

两种外源抗生素在农业土壤中的吸附与迁移特性

章明奎, 王丽平, 郑顺安

(浙江大学环境与资源学院资源科学系, 杭州 310029)

摘要:长期施用禽畜排泄物可导致抗生素在土壤中的积累,对生态环境产生不良影响。为了解长江三角洲和珠江三角洲农业土壤中长期施用含抗生素的有机肥可能产生的环境影响,选择了 7 个典型农业土壤,用室内模拟方法研究了我国常用的 2 种抗生素(泰乐菌素和土霉素)在这些土壤中吸附和迁移行为。研究表明,抗生素在土壤中的吸附、迁移行为与抗生素种类和土壤性质有关,土壤对土霉素的吸附能力明显高于泰乐菌素。土壤对抗生素的吸附能力主要与土壤粘粒含量、有机质和氧化铁呈正相关,与其它土壤性质的相关性较小。这 2 类抗生素在粘质农业土壤剖面中的迁移能力较弱;但泰乐菌素在砂质土壤中较易迁移,有较大的环境风险。

关键词:抗生素;农业土壤;吸附;迁移

文章编号:1000-0933(2008)02-0761-06 中图分类号:S181,X171 文献标识码:A

Adsorption and transport characteristics of two exterior-source antibiotics in some agricultural soils

ZHANG Ming-Kui, WANG Li-Ping, ZHENG Shun-An

Department of Natural Resource Science, College of Natural Resource and Environmental Sciences, Zhejiang University, Hangzhou, 310029, China

Acta Ecologica Sinica, 2008, 28(2): 0761 ~ 0766.

Abstract: Antibiotics used in livestock production may be present in manure and slurry as the parent compound and/or metabolites. The environments may therefore be exposed to these antibiotics due to the application of animal manure to agricultural land. In order to understand the potential effects of long-term application of antibiotics-contained animal manure on agricultural soils, laboratory studies were conducted to characterize two typical antibiotic compounds (tylosin, $C_{46}H_{77}NO_{17}$ and oxytetracycline, $C_{22}H_{24}N_2O_9 \cdot HCl$) with regard to sorption and transport in seven agricultural soils, collected from the Changjiang and Zhujiang deltas of China. Both transfer and adsorption behaviors of the antibiotics were related with species of antibiotics and soil properties. Distribution coefficients (K_d values) determined by batch equilibrium method varied between $43L\ kg^{-1}$ and $3018L\ kg^{-1}$ for oxytetracycline, and $2.3L\ kg^{-1}$ and $175L\ kg^{-1}$ for tylosin. Oxytetracycline was more strongly sorbed in all the soils investigated than tylosin. The adsorption amount of antibiotic compounds on the soils was correlated positively with the contents of clay, organic matter and iron oxides. Soil column leaching experiments indicated that there were a significant difference in the transport of the two antibiotic compounds between sandy soil and clayey soil, which due to the difference in their respective sorption capabilities. Very low concentrations of the two antibiotic compounds were detected in the leachates from clayey soil column, indicating a much lower mobility of antibiotics in the clayey soil. However, significant amount of tylosin compound was recovered in the leachates from sandy soil,

基金项目:国家教育部博士学科点专项科研基金资助项目(20060335018);国家自然科学基金资助项目(40771090)

收稿日期:2006-11-24; **修订日期:**2007-02-01

作者简介:章明奎(1964~),浙江绍兴人,男,博士,教授,主要从事土壤与环境研究。E-mail: mkzhang@zju.edu.cn

Foundation item: This work was financially supported by the research foundation of the doctoral programs of the Education Ministry of China (No. 20060335018) and the National Science Foundation of China (No. 40771090)

Received date: 2006-11-24; **Accepted date:** 2007-02-01

Biography: ZHANG Ming-Kui, Ph.D., Professor, mainly engaged in soil and environmental sciences. E-mail: mkzhang@zju.edu.cn

indicating that tylosin compound was not stable in sandy soil, and it had a high mobility in the soil.

Key Words: antibiotics; agricultural soil; adsorption; transport

抗生素是指由细菌、放线菌、真菌等微生物经培养而获得的或是用化学合成法合成的结构相同或类似的具有杀灭或抑制病原微生物的物质^[1]。自 1928 年亚历山大弗来明发现青霉素以来,各种抗生素的广泛应用在控制人、畜禽和水生动物细菌性疾病方面作出了卓越的贡献。我国自 20 世纪 90 年代初以来,饲用抗生素在畜牧业生产中得到了广泛应用,近年饲用抗生素年平均消费已达 6000t^[1],并集中应用于经济发达地区。然而,饲料和养殖环节中滥用抗生素对生态环境的不良影响显现越来越严重的趋势,成为人们普遍关注的一个社会热点问题^[2~4,7]。土壤(或沉积物)是抗生素等污染物质的最终归宿之地,进入环境中的抗生素将在土壤/沉积物中积累。研究已发现,抗生素等药物在土壤等固体物质中的持久性主要依赖于其稳定性、与固相的结合能力和水中的淋洗性等,土壤性质和抗生素种类对它们的环境行为有较大的影响^[7~9]。目前,许多有关抗生素在土壤中的环境行为和生态效应的信息主要从农药及其它有机污染物的相关研究中推导获得的^[7,10~13],针对抗生素等药物在土壤的迁移、转化以及毒性等的研究较少^[9,14],仅在欧盟各国和美国开始了环境中抗生素风险评估的调查。我国的抗生素不合理使用情况可能比欧洲和美国等国更为严重,但对抗生素的环境行为和环境毒理研究几乎还是空白。为了了解抗生素在我国农业土壤中的固定和迁移行为,选择了我国常用的 2 种抗生素(泰乐菌素和土霉素),研究了它们在长江三角洲和珠江三角洲典型农业土壤中的吸附和迁移特点。

1 材料与方法

1.1 供试材料

供试土壤共 7 个,为长江三角洲和珠江三角洲典型农业土壤,其中包括 5 个稻田土壤(S1, S2, S3, S4 和 S6)和 2 个旱地土壤(S5 和 S7)。土壤 S4 和 S5 质地为砂质,其它土壤的质地为壤土和粘土。供试的土样均为表土,采样地点和土壤性质见表 1。

表 1 供试土壤基本性质
Table 1 Basic properties of the tested soils

土壤类型 Soil type	采样地点 Location	pH	有机质 Organic matter (g kg ⁻¹)	交换性酸 Exchangeable acid (cmol kg ⁻¹)	CEC (cmol kg ⁻¹)	Fe ₂ O ₃ (g kg ⁻¹)	粘粒 Clay (%)	盐基饱和度 Base saturation (%)
乌栅土 Wushan paddy soil (S1)	江苏 Jiangsu	7.82	43.22	0.00	15.58	14.19	34.0	100
青紫泥田 Blue clayey paddy soil (S2)	浙江 Zhejiang	5.60	34.98	0.32	13.45	21.97	34.4	97.6
黄泥沙田 Paddy soil on redeposit of red soil (S3)	浙江 Zhejiang	5.12	51.18	1.06	12.47	20.31	20.5	91.5
粉泥田 Silt-loamy paddy soil (S4)	浙江 Zhejiang	5.42	19.92	0.24	14.59	10.04	6.2	98.3
清水砂 Fluvio-sand ridge soil (S5)	浙江 Zhejiang	6.03	6.30	0.14	2.54	4.60	2.7	89.3
泥质田 Pale fluviogenic loamy paddy soil (S6)	广东 Guangdong	5.69	28.14	0.10	6.34	22.43	17.6	98.4
赤红壤 Lateritic red soil (S7)	广东 Guangdong	4.75	33.33	0.86	6.82	28.86	37.2	87.4

供试的抗生素有 2 种,分别为泰乐菌素(Tylosin,分子式为 C₄₆H₇₇NO₁₇)和土霉素(Oxytetracycline,分子式为 C₂₂H₂₄N₂O₉HCl),它们的标准物购自美国 Sigma 公司。

1.2 研究方法

1.2.1 土壤基本性质和抗生素的测定

土壤 pH 采用酸度计测定;有机质含量用重铬酸钾氧化法测定;交换性酸用 1 mol L^{-1} KCl 交换,标准碱滴定;阳离子交换量用 NH_4OAc 法测定;颗粒组成用比重计法测定;游离氧化铁用 DCB(连二亚硫酸钠-柠檬酸钠-碳酸氢钠缓冲液)提取,比色法测定。

泰乐菌素和土霉素用一帶有 2487 型紫外检测器的美国 WATERS 公司的 2695 型液相色谱仪测定。流动相为 0.01 mol L^{-1} 磷酸二氢钾:乙腈 = 70:30(pH 为 2.0),流速为 1.0 ml min^{-1} 。泰乐菌素和土霉素的最低检出限量分别为 0.002 和 0.005 mg L^{-1} 。

1.2.2 土壤对抗生素的吸附试验

称取若干份相当于 5.00 g 烘干土的风干土样于 50 ml 的聚丙烯离心管中,分别加入 25 ml 含不同浓度抗生素的 0.01 mol L^{-1} CaCl_2 溶液。为了防止微生物的影响,所加溶液中含 10 mmol L^{-1} NaN_3 。加盖后在 25°C 下振荡 24 h ,离心分离清液测定清液中残留的抗生素浓度。吸附时间根据预备试验决定,试验表明, 24 h 内土壤对供试抗生素的吸附已达平衡。为了防止光反应,所有操作都在弱光条件下进行,溶液在试验前 2 h 内配置,并贮放在棕色试液瓶内。吸附试验的抗生素浓度设 6 个梯度,分别为 0 、 0.5 、 1.0 、 2.5 、 5.0 mg L^{-1} 和 10 mg L^{-1} ,同时设含相应抗生素浓度溶液的无土处理作对照,重复 2 次。平衡液中的抗生素浓度用高效液相色谱法测定。根据初始溶液与平衡溶液中抗生素浓度的差值计算土壤对抗生素的吸附量。

1.2.3 抗生素在土壤中的淋洗试验

选择青紫泥田(S2)和清水砂土(S5)等 2 种土壤进行本试验,其中 S2 代表粘质土壤,S5 代表砂质土壤。淋洗装置为一玻璃淋洗管,深度为 20 cm ,内径为 5 cm 。为防止土粒淋出,每一淋洗管底部各先加入 5 cm 厚的经酸洗的石英砂(粒径在 $0.5\sim 1.0\text{ mm}$ 之间),然后加入厚度为 5 mm 的玻璃纤维。每一淋洗管各加入 270 g 供试土壤,通过轻轻拍击淋洗管的方法使土柱深度控制在 10 cm ,装入土柱的平均容重约 1.38 g cm^{-3} 。为防止溶液直接冲洗土壤,在土柱的土壤上面再用 1 cm 厚的酸洗的石英砂覆盖。淋洗试验前,把淋洗管下端浸于一盛放 0.01 mol L^{-1} CaCl_2 溶液的烧杯中,使水分通过毛细管进入土壤并接近饱和,并去除土柱的内含空气,然后悬放在室温下培养 1 d 。试验前,由淋洗管入口向每一土柱表面各加入 8 ml 含抗生素为 $250\mu\text{g ml}^{-1}$ 溶液(即每一土柱抗生素加入量为 1.25 mg ,相当于荷兰等国报道的每年平均进入农田抗生素的 5 倍左右^[15])。 30 min 后,用 0.01 mol L^{-1} CaCl_2 溶液淋洗。每一土柱 0.01 mol L^{-1} CaCl_2 溶液的淋洗量为 1000 ml (相当于 500 mm 的降雨量),淋洗速度由一加液器控制,约为 0.5 ml min^{-1} 。淋出液用三角瓶收集,按收集先后每 50 ml 作为一个样品间隔取样,滤液经过滤分析抗生素浓度。

2 结果与讨论

2.1 土壤对抗生素的等温吸附

对无土的含不同量的抗生素溶液振荡 24 h 的回收分析表明,抗生素的回收率在 $95.3\%\sim 99.2\%$ 之间,平均为 97.3% 。表明在试验条件下抗生素的自然分解不明显。土壤对抗生素的吸附量随抗生素的加入量的增加而增加(图 1)。当平衡液中抗生素浓度较低时,吸附量随浓度增加呈急剧上升;但随平衡液中抗生素浓度增加,吸附量随浓度增加渐趋平缓(曲线斜率降低)。用 Langmuir 方程($C/Q = C/Q_m + K/Q_m$)和 Freundlich 方程($\log Q = \log K + 1/n \log C$)分别对观测值进行了拟合,结果表明,用 Freundlich 方程的拟合效果明显好于 Langmuir 方程。前者拟合的相关系数在 $0.9953\sim 0.9999$ 之间,均达到极显著水平($p < 0.01$);后者在 $0.8615\sim 0.9836$ 之间,分别为显著($p < 0.05$)和极显著水平($p < 0.01$)。

抗生素的吸附量因土壤类型和抗生素种类的不同有很大的变化。分配系数(K_d ,单位质量固相吸附的污染物量与平衡溶液中污染物的浓度的比值)常可表征土壤对污染物的吸附强度。表 3 为研究的 2 种抗生素在 7 个土壤中 K_d 值, K_d 值随平衡液浓度的增加而逐渐下降,并因土壤类型和抗生素种类有较大的变化。7 种土壤中土霉素的分配系数在 43 L kg^{-1} 和 3018 L kg^{-1} 之间,明显高于泰乐菌素(在 2.3 L kg^{-1} 和 175 L kg^{-1} 之间)。

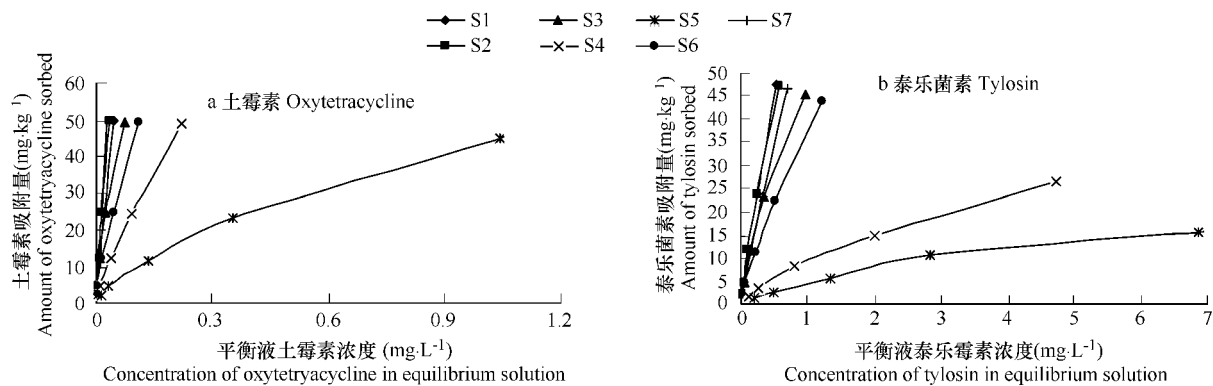


图1 供试土壤对抗生素的等温吸附

Fig. 1 Isothermal adsorption of antibiotics on the soils

其中砂质土壤(S4 和 S5)中土霉素的分配系数分别在 221、528、43L kg⁻¹和 173L kg⁻¹之间,泰乐菌素的分配系数分别在 5.6、15、2.3L kg⁻¹和 7.4L kg⁻¹之间,明显低于其它土壤(表 2)。但无论是泰乐菌素还是土霉素,它们的 K_d 值都明显高于文献报道的磺胺类抗生素。据 Boxall 等和 Thiele-Bruhn 等的研究^[8,9],磺胺类抗生素在不同土壤中的 K_d 值一般都在 6 以下,低的仅为 0.9L kg⁻¹。

表 2 土壤吸附抗生素的 Langmuir 和 Freundlich 方程常数

Table 2 The constants of antibiotics isothermal adsorption fitted with Langmuir and Freundlich models

土壤 Soil	Langmuir ($C/Q = C/Q_m + K/Q_m$)			Freundlich ($\log Q = \log K + 1/n \log C$)		
	Q_m	K	r	n	$\log K$	r
土霉素 Oxytetracyclin						
S1	67.5	0.0378	0.9587 **	0.359	2.788	0.9999 **
S2	295.3	0.136	0.9234 **	0.339	2.947	0.9999 **
S3	52.7	0.0336	0.9827 **	0.389	2.570	0.9994 **
S4	46.9	0.0113	0.9070 *	0.457	2.189	0.9998 **
S5	62.4	0.464	0.9659 **	0.604	1.656	0.9991 **
S6	153.8	0.0139	0.9431 **	0.418	2.394	0.9990 **
S7	154.8	0.0619	0.8615 *	0.336	2.968	0.9998 **
泰乐菌素 Tylosin						
S1	137.0	0.912	0.9177 **	0.528	1.891	0.9999 **
S2	179.8	1.311	0.9048 *	0.536	1.867	0.9999 **
S3	46.45	0.478	0.9727 **	0.593	1.687	0.9994 **
S4	10.9	0.784	0.9793 **	1.045	0.956	0.9986 **
S5	24.4	3.799	0.9836 **	1.525	0.657	0.9953 **
S6	325.7	4.788	0.9347 **	0.636	1.571	0.9999 **
S7	89.1	0.845	0.8873 *	0.561	1.782	0.9998 **

Q_m 为最大吸附量(mg kg⁻¹), C 是平衡液浓度(mg L⁻¹); K , n 为常数, r 为相关系数; * 和 ** 分别代表显著($p < 0.05$)和极显著水平($p < 0.01$)

Q_m is the maximum adsorption capacity (mg kg⁻¹); C is the concentration of antibiotics in equilibrium solution (mg L⁻¹); K and n are constants; r is correlation coefficient; * and ** are significant at 0.01 and 0.05 levels of probability, respectively

据报道,土壤对抗生素的吸附涉及物理吸附和化学吸附,抗生素可通过范德华力、色散力和氢键等分子间作用力与土壤有机质或无机胶体表面吸附位点发生作用,或通过抗生素的羧基、醛基、胺基等功能基团与土壤中的有机或无机物质形成络合物或螯合物,被吸持在土壤中^[8,9]。泰乐菌素(C₄₆H₇₇NO₁₇)与土霉素(C₂₂H₂₄N₂O₉HCl)由于分子结构不同,它们的功能基团也有较大的差异。每一个分子的土霉素包含 6 个—OH 基、3 个

—CH₃基、2个—C=O基和1个—CONH₂基,而每一个分子的泰乐菌素包含5个—OH基、3个—C=O基、10个—CH₃基和2个—OCH₃基。土霉素可通过—OH和—C=O等功能基团与土壤中的带正电荷胶体作用,也可通过—CONH₂基团与土壤中的带负电荷的胶体发生作用。泰乐菌素主要通过—OH和—C=O等功能基团与土壤发生作用。上述土壤对土霉素的吸附能力高于泰乐菌素,可能与单位质量的土霉素包含的—OH和—C=O等活性基团高于泰乐菌素有关。

吸附反应可反映抗生素与土壤相互作用的程度,并可预测抗生素在土壤中的稳定性。一般能被土壤强烈吸附的抗生素,在土壤环境中较为稳定,容易积累;而不易被土壤吸附的抗生素,在淋溶作用下很易被淋失进行地表水或地下水。以上结果表明,除砂质土壤外,泰乐菌素和土霉素都较易被土壤所固定,相对较为稳定。

相关分析表明,土壤之间 *K_d* 值的变化主要与土壤质地有关,土壤对泰乐菌素和土霉素吸附的 *K_d* 值平均值与粘粒含量的相关系数分别为 0.974** 和 0.949** ($p < 0.01$);与土壤有机质和氧化铁含量也存在一定的相关,土壤对泰乐菌素和土霉素吸附的 *K_d* 值平均值与有机质含量的相关系数分别为 0.664* 和 0.785* ($p < 0.05$);与氧化铁含量的相关系数分别为 0.835* 和 0.622* ($p < 0.05$)。粘粒、有机质和氧化铁是土壤中正、负电荷的主要来源,其含量越高,与抗生素活性功能团相互作用的可能性越大。但土壤对泰乐菌素和土霉素吸附的 *K_d* 值平均与其它土壤性质(pH、交换性酸、CEC、盐基饱和度)的相关不显著(相关系数在 0.5 以下, $p > 0.05$)。

表 3 土壤对抗生素吸附的分配系数

Table 3 Distribution coefficient (*K_d* value) of antibiotics in solid and solution phases

土壤 Soil	土霉素 Oxytetracycline		泰乐菌素 Tylosin	
	范围(L kg ⁻¹) Range	平均±标准差(L kg ⁻¹) Mean ± standard deviation	范围(L kg ⁻¹) Range	平均±标准差(L kg ⁻¹) Mean ± standard deviation
S1	1034 ~ 1977	1473 ± 373	90 ~ 175	126 ± 35
S2	1433 ~ 2466	1913 ± 398	82 ~ 166	118 ± 33
S3	657 ~ 1773	1188 ± 433	47 ~ 110	76 ± 24
S4	221 ~ 528	349 ± 125	5.6 ~ 15	10 ± 4.0
S5	43 ~ 173	103 ± 55	2.3 ~ 7.4	4.6 ± 1.9
S6	453 ~ 1362	848 ± 368	36 ~ 83	56 ± 18
S7	1675 ~ 3018	2190 ± 532	67 ~ 124	90 ± 24

2.2 抗生素在土壤中的迁移性

图 2 为在模拟降雨条件下外加泰乐菌素和土霉素等 2 种抗生素在粘质土壤(S2)和砂土(S5)淋洗液中浓度随时间的变化。结果表明,在淋洗初期,淋出液中没有测出抗生素或抗生素浓度很低,但随着淋洗次数的增加淋洗液中抗生素浓度逐渐增加,当累计淋出液体积为 250 ml 至 550 ml 时,抗生素达到较高水平,之后抗生素浓度又逐渐下降。淋出液中抗生素浓度因土壤质地和抗生素种类有很大的变化。对于粘质土壤,淋出液中抗生素的浓度较低(图 2),其中,土霉素的浓度均在 0.005 mg L⁻¹ 以下,而泰乐菌素的浓度略高,在 0 ~ 0.086 mg L⁻¹ 之间。但砂质土壤的淋出液中抗生素浓度有所提高,其中土霉素的浓度在 0 ~ 0.073 mg L⁻¹ 之间,仍处于相对较低的水平;而淋洗液中的泰乐菌素浓度较高,累计淋出液体积在 200 至 500 ml 时,泰乐菌素浓度在 0.2 mg L⁻¹ 以上,最高浓度可达 0.532 mg L⁻¹。这表明

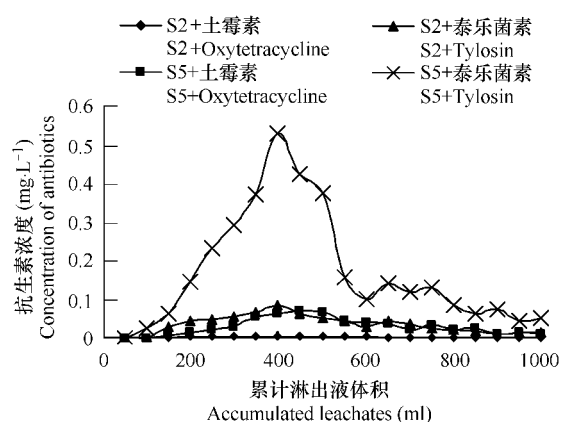


图 2 土霉素和泰乐菌素在砂土和粘土的淋洗性

Fig. 2 Leaching of oxytetracycline and tylosin from sandy and clayey soils

泰乐菌素在砂土中可发生明显的迁移,而在粘质土壤中的迁移一般很弱。泰乐菌素在土壤中的迁移能力明显高于土霉素,这与以上土壤对 2 种抗生素吸附的结果一致,即土霉素易被土壤吸附,不易发生迁移。在整个淋洗过程中,砂土和粘土中淋出的土霉素分别占加入量的 3.05% 和 0.17%;而相应土壤中淋出的泰乐菌素分别占加入量的 17.29% 和 3.62%;

3 结论

长江三角洲和珠江三角洲典型农业土壤对泰乐菌素和土霉素有较强的吸附作用,且供试土壤对土霉素的吸附能力高于泰乐菌素。抗生素在土壤中的吸附和迁移行为与土壤性质有关,吸附强度随着土壤粘粒、有机质和氧化铁含量的增加而增加,可迁移性随粘粒含量的增加而减弱。总的来看,在粘质和壤质土壤中积累的土霉素和泰乐菌素等抗生素较为稳定,不易发生迁移;而砂质土壤中积累的抗生素(特别是泰乐菌素)有较高的流失潜力和环境风险,应引起重视。

References:

- [1] Hou F L. Outline of Feed Additive Application. Beijing: China Agriculture Press, 2003.
- [2] Wang R, Liu T Z, Wang T. The fate of antibiotics in environment and its ecotoxicology: A review. *Acta Ecologica Sinica*, 2006, 26(1): 265—270.
- [3] Batt A L, Snow D D, Aga D S. Occurrence of sulfonamide antimicrobials in private water wells in Washington county, Idaho, USA. *Chemosphere*, 2006, 64(11): 1963—1971.
- [4] Stoob K, Singer H P, Stettler S, *et al.* Exhaustive extraction of sulfonamide antibiotics from aged agricultural soils using pressurized liquid extraction. *Journal of Chromatography A*, 2006, 1128(1-2): 1—9.
- [5] Hamscher G, Priess B, Nau H. A survey of the occurrence of various sulfonamides and tetracyclines in water and sediment samples originating from aquaculture systems in Northern Germany in summer 2005. *Archiv Fur Lebensmittelhygiene*, 2006, 57(4): 97—101.
- [6] Zielesny Y, Groeneweg J, Vereecken H, *et al.* Impact of sulfadiazine and chlorotetracycline on soil bacterial community structure and respiratory activity. *Soil Biology & Biochemistry*, 2006, 38(8): 2372—2380.
- [7] Diaz-Cruz M S, Larcelo D. Environmental behavior and analysis of veterinary and human drugs in soils, sediments and sludge. *Trends in Analytical Chemistry*, 2003, 22(6): 340—350.
- [8] Boxall A B A, Blackwell P, Cavallo R, *et al.* The sorption and transport of a sulphonamide antibiotic in soil systems. *Toxicology*, 2002, 131: 19—28.
- [9] Thiele-Bruhn S, Seibick T, Schulten H R, *et al.* Sorption of sulfonamide pharmaceutical antibiotics on whole soils and particle-size fractions. *Journal of Environmental Quality*, 2004, 33: 1331—1342.
- [10] Halling-Sorensen B, Nielsen S N, Lansky P F, *et al.* Occurrence, fate, and effects of pharmaceuticals in the environment — A review. *Chemosphere*, 1998, 36: 357—365.
- [11] Jemba P K. The potential impact of veterinary and human therapeutic agents in manure and biosolids on plants grown on arable land: a review. *Agriculture, Ecosystems and Environment*, 2002, 93: 267—278.
- [12] Thiele-Bruhn S. Pharmaceutical antibiotic compounds in soils—a review. *Journal of Plant Nutrition and Soil Science*, 2003, 166: 145—167.
- [13] Tolls J. Sorption of veterinary pharmaceuticals in soils: a review. *Environmental Science and Technology*, 2001, 35: 3397—3406.
- [14] Liguoro M De, Cibir V, Capolongo F, *et al.* Use of oxytetracycline and tylosin in intensive calf farming: evaluation of transfer to manure and soil. *Chemosphere*, 2003, 52: 203—212.
- [15] Jemba P K. The potential impact of veterinary and human therapeutic agents in manure and biosolids on plants grown on arable land: a review. *Agriculture, Ecosystems and Environment*, 2002, 93: 267—278.

参考文献:

- [1] 侯放亮. 饲料添加剂应用大全. 北京: 中国农业出版社, 2003.
- [2] 王冉, 刘铁铮, 王恬. 抗生素在环境中的转归及其生态毒性. *生态学报*, 2006, 26(1): 265—270.