

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第34卷 第8期

Vol.34 No.8

2013

中国科学院生态环境研究中心 主办

科学出版社 出版



目次

2006 ~ 2009 年我国超大城市霾天气特征及影响因子分析	戴永立, 陶俊, 林泽健, 谢绍东, 曹军骥, 张仁健 (2925)
南京北郊秋季 VOCs 及其光化学特征观测研究	李用宇, 朱彬, 安俊琳, 高晋微, 夏丽, 张祥志, 秦玮, 汤莉莉 (2933)
大气 PM _{2.5} 中水溶性离子在线观测技术的应用研究	程萌田, 潘月鹏, 王辉, 刘全, 王跃思 (2943)
一种纳米气溶胶发生系统的设计及性能测试	麦华俊, 蒋靖坤, 何正旭, 郝吉明 (2950)
焦炉顶和厂区内环境中有机碳和元素碳的粒径分布	刘效峰, 彭林, 白慧玲, 牟玲, 宋耕芳 (2955)
昼夜增温对大豆田土壤 N ₂ O 排放的影响	胡正华, 周迎平, 崔海玲, 陈书涛, 肖启涛, 刘艳 (2961)
不同土地利用方式下冬季 N ₂ O 排放及其影响因素	伍延正, 张苗苗, 秦红灵, 侯海军, 陈春兰, 魏文学 (2968)
基于支持向量回归模型的水稻田甲烷排放通量预测研究	陈强, 蒋卫国, 陈曦, 袁丽华, 王文杰, 潘英姿, 王维, 刘孝富, 刘海江 (2975)
夏季黄海和渤海微表层和次表层海水中营养盐的分布特征	王文涛, 杨桂朋, 于娟, 吴冠伟 (2983)
氮磷浓度对东海原甲藻优势种群吸附 BDE28 和 BDE47 的影响	汪芳, 葛蔚, 柴超, 孟祥霞 (2992)
基于光学分类的太湖水体叶绿素 a 浓度高光谱遥感	孙德勇, 周晓宇, 李云梅, 陈晓玲, 黄昌春, 龚绍琦 (3002)
基于浮游细菌生物完整性指数的河流生态系统健康评价——以滇池流域为例	黄艺, 舒中亚 (3010)
珠江三角洲城市非点源 COD 影响因素分析及其负荷估算	廖义善, 卓慕宁, 李定强, 郭太龙 (3019)
珠江流域河流碳输出通量及变化特征	张连凯, 覃小群, 杨慧, 黄奇波, 刘朋雨 (3025)
三峡库区兰陵溪小流域养分流失特征	曾立雄, 肖文发, 黄志霖, 王佐庆 (3035)
三峡库区消落带典型草本植物淹水浸泡后可溶性有机碳的释放特征	谭秋霞, 朱波, 花可可 (3043)
混合层深度对藻类生长的影响研究	陈洋, 杨正健, 黄钰铃, 张平, 刘德富 (3049)
伊乐藻-氮循环菌联用对太湖梅梁湾水体脱氮的研究	赵琳, 李正魁, 周涛, 吴宁梅, 叶忠香, 刘丹丹 (3057)
组合型生态浮床对上覆水和沉积物之间氮磷的影响	郑立国, 杨仁斌, 王海萍, 宋建军 (3064)
生物炭覆盖对底泥污染物释放的影响	李扬, 李锋民, 张修稳, 吴召富, 于辉 (3071)
东莞石马河流域重金属污染及生态毒性的时空差异	高磊, 陈建耀, 柯志庭, 王江, 杨雪韵, 清水裕太 (3079)
连环湖牙门气泡沉积物重金属演化 and 污染研究	肖海丰, 臧淑英, 关莹, 刘少军, 徐海凤, 孙清展, 王京京, 李苗 (3088)
人工湿地净化工业区含非污染降雨径流的效果研究	敬丹丹, 王金泉, 马邕文, 李东亚, 王艳, 黄明智 (3095)
四环素抗性基因在人工湿地中的去除及累积	郑加玉, 刘琳, 高大文, 刘超翔 (3102)
不确定节点水量下水质监测点优化选址方法	刘书明, 吴雪, 欧阳乐岩 (3108)
饮用水中含氮消毒副产物三氯硝基甲烷的形成过程和影响因素	丁春生, 邹邦文, 缪佳, 傅洋平, 沈嘉辰 (3113)
漆酶催化氧化水中雌激素的研究	夏青, 谢卫平, 刘国强, 廖云燕, 王斌楠, 孔德洋, 陆隼鹤 (3119)
碳纳米管电极电还原降解水中头孢他啶	朱宏, 胡翔, 李俊峰 (3125)
UV-vis 光照下喹类抗菌药氟康唑的光化学反应类型	葛林科, 李凯, 杨凯, 邢广水, 于春艳, 张蓬, 姚子伟 (3132)
氙灯/TiO ₂ 体系下敌草隆光催化降解动力学研究	阳海, 曾健, 黎源, 阳立平, 易兵 (3137)
羟基磷灰石对水中刚果红的吸附作用研究	詹艳慧, 林建伟 (3143)
乙醇处理对树脂基纳米水合氧化铁结构及其除砷性能的影响	万琪, 李旭春, 潘丙才 (3151)
污水中溶解性有机氮类化合物的氯化反应特性及其消毒副产物生成潜能	刘冰, 于鑫, 余国忠, 古励, 赵承美, 翟慧敏, 李清飞 (3156)
短程深度脱氮中试工艺的低温启动和维持	顾升波, 王淑莹, 彭永臻 (3164)
生物活性炭厌氧氨氧化反应器启动过程研究	赖玮毅, 周伟丽, 何圣兵 (3171)
东北三省畜禽养殖粪污固氮激素排放及其潜在污染风险	刘妹芳, 李艳霞, 张雪莲, 冯成洪, 鲁肖飞, 杨明, 李帷, 朱铁群, 黄泽春 (3180)
淮河流域土壤中全氟化合物的空间分布及组成特征	孟晶, 王铁宇, 王佩, 吕永龙 (3188)
华北平原典型区土壤氟的形态及其分布特征	易春瑶, 汪丙国, 靳孟贵 (3195)
长期施磷的产量效应及其环境风险评价	颜晓, 王德建, 张刚, 冉景, 郑继成 (3205)
污灌渠中有机氯农药对沿岸土壤的影响	徐亮, 张彩香, 刘敏, 廖小平, 姚林林, 李佳乐, 向青清 (3211)
表面活性剂及其组合洗脱污染土壤中的硫丹	熊佰炼, 郑国灿, 张进忠, 邢贻, 徐卫红 (3216)
黄土丘陵区不同坡向对土壤微生物生物量和可溶性有机碳的影响	赵彤, 蒋跃利, 闫浩, 黄懿梅, 安韶山 (3223)
氮素添加对樟树林红壤微生物的影响	郁培义, 朱凡, 宿少锋, 王志勇, 闫文德 (3231)
医疗废物焚烧炉周边环境介质中二噁英的浓度、同系物分布与来源分析	黄文, 张素坤, 杜国勇, 张漫雯, 冯桂贤, 任明忠 (3238)
固相萃取和固相萃取评价多环芳烃降解过程中的生物有效性变化	郭美霞, 巩宗强, 李晓明, 刘丹, 王悦 (3244)
改良型固定化 <i>Pseudomonas oleovorans</i> DT4 降解四氢呋喃的研究	邵钱, 叶杰旭, 欧阳杜娟, 陈建孟, 陈东之 (3251)
PCR-DGGE 技术解析固体碳源表面生物膜的微生物群落结构	徐影, 仇天雷, 韩梅琳, 李军, 王旭明 (3257)
温度对嗜酸性硫杆菌活性和生物成因次生铁矿物形成的影响	宋永伟, 赵博文, 霍敏波, 崔春红, 周立祥 (3264)
小白菜对外源硝酸盐和亚硝酸盐动态吸收的差异及其机制研究	郭璐, 满楠, 梁东丽, 谢钧宇, 刘娟娟 (3272)
预处理对打捆麦秸贮存和厌氧生物产沼气的的影响	马慧娟, 陈广银, 杜静, 常志州, 叶小梅 (3280)
硝酸盐对淡水水生生物毒性及水质基准推导	张铃松, 王业耀, 孟凡生, 周岳溪, 于海斌 (3286)
生物毒性测试微孔板 MTOXPlate 的分析性能研究	林奕云, 张国霞, 贺丽苹, 孙国萍, 许玫英 (3294)
两种实验设计研究 DES 和 EV 对 MCF-7 细胞增殖的联合作用	刘倩, 雷炳莉, 安静, 尚羽, 钟玉芳, 康佳, 文育 (3303)
中国近海海洋环境多氯联苯 (PCBs) 污染现状及影响因素	刘敏霞, 杨玉玉, 李庆孝, 王俊 (3309)
城市污水处理厂出水中的药品和个人护理品	郑少奎, 李晓峰 (3316)
生物炭封存技术研究进展	姜志翔, 郑浩, 李锋民, 王震宇 (3327)
饮用水水源地严格管理水质的对策分析——对实行严格水资源管理问题上的看法和建议	傅国伟 (3334)
《环境科学》征稿简则 (2967) 《环境科学》征订启事 (3034) 信息 (3063, 3136, 3194, 3302)	

东北三省畜禽养殖类固醇激素排放及其潜在污染风险

刘姝芳^{1,2}, 李艳霞^{1*}, 张雪莲¹, 冯成洪¹, 鲁肖飞¹, 杨明¹, 李帷³, 朱铁群⁴, 黄泽春⁵

(1. 北京师范大学环境学院, 水环境模拟国家重点实验室, 北京 100875; 2. 黄河水利委员会黄河水利科学研究院, 郑州 450003; 3. 环境保护部核与辐射安全中心, 北京 100082; 4. 华北水利水电学院环境与市政工程学院, 郑州 450011; 5. 中国环境科学研究院固体废物污染控制技术研究所, 北京 100012)

摘要: 以东北三省畜禽养殖数量统计数据 and 养殖结构分析为基础, 对黑龙江、吉林和辽宁省畜禽养殖类固醇激素排放量进行了估算, 并初步探讨了畜禽粪便中类固醇激素对当地水体的潜在污染风险。结果表明, 由于养殖数量的增加, 东北三省畜禽粪便所排放的类固醇激素量均持续增大。在 1998~2008 年的 10 a 间, 辽宁、吉林和黑龙江三省的类固醇激素排放量分别增长了 2 272.7、1 951.1 和 1 634.8 kg, 并且省会城市沈阳、长春和哈尔滨的增长最为明显。东北三省各城市中畜禽粪便类固醇激素排放量最大的是长春, 达到 874.7 kg; 哈尔滨和沈阳的排放量在各自省份中也是最大, 分别为 652.7 kg 和 603.1 kg。辽宁省的畜禽类固醇激素排放总量在东北三省为最多, 所排类固醇激素的雌二醇等当量浓度 EEQ_s 预测值也最高, 达到 17.1 ng·L⁻¹。如果以英国环保署 (Environment Agency, United Kingdom) 建议的最低可观测效应浓度 10 ng·L⁻¹ 为参考依据, 辽宁省在目前的畜禽养殖规模和结构下, 所排放的粪便类固醇激素极有可能会对地表水体中的水生生物产生内分泌干扰效应。

关键词: 类固醇激素; 畜禽养殖; 生态污染; 风险预估; 东北三省

中图分类号: X52; X820.4 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2013)08-3180-08

Excretion of Manure-Borne Steroid Hormones and Their Potential Risk in the Three Northeast Provinces of China

LIU Shu-fang^{1,2}, LI Yan-xia¹, ZHANG Xue-lian¹, FENG Cheng-hong¹, LU Xiao-fei¹, YANG Ming¹, LI Wei³, ZHU Tie-qun⁴, HUANG Ze-chun⁵

(1. State Key Laboratory of Water Environmental Simulation, School of Environment, Beijing Normal University, Beijing 100875, China; 2. Yellow River Institute of Hydraulic Research, Yellow River Conservancy Commission of the Ministry of Water Resources, Zhengzhou 450003, China; 3. Nuclear and Radiation Safety Centre, Ministry of Environmental Protection, Beijing 100082, China; 4. Institute of Environmental and Municipal Engineering, North China University of Water Resources and Electric Power, Zhengzhou 450011, China; 5. Research Institute of Solid Waste Management, Chinese Research Academy of Environmental Sciences, Beijing 100012, China)

Abstract: The excretion of manure-borne steroid hormones, including estrogens and androgens in Liaoning, Jilin and Heilongjiang province was estimated in this study on the basis of statistical data and by using the referenced estimation method in developed countries. In addition, the potential ecological risk of manure-borne steroid estrogens to local surface water systems from applying animal manure was preliminarily assessed. As a result of the rapid development of animal production, the excretions of manure-borne steroid hormones increased in all the three northeast provinces. In 2008, the emissions of total manure-borne estrogens and androgens increased by 2 272.7, 1 951.1 and 1 634.8 kg compared to those in 1998 in Liaoning, Jilin and Heilongjiang provinces, respectively. Especially, the growth rates in the three capital cities of Shenyang, Changchun and Harbin were the fastest among their own provinces. The largest emissions of manure-borne steroid hormones, as well as the highest concentration of predicted estradiol equivalency (EEQs) in the surface water system were found in Liaoning province. According to the lowest observable effect concentration for 17 β -estradiol (10 ng·L⁻¹) recommended by the Environmental Agency of United Kingdom, 17.1 ng·L⁻¹ of EEQs level in Liaoning province might have become a potential risk to local surface water systems.

Key words: manure-borne steroid hormones; animal production; ecological pollution; risk assessment; three northeast provinces

类固醇激素包括天然和人工合成的雌激素、雄激素、孕激素和皮质激素, 主要通过人和动物代谢随粪尿排泄物进入环境。这类污染物在极低的浓度 (如 0.5 ng·g⁻¹, 甚至 0.1 ng·L⁻¹) 水平下就可能对生物体造成危害, 对生态环境的影响尤为显著^[1]。畜禽粪尿作为环境中类固醇激素的主要污染源之

一, 在国际上已经引起关注^[2,3]。研究指出^[4], 美国

收稿日期: 2012-11-19; 修订日期: 2013-03-06

基金项目: 国家自然科学基金项目 (21277013, 20977010); 环境保护公益行业科研专项 (200909042); 北京师范大学自主科研基金项目 (2009SD-19)

作者简介: 刘姝芳 (1986~) 女, 硕士研究生, 主要研究方向为环境激素水体污染与防治, E-mail: violetse@126.com

* 通讯联系人, E-mail: liyxbnu@bnu.edu.cn

畜禽养殖排泄产生的雌激素量约为其城市污水处理厂排放的 10 倍,而英国畜禽养殖场年产生的 17 β -雌二醇高达 789 kg,是其人口排放的近 3 倍^[5]. 受养牛场出水污染的河流中,雄性呆头目鱼睾丸尺寸明显减小,睾丸激素合成量降低且头部特征目间距减小^[6],研究还发现,奶牛场排污中的雌激素通过地下迁移已对地下水构成威胁^[7].

我国畜禽养殖数量位居世界第一,畜禽粪尿的产生量达到近 40 亿 t·a⁻¹^[8]. 这些畜禽粪尿一旦处理和利用不当,就会对环境造成污染. 与欧美等发达国家相比,我国在有关畜禽养殖类固醇激素这方面的研究极少,无论是关于畜禽养殖过程中类固醇激素的排放,还是这些类固醇激素对环境的污染风险尚鲜见报道,因此急需开展相关探讨. 本研究对我国东北三省畜禽粪便类固醇激素的排放量进行了估算,同时初步探讨了畜禽粪便中类固醇雌激素可能对当地水体的污染风险,以期了解东北三省畜禽养殖对区域环境中类固醇激素的排放和污染风险提供借鉴和科学依据.

1 材料与方法

1.1 研究区域概况

东北三省包括黑龙江、吉林和辽宁省,土地总面积 78.73 万 km²,约占全国的 8.2%;其中,耕地面积 20.43 万 km²,约占全国的 16.6%. 研究区域内分布着松花江、辽河两大水系,是东北三省重要的工业、生活水源,总流域面积 63.05 万 km²,占整个区域面积的 80%.

1.2 类固醇激素排放量的估算

1.2.1 典型畜禽养殖类型的筛选

根据东北三省养殖量以及粪便产生量的统计分析(表 1),猪、肉牛、奶牛、肉鸡、蛋鸡的养殖规模在该区域最大,基本涵盖了养殖总量的 94.8%,这几种养殖类型所产生的粪尿量也涵盖了总畜禽粪尿量的 86.9%(以年末存栏量估算). 其它几类养殖类型(如羊、骆驼、马和兔等)所占比例较低,并且养殖较为分散,不论从养殖数量和粪便产生量上都不具代表性. 另外,由于目前国外有关类固醇激素的研究主要集中在猪、牛、鸡等畜禽养殖类型上,所报导的污染物排放浓度等资料相对全面且具有可比性,因此,本研究的养殖类型主要选取:猪、肉牛、奶牛、肉鸡、蛋鸡这 5 大类. 表 1 是东北三省畜禽养殖的年末存栏量及粪便产生量.

表 1 2008 年东北三省畜禽年末存栏量及粪便产生量

Table 1 Animal and manure production in Three Northeast Provinces in 2008

畜禽类型	年末存栏量 ¹⁾ × 10 ⁶ /头(只、匹)·a ⁻¹	占总养殖比例 /%	粪便产生量 ²⁾ /万 t·d ⁻¹	占总养殖比例 /%
肉牛	11.2	2.2	23.6	35.0
乳牛	1.8	0.3	9.8	14.6
猪	38.5	7.7	20.0	29.7
鸡	422.7	84.5	5.2	7.7
其它	26.2	5.2	8.9	13.1
总计	500.5	100.0	67.6	100.0

1) 数据来源:中国农业年鉴(2009),中国畜牧业年鉴(2009); 2) 畜禽粪便产生量的计算参考文献[9]

1.2.2 畜禽养殖排放类固醇激素种类的筛选

类固醇激素主要包括两类:性激素和肾上腺皮质激素. 性激素(雌、雄和孕激素)是畜禽排泄物中被研究较多的激素类物质^[7],由于具有最强的激素效应,类固醇雌激素(steroid estrogens, SEs)被关注的最早、研究的也最为深入^[10],近年来,欧美等发达国家也在逐步开展对雄激素的研究,认为无论其排放量还是环境毒性效应,也应该引起关注^[11]. 相比而言,有关畜禽养殖业所排放孕激素的相关研究有限,无论是排放浓度还是污染物的毒理效应等参数都极为缺乏;同样,虽然有关皮质激素的研究较多,但是国内外的相关报导基本是集中在检测污染

物的食品残留^[12],以及少量研究涉及污水处理厂出水 and 河水中的残留量检测^[13],至今鲜见有关畜禽养殖过程所排放皮质激素的相关报导. 基于以上原因,本研究有关畜禽粪便中类固醇激素排放量的估算暂不考虑孕激素和皮质激素.

畜禽养殖过程中所排放的天然 SEs 主要包括雌酮(estrone, E1)、17 α -雌二醇(17 α -estradiol, α E2)、17 β -雌二醇(17 β -estradiol, β E2)和雌三醇(estriol, E3). 不同脊椎动物排泄的类固醇雌激素种类不完全相同. 在畜禽排泄物中 β E2 和 E1 最常见^[5],二者对水生生物产生毒理效应的浓度低于其它 SEs,并且在环境中被检测出的浓度往往高于其最低可观察效应

浓度水平 (lowest observable effect concentration, LOEC)^[7]. α E2 主要存在牛的排泄物中^[10], 也会对水生生物产生内分泌干扰效应^[11]. 相比而言, 尽管环境中常常可检出一定浓度的 E3, 但由于它对水生生物的雌激素干扰效应较小, 相关研究往往忽略其生态风险^[5,14]. 因此, 本研究在筛选畜禽排泄物中特征 SEs 时也主要考虑 E1、 β E2 和 α E2.

畜禽排泄物中含有一定量的天然雄激素, 包括睾酮及其衍生物雄酮、雄烯二酮等. 在现有的研究资料中, 有关雄激素的报道大多以雄激素总量计, 较难细分每一种雄激素的含量^[15,16], 因此本研究暂不考虑不同种类雄激素的单一排放量, 只进行雄激素总排放量的估算. 同时, 类固醇雄激素主要由雄性动物睾丸间质细胞分泌, 虽然雌性动物的卵巢和肾上腺皮质细胞也可以分泌雄激素, 但由于产生量较低, 且没有系统的研究数据^[16], 本研究在进行雄激素排放量的估算时也暂不考虑雌性动物的雄激素排放.

1.2.3 估算的基本原则及公式

为有效地和国际相关研究比对, 本研究将不同畜禽的养殖数量以畜禽单元 (animal units, AU) 进行标准化换算^[17,18], 1 个畜禽单元等于 454 kg 畜禽活体重量, 具体换算方法见文献^[19]. 单位 AU 的类固醇激素排放量计算见公式(1)~(3), SEs 的排放量估算使用公式(1)和(2), 类固醇雄激素的排放量估算使用公式(3)进行计算.

单位 AU 的 SEs 日排放量计算, 如公式(1):

$$\sum_{i=1}^n E_i = \sum_{i=1}^n (c_{fi} \times A_{fi} + c_{ui} \times A_{ui}) \quad (1)$$

式中, i 为非繁育母畜畜禽种类, 即乳牛 (包括泌乳牛和非泌乳牛), 肉牛 (包括育肥牛、种牛和犍牛), 猪 (育肥猪), 和鸡 (包括蛋鸡和肉鸡), $n=8$; E_i 为第 i 种畜禽的 SEs 日排放量 [$\mu\text{g} \cdot (\text{AU} \cdot \text{d})^{-1}$]; c_{fi} 为第 i 种畜禽固体粪便中 SEs 的含量 ($\mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$); A_{fi} 为第 i 种畜禽的日排粪量 [$\text{kg} \cdot (\text{AU} \cdot \text{d})^{-1}$]; c_{ui} 为第 i 种畜禽尿液中 SEs 的浓度 ($\mu\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$); A_{ui} 为第 i 种畜禽的日排尿量 [$\text{L} \cdot (\text{AU} \cdot \text{d})^{-1}$].

繁育母畜在孕期和非孕期的 SEs 排泄量差异较大, 因此, 繁育母畜的 SEs 年排放量为母畜处于孕期和非孕期的排放量之和, 如公式(2):

$$\sum_{j=1}^m E_j = \sum_{j=1}^m (E_{pj} \times D_{pj} + E_{cj} \times D_{cj}) \quad (2)$$

式中, E_j 为第 j 种繁育母畜的 SEs 年排放量 [$\mu\text{g} \cdot (\text{AU} \cdot \text{a})^{-1}$], 包括繁育乳牛, 繁育肉牛和母猪,

$m=3$; E_{pj} 为第 j 种繁育母畜的孕期 SEs 日排放量 [$\mu\text{g} \cdot (\text{AU} \cdot \text{a})^{-1}$]; E_{cj} 为第 j 种繁育母畜的非孕期 SEs 日排放量 [$\mu\text{g} \cdot (\text{AU} \cdot \text{a})^{-1}$]; D_{pj} 为 1 a 中第 j 种繁育母畜处于孕期的天数 (d); D_{cj} 为 1 a 中第 j 种繁育母畜处于非孕期的天数 (d); 公式(2)中 1 a 以 365 d 计; E_{pj} 和 E_{cj} 使用公式(1)进行计算.

单位畜禽 AU 的类固醇雄激素日排放量计算, 如公式(3):

$$\sum_{k=1}^n T_k = \sum_{k=1}^n (c_{fk} \times A_{fk} + c_{uk} \times A_{uk}) \quad (3)$$

式中, k 为进行估算的畜禽种类, 即种牛、种猪、肉鸡和蛋鸡, $n=4$; T_k 为第 k 种畜禽的类固醇雄激素日排放量 [$\mu\text{g} \cdot (\text{AU} \cdot \text{a})^{-1}$]; c_{fk} 为第 k 种畜禽固体粪便中类固醇雄激素的浓度 [$\mu\text{g} \cdot (\text{AU} \cdot \text{a})^{-1}$]; A_{fk} 为第 k 种畜禽的日排粪量 [$\text{kg} \cdot (\text{AU} \cdot \text{d})^{-1}$]; c_{uk} 为第 k 种畜禽尿液中类固醇雄激素的浓度 ($\mu\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$); A_{uk} 为第 k 种畜禽的日排尿量 [$\text{L} \cdot (\text{AU} \cdot \text{d})^{-1}$].

式中基本计算参数包括畜禽养殖数量数据主要来自历年各省、市农业年鉴、畜牧业年鉴和统计年鉴; 各类畜禽性别、年龄及功能群数量的划分依据相关文献^[17,19]; 不同畜禽的粪尿日排泄量与品种、体重、生理状态、饲料组成和饲喂方式等均密切相关, 本研究主要采用马林等^[9]对我国 1994~2004 年相关研究的统计数据平均值.

畜禽粪尿中类固醇激素排泄浓度的确定: 由于目前尚未见有关我国畜禽粪尿中类固醇激素的排放及残留数据, 也缺乏相关激素类兽药的使用量数据, 因此本研究主要参考欧美国家相关研究报道. 有多个研究结果取平均值作为最终排泄浓度, 见表 2.

2 结果与讨论

2.1 东北三省类固醇激素的排放特征及年度变化

计算显示, 从 1988~2008 年的 20 a 间, 东北三省各类畜禽养殖所排放的类固醇激素量均呈显著的增长趋势, 其中辽宁省畜禽养殖的类固醇雌、雄激素总排放量最大, 但三省激素排放量增速存在一定差异 (图 1). 类固醇激素年排放量增长速度最快的是吉林省, 该省 2008 年的雌激素排放量约为 1988 年的 5.2 倍, 雄激素的排放量在这 20 a 间更是增加了 8 倍. 各省之间类固醇激素的年排放量增长存在差异, 主要原因是不同畜种的类固醇激素排放量不同, 并且三省的畜禽养殖数量的增长趋势以及养殖结构比重也不同. 畜禽的养殖量直接影响到畜禽粪便的产生量, 而不同种类畜禽粪便含有的类固醇激

表 2 不同畜种每单位的类固醇激素排泄值/ $\mu\text{g}\cdot(\text{AU}\cdot\text{a})^{-1}$

畜禽种类		E1		$\beta\text{E}2$		$\alpha\text{E}2$		雄激素 粪尿排泄值	文献
		固体粪便	尿液	固体粪便	尿液	固体粪便	尿液		
猪	繁育母猪	67.4	2 436.4	55.6	— ¹⁾	—	—	—	[5,20]
	育肥猪	109.1	745.4	81.8	—	—	—	—	[5,21,22]
	种猪	—	—	—	—	—	—	4 874.3	[23,24]
乳牛	泌乳牛	16.3	11.1	47.4	3.3	83.9	45.4	—	[16,25,26]
	非泌乳牛	88.0	59.8	256.0	18.0	453.6	245.2	—	[16,25,26]
	繁育乳牛	47.9	739.8	139.1	221.8	246.2	3 036.0	—	[5,20]
肉牛	育肥牛	25.1	17.0	73.0	5.1	129.3	69.9	—	[16,25,26]
	种牛	39.6	27.0	115.2	8.1	204.1	110.7	1 068.5	[25,27,28]
	犊牛	13.2	9.0	38.4	2.7	68.0	36.9	—	[25,27,29]
	繁育母牛	58.1	897.2	168.7	269.0	298.6	3 681.9	—	[5,20]
鸡	蛋鸡	787.5	—	3 610.0	—	—	—	2 330.0	[16,20,30]
	肉鸡	227.5	—	505.1	—	—	—	873.6	[15,16,30]

1) —表示无相关研究数据

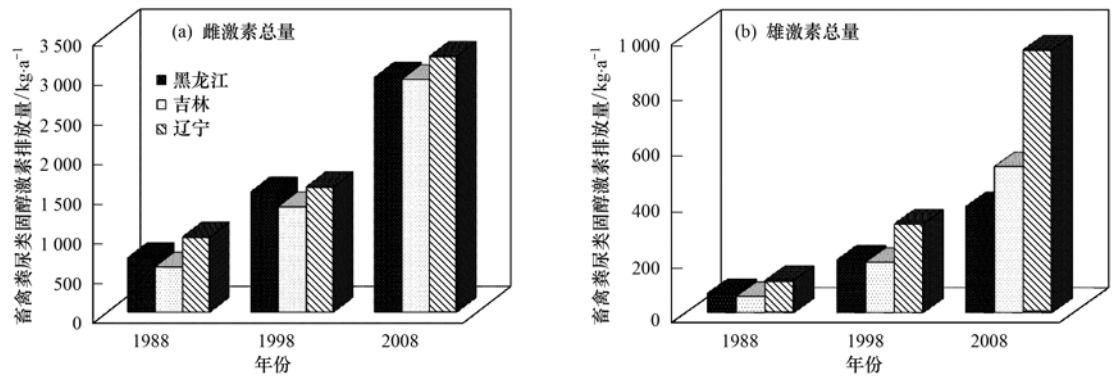


图 1 东北三省畜禽粪尿类固醇激素排放量

Fig. 1 Excretion of steroid hormones from animal feces and urine in Three Northeast Provinces

素量不同,因此,各地区各类畜禽养殖数量及养殖比重的差异直接导致类固醇激素年排放量的不同。

表 3 显示了三省畜禽粪便中 E1、 $\alpha\text{E}2$ 、 $\beta\text{E}2$ 和雄激素的排放量及差异。畜禽排泄物对 E1 贡献率的排序分别是:猪尿>牛尿≥鸡粪>猪粪>牛粪,对 E1 贡献率最大的是猪尿,所占比例基本在 70.0% 左右,特别是辽宁省在 1998 由于养猪数量所占比例高,猪尿中排泄的 E1 占了其总量的 77.1%。相比吉林和黑龙江省,辽宁省不同畜禽 E1 排放变化幅度较大,自 1998~2008 年这 10 a 间猪尿的贡献率降低了 9.3%;同时,由于蛋鸡和肉鸡的养殖数量激增,鸡粪对 E1 的贡献率显著增加,所占比例增加了 10.2%。而各省牛粪对 E1 的贡献率近年来均有所降低。 $\beta\text{E}2$ 的排放主要由鸡粪贡献,所占比例最高可达 90.4%,三省均呈现鸡粪>牛粪≥猪粪≥牛尿的规律(由于猪尿中 $\beta\text{E}2$ 的排泄量极低,并缺乏相关研究数据,此处未计算猪尿排放量)。同样,不同

畜种 $\beta\text{E}2$ 排放量变化最大的仍然是辽宁省,该省鸡粪对 $\beta\text{E}2$ 排放的贡献率 10 a 间增加了 9.1%。东北三省 $\alpha\text{E}2$ 的主要贡献者是肉牛尿液,贡献率最高可达 72.5%。虽然乳牛尿液对 $\alpha\text{E}2$ 的贡献率最高仅有 34.5%,但增长速度最快,特别是黑龙江省乳牛尿液对 $\alpha\text{E}2$ 的贡献率十年间增长了 15.7%。因此,从控制类固醇雌激素污染物排放的角度考虑,猪尿、鸡粪和牛尿分别是 E1、 $\beta\text{E}2$ 和 $\alpha\text{E}2$ 环境排放的主要控制对象。特别是 $\beta\text{E}2$ 具有极强的雌激素效应,如何有效地去除和减少鸡粪中雌激素排放的污染风险对东北三省至关重要。

东北三省各类主要畜禽所产生雄激素的最大贡献者是蛋鸡(表 3),排放雄激素所占比例最高达到 85.0%。比较各省 1998~2008 年这 10 a 间畜禽雄激素排放量组成比例的变化,明确显示吉林省的变化最为显著,蛋鸡不仅对雄激素排放的贡献率最大,并且在这 10 a 间比例上升了 11.8%;

同时,种牛、种猪和肉鸡的排放贡献率均有所下降.从控制环境中类固醇雄激素污染物的角度出发,蛋鸡粪便是需要控制的主要对象,如何有效去除和减少蛋鸡粪便中的雄激素对环境的输入和污染风险值得关注.

2. 2 东北三省各城市畜禽粪便雌激素排放的空间分布特征

图 2 显示了 1998 年和 2008 年东北三省 36 个地市畜禽养殖排放 SEs 的分布特征,显然,东北三省各城市的类固醇激素排放量空间分布极不均匀.

表 3 1998 和 2008 年东北三省畜禽粪尿类固醇激素排放量组成/%

Table 3 Composition of manure-borne steroid hormones in Three Northeast Provinces in 1998 and 2008/%							
类固醇激素	来源	黑龙江		吉林		辽宁	
		1998 年	2008 年	1998 年	2008 年	1998 年	2008 年
E1	牛粪	3.0	2.8	2.9	2.3	1.4	1.4
	牛尿	12.3	11.8	10.9	9.4	5.4	4.9
	猪粪	5.4	5.7	5.7	5.8	5.8	5.4
	猪尿	73.0	72.9	74.2	72.9	77.1	67.8
	鸡粪	6.2	6.9	6.3	9.7	10.3	20.5
总计		100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0
βE2	牛粪	20.0	17.2	19.7	12.0	7.6	4.0
	牛尿	8.4	7.5	7.7	5.0	3.0	1.5
	猪粪	9.5	9.3	10.3	7.9	8.1	4.1
	鸡粪	62.2	66.1	62.3	75.0	81.3	90.4
	总计	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0
αE2	乳牛粪便	5.1	9.4	0.7	1.4	1.1	2.9
	乳牛尿液	18.8	34.5	2.4	5.3	4.0	10.4
	肉牛粪便	18.4	13.4	24.4	22.1	23.9	23.0
	肉牛尿液	57.6	42.8	72.5	71.2	71.0	63.7
	总计	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0
雄激素	种牛粪尿	15.3	10.5	16.4	10.3	5.9	2.7
	种猪粪尿	13.4	12.5	12.6	9.0	10.0	4.6
	蛋鸡粪便	64.5	72.4	56.7	68.5	72.9	85.0
	肉鸡粪便	6.8	4.5	14.4	12.3	11.2	7.7
	总计	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0

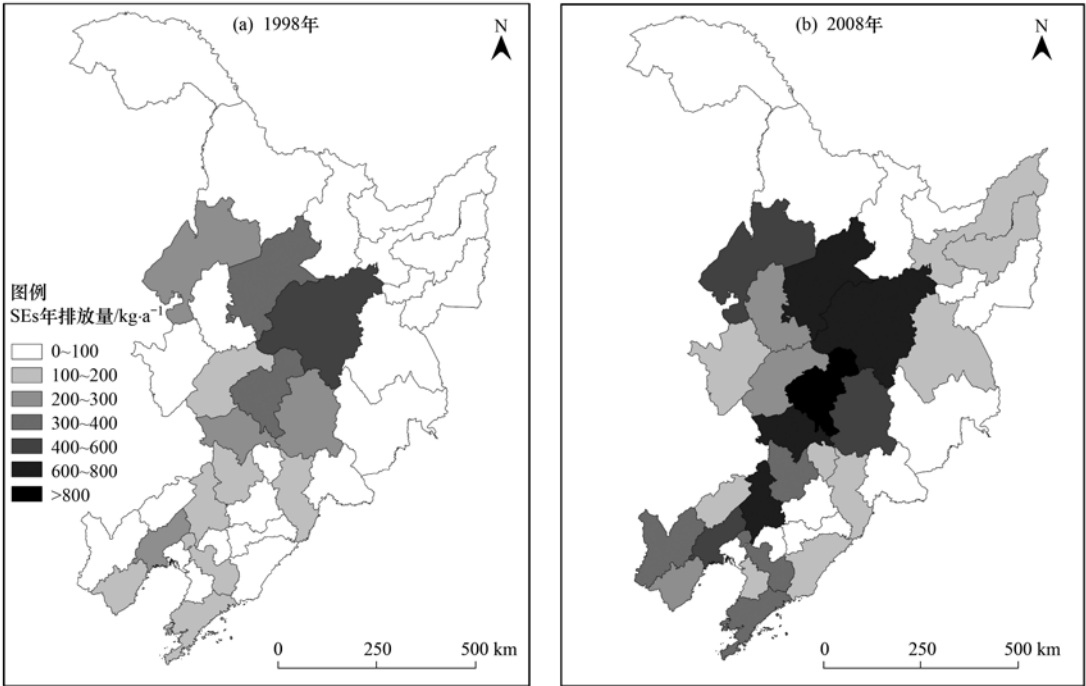


图 2 东北三省畜禽粪尿雌激素排放量分布

Fig. 2 Distribution of manure-borne estrogens in Three Northeast Provinces

在 1998 年,东北三省中 SEs 年排放总量最高的是哈尔滨市,达到 400.2 kg;三省中 SEs 年排放总量低于 100 kg 的城市有 21 个,占城市总数的 58.3%;到 2008 年,SEs 年排放总量低于 100 kg 的城市减少到 11 个,其中年排放总量低于 50 kg 的城市仅有 3 个。到 2008 年,三省中 SEs 年排放总量超过 400 kg 的城市上升到 8 个,100~400 kg 之间的城市有 17 个,占城市总数的 47.2%,SEs 年排放总量最高的长春市排放量达到 874.7 kg,10 a 间畜禽粪便 SEs 的年排放量增加了 500.8 kg,在东北三省的各地市中增长最为显著,是哈尔滨市 1998 年 SEs 排放总量的 2.2 倍。黑龙江和辽宁省排放量增长最显著的城市分别为绥化和沈阳市,年排放量分别增加了 289.2 kg 和 417.6 kg。此外,也有部分城市的畜禽粪便 SEs 年排放总量呈下降趋势,黑龙江省七台河市和辽宁省抚顺市年排放总量分别下降了 2.8 kg 和 2.4 kg。在总养殖数量急剧增长的大趋势下,出现年排放总量下降,主要原因是畜禽养殖结构比例的变化所致。

2.3 东北三省畜禽粪便排放类固醇雌激素对地表水的潜在污染风险

城市污水处理厂排水和畜禽养殖场排污以及粪便土地利用均可以导致不同程度地表水体污染风险。Johnson 等^[31]根据城市污水厂 SEs 的排放量估算值以及年径流量的统计数据,对日本及英国河流中的 SEs 浓度进行了估算。本研究借鉴了其方法,尝试对东北三省畜禽粪便所排放 SEs 对地表水体的污染风险进行预测,预测方法如式(4)。

$$PEC = \left(\sum_{i=1}^n E_i \times \eta \right) \div r \quad (4)$$

式中,PEC 表示某地区地表水体的 SEs 浓度预测值 ($\text{ng} \cdot \text{L}^{-1}$); E_i 表示当地第 i 种畜禽的 SEs 排放量 ($\text{ng} \cdot \text{a}^{-1}$), $n=11$; η 表示当地畜禽粪尿中 SEs 的流失率; r 表示当地地表水资源量 ($\text{L} \cdot \text{a}^{-1}$)。

在我国长江流域,已有大量关于畜禽粪便污染物流失的研究^[32],普遍采用 30% 作为畜禽粪便污染物流失率。但是与长江流域相比,东北地区降雨量少并且地表水系不发达,所以畜禽粪尿的流失率应该低于长江流域。马林等^[9]开展了东北地区畜禽粪尿污染的研究,其综合了全国相关研究以及上海、广东的研究结果,建议东北地区的畜禽粪尿中 N、P 及 COD 等污染物的流失率为 20%。本文参考马林等^[9]的研究结果,以 20% 作为东北三省畜禽粪尿中 SEs 的流失率 (η)。各种畜禽粪尿的 SEs 排放量

(E_i) 参考本文公式(1)和(2)进行计算;地表水资源量(r)的相关数据来源于各省份统计年鉴。

为更有效比较和呈现各种 SEs 的生态及环境污染风险,研究者普遍将不同种类 SEs 的雌激素活性效应统一转化为雌二醇等当量 (estradiol equivalency, EEQ) 表示。EEQ 是由各物质的雌二醇当量因子 (estradiol equivalency factors, EEf) 和实际检测的环境暴露浓度 (measured environmental concentration, MEC) 相乘得出,该值既能较为直观地反映污染物的暴露浓度,又易于比较不同生物的雌激素效应^[31]。本研究引入 EEQ 进行地表水中 SEs 浓度的测算,一是便于地表水浓度与鱼类效应浓度的比较,二是利于与国外相关研究的比对,计算方法如式(5)。

$$EEQ_s = \left(\sum_{i=1}^n EEf_i \times MEC_i \right) \quad (5)$$

式中,EEQ_s 为地表水中雌二醇等当量浓度 ($\text{ng} \cdot \text{L}^{-1}$); EEf_i 为第 i 种 SEs 的雌二醇当量因子; MEC_i 为第 i 种 SEs 的环境暴露浓度 ($\text{ng} \cdot \text{L}^{-1}$), $n=3$ 。已有文献指出 E1 的雌激素效能约为 $\beta E2$ 的 $1/3$ ^[5], $\beta E2$ 约为 $\alpha E2$ 雌激素效能的 8~9 倍^[10]。因此公式(5)中 $\beta E2$ 、E1 和 $\alpha E2$ 的 EEf 值分别取 1、 $1/3$ 和 $1/8$; MEC 值使用 $\beta E2$ 、E1 和 $\alpha E2$ 的 PEC 值,计算方法如式(4)。

图 3 是东北三省畜禽粪便流入水体后 SEs 可能在水体中的残留浓度(以 EEQ_s 计)。预测数据显示,东北三省地表水体 EEQ_s 值排序如下:辽宁 > 吉林 > 黑龙江省。其中,辽宁省地表水中的 EEQ_s 估算值最大,达到 $17.1 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$,约为黑龙江省的 2.6 倍。辽宁省地表水浓度显著高于其他两省的主要原因是该省畜禽养殖排放的 SEs 量最高,约为其他两省的 1.1 倍;但地表水资源量最少,仅为其他两省平均值的 73.3%。因此,如果其畜禽产生的大量 SEs 随畜禽粪尿流失进入水体后,可能无法得到更为有效地稀释,使地表水体中 EEQ_s 值显著高于其它两省。据台湾省某养殖场下游河流沿途采样的检测结果显示^[33],河水中 EEQ_s 值最高达到 $217 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$,河流下游 15 km 处仍检出 EEQ_s 值 $25.1 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$ 左右,充分证明了养殖场排污对水体的污染风险。另外有研究发现^[14],我国某地地表水中 E1 和 $\beta E2$ 的平均浓度分别为 38.6 和 $9.5 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$,如换算为地表水 EEQ_s 值可达 $22.4 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$,与本文预测的东北三省区域地表水 EEQ_s 值较为吻合。因此,本研究对东北三省地表水 EEQ_s 预测值虽然是理论数据,但是处于合理

范围之内, 研究结果对于科学认识畜禽养殖污染风险和有效环境管理具有科学意义。

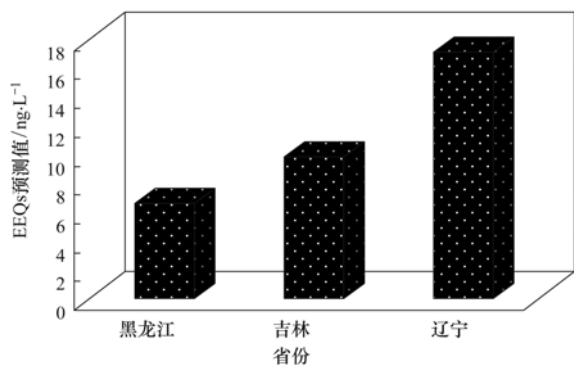


图3 2008年东北三省的EEQ_s预测值

Fig. 3 Estimation of EEQ_s in Three Northeast Provinces in 2008

欧美等发达国家对SEs的研究开展较早, 英国环保署 (Environment Agency, United Kingdom) 针对 β E2对鱼类的效应浓度已提出建议值, 预测无效应浓度 (predicted no effect concentration, PNEC) 和最低可观测效应浓度 (LOEC) 值分别为 $1 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$ 和 $10 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$ [1]。以建议的 PNEC ($1 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$) 为 EEQ_s 的参考值, 则东北三省的地表水均存在被畜禽粪便 SEs 污染的风险; 以建议的 LOEC ($10 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$) 为环境阈值, 则辽宁省 2008 年的畜禽养殖规模和结构可能已经对地表水体中的水生生物产生内分泌干扰效应。需要说明的是, 本研究计算的预测值仅为畜禽排泄物中 SEs 流失进入地表水的初始浓度, 即 EEQ_s 的最高预测值, 可能会出现养殖场临近河流的污水排放口处。该预测值只考虑了地表水对污染物的稀释作用, 未考虑 SEs 的降解半衰期以及其在地表水体中复杂的吸附和生物降解、光解及水解等过程, 但是众所周知, 养殖场排污基本是一个连续的过程, 因此预测结果还有待进一步的实际水体中污染物浓度的检测验证。

3 结论

(1) 20 世纪 80 年代以来, 东北三省各类畜禽养殖数量均快速增加, 导致随畜禽粪尿进入环境的类固醇激素量持续增大。其中, 辽宁省畜禽养殖类固醇激素的年排放量最大, 增长速度最快的省份是吉林省。

(2) 猪尿、鸡粪和牛尿分别是东北三省 E1、 β E2 和 α E2 环境排放的主要控制对象。由于 β E2 具有极强的雌激素效应, 如何有效地去除或减少鸡粪中雌激素的环境排放对东北三省至关重要。

(3) 东北三省畜禽排放类固醇雌激素的等当量浓度 (EEQ_s) 预测值呈现辽宁 > 吉林 > 黑龙江省的分布趋势, 参考英国环保署建议的 PNEC 和 LOEC 值, 辽宁省畜禽养殖的 SEs 排放对地表水体的潜在污染风险最高, 吉林和黑龙江省的 EEQ_s 预测值也对水生生物存在一定威胁, 但区域水环境污染风险较低。

参考文献:

- [1] Shappell N W, Hyndman K M, Bartell S E, *et al.* Comparative biological effects and potency of 17α - and 17β -estradiol in fathead minnows [J]. *Aquatic Toxicology*, 2010, **100**(1): 1-8.
- [2] 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.
- [3] Qu S, Kolodziej E P, Cwierny D M. Phototransformation rates and mechanisms for synthetic hormone growth promoters used in animal agriculture [J]. *Environmental Science & Technology*, 2012, **46**(24): 13202-13211.
- [4] Raman D R, Williams E L, Layton A C, *et al.* Estrogen content of dairy and swine wastes [J]. *Environmental Science & Technology*, 2004, **38**(13): 3567-3573.
- [5] Johnson A C, Williams R J, Matthiessen P. The potential steroid hormone contribution of farm animals to freshwaters, the United Kingdom as a case study [J]. *Science of the Total Environment*, 2006, **362**(1-3): 166-178.
- [6] Orlando E F, Kolok A S, Binzick G A, *et al.* Endocrine-disrupting effects of cattle feedlot effluent on an aquatic sentinel species, the fathead minnow [J]. *Environmental Health Perspectives*, 2004, **112**(3): 353-358.
- [7] Arnon S, Dahan O, Elhanany S, *et al.* Transport of testosterone and estrogen from dairy-farm waste lagoons to groundwater [J]. *Environmental Science & Technology*, 2008, **42**(15): 5521-5526.
- [8] Zhang F S, Li Y X, Yang M, *et al.* Copper residue in animal manures and the potential pollution risk in northeast China [J]. *Journal of Resources and Ecology*, 2011, **2**(1): 91-96.
- [9] 马林, 王方浩, 马文奇, 等. 中国东北地区中长期畜禽粪尿资源与污染潜势估算 [J]. *农业工程学报*, 2006, **22**(8): 170-174.
- [10] 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.
- [11] Barbosa I R, Nogueira A J A, Soares A M V M. Acute and chronic effects of testosterone and 4-hydroxyandrostenedione to the crustacean *Daphnia magna* [J]. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 2008, **71**(3): 757-764.
- [12] Chen D M, Tao Y F, Liu Z Y, *et al.* Development of a liquid chromatography-tandem mass spectrometry with pressurized liquid

- extraction for determination of glucocorticoid residues in edible tissues[J]. *Journal of Chromatography B*, 2011, **879**(2): 174-180.
- [13] Fan Z L, Wu S M, Chang H, *et al.* Behaviors of glucocorticoids, androgens and progestogens in a municipal sewage treatment plant: comparison to estrogens [J]. *Environmental Science & Technology*, 2011, **45**(7): 2725-2733.
- [14] Duong C N, Ra J S, Cho J, *et al.* Estrogenic chemicals and estrogenicity in river waters of South Korea and seven Asian countries[J]. *Chemosphere*, 2010, **78**(3): 286-293.
- [15] Shore L S, Shemesh M. Naturally produced steroid hormones and their release into the environment [J]. *Pure and Applied Chemistry*, 2003, **75**(11-12): 1859-1871.
- [16] Lange I G, Daxenberger A, Schiffer B, *et al.* Sex hormones originating from different livestock production systems: fate and potential disrupting activity in the environment [J]. *Analytica Chimica Acta*, 2002, **473**(1-2): 27-37.
- [17] 李帷, 李艳霞, 张丰松, 等. 东北三省畜禽养殖时空分布特征及粪便养分环境影响研究[J]. *农业环境科学学报*, 2007, **26**(6): 2350-2357.
- [18] Saam H, Powell J M, Jackson-Smith D B, *et al.* Use of animal density to estimate manure nutrient recycling ability of Wisconsin dairy farms[J]. *Agricultural Systems*, 2005, **84**(3): 43-357.
- [19] Kellogg R L, Lander C H, Moffitt D C, *et al.* Manure nutrients relative to the capacity of cropland and pastureland to assimilate nutrients: spatial and temporal trends for the United States[A]. *United States Department of Agriculture, Natural Resources Conservation Service and Economic Research Service*, 2000.
- [20] Hanselman T A, Graetz D A, Wilkie A C. Manure-borne estrogens as potential environmental contaminants: a review[J]. *Environmental Science & Technology*, 2003, **37**(24): 5471-5478.
- [21] Vos E A. Direct elisa for estrone measurement in the feces of sows: prospects for rapid, sow-side pregnancy diagnosis [J]. *Theriogenology*, 1996, **46**(2): 211-231.
- [22] Choi H S, Kiesenhofer E, Gantner H, *et al.* Pregnancy diagnosis in sows by estimation of oestrogens in blood, urine or faeces[J]. *Animal Reproduction Science*, 1987, **15**(3-4): 209-216.
- [23] Navrátil S, Matoušková O. Elimination of testosterone and androstendione in the urine of boars in relation to the incretory function of the testes[J]. *Veterinarni Medicina*, 1978, **23**(2): 77-86.
- [24] Palme R, Fischer P, Schildorfer H, *et al.* Excretion of infused¹⁴C-steroid hormones via faeces and urine in domestic livestock [J]. *Animal Reproduction Science*, 1996, **43**(1): 43-63.
- [25] Hoffmann B, De Pinho T G, Schuler G. Determination of free and conjugated oestrogens in peripheral blood plasma, feces and urine of cattle throughout pregnancy [J]. *Experimental and Clinical Endocrinology and Diabetes*, 1997, **105**(5): 296-303.
- [26] Möstl E, Choi H S, Wurm W, *et al.* Pregnancy diagnosis in cows and heifers by determination of oestradiol-17 α in faeces [J]. *British Veterinary Journal*, 1984, **140**(3): 287-291.
- [27] Sarah C, Guillermina H. Occurrence, fate, and biodegradation of estrogens in sewage and manure[J]. *Applied Microbiology and Biotechnology*, 2010, **86**(6): 1671-1692.
- [28] Arts C J M, Van Baak M J, Den Hartog J M P. Control system for detection of the illegal use of naturally occurring steroids in calves[J]. *Journal of Chromatography B: Biomedical Sciences and Applications*, 1991, **564**(2): 429-444.
- [29] Martin Kast W, Melief C J M. *In vivo* efficacy of virus-derived peptides and virus-specific cytotoxic T lymphocytes [J]. *Immunology Letters*, 1991, **30**(2): 229-232.
- [30] Finlay-Moore O, Hartel P, Cabrera M. 17 β -estradiol and testosterone in soil and runoff from grasslands amended with broiler litter[J]. *Journal of Environmental Quality*, 2000, **29**(5): 1604-1611.
- [31] Johnson A C, Yoshitani J, Tanaka H, *et al.* Predicting national exposure to a point source chemical: Japan and endocrine disruption as an example [J]. *Environmental Science & Technology*, 2011, **45**(3): 1028-1033.
- [32] 闫铁柱, 杜会英, 夏维, 等. 安徽省畜禽粪便污染现状及其防治对策[J]. *农业环境与发展*, 2009, **26**(2): 58-62.
- [33] Chen T S, Chen T C, Yeh K C, *et al.* High estrogen concentrations in receiving river discharge from a concentrated livestock feedlot[J]. *Science of the Total Environment*, 2010, **408**(16): 3223-3230.

CONTENTS

Characteristics of Haze and Its Impact Factors in Four Megacities in China During 2006-2009	DAI Yong-li, TAO Jun, LIN Ze-jian, <i>et al.</i> (2925)
Characteristics of VOCs and Their Photochemical Reactivity in Autumn in Nanjing Northern Suburb	LI Yong-yu, ZHU Bin, AN Jun-lin, <i>et al.</i> (2933)
On-Line Measurement of Water-Soluble Composition of Particulate Matter in Beijing	CHENG Meng-tian, PAN Yue-peng, WANG Hui, <i>et al.</i> (2943)
Design and Evaluation of an Aerosol Nanoparticle Generation System	MAI Hua-jun, JIANG Jing-kun, HE Zheng-xu, <i>et al.</i> (2950)
Aerosol Size Distribution of Organic Carbon and Elemental Carbon on the Top of Coke Oven and in the Plant Area	LIU Xiao-feng, PENG Lin, BAI Hui-ling, <i>et al.</i> (2955)
Effects of Diurnal Warming on Soil N ₂ O Emission in Soybean Field	HU Zheng-hua, ZHOU Ying-ping, CUI Hai-ling, <i>et al.</i> (2961)
N ₂ O Flux in Winter and Its Affecting Factors Under Different Land Use Patterns	WU Yan-zheng, ZHANG Miao-miao, QIN Hong-ling, <i>et al.</i> (2968)
Prediction of Methane Emission of Paddy Field Based on the Support Vector Regression Model	CHEN Qiang, JIANG Wei-guo, CHEN Xi, <i>et al.</i> (2975)
Distributional Characteristics of Nutrients in the Sea-surface Microlayer and Subsurface Water of the Bohai and Yellow Sea in Summer	WANG Wen-tao, YANG Gui-peng, YU Juan, <i>et al.</i> (2983)
Effect of Nitrogen and Phosphorus Concentrations on the Adsorption of BDE28 and BDE47 by <i>Prorocentrum donghaiense</i> Dominant Population	WANG Fang, GE Wei, CHAI Chao, <i>et al.</i> (2992)
Hyperspectral Remote Sensing of Chlorophyll a Concentrations in the Lake Taihu, Based on Water Optical Classification	SUN De-yong, ZHOU Xiao-yu, LI Yun-mei, <i>et al.</i> (3002)
Bacterioplankton Index of Biotic Integrity (BP-IBI): An Approach for Assessing River Ecosystem Health in Dianchi Watershed	HUANG Yi, SHU Zhong-ya (3010)
Estimation of Urban Non-Point Source Pollution Loading and Its Factor Analysis in the Pearl River Delta	LIAO Yi-shan, ZHUO Mu-ning, LI Ding-qiang, <i>et al.</i> (3019)
Transported Fluxes of the Riverine Carbon and Seasonal Variation in Pearl River Basin	ZHANG Lian-kai, QIN Xiao-qun, YANG Hui, <i>et al.</i> (3025)
Characteristics of Nutrient Loss of Lanlingxi Watershed in the Three Gorges Reservoir Area	ZENG Li-xiong, XIAO Wen-fa, HUANG Zhi-lin, <i>et al.</i> (3035)
Characteristics of Dissolved Organic Carbon Release Under Inundation from Typical Grass Plants in the Water-Level Fluctuation Zone of the Three Gorges Reservoir Area	TAN Qiu-xia, ZHU Bo, HUA Ke-ke (3043)
Research on the Influence of Mixing Layer Depth on Algal Growth	CHEN Yang, YANG Zheng-jian, HUANG Yu-ling, <i>et al.</i> (3049)
Denitrification Study of <i>Elodea nuttallii</i> -Nitrogen Cycling Bacteria Restoration in Meiliang Bay, Taihu Lake	ZHAO Lin, LI Zheng-kui, ZHOU Tao, <i>et al.</i> (3057)
Influence of Combined Ecological Floating Bed on Nitrogen and Phosphorus Between Overlying Water and Sediment	ZHENG Li-guo, YANG Ren-bin, WANG Hai-ping, <i>et al.</i> (3064)
Effects of Biochar Covering on the Release of Pollutants from Sediment	LI Yang, LI Feng-min, ZHANG Xiu-wen, <i>et al.</i> (3071)
Temporal-spatial Difference of Ecotoxicity and Heavy Metals Pollution in Shima Catchment, Dongguan	GAO Lei, CHEN Jian-yao, KE Zhi-ting, <i>et al.</i> (3079)
Evolution and Pollution of Heavy Metals in Core Sediments from Yamenqi Lake in Lianhuan Lake, China	XIAO Hai-feng, ZANG Shu-ying, GUAN Ying, <i>et al.</i> (3088)
Effect of Constructed Wetland on the Purification of Industrial Zone Rainfall Runoff Contaminated with Phenanthrene	JING Dan-dan, WAN Jin-quan, MA Yong-wen, <i>et al.</i> (3095)
Removal and Accumulation of the Tetracycline Resistance Gene in Vertical Flow Constructed Wetland	ZHENG Jia-yu, LIU Lin, GAO Da-wen, <i>et al.</i> (3102)
Method for Optimal Sensor Placement in Water Distribution Systems with Nodal Demand Uncertainties	LIU Shu-ming, WU Xue, OUYANG Le-yan (3108)
Formation Process of Nitrogenous Disinfection Byproduct Trichloronitromethane in Drinking Water and Its Influencing Factors	DING Chun-sheng, ZOU Bang-wen, MIAO Jia, <i>et al.</i> (3113)
Removal of Estrogens in Laccase Catalyzed Oxidative Processes	XIA Qing, XIE Wei-ping, LIU Guo-qiang, <i>et al.</i> (3119)
Study on Electrochemical Degradation of Cefazidime by Carbon Nanotubes Electrode	ZHU Hong, HU Xiang, LI Jun-feng (3125)
Photochemical Reaction Types of the Azole Fungicide Fluconazole Under UV-vis Irradiation	GE Lin-ke, LI Kai, YANG Kai, <i>et al.</i> (3132)
Photocatalytic Degradation Kinetics of Diuron by TiO ₂ and Simulated Sunlight	YANG Hai, ZENG Jian, LI Yuan, <i>et al.</i> (3137)
Adsorption of Congo Red from Aqueous Solution on Hydroxyapatite	ZHAN Yan-hui, LIN Jian-wei (3143)
Ethanol-Induced Influence on the Structure and Arsenate Adsorption of Resin-based Nano-hydrated Ferric Oxide	WAN Qi, LI Xu-chun, PAN Bing-cai (3151)
Chlorination Characteristic and Disinfection By-product Formation Potential of Dissolved Organic Nitrogen Compounds in Municipal Wastewater	LIU Bing, YU Xin, YU Guo-zhong, <i>et al.</i> (3156)
Start-up and Maintenance Method for Short-Cut Advanced Nitrogen Removal Process in a Pilot-Scale Reactor at Low Temperature	GU Sheng-bo, WANG Shu-ying, PENG Yong-zhen (3164)
Study on the Start-Up of Anaerobic Ammonium Oxidation Process in Biological Activated Carbon Reactor	LAI Wei-yi, ZHOU Wei-li, HE Sheng-bing (3171)
Excretion of Manure-Borne Steroid Hormones and Their Potential Risk in the Three Northeast Provinces of China	LIU Shu-fang, LI Yan-xia, ZHANG Xue-lian, <i>et al.</i> (3180)
Spatial Distribution and Composition of Perfluorinated Compounds in Soils Around the Huaihe River	MENG Jing, WANG Tie-yu, WANG Pei, <i>et al.</i> (3188)
Fluorine Speciation and Its Distribution Characteristics in Selected Agricultural Soils of North China Plain	YI Chun-yao, WANG Bing-guo, JIN Meng-gui (3195)
Effects of Long-Term Manure and Crop Residues Incorporation on Yield and Phosphorus Saturation in a Paddy Soil	YAN Xiao, WANG De-jian, ZHANG Gang, <i>et al.</i> (3205)
Influence of Organochlorine Pesticides in Wastewater on the Soil Along the Channel	XU Liang, ZHANG Cai-xiang, LIU Min, <i>et al.</i> (3211)
Elution of Endosulfan from Contaminated Soil by Surfactants and Their Combination	XIONG Bai-lian, ZHENG Guo-can, ZHANG Jin-zhong, <i>et al.</i> (3216)
Effects of Different Aspects on Soil Microbial Biomass and Dissolved Organic Carbon of the Loess Hilly Area	ZHAO Tong, JIANG Yue-li, YAN Hao, <i>et al.</i> (3223)
Effects of Nitrogen Addition on Red Soil Microbes in the <i>Cinnamomum camphora</i> Plantation	YU Pei-yi, ZHU Fan, SU Shao-feng, <i>et al.</i> (3231)
Concentration, Profile Distribution and Source Identification of PCDD/Fs in Environmental Medium Around a HSWI	HUANG Wen, ZHANG Su-kun, DU Guo-yong, <i>et al.</i> (3238)
Assessment of Bioaccessibility of PAHs in Microbial Degradation Process Using Solid Phase Micro Extraction and Solid Phase Extraction	GUO Mei-xia, GONG Zong-qiang, LI Xiao-jun, <i>et al.</i> (3244)
Biodegradation of Tetrahydrofuran by Combined Immobilized of <i>Pseudomonas oleovorans</i> DT4	SHAO Qian, YE Jie-xu, OUYANG Du-juan, <i>et al.</i> (3251)
Analysis on Microbial Community in Biofilm Coating onto Solid Carbon Source Using the PCR-DGGE Technique	XU Ying, QIU Tian-lei, HAN Mei-lin, <i>et al.</i> (3257)
Effect of Temperature on Activity of <i>Acidithiobacillus ferrooxidans</i> and Formation of Biogenic Secondary Iron Minerals	SONG Yong-wei, ZHAO Bo-wen, HUO Min-bo, <i>et al.</i> (3264)
Differences of Selenium Uptake Pattern of Pakchoi and the Possible Mechanism When Amended with Selenate and Selenite	GUO Lu, MAN Nan, LIANG Dong-li, <i>et al.</i> (3272)
Effect of Pretreatment on Storage and Biogas Production of Baling Wheat Straw	MA Hui-juan, CHEN Guang-yin, DU Jing, <i>et al.</i> (3280)
Toxicity of Nitrate-N to Freshwater Aquatic Life and Its Water Quality Criteria	ZHANG Ling-song, WANG Ye-yao, MENG Fan-sheng, <i>et al.</i> (3286)
Analysis Performance of Biological Toxicity Testing MTOXPlate Using Microplate	LIN Yi-yun, ZHANG Guo-xia, HE Li-ping, <i>et al.</i> (3294)
Study of Combined Effects of DES and EV on the Proliferation of MCF-7 Cells by Two Experimental Designs	LIU Qian, LEI Bing-li, AN Jing, <i>et al.</i> (3303)
Status and Influencing Factors of Polychlorinated Biphenyls (PCBs) Pollution in the Coastal Areas in China	LIU Min-xia, YANG Yu-yi, LI Qing-xiao, <i>et al.</i> (3309)
Pharmaceuticals and Personal Care Products (PPCPs) in the Effluent of Sewage Treatment Plants	ZHENG Shao-kui, LI Xiao-feng (3316)
Research Progress on Biochar Carbon Sequestration Technology	JIANG Zhi-xiang, ZHENG Hao, LI Feng-min, <i>et al.</i> (3327)
Countermeasures for Strict Water Quality Management of Drinking Water Sources: Some Thoughts and Suggestions on Implementing Strict Water Resources Management	FU Guo-wei (3334)

《环境科学》第6届编辑委员会

主 编: 欧阳自远

副主编: 赵景柱 郝吉明 田 刚

编 委: (按姓氏笔画排序)

万国江 王华聪 王凯军 王绪绪 田 刚 田 静 史培军
朱永官 刘志培 汤鸿霄 陈吉宁 孟 伟 周宗灿 林金明
欧阳自远 赵景柱 姜 林 郝郑平 郝吉明 聂永丰 黄 霞
黄 耀 鲍 强 潘 纲 潘 涛 魏复盛

环 境 科 学

(HUANJING KEXUE)

(月刊 1976年8月创刊)

2013年8月15日 34卷 第8期

ENVIRONMENTAL SCIENCE

(Monthly Started in 1976)

Vol. 34 No. 8 Aug. 15, 2013

主 管	中国科学院	Superintended	by	Chinese Academy of Sciences
主 办	中国科学院生态环境研究中心	Sponsored	by	Research Center for Eco-Environmental Sciences, Chinese Academy of Sciences
协 办	(以参加先后为序) 北京市环境保护科学研究院 清华大学环境学院	Co-Sponsored	by	Beijing Municipal Research Institute of Environmental Protection School of Environment, Tsinghua University
主 编	欧阳自远	Editor-in -Chief		OUYANG Zi-yuan
编 辑	《环境科学》编辑委员会 北京市2871信箱(海淀区双清路 18号, 邮政编码:100085) 电话:010-62941102, 010-62849343 传真:010-62849343 E-mail: hjkx@ rcees. ac. cn http://www. hjkx. ac. cn	Edited	by	The Editorial Board of Environmental Science (HUANJING KEXUE) P. O. Box 2871, Beijing 100085, China Tel:010-62941102, 010-62849343; Fax:010-62849343 E-mail: hjkx@ rcees. ac. cn http://www. hjkx. ac. cn
出 版	科 学 出 版 社 北京东黄城根北街16号 邮政编码:100717	Published	by	Science Press 16 Donghuangchenggen North Street, Beijing 100717, China
印 刷 装 订	北京北林印刷厂	Printed	by	Beijing Bei Lin Printing House
发 行	科 学 出 版 社 电话:010-64017032 E-mail: journal@ mail. sciencep. com	Distributed	by	Science Press Tel:010-64017032 E-mail: journal@ mail. sciencep. com
订 购 处	全国各地邮电局	Domestic		All Local Post Offices in China
国外总发行	中国国际图书贸易总公司 (北京399信箱)	Foreign		China International Book Trading Corporation (Guoji Shudian), P. O. Box 399, Beijing 100044, China

中国标准刊号: ISSN 0250-3301
CN 11-1895/X

国内邮发代号: 2-821

国内定价: 90.00元

国外发行代号: M 205

国内外公开发行