

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第34卷 第11期

Vol.34 No.11

2013

中国科学院生态环境研究中心 主办
科学出版社 出版



目次

北京不同污染事件期间气溶胶光学特性	施禅臻, 于兴娜, 周斌, 项磊, 聂皓浩 (4139)
秋季渤海、北黄海大气气溶胶中水溶性离子组成特性与来源分析	张岩, 张洪海, 杨桂朋 (4146)
中国北部湾地区夏季大气碳气溶胶的空间分布特征	杨毅红, 陶俊, 高健, 李雄, 施展, 韩保新, 谢文彰, 曹军骥 (4152)
改进的大气 CO ₂ 、CH ₄ 、N ₂ O、CO 在线观测 FTIR 系统	夏玲君, 刘立新, 周凌晔, 方双喜, 王红阳, 张振波 (4159)
长沙市郊大气 CH ₄ 浓度变化特征	刘鲁宁, 王迎红, 徐小娟, 王卫东, 王跃思 (4165)
麦草及其烟尘中正构烷烃的组成	刘刚, 李久海, 徐慧, 吴丹 (4171)
过二硫酸盐降解碱液吸收的甲硫醇恶臭	杨世迎, 王雷雷, 冯琳玉, 赵腊娟, 石超 (4178)
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	钟佳, 魏源送, 赵振凤, 应梅娟, 周国胜, 熊建军, 刘培财, 葛振, 丁刚强 (4186)
长江口沿岸及近海水体中胶体的分布和理化性质研究	顾丽军, 杨毅, 刘敏, 聂明华, 李涛, 侯立军 (4195)
海河流域主要河口区域沉积物中重金属空间分异及生态风险评价	吕书丛, 张洪, 单保庆, 李立青 (4204)
汾河流域太原段河水及沉积物中 PFOS 和 PFOA 的浓度分布特征	东口朋宽, 史江红, 张晖, 刘晓薇 (4211)
基于 L-THIA 模型的市桥河流域非点源氮磷负荷分析	李凯, 曾凡棠, 房怀阳, 林澍 (4218)
合流制排水系统雨天溢流污染 CMB 法源解析	戴梅红, 李田, 张伟 (4226)
微藻脂肪酸在中国近海缺氧海水-沉积物界面中的降解模拟研究	随伟伟, 丁海兵, 杨桂朋, 陆小兰, 李文娟, 孙立群 (4231)
太湖两种水生植物群落对沉积物中氮素的影响	马久远, 王国祥, 李振国, 许宽, 周峰, 张佳 (4240)
表面流人工湿地中硫丹的去除规律研究	秦晶, 高甫威, 谢慧君 (4251)
带菌盐藻对不同形态砷的富集和转化研究	王亚, 张春华, 王淑, 申连玉, 葛滢 (4257)
铜改性沸石活性覆盖控制重污染河道底泥溶解性磷酸盐和铵释放研究	李佳, 林建伟, 詹艳慧 (4266)
底栖动物扰动对河床渗透性的影响研究	任朝亮, 宋进喜, 杨小刚, 薛健 (4275)
铜绿微囊藻胞内物消毒副产物生成: 氯化化和溴化比较	田川, 郭婷婷, 刘锐平, William Jefferson, 刘会娟, 曲久辉 (4282)
天然有机物对混凝效果影响机制及絮体特性分析	徐磊, 俞文正, 梁亮, 王彤 (4290)
DOM 纳滤膜污染及对膜截留卡马西平性能的影响	丰桂珍, 董秉直 (4295)
零价铁去除废水中的汞	周欣, 张进忠, 邱昕凯, 王定勇 (4304)
Fe ₃ O ₄ 稳定化纳米 Pd/Fe 对水中 2,4-D 的催化还原脱氯研究	周红艺, 梁思, 曾思思, 雷双健 (4311)
不同粒径粉末活性炭对水中天然有机物吸附性能的比较研究	李政剑, 石宝友, 王东升 (4319)
氯化十六烷基吡啶改性活性炭对水中硝酸盐的吸附作用	郑雯婧, 林建伟, 詹艳慧, 方巧, 杨孟娟, 王虹 (4325)
改性石墨烯对水中亚甲基蓝的吸附性能研究	吴艳, 罗汉金, 王侯, 张子龙, 王灿, 王雨微 (4333)
经典等温吸附模型在重金属离子/硅藻土体系中的应用及存在问题	朱健, 吴庆定, 王平, 李科林, 雷明婧, 张伟丽 (4341)
硝酸盐对矿化垃圾中兼/厌氧甲烷氧化的影响	刘妍妍, 龙焰, 尹华, 叶锦韶, 何宝燕, 张娜 (4349)
硫酸盐/氨的厌氧生物转化试验研究	张丽, 黄勇, 袁怡, 李祥, 刘福鑫 (4356)
硫酸盐还原-氨氧化反应的特性研究	袁怡, 黄勇, 李祥, 张春蕾, 张丽, 潘杨, 刘福鑫 (4362)
UASB 系统低 pH 运行时对产氢性能的分析	赵健慧, 张百惠, 李宁, 王兵, 李永峰 (4370)
响应面法优化赤泥负载 Co 催化剂制备及活性评价	李华楠, 徐冰冰, 齐飞, 孙德智 (4376)
高浓度氨氮胁迫对纤细裸藻的毒性效应	刘炎, 石小荣, 崔益斌, 李梅 (4386)
NAPLs 污染物垂向指流迁移分形表征中图像处理的影响研究	李慧颖, 杜晓明, 杨宾, 伍斌, 徐竹, 史怡, 房吉敦, 李发生 (4392)
近 50 年浙江省耕作土壤有机质和酸碱度的变化特征	章明奎, 常跃畅 (4399)
浙中典型富硒土壤区土壤硒含量的影响因素探讨	黄春雷, 宋明义, 魏迎春 (4405)
黄河口新生湿地土壤 Fe 和 Mn 元素的空间分布特征	孙文广, 甘卓亭, 孙志高, 李丽丽, 孙景宽, 孙万龙, 牟晓杰, 王玲玲 (4411)
崇明岛土壤中 MCCPs 的污染水平、组成与来源研究	孙阳昭, 王学彤, 张媛, 孙延枫, 李梅, 马中 (4420)
福建戴云山土壤有机氯农药残留及空间分布特征	瞿程凯, 祁士华, 张莉, 黄焕芳, 张家泉, 张原, 杨丹, 刘红霞, 陈伟 (4427)
电子垃圾拆解地周边土壤中二噁英和二噁英类多氯联苯的浓度水平	邵科, 尹文华, 朱国华, 巩宏平, 周欣, 王玲, 刘劲松 (4434)
外源水溶性氟在茶园土壤中赋存形态的转化及其生物有效性	蔡荟梅, 彭传燧, 陈静, 侯如燕, 宛晓春 (4440)
丛枝菌根真菌在不同类型煤矸石山植被恢复中的作用	赵仁鑫, 郭伟, 付瑞英, 赵文静, 郭江源, 毕娜, 张君 (4447)
丛枝菌根真菌在矿区生态环境修复中应用及其作用效果	李少朋, 毕银丽, 孔维平, 王瑾, 余海洋 (4455)
超积累植物垂序商陆 (<i>Phytolacca americana</i> L.) 吸收锰机制的初步探讨	徐向华, 李仁英, 刘翠英, 施积炎, 林佳 (4460)
<i>Shewanella oneidensis</i> MR-1 对硫化汞的生物利用性研究	陈艳, 王卉, 司友斌 (4466)
基于我国西南地区儿童行为模式的 IEUBK 模型本地化研究	蒋宝, 崔晓勇 (4473)
不同结构有机磷在 (氢) 氧化铝表面的吸附与解吸特征	柳飞, 张延一, 严玉鹏, 刘凡, 谭文峰, 刘名茗, 冯雄汉 (4482)
煤中铁元素赋存状态的超声逐级化学提取研究	熊金钰, 李寒旭, 董众兵, 张颂, 钱宁波, 武成利 (4490)
植物对纳米颗粒的吸收、转运及毒性效应	杨新萍, 赵方杰 (4495)
《环境科学》征订启事 (4239) 《环境科学》征稿简则 (4369) 信息 (4225, 4265, 4303, 4375)	

微藻脂肪酸在中国近海缺氧海水-沉积物界面中的降解模拟研究

随伟伟¹, 丁海兵^{2*}, 杨桂朋^{1,2}, 陆小兰¹, 李文娟¹, 孙立群¹

(1. 中国海洋大学化学化工学院, 青岛 266100; 2. 中国海洋大学海洋化学理论与工程技术教育部重点实验室, 青岛 266100)

摘要: 通过一系列培养实验, 模拟了有机物在中国近海季节性缺氧环境沉积物-海水界面的降解过程. 以中国近海典型的赤潮藻中肋骨条藻 (*Skeletonema costatum*) 为研究对象, 对中肋骨条藻中的几种典型脂类生物标志物在不同程度缺氧海水-沉积物界面中的降解行为进行追踪. 通过分析测定不同培养时间获取的不同含氧体系 (氧饱和度 100%、50%、25% 和 0%) 中中肋骨条藻 4 种主要脂肪酸 [14:0、16:0、16:1(7)、20:5] 的含量, 结果表明, 在前 2~3 周 4 种脂肪酸迅速减少, 之后则变化很慢甚至几乎不变. 在不同含氧体系中 4 种脂肪酸的降解存在很大差异, 14:0、16:1(7)、20:5 经过两个月的培养, 在 4 种不同含氧体系中几乎降解完全, 而 16:0 在 4 种体系中剩余 25%~35%. 根据 multi-G 模型对 4 种脂肪酸降解进行定量描述, 结果表明, 每种化合物可以分为降解较快和较慢的部分, 各化合物的平均降解速率常数 k_{av} 范围在 $0.079 \sim 0.84 \text{ d}^{-1}$, 14:0 与 16:1(7) 的降解在 25% 含氧体系中最快, 在降解最快的体系中, 14:0 的 k_{av} 是最慢体系 (含氧 50%) 的 2.3 倍, 16:1(7) 的 k_{av} 是最慢体系 (含氧 100%) 的 1.7 倍; 16:0 的最快降解速率出现在无氧体系中 (0.17 d^{-1}), 是最慢体系 [50% 含氧体系 (0.079 d^{-1})] 的 2.1 倍; 20:5 的降解速率常数则与含氧量呈正相关. 结果表明, 影响中国近海缺氧海区沉积物-海水界面中中肋骨条藻中脂肪酸降解的因素除了含氧量之外, 有机化合物本身的结构和性质以及环境中微生物作用等对其降解也存在着很大影响.

关键词: 沉积物-海水界面; 脂肪酸; 有机物降解; 季节性缺氧; 中肋骨条藻

中图分类号: X55 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2013)11-4231-09

Simulated Study of Algal Fatty Acid Degradation in Hypoxia Seawater-Sediment Interface Along China Coastal Area

SUI Wei-wei¹, DING Hai-bing², YANG Gui-peng^{1,2}, LU Xiao-lan¹, LI Wen-juan¹, SUN Li-qun¹

(1. College of Chemistry and Chemical Engineering, Ocean University of China, Qingdao 266100, China; 2. Key Laboratory of Marine Chemistry Theory and Technology, Ministry of Education, Ocean University of China, Qingdao 266100, China)

Abstract: Series of laboratory incubation experiments were conducted to simulate degradation of organic matter in sediment-seawater interface in hypoxia environments along China coastal area. Under four different redox conditions (oxygen saturation: 100%, 50%, 25% and 0%), degradations of several biomarkers originated from *Skeletonema costatum*, a typical red tide alga along China coastal area were tracked. By analyzing concentrations of four fatty acid biomarkers [14:0, 16:0, 16:1(7) and 20:5] obtained at various sampling time, results showed that their concentrations decreased significantly after 2-3 weeks' incubation. Then, their concentrations changed very slowly or very little. However, degradation of the four fatty acids varied dramatically in different incubation systems. Fatty acids 14:0, 16:1(7) and 20:5 were degraded completely in all incubation systems after two-month incubation, but 25% to 35% of 16:0 was reserved in the systems. Based on multi-G model, degradations of the four fatty acids were quantitatively described. The results indicated that all four fatty acids had fast-degraded and slow-degraded fractions. Their degradation rate constants (k_{av}) ranged from 0.079 to 0.84 d^{-1} . The fastest degradation of 14:0 and 16:1(7) occurred under 25% oxygen concentrations. For these two compounds, in the fastest degradation system, their k_{av} values were 2.3 folds and 1.7 folds higher than those in the slowest degradation system [50% oxygen saturation for 14:0 and 100% oxygen saturation for 16:1(7)] respectively. The 16:0 was degraded fastest under the anoxic condition and slowest under the 50% oxygen saturation. The ratio of the two k_{av} s was 2.1. The k_{av} s of 20:5 had a positive relationship with oxygen saturations. Results of this study suggested that besides oxygen saturations, structure and features of organic compounds, roles of microbe in the environments and etc. might affect degradations of fatty acids in *S. costatum* in hypoxia sediment-seawater interface along China coastal area.

Key words: sediment-seawater interface; fatty acids; organic matter degradation; hypoxia; *Skeletonema costatum*

收稿日期: 2013-02-05; 修订日期: 2013-03-20

基金项目: 山东省自然科学基金项目 (ZR2010DM001); 国家自然科学基金项目 (41176061); 国家自然科学基金创新群体项目 (41221004)

作者简介: 随伟伟 (1986~), 女, 硕士研究生, 主要研究方向海洋界面化学, E-mail: suiweiwei-2006@163.com

* 通讯联系人, E-mail: dinghb@ouc.edu.cn

有机物在海洋沉积物中的降解过程在全球碳循环和营养盐循环中起到非常重要的作用。在不同的氧化还原条件下,有机质的降解途径不同。近几十年来,对氧气在有机物降解过程中的作用研究有很多^[1~4],但依然存在很大争议,其中最主要的是厌氧降解与需氧降解快慢的问题。Jewell 等^[5]和 Qtsuki 等^[6,7]在早期研究微藻中有机物的需氧和厌氧降解过程中未发现两者有明显的差别。Lee^[1]的研究工作也发现有氧和缺氧沉积物中有机物的降解速率差别不大。然而,Harvey 等^[3,8]根据 Bener 等^[9]提出的 multi-G 模型对不同有机物的降解速率进行了估算,其结果对早期研究结论提出了挑战,在有氧和无氧条件下有机物的降解速率有显著不同。Sun 等^[10,11]对海洋微藻中有机物降解的实验室模拟研究中显示出有机物需氧降解速率明显高于厌氧降解速率^[12]。

除了研究氧化还原条件对有机物降解的影响作用外,许多研究还探讨了其他对有机物降解可能产生影响的因素。这些因素包括内部因素:①生物体中有机物的结构影响^[12,13],②生物体中有机物组成^[12];以及外部因素:③动物的摄食^[14~20],④微生物的作用与有机化合物降解酶的活性等^[12]。然而,由于有机物降解复杂性,各种因素各种机制之间相关性研究分析还不够充分和成熟。

浮游植物是海洋系统中有机物的主要生产者,有机物的转化降解则主要依靠微生物。浮游植物通过光合作用合成以脂肪酸为代表的多种脂类化合物,占生物量总碳的 5%~20%,由于其结构比蛋白质和糖类化合物等稳定,广泛被作为生物标志物研究有机物的降解以及有机碳生物地球化学循环,反演沉积物历史记录等^[12,13,18,19]。沿海相对于大洋,沉积物中有机碳含量较高,具有较高的初级生产力,较高的沉积矿化速率,受人类活动影响较大,并时常发生缺氧现象^[21]。随着河口和近岸海区季节性缺氧现象的频发,有机物在这些环境中的生物地球化学过程被广泛关注^[22,23]。近些年来,在我国主要河口及附近海域(如长江口、珠江口)经常观测到的季节性缺氧现象,同时赤潮频发,严重影响了当地的生态环境。赤潮藻的死亡和降解加速了缺氧区的形成,使得相关区域的生态环境变化更加复杂。近年来,这些区域已成为研究近海碳循环的热点区域^[24,25]。然而,到目前为止,尽管对海洋中有机物的降解已经进行了大量研究,但对有机物在季节性缺氧海水-沉积物界面降解的相关研究进行的较少。特别是季节性缺氧海水中的含氧量是一个逐步减少

的过程,这个过程中,动物大量死亡,海水-沉积物界面的氧化还原环境和微生物环境都发生了显著变化^[26],到目前为止,对有机物在此类缺氧海水-沉积物界面降解行为几乎没有研究。

本研究选取中国沿海赤潮代表藻株中肋骨条藻,通过实验室模拟其在沿岸沉积物-海水界面不同程度缺氧状况下的降解过程,追踪其中主要脂肪酸生物标志物的降解行为。本研究对探究有机碳在中国近海缺氧海水-沉积物界面的生物地球化学循环过程,以及了解中国沿海早期成岩作用以及海洋环境保护有一定的指导意义。

1 材料与方法

1.1 藻细胞的培养与收集

实验藻种中肋骨条藻来自中国海洋大学海洋化学理论与工程技术教育部重点实验室藻种库。采用 f/2 培养液培养,温度 $(20 \pm 1)^\circ\text{C}$,光暗比 12 h/12 h,光强 4 000 lx,每天摇动数次,培养过程中每天用荧光分光光度计测活体荧光。于稳定生长期收集藻细胞,5 000 $\text{r} \cdot \text{min}^{-1}$ 离心 5~8 min(北京时代北利 GTR16-2B 型冷冻离心机),置于 -18°C 冰箱中冷冻备用。

1.2 海水与沉积物取样

海水与沉积物样品取自长江口附近[海水源自 2011 年 10 月 973 航次东海长江口附近 P01 站位($122.72^\circ\text{E}, 31.04^\circ\text{N}$),沉积物源自 2012 年 5 月基金委航次长江口附近 T01 站位],见图 1。海水用 2

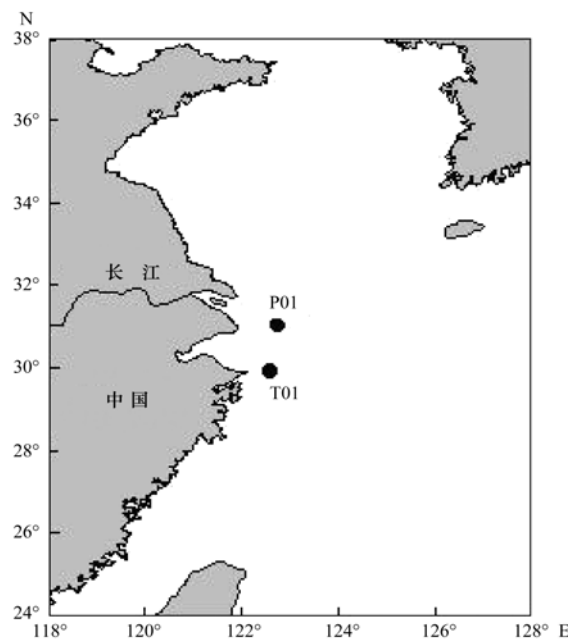


图 1 东海采样站示意图

Fig. 1 Sampling stations in the East China Sea

μm 滤膜过滤, 沉积物过 40 目筛。将收集的藻细胞与已过筛的沉积物按一定比例(使每克沉积物含碳量约为 2%) 充分混匀形成加藻沉积物。

1.3 模拟实验

模拟实验体系用于模拟不同氧化还原条件下的(4 种体系其氧饱和度分别为 100%、50%、25%、0%) 沉积物-海水界面, 通过控制 N_2/CO_2 -空气的比例调节海水的溶解氧含量并且保证海水 pH 不变(图 2)。有机物降解模拟实验于 4 个密封箱(40 cm × 30 cm × 30 cm) 中完成, 实验时加入半箱海水, 放入样品前根据不同条件充入混合气体调节海水含氧量至预设的氧饱和度。加藻沉积物装于直径为 6 cm, 高 1 cm 的培养皿中, 沉积物厚度约为 1.0 mm, 每一密封箱中放入 8 份加藻沉积物样品, 8 份不加藻的沉积物作为对照样品, 且每份样品保持质量与厚度一致(约 6 g 湿重)。密封箱置于培养箱中, 温度设为 $(20 \pm 1)^\circ\text{C}$, 光照为黑暗环境。定时充气以保证在整个模拟实验期间内氧化还原条件一致, 取样时间为 0、3、7、14、21、28、42、56、69 d。沉积物样品于 -18°C 下保存用以进行脂肪酸的提取。

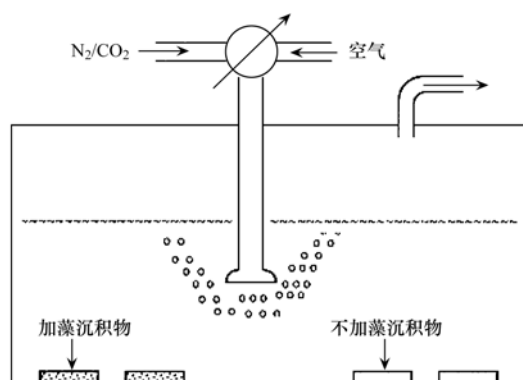


图 2 沉积物-海水界面模拟体系

Fig. 2 Simulated sediment-water interface incubation systems

1.4 脂肪酸的提取、测定与分析

参照 Sun 等^[11] 的提取方法对样品中的脂肪酸进行提取。取 1~2 g 沉积物样品于 50 mL 玻璃离心管中, 首先用 10 mL 甲醇与 3 × 10 mL 二氯甲烷-甲醇溶液(2:1, 体积比) 萃取, 萃取时样品漩涡混合 1~2 min, 超声粉碎 5~10 min, 冷冻离心机离心分离($2500 \text{ r} \cdot \text{min}^{-1}$, 10 min); 移取上清液至 250 mL 分液漏斗中, 于分液漏斗中加入 5% 的 NaCl 溶液使之更好地分层, 至少静置 6 h 后分底层溶液于梨形瓶中; 再用二氯甲烷萃取 3 次, 每次至少静置 6 h 后分底层溶液至梨形瓶中。梨形瓶旋转蒸发至近于干

燥, 然后用 1 mL $0.5 \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$ KOH- CH_3OH 溶液润洗 3 次至 20 mL 玻璃试管中, 加入少量 milli Q 水, 置于烘箱中于 100°C 皂化反应 2 h。玻璃试管冷却后, 加入少许 5% 的 NaCl 溶液分层, 用等体积的正己烷萃取 3 次, 每次静置至少 6 h, 将上清液移至梨形瓶中, 用于中性脂的分析, 下层样品用以提取脂肪酸。之后, 向玻璃试管中加入 $6 \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$ 的 HCl 调整 pH 小于 2, 再加入等体积的正己烷萃取 3 次, 每次静置至少 6 h, 每次移取上清液于梨形瓶中, 旋转蒸发至近干, 用 1 mL $\text{BF}_3\text{-CH}_3\text{OH}$ 溶液润洗 3 次, 再用 CH_3OH 润洗 3 次, 洗液均移入 20 mL 玻璃试管中, 于烘箱中 100°C 酯化反应 2 h, 使脂肪酸反应生成脂肪酸甲酯(FAME); 冷却后用等体积的正己烷萃取 3 次, 每次静置至少 6 h 后移取上清液至梨形瓶中, 旋转蒸发近于干燥, 用 0.5 mL 正己烷洗至 4 mL 的样品瓶中(3 次), 之后用 N_2 吹干, 加入 $50 \mu\text{L}$ $2 \text{ mg} \cdot \text{mL}^{-1}$ 的内标物正构十九酸甲酯(19:0), 且加入 100 μL 正己烷溶剂, 冷藏保存, 用于气相色谱(GC) 和气相色谱-质谱(GC-MS) 分析。

脂肪酸各组分通过气相色谱的保留时间与气相色谱-质谱的质谱图进行定性, 采用内标法定量, 通过色谱图中目标物与内标物的峰面积相比较, 确定含量。

气相色谱(Agilent 6890N, 美国) 分析条件: HP-5 毛细管色谱柱($25 \text{ m} \times 320 \mu\text{m} \times 0.25 \mu\text{m}$); 氢火焰离子化检测器(FID), 检测器温度 310°C ; 进样口温度 310°C , 进样量 1 μL , 不分流进样; 高纯 N_2 作载气, 载气流速 $1 \text{ mL} \cdot \text{min}^{-1}$, H_2 流量 $35 \text{ mL} \cdot \text{min}^{-1}$, 空气流量 $450 \text{ mL} \cdot \text{min}^{-1}$ 。色谱柱升温程序: 初始温度 30°C (0 min), 迅速以 $30^\circ\text{C} \cdot \text{min}^{-1}$ 升至 200°C , 再以 $5^\circ\text{C} \cdot \text{min}^{-1}$ 升至 215°C , 之后以 $1^\circ\text{C} \cdot \text{min}^{-1}$ 升温至 220°C 并保持 2 min, 然后以 $10^\circ\text{C} \cdot \text{min}^{-1}$ 升至 280°C , 保持 4 min, 最后以 $20^\circ\text{C} \cdot \text{min}^{-1}$ 升至 310°C 并保持 5 min。

气相色谱-质谱(Agilent 6890N-5973i) 条件: HP-5MS 毛细管气相色谱柱($30 \text{ m} \times 0.32 \text{ mm}, 0.52 \mu\text{m}$), 氦气为载气, 离子源为电子轰击电离(EI), 能量 70 eV, 离子源温度 240°C , 全扫描(scan) 采集方式。色谱柱升温程序同气相色谱法。

1.5 实验误差

通过测定平行样品获得实验误差。选取培养初期加藻沉积物样品第 0 d 的平行双样, 按照上述脂肪酸的提取、测定与分析方法, 对平行双样进行测定, 计算平行数据的相对偏差(表 1)。

表 1 测定脂肪酸的实验误差

Table 1 Experiment error of fatty acid measurements

脂肪酸	平行样 1/ $\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$	平行样 2/ $\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$	相对误差/%
14:0	319.8	338.6	2.86
16:0	125.1	135.5	4.00
16:1(7)	260.9	230.5	6.19
20:5	841.3	865.1	1.39

2 结果与讨论

2.1 中肋骨条藻中的脂肪酸

对培养期间取样(加藻沉积物和空白沉积物样品)的脂肪酸进行提取测定,选取中肋骨条藻中含量较丰富的 4 种脂肪酸[14:0、16:0、16:1(7)、20:5]^[26]进行分析研究,分别代表饱和、一元不饱和和多元不饱和脂肪酸.沉积物对照样品中均未检测到这 4 种脂肪酸.培养初期(0 d)加藻沉积物样品中的检测结果显示(图 3),4 种脂肪酸含量均高于 100 $\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ (干重含量),其中多不饱和脂肪酸 20:5 的含量最高,比其他 3 种脂肪酸总量还高,单不饱和脂肪酸 16:1(7)的含量约是饱和脂肪酸 16:0 的 2 倍,饱和脂肪酸 14:0 含量比 16:0 高约 200

$\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$,结果与文献中中肋骨条藻中脂肪酸含量的研究结果一致^[27,28].

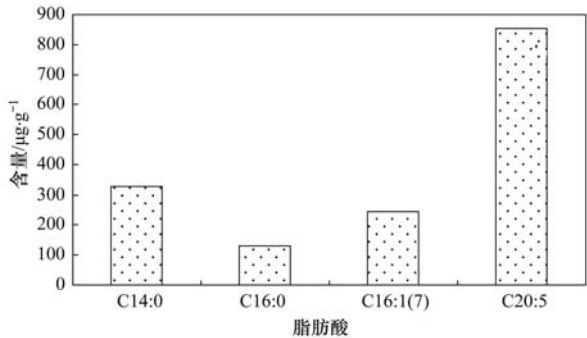
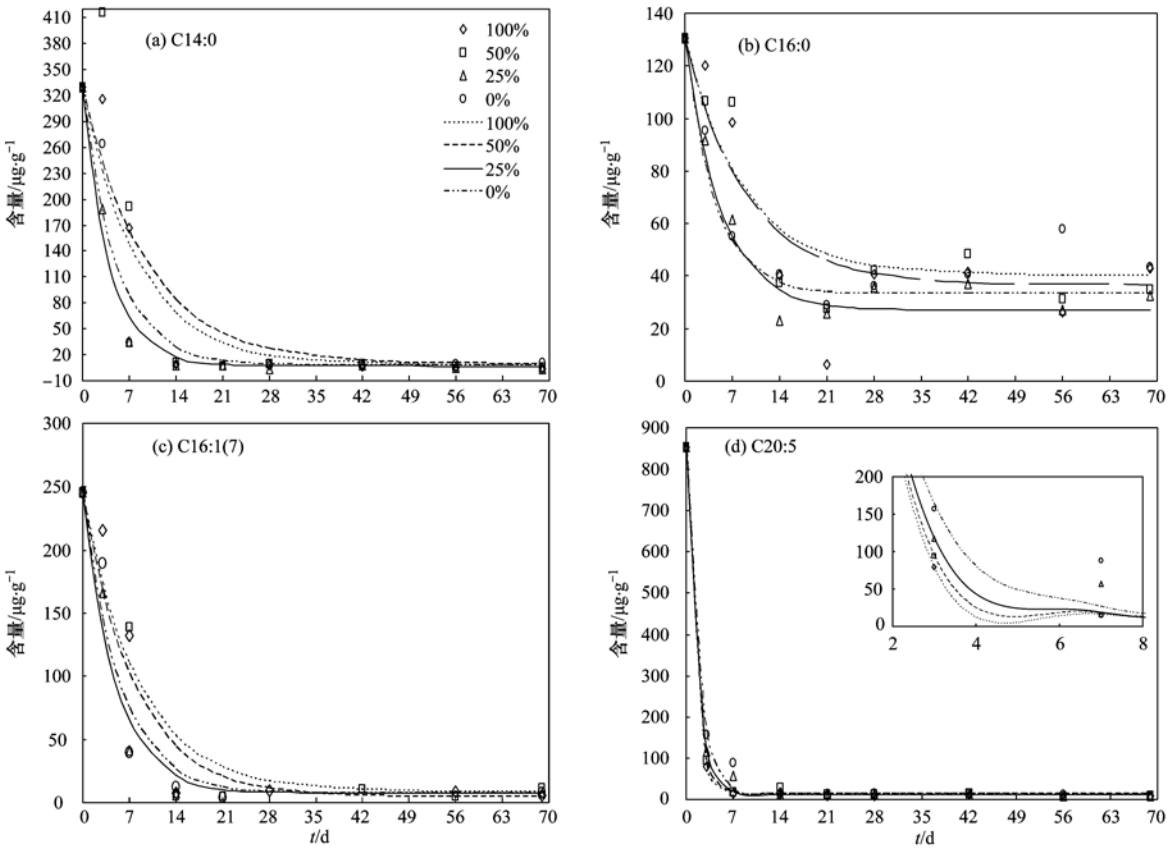


图 3 加藻沉积物中四种脂肪酸的初始含量(干重含量)

Fig. 3 Initial concentration of fatty acids in algal spiked sediment (dry weight)

2.2 脂肪酸在培养过程中的变化

4 种体系中的 4 种脂肪酸含量在培养过程中的变化趋势(图 4)存在相似之处,在前 2~3 周脂肪酸含量显著下降,之后的培养过程中继续降低,但变化幅度越来越小甚至趋近平缓.虽然这几种脂肪酸的降解趋势相近,但不同脂肪酸在不同的含氧体系中



曲线为多元 G-模型模拟的结果

图 4 沉积物中脂肪酸含量(干重)在培养期间随时间的变化

Fig. 4 Variation of fatty acid concentrations in sediment during incubations(drg weight)

降解情况仍有一定的差异。①不同脂肪酸的降解程度存在很大差异,培养实验末期脂肪酸的残留量(图5)有所差别,14:0、16:1(7)、20:5几乎降解完全(残留量<5%),其中20:5在第1周就几乎降解完全且其未降解的不足1%,而16:0未降解的脂肪酸在25%~35%,16:0的初始含量却最低。②在不同含氧体系中4种脂肪酸的残留量差别不大(表2),4种脂肪酸在不同含氧体系下的残留率(图6),14:0、16:0和20:5在无氧体系中的残留量最大,16:1(7)在50%含氧体系中降解率最小,其中14:0和16:1(7)在含氧100%条件下降解率最高,16:0则在25%含氧体系中的降解率最大,20:5在4种体系中的降解率均达到99%以上。表明氧气的存在可能不利于有机物的埋藏。

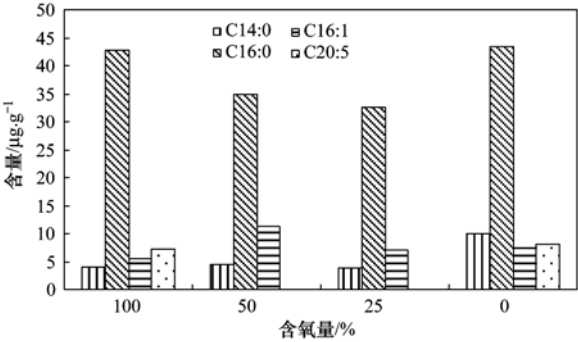


图5 69 d 取样时各脂肪酸在各体系中的含量(干重)
Fig. 5 Fatty acid concentrations in each incubation system in 69 d (dry weight)

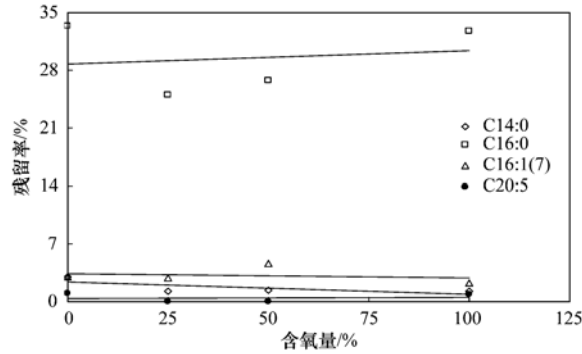


图6 4种脂肪酸的残留率与培养体系氧饱和度的关系
Fig. 6 Relationship of reservation percentage of four fatty acids and oxygen saturation in various incubation systems

2.3 降解速率常数

4种脂肪酸在培养过程中的变化显示(图4),其浓度在前2~3周下降迅速,之后呈现出很慢甚至是不变的趋势。有机质的这种降解行为通常采用multi-G模型进行量化^[12],此模型的准确性已得到许多现场检测与实验室研究的验证^[12,29],该模型假

表2 培养结束不同含氧体系中4种脂肪酸的降解率/%

Table 2 Degradation percentage of four fatty acids in different incubations systems with various oxygen saturations at the end of incubation/%

体系	14:0	16:0	16:1(7)	20:5
100% 含氧	98.79	67.21	97.72	99.15
50% 含氧	98.67	73.30	95.43	100
25% 含氧	98.81	74.98	97.12	100
0% 含氧	96.94	66.64	96.98	99.04

设有机质不同降解速率部分的降解行为独立,总的降解速率则是各不同降解速率部分的加权平均:

$$-(dG_i/dt) = \sum k_i G_i$$
$$G_i = \sum G_i = (G_1)_0 \exp(-k_1 t) + (G_2)_0 \exp(-k_2 t) + \dots$$

式中, $-(dG_i/dt)$ 是总的降解速率, k_i 是 i 部分降解速率常数, G_i 是 i 部分的浓度, $(G_1)_0$ 和 $(G_2)_0$ 是两不同降解速率部分的初始浓度。如果 $i=2$, 则:

$$k_{av} = k_1 \times f_1 + k_2 \times f_2$$

式中, k_{av} 定义为表观速率常数, 其中 $f_1 = (G_1)_0 / (G_i)_0$; $f_2 = (G_2)_0 / (G_i)_0$ 。

根据 multi-G 模型建立了脂肪酸降解的模型(图4中曲线)并计算了4种脂肪酸在4种不同含氧体系中的速率常数(表3)。14:0、16:0与16:1(7)在4种体系中降解速率常数变化范围为0.079~0.24 d⁻¹; 20:5的降解速率常数变化范围在0.56~0.84 d⁻¹之间。饱和脂肪酸14:0和16:0在含氧50%的体系中降解速率常数最小,含氧100%体系中次之,分别在含氧25%和无氧条件下降解较快;单不饱和脂肪酸16:1(7)的 k_{av} 在含氧25%的体系

表3 不同培养体系脂肪酸的降解速率常数/d⁻¹

Table 3 Degradation rate constant of fatty acids derived from various incubation experiments/d⁻¹

体系	降解速率常数	14:0	16:0	16:1(7)	20:5
100% 含氧	k_1	0.12	0.12	0.12	0.85
	k_2	0.015	0	0.001 0	0.001 6
	k_{av}	0.12	0.080	0.12	0.84
50% 含氧	k_1	0.11	0.11	0.13	0.78
	k_2	0.002 0	0	0	0.001 5
	k_{av}	0.10	0.079	0.13	0.77
25% 含氧	k_1	0.25	0.19	0.20	0.69
	k_2	0.001 8	0	0	0.000 96
	k_{av}	0.24	0.15	0.19	0.68
0% 含氧	k_1	0.20	0.23	0.18	0.57
	k_2	0.001 0	0	0	0.000 30
	k_{av}	0.19	0.17	0.18	0.56

中最高,100% 含氧条件下最低;多不饱和脂肪酸 20:5 的 k_{av} 在含氧 100% 体系中最高,在无氧体系中最低. 饱和脂肪酸 14:0 和 16:0 在降解最快体系的 k_{av} 是降解最慢体系的 k_{av} 的 2 倍多,而不饱和脂肪酸 16:1(7) 和 20:5 在降解最快体系的 k_{av} 是最慢体系 k_{av} 的约 1.5 倍,即最大速率常数与最小速率常数之间,不饱和脂肪酸没有饱和脂肪酸之间的差别大. 4 种脂肪酸中多不饱和脂肪酸 20:5 在 4 种体系中降解速率明显高于饱和和单不饱和脂肪酸 14:0、16:0 和 16:1(7),说明双键越多脂肪酸越不稳定.

3 讨论

3.1 脂肪酸结构对其降解的影响

表 3 的结果表明,在含氧量相同的情况下,多不饱和脂肪酸 20:5 的 k_{av} 比饱和脂肪酸(14:0、16:0) 和单不饱和脂肪酸[16:1(7)] 的 k_{av} 大很多,与之前的研究结果相似^[8,12,13]. Ding 等^[12] 和 Sun 等^[13] 对含氧/无氧环境下微藻中脂类降解的研究显示,18:1(9) 和 22:6 的降解率以及降解速率常数明显高于 14:0 等饱和脂肪酸. 从化学的角度来看,在有机物氧化降解的过程中,双键比单键活泼得多,更容易断裂. 对不同饱和度的脂肪酸而言,双键对其降解有一定的影响,含有较多双键的 20:5,其降解速率比饱和脂肪酸的降解速率要快很多. 然而,本研究表明,有一个双键的不饱和脂肪酸 16:1(7) 的降解没有明显快于饱和脂肪酸,表明单不饱和脂肪酸的双键对其降解的影响并不明显.

3.2 新陈代谢过程与脂肪酸的降解

4 种脂肪酸在培养末期的残留量存在差异,可以部分归因于它们在生物体内新陈代谢过程的差异. 在本研究的培养体系中,各种有机物的新陈代谢过程主要是由微生物来完成的. 通常情况下,在微藻脂肪酸降解的过程中,微生物具有双重作用:消耗微藻脂肪酸并产生自身的新的脂肪酸. 众多研究显示,微生物能生物合成与初级生产者所产生脂肪酸碳原子数范围相同的 $C_{14} \sim C_{18}$ 脂肪酸^[30~32],例如, Teece 等^[31] 通过 ^{13}C 同位素标记法研究显示,沉积物中细菌在无氧或者含氧条件下均可以合成与初级生产者相同的 $C_{14} \sim C_{18}$ 脂肪酸. 事实上,所有生物都通过碳链的延长合成不同的脂肪酸,这种延长往往在合成到 16:0 后终止,并启动不同的延长系统合成更长的脂肪酸. 不同的微生物也可以通过去饱和等过程把 16:0 转化成各种不饱和脂肪酸. 由于 16:0 在生物新陈代谢过程中的独特作用,使其有可

能在体系中积聚并长时间以较高浓度存在. 同时,16:0 也是长链脂肪酸氧化降解的产物. 在这两个过程的共同作用下,体系中出现高残留的 16:0 是合理的. 氧化速率的计算结果表明,在所有的体系中,16:0 的降解都是最慢的,表明 16:0 的生成和氧化显著影响其降解过程. Sun 等^[13] 的研究结果显示,经过一个月的降解,在含氧海水中 14:0、18:1(9) 和 22:6 几乎降解完全,而 16:0 剩余 14%. Pistocchi 等^[33] 在对硅藻黏液样品的分析中显示,16:0 的含量在所有脂肪酸中最高(20% ~ 40%). 众多研究显示,海洋沉积物中 16:0 的含量在所有脂肪酸中往往是最高的,例如,林卫东等^[34] 在南海中部表层沉积物中检出 41 种不同的脂肪酸,其中 16:0 的含量显著高于其他脂肪酸,其比例占到脂肪酸总量 25% 左右. 这些培养实验与现场检测的结果,与本模拟实验的结果相吻合.

3.3 氧化还原环境对脂肪酸降解的影响

本实验一些研究结果与之前研究的结论不完全一致. Ding^[12] 研究的沉积物-海水界面中赫氏圆石藻脂肪酸在含氧/无氧环境下的降解速率常数在 $0.026 \sim 0.256 \text{ d}^{-1}$, Harvey 等^[8] 培养研究了海水里海链藻和聚球藻在含氧/无氧条件下的降解速率常数范围在 $0.01 \sim 0.1 \text{ d}^{-1}$, Sun 等^[11] 和 Ding 等^[12] 的研究结果显示微藻中脂肪酸的需氧降解速率要明显高于无氧降解速率. 在本研究中,4 种酸的降解呈现不同的图景. 从图 7 可以发现,在所有体系中,20:5 的降解速率比其它 3 种酸明显快很多,并且 k_{av} 与体系中的氧饱和度呈线性正相关. 对其它 3 种酸而言, k_{av} 与体系的氧饱和度呈负相关,在 25% 缺氧体系和无氧体系明显降解较快,而在氧饱和度较高的体系中降解较慢. 表明在缺氧条件下,除了体系中的含氧量,中肋骨条藻脂肪酸的降解还受到其它多种因素的控制.

众多的研究表明微生物对有机物降解有重要作用. Harvey 等^[35] 对细菌量与有机基质之间的变化关系进行了研究,结果表明有机质的含量越高,细菌量越大; Ding 等^[12] 的结果显示在培养实验的前 2 ~ 3 周脂肪酸降解迅速,细菌量明显增加,并且细菌的降解活性可能比细菌量对脂肪酸的降解更有影响. 众多的实验还表明,氧化还原状态对调节微生物活性与菌落结构具有重要作用^[36,37]. Bowman 等^[38] 对沉积物中生物多样性与群落结构等的研究中,结果显示,在 0 ~ 0.4 cm 沉积物含氧表层微生物群落丰度较 1.5 ~ 2.5 cm 低,在 20 ~ 21 cm 微生物丰度有

明显下降至最小值. Cetecioğlu 等^[39]对缺氧沉积物中微生物群落结构进行了分析研究,结果显示,沉积物中微生物群落更具多样性,且群落随着深度、盐度等的变化多样性在改变. Mbadinga 等^[40]对微生物厌氧降解烷烃的机制进行了研究,证实不同微生物在不同氧化还原环境下对烷烃的降解机制不同,微生物通过对合成酶的机制利用电子受体应对环境变化. 微生物通过其种群结构、组成和代谢功能的变化,对其环境条件改变及其外来化合物的进入作出反应,并通过生理性调控和遗传变异来适应不断变化着的环境^[41,42].

在本实验的培养体系中,由于动物已经被除去,微生物成为有机物降解的主要执行者. 4 种培养体系不同脂肪酸的降解行为与之前的研究结论有所不同,则可能是由于微生物的生物量、多样性以及群落结构变化所引起的. 由于在沉积物表层 2 mm 以下氧气基本无法渗入^[43],本研究中用于培养实验的沉积物来自富氧、缺氧和无氧环境中,在混合处理过程中由于含氧量不断变化,可能更有利于兼性厌氧的微生物保持活跃状态,而需氧微生物大量死亡或处于休眠状态. 培养实验开始后,这类兼性厌氧微生物首先处于活跃状态,开始降解有机物,使得 25% 含氧体系和无氧体系脂肪酸降解较快. 之后,适应不同体系氧饱和度的微生物逐渐发展起来,使降解速率常数随含氧量的变化(图 7)趋势呈现复杂的结果. 然而,以前的大多数研究集中于对比有氧/无氧体系,对有机物在不同缺氧体系的降解研究极少,今后,需要更多的后续研究探讨缺氧体系有机物降解的控制因素.

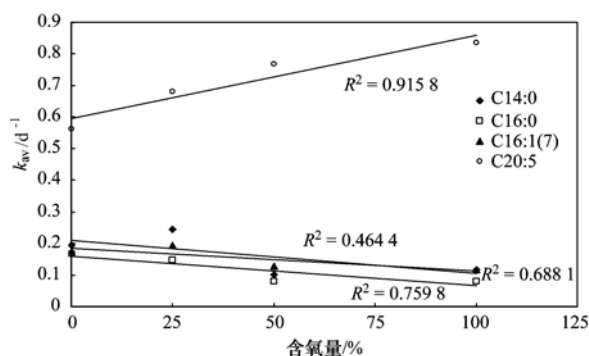


图 7 不同含氧体系中 4 种脂肪酸 k_{av} 变化

Fig. 7 The k_{av} variation of four fatty acids in various incubation systems

4 结论

(1) 4 种脂肪酸在培养过程中的降解趋势相似,

在前 2~3 周迅速减少,之后则变化很慢甚至几乎不变. 每种化合物可以分为降解较快和较慢的部分,各化合物的平均降解速率常数 k_{av} 范围在 0.079 ~ 0.84 d⁻¹.

(2) 4 种脂肪酸在培养末期残留率有很大不同, 14:0、16:1(7)、20:5 经过两个月的培养,在 4 种不同含氧体系中几乎降解完全,而 16:0 在 4 种体系中剩余达 25%~35%.

(3) 4 种脂肪酸在不同缺氧程度的体系中降解速率常数与含氧量的相关性不同,影响中国近海缺氧海区沉积物-海水界面中中肋骨条藻中脂肪酸的降解行为的因素除了含氧量之外,有机化合物本身的结构和性质以及环境中微生物作用等对其降解也存在显著影响.

致谢:感谢中国海洋大学海洋化学理论与工程技术教育部重点实验室的同学们在采样中提供的帮助;感谢国家海洋局第一海洋研究所杨佰娟老师和中国海洋大学食品工程学院徐杰老师提供的帮助.

参考文献:

- [1] Lee C. Controls on organic carbon preservation: the use of stratified water bodies to compare intrinsic rates of decomposition in oxic and anoxic systems[J]. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 1992, **56**(8): 3323-3335.
- [2] Canfield D E. Factors influencing organic carbon preservation in marine sediments[J]. *Chemical Geology*, 1994, **114**(3-4): 315-329.
- [3] Harvey H R, Tuttle J H, Bell J T. Kinetics of phytoplankton decay during simulated sedimentation: Changes in biochemical composition and microbial activity under oxic and anoxic conditions[J]. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 1995, **59**(16): 3367-3377.
- [4] Emerson S. Organic carbon preservation in marine sediment[A]. In: Simdquist E T, Broecker W S (Eds.). *The Carbon Cycle and Atmospheric CO₂: Natural Variations Archean to Present* [M]. Washington DC: Am Geophys Union, 1985. 78-87.
- [5] Jewell W J, Mccarty P L. Aerobic decomposition of algae[J]. *Environmental Science and Technology*, 1971, **5**(10): 1023-1031.
- [6] Otsuki A, Hanya T. Production of dissolved organic matter from dead green algal cells. I. Aerobic microbial decomposition[J]. *Limnology and Oceanography*, 1972, **17**(2): 248-257.
- [7] Otsuki A, Hanya T. Production of dissolved organic matter from dead green algal cells. II. Aerobic microbial decomposition[J]. *Limnology and Oceanography*, 1972, **17**(2): 258-264.
- [8] Harvey H R, Macko S A. Kinetics of phytoplankton decay during simulated sedimentation: changes in lipids under oxic and anoxic conditions[J]. *Organic Geochemistry*, 1997, **27**(3-4): 129-140.
- [9] Bener R A, Westrich J T. Bioturbation and the early diagenesis

- of carbon and sulfur[J]. American Journal of Science, 1985, **285**(3): 193-206.
- [10] Sun M Y, Wakeham S G. A study of oxic/anoxic effects on degradation of sterols at the simulated sediment-water interface of coastal sediments[J]. Organic Geochemistry, 1998, **28**(12): 773-784.
- [11] Sun M Y, Wakeham S G, Lee C. Rates and mechanisms of fatty acid degradation in oxic and anoxic coastal marine sediments of Long Island Sound, New York, USA [J]. Geochimica et Cosmochimica Acta, 1997, **61**(2): 341-355.
- [12] Ding H B, Sun M Y. Biochemical degradation of algal fatty acids in oxic and anoxic sediment-seawater interface systems; effects of structural association and relative roles of aerobic and anaerobic bacteria[J]. Marine Chemistry, 2005, **93**(1): 1-19.
- [13] Sun M Y, Zou L, Dai J H, *et al.* Molecular carbon isotopic fractionation of algal lipids during decomposition in natural oxic and anoxic seawaters[J]. Organic Geochemistry, 2004, **35**(8): 895-908.
- [14] Aller R C. The effects of macrobenthos on chemical properties of marine sediments and overlying water[A]. In: McCall P L, Tevesz M J (Eds.). Animal-sediment relations[C]. New York: Plenum Press, 1982. 53-102.
- [15] Rice D L. Early diagenesis in bioturbative sediments: Relationships between the diagenesis of beryllium-7, sediment reworking rates, and the abundance of conveyor-belt deposit-feeders[J]. Journal of Marine Research, 1986, **44**(1): 149-184.
- [16] Kristensen E, Andersen F Ø, Blackburn T H. Effects of benthic macrofauna and temperature on degradation of macroalgal detritus: the fate of organic carbon [J]. Limnology and Oceanography, 1992, **37**(7): 1404-1419.
- [17] Green M A, Aller R C, Cochran J K, *et al.* Bioturbation in shelf/slope sediments off Cape Hatteras, North Carolina: the use of ^{234}Th , Chl-*a*, and Br^- to evaluate rates of particle and solute transport [J]. Deep-Sea Research II: Topical Studies in Oceanography, 2002, **49**(20): 4627-4644.
- [18] Webb A P, Eyre B D. The effect of natural populations of the burrowing and grazing soldier crab (*Mictyris longicarpus*) on sediment irrigation, benthic metabolism and nitrogen fluxes[J]. Journal of Experimental Marine Biology and Ecology, 2004, **309**(1): 1-19.
- [19] Aller R C. Bioturbation and remineralization of sedimentary organic matter: effects of redox oscillation[J]. Original Research Article Chemical Geology, 1994, **114**(3-4): 331-345.
- [20] Ding H B, Sun M Y. Differential fates of *Emiliania huxleyi*-derived fatty acids and alkenones in coastal marine sediments: Effects of the benthic crustacean *Palaemonetes pugio*[J]. Journal of Marine Research, 2006, **64**(5): 759-781.
- [21] Sun M Y, Aller R C, Lee C, *et al.* Effects of oxygen and redox oscillation on degradation of cell-associated lipids in surficial marine sediments[J]. Geochimica et Cosmochimica Acta, 2002, **66**(11): 2003-2012.
- [22] 陈东, 张丽旭, 刘汉奇, 等. 长江口海域春夏季溶解氧分布特征及其相关因素分析[J]. 海洋环境科学, 2008, **27**(1): 49-53.
- [23] Parker C A, Reilly J E. Oxygen depletion in Long Island Sound: a historical perspective[J]. Estuaries, 1991, **14**(3): 248-264.
- [24] Qi Y Z. Red Tide Along Chinese Sea[M]. Beijing: Science Press, 2003. 1-3.
- [25] Quan W M, Han J D, Ping X Y, *et al.* Distribution and accumulation of nutrients and heavy metals in the sediment of Changjiang estuary wetlands [J]. Marine Science, 2008, **32**(6): 89-93.
- [26] Middelburg J J, Levin L A. Coastal hypoxia and sediment biogeochemistry[J]. Biogeosciences, 2009, **6**(7): 1273-1293.
- [27] 刘梦坛, 李超伦, 孙松. 两种甲藻和两种硅藻脂肪酸组成的比较研究[J]. 海洋科学, 2010, **34**(10): 77-82.
- [28] 李春颖, 仇雪梅. 海洋微藻脂肪酸组成的研究进展[J]. 生物技术通报, 2008, (4): 63-65.
- [29] Sun M Y, Wakeham S G. Molecular evidence for degradation and preservation of organic matter in the anoxic Black Sea Basin[J]. Geochimica et Cosmochimica Acta, 1994, **58**(16): 3395-3406.
- [30] Parkes R J, Taylor J. The relationship between fatty acid distributions and bacterial respiratory types in contemporary marine sediments [J]. Estuarine, Coastal and Shelf Science, 1983, **16**(2): 173-189.
- [31] Teece M A, Fogel M L, Dollhopf M E, *et al.* Isotopic fractionation associated with biosynthesis of fatty acids by a marine bacterium under oxic and anoxic conditions[J]. Organic Geochemistry, 1999, **30**(12): 1571-1579.
- [32] Monson K D, Hayes J M. Carbon isotopic fractionation in the biosynthesis of bacterial fatty acids. Ozonolysis of unsaturated fatty acids as a means of determining the intramolecular distribution of carbon isotopes[J]. Geochimica et Cosmochimica Acta, 1982, **46**(2): 139-149.
- [33] Pistocchi P, Trigari G, Serrazanetti G P, *et al.* Chemical and biochemical parameters of cultured diatoms and bacteria from the Adriatic Sea as possible biomarkers of mucilage production[J]. Science of the Total Environment, 2005, **353**(1-3): 287-299.
- [34] 林卫东, 周永章, 沈平. 南海中部表层沉积物中脂肪酸的组成、分布及来源[J]. 广东师范学院学报: 自然科学版, 2004, **21**(4): 11-15.
- [35] Harvey H R, Macko S A. Catalysts or contributors? Tracking bacterial mediation of early diagenesis in the marine water column [J]. Organic Geochemistry, 1997, **26**(9-10): 531-544.
- [36] Song Y, Deng S P, Martinez V A, *et al.* Characterization of redox-related soil microbial communities along a river floodplain continuum by fatty acid methyl ester (FAME) and 16S rRNA genes[J]. Applied Soil Ecology, 2008, **40**(3): 499-509.
- [37] Lüdemann H, Arth I, Liesack W. Spatial changes in the bacterial community structure along a vertical oxygen gradient in flooded paddy soil cores [J]. Applied and Environmental Microbiology, 2000, **66**(2): 754-762.
- [38] Bowman J P, McCaig R D. Biodiversity, Community Structural

- Shifts, and Biogeography of Prokaryotes within Antarctic Continental Shelf Sediment [J]. *Applied and Environmental Microbiology*, 2003, **69**(5): 2463-2483.
- [39] Cetecioglu Z, Ince B K, Kolukirik M, *et al.* Biogeographical distribution and diversity of bacterial and archaeal communities within highly polluted anoxic marine sediments from the marmara sea[J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2009, **58**(3): 384-395.
- [40] Mbadinga S M, Wang L Y, Zhou L, *et al.* Microbial communities involved in anaerobic degradation of alkanes [J]. *International Biodeterioration & Biodegradation*, 2011, **65**(1): 1-13.
- [41] Delong E F, Wickham G S, Pace N R. Phylogenetic stains: ribosomal RNA-based probes for the identification of single cells [J]. *Science*, 1989, **243**(4896): 1360-1363.
- [42] 张惠文, 张倩如, 周启星, 等. 分子微生物生态学及其研究进展[J]. *应用生态学报*, 2003, **14**(2): 286-292.
- [43] Canuel E A, Martens C S. Reactivity of recently deposited organic matter: Degradation of lipid compounds near the sediment-water interface[J]. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 1996, **60**(10): 1793-1806.

欢迎订阅 2014 年《环境科学》

《环境科学》创刊于 1976 年,由中国科学院主管,中国科学院生态环境研究中心主办,是我国环境科学学科中最早创刊的学术性期刊。

《环境科学》自创刊以来,始终坚持“防治污染,改善生态,促进发展,造福人民”的宗旨,报道我国环境科学领域内具有创新性高水平,有重要意义的基础研究和应用研究成果,以及反映控制污染,清洁生产和生态环境建设等可持续发展的战略思想、理论和实用技术等。

《环境科学》在国内外公开发行,并在国内外科技界有较大影响,被国内外一些重要检索系统收录,如美国医学索引 MEDLINE;美国化学文摘 CA;俄罗斯文摘杂志 AJ;美国生物学文摘预评 BP;美国医学索引 IM;日本科学技术情报中心数据库 JICST;英国动物学记录 ZR;剑桥科学文摘(CSA):Environmental Sciences;剑桥科学文摘(CSA):Pollution Abstracts;剑桥科学文摘(CAS):Life Sciences Abstracts 等;国内的检索系统有中国科技论文统计与引文数据库(CSTPCD);中文科技期刊数据库(维普);中国期刊全文数据库(CNKI);数字化期刊全文数据库(万方);中国科学引文数据库(CSCD);中国生物学文摘等。

全国各地邮局均可订阅,如有漏订的读者可直接与编辑部联系,办理补订手续。

《环境科学》2014 年为大 16 开本,90 元/册,全年 12 期。

国内统一刊号:CN11-1895/X 国际标准刊号:ISSN 0250-3301

国外发行代号:M 205 国内邮发代号:2-821

编辑部地址:北京市海淀区双清路 18 号(2871 信箱) 邮编:100085

电话:010-62941102;传真:010-62849343;E-mail:hjkk@rcees.ac.cn;网址:www.hjkk.ac.cn

CONTENTS

Aerosol Optical Properties During Different Air-Pollution Episodes over Beijing	SHI Chan-zhen, YU Xing-na, ZHOU Bin, <i>et al.</i> (4139)
Characteristics and Source Analysis of Atmospheric Aerosol Ions over the Bohai Sea and the North Yellow Sea in Autumn	ZHANG Yan, ZHANG Hong-hai, YANG Gui-peng (4146)
Spatial Distribution Characteristics of Carbonaceous Aerosol During Summer in Beibu Gulf Zone, China	YANG Yi-hong, TAO Jun, GAO Jian, <i>et al.</i> (4152)
Study on the <i>in-situ</i> Measurement of Greenhouse Gas by an Improved FTIR	XIA Ling-jun, LIU Li-xin, ZHOU Ling-xi, <i>et al.</i> (4159)
Distribution of CH ₄ in the Suburb of Changsha City, China	LIU Lu-ning, WANG Ying-hong, XU Xiao-juan, <i>et al.</i> (4165)
Chemical Composition of <i>n</i> -Alkanes in Wheat Straw and Smoke	LIU Gang, LI Jiu-hai, XU Hui, <i>et al.</i> (4171)
Degradation of the Absorbed Methyl Mercaptan by Persulfate in Alkaline Solution	YANG Shi-ying, WANG Lei-lei, FENG Lin-yu, <i>et al.</i> (4178)
Emissions of Greenhouse Gas and Ammonia from the Full Process of Sewage Sludge Composting and Land Application of Compost	ZHONG Jia, WEI Yuan-song, ZHAO Zhen-feng, <i>et al.</i> (4186)
Distribution and Physicochemical Properties of Aquatic Colloids in the Yangtze Estuarine and Coastal Ecosystem	GU Li-jun, YANG Yi, LIU Min, <i>et al.</i> (4195)
Spatial Distribution and Ecological Risk Assessment of Heavy Metals in the Estuaries Surface Sediments from the Haihe River Basin	 LÜ Shu-cong, ZHANG Hong, SHAN Bao-qing, <i>et al.</i> (4204)
Distribution of Perfluorooctanesulfonate and Perfluorooctanoate in Water and the Sediment in Fenhe River, Shanxi Province	Higashiguchi Tomohiro, SHI Jiang-hong, ZHANG Hui, <i>et al.</i> (4211)
Analysis on Nitrogen and Phosphorus Loading of Non-point Sources in Shiqiao River Watershed Based on L-THIA Model	LI Kai, ZENG Fan-tang, FANG Huai-yang, <i>et al.</i> (4218)
Pollutant Source Apportionment of Combined Sewer Overflows Using Chemical Mass Balance Method	DAI Mei-hong, LI Tian, ZHANG Wei (4226)
Simulated Study of Algal Fatty Acid Degradation in Hypoxia Seawater-Sediment Interface Along China Coastal Area	SUI Wei-wei, DING Hai-bing, YANG Gui-peng, <i>et al.</i> (4231)
Influence of Two Different Species of Aquatic Plant Communities on the Concentration of Various Nitrogen Forms in Sediment of Lake Taihu	 MA Jiu-yuan, WANG Guo-xiang, LI Zhen-guo, <i>et al.</i> (4240)
Study on Removal Rule of Endosulfan in Surface Flow Constructed Wetland	QIN Jing, GAO Fu-wei, XIE Hui-jun (4251)
Accumulation and Transformation of Different Arsenic Species in Nonaxenic <i>Dunaliella salina</i>	WANG Ya, ZHANG Chun-hua, WANG Shu, <i>et al.</i> (4257)
Evaluation of <i>in situ</i> Capping with Lanthanum-Modified Zeolite to Control Phosphate and Ammonium Release from Sediments in Heavily Polluted River	 LI Jia, LIN Jian-wei, ZHAN Yan-hui (4266)
Effects of Invertebrate Bioturbation on Vertical Hydraulic Conductivity of Streambed for a River	REN Chao-liang, SONG Jin-xi, YANG Xiao-gang, <i>et al.</i> (4275)
Formation of Disinfection By-products by <i>Microcystis aeruginosa</i> Intracellular Organic Matter; Comparison Between Chlorination and Bromination	 TIAN Chuan, GUO Ting-ting, LIU Rui-ping, <i>et al.</i> (4282)
Effect of Natural Organic Matter on Coagulation Efficiency and Characterization of the Flocs Formed	XU Lei, YU Wen-zheng, LIANG Liang, <i>et al.</i> (4290)
DOM Membrane Fouling and Effects on Rejection Behaviors of NF Membranes	FENG Gui-zhen, DONG Bing-zhi (4295)
Removal of Hg in Wastewater by Zero-Valent Iron	ZHOU Xin, ZHANG Jin-zhong, QIU Xin-kai, <i>et al.</i> (4304)
Catalytic Dechlorination of 2,4-D in Aqueous Solution by Fe ₃ O ₄ -Stabilized Nanoscale Pd/Fe	ZHOU Hong-yi, LIANG Si, ZENG Si-si, <i>et al.</i> (4311)
Comparative Study on Adsorption Behaviors of Natural Organic Matter by Powered Activated Carbons with Different Particle Sizes	LI Zheng-jian, SHI Bao-you, WANG Dong-sheng (4319)
Removal of Nitrate from Aqueous Solution Using Cetylpyridinium Chloride (CPC)-Modified Activated Carbon as the Adsorbent	ZHENG Wen-jing, LIN Jian-wei, ZHAN Yan-hui, <i>et al.</i> (4325)
Adsorption Properties of Modified Graphene for Methylene Blue Removal from Wastewater	WU Yan, LUO Han-jin, WANG Hou, <i>et al.</i> (4333)
Application of Classical Isothermal Adsorption Models in Heavy Metal Ions/Diatomite System and Related Problems	ZHU Jian, WU Qing-ding, WANG Ping, <i>et al.</i> (4341)
Effects of Nitrate on Anoxic/Anaerobic Oxidation of Methane in the Aged Refuse	LIU Yan-yan, LONG Yan, YIN Hua, <i>et al.</i> (4349)
Study on the Biotransformation of Sulfate and Ammonia in Anaerobic Conditions	ZHANG Li, HUANG Yong, YUAN Yi, <i>et al.</i> (4356)
Characteristics of Sulfate Reduction-Ammonia Oxidation Reaction	YUAN Yi, HUANG Yong, LI Xiang, <i>et al.</i> (4362)
Analysis of Hydrogen-production Performance in a UASB System at Low pH	ZHAO Jian-hui, ZHANG Bai-hui, LI Ning, <i>et al.</i> (4370)
Preparation of Red Mud Loaded Co Catalysts; Optimization Using Response Surface Methodology (RSM) and Activity Evaluation	LI Hua-nan, XU Bing-bing, QI Fei, <i>et al.</i> (4376)
Toxic Effects of High Concentrations of Ammonia on <i>Euglena gracilis</i>	LIU Yan, SHI Xiao-rong, CUI Yi-bin, <i>et al.</i> (4386)
Influence of Image Process on Fractal Morphology Characterization of NAPLs Vertical Fingering Flow	LI Hui-ying, DU Xiao-ming, YANG Bin, <i>et al.</i> (4392)
Changing Characteristics of Organic Matter and pH of Cultivated Soils in Zhejiang Province over the Last 50 Years	ZHANG Ming-kui, CHANG Yue-chang (4399)
Study on Selenium Contents of Typical Selenium-rich Soil in the Middle Area of Zhejiang and Its Influencing Factors	HUANG Chun-lei, SONG Ming-yi, WEI Ying-chun (4405)
Spatial Distribution Characteristics of Fe and Mn Contents in the New-born Coastal Marshes in the Yellow River Estuary	SUN Wen-guang, GAN Zhuo-ting, SUN Zhi-gao, <i>et al.</i> (4411)
Level, Composition and Sources of Medium-Chain Chlorinated Paraffins in Soils from Chongming Island	SUN Yang-zhao, WANG Xue-tong, ZHANG Yuan, <i>et al.</i> (4420)
Distribution Characteristics of Organochlorine Pesticides in Soil from Daiyun Mountain Range in Fujian, China	QU Cheng-kai, QI Shi-hua, ZHANG Li, <i>et al.</i> (4427)
Levels of PCDD/Fs and Dioxin-Like PCBs in Soils Near E-Waste Dismantling Sites	SHAO Ke, YIN Wen-hua, ZHU Guo-hua, <i>et al.</i> (4434)
Chemical Form Changes of Exogenous Water Solution Fluoride and Bioavailability in Tea Garden Soil	CAI Hui-mei, PENG Chuan-yi, CHEN Jing, <i>et al.</i> (4440)
Effects of Arbuscular Mycorrhizal Fungi on the Vegetation Restoration of Different Types of Coal Mine Spoil Banks	ZHAO Ren-xin, GUO Wei, FU Rui-ying, <i>et al.</i> (4447)
Effects of the Arbuscular Mycorrhizal Fungi on Environmental Phytoremediation in Coal Mine Areas	LI Shao-peng, BI Yin-li, KONG Wei-ping, <i>et al.</i> (4455)
Preliminary Analysis of Manganese Uptake Mechanism in the Hyperaccumulator <i>Phytolacca americana</i> L.	XU Xiang-hua, LI Ren-ying, LIU Cui-ying, <i>et al.</i> (4460)
Research on the Bioaccessibility of HgS by <i>Shewanella oneidensis</i> MR-1	CHEN Yan, WANG Hui, SI You-bin (4466)
Study on IEUBK Model Localization Based on Behavior Parameters of Children from Southwestern China	JIANG Bao, CUI Xiao-yong (4473)
Sorption and Desorption Characteristics of Different Structures of Organic Phosphorus onto Aluminum (Oxyhydr) Oxides	LIU Fei, ZHANG Yan-yi, YAN Yu-peng, <i>et al.</i> (4482)
Study on the Occurrence of Ferrum in Coal by Ultrasound-assisted Sequential Chemical Extraction	XIONG Jin-yu, LI Han-xu, DONG Zhong-bing, <i>et al.</i> (4490)
A Review of Uptake, Translocation and Phytotoxicity of Engineered Nanoparticles in Plants	YANG Xin-ping, ZHAO Fang-Jie (4495)

《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)

2013年11月15日 34卷 第11期

ENVIRONMENTAL SCIENCE

(Monthly Started in 1976)

Vol. 34 No. 11 Nov. 15, 2013

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