

畜禽粪污抗生素对土壤生物学效应的Meta分析

曾悦, 黄红英, 吴华山

引用本文:

曾悦, 黄红英, 吴华山. 畜禽粪污抗生素对土壤生物学效应的Meta分析[J]. 农业环境科学学报, 2021, 40(5): 1043–1050.

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.11654/jaes.2020-1044>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

典型养鸡场及其周边土壤中抗生素的污染特征和风险评估

涂棋, 徐艳, 李二虎, 师荣光, 郑向群, 耿以工

农业环境科学学报. 2020, 39(1): 97–107 <https://doi.org/10.11654/jaes.2019-0823>

天津市家庭养殖环境中抗生素污染特征与风险评估

阮蓉, 张克强, 杜连柱, 丁工尧, 王素英, 支苏丽

农业环境科学学报. 2021, 40(1): 202–210 <https://doi.org/10.11654/jaes.2020-0694>

兽用抗生素研究的文献计量学分析

李红娜, 阿旺次仁, 李斌绪, 叶婧, 朱昌雄

农业环境科学学报. 2017, 36(11): 2297–2306 <https://doi.org/10.11654/jaes.2017-0659>

植物修复重金属和抗生素复合污染 土壤微生物数量和酶活性的变化

周显勇, 刘鸿雁, 刘艳萍, 刘青栋, 涂宇, 顾小凤, 吴龙华

农业环境科学学报. 2019, 38(6): 1248–1255 <https://doi.org/10.11654/jaes.2019-0029>

Fenton法对沼液中三种四环素类和三种磺胺类抗生素氧化去除的研究

迟翔, 周文兵, 武林, 吴飞, 肖乃东, 朱端卫

农业环境科学学报. 2018, 37(11): 2451–2455 <https://doi.org/10.11654/jaes.2018-0916>



关注微信公众号, 获得更多资讯信息

曾悦, 黄红英, 吴华山. 畜禽粪污抗生素对土壤生物学效应的 Meta 分析[J]. 农业环境科学学报, 2021, 40(5): 1043–1050.

ZENG Yue, HUANG Hong-ying, WU Hua-shan. Meta-analysis was used to analyze the biological effects of livestock manure antibiotics on soil[J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2021, 40(5): 1043–1050.



开放科学 OSID

畜禽粪污抗生素对土壤生物学效应的 Meta 分析

曾悦^{1,2}, 黄红英^{2,3,4}, 吴华山^{2,3,4*}

(1. 南京师范大学环境学院, 南京 210042; 2. 江苏省农业科学院农业资源与环境研究所, 南京 210014; 3. 农业农村部种养结合重点实验室, 南京 210014; 4. 江苏省有机固体废弃物资源化协同创新中心, 南京 210014)

摘要:为研究养殖粪污抗生素土壤残留风险,从数据库文献检索获得国内外近10年来发表的相关论文,通过统计分析论文的结果,以获得现有相关研究的主要结论和主要趋势。利用关键词检索获得相关论文,通过Meta分析(Meta-analysis)的方法分析论文中关于氟喹诺酮类、四环素类和磺胺类这3类抗生素在土壤中残留的影响因素及对土壤微生物多样性的影响。结果表明:抗生素进入土壤后前7 d降解速率较快,之后会逐渐趋于平缓,第30 d时氟喹诺酮类、四环素类、磺胺类抗生素的最终降解率分别为77%、85%、91%。土壤类型、pH能显著影响抗生素的降解率,弱酸性土壤更有利于抗生素降解。3种抗生素在土壤中浓度大于10 mg·kg⁻¹时会抑制土壤微生物多样性,影响能力为氟喹诺酮>磺胺类>四环素类。土壤中抗生素能够自然降解,30 d内降解能力表现为磺胺类>四环素类>氟喹诺酮类,土壤pH越低,降解效果越好;抗生素对土壤微生物多样性存在显著影响,抗生素浓度越大抑制越明显;土壤pH在4.3~9.4的范围内时,pH越高抗生素对土壤微生物多样性的影响越强。

关键词: 畜禽粪污; 抗生素; 土壤; Meta 分析

中图分类号:X713;X53 文献标志码:A 文章编号:1672-2043(2021)05-1043-08 doi:10.11654/jaes.2020-1044

Meta-analysis was used to analyze the biological effects of livestock manure antibiotics on soil

ZENG Yue^{1,2}, HUANG Hong-ying^{2,3,4}, WU Hua-shan^{2,3,4*}

(1. School of Environmental, Nanjing Normal University, Nanjing 210042, China; 2. Recycling Agriculture Research Center, Jiangsu Academy of Agricultural Sciences, Nanjing 210014, China; 3. Key Laboratory for Crop and Animal Integrated Farming of Ministry of Agriculture and Rural Affairs, Nanjing 210014, China; 4. Jiangsu Collaborative Innovation Center for Solid Organic Waste Resource Utilization, Nanjing 210014, China)

Abstract: Veterinary antibiotics are widely used in breeding processes, thus, excessive antibiotics enter the farmland together with livestock manure and have a certain impact on soil ecosystems. In order to obtain the main conclusions and trends of existing studies and provide reference for studies on the risk of antibiotic residue in fecal manure, we collected data from relevant local and international journals, which were published in the past 10 years, and analyzed them. Relevant journals were obtained using keyword retrieval. Factors affecting fluoroquinolones, tetracycline, and sulfonamides antibiotics residues in the soil and their influence on soil microbial diversity were analyzed using Meta-analysis. Results showed that the degradation rate of antibiotics was faster in the first 7 days of entering the soil, after which, the rate reduced gradually. The final degradation rates of fluoroquinolones, tetracycline, and sulfonamides were about 77%, 85%, and 91% respectively. Soil pH and acid significantly affected the degradation rate of antibiotics in soil; weak acid soil was more conducive for antibiotic degradation. The concentration of the three antibiotics in soil above 10 mg·kg⁻¹ inhibited the functional diversity of soil

收稿日期:2020-09-09 录用日期:2021-01-11

作者简介:曾悦(1996—),女,贵州铜仁人,硕士研究生,从事农业废弃物资源化利用研究。E-mail:810793591@qq.com

*通信作者:吴华山 E-mail:13667130@qq.com

基金项目:国家重点研发计划项目(2017YFD0801403);江苏省农业科技自主创新资金项目(CX(18)1004);国家自然科学基金项目(41701340)

Project supported: National Key R&D Program of China(2017YFD0801403); The Innovation Foundation of Agricultural Science and Technology of Jiangsu Province, China(CX(18)1004); The National Natural Science Foundation of China(41701340)

microorganisms. Sulfonamides had a significant inhibitory effect on soil microbial functional diversity. The effects of different antibiotics on soil microbial functional diversity was as follows: fluoroquinolone>sulfa>tetracycline. The soil degraded the antibiotics via natural degradation. The degradation capacity within 30 days was as follows: sulfa >tetracycline >fluoroquinolone. The lower the soil pH value, the higher the degradation rate. Antibiotics had a significant effect on soil microbial diversity; the higher the concentration, the more significant the inhibition was. When the pH of soil was 4.3~9.4, the higher the pH, the stronger the influence of antibiotics on soil microbial diversity.

Keywords: livestock manure; antibiotics; soil; Meta-analysis

畜禽养殖废弃物资源化利用是治理养殖污染的重要手段,但畜禽粪便中兽用抗生素残留问题,一直是近年来研究的热点。随着养殖业规模化发展加速,抗生素的使用量也在快速增加,尤其在缺少有效监管的情况下,还存在抗生素滥用的行为。据估计,近年来我国抗生素的使用量已超 16.2 万 t^[1]。全球每年抗生素总使用量的 70% 用于养殖业^[2]。然而抗生素进入动物体后,只能被吸收利用一小部分,30%~90% 的抗生素会随着畜禽粪便排出^[3]。氟喹诺酮类、磺胺类和四环素类是在畜禽粪便中最常检测到的抗生素^[4~8],且其残留浓度范围广泛,抗生素的最高检出浓度通常出现在粪便处理区附近的农田或者长期施用粪肥浇灌的农田^[9]。抗生素残留问题给农村生态环境带来较大的潜在风险,甚至最终影响人体健康。

近年来,国内外学者对抗生素在土壤中的残留、降解、生态毒性和风险评价等已有了大量研究。张慧敏等^[10]通过对浙北地区土壤及畜禽粪便中的四环素类抗生素的残留研究发现,施用畜禽粪肥的农田表层土壤土霉素、四环素和金霉素的平均含量分别为未施畜禽粪肥农田的 38、13 倍和 12 倍,畜禽粪肥是农田土壤抗生素的重要来源。张涛等^[11]提出,土壤及抗生素本身的性质对抗生素在土壤中的残留浓度产生影响,耕地较容易积累抗生素。刘吉强等^[12]研究了油菜田中四环素对土壤酶活性的影响,结果发现四环素对土壤蛋白酶、脲酶、转化酶、过氧化氢酶的活性具有阶段性的抑制、激活作用,且在低浓度条件下,具有短暂的激活效果。Grenni 等^[13]的研究指出,抗生素在土壤中的迁移转化与土壤性质有较大关联,四环素在壤土中的吸附能力是沙土中的 3 倍,在黏土中可能更高;在土壤环境中,各种抗生素可能会发生相互作用,进而影响抗生素的降解。Yan 等^[14]通过向土壤中分别添加含不同浓度强力霉素的猪粪,探究土壤中的微生物降解行为,结果发现土壤中强力霉素的降解速率受其在土壤中初始浓度的影响,微生物可以显著加速强力霉素的降解,微生物降解是强力霉素土壤降解的主

要方式。Liu 等^[15]的研究表明,土壤受到抗生素污染时,磺胺甲恶唑对土壤微生物群落的影响比金霉素更强,但随着抗生素的降解,土壤微生物群落功能可以逐步恢复,且在此过程中,磺胺甲恶唑的降解相对较快。

虽然目前有众多关于养殖粪便抗生素残留影响的研究,但几乎都是选择某个特定试验点进行分析,受到试验点的生物地理环境因素影响,其结果有较大差异,也给畜禽粪污资源化利用的安全性带来不确定性。

本研究通过对已发表文献中的数据进行收集,运用 Meta 分析,统计文献中主要抗生素:四环素类、磺胺类、氟喹诺酮类在土壤中的降解情况,获得土壤中此 3 类抗生素的降解能力、降解时间,及不同浓度下对土壤微生物多样性的影响,分析得出现有研究的主要结果和趋势,以期评价养殖粪污从产出到用于农田的安全性,为养殖粪污资源化利用提供数据支撑。

1 材料与方法

1.1 数据来源及选择标准

养殖粪污中抗生素种类包括了大环内酯类、氨基糖苷类、内酰胺类、磺胺类、四环素类、氟喹诺酮类 6 类,选用目前研究较多的 3 种主要兽用抗生素:四环素类(土霉素、金霉素、四环素)、磺胺类(磺胺二甲嘧啶、磺胺甲恶唑、磺胺嘧啶)和氟喹诺酮类(环丙沙星、恩诺沙星、诺氟沙星)为统计对象。通过 CNKI 中国知网和 Web of Science 数据库,以“抗生素、土壤、四环素、磺胺、氟喹诺酮、残留、降解、微生物”等作为关键词进行检索,选取 2000—2019 年间在 CNKI 以及 Web of Science 上发表的文献。

文献筛选标准为:(1)文献至少研究一种目标抗生素从养殖粪污进入土壤后的降解情况;(2)实验必须包含严格的对照组和处理组;(3)每单个实验的重复数至少 3 次;(4)文献中的数据必须包含均值及样本数;(5)土壤样本取自 0~20 cm 浅层土壤;(6)关于

微生物多样性的文献需要包含微生物多样性的香农指数。

1.2 数据收集及分类

收集的数据包括:土壤中添加抗生素前后的香农指数、土壤中抗生素的降解率、抗生素在土壤中处理一段时间前后的含量,抗生素含量的单位统一为 $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ 。此外,文献中注明的试验点位置、土壤类型、pH 等信息也收集,若文献中数据用图表示,则使用 GetData Digitizer 2.24 软件获取。最终从数据库中获有效文献 59 篇,其中英文文献 39 篇,中文文献 20 篇,最终获得有效数据 463 组。主要指标确定如下:

(1) 抗生素降解速率指标:由于抗生素在土壤中 7 d 后,其残留会表现出急剧下降的趋势^[16-17],且大多数实验进行到 30 d 左右抗生素降解趋于平缓^[18-19],因此将抗生素在土壤中的降解速率划分为 ≤ 7 d、7~30 d、 >30 d 进行讨论。

(2) 土壤残留抗生素初始浓度指标:按抗生素不同初始浓度分为 $\leq 10 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ (低浓度)、 $10 \sim 100 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ (中浓度)、 $>100 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ (高浓度)。

(3) 土壤类型指标:土壤类型按照《中国土壤分类与代码》(GB/T 17296—2009)分为 12 类,选取的研究样本包括 6 类,即铁铝土(砖红壤、赤红壤、红砂壤),淋溶土(棕壤、暗棕壤),半淋溶土(黑土、壤土),初育土(红黏土),半水成土(潮土、灰潮土),人为土(水稻土)。

(4) 酸碱指标:样本 pH 范围为 4.3~9.4,分为弱酸性(pH 4.3~6)、中性(pH 6~8)、弱碱性(pH 8~9.5)。

1.3 Meta 分析

选择“Response ratio”指标作为本研究处理与对照之间的效应值(RR),由公式(1)进行计算:

$$\ln RR = \ln \left(\frac{\bar{X}_t}{\bar{X}_c} \right) = \ln(\bar{X}_t) - \ln(\bar{X}_c) \quad (1)$$

式中: $\ln RR$ 为处理与对照之间的效应值,无单位; $\bar{X}_t$ 和 $\bar{X}_c$ 分别为处理组和对照组的平均值,无单位。抗生素在土壤中降解情况的研究中处理组为经过土壤降解后的抗生素浓度,对照组为土壤降解前的抗生素浓度;抗生素对土壤微生物多样性的影响中处理组为抗生素在土壤中存留一段时间后的微生物多样性指数,对照组为抗生素流入前的土壤微生物多样性指数。

方差($1/V$)的倒数由式(2)计算:

$$V = \frac{S_t^2}{N_t \bar{X}_t^2} + \frac{S_c^2}{N_c \bar{X}_c^2} \quad (2)$$

式中: V 为均值变异系数,无单位; S_t 、 S_c 和 N_t 、 N_c 分别代

表处理组、对照组的标准差和处理组、对照组的重复数。为了得出处理组相对于对照组的总体反应效果,将处理与对照效应值均值进行加权处理,最后数据分析基于加权效应值及加权效应值的 95% 置信区间(95%CI)。

使用反变换 $(e^{\ln RR} - 1) \times 100\%$ 来反映抗生素的降解率以及抗生素对土壤微生物多样性的影响。

研究采用 MetaWin 2.1 软件,选择随机效应模型,计算每一组数据的效应值和 95%CI。当效应值的 95%CI 小于 0 时,认为农田中抗生素的降解效果显著或是抗生素对土壤微生物多样性具有显著抑制作用($P < 0.05$),当效应值的 95%CI 大于 0,认为抗生素对土壤微生物多样性具有显著促进作用,若 95%CI 包含 0,则认为处理不显著^[20]。

1.4 数据处理

通过 Meta 方法获得处理与对照之间的加权效应值,以此分析抗生素降解率以及对土壤微生物功能多样性的影响程度,SPSS 用于最小显著差异化检验,Origin 2018 软件用于绘图。

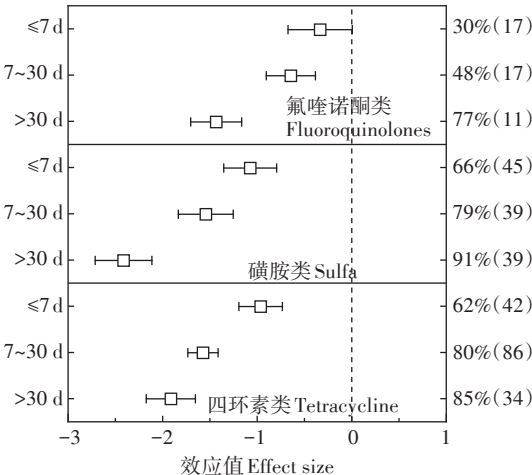
2 结果与分析

2.1 不同种类抗生素的降解率

分析并比较养殖粪污中 3 类主要抗生素(四环素类、磺胺类、氟喹诺酮类)在土壤中的降解速率,文献调研共获得有效数据 330 组,利用 Meta 进行统计,结果见图 1。根据 Meta 分析结果,抗生素在前 7 d 降解迅速,之后会逐步放缓直至趋于稳定。从降解速率上看,磺胺类抗生素降解最快,降解率在第 7 d 达到 66%, >30 d 时达到 91%,在所有抗生素中最高;四环素类抗生素的降解速率略低于磺胺类,降解率在第 7 d 达到 62%, >30 d 时达到 85%;氟喹诺酮类在土壤中降解比较缓慢,7~30 d 仅降解 48%。

2.2 抗生素不同初始浓度、pH 及土壤类型对土壤抗生素降解率的影响

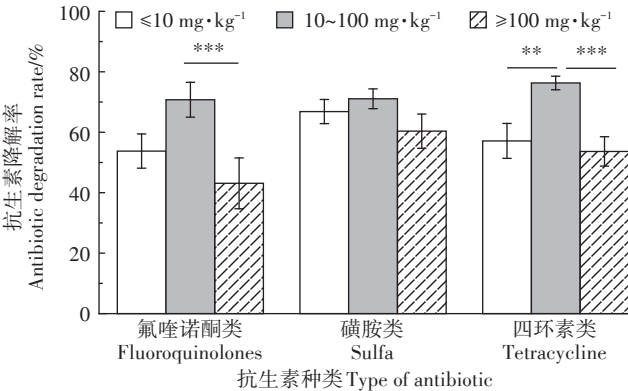
研究 3 种抗生素在土壤中低、中、高 3 种不同初始浓度条件下前 7 d 的降解率,共有数据 241 组。统计结果见图 2。根据统计,3 种抗生素均表现出当土壤中抗生素初始浓度在中浓度时,前 7 d 的降解率最高,低浓度时其次,高浓度时最小。但磺胺类 3 种浓度差异表现不显著;氟喹诺酮类中浓度和高浓度有显著差异,其他差异不显著;四环素类中浓度显著高于其他两种浓度,高、低两种浓度差异不显著。总体上说明,过高或过低浓度的抗生素在土壤中的降解率都会下



右侧百分数为抗生素降解率,括号内为研究数
Percentage in the right ordinate is the degradation rate of the antibiotic, study number is in brackets

图1 降解率的效应值随抗生素降解时间的变化

Figure 1 Response ratio of degradation rate change with degradation time of antibiotics



*** $P<0.001$, ** $P<0.01$, LSD 多重比较法。研究中的抗生素包含了文献中所有抗生素

*** $P<0.001$, ** $P<0.01$, LSD multiple ratio method. The antibiotics in the study include all the antibiotics in the literature

图2 抗生素不同初始浓度条件下降解率的差异性变化

Figure 2 Response ratio of degradation rate changes with different antibiotic concentrations

降,但不同抗生素种类具有差异。

由于土壤特性对抗生素降解也有一定影响,因此将pH和土壤类型与抗生素30 d内降解率进行单因素方差分析,以此探究土壤条件因素对抗生素降解的影响。文献调研共获得文献40篇,数据351组,结果如表1和表2所示。

表1 pH对抗生素降解率的影响

Table 1 Influence of pH on antibiotic degradation rate

项目 Item	微酸 Weak acid	中性 Neutral	微碱 Weak alkaline
抗生素降解率 Antibiotic degradation rate/%	82a	80ab	74b

注:表中数据为抗生素降解率的平均值,不同字母表示在0.05水平上LSD多重比较差异显著。

Note: The data in the table are the average degradation rate of antibiotics. Different letters mean difference is significant at the level of 0.05. The same below.

从表1可以看出,不同的土壤pH对土壤抗生素降解具有显著的影响,偏酸性土壤更有利于土壤中抗生素的降解。从表2可以看出,半水成土及半淋溶土中抗生素的降解率在85%以上,且显著高于其他土壤类型中的降解率,其他土壤类型中抗生素降解率不具有显著差异,这可能主要是因为土壤酸碱度的影响,从样本pH范围来看,半淋溶土与半水成土的pH范围都是弱酸性。

2.3 抗生素对土壤微生物功能多样性的影响

抗生素对微生物功能多样性的影响主要受抗生素种类、浓度的影响,为了探究抗生素浓度对微生物多样性的影响,基于文献调研数据,以土壤中抗生素低、中、高3种不同初始浓度为指标,获得不同浓度下抗生素对土壤微生物功能多样性的影响,共获得数据112组。结果如图3所示。从图3可以看出,氟喹诺酮类和四环素类抗生素在土壤低浓度时并没有对微生物功能多样性有抑制作用,反而具有微弱的促进作用

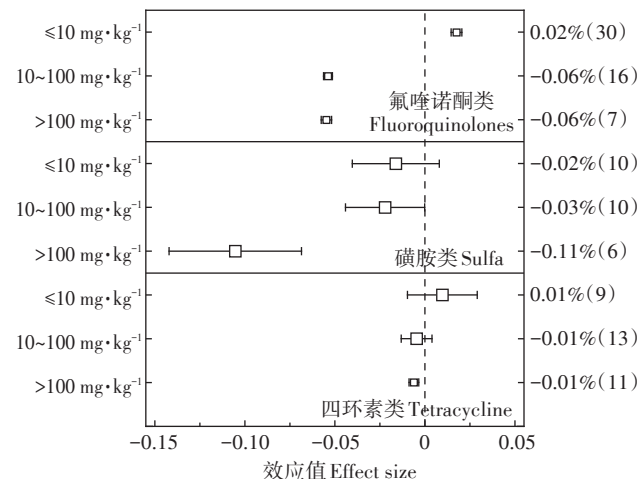
表2 土壤类型对抗生素降解率的影响

Table 2 Influence of soil type on antibiotic degradation rate

土壤类型 Soil type	pH 范围 pH range	抗生素降解率 Antibiotic degradation rate/%	样本数 Samples
铁铝土 Iron bauxite	4.30~8.45 (7.2)	75b	73
淋溶土 Luvisols	6.13~8.73 (7.92)	73b	42
半淋溶土 Semi-luvisols	5.81~6.60 (5.98)	86a	19
初育土 Primary soil	4.55~9.33 (7.01)	70b	32
半水成土 Semi-hydromorphic soil	5.56~6.75 (6.00)	88a	10
人为土 Paddy soil	5.43~8.73 (6.13)	77b	32

注:表中pH范围为选取的所有研究样本的pH范围,括号内为中位数。抗生素降解率为所有样本均值。

Note: The pH range in the table is the pH range of all selected research samples, and the median is in brackets. The degradation rate of antibiotics is the mean value of all samples.



右侧百分数为抗生素对微生物功能多样性的影响(正值表示对微生物多样性具有促进作用,负值表示对微生物多样性具有抑制作用),括号内为研究数

Right in the ordinate percentage for antibiotic effects on microbial diversity (value is positive said to promote the effects of microbial diversity, value is negative said has inhibitory effect on microbial diversity), brackets for the study of numbers

图3 抗生素对土壤微生物功能多样性影响的效应值随抗生素初始浓度的变化

Figure 3 Response ratio of soil microbial diversity changes with different antibiotic concentrations

用,但浓度大于 $10 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ 时,两种抗生素对土壤中微生物多样性均表现出抑制作用,且氟喹诺酮类的抑制作用更显著,当达到中浓度时,就已经表现出显著的抑制作用;四环素类抗生素虽然在中、高浓度对于土壤中抗生素具有一定抑制作用,但总体上其影响效果远不如其他两种抗生素显著,不同浓度之间差异也不显著。磺胺类抗生素在3个浓度组中均表现出抑制效果,浓度越大,对土壤微生物多样性抑制作用越大,当浓度 $\geq 100 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ 后,其抑制作用表现尤为显著。总体上,抗生素浓度越高,对土壤微生物功能多样性抑制作用越大,3种抗生素中四环素类抗生素抑制作用最小,中浓度时氟喹诺酮类影响最大,到高浓度时,磺胺类影响最大。

将抗生素对微生物功能多样性的影响与抗生素

在土壤中的初始浓度、残留时间、抗生素降解以及土壤 pH 作 Pearson 相关性分析,结果如表3所示。抗生素对微生物功能多样性的影响与抗生素在土壤中的残留时间在 0.01 水平下具有显著负相关;与土壤 pH 在 0.05 水平下具有显著正相关;与抗生素降解在 0.05 水平下具有显著负相关。随着抗生素在土壤中降解,抗生素对微生物功能多样性的影响逐渐减小,而土壤 pH 越高,抗生素对土壤微生物功能多样性的影响程度越高。

3 讨论

3.1 土壤中抗生素降解的影响因素

土壤中抗生素降解与多种因素相关,受土壤生物地理环境影响,抗生素之间降解差异明显。抗生素在土壤中的降解率从大到小依次为磺胺类>四环素类>氟喹诺酮类。磺胺类抗生素易降解,7 d 降解率能达到 66%,而氟喹诺酮类较难降解。这与现有的一些研究结果相符,Alexy 等^[21]模拟了 18 种抗生素的降解,结果表明金霉素等抗生素被完全降解,而氧氟沙星的降解率仅为 7.5%;Cycon 等^[22]的研究同样显示,氟喹诺酮类抗生素的降解周期长于磺胺类、四环素类抗生素。磺胺类抗生素易降解的特性可能与磺胺类化合物易与土壤成分牢固结合形成稳定残基有关^[23-24];Mohring 等^[25]研究认为,磺胺嘧啶在土壤中处理 40 d 后几乎完全被降解,属于极易降解抗生素。一般而言,抗生素在土壤中的降解随抗生素初始浓度的增加而增加^[26],但抗生素初始浓度过高,也会反过来影响抗生素在土壤中的降解率^[27]。在本研究中,四环素类抗生素降解速率受初始浓度的影响极显著(低浓度组与中浓度组 $P < 0.01$ 、中浓度组与高浓度组 $P < 0.001$),氟喹诺酮类抗生素在中、高初始浓度组间同样具有显著差异($P < 0.001$),但磺胺类抗生素降解率几乎不受初始浓度影响。张紫琴等^[28]对青霉素 G 钾在蔬菜地土壤中的降解动力学进行研究,认为初始浓度越高,降解速率越快,但其不会被完全降解,土壤中仍然会

表3 抗生素对土壤微生物功能多样性的影响与抗生素初始浓度、残留时间、降解以及土壤 pH 的相关性分析

Table 3 Effects of antibiotics on soil microbial diversity correlated with antibiotic species, initial concentration, residual time, soil pH and soil type

	抗生素初始浓度 Initial concentration	抗生素残留时间 Duration of antibiotic	抗生素降解 Antibiotic degradation	土壤 pH Soil pH
抗生素对土壤微生物功能多样性的影响 Effects of antibiotics on functional diversity of soil microorganisms	-0.107	-0.262**	-0.236*	0.195*

注:*表示在 0.05 水平相关性显著。**表示在 0.01 水平相关性显著。

Note:* indicates significant correlation at the 0.05 level.** indicates significant correlation at the 0.01 level.

有少量青霉素G钾存在。此前已有学者指出,土壤pH是影响抗生素降解的环境主控因素。丁韶鑫等^[29]对影响磺胺甲恶唑降解的因素进行了研究,结果表明降低pH有利于磺胺甲恶唑降解;Chen等^[30]的研究认为,pH过高或过低都会导致环境中与抗生素降解相关的活性分子含量降低,继而影响抗生素降解速率;李伟明等^[31]研究发现,四环素类抗生素在pH约为6.5和温度为25℃的条件下微生物组活性更高,降解率更高。本研究中弱酸性土壤条件更有利于抗生素降解,弱酸性土壤中抗生素降解率达到82%,且与弱碱性土壤条件具有显著差异($P<0.05$)。土壤类型同样是影响抗生素降解的一大重要因素,半淋溶土及半水成土中抗生素降解率显著高于其他土壤类型($P<0.05$)。许静等^[32]运用室内模拟降解法,研究了5种磺胺类抗生素在不同类型土壤中的降解能力,结果显示磺胺类抗生素在黑土中的降解能力最强,在红壤中的降解能力最弱。Koba等^[33]运用主成分分析法,分析抗生素降解的主要影响因素,结果显示土壤类型与抗生素降解高度相关。土壤类型对抗生素降解的影响可能与土壤pH有关,半淋溶土及半水成土中的抗生素降解率更高,同时半淋溶土与半水成土的样本pH都为弱酸性。

3.2 抗生素残留对土壤微生物多样性的影响

抗生素种类、浓度以及在土壤中的残留时间对土壤微生物多样性的影响较大。本研究中不同种类抗生素对土壤微生物的多样性均具有显著抑制作用,抑制能力依次为磺胺类>氟喹诺酮类>四环素类,磺胺类抗生素即使在低浓度条件下对微生物多样性影响也表现为抑制作用,Schmitt等^[34]认为磺胺类抗生素会抑制细菌细胞生长,因此导致土壤微生物多样性的减少。氟喹诺酮类及四环素类抗生素对微生物多样性同样表现出抑制效果,但在低浓度条件下则能促进微生物多样性增加,这种现象的原因可能是土壤微生物将抗生素利用为生长养分^[35],且抗生素重复施用也可能导致细菌适应性增强,从而促使抗生素抗性微生物增殖^[3]。在本研究中,抗生素对土壤微生物多样性的影响与抗生素在土壤中的降解具有相同的趋势^[36]。抗生素对土壤微生物功能多样性影响的效应值(RR)与抗生素降解的效应值(RR)具有显著负相关($P<0.05$),抗生素在土壤中的残留时间超过30d后,对土壤微生物多样性的抑制远低于抗生素刚进入土壤的前7d,土壤微生物多样性与抗生素降解具有密不可分的联系。Liu等^[37]研究发现,土壤微生物功能多样

性对环丙沙星在土壤中的降解有较大影响。Halling等^[38]研究了磺胺二甲嘧啶在土壤中的降解及其对土壤微生物多样性的影响,结果同样显示,抗生素在土壤中的快速消散在抗生素对土壤微生物群落的影响方面具有一定作用。土壤自身理化性质对微生物功能多样性同样会有影响,本研究中土壤pH与微生物功能多样性具有显著正相关。王楠等^[39]通过模拟酸雨条件探究了土壤理化性质与土壤微生物之间的关系,相关分析结果表明,土壤pH、速效钾等土壤理化性质与土壤微生物群落结构密切相关。黄冠南等^[40]的研究结果同样说明微生物群落结构与土壤性质具有一定关联。此外,土壤pH还可能通过影响抗生素的降解,间接影响抗生素对土壤微生物多样性的抑制程度,且抗生素通过养殖粪污还田的方式进入土壤,与粪肥中其他有机化合物联用,其土壤降解、对微生物多样性的影响与抗生素单一施用于土壤有一定差异,可能会导致抗生素降解速率以及对微生物多样性影响的变化。

4 结论

(1)根据文献统计研究,3类抗生素在土壤中初期降解最快,30d后逐渐趋于平缓,抗生素最终降解率为77%~91%。3类抗生素的降解速率和30d降解率从大到小依次为磺胺类>四环素类>氟喹诺酮类。

(2)初始浓度对抗生素降解率具有一定影响。当土壤中抗生素初始浓度在中浓度($10\sim100\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$)时,前7d的降解率最高,低浓度($\leq10\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$)时其次,高浓度($\geq100\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$)时最小。土壤类型、pH会显著影响抗生素的降解率,弱酸性土壤环境更有利于抗生素降解;半水成土及半淋溶土中抗生素降解率高于85%,显著高于其他土壤类型。

(3)土壤中四环素类和氟喹诺酮类抗生素浓度 $\leq10\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 时,对土壤微生物功能多样性具有微弱的促进作用, $>10\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 时为抑制作用;磺胺类抗生素在任何初始浓度条件下均表现出抑制效果。抗生素初始浓度越高对土壤微生物功能多样性的抑制作用越大,总体上四环素类抗生素抑制作用最小,中浓度时氟喹诺酮类影响最大,高浓度时磺胺类影响最大。

(4)相关分析结果表明,抗生素在土壤中的存留时间越长对土壤微生物多样性的影响越弱;而土壤pH在4.3~9.4的范围内时,pH越高抗生素对土壤微生物多样性的影响越强;随着抗生素的降解,抗生素对

土壤微生物多样性的影响程度逐渐降低;抗生素对土壤微生物功能多样性的影响与抗生素的初始浓度几乎没有关联。

参考文献:

- [1] Liu X, Lv K, Deng C, et al. Persistence and migration of tetracycline, sulfonamide, fluoroquinolone, and macrolide antibiotics in streams using a simulated hydrodynamic system[J]. *Environmental Pollution*, 2019, 252: 1532–1538.
- [2] Sassman S A, Lee L S. Sorption of three tetracyclines by several soils: Assessing the role of pH and cation exchange[J]. *Environmental Science and Technology*, 2005, 39(19): 7452–7459.
- [3] Sarmah A K, Meyer M T, Boxall A B A. A global perspective on the use, sales, exposure pathways, occurrence, fate and effects of veterinary antibiotics (VAs) in the environment[J]. *Chemosphere*, 2006, 65(5): 725–759.
- [4] 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.
- [5] Martínez-Carballo E, González-Barreiro C, Scharf S, et al. Environmental monitoring study of selected veterinary antibiotics in animal manure and soils in Austria[J]. *Environmental Pollution*, 2007, 148(2): 570–579.
- [6] Pan X, Qiang Z M, Ben W W, et al. Residual veterinary antibiotics in swine manure from concentrated animal feeding operations in Shandong Province, China[J]. *Chemosphere*, 2011, 84(5): 695–700.
- [7] Van Doorslaer X, Dewulf J, Van Langenhove H, et al. Fluoroquinolone antibiotics: An emerging class of environmental micropollutants[J]. *Science of the Total Environment*, 2014, 500/501: 250–269.
- [8] Zhao L, Dong Y H, Wang H. Residues of veterinary antibiotics in manures from feedlot livestock in eight provinces of China[J]. *Science of the Total Environment*, 2010, 408(5): 1069–1075.
- [9] 尹春艳, 骆永明, 滕应, 等. 典型设施菜地土壤抗生素污染特征与积累规律研究[J]. *环境科学*, 2012, 33(8): 2810–2816. YIN Chun-yan, LUO Yong-ming, TENG Ying, et al. Pollution characteristics and accumulation of antibiotics in typical protected vegetable soils[J]. *Environmental Science*, 2012, 33(8): 2810–2816.
- [10] 张慧敏, 章明奎, 顾国平. 浙北地区畜禽粪便和田间土壤中四环素类抗生素残留[J]. *生态与农村环境学报*, 2008, 24(3): 69–73. ZHANG Hui-min, ZHANG Ming-kui, GU Guo-ping. Residues of tetracyclines in livestock and poultry manures and agricultural soils from north Zhejiang Province[J]. *Journal of Ecology and Rural Environment*, 2008, 24(3): 69–73.
- [11] 张涛, 郭晓, 刘俊杰, 等. 江西梅江流域土壤中四环素类抗生素的含量及空间分布特征[J]. *环境科学学报*, 2017, 37(4): 1493–1501. ZHANG Tao, GUO Xiao, LIU Jun-jie, et al. Concentration and spatial distribution of tetracycline antibiotics in soil of Meijiang river catchment, Jiangxi Province[J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2017, 37(4): 1493–1501.
- [12] 刘吉强, 诸葛玉平, 崔丽娜. 外源四环素对土壤酶活性和油菜品质
- 的影响[J]. *应用生态学报*, 2009, 20(4): 943–948. LIU Ji-qiang, ZHUGE Yu-ping, CUI Li-na. Effects of exogenous tetracycline on rape soil enzyme activity and rape quality[J]. *Chinese Journal of Applied Ecology*, 2009, 20(4): 943–948.
- [13] Grenni P, Ancona V, Barra Caracciolo A J M J. Ecological effects of antibiotics on natural ecosystems: A review[J]. *Microchemical Journal*, 2017, 136: 25–39.
- [14] Yan Q F, Li X Y, Ma B H, et al. Different concentrations of doxycycline in swine manure affect the microbiome and degradation of doxycycline residue in soil[J]. *Frontiers in Microbiology*, 2018, 9.
- [15] Liu F, Wu J S, Ying G G, et al. Changes in functional diversity of soil microbial community with addition of antibiotics sulfamethoxazole and chlortetracycline[J]. *Applied Microbiology and Biotechnology*, 2012, 95(6): 1615–1623.
- [16] Chen J F, Jiang X S, Tong T L, et al. Sulfadiazine degradation in soils: Dynamics, functional gene, antibiotic resistance genes and microbial community[J]. *Science of the Total Environment*, 2019, 691: 1072–1081.
- [17] 章程, 冯瑶, 刘元望, 等. 菠菜土壤中典型抗生素的微生物降解及细菌多样性[J]. *中国农业科学*, 2018, 51(19): 3736–3749. ZHANG Cheng, FENG Yao, LIU Yuan-wang, et al. The degradation of typical antibiotics and their effects on soil bacterial diversity in spinach soil [J]. *Scientia Agricultura Sinica*, 2008, 51(19): 3736–3749.
- [18] Pan M, Chu L M. Adsorption and degradation of five selected antibiotics in agricultural soil[J]. *Science of the Total Environment*, 2016, 545: 48–56.
- [19] Danilova N, Galitskaya P, Selivanovskaya S. Veterinary antibiotic oxytetracycline's effect on the soil microbial community[J]. *Journal of Ecology and Environment*, 2020, 44(2): 72–80.
- [20] Niu L A, Hao J M, Zhang B Z, et al. Influences of long-term fertilizer and tillage management on soil fertility of the North China Plain[J]. *Pedosphere*, 2011, 21(6): 813–820.
- [21] Alexy R, Kumpel T, Kummerer K. Assessment of degradation of 18 antibiotics in the closed bottle test[J]. *Chemosphere*, 2004, 57(6): 505–512.
- [22] Cycon M, Mroziak A, Piotrowska-Seget Z. Antibiotics in the soil environment—degradation and their impact on microbial activity and diversity[J]. *Frontiers in Microbiology*, 2019, 10: 338.
- [23] Awad Y M, Ok Y S, Igalavithana A D, et al. Sulphamethazine in poultry manure changes carbon and nitrogen mineralisation in soils[J]. *Chemistry and Ecology*, 2016, 32(10): 899–918.
- [24] Hammesfahr U, Heuer H, Manzke B, et al. Impact of the antibiotic sulfadiazine and pig manure on the microbial community structure in agricultural soils[J]. *Soil Biology and Biochemistry*, 2008, 40(7): 1583–1591.
- [25] Mohring S A I, Strzysch I, Fernandes M R, et al. Degradation and elimination of various sulfonamides during anaerobic fermentation: A promising step on the way to sustainable pharmacy?[J]. *Environmental Science and Technology*, 2009, 43(7): 2569–2574.
- [26] 章明奎, 顾国平, 鲍陈燕. 兽用抗生素在土壤中的衰减特征及其与土壤性状的关系研究[J]. *中国农学通报*, 2015, 31(31): 228–236.

- ZHANG Ming-kui, GU Guo-ping, BAO Chen-yan. Degradation characteristics of veterinary antibiotics in soils and its relationship with soil properties[J]. *Chinese Agricultural Science Bulletin*, 2015, 31(31):228-236.
- [27] Demoling L A, Baath E, Greve G, et al. Effects of sulfamethoxazole on soil microbial communities after adding substrate[J]. *Soil Biology and Biochemistry*, 2009, 41(4):840-848.
- [28] 张紫琴, 张洪昌, 沈根祥, 等. 青霉素 G 钾在蔬菜地土壤中的降解动力学研究[J]. *生态毒理学报*, 2020, 15(3):218-226. ZHANG Zi-qin, ZHANG Hong-chang, SHEN Gen-xiang, et al. Degradation kinetics of penicillin G potassium in a vegetable soil system with compost application[J]. *Asian Journal of Ecotoxicology*, 2020, 15(3):218-226.
- [29] 丁韶鑫, 朱泉, 郭杨, 等. 紫外/氯高级氧化降解典型抗生素磺胺二甲嘧啶的试验[J]. *净水技术*, 2019, 38(5):7-13. DING Shao-xin, ZHU Quan, GUO Yang, et al. Degradation of sulfamethazine as a typical antibiotic by advanced oxidation process of UV/chlorine[J]. *Water Purification Technology*, 2019, 38(5):7-13.
- [30] Chen M J, Huang Y, Chu W. Exploring a broadened operating pH range for norfloxacin removal via simulated solar-light-mediated Bi_2WO_6 process[J]. *Chinese Journal of Catalysis*, 2019, 40(5):673-680.
- [31] 李伟明, 鲍艳宇, 周启星. 四环素类抗生素降解途径及其主要降解产物研究进展[J]. *应用生态学报*, 2012, 23(8):2300-2308. LI Wei-ming, BAO Yan-yu, ZHOU Qi-xing. Degradation pathways and main degradation products of tetracycline antibiotics: Research progress[J]. *Chinese Journal of Applied Ecology*, 2012, 23(8):2300-2308.
- [32] 许静, 王娜, 孔德洋, 等. 有机肥源磺胺类抗生素在土壤中的降解规律及影响因素分析[J]. *环境科学学报*, 2015, 35(2):550-556. XU Jing, WANG Na, KONG De-yang, et al. Dynamics and degradation mechanism of antibiotic sulfonamides in soils with organic manure amendment[J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2015, 35(2):550-556.
- [33] Koba O, Golovko O, Kodešová R, et al. Antibiotics degradation in soil: A case of clindamycin, trimethoprim, sulfamethoxazole and their transformation products[J]. *Environmental Pollution*, 2016, 220:1251-1263.
- [34] Schmitt H, Haapakangas H, van Beelen P. Effects of antibiotics on soil microorganisms: Time and nutrients influence pollution-induced community tolerance[J]. *Soil Biology and Biochemistry*, 2005, 37(10):1882-1892.
- [35] Thiele-Bruhn S, Beck I J C. Effects of sulfonamide and tetracycline antibiotics on soil microbial activity and microbial biomass[J]. *Chemosphere*, 2005, 59(4):457-465.
- [36] Wen X, Wang Y, Zou Y D, et al. No evidential correlation between veterinary antibiotic degradation ability and resistance genes in microorganisms during the biodegradation of doxycycline[J]. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 2018, 147:759-766.
- [37] Liu L, Mi J, Wang Y, et al. Different methods of incorporating ciprofloxacin in soil affect microbiome and degradation of ciprofloxacin residue[J]. *Science of the Total Environment*, 2018, 619:1673-1681.
- [38] Halling-Sørensen B, Sengelov G, Ingerslev F, et al. Reduced antimicrobial potencies of oxytetracycline, tylosin, sulfadiazin, streptomycin, ciprofloxacin, and olaquinox due to environmental processes[J]. *Archives of Environmental Contamination and Toxicology*, 2003, 44(1):7-16.
- [39] 王楠, 潘小承, 白尚斌. 模拟酸雨对我国亚热带毛竹林土壤呼吸及微生物多样性的影响[J]. *生态学报*, 2020, 40(10):3420-3430. WANG Nan, PAN Xiao-cheng, BAI Shang-bin. Effects of simulated acid rain on soil respiration and microbial diversity in Moso bamboo forest in subtropical China[J]. *Acta Ecologica Sinica*, 2020, 40(10):3420-3430.
- [40] 黄冠南, 丁美月, 马金才, 等. 吉林省四平地区粉黏壤土微生物群落结构与环境因子的关系[J]. *江苏农业科学*, 2019, 47(14):306-310. HUANG Guan-nan, DING Mei-yue, MA Jin-cai, et al. Relationship between microbial community structure and environmental factors in silty clay loam in Siping Area, Jilin Province[J]. *Jiangsu Agricultural Sciences*, 2019, 47(14):306-310.