

调查研究

河南省饮用水中四环素类抗生素残留调查及其健康风险研究

常青

(濮阳职业技术学院, 河南 濮阳 457000)

摘要:目的 了解河南省饮用水中四环素类抗生素(TCs)残留情况,并进行健康风险评价。方法 从河南省采集自来水水样,通过固相萃取法、高效液相色谱法检验水样中TCs残留,采用风险计算模型评估健康风险,将各污染物致癌风险和非致癌风险分别简单相加,不考虑污染物间相互作用影响,得出多种抗生素的总致癌风险和非致癌风险。结果 不同水源类型水中均未检出差向土霉素、氯四环素,而其余9种TCs则均有检出,检出率在0~100.0%范围内,浓度在ND~3.23 ng/L;不同水源类型水中均未检出差向土霉素、氯四环素;强力霉素、金霉素在水源水、出厂水、末梢水中均有检出,地美环素、甲烯土霉素仅在出厂水中的水库、地下水中未检出,在其他水源中均有检出;四环素、土霉素仅在水源水、出厂水及末梢水中的水库水中未检出,而在其他水源类型中均有检出,米诺环素仅水源水和末梢水中的江河水中检出;河南省平水期仅检出金霉素、强力霉素、甲烯土霉素,主要污染物有强力霉素;枯水期检出差向土霉素、四环素、强力霉素、土霉素、米诺环素、甲烯土霉素、氯四环素,主要污染物为差向土霉素和土霉素;河南省水源水TCs浓度ND~3.21 ng/L、出厂水ND~1.66 ng/L、末梢水ND~1.16 ng/L;枯水期及平水期水源水、出厂及末梢水样TCs饮水途径非致癌风险 3.40×10^{-7} ~ 3.28×10^{-6} ,远小于1;总致癌风险 1.30×10^{-7} ~ 1.43×10^{-6} ,远小于 10^{-4} ,在可接受范围,且饮用水健康风险具有成人高于儿童的特点。结论 河南省饮用水存在TCs污染问题,主要污染物有强力霉素、差向土霉素和土霉素,且健康风险处于可接受水平。

关键词:河南省; 饮用水; 四环素类抗生素; 残留; 健康风险; 总致癌风险; 风险计算模型; 不同水源类型

中图分类号:R155

文献标识码:A

文章编号:1004-8456(2023)06-0854-06

DOI:10.13590/j.cjfh.2023.06.009

Investigation of tetracycline antibiotic residues in drinking water and its health risk study in He'nan Province

CHANG Qing

(Puyang Vocational and Technical College, He'nan Puyang 457000, China)

Abstract: Objective To understand the residues of tetracycline antibiotics (TCs) in drinking water in He'nan Province, and conduct health risk assessment. **Methods** Tap water samples were collected from He'nan Province, and the residues of TCs in the water samples were examined by solid phase extraction and high performance liquid chromatography. A risk calculation model was used to assess the health risks, and the total carcinogenic and non-carcinogenic risks of various antibiotics were obtained by simply adding up the carcinogenic and non-carcinogenic risks of each contaminant separately, without considering the effects of contaminant interactions. **Results** Differential hygromycin and chlortetracycline were not detected in any of the different water source types, while the remaining nine TCs were detected, with detection rates ranging from 6.0% to 100.0% and concentrations ranging from ND to 3.23 ng/L. Oxytetracycline and chlortetracycline were not detected in different water sources; Doxycycline and Chlortetracycline are detected in source water, factory water and terminal water, while Demeclocycline and methylenenenebc oxytetracycline are only detected in the reservoir and groundwater in factory water, but are detected in other water sources; Tetracycline and Oxytetracycline were not detected only in the reservoir water of source water, factory water and terminal water, but were detected in other water sources. Minocycline was detected only in the river water of source water and terminal water; Chlortetracycline, doxycycline and methylenenenebc oxytetracycline were detected during the normal water period in Henan Province, and the main pollutants were doxycycline; However, in the dry season, it was found that epidoxycycline, tetracycline, doxycycline, Oxytetracycline, Minocycline, methylene Oxytetracycline, and chlortetracycline were the main pollutants of epidoxycycline, Oxytetracycline, and Oxytetracycline; The concentration of TCs in source water of He'nan

Province ranges from ND to 3.21 ng/L, factory water ND to 1.66 ng/L, and peripheral water ND to 1.16 ng/L; Non carcinogenic risk of TCs in drinking water sources, factory and peripheral water samples during dry and normal water periods 3.40×10^{-7} – 3.28×10^{-6} , far less than 1; the total carcinogenic risk was 1.30×10^{-7} – 1.43×10^{-6} , much less than 10^{-4} , within the acceptable range, and the health risk of drinking water is higher in adults than in children. **Conclusion** There is a problem of TCs pollution in drinking water in He'nan Province. The main pollutants are doxycycline, epidoxycycline and Oxytetracycline, and the health risk is at an acceptable level.

Key words: He'nan Province; drinking water; tetracycline antibiotics; residues; health risk; total carcinogenic risk; risk calculation model; different water source types

抗生素一直被用于医疗卫生事业,至今发现的抗生素已达上万种,按其化学结构可分为磺胺类、四环素类、头孢类、 β -内酰胺类、喹诺酮类及大环内酯类等。目前,我国是抗生素生产、使用的大国,近些年在动物源性食物和主要流域中均检出了抗生素,尤以四环素类抗生素(Tetracycline antibiotics, TCs)检出率较高,主要包括四环素、土霉素、金霉素、强力霉素、氯四环素、米诺环素等^[1]。目前,我国 TCs 使用占全部抗生素的 15.8% 左右,其降解后吸附力强,能长期稳定地残留于水环境中,并通过饮用水进入人体,对人体健康产生一定影响^[2-3]。研究证实,TCs 对植物、微生物、动物等均具有生态毒性^[4]。同时,研究报道,TCs 会对人体肝脏、胃肠造成损害,并可于骨骼中的钙结合,对骨骼、牙齿产生发育抑制作用^[5]。此外,大量摄入 TCs,会引起菌群失衡,造成二次感染,主要表现为鹅口疮、尿路感染,易发于婴幼儿、老年人群及病情严重或术后抵抗力低下患者。当前,我国关于水体环境内抗生素的残留研究主要集中于河水、海水及城市污水,较少涉及饮用水。另有研究发现,饮用水中长期抗生素的低剂量暴露会加剧致病微生物耐药性^[6]。由此可见,加强饮用水内抗生素残留相关研究,调查抗生素残留情况已迫在眉睫。本研究以河南省为例,调查该地区饮用水中 TCs 残留情况,统计 11 种常见 TCs,进一步对水环境健康风险进行评价,以期对河南省饮用水污染防治和风险管理提供参考。

1 材料与方法

1.1 样品采集

采样点分布:选择河南省 17 个地市自来水厂进行采样调查。

水样采集:①水源水:水源水取水口(水源水指水源地的原水,采样点通常选择在汲水处);②出厂水:还未进入输送管(出厂水指集中式供水单位处理工艺过程完成的水,采样点应设在出厂进入输送管道之前处);③末梢水:末梢水指出厂水经输水管网输送至终端(用户水龙头)处的水,采样点通常为

水龙头处的水,采用随机入户抽样方式。

采样时间:①选择天气晴好连续两天以上的时间;②分别于枯水期(2020 年 11 月)、平水期(2021 年 4 月)采集河南省水源水、末梢水及出厂水。水期时间根据河南省多年降水量确定。

采样量:17 个地市主要水厂水源水、出厂水各 1 份,共 34 份;平水期:河南省 8 家供水范围广、日供水量大,具有代表性的主要水厂的水源水 8 份,出厂水 8 份,末梢水 16 份;枯水期:河南省具有代表性的 8 家主要水厂的水源水 8 份,出厂水 8 份,末梢水 16 份。共采集水源水 33 份,出厂水 33 份,末梢水 32 份。

1.2 水样处理和保存

水样采集及保存根据《生活饮用水标准检验方法》实施,加入抗坏血酸,0~4 °C 冷藏、避光保存,在 4 h 内固相萃取。

1.3 质量控制

采样前:自来水、甲醇、超纯水冲洗采样容器,晾干;

采样时:水龙头取样前,打开水龙头阀门放水约 3~5 min 后对采样容器进行洗涤,满瓶取样,添加 100 mg 2.0 g/L 抗坏血酸;

采样后:编号,填写“记录表”,包括时间、地点、样本量、消毒方法等;4 °C 低温、避光保存运输。

1.4 仪器条件

色谱条件:ACQUITY UPLC HSS T3 色谱柱(USA, 1.8 μ m, 10 cm \times 2.1 mm)。进样体积:10 μ L;柱温:40 °C;流动相 A:0.1% 甲酸水溶液(HPLC 级),流动相 B:乙腈(Tedia, HPLC/SPE CTRO, USA),标准品(纯度>98%)均由安普实验科提供。

MS/MS 条件:电喷雾离子源(ESI⁺),离子源温度(TEM)为 550 °C,毛细管电压为 5.5 kV,气帘气(CUR)为 40 psi,雾化气(GS1)为 55 psi,辅助气(GS2)为 60 psi,定量分析:同位素内标法结合多反应监测模式(Multi reaction monitoring, MRM)。

1.5 溶液配制

取 0.01 g 标准品置入 100 mL 容量瓶内,甲醇稀释至刻度,配制成 100 mg/L 标准储备液,存放于

4℃冰箱内(有效期为3个月)。称取适量磷酸氢二钠(Na_2HPO_4)、依地酸二钠(EDTA-2Na)及柠檬酸,分别配制成0.1、0.2、0.4 mol/L溶液。按照3:2比例混合成为 Na_2HPO_4 、柠檬酸,配成柠檬酸盐-磷酸盐缓冲溶液(McIlvaine)。将0.1 mol/L McIlvaine缓冲溶液与EDTA溶液按1:1比例进行混合,配成pH值约为4的EDTA-McIlvaine缓冲溶液。

1.6 TCs残留定性、定量方法

采用MRM多反应监测模式,运用离子对质荷比,同位素内标法定量,保留时间定性,(米诺环素以 D_6 -米诺环素为内标,地美环素、差向土霉素、强力霉素、甲烯土霉素、差向金霉素以 D_3 -强力霉素为内标,差向四环素、四环素、金霉素、氯四环素及土霉素以 D_6 -四环素为内标),目标化合物的质谱参数设置见周偏偏^[7]关于四环素类抗生素污染调查研究。采用固相萃取-同位素内标-高效液相色谱-质谱/质谱技术测定水样中TCs浓度,污染物实际含量由检测浓度除以浓缩倍数(1000)得到。

1.8 健康风险评价

考虑到末梢水才是消费者日常实际饮用水,本研究仅采用末梢水对平水期、枯水期水样中TCs的健康风险进行评价。

经饮水途径污染物日暴露剂量模型^[8]:

$$\text{CDI} = C_i \times \text{IR} \times \frac{\text{EF} \times \text{ED}}{\text{BW} \times \text{AT}}$$

式中:CDI即经饮水途径污染物日暴露剂量; C_i 即污染物浓度;IR即水摄入量,参考我国人口水摄入量推荐值,呈对数正态分布,均值为1.38,标准差为

0.71;EF即暴露频率;BW即平均体质量;ED即暴露期,参数多选择US EPA推荐值,儿童按6a,成人按30a计算;AT即平均暴露时间, $\text{AT} = \text{EF} \times \text{ED}$ 。

致癌风险采用风险值(R), $R < 0.01$,即低水平暴露时:

$$R = \text{CDI} \times \beta_h$$

$$\beta_h = \beta \times K_{ah}$$

致癌效力模型:

$$\beta = D / \text{LD}_{50}^c$$

非致癌风险指数(Hazard index, HI):

$$\text{HI} = \frac{\text{CDI}}{\text{Rfd}}$$

多种抗生素的总致癌风险和非致癌风险,将各污染物致癌风险和非致癌风险分别简单相加,不考虑污染物间相互作用影响。美国环保局(United States Environmental Protection Agency, US EPA)推荐,可接受致癌风险最大限值为 10^{-4} , $\geq 10^{-4}$ 时,不能接受风险;反之,在接受范围内;1为非致癌风险限值, >1 时,污染物有健康危害。

1.9 数据处理

检测结果为未检出(Notdetected, ND),取值为0,数据经EXCEL 2010, SPSS 20.0软件整理分析。

2 结果

2.1 河南省水源水、出厂水、末梢水中TCs检出率

河南省17个地域饮用水中除差向土霉素、氯四环素未被检出外,其他9种TCs均已被检出,检出率为0~100.0%,浓度在ND~3.23 ng/L,见表1。

表1 河南省水源水、出厂水中TCs检出率/%

Table 1 Detection rate of TCs in water source and factory water in He'nan Province/%

组别	样品数	差向四环素	差向土霉素	差向金霉素	四环素	土霉素	氯四环素	强力霉素	金霉素	米诺环素	地美环素	甲烯土霉素
水源水	33	27.27	0	21.21	21.21	15.15	0	100.00	93.94	6.06	27.27	27.27
出厂水	33	27.27	0	0	30.30	12.12	0	100.00	51.20	0	12.12	6.06
末梢水	33	27.27	0	21.21	15.15	21.21	0	100.00	96.97	3.03	15.15	12.12

2.2 河南省不同水源类型水中TCs检出率

不同水源类型水中均未检出差向土霉素、氯四环素;强力霉素、金霉素在水源水、出厂水、末梢水中均有检出,地美环素、甲烯土霉素仅在出厂水中的水库、地下水未检出,在其他水源中均有检出;四环素、土霉素仅在水源水、出厂水及末梢水中的水库水中未检出,而在其他水源类型中均有检出,米诺环素仅水源水和末梢水中的江河水样中检出,见表2。

2.3 河南省水源水、出厂水、末梢水TCs残留含量

河南省平水期仅检出金霉素、强力霉素、甲烯土霉素,主要污染物有强力霉素;枯水期检出差向

土霉素、四环素、强力霉素、土霉素、米诺环素、甲烯土霉素、氯四环素,主要污染物为差向土霉素和土霉素;河南省水源水TCs浓度ND~3.21 ng/L、出厂水ND~1.66 ng/L、末梢水ND~1.16 ng/L;见表3~4。

2.4 河南省平水期、枯水期末梢水水样中TCs的健康风险评价

枯水期、平水期末梢水水样中TCs经饮水途径总非致癌风险 $3.40 \times 10^{-7} \sim 3.28 \times 10^{-6}$,远小于1;总致癌风险 $1.30 \times 10^{-7} \sim 1.43 \times 10^{-6}$,远小于 10^{-4} ,在可接受范围,且饮用水健康风险具有成人高于儿童的特点,见表5~6。

表2 河南省不同水源类型水中TCs检出率/%

Table 2 Detection rate of TCs in water from different water source types in He'nan Province/%

水样	水源	样品数	差向四环素	差向土霉素	差向金霉素	四环素	土霉素	氯四环素	强力霉素	金霉素	米诺环素	地美环素	甲烯土霉素
水源水	江河	20	30.00	0	20.00	20.00	10.00	0	100.00	100.00	10.00	30.00	30.00
	水库	5	0	0	0	0	0	0	100.00	100.00	0	0.00	0.00
	地下水	8	37.50	0	37.50	37.50	37.50	0	100.00	75.000	0	37.500	37.50
出厂水	江河	20	30.00	0	0	20.00	20.0	0	100.00	30.00	0	20.00	10.00
	水库	5	0	0	0	0.00	0.00	0	100.00	100.00	0	0	0
	地下水	8	37.50	0	0	75.00	0.00	0	100.00	75.000	0	0	0
末梢水	江河	20	35.00	0	20.00	5.00	25.00	0	100.00	100.00	5.00	20.00	15.00
	水库	5	0	0	0	0.00	0.00	0	100.00	80.00	0	0	20.00
	地下水	8	25.00	0	37.50	50.00	25.00	0	100.00	100.00	0	12.50	0

表3 河南省平水期饮用水中TCs残留含量/(ng/L)

Table 3 Residual levels of TCs in drinking water during the levelling period in He'nan Province/(ng/L)

TCs	水源水	出厂水	末梢水
差向四环素	ND	ND	ND
差向土霉素	ND	ND	ND
差向金霉素	ND	ND	ND
四环素	ND	ND	ND
土霉素	ND	ND	ND
氯四环素	ND	ND	ND
强力霉素	ND~1.20	ND~0.85	ND~0.95
金霉素	ND~0.53	ND~0.27	ND
米诺环素	ND	ND	ND
地美环素	ND	ND	ND
甲烯土霉素	ND	ND	ND~0.56
总浓度	0.52~1.23	ND~0.85	0.24~0.91

注:ND:未检出

表4 河南省枯水期饮用水中TCs残留含量/(ng/L)

Table 4 Residual content of TCs in drinking water in dry season in He'nan Province/(ng/L)

TCs	水源水	出厂水	末梢水
差向四环素	ND	ND	ND
差向土霉素	0.82~1.38	0.40~1.68	ND~1.18
差向金霉素	ND	ND	ND
四环素	ND~0.07	ND~0.06	ND
土霉素	0.06~0.32	0.05~0.45	ND~0.46
氯四环素	0.15~0.28	0.18~0.35	ND~0.33
强力霉素	ND~1.35	ND	ND~0.28
金霉素	ND	ND	ND
米诺环素	ND~1.87	ND	ND~0.76
地美环素	ND	ND	ND
甲烯土霉素	ND~3.21	ND	ND~0.26
总浓度	ND~6.63	ND~2.41	ND~1.83

注:ND:未检出

表5 河南省平水期、枯水期TCs致癌风险

Table 5 Health risk assessment of TCs during the flat water period in He'nan Province

TCs	平水期		枯水期	
	成人	儿童	成人	儿童
四环素	0.00E+00	0.00E+00	2.04×10 ⁻⁹	1.98×10 ⁻⁸
土霉素	0.00E+00	0.00E+00	4.41E×10 ⁻⁸	4.20×10 ⁻⁸
氯四环素	0.00E+00	0.00E+00	2.20E×10 ⁻⁷	2.11×10 ⁻⁷
强力霉素	1.41×10 ⁻⁷	1.33×10 ⁻⁷	0.00E+00	0.00E+00
金霉素	7.55×10 ⁻⁸	7.18×10 ⁻⁸	0.00E+00	0.00E+00
米诺环素	0.00E+00	0.00E+00	6.04×10 ⁻⁷	5.75×10 ⁻⁷
地美环素	0.00E+00	0.00E+00	3.88×10 ⁻⁷	3.85×10 ⁻⁷
甲烯土霉素	0.00E+00	0.00E+00	1.56×10 ⁻⁷	1.48×10 ⁻⁷
合计	2.15×10 ⁻⁷	2.05×10 ⁻⁷	1.43×10 ⁻⁶	1.38×10 ⁻⁶

表6 河南省平水期、枯水期TCs非致癌风险

Table 6 Health risk assessment of TCs during the dry season in He'nan Province

TCs	平水期		枯水期	
	成人	儿童	成人	儿童
四环素	0.00E+00	0.00E+00	1.07×10 ⁻⁷	1.01×10 ⁻⁷
土霉素	0.00E+00	0.00E+00	1.69×10 ⁻⁷	1.62×10 ⁻⁷
氯四环素	0.00E+00	0.00E+00	3.18×10 ⁻⁸	3.02×10 ⁻⁸
强力霉素	7.88×10 ⁻⁷	7.51E×10 ⁻⁷	0.00E+00	0.00E+00
金霉素	2.69×10 ⁻⁷	2.54E×10 ⁻⁷	0.00E+00	0.00E+00
米诺环素	0.00E+00	0.00E+00	1.35×10 ⁻⁶	1.28×10 ⁻⁶
地美环素	0.00E+00	0.00E+00	7.26E×10 ⁻⁷	6.92×10 ⁻⁷
甲烯土霉素	0.00E+00	0.00E+00	0.93×10 ⁻⁷	8.49×10 ⁻⁷
合计	1.04×10 ⁻⁶	1.01E×10 ⁻⁶	3.28×10 ⁻⁶	3.12×10 ⁻⁶

3 讨论

TCs 是一类广谱抑菌剂,能抑制细菌蛋白质合成,被广泛应用于细菌感染的治疗。研究发现,无论是人用 TCs 还是兽用 TCs,进入体内后约有 69%~86% 被排出体外,随粪便进入水和土壤等环境介质^[9]。目前,去除饮用水、污水 TCs 的能力不足,致使饮用水被抗生素污染^[10]。TCs 污染物可通过饮用水富集进入人体,影响人体健康^[11]。

本研究以河南省为例,对饮用水中 TCs 污染展开调查,结果显示,河南省 17 个地域除氯四环素、差向土霉素未被检出外,其他 9 类 TCs 均在饮用水中被检出,检出率在 6.0%~100.0% 范围内,说明河南省饮用水中存在 TCs 残存和污染^[12]。本研究进一步对不同水源地进行 TCs 检出率分析,结果显示,水库、江河、地下水等不同水源类型水中均未检出差向土霉素、氯四环素,可能原因是,氯四环素与四环素相似,对革兰氏阴性球菌,尤其是肺炎球菌、葡萄球菌有效,因其副作用大,临床应用相对较少,而差向土霉素在碱性溶液中易破坏失效,易溶于水发生水解。水库水源水和出厂水中仅检出金霉素、强力霉素,这可能是由于二者为畜禽养殖业常用抗生素,使用量大,使用范围广;而江河、地下水中检出 TCs 种类高达 6 种以上。由此可见,相比之下,水库 TCs 检出率更低,水质更好,考虑原因在于水库通常地处山地、人烟稀少之处,森林植被覆盖率高,环境好,人为影响环境较弱,难以造成 TCs 污

染^[13];此外,水库水通常流动性较差,长期接触底泥,TCs产生吸附作用,而深层地下水低温、避光,不利于TCs降解,TCs检出率相对较高^[14]。

同时,河南省饮用水中检测TCs浓度在ND~3.23 ng/L范围内,与丁苗苗等^[15]、赵婉婷等^[16]抗生素研究结果相比处于低水平,考虑主要原因在于,一方面水环境中TCs性质不稳定,易被光照、细菌等微生物降解,且沉积物可吸附TCs,造成水环境中TCs浓度较低^[17];另一方面,饮用水水源地通常水质较好,并在有关部门的倡导下加强保护,同时由于丰水期雨水的稀释作用,光照可增强光解和微生物代谢,该地区出现TCs虽有感染但总体水中浓度较低现象^[18]。另外,本研究发现河南省平水期仅检出金霉素、强力霉素、甲烯土霉素;枯水期除差向四环素、地美环素、差向金霉素、金霉素外,其他7种TCs均被检出,提示1~4月、12月枯水期降雨量少,无法发挥雨水的稀释作用,导致枯水期饮用水TCs检出率高。同时,水源水TCs浓度ND~3.21 ng/L、出厂水ND~1.66 ng/L、末梢水ND~1.16 ng/L,可见随着水加工和水处理的不断深入,TCs浓度不断下降,TCs污染对人体危害可能会逐渐减轻。

近年来,随水污染日益严重,健康风险评估备受关注,而饮用水与人体健康密切相关^[19],因此对水环境的健康风险评估具有重要价值。本研究经健康风险评估得知,枯水期、平水期水源水、出厂水及末梢水水样中TCs经饮水途径总非致癌风险远小于1,总致癌风险远小于最大可接受的风险水平,表明河南省饮用水中TCs残留处于可接受范围。此外,本研究显示河南省饮用水健康风险具有成人高于儿童的特点,这与张君等^[20]评价不同。可能原因在于本研究采用的是成人水摄入量,比多数文献选用的US EPA推荐IR值高出50.0%;同时对TCs经饮水途径引起的健康风险进行初步评估时,仅考虑了经饮水途径对健康的危害,而TCs广泛存在于土壤、畜禽蛋肉等食品内,一定程度上低估了其对健康风险的影响。另外,在抗生素污染研究中,本研究结合河南省人群暴露风险参数中成人参数对TCs健康风险进行评估,评价更接近实际情况,具有实用意义。

综上所述,河南省饮用水存在TCs污染问题,主要污染物有强力霉素、差向土霉素和土霉素,且健康风险处于可接受水平。此外,除本研究选取的11种TCs外,今后工作中可针对各地抗生素用药特点,扩大药物种类监察,如磺胺类等,以更全面地反映抗生素残存情况。

参考文献

- [1] MONAHAN C, NAG R, MORRIS D, et al. Antibiotic residues in the aquatic environment - current perspective and risk considerations. *Journal of Environmental Science and Health, Part A*, 2021, 56(7): 733-751.
- [2] 孟勇,王静,朱晓华,等.基于三重四极杆复合线性离子阱质谱法筛查和确证水产品中多种抗生素残留[J].*食品科学*, 2020, 41(4): 313-318.
MENG Y, WANG J, ZHU X H, et al. Screening and confirmation of multiple antibiotic residues in aquatic products by triple quadrupole-linear ion trap mass spectrometry[J]. *Food Science*, 2020, 41(4): 313-318.
- [3] OLIVER J P, GOOCH C A, LANSING S, et al. Invited review: Fate of antibiotic residues, antibiotic-resistant bacteria, and antibiotic resistance genes in US dairy manure management systems[J]. *Journal of Dairy Science*, 2020, 103(2): 1051-1071.
- [4] 卫瑾瑾,鹿尘,张正尧,等.2016年—2020年河南省鸡肉中四环素类抗生素残留的监测和膳食暴露评估[J].*中国卫生检验杂志*, 2022, 32(3): 371-374, 378.
WEI J J, LU C, ZHANG Z Y, et al. Monitoring and dietary exposure assessment of tetracycline antibiotics in chicken in Henan Province during 2016—2020 [J]. *Chinese Journal of Health Laboratory Technology*, 2022, 32(3): 371-374, 378.
- [5] SAVIN M, ALEXANDER J, BIERBAUM G, et al. Antibiotic-resistant bacteria, antibiotic resistance genes, and antibiotic residues in wastewater from a poultry slaughterhouse after conventional and advanced treatments [J]. *Scientific Reports*, 2021, 11: 16622.
- [6] 李曼玉,尹婕,马良坤.长期低剂量抗生素的暴露对孕妇及婴幼儿的影响[J].*基础医学与临床*, 2020, 40(2): 253-256.
LI M Y, YIN J, MA L K. Effects of long-term low-dose antibiotics exposure on the pregnant women and infants [J]. *Basic & Clinical Medicine*, 2020, 40(2): 253-256.
- [7] 周偏偏.安徽省饮用水和动物源性食品中四环素类抗生素污染调查及健康风险评估[D].合肥:安徽医科大学,2019.
ZHOU P P. Investigation of pollution and health risk assessment on tetracyclines in drinking water and animal derived food of Anhui[D]. Hefei: Anhui Medical University, 2019.
- [8] 黄建洪,张琴,王晋昆,等.水环境污染健康风险评估中饮水量暴露参数的研究进展[J].*卫生研究*, 2021, 50(1): 146-153.
HUANG J H, ZHANG Q, WANG J K, et al. Research progress on exposure parameters of drinking water volume in health risk assessment of water environment pollution [J]. *Journal of Hygiene Research*, 2021, 50(1): 146-153.
- [9] BEN Y J, FU C X, HU M, et al. Human health risk assessment of antibiotic resistance associated with antibiotic residues in the environment: A review. *Environmental Research*, 2019, 169: 483-493.
- [10] CHEN D, LIU S, ZHANG M Y, et al. Comparison of the occurrence of antibiotic residues in two rural ponds: Implication for ecopharmacovigilance [J]. *Environmental Monitoring and*

- Assessment, 2018, 190(9): 539.
- [11] 孙厚云, 卫晓锋, 贾凤超, 等. 基于多环境介质氮素和同位素的滦平盆地地下水硝酸盐来源示踪[J]. 环境科学, 2020, 41(11): 4936-4947.
- SUN H Y, WEI X F, JIA F C, et al. Source of groundwater nitrate in Luanping Basin based on multi-environment media nitrogen cycle and isotopes [J]. Environmental Science, 2020, 41(11): 4936-4947.
- [12] 魏清伟, 邴永鑫, 张政科, 等. 突发水环境事件中基于饮用水水源地保护目标的特征污染物容许浓度研究[J]. 环境工程学报, 2021, 15(9): 2874-2879.
- GUO Q W, BING Y X, ZHANG Z K, et al. Study on the allowable concentration of characteristic pollutant based on the protection of drinking water source during the period of water environmental emergencies [J]. Chinese Journal of Environmental Engineering, 2021, 15(9): 2874-2879.
- [13] BOOTH A, AGA D S, WESTER A L. Retrospective analysis of the global antibiotic residues that exceed the predicted no effect concentration for antimicrobial resistance in various environmental matrices [J]. Environment International, 2020, 141: 105796.
- [14] 张国芳. 不同水处理工艺对典型喹诺酮类抗生素的去除规律及潜在风险评估[J]. 净水技术, 2020, 39(6): 106-111, 124.
- ZHANG G F. Removal rules and potential risk assessment of typical quinolone antibiotics by different water treatment processes [J]. Water Purification Technology, 2020, 39(6): 106-111, 124.
- [15] 丁苗苗, 金晨, 胡春媛, 等. 芜湖地区饮用水中四环素类抗生素含量检测分析[J]. 皖南医学院学报, 2018, 37(1): 89-91.
- DING M M, JIN C, HU C Y, et al. Detection and analysis of the tetracyclines concentration in drinking water in Wuhu area [J]. Acta Academiae Medicinae Wannan, 2018, 37(1): 89-91.
- [16] 赵婉婷, 黄智峰, 郭雪萍, 等. 太湖周边饮用水处理厂中抗生素抗性基因污染分布特征[J]. 环境化学, 2020, 39(12): 3271-3278.
- ZHAO W T, HUANG Z F, GUO X P, et al. Pollution and distribution characteristics of antibiotic resistance genes in drinking water treatment plants around Taihu Lake [J]. Environmental Chemistry, 2020, 39(12): 3271-3278.
- [17] LUNDBORG C S, TAMHANKAR A J. Antibiotic residues in the environment of South East Asia [J]. BMJ (Clinical Research Ed), 2017, 358: j2440.
- [18] WANG K, ZHUANG T, SU Z X, et al. Antibiotic residues in wastewaters from sewage treatment plants and pharmaceutical industries: Occurrence, removal and environmental impacts [J]. Science of the Total Environment, 2021, 788: 147811.
- [19] 陈春静, 张景山, 李峻, 等. 2019年南京市饮用水重金属健康风险评估[J]. 现代预防医学, 2020, 47(5): 813-816.
- CHEN C J, ZHANG J S, LI J, et al. Health risk assessment of heavy metals in drinking water, Nanjing, 2019 [J]. Modern Preventive Medicine, 2020, 47(5): 813-816.
- [20] 张君, 程艳茹, 封丽, 等. 三峡库区饮用水水源抗生素健康风险评估[J]. 环境科学与技术, 2018, 41(8): 192-198.
- ZHANG J, CHENG Y R, FENG L, et al. Health risk assessment of antibiotics in the centralized drinking water source in the Three Gorges reservoir area [J]. Environmental Science & Technology, 2018, 41(8): 192-198.