

文章编号: 1674-7054(2021)01-0041-08

海南东部海水养殖区抗生素残留的生态风险评估

曾若菡^{1,2}, 齐 钊^{1,2}, 张腾云¹, 龚 莹^{1,2}, 张钦洲^{1,2}, 王海花^{1,2}, 刁晓平^{2,3}

(1. 海南大学生态与环境学院, 海口 570228; 2. 海南大学南海海洋资源利用国家重点实验室, 海口 570228;
3. 海南师范大学生命科学院, 海口 571158)

摘要: 为揭示海南东部(万宁和陵水)海水养殖区中抗生素的污染情况, 笔者利用 LC-MS/MS 对海水中磺胺类、四环素类、氯霉素类和喹诺酮类等 4 类 40 种抗生素进行检测。结果表明, 13 个采样点的抗生素残留质量浓度为 10.28 ~ 156.63 ng·L⁻¹, 检出喹诺酮类抗生素 2 种、四环素类抗生素 3 种、氯霉素类抗生素 1 种, 磺胺类抗生素未检出。在检出的 6 种抗生素中, 土霉素在采样区海水中含量最高(16.20 ng·L⁻¹), 其次是四环素(5.39 ng·L⁻¹)、强力霉素(4.10 ng·L⁻¹)、甲砒霉素(1.84 ng·L⁻¹)和环丙沙星(0.18 ng·L⁻¹), 最低的是丹诺沙星的含量(0.13 ng·L⁻¹)。陵水海水养殖区检出的 6 种抗生素平均残留浓度高于万宁海水养殖区, 相同区域抗生素残留浓度具有相似性。采用风险商值法对水体残留抗生素进行风险评估, 结果表明, 海南万宁和陵水海水养殖区环境中残留抗生素具有一定生态风险, 尤其是陵水新村渔港水体中土霉素对相应敏感物种具有中等风险, 影响藻类等浮游植物的生长。

关键词: 海水养殖区; 抗生素; 污染特征; 生态风险

中图分类号: X 55; X 820.4 **文献标志码:** A

引用格式: 曾若菡, 齐钊, 张腾云, 等. 海南东部海水养殖区抗生素残留的生态风险评估 [J]. 热带生物学报, 2021, 12(1): 41-48. DOI: 10.15886/j.cnki.rdsxb.2021.01.006

抗生素种类繁多, 现已达到几千种, 按照其化学结构主要分为 β -内酰胺类、四环素类、喹诺酮类、大环内酯类、磺胺类、氨基糖苷类和氯霉素等, 并且在多种环境介质中广泛存在。水体中抗生素污染的来源主要有医用、养殖业及制药工业废水排放。抗生素被使用后并不会被生物体完全吸收。残留抗生素以多种形式经各种途径排入水体等环境中, 造成环境污染。国内的其他水环境(如地表径流、地下水、海洋等)中都能检测到抗生素的残留。不同水域间的抗生素残留量差别很大, 残留量最高的是养殖废水。磺胺类、喹诺酮类、四环素类及氯霉素类等 4 类抗生素由于具有较好的防治疾病和促生长等作用而被广泛用于水产养殖等行业, 以达到治疗、预防动物传染性疾病和促进动物生长的目的^[1-3]。水产养殖废水的排放是水环境中抗生素污染的重要的人为来源。陵水新村、黎安港和万宁小海海域是海南省重点海水养殖集中区, 具有重要的生态及经济价值^[4]。新村港位于海南省陵水县新村镇的东南部, 港内南北长 4 km, 东西宽 6 km, 面积 24 km², 拥有上千家鱼排, 养殖着金鼓鳗鱼、珍珠龙胆等鱼类。万宁小海现面积约 43 km², 周长 43 km, 小海物产丰富, 著名的和乐蟹、港北对虾和后安鲷鱼均产于此。调查区域主要为浅海养殖中的网箱养殖。网箱的主要结构是框架和网衣, 框架起到支撑固定网衣的作用, 网箱面积可达到数十平方米, 深度约为 2 ~ 4 m。网衣上常附着水藻、微生物等多种物质。浮动式网箱能随着水位的变化而上下浮动, 在养殖中使用广泛, 常用于养殖鱼类、螃蟹^[5]。有研究表明, 海南省每年每平方米的抗生素

收稿日期: 2020-09-24 修回日期: 2020-11-07

基金项目: 海南省重点研发项目(ZDYF2018122)

第一作者: 曾若菡(1996-)女, 海南大学生态与环境学院 2018 级硕士研究生. E-mail: 765525086@qq.com

通信作者: 刁晓平(1963-)女, 教授. 研究方向: 生态毒理学. E-mail: diaoxip@hainanu.edu.cn

排放量处于我国相对较高水平^[6],但重要水产养殖区域养殖水体中抗生素的分布特征鲜见系统报道。为此,本研究采集海南岛东部陵水新村、黎安港和万宁小海,海域养殖区海水样品,通过 LC-MS/MS 技术对样品中 4 类(磺胺类、喹诺酮类、四环素类及氯霉素类)40 种抗生素进行定量分析,以揭示养殖区海水中抗生素残留的分布情况并进行生态风险评估,同时为养殖区生态水质监测和环境保护提供科学支持。

1 材料与方法

1.1 样品采集 本研究于 2018 年 8 月采集陵水新村、黎安港和万宁小海养殖区海域表层海水样本,共采集样品 15 个,采样点分布见图 1。同一采样点以棕色玻璃瓶采集 1 L 水样。水样采集时取同一截面水平面 0.5 cm 以下左中右 3 个点的混合样,每个样点采集 3 个重复。水样置于 4 °C 冰盒中避光冷藏保存,并于 48 h 内进行前处理。采样时详细记录监测点位的水温、pH 值、溶解氧和盐度等。

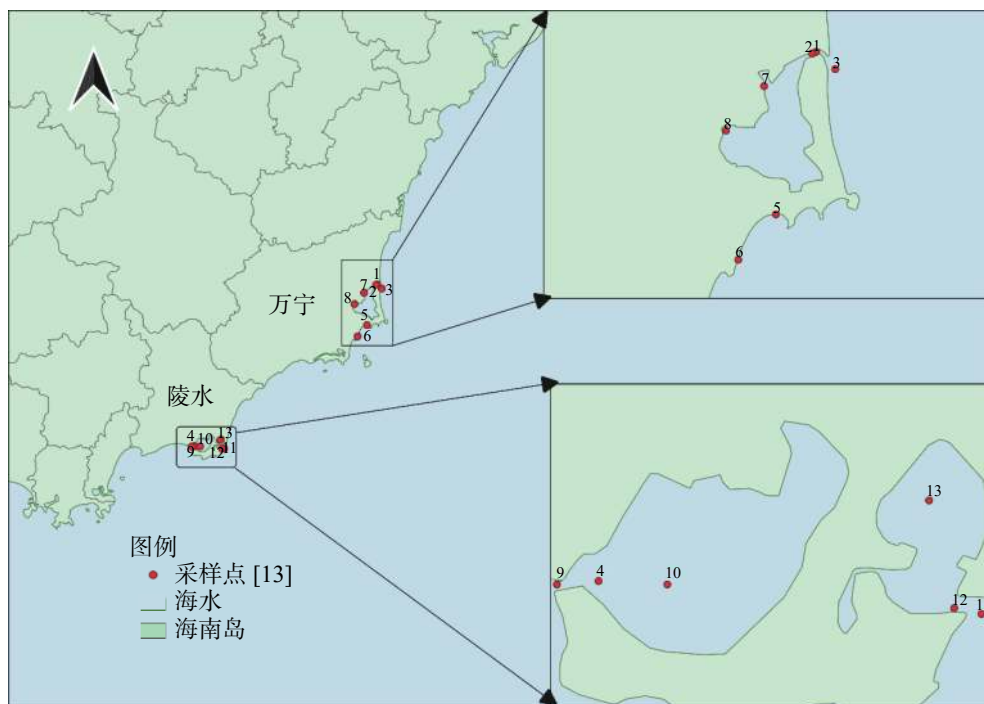


图 1 采样点分布情况

Fig. 1 Sample site

1.2 抗生素检测 本研究对 4 类(磺胺类、喹诺酮类、四环素类、氯霉素类)40 种抗生素进行检测,检测方法参照文献 [7]。

1.2.1 抗生素提取 取 1 L 已过滤水样,用盐酸-水溶液($V_{\text{盐酸}}:V_{\text{水}}=1:1$)调节 pH 至 2.5。依次用 20 mL 甲醇、6 mL 超纯水、6 mL 盐酸(pH2.5)对 HLB 柱进行活化。用已活化 HLB 柱对水样进行富集,流速控制在 $5\text{ mL}\cdot\text{min}^{-1}$ 左右。富集完成后用氮气轻柔吹干富集小柱,将氮吹干燥后的小柱用 12 mL 甲醇进行洗脱,收集洗脱液。洗脱液氮吹浓缩至近干。用流动相 95%A(0.1% 甲酸- $1\text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$ 甲酸铵水溶液)和 5%B ($V_{\text{甲醇}}:V_{\text{乙腈}}=1:1$)定容至 1 mL,过 $0.22\ \mu\text{m}$ 尼龙滤膜,待测。

1.2.2 抗生素检测 进样量 10 mL,柱温 $40\text{ }^{\circ}\text{C}$,流速 $0.30\text{ mL}\cdot\text{min}^{-1}$ 。流动相 A: 0.1% 甲酸- $1\text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$ 甲酸铵水溶液;流动相 B: $V_{\text{甲醇}}:V_{\text{乙腈}}=1:1$ 。梯度洗脱程序:起始 5%B 3 min,然后在 18 min 内从 5%B 线性变化至 88%B。质谱离子源:ESI+/ESI-切换,MRM 数据采集模式。待检抗生素中氯霉素类抗生素采用负离子模式,其余抗生素采用正离子模式。

1.3 生态风险评估 为研究抗生素在采样区水体中抗生素对水生生物的生态风险,采用风险熵值(RQs)来评估。风险熵值法(RQs)来自欧盟的技术指导文件(European commission technical guidance document,

TGD), 药品在环境中的生态风险可以根据风险熵值 (RQs) 大小来评估, 此方法被广泛应用于分析废水和地表水中常检测到的药物环境风险。RQs 通过污染物的环境实测浓度与预测无效应浓度的比值获得, 公式如下:

$$RQs = MEC/PNEC; \quad (1)$$

式中: MEC 为抗生素的实测质量浓度, $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$; PNEC 为预测无效应浓度, 即不会对生态环境产生不良影响的 最大质量浓度, $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$ 。

有研究^[8-11]表明, 多种抗生素存在于水体时, 产生的毒性效应会加强。因此, 用联合风险熵值法 (RQsum) 来代表多种抗生素对水生生态系统的生态风险, 计算公式:

$$RQsum = \sum RQ. \quad (2)$$

由于不同种类抗生素对不同物种的毒性不同, 因此, 选用最敏感物种的 PENC 作为评估值, 6 种检出的 抗生素中丹诺沙星未能找出参考的 PENC 值, 其余如表 1 所示。

表 1 抗生素对应最敏感物种的毒理数据

Tab. 1 Toxicological data of antibiotics for the most sensitive species

抗生素种类 Type of antibiotic	最敏感物种 Most sensitive species	毒性数据($\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$) Most sensitive species	毒性 Toxicity	评价因子 The evaluation factors	PENC/ ($\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$)	参考文献 Reference
CIP	<i>M. aeruginosa</i>	$EC_{50}=0.017$	急性	1000	17	[12]
DOX	<i>Lemna gibba</i>	$EC_{50}=0.316$	急性	1000	316	[13]
TC	<i>P. subcapitata</i>	$EC_{50}=3.31$	急性	1000	3310	[14]
OTC	<i>P. subcapitata</i>	$EC_{50}=1.04$	急性	1000	1040	[15]
THI	<i>M. aeruginosa</i>	$EC_{50}=0.320$	急性	1000	320	[16]

2 结果与分析

2.1 不同采样点海水中抗生素的检出种类 本研究对万宁和陵水养殖区海水中 4 类 40 种抗生素进行检测, 研究区域共有 6 种抗生素被检出, 喹诺酮类抗生素 2 种、四环素类抗生素 3 种、氯霉素类抗生素 1 种, 磺胺类抗生素未检出(图 2)。对抗生素组成进行分析时发现, 各采样点抗生素组成结构存在差异, 其中四环素类的强力霉素(DOX)、四环素(TC)、土霉素(OTC)在所有样点中皆被检出, 氯霉素类的甲砜

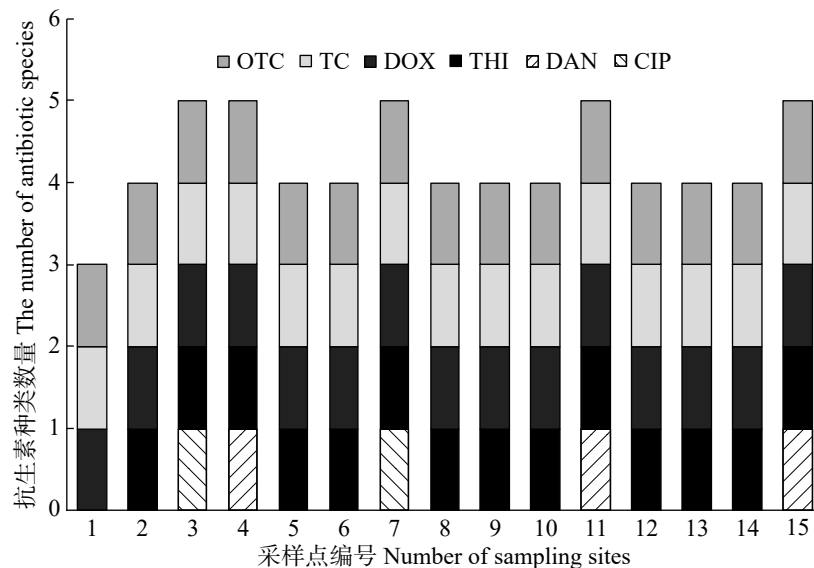


图 2 采样区海水中抗生素检测种类的数量

Fig. 2 The number of antibiotic species detected in seawater sampled

霉素(THI)除采样点 1 外,其余采样点皆有检出,喹诺酮类的环丙沙星(CIP)在采样点 3、7 被检出,丹诺沙星(DAN)在采样点 4、11、15 被检出。

2.2 不同采样点抗生素的残留浓度及分布特征 对不同采样点中抗生素残留浓度进行统计分析(图 3),结果发现各海水样品中总的抗生素残留浓度为 $10.28 \sim 156.63 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$;其中采样点 10(新村渔港)抗生素残留量最高($156.63 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$),其次是采样点 9 新村港($51.64 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$),采样点 11(黎安港)残留量在已经检出样点中最低($10.28 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$)。大多数样点抗生素残留量均小于 $20 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$ 。

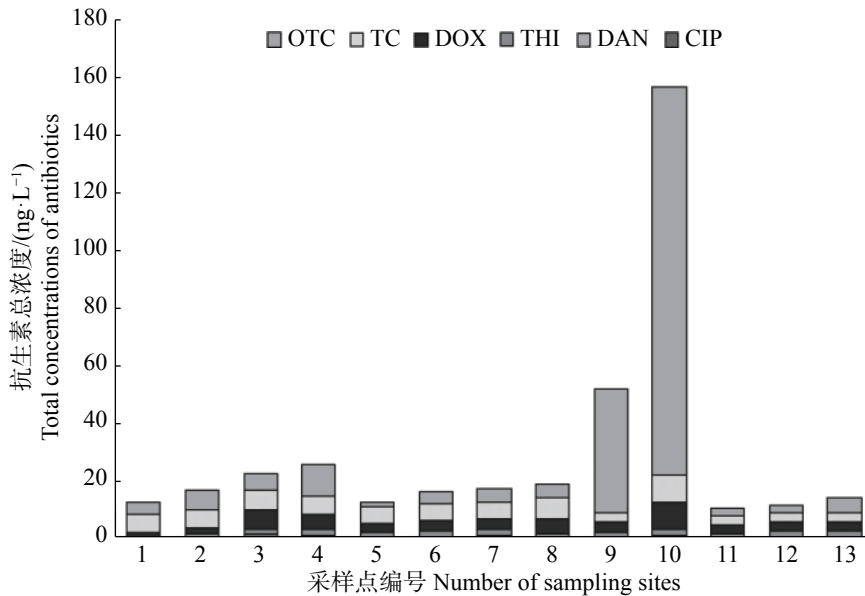


图 3 不同采样点海水中抗生素的总浓度情况

Fig. 3 Total concentrations of antibiotics in seawater from different sampling sites

不同样点间抗生素残留浓度存在类别差异,其中 OTC 与其他 5 种抗生素具有显著差异($P < 0.05$)。在 6 种抗生素中,OTC 在不同采样点海水中残留量最高,均值为 $16.20 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$,其次是 TC、DOX、THI 和 CIP,均值分别为 5.39 、 4.10 、 1.84 、 $0.18 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$,最低的是 DAN 均值为 $0.13 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$ (图 4)。

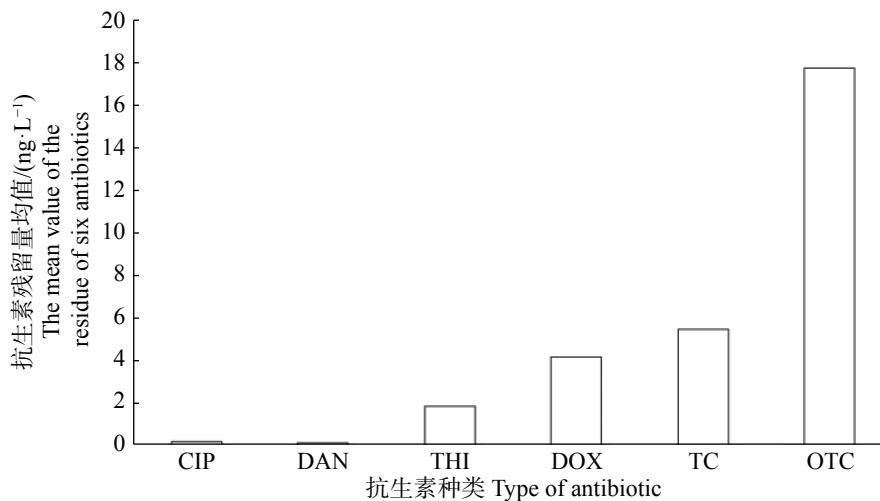


图 4 采样点海水中 6 种抗生素残留量均值

Fig. 4 The mean value of the residue of six antibiotics in the seawater sampled

2.3 不同采样点海水中抗生素的相似性分析 为进一步分析抗生素在各采样断面的分布情况,本研究采用主成分分析(PCA)方法对不同采样点海水中的抗生素相似性进行分析。万宁和陵水养殖区海水中

抗生素 PCA 分析结果见图 5, 由图 5 可见, 主成分 P1 的方差贡献率为 46.8%, P2 的方差贡献率为 21.6%, P1、P2 的累积特征值为 68.4%; 样点 1、2、7、8 距离较近, 说明万宁小海内部间抗生素组成存在相似性, 而样点 3、4、10 与其它采样点距离较远, 表明该采样点抗生素组成与其他采样点差异较大, 其余采样点聚集在一起, 说明陵水新村与黎安港抗生素残留存在相似性。

从 PCA 排序分布图(图 5)也可以看出, 各采样点间抗生素的残留均有一定差异, 这可能是各采样点环境条件不同或抗生素投放量不同导致。要阐明万宁和陵水养殖区海水中抗生素残留差异的原因, 还需对内海万宁和陵水养殖区周边抗生素使用情况和海洋环境现状进行进一步探究。

2.4 养殖水体中抗生素的生态风险评估 根据 RQs 风险熵值的计算方法, 得出 5 种抗生素在不同水体中的 RQs 值, 最终的评价结果见图 6。遵循 RQs 法评估采样区水体中残留抗生素对水生生物的生态风险, 风险等级依据其大小划分, $RQs \geq 1$ 表明高风险, $0.1 \leq RQs < 1$ 表明中等风险, $0.01 \leq RQs < 0.1$ 表明低风险, $0.01 > RQs$ 代表无风险。

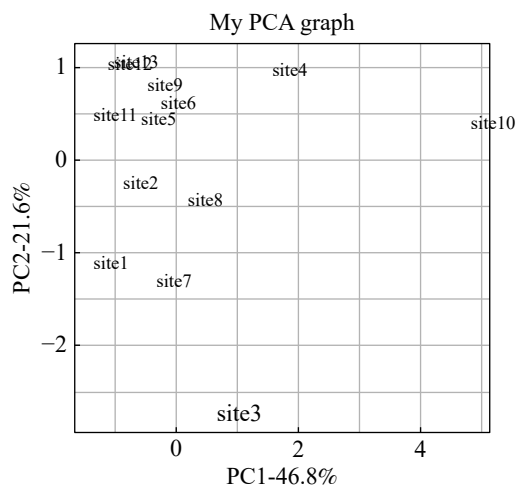


图 5 采样点海水中抗生素的 PCA 分析
Fig. 5 PCA analysis of antibiotics in seawater

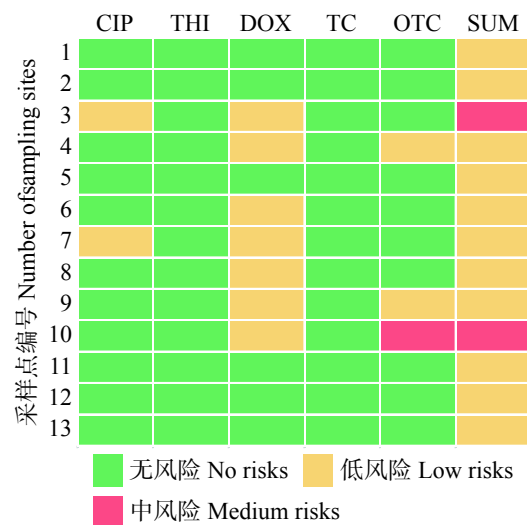


图 6 采样点生态风险评估等级
Fig. 6 Ecological risk assessment grade of sampling site

由图 6 可以看出, 大多数采样区的某一种抗生素的风险熵值(RQs)低于 0.01, 代表仅这一种抗生素在此区域无生态风险; 环丙沙星(CIP)只在港门岭(采样点 3)和安坡海入海口(采样点 7)被检测出, 且对水生生物皆有低生态风险; 在万宁(采样点 3、6、7)和陵水新村港(采样点 4、9、10)的样点中强力霉素(DOX)的残留存在有低生态风险; 在陵水新村港(采样点 4、9、10)的样点中, 土霉素(OTC)的残留存在有低或中生态风险。港门岭(采样点 3)和新村渔港(采样点 10)的联合风险熵值(RQsum)处于中风险, 其余地区联合风险熵值(RQsum)处于低风险。

3 讨论

3.1 采样区抗生素残留类型 由于万宁、陵水内海的鱼排网箱养殖具有一定规模, 且养殖人员将抗生素药物混入饲料进行喂食或直接投入海水中, 因此, 引起万宁、陵水内海发生抗生素污染。在对万宁和陵水养殖区海水抗生素检出进行分析时发现, 四环素类抗生素(TC、OTC、DOX)在两区域各个点皆被检出, 而磺胺类抗生素未被检出。四环素类抗生素可能是该地区水产养殖常用的抗生素, 可用于预防鱼类的细菌性疾病如肠炎病、烂鳃病、赤皮病、细菌性败血症、竖鳞病、烂鳍病和海水鱼类弧菌病等, 龟鳖类和甲壳类的细菌性疾病等。氯霉素类的甲砒沙星用于治疗鱼类细菌性败血症、肠炎及赤皮病^[7], 仅有一处采样点未检出, 这可能与当地水产养殖区鱼类发病情况有关。含有环丙沙星的水产用抗生素兽药名称为盐酸环丙沙星、盐酸小檗碱预混剂, 可用于治疗鳗鱼顽固性细菌性疾病^[17]。根据中华人民共和国农业部第

235号公告(动物性食品中兽药最高残留限量)^[18]和NY5070—2002(中华人民共和国农业行业标准《无公害食品 水产中渔药残留限量》)^[18],从本研究样品中检测出的土霉素、四环素、强力霉素和甲砒霉素皆为水产中可使用抗生素;兽药典(2005版)-兽药使用指南(化学卷)^[17]中将盐酸环丙沙星预混剂列为水产养殖用药名录,但在《无公害食品 水产中渔用药物使用准则》^[17]中将环丙沙星列为禁用药物;丹诺沙星并非水产使用抗生素,而是迄今治疗畜禽支原体感染最有效的药物之一,可能是由周围畜禽养殖场排入海域的。对万宁和陵水养殖区15处采样点海水中抗生素组成进行对比分析,发现9处采样点抗生素种类相同,这意味着各采样点水产养殖的养殖品种、水文条件、地理条件存在相似性,仅个别采样点使用了喹诺酮类抗生素。本研究对万宁、陵水内海中4类40种抗生素进行检测,其中仅6种被检出(THI, CIP, DAN, DOX, TC, OTC),可见养殖区海水中使用的抗生素比较单一。

3.2 采样区抗生素残留浓度及分布特征 本研究待测区域各海水样品中总的抗生素残留浓度范围为10.28~156.63 ng·L⁻¹,远远低于广西罗非鱼主产区养殖池塘的检出量(52~3257.7 ng·L⁻¹)^[19],同时也远远低于江苏典型中华绒螯蟹养殖区中抗生素的检出量(17.04~1311.93 ng·L⁻¹)^[20],但与广州市南沙水产养殖区抗生素残留量(18.13~61.34 ng·L⁻¹)相比处于相对较高水平^[21],与北部湾河口养殖区(22.4~118 ng·L⁻¹)^[22]、渤海湾近岸海域(24.3~242.7 ng·L⁻¹)^[23]、丰水期洞庭湖水体检出量(6.35~135.40 ng·L⁻¹)相近^[24]。在四类抗生素中四环素类抗生素检出水平最高,这与渤海湾近岸海域^[23]中检测结果相似。四环素类残留浓度均值为25.7 ng·L⁻¹,低于渤海湾近岸海域中四环素类抗生素的检出量均值(200.9 ng·L⁻¹)^[23],高于洞庭湖水体均值(3.96 ng·L⁻¹)^[24];在四环素类抗生素中OTC检出浓度最高,均值为16.2 ng·L⁻¹,与渤海湾近岸海域OTC检出浓度均值(69.8 ng·L⁻¹)^[23]相比处于相对较低水平。喹诺酮类抗生素检出0~1.59 ng·L⁻¹,低于北部湾养殖区养殖塘喹诺酮类抗生素检出浓度(16.9~78.5 ng·L⁻¹)^[22],与北部湾养殖区远海^[22]相近。氯霉素类抗生素仅有1种(THI)被检出,检出均值为1.84 ng·L⁻¹,其他地区鲜有报道。

与国内部分水域研究^[23,25-29]相比,万宁和陵水养殖区海水的抗生素残留处于相对较低水平,这可能与样品采集区域有关,其他研究样点布设主要位于北方或较为封闭小型的水域,而本研究样点布设在万宁、陵水内海中,其抗生素主要来自海水水产养殖;与其他水体环境研究相比,万宁、陵水养殖区海水中抗生素残留浓度处较低水平,这意味着内海养殖区抗生素使用量较低及内海与外海海水交换量大,也可能是由于海南省南部日照充足、海水温度较北方稍高、多处海水pH偏碱性从不同程度上有利于抗生素的降解^[30-32]。在本研究中,喹诺酮类相对于四环素类及氯霉素类型抗生素而言其检出量较低,且喹诺酮类相较于四环素类不易水解,这意味着万宁及陵水内海养殖区较少使用喹诺酮类。而相对其他3类抗生素来说,磺胺类抗生素不易水解而易发生光解,在万宁和陵水养殖区海水中磺胺类抗生素未被检出,说明万宁和陵水养殖区磺胺类抗生素使用量极低。

3.3 采样区抗生素生态风险水平 海南岛东部海水中抗生素残留对采样区域的影响基本处于中等以下风险水平,但有研究^[33]表明,抗生素残留可能会对水生生物产生急性或慢性毒性效应,同时抗生素的长期残留还可能会刺激病原菌产生耐药性,诱导抗性基因产生,这势必会对原有稳定的生态系统产生影响。因此,海南岛东部海水研究区水体中抗生素整体存在一定的生态风险,陵水新村渔港水体中土霉素对相应敏感物种具有中风险,但从维护生态系统出发也应该减少环丙沙星(CIP)、强力霉素(DOX)和土霉素(OTC)的使用。

参考文献:

- [1] 张俊,袁媛,宗华丽,等.地表水中新型有毒有机污染物研究进展[J].*海河水利*,2017(4):42-48.
- [2] 刘晓晖,王炜亮,国晓春,等.抗生素的水体赋存、毒性及风险[J].*给水排水*,2015,51(12):116-121.
- [3] 苏小欢.水环境中抗生素的迁移转化及其危害[J].*广州化工*,2015,43(5):156-158.
- [4] 杨辉,王文师,李庆彪,等.海南陵水县发展深水网箱养殖的探讨[J].*海洋开发与管理*,2015,32(1):49-52.
- [5] 韩千帆.山东半岛海水养殖场中抗生素的分布、复合污染和风险评估[D].济南:山东大学,2020.

- [6] ZHANG Q, YING G, PAN C, 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 & Technology*, 2015, 49(11): 6772 – 6782.
- [7] 姜春霞, 黎平, 李森楠, 等. 海南东寨港海水和沉积物中抗生素抗性基因污染特征研究[J]. *生态环境学报*, 2019, 28(1): 128 – 135.
- [8] BACKHAUS T S M G L. The single substance and mixture toxicity of quinolones to the bioluminescent bacterium *Vibrio fischeri*. *Aquat Toxicol.* [J]. 2000, (49)(1/2): 46 – 61.
- [9] CLEUVERS M. Aquatic ecotoxicity of pharmaceuticals including the assessment of combination effects [J]. *Toxicology Letters*, 2003, 142(3): 185 – 194.
- [10] CLEUVERS M. Mixture toxicity of the anti-inflammatory drugs diclofenac, ibuprofen, naproxen, and acetylsalicylic acid [J]. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 2004, 59(3): 309 – 315.
- [11] YANG LH, Ying GG, Su HC, et al. Growth-inhibiting effects of 12 antibacterial agents and their mixtures on the freshwater microalga *pseudokirchneriella subcapitata* [J]. *Environmental Toxicology and Chemistry*, 2008, No. 5(Vol. 27) : 1201 – 1208.
- [12] ROBINSON A A, BELDEN J B, LYDY M J. Toxicity of fluoroquinolone antibiotics to aquatic organisms [J]. *Environmental toxicology and chemistry*, 2005, 24(2): 423 – 430.
- [13] BIALK-BIELINSKA A, STOLTE S, ARNING J, et al. Ecotoxicity evaluation of selected sulfonamides [J]. *Chemosphere*, 2011, 85(6): 928 – 933.
- [14] GONZALEZ-PLEITER M, GONZALO S, RODEA-PALOMARES I, et al. Toxicity of five antibiotics and their mixtures towards photosynthetic aquatic organisms: implications for environmental risk assessment [J]. *Water Res*, 2013, 47(6): 2050 – 2064.
- [15] KOLAR B, ARNUS L, JERETIN B, et al. The toxic effect of oxytetracycline and trimethoprim in the aquatic environment [J]. *Chemosphere*, 2014, 115: 75 – 80.
- [16] ANDO T, NAGASE H, EGUCHI K, et al. A novel method using cyanobacteria for ecotoxicity test of veterinary antimicrobial agents [J]. *Environ Toxicol Chem*, 2007, 26(4): 601 – 606.
- [17] 陈昌福, 王玉堂. 水产养殖中抗生素类药物使用现状、问题与对策(连载一)[J]. *中国水产*, 2015(4): 65 – 68.
- [18] 战文斌, 绳秀珍. 海水养殖鱼类疾病与防治手册[M]. 北京: 海洋出版社, 2010: 168 – 186.
- [19] 王志芳. 广西罗非鱼主产区养殖池塘的重金属和抗生素检测及风险评估[D]. 南宁: 广西大学, 2018.
- [20] 方昊, 余军楠, 王智峰, 等. 江苏典型中华绒螯蟹养殖区抗生素污染特征与生态风险评估[J]. *生态与农村环境学报*, 2019, 35(11): 1436 – 1444.
- [21] 郝勤伟, 徐向荣, 陈辉, 等. 广州市南沙水产养殖区抗生素的残留特性[J]. *热带海洋学报*, 2017, 36(1): 106 – 113.
- [22] 张瑞玲. 北部湾典型养殖区抗生素污染特征及海产品食用风险[D]. 南宁: 广西大学, 2018.
- [23] 张永鹏. 渤海湾近岸海域抗生素及抗生素抗性基因的污染特征研究[D]. 天津: 天津大学, 2018.
- [24] 刘晓晖. 洞庭湖流域水环境中典型抗生素污染特征、来源及风险评估[D]. 济南: 山东师范大学, 2017.
- [25] 李媛. 高桥红树林区常用抗生素残留及细菌耐药性研究[D]. 湛江: 广东海洋大学, 2013.
- [26] NA G, FANG X, CAI Y, et al. Occurrence, distribution, and bioaccumulation of antibiotics in coastal environment of Dalian, China [J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2013, 69(1/2): 233 – 237.
- [27] YAN C, YANG Y, ZHOU J, et al. Antibiotics in the surface water of the Yangtze Estuary: Occurrence, distribution and risk assessment [J]. *Environmental Pollution*, 2013, 175: 22 – 29.
- [28] XIONG W, SUN Y, ZHANG T, et al. Antibiotics, antibiotic resistance genes, and bacterial community composition in fresh water aquaculture environment in china [J]. *Microbial Ecology*, 2015, 70(2): 425 – 432.
- [29] JIANG L, HU X, XU T, et al. Prevalence of antibiotic resistance genes and their relationship with antibiotics in the Huangpu River and the drinking water sources, Shanghai, China [J]. *Science of The Total Environment*, 2013, 458/459/460: 267 – 272.
- [30] 张力媛. 喹诺酮类抗生素检测方法的优化及其在水中光解、水解特性研究[D]. 长春: 吉林农业大学, 2016.
- [31] 詹杰, 魏树和. 四环素在土壤和水环境中的分布及其生态毒性与降解[J]. *生态学报*, 2015, 35(9): 2819 – 2825.
- [32] 彭艳, 丁世敏, 刘隼, 等. 水环境中抗生素的光化学降解研究进展[J]. *广州化工*, 2016, 44(10): 14 – 17.
- [33] BEN Y, FU C, HU M, et al. Human health risk assessment of antibiotic resistance associated with antibiotic residues in the environment: A review [J]. *Environmental Research*, 2019, 169: 483 – 493.

Characteristics of antibiotic pollution and ecological risk assessment in eastern Mariculture area of Hainan Province

ZENG Ruohan^{1,2}, QI Zhao^{1,2}, ZHANG Tengyun¹, GONG Ying^{1,2},

ZHANG Qin-zhou^{1,2}, WANG Haihua^{1,2}, DIAO Xiaoping^{2,3}

(1. College of Ecology and Environment, Hainan University, Haikou 570228, China; 2. Key Laboratory of Marine Resource Utilization in South China Sea, Hainan University, Haikou 570228, China; 3. School of Biology, Hainan Normal University, Haikou 571158, China)

Abstract: In order to assess the distribution characteristics and pollution status of antibiotics in Wanning and Lingshui mariculture areas in Hainan province, Lc-ms /MS was used to detect four classes of 40 antibiotics including sulfonamides, tetracycline, chloramphenicol and quinolones in seawater. The results showed that 13 sample point concentration of antibiotic residues in the range of 10.28–156.63 ng·L⁻¹, and two quinolones, three tetracyclines, one chloramphenicol were detected. Among the 6 antibiotics, the content of oxytetracycline in seawater was the highest, with a mean of 16.20 ng·L⁻¹, followed by tetracycline, doxycycline, thiamphenicol and ciprofloxacin, with mean values of 5.39, 4.10, 1.84 and 0.18 ng·L⁻¹ respectively, and the lowest was Danofloxacin with a mean value of 0.13 ng·L⁻¹. The risk assessment of residual antibiotics in water was carried out by using the RQs risk assessment method. The results showed that there were certain ecological risks in the environment of the sampling areas of Mariculture in Wanning and Lingshui, Hainan. In particular, oxytetracycline in the fishing port of Lingshui New Village had medium risks to the relevant sensitive species and affected the growth of phytoplankton such as algae. It is recommended to control the use of these antibiotics in the process of mariculture to reduce ecological risks, and to conduct long-term observation on the ecological risks of antibiotics in mariculture areas.

Keywords: mariculture area; antibiotics; pollution characteristic; ecological risk

(责任编辑:叶 静)