

青菜对三种土壤中典型抗生素的累积规律研究

王莉莉, 孙浩, 汪浪浪, 李学德

引用本文:

王莉莉, 孙浩, 汪浪浪, 李学德. 青菜对三种土壤中典型抗生素的累积规律研究[J]. *农业环境科学学报*, 2022, 41(9): 1887-1896.

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.11654/jaes.2022-0215>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

某规模化猪场废水中抗生素污染特征及生态风险评估

李盟军, 申健, 姚建武, 宁建凤, 王荣辉, 周凯军, 艾绍英

农业环境科学学报. 2021, 40(4): 884-893 <https://doi.org/10.11654/jaes.2020-1166>

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>

水冲和节水农村公厕粪便资源化利用风险评估

蔡佳盛, 施教忠, 叶志隆, 李叶楠, UZMAShaheen, 陈少华

农业环境科学学报. 2021, 40(10): 2226-2235 <https://doi.org/10.11654/jaes.2021-0340>

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

农业环境科学学报. 2021, 40(5): 1043-1050 <https://doi.org/10.11654/jaes.2020-1044>

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

朱秀辉, 曾巧云, 解启来, 丁丹, 茹淑玲

农业环境科学学报. 2017, 36(11): 2257-2266 <https://doi.org/10.11654/jaes.2017-0549>



关注微信公众号, 获得更多资讯信息

王莉莉, 孙浩, 汪浪浪, 等. 青菜对三种土壤中典型抗生素的累积规律研究[J]. 农业环境科学学报, 2022, 41(9): 1887-1896.

WANG L L, SUN H, WANG L L, et al. Accumulation regularity of typical antibiotics in Chinese cabbage from three soils [J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2022, 41(9): 1887-1896.



开放科学 OSID

青菜对三种土壤中典型抗生素的累积规律研究

王莉莉¹, 孙浩¹, 汪浪浪¹, 李学德^{1,2*}

(1. 安徽农业大学资源与环境学院, 合肥 230036; 2. 农业农村部合肥农业环境科学观测实验站, 合肥 230036)

摘要:为探究青菜对不同类型土壤中不同种类抗生素的吸收和累积特性,通过盆栽实验,观察了三类土壤(黄褐土、砂姜黑土、红壤)中磺胺二甲嘧啶(SM₂)、磺胺甲噁唑(SMZ)、四环素(TC)、土霉素(OTC)4种典型抗生素在青菜中的累积规律。结果表明:青菜累积三类土壤中4种抗生素的含量均在第10天达到最高后逐渐下降;青菜中抗生素的含量随着土壤中抗生素初始含量(0.1~25.0 mg·kg⁻¹)的增大而增大,抗生素初始含量为25.0 mg·kg⁻¹时,青菜中累积的抗生素含量显著高于其他低浓度处理组($P<0.05$);土壤中抗生素初始含量为25.0 mg·kg⁻¹时,青菜从不同类型土壤中吸收同种抗生素的含量差异较大,排序为红壤(SM₂ 14 993.6 μg·kg⁻¹、SMZ 12 199.2 μg·kg⁻¹、TC 646.1 μg·kg⁻¹、OTC 967.6 μg·kg⁻¹)>黄褐土(SM₂ 12 598.1 μg·kg⁻¹、SMZ 11 678.5 μg·kg⁻¹、TC 463.5 μg·kg⁻¹、OTC 663.8 μg·kg⁻¹)>砂姜黑土(SM₂ 9 510.4 μg·kg⁻¹、SMZ 3 666.9 μg·kg⁻¹、TC 58.8 μg·kg⁻¹、OTC 90.5 μg·kg⁻¹),土壤pH和有机质含量是影响青菜从土壤中累积抗生素的重要因素;在同类土壤中,青菜对不同抗生素的累积顺序为SM₂>SMZ>OTC>TC,导致青菜对不同抗生素累积差异的原因,除了土壤对四环素类抗生素(TCs)的吸附能力强于磺胺类抗生素(SAs)外,还与不同抗生素的理化性质(分子结构、形态)有关。青菜能吸收土壤中的抗生素,在移栽后第10天青菜中抗生素的含量最高,青菜易从酸性土壤(红壤)中吸收抗生素,中性土壤(黄褐土)次之,碱性土壤(砂姜黑土)最低,且青菜对SAs的累积能力强于TCs,土壤中抗生素的初始含量越高,青菜中抗生素的含量也越高。

关键词:土壤;抗生素;青菜;累积规律;机制分析

中图分类号:X173 文献标志码:A 文章编号:1672-2043(2022)09-1887-10 doi:10.11654/jaes.2022-0215

Accumulation regularity of typical antibiotics in Chinese cabbage from three soils

WANG Lili¹, SUN Hao¹, WANG Langlang¹, LI Xuede^{1,2*}

(1. School of Resources and Environment, Anhui Agricultural University, Hefei 230036, China; 2. Hefei Scientific Observation and Experimental Station of Agro-Environment, Ministry of Agriculture and Rural Affairs, Hefei 230036, China)

Abstract: To investigate the accumulation characteristics of different antibiotics in Chinese cabbage from different soils, the accumulation of typical antibiotics, including sulfadimidine (SM₂), sulfamethoxazole (SMZ), tetracycline (TC), and oxytetracycline (OTC), in Chinese cabbage were evaluated from three soils (yellow clunamon soil, lime concretion black soil, and red soil) through soil pot experiment. The results showed that the concentrations of the four antibiotics in Chinese cabbage from the three soils reached the highest concentrations on the 10th day and then gradually decreased. The concentration of antibiotics in vegetables increased with increasing initial concentrations of antibiotics in soils. When the initial concentration of antibiotics in the soil was 25.0 mg·kg⁻¹, the concentration of antibiotics in Chinese cabbage was significantly higher than at lower initial concentrations. Under the same initial concentration of antibiotics in soil, the concentration of the antibiotics in Chinese cabbage varied greatly under different soil types. Soil pH and organic matter content were

收稿日期:2022-03-04 录用日期:2022-04-25

作者简介:王莉莉(1995—),女,安徽太和人,硕士研究生,从事农业资源利用研究。E-mail:llwang0701@163.com

*通信作者:李学德 E-mail:xuedel@ahau.edu.cn

基金项目:安徽省重点研究与开发计划项目(202004a06020007)

Project supported: The Key Research and Development Program of Anhui Province, China(202004a06020007)

important factors affecting the antibiotic accumulation in Chinese cabbage. In the same soil, the accumulation sequence of different antibiotics in vegetable was in the order: $SM_2 > SMZ > OTC > TC$, which was because the adsorption of TCs in the same soil was much higher than that of SAs, and different antibiotics had different physical and chemical properties. Chinese cabbage absorbed antibiotics from soils and the concentration of antibiotics was the highest on the 10th day after transplantation. The accumulation of antibiotics in Chinese cabbage was the highest in acidic soil (red soil), followed by neutral soil (yellow-cinnamon soil), and it was the lowest in alkaline soil (lime concretion black soil). The accumulation ability of Chinese cabbage to SAs was stronger than TCs, and the higher the initial concentration of antibiotics in soil, the higher the concentration of antibiotics in Chinese cabbage.

Keywords: soil; antibiotics; Chinese cabbage; accumulation regularity; mechanism analysis

磺胺类抗生素(SAs)和四环素类抗生素(TCs)在畜禽养殖业中广泛用于治疗或预防动物疾病,以提高动物生长速度和饲料转化率^[1]。我国每年抗生素生产量约为21万t,其中46.1%用于畜禽养殖业^[2]。据报道,畜禽摄入的抗生素约有30%~90%以原药或代谢产物的形式排出体外^[3-4],畜禽粪便的施用是造成蔬菜等农产品中兽用抗生素污染的重要途径。有研究调查了65种抗生素在我国土壤中的空间分布,发现土壤中抗生素的检出率非常高^[5],有些农业土壤中抗生素的残留浓度超过了欧盟规定的风险阈值($100 \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$)^[6],如上海黄浦江上游养殖场附近土壤中四环素含量高达 $1\ 870\sim 2\ 450 \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ ^[7],江苏徐州施过畜禽粪便后的土壤中土霉素的最高检出浓度为 $8\ 400 \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ ^[8]。进入土壤中的抗生素,对生态环境和人类健康构成潜在威胁。研究表明,蔬菜能吸收累积土壤中的抗生素^[9],如小白菜和白萝卜可吸收土壤中的四环素和土霉素^[10]、菠菜和卷心菜可吸收土壤中的磺胺二甲嘧啶^[11]等。植物根际环境是植物与土壤之间进行物质交换的“桥梁”,也是污染胁迫的优先场所。抗生素被蔬菜的根系吸收后,主要沿蒸腾途径分布在植物的不同部位^[12-14]。进入蔬菜中的抗生素通过食物链威胁人类健康,受到人们的广泛关注。

土壤对抗生素的吸附性强弱是影响其迁移等环境行为的重要因素之一。研究表明,SAs在土壤中的吸附系数极低^[15],比TCs具有更高的流动性,因此SAs具有更高的生物可利用性和淋溶性,以及转移到各种环境和食物链的可能性。由此可见,土壤对抗生素的吸附作用越强,抗生素向地表水、地下水及植物中的迁移能力越弱。不同类型土壤的理化性质不同,青菜从不同类型土壤中吸收累积抗生素的差异性却鲜见报道。本研究通过土壤盆栽试验,研究了3类土壤中4种典型抗生素在青菜中的累积规律,探讨了其影响机制,以期土壤中抗生素的健康风险评估提供理论依据。

1 材料与方法

1.1 供试土壤

试验所用土壤包括砂姜黑土、黄褐土和红壤,均为0~20 cm的耕作层土壤,土壤经风干、剔除杂草、石块等杂质后磨碎过2 mm筛备用。砂姜黑土采自安徽农业大学皖北试验站(宿州),pH 7.92,阳离子交换量 $17.40 \text{ cmol}\cdot\text{kg}^{-1}$,有机质含量 $32.50 \text{ g}\cdot\text{kg}^{-1}$;黄褐土采自安徽农业大学农萃园,pH 6.97,阳离子交换量 $14.60 \text{ cmol}\cdot\text{kg}^{-1}$,有机质含量 $11.10 \text{ g}\cdot\text{kg}^{-1}$;红壤采自安徽省宣城市寒亭镇,pH 5.81,阳离子交换量 $9.31 \text{ cmol}\cdot\text{kg}^{-1}$,有机质含量 $7.59 \text{ g}\cdot\text{kg}^{-1}$ 。经检测表明这三类土壤中均不含四环素、土霉素、磺胺二甲嘧啶、磺胺甲噁唑的残留。

1.2 供试蔬菜

选用人们经常食用的青菜为供试蔬菜,品种为上海青(合肥丰乐种业有限公司)。

1.3 药品与试剂

磺胺二甲嘧啶(SM_2),纯度 $\geq 99\%$,萨恩化学技术(上海)有限公司;磺胺甲噁唑(SMZ),纯度 $\geq 98\%$,上海麦克林生化科技有限公司;四环素(TC),纯度 $\geq 98\%$,上海源叶生物科技有限公司;土霉素(OTC),纯度 $\geq 98\%$,上海泰坦科技股份有限公司,理化性质见表1;甲醇、乙腈、甲酸为HPLC级,其余试剂为分析纯;实验用水为超纯水(美国Millipore公司)。

1.4 仪器设备

超高效液相色谱串联质谱仪(Xevo TQ MS,美国Waters公司);高效液相色谱仪(Agilent 1200,美国安捷伦公司);氮吹仪(EFAA-DC24,上海安谱实验科技股份有限公司);振荡器(WHY-2,江苏金坛市金城国胜实验仪器厂);离心机(TG20C,长沙英泰仪器有限公司)。

1.5 试验方法

1.5.1 盆栽试验方法

本研究采用土壤盆栽试验,在安徽农业大学资源

表1 供试抗生素的理化性质
Table 1 Physicochemical properties of tested antibiotics

化合物 Chemical compound	四环素 Tetracycline	土霉素 Oxytetracycline	磺胺二甲嘧啶 Sulfamethazine	磺胺甲噁唑 Sulfamethoxazole
分子式	C ₂₂ H ₂₄ N ₂ O ₈	C ₂₂ H ₂₄ N ₂ O ₉	C ₁₂ H ₁₄ N ₄ O ₂ S	C ₁₀ H ₁₁ N ₃ O ₃ S
分子量	444.43	460.43	278.33	253.28
pK _{a1}	3.40	3.27	2.40	1.70
pK _{a2}	7.60	7.32	7.40	5.60
pK _{a3}	9.70	9.11	—	—
参考文献	[16-17]	[18]	[19]	[19]

与环境学院植物培养室中进行。试验所用的塑料小盆钵,上缘直径15 cm,底面直径12 cm,高11 cm。

青菜对三类土壤中抗生素的累积动态及生物量随时间的变化:将4种抗生素(SMZ、SM₂、TC、OTC)的标准混合液分别添加到三类土壤(黄褐土、砂姜黑土、红壤)中,充分混匀,使得同类土壤中每种抗生素的初始含量均为1.0 mg·kg⁻¹,放在培养室中平衡老化一周(期间每隔1 d翻动混匀一次),装盆,1.0 kg·盆⁻¹,每盆施入复合肥(N:P:K为15:15:15)0.5 g,将生长一致的青菜苗(单株鲜质量5 g左右)移栽入盆,每盆3棵。试验期间每隔2 d浇一次水(每盆50 mL)。分别在青菜移栽后第5、7、10、20天和30天取样测定青菜中4种抗生素的浓度。同类土壤中均有15盆盆栽,到相应取样天数时,每次取3盆。

三类土壤中抗生素种类和初始含量对青菜累积抗生素的影响:将不同含量的4种抗生素标准混合溶液分别与三类土壤充分混合均匀,使得同类土壤中每种抗生素的初始含量分别为0.1、0.5、1.0、5.0 mg·kg⁻¹和25.0 mg·kg⁻¹,其余步骤同上,在青菜移栽后第10天取样测定青菜和土壤中4种抗生素的含量。每个处理设3个平行。

青菜连根取出后,用纯水反复清洗根部,擦干水分,立即测定全株生物量,然后去除根部,将青菜可食部分匀浆,备用。每盆土壤混合均匀,取样制备土壤样品。

1.5.2 三类土壤对4种抗生素的等温吸附试验

参考有关文献及预试验,将磺胺类^[20]和四环素类^[21]抗生素在土壤中的吸附设置成不同的土液比和浓度梯度。吸附试验参照批量平衡试验方法进行,具体如下:

SMZ、SM₂的吸附试验:吸附试验在0.01 mol·L⁻¹ CaCl₂背景电解质中进行,土液比1:5,分别称取4.0 g砂姜黑土、黄褐土、红壤,加入20 mL抗生素混合液(SM₂、SMZ),设置抗生素混合液浓度梯度:1.0、2.0、4.0、8.0、10.0、15.0 mg·L⁻¹。25℃下,180 r·min⁻¹振荡

24 h,3 500 r·min⁻¹离心5 min,过0.22 μm滤膜,供高效液相色谱仪测定。

TC、OTC的吸附试验:吸附试验在0.01 mol·L⁻¹ CaCl₂背景电解质中进行,土液比1:100,分别称取0.25 g砂姜黑土、黄褐土、红壤,加入25 mL抗生素混合液(TC、OTC),设置抗生素混合液浓度梯度:10.0、15.0、20.0、30.0、50.0、80.0 mg·L⁻¹,其余步骤同上。

1.6 样品处理与分析

1.6.1 青菜和土壤中抗生素含量的测定

称取5.0 g样品(青菜/土壤)于50 mL离心管中,加入提取剂(青菜样品加入10 mL、土壤样品加入8 mL)0.1 mol·L⁻¹ Na₂EDTA-McIlvaine(pH=4.0±0.01)缓冲溶液:甲醇=1:1,300 r·min⁻¹、25℃下恒温振荡120 min,3 500 r·min⁻¹离心10 min,倒出上清液,其中青菜样品重复提取1次,土壤样品重复提取2次,用McIlvaine缓冲溶液定容至25.0 mL,再取5.0 mL加入含有分散固相萃取材料(60.0 mg PSA、25.0 mg C₁₈、250.0 mg MgSO₄)的离心管中,于多管振荡器上涡旋1 min,10 000 r·min⁻¹离心5 min,吸取2.0 mL上清液于玻璃离心管中,在35℃水浴中氮吹至近干,用1%甲酸溶液定容1.0 mL,过0.22 μm滤膜,供UPLC-MS/MS测定。

仪器检测条件色谱柱 ACQUIT UPLC HSS T3 (2.1×50 mm 1.8 μm),柱温35℃,流动相A为0.1%甲酸,流动相B为乙腈+0.1%甲酸,梯度洗脱:0~0.25 min,95.0%A;0.25~3.00 min,95%A;3.00~3.50 min,10%A;3.50~3.51 min,90%A;3.51~5.00 min,90%A。流速0.35 mL·min⁻¹,进样量5 μL。质谱条件:多反应检测模式(MRM);电喷雾离子源,正离子扫描(ESI+);反锥气流量100 L·h⁻¹;脱溶剂气流量1 000 L·h⁻¹;离子源温度150℃;脱溶剂气温度500℃;毛细管电压1 kV。目标物的母离子、子离子、锥孔电压和碰撞能量等质谱多反应检测条件如表2所示。

采用加标回收法测定了方法的准确度和精密性,

表2 不同种类抗生素的质谱分析参数

Table 2 Mass spectrometric analysis parameters of different types of antibiotics

化合物 Chemical compound	母离子 Parent ion	子离子 Daughter ion	锥孔电压 Taper hole voltage/V	碰撞能量 Collision energy/V
SMZ	254	92*/156	25	26/16
SM ₂	279	92*/124	27	30/20
TC	445	154*/410	22	26/20
OTC	461	426*/443	22	19/13

注:*代表定量离子。

Note:* means quantitative ion.

在 10.0、100.0、1 000.0 $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ 加标浓度范围内,4 种抗生素在青菜、土壤中的回收率均在 70.21%~117.32% 之间,相对标准偏差为 0.71%~20.70%。

1.6.2 土壤中抗生素有效态含量的测定

采用 0.1 $\text{mol}\cdot\text{L}^{-1}$ CaCl_2 溶液作为提取剂,土液比为 2:8,振荡提取 30 min,3 500 $\text{r}\cdot\text{min}^{-1}$ 离心 5 min,取上清液过 0.22 μm 滤膜,供 UPLC-MS/MS 测定,测定条件同上。

1.6.3 吸附试验土壤上清液中抗生素浓度的测定

色谱柱:Eclipse Plus C18(4.6×250 mm,5 μm),柱温:40 $^{\circ}\text{C}$,流动相 0.5% 甲酸:乙腈($V:V=78:22$),流速 1.0 $\text{mL}\cdot\text{min}^{-1}$,进样量 20 μL ,VWD 检测器,测定波长为 270 nm。

1.6.4 数据分析与处理

运用 Excel 和 Origin 2018 进行数据计算和绘图,差异显著性分析使用 SPSS 21.0。

利用 Handerson-hasselbalch (公式 1),计算土壤中 4 种抗生素阴离子和中性分子的比例。

$$\text{pH} = \text{p}K_{\text{a}} + \lg \frac{[\text{A}^{-}]}{[\text{HA}]} \quad (1)$$

式中:pH 为酸碱度;p K_{a} 为解离常数; A^{-} 为以阴离子形态存在的抗生素;HA 为以中性分子形态存在的抗生素(4 种抗生素)。在三类土壤 pH 条件下,不存在阳离子形态。

2 结果与分析

2.1 青菜对三类土壤中抗生素的累积动态及生物量随时间的变化

图 1 为青菜对三类土壤中 4 种抗生素(初始浓度均为 1.0 $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$) 的累积动态。从图 1 可见,青菜对三类土壤中 4 种抗生素的累积均随时间的延长先增大后减小,在第 10 天时达最大含量(13.0~83.3 $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$),随后,青菜中抗生素含量逐渐下降,第 20~30 天青菜中抗生素含量趋于平缓。

种植于三类土壤中的青菜生物量表现出差异性,从表 3 可以看出,随着时间的延长,青菜的鲜质量均逐渐增大,在 30 d 培养结束后,砂姜黑土中青菜生物量增加 35.2 g,黄褐土中青菜生物量增加 23.2 g,红壤中青菜生物量增加 15.3 g。

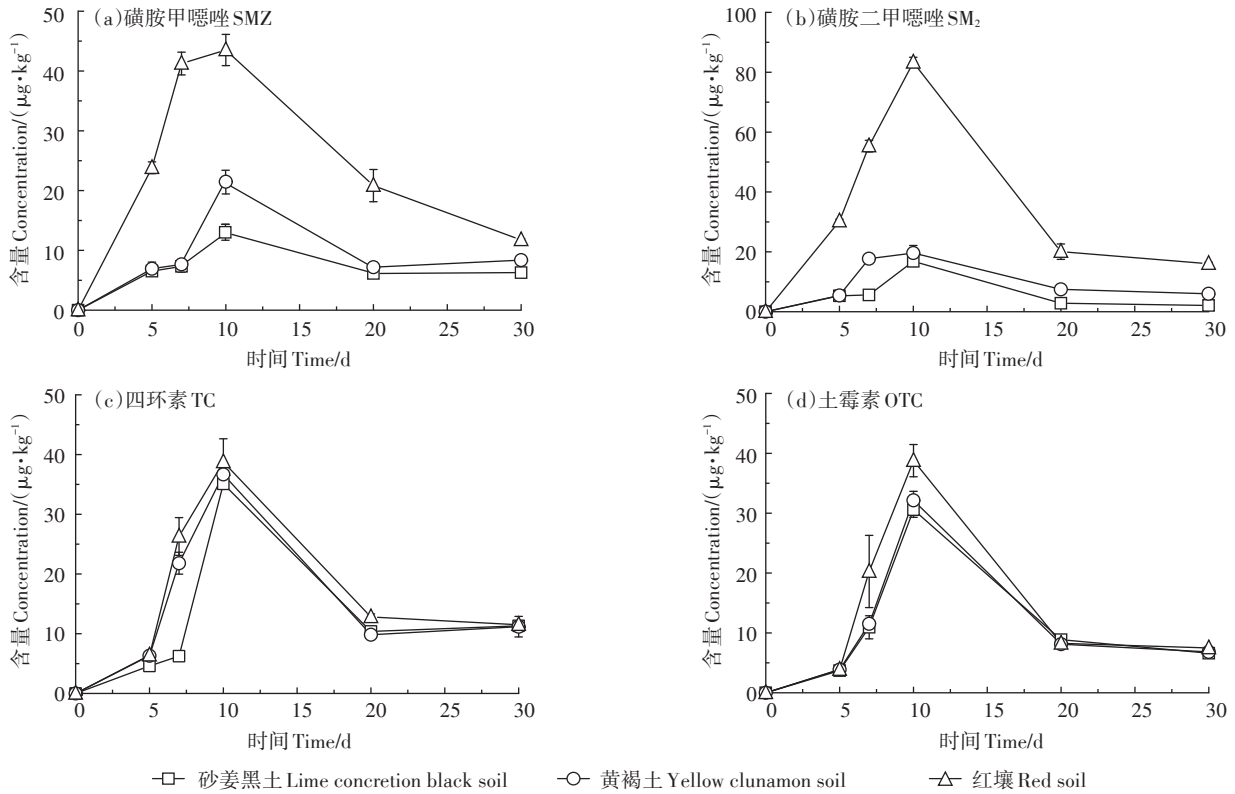
2.2 土壤中抗生素初始含量对其在青菜中累积的影响

为探究土壤中不同初始含量的抗生素在青菜中的累积规律,将土壤中抗生素初始含量设置为 0.1、0.5、1.0、5.0、25.0 $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$,实验结果见图 2,在 0.1~25.0 $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 处理水平下,青菜对 4 种抗生素的累积均随土壤中抗生素初始含量的增大而增大,说明土壤中抗生素的初始含量越大,青菜中抗生素的含量也越大,健康风险也越高。土壤中 4 种抗生素的初始含量均为 25.0 $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 时,青菜从土壤中累积的 4 种抗生素含量(58.8~14 993.6 $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$) 显著高于其他低含量处理组(7.6~3 609.1 $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$),而土壤中抗生素的初始含量在 0.1~5.0 $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 之间时,青菜对抗生素的累积差异不显著($P>0.05$)。

利用 0.1 $\text{mol}\cdot\text{L}^{-1}$ CaCl_2 和 $\text{Na}_2\text{EDTA-McIlvaine}$ 溶液为浸提剂可依次得到土壤中抗生素的有效态浓度、吸附态和固定态浓度^[22-23]。土壤中抗生素的有效态浓度是指容易被植物吸收的抗生素,与青菜从土壤中吸收的抗生素含量成正比。从表 4 可以看出,三类土壤中 4 种抗生素初始含量由 5.0 $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 增加到 25.0 $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 时,土壤中抗生素的有效态含量随初始含量的增大而显著增大($P<0.05$),因此导致青菜累积抗生素的含量也随之增大。土壤中的吸附态和固定态含量与有效态含量变化规律一致,且吸附态和固定态含量>有效态含量,因此,抗生素进入土壤后,吸附态和固定态是土壤中抗生素的主要存在形态。

2.3 不同类型土壤中同种抗生素在青菜中的累积差异

从图 3 可见,青菜从不同类型土壤中累积同种抗生素的难易顺序均为红壤(646.1~14 933.6 $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$)>黄褐土(463.5~12 598.1 $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$)>砂姜黑土(58.8~



三类土壤中每种抗生素的初始含量均为 $1.0 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$
The initial concentration of antibiotics in antibiotics in different soils is $1.0 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$

图1 青菜对不同类型土壤中抗生素的累积动态

Figure 1 Dynamics of antibiotic accumulation in different soils of Chinese cabbage

表3 每盆青菜的生物量随时间的变化(均值±标准差, g)

Table 3 Variation of Chinese cabbage biomass over time (Ave±SD, g)

土壤 Soil	0 d	5 d	7 d	10 d	20 d	30 d
砂姜黑土 Lime concretion black soil	15.0±0.5	21.4±0.8	25.1±3.1	25.6±0.3	36.4±5.9	50.2±1.6
黄褐土 Yellow clunamon soil	15.0±0.5	18.3±0.9	19.5±1.6	25.1±5.8	31.4±0.8	38.2±3.7
红壤 Red soil	15.0±0.5	18.0±2.3	18.4±2.1	21.1±4.6	31.5±5.7	30.3±1.7

注:三类土壤中每种抗生素的初始含量均为 $1.0 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ 。
Note: The initial concentration of antibiotics in different soils is $1.0 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$.

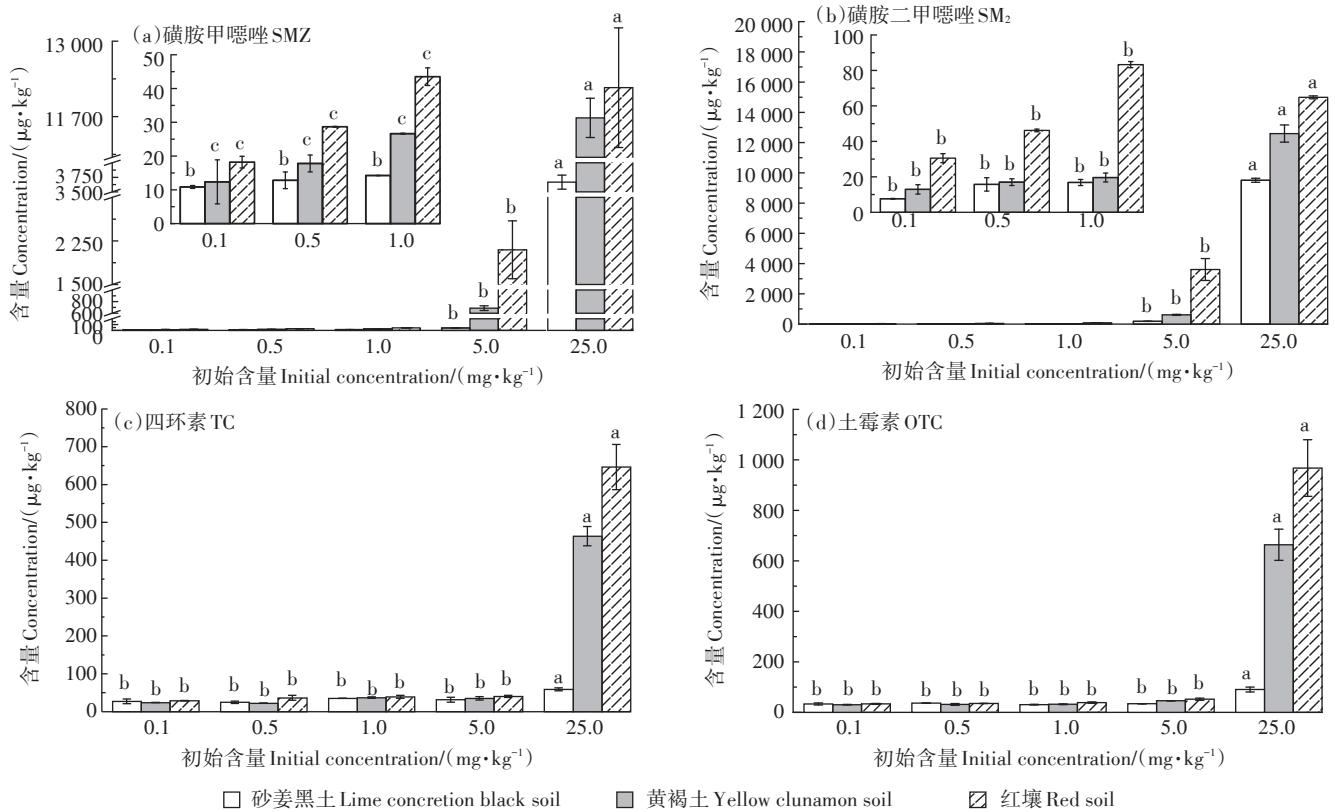
表4 土壤中吸附态和固定态、有效态抗生素含量(10 d)

Table 4 Concentrations of adsorbed, fixed and effective antibiotics in soil (10 d)

形态 Morphology	抗生素 Antibiotic	砂姜黑土 Lime concretion black soil		红壤 Red soil		黄褐土 Yellow clunamon soil	
		$5 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$	$25 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$	$5 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$	$25 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$	$5 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$	$25 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$
吸附态和固定态含量 Adsorbed and fixed concentrations/ ($\mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$)	SMZ	165.9±9.1b	657.5±18.5a	485.0±115.7b	5 939.8±14.6a	98.3±11.9b	556.8±47.8a
	SM ₂	678.9±97.2b	2 533.4±30.7a	399.4±0.4b	6 411.0±194.0a	136.3±22.5b	653.7±16.0a
	TC	71.3±10.0b	233.8±18.1a	81.5±4.7b	477.0±11.6a	34.4±3.1b	133.8±45.0a
	OTC	118.7±9.0b	541.1±22.2a	97.5±5.5b	534.2±2.1a	50.4±5.5b	158.6±21.0a
有效态含量 Effective concentration/ ($\mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$)	SMZ	39.2±5.3b	516.3±12.0a	193.1±8.6b	3 170.2±109.5a	89.0±4.3b	393.1±31.7a
	SM ₂	96.4±15.9b	1 596.2±5.1a	190.8±22.2b	2 681.1±216.2a	114.3±14.5b	507.7±35.5a
	TC	11.6±1.2b	108.2±5.1a	5.8±1.9b	26.4±2.5a	6.1±2.2b	36.8±3.2a
	OTC	32.7±4.7b	285.2±1.6a	6.1±1.7b	26.7±2.0a	10.3±1.1b	55.4±0.5a

注: $5, 25 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ 表示土壤中的抗生素初始含量;不同小写字母表示同类土壤中同种抗生素不同初始含量间存在显著性差异, $P < 0.05$ 。

Note: $5 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ and $25 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ are the initial concentrations of antibiotics in soil; Different lowercase letters indicate that there are significant differences between different initial concentrations of the same antibiotics in the same soil, $P < 0.05$.

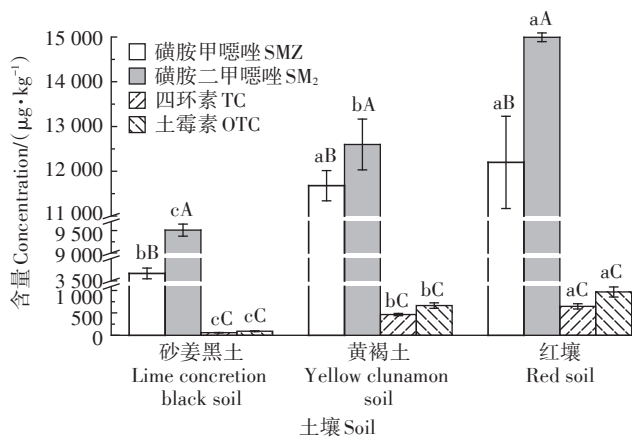


不同小写字母表示同类土壤中同种抗生素不同初始含量间存在显著性差异, $P < 0.05$

Different lowercase letters indicate that there are significant differences between different initial concentrations of the same antibiotics in the same soil, $P < 0.05$

图2 青菜对不同初始含量抗生素的吸收(10 d)

Figure 2 Uptake of different initial concentrations of antibiotics in soil by Chinese cabbage (10 d)



采样时间为移栽后第10 d;土壤中抗生素初始含量25.0 mg·kg⁻¹;不同小写字母表示不同类型土壤中同种抗生素间存在显著性差异, $P < 0.05$;不同大写字母表示不同抗生素同种土壤类型间存在显著差异, $P < 0.05$

The time of sampling is 10 days after transplanting. The initial concentration of antibiotics in soil is 25.0 mg·kg⁻¹. Different lowercase letters indicate that there are significant differences among different antibiotics in the same soil type, $P < 0.05$; Different capital letters in parentheses indicate that there are significant differences among different antibiotics in the same soil type, $P < 0.05$

图3 青菜对不同类型土壤中不同抗生素的吸收累积

Figure 3 Uptake of different antibiotics by Chinese cabbage from different soils

9 510.4 µg·kg⁻¹)。这可能与不同土壤的理化性质差异有关, 抗生素是离子型有机污染物, 在不同土壤 pH 条件下, 抗生素的存在形态和比例不同, 可能会影响青菜对抗生素的吸收累积。TCs 在 pH 值低于 pK_{a1} 时主要以阳离子形态存在, 介于 pK_{a1} 和 pK_{a2} 之间时主要以中性分子形态存在, 高于 pK_{a2} 和 pK_{a3} 时主要以阴离子形态存在^[24-25]; SAs 在 pH 小于 pK_{a1} 时主要以阳离子形态存在, 介于 pK_{a1} 和 pK_{a2} 之间主要以中性分子形态存在, pH 大于 pK_{a2} 以阴离子形态存在^[26-27]。根据三类土壤的 pH 值及表 1 中 4 种抗生素的 pK_a 值, 利用 Handerson-hasselbalch 公式, 计算三类土壤中 4 种抗生素阴离子和中性分子的比例(表 5)。由表 5 可见, 从红壤到黄褐土、砂姜黑土, 随着土壤 pH 值的升高, 4 种抗生素阴离子形态的比例逐渐升高, 而中性分子所占的比例逐渐降低, 青菜对不同土壤中同种抗生素的累积规律与土壤中抗生素的中性分子所占的比例变化规律一致, 可以推测, 青菜主要吸收土壤中以中性分子形态存在的抗生素, 而不是以阴离子形态存在的抗生素。

表5 不同类型土壤中4种抗生素的形态比例(%)

Table 5 Speciation proportions of four antibiotics in different soils(%)

形态 Specy	红壤 Red soil(pH=5.81)				黄褐土 Yellow clunamon soil(pH=6.97)				砂姜黑土 Lime concrection black soil(pH=7.92)			
	SMZ	SM ₂	TC	OTC	SMZ	SM ₂	TC	OTC	SMZ	SM ₂	TC	OTC
阴离子 Anion	61.86	2.51	0.39	0.29	95.91	27.09	18.99	30.88	99.52	76.81	67.63	81.66
中性分子 Neutral molecule	38.14	97.49	98.40	99.71	4.09	72.91	81.01	69.12	0.48	23.19	32.37	19.34

表6 青菜中抗生素含量(y)与土壤有机质含量(x)关系

Table 6 Relationships between antibiotics concentrations in Chinese cabbage and organic matter contents in soils

抗生素 Antibiotic	线性方程 Linear equation	R ²
SMZ	y=-353.7x+15 217	0.994 2
SM ₂	y=-193.5x+15 669	0.900 9
TC	y=-21.942x+763.86	0.968 7
OTC	y=-32.257x+1 124.4	0.953 4

注:土壤中抗生素初始含量为25.0 mg·kg⁻¹,采样时间为移栽后第10天。

Note: The initial concentration of antibiotics in the soil is 25.0 mg·kg⁻¹, and the time of sampling is 10 days after transplanting.

抗生素在土壤中的吸附行为,影响其在土壤中的生态毒性、降解、运输和生物累积。研究表明,抗生素在土壤中的吸附还取决于土壤有机质含量^[28]。表6为青菜中4种抗生素的含量与三类土壤中有机质含量的关系,由表6可见,青菜中抗生素的含量与土壤中有机质含量呈线性负相关,R²均在0.9以上,从红壤到黄褐土、砂姜黑土,随着土壤有机质含量的增加,青菜从土壤中吸收抗生素的含量减少。

2.4 同类土壤中不同抗生素在青菜中的累积差异

从图3可以看出,土壤中每种抗生素的初始含量为25.0 mg·kg⁻¹时,青菜从红壤、黄褐土和砂姜黑土中累积4种抗生素的含量顺序均为SM₂(9 510.4~14 993.6 μg·kg⁻¹)>SMZ(3 666.9~12 199.2 μg·kg⁻¹)>OTC(90.5~967.6 μg·kg⁻¹)>TC(58.8~646.1 μg·kg⁻¹),其中,SM₂在青菜中的含量最大,是TC的161.9倍(砂姜黑土)。由此可见,土壤中的SAs比TCs更易被青菜吸收累积,健康风险更大,这可能是不同抗生素的理化性质差异所致。

吸附等温模型是用于描述土壤对有机污染物吸附行为的方程,文献表明,SAs和TCs在土壤上的吸附均符合Langmuir和Freundlich模型^[29],因此,本研究根据Langmuir模型拟合计算,得到4种抗生素在三类土壤中的吸附参数Q_m、K_L、R²,结果见表7。从表7可以看出,三类土壤对TC和OTC的吸附作用远大于SM₂和SMZ,因此,土壤中同种抗生素的初始含量相同时,

表7 三类土壤对4种抗生素吸附的Langmuir模型拟合参数

Table 7 Fitting parameters of Langmuir model for adsorption of four antibiotics on three soils

土壤 Soil	抗生素 Antibiotic	Q _m /(mg·kg ⁻¹)	K _L /(L·mg ⁻¹)	R ²
红壤 Red soil	SMZ	4.02	0.143 8	0.938 4
	SM ₂	16.09	0.070 2	0.988 6
	TC	5 437.55	0.811 1	0.940 0
	OTC	5 744.97	0.636 7	0.968 0
砂姜黑土 Lime concrection black soil	SMZ	38.26	0.013 3	0.996 1
	SM ₂	16.33	0.156 2	0.994 2
	TC	19 748.36	0.036 2	0.982 8
	OTC	27 105.55	0.013 1	0.979 8
黄褐土 Yellow clunamon soil	SMZ	25.56	0.032 0	0.963 2
	SM ₂	14.40	0.148 3	0.960 8
	TC	25 239.58	0.026 6	0.969 6
	OTC	21 369.26	0.028 2	0.971 7

土壤中TC和OTC的有效含量小于SM₂和SMZ的有效含量,从而导致青菜对SM₂和SMZ的累积高于对TC和OTC的累积。

3 讨论

3.1 青菜对三类土壤中抗生素的累积动态及生物量随时间的变化

青菜能吸收土壤中的抗生素,随着时间的延长,青菜体内抗生素的含量先增加后降低,在第10天达到最高,与吴诗颖^[30]的研究结果一致。这可能是由于一部分抗生素在土壤中发生降解,导致10 d后青菜中抗生素含量逐渐降低,有研究表明抗生素可以通过光解、水解、氧化降解、生物降解等多种途径降解^[31],另一方面,随着青菜的生物量逐渐增大,抗生素在青菜中能发生代谢作用^[9]、生长稀释作用,从而导致10 d后青菜对抗生素的累积逐渐减小。在实际的蔬菜种植中,蔬菜在移栽后第10天采收食用具有最大的健康风险。

相较于黄褐土和砂姜黑土而言,种植于红壤中的青菜生物量最低,有研究表明,酸性土壤影响蔬菜的

根系生长及养分的吸收利用^[32],并且青菜也最易从红壤中吸收抗生素,使红壤中的青菜更易受到逆境的影响,从而影响青菜的生物量。

3.2 土壤中抗生素初始含量对其在青菜中累积的影响

青菜中累积的抗生素含量随土壤中抗生素初始含量的升高而升高,其对高含量(25.0 mg·kg⁻¹)处理的土壤中累积的抗生素含量显著高于低含量(0.1~5.0 mg·kg⁻¹)处理的土壤。研究表明,经高含量的抗生素(150.0~1 350.0 mg·kg⁻¹)处理土壤后,会显著抑制土壤中的脲酶和根际土中的过氧化氢酶活性,抑制土壤微生物的生长与繁殖,减少土壤细菌和真菌的数量^[33],从而减缓微生物降解抗生素的进程,导致抗生素的有效含量增大,青菜对抗生素的累积也随之增加,这可能也是青菜从高含量抗生素(25.0 mg·kg⁻¹)处理土壤中累积抗生素含量显著高于其他处理组的原因。实验过程中观察到从5.0 mg·kg⁻¹处理开始,青菜植株矮,叶片小,青菜的生长受到抑制。有研究表明^[34],经5.0 mg·kg⁻¹ TC和CTC处理,小白菜芽长和根长生长开始受到抑制,25.0 mg·kg⁻¹ TC和CTC处理对根长的抑制率达72.7%。抗生素对植物生长发育的影响除了与其自身的化学性质、使用剂量有关,还与土壤吸附及植物品种等有关。

3.3 不同类型土壤中同种抗生素在青菜中的累积差异

在土壤中抗生素初始含量相同条件下,酸性土壤(红壤)中的抗生素更容易被青菜吸收累积,中性土壤(黄褐土)次之,碱性土壤(砂姜黑土)中的抗生素在青菜中的累积含量最低。同种抗生素在不同类型土壤中的累积差异,与土壤的有机质含量和pH有关,土壤中有有机质含量越高,抗生素在土壤中的吸附性越强^[35],青菜在此类土壤中累积的抗生素越少,因此,可以通过增施有机肥来增加土壤中的有机质含量,从而减少土壤中的抗生素向蔬菜中迁移。青菜主要吸收以中性分子形态存在的抗生素,可通过调节青菜生长土壤的pH值,以降低土壤中以中性分子形态存在的抗生素的比例,从而减少青菜对抗生素的蓄积。

3.4 同类土壤中不同抗生素在青菜中的累积差异

由于青菜对同类土壤中SAs(SM₂、SMZ)的累积能力强于TCs(TC、OTC),导致青菜对不同抗生素具有累积差异,一方面是土壤对TCs的吸附能力强于SAs,与TCs分子中含有较多的强极性和离子型官能团有关,导致其在土壤中多次被吸附,TCs分子中的·OH、·CONH₂和带正电的-NH(CH₃)₂等功能基团,可通过离子键桥、表面络合、静电作用、阳离子交

换和氢键作用而被吸附,多种机理的共同作用使TCs表现出较强的吸附能力,SAs的分子结构中只含有苯胺基和酰胺基两个离子型官能团,在土壤中的吸附作用较弱^[36]。另一方面,与不同抗生素的理化性质有关,SMZ和SM₂的分子要小于TC和OTC^[37],有研究表明,小分子化合物更容易被植物吸收^[38]。两种重要因素导致青菜对SAs吸收能力强于TCs。因此,SAs比TCs具有更大的迁移能力以及进入食物链的风险,从而对人类健康和环境造成严重威胁。畜禽粪便直接施用于土壤是土壤中抗生素的重要来源,为了防止含抗生素的肥料污染土壤,在施用肥料前实施预处理措施,可降低潜在风险。

4 结论

(1)青菜对土壤(砂姜黑土、黄褐土、红壤)中4种抗生素的吸收累积上升期为移栽后0~10 d,第10天青菜中抗生素的含量达到最高,10 d后青菜体内抗生素的含量开始下降,第20天后趋于平缓。

(2)青菜可从土壤中吸收抗生素,青菜对4种抗生素的累积皆随土壤中抗生素初始含量的增大而增大,且从高含量(25.0 mg·kg⁻¹)处理的土壤中累积的抗生素含量显著高于低含量(0.1~5.0 mg·kg⁻¹)处理的土壤。

(3)在土壤中抗生素初始含量相同条件下,青菜从不同类型土壤中累积同种抗生素的难易顺序为红壤>黄褐土>砂姜黑土。

(4)在土壤中抗生素初始含量相同时,青菜从同类土壤中累积不同抗生素的强弱顺序为磺胺二甲嘧啶>磺胺甲噁唑>土霉素>四环素。

参考文献:

- [1] 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 & Food Chemistry*, 2015, 63(2): 398-405.
- [2] 刘燕, 朱冬, 何燕, 等. 4种网络交易的粪肥中抗生素抗性基因多样性分析和传播风险评估[J]. *安全与环境工程*, 2021, 28(5): 220-229. LIU Y, ZHU D, HE Y, et al. Diversity of detection and transmission risk assessment of antibiotic resistance genes in four online-trading manure[J]. *Journal of Safety and Environment*, 2021, 28(5): 220-229.
- [3] NGIGI A N, OK Y S, THIELE-BRUHN S. Biochar-mediated sorption of antibiotics in pig manure[J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2019, 364: 663-670.
- [4] LIU H, PU C, YU X, et al. Removal of tetracyclines, sulfonamides, and

- quinolones by industrial-scale composting and anaerobic digestion processes[J]. *Environmental Science & Pollution Research*, 2018, 25: 35835-35844.
- [5] LYU J, YANG L S, ZHANG L, et al. Antibiotics in soil and water in China: A systematic review and source analysis[J]. *Environmental Pollution*, 2020, 266(1): 115147.
- [6] 迟菽琳, 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.
- [7] JI X L, SHEN Q H, LIU F, et al. Antibiotic resistance gene abundances associated with antibiotics and heavy metals in animal manures and agricultural soils adjacent to feedlots in Shanghai, China[J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2012, 235/236(20): 178-185.
- [8] 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.
- [9] TADI O, HERNANDEZ M, CERQUEIRA F, et al. Occurrence and human health risk assessment of antibiotics and their metabolites in vegetables grown in field-scale agricultural systems[J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2021, 401: 123424.
- [10] 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.
- [11] 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*, 2020, 263: 128099.
- [12] TAVARES D S, CALADO S, GOMES M P, et al. Veterinary antibiotics and plant physiology: An overview[J]. *Science of the Total Environment*, 2021, 767: 144902.
- [13] AZANU D, MORTEY C, DARKO D, et al. Uptake of antibiotics from irrigation water by plants[J]. *Chemosphere*, 2016, 157: 107-114.
- [14] MARQUES R Z, WISTUBA N, BRITO J C, et al. Crop irrigation (soybean, bean, and corn) with enrofloxacin-contaminated water leads to yield reductions and antibiotic accumulation[J]. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 2021, 216: 112193.
- [15] BOXALL A, BLACKWELL P, CAVALLO R, et al. The sorption and transport of a sulphonamide antibiotic in soil systems[J]. *Toxicology Letters*, 2002, 131(1/2): 19-28.
- [16] TRAN V S, NGO H H, GUO W, et al. Removal of antibiotics (sulfamethazine, tetracycline and chloramphenicol) from aqueous solution by raw and nitrogen plasma modified steel shavings[J]. *Science of the Total Environment*, 2017, 601/602: 845-856.
- [17] JANG H M, KAN E. A novel hay-derived biochar for removal of tetracyclines in water[J]. *Bioresour Technol*, 2019, 274: 162-172.
- [18] 齐会勉, 吕亮, 乔显亮. 抗生素在土壤中的吸附行为研究进展[J]. *土壤*, 2009, 41(5): 703-708. QI H M, LÜ L, QIAO X L. Progress in sorption of antibiotics to soils[J]. *Soil*, 2009, 41(5): 703-708.
- [19] CARDA-BROCH S, BERTHOD A. Countercurrent chromatography for the measurement of the hydrophobicity of sulfonamide amphoteric compounds[J]. *Chromatographia*, 2004, 59(1/2): 79-87.
- [20] 杨灿. 2种磺胺类抗生素在草甸黑土中的吸附/解吸及淋溶特性研究[D]. 长春: 吉林农业大学, 2015: 13-14. YANG C. The adsorption/desorption and leaching properties of 2 Sulfa antibiotics in meadow black soil[D]. Changchun: Jilin Agricultural University, 2015: 13-14.
- [21] 王东升, 李鑫. 不同质地土壤中四环素类抗生素的吸附解吸特性研究[J]. *安全与环境学报*, 2017, 17(1): 227-231. WANG D S, LI X. Adsorption and desorption features of tetracycline antibiotics in different texture soils[J]. *Journal of Safety and Environment*, 2017, 17(1): 227-231.
- [22] 章明奎, 顾国平, 徐秋桐. 生物质炭降低蔬菜吸收土壤中抗生素的作用[J]. *农学学报*, 2016, 6(1): 42-46. ZHANG M K, GU G P, XU Q T. Effect of biochar application on the reduction of antibiotics uptake by vegetable crop[J]. *Journal of Agriculture*, 2016, 6(1): 42-46.
- [23] 余强, 鲍艳宇, 李艳梅, 等. 三种土壤中土霉素浸提方法的比较研究[J]. *中国环境科学*, 2011, 31(6): 951-957. YU Q, BAO Y Y, LI Y M, et al. Compare of different oxytetracycline extraction methods in the three soils[J]. *China Environmental Science*, 2011, 31(6): 951-957.
- [24] LI H Q, HU J T, MENG Y, et al. An investigation into the rapid removal of tetracycline using multilayered graphene-phase biochar derived from waste chicken feather[J]. *Science of the Total Environment*, 2017, 603/604: 39-48.
- [25] YUAN L, YAN M, HUANG Z, et al. Influences of pH and metal ions on the interactions of oxytetracycline onto nano-hydroxyapatite and their co-adsorption behavior in aqueous solution[J]. *Journal of Colloid and Interface Science*, 2019, 541: 101-113.
- [26] FAN Y, ZHENG C, LIN Z, et al. Influence of sulfamethazine (SMT) on the adsorption of antimony by the black soil: Implication for the complexation between SMT and antimony[J]. *Science of the Total Environment*, 2020, 760: 143318.
- [27] AHMED I, ADHIKARY K K, KIM K, et al. Aqueous adsorption of sulfamethoxazole on an N-doped zeolite beta-templated carbon[J]. *Journal of Colloid and Interface Science*, 2020, 582: 467-477.
- [28] CONDE-CID M, FERREIRA-COELHO G, ARIA-ESTÉVEZ M, et al. Competitive adsorption/desorption of tetracycline, oxytetracycline and chlortetracycline on pine bark, oak ash and mussel shell[J]. *Journal of Environmental Management*, 2019, 250: 109509.
- [29] 刘志富. 典型抗生素在土壤上的吸附-解吸及迁移性研究[D]. 北京: 中国地质大学, 2016: 24-54. LIU Z F. Study on sorption-desorption and transportation of typical antibiotics in soils[D]. Beijing: China University of Geosciences, 2016: 24-54.
- [30] 吴诗颖. 鸡粪中典型抗生素在青菜中的富集消解规律及阻控研究[D]. 合肥: 安徽农业大学, 2021: 35-36. WU S Y. Study on accumulation and dissipation of typical antibiotics in chicken manure and its control in vegetable[D]. Hefei: Anhui Agricultural University, 2021: 35-36.

- [31] 王冲, 罗义, 毛大庆. 土壤环境中抗生素的来源、转归、生态风险以及消减对策[J]. 环境化学, 2014, 33(1): 19-29. WANG C, LUO Y, MAO D Q. Sources, fate, ecological risks and mitigation strategies of antibiotics in the soil environment[J]. *Environmental Chemistry*, 2014, 33(1): 19-29.
- [32] 徐仁扣. 土壤酸化及其调控研究进展[J]. 土壤, 2015, 47(2): 238-244. XU R K. Research progresses in soil acidification and its control[J]. *Soil*, 2015, 47(2): 238-244.
- [33] 王卫中, 迟菡琳, 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 soil-lettuce system and its migration degradation characteristics[J]. *Environmental Science*. 2021, 42(3): 1545-1558.
- [34] 宫晓双, 安婧, 张立娜, 等. 典型抗生素复合污染对小白菜生长发育的毒理效应[J]. 生态学杂志, 2019, 38(2): 541-547. GONG X S, AN J, ZHANG L N, et al. Toxicological effects combined pollution of typical antibiotics on the development of Chinese white cabbage seedlings[J]. *Chinese Journal of Ecology*, 2019, 38(2): 541-547.
- [35] CONDE-CID M, FERREIRA-COELHO G, FERNÁNDEZ-CALVIÑO D, et al. Single and simultaneous adsorption of three sulfonamides in agricultural soils: Effects of pH and organic matter content[J]. *Science of the Total Environment*, 2020, 744: 140872.
- [36] WANG S, WANG H. Adsorption behavior of antibiotic in soil environment: A critical review[J]. *Frontiers of Environmental Science & Engineering*, 2015, 9(4): 565-574.
- [37] ZHAO X D, ZHENG M Q, GAO X L, et al. The application of MOFs-based materials for antibacterials adsorption[J]. *Coordination Chemistry Reviews*, 2021, 440: 213970.
- [38] CHUANG Y H, LIU C H, SALLACH J B, et al. Mechanistic study on uptake and transport of pharmaceuticals in lettuce from water[J]. *Environment International*, 2019, 131: 104976.

(责任编辑:叶飞)