

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第38卷 第7期

Vol.38 No.7

2017

中国科学院生态环境研究中心 主办
科学出版社 出版



目次

基于船载走航气溶胶质谱技术的海洋气溶胶研究	颜金培, 陈立奇, 林奇, 赵淑惠, 李磊, 朱大勇 (2629)
利用 MODIS C6 数据分析中国西北地区气溶胶光学厚度时空变化特征	赵仕伟, 高晓清 (2637)
秋冬季节华北背景地区 PM ₁ 污染特征及来源	张周祥, 张养梅, 张小曳, 王亚强, 沈小静, 孙俊英, 周怀刚 (2647)
杭州市 PM _{2.5} 中水溶性离子的污染特征及其消光贡献	吴丹, 蔺少龙, 杨焕强, 杜荣光, 夏俊荣, 齐冰, 刘刚, 李凤英, 杨孟, 盖鑫磊 (2656)
青岛不同强度霾天气溶胶中二次无机离子的生成及粒径分布	谢丹丹, 祁建华, 张瑞峰 (2667)
西安市重污染与清洁天 PM _{2.5} 组分及其活性氧物质对比	王堃, 韩永明, 何世恒, 张婷, 刘随心, 曹军骥 (2679)
黄山 PM ₁₀ 中二元羧酸类化合物的季节变化特征及其来源	孟静静, 侯战方, 张二勋, 董杰, 刘晓迪, 邢继钊, 刘加珍 (2688)
泉州市大气 PM _{2.5} 铜系元素组成特征及来源解析	张云峰, 于瑞莲, 胡恭任, 孙境蔚, 许文质, 张棕巍 (2698)
西北石化区周围毒害类空气污染物污染特征及健康风险评价	许亚宣, 李小敏, 于华通, 董林艳, 赵玉婷, 姚懿函, 邹广迅, 张新民 (2707)
G20 峰会期间宜兴市大气 VOCs 特征及来源分析	张璘, 张祥志, 秦玮, 茅晶晶, 秦艳红, 谢卫平, 史文科, 陈文泰 (2718)
四川省 2005 ~ 2014 年农业源氨排放清单及分布特征	冯小琼, 陈军辉, 姜涛, 钱骏, 叶宏 (2728)
长三角地区典型城市非道路移动机械大气污染物排放清单	鲁君, 黄成, 胡馨遥, 杨强, 井宝莉, 夏阳, 卢滨, 唐伟, 楼晨荣, 陶士康, 李莉 (2738)
我国城市饮用水中 N-亚硝基二甲胺的健康风险评估及水质标准制定	张秋秋, 潘申龄, 张昱, 杨敏, 安伟 (2747)
地下水污染风险评价中污染源荷载量化方法的对比分析	赵鹏, 何江涛, 王曼丽, 崔亚丰 (2754)
胶州湾表层海水中的正构烷烃及其来源解析	张倩, 宋金明, 彭全材, 李学刚, 袁华茂, 李宁, 段雨琴, 曲宝晓, 王启栋 (2763)
桂江流域夏季水-气界面 CO ₂ 脱气的空间变化及其影响因素	张陶, 李建鸿, 蒲俊兵, 吴飞红, 李丽, 袁道先 (2773)
都柳江水系沉积物锑等重金属空间分布特征及生态风险	宁增平, 肖青相, 蓝小龙, 刘意章, 肖唐付, 赵彦龙, 吴世良 (2784)
太湖表层水体及沉积物中双酚 A 类似物的分布特征及潜在风险	陈政宏, 郭敏, 徐怀洲, 刘丹, 程杰, 李江, 张圣虎, 石利利 (2793)
洱海沉积物水提取态有机氮特征及与其他来源溶解性有机氮的差异	李文章, 张莉, 王圣瑞, 肖尚斌, 钱伟斌, 席银, 许可宸, 史玲珑 (2801)
阿哈水库沉积物-水界面磷、铁、硫高分辨率空间分布特征	孙清清, 陈敬安, 王敬富, 杨海全, 计永雪, 兰晨, 王箫 (2810)
北京市水环境中精神活性物质污染特征	张艳, 张婷婷, 陈卫平, 郭昌胜, 花镇东, 张远, 徐建 (2819)
降雨特征及污染物赋存类型对路面径流污染排放的影响	陈莹, 王昭, 吴亚刚, 赵剑强, 杨文娟 (2828)
CaO ₂ 不同投加方式对黑臭河道底泥内源磷释放抑制作用	徐焱, 李大鹏, 韩菲尔, 宋小君, 李鑫, 周婧, 黄勇 (2836)
坡耕地薄层紫色土-岩石系统中氮磷的迁移特征	鲜青松, 唐翔宇, 朱波 (2843)
微生物强化组合浮床净化微盐碱水体的效果	陈友媛, 吴亚东, 孙萍, 吴丹 (2850)
氧化镁基生物炭高效去除水体中磷的特性	王彬斌, 林景东, 万顺利, 何锋 (2859)
Pd/Fe ⁰ 双金属复合催化纤维降解水中痕量亚硝基二甲胺	张环, 傅敏, 魏俊富, 王一冰, 安慧颖, 沈书怡 (2868)
针铁矿、磁铁矿和石膏对 2,4-二氯苯酚厌氧降解的影响	孔殿超, 周跃飞, 陈天虎, 王进, 李碧 (2875)
污水再生过程中消毒副产物前体物转化规律	韩慧慧, 缪恒峰, 张雅晶, 陆敏峰, 黄振兴, 阮文权 (2883)
微生物燃料电池改性阳极处理 PTA 废水	孙靖云, 范梦婕, 陈英文, 祝社民, 沈树宝 (2893)
水稻秸秆浸泡液对蓝藻和绿藻生长选择性抑制作用	苏文, 陈洁, 张胜鹏, 孔繁翔 (2901)
沼液 SBR 处理出水养殖螺旋藻	蔡小波, 郁强强, 刘锐, 赵远, 陈吕军 (2910)
K ⁺ 强化高盐环境下厌氧氨氧化脱氮效能	吴国栋, 于德爽, 李津, 周同, 王晓静 (2917)
包埋氨氧化细菌短程硝化的高效稳定运行	于濛雨, 刘毅, 田玉斌, 石欢, 徐富, 杨宏 (2925)
ANAMMOX 的快速启动及 EPS 在 ANAMMOX 颗粒污泥中的空间分布	李惠娟, 彭聪聪, 陈国燕, 姚倩, 卓杨, 王彬斌 (2931)
厌氧氨氧化污泥中氨氧化的潜在电子受体	李祥, 林兴, 王凡, 袁砚, 黄勇, 袁怡, 毕贞, 刘忻, 杨朋兵 (2941)
基于厌氧氨氧化的含氮废气原位处理	林兴, 王凡, 袁砚, 李祥, 黄勇, 袁澄伟 (2947)
基于污泥资源化利用的粗放型绿色屋顶生长基质的组成	沈庆然, 李田, 曹熠, 潘奥 (2953)
罗红霉素短期冲击对活性污泥中氨氧化微生物丰度和多样性的影响	高景峰, 孙丽欣, 樊晓燕, 潘凯玲, 李定昌 (2961)
不同盐度下活性污泥中微生物群落变化规律及其处理模拟染料废水	周贵忠, 许硕, 姚倩, 银钗 (2972)
CO ₂ -咸水-砂岩相互作用过程中微生物群落结构动态变化特征	王博强, 李晨阳, 卢伟, 樊昊, 张冬至, 汪治, 吕聪, 沈福东 (2978)
油菜/玉米轮作农田土壤呼吸和异养呼吸对秸秆与生物炭还田的响应	田冬, 高明, 黄容, 吕盛, 徐畅 (2988)
模拟气候升温对湿地土壤微生物群落及磷素形态的影响	腾昌运, 沈建国, 王忠, 王行, 李鸿毅, 张志剑 (3000)
秦岭红桦林土壤细菌群落剖面分布特征及其影响因素	杜璨, 许晨阳, 王强, 张帆, 马武功, 和文祥, 侯琳, 耿增超 (3010)
微生物对汞矿区农田土壤汞甲基化的影响	贾钦, 朱雪梅, 王琪, 傅海辉, 郝亚琼, 何洁, 杨子良 (3020)
施用海泡石对铅、镉在土壤-水稻系统中迁移与再分配的影响	方至萍, 廖敏, 张楠, 吕婷, 黄小斌 (3028)
BS + CTMAB 复配修饰在黄棕壤吸附苯酚上的应用	刘伟, 孟昭福, 任爽, 李文斌 (3036)
1999 年与 2014 年贡嘎山峨眉冷杉枝和叶中常见重金属的生物富集特征对比	李芬, 王训, 罗辑, 袁巍, 喻子恒, 商立海 (3045)
铅锌尾矿污染区 3 种菊科植物体内重金属的亚细胞分布和化学形态特征	朱光旭, 肖化云, 郭庆军, 张忠义, 杨曦, 孔静 (3054)
膨润土调质对污泥堆肥的脱毒及重金属钝化和雌酮消除作用	周莉娜, 蔡函臻, 李荣华, 王美净, 赵军超, 王权, 张增强 (3061)
餐厨垃圾与秸秆混合中温和高温厌氧消化对比	郭香麟, 左剑恶, 史绪川, 王凯军, 李静 (3070)
我国村镇生活垃圾可燃组分基本特征及其时空差异	晏卓逸, 岳波, 高红, 李志龙, 黄启飞, 聂小琴, 汪群慧 (3078)
甲烷催化还原 NO _x 中 Co 基/分子筛催化剂的助剂和载体优化	潘华, 建艳飞, 陈宁娜, 刘红霞, 何焱, 贺亚飞 (3085)
《环境科学》征稿简则 (2737) 《环境科学》征订启事 (2809) 信息 (2867, 2971, 3027)	

阿哈水库沉积物-水界面磷、铁、硫高分辨率空间分布特征

孙清清^{1,2}, 陈敬安^{1*}, 王敬富¹, 杨海全¹, 计永雪^{1,2}, 兰晨^{1,2}, 王箫³

(1. 中国科学院地球化学研究所, 环境地球化学国家重点实验室, 贵阳 550081; 2. 中国科学院大学资源与环境学院, 北京 100049; 3. 贵州师范大学地理与环境科学学院, 贵阳 550025)

摘要: 选取贵州典型高原亚深水型湖库阿哈水库为研究对象, 利用薄膜扩散梯度技术获取夏季分层期不同湖区沉积物-水界面磷、铁、硫的原位、二维高分辨分布信息, 并结合水化学及沉积物磷形态分析, 探讨了沉积物 P-Fe-S 分布规律及控制因素。结果表明: 沉积物-水界面 DGT-P 的浓度变化范围 $0.00 \sim 0.43 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$, DGT-Fe 的浓度变化范围 $0.00 \sim 2.83 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$, DGT-S 的浓度变化范围 $0.00 \sim 0.10 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 。阿哈水库沉积物孔隙水磷、铁、硫浓度在垂向分布上没有显著的相关性, DGT-P、DGT-Fe 甚至还呈反向变化, 这与很多湖泊的研究结果存在明显差异, 其原因可能是阿哈水库沉积物具有很高的 Fe/P 和 Fe/S 比值, 过剩的 Fe 导致还原态 S 以 FeS/FeS_2 形式沉淀后, P 仍然被 $\text{Fe}(\text{III})$ 固定在沉积物中。阿哈水库沉积物磷形态以 NaOH-SRP 和 BD-P 为主, NaOH-SRP 含量变化范围为 $192 \sim 604 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$, 平均值约为 $392 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$, BD-P 含量变化范围为 $143 \sim 524 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$, 平均值约为 $225 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ 。阿哈水库底层水体长期处于厌氧环境, Fe、S 地球化学循环对沉积物内源磷释放起着重要控制作用。

关键词: 阿哈水库; 沉积物-水界面; 薄膜扩散梯度技术; 磷; 硫; 铁

中图分类号: X524 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2017)07-2810-09 DOI: 10.13227/j.hjxx.201611159

High-resolution Distribution Characteristics of Phosphorous, Iron and Sulfur Across the Sediment-Water Interface of Aha Reservoir

SUN Qing-qing^{1,2}, CHEN Jing-an^{1*}, WANG Jing-fu¹, YANG Hai-quan¹, JI Yong-xue^{1,2}, LAN Chen^{1,2}, WANG Xiao³

(1. State Key Laboratory of Environmental Geochemistry, Institute of Geochemistry, Chinese Academy of Sciences, Guiyang 550081, China; 2. College of Resources and Environment, University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China; 3. School of Geography and Environmental Science, Guizhou Normal University, Guiyang 550025, China)

Abstract: *In situ* two-dimension, high-resolution distribution of phosphorus (P), iron (Fe), sulfur (S) from the sediment-water interface was investigated in different areas of Aha Reservoir, a typical sub-deep water lake, using diffusive gradients in thin films (DGT) technique, combining with water chemistry and sedimentary phosphorus speciation analysis, aimed to discuss the distribution and control factors of P-Fe-S in sediments. DGT-P ranged from $0.00 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ to $0.43 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$. DGT-Fe ranged from $0.00 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ to $2.83 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$. DGT-S ranged from $0.00 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ to $0.10 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$. There was no significant correlation among the concentrations of P, Fe, S in the sediment pore water of Aha Reservoir, which is markedly different from the results of previous studies. We hypothesize that the high ratios of Fe/P and Fe/S induced the direct reaction of surplus $\text{Fe}(\text{III})$ with S^{2-} , yielding FeS and/or FeS_2 , while P was firmly fixed in sediments by $\text{Fe}(\text{III})$. NaOH-SRP (ranging between 192 and $604 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$) and BD-P (ranging between 143 and $524 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$) were the two major fractions of P in sediments. Since the environment for the bottom layer of water in Aha Reservoir is anoxic, the geochemical cycle of Fe and S potentially has a massive impact on the activation and migration of sedimentary P.

Key words: Aha Reservoir; sediment-water interface; diffusive gradients in thin films technique (DGT); phosphorus; sulfur; iron

磷(P)是湖泊富营养化最主要的限制性营养元素之一^[1,2], 主要来源有外源输入和内源释放^[3]。研究表明, 当外源输入得到有效控制后, 内源磷释放可能成为水体磷的重要来源^[4-6]。Rozan 等^[7]研究指出磷-铁(Fe)-硫(S)系统在控制湖泊沉积物内源磷地球化学循环方面起着重要作用。在夏季, 沉积物中的铁、硫易于被还原为低价态, 并生成硫化铁沉淀, 与铁结合的磷伴随着此过程被释放至上覆水体,

致使水体中磷浓度增高^[8-10]。精细刻画沉积物-水界面 P-Fe-S 的空间分布特征, 对深入揭示沉积物内

收稿日期: 2016-11-21; 修订日期: 2017-02-08

基金项目: 国家自然科学基金项目(41403113); 贵州省应用基础研究计划重大项目(黔科合 J 重大字[2015]2001 号); 贵州省科技计划项目(黔科合[2016]支撑 2802 号); 贵州省科学技术基金项目(黔科合 J 字[2014]2163 号)

作者简介: 孙清清(1991~), 女, 硕士研究生, 主要研究方向为湖泊环境, E-mail: sunqingqing@mail.gyig.ac.cn

* 通信作者, E-mail: chenjingan@mail.gyig.ac.cn

源磷的地球化学循环过程与机制具有重要意义。早期,原位、高分辨率同步分析技术的缺乏限制了湖泊沉积物-水界面 P-Fe-S 耦合循环研究的深入开展。1994 年,英国科学家 Davison 等^[11]研发了薄膜扩散梯度技术(diffusive gradients in thin films technique, DGT)。该技术最初被应用于水体中微量重金属含量的监测,几经改进^[12,13],文献[14~18]发展了锆氧化物胶质层 DGT。该技术具有适用范围更广、操作简便、空间分辨率高(毫米-亚毫米)等优点。锆氧化物胶质层 DGT 结合电脑成像密度计量(computer imaging density measurement, CID)技术,可在亚毫米尺度同步获得沉积物 P-Fe-S 高分辨分布信息,为沉积物 P-Fe-S 时空分布规律及迁移转化机制研究提供了有力技术支撑。

阿哈水库是一座季节性分层的磷限制性富营养化水库,同时也是贵阳市及周边地区的重要饮用水源地。由于长期受到煤矿废水输入的影响,其沉积物硫、铁含量较高^[19]。阿哈水库中硫、铁的地球化学行为已有较多研究^[19~24],但关于沉积物硫、铁赋存形态及空间分布对内源磷循环的影响鲜见报道。本文利用 DGT 技术同步获取阿哈水库沉积物 P-Fe-S 在沉积物-水界面的二维分布信息,探讨 P-Fe-S 耦合循环过程及迁移转化机制,旨在为湖泊内源污染治理提供科学指导。

1 材料与方法

1.1 研究区概况

阿哈水库(E106°39', N26°33')位于贵阳市南明河支流小车河上,属乌江水系。该水库是一座典型的高原深水型湖库,水面面积 4.5 km²,流域面积 190 km²,库容 0.44 亿 m³,最大水深 24 m,平均水深 13.2 m^[23]。阿哈水库及流域周边出露地层主要有三叠系阳新灰岩与龙潭煤系,三叠系大冶组薄层灰岩,安顺组厚层与中厚层白云岩、泥质白云岩与泥页岩等。库北及东面,碳酸盐岩广布,岩溶发育,水文地质条件复杂^[19]。

1.2 样品的采集

选取 3 个代表性深水湖区作为采样点,即大坝(1 号)、湖心区(2 号)和游鱼河河口处(3 号)(图 1)。于 2016 年 8 月 15 日利用 Niskin 采水器分层采集表层、中层和底层(表层 0.5 m 处,水深 12~16 m 处,沉积物上 1 m 处)湖水。利用便携式水质参数仪(YSI 6600)对水温(*T*)、pH 值、溶解氧(DO)进行测定。同时,利用无扰动沉积物采样装置^[25]采集沉积物柱芯,

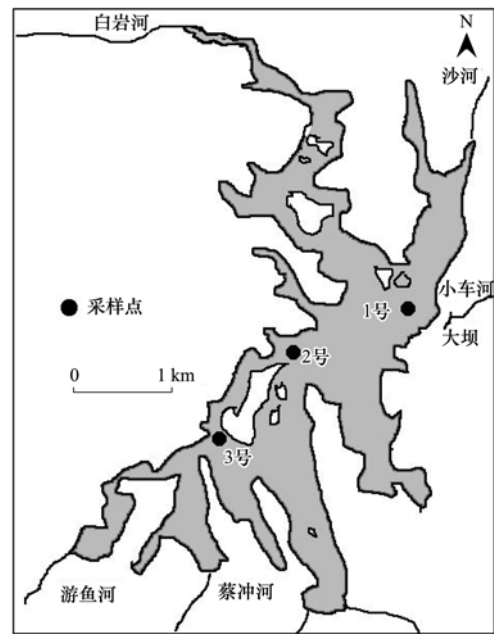


图 1 采样点分布示意

Fig. 1 Distribution of sampling sites

采集的柱芯利用锡纸包裹以保持避光状态。

1.3 样品分析

将复合 DGT 装置(南京智感环境科技有限公司)插入柱芯沉积物-水界面,控制 DO < 1 mg·L⁻¹, 温度(20 ± 0.5)℃,平衡 48 h 后取出,之后进行如下操作:①Zr-oxide 固定膜进行钼蓝法显色,获得 P 的二维高分辨数据^[15,16];②ZrO-Chelex 膜按 2 mm × 2 mm 切片,使用 1 mol·L⁻¹ HNO₃ 提取铁,采用改进的邻菲罗啉法利用 Epoch 超微量微孔板分光光度计(美国 BioTek 公司)测定获得铁的二维分布数据^[17];③ZrO-AgI 膜直接用电阻密度成像计量技术获取 S 二维高分辨数据^[18]。

水样总磷采用钼酸铵分光光度法(GB 11893-89)进行测定,总铁采用邻菲罗啉分光光度法(HJ/T 345-2007)进行测定,硫化物采用碘量法(HJ/T 60-2000)进行测定。

沉积物柱芯按 1cm 间隔进行分样,冷冻干燥后,研磨至 200 目备用。沉积物总硫含量利用元素分析仪(德国 Elementar vario MACRO cube)测定,有机碳含量先去除无机碳^[26]后利用元素分析仪测定,铁锰含量采用 HNO₃-HF-HClO₄ 消解法^[27]处理后使用 Vista MPX 型电感耦合等离子体-光发射光谱仪(美国 Varian 公司)测定。沉积物磷形态采用 Hupfer 等^[28]建立的化学连续提取法测定,具体步骤如下:① 1 mol·L⁻¹ NH₄Cl,在 pH = 7 条件下,振荡 0.5 h,提取 NH₄Cl-P;② 0.11 mol·L⁻¹ NaHCO₃/

0.11 mol·L⁻¹ Na₂S₂O₄, 即 BD 溶液, 振荡 1 h, 提取 BD-P; ③ 1 mol·L⁻¹ NaOH, 振荡 16 h, 提取 NaOH-SRP; ④ 用③步骤中的提取液利用 K₂S₂O₈ 溶液消解后测定其总磷含量, 此值与 NaOH-SRP 的差值为 NaOH-NRP; ⑤ 0.5 mol·L⁻¹ HCl, 振荡 16 h, 提取 HCl-P; ⑥ 残渣在 450℃ 条件下灰化 2 h, 1 mol·L⁻¹ HCl, 振荡 16 h, 提取 rest-P. 沉积物总磷的测定方法为: 样品在 500℃ 条件下灰化 2 h, 3.5 mol·L⁻¹ HCl, 振荡 16 h, 提取后测定 TP 含量.

2 结果与分析

2.1 水质和沉积物基本参数特征

阿哈水库夏季分层期的温度从表层往底层逐渐降低, 底层水体水温约为 10℃; pH 从表层往底层逐渐降低, 底层 pH ≈ 7, 为近中性; 溶解氧随水深的增加而降低, 最底层溶解氧浓度最低 (≈ 0.1 mg·L⁻¹), 底层水体处于厌氧状态 (图 2). 阿哈水库水体总磷、总铁、锰和硫化物的含量呈现表层 ≤ 中层 ≤ 底层的规律 (图 3). 水体总磷浓度的变化范围为 0.018 ~ 0.090 mg·L⁻¹, 平均为 0.046 mg·L⁻¹; 总

铁浓度变化范围为 0.046 ~ 0.110 mg·L⁻¹, 平均值约为 0.067 mg·L⁻¹; 硫化物浓度为 0.011 mg·L⁻¹. 水体总磷、总铁呈现 1 号 > 2 号 > 3 号的特征, 而硫化物则无明显差异.

阿哈水库夏季分层期 0 ~ 5 cm 沉积物样品 (表 1) 有机碳 (TOC) 质量分数变化范围为 4.25% ~ 7.92%, 平均值约为 6.25%; 总磷 (TP) 变化范围为 0.10% ~ 0.16%, 平均值约为 0.12%; 总铁 (Fe) 变化范围为 4.77 ~ 16.12%, 平均值约为 8.67%; 总硫 (TS) 变化范围为 0.81% ~ 2.48%, 平均值约为 1.34% (表 1). 1 号、2 号和 3 号总磷质量分数平均值分别为 0.13%、0.12% 和 0.12%, 没有显著差异; 总铁质量分数平均值分别为 5.37%、7.71% 和 12.92%, 总硫质量分数平均值分别为 0.94%、1.08% 和 2.01%, 铁、硫均呈现 1 号 < 2 号 < 3 号的特征; 有机碳质量分数平均值分别为 7.05%、6.27% 和 5.43%, 呈现 3 号 < 2 号 < 1 号的特征, 其原因可能是: 游鱼河是煤矿废水进入阿哈水库的主要通道, 铁、硫因此在游鱼河入湖口 (3 号点) 富集, 而大坝湖区是全湖藻类丰度最高的湖区, 有机碳蓄积量大.

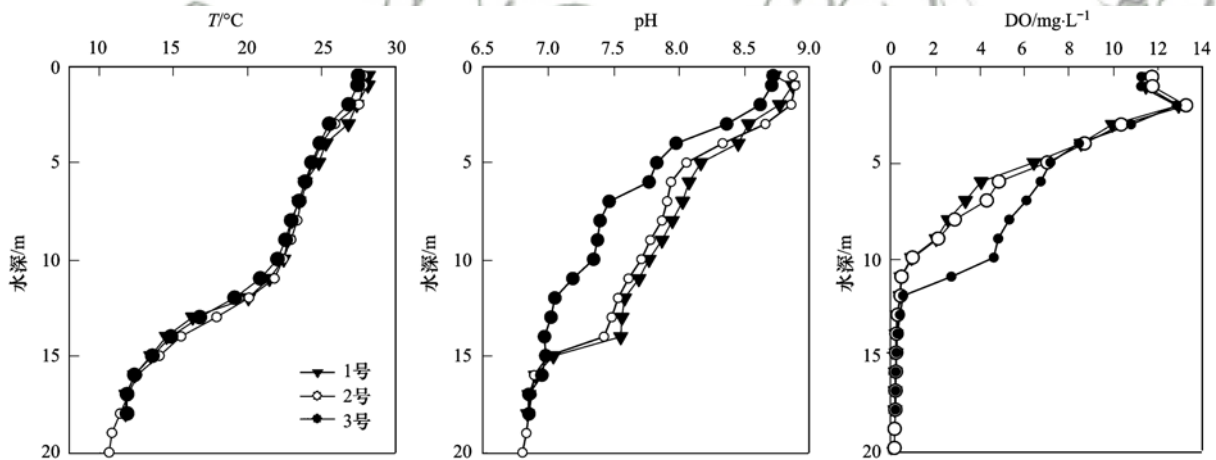


图 2 2016 年 8 月采样点剖面温度、pH 和溶解氧变化

Fig. 2 Variation of temperature, pH and dissolved oxygen along the profiles of sampling sites (August, 2016)

阿哈水库夏季分层期 0 ~ 5 cm 沉积物中弱吸附态磷 NH₄Cl-P 含量变化范围为 3 ~ 32 mg·kg⁻¹, 平均值约为 17 mg·kg⁻¹; BD-P 含量变化范围为 143 ~ 524 mg·kg⁻¹, 平均值约为 225 mg·kg⁻¹; NaOH-SRP 含量变化范围为 192 ~ 604 mg·kg⁻¹, 平均值约为 392 mg·kg⁻¹; NaOH-NRP 含量变化范围为 116 ~ 319 mg·kg⁻¹, 平均值约为 213 mg·kg⁻¹; HCl-P 含量变化范围为 75 ~ 414 mg·kg⁻¹, 平均值约为 197 mg·kg⁻¹; Rest-P 含量变化范围为 21 ~ 246 mg·kg⁻¹, 平均值约为 86 mg·kg⁻¹. 不同湖区 0 ~ 5 cm 沉积物

磷赋存形态变化见图 4, 大坝湖区 (1 号) 和游鱼河口区 (3 号) 沉积物中 BD-P、NaOH-SRP 和 NaOH-NRP 等活性磷占比达 80% 以上, 明显高于湖心区域 (2 号), 其原因可能是: 大坝湖区是全湖唯一出水口, 因筑坝的拦截作用湖区淤泥厚度大, 氮、磷营养盐在此大量累积, 而游鱼河河口区是阿哈水库的主要入湖河流通道, 流域农业面源污染、生活污水排放等, 导致营养盐在此富集.

2.2 沉积物-水界面二维分布特征

夏季分层期阿哈水库沉积物-水界面磷、铁、硫

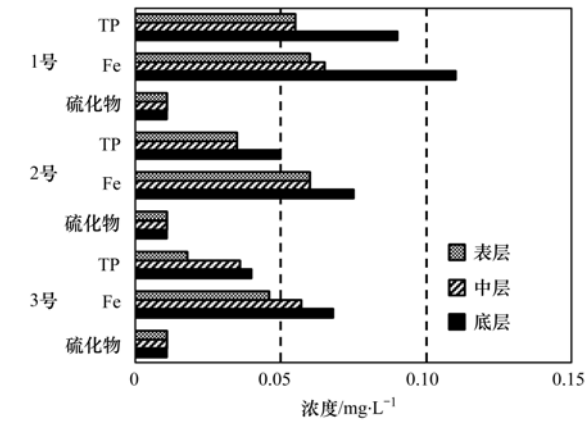


图3 阿哈水库夏季水体中磷、铁和硫化物含量

Fig. 3 TP, Fe and sulphide contents of water in Aha Reservoir in summer

二维分布具有以下特征(图5~7):①DGT-P分布特征:1号、2号、3号采样点有效磷含量范围分别为0.05~0.43、0.04~0.38、0.00~0.06 mg·L⁻¹;在0~2 cm上覆水中分布比较均匀;1号点0~5 cm沉积物剖面上有效磷含量分布比较均匀,2号、3号点垂直方向上分别在2.2~3.4 cm、3.5~4.5 cm处有高值.②DGT-Fe分布特征:1号、2号、3号采样点有效铁含量范围为0.00~1.20、0.00~1.21、0.00~2.83 mg·L⁻¹,在0~2 cm上覆水中分布比较均匀;0~5 cm沉积物剖面上有效铁含量分别在4.5~4.9、4.1~4.9、1.8~3.0 cm处有高值.③DGT-S分布特征:1号、2号、3号采样点有效硫含量范围为0.00~0.10、0.00~0.07、0.00~0.02 mg·L⁻¹;

表1 阿哈水库表层沉积物有机碳、总磷、总硫、总铁所占质量分数

Table 1 TOC, TP, TS and Fe contents in 1-5 cm surficial sediments of Aha Reservoir

编号	深度/cm	TOC/%	TP/%	Fe/%	S/%	Fe:P	Fe:S
1号	0~1	7.63	0.13	4.77	0.84	37	6
	1~2	7.57	0.17	4.98	0.87	29	6
	2~3	6.55	0.13	5.70	0.87	44	7
	3~4	7.33	0.12	5.49	0.92	46	6
	4~5	6.18	0.11	5.90	1.19	54	5
2号	0~1	4.25	0.16	6.73	1.16	42	6
	1~2	5.00	0.12	7.07	1.61	59	4
	2~3	7.92	0.09	8.08	1.00	90	8
	3~4	7.42	0.08	8.25	0.81	103	10
	4~5	6.77	0.09	8.42	0.82	94	10
3号	0~1	5.35	0.14	10.07	1.91	72	5
	1~2	5.91	0.12	12.96	1.72	108	8
	2~3	6.19	0.13	14.49	1.99	111	7
	3~4	5.36	0.10	10.99	2.48	110	4
	4~5	4.35	0.14	16.12	1.96	115	8

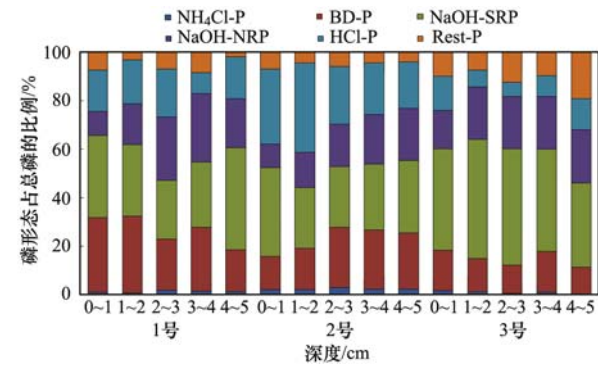


图4 阿哈水库夏季表层沉积物(0~5 cm)中不同磷形态相对丰度

Fig. 4 Relative contributions of various P fractions in surface sediments(0-5 cm) from Aha Reservoir in summer

在0~2 cm上覆水中分布比较均匀;0~5 cm沉积物剖面上分别在1.2~2.2 cm、1.8~2.8 cm、4.0~

5.0 cm处有最大值.④1号、2号、3号采样点沉积物剖面的DGT-P与DGT-Fe呈反相关变化,反映高铁对磷释放具抑制作用.

3 讨论

3.1 影响沉积物磷赋存形态的控制因素

夏季水温高,微生物活动强,水体溶解氧和氧化还原电位低,沉积物有机磷易于转化为无机磷^[29].阿哈水库底层水体pH近中性,磷主要以H₂PO₄⁻形态存在,镁盐、硅酸盐、铝硅酸盐以及氢氧化铁胶体都参与对磷的吸附^[8].阿哈水库沉积物磷形态中所占比例最高的是NaOH-SRP,而底层水体厌氧环境容易诱发NaOH-SRP的活化迁移和向上层水体的释放.

同处乌江流域的红枫湖沉积物磷的主要赋存形态是NaOH-SRP和rest-P,其中NaOH-SRP占到TP

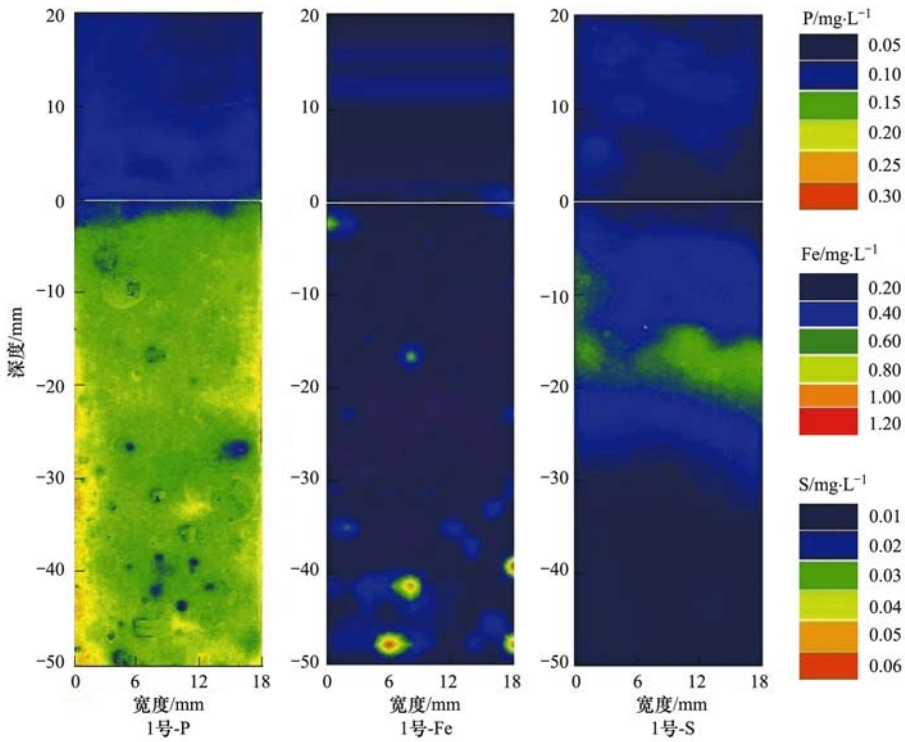


图 5 1号采样点沉积物-水界面 P、Fe、S 二维分布

Fig. 5 Two-dimensional distribution of P, Fe, S at the sediment-water interface in sampling site 1

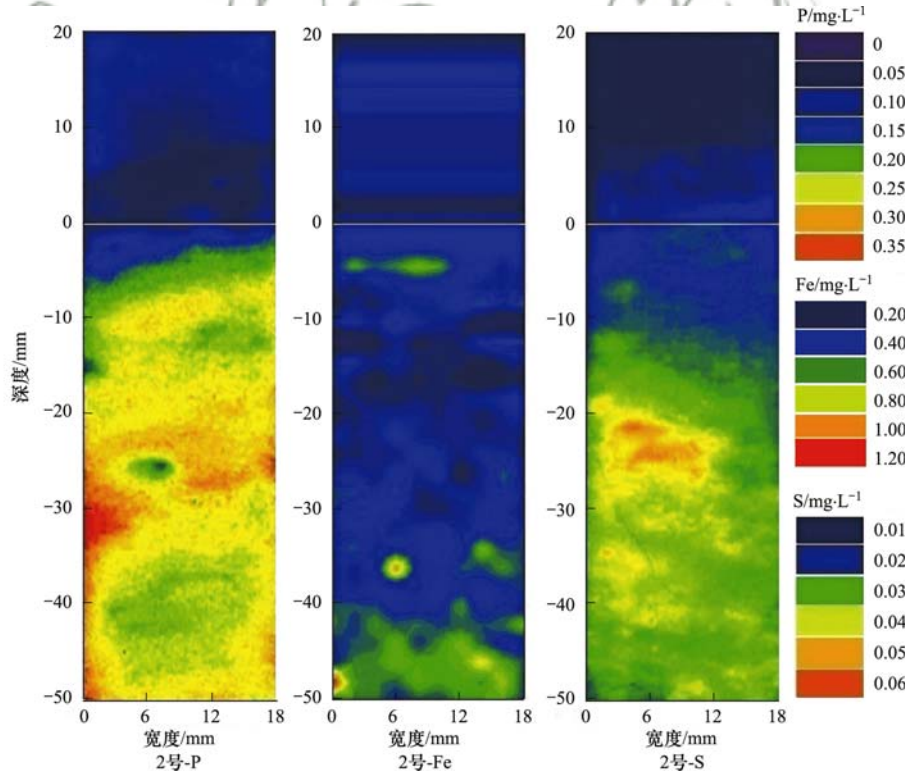


图 6 2号采样点沉积物-水界面 P、Fe、S 二维分布

Fig. 6 Two-dimensional distribution of P, Fe, S at the sediment-water interface in sampling site 2

的 50% 以上,rest-P 剖面上变化不大,约占 20%^[30~32],而阿哈水库的 BD-P 比例则更高.阿哈水库长期受到煤矿废水输入的影响^[19],沉积物硫、

铁、锰含量较高,使得阿哈水库沉积物中对氧化还原条件敏感的 BD-P 比例增加.由于人为投放石灰,导致阿哈水库沉积物中含有大量的钙^[20],这可能是

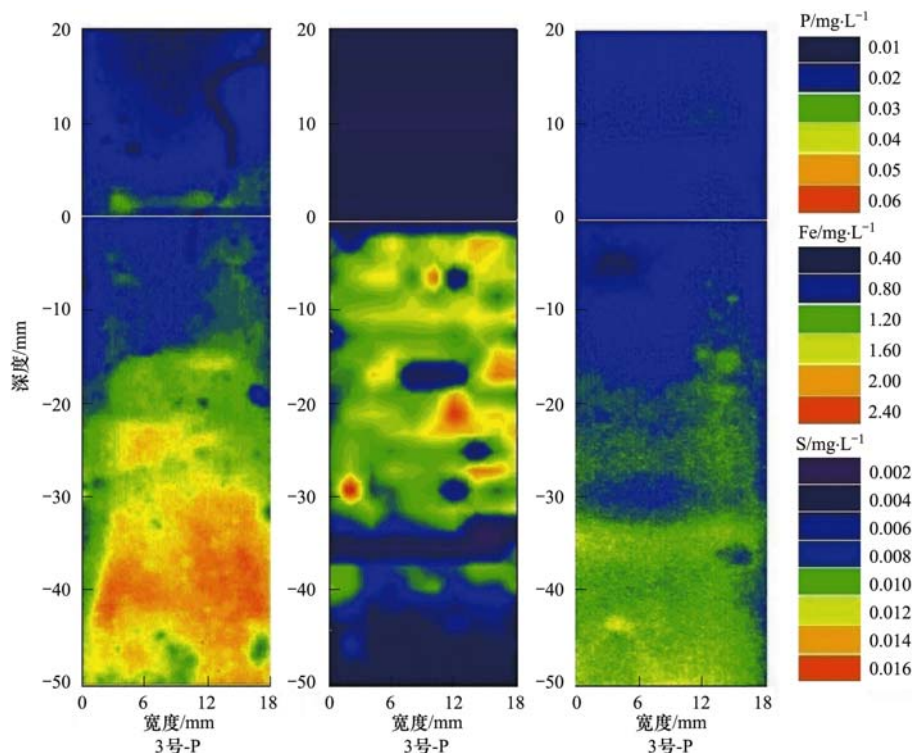


图7 3号采样点沉积物-水界面P、Fe、S二维分布

Fig. 7 Two-dimensional distribution of P, Fe, S at the sediment-water interface in sampling site 3

HCl-P 大于 20% 的原因(图 4)。

与太湖^[32~34]和滇池^[35]等浅水湖泊相比,阿哈水库沉积物中 $\text{NH}_4\text{Cl-P}$ 含量较高,这反映出深水湖泊沉积物-水界面扰动(包括水动力扰动和动植物生命活动引起的扰动)较浅水湖泊弱,沉积物中吸附态磷释放相对缓慢; NaOH-SRP 磷占总磷的比例较高,可能是因为太湖^[33]和滇池^[35]富营养化浅水湖泊水生植物光合作用促进了沉积物 NaOH-SRP 的释放,致使 NaOH-SRP 磷占总磷的比例较阿哈水库低^[33]。

pH 和 DO ^[30,31,33]是影响沉积物磷赋存形态的主要因素:①夏季底层水体 pH 近中性(~ 7),冬季 pH 略有上升(7.41 ~ 7.64),促进 NaOH-SRP (主要指 Fe/Al 结合态磷)释放,冬季沉积物的 NaOH-SRP 丰度略有下降,但仍以 NaOH-SRP (27% ~ 40%)为主;碱性环境不利于 HCl-P 释放, HCl-P 永久埋藏于沉积物中而难以被藻类等浮游生物所利用,含量变化不大^[30,31],相对丰度略有上升。② DO 控制水体氧化还原电位,影响水生生物种类及其活性以及有机物的矿化过程,夏季厌氧环境促进 Fe^{3+} 向 Fe^{2+} 转换, FePO_4 溶解导致磷的释放。

3.2 沉积物-水界面磷、铁、硫分布规律及控制因素
夏季分层期 DGT 获取的磷、铁、硫之间一维垂

向分布的相关性较差($R^2 < 0.1$),二维分布也没有显著的相关性。有研究发现太湖沉积物-水界面 Fe-S 、 P-S 在微尺度(mm)空间分布上存在高度的一致性^[17,18],阿哈水库 3 个采样点的 DGT-P 、 DGT-Fe 、 DGT-S 空间分布并没有呈现类似的规律, DGT-P 、 DGT-Fe 甚至还呈反向变化。阿哈水库沉积物总磷及磷形态(BD-P 、 NaOH-SRP)与 DGT-P 的相关性亦较差(通常 $R^2 < 0.25$)。这可能与阿哈水库沉积物具有显著高的 Fe/P 比值有关。Jensen 等^[36]对欧洲众多湖泊的调查发现,沉积物 Fe/P 比值控制着沉积物磷的迁移能力释放,比值越高沉积物磷稳定性越好。阿哈水库沉积物 Fe/P 比值(29 ~ 115)显著高于太湖^[37]、滇池^[35]、红枫湖等,过量的 Fe 会抑制沉积物磷的释放。与同流域红枫湖夏季的 DGT-P 数据^[13]相比,阿哈水库的 DGT-P 并没有表现出在垂向上随深度增加而增加的趋势,且不同采样点 DGT-P 空间分布差异较大,这可能也与阿哈水库沉积物 Fe 的分布有关。事实上,尹洪斌等^[8]在研究太湖沉积物 Fe-S 耦合循环时已发现类似阿哈水库沉积物 Fe 、 S 的分布规律^[38],并推测过量 Fe 会对 Fe-S 、 P-S 释放产生影响^[7,39]。有关过量 Fe 对湖泊沉积物 P 、 S 生物地球化学循环的影响过程与机制仍有待进一步深入研究。

万曦^[20]指出阿哈水库缺氧季节铁在界面的扩散循环过程伴随着强烈的硫还原,即 $\text{Fe}^{3+} \rightarrow \text{Fe}^{2+}$ 、 $\text{SO}_4^{2-} \rightarrow \text{S}^{2-}$,进而形成硫化铁. 夏季水体底部厌氧、丰富的有机质及适宜的 pH(6.2~7.1)为水库铁还原细菌(iron reducing bacteria, DIRB)与硫酸盐还原细菌(sulfate reducing bacteria, SRB)提供了适宜的生长环境. 文献[40~43]发现 DIRB 与 SRB 在沉积物垂直深度上具有不同优势种,DIRB 在沉积物中波动出现,在 2 cm、6 cm 处有峰值,这与本研究观测到的 Fe 分布高值点一致(图 6). 汪福顺等^[40]发现 SRB 利用硫酸根作为电子受体进行无氧呼吸作用下^[44],硫同位素组成发生显著分馏,进而指出阿哈水库 SBR 分布在水界面下 2~3 cm 附近活性最强,硫酸盐还原速率达到最大,往下活性减小,还原速率减小,与观测到的 S 分布规律一致(图 6 和图 7). 夏季这一变化趋势反映出硫在各层位的还原程度及可供给性. 在表层沉积物中,铁锰氧化物是降解有机质的主要电子受体, S 易被 Fe^{3+} 、 Mn^{4+} 氧化^[20,45,46],促进 Fe^{3+} 向 Fe^{2+} 转换, FePO_4 溶解(图 7),导致磷的释放,高价硫 SO_4^{2-} 处于较弱势的地位^[8,46](图 6~7),随着沉积物深度加深, SO_4^{2-} 离子扩散及渗透能力减弱,底层沉积物由于缺少 SO_4^{2-} 的补给, S^{2-} 形成受到限制^[8,47]. 在厌氧沉积物中,有机质的降解常常伴随着的 SO_4^{2-} 还原^[8]. 表层沉积物中生成过多的硫化物,会使 PO_4^{3-} 失去结合点,从而增加水体中的“磷负担”^[47](图 6). Rozan 等^[7]发现 Fe/S 比值较大的沉积物层以 Fe^{3+} 还原为主,而不是 SO_4^{2-} 还原,这也解释了阿哈水库沉积物铁和硫浓度此消彼长分布特征的原因(图 5~7).

深水湖泊沉积物中磷、铁、硫分布受温度、pH、DO 变化的影响,呈现周期性变化^[13,23,30],阿哈水库水体温度在 10~28℃ 之间, pH 在 6.9~8.98 之间, DO 在 0.01~8.17 $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$,随季节变化底层水温、pH、DO 变化明显. 夏季分层期比冬季混合期更促进沉积物磷、硫释放:一方面夏季微生物和生物活性增强,水体 DO 和氧化还原电位低,促进铁结合磷的释放^[30];另一方面夏季更有助于有机磷向无机磷的转化,致使沉积物中磷的释放量增大. 冬季混合期 Fe、S、P 高值区集中在沉积物底部(4~5 cm),有效磷、铁、硫向上覆水体的释放受到抑制.

4 结论

(1) 阿哈水库夏季分层期沉积物磷形态以

NaOH-SRP 和 BD-P 为主,加之底层水体长期处于厌氧环境, Fe、S 地球化学循环过程对阿哈水库沉积物内源磷释放起着重要控制作用.

(2) 阿哈水库夏季和冬季沉积物 DGT-P、DGT-Fe、DGT-S 浓度在垂向一维分布上的相关性较差 ($R^2 < 0.1$),二维分布上也没有显著的相关性, DGT-P、DGT-Fe 甚至还呈反向变化,这可能是因为阿哈水库沉积物具有很高的 Fe/P、Fe/S 比值,过剩的 Fe 导致还原态 S 以 FeS/FeS_2 形式沉淀后, P 亦被 Fe(III) 固定在沉积物中.

致谢:本研究获得了中国科学院南京地理与湖泊研究所丁士明课题组在 DGT 分析技术上的支持,在此表示感谢.

参考文献:

- [1] Schindler D W. Evolution of Phosphorus Limitation in Lakes[J]. Science, 1977, **195**(4275): 260-262.
- [2] 王敬富. 红枫湖沉积物内源磷释放过程机制与通量研究——基于薄膜扩散梯度(DGT)技术[R]. 贵阳:中国科学院地球化学研究所, 2015, 2015: 6-7.
Wang J F. Studies on the process, mechanism and flux of phosphorus release from sediments in Hongfeng Lake: using Diffusive Gradients in thin-films (DGT) Technique [R]. Guiyang: Institute of Geochemistry Chinese Academy of Sciences, 2015: 6-7.
- [3] Conley D J, Paerl H W, Howarth R W, *et al.* Controlling eutrophication: nitrogen and phosphorus[J]. Science, 2009, **323**(5917): 1014-1015.
- [4] Genkai-Kato M, Carpenter S R. Eutrophication due to phosphorus recycling in relation to lake morphometry, temperature, and macrophytes[J]. Ecology, 2005, **86**(1): 210-219.
- [5] Nausch M, Nausch G, Lass H U, *et al.* Phosphorus input by upwelling in the eastern Gotland Basin (Baltic Sea) in summer and its effects on filamentous cyanobacteria[J]. Estuarine, Coastal and Shelf Science, 2009, **83**(4): 434-442.
- [6] Vopel K, Gibbs M, Hickey C W, *et al.* Modification of sediment-water solute exchange by sediment-capping materials: effects on O_2 and pH[J]. Marine and Freshwater Research, 2008, **59**(12): 1101-1110.
- [7] Rozan T F, Taillefert M, Trouwborst R E, *et al.* Iron-sulfur-phosphorus cycling in the sediments of a shallow coastal bay: implications for sediment nutrient release and benthic macroalgal blooms[J]. Limnology and Oceanography, 2002, **47**(5): 1346-1354.
- [8] 尹洪斌, 范成新, 李宝, 等. 太湖北部沉积物中铁硫的地球化学特征研究[J]. 地球化学, 2008, **37**(6): 595-601.
Yin H B, Fan C X, Li B, *et al.* Geochemical characteristics of iron and sulfur in sediments of northern Lake Taihu [J]. Geochimica, 2008, **37**(6): 595-601.
- [9] 柴蓓蓓. 水源水库沉积物多相界面污染物迁移转化与污染控制研究[D]. 西安:西安建筑科技大学, 2012: 25-26.
Cai B B. Pollutants flux on the sediments multi-phase interface in drinking water reservoir and pollution controlling technology[D].

- Xi'an: Xi'an University of Architecture and Technology, 2012. 25-26.
- [10] 刘国锋, 范成新, 张雷, 等. 藻源性黑水团环境效应Ⅲ: 对水-沉积物界面处 Fe-S-P 循环的影响[J]. 中国环境科学, 2014, **34**(12): 3199-3206.
- Liu G F, Fan C X, Zhang L, *et al.* Environment effects of algae-caused black spots Ⅲ: Impacts on Fe-S-P cycle in water-sediment interface[J]. China Environmental Science, 2014, **34**(12): 3199-3206.
- [11] Davison W, Zhang H. *In situ* speciation measurements of trace components in natural waters using thin-film gels[J]. Nature, 1994, **367**(6463): 546-548.
- [12] Ding S M, Sun Q, Xu D. Development of the DET technique for high-resolution determination of soluble reactive phosphate profiles in sediment pore waters[J]. International Journal of Environmental Analytical Chemistry, 2010, **90**(14-15): 1130-1138.
- [13] 罗婧. 基于薄膜扩散梯度技术(DGT)对湖泊沉积物磷释放机制的原位高分辨率研究[D]. 贵阳: 贵州大学, 2015. 14-19.
- Luo J. *In-situ* high resolution studies on the mechanism of phosphorus release from lake sediments using diffusive gradients in thin-films (DGT) technique [D]. Guiyang: Guizhou University, 2015. 14-19.
- [14] Zhang C S, Ding S M, Xu D, *et al.* Bioavailability assessment of phosphorus and metals in soils and sediments: a review of diffusive gradients in thin films (DGT) [J]. Environmental Monitoring and Assessment, 2014, **186**(11): 7367-7378.
- [15] Ding S M, Xu D, Sun Q, *et al.* Measurement of dissolved reactive phosphorus using the diffusive gradients in thin films technique with a high-capacity binding phase[J]. Environmental Science & Technology, 2010, **44**(21): 8169-8174.
- [16] Ding S M, Wang Y, Xu D, *et al.* Gel-based coloration technique for the submillimeter-scale imaging of labile phosphorus in sediments and soils with diffusive gradients in thin films[J]. Environment Science & Technology, 2013, **47**(14): 7821-7829.
- [17] Xu D, Chen Y F, Ding S M, *et al.* Diffusive gradients in thin films technique equipped with a mixed binding gel for simultaneous measurements of dissolved reactive phosphorus and dissolved iron[J]. Environmental Science & Technology, 2013, **47**(18): 10477-10484.
- [18] Ding S M, Sun Q, Xu D, *et al.* High-resolution simultaneous measurements of dissolved reactive phosphorus and dissolved sulfide: The first observation of their simultaneous release in sediments[J]. Environment Science & Technology, 2012, **46**(15): 8297-8304.
- [19] 陈佑德. 贵阳阿哈水库及流域水污染现状原因和综合治理分析[J]. 贵州师范大学学报(自然科学版), 2001, **19**(3): 11-14.
- Chen Y D. An analysis of condition, cause and control of polluted water of the Arha Reservoir and its drainage in Guiyang [J]. Journal of Guizhou Normal University(Natural Sciences), 2001, **19**(3): 11-14.
- [20] 万曦. 阿哈湖沉积物-水界面 Fe-Mn 循环的微生物影响分析[J]. 矿物岩石地球化学通讯, 1994, **13**(3): 140-141.
- [21] 朱维晃, 吴丰昌. 贵阳市阿哈湖水库中铁、锰的形态分布[J]. 中国环境科学, 2006, **26**(s1): 83-86.
- Zhu W H, Wu F C. The speciation and distribution of iron and manganese in the A-Ha Lake, Guiyang City [J]. China Environmental Science, 2006, **26**(S1): 83-86.
- [22] 罗莎莎, 万国江. 云贵高原湖泊沉积物——水界面铁、锰、硫体系的研究进展[J]. 地质地球化学, 1999, **27**(3): 47-52.
- Luo S S, Wan G J. New progress in the study of Fe, Mn and S systems at the sediment-water interface of lakes on Yunnan-Guizhou plateau[J]. Geology-Geochemistry, 1999, **27**(3): 47-52.
- [23] 徐毓荣, 徐钟际, 徐玮, 等. 水温分层型水库铁、锰垂直分布特征[J]. 湖泊科学, 1999, **11**(2): 117-122.
- Xu Y R, Xu Z J, Xu W, *et al.* Characteristics of Fe, Mn vertical distribution in a thermal stratified reservoir[J]. Journal of lake sciences, 1999, **11**(2): 117-122.
- [24] 汪福顺, 刘丛强, 梁小兵, 等. 铁锰在贵州阿哈湖沉积物中的分离[J]. 环境科学, 2005, **26**(1): 135-140.
- Wang F S, Liu C Q, Liang X B, *et al.* Acid mining drainage impacts on the separation between iron and manganese in sediments of the Aha Lake, Guizhou Province [J]. Environmental Science, 2005, **26**(1): 135-140.
- [25] 李键, 张维, 陈敬安, 等. 一种可实现不同水深条件下采样的湖泊沉积物柱芯采样装置[J]. 地球与环境, 2011, **39**(1): 121-124.
- Li J, Zhang W, Chen J A, *et al.* A newly developed sampler for collecting lake sediment cores [J]. Earth and Environment, 2011, **39**(1): 121-124.
- [26] Meyers P A, Ishiwatari R. Lacustrine organic geochemistry—an overview of indicators of organic matter sources and diagenesis in lake sediments[J]. Organic Geochemistry, 1993, **20**(7): 867-900.
- [27] 邢军, 张强, 谢蔚嵩. 金属罐消解—ICP-OES 法直接测定土壤及植物中的铜、铅、锌[J]. 环保科技, 2012, **18**(3): 5-9.
- Xin J, Zhang Q, Xie W S. Directly measure the Cu, Pb, and Zn in soil and plants by Metal tin digestion-ICP-OES method[J]. Environmental Protection and Technology, 2012, **18**(3): 5-9.
- [28] Hupfer M, Gächter R, Giovanoli R. Transformation of phosphorus species in settling seston and during early sediment diagenesis[J]. Aquatic Sciences, 1995, **57**(4): 305-324.
- [29] Jiang X, Jin X C, Yao Y, *et al.* Effects of biological activity, light, temperature and oxygen on phosphorus release processes at the sediment and water interface of Taihu Lake, China [J]. Water Research, 2008, **42**(8-9): 2251-2259.
- [30] 朱元荣. 云贵高原湖泊沉积物中氮、磷形态和生物有效性及其与富营养化关系研究[D]. 北京: 中国科学院研究生院, 2010. 8-23.
- [31] 王敬富, 陈敬安, 曾艳, 等. 贵州红枫湖沉积物磷赋存形态的空间变化特征[J]. 湖泊科学, 2012, **24**(5): 789-796.
- Wang J F, Chen J A, Zeng Y, *et al.* Spatial distribution characteristics of phosphorus forms in sediment of Lake Hongfeng, Guizhou Province [J]. Journal of lake sciences, 2012, **24**(5): 789-796.
- [32] 杨文斌, 唐皓, 韩超, 等. 太湖沉积物铁形态分布特征及磷铁相关性分析[J]. 中国环境科学, 2016, **36**(4): 1145-1156.
- Yang W B, Tang H, Han C, *et al.* Distribution of iron forms and their correlations analysis with phosphorus forms in the

- sedimentary profiles of Taihu Lake [J]. *China Environmental Science*, 2016, **36**(4):1145-1156.
- [33] 金相灿, 王圣瑞, 庞燕. 太湖沉积物磷形态及 pH 值对磷释放的影响[J]. *中国环境科学*, 2004, **24**(6): 707-711.
- Jin X C, Wang S R, Pang Y. The influence of phosphorus forms and pH on release of phosphorus from sediments in Taihu Lake [J]. *China Environmental Science*, 2004, **24**(6): 707-711.
- [34] 金相灿, 姜霞, 王琦, 等. 太湖梅梁湾沉积物中磷吸附/解吸平衡特征的季节性变化[J]. *环境科学学报*, 2008, **28**(1): 24-30.
- Jin X C, Jiang X, Wang Q, *et al.* Seasonal changes of P adsorption/desorption characteristics at the water sediment interface in Meiliang Bay, Taihu Lake, China [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2008, **28**(1): 24-30.
- [35] Zhang R Y, Wang L Y, Wu F C. Phosphorus speciation in surface sediments of a hypertrophic lake, Southwestern China: insights from fractionation and ^{31}P NMR[J]. *Chinese Journal of Geochemistry*, 2015, **32**(2): 167-176.
- [36] Jensen H S, Andersen F O. Importance of temperature, nitrate, and pH for phosphate release from aerobic sediments of four shallow, eutrophic lakes [J]. *Limnology and Oceanography*, 1992, **37**(3): 577-589.
- [37] 朱广伟, 秦伯强, 高光. 浅水湖泊沉积物磷释放的重要因子-铁和水动力[J]. *农业环境科学学报*, 2003, **22**(6):762-764.
- Zhu G W, Qin B Q, Gao G. Hydrodynamics and iron: the key factors affecting resuspension of phosphorus from shallow lake sediments[J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2003, **22**(6):762-764.
- [38] 刘恩峰, 沈吉, 刘兴起, 等. 太湖 MS 岩芯重金属元素地球化学形态研究[J]. *地球化学*, 2004, **33**(6): 602-610.
- Liu E F, Shen J, Liu Q Q, *et al.* Speciation of heavy metals in Lake Taihu sediments of core MS[J]. *Geochimica*, 2004, **33**(6): 602-610.
- [39] Shuttleworth S M, Davison W, Hamilton-Taylor J. Two-dimensional and fine structure in the concentrations of iron and manganese in sediment pore-waters[J]. *Environmental Science & Technology*, 1999, **33**(23): 4169-4175.
- [40] 汪福顺, 刘丛强, 梁小兵, 等. 阿哈湖沉积物-水界面硫酸盐还原作用的微生物及其同位素研究[J]. *第四纪研究*, 2003, **23**(5):2073-2078.
- Wang F S, Liu C Q, Liang X B, *et al.* Microorganism with Sulfate reduction and its isotopic study across the sediment-water interface in Aha Reservoir [J]. *Quaternary Sciences*, 2003, **23**(5):2073-2078.
- [41] 汪福顺, 刘丛强, 梁小兵, 等. 湖泊沉积物中微量金属二次迁移过程中微生物作用的实验研究[J]. *湖泊科学*, 2006, **18**(1): 49-56.
- Wang F S, Liu C Q, Liang X B, *et al.* Impact on the remobilization of trace metals in lake sediments by micro-organisms[J]. *Journal of Lake Sciences*, 2006, **18**(1): 49-56.
- [42] 罗光俊, 何天容, 安艳玲. 贵阳市“两湖一库”不同季节硫酸盐还原菌分布变化[J]. *湖泊科学*, 2014, **26**(1):101-106.
- Luo G J, He T R, An Y L. Variations of sulfate reducing bacteria's distribution in sediments of Aha Reservoir, Lake Hongfeng and Lake Baihua, Guiyang City in different seasons [J]. *Journal of lake sciences*, 2014, **26**(1):101-106.
- [43] 罗光俊, 何天容, 尹德良, 等. 贵阳市湖泊沉积物中铁还原菌的季节分布[J]. *生态学杂志*, 2014, **33**(8): 2153-2160.
- Luo G J, He T R, Yin D L, *et al.* Seasonal distribution of dissimilatory iron-reducing bacteria in reservoir sediments of Guiyang City[J]. *Chinese Journal of Ecology*, 2014, **33**(8): 2153-2160.
- [44] Song L T, Liu C Q, Wang Z L, *et al.* Seasonal variations in sulfur isotopic composition of dissolved SO_4^{2-} in the Aha Lake, Guiyang and their implications [J]. *Chinese Journal of Geochemistry*, 2011, **30**(4): 444-452.
- [45] Feng X B, Bai W Y, Shang L H, *et al.* Mercury speciation and distribution in Aha Reservoir which was contaminated by coal mining activities in Guiyang, Guizhou, China [J]. *Applied Geochemistry*, 2011, **26**(2):213-221.
- [46] Roden E F, Wetzel R G. Kinetics of microbial $\text{Fe}(\text{III})$ oxide reduction in freshwater wetland sediments [J]. *Limnology and Oceanography*, 2002, **47**(1):198-211.
- [47] Thode-Andersen S, Jørgensen B B. Sulfate reduction and the formation of ^{35}S -labeled FeS , FeS_2 , and S^0 in coastal marine sediments[J]. *Limnology and Oceanography*, 1989, **34**(5): 793-806.

CONTENTS

Marine Aerosol Using On-board Aerosol Mass Spectrometry	YAN Jin-pei, CHEN Li-qi, LIN Qi, <i>et al.</i> (2629)
Analysis of Spatio-temporal Distribution and Variation Characteristics of Aerosol Optical Depth over the Northwest of China by MODIS C6 Product	ZHAO Shi-wei, GAO Xiao-qing (2637)
Sources and Characteristics of Regional Background PM ₁ in North China During the Autumn and Winter Polluted Period ...	ZHANG Zhou-xiang, ZHANG Yang-mei, ZHANG Xiao-ye, <i>et al.</i> (2647)
Pollution Characteristics and Light Extinction Contribution of Water-soluble Ions of PM _{2.5} in Hangzhou	WU Dan, LIN Shao-long, YANG Huan-qiang, <i>et al.</i> (2656)
Formation and Size Distribution of the Secondary Aerosol Inorganic Ions in Different Intensity of Haze in Qingdao, China	XIE Dan-dan, QI Jian-hua, ZHANG Rui-feng (2667)
Comparison of Characteristics and Reactive Oxidative Species of PM _{2.5} in Xi'an, China During Haze and Clean Days	WANG Kun, HAN Yong-ming, Ho Steven Sai Hang, <i>et al.</i> (2679)
Seasonal Variation and Sources of Dicarboxylic Acids and Related Compounds in PM ₁₀ from Mt. Huangshan	MENG Jing-jing, HOU Zhan-fang, ZHANG Er-xun, <i>et al.</i> (2688)
Composition Characteristics and Sources Apportionment of Lanthanoid in PM _{2.5} of Quanzhou	ZHANG Yun-feng, YU Rui-lian, HU Gong-ren, <i>et al.</i> (2698)
Pollution Characteristics and Health Risk Assessment of Hazardous Air Pollutants in the Surroundings of Three Petrochemical Industries in Northwest China	XU Ya-xuan, LI Xiao-min, YU Hua-tong, <i>et al.</i> (2707)
VOCs Characteristics and Sources Apportionment in Yixing City During the G20 Summit	ZHANG Lin, ZHANG Xiang-zhi, QIN Wei, <i>et al.</i> (2718)
Agricultural Ammonia Emission Inventory and Its Spatial Distribution in Sichuan Province from 2005 to 2014	FENG Xiao-qiong, CHEN Jun-hui, JIANG Tao, <i>et al.</i> (2728)
Air Pollutant Emission Inventory of Non-road Machineries in Typical Cities in Eastern China	LU Jun, HUANG Cheng, HU Qing-yao, <i>et al.</i> (2738)
Estimation of Health Risk and Enaction of Safety Standards of <i>N</i> -nitrosodimethylamine (NDMA) in Drinking Waters in China	ZHANG Qiu-qiu, PAN Shen-ling, ZHANG Yu, <i>et al.</i> (2747)
Comparison and Analysis of the Quantitative Methods for Pollutant Sources Load in Groundwater Contamination Risk Assessment	ZHAO Peng, HE Jiang-tao, WANG Man-li, <i>et al.</i> (2754)
Distribution and Sources of <i>n</i> -alkanes in Surface Seawater of Jiaozhou Bay	ZHANG Qian, SONG Jin-ming, PENG Quan-cai, <i>et al.</i> (2763)
Spatial Variations of CO ₂ Degassing Across Water-air Interface and Its Impact Factors in Summer in Guijiang River, China	ZHANG Tao, LI Jian-hong, PU Jun-bing, <i>et al.</i> (2773)
Spatial Distribution Characteristics and Potential Ecological Risk of Antimony and Selected Heavy Metals in Sediments of Duliujiang River	NING Zeng-ping, XIAO Qing-xiang, LAN Xiao-long, <i>et al.</i> (2784)
Distribution Characteristics and Potential Risk of Bisphenol Analogues in Surface Water and Sediments of Lake Taihu	CHEN Mei-hong, GUO Min, XU Huai-zhou, <i>et al.</i> (2793)
Characteristics of Water Extractable Organic Nitrogen from Erhai Lake Sediment and Its Differences with Other Sources	LI Wen-zhang, ZHANG Li, WANG Sheng-rui, <i>et al.</i> (2801)
High-resolution Distribution Characteristics of Phosphorous, Iron and Sulfur Across the Sediment-Water Interface of Aha Reservoir ...	SUN Qing-qing, CHEN Jing-an, WANG Jing-fu, <i>et al.</i> (2810)
Distribution Characteristics of Drugs of Abuse and Their Metabolites in Aqueous Environment of Beijing, China	ZHANG Yan, ZHANG Ting-ting, CHEN Wei-ping, <i>et al.</i> (2819)
Impacts of Rainfall Characteristics and Occurrence of Pollutant on Effluent Characteristics of Road Runoff Pollution	CHEN Ying, WANG Zhao, WU Ya-gang, <i>et al.</i> (2828)
Inhibition of Internal Phosphorus Release in the Black-Odor Channel Under Different Adding Methods of CaO ₂	XU Yao, LI Da-peng, HAN Fei-er, <i>et al.</i> (2836)
Transport of Nitrogen and Phosphorus from Sloping Farmland with Thin Purple Soil Overlying Rocks	XIAN Qing-song, TANG Xiang-yu, ZHU Bo (2843)
Purification of Slightly Salt-alkaline Water Bodies by Microorganism Enhanced Combined Floating Bed	CHEN You-yuan, WU Ya-dong, SUN Ping, <i>et al.</i> (2850)
MgO-Biochar for the Adsorption of Phosphate in Water	WANG Bin-bin, LIN Jing-dong, WAN Shun-li, <i>et al.</i> (2859)
Degradation of <i>N</i> -nitrosodimethylamine by Palladium/ Iron Bimetallic Composite Catalytic Fiber	ZHANG Huan, FU Min, WEI Jun-fu, <i>et al.</i> (2868)
Effects of Goethite, Magnetite and Gypsum on the Anaerobic Degradation of 2,4-Dichlorophenol	KONG Dian-chao, ZHOU Yue-fei, CHEN Tian-hu, <i>et al.</i> (2875)
Transformation of Disinfection Byproduct Precursors During the Wastewater Regeneration Processes	HAN Hui-hui, MIAO Heng-feng, ZHANG Ya-jing, <i>et al.</i> (2883)
Treatment of PTA Wastewater by Modified Anode Microbial Fuel Cell	SUN Jing-yun, FAN Meng-jie, CHEN Ying-wen, <i>et al.</i> (2893)
Selective Inhibition of Rice Straw Extract on Growth of Cyanobacteria and Chlorophyta	SU Wen, CHEN Jie, ZHANG Sheng-peng, <i>et al.</i> (2901)
Cultivation of <i>Spirulina platensis</i> in Digested Piggery Wastewater Pretreated by SBR with Operating Conditions Optimization	CAI Xiao-bo, YU Qiang-qiang, LIU Rui, <i>et al.</i> (2910)
Nitrogen Removal Performance of ANAMMOX Process with K ⁺ Addition in Saline Surroundings	WU Guo-dong, YU De-shuang, LI Jin, <i>et al.</i> (2917)
Efficient and Stable Operation of Shortcut Nitrification by Entrapping Ammonia Oxidizing Bacteria	YU Meng-yu, LIU Yi, TIAN Yu-bin, <i>et al.</i> (2925)
Fast Start-up of ANAMMOX and the Spatial Distribution of EPS in ANAMMOX Granules	LI Hui-juan, PENG Dang-cong, CHEN Guo-yan, <i>et al.</i> (2931)
Ammonia Oxidation with Potential Electron Acceptor in ANAMMOX Sludge	LI Xiang, LIN Xing, WANG Fan, <i>et al.</i> (2941)
Ammoniac Waste Gas in-situ Treatment Based on ANAMMOX Process	LIN Xing, WANG Fan, YUAN Yan, <i>et al.</i> (2947)
Extensive Green Roof Substrate Composition Based on Sludge Recycling	SHEN Qing-ran, LI Tian, CAO Yi, <i>et al.</i> (2953)
Short-term Effect of Roxithromycin on Abundance and Diversity of Ammonia-Oxidizing Microorganisms in Activated Sludge	GAO Jing-feng, SUN Li-xin, FAN Xiao-yan, <i>et al.</i> (2961)
Influence of Salinity on Microbial Community in Activated Sludge and Its Application in Simulated Dye Wastewater Treatment	ZHOU Gui-zhong, XU Shuo, YAO Qian, <i>et al.</i> (2972)
Shift of Microbial Communities During the CO ₂ -Brine-Sandstone Interaction Process	WANG Bo-qiang, LI Chen-yang, LU Wei, <i>et al.</i> (2978)
Response of Soil Respiration and Heterotrophic Respiration to Returning of Straw and Biochar in Rape-Maize Rotation Systems	TIAN Dong, GAO Ming, HUANG Rong, <i>et al.</i> (2988)
Effect of Simulated Climate Warming on Microbial Community and Phosphorus Forms in Wetland Soils	TENG Chang-yun, SHEN Jian-guo, WANG Zhong, <i>et al.</i> (3000)
Patterns of Bacterial Community Through Soil Depth Profiles and Its Influencing Factors Under <i>Betula albosinensis</i> Burkill in the Xinjiashan Forest Region of Qinling Mountains	DU Can, XU Chen-yang, WANG Qiang, <i>et al.</i> (3010)
Effects of Microbial Activities on Mercury Methylation in Farmland near Mercury Mining Area	JIA Qin, ZHU Xue-mei, WANG Qi, <i>et al.</i> (3020)
Effect of Sepiolite Application on the Migration and Redistribution of Pb and Cd in Soil Rice System in Soil with Pb and Cd Combined Contamination	FANG Zhi-ping, LIAO Min, ZHANG Nan, <i>et al.</i> (3028)
Application of Amphoteric-Cationic Combined Modification on Phenol Adsorption of Yellow Brown Soil	LIU Wei, MENG Zhao-fu, REN Shuang, <i>et al.</i> (3036)
Bioaccumulation of Heavy Metals in Twigs and Leaves of <i>Abies fabri</i> at Mount Gongga in China; A Comparison Study Between 1999 and 2014	LI Fen, WANG Xun, LUO Ji, <i>et al.</i> (3045)
Subcellular Distribution and Chemical Forms of Heavy Metals in Three Types of Compositae Plants from Lead-Zinc Tailings Area	ZHU Guang-xu, XIAO Hua-yun, GUO Qing-jun, <i>et al.</i> (3054)
Effects of Bentonite Amendment on Detoxification, Heavy Metal Passivation and Estrone Elimination of Sewage Sludge Compost	ZHOU Li-na, CAI Han-zhen, LI Rong-hua, <i>et al.</i> (3061)
Mesophilic and Thermophilic Anaerobic Co-Digestion of Food Waste and Straw	GUO Xiang-lin, ZUO Jian-e, SHI Xu-chuan, <i>et al.</i> (3070)
Basic Features of Combustible Rural Garbage Component and Its Spatial-temporal Difference in China	YAN Zhuo-yi, YUE Bo, GAO Hong, <i>et al.</i> (3078)
Optimization of Promoter and Support for Co-based/zeolites Catalysts in Catalytic Reduction of NO _x by CH ₄	PAN Hua, JIAN Yan-fei, CHEN Ning-na, <i>et al.</i> (3085)