

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第34卷 第10期

Vol.34 No.10

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

南京地区大气气溶胶 PM _{2.5} 中稳定碳同位素组成研究	吴梦龙, 郭照冰, 刘凤玲, 孙德玲, 卢霞, 姜文娟 (3727)
太原市空气颗粒物中正构烷烃分布特征及来源解析	胡冬梅, 彭林, 白慧玲, 牟玲, 韩峰, 刘效峰, 冀豪栋, 张鹏九 (3733)
交通与气象因子对不同粒径大气颗粒物的影响机制研究	罗娜娜, 赵文吉, 晏星, 官兆宁, 熊秋林 (3741)
公交车燃用生物柴油的颗粒物排放特性	楼狄明, 陈峰, 胡志远, 谭丕强, 胡炜 (3749)
兰州及其周边区域大气降水 δ ¹⁸ O 特征及其水汽来源	陈粉丽, 张明军, 马潜, 李小飞, 王圣杰, 李菲 (3755)
天山乌鲁木齐河源 1 号冰川区气溶胶水溶性离子变化特征及来源分析	岳晓英, 李忠勤, 张明军, 周平, 樊晋 (3764)
O ₃ /H ₂ O ₂ 氧化苯乙烯气体性能及机制	何觉聪, 黄倩茹, 叶杞宏, 罗雨薇, 张再利, 樊青娟, 魏在山 (3772)
马尾松针叶组织稳定硫同位素地球化学特征及来源示踪	关晖, 肖化云, 朱仁果, 郑能建, 瞿玲露 (3777)
江西省表层土壤和苔藓硫含量及硫同位素组成对比研究	李男, 肖化云, 陈永忠, 周丹, 罗笠, 吴代敏 (3782)
辽河流域非点源污染空间特征遥感解析	王雪蕾, 蔡明勇, 钟部卿, 姚延娟, 殷守敬, 吴迪 (3788)
景观带尺度高寒区水文特征时空变化规律研究	杨永刚, 胡晋飞, 肖洪浪, 邹松兵, 尹振良 (3797)
金普湾海域表层沉积物中基质结合态磷化氢的分布特征	游丽丽, 宗海波, 张淑芳, 尹国宇, 李涛, 侯立军 (3804)
崇明东滩湿地干湿交替过程脲酶活性变化初探	韩建刚, 曹雪 (3810)
FDA 水解酶分析法表征近海泥滩微生物活性	刘叶, 邹立, 刘陆, 高冬梅 (3818)
中国东北主要河流沉积物中多溴二苯醚的含量状况及生态风险分析	袁海峰, 成杭新, 赵传冬, 刘应汉, 杨柯, 李括, 彭敏, 刘飞 (3825)
深圳大鹏湾海域表层沉积物和生物体中多环芳烃残留及其风险评价	孙闰霞, 柯常亮, 谷阳光, 卢腾腾, 杜飞雁, 马胜伟, 林钦 (3832)
PMF 和 PCA/MLR 法解析上海市高架道路地表径流中多环芳烃的来源	边璐, 李田, 侯娟 (3840)
三峡库区蓄水初期大宁河重金属食物链放大特征研究	余杨, 王雨春, 周怀东, 高博, 赵高峰 (3847)
小型封闭水体环境因子与叶绿素 a 的时空分布及相关性研究	李飞鹏, 张海平, 陈玲 (3854)
太湖氮、磷自净能力的实验与模型模拟	韩涛, 翟淑华, 胡维平, 张红举, 李钦钦 (3862)
湖泊疏浚方式对内源释放影响的模拟研究	陈超, 钟继承, 范成新, 孔明, 余居华 (3872)
水体/底泥生物基城市河道富营养化水体修复试验研究	周慧华, 宋晓光, 吴革, 谢鑫源 (3879)
底泥调控剂对感潮河涌沉积物中重金属的影响	区凤荏, 孙国萍, 许玫英 (3888)
区域水化学条件对淮南采煤沉陷区水域沉积物磷吸附特征的影响研究	易齐涛, 孙鹏飞, 谢凯, 曲喜杰, 王婷婷 (3894)
4 种人工湿地填料的 f2 噬菌体吸附特性	陈迪, 郑祥, 魏源送, 杨勇 (3904)
稻壳灰对抗生素磺胺的吸附特性研究	纪莹雪, 王凤贺, 张帆, 张艳红, 王国祥, 顾中铸 (3912)
紫外辐射对腐殖酸化学稳定性影响机制研究	王文东, 周礼川, 丁真真, 王洪平, 孙学军 (3921)
基于石墨烯载体的铁基材料制备及除砷性能比较	朝木尔乐格, 冯流, 霍艳霞 (3927)
nTiO ₂ 在水中的分散沉降行为研究	陈金媛, 方金凤, 魏秀珍 (3933)
微生物-铁氧化物交互作用对黄土中砷活化迁移的影响	谢芸芸, 陈天虎, 周跃飞, 谢巧勤 (3940)
两性离子在聚偏氟乙烯 (PVDF) 膜表面接枝改性的研究	周桂花, 肖峰, 肖萍, 王东升, 段晋明, 石健, 臧莉 (3945)
化粪池排口处土壤对典型农户生活污水氮素污染物的消减测算研究	周锋, 王文林, 王国祥, 马久远, 万寅婧, 唐晓燕, 梁斌, 季斌 (3954)
珠江三角洲典型集约化猪场废水污染特征及风险评价	李文英, 彭智平, 于俊红, 黄继川, 徐培智, 杨少海 (3963)
污泥堆肥草坪基质利用对草坪生长及土壤和水环境的影响	金树权, 周金波, 陈若霞, 林斌, 王德耀 (3969)
活性污泥絮体粒径分布与分形维数的影响因素	李振亮, 张代钧, 卢培利, 曾善文, 杨永浩 (3975)
不同恢复方式对硝化颗粒污泥活性的影响	郭秀丽, 高大文, 卢健聪 (3981)
生物陶粒反应器的氨自养反硝化研究	陈丹, 王弘宇, 宋敏, 杨开, 刘晨 (3986)
亚高山草甸土壤呼吸的空间异质性研究	严俊霞, 李君剑, 李洪建, 张义辉 (3992)
SiB3 模式对作物区 CO ₂ 通量的模拟研究	张庚军, 卢立新, 蒋玲梅, 蒋磊, Ian Baker (4000)
缙云山土地利用方式对土壤活性有机质及其碳库管理指数的影响	徐鹏, 江长胜, 郝庆菊, 祝滔 (4009)
典型农业城市街道灰尘重金属特征及其环境风险评价: 以许昌市为例	闫慧, 陈杰, 肖军 (4017)
苏州、无锡和南通道路灰尘中的多溴联苯醚和多氯联苯	史双昕, 董亮, 李玲玲, 张辉, 李斯明, 张天野, 黄业茹 (4024)
废旧汽车拆解区土壤中多环芳烃垂向分布特性	吴彦瑜, 胡小英, 洪鸿加, 彭晓春 (4031)
铬污染土壤的稳定化处理及其长期稳定性研究	王旌, 罗启仕, 张长波, 谈亮, 李旭 (4036)
典型磺胺类抗生素在土柱中的淋溶规律研究	李曼, 陈卫平, 魏福祥, 焦文涛 (4042)
3 种金属氧化物纳米材料在不同土壤中迁移行为研究	方婧, 余博阳 (4050)
多孔介质中 NAPLs 流体毛细管指进形态及分形表征	李慧颖, 杜晓明, 杨宾, 伍斌, 徐竹, 史怡, 房吉敦, 李发生 (4058)
毛竹入侵对常绿阔叶林主要树种的化感作用研究	白尚斌, 周国模, 王懿祥, 梁倩倩, 陈娟, 程艳艳, 沈蕊 (4066)
珠江口典型水产养殖区抗生素抗性基因污染的初步研究	梁惜梅, 袁湘平, 施震 (4073)
江苏盐城地区水产品重金属含量与安全评价	刘洋, 付强, 高军, 徐网谷, 殷波, 曹亚乔, 秦卫华 (4081)
铜胁迫对不同基因型谷子幼苗基因组 DNA 多态性的影响	张义贤, 付亚萍, 肖志华, 张喜文, 李萍 (4090)
利用高通量测序对封存 CO ₂ 泄漏情景下土壤细菌的研究	田地, 马欣, 李玉娥, 查良松, 伍洋, 邹晓霞, 刘爽 (4096)
酸性矿山废水区域废矿石中真核生物多样性分析	李思远, 郝春博, 王丽华, 吕铮, 张丽娜, 刘莹, 冯传平 (4105)
十溴联苯醚降解菌的特性及功能蛋白初步分析	常晶晶, 尹华, 秦华明, 叶锦韶, 彭辉, 宋小飞 (4112)
硒对水稻吸收积累和转运锰、铁、磷和硒的影响	胡堂, 黄益宗, 黄艳超, 刘云霞, 梁建宏 (4119)
外源铁对不同番茄品种生理特性、镉积累及化学形态的影响	刘俊, 周坤, 徐卫红, 陈惠, 张明中, 江玲, 杨芸, 王崇力, 熊治庭 (4126)
电子废物排放持久性有毒污染物的控制政策分析	李力, 吕永龙, 王铁宇 (4132)
《环境科学》征稿简则 (3926) 《环境科学》征订启事 (4057) 信息 (3878, 3953, 3999, 4041)	

微生物-铁氧化物交互作用对黄土中砷活化迁移的影响

谢芸芸, 陈天虎*, 周跃飞, 谢巧勤

(合肥工业大学资源与环境工程学院, 合肥 230009)

摘要: 中国黄土高原地区普遍存在地下水砷超过饮用水标准问题, 迫切需要深入认识和理解高砷地下水形成机制. 在分析黄土中砷的含量、赋存状态基础上, 以乳酸钠为有机碳源, 开展缺氧条件下厌氧微生物-铁氧化物交互作用影响黄土中砷活化迁移的模拟实验研究. 结果表明黄土中砷含量在 $23 \sim 30 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$, 变化范围很小. 砷主要以吸附态、铁氧化物结合态、残渣态形式存在, 平均值分别为 $10.57 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ (占总砷 37.76%)、 $10.12 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ (占总砷 36.15%)、 $7.19 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ (占总砷 25.69%); 当水中存在有机物形成缺氧环境时, 厌氧微生物异化铁还原菌(DIRB)和硫酸盐还原菌(SRB)直接或间接还原铁氧化物引起部分铁氧化物分解, 导致吸附态和铁氧化物结合态砷部分释放到地下水中, 引起地下水中砷升高, 砷释放量主要与水中有机物浓度有关. 研究表明, 当有机物浓度达到 $100 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 时, 固液比为 1:10, 在土著微生物作用下, 砷浓度可以达到 $15 \mu\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$; 接种 DIRB 和 SRB 以及两种微生物同时存在都有明显的促进黄土中砷活化迁移的作用, 水中砷浓度可以达到 $40 \mu\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$.

关键词: 黄土; 砷; 赋存状态; 铁还原; 砷释放

中图分类号: X523 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2013)10-3940-05

Effect of the Interaction of Microorganisms and Iron Oxides on Arsenic Releasing into Groundwater in Chinese Loess

XIE Yun-yun, CHEN Tian-hu, ZHOU Yue-fei, XIE Qiao-qin

(School of Resources and Environmental Engineering, Hefei University of Technology, Hefei 230009, China)

Abstract: A large part of groundwater in the Chinese Loess Plateau area is characterized by high arsenic concentration. Anaerobic bacteria have been considered to play key roles in promoting arsenic releasing from loess to groundwater. However, this hypothesis remains unconfirmed. Based on modeling experiments, this study investigated the speciation of arsenic in loess, and then determined the release rates and quantities of arsenic with the mediation of anaerobic bacteria. The results showed that arsenic contents in loess were between $23 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ and $30 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$. No obvious arsenic content difference among loess samples was observed. The ratios for specific adsorbed, iron oxides co-precipitated and silicate co-precipitated arsenic were 37.76%, 36.15% and 25.69%, respectively. Indigenous microorganisms, dissimilatory iron reducing bacteria (DIRB) and sulfate reducing bacteria (SRB) could all promote the release of arsenic from loess. Organic matters highly affected the release rates. More than $100 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ sodium lactate was required for all bacterial experiments to facilitate obvious arsenic release. Considering the redox condition in loess, the contribution of SRB to arsenic release in loess area was less feasible than that of DIRB and indigenous microorganisms.

Key words: loess; arsenic; speciation; iron reduction; arsenic release

当今世界有数亿人口受到原生高砷地下水的影响^[1], 主要分布在中国、孟加拉国、印度、缅甸、越南、阿根廷、美国等国家^[2,3]. 中国的高砷地下水主要分布在山西大同盆地、内蒙古河套平原、新疆奎屯、吉林西部、台湾西南滨海平原等地区^[4~6]. 其中, 山西、内蒙古、新疆、吉林等地高砷地下水集中分布在黄土地区.

近十几年来, 国内外对高砷地下水中砷的来源进行了研究, 认为在厌氧环境中, 微生物的作用很容易引起沉积物中砷的释放^[7~11], 这种释放最主要的原因之一是铁锰矿物的还原性溶解, 导致其固持砷的释放, 如王焰新等^[12]对我国大同盆地地下水砷异常进行了调查研究, 认为在还原环境中, 由于铁锰氧

化物、氢氧化物或黏土矿物对砷的吸附性降低, 一部分砷从这些矿物表面释放; 另一方面, 部分铁锰氧化物可被还原成低价态可溶性铁锰离子, 从而使其结合的砷释放进入地下水^[13,14]. Islam 等^[15]和 Stüben 等^[16]对孟加拉三角洲沉积物中砷释放机制进行了研究, 发现随着铁还原溶解, 砷向地下水释放. Guo 等^[17]早在 1997 年就考察了在还原条件下底泥中砷的释放, 指出了铁和锰还原溶解造成了砷的快速释放.

收稿日期: 2013-01-28; 修订日期: 2013-04-07

基金项目: 国家自然科学基金项目(41130206, 41172048)

作者简介: 谢芸芸(1986~), 女, 硕士研究生, 主要研究方向为水污染控制, E-mail: xieyunyunj@163.com

* 通讯联系人, E-mail: chentianhu@hfut.edu.cn

以往涉及黄土中砷释放机制的研究多注重于某一高砷地区的水文地球化学调查,根据水化学数据拟合出地下水中砷的浓度与环境中其他因素的相关关系,如我国山西大同盆地^[12]、阿根廷高砷地区^[18]。而通过模拟实验,考察各种生物及非生物因素对黄土中砷释放的影响的研究,目前还比较鲜见。本文的主要研究目标是:首先测定黄土中砷的含量及其赋存状态,然后,以溶解性有机物乳酸钠为碳源,并设置不同浓度有机物,接种不同厌氧微生物,通过模拟实验探索不同种类微生物及有机物浓度对砷释放的影响。

1 材料与方法

1.1 实验材料

实验黄土样品取自黄土地区,厌氧实验采用宁夏固原市样品,经自然风干、磨碎、过60目筛,装入样品袋备用。经X射线荧光光谱(XRF)分析,样品主要成分SiO₂、Al₂O₃、CaO、Fe₂O₃、MgO、K₂O、Na₂O、MnO含量分别为(质量分数,%)51.34、11.03、8.97、4.16、1.92、2.62、0.71、0.0867。实验所用铁还原菌(DIRB)为*Shewanella putrefaciens* CN32,购买于美国标准生物品收藏中心(ATCC),用少量复水液(灭菌的去离子水)溶解冻干菌后,接种于琼脂斜面培养基(蛋白胨10g,酵母膏5g,氯化钠10g,琼脂20g,去离子水1L,调节pH为7.0左右),24h后转移至蛋白胨、酵母膏液体培养基中培养3d后用于接种。

硫酸盐还原菌(SRB)采用本实验室分离纯化的

1株兼性厌氧菌株,16S rDNA序列分析鉴定为脱硫弧菌^[19]。用Postgate B^[20]培养基培养3d后用于接种。

1.2 实验方法

根据文献[21]将黄土中砷分为4种赋存状态,分别为非特性吸附态(F1)、特性吸附态(F2)、铁氧化物结合态(F3)和残渣态(F4)。分别用0.05 mol·L⁻¹ (NH₄)₂SO₄ (F1)、0.05 mol·L⁻¹ NH₄H₂PO₄ (F2)、pH为3.25的0.2 mol·L⁻¹ 草酸铵和0.1 mol·L⁻¹ 抗坏血酸(F3)、浓HF和HClO₄ (F4)分级提取。

开展如表1所示的16组实验。分别在16只250 mL血清瓶中加入20 g黄土和200 mL不同浓度乳酸钠溶液(预调pH值为7.0)。根据实验体系设计,在部分实验中接种SRB或DIRB菌液20 mL(接种SRB或DIRB菌液时,进行了离心去除菌液和用无菌去离子水离心清洗3次),或分别做灭菌和不灭菌处理(土著微生物)总共进行了16组实验。配制不同浓度的乳酸钠(表1)作为厌氧微生物的代谢底物,所有反应瓶移入厌氧手套箱中,充氮气驱除反应瓶中的溶解氧,盖上橡胶塞后,加封铝盖,置于培养箱中于30℃条件下静置培养,定期用5 mL注射器取样检测溶液中总砷、亚铁离子浓度。

砷浓度采用原子荧光光谱仪(AFS-820,北京)测定,亚铁离子采用邻菲罗啉分光光度法测定,在测定砷前,将待测样在5 000 r·min⁻¹离心5 min取上清液,测定Fe²⁺浓度前,待测样预先经过0.22 μm混合纤维素酯膜过滤。

表1 实验初始条件设置¹⁾
Table 1 Initial condition of experiments

编号	灭菌	乳酸钠/mg·L ⁻¹			DIRB	SRB
		10	100	500		
Con	+					
E2	+	+				
E3	+		+			
E4	+			+		
E5		+				
E6			+			
E7				+		
E8	+	+			+	
E9	+		+		+	
E10	+			+	+	
E11	+	+				+
E12	+		+			+
E13	+			+		+
E14	+	+			+	+
E15	+		+		+	+
E16	+			+	+	+

1) “+”表示实验中选择该条件

2 结果与讨论

2.1 黄土中砷的赋存状态

不同黄土样品中砷的总量及其各赋存状态分析结果如表 2 所示. 不同地区黄土中砷的含量范围在

23 ~ 30 $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$, 变化范围很小. 砷主要以特性吸附态、铁氧化物结合态和残渣态形式存在, 平均值分别为 10.57 $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ (占总砷 37.76%)、10.12 $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ (占总砷 36.15%)、7.19 $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ (占总砷 25.69%).

表 2 不同地区黄土砷的含量及赋存状态

编号	各种形态 As 含量/ $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$					占总 As 质量分数/%			
	F1	F2	F3	F4	TAs	F1	F2	F3	F4
富县苹果园表土	0.01	9.73	9.27	8.07	27.08	0.04	35.93	34.23	29.80
榆林黄蒿岭表土	0.04	9.97	7.49	6.18	23.68	0.17	42.10	31.62	26.10
段家坡 S0	0.02	9.40	9.78	4.64	23.84	0.08	39.43	40.43	19.46
洛川 S5	0.03	9.75	11.59	5.72	27.09	0.11	35.99	42.78	21.11
赵家川 L1	0.04	9.42	10.58	7.71	27.75	0.14	33.95	38.13	27.78
任家坡 S5	0.07	10.75	10.17	9.80	30.79	0.23	34.91	33.03	31.83
西安表土	0.03	10.50	8.12	5.59	24.24	0.12	43.32	33.49	23.06
段家坡红黏土	0.01	8.92	12.93	7.83	29.69	0.03	30.04	43.55	26.37
任家坡 L0	0.04	13.50	14.18	5.31	33.03	0.12	40.87	42.93	16.08
固原表土	0.05	11.74	14.02	4.23	30.04	0.17	39.08	46.67	14.08
灵武表土	0.20	11.50	6.40	9.72	27.82	0.72	41.34	23.01	34.94
民和表土	0.05	11.70	7.36	11.69	30.80	0.16	37.99	23.89	37.95

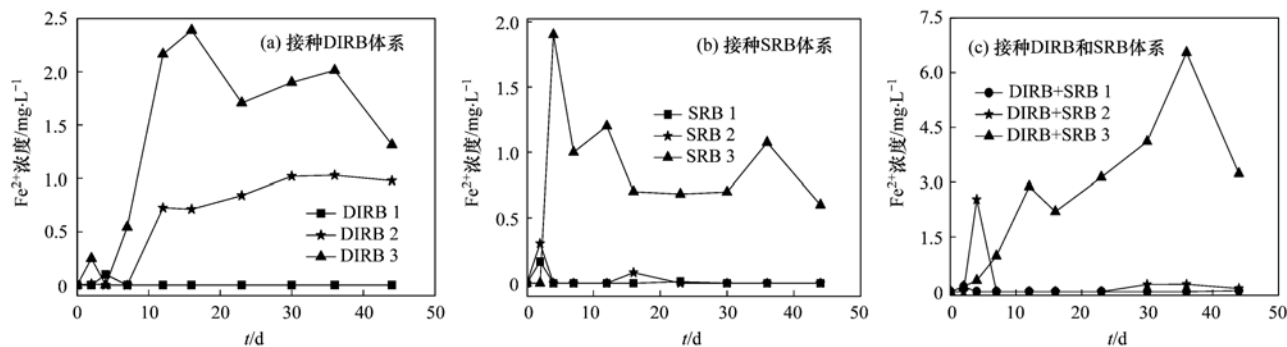
2.2 溶液中 Fe^{2+} 浓度的变化

不同实验中 Fe^{2+} 的浓度变化如图 1 所示, 在没有接种微生物的反应瓶溶液中检测不出 Fe^{2+} , 故其中没有无菌实验的结果. 分别及同时接种 DIRB 和 SRB 的反应瓶中, Fe^{2+} 浓度与初始乳酸钠浓度有关. 当乳酸钠浓度为 10 $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 时, 各反应瓶溶液中 Fe^{2+} 浓度都低于检测限; 当初始乳酸钠浓度为 100 $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 时, 只有接种 DIRB 的反应瓶中出现明显的铁溶解释放; 当初始乳酸钠浓度增加到 500 $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 时, 接种微生物的各反应瓶溶液中都有较高的 Fe^{2+} 浓度, 表明当有较高浓度有机物存在时, 在厌氧微生物作用下, 出现明显的铁氧化物还原溶解. 说明低浓度乳酸钠还不足以引起微生物还原铁氧化物溶解, 只有在较高浓度有机物环境中 (实验中有有机物

浓度为 500 $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$) 才会出现显著的微生物还原铁氧化物, 从而引起吸附和铁氧化物结合态砷释放出来. 近年来, 众多研究表明体系中易分解的有机质作为能量来源促进铁氧化物的还原溶解^[22, 23], 还原 $\text{Fe}(\text{III})$ 的微生物活性依赖于有机碳的含量. 本研究中乳酸钠浓度为 500 $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 时, 才能促进铁矿物的还原溶解. 但是, 在实际环境中, 地下水中溶解性有机物浓度很难达到 500 $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$.

2.3 溶液中砷浓度的变化

不同实验体系中砷浓度变化如图 2 所示, 黄土空白组 (CON) 和灭菌组 (E2 ~ E4) 如图 2 (a) 所示, 即在没有微生物作用的情况下, 溶液中砷浓度都在 10 $\mu\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$ 以下, 低于国家饮用水标准, 相应的溶液中没有检测到 Fe^{2+} , 表明这部分砷为吸附



图例中 1、2、3 分别代表体系中乳酸钠浓度为 10、100 和 500 $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$, 下同

图 1 溶液中 Fe^{2+} 浓度的变化

Fig. 1 Time profile of Fe^{2+} in the aqueous solution

态砷. 为了验证黄土中土著微生物是否对砷释放产生影响,如图 2(b)为未灭菌实验中砷浓度变化,可见在乳酸钠浓度为 $10 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 的体系溶液中砷浓度保持在 $5 \mu\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$ 以下,平衡液中砷的释放量基本与无菌组相当;乳酸钠浓度增加到 $100 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 时,溶液中砷浓度在第 15 d 达到平衡,为 $15 \mu\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$,表明有一定量砷释放到溶液中;当加

入乳酸钠浓度为 $500 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 时,砷释放的趋势与乳酸钠浓度为 $100 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 的实验中相似,但释放量略大于前者,并且在 30 d 实验结束时,释放也未达到平衡. 这表明在黄土地区,有机物浓度对黄土中砷的释放有重要影响,有机物自身并不加速砷的释放,但会通过制约微生物的生长制约了砷的释放.

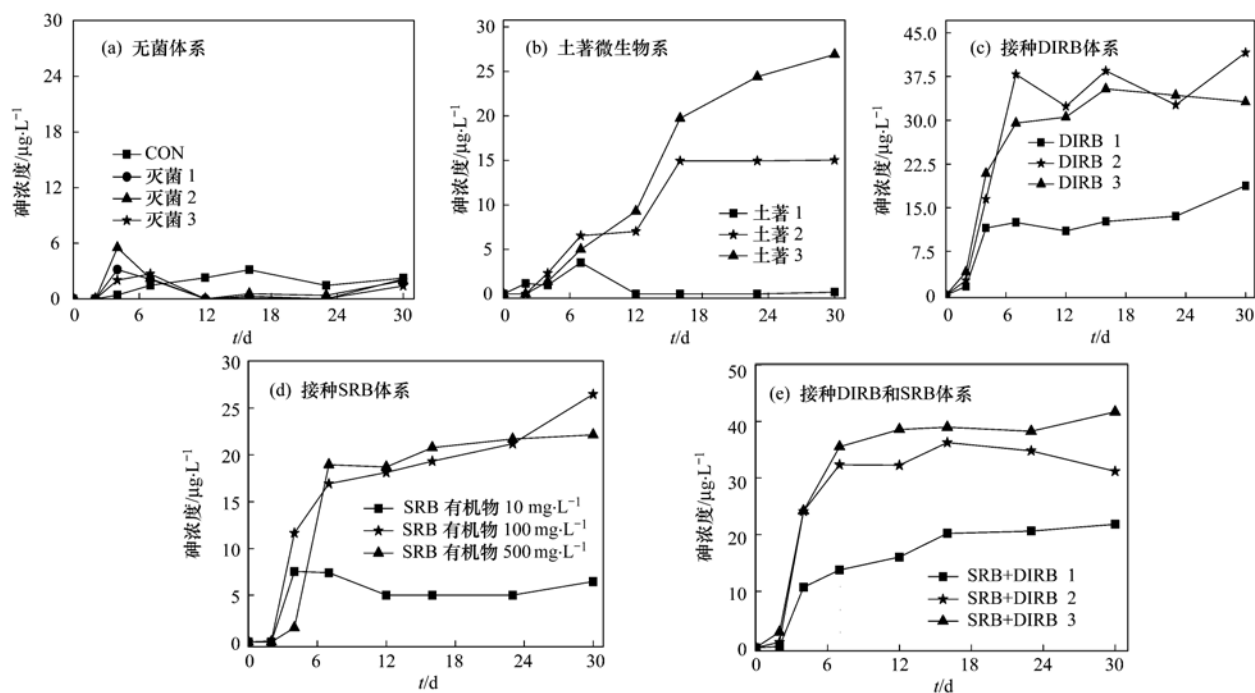


图2 溶液中砷浓度的变化

Fig. 2 Time profile of arsenic in the aqueous solution

为了解 DIRB 和 SRB 对黄土中砷释放的影响,将黄土灭菌后分别进行接种 DIRB、SRB 和两种菌同时存在 3 个体系的实验. 实验结果如图 2(c)~2(e)所示,可以看出,添加 DIRB 和 SRB 后均能导致砷的显著释放,乳酸钠的添加量对砷释放量有重要影响,添加量越多,释放速率越快,释放量也越多. 当反应器中初始乳酸钠浓度低时 ($10 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$), 3 个体系的砷平衡浓度分别为 14、6 和 $20 \mu\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$; 当体系中乳酸钠浓度增加到 $100 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 时, 3 个体系中的砷浓度在反应第 6 d 明显增大,分别达到 30、20 和 $35 \mu\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$,其浓度已超过国际饮用水标准 ($10 \mu\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$); 当体系中初始乳酸钠浓度增加到 $500 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 时,反应器中砷浓度变化趋势与前两个体系相似,实验结束时溶液中的砷浓度略大于初始有机物浓度为 $100 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 体系中砷浓度,分别为 40、20 和 $40 \mu\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$. 3 个添加微生物的实验结果说明接种 DIRB 和 SRB 以及两种微生物同时存在都有显著

促进黄土中砷活化迁移的能力. 厌氧微生物存在时,砷的释放机制主要为:厌氧微生物 (DIRB、SRB) 直接或间接还原铁氧化物引起部分铁氧化物分解,导致吸持态和铁氧化物结合态砷部分释放到地下水中,导致地下水中砷升高,而砷释放速率及释放量主要与水中有机物浓度有关.

实验所用样品的总砷为 $30.04 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$,其中,吸附态和铁氧化物晶体结合态为 $24.91 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$,如全部释放,溶液中的计算砷浓度至少为 $1992.8 \mu\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$,但实验中最大砷平衡浓度仅为 $40 \mu\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$,说明微生物作用引起黄土中吸附态和铁氧化物结合态砷释放只占其中很小的一部分.

根据资料可知,SRB 生长要求 Eh 低于 $-150 \text{ mV}^{[24]}$,而黄土高原地下水 Eh 一般为正值,偶尔达到 $-150 \text{ mV}^{[25]}$,故通常情况下达不到 SRB 代谢的氧化还原电位,只有在局部、特殊的条件下短时间内处于厌氧状态,故厌氧引起的黄土中砷释放只占

黄土地区地下水中砷来源的一小部分,可能还存在其他因素引起黄土中砷释放到地下水中。

3 结论

(1)黄土中砷含量范围在 $23 \sim 30 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$,其中特性吸附态占总砷的 37.76%,铁氧化物结合态约占砷总量的 36.15%。

(2)土著微生物、添加 DIRB 及 SRB 的厌氧环境中,低浓度的有机物不会促进黄土中砷释放,只有高浓度有机物(实验室乳酸钠 $100 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$)的体系中存在铁氧化物的还原,促进砷的释放。

(3)通常情况下黄土地区的地下水没有很高的溶解易降解有机物,厌氧微生物还原作用引起释放出的砷远达不到高砷地下水中砷的浓度,考虑到黄土孔隙率高,多数情况下处于好氧状态,因此厌氧微生物与矿物作用引起的砷释放可能不是中国黄土地区地下水高砷的主要机制,故还需进一步探索其它引起地下水高砷的原因。

参考文献:

- [1] Neumann R B, Ashfaq K N, Badruzzaman A B M, *et al.* Anthropogenic influences on groundwater arsenic concentrations in Bangladesh [J]. *Nature Geoscience*, 2010, **3**(1): 46-52.
- [2] Nordstrom D K. Worldwide occurrences of arsenic in ground water [J]. *Science*, 2002, **296**(5576): 2143-2145.
- [3] Smedley P L, Kinniburgh D G. A review of the source, behaviour and distribution of arsenic in natural waters [J]. *Applied Geochemistry*, 2002, **17**(5): 517-568.
- [4] 郭华明,王焰新,李永敏. 山阴水砷中毒区地下水砷的富集因素分析[J]. *环境科学*, 2003, **24**(4): 60-67.
- [5] 林年丰,汤洁. 我国砷中毒病区的环境特征研究[J]. *地理科学*, 1999, **19**(2): 135-139.
- [6] 赵伦山,武胜,周继华,等. 大同盆地砷、氟中毒地方病生态地球化学研究[J]. *地学前缘*, 2007, **14**(2): 225-235.
- [7] Ahmann D, Krumholz L R, Hemond H F, *et al.* Microbial mobilization of arsenic from sediments of the Aberjona Watershed [J]. *Environmental Science Technology*, 1997, **31**(10): 2923-2930.
- [8] Ahmann D, Roberts A L, Krumholz L R, *et al.* Microbe grows by reducing arsenic [J]. *Nature*, 1994, **371**(6500): 750.
- [9] Cummings D E, March A W, Bostick B, *et al.* Evidence for microbial Fe(III) reduction in anoxic, mining-impacted lake sediments (Lake Coeur d'Alene, Idaho) [J]. *Applied and Environmental Microbiology*, 2000, **66**(1): 154-162.
- [10] Oremland R S, Stolz J F. The ecology of arsenic [J]. *Science*, 2003, **300**(5621): 939-944.
- [11] Zobrist J, Dowdle P R, Davis J A, *et al.* Mobilization of arsenite by dissimilatory reduction of adsorbed arsenate [J]. *Environmental Science Technology*, 2000, **34**(22): 4747-4753.
- [12] 王焰新,苏春利,谢先军,等. 大同盆地地下水砷异常及其成因研究[J]. *中国地质*, 2010, **37**(3): 771-780.
- [13] McGeehan S L, Naylor D V. Sorption and redox transformation of arsenite and arsenate in two flooded soils [J]. *Soil Science Society of America Journal*, 1994, **58**(2): 337-342.
- [14] McGeehan S L. Arsenic sorption and redox reactions: Relevance to transport and remediation [J]. *Journal of Environmental Science and Health. Part A: Environmental Science and Engineering and Toxicology*, 1996, **31**(9): 2319-2336.
- [15] Islam F S, Gault A G, Boothman C, *et al.* Role of metal-reducing bacteria in arsenic release from Bengal delta sediments [J]. *Nature*, 2004, **430**(6995): 68-71.
- [16] Stüben D, Berner Z, Chandrasekhar D, *et al.* Arsenic enrichment in groundwater of West Bengal, India: geochemical evidence for mobilization of As under reducing conditions [J]. *Applied Geochemistry*, 2003, **18**(9): 1417-1434.
- [17] Guo T Z, DeLaune R D, Patrick W H Jr. The influence of sediment redox chemistry on chemically active forms of arsenic, cadmium, chromium, and zinc in estuarine sediment [J]. *Environmental International*, 1997, **23**(3): 305-316.
- [18] Nicolli H B, Bundschuh J, García J W, *et al.* Sources and controls for the mobility of arsenic in oxidizing groundwaters from loess-type sediments in arid/semi-arid dry climates-evidence from the Chaco-Pampean plain (Argentina) [J]. *Water Research*, 2010, **44**(19): 5589-5604.
- [19] 王国刚. 功能性硫酸盐还原菌的分离纯化与去除重金属动力学研究[D]. 合肥: 合肥工业大学, 2011. 23-29.
- [20] Postgate J R. *The Sulfite-Reducing Bacteria* (2nd ed.) [M]. Cambridge: Cambridge University Press, 1984. 55.
- [21] Wenzel W W, Kirchbaumer N, Prohaska T, *et al.* Arsenic fractionation in soils using an improved sequential extraction procedure [J]. *Analytica Chimica Acta*, 2001, **436**(2): 309-323.
- [22] Farooq S H, Chandrasekhar D, Berner Z, *et al.* Influence of traditional agricultural practices on mobilization of arsenic from sediments to groundwater in Bengal delta [J]. *Water Research*, 2010, **44**(19): 5575-5588.
- [23] Polizzotto M L, Harvey C F, Li G C, *et al.* Solid-phases and desorption processes of arsenic within Bangladesh sediments [J]. *Chemical Geology*, 2006, **228**(1-3): 97-111.
- [24] Delgado S, Alvarez M, Rodriguez-Gomez L E, *et al.* H_2S generation in a reclaimed urban wastewater pipe. Case Study: Tenerife (Spain) [J]. *Water Research*, 1999, **33**(2): 539-547.
- [25] 高存荣,李朝星,周晓虹,等. 河套平原临河区高砷地下水分布及水化学特征[J]. *水文地质工程地质*, 2008, **35**(6): 22-28.

CONTENTS

Stable Carbon Isotopic Composition in PM _{2.5} in Nanjing Region	WU Meng-long, GUO Zhao-bing, LIU Feng-ling, <i>et al.</i> (3727)
Distribution and Source Apportionment of <i>n</i> -Alkanes in Atmospheric Particle in Taiyuan, China	HU Dong-mei, PENG Lin, BAI Hui-ling, <i>et al.</i> (3733)
Study on Influence of Traffic and Meteorological Factors on Inhalable Particle Matters of Different Size	LUO Na-na, ZHAO Wen-ji, YAN Xing, <i>et al.</i> (3741)
Particle Emission Characteristics of Diesel Bus Fueled with Bio-diesel	LOU Di-ming, CHEN Feng, HU Zhi-yuan, <i>et al.</i> (3749)
Characteristics of δ ¹⁸ O in Precipitation and Water Vapor Sources in Lanzhou City and Its Surrounding Area	CHEN Fen-li, ZHANG Ming-jun, MA Qian, <i>et al.</i> (3755)
Characteristics and Sources of Soluble Ions in Aerosols from Glacier No. 1 at the Headwater of Urumqi River, Tianshan Mountains, China	YUE Xiao-ying, LI Zhong-qin, ZHANG Ming-jun, <i>et al.</i> (3764)
Mechanism and Performance of Styrene Oxidation by O ₃ /H ₂ O ₂	HE Jue-cong, HUANG Qian-ru, YE Qi-hong, <i>et al.</i> (3772)
Sulfur Isotopic Signatures in Leaves of <i>Pinus massoniana</i> Lamb. and Source Apportionment	GUAN Hui, XIAO Hua-yun, ZHU Ren-guo, <i>et al.</i> (3777)
Comparisons of Sulfur Contents and Isotopes Between Mosses and Surface Soils in Jiangxi Province	LI Nan, XIAO Hua-yun, CHEN Yong-zhong, <i>et al.</i> (3782)
Research on Spatial Characteristic of Non-point Source Pollution in Liaohe River Basin	WANG Xue-lei, CAI Ming-yong, ZHONG Bu-qing, <i>et al.</i> (3788)
Spatial and Temporal Variations of Hydrological Characteristic on the Landscape Zone Scale in Alpine Cold Region	YANG Yong-gang, HU Jin-fei, XIAO Hong-lang, <i>et al.</i> (3797)
Distribution of Matrix-Bound Phosphine in Surface Sediments of Jinpu Bay	YOU Li-li, ZONG Hai-bo, ZHANG Shu-fang, <i>et al.</i> (3804)
Effects of Drying-Rewetting Alternation on Urease Activity in Chongming East Intertidal Flat; Results of a Simulation Study	HAN Jian-gang, CAO Xue (3810)
Characterization of Microbial Activities in Marine Mudflat Sediment Using FDA Hydrolase Analysis	LIU Ye, ZOU Li, LIU Lu, <i>et al.</i> (3818)
Analysis of Ecological Risk and the Content Situation of Polybrominated Diphenyl Ethers in Sediments from Northeast China River Basin	NIE Hai-feng, CHENG Hang-xin, ZHAO Chuan-dong, <i>et al.</i> (3825)
Residues and Risk Assessment of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in the Surface Sediments and Marine Organisms from Dapeng Bay, Shenzhen	SUN Run-xia, KE Chang-liang, GU Yang-guang, <i>et al.</i> (3832)
Source Apportionment of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons Using Two Mathematical Models for Runoff of the Shanghai Elevated Inner Highway, China	BIAN Lu, LI Tian, HOU Juan (3840)
Biomagnification of Heavy Metals in the Aquatic Food Chain in Daning River of the Three Gorges Reservoir During Initial Impoundment	YU Yang, WANG Yu-chun, ZHOU Huai-dong, <i>et al.</i> (3847)
Temporal and Spatial Distribution of Environmental Factors and Chlorophyll-a and Their Correlation Analysis in a Small Enclosed Lake	LI Fei-peng, ZHANG Hai-ping, CHEN Ling (3854)
Experiment and Model Simulation of Self-Purification Capacity of Nitrogen and Phosphorus in Lake Taihu	HAN Tao, ZHAI Shu-hua, HU Wei-ping, <i>et al.</i> (3862)
Simulation Research on the Release of Internal Nutrients Affected by Different Dredging Methods in Lake	CHEN Chao, ZHONG Ji-cheng, FAN Cheng-xin, <i>et al.</i> (3872)
Research of Urban Eutrophic Water Repair by Water/Sediment Biological Bases	ZHOU Hui-hua, SONG Xiao-guang, WU Ge, <i>et al.</i> (3879)
Effects of Regulatory Agent on the Heavy Metal Stability in Tidal Sediments	OU Feng-zhuang, SUN Guo-ping, XU Mei-ying (3888)
Impact of Regional Water Chemistry on the Phosphorus Isothermal Adsorption of the Sediments in Three Subsidence Waters of the Huainan Mine Areas	YI Qi-tao, SUN Peng-fei, XIE Kai, <i>et al.</i> (3894)
Adsorption Characteristics of f2 Bacteriophages by Four Substrates in Constructed Wetland	CHEN Di, ZHENG Xiang, WEI Yuan-song, <i>et al.</i> (3904)
Adsorption Characteristics of the Antibiotic Sulfanilamide onto Rice Husk Ash	JI Ying-xue, WANG Feng-he, ZHANG Fan, <i>et al.</i> (3912)
Study on the Stability Variation Mechanism of Humic Acid Water Solution After Radiated by the UV Light	WANG Wen-dong, ZHOU Li-chuan, DING Zhen-zhen, <i>et al.</i> (3921)
Comparison of As Removal Performance by Graphene/Iron-Based Material	Chaomuerlege, FENG Liu, HUO Yan-xia (3927)
Studies on the Dispersion and Deposition Behavior of Nano-TiO ₂ in Aquatic System	CHEN Jin-yuan, FANG Jin-feng, WEI Xiu-zhen (3933)
Effect of the Interaction of Microorganisms and Iron Oxides on Arsenic Releasing into Groundwater in Chinese Loess	XIE Yun-yun, CHEN Tian-hu, ZHOU Yue-fei, <i>et al.</i> (3940)
Surface Modification of Polyvinylidene Fluoride (PVDF) Membrane by Using the Zwitterionic Substance	ZHOU Gui-hua, XIAO Feng, XIAO Ping, <i>et al.</i> (3945)
Estimate the Abatement Rate of Septic Tank Sewage Outfall Soil on Nitrogen Pollutants of Typical Farmer Household Sewage	ZHOU Feng, WANG Wen-lin, WANG Guo-xiang, <i>et al.</i> (3954)
Wastewater Pollution Characteristics from Typical Intensive Pig Farms in the Pearl River Delta and Its Ecological Risk Assessment	LI Wen-ying, PENG Zhi-ping, YU Jun-hong, <i>et al.</i> (3963)
Effects of Sludge Compost Used as Lawn Medium on Lawn Growth and Soil and Water Environment	JIN Shu-quan, ZHOU Jin-bo, CHEN Ruo-xia, <i>et al.</i> (3969)
Influencing Factors of Floc Size Distribution and Fractal Dimension of Activated Sludge	LI Zhen-liang, ZHANG Dai-jun, LU Pei-li, <i>et al.</i> (3975)
Influence of Different Recovery Methods on the Activity of Nitrification Granular Sludge	GUO Xiu-li, GAO Da-wen, LU Jian-cong (3981)
Study on Hydrogen Autotrophic Denitrification of Bio-ceramic Reactor	CHEN Dan, WANG Hong-yu, SONG Min, <i>et al.</i> (3986)
Studies on Spatial Heterogeneity of Soil Respiration in a Subalpine Meadow	YAN Jun-xia, LI Jun-jian, LI Hong-jian, <i>et al.</i> (3992)
Modeling of CO ₂ Fluxes at Cropland by Using SIB3 Model	ZHANG Geng-jun, LU Li-xin, JIANG Ling-mei, <i>et al.</i> (4000)
Effects of the Different Land Use on Soil Labile Organic Matter and Carbon Management Index in Junyun Mountain	XU Peng, JIANG Chang-sheng, HAO Qing-ju, <i>et al.</i> (4009)
Heavy Metal Content in Street Dust and Environmental Risk Assessment of Agricultural City: A Case Study of Xuchang City	YAN Hui, CHEN Jie, XIAO Jun (4017)
Polybrominated Diphenyl Ethers and Polychlorinated Biphenyls in Road Dust from Suzhou, Wuxi and Nantong	SHI Shuang-xin, DONG Liang, LI Ling-ling, <i>et al.</i> (4024)
Vertical Distribution of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Abandoned Vehicles Dismantling Area Soil	WU Yan-yu, HU Xiao-ying, HONG Hong-jia, <i>et al.</i> (4031)
Stabilization and Long-term Effect of Chromium Contaminated Soil	WANG Jing, LUO Qi-shi, ZHANG Chang-bo, <i>et al.</i> (4036)
Leaching Characteristics of Sulfadiazine and Sulfamethoxazole in Soil Column	LI Man, CHEN Wei-ping, WEI Fu-xiang, <i>et al.</i> (4042)
Transport Behaviors of Metal Oxide Nanomaterials in Various Soils	FANG Jing, YU Bo-yang (4050)
Fractal Characteristics of Capillary Finger Flow for NAPLs Infiltrated in Porous Media	LI Hui-ying, DU Xiao-ming, YANG Bin, <i>et al.</i> (4058)
Allelopathic Potential of <i>Phyllostachys edulis</i> on Two Dominant Tree Species of Evergreen Broad-leaved Forest in Its Invasive Process	BAI Shang-bin, ZHOU Guo-mo, WANG Yi-xiang, <i>et al.</i> (4066)
Preliminary Studies on the Occurrence of Antibiotic Resistance Genes in Typical Aquaculture Area of the Pearl River Estuary	LIANG Xi-mei, NIE Xiang-ping, SHI Zhen (4073)
Concentrations and Safety Evaluation of Heavy Metals in Aquatic Products of Yancheng, Jiangsu Province	LIU Yang, FU Qiang, GAO Jun, <i>et al.</i> (4081)
Effects of Cu ²⁺ Stress on DNA Polymorphism of Genome in Foxtail Millet of Different Genotypes	ZHANG Yi-xian, FU Ya-ping, XIAO Zhi-hua, <i>et al.</i> (4090)
Research on Soil Bacteria Under the Impact of Sealed CO ₂ Leakage by High-throughput Sequencing Technology	TIAN Di, MA Xin, LI Yu-e, <i>et al.</i> (4096)
Microeukaryotic Biodiversity in the Waste Ore Samples Surrounding an Acid Mine Drainage Lake	LI Si-yuan, HAO Chun-bo, WANG Li-hua, <i>et al.</i> (4105)
Characteristics and Functional Protein Analysis of an Effective Decabromodiphenyl Ether-Degrading Strain	CHANG Jing-jing, YIN Hua, QIN Hua-ming, <i>et al.</i> (4112)
Effect of Selenium on the Uptake and Translocation of Manganese, Iron, Phosphorus and Selenium in Rice (<i>Oryza sativa</i> L.)	HU Ying, HUANG Yi-zong, HUANG Yan-chao, <i>et al.</i> (4119)
Effect of Exogenous Iron on Accumulation and Chemical Forms of Cadmium, and Physiological Characterization in Different Varieties of Tomato	LIU Jun, ZHOU Kun, XU Wei-hong, <i>et al.</i> (4126)
Analysis of Control Policy for Persistent Toxic Substances from Electronic Wastes in China	LI Li, LÜ Yong-long, WANG Tie-yu (4132)

《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10月15日 34卷 第10期

ENVIRONMENTAL SCIENCE

(Monthly Started in 1976)

Vol. 34 No. 10 Oct. 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