

网络出版时间:2017-11-06 13:53 DOI:10.13207/j.cnki.jnwafu.2017.12.005
网络出版地址:http://kns.cnki.net/kcms/detail/61.1390.S.20171106.1353.010.html

溴氰菊酯在团头鲂体内的富集消除规律研究

徐春娟^{1,2},刘永涛²,艾晓辉²,杨秋红²,宋雅琪²,胥 宁²

(1 上海海洋大学 水产与生命学院,上海 浦东 201306;2 中国水产科学研究院 长江水产研究所 检测中心,湖北 武汉 430223)

【摘要】【目的】对溴氰菊酯(DM)在团头鲂体内的富集及消除规律进行研究,为水环境中污染物残留及水产品的质量安全问题研究提供理论依据。【方法】在(18±0.5)℃水温下,以团头鲂为研究对象,经5 μg/L DM药浴后,利用气相色谱法分析不同时间DM在血浆、肝脏、肌肉、皮肤、鳃、胆组织中的药物残留,采用3p97药代动力学软件对DM在血浆中的血药浓度时间数据进行拟合,构建DM在各组织中的消除曲线方程。【结果】DM在血浆中的峰值浓度(C_{max})为75.96 μg/L,达峰时间(T_{max})为7.05 h,药-时曲线下面积AUC为1 524.69 (μg·h)/L,吸收半衰期($T_{1/2(k_a)}$)为3.66 h,消除半衰期($T_{1/2(k_e)}$)为6.73 h;DM在团头鲂各组织中富集的浓度从高到低依次为鳃>血浆>肝脏>皮肤>肌肉>胆;肝脏、肌肉、皮肤、鳃及胆组织对DM的消除半衰期($T_{1/2}$)分别为13.75,12.55,12.55,5.35和3.28 d。团头鲂血浆、肝脏及鳃组织中的DM含量于药浴12 h后明显降低,各组织中的DM含量84 h后均降至(14.37±11.65) μg/kg以下,低于我国规定的DM在鱼肌肉中的最高残留限量(30 μg/kg);但低含量DM在团头鲂体内维持时间较长,768 h(32 d)时在皮肤、肝脏、鳃及肌肉组织中仍有残留。【结论】DM在团头鲂体内吸收分布迅速,在鳃、血浆和肝脏组织中富集浓度较高,其消除时间也较长,药浴后768 h(32 d)在大部分组织中仍能检出。

【关键词】 溴氰菊酯;团头鲂;富集;消除

【中图分类号】 S948

【文献标志码】 A

【文章编号】 1671-9387(2017)12-0031-07

Accumulation and elimination of deltamethrin in *Megalobrama amblycephala*

XU Chunjuan^{1,2}, LIU Yongtao², AI Xiaohui², YANG QiuHong², SONG Yaqi², XU Ning²

(1 College of Fisheries and Life Science, Shanghai Ocean University, Pudong, Shanghai 201306, China;

2 Testing Center, Yangtze River Fisheries Research Institute Chinese Academy of Fishery Sciences, Wuhan, Hubei 430223, China)

Abstract:【Objective】The accumulation and elimination of deltamethrin (DM) in blood, gill, muscle, skin, liver and bravery of *Megalobrama amblycephala* were studied to provide basis for residual problems in water environments and quality security of aquatic products. 【Method】After bath treatment of DM at the dose of 5 μg/L and temperature of (18±0.5) °C, the residues of DM in tissues including the blood, liver, muscle, skin, gill and bravery at different times were detected by gas chromatography and the drug concentration-time in blood was simulated by pharmacokinetics software and the elimination curve of DM were constructed. 【Result】The C_{max} of DM in blood reached 75.96 μg/L, the T_{max} was 7.05 h and AUC was 1 524.69 (μg·h)/L. The absorption half-life $T_{1/2(k_a)}$ was 3.66 h and the elimination half-life $T_{1/2(k_e)}$ was 6.73 h. The DM could be accumulated in the tissues but the enrichment capacity of each tissue was differ-

【收稿日期】 2016-10-15

【基金项目】 公益性行业(农业)科研专项“典型化学物污染淡水产品质量安全综合防治技术方案(鄂、皖、川、渝片区)”(201503108-CC-1)

【作者简介】 徐春娟(1990—),女,湖南邵阳人,在读硕士,主要从事拟除虫菊酯在水产养殖环境中的检测及在鱼体内的富集消除规律研究。E-mail:572515845@qq.com

【通信作者】 艾晓辉(1968—),男,湖北荆州人,研究员,博士,硕士生导师,主要从事水产动物药理和残留技术研究。E-mail:aixh@yfi.ac.cn

ent. The concentration levels of DM in tissues from high to low were in the order of gill, plasma, liver, skin, muscle and bravery. The elimination half-lives ($T_{1/2}$) were 13.75 d (in liver), 12.55 d (in muscle), 12.55 d (in skin), 5.35 d (in gill) and 3.28 d (in bravery), respectively. The concentration levels of DM in plasma, liver and gill tissues decreased significantly after 12 h and all decreased to less than (14.37 ± 11.65) $\mu\text{g}/\text{kg}$ after 84 h, which are below the MRT of DM in fish muscle (30 $\mu\text{g}/\text{kg}$). However, it can maintain in low level for longer period, and can be detected in skin, liver, gill and muscle after 768 h (32 d).

【Conclusion】 The distribution of DM in *Megalobrama amblycephala* was rapid and the concentrations of DM in gill, plasma and liver were high. Its withdrawal period was long, and can be detected in most tissues after 768 h (32 d).

Key words: deltamethrin; *Megalobrama amblycephala*; accumulation; elimination

溴氰菊酯 (Deltamethrin, DM) 是 Elliott 于 1974 年在研究天然除虫菊酯化学结构基础上合成的一种含有 α -氰基的 II 型拟除虫菊酯类仿生杀虫剂^[1], 是人工合成拟除虫菊酯杀虫剂中杀虫毒力最大的一个品种^[2]。DM 作为一种高效、广谱的杀虫剂, 目前已广泛应用于水产养殖^[3]及农业灭害^[4]中, 对于防治常见淡水鱼类体表的原虫、锚头蚤、吸虫及鱼虱和中华鲩等^[5-7]甲壳类寄生虫有较好的效果, 是传统有机磷及有机氯等水产杀虫剂的理想替代品之一。随着这类杀虫剂农药在农业生产和水产养殖中的大量使用, 部分农药极易通过地表径流、雨水冲刷、生活废水等途径进入水环境, 对水环境和水产动物造成日益严重的危害^[8-10]。目前, 国内外对于拟除虫菊酯类农药的研究主要集中在动物性食品、蔬菜、水果和水产品中残留的检测方法^[11-14]及其急性毒性上^[15-17], 而对于该类杀虫剂在水生生物尤其是淡水水产品中生物富集和消除规律的研究较少。

团头鲂 (*Megalobrama amblycephala*) 为中国特有的优良草食性鱼类, 其味美、头小、含肉率高, 且具有食性广、养殖成本低、生长快等优点^[18], 现已成为我国主要淡水水产养殖品种之一。本试验以团头鲂为研究对象, 以 5 $\mu\text{g}/\text{L}$ 的 DM 进行药浴, 对 DM 在团头鲂体内的富集消除及其在水体中的降解规律进行研究, 旨在为其在水环境中的残留和水产品的质量安全问题研究提供理论依据, 并对拟除虫菊酯类农药在淡水养殖中的残留监控措施进行指导, 以提高水产品质量, 确保水产品安全。

1 材料与方法

1.1 材料

1.1.1 试验动物 健康团头鲂, 购自中国水产科学院长江水产研究所基地, 平均体长为 (35.12 ± 1.89) cm, 平均体质量为 (517.45 ± 56.7) g/尾。试

验前将团头鲂经质量分数 2% 的食盐水消毒后置于高锰酸钾消毒过的水族箱 ($98 \text{ cm} \times 60 \text{ cm} \times 80 \text{ cm}$) 中暂养 1 周, 用于试验。

1.1.2 主要仪器 Varian CP-3800 气相色谱仪 (配 ECD 检测器, 美国 Varian 公司), 色谱柱 (DB-5MS, Agilent J&W GC Columns), METTLE-TOLE-DO 精密电子天平 (AE-240, 梅特勒+托利多公司)。

1.1.3 试剂与药品 正己烷 (色谱纯, 美国 J. T Baker 公司), 质谱水 (色谱纯, 美国 CNW 公司), 氯化钠、无水硫酸钠 (优级纯, 国药集团化学试剂有限公司), 石油醚 (色谱纯, 德国 CNW 公司), 丙酮 (色谱纯, 德山 Duksan 公司), 浓硫酸 (优级纯, 宋都开封东大化工有限公司), 溴氰菊酯标准品 (纯度 $> 98\%$, Dr. Ehrenstorfer GmbH), 溴氰菊酯溶液 (规格 2.5%, 宜兴市苏亚达生物技术有限公司, 经气相色谱仪测定质量分数为 2.79%)。

1.2 DM 检测方法的建立

1.2.1 DM 标准曲线的制备 准确称取 0.010 0 g DM 标准品, 用正己烷溶解并定容于 100 mL 棕色容量瓶中, 配制成 100 mg/L 的标准储存液, 再用正己烷稀释, 配制成 1 mg/L 的中间标准溶液, 4 $^{\circ}\text{C}$ 避光储存, 有效期为 6 个月。将中间标准溶液用正己烷依次稀释成 0.1, 0.5, 1.0, 2.0, 5.0, 10.0, 20.0 和 50.0 $\mu\text{g}/\text{L}$ 的标准工作溶液进行气相色谱分析, 以测得的 DM 峰面积为纵坐标 (Y), DM 质量浓度为横坐标 (X), 利用 Excel 2013 求出标准曲线及其线性回归方程。

气相色谱分析条件为: 色谱柱: Agilent DB-5MS ($30 \text{ m} \times 0.25 \text{ mm}, 0.25 \mu\text{m}$); 载气: 高纯氮气 (99.999%), 流速 1 mL/min; 进样口温度: 260 $^{\circ}\text{C}$; 检测器温度: 310 $^{\circ}\text{C}$; 程序升温: 初始温度 160 $^{\circ}\text{C}$ 保持 1 min, 以 10 $^{\circ}\text{C}/\text{min}$ 升到 250 $^{\circ}\text{C}$, 保持 2 min, 然后再以 10 $^{\circ}\text{C}/\text{min}$ 升到 280 $^{\circ}\text{C}$, 保持 10 min; 进样方

式:不分流进样;进样量:1 μL 。

1.2.2 待测样品处理 水样处理:参照刘丽等^[19]进行,未用浓硫酸进行磺化。

样品处理:参照叶玫等^[20]的方法并加以改进。取 5 g 匀质的肌肉组织于 50 mL 离心管中,加入 5 mL 质谱水及石油醚与丙酮体积比为 3:1 的混合提取剂 20 mL,涡漩振荡后超声提取 3 min(频率为 100 Hz),加入 2 g NaCl,涡漩混合后,7 000 r/min 离心 5 min,收集上清液于 250 mL 鸡心瓶中;再加入 10 mL 混合提取剂重复提取 1 次,合并 2 次提取所得上清液,过无水硫酸钠柱后收集于 150 mL 鸡心瓶中,35 $^{\circ}\text{C}$ 旋蒸浓缩至近干。用 6 mL 正己烷分 2 次溶解鸡心瓶中的残渣,将溶解液合并于 10 mL 离心管中,加入体积分数为 10% 的稀硫酸 1 mL,振荡,7 000 r/min 离心 5 min,上层吸入 10 mL 离心管中,下层再用 3 mL 正己烷萃取 1 次,合并,35 $^{\circ}\text{C}$ 氮吹至干,用 1 mL 正己烷定容,待测。皮肤、肝脏、鳃及胆和血清的前处理与肌肉相似。

将处理好的样品按照 1.2.1 中的气相色谱分析条件进行上机测定,对 DM 的检测结果进行定量,上样量为 1 μL 。

1.2.3 方法检测限、回收率及精密度的测定 计算 DM 峰响应值与基线噪音值的比值(信噪比),将信噪比大于 3 的加标浓度作为本方法的最低检测限。准确称取团头鲂的肌肉(5 g)、皮肤(2 g)、肝脏(2 g)、鳃(2 g)、血浆(3 mL)、胆(称质量并记录)组织及空白水样(200 mL),分别向所取样品中加入 10, 20 和 40 $\mu\text{g/L}$ 的 DM 标准稀释液 1 mL,各样品每种 DM 质量浓度设 6 次重复,按照 1.2.2 的方法进行前处理后,测定 DM 方法的回收率。每种质量浓度 DM 处理样品,日内重复 5 次,1 周重复 5 次,求出日内及日间精密度。

1.3 团头鲂给药与样品采集

准备装有 300 L 自来水的水族箱(98 cm \times 60 cm \times 80 cm)6 个,曝气 3 d 后,将溴氰菊酯溶液用丙

酮稀释 100 倍,采用单次泼洒药浴的方法,使水中溴氰菊酯的理论质量浓度达到 5 $\mu\text{g/L}$,药物充分混匀之后立即取 200 mL 水样,测定水体中实际药物浓度,并随机挑选 120 尾体格健硕、规格相近的团头鲂进行药浴,对照组不投任何药物。给药期间停止饲喂,全天曝气,使得水体中的溶氧量在 5 mg/L 以上,试验水温保持在(18 \pm 0.5) $^{\circ}\text{C}$ 。于给药后 0(给药前),4,6,12,24,36,48,60,72,84,96,108,120,132,144,192,264,312,432,600 和 768 h,采集血浆、鳃、肌肉、皮肤、肝脏、胆组织及水样,每个时间点重复采样 5 份,将各组织及水样等样品均置于-20 $^{\circ}\text{C}$ 冰箱避光保存。

1.4 数据处理

DM 的消除方程采用 SPSS 17.0 进行拟合,拟合模型为: $C=C_0e^{-kt}$,其中 C 表示药物浓度, C_0 为残留消除对数曲线的截距($\mu\text{g/kg}$), k 表示消除速率常数;血浆药动学主要参数采用 3p97 实用药代动力学软件进行拟合和计算。

2 结果与分析

2.1 DM 的标准曲线

DM 在质量浓度为 0.1~50.0 $\mu\text{g/L}$ 时与峰面积线性关系良好,低质量浓度(0.1~10.0 $\mu\text{g/L}$)的线性方程为 $Y=33\ 200X+260.85$ ($4\ 695\leq Y\leq 166\ 706$),高质量浓度(10.0~50.0 $\mu\text{g/L}$)的线性方程为 $Y=26\ 367X+82\ 880$ ($326\ 430\leq Y\leq 1\ 394\ 515$),其相关系数 R^2 均 ≥ 0.998 。

2.2 方法检测限、回收率及精密度

在本试验条件下,团头鲂肌肉、肝脏、鳃、皮肤及胆的 DM 检测限为 0.5 $\mu\text{g/kg}$,血浆为 0.50 $\mu\text{g/L}$,水体中 DM 的检测限为 0.005 $\mu\text{g/L}$ 。水体及团头鲂各组织中质量浓度加标水平的 DM 平均回收率为 71.58%~103.00%(表 1)。测得的日内精密度与日间精密度分别为 2.79%~5.83% 和 4.76%~7.23%,表明此方法重现性好,精密度高。

表 1 DM 在水体及团头鲂各组织中的加标回收率($n=6$)

Table 1 Recovery rates of DM in water and in tissues of *Megalobrama amblycephala* ($n=6$) %

添加水平/ $(\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1})$ Added level	水样 Water	鳃 Gill	皮肤 Skin	肌肉 Muscle	血浆 Plasma	肝脏 Liver	胆 Bravery
10	84.50 \pm 1.23	82.60 \pm 2.31	71.58 \pm 0.47	76.78 \pm 0.56	91.40 \pm 0.21	79.40 \pm 0.72	97.30 \pm 0.25
20	95.93 \pm 0.10	97.24 \pm 0.13	72.39 \pm 0.05	89.70 \pm 0.04	103.00 \pm 0.07	83.30 \pm 0.03	102.45 \pm 0.15
40	101.20 \pm 0.65	92.18 \pm 0.28	80.54 \pm 1.12	93.56 \pm 0.15	101.00 \pm 0.04	84.20 \pm 0.41	101.00 \pm 0.45

2.3 DM 在团头鲂各组织中的分布及消除规律

由表 2 可知,DM 在团头鲂各组织中达到峰值的时间不尽相同,DM 在血浆中 12 h 达到峰值

((93.94 \pm 26.84) $\mu\text{g/L}$);在皮肤中 6 h 达到峰值((36.73 \pm 26.54) $\mu\text{g/L}$),随后含量迅速下降;在肌肉中 36 h 达到峰值((17.69 \pm 6.32) $\mu\text{g/kg}$);在肝

脏中 12 h 达到峰值(70.05 ± 56.26) $\mu\text{g}/\text{kg}$);在鳃中的达峰时间应是在 4 h 之前,其峰值应该大于(101.72 ± 36.17) $\mu\text{g}/\text{kg}$;胆中的 DM 浓度较低,并且于 48 h 才达到了峰值(9.81 ± 7.71) $\mu\text{g}/\text{kg}$)。由 DM 在团头鲂各组织中的富集消除规律可以看出,鳃的富集含量最高,其次是血浆和肝脏组织,胆中的富集含量最低。DM 在团头鲂各组织及水体中的残留随时间的推移而逐渐降低,药浴 12 h 后,血

浆、肝脏和鳃组织中的 DM 含量急剧降低,84 h 后各组织均降至(14.37 ± 11.65) $\mu\text{g}/\text{kg}$ 以下,这远低于 DM 的最高残留限量 MRT($30 \mu\text{g}/\text{kg}$),而后团头鲂各组织中的 DM 含量变化较小,药浴后 768 h(32 d)在皮肤、肌肉、肝脏及鳃中仍有残留,但处于较低水平(4.88 ± 0.30) $\mu\text{g}/\text{kg}$ 以下)。较高含量的 DM 在水体中快速降解,4 h 时降至(0.36 ± 0.01) $\mu\text{g}/\text{L}$,而在低含量下则维持了较长的时间。

表 2 单次泼洒 DM 溶液不同时间后水体及团头鲂各组织中 DM 的含量($n=5$)

Table 2 DM levels in water and *Megalobrama amblycephala* tissues at different times after single splashing administration ($n=5$)

时间/h Time	水样/ ($\mu\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$) Water	血浆/ ($\mu\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$) Plasma	皮肤/ ($\mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$) Skin	肌肉/ ($\mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$) Muscle	肝脏/ ($\mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$) Liver	鳃/ ($\mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$) Gill	胆/ ($\mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$) Bravery
0	4.95±0.01	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
4	0.36±0.01	37.84±16.84	29.28±22.43	2.39±2.15	22.72±9.09	101.72±36.17	0.81±0.25
6	0.28±0.03	51.60±24.83	36.73±26.54	4.96±3.78	46.39±21.98	83.15±42.09	3.51±4.65
12	0.24±0.02	93.94±26.84	23.45±7.27	12.30±0.87	70.05±56.26	61.52±27.91	3.60±1.38
24	0.24±0.01	21.70±10.66	21.34±8.98	14.15±6.34	24.03±11.64	46.46±43.39	2.93±1.20
36	0.21±0.03	12.67±4.40	16.36±9.43	17.69±6.32	20.73±6.84	30.07±10.85	3.29±1.75
48	0.17±0.02	8.57±5.94	13.09±6.81	15.36±2.94	16.00±15.19	24.93±23.31	9.81±7.71
60	0.15±0.02	6.10±1.17	9.43±11.99	9.86±1.08	10.26±5.57	20.91±16.16	9.10±5.81
72	0.10±0.01	5.35±2.04	9.51±1.55	8.03±2.00	25.95±20.96	11.16±4.61	3.78±0.24
84	0.08±0.01	0.89±0.67	9.68±1.87	10.44±3.58	14.37±11.65	8.53±3.48	4.74±1.27
96	0.07±0.04	0.69±0.24	10.51±2.13	7.13±2.62	13.68±10.92	9.22±7.69	1.72±0.53
108	0.06±0.02	0.61±0.41	5.55±3.04	8.04±1.91	8.87±4.13	5.79±1.56	2.99±0.71
120	0.03±0.01	ND	5.38±1.31	1.29±10.4	8.03±5.42	6.90±3.33	2.86±0.45
132	0.02±0.02	ND	9.36±6.02	7.35±7.88	10.57±4.85	8.39±2.36	2.79±0.34
144	0.01±0.02	ND	7.23±2.94	7.20±1.40	3.89±0.45	9.03±5.21	2.70±1.63
192	ND	ND	6.33±2.01	8.39±0.79	4.10±2.17	10.55±3.40	1.46±0.52
264	ND	ND	5.61±2.68	4.16±1.61	6.04±2.47	2.33±0.40	0.99±0.31
312	ND	ND	6.27±2.59	2.91±4.27	5.32±3.21	2.03±1.21	0.67±0.25
432	ND	ND	5.53±5.34	4.20±1.45	7.26±2.30	1.45±0.90	ND
600	ND	ND	5.49±5.22	3.53±0.67	6.03±0.57	1.70±0.09	ND
768	ND	ND	2.59±1.09	2.34±1.20	4.88±0.30	1.20±0.12	ND

注:ND表示未检测到(低于仪器检测限)。

Note:ND represents undetectable or under the limit of detection.

2.4 DM 在团头鲂血浆中的药代动力学特征

采用 3p97 实用药代动力学软件对血浆中药物浓度-时间的数据进行拟合,结果表明,DM 在血液

中的药代动力学符合一级吸收-房室模型,其主要参数见表 3。

表 3 DM 在团头鲂血浆中的主要药代动力学参数

Table 3 Main pharmacokinetic parameters of deltamethrin in plasma of *Megalobrama amblycephala*

参数 Parameter	参数值 Value	参数 Parameters	参数值 Value
消除速率常数(k_e)/ h^{-1} Elimination rate constant	0.10	峰值浓度/ $(\mu\text{g} \cdot \text{L}^{-1}) C_{\text{max}}$ Peak concentration	75.96
吸收速率常数(k_a)/ h^{-1} Absorption rate constant	41.63	药-时曲线下面积/ $(\mu\text{g} \cdot \text{h} \cdot \text{L}^{-1}) AUC$ Area under concentration time curve	1 524.69
吸收半衰期($T_{1/2(k_a)}$)/h Absorption half-life	3.66	清除率/ $(\text{L} \cdot \text{h}^{-1} \cdot \text{kg}^{-1}) CL$ Clearance rate	0.000 10
消除半衰期($T_{1/2(k_e)}$)/h Elimination half-life	6.73	表观分布容积/ $(\text{L} \cdot \text{kg}^{-1}) V_d$ Apparent volume of distribution	0.002 2
达峰时间(T_{max})/h Peak time	7.05	滞后时间/h Lag time	2.86

由表 3 可知,DM 通过浸泡方式进入团头鲂的

血液循环,其达峰时间(T_{max})为 7.05 h,峰值浓度

(C_{\max})为75.96 $\mu\text{g/L}$,吸收速率常数(k_a)和消除速率常数(k_e)分别为41.63 h^{-1} 和0.10 h^{-1} 。

利用 Excel 2013 对药物浓度-时间数据进行拟合,可求出各组织药物消除曲线方程、相关系数 R^2 及其消除半衰期($T_{1/2}$)(表 4)。由表 4 可知,DM 在

表 4 DM 在团头鲂各组织中的消除方程及其参数

Table 4 Equations of elimination curves and parameters of deltamethrin residues in *Megalobrama amblycephala* tissues

组织 Tissue	消除曲线方程 Equation	相关系数(R^2) Correlation coefficient	消除半衰期($T_{1/2}$)/d Elimination half-life
肝脏 Liver	$C_{\text{肝}} = 16.09e^{-0.0021t}$	0.37	13.75
皮肤 Skin	$C_{\text{皮}} = 14.00e^{-0.0023t}$	0.57	12.55
肌肉 Muscle	$C_{\text{肌}} = 11.14e^{-0.0023t}$	0.74	12.55
胆 Bravery	$C_{\text{胆}} = 9.10e^{-0.0088t}$	0.81	3.28
鳃 Gill	$C_{\text{鳃}} = 26.44e^{-0.0054t}$	0.69	5.35

3 讨论

3.1 DM 在团头鲂血浆中的动力学特征

本试验条件下以 5 $\mu\text{g/L}$ 的 DM 浸泡团头鲂后,血液中的药物浓度和时间关系符合一级吸收-房室模型;DM 的表观分布容积(V_d)为 0.002 2 L/kg,小于 1 L/kg,这与林丽聪^[21]对欧洲鳊的研究结果相符。本研究结果表明,DM 主要分布在血液中,具有较强的血管内分布能力,DM 经团头鲂吸收后进入血液循环,其达峰时间(T_{\max})为 7.05 h,峰值浓度(C_{\max})为 75.96 $\mu\text{g/L}$,AUC 为 1 524.69 ($\mu\text{g} \cdot \text{h}$)/L,这与 DM 在欧洲鳊中的药动学参数^[21](C_{\max} : 18.446 $\mu\text{g/L}$, T_{\max} : 14.7 h, AUC: 2 221.034 ($\mu\text{g} \cdot \text{h}$)/L)有差异,说明同种药物在不同水生动物体内所表现的药动学特征可能不同,这可能与不同鱼体解剖学上的体积差异以及药物与血浆蛋白、组织结合的差异有关^[22]。DM 在团头鲂血液中的吸收速率常数(k_a)和消除速率常数(k_e)分别为 41.63 h^{-1} 和 0.10 h^{-1} ,吸收半衰期($T_{1/2(k_a)}$)为 3.66 h,消除半衰期($T_{1/2(k_e)}$)为 6.73 h。从药代动力学结果可知,DM 在团头鲂体内的吸收分布迅速,且富集浓度较高。

3.2 DM 在团头鲂体内的富集作用

本研究表明,DM 能够通过药浴方式富集到团头鲂体内,不同组织对 DM 的富集能力不同,其中以鳃的富集能力最强,其次是血浆和肝脏组织,胆的富集能力最弱。鳃对 DM 的摄取要比其他组织迅速得多,这是因为鳃是水生生物接触污染物的直接位点,因其巨大的表面积有利于与药物接触并对其进行直接摄取,且鳃中没有对药物进行排泄和转化的途径和渠道^[23],从而使其累积到最大浓度的时间较短,并且累积量也较高;同时,DM 的油水分配系数

团头鲂胆中的消除半衰期最短,为 3.28 d,在鳃、皮肤、肌肉和肝脏中的消除半衰期分别为 5.35, 12.55, 12.55 和 13.75 d。DM 在团头鲂 5 种组织中的消除半衰期由大到小分别为肝脏>肌肉=皮肤>鳃>胆。

($K_{o/w}$)较大,具有强脂溶性,而鳃中有一层脂膜,是药物吸收的通道^[24],所以 DM 在鳃中的富集能力较强。本试验中,团头鲂的肝脏、鳃及肌肉组织中药物浓度-时间曲线存在明显的双峰现象,难以单纯地用房室模型描述。关于双峰现象很多文献有不同的解释,其中肠肝循环^[25]被认为是最可能的一种机制,多峰现象延长了药物在体内的作用时间,增大了药-时曲线下面积,同时也延长了消除时间,使药动学过程变得复杂,因此制定给药方案时应予以考虑。肌肉是鱼类最主要的可食用组织,也是消费者和食品安全管理者所要关注的重中之重,本研究中 DM 在团头鲂肌肉中的最高富集量为(17.69 \pm 6.32) $\mu\text{g/kg}$,低于 DM 的最高残留限量(MRL)30 $\mu\text{g/kg}$ 。马晓燕等^[3]采用不同质量浓度(1.0, 2.0, 3.0, 5.0, 10.0 $\mu\text{g/L}$)的 DM 药浴罗非鱼后,测得其肌肉中 DM 的最高富集量为(8.80 \pm 0.05) $\mu\text{g/kg}$ 。说明 DM 在鱼体肌肉中的蓄积能力不强,且不同品种鱼类肌肉对 DM 的富集能力不同。本研究中,DM 在皮肤中的最高富集量为(36.73 \pm 26.54) $\mu\text{g/kg}$,远高于肌肉组织。

3.3 DM 在团头鲂体内的消除规律

从 DM 在各组织中的消除半衰期来看,由大到小的顺序依次是肝脏>肌肉=皮肤>鳃>胆,由此可知,DM 在肝脏中消除的时间最长,可能因为肝脏是鱼体主要的解毒器官^[26],DM 通过肝脏进行代谢转化,从而排出体外起到解毒的作用。目前,我国对水产品中 DM 的监控主要为肌肉组织,从试验结果可以看出,DM 容易在皮肤组织中蓄积,且蓄积浓度相对较高,因此可将皮肤和肌肉一起作为靶组织来进行检测。DM 在团头鲂各组织中的残留随时间的推移而逐渐降低,血浆、肝脏和鳃组织中的 DM 含量在药浴 12 h 后急剧降低,84 h 后各组织均降至

(14.37 ± 11.65) $\mu\text{g}/\text{kg}$ 以下,这远低于 DM 的 MRT($30 \mu\text{g}/\text{kg}$);而后各组织中的 DM 含量变化较小,持续时间较长,药浴后 32 d 在大部分组织中仍有检出,但含量较低,这与马晓燕等^[3]报道的罗非鱼肌肉中 DM 的消除规律较一致。由消除规律可以看出,团头鲂的大部分组织在消除前期阶段对 DM 的消除较快,而在消除后期阶段,其消除明显变慢。此外,DM 除了可以在生物体中代谢外,也可以在环境中降解,且易受环境条件的影响,不同环境条件下其降解速率不同,环境中的底泥、生物、pH 等都是其主要影响因子。由本试验结果可知,高浓度的 DM 在水中极易降解,而低浓度 DM 则存在较长时间,这与冷春梅等^[27]的结果一致,因此,自然水体中很少会存在高浓度的 DM。

总之,DM 在团头鲂体内吸收分布迅速,鳃、血浆和肝脏对 DM 的富集能力较强,胆的富集能力较弱;DM 的消除速率随时间的推移而逐渐降低,84 h 后各组织均降至 MRT($30 \mu\text{g}/\text{kg}$)以下,而低含量的 DM 在团头鲂体内则可以维持较长时间,药浴 32 d 后在皮肤、肝脏、鳃及肌肉组织中仍有检出。

[参考文献]

- [1] 耿文奎,杨玉英. 溴氰菊酯毒性研究现状 [J]. 广西预防医学, 1996,2(5):308-310.
Geng W K, Yang Y Y. The research status of the toxicity of deltamethrin [J]. Guangxi Journal of Preventive Medicine, 1996,2(5):308-310.
- [2] 王继英,傅承光. 羊组织中溴氰菊酯残留量的测定 [J]. 分析测试技术与仪器, 1997,3(2):98-102.
Wang J Y, Fu C G. The determination of deltamethrin residus in sheep tissues [J]. Analysis and Testing Technology and Instruments, 1997,3(2):98-102.
- [3] 马晓燕,吴伟,瞿建宏,等. 气相色谱法测定罗非鱼体内溴氰菊酯残留 [J]. 浙江海洋学院学报(自然科学版), 2006,25(4):390-396.
Ma X Y, Wu W, Qu J H, et al. Residue of Deltamethrin in fish samples determined by Gas Chromatography [J]. Journal of Zhejiang Ocean University(Natural Science), 2006,25(4):390-396.
- [4] 陈家长,冷春梅,胡庚东,等. 溴氰菊酯连续暴露对罗非鱼血清乙酰胆碱酯酶活性的影响 [J]. 生态学杂志, 2008,27(5):776-779.
Chen J Z, Leng C M, Hu G D, et al. Effects of continuous exposure to deltamethrin on the acetylcholinesterase activity in blood serum of tilapia [J]. Chinese Journal of Ecology, 2008,27(5):776-779.
- [5] Wauchope R D, Buttler T M, Hornsby A G, et al. The SCS/ARS/CES pestieides properties database for environmental decision making [J]. Rev Environ Contarn Toxicico, 1992, 123:1-155.
- [6] 梁鸿唐,程沃明. 用溴氰菊酯防治孔雀虱的试验 [J]. 广西畜牧兽医, 2000,16(2):34.
Liang H T, Cheng W M. The study on preventing the *Kongque louse* by deltamethrin [J]. Guangxi Journal of Animal Husbandry& Veterinary Medicine, 2000,16(2):34.
- [7] 涂滂,俞泽溪. 溴氰菊酯防治鱼类甲壳动物寄生虫病的探讨 [J]. 江西水产科技, 2000,98(2):22-26.
Tu L, Yu Z X. The study on prevention and conrtol of parasitism of fish crustacean by deltamethrin [J]. Journal of Fishery Science and Technology, 2000,98(2):22-26.
- [8] 迟恒,李健,王吉桥,等. 水环境中低浓度溴氰菊酯的降解规律及其动力学研究 [J]. 农业环境科学学报, 2007,26(5):1725-1728.
Chi H, Li J, Wang J Q, et al. Residual elimination and kinetics of low concentration of deltamethrin in water [J]. Journal of Agro-Environment Science, 2007,26(5):1725-1728.
- [9] 葛筱琴,高钰一,沈美芳,等. 水体中溴氰菊酯残留检测方法及其降解规律的研究 [J]. 水产养殖, 2007,28(5):1-4.
Ge X Q, Gao Y Y, Shen M F, et al. Research on determination method of deltamethrin residues in water and its degradation regulation [J]. Journal of Aquaculture, 2007,28(5):1-4.
- [10] 梅立永,赵智杰,尹璇,等. 拟除虫菊酯农药环境行为与归趋模拟 [J]. 农业环境科学学报, 2007,26(6):2316-2322.
Mei L Y, Zhao Z J, Yin X, et al. Simulating the environment behavior and fate of synthetic pyrethroids [J]. Journal of Agro-Environment Science, 2007,26(6):2316-2322.
- [11] 贾凤燕,王文文,刘振波,等. 乙腈-无机盐-水双水相体系萃取-气相色谱法检测鱼肉中拟除虫菊酯 [J]. 化学学报, 2012,70(4):485-491.
Jia F Y, Wang W W, Liu Z B, et al. Extraction and detection of pyrethroids pesticides in fish using Acetonitrile-Salt-H₂O system coupled with gas chromatography [J]. Acta Chimica Sinica, 2012,70(4):485-491.
- [12] 姬晓灵,屈爱桃,汪岭,等. 黑木耳中 7 种拟除虫菊酯类农药残留的气相色谱法检测方法 [J]. 现代预防医学, 2010,37(7):1346-1348.
Ji X L, Qu A T, Wang L, et al. An analytical method for the multi-residue determination of 7 pyrethroids pesticides in *Auricularia aurlicula* by gas chromatography [J]. Modern Preventive Medicine, 2010,37(7):1346-1348.
- [13] 阮伟达,叶文迪,黄剑锋. 罗非鱼中拟除虫菊酯类农药检测净化条件的优化 [J]. 海峡预防医学杂志, 2015,21(1):10-13.
Ruan W D, Ye W D, Huang J F. The optimization of purification method for detecion of pyrethriod pesticide residual in tilapia [J]. Strait Prevention Medicine, 2015,21(1):10-13.
- [14] 史晓梅,陈士恒,章晴,等. 固相萃取-气相色谱法测定玉米中有机氯和拟除虫菊酯农药残留量 [J]. 食品安全质量检测学报, 2015,6(4):1122-1126.
Shi X M, Chen S H, Zhang Q, et al. Simultaneous determination of organic chlorine and pyrethroid pesticides residues in

- corn by solid phase extraction-gas chromatography [J]. Journal of Food Safety and Quality, 2015, 6(4): 1122-1126.
- [15] 彭方,王茜,王兰. 溴氰菊酯对多刺裸腹蚤急性毒性及解毒代谢的影响 [J]. 水生生物学报, 2013, 37(3): 530-533.
Peng F, Wang Q, Wang L. Effect of deltamethrin on acute toxicity and detoxification metabolism in water flea, *Moina macrocopa* [J]. Acta Hydrobiologica Sinica, 2013, 37(3): 530-533.
- [16] 姜双城. 溴氰菊酯对菲律宾蛤仔急性毒性研究 [J]. 福建水产, 2010, 124(1): 41-45.
Jiang S C. The acute toxicity study of deltamethrin to *Philippinarum ruditapes* [J]. Journal of Fujian Fisheries, 2010, 124(1): 41-45.
- [17] 胡琼予. 溴氰菊酯对鲫的毒性作用研究及残留检测 [D]. 四川雅安: 四川农业大学, 2007.
Hu Q Y. The study on the toxicity of deltamethrin on *Carassius auratus* and the residue detection [D]. Ya'an, Sichuan: Sichuan Agricultural University, 2007.
- [18] 高泽霞,王卫民,蒋恩明,等. 团头鲂种质资源及遗传改良研究进展 [J]. 华中农业大学学报, 2014, 33(3): 138-144.
Gao Z X, Wang W M, Jiang E M, et al. Research advances on germplasm resources and genetic improvement of blunt snout bream (*Megalobrama amblycephala*) [J]. Journal of Huazhong Agricultural University, 2014, 33(3): 138-144.
- [19] 刘丽,肖维,黄华伟,等. 气相色谱法测定渔业水体中 6 种拟除虫菊酯类药物的残留量 [J]. 中国渔业质量与标准, 2013(2): 57-64.
Liu L, Xiao W, Huang H W, et al. The determination of six kinds of synthetic pyrethroids in aquatic water by gas chromatography [J]. Chinese Fishery Quality and Standards, 2013(2): 57-64.
- [20] 叶玫,姜琳琳,余颖,等. 气相色谱法测定水产养殖区表层沉积物中拟除虫菊酯残留量 [J]. 渔业科学进展, 2012, 33(5): 109-115.
Ye M, Jiang L L, Yu Y, et al. Determination of pyrethroids residue in surface sediment from aquaculture area by gas chromatography [J]. Progress in Fishery Sciences, 2012, 33(5): 109-115.
- [21] 林丽聪. 溴氰菊酯在欧洲鳗体内药代动力学研究 [J]. 福建水产, 2008, 117(2): 33-36.
Lin L C. Pharmacokinetics of Deltamethrin in European eels (*Anguilla anguilla*) [J]. Journal of Fujian Fisheries, 2008, 117(2): 33-36.
- [22] Hally B A, Nessel R J, Lu A Y H. Ivermectin and abamectin [M]. New York: Springer, 1989: 162-200.
- [23] 赵冬冬. 氯氰菊酯在鲫鱼组织中的残留分布及对鱼体 CAT 活性的诱导研究 [D]. 武汉: 华中农业大学, 2011.
Zhao D D. Study on residues dispersion of Cypermethrin and induction of cat in *Carassus auratus* [D]. Wuhan: Huazhong Agricultural University, 2011.
- [24] 黄向丽. 草鱼体内菊酯类杀虫剂的残留和消除规律研究 [D]. 重庆: 西南大学, 2009.
Huang X L. The studies on determination of pyrethroid pesticides residues and their residual eliminations in Grass carp [D]. Chongqing: Southwest University, 2009.
- [25] 邢丽红,孙伟红,冷凯良,等. 阿维菌素在鲈组织中的富集及消除规律研究 [J]. 中国渔业质量与标准, 2013, 3(4): 63-69.
Xing L H, Sun W H, Leng K L, et al. Accumulation and elimination rules of Avermectin in Perch [J]. Chinese Fishery Quality and Standards, 2013, 3(4): 63-69.
- [26] 秦改晓,徐文彦,艾晓辉,等. 阿维菌素在草鱼体内的药物代谢动力学研究 [J]. 西北农林科技大学学报(自然科学版), 2012, 40(8): 13-20.
Qin G X, Xu W Y, Ai X H, et al. Studies on pharmacokinetics of Avermectin in grass carp (*Ctenopharyngodon idellus*) [J]. Journal of Northwest A&F university (Nat Sci Ed), 2012, 40(8): 13-20.
- [27] 冷春梅,陈家长,胡庚东,等. 溴氰菊酯在水环境中的降解及对三种水生动物的毒性 [J]. 环境保护科学, 2009, 35(4): 43-53.
Leng C M, Chen J Z, Hu G D, et al. Deltamethrin degradation in water environment and its toxicity to three aquatic animals [J]. Environment Protection Science, 2009, 35(4): 43-53.