

我国长三角地区淡水池塘养殖水产品中抗生素残留及对人体暴露的贡献评价

贾斌, 庾旸, 马海川, 陈以芹, 李娟英

引用本文:

贾斌, 庾旸, 马海川, 等. 我国长三角地区淡水池塘养殖水产品中抗生素残留及对人体暴露的贡献评价[J]. 农业环境科学学报, 2022, 41(2): 238–245.

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.11654/jaes.2021-0607>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

长三角地区池塘养殖水产品重金属含量及其健康风险评价

和庆, 彭自然, 张晨, 杨丰源, 李娟英

农业环境科学学报. 2017, 36(6): 1070–1077 <https://doi.org/10.11654/jaes.2016-1594>

长三角某城镇典型小流域水体抗生素的污染分布特征

纵亚男, 邵美玲, 梁梦琦, 唐剑锋, 王瑞杰

农业环境科学学报. 2018, 37(5): 965–973 <https://doi.org/10.11654/jaes.2017-1445>

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>

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>

三类抗生素在两种典型猪场废水处理工艺中的去除效果

周婧, 支苏丽, 宫祥静, 杨凤霞, 谷艳茹, 丁飞飞, 张克强

农业环境科学学报. 2019, 38(2): 430–438 <https://doi.org/10.11654/jaes.2018-1092>



关注微信公众号, 获得更多资讯信息

贾斌, 庾旸, 马海川, 等. 我国长三角地区淡水池塘养殖水产品中抗生素残留及对人体暴露的贡献评价[J]. 农业环境科学学报, 2022, 41(2): 238–245.

JIA B, YU Y, MA H C, et al. Antibiotic residues and human exposure evaluation in freshwater aquaculture products from Yangtze River Delta, China[J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2022, 41(2): 238–245.



开放科学 OSID

我国长三角地区淡水池塘养殖水产品中 抗生素残留及对人体暴露的贡献评价

贾斌¹, 庾旸¹, 马海川², 陈以芹^{1*}, 李娟英¹

(1. 上海海洋大学海洋生态与环境学院, 上海 201306; 2. 上海中学东校, 上海 201306)

摘要:为探究我国长三角地区淡水养殖水产品中抗生素残留特征及食用风险, 于2019年7—10月采集上海、浙江、江苏、安徽、福建等5个地区淡水养殖池塘3类水产品(鱼类、虾类、蟹类), 使用高效液相色谱-串联质谱法(LC-MS/MS)检测水产品中的9种常见抗生素, 并根据人体可接受的每日摄入量(ADI)及养殖水产品消费对抗生素暴露的贡献率(CR)分别评价食用安全性和暴露风险。结果表明: 9种抗生素均有检出, 检出频率范围为38.1%~90.5%, 浓度范围为nd~25.25 ng·g⁻¹; 估算的每日摄入量(EDI)远低于ADI; Σ 抗生素的贡献率范围为<0.01%~29.77%。研究表明, 水产品摄入不会对人体健康构成抗生素暴露风险, 但食用水产品时, 喹诺酮类和大环内酯类抗生素的摄入应引起关注。

关键词: 抗生素; 淡水养殖水产品; 尿液抗生素; 人体暴露; 饮食贡献

中图分类号: X714; X835 文献标志码: A 文章编号: 1672-2043(2022)02-0238-08 doi:10.11654/jaes.2021-0607

Antibiotic residues and human exposure evaluation in freshwater aquaculture products from Yangtze River Delta, China

JIA Bin¹, YU Yang¹, MA Haichuan², CHEN Yiqin^{1*}, LI Juanying¹

(1. College of Marine Ecology and Environment, Shanghai Ocean University, Shanghai 201306, China; 2. East Shanghai High School, Shanghai 201306, China)

Abstract: This study aimed to investigate antibiotic contamination in freshwater cultured products in the Yangtze River Delta region and the risk of antibiotic exposure through consumption. Three types of products (fish, shrimp, and crab) from freshwater aquaculture ponds in five regions of China (Shanghai, Zhejiang, Jiangsu, Anhui, and Fujian) were collected from July to October 2019. High-performance liquid chromatography-tandem mass spectrometry (LC-MS/MS) was used to detect nine types of antibiotics in the samples. The human acceptable daily intake (ADI) and the contribution of cultured aquatic product consumption to antibiotic exposure contribution ratio (CR) were used to evaluate the exposure risk. All nine antibiotics were detected and the detection frequency ranged from 38.1% to 90.5%, and the antibiotics concentrations ranged from nd~25.25 ng·g⁻¹. The estimated daily intake (EDI) was far below the ADI, and the contribution rate of antibiotics ranged from <0.01% to 29.77%. These results suggest that the intake of aquatic products does not pose an antibiotic exposure risk to human health, but attention is needed for those under treatment with quinolones and macrolide antibiotics while consuming aquatic products.

Keywords: antibiotic; freshwater cultured product; urinary antibiotics; body burden; dietary contribution estimation

收稿日期: 2021-05-25 录用日期: 2021-09-09

作者简介: 贾斌(1995—), 男, 河南漯河人, 硕士研究生, 主要从事水产养殖环境中抗生素的研究。E-mail: 781748301@qq.com

*通信作者: 陈以芹 E-mail: yqchen@shou.edu.cn

基金项目: 上海市科委科技基金项目(18050502100)

Project supported: The Shanghai Committee of Science and Technology, China(18050502100)

近年来,随着生活水平的不断提高,人们越来越重视健康科学的饮食结构。水产品中含有丰富的蛋白质和矿物质,营养价值较高,是人类主要的高蛋白食物之一^[1]。随着水产品产量的稳定增长,我国已成为世界上最大的水产品生产和消费国^[2]。虽然我国对水产养殖业抗生素的使用进行管控,但实际密集养殖中,抗生素显著的抗菌能力和低副作用使其成为水产养殖疾病防治的常用药物^[3]。然而研究发现只有20%~30%的抗生素能被水产品吸收和利用^[4],剩余的残留在养殖水体或蓄积到底泥中的抗生素,不仅会改变环境中的微生物区系,对细菌产生选择压力诱导抗生素抗性基因的产生,还会导致养殖产品中残留药物通过食物链传播,从而对人体健康产生潜在的威胁。

同期研究发现,人体尿液中抗生素的检测频率较高,人群已经暴露于多种人用或兽用抗生素^[5-7]。尿液抗生素是潜在的人体暴露的生物标志物,基于尿液中抗生素的代谢物浓度可估算每日暴露总量^[8]。将水产养殖食品中抗生素的每日摄入量与估算的每日总暴露量进行比较,即可量化通过食用水产品暴露途径的相对贡献,从而评估食用水产品是否为人体的抗生素主要途径。因此,本研究的具体研究目标包括:(1)评估我国长三角地区淡水水产品肌肉中抗生素的残留量;(2)估算通过水产品摄入抗生素的每日暴露量,并根据尿液中的抗生素残留估算抗生素的每日总摄入量;(3)确定食用水产养殖产品对不同人群(儿童、成人、孕妇)的抗生素每日总暴露量的贡献范围,为人们的合理膳食提供科学数据,同时为水产养殖业的绿色可持续发展提供管理依据。

1 材料与方法

1.1 化学药剂

基于所研究的水产养殖区域中抗生素的检测频率^[9-10],选择了9种目标抗生素,其中磺胺甲噁唑(SMZ)、磺胺甲恶唑(SMX)、磺胺嘧啶(SDZ)、恩诺沙星(ENX)、诺氟沙星(NFX)、氧氟沙星(OFX)、环丙沙星(CFX)和甲氧苄啶(TMP)购自Dr. Ehrenstorfer GmbH(德国),罗红霉素(RTM)购自Sigma-Aldrich(美国)。内标磺胺嘧啶(SMR)购自Dr. Ehrenstorfer GmbH(德国),环丙沙星-D₈(CFX-D₈)和红霉素-¹³C-D₃(ETM-¹³C-D₃)购自多伦多研究化学公司(加拿大)。SMR作为SDZ、SMZ、SMX和TMP的内标,CFX-D₈作为NFX、CFX、OFX和ENX的内标,ETM-¹³C-D₃作为RTM的内标^[11]。HPLC级的甲醇、乙腈、甲酸和

乙酸铵购自Sigma-Aldrich(美国)。乙二醇四乙酸为分析纯,购自耀华化学试剂厂(中国)。柠檬酸和柠檬酸钠为分析纯,购自阿拉丁试剂有限公司,Oasis HLB SPE萃取柱(6 mL, 200 mg)和SMX柱(6 mL, 500 mg)购自Varian(美国)。

1.2 样品采集

本研究采集了我国上海、浙江、江苏、安徽、福建5个地区(图1)淡水养殖池塘中常见的3大类共21份水产品,其中鱼类包括草鱼(*Ctenopharyngodon idellus*)、鲢鱼(*Hypophthalmichthys molitrix*)、武昌鱼(*Megalobrama amblycephala*)、鲈鱼(*Lateolabrax japonicus*)、鳊鱼(*Aristichthys nobilis*)、黑鱼(*Ophioccephalus argus Cantor*)、鲤鱼(*Cyprinus carpio*);蟹类包括中华绒螯蟹(*Eriocheir sinensis*);虾类包括罗氏沼虾(*Macrobrachium rosenbergii*)。生物样品基本信息见表1。采集的样品均为即将上市的水产品。样品用铝箔袋密封包装后低温运输至实验室,冷冻干燥并置于-20℃冰箱保存。

1.3 样品预处理及检测

取2 g预先冷冻干燥并研磨过筛的生物肌肉样品于30 mL的玻璃离心管中,向离心管中依次加入10 mL柠檬酸钠缓冲溶液、10 mL乙腈和10 μL的3种内标品。依次振荡10 min、超声15 min、离心15 min(3 000 r·min⁻¹)。重复3次并收集上清液至200 mL的圆底烧瓶中。将圆底烧瓶在50℃的恒温加热板上进行蒸发,并用超纯水稀释至200 mL使得溶液中的有机溶剂含量低于5%。将溶液通过SAX柱和SPE柱串联萃取,洗脱并氮吹,最后用乙酸铵溶液定容至200 μL,经0.22 μm针头式滤膜过滤样品至2 mL棕色进

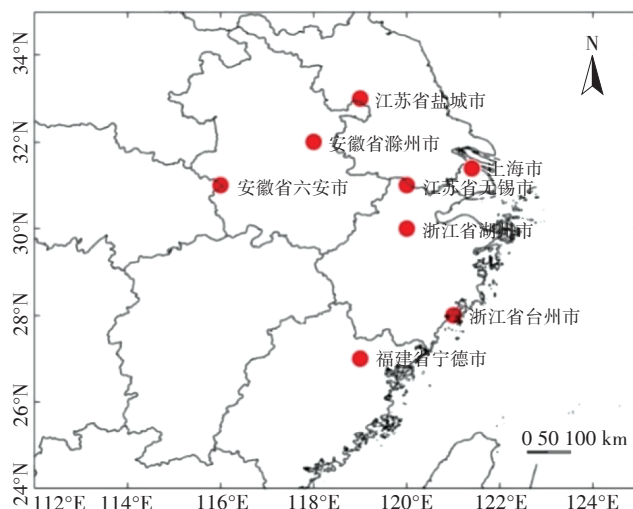


图1 采样点分布图

Figure 1 The sampling sites of this study

表1 生物样品基本信息
Table 1 Basic information of marine organisms

采样点 Sampling site	生物种类 Biological species	数量 Number	生长阶段 Growth stage	体长 Body length/cm	体质量 Body weight/g
安徽	草鱼 <i>Ctenopharyngodon idellus</i>	2	成鱼	16.6~19.2	100.3~142.2
	鳊鱼 <i>Aristichthys nobilis</i>	1	成鱼	27.9	580.3
浙江	武昌鱼 <i>Megalobrama amblycephala</i>	1	成鱼	23.4	184.2
	鲈鱼 <i>Lateolabrax japonicus</i>	1	成鱼	23.0	344.8
	黑鱼 <i>Ophiocephalus argus</i> Cantor	1	成鱼	32.3	544.1
福建	鲢鱼 <i>Hypophthalmichthys molitrix</i>	3	成鱼	21.3~31.7	205.7~546.5
江苏	鲤鱼 <i>Cyprinus carpio</i>	1	成鱼	24.7	455.9
上海	罗氏沼虾 <i>Macrobrachium rosenbergii</i>	7	成虾	11.9~22.5	14.1~23.1
	中华绒螯蟹 <i>Eriocheir sinensis</i>	4	成蟹	5.7~6.3	80.9~116.8

样瓶中。

采用LC-MS/MS(Agilent液相色谱1200系列LC系统和Agilent 6460 TSQ Quantum LC-MS,美国)进行分析。色谱条件:Agilent Plus-C18液相色谱柱(100 mm×2.1 mm,1.8 μm),柱温40℃;流动相A为0.2%甲酸和2 mmol·L⁻¹乙酸铵水溶液,B为乙腈溶液;流速为0.3 mL·min⁻¹。质谱条件:离子源为电喷雾电离(ESI+);毛细管电压3.5 kV;离子源温度120℃;气体温度325℃,流速6 L·min⁻¹;雾化器压力310 kPa;锥孔气流速11 L·min⁻¹;检测模式为MRM。

1.4 健康风险评估

通过食用鱼、虾和蟹类3种常见的水产品,人体每日抗生素摄入量(Estimated daily intake,EDI)的计算公式如下:

$$EDI = \frac{C \times IR}{1000} \quad (1)$$

式中:EDI为人体抗生素日摄入量,μg·kg⁻¹·d⁻¹;C为水产品中的抗生素含量,g·g⁻¹(鱼类的含水量为70%^[9]、虾类为80%^[12]、螃蟹类为75%^[13]);IR为水产品的每日摄入率,g·kg⁻¹·d⁻¹。水产品的每日消费量数据基于文献[14]。具体而言,儿童鱼、虾、蟹水产品摄入量分别为0.71、0.13、0.59 g·kg⁻¹·d⁻¹;成人鱼、虾、蟹水产品摄入量分别为1.20、0.22、1.00 g·kg⁻¹·d⁻¹,孕妇鱼、虾、蟹水产品摄入量分别为1.07、0.20、0.89 g·kg⁻¹·d⁻¹。

根据尿液中相应的抗生素的浓度,用公式(2)计算通过所有可能的暴露途径估计的抗生素的每日摄入量(Daily exposure dose,DED)^[18]:

$$DED = \frac{C \times V}{F} \quad (2)$$

式中:DED为抗生素日暴露量,μg·kg⁻¹·d⁻¹;C为尿液中抗生素的浓度,μg·mL⁻¹,数据来源为涉及上海435

名3~18岁健康儿童、我国东部地区854名16~42岁的健康孕妇、上海822名20~75岁的健康成年人尿液抗生素数据的3份已有研究^[15-17];V为平均每日尿量,24 mL·kg⁻¹·d⁻¹^[14],孕妇平均每日尿量为21 mL·kg⁻¹·d⁻¹^[13];F为抗生素的排泄比例^[18](未改变和呈葡萄糖醛酸结合形式,表2)。尿液抗生素低于检出限时,按照检出限(LOD)的1/2值计算DED。

人体总抗生素暴露的贡献率(CR)^[13]计算如公式(3)所示:

$$CR = \frac{EDI}{DED} \quad (3)$$

1.5 质量控制与保证

生物样品的回收率为68%~105%,相对标准偏差小于15%,检出限为0.015~0.016 ng·g⁻¹(干质量),同时设定2个空白样和2个平行样。

表2 未改变和呈葡萄糖醛酸结合形式的尿液中
9种抗生素的排泄率^[18](%)

Table 2 Excretion proportions of 9 antibiotics in urine as unchanged and glucuronide-conjugated species(%)

抗生素 Antibiotic	尿液排泄率 Excretion rate via urine		
	原型 Unchanged	葡萄糖醛酸 Glucuronide	本文采用 Adopted
磺胺甲噁唑	65.9(41.7~77.5)	—	65.9
磺胺甲恶唑	15.2(9.7~20.0)	12.3(9.7~15.0)	27.5
磺胺嘧啶	52.3(30.0~78.0)	—	52.3
甲氧苄啶	60.5(40.0~80.0)	—	60.5
恩诺沙星	21.0	—	21.0
诺氟沙星	61.5	—	61.5
氧氟沙星	75.8(70~82)	24.2	100.0
环丙沙星	53.8(29.5~83.7)	—	53.8
罗红霉素	66.7(57.0~74.5)	—	66.7

注:括号中为最小值~最大值。
Note: Data in the brackets indicate minimum ~ maximum.

2 结果和讨论

2.1 水产品中抗生素残留特征

本研究中9种目标抗生素均有检出(表3),检出频率在38.1%(磺胺嘧啶)~90.5%(恩诺沙星)之间。抗生素在水产品中的平均浓度顺序为磺胺甲恶唑>恩诺沙星>磺胺嘧啶>诺氟沙星>氧氟沙星>甲氧苄啶>罗红霉素>磺胺甲嘧啶>环丙沙星。其中磺胺甲恶唑的检出浓度最高,为 $25.25\text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$ (以干质量计),其次是恩诺沙星,为 $17.65\text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$ (以干质量计),比其他检测到的抗生素浓度高2~4个数量级,这可能与不同养殖品种使用的抗生素种类和剂量不同有关。除罗红霉素没有最大残留限量值外,其余8种抗生素的检出值均低于《无公害食品水产品中渔药残留限量》(NY 5070—2002)和《食品安全国家标准 食品中兽药最大残留限量》(GB 31650—2019)中的最大残留限量(MRL)。

表3 淡水养殖水产品中抗生素的浓度和检出率($n=21$)

Table 3 Concentration and detection rate of antibiotics in freshwater aquaculture products($n=21$)

抗生素 Antibiotic	浓度范围 Concentration range/($\text{ng}\cdot\text{g}^{-1}$)	平均值±标准偏差 Average±SD/ ($\text{ng}\cdot\text{g}^{-1}$)	检出率 Detection rate/%
磺胺甲嘧啶	nd~0.22	0.06 ± 0.06	66.7
磺胺甲恶唑	nd~25.25	1.64 ± 5.60	52.4
磺胺嘧啶	nd~1.72	0.19 ± 0.47	38.1
甲氧苄啶	nd~0.50	0.07 ± 0.14	57.1
恩诺沙星	nd~17.65	1.37 ± 4.03	90.5
诺氟沙星	nd~1.30	0.15 ± 0.37	47.6
氧氟沙星	nd~0.56	0.09 ± 0.13	66.7
环丙沙星	nd~0.30	0.05 ± 0.08	52.4
罗红霉素	nd~0.73	0.07 ± 0.14	47.6

注:nd表示未检出,计算平均值用1/2 LOD代替。

Note: nd means not detected, calculate the average using 1/2 LOD instead.

鱼、虾和蟹3种水产品抗生素的平均浓度分别为 4.27 、 $4.56\text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$ 和 $0.56\text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$ (图2),鱼类和虾类体内抗生素残留浓度较高,可能是由于蟹类的生长和摄食条件优于鱼类和虾类,不易感染疾病,养殖过程中抗生素使用量较少^[19]。此外抗生素的浓度还受到许多其他因素的影响^[20],例如性别、生长阶段以及饲料抗生素添加剂的停药期等,这还有待进一步研究。恩诺沙星和磺胺甲恶唑是鱼类检出的主要抗生素,对总抗生素浓度的贡献分别为63.6%和20.7%;磺胺甲恶唑

是虾类检出的主要抗生素,对总抗生素浓度的贡献为79.7%;恩诺沙星是蟹类检出的主要抗生素,对总抗生素浓度的贡献为32.6%。综上所述,恩诺沙星和磺胺甲恶唑是本研究水产品检出的主要抗生素,这可能是因为二者有广泛的抗菌谱,一般用于防治因弧菌和嗜水气单胞菌引起的鱼、虾和蟹的细菌性疾病,并且具有良好的环境迁移能力及化学稳定性,不易发生降解和吸附^[21-24]。进一步分析不同品种鱼类之间的抗生素平均浓度的差异(图3),发现本研究滤食性鱼类所有抗生素的浓度均低于饲料投喂鱼类。但由于本研究样本数量较少,后续应扩大样本数量进一步研究分析二者的差异。为了研究生物因素对水产品抗生素分布的影响,将鱼、虾和蟹类的体长和体质量与抗生素浓度进行相关性分析(表4),结果表明水产品的体长和体质量与抗生素的分布没有显著相关性($P>0.05$)。受限该研究的实验内容,所得结果受多种因素的影响,例如饲料、鱼龄、水产品雌雄等,这些有待后续进一步研究分析。

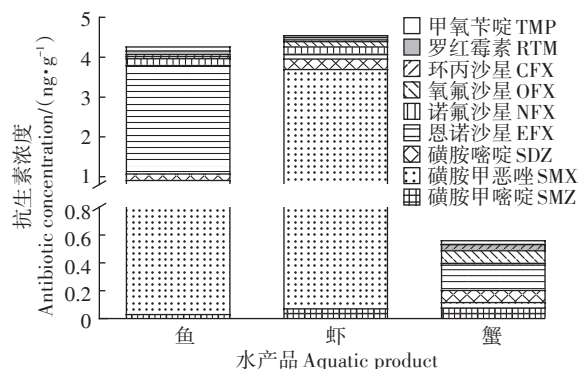


图2 水产品(鱼、虾、蟹)中抗生素的残留浓度

Figure 2 Concentration of antibiotics in three aquatic products of fish, shrimp and crab

2.2 水产品抗生素残留浓度的比较分析

为全面了解淡水养殖产品中抗生素残留情况,将本研究的数据与参考文献中我国淡水养殖、海水养殖与市场购入水产品抗生素浓度进行了比较分析(图4)。CHEN等^[25]在对广州淡水养殖区的研究中发现,磺胺甲恶唑和环丙沙星的检出频率最高,达到48%,恩诺沙星残留量最高,高出其他抗生素2个数量级,约为 $2\ 200\text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$ 。YU等^[26]对长江下游鱼类抗生素残留的研究发现,磺胺甲恶唑是最常见的抗生素,检出频率为23.7%;检出浓度最高的磺胺嘧啶浓度为 $1\ 261.01\text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$ 。ZHOU等^[10]在对太湖地区水产品的研究中发现,残留水平最高的环丙沙星浓度为 32.8

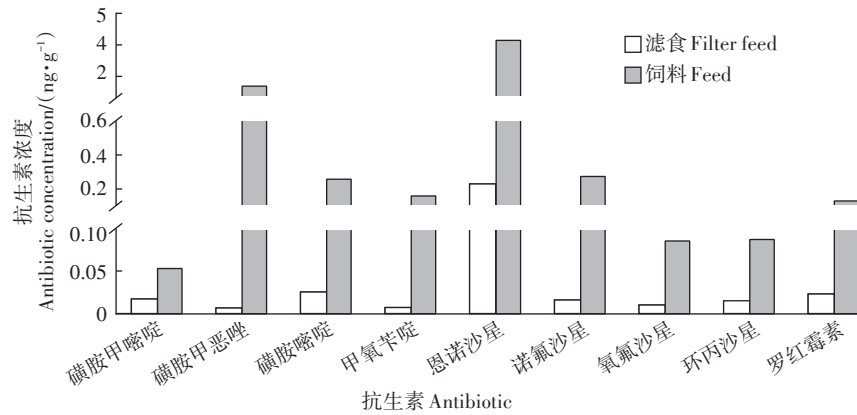


图3 不同鱼类中抗生素的浓度
Figure 3 Concentration of antibiotics in different fishes

表4 水产品抗生素残留与其体长和体质量的相关性
Table 4 Correlation between antibiotic residues in aquatic products and body length and weight

抗生素 Antibiotic	体长 Body length	体质量 Body weight
磺胺甲噁唑	-0.253	-0.179
磺胺甲恶唑	-0.155	-0.227
磺胺嘧啶	-0.163	-0.250
甲氧苄啶	0.223	0.151
恩诺沙星	0.085	-0.102
诺氟沙星	-0.019	-0.124
氧氟沙星	-0.234	-0.307
环丙沙星	-0.104	-0.199
罗红霉素	0.039	-0.206

ng·g⁻¹;CHEN等^[20]对南方海陵岛周围海水养殖场水产品的研究发现,磺胺嘧啶的检出浓度最高为2.3 ng·g⁻¹。总体而言,本研究的抗生素浓度偏低或与其他研究水平相当。

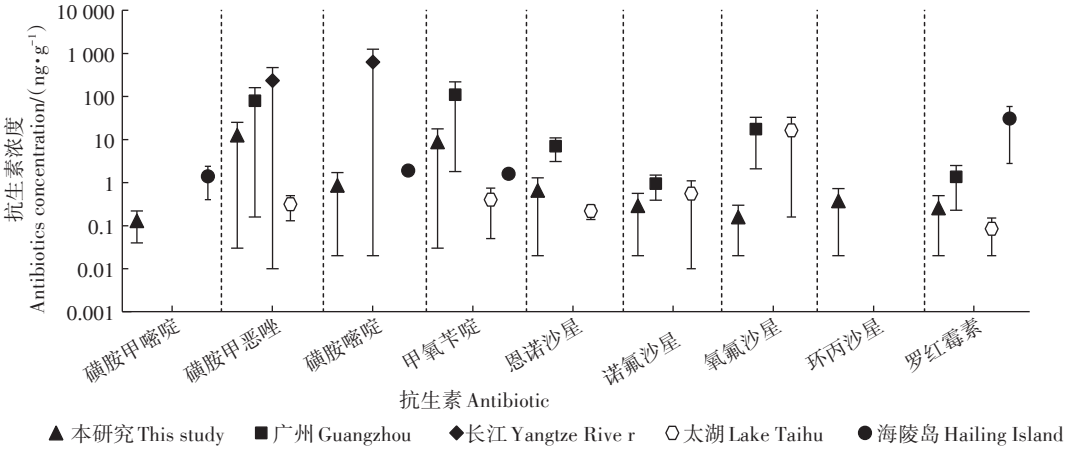


图4 本研究水产品抗生素浓度(中位数和范围)与其他研究比较

Figure 4 Comparisons between the concentration of antibiotics in aquatic products (median and range) in this study and other studies

2.3 水产品中残留抗生素的人体健康风险评估

2.3.1 水产品的食用安全性

假定烹饪过程不会显著影响水产品中抗生素的含量^[27],根据最大风险控制原则,分别使用鱼、虾、蟹3类水产品中每种抗生素的最大检测浓度计算水产品的 EDI ,以评估“最坏的情况”^[28],9种抗生素的 EDI 范围为 $7.7\times10^{-5}\sim6.5\times10^{-3}\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{d}^{-1}$ (表5)。将 EDI 与人体可接受的每日摄入量(ADI)^[16]进行比较,判断水产品的摄入风险。结果表明水产品抗生素的 EDI 值远小于 ADI 值,均低2~5个数量级,说明食用长三角地区水产品不存在健康风险。

2.3.2 水产品消费对人体抗生素暴露的贡献分析

根据尿液抗生素浓度的最低和最高值估算 DED ,并通过公式(3)估算了水产品消费对我国长三角地区3类人群(儿童、成人和孕妇)人体总暴露的最低和最高贡献率(CR),结果见表6。结果表明, Σ 抗生素的贡献率范围为<0.01%~29.77%。其中 Σ 磺胺

表5 食用水产品估计的抗生素的每日摄入量(*EDI*)及相关的每日可接受摄入量(*ADI*)($\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{d}^{-1}$)

Table 5 Estimated daily intake(*EDI*) of antibiotics from aquatic products and related acceptable daily intake(*ADI*)($\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{d}^{-1}$)

抗生素 Antibiotic	<i>EDI</i>			<i>ADI</i>
	儿童 Child	成人 Adult	孕妇 Pregnant woman	
磺胺甲噁唑	7.7×10^{-5}	1.2×10^{-4}	1.1×10^{-4}	1.6
磺胺甲恶唑	3.0×10^{-3}	4.3×10^{-3}	3.8×10^{-3}	130
磺胺嘧啶	4.9×10^{-4}	7.0×10^{-4}	6.3×10^{-4}	20
甲氧苄啶	1.8×10^{-4}	2.0×10^{-4}	1.8×10^{-4}	4.2
恩诺沙星	6.1×10^{-3}	6.5×10^{-3}	5.8×10^{-3}	6.2
诺氟沙星	4.3×10^{-4}	5.0×10^{-4}	4.5×10^{-4}	14
氧氟沙星	1.3×10^{-4}	1.8×10^{-4}	1.6×10^{-4}	3.2
环丙沙星	1.1×10^{-4}	1.3×10^{-4}	1.2×10^{-4}	0.15
罗红霉素	2.5×10^{-4}	2.6×10^{-4}	2.3×10^{-4}	0.4
合计	1.1×10^{-2}	1.3×10^{-2}	1.2×10^{-2}	

类贡献率为<0.01%~7.56%, Σ 喹诺酮类贡献率为<0.01%~20.93%, Σ 大环内酯类贡献率为<0.01%~29.77%,后两者有较高的贡献率。磺胺类抗生素对人体抗生素暴露贡献率最低,尽管其在水产品中的检出浓度较高(表3)。这可能是因为本研究所选择的磺胺类抗生素为优先兽用抗生素,其作为饲料添加剂用于促进动物生长和预防疾病,或作为兽药用于感染治疗,人群接触此类抗生素的来源更有可能为其他肉类食品而非水产品,例如,2015年对宁波猪肉抗生素残留的研究发现,最大磺胺类残留为 $194.8\text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$,高出本研究最大残留浓度2个数量级^[29]。喹诺酮类抗生素为本研究水产品主要抗生素残留之一,对人体暴

露贡献率较高。这可能是因为喹诺酮类抗生素具有抗菌谱广、抗菌力强、安全性高、价格低廉、毒副作用低等特性,因此被用于鱼类细菌性疾病的防治,但随着对其在环境中的残留和风险评价研究的不断深入,很多喹诺酮抗生素已逐渐被我国归为食品动物生产过程中的禁用药物。本研究所选择的大环内酯类抗生素罗红霉素不作为兽用抗生素,人群主要暴露来源可能为临床用药,且浓度低于其他抗生素1~7个数量级,因此*DED*水平较低,但即使水产品检出浓度范围较低,也可能导致对人体较高的贡献率。此外,对于不同人群,3类抗生素对孕妇的暴露贡献最高。这可能是因为孕妇对水产品摄入有更高的营养需求,导致其具有最高的*EDI*,同时,孕妇比其他人群更关注药物安全,从而更谨慎地选择药物,导致其*DED*水平较低。

本研究在得出结论的同时也存在以下局限性:首先,本研究假设烹饪水产品不会显著影响其抗生素含量,未考虑烹饪过程对抗生素降解的影响,这很可能会高估水产品中抗生素的每日摄入量。其次,一次的尿液收集不能捕获所有的抗生素暴露,特别是半衰期短的抗生素^[30],这可能低估了抗生素的总暴露。为了解决这些问题,在未来的研究中应该加强烹饪过程对水产品抗生素残留影响的研究,并增加更多时间点的尿液抗生素样品采集,以了解人体对抗生素的长期接触情况。总体而言,食用水产品不会造成显著的健康风险,但可能会导致低剂量多种抗生素的混合暴露,而现有一些研究表明低剂量抗生素对人体健康也会

表6 淡水养殖水产品消费对3组人群抗生素暴露的贡献率(*CR*,%)

Table 6 Contribution rate of freshwater aquaculture product consumption to antibiotic exposure in three groups (*CR*,%)

抗生素 Antibiotic	儿童 Child		成人 Adult		孕妇 Pregnant woman	
	最大值 Maximum	最小值 Minimum	最大值 Maximum	最小值 Minimum	最大值 Maximum	最小值 Minimum
磺胺甲噁唑	9.17	0.01	13.00	0.01	13.26	10.83
磺胺甲恶唑	14.42	—	18.90	0.29	19.36	0.91
磺胺嘧啶	1.16	0.02	1.54	0.12	1.57	0.09
甲氧苄啶	6.91	—	7.08	0.02	7.22	—
Σ 磺胺类	5.67	—	7.39	0.13	7.56	0.07
恩诺沙星	24.16	0.55	23.76	0.07	24.21	2.00
诺氟沙星	47.87	0.03	51.42	—	52.52	0.04
氧氟沙星	23.68	0.01	30.16	—	30.80	—
环丙沙星	1.81	0.01	2.01	—	2.05	0.01
Σ 喹诺酮类	20.61	0.14	20.54	—	20.93	0.02
罗红霉素	29.62	29.62	29.21	—	29.77	0.19
Σ 大环内酯类	29.62	29.62	29.21	—	29.77	0.20

注:—表示低于0.01%。

Note:— means less than 0.01%.

产生不良影响,例如尿液中的一些低水平抗生素可能与儿童肥胖有关^[31]。因此今后仍需加强养殖环境和水产品中抗生素残留的研究。

3 结论

(1)9种目标抗生素在我国长三角主要省区淡水养殖水产品中均被检出,但其浓度水平显著低于最大残留限量值,其中恩诺沙星和磺胺甲恶唑是浓度较高的抗生素。

(2)水产品中残留抗生素估算的每日摄入量远小于可接受的每日摄入量,在正常情况下食用本研究地区养殖的水产品不会对人体健康造成威胁。

(3)基于尿液中抗生素代谢浓度回推人体抗生素总暴露量,评估水产品消费带来的健康风险贡献率的结果表明,喹诺酮类抗生素可能具有较高的人体健康风险贡献,但后续应继续加强降低结果变异性的相关研究,进而更准确地评估抗生素暴露的风险贡献。

参考文献:

- [1] 潘煜辰,郑翌,施敬文,等.我国水产品质量安全管理现状与发展建议[J].食品安全质量检测学报,2014,5(7):2272-2279. PAN Y C, ZHENG Y, SHI J W, et al. The status and proposal of quality safety management to aquatic products in China[J]. *Journal of Food Safety and Quality*, 2014, 5(7):2272-2279.
- [2] 李成军.我国水产养殖安全问题研究现状[J].现代农业,2019(6):69-70. LI C J. Research status of aquaculture safety in China[J]. *Morden Agriculture*, 2019(6):69-70.
- [3] 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.
- [4] ALCOCK R E, SWEETMAN A, JONES K C. Assessment of organic contaminant fate in waste water treatment plants. I: Selected compounds and physicochemical properties[J]. *Chemosphere*, 1999, 38(10):2247-2262.
- [5] WANG H X, WANG B, ZHAO Q, et al. Antibiotic body burden of Chinese school children: A multisite biomonitoring-based study[J]. *Environmental Science & Technology*, 2015, 49(8):5070-5079.
- [6] ZHU Y T, LIU K Y, ZHANG J J, et al. Antibiotic body burden of elderly Chinese population and health risk assessment: A human biomonitoring-based study[J]. *Environmental Pollution*, 2020, 256:113311.
- [7] ZENG X X, ZHANG L Y, CHEN Q, et al. Maternal antibiotic concentrations in pregnant women in Shanghai and their determinants: A biomonitoring-based prospective study[J]. *Environment International*, 2020, 138:105638.
- [8] LI N, HO K W K, YING G G, et al. Veterinary antibiotics in food, drinking water, and the urine of preschool children in Hong Kong[J]. *Environment International*, 2017, 108:246-252.
- [9] LI J Y, WEN J, CHEN Y Q, et al. Antibiotics in cultured freshwater products in eastern China: Occurrence, human health risks, sources, and bioaccumulation potential[J]. *Chemosphere*, 2021, 264(1):128441.
- [10] ZHOU L J, WANG W X, LV Y J, et al. Tissue concentrations, trophic transfer and human risks of antibiotics in freshwater food web in Lake Taihu, China[J]. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 2020, 197:110626.
- [11] ZHOU L J, YING G G, LIU S, et al. Simultaneous determination of human and veterinary antibiotics in various environmental matrices by rapid resolution liquid chromatography-electrospray ionization tandem mass spectrometry[J]. *Journal of Chromatography A*, 2012, 1244:123-138.
- [12] AKONOR P T, OFORI H, DZIEDZOAVE N T, et al. Drying characteristics and physical and nutritional properties of shrimp meat as affected by different traditional drying techniques[J]. *International Journal of Food Science*, 2016:7879097.
- [13] MUSAIGER A O, AL-RUMAIDH M J. Proximate and mineral composition of crab meat consumed in Bahrain[J]. *International Journal of Food Sciences and Nutrition*, 2009, 56(4):231-235.
- [14] LI J Y, HE Q, LI J L, et al. Aquaculture contributes a higher proportion to children's daily intake of polycyclic aromatic hydrocarbons than to adults' in eastern China[J]. *Environmental Toxicology and Chemistry*, 2019, 38(5):1084-1092.
- [15] WANG H X, WANG N, WANG B, et al. Antibiotics in drinking water in Shanghai and their contribution to antibiotic exposure of school children[J]. *Environmental Science & Technology*, 2016, 50(5):2692-2699.
- [16] WANG H X, WANG N, QIAN J H, et al. Urinary antibiotics of pregnant women in eastern China and cumulative health risk assessment[J]. *Environmental Science and Technology*, 2017, 51(6):3518-3525.
- [17] WANG H X, YANG J Q, YU X, et al. Exposure of adults to antibiotics in a Shanghai suburban area and health risk assessment: A biomonitoring-based study[J]. *Environmental Science & Technology*, 2018, 52(23):13942-13950.
- [18] ZHANG Q Q, YING G G, PAN C G, et al. Comprehensive evaluation of antibiotics emission and fate in the river basins of China: Source analysis, multimedia modeling, and linkage to bacterial resistance[J]. *Environmental Science & Technology*, 2015, 49(11):6772-6782.
- [19] WANG H, REN L, YU X, et al. Antibiotic residues in meat, milk and aquatic products in Shanghai and human exposure assessment[J]. *Food Control*, 2017, 80:217-225.
- [20] CHEN H, LIU S, XU X R, et al. Antibiotics in typical marine aquaculture farms surrounding Hailing Island, south China: Occurrence, bioaccumulation and human dietary exposure[J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2015, 90(1/2):181-187.
- [21] ROBINSON A A, BELDEN J B, LYDY M J. Toxicity of fluoroquinolone antibiotics to aquatic organisms[J]. *Environmental Toxicology & Chemistry*, 2010, 24(2):423-430.
- [22] 钟振兴,张远,徐建,等.磺胺甲恶唑在沉积物中的降解行为研究[J].农业环境科学学报,2012,31(4):819-825. ZHONG Z X,

- ZHANG Y, XU J, et al. Degradation of sulfamethoxazole in sediments[J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2012, 31(4):819-825.
- [23] 张骞月, 周建忠, 赵婉婉, 等. 水产养殖环境中磺胺类药物的残留分析及其耐药菌株研究[J]. *生态环境学报*, 2015, 24(8):1354-1360. ZHANG Q Y, ZHOU J Z, ZHAO W W, et al. Analysis of sulfonamides residues and isolation of sulfonamides resistant strains in the aquaculture environment[J]. *Ecology and Environmental Sciences*, 2015, 24(8):1354-1360.
- [24] 张石云, 宋超, 陈家长. 喹诺酮类抗生素在水产养殖中应用的研究进展[J]. *江苏农业科学*, 2019, 47(3):32-36. ZHANG S Y, SONG C, CHEN J Z. Research progress of application of quinolones antibacterial drugs in aquaculture[J]. *Jiangsu Agricultural Sciences*, 2019, 47(3):32-36.
- [25] CHEN H, LIU S, XU X R, et al. Tissue distribution, bioaccumulation characteristics and health risk of antibiotics in cultured fish from a typical aquaculture area[J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2018, 343(5):140-148.
- [26] YU L, SONG C, ZHANG C, et al. Occurrence of sulfonamides in fish in the lower reaches of Yangtze River, China and estimated daily intake for understanding human dietary exposure[J]. *Aquaculture*, 2018, 495:538-544.
- [27] HESHMATI A. Impact of cooking procedures on antibacterial drug residues in foods: A review[J]. *Journal of Food Quality and Hazards Control*, 2015, 2:33-37.
- [28] FENG L, CHENG Y, ZHANG Y, et al. Distribution and human health risk assessment of antibiotic residues in large-scale drinking water sources in Chongqing area of the Yangtze River[J]. *Environmental Research*, 2020, 185:109386.
- [29] 吕梦园, 岳晓静, 王旭亮, 等. 市售猪肉肝肾中抗生素残留分析[J]. *肉类工业*, 2015(6):46-47. LÜ M Y, YUE X J, WANG X L, et al. Analysis of antibiotic residue in salled pork, liver and kidney[J]. *Meat Industry*, 2015(6):46-47.
- [30] ZHANG J, LIU X, ZHU Y, et al. Antibiotic exposure across three generations from Chinese families and cumulative health risk[J]. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 2020, 191(1):110237.
- [31] WANG H X, WANG N, WANG B, et al. Antibiotics detected in urines and adipogenesis in school children[J]. *Environment International*, 2016, 89/90:204-211.