

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第37卷 第12期

Vol.37 No.12

2016

中国科学院生态环境研究中心 主办
科学出版社 出版



目次(卷终)

基于数值计算的细颗粒物采样管路传输损失评估	罗李娜,程真,朱雯斐,张强,楼晟荣,乔利平,晏乃强(4457)
南京北郊重金属气溶胶粒子来源分析	秦鑫,张泽锋,李艳伟,沈艳,赵姝慧(4467)
南京青奥会期间不同天气条件下大气气溶胶中水溶性离子的分布特征	师远哲,安俊琳,王红磊,邹嘉南,王俊秀(4475)
苏州市 PM _{2.5} 中水溶性离子的季节变化及来源分析	王念飞,陈阳,郝庆菊,王欢博,杨复沐,赵晴,薄宇,贺克斌,姚玉刚(4482)
成都西南郊区春季 PM _{2.5} 中元素特征及重金属潜在生态风险评价	杨怀金,杨德容,叶芝祥,张恒德,马学款,汤志亚,毛冬艳(4490)
泉州市大气降尘中稀土元素地球化学特征及来源解析	张棕巍,于瑞莲,胡恭任,胡起超,王晓明(4504)
青奥会期间基于 $\delta^{13}\text{C}$ 观测的大气 CO ₂ 来源解析	徐家平,李旭辉,肖薇,次仁旺姆,温学发,刘寿东,杜雪婷,曹畅(4514)
民航飞机起飞过程气态污染物排放特征分析	韩博,黄佳敏,魏志强(4524)
畜禽养殖场空气中可培养抗生素耐药菌污染特点研究	张兰河,贺雨伟,陈默,高敏,仇天雷,王旭明(4531)
有序介孔材料过滤脱除纳米颗粒物	邢奕,王骥,路培,李子宜,刘应书,于晗(4538)
基于 DOC + CDPF 技术的公交车燃用生物柴油气态物道路排放特性	楼狄明,张允华,谭丕强,胡志远(4545)
亚热带浅水池塘水-气界面甲烷通量特征	龙丽,肖尚斌,张成,张文丽,谢恒,李迎晨,雷丹,穆晓辉,张军伟(4552)
浙江汤浦水库浮游植物季节演替及其影响因子分析	马沛明,施练东,张俊芳,胡菊香,赵先富(4560)
太湖典型沉水植物生理指标对水质的响应	高敏,胡维平,邓建才,胡春华(4570)
利用 UV-vis 及 EEMs 对比冬季完全混合下两个不同特征水库溶解性有机物的光学特性	黄廷林,方开凯,张春华,周石磊,曾明正,龙圣海,李扬,夏超,从海兵(4577)
三峡前置库汉丰湖试运行年水体水质现状及控制效果评估	杨兵,何丙辉,王德宝(4586)
太湖贡湖湾水域抗生素污染特征分析与生态风险评价	武旭跃,邹华,朱荣,王靖国(4596)
滇池不同湖区沉积物正构烷烃的分布特征及其环境意义	余丽燕,韩秀秀,黄晓虎,吴亚林,杨浩,黄涛,余艳红,黄昌春(4605)
洱海入湖河口湿地干湿季沉积物氮、磷、有机质垂向分布特征及污染风险差异性	王书锦,刘云根,王妍,侯磊,张超(4615)
蠡湖表层沉积物氮矿化过程及其赋存形态变化	赵丽,王书航,姜霞,黄晓峰,陈俊伊(4626)
三峡库区表层沉积物重金属含量时空变化特征及潜在生态风险变化趋势研究	卓海华,孙志伟,谭凌智,吴云丽,兰静(4633)
模拟巢湖流域氯菊酯的迁移转化和生态风险	刘亚莉,王继忠,彭书传,陈天虎(4644)
有机质胶体对卡马西平在多孔介质中迁移影响模拟实验	张思,何江涛,朱晓婧(4651)
无机型城市景观水体表面污染的悬浮颗粒物粒度分布特征:以中国运河苏州段为例	李倩倩,潘杨,贡丹燕,黄勇,夏侯刚(4662)
清水江流域岩石风化特征及其碳汇效应	吕婕梅,安艳玲,吴起鑫,吴永贵(4671)
南方典型农田区浅层地下水污染特征	郭卉,虞敏达,何小松,罗岳平(4680)
水化学和环境同位素在示踪枣庄市南部地下水硫酸盐污染源中的应用	马燕华,苏春利,刘伟江,朱亚鹏,李俊霞(4690)
粗放型绿色屋顶对多环芳烃的控制效果	沈庆然,侯娟,李田(4700)
超滤的预处理工艺对比研究:化学混凝与电絮凝	赵凯,杨春风,孙境求,李静,胡承志(4706)
QCM-D 与 AFM 联用解析 EfOM 在 SiO ₂ 改性 PVDF 超滤膜表面的吸附机制	姜家良,王磊,黄丹曦,黄松,朱振亚,徐亚伟,李青青(4712)
群体感应淬灭菌的分离及其膜污染控制性能	赵畅,王文昭,徐期勇(4720)
水力负荷对生物沉淀池污染物净化性能的影响特性	王文东,马翠,刘荟,范银萍,刘国旗,张珂(4727)
外加微量 N ₂ H ₄ 下 SBR 中硝化微生物特性	肖凡颖,张代钧,卢培利(4734)
部分半硝化 AGS-SBR 工艺的启动及其种群结构分析	鲁航,信欣,管蕾,邹长武,余静(4741)
典型油田多环芳烃污染对土壤反硝化微生物群落结构的影响	姚炎红,王明霞,左小虎,李振轮,罗锋,周志峰(4750)
生物强化膜生物反应器(MBR)处理邻苯二甲酸二乙酯(DEP)效果及微生物群落结构分析	张可,关允,罗鸿兵,陈伟,陈佳,陈强(4760)
开闭路条件下沉积物微生物燃料电池阳极细菌群落差异解析	吴义诚,邓全鑫,王泽杰,郑越,李岱霖,赵峰(4768)
全氟辛酸(PFOA)厌氧生物可降解性	李飞,陈轶丹,周真明,廖晓斌,马红芳,苑宝玲(4773)
水肥用量对玉米季土壤 CO ₂ 排放的综合影响	杨硕欢,张保成,王丽,胡田田(4780)
福建西部山地水土流失区土壤呼吸的空间异质性	姚雄,余坤勇,曾琪,杨玉洁,张今朝,刘健(4789)
基于不确定性分析的土壤-水稻系统镉污染综合风险评估	杨阳,陈卫平,李艳玲,王美娥,彭驰(4800)
北京市不同地区土壤中的球囊霉素荧光特征及其与土壤理化性质的关系	柴立伟,刘梦娇,蒋大林,樊灏,曹晓峰,黄艺(4806)
准东煤炭产业区周边土壤重金属污染与健康风险的空间分布特征	刘芳,塔西甫拉提·特依拜,依力亚斯江·努尔麦麦提,王楠,杨春,夏楠,高宇潇(4815)
河北平原潮土中微生物对氮降解特征	张灿灿,庞会从,高太忠,张静,李晓玉,付胜霞(4830)
砷-非对蜈蚣草根不同碳基团的影响	廖晓勇,龚雪刚,阎秀兰,马旭,吴泽赢(4841)
碱性固体对污泥的调质堆肥影响及产品对土壤的改良潜力	蔡函臻,宁西翠,王权,张增强,任秀娜,李荣华,王美净, Mukesh Kumar Awasthi(4848)
不同热解及来源生物炭对西北黄土吸附敌草隆的影响	孙航,蒋煜峰,石磊平,慕仲峰,展惠英(4857)
南丹矿业活动影响区人群头发中重金属含量特征	田美玲,钟雪梅,夏德尚,伏凤艳,陆素芬,李黎,宋波(4867)
Mg-Al-Me (Me = La, Ce, Zr) 复合氧化物制备及其除氟性能	汪爱河,周康根,刘行,陈泉州,刘芳(4874)
铁锰复合氧化物/壳聚糖珠:一种环境友好型除磷吸附剂	付军,范芳,李海宁,张高生(4882)
不同粒径垃圾焚烧飞灰重金属毒性浸出及生物可给性	王春峰,陈冠飞,朱艳臣,姚丹,皇晓晨,王连军(4891)
《环境科学》第37卷(2016年)总目录	(4899)
《环境科学》征稿简则(4466) 《环境科学》征订启事(4699) 信息(4489,4881)	

太湖贡湖湾水域抗生素污染特征分析与生态风险评价

武旭跃^{1,2}, 邹华^{1,2*}, 朱荣¹, 王靖国¹

(1. 江南大学环境与土木工程学院, 无锡 214122; 2. 江苏省水处理技术与材料协同创新中心, 苏州 215009)

摘要: 为评估太湖贡湖湾水域抗生素污染程度与生态风险, 利用高效液相色谱-串联质谱检测分析了 4 类抗生素(四环素类、喹诺酮类、磺胺类、大环内酯类)在贡湖湾表层水的污染特征。结果表明, 16 种目标抗生素中, 有 13 种在贡湖湾水体中检出, 质量浓度范围为 0.005 ~ 4.720 $\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$, 其中土霉素(oxytetracycline, OTC)检出浓度最高。抗生素在南北两湖湾的检出水平也互有高低, 其中四环素类抗生素北部湾要高于南部湾, 而喹诺酮类和磺胺类抗生素的检出量南部湾要高于北部湾。采用风险商值法进行风险评估, 初步评估结果为贡湖湾水域中检出的抗生素中, 处于高风险的有 5 种: 四环素类土霉素(OTC)及喹诺酮类诺氟沙星(norfloxacin, NOR)、氧氟沙星(ofloxacin, OFL)、环丙沙星(ciprofloxacin, CIP)和恩诺沙星(enrofloxacin, ENR), 占检出种类 38.5%; 中风险有 4 种: 四环素(tetracycline, TC)、金霉素(chlortetracycline, CTC)、罗红霉素(roxithromycin, ROX)和磺胺甲氧嘧啶(sulfamethoxazole, SMX), 占检出种类 30.8%; 其余 4 种磺胺甲基噻唑(sulfamerazine, SMR)、磺胺甲氧吡嗪(sulfamethoxypyridazine, SMP)、磺胺喹噁啉(sulfaquinoxaline, SQX)和甲氧苄氨嘧啶(trimethoprim, TMP)为低风险。评估结果表明贡湖水域抗生素存在一定生态风险, 其中四环素类和喹诺酮类尤为突出, 应引起足够的注意, 并采取相应防范措施。

关键词: 太湖贡湖湾; 表层水; 抗生素; 污染特征; 生态风险评价

中图分类号: X524; X820.4; X824 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2016)12-4596-09 DOI: 10.13227/j.hjxx.201603005

Occurrence, Distribution and Ecological Risk of Antibiotics in Surface Water of the Gonghu Bay, Taihu Lake

WU Xu-yue^{1,2}, ZOU Hua^{1,2*}, ZHU Rong¹, WANG Jing-guo¹

(1. School of Environment and Civil Engineering, Jiangnan University, Wuxi 214122, China; 2. Jiangsu Collaborative Innovation Center of Technology and Material of Water Treatment, Suzhou 215009, China)

Abstract: In order to assess the contamination degree and ecological risk of antibiotics in Gonghu Bay, Taihu Lake, the contamination characteristics of four kinds of antibiotics (tetracycline, quinolones, sulfonamides and macrolides) in surface water of the Gonghu Bay were analyzed using high performance liquid chromatography and tandem mass spectrometry (HPLC-MS/MS). The results showed that 13 of the 16 target antibiotics were detected in the Gonghu Bay. The mass concentrations of the 13 antibiotics ranged 0.005-4.720 $\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$, and OTC was of the highest concentration. The detection level of antibiotics was also different between the northern and the southern parts of Gonghu Bay, and the mass concentration of tetracycline in the northern part was higher than that in the southern part. Moreover, the concentrations of quinolones and sulfonamides in the southern part were larger than those in the northern part. The potential ecological risks of the detected antibiotics were assessed via using the risk quotients (RQ_s) approach. The preliminary results showed that 5 kinds of antibiotics: OTC, NOR, OFL, CIP and ENR were at high risk, accounting for 38.5% and 4 kinds of antibiotics TC, CTC, ROX and SMX were at medium risk, accounting for 30.8% in the antibiotics detected in Gonghu Bay, while the others (SMR, SMP, SQX, TMP) were at low risk. Ecological risk assessment revealed that some risks were present in antibiotics in the Gonghu Bay. The tetracyclines and quinolones were particularly prominent, which should be drawn enough attention, and corresponding preventive measures should be taken as well.

Key words: Gonghu Bay; surface water; antibiotics; pollution characteristics; ecological risk assessment

抗生素(antibiotics)是由细菌、霉菌或其它微生物产生的次级代谢产物或人工合成的类似物, 它能在较低浓度下有选择性地作用于菌体细胞特定环节, 干扰细胞的代谢作用, 妨碍生命活动或使停止生长, 甚至死亡。中国是抗生素使用大国, 也是抗生素生产大国, 据国家卫生部医院管理研究所药事管理研究部对抗生素滥用公共安全问题研究提供的资料, 我国每年抗生素原料生产量约为 21 万 t, 18 万 t 在国内销售, 人用、兽用各一半, 人均消费量 138

g, 是美国人均使用量的 10 倍以上(美国仅 13 g)^[1,2]。据 WHO 资料显示, 我国抗生素使用率中, 门诊感冒患者 75%、外科手术高达 95%、住院患者 80%, 其中使用广谱抗生素和联合应用的患者占

收稿日期: 2016-03-01; 修订日期: 2016-07-20

基金项目: 国家水体污染控制与治理科技重大专项(2012ZX07503-002)

作者简介: 武旭跃(1990~), 男, 硕士研究生, 主要研究方向为水体污染控制与治理, E-mail: wuxuyuej@126.com

* 通讯联系人, E-mail: zouhua@jiangnan.edu.cn

58%, 远高于国际上规定的抗生素使用率不超过 30% 的标准^[3]. 因此, 相比欧美国家, 中国的抗生素滥用现象尤为凸显, 且日益严重.

进入人和其它动物体内的抗生素大多不能被充分吸收利用, 随排泄物进入废水或直接排入环境^[4]. 相关研究表明现阶段的水处理技术对污水中含有的相当一部分抗生素没有明显的去除效果^[5,6], 虽然抗生素的半衰期很短, 但是由于频繁的使用和排入, 导致抗生素在水体中形成持续存在的状态, 影响水环境系统, 进而对人类健康及整个生态造成长期的潜在危害^[7]. 有报道指出: 由于受某药厂排放抗生素污水的影响, 南京自来水中甚至检测出了阿莫西林^[3], 水体中抗生素的污染风险引起了广泛的关注. 但目前, 我国对水体中抗生素的研究主要集中在河流、河口、海湾、水库等水体, 如广西邕江^[8]、大辽河^[9]、珠江口^[10]、钦州湾^[11]、深圳铁岗、西丽水库^[12,13]; 此外还有渤海湾^[14]、莱州湾^[15]、白洋淀^[16]、维多利亚港和珠江^[17]、黄浦江^[18]等水环境中. 太湖贡湖湾是无锡和苏州两城市重要的水源地, 其周边经济发达, 人口密度大, 因此其水质安全对于无锡和苏州的发展极为重要. 有研究表明^[19]贡湖周围分布有大量人口, 且存在禽畜养殖和较大面积水产养殖, 因此抗生素使用量较大, 这些抗生素如若处理不当进入水体, 会给贡湖生态安全带来极大风险. 但目前关于贡湖水中抗生素污染的研究还较少, 为此本文以贡湖表层水为研究对象, 分析其中抗生素的组成及分布特征, 并初步评价其生态风险, 以为贡湖的污染防治及环境保护提供科学的参考依据.

1 材料与方法

1.1 采样点设置

贡湖是位于太湖东北部的一个湖湾, 西北临无锡市, 西南与太湖相通, 面积 147 km², 平均水深 2 m, 是无锡和苏州两个城市重要的水源地^[19], 为了全面了解贡湖水域的抗生素污染情况及其风险程度, 共布设 9 个采样点, 其中包括贡湖主要河流长广溪、小溪港、望虞河、金墅港、石帆港等河口. 并根据苏锡二市贡湖水域的划分、采样点分布区域的特点将其分为南北两区, 采样点位置及分布图见表 1、图 1.

1.2 试剂与仪器

所用主要设备有: Oasis HLB 固相萃取小柱 (500 mg/6 mL, 美国 Waters 公司); 配有三重四级

杆检测器的高效液相色谱-串联质谱 (HPLC-MS/MS, Agilent 1200-6410A, 美国); ZORB-AXC₁₈ 色谱柱 (4.6 mm × 150 mm × 5.0 μm) 混合纤维素脂微孔滤膜 (0.22 μm, 0.45 μm); 氮吹仪; 固相萃取装置.

表 1 贡湖湾采样点位置分布表

Table 1 Distribution list of sampling sites of the Gonghu Bay			
分区	点位	经度/(°)	纬度/(°)
北区	1	120.247	31.372
	2	120.279	31.418
	3	120.355	31.459
	4	120.376	31.446
	5	120.405	31.440
南区	6	120.390	31.379
	7	120.361	31.395
	8	120.324	31.338
	9	120.294	31.363

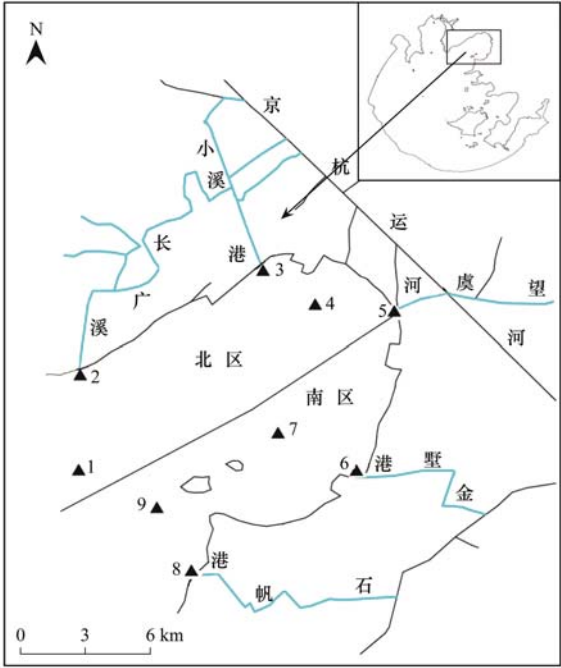


图 1 贡湖湾采样点分布示意

Fig. 1 Distribution of sampling sites of the Gonghu Bay

所用主要药品: Milli-Q 实验用水 (Millipore, Bedford, MA, 美国); 硫酸; 甲酸、乙腈、甲醇 (HPLC 级, J. T. Baker 公司, 美国); 乙二胺四乙酸二钠 (Na₂EDTA, 分析纯).

抗生素目标物: 四环素 (tetracycline, TC)、金霉素 (chlortetracycline, CTC)、土霉素 (oxytetracycline, OTC)、环丙沙星 (ciprofloxacin, CIP) 购自中国药品生物制品检定所; 氧氟沙星 (ofloxacin, OFL)、诺氟沙星 (norfloxacin, NOR)、恩诺沙星 (enrofloxacin, ENR)、磺胺醋酰 (n-

sulfanilylacetamide, SAAM)、磺胺甲基嘧啶(sulfamerazine, SMR)、磺胺甲氧哒嗪(sulfamethoxypyridazine, SMP)、磺胺二甲嘧啶(sulfadimidine, SMD)、磺胺甲基异噻唑(sulfamethoxazole, SMX)、磺胺喹噁啉(sulfaquinoxaline, SQX)、甲氧苄氨嘧啶(trimethoprim, TMP)、磺胺间二甲基嘧啶(sulfadimethoxine, SDM)、罗红霉素(roxithromycin, ROX)标样购自德国 Dr Ehrenstorfer GmbH 公司. 内标指示物: 仪器内标 $^{13}\text{C}_3$ -咖啡因($^{13}\text{C}_3$ -caffeine, I. S.), 购自美国剑桥同位素实验室; 回收率指示物: $^{13}\text{C}_6$ -磺胺甲噻二唑($^{13}\text{C}_6$ -sulfamethizole, S. S.), 购自 Toronto Research Chemicals Inc. (North York, ON, 加拿大). 上述标准物均为固体纯品, 纯度 >95%.

1.3 样品采集及预处理

样品采集: 采样日期为 2013 年 8 月上旬, 时间为上午 09:00, 采用 GPS 定位仪定位. 水样均采集表层水, 样品采集后置于棕色玻璃瓶中, 加入 $3\text{ mol}\cdot\text{L}^{-1}$ 的硫酸溶液调节 $\text{pH}=3$, 避光低温保存尽快运输至实验室, 并存放至 4°C 冰箱以待测定^[20]. 抗生素由国家环境分析检测中心检测.

样品预处理: 取水样 500 mL, 然后调节 $\text{pH}=3.0$, 并使用 $0.45\text{ }\mu\text{m}$ 的混合纤维素脂微孔滤膜滤除水中悬浮颗粒物, 加入回收指示剂 ^{13}C -磺胺甲噻二唑 $50.0\text{ }\mu\text{L}$ (标准样品质量浓度为 $1.0\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$) 和金属离子耦合剂 Na_2EDTA 0.4 g , 使样品混合均匀待测. 并使用活化后的 HLB 小柱进行富集. 待样品富集完成后, 依次使用 4 mL 高纯水和 4 mL 10% 的甲醇进行清洗, 然后在氮气保护下干燥 $30\sim45\text{ min}$ 除去残留水分, 再使用 8 mL 甲醇对 HLB 小柱淋洗, 将富集的物质洗脱下来, 收集洗脱液于 10 mL 试管中, 并在 40°C 水浴条件下氮吹浓缩至近干后用 10% 甲醇溶液将样品定容至 1.0 mL , 加入内标指示剂 $^{13}\text{C}_3$ -咖啡因(CAF), 将定容后的溶液通过 $0.22\text{ }\mu\text{m}$ 纤维滤膜过滤后, 使用液相色谱-串联质谱法(HPLC-MS/MS)进行检测.

1.4 HPLC-MS/MS 仪器分析条件

色谱条件: 所使用色谱柱为 ZARBAX Eclipse plus C_{18} ($150\text{ mm}\times2.1\text{ mm}\times3.5\text{ }\mu\text{m}$). 流动相 A 为乙腈, B 为 0.1% 的甲酸溶液, 流速设定为 $300\text{ }\mu\text{L}\cdot\text{min}^{-1}$, 进样量为 $10\text{ }\mu\text{L}$, 柱温为 30°C . 实验操作中具体的梯度淋洗程序参数见表 2. 每个梯度洗脱操作完成后还原流动相位初始状态, 并稳定 3 min .

质谱条件: 采用多反应监测(MRM)模式进行

检测. 离子源为电喷雾离子源(ESI), 在正离子模式下扫描, 雾化器压力为 40 psi , 毛细管电压为 4000 eV , 干燥器流速稳定为 $8\text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$.

质量控制: 采用内标法对样品进行定量分析, 在优化条件下进行测定, 使用抗生素标准溶液的质量浓度为 $1.0\sim500\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ 范围内呈现良好的线性关系, 相关系数 R^2 均不低于 0.99 ($P<0.05$). 准确量取 500 mL 水, 按照实验方法加入 25 ng 混合标准品, 测定 6 次, 由 6 个样品测定的标准偏差计算检出限和最低定量浓度. 当加标水平为 $0.05\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ 时, 6 次实验的 RSD (相对标准偏差) 为 $2.70\%\sim12.90\%$, 各目标物的回收率为 $71\%\sim105\%$, 说明该方法重现性较好^[21]. 检出限为 $0.003\sim0.016\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$, 最低定量浓度为 $0.011\sim0.054\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ [20].

表 2 梯度洗脱程序分离参数¹⁾

时间/min	流动相 A/%	流动相 B/%
0	10	90
8	10~40	90~60
16	40~90	60~10
24	90~100	10~0
27	100	0
32	10	90

1) 表内数据参考文献[20], 流速为 $0.3\text{ mL}\cdot\text{min}^{-1}$

1.5 生态风险评估方法

根据欧盟的技术指导文件(TGD)中关于环境风险评价的方法, 药品在环境中的生态风险可以根据风险商值(RQ_s)大小来评估^[22]. RQ_s 的计算可以通过污染物的环境预测浓度(predicted environmental concentration, PEC)或者实际监测浓度(measured environmental concentration, MEC)与预测无效应浓度(predicted no-effect cocentration, PNEC)的比值获得^[23,24]:

$$\text{RQ}_s = \text{MEC}/\text{PNEC} \text{ 或 } \text{RQ}_s = \text{PEC}/\text{PNEC} \quad (1)$$

$$\text{PNEC} = \text{LC}_{50} \text{ 或 } \text{PNEC} = \text{EC}_{50}/\text{AF} \quad (2)$$

式中, PEC: 环境预测浓度, $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$; MEC: 环境实测浓度, $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$; PNEC: 预测无效应浓度, $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$; LC_{50} : 半致死浓度, $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$; EC_{50} : 半最大效应浓度, $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$, LC_{50} 与 EC_{50} 均由查文献所得; AF: 评价因子; RQ_s : 综合毒性熵值.

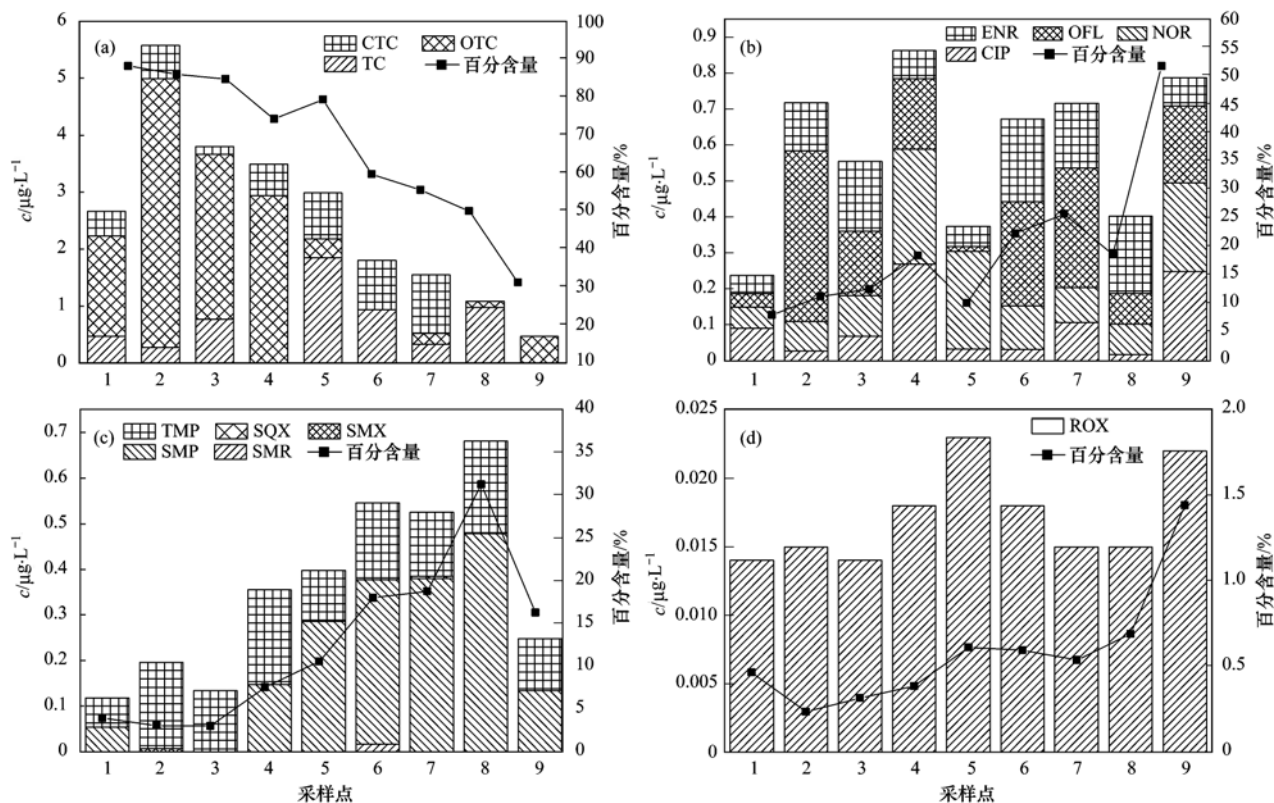
环境生态风险的高低根据 Hernando 等^[25]提出的 RQ_s 分类方法来评估生态风险等级: $\text{RQ}_s < 0.1$ 为最低风险; $0.1 \leq \text{RQ}_s < 1$ 为中等风险; $\text{RQ}_s \geq 1$ 为高风险.

2 结果与讨论

2.1 贡湖湾水体中抗生素的浓度分布

贡湖湾水体中监测的 16 种抗生素,分 4 大类:四环素类(TC、OTC、CTC)、喹诺酮类(NOR、OFL、CIP、ENR)、磺胺类(SAAM、SMR、SMP、SMD、

SMX、SQX、SDM、TMP)、大环内酯类(ROX)。在检测分析的 16 种抗生素中,除了磺胺醋酰(SAAM)、磺胺二甲基嘧啶(SMD)和磺胺间二甲基嘧啶(SDM)外,其余 13 种都有不同程度的检出。各采样点抗生素检出质量浓度见图 2、图 3。采样点 2 总抗生素检出残留量最高,达 $6.504 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ 。



(a)、(b)、(c)、(d) 分别表示四环素类、喹诺酮类、磺胺类、大环内酯类抗生素在各采样点的质量浓度以及所占该点的总抗生素浓度的百分含量

图 2 贡湖湾四类抗生素在各采样点的质量浓度分布及其百分含量

Fig. 2 Distribution of mass concentrations and percent contents of four kinds of antibiotics at each sampling site in the Gonghu Bay

土霉素(OTC)、氧氟沙星(OFL)、磺胺甲基异噁唑(SMX)在采样点 2 检出量最高,分别为 4.72 、 0.474 和 $0.007 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ 。环丙沙星(CIP)和甲氧苄氨嘧啶(TMP)在采样点 4 检出量最高分别为 $0.269 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ 和 $0.208 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ 。四环素(TC)、诺氟沙星(NOR)和罗红霉素(ROX)在采样点 5 检出量最高,分别为 1.85 、 0.271 和 $0.023 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ 。恩诺沙星(ENR)、磺胺甲基嘧啶(SMR)在采样点 6 检出量最高,分别为 $0.229 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ 和 $0.017 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ 。金霉素(CTC)和磺胺噻唑啉(SDM)在采样点 7 检出量最高,分别为 $1.03 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ 和 $0.005 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ 。磺胺甲氧嘧啶(SMP)在采样点 8 检出量最高,为 $0.478 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ 。

从图 2 可以看出,四环素类抗生素北区明显高于南区,且 2 号点最高,其中土霉素(OTC)在北区 1~4 号点质量浓度远高于北区的 5 号以及南区其余四点。北区 1~5 号点以及南区 6~8 三点四环素类抗生素占该点的总抗生素质量浓度的 50% 以上。喹诺酮类主要分布在北区 2~4 号和南区 6、7、9 号采样点,且占 9 号采样点总质量浓度的 50% 以上。磺胺类在南区 6~8 点普遍偏高,其中磺胺甲氧嘧啶(SMP)含量最高,这是一种在中国使用较多的畜用抗生素之一,在南区较高的原因可能与南区的大面积的水产养殖有关。此外大环内酯类罗红霉素各点差异不大,且都不是各点抗生素的主要组成。

综上,各抗生素的总检出水平为:土霉素

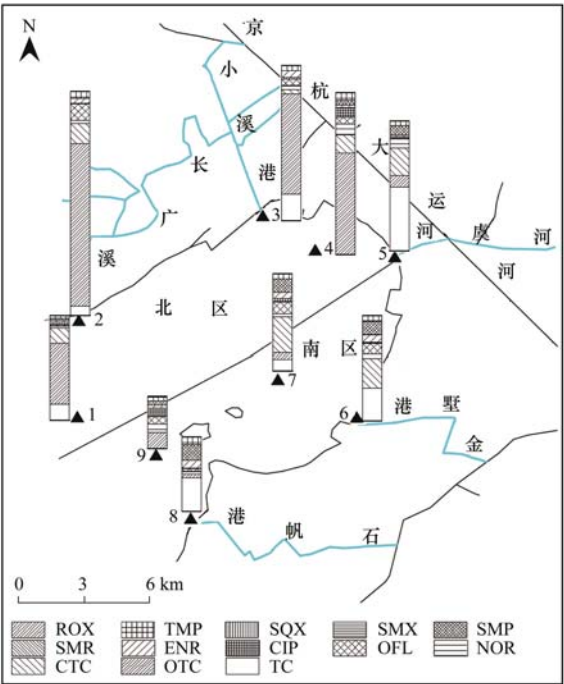


图3 贡湖湾各采样点抗生素质量浓度与种类分布
Fig. 3 Mass concentrations and distribution of antibiotics at each sampling site in the Gonghu Bay

(OTC) > 四环素 (TC) > 金霉素 (CTC) > 磺胺甲氧噻嗪 (SMP) > 氧氟沙星 (OFL) > 诺氟沙星 (NOR) > 甲氧苄氨嘧啶 (TMP) > 恩诺沙星 (ENR) > 环丙沙星 (CIP) > 罗红霉素 (ROX) > 磺胺甲基嘧啶 (SMR) > 磺胺甲基异噁唑 (SMX) > 磺胺喹噁啉 (SQX). 按照抗生素种类, 四类抗生素的检出水平为: 四环素类 ($n. d \sim 4.72 \mu g \cdot L^{-1}$) > 磺胺类 ($n. d \sim 0.478 \mu g \cdot L^{-1}$) > 喹诺酮类 ($0.014 \sim 0.474 \mu g \cdot L^{-1}$) > 大环内酯 ($0.014 \sim 0.023 \mu g \cdot L^{-1}$). 参照表 3 可知, 与我国其它地表水环境中主要抗生素质量浓度相比贡湖湾水域抗生素质量浓度处于一般水平, 其中四环素类处于较高水平, 而磺胺类、磺胺类、大环内酯相比处于稍低水平.

2.2 贡湖湾抗生素的污染特征

根据贡湖周边环境和行政区划, 贡湖分为南、北两区 (图 1 和表 1). 所有监测的抗生素数据如表 4 所示.

在检出的 13 种抗生素中, 喹诺酮类 (NOR、OFL、CIP、ENR) 和磺胺类中的甲氧苄氨嘧啶

表 3 国内不同水体中抗生素质量浓度比较¹⁾

Table 3 Comparison of the mass concentrations of antibiotics in different water bodies in China

地点	水域	抗生素质量浓度/ $ng \cdot L^{-1}$							
		ROX	NOR	OFL	TMP	SMX	CIP	OTC	TC
天津 ^[14]	渤海湾	n. d ~ 630	n. d ~ 6 800	n. d ~ 5 100	n. d ~ 120	n. d ~ 140	n. d ~ 390	n. d ~ 270	n. d ~ 30
辽宁 ^[9]	大辽河	n. d ~ 198	n. d ~ 1 380	n. d ~ 280	n. a ~ 127	n. d ~ 91	n. d ~ 65	n. d ~ 137	n. d ~ 15
山东 ^[15]	莱州湾	n. d ~ 227	n. d ~ 346	n. d ~ 45.4	n. d ~ 13 600	0.36 ~ 527	n. d ~ 340	—	—
河北 ^[16]	白洋淀	n. d ~ 155	n. d ~ 156	0.38 ~ 32.6	—	n. d ~ 940	n. d ~ 60.3	—	—
上海 ^[18]	黄浦江	0.13 ~ 1.86	n. d	n. d	2.23 ~ 11.73	4.86 ~ 14.32	n. d	12.99 ~ 84.54	15.07 ~ 113.89
本研究	贡湖湾	14 ~ 23	59 ~ 271	14 ~ 474	64 ~ 208	n. d ~ 7	18 ~ 269	n. d ~ 4720	0 ~ 1850

1) n. d 表示低于检出限, 下同; “—”表示数据缺失

(TMP) 以及大环内酯类的罗红霉素 (ROX) 的检出率为 100%; 其次为四环素类的土霉素 (OTC), 检出率高达 89%; 四环素 (TC) 和磺胺甲氧噻嗪 (SMP) 检出率为 78%; 金霉素 (CTC) 检出率为 68%; 其余 3 种检出率都不足 50%.

根据区域划分, 贡湖湾北区 (1 ~ 5 号采样点) 的 5 个采样点中, 监测的 16 种抗生素中共检测出 11 种, 其中四环素类 3 种, 喹诺酮类 4 种, 磺胺类有 3 种, 大环内酯类 1 种; 而在南区 (6 ~ 9 号采样点) 的 4 个采样点中检出 12 种抗生素, 其中四环素类 3 种, 喹诺酮类 4 种, 磺胺类 4 种, 大环内酯类 1 种. 除此以外, 南北两区域检出各种抗生素浓度的平均值也各有不同.

综合表 4 和图 4 可以看出来, 在监测的点位上抗生素的平均值在南北两个湖湾互有高低, 各不相

同. 其中四环素类的检出量明显北部高于南部, 特别是土霉素 (OTC) 尤为突出; 而磺胺类和喹诺酮类抗生素的平均值南部相比北部相对要高一些, 这说明南部湾这两类抗生素的污染要更重一些; 大环内酯类抗生素的平均值在两个湖湾内含量相当.

由于贡湖的抗生素主要来源于周边的水产养殖、禽畜养殖使用的抗生素对贡湖的输入及贡湖流域居民药用抗生素残留的输入. 因此, 出现这样的现象的主要原因是南北两湖湾的周围的环境不同. 曹卉等^[19]在 2011 年的研究中划定了环贡湖范围离岸 3 km 内的 148 km² 区域, 区域内共有 13.71 万人, 其中在北部湾的无锡境内有 7.21 万人, 占全部的 54.6%, 其中城镇和乡村人口分别占 36% 和 67%; 而苏州境内的 6.5 万人中乡村人口占到 97%, 城镇人口仅为 3%. 除此之外, 在贡湖研究区

域 3 km 以外地区无锡境内城镇化程度也相对高于该地区苏州境内的城镇化程度。而四环素类作为抗菌谱广,价格便宜的抗生素药,在城镇化程度高的地方使用量远多于乡村,因此可能造成四环素类在北部湾比南部湾高一些。相比之下,南部湾苏州地区的 5 万人中,有 97% 的为乡村人口,养殖牲畜较多,且贡湖区域内有鱼塘 6 320 km²,全部位于南部湾苏州境内的通安镇和东渚镇,主要分布在渚镇河、游湖及田鸡港河道两侧,农用、畜牧养殖业或动物疾病治疗药物的抗生素使用量相对较高。喹诺酮类作为人畜共用抗生素在我国被广泛应用,且被认为是理想的抗菌药物,在我国普遍且大量用于禽畜养殖^[26];磺胺类抗生素由于其抗菌谱广、疗效强等特点在我国已广泛应用于如畜牧养殖和水产养殖等的养殖业^[11,27]。南部湖湾地区由于村镇较多相比禽畜养殖较多,同时贡湖水域的全部水产养殖都位于南

部湖湾的苏州地区,这可能是造成这两类抗生素在南部湖湾较高的原因。

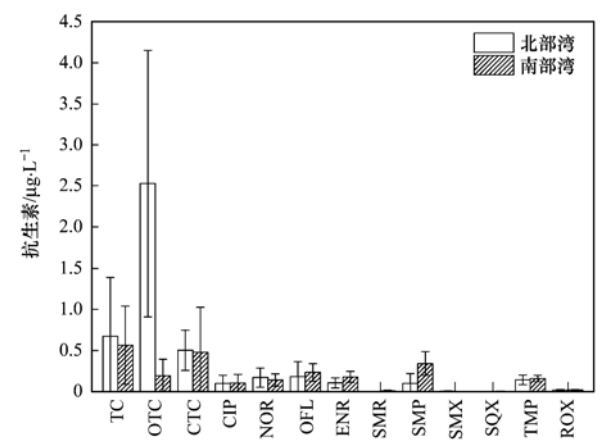


图 4 贡湖湾南北湖湾抗生素质量浓度
Fig. 4 Mass concentrations of antibiotics in the Gonghu Bay

表 4 贡湖湾水体南北区抗生素质量浓度及检出率

Table 4 Mass concentrations and detection rates of antibiotics in the southern and northern regions of Gonghu Bay						
抗生素种类		采样点分区				检出率/%
		北区		南区		
		最小值 / $\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$	最大值 / $\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$	最小值 / $\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$	最大值 / $\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$	
四环素类	四环素 TC	n. d	1.85	n. d	1.740	78
	土霉素 OTC	0.332	4.720	n. d	0.472	89
	金霉素 CTC	0.132	0.807	0.866	1.030	67
喹诺酮类	诺氟沙星 NOR	0.059	0.271	0.085	0.246	100
	氧氟沙星 OFL	0.014	0.474	0.085	0.331	100
	环丙沙星 CIP	0.028	0.269	0.018	0.249	100
	恩诺沙星 ENR	0.050	0.195	0.019	0.229	100
磺胺类	磺胺醋酰 SAAM	n. d	n. d	n. d	n. d	0
	磺胺甲基嘧啶 SMR	n. d	n. d	n. d	0.017	11
	磺胺甲氧哒嗪 SMP	n. d	0.286	0.360	0.478	78
	磺胺二甲嘧啶 SMD	n. d	n. d	n. d	n. d	0
	磺胺甲基异噁唑 SMX	n. d	0.007	n. d	n. d	11
	磺胺喹噁啉 SQX	n. d	n. d	n. d	0.005	11
	磺胺间二甲基嘧啶 SDM	n. d	n. d	n. d	n. d	0
	甲氧苄氨嘧啶 TMP	0.064	0.208	0.114	0.204	100
大环内酯类	罗红霉素 ROX	0.014	0.023	0.015	0.022	100

2.3 贡湖湾抗生素生态风险评价

本研究中,PNEC 值是通过阅读文献收集抗生素对一些物种的急性和慢性毒理数据求出的^[20,28-33]。基于最坏情况考虑,PNEC 计算筛选使用最敏感物种获得,同时环境中实测抗生素浓度选择最大值计算^[8]。计算结果见表 5。

根据 RQ_s 风险熵值的计算评价方法,计算得贡湖湾检测出的 13 种抗生素 RQ_s 值如表 6。从中可看出处于高风险抗生素有 5 种,占检出种类 38.5%,分别为四环素类 OTC 以及喹诺酮类 NOR、OFL、CIP 和 ENR,说明贡湖湾中四环素类中 OTC 以及喹

诺酮类 4 种抗生素对贡湖中相应敏感水生生物存在慢性或急性毒性风险;处于中风险有 4 种,占检出种类的 30.8%,分别为 TC、CTC、ROX 和 SMX;其余 4 种抗生素处于低风险,占检出种类的 30.8%,分别为 SMR、SMP、SQX 和 TMP,其生态风险并不显著。

评价结果显示,处于中高风险的 9 种抗生素中包括监测四环素类全部 4 种、喹诺酮类全部 4 种和大环内酯类全部 1 种以及磺胺类 1 种,环丙沙星(CIP)尤为突出。四环素类和喹诺酮类及大环内酯类罗红霉素主要用于医药或农用养殖用药,具有相

表 5 抗生素对应最敏感物种毒理数据^[20,28~33]

Table 5 Aquatic toxicity data of antibiotics to the most sensitive aquatic species					
抗生素	受试物种	毒性数据/ $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$	毒性类型	评估因子	$\text{PNEC}/\text{ng} \cdot \text{L}^{-1}$
OTC	<i>P. subcapitata</i>	$\text{EC}_{50} = 1.04$	急性	1 000	1.04×10^3
CTC	<i>C. pyrenoidosa</i>	$\text{EC}_{50} = 9.31$	急性	1 000	9.31×10^3
TC	<i>P. subcapitata</i>	$\text{EC}_{50} = 3.31$	急性	1 000	3.31×10^3
NOR	<i>V. fischeri</i>	$\text{NOEC} = 0.010\ 38$	慢性	100	103.8
OFL	<i>P. subcapitata</i>	$\text{NOEC} = 0.001\ 13$	慢性	100	11.3
CIP	<i>M. aeruginosa</i>	$\text{EC}_{50} = 0.002$	急性	1 000	2
ENR	<i>V. fischeri</i>	$\text{NOEC} = 0.00288$	慢性	100	28.8
ROX	<i>P. subcapitata</i>	$\text{NOEC} = 0.01$	慢性	1 000	100
TMP	<i>R. salina</i>	$\text{EC}_{50} = 16$	急性	1 000	1.6×10^4
SDM	Algae	$\text{EC}_{50} = 401.92$	急性	1 000	4.02×10^5
SAAM	Algae	$\text{EC}_{50} = 4.73 \times 103$	急性	1 000	4.73×106
SMD	<i>S. vacuolatus</i>	$\text{EC}_{50} = 19.52$	急性	1 000	1.95×10^4
SMP	Algae	$\text{EC}_{50} = 1\ 721.09$	急性	1 000	1.72×10^6
SMX	<i>S. leopoliensis</i>	$\text{EC}_{50} = 0.027$	急性	1 000	27
SMR	Algae	$\text{EC}_{50} = 1\ 598.38$	急性	1 000	1.6×10^6
SQX	<i>Daphnia curvirostris</i>	$\text{EC}_{50} = 84.46$	急性	1 000	8.45×10^4

表 6 贡湖湾水域抗生素风险商值

Table 6 RQ_s of the antibiotics in the Gonghu Bay					
抗生素	RQ_s	风险等级	抗生素	RQ_s	风险等级
TC	5.59×10^{-1}	中风险	ENR	7.95	高风险
OTC	4.54	高风险	SMR	1.06×10^{-5}	低风险
CTC	1.11×10^{-1}	中风险	SMP	2.78×10^{-4}	低风险
NOR	2.61	高风险	SMX	2.59×10^{-1}	中风险
OFL	4.19×10	高风险	SQX	5.92×10^{-5}	低风险
CIP	1.35×10^2	高风险	TMP	1.30×10^{-2}	低风险
ROX	2.30×10^{-1}	中风险			

对较高的 RQ_s 风险,且这几类抗生素在贡湖检出质量浓度相对较高,这说明此类抗生素药物在贡湖周围居民中使用量较大,使用频率高. 残留水中的抗生素可能会对水生生物产生一定的急性或慢性毒性效应,同时抗生素的长期残留还可能会刺激病原菌产生耐药性,这势必会对原有稳定的生态系统产生影响^[34];其次,养殖用抗生素的大量使用可能会导致禽畜鱼类产生耐药性,长期食用具有耐药性的肉和蛋对人类健康可能具有潜在威胁^[35]. 同时,医用的四环素类和大环内酯类罗红霉素以及人用的喹诺酮类的滥用可能会使病菌产生抗药性,进入体内未被完全代谢的抗生素会在人体内富集,威胁人体健康;此外,抗生素的频繁过量使用容易引发毒副作用,从而影响人体健康.

综上所述,当前贡湖水域抗生素风险问题不容忽视,应该引起注意并加以防范,避免滥用现象,从而降低相应生态风险.

3 结论

(1)贡湖湾水体监测的 16 种抗生素,除磺胺醋

酰(SAAM)磺胺二甲基嘧啶(SMD)和磺胺间二甲基嘧啶(SDM)外,共检出 13 种抗生素,质量浓度范围 $0.005 \sim 4.720 \mu\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$. 13 种抗生素中,OTC(土霉素)检出浓度最高, $4.720 \mu\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$;SQX(磺胺喹噁啉)检出浓度最低,仅为 $0.005 \mu\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$,且仅在 7 号采样点有检出. 四类抗生素检出水平为:四环素类($n. d \sim 4.72 \mu\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$)>磺胺类($n. d \sim 0.478 \mu\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$)>喹诺酮类($0.014 \sim 0.474 \mu\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$)>大环内酯类($0.014 \sim 0.023 \mu\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$). 对比国内其他水体环境,贡湖湾水体抗生素质量浓度总体上处于一般水平,但局部采样点(如 2 号点)和个别抗生素(如土霉素、喹诺酮类)检出浓度较高,应该引起足够的注意.

(2)贡湖水体中检出的 13 种抗生素中,喹诺酮类(NOR、OFL、CIP、ENR)和磺胺类中的甲氧苄氨嘧啶(TMP)以及大环内酯类的罗红霉素(ROX)的检出率为 100%,其余检出率也是相对较高的,这说明在贡湖湾周围抗生素使用量大. 同时,检出抗生素在南北两湖湾的检出水平互有高低,其中四环素

类抗生素北部湾要高于南部湾,而喹诺酮类和磺胺类抗生素南部湾的检出量要高与北部湾,这是由于南北湖湾周边不同的社会生活环境造成的。

(3)通过风险商值法评价检出的 13 种抗生素,结果表明贡湖湾水域中检出的抗生素中,处于高风险的(即 $RQ_s > 1$)抗生素有 5 种(OTC、NOR、OFL、CIP、ENR),占检出种类 38.5%,其中环丙沙星(CIP)尤为突出;中风险($0.1 < RQ_s < 1$)有 4 种(TC、CTC、ROX、SMX),占检出种类 30.8%;其余 4 种(SMR、SMP、SQX、TMP)为低风险($RQ_s < 0.1$)。整体来看,贡湖水域抗生素存在一定生态风险,尤其是四环素类和喹诺酮类风险程度较高,应引起足够的注意,并采取相应防范措施。

参考文献:

- [1] 曾化松,王艳琳. 抗生素滥用的现状及应对策略[J]. 中国卫生事业管理, 2012, (5): 341-343.
Zeng H S, Wang Y L. The present situation and countermeasures of overuse of antibiotics [J]. Chinese Health Service Management, 2012, (5): 341-343.
- [2] Jiang Y H, Li M X, Guo C S, et al. Distribution and ecological risk of antibiotics in a typical effluent-receiving river (Wangyang River) in north China[J]. Chemosphere, 2014, 112: 267-274.
- [3] 叶必雄,张岚. 环境水体及饮用水中抗生素污染现状及健康影响分析[J]. 环境与健康杂志, 2015, 32(2): 173-178.
Ye B X, Zhang L. Analysis of the pollution status and health risk of antibiotics in water environment and drinking water [J]. Journal of Environment and Health, 2015, 32(2): 173-178.
- [4] Liu Y, Guan Y T, Gao B Y, et al. Antioxidant responses and degradation of two antibiotic contaminants in *Microcystis aeruginosa*[J]. Ecotoxicology and Environmental Safety, 2012, 86: 23-30.
- [5] Carballa M, Omil F, Lema J M, et al. Behavior of pharmaceuticals, cosmetics and hormones in a sewage treatment plant[J]. Water Research, 2004, 38(12): 2918-2926.
- [6] Le-Minh N, Khan S J, Drewes J E, et al. Fate of antibiotics during municipal water recycling treatment processes[J]. Water Research, 2010, 44(15): 4295-4323.
- [7] Christen V, Hickmann S, Rechenberg B, et al. Highly active human pharmaceuticals in aquatic systems: a concept for their identification based on their mode of action [J]. Aquatic Toxicology, 2010, 96(3): 167-181.
- [8] 薛保铭. 广西邕江水体典型抗生素污染特征与生态风险评估[D]. 南宁: 广西大学, 2013.
Xue B M. Contamination and risks assessment of typical antibiotics in the Yongjiang river, Guangxi Province [D]. Nanning: Guangxi University, 2013.
- [9] 秦延文,张雷,时瑶,等. 大辽河表层水体典型抗生素污染特征与生态风险评估[J]. 环境科学研究, 2015, 28(3): 361-368.
Qin Y W, Zhang L, Shi Y, et al. Contamination characteristics and ecological risk assessment of typical antibiotics in surface water of the Daliao River, China[J]. Research of Environmental Sciences, 2015, 28(3): 361-368.
- [10] 梁惜梅,施震,黄小平. 珠江口典型水产养殖区抗生素的污染特征[J]. 生态环境学报, 2013, 22(2): 304-310.
Liang X M, Shi Z, Huang X P. Occurrence of antibiotics in typical aquaculture of the Pearl River Estuary[J]. Ecology and Environmental Sciences, 2013, 22(2): 304-310.
- [11] 薛保铭,杨惟薇,王英辉,等. 钦州湾水体中磺胺类抗生素污染特征与生态风险[J]. 中国环境科学, 2013, 33(9): 1664-1669.
Xue B M, Yang W W, Wang Y H, et al. Occurrence, distribution and ecological risks of sulfonamides in the Qinzhou Bay, South China[J]. China Environmental Science, 2013, 33(9): 1664-1669.
- [12] 朱婷婷,段标标,宋战锋,等. 深圳铁岗水库水体中抗生素污染特征分析及生态风险评估[J]. 生态环境学报, 2014, 23(7): 1175-1180.
Zhu T T, Duan B B, Song Z F, et al. Pollution characteristics and ecological risk assessment of antibiotics in Tiegang Reservoir in Shenzhen[J]. Ecology and Environmental Sciences, 2014, 23(7): 1175-1180.
- [13] 朱婷婷,宋战锋,尹魁浩,等. 深圳西丽水库抗生素残留现状及健康风险研究[J]. 环境污染与防治, 2014, 36(5): 49-53.
Zhu T T, Song Z F, Yin K H, et al. Study on current situation and health risk of antibiotics residue in source water of Xili Reservoir in Shenzhen[J]. Environmental Pollution & Control, 2014, 36(5): 49-53.
- [14] Zou S C, Xu W H, Zhang R J, et al. Occurrence and distribution of antibiotics in coastal water of the Bohai Bay, China: impacts of river discharge and aquaculture activities[J]. Environmental Pollution, 2011, 159(10): 2913-2920.
- [15] Zhang R J, Zhang G, Zheng Q, et al. Occurrence and risks of antibiotics in the Laizhou Bay, China: impacts of river discharge [J]. Ecotoxicology and Environmental Safety, 2012, 80: 208-215.
- [16] Li W H, Shi Y L, Gao L H, et al. Occurrence of antibiotics in water, sediments, aquatic plants, and animals from Baiyangdian Lake in North China[J]. Chemosphere, 2012, 89(11): 1307-1315.
- [17] 徐维海,张干,邹世春,等. 香港维多利亚港和珠江广州河段水体中抗生素的含量特征及其季节变化[J]. 环境科学, 2006, 27(12): 2458-2462.
Xu W H, Zhang G, Zou S C, et al. Occurrence and seasonal changes of antibiotics in the Victoria Harbour and the Pearl river, south China[J]. Environmental Science, 2006, 27(12): 2458-2462.
- [18] Jiang L, Hu X L, Yin D Q, et al. Occurrence, distribution and seasonal variation of antibiotics in the Huangpu River, Shanghai, China[J]. Chemosphere, 2011, 82(6): 822-828.
- [19] 曹卉,朱雪诞,李巍,等. 贡湖环湖带陆域污染源类型·负荷及空间分布[J]. 安徽农业科学, 2011, 39(24): 14749-14752.
Cao H, Zhu X D, Li W, et al. Terrestrial pollution source type, load and spatial distribution in the lake belt area of Gonghu Bay [J]. Journal of Anhui Agricultural Sciences, 2011, 39(24): 14749-14752.
- [20] 张秀蓝,张煜,董亮,等. 固相萃取/液相色谱-串联质谱法检测医院废水中 21 种抗生素药物残留[J]. 分析测试学报,

- 2012, **31**(4): 453-458.
- Zhang X L, Zhang T, Dong L, *et al.* Determination of antibiotics in hospital wastewater using HPLC-MS/MS coupled with solid phase extraction[J]. *Journal of Instrumental Analysis*, 2012, **31**(4): 453-458.
- [21] 张虹. 加标回收率的测定和结果判断[J]. *石油与天然气化工*, 2000, **29**(1): 50-52.
- Zhang H. Determination of standard addition recovery rate and the judgment for the results[J]. *Chemical Engineering of Oil and Gas*, 2000, **29**(1): 50-52.
- [22] European Commission. Technical guidance document in support of commission directive 93/67/EEC on risk assessment for new notified substances and commission regulation (EC) No 1488/94 on risk assessment for existing substance [M]. Luxembourg: Office for Official Publications of the European Communities, 2003.
- [23] Xue B M, Zhang R J, Wang Y H, *et al.* Antibiotic contamination in a typical developing city in south China: occurrence and ecological risks in the Yongjiang River impacted by tributary discharge and anthropogenic activities [J]. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 2013, **92**: 229-236.
- [24] Vryzas Z, Alexoudis C, Vassiliou G, *et al.* Determination and aquatic risk assessment of pesticide residues in riparian drainage canals in northeastern Greece [J]. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 2011, **74**(2): 174-181.
- [25] Hernando M D, Mezcua M, Fernández-Alba A R, *et al.* Environmental risk assessment of pharmaceutical residues in wastewater effluents, surface waters and sediments[J]. *Talanta*, 2006, **69**(2): 334-342.
- [26] 郭欣妍, 王娜, 许静, 等. 兽药抗生素的环境暴露水平及其环境归趋研究进展[J]. *环境科学与技术*, 2014, **37**(9): 76-86.
- Guo X Y, Wang N, Xu J, *et al.* Research progress on environmental exposure levels and environmental fate of veterinary antibiotics[J]. *Environmental Science & Technology*, 2014, **37**(9): 76-86.
- [27] 王娜. 环境中磺胺类抗生素及其抗性基因的污染特征及风险研究[D]. 南京: 南京大学, 2014.
- Wang N. Pollution characteristics and risk of sulfonamides antibiotics and their resistance genes in the environment [D]. Nanjing: Nanjing University, 2014.
- [28] Stuer-Lauridsen F, Birkved M, Hansen L P, *et al.* Environmental risk assessment of human pharmaceuticals in Denmark after normal therapeutic use[J]. *Chemosphere*, 2000, **40**(7): 783-793.
- [29] Turkdogan F I, Yetilmezsoy K. Appraisal of potential environmental risks associated with human antibiotic consumption in Turkey[J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2009, **166**(1): 297-308.
- [30] Lin A Y C, Yu T H, Lin C F. Pharmaceutical contamination in residential, industrial, and agricultural waste streams: risk to aqueous environments in Taiwan [J]. *Chemosphere*, 2008, **74**(1): 131-141.
- [31] Białk-Bielińska A, Stolte S, Arming J, *et al.* Ecotoxicity evaluation of selected sulfonamides[J]. *Chemosphere*, 2011, **85**(6): 928-933.
- [32] Isidori M, Lavorgna M, Nardelli A, *et al.* Toxic and genotoxic evaluation of six antibiotics on non-target organisms[J]. *Science of the Total Environment*, 2005, **346**(1-3): 87-98.
- [33] Bona M D, Di Leva V, De Liguoro M. The sensitivity of *Daphnia magna* and *Daphnia curvirostris* to 10 veterinary antibacterials and to some of their binary mixtures[J]. *Chemosphere*, 2014, **115**: 67-74.
- [34] World Health Organization. Antimicrobial resistance: global report on surveillance[M]. Geneva: World Health Organization, 2014.
- [35] Harrison E M, Paterson G K, Holden M T G, *et al.* Whole genome sequencing identifies zoonotic transmission of MRSA isolates with the novel *mecA* homologue *mecC* [J]. *EMBO Molecular Medicine*, 2013, **5**(4): 509-515.

CONTENTS

Transport Loss Estimation of Fine Particulate Matter in Sampling Tube Based on Numerical Computation	LUO Li-na, CHENG Zhen, ZHU Wen-fei, <i>et al.</i> (4457)
Sources Analysis of Heavy Metal Aerosol Particles in North Suburb of Nanjing	QIN Xin, ZHANG Ze-feng, LI Yan-wei, <i>et al.</i> (4467)
Distribution Characteristics of Water Soluble Ions Under Different Weather Conditions During the Youth Olympic Games in Nanjing	SHI Yuan-zhe, AN Jun-lin, WANG Hong-lei, <i>et al.</i> (4475)
Seasonal Variation and Source Analysis of the Water-soluble Inorganic Ions in Fine Particulate Matter in Suzhou	WANG Nian-fei, CHEN Yang, HAO Qing-ju, <i>et al.</i> (4482)
Characteristics of Elements and Potential Ecological Risk Assessment of Heavy Metals in PM _{2.5} at the Southwest Suburb of Chengdu in Spring	 YANG Huai-jin, YANG De-rong, YE Zhi-xiang, <i>et al.</i> (4490)
Geochemical Characteristics and Source Apportionment of Rare Earth Elements in the Dustfall of Quanzhou City	ZHANG Zong-wei, YU Rui-lian, HU Gong-ren, <i>et al.</i> (4504)
¹³ C-based Sources Partitioning of Atmospheric CO ₂ During Youth Olympic Games, Nanjing	XU Jia-ping, LI Xu-hui, XIAO Wei, <i>et al.</i> (4514)
Gaseous Emission Characterization of Civil Aviation Aircraft During Takeoff	HAN Bo, HUANG Jia-min, WEI Zhi-qiang (4524)
Pollution Characteristics of Antibiotic Resistant Bacteria from Atmospheric Environment of Animal Feeding Operations	ZHANG Lan-he, HE Yu-wei, CHEN Mo, <i>et al.</i> (4531)
Removing Nano Particles by Filtration Using Materials with Ordered Mesoporous Structure	XING Yi, WANG Cong, LU Pei, <i>et al.</i> (4538)
Emission Characteristics of Gaseous Pollutants from City Bus Fueled with Biodiesel Based on DOC + CDPF Technology in Real Road Conditions	 LOU Di-ming, ZHANG Yun-hua, TAN Pi-qiang, <i>et al.</i> (4545)
Characteristics of Methane Flux Across the Water-air Interface in Subtropical Shallow Ponds	LONG Li, XIAO Shang-bin, ZHANG Cheng, <i>et al.</i> (4552)
Succession of Phytoplankton Assemblages and Its Influencing Factors in Tangpu Reservoir, Zhejiang Province	MA Pei-ming, SHI Lian-dong, ZHANG Jun-fang, <i>et al.</i> (4560)
Responses of Physiological Indices of Typical Submerged Macrophytes to Water Quality in Taihu Lake	GAO Min, HU Wei-ping, DENG Jian-cai, <i>et al.</i> (4570)
Optical Characteristics of Dissolved Organic Matter from Two Different Full Mixed Reservoirs in Winter Based on UV-vis and EEMs	 HUANG Ting-lin, FANG Kai-kai, ZHANG Chun-hua, <i>et al.</i> (4577)
Hanfeng Pre-dam Commissioning Eutrophication Status and Control Evaluation in Three Gorges Reservoir	YANG Bing, HE Bing-hui, WANG De-bao (4586)
Occurrence, Distribution and Ecological Risk of Antibiotics in Surface Water of the Gonghu Bay, Taihu Lake	WU Xu-yue, ZOU Hua, ZHU Rong, <i>et al.</i> (4596)
Distribution Characteristics of <i>n</i> -alkanes in Sediment Core and Implication of Environment in Different Lakes of Dianchi	YU Li-yan, HAN Xiu-xiu, HUANG Xiao-hu, <i>et al.</i> (4605)
Vertical Distribution and Pollution Risk Assessment of Nitrogen, Phosphorus, and Organic Matter in Sediment of Inflowing Rivers of Erhai Lake Estuarine Wetland in Wet and Dry Seasons	 WANG Shu-jin, LIU Yun-gen, WANG Yan, <i>et al.</i> (4615)
Variation of Nitrogen Forms in Sediments of Lihu Lake During Mineralization	 ZHAO Li, WANG Shu-hang, JIANG Xia, <i>et al.</i> (4626)
Temporal and Spatial Variation Characteristics of the Heavy Metals Content in the Surface Sediment and the Potential Ecological Risk Trends in the Three Gorges Reservoir Area	 ZHUO Hai-hua, SUN Zhi-wei, TAN Ling-zhi, <i>et al.</i> (4633)
Modeling the Environmental Behaviors and Ecological Risks of Permethrin in Chaohu Lake	LIU Ya-li, WANG Ji-zhong, PENG Shu-chuan, <i>et al.</i> (4644)
Simulation Experiment; Effect of Organic Colloid on Carbamazepine Transport in Porous Media	ZHANG Si, HE Jiang-tao, ZHU Xiao-jing (4651)
Grain Size Distribution Characteristics of Suspended Particulate Matter as Influenced by the Apparent Pollution in the Inorganic Type Urban Landscape Water: Taking the Canal of Suzhou Section as Example	LI Qian-qian, PAN Yang, GONG Dan-yan, <i>et al.</i> (4662)
Rock Weathering Characteristics and the Atmospheric Carbon Sink in the Chemical Weathering Processes of Qingshuijiang River Basin	LÜ Jie-mei, AN Yan-ling, WU Qi-xin, <i>et al.</i> (4671)
Pollution Characteristics Analysis in Shallow Groundwater of Typical Farmland Area, Southern China	GUO Hui, YU Min-da, HE Xiao-song, <i>et al.</i> (4680)
Identification of Sulfate Sources in the Groundwater System of Zaozhuang; Evidences from Isotopic and Hydrochemical Characteristics	MA Yan-hua, SU Chun-li, LIU Wei-jiang, <i>et al.</i> (4690)
Removal of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons by Extensive Green Roofs	SHEN Qing-ran, HOU Juan, LI Tian (4700)
Comparative Study on Pretreatment Process of Ultrafiltration; Chemical Coagulation and Electrocoagulation	ZHAO Kai, YANG Chun-feng, SUN Jing-qiu, <i>et al.</i> (4706)
Adsorption Mechanisms Analysis of EOM on PVDF Ultrafiltration Membranes Modified by SiO ₂ Using QCM-D and AFM	JIANG Jia-liang, WANG Lei, HUANG Dan-xi, <i>et al.</i> (4712)
Isolation of Quorum Quenching Bacteria and Their Function for Controlling Membrane Biofouling	ZHAO Chang, WANG Wen-zhao, XU Qi-yong (4720)
Effects of Hydraulic Loading Rate on the Removal of Pollutants from an Integrated Biological Settling Tank	WANG Wen-dong, MA Cui, LIU Hui, <i>et al.</i> (4727)
Characteristics of Nitrobacteria in SBR with Trace N ₂ H ₄ Addition	XIAO Peng-ying, ZHANG Dai-jun, LU Pei-li (4734)
Start-up of Partial Nitrification AGS-SBR and Analysis of Its Microbial Community Composition	LU Hang, XIN Xin, GUAN Lei, <i>et al.</i> (4741)
Effects of PAHs Pollution on the Community Structure of Denitrifiers in a Typical Oilfield	YAO Yan-hong, WANG Ming-xia, ZUO Xiao-hu, <i>et al.</i> (4750)
Performance and Microbial Community Analysis of Bioaugmented Treatment of Diethyl Phthalate (DEP) in Membrane Bioreactor	ZHANG Ke, GUAN Yun, LUO Hong-bing, <i>et al.</i> (4760)
Comparative Analysis of the Bacterial Community on Anodic Biofilms in Sediment Microbial Fuel Cell Under Open and Closed Circuits	 WU Yi-cheng, DENG Quan-xin, WANG Ze-jie, <i>et al.</i> (4768)
Anaerobic Biodegradability of Perfluorooctanoic Acid (PFOA)	LI Fei, CHEN Yi-dan, ZHOU Zhen-ming, <i>et al.</i> (4773)
Comprehensive Effects of the Application of Water and Fertilizer Amount on CO ₂ Emission from Soils of Summer-maize Field	YANG Shuo-huan, ZHANG Bao-cheng, WANG Li, <i>et al.</i> (4780)
Spatial Heterogeneity of Soil Respiration in the Soil Erosion Area of West Mountains in Fujian Province, China	YAO Xiong, YU Kun-yong, ZENG Qi, <i>et al.</i> (4789)
Comprehensive Risk Evaluation of Cadmium in Soil-rice System Based on Uncertainty Analysis	YANG Yang, CHEN Wei-ping, LI Yan-ling, <i>et al.</i> (4800)
Fluorescence Properties of Glomalin and Its Relationship with Soil Physicochemical Characteristics in Different Regions of Beijing City	 CHAI Li-wei, LIU Meng-jiao, JIANG Da-lin, <i>et al.</i> (4806)
Spatial Distribution Characteristics of Heavy Metal Pollution and Health Risk in Soil Around the Coal Industrial Area of East Junggar Basin	 LIU Fang, Tashpolat Tiyp, Ilyas Nurmamat, <i>et al.</i> (4815)
Characteristics of Microbial Nitrogen Degradation in Fluvio-aquic Soil of Hebei Plain	ZHANG Can-can, PANG Hui-cong, GAO Tai-zhong, <i>et al.</i> (4830)
Influence of Arsenate and Phenanthrene on Carbon-groups of <i>Pteris vittata</i> L. Roots	LIAO Xiao-yong, GONG Xue-gang, YAN Xiu-lan, <i>et al.</i> (4841)
Effect of Alkali Solids Amendment on Sewage Sludge Aerobic Composting and the Potential of Related Products on Infertile Soil Amelioration	 CAI Han-zhen, NING Xi-cui, WANG Quan, <i>et al.</i> (4848)
Adsorption and Influential Factors of Diuron on the Loess Soil by Adding Different Biochar Prepared at Varying Temperatures	SUN Hang, JIANG Yu-feng, SHI Lei-ping, <i>et al.</i> (4857)
Characteristics of Heavy Metal Contents in Human Hairs of Mine Contaminated Areas in Nandan County	TIAN Mei-ling, ZHONG Xue-mei, XIA De-shang, <i>et al.</i> (4867)
Preparation of Mg-Al-Me (Me = La, Ce, Zr) Composite Oxides for Efficient Fluoride Uptake	WANG Ai-he, ZHOU Kang-gen, LIU Xing, <i>et al.</i> (4874)
Fe-Mn Binary Oxide Impregnated Chitosan Bead (FMCB): An Environmental Friendly Sorbent for Phosphate Removal	FU Jun, FAN Fang, LI Hai-ning, <i>et al.</i> (4882)
Leaching Toxicity and Bioaccessibility of Heavy Metals in MSWI Fly Ash with Various Particle Sizes	WANG Chun-feng, CHEN Guan-fei, ZHU Yan-chen, <i>et al.</i> (4891)

《环境科学》第6届编辑委员会

主 编: 赵进才

副主编: 赵景柱 郝吉明 田 刚

编 委: (按姓氏笔画排序)

万国江 王华聪 王凯军 王绪绪 田 刚 田 静 史培军
朱永官 刘志培 刘 毅 汤鸿霄 孟 伟 周宗灿 林金明
赵进才 赵景柱 姜 林 郝郑平 郝吉明 聂永丰 黄 霞
黄 耀 鲍 强 潘 纲 潘 涛 魏复盛

环 境 科 学

(HUANJING KEXUE)

(月刊 1976年8月创刊)

2016年12月15日 第37卷 第12期(卷终)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

(Monthly Started in 1976)

Vol. 37 No. 12 Dec. 15, 2016

主 管	中国科学院	Superintended	by	Chinese Academy of Sciences
主 办	中国科学院生态环境研究中心	Sponsored	by	Research Center for Eco-Environmental Sciences, Chinese Academy of Sciences
协 办	(以参加先后为序) 北京市环境保护科学研究院 清华大学环境学院	Co-Sponsored	by	Beijing Municipal Research Institute of Environmental Protection School of Environment, Tsinghua University
主 编	赵进才	Editor-in -Chief		ZHAO Jin-cai
编 辑	《环境科学》编辑委员会 北京市2871信箱(海淀区双清路 18号, 邮政编码:100085) 电话:010-62941102, 010-62849343 传真:010-62849343 E-mail: hjkx@ rcees. ac. cn http://www. hjkx. ac. cn	Edited	by	The Editorial Board of Environmental Science (HUANJING KEXUE) P. O. Box 2871, Beijing 100085, China Tel:010-62941102, 010-62849343; Fax:010-62849343 E-mail: hjkx@ rcees. ac. cn http://www. hjkx. ac. cn
出 版	科 学 出 版 社 北京东黄城根北街16号 邮政编码:100717	Published	by	Science Press 16 Donghuangchenggen North Street, Beijing 100717, China
印 刷 装 订	北京北林印刷厂	Printed	by	Beijing Bei Lin Printing House
发 行	科 学 出 版 社 电话:010-64017032 E-mail: journal@ mail. sciencep. com	Distributed	by	Science Press Tel:010-64017032 E-mail: journal@ mail. sciencep. com
订 购 处	全国各地邮电局	Domestic		All Local Post Offices in China
国外总发行	中国国际图书贸易集团有限公司 (北京399信箱)	Foreign		China International Book Trading Corporation (Guoji Shudian), P. O. Box 399, Beijing 100044, China

中国标准刊号: ISSN 0250-3301
CN 11-1895/X

国内邮发代号: 2-821

国内定价: 120.00元

国外发行代号: M 205

国内外公开发行