

市政污泥好氧堆肥过程中PAHs的去除

张慧钰, 宋雪英, 由明超, 薛丽媛, 李凤娇, 赵晓旭, 王兴

引用本文:

张慧钰, 宋雪英, 由明超, 薛丽媛, 李凤娇, 赵晓旭, 王兴. 市政污泥好氧堆肥过程中PAHs的去除[J]. 农业环境科学学报, 2024, 43(2): 419-425.

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.11654/jaes.2023-0198>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

不同地区农田土壤多环芳烃污染特征与来源解析

刘月仙, 解小凡, 杜志伟, 邱慧, 张瑞丽, 张萌, 王伟

农业环境科学学报. 2020, 39(11): 2539-2547 <https://doi.org/10.11654/jaes.2020-0448>

单壁碳纳米管对紫花苜蓿根际土壤中PAHs降解及微生物群落的影响

王慧敏, 陈莉荣, 任文杰, 郑春丽, 黄怡雯, 滕应, 张铁军

农业环境科学学报. 2021, 40(12): 2647-2659 <https://doi.org/10.11654/jaes.2021-0332>

利用保水剂调节污泥发酵起始水分的研究

李玉和, 胡伟, 秦端端, 房瑜静, 王小兵, 王小治, 封克

农业环境科学学报. 2017, 36(12): 2527-2534 <https://doi.org/10.11654/jaes.2017-0724>

生物质炭对小白菜吸收多环芳烃的影响

彭碧莲, 刘铭龙, 隋凤凤, 潘志平, 李恋卿, 潘根兴, 程琨

农业环境科学学报. 2017, 36(4): 702-708 <https://doi.org/10.11654/jaes.2016-1564>

不同栽培环境下豇豆体内多环芳烃源解析及风险评估

巫桂芬, 龙明华, 乔双雨, 赵体跃, 张会敏

农业环境科学学报. 2018, 37(12): 2651-2659 <https://doi.org/10.11654/jaes.2018-1075>



关注微信公众号, 获得更多资讯信息

张慧钰, 宋雪英, 由明超, 等. 市政污泥好氧堆肥过程中PAHs的去除[J]. 农业环境科学学报, 2024, 43(2): 419-425.

ZHANG H Y, SONG X Y, YOU M C, et al. Removal of PAHs in the aerobic composting of municipal sludge[J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2024, 43(2): 419-425.



开放科学 OSID

市政污泥好氧堆肥过程中PAHs的去除

张慧钰¹, 宋雪英^{1,2*}, 由明超¹, 薛丽媛¹, 李凤娇¹, 赵晓旭², 王兴³

(1. 沈阳大学区域污染生态环境修复教育部重点实验室, 沈阳 110044; 2. 福建省新型污染物生态毒理效应与控制重点实验室, 莆田学院, 福建 莆田 351100; 3. 辽宁华电长兴生物环保有限公司, 沈阳 110000)

摘要: 为探究市政污泥好氧堆肥过程中多环芳烃(PAHs)的去除动态, 本研究以沈阳市市政污泥为研究对象, 进行3个批次的好氧堆肥现场试验, 分析了市政污泥中PAHs的污染特征、污染来源及堆肥过程中PAHs的去除动态。结果表明: 不同季节沈阳市市政污泥中 Σ PAHs含量差异较大, 范围为0.82~3.73 mg·kg⁻¹, 夏季污泥成分以高环PAHs($n \geq 4$)为主(质量比为94.0%), 而冬季和春季污泥以低环PAHs($n < 4$)为主, 质量比分别为76.0%和63.0%。采用双比值法对沈阳市污泥中PAHs进行源解析, 结果显示污泥中PAHs的主要来源为煤的燃烧源。经过堆肥处理后 Σ PAHs去除率大小顺序为春季(52.8%)>夏季(49.1%)>冬季(46.7%)。研究表明, 好氧堆肥对PAHs有明显的降解效果, 有利于实现污泥的无害化和资源化。

关键词: 多环芳烃; 污泥; 好氧堆肥; 源解析

中图分类号: S141.4; X703 文献标志码: A 文章编号: 1672-2043(2024)02-0419-07 doi:10.11654/jaes.2023-0198

Removal of PAHs in the aerobic composting of municipal sludge

ZHANG Huiyu¹, SONG Xueying^{1,2*}, YOU Mingchao¹, XUE Liyuan¹, LI Fengjiao¹, ZHAO Xiaoxu², WANG Xing³

(1. Key Laboratory of Regional Environment and Eco-Remediation, Ministry of Education, Shenyang University, Shenyang 110044, China; 2. Fujian Provincial Key Laboratory of Ecology-Toxicological Effects & Control for Emerging Contaminants, Putian University, Putian 351100, China; 3. Liaoning Huadian Changxing Biological Environmental Protection Co., Ltd., Shenyang 110000, China)

Abstract: This study conducted three batches of aerobic compost field experiments using Shenyang municipal sludge to investigate the removal dynamics of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) during aerobic composting. The analysis focused on the pollution characteristics, pollution sources, and removal dynamics of PAHs in municipal sludge. The results showed significant variations in the content of Σ PAHs in Shenyang municipal sludge across different seasons, ranging from 0.82 mg·kg⁻¹ to 3.73 mg·kg⁻¹. High-ring PAHs($n \geq 4$) accounted for 94.0% of the sludge composition in summer, while low-ring PAHs($n < 4$) dominated in winter and spring with mass ratios of 76.0% and 63.0%, respectively. Source analysis of PAHs in Shenyang sludge using the double ratio method indicated that the main source of PAHs in the sludge was coal combustion. The degradation effect of PAHs after composting followed the order of Σ PAHs removal rate in spring at 52.8%, followed by summer at 49.1%, and winter at 46.7%. Aerobic composting resulted in significant degradation of PAHs, which contributes to the achievement of harmless resource recovery from sludge.

Keywords: polycyclic aromatic hydrocarbons; sludge; aerobic composting; source analysis

收稿日期: 2023-03-18 录用日期: 2023-05-18

作者简介: 张慧钰(1998—), 女, 黑龙江伊春人, 硕士研究生, 主要从事环境化学研究。E-mail: 1771869363@qq.com

*通信作者: 宋雪英 E-mail: songxy2046@163.com

基金项目: 国家自然科学基金项目(41907220); 福建省新型污染物生态毒理效应与控制重点实验室开放基金项目(PY21003); 沈阳市中青年人才科技支持计划项目(RC190371)

Project supported: National Natural Science Foundation of China(41907220); Fujian Provincial Key Laboratory of Ecology-Toxicological Effects & Control for Emerging Contaminants(PY21003); Shenyang Young and Middle-aged Talents Support Program(RC190371)

市政污泥是城市污水处理过程中所产生的副产品。污泥中不仅含有各种营养物质,同时还含有如有机污染物等各种有毒有害物质,若处理不慎,将会对整个生态环境造成巨大危害^[1-3]。好氧堆肥处理后的污泥中病原微生物基本被消除,同时部分有机污染物被降解,该方法是世界公认的污泥处置的理想方法^[4]。

多环芳烃(PAHs)是一类由两个或两个以上苯环稠合在一起的有机化合物^[5],广泛存在于各种环境介质中。在废水处理过程中,小部分PAHs会被降解去除,而大部分PAHs会吸附在污泥絮体和有机颗粒上,导致污泥中PAHs残留量较高^[6]。例如哈尔滨市污泥中PAHs范围为2.20~20.00 mg·kg⁻¹,北京市市政污泥中PAHs范围为2.47~25.90 mg·kg⁻¹,而约旦污泥中PAHs污染较为严重,最高值可达69.73 mg·kg⁻¹。PAHs具有“三致”效应,是首批公认的环境致癌物质,PAHs含有的苯环数量越多其致癌性越强^[7]。此外,PAHs还会对人体生殖系统、免疫系统和基因传递造成极大伤害^[8]。鉴于PAHs对人体健康和生态安全的威胁,我国《城镇污水处理厂污泥处置 林地用泥质》(CJ/T 362—2011)已将PAHs总量和苯并(a)芘单体含量列为重点监控指标。

近年来,对于污泥堆肥进程中重金属类污染物迁移转化的各项研究已经取得了较大进展,然而对于PAHs的研究相对较少。为此,本研究以沈阳市市政污泥为研究对象,以美国环保局(USEPA)确定的16种优先控制的PAHs作为目标化合物,分析研究市政污泥中PAHs的污染特征及其来源,并探讨堆肥过程中PAHs的去除动态,以期为城市污泥的安全处理和资源化利用提供参考。

1 材料与方法

1.1 堆肥原料

本实验堆肥污泥来源于沈阳市某污水处理厂的市政污泥;返混料来源于沈阳某环保公司堆肥实验生产基地,返混料为上一周期的堆肥产品,主要用于提供堆肥所需微生物、调节堆体含水率和孔隙度;稻草来源于沈阳某畜牧养殖场;微生物菌剂来源于鹤壁市人元生物发展技术有限公司。微生物菌剂与返混料的区别在于:返混料提供的微生物是土著微生物,用于促进整个堆肥过程的进行,而微生物菌剂的主要作用是为了堆肥初期的快速升温。

1.2 堆肥实验设计

堆肥反应器为长17 m、宽5 m、高2 m的发酵

槽,发酵槽底部设有通风孔,每个发酵槽的通风量为4 400 m³·h⁻¹。堆体体积约为81 m³,堆肥过程中采用铲车作业。本实验共进行3个批次堆肥处理,分别于冬季(2021年12月,T1)、春季(2022年5月,T2)和夏季(2022年8月,T3)进行,每次堆肥时间为16 d,每3 d进行一次翻堆处理。堆料组合为返混料、污泥和稻草,其体积比为2:1:1,同时添加0.1%微生物菌剂。每日测定堆体温度(图1),利用温度变化评价堆肥程度。堆体的初始参数见表1。

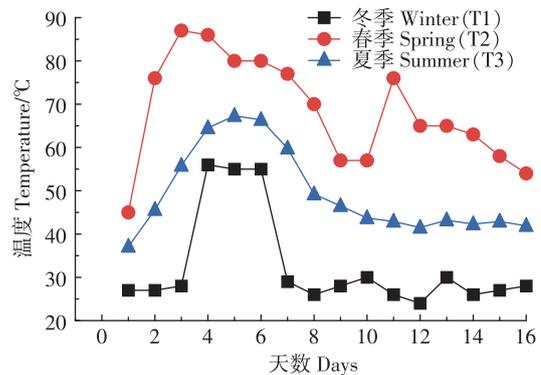


图1 堆肥过程中温度的变化

Figure 1 Temperature change in composting process

表1 堆肥实验初始参数

Table 1 Initial parameters of the composting experiment

处理 Dispose	C/N	有机质 Organic matter/ (g·kg ⁻¹)	含水率 Water content/%	PAHs总量 Total amount of PAHs/(mg·kg ⁻¹)
冬季(T1)	9.5	392.8	56.2	2.26
春季(T2)	13.9	397.5	60.9	0.82
夏季(T3)	11.5	453.2	60.0	3.73

1.3 堆肥样品的采集

于堆肥进行的第0、4、7、11、16天采集样品。按五点取样法均匀布点采集样品,四分法取样。样品经阴凉处风干,研磨后过100目筛,用于PAHs含量的测定。

1.4 PAHs分析

样品提取采用超声提取-硅胶柱净化法。准确称取2.000 0 g堆肥样品放入150 mL锥形瓶中,加入20 mL二氯甲烷浸泡12 h后,超声提取20 min,超声期间控制水温不超过20 °C。每次提取后,需将提取液倒入装有脱脂棉和适量无水硫酸钠的漏斗中进行干燥过滤,然后再向锥形瓶中加入20 mL二氯甲烷,超声提取20 min,此步骤重复3次,将3次的滤液都转移到150 mL鸡心瓶中,然后在旋转蒸发仪上蒸发至近干。

样品净化:净化柱采用自制硅胶净化柱,采用湿法装柱,层析柱中依次加入无水硫酸钠、硅胶(提前浸泡在色谱正己烷中)和无水硫酸钠,添加体积比为1:8:3。将硅胶层析柱固定于铁架台上,用1 mL正己烷充分溶解提取样品,冲洗液转入硅胶层析柱中,重复2次。向层析柱中每次加入2 mL二氯甲烷与正己烷体积比为1:1的洗脱液,用鸡心瓶接收滤液,重复5次。将全部滤液置于旋转蒸发仪上缓慢蒸发至近干,加1 mL乙腈溶解,经PVDF针式过滤器(0.22 μm)过滤后转移到HPLC进样瓶中,冷藏,待测。

PAHs的测定采用高效液相色谱法。检测器为荧光检测器(FLD)和紫外检测器(DAD)。色谱柱使用Waters C18 PAHs专用色谱柱(250 mm \times 4.6 μm),柱温为25 $^{\circ}\text{C}$,进样量为20.0 μL ,流动相为超纯水和乙腈,流速为2.0 mL \cdot min $^{-1}$,梯度淋洗(淋洗梯度为0 min超纯水和乙腈体积比为50:50,6 min后转为100:0,保持至26 min)。DAD用于检测苊烯(Acy)和茚并(1,2,3-cd)苊(InP);检测波长254 nm,参比波长360 nm;FLD用于检测14种PAHs。

质量保证与控制:样品分析过程中加入方法空白,以色谱峰的保留时间定性、外标法色谱峰面积定量。本方法测定线性较好,检出限较低,相关系数(r)均大于0.999,PAHs检出限的范围为0.003~0.3 ng \cdot L $^{-1}$,萘(Nap)、苊(Ace)、芴(Flu)、菲(Phe)、蒽(An)、荧蒽(Fla)、芘(Py)、苯并[a]蒽(BaA)、蒽(Chy)、苯并[b]荧蒽(BbF)、苯并[k]荧蒽(BkF)、苯并[a]芘(BaP)、二苯并[a,h]蒽(DahA)、苯并[g,h,i]芘(BghiP)、茚并[1,2,3-c,d]芘(IcdP)的回收率分别为45.3%、78.7%、80.6%、97.7%、83.1%、96.7%、90.4%、88.9%、100.8%、83.2%、84.9%、90.4%、85.5%、94.2%和92.6%,苊烯(Acy)在所有样品中未检出。

2 结果与讨论

2.1 市政污泥堆肥过程中 Σ PAHs的含量变化及其来源分析

图2为T1、T2和T3堆肥过程中16种PAHs(Σ PAHs)的含量变化,堆肥前 Σ PAHs含量分别为2.26、0.82 mg \cdot kg $^{-1}$ 和3.73 mg \cdot kg $^{-1}$, Σ PAHs含量由高到低依次为T3>T1>T2,可见不同季节污泥中的 Σ PAHs含量差异较大。冬季污泥中 Σ PAHs含量较高,这主要是因为冬季北方供暖会额外消耗大量化石燃料,而燃烧导致大量PAHs的排放,部分PAHs经干湿沉降进入污水;而夏季因较大的降雨量使城市环境中PAHs被

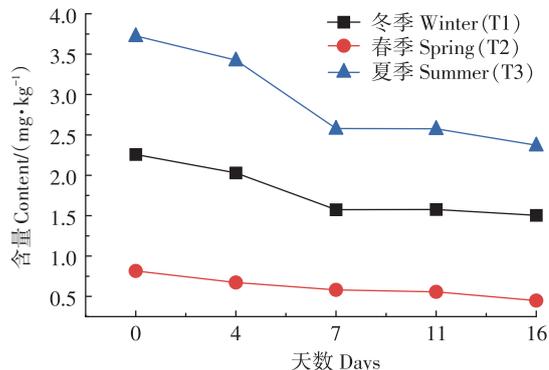


图2 Σ PAHs含量在堆肥过程中的变化

Figure 2 Variation of Σ PAHs content during composting

雨水冲刷进入污水,导致污泥中 Σ PAHs的含量与其他季节相比是最高的。Song等^[9]在对辽宁省太子河流域地表水PAHs污染调查时也发现了这一现象,流经城市的太子河中下游河段丰水期(7月)地表水中PAHs含量远高于平水期(10月)和枯水期(4月)。

从图2中可以看出在堆肥过程中T1和T3处理的 Σ PAHs整体上均呈现迅速下降后小幅上升和缓慢下降的趋势,出现时而增加时而减少这一现象可能与影响PAHs降解或转化的机制有关,相关研究表明,影响环境中PAHs归宿或生物可利用性的机制主要是生物降解和吸附^[10-11]。Weissenfels等^[12]的研究表明,有机污染物吸附在微生物不可接近的有机物上是降低其生物降解的主要原因。而T2处理经历了小幅缓慢下降的过程。经堆肥处理后,在考虑物料损失因素后得到T1、T2和T3处理的 Σ PAHs含量分别为1.50、0.45 mg \cdot kg $^{-1}$ 和2.37 mg \cdot kg $^{-1}$,降解率分别为46.7%、52.8%和49.1%。在污泥堆肥过程中,PAHs可以通过挥发、吸附矿化和微生物降解等方式被去除,其中,绝大部分PAHs的去除依赖于微生物的降解作用。在本研究中,PAHs的降解效果为T2(52.8%)>T3(49.1%)>T1(46.7%)。将冬、春和夏季的PAHs降解率两两进行独立样本 t 检验发现,除夏季显著高于冬季外($P<0.05$),其他季节间不存在显著差异。

由于冬季环境温度较低,堆肥温度会有所损失,导致堆肥过程中整体温度下降,微生物的生物活性降低,不利于PAHs的降解。夏季实施堆肥的过程中遇上雨季,其环境温度低于春季,导致春季的PAHs降解率高于夏季。季节因素对于堆肥过程中PAHs去除的影响是不确定的,PAHs的去除率与天气等因素间的关系还有待于进一步研究。Moeller等^[13]研究发现,污泥在不同温度下经过25 d堆肥后9种 Σ PAHs

的去除率为18%~74%。Amir等^[14]通过研究发现,在为期180 d的堆肥试验后,污泥中单个PAHs的去除率范围为59%~100%。相比之下本实验中PAHs的降解率偏低,这可能是由于污泥中PAHs的降解效果不仅与堆肥前其含量直接相关,还与PAHs的各种化学特性和堆肥条件等因素有关^[15]。

将我国《城镇污水处理厂污泥处置 林地用泥质》(CJ/T 362—2011)行业标准中对PAHs总量(小于 $6 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$)的控制标准与本研究中3个批次堆肥后PAHs含量对比发现,堆肥前后市政污泥中PAHs含量均未超标,并且T1、T2和T3中的BaP含量均远低于标准中BaP的单体含量限值($3 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$)。

环境中PAHs的来源主要分为燃烧源和石油源^[16]。由于燃烧源的种类和燃烧条件不同,其所生成PAHs的相对含量和组分也不完全相同,因此,通过PAHs成分谱中的特征污染物之间含量的比值可以识别出PAHs的来源^[12]。有研究表明,多种特征PAHs比值联合使用的双比值法能在2个甚至2个以上的方向上对污染源进行识别,从而可进一步增加判别结果的现实意义^[17-18]。例如:当 $\text{Fla}/(\text{Fla}+\text{Py}) < 0.4$ 时,PAHs主要来自于石油源;当 $\text{Fla}/(\text{Fla}+\text{Py}) > 0.5$ 时,PAHs来自煤和木材的燃烧;当 $\text{Fla}/(\text{Fla}+\text{Py})$ 在 $0.4 \sim 0.5$ 之间时,PAHs来源于石油燃烧。此外,当 $\text{InP}/(\text{InP}+\text{BghiP}) < 0.2$ 时,表明PAHs主要来源于石油污染源;当 $\text{InP}/(\text{InP}+\text{BghiP}) > 0.4$ 时,表示PAHs主要来自于煤和木材的燃烧;当 $\text{InP}/(\text{InP}+\text{BghiP})$ 在 $0.2 \sim 0.4$ 之间时,则PAHs的主要来源是石油燃烧^[19]。

本研究中不同堆肥处理的 $\text{Fla}/(\text{Fla}+\text{Py})$ 和 $\text{InP}/(\text{InP}+\text{BghiP})$ 的比值如图3所示。研究结果表明,T1、T2和T3处理中的 $\text{Fla}/(\text{Fla}+\text{Py})$ 分别为0.79、0.82和0.75, $\text{InP}/(\text{InP}+\text{BghiP})$ 分别为0.72、0.79和0.74,依据上述判别标准可知,沈阳市污泥中的PAHs主要来源于煤和木材的燃烧,同时,沈阳市的能源实际消费情况,即统计资料显示,沈阳市能源消费中煤炭占比接近80%^[20],因此可得出结论,沈阳市城市污泥中PAHs的主要来源为燃煤源。

2.2 堆肥过程中各单体PAHs的去动态

T1、T2和T3堆体堆肥前后样品中共检测到15种PAHs, Acy在所有样品中均未检出。将T1、T2和T3堆肥过程中的PAHs单体物质的含量变化进行分析,具体见图4、图5和图6。从图4可以看出,低环的Nap和Phe含量最高且降解效果较为明显,分别从 $0.77 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ 和 $0.69 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ 降解至 $0.50 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ 和 0.40

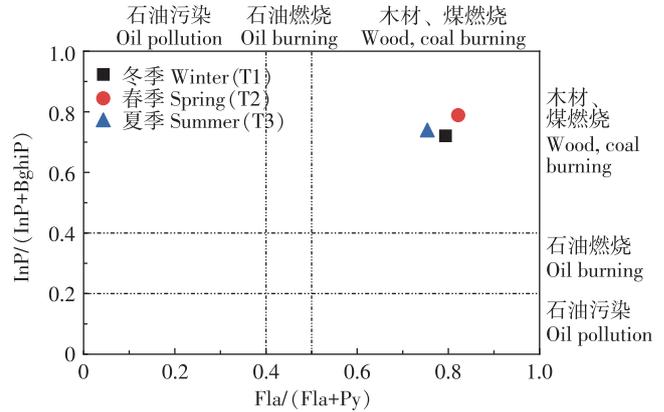


图3 T1、T2和T3中PAHs的双比值

Figure 3 PAHs double ratio in T1, T2 and T3

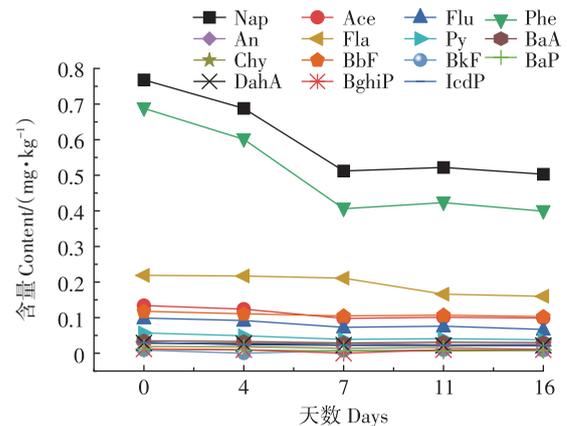


图4 冬季(T1)堆肥过程中各单体PAHs含量变化

Figure 4 Changes in PAHs content of each monomer during T1 winter composting

$\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$,且两者均在堆肥前7 d含量降低较为明显。这是由于堆肥初期(前7 d),随着堆体温度逐渐升高,微生物的活性增强,导致部分PAHs下降速度较快。通常情况下,微生物对PAHs的降解受苯环数量的影响,低环的PAHs相比于高环的更易降解,这是因为鞘氨醇杆菌属、假单胞菌属和黄杆菌属等许多微生物会以2环或3环的PAHs作为其代谢的唯一碳源,而4~6环的PAHs稳定性强,难降解,只有白腐真菌等少量微生物可以通过共代谢作用将其去除^[21]。而其他较高环的单体在堆肥过程中含量降低较为缓慢,降解效果略差。这可能是由于高分子化合物降解不完全,致使部分PAHs降解率稍低^[22]。

图5中单体Phe和Fla的初始含量较高,分别为 $0.34 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ 和 $0.18 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$,在堆肥初期(前7 d),随着温度的逐渐升高其含量均有明显降低,但后期有小幅上升和一定的下降趋势。这可能是由于前7 d堆肥

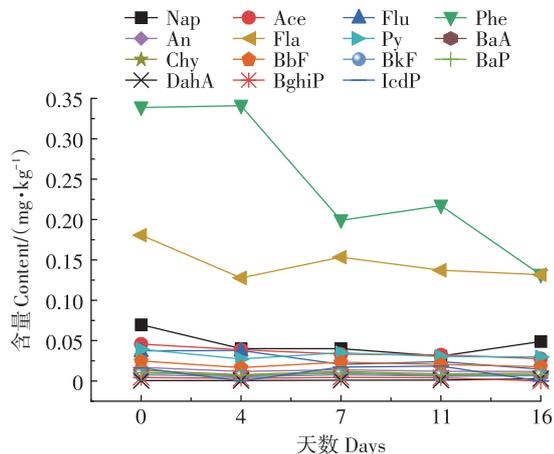


图5 春季(T2)堆肥过程中PAHs各单体含量变化

Figure 5 Changes in the monomer content of PAHs during T2 spring composting

没有达到稳定状态,在这一阶段,部分PAHs可能吸附在了有机物上,导致其含量下降,随着堆肥进入腐熟阶段,有机物逐渐减少,键合在其上的PAHs逐渐被解吸下来,因此PAHs有所增加^[23]。Phe和Fla在堆肥结束后含量都降至 $0.13 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$,而部分高环单体含量却在堆肥后出现负效应,这可能与高环PAHs不易被微生物降解以及堆体总质量减小引起的浓缩效应有关^[24],也可能是不同PAHs之间发生了转化^[25]。

图6中夏季堆肥过程中PAHs各单体含量相较于冬季和春季的含量稍高,部分单体降解效果明显。BbF初始含量最高,为 $0.74 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$,经堆肥处理后其含量降至 $0.48 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ 。另外,从图中可以看出,多数单体较T1、T2两个批次处理中含量下降较为明显,这可能是由于夏季气温高,堆肥过程中微生物活性高,PAHs含量有较明显降低。但部分高环PAHs在堆肥后期存在含量上升的情况,如Chy、BkF、BghiP等。这是由于PAHs的解吸随苯环数量的改变而变化,低环PAHs的吸附能力要弱于高环PAHs,在堆肥8d后低环PAHs更容易解吸出来,高环PAHs的解吸会延迟到堆肥第16天,因此其含量会升高^[14]。Lazzair等^[26]用污泥和木制废物共堆肥,结果表明在堆肥的成熟阶段,高分子量PAHs的含量有所增加。

分析图4~图6发现,在堆肥过程中,温度、供氧量以及含水率等均会影响污泥中PAHs的降解与转化。在堆肥前中期,温度较高时PAHs降解幅度较大。堆肥腐熟达到稳定后,所有PAHs的含量均有所下降并趋于稳定。同时,微生物降解PAHs与堆肥过程中氧气含量密切相关,氧气含量少、水分含量高不利于

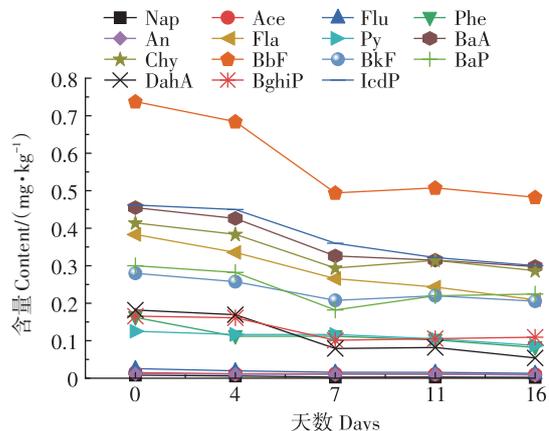


图6 夏季(T3)堆肥过程中PAHs各单体含量变化

Figure 6 Changes in the monomer content of PAHs during T3 summer composting

PAHs的完全降解。本研究中的PAHs降解效果一般,可能是堆肥时采用翻堆方式进行处理会导致堆体水分含量较高,且翻堆易造成氧气供应不均,从而影响PAHs的降解效果^[27]。

2.3 堆肥前后不同环数PAHs含量分布特征

对堆肥前后污泥的成分谱按照不同环数(2~6环)PAHs含量进行分析(图7)发现,堆肥初始时T1处理以低环($n < 4$)PAHs为主,其中2环和3环PAHs含量最高,分别占 Σ PAHs的34.0%和42.0%,堆肥结束时PAHs的分布仍以2环和3环为主,两种环数PAHs的去除率在T1处理中较好,分别为34.5%和37.8%。T2堆肥初始时以3环和4环PAHs为主,其含量分别占 Σ PAHs的53.7%和29.9%,经堆肥处理后,各环数的PAHs含量下降明显,但仍以3环、4环为主,其中3环PAHs的去除率较高,为57.7%。由图7可知,T3堆体以高环PAHs($n \geq 4$)为主,其中4环和5环PAHs含

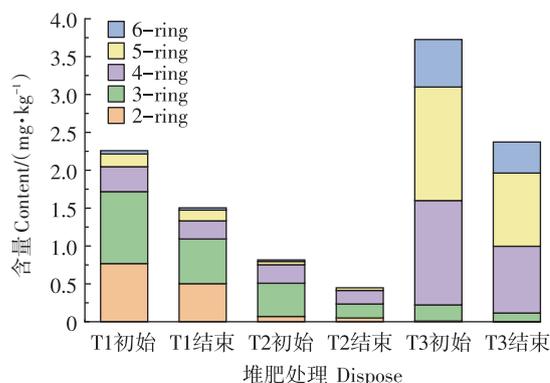


图7 T1、T2和T3堆肥前后2~6环PAHs的含量

Figure 7 Contents of 2~6 ring PAHs in T1, T2, and T3 before and after composting

量最高,分别占 Σ PAHs的37.0%和40.2%,且堆肥后仍以高环PAHs为主,但在该批次处理中2环PAHs的去除率最高,可达71.9%。由于T1、T2和T3处理的污泥分别产生于冬季、春季和夏季,在环境温度升高的过程中,挥发性强的低环(低分子量)PAHs在 Σ PAHs中的占比也逐渐减少^[28]。

3 结论

(1)利用双比值法对堆肥污泥中PAHs的来源进行分析,结果表明,PAHs均主要来源于煤的燃烧。污泥堆肥前冬、春、夏季堆体的 Σ PAHs含量分别为2.26、0.82 $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 和3.73 $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$,夏季污泥中PAHs含量最高。经过堆肥处理后 Σ PAHs去除率大小顺序为春季(52.8%)>夏季(49.1%)>冬季(46.7%)。好氧堆肥对污泥中PAHs具有一定的降解效果,其有利于实现污泥的无害化和资源化。

(2)通过对污泥堆肥中各单体PAHs含量变化进行分析发现,冬季堆肥处理中萘和菲的含量最高且降解效果较为明显,分别从0.77 $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 和0.69 $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 降解至0.50 $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 和0.40 $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$;春季堆肥处理中单体菲和荧蒽的含量较高,分别为0.34 $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 和0.18 $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$,经堆肥处理后其含量都降至0.13 $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$;夏季堆肥处理中,苯并[b]荧蒽含量最高,为0.74 $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$,经堆肥处理后其含量降至0.48 $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 。

(3)经过堆肥处理后,冬季堆肥处理中2环和3环的PAHs去除率较高,分别为34.5%和37.8%;春季堆肥处理中3环PAHs的去除率较高,为57.7%;夏季堆肥处理中2环PAHs的去除率较高,可达71.9%。

参考文献:

- [1] 余芳, 张奎, 颜二董, 等. 太阳能在污泥高效堆肥中的应用研究[J]. 中国给水排水, 2013, 29(17): 70-73. YU F, ZHANG K, YAN E J, et al. Application of solar energy to effective sludge composting[J]. *China Water & Wastewater*, 2013, 29(17): 70-73.
- [2] MA S, FANG C, SUN X, et al. Bacterial community succession during pig manure and wheat straw aerobic composting covered with a semi-permeable membrane under slight positive pressure[J]. *Bioresource Technology*, 2018, 259(3): 221-227.
- [3] ERKANLI M, YILMAZ L, CULFAZ P Z, et al. Brackish water recovery from reactive dyeing wastewater via ultrafiltration[J]. *Journal of Cleaner Production*, 2017, 165(7): 1204-1214.
- [4] CHOWDHURY A K, KONSTANTINOVA F, DAMATI A, et al. Is physicochemical evaluation enough to characterize olive mill waste compost as soil amendment? The case of genotoxicity and cytotoxicity evaluation [J]. *Journal of Cleaner Production*, 2015, 93(1): 94-102.
- [5] MOHAMMED R, ZHANG Z F, KAN Z, et al. Determination of polycyclic aromatic hydrocarbons and their methylated derivatives in sewage sludge from northeastern China: occurrence, profiles and toxicity evaluation[J]. *Molecules*, 2021, 26(9): 2739.
- [6] MILLER R, GASPERI J, PATUREAU D, et al. Fate of emerging and priority micropollutants during the sewage sludge treatment: case study of Paris conurbation. Part 1: contamination of the different types of sewage sludge[J]. *Waste Management*, 2017, 59(1): 379-393.
- [7] 吴萌, 段永红, 何佳麟, 等. 北方地区表层土壤中PAHs的含量及来源分析[J]. 山西农业科学, 2021, 49(3): 311-317. WU M, DUAN Y H, HE J L, et al. Content and source analysis of PAHs in surface soil of northern China[J]. *Journal of Shanxi Agricultural Sciences*, 2021, 49(3): 311-317.
- [8] PATEL A B, SHAIKH H, JAIN K R, et al. Polycyclic aromatic hydrocarbons: sources, toxicity, and remediation approaches[J]. *Frontiers in Microbiology*, 2020, 11: 562813.
- [9] SONG X Y, HU X J, HE M M, et al. Distribution and sources of polycyclic aromatic hydrocarbons in the surface water of Taizi River, north-east of China[J]. *Environmental Monitoring and Assessment*, 2013, 185(10): 8375-8382.
- [10] JUHASZ A L, NAIDU R. Bioremediation of high molecular weight polycyclic aromatic hydrocarbons: a review of the microbial degradation of benzo[a]pyrene[J]. *International Biodeterioration & Biodegradation*, 2000, 45(1/2): 57-88.
- [11] KASTNER T, HAUPT E T K, GARMS C, et al. Structural characterization of humic acid-bound PAH residues in soil by ¹³C-CPMAS-NMR-spectroscopy: evidence of covalent bonds[J]. *Chemosphere*, 2002, 48(1): 117-131.
- [12] WEISSENFELS W D, KLEWEER H, LANGHOFF J. Adsorption of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) by soil particles: influence on biodegradability and biotoxicity[J]. *Applied Microbiology and Biotechnology*, 1992, 36(5): 689.
- [13] MOELLER J, REEH U. Degradation of DEHP, PAHs and LAS in source separated MSW and sewage sludge during composting[J]. *Compost Science & Utilization*, 2003, 11(4): 370-378.
- [14] AMIR S, HAFIDI M, MERLINA G, et al. Fate of polycyclic aromatic hydrocarbons during composting of lagooning sewage sludge[J]. *Chemosphere*, 2005, 58(4): 449-458.
- [15] 梁晶, 彭喜玲, 方海兰, 等. 污泥堆腐过程中多环芳烃(PAHs)的降解[J]. 环境科学与技术, 2011(1): 114-116. LIANG J, PENG X L, FANG H L, et al. Degradation of polycyclic aromatic hydrocarbons during composting of sewage sludge[J]. *Environmental Science and Technology*, 2011(1): 114-116.
- [16] 邹艳梅, 李沉蔚, 纪灵, 等. 渤海龙口湾沉积物中烃类物质的分布特征、来源解析及风险评估[J]. 环境科学研究, 2020, 33(9): 2138-2147. ZOU Y M, LI Y W, JI L, et al. Distribution, source and risk assessment of hydrocarbons in sediments of Longkou Bay, Bohai Sea [J]. *Research of Environmental Sciences*, 2020, 33(9): 2138-2147.
- [17] SOFOWOTE U M, CARRY B E, MARVIN C H. Source apportionment of PAH in hamilton harbour suspended sediments: comparison of two factor analysis methods[J]. *Environmental Science & Technology*

- gy, 2008, 42(16):6007-6014.
- [18] LI G C, XIA X H, YANG Z F, et al. Distribution and sources of polycyclic aromatic hydrocarbons in the middle and lower reaches of the Yellow River, China[J]. *Environmental Pollution*, 2006, 144(3):985-993.
- [19] 杨少博, 李江, 张春辉, 等. 贵阳市城市污泥中多环芳烃的分布特征、来源解析及风险评价[J]. *生态学杂志*, 2015, 34(6):1675-1681. YANG S B, LI J, ZHANG C H, et al. Distribution, sources and risk assessment of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in sewage sludge from Guiyang City[J]. *Chinese Journal of Ecology*, 2015, 34(6):1675-1681.
- [20] 任凌. 沈阳市能源结构调整现状及展望[J]. *现代经济信息*, 2017(7):477-478. REN L. Current situation and prospect of energy structure adjustment in Shenyang[J]. *Journal of Modern Economic Information*, 2017(7):477-478.
- [21] 李嘉康, 宋雪英, 魏建兵, 等. 沈北新区土壤中多环芳烃污染特征及源解析[J]. *环境科学*, 2018, 39(1):379-388. LI J K, SONG X Y, WEI J B, et al. Pollution characteristics and source apportionment of polycyclic aromatic hydrocarbons in soils of Shenyang North New Area[J]. *Environmental Science*, 2018, 39(1):379-388.
- [22] 石守业. 污泥堆肥过程中多环芳烃降解及转化的研究[D]. 青岛: 中国海洋大学, 2008. SHI S Y. Study on degradation and transformation of polynuclear aromatic hydrocarbons (PAHs) during digested sludge compost[D]. Qingdao: Ocean University of China, 2008.
- [23] REBHUM M, SMEDT F, RWETABALA J. Dissolved humic substances for remediation of sites contaminated by organic pollutants binding-desorption model predictions[J]. *Water Research*, 1996, 30(9):2027-2038.
- [24] KASTNER T, HAUPT E T K, GARMS C, et al. Structural characterisation of humic acid-bound PAH residues in soil by ^{13}C -CPMAS-NMR-spectroscopy: evidence of covalent bonds[J]. *Chemosphere*, 2002, 48(1):117-131.
- [25] 孙伟, 匡科, 严兴, 等. 污泥好氧堆肥对 PAHs 的处理效果和抗生素及抗性基因消解效果[J]. *环境科学研究*, 2021, 34(7):1757-1763. SUN W, KUANG K, YAN X, et al. Sludge aerobic composting to treat PAHs, antibiotics and resistance genes[J]. *Research of Environmental Sciences*, 2021, 34(7):1757-1763.
- [26] LAZZARI L, SPERNI M, SALIZZATO B, et al. Gas chromatographic determination of organic micropollutants in samples of sewage sludge and compost: behaviour of PCB and PAH during composting[J]. *Chemosphere*, 1999, 38(8):1925-1935.
- [27] 莫测辉, 蔡全英, 吴启堂, 等. 城市污泥与稻草堆肥中多环芳烃的研究[J]. *环境化学*, 2002, 21(2):132-138. MO C H, CAI Q Y, WU Q T, et al. A study on PAHs in composts of municipal sludge and rice straw[J]. *Environmental Chemistry*, 2002, 21(2):132-138.
- [28] 李军, 张干, 祁士华. 广州市大气中多环芳烃分布特征、季节变化及其影响因素[J]. *环境科学*, 2004, 25(3):7-13. LI J, ZHANG G, QI S H. Characteristics and seasonal variations and influence factors on polycyclic aromatic hydrocarbons in Guangzhou City[J]. *Environmental Science*, 2004, 25(3):7-13.

(责任编辑:李丹)