ISSN 0250-3301 CODEN HCKHDV

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

中国期刊方阵 双奖期刊 中华人民共和国新闻出版总署

环境科学
(HUANJING KEXUE) ENVIRONMENTAL SCIENCE
第34卷 第10期
2013年10月15日

目 次

南京地区大气气溶胶 $PM_{2.1}$ 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,韩锋,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,宫兆宁,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 $\delta^{18}O$ 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_2O_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,吴代赦(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 …… 聂海峰,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 …… 区凤莊,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 …… 纪营雪,王风贺,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)
生物陶粒反应器的氢自养反硝化研究 …… 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运移行为研究 …… 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,聂湘平,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 …… 胡莹,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)

典型磺胺类抗生素在土柱中的淋溶规律研究

李曼[1,2],陈卫平[2],魏福祥[1],焦文涛[2*]

(1. 河北科技大学环境科学与工程学院,石家庄 050018; 2. 中国科学院生态环境研究中心城市与区域生态国家重点实验室,北京 100085)

摘要: 通过室内土柱淋溶试验,对 2 种磺胺类抗生素——磺胺嘧啶和磺胺甲基异噁唑在土壤中的淋溶行为,及其受到淋溶流速、淋溶浓度和不同剖面土壤理化性质的影响进行了研究. 结果表明,随着剖面土层深度增加磺胺类抗生素的淋出速率变快且在土柱中的残留量减少,磺胺甲基异噁唑在 0 ~ 20 cm 土层土柱中的残留含量是其在 40 ~ 60 cm 土层土柱中的 2 倍. 淋溶流速越快,淋出液中磺胺类抗生素浓度越大且在土柱中的残留含量越低. 用浓度为 500 μg·L^{-1}淋溶液以 2 mL·min^{-1}的速度淋溶时,淋出液中磺胺类抗生素的浓度接近 500 μg·L^{-1},而以 1 mL·min^{-1}和 1.5 mL·min^{-1}速度淋溶时,其浓度仅为 100 ~ 200 μg·L^{-1}. 随淋溶液浓度升高,磺胺类抗生素淋溶性增强,其在土柱中的残留含量也明显增高. 用浓度为 250 μg·L^{-1}和 125 μg·L^{-1}淋溶液以 2 mL·min^{-1}进行淋溶时,磺胺甲基异噁唑在淋出液中仅有少量检出,而用浓度为 500 μg·L^{-1}淋溶液淋洗时,其在淋出液中的浓度接近 500 μg·L^{-1},其在土柱中的残留含量是低浓度淋溶液淋溶时的 2 ~ 3 倍. 本研究结论可为管理含磺胺类抗生素的水源灌溉方式提供理论依据.

关键词:磺胺嘧啶; 磺胺甲基异噁唑; 土柱; 淋溶; 土壤

中图分类号: X131.3; X53 **文献标识码**: A **文章编号**: 0250-3301(2013)10-4042-08

Leaching Characteristics of Sulfadiazine and Sulfamethoxazole in Soil Column

LI Man[1,2], CHEN Wei-ping[2], WEI Fu-xiang[1], JIAO Wei-tao[2]

(1. College of Environmental Science and Engineering, Hebei University of Science and Technology, Shijiazhuang 050018, China; 2. State Key Laboratory of Urban and Regional Ecology, Research Center for Eco-Environmental Sciences, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100085, China)

Abstract: Leaching characteristics and influencing factors of the typical sulfa antibiotics-sulfadiazine and sulfamethoxazole were studied by soil column experiments. The results showed that the leaching rate increased and the residues of sulfa antibiotics in soil column decreased as the soil profile depth increased. The residual concentration of sulfa antibiotics in column filled with 0-20 cm profile soil was 2 times higher than that with 40-60 cm profile soil. The concentration of sulfa antibiotics in the leachate was higher, while the residual concentration in the soil column was lower under a higher leaching velocity. The concentration of sulfa antibiotics in the leachate was close to 500 μg·L^{-1} when the leaching velocity was 2 mL·min^{-1}, while the concentration of sulfa antibiotics in the leachate was between 100-200 μg·L^{-1} when the leaching velocity was 1 and 1.5 mL·min^{-1}. The concentrations of sulfa antibiotics in the leachate and soil column increased as the concentration of leaching solution increased. The concentration of sulfa antibiotics in the leachate was close to 0 μg·L^{-1} when the concentration of leaching solution was 250 μg·L^{-1} and 125 μg·L^{-1}. When the concentration of leaching solution was 500 μg·L^{-1}, the concentration of sulfa antibiotics in the leachate was close to 500 μg·L^{-1} and the residue concentration in the soil column was 2 to 3 times higher than that with lower concentration of leaching solution. The results in this research may provide a scientific basis for water irrigation with anibiotics.

Key words: sulfadiazine(SDZ); sulfamethoxazole(SMZ); soil column; leaching; soil

磺胺类抗生素属人工合成的广谱性抑菌药. 近年来,随着养殖业的快速发展,磺胺类抗生素作为动物饲料添加剂,被广泛应用于预防和治疗细菌感染性疾病. 其中有 50% ~90% 的药物以原药形式或代谢物形式排入环境[1~6]. 同时,药物生产工厂废水的无序排放也是环境中抗生素的一个重要来源[7]. 目前,污水处理厂尚缺乏针对抗生素类物质的处理技术,导致了其向环境的持续排放,从而对生态系统产生一定影响[8~10].

我国环境中抗生素残留现象比较严重. 由于禽畜粪便的农业利用[12],每年每公顷土壤中流入的磺胺类抗生素含量约为几十至几百克[13]. 土壤中磺胺类抗生素的含量一般在 1 ~ 1 000 μg·kg^{-1}[14~17]. 磺胺类抗生素进入环境后,会发生吸附、微生物降解、光解、淋溶、地表径流等. 其淋溶性的强弱直接影响该类污染物是否会对地下水产生污染. 目前地下水中已有磺胺类抗生素及其代谢产物检出[18~20]. 但其污染过程尚不清晰,

收稿日期: 2013-01-16; **修订日期**: 2013-03-20
基金项目: 国家自然科学基金项目(41001330)
作者简介: 李曼(1987 ~),女,硕士研究生,主要研究方向为新型污染物环境迁移及调控,E-mail:limanyx@163.com
* 通讯联系人,E-mail:wtjiao@rcees.ac.cn

急需加强此方面的研究. 本研究选取淋溶性较强且存在差异的磺胺嘧啶和磺胺甲基异噁唑为目标污染物,选取北京市土壤性质有较大差异的 3 层剖面土壤为供试用土壤,分析 3 种淋洗剂浓度和 3 种淋洗流速条件下,2 种磺胺类抗生素在不同土层土柱中的淋溶行为,明晰其在土壤中的迁移规律,以期为磺胺类抗生素的地下水污染风险评价提供理论依据.

1　材料与方法

供试土壤:所用土壤采自北京市农林科学院剖面土壤样品. 土壤基本理化性质见表 1.

表 1　供试土壤样品基本理化性质

Table 1　Basic physical and chemical properties of the experimental soil

土壤层次/cm	水分含量/%	pH	有机质含量/%	电导率/μS·cm^{-1}	颗粒组成		
					黏粒/%	粉粒/%	沙粒/%
0 ~ 20	15.05	7.80	1.23	147.95	14	34	52
40 ~ 60	18.69	7.82	0.82	127.15	32	46	22
80 ~ 100	18.42	8.1	0.11	181.05	37	49	15

仪器:1290-6460 型液相色谱串联质谱联用仪(美国安捷伦科技有限公司)

试剂:磺胺嘧啶(Sulfadiazine, SDZ)标准品,磺胺甲基异噁唑(Sulfamethoxazole, SMZ)标准品,均购自德国 Dr. Ehrenstorfer GmbH 公司; 甲醇,乙腈,色谱纯; 甲酸、草酸、柠檬酸、乙二胺四乙酸二钠、磷酸氢二钠、硫酸,分析纯. 缓冲溶液:称取 12.9 g 柠檬酸,27.6 g 磷酸氢二钠,37.2 g 乙二胺四乙酸二钠,于1 000 mL 超纯水中混匀.

试验方法:在内径 10 cm 的有机玻璃管中,采用分层湿土填柱法填装湿度为 10% 的供试土壤,淋溶柱内土壤总高度为 20 cm. 土柱上下两端各铺有 1 cm 石英砂,在下端石英砂底部铺有一层玻璃棉. 淋溶试验前,使用去离子水饱和土柱; 土柱饱和后,蠕动泵恒速供水稳定土柱. 从顶部加入一定浓度的目标抗生素淋溶液进行淋溶试验. 淋溶过程中,流速控制 2 mL·min^{-1},每隔 3 ~ 4 h 取一份水样,淋出液收集总体积约为2 880 mL. 淋溶结束后,蠕动泵停止供水,将土柱中的土壤自上而下由密及疏进行分割取出,共分为 5 个取样层,具体分割距离为:0 ~ 2、2 ~ 4、4 ~ 7、7 ~ 12 和 12 ~ 20 cm. 另设置不同处理,以探讨不同淋溶条件对目标污染物迁移能力的影响,具体条件设置如下:①两种污染物:选择磺胺嘧啶和磺胺甲基异噁唑两种磺胺类抗生素,探讨污染物自身理化性质对其迁移的影响; ②不同土层:表 1 中 3 种不同土层土壤条件,探讨土层对磺胺类抗生素淋溶性的影响; ③不同淋洗流速:以浓度为 500 μg·L^{-1} 淋溶液,设置流速 1、1.5 和 2 mL·min^{-1},灌溉相同量目标抗生素的情况下,探讨不同流速对其迁移的影响; ④不同抗生素浓度淋溶液:设置含目标抗生素浓度为 125 μg·L^{-1}、250 μg·L^{-1}与 500 μg·L^{-1}淋溶液做对比,以 2 mL·min^{-1}流速进行淋溶,探讨污染物浓度对其迁移的影响.

水样提取及净化:用盐酸调节淋出液 pH 值为 3,加入 0.25 g 乙二胺四乙酸二钠,过 0.45 μm 孔径玻璃纤维滤膜. 配制缓冲溶液为提取液,将过滤后滤膜及缓冲溶液放入玻璃离心管中,超声萃取 3 次. 收集萃取后玻璃离心管中提取液,并与过滤后液体合并. 将合并后水样过 HLB 小柱净化,采用甲醇洗脱后定容,加水稀释后过 0.22 μm 孔径有机系滤膜过滤,液相色谱串联质谱联用仪测定.

土样提取及净化:向所取土壤样品中加入缓冲溶液 20 mL,摇匀,超声萃取 20 min,在2 500 r·min^{-1}的转速下离心 15 min,上清液转移至对应锥形瓶中,该步骤重复 3 次. 将所收集提取液进行净化及洗脱.

液相色谱串联质谱联用仪工作条件:液相色谱分析柱为 C18 柱,流动相中水相 A:0.2% 甲酸与 1 mmol·L^{-1}草酸混合液,有机相 B:乙腈,流速为 0.2 mL·min^{-1},柱温为 30℃,进样量为 10 μL. 流动相洗脱梯度见表 2.

表 2　液相色谱洗脱梯度

Table 2　Elution gradient in liquid chromatography

时间/min	有机相/%	水相/%
0	5	95
1	5	95
5	25	75
8.5	90	10
9.5	90	10
10	5	95
13	5	95

检测器为质谱检测器,选择电喷雾正离子模式(ESI +). 各项质谱参数为:Gas Temp: 300℃; Gas

Flow: 12 L·min^{-1}; Nebulizer: 30psi; Capillary: 3500V positive; Delta EMV(+): 800. 采用离子模式定量,目标抗生素的质子化离子和碎片离子及对应参数见表 3.

表 3 目标抗生素的质子分子、碎片离子、质谱破碎电压和碰撞能值

Table 3 Conditions of identification and quantification in UPLC-MS/MS

物质	母离子	碎片离子	破碎电压	碰撞能
磺胺嘧啶(SDZ)	254.1	92.1	94	28
磺胺甲基异噁唑(SMZ)	251.1	92.1	100	25

2 结果与分析

2.1 不同土层对磺胺类抗生素淋溶规律的影响

用浓度为 500 μg·L^{-1}的淋溶液以 2 mL·min^{-1}流速淋洗 24 h 时,不同土层土柱淋出液中磺胺类抗生素的浓度见图 1. 从中可知,磺胺嘧啶淋出速率高于磺胺甲基异噁唑. 图 1(a)中,淋溶 0 ~ 4 h,淋出液中未有磺胺类物质检出,4 ~ 10 h 内,磺胺嘧啶浓度迅速升高,10 h 后基本达到平衡,淋出液中磺胺嘧啶浓度接近 500 μg·L^{-1}. 图 1(b)中,淋溶 4 ~ 10 h 内,淋出液中磺胺甲基异噁唑浓度快速增加,淋溶 10 ~ 15 h,磺胺甲基异噁唑淋出浓度缓慢增长,并达到平衡,平衡时浓度为 400 ~ 500 μg·L^{-1}. 在 4 ~ 10 h 淋溶过程中,磺胺类抗生素在 40 ~ 60 cm 和 80 ~ 100 cm 土层土柱中的淋出速度比 0 ~ 20 cm 土层土柱更快.

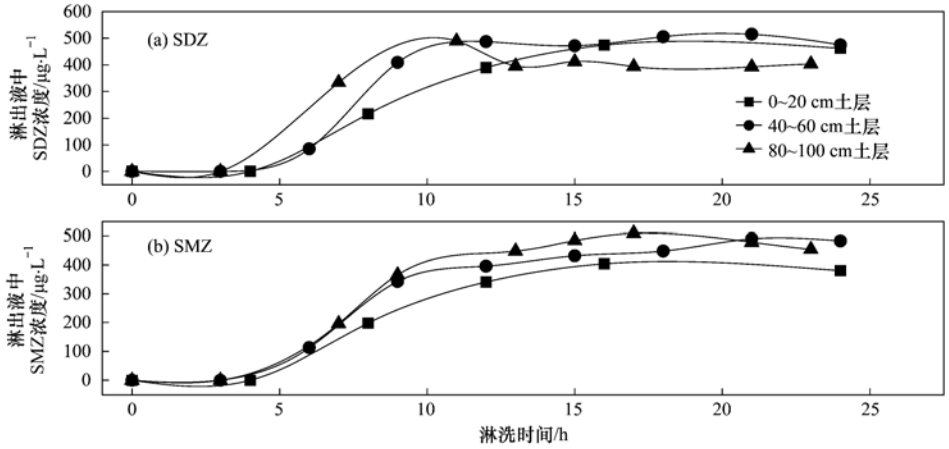

图 1 不同土层对磺胺类抗生素迁移的影响

Fig. 1 Effects of different soil depth on the leaching of sulfa antibiotics

图 2 为不同土层土柱淋溶后,各取样深度处土柱土壤中的典型磺胺类抗生素残留含量. 图 2(a)显示,不同土层土柱各取样土壤中磺胺嘧啶残留含量无明显差别. 其中 0 ~ 20 cm 土层土柱中,磺胺嘧啶在 0 ~ 2 cm 取样处残留含量(99.4 μg·kg^{-1})低于 4 ~ 20 cm 取样处残留含量(约为 120 μg·kg^{-1}). 40

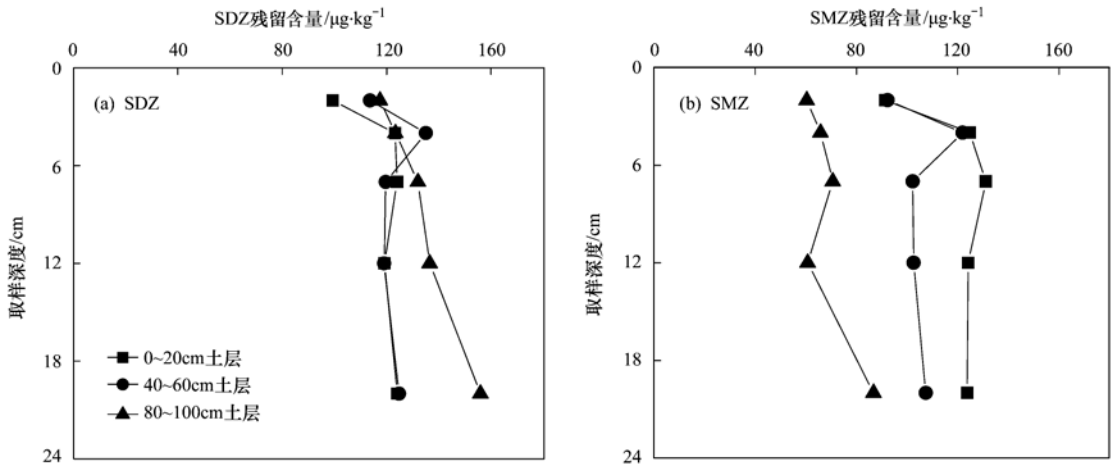

图 2 不同土层对土柱中磺胺类抗生素残留量的影响

Fig. 2 Effects of different soil depth on sulfa antibiotics residues in soil columns

~60 cm 土层土柱中,在各取样土壤磺胺嘧啶残留含量基本相同,平均约为 120 μg·kg^{-1}. 80 ~ 100 cm 土层土柱中,在 12 ~ 20 cm 取样土壤中磺胺嘧啶残留含量与其他土层相比略高(156 μg·kg^{-1}). 图 2(b)中显示,随土层深度的增加,土柱中磺胺甲基异噁唑残留含量依次递减,在不同土层土柱中磺胺甲基异噁唑残留含量依次为 120、100 和 85 μg·kg^{-1} 左右. 结合淋出液及土柱中抗生素残留量,统计得出磺胺类抗生素在 0 ~ 20 cm 土层土柱进行淋溶时,其淋出量最大.

2.2　不同流速对磺胺类抗生素淋溶规律的影响

鉴于土壤性质不同,实际灌溉的允许灌溉流速一般为 1.0 ~ 2.6 mL·min^{-1}. 本试验选取 1.0、1.5、2.0 mL·min^{-1}这 3 种流速进行淋溶,结果如图 3 所示. 土柱淋溶试验中,淋溶液淋溶流速越大,两种磺胺类抗生素的迁移速度越快,淋出量也越大. 图 3(a)中以 2 mL·min^{-1}流速淋溶 3 ~ 12 h 期间,淋出液中磺胺嘧啶浓度显著升高. 淋溶 12 h 后磺胺嘧啶快速通过土柱,淋出液中浓度达到平衡,接近 500 μg·L^{-1}. 以 1.5 mL·min^{-1}流速淋溶时,土壤中磺胺嘧啶淋出速率较慢,且淋出液中浓度较低. 淋溶 6 ~ 21 h,淋出液中磺胺嘧啶浓度逐渐增加,淋溶 21 h 后达到平衡,此时磺胺嘧啶浓度约为 120 μg·L^{-1}. 淋溶流速为 1 mL·min^{-1}时,淋出速率最慢,9 h 后淋出液才有磺胺嘧啶检出. 灌溉 27 h 后达到平衡,平衡时浓度为 97.6 μg·L^{-1}.

图 3(b)中,淋出液中磺胺甲基异噁唑浓度随淋溶流速变化曲线与磺胺嘧啶变化规律基本一致. 以 2 mL·min^{-1}流速淋溶土柱,淋溶 3 ~ 9 h,淋出液中磺胺甲基异噁唑浓度快速升高至 343.1 μg·L^{-1}; 在 9 ~ 21 h 之间,磺胺甲基异噁唑浓度增长缓慢,并达到平衡(490 μg·L^{-1}). 以 1.5 mL·min^{-1}流速进行淋溶时,6 ~ 15 h 为浓度快速增长期; 淋溶 15 ~ 24 h,磺胺甲基异噁唑淋出速率降低,24 h 后达到平衡,淋出液中磺胺甲基异噁唑浓度为 186.1 μg·L^{-1}. 以 1 mL·min^{-1}流速淋溶土柱时,淋出速率最慢,9 h 后淋出液中有磺胺甲基异噁唑检出; 淋溶 9 ~ 18 h 淋出液中磺胺甲基异噁唑浓度显著升高; 淋溶 18 ~ 27 h,磺胺甲基异噁唑浓度从 100 μg·L^{-1}缓慢升至 143 μg·L^{-1},达平衡时,浓度约为 136.2 μg·L^{-1}.

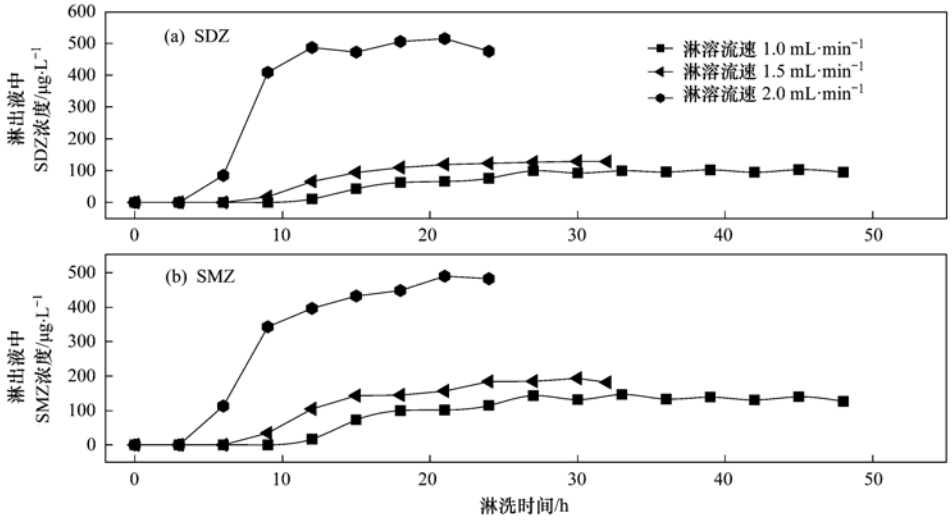

图 3　不同淋溶流速对磺胺类抗生素迁移规律的影响

Fig. 3　Effects of different leaching velocity on the leaching of sulfa antibiotics

图 4 为 500 μg·L^{-1}浓度淋溶液以不同淋溶速度对土柱进行淋溶,土柱中不同深度处磺胺类抗生素残留含量情况. 由图 4(a)可知淋溶流速越高,磺胺嘧啶残留含量越低. 0 ~ 2 cm 取样处,不同流速淋溶土柱中磺胺嘧啶残留含量不同. 灌溉流速为 2 mL·min^{-1}时,土壤残留量较低,为 113.7 μg·kg^{-1}. 当灌溉流速为 1 mL·min^{-1}和 1.5 mL·min^{-1}时,0 ~ 2 cm 取样土壤中磺胺嘧啶残留含量基本相同,为 153 μg·kg^{-1}. 不同流速淋溶土柱在 2 ~ 4 cm 取样处,磺胺嘧啶残留含量相差不大,约为 140 μg·kg^{-1}. 在 4 ~ 20 cm 取样土壤中磺胺嘧啶的残留含量与灌溉流速呈反比. 以 2 mL·min^{-1}流速淋溶时,磺胺嘧啶残留含量最低.

图 4(b)中以不同淋溶流速对土柱进行淋溶,土柱中磺胺甲基异噁唑的土壤残留含量约为 100 μg·kg^{-1},与淋溶流速无明显关系. 可能与磺胺类抗生素自身吸附性较弱,且受到各种因素的影响有关[21,22].

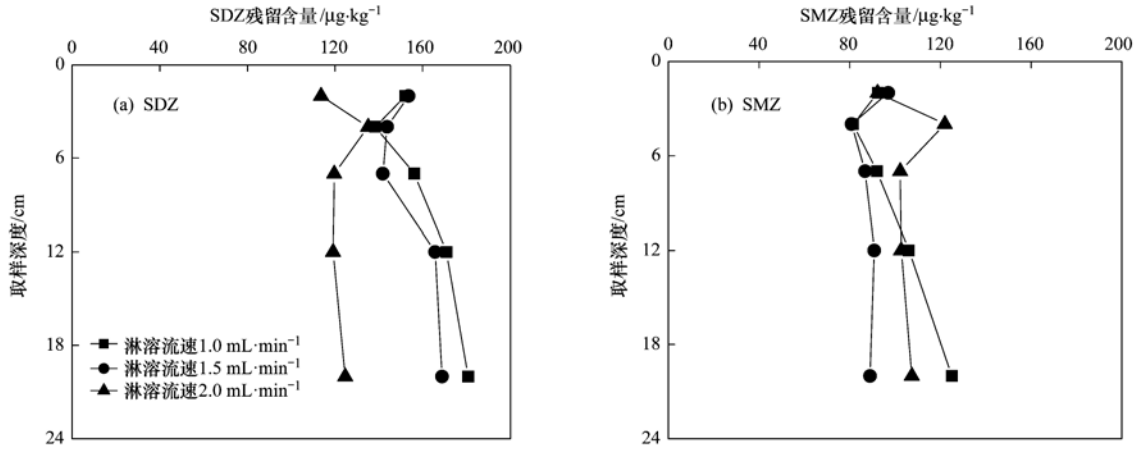

图 4 不同淋溶流速对土柱中磺胺类抗生素残留量的影响

Fig. 4 Effects of different leaching velocity on sulfa antibiotics residues in soil columns

结合淋出液中磺胺类抗生素浓度变化曲线及土柱不同取样深度处磺胺类抗生素残留含量情况,可以统计得出,在 1、1.5 和 2 mL·min^{-1}淋溶流速条件下,土壤中磺胺类抗生素吸附、降解、转化等作用的损失量分别为 686.45、783.87 和 255.69 μg.

2.3 不同淋溶液浓度对磺胺类抗生素淋溶规律的影响

图 5 为以不同浓度抗生素溶液对土柱进行淋溶时,淋出液中磺胺类抗生素浓度随时间的变化曲线. 图 5(a)显示,随着淋溶液浓度升高,磺胺类抗生素在土柱中的迁移明显增强; 淋溶液中磺胺嘧啶浓度为 125 μg·L^{-1}和 250 μg·L^{-1}时,淋出液中磺胺嘧啶浓度接近 0 μg·L^{-1}; 淋溶液浓度为 500 μg·L^{-1}时,对土柱淋溶 4 h 后淋出液中有磺胺嘧啶检出; 4 ~ 6 h 内,淋出液中磺胺嘧啶浓度快速升高,并达到稳定. 图 5(b)中,以 125 μg·L^{-1}浓度淋溶液进行淋溶时,淋出液中磺胺甲基异噁唑浓度接近 0 μg·L^{-1}; 以 250 μg·L^{-1}浓度淋溶液淋溶 6 h 后,有磺胺甲基异噁唑淋出; 连续淋溶 15 h,淋出液中磺胺甲基异噁唑浓度缓慢升高并达到平衡(91.8 μg·L^{-1}); 以 500 μg·L^{-1}浓度淋溶液淋溶土柱,磺胺甲基异噁唑淋出明显; 4 ~ 16 h 内, 淋出液中磺胺甲基异噁唑浓度显著增大至 404 μg·L^{-1}; 淋溶 16 h 后,淋出液中磺胺甲基异噁唑浓度达到平衡.

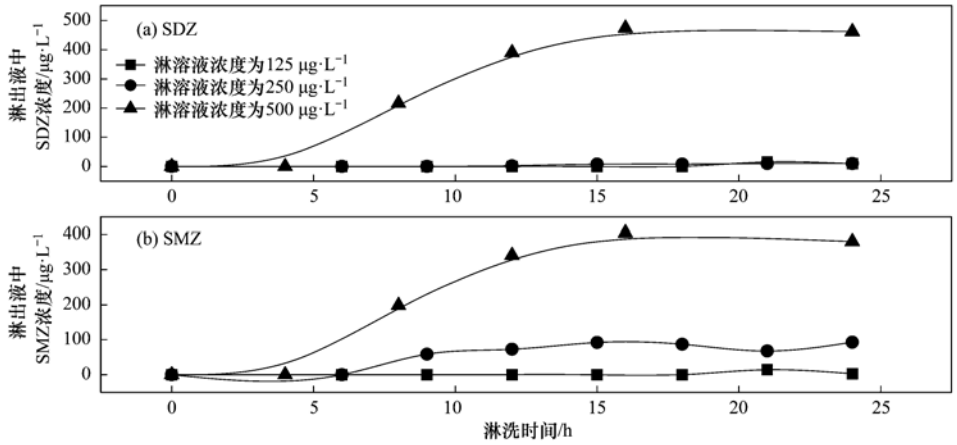

图 5 不同淋溶液浓度对磺胺类抗生素迁移规律的影响

Fig. 5 Effects of different concentrations of leaching solutions on the leaching of sulfa antibiotics

图 6 为不同浓度淋溶液以 2 mL·min^{-1}流速对土柱淋溶时,土壤中磺胺类抗生素残留含量变化. 图 6(a)中,淋溶液浓度为 125 μg·L^{-1}和 250 μg·L^{-1}时,各取样处磺胺嘧啶残留含量基本相同,约为 40 μg·kg^{-1}. 以 500 μg·L^{-1}浓度淋溶液进行淋溶时,土壤中磺胺嘧啶残留含量显著增大,0 ~ 2 cm 取样深度处残留含量增至 99.4 μg·kg^{-1},2 ~ 20 cm 取样深度处磺胺嘧啶残留含量更高,约为 120 μg·kg^{-1},为低浓度淋溶土柱中残留量的 3 倍. 图 6(b)显示,随着淋溶液浓度增大,磺胺甲基异噁唑在土柱土壤中

的残留含量也随之增大. 采用两种低浓度淋溶液进行淋溶时,0 ~ 2 cm 取样处磺胺甲基异噁唑残留含量基本相同,淋溶液浓度为 500 μg·L^{-1}时,残留含量显著增大. 2 ~20 cm 取样处土壤中磺胺甲基异噁唑残留含量与淋溶液的浓度呈明显梯度关系. 125 μg·L^{-1}浓度淋溶液淋洗土柱,在 0 ~ 2 cm 取样深度处磺胺甲基异噁唑残留含量为 39 μg·kg^{-1},2 ~ 20 cm 取样深度土壤中残留含量仅为 20 μg·kg^{-1}左右. 以 250 μg·L^{-1}浓度淋溶液淋溶时,磺胺甲基异噁唑残留含量约为 40 μg·kg^{-1}. 用浓度为 500 μg·L^{-1}溶液淋溶后,土壤中磺胺甲基异噁唑残留量显著升高,0 ~2 cm 取样土壤中残留含量为 91.4 μg·kg^{-1},2 ~ 20 cm 取样深度土壤中磺胺甲基异噁唑残留均匀,平均含量为 126 μg·kg^{-1}. 以 500 μg·L^{-1}浓度淋溶液淋溶土柱时,土壤中磺胺甲基异噁唑残留含量为低浓度灌溉后残留含量的 2 ~6 倍.

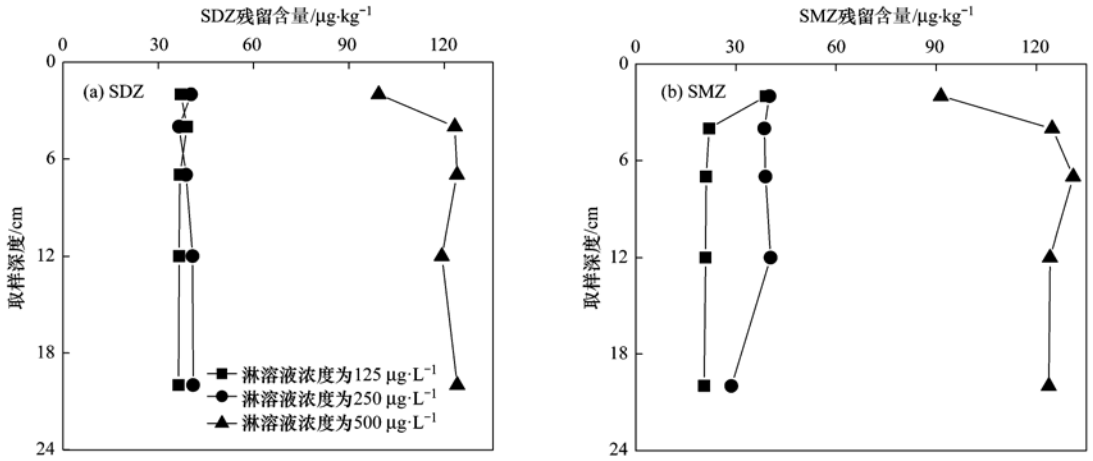

图 6　不同淋溶液浓度对土柱中磺胺类抗生素残留量的影响

Fig. 6　Effects of different leaching solution concentrations on Sulfa antibiotics residues in soil columns

3　讨论

3.1　不同土层影响分析

本研究的结果显示,磺胺类抗生素在土柱中的淋溶过程中,装柱土壤土层越深,磺胺类抗生素淋出速率越快,淋溶 15 h 后淋出液中磺胺类抗生素达到同一质量浓度. 所取土壤土层不同对磺胺甲基异噁唑在土柱中的残留含量影响明显,在 7 ~20 cm 取样处,0 ~20 cm 土层土柱中磺胺甲基异噁唑的残留含量约是其在 80 ~100 cm 土层土柱中浓度的 2 倍,是 40 ~60 cm 土层土柱中残留含量的 1.2 倍. 通过对磺胺类抗生素的物料平衡分析,对其在淋溶过程中降解、转化等造成的损失量进行探讨. 统计得出,0 ~20 cm 土层土柱进行淋溶试验时,磺胺类抗生素损失量最小. 本试验中,磺胺类抗生素快速通过土柱到达底层土壤,具有较强的迁移性. Thieles[23]研究发现磺胺类抗生素在黏质土壤颗粒上的吸附量是砂质土壤颗粒的 2.5 倍. 章明奎等[24]发现磺胺二甲嘧啶在土壤中的吸附能力与土壤黏粒含量、有机质含量和氧化铁含量呈正相关,与土壤有机质含量存在极显著的相关性. 这与本试验中磺胺类抗生素的快速迁移及有机质的影响规律相一致. 张从良等[25]研究发现,黏土矿物含量是影响土壤吸附磺胺嘧啶的最重要因子. Boxall 等[26]研究发现磺胺氯哒嗪在土壤中的吸附系数很低,迁移较强,与本试验结论一致. 文春波等[27]研究表明,磺胺嘧啶在土壤中的残留量较高,且不同土壤间迁移状况有差异,砂土中磺胺嘧啶迁移性较强,而在壤土和黏土柱中的渗出率则明显偏低. 以上研究表明土壤的自身理化性质对抗生素的迁移均有影响. 本研究中供试土壤为 3 层剖面土壤,随着土层深度的增加,其黏粒和粉粒含量增加,沙粒含量和有机质含量增加,导致其对磺胺类抗生素的吸附量和吸附强度减弱,增加了其淋溶量,出现了结果中上层土壤较下层土壤淋溶性强的结果.

3.2　淋溶流速影响分析

磺胺类抗生素在土壤中的淋溶迁移性与淋溶速度呈正相关性. 将 500 μg·L^{-1}浓度淋溶液以 2 mL·min^{-1}流速对土柱进行淋洗,10 ~ 15 h 后磺胺类抗生素会穿透土柱. 淋溶液灌溉流速为 1 mL·min^{-1}和 1.5 mL·min^{-1}时,淋出液中磺胺类抗生素的检出浓度低. 随淋溶流速增大,两种磺胺类抗生素穿透土柱时间越短,淋出液中两种抗生素质量浓度越高,土柱中磺胺嘧啶残留含量越低,但流速变化对土柱

中磺胺甲基异噁唑的残留含量的影响无确定规律. 当流速为 1 mL·min^{-1}和 1.5 mL·min^{-1}时,磺胺类抗生素土壤中降解转化等造成的损失量远高于流速为 2 mL·min^{-1}时的损失量. 因此推断,当淋溶流速较高时,磺胺类抗生素与土壤不能达到完全接触,土壤对其吸附量相应减少,致使其在淋出液中浓度增高,在土壤中的残留含量降低. 淋溶液流速降低,可使土壤与磺胺类抗生素更为完全的接触,减少其向下迁移,致使其其向深层土壤及地下水迁移的风险降低.

3.3 淋溶液浓度影响分析

磺胺类抗生素在土壤中吸附性较弱,淋溶液浓度为 500 μg·L^{-1}时,磺胺类抗生素穿透土柱,发生显著深层迁移. 以 125 μg·L^{-1}和 250 μg·L^{-1}浓度淋溶液进行灌溉时,淋出液中只有少量磺胺甲基异噁唑检出. 以 500 μg·L^{-1}浓度淋溶液进行淋溶时,土壤中磺胺类抗生素残留含量高,是以 125 μg·L^{-1}和 250 μg·L^{-1}浓度淋溶液淋溶后对应取样深度处浓度的 2 ~3 倍. 这可能与土壤对磺胺类抗生素的吸附容量及降解等作用有关. 当用低浓度溶液如 125 μg·L^{-1}和 250 μg·L^{-1}进行淋溶时,磺胺类抗生素吸附降解等造成的损失量比较接近. 淋溶液中污染物含量在土壤的吸附、降解容量范围内,致使大量磺胺类抗生素被土壤吸附,而淋出液中其含量较低. 当溶液浓度达到 500 μg·L^{-1}时,其含量已超出土壤对淋溶液中磺胺类抗生素的吸附、降解容量范围,大量磺胺类抗生素从底部淋出. 土壤对磺胺类抗生素吸附、降解量的临界点有待于进一步加强.

4 结论

磺胺类抗生素在土柱中具有一定的迁移性. 土层差异、淋溶流速及淋溶液浓度对 2 种磺胺类抗生素在土柱中的迁移行为均有一定影响. 随土层深度的增加,磺胺类抗生素淋出速率增大,土柱中磺胺甲基异噁唑残留含量依次递减. 淋溶流速增大时,磺胺类抗生素更容易发生向下迁移,土柱中残留量减少. 淋溶液中磺胺类抗生素质量浓度的升高,也会加快磺胺类抗生素穿透土柱的时间和向深层土壤及地下水的迁移,对深层土壤及地下水构成潜在危害.

参考文献:

[1] Haller M Y, Müller R S, Mcardell C S, *et al*. Quantification of veterinary antibiotics (sulfonamides and trimethoprim) in animal manure by liquid chromatography-mass spectrometry[J]. Journal of Chromatography A, 2002, **952**(1-2): 111-120.

[2] Blackwell P A, Lützhoft H C H, Ma H P. Ultrasonic extraction of veterinary antibiotics from soils and pig slurry with SPE clean-up and LC-UV and fluorescence detection[J]. Talanta, 2004, **64**(4): 1058-1064.

[3] 王长青. 东台市蛋鸡兽药使用现状和残留分析及控制对策研究[D]. 南京:南京农业大学,2006. 112-113.

[4] Hu X G, Yi L, Zhou Q X, *et al*. Determination of thirteen antibiotics residues in manure by solid phase extraction and high performance liquid chromatography [J]. Chinese Journal of Analytical Chemistry, 2008, **36**(9): 1162-1166.

[5] Zhao L, Dong Y H, Wang H. Residues of veterinary antibiotics in manures from feedlot livestock in eight provinces of China[J]. Science of the Total Environment, 2010, **408**(5): 1069-1075.

[6] 陈昇, 董元华, 王辉, 等. 江苏省畜禽粪便中磺胺类药物残留特征[J]. 农业环境科学学报, 2008, **27**(1): 385-389.

[7] 何瑞兰. 抗生素生产废水中抗药菌的筛选和去除研究[D]. 北京: 北京交通大学, 2009. 5-6.

[8] Kemper N. Veterinary antibiotics in the aquatic and terrestrial environment[J]. Ecological Indicators, 2008, **8**(1): 1-13.

[9] 孔维栋, 朱永官. 抗生素类兽药对植物和土壤微生物的生态毒理学效应研究进展[J]. 生态毒理学报, 2007, **2**(1): 1-9.

[10] 金彩霞, 刘军军, 陈秋颖, 等. 兽药磺胺间甲氧嘧啶对土壤呼吸及酶活性的影响[J]. 农业环境科学学报, 2010, **29**(2): 314-318.

[11] 王冉, 刘铁铮, 王恬. 抗生素在环境中的转归及其生态毒性[J]. 生态学报, 2006, **26**(1): 265-270.

[12] 陈杖榴. 兽用化学药物研发动向[J]. 中国兽药杂志, 2005, **39**(7): 1-6.

[13] Burkhardt M, Stamm C. Depth distribution of sulfonamide antibiotics in pore water of an undisturbed loamy grassland soil [J]. Journal of Environmental Quality, 2007, **36**(2): 588-596.

[14] Martínez-Carballo E, González-Barreiro C, Scharf S, *et al*. Environmental monitoring study of selected veterinary antibiotics in animal manure and soils in Austria [J]. Environmental Pollution, 2007, **148**(2): 1-10.

[15] 李彦文, 莫测辉, 赵娜, 等. 菜地土壤中磺胺类和四环素类抗生素污染特征研究[J]. 环境科学, 2009, **30**(6): 1762-1766.

[16] 唐才明, 黄秋鑫, 余以义. 污泥和沉积物中微量大环内酯类、磺胺类抗生素、甲氧苄胺嘧啶和氯霉素的测定[J]. 分析化学, 2009, **37**(8): 119-124.

[17] 马丽丽, 郭昌胜, 胡伟, 等. 固相萃取-高效液相色谱-串联质谱法同时测定土壤中氟喹诺酮、四环素和磺胺类抗生素[J]. 分析化学, 2010, **38**(1): 21-26.

[18] Sarmah H, Meyer M T, Boxall A B A. A global perspective on the use, sales, exposure pathways occurrence, fate and effects of veterinary antibiotics (VAs) in the environment [J]. Chemosphere, 2006, **65**(5): 725-759.

[19] 徐维海. 典型抗生素类药物在珠江三角洲水环境中的分布、行为与归宿[D]. 广州: 中国科学院研究生院(广州地球化学研究所), 2007.

[20] Sacher F, Lange F T, Brauch H J. Pharmaceuticals in

groundwaters: analytical methods and results of a monitoring Program in Baden-Württemberg, Germany [J]. Journal of Chromatography A, 2001, **938**(1-2): 199-210.

[21] 孔晶晶, 裴志国, 温蓓, 等. 磺胺嘧啶和磺胺噻唑在土壤中的吸附行为[J]. 环境化学, 2008, **27**(6): 732-741.

[22] Gao J, Pedersen J A. Adsorption of sulfonamide antimicrobial agents to clay minerals [J]. Environmental Science and Technology, 2005, **39**(24): 9509-9516.

[23] Thieles-Bruhn S. Pharmaceutical antibiotic compounds in soils-a review[J]. Journal of Plant Nutrition and Soil Science, 2003, **166**(2): 145-147.

[24] 章明奎, 王丽平, 郑顺安. 两种外源抗生素在农业土壤中的吸附与迁移特性[J]. 生态学报, 2008, **28**(2): 761-766.

[25] 张从良, 王岩, 文春波, 等. 磺胺嘧啶在不同类型土壤中的吸附研究[J]. 农机化研究, 2007, **27**(9): 143-146.

[26] Boxall A B A, Blackwell P, Cavallo R, *et al*. The sorption and transport of a sulphonamide antibiotic in soil systems [J]. Toxicology Letters, 2002, **131**(1-2): 19-28.

[27] 文春波, 张从良, 王岩. 磺胺嘧啶在土壤中的降解与迁移研究[J]. 农业环境科学学报, 2007, **26**(5): 1677-1680.

[28] Thiele S. Adsorption of the antibiotic pharmaceutical compound sulfapyridine by a long-term differently fertilized loess Chernozem [J]. Journal of Plant Nutrition and Soil Science, 2000, **163**(6): 589-594.

[29] 金朝辉, 曹骥赟, 段微, 等. 涕灭威在土壤中淋溶影响因子分析及地下水污染研究[J]. 南开大学学报(自然科学版), 2003, **36**(2): 104-108.

[30] Lindsey M E, Meyer T M, Thurman E M, *et al*. Analysis of trace levels of sulfonamide and tetracycline antimicrobials in groundwater and surface water using solid-phase extraction and liquid chromatography/mass spectrometry [J]. Analytical Chemistry, 2001, **73**(19): 4640-4646.

HUANJING KEXUE

Environmental Science (monthly)

Vol. 34 No. 10

Oct. 15, 2013

CONTENTS

Stable Carbon Isotopic Composition in $PM_{2.1}$ in Nanjing Region ····· WU Meng-long, GUO Zhao-bing, LIU Feng-ling, *et al.* (3727)

Distribution and Source Apportionment of *n*-Alkanes in Atmospheric Particle in Taiyuan, China ····· HU Dong-mei, PENG Lin, BAI Hui-ling, *et al.* (3733)

Study on Influence of Traffic and Meteorological Factors on Inhalable Particle Matters of Different Size ····· LUO Na-na, ZHAO Wen-ji, YAN Xing, *et al.* (3741)

Particle Emission Characteristics of Diesel Bus Fueled with Bio-diesel ····· LOU Di-ming, CHEN Feng, HU Zhi-yuan, *et al.* (3749)

Characteristics of $\delta^{18}O$ in Precipitation and Water Vapor Sources in Lanzhou City and Its Surrounding Area ····· CHEN Fen-li, ZHANG Ming-jun, MA Qian, *et al.* (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, *et al.* (3764)

Mechanism and Performance of Styrene Oxidation by O_3/H_2O_2 ····· HE Jue-cong, HUANG Qian-ru, YE Qi-hong, *et al.* (3772)

Sulfur Isotopic Signatures in Leaves of *Pinus massoniana* Lamb. and Source Apportionment ····· GUAN Hui, XIAO Hua-yun, ZHU Ren-guo, *et al.* (3777)

Comparisons of Sulfur Contents and Isotopes Between Mosses and Surface Soils in Jiangxi Province ····· LI Nan, XIAO Hua-yun, CHEN Yong-zhong, *et al.* (3782)

Research on Spatial Characteristic of Non-point Source Pollution in Liaohe River Basin ····· WANG Xue-lei, CAI Ming-yong, ZHONG Bu-qing, *et al.* (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, *et al.* (3797)

Distribution of Matrix-Bound Phosphine in Surface Sediments of Jinpu Bay ····· YOU Li-li, ZONG Hai-bo, ZHANG Shu-fang, *et al.* (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, *et al.* (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, *et al.* (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, *et al.* (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, *et al.* (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, *et al.* (3862)

Simulation Research on the Release of Internal Nutrients Affected by Different Dredging Methods in Lake ····· CHEN Chao, ZHONG Ji-cheng, FAN Cheng-xin, *et al.* (3872)

Research of Urban Eutrophic Water Repair by Water/Sediment Biological Bases ····· ZHOU Hui-hua, SONG Xiao-guang, WU Ge, *et al.* (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, *et al.* (3894)

Adsorption Characteristics of f2 Bacteriophages by Four Substrates in Constructed Wetland ····· CHEN Di, ZHENG Xiang, WEI Yuan-song, *et al.* (3904)

Adsorption Characteristics of the Antibiotic Sulfanilamide onto Rice Husk Ash ····· JI Ying-xue, WANG Feng-he, ZHANG Fan, *et al.* (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, *et al.* (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, *et al.* (3940)

Surface Modification of Polyvinylidene Fluoride (PVDF) Membrane by Using the Zwitterionic Substance ····· ZHOU Gui-hua, XIAO Feng, XIAO Ping, *et al.* (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, *et al.* (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, *et al.* (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, *et al.* (3969)

Influencing Factors of Floc Size Distribution and Fractal Dimension of Activated Sludge ····· LI Zhen-liang, ZHANG Dai-jun, LU Pei-li, *et al.* (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, *et al.* (3986)

Studies on Spatial Heterogeneity of Soil Respiration in a Subalpine Meadow ····· YAN Jun-xia, LI Jun-jian, LI Hong-jian, *et al.* (3992)

Modeling of CO_2 Fluxes at Cropland by Using SiB3 Model ····· ZHANG Geng-jun, LU Li-xin, JIANG Ling-mei, *et al.* (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, *et al.* (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, *et al.* (4024)

Vertical Distribution of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Abandoned Vehicles Dismantling Area Soil ····· WU Yan-yu, HU Xiao-ying, HONG Hong-jia, *et al.* (4031)

Stabilization and Long-term Effect of Chromium Contaminated Soil ····· WANG Jing, LUO Qi-shi, ZHANG Chang-bo, *et al.* (4036)

Leaching Characteristics of Sulfadiazine and Sulfamethoxazole in Soil Column ····· LI Man, CHEN Wei-ping, WEI Fu-xiang, *et al.* (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, *et al.* (4058)

Allelopathic Potential of *Phyllostachys edulis* on Two Dominant Tree Species of Evergreen Broad-leaved Forest in Its Invasive Process ····· BAI Shang-bin, ZHOU Guo-mo, WANG Yi-xiang, *et al.* (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, *et al.* (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, *et al.* (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, *et al.* (4096)

Microeukaryotic Biodiversity in the Waste Ore Samples Surrounding an Acid Mine Drainage Lake ····· LI Si-yuan, HAO Chun-bo, WANG Li-hua, *et al.* (4105)

Characteristics and Functional Protein Analysis of an Effective Decabromodiphenyl Ether-Degrading Strain ····· CHANG Jing-jing, YIN Hua, QIN Hua-ming, *et al.* (4112)

Effect of Selenium on the Uptake and Translocation of Manganese, Iron, Phosphorus and Selenium in Rice (*Oryza sativa* L.) ····· HU Ying, HUANG Yi-zong, HUANG Yan-chao, *et al.* (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, *et al.* (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