

我国猪粪中四环素类抗生素残留及好氧堆肥消减研究进展

白金顺¹, 王伟红^{2#}, 李艳丽¹, 李兆君¹, 赵林萍^{1*}

(1. 中国农业科学院农业资源与农业区划研究所, 农业农村部植物营养与肥料重点实验室, 北京 100081;

2. 中国农业科学中国农业科学技术出版社有限公司, 北京 100081)

摘要: 我国是世界生猪养殖第一大国, 四环素类抗生素在生猪养殖中普遍使用, 其中大量以原体或代谢物形式排出体外, 对生态环境和人体健康产生极大风险。通过梳理国内相关研究结果, 综述了猪粪中四环素类抗生素残留水平及其对土壤和作物的污染风险, 分析了好氧堆肥技术对猪粪中四环素类抗生素的消减效率及其影响因素, 提出了未来需要重点研究的方向。结果表明, 我国不同地区对猪粪中四环素类抗生素残留均有报道, 残留量在 $0 \sim 493.3 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ 之间, 检出率为 41% ~ 100%, 对农田土壤污染和作物生长形成潜在风险; 好氧堆肥技术对猪粪四环素类抗生素残留有明显消减作用, 消减效率为 27.3% ~ 96.8%, 消减效率受堆体理化性状和微生物特性因素综合影响; 未来应加强消减技术标准、环境安全阈值、生物转化机制等方面的研究, 为猪粪无害化处理和资源化利用提供理论依据和技术参考。

关键词: 猪粪; 好氧堆肥; 四环素; 抗生素消减

畜牧业是我国农业农村经济发展的重要支柱产业。2017 年, 畜牧业产值占农业总产值近 30% 的比例^[1]。然而, 伴随着我国畜牧业的快速发展, 产生的大量养殖粪污带来了巨大的环境压力^[2]。当前, 我国每年产生畜禽粪污约 38 亿 t, 是世界最大的养殖粪污产生国。其中, 我国生猪养殖规模世界第一, 生猪粪污占全国畜禽粪污产生量的 47%^[3]。因而, 加快猪粪无害化处理和资源化利用对我国畜牧业可持续发展具有重要意义。

兽药产业是支撑我国畜牧业快速发展的基础性产业。兽用抗生素因其具有促进动物生长和预防动物疾病等作用在畜禽养殖中被广泛使用。研究表明, 我国每年约 8 万 t 抗生素被应用于畜牧养殖中, 占全国总抗生素用量的 52%^[4]。然而, 40% ~ 90% 的兽用抗生素会以原体或代谢物形式随粪尿排出体外^[5]。进入环境的抗生素可对环境非靶标生物产生生态毒性作用, 同时通过食物链富集和诱导抗性基因产生传播, 也会对人体健康带来威胁^[6]。目前, 兽用抗生素环境残留与污染已成为畜禽养殖中一个倍受关注的问题。

四环素类抗生素是畜禽养殖业中使用量最大的抗菌药物, 约占兽用抗生素总用量的 57%^[7], 因其具有高亲水性、低挥发性和高吸附系数等特性^[8], 在粪便中具有强持久性^[9], 一些报道表明四环素类抗生素也是畜禽粪便中检出频率和浓度最高的抗生素类型^[4, 10]。近年来有关畜禽粪便中四环素类抗生素残留及消减效果等研究不断增加^[11-13]。本文以我国畜禽粪污中产生量最大的猪粪为研究对象, 聚焦使用量最大且具有强持久性的四环素类抗生素, 根据已发表相关文献, 对猪粪中四环素类抗生素的残留水平、好氧堆肥消减效果进行综述, 同时对目前存在的问题和未来的研究重点进行展望, 为猪粪中四环素类抗生素风险评估和有效控制提供科学依据和技术参考。

1 猪粪中四环素类抗生素残留水平及其对农田土壤及作物的潜在影响

1.1 残留水平

四环素类抗生素是生猪养殖中常用的抗生素种类, 与其自身化学特性有关, 生猪体内对四环素类抗生素吸收较少, 用药量的 70% ~ 95% 被排出体外^[6], 与其他种类抗生素相比, 四环素类抗生素是猪粪中残留量最大的兽药类型^[10], 对环境造成潜在污染。国内学者对我国主要生猪养殖地区猪粪中四环素类抗生素残留量开展了诸多调查研究^[14]。其中, 土霉素、四环素、金霉素是相关报道广泛关注的 3 种四环素类抗生素。表 1 列出了不同地区猪粪中四环素类抗生素残留量的情况。

收稿日期: 2021-04-20; 录用日期: 2021-04-30

基金项目: 国家重点研发计划课题 (2018YFF0213503); 中国农科院科技创新工程 (G202112-6)。

作者简介: 白金顺 (1979-), 副研究员, 博士, 从事农田土壤-作物体系综合管理研究, E-mail: baijinsun@caas.cn。王伟红 (1979-), 助理研究员, 博士, 从事植物营养研究, E-mail: wangweihong@caas.cn。白金顺与王伟红为共同第一作者。

通讯作者: 赵林萍, E-mail: zhaoliping@caas.cn。

表 1 我国不同地区猪粪中四环素类抗生素残留浓度及检出率

区域	省份	年份	样品数	种类	浓度范围 ($\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$)	平均浓度 ($\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$)	检出率 (%)	文献
东北	黑龙江、吉林、辽宁	2013	18	土霉素	0.7 ~ 56.8	11.8	50.0	[15]
				金霉素	0.7 ~ 22.3	3.2	61.1	
				四环素	0.3 ~ 30.6	5.3	50.0	
	吉林	2021		土霉素	0 ~ 12.5	7.4	88.9	[16]
				金霉素	0 ~ 8.2	5.5	88.9	
				四环素	0 ~ 8.2	2.9	88.9	
西北	陕西	2005	3	土霉素	3.3 ~ 8.9	6.7	100.0	[17]
				四环素	0 ~ 1.2	0.4		
	宁夏		1	土霉素		4.5		
华北	北京	2005	15	土霉素	4.3 ~ 134.8	20.9	100.0	[17]
				四环素	0 ~ 78.6	12.2		
				金霉素	0 ~ 121.8	15.3		
	北京	2013	6	土霉素	5.6 ~ 25.2	15.5	100.0	[18]
				四环素	4.6 ~ 24.1	13.5	100.0	
				金霉素	1.4 ~ 17.7	9.2	100.0	
西南	北京		35	土霉素	0 ~ 1.7	0.4	45.5	[19]
				四环素	0 ~ 27.4	6.6	90.9	
	重庆	2014	14	土霉素	0 ~ 53.7	13.0	85.7	[20]
				四环素	1.0 ~ 427.4	91.8	100.0	
				金霉素	0 ~ 493.3	62.5	85.7	
华东	重庆	2019	31	土霉素	0 ~ 11.6	3.4	83.9	
				四环素	0 ~ 53.1	4.8	83.9	
				金霉素	0 ~ 23.1	5.9	80.6	
	浙江	2012	65	四环素	0 ~ 16.8	3.3		[21]
				土霉素	0 ~ 29.6	9.7		
				金霉素	0 ~ 11.6	4.0		
华南	浙江	2012	28	四环素	0 ~ 3.4	0.9		
				土霉素	0 ~ 4.3	0.8		
				金霉素	0 ~ 4.3	0.7		
	山东	2018	24	四环素	2.0 ~ 7.0	3.1	100.0	[22]
				土霉素	0.0 ~ 1.7	0.6	100.0	
华南	海南	2017	77	土霉素	0 ~ 4.8	0.2	64.9	[23]
				金霉素	0 ~ 3.7	0.2	53.2	
	广州	2011	23	四环素	28.3 ~ 326.2	115.2	100.0	[24]
				土霉素	0 ~ 64.0	9.1	94.1	
华中、华南、华东	8 个省份 (山东、江苏、上海、浙江、江西、湖北、湖南、广西)	2010	61	土霉素	0.2 ~ 59.1	2.7	41.0	[25]
				金霉素	0.2 ~ 21.1	1.2	42.6	

总体上,我国猪粪中四环素类抗生素残留在 $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ 量级,大多数浓度范围在 $0 \sim 100 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ 之间,部分报道含量可达 $100 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ 以上。受养殖规模、抗生素使用数量、抗生素种类使用偏好、采样时间及地点等因素影响,猪粪中四环素类抗生素残留浓度在不同生产区域间、不同抗生素种类间、不同研究报道间均存在较大差异。Wang 等^[26]报道我国不同地区猪粪中的四环素最高含量从 $59.06 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ 到 $172.90 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ 不等。张树清等^[17]对我国多地的畜禽粪便中残留的四环素类抗生素做了对比分析,浙江、北京等发达地区的畜禽粪便中抗生素残留量明显高于其他地区,可能与发达地区抗生素使用量较高有关。不同生猪养殖规模和生育期对抗生素残留有一定影响,张慧敏等^[27]和单英杰等^[21]报道发现,浙江地区规模化养殖场较家庭散户四环素、金霉素和土霉素用量均显著较高。沈颖^[28]通过对北京、上海、重庆的养猪场调查,发现幼龄期生猪粪便四环素类抗生素含量显著高于成年期,这与幼龄期喂养抗生素用量较多有关。另外,不同种类四环素类抗生素间也有明显差异,但不同报道结果不一。张树清等^[17]对北京养猪场粪污抗生素残留情况进行调查,结果为土霉素 > 金霉素 > 四环素;而夏天骄等^[18]的研究结果由高到低的次序是土霉素 > 四环素 > 金霉素,这可能与不同养猪场养殖过程中的抗生素使用偏好有关。然而,尽管抗生素含量总体偏高,但最新研究表明,一些地区近年来呈现整体下降的良好态势,彭秋等^[20]对重庆市大型养殖场粪便中四环素类抗生素残留进行了分析,发现 2019 年畜禽粪便中四环素类抗生素含量较 2014 年均大幅度下降,且检出率也有所降低。

2019 年,农业农村部发布中华人民共和国农业农村部第 194 号公告,指出自 2020 年元旦起,我国饲料中全面禁止添加抗生素,这一政策对减少滥用抗生素造成的危害和维护动物源食品安全和公共卫生安全具有深远意义。从欧盟对抗生素的禁用历史来看,在禁用的最初几年使用量仍然会有所攀升,但长期来看,总体上会呈现稳定或下降的趋势。所以,未来的研究应持续关注和跟踪新政策形势下不同区域的猪粪中四环素类抗生素的残留情况和污染风险。

1.2 对农田土壤及作物的潜在影响

四环素类抗生素可通过畜禽粪便-土壤-作物

体系逐级传递^[29],在不同介质中具有检出频率较高、污染迁移高、扩散范围广等特点^[30-31],对农田土壤和作物带来显著影响^[32-33]。

土壤是抗生素使用的主要受体。近年来,四环素类抗生素在土壤环境中频繁检出,检出水平在 $\mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$ 到 $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ 量级不等^[34]。曾巧云等^[35]对我国农业土壤中四环素类抗生素污染现状进行了综述,发现土壤中土霉素、金霉素和四环素的质量分数分别为 $0 \sim 8400$ 、 $0 \sim 5520$ 和 $0 \sim 2450 \mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$,且部分已超过国际规定的毒害限量标准。蔬菜地土壤因畜禽粪肥还田量大、四环素含量高而报道较多^[36-39],例如:朱秀辉等^[40]检测广州市周围菜地土壤中抗生素的残留浓度结果表明,所检测的样品中土霉素的最高浓度可达 $903.1 \mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$,平均浓度为 $38.4 \mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$ 。畜禽粪便直接或间接还田是农田土壤四环素类抗生素残留的主要来源^[41]。张慧敏等^[27]发现畜禽粪便还田土壤中土霉素、四环素和金霉素的检出率分别为 93%、88% 和 93%,残留量分别是未还田土壤的 38、13 和 12 倍。朱秀辉等^[40]采用层次分析法对菜地土壤中四环素类抗生素的污染源解析结果表明,粪肥是土壤中四环素类抗生素的主要来源,其所占比例大于 50%。

土壤中四环素类抗生素积累会改变土壤微生物群落特性,并潜在影响作物生长。于晓雯等^[42]发现四环素类抗生素会降低土壤细菌群落的多样性,改变细菌群落的丰富度,随着时间的推移影响程度逐渐减小,但增加了土壤真菌群落的多样性。有关抗生素污染对作物毒性效应模拟试验表明,四环素类抗生素污染可对作物生长产生明显的抑制作用,鲍艳宇等^[43]在土培条件下发现褐土中残留四环素和土霉素浓度与小麦根(芽)生长抑制率显著相关。林琳等^[44]在小白菜上也发现类似现象。Li 等^[45-46]发现土霉素污染土壤可通过抑制根系活性、光合作用影响小麦生长。但不同作物和基因型对四环素类抗生素具有不同响应敏感性,Zhao 等^[47]在水培条件下对高粱、绿豆、大麦等 10 类作物开展了四环素毒理效应研究,发现不同作物具有不同敏感性。解晓瑜等^[48]发现不同小麦基因型间对土霉素有响应差异。

由此可见,农田土壤四环素类抗生素污染普遍存在,尽管难以直接关联猪粪中四环素残留对土壤四环素类抗生素残留的贡献,但猪粪作为最大的畜

禽粪污来源,其中存在的大量残留四环素将是带给农田土壤和作物污染风险的重要因素之一。

2 猪粪好氧堆肥四环素类抗生素消减效果及其主要影响因素

2.1 消减效果

畜禽粪污抗生素消减是降低农田抗生素污染的重要源头控制对策之一。不同畜禽粪便处理方式对抗生素消减有不同影响^[49],好氧堆肥是指在充分供氧的条件下,主要利用好氧微生物进行的堆肥处理过程^[50],是畜禽粪便抗生素消减、实现无害化

处理的经济有效且使用最为广泛的方法之一^[51]。

虽然大量研究表明,通过好氧堆肥可以有效去除粪便中残留的抗生素^[52-53]。但大多数研究报道建立在模拟试验条件的基础上,且受堆体温度、湿度和碳氮比等理化性质^[14]、抗生素种类及残留量^[54]、微生物特性等因素的综合影响^[55]。猪粪中四环素类抗生素消减效果存在较大变异(表2),Bao等^[56]研究了堆肥对育肥猪粪中金霉素消减的研究,发现猪粪中金霉素消减率仅为27%;而Wu等^[57]研究表明猪粪经过50d堆肥后,四环素、土霉素和金霉素的消减率分别为70%、92%和74%。

表2 我国猪粪中四环素类抗生素消减率

种类	消减率(%)	文献	种类	消减率(%)	文献
金霉素	93.4	[11]	四环素	86.0	[16]
	92.0	[12]		73.7	[19]
	71.0	[12]		70.0	[57]
	96.8	[13]	土霉素	66.7	[59]
	75.6	[16]		92.8	[11]
	27.3	[56]		94.0	[12]
	74.0	[57]		62.0	[12]
	58.3	[58]		83.2	[13]
	73.3	[59]		87.1	[13]
四环素	91.0	[12]		82.7	[13]
	60.0	[12]		85.8	[13]
	82.8	[13]		84.5	[16]
	88.5	[13]		84.1	[19]
	82.1	[13]		92.0	[57]
	90.4	[13]		64.7	[59]

2.2 主要影响因素

好氧堆肥对猪粪中四环素类抗生素的消减效果与堆体理化参数密切相关,保持适宜水分是高效消减的重要条件之一。研究表明,在初始含水量为60%时的四环素类抗生素降解率显著高于含水量为40%和70%时的降解率^[58,60]。控制发酵温度是实现物料中有机物降解和病菌无害化的基本要求。一般而言,四环素类抗生素降解率随堆体温度提高而增加,沈颖等^[58]不同温度的研究结果表明,在初始温度为55℃时的四环素类抗生素降解率显著高于温度为35和45℃时的降解率。堆体酸碱度可通过影响微生物的生长状况,进而影

响抗生素的降解效果。郑丽英^[61]研究了金霉素在不同pH条件下的降解情况,发现在碱性和中性条件下金霉素的降解率明显大于酸性条件下的降解率。堆体碳氮比及养分含量与四环素类抗生素消减效率密切相关,Bao等^[56]发现金霉素消减率与堆体全碳、全氮、碳氮比、全磷、氮磷比具有相关关系。张树清等^[62]通过添加高碳氮比的麦秸与猪粪混合堆肥较单独猪粪堆肥具有更强的金霉素、四环素和土霉素去除效果。猪粪中抗生素残留量也对抗生素消减有显著影响,研究表明高量抗生素可对堆肥微生物产生短暂抑制作用^[63],进而降低抗生素去除率^[64]。勾长龙等^[12]研究表明低剂量组较高剂

量组四环素类抗生素消减率更高,且主要发生在高温阶段。好氧堆肥对不同类型四环素类抗生素消减效率影响不同,报道结果并不一致。张树清等^[62]研究表明,四环素类抗生素降解去除率大小为四环素>金霉素>土霉素,而 Chai 等^[59]发现在相同条件下,四环素类抗生素降解率大小为金霉素>四环素>土霉素。

好氧堆肥实际上是基质微生物的发酵过程^[65],因而微生物是影响好氧堆肥降解效果的关键因素之一^[13]。研究表明,好氧堆肥对土霉素降解效率在灭菌和不灭菌状态下分别为 100% 和 82%,而高温灭菌则显著降低抗生素降解效果,同时,无论在添加抗生素还是在自然无添加状态下,均表现为灭菌显著降低猪粪中四环素的降解效率^[66]。沈颖等^[58]证明了放线菌、真菌、细菌都可以有效降解抗生素,且不同菌的最适温度不同。张树清等^[17]发现通过接种 BM 菌剂可提高堆肥过程中抗生素消减效果。目前,通过高效降解菌提高畜禽粪便堆肥中抗生素降解效果被认为是一种高效、低成本的无害化处理方法^[67]。国内已开展一些有关抗生素降解菌的相关研究,主要集中在菌株筛选与鉴定以及优化去除效果等方面。沈东升等^[68]将其实验室筛选的土霉素降解菌接种于堆肥中,发展 TJ-1 接种可提高降解率 20%。成洁等^[69]证明四环素降解菌 TJ-2 对 3 种抗生素的降解率分别为 58.3%、63.9% 和 65.5%,且 TJ-2 能以四环素类抗生素作为唯一碳源。赵晨光等^[13]开展了接种四环素高温降解菌对不同抗生素浓度猪粪堆肥的影响研究,发现较高浓度 $40 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ 的抗生素具有更好的处理效果。赵晨光等^[13]进一步通过接种从猪粪中筛选到的耐高温降解菌,在堆肥 14 d 土霉素、四环素和金霉素降解率分别可达 85.8%、91.0% 和 98.6%。也有研究表明混合外源菌剂接种有利于抗生素降解,肖礼等^[70]在猪粪中添加白腐真菌及其混合外源菌剂,单一白腐真菌处理下的猪粪中降解率最小,四环素和土霉素的含量随堆肥时间显著下降,经过 42 d 后两种抗生素降解率可达 90% 以上。

3 研究展望

生猪养殖是近 20 年来我国畜禽养殖业中发展最快的产业之一,其集约化、规模化程度不断提高。四环素类抗生素作为生猪养殖中广泛使用的重要兽药类型,其在猪粪中普遍残留,对土壤和作物

的潜在风险已得到广泛关注。尽管基于好氧堆肥技术的猪粪中四环素类抗生素消减效果也取得较多试验证明,但堆肥条件及微生物特性对消减效率也有较大影响。因而,如何合理利用好氧堆肥技术有效控制猪粪中四环素类抗生素污染,为生猪养殖产业绿色发展提供重要支撑,本研究认为需要加强以下 3 方面的研究工作。

(1) 标准制定方面。我国猪粪产生量大且四环素类抗生素残留量高,对生态环境产生巨大风险,但我国尚无针对猪粪中四环素类抗生素的消减标准。同时,目前国内外围绕基于堆肥的猪粪中四环素类抗生素消减技术和消减浓度开展了一定研究,但整体上存在消减技术繁多而缺少统一规范的问题,导致消减效率存在较大变异,现有的畜禽养殖粪便相关处理国家标准中对抗生素的处理工艺也无体现。另外,尽管 2016 年国家发布了有机肥中四环素类抗生素含量测定的强制性国家标准,但在实际操作中如何实现四环素类抗生素含量降低成为养猪场和有机肥企业在粪便处理中极其重要但也颇为挑战的技术问题。因而,建立操作规范和市场认可的猪粪中四环素类抗生素强化消减技术标准迫在眉睫,为实现猪粪中四环素类抗生素无害化利用提供技术途径。

(2) 风险评估方面。有关猪粪中四环素类抗生素残留对土壤、作物的可能不利影响已研究较多,但主要基于抗生素模拟试验添加或长期猪粪高量施用条件下的研究结果,尽管在优化堆肥条件下四环素类抗生素消减效率也可达到 80% ~ 90% 以上,但对于猪粪中微量四环素类抗生素残留在土壤和作物中的迁移与积累机制仍需进一步研究,关于猪粪中四环素类抗生素的安全阈值尚未建立。因而,应在加强微量四环素类抗生素环境迁移、累积机制基础上,建立猪粪中四环素类抗生素风险评估和预警体系,为实现猪粪四环素类抗生素污染控制提供科学依据。

(3) 基础研究方面。与国内外有关四环素类抗生素消减效果已有较多报道相比,四环素类抗生素生物降解机制方面研究仍相对较少,尽管部分研究通过模型模拟等方法对四环素类抗生素降解途径进行相关预测,但关于其消减产物的稳定性、再转化过程及其环境风险仍不清楚。同时,堆肥作为实现粪便无害化、资源化利用的关键手段,在此过程中如何实现抗生素最大程度消减条件下有效保蓄营养

元素是颇为关键的问题之一。因而,有必要加强猪粪四环素类抗生素消减途径及其消减产物转化机制与环境行为的研究,并强化猪粪好氧堆肥中四环素类抗生素与营养元素协同转化机制的研究,不断提高猪粪中四环素类抗生素生物转化的科学认知水平。

参考文献:

- [1] 国家统计局. 中国统计年鉴 [M]. 北京: 中国统计出版社, 2018.
- [2] 孙良媛, 刘涛, 张乐. 中国规模化畜禽养殖的现状及其对生态环境的影响 [J]. 华南农业大学学报 (社会科学版), 2016, 15 (2): 23-30.
- [3] 武淑霞, 刘宏斌, 黄宏坤, 等. 我国畜禽养殖粪污产生量及其资源化分析 [J]. 中国工程科学, 2018, 20 (5): 103-111.
- [4] Zhang Q Q, Ying G G, Pan C G, 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.
- [5] Kumar K, Gupta S C, Baidoo S K, et al. Antibiotic uptake by plants from soil fertilized with animal manure [J]. Journal of Environmental Quality, 2005, 34 (6): 2082-2085.
- [6] 徐向月, 马文瑾, 安博宇, 等. 四环素类抗生素在环境中的风险评估研究进展 [J]. 中国畜牧兽医, 2020, 47 (3): 948-957.
- [7] 于晓雯, 索全义. 畜禽粪便中四环素类抗生素的残留及危害 [J]. 北方农业学报, 2018, 46 (3): 83-88.
- [8] 夏萌萌. 微生物法处理四环素类抗生素的研究进展 [J]. 云南化工, 2020, 47 (7): 30-31.
- [9] Boxall A B, Fogg L A, Blackwell P A, et al. Veterinary medicines in the environment [J]. Reviews of Environmental Contamination & Toxicology, 2004, 180: 1-91.
- [10] 成登苗, 李兆君, 张雪莲, 等. 畜禽粪便中兽用抗生素削减方法的研究进展 [J]. 中国农业科学, 2018, 51 (17): 3335-3352.
- [11] 潘寻, 强志民, 贾伟伟. 高温堆肥对猪粪中多类抗生素的去除效果 [J]. 生态与农村环境学报, 2013, 39 (1): 64-69.
- [12] 勾长龙, 王雨琼, 张喜庆, 等. 高温堆肥对猪粪中四环素类抗生素及抗性基因的影响 [J]. 环境科学学报, 2017, 37 (4): 1454-1460.
- [13] 赵晨光, 陈路鹏, 黄祚建, 等. 猪粪中四环素类抗生素降解菌的筛选及其在堆肥中的应用研究 [J]. 家畜生态学报, 2020, 41 (9): 53-58.
- [14] 冯栋梁, 封林玉, 张倚剑, 等. 猪粪堆肥过程中四环素类抗生素的生物转化及降解研究进展 [J]. 生态毒理学报, 2020, 15 (4): 45-55.
- [15] Yan X, Li X L, Zhang W, et al. The residues and environmental risks of multiple veterinary antibiotics in animal faeces [J]. Environmental Monitoring and Assessment, 2013, 185 (3): 2211-2220.
- [16] 胡家晴, 王洋, 于锐, 等. 典型河源区畜禽粪便农田施用的环境承载力研究 [J]. 土壤与作物, 2021, 10 (1): 37-46.
- [17] 张树清, 张夫道, 刘秀梅, 等. 规模化养殖畜禽粪主要有害成分测定分析研究 [J]. 植物营养与肥料学报, 2005 (6): 116-123.
- [18] 夏天骄, 夏训峰, 徐东耀, 等. 基于固相萃取-高效液相色谱法的畜禽粪便中四环素类抗生素残留量检测 [J]. 安全与环境学报, 2013, 13 (2): 121-125.
- [19] 张丽丽, 直俊强, 张加勇, 等. 北京地区猪粪中四环素类抗生素和重金属残留抽样分析 [J]. 中国农学通报, 2014, 30 (35): 74-78.
- [20] 彭秋, 王卫中, 徐卫红. 重庆市畜禽粪便及菜田土壤中四环素类抗生素生态风险评价 [J]. 环境科学, 2020, 41 (10): 4757-4766.
- [21] 单英杰, 章明奎. 不同来源畜禽粪的养分和污染物组成 [J]. 中国生态农业学报, 2012, 20 (1): 80-86.
- [22] 任君焄, 徐琳. 山东东营地区畜禽粪便中抗生素残留研究 [J]. 黑龙江畜牧兽医, 2019 (6): 56-59.
- [23] 姚倩, 高玲琳, 姜亚磊, 等. 海南畜禽粪中四环素类和大环内酯类抗生素的含量及其分布特征 [J]. 海南大学学报 (自然科学版), 2017, 35 (2): 152-158.
- [24] 国彬, 姚丽贤, 刘忠珍, 等. 广州市兽用抗生素的环境残留研究 [J]. 农业环境科学学报, 2011, 30 (5): 938-945.
- [25] Zhao L, Dong Y H, Wang H. Residues of veterinary antibiotics in manures from feedlot livestock in eight provinces of China [J]. Science of the Total Environment, 2010, 408 (5): 1069-1075.
- [26] Wang Y, Chen G X, Liang J B, et al. Comparison of oxytetracycline degradation behavior in pig manure with different antibiotic addition methods [J]. Environmental Science and Pollution Research. 2015, 22: 18469-18476.
- [27] 张慧敏, 章明奎, 顾国平. 浙北地区畜禽粪便和农田土壤中四环素类抗生素残留 [J]. 生态与农村环境学报, 2008 (3): 69-73.
- [28] 沈颖. 集约化养猪场猪粪中四环素类抗生素残留及其堆肥去除的研究 [D]. 北京: 中国科学院生态环境研究中心, 2009.
- [29] 余慎, 王敏, 洪有为, 等. 环境介质中的抗生素及其微生物生态效应 [J]. 生态学报, 2011, 31 (15): 4437-4446.
- [30] 李宗宸, 魏群山, 罗专溪, 等. 九龙江沉积物主要组分对四环素类抗生素吸附性能对比 [J]. 生态环境学报, 2016, 25 (10): 1714-1720.
- [31] 展海银, 周启星. 不同介质中四环素类抗生素的检出水平与污染扩散 [J]. 生态学杂志, 2020, 39 (12): 4206-4215.
- [32] 潘伟, 刘辉, 艾华庭, 等. 畜禽粪便抗生素残留和控制策略的现状研究 [J]. 畜牧业环境, 2020 (7): 8-10.

- [33] 张志强, 李春花, 黄绍文, 等. 农田系统四环素类抗生素污染研究现状 [J]. 辣椒杂志, 2013, 11 (2): 1-9, 12.
- [34] 吴楠, 乔敏. 土壤环境中四环素类抗生素残留及抗性基因污染的研究进展 [J]. 生态毒理学报, 2010, 5 (5): 618-627.
- [35] 曾巧云, 丁丹, 檀笑. 中国农业土壤中四环素类抗生素污染现状及来源研究进展 [J]. 生态环境学报, 2018, 27 (9): 1774-1782.
- [36] 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.
- [37] An J, Chen H W, Wei S H, et al. Antibiotic contamination in animal manure, soil, and sewage sludge in Shenyang, northeast China [J]. Environmental Earth Sciences, 2015, 74 (6): 5077-5086.
- [38] 张兰河, 王佳佳, 哈雪姣, 等. 北京地区菜田土壤抗生素抗性基因的分布特征 [J]. 环境科学, 2016, 37 (11): 4395-4401.
- [39] 张志强, 李春花, 黄绍文, 等. 土壤及畜禽粪肥中四环素类抗生素固相萃取-高效液相色谱法的优化与初步应用 [J]. 植物营养与肥料学报, 2013, 19 (3): 713-726.
- [40] 朱秀辉, 曾巧云, 解启来, 等. 广州市北郊蔬菜基地土壤四环素类抗生素的残留及风险评估 [J]. 农业环境科学学报, 2017, 36 (11): 2257-2266.
- [41] Hamscher G, Pawelzick H T, Höper H, et al. Antibiotics in soil: routes of entry, environmental concentrations, fate and possible effects [M]. Germany: Springer Berlin Heidelberg, 2004.
- [42] 于晓雯, 索全义, 史李萍. 外源四环素类抗生素对土壤微生物多样性的影响 [J]. 北方园艺, 2021 (2): 91-96.
- [43] 鲍艳宇, 周启星, 谢秀杰. 四环素类抗生素对小麦种子芽与根伸长的影响 [J]. 中国环境科学, 2008 (6): 88-92.
- [44] 林琳, 安婧, 周启星. 土壤四环素污染对小白菜幼苗生长发育的生态毒性 [J]. 环境科学, 2011 (8): 256-261.
- [45] Li Z J, Xie X Y, Zhang S Q, et al. Wheat growth and photosynthesis as affected by oxytetracycline as a soil contaminant [J]. Pedosphere, 2011, 21 (2): 244-250.
- [46] Li Z J, Xie X Y, Zhang S Q, et al. Negative effects of oxytetracycline on wheat (*Triticum aestivum*. L.) growth, root activity, photosynthesis and chlorophyll contents [J]. Agricultural Sciences in China, 2011, 10 (10): 545-553.
- [47] Zhao X J, Ma R C, Li Z J. Non-target organism species sensitivity distributions to oxytetracycline in water [J]. Research Journal of Chemistry and Environment, 2013, 17 (8): 74-81.
- [48] 解晓瑜, 张永清, 李兆君, 等. 兽用土霉素对小麦毒理效应的基因型差异研究 [J]. 生态毒理学报, 2009, 4 (4): 577-583.
- [49] Massé D, Saady N, Gilbert Y. Potential of biological processes to eliminate antibiotics in livestock manure: an overview [J]. Animals, 2014, 4 (2): 146-163.
- [50] GB/T 25171-2010. 畜禽养殖废弃物管理术语 [S].
- [51] Hu Z, Liu Y, Chen G, et al. Characterization of organic matter degradation during composting of manure-straw mixtures spiked with tetracyclines [J]. Bioresource Technology, 2011, 102 (15): 7329-7334.
- [52] Su J Q, Wei B, Ou-Yang W Y, et al. Antibiotic resistome and its association with bacterial communities during sewage sludge composting [J]. Environmental Science & Technology, 2015, 49 (12): 7356-63.
- [53] Kim K R, Owens G, Ok Y S, et al. Decline in extractable antibiotics in manure-based composts during composting [J]. Waste Management, 2012, 32 (1): 110-116.
- [54] Mitchell S M, Ullman J L, Bary A, et al. Antibiotic degradation during thermophilic composting [J]. Water Air and Soil Pollution, 2015, 226 (2): 13.
- [55] 郭小夏, 刘洪涛, 常志州, 等. 有机废物好氧发酵腐殖质形成机理及农学效应研究进展 [J]. 生态与农村环境学报, 2018, 34 (6): 489-498.
- [56] Bao Y, Zhou Q, Guan L, et al. Depletion of chlortetracycline during composting of aged and spiked manures [J]. Waste Management, 2009, 29 (4): 1416-1423.
- [57] Wu X, Wei Y, Zheng J, et al. The behavior of tetracyclines and their degradation products during swine manure composting [J]. Bioresource Technology, 2011, 102 (10): 5924-5931.
- [58] 沈颖, 魏源送, 郑嘉熹, 等. 猪粪中四环素类抗生素残留物的生物降解 [J]. 过程工程学报, 2009, 9 (5): 962-968.
- [59] Chai R, Huang L, Li L, et al. Degradation of tetracyclines in pig manure by composting with rice straw [J]. International Journal of Environmental Research and Public Health, 2016, 13 (3): 254.
- [60] 张嘉超. 基于分子生物学的堆肥功能微生物种群与体系基质特性关系研究 [D]. 长沙: 湖南大学, 2013.
- [61] 郑丽英. 金霉素的水解动力学研究 [J]. 广州化工, 2010, 38 (12): 182-183, 191.
- [62] 张树清, 张夫道, 刘秀梅, 等. 高温堆肥对畜禽粪中抗生素降解和重金属钝化的作用 [J]. 中国农业科学, 2006, 39 (2): 337-343.
- [63] Huang X, Zheng J, Tian S, et al. Higher temperatures do not always achieve better antibiotic resistance gene removal in anaerobic digestion of swine manure [J]. Applied and Environmental Microbiology, 2019, 85 (7): e02878-18.
- [64] Wang Q, Yates S R. Laboratory study of oxytetracycline degradation kinetics in animal manure and soil. [J]. Journal of Agricultural & Food Chemistry, 2008, 56 (5): 1683-1688.
- [65] 刘元望, 李兆君, 冯瑶, 等. 微生物降解抗生素的研究进展 [J]. 农业环境科学学报, 2016, 35 (2): 212-224.
- [66] Wang J, Ben W W, Zhang Y, et al. Effects of thermophilic

- composting on oxytetracycline, sulfamethaine, and their corresponding resistance genes in swine manure[J]. *Environmental Sciences Processes and Impacts*, 2015, 17 (9): 1654–1660.
- [67] 张欣阳, 许旭萍. 微生物技术去除抗生素残留污染的研究进展[J]. *生物技术进展*, 2014, 4 (5): 355–360.
- [68] 沈东升, 何虹葵, 汪美贞, 等. 土霉素降解菌 TJ-1 在猪粪无害化处理中的作用[J]. *环境科学学报*, 2013, 33 (1): 147–153.
- [69] 成洁, 杜慧玲, 张天宝, 等. 四环素类抗生素降解菌的分离与鉴定[J]. *核农学报*, 2017, 31 (5): 884–888.
- [70] 肖礼, 黄懿梅, 赵俊峰, 等. 外源菌剂对猪粪堆肥质量及四环素类抗生素降解的影响[J]. *农业环境科学学报*, 2016, 35 (1): 172–178.

Advances in residues of tetracyclines and its degradation by aerobic composting in pig manure in China

BAI Jin-shun¹, WANG Wei-hong^{2#}, LI Yan-li¹, LI Zhao-jun¹, ZHAO Lin-ping^{1*} (1. Key Laboratory of Plant Nutrition and Fertilizer of Ministry of Agriculture and Rural Affairs, Institute of Agricultural Resources and Regional Planning, Chinese Academy of Agricultural Sciences, Beijing 100081; 2. China Agricultural Science and Technology Press Cooperation Limited Company, Beijing 100081)

Abstract: China is the largest country of pig breeding in the world. Tetracyclines are widely used in pig breeding, and most of them are excreted in the form of plasma or metabolites, which brings great risks to the ecological environment and human health. By combing the domestic research results, the level of tetracyclines residues in pig manure and its pollution risk to soil and crops were reviewed. The degradation efficiency of aerobic composting technology on tetracycline antibiotics in pig manure and its influencing factors were analyzed, the future research directions were put forward. The results showed that the residues of tetracycline antibiotics in pig manure were reported in different regions of China, and the residues ranged from 0 to 493.3 mg · kg⁻¹. The detection rate was from 41% to 100%, which was a potential risk to agricultural soil pollution and crop growth. Aerobic composting had a significant degradation effect on antibiotics in pig manure, and the reduction rate was between 27.3% and 96.8%. The degradation efficiency is affected by the physical and chemical properties and microbial characteristics. In the future, it is necessary to strengthen the research work on reduction technology standards, environmental safety threshold and biotransformation mechanism, so as to provide theoretical basis and technical reference for the harmless treatment and resource utilization of animal manures.

Key words: pig manure; aerobic composting; tetracyclines; antibiotics degradation