

厌氧消化和好氧堆肥对城市污泥中新污染物的削减^{*}

陶樱鹭¹ 王明丽² 王凯玫¹ 宋天文^{1#} 武书晓¹ 夏文香¹

(1.青岛理工大学环境与市政工程学院,山东 青岛 266052;2.山东省青岛生态环境监测中心,山东 青岛 266003)

摘要 城镇污水处理规模的扩大使得城市污泥的产生量增加,而药物及个人护理品(PPCPs)、生物性污染物、微塑料(MPs)和雌激素等新污染物在污泥中的检出率也呈增加趋势。污泥厌氧消化制沼气、好氧堆肥制土壤改良剂具有削减污染物、回收有价值组分、降低环境风险等多重功效,然而它们对新污染物的削减效果尚待考察。以上述4种新污染物为例,比较了它们在不同国家城市污泥中的存在状况,综述了厌氧消化、好氧堆肥、厌氧消化和好氧堆肥结合以及物化措施联合对新污染物的削减情况及存在的问题。针对污泥中多种新污染物并存的状态,提出未来应开发针对多种新污染物的去除技术,同时强化新污染物削减机制的研究,以保障城市污泥的安全利用。

关键词 城市污泥 新污染物 厌氧消化 好氧堆肥

DOI:10.15985/j.cnki.1001-3865.2024.04.019

Reduction of emerging pollutants in sewage sludge by anaerobic digestion and aerobic composting TAO Yinglu¹, WANG Mingli², WANG Kaimei¹, SONG Tianwen¹, WU Shuxiao¹, XIA Wenxiang¹. (1. School of Environmental and Municipal Engineering, Qingdao University of Technology, Qingdao Shandong 266052; 2. Qingdao Eco-environment Monitoring Center of Shandong Province, Qingdao Shandong 266003)

Abstract: With the expansion of urban sewage treatment scale, the production of municipal sludge increased, and the detection rate of emerging pollutants such as pharmaceuticals and personal care products (PPCPs), biological pollutants, microplastics (MPs) and estrogen in sludge also showed an increasing trend. The two sludge recycling methods, anaerobic digestion of sludge to produce biogas and aerobic composting to produce soil conditioner, have multiple effects of reducing pollutants, recovering valuable components and reducing environmental risks. However, the effect of reducing emerging pollutants in sludge is still unclear. Taking the four emerging pollutants mentioned above as examples, their existing conditions in urban sludge in different countries were compared, and the reduction effects and existing problems of emerging pollutants in sludge by anaerobic digestion, aerobic composting, combined treatment of anaerobic digestion and aerobic composting, as well as physical and chemical measures were summarized. In view of the coexistence of many emerging pollutants in sludge, it was suggested that the removal technology for many emerging pollutants should be developed in the future, and the research on the reduction mechanism of emerging pollutants should be strengthened in order to ensure the safe utilization of sewage sludge.

Keywords: sewage sludge; emerging pollutants; anaerobic digestion; aerobic composting

随着我国城市污水处理规模日益提升,城市污泥产量也相应增加,预计2025年污泥年产量将突破9 000万t^[1]。城市污泥中含有有机物、重金属和病原微生物等,如果不加处理随意堆置会对周围地表水、地下水和土壤等造成严重污染。鉴于污泥中含有氮、磷、钾等多种植物生长不可或缺的微量元素和有机质,利用好氧堆肥和厌氧消化分别可以制备土壤改良剂和生产沼气,通过回收和再利用污泥中有价值的物质,不仅可以解决污泥污染问题,还可以带

来其他效益^[2]。

新污染物由人类活动造成,危害生活和生态环境,但尚缺乏完善的法律法规和标准予以规范,通常具有隐蔽性、持久性、不易治理等特点^[3]。常见的新污染物主要有药物及个人护理品(PPCPs)、生物性污染物、微塑料(MPs)和雌激素等。这些新污染物在污水处理过程只有少部分能够被去除,大部分会通过沉降、吸附和降解等作用转移到污泥中,并随污泥的填埋或土地利用重新进入环境,造成二次污

第一作者:陶樱鹭,女,1998年生,硕士研究生,主要从事污泥资源化利用研究。[#] 通讯作者。

^{*} 山东省自然科学基金资助项目(No.ZR2021QD100、No.ZR2020ME256)。

染^[4]。新污染物在极低的浓度下便能够对生态环境与人体健康构成威胁,而传统的污泥资源化方法对其作用效果尚不明确,因此需要引起高度重视。本研究比较了上述 4 种典型新污染物在国内外城市污泥中的存在状况,综述了厌氧消化、好氧堆肥、厌氧消化和好氧堆肥结合以及与物化措施联合对污泥中新污染物的削减及存在的问题,并对未来污泥中新污染物的去除技术进行了展望。

1 国内外城市污泥中的新污染物

1.1 PPCPs

PPCPs 是一类与人们生产生活联系最为紧密的新污染物^[5]。由于其较高的生理毒性和环境危害性受到高度关注,许多科研机构针对不同的 PPCPs 制定了相关标准或指导建议,例如美国水研究会(NWRD)指出以水回用为目的的污水处理厂二级出水中三氯生、卡马西平和氨甲丙二酯的限值分别为 2 100、10、200 μg/L^[6]。除少部分被人体或动物吸收外,大部分药物及其代谢产物会通过尿液和粪便进入污水处理系统;而个人护理用品未经消化系统和血液循环系统,直接通过冲洗、沐浴等物理过程进入污水处理系统。进入污水处理厂的 PPCPs 有相当一部分并未经过生物降解而被吸附于污泥中。目前,许多国家和地区在城市污泥中检测出了 PPCPs (见表 1)。

国家	名称	质量浓度/(ng/g)	文献
中国	磺胺噻唑	105	[7]
	对乙酰氨基酚	0.121	
	吐纳麝香	700~13 900	[8]
	佳乐麝香	2 500~17 000	
美国	对羟基苯甲酸甲酯	15.9~203.0	[9]
	对羟基苯甲酸丙酯	0.5~7.7	
	三氯生	90~7 060	
	三氯卡班	4 890~9 280	
英国	多西霉素	1.7~5.1	[10]
	对乙酰氨基酚	0.9~2.8	
巴西	普萘洛尔	61.2~94.3	[11]
	驱虫剂	43.6~76.3	
西班牙	布洛芬	200	[12]
	卡马西平	300	
	大环麝香	<0.89	[13]

郝晓地等^[14]调查了北京某污水处理厂剩余污泥中 33 种 PPCPs 浓度,其中三氯卡班、诺氟沙星和环丙沙星等 9 种 PPCPs 质量浓度均超过 100 ng/g,

而且三氯卡班质量浓度甚至达到了 5 709.18 ng/g。美国某污水处理厂的剩余污泥中检测出三氯卡班,其质量浓度为 3 600~6 600 ng/g(以干质量计)^[15]。可见 PPCPs 在各国城市污泥中普遍存在,且部分 PPCPs 浓度较高,需要引起高度重视。

1.2 生物性污染物

生物性污染物主要包括抗生素抗性基因(ARGs)、病毒和细菌等。ARGs 在环境中的持久性残留、复制、传播和扩散危害很大^[16]。污水处理厂中的 ARGs 主要来源于医疗废水、畜禽和渔业养殖废水等,其通过活性污泥吸附、固液分离而富集于污泥中。国内外均在污泥中检出 ARGs,如 ZHENG 等^[17]在中国某污水处理厂的多个污泥样品中检测出 *tetG*、*tetM* 等 39 种 ARGs 浓度为 $5.55 \times 10^{10} \sim 2.50 \times 10^{11}$ 拷贝数/g。GAO 等^[18]在美国某污水处理厂的污泥中检测到 *tetO* 浓度为 1.78×10^{11} 拷贝数/g。病毒可随感染者的粪便排出体外,通过排水系统进入污水处理厂并在污泥中富集。美国《生物污泥产生、使用和处置报告》指出,4 g 污泥中肠道病毒的最高浓度应小于 1 pfu^[19]。污泥中最常见的病毒包括腺病毒和诺如病毒等,肠道病毒、轮状病毒等也被频繁检出(见表 2)。进入城市污水处理系统的病毒有通过污泥进行二次传播的风险,为避免病毒随污泥再次进入环境,应进一步提高污泥处理工艺对病毒的削减能力。

病毒类型	国家	浓度	文献
肠道病毒	中国	950 pfu/L	[20]
	美国	$2.2 \times 10^5 \sim 2.4 \times 10^5$ pfu/g	[21]
轮状病毒	巴西	$8 \times 10^3 \sim 8 \times 10^5$ 拷贝数/L	[22]
	泰国	2.23 拷贝数/反应	[23]
腺病毒	美国	$9.4 \times 10^6 \sim 3.9 \times 10^8$ pfu/g	[19]
	西班牙	1.83×10^2 拷贝数/g	[24]
诺如病毒(基因组Ⅱ)	巴西	$1.6 \times 10^4 \sim 4.9 \times 10^5$ 拷贝数/L	[20]
冠状病毒	西班牙	24 拷贝数/mL	[25]

1.3 MPs

随着塑料消费在工业生产和日常生活中的不断增加,大量废旧塑料被排入土壤和水体中,在机械磨损、光照辐射、生物降解等作用下被分解成小碎片,其中直径小于 5 mm 的被称为 MPs。MPs 会对水生、陆生生物产生不利影响,因为其不仅含有多种添加剂,而且是持久性有机污染物、重金属和抗生素等多种污染物的良好载体。污水处理厂是 MPs 的潜

在储存库,由于 MPs 的密度普遍大于水,污水处理过程中超过 90%的 MPs 都会保留在污泥中^[26]。污泥中浓度最高的 MPs 主要有聚乙烯(PE)、聚对苯二甲酸乙二醇酯(PET)和聚碳酸酯(PC)等。MPs 种类和形态等理化性质存在巨大差异,生理毒性研究尚处于起步阶段,关键限值尚待明确^[27]。国内外研究人员检测得到的污泥中 MPs 丰度见表 3。

表 3 国内外城市污泥中的 MPs 丰度
Table 3 Abundance of MPs in domestic and foreign municipal sludge

国家	污泥中 MPs 丰度 ¹⁾	文献
中国	$1.6\times 10^3\sim 56.4\times 10^3$ 个/kg	[28]
法国	16.1×10^3 个/kg	[29]
芬兰	170.9×10^3 个/kg	[30]
英国	2.0×10^6 个/kg	[31]
意大利	5.3×10^3 个/kg	[32]
德国	2.4×10^4 个/kg	[33]
澳大利亚	$15.9\times 10^3\sim 56.5\times 10^3$ 个/kg	[34]
摩洛哥	40.5×10^3 个/kg	[35]

注:1)除意大利污泥中 MPs 丰度基于污泥总固体质量计算外,其余均基于污泥干质量计算。

大量的研究已经表明 MPs 会对动物的神经系统、消化系统和免疫系统等产生显著的危害。例如,水体中的聚氯乙烯类 MPs 会对鲤鱼的鳃、肝和肠道造成明显的损伤^[36]。LI 等^[37]研究发现高浓度 MPs 改变了小鼠肠道细菌丰度和菌群多样性,同时引起了明显的肠道炎症。JIN 等^[38]在小鼠大脑中观察到了 MPs 颗粒,MPs 破坏了小鼠的血脑屏障,使海马体区域发生炎症反应,并导致小鼠出现认知和记忆障碍。

1.4 雌激素

雌激素是一种典型的内分泌干扰物,分为天然雌激素(雌酮(E1)、雌二醇(E2)、雌三醇(E3))和人工合成雌激素(乙炔基雌二醇(EE2))两类^[39]。雌激素可通过迁移、转化经多种途径进入环境,在水体、土壤和污水处理厂的剩余污泥中均有雌激素被检出。由于在极低浓度下便可显示出明显的生理毒性,雌激素受到严格的监管与控制,例如英国对污水

处理厂出水中雌激素的建议标准为折算总质量浓度不高于 1 ng/L^[40]。表 4 列举了国内外城市污泥中的雌激素质量浓度。

雌激素具有致癌、致畸、致突变作用,能够损害动物的免疫系统,并造成生殖能力下降。水体中 EE2 即便低于 1 ng/L,也可使体内本无雌激素的雄性虹鳟鱼开始分泌雌激素,质量浓度为 4 ng/L 时,可以使雄性黑头鱼第二性征发育异常^[49]。此外,EE2 暴露还可使鱼类的子代畸形率和发育异常率升高,KIDD 等^[50]研究发现将湖泊中的胖头鲶鱼种群暴露于 5~6 ng/L 的 EE2 中,最终导致了该种群的灭绝。

2 厌氧消化对新污染物的削减

污泥厌氧消化技术是指利用厌氧和兼性微生物将污泥中大分子有机物转化成小分子物质,在实现污泥稳定化的同时回收沼气能源^[51]。此外,厌氧消化还可以实现污泥的减量化和稳定化,改善污泥脱水性能,杀死病原微生物。

2.1 厌氧消化对 PPCPs 的削减

不同 PPCPs 在污泥厌氧消化过程中的去除效果存在明显的差异。CARBALLA 等^[12]研究了污泥中 13 种 PPCPs 在厌氧消化前后的浓度变化,发现厌氧消化后污泥中除卡马西平外的所有 PPCPs 浓度均有不同程度降低,其中磺胺甲噁唑、罗红霉素和萘普生的去除效果最好,去除率可达 80%~99%。NARUMIYA 等^[52]发现多种 PPCPs 在厌氧消化过程中均被不同程度去除,其中磺胺甲噁唑、甲氧苄氨嘧啶和咖啡因的去除率超过 90%,对乙酰氨基酚和地尔硫卓的去除率超过 80%,但氟喹诺酮类抗生素(诺氟沙星和氧氟沙星)和大环内酯类抗生素(克拉霉素、罗红霉素和红霉素)去除率仅为 50%左右。

2.2 厌氧消化对生物性污染物的削减

厌氧消化能够有效消减污泥中病毒和 ARGs 等生物性污染物,其中高温消化的去除效果普遍优于

表 4 国内外城市污泥中的雌激素质量浓度
Table 4 Estrogen concentration in domestic and foreign municipal sludge

国家	E1	E2	E3	EE2	文献
中国	79.5	65.4	920	176	[41]
德国	7	1.7		3	[42]
西班牙	230	18		14	[43]
丹麦	37	49		17	[44]
新加坡	2.1	4.9	4.5	5.3	[45]
澳大利亚	14.3	0.57		0.61	[46]
突尼斯	9.1	792.9	98	102	[47]
日本	42.5	17.9			[48]

中温消化,这可能与微生物群落结构密切相关^[53]。在污泥嗜热厌氧消化(50℃)过程中,BCoV 病毒和灭活的 SARS-CoV-2 病毒颗粒的核糖核酸(RNA)水平在 5 d 内迅速下降,最终水平低于或接近检测限^[54]。ZOU 等^[55]发现中温厌氧消化时 ARGs 去除率为 22.8%~93.9%,而高温厌氧消化时的去除率可达 52.7%~96.6%。此外,有学者对厌氧消化进行了改进,如 HUANG 等^[56]发现碱性厌氧消化(pH=10)与对照组(未调整 pH)相比,*sul II*、*tetQ* 和 *tetX* 的丰度分别降低了 $10^{1.36}$ 、 $10^{1.11}$ 、 $10^{1.04}$ 拷贝数/g。姜明吉等^[57]在厌氧消化之前设置物化预处理步骤,发现热水解初始 pH=7 时,污泥中 *tetA*、*tetC* 和 *tetX* 丰度下降了 1.3~2.4 个数量级;pH=3 时,*tetM*、*tetX* 的丰度下降了 3 个数量级。

2.3 厌氧消化对 MPs 的削减

由于 MPs 分子量、化学结构和塑料添加剂的差异,它们在厌氧消化过程的削减效果也相差较大。聚乳酸和聚羟基丁酸类 MPs 很容易在污泥厌氧消化中被降解,但是聚氯乙烯、聚丙烯和聚四氟乙烯等则具有较高的稳定性,在厌氧消化过程中降解效率较低^[58]。研究表明厌氧处理可以改变 MPs 的表面特性,如居传福等^[59]发现厌氧污泥微生物作用 90 d 后,MPs 表面接触角呈减小趋势,表明厌氧作用改善了 MPs 表面的亲水性;郑晓英等^[60]的研究显示,经过 60 d 厌氧发酵后,PE 表面出现孔洞、凹坑和不规则开裂,证明厌氧发酵可以加快 PE 的老化进程。MAHON 等^[61]在厌氧消化前对污泥进行了热水解预处理,结果表明 PET 类 MPs 在热水解过程中发生了链的断裂,导致聚合物分子量降低,并使得污泥中次级 MPs 数量增加。

2.4 厌氧消化对雌激素的削减

厌氧污泥对 E1、E2、EE2 的吸附作用明显,且吸附能力表现为 EE2>E2>E1,而厌氧消化对 E3 的去除主要是依靠生物降解作用^[62]。温度会影响厌氧消化对雌激素的去除效果,PATERAKIS 等^[63]发现 E1、E3、EE2 在中温条件下(35℃)的去除率分别为 79%、45%和 34%,而在高温条件下(55℃)的去除率分别为 96%、17%和 43%。PAPA 等^[64]发现中温厌氧消化无法降低污泥中雌激素活性,厌氧消化后雌激素浓度大幅上升,可能是由于 37℃、pH 中性条件会促进更高雌激素活性的代谢物形成。此外,也有研究发现厌氧微生物对雌激素的降解作用极低,厌氧条件下雌激素的去除率通常仅为 10%~30%,而且生物吸附起主导作用^[65]。可见污泥厌氧

消化对雌激素的削减效果存在争议,其原因与去除机制有待进一步研究。

温度、pH、氧含量等因素均会对污泥中新污染物的去除效率产生影响,因此需要严格控制污泥厌氧消化的反应条件。厌氧微生物的生长速率较慢,厌氧消化过程需要较长时间。相较于好氧条件,相同规模的处理系统在厌氧条件下需要更大的体积和更长的运行周期。此外,污泥厌氧消化过程中,会产生氢气、硫化氢和甲烷等气体,需要进行必要的处理和 控制,增加了污泥处理的成本。

3 好氧堆肥对新污染物的削减

好氧堆肥是指在氧气充足的条件下,好氧微生物通过自身的代谢活动把城市污泥中一部分有机物氧化为无机物,同时获取供自身生长活动所需的能量,而另一部分有机物则被合成新的细胞物质,并使微生物不断生长繁殖。好氧堆肥的温度通常较高(50~60℃),高温能够有效地杀灭病原菌,提高有机物降解速率并减少臭气产生,是最具潜力的污泥处理技术。

3.1 好氧堆肥对 PPCPs 的削减

尽管有研究表明部分 PPCPs 会明显抑制微生物的繁殖与代谢活性,但是由于堆体具有稳定的微生物群落结构和较高的功能酶活性,好氧堆肥对多种 PPCPs 均具备良好的去除效果。ZHANG 等^[66]对污泥进行好氧堆肥,发现污泥中的诺氟沙星和氧氟沙星去除率分别达到 89.6%和 87.2%。MARTIN 等^[67]²²发现卡马西平经过好氧堆肥后,其质量浓度从 266 μg/kg 下降到 51.5 μg/kg。好氧堆肥去除 PPCPs 的效果受温度、PPCPs 种类与初始浓度、含水率等诸多因素的影响。姚全威等^[68]向堆肥中添加两种典型的氟喹诺酮类抗生素,在不同氟喹诺酮类抗生素初始质量浓度(0、2.5、5.0 mg/kg)、含水率(50%、60%、70%)条件下进行好氧堆肥,结果表明氟喹诺酮类抗生素去除率随着初始浓度上升而下降,在高温好氧堆肥中,氟喹诺酮类抗生素去除率随含水率升高而逐步增加。

3.2 好氧堆肥对生物性污染物的削减

好氧堆肥过程中 50~60℃的高温可以杀死污泥中一些常温致病菌,也可以降低抗性基因的浓度。基质中噬菌体的缺失可以被认为是病毒失活的一个指标,EL HAYANY 等^[69]研究发现大肠杆菌噬菌体、沙门氏菌噬菌体经过好氧堆肥后均完全消失。孙伟等^[70]研究发现多种抗性基因在堆肥过程中出

现了不同程度的消减,其中青霉素、氯霉素和四环素等 11 种抗性基因消减率可达到 100%,头孢霉菌素、红霉素、氟喹诺酮和氯霉素等 19 种抗性基因在堆肥过程中消减率均超过 85%。此外,部分学者对传统的好氧堆肥进行了改良,包灿鑫等^[71]在好氧堆肥底物中添加玉米芯生物炭后,喹诺酮类抗性基因 *qnrS* 的丰度从 $10^{7.38}$ 拷贝数/g 大幅下降至 $10^{5.90}$ 拷贝数/g。LIAO 等^[72]研究了超高温好氧堆肥去除 ARGs 的效果,发现与常规好氧堆肥相比,超高温好氧堆肥去除了 89% 的 ARGs。

3.3 好氧堆肥对 MPs 的削减

好氧生物降解是各类型塑料污染物降解转化的重要途径,尤其在高温条件下,其降解效率明显提高。LARISSA 等^[73]发现经过好氧堆肥后,MPs 浓度由 326 个/kg(基于总固体质量计算,下同)降至 39~102 个/kg。SUN 等^[74]将 3 种 MPs(PE、聚氯乙烯和聚羟基脂肪酸酯)添加至堆体中进行了 60 d 好氧堆肥,堆肥结束后 MPs 含碳量分别降低了 30%、17% 和 30%,且 PE 和聚羟基脂肪酸酯的丰度和 MPs 尺寸均明显降低。此外,有研究发现极端嗜热微生物能够将塑料分子结构中的 C—C 快速氧化为 C=O 和 C—O 等,从而改善塑料的可生物降解性及其表面亲水性能^[75]。CHEN 等^[76]研究了污泥传统高温好氧堆肥和超高温好氧堆肥两种不同条件下塑料的降解效率,发现高温好氧堆肥 45 d 后塑料降解率仅为 4.5%,而经过相同周期的超高温好氧堆肥,塑料降解率可达 43.7%。

3.4 好氧堆肥对雌激素的削减

好氧堆肥过程中的升温期和高温期微生物大量繁殖,生物酶活性升高,有利于雌激素的高效降解。MARTIN 等^{[67]22}对比分析了污泥中 E2 在厌氧消化和好氧堆肥过程中的降解情况,发现 E2 厌氧消化后为 315 mg/kg,而好氧堆肥后仅为 79.2 mg/kg。此外,有研究表明添加功能性外源物可以提高好氧堆肥对雌激素的去除效果。LI 等^[77]对比分析了硫粉对好氧堆肥中雌激素去除的影响,发现堆肥结束后对照组中(未添加硫)E1 和 E2 由 113.2~115.6、464.0~466.9 ng/g 分别下降至 47.28、84.62 ng/g;分别加入 0.25%(质量分数,下同)、0.50% 和 1.00% 硫粉后,E1 分别下降至 5.47、2.25、2.08 ng/g,E2 直接降至检测限以下。周莉娜等^[78]发现污泥堆肥过程中加入膨润土可以大幅提高 E1 的降解效率,原始污泥中 E1 为 90.48 $\mu\text{g/kg}$,加入 2.5%(质量分数,下同)、5.0% 和 10.0% 膨润土后,E1 分别下降到

41.50、28.27、30.08 $\mu\text{g/kg}$ 。

影响污泥好氧堆肥效率的因素主要包括含水率、通风量、pH、温度和碳氮比等。虽然多数好氧微生物的代谢活性高于厌氧微生物,但是由于新污染物的结构和性质与传统污染物差异明显,部分情况下好氧微生物无法彻底代谢或降解新污染物。

4 联合处理措施对新污染物的削减

4.1 厌氧消化与好氧堆肥结合

污泥经厌氧消化后仍残留有较多的有机质和氮、磷、钾等营养元素,好氧堆肥可以进一步降解污泥中残余的有机物,因而两种处理方式的结合为削减污泥中的新污染物提供了更大可能性。LIN 等^[79]将厌氧消化污泥产物进行好氧堆肥,发现在堆肥高温期污泥中四环素类抗性基因(*tetA*、*tetC*、*tetG* 和 *tetW*)和磺胺类抗性基因(*sul I*)的丰度有所上升,但在堆肥后期至反应结束其丰度大幅下降,表明好氧堆肥过程明显降低了污泥中抗性基因的丰度。DALAHMEH 等^[80]发现单独的污泥厌氧消化只去除了 16% 的雌激素(包括 E2、EE2)、14% 的抗生素(包括青霉素、磺胺甲噁唑、环丙沙星等)、4% 的药物活性化合物(卡马西平、咖啡因、氟西汀等),将厌氧消化产物堆肥后发现抗生素和药物活性化合物的浓度分别下降了 93% 和 85%,E2 浓度下降到了检测限以下。

4.2 厌氧消化、好氧堆肥与物化措施结合

单纯的厌氧消化和好氧堆肥对部分新污染物的处理效果不够理想,因此有研究人员尝试将两者与物化处理措施相结合以提高处理效率。LI 等^[81]在厌氧消化后增加了热碱性水解处理,研究了环丙沙星、氧氟沙星以及 3 种常用抗菌剂(咪康唑、三氯生和三氯卡班)在水解前后的变化,发现这 5 种 PPCPs 浓度均有不同程度降低,其中咪康唑和三氯生分别由 10 382、6 165 ng/g 下降至 6 881、3 664 ng/g。臭氧的强氧化性可以加速破坏污泥微生物的细胞壁,使胞内物质充分释放,提高污泥水解酸化效率。WU 等^[82]将堆肥产物放入玻璃柱中并进行臭氧曝气后,污泥中 ARGs 总丰度减少了 $10^{0.64}$ 拷贝数/g。PEI 等^[83]在厌氧消化前分别增加了臭氧氧化和热水解预处理,结果表明两种处理下四环素抗性基因(*tetA*、*tetG*、*tetQ*、*tetW*、*tetX*)分别减少了 0.04~0.17、2.01~3.79 拷贝数/g。

5 结 论

PPCPs、生物性污染物、MPs 和雌激素等新污

染物在国内外城市污泥中频繁检出,其具有的环境持久性和生物积累性对污泥土地安全利用构成严重威胁。污泥厌氧消化和好氧堆肥处理能够有效削减污泥中的大部分新污染物,削减效果除了受污染物自身理化性质和降解难易程度等影响外,还受操作条件等诸多因素的影响。在污泥厌氧消化前进行强化预处理,或者在好氧堆肥中提高堆肥温度、添加外源物质(如铜离子、矿物添加剂等),或者将厌氧消化与好氧堆肥及其他物化措施相结合,可以有效促进对污泥中新污染物的去除。

6 展 望

目前,已有的工作大多针对污泥中的单一新污染物进行研究,而实际污泥中可能同时存在多种新污染物,在厌氧消化和好氧堆肥过程中,共存的新污染物之间可能发生更为复杂的生化、物化反应,导致削减效率降低,因此在未来的研究工作中需要更加注重开发针对多种污染物的去除技术。同时,已有研究工作侧重于厌氧消化和好氧堆肥对新污染物的削减效率,较少涉及具体反应机制。在未来研究中应加强新污染物削减机制的研究,通过控制和优化关键技术参数,实现污泥中新污染物的高效去除,为污泥的进一步安全利用提供可靠保障。

参考文献:

[1] 戴晓虎.我国污泥处理处置现状及发展趋势[J].科学,2020,72(6):30-34.
 [2] 李玉双,杨嘉鑫,魏建兵,等.城市污泥资源化利用技术研究进展[J].工业水处理,2022,42(12):41-46.
 [3] MOREAU M,HADFIELD J,HUGHEY J,et al.A baseline assessment of emerging organic contaminants in New Zealand groundwater[J].Science of the Total Environment,2019,686:425-439.
 [4] TAWFIK A,MOHSEN M,ISMAIL S,et al.Methods to alleviate the inhibition of sludge anaerobic digestion by emerging contaminants:a review[J].Environmental Chemistry Letters,2022,20:3811-3836.
 [5] 张琪,杨芳,王峥,等.药物与个人护理品在不同环境介质中的分布特征及其生态毒性降解综述[J].环境污染与防治,2020,42(7):922-928.
 [6] AUDENAERT W T,CHYS M,HULLE S V.Future regulation of trace organic compounds in WWTP effluents as a driver of advanced wastewater treatment[J].Academic Bibliography,2014,8:24-27.
 [7] WANG F,YIN Z,LIU Y,et al.Changes and release risk of typical pharmaceuticals and personal care products in sewage sludge during hydrothermal carbonization process[J].Chemosphere,2021,284:131313.
 [8] ZHOU H,HUANG X,GAO M,et al.Distribution and elimination

of polycyclic musks in three sewage treatment plants of Beijing,China[J].Journal of Environmental Sciences,2009,21(5):561-567.
 [9] CHEN J,PYCKE B F G,BROWNAWELL B J,et al.Occurrence,temporal variation,and estrogenic burden of five parabens in sewage sludge collected across the United States[J].Science of the Total Environment,2017,593/594:368-374.
 [10] ADEMOYEGUN O T,OKOH O O,OKOH A I.Method validation and investigation of the levels of pharmaceuticals and personal care products in sludge of wastewater treatment plants and soils of irrigated golf course[J].Molecules,2020,25(14):3114.
 [11] CERQUEIRA M B R,SOARES K L,CALDAS S S,et al.Sample as solid support in MSPD;a new possibility for determination of pharmaceuticals, personal care and degradation products in sewage sludge[J].Chemosphere,2018,211:875-883.
 [12] CARBALLA M,OMIL F,TERNES T,et al.Fate of pharmaceutical and personal care products (PPCPs) during anaerobic digestion of sewage sludge[J].Water Research,2007,41(10):2139-2150.
 [13] VALLECILLOS L,POCURULL E,BORRULL F.A simple and automated method to determine macrocyclic musk fragrances in sewage sludge samples by headspace solid-phase microextraction and gas chromatography-mass spectrometry [J].Journal of Chromatography A,2013,1314:38-43.
 [14] 郝晓地,杨文宇,曹达啟.剩余污泥中 PPCPs 量化评价方法研究[J].中国给水排水,2019,35(16):9-15.
 [15] HEIDLER J,SAPKOTA A,HALDEN R U.Partitioning,persistence, and accumulation in digested sludge of the topical antiseptic triclocarban during wastewater treatment[J].Environmental Science & Technology,2006,40(11):3634-3639.
 [16] 汪涛,杨再福,陈勇航,等.磺胺类抗性基因的产生及演变研究进展[J].环境污染与防治,2017,39(11):1251-1255.
 [17] ZHENG W,HUYAN J,TIAN Z,et al.Clinical Class 1 integron-integrase gene - a promising indicator to monitor the abundance and elimination of antibiotic resistance genes in an urban wastewater treatment plant[J].Environment International,2020,135:105372.
 [18] GAO P,MUNIR M,XAGORARAKI I.Correlation of tetracycline and sulfonamide antibiotics with corresponding resistance genes and resistant bacteria in a conventional municipal wastewater treatment plant[J].Science of the Total Environment,2012,421/422:173-183.
 [19] 戴晓虎,李小伟,杨婉,等.污水处理厂污泥中病毒的赋存特性及处理处置过程中暴露风险防控研究进展[J].给水排水,2020,56(3):60-73.
 [20] 颜文洪,欧阳劲进,商谦,等.去除生活废水及污泥中病毒的研究[J].重庆环境科学,2003,25(9):17-19.
 [21] WONG K,ONAN B M,XAGORARAKI I.Quantification of enteric viruses, pathogen indicators, and *Salmonella* bacteria in class B anaerobically digested biosolids by culture and molecular methods[J].Applied and Environmental Microbiology,2010,76(19):6441-6448.
 [22] PRADO T,GASPAR A M C,MIAGOSTOVICH M P.Detection of enteric viruses in activated sludge by feasible concentration methods[J].Brazilian Journal of microbiology,2014,

- 45(1):343-349.
- [23] KITTIGUL L, POMBUBPA K. Rotavirus surveillance in tap water, recycled water, and sewage sludge in Thailand: a longitudinal study, 2007-2018[J]. Food and Environmental Virology, 2021, 13(1): 53-63.
 - [24] BOFILL MAS S, ALBINANA GIMENEZ N, CLEMENTE CASARES P, et al. Quantification and stability of human adenoviruses and polyomavirus JCPyV in wastewater matrices[J]. Applied and Environmental Microbiology, 2006, 72(12): 7894-7896.
 - [25] BALBOA S, MAURICIO IGLESIAS M, RODRIGUEZ S, et al. The fate of SARS-CoV-2 in WWTPS points out the sludge line as a suitable spot for detection of COVID-19[J]. Science of the Total Environment, 2021, 772: 145268.
 - [26] 刘发欣, 程文, 任杰辉. 污水处理厂中微塑料的赋存、迁移及归趋研究进展[J]. 环境污染与防治, 2022, 44(6): 793-800.
 - [27] 荣飒爽, 程昕煜, 陈卓妮, 等. 土壤中微塑料检测技术及生态效应研究进展[J]. 中国科学: 化学, 2021, 51(9): 1217-1229.
 - [28] LI X, CHEN L, MEI Q, et al. Microplastics in sewage sludge from the wastewater treatment plants in China[J]. Water Research, 2018, 142: 75-85.
 - [29] KAZOUR M, TERKI S, RABHI K, et al. Sources of microplastics pollution in the marine environment: importance of wastewater treatment plant and coastal landfill[J]. Marine Pollution Bulletin, 2019, 146: 608-618.
 - [30] GATIDOU G, ARVANITI O S, STASINAKIS A S. Review on the occurrence and fate of microplastics in sewage treatment plants[J]. Journal of Hazardous Materials, 2019, 367: 504-512.
 - [31] CUNSOLO S, WILLIAMS J, HALE M, et al. Optimising sample preparation for FTIR-based microplastic analysis in wastewater and sludge samples: multiple digestions[J]. Analytical and Bioanalytical Chemistry, 2021, 413(14): 3789-3799.
 - [32] PITTURA L, FOGLIA A, AKYOL Ç, et al. Microplastics in real wastewater treatment schemes: comparative assessment and relevant inhibition effects on anaerobic processes[J]. Chemosphere, 2021, 262: 128415.
 - [33] MINTENIG S M, INT VEEN I, LODER M G J, et al. Identification of microplastic in effluents of waste water treatment plants using focal plane array-based micro-Fourier-transform infrared imaging[J]. Water Research, 2017, 108: 365-372.
 - [34] ZIAJAHROMI S, NEALE P A, TELLES SILVEIRA I, et al. An audit of microplastic abundance throughout three Australian wastewater treatment plants[J]. Chemosphere, 2021, 263: 128294.
 - [35] EL HAYANY B, EL FELS L, QUENEA K, et al. Microplastics from lagooning sludge to composts as revealed by fluorescent staining-image analysis, Raman spectroscopy and pyrolysis-GC/MS[J]. Journal of Environmental Management, 2020, 275: 111249.
 - [36] XIA X, SUN M, ZHOU M, et al. Polyvinyl chloride microplastics induce growth inhibition and oxidative stress in *Cyprinus carpio* var. larvae[J]. Science of the Total Environment, 2020, 716: 136479.
 - [37] LI B, DING Y, CHENG X, et al. Polyethylene microplastics affect the distribution of gut microbiota and inflammation development in mice[J]. Chemosphere, 2020, 244: 125492.
 - [38] JIN H, YANG C, JIANG C, et al. Evaluation of neurotoxicity in BALB/c mice following chronic exposure to polystyrene microplastics[J]. Environmental Health Perspectives, 2022, 130(12): 129001.
 - [39] 王琳, 陈兴财, 姜晓满, 等. 不同形态雌激素的环境行为及污染控制[J]. 农业环境科学学报, 2021, 40(8): 1623-1634.
 - [40] 史江红. 雌激素在污水处理系统中浓度分布及其去除效果研究进展[J]. 给水排水, 2013, 49(7): 1-3.
 - [41] ZHANG M, MAO Q, FENG J, et al. Validation and application of an analytical method for the determination of selected acidic pharmaceuticals and estrogenic hormones in wastewater and sludge[J]. Journal of Environmental Science and Health, Part A, 2016, 51(11): 914-920.
 - [42] ANDERSEN H R, SIEGRIST H, HALLING SORENAEN B, et al. Fate of estrogens in a municipal sewage treatment plant[J]. Environmental Science & Technology, 2003, 37(18): 4021-4026.
 - [43] GONZALEZ GIL L, PAPA M, FERETTI D, et al. Is anaerobic digestion effective for the removal of organic micropollutants and biological activities from sewage sludge? [J] Water Research, 2016, 102: 211-220.
 - [44] ANDERSEN H R, HANSEN M, KJOLHOLT J, et al. Assessment of the importance of sorption for steroid estrogens removal during activated sludge treatment[J]. Chemosphere, 2005, 61(1): 139-146.
 - [45] CHIU T Y, KOH Y K K, PATERAKIS N, et al. The significance of sample mass in the analysis of steroid estrogens in sewage sludges and the derivation of partition coefficients in wastewaters[J]. Journal of Chromatography A, 2009, 1216(24): 4923-4926.
 - [46] BRAGA O, SMYTHE G A, SCHAFER A I, et al. Fate of steroid estrogens in Australian inland and coastal wastewater treatment plants[J]. Environmental Science & Technology, 2005, 39(9): 3351-3358.
 - [47] BELHAJ D, ATHMOUNI K, JERBI B, et al. Estrogenic compounds in Tunisian urban sewage treatment plant: occurrence, removal and ecotoxicological impact of sewage discharge and sludge disposal[J]. Ecotoxicology, 2016, 25(10): 1849-1857.
 - [48] SUZUKI Y, MARUYAMA T. Fate of natural estrogens in batch mixing experiments using municipal sewage and activated sludge[J]. Water Research, 2006, 40(5): 1061-1069.
 - [49] LANGE R, HUTCHINSON T H, CROUDACE C P, et al. Effects of the synthetic estrogen 17 α -ethinylestradiol on the life-cycle of the fathead minnow (*Pimephales promelas*) [J]. Environmental Toxicology and Chemistry, 2001, 20(6): 105659.
 - [50] KIDD K, BLANCHFIELD P, MILLS K, et al. Collapse of a fish population after exposure to a synthetic estrogen[J]. PNAS, 2007, 104(21): 8897-8901.
 - [51] 钮劲涛, 金宝丹, 马三贵, 等. 高铁酸钾对剩余污泥厌氧发酵性能的影响[J]. 环境污染与防治, 2022, 44(8): 986-992.
 - [52] NARUMIYA M, NAKADA N, YAMASHITA N, et al. Phase distribution and removal of pharmaceuticals and personal care products during anaerobic sludge digestion[J]. Journal of Hazardous Materials, 2013, 260: 305-312.

[53] 刘雨昊,郭宁,刘梦梦,等.污水中抗生素抗性基因去除技术研究进展[J].环境污染与防治,2021,43(6):764-771.

[54] GUERIN RECHDAOUI S,BIZE A,LEVESQUE NINIO C, et al.Fate of SARS-CoV-2 coronavirus in wastewater treatment sludge during storage and thermophilic anaerobic digestion[J].Environmental Research,2022,214:114057.

[55] ZOU Y,TU W,WANG H, et al.Anaerobic digestion reduces extracellular antibiotic resistance genes in waste activated sludge: the effects of temperature and degradation mechanisms[J].Environment International,2020,143:105980.

[56] HUANG H,ZHENG X,CHEN Y, et al.Alkaline fermentation of waste sludge causes a significant reduction of antibiotic resistance genes in anaerobic reactors[J].Science of the Total Environment,2017,580:380-387.

[57] 姜明吉,薛罡,陈红,等.pH 值对污泥热水解/厌氧消化过程抗性基因的影响[J].中国给水排水,2019,35(13):16-22.

[58] CAZAUDEHORE G,MONLAU F,GASSIE C, et al.Active microbial communities during biodegradation of biodegradable plastics by mesophilic and thermophilic anaerobic digestion [J].Journal of Hazardous Materials,2023,443:130208.

[59] 居传福,秦艳,代学民,等.厌氧污泥微生物作用对微塑料表面性质的影响[J].东华大学学报(自然科学版),2022,49(3):81-88.

[60] 郑晓英,杨珊珊,杨萌萌,等.剩余污泥厌氧发酵和微塑料的相互作用机制[J].环境工程,2023,41(4):92-100.

[61] MAHON A M,O'CONNELL B,HEALY M G, et al.Microplastics in sewage sludge: effects of treatment[J]. Environmental Science & Technology,2017,51(2):810-818.

[62] 王宇,袁涛,胡江泳.AnSBR 法处理生活污水中典型环境雌激素的研究[J].环境科学研究,2008,21(2):145-149.

[63] PATERAKIS N,CHIU T Y,KOH Y K K, et al.The effectiveness of anaerobic digestion in removing estrogens and nonylphenol ethoxylates[J].Journal of Hazardous Materials, 2012,199/200:88-95.

[64] PAPA M,DOGRUER G,BAILEY D, et al.Anaerobic digestion of sewage sludge has no effect on glucocorticoid and anti-progestagenic activity but increases estrogenicity three-fold [J].Chemosphere,2022,286:131753.

[65] 陈传全,何文韬,徐昊晨,等.药物及雌激素在污水处理厂中的去除作用研究[J].广州化工,2020,48(19):73-76.

[66] ZHANG J,BAO Y,JIANG Y, et al.Removal and dissipation pathway of typical fluoroquinolones in sewage sludge during aerobic composting [J]. Waste Management, 2019, 95: 450-457.

[67] MARTIN J,CAMACHO MUNOZ M D,SANTOS J L, et al. Distribution and temporal evolution of pharmaceutically active compounds alongside sewage sludge treatment. Risk assessment of sludge application onto soils[J].Journal of Environmental Management,2012,102.

[68] 姚全威,张军,严沁颖,等.中温期和高温期污泥堆肥物料中典型氟喹诺酮类抗生素去除的影响因素[J].环境工程,2020,38(9):200-207.

[69] EL HAYANY B,EL FELS L,OUHDOUCH Y, et al.Fate of pathogenic microorganisms during lagooning sludge composting and exploration of bacteriophages as indicator of hygienization[J]. Environmental Technology & Innovation, 2021, 21:101268.

[70] 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.

[71] 包灿鑫,张园,陈明龙,等.不同生物炭对猪粪堆肥过程中抗生素及抗生素抗性基因的削减规律研究[J].环境污染与防治, 2022,44(2):160-164.

[72] LIAO H,LU X,RENSING C, et al.Hyperthermophilic composting accelerates the removal of antibiotic resistance genes and mobile genetic elements in sewage sludge[J]. Environmental Science & Technology,2018,52(1):266-276.

[73] LARISSA L,KRAUSE S,SCHAUM C. Determination of large microplastics:wet-sieving of dewatered digested sludge, co-substrates,and compost[J].Water Science and Technology,2021,84(2):384-392.

[74] SUN Y,REN X,RENE E R, et al.The degradation performance of different microplastics and their effect on microbial community during composting process[J].Bioresource Technology,2021,332:125133.

[75] SONG T,LI S,YIN Z, et al.Hydrolyzed polyacrylamide-containing wastewater treatment using ozone reactor-upflow anaerobic sludge blanket reactor-aerobic biofilm reactor multistage treatment system[J].Environmental Pollution,2021, 269:116111.

[76] CHEN Z,ZHAO W,XING R, et al.Enhanced in situ biodegradation of microplastics in sewage sludge using hyperthermophilic composting technology [J]. Journal of Hazardous Materials,2020,384:121271.

[77] LI R,XU K,ALI A, et al.Sulfur-aided composting facilitates ammonia release mitigation, endocrine disrupting chemicals degradation and biosolids stabilization[J].Bioresource Technology,2020,312:123653.

[78] 周莉娜,蔡函臻,李荣华,等.膨润土调质对污泥堆肥的脱毒及重金属钝化和雌酮消除作用[J].环境科学,2017,38(7):3061-3069.

[79] LIN Z,WU Z,SUN Z, et al.Aerobic post-treatment of anaerobic digested sludge with a focus on organic matter stability and the fate of antibiotic resistance genes [J]. Journal of Cleaner Production,2021,289:125798.

[80] DALAHMEH S S, THORSEN G, JONSSON H. Open-air storage with and without composting as post-treatment methods to degrade pharmaceutical residues in anaerobically digested and dewatered sewage sludge[J].Science of the Total Environment,2022,806:151271.

[81] LI J,SABOURIN L,RENAUD J, et al.Simultaneous quantification of five pharmaceuticals and personal care products in biosolids and their fate in thermo-alkaline treatment[J].Journal of Environmental Management,2021,278:111404.

[82] WU Y,CHEN Z,WEN Q, et al.Mechanism concerning the occurrence and removal of antibiotic resistance genes in composting product with ozone post-treatment [J]. Bioresource Technology,2021,321:124433.

[83] PEI J,YAO H,WANG H, et al.Comparison of ozone and thermal hydrolysis combined with anaerobic digestion for municipal and pharmaceutical waste sludge with tetracycline resistance genes[J].Water Research,2016,99:122-128.