

目次

2013~2020年天津市PM_{2.5}-O₃污染变化趋势和影响因素分析 肖致美, 李亚菲, 高璟赞, 李鹏, 蔡子颖, 郑乃源, 张裕芬, 戴运峰 (4211)

2015~2020年济南市O₃污染趋势及敏感性变化分析 孙晓艳, 孙军, 郭萌萌, 刘杨, 王宝琳, 范国兰, 许宏宇, 姜腾龙 (4220)

南京市南部地区O₃污染特征、生成敏感性及传输影响分析 郑新梅, 胡崑, 王鸣, 谢放尖, 王艳 (4231)

天津市“十三五”期间O₃污染特征和驱动因子 李源, 肖致美, 毕晓辉, 蔡子颖, 徐虹, 高璟赞, 郑乃源, 杨宁 (4241)

基于随机森林的南京市PM_{2.5}和O₃对减排的响应 尚永杰, 茅宇豪, 廖宏, 胡建林, 邹泽庸 (4250)

基于四维通量法的佛山臭氧污染输送量化 吴莉萍, 莫海华, 杨丽婷, 蔡梓桐, 吴国彤, 白玉洁, 邓思欣, 司徒淑婷, 常鸣, 王雪梅 (4262)

污染地块VOCs源衰减对室内蒸气入侵风险的影响 钟茂生, 汪洋, 姜林, 张丽娜, 马琳, 张瑞环, 赵莹, 李吉鸿 (4271)

2017~2020年长江流域水体污染物通量时空变化特征分析 郭朝臣, 雷坤, 李晓光, 周波, 吕旭波 (4279)

滹沱河流域山区地表水-地下水水化学空间变化特征、影响因素及其来源 孔晓乐, 常玉儒, 刘夏, 赵小宁, 沈彦军 (4292)

重庆东南部岩溶水金属元素空间分布、源解析及健康风险评价 谢浩, 邹胜章, 李军, 申豪勇, 林永生, 周长松, 朱丹尼, 王志恒 (4304)

衡水市桃城区浅层地下水咸化成因 何锦, 张怀胜, 蔡五田, 王雨山 (4314)

吐鲁番南盆地平原区地下水污染风险评价 白凡, 周金龙, 周殿竹, 韩双宝, 孙英 (4325)

金属硫化物矿山水系统中微生物群落组成及多样性 丁聪聪, 朱旭炎, 赵兴青, 陆金, 周宇斌, 张欣怡, 王霄鹏 (4334)

白洋淀上覆水及沉积物中微塑料赋存特征 程昕煜, 杨丽虎, 宋献方 (4344)

基于溶解性有机物分子指纹特征解析城市河道污染来源与机制 朱奕, 叶建锋, 孙晓楠, 胡曙煜, 陈勋, 唐建飞, 陈浩 (4353)

甾体激素在污水处理厂中的赋存特征和行为归趋 刘媛媛, 冯慧, 张云, 叶亮, 钟琴, 邹华 (4364)

博鳌近岸海域表层沉积物中持久性有机污染物的分布、来源与生态风险评价 郝润波, 符国伟, 宋艳伟, 傅开哲, 袁坤 (4374)

太原市耕地土壤PAHs的含量、分布、源解析与风险评价 吴张伟, 段永红, 刘立文, 徐立帅, 陈香玲, 姚旭红 (4387)

雄安新区土壤氟地球化学特征及健康风险评价 郭志娟, 刘飞, 周亚龙, 王乔林, 王成文 (4397)

基于APCS-MLR和PMF模型解析黄河下游文化公园土壤重金属污染特征及来源分析 段海静, 马嘉玉, 彭超月, 刘德新, 王玉龙, 李旭辉, 马建华 (4406)

锰矿区周边农田土壤重金属污染特征、来源解析及风险评价 余高, 陈芬, 张晓东, 孙约兵 (4416)

老工业城市土壤-作物系统重金属的迁移累积及风险协同评价 王莹, 董爱俊, 杨建锋, 马彦斌, 王泽晶, 杨凡燕 (4429)

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 丁丹, 黄晓依, 顾静仪, 陈澄宇, 龙新亮, 曾巧云 (4440)

地质高背景区外源污染叠加条件下大白菜对Cd、Pb、Zn累积途径探究 简槐良, 刘鸿雁, 梅雪, 毛诗佳, 刘芳, 张秋野, 敬鹏 (4448)

微塑料与铅复合污染对玉米种子萌发与生长的影响 马贵, 廖彩云, 周悦, 丁家富, 周炎炎, 王展, 马燕 (4458)

施加Fe₃O₄/桑秸秆生物炭对土壤团形态和水稻砷含量的影响 阮麟乔, 梁美娜, 丁艳梅, 曹海燕, 刘崇敏, 成官文, 朱义年, 王敦球 (4468)

生物炭与氮肥配施对镉污染水稻土修复效应及机制 张丽, 李如霞, 何玉玺, 姚彦坡, 林大松 (4479)

不同氮肥配施生物炭对镉污染土壤青菜镉吸收的影响 李平, 聂浩, 郎漫, 朱燕菊, 姜海波, 李楠 (4489)

椰纤维生物炭及其硝酸改性对稻田土壤中Pb钝化的影响 侯正伟, 李建宏, 李财生, 张婧旻, 林清火, 赵庆杰, 吴治澎, 王禹 (4497)

生物炭施用对微塑料污染石灰性土壤理化性质和细菌群落的影响 冉泰山, 龙健, 廖洪凯, 李娟, 杨国梅, 赵雨鑫 (4507)

改性生物炭负载零价铁对土壤中三氯乙烯的去除及微生物响应 陆海楠, 理鹏, 郭琳, 徐佳成, 杨洁, 黄沈发, 柯天英 (4519)

改性酒糟生物炭对紫色土养分及酶活性的影响 由乐林, 谢永红, 王子芳, 杨文娜, 高明 (4530)

化肥减量配施生物炭和秸秆增加了坡耕地土壤中流磷流失风险 赖佳鑫, 邓华, 朱浩宇, 黄容, 龙翼, 王子芳, 高明 (4541)

污泥和鸡粪生物炭制备及其老化过程中的碳损失 张滢, 张长浩, 张秀芳, 段文焱, 陈芳媛 (4554)

化肥和有机肥配施生物炭对根际土壤反硝化势和反硝化细菌群落的影响 谢军, 王子芳, 王莹燕, 熊子怡, 高明 (4565)

黄河下游谷子花生间作农田土壤细菌群落结构与功能预测 刘柱, 南镇武, 林松明, 孟维伟, 于海秋, 谢立勇, 张正, 万书波 (4575)

微咸水灌溉下微生物菌肥对盐渍土壤理化性质和细菌群落的影响 刘月, 杨树青, 张万锋, 姜帅 (4585)

高效石油降解菌修复石油污染土壤与强化机制分析 姚贞先, 王丽萍, 李丹, 李亚平, 何士龙, 赵雅琴 (4599)

土地集约利用程度对华北潮土农田土壤微生物群落丰度和死生物物质积累的影响 李胜君, 盛美君, 李刚, 王蕊, 李洁, 张贵龙, 修伟明 (4611)

中国省域碳达峰路径与政策 苗安康, 袁越, 吴涵, 马欣, 邵辰宇 (4623)

基于碳减排成本的我国省域碳补偿机制 钟诗雨, 张晓敏, 吴佳, 郭娜, 封强, 傅泽强 (4637)

不同施肥措施下长江经济带地区农田土壤有机碳含量的变化分析 刘欣宇, 卢江, 孟璇, 刘铮, 宋鹏, 李季, 田光明 (4647)

中国西北地区多情景土地利用优化与碳储量评估 陈宁, 辛存林, 唐道斌, 张亮, 辛顺杰 (4655)

陕西渭北旱塬区生境质量及碳储量时空演变分析与模拟 古圳威, 刘京, 陈怡, 卢新冉, 王思轶 (4666)

气候变暖对四川盆地水稻土有机碳含量变化的影响 李艾雯, 宋靛颖, 冉敏, 李文丹, 张元媛, 李呈吉, 史文娇, 李启权 (4679)

降水改变下撂荒草地的化学计量失衡改变调节土壤呼吸 王佳懿, 王兴, 王源苗, 房景博, 夏开拉·阿克拜, 祖丽皮耶·居热艾提, 杨改河, 任成杰, 韩新辉 (4689)

水盐环境对黄河口淡水湿地土壤碳、氮、磷生态化学计量特征的影响 秦纪法, 张佳彭, 桑奕, 杨云斐, 杨继松, 王志康, 栗云召, 周迪, 于君宝 (4698)

中国省域土壤重金属空间分布特征及分区管控对策 石航源, 王鹏, 郑家桐, 肖荣波, 邓一荣, 庄长伟 (4706)

壬基酚的环境生物地球化学研究进展及对新污染物管理的建议 洪亚军, 冯承莲, 徐大勇, 吴丰昌 (4717)

微塑料的形成机制及其环境分布特征研究进展 张龙飞, 刘玉环, 阮榕生, 赵蓝天, 王允圃, 张琦, 曹雷鹏, 崔宪, 巫小丹, 郑洪立 (4728)

生物炭添加对土壤温室气体排放影响的长短期效应研究进展 周咏春, 吴柳林, 李丹阳, 郭思伯, 陈志敏, 李正龙, 赵研 (4742)

铁基双金属催化剂活化过硫酸盐去除水中抗生素研究进展 魏健, 张新怡, 郭壮, 宋永会 (4751)

畜禽粪便污染的环境风险与资源化治理技术分析 安婧, 丁子明, 高程程, 胡芳雨, 魏树和 (4764)

《环境科学》征订启事(4230) 《环境科学》征稿简则(4303) 信息(4506, 4678, 4741)

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

丁丹^{1,2,3}, 黄晓依^{1,2}, 顾静仪^{1,2}, 陈澄宇^{1,2}, 龙新宪^{1,2}, 曾巧云^{1,2*}

(1. 华南农业大学资源环境学院, 广州 510642; 2. 广东省农业农村污染治理与环境安全重点实验室, 广州 510642; 3. 深圳市源清环境科技服务有限公司, 深圳 518000)

摘要: 畜禽粪肥还田引起的土壤抗生素污染对蔬菜安全和土壤生态风险的影响应得到足够的重视。四环素类抗生素 (TCs) 在畜禽粪肥和蔬菜基地土壤中被普遍检出且含量较高。然而, 目前针对土壤 TCs 污染对蔬菜安全和土壤生态风险的研究主要采用盆栽试验和田间调查的研究方法, 较少开展田间试验。结合盆栽试验和田间试验的研究方法, 调查畜禽粪肥还田引起的 TCs 在土壤-蔬菜系统中的分布特征, 采用日允许摄入量-危害商值法 (ADI-HQ 法) 和物种敏感性分布-风险商值法 (SSD-RQ 法) 分别对蔬菜可食部分 TCs 污染的人体健康风险和土壤 TCs 污染的生态风险进行评估。结果表明, 盆栽试验和田间试验菜心地上部和地下部 TCs 含量均以 OTC 为主; 盆栽试验和田间试验菜心地上部 (以干重计) ω (OTC) 分别高达 29.25 $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ 和 45.03 $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$, 地下部含量 (以干重计) ω (OTC) 分别高达 87.32 $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ 和 135.44 $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$; 且田间试验菜心地上部和地下部 3 种 TCs 含量均显著高于盆栽试验。土壤 TCs 的残留以 OTC 为主, 盆栽试验和田间试验土壤 ω (OTC) 分别高达 604.30 $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ 和 1 013.68 $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$; 3 种 TCs 在田间试验土壤残留含量显著高于盆栽试验。试验条件下, 除田间试验菜心 OTC 含量对儿童的人体健康具有中风险外 ($\text{HQ} > 0.1$), 其它处理菜心 3 种 TCs 含量对成年人和儿童的人体健康风险均较低 ($\text{HQ} \leq 0.1$); 盆栽试验和田间试验土壤 3 种 TCs 残留均具有中等或高生态风险 ($\text{HQ} > 0.1$ 或 $\text{HQ} > 1$)。因此, 畜禽粪肥还田引起的土壤 TCs 污染对蔬菜安全和土壤生态风险的影响不容忽视。

关键词: 畜禽粪肥还田; 蔬菜生产基地; TCs 污染; 农产品安全; 土壤生态风险; 土霉素 (OTC)

中图分类号: X171.5; X820.4 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301 (2023) 08-4440-08 DOI: 10.13227/j.hjxx.202208255

Distribution Characteristics and Risk Assessment of Tetracycline Antibiotics (TCs) in Soil-Vegetable System with Soil Fertilized with Animal Manure

DING Dan^{1,2,3}, HUANG Xiao-yi^{1,2}, GU Jing-yi^{1,2}, CHEN Cheng-yu^{1,2}, LONG Xin-xian^{1,2}, ZENG Qiao-yun^{1,2*}

(1. College of Natural Resources and Environment, South China Agricultural University, Guangzhou 510642, China; 2. Guangdong Provincial Key Laboratory of Agricultural & Rural Pollution Abatement and Environmental Safety, Guangzhou 510642, China; 3. Shenzhen Yuanqing Environment Technology Service Co., Ltd., Shenzhen 518000, China)

Abstract: The effects of antibiotic contamination on vegetable safety and the ecological risks of soil after returning livestock and poultry manure to the land require sufficient future attention. Tetracycline antibiotics (TCs) are often detected at high concentrations in livestock manure and vegetable production soils. Recently, pot experiments and field investigation methods have often been used to understand the effects of TCs contamination on the vegetable safety and ecological risks of soil, whereas field experiments are employed less frequently. This study investigated the distribution characteristics of TCs in the soil-vegetable system following manure application using a combination of pot and field experiments. The human health risks of the edible parts of Chinese flowering cabbage were assessed using the health risk quotient method based on the acceptable daily intake (ADI-HQ), and the ecological risks of TCs-contaminated soils were evaluated using the risk quotient method associated with the species sensitivity distribution model (SSD-RQ). The results showed that oxytetracycline (OTC) was the major type of TCs in Chinese flowering cabbage based on both the pot and field experiments. The maximum contents (dry weight) of OTC in the aboveground parts of the Chinese flowering cabbage for the pot and field experiments were 29.25 $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ and 45.03 $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$, respectively, whereas those of their underground parts were 87.32 $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ and 135.44 $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$, respectively. Meanwhile, higher contents of TCs were detected in Chinese flowering cabbage collected from the field experiment than those from the pot experiment. OTC was also the major type of TCs in soil from both the pot and field experiments, with their contents up to 604.30 $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ and 1 013.68 $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$, respectively. Higher residual contents of three TCs were detected in soils collected from the field experiment than those from the pot experiment. Under the experimental conditions, with the exception that OTC in Chinese flowering cabbage from the field experiment would pose medium health risks ($\text{HQ} > 0.1$) to children, the contents of three TCs in other treated Chinese flowering cabbage would pose low health risks ($\text{HQ} \leq 0.1$) to adults and children. In the pot experiments, three TCs present in Chinese flowering cabbage would pose low health risks ($\text{HQ} \leq 0.1$) to adults and children. Additionally, the TCs in soils with manure application from the pot and field experiments may have posed both moderate or high levels of ecological risks ($\text{HQ} > 0.1$ or $\text{HQ} > 1$). Therefore, the effects of antibiotic contamination on vegetable safety and their potential ecological risks on soil following manure fertilization need to be given special attention.

Key words: land application of livestock and poultry manure; vegetable production bases; TCs contamination; agricultural product safety; ecological risk of soil; oxytetracycline (OTC)

收稿日期: 2022-08-29; 修订日期: 2022-10-28

基金项目: 广东省自然科学基金项目 (2022A1515010703); 广州市科技计划项目 (202206010162); 广东省科技计划项目 (2021B1212040008-20210301)

作者简介: 丁丹 (1993 ~), 女, 硕士研究生, 主要研究方向为畜禽粪肥还田抗生素环境行为, E-mail: 18211572463@163.com

* 通信作者, E-mail: qiaoyunzeng@scau.edu.cn

畜禽粪肥还田是推动农业绿色低碳发展、改善农村生态环境、实现乡村振兴战略和“双碳”目标的重要举措。抗生素是畜禽粪肥中普遍存在的典型污染物,长期大量施用畜禽粪肥势必会向农田生态系统输入大量外源抗生素^[1,2]。蔬菜生产基地强调有机肥的施用,较高的复种指数和施肥频率导致蔬菜基地土壤抗生素污染尤为严重^[3-5]。畜禽粪肥常施于土壤表层,而蔬菜根系主要生长于土壤表层,且生长周期较短,更容易受畜禽粪肥还田引起的抗生素污染。

TCs 在畜禽粪肥和蔬菜基地土壤中被普遍检出且含量较高^[6-8]。TCs 污染不仅会破坏土壤环境中的微生物群落^[9,10],还会影响蔬菜的生长^[11],甚至被蔬菜吸收累积^[12-14],从而严重威胁蔬菜安全和土壤生态安全。目前针对 TCs 对蔬菜安全和土壤生态安全的研究主要采用盆栽模拟试验^[11-14]或田间调查^[3,5,8,15-17]的研究方法,较少开展田间试验^[18]。虽然可以较方便地改变或控制试验条件,但盆栽试验在土壤团聚体数量和结构,以及蔬菜生长环境等方面均与田间实际情况生产存在一定的差异^[19],从而不能真实反映田间实际生产情况。与田间调查研究方法相比,田间试验研究方法通过进行局部控制,从而具有在较小地段内试验环境条件等非处理因素较易控制的优点。

因此,本文结合盆栽试验和田间试验的研究方法,采用当地农户习惯性施肥方式,调查畜禽粪肥还田引起的 3 种主要 TCs [四环素(TC)、土霉素(OTC)和金霉素(CTC)]在土壤-蔬菜系统中的分布特征;并采用 ADI-HQ 和 SSD-RQ 分别对蔬菜可食部分 TCs 污染的人体健康风险和土壤 TCs 污染的生态风险进行评估,通过系统和真实地掌握畜禽粪肥还田时 3 种主要 TCs 对农产品安全和土壤生态安全的影响,旨在为畜禽粪肥的安全利用和环境风险控制提供科学依据。

1 材料与方法

1.1 盆栽试验方案

盆栽试验土壤取自田间试验地点(27°09'59"N, 113°37'45"E)。其 pH 为 6.84, ω (有机质)为 18.5 g·kg⁻¹, ω (碱解氮)为 118.2 mg·kg⁻¹, ω (有效磷)为 117.9 mg·kg⁻¹, ω (速效钾)为 79.3 mg·kg⁻¹;土壤沙粒(>0.05 mm)、粉粒(0.01~0.05 mm)和黏粒(<0.01 mm)占比分别为 34%、44%和 22%;未检出 TC、OTC 和 CTC。供试畜禽粪肥取自广州市某现代化生猪养殖企业, ω (TC)、 ω (OTC)和 ω (CTC)分别为 16.9、107.9 和 54.2 mg·kg⁻¹。供试蔬菜品

种为菜心(*Brassica parachinensis*),其种子购自广东省农业科学研究院。

盆栽试验在华南农业大学网室进行,每盆用土 5 kg。设置 2 个畜禽粪肥施用水平(P_1 和 P_2), P_1 为 50 g·pot⁻¹[参照田间试验施用水平,并根据土壤容重(1.12 g·cm⁻³)计算得到], P_2 为 P_1 的 130%,即 65 g·pot⁻¹。对照处理(CK-P)不施畜禽粪肥,施用复合肥(N:P:K=15:15:15)2.20 g·pot⁻¹。畜禽粪肥和复合肥均采用拌施方式,在种植前与土壤混合均匀。以理论计算得出盆栽前土壤中 3 种 TCs 含量, ω (TC)、 ω (OTC)和 ω (CTC)分别为 169、1 079 和 542 $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ (P_1),219.7、1 402.7 和 704.6 $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ (P_2)。每个处理设 3 个重复。

1.2 田间试验方案

田间试验地点位于华南农业大学农场。小区面积为 2 m×2.5 m,设置施用畜禽粪肥处理(F)和对照处理(CK-F)。畜禽粪肥施用量参考珠三角蔬菜基地习惯性施肥水平[2.2 kg·(m²×茬)⁻¹],即 11 kg·plot⁻¹;对照处理不施畜禽粪肥,施用复合肥(N:P:K=15:15:15)500 g·plot⁻¹,参照《广东省 2020 年主要农作物科学施肥意见》。畜禽粪肥以基肥的形式在种植前一次性撒施于土壤表层,然后进行人工翻土覆盖;复合肥则分别作为基肥和 3 次追肥撒施或浇施。每个处理设 3 个重复。

1.3 试验管理与样品采集

施肥当天(2018 年 12 月 30 日),采用移栽方式移植菜心幼苗(4~5 片真叶)。盆栽试验移苗为 3 株·pot⁻¹,田间试验的移植密度按农户种植习惯。整个盆栽期间用蒸馏水进行浇灌,保持田间持水量的 50%~60%,避免产生渗漏;整个田间试验期间用自来水进行浇灌,根据天气情况和菜心长势每天浇水 1~2 次,保持田间持水量的 50%~70%。分别于 29 d 和 33 d 后(约 75%的菜心保持抽薹)收获盆栽试验和田间试验,采集菜心和土壤样品。

1.4 样品中 TCs 的提取、测定与质量控制

采用 HLB 小柱对土壤、植物和畜禽粪肥样品 TCs 进行提取,采用高效液相色谱-三重四极杆串联质谱(HPLC-MS-MS)对提取液中 TCs 进行检测。样品中 TCs 的提取和仪器分析详细步骤见文献[16]。

在样品的提取与仪器检测过程中进行相应的程序空白、分析空白、空白加标、样品加标、检测限、定量限和标准曲线等质量控制和质量保证措施。程序空白和分析空白样品中均未检出 TCs;样品中 3 种 TCs 加标回收率、检测限、定量限和标准曲线相关系数见表 1。文中所呈现的 TCs 数据均未经回收率校正。

表1 样品中3种TCs加标回收率、检测限、定量限和标准曲线相关系数¹⁾

Table 1 Recovery rate, limits of detection and quantification, and correlation coefficient of standard curve of three TCs in samples

化合物	回收率/%		检测限 / $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$	定量限 / $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$	标准曲线相关系数 (R^2)
	土样 ($50\ \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$)	植物 ($10\ \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$)			
TC	93.04	84.77	0.01	0.05	0.998 8
OTC	94.26	96.00	0.01	0.06	0.999 7
CTC	48.84	97.17	0.03	0.11	0.998 1

1) 回收率指标中、土样和植物样品中替代物含量分别为 $50\ \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ 和 $10\ \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$

1.5 生物富集系数(BCF)和转运系数(TF)的计算方法

BCF 是指生物体中污染物的含量与其生长环境中的含量之比,是用来评价生物对环境污染物的富集作用的一种指标.菜心地上部和地下部对土壤中3种TCs的BCFs可按公式(1)进行计算.

$$\text{BCF} = \frac{\text{菜心地上部或地下部 TCs 浓度}}{\text{土壤 TCs 残留浓度}} \quad (1)$$

TF 是指植物地上部污染物浓度与地下部污染物浓度的比值,是用来评价植物将污染物从地下部向地上部的运输和富集能力的一种指标.菜心对3种TCs的TF可按公式(2)进行计算.

$$\text{TF} = \frac{\text{菜心地上部 TCs 浓度}}{\text{菜心地下部 TCs 浓度}} \quad (2)$$

1.6 风险评估

1.6.1 菜心可食部分TCs污染的健康风险评估

本文采用ADI-HQ法对菜心可食部分TCs污染进行人体健康风险评估,即每日摄入量(ADD)与每日允许摄入量(ADI)的比值,其计算见公式(3).

$$\text{HQ} = \text{ADD}/\text{ADI} \quad (3)$$

式中,ADI表示日允许摄入量,TC、OTC和CTC的日允许摄入量分别为 5.7 、 5 和 $10\ \mu\text{g}\cdot(\text{kg}\cdot\text{d})^{-1}$ ^[20]; ADD可通过公式(4)计算得到.

$$\text{ADD} = c_v \times \text{IR}/\text{BW} \quad (4)$$

式中, c_v 表示蔬菜中单一TCs含量, $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$; IR表示蔬菜日摄入量,成人和儿童分别为 $500\ \text{g}\cdot\text{d}^{-1}$ 和 $300\ \text{g}\cdot\text{d}^{-1}$ ^[21]; BW表示体重,成人和儿童分别为 $65\ \text{kg}$ 和 $25\ \text{kg}$.

当 $\text{HQ} \leq 0.1$,为低风险; $0.1 < \text{HQ} < 1$,为中风险; $\text{HQ} \geq 1$,为高风险.

1.6.2 土壤TCs污染的生态风险评估

本文采用SSD-RQ法对土壤TCs残留进行生态风险评估,即测定环境浓度(MEC)与预测无效应浓度(PNEC)的比值,其计算见公式(5).

$$\text{RQ} = \text{MEC}/\text{PNEC}_{\text{water}} \quad (5)$$

式中,MEC为测定环境含量,即测定土壤TCs含量, $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$; $\text{PNEC}_{\text{water}}$ 可通过公式(6)计算得到.

$$\text{PNEC}_{\text{water}} = \text{HC}_5/\text{AF} \quad (6)$$

式中,AF参考《欧盟风险评价技术指南》,本文取值为5; HC_5 (hazardous concentration for 5% the species)可以采用物种敏感分布法(species sensitivity distributions, SSD)获得. SSD曲线的构建:第一步,毒性数据的获取与筛选;第二步,模型选择与SSD曲线的构建拟合;第三步, HC_5 的计算. SSD曲线的具体构建方法见文献[16].

当 $\text{RQ} \leq 0.1$,为低风险; $0.1 < \text{RQ} < 1$,为中风险; $\text{RQ} \geq 1$,为高风险.

1.7 数据处理

文中所有数据均为平均值 \pm 标准误 ($n=3$); 利用统计分析软件SPSS 22进行了单因素方差分析(one-way ANOVA),处理间差异显著性比较采用Duncan's多重比较 ($P=0.05$) 和 t 检验.

2 结果与讨论

2.1 菜心地上部和地下部的生物量

盆栽试验和田间试验菜心均长势良好.盆栽试验各处理地上部生物量约为 $110\ \text{g}\cdot\text{pot}^{-1}$ (表2),处理间无显著差异 ($P > 0.05$,下同);然而高水平施肥量处理 (P_2) 地下部生物量显著高于对照处理(CK-P)和低水平施肥处理 (P_1) ($P < 0.05$,下同).田间试验施用畜禽粪肥处理(F)地上部生物量为 $8086\ \text{g}\cdot\text{plot}^{-1}$,显著高于对照处理(CK-F).与对照处理(CK-F)相比,施用畜禽粪肥处理(F)地上部和地下部生物量分别增加 17.5% 和 7.8% ,说明施用畜禽粪肥在一定程度上能促进菜心生长.

2.2 菜心对TCs的吸收累积特征

盆栽试验和田间试验的对照处理(CK-P和CK-F)菜心植株地上部和地下部均未检测出3种TCs,而施用畜禽粪肥处理菜心植株地上部和地下部均检测出3种TCs(图1),说明菜心可以吸收累积畜禽粪肥还田引入的TCs.且盆栽试验菜心地上部和地下部3种TCs含量随土壤TCs初始含量的增加而增加;地下部3种TCs含量高于地上部[图1(b)],其TF值均小于1.0(表3),说明菜心对畜禽粪肥还田引起的土壤TCs污染主要累积于菜心根部,这与已有研究的结果一致^[12-14,22].

表 2 盆栽试验和田间试验菜心地上部和地下部生物量¹⁾

Table 2 Biomass of aboveground and underground parts of Chinese flowering cabbage under pot and field experiments

项目	处理	地上部分	地下部分
盆栽试验/g·pot ⁻¹	CK-P	108.28 ± 1.60a	5.85 ± 0.47b
	P ₁	109.22 ± 1.39a	5.57 ± 0.10b
	P ₂	109.42 ± 2.77a	7.63 ± 0.57a
田间试验/g·plot ⁻¹	CK-F	6 877.13 ± 511.83	531.69 ± 13.82
	F	8 086.00 ± 173.77*	573.12 ± 25.89

1) 盆栽试验生物量差异显著性比较采用 Duncan's 多重比较, 同一列具有相同字母者差异不显著 ($P > 0.05$); 田间试验生物量差异显著性比较采用 t 检验, * 表示差异显著 ($P < 0.05$)

结果显示[图 1(a)], 盆栽试验菜心地上部(以干重计) ω (TC)、 ω (OTC)和 ω (CTC)分别为 5.93 ~ 6.87、24.04 ~ 29.25 和 2.18 ~ 4.37 $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$, 远低于贺德春等^[12]、迟荪琳等^[13]和王卫中等^[14]对萝卜、小白菜和生菜的研究结果, 这可能是因为本文盆栽试验土壤 3 种 TCs 含量远低于已有研究设置水平 ($\geq 5 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$). 本文盆栽试验菜心地上部 TCs 含量也低于 Sun 等^[9]和 Kumar 等^[23]研究的结果, 当土壤 ω (TCs) 为 $1 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 时, 卷心菜、莴苣和菠菜(以鲜重计)中 ω (OTC) 介于 180 ~ 550 $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ ^[9]; 洋葱和卷心菜(以鲜重计)中 ω (CTC) 介于 2.0 ~ 11.0 $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ ^[23]. 但高于刘娣^[24]的研究, 当土壤 ω (TCs) 为 $20 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 时, 一个月后小白菜茎叶(以干重计)中 ω (TC) 和 ω (CTC) 仅为 2.0 ~ 4.0 $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$. 因此, 与已有蔬菜吸收累积 TCs 的研究报道相比, 本文盆栽试验菜心地上部 3 种 TCs 含量处于较低水平. 同时, 本文盆栽试验菜心地上部 3 种 TCs 含量也低于粮食作物玉米^[23, 25].

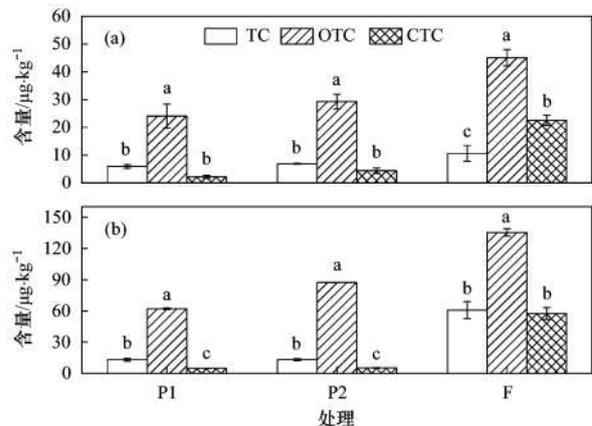
盆栽试验菜心地上部 3 种 TCs 含量高低顺序为: OTC > TC > CTC. 其中 OTC 含量显著高于 TC 和 CTC, 这可能是因为试验土壤 OTC 的初始含量远高

表 3 菜心对土壤中 3 种 TCs 的富集系数 (BCF) 和转运系数 (TF)

Table 3 Bioconcentration factors (BCFs) and translocation factors (TFs) of three tetracycline antibiotics for Chinese flowering cabbage

处理	BCF						TF		
	地上部			地下部			TC	OTC	CTC
	TC	OTC	CTC	TC	OTC	CTC			
P ₁	0.07	0.06	0.01	0.15	0.15	0.03	0.45	0.39	0.45
P ₂	0.05	0.05	0.02	0.10	0.14	0.02	0.51	0.34	0.82
F	0.06	0.04	0.07	0.35	0.13	0.18	0.17	0.33	0.39

和小白菜对 3 种 TCs 的 BCF 大小顺序不一致 (CTC > OTC ≈ TC)^[11, 12]. 本文菜心对 CTC 的 BCF ≤ 0.05, 与生菜和小白菜一致; 对 TC 和 OTC 的 BCF 介于 0.05 ~ 0.07, 高于生菜和小白菜^[11, 12]. 已有研究表明, 蔬菜对 TCs 的吸收累积不仅受土壤 TCs 初始含量的影响^[12~14], 还与蔬菜品种和 TCs 种类密切相关. 如, Ahmed 等^[26]对比研究了黄瓜、番茄和生菜对 TCs 的吸收累积情况, 结果表明, 番茄茎叶和果实



采用 Duncan's 多重比较对菜心地上部和地下部 TCs 含量进行显著性差异分析, 同一处理具有相同小写字母表示差异不显著 ($P > 0.05$)

图 1 菜心地上部和地下部 3 种 TCs 含量

Fig. 1 Three tetracycline antibiotic contents in aboveground part and underground part of Chinese flowering cabbage

于 TC 和 CTC (见 1.1 节); 菜心地上部和地下部 TC 含量高于 CTC, 而土壤 TC 初始含量低于 CTC, 说明 TC 更容易被菜心吸收累积. BCF 结果显示 (表 3), 菜心地上部和地下部对 TC 和 OTC 的 BCF 值接近, 二者高于 CTC 的 BCF 值 (TC ≈ OTC > CTC), 与生菜

中均是 OTC 含量最高, 生菜茎叶中是 CTC 含量最高; 而黄瓜茎叶和果实中 3 种 TCs 含量高低顺序则与 TCs 种类相关.

田间试验菜心地上部(以干重计) ω (TCs) 介于 10.59 ~ 45.03 $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$. Kang 等^[18]采用田间试验方法调查 11 种蔬菜对稻草与鸡粪/猪粪堆肥中 CTC 的吸收情况, 蔬菜 ω (CTC) 不超过 2.0 $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$, 大部分样品 ω (CTC) 低于 0.5 $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$, 低于本研究田

田间试验菜心地上部 ω (CTC) 为 $22.52 \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$, 这可能是因为本研究土壤 CTC 的初始含量 ($540 \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$) 高于 Kang 等^[18] 的研究 ($\leq 72.6 \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$, 大部分 $\leq 1 \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$). 与田间调查文献相比, 本文田间试验菜心 TCs 含量高于珠三角污灌区蔬菜 ($4.0 \sim 10.1 \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$)^[27] 和施用畜禽粪肥蔬菜 ω (OTC) 和 ω (CTC) (分别为 $0.29 \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ 和 $0.10 \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$)^[16].

与盆栽试验结果相比, 田间试验菜心地上部和地下部 3 种 TCs 含量显著高于盆栽试验 (图 1). 这可能是因为: 第一, 蔬菜对 TCs 的吸收累积程度随环境含量的升高而增加^[22], 而本文田间试验土壤 TCs 残留含量高于盆栽试验 (原因分析见 2.3 节); 第二, 作物对土壤/溶液中 TCs 的吸收累积是一个通过胞外运输的主动过程, 受蒸腾作用大小的影响^[28,29]. 本文田

间试验开放环境下的菜心蒸腾作用大于盆栽试验半封闭网室, 更有利于菜心对土壤 TCs 的吸收和转运. 田间试验菜心 TF 值小于盆栽试验 (表 3), 说明与盆栽试验相比, 田间试验菜心地下部 TCs 含量增加程度大于地上部, 这可能是因为田间试验土壤 TCs 的生物有效性高于研磨过筛的盆栽试验.

2.3 土壤中 TCs 的残留特征

盆栽试验和田间试验的对照处理 (CK-P 和 CK-F) 土壤中均未检出 3 种 TCs, 而施用畜禽粪肥处理土壤均检测出 3 种 TCs (表 4), 说明施用含有 TCs 的畜禽粪肥会导致土壤 TCs 污染. 盆栽试验土壤 ω (TC)、 ω (OTC) 和 ω (CTC) 分别介于 $85.27 \sim 174.08$ 、 $410.94 \sim 1013.68$ 和 $163.81 \sim 313.11 \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$, 介于国内长期施用畜禽粪肥蔬菜基地土壤 TCs 污染残留含量范围^[16,30,31].

表 4 土壤中 3 种 TCs 残留含量及降解率¹⁾

Table 4 Residual concentrations and degradation rate of three tetracycline antibiotics in soil

处理	含量/ $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$			降解率/%		
	TC	OTC	CTC	TC	OTC	CTC
P ₁	85.27 ± 10.06	410.94 ± 1.23	163.81 ± 14.29	49.54 ± 5.95	61.59 ± 0.11	69.78 ± 2.64
P ₂	129.85 ± 1.45	604.30 ± 18.81	242.40 ± 8.47	40.90 ± 0.66	56.56 ± 1.34	65.60 ± 1.20
F	174.08 ± 6.58	1013.68 ± 25.23	313.11 ± 6.79	—	—	—

1) “—”表示未进行计算

3 种 TCs 残留含量高低趋势与所施用畜禽粪肥中 3 种 TCs 含量高低趋势一致, 即: OTC > CTC > TC, 且三者之间差异显著, 其中 OTC 含量占 3 种 TCs 残留总含量的 60% 以上. 这与本课题组前期对广州市北郊和珠三角典型蔬菜基地土壤 3 种 TCs 污染调查结果一致^[15,16], 也与 Li 等^[32] 对珠三角典型蔬菜基地土壤 3 种 TCs 污染调查结果一致, 从而也进一步说明 OTC 是珠三角农田土壤主要的 TCs 污染物.

田间试验土壤 3 种 TCs 残留含量高低趋势与盆栽试验结果一致, 但田间试验土壤 TCs 残留含量显著高于盆栽试验. 这可能主要是由于本研究试验在冬季进行, 盆栽试验场所为半封闭网室, 其温度高于田间试验开放场所, 从而更有利于 TCs 的降解. 有研究表明, 高温的夏季土壤中 TC、CTC 和 OTC 的检出率和含量均低于低温的冬季^[33].

盆栽试验土壤 TCs 渗漏量和菜心对 TCs 的累积量 ($< 0.1\%$) 均可忽略不计, 土壤 TCs 的环境行为主要包括吸附残留和降解, 从而可通过计算残留率而获得 3 种 TCs 在土壤中的降解率 (表 4). 而田间试验土壤 TCs 的环境行为不仅包括吸附残留和降解, 还有可能通过径流迁出土体, 以及通过渗流迁往更深的次表层土壤^[34], 因此, 无法通过计算残留率而获得 3 种 TCs 在土壤中的降解率. 从表 4 可知, 盆

栽试验土壤 3 种 TCs 降解率高低顺序为: CTC > OTC > TC. TC 的降解率最低, 这可能是因为 TC 的 $\lg K_d$ 相对较大, 生物降解率相对较低^[35]; OTC 的 $\lg K_d$ 小于 CTC, 但其降解率却显著低于 CTC, 与文献^[36] 对畜禽粪便中 CTC 和 OTC 降解研究的结果一致. 土壤中 3 种 TCs 降解率介于 40% ~ 70%, 低于刘娣^[24] 研究的结果, 但也说明 TCs 在土壤环境中不难降解. 因此, 随畜禽粪肥引起的土壤 TCs 污染对短生长周期的作物的影响更应引起关注.

2.4 风险评估

2.4.1 菜心可食部分 TCs 污染的健康风险

盆栽试验和田间试验菜心可食部分 (地上部) TCs 污染对成年人和儿童的危害商值见图 2.

盆栽试验菜心 TCs 污染对成人 [图 2(a)] 和儿童 [图 2(b)] 的人体健康危害商值趋势一致, 3 种 TCs 的 HQ 值大小顺序为 OTC > TC > CTC, 且随畜禽粪肥施用量的增加而升高, 但均属于低风险 (HQ ≤ 0.1). 田间试验菜心 TCs 污染对成人和儿童的人体健康风险商值均高于盆栽试验, 且 3 种 TCs 的 HQ 值大小顺序与盆栽试验不一致, 为 OTC > TC \approx CTC. 其中 TC 和 CTC 对成年人和儿童的 HQ ≤ 0.1 , 为低风险; OTC 对成年人的 HQ ≤ 0.1 , 为低风险, 但对儿童的 HQ 超过 0.1, 为中风险.

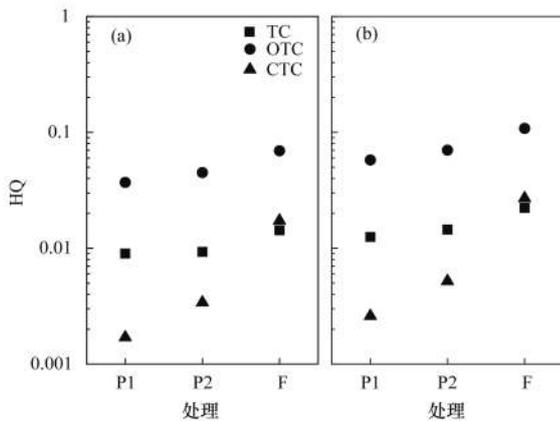


图2 菜心中3种TCs健康风险商值(HQ)

Fig. 2 Health risk assessment (HQ) values for three tetracycline antibiotics in Chinese flowering cabbage

目前,农产品污染对人体的非致癌健康风险评估主要采用规定允许最大残留浓度(MRL)对比法和ADI值对比法.我国暂时没有规定蔬菜中TCs的MRL,但规定了动物性食品中3种TCs的MRL为 $100 \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$;世界卫生组织规定3种TCs的ADI值为 $30 \mu\text{g}\cdot(\text{kg}\cdot\text{d})^{-1}$.有研究采用此方法,通过对比蔬菜中TCs实测含量是否超过 $100 \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ 和计算ADD值是否超过 $1800 \mu\text{g}\cdot\text{d}^{-1}$ [$30 \mu\text{g}\cdot(\text{kg}\cdot\text{d})^{-1} \times 60 \text{ kg} = 1800 \mu\text{g}\cdot\text{d}^{-1}$,世界卫生组织成年人平均体重为60 kg]来确定蔬菜是否存在健康风险^[16,18,37].结果表明,蔬菜TCs污染的健康风险较低.与以上已有报道相比,本文选用了更严格的标准,参照文献^[20],选用TC、OTC和CTC的ADI值分别为5.7、5和 $10 \mu\text{g}\cdot(\text{kg}\cdot\text{d})^{-1}$;同时,调整人体健康风险等级的划分标准,当 $\text{HQ} > 0.1$ 时,即存在中风险.因此,本文菜心TCs污染对人体健康风险等级也相应会高于文献^[16,18,37]的报道.

2.4.2 土壤TCs残留的生态风险

目前,除参考兽药国际协调筹划指导委员会给出的生态毒害效应触发值($100 \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$)来评价土壤中TC的污染以外^[7],评价因子-风险商值法(RAF-RQ)也是目前土壤中抗生素污染评价的常用方法之一^[6,8,15,17].RAF虽然运用简单,操作性强,但RAF法只考虑了污染物最敏感物种与其在某一条条件下的毒性数据,定性评价结果的不确定性较高.SSD基于不同物种对同一污染物敏感性的差异,以多个有代表性敏感物种的急性或慢性毒性数据为基础,选择统计分布并构建相应污染物的SSD曲线,评估实测环境浓度下污染物对生态系统的风险.该方法要求所选物种需要囊括3个营养级(藻类、真菌、土壤动物和植物),物种个数不少于5个.虽然操作复杂,但由于所选生物物种营养级和个数均较

多,从而能提高污染物风险评估结果的科学性^[38].

本文采用课题组已构建的土壤3种TCs的SSD曲线^[16],对施用畜禽粪肥引起的土壤中3种TCs污染进行生态风险评估,结果见图3.盆栽试验土壤3种TCs的RQ值大小顺序为:OTC > TC \approx CTC,且随畜禽粪肥施用量的增加而升高.P₁处理OTC和P₂处理TC与CTC的RQ均大于0.1,属于中风险;P₂处理OTC的RQ大于1.0,属于高风险.田间试验土壤TCs的RQ值高于盆栽试验土壤,3种TCs的RQ值大小顺序与盆栽试验相似,即OTC > TC \approx CTC.其中,TC和CTC的RQ大于0.1,属于中风险;OTC的RQ大于1.0,属于高风险.本文关于土壤TCs残留的生态风险研究结果高于本课题组前期对珠三角典型蔬菜基地土壤TCs污染生态风险评估的调查结果^[16],这可能是由于本试验中畜禽粪肥3种TCs含量较高, $\omega(\text{TC})$ 、 $\omega(\text{OTC})$ 和 $\omega(\text{CTC})$ 分别为16.9、107.9和 $54.2 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$,高于本课题组前期对珠三角典型蔬菜基地有机肥(畜禽粪肥简单堆制而成)的含量水平^[16],但与国彬^[39]对广州市22个养殖厂的畜禽粪肥的调查结果基本在同一含量水平.因此,畜禽粪肥还田引入的土壤TCs污染的生态风险不可忽视.

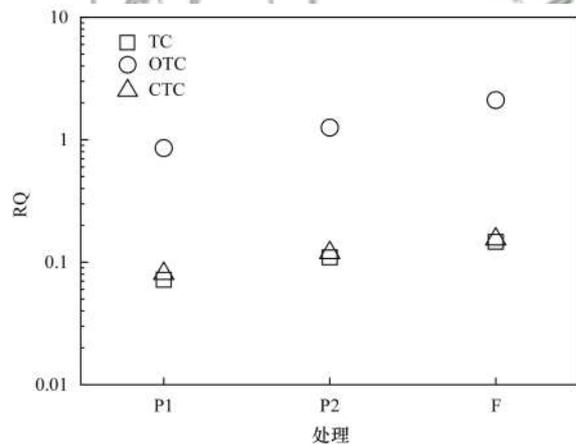


图3 土壤3种TCs的生态风险商值(RQ)

Fig. 3 Ecological risk assessment (RQ) values for three tetracycline antibiotics in soil

3 结论

(1)盆栽试验和田间试验菜心地上部和地下部TCs含量均以OTC为主;盆栽试验和田间试验菜心地上部(以干重计) $\omega(\text{OTC})$ 分别高达 $29.25 \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ 和 $45.03 \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$,地下部含量(以干重计) $\omega(\text{OTC})$ 分别高达 $87.32 \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ 和 $135.44 \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$;且田间试验菜心地上部和地下部3种TCs含量均显著高于盆栽试验.

(2)土壤TCs的残留以OTC为主,盆栽试验和

田间试验土壤 ω (OTC) 分别高达 $604.30 \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ 和 $1013.68 \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$; 3 种 TCs 在田间试验土壤残留含量显著高于盆栽试验。

(3) 试验条件下, 除田间试验菜心 OTC 含量对儿童的人体健康具有中风险外 ($\text{HQ} > 0.1$), 其它处理菜心 3 种 TCs 含量对成年人和儿童的人体健康风险均较低 ($\text{HQ} \leq 0.1$); 盆栽试验和田间试验土壤 3 种 TCs 残留均具有中等或高生态风险 ($\text{HQ} > 0.1$ 或 $\text{HQ} > 1$)。

参考文献:

- [1] Chen Y S, Zhang H B, Luo Y M, *et al.* Occurrence and assessment of veterinary antibiotics in swine manures; a case study in east China [J]. *Chinese Science Bulletin*, 2012, **57** (6): 606-614.
- [2] Wu J, Wang J Y, Li Z T, *et al.* Antibiotics and antibiotic resistance genes in agricultural soils: a systematic analysis [J]. *Critical Reviews in Environmental Science and Technology*, 2022, doi: 10.1080/10643389.2022.2094693.
- [3] 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.
- [4] Wei R C, He T, Zhang S X, *et al.* Occurrence of seventeen veterinary antibiotics and resistant bacteria in manure-fertilized vegetable farm soil in four provinces of China [J]. *Chemosphere*, 2019, **215**: 234-240.
- [5] Xiang L, Wu X L, Jiang Y N, *et al.* Occurrence and risk assessment of tetracycline antibiotics in soil from organic vegetable farms in a subtropical city, South China [J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2016, **23** (14): 13984-13995.
- [6] 沈聪, 张俊华, 刘吉利, 等. 宁夏养鸡场粪污和周边土壤中抗生素及抗生素抗性基因分布特征 [J]. *环境科学*, 2022, **43** (8): 4166-4178.
Shen C, Zhang J H, Liu J L, *et al.* Distribution characteristics of antibiotics and antibiotic resistance genes in manure and surrounding soil of poultry farm in Ningxia [J]. *Environmental Science*, 2022, **43** (8): 4166-4178.
- [7] Wang W Z, Chi S L, Xu W H, *et al.* Influence of long-term chicken manure application on the concentration of soil tetracycline antibiotics and resistant bacteria variations [J]. *Applied Ecology and Environmental Research*, 2018, **16** (2): 1143-1153.
- [8] Zhou X, Wang J, Lu C, *et al.* Antibiotics in animal manure and manure-based fertilizers: occurrence and ecological risk assessment [J]. *Chemosphere*, 2020, **255**, doi: 10.1016/j.chemosphere.2020.127006.
- [9] Sun Y M, Guo Y J, Shi M M, *et al.* Effect of antibiotic type and vegetable species on antibiotic accumulation in soil-vegetable system, soil microbiota, and resistance genes [J]. *Chemosphere*, 2021, **263**, doi: 10.1016/j.chemosphere.2020.128099.
- [10] 陈敏杰, 钱懿宏, 于青燕, 等. 典型四环素类抗生素对土壤微生物及植物生长的影响 [J]. *生态毒理学报*, 2019, **14** (6): 276-283.
Chen M J, Qian Y H, Yu Q Y, *et al.* Effects of typical tetracycline antibiotics on soil microorganisms and plant growth [J]. *Asian Journal of Ecotoxicology*, 2019, **14** (6): 276-283.
- [11] 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.
- [12] 贺德春, 吴根义, 许振成, 等. 小白菜和白萝卜对四环素类抗生素的吸收累积特征 [J]. *农业环境科学学报*, 2014, **33** (6): 1095-1099.
He D C, Wu G Y, Xu Z C, *et al.* Uptake of selected tetracycline antibiotics by pakchoi and radish from manure-amended soils [J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2014, **33** (6): 1095-1099.
- [13] 迟荪琳, 王卫中, 徐卫红, 等. 四环素类抗生素对不同蔬菜生长的影响及其富集转运特征 [J]. *环境科学*, 2018, **39** (2): 935-943.
Chi S L, Wang W Z, Xu W H, *et al.* Effects of tetracycline antibiotics on growth and characteristics of enrichment and transformation in two vegetables [J]. *Environmental Science*, 2018, **39** (2): 935-943.
- [14] 王卫中, 迟荪琳, 徐卫红. 四环素类抗生素对土壤-生菜系统的生物效应及其迁移降解特性 [J]. *环境科学*, 2021, **42** (3): 1545-1558.
Wang W Z, Chi S L, Xu W H. Biological effect of tetracycline antibiotics on a soil-lettuce system and its migration degradation characteristics [J]. *Environmental Science*, 2021, **42** (3): 1545-1558.
- [15] 朱秀辉, 曾巧云, 解启来, 等. 广州市北郊蔬菜基地土壤四环素类抗生素的残留及风险评估 [J]. *农业环境科学学报*, 2017, **36** (11): 2257-2266.
Zhu X H, Zeng Q Y, Xie Q L, *et al.* Residues and risk assessment of tetracycline antibiotics in vegetable-growing soils from suburban areas of northern Guangzhou [J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2017, **36** (11): 2257-2266.
- [16] Gu J Y, Chen C Y, Huang X Y, *et al.* Occurrence and risk assessment of tetracycline antibiotics in soils and vegetables from vegetable fields in Pearl River Delta, South China [J]. *Science of the Total Environment*, 2021, **776**, doi: 10.1016/j.scitotenv.2021.145959.
- [17] 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.
- [18] 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** (24): 9992-10001.
- [19] Lavelle P, Spain A, Fonte S, *et al.* Soil aggregation, ecosystem engineers and the C cycle [J]. *Acta Oecologica*, 2020, **105**, doi: 10.1016/j.actao.2020.103561.
- [20] Prosser R S, Sibley P K. Human health risk assessment of pharmaceuticals and personal care products in plant tissue due to biosolids and manure amendments, and wastewater irrigation [J]. *Environment International*, 2015, **75**: 223-233.
- [21] Yang Y Y, Owino A A, Gao Y, *et al.* Occurrence, composition and risk assessment of antibiotics in soils from Kenya, Africa [J]. *Ecotoxicology*, 2016, **25** (6): 1194-1201.
- [22] Geng J G, Liu X Y, Wang J, *et al.* Accumulation and risk assessment of antibiotics in edible plants grown in contaminated farmlands: a review [J]. *Science of the Total Environment*, 2022, **853**, doi: 10.1016/j.scitotenv.2022.158616.
- [23] Kumar K, Gupta S C, Baidoo S K, *et al.* Antibiotic uptake by

- plants from soil fertilized with animal manure [J]. *Journal of Environmental Quality*, 2005, **34**(6): 2082-2085.
- [24] 刘娣. 土壤-蔬菜系统中四环素类抗生素迁移积累与污染的细胞诊断方法[D]. 杭州: 浙江大学, 2017.
- Liu D. Tetracyclines transformation, accumulation and *in vitro* diagnosis model in soil-vegetable system [D]. Hangzhou: Zhejiang University, 2017.
- [25] Mullen R A, Hurst J J, Naas K M, *et al.* Assessing uptake of antimicrobials by *Zea mays* L. and prevalence of antimicrobial resistance genes in manure-fertilized soil[J]. *Science of the Total Environment*, 2019, **646**: 409-415.
- [26] Ahmed M B M, Rajapaksha A U, Lim J E, *et al.* Distribution and accumulative pattern of tetracyclines and sulfonamides in edible vegetables of cucumber, tomato, and lettuce[J]. *Journal of Agricultural and Food Chemistry*, 2015, **63**(2): 398-405.
- [27] 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.
- [28] Di Marco G, Gismondi A, Canuti L, *et al.* Tetracycline accumulates in *Iberis sempervirens* L. through apoplastic transport inducing Oxidative Stress and Growth Inhibition [J]. *Plant Biology*, 2014, **16**(4): 792-800.
- [29] 章程. 典型抗生素在土壤-植物中的迁移及其机制[D]. 北京: 中国农业科学院, 2018.
- Zhang C. The fate of veterinary antibiotics in system of soil and plants and their mechanism[D]. Beijing: Chinese Academy of Agricultural Sciences, 2018.
- [30] Wei R C, Ge F, Zhang L L, *et al.* Occurrence of 13 veterinary drugs in animal manure-amended soils in eastern China[J]. *Chemosphere*, 2016, **144**: 2377-2383.
- [31] 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.
- [32] 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.
- [33] 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.
- [34] Huang X Y, Chen C Y, Zeng Q Y, *et al.* Field study on loss of tetracycline antibiotics from manure-applied soil and their risk assessment in regional water environment of Guangzhou, China [J]. *Science of the Total Environment*, 2022, **827**, doi: 10.1016/j.scitotenv.2022.154273.
- [35] Wu X F, Wei Y S, Zheng J X, *et al.* The behavior of tetracyclines and their degradation products during swine manure composting [J]. *Bioresource Technology*, 2011, **102**(10): 5924-5931.
- [36] Yin F B, Dong H M, Ji C, *et al.* Effects of anaerobic digestion on chlortetracycline and oxytetracycline degradation efficiency for swine manure[J]. *Waste Management*, 2016, **56**: 540-546.
- [37] 吴小莲, 莫测辉, 李彦文, 等. 蔬菜中喹诺酮类抗生素污染探查与风险评估: 以广州市超市蔬菜为例[J]. *环境科学*, 2011, **32**(6): 1703-1709.
- Wu X L, Mo C H, Li Y W, *et al.* Investigation and health risk assessment of quinolone antibiotics in vegetables: taking supermarket vegetables of Guangzhou City for an example[J]. *Environmental Science*, 2011, **32**(6): 1703-1709.
- [38] Chae Y, Kim L, Kim D, *et al.* Deriving hazardous concentrations of phenol in soil ecosystems using a species sensitivity distribution approach [J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2020, **399**, doi: 10.1016/j.jhazmat.2020.123036.
- [39] 国彬. 农用畜禽废物抗生素的污染特征和环境归宿研究[D]. 广州: 暨南大学, 2009.
- Guo B. The study on occurrence and the environmental risk of antibiotics in animal waste applied to land [D]. Guangzhou: Jinan University, 2009.

CONTENTS

Analysis of Change Trend and Influencing Factors of PM _{2.5} -O ₃ Pollution in Tianjin from 2013 to 2020	XIAO Zhi-mei, LI Ya-fei, GAO Jing-yun, <i>et al.</i> (4211)
Changes in Ozone Pollution Trend Characteristics and Sensitivity in Jinan from 2015 to 2020	SUN Xiao-yan, SUN Jun, GUO Meng-meng, <i>et al.</i> (4220)
Analysis of O ₃ Pollution Characteristics, Formation Sensitivity, and Transport Impact in Southern Nanjing	ZHENG Xin-mei, HU Kun, WANG Ming, <i>et al.</i> (4231)
Characteristics and Driving Factors of O ₃ Pollution During 13 th Five-Year Period in Tianjin	LI Yuan, XIAO Zhi-mei, BI Xiao-hui, <i>et al.</i> (4241)
Response of PM _{2.5} and O ₃ to Emission Reductions in Nanjing Based on Random Forest Algorithm	SHANG Yong-jie, MAO Yu-hao, LIAO Hong, <i>et al.</i> (4250)
Quantification of Ozone Pollution Transport Based on Four-dimensional Flux Method in Foshan, China	WU Li-ping, MO Hai-hua, YANG Li-ting, <i>et al.</i> (4262)
Effects of Source Depletion on Vapor Intrusion Risk Assessment	ZHONG Mao-sheng, WANG Yang, JIANG Lin, <i>et al.</i> (4271)
Spatiotemporal Variation Characteristics of Main Pollutant Fluxes in the Yangtze River Basin from 2017 to 2020	GUO Chao-chen, LEI Kun, LI Xiao-guang, <i>et al.</i> (4279)
Spatial Variation Characteristics, Influencing Factors, and Sources of Hydrogeochemical of Surface Water and Groundwater in Mountainous Area of Hutuo River	KONG Xiao-le, CHANG Yu-ru, LIU Xia, <i>et al.</i> (4292)
Spatial Distribution, Source Analysis, and Health Risk Assessment of Metal Elements in Karst Water in Southeastern Chongqing	XIE Hao, ZOU Sheng-zhang, LI Jun, <i>et al.</i> (4304)
Mechanism of Salinization of Shallow Groundwater in Taocheng District, Hengshui City	HE Jin, ZHANG Huai-sheng, CAI Wu-tian, <i>et al.</i> (4314)
Assessment of Groundwater Contamination Risk in the Plain Area of Southern Turpan Basin	BAI Fan, ZHOU Jin-long, ZHOU Yin-zhu, <i>et al.</i> (4325)
Microbial Community Composition and Diversity in Metal Sulfide Mine Water Systems	DING Cong-cong, ZHU Xu-yan, ZHAO Xing-qing, <i>et al.</i> (4334)
Occurrence Characteristics of Microplastics in Baiyangdian Lake Water and Sediments	CHENG Xin-yu, YANG Li-hu, SONG Xian-fang (4344)
Analyzing the Pollution Sources and Mechanisms of Urban Rivers Based on Identifying the Molecular Signature of Dissolved Organic Matter	ZHU Yi, YE Jian-feng, SUN Xiao-nan, <i>et al.</i> (4353)
Occurrence and Fate of Steroid Hormones in Sewage Treatment Plants	LIU Yuan-yuan, FENG Hui, ZHANG Hui, <i>et al.</i> (4364)
Distribution, Source, and Ecological Risk Assessment of Persistent Organic Pollutants in Surface Sediments of Boao Coastal Waters	HAO Run-bo, FU Guo-wei, SONG Yan-wei, <i>et al.</i> (4374)
Content, Distribution, Source Analysis, and Risk Assessment of PAHs in Arable Soils of Taiyuan	WU Zhang-wei, DUAN Yong-hong, LIU Li-wen, <i>et al.</i> (4387)
Potential Ecological Risk Assessment and Source Analysis of Heavy Metals in Soil-crop System in Xiong'an New District	GUO Zhi-juan, LIU Fei, ZHOU Ya-long, <i>et al.</i> (4397)
Pollution Characteristics and Source Analysis of Heavy Metals in Soils in Yellow River Cultural Park Based on APCS-MLR and PMF Receptor Model	DUAN Hai-jing, MA Jia-yu, PENG Chao-yue, <i>et al.</i> (4406)
Pollution Characteristics, Source Analysis, and Risk Assessment of Heavy Metals in the Surrounding Farmlands of Manganese Mining Area	YU Gao, CHEN Fen, ZHANG Xiao-dong, <i>et al.</i> (4416)
Translocation, Accumulation, and Comprehensive Risk Assessment of Heavy Metals in Soil-Crop Systems in an Old Industrial City, Shizuishan, Ningxia, Northwest China	WANG Ying, DONG Ai-jun, YANG Jian-feng, <i>et al.</i> (4429)
Distribution Characteristics and Risk Assessment of Tetracycline Antibiotics (TCs) in Soil-Vegetable System with Soil Fertilized with Animal Manure	DING Dan, HUANG Xiao-yi, GU Jing-yi, <i>et al.</i> (4440)
Accumulation Pathway of Cd, Pb, and Zn in Chinese Cabbage under the Condition of Exogenous Pollution Superposition in High Geological Background Area	JIAN Huai-liang, LIU Hong-yan, MEI Xue, <i>et al.</i> (4448)
Effects of Combined Pollution of Microplastics and Lead on Maize Seed Germination and Growth	MA Gui, LIAO Cai-yun, ZHOU Yue, <i>et al.</i> (4458)
Application of Fe ₃ O ₄ /Mulberry Stem Biochar Effects on Soil Arsenic Species and Rice Arsenic Content	RUAN Lin-qiao, LIANG Mei-na, DING Yan-mei, <i>et al.</i> (4468)
Remediation Effect and Mechanism of Biochar in Combination with Nitrogen Fertilizer on Cd-contaminated Paddy Soil	ZHANG Li, LI Ru-xia, HE Yu-lei, <i>et al.</i> (4479)
Effects of Combined Application of Different Nitrogen Fertilizers and Biochar on Cadmium Uptake by Pakchoi (<i>Brassica chinensis</i> L.) in Cadmium Contaminated Soil	LI Ping, NIE Hao, LANG Man, <i>et al.</i> (4489)
Effect of Coconut Fiber Biochar and Its Nitrate Modification on Pb Passivation in Paddy Soils	HOU Zheng-wei, LI Jian-hong, LI Cai-sheng, <i>et al.</i> (4497)
Effects of Biochar Application on Physicochemical Properties and Bacterial Communities of Microplastic-contaminated Calcareous Soil	RAN Tai-shan, LONG Jian, LIAO Hong-kai, <i>et al.</i> (4507)
Effects of Modified Biochar-Supported Zero-Valent Iron on the Removal of Trichloroethylene and Responses of Microbial Community in Soil	LU Hai-nan, LI Peng, GUO Lin, <i>et al.</i> (4519)
Effects of Modified Distiller's Lees Biochar on Nutrients and Enzyme Activities in Purple Soil	YOU Le-lin, XIE Yong-hong, WANG Zi-fang, <i>et al.</i> (4530)
Biochar or Straw Substituting Chemical Fertilizer Increase the Risk of Phosphorus Loss in Subsurface Runoff in Sloping Farmland	LAI Jia-xin, DENG Hua, ZHU Hao-yu, <i>et al.</i> (4541)
Carbon Loss During Preparation and Aging of Sludge Livestock Manure Biochars	ZHANG Ying, ZHANG Chang-hao, ZHANG Xiu-fang, <i>et al.</i> (4554)
Effect of Chemical Fertilizer and Manure Combined with Biochar on Denitrification Potential and Denitrifying Bacterial Community in Rhizosphere Soil	XIE Jun, WANG Zi-fang, WANG Ying-yan, <i>et al.</i> (4565)
Soil Bacterial Community Structure and Function Prediction of Millet/Peanut Intercropping Farmland in the Lower Yellow River	LIU Zhu, NAN Zhen-wu, LIN Song-ming, <i>et al.</i> (4575)
Effects of Microbial Fertilizer on Physicochemical Properties and Bacterial Communities of Saline Soil Under Brackish Water Irrigation	LIU Yue, YANG Shu-qing, ZHANG Wan-feng, <i>et al.</i> (4585)
Remediation of Petroleum-contaminated Soil by Highly Efficient Oil-degrading Bacteria and Analysis of Its Enhancement Mechanism	YAO Zhen-xian, WANG Li-ping, LI Dan, <i>et al.</i> (4599)
Impacts of Land Use Intensification Level on Fluvo-aquic Cropland Soil Microbial Community Abundance and Necromass Accumulation in North China	LI Sheng-jun, SHENG Mei-jun, LI Gang, <i>et al.</i> (4611)
Pathway and Policy for China's Provincial Carbon Emission Peak	MIAO An-kang, YUAN Yue, WU Han, <i>et al.</i> (4623)
Carbon Offsetting Mechanism of China Province Based on Carbon Reduction Cost	ZHONG Shi-yu, ZHANG Xiao-min, WU Jia, <i>et al.</i> (4637)
Analysis on Change in Soil Organic Carbon Content of Farmland in Yangtze River Economic Belt Under Different Fertilizing Measures	LIU Xin-yu, LU Jiang, MENG Xuan, <i>et al.</i> (4647)
Multi-scenario Land Use Optimization and Carbon Storage Assessment in Northwest China	CHEN Ning, XIN Cun-lin, TANG Dao-bin, <i>et al.</i> (4655)
Analysis and Simulation of the Spatiotemporal Evolution of Habitat Quality and Carbon Storage in the Weibei Dry Plateau Region of Shaanxi	GU Zhen-wei, LIU Jing, CHEN Yi, <i>et al.</i> (4666)
Impact of Climate Warming on Paddy Soil Organic Carbon Change in the Sichuan Basin of China	LI Ai-wen, SONG Liang-ying, RAN Min, <i>et al.</i> (4679)
Stoichiometric Imbalance of Abandoned Grassland Under Precipitation Changes Regulate Soil Respiration	WANG Jia-yi, WANG Xing, WANG Yuan-zhuo, <i>et al.</i> (4689)
Effects of Water-salt Environment on Freshwater Wetland Soil C, N, and P Ecological Stoichiometric Characteristics in the Yellow River Estuary Wetland	QIN Ji-fa, ZHANG Jia-peng, SANG Luan, <i>et al.</i> (4698)
Spatial Distribution of Soil Heavy Metals and Regional Control Strategies in China at Province Level	SHI Hang-yuan, WANG Peng, ZHENG Jia-tong, <i>et al.</i> (4706)
Comprehensive Review on Environmental Biogeochemistry of Nonylphenol and Suggestions for the Management of Emerging Contaminants	HONG Ya-jun, FENG Cheng-lian, XU Da-yong, <i>et al.</i> (4717)
Research Progress on Distribution Characteristics and Formation Mechanisms of Microplastics in the Environment	ZHANG Long-fei, LIU Yu-huan, RUAN Rong-sheng, <i>et al.</i> (4728)
Review on the Long-term and Short-term Effects of Biochar Addition on Soil Greenhouse Gas Emissions	ZHOU Yong-chun, WU Liu-lin, LI Dan-yang, <i>et al.</i> (4742)
Iron-based Bimetallic Catalysts for Persulfate Activation to Remove Antibiotics in Water: A Review	WEI Jian, ZHANG Xin-yi, GUO Zhuang, <i>et al.</i> (4751)
Analysis of the Environmental Risk of Livestock Manure Pollution and Resource Treatment Technology	AN Jing, DING Zi-ming, GAO Cheng-cheng, <i>et al.</i> (4764)