

# 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



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,周凌晔,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,周凌晔,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<sub>2.5</sub> 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<sub>10</sub> 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<sub>2</sub> 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,钱薇微,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,高贲,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<sup>210</sup>Pb<sub>ex</sub>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<sup>2+</sup> 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非吸持的影响 ..... 唐伟,郭悦,吴景贵,黄兆琴,代静玉 (2604)

TiO<sub>2</sub> 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肿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)

改性活性炭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,马鲁梅 (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 ..... 青亮,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,张汛达,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)

福建鹭峰山脉土壤有机氯农药分布特征及健康风险评估 ..... 黄焕芳,祁士华,瞿程凯,李绘,陈文文,张莉,胡婷,石燎 (2691)

不同功能区表层土壤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)

桑沟湾溶解态无机磷的分布、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估 ..... 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估研究 ..... 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 种氯酚对嗜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<sub>2</sub> 和 N<sub>2</sub>O 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<sub>3</sub>、N<sub>2</sub>O 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)

# 冬季猪粪固体堆放过程中 $\text{NH}_3$ 、 $\text{N}_2\text{O}$ 和 $\text{NO}$ 排放特征研究

丁钢强<sup>1,2</sup>, 韩圣慧<sup>2\*</sup>, 袁玉玲<sup>3</sup>, 罗琳<sup>3</sup>, 王立刚<sup>4</sup>, 李虎<sup>4</sup>, 李萍<sup>1\*</sup>

(1. 广东工业大学环境科学与工程学院, 广州 510006; 2. 中国科学院大气物理研究所, 北京 100029; 3. 湖南农业大学资源环境学院, 长沙 410128; 4. 中国农业科学院农业资源与农业区划研究所, 北京 100081)

**摘要:** 针对农村猪粪典型处理方式中的固体堆放管理, 研究猪粪在冬季(2012 年 11 月~2013 年 2 月)固体堆放过程中  $\text{NH}_3$ 、 $\text{N}_2\text{O}$  和  $\text{NO}$  排放特征. 实验共设两个处理——无覆盖(non-covered, NC)和水稻秸秆覆盖(covered, C), 堆放时间为 73 d, 期间进行了 3 次翻堆操作. 实验观测了 3 种含氮气体( $\text{NH}_3$ 、 $\text{N}_2\text{O}$  和  $\text{NO}$ )的排放通量和堆体剖面  $\text{N}_2\text{O}$  浓度变化. 结果表明, 猪粪固体堆放过程中  $\text{NH}_3$ 、 $\text{N}_2\text{O}$  和  $\text{NO}$  排放累积量(以 N 计)分别占初始 TN 的比例为 2.1%~2.6%、0.02% 和 ~0.000 25%. 两个处理的含氮气体排放通量变化趋势基本一致, 且有覆盖堆体的含氮气体的排放量略低于无覆盖堆体. 在堆放初期,  $\text{NH}_3$  排放量最先出现峰值, 之后  $\text{N}_2\text{O}$  和  $\text{NO}$  排放开始增加.  $\text{NH}_3$  和  $\text{NO}$  在固体堆放的中前期呈现互为消长的变化趋势; 到堆放后期,  $\text{N}_2\text{O}$  开始出现比前期高出两倍的排放高峰, 而  $\text{NH}_3$  和  $\text{NO}$  出现小幅增长. 翻堆前后,  $\text{NH}_3$  的排放无明显变化, 而  $\text{N}_2\text{O}$  排放出现在翻堆后均出现降低的变化,  $\text{NO}$  排放却出现升高的变化.

**关键词:**  $\text{NH}_3$ ;  $\text{N}_2\text{O}$ ;  $\text{NO}$ ; 温室气体; 固体堆放; 翻堆

中图分类号: X705 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2014)07-2807-09 DOI: 10.13227/j.hjkk.2014.07.052

## Emissions of $\text{NH}_3$ , $\text{N}_2\text{O}$ , and $\text{NO}$ from Swine Manure Solid Storage in Winter

DING Gang-qiang<sup>1,2</sup>, HAN Sheng-hui<sup>2</sup>, YUAN Yu-ling<sup>3</sup>, LUO Lin<sup>3</sup>, WANG Li-gang<sup>4</sup>, LI Hu<sup>4</sup>, LI Ping<sup>1</sup>

(1. School of Environmental Science and Engineering, Guangdong University of Technology, Guangzhou 510006, China; 2. Institute of Atmospheric Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100029, China; 3. College of Resources and Environment, Hunan Agricultural University, Changsha 410128, China; 4. Institute of Natural Resources and Regional Planning, Chinese Academy of Agricultural Sciences, Beijing 100081, China)

**Abstract:** Swine manure solid storage is a typical management in rural area of China. In order to investigate the characteristics of  $\text{NH}_3$ ,  $\text{N}_2\text{O}$  and  $\text{NO}$  emissions during manure storage in winter (Nov., 2012 to Feb., 2013), two treatments were conducted: non-covered (NC) and covered (C) with straws, and each treatment had three times of pile-turning during the 73 days storage. The emission fluxes of three nitrogen gases ( $\text{NH}_3$ ,  $\text{N}_2\text{O}$  and  $\text{NO}$ ) were measured and the profile- $\text{N}_2\text{O}$  concentrations inside the swine pile profile and in the soil under the pile were also measured. The results indicated that 2.1%-2.6%, 0.02% and ~0.000 25% of total nitrogen were lost in the form of  $\text{NH}_3$ ,  $\text{N}_2\text{O}$  and  $\text{NO}$  respectively during the whole swine manure solid storage. The nitrogen gases in the two treatments had the same variation characteristics, but all the nitrogen gases were reduced in the covered treatment. In the early storage stage,  $\text{NH}_3$  emission peak occurred first and then the emissions of  $\text{N}_2\text{O}$  and  $\text{NO}$  started increasing. In the middle storage stage, the emissions of  $\text{NH}_3$  and  $\text{NO}$  showed mutual growth and decline trend. In the late storage stage,  $\text{N}_2\text{O}$  emission peak was twice higher than that in the early stage, while  $\text{NH}_3$  and  $\text{NO}$  emissions showed a slight increase. Before and after pile-turning operation,  $\text{NH}_3$  emission had little change, but  $\text{N}_2\text{O}$  emission was decreasing and  $\text{NO}$  emission was rising after pile-turning.

**Key words:**  $\text{NH}_3$ ;  $\text{N}_2\text{O}$ ;  $\text{NO}$ ; greenhouse gas; manure storage; pile-turning

2007 年我国畜禽粪便产生量为 2.43 亿 t, 是全国垃圾填埋量的 1.59 倍<sup>[1]</sup>, 其中猪粪占畜禽粪便产生量的 46.9%<sup>[2]</sup>. 对全国部分省市畜禽粪便处置情况调查表明, 畜禽粪便通过堆肥无害化处理的低于 10%, 大多数粪便未经处理直接施入农田或经自然堆放后施入农田<sup>[3]</sup>. 中小型规模化养殖场畜禽粪便在处理或施肥之前基本以自然堆放为主<sup>[4]</sup>. 由于劳动力缺失或者农田消纳不足, 农村的猪粪废弃比例从 2005 年的 2.0% 上升到 2010 年的 4.0%, 导致猪粪出现随意堆放的现象<sup>[5]</sup>.

自然堆放相对于堆肥场而言, 是一种非常粗犷的堆肥过程. 猪粪在堆放过程中, 微生物分解有机氮, 不仅产生氨气( $\text{NH}_3$ ), 还会产生氧化亚氮( $\text{N}_2\text{O}$ )和氮氧化物( $\text{NO}_x$ ) ( $\text{NO}_x = \text{NO} + \text{NO}_2$ , 堆放过程中  $\text{NO}_x$  以  $\text{NO}$  形式为主排放).

收稿日期: 2013-10-25; 修订日期: 2014-01-09

基金项目: 国家重点基础研究发展规划(973)项目(2012CB417104); 国家自然科学基金项目(41075090)

作者简介: 丁钢强(1987~), 男, 硕士研究生, 主要研究方向为固废资源化利用及水污染控制, E-mail: gangqiangd@126.com

\* 通讯联系人, E-mail: shenghui\_han@post.iap.ac.cn

$\text{NH}_3$  是堆放过程产生很多恶臭气体中最主要成分<sup>[6]</sup>. 猪粪堆肥过程中,  $\text{NH}_3$  挥发主要发生在堆肥的前期<sup>[7,8]</sup>. Petersen 等<sup>[9]</sup>对夏季猪粪堆肥的氨气排放规律进行了研究, 无覆盖堆体氨气的排放量(以  $\text{NH}_3$  计)为  $2.0 \sim 3.1 \text{ g} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$ , 是有覆盖小麦秸秆堆体的 10 倍. 万合峰<sup>[10]</sup>对猪粪条垛式堆肥的  $\text{NH}_3$  排放进行了观测研究, 氨气的排放通量(以 N 计)约为  $106 \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{h})^{-1}$  [以  $\text{NH}_3$  计量为  $3.1 \text{ g} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$ ].

猪粪堆放/堆肥过程中, 堆料在硝化和反硝化作用下产生温室气体  $\text{N}_2\text{O}$ . 万合峰等对猪粪条垛式堆肥的  $\text{N}_2\text{O}$  排放进行了观测研究, 发现  $\text{N}_2\text{O}$  主要发生在堆肥的前期和后腐熟期<sup>[10]</sup>. Szanto 等<sup>[11]</sup>对静态通风堆估算了  $\text{N}_2\text{O}$  的排放, 并做月翻堆一次和不翻堆处理, 发现翻堆减少了  $\text{N}_2\text{O}$  的排放, 并且  $\text{N}_2\text{O}$  排放量占初始总氮的  $2.5\% \pm 0.1\%$ . Petersen 等<sup>[9]</sup>发现  $\text{N}_2\text{O}$  的排放仅仅发生于夏季猪粪堆肥中, 并与覆盖材料中的水分有关. 郑嘉熹等<sup>[12]</sup>对猪粪堆肥过程中  $\text{N}_2\text{O}$  的减排进行了研究, 发现添加改性镁橄榄石能减少  $\text{N}_2\text{O}$  的排放.

氮氧化物 ( $\text{NO}_x = \text{NO} + \text{NO}_2$ ) 是危害人体健康的大气污染物. 农业  $\text{NO}$  与  $\text{NO}_2$  大多数来自于微生物过程, 是土壤微生物硝化与反硝化过程的一种中间

产物之一. 畜禽粪便的堆肥与堆放也是一种微生物反应过程, 其产生的  $\text{NO}_x$  机制类似于土壤中  $\text{NO}_x$  的产生. Hao 等<sup>[13]</sup>对牛粪堆肥堆体上部 50cm 处测定空气中的  $\text{NO}$  和  $\text{NO}_2$ , 发现堆肥过程增加了空气中的  $\text{NO}$  含量, 但  $\text{NO}_2$  未受影响, 说明牛粪堆肥排放的  $\text{NO}_x$  以  $\text{NO}$  形式排放. Fukumoto 等<sup>[14]</sup>在猪粪堆肥中对分别加入 Mg、P 和高温后加入硝化细菌的堆体测定  $\text{NO}$  排放, 结果发现  $\text{NO}$  排放减少了 96% ~ 99%.

目前, 我国在猪粪固体堆放研究上, 仅限于  $\text{NH}_3$  和  $\text{N}_2\text{O}$  的排放, 并未对  $\text{NH}_3$ 、 $\text{N}_2\text{O}$  和  $\text{NO}_x$  排放进行全面的研究. 因此, 本研究基于农村习惯的猪粪处理方式, 分析了猪粪固体堆放过程中  $\text{NH}_3$ 、 $\text{N}_2\text{O}$  和  $\text{NO}_x$  排放特征, 并考察了水稻秸秆覆盖和翻堆对粪便固体堆放过程含氮气体排放的影响, 以期提供猪粪堆放中的含氮气体排放观测数据, 同时可以为畜禽粪便管理温室气体清单编制提供基础观测数据.

## 1 材料与方法

### 1.1 实验设计

供试的猪粪来自湖南长沙县某小型养猪场, 覆盖材料水稻秸秆来自湖南农业大学水稻基地, 其基本理化特征见表 1.

表 1 堆放材料基本理化特征

Table 1 Basic physical and chemical characteristics of solid storage material

原料	含水率/%	有机质/%	容重/ $\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$	C/N	pH	电导率 $\text{EC}/\mu\text{S} \cdot \text{cm}^{-1}$
猪粪	77.53	58.09	1 105.2	6.53	6.20	550
秸秆	21.24	41.96	/	17.07	/	/

实验场地位于湖南农业大学实验基地, 猪粪采用露天堆放, 共设两个处理: 无覆盖 (non-covered, NC) 和水稻秸秆覆盖 (covered, C). 新鲜猪粪称重, 处理 NC 为 356 kg, 处理 C 为 345 kg, 猪粪直接堆放在平整的土壤上面, 呈圆锥体形状, 底部圆直径为 1.3 m, 堆体高度为 0.6 m, 堆体表面积约为 1.81  $\text{m}^2$ . 有覆盖堆, 均匀铺设约 3 cm 厚干燥水稻秸秆. 猪粪固体堆放周期为 73 d.

堆体表面  $\text{N}_2\text{O}$  和  $\text{NO}_x$  的采集采用静态箱法,  $\text{NH}_3$  采集利用通气酸吸收法, 而堆体剖面  $\text{N}_2\text{O}$  的采集使用剖面气体采样器.

在建堆过程中, 堆体里面放置了剖面气体采样器(图 1). 气体采样器由 4 部分组成: 集气管、导气管、密封塞和温度传感器. 气体采样器的埋设以土壤平面为零基面. 地上部分(堆体内部)在高度分别

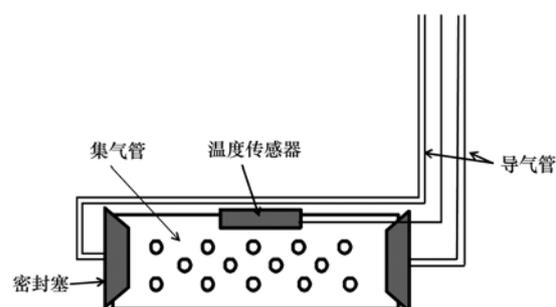


图 1 剖面气体采样器  
Fig. 1 Gas sampler

为 0、20 和 40 cm, 均匀埋设了 15 个采样器. 以堆体的中轴线为中心, 堆体的每一层(高度分别为 0、20 和 40 cm)呈 3 个方向(各间隔 120 度)平行于地面向堆体外部的延伸线上, 均匀放置剖面气体采样器(0、20 和 40 cm 层分别放置 7 个、7 个和 1 个采

样器). 地下部分(堆体的下部土壤)也埋设了气体采样器,以土壤平面为零基面,分别在相对的两侧不同深度 20、40 和 60 cm 处均匀埋设了 12 个采样器,每个深度在距离外侧 0.5 m 和 0.25 m 处各埋设 1 个气体采样器. 图 2 为剖面采样器布设图(只显示部分采样器).

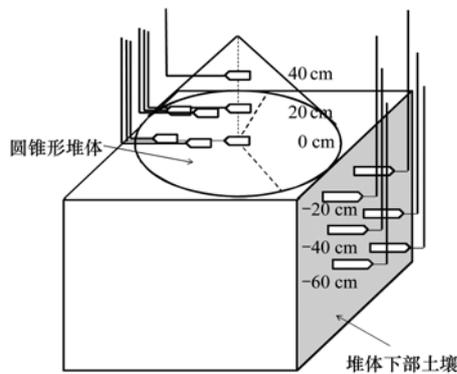


图 2 剖面气体采样器埋设示意

Fig. 2 Installation of gas sampler

堆体表面的  $\text{N}_2\text{O}$  和  $\text{NO}_x$  采用静态箱法<sup>[15]</sup>, 每个堆体有 3 个气体采样点, 为剖面采样点分隔出的 3 个不同方向呈  $120^\circ$  的区域, 即在圆锥体的 3 个母线的中点处分别放置 1 个静态箱(40 cm × 20 cm × 17 cm).  $\text{NH}_3$  的 3 个采样点在每个静态箱的旁边.

堆放开始后, 每次定时(09:00 ~ 11:00)采样. 在堆放的前 22 d 间隔 1 d 采 1 次气样(包括堆体表面气样和堆体内及其下部土壤剖面的气样), 间隔 3 d 采 1 次固样. 之后, 间隔 2 d 采样 1 次气样和固样. 堆放第 34 d 后, 间隔 5 d 采样 1 次气样和固样. 在第 17、32 和 56 d 进行翻堆操作, 并每次翻堆后连续 3 d 采集气体样品.

对于堆体表面  $\text{N}_2\text{O}$  气体采集, 每个采样箱每隔 3 min 采集 1 个气样, 共采 5 个气样;  $\text{NO}_x$  的采集利用了  $\text{N}_2\text{O}$  的静态箱. 每个采样点采集 2 个采样气袋, 第一袋为静态箱扣箱时刻采集采样箱附近等高处的空气样品 4 L, 第二袋气样为  $\text{N}_2\text{O}$  第 5 针气样采集后, 用微型隔膜泵抽取箱内气体 4 L, 并记录两个气袋的间隔时间. 采样结束后, 记录箱内温度, 环境温度及堆体表面湿度.  $\text{NH}_3$  排放收集装置在采样开始时放置在堆体表面, 2 h 后收起.

堆体和下部土壤剖面的气体采集, 用注射器连接剖面气体采样器的其中一根导气管直接抽取一针(60 mL).

采完气样之后, 用金属温度计测量堆体表面、中部和内部的温度, 然后用小铲子在堆体的上、中、

下采集固体样品, 然后混匀, 以四分法获取样品约 500 g 装入自封袋, 带回实验室分析.

## 1.2 样品分析方法

氨气的采集采用了通气酸吸收法<sup>[16]</sup>. 吸收  $\text{NH}_3$  的海绵浸泡在 KCl 溶液中经过振荡 1 h, 抽取浸出液, 用流动注射分析仪测定氨氮和硝氮, 氨气排放通量如公式(1):

$$F = \frac{(c_1 + c_2) \cdot V}{A \cdot t} \times 10^{-3} \quad (1)$$

式中,  $F$  为氨气排放通量(以 N 计, 下同),  $\text{mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{h})^{-1}$ ;  $c_1$  和  $c_2$  分别为浸提液中铵态氮和硝态氮含量,  $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$ ;  $V$  为浸提液的体积, mL;  $A$  为吸收氨气的海绵的有效面积,  $\text{m}^2$ ;  $t$  为采样时间, h.

$\text{N}_2\text{O}$  采用带有电子捕获检测器(GC/ECD)联机定量分析检测(GC 为美国安捷伦 6820D). 本研究使用的气相色谱采用氮气作载气, 为避免气样中  $\text{CO}_2$  对电子捕获检测器(ECD)检测  $\text{N}_2\text{O}$  的影响, ECD 内被注入高浓度  $\text{CO}_2$  补充气(浓度约为 10%; 流量为  $1 \sim 2 \text{ mL} \cdot \text{min}^{-1}$ )<sup>[17]</sup>.

$\text{NO}_x$  采用美国热电子公司的  $\text{NO}-\text{NO}_2-\text{NO}_x$  分析仪(型号: thermo Model 42i)测定.  $\text{N}_2\text{O}$  和  $\text{NO}_x$  排放通量计算公式见文献[12, 15].

$\text{N}_2\text{O}$ 、 $\text{NO}_x$  和  $\text{NH}_3$  排放累积量采用式(2)计算:

$$Q = \sum \Delta F_i t_i = \sum t_i (F_i + F_{i+1}) / 2 \quad (2)$$

式中,  $i$  为取样次数;  $Q$  为各处理区气体排放总量(以 N 质量计),  $\text{g} \cdot \text{m}^{-2}$  或  $\text{mg} \cdot \text{m}^{-2}$ ;  $F$  为气体排放通量,  $\text{mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{h})^{-1}$  或  $\mu\text{g} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{h})^{-1}$ ;  $t$  为相邻两次测定的间隔天数, d.

固体样品主要分析以下指标: 含水率、有机质、pH 值、电导率(EC)、 $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ 、 $\text{NO}_3^- - \text{N}$ 、TC 和 TN. 其中,  $\text{NH}_4^+ - \text{N}$  和  $\text{NO}_3^- - \text{N}$  用流动分析仪测定, TC 和 TN 用元素分析仪(型号 VarionELin, 德国 Elementar 公司)测定.

## 2 结果与讨论

### 2.1 堆体温度和物化参数

猪粪室外固体堆放的堆体温度伴随着环境温度的变化而变化( $-2.8 \sim 13.5^\circ\text{C}$ ). 这与叶小梅等<sup>[18]</sup>观测到的现象一致. 与堆肥过程不同, 堆体没有产生  $50 \sim 60^\circ\text{C}$  的高温期. 整个堆体内部温度分布, 上层的温度略高于堆体内部和底部的温度(图 3). 处理 NC 和处理 C 的堆体上层温度具有极其显著的差异(成对  $t$ -检验结果), 其他层的堆体温度无显著差异(表 2).

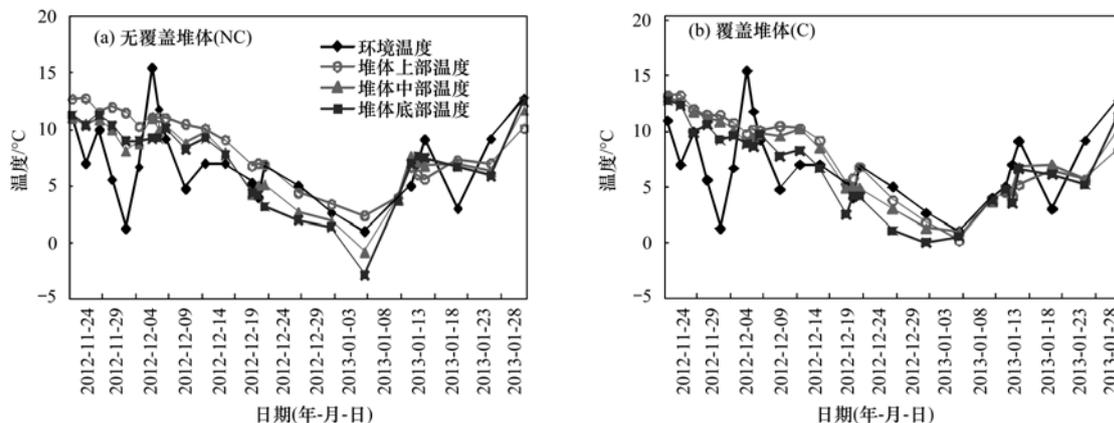


图3 堆放过程中堆体温度和环境温度变化

Fig. 3 Changes of environmental temperature and pile temperature during solid storage of swine manure

表2 无覆盖处理 NC 和有覆盖处理 C 各项指标成对 *t*-检验结果<sup>1)</sup>Table 2 The *t*-test of measure data for treatments NC and C

项目	成对 <i>t</i> -检验值	项目	成对 <i>t</i> -检验值
堆体上层温度	0.001 **	堆体 C/N	0.001 **
堆体中层温度	0.659	NH <sub>3</sub> 排放	1.5 × 10 <sup>-5</sup> **
堆体下层温度	0.17	N <sub>2</sub> O 排放	0.652
堆体总氮 TN	0.61	NO <sub>x</sub> 排放	0.651
堆体有机质	0.687	堆体 0 cm 层 N <sub>2</sub> O 浓度	0.060
堆体含水率	0.016 *	堆体 20 cm 高 N <sub>2</sub> O 浓度	0.686
堆体 pH	0.263	堆体 40 cm 高 N <sub>2</sub> O 浓度	0.204
堆体电导率 EC	0.754	土壤 20 cm 深度 N <sub>2</sub> O 浓度	0.0007 **
堆体 NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	0.42	土壤 40 cm 深度 N <sub>2</sub> O 浓度	0.169
堆体 NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	0.136	土壤 60 cm 深度 N <sub>2</sub> O 浓度	0.955

1) \* 代表具有统计学意义上的显著性差异 ( $P < 0.05$ ), \*\* 代表具有统计学意义上的极其显著性差异 ( $P < 0.01$ ), 其余表示在统计学意义上不具有显著性差异, 即处理间存在差异, 但是差异不具有统计学意义

在整个堆放过程中, 堆体的含水率和有机质变化规律均略有降低 [图 4(a) 和 4(b)]. 堆体的 pH 值总体呈升高的变化 (变化范围 6.00 ~ 7.70). 堆体物料的 pH 在 7.0 以下维持了一个月, 可能是堆放前期产生了较多有机酸<sup>[19]</sup>. 堆放的中后期, 堆料呈弱碱性 (pH = 7.70), 可能是有机酸的分解, 使得 pH 升高. 电导率 (EC) 呈先升高后降低的变化. 堆体的 EC 达到峰值  $1\,310.67\ \mu\text{S}\cdot\text{cm}^{-1}$ , 之后 EC 逐渐下降. 通过成对 *t*-检验分析, 处理 NC 与处理 C 在整个堆放期间的堆体含水率、有机质、pH 和电导率均没有显著性差异 (表 2).

## 2.2 堆体剖面 N<sub>2</sub>O 浓度廓线

图 5 为堆体和土壤剖面的 N<sub>2</sub>O 浓度对数廓线图. 图 5(a) 是堆放前, 土壤剖面的 N<sub>2</sub>O 浓度廓线图, 在土壤 40 cm 深度, 土壤 N<sub>2</sub>O 浓度最低.

地上堆放后, 堆体下面土壤的 N<sub>2</sub>O 浓度明显比地上堆体内部高. 这是由于堆体内部产生的 N<sub>2</sub>O 容易扩散出去, 而土壤部分产生的 N<sub>2</sub>O, 由于上面有堆

放的猪粪堆而不容易扩散出去. 如图 5(b), 土壤剖面各层的 N<sub>2</sub>O 浓度相比堆放前都增大了, 且 -40 cm 层的增幅明显高于其他两层的, 说明堆放过程中确有 N 素淋溶到土壤中. 在地面的猪粪堆体内部, 40 cm 高度层, 处理 NC 的 N<sub>2</sub>O 浓度大于处理 C 的浓度, 而其他两层处理 C 的 N<sub>2</sub>O 浓度大于处理 NC, 说明覆盖物对堆体产生的 N<sub>2</sub>O 可能具有吸附作用.

在整个固体堆放过程中, 土壤剖面的 N<sub>2</sub>O 浓度经历了前期的升高然后降低, 堆放后期的又小幅度上升. 处理 C 土壤剖面 N<sub>2</sub>O 浓度从最初低于处理 NC 土壤剖面, 逐渐增大, 到猪粪固体堆放的第 7 d, 处理 C 土壤剖面 N<sub>2</sub>O 浓度与处理 NC 土壤剖面的持平 [图 5(c)], 进而到堆放的中后期, 有覆盖处理 C 土壤剖面 N<sub>2</sub>O 浓度一直高于无覆盖处理 NC 土壤剖面的 [图 5(d) ~ 5(f)]. 图 5 中还显示, 两个处理的土壤 -40 cm 层, N<sub>2</sub>O 浓度均从刚开始低于其他两层, 到堆放中后期各层 N<sub>2</sub>O 浓度大小为:  $C_{-20} > C_{-40} > C_{-60}$ . 堆体内部 N<sub>2</sub>O 浓度呈锯齿形变化. 在堆放

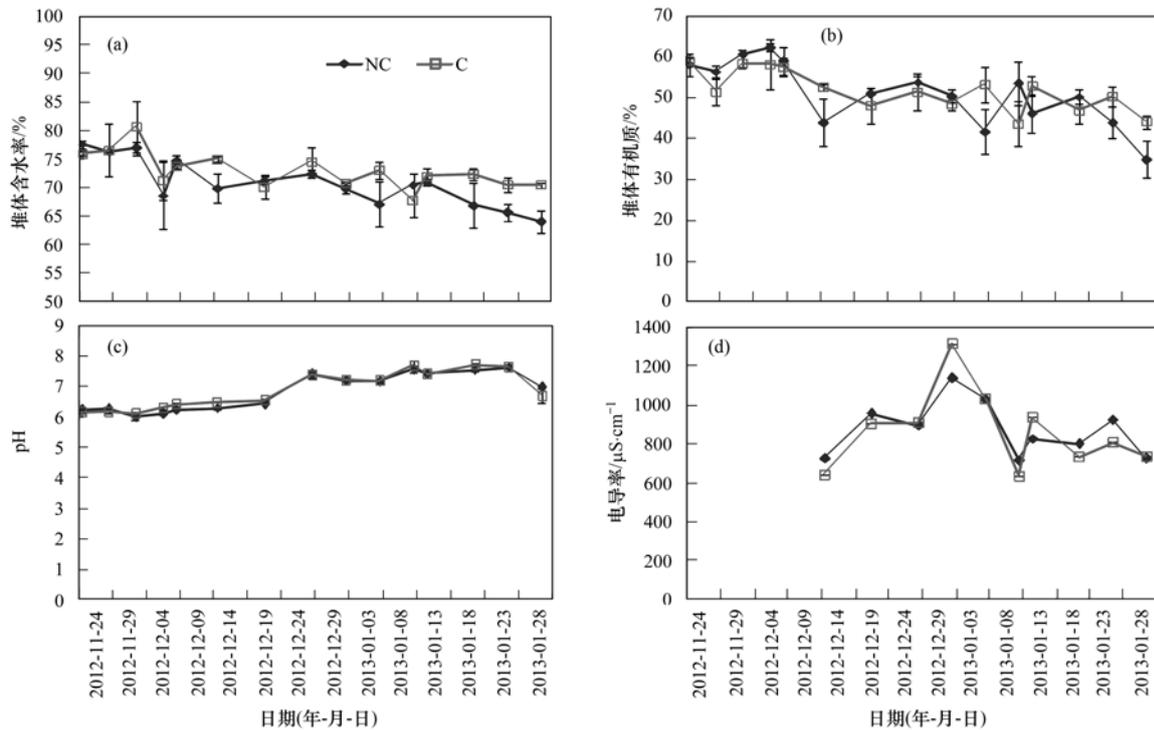


图 4 猪粪堆放过程中含水率、有机质、pH 和电导率变化

Fig. 4 Changes of moisture content, organic matter, pH and electrical conductivity during solid storage of swine manure

的前 57 d, 有覆盖处理 C 堆体剖面  $\text{N}_2\text{O}$  浓度高于处理 NC 堆体剖面 [图 5(b) ~ 5(d)]; 到固体堆放的后半期, 处理 C 堆体剖面  $\text{N}_2\text{O}$  浓度才低于处理 NC 堆体剖面 [图 5(e)、5(f)]. 处理 NC 和处理 C 的堆体下面土壤 20 cm 深度层  $\text{N}_2\text{O}$  浓度具有极其显著性差异, 其他土壤层和堆体内部  $\text{N}_2\text{O}$  浓度差异不显著 (表 2).

### 2.3 堆放过程 $\text{NH}_3$ 、 $\text{N}_2\text{O}$ 和 $\text{NO}_x$ 排放通量变化特征

氨气 ( $\text{NH}_3$ ) 的排放集中在固体堆放的前期 (堆放前 25 d), 在堆放第 11 d 和第 20 d 分别出现排放峰值, 处理 NC 的  $\text{NH}_3$  排放通量 (以 N 计量) 为  $56.4 \text{ mg}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{h})^{-1}$  和  $54.0 \text{ mg}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{h})^{-1}$ , 处理 C 为  $45.8 \text{ mg}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{h})^{-1}$  和  $35.5 \text{ mg}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{h})^{-1}$ . 此后,  $\text{NH}_3$  排放迅速下降; 在堆放的第 30 d 之后, 氨气的排放逐渐平稳, 期间有小幅度的上升. 两种处理的氨气排放规律非常一致 [图 6(b)]. 成对 *t*-检验结果显示, 两个处理的  $\text{NH}_3$  排放具有极显著差异 (表 2). 整个堆肥期, 处理 NC 和处理 C 的  $\text{NH}_3$  平均排放通量 (以 N 计量) 为  $22.5 \text{ mg}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{h})^{-1}$  和  $17.8 \text{ mg}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{h})^{-1}$ . 处理 NC 和 C 前 25 d 的氨气排放累积量 (以 N 计) 分别为  $21.9 \text{ g}\cdot\text{m}^{-2}$  和  $17.0 \text{ g}\cdot\text{m}^{-2}$ , 约占整个堆放过程氨气排放累积量 ( $35.1 \text{ g}\cdot\text{m}^{-2}$  和  $27.8 \text{ g}\cdot\text{m}^{-2}$ ) 的

62% 左右. 处理 NC 的氨气排放量比处理 C 的约大 26%, 可能是覆盖材料在堆体表面吸收分解产生的水蒸气, 冷凝后形成 1 层高含水率的膜. 这些膜的存在对氨气挥发具有一定的吸收和阻碍作用 [20], 导致覆盖处理的氨气挥发相对较少.

堆料中水溶性铵态氮经过硝化和反硝化过程产生  $\text{N}_2\text{O}$ , 堆体 NC 与堆体 C 的  $\text{N}_2\text{O}$  通量排放规律基本保持一致 [图 6(c)]. 整个堆放过程中的  $\text{N}_2\text{O}$  排放存在 3 个主要排放峰, 分别处于堆放初期 [处理 C 和 NC 的第 16 d 左右,  $\text{N}_2\text{O}$  排放通量 (以 N 计) 为  $176 \mu\text{g}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{h})^{-1}$  左右]、堆放中期 [处理 C 的第 32 d 的通量  $308 \mu\text{g}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{h})^{-1}$  和处理 NC 的第 33 d 的通量  $140 \mu\text{g}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{h})^{-1}$ ] 及堆放后期 [处理 C 和 NC 的第 62 d 左右,  $\text{N}_2\text{O}$  排放通量分别为  $93 \mu\text{g}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{h})^{-1}$  和  $448 \mu\text{g}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{h})^{-1}$ ]. 且处理 NC 后期 15d 的  $\text{N}_2\text{O}$  平均排放通量是中前期 35 d 的 3.4 倍, 这和文献 [7, 11] 的研究结果一致. 而处理 C 后期 15d 的  $\text{N}_2\text{O}$  平均排放通量比中前期 35 d 的平均通量降低了 45%. 在整个堆肥期, 处理 NC 和处理 C 的  $\text{N}_2\text{O}$  排放差异不显著,  $\text{N}_2\text{O}$  平均排放通量 (以 N 计) 分别为  $154.5 \mu\text{g}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{h})^{-1}$  和  $128.3 \mu\text{g}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{h})^{-1}$ , 累积排放量分别为  $0.26 \text{ g}\cdot\text{m}^{-2}$  和  $0.22 \text{ g}\cdot\text{m}^{-2}$ .

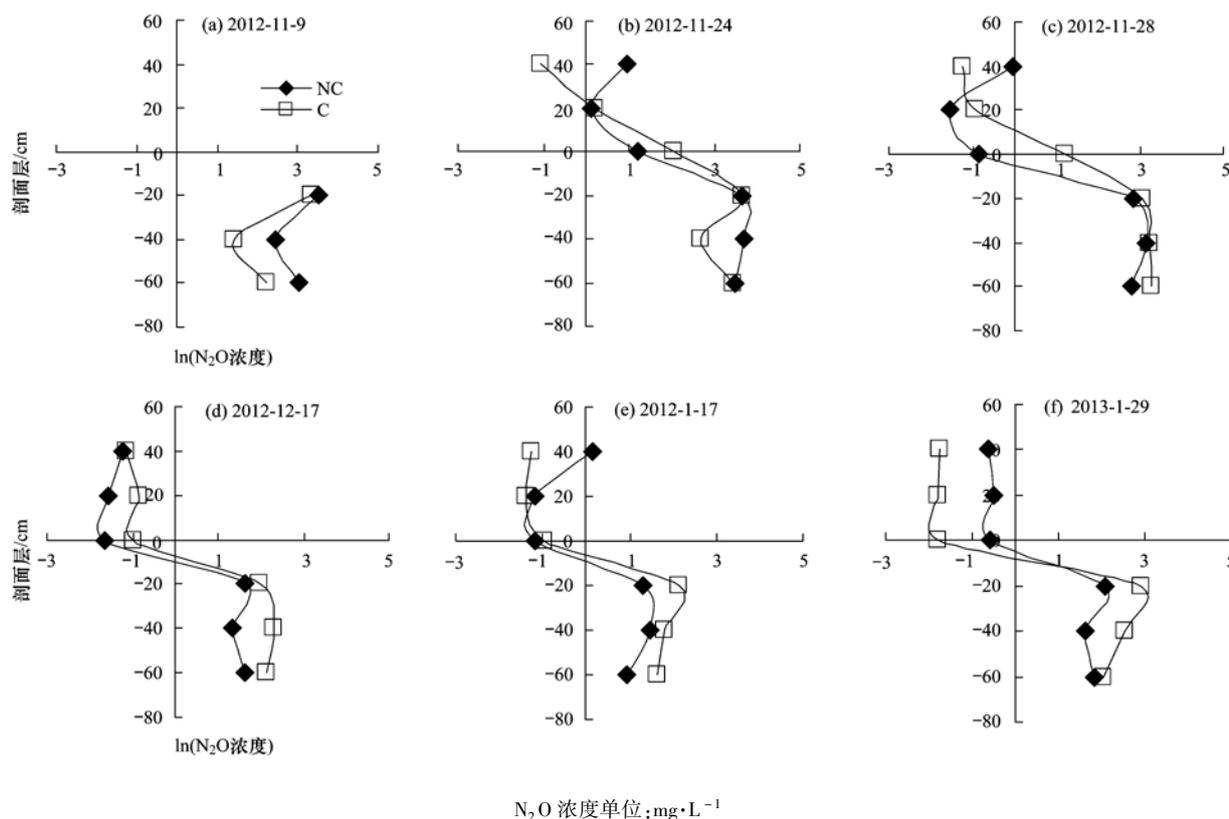


图5 不同堆放时间的土壤和堆体 $N_2O$ 浓度廓线

Fig. 5 Profile of  $N_2O$  concentration in the soil and in the pile during manure solid storage

2012-12-06、2012-12-21 和 2013-01-21 共 3 次翻堆后,堆体 $N_2O$ 排放均开始降低. 畜禽粪便堆肥过程中产生的 $N_2O$ 主要来源于堆体内部的反硝化作用<sup>[21,22]</sup>,翻堆增加了堆体中的氧气浓度,减缓了反硝化过程,进而降低了 $N_2O$ 的排放.

$NO_x$  排放主要发生在前期和中期[图 6(d)], 处理 NC 与处理 C 的  $NO_x$  排放规律也非常一致[图 6(d)]. 随着堆放进行, $NO_x$  的排放逐渐增加,12 月 6 日的翻堆增加了堆体中的含氧量,加快了硝化作用,进而  $NO_x$  的排放增加,在 12 月 7 日, $NO_x$  出现第一次峰值,处理 NC 和处理 C 的  $NO_x$  排放通量(以 N 计)分别为  $15.3 \mu\text{g}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{h})^{-1}$  和  $16.5 \mu\text{g}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{h})^{-1}$ . 在这之后, $NO_x$  排放通量呈下降趋势. 此种情况同样出现在 12 月 21 日和 1 月 21 日的翻堆期间.

#### 2.4 影响 $NH_3$ 、 $N_2O$ 和 $NO_x$ 排放的因素

在猪粪堆放/堆肥过程中,有机氮在微生物的作用下被分解而转化为 $NH_4^+-N$ , $NH_4^+-N$ 则可以进一步转化为氨气,以气态形式释放到堆体外. 因此,堆料中的 $NH_4^+-N$ 浓度变化直接影响氨气的释放,处理 NC 与处理 C 的  $NH_3$  排放通量和堆料 $NH_4^+-N$ 浓度的

相关系数分别为 0.803 和 0.847,呈显著的正相关,这与郑瑞生等<sup>[8]</sup>的研究结果一致. 堆料中 $NH_4^+-N$ 浓度则受堆体温度、堆料有机质、堆料 TN 和堆料 C/N 的影响,两个处理的 $NH_4^+-N$ 浓度与堆体温度、堆料有机质、堆料 TN 的相关系数,处理 NC 的分别为 0.723、0.715、0.812,处理 C 分别为 0.665、0.610、0.713,都有显著的正相关. 因此, $NH_3$  排放通量表观也与堆体温度、堆料有机质、堆料 TN 和堆料 C/N 显著正相关. Fukumoto 等<sup>[14]</sup>采用负压式猪粪堆肥方法,结果也发现  $NH_3$  的挥发量与堆体温度的有显著的正相关. 猪粪室外固体堆放的堆体温度伴随着环境温度的变化而变化( $-2.8 \sim 13.5^\circ\text{C}$ ). 与堆肥过程不同,堆体没有产生  $50 \sim 60^\circ\text{C}$  的高温期,但是  $NH_3$  的挥发量与堆体温度也有显著的正相关.

堆体的含水率影响其 $N_2O$ 的排放<sup>[24]</sup>. Hwang 等<sup>[25]</sup>的研究认为,当堆料的水分含量维持在 60% 以上时,主要通过反硝作用形成 $N_2O$ . 整个堆放过程的含水率在 64% ~ 81% 之间变化,因此,堆放的 $N_2O$ 排放主要以反硝化为主. 堆放期间的 3 次翻堆后,堆体内部氧浓度增加,导致 $N_2O$ 排放通量的降低,进一步证明了此次堆放 $N_2O$ 的产生可能以反硝

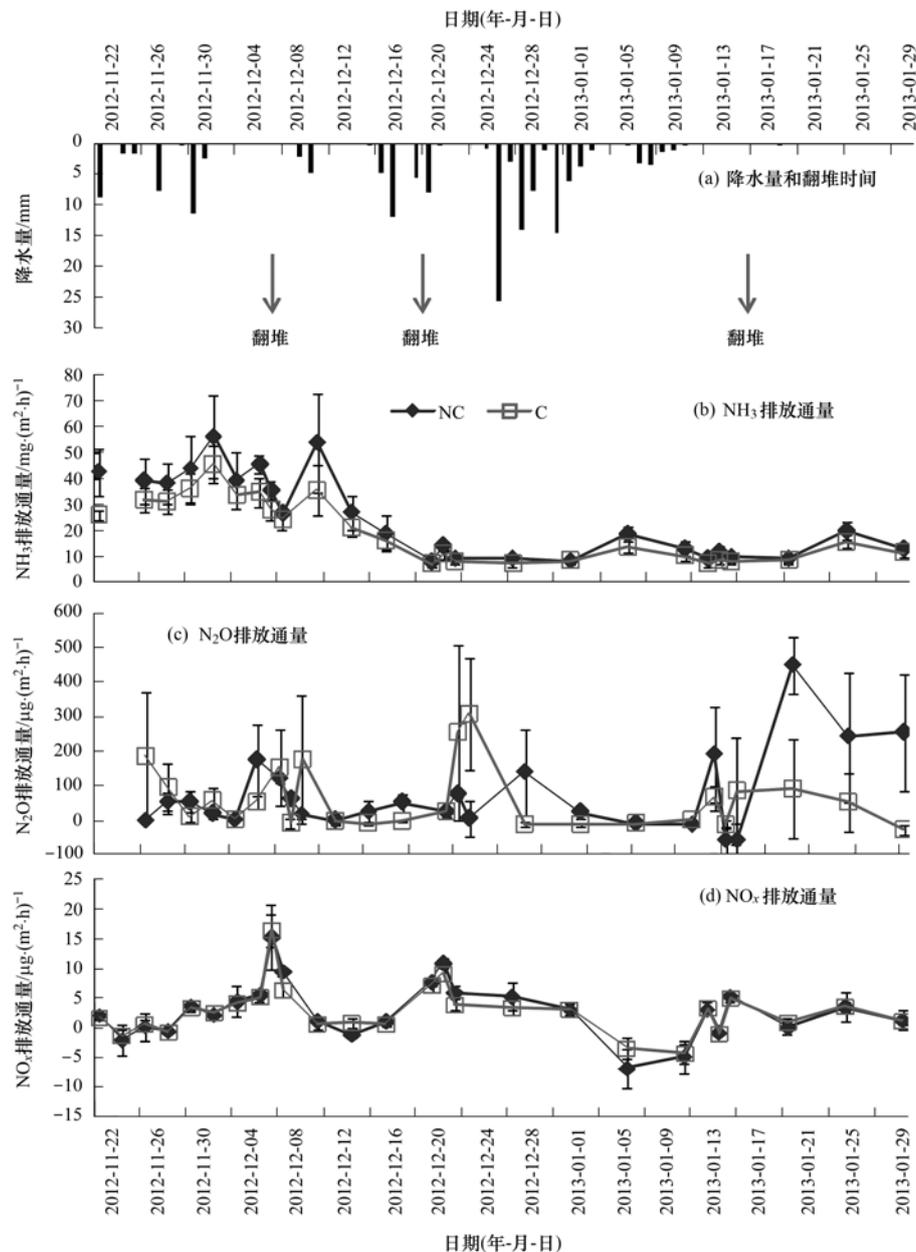


图 6 猪粪堆放过程中含氮气体 ( $\text{NH}_3$ 、 $\text{N}_2\text{O}$  和  $\text{NO}$ ) 排放通量变化特征

Fig. 6 Emission flux of nitrogen containing gases ( $\text{NH}_3$ ,  $\text{N}_2\text{O}$  and  $\text{NO}$ ) during swine manure storage

化作用为主。

猪粪堆放/堆肥  $\text{NO}_x$  的产生机制比较复杂, 微生物的硝化与反硝化都能产生  $\text{NO}_x$ 。下一步研究有望从抑制硝化细菌或反硝化细菌, 探讨猪粪堆放/堆肥中  $\text{NO}_x$  的排放影响因子。

## 2.5 覆盖和翻堆对含氮气体排放的作用

水稻秸秆覆盖对猪粪固体堆放的  $\text{NH}_3$  减排效果非常明显, 而对于  $\text{N}_2\text{O}$  和  $\text{NO}_x$  的排放虽有减排作用但效果不显著 (表 2, 图 6)。对两个处理堆体  $\text{NH}_3$ 、 $\text{N}_2\text{O}$ 、 $\text{NO}_x$  的排放做配对样本  $T$  检验, 两个处

理的  $\text{NH}_3$  排放通量具有极显著性差异 ( $P = 0.000 < 0.001$ ); 而  $\text{N}_2\text{O}$  和  $\text{NO}_x$  排放通量均无显著性差异 ( $\text{N}_2\text{O}: P = 0.652 > 0.05$ ;  $\text{NO}_x: P = 0.651 > 0.05$ ) (表 2)。这是因为覆盖的水稻秸秆经常处于湿润状态, 对  $\text{NH}_3$  有很大的吸收作用, 可能由于覆盖量相对较少, 覆盖物对  $\text{N}_2\text{O}$ 、 $\text{NO}_x$  却无明显减排作用。Petersen 等<sup>[9]</sup>对夏季猪粪堆肥的氨气排放规律进行了研究, 无覆盖堆体氨气的排放量 (以  $\text{NH}_3$  计) 为  $180.2 \text{ g} \cdot \text{m}^{-2}$ , 有覆盖堆体的氨气的排放量为  $18.0 \text{ g} \cdot \text{m}^{-2}$ , 有覆盖物的堆体  $\text{NH}_3$  排放降低了 10 倍。而

本研究中处理 NC 和处理 C 的  $\text{NH}_3$  排放累积量(以 N 计)分别为  $35.1 \text{ g}\cdot\text{m}^{-2}$  和  $27.8 \text{ g}\cdot\text{m}^{-2}$ , 覆盖物对  $\text{NH}_3$  排放的减排效果相对较低. 究其原因, 可能是因为 Petersen 的实验中覆盖材料为切碎的小麦秸秆, 并且覆盖量为  $0.8 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-2}$ , 比本研究中的覆盖量大( $0.55 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-2}$ ), 并且本研究中覆盖材料为未切碎的水稻秸秆. 因此, Petersen 等<sup>[9]</sup>研究所用的覆盖物比本研究的覆盖物具有更大的比表面积, 且研究季节为夏季, 其减排效果表现更好. 而江滔等<sup>[20]</sup>用油布覆盖对猪粪和玉米秸秆堆肥开展研究, 发现含氮气体的排放规律明显不一致, 但覆盖同样能减少含氮气体的排放. 因此, 畜禽粪便在固体堆放储存过程中, 覆盖物能够明显降低有害气体的排放.

翻堆后,  $\text{NH}_3$  的排放通量变化不明显. 每次翻堆后,  $\text{N}_2\text{O}$  的排放均迅速下降, 可能是翻堆使得堆体内部充氧, 减缓了堆料的反硝化过程而促进了硝化过程, 进而导致翻堆后  $\text{N}_2\text{O}$  排放减少, 而  $\text{NO}_x$  的排放

通量出现升高的变化. 另外, 在翻堆过程中, 由于采样技术的限制, 现在还无法确定是否有大量上述含氮气体排放.

## 2.6 猪粪固体堆放与其它堆肥方式的含氮气体累积排放量比较

整个堆放过程中, 处理 NC 和处理 C 的  $\text{NH}_3$  排放累积量(以 N 计)分别为  $35.1 \text{ g}\cdot\text{m}^{-2}$  和  $27.8 \text{ g}\cdot\text{m}^{-2}$ , 处理 NC 排放累积量比 C 堆体高出  $7.3 \text{ g}\cdot\text{m}^{-2}$  (占处理 C 的  $\text{NH}_3$  排放量 26%). NC 堆体和 C 堆体  $\text{N}_2\text{O}$  排放累积量(以 N 计)分别为  $260 \text{ mg}\cdot\text{m}^{-2}$  和  $216 \text{ mg}\cdot\text{m}^{-2}$ , NC 排放累积量比 C 堆体高出值为  $44 \text{ mg}\cdot\text{m}^{-2}$ . 而 NC 堆体  $\text{NO}_x$  累积量(以 N 计)为  $3.6 \text{ mg}\cdot\text{m}^{-2}$ , 处理 C 堆体累积量为  $3.4 \text{ mg}\cdot\text{m}^{-2}$ .

NC 堆体初始 TN 含量为  $2442.6 \text{ g}$ , C 堆体初始 TN 含量为  $2411.6 \text{ g}$ . 两个堆体的表面积为  $1.81 \text{ m}^2$ . 计算出  $\text{NH}_3$ 、 $\text{N}_2\text{O}$  和  $\text{NO}_x$  排放累积量和各自占初始总氮的百分比(质量分数)如表 3 所示.

表 3  $\text{NH}_3$ 、 $\text{N}_2\text{O}$  和  $\text{NO}_x$  累积排放量<sup>1)</sup>  
Table 3 Accumulations of  $\text{NH}_3$ ,  $\text{N}_2\text{O}$  and  $\text{NO}_x$

处理	$\text{NH}_3$		$\text{N}_2\text{O}$		$\text{NO}_x$	
	排放总量 /g	占初始 TN 的比例 /%	排放总量 /g	占初始 TN 的比例 /%	排放总量 /g	占初始 TN 的比例 /%
NC	63.6	2.6	0.47	0.02	0.006 1	$2.5 \times 10^{-4}$
C	50.3	2.1	0.39	0.02	0.005 7	$2.4 \times 10^{-4}$
猪粪堆肥 <sup>[14]</sup>	13.6	9.2	9.7	6.53	5.80	3.92
猪粪好氧堆肥 <sup>[11]</sup>	$165 \pm 11$	$3.9 \pm 0.2$	$335 \pm 18$	$2.5 \pm 0.1$	—	—
污泥堆肥 <sup>[26]</sup>	113 240	4.44	468.8	0.018	—	—
猪粪 + 玉米秸秆堆肥 <sup>[27]</sup>	—	20 ~ 39	—	0.5 ~ 4	—	—

1) “—”表示原文无相关数据

与其他的研究对比(表 3)结果显示, 本研究  $\text{NH}_3$  的排放累积量占初始 TN 的比例为 2.1% ~ 2.6%, 低于其他堆肥研究, 说明了正常堆肥过程中, 会有更多的  $\text{NH}_3$  排放. 本研究冬季猪粪堆放的  $\text{N}_2\text{O}$  排放累积量占初始 TN 比例为 0.02%, 与污泥堆肥的  $\text{NH}_3/\text{TN}$  比例 0.018% 相当, 低于猪粪堆肥的  $\text{NH}_3/\text{TN}$  比例 2.5% ~ 6.53%.  $\text{NO}_x$  排放累积量占初始 TN 的比例远低于猪粪堆肥中的. 可能原因是猪粪的固体堆放过程主要以厌氧状态存在, 硝化反应低,  $\text{NO}_x$  产生量少. 猪粪固体堆放引起含氮气体的排放, 导致了 N 的损失, 但同时猪粪在自然堆放过程中, 通过淋溶径流流失了部分 N, 下一步有必要对猪粪固体堆放的淋溶径流进行观测研究.

## 3 结论

(1) 猪粪固体堆放过程中的含氮气体排放主要

以  $\text{NH}_3$  形式排放, 其次为  $\text{N}_2\text{O}$  排放,  $\text{NO}_x$  排放非常低.

(2) 无覆盖(non-covered, NC)和水稻秸秆覆盖(covered, C)两个处理的猪粪冬季固体堆放的含氮气体排放通量变化趋势基本一致, 且有覆盖堆体的含氮气体的排放量略低于无覆盖堆体. 尤其覆盖物对于  $\text{NH}_3$  的减排效果明显.

(3) 翻堆前后,  $\text{NH}_3$  的排放无明显变化, 而  $\text{N}_2\text{O}$  排放和  $\text{NO}_x$  排放却在翻堆后均出现降低的变化,  $\text{NO}$  排放却出现升高的变化.

致谢: 本研究得到湖南农业大学罗琳教授以及王海兵老师的帮助, 在此表示感谢.

## 参考文献:

- [1] 中华人民共和国环境保护部, 中华人民共和国国家统计局, 中华人民共和国农业部. 第一次全国污染源普查公报[R]. 2010.

- [ 2 ] 王方浩, 马文奇, 窦争霞, 等. 中国畜禽粪便产生量估算及环境效应[J]. 中国环境科学, 2006, **26**(5): 614-617.
- [ 3 ] 相俊红, 杨宁, 刘强. 农村废弃物资源化处理及利用技术研究[J]. 农机科技推广, 2004, (5): 27.
- [ 4 ] 谢忠雷, 朱洪双, 李文艳, 等. 吉林省畜禽粪便自然堆放条件下粪便/土壤体系中 Cu、Zn 的分布规律[J]. 农业环境科学学报, 2011, **30**(11): 2279-2284.
- [ 5 ] 仇焕广, 莫海霞, 白军飞, 等. 中国农村畜禽粪便处理方式及其影响因素——基于五省调查数据的实证分析[J]. 中国农村经济, 2012, (3): 78-87.
- [ 6 ] 臭气对策研究协会. 臭气对策年鉴[M]. 东京: 东京出版社, 1996.
- [ 7 ] Fukumoto Y, Osada T, Hanajima D, *et al.* Patterns and quantities of  $\text{NH}_3$ ,  $\text{N}_2\text{O}$  and  $\text{CH}_4$  emissions during swine manure composting without forced aeration—Effect of compost pile scale [J]. *Bioresource Technology*, 2003, **89**(2): 109-114.
- [ 8 ] 郑瑞生, 肖本木, 李延. 堆肥化过程中氮素转化和  $\text{NH}_3$  挥发研究[J]. 泉州师范学院学报(自然科学), 2007, **25**(2): 122-125.
- [ 9 ] Petersen S O, Dorno N, Lindholm S, *et al.* Emissions of  $\text{CH}_4$ ,  $\text{N}_2\text{O}$ ,  $\text{NH}_3$  and odorants from pig slurry during winter and summer storage[J]. *Nutrient Cycling in Agroecosystems*, 2013, **95**(1): 103-113.
- [ 10 ] 万合峰. 猪粪堆肥及其在蔬菜地利用全过程中温室气体( $\text{N}_2\text{O}$ 、 $\text{CH}_4$ )和  $\text{NH}_3$  排放特征研究[D]. 南昌: 南昌大学, 2012. 27-40.
- [ 11 ] Szanto GL, Hamelers H M, Rulkens W H, *et al.*  $\text{NH}_3$ ,  $\text{N}_2\text{O}$  and  $\text{CH}_4$  emissions during passively aerated composting of straw-rich pig manure[J]. *Bioresource Technology*, 2007, **98**(14): 2659-2670.
- [ 12 ] 郑嘉熹, 魏源送, 吴晓凤, 等. 猪粪堆肥过程保氮固磷及温室气体( $\text{N}_2\text{O}$ )减排研究[J]. 环境科学, 2011, **32**(7): 2047-2055.
- [ 13 ] Hao X Y, Chang C. Gaseous  $\text{NO}$ ,  $\text{NO}_2$  and  $\text{NH}_3$  loss during cattle feedlot manure composting [J]. *Phyton-annales Rei Botanicae*, 2001, **41**(3): 81-93.
- [ 14 ] Fukumoto Y, Suzuki K, Kuroda K, *et al.* Effects of struvite formation and nitrification promotion on nitrogenous emissions such as  $\text{NH}_3$ ,  $\text{N}_2\text{O}$  and  $\text{NO}$  during swine manure composting [J]. *Bioresource Technology*, 2011, **102**(2): 1468-1474.
- [ 15 ] 王跃思, 郑循华, 王明星. 静态箱法气相色谱法自动检测农田  $\text{N}_2\text{O}$  排放[J]. 分析测试技术与仪器, 1997, **3**(1): 10-15.
- [ 16 ] 王朝辉, 刘学军, 巨晓棠, 等. 田间土壤氮挥发的原位测定——通气法[J]. 植物营养与肥料学报, 2002, **8**(2): 205-209.
- [ 17 ] Wang Y H, Wang Y S, Ling H. A new carrier gas type for accurate measurement of  $\text{N}_2\text{O}$  by GC-ECD [J]. *Advances in Atmospheric Sciences*, 2010, **27**(6): 1322-1330.
- [ 18 ] 叶小梅, 陈欣, 常志州. 畜禽粪便自然堆放及施入农田后粪大肠菌群数量的消长[J]. 中国农学通报, 2008, **24**: 85-88.
- [ 19 ] 单德鑫, 李淑芹, 许景钢. 牛粪生物堆肥有机酸变化及对腐熟度的影响[J]. 环境科学与技术, 2007, **30**(1): 29-31.
- [ 20 ] 江滔, Schuchardt F, 李国学. 冬季堆肥中翻堆和覆盖对温室气体和氨气的排放的影响[J]. 农业工程学报, 2011, **27**(10): 212-217.
- [ 21 ] Yoshida N, Toyoda S. Constraining the atmospheric  $\text{N}_2\text{O}$  budget from intramolecular site preference in  $\text{N}_2\text{O}$  isotopomers [J]. *Nature*, 2000, **405**(6784): 330-334.
- [ 22 ] Maeda K, Toyoda S, Shimajima R, *et al.* Source of nitrous oxide emissions during the cow manure composting process as revealed by isotopomer analysis of and amoA abundance in betaproteobacterial ammonia-oxidizing bacteria [J]. *Applied and Environmental Microbiology*, 2010, **76**(5): 1555-1562.
- [ 23 ] 黄耀, 蒋静艳, 宗良纲, 等. 种植密度和降水对冬小麦田  $\text{N}_2\text{O}$  排放的影响[J]. 环境科学, 2001, **22**(6): 20-23.
- [ 24 ] Maia G D N, Day V G B, Gates R S, *et al.* Moisture effects on greenhouse gases generation in nitrifying gas-phase compost biofilters[J]. *Water Research*, 2012, **46**(9): 3023-3031.
- [ 25 ] Hwang S, Hanaki K. Effects of oxygen concentration and moisture content of refuse on nitrification, denitrification and nitrous oxide production[J]. *Bioresource Technology*, 2000, **71**(2): 159-165.
- [ 26 ] 钟佳, 魏源送, 赵振凤, 等. 污泥堆肥及其土地利用全过程的温室气体与氨气排放特征[J]. 环境科学, 2013, **34**(11): 4186-4194.
- [ 27 ] Jiang T, Schuchardt F, Li G X, *et al.* Gaseous emission during the composting of pig feces from Chinese Ganqinfen system [J]. *Chemosphere*, 2013, **90**(4): 1545-1551.

## 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, <i>et al.</i>	(2439)
<i>In-situ</i> Measurement of Atmospheric Methyl Chloroform at the Shangdianzi GAW Regional Background Station	YAO Bo, ZHOU Ling-xi, LIU Zhao, <i>et al.</i>	(2449)
Distribution of CO at Lin'an Station in Zhejiang Province	FANG Shuang-xi, ZHOU Ling-xi, LUAN Tian, <i>et al.</i>	(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, <i>et al.</i>	(2460)
Characteristics of Water-soluble Organic Nitrogen of PM <sub>2.5</sub> in Xi'an During Wintertime Non-haze and Haze Periods	CHENG Yu-ting, WANG Ge-hui, SUN Tao, <i>et al.</i>	(2468)
Effect of Sand Dust Weather on Major Water-soluble Ions in PM <sub>10</sub> in Lanzhou, China	WANG Fang, CHEN Qiang, ZHANG Wen-yu, <i>et al.</i>	(2477)
Diversity of Bacterial Areasols in Precipitation of Shanghai Area	LIANG Zong-min, DU Rui, DU Peng-rui, <i>et al.</i>	(2483)
Concentrations and Deposition Fluxes of Heavy Metals in Precipitation in Core Urban Areas, Chongqing	PENG Yu-long, WANG Yong-min, QIN Cai-qing, <i>et al.</i>	(2490)
Anthropogenic VOC Emission Inventory and Contribution from Industrial Sources in Ningbo	LI Xuan, WANG Xue-song, LIU Zhong, <i>et al.</i>	(2497)
Evaluation and Selection of VOCs Treatment Technologies in Packaging and Printing Industry	WANG Hai-lin, WANG Jun-hui, ZHU Chun-lei, <i>et al.</i>	(2503)
Experimental Study on CO <sub>2</sub> Absorption by Aqueous Ammonia-based Blended Absorbent	XIA Zhi-xiang, XIANG Qun-yang, ZHOU Xu-ping, <i>et al.</i>	(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, <i>et al.</i>	(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, <i>et al.</i>	(2528)
Dynamic Distributions of Dissolved Oxygen in Lake Qiandaohu and Its Environmental Influence Factors	YIN Yan, WU Zhi-xu, LIU Ming-liang, <i>et al.</i>	(2539)
Source Analysis of Urea-N in Lake Taihu During Summer	HAN Xiao-xia, ZHU Guang-wei, XU Hai, <i>et al.</i>	(2547)
Phytoplankton Community Structure and Its Succession in Isolated Lakes of Poyang-Junshan Lake	LIU Xia, QIAN Kui-mei, TAN Guo-liang, <i>et al.</i>	(2557)
Vertical Distribution and Relationship Between <sup>210</sup> Pb <sub>ex</sub> Activities and Nutrients in Sediment Cores of Two Different Eutrophication Level Lakes	WANG Xiao-lei, YANG Hao, GU Zhu-jun, <i>et al.</i>	(2565)
Simulation of Nitrate Pollution in Groundwater Using Pump-and-treat Optimization Method	JIANG Lie, HE Jiang-tao, JIANG Yong-hai, <i>et al.</i>	(2572)
Variation of Water DOC During the Process of Pre-pressure and Coagulation Sedimentation Treatment	CHEN Wen-jing, CONG Hai-bing, XU Ya-jun, <i>et al.</i>	(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, <i>et al.</i>	(2590)
Effect of SDS on the Adsorption of Cd <sup>2+</sup> onto Amphoteric Modified Bentonites	WANG Jian-tao, MENG Zhao-fu, YANG Ya-ti, <i>et al.</i>	(2596)
Structural Changes of Aged Biochar and the Influence on Phenanthrene Adsorption	TANG Wei, GUO Yue, WU Jing-gui, <i>et al.</i>	(2604)
Photocatalytic Degradation Kinetics of Perfluorooctanoic Acid (PFOA) in TiO <sub>2</sub> Dispersion and Its Mechanism	LI Ming-jie, YU Ze-bin, CHEN Ying, <i>et al.</i>	(2612)
Characterizing the Interaction Between Roxarsone and Humic Acid by Fluorescence Quenching Experiment	ZHU Jiang-peng, MEI Ting, PENG Yun, <i>et al.</i>	(2620)
Modification of Activated Carbon Fiber for Electro-Fenton Degradation of Phenol	MA Nan, TIAN Yao-jin, YANG Guang-ping, <i>et al.</i>	(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, <i>et al.</i>	(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, <i>et al.</i>	(2645)
Study on the Quality of Digested Piggery Wastewater in Large-Scale Farms in Jiaying	WEI Dan, WAN Mei, LIU Rui, <i>et al.</i>	(2650)
New Ways to Improve Volatile Fatty Acids Accumulation in Sludge Alkaline Fermentation System	LI Xiao-ling, PENG Yong-zhen, CHAI Tong-zhi, <i>et al.</i>	(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-tuan, CHEN Zhen-lou, <i>et al.</i>	(2664)
Distribution of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Water and Sediment from Zhoushan Coastal Area, China	JIANG Min, Le Huy Tuan, MEI Wei-ping, <i>et al.</i>	(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, <i>et al.</i>	(2691)
Pollution Fingerprints and Sources of Perfluorinated Compounds in Surface Soil of Different Functional Areas	ZHANG Hong, ZHAO Liang, HE Long, <i>et al.</i>	(2698)
Distribution, Seasonal Variation and Influence Factors of Dissolved Inorganic Arsenic in the Sanggou Bay	LI Lei, REN Jing-ling, LIU Su-mei, <i>et al.</i>	(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, <i>et al.</i>	(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, <i>et al.</i>	(2728)
Health Risk Assessment of Heavy Metals in Atmospheric Dust of Qingdao City	ZHANG Chun-rong, WU Zheng-long, YAO Chun-hui, <i>et al.</i>	(2736)
Health Risk Assessment of Coke Oven PAHs Emissions	BO Xin, WANG Gang, WEN Rou, <i>et al.</i>	(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 <i>Tetrahymena thermophila</i>	LI Ya-jie, CUI Yi-Bin, JIANG Li-juan, <i>et al.</i>	(2755)
Phytoexclusion Potential Studies of Si Fertilization Modes on Rice Cadmium	CHEN Zhe, TIE Bo-qing, LEI Ming, <i>et al.</i>	(2762)
Effects of Conservation Tillage on Soil CO <sub>2</sub> and N <sub>2</sub> O Emission During the Following Winter-Wheat Season	PAN Ying, HU Zheng-hua, WU Yang-zhou, <i>et al.</i>	(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 <sup>2+</sup> on the Power Output of Dual-chamber Microbial Fuel Cell	MU Shu-jun, LI Xin-fen, REN Yue-ping, <i>et al.</i>	(2791)
Emissions of Greenhouse Gas and Ammonia from Sewage Sludge Composting by Continuous Aerated Turning Pile	ZHAO Chen-yang, WEI Yuan-song, GE Zhen, <i>et al.</i>	(2798)
Emissions of NH <sub>3</sub> , N <sub>2</sub> O, and NO from Swine Manure Solid Storage in Winter	DING Gang-qiang, HAN Sheng-hui, YUAN Yu-ling, <i>et al.</i>	(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, <i>et al.</i>	(2816)
Research on the Variation Regularity of Effluent from the Leachate Reverse Osmosis Concentrate Recirculation	WANG Dong-mei, LIU Dan, LIU Qing-mei, <i>et al.</i>	(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 <sub>2</sub> Removal Process by Partial Nitrification and Anaerobic Ammonium Oxidation	ZHAO Zhi-ru, 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