

重金属在猪饲料—粪污—沼液中的变化特征

朱泉雯

(扬州市职业大学, 江苏 扬州 225009)

摘要: 畜禽养殖使用饲料中普遍添加了含有重金属的添加剂, 畜禽对重金属的利用率低, 绝大部分残留于粪便中, 对生态环境和人类健康存在潜在风险。调查分析了太湖流域西岸区域养猪场饲料、猪粪和沼液化的沼渣和沼液 9 种重金属(Cr, Mn, Co, Ni, Cu, Zn, As, Cd, Pb), 研究表明, 猪饲料和猪粪中 Cu, Zn, Pb, Cd 和 As 重金属均超标严重, 猪大小不同, 使得猪饲料和猪粪中重金属含量差异较大。沼液中 Cu, Zn, As 含量分别为 3.37, 34.49, 0.36 mg/L, 均严重超标, 沼渣中 Cu, Zn, Pb, Cd 和 Ni, 分别达到 1 348.20, 10 525.03, 1 254.45, 57.36 和 1 043.99 mg/kg, 均也严重超标, 沼气化工程后除了 Pb, Cd 和 Co 外, 其他 6 种重金属可溶态含量都增大, 因此沼肥均不宜直接施用农田, 需通过相应处理实现沼肥安全农用。

关键词: 养猪; 饲料—猪粪—沼液—沼渣; 重金属; 超标

中图分类号: X713

文献标识码: A

文章编号: 1005-3409(2014)06-0284-06

Distribution Characteristics of Heavy Metals in Feeds, Pig Manures and Biogas Slurry

ZHU Quan-wen

(Yangzhou Polytechnic College, Yangzhou, Jiansu 225009, China)

Abstract: In the intensive animal production, more and more trace elements such as Cu, Zn were added in the feeds of animals to prevent disease, there will be potentially environmental risks caused by the manure-born metals because of the low rate of utilization of livestock and poultry to heavy metals and the high residue in feces. Samples of pig feeds, pig manures and biogas slurry were collected to analyze the characteristics of heavy metal pollution (Cr, Mn, Co, Ni, Cu, Zn, As, Cd, Pb) in feeds-manures-biogas system in the west coast region of Taihu basin. The results show that the heavy metals in pig feeds and manures severely exceeded the limits in Taihu Lake Basin, mainly Cu, Zn, Pb, Cd and As, different stages of the rearing are quite different. Heavy metals seriously exceeded in biogas slurry, in which Cu, Zn, As contents were 3.37, 34.49, 0.36 mg/L, respectively. Cu, Zn, Pb, Cd and Ni are the excessive metals in biogas residue, reaching to 1 348.20, 10 525.03, 1 254.45, 57.36 and 1 043.99 mg/kg, respectively. Except for Pb, Cd and Co, the contents of soluble heavy metals increased in anaerobic fermentation process, which cannot be directly applied to agricultural land, need follow-up treatment to reduce heavy metal pollution, so it can provide the scientific basis for harmless use of livestock and poultry manure.

Key words: pig raising; feeds-manures-biogas residue-biogas manure; heavy metals; over standard

畜禽粪便中重金属主要直接来自于动物饲料, 或者间接来自于动物摄入的污染土壤和粪便的堆积处理过程^[1]。畜禽养殖中使用的饲料和兽药在生产过程中普遍添加了含有重金属的添加剂, 如锌、硒、铜和砷等重金属, 这些金属元素在畜禽体内消化吸收利用率极低, 绝大部分铜和锌通过粪便排出, 少量从尿中

排出, 粪尿铜锌总排泄率分别为 87.86%~96.13% 和 87.18%~98.11%, 风干粪样中铜锌含量甚至分别达到了 1 150.6~1 211.9 mg/kg 和 541.3~12 921.13 mg/kg^[2]。土壤中重金属元素富集, 导致蔬菜污染, 再通过食物链进入人体, 使人体产生慢性中毒, 严重影响人们的身体健康^[3-4]。

沼气化对猪粪处理有很好的效果,但厌氧消化过程中重金属浓度会出现“相对浓缩效应”,且沼渣中重金属含量远大于沼液含量^[5]。江苏省某区域沼液和沼渣中 Zn, Cu, As 含量分别为 20.66 mg/L 和 477.08 mg/kg, 16.34 mg/L 和 204.02 mg/kg, 0.26 mg/L 和 2.19 mg/kg, 分别超过中国农田灌溉水质标准和德国堆肥质量标准^[6]。厌氧消化使得重金属从不稳定态向更加稳定的低生物有效性形态转变^[7,8]。重金属形态变化受到重金属总量的影响,同时厌氧反应过程的 pH 和微量元素(N, P)也是影响沼液重金属形态分布的主要因素^[6]。猪粪厌氧发酵过程中颗粒粒径和结构发生变化,导致和颗粒结合的重金属形态发生变化,且主要分布在 3~25 μm 粒径颗粒上^[9]。厌氧消化指标(pH、碱度、氨氮和挥发性颗粒物/总颗粒物 TS)和重金属特定形态具有相关性^[10]。

太湖流域畜禽养殖主要呈规模化趋势,畜禽养殖在经济中具有比重,呈点源化排放特征,畜禽粪尿过度集中和冲洗污水急剧增加,对流域水环境构成了巨大威胁。2011年,江苏省太湖流域畜禽养殖总量为 639.80 万头(折合成标准生猪头数),且以生猪为主,占养殖总量的 60.53%,畜禽养殖共产生粪尿废弃物 376.9 万 t,生猪产生的尿液最多,占 85.86%^[11]。随着太湖流域水环境综合治理的加强,沼气工程将成为猪粪处理的主要方式之一。但是,对于分散养猪饲料、猪粪、原猪粪液以及沼气化沼渣沼液沼气化集中处理重金属污染来源缺乏调查,厌氧发酵过程中重金属含量、形态变化不明确。因此,本文针对太湖流域典型养猪区域沼气化综合处理工程,收集区域内不同规模养猪场饲料、猪粪、原猪粪液以及沼气化沼渣沼液,研究重金属在饲料—猪粪—沼气化过程中变化特征,为沼肥中重金属控制和安全农用提供科学依据。

1 材料和方法

1.1 研究区域概况

武进区地处江苏省南部,濒太湖,衔滆湖,东邻江阴、无锡,南接宜兴,西毗金坛、丹阳,北接常州天宁、钟楼、新北区,户籍人口近 101 万,常住人口 160 万。采样区位于武进区太湖西岸区域的雪堰、礼嘉和洛阳等乡镇,周围共有 74 户不同养殖户,规模存栏 15 000 头猪,其中大多是散户养殖,年存栏量少于 500 头的就有 63 家,占养殖场总数的 85%,粪污量 42.52 t/d,占总粪污量的 48.6%。不同规模不同饲养周期的猪粪液统一收集后经调节池混合均匀,进入 1 500 m³

CSTR 发酵罐进行厌氧发酵,依据猪粪产量日处理量约为 88 t,进料浓度为 7.5%。厌氧消化温度为 35~37℃,液体水力停留时间为 17 d,发酵罐底部固体物滞留期为 60 d。产生的沼气收集后发电用来供电和供热,发酵罐出来的沼液进入沉淀池就近回用农田。

1.2 样品采集

根据不同的养殖周期,分别于 2013 年 3—5 月采集具有代表性的配合饲料、浓缩料、猪粪样品总计 52 份,用密封袋保存;沼气工程运行时,取调节池原猪粪混合液和发酵罐的沼液出口处的沼液和沼渣,用塑料桶保存,运回实验室,以备分析。

1.3 样品预处理和分析

样品的 pH、溶解氧、氧化还原电位、电导率均采用便携式多参数数字化分析仪(美国哈希 HQd 系列)测定;有机质(OM)采用 550℃烧失量法测定(SR-JX-4-13 型高温箱式电炉控制箱,中国);饲料中重金属总量测定参照动物饲料中重金属测定方法,先在 550℃下干灰化法然后加盐酸溶解,定容,过滤待测^[12-15];猪粪和沼渣中重金属总量测定参照土壤中重金属测定方法,采用 HCL + HNO₃ + HF + HClO₄ 四酸消解,定容,过滤待测。猪粪液和沼液中重金属总量采用 HNO₃ 消解测定,溶解态过 0.45 μm 滤膜待测,按照测试要求采用 ICP-MS(安捷伦 Agilent Technologies 7700 Series)测定样品中 Cu, Zn, As, Pb, Ni, Cd, Cr, Mn, Co 共 9 种重金属^[16]。

2 结果与分析

2.1 猪饲料中的重金属含量

浓缩料当地市售饲料,配合料为养殖户单独配料,不同养殖周期猪饲料的重金属含量如表 1。浓缩料重金属含量普遍比配合料中重金属含量高(表 1),其中浓缩料重金属 Cu, Zn, Pb, Mn, As 最高含量分别为 760, 1 472, 23.42, 438.61, 59.01 mg/kg, 配合料重金属 Cu, Zn, Pb, Mn, As 最高含量分别为 181.51, 672.23, 19.98, 95.83, 15.01 mg/kg。除了 As 外,其他重金属最高值均为小猪饲料,均大于 Nicholson 研究中表述英格兰和威尔士猪饲料中重金属含量^[3],配合料重金属含量和山东规模化养猪场配合饲料重金属含量相近^[17]。不同养殖阶段猪饲料重金属含量差异也较大,其中浓缩料中 Zn 含量为:小猪>中猪>大猪, Pb, Co 也有相似的规律,而 Cu 和 Mn 则为:中猪>小猪>大猪, Cd, Cr, Ni 则为:小猪>大猪>中猪,而 As 为:大猪>中猪>小猪,配合料重金属分布规律和浓缩料大致相同。对于不同养殖

户小猪料,重金属含量范围较大,不同重金属差异也较大,说明养殖场对重金属添加剂随意使用,造成饲料中重金属严重超标。为了满足快速生长发育需求,预防小猪腹泻等,小猪饲料超标较为严重,同国内外研究结果一致^[18]。小、中、大猪配合料中 Cu 超标倍

数分别为1.21,0和1.95,Zn超标倍数分别为1.83,1.44和1.01,As超标倍数分别为1.51,1.75和7.5,Pb和Cd有少量超标,饲料中As超标严重源于添加As不仅能促进猪的生长,更能使猪的皮肤红润和毛色光亮^[2]。

表1 养猪不同养殖阶段中饲料中的重金属含量

猪饲料重金属含量		Cu	Zn	Pb	Cd	Cr	Ni	Mn	As	Co
小猪(浓缩料)	平均值	307.15	1063.62	16.07	0.96	8.05	10.00	252.08	4.29	3.11
	标准差	393.44	630.88	11.70	0.63	5.84	7.81	210.21	3.39	2.19
中猪(浓缩料)	平均值	510.31	591.98	1.86	0.12	1.79	1.84	261.83	4.37	2.26
	标准差	15.23	16.18	0.24	0.02	0.09	0.05	5.95	0.03	0.06
大猪(浓缩料)	平均值	219.51	449.24	1.39	0.64	2.25	2.13	149.33	59.01	0.75
	标准差	6.96	37.30	0.15	0.07	0.33	0.22	12.03	1.20	0.07
小猪(混合料)	平均值	46.99	424.97	11.89	0.66	5.32	5.94	68.68	3.02	1.39
	标准差	5.30	349.69	11.45	0.74	5.16	5.76	38.40	1.30	1.29
中猪(混合料)	平均值	181.51	216.55	7.29	0.07	1.21	1.74	95.41	3.50	1.11
	标准差	14.99	2.02	0.13	0.01	0.06	0.06	4.64	0.16	0.21
大猪(混合料)	平均值	103.27	151.82	0.38	0.16	1.88	1.83	58.61	15.01	0.39
	标准差	0.09	0.01	0.13	0.16	0.05	0.06	0.04	0.02	0.19

规模化、集约化畜禽养殖过程中为了防止畜禽疾病、提高饲料利用率和促进畜禽生长,Cu,Zn,Fe等被当做动物的营养元素添加入动物饲料中。英格兰和威尔士183种禽畜饲料中重金属的含量,Cu和Zn含量都很高,其中猪饲料中含Zn和Cu的含量分别为150~2 920 mg/kg和18~217 mg/kg。根据猪大小,饲料中重金属含量不同。仔猪饲料中Zn含量为216~2 920 mg/kg,成年猪饲料中Zn含量为193~914 mg/kg^[18](表2)。英国低于10 kg的仔猪的饲料中可添加Zn不需要兽医处方,小猪施用高剂量Zn达到2 400~3 000 mg/kg,稍微大一点猪则需要兽医的处方才能添加,故成年猪饲料中Zn含量低于仔猪饲料中Zn含量^[13]。

表2 动物混合饲料中重金属含量

猪的不同养殖阶段	Zn含量/ (mg·kg ⁻¹)	Cu含量/ (mg·kg ⁻¹)
初生仔猪(日龄1~7 d)	150~388	18~46
乳猪(日龄7~50 d)	216~2920	150~214
小猪(日龄50~87 d)	212~2350	121~190
中猪(日龄87~125 d)	193~914	85~217
大猪(日龄125~168 d)	173~986	90~198

2.2 猪粪中重金属含量

猪粪中重金属Cu,Zn,Pb,Cd,Cr,Ni,Mn,As,Co平均含量分别为1 082.47,6 455.46,421.24 mg,28.34,199.61,286.40,920.02,42.46,10.61 mg/kg(表3)。参照我国《农业行业有机肥料标准》(NY5254-2011)中有的重金属限量,猪粪中Pb,Cd,Cr,As超标严重,各自的超标倍数分别为8.4,9.4,1.3和2.8。不同规模的养殖场猪粪重金属含量差异较大,其中Cu,Zn,Cd和Ni最高含量分别为1 417.7 mg/kg,11 402.2 mg/kg,55.4 mg/kg和559.1 mg/kg,分别为最低含量的1.9,7.6,43.0和41.0倍。重金属在混合猪粪中重金属的平均含量比不混合的新猪粪高,其中Cu,Zn,As分别是新猪粪的1.45,1.3,1.09倍,可能为其他养猪场重金属含量较高所致,也明显高于东北地区猪粪中重金属含量^[19],英国猪粪中的Zn,Cu,As,Cr的平均检出值分别为500 mg/kg,360 mg/kg,1.7 mg/kg,2.8 mg/kg,Cu含量和杭州地区猪粪中含量相当1 064 mg/kg^[20]。

表3 不同养殖规模养猪场猪粪中重金属含量

猪粪中重金属		Cu	Zn	Pb	Cd	Cr	Ni	Mn	As	Co
养殖场猪粪	平均值	747.2	6455.5	421.2	28.3	199.6	286.4	920.0	42.5	10.6
	标准差	474.2	6995.7	571.3	38.3	224.5	385.7	177.2	5.2	4.4
混合猪粪	平均值	1082.5	8402.2	825.2	55.4	358.4	559.1	1045.3	46.2	13.7
	标准差	52.5	168.5	28.1	4.3	18.8	37.4	32.8	4.0	2.4
参考标准(NY5254-2011)		—	—	50	3	150	—	—	15	—

我国的粪便无害化卫生标准(GB7 959—87)、畜禽养殖业污染物排放标准(GB18596—2001)中均无有关畜禽粪便中重金属含量的规定,而农业行业有机肥料标准中只有 Pb,Cd,Cr,As 和 Hg,5 种重金属的标准值,对于畜禽养殖粪便中普遍存在且含量高的 Cu,Zn,Ni 等重金属,没有指标的限量要求。在我国城镇垃圾农用控制标准(GB8172—87)中,规定了 Pb,Cd,Cr,As 等含量的上限,但没有规定 Zn,Cu 的含量。因此,我国关于畜禽粪便有机肥的标准一方面涉及重金属指标太少,另一方面对于重金属的限量指标值比较宽,有机肥标准中规定 Cr 的限量指标不超过 150 mg/kg,而德国堆肥标准中 Cr 的限制值为 100 mg/kg,比利时的堆肥标准中 Cr 为 70 mg/kg,荷兰的堆肥标准中 Cr 仅为 50 mg/kg,因此,畜禽养殖粪便制作有机肥的标准修订,已经迫在眉睫,这将为为粪便中重金属控制和安全农用提供科学依据。

2.3 太湖流域养猪粪污处理

调查了太湖流域的常州和无锡畜禽养殖厂共有 2 453 家,畜禽养殖总存栏量约 53.88 万头,1 764 家畜禽养殖对尿液进行了处理利用,其处理利用方式主要归结为六大类:简单处理后灌溉农田或排入鱼塘、经生产沼气、沉淀处理、好氧处理、氧化塘、其它方式处理后灌溉农田或排入鱼塘或直接排放。各种处理利用方式及尿液处理量情况见图 1—2。在尿液处理利用方式中,灌溉农田或排入鱼塘、沉淀两种方式占据了主要地位,两者达到了 84.59%,处理利用量比重也达到了 64.23%,而好氧和氧化塘方式运用的最少;另外仅占 4.48%比例的沼气工艺处理利用了 28.75%的尿液,6 类方式中表现出了较为明显的处理利用优势。

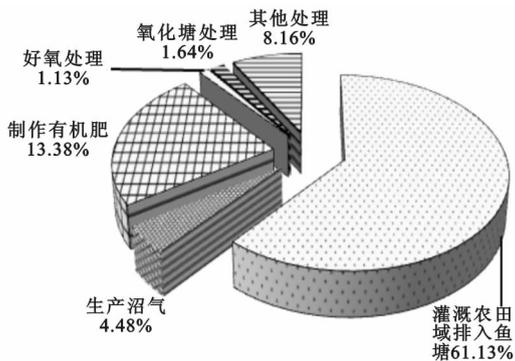


图1 尿液处理利用方式

调查了 2 376 家对畜禽养殖粪便进行了综合利用,其处理利用方式主要归结为五类:施入农田、生产沼气、制作有机肥、销售和其它方式。粪便各处理利用方式及处理利用量情况见图 3—4。由图 3—4 可知,粪便的处理利用主要以施入农田、销售和制作

有机肥三种方式为主,所占比例共达到了 93.34%,处理利用量比例达到 89.05%,沼气工艺以较小的比例处理利用了较大比例的粪便,表现出处理能力较大的优势。

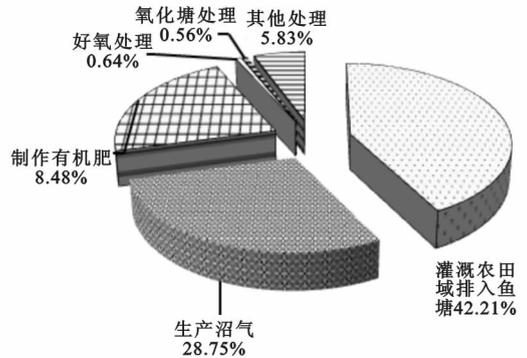


图2 尿液各处理利用方式的处理利用量

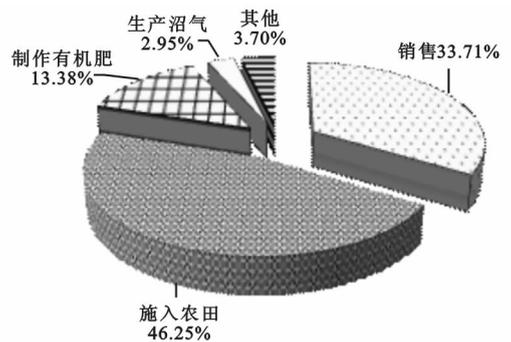


图3 粪便处理利用方式

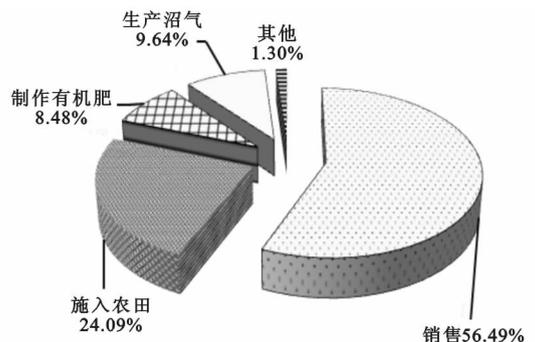


图4 粪便各处理利用方式的处理利用

2.4 沼气化过程沼液中重金属总量和可溶态变化

原猪粪液和新鲜沼液中重金属可溶态和总量如表 4 所示,随着厌氧过程有机质的分解,沼液固体浓度降低,原猪粪液中重金属分散在沼液中。新沼液中重金属 Cu,Zn,Pb,Cd,Cr,Ni,Mn,As,Co 含量范围为 1.37~5.36 mg/L,3.22~65.76 mg/L,0.11~2.96 mg/L,0.07~0.43 mg/L,0.28~6.82 mg/L,0.24~6.64 mg/L,1.49~10.90 mg/L,0.11~0.62 mg/L,0.35~0.41 mg/L。其中 Cu,Zn,Cd,Ni,As 和 Co 含量都比原沼液中要高,说明沼气化过程沼液中部分重金属含量增加,参照《农田灌溉水质标准》(GB5084—2005)关于重金属的规定,沼气化后沼液

中所有的元素均超标,其中 Cu, Zn 和 As 超标率分别为 237%, 1 624.5% 和 640%。可溶态是最不稳定形态,也最容易被生物所利用,会随着地表径流迁移造成水体污染。新鲜沼液中可溶态 Zn, Cd, Cr, As 平均值分别为 4.67, 0.02, 0.16 和 0.07 mg/L, 参照《农田灌溉水质标准》, 四种重金属可溶态都超标。厌氧过程中除了 Pb, Cd 和 Co 外, 其他 6 种重金属可溶态含量都增大, 与总量变化基本一致^[6]。厌氧消化过程中, 重金属总量和形态都发生变化。随着沼液重金属

总量的增大, 溶解态重金属含量并没有完全相应的增加, 一部分可溶态占总量的百分比呈现减小的趋势, 这说明沼液中重金属的形态不仅和原猪粪液中重金属总量有关, 同时也受到厌氧发酵和储存条件的影响^[6]。厌氧消化理化性质和沼液重金属可溶态占总量百分比具有一定相关性, Zn, Cu, Mn 和 As 可溶态与 DOC 显著相关, 沼液中 DOC 浓度非常高, 导致重金属部分重金属可溶态较高, 这可能是几种重金属水溶态含量较高的原因之一。

表 4 混合粪污和沼液中溶解态重金属和重金属含量

重金属形态		粪污沼液中重金属	Cu	Zn	Pb	Cd	Cr	Ni	Mn	As	Co
溶解态	混合粪污	平均值	0.19	2.45	0.59	0.02	0.12	0.21	0.22	0.06	0.02
		标准差	0.12	2.81	0.77	0.01	0.06	0.21	0.11	0.01	0.01
	沼液	平均值	0.42	4.67	0.17	0.02	0.16	0.29	0.47	0.07	0.02
		标准差	0.14	3.59	0.17	0.01	0.11	0.32	0.15	0.03	0.02
总量	混合粪污	平均值	2.29	15.57	2.07	0.17	4.03	2.41	9.82	0.20	0.31
		标准差	1.61	17.66	2.84	0.17	5.20	3.15	11.06	0.07	0.17
	沼液	平均值	3.37	34.49	1.53	0.25	3.55	3.44	6.20	0.37	0.38
		标准差	2.82	44.22	2.01	0.25	4.62	4.53	6.65	0.36	0.04
灌溉水标准(GB5084—2005)				1	2	0.2	0.01	0.1			0.05

由于沼气生产的原料、配比、条件控制等差别较大, 因此沼渣和沼液中重金属种类及含量差异也较大^[5, 21-23](表 5), 这些沼渣和沼液大都施入农田, 但目前我国对沼肥中的重金属含量还没有统一的限制标准, 应尽快建立和完善相关标准, 降低沼肥农用风险。厌氧沼气发酵使得重金属从可移动态向更加稳定的低生物有效性形态转变。沼肥作为一种有机肥含有大量的腐殖质, 腐殖质是土壤重要的螯合或络合剂, 腐殖质包括一些羧基和, 肥施加到土壤后, 有机质会吸附金属离子, 转化成较稳定的形态, 从而降低其生物有效性。

表 5 猪沼渣中重金属含量 mg/kg

沼渣类型	Cu	Zn	Cd	As	Cr
猪沼渣	780	2036	<0.7	—	15
猪沼渣	1016	2628	—	—	—
猪沼渣	45.8	94.1	0.78	3.94	10.29

3 结论

研究区域猪饲料和猪粪中 Cu, Zn, Pb, Cd 和 As 重金属均超标严重, 饲养阶段和养殖规模不同, 饲料和猪粪中重金属差异较大, 饲料添加剂中高含量重金属及养殖户的随意使用是饲料和粪便中重金属超标主要原因。

沼气化处理是养猪粪污主要的处理方式之一, 沼液中 Cu, Zn, As 含量分别为 3.37, 34.49, 0.36 mg/L, 均严重超标, 沼渣中 Cu, Zn, Pb, Cd 和 Ni, 分别达到

1 348.20, 10 525.03, 1 254.45, 57.36, 1 043.99 mg/kg, 均严重超标, 因此沼肥均不能直接施用农田, 需要后续处理来削减沼肥中重金属污染负荷。

厌氧消化过程中沼液中大部分重金属可溶态含量增加, 不同重金属可溶态占总量百分比变化存在差异, Cu, Cr, Mn 和 Co 可溶态占总量百分比增大, Zn, Pb, Cd, As 可溶态占总量百分比减小, 主要受到 DOC, pH 和 COD 的影响。沼渣中除了 As 和 Cd, 其它重金属形态均由不稳定态向稳定态转变, 生物有效性降低, 长期施用会造成表层土壤的重金属累积。

参考文献:

- [1] Bolan N, Adriano D, Mahimairaja S. Distribution and bioavailability of trace elements in livestock and poultry manure by-products[J]. Critical Reviews in Environmental Science and Technology, 2004, 34(3): 291-338.
- [2] 李松岩. 猪饲料中高剂量的铜锌对环境的影响及其控制[D]. 南京: 南京农业大学, 2005.
- [3] Nicholson F A, Chambers B J, Williams J R, et al. Heavy metal contents of livestock feeds and animal manures in England and Wales[J]. Bioresource Technology, 1999, 70(1): 23-31.
- [4] Martley E, Gulson B L, Pfeifer H R. Metal concentrations in soils around the copper smelter and surrounding industrial complex of Port Kembla, NSW, Australia [J]. Science of the Total Environment, 2004, 325(1):

- 113-127.
- [5] 钟攀,李泽碧,李清荣,等. 重庆沼气肥养分物质和重金属状况研究[J]. 农业环境科学学报, 2007, 26(B03): 165-171.
- [6] 靳红梅,常志州,叶小梅,等. 江苏省大型沼气工程沼液理化特性分析[J]. 农业工程学报, 2011, 27(1): 291-296.
- [7] Lavado R S, Rodriguez M B, Taboada M A. Treatment with biosolids affects soil availability and plant uptake of potentially toxic elements[J]. *Agriculture, Ecosystems & Environment*, 2005, 109(3): 360-364.
- [8] Marcato C E, Pinelli E, Pouech P, et al. Particle size and metal distributions in anaerobically digested pig slurry[J]. *Bioresource Technology*, 2008, 99(7): 2340-2348.
- [9] Møller H B, Sommer S G, Ahring B K. Separation efficiency and particle size distribution in relation to manure type and storage conditions [J]. *Bioresource Technology*, 2002, 85(2): 189-196.
- [10] 刘晓光,董滨,戴翎翎,等. 剩余污泥厌氧消化过程重金属形态转化及生物有效性分析[J]. 农业环境科学学报, 2012, 31(8): 1630-1638.
- [11] 江苏省农业委员会. 江苏省太湖流域畜禽养殖污染治理专项规划[R]. 南京: 2013: 28-36.
- [12] 中华人民共和国国家质量监督检验检疫总局. GB/T 13079—2006. 饲料中总砷的测定[S]. 北京: 中国标准出版社, 2006.
- [13] 中华人民共和国国家质量监督检验检疫总局. GB/T 13080—2004. 饲料中总铅的测定[S]. 北京: 中国标准出版社, 2004.
- [14] 中华人民共和国国家质量监督检验检疫总局. GB/T 13082—1991. 饲料中总镉的测定[S]. 北京: 中国标准出版社, 1991.
- [15] 中华人民共和国国家质量监督检验检疫总局. GB/T 13088—2006. 饲料中总铬的测定[S]. 北京: 中国标准出版社, 2006.
- [16] 鲍士旦. 土壤农化分析[M]. 北京: 中国农业出版社, 2000.
- [17] 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.
- [18] Nicholson F A, Smith S R, Alloway B J, et al. An inventory of heavy metals inputs to agricultural soils in England and Wales[J]. *Science of the Total Environment*, 2003, 311(1): 205-219.
- [19] Zhang F, Li Y, Yang M, et al. Content of heavy metals in animal feeds and manures from farms of different scales in Northeast China[J]. *International Journal of Environmental Research and Public Health*, 2012, 9(8): 2658-2668.
- [20] 董占荣,陈一定,林咸永,等. 杭州市郊规模化养殖场猪粪的重金属含量及其形态[J]. 浙江农业学报, 2008, 20(1): 35-39.
- [21] Ramírez W A, Domene X, Ortiz O, et al. Toxic effects of digested, composted and thermally-dried sewage sludge on three plants [J]. *Bioresource Technology*, 2008, 99(15): 7168-7175.
- [22] Miaomiao H, Wenhong L, Xinqiang L, et al. Effect of composting process on phytotoxicity and speciation of copper, zinc and lead in sewage sludge and swine manure[J]. *Waste Management*, 2009, 29(2): 590-597.
- [23] 段然. 沼肥肥力和施用后潜在污染风险研究与土壤安全性评价[D]. 兰州: 兰州大学, 2008.