ISSN 0250-3301 CODEN HCKHDV

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第35卷 第7期

Vol.35 No.7

2014

中国科学院生态环境研究中心 主办

科学出版社 出版

双奖期刊

环境科学
(HUANJING KEXUE)
ENVIRONMENTAL SCIENCE
第35卷 第7期
2014年7月15日

目 次

区域污染对本底地区气溶胶光学特性及辐射强迫影响的地基和卫星遥感观测研究 …… 张小玲,夏祥鳌,车慧正,汤洁,唐宜西,孟伟,董璠 (2439)
北京上甸子区域大气本底站甲基氯仿在线观测研究 …… 姚波,周凌晞,刘钊,张根,夏玲君 (2449)
浙江临安大气本底站CO浓度及变化特征 …… 方双喜,周凌晞,栾天,马千里,王红阳 (2454)
南京北郊夏季大气颗粒物中有机碳和元素碳的污染特征 …… 段卿,安俊琳,王红磊,缪青 (2460)
西安冬季非灰霾天与灰霾天 $PM_{2.5}$ 中水溶性有机氮污染特征比较 …… 程玉婷,王格慧,孙涛,成春雷,孟静静,任艳芹,李建军 (2468)
沙尘天气对兰州市 PM_{10} 中主要水溶性离子的影响 …… 王芳,陈强,张文煜,郭勇涛,赵连彪 (2477)
上海大气降水中细菌气溶胶的多样性研究 …… 梁宗敏,杜睿,杜鹏瑞,王亚玲,李梓铭 (2483)
重庆主城区降水中重金属的分布特征及其沉降量 …… 彭玉龙,王永敏,覃蔡清,王定勇 (2490)
宁波人为源VOC清单及重点工业行业贡献分析 …… 李璇,王雪松,刘中,吴梁,翁燕波,胡杰 (2497)
包装印刷行业挥发性有机物控制技术评估与筛选 …… 王海林,王俊慧,祝春蕾,聂磊,郝郑平 (2503)
氨水混合吸收剂脱除 CO_2 实验研究 …… 夏芝香,项群扬,周旭萍,方梦祥 (2508)
焦炉烟气中二噁英类物质排放水平研究 …… 孙鹏程,李晓璐,成钢,陆勇,吴昌敏,罗锦洪 (2515)
2012年夏季长江口颗粒有机碳、氮分布特征及其来源 …… 邢建伟,线薇微,绳秀珍 (2520)
千岛湖水体悬浮颗粒物吸收特性及其典型季节差异 …… 王明珠,张运林,施坤,高赟,刘刚,蒋浩 (2528)
千岛湖溶解氧的动态分布特征及其影响因素分析 …… 殷燕,吴志旭,刘明亮,何剑波,虞左明 (2539)
太湖夏季水体中尿素的来源探析 …… 韩晓霞,朱广伟,许海,Steven W. Wilhelm,秦伯强,李兆富 (2547)
鄱阳湖阻隔湖泊浮游植物群落结构演化特征:以军山湖为例 …… 刘霞,钱奎梅,谭国良,邢久生,李梅,陈宇炜 (2557)
不同营养湖泊沉积物中 $^{210}Pb_{ex}$ 和营养盐垂向分布特征及相关性分析 …… 王小雷,杨浩,顾祝军,张明礼 (2565)
地下水硝酸盐污染抽出处理优化方法模拟研究 …… 姜烈,何江涛,姜永海,刘菲 (2572)
预压力混凝沉淀除藻工艺中DOC变化规律研究 …… 陈雯婧,丛海兵,徐亚军,王巍,蒋新跃,刘玉娇 (2579)
类水滑石 Mg/Zn/Al 焙烧产物对高氯酸盐的吸附 …… 王红宇,刘艳 (2585)
粉煤灰对阴离子水溶性混合染料的吸附动力学 …… 孙德帅,郑强强,张晓东,方龙 (2590)
SDS对两性修饰膨润土吸附 Cd^{2+} 的影响 …… 王建涛,孟昭福,杨亚提,杨淑英,李彬,马麟莉,许绍娥 (2596)
老化的生物质炭性质变化及对菲吸持的影响 …… 唐伟,郭悦,吴景贵,黄兆琴,代静玉 (2604)
TiO_2 光催化降解PFOA的反应动力学及机制研究 …… 李明洁,喻泽斌,陈颖,王莉,刘晴,刘钰鑫,何丽丽 (2612)
荧光猝灭法研究洛克沙胂与腐殖酸的相互作用 …… 朱江鹏,梅婷,彭云,葛思怡,李时银,王国祥 (2620)
改性活性碳纤维电芬顿降解苯酚废水性能研究 …… 马楠,田耀金,杨广平,谢鑫源 (2627)
催化铁强化低碳废水生物反硝化过程的探讨 …… 王梦月,马鲁铭 (2633)
聚丁二酸丁二醇酯(PBS)为反硝化固体碳源的脱氮特性研究 …… 刘佳,沈志强,周岳溪,曹蓉,李元志 (2639)
某造纸厂废水中二噁英含量及其电子束辐照降解 …… 青宪,黄锦琼,余小巍,张素坤,杨艳艳,任明忠,温玉龙 (2645)
嘉兴市规模化养猪场沼液水质调查研究 …… 卫丹,万梅,刘锐,王根荣,张汎达,文晓刚,赵远,陈吕军 (2650)
提高污泥碱性发酵挥发酸积累的新方法 …… 李晓玲,彭永臻,柴同志,朱建平,王淑莹 (2658)
滴水湖及其水体交换区沉积物和土壤中PAHs的分布及生态风险评价 …… 郭雪,毕春娟,陈振楼,王薛平 (2664)
舟山近海水体和沉积物中多环芳烃分布特征 …… 江敏,Le Huy Tuan,梅卫平,阮慧慧,吴昊 (2672)
青藏高原湖泊流域土壤与牧草中多环芳烃和有机氯农药的污染特征与来源解析 …… 谢婷,张淑娟,杨瑞强 (2680)
福建鹫峰山脉土壤有机氯农药分布特征及健康风险评价 …… 黄焕芳,祁士华,瞿程凯,李绘,陈文文,张莉,胡婷,石燎 (2691)
不同功能区表层土中全氟化合物污染指纹及其来源解析 …… 张鸿,赵亮,何龙,柴之芳,沈金灿,杨波 (2698)
桑沟湾溶解态无机砷的分布、季节变化及影响因素 …… 李磊,任景玲,刘素美,蒋增杰,杜金洲,方建光 (2705)
引黄灌区不同尺度农田土壤重金属空间分布及污染评价:以银川市兴庆区为例 …… 王幼奇,白一茹,王建宇 (2714)
三峡水库消落区土壤、植物汞释放及其在斑马鱼体的富集特征 …… 李楚娴,孙荣国,王定勇,赵铮,张金洋,马明,张成 (2721)
广东典型海水养殖区沉积物及鱼体中磺胺类药物的残留及其对人体的健康风险评价 …… 何秀婷,王奇,聂湘平,杨永涛,程章 (2728)
青岛市区大气降尘重金属对人体健康风险的评价 …… 张春荣,吴正龙,姚春卉,高宗军 (2736)
焦炉排放多环芳烃与人体健康风险评价研究 …… 伯鑫,王刚,温柔,赵春丽,吴铁,李时蓓 (2742)
Cd、Cu和Pb复合污染对蚯蚓抗氧化酶活性的影响 …… 王辉,谢鑫源 (2748)
3种氯酚对噬热四膜虫的毒性效应 …… 李雅洁,崔益斌,蒋丽娟,窦静,李梅 (2755)
施硅方式对稻米镉阻隔潜力研究 …… 陈喆,铁柏清,雷鸣,刘孝利,叶长城,罗梅梅,毛懿德 (2762)
保护性耕作对后茬冬小麦土壤 CO_2 和 N_2O 排放的影响 …… 潘莹,胡正华,吴杨周,孙银银,盛露,陈书涛,肖启涛 (2771)
渭北生草果园土壤有机碳矿化及其与土壤酶活性的关系 …… 贾曼莉,郭宏,李会科 (2777)
蒸汽-空气混合注射修复TCE污染的二维土箱实验研究 …… 王宁,彭胜,陈家军 (2785)
铜离子对双室微生物燃料电池电能输出的影响研究 …… 牟姝君,李秀芬,任月萍,王新华 (2791)
连续流强制通风槽式污泥堆肥工艺的温室气体和氨气排放特征 …… 赵晨阳,魏源送,葛振,钟佳,才兴,张媛丽,李洪枚 (2798)
冬季猪粪固体堆放过程中 NH_3、N_2O 和NO排放特征研究 …… 丁钢强,韩圣慧,袁玉玲,罗琳,王立刚,李虎,李萍 (2807)
填埋场渗滤液腐殖酸随填埋龄的变化特性及模型研究 …… 黄友福,许心雅,范良鑫,方艺民 (2816)
渗滤液反渗透浓缩液回灌出水水质变化规律的研究 …… 王东梅,刘丹,刘庆梅,陶丽霞,刘颖 (2822)
中国铅流变化的定量分析 …… 马兰,毛建素 (2829)
半短程亚硝化与厌氧氨氧化联合脱氮工艺微生物特征研究进展 …… 赵志瑞,侯彦林 (2834)
《环境科学》征稿简则(2679) 《环境科学》征订启事(2735) 信息(2476,2556,2713,2770)

嘉兴市规模化养猪场沼液水质调查研究

卫丹[1,2],万梅[2],刘锐[2],王根荣[3],张汛达[2],文晓刚[4*],赵远[1],陈吕军[2,5]

(1. 常州大学环境与安全工程学院,常州 213164; 2. 浙江清华长三角研究院生态环境研究所,浙江省水质科学与技术重点实验室,嘉兴 314006; 3. 嘉兴市南湖区农业经济局,嘉兴 314000; 4. 嘉兴学院南湖学院,嘉兴 314000; 5. 清华大学环境学院,北京 100084)

摘要: 以嘉兴市 10 家大型规模化养猪场为对象,开展了沼液水质调查,测试了 COD、氮、磷和外源化学品(抗生素、重金属)的污染水平. 结果表明,不同猪场之间水质差异很大,且同一猪场的沼液水质随时间波动很大. 其中春季检测组的猪场沼液浓度普遍较高,COD、氨氮、TN 和 TP 的浓度分别高于2 000、1 000、1 000和 60 mg·L^{-1}的猪场有 7 家,秋季和冬季检测组的沼液浓度稍低,夏季检测组最低. 沼液碳氮比失衡严重,其中秋季检测组最低,仅为 0.8 ~ 4.3. 4 类(四环素类、磺胺类、大环内酯类、喹诺酮类)共 10 种抗生素和 6 种重金属(铜、锌、铅、铬、镍和镉)在 10 家猪场沼液中均有检出. 重金属以铜、锌为主,平均值分别为 1.88 mg·L^{-1}和 7.63 mg·L^{-1}. 抗生素以四环素类(四环素、土霉素、金霉素)为主. 10 种抗生素总浓度的最低值为 10.1 μg·L^{-1},最高值为1 090 μg·L^{-1},远高于欧盟的水环境抗生素阈值(10 ng·L^{-1}). 猪场沼液不仅氮磷脱除难,而且重金属和抗生素污染严重,亟待开发低成本高效无害化处理与资源化利用技术.

关键词:养猪场沼液; 外源化学品; 重金属; 抗生素; 碳氮比

中图分类号: X703.1 **文献标识码**: A **文章编号**: 0250-3301(2014)07-2650-08 **DOI**: 10.13227/j.hjkx.2014.07.031

Study on the Quality of Digested Piggery Wastewater in Large-Scale Farms in Jiaxing

WEI Dan[1,2], WAN Mei[2], LIU Rui[2], WANG Gen-rong[3], ZHANG Xun-da[2], WEN Xiao-gang[4], ZHAO Yuan[1], CHEN Lü-jun[2,5]

(1. College of Environment and Safety Engineering, Changzhou University, Changzhou 213164, China; 2. Zhejiang Provincial Key Laboratory of Water Science and Technology, Department of Environment in Yangtze Delta Region Institute of Tsinghua University, Jiaxing 314006, China; 3. Nanhu District Agriculture Bureau, Jiaxing 314000, China; 4. Nanhu College, Jiaxing University, Jiaxing 314000, China; 5. School of Environment, Tsinghua University, Beijing 100084, China)

Abstract: Pollution characteristics of digested piggery wastewater (DPW), including not only the chemical oxygen demand (COD), nitrogen and phosphorus but also the veterinary antibiotics and heavy metals, were investigated in ten large-scale pig farms in Jiaxing City. Results showed that the water quality of DPW greatly varied with farms and seasons. DPW in the spring group showed the highest pollutant concentration, with seven of the ten pig farms demonstrating COD of over 2 000 mg·L^{-1}, total nitrogen and ammonia nitrogen of over 1 000 mg·L^{-1} and total phosphorus of over 60 mg·L^{-1}. Pollutant concentrations of DPW were lower in the autumn and winter groups, while the lowest was observed in the summer group. Unbalanced nutrient was observed in DPW, the carbon nitrogen ratio showed the lowest value of 0.8-4.3 in the autumn group. Four classes (tetracyclines, quinolones, macrolides and sulfonamides) of ten antibiotics and six heavy metals (Cu, Zn, Pb, Cd, Ni and Cr) were detectable in DPW from all the ten farms. Cu and Zn were the top two dominant heavy metals, with an average concentration of 1.88 mg·L^{-1} and 7.63 mg·L^{-1}, respectively. Tetracyclines (including Tetracycline, Oxytetracycline and Chlortetracycline) were always the dominant antibiotics. The total concentration of the ten antibiotics was in the range of 10.1 μg·L^{-1} to 1090 μg·L^{-1}, far exceeding the antibiotics limit of 10 ng·L^{-1} in the water environment specified by EU. Efficient but low cost treatment technologies are in urgent need in order to deal with the pollution by DPW, a wastewater that is not only difficult to remove nitrogen and phosphorus, but also seriously polluted by heavy metals and antibiotics.

Key words: digested piggery wastewater; exogenetic chemicals; heavy metals; antibiotic; the C/N ratio

生猪养殖带来的 COD 和氮磷污染问题已经受到广泛重视[1,2],其中 COD 和氨氮减排已被列入国家环保部的"十二五"总量减排计划. 同时现代畜牧养殖业中为了促生长或防治疾病,在饲喂时使用的重金属和抗生素等外源化学品污染问题逐步显现. 这些外源化学品被生物体利用的较少,85% 以上通过尿液和粪便排出体外进入环境,威胁生态系统安全和人类健康,引起广泛关注[3~6]. 我国目前执行的是《畜禽养殖业污染物排放标准》(GB 18596-

收稿日期: 2013-11-13; **修订日期**: 2014-01-10
基金项目: 国家高技术研究发展计划(863)项目 (2012AA06A304); 浙江省科技计划项目(2012F10028); 嘉兴市科技计划项目(2012AZ1013); 南湖区科技计划项目(2013QS01)
作者简介: 卫丹(1988 ~),男,硕士研究生,主要研究方向为水污染控制,E-mail:bbxywd@126.com
* 通讯联系人,E-mail:wenxg.thzj@gmail.com

2001)，对畜禽养殖业排水中重金属和抗生素的排放浓度均没有规定. 环境保护部近期委托中国环境科学研究院对排放标准进行了修订，2011 年 3 月公开的《畜禽养殖业水污染物排放标准》(征求意见稿)中规定 Cu 和 Zn 的排放限值分别为 0.5 mg·L^{-1} 和 1.5 mg·L^{-1}. Cu 和 Zn 排放限值的提出，充分显示生猪养殖业中外源化学品的污染已开始引起政府的重视和社会的关注.

虽然针对养猪废水中外源化学品污染现状的研究数据还比较有限，但既有文献报道足以充分表明，我国养猪废水中存在着比较严重的重金属和抗生素污染. 潘寻等[7]对山东省 21 家规模化猪场夏、冬两季共 126 个猪粪样品及 18 个配合饲料样品中多种重金属(Cr、Cu、Zn、As、Cd 和 Pb)的含量进行了检测，发现猪粪中 Cu、Zn、Cr、As、Cd、Pb 的平均检出值分别为 472.8、1908.6、12.3、36.5、0.9、2.9 mg·kg^{-1}. 不同猪群粪便中重金属含量存在一定差异，Cu、Zn、Cd 在小猪粪便中检出浓度最高，而 Cr、As 分别在种猪和育肥猪的粪便中检出浓度最高. 陈永山等[8]对苕溪流域某规模化养猪场排放的典型废水进行兽用抗生素污染检测，发现废水中四环素类抗生素污染最为严重，最高单体污染浓度可达 13.7 μg·L^{-1}，磺胺嘧啶、磺胺甲唑和磺胺二甲嘧啶等 3 种磺胺类物质也有一定的检出量，但以磺胺二甲嘧啶较为突出，最高检出量为 0.675 μg·L^{-1}；氧氟沙星以及红霉素和罗红霉素等喹诺酮和大环内酯类抗生素除了原水有较低的检出量，其它废水均未检出. Luo 等[9]对海河流域 4 类(四环素类、磺胺类、大环内酯类、喹诺酮类)抗生素来源进行了调查，发现这 4 类抗生素在猪场废水中都有检出，浓度在 0.12 ~ 0.47 μg·L^{-1}之间，高于污水处理厂出水 10 ~ 100 倍不等；磺胺二甲基嘧啶在所有的猪场废水中都有检出，浓度最高达到了 47 μg·L^{-1}.

养猪沼液中外源污染物和传统污染物(COD、N、P)的污染水平及其变化特征，直接关系到沼液处理技术的选择、排水的生态安全程度以及可资源化利用水平，因此有必要针对各地区具体情况综合考察、系统研究. 嘉兴市是长三角地区重要的生猪养殖基地，2012 年全市生猪存栏量为 280 万头(嘉兴市统计信息网，http://www.jxstats.gov.cn)，按照每头猪每年粪便废水排放量为 1 520.6 kg[10]计算，预计每年产生养猪废水超过 400 万 t. 本研究以嘉兴市南湖区年出栏量在 5 000 头以上的规模化养猪场为对象，在测试沼液常规水质指标的同时，对沼液中常见的 6 种重金属元素和 10 种抗生素的污染情况进行了调查研究，以期为沼液的达标排放、无害化处理以及有效管理提供基础数据支持.

1　材料与方法

1.1　采集样品

在嘉兴市生猪养殖密集的南湖区选择 10 家年出栏量为 5 000 头以上的规模化养猪场进行取样调查. 南湖区年出栏量 5 000 头以上的规模化养殖场共 17 家，本次抽查数占总数的 60%，具有代表性.

分别于 2012 年 10 月 30 日(秋季)、2012 年 12 月 26 日(冬季)、2013 年 4 月 15 日(春季)和 2013 年 8 月 5 日(夏季)同时采集各猪场水样. 在厌氧发酵罐排放沼液的前期、中期和后期这 3 个阶段，分别于厌氧发酵罐排出口采集沼液 1 L 混合后放入冰箱冷藏，3 d 内完成各项水质分析.

1.2　测定方法

常规水质检测方法参照文献[11]. 溶解性水质指标通过把水样以转速 3 000 r·min^{-1}，离心 8 min 后取上清液测试获得.

铜、锌、铬、镍、镉、铅经微波消解(上海新仪微波消解化学科技有限公司，型号 MDS-10)后用火焰原子吸收仪(安捷伦科技有限公司，型号 240AA Duo)测定[11].

抗生素检测方法参照文献[12]. 采用 Waters e2695 型液相色谱仪，配 Waters TQ Detector 型串联三重四级杆质谱. 四环素(Tetracycline，TC)、土霉素(Oxytetracycline，OTC)、金霉素(Chlortetracycline，CTC)、诺氟沙星(Norfloxacin，NOR)、恩诺沙星(Enrofloxacin，ENR)、环丙沙星(Ciprofloxacin，CIP)、泰乐菌素(Tylosin，TYL)、罗红霉素(Roxithromycin，RTM)标准品购自德国 Dr. Ehrenstorfer GmbH 公司，磺胺甲噁唑(Sulfamethoxazole，SMX)和磺胺二甲嘧啶(Sulfadimidine，SMD)标准品购自中国药品生物制品检定所. 甲醇、乙腈、甲酸为色谱纯；EDTA 钠盐、盐酸等试剂为分析纯；试验用水为 Milli-Q 水.

2　结果与讨论

2.1　常规水质

春夏秋冬 4 次采样中 10 家猪场沼液 COD、氨氮、TN 和 TP 的浓度变化如图 1 所示. 猪场沼液水质随采样时间变化很大，总体来说，夏季采样组的猪场沼

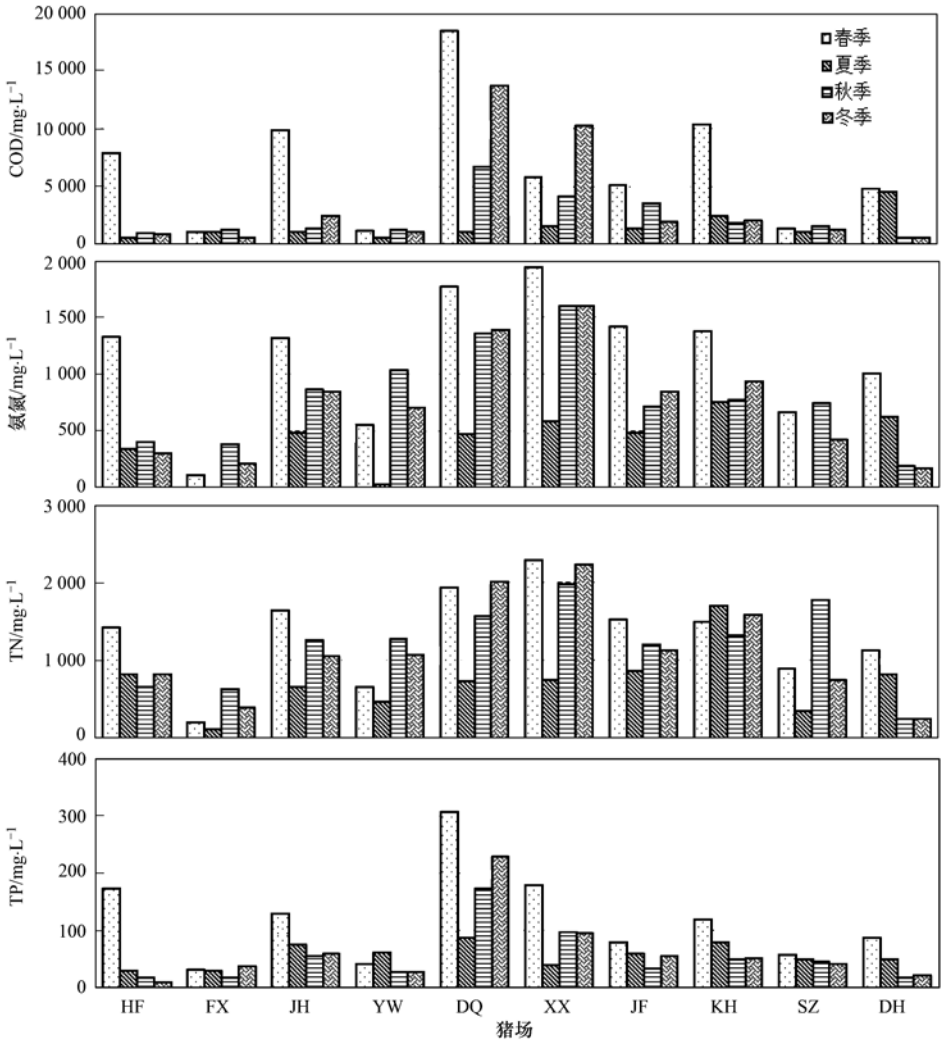

图 1 春夏秋冬 4 次采样中 10 家规模化猪场 COD、氨氮、TN 和 TP 的浓度变化情况

Fig. 1 COD, ammonia nitrogen, TN and TP concentrations of DPW sampled in different seasons from the ten large-scale farms

液水质浓度普遍较低,春季采样组的浓度普遍较高.

春季采样组中,10 家猪场沼液的 COD 浓度为 1 008 ~ 18 479 mg·L^{-1},DQ 猪场浓度最高,FX 猪场最低,二者相差了 18 倍. COD 浓度小于 2 000 mg·L^{-1}以及在 2 000 ~ 6 000 mg·L^{-1}之间的猪场各有 3 家, COD 浓度高于 6 000 mg·L^{-1}的猪场有 4 家. TN 浓度为 205 ~ 2 288 mg·L^{-1},最大值与最小值相差了 11 倍; 氨氮浓度为 119 ~ 1 936 mg·L^{-1},占 TN 浓度的 84% ±11%. 10 家猪场中,有 7 家猪场的氨氮和 TN 浓度均在 1 000 mg·L^{-1}以上. TP 浓度为 32.6 ~ 306 mg·L^{-1},其中 TP 浓度低于 60 mg·L^{-1}和在 60 ~ 150 mg·L^{-1}之间的各有 3 家,高于 150 mg·L^{-1}的有 4 家.

夏季采样组的沼液浓度普遍较低. COD 浓度在 524 ~ 4 478 mg·L^{-1}之间,平均值仅为春季采样组的四分之一,其中 COD 浓度低于 2 000 mg·L^{-1}的猪场有 8 家,高于 2 000 mg·L^{-1}的猪场只有 2 家. TN 和氨氮的浓度分别为 116 ~ 1 703 mg·L^{-1}和 22.2 ~ 758 mg·L^{-1},其中 TN 和氨氮浓度都低于 1 000 mg·L^{-1}的有 9 家; TP 浓度为 30 ~ 87.5 mg·L^{-1},其中浓度低于 60 mg·L^{-1}的猪场占一半.

夏季采样组猪场沼液浓度较低的原因主要有两点:①夏季沼液池温度高,发酵完全,有机物去除效果较好; ②夏季天气炎热,给猪喂水和清洗猪舍的次数增多,导致整体用水量增加,沼液中污染物稀释程度较大.

秋季采样组中猪场沼液的 COD 浓度在 593 ~ 6 728 mg·L^{-1}之间,有 7 家猪场 COD 浓度低于 2 000 mg·L^{-1},2 家猪场在 2 000 ~ 6 000 mg·L^{-1}之间,仅有 1 家猪场在 6 000 mg·L^{-1}以上; TN 和氨氮的浓度分别为 253 ~ 1 978 mg·L^{-1}和 195 ~ 1 596 mg·L^{-1},其中 7 家猪场 TN 浓度在 1 000 mg·L^{-1}以上,氨氮浓度

在1 000 mg·L^{-1}以上的仅有3 家；TP 浓度为18.5 ~ 174 mg·L^{-1}，有8 家猪场TP 浓度低于60 mg·L^{-1}，1 家猪场在150 mg·L^{-1}以上.

冬季采样组中猪场沼液COD 浓度在557 ~ 13 713 mg·L^{-1}之间，平均值仅次于春季采样组，有6 家猪场COD 浓度低于2 000 mg·L^{-1}，2 家猪场在6 000 mg·L^{-1}以上；TN 和氨氮的浓度分别为247 ~ 2 235 mg·L^{-1}和175 ~ 1 598 mg·L^{-1}，二者的平均值和秋季采样组差别不大，有6 家猪场TN 浓度在1 000 mg·L^{-1}以上，氨氮浓度在1 000 mg·L^{-1}以上的仅有2 家；TP 浓度为10.7 ~ 230 mg·L^{-1}，有7 家猪场TP 浓度低于60 mg·L^{-1}，1 家猪场在150 mg·L^{-1}以上.

众所周知沼液中碳氮比严重失衡，其中氮的含量相对较高，导致生物脱氮困难. 本研究中春季采样组的沼液COD/TN 为1.5 ~ 9.5，比值低于5.0 的猪场占60%，大于8.0 的猪场仅占10%. 夏季采样组的沼液中由于COD 浓度降低，导致COD/TN 也有所降低，在0.7 ~ 9.1 之间，其中80% 猪场的COD/TN 低于3.0. 秋季和冬季采样组的沼液COD/TN 分别在0.8 ~ 4.3 和1.0 ~ 6.8 之间，平均值分别为1.9 和2.4，明显低于春季和夏季采样组. 与文献[13]中TN 完全去除时所需碳氮比应为8 ~ 10 相比，本研究所有沼液检体的碳氮比都相对较低，因此可推测，要使沼液经过处理达到《畜禽养殖业水污染物排放标准》(征求意见稿)中规定的TN 排放限值40 mg·L^{-1}，难度较大.

虽然同属于大规模生猪养殖企业，但各养猪场之间的沼液水质差异很大，其中DQ 和XX 两家猪场沼液COD、氨氮、TN 和TP 的浓度要明显高于其它8 家猪场. 这与各养猪户的用水量有关，也与饲养管理水平、清粪方式(水泡粪、水冲式、干清粪)和清粪频率有关，另外沼气池的运行效率也会有很大影响.

徐秀银[14]、杨朝晖等[15]对江苏、上海等地区沼液调查结果表明，COD 浓度集中在960 ~ 2 800 mg·L^{-1}，TP 浓度集中在20 ~ 50 mg·L^{-1}，与本次调查结果基本一致；而同属于长三角地区的江苏、上海TN 浓度集中在300 ~ 900 mg·L^{-1}，略低于本次调查结果的1 000 ~ 2 300 mg·L^{-1}. 因此在嘉兴地区设计沼液处理方案时应充分考虑当地的沼液水质实际情况，针对高总氮、高氨氮的特点，重点开发以短程硝化反硝化、厌氧氨氧化等技术特点的工艺，提高系统的脱氮能力.

从溶解性浓度占比来看，溶解性COD 占总COD 的30% ~ 97%，平均71%；溶解性TN 占总TN 的50% ~ 97%，平均81%；溶解性TP 占总TP 的13% ~ 96%，平均62%. 悬浮物对沼液水质影响比较大. 为了控制后续生物处理成本，建议在对沼液进行处理时强化一级处理，尽量去除悬浮物带来的污染负荷，减轻后续生物处理负荷.

2.2　重金属

不同季节采样组各规模化猪场沼液重金属的含量见表1. 铜和锌是沼液中含量最高的两种重金属，占所有猪场沼液(除了秋季HF、FX、JH 和YW 猪场沼液)重金属浓度的97% ±3%. 铅的含量仅次于铜和锌. 镉、镍和铬在多数猪场沼液中均有检出，但是三者的浓度很低.

春季采样组中猪场沼液的重金属检出浓度最高，6 种重金属在10 家猪场沼液中都有检出. 铜和锌的浓度分别为0.82 ~ 8.8 mg·L^{-1}和1.4 ~ 39.8 mg·L^{-1}，所有猪场均超过《畜禽养殖业水污染物排放标准》(征求意见稿)中规定的铜(0.5 mg·L^{-1})和锌(1.5 mg·L^{-1})排放限值. 铅浓度在0.15 ~ 0.35 mg·L^{-1}之间，镍和铬的浓度相差不大，分别为0.07 ~ 0.15 mg·L^{-1}和0.04 ~ 0.21 mg·L^{-1}，6 种重金属中镉的浓度最低，为0.01 ~ 0.03 mg·L^{-1}. 关于猪场猪粪中重金属含量的报道中，Cu 和Zn 的含量也是最高的.

秋季采样组的沼液中6 种重金属也多有检出. 铜和锌的浓度分别为0.24 ~ 3.6 mg·L^{-1}和0.32 ~ 13.0 mg·L^{-1}，其中超过《畜禽养殖业水污染物排放标准》(征求意见稿)中铜锌排放限值的猪场占8 家. 有6 家猪场检出重金属铅，且浓度要高于春季沼液组，剩余4 家猪场没有检出. 镉、镍和铬浓度的平均值分别为0.01、0.04 和0.05 mg·L^{-1}，低于春季采样组猪场沼液平均值.

夏季和冬季采样组中沼液的重金属含量较低. 两个季节沼液中铜和锌的含量相似，平均值比春季低60%；铅和镉在夏季采样的各沼液中都没有检出，镍和铬在冬季沼液中除DQ 猪场外也没有检出，夏季沼液中镍和铬含量以及冬季沼液中铅和镉含量都低于春季采样组.

沼液中检出的重金属主要来源于饲料添加，猪饲料中通常添加重金属促进猪的生长[16]. 本调查结果显示沼液中铜、锌含量均高于排放要求，且铅、镉、镍和铬也有不同程度检出，若不经有效处理，该废水排入水体后会导致水质恶化. 因此，在沼液资源化利用以及处理过程中应充分重视重金属污染问题.

表 1 不同季节采样组 10 家猪场沼液重金属浓度的变化情况[1)]

Table 1 Heavy metal concentrations of DPW sampled in different seasons from the ten large-scale farms

采样组	猪场	重金属/mg·L^{-1}					
		Cu	Zn	Pb	Cd	Ni	Cr
春季	HF	5.5	19.2	0.20	0.02	0.09	0.17
	FX	1.6	5.9	0.30	0.02	0.07	0.07
	JH	7.3	39.8	0.20	0.03	0.15	0.17
	YW	1.7	3.9	0.15	0.01	0.11	0.19
	DQ	8.8	32.3	0.35	0.02	0.39	0.19
	XX	1.7	21.8	0.25	0.03	0.09	0.06
	JF	4.0	10.8	0.25	0.03	0.08	0.14
	KH	4.1	7.0	0.30	0.02	0.09	0.08
	SZ	0.82	1.4	0.20	0.02	0.09	0.04
	DH	1.8	5.6	0.20	0.02	0.07	0.21
夏季	HF	8.6	30.3	ND	ND	0.15	0.18
	FX	0.17	2.1	ND	ND	ND	ND
	JH	0.70	3.9	ND	ND	0.04	0.02
	YW	0.32	0.75	ND	ND	0.01	ND
	DQ	1.1	10.8	ND	ND	0.03	0.01
	XX	0.70	2.7	ND	ND	0.02	ND
	JF	0.49	2.0	ND	ND	0.01	ND
	KH	0.39	1.9	ND	ND	0.06	ND
	SZ	0.23	0.45	ND	ND	0	ND
	DH	0.88	3.5	ND	ND	0.08	0.08
秋季	HF	0.53	1.8	0.70	0.01	0.03	0.06
	FX	0.66	1.3	0.70	0.01	0.01	ND
	JH	0.59	2.3	0.70	0.01	0.03	0.08
	YW	0.30	0.42	0.70	0.01	0.04	0.12
	DQ	3.6	13.0	1.4	0.01	0.10	ND
	XX	2.1	9.6	1.4	0.01	0.10	0.03
	JF	1.4	3.0	ND	0.02	0.04	0.02
	KH	1.5	7.0	ND	0.02	0.02	0.06
	SZ	2.5	2.9	ND	0.01	0	0.04
	DH	0.24	0.32	ND	0.01	0	0.02
冬季	HF	0.14	1.7	0.01	0.03	ND	ND
	FX	0.12	0.8	0.01	0.02	ND	ND
	JH	1.3	9.5	0.03	0.02	ND	ND
	YW	0.35	1.4	0.03	0.03	ND	ND
	DQ	4.8	23.1	0.14	0.02	ND	0.12
	XX	2.0	11.4	0.09	0.02	ND	ND
	JF	0.38	1.2	ND	0.01	ND	ND
	KH	1.3	6.8	0.04	0.02	ND	ND
	SZ	0.61	1.2	0.03	0.02	ND	ND
	DH	0.06	0.44	ND	ND	ND	ND
最大值		8.8	39.8	1.40	0.04	0.39	0.21
最小值		0.06	0.32	ND	ND	ND	ND
平均值		1.88	7.63	0.21	0.01	0.05	0.05
标准偏差		2.27	9.64	0.35	0.01	0.07	0.07

1)“ND”表示未检出

现有沼液处理多采用生化处理方法. 有研究表明,当进水铜、锌等含量小于 10 mg·L^{-1}时,对生物处理系统的有机物去除效率影响较小,但硝化功能会受到严重影响,且受影响后很难恢复,另外污泥沉淀性变差,增加出水浊度[17]. 因此在设计沼液处理系统时,应充分考虑重金属在生物处理系统中的蓄积及其对微生物活性的影响,特别需要关注在生物处理前端的物化处理方法对重金属进行去除.

2.3 抗生素

不同季节采样组猪场沼液抗生素含量见表 2. 春季采样组的猪场沼液各种抗生素总含量在 45 ~ 1 090 μg·L^{-1}之间,均值为 368 μg·L^{-1},秋季采样组的各种抗生素总含量在 10.1 ~ 351 μg·L^{-1}之间,均值为 98.5 μg·L^{-1},冬季采样组的各种抗生素总含量在 28.0 ~ 717 μg·L^{-1}之间,均值为 187 μg·L^{-1}. 其中春季采样组的沼液抗生素含量最高,均值分别是秋季和冬季采样组的 3.7 倍和 2.0 倍.

表 2　不同季节采样组 10 家猪场沼液抗生素含量的变化情况[1)]

Table 2　Antibiotics concentrations of DPW sampled in different seasons from the ten large-scale farms

采样组	猪场	抗生素/μg·L^{-1}									
		TC	OTC	CTC	SMD	SMX	ENR	CIP	NOR	TYL	RTM
春季	HF	0.75	69.6	2.95	0.05	0.05	1.05	1.3	2.3	22.0	ND
	FX	2.3	1.6	21.5	2.9	ND	0.4	0.65	0.85	0.4	ND
	JH	5.75	994	31.3	ND	ND	0.2	1.2	0.65	0.7	ND
	YW	8.6	17.6	75.1	ND	2.3	0.1	0.65	ND	ND	3.4
	DQ	6.65	182	34.5	3.8	ND	1.6	1.1	0.8	1.1	ND
	XX	43	88.5	228	30.2	ND	0.15	4.6	0.8	1.7	ND
	JF	3.65	44.8	17.8	2.85	56.9	2.85	1.95	0.95	6.1	ND
	KH	18.1	959	87.3	19.2	ND	1.2	1.5	1	3.45	ND
	SZ	9.5	36.8	41.1	0.8	ND	1.5	1.1	1.05	6.65	ND
	DH	13.3	287	64.2	13.8	0.2	3.9	4.6	4.4	44.1	ND
	平均值	11.2	269	60.3	7.37	5.94	1.30	1.87	1.28	8.62	0.34
秋季	HF	0.4	9.78	0.53	0.008	ND	0.22	0.41	0.6	0.16	0.15
	FX	0.82	51.1	7.01	0.37	0.02	0.46	0.29	0.57	0.03	0.03
	JH	1.44	40.4	3.07	3.47	0.031	1.98	5.92	0.08	0.02	0.26
	YW	0.67	14.8	2.64	0.005	1.61	0.09	0.28	0.16	0.01	0.5
	DQ	1.74	17.7	52.8	1.59	ND	0.19	1.44	1.63	0.04	0.04
	XX	1.27	4.58	2.3	0.33	ND	ND	0.86	0.44	0.36	ND
	JF	3.02	68.5	18.6	0.09	1.17	1.39	1.53	0.33	0.11	ND
	KH	0.62	332	12.4	0.46	0.08	0.18	2.09	1.97	1.22	0.002
	SZ	8.98	164	53.8	0.03	0.003	1.31	0.86	0.08	0.79	ND
	DH	0.4	69.8	1.28	0.011	0.001	0.05	0.2	0.04	0.003	0.005
	平均值	1.94	77.3	15.4	0.636	0.292	0.587	1.39	0.59	0.274	0.099
冬季	HF	0.62	92.8	6.43	0.02	0.002	0.23	0.7	0.4	0.08	0.02
	FX	0.67	21.2	4.55	0.39	0.003	0.35	0.57	0.23	0.012	0.009
	JH	0.81	39.5	3.8	1.66	0.002	0.47	1.5	0.06	0.56	0.007
	YW	1.84	21.6	12.2	0.05	0.01	0.2	0.44	0.08	0.07	0.03
	DQ	14.2	469	93.7	0.12	0.007	5.88	5.91	0.35	0.38	6.86
	XX	2	188	13.8	0.19	0.02	0.309	1.93	0.3	0.3	0.32
	JF	0.89	24.3	3.24	0.05	0.6	0.68	1.77	0.16	0.25	0.009
	KH	5.83	672	35.3	0.2	0.001	1.29	1.81	0.08	0.1	0.01
	SZ	3.55	46.5	21.0	0.08	0.002	0.58	0.68	0.21	0.12	0.01
	DH	0.3	33.6	1.04	0.008	0	0.03	0.18	0.04	0.12	0.006
	平均值	3.07	161	19.5	0.277	0.065	1.00	1.55	0.191	0.199	0.728

1)"ND"表示未检出

10 种抗生素在不同季节采样的各猪场沼液中均有检出,说明这些抗生素在猪场内全年普遍使用. 然而各猪场之间的沼液抗生素含量差别很大,抗生素总浓度最高者分别约为最低者的 24 倍(春季组)、35 倍(秋季组)和 25 倍(冬季组). KH 猪场沼液 10 种抗生素总含量是所有猪场中最高的,3 个季节中 FX 猪场相对最低. 本调查的 10 家猪场位于同一城市,所以需要预防的畜禽疾病也基本一样,然而不同猪场之间抗生素含量差别很大,说明有些猪场对某些抗生素过度使用.

所有猪场沼液中四环素类(四环素、土霉素、金霉素)含量最高,占总抗生素浓度的 91%. 不同季节采样组所有猪场沼液中四环素、土霉素和金霉素均有检出,并且浓度也很高, 10 家猪场在春、秋、冬这 3 个采样组的浓度分别为 39.8 ~ 1 064、8.15 ~ 345 和 26.4 ~ 713 μg·L^{-1},其中又以土霉素所占

比例最高,占四环素类物质的 75% ±22%,四环素和金霉素所占比例较少,但是浓度也很高.

沼液中磺胺类(磺胺二甲嘧啶、磺胺甲噁唑)物质在春、秋、冬这 3 次采样中的浓度范围分别为未检出 ~59.7、0.008 ~3.50 和 0.008 ~1.66 μg·L^{-1}. 春季采样组中 10 家猪场的沼液磺胺类浓度平均值高出秋季和冬季采样组数十倍,并且不同猪场之间差别也很大,高达成百上千倍.

春、秋、冬这 3 个采样组 10 家猪场沼液中喹诺酮类(恩诺沙星、环丙沙星、诺氟沙星)含量分别为 0.75 ~12.9、0.29 ~7.98 和 0.25 ~12.1 μg·L^{-1},其中春季猪场含量的平均值最高. 与磺胺类物质相比,不同猪场之间喹诺酮类含量的时间变化较小.

春、秋、冬这 3 个采样组 10 家猪场沼液(除春季 YW 猪场以外)中泰乐菌素均有检出,其中春季采样组的检出浓度要高于秋季和冬季数十至数百倍. 罗红霉素在春季沼液中只有 1 家猪场检出,秋季有 3 家,冬季全部都有检出,含量不等.

到目前为止,我国还未对水环境中的抗生素做出限定. 但是本调查显示猪场沼液抗生素的污染已相当严重,被调研的 10 个猪场沼液中, 10 种抗生素总浓度的最低值为 10.1 μg·L^{-1},最高值则达到了 1 090 μg·L^{-1},检测数值远高于欧盟的水环境抗生素阈值(10 ng·L^{-1})[18]. 动植物长期接触含抗生素的废水会产生耐药基因,并水平转移到土壤、农田、地下水中的非耐药菌中,增加耐药菌数量,并通过土壤农作物和水生生物传播,促进耐药菌的传播,降低抗生素的药效. 因此要给予沼液中抗生素污染问题足够的重视,除了制定相关政策合理使用抗生素以外,对抗生素污染状况、高效去除技术以及生态风险评估等需要进一步进行研究.

含抗生素的废水目前常采用生化法、高级氧化法、膜处理工艺等进行处理. 其中传统生化法对抗生素的去除效率较低[19,20],平均在 60% 左右,而对磺胺类抗生素几乎没有去除作用; 高级氧化法对抗生素的去除效率在 30% ~90% 之间,但处理成本高,实际应用存在一定的局限性[21,22]; 膜处理工艺是基于膜的高效截留原理,并不能够达到真正的抗生素去除,需要寻求更好的方法[23,24]. 因此,如何在抗生素高效去除的同时降低成本是将来研究的重点.

3 结论

(1)本研究每个季节只采集到一次样品,因此各季节采样组之间的差异尚不足以揭示水质的季节性变化. 然而,研究结果在一定程度上揭示出嘉兴地区沼液抗生素和重金属的污染水平,以及时间变化较大的特征. 同时显示,各规模化养猪场之间沼液的常规水质指标和外源化学品污染水平都差异较大. 在设计沼液处理工艺时需要充分考虑到沼液水质的差异和波动. 沼液中悬浮物对水质影响大,需要在生物处理之前强化一级处理.

(2)各规模化猪场外源化学品污染相当严重, 6 种重金属(铜、锌、铅、镉、镍和铬)和 10 种常用抗生素在猪场沼液中均有检出. 沼液中铜和锌浓度最高,超过《畜禽养殖业水污染物排放标准》(征求意见稿)中规定的铜(0.5 mg·L^{-1})和锌(1.5 mg·L^{-1})排放限值; 各规模化猪场抗生素含量总和在 10.1 ~ 1 090 μg·L^{-1}之间. 因此,在沼液资源化利用或处理过程中外源化学品污染问题要给予足够的重视. 亟需开发抗生素的低成本高效去除处理方法.

参考文献:

[1] 杨静超, 夏训峰, 席北斗, 等. 曝停比对两级 SBBR 处理猪场废水厌氧消化液的影响[J]. 生态与农村环境学报, 2013, **29**(2): 248-252.

[2] 曾凤, 霍守亮, 席北斗, 等. 猪场废水厌氧消化液后处理过程中 DOM 变化特征[J]. 环境科学, 2011, **32**(6): 1687-1695.

[3] Costanzo S D, Murby J, Bates J. Ecosystem response to antibiotics entering the aquatic environment [J]. Marine Pollution Bulletin, 2005, **51**(1): 218-223.

[4] Kumarasamy K K, Toleman M A, Walsh T R, *et al*. Emergence of a new antibiotic resistance mechanism in India, Pakistan, and the UK: a molecular, biological, and epidemiological study [J]. The Lancet Infectious Diseases, 2010, **10**(9): 597-602.

[5] D'Costa V M, King C E, Kalan L, *et al*. Antibiotic resistance is ancient [J]. Nature, 2011, **477**(7365): 457-461.

[6] Binh C T, Heuer H, Kaupenjohann M, *et al*. Piggery manure used for soil fertilization is a reservoir for transferable antibiotic resistance plasmids [J]. FEMS Microbiology Ecology, 2008, **66**(1): 25-37.

[7] 潘寻, 韩哲, 贲伟伟. 山东省规模化猪场猪粪及配合饲料中重金属含量研究[J]. 农业环境科学学报, 2013, **32**(1): 160-165.

[8] 陈永山, 章海波, 骆永明, 等. 典型规模化养猪场废水中兽用抗生素污染特征与去除效率研究[J]. 环境科学学报, 2010, **30**(11): 2205-2212.

[9] Luo Y, Xu L, Rysz M, *et al*. Occurrence and transport of tetracycline, sulfonamide, quinolone, and macrolide antibiotics in the Haihe River Basin, China[J]. Environmental Science & Technology, 2011, **45**(5): 1827-1833.

[10] 仇焕广, 廖绍攀, 井月, 等. 我国畜禽粪便污染的区域差异与发展趋势分析[J]. 环境科学, 2013, **34**(7): 2766-2774.

[11] 国家环境保护总局. 水和废水监测分析方法[M]. (第四版). 北京：中国环境科学出版社, 2002. 238-356.
[12] 闾幸, 余卫娟, 兰亚琼, 等. 嘉兴市地表水中兽用抗生素的污染现状调查[J]. 环境科学, 2013, **34**(9)：3368-3373.
[13] 吴婉娥, 葛红光, 张克峰. 废水生物处理技术[M]. 北京：化学工业出版社, 2003. 179-179.
[14] 徐秀银. 规模化养猪场沼液的利用现状与对策[J]. 江苏农业科学, 2010, (6)：521-522.
[15] 杨朝晖, 曾光明, 陈信常, 等. 规模化养猪场废水处理工艺的研究[J]. 环境工程, 2002, **20**(6)：10-21.
[16] 张妍, 崔骁勇, 罗维, 等. 小白菜对猪粪中高 Cu 和 Zn 的富集与转运[J]. 环境科学, 2011, **32**(5)：1482-1488.
[17] 谢冰. 分子生物学方法研究铜锌重金属离子对活性污泥微生物的影响[D]. 上海：东华大学, 2002. 70-100.
[18] Kümmerer K. Antibiotics in the aquatic environment-a review-part Ⅰ[J]. Chemosphere, 2009, **75**(4):417-434.
[19] Ternes T A, Joss A, Siegrist H. Peer reviewed: scrutinizing pharmaceuticals and personal care products in wastewater treatment [J]. Environmental Science & Technology, 2004, **38**(20): 392A-399A.
[20] Karthikeyan K G, Meyer M T. Occurrence of antibiotics in wastewater treatment facilities in Wisconsin, USA [J]. Science of the Total Environment, 2006, **361**(1-3): 196-207.
[21] Carballa M, Omil F, Lema J M, *et al*. Behavior of pharmaceuticals, cosmetics and hormones in a sewage treatment plant [J]. Water Research, 2004, **38**(12): 2918-2926.
[22] Huber M M, Göbel A, Joss A, *et al*. Oxidation of pharmaceuticals during ozonation of municipal wastewater effluents: a pilot study [J]. Environmental Science & Technology, 2005, **39**(11): 4290-4299.
[23] Li S Z, Li X Y, Wang D Z. Membrane (RO-UF) filtration for antibiotic wastewater treatment and recovery of antibiotics [J]. Separation & Purification Technology, 2004, **34**(1): 109-114.
[24] Kosutic K, Dolar D, Asperger D, *et al*. Removal of antibiotics from a model wastewater by RO/NF membranes [J]. Separation & Purification Technology, 2007, **53**(3): 244-249.

HUANJING KEXUE

Environmental Science (monthly)

Vol. 35 No. 7

Jul. 15, 2014

CONTENTS

Observation Study on Aerosol Optical Properties and Radiative Forcing Using the Ground-based and Satellite Remote Sensing at Background Station During the Regional Pollution Episodes ..... ZHANG Xiao-ling, XIA Xiang-ao, CHE Hui-zheng, *et al.* (2439)

In-situ Measurement of Atmospheric Methyl Chloroform at the Shangdianzi GAW Regional Background Station ..... YAO Bo, ZHOU Ling-xi, LIU Zhao, *et al.* (2449)

Distribution of CO at Lin'an Station in Zhejiang Province ..... FANG Shuang-xi, ZHOU Ling-xi, LUAN Tian, *et al.* (2454)

Pollution Characteristics of Organic and Elemental Carbon in Atmospheric Particles in Nanjing Northern Suburb in Summer ..... DUAN Qing, AN Jun-lin, WANG Hong-lei, *et al.* (2460)

Characteristics of Water-soluble Organic Nitrogen of $PM_{2.5}$ in Xi'an During Wintertime Non-haze and Haze Periods ..... CHENG Yu-ting, WANG Ge-hui, SUN Tao, *et al.* (2468)

Effect of Sand Dust Weather on Major Water-soluble Ions in PM_{10} in Lanzhou, China ..... WANG Fang, CHEN Qiang, ZHANG Wen-yu, *et al.* (2477)

Diversity of Bacterial Areasols in Precipitation of Shanghai Area ..... LIANG Zong-min, DU Rui, DU Peng-rui, *et al.* (2483)

Concentrations and Deposition Fluxes of Heavy Metals in Precipitation in Core Urban Areas, Chongqing ..... PENG Yu-long, WANG Yong-min, QIN Cai-qing, *et al.* (2490)

Anthropogenic VOC Emission Inventory and Contribution from Industrial Sources in Ningbo ..... LI Xuan, WANG Xue-song, LIU Zhong, *et al.* (2497)

Evaluation and Selection of VOCs Treatment Technologies in Packaging and Printing Industry ..... WANG Hai-lin, WANG Jun-hui, ZHU Chun-lei, *et al.* (2503)

Experimental Study on CO_2 Absorption by Aqueous Ammonia-based Blended Absorbent ..... XIA Zhi-xiang, XIANG Qun-yang, ZHOU Xu-ping, *et al.* (2508)

Preliminary Investigation on Emission of PCDD/Fs and DL-PCBs Through Flue Gas from Coke Plants in China ..... SUN Peng-cheng, LI Xiao-lu, CHENG Gang, *et al.* (2515)

Distribution and Source of Particulate Organic Carbon and Particulate Nitrogen in the Yangtze River Estuary in Summer 2012 ..... XING Jian-wei, XIAN Wei-wei, SHENG Xiu-zhen (2520)

Characteristics of Optical Absorption Coefficients and Their Differences in Typical Seasons in Lake Qiandaohu ..... WANG Ming-zhu, ZHANG Yun-lin, SHI Kun, *et al.* (2528)

Dynamic Distributions of Dissolved Oxygen in Lake Qiandaohu and Its Environmental Influence Factors ..... YIN Yan, WU Zhi-xu, LIU Ming-liang, *et al.* (2539)

Source Analysis of Urea-N in Lake Taihu During Summer ..... HAN Xiao-xia, ZHU Guang-wei, XU Hai, *et al.* (2547)

Phytoplankton Community Structure and Its Succession in Isolated Lakes of Poyang-Junshan Lake ..... LIU Xia, QIAN Kui-mei, TAN Guo-liang, *et al.* (2557)

Vertical Distribution and Relationship Between $^{210}Pb_{ex}$ Activities and Nutrients in Sediment Cores of Two Different Eutrophication Level Lakes ..... WANG Xiao-lei, YANG Hao, GU Zhu-jun, *et al.* (2565)

Simulation of Nitrate Pollution in Groundwater Using Pump-and-treat Optimization Method ..... JIANG Lie, HE Jiang-tao, JIANG Yong-hai, *et al.* (2572)

Variation of Water DOC During the Process of Pre-pressure and Coagulation Sedimentation Treatment ..... CHEN Wen-jing, CONG Hai-bing, XU Ya-jun, *et al.* (2579)

Adsorption of Perchlorate by Calcined Mg/Zn/Al Layered Double Hydroxides ..... WANG Hong-yu, LIU Yan (2585)

Adsorption Kinetic Mechanism of Ionic Soluble Dye Mixture on Fly Ash ..... SUN De-shuai, ZHENG Qiang-qiang, ZHANG Xiao-dong, *et al.* (2590)

Effect of SDS on the Adsorption of Cd^{2+} onto Amphoteric Modified Bentonites ..... WANG Jian-tao, MENG Zhao-fu, YANG Ya-ti, *et al.* (2596)

Structural Changes of Aged Biochar and the Influence on Phenanthrene Adsorption ..... TANG Wei, GUO Yue, WU Jing-gui, *et al.* (2604)

Photocatalytic Degradation Kinetics of Perfluorooctanoic Acid (PFOA) in TiO_2 Dispersion and Its Mechanism ..... LI Ming-jie, YU Ze-bin, CHEN Ying, *et al.* (2612)

Characterizing the Interaction Between Roxarsone and Humic Acid by Fluorescence Quenching Experiment ..... ZHU Jiang-peng, MEI Ting, PENG Yun, *et al.* (2620)

Modification of Activated Carbon Fiber for Electro-Fenton Degradation of Phenol ..... MA Nan, TIAN Yao-jin, YANG Guang-ping, *et al.* (2627)

Investigation of Enhanced Low Carbon Wastewater Denitrification by Catalytic Iron ..... WANG Meng-yue, MA Lu-ming (2633)

Denitrification Performance of PBS as a Solid Carbon Source of Denitrification ..... LIU Jia, SHEN Zhi-qiang, ZHOU Yue-xi, *et al.* (2639)

Concentrations, Distribution Characteristics and Electron Beam Radiolysis Degradation of PCDD/Fs in Waste Water from a Paper Mill ..... QING Xian, HUANG Jin-qiong, YU Xiao-wei, *et al.* (2645)

Study on the Quality of Digested Piggery Wastewater in Large-Scale Farms in Jiaxing ..... WEI Dan, WAN Mei, LIU Rui, *et al.* (2650)

New Ways to Improve Volatile Fatty Acids Accumulation in Sludge Alkaline Fermentation System ..... LI Xiao-ling, PENG Yong-zhen, CHAI Tong-zhi, *et al.* (2658)

Distribution and Ecological Risk Assessment of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Surface Sediments and Soils from Dishui Lake and Its Water Exchange Areas ..... GUO Xue, BI Chun-juan, CHEN Zhen-lou, *et al.* (2664)

Distribution of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Water and Sediment from Zhoushan Coastal Area, China ..... JIANG Min, Le Huy Tuan, MEI Wei-ping, *et al.* (2672)

Contamination Levels and Source Analysis of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons and Organochlorine Pesticides in Soils and Grasses from Lake Catchments in the Tibetan Plateau ..... XIE Ting, ZHANG Shu-juan, YANG Rui-qiang (2680)

Distribution Characteristics and Risk Assessment of Organochlorine Pesticides in Soil from Jiufeng Mountain Range in Fujian, China ..... HUANG Huan-fang, QI Shi-hua, QU Cheng-kai, *et al.* (2691)

Pollution Fingerprints and Sources of Perfluorinated Compounds in Surface Soil of Different Functional Areas ..... ZHANG Hong, ZHAO Liang, HE Long, *et al.* (2698)

Distribution, Seasonal Variation and Influence Factors of Dissolved Inorganic Arsenic in the Sanggou Bay ..... LI Lei, REN Jing-ling, LIU Su-mei, *et al.* (2705)

Distribution of Soil Heavy Metal and Pollution Evaluation on the Different Sampling Scales in Farmland on Yellow River Irrigation Area of Ningxia: A Case Study in Xingqing County of Yinchuan City ..... WANG You-qi, BAI Yi-ru, WANG Jian-yu (2714)

Release of Mercury from Soil and Plant in Water-Level-Fluctuating Zone of the Three Gorges Reservoir Area and Its Accumulation in Zebrafish ..... LI Chu-xian, SUN Rong-guo, WANG Ding-yong, *et al.* (2721)

Residues and Health Risk Assessment of Sulfonamides in Sediment and Fish from Typical Marine Aquaculture Regions of Guangdong Province, China ..... HE Xiu-ting, WANG Qi, NIE Xiang-ping, *et al.* (2728)

Health Risk Assessment of Heavy Metals in Atmospheric Dust of Qingdao City ..... ZHANG Chun-rong, WU Zheng-long, YAO Chun-hui, *et al.* (2736)

Health Risk Assessment of Coke Oven PAHs Emissions ..... BO Xin, WANG Gang, WEN Rou, *et al.* (2742)

Effects of Combined Pollution of Cd, Cu and Pb on Antioxidant Enzyme Activities of Earthworm in Soils ..... WANG Hui, XIE Xin-yuan (2748)

Toxicity of Three Chlorophenols to Protozoa *Tetrahymena thermophila* ..... LI Ya-jie, CUI Yi-Bin, JIANG Li-juan, *et al.* (2755)

Phytoexclusion Potential Studies of Si Fertilization Modes on Rice Cadmium ..... CHEN Zhe, TIE Bo-qing, LEI Ming, *et al.* (2762)

Effects of Conservation Tillage on Soil CO_2 and N_2O Emission During the Following Winter-Wheat Season ..... PAN Ying, HU Zheng-hua, WU Yang-zhou, *et al.* (2771)

Mineralization of Soil Organic Carbon and Its Relationship with Soil Enzyme Activities in Apple Orchard in Weibei ..... JIA Man-li, GUO Hong, LI Hui-ke (2777)

Steam and Air Co-injection in Removing TCE in 2D-Sand Box ..... WANG Ning, PENG Sheng, CHEN Jia-jun (2785)

Effect of Cu^{2+} on the Power Output of Dual-chamber Microbial Fuel Cell ..... MU Shu-jun, LI Xiu-fen, REN Yue-ping, *et al.* (2791)

Emissions of Greenhouse Gas and Ammonia from Sewage Sludge Composting by Continuous Aerated Turning Pile ..... ZHAO Chen-yang, WEI Yuan-song, GE Zhen, *et al.* (2798)

Emissions of NH_3, N_2O, and NO from Swine Manure Solid Storage in Winter ..... DING Gang-qiang, HAN Sheng-hui, YUAN Yu-ling, *et al.* (2807)

Variation Characteristics and Mathematical Model of Humic Substances in Landfill Leachates with Different Landfill Ages ..... HUANG You-fu, XU Xin-ya, FAN Liang-xin, *et al.* (2816)

Research on the Variation Regularity of Effluent from the Leachate Reverse Osmosis Concentrate Recirculation ..... WANG Dong-mei, LIU Dan, LIU Qing-mei, *et al.* (2822)

Quantitative Analysis on the Changes in Anthropogenic Lead Flows of China ..... MA Lan, MAO Jian-su (2829)

Research Progress in Microbiological Characteristics in Combined N_2 Removal Process by Partial Nitrification and Anaerobic Ammonium Oxidation ..... ZHAO Zhi-rui, HOU Yan-lin (2834)

《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）

2014 年 7 月 15 日　第 35 卷　第 7 期

ENVIRONMENTAL SCIENCE

（Monthly　Started in 1976）

Vol. 35　No. 7　Jul. 15, 2014

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