

引用格式:周涛,苏正安,刘刚才,谢晓健,周铃. 川中丘陵区紫色土抗生素残留特征及其生态风险[J]. 山地学报, 2024, 42(2): 164-173.
ZHOU Tao, SU Zheng'an, LIU Gangcai, XIE Xiaojian, ZHOU Ling. Antibiotics residue and ecological risks in purple soils of the central Sichuan basin, China [J]. Mountain Research, 2024, 42(2): 164-173.

川中丘陵区紫色土抗生素残留特征及其生态风险

周涛^{1,2}, 苏正安^{1*}, 刘刚才¹, 谢晓健^{1,2}, 周铃^{1,2}

(1. 中国科学院、水利部成都山地灾害与环境研究所 中国科学院山地表生过程与生态调控重点实验室, 成都 610299;

2. 中国科学院大学, 北京 100049)

摘要: 抗生素在表层土壤中富集, 将干扰植物、土壤动物以及微生物的生长发育, 威胁生态系统安全。紫色土作为长江中上游重要的农业土壤资源, 其抗蚀性弱和优先流发育的特点为环境残留抗生素迁移提供了动力条件。目前相关研究多针对目标抗生素的环境迁移行为, 土壤残留抗生素的自然丰度、自然污染特征以及环境风险尚不明晰。本研究选择川中丘陵区 6 种典型土地利用类型(旱地、林地、果园、水田、化肥菜园和粪肥菜园)的紫色土土壤及灌溉水为研究对象, 对 5 类 11 种抗生素进行残留量的测定, 并利用风险商值法进行抗生素生态风险评估。结果表明: (1) 土壤中检出金霉素、诺氟沙星、环丙沙星和恩诺沙星。其中, 诺氟沙星、环丙沙星和恩诺沙星仅在粪肥菜园土壤中有检出, 其残留量分别为 5.95、3.36 和 6.52 $\mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$; 金霉素在粪肥菜园土壤中残留量最高, 为 43.00 $\mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$ 。(2) 灌溉水中各类抗生素含量均低于仪器检出限。(3) 研究区内土壤抗生素风险商值范围为 0.08~0.43, 处于中低生态风险水平, 但抗生素残留量均小于国际土壤生物毒性触发值(100 $\mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$), 处于相对安全的生态风险水平。(4) 研究区内土壤抗生素来源可能与有机肥施用有关, 通过调整施肥结构可能在一定程度上降低抗生素的环境生态风险。本研究可为川中丘陵紫色土区生态安全建设提供依据。

关键词: 抗生素残留; 土地利用; 生态安全; 紫色土; 粪肥浇灌

中图分类号: X833

文献标志码: A

抗生素具有抗病原活性的功能, 可干扰细菌和病毒发育, 被广泛用于人类和动物病菌感染的治疗。根据抗生素结构特征的差异可将抗生素分为磺胺类(SAs)、喹诺酮类(QNs)、四环素类(TCs)、大环内酯类(MLs)、 β -内酰胺类(β -Ls)、氯霉素类(CPs)等。有机体在治疗过程仅能吸收 10%~70% 的抗生素, 其余部分将以原药或代谢产物的形式排出^[1]。抗生素进入环境中主要通过畜禽粪便、养殖废水的还田灌溉和污水排放^[2-3], 其中粪肥灌溉是引起抗生素污染最主要的因素。抗生素以有机粪肥为载体进

入土壤后, 在降雨和径流的作用下进行横向和纵向迁移, 但抗生素的纵向迁移能力有限, 大多数抗生素均富集在表层土壤中^[4]。抗生素在表层土壤中富集, 会直接或间接地影响植物、土壤动物和微生物的生长发育, 在食物链运转过程中对整个生态系统产生风险。抗生素在环境中长时间滞留可诱导抗性基因和耐药菌出现, 严重威胁生态系统安全^[5]。

抗生素环境污染研究是近年来的科学热点, 主要覆盖污染现状调查、污染源解析、抗生素环境行为和生态安全风险评估等内容。研究发现, 不同土地

收稿日期(Received date): 2023-07-31; 改回日期(Accepted date): 2024-03-30

基金项目(Foundation item): 国家自然科学基金(42277338); 四川省科技计划(2022YFS0500)。[National Natural Science Foundation of China (42277338); Sichuan Science and Technology Program (2022YFS0500)]

作者简介(Biography): 周涛(1996-), 男, 河南三门峡人, 博士研究生, 主要研究方向: 水土保持与生态修复。[ZHOU Tao (1996-), male, born in Sanmenxia, Henan province, Ph.D. candidate, research on soil and water conservation and ecological restoration] E-mail: zhoutao@imde.ac.cn

* 通讯作者(Corresponding author): 苏正安(1980-), 男, 博士, 副研究员, 主要研究方向: 土壤侵蚀和水土保持。[SU Zheng'an (1980-), male, Ph.D., associate professor, research on soil erosion and soil and water conservation] E-mail: suzhengan@imde.ac.cn

利用类型的土壤均存在抗生素污染问题,且具有显著差异,主要的驱动因子为牲畜粪便、废水回流、用地模式等^[6-9]。土壤抗生素残留特征通常与抗生素种类和土壤性质有关。大部分抗生素的分子结构中均存在电离基团,如羧基、羟基、氨基和酮基等,不同电离基团在水环境中的酸碱解离能力不同,在环境中的残留能力也不同。相较于四环素和金霉素等,氧氟沙星由于具有羧基和酮基等官能团,在环境中的残留量显著较高^[10]。此外,土壤中的溶解性有机质具有多种官能团,可作为抗生素环境行为的“载体”和“助溶剂”^[11]。北京市一处蔬菜基地的研究表明,土霉素、金霉素、诺氟沙星、环丙沙星和恩诺沙星的风险商值处于较高生态风险水平的样本量分别为 39.3%、10.7%、10.7%、17.9% 和 41.1%^[12]。自 2018 年以来,抗生素环境污染研究更加细化,已经涉及抗生素环境动力学、生态毒性、污染修复等^[13]等研究方向。

中国存在抗生素环境污染风险。据统计,2020 年中国境内抗生素的使用总量约为 33 000 t,且国内抗生素同期人均消费水平已达到发达国家的 5~8 倍^[14-15]。2008—2018 年,华北、华南、华东和华中的抗生素污染调查研究发现,土壤和沉积物中 SAs、TCs、QNs 和 MLs 抗生素的含量范围为 0~16.30 mg·kg⁻¹,两种环境介质中抗生素的平均含量高达 1.48 和 1.28 mg·kg⁻¹,均超过了国际土壤生物毒性触发值^[16]。

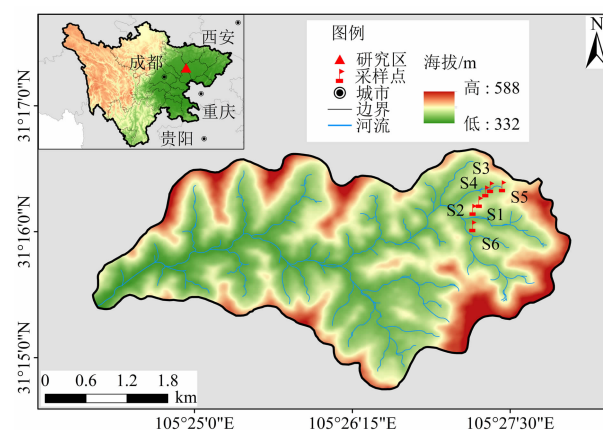
紫色土作为长江中上游地区重要的农业土壤资源,具有土层浅薄、抗侵蚀能力弱、优先流普遍发育等特点^[17],有利于抗生素在土壤中迁移。紫色土抗生素污染相关研究,过去多关注土壤中抗生素的环境迁移机理和吸附特征,均以特定的目标抗生素为研究对象,而土壤残留抗生素的自然丰度及分布特征的相关研究则较少,紫色土抗生素的自然污染特征尚无明确定论。

本研究以川中丘陵区小流域典型的土地利用类型土壤及灌溉水为研究对象,测定环境中残留抗生素含量,并利用风险商值法评估不同土地利用类型土壤的抗生素生态风险,通过统计分析等方法识别研究区土壤抗生素残留的驱动因素,查明土壤抗生素污染特征及其来源,以期为川中丘陵紫色土区生态安全建设提供依据。

1 区域概况与方法

1.1 研究区概况

研究区位于四川省绵阳市盐亭县大兴回族乡(105°23'~105°30'E,31°14'~31°19'N),地处四川盆地中部偏北,属涪江流域,位于弥江和湍江的分水岭(图 1)。该区地形以低山深丘为主,地势北高南低,沟壑纵横,海拔高度为 332~651 m,被河谷切割为台地地貌^[18]。气候类型属亚热带湿润季风气候,多年平均气温为 17.3℃,最高气温为 40℃,最低气温为 -5.1℃,全年 >10℃ 的积温为 5000℃~6000℃^[19]。多年平均降雨量为 826 mm,全年降雨量分布极为不均,春季、夏季、秋季和冬季的平均降雨量分别为 48.8、541.0、162.7 和 73.5 mm,且夏季多为暴雨,全年无霜期为 294 d^[20]。研究区土壤类型主要为石灰性紫色土,属中国土壤分类系统中的初育土和美国土壤分类系统中的新成土^[20],具有土壤发育浅、结构性差、肥力高和土壤抗蚀能力弱等特点,土层厚度约为 20~60 cm,质地类型多为中壤,容重为 1.30~1.60 g·cm⁻³,透水性好,壤中流较为发育^[21],为抗生素等污染物在土壤-水系统中迁移提供了动力条件。紫色土是四川乃至全国重要的土地资源,耕地面积占全省耕地的 68%^[22]。农业活动中,施肥和灌溉方式等是抗生素等污染物进入农田生态系统中的重要途径,目前在紫色土区已发现喹诺酮类、氯霉素类和磺胺类等抗生素残留^[23]。



S1、S2、S3、S4、S5 和 S6 分别为旱地、林地、果园、水田、化肥菜园和粪肥菜园。

图 1 研究区和样地位置图

Fig. 1 Location of study area and sample plots

1.2 研究方法

1.2.1 样品采集

综合考虑研究区内典型土地利用类型及潜在土壤抗生素来源(径流、灌溉水和施肥类型等),选择旱地、林地、果园、水田、化肥菜园和粪肥菜园 6 种主要的土地利用类型样地及其附近水源为研究对象(图 1、表 1)。各采样点均在小流域内布设,样点之间最远相隔 800 m,可辐射面积约 3 km²。遵循典型性、代表性和随机性等原则,在每个样地进行随机取样,采样深度为 10 cm,每个样地进行多样点混合样采集,形成 3 个平行样,共 18 个土样。土壤抗生素的迁移途径主要包括灌溉水和径流等,研究区内的径流均汇集到水渠内,供附近农田灌溉使用,因此,在土样点位附近采集对应的灌溉水,每个灌溉水样点采集 3 个平行样,共 15 个灌溉水样。样品采集后,一份样品用于抗生素残留量的测定,另一份样品用于理化指标的测定。

表 1 样地基本信息

Tab. 1 Information of the sample plots

土地利用	作物类型	施肥类型	灌溉水类型
旱地	小麦	化肥	蓄水池水
果园	柠檬	化肥	自然降雨
林地	柏树	—	自然降雨
水田	水稻	化肥	水库水
化肥菜园	青菜、黄瓜	化肥	沟渠水
粪肥菜园	辣椒	猪粪	井水

1.2.2 土壤理化指标测定

土样风干后分别过 2 mm 和 0.25 mm 筛,进行土壤容重、含水率、机械组成、阳离子交换量(CEC)、全氮(N)、全磷(P)、全钾(K)、有机碳(SOC)和 pH 等理化指标的测定^[24-25]。土壤容重的测定采用环刀法;含水率的测定采用烘干法;机械组成的测定采用吸管法,依据美国制土壤颗粒分级标准将土壤粒径分为砂粒(2.0 ~ 0.05 mm)、粉粒(0.05 ~ 0.002 mm)和粘粒(小于 0.002 mm);土壤 N、SOC 的测定采用元素分析法(Vario EL cube,德国 Elementar),样品测定前用 1 M 的 HCl 进行前处理,去除土壤中无机碳干扰;土壤全磷(P)、全钾(K)的测定分别采用氢氧化钠熔融-钼锑抗比色法和氢氧

化钠熔融-火焰分光光度计法;土壤 pH 的测定采用电位法。

1.2.3 环境抗生素的测定

通过走访调查本研究区内常用的抗生素种类,并辅以文献调研搜集土壤中常见的抗生素,最终确定对 5 类 11 种抗生素进行环境残留特征的测定(表 2)。

表 2 抗生素基本信息

Tab. 2 Information of antibiotics

抗生素种类	抗生素名称
氯霉素类(CPs)	氯霉素(CAP)
大环内酯类(MLs)	泰乐菌素(TYL)
四环素类(TCs)	土霉素(OTC)、金霉素(CTC)
喹诺酮类(QNs)	环丙沙星(CFX)、恩诺沙星(EFX)、诺氟沙星(NFX)
磺胺类(SAs)	磺胺噻唑(STZ)、磺胺间甲氧嘧啶(SMM)、磺胺甲恶唑(SMX)、磺胺二甲嘧啶(SMZ)

土壤抗生素的测试方法参考农业行业标准 NY/T 3787—2020^[26]进行,具体方法如下。(1)提取:准确称取 1.00 g 土样置于 50 mL 离心管中,加入 10 mL Na₂EDTA-McIlvaine 缓冲液进行提取,在漩涡混匀 30 s、超声 15 min、8000 r·min⁻¹ 条件下离心 10 min 后收集上清液,以上步骤再重复 2 次,合并 3 次提取液于 40 ℃ 条件下旋蒸至体积浓缩为 5 mL 左右;(2)净化:将 Oasis HLB 固相萃取柱依次用 5 mL 甲醇和 10 mL 超纯水进行活化,提取液以 1 mL·min⁻¹ 的流速过固相萃取柱,然后用 5 mL 25% 甲醇水溶液进行淋洗,真空抽干 5 min,最后用 10 mL 65% 甲醇水溶液进行洗脱,洗脱液于 40 ℃ 条件下旋蒸至近干,用甲醇定容至 1 mL,过 0.22 μm 滤膜,存于自动进样瓶中待测;(3)上机测定:采用 LC/MS-8040 超高效液相色谱-串联质谱仪(日本,岛津公司)进行上机测定,Waters BEH C18 柱(100 mm×2.1 mm,1.7 μm)的柱温为 40 ℃,进样量 5 μL,流动相 A 为甲醇,流动相 B 为含 0.3% 甲酸的 5 mmol·L⁻¹ 甲酸铵水溶液,流速为 0.3 mL·min⁻¹。

水样抗生素的测试方法与土壤抗生素类似,但没有浸提过程。

采用外标法进行定量分析。分别称取适量的各

抗生素标准品并用甲醇配置浓度为 $1\text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 的单标准储备溶液,取适量的单标准储备溶液制备具有浓度梯度的混合系列标准溶液,其中金霉素的系列浓度为 $0.5、10、25、50、100\text{ }\mu\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$;其余抗生素的系列浓度为 $0、0.5、1、2.5、10、25\text{ }\mu\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$ 。系列标准溶液经仪器分析测定后,得到抗生素峰面积与质量浓度的标准工作曲线(相关系数均大于 0.99)。样品加标回收率介于 $62.7\% \sim 97.1\%$,相对标准偏差低于 10%。

1.2.4 环境抗生素风险评估

环境抗生素的生态风险采用风险商值法(Risk quotient, RQ)进行评估^[12]。风险商是指环境抗生素的实际测量浓度(Measured Concentration, MEC)与预测无效应浓度(Predicted No-Effect-Concentration, PNEC)的比值,风险商值 RQ 可分为低风险($RQ \leq 0.1$)、中风险($0.1 \leq RQ \leq 1$)、高风险($RQ > 1$)3 个等级。相关计算公式如下:

$$RQ = MEC/PNEC_{\text{soil}} \tag{1}$$

$$PNEC_{\text{soil}} = PNEC_{\text{water}}/K_d \tag{2}$$

$$PNEC_{\text{water}} = EC_{50}/AF \tag{3}$$

式中, MEC 为环境抗生素的实际测量浓度($\mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$); $PNEC_{\text{soil}}$ 为抗生素在土壤中的预测无效应浓度($\mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$); $PNEC_{\text{water}}$ 为抗生素在水中的预测无效应浓度($\mu\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$); K_d 为土壤-水分配系数($\text{L} \cdot \text{kg}^{-1}$),通过文献查阅得出^[27-28]; EC_{50} 为各抗生素急性毒理学的相关浓度,主要从美国生态毒理数据库 ECOTOX 中获取; AF 为评价因子,采用急性毒性数据评估时常取值 1000^[29]。相关指标的取值及计算如表 3 所示。

1.3 数据处理

数据统计分析通过 SPSS 20.0 软件进行,差异显著性分析采用 Duncan 法进行($P < 0.05$),相关性分析采用 Spearman 法进行($P < 0.05$)。图表绘制

通过 Origin 2017 软件进行。

2 研究结果

2.1 不同土地利用类型的土壤理化性质

不同土地利用类型土壤因其自然因素(植被特征、立地条件等)和人为因素(施肥类型、灌溉方式和耕作方式等)的差异可呈现出不同的水分特征、质地特征和养分特征等(表 4)。土壤含水率表现为水田土壤最大,为 54.33%,林地土壤最小,为 14.67%。不同土壤的容重差异不大,为 $1.05 \sim 1.29\text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$,仅旱地和果园土壤的容重显著大于其他土地利用类型的土壤。依据美国农业部土壤质地判断标准,旱地、果园、林地、化肥菜园、粪肥菜园和水田土壤的质地分别属于壤土、壤土、粘壤、粘壤、砂粘壤和粘壤。所有土地利用类型土壤均呈弱碱性, pH 为 7.54 ~ 8.40。土壤阳离子交换量表现为林地土壤最高,为 $33.06\text{ cmol} \cdot \text{kg}^{-1}$,显著高于其他土地利用类型土壤。土壤养分在不同土地利用类型之间表现出显著差异性:林地土壤的全氮、SOC 含量和 C/N 最高,分别为 0.26%、3.59% 和 13.75,显著高于旱地、果园和水田土壤;土壤全磷含量表现为粪肥菜园土壤最高,为 $1.65\text{ g} \cdot \text{kg}^{-1}$,与其他土地利用类型土壤之间具有显著的差异性;不同土地利用类型土壤的全钾含量为 $14.32 \sim 18.47\text{ g} \cdot \text{kg}^{-1}$,由大到小依次为水田、旱地、化肥菜园、果园、粪肥菜园、林地。

2.2 不同环境介质中抗生素检出率及其残留量

不同环境介质中抗生素的检出率不同(图 2)。土壤介质中抗生素以四环素类和喹诺酮类为主,磺胺类、氯霉素类和大环内酯类抗生素则未检出。四环素类抗生素中金霉素(CTC)的检出率为 100%,土霉素(OTC)未检出;喹诺酮类抗生素中诺氟沙星(NFX)和环丙沙星(CFX)的检出率均为 11.11%,

表 3 抗生素敏感物种和无效应浓度预测值^[27-28]

Tab. 3 Antibiotic-sensitive species and predicted no-effect-concentrations (PNECs)

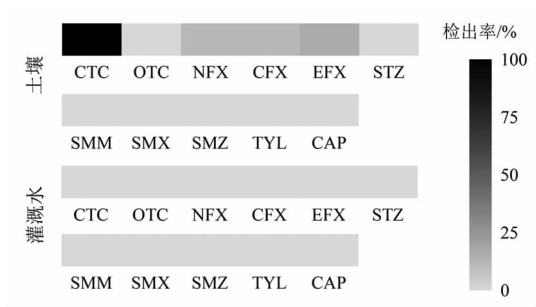
抗生素	敏感物种	毒性	$EC_{50}/(\text{mg} \cdot \text{L}^{-1})$	AF	K_d	$PNEC_{\text{water}}/(\mu\text{g} \cdot \text{L}^{-1})$	$PNEC_{\text{soil}}/(\mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1})$
金霉素	铜绿微囊藻	短期急性	0.05	1000	4570.90	0.05	228.55
诺氟沙星	铜绿微囊藻	短期急性	0.04	1000	523.00	0.04	19.88
环丙沙星	铜绿微囊藻	短期急性	0.02	1000	691.00	0.02	11.75
恩诺沙星	铜绿微囊藻	短期急性	0.05	1000	844.00	0.05	41.36

表 4 不同土地利用类型土壤理化性质
Tab.4 Physicochemical properties of soils in different land use types

土地利用	含水率/%	容重/(g·cm ⁻³)	砂粒含量/%	粉粒含量/%	粘粒含量/%	pH
旱地	25.33 ± 0.67b	1.29 ± 0.02a	31.80 ± 2.93b	43.39 ± 5.49a	24.81 ± 4.01c	8.40 ± 0.03a
果园	19.33 ± 0.88c	1.29 ± 0.08a	42.60 ± 2.57a	33.43 ± 1.22bc	23.98 ± 1.52c	8.19 ± 0.05b
林地	14.67 ± 1.86d	1.06 ± 0.05b	26.45 ± 2.70bc	40.05 ± 1.64ab	33.50 ± 1.58ab	8.02 ± 0.02b
水田	54.33 ± 2.19a	1.05 ± 0.02b	22.54 ± 1.95c	40.78 ± 0.45ab	36.67 ± 1.80a	8.12 ± 0.06b
化肥菜园	17.67 ± 0.33cd	1.17 ± 0.04ab	28.63 ± 0.24bc	42.56 ± 3.69ab	28.81 ± 3.50abc	8.14 ± 0.11b
粪肥菜园	26.00 ± 1.16b	1.06 ± 0.03b	48.49 ± 0.80a	25.70 ± 1.75c	25.81 ± 2.98bc	7.54 ± 0.04c

土地利用	CEC 含量/(cmol·kg ⁻¹)	N 含量/%	P 含量/(g·kg ⁻¹)	K 含量/(g·kg ⁻¹)	SOC 含量/%	C/N
旱地	23.28 ± 0.81bc	0.07 ± 0.01c	0.53 ± 0.02d	18.07 ± 0.00a	0.46 ± 0.01c	7.27 ± 0.61b
果园	21.27 ± 0.68c	0.12 ± 0.00bc	0.70 ± 0.01c	16.79 ± 0.04b	1.01 ± 0.04bc	8.29 ± 0.58b
林地	33.06 ± 1.11a	0.26 ± 0.03a	0.54 ± 0.04d	14.32 ± 0.10d	3.59 ± 0.33a	13.75 ± 0.49a
水田	24.25 ± 0.21b	0.09 ± 0.00c	0.61 ± 0.01cd	18.47 ± 0.40a	0.72 ± 0.01bc	7.75 ± 0.39b
化肥菜园	23.55 ± 0.02bc	0.17 ± 0.06abc	0.95 ± 0.05b	17.99 ± 0.04a	1.50 ± 0.67bc	8.27 ± 0.59b
粪肥菜园	25.60 ± 1.02b	0.21 ± 0.05ab	1.65 ± 0.06a	15.19 ± 0.38c	1.84 ± 0.50b	8.54 ± 0.37b

注:C/N 为 SOC 含量与 N 含量的比值;同列不同小写字母代表不同处理之间差异显著(P<0.05)。



图中缩写均为抗生素名称,详见表 2。

图 2 土壤和灌溉水中抗生素的检出率

Fig.2 Detection rate of antibiotics in soil and irrigation water

恩诺沙星(EFX)的检出率为 16.67%。灌溉水介质中 5 类 11 种抗生素含量均低于仪器检出限。抗生素在不同介质中检出率的差异表明,抗生素主要以土壤吸附的形式存在,可能与抗生素的自身性质有关。相关研究^[30-31]表明抗生素具有极强的吸附作用,容易在土壤中产生富集,不同抗生素在沉积物中的吸附能力一般由大到小为四环素类、大环内酯类、喹诺酮类、磺胺类。

不同土地利用类型土壤的抗生素残留量如表 5 所示。金霉素在不同土地利用类型土壤中的残留量为 18.70~43.00 μg·kg⁻¹,其中粪肥菜园土壤的金霉素残留量最高,为 43.00 μg·kg⁻¹,是其他土壤的

1.14~2.30 倍,显著高于旱地、果园、林地和化肥菜园土壤,但与水田土壤没有显著的差异性;林地土壤中金霉素残留量最低,为 18.70 μg·kg⁻¹,显著低于旱地、化肥菜园、粪肥菜园和水田土壤;此外,水田、化肥菜园和旱地土壤的金霉素残留量没有显著的差异性。喹诺酮类抗生素中,仅粪肥菜园土壤中检出诺氟沙星、环丙沙星和恩诺沙星,抗生素残留量分别为 5.95、3.36 和 6.52 μg·kg⁻¹。

2.3 不同土地利用类型土壤抗生素生态风险评估

不同土地利用类型下土壤施肥类型、水文特性和土壤性质等的差异均会影响抗生素的运移和累积特征,从而产生不同的生态风险。本研究环境中环境抗

表 5 不同土地利用类型土壤抗生素残留量
Tab.5 Antibiotic residues of soils in different land use types
(单位:μg·kg⁻¹)

土地利用	金霉素	诺氟沙星	环丙沙星	恩诺沙星
旱地	33.00 ± 5.86b	—	—	—
果园	22.70 ± 0.33cd	—	—	—
林地	18.70 ± 1.45d	—	—	—
水田	37.70 ± 3.48ab	—	—	—
化肥菜园	29.30 ± 1.45bc	—	—	—
粪肥菜园	43.00 ± 2.52a	5.95 ± 3.31	3.36 ± 1.88	6.52 ± 2.13

生素仅检出金霉素、诺氟沙星、环丙沙星和恩诺沙星共 4 种抗生素,且不同抗生素的生态风险也不同(图 3)。金霉素在 6 种目标土壤中均有检出, RQ 范围为 0.08~0.19,其中 22.22% 的土壤样本处于低生态风险水平,77.78% 的土壤样本处于中生态风险水平,但总体上所有土壤金霉素的 RQ 值均小于 0.2,处于较低的生态风险水平;诺氟沙星、环丙沙星和恩诺沙星仅在粪肥菜园土壤中检出,其 RQ 值分别为 0.30、0.43 和 0.16,处于中生态风险水平。此外,兽药国际协调委员会设定土壤生物毒性触发值为 $100\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ ^[32],本研究中所有检出的土壤抗生素残留量均小于该值,表明研究区内不同土地利用类型土壤的抗生素污染状况虽处于中低生态风险水平,但总体相对安全。通过对抗生素和土壤理化性质的相关性分析可知,金霉素含量仅与土壤含水率有显著的相关关系(表 6),但土壤含水率一般受降雨、地表水文状态、温度和湿度等因素影响,呈波动变化趋势,且本研究中不同土地利用类型土壤抗生素的来源也有差异,所以土壤含水量与金霉素之间的相关性关系可能并不准确。综上,本研究中金霉素与土壤理化性质之间没有较为显著的相关性。

3 讨论

不同土地利用类型土壤的抗生素残留量具有显著差异。近年来,抗生素作为一种新型污染物被广大学者重视,在土壤、水和沉积物等环境介质中均有发现。畜禽养殖、耕作方式、城市化建设等人类活动是抗生素迁移和累积的主要驱动因子,决定了抗生素在环境中的残留量^[33-34]。Zhao^[4]等研究发现,农田和果园土壤的抗生素残留量(92.6 、 $228.1\text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$)通常高于林地土壤的抗生素残留量($13.5\text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$)。Zhang^[35]等研究表明,水相、悬浮颗粒和沉积物等河流环境内的抗生素分布特征与工业水平和人口密度有关,而土壤中的抗生素与土地利用类型密切相关。与前人研究结果类似,本研究

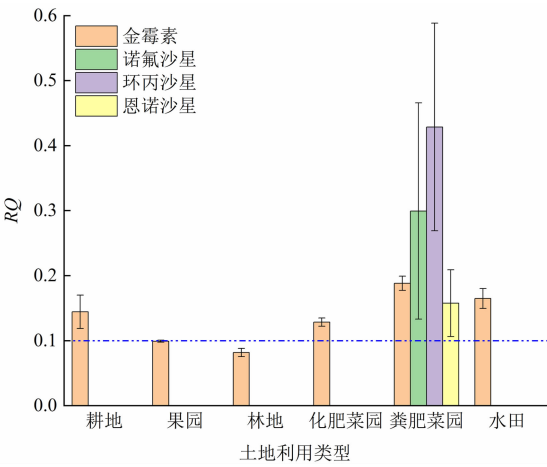


图 3 不同土地利用类型土壤抗生素生态风险
Fig. 3 Ecological risk of antibiotics of soils in different land use types

中,相较于林地和果园土壤,旱地、菜园和水田等土壤的抗生素残留量较高,同时,喹诺酮类抗生素仅在粪肥菜园土壤中检出。

土壤抗生素残留组分与抗生素性质(分子结构、极性和空间结构等)和土壤性质(土壤类型、离子强度和有机质等)有关^[36]。Cela-Dablanca^[37]等利用吸附实验证明,相较于磺胺嘧啶,四环素在土壤中的吸附能力较强,且当两种抗生素同时存在于土壤中时,四环素对磺胺嘧啶的吸附能力具有协同作用。Álvarez-Esmorís^[38]等研究表明,土壤中多西环素和恩诺沙星的吸附能力在酸性环境下增高,在碱性环境下降低,且其吸附系数与土壤表面电荷性质显著相关。Conde-Cid^[39]等发现土壤有机碳是影响抗生素吸附行为的重要因素,且磺胺类抗生素在有机质含量高的土壤中具有较高的保留率。与前人研究不同,本研究条件下,土壤抗生素残留特征与土壤性质之间没有显著的相关性,可能与不同土地利用类型土壤的抗生素来源差异有关。本研究中林地土壤的阳离子交换量、有机质和总氮含量等相对较高,但无施肥等强烈的人为干扰,抗生素来源基本仅为微生物源等土壤固有来源,抗生素残留及环境行为

表 6 土壤抗生素残留量和土壤理化性质的相关性系数

Tab. 6 Correlation coefficients of chlortetracycline concentration and physicochemical properties of soils

	含水率	容重	砂粒含量	粉粒含量	粘粒含量	pH	CEC 含量	N 含量	P 含量	K 含量	SOC 含量	C/N
金霉素含量	0.75 *	-0.16	0.20	-0.13	-0.11	-0.07	-0.07	-0.31	0.39	0.45	-0.43	-0.34

注: * 表示相关性在 0.05 水平上显著。

较弱,而前人研究多为同一土地利用类型不同处理之间的研究,可通过单因素分析的方法定量表示抗生素环境行为与土壤性质之间的关系。

有机肥源抗生素是农田土壤抗生素污染的主要来源,农田施用的有机肥在降雨作用下易释放抗生素,并使其在表层土壤中富集。与本研究结果类似,Zhang^[3]等通过 meta 分析技术总结了施用粪肥土壤的抗生素污染特征,结果发现,施用粪肥的土壤中可检出 49 种抗生素,其中四环素类和喹诺酮类最为普遍,残留浓度中位数为 $11.55 \sim 43.75 \mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$ 。Lyu^[40]等对土壤抗生素来源的分析表明,土壤抗生素来源主要为畜牧活动、水产养殖和废水排放,其中检出率较高的 4 种四环素类、6 种磺胺类和 2 种大环内酯类抗生素主要来源于鱼塘水或动物粪肥灌溉。此外,本研究结果表明,金霉素在土壤中的残留量远高于诺氟沙星、环丙沙星和恩诺沙星,可能与各类抗生素用量差异引起动物粪便的抗生素残留差异有关。据统计,中国兽用抗生素的年使用量前三位依次为四环素类、磺胺类和 β -内酰胺类,分别占总使用量的 30.52%、13.08% 和 12.55%,而喹诺酮类抗生素的施用量仅占 2.95%^[15]。

抗生素产生的生态风险已经引起了广泛关注。兽药国际协调委员会综合不同抗生素化合物对一系列生物的生态毒性作用将土壤生物毒性触发值设定为 $100 \mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$,在高生态风险水平下,将对土壤生物群落产生毒性作用^[33]。风险商值法是一种判定污染物是否有潜在有害影响的半定量生态风险评价方法,利用最敏感物种在某一条件下的毒性数据定性评价污染物的潜在生态风险,通过 RQ 的大小可一定程度上判别抗生素的生态风险,此外,一般政策和标准中为简化风险评定和预防标准也常取 $RQ = 1$ 为风险阈值,将 RQ 值大于 1 时判定为需要管控的高风险,反之则为低风险^[41]。结合 RQ 法和土壤生物毒性触发值可从半定量和定量的角度综合判定环境抗生素的生态风险。综上,虽然研究区内检出的抗生素不同程度地处于中低生态风险水平,但其残留量均低于国际土壤生物毒性触发值($100 \mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$),处于相对安全的环境生态风险水平。

土壤抗生素迁移、残留过程和机制较为复杂,亟需开展大量针对性的定量研究。本研究主要以川中丘陵区的典型小流域为研究对象,通过采集流域内的不同土地利用类型的多样点混合样进行 5 类 11

种抗生素环境残留特征的研究,初步形成不同土地利用类型土壤的抗生素污染特征及风险评价的前期调查研究。但由于本研究涉及的样地和样本量较少,其结果存在一定的局限性,不足以全面解释川中丘陵区不同土地利用类型土壤的抗生素残留特征及其生态风险评估,未来仍需进一步对川中丘陵区不同地域、不同土地利用类型、不同土壤类型的抗生素的环境行为及其生态风险特征进行更加全面、深入的研究。

4 结论

(1)不同土地利用类型土壤中抗生素组成和检出率不同。研究区内土壤中检出的抗生素主要为金霉素、诺氟沙星、环丙沙星和恩诺沙星,其检出率分别为 100%、11.11%、11.11% 和 16.67%。其中,金霉素在旱地、林地、果园、水田、化肥菜园和粪肥菜园土壤中均有检出,而诺氟沙星、环丙沙星和恩诺沙星则只在粪肥菜园土壤中有检出。

(2)本研究中土壤抗生素来源可能与有机肥施用有关。灌溉水中抗生素的含量均低于仪器检出限,诺氟沙星、环丙沙星和恩诺沙星仅在粪肥菜园土壤中有检出,其残留量分别为 5.95、3.36 和 $6.52 \mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$,同时金霉素含量在粪肥菜园土壤中残留量最高,且实验条件下抗生素含量与土壤理化性质之间的相关性较低,因此本研究中土壤抗生素残留主要与有机肥施用有关。

(3)研究区内土壤抗生素污染处于相对安全的水平。不同土地利用类型土壤中金霉素的 RQ 为 0.08~0.19,粪肥菜园土壤中诺氟沙星、环丙沙星和恩诺沙星的 RQ 分别为 0.30、0.43 和 0.16,处于中低生态风险水平,但其残留量均小于国际土壤生物毒性触发值,处于相对安全的生态风险水平。

参考文献 (References)

- [1] ZHANG Yalei, LIN Shuangshuang, DAI Chaomeng, et al. Sorption-desorption and transport of trimethoprim and sulfonamide antibiotics in agricultural soil: Effect of soil type, dissolved organic matter, and pH [J]. Environmental Science and Pollution Research, 2014, 21(9): 5827–5835. DOI: 10.1007/s11356-014-2493-8
- [2] AYDIN S, AYDIN M E, ULVI A, et al. Antibiotics in hospital effluents: Occurrence, contribution to urban wastewater, removal in a wastewater treatment plant, and environmental risk assessment

- [J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2019, **26** (1): 544–558. DOI: 10.1007/s11356-018-3563-0
- [3] ZHANG Yu, CHENG Dengmiao, XIE Jun, et al. Impacts of farmland application of antibiotic-contaminated manures on the occurrence of antibiotic residues and antibiotic resistance genes in soil: A meta-analysis study [J]. *Chemosphere*, 2022, **300**: 134529. DOI: 10.1016/j.chemosphere.2022.137050
- [4] ZHAO Fangkai, CHEN Liding, YANG Lei, et al. Effects of land use and rainfall on sequestration of veterinary antibiotics in soils at the hillslope scale [J]. *Environmental Pollution*, 2020, **260**: 114112. DOI: 10.1016/j.envpol.2020.114112
- [5] SUN Yanmei, GUO Yajie, SHI Mingming, et al. Effect of antibiotic type and vegetable species on antibiotic accumulation in soil-vegetable system, soil microbiota, and resistance genes [J]. *Chemosphere*, 2021, **263**: 128099. DOI: 10.1016/j.chemosphere.2020.128099
- [6] RODRÍGUEZ A, IGLESIAS I, DE LA TORRE A. Prioritisation tool for targeting the monitoring of veterinary pharmaceuticals in soils at a national level: The case of Spain [J]. *European Journal of Soil Science*, 2022, **73**(4): e13268. DOI: 10.1111/ejss.13268
- [7] DUNGAN R S, SNOW D D, BJORNEBERG D L. Occurrence of antibiotics in an agricultural watershed in south-central Idaho [J]. *Journal of Environmental Quality*, 2017, **46**(6): 1455–1461. DOI: 10.2134/jeq2017.06.0229
- [8] BRAUN G, BRAUN M, KRUSE J, et al. Pesticides and antibiotics in permanent rice, alternating rice-shrimp and permanent shrimp systems of the coastal Mekong Delta, Vietnam [J]. *Environment International*, 2019, **127**: 442–451. DOI: 10.1016/j.envint.2019.03.038
- [9] LIU Xinyu, ZHANG Jianqiang, GBADEGESIN L A, et al. Modelling approaches for linking the residual concentrations of antibiotics in soil with antibiotic properties and land-use types in the largest urban agglomerations in China: A review [J]. *Science of the Total Environment*, 2022, **838**: 156141. DOI: 10.1016/j.scitotenv.2022.156141
- [10] SEYOUM M M, OBAYOMI O, BERNSTEIN N, et al. Occurrence and distribution of antibiotics and corresponding antibiotic resistance genes in different soil types irrigated with treated wastewater [J]. *Science of the Total Environment*, 2021, **782**: 146835. DOI: 10.1016/j.scitotenv.2021.146835
- [11] HUANG Xuewei, YE Zhilong, CAI Jiasheng, et al. Quantification of DOM effects on tetracyclines transport during struvite recovery from swine wastewater [J]. *Water Research*, 2021, **206**: 117756. DOI: 10.1016/j.watres.2021.117756
- [12] LI Cheng, CHEN Jiayi, WANG Jihua, 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. DOI: 10.1016/j.scitotenv.2015.03.070
- [13] GWOREK B, KIJENSKA M, WRZOSEK J, et al. Pharmaceuticals in the soil and plant environment: A review [J]. *Water, Air, and Soil Pollution*, 2021, **232**: 145. DOI: 10.1007/s11270-020-04954-8
- [14] ZHANG Qianqian, YING Guangguo, PAN Changgui, 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 and Technology*, 2015, **49**(11): 6772–6782. DOI: 10.1021/acs.est.5b00729
- [15] 中华人民共和国农业农村部. 兽医公报[R]. 北京: 中华人民共和国农业农村部, 2021: 33–36. [Ministry of Agriculture and Rural Affairs of People's Republic of China. Official veterinary bulletin [R]. Beijing: Ministry of Agriculture and Rural Affairs of the People's Republic of China, 2021: 33–36]
- [16] 解旭东, 侯智昊, 李楠, 等. 中国胡焕庸线下方四区域沉积物和土壤中抗生素污染特征及生态风险评价[J]. *生态环境学报*, 2021, **30**(5): 1023–1033. [XIE Xudong, HOU Zhihao, LI Nan, et al. Occurrence, distribution and ecological risk of antibiotics in sediments and soils over the four areas below the Heihe-Tengchong Line of China [J]. *Ecology and Environmental Sciences*, 2021, **30**(5): 1023–1033] DOI: 10.16258/j.cnki.1674-5906.2021.05.015
- [17] XING Hang, HUANG Yuhang, CHEN Xiaoyan, et al. Comparative study of soil erodibility and critical shear stress between loess and purple soils [J]. *Journal of Hydrology*, 2018, **558**: 625–631. DOI: 10.1016/j.jhydrol.2018.01.060
- [18] QUINE T A, WALLING D E, XHANG X, et al. Investigation of soil erosion on terraced fields near Yanting, Sichuan province, China, using caesium-137 [G]// *Proceedings of the Chengdu Symposium of Erosion, Debris Flows and Environment in Mountain Regions*. Oxfordshire: IAHS-AISH Publication, 1992, **209**: 155–168.
- [19] 朱波, 汪涛, 徐泰平, 等. 紫色丘陵区典型小流域氮素迁移及其环境效应[J]. *山地学报*, 2006, **24**(5): 601–606. [ZHU Bo, WANG Tao, XU Taiping, et al. Non-point-source nitrogen movement and its environmental effects in a small watershed in hilly area of purple soil [J]. *Mountain Research*, 2006, **24**(5): 601–606] DOI: 10.16089/j.cnki.1008-2786.2006.05.015
- [20] ZHU Bo, WANG Tao, KUANG Fuhong, et al. Measurements of nitrate leaching from a hillslope cropland in the central Sichuan basin, China [J]. *Soil Science Society of America Journal*, 2009, **73**(4): 1419–1426. DOI: 10.2136/sssaj2008.0259
- [21] 王小国, 朱波, 王艳强, 等. 不同土地利用方式下土壤呼吸及其温度敏感性[J]. *生态学报*, 2007, **27**(5): 1960–1968. [WANG Xiaoguo, ZHU Bo, WANG Yanqiang, et al. Soil respiration and its sensitivity to temperature under different land use conditions [J]. *Acta Ecologica Sinica*, 2007, **27**(5): 1960–1968]
- [22] 中国科学院成都分院土壤研究室. 中国紫色土(上篇)[M]. 北京: 科学出版社, 1991: 1. [Soil Laboratory, Chengdu Branch

- of Chinese Academy of Sciences. Purple soil in China (1) [M]. Beijing: Science Press, 1991: 1]
- [23] 罗芳林, 刘琛, 唐翔宇, 等. 猪粪溶解性有机物对紫色土中抗生素迁移的影响[J]. 中国环境科学, 2020, **40**(9): 3952 – 3961. [LUO Fanglin, LIU Chen, TANG Xiangyu, et al. Effects of pig manure-derived dissolved organic matter on the transport of antibiotics in purple soils [J]. China Environment Science, 2020, **40**(9): 3952 – 3961] DOI: 10.19674/j.cnki.issn1000 – 6923. 2020.0441
- [24] 鲁如坤. 土壤农业化学分析方法[M]. 北京: 中国农业科技出版社, 2000: 13, 28, 146 – 195. [LU Rukun. Methods of soil agrochemical analysis [M]. Beijing: China Agricultural Science and Technology Press, 2000: 13, 28, 146 – 195]
- [25] 刘光崧. 土壤理化分析与剖面描述[M]. 北京: 中国标准出版社, 1996: 5 – 9. [LIU Guangsong. Physical and chemical analysis and profile description of soil [M]. Beijing: China Standard Press, 1996: 5 – 9]
- [26] NY/T 3787 – 2020. 土壤中四环素类、氟喹诺酮类、磺胺类、大环内酯类和氯霉素类抗生素含量同步检测方法 高效液相色谱法[S]. 北京: 中国农业出版社, 2020. [NY/T 3787 – 2020. Simultaneous determination of tetracyclines, fluoroquinolones, sulfonamides, macrolides and chloramphenicol antibiotics in soil by high performance liquid chromatography method [S]. Beijing: China Agricultural Press, 2020]
- [27] 朱秀辉, 曾巧云, 解启来, 等. 广州市北郊蔬菜基地土壤四环素类抗生素的残留及风险评估[J]. 农业环境科学学报, 2017, **36**(11): 2257 – 2266. [ZHU Xiuhui, ZENG Qiaoyun, XIE Qilai, et al. Residues and risk assessment of tetracycline antibiotics in vegetable-growing soils from suburban areas of northern Guangzhou [J]. Journal of Agro-Environment Science, 2017, **36**(11): 2257 – 2266] DOI: 10.11654/jaes.2017 – 0549
- [28] 赵鑫宇, 陈慧, 赵波, 等. 石家庄市土壤中喹诺酮类抗生素时空分布及其风险评估[J]. 环境科学, 2023, **44**(4): 2223 – 2233. [ZHAO Xinyu, CHEN Hui, ZHAO Bo, et al. Spatial-temporal distribution and risk assessment of quinolone antibiotics in soil for Shijiazhuang city [J]. Environmental Science, 2023, **44**(4): 2223 – 2233] DOI: 10.13227/j.hjks.202204266
- [29] European Chemicals Bureau. Technical guidance document on risk assessment [R]. European Communities: European Commission Joint Research Center, 2003: 118 – 190.
- [30] HAMSCHER G, SCZESNY S, HÖPER H, et al. Determination of persistent tetracycline residues in soil fertilized with liquid manure by high-performance liquid chromatography with electrospray ionization tandem mass spectrometry [J]. Analytical Chemistry, 2002, **74**(7): 1509 – 1518. DOI: 10.1021/ac015588m
- [31] 李宗宸. 河流沉积物吸附四环素类抗生素的行为规律研究[D]. 上海: 东华大学, 2017: 16 – 19. [LI Zongchen. Study on the adsorption behaviors and rules of tetracyclines on river sediment [D]. Shanghai: Donghua University, 2017: 16 – 19]
- [32] 王娜, 郭欣妍, 单正军, 等. 农田土壤抗生素污染管控建议[J]. 中国工程科学, 2021, **23**(1): 167 – 173. [WANG Na, GUO Xinyan, SHAN Zhengjun, et al. Suggestions for management and control of antibiotics in farmland soil in China [J]. Strategic Study of CAE, 2021, **23**(1): 167 – 173] DOI: 10.15302/J – SSCAE – 2021.01.023
- [33] LI Min, YANG Lei, YEN H, et al. Occurrence, spatial distribution and ecological risks of antibiotics in soil in urban agglomeration [J]. Journal of Environmental Sciences, 2023, **125**: 678 – 690. DOI: 10.1016/j.jes.2022.03.029
- [34] ZHAO Fangkai, YANG Lei, TANG Jianfeng, et al. Urbanization-land-use interactions predict antibiotic contamination in soil across urban-rural gradients [J]. Science of the Total Environment, 2023, **867**: 161493. DOI: 10.1016/j.scitotenv.2023.161493
- [35] ZHANG Ruijie, ZHANG Ruiling, LI Jun, et al. Occurrence and distribution of antibiotics in multiple environmental media of the East River (Dongjiang) catchment, South China [J]. Environmental Science and Pollution Research, 2017, **24**(10): 9690 – 9701. DOI: 10.1007/s11356 – 017 – 8664 – 7
- [36] ZHI Dan, YANG Danxing, ZHENG Yongxin, et al. Current progress in the adsorption, transport and biodegradation of antibiotics in soil [J]. Journal of Environmental Management, 2019, **251**: 109598. DOI: 10.1016/j.jenvman.2019.109598
- [37] CELA-DABLANCA R, BARREIRO-BUJÁN A, FERREIRA-COELHO G, et al. Competitive adsorption and desorption of tetracycline and sulfadiazine in crop soils [J]. Environmental Research, 2022, **214**: 113726. DOI: 10.1016/j.envres.2022.113726
- [38] ÁLVAREZ-ESMORÍS C, RODRÍGUEZ-LÓPEZ L, NÚÑEZ-DELGADO A, et al. Influence of pH on the adsorption-desorption of doxycycline, enrofloxacin, and sulfamethoxypyridazine in soils with variable surface charge [J]. Environmental Research, 2022, **214**: 114071. DOI: 10.1016/j.envres.2022.114071
- [39] CONDE-CID M, FERNÁNDEZ-CALVIÑO D, FERNÁNDEZ-SANJURJO M J, et al. Adsorption/desorption and transport of sulfadiazine, sulfachloropyridazine, and sulfamethazine, in acid agricultural soils [J]. Chemosphere, 2019, **234**: 978 – 986. DOI: 10.1016/j.chemosphere.2019.06.121
- [40] LYU Jia, YANG Linsheng, ZHANG Lan, et al. Antibiotics in soil and water in China: A systematic review and source analysis [J]. Environmental Pollution, 2020, **266**: 115147. DOI: 10.1016/j.envpol.2020.115147
- [41] 丁丹, 黄晓依, 顾静仪, 等. 畜禽粪肥还田四环素类抗生素(TCs)在土壤-蔬菜系统的分布特征及风险评估[J]. 环境科学, 2023, **44**(8): 4440 – 4447. [DING Dan, HUANG Xiaoyi, GU Jingyi, et al. Distribution characteristics and risk assessment of tetracycline antibiotics (TCs) in soil-vegetable system with soil fertilized with animal manure [J]. Environmental Science, 2023, **44**(8): 4440 – 4447] DOI: 10.13227/j.hjks.202208255

Antibiotics Residue and Ecological Risks in Purple Soils of the Central Sichuan Basin, China

ZHOU Tao^{1,2}, SU Zheng'an^{1*}, LIU Gangcai¹, XIE Xiaojian^{1,2}, ZHOU Ling^{1,2}

(1. Key Laboratory of Mountain Surface Processes and Ecological Regulation, Institute of Mountain Hazards and Environment, Chinese Academy of Sciences and Ministry of Water Resources, Chengdu 610299, China;

2. University of Chinese Academy of Science, Beijing 100049, China)

Abstract: The enrichment of antibiotics in topsoil will interfere with the growth and development of plants, soil fauna, and microorganisms, threatening ecosystem security. As an important agricultural soil resource in the middle and upper reaches of the Yangtze River, China, purple soils are characterized by weak erosion resistance and preferential flow development, which provide dynamic conditions for the migration of environmental residual antibiotics. Formerly, most of the related studies in antibiotics migration in purple soil focused on the mechanism of environmental migration of target antibiotics; unfortunately, the natural abundance, natural contamination characteristics, and environmental risks of soil residual antibiotics are not yet addressed.

In this study, purple soil in 6 land use types (dryland, woodland, orchard, paddy field, fertilizing vegetable garden and manuring vegetable garden) and irrigation water in the hilly area of central Sichuan basin, China were targeted for determination of residue levels of 11 antibiotics in five categories, followed by an ecological risk assessment of antibiotics using the risk quotient method.

(1) Chlortetracycline (CTC), norfloxacin (NFX), ciprofloxacin (CFX) and enrofloxacin (EFX) were detected in purple soils. NFX, CFX and EFX were only detected in manuring vegetable garden, with soil residues values of 5.95, 3.36 and 6.52 $\mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$, respectively. CTC had the highest residue of 43.00 $\mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$ in manuring vegetable garden among six typical land uses.

(2) No antibiotics were detected in irrigation water in the study area, suggesting that the levels of all types of antibiotics residues in irrigation water were below the detection limit of instrument to be used in the study.

(3) The risk quotient values (RQ) of antibiotics in purple soils in the study area ranged from 0.08 to 0.43, which were at a low or middle ecological risk level; the antibiotics residues were all lower than the international soil biological toxicity trigger value (100 $\mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$), at a relatively safe ecological risk level.

(4) The source of antibiotics in the study area might contribute to the application of organic fertilizer; therefore, environmental and ecological risks of antibiotics in soil might be reduced to a certain extent by adjusting the fertilizer application structure.

This study provides a basis for ecological security construction in the purple soil area of the central Sichuan basin.

Key words: antibiotics residue; land use; ecological security; purple soil; manuring

(责任编辑 钟雨倩)