

基于代谢笼试验的鸡粪中雌激素排放特征研究

梁紫薇, 李艳, 胡嘉梧, 贺德春, 邹梦遥, 杨莹, 陈冰娜

引用本文:

梁紫薇, 李艳, 胡嘉梧, 等. 基于代谢笼试验的鸡粪中雌激素排放特征研究[J]. [农业环境科学学报](#), 2022, 41(2): 434–440.

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.11654/jaes.2021-0633>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

[上海典型畜禽场周边河流雌激素污染特征研究](#)

袁哲军, 张洪昌, 胡双庆, 沈根祥, 钱晓雍, 王振旗, 朱英, 张玉

农业环境科学学报. 2017, 36(8): 1583–1589 <https://doi.org/10.11654/jaes.2017-0325>

[固定化*Pseudomonas citronellae* SJTE-3菌剂对水中炔雌醇的去除作用](#)

王雁秋, 彭万里, 梁如冰

农业环境科学学报. 2020, 39(8): 1803–1810 <https://doi.org/10.11654/jaes.2020-0277>

[华北地区不同规模畜禽养殖场粪便中抗生素抗性基因污染特征](#)

邹威, 金彩霞, 魏闪, RamasamyRajeshKumar, 周启星

农业环境科学学报. 2020, 39(11): 2640–2652 <https://doi.org/10.11654/jaes.2020-0403>

[不同形态雌激素的环境行为及污染控制](#)

王琳, 陈兴财, 姜晓满, 蒋林树, 李艳霞, 张雪莲, 胡柏杨, 张晟玮

农业环境科学学报. 2021, 40(8): 1623–1634 <https://doi.org/10.11654/jaes.2020-1386>

[天津市畜禽粪污处理工艺对抗生素抗性基因的去除效果](#)

闫雷, 丁工尧, 杨凤霞, 阮蓉, 韩秉君, 支苏丽, 张克强

农业环境科学学报. 2021, 40(9): 2021–2030 <https://doi.org/10.11654/jaes.2020-1280>



关注微信公众号, 获得更多资讯信息

梁紫薇, 李艳, 胡嘉梧, 等. 基于代谢笼试验的鸡粪中雌激素排放特征研究[J]. 农业环境科学学报, 2022, 41(2): 434–440.

LIANG Z W, LI Y, HU J W, et al. Emission characteristics of estrogens in chicken manure based on the metabolic cage test[J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2022, 41(2): 434–440.



开放科学 OSID

基于代谢笼试验的鸡粪中雌激素排放特征研究

梁紫薇^{1,2}, 李艳^{2,3}, 胡嘉梧², 贺德春^{2*}, 邹梦遥^{1*}, 杨莹¹, 陈冰娜¹

(1. 仲恺农业工程学院资源与环境学院, 广州 510225; 2. 生态环境部华南环境科学研究所农村环境研究团队, 广州 510530; 3. 重庆三峡学院环境与化学工程学院, 重庆 404199)

摘要:为研究集约化养殖禽类粪便中雌激素的排放特征,以四川省某养殖场的肉鸡为研究对象,采用代谢笼采样方式采集4个季节的粪便样品,用固相萃取-高效液相色谱-串联质谱法(SPE-UHPLC-MS/MS)检测粪便样品中6种雌激素的含量。结果表明:肉鸡粪中6种雌激素E1、17 α -E2、17 β -E2、E3、17 α -EE2和DES的检出率分别为100%、81%、91%、65%、22%和18%,含量范围分别为4.51~1 321.55、ND~269.23、ND~307.62、ND~60.35、ND~12.18 $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ 和ND~10.31 $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$,E1和17 β -E2是肉鸡粪中主要的雌激素。采用雌二醇当量(EEQ)评估肉鸡粪中雌激素活性,所有样品EEQ的范围为10.80~1 080.22 $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$,6种雌激素对EEQ贡献值由大到小依次为E1>17 β -E2>17 α -E2>E3>17 α -EE2>DES,每羽肉鸡通过粪便排放雌激素的日平均总量为43.75 $\mu\text{g}\cdot\text{d}^{-1}$,EEQ为28.66 $\mu\text{g}\cdot\text{d}^{-1}$ 。差异显著性分析结果显示,同一养殖场饲养肉鸡的粪便中雌激素含量无显著差异,但不同批次的肉鸡粪便中雌激素的种类和含量均存在显著差异,即夏季和秋季饲养批次肉鸡粪便中雌激素含量高于春季和冬季饲养批次,表明即使在相同品种、相同喂养方式下,不同季节喂养的肉鸡雌激素分泌与排放量也存在较大差异。因此,在研究家禽粪便雌激素排放负荷时,应充分考虑采样时间对结果的影响。

关键词:鸡粪;雌激素;排放特征;雌二醇当量

中图分类号:X713 文献标志码:A 文章编号:1672-2043(2022)02-0434-07 doi:10.11654/jaes.2021-0633

Emission characteristics of estrogens in chicken manure based on the metabolic cage test

LIANG Ziwei^{1,2}, LI Yan^{2,3}, HU Jiawu², HE Dechun^{2*}, ZOU Mengyao^{1*}, YANG Ying¹, CHEN Bingna¹

(1. College of Resource and Environment, Zhongkai University of Agriculture and Engineering, Guangzhou 510225, China; 2. Rural Environmental Research Group, South China Institute of Environmental Sciences, Ministry of Ecology and Environment, Guangzhou 510530, China; 3. College of Environmental and Chemical Engineering, Chongqing Three Gorges University, Chongqing 404199, China)

Abstract: To investigate the emission characteristics of estrogens in manures from intensive poultry farming, the contents of six estrogens in broiler manure samples collected by metabolic cage sampling for four seasons from a chicken farm in Sichuan Province were determined by SPE-UHPLC-MS/MS. The results showed that the detection rates of natural estrogens E1, 17 α -E2, 17 β -E2, E3, 17 α -EE2, and DES in broiler manures were 100%, 81%, 91%, 65%, 22%, and 18%, with concentration ranges of 4.51~1 321.55, ND~269.23, ND~307.62, ND~60.35, ND~12.18 $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$, and ND~10.31 $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$, respectively, indicating that E1 and 17 β -E2 were the primary estrogens in broiler manures. Estradiol equivalent (EEQ) was used to evaluate estrogen activity in broiler manure. The EEQ of all samples ranged from 10.80 $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ to 1 080.22 $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$, and the relative contributions of the six estrogens to EEQ were: E1>17 β -E2>17 α -E2>E3>17 α -EE2>DES. The average daily emission of total estrogens for each broiler was 43.75 $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ with an EEQ of 28.66 $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$. The significance analysis

收稿日期:2021-06-01 录用日期:2021-08-23

作者简介:梁紫薇(1994—),女,广东电白人,硕士研究生,从事新型污染物控制技术研究。E-mail:yp15723@163.com

*通信作者:贺德春 E-mail:hedechn@scies.org; 邹梦遥 E-mail:mengyaozou@zhku.edu.cn

基金项目:国家重点研发计划项目(2017YFD0800701);中央级公益性科研院所基本科研业务专项项目(PM-zx703-202002-052)

Project supported: The National Key Research and Development Program of China (2017YFD0800701); Special Project for Basic Scientific Research Business of Central Public Welfare Research Institutions (PM-zx703-202002-052)

results showed that there was no significant difference in the concentration of estrogens in the manures of broilers fed on the same farm, but significant differences were observed in the type and concentration of estrogens in the manures of broilers fed in different batches. The concentrations of estrogens in the manures of broilers fed in summer and autumn were higher than those of broilers fed in spring and winter, which indicated that the estrogen concentration excreted by the broilers fed in different seasons was different, even for the same species and feeding mode. Therefore, the effect of sampling time on the experimental results should be fully considered when studying the excretion loads of estrogen in poultry feces.

Keywords: chicken manure; estrogen; emission characteristic; estradiol equivalent

环境雌激素是一类具有较强内分泌干扰性的化合物,包括雌酮(E1)、雌二醇(E2)、雌三醇(E3)等内源性雌激素和17 α -乙炔基雌二醇(17 α -EE2)、己烯雌酚(DES)等人工合成雌激素,以及其他具有雌激素效应的化合物^[1-3]。雌激素因其较强的生态与健康危害,已成为一类备受学术界关注的有机污染物^[4-5]。据报道畜禽粪污是环境雌激素的重要来源之一^[6-8],有文献表明,畜禽粪污约贡献了环境雌激素总量的90%^[9-10];2010年,我国畜禽雌激素总排放量为2 046 t,其中,E1、E2和E3的年总排放量分别为71.7、23.5 t和1 185.0 t,对环境中E1、E2(17 β -E2)和E3的贡献率分别高达93%、94%和98%^[11]。另据估算,2015年全球畜禽粪污中E1、E2和E3的总排放量分别为531、206 t和13 225 t,其中鸡粪中E1、E2、E3的总排放量分别为6.1、25.5、16.9 t^[12]。

近年来,我国畜禽养殖规模化、集约化发展趋势明显,家禽粪污更趋向于集中排放,由家禽养殖导致局部地区的环境雌激素污染问题也更加严峻。当前,国内有关畜禽粪便雌激素的研究主要集中在猪粪和牛粪方面^[13-17],关于家禽粪便中雌激素的排放特征研究较少,而且多数是基于单次采样或混合采样而开展的,研究对象多为蛋鸡且样品数量较为有限^[18-25],未能考虑不同家禽个体和不同季节经粪便排放的雌激素含量的差异,据此含量特征测算的雌激素排放量与实际可能存在差异,不利于科学准确地进行畜禽粪便中雌激素环境污染的治理与防控。我国肉鸡养殖量大,开展肉鸡粪便雌激素排放特征研究具有重要意义。

本文以肉鸡为研究对象,系统研究肉鸡不同个体、不同季节排放粪便中4种内源性雌激素(E1、17 α -E2、17 β -E2、E3)和2种人工合成雌激素(17 α -EE2、DES)的含量与组成特征,以期科学准确地测算禽类粪便雌激素排放量、制定合理的污染与风险防控对策等提供科学依据。

1 材料与方法

1.1 试验地点与试验动物

本试验在四川省成都市某肉鸡养殖场进行,试验对象为同一品种且日龄相同的肉鸡,体质量范围在1.36~1.51 kg。试验分4批次进行,每个季节分别饲养一批,试验过程中的饲料、饮水、环境与该养殖场常规饲养管理条件一致。试验期间当地平均气温范围为冬季4~10℃、春季14~22℃、夏季20~30℃和秋季14~20℃。

1.2 粪便收集

采用代谢笼定位饲养,在养殖场内挑选25只日龄相同、体质量相近的肉鸡,按每笼5只为一组进行喂养,笼下铺设薄膜以方便收集肉鸡粪便。

1.3 样品采集与保存

采样时间与频率:喂养试验分别在2018年12月(冬季)、2019年3月(春季)、6月(夏季)和10月(秋季)开展,每个批次连续监测3 d。

样品采集:每日上午分别收集每组代谢笼肉鸡排泄的所有新鲜粪便样品,称量并记录粪便质量,每组鸡粪样品均分装成3份,其中2份样品加入4 mol·L⁻¹的稀硫酸,用于测定雌激素,1份样品不加稀硫酸,用于测定含水率。样品用密封袋装好,4 h内运回实验室,放入-20℃冰箱冷冻保存。

1.4 样品预处理与检测方法

称取经真空冷冻干燥且研磨过筛(20目)后的肉鸡粪便样品(1.00 $\pm$ 0.01)g,采用本团队优化的畜禽粪便雌激素测定方法(同位素内标-高效液相色谱-串联质谱法)进行样品预处理和仪器分析检测^[26]。

1.5 数据处理及分析

1.5.1 雌激素活性当量计算方法

雌激素的环境污染风险在于其内分泌干扰作用,即雌激素活性。为更直观有效地反映目标雌激素的雌激素效应,以雌二醇(17 β -E2)的内分泌干扰作用

大小为基准,采用 17β -E2当量(EEQ)来表征鸡粪中各雌激素的活性大小,以评价其环境风险^[10,27]。计算公式^[28]为:

$$EEQ_i = MEC_i \times EEF_i \quad (1)$$

式中: MEC_i 为各目标雌激素的实测含量, $\mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$; EEF_i 为各目标雌激素的 17β -E2当量因子,E1、 17α -E2、 17β -E2、E3、 17α -EE2和DES的 EEF 分别为0.59、0.125、1、0.26、8.71和8.0^[10,29-30]。

1.5.2 样品含水率计算

根据《复混肥料中游离水含量的测定 真空烘箱法》(GB/T 8576—2010),求得粪便样品的含水率 H ,计算公式为:

$$H = \frac{m - m_1}{m} \times 100\% \quad (2)$$

式中: m 为干燥前样品的质量,g; m_1 为干燥后样品的质量,g。

1.5.3 雌激素日排放量计算方法

通过每羽肉鸡粪便日平均产生量(WWs)和粪便样品中雌激素含量计算每羽肉鸡雌激素日排放量,计算公式为:

$$Q_i = MEC_i \times WWs \times (1 - H) \quad (3)$$

式中: Q_i 为各雌激素日排放量, $\mu\text{g} \cdot \text{d}^{-1}$; MEC_i 为各目标雌激素的实测含量, $\mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$; WWs 为每羽肉鸡粪便日平均产生量, $\text{kg} \cdot \text{d}^{-1}$; H 为肉鸡粪便含水率,%。

1.5.4 数据处理及统计学分析

采用Excel 2010整理数据,采用SPSS Statistics 20.0中单因素方差分析(ANOVA)和Tukey HSD事后检验对数据进行差异显著性分析,使用Originlab 2018制图。

2 结果与讨论

2.1 肉鸡粪中雌激素的含量特征

在调查的6种雌激素中,与人工合成雌激素

(17α -EE2、DES)相比,内源性雌激素(E1、 17α -E2、 17β -E2、E3)具有较高的检出率和检出含量(表1)。雌激素检出率从大到小依次为 $E1 > 17\beta$ -E2 $> 17\alpha$ -E2 $> E3 > 17\alpha$ -EE2 $> DES$; E1、 17α -E2和 17β -E2的平均含量分别为280.94、62.02 $\mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$ 和72.02 $\mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$,中位值分别为95.88、10.84 $\mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$ 和21.45 $\mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$; E3、 17α -EE2和DES的平均含量分别为4.15、1.84 $\mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$ 和1.30 $\mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$,E3的中位值低于定量限(LOQ), 17α -EE2和DES的中位值均为未检出(ND)。肉鸡粪便中主要以内源性雌激素E1、 17α -E2和 17β -E2为主,表明肉鸡养殖中的雌激素排放主要来源于内源性雌激素。

不同研究报道的鸡粪样品中雌激素种类与浓度均差异较大(表2)。相比于其他研究,本研究样品中E1含量远高于其他研究, 17β -E2的含量水平相差较小^[20,24,31-32],E3的含量水平与胡双庆等的结果相当^[19,22,24],但远低于LI等的研究结果^[20-21,32]。上述差异可能是由于试验对象的品种、年龄、性别、生长阶段、作息习惯、饲料、进食量以及生长繁殖情况等不同造成的^[31]。本研究及其他学者的研究均表明鸡粪中人工合成雌激素的检出浓度与检出率较低,说明人工合成雌激素在肉鸡养殖场使用较少。

2.2 肉鸡粪便中雌激素的季节排放特征

肉鸡粪便样品中6种雌激素的总含量由大到小依次为夏季>秋季>春季>冬季(表3)。4种内源性雌激素E1、 17α -E2、 17β -E2和E3在夏季具有较高的检出率和检出含量,其检出率均为100%,含量均值分别为854.91、184.87、154.53 $\mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$ 和9.96 $\mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$;冬季雌激素的检出率和检出含量最低,除E1的检出率为100%外, 17α -E2、 17β -E2和E3分别为40%、67%和37%,含量均值分别为13.23、1.59、4.98 $\mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$ 和0.57 $\mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$;人工合成雌激素(17α -EE2、DES)在4个季节样品中的检出率和检出含量均较低。夏、秋季样品中测得的雌激素主要以E1、 17α -E2和 17β -E2为

表1 肉鸡粪样品中6种雌激素含量(干质量, $n=120$)

Table 1 6 estrogens content in broiler feces (dry weight, $n=120$)

雌激素 Estrogen	范围 Range/($\mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$)	中位值 Median/($\mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$)	平均值 Mean/($\mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$)	标准差 SD/($\mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$)	检出率 Recall factor/%
E1	4.51~1 321.55	95.88	280.94	51.15	100
17α -E2	ND~269.23	10.84	62.02	10.99	81
17β -E2	ND~307.62	21.45	72.02	10.61	91
E3	ND~60.35	<LOQ	4.15	1.22	65
17α -EE2	ND~12.18	ND	1.84	0.37	42
DES	ND~10.31	ND	1.30	0.25	35

注:ND表示未检出;<LOQ表示低于定量限。下同。

Note: ND means no detection; <LOQ means below the limit of quantitation. The same below.

表2 不同文献报道的鸡粪中6种雌激素含量比较($\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$)Table 2 Comparison of 6 estrogens content in chicken manure reported in different literatures($\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$)

地区 District	样品 Samples	E1	17 α -E2	17 β -E2	E3	17 α -EE2	DES	参考文献 Reference
山西	肉鸡($n=3$)	21.1~22.1	—	11.3~15.7	12.9~14.5	ND	—	[18]
上海	公肉鸡($n=6$)	ND	—	ND	ND	ND	—	[31]
浙江	蛋鸡($n=6$)	2.3~27.0	—	22.6~73.0	ND~12.9	ND~2.0	—	[31]
上海	母肉鸡($n=3$)	9.4~12.8	—	52.2~60.2	11.8~13.1	ND	—	[31]
	抱卵鸡($n=3$)	ND	—	ND	ND	ND	—	[31]
	鸡($n=1$)	26.6	—	191	8.71	5.19	1.23	[19]
江苏	蛋鸡($n=4$)	—	—	38.62	289.84	14.28	—	[20]
	鸡($n=18$)	—	—	2.27~107.95	292.78~1 387.25	ND~18.18	—	[21]
	母鸡($n=12$)	—	—	38.6	298.8	14.3	—	[32]
河北	鸡($n=20$)	28.72	—	3.95	7.4	ND	—	[22]
美国	家禽($n=1$)	44.2	92.7	149.8	—	ND	—	[23]
	家禽($n=4$)	54.15 $\pm$ 18.60	2.68 $\pm$ 0.22	4.98 $\pm$ 0.88	8.13 $\pm$ 1.75	—	—	[24]
	鸡($n=12$)	41.4	—	—	—	—	—	[33]
四川	肉鸡($n=120$)	280.94 $\pm$ 51.15	62.02 $\pm$ 10.99	72.02 $\pm$ 10.61	4.15 $\pm$ 1.22	1.84 $\pm$ 0.37	1.30 $\pm$ 0.25	本文

注:“—”表示无相关数据。

Note:“—” means no relevant data.

主,春、冬季则主要以E1和17 β -E2为主。3种检出含量与检出率较高的内源性雌激素在不同季节采集的肉鸡粪便间存在明显差异(表3)。夏季肉鸡粪便中E1含量显著高于春、秋和冬季;夏季和秋季肉鸡粪便中17 α -E2和17 β -E2的含量显著高于春季和冬季。

有研究表明,畜禽分泌和排泄雌激素受季节性环境条件(温度、湿度、光照、气压等)变化的影响。鸡舍舒适的环境温度为18~26℃,夏天温度过高时,畜禽易受热应激影响而导致内分泌机能发生紊乱、能量消耗增大、新陈代谢减缓等,使得体内雌激素分泌异常,该热应激影响会持续到秋季^[34-37]。不同季节肉鸡排泄的雌激素量存在显著差异,在开展家禽养殖中雌激素的排放量测算时,应开展不同季节的家禽粪便中雌激素的排放特征调查,避免单次采样或某一时间段的试验导致测算结果的偏高或偏低。

2.3 试验肉鸡间雌激素含量差异性比较

为考察试验动物间雌激素排放情况的差异,使用单向方差分析(ANOVA)对5组试验肉鸡粪便中4种检出率较高的内源性雌激素含量结果进行差异显著性分析,结果如表4所示。4种目标雌激素含量的组间 P 值均在0.35以上,即试验动物间的粪便雌激素排放含量不具有显著性差异($P>0.05$),表明同批次喂养的肉鸡个体间的粪便雌激素含量总体相似,无显著差异,生长环境相同且进食相同的肉鸡在内源性雌激素排放方面的个体间差异可以忽略。

2.4 雌激素活性分析

雌激素活性通常可用来表征样品中总雌激素的当量(总EEQ)。试验结果表明(图1),春、夏、秋和冬季肉鸡粪样品中雌激素活性范围分别为39.27~146.30、474.88~1 080.22、180.32~378.44 $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ 和

表3 不同季节肉鸡粪便中的雌激素含量分布(干质量, $n=30$)Table 3 Concentration distributions of estrogen in broiler manures in different seasons(dry weight, $n=30$)

季节 Season	E1		17 α -E2		17 β -E2		E3		17 α -EE2		DES	
	含量 Concentration/ ($\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$)	检出率 Detection rate/%	含量 Concentration/ ($\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$)	检出率 Detection rate/%	含量 Concentration/ ($\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$)	检出率 Detection rate/%	含量 Concentration/ ($\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$)	检出率 Detection rate/%	含量 Concentration/ ($\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$)	检出率 Detection rate/%	含量 Concentration/ ($\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$)	检出率 Detection rate/%
春季	82.73 $\pm$ 11.36b	100	6.57 $\pm$ 0.86c	100	14.53 $\pm$ 2.37b	100	2.79 $\pm$ 1.78ab	67	0.62 $\pm$ 0.12a	27	0.62 $\pm$ 0.12a	20
夏季	854.91 $\pm$ 64.08a	100	184.87 $\pm$ 11.78a	100	154.53 $\pm$ 17.41a	100	9.96 $\pm$ 3.67a	100	3.21 $\pm$ 1.09a	40	1.95 $\pm$ 0.56a	40
秋季	118.84 $\pm$ 11.44b	100	51.58 $\pm$ 3.51b	100	135.03 $\pm$ 10.73a	100	2.84 $\pm$ 1.64ab	70	1.97 $\pm$ 0.75a	40	1.80 $\pm$ 1.00a	30
冬季	13.23 $\pm$ 2.52b	100	1.59 $\pm$ 0.91c	40	4.98 $\pm$ 1.58b	67	0.57 $\pm$ 0.11b	37	1.60 $\pm$ 0.49a	40	1.00 $\pm$ 0.15a	47

注:同列不同小写字母表示季节间差异显著($P<0.05$)。Note: Different lowercase letters in the same column indicate significant seasonal differences at $P<0.05$ levels.

表4 肉鸡雌激素排放个体间差异分析($n=60$)
Table 4 Analysis of individual differences for estrogen emissions in broilers($n=60$)

雌激素 Estrogen	样品 Sample	S1	S2	S3	S4	S5
E1	S1					
	S2	0.95				
	S3	1.00	0.96			
	S4	0.97	1.00	0.98		
	S5	0.99	1.00	1.00	1.00	
17 α -E2	S1					
	S2	0.98				
	S3	1.00	0.97			
	S4	1.00	1.00	1.00		
	S5	1.00	0.97	1.00	0.99	
17 β -E2	S1					
	S2	0.96				
	S3	1.00	0.89			
	S4	0.99	1.00	0.95		
	S5	0.99	1.00	0.96	1.00	
E3	S1					
	S2	1.00				
	S3	1.00	1.00			
	S4	0.38	0.37	0.35		
	S5	0.99	0.99	0.99	0.64	

10.80~71.66 $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$, 平均值分别为 (76.08 $\pm$ 9.92)、(728.19 $\pm$ 39.52)、(243.89 $\pm$ 21.62) $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ 和 (35.10 $\pm$ 2.60) $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ 。夏季鸡粪样品中的总EEQ最高,是平均含量的2.7倍,秋季次之,冬季最低;夏季样品的总EEQ主要由E1和17 β -E2贡献,占比分别为69%和21%;秋季样品的总EEQ主要由17 β -E2和E1贡献,占比分别为55%和29%;冬季样品的总EEQ相对较低,主要由人工合成雌激素贡献,17 α -EE2和DES的占比分别为40%和23%。从4个季节样品来看,平均

总EEQ为(270.81 $\pm$ 64.07) $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$,主要由E1和17 β -E2贡献,占比分别为58%和29%。虽然人工合成雌激素具有较高的雌激素活性,但本研究中鸡粪样品中的雌激素活性仍主要由内源性雌激素贡献,表明肉鸡养殖中的雌激素环境风险主要来源于内源性雌激素的排放。

2.5 肉鸡粪便中雌激素日排放量

根据本试验研究结果,该鸡场每羽肉鸡日平均产粪量为0.14 $\text{kg}\cdot\text{d}^{-1}$,粪便平均含水率为76.7%,参照公式(3)计算每羽肉鸡粪便中6种雌激素日排放量,结果见表5。每羽肉鸡粪便中6种雌激素的全年日平均排放总量为43.75 $\mu\text{g}\cdot\text{d}^{-1}$,总EEQ为28.66 $\mu\text{g}\cdot\text{d}^{-1}$,高于ZHANG等^[31]估算的EEQ(0.66~12.78 $\mu\text{g}\cdot\text{d}^{-1}$),但本研究春季和冬季的日平均排放总EEQ总量与其相近,这种差异可能是由于估算方法及基础数据差异造成的。以上结果表明估算雌激素的日均排放量应将季节性差异等环境因素考虑在内,从而使排放估算值更具代表性。

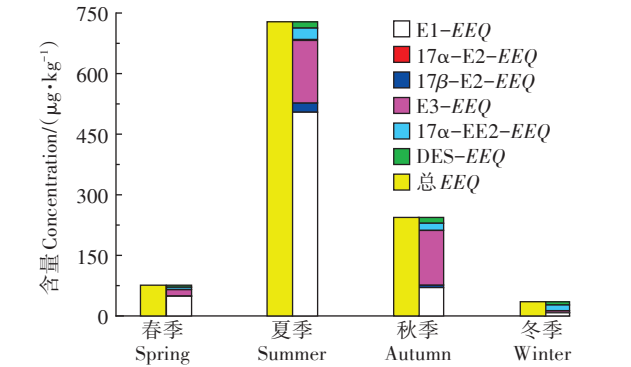


图1 肉鸡粪便中6种雌激素的EEQ含量分布(干质量, $n=30$)
Figure 1 The distribution of EEQ contents for 6 estrogens in the feces of broilers(dry weight, $n=30$)

表5 肉鸡粪便中雌激素日排放量(干质量, $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$, $n=30$)
Table 5 Daily estrogen emission in feces of broilers(dry weight, $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$, $n=30$)

雌激素 Estrogen	春季 Spring	夏季 Summer	秋季 Autumn	冬季 Winter	平均值 Mean
E1	8.76 $\pm$ 1.68	90.47 $\pm$ 9.01	12.57 $\pm$ 0.83	1.40 $\pm$ 0.17	28.31 $\pm$ 8.55
17 α -E2	0.73 $\pm$ 0.06	19.57 $\pm$ 1.85	5.46 $\pm$ 0.42	0.17 $\pm$ 0.08	6.48 $\pm$ 1.85
17 β -E2	1.62 $\pm$ 0.19	16.36 $\pm$ 1.83	14.29 $\pm$ 1.04	0.53 $\pm$ 0.13	8.20 $\pm$ 1.72
E3	0.30 $\pm$ 0.20	1.05 $\pm$ 0.39	0.30 $\pm$ 0.17	0.06 $\pm$ 0.01	0.43 $\pm$ 0.14
17 α -EE2	0.66 $\pm$ 0.01	0.34 $\pm$ 0.10	0.21 $\pm$ 0.10	0.17 $\pm$ 0.04	0.20 $\pm$ 0.04
DES	0.07 $\pm$ 0.01	0.21 $\pm$ 0.02	0.19 $\pm$ 0.10	0.11 $\pm$ 0.01	0.14 $\pm$ 0.27
Σ	11.54 $\pm$ 1.68	128.01 $\pm$ 9.37	33.03 $\pm$ 1.58	2.43 $\pm$ 0.21	43.75 $\pm$ 11.66
总EEQ	8.05 $\pm$ 1.05	77.08 $\pm$ 4.18	25.82 $\pm$ 2.29	3.71 $\pm$ 0.27	28.66 $\pm$ 6.78

注:“ Σ ”表示6种雌激素的日排放总量。
Note:“ Σ ” represents the total daily emission of 6 estrogens.

3 结论

(1)肉鸡粪便中主要存在3种内源性雌激素E1、17 α -E2和17 β -E2,人工合成雌激素17 α -EE2和DES的检出量和检出率较低,说明肉鸡养殖中的雌激素排放主要来源于内源性雌激素。

(2)肉鸡粪便中的雌激素种类和含量在不同季节间具有显著差异,夏季普遍较高,秋季次之,冬季最低,在开展家禽养殖雌激素的排放量测算时,应开展不同季节的家禽粪便中雌激素的排放特征调查,避免单次采样或某一时间段的试验导致测算结果的偏高或偏低。

(3)同一养殖场喂养的肉鸡在内源性雌激素排放方面个体间差异不显著,每羽肉鸡每日通过鸡粪排放的6种雌激素总量为43.75 $\mu\text{g}\cdot\text{d}^{-1}$,雌二醇当量为28.66 $\mu\text{g}\cdot\text{d}^{-1}$ 。

参考文献:

- [1] THRUPP T J, RUNNALLS T J, SCHOLZE M, et al. The consequences of exposure to mixtures of chemicals: Something from nothing and a lot from a little when fish are exposed to steroid hormones[J]. *Science of the Total Environment*, 2018, 619: 1482–1492.
- [2] LIANG Y Q, HUANG G Y, ZHEN Z, et al. The effects of binary mixtures of estradiol and progesterone on transcriptional expression profiles of genes involved in hypothalamic–pituitary–gonadal axis and circadian rhythm signaling in embryonic zebrafish (*Danio rerio*) [J]. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 2019, 174: 540–548.
- [3] HAMID H, ESKICIOGLU C. Fate of estrogenic hormones in wastewater and sludge treatment: A review of properties and analytical detection techniques in sludge matrix[J]. *Water Research*, 2012, 46: 5813–5833.
- [4] ADEEL M, SONG X M, WANG Y Y, et al. Environmental impact of estrogens on human, animal and plant life: A critical review[J]. *Environment International*, 2017, 99: 107–119.
- [5] ZHAO X M, GRIMES K L, COLOSI L M, et al. Attenuation, transport, and management of estrogens: A review[J]. *Chemosphere*, 2019, 230: 462–478.
- [6] SHORE L S, SHEMES M. Estrogen as an environmental pollutant[J]. *Topics in Current Chemistry*, 2016, 97(4): 447–448.
- [7] BARTELT-HUNT S L, SNOW D D, KRANZ W L, et al. Effect of growth promotants on the occurrence of endogenous and synthetic steroid hormones on feedlot soils and in runoff from beef cattle feeding operations[J]. *Environmental Science Technology*, 2012, 46(3): 1352–1360.
- [8] QU S, KOLODZIEJ E P, CWIERTNY D M. Photo transformation rates and mechanisms for synthetic hormone growth promoters used in animal agriculture[J]. *Environmental Science & Technology*, 2012, 46(24): 13202–13211.
- [9] HE Y J, WANG T, SUN F F, et al. Effects of veterinary antibiotics on the fate and persistence of 17 β -estradiol in swine manure[J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2019, 375: 198–205.
- [10] 袁哲军, 张洪昌, 胡双庆, 等. 上海典型畜禽场周边河流雌激素污染特征研究[J]. *农业环境科学学报*, 2017, 36(8): 1583–1589.
- YUAN Z J, ZHANG H C, HU S Q, et al. Study on estrogen pollution characteristics of rivers around typical livestock and poultry farms in Shanghai[J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2017, 36(8): 1583–1589.
- [11] ZHANG Q Q, ZHAO J L, YING G G, et al. Emission estimation and multimedia fate modeling of seven steroids at the river basin scale in China[J]. *Environmental Science & Technology*, 2014, 48(14): 7982–7992.
- [12] ZHANG Q Q, XING C, CAI Y Y, et al. How much do human and livestock actually contribute to steroids emission and surface water pollution from past to the future: A global research[J]. *Science of the Total Environment*, 2021, 772: 145558.
- [13] LIU S, YING G G, ZHANG R Q, et al. Fate and occurrence of steroids in swine and dairy cattle farms with different farming scales and wastes disposal systems[J]. *Environmental Pollution*, 2012, 170: 190–201.
- [14] LIU S, YING G G, ZHOU L J, et al. Steroids in a typical swine farm and their release into the environment[J]. *Water Research*, 2012, 46: 3754–3768.
- [15] LI Y X, GAO S Y, LIU S F, et al. Excretion of manure-borne estrogens and androgens and their potential risk estimation in the Yangtze River basin[J]. *Journal of Environmental Sciences*, 2015, 37: 110–117.
- [16] 李艳霞, 韩伟, 林春野, 等. 畜禽养殖过程中雌激素的排放及其环境行为[J]. *生态学报*, 2010, 30(4): 1058–1065.
- LI Y X, HAN W, LIN C Y, et al. Excretion of estrogens in the livestock and poultry production and their environmental behaviors[J]. *Acta Ecologica Sinica*, 2010, 30(4): 1058–1065.
- [17] HILL D, MORRA M J, STALDER T, et al. Dairy manure as a potential source of crop nutrients and environmental contaminants[J]. *Journal of Environmental Sciences*, 2021, 100: 117–130.
- [18] ZHANG H, SHI J, LIU X, et al. Occurrence of free estrogens, conjugated estrogens, and bisphenol A in fresh livestock excreta and their removal by composting in north China[J]. *Environmental Science and Pollution Research International*, 2014, 21: 9939–9947.
- [19] 胡双庆, 袁哲军, 沈根祥. 典型畜禽粪污中雌激素排放特征[J]. *环境科学研究*, 2020, 33(1): 227–234.
- HU S Q, YUAN Z J, SHEN G X. Characteristics of estrogen in typical livestock and poultry waste[J]. *Research of Environmental Sciences*, 2020, 33(1): 227–234.
- [20] 付银杰, 凌婉婷, 董长勋, 等. 应用UE-SPE-HPLC/FLD法检测养殖业畜禽粪便中雌激素[J]. *应用生态学报*, 2013, 24(11): 3280–3288.
- FU Y J, LING W T, DONG C X, et al. Estrogens determination of livestock dung based on UE-SPE-HPLC/FLD[J]. *Chinese Journal of Applied Ecology*, 2013, 24(11): 3280–3288.
- [21] LI C, LI Y, LI X Y, et al. Veterinary antibiotics and estrogen hormones in manures from concentrated animal feedlots and their potential ecological risks[J]. *Environmental Research*, 2021, 198: 110463.

- [22] 徐鹏程. 畜禽粪便中雌激素排放特征及好氧堆肥对雌激素含量的影响[D]. 南京:南京农业大学, 2017:17-23. XU P C. Contamination of estrogens in livestock manure and their fates during aerobic composting process[D]. Nanjing: Nanjing Agricultural University, 2017:17-23.
- [23] ANDALURI G, SURI R P, KUMAR K. Occurrence of estrogen hormones in biosolids, animal manure and mushroom compost[J]. *Environmental Monitoring and Assessment*, 2012, 184(2):1197-1205.
- [24] DUTTA S K, INAMDAR S P, TSO J, et al. Concentrations of free and conjugated estrogens at different landscape positions in an agricultural watershed receiving poultry litter[J]. *Water, Air, & Soil Pollution*, 2012, 223(5):2821-2836.
- [25] LIU N, SHI Y E, LI M Y, et al. Simultaneous determination of four trace estrogens in feces, leachate, tap and groundwater using solid-liquid extraction/auto solid-phase extraction and high-performance liquid chromatography with fluorescence detection[J]. *Journal of Separation Science*, 2015, 38(20):3494-3501.
- [26] 贺德春, 胡嘉梧, 梁紫薇, 等. 同位素内标-高效液相色谱-串联质谱法测定畜禽粪便中6种雌激素[J]. *生态环境学报*, 2021, 30(2):383-390. HE D C, HU J W, LIANG Z W, et al. Determination of six estrogens in livestock manures by isotope internal standard-high performance liquid chromatography coupled with tandem mass spectrometry[J]. *Ecology and Environmental Sciences*, 2021, 30(2):383-390.
- [27] 余薇薇, 杨硕, 杨伦, 等. 养殖场沼液中雌激素排放特征及去除效果研究[J]. *中国环境科学*, 2020, 40(5):2103-2109. YU W W, YANG S, YANG L, et al. Study of emission characteristics and removal efficiency of estrogens in biogas slurry at farm[J]. *China Environmental Science*, 2020, 40(5):2103-2109.
- [28] 刘妹芳, 李艳霞, 张雪莲, 等. 东北三省畜禽养殖类固醇激素排放及其潜在污染风险[J]. *环境科学*, 2013, 34(8):3180-3187. LIU S F, LI Y X, ZHANG X L, et al. Excretion of manure-borne steroid hormones and their potential risk in the three northeast provinces of China[J]. *Environmental Science*, 2013, 34(8):3180-3187.
- [29] GADD J B, TREMBLAY L A, NORTHCOTT G L. Steroid estrogens, conjugated estrogens and estrogenic activity in farm dairy shed effluents[J]. *Environmental Pollution*, 2010, 158(3):730-736.
- [30] SHAPPELL N W, HYNDMAN K M, BARTELL S E, et al. Comparative biological effects and potency of 17 α - and 17 β -estradiol in fat-head minnows[J]. *Aquatic Toxicology*, 2010, 100(1):1-8.
- [31] ZHANG H, SHI J H, LIU X W, et al. Occurrence and removal of free estrogens, conjugated estrogens, and bisphenol A in manure treatment facilities in east China[J]. *Water Research*, 2014, 58:248-257.
- [32] XU P C, ZHOU X, XU D F, et al. Contamination and risk assessment of estrogens in livestock manure: A case study in Jiangsu Province, China[J]. *International Journal of Environmental Research and Public Health*, 2018, 15(1):125.
- [33] BEVACQUA C E, RICE C P, Torrents A, et al. Steroid hormones in biosolids and poultry litter: A comparison of potential environmental inputs[J]. *Science of the Total Environment*, 2011, 409(11):2120-2126.
- [34] HABASHY W S, MILFORT M C, FULLER A L, et al. Effect of heat stress on protein utilization and nutrient transporters in meat-type chickens[J]. *International Journal of Biometeorology*, 2017, 61(12):2111-2118.
- [35] 赵寿培, 李雪梅, 高玉红, 等. 冀中平原奶牛舍温热环境评价及温热参数与生理指标的相关性分析[J]. *中国畜牧兽医*, 2020, 47(11):3510-3517. ZHAO S P, LI X M, GAO Y H, et al. Evaluation of thermal environment of cowshed and correlation analysis between thermal parameter and physiological parameter of dairy cows in central plain of Hebei[J]. *China Animal Husbandry & Veterinary Medicine*, 2020, 47(11):3510-3517.
- [36] BAGATH M, KRISHNAN G, DEVARAJ C, et al. The impact of heat stress on the immune system in dairy cattle: A review[J]. *Research in Veterinary Science*, 2019, 126:94-102.
- [37] LI G M, LIU L P, YIN B, et al. Heat stress decreases egg production of laying hens by inducing apoptosis of follicular cells via activating the FasL/Fas and TNF- α systems[J]. *Poultry Science*, 2020, 99(11):6084-6093.