

水环境中抗生素的主要来源和残留分析

作者 1^{1,2}, 作者 2^{2*}, 作者 3¹, 作者 4³

1. 作者单位, 城市 000000

2. 作者单位, 城市 000000

3. 作者单位, 城市 000000

* 通信作者. E-mail: abc@xxxx.xxx

基金资助

摘要 抗生素在水生环境中的残留引起了人们的广泛关注, 因为它可能导致细菌出现耐药性, 从而降低抗生素的治疗效果。由于在农业和人类医疗的不合理地使用抗生素, 使得这一问题更加严重。此外, 由于缺乏适当的污水处理设施会导致抗生素在水生环境中的广泛扩散。本文的目的是全面综述水生环境中抗生素的所有相关来源。除了来自水产养殖和畜禽养殖等常见抗生素来源外, 还包括将抗生素大量释放到水环境中的其他活动。研究了与这些来源相关的抗生素种类和环境中残留情况, 以说明水生环境中抗生素存在的危害

关键词 关键词 1, 关键词 2, 关键词 3, 关键词 4, 关键词 5

Title

Ming XING^{1,2}, Mingming XING^{2*}, Ming XING¹ & Ming XING³

1. *Affiliation, City 000000, Country;*

2. *Affiliation, City 000000, Country;*

3. *Affiliation, City 000000, Country*

* Corresponding author. E-mail: abc@xxxx.xxx

Abstract An abstract (about 200 words) is a summary of the content of the manuscript. It should briefly describe the research purpose, method, result and conclusion. The extremely professional terms, special signals, figures, tables, chemical structural formula, and equations should be avoided here, and citation of references is not allowed.

Keywords keyword1, keyword2, keyword3, keyword4, keyword5

0 前言

抗生素广泛应用于人类和动物疾病的治疗和预防 [1], 是治疗人类和动物感染性疾病的有效药物或者疾病预防药物, 而且抗生素也被作为生长促进剂在畜牧业中大量应用 [2]。我国是抗生素生产和使用大国。我国被认为是“世界上滥用抗生素问题最严重的国家之一” [3]。据相关研究报告, 我国在 2013 年抗生素总使用量达 162 万吨, 其中 48 种抗生素的生产和使用导致人类和动物死亡率和发病率显著降低。但是抗生素的大量生产和消费也导致了抗生素在环境中随处可见的情况 [5]。在水环境中如湖泊、河流、水库、污水处理厂的进水和出水, 地下水甚至已经处理过的饮用水中都发现了抗生素的存在 [6,7]。抗生素的潜在危害是即使在低浓度环境下也会使细菌产生耐药性, 产生超级细菌 [8,9]。因此, 抗生素是被认为是新出现的环境污染物 [6], 抗生素的过度使用和滥用是细菌耐药性产生和扩散的关键因素。水环境中的抗生素来源于各个方面: 城市污水 (医院和市政污水, 包括家庭废水大部分) [10,11], 农业 (水产养殖、畜牧业) [12,13] 和制药企业 [14] (见图 1)。每个来源在不同的国家和地区的贡献程度是不同的。例如, 德国的畜禽养殖和水产养殖的贡献很小, 而人类医疗是主要来源 (Hirsch 等人, 1999 年)。在台湾, 与水产养殖和污水处理厂的废水相比, 制药企业是抗生素的主要来源 (Lin 等人, 2008 年)。随着我国经济的飞速发展, 抗生素的使用已经非常普遍, 抗生素在环境中的残留对生态系统和人类健康已经构成了重大威胁, 引起人们高度关注。抗生素治理问题已经刻不容缓, 但是目前的常规污水处理方法对抗生素的去除率很低 (列举几个文献), 无法有效去除污水中抗生素, 从源头阻止抗生素进入水环境中是一种行之有效的方法。因此, 本综述旨在从源头分析抗生素污染物的来源和在环境中的残留情况, 阐述抗生素在环境水域的应用情况。为了解抗生素在水环境中的概况,

提供更加全面的情况, 并为控制抗生素污染的政策提供依据。

图片如1所示。

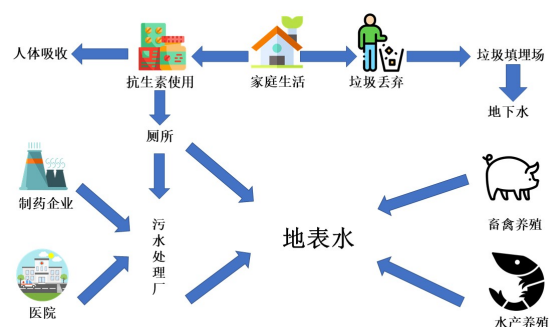


图 1 抗生素进入水环境的途径

Figure 1 Caption

1 水中抗生素来源

1.1 医疗

1.1.1 医院中抗生素使用情况

据 2006-2007 年度卫生部全国细菌耐药监测结果显示, 全国医院抗菌药物年使用率高达 74 直到 2011 年中国卫生部发起的人体医疗体制改革, 中国才开始有效控制抗生素的处方模式 [20]。据报道, 接受抗生素处方的住院患者比例在一年内下降了 10 造成中国滥用抗生素的因素有很多。首先, 许多医生认为广谱抗生素是治疗多种感染最有效的方法, 并依赖于经验性治疗 [19]。其次, 患者对抗生素不了解, 认为这些药物会更有疗效。最关键的是, 中国复杂的卫生体系, 加上医生开出更多药物的经济激励措施, 很可能会影响药物的合理使用 [25]。抗生素的大量使用容易造成人体内菌群失调、破坏正常菌群结构、产生大量耐药菌株, 使患者的药物使用量越来越大, 增加患者的疾病负担。抗生素的抗菌效果大同小异, 很多时候医师在开具处方时, 药物作用相近, 重复用药, 导致患抗生素耐药, 增加了患者不良

反应等。基层医院住院患者抗生素不合理用药现象普遍存在,应该全面加强用药管理,制定目标性的管理制度,禁止抗生素滥用。[26]

1.1.2 医院废水抗生素残留

我国是抗生素的使用大国,人口众多,加之医生对抗生素滥用的情况严重,这就造成了医院废水中含有大量的抗生素,而且我国医院污水多采用一级强化处理工艺[27],简易的混凝沉淀并不能有效去除医院污水中残留的抗生素。有研究证实医院废水是自然水体中抗生素的主要来源之一[28]。大多数在医院废水中发现的抗生素浓度较高,远远超过城市河流水或城市废水,特别是头孢类、喹诺酮类和四环素类抗生素[29,30]。在其他医院废水中也报告了类似的结果[31,32]。这可能归因于它们的大量的医疗消耗[33]。不同类别医院废水中的抗生素总类也有很大区别,对海口市3家医院废水中的抗生素类药物残留研究发现,医院废水中6种抗生素的浓度介于3.546 g/L至53.356 g/L之间,远远高环境水体抗生素的浓度水平。6种抗生素的去除率介于36.3 100%[34]。

1.2 水产养殖

1.2.1 水产养殖中抗生素使用情况

在我国,随着国内水产养殖集约化的不断发展,水产养殖单位面积产量显著增加,在养殖中使用抗生素来治疗或预防感染和促进生长已经成为一种常见做法。抗生素显著的抗菌能力和低副作用使其成为水产养殖上疾病防治的常用药物。常用于水产养殖的抗生素:应用在水产养殖中的抗生素种类主要有喹诺酮类、磺胺类、四环素类、大环内酯类、氨基糖苷类等,其中四环素类抗生素已经在水产养殖业中广泛使用,具有广谱性和低毒性等特点。已有报道的四环素类抗性基因就有40多种在水产养殖业中传播和扩散【8】。

中国在水产养殖上投入了大量资金,是全球最大的养殖鱼类生产国[35]。为了维持高种群密度的水产养殖,需要大量投入,包括饲料,改良剂,有机肥料以及抗生素等药物(Bosma和Verdegem,2011),来预防多种细菌性疾病(Heuer等,2009)。人们对水产养殖生态系统中抗生素使用的增加已经引起广泛关注(Seyfried等,2010;Xiong等,2015)。根据对中国河流流域抗生素排放和来源的综合评估,2013年,包括鱼类在内的食用动物养殖量为13,700吨,占抗生素总量的80%以上(Zhang等人,2015)。与智利的鲑鱼养殖相似,药物饲料和直接喷洒是中国抗生素管理的主要方法(Shah等人,2014)。消化或未消化的抗生素将最终出现在水产养殖周围的水环境中(Cabello等,2013)。水中的抗生素负担最终将成为水产养殖生态系统的潜在生态风险,例如抑制水生生态系统生物地球化学功能所依赖的初级生产力(Andrieu等人,2015)。诸如氮吸收,有机物氧化之类的生态系统功能可能会由于初级生产力的丧失而受到阻碍(Celine and An-niet,2015)。但是,最近的研究尚未很好地探索中国水产养殖环境中抗生素使用的特征(Chen等人,2015)。

养殖区使用喹诺酮类抗生素较普遍

郝红珊等对大亚湾、珠海的渔业养殖区进行采样分析,在海水中检出6中抗生素奇霉素(4.68ng/L),氧氟沙星(3.19ng/L),诺氟沙星(2.09ng/L),头孢噻肟钠(1.58ng/L),甲氧苄氨嘧啶(0.54ng/L)和磺胺甲恶唑(0.13ng/L)、沉积物中13中抗生素、生物样(鱼类和贝壳)中18种抗生素。[36]

在中国,用于水产养殖的抗生素超过30种属于磺胺的抗生素,BACT法AM、Quinolones、大环内酯、CYCLINES和一些其他抗生素组被允许以有限的量使用(表2)。同时,一些广谱抗生素如氯霉素,大多数氟喹诺酮类和硝基咪唑类被禁止在水产养殖中使用,因为它们对人类健康可能对水产养殖产品的消费产生影响(MARD,2014年)。蚂蚁数越南可用于水产养殖的益生菌

远高于其他国家,如美国,那里只有4种抗生素(土霉素、氟苯尼考、磺胺嘧啶和 orme)。可用于水产养殖(Chuah 等人,2016 年)。由于这个行业允许大量使用抗生素,因此很难控制抗生素的使用,并有可能增加使用抗生素的风险。不合理使用 and 环境污染。

抗生素在水产养殖中的应用因品种和养殖阶段的不同而不同。根据 TAI(2004),越南 376 种水产养殖产品中有 138 种抗生素制剂。NG 占 36.7 Antibiotic residues from aquaculture 在接受虾或养鱼业废水的水体中检测到各种抗生素,这些抗生素是由于它们的共同用途而被发现的。据 Giang 等人说。(2015 年),占地表水的 91.6

抗生素还会影响水体细菌群落,张云石等研究了磺胺甲吧恶唑对罗非鱼养殖水体细菌群落的影响,发现磺胺甲吧恶唑在中、高浓度剂量下对养殖水体细菌的生物多样性有不同程度的降低影响显著,使得水体菌群向物种丰度降低、优势种明显的趋势发展。(细菌产生耐药性) [37]

徐磊等人在湖州地区养殖水和底泥中分别检测到 9 种和 13 种抗生素,平均浓度在 0.1ng/L~428.8ng/L 和 10.0ng/Kg~3681.6ng/Kg 之间,其中养殖水中以磺胺类为主,底泥中以四环素类和喹诺酮类为主。[38]

中国在水产养殖技术方面投入了大量投资,是全世界最大的养殖鱼类生产国(纳勒等人,2000 年;渔业局,2014 年)。需要大量的输入来维持高电 STOSTOCK 密度水产养殖,包括饲料、改性剂、有机肥料和药物,如抗生素(BoSMA 和 VerdeGem, 2011),其有助于防止多种细菌性疾病(Heuer 等,(2009 年)。人们十分重视水产养殖生态系统中抗生素使用量的增加(Seyfriet al., 2010 年; Xong 等人, 2015 年)。根据抗生素的综合评价 2013 年,中国江河流域包括鱼类在内的食用动物的排放和归宿为 13,700 吨,占抗生素总量的 80

[35] 在中国太湖的周边 24 个鱼塘进行采样检测,所调查的 15 类抗生素均在水样中检出,检

出频率为 2~60

中国在水产养殖技术方面投入了大量投资,是全世界最大的养殖鱼类生产国(纳勒等人,2000 年;渔业局,2014 年)。需要大量的输入来维持高电 STOSTOCK 密度水产养殖,包括饲料、改性剂、有机肥料和药物,如抗生素(BoSMA 和 VerdeGem, 2011),其有助于防止多种细菌性疾病(Heuer 等,(2009 年)。人们十分重视水产养殖生态系统中抗生素使用量的增加(Seyfriet al., 2010 年; Xong 等人, 2015 年)。根据抗生素的综合评价 2013 年,中国河流流域的排放和命运,包括鱼类在内的食品动物的农业在 2013 年负责 13700 吨,占抗生素总量的 80 与智利的鲑鱼养殖类似,药物饲料和直接喷溅是中国使用抗生素的主要方法(Shah 等人,2014 年)。消化或未消化抗生素 d 最后进入周围的水产养殖环境(Cabello 等人, 2013 年)。水中的抗生素负担最终会对水产养殖生态系统造成潜在的生态风险,例如抑制 Primar. e 初级生产力的丧失(Celine 和 Anniet, 2015 年)。然而,最近的研究还没有很好地探索抗生素在中国水产养殖环境中的使用特点(Chen 等人)。2015)。

1.2.2 水产养殖中抗生素的残留情况

水产品含有大量的抗生素,容易给人们的健康带来威胁 [5]。史朝斌对某养殖场研究发现。鱼体中检测出含量超过安全残留量的 50 由于它们的共同使用,在从虾或养鱼中接收废水的水体中检测到了各种基团的抗生素。根据 Giang 等人(2015), 91.6 由于氟喹诺酮类抗生素在水产养殖中的广泛应用,它们在不同浓度水平的多种水生环境中经常被检测到。看 t 是合理的..在 PangasusCat-FishFarmi 的废水管道排放点处,最高浓度(最高达 680ng/L1)发现最常见的抗生素帽恩诺沙星浓度最高达 680ng/L1。Nto 运河(Andrieu 等人, 2015 年),在虾场废水中分别高于氧氟沙星和诺氟沙星(238.6 纳克 L1

和 44.4 纳克 L⁻¹) (Takasu 等人, 2011 年)。值得注意的是, 尽管自 2009 年以来, 水产养殖中禁止使用氟喹诺酮类药物, 特别是恩诺-氟沙星 (MARD, 2014 年), 但据报道, 它们仍被用于鲶鱼养殖 (Andrieu 等人, 2015 年; Giang 等人, 2015) 以及虾养殖 (Chi 等, 2017)。和大量使用抗生素在水产养殖中的应用污染水, 但也污染沉积物阶段, 因为抗生素积累在沉积物中, 随着未消耗的饲料颗粒的沉降。氟喹诺酮类抗生素的掺入进入沉积物可能会增加它们在环境中的持久性, 并随后延长它们的不利影响 (Le 和 Munekage, 2004 年; Andrieu 等人, 2015 年; Giang 等人, 2015 年)。恩诺沙星在运河和河流中普遍存在, 在 Canal (Giang 等人, 2015) 的浓度高达 59ngL⁻¹ 的情况下, 这些河流和河流都接收到水产养殖废水。其他五氯苯酚抗生素 (NOR、LOM 和 CIP) 在虾场、养鱼场、养猪场和养鸭场收集的地表水和废水中检测到废水。集成的农业系统可能在经济上是有益的, 但是, 因此给水产养殖带来污染抗生素的风险 (HoAetal., 2011)。虾池地表水中的氧和浓度均为 0.01~2.5mg/L。0.06 至 6.06 毫克升, 1, 类似于周围运河地表水的水平 (Le 和 Munekage, 2004 年)。在与猪场合并的鱼塘中检测到洛美浓度高达 3.5.9 纳克 L, 1 (Takasu 等人, 2011 年)。虾场废水中没有检测到 CIP 和 LOM (Takasu 等人, 2011 年)。SMX、SDZ 和 TRI 的检测频率很高 (Le 和 Munekage, 2004 年; Hoa 等人, 2011 年; Giang 等人, 2015 年)。这与磺胺类产品的普遍使用是一致的。其他 STZ、SMR、SMZ、SDX 等磺胺类化合物在虾场和猪场/鱼场的任何样本中均未检测到 (Hoa 等人, 2011 年)。虾场地表水最大 SMX 浓度为 2.39mg L, 1 (Le 和 MuneShe, 2004 年), 比 914ngL⁻¹ 的虾场废水高出数倍 (HoAetal., 2011; Shimizu 等, 2013)。周围沟底的 SMX 和 PO 中的 SMX 一样高。ND 水 (约 5.57mgL⁻¹) (LE 和 Munege, 2004)。虾场水中的 Tri 浓度最高为 2.03mg/L⁻¹, 周围管底部水中约 1.2mgL⁻¹ (Le 和 Munege, 2004)。在废水

中达到 85ngL⁻¹ (HoAetal., 2011)。在从幼稚和攀西农场 (135 和 108ngL⁻¹) 接收废水的运河中检测到具有可比浓度的 SMX 和 SDZ, (Giang 等人, 2015 年)。然而, 在与猪场结合的鱼塘废水中, SDZ 浓度是 SMX 的 10 倍, 分别为 6662 ng L⁻¹ 和 625 ng L⁻¹ (Hoa 等人, 2011 年)。在 SDZ 浓度大于 SMX (1966ngL⁻¹ 和 70ngL⁻¹) (Shimizu 等人, 2013 年)。因此, 可以得出结论, SMX 主要用于虾池, SDZ 在与鱼塘结合的养猪场中更占优势 (Hoa 等人, 2011 年)。然而, 在另一项研究中, SMX 没有在许多虾场的废水样本中检测到 (Shimizu 等人, 2013 年)。在越南北部的虾场、鱼塘和养猪场都检测到了大环内酯类化合物, 但它们的浓度远远低于城市运河中的浓度, 人们认为这是严重的 I 型。受到人类活动的影响 (Hoa 等人, 2011 年)。红霉素 (ERY) 是最常见的大环内酯类药物。在对虾养殖场和猪/鱼综合养殖场的两种废水样本中都发现了这一现象。浓度分别为 0.28ng/l 和最高 63.9ng/l。CLA 浓度较低, 在猪/鱼场最大 0.4ngL⁻¹。在这些样品中未检测到 SPI、ROXI 和 AZI (Shimizu 等人, 2013 年)。尽管循环抗生素被广泛使用, 但它们在高频和高浓度中没有被检测到, 这可能是因为它们快速降解并且不易分析。只有一项研究有试图在越南水产养殖中测量该抗生素组 (Shimizu 等, 2013)。OTC 是最常见的 CyclinE 抗生素, 是猪/鱼场废水中唯一检出的一种抗生素。浓度可达 36 纳克升, 1。对虾养殖废水中 OTC、TC 的浓度分别为 18 ng L⁻¹, 1 ng 和 17 ng L⁻¹, 1 ng。没有在任何样本中检测到 dox。林是目前调查中唯一的林可酰胺类抗生素。越南的 IES。在猪/鱼场中发现的浓度高达 416 纳克升, 1 纳克 (Shimizu 等人, 2013 年)。

1.3 畜禽养殖

1.3.1 畜禽养殖常用抗生素

抗生素耐药性已成为全球健康、粮食安全和发展的主要威胁,尤其是在中低收入国家,如中国。Heddini 等人,2009 年;肖等人,2011 年;Zhang 等人,2006 年)。与许多国家一样,中国使用的抗生素中约有一半是牲畜使用的,包括用作生长促进剂以及预防和治疗疾病的用途。Zhang 等人,2015 年)。2010 年,中国是牲畜使用抗生素的最大生产国和消费国,预计到 2030 年,由于人口增长和对肉类蛋白质需求的增加,畜牧业使用抗生素的数量将增加三分之二。van Boeckel 等人,2015 年)。经合组织最近的一份报告指出,中国在猪和肉鸡生产中使用抗生素的数量是国际平均水平的五倍,这是由于广泛使用抗生素促进生长,违反政府的抗菌素使用政策,以及由于缺乏使用抗菌药物的知识和技能而滥用抗生素(吴,2019)。

1.3.2

在动物养殖中长期使用抗生素类饲料添加剂以及亚剂量使用兽药,再加上抗生素具有选择性高、吸收率低的特点,使大量抗生素随粪便和尿液排出 [18]。国彬等 [12] 对广州市 18 个规模化养殖场周边土壤进行调查,其中磺胺二甲嘧啶的浓度较高,平均浓度为 1.75 g/kg [18]。Wei 等 [11] 检测了江苏省 27 家规模化养殖场废水及周边地表水中抗生素的浓度水平,10 种抗生素被检出,养殖废水中磺胺甲嘧啶的浓度最高,可达 211 g/L,地表水中土霉素的浓度最高可达 6.83 g/L [18]

1.4 制药企业

1.4.1 制药废水中抗生素残留

Kim 等人发现污水厂出水中克拉霉素,立定痛等药物含量大于 500ng/L [40]。在江苏省某制

表 1 表题

Table 1 Caption

Title a	Title b	Tit
Aaa	Bbb	C
Aaa	Bbb	C
Aaa	Bbb	C

药厂污水中检测出十种抗生素,浓度在 1.3ug/L 183.9ug/L 之间不等 [41]。

1.4.2

1.5 生活污水

1.6 日常生活抗生素

1.7 生活污水抗生素残留

表格如表1所示. 表格如表1所示.

1.7.1 三级标题

算法如算法1所示.

算法 1 算法标题

输入: $n \geq 0 \vee x \neq 0$;
主迭代: $y = x^n$;
1: $y \leftarrow 1$;
2: if $n < 0$ then
3: $X \leftarrow 1/x$;
4: $N \leftarrow -n$;
5: else
6: $X \leftarrow x$;
7: $N \leftarrow n$;
8: end if
9: while $N \neq 0$ do
10: if N is even then
11: $X \leftarrow X \times X$;
12: $N \leftarrow N/2$;
13: else { N is odd}
14: $y \leftarrow y \times X$;
15: $N \leftarrow N - 1$;
16: end if
17: end while
输出:

参考文献

- 1 Author A, Author B, Author C. Reference title. Journal, Year, Vol: Number or pages
- 2 张三, 李四, Author C, et al. Reference title. In: Proceedings of Conference, Place, Year. Number or pages