

渗滤液污染羽中氧化还原带的动态发展演化研究

董军, 赵勇胜*, 张伟红

(吉林大学环境与资源学院, 长春 130026)

摘要:通过砂箱模拟实验研究了垃圾渗滤液污染羽中氧化还原带的动态发展和演化过程. 结果表明, 随着时间的推移和污染程度的加重, 各氧化还原带不断向前推移, 产甲烷带/硫酸盐还原带的范围不断扩大, 随后出现惰性区. 在氧化还原带的整个演化过程中, 各带中 TOC、硫化物、 $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ 、 HCO_3^- 、 CO_2 和 Fe^{2+} 等物质的浓度随着时间的推移而升高, 随离污染源距离的增加而降低; NO_3^- 和 DO 等物质的浓度随着时间的推移而减小, 随离污染源距离的增加而升高; SO_4^{2-} 的浓度则随着时间的推移先减小而后增加, 随离污染源距离的增加而降低. 而且, 随着污染程度的加重, 沉积物中 Fe^{3+} 含量降低, TOC 含量升高. 在氧还原带、硝酸盐还原带、铁还原带和产甲烷带/硫酸盐还原带沉积物中, Fe^{3+} 由占 OXC 的 70.5% 分别减小为 56.3%、41%、28.3% 和 15%; TOC 由占 RDC 的 98.7% 分别升高为 102.0%、107.0%、142.9% 和 162.1%; Fe^{2+} 主要以 FeS 和 FeCO_3 沉淀形式沉积下来, 分别占总 Fe^{2+} 的 80.6%、175.6%、377.7% 和 555.1%.

关键词:垃圾渗滤液; 污染羽; 氧化还原带; 动态发展演化

中图分类号: X524 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2008)07-1942-06

Dynamitic Development and Evolution of Redox Zones in Pollution Plume

DONG Jun, ZHAO Yong-sheng, ZHANG Wei-hong

(College of Environment and Resources, Jilin University, Changchun 130026, China)

Abstract: A box filled with sandy soil was constructed to investigate dynamitic development and evolution of redox zones in landfill leachate-polluted plume. The results indicated that with time elapsing and pollution aggravating, redox zones moved ahead slowly; Methanogenic zone/sulfate reduction zone extended gradually, and then inert zone appeared with further pollution. During the whole course of the dynamitic development and evolution of redox zones, concentrations of TOC, sulfide, $\text{NH}_4^+ - \text{N}$, HCO_3^- , CO_2 and Fe^{2+} increased with time and decreased with distance; concentrations of NO_3^- and DO decreased with time and increased with distance; SO_4^{2-} concentration decreased first and then increased over time; but decreased with distance. Moreover, with time elapsing and pollution aggravating, the Fe^{3+} content of sediments was decrease and TOC was increase. Within oxygen reduction zone, nitrate reduction zone, iron reduction zone and methanogenic zone/sulfate reduction zone, Fe^{3+} content of sediments accounted for 70.5% of OXC decreased to 56.3%, 41%, 28.3% and 15%, and the TOC accounted for 98.7% of RDC increased to 102.0%, 107.0%, 142.9% and 162.1%, respectively; Fe^{2+} mainly precipitated as FeS and FeCO_3 , and accounted for 80.6%, 175.6%, 377.7% and 555.1% of total Fe^{2+} , respectively.

Key words: landfill leachate; pollution plume; redox zones; dynamitic development and evolution

当垃圾渗滤液中的污染物质泄漏进入地下环境时, 随着泄漏量的增大, 污染程度不断加重, 地下环境也发生了相应的变化, 其由初始的氧化性环境向还原性环境演变. 在这个过程中, 地下环境中的微生物利用不同的最终电子受体(如 O_2 、 NO_3^- 、 Fe^{3+} 、 Mn^{4+} 和 SO_4^{2-} 等)通过好氧呼吸、硝酸盐还原、铁锰还原、硫酸盐还原和产甲烷等代谢途径实现对有机污染物的降解, 由于这些最终电子受体竞争最终电子能力的差异和降解反应过程释放能量的不同, 导致在水流方向上形成一系列顺序氧化还原带^[1~4], 这些氧化还原带控制着地下环境中有机物的降解和无机化学反应的进行, 对污染物的迁移转化有重要影响. 若污染源得到控制后, 在生物地球化学作用下, 地下环境又从还原性环境向氧化性环境恢复, 这个过程就是一个缓慢的自然修复过程. 已有的研究

主要对污染物和氧化还原灵敏性物质在不同氧化还原带中的分布进行了一定的研究^[11~14], 对氧化还原带的发展演化鲜见报道. 本试验主要研究污染和自然恢复过程中氧化还原带的发展演化, 污染物和氧化还原灵敏性物质在时空范围内的变化. 此研究可为垃圾污染场地的风险评价提供一定的理论基础, 对污染场地的控制、自然修复和强化自然修复等具有重要意义.

1 材料与方法

1.1 实验材料

收稿日期: 2007-07-16; 修订日期: 2007-09-17

基金项目: 国家重点基础研究发展规划(973)项目(2004CB418505); 吉林大学“985 工程”项目

作者简介: 董军(1976~), 男, 讲师, 主要研究方向为水土环境污染控制与治理, E-mail: dongjun@jlu.edu.cn

* 通讯联系人, E-mail: zhaoyongsheng@jlu.edu.cn

实验装置为 1 个有机玻璃箱(130 cm × 30 cm × 80 cm)和 2 个马氏瓶(图 1), 填充取自于长春市伊通河畔的扰动粉砂土. 装样时在设定的取样位置安装玻璃管用于取样. 实验所用垃圾渗滤液是取自于长春市裴家垃圾填埋场, 其初始基本理化性质见表 1.

1.2 实验方法

在有机玻璃箱中填充 267.5 kg 粉砂土(湿度为 15%), 压实后其密度为 1.53 g/cm³. 用自来水模拟地下水缓慢注入箱内, 水力坡度约为 5‰, 然后以相同的流速向箱中注入垃圾渗滤液, 模拟垃圾填埋场泄漏. 经测算, 孔隙度约为 0.43, 渗透系数(*K*)约为



图 1 实验装置
Fig.1 Diagram of experiment equipment

表 1 渗滤液的基本性质
Table 1 Properties of landfill leachate

pH	Eh/mV	电导率/mS·m ⁻¹	TOC/mg·L ⁻¹	COD/mg·L ⁻¹	HCO ₃ ⁻ /mg·L ⁻¹	Fe ³⁺ /mg·L ⁻¹	总 Fe/mg·L ⁻¹	NH ₄ ⁺ -N/mg·L ⁻¹
7.86	-267.7	257.6	1 863.87	7 891.23	12 954.4	23.42	28.63	1 014.56

2.002 m/d, 线性流速约为 1.1 ~ 1.4 cm/d. 实验运行至 60 d 时停止注入渗滤液. 取样时尽可能控制流速以减小扰动流场.

沉积物中各种形态 Fe³⁺ 和 Fe²⁺ 的检测采用分级提取法^[5,6], OXC 和 RDC 通过计算所得^[7,8], 其它指标均采用采用常规分析方法^[9].

2 结果与分析

MGZ、SRZ、IRZ、NRZ 和 ORZ 分别代表产甲烷

带、硫酸盐还原带、铁还原带、硝酸盐还原带和氧还原带.

2.1 氧化还原带随时间的变化

从图 2 可以看出, 顺序氧化还原带在发展演化的过程中随着时间的推移, 不断向前推进. 在 20 d 时, 污染羽中只出现了 MGZ/SRZ 和 ORZ; 在 40 d 时, 出现了 IRZ, 但其范围相对较小; 在 60 d 时同时存在 MGZ/SRZ、IRZ、NRZ 和 ORZ, 而且, MGZ/SRZ 和 IRZ 的范围比较大. 随后, 当垃圾渗滤液停止泄漏后(污

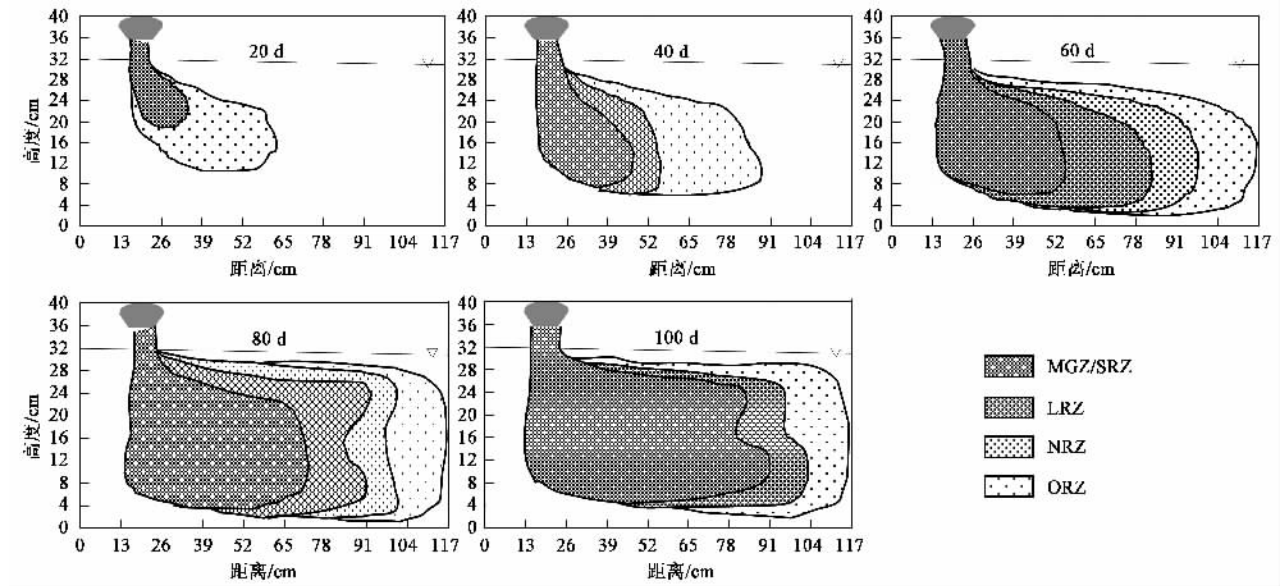


图 2 氧化还原带动态发展演化
Fig.2 Dynamic development and evolution of redox zones

染源得到控制),在一定的范围内, MGZ/SRZ 范围的继续扩大,但 IRZ、NRZ 和 ORZ 的范围逐渐缩小,100 d 时 NRZ 基本消失.这种现象的发生正是自然修复作用的结果.由此推理,随着时间的延长,IRZ 和 MGZ/SRZ 也将进一步缩小,最终将相继消失.

在顺序氧化还原带的整个发展演化过程中,各氧化还原带水溶液中的各种污染物和氧化还原灵敏性物质的浓度变化见表 2.表 2 中的数据表明,各顺序氧化还原带中,TOC、硫化物、 $\text{NH}_4^+ \text{-N}$ 、 HCO_3^- 、 CO_2 和 Fe^{2+} 等物质的浓度随着时间的推移不断升高,而在空间上则随着离污染源距离的增加而降低; NO_3^-

和 DO 等物质的浓度随着时间的推移而不断减小,在空间上随着离污染源距离的增加而升高; SO_4^{2-} 的浓度则随着时间的推移呈现先减小而后增加的变化趋势,在空间上也是随离污染源距离的增加而降低.在 80 d 和 100 d 时 MGZ/SRZ 中的污染物和氧化还原灵敏性物质的浓度变化幅度并不大,说明部分 MGZ/SRZ 已经演化为低活性环境,氧化还原缓冲能力大大减小.总之,在厌氧还原性环境中,如 MGZ/SRZ、 Fe^{2+} 、 $\text{NH}_4^+ \text{-N}$ 、 NO_2^- 和硫化物等还原性物质的含量相对较高;在氧化性环境中,如 NRZ 和 ORZ、 NO_3^- 、 SO_4^{2-} 和 DO 等氧化性物质的含量相对较高.

表 2 氧化还原带中污染物和氧化还原灵敏性物质变化/ $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$
Table 2 Variation of pollutants and redox sensitive substrates in redox zones/ $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$

时间/d	氧化还原带	TOC	$\text{NH}_4^+ \text{-N}$	CO_2	HCO_3^-	SO_4^{2-}	硫化物	Fe^{2+}	NO_3^-	NO_2^-	DO
20	MGZ/SRZ	76.81	26.77	68.37	1 156.88	109.34	18.31	0.72	0	0.001	0
	IRZ	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
	NRZ	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
	ORZ	0	0	0	0	0	0	0	5.81	0	7.06
40	MGZ/SRZ	185.33	51.02	130.18	2 794.26	273.61	27.89	1.65	0	0	0
	IRZ	60.17	12.25	32.59	766.17	124.89	7.63	3.78	0.50	0.001	0
	NRZ	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
	ORZ	0	0	0	105.34	0	0	0	5.70	0	7.32
60	MGZ/SRZ	286.75	154.08	285.01	4 023.87	197.42	32.52	4.85	0	0	0
	IRZ	91.64	54.86	101.23	1 526.36	172.80	9.73	6.23	0.43	0.001	0
	NRZ	0	5.31	26.07	691.55	35.24	1.09	1.50	1.01	0.009	1.18
	ORZ	0	1.44	0	276.28	0	0	0.08	6.78	0.002	6.23
80	MGZ/SRZ	393.54	285.99	335.28	5 568.34	162.16	27.28	9.97	0	0	0
	IRZ	125.08	101.12	189.57	2 068.98	247.54	10.61	12.95	0.17	0.001	0
	NRZ	45.34	33.61	112.82	1 150.53	165.46	2.35	3.09	1.50	0.124	1.05
	ORZ	15.31	8.30	26.37	680.76	39.98	0	1.15	6.13	0.002	5.84
100	MGZ/SRZ	454.24	348.60	402.86	6 023.52	109.08	29.65	10.03	0	0	0
	IRZ	143.78	165.04	253.99	2 735.61	307.39	13.68	13.52	0	0.001	0
	NRZ	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
	ORZ	28.64	23.96	88.83	1 034.66	69.60	1.06	3.80	3.56	0.001	3.52

综上所述,顺序氧化还原带在发展演化的过程中,随着时间的推移和污染程度的不断加重,各带不断向前推移. MGZ/SRZ 范围不断扩大,随后出现惰性区域.在厌氧还原性环境中,还原性物质的含量较高;在氧化性环境中,氧化性物质的含量较高.各顺序氧化还原带中 TOC、硫化物、 $\text{NH}_4^+ \text{-N}$ 、 HCO_3^- 、 CO_2 和 Fe^{2+} 等物质的浓度随着时间的推移不断升高,在空间上则随着离污染源距离的增加而降低; NO_3^- 和 DO 等物质的浓度随着时间的推移而减小,在空间上随着离污染源距离的增加而升高; SO_4^{2-} 的浓度则随着时间的推移先减小而后增加,在空间上也是随离污染源距离的增加而降低.随着时间的推移和污染程度的加重,垃圾渗滤液污染羽是从氧化性环境向

还原性环境发展,相应地,其中的氧化还原带也是由 ORZ 向 MGZ/SRZ 发展, MGZ/SRZ 和靠近 MGZ/SRZ 边缘的部分 IRZ 发展为低活性环境,氧化还原缓冲能力和环境自净能力大大减小.

2.2 OXC 和 RDC 在氧化还原带演化过程中的变化

沉积物的氧化还原缓冲能力通常用氧化容量(OXC)和还原容量(RDC)来衡量^[7,8],研究其在氧化还原带发展演化过程中的变化对评估地下环境的自然修复能力具有重要意义.从图 3 可知,地下环境一旦遭受污染,OXC 就开始下降,其主要组成也发生相应的变化,如未受污染样品中 Fe^{3+} 和 Mn^{4+} 的含量分别占 OXC 的 70.5%和 11.1%,随着污染程度的加重,其在 ORZ、NRZ、IRZ 和 MGZ/SRZ 中的含量依次

分别减小为 56.3% 和 10.3%、41% 和 8.8%、28.3% 和 7.7%、15% 和 3.8%; 而 TOC 依次逐渐升高, 由原样的 18.4% 依次升高为 20.9%、22%、29.5% 和 31.7% .RDC 随污染程度的加重而不断升高(图 4), 其主要组成物(TOC 和 Fe^{2+} 及其它还原性物质)的含量也在 ORZ、NRZ、IRZ 和 MGZ/SRZ 中依次升高, 分别由原样的 98.7% 和 1.3% 升高为 102.0% 和 1.5%、107.0% 和 2.1%、142.9% 和 3%、162.1% 和 3.5% .由此可知, 氧化还原带由氧化性的 ORZ 向还原性的 MGZ 发展演化的过程中, RDC 逐渐升高, OXC 逐渐减小.

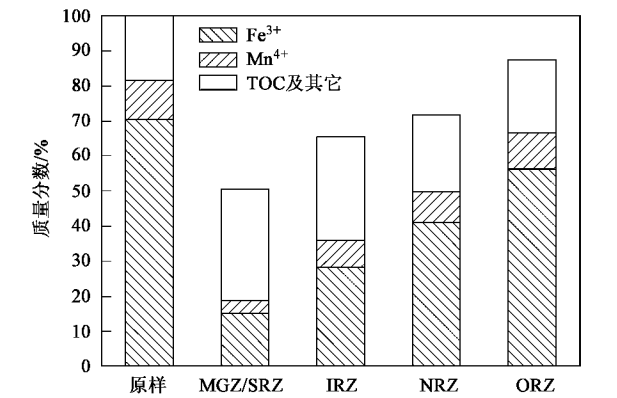


图 3 各氧化还原带沉积物的 OXC 组成变化
Fig.3 Variation of OXC components in redox-zones sediments

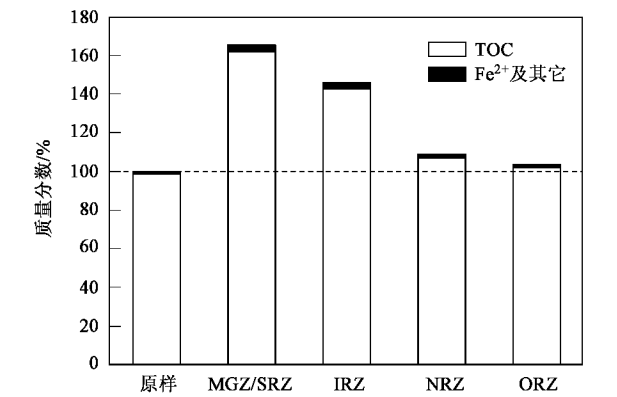


图 4 各氧化还原带沉积物的 RDC 组成变化
Fig.4 Variation of RDC components in redox-zones sediments

2.3 铁在氧化还原带演化过程中的变化

总体来看, 在氧化还原带由 ORZ 向 MGZ 发展演化的过程中, 随着污染程度的加重, 各顺序氧化还原带中总铁的含量均有不同程度的减少. 在 MGZ/SRZ 和 IRZ 中, Fe^{2+} 的沉淀作用和迁移作用并存, 但是由于 Fe^{2+} 的迁移量大于沉淀量, 所以总铁的含量仍相对减少. 而在 NRZ 和 ORZ 中, 微生物主

要利用 NO_3^- 和 O_2 作为最终电子受体对污染物进行降解, 这 2 个带沉积物中总铁含量的增加主要来源于 IRZ 中 Fe^{2+} 的迁移, 而且随着环境氧化性的增强, 部分 Fe^{2+} 又被氧化, 其含量减少. 因此, 在污染羽的中心区域, 铁的含量大幅减少, 而在边缘地带, 由于它们的迁移, 含量则相对较高.

图 5 表明, 原样中可离子交换态 Fe^{2+} 、 $\text{FeCO}_3\text{-Fe}^{2+}$ 和 FeS-Fe^{2+} 的含量分别为 0.87、0.18 和 5.02 $\mu\text{g/g}$, 3 种 Fe^{2+} 在 MGZ/SRZ 中的含量分别为 4.57、1.67 和 11.78 $\mu\text{g/g}$, 在 IRZ 中分别为 3.28、0.85 和 5.74 $\mu\text{g/g}$, 含量明显增多. 而在 NRZ 和 ORZ 含量相对较低, 说明 Fe^{3+} 还原在 MGZ/SRZ 和 IRZ 中比较活跃, 而且还原产生的 Fe^{2+} 并没有完全迁移到 NRZ 和 ORZ, 大部分则以 FeS 和 FeCO_3 沉淀形式沉积下来, 在两带中分别占总 Fe^{2+} 的 555.1% 和 377.7%, 而在 NRZ 和 ORZ 中的沉积量分别只占 175.6% 和 80.6%. 另一小部分则通过离子交换进入沉积物当中, 在 MGZ/SRZ、IRZ、NRZ 和 ORZ 分别只占 3%、1.84%、0.3% 和 0.1%, 可离子交换态 Fe^{2+} 在 MGZ/SRZ 和 IRZ 中含量的升高说明 Fe^{3+} 被还原, 而在 NRZ 和 ORZ 中的含量减少说明 Fe^{3+} 未被还原或 Fe^{2+} 处于热力学不稳定状态. 残余态 Fe^{2+} (主要是粘土和硅酸岩屑等矿物中的 Fe^{2+}) 在各带分别占 494%、330.3%、175.6%、80.6%. 由此可见, 任何一种形态的 Fe^{2+} 在厌氧环境中的含量较高, 而在氧化性环境中的含量较少.

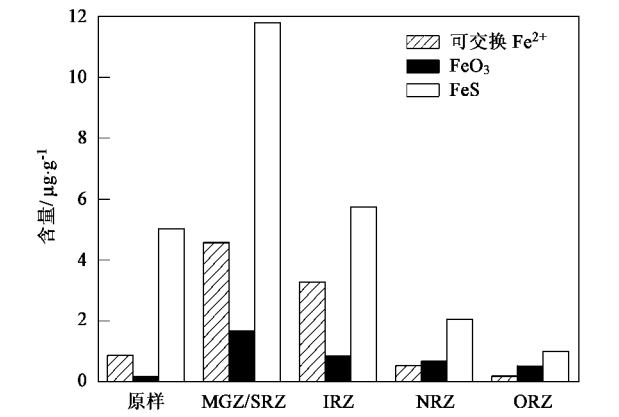


图 5 各种 Fe^{2+} 在氧化还原带中的分布
Fig.5 Distributions of Fe^{2+} species in redox zones

图 6 表明, Fe^{3+} 在离污染源较近的厌氧环境中含量较低, 如在 MGZ/SRZ 和 IRZ 中的含量分别为 627.77 $\mu\text{g/g}$ 和 828.14 $\mu\text{g/g}$, 分别占可提取 Fe^{3+} 的 11.3% 和 15%, 这一方面说明沉积物中易溶的和无

定型的 Fe^{3+} ，如 $\text{Fe}(\text{OH})_3$ 、 $\beta\text{-FeOOH}$ 等，容易被微生物还原利用，同时产生可溶的 Fe^{2+} 进入水中，使沉积物中总铁的含量减少，其中部分 Fe^{2+} 随水流迁移，同时又有少部分 Fe^{2+} 与 SO_4^{2-} 被还原产生的 S^{2-} 生成硫化物沉淀或 FeCO_3 沉淀，因此在 MGZ/SRZ 的沉积物中 Fe^{2+} 含量相对最多；另一方面，渗滤液污染羽中的大部分可利用 Fe^{3+} 已经被微生物还原，而且由于长期的接触和化学作用（主要是低 Eh 下的络合作用）使部分晶体铁氧化物，如针铁矿（ $\alpha\text{-FeOOH}$ ）和赤铁矿（ Fe_2O_3 ）等，也被还原溶解，最终剩余的大部分是微生物不可还原、不可利用的矿物，如磁铁矿或部分存在于粘土矿物和其它矿物中的 Fe^{3+} ；随着环境氧化性的不断增强， Fe^{3+} 含量又逐渐升高；在 NRZ 和 ORZ 中含量分别为 $1\,023.83\,\mu\text{g/g}$ 和 $1\,146.93\,\mu\text{g/g}$ ，分别占可提取 Fe^{3+} 的 18.5% 和 20.7%，这有可能是由于部分铁氧化物还未被还原，也有可能是从上游还原环境中迁移来的 Fe^{2+} 在氧化环境中被氧化为 Fe^{3+} 。

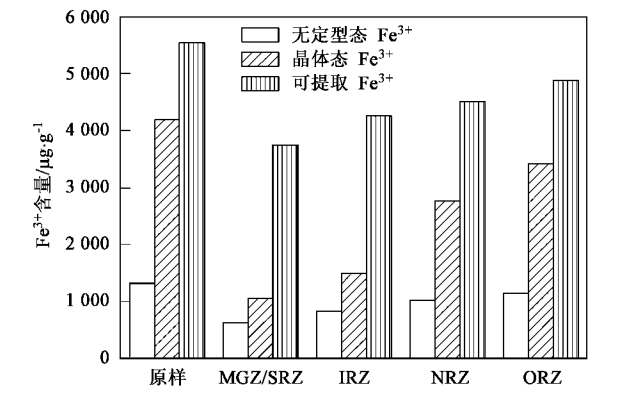


图 6 各形态 Fe^{3+} 在氧化还原带中的分布

Fig.6 Distributions of Fe^{3+} species in redox zones

2.4 氧化还原带演化的概念模型

随着垃圾渗滤液中强还原性污染物的不断泄漏，污染羽中的氧化还原带也随之不断发生变化。根据实验监测结果，结合热力学、生物地球化学原理推演出污染羽中氧化还原带随时间演化的理论概念模型（图 7）。从图 7 可以看出，在一定的范围内，随着污染源泄漏还原性污染物量的增加和时间的推移，氧化性环境的范围逐渐缩小，各氧化还原带的范围均有不同程度的增大，最终 IRZ 占有相对较大的范围（图 7a、b、c）；当污染源得到控制后，还原性污染物停止泄漏，氧化性环境又逐渐得到一定程度的恢复，但是 MGZ 和靠近 MGZ 的部分 IRZ 已演变为低活性环境，氧化还原缓冲能力和自净能力大大减小，沉积物

中铁的含量较低，还原性硫含量较多（图 7d、e）。

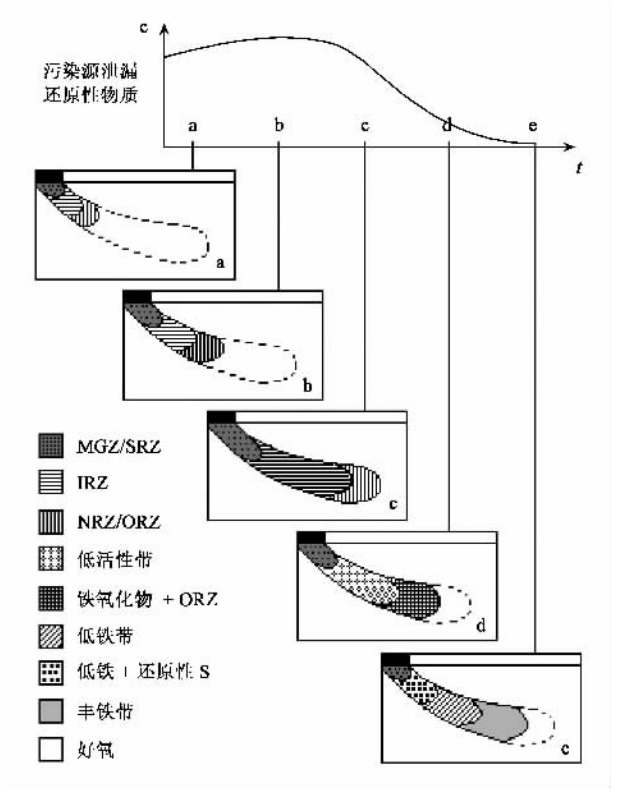


图 7 氧化还原带发展演化的理论模型^[10]

Fig.7 Theoretical models of development and evolution of redox zones

2.5 氧化还原带演化机理

氧化还原带的形成、发展和演化主要与地下环境中的最终电子受体有密切的关系。地下环境中的微生物利用不同最终电子受体顺序的不同决定了氧化还原带的形成，而最终电子受体含量的多少决定着氧化还原带的变化速度和范围大小，若某种最终电子受体的含量较多，相应的氧化还原带在同一地点存在的时间越长，范围也越大。此外氧化还原带的形成、发展和演化还和释放的还原性污染物的量有关。单位时间内释放的还原性污染物的量越大，氧化还原带的发展变化就越快。

3 结论

(1) 顺序氧化还原带在发展演化的过程中，是由 ORZ 向 MGZ/SRZ 发展，而且随着时间的推移和污染程度的不断加重，各氧化还原带不断向前推移，MGZ/SRZ 的范围不断扩大，随后出现惰性区域，其氧化还原缓冲能力和自净能力大大减小，沉积物中铁的含量较低，还原性硫含量较多。

(2) 在顺序氧化还原带的整个发展演化过程中，各氧化还原带中 TOC、硫化物、 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 、 HCO_3^- 、 CO_2

和 Fe^{2+} 等物质的浓度随着时间的推移而升高, 在空间上则随着离污染源距离的增加而降低; NO_3^- 和 DO 等物质的浓度随着时间的推移而减小, 在空间上随着离污染源距离的增加而升高; SO_4^{2-} 的浓度则随着时间的推移先减小而后增加, 在空间上也是随离污染源距离的增加而降低.

(3)氧化还原带在由氧化性的 ORZ 向还原性的 MGZ 发展演化的过程中, RDC 逐渐升高, OXC 逐渐减小, 其主要组成也发生了相应的变化.

(4)任何一种形态的 Fe^{2+} 在还原性环境中的含量较高, 而在氧化性环境中的含量较少; Fe^{3+} 在离污染源较近的厌氧环境中含量较低, 在离污染源较近的氧化性环境中含量较高.

参考文献:

[1] 董军, 赵勇胜, 王翊虹, 等. 渗滤液污染羽中沉积物氧化还原缓冲能力研究[J]. 环境科学, 2006, 27(12): 2558-2563.

[2] 董军, 赵勇胜, 韩融, 等. 垃圾渗滤液污染羽在地下环境中的分带现象研究[J]. 环境科学, 2006, 27(9): 1901-1905.

[3] Christonsen T H, Kjeldsen P, Bjerg P L, *et al.* Biogeochemistry of landfill leachate plumes [J]. Appl Geochem, 2001, 16(6/7): 659-718.

[4] Christonsen T H, Bjerg P L, Banwart S A, *et al.* Characterization of redox conditions in groundwater contaminant plumes [J]. J Contam Hydrol, 2000, 45(3/4): 165-241.

[5] Heron G, Christensen T H. Impact of sediment-bound iron on redox buffering in a landfill leachate polluted aquifer (Vejen, Denmark)

[J]. Environ Sci Technol, 1995, 29(1): 187-192.

[6] Heron G, Crouzet C, Bourg A C M, *et al.* Speciation of Fe (II) and Fe (III) in contaminated aquifer sediments using chemical extraction techniques [J]. Environ Sci Technol, 1994, 28(9): 1698-1705.

[7] Heron G, Christensen T H, Tjell J C. Oxidation capacity of aquifer sediments [J]. Environ Sci Technol, 1994, 28(1): 153-158.

[8] Barcelona M J, Holm T R. Oxidation-reduction capacities of aquifer solids [J]. Environ Sci Technol, 1991, 25(9): 1565-1572.

[9] 国家环境保护总局《水和废水监测分析方法》编委会. 水和废水监测分析方法 [M]. (第四版). 北京: 中国环境科学出版社, 2002.

[10] Christensen T H, Bjerg P L, Banwart S A, *et al.* Characterization of redox conditions in groundwater contaminant plumes [J]. J Contam Hydrol, 2000, 45(3-4): 165-241.

[11] Bjerg P L, Rugge K, Pedersen J K, *et al.* Distribution of redox-sensitive groundwater quality parameters downgradient of a landfill (Grindsted, Denmark) [J]. Environ Sci Technol, 1995, 29: 1387-1394.

[12] Rugge K, Bjerg P L, Mosbaek H, *et al.* Fate of MCP and atrazine in an anaerobic landfill leachate plume (Grindsted, Denmark) [J]. Wat Res, 1999, 33(10): 2455-2458.

[13] Rugge K, Bjerg P L, Christensen T H. Distribution of organic compounds from municipal solid waste in the groundwater downgradient of a landfill (Grindsted, Denmark) [J]. Environ Sci Technol, 1995, 29(5): 1395-1400.

[14] Ludvigsen L, Albrechtsen H J, Heron G, *et al.* Anaerobic microbial redox processes in a landfill leachate contaminated aquifer (Grindsted, Denmark) [J]. J Contam Hydrol, 1998, 33(3-4): 273-291.