第34卷第3期 河北科技大学学报 Vol. 34, No. 3
2013年6月 Journal of Hebei University of Science and Technology June 2013

文章编号:1008-1542(2013)03-0234-07 doi:10.7535/hbkd.2013yx03011

蒸渗仪控制下典型抗生素迁移规律研究

李 曼[1,2],魏福祥[1]

(1.河北科技大学环境科学与工程学院,河北石家庄 050018;2.中国科学院生态环境研究中心城市与区域生态国家重点实验室,北京 100085)

摘 要:以北京市潮土原状土柱为供试土壤,采用称重式蒸渗仪模拟自然环境下典型抗生素在土壤中的迁移规律。结果表明,磺胺类抗生素(磺胺甲基异恶唑、磺胺嘧啶)在土壤中的吸附性较差,迁移性较强,淋溶过程中,部分磺胺类抗生素可以穿透第一层次土壤,并逐步向下迁移。四环素类(土霉素、四环素)和氟喹诺酮类抗生素(诺氟沙星、环丙沙星、氧氟沙星)在各个土壤层次的淋溶液浓度稳定时分别为0.5~1 μg/L和7~9 μg/L,这表明四环素类和氟喹诺酮类抗生素在土壤中的吸附性较强,迁移性较弱,淋溶过程中,大部分四环素类和氟喹诺酮类抗生素可在土壤中累积。

关键词:抗生素;蒸渗仪;淋溶;土壤

中图分类号:X53 **文献标志码**:A

Migration characteristics of typical antibiotics under the control of lysimeter

LI Man[1,2], WEI Fuxiang[1]

(1. School of Environmental Science and Engineering, Hebei University of Science and Technology, Shijiazhuang Hebei 050018, China; 2. State Key Laboratory of Urban and Regional Ecology, Research Center for Eco-Environmental Sciences, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100085, China)

Abstract: The migration characteristics of typical antibiotics in natural soil of Beijing are imitated using the weighing lysimeter. The results show that the sulfa antibiotics (sulfamethoxazole, sulfadiazine) in the soil present poor adsorption but strong migration. While in the leaching process, some sulfa antibiotics penetrate the soil of the first level, and gradually migrated further down. The stable leachate concentration of Tetracyclines (oxytetracycline, tetracycline) and fluoroquinolones (norfloxacin, ciprofloxacin, ofloxacin) in different soil levels are 0.5~1 μg/L and 7~9 μg/L, respectively. It indicates that the tetracycline and fluoroquinolones have the characteristics of strong adsorption and weak migration. Many tetracyclines and fluoroquinolones are accumulated in the soil in the process of leaching.

Key words: antibiotic; lysimeter; leaching; soil

抗感染药物的销售额在当今全球医药市场中居第2位,且滥用情况最为明显。根据历年相关资料显示,全球抗生素销量的年平均增长率约为8%,种类已达数千种[1-2]。中国抗生素滥用现象十分严重,有调查显示,对包括上海、武汉、重庆、成都等大城市的不完全统计,中国抗生素在药物总用量中占30%~40%,比例远远大于其他各类药物;而欧美发达国家仅为10%左右。

收稿日期:2013-03-07;修回日期:2013-03-25;责任编辑:王海云

基金项目:国家自然科学基金(41001330)

作者简介:李 曼(1987-),女,天津蓟县人,硕士研究生,主要从事新型污染物环境迁移及调控等方面的研究。

通讯作者:魏福祥教授。E-mail: wfxss@sohu.com

抗生素类医药品经人体或动物摄入后，大部分以原药和代谢产物的形式经由其粪尿排出体外，并经污水排泄管道进入到污水处理厂，此外一些不用或过期的药物则通过厕所丢弃等方式也汇入到城市生活污水中[3]。通常的污水处理系统（二级处理）并不能有效去除这些污染物，处理率普遍在 30%～80%[4-5]。同时污泥由于吸附作用而含有的大量抗生素，也流入到环境当中。

尽管抗生素的半衰期短，浓度低，然而人类活动的连续输入使环境中抗生素呈现出一种“假持续”现象，进而对人体健康及整个生态系统构成长期潜在的危害[2]。在蔬菜、牛奶、鱼类等食物中均已有抗生素类物质检出，抗生素菌渣作为饲料使用时容易引起动物的耐药性，这都可能导致抗生素通过食物链对人类健康构成威胁[6-9]。抗生素已在地表水体、土壤、生物体等环境介质中大量检出[10-14]，甚至在地下水中也有检出[15]。目前，对抗生素的处理、处置方式尚存在一定问题[16]，抗生素的环境污染及其生态效应已成为中国乃至全球所面临的重大环境问题之一[2]。

本研究选取淋溶性质存在差异的磺胺类、四环素类、氟喹诺酮类抗生素为供试药物，通过微型蒸渗仪模拟试验，探讨 3 类抗生素在原状土柱中的迁移规律，为防治土壤及地下水抗生素污染提供理论依据。

1　实验材料与方法

1.1　实验材料

供试土壤：微型蒸渗仪内土柱为原状土柱，高度为 60 cm。所用土壤采自北京市农林科学院，土壤基本理化性质见表 1。

表 1　供试土壤样品基本理化性质

Tab. 1　Basic physical and chemical characteristics of the experimental soil sample

土壤深度/cm	w(水分)/%	pH 值	w(有机质)/%	电导率/(μS·cm^{-1})	颗粒组成		
					w(黏粒)/%	w(粉粒)/%	w(砂粒)/%
0～20	15.05	7.80	1.23	147.95	14	34	52
20～40	16.97	7.88	0.98	163.15	17	41	42
40～60	18.69	7.82	0.82	127.15	32	46	22

仪器：KLSET-600 微型蒸渗仪，德国 UMS 公司提供（示意图见图 1）；Agilent 1290-6460 型液相色谱/三重串联四级杆质谱联用仪，美国安捷伦科技有限公司提供。

试剂：磺胺嘧啶（sulfadiazine，SDZ）标准品，磺胺甲基异恶唑（sulfamethoxazole，SMZ）标准品，土霉素（oxytetracycline，OTC）标准品，四环素（tetracycline，TC）标准品，氧氟沙星（ofloxacin，OFL）标准品，诺氟沙星（norfloxacin，NOR）标准品，环丙沙星（ciprofloxacin，CIP）标准品，均购自德国 Dr. Ehrenstorfer GmbH 公司；甲醇，乙腈，色谱纯，购自美国 Fisher 公司；甲酸、草酸、柠檬酸、乙二胺四乙酸二钠、磷酸氢二钠、硫酸，分析纯，购自国药集团化学试剂有限公司。缓冲溶液：称取 12.9 g 柠檬酸，27.6 g 磷酸氢二钠，37.2 g 乙二胺四乙酸二钠，于 1 000 mL 超纯水中混匀。

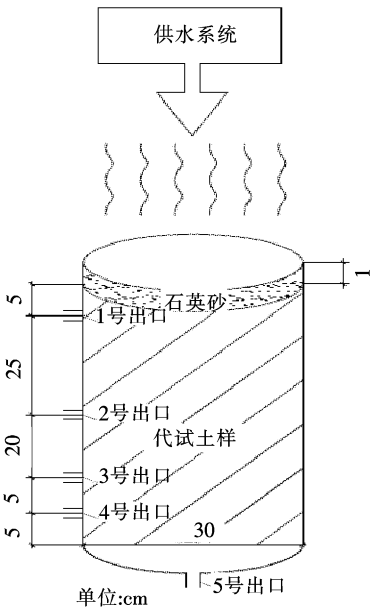

图 1　蒸渗仪示意图

Fig. 1　Schematic diagram of lysimeter

1.2　实验方法

1.2.1　蒸渗仪实验

微型蒸渗仪沿土体剖面可埋入土壤水分、土壤水势、土壤溶液取样器等传感器，实时监测土体剖面不同深度的水分变化情况；在土柱体的底部有一个陶磁盘，用于渗漏水的取样或用于张力模拟；安装在底部的高精度称重系统可实时称量土柱的重量变化，从而用于计算水分的变化量。微型蒸渗仪共有 5 个取水点，在侧壁处从上至下分为 1～4 层，每层取水点距蒸渗仪表层土壤距离分别为 5，30，50，55 cm，底部有一淋出液出口，为第 5 个取水

点，距离蒸渗仪表层 60 cm。微型蒸渗仪内径 30 cm，土柱表层铺 1 cm 厚度石英砂。淋溶实验前，使用去离子水饱和土柱；土柱饱和后，蠕动泵恒速供水稳定土柱。从顶部加入 500 μg/L 质量浓度的目标抗生素淋溶液进行淋溶实验。使用微型蒸渗仪进行抗生素迁移模拟，每天灌溉 8 h；淋溶过程中，蠕动泵流速控制 2 mL/min，取 4 根软管分区域均匀滴灌，共 8 mL/min；共淋溶 28 h 后，蠕动泵停止供水。采用连续真空泵系统在 400 h·Pa 负压下对土壤溶液取样。

由于不同取水点出水量存在差异，第 1 层和第 5 层取水点每 4 h 取 1 份水样，第 2，3，4 层取水点每 8 h 取 1 份水样，每天灌溉 8 h。对淋出液中抗生素进行定量检测分析，探讨抗生素在微型蒸渗仪中的迁移规律。实验初始条件如下：微型蒸渗仪总重为 40.50 kg，实时检测水势水分记录显示见表 2。

表 2 蒸渗仪实验初始参数

Tab. 2 Initial test parameters of lysimeter

测试点深度/cm	w(水分)/%	水势/(h·Pa)
5	16.84	12.43
15	8.34	11.79
30	47.13	29.07
55	13.09	13.71

1.2.2 水样提取及净化

用盐酸调节淋出液 pH 值为 3，加入 0.25 g 乙二胺四乙酸二钠，过 0.45 μm 孔径玻璃纤维滤膜。配制缓冲溶液为提取液，将过滤后滤膜及缓冲溶液放入玻璃离心管中，超声萃取 3 次。收集萃取后玻璃离心管中提取液，并与过滤后液体合并。将合并后水样过 HLB 小柱净化，采用甲醇洗脱后定容，加水稀释后过 0.22 μm 孔径有机系滤膜过滤，液相色谱串联质谱联用仪测定。

1.2.3 仪器分析

液相色谱串联质谱联用仪工作条件：液相色谱分析柱为 C18 柱；流动相中水相 A：体积分数 0.2%甲酸与 1 mmol/L 草酸混合液，有机相 B：乙腈，流速为 0.2 mL/min；柱温为 30 ℃；进样量为 10 μL。流动相洗脱梯度见表 3。

检测器为质谱检测器，选择电喷雾正离子模式(ESI+)。各项质谱参数为 Gas Temp：300 ℃；Gas Flow：12 L/min；Nebulizer：30 psi；Capillary：3 500 V positive；Delta EMV(+)：800。采用离子模式定量，目标抗生素的质子化离子和碎片离子及对应参数见表 4。

表 3 液相色谱洗脱梯度

Tab. 3 Liquid chromatography elution gradient

时间/min	φ(有机相)/%	φ(水相)/%
0	5	95
1	5	95
5	25	75
8.5	90	10
9.5	90	10
10	5	95
13	5	95

表 4 目标抗生素的母离子、子离子、质谱破碎电压和碰撞能值

Tab. 4 Conditions of identification and quantification in UPLC-MS/MS

物质	母离子	子离子	破碎电压/V	碰撞能/V
磺胺嘧啶(SDZ)	254.1	92.1	94	28
磺胺甲基异恶唑(SMZ)	251.1	92.1	100	25
土霉素(OTC)	461.2	426.1	114	15
四环素(TC)	445.2	410.2	114	15
氧氟沙星(OFL)	362.2	318.2	134	15
诺氟沙星(NOR)	320.2	276.2	130	13
环丙沙星(CIP)	332.1	288.2	124	15

2 结果与分析

2.1 微型蒸渗仪中磺胺类抗生素迁移规律

采用微型蒸渗仪对磺胺类抗生素在土壤中的迁移规律进行模拟研究，磺胺类抗生素在不同土层迁移变化如图 2 所示。图 2a)中，0～4 000 mL 灌溉量内，第 1 层取水点淋出液中磺胺嘧啶浓度显著升高，质量浓度稳定时可达到 160 μg/L，第 2 层土壤淋出液中磺胺嘧啶浓度呈逐步上升趋势，第 3—第 5 层土壤淋出液中磺胺嘧啶淋出浓度变化不大。

图 2b)中，淋出液中磺胺甲基异恶唑浓度随灌溉量变化规律与磺胺嘧啶相似。第 1 层取水点淋出液中磺胺甲基异恶唑质量浓度稳定时可达到近 180 μg/L，第 2—第 5 土壤层次的磺胺甲基异恶唑淋溶液浓度呈

逐步上升趋势，且各层淋出液中目标抗生素浓度梯度变化较磺胺嘧啶更为明显。

图 2 表明磺胺类抗生素（磺胺甲基异恶唑、磺胺嘧啶）在土壤中的吸附性较差，其中磺胺嘧啶结构复杂，较难降解[17]，二者迁移性较强，淋溶过程中，部分磺胺类抗生素可以穿透第 1 层次土壤，并逐步向下迁移。可以推测，延长磺胺类抗生素灌溉的时间或增大灌溉浓度的情况下，大量磺胺类抗生素会快速向下迁移至深层土壤和地下水中，是抗生素污染的重要来源，应重点对磺胺类抗生素加强管理。

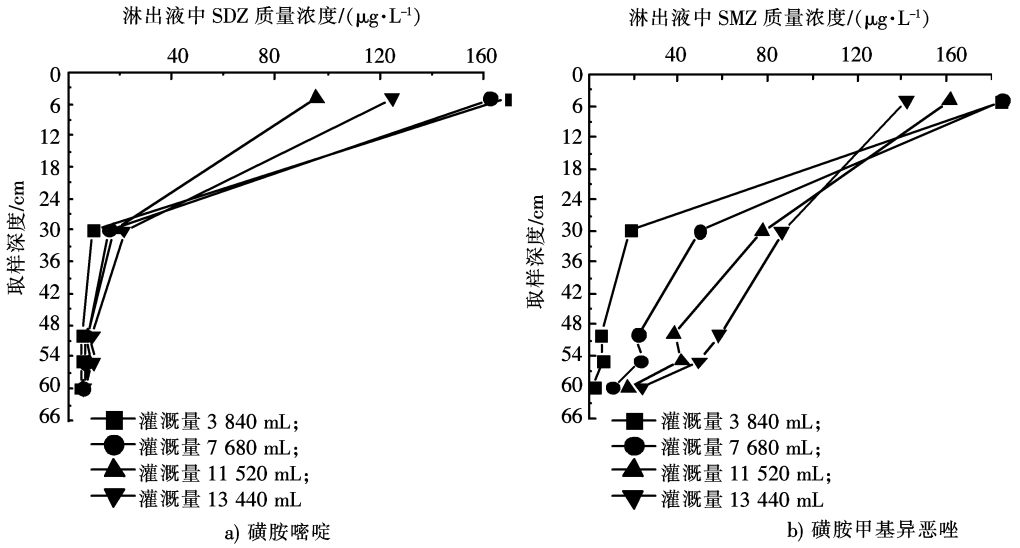

图 2　不同深度磺胺嘧啶及磺胺甲基异恶唑淋出浓度曲线

Fig. 2　Leaching concentration curves of sulfadiazine and sulfamethoxazole in different depths

2.2　微型蒸渗仪中四环素类抗生素迁移规律

图 3 为蒸渗仪模拟实验中，四环素类抗生素在不同土层迁移变化曲线。图 3a）中，各土层取水点淋出液中土霉素质量浓度较低，且差别较小，为 0.5 μg/L。灌溉 11 520 mL 淋溶液后，第 2 层取水点处淋出液中土霉素浓度呈升高趋势。相关研究显示土霉素为吸附性较强的物质，比较容易蓄积[18]。这与本次模拟实验结果相符。

图 3b）各层取水点中四环素质量浓度为 1 μg/L。灌溉一定时间后淋出液中四环素浓度变化与土霉素呈现相同变化趋势，淋出液中质量浓度仅为 1 μg/L，灌溉量接近 12 000 mL 时，第 2 层取水点浓度升高。

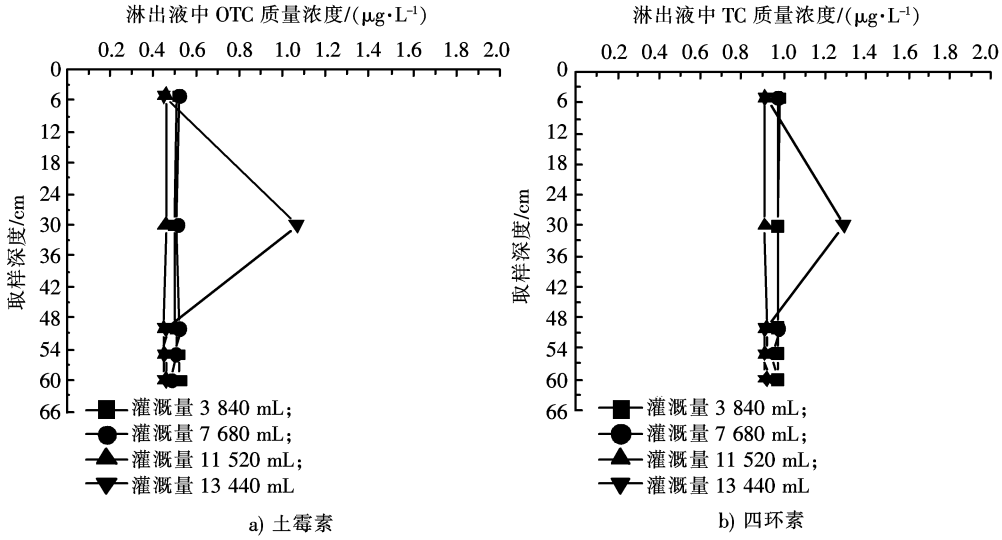

图 3　不同深度土霉素及四环素淋出浓度曲线

Fig. 3　Leaching concentration curves of oxytetracycline and tetracycline in different depths

HAMSCHER 等将四环素质量分数为4.0 mg/kg的液体粪肥施入土壤后，发现四环素在0～10 cm 土层中的平均质量分数增至86.2 μg/kg，在20～30 cm 的土层中，其质量分数增加到171.7 μg/kg[19]。这与本次模拟实验中，2种四环素类抗生素在5～15 cm 处淋出液中浓度升高有所类似。可以做出以下推断，灌溉一定时间后，由于表层土壤结构复杂，对抗生素吸附、降解等作用较大，表层土壤中四环素抗生素淋出量及积聚量较少。四环素类抗生素迁移性较差，尚未迁移到深层土壤，因此显示出第2层土壤淋出液中抗生素浓度上升的现象。长期灌溉，可能引起土壤中四环素类抗生素大量向下迁移造成污染。李彦文等研究发现，广州菜地土壤中四环素类抗生素聚积量大于磺胺类的沉积量，将本实验中2类抗生素的数据结果对照比较可以得出相似结论[20]。四环素类抗生素作为农用抗生素被广泛使用[21]，因此对四环素类抗生素在土壤中的迁移性研究十分必要。根据本次实验结论可以得出，需对灌溉溶液的浓度及灌溉流速进行控制，以达到控制四环素类抗生素污染深层土壤及地下水的目的。

2.3 微型蒸渗仪中氟喹诺酮类抗生素淋溶规律

氟喹诺酮类抗生素（诺氟沙星、环丙沙星、氧氟沙星）在各个土壤层次的淋溶液浓度稳定时均为6～8 μg/L，这表明氟喹诺酮类抗生素在土壤中的吸附性较强，迁移性较弱，淋溶过程中，大部分氟喹诺酮类抗生素可在土壤中累积。图4中提供灌溉量条件下，淋出液中氟喹诺酮类抗生素浓度持续平稳趋势，显示氟喹诺类抗生素尚未达到吸附、降解等作用的平衡，没有明显向下迁移的趋势。

氟喹诺酮类抗生素的分子中含有较多的极性离子，因此吸附能力较强[22]。HALLING-SORENSEN 等发现氟喹诺酮类抗生素对表层土壤矿物质存在吸附作用，在土壤中的移动能力有限[23]。吴银宝等研究得出环丙沙星、诺氟沙星和恩诺沙星等很容易在土壤表层积累，向下层土的迁移很弱[24]。这与本实验研究验证结果相一致。人兽共用的诺氟沙星、环丙沙星和依诺沙星在河水中广泛存在，具有80%以上的检出率和较高的含量（质量浓度为99～120 ng/L）[25]，因此应加强对喹诺酮类抗生素污染的关注。

常见抗生素吸附作用强弱顺序依次为四环素类＞大环内酯类＞氟喹诺酮类＞磺胺类＞氨基

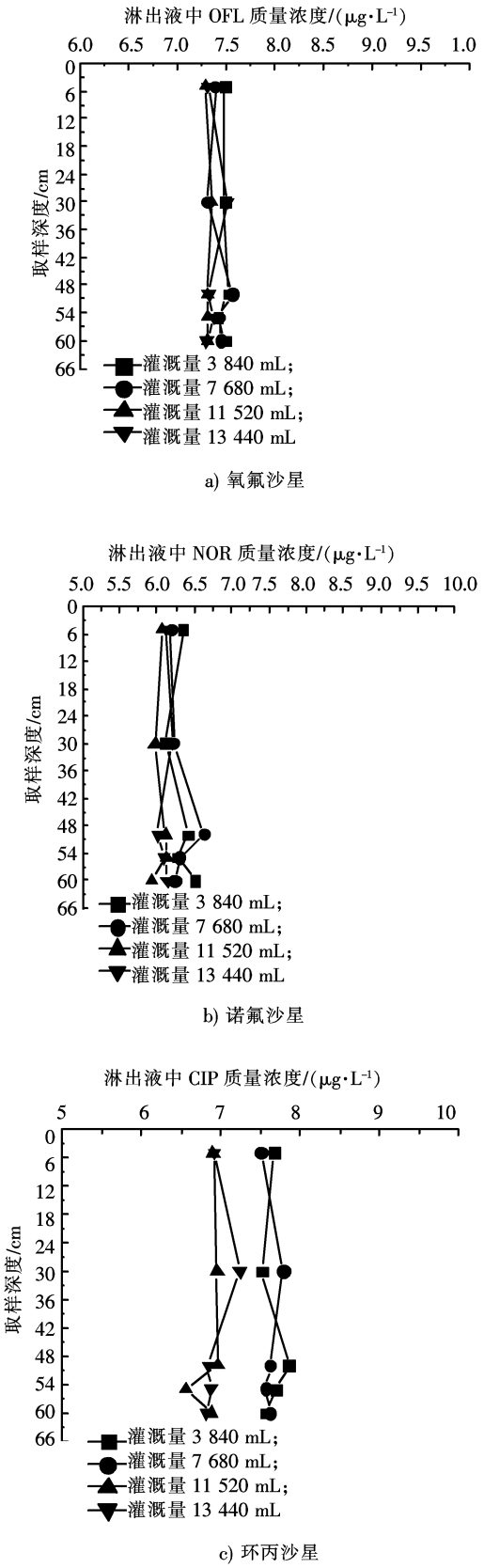

图4 不同深度氧氟沙星、诺氟沙星及环丙沙星淋出浓度曲线

Fig. 4 Leaching concentration curves of ofloxacin, norfloxacin and ciprofloxacin in different depths

糖苷类＞青霉素类[26]。本次实验结果淋出液中 3 类抗生素浓度比较与上述排序相符，但灌溉一定时间后，氟喹诺酮类抗生素尚无升高趋势。这可能与氟喹诺酮类抗生素生物降解较快[27]等降解或转化特点有关。

3　结　论

在微型蒸渗仪控制下，对原状土柱中典型抗生素迁移规律的研究表明：磺胺类抗生素在土壤中向下迁移性较强，淋出液中磺胺甲基异恶唑淋出量及淋出速率大于磺胺嘧啶，对深层土壤及地下水构成威胁。四环素类和喹诺酮类抗生素在土壤中迁移性差，大量目标抗生素在土壤中累积或损失。灌溉量达到 12 000 mL 左右后，5～15 cm 土层中四环素类抗生素淋出量呈现上升趋势。建议降低灌溉水源中抗生素浓度，尤其加强对磺胺类抗生素的浓度控制，以降低对地下水的污染风险，对自然环境及生态影响较小。四环素类及喹诺酮类抗生素在土壤中迁移性差，应采取措施以防治其在土壤中富集造成污染。

参考文献/References：

[1] THIELES S. Pharmaceutical antibiotic compound in soils：A review[J]. Journal of Plant Nutrition and Soil Science，2003，166：145-147.

[2] 周启星，罗　义，王美娥. 抗生素的环境残留、生态毒性及抗性基因污染[J]. 生态毒理学报，2007，2(3)：243-251.
ZHOU Qixing，LUO Yi，WANG Meie. Environmental residues and ecotoxicity of antibiotics and their resistance gene pollution：A review [J]. Asian Journal of Ecotoxicology，2007，2(3)：243-251.

[3] 王　冉，刘铁铮，王　恬. 抗生素在环境中的转归及其生态毒性[J]. 生态学报，2006，26(1)：265-270.
WANG Ran，LIU Tiezheng，WANG Tian. The fate of antibiotics in environment and its ecotoxicology：A review[J]. Acta Ecologica Sinica，2006，26(1)：265-270.

[4] 徐维海，张　干，邹世春，等. 典型抗生素类药物在城市污水处理厂中的含量水平及其行为特征[J]. 环境科学，2007，28(8)：1 779-1 783.
XU Weihai，ZHANG Gan，ZOU Shichun，et al. Occurrence，distribution and fate of antibiotics in sewage treatment plants[J]. Environmental Science，2007，28(8)：1 779-1 783.

[5] 常　红，胡建英，王乐征，等. 城市污水处理厂中磺胺类抗生素的调查研究[J]. 科学通报，2008，53(2)：159-164.
CHANG Hong，HU Jianying，WANG Lezheng，et al. Research on sulfa antibiotics in municipal sewage treatment plant[J]. Chinese Science Bulletin，2008，53(2)：159-164.

[6] 李彦文，张　艳，莫测辉，等. 广州市蔬菜中喹诺酮类抗生素污染特征及健康风险初步研究[J]. 环境科学，2010，31(10)：2 445-2 449.
LI Yanwen，ZHANG Yan，MO Cehui，et al. Preliminary study on occurrence and health risk assessment of quinolone antibiotics in vegetables from Guangzhou，China[J]. Environmental Science，2010，31(10)：2 445-2 449.

[7] 郑淑容. 牛奶中抗生素残留的危害及对策[J]. 中国奶牛，2010(3)：48-50.
ZHENG Shurong. Harm and countermeasure of antibiotic residues in milk[J]. China Dairy Cattle，2010(3)：48-50.

[8] 贡丽鹏，郭　斌，任爱玲，等. 抗生素菌渣理化特性[J]. 河北科技大学学报，2012，33(2)：190-196.
GONG Lipeng，GUO Bin，REN Ailing，et al. Physical and chemical properties of antibiotics bacterial residue[J]. Journal of Hebei University of Science and Technology，2012，33(2)：190-196.

[9] 王玉春，赵星洁，刘英华，等. 高效液相色谱法测定淡水鱼中抗生素残留量[J]. 河北科技大学学报，2007，28(3)：215-217.
WANG Yuchun，ZHAO Xingjie，LIU Yinghua，et al. HPLC determination of antibiotics in freshwater fish[J]. Journal of Hebei University of Science and Technology，2007，28(3)：215-217.

[10] 安　婧，周启星. 药品及个人护理用品(PPCPs)的污染来源、环境残留及生态毒性[J]. 生态学杂志，2009，28(9)：1 878-1 890.
AN Jing，ZHOU Qixing. Pollution sources，environmental residues，and ecological toxicity of pharmaceuticals and personal care products (PPCPs)：A review[J]. Chinese Journal of Ecology，2009，28(9)：1 878-1 890.

[11] LORAINE G A，PETTIGROVE M E. Seasonal variations in concentrations of pharmaceuticals and personal care products in drinking water and reclaimed wastewater in Southern California[J]. Environmental Science and Technology，2006，40(3)：687-695.

[12] 李彦文，莫测辉，赵　娜，等. 高效液相色谱法测定水和土壤中磺胺类抗生素[J]. 分析化学，2008，36(7)：954-958.
LI Yanwen，MO Cehui，ZHAO Na，et al. Determination of sulfonamides antibiotics in water and soil using high performance liquid chromatography[J]. Chinese Journal of Analytical Chemistry，2008，36(7)：954-958.

[13] 徐冰洁，罗　义，周启星，等. 抗生素抗性基因在环境中的来源、传播扩散及生态风险[J]. 环境化学，2010，29(2)：169-178.
XU Bingjie，LUO Yi，ZHOU Qixing，et al. Sources，dissemination，and ecological risks of antibiotic resistances genes(args) in the environment[J]. Environmental Chemistry，2010，29(2)：169-178.

[14] HU Jianying, SHI Jianchen, CHANG Hong, et al. Phenotyping and genotyping of antibiotic-resistant escherichia coli isolated from a natural river basin[J]. Environmental Science & Technology, 2008, 42(9): 3 415-3 420.

[15] SACHER F, LANG F T, BRAUCH H J, et al. Pharmaceuticals in ground waters-analytical methods and results of a monitoring program in Baden-Wurttemberg, Germany[J]. Journal of Chromatography A, 2001, 938: 199-210.

[16] 周保华，高 勤，王洪华，等. 青霉素、土霉素菌渣研究利用现状及特性分析[J]. 河北工业科技，2011，28(5)：291-294.
ZHOU Baohua, GAO Qin, WANG Honghua, et al. Research and utilization of penicillin bacterial residue and oxytetracycline bacterial residue and analysis of the characteristics[J]. Hebei Journal of Industrial Science and Technology, 2011, 28(5): 291-294.

[17] 文春波，张从良，王 岩. 磺胺嘧啶在土壤中的降解与迁移研究[J]. 农业环境科学学报，2007，26(5)：1 677-1 680.
WEN Chunbo, ZHANG Congliang, WANG Yan. Degradation and transport of sulfadiazine in soil[J]. Journal of Agro-Environment Science, 2007, 26(5): 1 677-1 680.

[18] SITHOLE B, GUY R D. Models for tetracycline in aquatic environments(Ⅰ): Interaction with bentonite clay systems[J]. Water Air and Soil Pollution, 1987,32(3/4):303-314.

[19] HAMSCHER G, SCZESNY S, HÖPER N H. Determination of persistent tetracycline residues in soil fertilised with liquid manure by high-performance liquid chromatography with electrospray ionization tandem mass spectrometry[J]. Analytical Chemistry, 2002, 74(7): 1 509-1 518.

[20] 李彦文，莫测辉，赵 娜，等. 菜地土壤中磺胺类和四环素类抗生素污染特征研究[J]. 环境科学，2009，30(6)：1 762-1 766.
LI Yanwen, MO Cehui, ZHAO Na, et al. Investigation of sulfonamides and tetracyclines antibiotics in soils from various vegetable fields [J]. Environmental Science, 2009, 30(6): 1 762-1 766.

[21] 贺德春，许振成，吴根义，等. 四环素类抗生素的环境行为研究进展[J]. 动物医学进展，2011，32(4)：98-102.
HE Dechun, XU Zhencheng, WU Genyi, et al. Progresson residues and environmental behaivor of tetracycline antibiotics[J]. Progress in Veterinary Medicine, 2011, 32(4): 98-102.

[22] 齐会勉，吕 亮，乔显亮. 抗生素在土壤中的吸附行为研究进展[J]. 土壤，2009，41(5)：703-708.
QI Huimian, LYU Liang, QIAO Xianliang. Progress in sorption of antibiotics to soils[J]. Soils, 2009, 41(5): 703-708.

[23] HALLING-SORENSEN B, NORSNIELSEN S, LANZKY P F, et al. Occurrence, fate and effects of pharmaceutical subst ances in the environment: A review[J]. Chemosphere, 1998, 36(2): 357-393.

[24] 吴银宝，汪植三，廖新俤，等. 土壤对恩诺沙星的吸附和解吸特性研究[J]. 生态环境，2005，14(5)：645-649.
WU Yinbao, WANG Zhisan, LIAO Xinti, et al. Study on the absorption and desorption of soil to enrofloxacin[J]. Ecology and Environmental Sciences, 2005, 14(5): 645-649.

[25] 张瑞杰，张 干，郑 芊，等. 喹诺酮类抗生素在莱州湾及主要入海河流中的含量和分布特征[J]. 海洋环境科学，2012，31(1)：53-61.
ZHANG Ruijie, ZHANG Gan, ZHENG Qian, et al. Concentrations and spatial distributions of selected quinolones antibiotics in Laizhou bay and main rivers flowing into the bay[J]. Marine Envioronmental Science, 2012, 31(1): 53-61.

[26] 王 冉，刘铁铮，耿志明，等. 兽药磺胺二甲嘧啶在土壤中的生态行为[J]. 土壤学报，2007，44(2)：307-311.
WANG Ran, LIU Tiezheng, GENG Zhiming, et al. Ecotoxicology and ecological behavior of sulfamethazine in soil[J]. Acta Pedologica Sinica, 2007, 44(2): 307-311.

[27] ALALMAD A, DASCHNER F D, KÜMMERER K. Biodegradability of cefotiam, ciprofloxacin, meropenem, penicillin G, and sulfamethoxazole and inhibit ion of wastewater bacteria[J]. Archives of Environmental Cont aminationand Toxicology, 1999, 37: 158-163.