

畜禽养殖场周边土壤和地下水中抗生素的残留特征和风险评价

钟玖妍, 杨子彦*

华北水利水电大学环境与市政工程学院, 河南 郑州

收稿日期: 2025年1月21日; 录用日期: 2025年2月25日; 发布日期: 2025年3月10日

摘 要

抗生素的出现, 加快了畜禽养殖业的发展, 但抗生素滥用导致的环境问题日益显现。本研究选取了一个规模较大的养猪场, 在其周边环境布设了8个点位, 研究土壤及地下水中抗生素的残留情况, 并采用不同的评估方法对地下水中抗生素进行人体健康风险评估。研究发现, 在土壤样品中, 磺胺嘧啶和恩诺沙星未检出, 四环素和金霉素仅在S6点位检出且浓度较低, 磺胺甲噁唑检出率较高。在地下水样品中, 四环素类抗生素的检出率最高, 磺胺类抗生素次之, 恩诺沙星虽低, 但浓度很高。总体上, 在土壤和地下水样品中, 污染集中于S6、S7、S8点位。在人体健康风险评估方面, 使用饮水当量法进行评价时, 有50%点位为中等风险, 且仅针对低龄儿童, 而使用平均每日潜在剂量法评价时, 大部分点位的风险都可接受, 仅有S7点位的风险不可接受。因此, 抗生素污染问题不可忽视, 需加大对抗生素的监管力度, 更需要研究抗生素在环境中的去除方法, 降低环境中抗生素对人体及生态的影响。

关键词

抗生素, 污染特征, 人体健康风险评估, 饮水当量法, 平均每日潜在剂量法

Characterization and Risk Evaluation of Antibiotic Residues in Soil and Groundwater around Livestock Farms

Jiuyan Zhong, Ziyang Yang*

School of Environmental and Municipal Engineering, North China University of Water Resources and Electric Power, Zhengzhou Henan

Received: Jan. 21st, 2025; accepted: Feb. 25th, 2025; published: Mar. 10th, 2025

*通讯作者。

文章引用: 钟玖妍, 杨子彦. 畜禽养殖场周边土壤和地下水中抗生素的残留特征和风险评价[J]. 环境保护前沿, 2025, 15(3): 266-276. DOI: 10.12677/aep.2025.153033

Abstract

The advent of antibiotics has accelerated the development of livestock and poultry farming, but the environmental problems caused by the misuse of antibiotics have become increasingly apparent. In this study, a large-scale pig farm was selected and eight sites in its vicinity were used to investigate the antibiotic residues in soil and groundwater, and different evaluation methods were used to assess the human health risk of antibiotics in groundwater. It was found that in soil samples, sulfadiazine and enrofloxacin were not detected, tetracycline and chlortetracycline were detected only at point S6 and at low concentrations, and sulfamethoxazole was detected at a high rate. In groundwater samples, tetracycline antibiotics had the highest detection rate, sulfonamide antibiotics were next highest, and enrofloxacin was detected at low but high concentrations. Overall, contamination in soil and groundwater samples was concentrated at points S6, S7 and S8. In terms of human health risk assessment, when evaluated using the drinking water equivalent method, 50% of the points were of moderate risk and only for younger children, whereas when evaluated using the average potential daily dose method, most of the points were of acceptable risk and only point S7 was of unacceptable risk. Therefore, the problem of antibiotic contamination cannot be ignored, and there is a need to strengthen the regulation of antibiotics, and there is a greater need to study methods of removing antibiotics from the environment to reduce the human and ecological impact of antibiotics in the environment.

Keywords

Antibiotics, Contamination Characterization, Human Health Risk Assessment, Drinking Water Equivalent Method, Average Potential Daily Dose Method

Copyright © 2025 by author(s) and Hans Publishers Inc.

This work is licensed under the Creative Commons Attribution International License (CC BY 4.0).

<http://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>



Open Access

1. 引言

自从抗生素问世以来,它在维护人类健康和促进畜牧养殖方面,始终扮演着无可替代的重要角色。抗生素的种类有很多种,根据结构式和基本原理将其大致分为7大类,但最常见的有5种,分别为 β -内酰胺类、磺胺类、大环内酯类、四环素类和氟喹诺酮类[1]。近年来,由于人们在使用抗生素时的不合理行为,导致抗生素污染问题频繁出现,这一问题引起了国内外学者的深切关注和重视[2]。抗生素进入人体或动物体后,不能被完全的吸收转化,有相当一部分会以原药或代谢产物的形式随母体的代谢物进入环境中。环境中的抗生素主要来自污水排放。据研究结果显示,有40%到90%的抗生素,通过原药或药物活性成分的形式,直接或间接的被排放到环境中[3]。因此,对于排入环境的抗生素对环境的污染影响,以及对生命体的毒理性研究,都显得尤为重要。

畜禽粪便和污水中的药物也可以通过施肥和灌溉等途径进入土壤。国内外许多研究学者多次报道了畜禽粪便和废水中检测到高浓度的抗生素[4],Pan等[5]人在中国黄淮海平原中检测了20种抗生素,浓度最高为575 ng/g。Jia等[6]对全球农业土壤中和地表水中抗生素研究发现,磺胺类抗生素(SAs)是在农业土壤和地表水中检测到频率最高的抗生素,四环素类抗生素(TCs)是在土壤中和地表水中中位数最高的,说明TCs是使用最广泛的抗生素。地表水和土壤中的抗生素污染通过渗透作用和淋洗作用进入到地下水中[7],造成了地下水中抗生素污染。Xiao等[8]人研究发现,地下水中检测出64种抗生素,大部分浓度在

10~1000 ng/L, 其中喹诺酮类抗生素(QAs)和 SAs 的浓度较高。抗生素可以通过各种方式进入人体, 例如饮用水, 残留了抗生素的肉、牛奶、鱼等。抗生素会在生物体内累积, 并通过食物链放大, 传递给人类, 对人类造成各种危害, 包括但不限于致癌、致畸、骨髓抑制和破坏肠道菌群等[9]。另外抗生素具有比较好的抑菌性, 抑制植物和藻类的生长, 降低环境中微生物的多样性, 破坏生态系统的平衡, 产生抗生素耐药性等[10]-[14]。研究表明, 环境中低浓度的抗生素可促进抗生素耐药菌(ARB)和抗性基因(ARGs)的传播[4]。Zhang 等[15]在河南省采集了 34 个地下水样品中检测到多种 ARGs, 其中以磺胺类、 β -内酰胺类和四环素类 ARGs 为主。

健康风险评价是以人为主体的评价, 描述污染物在特定暴露剂量下, 对人体健康产生影响的概率大小和风险程度。目前最常用的健康风险评价方法有两种, 一是饮水当量法, Jingyun Shi 等[16]采用饮水当量法探究了中国北方地下水中抗生素, 结果表示抗生素的风险商值显示出随年龄的增长而减小的趋势, 风险商值的大小在 2.6×10^{-7} ~ 1×10^{-3} 之间。Ting Meng 等[17]也采用了该方法对中国南方沿江农村地区进行了调查, 研究结果显示抗生素的风险商值在 10^{-6} ~ 10^{-2} 。另一种方法是日均剂量法, Lyu J 等[18]对中国的 12 座城市的饮用水中的抗生素进行了分析, 研究结果显示三种 SAs 的健康风险商值分别为 2.8×10^{-4} ~ 9.4×10^{-3} , 1.2×10^{-5} ~ 2.7×10^{-3} , 5.5×10^{-6} ~ 2.9×10^{-4} 。

本文选取 5 种最常见的抗生素作为研究对象, 采集河南省某养猪场周围点位的地下水及土壤样品, 探究抗生素的空间分布特征, 并采用不同的评价方法进行人体健康风险评价, 为后面抗生素的污染控制提供技术支撑。

2. 材料与方法

2.1. 实验材料

本研究使用的磷酸溶液和硫酸溶液均从永华化工有限公司购买。甲醇(色谱纯级)和乙腈(色谱纯级)来自美国默克公司。萃取使用的固相萃取柱(HLB, 200 mg, 6 mL)来自比克曼公司。三重四极杆液质联用系统中使用的色谱柱(2.6 μ m EVO C18 100A)来自飞诺美公司。有机相针式滤膜(0.22 μ m, 尼龙)购自安培实验室技术(上海)有限公司。此外, 5 种抗生素标准品购自天津阿尔塔试剂公司, 5 种抗生素的全称及缩写如表 1 所示。

Table 1. Full names and abbreviations of the 5 antibiotics
表 1. 5 种抗生素的全称及英文简写

抗生素	简写	抗生素类型	抗生素	简写	抗生素类型
四环素	TC	四环素类(TCs)	磺胺嘧啶	SDZ	磺胺类(SAs)
金霉素	CTC		磺胺甲噁唑	SMX	
恩诺沙星	ENR	喹诺酮类(FQs)			

2.2. 样品采集

在河南省某地市选取了一个养猪场进行调查采样, 该养猪场始建于 2019 年, 养殖数量为 6000 头, 养殖面积约为 60,000 m²。废物处置方式为外运做肥料, 整个厂区包括猪棚、污粪处理区以及办公区。厂区属于浅层地表水, 地下水径流方向大致由西北方向往东南方向径流, 地下水埋深较浅, 水位埋深约 7~10 m。采样点分布如图 1 所示。

样品采集参照 HJ 91.1-2019 的相关规定进行, 采样时间为 2024 年 4 月, 对研究区域内的点位进行采样, 所有地下水样品采集后装入 1.0 L 磨口棕色玻璃瓶中避光冷藏保存。土样装入专用的密封袋, 避光冷

藏保存。水样使用贝勒管采样器进行采样, 土样采用梅花形布点法采样, 刮去表层 2~3 cm 的土壤, 用铁锹挖取五点土样, 装入密封袋混合。

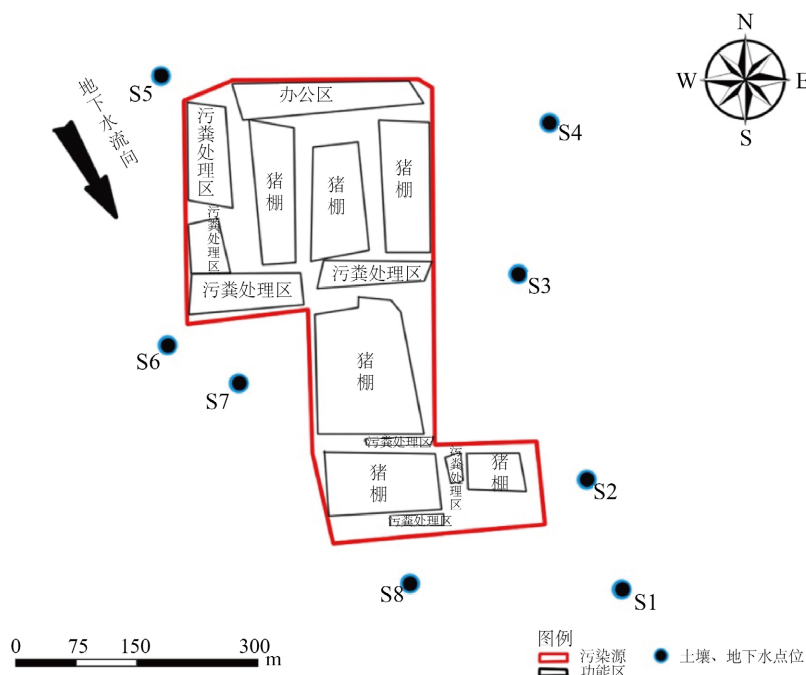


Figure 1. Sampling point location map
图 1. 采样点位置图

2.3. 抗生素提取

水样: 准确量取经 0.45 μm 玻璃纤维滤膜过滤的水样 0.5 L, 并立即贮存在 4℃ 的冰箱中, 在提取之前, 用 4 mol/L 硫酸和氨水调节 pH 值为 4, 并加入 0.5 g Na_2EDTA 。然后用经 5 ml 甲醇、5 ml 超纯水活化的 HLB 固相萃取柱提取水样, 上样速度约为 10~15 ml/min。接着, 用 10 ml 的超纯水淋洗 HLB 柱, 并在负压条件下抽真空 30 分钟进行干燥, 用 5 ml 甲醇以 3 ml/min (约 1 滴/秒) 的流速洗脱, 收集洗脱液。洗脱液氮气吹干, 然后用甲醇溶液定容至 1 ml。样品定容过后 0.22 μm 滤膜, 使用 LC-MS 进行分析。

土壤: 准确称取 $(1.00 \pm 0.01 \text{ g})$ 经研磨的土壤样品 (过 2 mm 筛), 置于 50 ml 聚乙烯离心管中, 加入 10 ml Na_2EDTA -McIlvaine 缓冲液, 涡旋 30 s (室温), 于 4℃ 下, 超声 15 min, 8000 r/min 条件下离心 10 min, 收集上清液。吸取上清液至另一洁净的离心管中, 同样的步骤提取两次, 之后再用 10 ml 有机混合提取剂提取两次, 合并 4 次上清液, 稀释至 250 ml, 过 0.45 μm 玻璃纤维滤膜, 之后样品的净化和浓缩等与水处理的方法一致。

2.4. 数据处理

本论文中主要利用软件 Microsoft Office Excel 2021 对实验数据进行整理、运算; 利用 Origin 绘制图形。

健康风险评估

(1) 饮用水当量法

风险商的计算是通过环境实测浓度 MEC 与饮用水当量水平 DWEL 做商^[19], 得到单个目标抗生素

的风险商值 RQ_i 。由于抗生素之间存在协同作用, 所以, 一个采样点的风险商值是由各目标抗生素的风险商值 RQ_i 加和所得到的 RQ_s 代表。风险商 RQ_i 及 RQ_s 由公式(1)、(2)、(3)计算得到。 RQ 被分为 3 个等级, 分别为: $RQ < 0.1$, 低风险; $0.1 < RQ < 1$, 中等风险; $RQ \geq 1$, 高风险[20]。不同年龄段的 DWI 及 BW 的推荐值如表 2。

$$RQ = \frac{MEC}{DWEL} \quad (1)$$

$$DWEL = \frac{ADI \times BW \times HQ}{DWI \times AB \times FOE} \quad (2)$$

$$RQ_s = \sum RQ_i \quad (3)$$

式中:

ADI——可接受的每日摄入量($\mu\text{g}/\text{kg}/\text{day}$);

BW——成人或儿童的体重(kg);

HQ——危害商, 取 1;

DWI——饮用水摄入量(L/day);

AB——吸收速率, 取 1;

FOE——暴露频率, $356 \text{ d}/365 \text{ d} = 0.96$ 。

(2) 平均每日潜在剂量法

该方法是将暴露途径分为两部分, 一是通过饮用水吸收; 另一部分是通过皮肤接触。之后将两部分的 ADD 加和, 与每日可接受摄入量做商, 得到风险商值(即 HRQ 值或 RQ 值), 具体计算公式如(4)、(5)、(6)和(7)所示[21]。参数的取值见表 3~5。

$$HRQ = \frac{ADD_{dw} + ADD_{dema}}{ADI} \quad (4)$$

$$ADD_{dw} = \frac{c_{dw} \times \text{IngR} \times EF \times ED}{BW \times AT \times 1000} \quad (5)$$

$$ADD_{dema} = \sum \frac{DA_{event-i} \times SA_i \times EF_i \times ED_i}{BW \times AT_i} \quad (6)$$

$$DA_{event-i} = K_p \times C \times T \times 10^{-6} \quad (7)$$

$$\log K_p = -2.80 + 0.66 \log K_{ow} - 0.0056 MW \quad (8)$$

式中:

c_{dw} ——饮用水中抗生素的浓度($\mu\text{g}/\text{L}$);

IngR——摄入量(L/day), 主要参考《中国人群暴露手册》;

EF——暴露频率(day/year), 350 day/year;

ED——暴露周期(year), 非致癌效应为 30, 致癌效应为 0;

BW——成人或儿童的体重(kg);

AT——平均时间(days), 非致癌效应为 30 年, 即 10950, 致癌效应固定为 25550, 即 70 年;

SA_i ——皮肤接触面积(cm^2);

C——皮肤接触到的水中抗生素的浓度($\mu\text{g}/\text{L}$);

T——皮肤与抗生素接触的时间(hours/day)

K_p ——渗透系数;

K_{ow} ——目标抗生素的正辛醇/水分配系数;

MW——目标抗生素的摩尔质量(g/mol)。

Table 2. Recommended values of DWI and BW for different age groups

表 2. 不同年龄段 DWI、BW 推荐值

年龄段	0~3 月	3~6 月	6~12 月	1~2 岁	2~3 岁	3~6 岁	6~11 岁	11~16 岁	16~18 岁	成人
BW	5.6	7.2	9.4	12	13.8	19	36	56	57	60
DWI	1.15	1.14	1.18	0.85	0.83	1.16	1.55	1.9	1.77	2.04

Table 3. Value of ADI [22]

表 3. ADI 的取值[22]

抗生素	ADI ($\mu\text{g/kg/day}$)	LogKow	MW
恩诺沙星	6.2	0.64	359.44
磺胺嘧啶	50	2.59	250.27
磺胺甲噁唑	130	0.89	253.28
四环素	30	-1.33	444.48
金霉素	20	-0.62	478.92

Table 4. Skin contact area per event

表 4. 每个事件的皮肤接触面积

SA _i (cm ²)	洗手	洗脸洗头	洗脚	洗盘子	洗菜	洗衣服	洗澡	游泳
男性	800	1300	1100	800	800	800	17,000	6300
女性	700	1200	100	700	700	700	15,000	5700

Table 5. Recommended intake by season in Henan

表 5. 河南地区分季节摄入量推荐值

区域	季节	IngR(L/day)
河南	春秋	2.34
	夏季	2.90
	冬季	2.30

3. 结果与讨论

3.1. 土壤中抗生素的残留特征

土壤中抗生素的残留浓度见表 6。检测的 8 个土样中, TC, CTC 和 SMX 的检出率分别为 2.5%、12.5% 和 50%。两种 TCs 的总含量为 n.d.~0.1459 $\mu\text{g/L}$, 以 CTC 为主, 这可能是因为 TC 在厌氧的田间能被降解 [23]。两种抗生素主要集中于高污染点位 S6。这可能是由于 S6 点位附近有粪便堆积区, 且地面硬化没做好, 导致抗生素下渗入到土壤中, 该点位所在农田可能采取了该养殖场产生的粪便及污水施肥、灌溉农田。SDZ 和 ENR 在土壤中均未检出, 这可能是因为这两种抗生素容易发生水解和光解 [24], 且容易被有机质吸附在土壤中, 在雨水淋溶作用下或阳光照射下, 转入地下水或被光解, 从而使土壤中的含量低于

检测限。SMX 在 S2、S4、S5、S6 四个点位均有检出，浓度范围在 n.d.~0.19 μg/L。SMX 在土壤中多次检出，这可能与理化性质相关，SMX 不易吸附并且难以降解。相较于 SDZ、ENR 两种易吸附，且水解或光解的抗生素而言，不能够得到有效的光降解，或者是随着淋溶作用下渗到地下水中，从而少量残留于表层土壤。TCs 类抗生素，容易水解，在雨水的淋溶作用下，会渗入深层土壤和地下水中[25]。五种抗生素在土壤中含量的高低顺序为：SMX > CTC > TC > SDZ = ENR，最大残留浓度为 S6。

Table 6. Residual concentrations of antibiotics in soil
表 6. 土壤中抗生素的残留浓度

点位	TC	CTC	SMX	SDZ	ENR
S1	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.
S2	n.d.	n.d.	0.0205	n.d.	n.d.
S3	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.
S4	n.d.	n.d.	0.19	n.d.	n.d.
S5	n.d.	n.d.	0.0017	n.d.	n.d.
S6	0.0109	0.135	0.0015	n.d.	n.d.
S7	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.
S8	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.

3.2. 地下水中抗生素的残留特征

地下水中抗生素的残留浓度如表 7 所示。检测的 8 个地下水样中，八个点位均能够检测出四环素类的抗生素，检出率为 100%，三种抗生素的检出率分别为 75%，87.5%和 62.5%。TC 检测出的浓度范围在 1.581~16.95 μg/L，CTC 检出的浓度范围在 1.226~23.414 μg/L，SMX 的为 n.d.~2.099 μg/L，SDZ 的为 n.d.~8.886 μg/L，ENR 的为 n.d.~8.308 μg/L。由表可见，CTC、SMX 和 SDZ 在各点的残留状况相当，只有在 S7 点位陡然变大。并且四环素类抗生素的检出浓度相较于其他两种抗生素的检出浓度，普遍较大，这说明该养殖场使用的抗生素类型主要为四环素类。同时，在 S7 点位，各抗生素检出浓度普遍为最大值，这可能是因为 S7 点位距离粪便堆积区较近，粪便堆积的渗滤液下渗，污染地下水，另外该点位于地下水的下游，上游污染的水体在该点富集，造成了该点位抗生素浓度整体偏高。

Table 7. Groundwater antibiotic test results
表 7. 地下水抗生素检测结果

点位	TC	CTC	SMX	SDZ	ENR
S1	2.048	1.226	0.827	n.d.	n.d.
S2	7.613	1.569	0.943	0.085	2.139
S3	8.42	1.255	0.792	0.194	n.d.
S4	2.64	1.341	n.d.	0.139	n.d.
S5	16.95	2.813	n.d.	0.167	2.386
S6	4.028	1.627	0.903	0.317	7.885
S7	5.374	23.414	2.099	8.886	8.308
S8	1.581	1.255	0.850	0.112	1.946

3.3. 环境中抗生素的健康风险评价

3.3.1. 饮用水当量法

饮水当量法对该养猪场周边地下水进行评价。具体结果如图 2 所示, 图 2(a)和图 2(b)展示了 TCs 的评价结果, 发现 TCs 通过饮用水途径成年人的健康风险评价在该区域处于 0.00172~0.03821 之间, 对 6~18 岁儿童的健康风险处于 0.00157~0.06862 之间, 对 0 月~6 岁儿童的 0.0104~0.2308 之间。结果表明通过此途径对 0 月~6 岁儿童的健康风险指数在该区域内要普遍高于成年人和青少年, 属于最敏感人群。在图 2(d)和图 2(e)中, SAs 通过饮用水途径成年人的健康风险评价在该区域处于 0.00006~0.0058 之间, 对 6~18 岁儿童的健康风险处于 0.00006~0.0735 之间, 对 0 月~6 岁儿童的 0.0004~0.0350 之间。这表明通过此途径对 6~11 岁青年的健康风险指数在该区域内要普遍高于成年人和儿童, 属于最敏感人群。图 2(c)中发现 ENR 通过饮用水途径成年人的健康风险评价在该区域处于 0.01024~0.04374 之间, 对 6~18 岁儿童的健康风险处于 0.00936~0.05539 之间, 对 0 月~6 岁儿童的 0.01812~0.2642 之间。这表明 ENR 的风险商要显著高于另外两种抗生素的风险商, 对低龄儿童的风险已然达到了 0.2642, 这应当予以足够的重视。通过此途径对低龄儿童的健康风险指数在该区域内要普遍高于成年人和儿童, 属于最敏感人群。

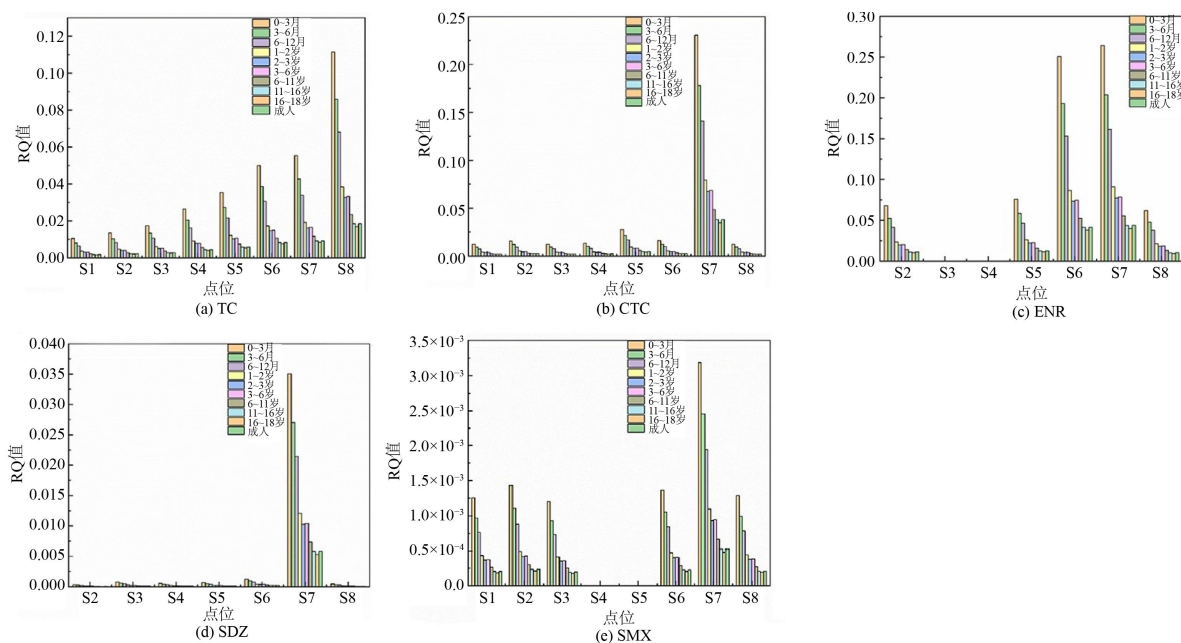


Figure 2. Evaluation results of the drinking water equivalent method: (a) TC; (b) CTC; (c) ENR; (d) SDZ; (e) SMX
图 2. 饮水当量法的评价结果: (a) TC; (b) CTC; (c) ENR; (d) SDZ; (e) SMX

3.3.2. 平均每日潜在剂量法

根据前文查到的相关参数及公式, 计算得到 5 种抗生素的 RQ, 如图 3 所示。图 3(a)表示了 TCs 的评价结果。结果发现 TC 对成年男性的风险在 $9.99547\text{E}-06$ ~ $1.1055\text{E}-05$ 之间, 对成年女性的风险在 $6.02213\text{E}-06$ ~ $1.13819\text{E}-05$; CTC 对成年男性的风险在 $2.47163\text{E}-06$ ~ $7.03729\text{E}-05$ 之间, 对成年女性的风险在 $6.30844\text{E}-06$ ~ $1.20517\text{E}-05$; 整体都存在健康风险, 但是这种风险还可以被接受; 图 3(b)表明 SMX 对成年男性的风险在 n.d.~ $6.36235\text{E}-07$ 之间, 对成年女性的风险在 n.d.~ $7.24464\text{E}-07$; SDZ 对成年男性的风险在 n.d.~ $7.04001\text{E}-06$ 之间, 对成年女性的风险在 n.d.~ $8.01308\text{E}-06$; 磺胺类抗生素的风险相较于四环素类抗生素要小一个数量级, 大多数点位表现为无明显健康风险, 个别地区处于可接受的风险状态。由图 3(c)

可以得到, ENR 对成年男性的风险在 $n.d.\sim5.27843E-05$ 之间, 对成年女性的风险在 $n.d.\sim6.01056E-05$ 。ENR 的风险相较于前两类抗生素普遍要高, 大多数点位处于可接受的风险状态, 只有三处点位表现为无风险状态。

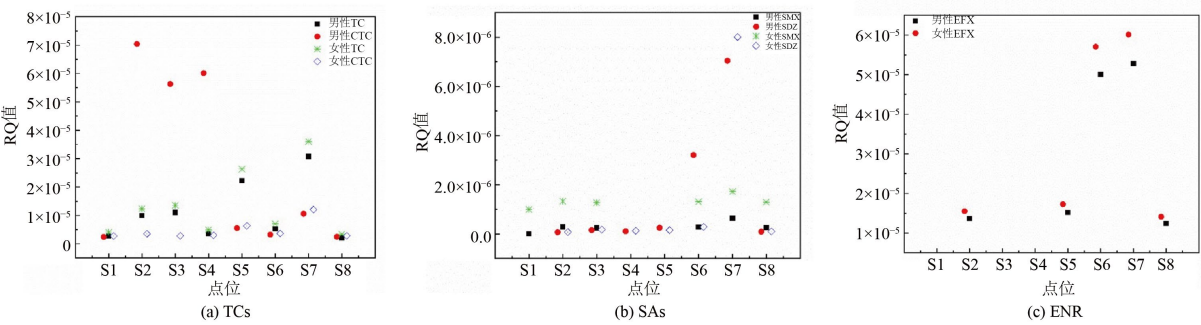


Figure 3. Results of the evaluation of the average potential daily dose method: (a) TCs; (b) SAs; (c) ENR
图 3. 平均每日潜在剂量法的评价结果: (a) TCs; (b) SAs; (c) ENR

3.3.3. 综合评价结果

将每个点位各个抗生素的风险商相加, 得到一个总风险商。具体结果如图 4 所示。图 4(a)为使用饮用水当量法评价的结果, 发现在 S1、S3、S4、S8 点位, 抗生素的联合风险商均在 0.1 以下, 对各年龄段的人群表现为无健康风险; 在 S2、S5、S6、S7 点位, 抗生素对部分人群表现为中等风险, 主要集中在 2 岁以下儿童, S7 点位抗生素的影响已延伸到 11 岁儿童。在所有点位中, 均未出现高风险点位, 由结果可以看出, 随着年龄的增加, 人体受到抗生素带来的风险也随之减小, 16~18 岁时期的青年受到的影响最小。使用日均潜在剂量法评价的结果如图 4(b)所示, S1 点位为最低风险点位, 成年男性、女性的风险商为 5.1×10^{-6} 、 5.8×10^{-6} , 均大于 10^{-6} ; S7 点位为最高风险, 男性、女性的风险商为 1.02×10^{-4} 、 1.16×10^{-4} , 均大于 10^{-4} ; 根据风险判定标准, S1~S8 点位(S7 除外), 为可接受风险, 对人体影响可以忽略, S7 点位为不可接受风险, 需要引起重视。

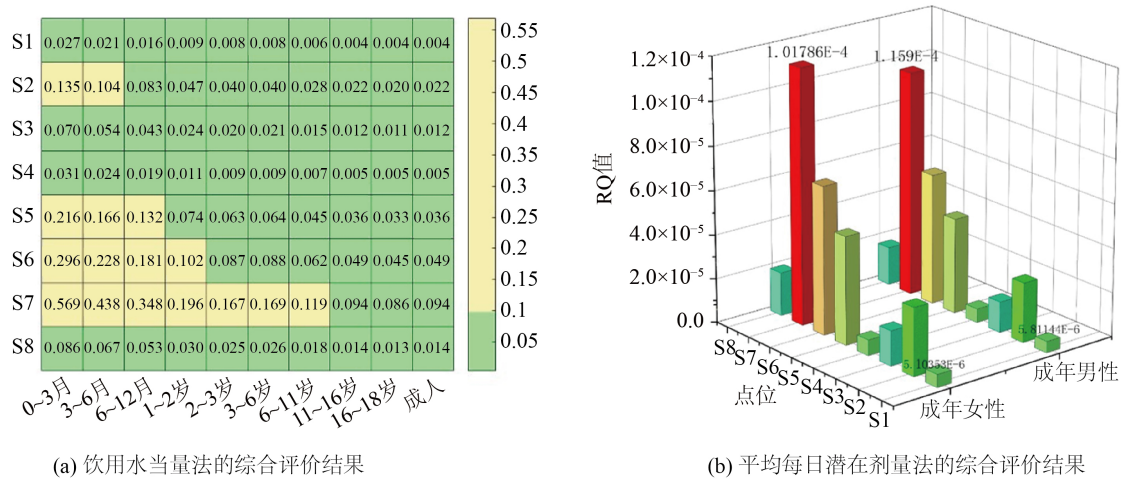


Figure 4. Combined results of the two evaluation methods:(a) Comprehensive evaluation results of the drinking water equivalent method;(b) Comprehensive evaluation results of the average potential daily dose method

图 4. 两种评价方法的综合评价结果: (a) 饮用水当量法的综合评价结果; (b) 平均每日潜在剂量法的综合评价结果

总体来说, 饮用水当量法对广泛的人群和年龄段进行了评估, 根据结果显示 RQ 值呈现出随年龄的

增长而减小的趋势。这一规律与 Jingyun Shi 等[16]研究一致。另外养殖场对低龄儿童的潜在健康风险较大, 特别是 S7 点位, 对 6~11 岁的青少年也存在影响, 这与 S7 点位附近是蓄粪池有关。而日均潜在剂量法则更侧重于特定个体(成年男性和女性)的潜在风险, 该方法确定的暴露途径更加全面, 同时也将季节, 性别等考虑在内, 使评价结果相较于饮水当量法更加准确。本研究结果显示只有 S7 点位表现为不可接受风险, 其余点位均为可接受风险。两种方法各有特点, 饮水当量法便捷高效, 能够快速识别风险地区以及敏感人群, 可以对污染地区做出快速反应, 而日均潜在剂量法更加具体, 考虑的暴露途径更加全面, 计算方法相较于饮水当量法稍微繁琐一些, 可以对点位进行更加详细的风险评估, 便于制定特定人群的保护措施。

4. 结论

本研究探究了在该畜禽养殖场周边环境中的抗生素的残留特征及健康风险评估。研究表明, 在该养殖场周边的地下水环境中, TCs 的检出率最高, 为 100%, 且最高残留浓度为 23.414 $\mu\text{g/L}$ 。SAs 和 ENR 的检出率都较低, 但 ENR 的残留浓度比 SAs 的高。因此在该养殖场的主要用药类型为 TCs。在检测的 8 个点中, 主要污染集中在 S6、S7、S8 这三个点位, 主要是因为这三个点在蓄粪池周边。在该养殖场的周边土壤中, SDZ 和 ENR 均未检出, TCs 也只有在 S6 点位有检出, SMX 在本次研究中多次检出, 这与它本身不易被吸附也不易降解的性质有关。在人体健康风险评价方面, 饮水当量法的评价结果表示: 在 S1、S3、S4、S8 点位, 对各年龄段的人群均表现为低风险; 在 S2、S5、S6、S7 点位, 对低龄的儿童有中等健康风险。特别是对于 0~3 月的儿童, 在各点位受到的风险均高于其他年龄段, 属于敏感人群。日均潜在剂量法的评价结果表示: 除 S7 点位外, 成年男性和成年女性的健康风险尚属于可接受的风险, 并不会对人体健康造成影响。仅有 S7 点位, 风险商大于 10^{-4} , 属于不可接受风险, 应当引起重视。并且根据结果显示, TC 给男性带来的风险高于女性, 另外 4 种抗生素给女性带来的风险要高于男性。本研究再次证实了畜禽养殖场周边环境中的抗生素的污染不容忽视, 因此, 我们应该加强对抗生素的监管, 另外, 还需进一步开展环境中抗生素的源头解析、污染治理和生态风险评估管理, 维护土壤安全和人体健康。

参考文献

- [1] 邓玉英, 陈桂先. 滥用饲用抗生素现状及对生态环境的影响[J]. 现代畜牧兽医, 2009(10): 35-36.
- [2] Ayodele, O.B., Auta, H.S. and Nor, N.M. (2012) Artificial Neural Networks, Optimization and Kinetic Modeling of Amoxicillin Degradation in Photo-Fenton Process Using Aluminum Pillared Montmorillonite-Supported Ferrioxalate Catalyst. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, **51**, 16311-16319. <https://doi.org/10.1021/ie302390b>
- [3] 张慧, 郭文建, 朱晨, 李红莉, 王桂勋, 岳太星, 丁波涛. 山东省主要河流中抗生素污染组成及空间分布特征[J]. 中国环境监测, 2019, 35(1): 89-94.
- [4] Jia, W., Song, C., He, L., Wang, B., Gao, F., Zhang, M., et al. (2023) Antibiotics in Soil and Water: Occurrence, Fate, and Risk. *Current Opinion in Environmental Science & Health*, **32**, Article 100437. <https://doi.org/10.1016/j.coesh.2022.100437>
- [5] Pan, Z., Yang, S., Zhao, L., Li, X., Weng, L., Sun, Y., et al. (2021) Temporal and Spatial Variability of Antibiotics in Agricultural Soils from Huang-Huai-Hai Plain, Northern China. *Chemosphere*, **272**, Article 129803. <https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2021.129803>
- [6] Jia, W., Song, C., He, L., Wang, B., Gao, F., Zhang, M., et al. (2023) Antibiotics in Soil and Water: Occurrence, Fate, and Risk. *Current Opinion in Environmental Science & Health*, **32**, Article 100437. <https://doi.org/10.1016/j.coesh.2022.100437>
- [7] Wang, J., Zhang, C., Xiong, L., Song, G. and Liu, F. (2022) Changes of Antibiotic Occurrence and Hydrochemistry in Groundwater under the Influence of the South-to-North Water Diversion (The Hutuo River, China). *Science of the Total Environment*, **832**, Article 154779. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2022.154779>
- [8] Xiao, W., Zhao, X., Teng, Y., Wu, J. and Zhang, T. (2023) Review on Biogeochemical Characteristics of Typical Antibiotics in Groundwater in China. *Sustainability*, **15**, Article 6985. <https://doi.org/10.3390/su15086985>

- [9] Grenni, P., Ancona, V. and Barra Caracciolo, A. (2018) Ecological Effects of Antibiotics on Natural Ecosystems: A Review. *Microchemical Journal*, **136**, 25-39. <https://doi.org/10.1016/j.microc.2017.02.006>
- [10] Hu, Y. and Cheng, H. (2015) Use of Veterinary Antimicrobials in China and Efforts to Improve Their Rational Use. *Journal of Global Antimicrobial Resistance*, **3**, 144-146. <https://doi.org/10.1016/j.jgar.2015.03.003>
- [11] 王晓洁, 赵蔚, 张志超, 程和发, 陶澍. 兽用抗生素在土壤中的环境行为、生态毒性及危害调控[J]. 中国科学: 技术科学, 2021, 51(6): 615-636.
- [12] Cycoń, M., Mrozik, A. and Piotrowska-Seget, Z. (2019) Antibiotics in the Soil Environment—Degradation and Their Impact on Microbial Activity and Diversity. *Frontiers in Microbiology*, **10**, Article 338. <https://doi.org/10.3389/fmicb.2019.00338>
- [13] Liu, X., Lv, Y., Gao, S. and Xu, K. (2021) Ofloxacin Induces Etiolation in Welsh Onion Leaves. *Chemosphere*, **267**, Article 128918. <https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2020.128918>
- [14] Xu, L., Zhang, H., Xiong, P., Zhu, Q., Liao, C. and Jiang, G. (2021) Occurrence, Fate, and Risk Assessment of Typical Tetracycline Antibiotics in the Aquatic Environment: A Review. *Science of the Total Environment*, **753**, Article 141975. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2020.141975>
- [15] Zhang, K., Li, K., Hu, F., Xin, R., Fan, P., Lu, Y., et al. (2024) Occurrence Characteristics and Influencing Factors of Antibiotic Resistance Genes in Rural Groundwater in Henan Province. *Environmental Science and Pollution Research*, **31**, 16685-16695. <https://doi.org/10.1007/s11356-024-32258-5>
- [16] Shi, J., Dong, Y., Shi, Y., Yin, T., He, W., An, T., et al. (2022) Groundwater Antibiotics and Microplastics in a Drinking-Water Source Area, Northern China: Occurrence, Spatial Distribution, Risk Assessment, and Correlation. *Environmental Research*, **210**, Article 112855. <https://doi.org/10.1016/j.envres.2022.112855>
- [17] Meng, T., Cheng, W., Wan, T., Wang, M., Ren, J., Li, Y., et al. (2019) Occurrence of Antibiotics in Rural Drinking Water and Related Human Health Risk Assessment. *Environmental Technology*, **42**, 671-681. <https://doi.org/10.1080/09593330.2019.1642390>
- [18] Lyu, J., Yang, L.S., Chen, Y.Y., Ye, B.X., Zhang, L. and Wang, L. (2021) Risk Assessment of Antibiotic Prevalence in Drinking Water and Its Impacts on Human Health in China. *Applied Ecology and Environmental Research*, **19**, 219-236. https://doi.org/10.15666/aeer/1901_219236
- [19] de Jesus Gaffney, V., Almeida, C.M.M., Rodrigues, A., Ferreira, E., Benoliel, M.J. and Cardoso, V.V. (2015) Occurrence of Pharmaceuticals in a Water Supply System and Related Human Health Risk Assessment. *Water Research*, **72**, 199-208. <https://doi.org/10.1016/j.watres.2014.10.027>
- [20] Zhang, X., Gong, Z., Allinson, G., Xiao, M., Li, X., Jia, C., et al. (2022) Environmental Risks Caused by Livestock and Poultry Farms to the Soils: Comparison of Swine, Chicken, and Cattle Farms. *Journal of Environmental Management*, **317**, Article 115320. <https://doi.org/10.1016/j.jenvman.2022.115320>
- [21] Daliri, M., Martinez-Morcillo, S., Sharifinia, M., Javdan, G. and Keshavarzifard, M. (2022) Occurrence and Ecological Risk Assessment of Antibiotic Residues in Urban Wastewater Discharged into the Coastal Environment of the Persian Gulf (the Case of Bandar Abbas). *Environmental Monitoring and Assessment*, **194**, Article No. 905. <https://doi.org/10.1007/s10661-022-10579-7>
- [22] 中华人民共和国农业农村部. GB 31650-2019 食品安全国家标准 食品中兽药最大残留限量[S]. 北京: 中国标准出版社, 2019.
- [23] Spielmeyer, A., Breier, B., Großmeier, K. and Hamscher, G. (2015) Elimination Patterns of Worldwide Used Sulfonamides and Tetracyclines during Anaerobic Fermentation. *Bioresource Technology*, **193**, 307-314. <https://doi.org/10.1016/j.biortech.2015.06.081>
- [24] Zhang, R., Zhang, G., Zheng, Q., Tang, J., Chen, Y., Xu, W., et al. (2012) Occurrence and Risks of Antibiotics in the Laizhou Bay, China: Impacts of River Discharge. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, **80**, 208-215. <https://doi.org/10.1016/j.ecoenv.2012.03.002>
- [25] 李威, 李佳熙, 李吉平, 吕宝玲, 张银龙. 我国不同环境介质中的抗生素污染特征研究进展[J]. 南京林业大学学报(自然科学版), 2020, 44(1): 205-214.