

小白菜和白萝卜对四环素类抗生素的吸收累积特征

贺德春¹, 吴根义^{2*}, 许振成¹, 方建德¹, 张素坤¹

(1.环境保护部华南环境科学研究所, 广州 510655; 2.湖南农业大学资源与环境学院, 长沙 410128)

摘要:为研究有机肥中残留抗生素在土壤-蔬菜体系中的迁移,采用盆栽试验研究了小白菜和白萝卜对四环素类抗生素的吸收富集情况。结果表明:小白菜、白萝卜对4种抗生素均有吸收,作物组织中抗生素的浓度随土壤中浓度的升高而增加,表现出显著的正相关。当粪肥中抗生素浓度由 $20\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 增加到 $50\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 时,小白菜茎叶中4种抗生素的含量分别增加了67%(四环素,TC)、105%(土霉素,OTC)、71%(金霉素,CTC)和83%(强力霉素,DC),其最高含量分别为 (51.56 ± 8.85) (TC)、 (31.89 ± 4.29) (OTC)、 (37.58 ± 5.84) (CTC)、 (17.73 ± 2.39) (DC) $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$,萝卜组织中4种抗生素的含量分别增加了58%(TC)、41%(OTC)、88%(CTC)和24%(DC),其最高含量分别为 (13.93 ± 1.96) (TC)、 (14.39 ± 1.16) (OTC)、 (17.30 ± 3.05) (CTC)、 (8.86 ± 1.28) (DC) $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ 。土壤性质影响抗生素向作物中的迁移,红壤处理与砂壤处理比,4种抗生素在萝卜茎叶与小白菜茎叶中的浓度分别降低了11%~44%和21%~47%。

关键词:吸收;作物;四环素;土霉素

中图分类号:X592 文献标志码:A 文章编号:1672-2043(2014)06-1095-05 doi:10.11654/jaes.2014.06.006

Uptake of Selected Tetracycline Antibiotics by Pakchoi and Radish from Manure-Amended Soils

HE De-chun¹, WU Gen-yi^{2*}, XU Zhen-cheng¹, FANG Jian-de¹, ZHANG Su-kun¹

(1.South China Institute of Environmental Sciences, MEP, Guangzhou 510655, China; 2.College of Resource and Environment, Hunan Agriculture University, Changsha 410128, China)

Abstract: Veterinary antibiotics may enter soil-plant system via soil applications of animal manure, posing risks to human health. A microplot experiment was conducted in greenhouse to investigate the uptake of selected four tetracycline antibiotics, including tetracycline (TC), oxytetracycline (OTC), chlortetracycline (CTC), and doxytetracycline (DC) by pakchoi and radish grown in a manure-amended soil. Treatments were 0, 5, 20, 50 mg antibiotics kg^{-1} of manure. The manure was applied at a rate of $20\,000\text{ kg}\cdot\text{hm}^{-2}$. Both crops took up four antibiotics during 35 d (pakchoi) and 50 d (radish) periods. Concentrations of the antibiotics in plant increased with increasing antibiotics in soils, and they showed a significant positive correlation. When the concentrations of antibiotics in manure were increased from $20\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ to $50\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$, the concentrations of four antibiotics in plants were increased by 67% (TC), 105% (OTC), 71% (CTC), and 83% (DC) for pakchoi and 58% (TC), 41% (OTC), 88% (CTC), and 24% (DC) for radish. The maximum concentration was (51.56 ± 8.85) (TC), (31.89 ± 4.29) (OTC), (37.58 ± 5.84) (CTC), and (17.73 ± 2.39) (DC) $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ in pakchoi and (13.93 ± 1.96) (TC), (14.39 ± 1.16) (OTC), (17.30 ± 3.05) (CTC), and (8.86 ± 1.28) (DC) $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ fresh weight in radish. Soil properties greatly affected the uptake of four tetracycline antibiotics by crops. Compared to sandy loam soil, concentrations of antibiotics in radish and pakchoi cultivated in red soil decreased by 11%~44% and 21%~47%, respectively. These results indicate that consuming produces from soils amended with manures containing low-levels of antibiotics might pose potential risks to human health.

Keywords: uptake; crop; oxytetracycline; tetracycline

兽药抗生素被大量的应用于动物疾病的治疗与促进动物的生长^[1],在地表水、土壤、地下水及沉积物

等环境介质中广泛地检测到各类抗生素的残留,越来越多的研究表明,兽用抗生素类药物已成为环境中抗生素等新型污染物的主要来源^[2]。抗生素具有杀灭细菌或者抑制其生长的作用,具有较强的生物活性,其对生态环境、人类及动物健康的影响引起了广泛的关注^[3-5]。研究表明,抗生素可通过植物吸收迁移至高等植物体内^[6],Aust等^[5]研究发现,在从未给药的对照组的牛粪中检出金霉素与磺胺嘧啶的残留,表明抗生素

收稿日期:2014-05-19

基金项目:环保公益性行业科研专项(201009017);中央级公益性科研院所基本科研业务费专项资金(PM-ZX021-201211-102)

作者简介:贺德春(1979—),男,湖南溆浦人,博士,主要从事农业痕量毒害物检测、环境行为研究。E-mail:de_he@126.com

*通信作者:吴根义 E-mail:wugenyi99@s163.com

不仅广泛存在于养殖废弃物及周边环境中,还可通过径流及渗流向更广泛的环境中迁移扩散,并在食物链中迁移累积,给生态环境及人类健康带来不可预知的潜在威胁。四环素类抗生素是应用最为广泛的抗生素之一,大量残留于养殖场的粪便、周边土壤、地表水及地下水等介质中,浓度从几 $\text{ng}\cdot\text{kg}^{-1}$ (L^{-1})至几百 $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ (L^{-1})^[7]不等。关于这类物质在环境中的残留、分布及各种介质中的吸附解吸已开展了初步的研究^[8-12],然而对于四环素类抗生素在土壤-植物系统中的迁移,特别是在农作物中残留累积及通过食物链对人体带来的可能危害的研究尚十分缺乏^[13-15]。本文以我国各地广泛种植的白萝卜与小白菜为受试作物,通过半自然条件下的盆栽试验研究用量最大、环境中分布最为广泛的四环素类抗生素在施肥土壤-作物体系的迁移累积规律,为评估畜禽粪便农田利用过程中残留抗生素的生态安全及对人类健康的潜在危害提供必要支撑,为有机肥的环境风险管理提供依据。

1 材料与方法

1.1 试验地与材料

供试土壤:海南省文昌市锦山镇农田土壤(砂壤)与林地土壤(红壤)。砂壤的基本理化性质为:有机质 $9.86\text{ g}\cdot\text{kg}^{-1}$;总氮、总磷与总钾分别为 0.561 、 0.143 与 $0.533\text{ g}\cdot\text{kg}^{-1}$;阳离子交换量为 $12.17\text{ cmol}(+)\cdot\text{kg}^{-1}$;交换性酸为 $0.67\text{ cmol}(+)\cdot\text{kg}^{-1}$;pH 值(水:土=2.5:1)为 7.33 。红壤的基本理化性质为:有机质 $0.28\text{ g}\cdot\text{kg}^{-1}$;总氮、总磷与总钾分别为 0.72 、 $0.217\text{ g}\cdot\text{kg}^{-1}$ 与 $0.321\text{ g}\cdot\text{kg}^{-1}$;阳离子交换量为 $21.03\text{ cmol}(+)\cdot\text{kg}^{-1}$;交换性酸为 $2.21\text{ cmol}(+)\cdot\text{kg}^{-1}$;pH 值(水:土=2.5:1)为 4.26 。

供试蔬菜品种:选取在我国南北各地广泛种植的白萝卜与小白菜为试验对象。

试验用的土霉素、四环素、金霉素、强力霉素粉剂购于当地兽药店,经测定含量分别为土霉素(95.3%)、四环素(93.6%)、金霉素(19.5%)、强力霉素(94.5%),将上述兽药用水溶解,配成浓度各为 $1.0\text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$ 的混合溶液。

试验用猪粪:试验猪粪采自环境保护部华南环境科学研究所海南试验站养殖场,饲料为猪场自行配制,未添加任何抗生素。

1.2 试验方法及设计

1.2.1 盆栽设施

盆栽试验在大棚内进行,大棚内建水泥池作为盆栽装置,每池规格为长 $1.0\text{ m}\times$ 宽 $1.0\text{ m}\times$ 深 0.80 m ,池

四周及底部用水泥做防渗处理。根据试验基地土壤剖面,分别从下往上依次填 25 cm 沙土、 15 cm 白粘土,灌水使其自然沉紧。从试验基地内取耕作层土壤(砂壤)与附近林地土壤(红壤),过筛去除石块、草根、树根等,混合均匀后分别装填于试验池内,每池耕作层土壤 40 cm 。试验用砂壤及红壤经检测均不含四环素类抗生素。

1.2.2 试验设计

试验共设 3 个污染水平、一个对照处理,2 种作物与 2 种土壤共 12 个处理,每处理重复 3 次。抗生素浓度分别为 0 、 5 、 20 、 $50\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 粪肥,每池施肥 2 kg 。

土壤中抗生素的施入:依据当地种植习惯,白萝卜与小白菜按施猪粪 $15\sim 22.5\text{ t}\cdot\text{hm}^{-2}$ 计算,每池施猪粪 2 kg 。分别取一定体积浓度为 $1.0\text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$ 的 4 种抗生素混合溶液加入到猪粪中,搅拌均匀,室温下放置平衡 2 h ,然后将液体粪肥喷洒于土壤表层,人工翻土使之与耕作层土壤($0\sim 15\text{ cm}$)混合均匀,施肥后自然状态下放置 24 h 后播种。以理论计算的抗生素浓度为原始浓度进行讨论。

播种:采用种子直播的方式种植作物,每试验池播萝卜种子 40 颗、小白菜种子 60 颗,发芽后进行间苗,分别留下 20 株和 40 株生长良好的萝卜及小白菜。

1.2.3 盆栽试验实施与采样

2010 年 6 月 10 日播种,发芽后进行间苗,萝卜每池保留 20 株,小白菜每池保留 40 株。试验期间用蒸馏水浇灌,人工除草与防治虫害,不喷洒农药。

分别于小白菜(35 d)和白萝卜(50 d)收获期采集全株样,依次用自来水、蒸馏水清洗,滤纸吸干水分。小白菜全株分成根(地下部分)与茎叶(地上部分),白萝卜全株分成萝卜与茎叶,分别将两部分切成碎末后用自封口袋密封保存待测。

1.3 样品处理与分析

1.3.1 样品预处理

抗生素的提取:称取 10.0 g 切成碎末的新鲜蔬菜样品于具塞三角瓶中,加入 $20\text{ mL } 0.02\text{ mol}\cdot\text{L}^{-1}$ 氯化镁-柠檬酸混合溶液于 $45\text{ }^{\circ}\text{C}$ 下振荡提取 45 min ,过滤,残渣再用 20 mL 甲醇重复提取 1 次,将甲醇提取液过滤转移至磨口三角瓶中,旋转蒸发浓缩挥发除去甲醇,用 $5\text{ mL } 0.02\text{ mol}\cdot\text{L}^{-1}$ 氯化镁-柠檬酸混合溶液复溶,与氯化镁-柠檬酸提取液混合后待过柱净化富集。

固相萃取:将上述提取液以 $5\text{ mL}\cdot\text{min}^{-1}$ 左右的速度过经活化 Oasis HLB(6 mL , 200 mg)固相萃取小柱,

随后依次用 5 mL 纯水与 5 mL 氯化镁-柠檬酸溶液冲洗小柱,继续真空干燥 5 min。用 12 mL 含 10% 甲醇的乙酸乙酯淋洗萃取柱,洗脱液收集于磨口三角瓶中,在旋转蒸发器上浓缩至约 1 mL,再用氮气流浓缩至干,用甲醇定容至 2 mL,过 0.22 μm 有机相滤膜待测。

1.3.2 HPLC-MS/MS 分析和质量控制

色谱柱: ZORBAX SB-C18 (2.1 $\times$ 100 mm 1.8 μm),柱温:30 $^{\circ}\text{C}$,流速:0.3 $\text{mL}\cdot\text{min}^{-1}$,进样量:5 μL ,流动相 A 为水(1 $\text{mmol}\cdot\text{L}^{-1}$ 三氟乙酸),B 为甲醇。梯度洗脱程序:开始时流动相 B 占 10%,3 min 时上升到 30%,8 min 时上升到 50%,12 min 升到 90%,12.1 min 降到 10%,运行 3 min。质谱条件:电离源模式:ESI(+),雾化气:氮气,雾化气压力:40 psi,干燥气流量:10 $\text{L}\cdot\text{min}^{-1}$,干燥气温度:350 $^{\circ}\text{C}$,离子喷雾电压:3500 V。目标化合物定性离子及标准曲线见表 1。

采用加标法测定 4 种抗生素的回收率,回收率分别为:土霉素 64%~92.7%、四环素 73.7%~90.6%、金霉素 76.5%~113%和强力霉素 75.3~89.5%,所有变异系数小于 10.54%。

1.4 数据处理

数据处理采用 Excel 2011 与 SPSS 15.0 完成。

2 结果与分析

2.1 小白菜与白萝卜中抗生素的累积特征

小白菜与白萝卜中抗生素的残留情况如表 2 所示。4 种抗生素均可被小白菜与白萝卜从施肥土壤中吸收富集。猪粪中抗生素浓度越高,作物中抗生素的残留浓度越高。当猪粪中抗生素从 20 $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 增加到 50 $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 时,小白菜根中和茎叶中四环素、土霉素、金霉素、强力霉素的含量分别增加了 32%、98%、86%、31%和 67%、105%、71%、83%。白萝卜皮肉与茎叶中四环素、土霉素、金霉素、强力霉素的含量分别增加了 58%、41%、88%、24%和 19%、31%、39%、40%。各处理浓度下,收获时(35 d)小白菜根、茎叶中 4 种抗生素的最高累积浓度分别为:四环素(51.56 $\pm$ 8.85)、(44.83 $\pm$ 4.47) $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$;土霉素(31.89 $\pm$ 4.29)、(27.66 $\pm$ 3.44) $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$;金霉素(37.58 $\pm$ 5.84)、(17.21 $\pm$ 3.15) $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$;强力霉素(17.73 $\pm$ 2.39)、(11.90 $\pm$ 2.13) $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$;收

表 1 4 种抗生素的保留时间、定性定量离子对及线性方程与范围

Table 1 The retention time and ion pair for quantitative analysis and regression equation, correlation coefficients for 4 TCs

抗生素	保留时间/min	定量离子	CE(V)	校准曲线方程	R^2	线性范围/ $\mu\text{g}\cdot\text{mL}^{-1}$
四环素	7.7	445.2/410	18	$y=48\ 491.17x-1\ 387.18$	0.999 1	0.05~2.0
土霉素	7.8	461.2/426	18	$y=25\ 971.53x-315.39$	0.994 4	0.05~2.0
金霉素	10.0	479.2/444	20	$y=43\ 109.03x-990.82$	0.995 5	0.05~2.0
强力霉素	11.5	445.1/428	15	$y=60\ 863.74x-1\ 654.25$	0.990 2	0.05~2.0

表 2 不同处理水平下作物中抗生素残留($\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ 鲜重)

Table 2 Average concentrations of antibiotics in pakchoi and radish in various treatment

抗生素	处理浓度/ $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$	小白菜茎叶	小白菜根	萝卜茎叶	萝卜根
四环素	5	13.78(2.48)b	5.2(1.28) c	1.16(0.20)c	3.29(0.91)b
	20	39.05(8.39)ab	26.79(8.48)b	5.7(1.08) b	11.71(3.56)a
	50	51.56(3.85)a	44.8(4.47)a	9.02(0.47)a	13.93(1.96)a
土霉素	5	7.8(1.75) b	5.34(1.41) c	1.85(0.54)b	2.78(0.89) b
	20	16.09(4.26)b	13.46(3.71)b	8.14(1.85)a	11.02(2.22) a
	50	31.22(4.29)a	27.66(3.44)a	11.49(1.14)a	14.38(1.16)a
金霉素	5	8.66(2.23)c	4.25(0.82)c	1.06(0.24)c	3.16(0.85)b
	20	20.14(3.74)b	10.05(1.66)b	5.23(0.89)b	12.4(3.50)a
	50	37.54(5.84) a	17.21(3.15)a	9.86(1.42)a	17.3(2.05)a
强力霉素	5	4.72(1.30)b	2.04(0.35)c	1.19(0.26) b	1.81(0.49)b
	20	13.77(3.26)a	6.47(1.34)b	2.73(0.85) a	6.34(1.21)a
	50	17.73(2.39)a	11.9(2.13)a	3.4(0.62) a	8.60(1.28) a

注:不同小写字母表示同一抗生素在不同处理浓度下差异显著($P<0.05$)。

获时(50 d)白萝卜皮肉、茎叶中4种抗生素的最高累积浓度分别为:四环素(9.02 ± 0.47)、(13.93 ± 1.96) $\mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$;土霉素(11.49 ± 1.14)、(14.39 ± 1.16) $\mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$;金霉素(9.86 ± 1.42)、(17.30 ± 32.05) $\mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$;强力霉素(3.40 ± 2.39)、(8.86 ± 1.28) $\mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$ 。

2.2 土壤性质对作物吸收抗生素的影响

试验比较了小白菜、白萝卜在砂壤与红壤两种土壤中对4种抗生素的吸收累积情况(图1)。不同类型土壤中作物对抗生素的吸收累积能力差异明显,两种作物从砂壤中吸收抗生素的能力远高于从红壤中吸收抗生素的能力。当粪肥中抗生素浓度为 $50 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ 时,红壤处理与砂壤处理比,白萝卜皮肉与茎叶中4种抗生素的浓度分别降低了51%(TC)、54%(OTC)、66%(CTC)、41%(DC)和11%(TC)、10%(OTC)、44%(CTC)、35%(DC);小白菜根与茎叶中4种抗生素的浓度则分别减少了39%(TC)、35%(OTC)、45%(CTC)、11%(DC)和47%(TC)、28%(OTC)、41%(CTC)、21%(DC)。

2.3 抗生素在植物组织中的分布特征

取收获期采集的小白菜与白萝卜样品,小白菜样分成根、茎、叶3部分,白萝卜分成根、皮、肉、茎、叶5部分,分别测定其中抗生素的含量,两种作物各部分

中抗生素的分布见表3。4种抗生素在作物体内具有相似的分布规律,在不同植物体内的分布有所不同,在小白菜组织中4种抗生素的浓度分布为根>叶>茎,在白萝卜组织中的分布为叶>皮>根>茎>肉,说明4种抗生素在不同品种植物体内具有不同的转运系数。

3 讨论

3.1 抗生素种类对作物吸收的影响

本研究中4种四环素类抗生素在植物体内的含量为 $1 \sim 52 \mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$ 鲜重,与Kumer等^[15]报道金霉素在植物体内的浓度($2 \sim 17 \mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$ 鲜重)及Boxall等^[16]的研究结果($3 \sim 38 \mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$ 鲜重)较为接近,低于Dollirer等^[14]报道的磺胺嘧啶在植物体内的浓度($8 \sim 100 \mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$ 鲜重)。本研究表明,作物对抗生素的吸收累积不仅取决于作物的种类,还与土壤性质及抗生素本身的性质密切相关^[13]。本研究及相关研究均证明有机肥源抗生素存在向高等植物迁移累积的现象,而这种累积可随食物链的传递最终进入人体。

3.2 土壤性质对作物累积抗生素的影响

本研究表明土壤性质影响作物从土壤中吸收累积抗生素。资料表明,四环素类抗生素在酸性土壤中降解及吸附性均小于碱性土壤中^[11,17-20],本研究所用

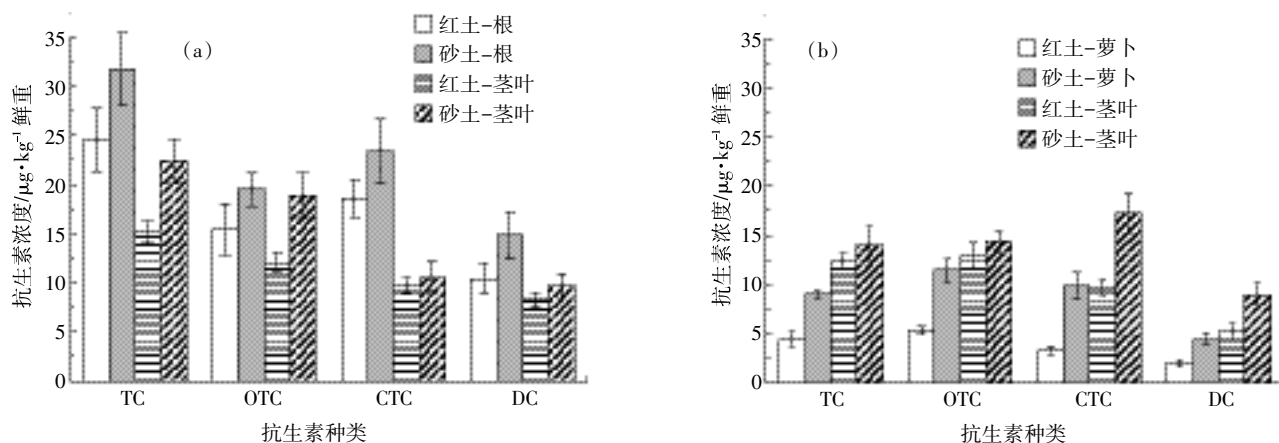


图1 不同土壤种植白菜(a)及萝卜(b)中抗生素残留量鲜重

Figure 1 Tetracycline antibiotics concentration in pakchoi (a) and radish (b) cultivated in different soil

表3 抗生素在作物不同部位的浓度分布($\mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$ 鲜重)

Table 3 Concentrations of antibiotics in different tissues of pakchoi and radish

抗生素	白菜			萝卜				
	根	茎	叶	直根	皮	肉	茎	叶
四环素	57.18	37.38	45.67	8.34	11.65	6.75	10.46	15.34
土霉素	35.04	24.3	27.08	11.43	15.73	8.22	12.45	17.62
金霉素	37.74	12.66	20.08	7.55	12.71	5.32	14.83	26.77
强力霉素	17.56	10.22	13.1	6.44	5.14	2.36	6.98	12.13

红壤pH值在4.26左右,远低于砂壤的pH值(7.25),根据抗生素在不同pH值条件下的降解特性与迁移特性分析,红壤中的抗生素应当比砂壤具有更长的半衰期与更好的移动性,因而可能更易向植物体内迁移,而本研究的结果恰好相反,说明土壤中残留抗生素向植物体内的迁移能力受更多更复杂因素的影响,需要更多的研究予以探讨。同一作物从不同土壤中吸收累积抗生素的能力不同,在有机肥源抗生素的风险评价中应当引起重视。

4 结论

(1)小白菜与白萝卜均可从施肥土壤中吸收富集四环素类抗生素,小白菜对抗生素的富集能力远大于白萝卜。

(2)蔬菜组织中抗生素浓度随着土壤中抗生素浓度的增加而升高。

(3)不同土壤类型中抗生素向植物体内迁移的效率不同,在有机肥的农业利用风险管理中应当引起重视。

参考文献:

- [1] Blackwell P A, Kay P, Boxall, A B. The dissipation and transport of veterinary antibiotics in a sandy loam soil[J]. *Chemosphere*, 2007, 62, 292-299.
- [2] Kolpin D W, Halling-Sensen B, Tolls J. Are veterinary medicines causing environmental risks[J]. *Environ Sci Technol*, 2003,37: 286A-294A.
- [3] Boxall A B A, Fogg L A, Kay P, et al. Veterinary medicines in the environment[J]. *Rev Environ Contam Toxicol*, 2004, 180:1-91.
- [4] Boxall A B A, Johnson P, Smith E J, et al. Uptake of veterinary medicines from soils into plants[J]. *Agr Food Chem*, 2006, 54: 2288-2297.
- [5] Aust M O, Godlinsk F, Travis G R, et al. Distribution of sulfamethazine, chlortetracycline and tylosin in manure and soil of Canadian feedlots after subtherapeutic use in cattle[J]. *Environmental Pollution*, 2008, 156 (3): 1243-1251.
- [6] Tanabe N, Bergamaschi B, Loftin K A, et al. Use and environmental occurrence of antibiotics in freest all dairy farms with manured forage fields[J]. *Environ Sci Technol*, 2010, 44: 6591-6600.
- [7] 王 瑾. 饲料添加剂在土壤和蔬菜中的迁移及残留研究[D]. 杭州: 浙江工商大学, 2009.
WANG Jin. Study on transfer and residue of feed additives in soil and vegetables[D]. Hangzhou: Zhejiang Gongshang University, 2009.
- [8] 刘 虹, 张国平, 刘从强, 等. 贵阳城市污水及南明河中氯霉素和四环素类抗生素的特征[J]. *环境科学*, 2008, 30(3): 687-692.
LIU Hong, ZHANG Guo-ping, LIU Cong-qiang, et al. Characteristics of chloramphenicol and tetracyclines in municipal sewage and Nanming River of Guiyang City, China[J]. *Environmental Science*, 2008, 30(3): 687-692.
- [9] 张树清, 张夫道, 刘秀梅, 等. 规模化养殖场畜禽粪中主要有害成分测定分析研究[J]. *植物营养与肥料学报*, 2005, 11(6): 822-829.
ZHANG Shu-qing, ZHANG Fu-dao, LIU Xiu-mei, et al. Determination and analysis on main harmful composition in excrement of scale live-stock and poultry feedlots [J]. *Plant Nutrition and Fertilizer Science*, 2005, 11(6): 822-829.
- [10] 刘春燕, 解满俊, 许时良, 等. 活性污泥对四环素类抗生素的吸附特性研究[J]. *上海海洋大学学报*, 2012, 21(4): 581-588.
LIU Chun-yan, XIE Man-jun, XU Shi-liang, et al. Research on adsorption characteristics of tetracycline antibiotics with activated sludge [J]. *Journal of Shanghai Ocean University*, 2012, 21(4): 581-588.
- [11] 鲍艳宇, 周启星, 鲍艳姣, 等. 3种四环素类抗生素在试验污染土壤上的吸附解吸[J]. *中国环境科学*, 2012, 32(7): 1257-1262.
BAO Yan-yu, ZHOU Qi-xing, BAO Yan-jiao, et al. Adsorption and desorption of three tetracycline antibiotics in petroleum-contaminated soils[J]. *China Environmental Science*, 2012, 32(7): 1257-1262.
- [12] 王 敏, 唐景春. 土壤中的抗生素污染及其生态毒性研究进展[J]. *农业环境科学学报*, 2010, 29(增刊): 261-266.
WANG Min, TANG Jing-chun. Research of antibiotics pollution in soil environments and its ecological toxicity[J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2010, 29(Suppl): 261-266.
- [13] 尹 倩, 黄献培, 李彦文, 等. 不同基因型空心菜对环丙沙星及恩诺沙星的吸收累积特征[J]. *农业环境科学学报*, 2013, 32(2): 407-408.
YIN Qian, HUANG Xian-pei, LI Yan-wen, et al. Accumulation features of ciprofloxacin and enrofloxacin by different genotypes of water spinach[J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2013, 32(2): 407-408.
- [14] Dolliver H, Kumar K, Gupt S. Sulfamethazine uptake by plants from manure-amended soil[J]. *Environ Qual*, 2007, 36: 1224-1230.
- [15] Kumara K, Gupta S C, Baidoo S K, et al. Antibiotic uptake by plants from soil fertilized with animal manure[J]. *Environ Qual*, 2005, 34: 2082-2085.
- [16] Boxall A B A, Johnson P, Smith E J, et al. Uptake of veterinary medicines from soils into plants[J]. *J Agr Food Chem*, 2006, 54: 2288-2297.
- [17] Pils J R, Laird D A. Sorption of tetracycline and chlortetracycline on K- and Ca-saturated soil clays, humic substances, and clay-humic complexes[J]. *Environ Sci Technol*, 2007, 41 (6): 1928-1933.
- [18] Dror A, Orna P, Igal G, et al. Sorption of sulfonamides and tetracyclines to montmorillonite clay[J]. *Water, Air, & Soil Pollution*, 2010, 29(1-4): 439-450.
- [19] 刘新程, 董元华. 金霉素在不同耕作土壤中的吸附-解吸行为[J]. *土壤学报*, 2009, 46(5): 861-867.
LIU Xin-cheng, DONG Yuan-hua. Adsorption-Desorption of chlortetracycline in various cultivated soils in China[J]. *Acta Pedologica Sinica*, 2009, 46(5): 861-867.
- [20] 鲍艳宇. 四环素类抗生素在土壤中的环境行为及生态毒理研究[D]. 天津: 南开大学, 2008.
BAO Yan-yu. Environmental behavior and eco-toxicity of tetracycline antibiotics in soils[D]. Tianjin: Nankai University, 2008.