· 专论与综述 ·

水环境中抗生素的分布、累积及生态毒理效应

刘建超 陆光华 杨晓凡 金少格

(浅水湖泊综合治理与资源开发教育部重点实验室)河海大学环境学院,江苏 南京 210098

摘 要:抗生素持续大量使用带来的环境污染和潜在的生态风险已经引起广泛关注。总结了国内外相关研究成果 对水环境中抗生素的污染源及残留水平进行了分析 对抗生素在水生生物体内的累积规律给予了评述 同时对抗生素的生态毒理效应进行了探讨。鉴于我国水环境中抗生素的污染现状 建议未来加强环境相关浓度下抗生素在生物体内的分布与转化、食物链迁移与放大 以及多种抗生素联合效应等方面的研究。

关键词:抗生素:水环境:累积:生态毒理效应

中图分类号:X171.5 文献标识码:A 文章编号:1006-2009(2012)04-0014-07

Distribution , Accumulation and Eco-toxicological Effects of Antibiotics in Aquatic Environment

LIU Jian-chao , LU Guang-hua* , YANG Xiao-fan , JIN Shao-ge (Key Laboratory of Integrated Regulation and Resources Development of Shallow Lakes of Ministry of Education , College of Environment , Hohai University , Nanjing , Jiangsu 210098 , China)

Abstract: The environmental pollution and potential ecological risks caused by continued high rates of antibiotics use had aroused widespread concerns. The relevant achievements of domestic and foreign researches were summarized for analysis of pollution sources and residue levels of antibiotics in waters. The accumulative rules of antibiotics in aquatic organisms were reviewed to discuss eco-toxicological effects of antibiotics. Considering China' pollution situation of antibiotics in water environment, it was made some suggestion that in the further research works should focus on key subjects such as distribution and transformation of antibiotics in organisms, the transfer and amplification of antibiotics by food chains and the combined effects of multiple antibiotics in environmental relevant concentrations.

Key words: Antibiotics; Water environment; Accumulation; Eco-toxicological effect

抗生素在农业、水产养殖业、畜牧业和人类疾病治疗及个人护理方面大量使用,再加上过期抗生素药品处理失当,其对环境安全、生态系统及人类健康的威胁越来越严重^[1-3]。近十余年来,抗生素滥用所造成的环境污染问题在国内外已经引起重视,尤其是在欧美一些发达国家获得了更多的关注和科研投入^[4]。抗生素是一类天然或者半人工合成的化合物,通常包括人用和兽用两种,全世界每年抗生素的使用量在 10 万 t ~ 20 万 t。 美国兽用抗生素年使用量约 1.62 万 t ,其中只有 10% 用于动物疾病治疗,90% 都作为生长促进剂饲养动物^[5-6]。中国抗生素年使用量约 2.5 万 t^[7],一直

居世界前列,由此导致的环境污染和生态风险日益 严重。

大部分抗生素具有水溶性,人类和动物服用的抗生素有40%~90%将随尿液排出体外^[8],而传统的污水处理工艺对大部分抗生素处理效果不佳。虽然抗生素的半衰期不长,但由于频繁使用并进入环境,导致其形成"假持续"现象,对人类健康及整

收稿日期:2011-11-07;修订日期:2012-05-17

基金项目:国家自然科学基金资助项目(50830304)

作者简介:刘建超(1985—),男,河南商丘人,在读博士研究生 研究方向为环境毒理学。

* 通讯作者:陆光华 Email: ghlu@ hhu. edu. cn

个生态系统构成了潜在危害^[9]。抗生素的环境污染及其可能导致的生态风险已成为全球关注的热点环境问题之一。

1 水环境中抗生素的来源

目前使用的抗生素主要包括青霉素类、头孢菌素类、氨基糖苷类、酰胺类、糖肽类、大环内酯类、四环素类、磺胺类、喹诺酮类、呋喃类、抗真菌药和硝咪唑类等。近年来,许多国家报道在水环境中发现了抗生素的存在,而且已经超过30种抗生素在污废水、地表水甚至地下饮用水中被发现。抗生素进入水环境的原因有多种,其中最主要的是医用药物和农用兽药的大量使用。

医用抗生素的使用主要在医院和家庭。此类 抗生素不能被人体完全代谢,未代谢的抗生素和代 谢产物通过人体排泄进入市政污水系统[10],然后 通过污水收集系统进入污水处理厂。然而现有的 常规水处理技术很难将其去除 而且对相当一部分 抗生素几乎没有处理效果[2,11-12] ,污水处理厂尾 水是水环境抗生素污染的一个主要来源[13-14]。另 外 过期医用抗生素的不规范处理和抗生素生产厂 家大量排放的生产废水,也是造成水环境抗生素污 染的一个重要原因。Chang 等[15] 调查了中国重庆 三峡库区医院废水、屠宰废水、污水处理厂等 5 种 不同水源水中的抗生素含量,评估了污水处理厂对 典型抗生素的去除效率,发现泰乐菌素、氧四环素 和四环素的去除率接近 100% ,红霉素为 24% ,差 向异构氯四环素为 18% ,而甲氧苄氨嘧啶的去除 率仅为1%左右。Brown 等[10]研究了美国新墨西 哥州污水处理厂对几种抗生素的处理效果 检测结 果显示 伊氧苄氨嘧啶和氧氟沙星的去除率分别为 69% 和77% ,而磺胺甲恶唑的去除率仅为20%。

抗生素在水产养殖中被用来治疗鱼类的赤皮、体表溃疡、烂尾、烂鳃等多种疾病。在抗生素使用过程中,未被水产养殖生物吸收及随粪便排泄的抗生素残留于水体,或随悬浮物沉降汇集于底部沉积物^[16-18]。因此,水产养殖业中抗生素的大量使用,是其进入水环境的一个重要途径。

兽用抗生素除了用于预防和治疗动物疾病外,在畜禽养殖业还以亚治疗剂量添加于动物饲料中,起到刺激动物生长和促进增产的作用。抗生素在动物体内不能完全代谢降解,而且其代谢产物可能同样具有生物活性[19]。这些抗生素及代谢产物随

动物粪尿排出体外,无论用作农业肥料,还是直接排放,都可能随着地表径流汇入江河或渗入地下水。据 Sarmah 等^[20]研究,美国每年有 6 000 万头猪产生的 1 亿 t 粪尿被用作农业肥料。Wei 等^[21]调查了中国江苏 11 个城市的 27 个大型动物养殖场,抽取 10 种抗生素,对 53 个养殖废水样品进行检测,结果均有检出。水环境中抗生素的来源和迁移途径见图 1^[22]。

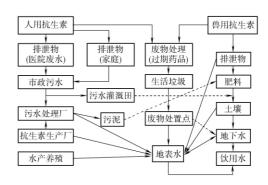


图 1 水环境中抗生素的来源和迁移途径^[22] Fig. 1 Sources and migration routes of antibiotics

Fig. 1 Sources and migration routes of antibiotics in water environment [22]

2 水环境中抗生素的分布

目前许多国家在污水、地表水甚至地下水中发现了磺胺、喹诺酮和大环内酯类等抗生素的存在^[23-26]。

抗生素在污废水中的残留量与污水的来源和特性有关,如医院污水、养殖污水中抗生素种类较少,但含量一般较高。在污水厂进水中,最常被检出的大环内酯类、磺胺类和喹诺酮类质量浓度达到μg/L级^[27]。在医院污水中,氧氟沙星、诺氟沙星、环丙沙星和甲氧苄氨嘧啶检出率较高^[15]。磺胺类药物在养殖污水中的浓度比在医院污水中高^[21]。

天然地表水中抗生素的来源多样,存在的种类较多,对水环境的影响较复杂。但是与污水相比,地表水中抗生素含量较低,总体而言,仍然是磺胺类检出率高,最高质量浓度达到300 ng/L^[10]。

由于土壤层的天然净化作用 地下水受抗生素 污染程度较低。与地表水相比 地下水中抗生素的 种类少 检出率不高 含量也较低。然而地下水如 果作为饮用水水源 其中的抗生素残留仍然对人类 健康有着不容忽视的影响。世界各地不同水环境 中检测到的抗生素种类及残留数据见表 1。

表 1 不同水环境中的抗生素残留

Table 1 Antibiotic residue in different water environment

种类	物质	质量浓度 ρ /(ng • L ⁻¹)	来源	文献
大环内酯类	洁霉素	1 467 ± 137	中国污水厂进水	[15]
		700 ~6 600	美国奶制品厂污水	[10]
		21 100	英国地表水	[8]
	红霉素	€70	西班牙地表水	[28]
		≤10	英国地表水	[29]
		4.62	意大利地表水	[26]
		2 246	越南地表水	[23]
	罗红霉素	2 189 ± 362	中国医院污水	[15]
	2:14%	≤560	德国地表水	[30]
		191 ± 10	中国地表水	[31]
		125	越南地表水	[23]
磺胺类	磺胺嘧啶	≤320	西班牙污水厂进水	[32]
(映) (映) (映) (中) (中) (中) (中) (中) (中) (中) (中) (中) (中	唤 及 啮 吹	≤320 ≤17 000	中国养殖污水	[21]
		4 130	英国地表水	[8]
		12 000	西班牙地表水	[33]
	7# 04 CD 7F adv	57.5	越南地表水	[23]
	磺胺甲恶唑	400 ~ 2 100	美国医院污水	[10]
		≤63 600	中国养殖污水	[21]
		523	韩国污水厂进水	[13]
		≤11 920	西班牙地表水	[28]
		26.9	韩国地表水	[13]
		4 330	越南地表水	[23]
		470	德国地下水	[30]
		170	美国地下水	[31]
		9.9	西班牙地下水	[33]
	甲氧苄氨嘧啶	590 ~ 1 400	美国污水厂进水	[10]
		70	英国污水厂尾水	[29]
		≤ 470	西班牙地表水	[28]
		≤10	英国地表水	[29]
		200	德国地表水	[30]
		1 808	越南地表水	[23]
		18	美国地下水	[34]
喹诺酮类	环丙沙星	850 ~2 000	美国医院污水	[10]
		200 ~ 1 000	美国污水厂进水	[10]
		132. 2	意大利污水厂尾水	[35]
		≤26.15	意大利地表水	[36]
	诺氟沙星	1 620 ± 285	中国医院污水	[15]
	内州ル生	210	意大利污水厂尾水	[35]
		≤120		
			美国地表水	[8]
	复复沙里	5.55	中国地表水	[37]
	氧氟沙星	25 500 ~ 35 500	美国医院污水	[10]
		780 ± 132	中国污水厂进水	[15]
		42 ~ 2 148	加拿大污水厂尾水	[38]
		≤ 8 770	西班牙地表水	[28]
		18.06	意大利地表水	[26]
		74 ± 15	中国地表水	[31]

3 抗生素在水生生物体内的累积

尽管天然水体中的抗生素浓度很低。但是持续暴露可能导致抗生素在水生生物体内的累积^[39]。目前关于抗生素生物累积的研究还比较少,现有成果主要是关于抗生素在鱼类、虾类等生物体内残留检测方法的报道。

野生生物体内抗生素的残留报道多集中于高营养级的鱼类和虾类。Cháfer-Pericás等[40]在希腊和西班牙的 20 个乌颊鱼鲷($Gilthead\ sea\ bream$) 样品中检测到四环素类的质量比范围为 $2.1\ ng/g\sim152\ ng/g$ 。Fernandez-Torres等[41]在西班牙地中海沿岸野生鱼类样品中检测出多种抗生素及其代谢产物的存在,在鲻鱼($Liza\ ramada$) 内脏中磺胺嘧啶、氧四环素和氯四环素的质量比分别达(180 ± 10) ng/g、(50 ± 5) ng/g 和(160 ± 7) ng/g;在布氏鲳鲹($Trachynotus\ ovatus$) 内脏中检出了磺胺嘧啶、氯四环素和磺胺甲嘧啶,其中氯四环素在内脏和肌肉组织中的质量比高达 $590\ ng/g$ 。 Won等[42] 从韩国的 9 个城市中选择 7 种不同的海产品作磺胺类抗生素检测,发现磺胺甲恶唑在鳝鱼($Monopterus\ albus$) 体内残留质量比达 $5\ 104\ ng/g$ 。

上述研究结果表明 抗生素在野生鱼类中存在累积效应。在此基础上,实验室条件下典型抗生素在水生生物中的累积规律研究取得了进展。Nogueira-Lima等 $^{[43]}$ 研究了氧四环素在南美白对虾 (Litopenaeus vannamei) 腹部肌肉中的累积规律,以4 g/kg 剂量连续喂养 14 d,在相同剂量下,实验室环境中7 d 达到最大累积量 17.21 μ g/g,自然池塘环境中12 d 达到 4.38 μ g/g。该研究分析认为,光照、盐度、pH 值、自然水体中其他生物的累积及食物丰富程度等可能是造成两者共条件下累积系数差异的重要原因。

Rigos 等 $^{[44]}$ 以 30 mg/kg 的恶喹酸喂养金头鲷 (Sparus aurata) 和尖吻重牙鲷 (Diplodus puntazzo) ,4 d 后 不同组织的累积规律为肝脏 (2 660 ng/g) > 胆汁 (2 370 µg/L) > 皮肤 (2 350 ng/g) > 肌肉 (1 330 ng/g) > 血浆 (880 µg/L) 。 Xu 等 $^{[45]}$ 研究了恩诺沙星及其降解产物在尼罗河罗非鱼 (Oreochromis niloticus) 和中国对虾 (Penaeus chinensis) 组织中的累积效应,以 50 mg/kg 的剂量口服喂养 7 d 后,恩诺沙星在罗非鱼和对虾中的代谢产物均为环丙沙星 恩诺沙星在罗非鱼不同组织中的累积规律为肝脏 > 肌肉 > 血浆 而恩诺沙星和环丙沙星在中国

对虾中的最大累积质量比分别为 $1.68~\mu g/g$ 和 $0.07~\mu g/g$ 。Zhang 等 $[^{46}]$ 研究了以 100~m g/k g 的氧四环素喂养草鱼(Ctenopharyngodon~idellus) 7~d~发现肾脏的累积效应最强 "肌肉最弱。

由此可见,即使水环境中抗生素的浓度不高,但通过生物富集和食物链传递,最终可能对生态安全和人类健康产生不利影响。

4 抗生素对水生生物的生态毒理效应

抗生素主要针对人类和动物体内的病原性目标致病菌。抗生素及其代谢产物在环境中以低浓度存在 不仅会使环境中产生耐抗生素菌和抗性基因^[47] 还会对人体及环境中的其他非目标生物体产生潜在的生态毒理效应^[16 48 - 50]。

目前对抗生素毒性的研究主要集中于低等水 生生物。Kim 等[51] 研究了洁霉素、磺胺甲嘧啶和 四环素对大型溞、费氏弧菌和月牙藻(Selenastrum capricornutum) 的急性毒性效应 ,结果表明 ,月牙藻 对抗生素最为敏感,最容易受到抗生素的影响。 Andreozzi 等[48] 研究抗生素对藻类的毒性时发现, 洁霉素对蓝藻类(Cyanobacteria) 有明显的毒性,但 膜状眉藻(Calotrix membranacea)和贺氏伪枝藻 (Scytonema hofmanni) 由于自身细胞结构特性原 因,对洁霉素反应不敏感,所有的绿藻类(Chlorophyceae) 对洁霉素都没有敏感反应(月牙藻除外)。 Liu 等[52]研究了红霉素、环丙沙星和磺胺甲恶唑对 月牙藻光合作用的毒性作用,发现3种抗生素对月 牙藻光合作用中的光反应、电子转移、光合磷酸化 和碳反应等都有抑制作用 红霉素对月牙藻的毒性 比环丙沙星和磺胺甲恶唑更强。

Wollenberger 等 $^{[50]}$ 研究了 9 种兽用抗生素对大型溞的急、慢性毒性,发现环境相关浓度的灭滴灵、喹乙醇、地灵霉素、链霉素、磺胺嘧啶、四环素、泰乐菌素对大型溞没有影响。恶喹酸和泰妙菌素 48 h 繁殖试验得到的急性毒性 EC_{50} (半数效应浓度)分别为 4.6~mg/L 和 40~mg/L 而 21~d 繁殖试验得到的慢性毒性 EC_{50} 分别为 0.~38~mg/L 和 5.4~mg/L 对比发现 抗生素的慢性繁殖毒性效应浓度比急性毒性低 1 个数量级。

很多抗生素在环境中可以发生降解 在水生生物体内也可以发生代谢转化。因此 抗生素降解或代谢产物的毒性 尤其是与母体化合物的毒性差异引起了关注。Isidori 等^[3] 研究了萘普生及其降解

产物对藻类、轮虫类、浮游甲壳类的慢性和急性毒性 结果发现 萘普生的降解产物比母体萘普生毒性更强。 Yuan 等^[53] 也得到了类似结果 ,发现氧四环素、强力霉素和环丙沙星在一定紫外光强下的降解产物对费氏弧菌的毒性比母体化合物更强。 Trovó 等^[54] 也发现阿莫西林的降解产物比阿莫西林本身对大型溞更具有毒性作用。

最近 有研究者对抗生素的联合毒性作用开展了探索性研究。Eguchi 等^[55]研究了多种抗生素对小球藻和月牙藻生长的影响 ,发现红霉素抑制生长作用最明显 ,氨苄青霉素和头孢唑啉没有生长抑制作用(EC_{50s} > 1 000 mg/L); 当在磺胺甲恶唑和磺胺嘧啶中加入甲氧苄氨嘧啶时 ,生长抑制作用明显加强 ,而在磺胺类药物中加入叶酸 ,生长抑制作用 明显 ,而在磺胺类药物中加入叶酸 ,生长抑制作用 减弱。Zou 等^[56]研究了磺胺甲恶唑和甲氧苄氨嘧啶的联合作用 发现二者对发光细菌的急性联合作用为拮抗作用 ,而慢性联合作用为协同作用。De Liguoro 等^[57]研究发现 ,磺胺甲嘧啶和甲氧苄氨嘧啶对大型溞急性暴露时的联合毒性表现为简单的相加作用而非协同作用。

尽管抗生素对水生生物的毒性效应研究已经 起步,但是目前的研究成果极其有限。由于抗生素 种类繁多 降解和代谢产物复杂,水环境中共存的 抗生素及其转化产物之间的联合毒性作用还有待 进一步研究。

5 建议

鉴于我国水环境中抗生素的污染现状 建议未 来在以下几方面加强研究。

- (1) 对全国范围内的地表水、地下水等开展调查 建立我国水环境中抗生素的区域分布数据库 , 为抗生素的使用、管理和污染控制提供依据。
- (2) 抗生素污染日益严重,而人们对其在水环境中的迁移、转化过程及影响因素还知之甚少,迫切需要开展抗生素环境行为的研究。
- (3)需要加强对环境相关浓度下抗生素(母体及转化产物)的复杂毒理效应及毒性作用机制研究。运用分子生物学手段对环境中抗生素的生态安全性进行评价,对可能的生态风险早期预警。
- (4) 对抗生素在食物链和食物网中的累积放 大效应及其导致的潜在人类健康风险进行评估,也 是将来该领域研究的重点。

[参考文献]

- [1] BRAUSCH J M ,RAND G M. A review of personal care products in the aquatic environment: Environmental concentrations and toxicity [J]. Chemosphere 2011 82(11):1518-1532.
- [2] ISIDORI M ,LAVORGNA M ,NARDELLI A ,et al. Ecotoxicity of naproxen and its phototransformation products [J]. Science of the Total Environment 2005 348(1-3):93-101.
- [3] ISIDORI M ,LAVORGNA M ,NARDELLI A ,et al. Toxic and genotoxic evaluation of six antibiotics on non-target organisms
 [J]. Science of the Total Environment 2005 ,346(1-3):87-98
- [4] 周启星 罗义 汪美娥. 抗生素的环境残留、生态毒理及抗性基因污染[J]. 生态毒理学报 2007 2(3):243-251.
- [5] KÜMMERER K. Antibiotics in the aquatic environment——A review——Part I [J]. Chemosphere 2009 75(4):417 -434.
- [6] KÜMMERER K. Antibiotics in the aquatic environment——A review——Part II [J]. Chemosphere 2009 75(4):435-441.
- [7] XU W H ZHANG G ZOU S C et al. Determination of selected antibiotics in the Victoria Harbour and the Pearl River, South China using high-performance liquid chromatography-electrospray ionization tandem mass spectrometry [J]. Environmental Pollution 2007, 145(3):672-679.
- [8] KEMPER N. Veterinary antibiotics in the aquatic and terrestrial environment [J]. Ecological Indicators 2008 &(1):1-13.
- [9] CHRISTEN V ,HICKMANN S ,RECHENBERG B ,et al. Highly active human pharmaceuticals in aquatic systems: A concept for their identification based on their mode of action [J]. Aquatic Toxicology 2010 96(3):167-181.
- [10] BROWN K D KULIS J ,THOMSON B ,et al. Occurrence of anti-biotics in hospital , residential , and dairy effluent , municipal wastewater , and the Rio Grande in New Mexico [J]. Science of the Total Environment 2006 366(2-3):772-783.
- [11] GULKOWSKA A LEUNG H W SO M K et al. Removal of antibiotics from wastewater by sewage treatment facilities in Hong Kong and Shenzhen , China [J]. Water Research 2008 #2(1-2):395-403.
- [12] 刘佳 ,隋铭皓 ,朱春艳. 水环境中抗生素的污染现状及其去除方法研究进展[J]. 四川环境 2011 ,30(2):111-114.
- [13] CHOI K ,KIM Y ,PARK J ,et al. Seasonal variations of several pharmaceutical residues in surface water and sewage treatment plants of Han River , Korea [J]. Science of the Total Environment 2008 405 (1-3):120-128.
- [14] COOPER E R ,SIEWICKI T C ,PHILLIPS K. Preliminary risk assessment database and risk ranking of pharmaceuticals in the environment [J]. Science of the Total Environment ,2008 ,398 (1-3):26-33.
- [15] CHANG X MEYER M T J.IU X et al. Determination of antibiotics in sewage from hospitals , nursery and slaughter house , wastewater treatment plant and source water in Chongqing region of Three Gorge Reservoir in China [J]. Environmental Pollu-

— 18 —

- tion 2010 ,158(5): 1444 1450.
- [16] BURRIDGE L ,WEIS J S ,CABELLO F ,et al. Chemical use in salmon aquaculture: A review of current practices and possible environmental effects [J]. Aquaculture ,2010 ,306 (1 - 4): 7 -23.
- [17] DEFOIRDT T SORGELOOS P BOSSIER P. Alternatives to antibiotics for the control of bacterial disease in aquaculture [J].
 Current Opinion in Microbiology 2011 14(3):251 258.
- [18] ZOU S XU W ZHANG R et al. Occurrence and distribution of antibiotics in coastal water of the Bohai Bay , China: Impacts of river discharge and aquaculture activities [J]. Environmental Pollution 2011 ,159(10): 2913 – 2920.
- [19] 王娜 .单正军 .葛峰 .等. 兽药的环境污染现状及管理建议 [J]. 环境监测管理与技术 2010 22(5):14-18.
- [20] SARMAH A K "MEYER M T "BOXALL A B A. A global perspective on the use , sales , exposure pathways , occurrence , fate and effects of veterinary antibiotics (VAs) in the environment [J]. Chemosphere 2006 65(5):725 -759.
- [21] WEI R GE F HUANG S et al. Occurrence of veterinary antibiotics in animal wastewater and surface water around farms in Jiangsu Province , China [J]. Chemosphere ,2011 ,82 (10): 1408 – 1414
- [22] THOMAS H. Occurrence, fate, and removal of pharmaceutical residues in the aquatic environment: A review of recent research data [J]. Toxicology Letters 2002, 131(1-2):5-17.
- [23] HOA P T P MANAGAKI S NAKADA N et al. Antibiotic contamination and occurrence of antibiotic-resistant bacteria in aquatic environments of northern Vietnam [J]. Science of the Total Environment 2011 #09(15): 2894 2901.
- [24] VIONE D ,FEITOSA-FELIZZOLA J ,MINERO C ,et al. Photo-transformation of selected human-used macrolides in surface water: Kinetics , model predictions and degradation pathways [J]. Water Research 2009 43(7):1959 1967.
- [25] XU W ,ZHANG G ,LI X ,et al. Occurrence and elimination of antibiotics at four sewage treatment plants in the Pearl River Delta (PRD) , South China [J]. Water Research ,2007 ,41 (19):4526-4534.
- [26] ZUCCATO E ,CASTIGLIONI S ,BAGNATI R ,et al. Source , occurrence and fate of antibiotics in the Italian aquatic environment [J]. Journal of Hazardous Materials ,2010 ,179 (1 3): 1042 1048.
- [27] ANDREOZZI R ,RAFFAELE M ,NICKLAS P. Pharmaceuticals in STP effluents and their solar photodegradation in aquatic environment [J]. Chemosphere 2003 50(10):1319-1330.
- [28] GINEBREDA A "MUÑOZ I "ALDA M L "et al. Environmental risk assessment of pharmaceuticals in rivers: Relationships between hazard indexes and aquatic macroinvertebrate diversity indexes in the Llobregat River (NE Spain) [J]. Environment International 2010 36(2):153-162.
- [29] ASHTON D ,HILTON M ,THOMAS K V. Investigating the environmental transport of human pharmaceuticals to streams in the

- United Kingdom [J]. Science of the Total Environment ,2004, ,333(1-3):167-184.
- [30] HIRSCH R ,TERNES T ,HABERER K ,et al. Occurrence of antibiotics in the aquatic environment [J]. Science of the Total Environment ,1999 225(1-2):109-118.
- [31] 叶计朋 40世春 涨干 等. 典型抗生素类药物在珠江三角洲水体中的污染特征[J]. 生态环境 2007, 16(2):384-388.
- [32] GARCĨA-GALÁN M J ,DĨAZ-CRUZ M S ,BARCELÓ D. Occurrence of sulfonamide residues along the Ebro river basin: Removal in wastewater treatment plants and environmental impact assessment [J]. Environment International ,2011 ,37 (2): 462 –473.
- [33] DĪAZ-CRUZ M S ,GARCĪA-GALÁN M J ,BARCELÓ D. Highly sensitive simultaneous determination of sulfonamide antibiotics and one metabolite in environmental waters by liquid chromatography-quadrupole linear ion trap-mass spectrometry [J]. Journal of Chromatography A 2008 ,1193(1-2):50-59.
- [34] FRAM M S ,BELITZ K. Occurrence and concentrations of pharmaceutical compounds in groundwater used for public drinking-water supply in California [J]. Science of the Total Environment 2011 409 (18): 3409 3417.
- [35] COSTANZO S D "MURBY J "BATES J. Ecosystem response to antibiotics entering the aquatic environment [J]. Marine Pollution Bulletin 2005 51(1-4):218-223.
- [36] CASTIGLIONI S ,FANELLI R ,CALAMARI D ,et al. Methodological approaches for studying pharmaceuticals in the environment by comparing predicted and measured concentrations in River Po , Italy [J]. Regulatory Toxicology and Pharmacology , 2004 39(1):25-32.
- [37] 张川,胡冠九,孙成. UPLC ESI MS/MS 法同时测定水中7种抗生素[J]. 环境监测管理与技术,2009,21(3):37-40.
- [38] LEE H-B ,PEART T E ,SVOBODA M L. Determination of ofloxacin , norfloxacin , and ciprofloxacin in sewage by selective solid-phase extraction , liquid chromatography with fluorescence detection , and liquid chromatography-landem mass spectrometry
 [J]. Journal of Chromatography A 2007 ,1139(1): 45 52.
- [39] 陆梅 ,高翔 ,李淑文. 高效液相色谱法测定水产品中四环素 类抗生素残留[J]. 环境监测管理与技术 2008 ,20(5):38 -39.
- [40] CHÁFER-PERICÁS C "MAQUIEIRA Á "PUCHADES R "et al. Multiresidue determination of antibiotics in feed and fish samples for food safety evaluation. Comparison of immunoassay vs LC – MS – MS [J]. Food Control 2011 22(6):993 –999.
- [41] FERNANDEZ-TORRES R ,LOPEZ M A B ,CONSENTINO M O ,et al. Enzymatic-microwave assisted extraction and high-performance liquid chromatography-mass spectrometry for the determination of selected veterinary antibiotics in fish and mussel samples [J]. Journal of Pharmaceutical and Biomedical Analysis 2011 54(5):1146-1156.
- [42] WON S Y LEE C H CHANG H S et al. Monitoring of 14 sul-

— 19 —

- fonamide antibiotic residues in marine products using HPLC PDA and LC MS/MS[J]. Food Control 2011 22(7):1101 –1107.
- [43] NOGUEIRA-LIMA A C ,GESTEIRA T C V ,MAFEZOLI J. Oxytetracycline residues in cultivated marine shrimp (*Litopenaeus vannamei* Boone ,1931) (Crustacea , Decapoda) submitted to antibiotic treatment [J]. Aquaculture ,2006 ,254 (1 4): 748 -757.
- [44] RIGOS G ,NENGAS I ,ALEXIS M ,et al. Tissue distribution and residue depletion of oxolinic acid in gilthead sea bream (Sparus aurata) and sharpsnout sea bream (Diplodus puntazzo) following multiple in-feed dosing [J]. Aquaculture ,2003 ,224 (1 4): 245 256.
- [45] XU W ZHU X ,WANG X ,et al. Residues of enrofloxacin , fura-zolidone and their metabolites in Nile tilapia (*Oreochromis niloticus*) [J]. Aquaculture 2006 254(1-4):1-8.
- [46] ZHANG Q ,LI X. Pharmacokinetics and residue elimination of oxytetracycline in grass carp , Ctenopharyngodon idellus [J]. Aquaculture 2007 272(1-4):140-145.
- [47] BAQUERO F, MARTĪNEZ J-L, CANTÓN R. Antibiotics and antibiotic resistance in water environments [J]. Current Opinion in Biotechnology 2008, 19(3):260-265.
- [48] ANDREOZZI R ,CANTERINO M ,GIUDICE R L ,et al. Linco-mycin solar photodegradation , algal toxicity and removal from wastewaters by means of ozonation [J]. Water Research 2006 , 40(3):630-638.
- [49] CRANE M ,WATTS C ,BOUCARD T. Chronic aquatic environmental risks from exposure to human pharmaceuticals [J]. Science of the Total Environment 2006 ,367(1):23-41.

- [50] WOLLENBERGER L ,HALLING-SØRENSEN B ,KUSK K O. Acute and chronic toxicity of veterinary antibiotics to *Daphnia magna* [J]. Chemosphere 2000 40(7):723 -730.
- [51] KIM H Y ,YU S H ,LEE M J ,et al. Radiolysis of selected antibiotics and their toxic effects on various aquatic organisms [J].
 Radiation Physics and Chemistry 2009 78(4): 267 272.
- [52] LIU B Y NIE X P LIU W Q et al. Toxic effects of erythromycin , ciprofloxacin and sulfamethoxazole on photosynthetic apparatus in *Selenastrum capricornutum* [J]. Ecotoxicology and Environmental Safety 2011 74(4):1027 –1035.
- [53] YUAN F, HU C, HU X, et al. Photodegradation and toxicity changes of antibiotics in UV and UV/H₂O₂ process [J]. Journal of Hazardous Materials 2011, 185(2-3):1256-1263.
- [54] TROVÓ A G ,PUPO NOGUEIRA R F ,AGÜERA A ,et al. Degradation of the antibiotic amoxicillin by photo-Fenton process-Chemical and toxicological assessment [J]. Water Research , 2011 45(3):1394-1402.
- [55] EGUCHI K ,NAGASE H ,OZAWA M ,et al. Evaluation of anti-microbial agents for veterinary use in the ecotoxicity test using microalgae [J]. Chemosphere 2004 57(11):1733-1738.
- [56] ZOU X ,LIN Z ,DENG Z ,et al. The joint effects of sulfonamides and their potentiator on *Photobacterium phosphoreum*: Differences between the acute and chronic mixture toxicity mechanisms [J]. Chemosphere , doi: 10.1016/j. envpol. 2011. 04.037.
- [57] DE LIGUORO M ,FIORETTO B ,POLTRONIERI C ,et al. The toxicity of sulfamethazine to *Daphnia magna* and its additivity to other veterinary sulfonamides and trimethoprim [J]. Chemosphere 2009 ,75(11):1519 –1524.

·简讯·

国外如何处理地沟油

人民日报海外版消息 7月中旬 2000 t 产自上海的地沟油将被荷兰航空加工成航空生物煤油 供飞机使用。据悉 荷兰人吃油不多 地沟油原料不足 他们一年对地沟油的需求量为 12万 t。而今年6月 ,荷兰航空的"废弃油"航班已开始执飞洲际航线。

荷兰人的创举令人大开眼界,无数公众期待中国地沟油也能"上天"。据了解,这一技术问题,在中国并不是太大问题,相关专家也早就提出将中国地沟油加工成航空用油的建议。而且,地沟油还可以用来加工成生物柴油,这在中国有更大的需求量。资料显示,目前我国柴油使用量达1.3亿t,即使生物柴油能占到总使用量的1%,也是一个不小的数字。

然而,除了转化成本较高,以及生物柴油标准迟迟没有出台外,中国的生物柴油遭遇的是"原料不足"的最大瓶颈。在很多城市,正规的收油企业根本竞争不过无本万利的收油"游击队"。而其中存在的最大问题,正是监管乏力:在废弃油掏捞、粗炼、深加工、批发、零售等几乎各个环节,都存在监管不力的问题。

而在国外 对废弃油的监管极其严格、细致和正规。在日本 政府高价回收地沟油当作燃料用;在美国 政府规定餐馆乱用乱卖地沟油就要被关门;在英国 ,专门设立有废油垃圾桶用于统一回收 ,然后制成生物柴油 ,餐馆乱倒泔水将被重罚;在德国 ,每一桶泔水都有随时可供检查的"身份证";在新西兰 ,餐馆及家庭厨房都安装有食物垃圾处理机以及油脂分离装置 ,由政府指定的公司负责上门收集分离出的废油脂……显然 ,在对废弃油的监管上 ,这些国家都花费了较大的财力、人力、物力 ,目的正是为了保障公众不食用地沟油 ,保障公民的身体健康权。

摘自 www. jshb. gov. cn 2012-07-27