

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第35卷 第11期

Vol.35 No.11

2014

中国科学院生态环境研究中心 主办
科学出版社 出版



目次

南京北郊夏季近地层臭氧及其前体物体积分数变化特征	邵平, 安俊琳, 杨辉, 林旭, 吉东生 (4031)
亚青会期间南京污染气体与气溶胶中水溶性离子的分布特征	邹嘉南, 安俊琳, 王红磊, 邵平, 段卿, 薛国强, 庞博 (4044)
亚青会期间南京地区气溶胶浓度变化及其与能见度的关系	袁亮, 银燕, 李琦, 肖辉, 李力 (4052)
2013年10月长株潭城市群一次持续性空气污染过程特征分析	廖志恒, 范绍佳, 黄娟, 孙家仁 (4061)
在线单颗粒气溶胶质谱 SPAMS 对细颗粒物中主要组分提取方法的研究	付怀于, 闫才青, 郑玫, 蔡靖, 李小滢, 张延君, 周振, 傅忠, 李梅, 李磊, 张远航 (4070)
PM ₁₀ 可替代源成分谱的建立方法及其应用	陈强, 景毅, 吴焕波, 王芳 (4078)
夏季东海和南黄海一氧化氮的浓度分布、海-气通量和微生物消耗研究	王敬, 陆小兰, 杨桂朋, 徐冠球 (4085)
三峡库区典型农田小流域水体汞的时空分布特征	王娅, 赵铮, 木志坚, 王定勇 (4095)
浑太水系水体中不同粒径有机胶体荧光光谱特性	刘娜娜, 李斌, 刘瑞霞, 宋永会, 吴畏 (4103)
深圳湾流域 TN 和 TP 入海年通量变化规律研究	赵晨辰, 张世彦, 毛献忠 (4111)
滇池沉积物有机磷垂直分布特征及其生物有效性	熊强, 焦立新, 王圣瑞, 彭希琰 (4118)
金山湖闸坝型水体表层沉积物重金属分布特征及生态风险评价	周晓红, 刘龙梅, 陈曦, 陈志刚, 张金萍, 李义敏, 刘彪 (4127)
西藏普莫雍错湖芯沉积物中重金属的垂向分布特征及生态风险评估	谢婷, 罗东霞, 杨瑞强 (4135)
西安市雨水径流中重金属季节性污染特征及分析	袁宏林, 李星宇, 王晓昌 (4143)
城市不同下垫面降雨径流多环芳烃 (PAHs) 分布及源解析	武子澜, 杨毅, 刘敏, 陆敏, 于英鹏, 汪青, 郑鑫 (4148)
粗放型绿色屋面填料的介质组成对出水水质的影响	陈昱霖, 李田, 顾俊青 (4157)
饮用水处理中不同来源生物活性炭微生物群落多样性和结构研究	杜尔登, 郑璐, 冯欣欣, 高乃云 (4163)
压力强化混凝除藻工艺中藻毒素安全性研究	蒋新跃, 栾清, 丛海兵, 徐思涛, 刘玉娇, 朱学源 (4171)
基于膜特征参数变化的蛋白质超滤过程膜污染研究	王旭东, 张银辉, 王磊, 张慧慧, 夏四清 (4176)
臭氧氧化水溶液中对乙酰氨基酚的机制研究	曹飞, 袁守军, 张梦涛, 王伟, 胡真虎 (4185)
电辅助微生物反应器降解苯并噻唑效能的研究	刘春苗, 丁杰, 刘先树, 程旺斌 (4192)
铁铜复合氧化物纳米吸附剂的制备、表征及 As(Ⅲ)吸附性能研究	张伟, 陈静, 张高生 (4198)
重金属铬胁迫下水蚯蚓的生理响应研究	楼菊青, 杨东叶, 曹永青, 孙培德, 郑平 (4205)
光质对蛋白核小球藻 (<i>Chlorella pyrenoidosa</i>) 生长特征及生化组成的影响研究	唐青青, 方治国, 嵇雯雯, 夏会龙 (4212)
常温低基质下碱度和溶解氧对厌氧氨氧化的影响	任玉辉, 王科, 李相昆, 马凯丽, 张杰 (4218)
Fe ²⁺ 和 Fe ³⁺ 对厌氧氨氧化污泥活性的影响	李祥, 黄勇, 巫川, 王孟可, 袁怡 (4224)
CSTR 中亚硝化颗粒污泥的变化过程研究	阴方芳, 刘文如, 王建芳, 吴鹏, 沈耀良 (4230)
盐度对好氧颗粒污泥硝化过程中 N ₂ O 产生量的影响	王珊珊, 梁红, 高大文 (4237)
硫酸盐还原反应器污泥驯化过程中微生物群落变化分析	曾国驱, 贾晓珊, 郑小红, 杨丽平, 孙国萍 (4244)
利用铅同位素方法量化不同端元源对南京土壤和长江下游悬浮物铅富集的影响	王成, 夏学齐, 张义, 廖启林, 杨忠芳, 季峻峰 (4251)
北京东南郊土壤剖面氟喹诺酮类抗生素分布特征	苏思慧, 何江涛, 杨蕾, 乔肖翠, 崔亚丰 (4257)
环境因素对土壤中几种典型四环素抗性基因形成的影响	张俊, 罗方园, 熊浩微, 焦少俊, 叶波平 (4267)
稻田土壤不同水分条件下硝化/反硝化作用及其功能微生物的变化特征	刘若萱, 贺纪正, 张丽梅 (4275)
典型岩溶土壤微生物丰度与多样性及其对碳循环的指示意义	靳振江, 汤华峰, 李敏, 黄炳富, 李强, 张家喻, 黎桂文 (4284)
变温环境对典型石灰土有机碳矿化的影响	王莲阁, 高岩红, 丁长欢, 慈恩, 谢德体 (4291)
铁氧化物与电子供体基质交互作用对红壤性水稻土中 DDT 还原脱氯影响	刘翠英, 徐向华, 王壮, 姚童言 (4298)
植物套种及化学强化对重金属污染土壤的持续修复效果研究	卫泽斌, 郭晓方, 吴启堂, 龙新宪 (4305)
不同取样尺度下亚高山草甸土壤呼吸的空间变异特征	李洪建, 高玉凤, 严俊霞, 李君剑 (4313)
不同开垦年限黑土温室气体排放规律研究	李平, 郎漫, 徐向华, 李煜珊, 朱淑娟 (4321)
转 Cry1Ac 基因抗虫棉与其亲本棉花根际真菌多样性的比较	潘建刚, 焦海华, 白志辉, 齐鸿雁, 马安周, 庄国强, 张洪勋 (4329)
天津污灌区内气态汞的污染特征及在叶菜类蔬菜中的富集	郑顺安, 韩允垒, 郑向群 (4338)
1-硝基芘和 1,2-萘醌的联合细胞毒性和致 DNA 损伤	尚羽, 蒋玉婷, 张玲, 李怡 (4345)
鸡粪堆肥有机物演化对重金属生物有效性影响研究	卜贵军, 于静, 邱慧慧, 罗世家, 周大寨, 肖强 (4352)
污泥预植重金属 Cu 炭化及炭中重金属的稳定性研究	窦晓敏, 陈德珍, 戴晓虎 (4359)
上层曝气式生物反应器填埋工艺特性的研究	田颖, 王坤, 徐期勇 (4365)
硝酸盐连续回灌对生物反应器填埋场 N ₂ O 产生的影响	卞荣星, 孙英杰, 李晶晶, 张欢欢 (4371)
中国碳强度下降和碳排放增长的行业贡献分解研究	蒋晶晶, 叶斌, 计军平, 马晓明 (4378)
泛长三角地区工业污染重心演变路径及其驱动机制研究	赵海霞, 蒋晓威, 崔建鑫 (4387)
基于污染防治技术模拟的造纸行业环境管理方法研究	张雪莹, 温宗国 (4395)
大气棕色碳的研究进展与方向	闫才青, 郑玫, 张远航 (4404)
《环境科学》征稿简则 (4094)	
《环境科学》征订启事 (4126)	
信息 (4243, 4266, 4274, 4328)	

铁氧化物与电子供体基质交互作用对红壤性水稻土中 DDT 还原脱氯影响

刘翠英¹, 徐向华¹, 王壮², 姚童言¹

(1. 南京信息工程大学应用气象学院, 江苏省农业气象重点实验室, 南京 210044; 2. 南京信息工程大学环境科学与工程学
院, 江苏省大气环境监测与污染控制高技术研究重点实验室, 南京 210044)

摘要: 铁氧化物与电子供体基质交互作用对电子转移及具有脱氯功能的铁还原菌生长有重要影响, 进而可能影响土壤中多氯代有机物的还原脱氯降解。本研究采用土壤厌氧培养实验, 分析铁氧化物 (针铁矿) 和电子供体基质 (正丁酸和乙醇) 及其交互作用对红壤性水稻土中 DDT 脱氯的影响及其机制。结果表明, 由于 DDT 脱氯降解, DDT 及其降解产物与土壤形成结合态残留, 厌氧培养 6 周后, 土壤中 DDT 可提取态残留量仅为初始量的 1.29% ~ 2.01%。DDT 厌氧脱氯降解的主要产物为 DDD。在培养前期, 加入正丁酸和乙醇使反应体系的 pH 降低 Eh 增加, 进而不利于 DDT 还原脱氯降解。添加针铁矿或者同时添加针铁矿和电子供体基质均使反应体系的 pH 增加 Eh 降低, 并且增加土壤中二价铁的量, 从而促进 DDT 还原脱氯降解。正丁酸和铁氧化物对 DDT 还原脱氯无显著交互作用, 而乙醇和铁氧化物对 DDT 还原脱氯具有拮抗作用。本研究结果对于制定 DDT 污染土壤的高效原位修复技术方案具有重要意义。

关键词: DDT; 还原脱氯; 针铁矿; 有机碳; 土壤

中图分类号: X131.3 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2014)11-4298-07 DOI: 10.13227/j.hjxx.2014.11.036

Influence of the Interaction Between Iron Oxide and Electron Donor Substances on 1, 1, 1-Trichloro- 2, 2-bis (*p*-chlorophenyl) ethane (DDT) Reductive Dechlorination in Hydragric Acrisols

LIU Cui-ying¹, XU Xiang-hua¹, WANG Zhuang², YAO Tong-yan¹

(1. Jiangsu Key Laboratory of Agricultural Meteorology, College of Applied Meteorology, Nanjing University of Information Science and Technology, Nanjing 210044, China; 2. Jiangsu Key Laboratory of Atmospheric Environment Monitoring and Pollution Control, School of Environmental Science and Engineering, Nanjing University of Information Science and Technology, Nanjing 210044, China)

Abstract: The interaction between iron oxide and electron donor substance have significant influences on electron transfer and the growth of iron-reducing bacteria, which may affect the reductive dechlorination of polychlorinated organic compounds in soil. Anaerobic soil incubation experiment was conducted to study the effect and its mechanism of iron oxide (goethite), electron donor substances (butyrate and ethanol), and their interaction on DDT reductive dechlorination in Hydragric Acrisols. Results showed that after 6 weeks of anaerobic incubation, the extractable residues of DDT were between 1.29% and 2.01% of initial DDT amounts in soils, which was attributed to the dechlorinated degradation of DDT and formation of bound residues of DDT and its dechlorinated products. The main product of DDT anaerobic dechlorination was 1, 1-dichloro- 2, 2-bis (*p*-chloro-phenyl) ethane (DDD). During the prophase of incubation, the application of butyrate or ethanol led to the decreased pH and increased Eh for reaction system, thus inhibited DDT dechlorination. The applications of only goethite or goethite and electron donor substances resulted in the increased soil pH, decreased soil Eh and increased Fe(II) contents, thus accelerated DDT dechlorination. There was no significant interaction between butyrate and iron oxide on DDT dechlorination, whereas there was antagonistic action between ethanol and iron oxide on DDT dechlorination. The results will be of great significance for developing efficient and in-situ remediation technology of DDT contaminated soil.

Key words: DDT; reductive dechlorination; goethite; organic carbon; soil

有机氯农药 DDT, 别名 2, 2-双(4-氯苯基)-1, 1, 1-三氯乙烷 (即 *p, p'*-DDT), 是首批被列入《关于持久性有机污染物的斯德哥尔摩公约》受控名单的持久性有机污染物 (POPs) 之一^[1]。由于 DDT 的高残留性和持久性, 并且含 DDT 杂质的三氯杀螨醇的大量使用, 导致目前我国许多地区农田土壤中仍可检出 DDT, 且在一些地区的残留仍很严重^[2~4]。农田土壤中的 DDT 被作物吸收后, 将严重危及农产品品

质安全。因此, 如何消除土壤中 DDT 污染成为近年来亟待解决的重要科学问题。

由于 DDT 含有较多的氯取代基, 氯原子强烈的吸电子性使其很难被好氧微生物氧化降解, 而在厌

收稿日期: 2014-04-03; 修订日期: 2014-05-29

基金项目: 国家自然科学基金项目 (41201314); 土壤与农业可持续发展国家重点实验室开放课题项目 (0812201227)

作者简介: 刘翠英 (1982 ~), 女, 博士, 讲师, 主要研究方向为土壤环境化学与污染控制, E-mail: 002263@nuist.edu.cn

氧条件下,DDT 能够发生还原脱氯作用^[5~7]. 经过脱氯反应脱除了氯取代基后,使 DDT 的毒性和持久性大大降低,更易被好氧微生物进一步降解,直至完全矿化^[6]. 因此,厌氧条件下的还原脱氯反应是 DDT 有效降解的关键. 厌氧还原脱氯即在得到电子的同时脱去一个氯取代基, H_2 是主要电子供体,但直接向污染源区导入 H_2 比较困难,由于有机物能够在微生物作用下发酵生成 H_2 ,通常使用有机物(脂肪酸、醇类和糖类等)作为电子供体基质^[8]. 南方红壤区是我国主要的水稻产区,红壤中含有大量的铁氧化物^[9]. 研究发现,厌氧条件下铁氧化物对氯代有机物的还原脱氯降解有促进作用^[10~15]. 然而,关于铁氧化物与电子供体基质交互作用对红壤性水稻土中 DDT 还原脱氯的影响鲜有报道.

由于我国大面积红壤中含有丰富的铁氧化物,水稻土长期处于淹水还原条件,本文选择红壤性水稻土进行研究. 为了阐明铁氧化物与电子供体基质交互作用对 DDT 还原脱氯的影响机制,本研究采用人为添加一定量 DDT 的污染土进行实验. 选择正丁酸和乙醇作为电子供体基质,选择针铁矿作为铁氧化物,研究铁氧化物与电子供体基质交互作用对 DDT 还原脱氯的影响及其机制,以期探索加速红壤中 DDT 消减的农艺措施提供科学依据.

1 材料与方法

1.1 供试土壤性质及污染土的制备

供试土样为江西鹰潭红壤性水稻土($28^{\circ}12'N$, $116^{\circ}55'E$),取 0~20 cm 表层土,风干后,过 2 mm 筛备用. 供试土壤的基本性质如下:土壤 pH 为 5.1,有机质含量为 3.5%,可溶性有机碳含量为 $40.2\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$,游离氧化铁含量为 $27.3\text{ g}\cdot\text{kg}^{-1}$,无定形氧化铁含量为 $2.1\text{ g}\cdot\text{kg}^{-1}$,土壤中三价铁与二价铁的含量之比为 20.7,黏粒、粉粒和砂粒含量分别为 26.5%、42.1% 和 31.4%,具体分析方法见文献^[16]. 土壤中 DDT 和 DDD 的背景值分别为 $9.1\text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$ 和 $7.5\text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$.

根据实验用量,称取 100 mg DDT 完全溶解于 200 mL 丙酮,然后将 DDT 的丙酮溶液加入 280 g 细石英砂(100 目)中,充分搅拌至丙酮全部挥发,即得到 DDT 均匀污染的石英砂. 称取 5 g 污染石英砂和 500 g 土壤拌匀,即得到 DDT 浓度为 $3.5\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ 的污染土壤,室温放置 1 周后备用. 由于土壤对 DDT 的吸持作用以及分析过程中 DDT 的损失,气相色谱检测到土壤中 DDT 的初始浓度为 $2.9\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$.

1.2 实验仪器与化学试剂

安捷伦(Agilent, 6890)气相色谱仪-ECD 检测器⁶³Ni; 安捷伦 7683 自动进样器(Agilent, USA); 岛津(Shimadzu, GC-12A)气相色谱仪-FID 检测器; 岛津(Shimadzu, GC-14B)气相色谱分析仪-TCD 检测器; 生化培养箱(LRH-250, 上海印溪); 旋转蒸发仪(RE-3000, 上海亚荣).

DDT 及其脱氯降解产物的标样(纯度 $\geq 99.5\%$, 德国 Ehrenstorfer 博士提供); 正己烷(分析纯)、丙酮(分析纯)、二氯甲烷(分析纯)、乙醇(分析纯)和正丁酸(分析纯)均由上海国药集团化学试剂有限公司生产; 针铁矿采用水合硝酸铁与氢氧化钾合成; 无水硫酸钠(400°C 下干燥 4 h); 硅胶(130°C 下保持 18 h 后,加入 3% 去离子水混匀,用之前平衡 6 h).

1.3 实验设计

本研究设以下 6 个处理:①土壤 + DDT(对照/CK); ②土壤 + DDT + 正丁酸(SB); ③土壤 + DDT + 乙醇(SE); ④土壤 + DDT + 针铁矿(SG); ⑤土壤 + DDT + 正丁酸 + 针铁矿(SBG); ⑥土壤 + DDT + 乙醇 + 针铁矿(SEG). 正丁酸和乙醇均按 $50\text{ mmol}\cdot\text{kg}^{-1}$ 的有机碳/土壤的比例添加,针铁矿按 $20\text{ g}\cdot\text{kg}^{-1}$ 土壤的比例添加. 土壤保持淹水,塞紧瓶塞后,从通气口通入氮气,使瓶中充满氮气后用止水夹夹紧通气口连接的硅胶管,使得培养瓶达到严格密封厌氧条件,随后将培养瓶于 25°C 的生化培养箱中培养. 实验设 3 个重复. 分别设定 1~6 周每周取土壤样品,测定其中的 DDT 及其降解产物含量,并测定土壤中二价铁 Fe(II) 含量; 分析每周 CH_4 及 CO_2 释放量; 每次取样时测土壤 pH 和氧化还原电位(Eh). 每次取样完毕后,塞上瓶塞使瓶中充满氮气后密封,继续培养.

1.4 土壤中 DDT 及其降解产物的测定

每周用不锈钢土钻取土壤样品约 10 g 用于测定其中的 DDT 及其降解产物和 Fe(II) 含量. 称取土样约 1 g 于 50 mL 离心管中,加入 30 mL 正己烷/丙酮(4/1, 体积比),于 25°C , 60 kHz 条件下超声萃取 2 h 后,将提取液转移至梨形瓶,在 45°C 旋转蒸发至约 2 mL,经过填有 2 g Na_2SO_4 和 1 g 硅胶的 SPE 柱净化,净化时用 15 mL 体积比为 9/1 的正己烷/二氯甲烷淋洗,再将淋洗液旋转蒸发浓缩定容至 2 mL,用气相色谱测定 DDT 及其降解产物的浓度. 气相色谱测定条件为: DB-5 柱($30.0\text{ m}\times 0.32\text{ mm}\times 0.25\text{ }\mu\text{m}$),载气为 N_2 ,采用不分流进样,进样量为

1 μL,进样口温度为 220℃,检测器温度为 280℃.

1.5 土壤 pH 和 Eh 的测定

土壤 pH 和 Eh 采用 PHB-06 型 pH/mV 计(南京骄远分析仪器有限公司生产)进行测定. 测定土壤 pH 时将 pH/mV 计功能选择开关在 pH 档,采用 pH 复合电极测定. 测定土壤 Eh 时将 pH/mV 计功能选择开关在 mV 档,将铂电极(指示电极)、参比电极分别与相应的电极插座连接后,电极插入被测土壤中即可进行测定.

1.6 二价铁及 CH₄ 和 CO₂ 的测定

称取土样约 1 g 于 50 mL 离心管中,加入 40 mL 0.5 mol·L⁻¹的盐酸,振荡提取 1.5 h 后离心过 0.22 μm 滤膜,取 1 mL 滤液加入 2 mL 1 mol·L⁻¹的碳酸钠缓冲溶液和 2 mL 1 g·L⁻¹的邻菲罗啉显色 1 h,采用紫外-可见分光光度计于 510 nm 测定其中 Fe(Ⅱ)的浓度,具体分析方法见文献[17]. CH₄ 和 CO₂ 的测定和分析方法见文献[18].

1.7 质量控制与数据分析

分别配制浓度为 50、100、200、400、600、800 ng·g⁻¹的 DDT、2,2-双(4-氯苯基)-1,1-二氯乙烷(DDD)、2,2-双(4-氯苯基)-1,1-二氯乙烯(DDE)、2,2-双(4-氯苯基)-1-一氯乙烷(DDMU)和 4,4'-二氯二苯酮(DPB)标准溶液,采用外标法对所测数据进行质量控制. 在样品测定之前,进行了回收率实验,本实验测得的回收率为 85.1%~87.4%. 显著性差异分析由 SPSS 13.0 完成,显著性水平为 0.05.

2 结果与讨论

2.1 土壤 Eh 和 pH

表 1 为各处理在整个培养周期内的土壤 Eh 和

pH 变化动态. 可以看出,在培养开始的 1~2 周,添加电子供体基质正丁酸和乙醇均显著提高土壤 Eh,而且添加正丁酸处理的土壤 Eh 最高($P < 0.05$). 在培养的第 3~6 周,除了第 4 周 SB 处理的土壤 Eh 偏低外,土壤 Eh 在 CK 与 SB、SE 处理之间均无显著差异($P > 0.05$). 在整个培养过程中,添加针铁矿均显著降低土壤 Eh($P < 0.05$). 在培养的第 1 周,SBG 和 SEG 处理的土壤 Eh 与对照相比均无显著差异($P > 0.05$),而后 SBG 和 SEG 处理的土壤 Eh 均显著低于对照($P < 0.05$). 而且,在第 2~3 周,SBG 处理的土壤 Eh 显著低于 SEG 处理($P < 0.05$). 该结果表明,添加电子供体基质正丁酸和乙醇在培养前期使土壤的还原性减弱,而添加铁氧化物使土壤还原性增强,同时添加铁氧化物和电子供体基质(正丁酸或乙醇)在第 1 周之后也能够使土壤的还原性增强.

由表 1 可以看出,添加电子供体基质正丁酸和乙醇均使土壤 pH 显著低于对照,而且在 1~5 周添加正丁酸处理的土壤 pH 最低($P < 0.05$). 在整个培养过程中,添加针铁矿均显著增加土壤 pH($P < 0.05$). SBG 处理的土壤 pH 在第 1 周显著低于对照,而在第 2~6 周,SBG 处理的土壤 pH 显著高于对照($P < 0.05$). 在整个培养过程中,SEG 处理的土壤 pH 显著高于对照($P < 0.05$). 该结果表明,添加电子供体基质正丁酸和乙醇使土壤酸性增强,且在培养前期的效果更明显. 而添加铁氧化物使土壤酸性减弱,使整个培养过程土壤 pH 均接近中性. 同时添加铁氧化物和电子供体基质(正丁酸或乙醇)也能够使土壤酸性减弱.

表 1 土壤 Eh 和 pH 变化过程¹⁾

Table 1 Time course of soil Eh and pH

项目	处理	时间(周)					
		1	2	3	4	5	6
Eh/mV	CK	-174 ± 41c	-183 ± 8c	-178 ± 21a	-206 ± 27b	-201 ± 44a	-203 ± 24a
	SB	71 ± 20a	-34 ± 4a	-204 ± 21a	-164 ± 21a	-202 ± 28a	-170 ± 26a
	SE	-71 ± 7b	-127 ± 7b	-166 ± 30a	-213 ± 32b	-185 ± 11a	-203 ± 15a
	SG	-269 ± 35d	-290 ± 16de	-303 ± 16b	-291 ± 38c	-256 ± 31b	-259 ± 20b
	SBG	-202 ± 38c	-314 ± 61e	-340 ± 4c	-311 ± 66c	-314 ± 11c	-321 ± 54c
	SEG	-195 ± 25c	-264 ± 23d	-282 ± 40b	-314 ± 39c	-301 ± 7c	-288 ± 25bc
pH	CK	6.32 ± 0.04C	6.43 ± 0.06D	6.51 ± 0.08B	6.62 ± 0.04C	6.78 ± 0.03C	6.69 ± 0.03C
	SB	4.57 ± 0.03E	5.02 ± 0.06F	5.56 ± 0.08D	6.08 ± 0.14E	6.40 ± 0.04E	6.43 ± 0.03D
	SE	5.08 ± 0.05D	5.67 ± 0.17E	6.30 ± 0.10C	6.41 ± 0.08D	6.53 ± 0.05D	6.42 ± 0.04D
	SG	6.89 ± 0.03A	7.00 ± 0.03A	7.21 ± 0.02A	7.31 ± 0.02B	7.47 ± 0.02B	7.48 ± 0.01B
	SBG	5.16 ± 0.10D	6.64 ± 0.03C	7.19 ± 0.07A	7.46 ± 0.07A	7.67 ± 0.03A	7.68 ± 0.04A
	SEG	6.58 ± 0.04B	6.86 ± 0.05B	7.23 ± 0.04A	7.38 ± 0.07AB	7.53 ± 0.07B	7.46 ± 0.10B

1) CK: 土壤 + DDT; SB: 土壤 + DDT + 正丁酸; SE: 土壤 + DDT + 乙醇; SG: 土壤 + DDT + 针铁矿; SBG: 土壤 + DDT + 正丁酸 + 针铁矿; SEG: 土壤 + DDT + 乙醇 + 针铁矿,下同; 同一列数据后不同字母表示在 0.05 水平有显著差异,小写字母表示土壤 Eh,大写字母表示土壤 pH

2.2 土壤中二价铁含量

表 2 为各处理在整个培养周期内的土壤 Fe(Ⅱ)含量的变化动态. 可以看出,在培养的前 5 周,添加电子供体基质正丁酸均显著降低土壤 Fe(Ⅱ)含量($P<0.05$),主要原因可能是添加正丁酸导致土壤 pH 较低 Eh 较高,不利于铁还原菌还原 Fe(Ⅲ)生成 Fe(Ⅱ). 在整个培养周期内,添加乙醇对土壤 Fe(Ⅱ)含量均无显著影响($P>0.05$). 在整个培养过程中,SG、SBG 和 SEG 处理的土壤 Fe(Ⅱ)

含量均显著高于对照,除了在第 1 周时,SEG 处理的土壤 Fe(Ⅱ)含量低于 SG 和 SBG 处理,第 2 周时 SBG 处理的土壤 Fe(Ⅱ)含量高于 SG 和 SEG 处理外,SG、SBG 和 SEG 处理的土壤 Fe(Ⅱ)含量均无显著差异. 该结果表明,添加正丁酸和乙醇并没有明显促进 Fe(Ⅲ)还原生成 Fe(Ⅱ),即正丁酸和乙醇的加入对该反应体系的铁还原菌无显著刺激作用,可能原因是该 2 种电子供体基质导致反应体系的 pH 较低 Eh 较高,不利于铁还原菌生长.

表 2 土壤中Fe(Ⅱ)含量变化动态¹⁾/mmol·kg⁻¹
Table 2 Dynamics of soil Fe(Ⅱ) contents/mmole·kg⁻¹

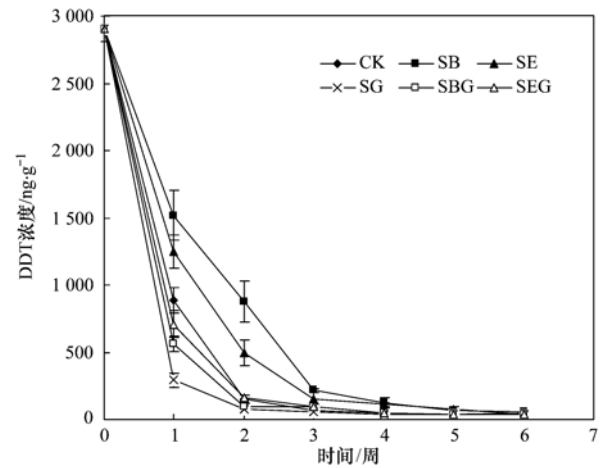
处理	时间(周)					
	1	2	3	4	5	6
CK	26.94 ± 3.47c	41.37 ± 5.27c	39.30 ± 4.89b	45.81 ± 5.71b	45.96 ± 4.59b	51.67 ± 7.78b
SB	3.40 ± 0.07d	22.42 ± 1.58d	29.82 ± 0.67c	29.51 ± 1.64c	37.09 ± 3.51c	47.07 ± 5.71b
SE	24.93 ± 1.70c	38.65 ± 4.82c	37.19 ± 4.04b	39.89 ± 5.32b	42.82 ± 5.72bc	51.41 ± 5.47b
SG	61.02 ± 3.41a	81.30 ± 2.46b	91.89 ± 7.81a	94.17 ± 5.82a	119.57 ± 7.63a	117.17 ± 9.74a
SBG	61.69 ± 2.84a	107.65 ± 5.74a	97.87 ± 8.71a	93.36 ± 6.34a	114.36 ± 10.83a	110.54 ± 6.87a
SEG	43.73 ± 1.47b	81.84 ± 2.86b	91.07 ± 12.63a	92.44 ± 6.31a	118.36 ± 8.57a	107.96 ± 11.31a

1) 同一列数据后不同小写字母表示在 0.05 水平有显著差异

2.3 土壤中 DDT 可提取态残留及其降解产物生成动态

各处理土壤中 DDT 的可提取态残留量随培养时间的变化过程见图 1. 可以看出,各处理土壤中 DDT 可提取态残留整体均呈现先快速减少,再缓慢减少,然后达到平衡的变化趋势. 厌氧培养 6 周后,土壤中 DDT 可提取态残留量仅为初始量的 1.29%~2.01%. 在前 5 周内,SB 和 SE 处理的土壤中 DDT 可提取态残留量显著高于对照,而且在前 3 周内,SB 处理的土壤中 DDT 可提取态残留量显著高于 SE 处理($P<0.05$). 在培养的最后 1 周,SB 和 SE 处理的土壤中 DDT 可提取态残留量与对照相比无显著差异($P>0.05$). 在前 2 周,SG 和 SBG 处理的土壤中 DDT 可提取态残留均显著低于对照,而在第 3~6 周,SG 和 SBG 处理的土壤中 DDT 可提取态残留与对照相比无显著差异($P>0.05$). 在整个培养过程中,SEG 处理的土壤中 DDT 可提取态残留与对照相比均无显著差异($P>0.05$).

本实验检测到 DDT 主要脱氯降解产物为 DDD,而 DDE、DDMU 和 DPB 的量很少,故不作分析. 厌氧培养 6 周后,生成 DDD 量为 782.7~992.4 ng·g⁻¹,占 DDT 初始量的 26.9%~34.2%. 由于淹水条件下 DDT 及其降解产物的挥发量很少^[7,19],所以一部分 DDT 及其降解产物与土壤形成不可提取态的结合残留. 研究表明,土壤中的非水溶性大分



CK: 土壤 + DDT; SB: 土壤 + DDT + 正丁酸; SE: 土壤 + DDT + 乙醇; SG: 土壤 + DDT + 针铁矿; SBG: 土壤 + DDT + 正丁酸 + 针铁矿; SEG: 土壤 + DDT + 乙醇 + 针铁矿,下同
图 1 各处理土壤中 DDT 可提取态残留量随培养时间的变化过程
Fig. 1 Time course of extractable DDT residues for different treatments in soil

子有机质能够吸持土壤中的有机污染物,使其与土壤形成结合残留,降低 DDT 的可提取性,而小分子的可溶性有机碳(DOC)能够增加 DDT 在土壤溶液中的溶解性,从而增加土壤中 DDT 的可提取性^[20]. 本研究的供试土壤有机质含量为 3.5%,可溶性有机碳含量仅为 40.2 mg·kg⁻¹,因此,土壤中大量的非水溶性有机质能够吸附结合 DDT 而使其可提取性大大降低.

各处理土壤中 DDD 生成动态见图 2. 可以看出,在培养的前 3 周,添加正丁酸使土壤中 DDD 生成量显著低于对照 ($P < 0.05$),而后 SB 处理的土壤中 DDD 含量与对照相比无显著差异 ($P > 0.05$). 表明添加正丁酸在培养前期抑制 DDT 还原脱氯降解,主要因为红壤性水稻土为酸性土壤 ($\text{pH} = 5.1$),正丁酸的添加更降低了土壤 pH (表 1),而还原脱氯的最佳 pH 条件为弱碱性^[19, 21],而且由于低 pH 条件不利于土壤中还原反应的进行,导致培养前期 SB 处理的土壤还原性减弱 (表 1),还原性 Fe(II) 含量较低 (表 2),进而不利于此时 DDT 还原脱氯降解. 本研究表明,土壤 pH 和 Eh 是影响还原脱氯反应的关键因素. 在培养的第 1 周,添加乙醇使土壤 DDD 含量显著低于对照 ($P < 0.05$),在第 2~4 周时,SE 处理的土壤 DDD 含量与对照相比无显著差异 ($P > 0.05$),而在最后 2 周,SE 处理的土壤 DDD 含量显著高于对照 ($P < 0.05$). 主要原因可能是在培养前期乙醇发酵过程中羧键比较容易断裂,释放的 H^+ 使土壤 pH 降低,低 pH 条件不利于土壤中还原反应的进行,导致第 1 周时土壤 Eh 较高 (表 1),进而不利于此时 DDT 还原脱氯反应生成 DDD,然后随着土壤 pH 升高和 Eh 降低,SE 处理的 DDD 生成速率逐渐增加,第 4 周之后,SE 处理的 DDD 生成量显著高于对照. 本研究表明,乙醇作为电子供体基质能够促进 DDT 还原脱氯. 在整个培养过程中,SG、SBG 和 SEG 处理的土壤中 DDD 的生成量均显著高于对照 ($P < 0.05$),对应于 SG、SBG 和 SEG 处理的土壤中 Fe(II) 含量也较高. 主要原因是厌氧条件下土壤中的铁还原菌能够使 Fe(III) 还原成 Fe(II),Fe(II) 作为电子供体将电子传递给氯代有机物,同时自身失电子后又转化为 Fe(III),而氯代有机物得到电子脱去一个氯取代基完成还原脱氯过程,即铁氧化物对还原脱氯起催化作用^[22, 23]. 而且 SG、SBG 和 SEG 处理的土壤 Eh 也较低 (表 1),所以有利于 DDT 还原脱氯降解.

比较图 1、2 和表 2 可以看出,在培养的前 2 周,土壤 Fe(II) 含量越高的处理 DDT 还原脱氯生成 DDD 的速率越快,表明 Fe(II) 作为还原剂能够为 DDT 还原脱氯提供电子. 然后随着大部分 DDT 脱氯转化为 DDD 之后,由于 DDD 很难继续脱氯降解,即使 Fe(II) 含量继续增加,DDT 脱氯速率也不再有明显增加.

方差分析显示,正丁酸和铁氧化物对 DDT 还原脱氯无显著交互作用 ($P > 0.05$),而乙醇和铁氧化

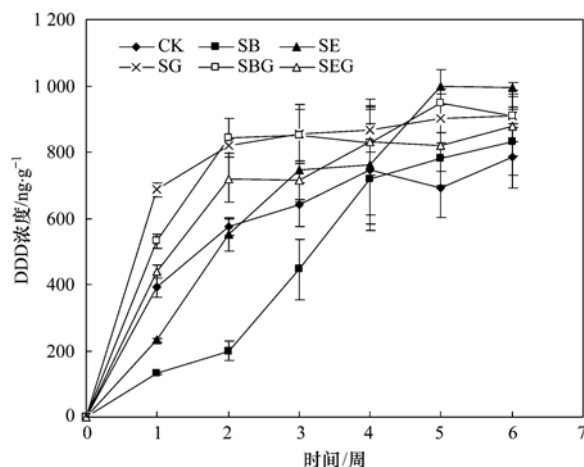


图 2 各处理土壤中 DDT 主要还原脱氯产物 DDD 生成动态

Fig. 2 Dynamics of DDD productions for different treatments in soil

物对 DDT 还原脱氯存在显著交互作用 ($P < 0.05$),单添加乙醇或铁氧化物时对促进 DDT 还原脱氯的效果均大于两者同时添加的效果,表明乙醇和铁氧化物对 DDT 还原脱氯具有拮抗作用. 主要原因可能是 Fe(III) 在还原生成 Fe(II) 的过程中作为电子受体与 DDT 还原脱氯竞争电子. 由于还原脱氯所需的 H_2 分压小于 Fe(III) 还原所需的 H_2 分压^[24~26],而丁酸发酵生成 H_2 的分压小于乙醇^[27],因此,丁酸作为缓释 H_2 电子供体基质有利于避免 Fe(III) 还原与 DDT 还原脱氯竞争电子.

2.4 CH_4 和 CO_2 生成与 DDT 脱氯降解的关系

本研究以 CH_4 和 CO_2 的生成动态反映土壤微生物活性和有机碳转化速率,培养过程中土壤表层 CH_4 和 CO_2 浓度的变化如图 3 所示. 可以看出,所有处理的 CH_4 和 CO_2 释放量均呈先增加后下降的趋势. 对照和 SEG 处理的 CH_4 生成量在第 3 周时最大,分别为 $26.9 \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ 和 $35.4 \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$; SE 和 SBG 处理的 CH_4 生成量均在第 4 周时最大,分别为 $110.0 \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ 和 $17.6 \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$; 而 SB 和 SG 处理的 CH_4 生成量均在第 5 周时最大,分别为 $159.6 \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ 和 $1.0 \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$. 对照、SG、SBG 和 SEG 处理的 CO_2 生成量均在第 3 周时最大,分别为 86.9 、 42.8 、 49.6 和 $78.0 \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$; SE 和 SB 处理的 CO_2 生成量分别在第 4 和第 5 周时最大,分别为 $127.4 \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ 和 $139.5 \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$. 可见外加电子供体基质正丁酸和乙醇均显著增加了 CH_4 和 CO_2 生成量,而添加铁氧化物显著抑制 CH_4 和 CO_2 生成 ($P < 0.05$). SBG 处理的 CH_4 和 CO_2 生成量显著低于 SB 处理,SEG 处理的 CH_4 和 CO_2 生成量也显著低于 SE 处理,SBG 和 SEG 处理的 CH_4 和 CO_2 生成量均显著高

于 SG 处理 ($P < 0.05$). 表明添加电子供体基质增强土壤微生物活性, 而添加铁氧化物抑制土壤微生物活性.

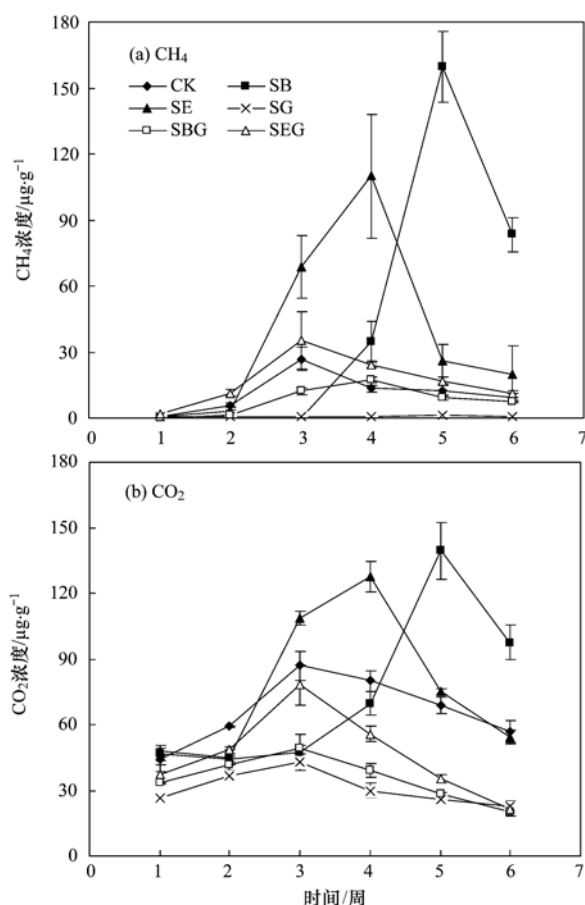


图3 各处理土壤中CH₄和CO₂生成动态

Fig. 3 Dynamics of CH₄ and CO₂ productions for different treatments in soil

比较图1~3可以看出,在前2周CH₄和CO₂量很少时,CK、SG、SBG和SEG处理的DDT降解速率却最快;SB处理的DDT在第2~4周时降解最快,而CH₄和CO₂生成在第5周时最大;SE处理的DDT在第1~3周时降解最快,而CH₄和CO₂生成在第4周时最大;而且添加电子供体基质生成CH₄和CO₂量明显增加,而DDT降解速率并未显著增大;添加铁氧化物生成CH₄和CO₂量明显减少,而DDT降解速率却增大.说明CH₄和CO₂的生成与DDT还原脱氯无严格的亦步亦趋关系.可能因为碳源在分解生成CH₄和CO₂的过程中,既作为电子受体也向体系释放电子并且提高了微生物活性,是一个复杂的过程,而且土壤本身是一个复杂的体系,还原脱氯还受土壤中微生物的类型和土壤的理化性质等多种因素的影响^[18, 28].电子供体基质的添加虽

增强了土壤微生物活性,但未促进DDT还原脱氯,表明限制DDT还原脱氯的主要因素是还原性Fe(II)的含量,而不是土壤微生物.

3 结论

(1)厌氧条件下,DDT脱氯降解主要生成DDD.加入正丁酸导致体系pH降低Eh增加,并且降低还原性Fe(II)含量,进而不利于DDT还原脱氯降解;加入乙醇在培养前期使体系pH降低Eh增加,抑制DDT还原脱氯;添加铁氧化物或者同时添加铁氧化物和电子供体基质均使体系pH增加Eh降低,并且增加土壤Fe(II)含量,从而促进DDT还原脱氯降解.

(2)正丁酸和铁氧化物对DDT还原脱氯无显著交互作用,而单添加乙醇或铁氧化物时对促进DDT还原脱氯的效果均大于两者同时添加的效果.

(3)所有处理的CH₄和CO₂生成量整体呈现先增加后下降的趋势,CH₄和CO₂的生成与DDT还原脱氯降解无严格亦步亦趋的关系.

参考文献:

- [1] UNEP. 关于持久性有机污染物的斯德哥尔摩公约 [DB/OL]. http://www.pops.int/documents/convtext/convtext_ch.pdf, 2001-2005.
- [2] 魏中青, 刘丛强, 梁小兵, 等. 贵州红枫湖地区水稻土多氯联苯和有机氯农药的残留[J]. 环境科学, 2007, 28(2): 255-260.
- [3] 余世清, 唐伟, 卢滨. 某农药厂废弃场地六六六和滴滴涕污染分布特征及风险评价[J]. 环境科学, 2011, 32(9): 2646-2653.
- [4] 洪青, 蒋新, 李顺鹏. 微生物降解DDT研究进展[J]. 土壤, 2008, 40(3): 329-334.
- [5] Tsui L, Fan C, Chung Y, et al. Reductive dechlorination of tetrachloroethene by two compost samples with different maturity [J]. Bioresource Technology, 2011, 102(22): 10498-10504.
- [6] 刘翠英, 余贵芬, 蒋新. 土壤和沉积物中多氯代有机化合物厌氧降解研究进展[J]. 生态学报, 2007, 27(8): 3482-3488.
- [7] Brahushi F, Dörfler U, Schroll R, et al. Stimulation of reductive dechlorination of hexachlorobenzene in soil by inducing the native microbial activity [J]. Chemosphere, 2004, 55(11): 1477-1484.
- [8] 胡海珠, 毛晓敏. 地下水高浓度三氯乙烯厌氧生物降解的进展[J]. 科技导报, 2010, 28(21): 112-117.
- [9] 李芳柏, 王旭刚, 周顺桂, 等. 红壤胶体铁氧化物界面有机氯的非生物转化研究进展[J]. 生态环境, 2006, 15(5): 1343-1351.
- [10] Cao F, Liu T X, Wu C Y, et al. Enhanced biotransformation of DDTs by an iron- and humic-reducing bacteria *Aeromonas hydrophila* HS01 upon addition of goethite and anthraquinone-2,

- 6-disulphonic disodium salt(AQDS)[J]. *Journal of Agricultural and Food Chemistry*, 2012, **60**(45): 11238-11244.
- [11] 陈曼佳, 刘承帅, 吴伟坚, 等. 外加营养源作用下砖红壤中五氯酚还原转化的生物化学作用机制[J]. *生态环境学报*, 2013, **22**(2): 325-329.
- [12] Fredrickson J K, Zachara J M, Kennedy D W, *et al.* Biogenic iron mineralization accompanying the dissimilatory reduction of hydrous ferric oxide by a groundwater bacterium[J]. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 1998, **62**(19-20): 3239-3257.
- [13] Li X M, Li Y T, Li F B, *et al.* Interactively interfacial reaction of iron-reducing bacterium and goethite for reductive dechlorination of chlorinated organic compounds[J]. *Chinese Science Bulletin*, 2009, **54**(16): 2800-2804.
- [14] Li F B, Li X M, Zhou S G, *et al.* Enhanced reductive dechlorination of DDT in an anaerobic system of dissimilatory iron-reducing bacteria and iron oxide[J]. *Environmental Pollution*, 2010, **158**(5): 1733-1740.
- [15] Wei N, Finneran K T. Influence of ferric iron on complete dechlorination of trichloroethylene (TCE) to ethene; Fe(III) reduction does not always inhibit complete dechlorination[J]. *Environmental Science and Technology*, 2011, **45**(17): 7422-7430.
- [16] 鲁如坤. 土壤农业化学分析方法[M]. 北京: 中国农业科技出版社, 2000.
- [17] Chen M J, Cao F, Li F B, *et al.* Anaerobic Transformation of DDT related to iron(III) reduction and microbial community structure in paddy soils[J]. *Journal of Agricultural and Food Chemistry*, 2013, **61**(9): 2224-2233.
- [18] 刘翠英, 余贵芬, 蒋新, 等. 小分子有机碳对土壤中六氯苯厌氧降解及挥发的影响[J]. *环境科学*, 2008, **29**(5): 1418-1424.
- [19] Liu C Y, Jiang X, Wang F, *et al.* Hexachlorobenzene dechlorination as affected by nitrogen application in acidic paddy soil[J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2010, **179**(1-3): 709-714.
- [20] Sposito G, Martin-Neto L, Yang A. Atrazine complication by soil humic acids[J]. *Journal of Environmental Quality*, 1996, **25**: 1203-1209.
- [21] Chang B V, Zheng J X, Yuan S Y. Effects of alternative electron donors, acceptors and inhibitors on pentachlorophenol dechlorination in soil[J]. *Chemosphere*, 1996, **33**(2): 313-320.
- [22] Li F B, Wang X G, Li Y T, *et al.* Enhancement of the reductive transformation of pentachlorophenol by polycarboxylic acids at the iron oxide-water interface[J]. *Journal of Colloid and Interface Science*, 2008, **321**(2): 332-341.
- [23] 陶亮, 周顺桂, 李芳柏. 土壤有机氯脱氯转化的界面交互反应[J]. *化学进展*, 2009, **21**(4): 791-800.
- [24] Smatlak C R, Gossett J M, Zinder S H. Comparative kinetics of hydrogen utilization for reductive dechlorination of tetrachloroethene and methanogenesis in an anaerobic enrichment culture[J]. *Environmental Science and Technology*, 1996, **30**(9): 2850-2858.
- [25] Yu S, Semprini L. Comparison of trichloroethylene reductive dehalogenation by microbial communities stimulated on silicon-based organic compounds as slow-release anaerobic substrates[J]. *Water Research*, 2002, **36**(20): 4985-4996.
- [26] Yu S, Semprini L. Enhanced reductive dechlorination of PCE DNAPL with TBOS as a slow-release electron donor[J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2009, **167**(1-3): 97-104.
- [27] Fennell D E, Gossett J M, Zinder S H. Comparison of butyric acid, ethanol, lactic acid, and propionic acid as hydrogen donors for the reductive dechlorination of tetrachloroethene[J]. *Environmental Science and Technology*, 1997, **31**(3): 918-926.
- [28] Liu C Y, Jiang X, Yang X L, *et al.* Hexachlorobenzene dechlorination as affected by organic fertilizer and urea applications in two rice planted paddy soils in a pot experiment[J]. *Science of the Total Environment*, 2010, **408**(4): 958-964.

CONTENTS

Variation Characteristics of Surface Ozone and Its Precursors During Summertime in Nanjing Northern Suburb	SHAO Ping, AN Jun-lin, YANG Hui, <i>et al.</i> (4031)
Distribution Characteristics of Pollution Gases and Water Soluble Ion in Aerosol During the Asian Youth Games of Nanjing, China	ZOU Jia-nan, AN Jun-lin, WANG Hong-lei, <i>et al.</i> (4044)
Aerosol Concentration Variation in Nanjing During Asian Youth Games and the Relationship Between Aerosol Concentration and Visibility	YUAN Liang, YIN Yan, LI Qi, <i>et al.</i> (4052)
Characteristic Analysis of a Multi-day Pollution Event in Chang-Zhu-Tan Metropolitan Area During October 2013	LIAO Zhi-heng, FAN Shao-jia, HUANG Juan, <i>et al.</i> (4061)
Application of On-line Single Particle Aerosol Mass Spectrometry (SPAMS) for Studying Major Components in Fine Particulate Matter	FU Huai-yu, YAN Cai-qing, ZHENG Mei, <i>et al.</i> (4070)
Establishment and Application of Replaceable Source Profiles of PM ₁₀	CHEN Qiang, JING Yi, WU Huan-bo, <i>et al.</i> (4078)
Distribution, Flux and Biological Consumption of Carbon Monoxide in the East China Sea and the South Yellow Sea in Summer	WANG Jing, LU Xiao-lan, YANG Gui-peng, <i>et al.</i> (4085)
Spatial and Temporal Distribution of Mercury in Water of a Small Typical Agricultural Watershed in the Three Gorges Reservoir Region	WANG Ya, ZHAO Zheng, MU Zhi-jian, <i>et al.</i> (4095)
Fluorescence Characteristics of Fractionated Colloidal Organic Matter in Freshwater from Hunhe and Taizihe Watersheds	LIU Na-na, LI Bin, LIU Rui-xia, <i>et al.</i> (4103)
Variations of Annual Load of TN and TP in the Deep Bay Watershed, Shenzhen	ZHAO Chen-chen, ZHANG Shi-yan, MAO Xian-zhong (4111)
Characteristics and Bioavailability of Organic Phosphorus from Different Sources of Sediments in Dianchi Lake	XIONG Qiang, JIAO Li-xing, WANG Sheng-rui, <i>et al.</i> (4118)
Heavy Metals Distribution Characteristics and Ecological Risk Evaluation in Surface Sediments of Dammed Jinshan Lake	ZHOU Xiao-hong, LIU Long-mei, CHEN Xi, <i>et al.</i> (4127)
Vertical Distribution Pattern and Ecological Risk Assessment of Heavy Metals in a Sediment Core from Pumoyum Co, Tibet	XIE Ting, LUO Dong-xia, YANG Rui-qiang (4135)
Heavy Metals Pollution and Analysis of Seasonal Variation Runoff in Xi'an	YUAN Hong-lin, LI Xing-yu, WANG Xiao-chang (4143)
Distribution and Source Apportionment of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons (PAHs) in Urban Rainfall Runoff	WU Zi-lan, YANG Yi, LIU Min, <i>et al.</i> (4148)
Influence of the Substrate Composition in Extensive Green Roof on the Effluent Quality	CHEN Yu-lin, LI Tian, GU Jun-qing (4157)
Investigation of the Microbial Diversity and Structure of Biological Activated Carbon from Different Sources in Drinking Water Treatment Process	DU Er-deng, ZHENG Lu, FENG Xin-xin, <i>et al.</i> (4163)
Microcystin Safety Study During <i>Cyanobacteria</i> Removal by Pressure Enhanced Coagulation Process	JIANG Xin-yue, LUAN Qing, CONG Hai-bing, <i>et al.</i> (4171)
Membrane Fouling Based on Change of Membrane Characteristic Parameters During Ultrafiltration of Protein	WANG Xu-dong, ZHANG Yin-hui, WANG Lei, <i>et al.</i> (4176)
Impact Factors and Degradation Mechanism for the Ozonation of Acetaminophen in Aqueous Solution	CAO Fei, YUAN Shou-jun, ZHANG Meng-tao, <i>et al.</i> (4185)
Degradation of Benzothiazole in Electro-Assisted Microbial Reactor	LIU Chun-miao, DING Jie, LIU Xian-shu, <i>et al.</i> (4192)
Preparation and Evaluation of Fe-La Composite Oxide Nanoabsorbent for As(III) Removal from Aqueous Solutions	ZHANG Wei, CHEN Jing, ZHANG Gao-sheng (4198)
Physiological Responses of Tubificidae to Heavy Metal Chromium Stress	LOU Ju-qing, YANG Dong-ye, CAO Yong-qing, <i>et al.</i> (4205)
Effects of Light Quality on the Growth Characteristics and Biochemical Component of <i>Chlorella pyrenoidosa</i>	TANG Qing-qing, FANG Zhi-guo, JI Wen-wen, <i>et al.</i> (4212)
Influence of Alkalinity and DO on ANAMMOX Bioreactor at Normal Temperature and Low Substrate Concentration	REN Yu-hui, WANG Ke, LI Xiang-kun, <i>et al.</i> (4218)
Effect of Fe ²⁺ and Fe ³⁺ on the Activity of ANAMMOX	LI Xiang, HUANG Yong, WU Chuan, <i>et al.</i> (4224)
Research on Change Process of Nitrosation Granular Sludge in Continuous Stirred-Tank Reactor	YIN Fang-fang, LIU Wen-ru, WANG Jian-fang, <i>et al.</i> (4230)
Effects of Salinity on N ₂ O Production During Nitrification Using Aerobic Granular Sludge	WANG Shan-shan, LIANG Hong, GAO Da-wen (4237)
Analysis of Microbial Community Variation in the Domestication Process of Sludge in a Sulfate-reducing Reactor	ZENG Guo-qu, JIA Xiao-shan, ZHENG Xiao-hong, <i>et al.</i> (4244)
Quantifying the Influence of Different Matrices on Pb Accumulation in the Soil from Nanjing and Suspended Matter from the Lower of the Yangtze River with Pb Isotopic Technique	WANG Cheng, XIA Xue-qi, ZHANG Yi, <i>et al.</i> (4251)
Contamination Characteristics of Fluoroquinolones in Different Kinds of Soil Profiles in Southeast Suburb of Beijing	SU Si-hui, HE Jiang-tao, YANG Lei, <i>et al.</i> (4257)
Effect of Environmental Factors on the Formation of Several Typical Tetracycline Resistance Genes in Soil	ZHANG Jun, LUO Fang-yuan, XIONG Hao-hui, <i>et al.</i> (4267)
Response of Nitrification/Denitrification and Their Associated Microbes to Soil Moisture Change in Paddy Soil	LIU Ruo-xuan, HE Ji-zheng, ZHANG Li-mei (4275)
Microbial Community Abundance and Diversity in Typical Karst Ecosystem to Indicate Soil Carbon Cycle	JIN Zhen-jiang, TANG Hua-feng, LI Min, <i>et al.</i> (4284)
Effects of Variable Temperature on Organic Carbon Mineralization in Typical Limestone Soils	WANG Lian-ge, GAO Yan-hong, DING Chang-huan, <i>et al.</i> (4291)
Influence of the Interaction Between Iron Oxide and Electron Donor Substances on 1,1,1-Trichloro-2,2-bis(<i>p</i> -chlorophenyl)ethane (DDT) Reductive Dechlorination in Hydragic Acrisols	LIU Cui-ying, XU Xiang-hua, WANG Zhuang, <i>et al.</i> (4298)
Continuous Remediation of Heavy Metal Contaminated Soil by Co-Cropping System Enhanced with Chelator	WEI Ze-bin, GUO Xiao-fang, WU Qi-tang, <i>et al.</i> (4305)
Spatial Heterogeneity of Soil Respiration in a Subalpine Meadow at Different Sampling Scales	LI Hong-jian, GAO Yu-feng, YAN Jun-xia, <i>et al.</i> (4313)
Study on Regularity of Greenhouse Gas Emissions from Black Soil with Different Reclamation Years	LI Ping, LANG Man, XU Xiang-hua, <i>et al.</i> (4321)
Comparison Between Transgenic Insect-Resistant Cotton Expressing CryI _{Ac} Protein and Its Parental Variety in Rhizospheric Fungal Diversity	PAN Jian-gang, JIAO Hai-hua, BAI Zhi-hui, <i>et al.</i> (4329)
Concentrations of Mercury in Ambient Air in Wastewater Irrigated Area of Tianjin City and Its Accumulation in Leafy Vegetables	ZHENG Shun-an, HAN Yun-lei, ZHENG Xiang-qun (4338)
Combined Effects of 1-Nitropyrene and 1,2-Naphthoquinone on Cytotoxicity and DNA Damage in A549 Cells	SHANG Yu, JIANG Yu-ting, ZHANG Ling, <i>et al.</i> (4345)
Influence of Organic Matter Evolution During Composting on the Bioavailability of Heavy Metals	BU Gui-jun, YU Jing, DI Hui-hui, <i>et al.</i> (4352)
Carbonization of Heavy Metal Cu Implanted Sewage Sludge and Stability of Heavy Metal in the Resulting Char	DOU Xiao-min, CHEN De-zhen, DAI Xiao-hu (4359)
Technological Characteristics of Bioreactor Landfill with Aeration in the Upper Layer	TIAN Ying, WANG Shen, XU Qi-yong (4365)
Impact of Nitrate Continuous Injection on N ₂ O Releases from Bioreactor Landfill	BIAN Rong-xing, SUN Ying-jie, LI Jing-jing, <i>et al.</i> (4371)
Research on Contribution Decomposition by Industry to China's Carbon Intensity Reduction and Carbon Emission Growth	JIANG Jing-jing, YE Bin, JI Jun-ping, <i>et al.</i> (4378)
Shifting Path of Industrial Pollution Gravity Centers and Its Driving Mechanism in Pan-Yangtze River Delta	ZHAO Hai-xia, JIANG Xiao-wei, CUI Jian-xin (4387)
Method for Environmental Management in Paper Industry Based on Pollution Control Technology Simulation	ZHANG Xue-ying, WEN Zong-guo (4395)
Research Progress and Direction of Atmospheric Brown Carbon	YAN Cai-qing, ZHENG Mei, ZHANG Yuan-hang (4404)

《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)

2014年11月15日 第35卷 第11期

ENVIRONMENTAL SCIENCE

(Monthly Started in 1976)

Vol. 35 No. 11 Nov. 15, 2014

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