

目次

气候变化对中国夏季臭氧影响 胡安琪, 谢晓栋, 龚康佳, 侯宇晖, 胡建林 (1801)
基于 EOF 分解和 KZ 滤波的 2019 ~ 2021 年中国臭氧时空变化及驱动因素分析 王浩琪, 张裕芬, 罗忠伟, 王艳阳, 戴启立, 毕晓辉, 吴建会, 冯银厂 (1811)
华北工业城市夏季大气臭氧生成机制及减排策略 郑镇森, 窦建平, 张国涛, 李丽明, 徐勃, 杨文, 白志鹏 (1821)
2015 ~ 2020 年中国城市 PM_{2.5}-O₃ 复合污染时空演变特征 牛笑笑, 钟艳梅, 杨璐, 易嘉慧, 慕航, 吴倩, 洪松, 何超 (1830)
2015 ~ 2021 年京津冀及周边地区 PM_{2.5} 和臭氧复合污染时空特征分析 宋小涵, 燕丽, 刘伟, 贺晋瑜, 王亚晨, 黄同林, 李园园, 陈敏, 孟静静, 侯战方 (1841)
2000 ~ 2020 年中国典型经济区 PM_{2.5} 时空变化及其与植被景观格局的关系 徐勇, 李欣怡, 黄雯婷, 郭振东, 盘钰春, 郑志威, 戴强玉 (1852)
北京市核心区冬春季大气离子沉降量特征及来源解析 赵宇, 李贝贝, 黄玉虎, 梁静, 杨洪玲, 秦建平, 朱玲 (1865)
南京近郊农田大气颗粒物及金属干沉降输入特征 刘翠英, 靳浩, 樊建凌 (1873)
西安冬季 PM_{2.5} 中不同极性水溶性有机物的污染特征及氧化潜势 罗玉, 黄沙沙, 张甜, 孙健, 沈振兴 (1882)
机动车源和民用燃料源颗粒物中有机碳和元素碳的排放特征 王红磊, 刘思晗, 孙杰娟, 刘煥武, 赵天良, 裴宇僊, 可玥, 武自豪, 刘诗云 (1890)
伊犁河谷核心区春季 PM_{2.5} 组分特征及来源解析 谷超, 徐涛, 马超, 伊布提哈尔·加帕尔, 郭丽瑶, 李新琪, 杨文 (1899)
基于高空间分辨率的郑州市城镇居民 PM_{2.5} 暴露浓度与健康风险变化评估 李媛, 徐艺斐, 袁明浩, 苏方成, 王申博, 王克, 张瑞芹 (1911)
基于多源数据融合的河南省建材行业排放清单 刘晓, 胡京南, 王红梅, 杨丽, 张皓 (1924)
开封市城区冬季大气挥发性有机物污染特征及来源解析 施雨其, 郑凯允, 丁玮婷, 刘金平, 陈洪光, 高光, 王玲玲, 王楠, 马双良, 郑瑶, 谢绍东 (1933)
2020 年和 2021 年南京城区臭氧生成敏感性和 VOCs 来源变化分析 陆晓波, 王鸣, 丁峰, 喻义勇, 张哲海, 胡崑 (1943)
北京市城区夏季大气 VOCs 变化特征及臭氧生成潜势 张蕊, 孙雪松, 王裕, 王飞, 罗志云 (1954)
青岛市臭氧污染与非污染期间 VOCs 化学特征及来源解析 贾智海, 顾瑶, 孔翠丽, 宋江邦, 孟赫, 石来元, 吴建会, 刘保双 (1962)
基于总过氧自由基观测研究合肥市西郊夏季 O₃ 生成特征 俞辉, 韦娜娜, 徐学哲, 刘芊芊, 姚易辰, 赵卫雄, 张为俊 (1974)
“大气十条”政策的节能降碳效果评估与创新中介效应 李少林, 王齐齐 (1985)
北京市减排协同控制情景模拟和效应评估 俞珊, 张双, 张增杰, 翟培芝, 刘桐珊 (1998)
基于不同排放清单的长三角人为 CO₂ 排放模拟 马心怡, 黄文晶, 胡凝, 肖薇, 胡诚, 张弥, 曹畅, 赵佳玉 (2009)
武汉汉江水源水质变化趋势及风险分析 卓海华, 姜保锋, 徐杰, 陈洁, 陈杰, 兰秀薇, 范文重, 欧阳雪姣, 兰静 (2022)
长江武汉段水源地典型抗生素及抗性基因污染特征与生态风险评价 李柏林, 张贺, 王俊, 沙雪妮, 陈晓飞, 卓海华 (2032)
陕北矿区典型河流多环芳烃的赋存特征、来源及毒性风险分析 吴喜军, 董颖, 赵健, 刘辉, 张亚宁 (2040)
典型湖泊有机聚集体时空特征及驱动因子 谢贵娟, 龚伊, 朱富成, 刘昌利, 卢宝伟, 邓辉, 汤祥明 (2052)
桂林市不同功能型公园水体微塑料的分布特征及风险评估 李沛钊, 吴莉, 黄菲菲, 林才霞, 舒小华, 张倩 (2062)
长江流域浮游植物群落的环境驱动及生态评价 张静, 胡愈焯, 胡圣, 黄杰 (2072)
环境异质性对三峡库区支流香溪河附石硅藻群落的影响及驱动作用 纪璐璐, 赵璐, 欧阳添, 杨宋琪, 郑保海, 杜雨欣, 李玉鑫, 李佳欣, 施军琼, 吴忠兴 (2083)
武汉市 3 种类型湖泊浮游植物群落特点及关键影响因素 张浩坤, 闵奋力, 崔慧荣, 彭雪, 张心怡, 张淑娟, 李竹栖, 葛芳杰, 张璐, 吴振斌, 刘碧云 (2093)
重金属污染对不同生境中微生物群落结构的影响 何一凡, 肖新宗, 王佳文 (2103)
亳清河水体细菌群落的结构和分布特征 王森, 陈建文, 张红, 李君剑 (2113)
微塑料暴露对小棒指软珊瑚 (*Sinularia microclavata*) 共附生细菌群落结构和功能的影响 刘敏, 车文学, 曾映旭, 边伟杰, 吕淑果, 穆军 (2122)
上海市从源头到龙头的饮用水新型污染物分布特征及健康风险评价 严棋 (2136)
铝改性生物炭对水体低浓度氟的吸附特性 刘艳芳, 高玮, 刘蕊, 尹思婕, 张妙雨, 刘晓帅, 李再兴 (2147)
典型雌激素在微塑料上的吸附特征及位点能量分布 刘姜艳, 郑密密, 胡嘉梧, 柳玉荣, 贺德春, 潘杰 (2158)
面向工业园区废水臭氧氧化深度处理性能评价的模型污染物选择与评估 辛勃, 单超, 吕路 (2168)
基于地理探测器和多源数据的耕地土壤重金属来源驱动因子及其交互作用识别 张宏泽, 崔文刚, 刘绥华, 崔瀚文, 黄月美 (2177)
基于 APCS-MLR 和 PMF 模型的煤矸山周边耕地土壤重金属污染特征及源解析 马杰, 沈智杰, 张萍萍, 刘萍, 刘今朝, 孙静, 王玲灵 (2192)
基于蒙特卡罗模拟的铅锌冶炼厂周边农田土壤重金属健康风险评估 黄剑波, 姜登登, 温冰, 王磊, 石佳奇, 周艳 (2204)
基于 BP 神经网络预测北京市加油站周边土壤多环芳烃含量 马赛炎, 魏海英, 马瑾, 刘奇缘, 吴颐杭, 屈雅静, 田雨欣, 赵文浩 (2215)
石家庄市土壤中喹诺酮类抗生素时空分布及其风险评估 赵鑫宇, 陈慧, 赵波, 宋圆梦, 卢梦淇, 崔建升, 张璐璐, 李双江 (2223)
典型黑色岩系地质高背景区土壤和农产品重金属富集特征与污染风险 邓帅, 段佳辉, 宁墨兔, 谭林, 蒲刚, 陈际行, 齐小兵, 蒋尚智, 谢桃园, 刘意章 (2234)
岩溶区不同母质土壤 Cd 地球化学特征及玉米籽实 Cd 含量预测 戴亮亮, 徐宏根, 巩浩, 彭志刚, 肖凯琦, 吴欢欢, 许青阳, 郭军, 汤媛媛, 张俊 (2243)
龙岩市不同利用类型土壤及农作物 Pb、Cd 和 As 污染风险与贡献分析 王蕊, 陈楠, 张二喜 (2252)
小麦籽粒镉含量影响因素 Meta 分析和决策树分析 刘娜, 张少斌, 郭欣宇, 宁瑞艳 (2265)
黄土高原次生林演替过程土壤有机碳库及其化学组成响应特征 刘涵宇, 刘颖异, 张琦, 封伦, 高起乾, 任成杰, 韩新辉 (2275)
短期氮磷添加对祁连山亚高山草地土壤呼吸组分的影响 江原, 甘小玲, 曹丰丰, 赵传燕, 李伟斌 (2283)
黄河源区斑块退化高寒草甸土壤微生物多样性对长期封育的响应 杨鹏年, 李希来, 李成一, 段成伟 (2293)
不同海拔鳧箭锦鸡儿根际和非根际土壤细菌群落多样性及 PICRUSt 功能预测 李媛媛, 徐婷婷, 艾喆, 魏卢璐, 马飞 (2304)
模拟酸雨及氮沉降对马尾松林土壤细菌群落结构及其多样性的影响 王楠, 钱少郁, 潘小承, 陈一磊, 白尚斌, 徐飞 (2315)
磷石膏和碱蓬对盐渍化土壤水盐及细菌群落结构的影响 刘月, 杨树青, 张万峰, 姜帅 (2325)
磷渣与化肥配施对稻田土壤微生物群落组成及多样性的影响 耿和田, 王旭东, 石思博, 叶正钱, 周文晶 (2338)
增氧对不同秸秆还田稻田田面水养分动态及温室气体排放的影响 胡锦涛, 薛利红, 钱聪, 薛利祥, 曹国帅 (2348)
外源褪黑素对胁迫下水稻幼苗生长和抗氧化系统的影响 储玉檀, 李颜, 黄益宗, 保琼莉, 孙红羽, 黄永春 (2356)
面向 2035 的节能与新能源汽车全生命周期碳排放预测评价 付佩, 兰利波, 陈颖, 郝卓, 邢云翔, 蔡旭, 张春梅, 陈轶嵩 (2365)
农田土壤微塑料分布、来源和行为特征 薄录吉, 李冰, 张凯, 马荣辉, 李彦, 王艳芹, 孙斌, 刘月岩 (2375)
农田土壤除草剂污染的修复技术研究进展 胡芳雨, 安婧, 王宝玉, 徐明恺, 张惠文, 魏树和 (2384)
我国黑土地农田土壤除草剂残留特征研究及展望 李睿, 吴秋梅, 赵归梅, 胡文友, 田康, 黄标, 吴祥为, 刘峰, 赵玉国, 赵永存 (2395)
《环境科学》征订启事(1910) 《环境科学》征稿简则(1984) 信息(2167, 2191, 2324)

长江武汉段水源地典型抗生素及抗性基因污染特征与生态风险评价

李柏林¹, 张贺¹, 王俊^{1,2}, 沙雪妮¹, 陈晓飞³, 卓海华^{4*}

(1. 武汉理工大学资源与环境工程学院, 武汉 430070; 2. 武汉临空港经济技术开发区服务业发展投资集团有限公司, 武汉 430040; 3. 湖北省生态环境科学研究院, 武汉 430070; 4. 生态环境部长江流域生态环境监督管理局生态环境监测与科学研究中心, 武汉 430010)

摘要: 为了探究长江武汉段水源地抗生素和抗性基因(ARGs) 的分布特征和相关性以及潜在生态风险, 采用固相萃取-超高效液相色谱串联质谱法(SPE-UPLC-MS/MS)和实时荧光定量 PCR 技术分别分析了全武汉市饮用水水源地中 13 种抗生素和 10 种 ARGs 的赋存水平。结果表明, 在 16 处水源地样品中共检出 9 种抗生素, 浓度范围为 ND(未检出)~177.36 ng·L⁻¹, 红霉素、磺胺嘧啶和磺胺对甲氧嘧啶的检出率均为 100%, 抗生素浓度分布呈现(以汉江汇入口划分长江干流上下游): 支流举水 < 长江干流下游 < 长江干流上游 < 支流汉江 < 支流淝水。长江干流下游 ARGs 总绝对丰度明显高于长江干流上游和汉江, 磺胺类 ARGs 显著高于其他三类 ARGs 耐药基因的平均丰度($P < 0.05$), ARGs 中 *sul1* 与 *sul2*、*ermB*、*qnrS*、*tetW* 和 *intI1* 等 5 种 ARGs 存在显著正相关关系($P < 0.01$), 相关系数分别为 0.768、0.648、0.824、0.678 和 0.790, 磺胺类 ARGs 组内相关性弱于组间 ARGs 的相关性。磺胺甲噁唑、金霉素、罗红霉素和恩诺沙星等 4 种抗生素对水生敏感生物具有中风险, 生态风险熵热图中各风险区占比情况依次为: 9.0% (中风险)、30.6% (低风险) 和 60.4% (无风险)。16 处水源地的联合毒性生态风险评估(RQ_{sum})均为中风险, 所涉及河流的 RQ_{sum} (平均值)依次为: 0.222(支流汉江) < 0.267(长江干流) < 0.299(其他支流)。

关键词: 水源地; 抗生素; 抗性基因; 空间分布; 生态风险评价

中图分类号: X522 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2023)04-2032-08 DOI: 10.13227/j.hjkk.202204318

Pollution Characteristics and Risk Assessment of Antibiotics and Resistance Genes in Different Water Sources in the Wuhan Section of the Yangtze River

LI Bo-lin¹, ZHANG He¹, WANG Jun^{1,2}, SHA Xue-ni¹, CHEN Xiao-fei³, ZHOU Hai-hua^{4*}

(1. School of Resource and Environmental Engineering, Wuhan University of Technology, Wuhan 430070, China; 2. Wuhan Lingang Economic and Technological Development Zone Service Industry Development Investment Group Co. Ltd., Wuhan 430040, China; 3. Hubei Academy of Eco-Environmental Sciences, Wuhan 430070, China; 4. Yangtze River Basin Ecological Environment Monitoring and Scientific Research Center, Yangtze River Basin Ecological Environment Supervision and Administration Bureau, Ministry of Ecology and Environment, Wuhan 430010, China)

Abstract: The distribution characteristics, correlations, and potential ecological risks of 13 antibiotics and 10 antibiotic resistance genes (ARGs) in 16 water sources in Wuhan were analyzed using solid-phase extraction-ultra-high performance liquid chromatography-tandem mass spectrometry (SPE-UPLC-MS/MS) and real-time quantitative PCR technology. The distribution characteristics and correlations and potential ecological risks of antibiotics and resistance genes in this region were analyzed. The results showed that a total of nine antibiotics were detected in the 16 water source samples, and the concentration range was ND-177.36 ng·L⁻¹. The concentration distribution presented as follows: Tributary Jushui River < lower reaches of the main stream of the Yangtze River < upstream of the main stream of the Yangtze River < Tributary Hanjiang River < Tributary Sheshui River. The total absolute abundance of ARGs after the Yangtze River and Hanjiang River confluence was significantly higher than that before the confluence, and the average abundance of sulfa ARGs was significantly higher than that of the other three ARGs resistance genes ($P < 0.05$). There was a significant positive correlation between *sul1* and *sul2*, *ermB*, *qnrS*, *tetW*, and *intI1* in ARGs ($P < 0.01$), and the correlation coefficients were 0.768, 0.648, 0.824, 0.678, and 0.790, respectively. The correlation within the sulfonamide ARGs group was weak. Correlation of ARGs between groups. Four antibiotics, sulfamethoxazole, aureomycin, roxithromycin, and enrofloxacin, had a medium risk to aquatic sensitive organisms, and the proportion of each risk area in the ecological risk map was 9.0% (medium risk), 30.6% (low risk), and 60.4% (no risk). The combined ecological risk assessment (RQ_{sum}) of the 16 water sources indicated medium risk, and the RQ_{sum} (mean) of the rivers involved was 0.222 (Tributary Hanjiang River) < 0.267 (main stream of the Yangtze River) < 0.299 (other tributaries).

Key words: water source; antibiotic; resistance gene; spatial distribution; ecological risk assessment

水环境中抗生素和抗性基因(antibiotic resistance genes, ARGs)作为一种新兴污染物(CEC)^[1]一直是国内外的研究热点。抗生素一般分为医用抗生素和兽用抗生素, Lienert 等^[2]研究表明约有 50% 的医用抗生素被人体代谢形成活性代谢物和未代谢抗生素被人体排出, 其中有 70% 左右以尿液排出, 经污水处理后排入水体。畜禽粪便和尿液

多数以有机肥形式返回农田, 而存在于其中的兽用抗生素及其活性代谢物通过土壤渗透和地表径流直接进入水体^[3]。近年来国内河流如长江^[4~6]、黄

收稿日期: 2022-04-26; 修订日期: 2022-07-10

基金项目: 武汉市应用基础前沿项目(2018060401011313)

作者简介: 李柏林(1983~), 男, 博士, 副教授, 主要研究方向为环境新型污染物检测及去除, E-mail: holly1221@whut.edu.cn

* 通信作者, E-mail: harderjoe@sina.com

河^[4,5,7]、海河^[8,9]、松花江^[4,10,11]和珠江^[4,5,12,13]等,湖泊甚至渤海湾等天然水环境中检测到抗生素残留,而在邻国越南^[14]、非洲的莫桑比克^[15]和肯尼亚^[16]也有相关报道. 水体中残留抗生素通过环境压力诱发细菌产生耐药性进而传播,饮用水和废水^[17]处理工艺被证明无法完全去除 ARGs. 因而亟需对自然水体中抗生素和 ARGs 的分布特征及诱导传播等方面进行研究以应对二者对水生环境和人类健康带来的潜在巨大风险.

长江及其支流汉江是武汉市最重要的供水来源,供给全市 90% 以上的居民饮用水,而武汉周边的水产和畜禽等养殖业密集,产生的高浓度抗生素废水不可避免以直接或间接方式进入武汉周边水系. 减少抗生素污染,缓解细菌的耐药性环境压力,保证城市及周边供水水质安全至关重要,目前国内对长江中游典型饮用水水源中抗生素和 ARGs 丰度的时空分布特征研究较少^[18]. 基于此,本研究选取有代表性的 13 种抗生素和 10 种 ARGs (另选取 16S rDNA 作为细菌的参照基因),分析其在长江武汉段周边水源地中的分布特征,使用皮尔逊相关性对 ARGs 与抗生素和水质参数间的关系进行分析,并采用生态联合风险熵 (RQ_{sum}) 对水环境的生态风险进行评价,以期水质保护和生态管理提供数据和帮助. 识别影响该地区抗生素和 ARGs 污染的环境因子,具有重要的理论及实际意义.

1 材料与方法

1.1 仪器和试剂

ACQITY H/TQ-S 超高效液相色谱串联质谱仪(美国 Waters 公司)、SPE1000-04 全自动固相萃取仪(北京 LabTech 公司)、MultiVap-8 水浴氮吹仪(北京 LabTech 公司)、PLC-6 多功能不锈钢过滤器(北京国环高科自动化技术研究院)和 qTower 2.2 实时荧光定量 PCR 仪(德国耶拿公司).

磺胺类抗生素(SAs):磺胺吡啶(SP)、磺胺嘧啶(SDZ)、磺胺甲噁唑(SMX)、磺胺二甲嘧啶(SMZ)和磺胺对甲氧嘧啶(SMD);四环素类抗生素(TCs):四环素(TC)、金霉素(CTC)、土霉素(OTC);喹诺酮类抗生素(FQs):诺氟沙星(NOR)、氧氟沙星(OFL)和恩诺沙星(ENR);大环内酯类抗生素(MCs):罗红霉素(RTM)和红霉素(ETM)等标准物质及内标物阿特拉津-¹³C₃(atrazine-¹³C₃);四类抗生素替代物分别为:磺胺甲噁唑-d4(SMX-d4)、磺胺二甲嘧啶-3C₆(SMZ-3C₆)、噻苯咪唑-d4(TBZ-d4)、环丙沙星-d8(CPF-d8)和红霉素-¹³C₆(ETM-¹³C₆)等替代物. 固相萃取柱(500 mg, 6 mL, 购自美

国 Waters 公司). 抗性基因实验所需的 DNA 提取试剂盒 PowerSoil@ DNA Isolation kit 购自美国 MOBIO 公司;PCR 产物纯化试剂盒购自上海生工生物有限公司;荧光定量试剂盒(ChamQ SRBR Green II)购自南京诺唯赞生物公司.

1.2 样品采集

于 2020 年 10 月,按照标准 HJ/T91 和 HJ/T164 相关规定对武汉市 16 处饮用水水源地(图 1)进行采样,其中 8 处水源地位于长江干流(以汉江汇入口划分:干流上流 SW1~SW5 和干流下流 SW6~SW8),8 处水源地位于支流(汉江 SW9~SW14、滢水 SW15 和举水 SW16). 预先在 1 L 的干燥洁净棕色玻璃采样瓶中分别加入 0.25 g 乙二胺四乙酸二钠和 0.15 g 抗坏血酸排除干扰. 使用便携式多参数水质分析仪测定取样现场表层水温和 pH,使用 ZPY-1 型水质采样器采集 1 L 水样于棕色玻璃瓶中,采样完成后迅速送回实验室,存放于 4℃ 冰箱内,48 h 内完成预处理及常规水质指标测定.

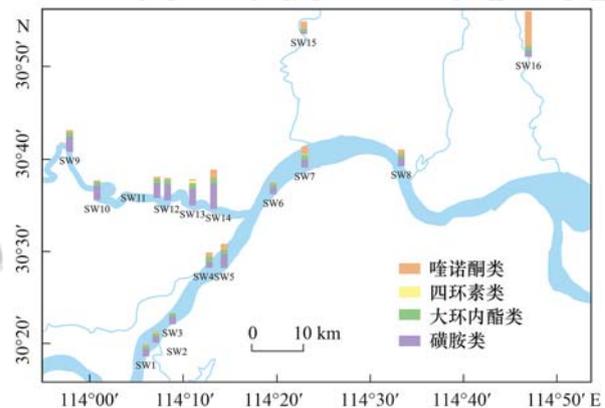


图 1 武汉市水源地和抗生素分布示意

Fig. 1 Schematic of water sources and antibiotic distribution in Wuhan

1.3 样品预处理和常规参数理化分析

抗生素预处理方法^[19]:取 1 000 mL 水样并使用 0.45 μm 水系滤膜进行真空抽滤,滤后样品中加入 4 种替代物 10 μL (单标浓度 2 mg·L⁻¹) 后充分混匀. 样品通入固相萃取 HLB 柱前,使用甲醇和去离子水活化 HLB 小柱,样品萃取完成后,通入甲醇将萃取柱中抗生素洗脱下来. 经自动氮吹仪吹扫后,在洗脱液中加入 2 mg·L⁻¹ 的内标使用液 10 μL,用甲醇定容至 1.0 mL,经 0.22 μm 有机相滤膜过滤后,于 -18℃ 避光保存待 HPLC-MS/MS 分析.

抗性基因预处理方法:将 500 mL 样品以真空抽滤方式通过 0.45 μm 滤膜,所获得滤膜剪碎置于 PowerSoil@ DNA Isolation kit 中提供的 PowerBead Tubes 管内,并按照试剂盒内提供的 DNA 提取步骤进行操作,除滤膜样品外,其他实验用品和试剂均由

PowerSoil@ DNA Isolation kit 提供.

对送回实验室水样立即测试浊度 (NTU, 便携式浊度仪/CT12)、总氮 (TN, HJ636-2012)、总磷 (TP, GB11901-89) 和高锰酸盐指数 (I_{Mn} , GB 11892-1989), 每个指标进行 3 次平行测试.

1.4 抗生素以及抗性基因的测定

抗生素测定^[19]: 质谱采用电喷雾离子源, 正离子模式, 多重反应检测 (MRM). 具体质谱参数设置如下: 毛细管电压为 3.0 kV; 锥孔电压设定在 6 ~ 100 V; 离子源温度设置为 150°C; 去溶剂化气体 (N_2) 温度设定为 550°C; 去溶剂化气体的流量为 1 000 $L \cdot h^{-1}$; 锥孔气流 (N_2) 流量为 50 $L \cdot h^{-1}$; 撞击气体 (氩气) 流速设定为 0.15 $mL \cdot min^{-1}$. 流动相分为水相 A 和有机相 B, 分别为含 0.1% 甲酸的超纯水 (体积分数) 和含 0.1% 甲酸的乙腈, 样品进样体积设为 5 μL . 系统色谱条件选择梯度洗脱模式.

抗性基因测定: 采用微量核酸蛋白质分析仪 Nanodrop ND-1000 (Thermo Scientific, USA) 检测 DNA 含量及纯度. 使用诺维赞公司的 ChamQTM Universal SYBR[®] qPCR Master Mix 对提取的 DNA 进行 qPCR 扩增, 反应体系 20 μL , 包含 10 μL SYBR、0.4 μL 上游引物、0.4 μL 下游引物、2 μL DNA 样品和 7.2 μL ddH₂O.

1.5 生态风险评价方法

通过风险熵值法 (risk quotient, RQ) 对水体中污染物残留的潜在风险进行评价, 而水体中多种抗生素并存会加强其毒性效应^[20], 故生态联合风险熵 (RQ_{sum}) 更适合水生态系统的风险评估, 根据 RQ 值把生态风险水平分为无风险 ($RQ < 0.01$)、低风险 ($0.01 \leq RQ < 0.10$)、中风险 ($0.1 \leq RQ < 1.00$) 和高风险 ($RQ \geq 1.00$) 4 个等级. 计算公式如下:

$$RQ_{sum} = \sum RQ_i \quad (1)$$

$$RQ = MEC/PNEC \quad (2)$$

$$PNEC = (LC_{50}/AF) \times 10^3 \text{ 或}$$

$$PNEC = (EC_{50}/AF) \times 10^3$$

$$\text{或 } PNEC = (NOEC/AF) \times 10^3 \quad (3)$$

式中, RQ_{sum} 表示不同抗生素 i 叠加的联合生态风险熵, MEC (measured environmental concentration) 为实际测定浓度, $ng \cdot L^{-1}$, PNEC (predicted no effect concentration) 为预测无效应浓度, $ng \cdot L^{-1}$, PNEC 是由急性毒性数据 [半致死浓度 LC_{50} 和半抑制浓度 EC_{50} ($\mu g \cdot L^{-1}$)] 或慢性毒性数据 (无观察效应浓度, NOEC) 与评价因子 (AF) 的比值, 参照文献 [21] 的推荐值, 其急性毒性和慢性毒性分别取值 1 000 和 100. 本研究选用最敏感物种的 PNEC 值进行评价见表 1.

表 1 抗生素对应最敏感物种的毒性数据和评价因子

Table 1 Toxicity data and evaluation factors for the five most sensitive antibiotics

抗生素	对应敏感生物	毒性	毒性数据/ $\mu g \cdot L^{-1}$	AF	PNEC/ $ng \cdot L^{-1}$	文献
SP	<i>Daphnia magna</i>	慢性	6.17 (NOEC)	100	61.7	[22]
SMX	<i>Blue-green alga</i>	急性	26.8 (EC_{50})	1 000	26.8	[23]
SMD	<i>Daphnia magna</i>	慢性	109 (NOEC)	100	1 090.0	[22]
SDZ	<i>S. capricornutum</i>	急性	2 200 (EC_{50})	1 000	2 200	[24]
OFL	<i>V. fischeri</i>	慢性	1.13 (NOEC)	100	11.3	[25]
ENR	<i>M. aeruginosa</i>	急性	490 (EC_{50})	1 000	490.0	[26]
TC	<i>P. subcapitata</i>	急性	3 310 (EC_{50})	1 000	3 310.0	[26]
CTC	<i>P. subcapitata</i>	急性	2 (EC_{50})	1 000	2.0	[27]
RTM	<i>P. subcapitata</i>	慢性	10 (NOEC)	100	100.0	[26]

1.6 统计分析

本研究使用 ArcGIS 绘制采样点位分布, 利用 Origin 软件对抗生素和 ARGs 的分布情况进行绘图, 用 SPSS 23.0 软件 (IBM, USA) 对抗生素和 ARGs 的相关性分析采用皮尔逊相关性检验.

2 结果与讨论

2.1 抗生素空间分布特征

长江武汉段水源地监测点位和抗生素空间分布情况如图 1 所示, 4 大类抗生素在长江干流、支流汉江和其他支流均有不同程度检出 (表 2), 其中四环素类抗生素 (TCs) 检出率为 6.3%; 喹诺酮类抗生

素 (FQs) 检出率为 47.9%, 其中罗红霉素 (OFL) 和恩诺沙星 (ENR) 的检出率分别为 75.0% 和 68.8%; 大环内酯类抗生素 (MCs) 检出率为 50.0%, 红霉素 (RTM) 在各水源地中均有检出; 磺胺类抗生素 (SAs) 检出率高达 77.5%, 其中磺胺嘧啶 (SDZ) 和磺胺对甲氧嘧啶 (SMD) 的检出率均为 100%, 磺胺甲噁唑 (SMX) 和磺胺吡啶 (SP) 的检出率均高于 90%. 结果表明, 武汉市 16 处饮用水源均存在不同程度的抗生素残留, 其中 SAs 的赋存较为普遍, 这与长江入海口的研究结果相一致^[28], 表明 SAs 在长江流域广泛使用, 同时由于水环境中的 SAs 具有高度稳定性和较强亲水性, 易于在水体中赋存扩散, 故其

在地表水中检出率较高^[29,30]. 四环素类抗生素 (TCs) 检出率仅为 6.3%, 这是由于水环境中的金属离子 (Ca^{2+} 、 Mg^{2+} 和 Al^{3+})、蛋白质、硅醇基 (SiOH) 和腐殖酸等物质对 TCs 具有较强的吸附作用^[31], 同样 Yin^[4] 研究发现 TCs 与水体中颗粒物和沉积物的强结合作用会导致 TCs 在水环境中检出情况不佳.

长江武汉段水源地抗生素的分布情况如图 2 所示, 13 种目标抗生素浓度平均值为 $30.17 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$. FQs、SAs、MCs 和 TCs 的浓度平均值分别为 15.48、12.17、2.39 和 $0.14 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$. 其中长江干流和汉江的 MCs 残留浓度在 $1.49 \sim 2.50 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$ 范围之间, 质量分数整体上较为稳定, 这可能是由于 RTM 为尺寸分子, 使其具有较强的疏水性, 其次是 RTM 在水和沉积物间的分配系数差异过大, 造成了水环境中 RTM 浓度值偏低波动较小^[32]. 除 SW16 处总抗生素浓度达到 $185.02 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$ 外, SW1 ~ SW15 的总抗生素浓度均处于 ND (未检出) ~ $29.54 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$ 范围内, 浓度平均值为 $3.77 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$. 在长江干流上游点位 (SW1 ~ SW5) 中, SW5 处总抗生素浓度明显大于其他四点, 为 $17.14 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$, 其中 SAs 占比为 71.9%, SMX 和 SDZ 浓度分别为 $5.11 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$ 和 $3.64 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$. 长江干流下游点位 (SW6 ~ SW8) 的总抗生素浓度分别是 8.70、13.34 和 $11.24 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$, SAs 的质量分数分别为 75.6%、53.7% 和 65.9%. 整体而言, SW6 ~ SW8 的总抗生素浓度略高于 SW1

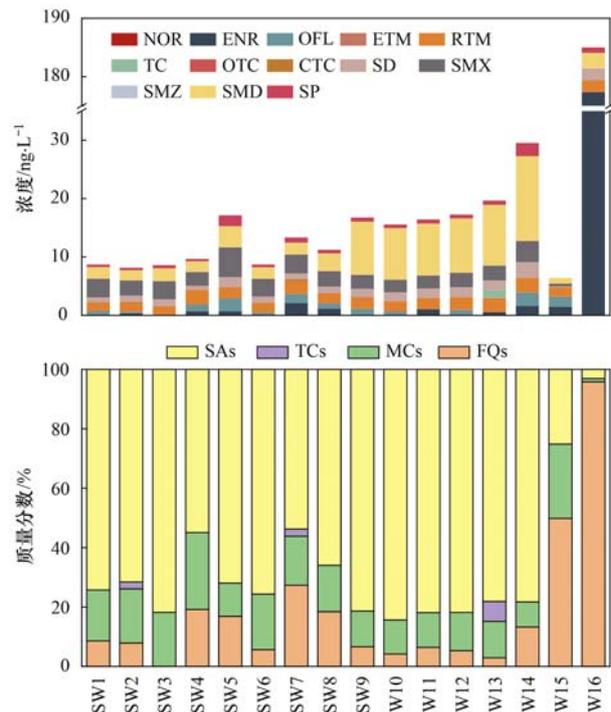


图 2 长江武汉段水源地的抗生素分布情况

Fig. 2 Distribution of antibiotics in water source areas of the Wuhan section of the Yangtze River

~SW4, 支流汉江 (SW9 ~ SW14) 的总抗生素浓度水平明显高于长江干流 (图 2), 但是汉江年径流量约占长江武汉段干流年径流量的 5% (2020 年度)^[33], 在汉江汇入长江后, 长江干流下游所受的影响较小. SW9 ~ SW14 点位的总抗生素浓度范围为 $15.56 \sim 29.54 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$, 浓度平均值为 $19.20 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$.

表 2 长江干流 (武汉段) 及各支流水源地抗生素的检出情况¹⁾

Table 2 Detection of antibiotics in the main stream of the Yangtze River (Wuhan section) and its tributaries

抗生素	长江干流				支流汉江			其他支流		
	检出率	浓度平均值	范围	检出率	浓度平均值	范围	检出率	浓度平均值	范围	
喹诺酮类 抗生素 (FQs)	NOR	0.00	0.00	ND (未检出)	0.00	0.00	ND	0.00	0.00	ND
	ENR	75.00	0.63	ND ~ 2.09	50.00	0.54	ND ~ 1.56	100.00	89.40	1.43 ~ 177.37
	OFL	87.50	0.92	ND ~ 2.24	66.67	0.84	ND ~ 2.35	50.00	0.89	ND ~ 1.77
	∑ FQs	54.17	0.51	ND ~ 2.24	38.89	0.46	ND ~ 2.35	50.00	30.09	ND ~ 177.37
四环素类 抗生素 (TCs)	TC	0.00	0.00	ND	16.67	0.22	ND ~ 1.32	0.00	0.00	ND
	OTC	0.00	0.00	ND	0.00	0.00	ND	0.00	0.00	ND
	CTC	25.00	0.06	ND ~ 0.33	0.00	0.00	ND	0.00	0.00	ND
	∑ TCs	8.33	0.02	ND ~ 0.33	5.56	0.07	ND ~ 1.32	0.00	0.00	ND
大环内酯类 抗生素 (MCs)	ETM	0.00	0.00	ND	0.00	0.00	ND	0.00	0.00	ND
	RTM	100.00	1.82	1.49 ~ 2.50	100.00	2.14	1.79 ~ 2.50	100.00	1.81	1.61 ~ 2.01
	∑ MCs	50.00	0.91	ND ~ 2.50	50.00	1.07	ND ~ 2.50	50.00	0.90	ND ~ 2.01
磺胺类 抗生素 (SAs)	SDZ	100.00	1.08	0.69 ~ 1.72	100.00	1.75	1.39 ~ 2.68	100.00	1.12	0.18 ~ 2.06
	SMX	100.00	3.17	2.37 ~ 5.11	100.00	2.59	2.16 ~ 3.64	50.00	0.23	ND ~ 0.46
	SMZ	0.00	0.00	ND	0.00	0.00	ND	0.00	0.00	ND
	∑ SAs	100.00	2.31	1.72 ~ 3.64	100.00	10.18	8.83 ~ 14.53	100.00	1.80	0.98 ~ 2.63
其他	SMD	100.00	0.71	0.41 ~ 1.87	100.00	0.96	0.62 ~ 2.27	50.00	0.48	ND ~ 0.96
	SP	100.00	0.71	0.41 ~ 1.87	100.00	0.96	0.62 ~ 2.27	50.00	0.48	ND ~ 0.96
	∑ 其他	80.00	1.45	ND ~ 5.12	80.00	3.09	ND ~ 14.53	60.00	0.73	ND ~ 2.63
∑ 13 种抗生素	52.88	0.82	ND ~ 5.12	48.72	1.48	ND ~ 14.53	42.31	7.36	ND ~ 177.37	

1) 检出率单位为%, 以大于等于检出限的样本量为原则计算检出率; 浓度平均值单位为 $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$, 抗生素未检出记为 0.00; 浓度范围单位为 $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$

其中 SW9 点位在上游工业区(医院、屠宰场和垃圾填埋场等)的影响下,其总抗生素浓度高于 SW10 和 SW11,为 $16.78 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$. SW10 ~ SW14 点位的总抗生素浓度由 $15.56 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$ 逐渐提高至 $29.54 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$,其中各点位 SAs 的浓度依次为 13.13 、 13.45 、 14.13 、 15.35 和 $23.12 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$. 这与长江南京段的 SAs 检出水平 ($\text{ND} \sim 27.02 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$) 相当^[34],但明显低于长江入海口 SAs 的检出浓度 $156.5 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$ ^[35],而长江中下游 SAs 残留水平远高于南极海水中的浓度^[36]. 这表明抗生素的环境残留与人类活动的密集程度有关. 对于潏水(SW15)和举水(SW16)等其他支流,SW15 的总抗生素残留浓度为 $6.42 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$,其中 FQs 的质量分数约 50%. SW16 的总抗生素残留浓度为 $185.02 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$,其中恩诺沙星检出浓度为 $177.37 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$. 这是由于该监测点位于畜禽养殖企业的下游,FQs 的使用量较大,引起周边水环境抗生素残留超标. 总体来看,抗生素的空间分布表现(以总抗生素浓度计):支流举水 < 长江干流下游 < 长江干流上游 < 支流汉江 < 支流潏水,16 处水源地(10 月)总抗生素浓度整体处于 $6.42 \sim 185.02 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$ 范围内,其中 SW2 和 SW7 分别检出了 9 种和 7 种抗生素,磺胺类抗生素检出率最高,达 77.5%.

2.2 抗性基因空间分布特征

10 种 ARGs 和 16S rDNA 的绝对丰度绘制的抗性基因热图如图 3 所示. 目标基因均有不同程度地检出,绝对丰度在 $1.33 \times 10^4 \sim 2.66 \times 10^{10} \text{ copies}\cdot\text{L}^{-1}$ 范围内,可以确定本采样区域内水体中主要的抗性基因为 *sul1*、*sul2*、*int11* 和 *ermB*,长江干流下流表层水中抗性基因研究也得出类似结果^[37]. 从四类 ARGs 总绝对丰度的空间分布来看,长江干流下游(SW6 ~ SW8)的 ARGs 总绝对丰度分别为 1.23×10^8 、 7.99×10^7 和 $4.02 \times 10^7 \text{ copies}\cdot\text{L}^{-1}$,明显高于其他点位,其中长江干流上游的 ARGs 总绝对丰度范围为 $8.49 \times 10^6 \sim 2.47 \times 10^7 \text{ copies}\cdot\text{L}^{-1}$,汉江和其他支流的 ARGs 总绝对丰度范围为 $1.72 \times 10^6 \sim 2.75 \times 10^7 \text{ copies}\cdot\text{L}^{-1}$. 汉江(SW9 ~ SW14)的沿程 ARGs 总绝对丰度呈现平稳下降趋势,其中磺胺类 ARGs 中 *sul1* 的绝对丰度最高,占 ARGs 总绝对丰度的 82.5% ~ 92.0%. 这可能与环境中磺胺类 ARGs 的稳定性有关,该类 ARGs 容易被 *int11* 捕获并在环境中持续传播,抗性基因的丰度会随时间流逝而逐渐增加. *sul1* 是所有样品中的主导基因,绝对丰度的范围为 $1.09 \times 10^5 \sim 1.13 \times 10^8 \text{ copies}\cdot\text{L}^{-1}$,对于 *sul2* 在相应时期的平均绝对丰度为 $7.04 \times 10^5 \text{ copies}\cdot\text{L}^{-1}$. 独立样本 *t*-检验结果表明,平均丰度较

高的磺胺类 ARGs 显著高于其他三类 ARGs 的平均丰度 ($P < 0.05$),表明磺胺类 ARGs 是长江武汉段水源地中的优势耐药基因,有研究表明 *sul1* 和 *sul2* 还是沉积物中最普遍的 ARGs,因为 SAs 是水产养殖中最常用的抗生素之一^[38]. 大部分进入动物肠道的 SAs 最终以原药的形式排放到环境中,这势必会导致武汉及其周边水环境中磺胺类 ARGs 的丰度水平提升. 四环素类、大环内酯类和喹诺酮类 ARGs 在绝对丰度上并无显著差异,其平均绝对丰度分别为 2.14×10^5 、 2.06×10^5 和 $2.14 \times 10^5 \text{ copies}\cdot\text{L}^{-1}$. 与发达国家相比,发展中国家普遍存在抗生素消耗量大和污水处理水平低下等情况,但研究表明发展中国家和发达国家的 ARGs 丰度水平并未有显著性差异,可以说明 ARGs 的分布并不完全同抗生素一致^[38].

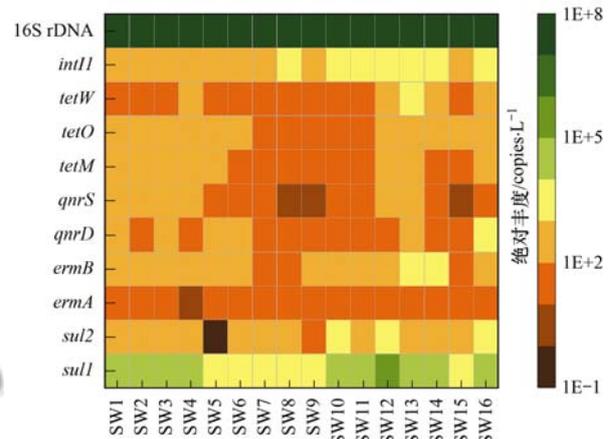


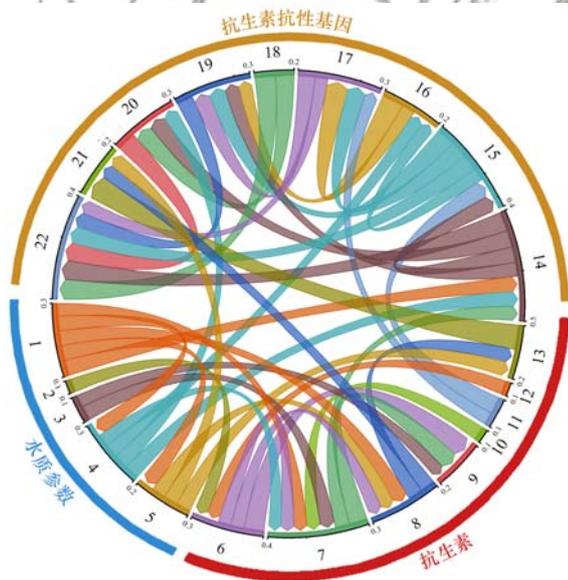
图 3 长江武汉段水源地 ARGs 的分布情况

Fig. 3 Distribution of ARGs in the Wuhan section of the Yangtze River

2.3 抗生素和抗性基因相关性研究

使用 SPSS 软件中 Pearson 相关系数分析 ARGs、抗生素和常规水质指标之间的相关性(图 4),由图可知,研究区域内水源地表层水的 10 种 ARGs 与 TN、TP 和 I_{Mn} 等常规水质参数均无显著相关性关系,浊度(NTU)与 3 种 ARGs(*sul2*、*tetO* 和 *int11*)均存在直接负相关关系 ($P < 0.05$),pH 与 *qnrD* 存在显著负相关关系 ($P < 0.05$). SMD 与 I_{Mn} 和 TN 等水质指标均表现为正相关关系,SDZ 与 TN 存在正相关关系 ($P < 0.05$),Cheng 等^[32]发现水体中 SMD 和 SDZ 浓度水平可能与污水排放量呈正相关关系,这是由于水质参数可以反映水体的富营养化状态,而水体富营养化与污水排放量具有直接关系. 抗生素与 ARGs 间关系密切,如 CTC 与 *tetW* 存在正相关关系 ($P < 0.01$),而 CTC 与 *tetM* 则存在负相关关系 ($P < 0.05$),2 种抗生素(SMX 和 ENR)与 *qnrD* 存在负相关关系 ($P < 0.05$). 通过图谱可以看

出 ARGs 的诱导不仅受到对应抗生素的选择压力, 其他抗生素也会诱导于非对应 ARGs 的产生. Der Beek 等^[14]研究发现 ARGs 与抗生素呈负相关, 这可能是因为水环境中的影响因素复杂, 许多因素会影响抗生素与其相应的 ARGs 之间的直接相关性. 对于四环素类 ARGs, *tetM* 与 2 种 ARGs (*tetO* 和 *tetW*) 存在显著性正相关关系 ($P < 0.01$), 相关系数为 0.878 和 0.764. 对于其他种类的 ARGs 而言, 组内 ARGs 间的相关性弱于组间 ARGs 的相关性, 其中 *sul1* 与 5 种 ARGs (*sul2*、*ermB*、*qnrS*、*tetW* 和 *intI1*) 存在显著正相关关系 ($P < 0.01$), 相关系数分别为 0.768、0.648、0.824、0.678 和 0.790; *sul2* 与 2 种 ARGs (*qnrS* 和 *intI1*) 存在显著性正相关 ($P < 0.01$); *ermB* 与 2 种 ARGs (*tetM* 和 *tetW*) 存在显著性正相关 ($P < 0.01$); *tetW* 与 *intI1* 存在显著性正相关 ($P < 0.01$). 此外, 整合子 *intI1* 与 *sul1* 和 *sul2* 有非常紧密关系, *intI1* 和 SMD 也存在相关性, 表明 *intI1* 在磺胺类 ARGs 的水平转移中起着重要作用, 这与 Ma 等^[39]研究的结果相一致. 除了抗生素诱导等耐药机制, 环境条件和人类活动等外部因素也至关重要^[40]. 这些不同的因素会形成共同选择和交叉选择效应对 ARGs 的诱导产生和传播造成影响.



1. *I_{Mn}*, 2. TP, 3. TN, 4. NTU, 5. pH, 6. SP, 7. SMD, 8. SMX, 9. SDZ, 10. RTM, 11. CTC, 12. OFL, 13. ENR, 14. *intI1*, 15. *tetW*, 16. *tetO*, 17. *tetM*, 18. *qnrS*, 19. *ermB*, 20. *sul2*, 21. *qnrD*, 22. *sul1*

图 4 抗性基因和水质参数及抗生素之间的联系

Fig. 4 Associations between antibiotic resistance genes and water quality parameters and antibiotics

2.4 抗生素生态风险评价

根据风险熵值 (RQ) 的计算评价方法, 计算得到长江武汉段 16 处水源地抗生素的 RQ 及联合生态

风险熵 (RQ_{sum}), 如图 5 所示. 从中可知有 4 种抗生素对部分水源地相应敏感水生生物表现为中风险, 分别是 SMX、OFL、CTC 和 ENR, 其中 CTC 和 ENR 分别对 SW7 和 SW16 表现出中风险, SMX 和 OFL 对长江和汉江多处水源地相应敏感水生生物均呈现出慢性或急性毒性风险, 整个研究区域内中风险点位占比情况为 9.0%. SMX、OFL、CTC、RTM、SMD 和 SP 等 6 种抗生素对部分水源地相应敏感水生生物表现为低风险, 整个研究区域内低风险点位占比情况为 30.6%. 其中 RTM 对藻类 *P. subcapitata* 的无观察效应浓度 (NOEC) 为 $10.0 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$, 其相应 RQ 值处于 0.015 ~ 0.025 范围内, 是唯一一种 100% 对敏感生物显现中风险的抗生素. 在 SAs 中, SMX 对汉江以及长江汇流后的敏感生物 *Blue-green alga* 显现出中低风险情况, SP 对长江汇流后和汉江敏感生物 *Daphnia magna* 显现为低风险, 有 37.5% 的水源地为无风险. SMD 仅在 SW14 对敏感生物 *Daphnia magna* 表现为低风险, 其他点位均无风险. 在 FQs 中, OFL 对海洋发光费氏弧菌 *V. fischeri* 的无观察效应浓度 (NOEC) 为 $1.13 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$, 其水中无效应浓度 PNEC 为 $11.3 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$, 除在 SW3、SW11、SW13 和 SW16 为无风险, 其他水源地中均为中低风险. ENR 除 SW16 外对其他水源地的敏感生物 *Daphnia magna* 均无风险, SW16 的 ENR 残留浓度为 $177.37 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$, 表现为高风险. 对于联合毒性风险熵 (RQ_{sum}), 16 处水源地的 RQ_{sum} 均表现为中风险, 所在河流的 RQ_{sum} (平均值) 大小依次为: 0.222 (汉江) < 0.267 (长江) < 0.299 (其他支流). 这表明即使痕量抗生素 (ng 级别) 也会对水源地中敏感生物, 特别

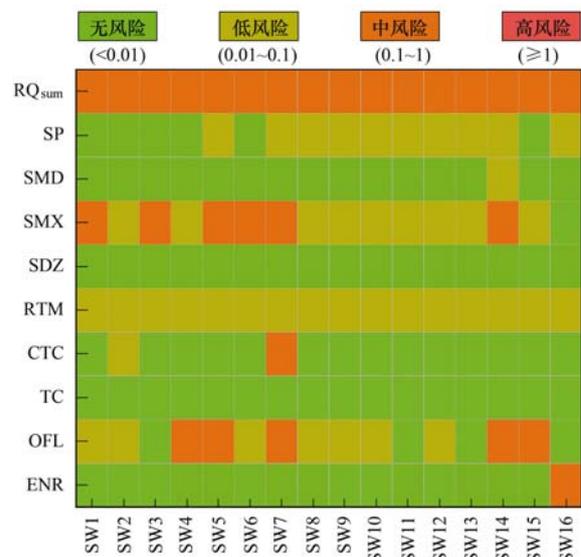


图 5 长江武汉段水源地抗生素对敏感生物的生态风险熵

Fig. 5 Ecological Risk Quotient of antibiotics to sensitive organisms in water source areas of the Wuhan section of the Yangtze River

是藻类有一定程度的生态风险,同时水环境中残留抗生素的种类繁多,且毒性也不相统一,但多种抗生素之间可能存在协同作用以增加生态风险^[41],建议加强抗生素组合效应的研究以更好地评估抗生素残留在水生环境中的生态毒理学潜在风险。

3 结论

(1) 抗生素浓度的大小空间分布表现为(以总抗生素浓度计):支流举水 < 长江干流下游 < 长江干流上游 < 支流汉江 < 支流淝水,16 处水源地(10 月)抗生素浓度整体处于 $6.42 \sim 185.02 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$ 范围内,其中 SW2 和 SW7 分别检出了 9 种和 7 种抗生素,磺胺类抗生素检出率最高,达 77.5%。

(2) ARGs 的空间分布为长江干流下游 ARGs 总绝对丰度明显高于长江干流上游和汉江,其中 *sul1* 绝对丰度的范围为 $1.09 \times 10^5 \sim 1.13 \times 10^8 \text{ copies} \cdot \text{L}^{-1}$,是所有样品中的主导基因,对于 *sul2* 在相应时期的平均绝对丰度为 $7.04 \times 10^5 \text{ copies} \cdot \text{L}^{-1}$ 。独立样本 *t*-检验结果表明,平均丰度较高的磺胺类 ARGs 显著高于其他三类 ARGs 的平均丰度($P < 0.05$),这表明磺胺类 ARGs 是长江武汉段水源地中的优势耐药基因。

(3) TN 和 I_{Mn} 等水质参数与抗生素多呈现正相关关系,NTU 和 pH 等水质参数与部分 ARGs 呈现负相关关系;抗生素与 ARGs 间关系密切,ARGs 的诱导不仅受到对应抗生素的选择压力,其他抗生素也会诱导非对应 ARGs 的产生;ARGs 中 *sul1* 与 *sul2*、*ermB*、*qnrS*、*tetW* 和 *intI1* 等 5 种 ARGs 存在显著正相关关系($P < 0.01$),相关系数分别为 0.768、0.648、0.824、0.678 和 0.790,磺胺类 ARGs 组内相关性弱于组间 ARGs 的相关性,其中 *intI1* 在磺胺类 ARGs 的水平转移中起着重要作用。

(4) 磺胺甲噁唑、金霉素、罗红霉素和恩诺沙星等 4 种抗生素对部分水源地相应敏感水生生物表现为中风险,生态风险熵热图中各风险区占比情况依次为:9.0% (中风险)、30.6% (低风险) 和 60.4% (无风险)。16 处水源地的联合毒性生态风险评估(RQ_{sum}) 均为中风险,所涉及河流的 RQ_{sum} (平均值) 大小依次为:0.222 (汉江) < 0.267 (长江) < 0.299 (其他支流)。

参考文献:

[1] Peiris C, Gunatilake S R, Mlsna T E, et al. Biochar based removal of antibiotic sulfonamides and tetracyclines in aquatic environments: a critical review [J]. *Bioresource Technology*, 2017, **246**: 150-159.

[2] Lienert J, Güdel K, Escher B I. Screening method for ecotoxicological hazard assessment of 42 pharmaceuticals

considering human metabolism and excretory routes [J]. *Environmental Science & Technology*, 2007, **41** (12): 4471-4478.

[3] 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.

[4] Yin Z Z. Distribution and ecological risk assessment of typical antibiotics in the surface waters of seven major rivers, China [J]. *Environmental Science: Processes & Impacts*, 2021, **23** (8): 1088-1100.

[5] Guan Y D, Wang B, Gao Y X, et al. Occurrence and fate of antibiotics in the aqueous environment and their removal by constructed wetlands in China: a review [J]. *Pedosphere*, 2017, **27**(1): 42-51.

[6] Wang G G, Zhou S H, Han X K, et al. Occurrence, distribution, and source track of antibiotics and antibiotic resistance genes in the main rivers of Chongqing City, Southwest China [J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2020, **389**, doi: 10.1016/j.jhazmat.2020.122110.

[7] Wang L F, Wang Y F, Li H, et al. Occurrence, source apportionment and source-specific risk assessment of antibiotics in a typical tributary of the Yellow River Basin [J]. *Journal of Environmental Management*, 2022, **305**, doi: 10.1016/j.jenvman.2021.114382.

[8] Gao L H, Shi Y L, Li W H, et al. Occurrence, distribution and bioaccumulation of antibiotics in the Haihe River in China [J]. *Journal of Environmental Monitoring*, 2012, **14** (4): 1247-1254.

[9] Lei K, Zhu Y, Chen W, et al. Spatial and seasonal variations of antibiotics in river waters in the Haihe River catchment in China and ecotoxicological risk assessment [J]. *Environment International*, 2019, **130**, doi: 10.1016/j.envint.2019.104919.

[10] 杨尚乐, 王旭明, 王伟华, 等. 松花江哈尔滨段及阿什河抗生素的分布规律与生态风险评估 [J]. *环境科学*, 2021, **42** (1): 136-146.

Yang S L, Wang X M, Wang W H, et al. Distribution and ecological risk assessment of antibiotics in the Songhua River Basin of the Harbin Section and Ashe River [J]. *Environmental Science*, 2021, **42**(1): 136-146.

[11] Wang W H, Zhang W F, Liang H, et al. Seasonal distribution characteristics and health risk assessment of typical antibiotics in the Harbin section of the Songhua River Basin [J]. *Environmental Technology*, 2019, **40**(20): 2726-2737.

[12] Xu W H, Yan W, Li X D, et al. Antibiotics in riverine runoff of the Pearl River delta and Pearl River Estuary, China: concentrations, mass loading and ecological risks [J]. *Environmental Pollution*, 2013, **182**: 402-407.

[13] Yang J F, Ying G G, Zhao J L, et al. Spatial and seasonal distribution of selected antibiotics in surface waters of the Pearl Rivers, China [J]. *Journal of Environmental Science and Health, Part B*, 2011, **46**(3): 272-280.

[14] Der Beek T A, Weber F, Bergmann A, et al. Pharmaceuticals in the environment-global occurrences and perspectives [J]. *Environmental Toxicology and Chemistry*, 2016, **35** (4): 823-835.

[15] Segura P A, Takada H, Correa J A, et al. Global occurrence of anti-infectives in contaminated surface waters: impact of income inequality between countries [J]. *Environment International*,

- 2015, **80**: 89-97.
- [16] Madikizela L M, Tavengwa N T, Chimuka L. Status of pharmaceuticals in African water bodies; occurrence, removal and analytical methods [J]. *Journal of Environmental Management*, 2017, **193**: 211-220.
- [17] 徐维海, 张干, 邹世春, 等. 典型抗生素类药物在城市污水处理厂中的含量水平及其行为特征[J]. *环境科学*, 2007, **28**(8): 1779-1783.
Xu W H, Zhang G, Zou S C, *et al.* Occurrence, distribution and fate of antibiotics in sewage treatment plants [J]. *Environmental Science*, 2007, **28**(8): 1779-1783.
- [18] 武俊梅, 魏琳, 彭晶倩, 等. 长江中游典型饮用水水源地中药物的时空分布及风险评价[J]. *环境科学*, 2022, **43**(6): 2996-3004.
Wu J M, Wei L, Peng J Q, *et al.* Spatiotemporal distribution and risk assessment of pharmaceuticals in typical drinking water sources in the middle reaches of the Yangtze River [J]. *Environmental Science*, 2022, **43**(6): 2996-3004.
- [19] 宋焕杰, 谢卫民, 王俊, 等. SPE-UPLC-MS/MS 同时测定水环境中 4 大类 15 种抗生素[J]. *分析试验室*, 2022, **41**(1): 50-54.
Song H J, Xie W M, Wang J, *et al.* Simultaneous determination of 15 antibiotics in 4 categories in water environment by SPE-UPLC-MS/MS [J]. *Chinese Journal of Analysis Laboratory*, 2022, **41**(1): 50-54.
- [20] Cleuvers M. Aquatic ecotoxicity of pharmaceuticals including the assessment of combination effects[J]. *Toxicology Letters*, 2003, **142**(3): 185-194.
- [21] Bateman G. Water framework directive special issue: editorial by Geoff Bateman[J]. *Water and Environment Journal*, 2008, **22**(4): 225-226.
- [22] Juradó A, Margareto A, Pujades E, *et al.* Fate and risk assessment of sulfonamides and metabolites in urban groundwater [J]. *Environmental Pollution*, 2020, **267**, doi: 10.1016/j.envpol.2020.115480.
- [23] Ferrari B, Mons R, Vollat B, *et al.* Environmental risk assessment of six human pharmaceuticals: are the current environmental risk assessment procedures sufficient for the protection of the aquatic environment? [J]. *Environmental Toxicology and Chemistry*, 2004, **23**(5): 1344-1354.
- [24] Eguchi K, Nagase H, Ozawa M, *et al.* Evaluation of antimicrobial agents for veterinary use in the ecotoxicity test using microalgae[J]. *Chemosphere*, 2004, **57**(11): 1733-1738.
- [25] Backhaus T, Scholze M, Grimme L H. The single substance and mixture toxicity of quinolones to the bioluminescent bacterium *Vibrio fischeri*[J]. *Aquatic Toxicology*, 2000, **49**(1-2): 49-61.
- [26] Zhou S B, Di Paolo C, Wu X D, *et al.* Optimization of screening-level risk assessment and priority selection of emerging pollutants—the case of pharmaceuticals in European surface waters [J]. *Environment International*, 2019, **128**: 1-10.
- [27] Lützhøft H C H, Halling-Sørensen B, Jørgensen S E. Algal toxicity of antibacterial agents applied in Danish fish farming[J]. *Archives of Environmental Contamination and Toxicology*, 1999, **36**(1): 1-6.
- [28] Chen J F, Tong T L, Jiang X S, *et al.* Biodegradation of sulfonamides in both oxic and anoxic zones of vertical flow constructed wetland and the potential degraders [J]. *Environmental Pollution*, 2020, **265**, doi: 10.1016/j.envpol.2020.115040.
- [29] Chen J F, Xie S G. Overview of sulfonamide biodegradation and the relevant pathways and microorganisms [J]. *Science of the Total Environment*, 2018, **640-641**: 1465-1477.
- [30] Zheng S L, Qiu X Y, Chen B, *et al.* Antibiotics pollution in Jiulong River estuary: source, distribution and bacterial resistance[J]. *Chemosphere*, 2011, **84**(11): 1677-1685.
- [31] Verma B, Headley J V, Roberts R D. Behaviour and fate of tetracycline in river and wetland waters on the Canadian northern great plains[J]. *Journal of Environmental Science and Health, Part A*, 2007, **42**(2): 109-117.
- [32] Cheng D M, Xie Y J, Yu Y J, *et al.* Occurrence and partitioning of antibiotics in the water column and bottom sediments from the intertidal zone in the Bohai Bay, China[J]. *Wetlands*, 2016, **36**(1): 167-179.
- [33] 水利部长江水利委员会. 长江泥沙公报-2020[M]. 武汉: 长江出版社, 2020.
- [34] Liu Y H, Feng M J, Wang B, *et al.* Distribution and potential risk assessment of antibiotic pollution in the main drinking water sources of Nanjing, China [J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2020, **27**(17): 21429-21441.
- [35] Li F F, Chen L, Chen W D, *et al.* Antibiotics in coastal water and sediments of the East China sea: distribution, ecological risk assessment and indicators screening [J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2020, **151**, doi: 10.1016/j.marpolbul.2019.110810.
- [36] Hernández F, Calisto-Ulloa N, Gómez-Fuentes C, *et al.* Occurrence of antibiotics and bacterial resistance in wastewater and sea water from the Antarctic [J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2019, **363**: 447-456.
- [37] Zhang G D, Lu S Y, Wang Y Q, *et al.* Occurrence of antibiotics and antibiotic resistance genes and their correlations in lower Yangtze River, China[J]. *Environmental Pollution*, 2020, **257**, doi: 10.1016/j.envpol.2019.113365.
- [38] Gao Q X, Li Y L, Qi Z H, *et al.* Diverse and abundant antibiotic resistance genes from mariculture sites of China's coastline[J]. *Science of the Total Environment*, 2018, **630**: 117-125.
- [39] Ma L P, Li A D, Yin X L, *et al.* The prevalence of integrons as the carrier of antibiotic resistance genes in natural and man-made environments[J]. *Environmental Science & Technology*, 2017, **51**(10): 5721-5728.
- [40] Lu L H, Liu J, Li Z, *et al.* Occurrence and distribution of tetracycline antibiotics and resistance genes in longshore sediments of the Three Gorges Reservoir, China[J]. *Frontiers in Microbiology*, 2018, **9**, doi: 10.3389/fmicb.2018.01911.
- [41] Park S, Choi K. Hazard assessment of commonly used agricultural antibiotics on aquatic ecosystems[J]. *Ecotoxicology*, 2008, **17**(6): 526-538.

CONTENTS

Impact of Climate Change on Summer Ozone in China	HU An-qi, XIE Xiao-dong, GONG Kang-jia, <i>et al.</i>	(1801)
Spatial-temporal Variation and Driving Factors of Ozone in China from 2019 to 2021 Based on EOF Technique and KZ Filter	WANG Hao-qi, ZHANG Yu-fen, LUO Zhong-wei, <i>et al.</i>	(1811)
Photochemical Mechanism and Control Strategy Optimization for Summertime Ozone Pollution in an Industrial City in the North China Plain	ZHENG Zhen-sen, DOU Jian-ping, ZHANG Guo-tao, <i>et al.</i>	(1821)
Spatiotemporal Evolution Characteristics of PM _{2.5} -O ₃ Compound Pollution in Chinese Cities from 2015 to 2020	NIU Xiao-xiao, ZHONG Yan-mei, YANG Lu, <i>et al.</i>	(1830)
Spatiotemporal Distribution Characteristics of Co-pollution of PM _{2.5} and Ozone over BTH with Surrounding Area from 2015 to 2021	SONG Xiao-han, YAN Li, LIU Wei, <i>et al.</i>	(1841)
Spatio-temporal Variation in PM _{2.5} Concentration and Its Relationship with Vegetation Landscape Patterns in Typical Economic Zones in China from 2000 to 2020	XU Yong, LI Xin-yi, HUANG Wen-ting, <i>et al.</i>	(1852)
Characteristics and Source Apportionment of Atmospheric Ion Deposition During Winter and Spring in the Core Area of Beijing	ZHAO Yu, LI Bei-bei, HUANG Yu-hu, <i>et al.</i>	(1865)
Input Characteristics of Dry Deposition of Atmospheric Particulates and Metals in Farmland in the Suburb of Nanjing	LIU Cui-ying, JIN Hao, FAN Jian-ling	(1873)
Pollution Characterizations and Oxidative Potentials of Water-Soluble Organic Matters at Different Polarity Levels in Winter PM _{2.5} Over Xi'an	LUO Yu, HUANG Sha-sha, ZHANG Tian, <i>et al.</i>	(1882)
Emission Characteristics of Organic Carbon and Elemental Carbon in PM ₁₀ and PM _{2.5} from Vehicle Exhaust and Civil Combustion Fuels	WANG Hong-lei, LIU Si-han, SUN Jie-juan, <i>et al.</i>	(1890)
Characteristics and Source Apportionment of PM _{2.5} in the Core Area of Ili River Valley in Spring	GU Chao, XU Tao, MA Chao, <i>et al.</i>	(1899)
Evaluation of Changes in PM _{2.5} Exposure Concentration and Health Risk for Urban Resident in Zhengzhou Based on High Spatial Resolution Grids	LI Yuan, XU Yi-fei, YUAN Ming-hao, <i>et al.</i>	(1911)
Emission Inventory of Building Material Industry in Henan Province Based on Multi-source Data Integration	LIU Xiao, HU Jing-nan, WANG Hong-mei, <i>et al.</i>	(1924)
Pollution Characteristics and Source Apportionment of Atmospheric Volatile Organic Compounds in Winter in Kaifeng City	SHI Yu-qi, ZHENG Kai-yun, DING Wei-ling, <i>et al.</i>	(1933)
Changes in O ₃ -VOCs-NO _x Sensitivity and VOCs Sources at an Urban Site of Nanjing Between 2020 and 2021	LU Xiao-bo, WANG Ming, DING Feng, <i>et al.</i>	(1943)
Variation Characteristics and Ozone Formation Potential of Ambient VOCs in Urban Beijing in Summer	ZHANG Rui, SUN Xue-song, WANG Yu, <i>et al.</i>	(1954)
Chemical Characteristics and Source Apportionment for VOCs During the Ozone Pollution Episodes and Non-ozone Pollution Periods in Qingdao	JIA Zhi-hai, GU Yao, KONG Cui-li, <i>et al.</i>	(1962)
Characteristics of O ₃ Production in the Western Suburb of Hefei in Summer Based on the Observation of Total Peroxy Radical	YU Hui, WEI Na-na, XU Xue-zhe, <i>et al.</i>	(1974)
Evaluation of Energy Saving and Carbon Reduction Effect of Air Pollution Prevention and Control Action Plan and Innovation Intermediary Effect	LI Shao-lin, WANG Qi-qi	(1985)
Scenario Simulation and Effects Assessment of Co-control on Pollution and Carbon Emission Reduction in Beijing	YU Shan, ZHANG Shuang, ZHANG Zeng-jie, <i>et al.</i>	(1998)
Simulation of Anthropogenic CO ₂ Emissions in the Yangtze River Delta Based on Different Emission Inventories	MA Xin-yi, HUANG Wen-jing, HU Ning, <i>et al.</i>	(2009)
Water Quality Change Trend and Risk Analysis of Wuhan Hanjiang River Water Source	ZHUO Hai-hua, LOU Bao-feng, XU Jie, <i>et al.</i>	(2022)
Pollution Characteristics and Risk Assessment of Antibiotics and Resistance Genes in Different Water Sources in the Wuhan Section of the Yangtze River	LI Bo-lin, ZHANG He, WANG Jun, <i>et al.</i>	(2032)
Occurrence Characteristics, Sources, and Toxicity Risk Analysis of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Typical Rivers of Northern Shaanxi Mining Area, China	WU Xi-jun, DONG Ying, ZHAO Jian, <i>et al.</i>	(2040)
Spatio-temporal Characteristics of Organic Aggregates and the Driving Factors in Typical Lakes	XIE Gui-juan, GONG Yi, ZHU Fu-cheng, <i>et al.</i>	(2052)
Distribution Characteristics and Risk Assessment of Microplastics in Water of Different Functional Parks in Guilin	LI Pei-zhao, WU Li, HUANG Fei-fei, <i>et al.</i>	(2062)
Environmental Driving Factors and Assessment on the Aquatic Ecosystem of Periphytic Algae of Six Inflow Rivers in Yangtze River Basin	ZHANG Jing, HU Yu-xin, HU Sheng, <i>et al.</i>	(2072)
Influence and Driving of Environmental Heterogeneity on the Epilithic Diatom Community in Xiangxi River, a Tributary of the Three Gorges Reservoir Area	Ji Lu-lu, ZHAO Lu, OUYANG Tian, <i>et al.</i>	(2083)
Characteristics of Phytoplankton Communities and Key Impact Factors in Three Types of Lakes in Wuhan	ZHANG Hao-kun, MIN Fen-li, CUI Hui-rong, <i>et al.</i>	(2093)
Effects of Heavy Metal Pollution on the Structure of Microbial Communities in Different Habitats	HE Yi-fan, XIAO Xin-zong, WANG Jia-wen	(2103)
Structure and Distribution Characteristics of Bacterial Community in Boqing River Water	WANG Sen, CHEN Jian-wen, ZHANG Hong, <i>et al.</i>	(2113)
Effects of Microplastic Exposure on the Community Structure and Function of Symbiotic Bacteria in <i>Sinularia microclavata</i>	LIU Min, CHE Wen-xue, ZENG Ying-xu, <i>et al.</i>	(2122)
Distribution Characteristics and Health Risk Assessment of Emerging Contaminants from Raw Water to Drinking Water in Shanghai	YAN Qi	(2136)
Adsorption Characteristics of Fluoride in Low-Concentration Water by Aluminum and Zirconium-Modified Biochar	LIU Yan-fang, GAO Wei, LIU Rui, <i>et al.</i>	(2147)
Sorption Characteristics and Site Energy Distribution Theory of Typical Estrogens on Microplastics	LIU Jiang-yan, ZHENG Mi-mi, HU Jia-wu, <i>et al.</i>	(2158)
Selection and Evaluation of Model Pollutants for Performance Assessment of Advanced Treatment of Industrial Park Wastewater by Ozonation	XIN Bo, SHAN Chao, LÜ Lu	(2168)
Identifying Driving Factors and Their Interacting Effects on Sources of Heavy Metal in Farmland Soils with Geodetector and Multi-source Data	ZHANG Hong-ze, CUI Wen-gang, LIU Sui-hua, <i>et al.</i>	(2177)
Pollution Characteristics and Source Apportionment of Heavy Metals in Farmland Soils Around the Gangue Heap of Coal Mine Based on APCS-MLR and PMF Receptor Model	MA Jie, SHEN Zhi-jie, ZHANG Ping-ping, <i>et al.</i>	(2192)
Contamination and Probabilistic Health Risk Assessment of Heavy Metals in Agricultural Soils Around a Lead-Zinc Smelter	HUANG Jian-bo, JIANG Deng-deng, WEN Bing, <i>et al.</i>	(2204)
Prediction of PAHs Content in Soil Around Gas Stations in Beijing Based on BP Neural Network	MA Sai-yan, WEI Hai-ying, MA Jin, <i>et al.</i>	(2215)
Spatial-temporal Distribution and Risk Assessment of Quinolones Antibiotics in Soil of Shijiazhuang City	ZHAO Xin-yu, CHEN Hui, ZHAO Bo, <i>et al.</i>	(2223)
Accumulation and Pollution Risks of Heavy Metals in Soils and Agricultural Products from a Typical Black Shale Region with High Geological Background	DENG Shuai, DUAN Jia-hui, NING Mo-huan, <i>et al.</i>	(2234)
Geochemical Characteristics of Cd in Different Parent Soils in Karst Area and Prediction of Cd Content in Maize	DAI Liang-liang, XU Hong-gen, GONG Hao, <i>et al.</i>	(2243)
Pollution Risk and Contribution Analysis of Pb, Cd, and As in Soils and Crops Under Different Land Use Types in Longyan City	WANG Rui, CHEN Nan, ZHANG Er-xi	(2252)
Influencing Factors of Cadmium Content in Wheat Grain: A Meta-analysis and Decision Tree Analysis	LIU Na, ZHANG Shao-bin, GUO Xin-yu, <i>et al.</i>	(2265)
Response Characteristics of Soil Organic Carbon Pool and Its Chemical Composition During Secondary Forest Succession in the Loess Plateau	LIU Han-yu, LIU Ying-yi, ZHANG Qi, <i>et al.</i>	(2275)
Effects of Short-Term Nitrogen and Phosphorus Addition on Soil Respiration Components in a Subalpine Grassland of Qilian Mountains	JIANG Yuan, GAN Xiao-ling, CAO Feng-feng, <i>et al.</i>	(2283)
Response of Soil Microbial Diversity to Long-term Enclosure in Degraded Patches of Alpine Meadow in the Source Zone of the Yellow River	YANG Peng-nian, LI Xi-lai, LI Cheng-yi, <i>et al.</i>	(2293)
Diversity and Predictive Functional of <i>Caragana jubata</i> Bacterial Community in Rhizosphere and Non-rhizosphere Soil at Different Altitudes	LI Yuan-yuan, XU Ting-ting, AI Zhe, <i>et al.</i>	(2304)
Effects of Simulated Acid Rain and Nitrogen Deposition on Soil Bacterial Community Structure and Diversity in the Masson Pine Forest	WANG Nan, QIAN Shao-yu, PAN Xiao-cheng, <i>et al.</i>	(2315)
Effects of Phosphogypsum and <i>Suaeda salsa</i> on the Soil Moisture, Salt, and Bacterial Community Structure of Salinized Soil	LIU Yue, YANG Shu-qing, ZHANG Wan-feng, <i>et al.</i>	(2325)
Effects of Combined Application of Fungal Residue and Chemical Fertilizer on Soil Microbial Community Composition and Diversity in Paddy Soil	GENG He-tian, WANG Xu-dong, SHI Si-bo, <i>et al.</i>	(2338)
Effects of Aeration on Surface Water Nutrient Dynamics and Greenhouse Gas Emission in Different Straw Returning Paddy Fields	HU Jin-hui, XUE Li-hong, QIAN Cong, <i>et al.</i>	(2348)
Effects of Exogenous Melatonin Treatment on the Growth and Antioxidant System of Rice Seedlings Under Antimony Stress	CHU Yu-tan, LI Yan, HUANG Yi-zong, <i>et al.</i>	(2356)
Life Cycle Prediction Assessment of Energy Saving and New Energy Vehicles for 2035	FU Pei, LAN Li-bo, CHEN Ying, <i>et al.</i>	(2365)
Distribution, Sources, and Behavioral Characteristics of Microplastics in Farmland Soil	BO Lu-ji, LI Bing, ZHANG Kai, <i>et al.</i>	(2375)
Research Progress on the Remediation Technology of Herbicide Contamination in Agricultural Soils	HU Fang-yu, AN Jing, WANG Bao-yu, <i>et al.</i>	(2384)
Research Progress and Prospect of Herbicide Residue Characteristics in Black Soil Region of China	LI Rui, WU Qiu-mei, ZHAO Gui-mei, <i>et al.</i>	(2395)