

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, 周锋, 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)	

Shewanella oneidensis MR-1 对硫化汞的生物利用性研究

陈艳, 王卉, 司友斌*

(安徽农业大学资源与环境学院, 合肥 230036)

摘要: 在实验室模拟条件下, 研究了铁还原菌奥奈达希瓦氏菌 *Shewanella oneidensis* MR-1 对固态硫化汞的生物溶解、生物甲基化作用及其影响因素。结果表明, 铁还原菌 *S. oneidensis* MR-1 在含硫培养基中生长良好, 低浓度硫素能够促进其生长, 高浓度时细菌生长则受到抑制, 这种抑制主要表现在菌株生长曲线迟缓期的延长; 铁还原菌 *S. oneidensis* MR-1 能够利用固态硫化汞, 促进其溶解并迅速进行汞甲基化; 在 *S. oneidensis* MR-1 的耐硫化物范围内, 菌株对硫化汞的生物溶解作用随着硫化钠浓度的增大而增强, 但生物甲基化作用只在低浓度硫化钠时受到促进, 硫化钠浓度过高时则会受到抑制; 此外, 弱酸性环境比酸性及中碱性的环境更有利于 *S. oneidensis* MR-1 对硫化汞的生物溶解及甲基化。

关键词: 铁还原菌; 硫化汞; 生物溶解性; 汞甲基化; 硫化物

中图分类号: X172 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2013)11-4466-07

Research on the Bioaccessibility of HgS by *Shewanella oneidensis* MR-1

CHEN Yan, WANG Hui, SI You-bin

(School of Resources and Environment, Anhui Agricultural University, Hefei 230036, China)

Abstract: The biological dissolution and methylation of solid HgS by *Shewanella oneidensis* MR-1 and influenced factors under laboratory conditions were studied. Results showed that *S. oneidensis* MR-1 could grow well at the low concentration of Na₂S, but its growth was inhibited at the high concentration of Na₂S, which mainly happened in the prolonged lag phase. Iron reducing bacteria *S. oneidensis* MR-1 could access the solid mercuric sulfide, and rapidly promote the biological dissolution and methylation of HgS. In the appropriate range of sulfide to *S. oneidensis* MR-1, the biological solubility of HgS was enhanced with the increasing concentration of Na₂S, but the methylation just promoted at the low Na₂S concentration, and it would be inhibited when the concentration is high. In addition, weakly acidic environment was more beneficial to biological dissolution and methylation of HgS than acidic, neutral or alkaline conditions by *S. oneidensis* MR-1.

Key words: iron reducing bacteria; HgS; biological dissolution; mercury methylation; sulfide

环境中汞能够转化为毒性更强的甲基汞, 经食物链传递危害人类健康, 汞的甲基化作用一直受到人们的广泛关注, 其中生物甲基化是甲基汞生成的主要方式。微生物甲基化主要发生在厌氧的环境中, 如沉积物、土壤和沉积物-水界面。Fleming 等^[1]从富含铁的河流沉积物中分离出铁还原菌株 *Geobacter* sp. strain CLFeRB, 并发现在纯培养时该菌株汞甲基化能力与硫酸盐还原菌相当^[2]。由此, 铁还原菌 (FeRB) 对汞的甲基化作用成为近年来生物地球化学研究的重点和热点。奥奈达希瓦氏菌 (*S. oneidensis* MR-1) 属于革兰氏染色阴性兼性厌氧细菌, 是最先被阐明通过 Fe(III) 还原使有机物氧化获得生长所需能量的细菌, 它在淡水沉积物、海湾沉积物和其他各种环境中广泛存在, 能利用包括氧气在内的多种电子受体, 如铁 (III)、铬 (VI)、铀 (VI)、硝酸盐、亚硝酸盐等, 进行产能代谢和电子传递, 并进行各种污染物的转化, 如苯、甲苯、苯甲酸等。根据细菌 16S rRNA 基因的系统分析法, *S. oneidensis* MR-1 已被认定为 γ -变形菌门的亚群^[3]。

汞 (Hg) 俗称水银, 单质汞较少存在于自然界中, 主要是以硫化汞 (HgS) 的形态存在, 这种化合物亦称为汞砂, 即不可溶的含汞化合物, 在土壤和自然沉积物中广泛存在。已有很多研究探讨了 Hg²⁺、硫化物、有机物质之间的相互作用, 特别是 Hg²⁺ 在水环境中的转化^[4-6], 以及一些汞污染沉积物中的生物利用性^[7-9]。但是关于铁还原菌 *S. oneidensis* MR-1 生物利用固态硫化汞的研究却相对较少。在含硫化物的沉积物中, 汞砂是否限制着汞元素由固相到水相的迁移扩散, 是否能在微生物的作用下进行生物甲基化成为沉积物中甲基汞污染的持续来源, 却鲜有报道。

本研究通过对铁还原菌 *S. oneidensis* MR-1 进行纯培养, 在实验室模拟条件下, 探讨了 *S. oneidensis* MR-1 对固态硫化汞的生物溶解和甲基化

收稿日期: 2013-02-02; 修订日期: 2013-04-17

基金项目: 国家自然科学基金项目 (40971182, 41171254)

作者简介: 陈艳 (1987~), 女, 硕士研究生, 主要研究方向为环境污染防治, E-mail: chenyan_China@163.com

* 通讯联系人, E-mail: ybsi2002@yahoo.com.cn

作用,以及环境因素如 pH、共存硫离子含量等对汞甲基化的影响,以期对沉积物中汞污染防治提供科学依据。

1 材料与方法

1.1 实验材料

硫化汞 (HgS), 甲基汞 (MeHg), 纯度 95% 以上, 均购于 Merck 公司。 MeHg 溶于甲醇的 $1000 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 贮备液, 置于 4°C 冰箱中用棕色瓶保存, 所需稀溶液用超纯水依次逐级稀释。 四丁基溴化铵 (TBABr), 纯度 $\geq 99\%$, 水为 Mili-Q 超纯水, 其它试剂均为分析纯。

菌种来源: *S. oneidensis* MR-1 由西北农林科技大学土壤微生物实验室提供。

LB 富集培养基 ($\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$): 牛肉膏 5.0, 蛋白胨 10.0, NaCl 5.0, $\text{pH} = 7.0$; 固体培养基再按 1.5% ~ 2% 的比例加入琼脂粉, 121°C 灭菌 30 min。

1.2 实验方法

在无菌操作条件下, 将 1 mL *S. oneidensis* MR-1 菌悬液接种至含有 1 mg HgS 的液体培养基中, 形成含 HgS 悬浮液, 溶液总体积为 20 mL ; 设计不同影响因素如初始 pH、硫化钠浓度等对硫化汞溶解和甲基化的影响, 充氮厌氧处理后, 棕色瓶中恒温避光静置培养。 培养时间为 14 d, 分别于 0、0.5、1、2、3、4、5、6、7、9、11、13、14 d 取样, 测定溶解态汞浓度及甲基汞含量。 实验同时以不加 *S. oneidensis* MR-1 菌悬液作为对照。 每处理 3 次重复。

1.3 样品处理与汞的测定

样品经过 $4000 \text{ r} \cdot \text{min}^{-1}$ 离心分离后, 测定上清液中无机汞、甲基汞和总汞的含量。

1.3.1 无机汞和甲基汞的测定

上清液样品经 25% KOH /甲醇溶液提取后, 用 $0.22 \mu\text{m}$ 滤膜过滤, 再加入 $0.05 \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$ TBABr 溶液混合衍生成络合物, 然后进样测定。

无机汞和甲基汞的测定采用 Agilent 1100 高效液相色谱仪, 配可变波长紫外检测器和 HP 化学工作站。

色谱操作条件^[10]: C18 Hypersil ODS 色谱柱 ($4.6 \text{ mm} \times 150 \text{ mm}$, $5 \mu\text{m}$), 流动相为含 $0.01 \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$ TBABr 和 $0.025 \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$ NaCl 的水溶液: 甲醇 = 45 : 55 (体积比), 柱温 35°C , 流速 $1.0 \text{ mL} \cdot \text{min}^{-1}$, 检测波长为 225 nm , 进样量为 $20 \mu\text{L}$ 。

1.3.2 溶液中总汞的测定

采用 AFS-230E 型双道氢化物发生原子荧光

(北京科创海光仪器有限公司)。 样品经 $4000 \text{ r} \cdot \text{min}^{-1}$ 离心 15 min, 用 $0.22 \mu\text{m}$ 滤膜过滤后, 进行消解^[11]; 加入 1.5 mL 硫酸, 1.5 mL (1 + 1) 硝酸, 4 mL 5% 高锰酸钾, 4 mL 5% 过硫酸钾, 补充适量去离子水约至 50 mL , 置沸水浴中 1 h。 临近测定时, 边摇边滴加 20% 盐酸羟胺溶液直到刚好使过剩高锰酸钾褪色及二氧化锰全部溶解为止, 最后上机测定。

双道氢化物发生原子荧光操作条件^[12]: 空心阳极汞电流强度为 24 mA , 仪器的负高压为 280 V , 载气流氩气流速为 $400 \text{ mL} \cdot \text{min}^{-1}$, 载流中硝酸浓度为 2%, 氢氧化钾的浓度为 $10 \text{ g} \cdot \text{L}^{-1}$, 硼氢化钾浓度为 $5 \text{ g} \cdot \text{L}^{-1}$ 。

2 结果与分析

2.1 *S. oneidensis* MR-1 在含硫培养基上的生长曲线

由图 1 可以得知 30°C , $\text{pH} 7.0$ 的条件下, *S. oneidensis* MR-1 在硫化钠浓度为 $0 \sim 3.0 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 范围内可以正常生长, 菌落数 (CFU) 都在 $160 \text{ CFU} \cdot \text{mL}^{-1}$ 以上, 当培养基中硫化钠浓度为 0.5 、 1.0 、 $2.0 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 时, 培养基上的菌落数略大于未添加硫化物培养基菌落数, 说明一定浓度的硫化物对菌体生长有一定的促进作用。 当硫化物浓度大于 $3 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 时, 固体培养基上的菌落明显减少, 其中浓度为 $3.1 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 和 $3.2 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 时, 固体培养基上的菌落数仅为 $83 \text{ CFU} \cdot \text{mL}^{-1}$ 、 $41 \text{ CFU} \cdot \text{mL}^{-1}$, 而浓度为 $3.4 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 时菌体即无法生存, 说明 *S. oneidensis* MR-1 对硫化物具有一定的耐受性, 超过这一限值即对菌体具有毒害作用。

由图 2 可知相同的实验条件下, *S. oneidensis* MR-1 在培养的第 20 h 达到对数生长期, 由此可知, *S. oneidensis* MR-1 在适宜的生长环境下菌株生长

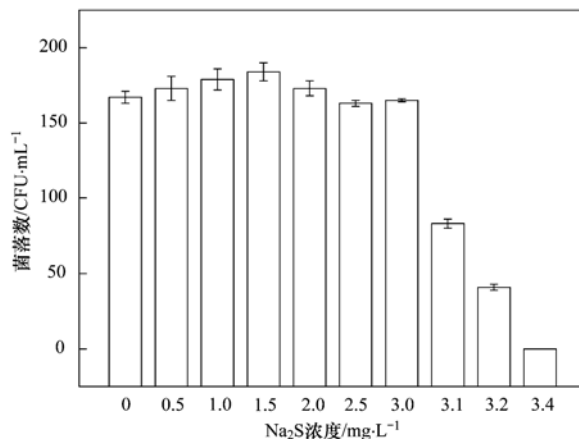


图 1 *S. oneidensis* MR-1 在含硫培养基上的菌落数

Fig. 1 Bacterial colony of *S. oneidensis* MR-1 on sulfide medium

较快,且具有较高的活性.而硫化物的加入对 *S. oneidensis* MR-1 具有一定程度的抑制作用,这种抑制主要体现在生长曲线迟缓期的延长. *S. oneidensis* MR-1 在 $3 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ Na_2S 环境中生长迟缓期比原来延长了约 8 h,可能是因为一定浓度的 S^{2-} 对菌体具有一定程度的抑制作用,但对于对数生长期时间没有明显影响,最大生长量也较为接近.这也说明 *S. oneidensis* MR-1 能在一定浓度 Na_2S 的环境中良好生长.

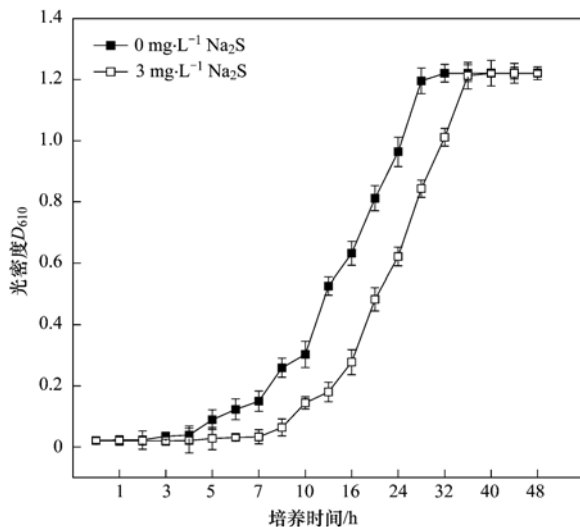


图2 硫化物对 *S. oneidensis* MR-1 生长的影响

Fig. 2 Effects of Na_2S concentration on the growth of *S. oneidensis* MR-1

2.2 *S. oneidensis* MR-1 对 HgS 生物溶解和生物甲基化动力学

在 *S. oneidensis* MR-1 作用下,上清液离子汞、甲基汞和总汞的浓度随时间的变化趋势如图 3 所示.其中上清液中测得的总汞浓度约等于离子汞和甲基汞浓度之和.在不加 *S. oneidensis* MR-1,其他条件相同时,上清液中检测到的溶解态汞浓度极小,而加菌后检测到的上清液溶解态汞浓度达到 $2.221 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$.因此, *S. oneidensis* MR-1 的存在明显促进了固态硫化汞在含硫化物溶液中的溶解. Graham 等^[13]在其实验中也证实了微生物 *Desulfovibrio desulfuricans* 对纳米 HgS 颗粒的生物利用性.

由图 3 可知,甲基汞最大值的产生早于上清液中溶解态汞浓度最大值的产生,这说明甲基汞的生成除了与上清液中汞化合物的浓度相关外,还与上清液中汞化合物的形态相关^[14,15].初始时,菌体活性较高,上清液中可溶态的无电荷粒子 HgS^0 浓度较大,微生物能够顺利进行甲基化^[16-18],使上清液中

甲基汞浓度迅速增大;随着上清液中 HgS^0 的消耗,上清液中易被菌体利用的无电荷含汞化合物减少,且随着上清液中溶解态总汞浓度的增大,对菌体产生一定的毒害作用,使甲基化速率减小,而上清液中甲基汞的含量降低可能是因为无机汞、甲基汞挥发,或者是甲基汞与菌体内某些含硫的物质相结合^[19],无法及时排出菌体外.这时上清液中溶解态总汞浓度也随之下降;当反应进行到第 9 d 时,上清液中总汞和甲基汞的浓度不再变化,达到平衡.

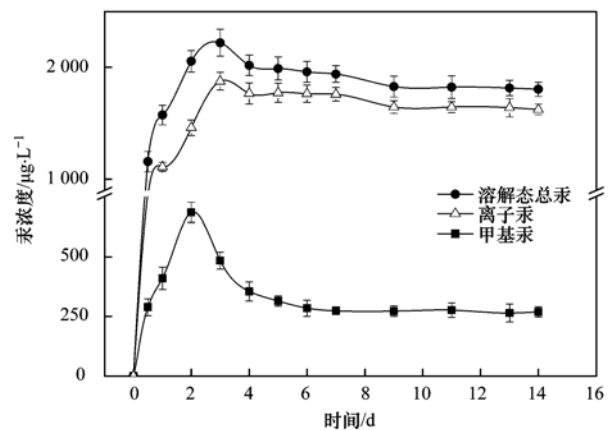


图3 *S. oneidensis* MR-1 对溶液中 HgS 甲基化动力学

Fig. 3 Dynamics of HgS methylation by *S. oneidensis* MR-1

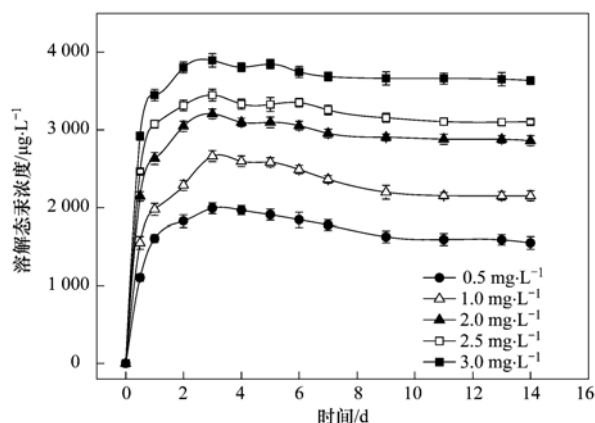
2.3 *S. oneidensis* MR-1 对 HgS 的生物溶解作用

2.3.1 不同浓度 Na_2S 对 *S. oneidensis* MR-1 溶解 HgS 的影响

当温度为 30°C , pH 7.0, 硫化钠浓度分别为 0.5、1.0、2.0、2.5、3.0 $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 时,上清液中总汞浓度随时间的变化趋势如图 4 所示.上清液中溶解态总汞浓度随着硫化钠浓度的增大而增加,并在第 3 d 时达到最大值,当硫化钠浓度为 $3 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 时,上清液中总汞浓度最大值为 $3.896 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$,在第 4~8 d 时,有略微下降的趋势,其可能是因为 *S. oneidensis* MR-1 利用上清液中溶解态汞化合物进行甲基化后,无机汞和甲基汞挥发所致,并在第 9 d 时达到平衡.

2.3.2 不同初始 pH 对 *S. oneidensis* MR-1 溶解 HgS 的影响

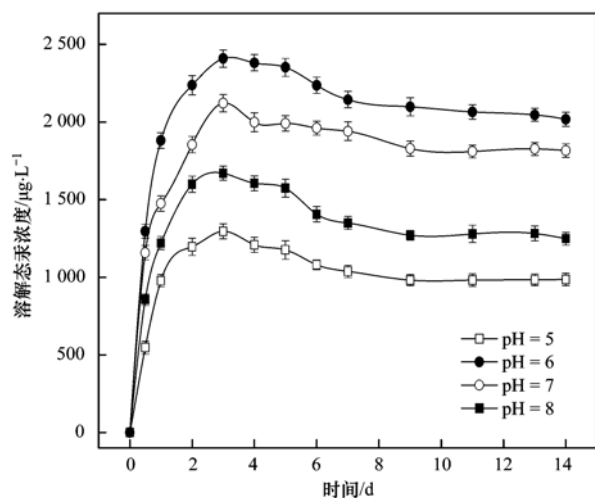
在其他条件相同,初始 pH 为 5.0、6.0、7.0、8.0 时,在 *S. oneidensis* MR-1 作用下,硫化汞的溶解量随时间的变化如图 5 所示.当初始 pH 6.0 时,上清液中溶解态汞浓度最大,为 $2.408 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$,pH 5.0 时,上清液中溶解态的汞浓度最小,仅为 $1.296 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$,其次为 pH 7.0 和 pH 8.0,说明不同的 pH 值显著影响上清液中溶解态的汞浓度,其中偏酸和

图4 不同浓度 Na_2S 对 *S. oneidensis*

MR-1 生物溶解 HgS 的影响

Fig. 4 Effects of Na_2S concentration on HgS biological dissolution by *S. oneidensis* MR-1

偏碱性环境都不利于微生物对固态硫化汞的溶解. 另外, 低 pH 的环境不利于硫化钠在溶液中的稳定存在, 因 Na_2S 易与酸生成 H_2S 而使溶液中 Na_2S 浓度减少, 从而影响 *S. oneidensis* MR-1 对固态硫化汞的溶解.

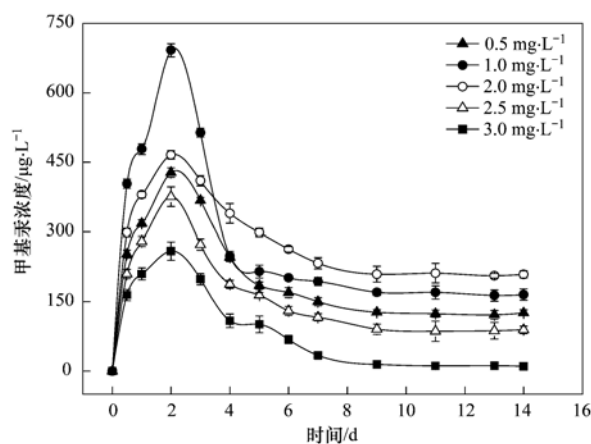
图5 不同初始 pH 对 *S. oneidensis* MR-1 生物溶解 HgS 的影响Fig. 5 Effects of initial pH value on HgS biological dissolution by *S. oneidensis* MR-1

2.4 *S. oneidensis* MR-1 对 HgS 的生物甲基化作用

2.4.1 不同浓度 Na_2S 对 *S. oneidensis* MR-1 生物甲基化 HgS 的影响

当温度 30°C , pH = 7.0, 硫化汞 1 mg , 菌悬液 1 mL , 硫化钠浓度分别为 0.5 、 1.0 、 2.0 、 2.5 、 $3.0\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 时, 上清液中汞浓度随时间的变化趋势如图 6 所示. 在上清液中溶解态汞产生的同时, 也检测出甲基汞的存在, 并且甲基汞含量在第 2 d 即达到

最大值, 之后含量随时间而逐步下降. 其中, 当硫化钠浓度为 $1\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 时, *S. oneidensis* MR-1 对汞的甲基化量最大, 为 $692.160\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$, 硫化钠在 $0.5\sim 1.0\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 时, 上清液甲基汞呈上升的趋势, 硫化钠浓度在 $2.0\sim 3.0\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 时, 上清液中甲基汞呈下降的趋势. 在第 $0\sim 2\text{ d}$ 时上清液中甲基汞浓度迅速升高是因为菌体可以利用上清液中溶解态汞化合物进行生物甲基化产生大量甲基汞, 在第 $2\sim 9\text{ d}$ 时上清液中甲基汞随时间逐步降低, 有可能是因为溶液中甲基汞挥发所致, 或者是因为甲基汞具有很强的亲脂性, 能够进入菌体内与细胞内某些含硫物质相结合^[19], 而导致上清液中甲基汞浓度降低. 另外, 随着上清液中甲基汞的累积, 对菌体产生一定的毒害作用, 使菌体活性降低, 甲基化速率降低, 至第 9 d 时, 上清液中溶解态汞和甲基汞浓度达到平衡.

图6 不同浓度 Na_2S 对 *S. oneidensis*

MR-1 生物甲基化 HgS 的影响

Fig. 6 Effects of Na_2S concentration on HgS biological methylation by *S. oneidensis* MR-1

2.4.2 不同初始 pH 对 *S. oneidensis* MR-1 生物甲基化 HgS 的影响

初始 pH 分别为 5.0 、 6.0 、 7.0 、 8.0 , 硫化钠浓度为 $1\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 时, 在 *S. oneidensis* MR-1 作用下, 上清液中甲基汞含量随时间的变化趋势如图 7 所示. 上清液中甲基汞含量与溶解态总汞浓度(图 5)变化趋势相一致, 当 pH 6.0 时, 上清液中甲基汞含量最高, 为 $708.830\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$, 转化率达到最大值. 不同 pH 值下, 甲基汞含量都在第 2 d 达到最高值; 同样, 偏酸和偏碱的环境都不利于微生物的甲基化, 因为甲基汞的变化趋势和上清液中总汞浓度及汞化合物形态密切相关. 很多学者发现, 酸性水体中的鱼体内甲基汞含量偏高^[20,21] 通常认为酸性条件有利于甲基汞的形成, 但过酸的环境会影响微生物对汞的

吸收而影响甲基化效率,而碱性条件也不利于甲基汞的生成^[22].

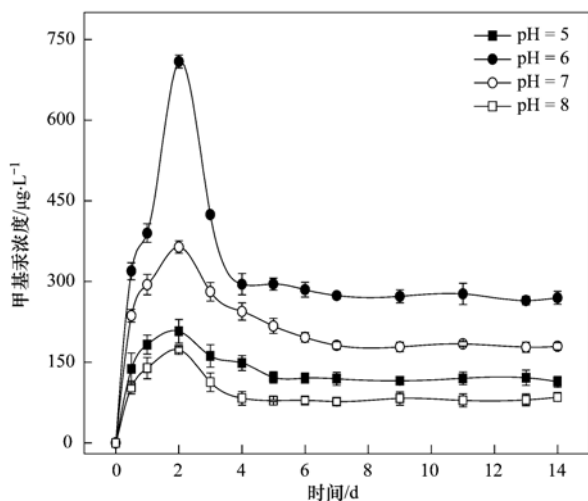


图7 不同初始 pH 对 *S. oneidensis* MR-1 生物甲基化 HgS 的影响

Fig. 7 Effects of initial pH value on HgS biological methylation by *S. oneidensis* MR-1

3 讨论

S. oneidensis MR-1 加入后,上清液中测得的溶解态汞浓度达到 $2.0 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 以上,远远大于未加菌时的汞浓度,说明 *S. oneidensis* MR-1 能够明显促进固态硫化物的溶解. 有相关研究表明 *S. oneidensis* MR-1 能够利用 $\text{S}_2\text{O}_3^{2-}$, $\text{S}_4\text{O}_6^{2-}$, SO_3^{2-} 和单质 S 作为最终电子受体^[23~25],生成 H_2S 排出体外. 另外, Brunner 等^[26]也提出菌体利用硫化物代谢的主要途径,如异化硫还原菌能够将亚硫酸盐还原为硫化物,是通过三磺酸盐途径,且反应是高度可逆的,他们也提出猜想,这种可逆性可以延伸到硫酸盐和硫化物之间相互转化的所有途径. 与这一猜想相一致的是有研究证明异化硫还原菌 *Desulfobacter latus* 能够将硫化物再氧化而获得能量的储存^[27]. 因此 *S. oneidensis* MR-1 对硫化汞具有促溶作用是因为菌体能够利用上清液中可溶态的含汞化合物,如 $\text{Hg}(\text{SH})_2^0$ 、 HgS^0 、 HgS_2^{2-} 、 HgS_2H^- 等^[14,28~32]. 其中的生物机制可能是因为菌体内已证实存在的硫代硫酸盐还原酶^[25]和亚硫酸盐还原酶^[33]具有可逆性,能够将硫化汞氧化后,将它们作为电子受体氧化有机质获得能量,促进自身细胞生长代谢;也可能是铁还原菌本身能够分泌某种特殊的螯合剂促进硫化汞的生物溶解;另外, S^{2+} 浓度、pH 的变化,也一定程度上影响了化学平衡的进行,促进了 HgS 的溶解.

S. oneidensis MR-1 可以迅速利用上清液中溶解态汞,这与上清液中汞形态密切相关. 在一定浓度的硫化物范围内,溶解态的 HgS^0 决定着含汞矿物质中汞的生物利用性^[34]. 在缺氧的环境介质中,中性的汞的氯化物 HgCl_2 与带负电荷离子的 HgCl_3^- 以及汞有机质络合物相比较,更有利于微生物的转化利用^[17];在湖底沉积物中,孔隙水中的总汞含量和中性的硫化汞粒子的浓度呈正相关,并且溶液中 $\text{Hg}(\text{SH})_2^0$ 和 HgS^0 的总量和沉积物中甲基汞的含量呈正相关^[8];同样,湖泊河口沉积物中甲基汞含量也是因溶解态 HgS^0 浓度的减少而减少^[14]. 如图 6 所示,在不同浓度硫化钠范围内,甲基汞浓度的变化趋势不同. 原因一是固态硫化汞在低浓度硫化钠溶液中的主要形式是溶解态的 HgS^0 ,随硫化物浓度升高时,溶解态的 HgS^0 浓度降低,而溶液中离子态 HgS_2H^- 浓度升高,不利于菌体对汞的转化利用^[34]. 这种情况也曾用来解释佛罗里达沼泽地和帕塔克森特河口^[14,36]中甲基汞浓度变化的趋势. 原因二是因为 Na_2S 浓度在 $0.5 \sim 1.0 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 范围时,上清液中溶解态汞浓度为 $1.118 \sim 2.662 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$,*S. oneidensis* MR-1 在这个范围内活性较高,甲基化效率较好;而 Na_2S 浓度在 $2.0 \sim 3.0 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 范围时,上清液中总汞浓度在 $2.849 \sim 3.896 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$,*S. oneidensis* MR-1 在这个汞浓度范围内微生物活性受到一定程度的抑制作用,甲基化率降低.

4 结论

(1) *S. oneidensis* MR-1 能够在含硫培养基中正常生长,但当硫化钠浓度超过 $3.0 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 时,菌株的生长受到严重抑制,生长量明显减少,至 $3.4 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 时便无法生存.

(2) 在厌氧的环境下,*S. oneidensis* MR-1 可以促进固态 HgS 的生物溶解,并能够迅速进行汞甲基化.

(3) 在 *S. oneidensis* MR-1 的耐硫范围内,菌株对硫化汞的生物溶解作用随硫化物浓度的增大而增强;硫化汞的生物甲基化作用在低浓度硫化物范围内具有促进作用,高浓度时则受到抑制作用;其中弱酸性 (pH 6.0) 比酸性和中碱性的环境更有利于 *S. oneidensis* MR-1 对硫化汞的生物溶解及生物甲基化;当 pH 6.0,硫化钠浓度为 $1.0 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 时,*S. oneidensis* MR-1 对 HgS 的甲基化率最高.

参考文献:

- [1] Fleming E J, Mack E E, Green P G, *et al.* Mercury methylation from unexpected sources: Molybdate-inhibited freshwater sediments and an iron-reducing bacterium [J]. *Applied and Environmental Microbiology*, 2006, **72**(1): 457-464.
- [2] Gilmour C C, Henry E A, Mitchell R. Sulfate stimulation of mercury methylation in freshwater sediments [J]. *Environmental Science & Technology*, 1992, **26**(11): 2281-2287.
- [3] Kato C, Nogi Y. Correlation between phylogenetic structure and function: examples from deep-sea *Shewanella* [J]. *FEMS Microbiology Ecology*, 2006, **35**(3): 223-230.
- [4] Waples J S, Nagy K L, Aiken G R, *et al.* Dissolution of cinnabar (HgS) in the presence of natural organic matter [J]. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 2005, **69**(6): 1575-1588.
- [5] Slowey A J, Johnson S B, Rytuba J J, *et al.* Role of organic acids in promoting colloidal transport of mercury from mine tailings [J]. *Environmental Science & Technology*, 2005, **39**(20): 7869-7874.
- [6] Merritt K A, Amirbahman A. Mercury dynamics in sulfide-rich sediments: Geochemical influence on contaminant mobilization within the Penobscot River estuary, Maine, USA [J]. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 2007, **71**(4): 929-941.
- [7] Lambertsson L, Nilsson M. Organic material: the primary control on mercury methylation and ambient methyl mercury concentrations in estuarine sediments [J]. *Environmental Science & Technology*, 2006, **40**(6): 1822-1829.
- [8] Drott A, Lambertsson L, Björn E, *et al.* Importance of dissolved neutral mercury sulfides for methyl mercury production in contaminated sediments [J]. *Environmental Science & Technology*, 2007, **41**(7): 2270-2276.
- [9] Miller C L, Mason R P, Gilmour C C, *et al.* Influence of dissolved organic matter on the complexation of mercury under sulfidic conditions [J]. *Environmental Toxicology & Chemistry*, 2007, **26**(4): 624-633.
- [10] Ho Y S, Uden P C. Determination of inorganic Hg (II) and organic mercury compounds by ion-pair high-performance liquid chromatography [J]. *Journal of Chromatography A*, 1994, **688**(1): 107-116.
- [11] 黄志勇, 黄志陶, 张强, 等. 原子荧光光谱法测定环境水及土壤样品中的汞形态含量 [J]. *光谱学与光谱分析*, 2008, **27**(11): 2361-2366.
- [12] 袁爱萍, 唐艳霞, 黄玉龙, 等. 氢化物-原子荧光法测定锑精矿中痕量砷、汞的研究 [J]. *光谱学与光谱分析*, 2006, **26**(8): 1553-1556.
- [13] Graham A M, Aiken G R, Gilmour C C. Dissolved organic matter enhances microbial mercury methylation under sulfidic conditions [J]. *Environmental Science & Technology*, 2012, **46**(2): 2715-2723.
- [14] Benoit J M, Gilmour C C, Mason R P, *et al.* Sulfide controls on mercury speciation and bioavailability to methylating bacteria in sediment pore waters [J]. *Environmental Science & Technology*, 1999, **33**(6): 951-957.
- [15] Benoit J M, Gilmour C C, Mason R P. Aspects of bioavailability of mercury for methylation in pure cultures of *Desulfobulbus propionicus* (1pr3) [J]. *Applied and Environmental Microbiology*, 2001, **67**(1): 51-58.
- [16] Mason R P, Reinfelder J R, Morel F M M. Uptake, toxicity, and trophic transfer of mercury in a coastal diatom [J]. *Environmental Science & Technology*, 1996, **30**(6): 1835-1845.
- [17] Barkay T, Gillman M, Turner R R. Effects of dissolved organic carbon and salinity on bioavailability of mercury [J]. *Applied and Environmental Microbiology*, 1997, **63**(11): 4267-4271.
- [18] Jay J A, Morel F M M, Hemond H F. Mercury speciation in the presence of polysulfides [J]. *Environmental Toxicology & Chemistry*, 2000, **34**(11): 2196-2200.
- [19] Stoor R W, Hurley J P, Babiarz C L, *et al.* Subsurface sources of methyl mercury to Lake Superior from a wetland-forested watershed [J]. *Science of the Total Environment*, 2006, **368**(1): 99-110.
- [20] Scheider W A, Hayton C C A, Hitchin G, *et al.* Current status and temporal trends in concentrations of persistent toxic substances in sport fish and juvenile forage fish in the Canadian waters of the Great Lakes [J]. *Environmental Monitoring and Assessment*, 1998, **53**(1): 57-76.
- [21] Harris H H, Pickering I J, George G N. The chemical form of mercury in fish [J]. *Science*, 2003, **301**(5637): 1203-1203.
- [22] Fitzgerald W F, Mason R P, Vandal G M. Atmospheric cycling and air-water exchange of mercury over mid-continental lacustrine regions [J]. *Water, Air, & Soil Pollution*, 1991, **56**(1): 745-767.
- [23] Perry K A, Kostka J E, Luther D W, *et al.* Mediation of sulfur speciation by a Black Sea facultative anaerobe [J]. *Science*, 1993, **259**(5096): 801-803.
- [24] Moser D P, Nealson K H. Growth of the facultative anaerobe *Shewanella putrefaciens* by elemental sulfur reduction [J]. *Applied and Environmental Microbiology*, 1996, **62**(6): 2100-2105.
- [25] Burns J L, DiChristina T J. Anaerobic respiration of elemental sulfur and thiosulfate by *Shewanella oneidensis* MR-1 requires *psrA*, a homolog of the *phsA* gene of *Salmonella enterica* serovar typhimurium LT2 [J]. *Applied and Environmental Microbiology*, 2009, **75**(16): 5209-5217.
- [26] Brunner B, Bernasconi S M. A revised isotope fractionation model for dissimilatory sulfate reduction in sulfate reducing bacteria [J]. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 2005, **69**(20): 4759-4771.
- [27] Eckert T, Brunner B, Edwards E A, *et al.* Microbially mediated re-oxidation of sulfide during dissimilatory sulfate reduction by *Desulfobacter latus* [J]. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 2011, **75**(12): 3469-3485.
- [28] Benoit J M, Mason R P, Gilmour C C. Estimation of mercury-sulfide speciation in sediment pore waters using octanol-water

- partitioning and implications for availability to methylating bacteria[J]. *Environmental Toxicology & Chemistry*, 1999, **18** (10): 2138-2141.
- [29] Tossell J A. Calculation of the structures, stabilities, and properties of mercury sulfide species in aqueous solution[J]. *The Journal of Physical Chemistry A*, 2001, **105**(5): 935-941.
- [30] Paquette K E, Helz G R. Inorganic speciation of mercury in sulfidic waters: The importance of zero-valent sulfur [J]. *Environmental Science & Technology*, 1997, **31** (7): 2148-2153.
- [31] Bell A M T, Charnock J M, Helz G R, *et al.* Evidence for dissolved polymeric mercury (II)-sulfur complexes? [J]. *Chemical Geology*, 2007, **243**(1-2): 122-127.
- [32] Lennie A R, Charnock J M, Patrick R A D. Structure of mercury (II)-sulfur complexes by EXAFS spectroscopic measurements[J]. *Chemical Geology*, 2003, **199**(3-4): 199-207.
- [33] Shirodkar S, Reed S, Romine M, *et al.* The octahaem SirA catalyses dissimilatory sulfite reduction in *Shewanella oneidensis* MR-1 [J]. *Environmental Microbiology*, 2011, **13** (1): 108-115.
- [34] Benoit J M, Gilmour C C, Mason R P. The influence of sulfide on solid-phase mercury bioavailability for methylation by pure cultures of *desulfobulbus propionicus* (1pr3) [J]. *Environmental Science & Technology*, 2001, **35**(1): 127-132.
- [35] Jay J A, Murray K J, Gilmour C C, *et al.* Mercury methylation by *Desulfovibrio desulfuricans* ND132 in the presence of polysulfides [J]. *Applied and Environmental Microbiology*, 2002, **68**(11): 5741-5745.
- [36] Benoit J M, Gilmour C C, Mason R P, *et al.* Behavior of mercury in the Patuxent River estuary [J]. *Biogeochemistry*, 1998, **40**(2-3): 249-265.

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