

中高温条件下羊粪与芒果废弃枝叶混合厌氧发酵产沼气研究

朱军保, 董丽艳, 叶小胜, 虎海波*
(攀枝花市农林科学研究院, 四川 攀枝花 617000)

摘要: 为研究中高温条件下羊粪与芒果废弃枝叶混合厌氧发酵的产沼气特性影响, 选取风干后的羊粪与芒果废弃枝叶进行厌氧发酵产沼气试验。试验设置 5 个配比: 单一羊粪、单一芒果废弃枝叶、羊粪与芒果废弃枝叶 (1:1、1:3、3:1) 3 个配比, 在 3 种恒温温度 (35 °C、45 °C、55 °C) 下进行厌氧发酵, 共计 15 个处理, 发酵周期 32 天。试验结果表明: 相对于芒果废弃枝叶单一发酵, 羊粪与芒果废弃枝叶混合发酵可获得较好的产气效果, 但相对于羊粪单一发酵, 各温度下混合发酵的产气量并没有更好的表现。综合比较, 羊粪和芒果废弃枝叶混合发酵在配比 3:1、45 °C 发酵状态下的发酵完成时间最短为 17 天, 且 TS 产气率和 VS 产气率最大, 具有一定的产气潜力。

关键词: 厌氧发酵; 芒果废弃枝叶; 羊粪; 沼气

中图分类号: S216.4; X713 **文献标志码:** A **文章编号:** 1000-1166(2024)02-0038-06
DOI: 10.20022/j.cnki.1000-1166.2024020038

Biogas Production through Anaerobic Fermentation of Sheep Manure and Mango Waste Branches and Leaves under Medium-high Temperatures / ZHU Junbao, DONG Liyan, YE Xiaosheng, HU Haibo* / (Panzhihua Academy of Agriculture and Forestry Sciences, Panzhihua 617000, China)

Abstract: To study the effects of anaerobic fermentation of sheep manure and mango waste branches and leaves under medium-high temperature conditions on biogas production characteristics, air dried sheep manure and mango waste branches and leaves were selected for anaerobic fermentation biogas production experiments. Five ratios were set up in the experiment: single sheep manure, single mango waste branches and leaves, sheep manure and mango waste branches and leaves (1:1, 1:3, 3:1). Anaerobic fermentation was carried out at three constant temperatures (35 °C, 45 °C, 55 °C) for a total of 15 treatments, with a fermentation cycle of 32 days. The experimental results show that compared to the single fermentation of mango waste branches and leaves, the mixed fermentation of sheep manure and mango waste branches and leaves can achieve better gas production effect. However, compared to the single fermentation of sheep manure, the mixed fermentation does not show better gas production at various temperatures. Overall comparison, the fermentation completion time of the mixed fermentation of sheep manure and mango waste branches and leaves at a ratio of 3:1 and a fermentation state of 45 °C is the shortest of 17 days, and the gas production rates of TS and VS are the highest, indicating a certain potential for gas production.

Key words: anaerobic fermentation; mango waste branches and leaves; sheep manure; biogas

芒果 (*Mangifera indica*) 为漆树科芒果属 (*Mangifera* Linn) 常绿乔木。芒果树枝条年生长量较大, 为提高果园产量, 延长树龄, 平衡好果树营养生长与生殖生长的矛盾, 一般年修剪 1~2 次^[1]。近 20 年来, 我国芒果产业发展迅速, 截至 2021 年, 全国种植面积达 37.46 万 hm^2 ^[2]。根据相关统计, 按芒果年修剪枝叶量 8.25 $\text{t}\cdot\text{hm}^{-2}$ 计算, 则我国芒果年修剪枝

叶量将达 309 万 t。同时, 随着我国畜牧业的发展, 现代养殖生产环境条件下的畜禽粪便污染问题逐渐凸显^[3]。我国羊粪年产量巨大, 作为农业废弃物之一, 未经处理的羊粪含有大量病原菌、寄生虫卵等有害物, 如直接施入田中, 会对环境造成污染^[4]。

厌氧发酵是目前实现农业废弃物资源再利用的有效途径之一^[5], 通过在无氧或低氧的环境中, 利

收稿日期: 2023-08-11 修回日期: 2023-12-20

项目来源: 国家现代农业产业技术体系四川南亚作物创新团队专项 (secxtl-2020-06)。

作者简介: 朱军保 (1988 -), 男, 甘肃张掖人, 助理研究员, 主要从事节水灌溉与农业废弃物循环利用等研究工作。

通信作者: 虎海波 (1972 -), 男, 四川巴中人, 研究员, 主要从事节水灌溉与农业废弃物循环利用等工作。

用厌氧微生物将发酵原料中的有机物质转化为小分子化学成分的过程。厌氧发酵产生沼气、沼液和沼渣,沼气可用作燃气使用,沼液沼渣可用于农田,通过厌氧的沼气发酵是实现农业废弃物处理和生态循环农业的有机结合^[6-7],也能达到碳减排的重要目的,有利于环境保护^[8]。

目前,未见以羊粪和废弃芒果树枝为原料进行混合厌氧发酵的研究报道,且混合厌氧发酵产沼气是近年来农业废弃物沼气发酵的重要研究方向^[9]。因此,本研究以芒果废弃枝叶和羊粪为原料在中高温下进行发酵来研究其产气潜力,目的在于为众多的芒果废弃树枝和羊粪能源化利用提供新的理论依据,同时也可填补羊粪与芒果废弃枝叶在沼气厌氧发酵方面的试验研究空白。

1 材料与方法

1.1 试验材料

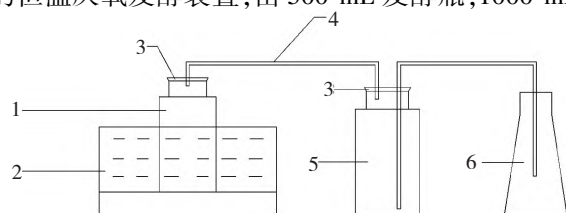
发酵原料为羊粪和芒果树修剪后的废弃枝叶。羊粪取自于攀枝花市农林科学院羊场基地,为自然风干后的羊粪;芒果废弃枝叶取自于攀枝花市仁和区农户自种凯特芒果园,包含约70%的树枝和30%的树叶,粉碎为1~3 mm的颗粒;接种物取自攀枝花市仁和区农户自用5年以上猪粪沼气池内厌氧发酵污泥。发酵物料与接种物特性如表1所示,试验过程中无添加其他任何添加剂。

表1 羊粪、芒果废弃枝叶混合厌氧发酵原料特性

材料	总固体(TS)含量/%	挥发性固体(VS)含量/%	C/N	pH值
羊粪	83.93	78.01	20.79	10.15
芒果废弃枝叶	91.73	92.61	41.82	4.98
接种物	9.93	43.97	—	—

1.2 试验装置

本研究采用的试验装置为自制容积为500 mL的恒温厌氧发酵装置,由500 mL发酵瓶,1000 mL



1. 发酵瓶; 2. 恒温水浴锅; 3. 橡胶塞; 4. 导管; 5. 集气瓶; 6. 集水瓶

图1 恒温厌氧发酵装置

的集水瓶,500 mL的计量瓶以及控温水浴锅(温度波动范围为 ± 1 °C)组成。试验装置如图1所示。

1.3 试验方法

将羊粪和枝叶均匀粉碎后,按照不同总固体含量(TS)比混合进行沼气发酵试验,设置5个试验组(T1、T2、T3、T4、T5),每组均设2个平行,发酵TS浓度控制在8%,接种物接种量为TS的30%,发酵物料总质量为400 g,反应设置3种温度(35 °C、45 °C、55 °C),发酵试验周期为32 d,各处理设置具体如表2所示。

表2 各处理设置

处理	羊粪: 芒果树枝叶 (TS比)	总固体(TS)浓度/%	挥发性固体(VS)浓度/%	底物 C/N
T1	1:1	8	5.83	28.38
T2	1:3	8	6.04	34.01
T3	3:1	8	5.61	24.12
T4	1:0	8	5.40	20.79
T5	0:1	8	6.25	41.82

1.4 测试指标及方法

- (1) pH值使用pH酸度计(雷磁pHS-4F)测定;
- (2) 总固体含量(TS)采用烘干-差重法测定^[10-11];
- (3) 挥发性固体含量(VS)采用灼烧-差重法测定^[10-11];
- (4) 产气量采用排水集气法测定^[12];
- (5) 产气性能指标包括TS产气量和VS产气量,计算公式如下:

$$TS \text{ 产气量} = A/B$$

$$VS \text{ 产气量} = A/C$$

式中: A为各处理发酵期内的总产气量,mL; B为各发酵原料的总固体含量g; C为各发酵原料的挥发性固体含量,g。

1.5 数据处理

试验数据使用Microsoft Excel 2010及Origin 8.5软件进行标准化图标编辑及分析处理。

2 结果与分析

2.1 不同温度下羊粪与芒果废弃枝叶不同配比的混合厌氧发酵对日产气量的影响

图2~图4分别是羊粪与芒果废弃枝叶在5种原料配比下(1:1、1:3、3:1、1:0、0:1)和3种发酵温度(35 °C、45 °C、55 °C)下的日产气量连线图。由于

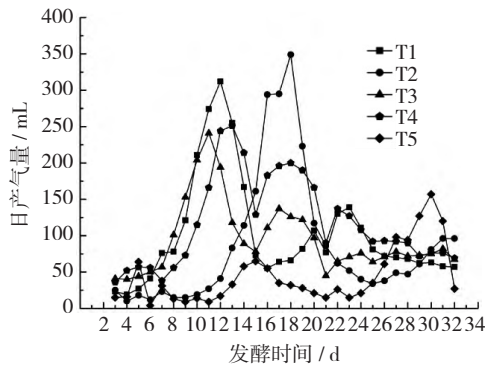


图2 35 °C 不同配比日产气量变化

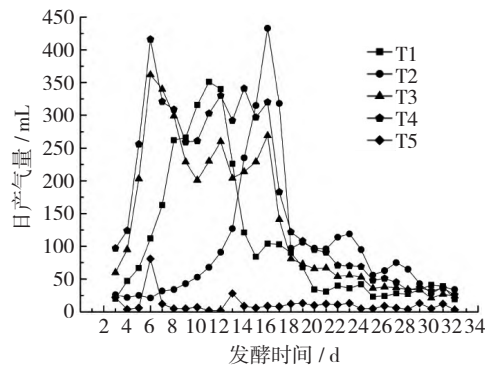


图3 45 °C 不同配比日产气量变化

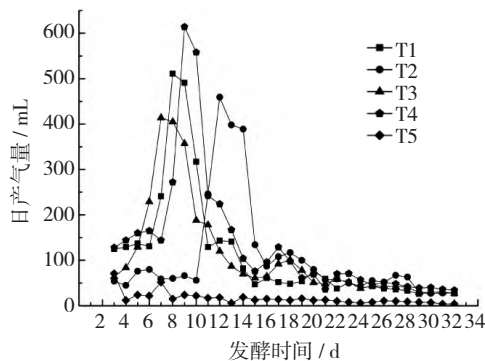


图4 55 °C 不同配比日产气量变化

接种物活化性较高,产气初期为减少接种物对日产气量的影响,且发酵原料需要一定时间的活化,因此,选择发酵启动后的第3天开始记录日产气量。

由图2~图4可知,3种不同恒温发酵温度下,5种不同配比的混合发酵料液在发酵前期均出现了明显的产气波峰,幅度较大,仅在粪叶比0:1发酵液的产气波动较小,产气量比较稳定,其余均是在产气高峰后逐步下降最终趋于平缓。粪叶比为0:1的料液在35 °C、45 °C、55 °C的发酵温度下日均产气量都较低,分别为:43.83 mL·d⁻¹、11.30 mL·d⁻¹、16.07 mL·d⁻¹,都低于其他配比混合料液的产气量,这是

因为芒果废弃枝叶木质纤维素较高,不易被降解,不易被微生物快速利用,增加产气量^[13]。日均产气量最高的是粪叶比为1:0,45 °C发酵温度下的料液,产气量为168.1 mL·d⁻¹。

在粪叶比1:1、1:3、3:1配比下的混合发酵料液,35 °C发酵温度下,产气高峰期集中在第10~19天,45 °C发酵温度下,产气高峰期集中在第5~17天,55 °C发酵温度下,产气高峰期集中在第6~14天。由此可见,羊粪与芒果废弃枝叶混合发酵的产气高峰期集中在前19天,随着发酵温度的升高,发酵料液的产气高峰期也逐步提前且更集中。而单一芒果废弃枝叶在35 °C发酵温度下,在第27~31天才出现产气峰值,均晚于其他两个温度,且产气量均高于其他两个温度,这说明在35 °C发酵温度下,随着发酵时间的延长,有部分有机质已被分解,微生物也不断繁殖并适应了此时的环境并活跃起来,而快速利用有机质增加了产气量^[14]。

由表3可知,除粪叶比为0:1的发酵料液的产气峰值随着发酵温度的升高而降低外,其他配比下的混合发酵料液产气峰值随着发酵温度的升高而逐渐升高,这与宋籽霖^[15]等的研究结果较一致,在一定的临界发酵温度范围内,温度越高发酵料液的产气峰值也逐渐升高。

表3 各处理产气峰值表 (mL)

发酵温度 °C	粪与芒果废弃枝叶 不同比例混合发酵下的产气峰值				
	1:1	1:3	3:1	1:0	0:1
35	312	349	241	251	157
45	351	433	340	416	81
55	511	459	414	614	52

2.2 不同温度下羊粪与芒果树枝叶不同配比的混合厌氧发酵对累计产气量和产气率的影响

由图5~图8可知,羊粪与芒果废弃枝叶在1:1

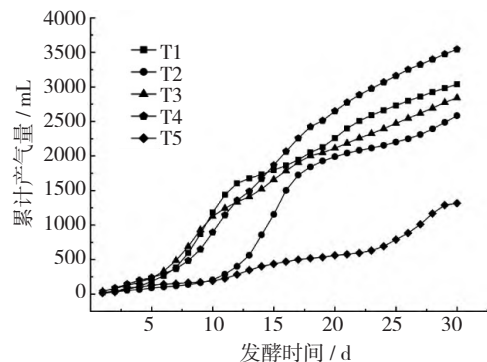


图5 35 °C 不同配比累计产气量比较

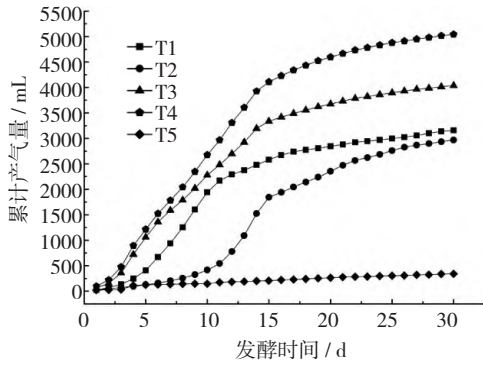


图6 45 °C不同配比累计产气量比较

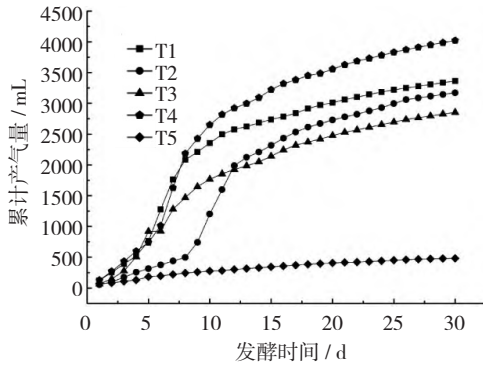


图7 55 °C不同配比累计产气量比较

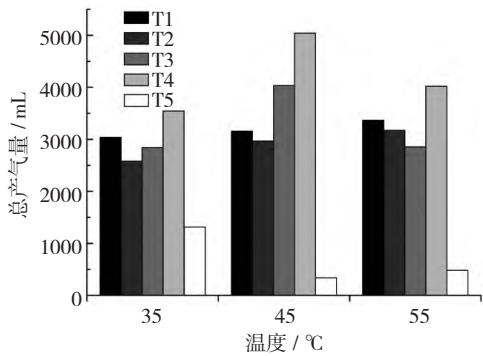


图8 温度对累计产气量的影响

和 1:3 配比条件下发酵的累计产气量随温度的升高

而增大,而羊粪与芒果废弃枝叶在 3:1 和 1:0 配比条件下发酵的累计产气量不随温度的升高而增大,其最大值均出现在 45 °C。大多研究认为,温度对沼气产量的影响较大,不同原料的厌氧发酵在一定的温度范围内,产气量随温度的升高而增加,超出最优温度后,其产气量随温度的升高而不一定增加^[16-18],这是因为温度对厌氧发酵微生物的活性影响较大,适宜的温度有利于某种促进产气微生物的生长速率和分解有机物的代谢速率,相反,过高或过低的发酵温度,不利于某种促进产气微生物的生长,其产气速率也相对较小。其中,单一芒果废弃枝叶发酵下累计产气量在 35 °C 下最大,45 °C 下最小。

羊粪与芒果废弃枝叶不同配比在 35 °C 发酵温度下的累计产气量:1:0 > 1:1 > 3:1 > 1:3 > 0:1, 45 °C 发酵温度下的累计产气量:1:0 > 3:1 > 1:1 > 1:3 > 0:1, 55 °C 发酵温度下的累计产气量:1:0 > 1:1 > 1:3 > 3:1 > 0:1。整体来看,单一羊粪在 45 °C 发酵温度下的累计产气量最大,这是因为单一羊粪的含氮量比较高,C/N 为 20.79,在 45 °C 发酵温度较适于微生物分解,产气性能好。而单一废弃树枝叶在 3 个温度下的产气量都较低,这是因为芒果废弃枝叶的含氮量较低,碳氮比最高,为 41.82,不利于微生物分解产气。羊粪与芒果废弃枝叶混合发酵下的累计产气量相对于单一羊粪发酵累计产气量无明显提高,相对于单一芒果废弃枝叶累计产气量明显提高。

2.3 产气潜力比较分析

一般认为累计产气量达到总产气量 80% 的时间为发酵完成时间,由表 4 可知,35 °C 温度下各配比的发酵完成时间均大于 45 °C 和 55 °C 各配比的发酵完成时间,可见,一定的高温能够缩短发酵完成时间。综合比较,羊粪和芒果废弃枝叶比 3:1、45 °C 发酵状态下的发酵完成时间最短为 17 d,且 TS 产气率和 VS 产气率最大。

表4 不同温度下羊粪与芒果树枝叶不同配比的混合厌氧发酵产气性能指标

(mL·g⁻¹)

粪废比	达到 80% 累计产气量			TS 产气率			VS 产气率		
	所用时间/d								
	35 °C	45 °C	55 °C	35 °C	45 °C	55 °C	35 °C	45 °C	55 °C
1:1	21	17	17	94.97	98.69	105.16	130.32	135.42	144.30
1:3	20	23	20	80.72	92.78	99.13	106.91	122.89	131.29
3:1	23	17	19	88.81	126.16	89.19	126.88	179.90	127.18
1:0	22	17	17	110.75	157.59	125.66	164.07	233.47	186.16
0:1	29	23	21	41.09	10.59	15.06	52.60	13.56	19.28

3 讨论

厌氧发酵产沼气最主要的目的是能够获得较好的产气量,供人们生活使用。相对于单一羊粪发酵产沼气,芒果废弃枝叶与羊粪混合发酵并没有表现出更好的产气效果,TS产气率和VS产气率均低于单一羊粪发酵。在35℃和45℃温度发酵下,羊粪比例越高,发酵产沼气效果越好,而在55℃温度发酵下,高比例的羊粪含量并没有表现出更大的产气效果优势,这也许是因为在55℃的高温发酵环境里含有耐高温且能有效降解木质纤维素的菌系,加速了木质纤维素的降解^[19-20],从而促进了发酵产沼气的速率,这与李玲^[21]等的研究结果相符合,温度升高对木质纤维素的水解具有促进作用。

农业生物质废物物料大多采用传统的资源化循环利用方式,要么在田间直接焚烧,要么直接覆盖在果树穴盘表面,使其自然腐化,但芒果废弃枝叶属于木质素类的废弃物,自然腐化年限较长,陶佳^[22]等研究了沙地樟子松林叶凋落的废弃物在自然环境中分解50%的时间需要3.32年,分解95%的时间为14.33年,可见,木质纤维素含量较高的农业废物自然分解腐化被作物利用需要漫长的时间。为此,人们对废弃物与粪便混合进行沼气发酵,又或者进行粉碎腐熟还田。董丽艳^[23]等对芒果废弃枝叶进行了好氧堆肥研究,认为在碳氮比为25:1的条件下,有利于提高芒果废弃枝叶的纤维素降解率,能提高堆肥的腐殖化程度,达到较好的堆肥效果。史伟^[24]等对杨梅废弃枝叶和菜籽饼混合进行堆肥腐熟,堆肥腐熟后的有机质含量和种子发芽指数均高于有机肥料的标准要求,能够达到作为非商品性的有机肥基本要求。本研究的芒果废弃枝叶厌氧发酵并没有较好的产气效果,相较于好氧堆肥腐熟还田,厌氧产沼气发酵程序复杂,发酵条件要求更高,芒果废弃枝叶进行厌氧产沼气发酵不一定是最好选择。

芒果树枝叶属于木质纤维素含量较高的农业废弃物,作为农业废弃物中的一种,其处理方式较多,最常用的利用手段为肥料化、能源化、基质化和原料化利用。肥料化利用主要是将废弃物归还于田,最简单的方式为粉碎后直接还田,但会产生病虫害现象,因此需要首先对废弃物进行好氧堆肥腐熟后再归还于田,这样就可以实现废弃物的无害化利用。能源化利用主要有厌氧发酵和直燃热解2种方式^[25],厌氧发酵产沼气是农村地区能源化利用的重要

方式,但因利用效率不高,大多的使用年限都较短^[26],直接热解主要用于燃烧发电,但不利于环境保护。基质化利用主要是用于食用菌的栽培基质,林果废弃剪枝量大,易收集,是栽培食用菌的良好原料,有较好的开发潜力^[27],肖玉军^[28]等研究表明芒果废弃枝叶作为凤尾菇栽培基质,能够产生较好的栽培效果;柳成益^[29]等利用废弃芒果枝叶成功栽培了灵芝、杏鲍菇和毛木耳,说明芒果废弃枝叶适合多种食用菌的生长,作为食用菌栽培基质,应用潜力巨大。原料化利用主要是提取废弃物中的木质纤维素应用于部分工业生产原材料,可用于生产可降解餐具、纤维素薄膜、硅陶瓷、保温材料和交换树脂等,应用市场前景广阔^[30-31]。

4 结论

本试验进行了在3种恒温(35℃、45℃、55℃)条件下,单一羊粪、单一芒果废弃枝叶、羊粪与芒果废弃枝叶不同配比(1:1、1:3、3:1)混合的厌氧发酵产沼气特性研究。通过对不同处理下的日产气量、累计产气量、产气速率比较分析,结果表明:相对于芒果废弃枝叶单一发酵,羊粪与芒果废弃枝叶混合发酵可获得较好的产气效果,但相对于羊粪单一发酵,各温度下混合发酵的产气量并没有更好的表现。综合比较,羊粪和芒果废弃枝叶混合发酵,在配比3:1、45℃发酵状态下的发酵完成时间最短为17天,且TS产气率和VS产气率最大,具有一定的产气潜力。

参考文献:

- [1] 陈于福,解德宏,张发明,等. 芒果采后修剪技术[J]. 热带农业工程,2017,41(5-6):13-15.
- [2] 云果产业大脑. 云果:2023年中国芒果产业数据分析简报[EB/OL]. [2023-07-05]. <http://ngx.179c.com/p2931.html>.
- [3] 王英刚,高殊静,王辉. 我国畜禽养殖环境污染评价研究进展[J]. 沈阳大学学报(自然科学版),2020,(04):285-291.
- [4] 朱云芬,李蓉,向极钎,等. 羊粪资源换利用的研究进展[J]. 湖北农业科学,2020,60(11):12-15.
- [5] 杨军香,林海. 我国畜禽粪便集中处理的组织模式[J]. 中国畜牧杂志,2017(06):148-152.
- [6] IBRAHIM M H, QUAIK S, ISMAIL S A. An introduction to anaerobic digestion of organic wastes [M]. In: Prospects of organic waste management and the signifi-

- cance of earthworms, *Applied Environmental Science and Engineering for a Sustainable Future*. Springer, Cham. 2016.
- [7] 马新刚, 谢连科, 张永, 等. 牛粪与蘑菇渣厌氧混合发酵产沼气研究[J]. *可再生能源*, 2019, 37(07): 955 - 958.
- [8] HAO X D, LIU R B, HUANG X. Evaluation of the potential for operating carbon neutral WWTPs in China[J]. *Water Research*, 2015, 87: 424 - 431.
- [9] 陈广银, 郑嘉伟, 曹海南, 等. 鸡粪与麦秸混合厌氧发酵产沼气特性研究[J/OL]. *中国环境科学*, <https://doi.org/10.19674/j.cnki.issn1000-6923.20221207.005>, 2022-12-07.
- [10] 曾锦, 徐锐, 张无敌, 等. 猕猴桃皮中温度发酵产沼气潜力的实验研究[J]. *中国沼气*, 2019, 37(02): 29 - 33.
- [11] 张无敌, 宋洪川, 尹芳, 等. 沼气发酵与综合利用[M]. 昆明: 云南科技出版社, 2004.
- [12] 刘荣厚, 郝元元, 武丽娟. 温度条件对猪粪厌氧发酵沼气产气特性的影响[J]. *可再生能源*, 2006(05): 32 - 35.
- [13] 李安华, 刘彦珍, 王建设, 等. 杨树叶与猪粪混合发酵产沼气研究[J]. *南方农业学报*, 2016, 47(05): 705 - 709.
- [14] 张望, 李秀金, 庞云芝, 等. 稻草中温干式厌氧发酵产甲烷的中试研究[J]. *农业环境科学学报*, 2008, 27(5): 2075 - 2079.
- [15] 宋籽霖, 李轶冰, 杨改河, 等. 温度及总固体浓度对粪秆混合发酵产气特性的影响[J]. *农业工程学报*, 2010, 26(07): 260 - 265.
- [16] 张振华, 呼世斌, 景岳龙, 等. 变温条件下牲畜粪便与秸秆混合发酵研究[J]. *农机化研究*, 2010, 32(07): 205 - 208.
- [17] 张翠丽, 李轶冰, 卜东升, 等. 牲畜粪便与麦秆混合厌氧发酵的产气量、发酵时间及最优温度[J]. *应用生态学报*, 2008(08): 1817 - 1822.
- [18] 郭欧燕, 李轶冰, 白洁瑞, 等. 温度对鸡粪与秸秆混合原料厌氧发酵产气特性的影响[J]. *西北农林科技大学学报(自然科学版)*, 2009, 37(06): 137 - 144.
- [19] 贺鹏亮. 高温木质素降解菌系驯化筛选及在羊粪-菌渣堆肥中的应用[D]. 贵阳: 贵州师范大学, 2021.
- [20] 张惠. 蔬菜废弃物堆肥中耐高温木质素降解菌的筛选及降解效果研究[D]. 保定: 河北农业大学, 2021.
- [21] 李玲, 闻岳, 徐超, 等. 温度对木质纤维素水解与挥发性脂肪酸累积的影响[J]. *环境工程学报*, 2013, 7(10): 3807 - 3812.
- [22] 陶佳, 雷泽勇, 王国晨, 等. 沙地樟子松人工林叶凋落物的分解与养分释放[J]. *干旱区资源与环境*, 2023, 37(12): 131 - 139.
- [23] 董丽艳, 朱军保, 虎海波. 碳氮比对芒果树剪枝堆肥的影响[J]. *南方农业学报*, 2022, 53(10): 2963 - 2970.
- [24] 史伟, 王琦, 王剑, 等. 有机物料腐熟剂降解杨梅废弃枝叶的效果[J]. *浙江农业科学*, 2022, 63(06): 1318 - 1321.
- [25] 尉吉乾, 李丹, 王京文, 等. 农林废弃物的资源化利用研究进展[J]. *中国农学通报*, 2023, 39(06): 77 - 81.
- [26] 陈卫红, 石晓旭. 我国农林废弃物的应用及研究现状[J]. *现代农业科技*, 2017, 18: 148 - 149.
- [27] 沈盟, 郑巧平, 姚祥坦. 林果废弃物栽培食用菌研究进展[J]. *食用菌*, 2018, 40(4): 1 - 7.
- [28] 肖玉军, 杨梅, 熊亚, 等. 利用废弃果枝筛选凤尾菇栽培基质的初步研究[J]. *北方园艺*, 2015, (11): 142 - 144.
- [29] 柳成益, 杨梅, 李华兵, 等. 利用废弃芒果枝栽培环柄韧伞[J]. *食用菌学报*, 2014, 21(02): 51 - 53.
- [30] 罗通, 吕高金, 王超, 等. 工业木质素活化改性及其在复合材料中的应用进展[J]. *中国造纸*, 2020, 39(9): 60 - 67.
- [31] 林彦萍, 任源, 王晓娥, 等. 农业生物质废弃物转化功能材料的研究进展[J/OL]. [2023-11-21]. *环境科学*, DOI:10.13227/j.hjcx.202307264.