

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)	

微生物对汞矿区农田土壤汞甲基化的影响

贾钦^{1,2}, 朱雪梅^{2*}, 王琪², 傅海辉², 郝亚琼², 何洁², 杨子良²

(1. 北京师范大学水科学研究院, 北京 100875; 2. 中国环境科学研究院固体废物污染控制技术研究所, 北京 100012)

摘要: 为研究典型汞矿区农田土壤中汞的甲基化作用, 实验以受汞污染的旱田土壤和稻田土壤为对象, 分别进行灭菌, 促进硫酸盐还原菌 (SRB) 活性处理, 抑制 SRB 活性处理以及促进铁还原菌 (FeRB) 活性处理, 分析非微生物作用和微生物作用对土壤甲基汞 (MeHg) 生成的影响。结果表明, 促进 SRB 活性处理的土壤 MeHg 生成量最高, 其中旱田土 MeHg 增量为 $0.15 \sim 0.38 \mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$, 稻田土壤 MeHg 增量为 $1 \sim 2 \mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$; 抑制 SRB 活性处理和促进 FeRB 活性处理的 MeHg 增量较小, 最高值仅为 $0.025 \mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$ 。相比于旱田土壤, 稻田土壤具有更高的汞甲基化能力, 其 MeHg 生成量是旱田土壤的 4~9 倍。土壤 SRB 数量与 MeHg 生成量具有相同的变化趋势, 二者具有显著的正相关性 ($R^2 = 0.57, P < 0.01$)。因此, 该研究区土壤汞甲基化作用主要是微生物汞甲基化作用, 且主要的汞甲基化细菌是 SRB。此外, 稻田是农田中 MeHg 生成的活跃地区, 在评估和控制 MeHg 对人体健康危害时需要重点关注。

关键词: 土壤; 甲基汞; 汞矿区; 硫酸盐还原菌; 稻田土壤

中图分类号: X172 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2017)07-3020-08 DOI: 10.13227/j.hj.kx.201611205

Effects of Microbial Activities on Mercury Methylation in Farmland near Mercury Mining Area

JIA Qin^{1,2}, ZHU Xue-mei^{2*}, WANG Qi², FU Hai-hui², HAO Ya-qiong², HE Jie², YANG Zi-liang²

(1. College of Water Sciences, Beijing Normal University, Beijing 100875, China; 2. Research Institute of Solid Waste Management, Chinese Research Academy of Environmental Sciences, Beijing 100012, China)

Abstract: In order to study the main effect of microbial activities on mercury (Hg) methylation in farmland, mercury contaminated upland soils and paddy soils near Hg mining area were sampled as experimental soils. Four treatments were designed including only sterilization as the control, accelerating the activities of sulfate reducing bacteria (SRB), inhibiting the SRB's activities, and accelerating the activities of iron-reducing bacteria (FeRB), to know the effects of microbial and non-microbial factors on mercury methylation in soils. The results were as follows: the highest concentration of methylmercury (MeHg) was observed in soils with SRB accelerated treatment, and the increments of MeHg concentrations in upland soils and paddy soils ranged from $0.15 \mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$ to $0.38 \mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$ and $1 \mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$ to $2 \mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$, respectively. Comparatively, little increments of MeHg concentration were seen in soils with SRB inhibited treatment and FeRB accelerated treatment, which were lower than $0.025 \mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$. Compared with upland soils, more MeHg was formed in Paddy soils and the concentrations of MeHg in paddy soils were 4-9 times of that in upland soils. Variation in the number of SRB in soils was similar to that in the concentration of MeHg in soils, and the number of SRB was positively correlated with the concentration of MeHg concentrations in soils ($R^2 = 0.57, P < 0.01$). The above results indicated that activities of reducing bacteria, especially SRB, played key role in the methylation in soils. In addition, more attention should be paid to paddy soils due to the high potential of methylation when conducting any assessment and taking any measure to manage the health risk caused by the exposure to mercury.

Key words: soil; methylmercury; mercury mining area; sulfate reducing bacteria; paddy soils

汞 (Hg) 的毒性与危害取决于其结构与形态, 与无机汞相比甲基汞 (MeHg) 具有更强的生物富集与生物放大作用, 也具有更大的环境风险与健康危害。土壤是 Hg 重要的源和汇^[1]。在我国汞矿区水稻、玉米、蔬菜等农作物中含有较高浓度的 MeHg^[2~4], 蔬菜与稻米的摄入是矿区群众甲基汞的主要暴露途径, 而土壤则是农作物中甲基汞的主要来源^[5]。土壤中汞的甲基化机制研究对评估 MeHg 的环境健康风险以及抑制土壤 MeHg 形成技术的开发至关重要, 一直是研究的热点和重点。

土壤汞甲基化包括非微生物作用和微生物作

用。非微生物作用主要是土壤腐殖质中的甲基基团 (CH_3^-) 在与土壤中二价汞 [$\text{Hg}(\text{II})$] 的结合生成 MeHg^[6]。微生物作用是通过微生物细胞内酶催化细胞内甲基供体将甲基基团 (CH_3^-) 转移给 Hg (II), 进而形成 MeHg^[7]。Parks 等^[8]在微生物体内分离出两组基因 *hgcA* 和 *hgcB*, 由其编码形成的类咕啉蛋白酶机制被认为是汞甲基化微生物主要的

收稿日期: 2016-11-24; 修订日期: 2017-02-10

基金项目: 环境保护公益性行业科研专项

作者简介: 贾钦 (1986~), 女, 博士, 主要研究方向为固体废物处置技术, E-mail: jiaqin177@foxmail.com

* 通信作者, E-mail: zhuxm@craes.org.cn

MeHg 生成机制. 硫酸盐还原菌 (SRB) 被认为是主要的汞甲基化细菌^[9], 少部分铁还原菌 (FeRB) 和产甲烷菌也具有甲基化能力^[10]. SRB 是一类异养型厌氧微生物, 并以硫酸盐等氧化态硫为电子受体而获得能量供给. FeRB 与 SRB 同属 δ -变形菌纲 (δ -Proteobacteria), 以 Fe (III) 为电子受体进行能量代谢.

相比于旱田土壤, 稻田土壤由于其周期性淹水形成的厌氧条件更有利于 MeHg 的生成. 本文主要对汞矿区农田土壤中汞甲基化的影响因素与作用机制进行研究, 重点对不同处理条件下硫酸盐还原菌及铁还原菌对土壤汞甲基化的影响进行研究, 同时研究了两种土壤不同培养方式 (淹水和湿润) 引起的土壤理化性质以及微生物丰度的变化.

1 材料与方法

1.1 供试土壤

供试土壤是 2014 年 7 月采自陕西旬阳汞矿区 (北纬 33°05′50″ ~ 33°06′30″, 东经 109°24′40″ ~ 109°26′50″) 的旱田土壤和稻田土壤, 用不锈钢铲采集旱田 (种植农作物为玉米) 和稻田表层耕作土 (0 ~ 20 cm), 土壤类型为黄棕壤. 土壤样品采集后放入自封袋, 冷冻避光保存.

1.2 实验材料

实验所用高压灭菌锅是日本 Tomy Digital Biology 公司生产的 SS-325 型高压灭菌锅. 本实验所使用的 Na_2SO_4 ($1\text{ mol}\cdot\text{L}^{-1}$), Na_2MoO_4 ($1\text{ mol}\cdot\text{L}^{-1}$) 均为优级纯, 储备液由超纯水配制. $\text{Fe}(\text{OH})_3$ 通过氢氧化钠 (NaOH) 和氯化铁 (FeCl_3) 共沉淀生成; 所得沉淀用 $\text{pH} = 3.5$ 的柠檬酸溶液溶解沉淀, 无沉淀生成即证明该氢氧化铁为无定形氢氧化铁^[11].

1.3 土壤培养与处理

供试的土壤样品在自然风干后混匀, 研磨过 2

mm 筛. 取 50 g 土壤放入 250 mL 血清瓶中, 按照模拟的旱田和稻田水分条件 (旱田含水率 30%, 稻田水淹 2 cm) 加入去离子水在避光条件下预培养 7 d.

对预培养后的旱田土壤和稻田土壤, 为最大程度模拟采集地土壤汞甲基化作用, 本实验以土壤中原有汞为汞源, 不添加新鲜汞. 实验分别设 4 个处理和 1 个对照, 处理 1 为灭菌处理 (Ab): 将预培养后的土壤放入高压灭菌锅内, 120℃ 下灭菌 30 min; 处理 2 为 SRB 活性促进处理 (SS): 添加 SRB 活性促进剂硫酸钠 (Na_2SO_4), 添加量为 $50\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$; 处理 3 为 SRB 活性抑制处理 (IS): 添加 SRB 活性抑制剂钼酸钠 (Na_2MoO_4), 添加量为 $100\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$; 处理 4 为 FeRB 活性促进同时抑制 SRB 活性处理 (SF): 添加 FeRB 活性促进剂无定形氢氧化铁 [$\text{Fe}(\text{OH})_3$], 同时添加 SRB 抑制剂 Na_2MoO_4 , 其中 $\text{Fe}(\text{OH})_3$ 添加量为 $50\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$, Na_2MoO_4 添加量为 $100\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$. 每个处理设 3 个平行, 在 25℃ 下避光培养 30 d.

1.4 微生物 DNA 提取和实时定量 PCR (qPCR) 分析

土壤微生物 DNA 采用天根土壤 DNA 提取试剂盒提取 (TIANamp Soil DNA Kit).

异化亚硫酸盐还原酶 (DSR) 是 SRB 异化硫酸盐还原过程中的一个关键酶, 只存在于异化硫酸盐还原原核生物中. DSR 被发现存在于所有已知的 SRB 细胞内, 并且具有高度保守的序列, 因此这种酶被广泛的应用于分析环境中 SRB 的丰度和群落多样性. 功能基因 *dsrAB* 是编码 DSR 酶的关键基因, 被用以分析土壤和沉积物 SRB 的丰度和群落结构^[12]. 本实验以 *dsrAB* 基因作为靶基因, 利用实时荧光定量 PCR 对 SRB 的丰度进行检测. 探针和引物由上海生物工程公司完成, 引物序列为 DSRp2060F (5′-CAACATCGTYCAYACCCAGGG-3′) 和 DSR4R (5′-GTGTAGCAGTTACCGCA-3′)^[13]. 具体反应体系和反应程序如表 1 所示.

表 1 实时荧光定量 PCR 的引物、反应体系和反应程序

Table 1 Probes, primers, PCR mixtures and conditions used for the Quantitative Real-time PCR

引物	引物序列	反应体系	反应程序
DSRp2060F	CAACATCGTYCAYACCCAGGG	25 μL 体系包括: SYBR® Premix Ex Taq TM12.5 μL , 1 μL BSA ($25\text{ mg}\cdot\mu\text{L}^{-1}$), 引物各 0.5 μL , 2 μL 模板 DNA (约 1 ~ 5 ng), ddH ₂ O 8 μL	2 min at 95℃, followed by 40 cycles of 10 s at 95℃, 30 s at 50℃, 30 s at 72℃
DSR4R	GTGTAGCAGTTACCGCA		

1.5 土壤样品分析

土壤样品中的总汞 (T-Hg) 采用 Hydra II 直接测汞仪 (美国利曼公司生产) 直接测定. 土壤中 MeHg

用硫酸铜 (CuSO_4) 和溴化钾/硫酸 ($\text{KBr}/\text{H}_2\text{SO}_4$) 溶液提取 2.5 h, 然后向提取液中加入二氯甲烷 (CH_2Cl_2) 进行萃取. 吸取 5 mL 二氯甲烷萃取液到

40 mL 高纯水中,通过氮吹将二氯甲烷去除. 取 5 mL 所得溶液,加入 0.5 mL 醋酸钠缓冲液,30 μL 衍生化试剂四乙基硼酸钠(NaBEt_4),静置 30 min 后通过 Tekran2700 甲基汞分析仪(美国安普公司生产)测定. 实验采用土壤标准品对 T-Hg 和 MeHg 测定结果进行质量控制. 土壤标准品(GSBZ50013-88)的 T-Hg 浓度为 $0.25\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$,实验测得 T-Hg 浓度为 $(0.23\pm0.05)\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ ($n=3$),回收率为 92%. MeHg 的土壤标准品(EMC-580)中 MeHg 浓度为 $75\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$,实验室测得 MeHg 浓度为 $(68.5\pm3.0)\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ ($n=3$),回收率为 91%.

土壤氧化还原电势(Eh)采用铂电极直接测定. 土壤 pH 值采用 HQ30d(美国哈希公司生产)测定. 土壤总有机碳(TOC)采用重铬酸钾氧化-分光光度法测定(HJ 615-2011). 土壤可溶性有机碳(DOC)测定用 Torch 总有机碳分析仪(美国利曼公司生产)测定. 土壤可溶性硫化物采用亚甲基蓝-分光光度法测定(GB/T 16489-1996).

2 结果与讨论

2.1 土壤基本理化性质

供试土壤基本理化性质分析结果列于表 2. 受汞矿开采和冶炼活动的影响,采集的农田土壤具有较高的 T-Hg 浓度,旱田土壤和稻田土壤 T-Hg 浓度分别为 $11.2\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 和 $12.6\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$. 由于 Hg 的输入,农田土壤中部分无机汞转化为 MeHg,并且稻田土壤的 MeHg 浓度($22.3\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$)高于旱田土壤的 MeHg 浓度($7.8\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$). 受耕作方式的影响,稻田土壤含水率(80%)高于旱田土壤的含水率(30%). 此外,稻田土壤的 TOC(5.4%)高于旱田土壤的 TOC(4.8%),这可能是由于稻田周期性淹水造成的厌氧环境减缓了土壤有机质的矿化作用,使更多的有机质赋存于土壤中.

表 2 汞供试土壤基本理化性质

Table 2 Basic physiochemical properties of tested soil

项目	旱田土	稻田土
机械组成(0.01~2 mm)/%	58.1	50.7
机械组成(0.001~0.01 mm)/%	22.3	30.1
机械组成(<0.001 mm)/%	17.3	17.6
T-Hg/ $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$	11.2	12.6
MeHg/ $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$	7.8	22.3
含水率/%	30	80
TOC/%	4.8	5.4
pH	7.1	6.5
可溶态 $\text{SO}_4^{2-}/\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$	0.32	0.54

2.2 不同处理土壤中甲基汞的浓度变化

由于实验使用的汞矿区旱田土壤和稻田土壤已经含有一定量的 MeHg,为了更准确表示培养方法对土壤 MeHg 形成的影响,本研究以培养过程中 MeHg 的浓度增量来表示不同处理条件下的汞甲基化能力.

$$\text{MeHg 浓度增量} = \text{培养后土壤 MeHg 浓度} - \text{土壤 MeHg 背景浓度}$$

培养过程中,不同处理方式对旱田土壤和稻田土壤的 MeHg 浓度都有不同程度的影响. 图 1 和图 2 分别为不同处理方式对旱田和稻田土壤 MeHg 的增量.

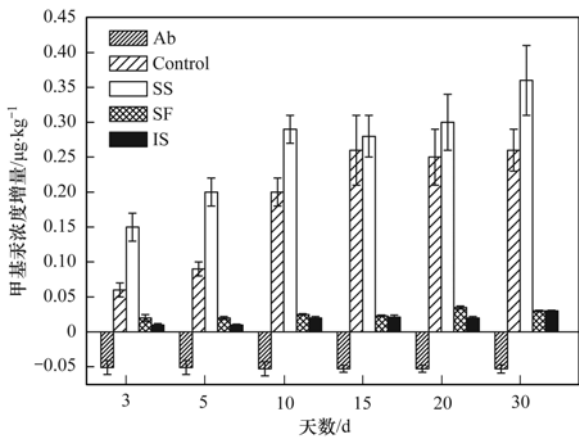


图 1 不同处理方式对旱田土壤 MeHg 增量

Fig. 1 Increments of MeHg concentrations in dry land soils with different treatments

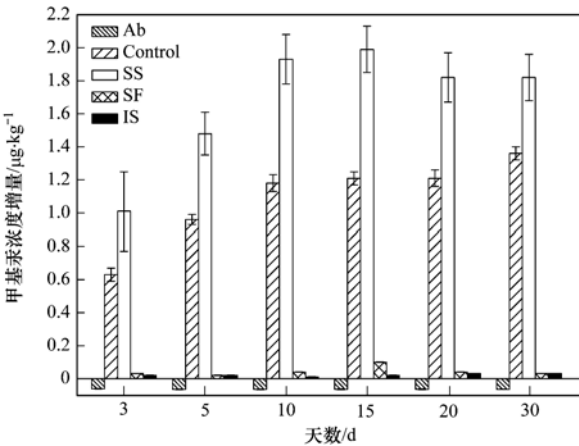


图 2 不同处理方式对稻田土壤 MeHg 增量的影响

Fig. 2 Increments of MeHg concentrations in paddy field soils with different treatments

Ab 处理的旱田和稻田土壤中 MeHg 增量出现负值. 这可能是由于高温高压的灭菌方式使土壤中原有的 MeHg 发生分解而培养过程中没有新的 MeHg 生成,造成土壤中原有的 MeHg 浓度降低使

MeHg 增量出现负值. 其余的处理方式都不同程度地促进土壤 MeHg 的形成, 并且不同处理方式对旱田土壤和稻田土壤中 MeHg 增量的影响具有相同的规律. 旱田土壤和稻田土壤 MeHg 的增量大小顺序为: SS 处理 > 对照 > SF 处理 > IS 处理. 在培养的 30 d 内, 对于旱田土壤, SS 处理和对照土壤中的 MeHg 增量都随培养时间的延长而增加, SS 处理土壤中的 MeHg 增量从 $0.15 \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ 增加到 $0.38 \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$, 对照土壤中的 MeHg 增量从 $0.06 \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ 增加到 $0.25 \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$. 对于稻田土壤, 对照土壤中的 MeHg 增量随着培养时间的延长持续增加, 从 $0.06 \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ 增加到 $1.35 \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$, 而 SS 处理的 MeHg 增量在整个培养期内经历了先增长后降低的变化, 在 3 ~ 15 d 内, MeHg 增量从 $1 \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ 增长到 $2 \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$, 随后在剩余的 15 d 内, MeHg 浓度降低到 $1.8 \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$. 旱田土壤和稻田土壤中 IS 处理的 MeHg 浓度只有极小量的增加, 与对照样相比, 旱田土壤 MeHg 增量仅为其 1/8, 稻田土壤 MeHg 增量为 1/17. 此外, SF 处理的 MeHg 增量也较小, 旱田和稻田最大增量分别为 $0.018 \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ 和 $0.025 \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$, 远低于相同培养条件下的 SS 处理和对照样. 该结果与 St. Pierre 等^[14]的研究结果相符, 其对北极地区沉积物汞甲基化速率研究发现, 在 14°C 温度条件下, 对照处理和促进 SRB 活性的处理汞甲基化速率分别是 $0.4 \text{ pmol}\cdot(\text{g}\cdot\text{h})^{-1}$ 和 $1.1 \text{ pmol}\cdot(\text{g}\cdot\text{h})^{-1}$, 均高于促进 FeRB 活性处理的 $0.02 \text{ pmol}\cdot(\text{g}\cdot\text{h})^{-1}$.

上述研究结果表明, 汞矿区农田土壤中汞甲基化起主导作用的是微生物作用, 这与大多数研究^[15,16]结果一致. 已有研究表明, 土壤非生物甲基化速率仅为纯培养条件下微生物甲基化作用的 $1/10^4$, 且生成的 MeHg 极不稳定易于分解, 因此在实际条件下评估土壤中的汞甲基化需要优先考虑微生物作用. 此外, 实验中 SF 处理并没有较强的汞甲基化作用, 说明本实验中 SRB 是主要的汞甲基化细菌. 这可能是由于 FeRB 的汞甲基化能力远远低于 SRB, Gilmour 等^[17]也在相同纯培养条件下研究发现 FeRB 的汞甲基化率低于 SRB. 因此, 在本研究中, 在所研究的汞矿区土壤中 SRB 是控制 MeHg 形成的关键微生物.

在相同的培养条件下, 旱地土壤和稻田土壤表现出不同汞甲基化能力. 在实验培养的 30 d 内, 对照和促进 SRB 活性处理的稻田土壤中 MeHg 增量均显著高于相同处理的旱田土壤中 MeHg 增量 ($P < 0.05$). 其中对照土壤的 MeHg 增量, 稻田土壤是

旱田土壤的 4 ~ 6 倍; 促进 SRB 活性的 SS 处理的 MeHg 增量, 稻田土壤是旱田土壤的 7 ~ 9 倍. 该结果进一步表明, 相比于旱田土壤, 稻田土壤具有更高的汞甲基化能力.

2.3 不同处理土壤中 SRB 丰度对汞甲基化的影响

实时定量 PCR 结果显示, 不同的处理方式对土壤 SRB 丰度的影响并不显著 ($P > 0.1$). 图 3 和图 4 分别为不同处理方式对旱田和稻田土壤中 SRB 丰度的影响. 从中可知, 对照和 SS 处理的土壤 *dsrAB* 基因拷贝数略高于 IS 处理和 SF 处理.

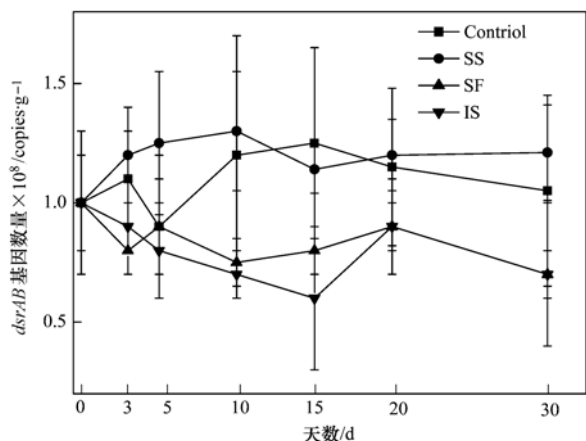


图 3 旱田土壤 *dsrAB* 基因的拷贝数

Fig. 3 The *dsrAB* gene numbers in dry land soil

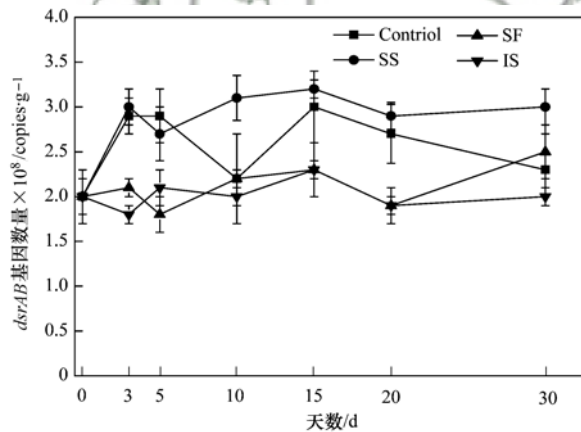


图 4 稻田土壤 *dsrAB* 基因的拷贝数

Fig. 4 The *dsrAB* gene numbers in paddy field soil

但是进一步对比旱田土壤和稻田土壤中的 *dsrAB* 基因拷贝数可知, 稻田土壤的 *dsrAB* 基因拷贝数显著高于旱田土壤. 对照样中, 稻田土壤 *dsrAB* 基因拷贝数为 $1.8 \times 10^8 \sim 3 \times 10^8 \text{ copies}\cdot\text{g}^{-1}$, 该数值与文献中报道的稻田土壤以及沉积物中 *dsrAB* 基因拷贝数值相近, 例如, Wang 等^[18]和 Liu 等^[19]检测到贵州万山地区稻田土 *dsrAB* 基因拷贝数为 $0.6 \times 10^8 \sim 3.5 \times 10^8 \text{ copies}\cdot\text{g}^{-1}$, Kondo 等^[20]发现淡水河

的沉积物中 *dsrAB* 基因拷贝数为 $0.2 \times 10^8 \sim 5.7 \times 10^8 \text{ copies} \cdot \text{g}^{-1}$. 同期对照处理的旱田土壤中 *dsrAB* 基因拷贝数为 $1 \times 10^8 \sim 1.25 \times 10^8 \text{ copies} \cdot \text{g}^{-1}$, 为稻田土壤的 $1/3$, 可能是由于稻田土壤在淹水的培养而形成厌氧氛围, 而旱地土壤处于好氧氛围的原因. 已有研究表明^[21], SRB 属于厌氧菌适于在厌氧条件下生存, 环境氧浓度升高会导致参与 SRB 硫酸盐代谢的焦磷酸酶迅速失活, 使 SRB 无法完成正常的能量代谢而失去活性, 因此, 处于厌氧状态的稻田土壤更易于 SRB 的生存, 这也可能是造成稻田土壤 MeHg 生成量明显高于旱地土壤 MeHg 的主要原因. 进一步分析土壤 MeHg 增量和 *dsrAB* 基因拷贝数的关系发现, 对照样和 SS 处理的旱田土壤和稻田土壤中 MeHg 增量和 *dsrAB* 基因拷贝数有显著的正相关性 ($R^2 = 0.57, P < 0.01$), 见图 5. 因此, SRB 是土壤中主导汞甲基化的微生物, 且其丰度对 MeHg 的形成具有显著的影响.

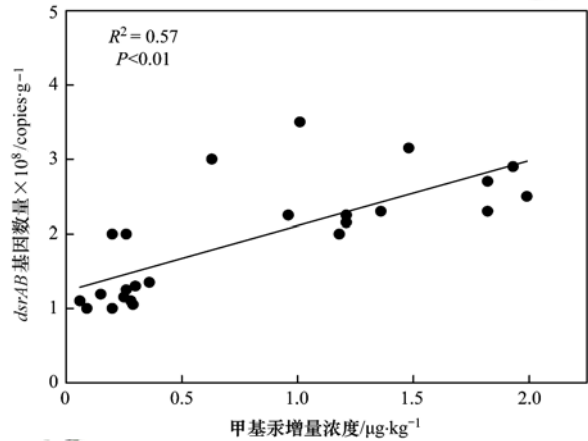


图5 MeHg 增量与 *dsrAB* 基因拷贝数的相关关系

Fig. 5 Relationships between *dsrAB* gene numbers and increments of MeHg concentrations in soils

2.4 环境因素对汞甲基化的影响

土壤汞甲基化作用不仅受汞甲基化微生物的影

响, 一些环境因素, 包括: 氧化还原电势 (Eh)、pH、有机质以及硫化物对 MeHg 的生成也起到促进或抑制的作用^[22,23]. 实验培养期内, 旱田土壤 Eh 没有发生明显变化[图 6(a)], 但稻田土壤的 Eh 出现显著的下降[图 6(b)]. 在培养的前 5 d 除 Ab 处理外, 其他处理的 Eh 迅速从 120 mV 下降到 $-75 \sim -80 \text{ mV}$. 说明稻田土壤的水淹条件明显降低了土壤 Eh 值, 这种厌氧氛围促进了稻田土中 SRB 的生长进而促进了 MeHg 的形成. 旱田土壤的 pH 值没有发生规律性变化[图 7(a)]. 受稻田土壤 Eh 下降的影响, 除 Ab 处理外, 稻田土壤 pH 在培养的前 5 d 从 6.5 上升到 7.1, 并保持在 7.1 左右[图 7(b)].

此外, 通过对土壤可溶性有机质 (DOC) 的分析发现 (图 8), Ab 处理的旱田土壤和稻田土壤的 DOC 出现了明显的下降, 这可能是由于高温高压条件使土壤中的小分子糖、可溶性有机酸等 DOC 发生分解从而降低了 DOC 的浓度, 而其余处理方式对土壤 DOC 浓度并没有显著的影响. 对对照样和 SS 处理的土壤中 MeHg 增量与 pH 和 DOC 的相关性进行分析 (表 3), 结果表明 pH 和 DOC 与土壤 MeHg 的增量没有显著的相关性. 这与王欣悦等^[24] 和仇广乐等^[25] 通过大范围野外调查的结果不同, 本实验条件下样品 pH 和 DOC 浓度变化较小 (如图 8), 该变化范围对 MeHg 生成影响不构成显著影响.

表 3 旱田土壤和稻田土壤 MeHg 增量与 pH 值, DOC 的相关性

Table 3 Correlation between increments of MeHg concentrations and pH and DOC in soils of dry land and paddy field

项目	旱田 MeHg 增量	稻田 MeHg 增量
pH	$R^2 = 0.011, P > 0.05$	$R^2 = 0.013, P > 0.05$
DOC	$R^2 = 0.018, P > 0.05$	$R^2 = 0.015, P > 0.05$

已有研究表明^[25,26], 土壤可溶性硫化物对土壤 MeHg 浓度具有显著影响 (图 9), 硫化物可以抑制土壤 MeHg 的形成, 其原因主要是可溶性硫化物可以

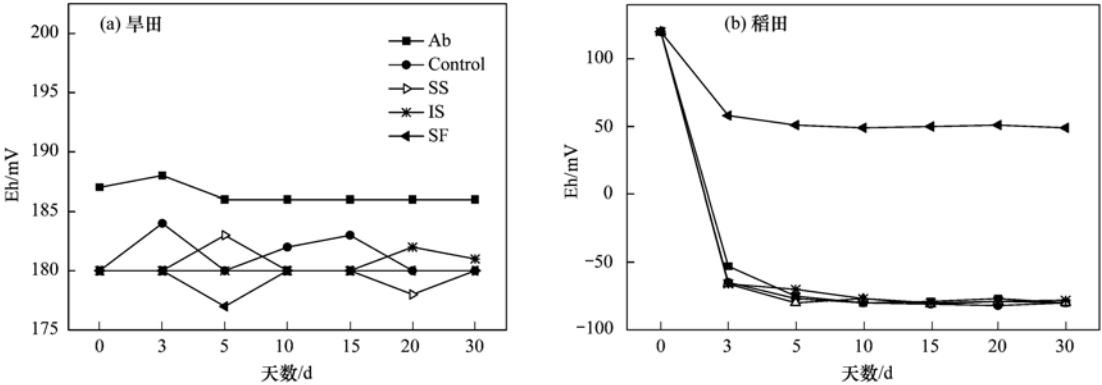


图6 实验培养期内土壤 Eh

Fig. 6 Values of Eh in soil samples during the incubation period

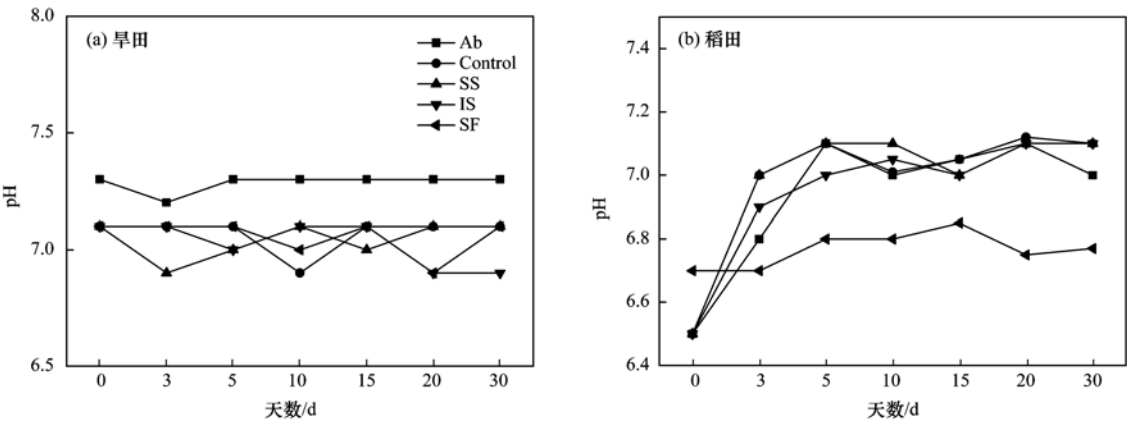


图7 实验培养期内土壤 pH
Fig. 7 Values of pH in soil samples during the incubation period

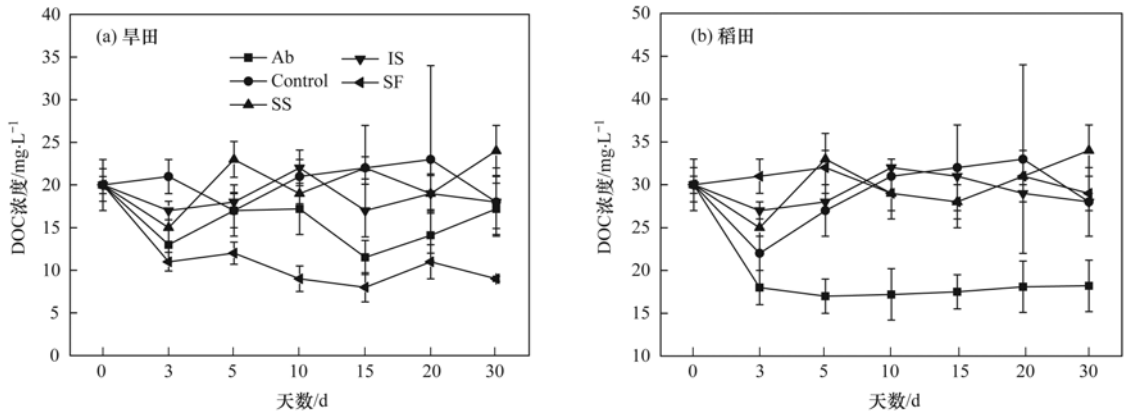


图8 实验培养期内土壤 DOC 浓度
Fig. 8 Values of DOC in soil samples during the incubation period

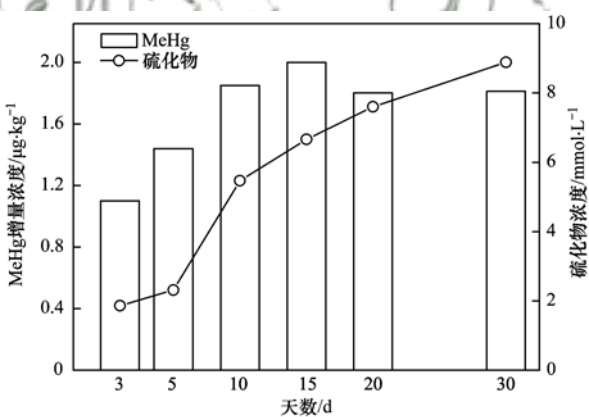


图9 稻田促进 SRB 活性处理 (SS) 土壤 MeHg 增量
和孔隙水硫化物浓度
Fig. 9 Values of increments of MeHg concentrations in
soils and sulfide concentrations in pore water
in SRB stimulated (SS) treatment

与土壤中的 $\text{Hg}(\text{II})$ 结合形成难溶的汞的硫化物, 难以被汞甲基化微生物利用, 进而降低了 MeHg 的形成. 本实验中, 旱田土壤对照样和 SS 处理的样品可溶性硫化物与 MeHg 增量并没有显著地相关性

($P > 0.05$). 但是, 稻田土壤 SS 处理样品在培养的第 15 d MeHg 增量开始降低, 同时上覆水中不断出现红褐色沉淀, 对其进行元素分析发现其主要成分为: $\text{S} = 58\%$, $\text{C} = 22\%$, 土壤孔隙水中的硫化物也在培养过程从 0 增长到 $2 \text{ mmol}\cdot\text{L}^{-1}$ (如图 9). 硫化物的增加可能是由于 SRB 的呼吸作用使土壤中的硫酸盐转化为硫化物^[27], 而这些硫化物降低了土壤中可利用态汞, 进而抑制了土壤 MeHg 的形成.

3 结论

(1) 本文通过实验室模拟培养实验对旱田土壤和稻田土壤汞甲基化作用进行研究. 结果表明, 不同处理方法对土壤甲基汞生成具有显著影响, 其中以促进 SRB 处理的土壤 MeHg 生成量最大, 而抑制 SRB 处理的 MeHg 生成量最低. 此外, 灭菌处理的土壤甲基汞增量为负. *dsrAB* 基因拷贝数结果显示, 土壤 *dsrAB* 基因拷贝数与土壤 MeHg 增量呈显著正相关性. 表明该汞矿区农田土壤的汞甲基化过程主要是 SRB 主导的微生物甲基化过程.

(2)相比于旱田土壤,稻田土壤由于淹水形成的厌氧环境更有利于 SRB 的生存,具有更高的汞甲基化能力。

(3)此外,本实验中环境因素 pH 值,DOC 与土壤 MeHg 增量没有明显的相关性,但是对于 SS 处理的稻田土,由于 SRB 的代谢作用,培养过程中土壤溶液中的硫化物不断增加,在一定程度上抑制了 MeHg 的生成。

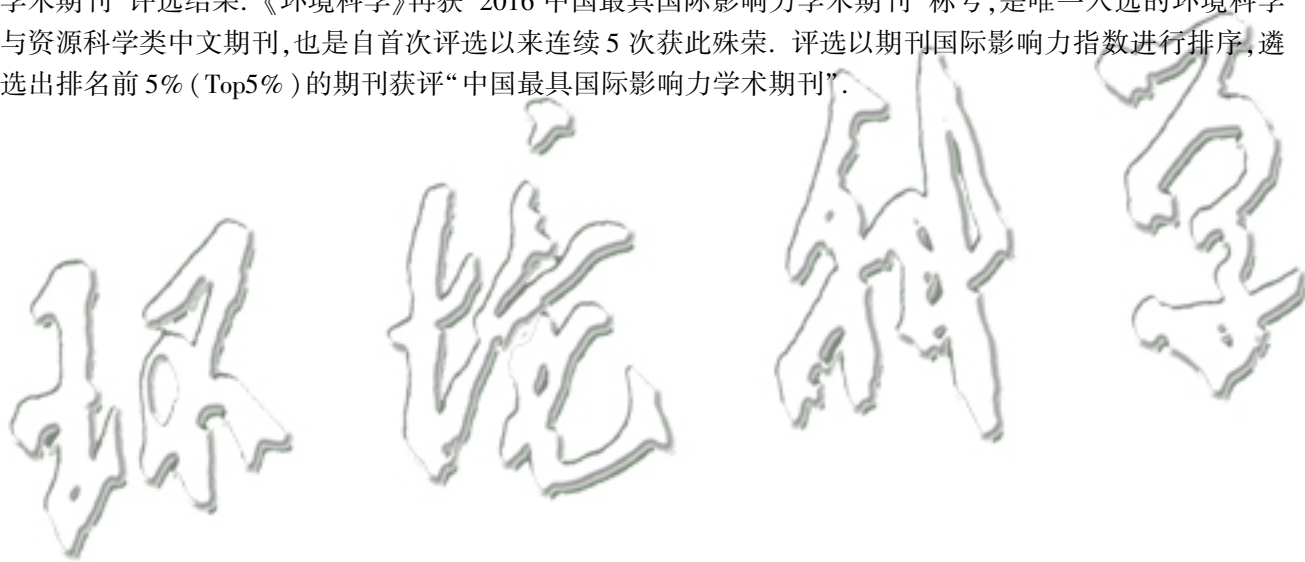
参考文献:

- [1] Selin N E. Global biogeochemical cycling of mercury: a review [J]. Annual Review of Environment and Resources, 2009, **34** (1): 43-63.
- [2] Zhang H, Feng X B, Larssen T, et al. Bioaccumulation of methylmercury versus inorganic mercury in rice (*Oryza sativa* L.) grain [J]. Environmental Science & Technology, 2010, **44** (12): 4499-4504.
- [3] Qiu G L, Feng X B, Li P, et al. Methylmercury accumulation in rice (*Oryza sativa* L.) grown at abandoned mercury mines in Guizhou, China [J]. Journal of Agricultural and Food Chemistry, 2008, **56**(7): 2465-2468.
- [4] Feng X B, Li P, Qiu G L, et al. Human exposure to methylmercury through rice intake in mercury mining areas, Guizhou Province, China [J]. Environmental Science & Technology, 2008, **42**(1): 326-332.
- [5] Meng B, Feng X B, Qiu G L, et al. Distribution patterns of inorganic mercury and methylmercury in tissues of rice (*Oryza sativa* L.) plants and possible bioaccumulation pathways [J]. Journal of Agricultural and Food Chemistry, 2010, **58** (8): 4951-4958.
- [6] 胡海燕, 冯新斌, 曾永平, 等. 汞的微生物甲基化研究进展 [J]. 生态学杂志, 2011, **30**(5): 874-882.
Hu H Y, Feng X B, Zeng Y P, et al. Progress in research on microbial methylation of mercury [J]. Chinese Journal of Ecology, 2011, **30**(5): 874-882.
- [7] Zhao X H, Rockne K J, Drummond J L, et al. Characterization of methyl mercury in dental wastewater and correlation with sulfate-reducing bacterial DNA [J]. Environmental Science & Technology, 2008, **42**(8): 2780-2786.
- [8] Parks J M, Johs A, Podar M, et al. The genetic basis for bacterial mercury methylation [J]. Science, 2013, **339**(6125): 1332-1335.
- [9] Compeau G C, Bartha R. Sulfate-reducing bacteria: principal methylators of mercury in anoxic estuarine sediment [J]. Applied and Environmental Microbiology, 1985, **50**(2): 498-502.
- [10] Kerin E J, Gilmour C C, Roden E, et al. Mercury methylation by dissimilatory iron-reducing bacteria [J]. Applied and Environmental Microbiology, 2006, **72**(12): 7919-7921.
- [11] Schwertmann U, Cornell R M. Iron oxides in the laboratory: preparation and characterization [M]. Hoboken: Wiley-VCH, 2000. 188-190.
- [12] 蔡靖, 郑平, 张蕾. 硫酸盐还原菌及其代谢途径 [J]. 科技通报, 2009, **25**(4): 427-431.
Cai J, Zheng P, Zhang L. Sulfate-reducing bacteria and their metabolic pathway [J]. Bulletin of Science and Technology, 2009, **25**(4): 427-431.
- [13] Geets J, Borremans B, Diels L, et al. *DsrB* gene-based DGGE for community and diversity surveys of sulfate-reducing bacteria [J]. Journal of Microbiological Methods, 2006, **66**(2): 194-205.
- [14] St. Pierre K A, Chételat J, Yumvihoze E, et al. Temperature and the sulfur cycle control monomethylmercury cycling in high arctic coastal marine sediments from Allen Bay, Nunavut, Canada [J]. Environmental Science & Technology, 2014, **48** (5): 2680-2687.
- [15] Ekstrom E B, Morel F M. Cobalt limitation of growth and mercury methylation in sulfate-reducing bacteria [J]. Environmental Science and Technology, 2008, **42**(1): 93-99.
- [16] Choi S C, Chase Jr T, Bartha R. Enzymatic catalysis of mercury methylation by *Desulfovibrio desulfuricans* LS [J]. Applied and Environmental Microbiology, 1994, **60**(4): 1342-1348.
- [17] Gilmour C C, Elias D A, Kucken A M, et al. Sulfate-reducing bacterium *Desulfovibrio desulfuricans* ND132 as a model for understanding bacterial mercury methylation [J]. Applied and Environmental Microbiology, 2011, **77**(12): 3938-3951.
- [18] Wang X, Ye Z H, Li B, et al. Growing rice aerobically markedly decreases mercury accumulation by reducing both Hg bioavailability and the production of MeHg [J]. Environmental Science & Technology, 2014, **48**(3): 1878-1885.
- [19] Liu Y R, Zheng Y M, Zhang L M, et al. Linkage between community diversity of sulfate-reducing microorganisms and methylmercury concentration in paddy soil [J]. Environmental Science and Pollution Research, 2014, **21**(2): 1339-1348.
- [20] Kondo R, Nedwell D B, Purdy K J, et al. Detection and enumeration of sulphate-reducing bacteria in estuarine sediments by competitive PCR [J]. Geomicrobiology Journal, 2004, **21** (3): 145-157.
- [21] 谢水波, 马华龙, 唐振平, 等. 微氧条件下硫酸盐还原菌颗粒污泥处理废水中铀(VI)的实验研究 [J]. 原子能科学技术, 2015, **49**(1): 26-33.
Xie S B, Ma H L, Tang Z P, et al. Study of U(VI) removal by sulfate reducing bacteria granular sludge under micro-aerobic condition [J]. Atomic Energy Science and Technology, 2015, **49** (1): 26-33.
- [22] Liu Y R, Yu R Q, Zheng Y M, et al. Analysis of the microbial community structure by monitoring an Hg methylation gene (*hgcA*) in paddy soils along an Hg gradient [J]. Applied and Environmental Microbiology, 2014, **80**(9): 2874-2879.
- [23] 王娅, 赵铮, 木志坚, 等. 三峡库区典型农田小流域水体汞的时空分布特征 [J]. 环境科学, 2014, **35**(11): 4095-4102.
Wang Y, Zhao Z, Mu Z J, et al. Spatial and temporal distribution of mercury in water of a small typical agricultural watershed in the three gorges reservoir region [J]. Environmental Science, 2014, **35**(11): 4095-4102.
- [24] 王欣悦, 唐振亚, 张成, 等. 长期不同耕作方式下紫色水稻土和上覆水中汞及甲基汞的分布特征 [J]. 环境科学, 2016, **37**(3): 909-916.
Wang X Y, Tang Z Y, Zhang C, et al. Effects of long-term different tillage methods on mercury and methylmercury contents in purple paddy soil and overlying water [J]. Environmental Science, 2016, **37**(3): 909-916.

- [25] 仇广乐, 冯新斌, 王少锋, 等. 贵州汞矿区不同位置土壤中总汞和甲基汞污染特征的研究[J]. 环境科学, 2006, 27(3): 550-555.
- Qiu G L, Feng X B, Wang S F, *et al.* Total mercury and methylmercury in soils collected from Guizhou hg-mined areas [J]. Environmental Science, 2006, 27(3): 550-555.
- [26] Gerbig C A, Kim C S, Stegemeier J P, *et al.* Formation of nanocolloidal metacinnabar in mercury-DOM-sulfide systems[J]. Environmental Science & Technology, 2011, 45(21): 9180-9187.
- [27] Benoit J M, Gilmour C C, Mason R P. The influence of sulfide on solidphase mercury bioavailability for methylation by pure cultures of *Desulfobulbus propionicus* (1pr3) [J]. Environmental Science & Technology, 2001, 35(1): 127-132.

《环境科学》连续 5 次荣获 “中国最具国际影响力学术期刊”称号

2016 年 11 月 22 日,中国学术期刊(光盘版)电子杂志社(CNKI)等机构发布“2016 中国最具国际影响力学术期刊”评选结果.《环境科学》再获“2016 中国最具国际影响力学术期刊”称号,是唯一入选的环境科学与资源科学类中文期刊,也是自首次评选以来连续 5 次获此殊荣. 评选以期刊国际影响力指数进行排序,遴选出排名前 5% (Top5%) 的期刊获评“中国最具国际影响力学术期刊”.



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)