

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第39卷 第2期

Vol.39 No.2

2018

中国科学院生态环境研究中心 主办
科学出版社 出版



目次

特别策划:挥发性有机污染物(VOCs)排放特征、减排控制、环境政策研究专辑(III)

序	郝郑平(477)
我国机动车排放 VOCs 及其大气环境影响	陈天增,葛艳丽,刘永春,贺泓(478)
基于 PMF 量化工业排放对大气挥发性有机物(VOCs)的影响:以南京市江北工业区为例	胡崑,王鸣,郑军,王红丽,卢兴东,景盛翱,陈超(493)
南京工业挥发性有机物来源解析及其对臭氧贡献评估	张玉欣,安俊琳,王俊秀,师远哲,刘静达,梁静舒(502)
某工业园区 VOCs 臭氧生成潜势及优控物种	武蕾丹,王秀艳,杨文,郭风艳,刘锦(511)
某石化工业园区秋季 VOCs 污染特征及来源解析	胡天鹏,李刚,毛瑶,郑煌,秦世斌,闵洋,张家泉,邢新丽,祁士华(517)
某典型石化工业园区冬季大气中 VOCs 污染特征	毛瑶,李刚,胡天鹏,郑煌,安艺伟,闵洋,邢新丽,祁士华(525)
杭州市工业源 VOCs 排放清单及排放特征	卢滨,黄成,卢清,杨强,井宝莉,夏阳,唐伟,顾泽平(533)
秦皇岛市工业行业挥发性有机物排放特征	虎啸宇,刘航,王乃玉,王灿,揣莹(543)
浙江省汽摩配行业挥发性有机物排放特征及排放系数	杨忠平,王浙明,何志桥,徐志荣,滕富华,张华岳(551)
汽车制造企业恶臭来源及影响分析	石田立,张伟霞,陈小方,张嘉妮,梁小明,范丽雅,叶代启(557)
典型酿造业厂界无组织排放 VOCs 污染特征与风险评价	高占啟,胡冠九,王荃,朱冰清,陈素兰(567)
成都市大气环境 VOCs 污染特征及其健康风险评价	李友平,唐娅,范忠雨,蒲敏,章金莲,杨铮铮,吴大磊(576)
上海市住宅区儿童卧室中甲醛和苯系物浓度的现场检测分析	蒋巧云,刘平平,王雪颖,路荣春,刘炜,周华元,龚莹莹,周亚欣,黄晨(585)
江苏省人为源 VOCs 排放清单及其对臭氧生成贡献	夏思佳,刘倩,赵秋月(592)
江门市人为源挥发性有机物排放清单	陈小方,张伟霞,陈柄旭,张嘉妮,范丽雅,叶代启(600)
长江三角洲 2014 年天然源 BVOCs 排放、组成及时空分布	刘岩,李莉,安静宇,张伟,严茹莎,黄凌,黄成,王红丽,王卿,王敏(608)
北京城市副中心(通州区)加油站 VOCs 排放清单	黄玉虎,胡玮,李贝贝,纪旋,肖宇,任碧琪,秦建平(618)
公交车使用废食用油制生物柴油的污染物排放及 VOCs 成分谱	胡志远,林骝骑,黄成,王红丽,景盛翱,楼狄明(626)
生物滴滤塔净化甲基叔丁基醚废气的研究	褚其英,姚露露,吕雄标,叶杰旭,叶虹霓,潘梁柱,陈建孟,陈东之(633)
低温等离子体-生物耦合系统对复合 CVOCs 的降解	郭海倩,缪晶晶,姜理英,张迪(640)
水质异味期间钱塘江杭州段表层水体中挥发性和半挥发性有机物污染特征及健康风险评价	陈峰,唐访良,徐建芬,王奕奕,阮东德,张伟,周姗(648)
城市自来水管网中挥发性有机物的空间分布特征	许美佳,王海亮,李春梅,徐雄,王东红(655)
不同通勤模式暴露于 VOCs 的健康风险评价	佟瑞鹏,张磊(663)
家具制造过程中 VOCs 的来源分析及环境健康风险评价	佟瑞鹏,张磊,杨校毅,朱旭波,任传耕(672)
北京市 PM _{2.5} 时空分布特征及其与 PM ₁₀ 关系的时空变异特征	杨文涛,姚诗琪,邓敏,王艳军(684)
小型池塘水-气界面 CH ₄ 冒泡通量的观测	张秀芳,肖薇,张弥,王伟,赵佳玉,胡勇博,谢成玉,张圳,谢燕红,黄文晶(691)
中国七大流域全氟烷基酸污染水平与饮水暴露风险	王鑫璇,张鸿,王艳萍,罗骥(703)
铁岭市河流氮素时空分布及源解析	杨丽标,雷坤,乔飞,孟伟(711)
基于三维荧光及平行因子分析的川西高原河流水体 CDOM 特征	刘堰杨,秦纪洪,刘琛,孙辉,唐翔宇,范诗雨(720)
宁波市地表水重金属污染现状和健康风险评价	徐美娟,鲍波,陈春燕,王永川,高夫燕,虞效益(729)
巢湖水体可溶性重金属时空分布及污染评价	吴蕾,刘桂建,周春财,刘荣琼(738)
广西龙江沉积物重金属污染现状及生物有效性	蓝小龙,宁增平,肖青相,黄正玉,刘意章,肖唐付,赵彦龙,吴世良(748)
内电解人工湿地冬季低温尾水强化脱氮机制	郑晓英,朱星,王菊,周翔,徐亚东,韦诚,高雅洁,周敏(758)
河道型水库支流库湾营养盐动态补给过程	徐雅倩,徐飘,杨正健,刘德富,马骏(765)
降雨对蓝藻水华消退影响及其机制分析	刘心愿,宋林旭,纪道斌,刘德富,崔玉洁,黄佳维,赵冲,唐咏春,平明明(774)
城市河流沉水植物与大型底栖动物群落的关系	梁晓东,余杨,张敏,段龙飞,彭文启(783)
三峡库区兰陵溪流域径流氮磷输出及其降雨径流过程特征	张林,黄志霖,肖文发,曾立雄,宋文梅(792)
基于污染评价的地下水中优控污染物筛选	赵鹏,何江涛,王曼丽,黄德亮,王磊,梁雨(800)
硫和石英砂比对自养填充床反应器去除高浓度高氯酸盐的影响	陶华强,邵冬海,张超,宋圆圆,逯彩彩,郭建博(811)
活性炭/高分子复合水凝胶对水中亚甲基蓝和 Cu(II) 的去除性能	孔岩,庄媛,石宝友,韩志勇,郝昊天,韩昆,于建伟(819)
三维网状 HZO@SGH 对水中氟离子的吸附作用和机制	马福臻,周少奇,刘泽琚,支亮亮,周璇(828)
MgO/活性炭催化臭氧氧化降解有机物的作用机制	许珊珊,林存旺,丁亚磊,童少平(838)
污水厂二级出水中难降解有机物的臭氧化特性	侯瑞,金鑫,金鹏康,苟邦耀,王晓昌(844)
染料探针技术对二级出水中优势污染物的定量检测	孟晓荣,王穗桢,王磊,王旭东,乔茹凯,任婷婷,唐卫婷(852)
污水处理厂厌氧氨氧化工艺小试	李冬,赵世勋,王俊安,朱金凤,关宏泽,张杰(859)
间歇曝气模式下曝气量对短程硝化恢复的影响	刘宏,南彦斌,李慧,王翔,彭永臻,陈永志(865)
好氧/除磷颗粒对亚硝化颗粒污泥启动的影响	李冬,郭跃洲,曹美忠,张泽文,李帅,张杰(872)
处理垃圾渗滤液的 SBR 中微生物种群与污泥比阻	蔡丽云,黄泽彬,须子唯,江志斌,林莉莉,黄宇(880)
基于城镇化进程表层土壤多环芳烃来源解析及风险评价	姚宏,张士超,刘明丽,王静,鲁根涛,于晓华(889)
西江流域土壤砷含量空间变异与污染评价	刘畅,宋波,张云霞,雷梅,田美玲,余元元,庞瑞(899)
开封城市土壤磷素组成特征及流失风险	白秀玲,马建华,孙艳丽,刘德新(909)
电子垃圾拆解区土壤-水稻系统重金属分布特征及健康风险评价	尹伊梦,赵委托,黄庭,程胜高,赵珍丽,余葱葱(916)
上海市稻米中有机氯农药残留水平及健康风险评价	孟媛,刘翠翠,仇雁翎,周轶慧,朱志良(927)
四环素类抗生素对不同蔬菜生长的影响及其富集转运特征	迟荪琳,王卫中,徐卫红,李桃,李彦华,张春来(935)
硅肥耦合水分管理对复合污染稻田土壤 As-Cd 生物有效性及稻米累积阻控	李园星露,叶长城,刘玉玲,李丹阳,刘寿涛,罗海艳,刘孝利,铁柏清,孙健(944)
电子垃圾拆解工人的肝功能和肾功能健康状况及影响因素分析:以清远市龙塘镇为例	严晓,李淑圆,王美欢,许榕发,郑晶,任明忠(953)

四环素类抗生素对不同蔬菜生长的影响及其富集转运特征

迟荪琳, 王卫中, 徐卫红*, 李桃, 李彦华, 张春来

(西南大学资源与环境学院, 重庆 400715)

摘要: 本研究探讨了四环素类抗生素(TCs)对两种蔬菜生长的影响及其在蔬菜体内的富集和转运特征, 以期对四环素类抗生素的植物毒性和对人体健康的风险评价提供理论基础. 采用土培试验研究了不同水平(0、50和150 mg·kg⁻¹)的四环素类抗生素(四环素 TC、土霉素 OTC、金霉素 CTC)对生菜和小白菜生长、抗生素含量及其富集转运特征的影响. 结果表明, TCs 总体上抑制了生菜的生长, 地上部和地下部鲜重分别较 CK 降低了 1.56%~26.84% 和 17.36%~51.04%, 小白菜地上部和地下部鲜重反而较对照提高了 3.7%~7.3% 和 3.1%~82.2%. TCs 在一定程度上增加了生菜和小白菜的气孔导度(G_s)和蒸腾速率(T_r), 抑制了生菜的净光合速率(P_n), P_n 在 TCs 为 150 mg·kg⁻¹ 时较 CK 降低了 32.43%~82.43%. TCs 还抑制了生菜和小白菜的 SOD 活性, 较 CK 降低了 29.17%~223.12%, 以 OTC 的抑制作用最强. 生菜和小白菜的 MDA 含量在 TCs 为 150 mg·kg⁻¹ 时达到最大值(生菜地上部除外). 小白菜地上部和地下部 TCs 的含量均高于生菜, 以 CTC 处理的小白菜和生菜 TCs 含量较高. 种植生菜的土壤 TCs 残留量高于小白菜土壤, 以 OTC 处理的土壤 TCs 残留量最高. 小白菜对 TCs 的富集系数和转运系数分别是生菜的 1.07~7.35 倍和 1.15~2.25 倍. 3 种四环素类抗生素中以 OTC 和 CTC 的生态风险较大.

关键词: 四环素类抗生素; 蔬菜; 抗氧化酶活性; 光合作用; 富集转运特征

中图分类号: X171.5 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2018)02-0935-09 DOI: 10.13227/j.hjxx.201706250

Effects of Tetracycline Antibiotics on Growth and Characteristics of Enrichment and Transformation in Two Vegetables

CHI Sun-lin, WANG Wei-zhong, XU Wei-hong*, LI Tao, LI Yan-hua, ZHANG Chun-lai

(College of Resources and Environmental Sciences, Southwest University, Chongqing 400715, China)

Abstract: Pot experiments were carried out to study different levels (0, 50, and 150 mg·kg⁻¹) of three tetracycline antibiotics [tetracycline (TC), oxytetracycline (OTC), and chlortetracycline (CTC)] on the growth, concentration of tetracycline antibiotics, and their characteristics of enrichment and transformation in two kinds of vegetables (lettuce and Chinese cabbage). The results showed that the fresh weight of shoots and roots of lettuce decreased by 1.56%-26.84% and 17.36%-51.04%, respectively, when exposed to tetracycline antibiotics compared to the control, while the fresh weight of shoots and roots of Chinese cabbage increased by 3.7%-7.3% and 3.1%-82.2%, respectively. The stomatal conductance (G_s) and transpiration rate (T_r) of lettuce and cabbage increased when exposed to tetracycline antibiotics, while the net photosynthetic rate (P_n) of lettuce decreased by 32.43%-82.43% at 150 mg·kg⁻¹ of TC compared to the control. Compared to the control, the activities of SOD in lettuce and cabbage decreased 29.17%-223.12% when exposed to tetracycline antibiotics, and the lowest activities of SOD in lettuce and cabbage were found in OTC treatments. The highest content of MDA in lettuce and cabbage was observed at 150 mg·kg⁻¹ of TC (except for lettuce leaves). The contents of tetracycline antibiotics in the shoots and underground portions of Chinese cabbage were higher than that of lettuce, and higher contents of tetracycline antibiotics in vegetables were found with the CTC treatments. The residual amount of antibiotics in lettuce soil was higher than that in the Chinese cabbage soil, and the highest residual amount in the soil was observed with the OTC treatment. The bioconcentration factors (BCF) and transport factor (TF) of Chinese cabbage were, respectively, 1.07-7.35 and 1.15-2.25 times that of lettuce. OTC and CTC were more easily concentrated in the two vegetables. Therefore, OTC and CTC may bring a higher ecological risk.

Key words: tetracycline antibiotics; vegetables; antioxidant enzyme activity; photosynthesis; characteristics of enrichment and transformation

抗生素在农业生产中发挥着重要的作用, 在全球范围内几乎所有地区都采用添加各种抗生素来提高动物产品产量和经济效益. 由于在动物体内不能被完全吸收和代谢, 大部分抗生素以母体形式通过粪便和尿液排出体外进入环境中^[1]. 在众多的抗生素中, 四环素类抗生素是应用最为广泛的抗生素之

一, 在畜禽粪便中检测到四环素的残留量高达 98.20~354.00 mg·kg⁻¹, 即使经过处理生产为有

收稿日期: 2017-06-26; 修订日期: 2017-09-05

基金项目: 现代农业产业技术体系建设专项(Nycyt-25)

作者简介: 迟荪琳(1991~), 女, 博士研究生, 主要研究方向为土壤污染修复, E-mail: chisunlin@163.com

* 通信作者, E-mail: xuwei_hong@163.com

机肥,其四环素含量也高达 $15.87 \sim 72.79 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ [2,3]。2010 年中国产生约 19 亿 t 畜禽粪便,并呈增长的趋势 [4]。这些大量的畜禽粪便被用作粪肥施入土壤,导致农田土壤中的四环素类抗生素残留量可达 $29.70 \sim 8400 \text{ } \mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$ [5,6]。

长期存在于土壤环境中的抗生素会对植物产生毒害,而目前关于不同种类抗生素对植物生理代谢的研究还很有限 [7]。有研究发现抗生素会影响植物(如小麦、黄瓜、莴苣等)的生长,抑制光合作用,产生氧化胁迫等 [8~12]。但这些报道大多是在人为添加高浓度抗生素的液体介质中研究抗生素对种子和幼苗的影响 [9],而生长在土壤中的作物对抗生素的敏感性与生长在营养液中有很大不同 [13]。抗生素不仅对植物生长产生影响,也会在植物体内富集,尤其是可以通过食物链进入人体,而对人类健康造成威胁 [14]。Hu 等 [15] 发现植物不同部位的抗生素含量分布为叶 > 茎 > 根,而 Micheline 等 [16] 则认为抗生素主要集中在植物根部。可见,目前对于抗生素在植物体的累积转运及对人类健康的风险还需要进一步的研究 [15,17,18]。

蔬菜生产需要大量的有机肥,使蔬菜作物暴露于抗生素胁迫下。生菜(*Lactuca sativa* L.)和小白菜(*Brassica chinensis* L.)是种植广泛和人们喜食的蔬菜。四环素类抗生素因其广谱性而在农业生产中被广泛使用。因此,本研究以生菜和小白菜为对象,以 3 种典型的四环素类抗生素[四环素(TC)、土霉素(OTC)和金霉素(CTC)]为代表,研究不同水平($50 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ 和 $150 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$)的四环素类抗生素对生菜和小白菜生长、生理代谢的影响及抗生素在植物体内的富集和转运特性,比较生菜和小白菜对四环素类抗生素的耐性和富集转运能力,以期对抗生素对植物的毒性作用研究累积资料,并为蔬菜安全生产提供理论依据。

1 材料与方法

1.1 供试材料

供试作物为菊科的意大利生菜(*Lactuca sativa* L. var. *ramosa* Hort.)和十字花科的四季小白菜(*Brassica chinensis* L.)。供试土壤采自重庆市北碚区西南大学紫色土监测基地,土壤的基本理化性质为碱解氮 $74.59 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ 、有效磷 $38.59 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ 、速效钾 $65.07 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ 、全氮 $1.54 \text{ g} \cdot \text{kg}^{-1}$ 、pH 为 5.23、有机质 $8.87 \text{ g} \cdot \text{kg}^{-1}$ 。

3 种四环素类抗生素(TCs)分别为四环素

(TC)、土霉素(OTC)、金霉素(CTC), USP 级(BBI Life Science, China); 甲醇、乙腈为色谱级(Fisher Chemical, USA), 正己烷为色谱级(科龙化工,成都),其它化学试剂均为分析纯。固相萃取小柱为 Poly-Sery HLB SPE [6 mL, 500 mg, ANPEL Laboratory Technologies (Shanghai) Inc., China]。

1.2 试验设计

土培试验于 2015-04-08 ~ 2015-06-10 在西南大学 1 号玻璃温室内进行。试验种植生菜和小白菜两种作物。四环素类抗生素处理设置不添加抗生素的空白作为 CK、TC ($50 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ 和 $150 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$)、OTC ($50 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ 和 $150 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$) 和 CTC ($50 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ 和 $150 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$) 四环素类抗生素水平设置根据其在畜禽粪便和土壤中的残留量及前人的研究 [11,16]。共 14 个处理,每个处理 5 个重复,随机排列。试验采用直径 $\times$ 高度 = $25 \text{ cm} \times 17 \text{ cm}$ 的塑料桶,装入 3 kg 过 5 mm 筛的土壤,每盆分别定植三叶一心的生菜和小白菜幼苗 3 株。生菜和小白菜底肥用量为氮(N) $180 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ 、磷(P_2O_5) $100 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ 、钾(K_2O) $150 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$,由 NH_4NO_3 、 KH_2PO_4 和 K_2SO_4 提供。土培试验 8 周后收获。收获时用去离子水把植株洗净、擦干,分成地上部和地下部,一部分样品冻干用于测定抗生素含量,一部分样品在 4°C 下切碎混匀测定生理生化指标。多点混合法采集土培的土壤样品,冻干后用于测定土壤抗生素含量。

1.3 植物生理指标

1.3.1 光合系统参数

光合特性的测定使用便携式光合系统测定仪(Li-6400, LI-COR, USA),在晴朗天气的 09:00 ~ 11:00,测定各处理生菜和小白菜第二片完全展开的叶片净光合速率(P_n)、气孔导度(G_s)、胞间二氧化碳(C_i)和蒸腾速率(T_r),重复 3 次。

1.3.2 抗氧化酶活性和丙二醛含量

超氧化物歧化酶(superoxide dismutase, SOD)活性用氮蓝四唑光化学还原法测定,以抑制 NBT 光化学还原 50% 的酶量为一个酶活力单位;过氧化物酶(peroxidase, POD)活性的测定用愈创木酚比色法,以每分钟增加 $1.0 D_{470}$ 酶量为一个酶活力单位;过氧化氢酶(catalase, CAT)活性采用紫外分光光度法,以 1 min 减少 $0.01 D_{240}$ 的酶量为一个酶活力单位 [19]。丙二醛(malondialdehyde, MDA)含量的测定采用硫代巴比妥酸(TBA)比色法 [20]。

1.4 植物和土壤中四环素类抗生素测定

1.4.1 样品提取

样品提取方法参考文献[21], 主要过程为:准确称取冻干的3.000 0 g土壤或1.000 0 g植物样品于50 mL离心管中, 加入10 mL提取液(0.1 mol·L⁻¹ Na₂EDTA-McIlvaine: 甲醇=1:1), 漩涡混匀1 min, 超声10 min后, 4 000 r·min⁻¹离心10 min, 此提取过程重复3次, 合并上清液. 植物样品提取液用10 mL的正己烷反复洗涤, 静置后去除上层正己烷. 上清液于40℃旋转蒸发至体积为12 mL左右. 固相萃取小柱先依次用5 mL甲醇和5 mL超纯水活化, 用固相萃取装置将提取液以1 mL·min⁻¹的流速通过小柱后, 用5 mL 5%的甲醇溶液淋洗小柱, 真空抽干10 min. 以5 mL洗脱液(0.01 mol·L⁻¹草酸甲醇溶液)洗脱小柱, 收集洗脱液, 在40℃下用氮吹仪吹干, 用混合流动相(0.01 mol·L⁻¹草酸: 乙腈: 甲醇=76: 16: 8)定容至1 mL, 过0.22 μm滤膜后转移到自动进样瓶中, 上机测定.

1.4.2 样品分析和质量控制

四环素类抗生素的提取液使用高效液相色谱仪(HPLC, 岛津, 日本)进行测定, HPLC 配备SPD-20A紫外检测器, LC-20AD泵, SIL-20A自动进样架. 抗生素使用C₁₈色谱柱[5 μm, 4.6×150 mm (岛津, 日本)]进行分离, 测定的液相条件为0.01 mol·L⁻¹草酸: 乙腈: 甲醇=76: 16: 8, 等度洗脱, 流动相流速为1 mL·min⁻¹, 进样体积为10 μL, 在355 nm处检测, 采集时间25 min.

TCs混合标准工作液是用甲醇准确配制浓度为100 mg·L⁻¹ TC、100 mg·L⁻¹ OTC和200 mg·L⁻¹ CTC的储备液, 再用混合流动相稀释10倍, 得到含有10 mg·L⁻¹ TC、10 mg·L⁻¹ OTC和20 mg·L⁻¹

CTC的混合标准工作液, 4℃下避光保存. 采用加标法测定3种抗生素的回收率, OTC、TC和CTC的平均回收率分别为58.3%、57.1%和87.4%, 所有变异系数小于11.04%.

植物对四环素类抗生素的富集可以用生物浓缩系数BCF值表示, 计算公式为:

$$BCF = \frac{\text{抗生素在植物不同部位的浓度}}{\text{抗生素在土壤环境中的浓度}}$$

四环素类抗生素从植物地下部向地上部的转运能力用转运系数TF值表示, 计算公式为:

$$TF = \frac{\text{地上部抗生素含量}}{\text{地下部抗生素含量}}$$

1.5 数据分析

用Excel 2010和SPSS 21.0对数据进行计算和统计分析, 对不同处理数据进行单因素方差分析(ANOVA)和Duncan多重比较, 数据以平均值±标准差表示, 用Origin 9.0进行绘图.

2 结果与分析

2.1 生物量

如表1, TCs对生菜的生长总体上表现出抑制作用. 除在OTC 50 mg·kg⁻¹时外, 生菜地上部和地下部鲜重分别较CK降低了1.56%~26.84%和17.36%~51.04%. TCs总体上增加了小白菜鲜重(除了CTC 50 mg·kg⁻¹处理的地上部鲜重). 小白菜地上部和地下部鲜重较对照提高了3.7%~7.3%和3.1%~82.2%. 小白菜地下部生物量在50 mg·kg⁻¹的TCs处理时较CK高30.22%~82.22%. 生菜地上部和小白菜地下部的鲜重在150 mg·kg⁻¹TCs处理下均显著低于50 mg·kg⁻¹TCs(CTC处理除外).

表1 不同四环素类抗生素对生菜和小白菜生物量(鲜重)的影响¹⁾

Table 1 Effects of tetracycline antibiotics on biomass (FW) of lettuce and Chinese cabbage							
抗生素种类	抗生素水平 /mg·kg ⁻¹	生菜生物量(FW)/g·plot ⁻¹			小白菜生物量(FW)/g·plot ⁻¹		
		地上部	地下部	植株	地上部	地下部	植株
CK		106.05±5.29b	3.86±0.13a	109.90±5.16b	239.23±11.70c	2.25±0.11f	241.48±11.81c
TC	50	77.59±3.52e	2.46±0.09c	80.05±3.43d	250.08±3.89ab	3.24±0.16c	253.32±3.73ab
	150	96.90±4.14c	3.19±0.13b	100.09±4.00c	248.05±12.23ab	2.32±0.11f	250.37±12.35ab
CTC	50	104.40±4.26b	3.09±0.15bc	107.49±4.41bc	235.06±11.52c	4.10±0.19a	239.16±11.32c
	150	81.52±1.27d	3.18±0.21b	84.70±1.07d	256.80±12.83a	3.72±0.18b	260.52±13.01a
OTC	50	119.33±5.09a	1.89±0.09d	121.22±4.99a	252.17±11.61a	2.93±0.14d	255.10±11.47a
	150	79.54±3.46de	3.06±0.15bc	82.60±3.32d	255.28±12.47a	2.56±0.13e	257.84±12.60a

1) 表中不同小写字母表示同一列的差异显著性(P<0.05), 下同

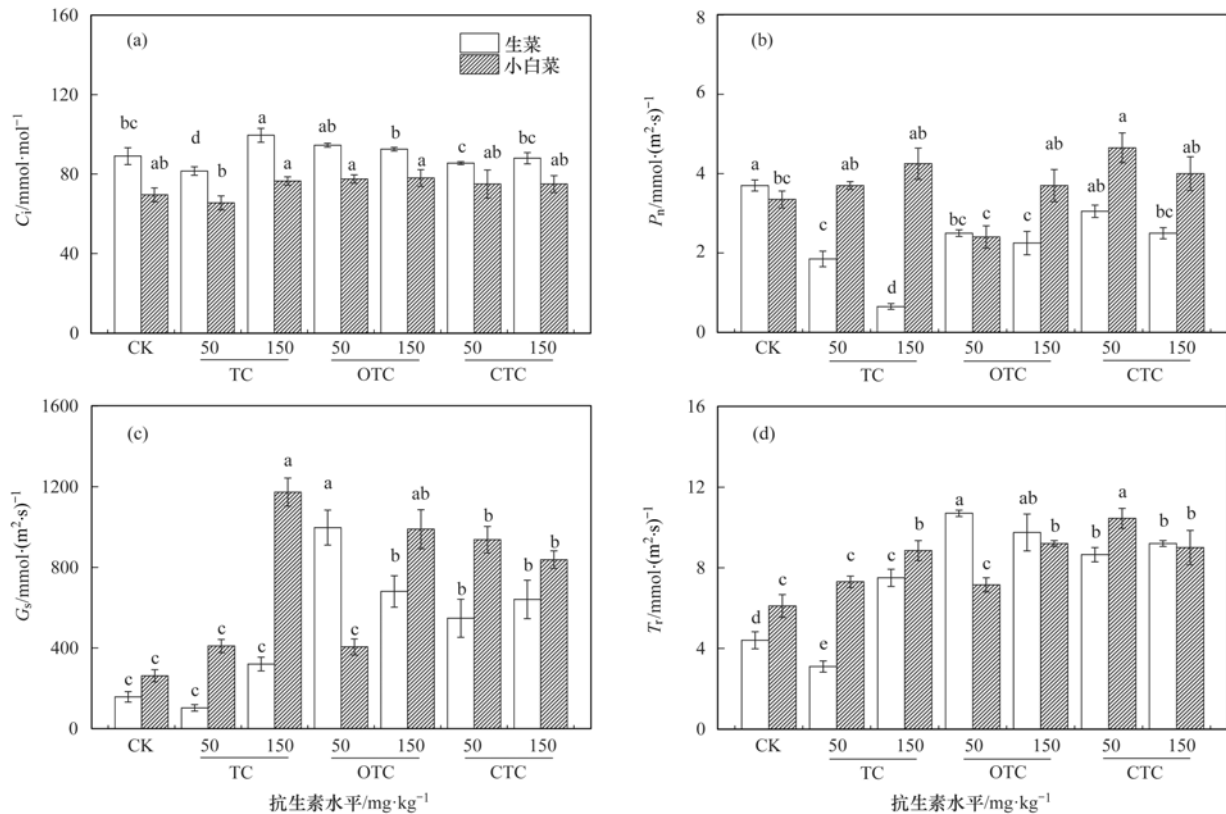
2.2 光合特性

如图1(a)所示, 生菜的胞间二氧化碳(C_i)在

50 mg·kg⁻¹的TC处理下较CK显著降低了7.30%, 在150 mg·kg⁻¹的TC下较CK显著增加11.80%,

而小白菜的 C_i 在 TCs 处理下与 CK 间无显著性差异. 生菜的净光合速率(P_n) 在 TCs 处理下显著降低 (50 $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 的 CTC 除外), 比 CK 降低了 32.43% ~ 82.43%, 其中在 TC 处理下的变化最明显[图 1(b)]. 小白菜的 P_n 仅在 50 $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 的 CTC 处理下较 CK 显著增加了 38.81%. 生菜的气孔导度(G_s) 在 CTC 和 OTC 处理下显著增加, 是 CK 的 2.48 ~

5.33 倍[图 1(c)]. 在 TCs 处理下, 小白菜的 G_s 增加, 且在 150 $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ TCs 水平时达到显著水平, 是 CK 的 2.20 ~ 3.48 倍. 生菜和小白菜的蒸腾速率(T_r) 在 TCs 处理下分别比 CK 提高了 70.45% ~ 143.18% 和 17.21% ~ 71.31%; 生菜在 OTC 处理下的变化最显著, 而小白菜在 CTC 处理下变化最显著[图 1(d)].



a、b、c 表示同种蔬菜在不同抗生素处理下的显著性差异 ($P < 0.05$)

图 1 不同浓度的 TCs 对生菜和小白菜 C_i 、 P_n 、 G_s 、 T_r 的影响

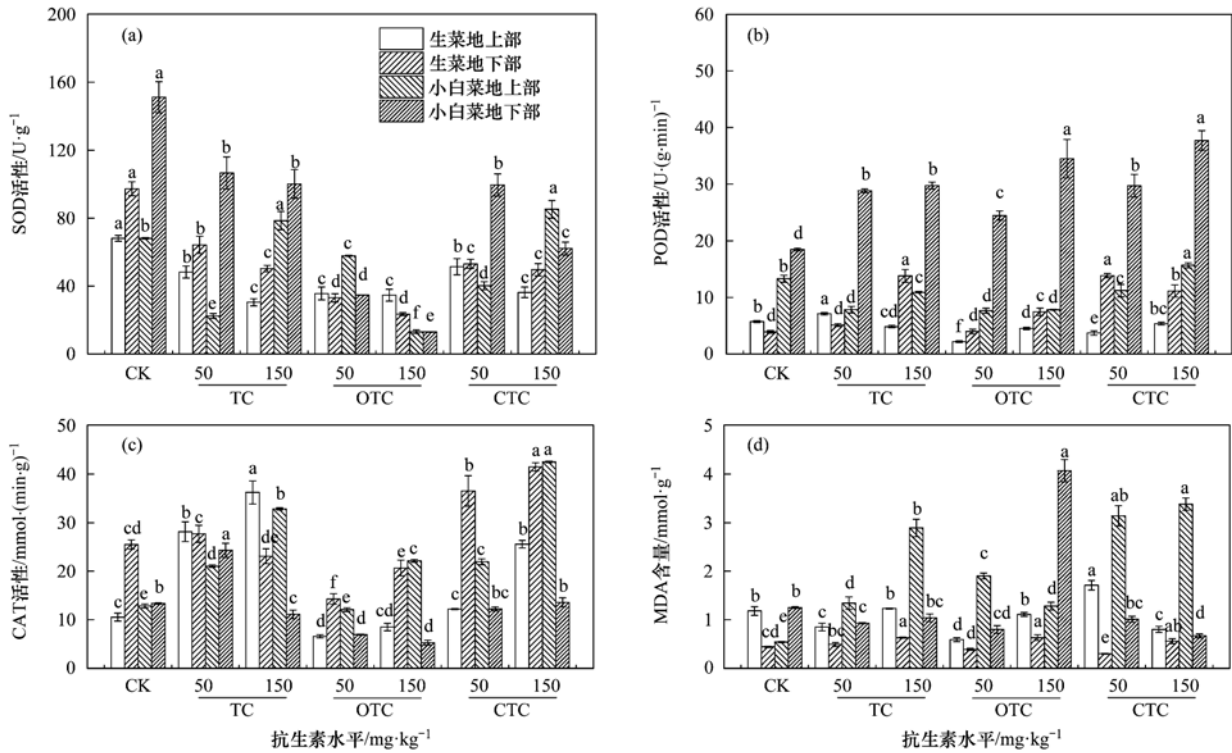
Fig. 1 Effects of tetracycline antibiotic treatments on C_i , P_n , G_s , and T_r of lettuce and Chinese cabbage

2.3 抗氧化酶活性和 MDA 含量

在不同 TCs 处理下, 生菜和小白菜抗氧化酶活性和 MDA 含量的变化不同, 且不同部位的敏感性存在显著性差异. 如图 2(a) 所示, TCs 处理对生菜和小白菜的 SOD 活性有不同程度的抑制作用. TCs 降低了生菜地上部和地下部的 SOD 活性, 较 CK 低 29.17% ~ 94.19%, 小白菜地下部的 SOD 活性比 CK 也降低了 33.94% ~ 223.12%. 3 种 TCs 中均以 OTC 的抑制作用最强. 在 TCs 处理下, 小白菜和生菜地下部的 POD 活性分别比 CK 增加了 32.63% ~ 104.34% 和 1.28% ~ 253.32%, 且在 CTC 处理下的变化最显著[图 2(b)]. TCs 对小白菜和生菜地上部的 POD 活性总体上表现出抑制作用, 且以

OTC 的作用最显著.

生菜地上部和地下部的 CAT 活性在 OTC 处理下, 分别比 CK 降低了 19.33% ~ 37.56% 和 18.90% ~ 44.04% [图 2(c)]. 小白菜地上部的 CAT 活性在 TCs 处理下增加, 且 150 $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ TCs 水平时的 CAT 活性高于 50 $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ TCs, 而小白菜地下部的 CAT 活性较 CK 降低了 8.22% ~ 60.43% (TC 50 $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 处理除外). 除生菜地上部外, 生菜地下部及小白菜地上部和地下部的 MDA 含量均在 150 $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ TCs 水平时达到最高值, 生菜地下部比 CK 增加了 27.27% ~ 43.22%, 小白菜地上部是 CK 的 2.37 ~ 6.26 倍, 且以 OTC 和 CTC 的影响最显著[图 2(d)].



a、b、c 表示植物相同部位在不同抗生素处理下的显著性差异 ($P < 0.05$), 下同

图 2 不同浓度的 TCs 对生菜和小白菜抗氧化酶 (SOD、POD、CAT) 活性和丙二醛 (MDA) 含量的影响

Fig. 2 Effects of different tetracycline antibiotic treatments on antioxidative enzyme (SOD, POD and CAT) activities and malondialdehyde (MDA) content of lettuce and Chinese cabbage

2.4 四环素类抗生素在蔬菜中的含量和土壤中的残留量

由图 3 可知,小白菜地上部和地下部的 TCs 含量均高于生菜,分别是生菜的 1.11 ~ 1.25 倍和 1.16 ~ 3.55 倍。除小白菜在 CTC 150 $mg \cdot kg^{-1}$ 处理外,生菜和小白菜的地下部抗生素含量比地上部高 27.27% ~ 167.63%。在相同抗生素水平下,生菜和小白菜的 CTC 含量均最高,分别比 TC 和 OTC 高

10.44% ~ 103.22% 和 88.24% ~ 197.43%; 在同种抗生素处理下,生菜和小白菜的 TCs 含量总体上以 150 $mg \cdot kg^{-1}$ TCs 处理显著高于 50 $mg \cdot kg^{-1}$ TCs。

由图 4 可知,收获时生菜盆栽土壤中的 TCs 残留量总体上略高于小白菜 (TC 50 $mg \cdot kg^{-1}$ 时除外)。在同一抗生素水平下,生菜和小白菜盆栽土壤中均以 OTC 的残留量最高,分别是 TC 和 OTC 的 2.18 ~ 7.31 倍和 1.71 ~ 4.77 倍。在同一抗生素处理下,

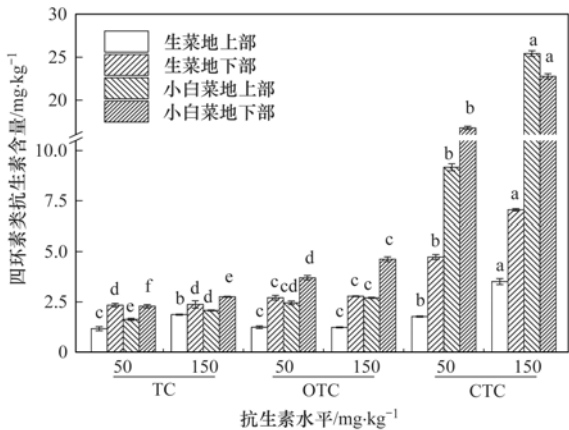


图 3 生菜和小白菜不同部位四环素类抗生素含量

Fig. 3 Tetracycline antibiotic concentrations in different parts of lettuce and Chinese cabbage

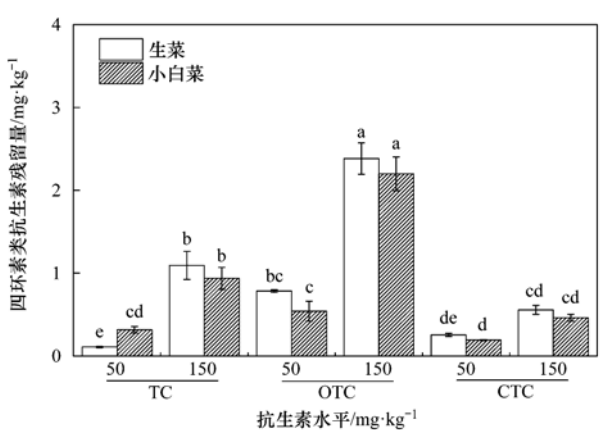


图 4 生菜和小白菜收获时盆栽土壤中四环素类抗生素残留量

Fig. 4 Tetracycline antibiotic reduction in lettuce and Chinese cabbage soil at harvest

土壤 TCs 的残留量在 150 mg·kg⁻¹TCs 水平时是 50 mg·kg⁻¹TCs 水平时的 2.20 ~ 10.22 倍, 且 TC 和 OTC 的残留量在不同抗生素水平间的差异达到显著水平.

2.5 生菜和小白菜对四环素类抗生素的富集转运特征

如表 2 所示, 小白菜对 TCs 的富集系数和转运系数较高, 分别是生菜的 1.07 ~ 7.35 倍和 1.15 ~ 2.25 倍. 两种蔬菜不同部位的富集系数以地下部略高(小白菜的 CTC 150 mg·kg⁻¹处理除外), 是地上

部的 1.14 ~ 2.71 倍. 在同一水平抗生素处理下, 生菜和小白菜对 CTC 的富集能力较强, 均在 50 mg·kg⁻¹ TCs 水平时显著最高; 生菜对 TC 的转运能力最强, 其转运系数比 OTC 和 CTC 高 9.17% ~ 78.68%, 小白菜在 CTC 150 mg·kg⁻¹时转运系数最高. 在同一抗生素处理下, 生菜和小白菜在 50 mg·kg⁻¹ TCs 处理下的富集系数显著高于 150 mg·kg⁻¹, 而生菜和小白菜对 TCs 的转运系数在 150 mg·kg⁻¹ TCs 处理时显著高于 50 mg·kg⁻¹ TCs 处理 (OTC 除外).

表 2 生菜和小白菜的四环类抗生素的生物富集系数 (BCF) 和转运系数 (TF)¹⁾

Table 2 Bioconcentration factors and translocation factor of tetracycline antibiotics for lettuce and Chinese cabbage

抗生素种类	抗生素水平 /mg·kg ⁻¹	生物富集系数				转运系数	
		生菜		小白菜		生菜	小白菜
		地上部	地下部	地上部	地下部		
TC	50	0.023 ± 0.002b	0.047 ± 0.002c	0.033 ± 0.001d	0.055 ± 0.002d	0.500 ± 0.062b	0.592 ± 0.001d
	150	0.012 ± 0.000c	0.015 ± 0.001d	0.014 ± 0.000e	0.016 ± 0.000f	0.788 ± 0.048a	0.910 ± 0.022b
OTC	50	0.025 ± 0.001b	0.054 ± 0.002b	0.049 ± 0.002c	0.074 ± 0.002c	0.458 ± 0.046bc	0.662 ± 0.004c
	150	0.008 ± 0.000d	0.019 ± 0.000d	0.018 ± 0.000e	0.031 ± 0.001e	0.441 ± 0.011bc	0.585 ± 0.02de
CTC	50	0.035 ± 0.001a	0.095 ± 0.002a	0.183 ± 0.003a	0.336 ± 0.004a	0.374 ± 0.002c	0.546 ± 0.004e
	150	0.023 ± 0.001b	0.047 ± 0.000c	0.169 ± 0.002b	0.152 ± 0.002b	0.497 ± 0.025b	1.116 ± 0.029a

1) 不同小写字母表示同种蔬菜的相同部位在不同处理下的显著性差异, $P < 0.05$

2.6 四环素类抗生素在土壤和植物中的含量与植物生理指标的相关性

相关性分析的结果进一步表明, 在土壤中添加不同水平的 TCs 对生菜和小白菜的影响不同(表 3). 土壤 TCs 水平与生菜的地下部生物量呈显著负相关($r = -0.534$, $P < 0.05$), 而与小白菜生物量

间无显著相关性($P > 0.05$). 土壤 TCs 水平与生菜的 P_n 呈显著负相关($r = -0.632$, $P < 0.05$), 与小白菜的 T_r 和 G_s 呈(极)显著正相关($r = 0.564$, $P < 0.05$; $r = 0.801$, $P < 0.01$). 生菜和小白菜的 SOD 活性与土壤 TCs 水平和不同部位的抗生素含量总体上呈(极)显著负相关. 土壤 TCs 水平与生菜和小白

表 3 土壤和两种蔬菜不同部位中四环素类抗生素含量与其生理生化特性的相关性¹⁾

Table 3 Correlation analysis of tetracycline antibiotic in soil with different parts of lettuce and Chinese cabbage and physiological-biochemical characteristics

生理指标		四环素类抗生素水平					
		生菜			小白菜		
		土壤	地上部	地下部	土壤	地上部	地下部
生物量	地上部	0.040	-0.329	-0.200	0.455	0.332	0.373
	地下部	-0.534 *	-0.007	-0.133	-0.024	-0.231	-0.148
光合特性	C_i	0.342	-0.013	-0.147	0.447	0.163	0.197
	T_r	0.485	0.457	0.515	0.564 *	0.447	0.633 *
	G_s	0.270	0.333	0.431	0.801 **	0.288	0.365
	P_n	-0.632 *	-0.389	-0.065	0.319	0.304	0.430
抗氧化性	地上部 SOD	-0.818 **	-0.729 **	-0.667 **	0.117	-0.586 *	-0.491
	地下部 SOD	-0.644 *	-0.892 **	-0.923 **	-0.576 *	-0.814 **	-0.905 **
	地上部 POD	-0.016	-0.331	-0.473	0.103	-0.521	-0.589 *
	地下部 POD	0.552 *	0.160	-0.025	0.829 **	0.355	0.269
	地上部 CAT	0.444	-0.110	-0.351	0.786 **	-0.141	-0.237
	地下部 CAT	0.139	-0.369	-0.376	-0.332	-0.638 *	-0.684 **
	地上部 MDA	-0.087	-0.076	-0.221	0.515	-0.254	-0.192
	地下部 MDA	0.770 **	0.502	0.288	0.370	0.905 **	0.710 **

1) * * 表示在 $P < 0.01$ 水平(双侧)上显著相关; * 表示在 $P < 0.05$ 水平(双侧)上显著相关, $n = 21$

菜根的 POD 活性呈(极)显著正相关($r=0.552$, $P<0.05$; $r=0.829$, $P<0.01$)。生菜和小白菜地下部的 MDA 含量分别与土壤抗生素水平和小白菜不同部位抗生素含量呈极显著正相关($r=0.770$, $P<0.01$; $r=0.905$, 0.710 , $P<0.01$)。

3 讨论

3.1 四环素类抗生素对两种蔬菜的植物毒性

3.1.1 TCs 对生菜和小白菜生长的影响

Pan 等^[22]比较了不同种类抗生素对生菜、番茄、胡萝卜和黄瓜生长的影响发现生菜对抗生素更敏感,并认为其可以作为抗生素毒性的重要指示作物之一。本试验中,生菜在不同水平 TCs 处理下的生长均受到抑制,较小白菜对 TCs 更为敏感。这表明不同种属的作物对抗生素的耐受性不同,该结果与前人的研究相似^[7]。此外,本研究中小白菜地下部的生长在土壤 TCs 水平为 $50\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 时受到促进作用,这在一定程度上反映了 TCs 对植物生长的双向作用,即低浓度促进生长而高浓度抑制生长^[9,23]。

3.1.2 TCs 对生菜和小白菜光合作用的影响

本研究中,生菜的 G_s 和 T_r 在 TCs 处理下有不同程度的增加,但 P_n 总体上被抑制。这可能是由于 TCs 能够影响光合电子传递速率以及光合色素的合成^[24]。TCs 进入植物体后存在于气孔细胞中,也是其影响光合作用的可能原因之一^[25]。3 种 TCs 中,TC 对生菜 P_n 的抑制作用最强,可能是同类抗生素下的不同抗生素含有的不同官能团,而不同程度地抑制光合过程中某些关键酶的活性^[12]。本研究中小白菜的光合系统参数对 TCs 更敏感,表明 TCs 对两种作物的光合作用影响不同,这可能是因为小白菜光合特性与生菜的变化差异,也可能是生菜生长受到抑制的原因。

3.1.3 TCs 对生菜和小白菜的氧化胁迫

植物受到胁迫时会产生过量的活性氧自由基(ROS)破坏细胞内氧化和抗氧化之间的平衡,而损害其生理和生化功能,导致膜脂质过氧化和 MDA 的产生^[11,26]。Xie 等^[27]的研究发现 TCs 浓度大于 $5\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 即会增加 MDA 含量,并认为其是 TCs 胁迫的生物指标之一。本研究中,生菜和小白菜 MDA 含量在 $150\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ TCs 时显著增加,表明外源 TCs 胁迫下产生的 ROS 已经超过了两种蔬菜的抗氧化能力。植物在胁迫下的另一个指示指标为抗氧化酶活性,其中 SOD 将 ROS 转化为 H_2O_2 和 O_2 , POD

和 CAT 等酶能够将 H_2O_2 分解为无害的 H_2O 。本研究中,生菜和小白菜的 SOD 活性均有不同程度的降低,且与土壤 TCs 水平、植物的 TCs 含量呈(极)显著负相关,进一步表明了土壤中 TCs 水平大于 $50\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 时会对生菜和小白菜产生一定程度的毒害作用。Riaz 等^[8]研究发现高浓度的氟喹诺酮类抗生素(100 和 $300\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$)使小麦的 MDA 含量和 SOD 活性显著增加, Ma 等^[11]也发现在土壤中添加的 OTC 浓度为 $25\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 时,空心菜根的 SOD 显著增加,而 Liu 等^[23]发现 OTC 溶液浓度大于 $1\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ 时,芦苇的 SOD 活性即显著受到抑制。这些研究在一定程度上表明植物对抗生素的敏感性因抗生素种类、浓度以及培养介质等因素的不同而异,且植物抗氧化系统的作用具有一定的限度。本研究中 TCs 对生菜和小白菜不同部位的 POD 和 CAT 活性影响有差异,可能是由于抗生素会损害呼吸电子传递链中的正常电子流等代谢过程^[28],也会诱导产生 H_2O_2 而干扰 POD 和 CAT 的活性。由此可见,TCs 会对植物生长产生氧化胁迫,但其作用机制和影响因素还需要进一步的研究。

3.2 四环素类抗生素在蔬菜体内的富集转运特征

生菜和小白菜地下部对 TCs 的富集能力大于地上部,这与对柳树和芦苇的研究结果一致^[16,23]。而在蔬菜基地中, Hu 等^[15]发现作物中抗生素含量的分布为叶>茎>根。这种差异可能是由于在外源添加抗生素的营养液或土壤等培养介质中,抗生素浓度($0\sim1000\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ 和 $10\sim200\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$)远大于自然条件下农田中的抗生素浓度($0.1\sim2683\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$)。介质中的抗生素通过被动扩散到地下部。抗生素从地下部转运到地上部的能力有限,从而过高浓度的抗生素在地下部累积,也可能与植物培养和生长时间的不同有关^[29]。本研究中小白菜的富集能力大于生菜,生菜和小白菜在 $50\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ TCs 的富集系数较高和对 CTC 的富集能力较强。这证明了作物对抗生素的吸收取决于抗生素的物理化学性质以及土壤中抗生素的浓度^[30],作物种类和生长阶段也会影响抗生素的积累和分布^[17,31]。同时, Pan 等^[7]认为仅仅考虑抗生素母体化合物而忽略植物体中抗生素的代谢产物,可能会导致对抗生素在植物中摄取和累积能力的低估。因此,关于植物对抗生素的累积特征还需要更深入的研究。

小白菜对 3 种 TCs 的转运能力高于生菜,其 TF 值是 $0.546\sim1.116$,与 Pan 等^[32]的结果相似。在抗生素通过被动扩散被植物吸收时,可以通过根系中

的凯氏带运输,然后通过木质部和韧皮部分别转运至茎叶和果实^[33].因此,TF 主要受作物蒸腾速率的影响,蒸腾速率的增加会加速植物体对土壤中抗生素的吸收^[15],还与抗生素的浓度和物理化学性质(如疏水性)等因素有关^[34,35].本研究中,添加 TCs 会增加生菜和小白菜的 T_r (在 CTC 处理下显著增加),这可能是小白菜转运系数大于生菜,且 CTC 转运系数较高的原因之一.本研究还发现在收获期两种蔬菜中 CTC 含量最高,而土壤中 CTC 残留量最低,这可能是由于 CTC 较易被作物吸收转运而减少其在土壤中的残留量.OTC 结构更稳定,难以被吸收和降解^[7],可能是本研究的土壤中 OTC 残留量较高的原因.因此,OTC 和 CTC 在土壤-植物系统中的风险较高.

4 结论

(1)3 种四环素类抗生素提高了小白菜地上部和地下部鲜重,但抑制了生菜的生长.

(2)四环素类抗生素能够抑制生菜和小白菜的净光合速率(P_n)和 SOD 酶活性.生菜和小白菜的 MDA 含量在 TCs 为 $150 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ 时达到最大值.

(3)供试两种蔬菜四环素类抗生素的含量以地下部 > 地上部;小白菜对 3 种抗生素的富集和转运能力大于生菜.

(4)在 3 种四环素类抗生素中,OTC 在土壤中的残留量最高.

参考文献:

- [1] McArdell C S, Molnar E, Suter M J F, *et al.* Occurrence and fate of macrolide antibiotics in wastewater treatment plants and in the glatt valley watershed, Switzerland [J]. *Environmental Science & Technology*, 2003, **37**(24): 5479-5486.
- [2] Chen Y S, Zhang H B, Luo Y M, *et al.* Occurrence and assessment of veterinary antibiotics in swine manures; a case study in East China [J]. *Chinese Science Bulletin*, 2012, **57**(6): 606-614.
- [3] Qian M R, Wu H Z, Wang J M, *et al.* Occurrence of trace elements and antibiotics in manure-based fertilizers from the Zhejiang Province of China [J]. *Science of the Total Environment*, 2016, **559**: 174-181.
- [4] 仇焕广, 廖绍攀, 井月, 等. 我国畜禽粪便污染的区域差异与发展趋势分析 [J]. *环境科学*, 2013, **34**(7): 2766-2774.
Qiu H G, Liao S P, Jing Y, *et al.* Regional differences and development tendency of livestock manure pollution in China [J]. *Environmental Science*, 2013, **34**(7): 2766-2774.
- [5] Tang X J, Lou C L, Wang S X, *et al.* Effects of long-term manure applications on the occurrence of antibiotics and antibiotic resistance genes (ARGs) in paddy soils; evidence from four field experiments in south of China [J]. *Soil Biology and Biochemistry*, 2015, **90**: 179-187.
- [6] Zhang H B, Zhou Y, Huang Y J, *et al.* Residues and risks of veterinary antibiotics in protected vegetable soils following application of different manures [J]. *Chemosphere*, 2016, **152**: 229-237.
- [7] Pan M, Chu L M. Fate of antibiotics in soil and their uptake by edible crops [J]. *Science of the Total Environment*, 2017, **599-600**: 500-512.
- [8] Riaz L, Mahmood T, Coyne M S, *et al.* Physiological and antioxidant response of wheat (*Triticum aestivum*) seedlings to fluoroquinolone antibiotics [J]. *Chemosphere*, 2017, **177**: 250-257.
- [9] Migliore L, Cozzolino S, Fiori M. Phytotoxicity to and uptake of enrofloxacin in crop plants [J]. *Chemosphere*, 2003, **52**(7): 1233-1244.
- [10] Vilvert E, Contardo-Jara V, Esterhuizen-Londt M, *et al.* The effect of oxytetracycline on physiological and enzymatic defense responses in aquatic plant species *Egeria densa*, *Azolla caroliniana*, and *Taxiphyllum barbieri* [J]. *Toxicological & Environmental Chemistry*, 2017, **99**(1): 104-116.
- [11] Ma T T, Chen L k, Wu L H, *et al.* Toxicity of OTC to *Ipomoea aquatica* Forsk. and to microorganisms in a long-term sewage-irrigated farmland soil [J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2016, **23**(15): 15101-15110.
- [12] Aristilde L, Melis A, Sposito G. Inhibition of photosynthesis by a fluoroquinolone antibiotic [J]. *Environmental Science & Technology*, 2010, **44**(4): 1444-1450.
- [13] 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.
- [14] Marti R, Scott A, Tien Y C, *et al.* Impact of manure fertilization on the abundance of antibiotic-resistant bacteria and frequency of detection of antibiotic resistance genes in soil and on vegetables at harvest [J]. *Applied and Environmental Microbiology*, 2013, **79**(18): 5701-5709.
- [15] 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.
- [16] 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.
- [17] Kang D H, Gupta S, Rosen C, *et al.* Antibiotic uptake by vegetable crops from manure-applied soils [J]. *Journal of Agricultural and Food Chemistry*, 2013, **61**(42): 9992-10001.
- [18] Bártíková H, Podlipná R, Skálová L. Veterinary drugs in the environment and their toxicity to plants [J]. *Chemosphere*, 2016, **144**: 2290-2301.
- [19] 李合生. 植物生理生化实验原理和技术 [M]. 北京: 高等教育出版社, 2000. 164-168.
Li H S. Principles and techniques of plant physiological biochemical experiment [M]. Beijing: Higher Education Press, 2010. 164-168.
- [20] Smeets K, Cuypers A, Lambrechts A, *et al.* Induction of oxidative stress and antioxidative mechanisms in *Phaseolus vulgaris* after Cd application [J]. *Plant Physiology and Biochemistry*, 2005, **43**(5): 437-444.

- [21] Jacobsen A M, Halling-Sørensen B, Ingerslev F, *et al.* Simultaneous extraction of tetracycline, macrolide and sulfonamide antibiotics from agricultural soils using pressurised liquid extraction, followed by solid-phase extraction and liquid chromatography-tandem mass spectrometry [J]. *Journal of Chromatography A*, 2004, **1038**(1-2): 157-170.
- [22] Pan M, Chu L M. Phytotoxicity of veterinary antibiotics to seed germination and root elongation of crops[J]. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 2016, **126**: 228-237.
- [23] Liu L, Liu Y H, Liu C X, *et al.* Potential effect and accumulation of veterinary antibiotics in *Phragmites australis* under hydroponic conditions[J]. *Ecological Engineering*, 2013, **53**: 138-143.
- [24] Opriş O, Copaciu F, Loredana Soran M, *et al.* Influence of nine antibiotics on key secondary metabolites and physiological characteristics in *Triticum aestivum*; leaf volatiles as a promising new tool to assess toxicity[J]. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 2013, **87**: 70-79.
- [25] Di Marco G, Gismondi A, Canuti L, *et al.* Tetracycline accumulates in *Iberis sempervirens* L. through apoplastic transport inducing oxidative stress and growth inhibition [J]. *Plant Biology*, 2014, **16**(4): 792-800.
- [26] Koca H, Bor M, Özdemir F, *et al.* The effect of salt stress on lipid peroxidation, antioxidative enzymes and proline content of sesame cultivars[J]. *Environmental and Experimental Botany*, 2007, **60**(3): 344-351.
- [27] Xie X J, Zhou Q X, Lin D S, *et al.* Toxic effect of tetracycline exposure on growth, antioxidative and genetic indices of wheat (*Triticum aestivum* L.) [J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2011, **18**(4): 566-575.
- [28] Gomes M P, Gonçalves C A, de Brito J C M, *et al.* Ciprofloxacin induces oxidative stress in duckweed (*Lemna minor* L.): implications for energy metabolism and antibiotic-uptake ability[J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2017, **328**: 140-149.
- [29] Hawker D W, Cropp R, Boonsaner M. Uptake of zwitterionic antibiotics by rice (*Oryza sativa* L.) in contaminated soil[J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2013, **263**: 458-466.
- [30] Chiou C T, Sheng G Y, Manes M. A partition-limited model for the plant uptake of organic contaminants from soil and water[J]. *Environmental Science & Technology*, 2001, **35**(7): 1437-1444.
- [31] Li X D, Yu H X, Xu S S, *et al.* Uptake of three sulfonamides from contaminated soil by pakchoi cabbage[J]. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 2013, **92**: 297-302.
- [32] Pan M, Wong C K C, Chu L M. Distribution of antibiotics in wastewater-irrigated soils and their accumulation in vegetable crops in the Pearl River Delta, Southern China[J]. *Journal of Agricultural and Food Chemistry*, 2014, **62**(46): 11062-11069.
- [33] 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.
- [34] Wu X Q, Dodgen L K, Conkle J L, *et al.* Plant uptake of pharmaceutical and personal care products from recycled water and biosolids: a review[J]. *Science of the Total Environment*, 2015, **536**: 655-666.
- [35] Boonsaner M, Hawker D W. Investigation of the mechanism of uptake and accumulation of zwitterionic tetracyclines by rice (*Oryza sativa* L.) [J]. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 2012, **78**: 142-147.

CONTENTS

Preface	HAO Zheng-ping (477)
VOCs Emission from Motor Vehicles in China and Its Impact on the Atmospheric Environment	CHEN Tian-zeng, GE Yan-li, LIU Yong-chun, <i>et al.</i> (478)
Quantification of the Influence of Industrial Emissions on Volatile Organic Compounds (VOCs) Using PMF Model; A Case Study of Jiangbei Industrial Zone in Nanjing	 HU Kun, WANG Ming, ZHENG Jun, <i>et al.</i> (493)
Source Analysis of Volatile Organic Compounds in the Nanjing Industrial Area and Evaluation of Their Contribution to Ozone	ZHANG Yu-xin, AN Jun-lin, WANG Jun-xiu, <i>et al.</i> (502)
Ozone Formation Potential and Priority Species of VOCs in an Industrial Park	WU Lei-dan, WANG Xiu-yan, YANG Wen, <i>et al.</i> (511)
Characteristics and Source Apportionment of VOCs of a Petrochemical Industrial Park During Autumn in China	HU Tian-peng, LI Gang, MAO Yao, <i>et al.</i> (517)
Characteristics of VOCs Pollution in the Winter Atmosphere of a Typical Petrochemical Industry Park	MAO Yao, LI Gang, HU Tian-peng, <i>et al.</i> (525)
Emission Inventory and Pollution Characteristics of Industrial VOCs in Hangzhou, China	LU Bin, HUANG Cheng, LU Qing, <i>et al.</i> (533)
Industrial VOCs Emission in Qinhuangdao	HU Xiao-yu, LIU Hang, WANG Nai-yu, <i>et al.</i> (543)
Pollution Characteristics and Emission Coefficient of Volatile Organic Compounds from Auto/motorcycle Parts & Accessories Manufacturing in Zhejiang Province	 YANG Zhong-ping, WANG Zhe-ming, HE Zhi-qiao, <i>et al.</i> (551)
Stench Sources and Impact Analysis in Automobile Making	SHI Tian-li, ZHANG Wei-xia, CHEN Xiao-fang, <i>et al.</i> (557)
Pollution Characteristics and Health Risk Assessment of VOCs Fugitively Emitted from Typical Brewers	GAO Zhan-qi, HU Guan-ju, WANG Hui, <i>et al.</i> (567)
Pollution Characteristics and Health Risk Assessment of Atmospheric VOCs in Chengdu	LI You-ping, TANG Ya, FAN Zhong-yu, <i>et al.</i> (576)
Indoor Formaldehyde and Benzene Series in Shanghai Residences and Their Associations with Building Characteristics and Lifestyle Behaviors	 JIANG Qiao-yun, LIU Ping-ping, WANG Xue-ying, <i>et al.</i> (585)
Emission Inventory of Anthropogenically Sourced VOCs and Its Contribution to Ozone Formation in Jiangsu Province	XIA Si-jia, LIU Qian, ZHAO Qiu-yue (592)
Emission Inventory of Anthropogenic VOCs in Jiangmen City	CHEN Xiao-fang, ZHANG Wei-xia, CHEN Bing-xu, <i>et al.</i> (600)
Emissions, Chemical Composition, and Spatial and Temporal Allocation of the BVOCs in the Yangtze River Delta Region in 2014	LIU Yan, LI Li, AN Jing-yu, <i>et al.</i> (608)
VOCs Emission Inventory of Service Stations in a Subcenter (Tongzhou District) of the City of Beijing	HUANG Yu-hu, HU Wei, LI Bei-bei, <i>et al.</i> (618)
Pollutant Emissions from Diesel Buses Fueled with Waste Cooking Oil Based Biodiesel	HU Zhi-yuan, LIN Biao-qi, HUANG Cheng, <i>et al.</i> (626)
Treatment of the Waste Gas Containing Methyl <i>tert</i> -Butyl Ether via a Biotrickling Filter	CHU Qi-ying, YAO Lu-lu, LÜ Xiong-biao, <i>et al.</i> (633)
Composite CVOCs Removal in a Combined System of Nonthermal Plasma and a Biotrickling Filter	GUO Hai-qian, MIAO Jing-jing, JIANG Li-ying, <i>et al.</i> (640)
Pollution Characteristics and Health Risk Assessment of Volatile Organic Compounds (VOCs) and Semi-volatile Organic Compounds (SVOCs) in Qiantang River's Hangzhou Section During a Water Odor Pollution Event	CHEN Feng, TANG Fang-liang, XU Jian-fen, <i>et al.</i> (648)
Occurrence and Spatial Distribution of Volatile Organic Compounds in Urban Drinking Water Distribution Systems	XU Mei-jia, WANG Hai-liang, LI Chun-mei, <i>et al.</i> (655)
Health Risk Assessment of Volatile Organic Compounds for Different Commuting Modes	 TONG Rui-peng, ZHANG Lei (663)
Source Analysis and Environmental Health Risk Assessment of VOCs in Furniture Manufacturing	TONG Rui-peng, ZHANG Lei, YANG Xiao-yi, <i>et al.</i> (672)
Spatio-temporal Distribution Characteristics of PM _{2.5} and Spatio-temporal Variation Characteristics of the Relationship Between PM _{2.5} and PM ₁₀ in Beijing	 YANG Wen-tao, YAO Shi-qi, DENG Min, <i>et al.</i> (684)
Quantification of Methane Ebullition Flux from Small Ponds Using the Inverted-Funnel Method	ZHANG Xiu-fang, XIAO Wei, ZHANG Mi, <i>et al.</i> (691)
Contamination Levels and Exposure Risk via Drinking Water from Perfluoroalkyl Acids in Seven Major Drainage Basins of China	 WANG Xin-xuan, ZHANG Hong, WANG Yan-ping, <i>et al.</i> (703)
Spatio-temporal Distribution and Source Apportionment of Nitrogen in Rivers of Tieling	YANG Li-biao, LEI Kun, QIAO Fei, <i>et al.</i> (711)
Characteristics of Chromophoric Dissolved Organic Matter (CDOM) in Rivers of Western Sichuan Plateau Based on EEM-PARAFAC Analysis	 LIU Yan-yang, QIN Ji-hong, LIU Chen, <i>et al.</i> (720)
Assessment of Heavy Metal Pollution and Human Health Risk of Surface Waters in the City of Ningbo, China	XU Mei-juan, BAO Bo, CHEN Chun-yan, <i>et al.</i> (729)
Temporal-spatial Distribution and Pollution Assessment of Dissolved Heavy Metals in Chaohu Lake	WU Lei, LIU Gui-jian, ZHOU Chun-cai, <i>et al.</i> (738)
Spatial Distribution, Sources and Bioavailability of Heavy Metals in the Surface Sediments of Longjiang River, Southern China	 LAN Xiao-long, NING Zeng-ping, XIAO Qing-xiang, <i>et al.</i> (748)
Mechanism on Enhanced Nitrogen Removal in Municipal Secondary Effluent via Internal-Electrolysis Constructed Wetlands at Low Temperature in Winter	 ZHENG Xiao-ying, ZHU Xing, WANG Ju, <i>et al.</i> (758)
Dynamic Replenishment Process of Nutrients in Tributary of Channel Reservoir	XU Ya-qian, XU Piao, YANG Zheng-jian, <i>et al.</i> (765)
Effect of the Rainfall on Extinction of Cyanobacteria Bloom and Its Mechanism Analysis	LIU Xin-yuan, SONG Lin-xu, JI Dao-bin, <i>et al.</i> (774)
Relationship Between Macrophyte Communities and Macroinvertebrate Communities in an Urban Stream	QU Xiao-dong, YU Yang, ZHANG Min, <i>et al.</i> (783)
Characteristics of Nitrogen and Phosphorus Output in Runoff and Rainfall Runoff in Lanlingxi Watershed, Three Gorges Reservoir Area	 ZHANG Lin, HUANG Zhi-lin, XIAO Wen-fa, <i>et al.</i> (792)
Screening Method of Priority Control Pollutants in Groundwater Based on Contamination Assessment	ZHAO Peng, HE Jiang-tao, WANG Man-li, <i>et al.</i> (800)
Effect of Sulfur to Quartz Sand Ratios on the Removal of High-Concentration Perchlorate in Packed-Bed Reactors	TAO Hua-qiang, SHAO Dong-hai, ZHANG Chao, <i>et al.</i> (811)
Adsorption of Methylene Blue and Cu(II) by Activated Carbon/Macromolecule Composite Hydrogel	KONG Yan, ZHUANG Yuan, SHI Bao-you, <i>et al.</i> (819)
Adsorption Performance and Mechanism of HZO@SGH for the Removal of Fluoride from Aqueous Solution	MA Fu-zhen, ZHOU Shao-qi, LIU Ze-jun, <i>et al.</i> (828)
Mechanism of MgO/GAC Catalyzed Ozonation of Organic Compounds	XU Shan-shan, LIN Cun-wang, DING Ya-lei, <i>et al.</i> (838)
Ozonation Characteristics of Low Coagulability Organic Matter from the Secondary Effluent of WWTPs	HOU Rui, JIN Xin, JIN Peng-kang, <i>et al.</i> (844)
Quantitative Analysis of Dominant Pollutants in Secondary Effluent via Dye Probe Technology	MENG Xiao-rong, WANG Cong-hui, WANG Lei, <i>et al.</i> (852)
Lab-scale ANAMMOX Process in a Wastewater Treatment Plant	LI Dong, ZHAO Shi-xun, WANG Jun-an, <i>et al.</i> (859)
Effect of Aeration Rate on Shortcut Nitrification Recovery in Intermittent Aeration Mode	LIU Hong, NAN Yan-bin, LI Hui, <i>et al.</i> (865)
Effect of Aerobic/Phosphorus Granules on Start-up of Partial Nitrification Granular Sludge	LI Dong, GUO Yue-zhou, CAO Mei-zhong, <i>et al.</i> (872)
Microbial Communities and Sludge Specific Resistance in Two SBRs Treating Leachate	CAI Li-yun, HUANG Ze-bin, XU Zi-wei, <i>et al.</i> (880)
Sources and Risk Assessment of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons from the Urbanization Process of Topsoil	YAO Hong, ZHANG Shi-chao, LIU Ming-li, <i>et al.</i> (889)
Spatial Variability and Contamination of Arsenic in Soils of Xijiang River Basin	LIU Chang, SONG Bo, ZHANG Yun-xia, <i>et al.</i> (899)
Characterization of Phosphorus in Urban Surface Soils in Kaifeng City and Its Risk of Loss	BAI Xiu-ling, MA Jian-hua, SUN Yan-Li, <i>et al.</i> (909)
Distribution Characteristics and Health Risk Assessment of Heavy Metals in a Soil-Rice System in an E-waste Dismantling Area	YIN Yi-meng, ZHAO Wei-tuo, HUANG Ting, <i>et al.</i> (916)
Residue Levels and Health Risk Assessment of Organochlorine Pesticides in Rice from Shanghai	MENG Yuan, LIU Cui-cui, QIU Yan-ling, <i>et al.</i> (927)
Effects of Tetracycline Antibiotics on Growth and Characteristics of Enrichment and Transformation in Two Vegetables	CHI Sun-lin, WANG Wei-zhong, XU Wei-hong, <i>et al.</i> (935)
Bioavailability of Silicon Fertilizer Coupled Water Management on Soil Bioavailability and Cumulative Control of Rice in Compound Contaminated Paddy Soils	 LI Yuan-xing-lu, YE Chang-cheng, LIU Yu-ling, <i>et al.</i> (944)
Liver and Kidney Function of E-waste Dismantling Workers and Potential Influencing Factors	YAN Xiao, LI Shu-yuan, WANG Mei-huan, <i>et al.</i> (953)