

DOI:10.7524/j.issn.0254-6108.2022121402

王义佳, 邹韵, 汤欣悦, 等. 菜地系统中抗生素污染特征及生态效应研究进展[J]. 环境化学, 2024, 43(6): 1805-1819.

WANG Yijia, ZOU Yun, TANG Xinyue, et al. Research on the characteristics of antibiotic pollution and ecological effects in vegetable field systems[J]. Environmental Chemistry, 2024, 43 (6): 1805-1819.

菜地系统中抗生素污染特征及生态效应研究进展*

王义佳 邹韵 汤欣悦 赵家奕 张园**

(苏州科技大学环境科学与工程学院, 苏州, 215009)

摘要 抗生素直接或间接释放到菜地系统中已逐渐产生了许多环境问题. 然而, 现有研究局限在地块尺度上对土壤界面过程中抗生素的污染现状的描述, 缺乏基于农业生态系统整体维度的综合性研究. 文章在解析我国菜地系统中抗生素污染特征的基础上, 概述了促成抗生素在菜地系统残留差异性的相关影响因素, 如输入水平、种植条件、抗生素类型和土壤性质等, 从机理角度重点分析了抗生素可能对蔬菜及土壤动物产生的毒性作用, 以及对土壤微生物群落结构和生态功能的影响. 在此基础上, 对后续研究提出了建议和展望, 以为农田系统抗生素污染控制提供理论支撑.

关键词 抗生素, 菜地系统, 分布特征, 生态效应.

中图分类号 X-1; O6 文献标识码 A

Research on the characteristics of antibiotic pollution and ecological effects in vegetable field systems

WANG Yijia ZOU Yun TANG Xinyue ZHAO Jiayi ZHANG Yuan**

(College of Environment and Engineering, Suzhou University of Science and Technology, Suzhou, 215009, China)

Abstract Many environmental problems have been gradually caused by the direct or indirect release of antibiotics into the vegetable field system. The existing studies, however, are limited to describing the status quo of soil antibiotic pollution on specific plots, and lack comprehensive studies based on the whole agro-ecosystem. On the basis of analyzing the characteristics of antibiotic pollution in the vegetable land system in China, this paper summarizes the relevant influencing factors such as input level, planting conditions, antibiotic types and soil properties that contribute to the difference of antibiotic residues in the vegetable field system. From the perspective of mechanism, the article focuses on analyzing the possible toxic effects of antibiotics on vegetables and soil animals, as well as their impact on the structure and ecological function of soil microbial communities. On this basis, suggestions and prospects are proposed for future researches, in order to provide theoretical support for antibiotic pollution control in agricultural system.

Keywords antibiotics, vegetable field system, distribution characteristics, ecological effect.

抗生素是一类由微生物(包括细菌、真菌、放线菌属)分泌或化学合成等途径产生的复杂分子, 可以抑制微生物活性, 提高人和动物的抵抗力, 因而在医疗和养殖行业被广泛应用^[1]. 滥用现象导致的抗

2022年12月14日收稿(Received: December 14, 2022).

* 国家自然科学基金(41701564), 苏州市科技计划项目(SNG201613)和江苏省高校自然科学基金(17KJB610010)资助.

Supported by National Natural Science Foundation of China (41701564), Suzhou Science and Technology Plan (SNG201613) and Jiangsu University Natural Science Foundation of China (17KJB610010).

** 通信联系人 **Corresponding author**, E-mail: yuanzhang_1001@mail.usts.edu.cn

生素耐药性问题,已经使其成为备受关注的一类新型污染物.抗生素在环境中极为隐蔽、检出难度大、扩散性强且极易被生物积累,对生态系统稳定性和人体健康造成潜在威胁^[2].

与人类医疗行业使用的抗生素类型不同,四环素类、磺胺类和喹诺酮类药物在畜禽养殖中被广泛使用^[3].多数兽用抗生素在畜禽体内生物利用率较低,未完全代谢的抗生素极易随动物排泄物进入环境^[4].因此,畜禽粪便被认为是环境抗生素的主要污染源之一.进入土壤中的抗生素,一部分在生物因素(如土壤微生物)和非生物因素(如土壤组分)的作用下发生吸附或降解反应,另一部分则会持续对土壤微生物施加选择压力,改变土壤微生物的活性和群落组成,甚至会促进环境中耐药菌的传播和抗生素抗性基因的污染.此外,抗生素不仅会通过多种途径迁移到动植物体内,还会伴随地表径流以及淋溶作用迁移到地表水和地下水中,扩大污染范围(图1)^[5-6].因此,土壤环境中抗生素的污染现状及其生态风险逐渐成为研究热点.

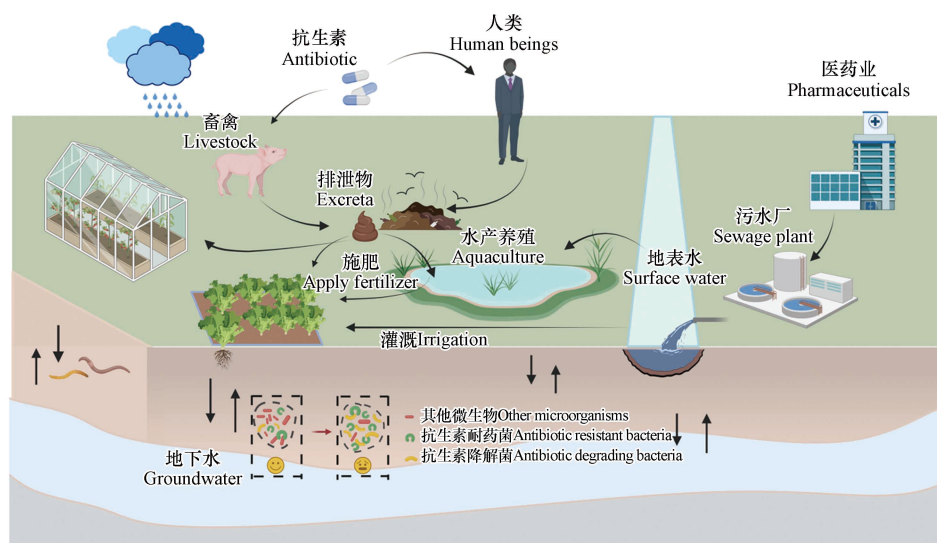


图1 环境中抗生素的来源及生态危害

Fig.1 Sources of antibiotics in the environment and ecological hazards

近年来,作为化肥的替代品,以畜禽粪便为重要来源的有机肥成为了农业生产必不可少的营养来源.与其他类型的农用地相比,菜地往往因作物生长周期短且经济效益高而轮作频繁,对有机肥的消耗量也远高于其他类型作物^[7],因此菜地较粮食作物地更可能受到畜禽粪便污染,也更易出现抗生素残留.调查显示,相对于常规菜地,施用有机肥的菜地土壤中抗生素残留量更高,部分地区抗生素残留量达到 $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 级别^[6,8].尽管学者对抗生素污染的来源、现状和归趋已经有了深入研究成果,但是各类抗生素在菜地系统中的污染现状调查仍然存在技术壁垒等客观限制.抗生素在环境中具有一定的内在生物活性,能够对生物和人类健康产生毒性作用.目前关于抗生素的潜在生态危害的相关研究较少,其产生生态毒性效应机制尚不明确.文章综述了菜地系统中抗生素的污染情况、影响因素和可能造成的生态效应,重点分析了抗生素对土壤生物毒性作用机制,以期减轻环境抗生素污染提供理论支撑和实践指导.

1 菜地土壤抗生素污染特征及其影响因素 (Characteristics and influencing factors of antibiotic contamination in vegetable soil)

1.1 土壤中抗生素的空间分布特征

我国菜地土壤受到不同程度抗生素污染,具体污染状况与区域位置密切相关,总体呈现“北高南低,东高西低”的特征(表1).截至2021年底,我国菜地土壤抗生素的残留量范围在 $4.59\text{--}2101.4\ \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ 之间,平均残留量为 $186.98\ \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$.其中,西北和华中部分区域的抗生素污染相对严重,平均含量分别高达 $243.20\ \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ 和 $724.13\ \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$,而东部沿海典型污染带主要分布在黄淮海和长江三角洲地区,该地区抗生素平均总含量达 $166.32\ \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$.我国菜地土壤抗生素含量的空间差异可能与当地抗生素的使

用情况有关. Zhang 等^[9]对我国抗生素使用情况调研显示, 华东(38800 t)>华北(27900 t)>华中(21100 t)>西南(18300 t)>华南(9030 t)>东北(6070 t)>西北(2360 t). 然而, 西北地区抗生素的使用量和土壤抗生素残留量呈现负相关关系, 这极可能与区域农户的施肥习惯有关^[10]. 此外, 研究区域中四环素类抗生素的检出量最高, 其次是喹诺酮类和磺胺类抗生素(表 1). 可能原因如下: (1) 四环素类在畜禽养殖中使用量最大^[11]且具有高 K_{oc} 值^[12]; (2) 喹诺酮类抗生素在土壤中的吸附能力较低, 即使畜禽养殖对其消耗量较大, 其在土壤中的残留水平仍低于四环素类抗生素^[13]; (3) 磺胺类抗生素较低的 pK_a 值会导致去质子化物种的比例增加进而降低对土壤的吸附^[12]. 然而, 由于缺少合适的测定方法, 复杂基质中的低浓度水平抗生素难以被检出, 因此难以全面评估土壤抗生素污染情况. 此外, 我国对菜地土壤抗生素污染的研究多集中在人口稠密、经济发达地区, 如京津冀、长三角和珠三角地区, 对西北地区的关注有限, 有关部门理应给予警惕.

表 1 我国菜地表层土壤抗生素检出浓度

Table 1 Antibiotic concentrations in the surface soil of vegetable fields in China

地理区域 Geographic area	省份 Provinces	调查地点 Investigation sites	抗生素含量/($\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$) Antibiotic content				参考文献 References		
			ΣTCs	ΣSAs	ΣQNs	SUM			
华南地区 South China	广东省 Guangdong Province	珠三角 The Pearl River Delta Area	242.6	321.4	1537.4	2101.4	[3]		
		佛山市 Foshan	84.8	9	—	93.8			
		中山市 Zhongshan	4.24	—	17.83	22.07	[32]		
		东莞市 Dongguan	14	—	—	14			
		广州市 Guangzhou	15.4	0.96	50.23	66.59			
			27.48	1.53	55.81	84.82	[33]		
			37.1	96.2	—	133.3	[34]		
			—	—	48.85	48.85	[35]		
		西南地区 Southwest China	云南省 Yunnan Province	昆明市 Kunming	19.9	0.2	15.2	35.3	[23]
				重庆市 Chongqing	79.81	—	—	79.81	[19]
贵州省 Guizhou Province	贵阳市 Guiyang		9.36	2.564	29.83	41.754	[27]		
	贵阳市 Guiyang		5.07	0.62	5.28	10.97	[36]		
	贵阳市 Guiyang		1.52	0.62	5.28	7.42	[15]		
	三峡库区 the Three Gorges Reservoir		53.3	99.2	75.9	228.4	[37]		
华东地区 East China	安徽省 Anhui Province	安庆市 Anqing	31.9	—	—	31.9	[38]		
		合肥市 Hefei	—	4.59	—	4.59	[39]		
	上海市 Shanghai	上海市 Shanghai	17.1	7.6	62.5	87.2			
		徐州市 Xuzhou	460.8	6.6	54.1	521.5	[23]		
	江苏省 Jiangsu Province	南京市 Nanjing	64.5	10.2	38.5	113.2			
		黄淮海平原 Huang-Huai-Hai Plain	24.01	0.03	16.32	40.36	[40]		
		宁波市 Ningbo	41.43	0.07	8.97	50.47	[41]		
	浙江省 Zhejiang Province	长三角 Yangtze River Delta	27.03	3.25	42.67	72.95	[42]		
		山东省 Shandong Province	135.664	32.866	—	168.53	[43]		
		山东省 Shandong Province	274	3.91	73.05	350.96	[44]		
华中地区 Central China	河南省 Henan Province								
			723.42	0.61	0.1	724.13	[45]		

续表 1

地理区域 Geographic area	省份 Provinces	调查地点 Investigation sites	抗生素含量/($\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$) Antibiotic content				参考文献 References
			ΣTCs	ΣSAs	ΣQNs	SUM	
华北地区 North China	北京 Beijing	北京 Beijing	103.58	13.41	7.35	124.34	[46]
	河北省 Hebei Province	石家庄市 Shijiazhuang	102	1.1	86	189.1	[47]
		银川市 Yinchuan	—	—	170.775	170.775	[48]
西北地区 Northwest China	宁夏省 Ningxia Province	银川市 Yinchuan	462.24	—	—	462.24	[10]
	陕西省 Shaanxi Province	杨凌市 Yangling	12.77	1.14	51.76	65.67	[49]
	甘肃省 Gansu Province	—	—	201.676	—	201.676	[50]
东北地区 Northeast China	黑龙江省 Heilongjiang Province	哈尔滨市 Harbin	181.74	—	—	181.74	[51]
河北、河南、四川和江苏省 Hebei, Henan, Sichuan and Jiangsu Province			82.75	2.61	12.78	98.14	[52]

—, 未检测; TCs, 四环素类; SAs, 磺胺类; QNs, 喹诺酮类。—, non-detection; TCs, tetracyclines; SAs, sulfonamides; QNs, quinolones.

1.2 土壤中抗生素污染特征的影响因素

如上所述,我国菜地土壤普遍存在抗生素污染且污染水平在地理空间上差异较大.土壤作为抗生素富集的一种典型环境载体,其中的抗生素残留量还与很多因素有关,主要包括以下4种.

1.2.1 输入水平

农业生产中灌溉和施肥是大部分土壤中抗生素的主要来源.污水和粪肥中抗生素含量与土壤抗生素总含量表现显著正相关关系.厉文辉等^[14]对凉水河两岸污灌区和井水灌溉区农田土壤样品进行采集检测,发现污灌区土壤抗生素残留量高于井水灌溉区,这意味着抗生素会从灌溉水转移到农田土壤中.考虑到不同来源灌溉水污染水平的差异,Pan等^[12]比较了用鱼塘水和生活污水灌溉后土壤中抗生素污染情况,发现鱼塘水灌溉的土壤中抗生素污染水平较高,这警示相关部门需要加强对水产养殖业的药品管控.此外,距灌溉水源越近,土壤中抗生素检出率和残留量越高,反之越低^[15].在Zhao等^[16]的研究中,施用鸡、猪、牛等3类粪肥后土壤抗生素残留水平高低与这3类粪肥中抗生素含量高低一致,说明粪肥施用可显著增加土壤抗生素含量,且土壤抗生素残留水平与输入抗生素量息息相关.重复性施肥可增加抗生素在土壤中的累积,不过也有学者研究发现,在施用粪肥的前期,土壤中抗生素的浓度会有所降低.例如徐秋桐等^[17]发现,在粪肥施加前期(第8天)施用1%有机肥处理组比未添加有机肥处理组4种抗生素降解率分别高出了12.5%、13.5%、24.8%和12.0%,这与Zhang等^[18]的研究结论基本一致.原因可能是有机肥提高了土壤中某些微生物的活性,从而加速了抗生素的生物降解.

1.2.2 种植条件

种植条件对菜地土壤中抗生素残留水平也存在一定影响.一般来说,温室菜地中抗生素浓度要高于露天菜地,可能是在温室种植模式下,蔬菜的轮作更加频繁,粪肥的施用频率和总量更高,导致土壤中更多抗生素残留.但彭秋等^[19]和罗凯等^[20]的调查发现,大棚菜地土壤抗生素浓度也可能会低于露天菜地.这可能是该露天菜地靠近污染源,接触了由大气颗粒物携带的抗生素类污染物^[21],也可能是露天菜地常以附近地表水作为灌溉水源,而灌溉水源受到了抗生素污染^[20].其次,相较于露天环境,大棚的高温高湿条件有利于土壤微生物对抗生素的降解^[22].种植年限与土壤抗生素残留水平存在密切关系.在Zhang等^[23]研究中,四环素类和氟喹诺酮类残留量随种植年限呈(中期)6年至10年<(长期)10年以上<(短期)5年以下的变化趋势,但土壤抗生素残留量的增长率却随种植年限延长而降低,这是由于进入土壤后抗生素的消散速率最初被抑制而后恢复,导致高含量的四环素类和喹诺酮类抗生素出现在短期种植的土壤中.该现象提醒了今后研究还需关注抗生素代谢产物在土壤中的污染机制.值得注意的是,磺胺类抗生素呈现出相反的情况.在长期种植年限的土壤中往往能检测出更高含量的磺胺类^[23],Fang等^[24]研究也得到类似的结论.从抗生素本身性质来说,一方面磺胺类抗生素的水溶性较四环素类

和氟喹诺酮类更高, 因而不易被土壤颗粒吸附. 另一方面, 磺胺类抗生素对土壤有机质表现出高亲和力, 这减缓了它在土壤中的迁移. 上述结论进一步证实了抗生素在土壤中的动态持久性.

1.2.3 土壤条件

理化性质和颗粒组成等土壤条件制约了抗生素在土壤中的移动. 土壤 pH 通过改变抗生素的电荷状态间接干扰抗生素的吸附. 多数抗生素(如四环素类和喹诺酮类等)的吸附能力随 pH 上升呈下降趋势, 而磺胺类的吸附能力与 pH 有强烈的正相关性^[25-26]. 抗生素进入土壤就会与土壤固相紧密结合, 不难推断土壤抗生素含量与土壤有机质呈显著正相关关系^[27]. 而有机质多分布在土壤黏粒上, 意味着土壤黏粒比重越高土壤抗生素含量越高. 但也出现了不一样的研究结论, 即在粘土比例较低的土壤中四环素类抗生素含量反而最高^[28], 这可能是在多因素的作用下土壤有机质含量下降了^[29-30]. 因此可以认为土壤性质与抗生素的环境行为密切相关.

1.2.4 其他

关于气候条件对土壤中抗生素分布特征的研究较少. Hu 等^[6]报道, 与夏季相比, 冬季菜地土壤抗生素的残留更多, 不难推测在一定条件下南方土壤抗生素残留水平要低于北方. 究其原因, 适宜的水热条件极大帮助了土壤微生物对抗生素的降解^[31], 而低温低湿环境不利于抗生素在土壤中的降解和迁移. 此外, 蔬菜种类的差异也是影响土壤抗生素含量的重要因素, 比如磺胺类抗生素在土壤中表现为根茎类蔬菜土壤($289 \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$)>瓜果类蔬菜土壤($143 \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$)>叶菜类蔬菜土壤($98.1 \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$)^[22]; 四环素类抗生素表现为叶菜类蔬菜土壤($77.4 \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$)>瓜果类蔬菜土壤($67.8 \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$)>茄果类蔬菜土壤($54.1 \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$)>豆类蔬菜土壤($47.7 \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$)^[19], 喹诺酮类抗生素总含量表现为果类蔬菜($44.8 \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$)>根茎类蔬菜($37.0 \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$)>叶菜类蔬菜($32.1 \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$)^[8].

综上所述, 菜地抗生素赋存差异性是多因素共同作用的结果. 其中, 输入水平直接决定了土壤中抗生素的污染水平, 而抗生素性质、种植条件、土壤条件和气候条件等在一定程度上影响着抗生素在土壤中含量的变化. 如吸附能力强的抗生素更易在土壤中累积, 重复的施肥可以增加土壤中抗生素含量, 而高温高湿环境有利于抗生素的降解.

2 蔬菜中抗生素的累积迁移特征 (Accumulation and migration characteristics of antibiotics in vegetables)

暴露在受抗生素污染的土壤中时, 蔬菜可能会吸收抗生素并在体内不断累积. 某些抗生素甚至能够在较低浓度下被蔬菜吸收并累积, 出现蔬菜体内抗生素浓度高于土壤中的现象. 如 Hu 等^[6]发现林可霉素在土壤中的检出量低于在蔬菜中的检出量, Migliore 等^[53]发现, 恩诺沙星在 4 种果蔬中的含量远高于培养基中的水平. 以上事实均表明, 蔬菜对抗生素具有极强的生物累积性, 而且实际环境下蔬菜对抗生素的累积系数远低于实验室模拟值, 因此可以推断在更严重的污染条件下, 该累积系数会增大.

蔬菜对抗生素的吸收按照吸收方式分为主动吸收和被动吸收. 主动吸收主要受蒸腾作用影响, 需要消耗能量, 而被动运输不需要其他辅助. 有研究比较了田间试验和盆栽试验发现, 前者四环素类抗生素含量显著高于后者^[54]. 这是由于田间开放条件下的蔬菜蒸腾作用更高, 更有利于蔬菜对抗生素的主动吸收. 有研究发现磺胺多辛、土霉素和林可霉素在蔬菜中含量均很高, 意味着这些抗生素的理化性质(如水溶性和半衰期)几乎不影响蔬菜对其的吸收, 说明了蔬菜对这些抗生素的吸收是被动吸收^[6]. 目前认为, 蔬菜对有机污染物的吸收以被动吸收为主, 并伴有一定程度的主动吸收.

蔬菜对抗生素的吸收和累积受多种因素影响, 主要包括蔬菜种类、抗生素性质以及其他环境因子. 不同种类蔬菜中抗生素的残留水平差异很大, 一般为叶菜类>果蔬菜类>块茎类^[55], 但是 Li 等^[56]调查了蔬菜可食用部分氟喹诺酮的累积情况, 发现茄果类>叶菜类. 这可能是不同类型蔬菜对抗生素的吸收能力不同, 当然也不能忽略其他影响因素的作用, 如土壤性质可以通过控制抗生素的生物可利用度来影响蔬菜对抗生素的吸收^[56-58]. 抗生素性质似乎是影响抗生素吸收过程的主要因素. 一般认为, 强土壤吸附性、高疏水性的四环素类抗生素的生物可利用度较低, 而较弱土壤吸附性、较高水溶性的磺胺类和喹诺酮类抗生素生物可利用度较高^[59]. 因此可以推测, 磺胺类和喹诺酮类更容易被蔬菜吸收并累积.

然而,在某些实际环境中,蔬菜对这3类抗生素的吸收情况不符合上述结论.如图2所示,前4种蔬菜中四环素类含量显著高于磺胺类和喹诺酮类,这与土壤中不同种类抗生素含量的变化一致^[6],说明土壤中抗生素污染水平也是一个重要的影响因素.此外,抗生素降解、土壤结合和浸出也限制了蔬菜吸收抗生素^[2].

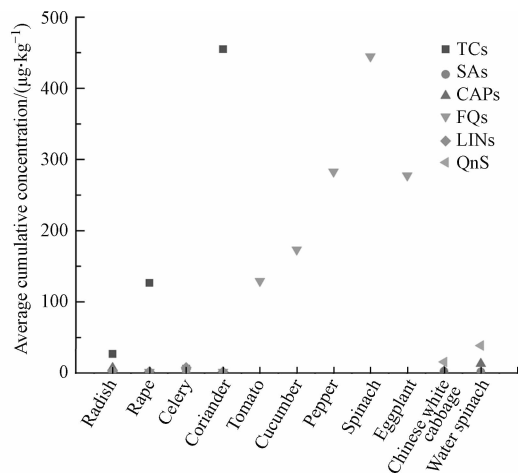


图2 抗生素在不同种类蔬菜的累积情况

Fig.2 Accumulation of antibiotics in different types of vegetables

表2中抗生素在叶中含量要大于茎和根,但是 Migliore 等^[60]发现,根中抗生素含量高于叶.这是由于抗生素在蔬菜体内的转运受蒸腾作用驱动,而蒸腾水量的差异最终会影响抗生素在根和叶中含量的差异^[61].此外,抗生素种类也是影响其在蔬菜组织中分布水平差异的重要因素.抗生素从植物根部向上部分的转运能力常用易位因子测定.大多数四环素类抗生素、喹诺酮类抗生素和林可霉素易位因子 >1 ,但磺胺类抗生素和大环内酯类抗生素易位因子 <1 ^[62].这就造成了前者在植物体内均能被检出,而后者很难在植物地上部分被检出.值得注意的是,大环内酯类药物尺寸较大,多数情况下很难在植物中被检测到^[63].抗生素在蔬菜内的分布随不同生长阶段变化.如采集收获前15 d蔬菜样品,发现抗生素在叶菜类根部含量高于叶片,而对成熟期采集的蔬菜样品检测得到相反的结论^[6].

表2 蔬菜不同部位抗生素的累积情况^[6, 12]

Table 2 Accumulation of antibiotics in different parts of vegetables^[6, 12]

蔬菜 Types of vegetables	抗生素 Types of antibiotics	抗生素含量/($\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$) Antibiotic content		
		根 Root	茎 Stem	叶 Leaves
萝卜 Radish	TCs	8.3	22.1	24.4—76.4
	SAs	0.1—0.4	0.2—0.5	0.2—0.6
	CAPs	ND.	1.4—3.4	8—30
	QNs	ND.	0.5	0.8—1.6
	LINs	0.9—3.1	1.5—3.9	1.4—5.4
油菜 Rape	TCs	ND.	—	61.1—192.1
	SAs	0.1—0.5	—	0.5—1.4
	CAPs	ND.	—	0.7
	FQs	ND.	—	0.7—2.1
	LINs	0.5—3.5	—	0.7—3.2
芹菜 Celery	TCs	—	1.0—2.4	15.7
	SAs	—	0.1—0.3	0.3—0.7
	FQs	—	0.5—1.9	2.8—4.7
	LINs	—	1.2—5.1	5—20

续表 2

蔬菜 Types of vegetables	抗生素 Types of antibiotics	抗生素含量/($\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$) Antibiotic content		
		根 Root	茎 Stem	叶 Leaves
香菜 Coriander	TCs	128.2—690.1	—	133.9—867.6
	SAs	0.1—0.5	—	0.5—1.3
	FQs	ND.	—	0.7—3.5
	LINs	0.4—2.4	—	0.8—3.8
小白菜 Chinese white cabbage	TCs	ND.	—	5.5
	QNs	5.9	—	9.6
	CAPs	ND.	—	2.6
	SAs	0.8	—	ND.
空心菜 Water spinach	TCs	4.8	—	6.3
	QNs	16.9	—	21.8
	CAPs	3	—	10.1
	SAs	1.7	—	ND.

—, 未检测; ND., 未检测出; TCs, 四环素类; SAs, 磺胺类; CAPs, 氯霉素类; QNs, 喹诺酮类; LINs, 林可酰胺类; FQs, 氟喹诺酮类.

—, non-detection; ND., not detected; TCs, tetracyclines; SAs, sulfonamides; CAPs, chloramphenicols; QNs, quinolones; Lins, lincolamide; FQs, fluoroquinolones.

抗生素的理化性质以及蔬菜种类、生长阶段和蒸腾速率是导致其在蔬菜中含量不同的影响因素. 目前已有学者开展了一些蔬菜可食用部分的人体暴露影响的研究, 但是仍然缺乏蔬菜摄食途径下抗生素的人体健康风险的全面评估. 因此, 需要进一步研究来评估这些抗生素在食物链中的积累, 以确定人类使用的安全浓度.

3 菜地系统中抗生素的生态毒性效应(Ecotoxicity of antibiotics in vegetable field system)

抗生素具有易被生物积累的特性. 大量研究证实, 长期的农业生产不仅会促使抗生素在植物间迁移^[57, 64-65], 还会诱导微生物产生抗生素抗性, 严重破坏了土壤微生物生态系统的稳定性^[66-67], 同时, 长期暴露在抗生素污染环境中的动物也会表现出诸多不良反应.

3.1 抗生素诱发植物毒性

抗生素对植物生长的影响具有两面性, 一方面, 抗生素可以帮助植物抵抗病害、提高植物体内 Ca、Mg、K、N 等营养元素的含量^[68-69], 另一方面, 某些条件下, 抗生素的存在反而会诱发植物毒性, 并持续作用于植物生长发育的不同阶段. 抗生素对蔬菜生长的影响表现为低浓度促进高浓度抑制^[68]. 金彩霞等^[70]研究发现, 低浓度磺胺嘧啶钠($1\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$)对大白菜的芽伸长有一定促进作用. 在 0、50、100、5000 $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ 恩诺沙星处理的土壤中, 黄瓜、菜豆、萝卜和莴苣生长发生变化, 低浓度($0-50\ \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$)条件下, 根长、下胚轴长、子叶和叶片长度及数量均受到刺激作用, 随着恩诺沙星浓度提高, 抑制作用逐渐明显^[53]. 在种子萌发时期, 抗生素的毒性作用影响不大^[71], 这可能是抗生素难以穿过种皮, 因而对胚根生长的抑制作用不大^[72]. 从这点来看, 为缓解抗生素对种子的毒性作用, 未来可以利用现代生物技术培育适宜质地的种皮, 以达到减少抗生素渗透的目的^[73]. 抗生素对植物的潜在毒性作用常通过干扰蚯蚓和微生物介导的土壤速效养分间接抑制植物生产力^[74]. 在抗生素的直接或间接作用下, 农业系统可持续性将受到严重威胁.

与其他污染物类似的是, 抗生素干预了蔬菜光合作用等许多重要的生理过程. 如四环素类、氟喹诺酮类和大环内酯类等抗生素会影响蔬菜的叶绿体和线粒体蛋白质合成^[75-76], 环丙沙星和头孢菌素会降低气孔导度^[77]. 这意味着与光合作用有关的叶绿素和类胡萝卜素的减少和叶片气孔导度的降低, 会导致蔬菜光合作用速率降低, 从而影响蔬菜的生长^[78]. 从根本来看, 抗生素的毒性作用机理是破坏遗传物质或限制酶作用途径. 喹诺酮类抗生素能够抑制核酸合成或代谢过程, 主要通过改变 DNA 拓扑异构酶 II 活性、抑制酶的切割和链接, 进而对真核 DNA 复制造成不同程度的影响并抑制了叶绿素的转

录,最终影响植物生长^[53,75].磺胺类抗生素作用机制是改变能量代谢过程,其具有类似氨基苯甲酸结构,能竞争性作用于叶酸合成途径中的相关酶,阻止叶酸合成,最终干扰根系伸长、木质素和光呼吸作用^[79-80].四环素类和大环内酯类抗生素对植物生长的抑制作用表现在能够显著抑制蛋白质生物合成或诱导染色体变异,而 β -内酰胺会影响低等植物的质体分裂^[75].目前很多有关植物毒性的研究都在实验室环境中进行,其设计的抗生素浓度并不一定会在土壤中出现,因此在实际土壤环境中这些抗生素是否仍会表现出毒性作用有待商榷.如红扁豆在含较低浓度抗生素营养液中根伸长减缓、植物干重降低,而在相应浓度土壤基质的红扁豆则没有出现植物毒性效应^[69].

3.2 抗生素对土壤动物新陈代谢和身体机能的影响

抗生素对土壤动物的毒性作用的相关研究并不多,且各方观点不一. Baguer 等^[81]发现蚯蚓、线虫和弹尾虫在 3000—5000 mg·kg⁻¹ 土霉素和泰乐菌素胁迫下,其生长并未受到严重影响,说明这两种抗生素不太可能对土壤动物构成直接风险.然而,一些研究认为,抗生素对动物的毒性具有明显的剂量-效应关系.如在 1.0—2.0 mg·kg⁻¹ 浓度抗生素胁迫下,蚯蚓的生长和呼吸作用受抑制、繁殖率下降、回避反应增强,且随浓度提高,蚯蚓的反应越明显^[82].除了蚯蚓,抗生素也在破坏着跳虫和白符蚧的健康机能^[83-84].暴露于 10 mg·kg⁻¹ 诺氟沙星和土霉素中,跳虫出现明显的体重下降^[83].与对照组相比,当白符蚧暴露在浓度为 1000 mg·kg⁻¹ 的诺氟沙星环境下,其繁殖数和成虫体长分别减少 34.4% 和 9%^[84].

抗生素对土壤动物的毒性作用首先表现在对 DNA 的破坏性.抗生素代谢产物的自由基和碱基位点等会直接导致土壤动物细胞 DNA 断裂,造成细胞 DNA 损伤^[85].DNA 损伤程度与抗生素剂量呈显著正相关关系,即使是最低暴露剂量(0.3 mg·kg⁻¹)仍然会造成严重 DNA 损伤^[85].其次,抗生素还会引起土壤动物酶活性的变化.在抗生素的暴露下,动物会出现氧化应激反应,导致其脂质过氧化,最终促进脂质过氧化产物丙二醛的形成并诱导过氧化氢酶、过氧化物酶和超氧化物歧化酶的表达^[84].如 *Eisenia foetida* 蚯蚓在环丙沙星(0—51.2 mg·kg⁻¹)污染土壤中发生了蛋白质羟基化造成的氧化损伤^[86].为了抵消抗生素产生的负面影响,动物肠道菌群物种组成发生改变,身体机能迅速反应形成一道强硬的防御系统.动物体内产生的抗氧化酶、抗氧化剂和蛋白水解系统等可以极大缓解细胞的氧化损伤,在一定程度上保护了机体^[87].此外,动物肠道会将已经发生改变的肠道菌群输送到土壤中,进而引起周边土壤菌群发生改变,形成微生物菌群对抗生素的共代谢模式,最终促成对土壤抗生素的削减.但是目前关于肠道内生菌对抗生素的降解机制依旧未知.

3.3 抗生素影响土壤微生物群落结构和生态功能

土壤微生物是土壤生态系统的关键组成成分,它们在促进土壤有机物分解、提高土壤肥力和增进作物产量的过程中扮演者重要角色^[88].而外源输入的抗生素会对土壤生态系统产生一系列的影响^[89-90],造成土壤微生物群落特征的改变^[91],干扰微生物对碳源利用^[92],且不利于微生物硝化和反硝化等过程^[93].

3.3.1 改变土壤微生物群落特征

多数抗生素为抑菌药物,将其添加到土壤中会显著降低土壤细菌数量、改变群落结构并促使群落演替. Hammesfahr 等^[94]发现,4 d 后暴露在磺胺嘧啶中的细菌/真菌比值从 70% 减少到 57%.磺胺嘧啶还对土壤氨氧化微生物群落分布和活性有显著影响^[95-96].在磺胺嘧啶处理的土壤中,氨氧化细菌丰度会显著下降,而氨氧化古细菌基本稳定^[97], Radl 等^[98]也得到类似的结论.但另一项研究得到了不同的结论,在施加粪肥土壤中,具有生物有效性的磺胺嘧啶对全程硝化菌活性的抑制作用最强,其次是氨氧化古细菌,对氨氧化细菌的影响可以忽略不计^[99].部分抗生素还会对革兰氏阳性菌和革兰氏阴性菌起到选择作用.如当添加高浓度四环素 8 d 后,革兰氏阳性菌和革兰氏阴性菌的比例会下降,这可能是环境中耐四环素细菌多为革兰氏阴性菌,而磺胺类抗生素则不受此影响^[94,100].在添加抗生素的处理中,相较于有益菌群,潜在致病菌群的丰度更高^[101],即使是将生物质堆肥处理后仍可能增加土壤中病原菌丰度^[102].但抗生素对真菌的影响仍然不清楚.

3.3.2 影响碳源利用效率和酶活性

进一步研究表明,抗生素会限制微生物对碳源的正常利用,进而干扰其生长繁殖过程.有研究检测了施加 100 mg·kg⁻¹ 磺胺甲恶唑水稻土经 21 d 培育后水稻土中微生物对碳源的利用情况,结果显示,微

生物对碳源的利用受到抑制且其 Shannon 指数降低^[103]。但抗生素也可以作为微生物可利用的碳源, 改变其呼吸强度。有研究显示, 最初添加磺胺嘧啶和金霉素处理组的土壤呼吸活性均受到抑制, 随抗生素添加频率的增加, 土壤呼吸活性逐渐提高^[24]。抗生素对土壤微生物的呼吸作用的影响较复杂, 如低浓度的抗生素有促进作用, 环境浓度抗生素却无显著作用^[104-105]。这些影响一般比较短暂, 可能是由于抗生素生物可利用性会随时间推移而降低, 最终导致了抗生素对微生物呼吸作用受限^[106]。同样, 抗生素的种类和暴露时间也影响了呼吸作用^[107]。在抗生素的胁迫下, 土壤微生物的活性出现明显的差异, 其活性可能增强也可能受抑制^[108-109]。如较低浓度四环素对土壤脱氢酶和磷酸酶活性有明显的抑制效果^[110], 而微生物在较高浓度土霉素中表现出较低的生物活性^[111]。一个可能的原因是, 土壤中的酶一般是由真菌分泌产生, 而某些抗生素能够促进真菌繁殖造成土壤酶活性的增加^[101]。反之, 酶活性受抑制可能是土壤微生物不能够抵抗抗生素的选择压力, 出现了生长停缓或死亡等情况。

3.3.3 干扰硝化反硝化过程

此外, 抗生素对微生物的影响还表现在干扰土壤的硝化、反硝化和产甲烷化等过程, 最终阻碍了土壤养分循环。抗生素能够刺激土壤微观世界中氮循环, 主要体现在对土壤微生物的硝化和反硝化作用所造成的影响^[112]。Ma 等^[113]观察到高浓度的土霉素 ($30 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$) 和磺胺嘧啶 ($100 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$) 抑制了土壤微生物的硝化作用。然而, 部分研究发现仅最低浓度的环丙沙星和诺氟沙星 ($1 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$) 会刺激土壤微生物的硝化作用^[114-115]。低浓度的磺胺甲恶唑、磺胺嘧啶、庆大霉素、甲基盐霉素 ($500 \mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$) 还会抑制反硝化过程, 但是更低浓度 ($<1 \mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$) 会促进该过程^[116]。抗生素还被证实可以干扰土壤中铁的转化率和产甲烷化过程。如超过 $10 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ 磺胺甲恶唑和土霉素暴露会强烈抑制三价铁的还原^[117], 而 $500 \mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$ 磺胺甲恶唑可以显著刺激土壤微生物产甲烷化过程^[118]。以上事实证明了抗生素在一定程度上不利于地球化学循环。

4 结果与展望(Results and perspective)

综上所述, 我国菜地系统存在不同程度的抗生素污染, 且与输入水平、土壤性质、抗生素种类以及气候条件等息息相关。抗生素从畜牧业向农业的流动过程不仅对土壤生物产生直接毒性作用, 还能干扰土壤速效养分造成植物减产, 提高致病菌丰度, 并对动、植物生长构成严重威胁。为维护农业的可持续性, 相关领域目前已经开展一系列研究, 但仍存在一定局限性, 未来研究可以关注以下方向:

(1) 抗生素在全国尺度上的长期追踪调查目前还未实现, 这不利于全面评估我国土壤抗生素污染现状。因此, 未来可以进一步增加对不同区域的调查研究, 尤其是人口密度和经济发展水平较低的西北地区, 以期制定相关政策法规提供科学依据。

(2) 学者们已认识到抗生素的分子结构是决定抗生素作用机制的关键因素, 抗生素的转化和降解速率很大程度上取决于抗生素的结构。因此, 未来研究可以关注如何利用分子手段等高新技术改造相应的官能团, 以保障抗生素本身功效的同时安全高效的实现抗生素降解为研究目标。

(3) 为全方面控制农田系统中抗生素污染现状, 准确定量土壤中抗生素及其降解产物是极为必要的。对于复杂环境基质中痕量分析, 建议尝试更先进的样品前处理方法以及更高性能的数据采集和分析平台。吸附、转化和降解是土壤中抗生素主要的环境行为, 除抗生素自身性质外, 这些过程还受到很多环境因素影响。因此, 未来研究可侧重于土壤性质、水热条件等对抗生素的作用机制。对于参与土壤中抗生素降解的微生物, 其降解能力的遗传效率同样值得研究。掌握调控微生物降解抗生素的关键功能基因技术, 尝试将该基因技术运用到培育具备高降解特性的功能性降解菌, 这对未来土壤抗生素污染的修复具有重要意义。

(4) 目前对于评估抗生素生态风险的方法并不统一, 用于毒性试验的物种仍然局限, 抗生素对生态环境造成的风险可能被低估了。SSD 和风险熵值法是常见的环境风险评估方法, 但易受太多不同因素影响而不可靠。因此, 应进一步扩充多营养级多物种的毒性数据, 构建更科学的抗生素生态风险评估体系。

参考文献 (References)

- [1] SARMAH A K, MEYER M T, BOXALL A B A. A global perspective on the use, sales, exposure pathways, occurrence, fate and effects of veterinary antibiotics (VAs) in the environment[J]. *Chemosphere*, 2006, 65(5): 725-759.
- [2] THIELE-BRUHN S. Pharmaceutical antibiotic compounds in soils—a review[J]. *Journal of Plant Nutrition and Soil Science*, 2003, 166(2): 145-167.
- [3] LI Y W, WU X L, MO C H, et al. Investigation of sulfonamide, tetracycline, and quinolone antibiotics in vegetable farmland soil in the Pearl River Delta area, Southern China[J]. *Journal of Agricultural and Food Chemistry*, 2011, 59(13): 7268-7276.
- [4] MIGLIORE L, CIVITAREALE C, BRAMBILLA G, et al. Effects of sulphadimethoxine on cosmopolitan weeds (*Amaranthus retroflexus* L., *Plantago major* L. and *Rumex acetosella* L.) [J]. *Agriculture, Ecosystems & Environment*, 1997, 65(2): 163-168.
- [5] 吴小莲, 向垒, 莫测辉, 等. 长期施用粪肥蔬菜基地蔬菜中典型抗生素的污染特征 [J]. *环境科学*, 2013, 34(6): 2442-2447.
WU X L, XIANG L, MO C H, et al. Concentrations of antibiotics in vegetables from manure-mended farm[J]. *Environmental Science*, 2013, 34(6): 2442-2447 (in Chinese).
- [6] HU X G, ZHOU Q X, LUO Y. Occurrence and source analysis of typical veterinary antibiotics in manure, soil, vegetables and groundwater from organic vegetable bases, Northern China[J]. *Environmental Pollution*, 2010, 158(9): 2992-2998.
- [7] 张世昌, 吴凌云. 福建省规模种植户 4 种主要农作物施肥现状调查与分析 [J]. *福建农业科技*, 2018(10): 36-39.
ZHANG S C, WU L Y. Investigation and analysis on fertilization status of four main crops of large-scale planters in Fujian Province[J]. *Fujian Agricultural Science and Technology*, 2018(10): 36-39 (in Chinese).
- [8] WU X L, XIANG L, YAN Q Y, et al. Distribution and risk assessment of quinolone antibiotics in the soils from organic vegetable farms of a subtropical city, Southern China[J]. *Science of the Total Environment*, 2014, 487: 399-406.
- [9] ZHANG Q Q, YING G G, PAN C G, et al. Comprehensive evaluation of antibiotics emission and fate in the river basins of China: Source analysis, multimedia modeling, and linkage to bacterial resistance[J]. *Environmental Science & Technology*, 2015, 49(11): 6772-6782.
- [10] 张小红, 陶红, 王亚娟, 等. 银川市农田土壤中四环素类抗生素的污染特征及生态风险评估 [J]. *环境科学*, 2021, 42(10): 4933-4941.
ZHANG X H, TAO H, WANG Y J, et al. Pollution characteristics and risk assessment of tetracycline antibiotics in farmland soil in Yinchuan[J]. *Environmental Science*, 2021, 42(10): 4933-4941 (in Chinese).
- [11] LI Y X, ZHANG X L, LI W, et al. The residues and environmental risks of multiple veterinary antibiotics in animal faeces[J]. *Environmental Monitoring and Assessment*, 2013, 185(3): 2211-2220.
- [12] PAN M, WONG C K C, CHU L M. Distribution of antibiotics in wastewater-irrigated soils and their accumulation in vegetable crops in the Pearl River Delta, Southern China[J]. *Journal of Agricultural and Food Chemistry*, 2014, 62(46): 11062-11069.
- [13] BOXALL A B A. The environmental side effects of medication: how are human and veterinary medicines in soils and water bodies affecting human and environmental health?[J]. *EMBO Journal*, 2004, 5(12): 1110-1116.
- [14] 厉文辉, 史亚利, 高立红, 等. 污灌区土壤中抗生素污染水平及分布特征研究 [C]//中国化学会第 29 届学术年会摘要集——第 20 分会: 环境与健康. 北京, 2014: 74.
LI W H, SHI Y L, GAO L H, et al. Occurrence and distribution of antibiotics in soils from wastewater irrigated farmlands [C] // The 29th annual meeting of the Chinese chemical society. Abstracts of the 29th annual meeting of the Chinese Chemical Society. Beijing: the 29th annual meeting of the Chinese Chemical Society, 2014: 74 (in Chinese).
- [15] 刘艳萍, 刘鸿雁, 吴龙华, 等. 贵阳市某蔬菜地养殖废水污灌土壤重金属、抗生素复合污染研究 [J]. *环境科学学报*, 2017, 37(3): 1074-1082.
LIU Y P, LIU H Y, WU L H, et al. Co-contamination of heavy metals and antibiotics in soils under husbandry wastewater irrigation in Guiyang City[J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2017, 37(3): 1074-1082 (in Chinese).
- [16] ZHAO L, DONG Y H, WANG H. Residues of veterinary antibiotics in manures from feedlot livestock in eight provinces of China[J]. *Science of the Total Environment*, 2010, 408(5): 1069-1075.
- [17] 徐秋桐, 顾国平, 章明奎. 有机肥对土壤中抗生素降解的促进作用 [J]. *浙江农业学报*, 2015, 27(3): 417-422.
XU Q T, GU G P, ZHANG M K. Promoting antibiotics degradation via application of organic fertilizers[J]. *Acta Agriculturae Zhejiangensis*, 2015, 27(3): 417-422 (in Chinese).
- [18] ZHANG Y, HU S Q, ZHANG H C, et al. Degradation kinetics and mechanism of sulfadiazine and sulfamethoxazole in an agricultural soil system with manure application[J]. *Science of the Total Environment*, 2017, 607/608: 1348-1356.
- [19] 彭秋, 王卫中, 徐卫红. 重庆市畜禽粪便及菜田土壤中四环素类抗生素生态风险评价 [J]. *环境科学*, 2020, 41(10): 4757-4766.
PENG Q, WANG W Z, XU W H. Ecological risk assessment of tetracycline antibiotics in livestock manure and vegetable soil of Chongqing[J]. *Environmental Science*, 2020, 41(10): 4757-4766 (in Chinese).
- [20] 罗凯, 李文红, 章海波, 等. 南京典型设施菜地有机肥和土壤中四环素类抗生素的污染特征调查 [J]. *土壤*, 2014, 46(2): 330-

- 338.
- LUO K, LI W H, ZHANG H B, et al. Pollution characteristics of tetracycline antibiotics in typical protected vegetable organic fertilizer of Nanjing city[J]. *Soils*, 2014, 46(2): 330-338 (in Chinese).
- [21] MCEACHRAN A D, BLACKWELL B R, HANSON J D, et al. Antibiotics, bacteria, and antibiotic resistance genes: aerial transport from cattle feed yards via particulate matter[J]. *Environmental Health Perspectives*, 2015, 123(4): 337-343.
- [22] 成玉婷, 吴小莲, 向垒, 等. 广州市典型有机蔬菜基地土壤中磺胺类抗生素污染特征及风险评价 [J]. *中国环境科学*, 2017, 37(3): 1154-1161.
- CHENG Y T, WU X L, XIANG L, et al. Distribution and risk assessment of sulfonamide antibiotics in soil from organic vegetable farms in Guangzhou[J]. *China Environmental Science*, 2017, 37(3): 1154-1161 (in Chinese).
- [23] ZHANG H B, ZHOU Y, HUANG Y J, et al. Residues and risks of veterinary antibiotics in protected vegetable soils following application of different manures[J]. *Chemosphere*, 2016, 152: 229-237.
- [24] FANG H, HAN Y L, YIN Y M, et al. Variations in dissipation rate, microbial function and antibiotic resistance due to repeated introductions of manure containing sulfadiazine and chlortetracycline to soil[J]. *Chemosphere*, 2014, 96: 51-56.
- [25] PAN M, CHU L M. Leaching behavior of veterinary antibiotics in animal manure-applied soils[J]. *Science of the Total Environment*, 2017, 579: 466-473.
- [26] 提清清, 高增文, 季慧慧, 等. 抗生素在土壤中的吸附行为研究进展 [J]. *土壤*, 2017, 49(3): 437-445.
- TI Q Q, GAO Z W, JI H H, et al. Adsorption of antibiotics in soils: A review[J]. *Soils*, 2017, 49(3): 437-445 (in Chinese).
- [27] 方林发, 叶苹莘, 方标, 等. 重庆开州区菜地土壤抗生素污染特征及潜在生态环境风险评估 [J]. *环境科学*, 2022, 43(11): 5244-5252.
- FANG L F, YE P P, FANG B, et al. Pollution characteristics and ecological risk assessment of antibiotics in vegetable field in Kaizhou, Chongqing[J]. *Environmental Science*, 2022, 43(11): 5244-5252 (in Chinese).
- [28] TANG X, LOU C, WANG S, et al. Effects of long-term manure applications on the occurrence of antibiotics and antibiotic resistance genes (ARGs) in paddy soils: Evidence from four field experiments in south of China [J]. *Soil Biology and Biochemistry*, 2015, 90: 179-187.
- [29] TASHO R P, CHO J Y. Veterinary antibiotics in animal waste, its distribution in soil and uptake by plants: A review[J]. *Science of the Total Environment*, 2016, 563/564: 366-376.
- [30] TOLLS J. Sorption of veterinary pharmaceuticals in soils: A review[J]. *Environmental Science & Technology*, 2001, 35(17): 3397-3406.
- [31] WANG Q Q, BRADFORD S A, ZHENG W, et al. Sulfadimethoxine degradation kinetics in manure as affected by initial concentration, moisture, and temperature[J]. *Journal of Environmental Quality*, 2006, 35(6): 2162-2169.
- [32] 李彦文, 莫测辉, 赵娜, 等. 菜地土壤中磺胺类和四环素类抗生素污染特征研究 [J]. *环境科学*, 2009, 30(6): 1762-1766.
- LI Y W, MO C H, ZHAO N, et al. Investigation of sulfonamides and tetracyclines antibiotics in soils from various vegetable fields[J]. *Environmental Science*, 2009, 30(6): 1762-1766 (in Chinese).
- [33] 刘彩媚, 林泳欣, 谢晓仪, 等. 广州市城-郊梯度上典型蔬菜地土壤抗生素污染研究 [J]. *广东农业科学*, 2019, 46(6): 59-67.
- LIU C M, LIN Y X, XIE X Y, et al. Study on antibiotic pollution in soils of typical vegetable fields along an urban-suburban gradient in Guangzhou[J]. *Guangdong Agricultural Sciences*, 2019, 46(6): 59-67 (in Chinese).
- [34] 赵娜. 珠三角地区典型菜地土壤抗生素污染特征研究 [D]. 广州: 暨南大学, 2007.
- ZHAO N. The study of antibiotics in the soil of typical vegetable fields in pearl river delta [D]. Guangzhou: Jinan University, 2007 (in Chinese).
- [35] 邵义萍. 珠三角地区蔬菜基地土壤中典型抗生素的污染特征研究 [D]. 广州: 暨南大学, 2010.
- TAI Y P. The study on pollution characteristics of typical antibiotics in soil from vegetable fields of pearl river delta area [D]. Guangzhou: Jinan University, 2010 (in Chinese).
- [36] 刘艳萍. 养殖废水污染土壤抗生素、重金属复合污染及植物修复 [D]. 贵阳: 贵州大学, 2016.
- LIU Y P. Co-contamination of heavy metals and antibiotics in soils under husbandry wastewater irrigation and phytoremediation [D]. Guiyang: Guizhou University, 2016 (in Chinese).
- [37] 徐晨. 三峡库区水体、土壤和沉积物中抗生素与抗生素抗性基因的污染特征 [D]. 武汉: 中国科学院武汉植物园, 2017.
- XU C. Contamination of antibiotic and antibiotic resistance genes in water, soil and sediment of the three gorges reservoir [D]. Wuhan: Wuhan Botanical Garden, Chinese Academy of Sciences, 2017 (in Chinese).
- [38] CHEN H Y, ZHENG W F, SHEN X M, et al. Occurrence, distribution, and ecological risk assessment of antibiotics in different environmental media in Anqing, Anhui Province, China[J]. *International Journal of Environmental Research and Public Health*, 2021, 18(15): 8112.
- [39] 陈海燕, 花日茂, 李学德, 等. 不同类型菜地土壤中 3 种磺胺类抗生素污染特征研究 [J]. *安徽农业科学*, 2011, 39(23): 14224-14226, 14229.

- CHEN H Y, HUA R M, LI X D, et al. Study on pollution characteristic of three sulfonamides antibiotics in different soils of vegetable plot[J]. *Journal of Anhui Agricultural Sciences*, 2011, 39(23): 14224-14226, 14229 (in Chinese).
- [40] PAN Z, YANG S D, ZHAO L X, et al. Temporal and spatial variability of antibiotics in agricultural soils from Huang-Huai-Hai Plain, Northern China[J]. *Chemosphere*, 2021, 272: 129803.
- [41] 赵方凯, 陈利顶, 杨磊, 等. 长三角典型城郊不同土地利用土壤抗生素组成及分布特征 [J]. *环境科学*, 2017, 38(12): 5237-5246.
- ZHAO F K, CHEN L D, YANG L, et al. Composition and distribution of antibiotics in soils with different land use types in a typical peri-urban area of the Yangtze River Delta[J]. *Environmental Science*, 2017, 38(12): 5237-5246 (in Chinese).
- [42] 李文. 长三角农田土壤中 crAssphage 与抗生素抗性基因共存关系研究 [D]. 杭州: 浙江大学, 2021.
- LI W. Co-occurrence of crAssphage and antibiotic resistance genes in agricultural soils of the Yangtze River delta [D]. Hangzhou: Zhejiang University, 2021 (in Chinese).
- [43] 赵祥. 施用粪肥的设施菜地土壤中抗生素及抗性基因多样性及丰度的研究 [D]. 泰安: 山东农业大学, 2017.
- ZHAO X. Diversity and abundance of antibiotics and ARGs in vegetable soil with manure application [D]. Taian: Shandong Agricultural University, 2017 (in Chinese).
- [44] 尹春艳, 骆永明, 滕应, 等. 典型设施菜地土壤抗生素污染特征与积累规律研究 [J]. *环境科学*, 2012, 33(8): 2810-2816.
- YIN C Y, LUO Y M, TENG Y, et al. Pollution characteristics and accumulation of antibiotics in typical protected vegetable soils[J]. *Environmental Science*, 2012, 33(8): 2810-2816 (in Chinese).
- [45] 张凤丽. 某冶炼厂周围农田土壤中抗生素抗性基因分布及其影响因素 [D]. 郑州: 郑州大学, 2018.
- ZHANG F L. The distribution of antibiotic resistance genes and its influencing factors in agricultural soil nearby a smelting plant [D]. Zhengzhou: Zhengzhou University, 2018 (in Chinese).
- [46] 王佳佳. 北京地区蔬菜土壤抗生素抗性基因分布特征的研究 [D]. 吉林: 东北电力大学, 2016.
- WANG J J. Research on distribution of antibiotic resistance genes in vegetable soils in Beijing [D]. Jilin: Northeast Dianli University, 2016 (in Chinese).
- [47] LI C, CHEN J Y, WANG J H, et al. Occurrence of antibiotics in soils and manures from greenhouse vegetable production bases of Beijing, China and an associated risk assessment[J]. *Science of the Total Environment*, 2015, 521/522: 101-107.
- [48] 赵鑫宇, 刷泽佳, 陈慧, 等. 石家庄市土壤中喹诺酮类抗生素空间分布特征及其与微生物群落相关性 [J]. *环境科学*, 2022, 43(9): 4684-4696.
- ZHAO X Y, JU Z J, CHEN H, et al. Spatial distribution of quinolone antibiotics and its correlation relationship with microbial community in soil of Shijiazhuang city[J]. *Environmental Science*, 2022, 43(9): 4684-4696 (in Chinese).
- [49] 李国秀, 崔利辉, 刘颖沙. 陕西省杨陵区蔬菜基地土壤中抗生素污染评价 [J]. *农业工程*, 2021, 11(7): 41-46.
- LI G X, CUI L H, LIU Y S. Evaluation of antibiotic pollution in soil of vegetable base in Yangling district, Shaanxi Province[J]. *Agricultural Engineering*, 2021, 11(7): 41-46 (in Chinese).
- [50] 谢超然. 干旱区设施菜地土壤磺胺类抗生素污染特征及吸附行为初步研究 [D]. 兰州: 兰州大学, 2017.
- XIE C R. Preliminary study on sulfonamides pollution characteristics and adsorption behavior in arid oasis soil [D]. Lanzhou: Lanzhou University, 2017 (in Chinese).
- [51] 郎朗, 狄静波, 王戈, 等. 哈尔滨市蔬菜基地四环素类抗生素的污染现状 [J]. *环境科学与技术*, 2018, 41(8): 153-159.
- LANG L, DI J B, WANG G, et al. Study on the tetracycline antibiotics pollution in soil of vegetable bases in Harbin[J]. *Environmental Science & Technology*, 2018, 41(8): 153-159 (in Chinese).
- [52] WEI R C, HE T, ZHANG S X, et al. Occurrence of seventeen veterinary antibiotics and resistant bacterias in manure-fertilized vegetable farm soil in four provinces of China[J]. *Chemosphere*, 2019, 215: 234-240.
- [53] MIGLIORE L, COZZOLINO S, FIORI M. Phytotoxicity to and uptake of enrofloxacin in crop plants[J]. *Chemosphere*, 2003, 52(7): 1233-1244.
- [54] 丁丹, 黄晓依, 顾静仪, 等. 畜禽粪肥还田四环素类抗生素 (TCs) 在土壤-蔬菜系统的分布特征及风险评估 [J]. *环境科学*, 2023, 44(8): 4440-4447.
- DING D, HUANG X Y, GU J Y, et al. Distribution Characteristics and Risk Assessment of Tetracycline Antibiotics (TCs) in Soil-Vegetable System with Soil Fertilized with Animal Manure [J]. *Environmental Science*, 2023, 44(8): 4440-4447(in Chinese) .
- [55] KANG D H, GUPTA S, ROSEN C, et al. Antibiotic uptake by vegetable crops from manure-applied soils[J]. *Journal of Agricultural and Food Chemistry*, 2013, 61(42): 9992-10001.
- [56] LI X W, XIE Y F, LI C L, et al. Investigation of residual fluoroquinolones in a soil-vegetable system in an intensive vegetable cultivation area in Northern China[J]. *Science of the Total Environment*, 2014, 468/469: 258-264.
- [57] BOXALL A B A, JOHNSON P, SMITH E J, et al. Uptake of veterinary medicines from soils into plants[J]. *Journal of Agricultural and Food Chemistry*, 2006, 54(6): 2288-2297.
- [58] EGGEN T, ASP T N, GRAVE K, et al. Uptake and translocation of metformin, ciprofloxacin and narasin in forage- and crop

- plants[J]. *Chemosphere*, 2011, 85(1): 26-33.
- [59] TANOUE R, SATO Y, MOTOYAMA M, et al. Plant uptake of pharmaceutical chemicals detected in recycled organic manure and reclaimed wastewater[J]. *Journal of Agricultural and Food Chemistry*, 2012, 60(41): 10203-10211.
- [60] MIGLIORE L, CIVITAREALE C, COZZOLINO S, et al. Laboratory models to evaluate phytotoxicity of sulphadimethoxine on terrestrial plants[J]. *Chemosphere*, 1998, 37(14/15): 2957-2961.
- [61] SIMONICH S L, HITES R A. Organic pollutant accumulation in vegetation[J]. *Environmental Science & Technology*, 1995, 29(12): 2905-2914.
- [62] PAN M, CHU L M. Fate of antibiotics in soil and their uptake by edible crops[J]. *Science of the Total Environment*, 2017, 599/600: 500-512.
- [63] MILLER E L, NASON S L, KARTHIKEYAN K G, et al. Root uptake of pharmaceuticals and personal care product ingredients[J]. *Environmental Science & Technology*, 2016, 50(2): 525-541.
- [64] MIGLIORE L, BRAMBILLA G, COZZOLINO S, et al. Effect on plants of sulphadimethoxine used in intensive farming (*Panicum miliaceum*, *Pisum sativum* and *Zea mays*) [J]. *Agriculture, Ecosystems & Environment*, 1995, 52(2/3): 103-110.
- [65] LILLENBERG M, LITVIN S V, NEI L, et al. Enrofloxacin and ciprofloxacin uptake by plants from soil[J]. *Agronomy Research*, 2010, 8(1): 807-814.
- [66] 汪勇, 林先贵, 王一明, 等. 长期施用粪肥对农田土壤中细菌四环素抗性水平的影响 [J]. *安徽农业科学*, 2008, 36(14): 5944-5945, 5947.
- WANG Y, LIN X G, WANG Y M, et al. Effects of long-term application of manure on bacteria resistance level to tetracycline in farmland soil[J]. *Journal of Anhui Agricultural Sciences*, 2008, 36(14): 5944-5945, 5947 (in Chinese).
- [67] HEUER H, SOLEHATI Q, ZIMMERLING U, et al. Accumulation of sulfonamide resistance genes in arable soils due to repeated application of manure containing sulfadiazine[J]. *Applied and Environmental Microbiology*, 2011, 77(7): 2527-2530.
- [68] BATCHELDER A R. Chlortetracycline and oxytetracycline effects on plant growth and development in soil systems[J]. *Journal of Environmental Quality*, 1982, 11(4): 675-678.
- [69] McMANUS P S, STOCKWELL V O, SUNDIN G W, et al. Antibiotic use in plant agriculture[J]. *Annual Review of Phytopathology*, 2002, 40: 443-465.
- [70] 金彩霞, 陈秋颖, 刘军军, 等. 两种常用兽药对作物发芽的生态毒性效应 [J]. *环境科学学报*, 2009, 29(3): 619-625.
- JIN C X, CHEN Q Y, LIU J J, et al. The Eco-toxicological effect of two common veterinary drugs on crop germination[J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2009, 29(3): 619-625 (in Chinese).
- [71] BELLINO A, LOFRANO G, CAROTENUTO M, et al. Antibiotic effects on seed germination and root development of tomato (*Solanum lycopersicum* L.) [J]. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 2018, 148: 135-141.
- [72] AN J, ZHOU Q X, SUN F H, et al. Ecotoxicological effects of paracetamol on seed germination and seedling development of wheat (*Triticum aestivum* L.) [J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2009, 169(1/2/3): 751-757.
- [73] PAN M, CHU L M. Phytotoxicity of veterinary antibiotics to seed germination and root elongation of crops[J]. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 2016, 126: 228-237.
- [74] ZHAO F K, YANG L, LI G, et al. Veterinary antibiotics can reduce crop yields by modifying soil bacterial community and earthworm population in agro-ecosystems[J]. *Science of the Total Environment*, 2022, 808: 152056.
- [75] BRAIN R A, HANSON M L, SOLOMON K R, et al. Aquatic plants exposed to pharmaceuticals: Effects and risks[J]. *Reviews of Environmental Contamination and Toxicology*, 2008, 192: 67-115.
- [76] KÜMMERER K. Antibiotics in the aquatic environment—A review—Part I [J]. *Chemosphere*, 2009, 75(4): 417-434.
- [77] OPRIŞ O, SORAN M L, COMAN V, et al. Determination of some frequently used antibiotics in waste waters using solid phase extraction followed by high performance liquid chromatography with diode array and mass spectrometry detection[J]. *Central European Journal of Chemistry*, 2013, 11(8): 1343-1351.
- [78] ARISTILDE L, MELIS A, SPOSITO G. Inhibition of photosynthesis by a fluoroquinolone antibiotic[J]. *Environmental Science & Technology*, 2010, 44(4): 1444-1450.
- [79] BASSET G J C, QUINLIVAN E P, GREGORY J F, et al. Folate synthesis and metabolism in plants and prospects for biofortification[J]. *Crop Science*, 2005, 45(2): 449-453.
- [80] BOXALL A B A, BLACKWELL P, CAVALLO R, et al. The sorption and transport of a sulphonamide antibiotic in soil systems[J]. *Toxicology Letters*, 2002, 131(1/2): 19-28.
- [81] BAGUER A J, JENSEN J, KROGH P H. Effects of the antibiotics oxytetracycline and tylosin on soil fauna[J]. *Chemosphere*, 2000, 40(7): 751-757.
- [82] LI Y S, HU Y X, AI X J, et al. Acute and sub-acute effects of enrofloxacin on the earthworm species *Eisenia fetida* in an artificial soil substrate[J]. *European Journal of Soil Biology*, 2015, 66: 19-23.
- [83] ZHU D, AN X L, CHEN Q L, et al. Antibiotics disturb the microbiome and increase the incidence of resistance genes in the gut of a

- common soil collembolan[J]. *Environmental Science & Technology*, 2018, 52(5): 3081-3090.
- [84] 李进. 跳虫(弹尾纲)不同生物水平特征对农田重金属和抗生素类污染响应的毒理学研究 [D]. 上海: 华东师范大学, 2019.
LI J. Toxicological study on response of different biological level characteristics of collembolan(Collembola) to heavy metals in farmland and antibiotics pollution [D]. Shanghai: East China Normal University, 2019 (in Chinese).
- [85] DONG L X, GAO J, XIE X J, et al. DNA damage and biochemical toxicity of antibiotics in soil on the earthworm *Eisenia fetida*[J]. *Chemosphere*, 2012, 89(1): 44-51.
- [86] WANG C R, RONG H, LIU H T, et al. Detoxification mechanisms, defense responses, and toxicity threshold in the earthworm *Eisenia foetida* exposed to ciprofloxacin-polluted soils[J]. *Science of the Total Environment*, 2018, 612: 442-449.
- [87] MITTLER R. Oxidative stress, antioxidants and stress tolerance[J]. *Trends in Plant Science*, 2002, 7(9): 405-410.
- [88] FIERER N. Embracing the unknown: Disentangling the complexities of the soil microbiome[J]. *Nature Reviews Microbiology*, 2017, 15(10): 579-590.
- [89] HALLING-SØRENSEN B, NORS NIELSEN S, LANZKY P F, et al. Occurrence, fate and effects of pharmaceutical substances in the environment- A review[J]. *Chemosphere*, 1998, 36(2): 357-393.
- [90] JJEMBA P K. The potential impact of veterinary and human therapeutic agents in manure and biosolids on plants grown on arable land: A review [J]. *Agriculture, Ecosystems & Environment*, 2002, 93(1/2/3): 267-278.
- [91] GIRARDI C, GREVE J, LAMSHÖFT M, et al. Biodegradation of ciprofloxacin in water and soil and its effects on the microbial communities[J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2011, 198: 22-30.
- [92] VACLAVIK E, HALLING-SØRENSEN B, INGERSLEV F. Evaluation of manometric respiration tests to assess the effects of veterinary antibiotics in soil[J]. *Chemosphere*, 2004, 56(7): 667-676.
- [93] CYCÓN M, MROZIK A, PIOTROWSKA-SEGET Z. Antibiotics in the soil environment-degradation and their impact on microbial activity and diversity[J]. *Frontiers in Microbiology*, 2019, 10: 338.
- [94] HAMMESFAHR U, HEUER H, MANZKE B, et al. Impact of the antibiotic sulfadiazine and pig manure on the microbial community structure in agricultural soils[J]. *Soil Biology and Biochemistry*, 2008, 40(7): 1583-1591.
- [95] FRANCIS C A, ROBERTS K J, BEMAN J M, et al. Ubiquity and diversity of ammonia-oxidizing archaea in water columns and sediments of the ocean[J]. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 2005, 102(41): 14683-14688.
- [96] LEININGER S, URICH T, SCHLOTTER M, et al. Archaea predominate among ammonia-oxidizing prokaryotes in soils[J]. *Nature*, 2006, 442(7104): 806-809.
- [97] SCHAUSS K, FOCKS A, LEININGER S, et al. Dynamics and functional relevance of ammonia-oxidizing archaea in two agricultural soils[J]. *Environmental Microbiology*, 2009, 11(2): 446-456.
- [98] RADL V, KINDLER R, WELZL G, et al. Drying and rewetting events change the response pattern of nitrifiers but not of denitrifiers to the application of manure containing antibiotic in soil[J]. *Applied Soil Ecology*, 2015, 95: 99-106.
- [99] LI J J, YANG H Z, QIN K N, et al. Effect of pig manure-derived sulfadiazine on species distribution and bioactivities of soil ammonia-oxidizing microorganisms after fertilization[J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2022, 423: 126994.
- [100] HUND-RINKE K, SIMON M, LUKOW T. Effects of tetracycline on the soil microflora: Function, diversity, resistance[J]. *Journal of Soils and Sediments*, 2004, 4(1): 11-16.
- [101] DING G C, RADL V, SCHLOTTER-HAI B, et al. Dynamics of soil bacterial communities in response to repeated application of manure containing sulfadiazine[J]. *PLoS One*, 2014, 9(3): e92958.
- [102] ZHANG Y, CHEN M L, BAO C X, et al. Application of pig manure compost with different biochar modifies the antibiotic resistome and bacterial community in agriculture soil [J]. *Water, Air, & Soil Pollution*, 2022, 233(4): 108.
- [103] LIU F, WU J S, YING G G, et al. Changes in functional diversity of soil microbial community with addition of antibiotics sulfamethoxazole and chlortetracycline[J]. *Applied Microbiology and Biotechnology*, 2012, 95(6): 1615-1623.
- [104] LIU A J, CAO H S, YANG Y, et al. Combinational effects of sulfomethoxazole and copper on soil microbial community and function[J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2016, 23(5): 4235-4241.
- [105] 刘伟, 王慧, 陈小军, 等. 抗生素在环境中降解的研究进展 [J]. *动物医学进展*, 2009, 30(3): 89-94.
LIU W, WANG H, CHEN X J, et al. Progress on degradation of antibiotics in environment[J]. *Progress in Veterinary Medicine*, 2009, 30(3): 89-94 (in Chinese).
- [106] LIU F, YING G G, TAO R, et al. Effects of six selected antibiotics on plant growth and soil microbial and enzymatic activities[J]. *Environmental Pollution*, 2009, 157(5): 1636-1642.
- [107] WEPKING C, AVERA B, BADGLEY B, et al. Exposure to dairy manure leads to greater antibiotic resistance and increased mass-specific respiration in soil microbial communities[J]. *Proceedings of the Royal Society B: Biological Sciences*, 2017, 284(1851): 20162233.
- [108] MARX M C, KANDELER E, WOOD M, et al. Exploring the enzymatic landscape: Distribution and kinetics of hydrolytic enzymes in

- soil particle-size fractions[J]. *Soil Biology and Biochemistry*, 2005, 37(1): 35-48.
- [109] DANTAS G, SOMMER M O A, OLUWASEGUN R D, et al. Bacteria subsisting on antibiotics[J]. *Science*, 2008, 320(5872): 100-103.
- [110] BOLEAS S, ALONSO C, PRO J, et al. Toxicity of the antimicrobial oxytetracycline to soil organisms in a multi-species-soil system (MS-3) and influence of manure co-addition[J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2005, 122(3): 233-241.
- [111] KONG W D, ZHU Y G, LIANG Y C, et al. Uptake of oxytetracycline and its phytotoxicity to alfalfa (*Medicago sativa* L.) [J]. *Environmental Pollution*, 2007, 147(1): 187-193.
- [112] DEVRIES S L, ZHANG P F. Antibiotics and the terrestrial nitrogen cycle: A review[J]. *Current Pollution Reports*, 2016, 2(1): 51-67.
- [113] MA T T, PAN X, CHEN L K, et al. Effects of different concentrations and application frequencies of oxytetracycline on soil enzyme activities and microbial community diversity[J]. *European Journal of Soil Biology*, 2016, 76: 53-60.
- [114] CUI H, WANG S P, FU J, et al. Influence of ciprofloxacin on microbial community structure and function in soils[J]. *Biology and Fertility of Soils*, 2014, 50(6): 939-947.
- [115] YANG J F, YING G G, LIU S, et al. Biological degradation and microbial function effect of norfloxacin in a soil under different conditions[J]. *Journal of Environmental Science and Health Part B Pesticides Food Contaminants and Agricultural Wastes*, 2012, 47(4): 288-295.
- [116] DEVRIES S L, LOVING M, LI X Q, et al. The effect of ultralow-dose antibiotics exposure on soil nitrate and N₂O flux[J]. *Scientific Reports*, 2015, 5(1): 16818.
- [117] MOLAEI A, LAKZIAN A, HAGHNI A, et al. Assessment of some cultural experimental methods to study the effects of antibiotics on microbial activities in a soil: An incubation study[J]. *PLoS One*, 2017, 12(7): e0180663.
- [118] CONKLE J L, WHITE J R. An initial screening of antibiotic effects on microbial respiration in wetland soils[J]. *Journal of Environmental Science and Health, Part A*, 2012, 47(10): 1381-1390.