

3种抗生素在小白菜中的积累迁移及风险评估

牛 达^{1,2}, 吴佳睿^{1,3}, 苏国成¹, 杨名平², 江锋², 孙雪珂², 周常义¹

(1. 集美大学海洋食品与生物工程学院, 福建 厦门 361021; 2. 厦门中集信检测技术有限公司, 福建 厦门 361100; 3. 黄鹤楼科技园(集团)有限公司, 湖北 武汉 430040)

[摘要] 为了探究土壤中氯霉素类抗生素对小白菜生长的影响及累积迁移规律, 并进行健康风险评估。通过盆栽试验, 在含有不同质量比(0, 5, 10, 25 mg/kg)的氟苯尼考、氯霉素、甲砒霉素土壤中种植小白菜, 检测根茎叶中各抗生素的累积量; 采用富集系数、迁移系数分析土壤-小白菜体系的迁移累积特性, 并采用风险商值(hazard quotient, HQ)进行健康风险评估。结果表明: 小白菜中氟苯尼考、氯霉素、甲砒霉素的累积量分别是4.71~410, 0~0.359, 0~0.161 $\mu\text{g/kg}$; 对于小白菜的不同部位, 甲砒霉素累积量为根>茎>叶, 氯霉素和氟苯尼考为叶>茎>根; 小白菜体内生物富集程度为氟苯尼考>氯霉素>甲砒霉素; 3种抗生素的迁移能力为氟苯尼考>氯霉素>甲砒霉素。当土壤中甲砒霉素质量比 $\leq 25\text{ mg/kg}$ 时, 成人HQ<0.1; 当土壤中氟苯尼考质量比 $\geq 10\text{ mg/kg}$ 时, 成人HQ>0.1; 当土壤中氟苯尼考质量比 $\geq 25\text{ mg/kg}$ 时, 儿童HQ>1。可见, 3种抗生素均可在小白菜中迁移累积, 迁移能力、累积情况与抗生素种类有关, 根部易累积甲砒霉素, 叶部易累积氯霉素和氟苯尼考; 氟苯尼考迁移能力和富集能力最强; 当土壤中抗生素浓度达到一定程度时, 生长的小白菜对人体健康有一定的风险。

[关键词] 氯霉素; 氟苯尼考; 甲砒霉素; 小白菜; 土壤; 迁移; 累积; 健康风险评估

[中图分类号] S 151.9; X 592

Accumulation and Migration Characteristics and Risk Assessment of Three Antibiotics in Pakchoi

NIU Da^{1,2}, WU Jiarui^{1,3}, SU Guocheng¹, YANG Mingping², JIANG Feng², SUN Xueke², ZHOU Changyi¹

(1. College of Ocean Food and Biological Engineering, Jimei University, Xiamen 361021, China;

2. Xiamen Zhongjixin Testing Co. Ltd, Xiamen 361100, China;

3. Huanghelou Science Park(Group) Co., Ltd, Wuhan 430040, China)

Abstract: This study investigated the effect of chloramphenicol antibiotics in the soil on the growth and the accumulation in pakchoi(*Brassica chinensis* L.) and further assessed the health risk of them. Pakchoi was planted in soil containing florfenicol, chloramphenicol and thiamphenicol at different concentrations(0, 5, 10, 25 mg/kg) using a pot experiment. The accumulation of antibiotics in the roots, stems and leaves were detected. The enrichment and migration coefficient were used to analyze the migration and accumulation characteristics of the soil-pakchoi system. And the health risk assessments were evaluated using hazard quotient(HQ). The cumulative amounts of florfenicol, chloramphenicol and thiamphenicol in pakchoi were 4.71-410, 0-0.359, 0-0.161 $\mu\text{g/kg}$, respectively. The accumulation of thiamphenicol in different parts of pakchoi was root > stem >

[收稿日期] 2021-03-02

[基金项目] 国家星火计划项目(2015GA721001)

[作者简介] 牛达(1995—), 男, 硕士生, 从事食品安全与检测方向研究。通信作者: 周常义(1971—), 女, 副教授, 从事食品安全与生物技术方向研究。E-mail: chyizhou@163.com

leaf while that of chloramphenicol and florfenicol were leaf > stem > root. The order of bioaccumulation in pakchoi was florfenicol > chloramphenicol > thiamphenicol. The migration ability of these antibiotics was florfenicol > chloramphenicol > thiamphenicol. When the concentration of thiamphenicol in the soil was less than or equal to 25 mg/kg, human's HQ was less than 0.1. When the concentrations of florfenicol in the soil was more than 10 mg/kg, human's HQ was higher than 0.1; while the concentrations was higher than 25 mg/kg, children's HQ was higher than 0.1. These antibiotics could migrate and accumulate in pakchoi. The migration and enrichment ability were correlated with the types of antibiotics. The root was easy to accumulate thiamphenicol, and the leaf was easy to accumulate chloramphenicol and florfenicol. Florfenicol had the strongest migration and enrichment ability among three antibiotics. When the concentration of antibiotics in the soil reached a certain level, the growing pakchoi had a certain health risk to people.

Keywords: chloramphenicols; florfenicol; thiamphenicol; pakchoi; soil; migration; accumulation; health risk assessment

0 引言

抗生素是一类由微生物或高等动植物产生的具有抗病原体或其他活性的次级代谢产物，常用的抗生素有超过 150 种^[1]。氯霉素类抗生素是一种常用的广谱抗生素，对革兰氏阳性菌和革兰氏阴性菌均有效果，经常作为药物用于人畜疾病的治疗^[2]。据估计，到 2030 年，中国将成为最大的兽用抗生素消费国^[3]。

30% ~ 90% 的抗生素会通过人体及动物的尿液、粪便等排泄物或生产废水排入环境当中^[4]。每年我国畜禽排泄物约有 40 亿 t，一部分直接排放，污染土壤环境，另一部分被制成有机肥料，间接污染土壤环境。抗生素最终会通过径流或浸出的方式对土壤、地表水及地下水造成污染^[5]，如 Li 等^[6]在北京温室蔬菜生产基地土壤中检测到了 $\mu\text{g}/\text{kg}$ 水平的多种抗生素，中国南部珠江三角洲的农田土壤中也存在多种不同的抗生素污染^[7]。由于大量施加畜禽粪便作肥料，有机蔬菜基地的土壤与常规田地相比具有更高浓度的抗生素。Hu 等^[8]在中国北方蔬菜基地施用的粪肥中检测到了多种高浓度抗生素，且土壤中抗生素的质量比可达 $\mu\text{g}/\text{kg}$ 至 mg/kg （干重）^[7]。有研究表明，抗生素浓度随着土壤深度的增加而下降，菜地亚表层土壤抗生素总量为表层的 4.5 倍，氯霉素的含量增加了几倍^[9]。茶园亚表层土壤抗生素的种类分布，即便是在深度（>20 cm）的土层剖面仍能检测到一定量的氯霉素。已有研究表明，食用回用废水灌溉的玉米和水稻，人体氯霉素抗生素暴露量的日均人体暴露量可达 0.34 ~ 21.8 μg ^[7]。因此，研究农作物在残留有抗生素土壤中的生长情况以及抗生素的吸收累积规律，对于抗生素污染土壤的合理利用和农作物安全生产具有重要的参考价值。并且，已有研究表明，植物生长会吸收环境中的抗生素，如 Wang 等^[10]的研究发现，萝卜和小白菜生长均积累了磺胺甲恶唑、诺氟沙星，而检测机构却很少对蔬菜类进行抗生素检测。植物对抗生素的吸收、迁移、累积与抗生素性质、植物个体差异有关，目前尚未明确植物吸收氯霉素类抗生素的机制以及氯霉素类抗生素对于植物生长的影响，只有植物吸收抗生素的 3 个相关研究方向，即亲脂性抗生素通常在植物根系上被吸收、抗生素可以聚集在植物液泡内、通过植物细胞质膜上电吸引作用牵引吸收^[11]。本研究在含有不同浓度的 3 种抗生素的土壤中种植小白菜（*Brassica chinensis* L.），探究土壤中氯霉素类抗生素对于小白菜生长影响，并通过 UPLC-MS/MS 检测小白菜根茎叶各部分以及土壤中的 3 种抗生素含量，从而推断 3 种氯霉素类抗生素对小白菜生长的影响，同时采用富集系数、迁移系数分析 3 种氯霉素类抗生素在土壤-小白菜系统中的累积迁移特性，并且对小白菜可食用部分进行人类健康风险评估，为小白菜在氯霉素类抗生素污染土壤种植安全性评价研究奠定基础。

1 材料与方法

1.1 材料、试剂与仪器

1.1.1 供试材料

供试小白菜为德州市德高蔬菜种苗研究所生产的不结球小白菜“鸡毛”种。供试土壤为山东寿光农产品公司的有机营养土, pH=6.5, 有机质质量比为 31.2 g/kg, 氮质量比为 17.6 g/kg, 磷质量比为 11.4 g/kg。

1.1.2 主要试剂

氯霉素标准品 (99.24%); 甲砒霉素标准品 (98.5%); 氟苯尼考标准品 (99.1%), Dr. Ehrenstorfer; 氯霉素~D5 标准品 (100 mg/L), 农业部农产品质量标准研究中心; 甲酸 (色谱纯), 美国 Tedia 公司; 甲醇、乙腈 (色谱纯/分析纯), 德国默克试剂公司; 乙酸乙酯 (分析纯), 正己烷 (色谱纯), 百灵威科技有限公司; 氯化钠 (分析纯), 无水硫酸钠 (分析纯), 西陇科学股份有限公司。

1.1.3 主要仪器

赛默飞 TSQ Endura 三重四极杆串联质谱仪, 赛默飞 UltiMate 3000 超高效液相色谱仪。

1.2 栽培实验设计

种植箱规格为 80 cm×40 cm×26 cm, 每箱供试土壤 10 kg。实验选择 3 种抗生素混合污染处理, 设置 4 个污染水平: 抗生素质量比分别为 0, 5, 10, 15 mg/kg, 分别为空白组和 3 个实验组, 每个处理 3 组平行。小白菜种植密度为左右间隔 6 cm, 前后间隔 4 cm, 每天浇水, 在自然光照环境下培育。分别检测种植后的土壤中氯霉素抗生素含量, 以及成熟小白菜的各部分氯霉素抗生素含量。

1.3 样品采集与处理

1.3.1 小白菜样品检测

小白菜种植分为空白对照组和处理组, 33 d 种植成熟后, 冲洗, 剪刀分离根茎叶, 小型高速斩拌机打碎, 取空白和处理组各 6 份, 4 组平行, 2 组加标, 加标和内标水平均为 1 μg/kg。

样品前处理参考李亚宁等^[12]和王旭强等^[13]的方法进行: 清洗干净小白菜, 用小型高速斩拌机进行处理, 装入干燥洁净容器在冷冻室备用。样品常温下解冻, 准确称取 5.00 g 试样于洁净干燥的 50 mL 塑料离心管中, 加入乙腈 15.0 mL, 振荡 5 min, 25 ℃ 超声 20 min, 依次加入 5.0 g 氯化钠、8.0 g 无水硫酸钠, 涡旋 3 min, 离心机 8 000 r/min 离心 3 min。取上清液于另一个 50 mL 塑料离心管后, 残渣重复上述步骤合并上清液, 40 ℃ 氮气吹干, 用 5 mL 超纯水溶解残渣。净化处理: 用 3.0 mL 甲醇和 5.0 mL 超纯水预处理连接的 Oasis HLB 柱 (60 mg, 3 mL) 与过柱提取装置, 然后提取液以 3.0 mL/min 的速度全部过柱后, 用 5 mL×2 超纯水淋洗后再用 5.0 mL $V(\text{乙腈}):V(\text{超纯水})=1:7$ 淋洗柱子, 用减压抽滤装置于负压下抽干 10 min。最后用 10.0 mL 乙酸乙酯洗脱, 收集洗脱液于 15 mL 塑料离心管中, 在 40 ℃ 下氮气吹干, 用 $V(\text{乙腈}):V(\text{超纯水})=1:4$ 定容到 1.0 mL, 过 0.22 μm 有机相滤膜, 待 UPLC-MS/MS 上机检测。

1.3.2 土壤样品检测

种植小白菜 33 d 后的土壤分空白组和样品组共 4 组, 取空白组及 3 组不同水平混合污染土壤各 6 份, 4 组平行, 2 组加标, 加标和内标水平均为 1 μg/kg。

样品前处理参考李亚宁等^[12]和章程等^[14]的方法进行: 将土壤样品自然条件下风干, 干燥密闭容器内低温保存。称取 5.00 g 土壤试样于洁净干燥 50.0 mL 塑料离心管中, 加入超纯水 8.0 mL, 涡旋 1.0 min, 振荡 15 min, 加入体积分数为 1% 氨化乙腈 10.0 mL, 25 ℃ 超声 20 min, 依次加入 5.0 g 氯化钠、8.0 g 无水硫酸钠, 涡旋 3 min, 离心机 8 000 r/min 离心 3 min, 取上清液于另一个 50 mL 塑料离心管中, 残渣加入体积分数为 1% 氨化乙腈 10.0 mL, 重复上述步骤合并上清液, 40 ℃ 氮气吹干, 5 mL 超纯水溶解残渣。净化步骤同上。

1.4 液质联用条件

色谱条件: 色谱柱为 ACQUITY HSS T3 色谱柱 (100 mm × 2.1 mm, 1.8 μm); 柱温箱温度为 30 ℃, 进样量为 2 μL; 流动相流速为 0.3 mL/min; 流动相 A 为超纯水, 流动相 B 为甲醇 (色谱纯)。流动相梯度洗脱程序见表 1。

质谱条件: 离子源类型为电喷雾离子源; 喷涂电压为静态; 负离子喷雾电压为 3 200 V; 鞘气、辅助气和反吹气流速分别为 30, 10, 0 arb; 离子传输管温度为 300 ℃; 喷雾温度为 250 ℃。

1.5 数据处理

利用赛默飞 TSQ Quantum series 软件对数据进行采集, 用 Excel 2010 和 SPSS 21.0 对数据进行计算和统计分析, 采用单因素方差分析 (ONEWAY-ANOVA) 检验其相关性和显著性, $P < 0.05$ 认为具有统计学意义, 利用 GraphPad Prism 进行图表绘制。

评价抗生素在土壤-植物体系内吸收、转化和迁移过程中的富集状况和转移能力分别用生物富集系数 (bioconcentration factor, BCF)^[15-16] 和转运系数 (transport factor, TF)^[17] 表示, 计算公式如下:

$$BCF = C_i/B_i,$$

$$TF = C_s/C_r.$$

其中: C_i 表示小白菜某部位抗生素的质量比 (μg/kg); B_i 表示栽种小白菜的土壤中抗生素的质量比 (μg/kg); C_s 表示小白菜某抗生素地上部分的质量比 (μg/kg); C_r 表示栽种小白菜某抗生素地下部分的质量比 (μg/kg)。

人体对抗生素的每日预测摄入量 (estimated daily intake, EDI) 根据式 (3) 计算, 抗生素对人体健康的风险商 (hazard quotient, HQ) 根据式 (4) 计算^[18]。

$$EDI = C \times FIR/BW,$$

$$HQ = EDI/ADI.$$

其中: C 为食品中的抗生素质量比 (μg/kg, 以鲜重计), 鲜基含量以干基含量和含水量换算得到; FIR (food intake recommendation) 为每日摄取食物的量 (kg), 世界卫生组织建议每天摄入 400 g 蔬菜^[19], 《中国居民膳食指南 (2016)》建议中小学生和成年人每人每天对蔬菜的需求量为 300 ~ 500 g^[20], 本文取每日摄食蔬菜 400 g 计算; BW (body weight) 为人体平均体重 (kg), 分别设定成年人体重为 65 kg, 儿童 (7 岁) 体重为 25 kg; ADI 为每日容许摄入量 (allowable daily intake), 取值参照 WHO 的规定^[19]。

2 实验结果及讨论

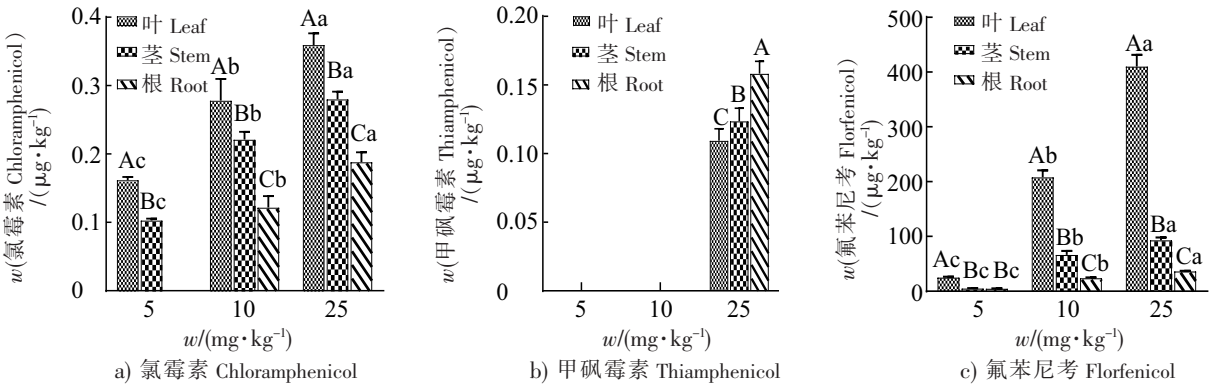
2.1 不同浓度抗生素对小白菜生长的影响及迁移特征

2.1.1 不同浓度抗生素培养下小白菜各部分累积

由图 1 可知, 本次实验空白组均未检测出 3 种抗生素, 土壤中添加抗生素的实验组, 小白菜各部分对于 3 种抗生素均有吸收并富集的能力。氟苯尼考、氯霉素、甲砒霉素在小白菜中的累积量分别为 4.71 ~ 410, 0 ~ 0.359, 0 ~ 0.161 μg/kg; 5 mg/kg 和 10 mg/kg 处理组甲砒霉素均未在小白菜中检出; 随着土壤中氯霉素和氟苯尼考浓度的增加, 小白菜的吸收量也在显著增加; 25 mg/kg 处理组中, 小白菜不同部位甲砒霉素累积量为根 > 茎 > 叶; 氯霉素和氟苯尼考在小白菜不同部位累积量表现为叶 > 茎 > 根; 3 种不同浓度处理组中, 氟苯尼考在小白菜中的累积量最大。小白菜对 3 种氯霉素类抗生素的累积量与土壤中抗生素浓度呈正相关。

表 1 流动相梯度洗脱程序

Tab.1 Gradient elution procedure of mobile phase				
序号 Serial number	t/min	流速 Flow rate/ (mL · min ⁻¹)	流动相比比例 Mobile phase/%	
			A 相 Phase A	B 相 Phase B
1	0	0.300	80	20
2	0.5	0.300	80	20
3	3.5	0.300	5	95
4	4.3	0.300	5	95
5	4.5	0.300	80	20
6	7.0	0.300	80	20



不同小写字母表示处理组间差异显著($P<0.05$);不同大写字母表示相同处理组差异显著($P<0.05$)。下同
The different lowercase letters indicated significant differences between different treatment groups ($P<0.05$);the different uppercase letters indicated significant differences in the same treatment group ($P<0.05$).The same below

图 1 不同处理组中 3 种氯霉素类抗生素在小白菜不同部位的含量

Fig.1 The content of chloramphenicol antibiotics in different parts of pakchoi on different treatments

Kumar 等^[21]的研究显示,卷心菜和大葱都可吸收四环素并将其积累于各组织中。杨晓静等^[22]的研究也表明,泥炭土基质条件下培养的蔬菜中,茎叶中的抗生素浓度高于根部。植物体内抗生素的含量与土壤、抗生素类型、植物品种、植物组织部位等有关。在本实验中,甲磺霉素累积量少可能是因为它具有较强的水溶性,自然条件下使其溶于雨水中,由于种植盆的结构,溶于雨水的甲磺霉素流向土壤深层或者直接流出种植盆,所以吸收量相对较少;也可能是因为复合抗生素之间的相互作用对小白菜转运机制产生拮抗作用导致;或与小白菜生长周期及其特征有关,甲磺霉素存在于下层土壤且转移到上层的能力有限,小白菜生长周期较短,因此未被小白菜吸收。氟苯尼考在小白菜叶中的累积量显著大于根部,说明抗生素由小白菜根系吸收后被储存在叶片中。氯霉素和甲磺霉素在小白菜的各部分累积量无明显差别,说明这 2 种抗生素没有被小白菜大量储存,但仍会随着根部的吸收进入小白菜体内。

2.1.2 含有抗生素土壤培养下小白菜的富集系数

小白菜不同部位对于 3 种氯霉素类抗生素的富集能力如图 2 所示,可见,小白菜各部分的氯霉素富集系数随着土壤浓度的增加均显著降低。氯霉素在小白菜各部分的富集系数为 0.039~0.154,富集系数较小,在高浓度时已经无法继续富集,所以,土壤浓度越高,富集系数越低;小白菜各部分的氟苯尼考富集系数随土壤浓度的增加先显著增加后显著减少,氟苯尼考在小白菜各部分的富集系数为 0.122~2.87,由于其富集系数较高,随着土壤浓度的不断升高,富集能力在中浓度时达到顶峰,随后富集系数降低。各部分抗生素的富集系数大小为:氯霉素为叶>茎>根,甲磺霉素为根>茎>叶,氟苯尼考为叶>茎>根。不同植物对不同抗生素的富集能力有强弱之分,根据生物富集系数程度分

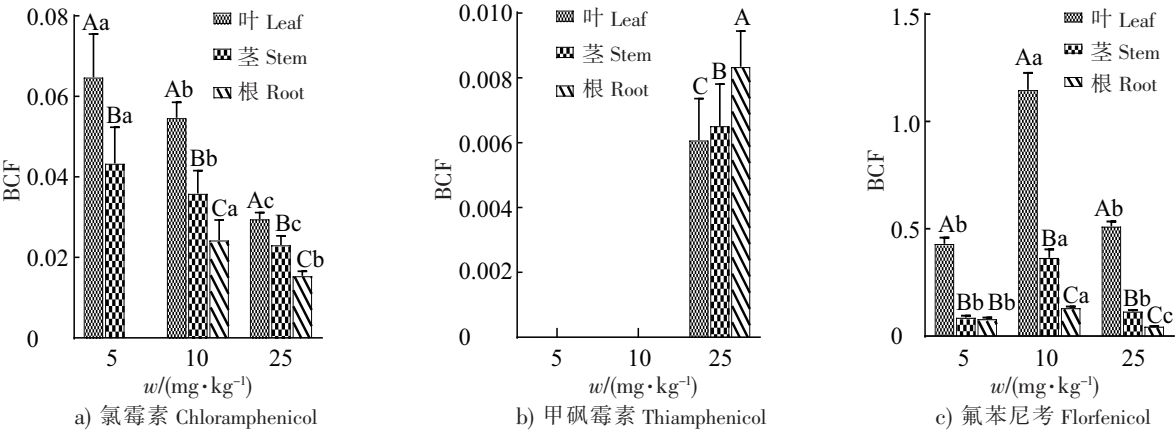


图 2 3 种氯霉素类抗生素在小白菜中的生物富集系数

Fig.2 Bioconcentration coefficients of chloramphenicol antibiotics in pakchoi

级, 小白菜对甲砒霉素和氯霉素可视为无富集, 对氟苯尼考有轻微富集能力。

Miller 等^[23]认为, 在植物根部吸收化合物时, 只有溶解在土壤孔隙水中的化合物才会被植物吸收。因此, 环境因素、植物种类和抗生素自身理化性质决定了该种抗生素在某种植物中的迁移和累积效率。氟苯尼考比其他 2 种抗生素亲脂性更强, 考虑到亨利系数值高于 10^{-4} , 且亲水性较弱的物质易挥发, 通过植物叶片表面的气孔进入植物体内, 被截留在叶片角质层的类脂类物质中。甲砒霉素和氯霉素则主要靠根系吸收, 小白菜对其富集能力较弱。

2. 1. 3 含有抗生素土壤培养下小白菜的转运系数

如图 3 所示, 随着土壤氟苯尼考浓度增加, 氟苯尼考转运系数显著增加, 而氯霉素转运系数则无显著性变化。本次实验结果表明, 3 种氯霉素的转运系数均大于 1, 说明 3 种抗生素容易被小白菜根部吸收并向上转运。由图 3 还可以看出, 3 种抗生素均可从根部迁移至地上部分, 氟苯尼考转运系数为 6.97 ~ 14.58, 氯霉素转运系数为 3.23 ~ 4.16, 甲砒霉素转运系数为 1.41 ~ 1.63, 氟苯尼考 > 氯霉素 > 甲砒霉素。转运系数越大, 说明污染物越容易通过根部的吸收进而向植物地上的其他部分迁移, 迁移能力为氟苯尼考 > 氯霉素 > 甲砒霉素。李亚宁等^[12]对磺胺类抗生素磺胺甲恶唑污染的土地上种植辣椒的研究结果表明, 其地上部分的质量比约为其在根中质量比的 2 倍, 与本实验结果相符。

2. 2 土壤-小白菜体系中氯霉素类抗生素健康风险评估

由表 2 可知, 随着土壤中 3 种混合氯霉素类抗生素含量的增加, 小白菜中的氯霉素和氟苯尼考的

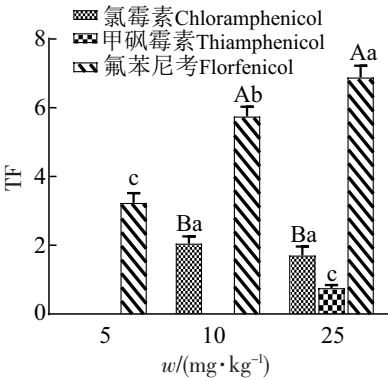


图 3 3 种氯霉素类抗生素在小白菜中的转运系数

Fig.3 The transport coefficients of three chloramphenicol antibiotics in pakchoi

表 2 通过小白菜摄入的氯霉素类抗生素对人体健康的潜在风险

Tab.2 Potential health risks of chloramphenicol antibiotics ingestion by pakchoi							
抗生素种类 Types of antibiotics	土壤质量比 Concentration in soil /(mg · kg ⁻¹)	可食用部分 Edible part (FW)/ (mg · kg ⁻¹)	EDI		ADI/ (μg · (kg · d) ⁻¹)	HQ	
			成人 Adult	儿童 Child		成人 Adult	儿童 Child
氯霉素 Chloramphenicol	5	0.132 4 ± 0.013 ^c	0.000 8 ± 2.21 × 10 ^{-5 c}	0.002 1 ± 1.19 × 10 ^{-4 c}	—	—	—
	10	0.249 6 ± 0.028 ^b	0.001 5 ± 8.69 × 10 ^{-5 b}	0.004 0 ± 1.94 × 10 ^{-4 b}	—	—	—
	25	0.319 9 ± 0.024 ^a	0.002 0 ± 1.02 × 10 ^{-4 a}	0.005 1 ± 2.58 × 10 ^{-4 a}	—	—	—
甲砒霉素 Thiamphenicol	5	n. d.	—	—	5.0	—	—
	10	n. d.	—	—	5.0	—	—
	25	0.121 5 ± 0.018	0.000 7 ± 6.82 × 10 ⁻⁵	0.001 9 ± 7.68 × 10 ⁻⁵	5.0	0.000 1 ± 8.25 × 10 ⁻⁶	0.000 4 ± 2.36 × 10 ⁻⁵
氟苯尼考 Florfenicol	5	15.274 4 ± 0.783 ^c	0.094 0 ± 0.005 ^c	0.244 4 ± 0.028 ^c	3.0	0.031 3 ± 0.003 ^c	0.081 5 ± 0.006 ^c
	10	137.245 2 ± 6.254 ^b	0.844 6 ± 0.036 ^b	2.195 9 ± 0.196 ^b	3.0	0.281 5 ± 0.015 ^b	0.732 0 ± 0.069 ^b
	25	251.624 3 ± 10.254 ^a	1.548 5 ± 0.078 ^a	4.026 0 ± 0.681 ^a	3.0	0.516 2 ± 0.041 ^a	1.342 0 ± 0.093 ^a

不同小写字母表示处理组间差异显著 ($P < 0.05$)。

The different lowercase letters indicated significant differences for the treated groups ($P < 0.05$) .

含量显著增加, 对人体的危害也会增大。由于儿童摄入蔬菜量相对自身体重比例更高, 因此, 儿童摄入含抗生素的蔬菜危害大于成人。对于非药用抗生素通过饮食长期低剂量暴露对人体健康造成的威胁, 通常采用 HQ 进行评估^[24-25]。该方法同时适用于饮用水、动物性食品、蔬菜和粮食等, 通常认为, 当 HQ > 1 时存在风险^[26], 但也有学者认为当 HQ > 0.1 时便有潜在的风险^[27]。数据显示, 当氟苯尼考在土壤中的质量比达到 10 mg/kg 时, 成人和儿童的 HQ > 0.1, 说明具有潜在的健康风险。氟苯尼考在土壤中的质量比达到 25 mg/kg, 儿童的 HQ > 1, 说明对儿童的健康构成威胁。本次实验的所有处理组中甲砒霉素 HQ 均小于 0.01。实验中氟苯尼考抗生素的 HQ 值大于甲砒霉素。由于国家规定在所有食品中氯霉素不得检出, 所以没有氯霉素 ADI 值, 而本次实验证明, 土壤中的氯霉素会迁移进入小白菜体内从而对人体造成危害。

3 结论

1) 小白菜体内 3 种氯霉素类抗生素累积量随土壤含量增加而增加; 氟苯尼考与氯霉素在小白菜不同部位的累积状况是叶 > 茎 > 根; 甲砒霉素在小白菜体内的累积状况是根 > 茎 > 叶。氟苯尼考富集系数超过氯霉素 10 倍以上, 超过甲砒霉素 100 倍以上; 在小白菜叶中, 氟苯尼考生物富集系数达到中度富集的程度; 3 种抗生素均易从根部迁移到小白菜地上部分, 小白菜中 3 种抗生素的迁移能力为氟苯尼考 > 甲砒霉素 > 氯霉素。

2) 当土壤中甲砒霉素质量比低于 25 mg/kg 时, 生长的小白菜对人类健康没有风险 (HQ < 0.1); 当土壤中氟苯尼考质量比高于 10 mg/kg 时, 生长的小白菜对人类健康有潜在的风险 (HQ > 0.1); 当土壤中氟苯尼考质量比高于 25 mg/kg 时, 生长的小白菜对儿童健康有风险 (HQ > 1)。土壤中氯霉素类抗生素残留对小白菜的生长和累积有一定影响, 种植和食用时需考虑其风险。

[参 考 文 献]

- [1] TASHO R P, CHO J Y. Veterinary antibiotics in animal waste, its distribution in soil and uptake by plants: a review [J]. *Science of the Total Environment*, 2016, 563/564: 366-376. DOI:10.1016/j.scitotenv.2016.04.140.
- [2] IMPENS S, REYBROECK W, VERCAMMEN J, et al. Screening and confirmation of chloramphenicol in shrimp tissue using ELISA in combination with GC-MS2 and LC-MS2 [J]. *Analytica Chimica Acta*, 2003, 483(1/2): 153-163. DOI: 10.1016/S0003-2670(02)01232-1.
- [3] BERENDONK T U, MANAIA C M, MERLIN C, et al. Tackling antibiotic resistance: the environmental framework [J]. *Nature Reviews Microbiology*, 2015, 13(5): 310-317. DOI:10.1038/nrmicro3439.
- [4] WANG F H, QIAO M, CHEN Z, et al. Antibiotic resistance genes in manure-amended soil and vegetables at harvest [J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2015, 299: 215-221. DOI:10.1016/j.jhazmat.2015.05.028.
- [5] XIE W Y, MCGRATH S P, SU J Q, et al. Long-term impact of field applications of sewage sludge on soil antibiotic resistance [J]. *Environmental Science & Technology*, 2016, 50(23): 12602-12611. DOI:10.1021/acs.est.6b02138.
- [6] LI C, CHEN J, WANG J, et al. Occurrence of antibiotics in soils and manures from greenhouse vegetable production bases of Beijing, China and an associated risk assessment [J]. *Science of The Total Environment*, 2015, 521/522: 101-107.
- [7] PAN M, CHU L M. Transfer of antibiotics from wastewater or animal manure to soil and edible crops [J]. *Environmental Pollution*, 2017, 231: 829-836. DOI:10.1016/j.envpol.2017.08.051.
- [8] HU X G, ZHOU Q X, LUO Y. Occurrence and source analysis of typical veterinary antibiotics in manure, soil, vegetables and groundwater from organic vegetable bases, northern China [J]. *Environmental Pollution*, 2010, 158(9): 2992-2998. DOI:10.1016/j.envpol.2010.05.023.
- [9] 潘霞, 陈励科, 卜元卿, 等. 畜禽有机肥对典型蔬果地土壤剖面重金属与抗生素分布的影响 [J]. *生态与农村环境学报*, 2012, 28(5): 518-525.
- [10] WANG J M, LIN H, SUN W C, et al. Variations in the fate and biological effects of sulfamethoxazole, norfloxacin and doxycycline in different vegetable-soil systems following manure application [J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2016,

- 304; 49-57. DOI:10.1016/j.jhazmat.2015.10.038.
- [11] WU X Q, ERNST F, CONKLE J L, et al. Comparative uptake and translocation of pharmaceutical and personal care products (PPCPs) by common vegetables [J]. *Environment International*, 2013, 60:15-22. DOI:10.1016/j.envint.2013.07.015.
- [12] 李亚宁, 张丽红, 吴鹏, 等. 磺胺类抗生素在土壤中的迁移转化及植物效应 [J]. *安全与环境学报*, 2019, 19(4): 1425-1430.
- [13] 王旭强, 孙文闪, 冯均利, 等. 液质联用法测定蔬菜、水果、土壤中的溴氰虫酰胺残留 [J]. *福建分析测试*, 2019, 28(2): 1-4.
- [14] 章程. 典型抗生素在土壤-植物中的迁移及其机制 [D]. 北京: 中国农业科学院, 2018.
- [15] MICHELINI L, REICHEL R, WERNER W, et al. Sulfadiazine uptake and effects on *Salix fragilis* L. and *Zea mays* L. plants [J]. *Water, Air & Soil Pollution*, 2012, 223(8): 5243-5257. DOI:10.1007/s11270-012-1275-5.
- [16] YU X L, LIU X X, LIU H, et al. The accumulation and distribution of five antibiotics from soil in 12 cultivars of pak choi [J]. *Environmental Pollution*, 2019, 254:113115. DOI:10.1016/j.envpol.2019.113115.
- [17] 葛依立, 陈心胜, 黄道友, 等. 湿地植物水蓼 (*Polygonum hydropiper* L.) 对镉的富集特征及生理响应 [J]. *生态毒理学报*, 2020, 15(2): 190-200.
- [18] PROSSER R S, SIBLEY P K. Human health risk assessment of pharmaceuticals and personal care products in plant tissue due to biosolids and manure amendments, and wastewater irrigation [J]. *Environment International*, 2015, 75: 223-233. DOI:10.1016/j.envint.2014.11.020.
- [19] PENNANT M, STEUR M, MOORE C, et al. Comparative validity of vitamin C and carotenoids as indicators of fruit and vegetable intake: a systematic review and meta-analysis of randomised controlled trials [J]. *British Journal of Nutrition*, 2015, 114(9): 1331-1340. DOI:10.1017/S0007114515003165.
- [20] 中国营养学会. 中国居民膳食指南 (2016) [M]. 北京: 人民卫生出版社, 2016.
- [21] KUMAR D, GORAIN M, KUNDU G, et al. Therapeutic implications of cellular and molecular biology of cancer stem cells in melanoma [J]. *Molecular Cancer*, 2017, 16(1): 7. DOI:10.1186/s12943-016-0578-3.
- [22] 杨晓静. 蔬菜中抗生素的分析及吸收规律研究 [D]. 大连: 大连理工大学, 2017.
- [23] MILLER E L, NASON S L, KARTHIKEYAN K G, et al. Root uptake of pharmaceuticals and personal care product ingredients [J]. *Environmental Science & Technology*, 2016, 50(2): 525-541. DOI:10.1021/acs.est.5b01546.
- [24] 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 and Food Chemistry*, 2015, 63(2): 398-405. DOI:10.1021/jf5034637.
- [25] 刘娣. 土壤-蔬菜系统中四环素类抗生素迁移积累与污染的细胞诊断方法 [D]. 杭州: 浙江大学, 2017.
- [26] LIU X J, LIANG C Z, LIU X H, et al. Occurrence and human health risk assessment of pharmaceuticals and personal care products in real agricultural systems with long-term reclaimed wastewater irrigation in Beijing, China [J]. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 2020, 190:110022. DOI:10.1016/j.ecoenv.2019.110022.
- [27] MAHMOUD M A M, ABDEL-MOHSEIN H S. Hysterical tetracycline in intensive poultry farms accountable for substantial gene resistance, health and ecological risk in Egypt-manure and fish [J]. *Environmental Pollution*, 2019, 255: 113039. DOI:10.1016/j.envpol.2019.113039.

(责任编辑 马建华 英文审校 刘静雯)