

方知库
Eco-Environmental
Knowledge Web

环境科学

ENVIRONMENTAL SCIENCE

ISSN 0250-3301 CODEN HCKHDV

HUANJING KEXUE

■ 主办 中国科学院生态环境研究中心

■ 出版 科学出版社



2019

Vol.40 No.6

第40卷 第6期

目次

北京城区大气金属元素干湿沉降特征	张国忠, 潘月鹏, 田世丽, 王永宏, 熊秋林, 李广, 顾梦娜, 吕雪梅, 倪雪, 何月欣, 黄威, 刘博文, 王跃思 (2493)
北京城郊 PM _{2.5} 中金属元素的污染特征及潜在生态风险评价	徐静, 李杏茹, 张兰, 陈曦, 杨阳, 刘永桥, 赵清 (2501)
上海城区二次气溶胶的形成: 光化学氧化与液相反应对二次气溶胶形成的影响	高杰, 乔利平, 楼晟荣, 严茹莎, 周敏, 刘瑜存, 冯加良, 黄丹丹 (2510)
天津市 2017 年重污染过程二次无机化学污染特征分析	徐虹, 肖致美, 陈魁, 李立伟, 杨宁, 高璟赞, 李源, 孔君, 毕温凯, 邓小文 (2519)
典型非金属矿物制造工艺过程源成分谱特征	赵雪艳, 于高峰, 王信梧, 张向炎, 殷宝辉, 刘盈盈, 王歆华, 杨文, 赵若杰 (2526)
垃圾焚烧厂排放颗粒物组分粒径分布特征	余卓君, 吴建会, 张裕芬, 张进生, 冯银厂, 李蒲 (2533)
天津市春季样方法道路扬尘碳组分特征及来源分析	马妍, 姬亚芹, 国纪良, 赵静琦, 李越洋, 王士宝, 张蕾 (2540)
霾天气下城市气溶胶吸湿性的观测	杨素英, 田芷洁, 张铁凝, 于兴娜, 李艳伟, 安俊琳, 赵秀勇, 李岩, 王梓航, 吴尚 (2546)
宁东能源化工基地大气 PM _{2.5} 中硝基多环芳烃污染特征及呼吸暴露风险	刘攀亮, 剧媛丽, 毛潇萱, 黄韬, 高宏, 马建民 (2556)
2014 ~ 2016 年间郑州市控制 PM ₁₀ 和 PM _{2.5} 污染的健康效益评估	韩士杰, 王佳, 燕启社, 杨留明, 赵庆炎, 王申博, 李晨, 张轶舜, 张瑞芹 (2565)
1990 ~ 2017 年中国地区气溶胶光学厚度的时空分布及其主要影响类型	刘莹, 林爱文, 覃文敏, 何利杰, 李霄 (2572)
北京春季一次霾-沙天气污染特性与成因分析	王耀庭, 李青春, 郑祚芳, 窦有俊 (2582)
江苏省内河船舶大气污染物排放清单及特征	徐文文, 殷承启, 许雪记, 张玮 (2595)
亚热带稻区大气 NO ₂ 、HNO ₃ 及硝态氮污染特征及干湿沉降	欧阳秀琴, 王波, 沈健林, 朱潇, 王杰飞, 李勇, 吴金水 (2607)
长江源区降水氢氧稳定同位素特征及水汽来源	汪少勇, 王巧丽, 吴锦奎, 何晓波, 丁永建, 王利辉, 胡召富 (2615)
基于高山湖泊沉积记录的贵州北部大气重金属污染历史重建	梁梦瑶, 刘恩峰, 张恩楼, 纪明, 李小林 (2624)
青岛 4 个海水浴场微塑料的分布特征	罗雅丹, 林千惠, 贾芳丽, 徐功娣, 李锋民 (2631)
鄱阳湖湿地候鸟栖息地微塑料污染特征	刘淑丽, 简敏菲, 周隆胤, 李文华, 吴希恩, 饶丹 (2639)
三峡库区消落带土壤溶解性有机质溯源: 基于氮/碳比值的线性双端元源负荷分析	江韬, Joeri Kaal, 梁俭, 刘江, 张耀玲, 王定勇, 魏世强, 赵铮 (2647)
水生生物光合作用对雪玉洞岩溶水体中 CDOM 的影响	范佳鑫, 蒋勇军, 贺秋芳, 王家楠, 何瑞亮, 张彩云, 马丽娜, 汪啟容 (2657)
水化学和环境同位素对济南东源饮用水源地地下水演化过程的指示	张雅, 苏春利, 马燕华, 刘伟江 (2667)
崇左响水地区地下水水质分析及健康风险评价	周巾枚, 蒋忠诚, 徐光黎, 覃小群, 黄奇波, 张连凯 (2675)
云南荞麦地流域地下水水化学特征及物质来源分析	张勇, 郭纯青, 朱彦光, 于爽 (2686)
鄱阳湖流域多尺度 C、N 输送通量及其水质参数变化特征	陆瑶, 高扬, 贾珺杰, 宋贤威, 陈世博, 马明真, 郝卓 (2696)
合流制面源污染传输过程与污染源解析	房金秀, 谢文霞, 朱玉玺, 沈雷, 马玉坤, 李佳, 姜智绘, 李叙勇, 赵洪涛 (2705)
强化浅基质层干植草沟对道路径流的脱氮效果	段进凯, 李田, 张佳炜 (2715)
水源水库暴雨径流过程水体锰的迁移及其影响	邓立凡, 黄廷林, 李楠, 李凯, 吕晓龙, 毛雪静 (2722)
巢湖十五里河沉积物磷吸收潜力及对外源碳的响应	李如忠, 鲍琴, 张瑞钢, 陈慧 (2730)
金盆水库沉积物磷的来源及分布特征	毛雪静, 黄廷林, 李楠, 徐金兰, 苏露, 吕晓龙, 邓立凡 (2738)
水库水体热分层的水质及细菌群落分布特征	王禹冰, 王晓燕, 庞树江, 杨晓明, 刘洋 (2745)
不同水温分层水库沉积物间隙水营养盐垂向分布与细菌群落结构的关系	王慎, 张思思, 许尤, 官卓宇, 杨正健, 刘德富, 马骏 (2753)
表面流人工湿地长期运行后的底泥营养盐累积特征与释放规律	朱伊梦, 姜翠玲, 朱立琴, 杜观超, 高旭, 陈红卫, 李峰东, 张海阔, 张雪, 秦文凯, 李一平 (2764)
针铁矿改性生物炭对砷吸附性能	朱司航, 赵晶晶, 尹英杰, 商建英, 陈冲, 瞿婷 (2773)
改性稻壳生物炭对水溶液中甲基橙的吸附效果与机制	史月月, 单锐, 袁浩然 (2783)
厌氧膜生物反应器处理含盐废水运行效能及膜污染特性	闫欢沙, 许振钰, 金春姬, 邵梦雨, 郭亮, 赵阳国 (2793)
污水处理厂出水有机磷污染特征及强化去除	王小东, 王子文, 陈明飞, 王燕, 王硕, 李激 (2800)
碱度对沸石序批式反应器亚硝化的影响	王瑞鑫, 陈婧, 汪晓军, 胡浩林, Karasuta Chayangkun (2807)
活性污泥物理结构对呼吸过程的影响	郭耀, 李志华, 杨成建, 王慧娟, 李亚明, 姜阳 (2813)
好氧颗粒污泥处理畜禽养殖沼液污染物的特性	廖杰, 叶嘉琦, 曾志超, 刘琳, 徐开钦, 刘超翔 (2821)
快速城市化区河流温室内空气排放的时空特征及驱动因素	刘婷婷, 王晓峰, 袁兴中, 龚小杰, 侯春丽 (2827)
生物炭对潜流人工湿地污染物去除及 NO ₃ 排放影响	邓朝仁, 梁银坤, 黄磊, 方丹丹, 陈玉成, 杜刚 (2840)
曾用抗生素磺胺二甲嘧啶对稻田 N ₂ O 排放的影响及其微生物机制	吴杰, 李志琳, 徐佳迎, 王珏, 蒋静艳 (2847)
不同施氮水平对紫花苜蓿草地土壤呼吸和土壤生化性质的影响	胡伟, 张亚红, 李鹏, 张鹏, 李满友, 尤璟涛, 田水泉 (2858)
典型城市化区域土壤重金属污染的空间特征与风险评价	何博, 赵慧, 王铁宇, 孟晶, 肖荣波, 刘胜然, 周云桥, 史斌 (2869)
西南高锡地质背景区农田土壤与农作物的重金属富集特征	刘意章, 肖唐付, 熊燕, 宁增平, 双燕, 李航, 马良, 陈海燕 (2877)
基于 GIS 和受体模型的枸杞地土壤重金属空间分布特征及来源解析	白一茹, 张兴, 赵云鹏, 王幼奇, 钟艳霞 (2885)
喀斯特地区小尺度农业土壤砷的空间分布及污染评价	汪花, 刘秀明, 刘方, 唐启琳, 王世杰 (2895)
黄土高原不同植被带人工刺槐林土壤团聚体稳定性及其化学计量特征	瞿晴, 徐红伟, 吴旋, 孟敏, 王国梁, 薛蓑 (2904)
秸秆还田配施氮肥对喀斯特农田微生物群落及有机碳矿化的影响	徐学池, 苏以荣, 王桂红, 刘坤平, 胡亚军, 陈香碧, 郑小东, 何寻阳 (2912)
生物炭施用及老化对紫色土中抗生素吸附特征的影响	阴文敏, 关卓, 刘琛, 何杨, 杨飞, 唐翔宇 (2920)
稳定性同位素 DNA-SIP 示踪中性紫色土的氨氧化过程	刘天琳, 王智慧, 闫小娟, 赵永鹏, 贾仲君, 蒋先军 (2930)
纳米银和银离子对土壤中硝化微生物及其氨氧化速率的影响	伍玲丽, 张旭, 舒慧慧, 张丽, 司友斌 (2939)
农田沟道土壤中锰氨氧化 (Mn-ANAMMOX) 过程的探究	陈湜, 李正魁, 覃云斌, 丁帮环, 陈志浩 (2948)
污泥四环素含量对蚯蚓堆肥中氨氧化菌群的影响	吴颖, 黄魁, 夏慧, 陈景阳 (2954)
《环境科学》征订启事 (2929)	《环境科学》征稿简则 (2947)
信息 (2646, 2656, 2857)	

纳米银和银离子对土壤中硝化微生物及其氨氧化速率的影响

伍玲丽, 张旭, 舒昆慧, 张丽, 司友斌*

(安徽农业大学资源与环境学院, 农田生态保育与污染防治安徽省重点实验室, 合肥 230036)

摘要: 为研究纳米银对土壤硝化微生物及其氮转化的影响, 采用土壤培养方式, 对不同剂量纳米银 (10、50、100 mg·kg⁻¹) 和银离子 (1、5、10 mg·kg⁻¹) 暴露下黄棕壤和水稻土硝化细菌数量、土壤酶活性、*amoA* 基因丰度、NH₄⁺-N与NO₃⁻-N含量变化以及土壤潜在氨氧化速率进行研究. 结果表明, 纳米银和银离子暴露后, 2种土壤亚硝酸细菌和硝酸细菌数量显著减少; 土壤酶活性受到抑制, 对脲酶的影响大于过氧化氢酶; 土壤氨氧化细菌(AOB)和氨氧化古菌(AOA)的*amoA*基因丰度均降低, 对AOB基因丰度的影响大于AOA. 在2种土壤中外源添加(NH₄)₂SO₄时, 随着纳米银和银离子暴露剂量增加, 土壤NH₄⁺-N含量累积, NO₃⁻-N含量减少, 氨氧化速率降低, 铵态氮向硝态氮的转化受阻. 综上所述, 纳米银和银离子对土壤硝化微生物产生毒害作用并影响铵态氮转化, 且影响程度与土壤理化性质有关.

关键词: 纳米银; 银离子; 硝化细菌; *amoA* 基因丰度; 氮转化

中图分类号: X172 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2019)06-2939-09 DOI: 10.13227/j. hjkx. 201809222

Effects of Silver Nanoparticles and Silver Ions on Soil Nitrification Microorganisms and Ammonia Oxidation

WU Ling-li, ZHANG Xu, SHU Kun-hui, ZHANG Li, SI You-bin*

(Anhui Province Key Laboratory of Farmland Ecological Conservation and Pollution Prevention, School of Resources and Environment, Anhui Agricultural University, Hefei 230036, China)

Abstract: In order to study the effect of nanosilver on soil nitrification microorganisms and nitrogen transformation, soil culture experiments were carried out. Yellow brown soil and paddy soil were first spiked with different doses of nanosilver (10, 50, 100 mg·kg⁻¹) and silver ions (1, 5, 10 mg·kg⁻¹). Then, the number of nitrifying bacteria, activity of soil invertase, *amoA* gene abundance, NH₄⁺-N content, NO₃⁻-N content, and soil potential ammonia oxidation rate were determined. The results showed that the number of nitrite bacteria and nitrate bacteria decreased significantly when the soils were treated with nanosilver and silver ions. Soil invertases were inhibited, and the effect on urease was greater than that on catalase. The *amoA* gene abundances of soil ammonia-oxidizing bacteria (AOB) and ammonia-oxidizing archaea (AOA) decreased, and the effect on the gene abundance of AOB was greater than that of AOA. When (NH₄)₂SO₄ was added to the soil, nanosilver and silver ion pollutants caused NH₄⁺-N to accumulate, and the contents of NO₃⁻-N were reduced, the rate of ammonia oxidation decreased, and the transformation of ammonium nitrogen to nitrate nitrogen was inhibited. This research suggests that nanosilver and silver ions can have toxic effects on soil nitrification microorganisms and ammonium nitrogen conversion, and the degree of influence was found to be related to the soil physical and chemical properties.

Key words: nanosilver; silver ions; nitrifying bacteria; *amoA* gene abundance; nitrogen transformation

银作为杀菌剂已有 100 多年的历史^[1]. 现阶段随着纳米技术快速发展, 纳米银颗粒 (AgNP) 由于高效、作用持久和不易产生耐药性等优良的抗菌特性, 越来越多的研究人员将其应用于涂层、纺织品、个人护理品、食品包装等方面^[2, 3]. 据统计^[4], 目前全球对 AgNP 的消费高达 300 t·a⁻¹. 预测 AgNP 在土壤中每年可增加 1.2 ~ 2.3 ng·kg⁻¹^[5]. 环境中的 AgNP 颗粒最终通过污水污泥农用、大气沉降、垃圾填埋等方式进入土壤, 对土壤微生物及人类健康产生潜在威胁^[6].

土壤微生物是土壤生态系统重要的组成成分, 推动土壤氮、磷、钾等养分循环^[7]. 土壤氮素转化主要由固氮菌、氨化细菌、硝化细菌 (亚硝酸细菌和硝酸细菌)、反硝化细菌完成. 硝化作用指在微

生物驱动下铵态氮被氧化为硝态氮的过程, 是氮素转化的关键环节^[8]. 首先是氨氧化微生物 (ammonia-oxidizing microorganisms, AOM) 将氨氧化为亚硝态氮, 再由亚硝酸氧化细菌 (nitrite oxidizing bacteria, NOB) 将亚硝态氮氧化为硝态氮. 含有氨单加氧酶 (*amo*) 的氨氧化细菌 (AOB) 和氨氧化古菌 (AOA) 驱动的氨氧化过程又是硝化作用的限速步骤^[9], 氨单加氧酶基因 (*amoA*) 常用作检测环境中氨氧化细菌的标记基因^[10]. AgNP 作为一种有效的杀菌剂, 已有大量研究表明 AgNP 能对氮转化微生

收稿日期: 2018-09-29; 修订日期: 2018-12-13

基金项目: 国家自然科学基金重点项目 (41430752)

作者简介: 伍玲丽 (1994 ~), 女, 硕士研究生, 主要研究方向为土壤微生物生态, E-mail: 1836248629@qq.com

* 通信作者, E-mail: youbinsi@ahau.edu.cn

物产生毒害作用.

AgNP 抗菌机制研究认为 AgNP 主要通过释放 Ag^+ 并诱导产生活性氧 (ROS) 对细菌造成伤害^[11]. 由于土壤环境的复杂性, AgNP 对土壤微生物的毒害作用是源于自身还是释放的 Ag^+ , 一直存在争议. Yuan 等^[12] 将 AgNP 暴露于欧洲亚硝化毛杆菌 (*Nitrosomonas europaea*) 中, 发现 AgNP 会引起 *N. europaea* 细胞壁破坏, 且抑制包括生物合成、能量产生和与硝化作用有关的重要蛋白质的表达. Liang 等^[13] 将 $1\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 的 AgNP 负载于活性污泥中, 反应器中硝化细菌数量显著减少, 硝化作用降低 41%. Hänsch 等^[14] 是第一批研究 AgNP 对土壤微生物及其活动中期影响的课题组之一, 他们观察到随着土壤 AgNP 浓度的增加, 土壤微生物量显著减少、基础呼吸和代谢系数不断增加. 陈铮等^[15] 发现 AgNP 对环境中氨氮的转化具有浓度抑制效应, 随着浓度增加, 氨氧化平均速率逐渐降低, 氨氮转化量减少. He 等^[16] 发现 0.1、1 和 $10\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 浓度下的 AgNP 使土壤硝化潜力、氨氧化细菌的 *amoA* 基因丰度均降低. 目前, 关于 AgNP 对土壤中硝化微生物及氨氧化速率影响机制仍不清楚.

本文针对 AgNP 的环境暴露, 比较了 AgNP (10 、 50 、 $100\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$) 和 Ag^+ (1 、 5 、 10

$\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$) 对土壤硝化细菌数量、土壤酶活性以及氨氧化细菌 (AOB)、氨氧化古菌 (AOA) *amoA* 基因丰度的影响, 并对 AgNP 和 Ag^+ 暴露下土壤 NH_4^+-N 、 NO_3^--N 含量、潜在氨氧化速率进行测定, 以期 AgNP 的土壤微生物效应及对氮循环影响研究提供支持.

1 材料与方法

1.1 实验材料

1.1.1 供试材料

纳米银粉末, 购于南京埃瑞普纳米材料有限公司, 纯度 $\geq 99\%$, 平均粒径 $(50 \pm 5)\text{ nm}$, 比表面积为 $2.5 \sim 15\text{ m}^2\cdot\text{g}^{-1}$, 密度为 $0.25 \sim 0.6\text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$, 表面无包被, 其形态和粒径如图 1 所示. 醋酸银 (CH_3COOAg , 又名乙酸银), 纯度 $\geq 99.5\%$, 密度为 $3.26\text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$, 相对分子质量为 166.91, CAS 号 563-63-3, 购自西亚试剂.

1.1.2 土壤样品采集

土壤均采自安徽合肥, 采样深度为 $0 \sim 20\text{ cm}$. 土样采集后及时拣出可见植物残体、根系及土壤动物, 过 20 目筛备用. 土壤砂粒、黏粒、粉粒测定参见文献[17]的重计法, 土壤阳离子交换量采用乙酸铵法测定, pH 用电位法测定. 土壤理化性质见表 1.

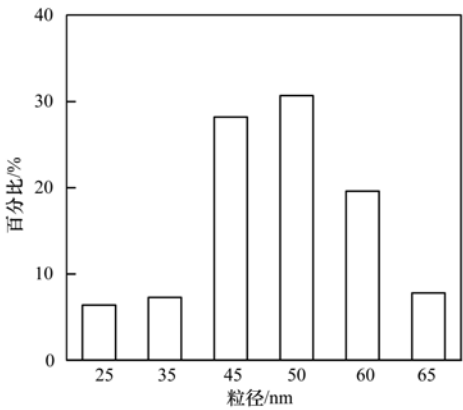
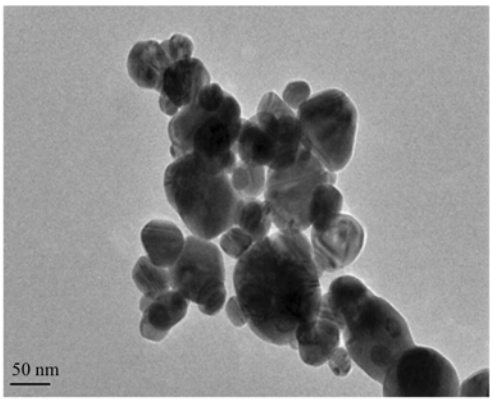


图 1 纳米银 TEM 和粒径分布
Fig. 1 TEM image and distribution of particle sizes of nanosilver

表 1 供试土壤的基本理化性质

Table 1 Basic physical and chemical properties of experimental soil

土壤类型	pH	有机质 / $\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$	CEC / $\text{cmol}\cdot\text{kg}^{-1}$	砂粒/%	粉粒/%	黏粒/%	田间最大 持水量/%
水稻土	8.20	9.65	19.10	5.90	72.70	21.40	44.05
黄棕壤	6.30	15.37	12.40	10.60	58.60	30.80	45.68

1.2 实验设计

先将土壤样品置于 28°C 恒温恒湿培养箱中培养 7 d. 培养结束后, 采用干混法将 AgNP 和 CH_3COOAg 与少量风干土混合均匀后再加入新鲜过筛土壤, AgNP 浓度为 10 、 50 和 $100\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$, Ag^+

剂量是以 $100\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ AgNP 释放的量 (1%) 为基础, CH_3COOAg 浓度设为 1 、 5 和 $10\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$, 每组处理 3 个重复.

1.2.1 土壤硝化细菌数量测定

AgNP 和 Ag^+ 暴露 7 d 后, 采用系列稀释平板

培养法对不同剂量 AgNP 和 Ag⁺ 暴露下土壤样品进行土壤亚硝酸细菌和硝酸细菌的测定^[18]。细菌数量根据最确值表(MPN)计算出每克干土的硝化细菌数。

1.2.2 土壤酶活性测定

AgNP 和 Ag⁺ 暴露 1、7、14 和 28 d 后参见文献^[18]测定土壤酶活性。土壤脲酶测定采用苯酚钠-次氯酸钠比色法,其活性以每克土壤 24 h 酶解尿素产生铵态氮(NH₄⁺-N)的毫克数来表示;过氧化氢酶采用高锰酸钾滴定法测定,其活性以每克土 30 min 分解 H₂O₂ 的毫克数表示。

1.2.3 土壤氨氧化细菌(AOB)、氨氧化古菌(AOA)的 amoA 基因丰度测定

称取 AgNP 和 Ag⁺ 暴露 7 d 的土壤 0.5 g,按照 Fast DNA SPIN Kit for soil 试剂盒进行土壤微生物总 DNA 的提取,用 amoA、Arch-amoA 基因特异引物^[19, 20](表 2)对土壤样品中 AOB、AOA 数量进行定量,定量 PCR 反应体系 20 μL,其中 2 × SYBR Premix Ex Taq TM II 10 μL,上下游引物(10 mol·L⁻¹)各 1 μL, DNA 模板 2 μL, ddH₂O 6 μL. 反应程序见表 2. PCR 标准曲线分别使用 AOA 和 AOB 克隆后的质粒作为模板进行实验。

表 2 实时荧光定量 PCR 扩增引物及反应条件
Table 2 Primers and PCR conditions used in this study

基因类别	引物序列	反应程序
amoA	amoA-1F:GGGGTTTCTACTGCTGGT amoA-2R:CCCCTCKGSAAAGCCTTCTTC	95℃ 3 min, 40 × (95℃ 15 s, 57℃ 20 s, 72℃ 30 s)72℃ 10 min
Arch-amoA	Arch-amoAF:STAATGGTCTGGCTTAGACG Arch-amoAR:GCGGCCATCCATCTGTATGT	95℃3 min, 40 × (95℃ 15 s, 57℃ 20 s, 72℃ 30 s)72℃ 10 min

1.2.4 AgNP 和 Ag⁺ 对土壤铵态氮转化的影响

土壤预培养 7 d 后,按 1 g·kg⁻¹干土的比例在土壤中添加(NH₄)₂SO₄(以 N 计)212 mg·kg⁻¹. 于 1、7、21、28 d 取样测定土壤 NH₄⁺-N、NO₃⁻-N 含量和土壤潜在氨氧化速率. 土壤 NH₄⁺-N 采用靛酚蓝比色法测定^[18], 土壤 NO₃⁻-N 采用酚二磺酸比色法测定^[18], 土壤潜在氨氧化速率的测定采用基质诱导法^[21]。

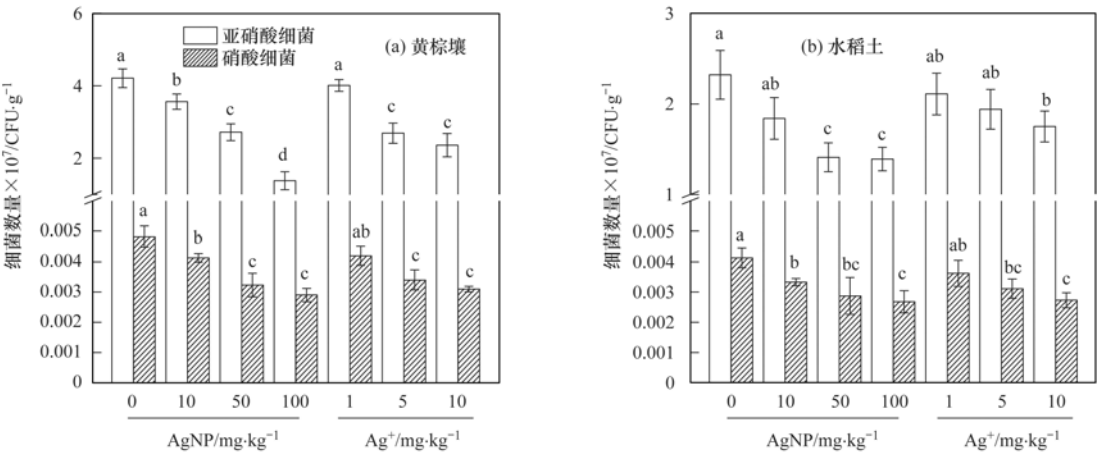
1.3 数据处理与分析

本实验数据采用 SPSS 18.0 进行统计分析,并对不同处理间的数据用单因素方差分析(ANOVA)和 Duncan 多重比较进行显著性差异(P < 0.05)检验,再用 Origin 9.0 绘图。

2 结果与分析

2.1 AgNP 和 Ag⁺ 对土壤硝化细菌数量的影响

硝化细菌包括亚硝酸细菌和硝酸细菌,在土壤氮循环中承担着将铵态氮向硝态氮转化的作用. 不同剂量 AgNP 和 Ag⁺ 暴露 7 d 后,黄棕壤与水稻土硝化细菌数量均不同程度减少(图 2). 10 mg·kg⁻¹ AgNP 处理下黄棕壤亚硝酸细菌和硝酸细菌分别减少 15.44% 和 14.49%, 水稻土亚硝酸细菌和硝酸细菌分别减少 20.56% 和 19.37%. 随着 AgNP 剂量的增加,2 种土壤硝化细菌数量显著降低. 100 mg·kg⁻¹ AgNP 处理下黄棕壤亚硝酸细菌和硝酸细菌分别减少 67.22% 和 39.96%, 水稻土亚硝酸细菌和硝酸细菌分别减少 40.22% 和 35.11%. Ag⁺ 处



图中不同小写字母者为 Duncan 检测下差异显著(P < 0.05), 下同

图 2 不同剂量纳米银和银离子处理土壤硝化细菌数量变化

Fig. 2 Variation of nitro bacteria in soil treated with different contents of AgNP and Ag⁺

理下土壤硝化细菌数量降低幅度小于 AgNP 处理组, $10 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1} \text{Ag}^+$ 处理下黄棕壤亚硝酸细菌和硝酸细菌分别减少 43.94% 和 35.82%, 水稻土亚硝酸细菌和硝酸细菌分别减少 24.44% 和 33.90%。

2.2 AgNP 和 Ag^+ 对土壤酶活性的影响

随着培养时间的延长, 无银对照组中土壤脲酶活性先增加后降低, 过氧化氢酶活性不断降低, AgNP 和 Ag^+ 处理下土壤氮转化酶活性变化如图 3 所示. 培养初期(1 d), AgNP 对土壤脲酶活性影响不大. 培养 7 d 时土壤脲酶活性整体增强, AgNP 开始对脲酶活性产生抑制. 培养 14 d 时不同剂量 AgNP 对土壤脲酶活性的抑制作用最强, 对黄棕壤和水稻土脲酶活性的抑制率分别为 15.79% ~ 38.82% 和 3.01% ~ 49.40%. Ag^+ 毒性在 7 d 后随着时间延长减弱, 其中 $10 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1} \text{Ag}^+$ 对黄棕壤脲酶活性的抑制率从第 7 d 的 43.60% 降到 28 d 的 13.22%, 对水稻土脲酶活性的抑制率从第 7 d 的

55.56% 降到 28 d 的 20.92%。

过氧化氢酶与土壤微生物的活动密切相关, 反映了土壤微生物的活动强度. 整体上过氧化氢酶对 AgNP 的响应比脲酶低, 其活性随着时间延长减弱. 在培养初期(1 d) AgNP 对土壤过氧化氢酶活性影响不大. 随着培养时间的延长, AgNP 的抑制作用略有增强, 但只在高剂量($100 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$)下有变化. $100 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1} \text{AgNP}$ 暴露 7 d 后黄棕壤过氧化氢酶活性降低 13.00%, 14 d 后降低到 21.17% 并维持在这一水平. 不同剂量 Ag^+ 暴露 7 d 对黄棕壤过氧化氢酶的抑制最强, 抑制率为 8.30% ~ 26.71%, 暴露 28 d 后抑制率只有 1.64% ~ 6.15%. 不同剂量 AgNP 和 Ag^+ 对水稻土过氧化氢酶活性几乎没影响。

总体上, AgNP 和 Ag^+ 对土壤脲酶、过氧化氢酶活性均产生了影响, 且影响程度与土壤类型及剂量有关。

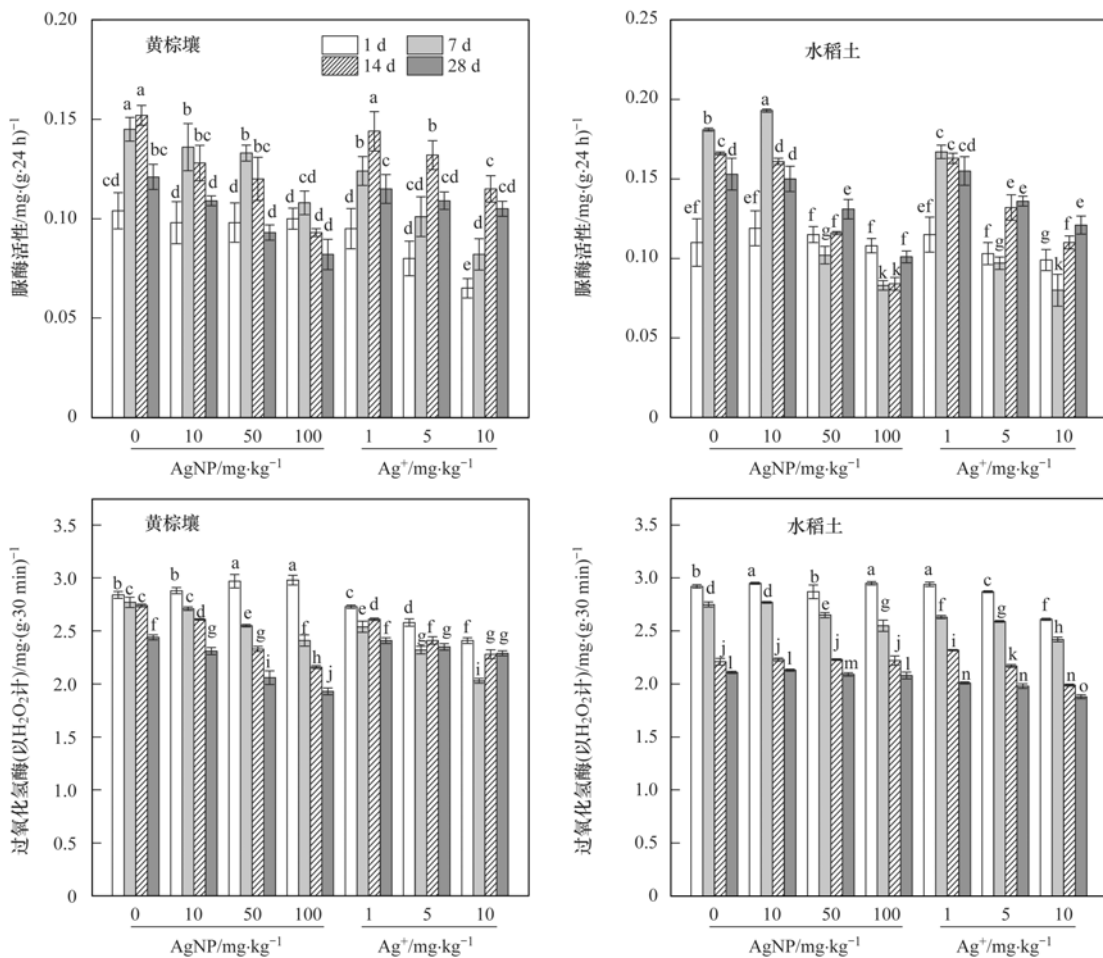


图3 不同剂量纳米银和银离子处理土壤酶活性变化

Fig. 3 Changes of enzyme activity in soil treated with different contents of AgNP and Ag^+

2.3 AgNP 和 Ag^+ 对土壤 AOB、AOA 的 *amoA* 丰度的影响

氨氧化微生物主要由氨氧化细菌 (AOB) 和氨

氧化古菌 (AOA) 组成. 不同剂量 AgNP 和 Ag^+ 暴露 7 d 后黄棕壤和水稻土 AOB、AOA 的 *amoA* 丰度均不同程度降低 (图 4). 黄棕壤 AOB 的 *amoA* 丰度明显

高于水稻土, AOA 的 *amoA* 丰度与水稻土差不多, 这可能与黄棕壤富含有机质, 能为 AOB 提供更好的生长环境有关. 随着 AgNP 暴露剂量的增加, 黄棕壤 AOB 丰度降低 7.27% ~ 58.18%, AOA 丰度降低 4.55% ~ 54.55%, 水稻土 AOB 丰度降低 14.29% ~ 45.71%, AOA 丰度降低 12.00% ~ 36.00%. AgNP 对黄棕壤 AOB 的 *amoA* 丰度的影响大于水稻土, 对 AOB 的影响大于 AOA, 且影响程度与 AgNP 的剂量呈正相关. Ag^+ 对 2 种土壤 AOB、AOA 的 *amoA* 丰度

的影响趋势与 AgNP 相似, 具有明显浓度抑制效应, 但 Ag^+ 对两种土壤 AOB 和 AOA *amoA* 丰度的影响程度比 AgNP 小. $10 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ Ag^+ 处理下, 黄棕壤 AOB 和 AOA 的 *amoA* 丰度分别降低 40.00% 和 22.73%, 水稻土 AOB 和 AOA 的 *amoA* 丰度分别降低 28.57% 和 24.00%. $1 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ Ag^+ 处理下黄棕壤 AOB 的 *amoA* 丰度有轻微的增加, 说明 Ag^+ 对土壤氨氧化微生物的影响与其暴露剂量相关, 只有达到一定的浓度才会产生显著影响.

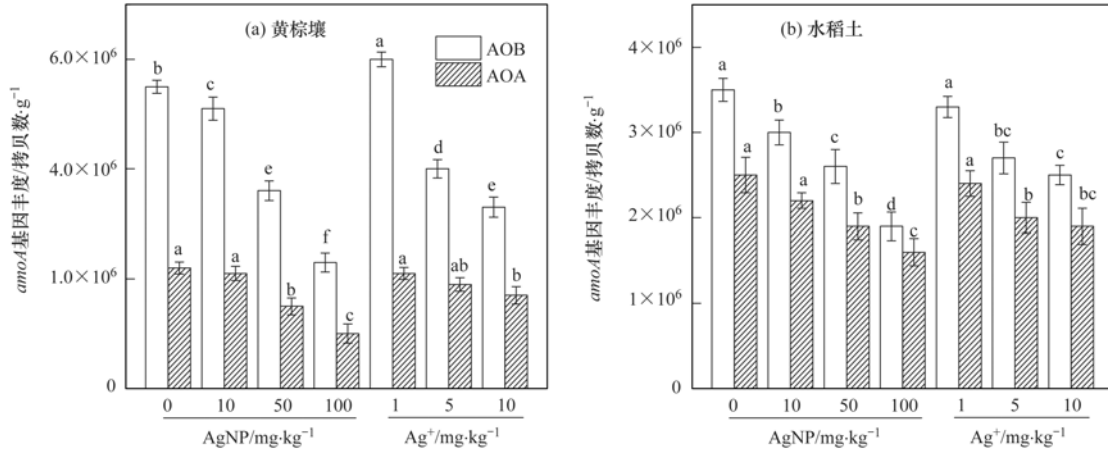


图 4 不同剂量纳米银和银离子处理土壤 *amoA* 基因丰度变化

Fig. 4 Variation of *amoA* gene abundances in soil treated with different contents of AgNP and Ag^+

2.4 AgNP 和 Ag^+ 对土壤铵态氮转化的影响

2.4.1 AgNP 和 Ag^+ 对土壤 NH_4^+ -N 含量的影响

为探究 AgNP 和 Ag^+ 对土壤铵态氮转化的影响, 采用外源添加 $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ 的形式, 以土壤 NH_4^+ -N 和 NO_3^- -N 含量为指标, 对 AgNP 和 Ag^+ 暴露 1、7、21、28 d 铵态氮转化能力进行测定. AgNP 和 Ag^+ 对 2 种土壤 NH_4^+ -N 含量的影响如图 5 所示. 随着培养时间延长, 无银对照组中外源铵态氮由于向硝态氮转化含量逐渐降低. AgNP 和 Ag^+ 处理组中铵态氮转化过程受阻, 随着 AgNP 和 Ag^+ 剂量

增加氨氧化过程减弱. 培养 1 d 时, AgNP 和 Ag^+ 处理下 2 种土壤铵态氮转化受到轻度抑制. 培养 7 d 时, 不同剂量 AgNP 处理下黄棕壤和水稻土中 NH_4^+ -N 含量分别高出对照组 36.11% ~ 75.19% 和 2.98% ~ 33.13%. 随着培养时间的延长, 氨氧化过程减弱更加显著. 培养 28 d 时, 不同剂量 AgNP 处理下黄棕壤和水稻土中 NH_4^+ -N 分别高出对照组 521.95% ~ 2328.05% 和 258.20% ~ 651.64%. 不同剂量 Ag^+ 处理下对土壤铵态氮转化的影响程度比 AgNP 轻, 但随着时间延长抑制作用不断加

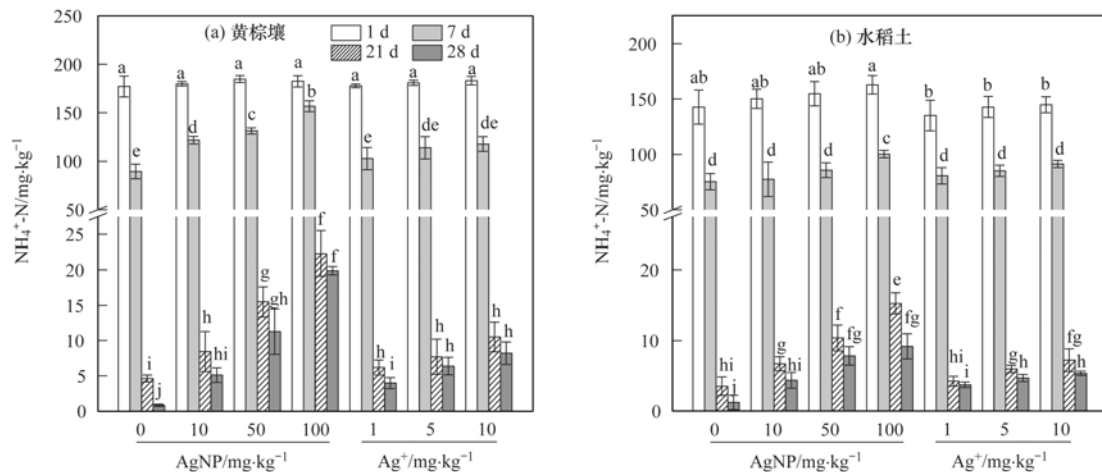


图 5 不同纳米银和银离子处理下土壤 NH_4^+ -N 变化

Fig. 5 Changes of NH_4^+ -N in soil treated with different contents of AgNP and Ag^+

强, 培养 28 d 时黄棕壤和水稻土中 NH_4^+ -N 含量分别高出对照组 384.15% ~ 898.78% 和 205.74% ~ 338.52%.

2.4.2 AgNP 和 Ag^+ 对土壤 NO_3^- -N 含量的影响

在无银对照组中, 外源铵态氮向硝态氮转化, 土壤中硝态氮含量随培养时间延长逐渐增多. AgNP 和 Ag^+ 使土壤铵态氮转化过程受阻, NO_3^- -N 含量减少(图 6). AgNP 和 Ag^+ 对 NO_3^- -N 含量的影响也是在培养第 7 d 开始出现, 处理组 NO_3^- -N 含量均低于对照组, 且随着 AgNP 和 Ag^+ 剂量的增加, 抑制效果更明显. 不同剂量 AgNP 暴露 7 d 后, 黄

棕壤和水稻土中 NO_3^- -N 含量分别低于对照组 26.71% ~ 29.44% 和 8.17% ~ 20.60%. 随着培养时间的延长, AgNP 的影响逐渐增强, 28 d 时黄棕壤和水稻土中 NO_3^- -N 含量分别低于对照组 9.11% ~ 33.40% 和 7.18% ~ 28.16%. Ag^+ 处理下对土壤 NO_3^- -N 含量影响小于 AgNP , 不同剂量 Ag^+ 暴露 7 d 后黄棕壤和水稻土中 NO_3^- -N 含量分别低于对照组 12.09% ~ 26.93% 和 14.30% ~ 27.76%. 随着时间延长, Ag^+ 的影响逐渐减小, 培养 28 d 后不同剂量 Ag^+ 处理下黄棕壤和水稻土中 NO_3^- -N 含量分别低于对照组 2.94% ~ 13.84% 和 5.32% ~ 16.14%.

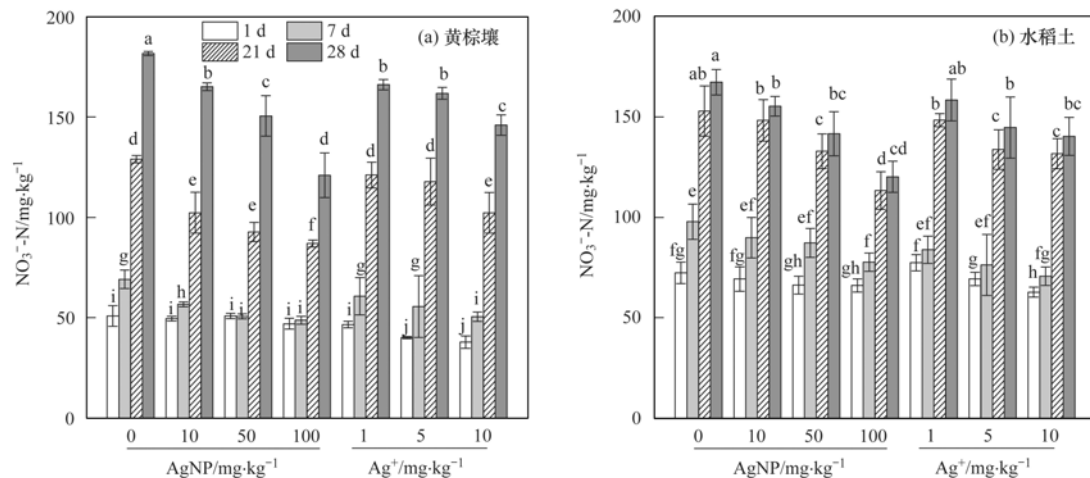


图 6 不同纳米银和银离子处理下土壤 NO_3^- -N 变化

Fig. 6 Changes of NO_3^- -N in soil treated with different contents of AgNP and Ag^+

2.4.3 AgNP 和 Ag^+ 对土壤潜在氨氧化速率的影响

土壤潜在氨氧化速率通常采用短期实验测定 NO_2^- 含量的方式表示, AgNP 和 Ag^+ 暴露下土壤潜在氨氧化速率变化如图 7 所示. 无银对照组中, 外源添加 $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ 土壤中氨氧化速率随培养时间先增加后降低. 低剂量 AgNP ($10 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$) 和 Ag^+ ($1 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$) 处理对 2 种土壤潜在氨氧化速率影响

不大, 可能此暴露浓度还在土壤氨氧化细菌的耐受范围内, 中高剂量 AgNP 和 Ag^+ 使土壤潜在氨氧化速率显著降低. $50 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ 和 $100 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ AgNP 暴露 1 d 后黄棕潜在氨氧化速率与对照组相比分别抑制 49.23% 和 67.69%. 中高剂量 AgNP 对水稻土潜在氨氧化速率的抑制在 21 d 达到最大, 抑制率分别为 47.62% 和 49.38%. Ag^+ 对黄棕壤潜在氨氧化速

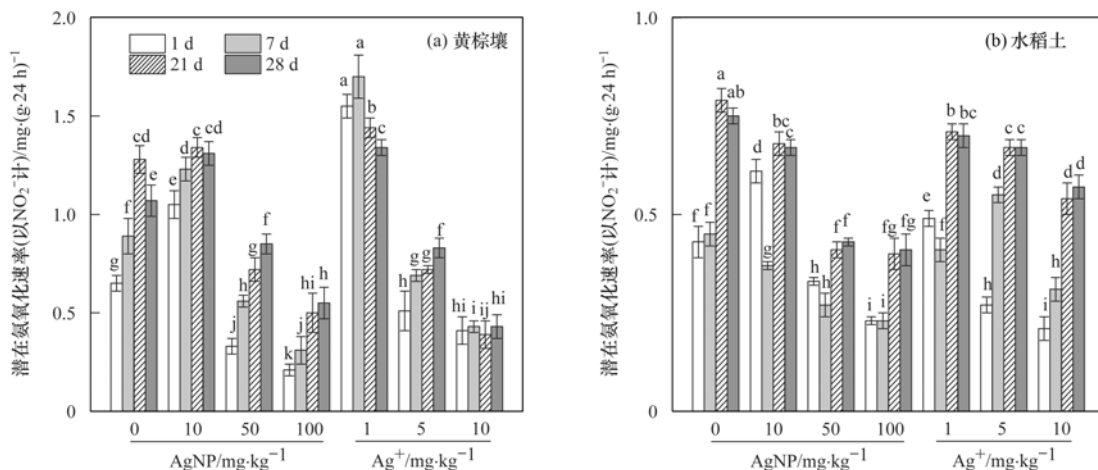


图 7 不同剂量纳米银和银离子处理土壤土壤潜在氨氧化速率变化

Fig. 7 Changes of potential ammonia oxidation rates in soil treated with different contents of AgNP and Ag^+

率的影响随着培养时间先增强后降低, 其中 $10 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1} \text{ Ag}^+$ 抑制率从 1 d 的 36.92% 提高到 21 d 的 69.53%, 后降为 28 d 的 59.81%。Ag⁺ 对水稻土潜在氨氧化速率的抑制在培养 1 d 时最大, 随后逐渐减小。整体上水稻土潜在氨氧化速率比黄棕壤低, 且受 AgNP 的影响比 Ag⁺ 强。AgNP 和 Ag⁺ 对土壤潜在氨氧化速率的影响较大, 土壤氨氧化过程对 AgNP 非常敏感。

3 讨论

硝化过程是土壤氮素循环的限速步骤和中心环节, 硝化微生物及硝化作用常被用来评估土壤重金属污染^[22]。由于含 AgNP 产品的广泛使用, 其暴露于土壤环境中的生态风险不容忽视。本研究表明 AgNP 和 Ag⁺ 暴露后, 黄棕壤和水稻土硝化细菌数量显著减少, AOB、AOA 的 *amoA* 基因丰度下降, 且对 AOB 的 *amoA* 基因丰度影响强于 AOA。Yang 等^[23]发现 AgNP 对活性污泥中的微生物群落组成产生了负面影响, 特别是对硝化细菌的抑制尤为明显。Asadishad 等^[24]和 Samarajeewa 等^[25]同样发现 AgNP 对土壤硝化细菌产生毒害作用。Beddow 等^[26]在河口沉积物发现 $50 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ 的 AgNP 能显著性降低 AOB 的 *amoA* 基因丰度, 但对 AOA 的 *amoA* 基因丰度的影响并不明显。Choi 等^[27]的研究发现, AgNP 对污水处理中 AOB 呈现出毒性作用, 抑制了污水处理能力。He 等^[16]的研究发现, 经过 AgNP 处理 30 d 后, 土壤 *amoA* 基因丰度下降了 40%。水稻土硝化细菌对 AgNP 和 Ag⁺ 的响应要低于黄棕壤, 这可能是由于土壤理化性质对 AgNP 的毒性产生了影响, 黄棕壤比水稻土的 pH 值低, 酸性土壤表面的电负性低, 对带负电荷的 AgNP 静电排斥力更小^[28], 易与 AgNP 结合, 从而降低 AgNP 在土壤中的迁移, 使其毒性作用更持久。Schlich 等^[21]也认为 AgNP 的毒性与土壤的理化性质密切相关, 其毒性随着土壤 pH 值的增加而下降。

AgNP 和 Ag⁺ 剂量越高, 对土壤酶活性的抑制程度越大。Shin 等^[29]发现脲酶活性受 AgNP 影响较大, $1 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ AgNP 使脲酶活性降低, $1000 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ 时活性抑制高达 90%。王秋双等^[30]的研究显示, AgNP 处理显著抑制土壤脲酶、脱氢酶活性, 对土壤过氧化氢酶与磷酸酶活性基本无影响。土壤脲酶受 AgNP 和 Ag⁺ 的影响比过氧化氢酶大, 这可能由于脲酶本身的高敏感性所致。

AgNP 和 Ag⁺ 对土壤硝化微生物特别是氨氧化微生物产生毒害作用, 导致在外源添加 $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ 的情况下, 土壤中氨氧化过程减弱, 铵态氮含量积

累、硝态氮含量减少, 土壤潜在氨氧化速率降低, 铵态氮转化过程受阻, 且具有明显的浓度抑制效应。Gu 等^[31]也发现高剂量 AgNP 能对氨氧化过程产生更强的抑制。Beddow 等^[26]发现在河口沉积物中, AgNP 能显著降低潜在氨氧化速率, 特别是随时间累积 AgNP 在高浓度的情况下。Grün 等^[32]发现 $0.01 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ 的 AgNP 在土壤中暴露 1 a 过后, 氨氧化过程受到显著抑制。Giao 等^[33]发现在序列间歇式反应器中 AgNP 浓度从 $0.25 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 提高到 $10.00 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$, 氨氧化速率降低了 4% ~ 50%。

关于 AgNP 对土壤微生物的毒性机制一直存在争议, 有的学者认为是其释放的 Ag⁺ 的作用, 也有认为主要是 AgNP 自身的原因。Giao 等^[34]发现 $1 \sim 100 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 的 AgNP 对氨氧化速率的抑制率为 45% ~ 74%, 而 $0.05 \sim 0.5 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1} \text{ Ag}^+$ 对氨氧化速率的抑制为 59% ~ 94%, AgNP 对氨氧化过程产生抑制作用主要是来源于释放的 Ag⁺。Yuan 等^[12]发现 AgNP 对氨氧化细菌及其氨氧化作用的抑制是由于 AgNP 本身, 而非溶解的 Ag⁺ 造成的。Liang 等^[13]也发现, 从 AgNP 中溶解的 Ag⁺ 对氨氧化微生物的影响并不显著, 主要是 AgNP 自身的作用。本文研究发现 Ag⁺ 对土壤硝化微生物及其氨氧化速率造成了影响, 但影响程度比 AgNP 低, AgNP 的毒性部分来自释放的 Ag⁺, 部分由于本身的特异抗菌性^[35]。

虽然本文关于 AgNP 和 Ag⁺ 在不同土壤中对硝化微生物特别是氨氧化微生物的毒性作用及对氨氧化速率的影响进行了探讨, 并发现 AgNP 主要是抑制了氨氧化微生物的活性从而导致土壤铵态氮转化受阻, 但是关于 AgNP 在土壤环境中的风险及影响机制尚不清楚, 还有待进一步地研究。

4 结论

(1) AgNP 和 Ag⁺ 暴露下, 黄棕壤和水稻土的亚硝酸细菌和硝酸细菌的数量显著降低; AOB、AOA 的 *amoA* 基因丰度均下降。AgNP 和 Ag⁺ 暴露剂量越高, 对土壤硝化微生物特别是氨氧化细菌的毒害作用越大, 且影响程度与土壤类型有关。

(2) AgNP 和 Ag⁺ 剂量越高, 对土壤酶活性的抑制越大, 对脲酶的影响强于过氧化氢酶。

(3) AgNP 和 Ag⁺ 导致外源添加氨氮的土壤中氨氧化过程减弱, 铵态氮含量积累, 硝态氮含量减少, 土壤潜在氨氧化速率降低, 铵态氮转化过程受阻。

参考文献:

- [1] Nowack B, Krug H F, Height M. 120 years of nanosilver history: implications for policy makers [J]. Environmental

- Science & Technology, 2011, **45**(4): 1177-1183.
- [2] Reidy B, Haase A, Luch A, *et al.* Mechanisms of silver nanoparticle release, transformation and toxicity: a critical review of current knowledge and recommendations for future studies and applications[J]. Materials, 2013, **6**(6): 2295-2350.
- [3] Kora A J, Rastogi L. Enhancement of antibacterial activity of capped silver nanoparticles in combination with antibiotics, on model gram-negative and gram-positive bacteria[J]. Bioinorganic Chemistry and Applications, 2013, **2013**: 871097.
- [4] McGillicuddy E, Murray I, Kavanagh S, *et al.* Silver nanoparticles in the environment: sources, detection and ecotoxicology[J]. Science of the Total Environment, 2017, **575**: 231-246.
- [5] Sun T Y, Gottschalk F, Hungerbühler K, *et al.* Comprehensive probabilistic modelling of environmental emissions of engineered nanomaterials[J]. Environmental Pollution, 2014, **185**: 69-76.
- [6] Suresh A K, Pelletier D A, Doktycz M J. Relating nanomaterial properties and microbial toxicity[J]. Nanoscale, 2012, **5**(2): 463-474.
- [7] Riah-Anglet W, Trinsoutrot-Gattin I, Martin-Laurent F, *et al.* Soil microbial community structure and function relationships: A heat stress experiment[J]. Applied Soil Ecology, 2015, **86**: 121-130.
- [8] Ke X B, Angel R, Lu Y H, *et al.* Niche differentiation of ammonia oxidizers and nitrite oxidizers in rice paddy soil[J]. Environmental Microbiology, 2013, **15**(8): 2275-2292.
- [9] Puthiya Veetil V, Abdulaziz A, Chekidhenkuzhiyil J, *et al.* Bacterial domination over archaea in ammonia oxidation in a Monsoon-Driven tropical estuary[J]. Microbial Ecology, 2015, **69**(3): 544-553.
- [10] 李虎, 黄福义, 苏建强, 等. 浙江省瓯江氨氧化古菌和氨氧化细菌分布及多样性特征[J]. 环境科学, 2015, **36**(12): 4659-4666.
- Li H, Huang F Y, Su J Q, *et al.* Distribution and diversity of ammonium-oxidizing archaea and ammonium-oxidizing bacteria in surface sediments of Oujiang River[J]. Environmental Science, 2015, **36**(12): 4659-4666.
- [11] Tian X, Jiang X M, Welch C, *et al.* Bactericidal effects of silver nanoparticles on Lactobacilli and the underlying mechanism[J]. ACS Applied Materials & Interfaces, 2018, **10**(10): 8443-8450.
- [12] Yuan Z H, Li J W, Cui L, *et al.* Interaction of silver nanoparticles with pure nitrifying bacteria[J]. Chemosphere, 2013, **90**(4): 1404-1411.
- [13] Liang Z H, Das A, Hu Z Q. Bacterial response to a shock load of nanosilver in an activated sludge treatment system[J]. Water Research, 2010, **44**(18): 5432-5438.
- [14] Hänsch M, Emmerling C. Effects of silver nanoparticles on the microbiota and enzyme activity in soil[J]. Journal of Plant Nutrition and Soil Science, 2010, **173**(4): 554-558.
- [15] 陈铮, 罗专溪, 邱昭政, 等. 纳米金、银对氨氧化细菌及其氨氧化作用的影响[J]. 中国环境科学, 2014, **34**(3): 705-712.
- Chen Z, Luo Z X, Qiu Z Z, *et al.* Effects of silver and gold nanoparticles on ammonia-oxidizing bacteria and its ammoxidation[J]. China Environmental Science, 2014, **34**(3): 705-712.
- [16] He S Y, Feng Y Z, Ni J, *et al.* Different responses of soil microbial metabolic activity to silver and iron oxide nanoparticles[J]. Chemosphere, 2016, **147**: 195-202.
- [17] 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.
- [18] 李振高, 骆永明, 滕应. 土壤与环境微生物研究法[M]. 北京: 科学出版社, 2008.
- [19] Rothauwe J H, Witzel K P, Liesack W. The ammonia monooxygenase structural gene *amoA* as a functional marker: molecular fine-scale analysis of natural ammonia-oxidizing populations[J]. Applied and Environmental Microbiology, 1997, **63**(12): 4704-4712.
- [20] Francis C A, Roberts K J, Beman J M, *et al.* Ubiquity and diversity of ammonia-oxidizing archaea in water columns and sediments of the ocean[J]. Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America, 2005, **102**(41): 14683-14688.
- [21] Schlich K, Hund-Rinke K. Influence of soil properties on the effect of silver nanomaterials on microbial activity in five soils[J]. Environmental Pollution, 2015, **196**: 321-330.
- [22] Broos K, Mertens J, Smolders E. Toxicity of heavy metals in soil assessed with various soil microbial and plant growth assays: a comparative study[J]. Environmental Toxicology and Chemistry, 2005, **24**(3): 634-640.
- [23] Yang Y, Quensen J, Mathieu J, *et al.* Pyrosequencing reveals higher impact of silver nanoparticles than Ag⁺ on the microbial community structure of activated sludge[J]. Water Research, 2014, **48**: 317-325.
- [24] Asadishad B, Chahal S, Akbari A, *et al.* Amendment of agricultural soil with metal nanoparticles: effects on soil enzyme activity and microbial community composition[J]. Environmental Science & Technology, 2018, **52**(4): 1908-1918.
- [25] Samarajeewa A D, Velicogna J R, Prinz J I, *et al.* Effect of silver nano-particles on soil microbial growth, activity and community diversity in a sandy loam soil[J]. Environmental Pollution, 2017, **220**: 504-513.
- [26] Beddow J, Stolpe B, Cole P A, *et al.* Nanosilver inhibits nitrification and reduces ammonia-oxidising bacterial but not archaeal *amoA* gene abundance in estuarine sediments[J]. Environmental Microbiology, 2017, **19**(2): 500-510.
- [27] Choi O, Hu H Q. Size dependent and reactive oxygen species related nanosilver toxicity to nitrifying bacteria[J]. Environmental Science & Technology, 2008, **42**(12): 4583-4588.
- [28] 杜欢, 王玉军, 李程程, 等. 纳米 Ag 在四种不同性质土壤上的吸附行为研究[J]. 农业环境科学学报, 2015, **34**(6): 1069-1075.
- Du H, Wang Y J, Li C C, *et al.* Sorption of silver nanoparticles on four soils with different characteristics[J]. Journal of Agro-Environment Science, 2015, **34**(6): 1069-1075.
- [29] Shin Y J, Kwak J I, An Y J. Evidence for the inhibitory effects of silver nanoparticles on the activities of soil exoenzymes[J]. Chemosphere, 2012, **88**(4): 524-529.
- [30] 王秋双, 戚兴超, 申天琳, 等. 纳米银与石墨烯对土壤微生物及土壤酶的影响[J]. 环境科学学报, 2017, **37**(8): 3149-3157.
- Wang Q S, Qi X C, Shen T L, *et al.* Effect of silver nanoparticles and graphene on soil microorganisms and enzyme activities[J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2017, **37**(8): 3149-3157.
- [31] Gu L G, Li Q L, Quan X C, *et al.* Comparison of nanosilver removal by flocculent and granular sludge and short- and long-term inhibition impacts[J]. Water Research, 2014, **58**: 62-70.
- [32] Grin A L, Emmerling C. Long-term effects of environmentally relevant concentrations of silver nanoparticles on major soil bacterial phyla of a loamy soil[J]. Environmental Sciences

- Europe, 2018, **30**: 31.
- [33] Giao N T, Limpiyakorn T, Siripattanakul-Ratpukdi S. Inhibition kinetics of ammonia oxidation influenced by silver nanoparticles [J]. *Water, Air, & Soil Pollution*, 2012, **223** (8): 5197-5203.
- [34] Giao N T, Limpiyakorn T, Kunapongkiti P, *et al.* Influence of silver nanoparticles and liberated silver ions on nitrifying sludge; ammonia oxidation inhibitory kinetics and mechanism [J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2017, **24**(10): 9229-9240.
- [35] Wang J, Shu K H, Zhang L, *et al.* Effects of silver nanoparticles on soil microbial communities and bacterial nitrification in suburban vegetable soils[J]. *Pedosphere*, 2017, **27**(3): 482-490.

《环境科学》征稿简则

1. 来稿报道成果要有创新性,论点明确,文字精炼,数据可靠.全文不超过8 000字(含图、表、中英文摘要及参考文献).国家自然科学基金项目、国家科技攻关项目、国际合作项目或其它项目请在来稿中注明(在首页以脚注表示).作者投稿时请先登陆我刊网站(www.hjkx.ac.cn)进行注册,注册完毕后以作者身份登录,按照页面给出的提示信息投稿即可.

2. 稿件请按GB 7713-87《科学技术报告、学位论文和学术论文的编写格式》中学术论文的规范撰写.论文各部分的排列顺序为:题目;作者姓名;作者工作单位、地址、邮政编码;中文摘要;关键词;中图分类号;英文题目;作者姓名及单位的英译名;英文摘要;关键词;正文;致谢;参考文献.

3. 论文题目应简练并准确反映论文内容,一般不超过20字,少用副标题.

4. 中文摘要不少于300字,以第三人称写.摘要内容包括研究工作的目的、方法、结果(包括主要数据)和结论,重点是结果和结论.英文摘要与中文对应,注意人称、时态和语言习惯,以便准确表达内容.

5. 前言包括国内外前人相关工作(引文即可)和本工作的目的、特点和意义等.科普知识不必赘述.

6. 文中图表应力求精简,同一内容不得用图表重复表达,要有中英文对照题目.图应大小一致,曲线粗于图框,图中所有字母、文字字号大小要统一.表用三线表.图表中术语、符号、单位等应与正文一致.

7. 计量单位使用《中华人民共和国法定计量单位》(SI).论文中物理计量单位用字母符号表示,如mg(毫克),m(米),h(小时)等.科技名词术语用国内通用写法,作者译的新名词术语,文中第一次出现时需注明原文.

8. 文中各级标题采用1,1.1,1.1.1的形式,左起顶格书写,3级以下标题可用(1),(2)……表示,后缩2格书写.

9. 文中外文字母、符号应标明其大小写,正斜体.生物的拉丁学名为斜体.缩略语首次出现时应给出中文全称,括号内给出英文全称和缩略语.

10. 未公开发表资料不列入参考文献,可在出现页以脚注表示.文献按文中出现的先后次序编排.常见文献书写格式为:

期刊:作者(外文也要姓列名前).论文名[J].期刊名,年,卷(期):起页-止页.

图书:作者.书名[M].出版地:出版社,年.起页-止页.

会议文集:作者.论文名[A].见(In):编者.文集名[C].出版地:出版社(单位),年.起页-止页.

学位论文:作者.论文名[D].保存地:保存单位,年份.

报告:作者.论文名[R].出版地:出版单位,出版年.

专利:专利所有者.专利题名[P].专利国别:专利号,出版日期.

11. 来稿文责自负,切勿一稿多投.编辑对来稿可作文字上和编辑技术上的修改和删节.在3个月内未收到本刊选用通知,可来电询问.

12. 投稿请附作者单位详细地址,邮编,电话号码,电子邮箱等.编辑部邮政地址:北京市2871信箱;邮编:100085;电话:010-62941102,010-62849343;传真:010-62849343;E-mail:hjkx@rcees.ac.cn;网址:www.hjkx.ac.cn

CONTENTS

Concurrent Measurement of Wet and Bulk Deposition of Trace Metals in Urban Beijing	ZHANG Guo-zhong, PAN Yue-peng, TIAN Shi-li, <i>et al.</i> (2493)
Concentration and Ecological Risk Assessment of Heavy Metals in PM _{2.5} Collected in Urban and Suburban Areas of Beijing	XU Jing, LI Xing-ru, ZHANG Lan, <i>et al.</i> (2501)
Secondary Aerosol Formation in Urban Shanghai: Insights into the Roles of Photochemical Oxidation and Aqueous-Phase Reaction	GAO Jie, QIAO Li-ping, LOU Sheng-rong, <i>et al.</i> (2510)
Secondary Inorganic Pollution Characteristics During Heavy Pollution Episodes of 2017 in Tianjin	XU Hong, XIAO Zhi-mei, CHEN Kui, <i>et al.</i> (2519)
Characterization of PM ₁₀ and PM _{2.5} Source Profiles for Emissions from Nonmetal Mineral Products Manufacturing Processes	ZHAO Xue-yan, YU Gao-feng, WANG Xin-wu, <i>et al.</i> (2526)
Characteristics of Component Particle Size Distributions of Particulate Matter Emitted from a Waste Incineration Plant	YU Zhuo-jun, WU Jian-hui, ZHANG Yu-fen, <i>et al.</i> (2533)
Characteristics and Source Apportionment of Carbon Components in Road Dust PM _{2.5} and PM ₁₀ During Spring in Tianjin Derived by Using the Quadrat Sampling Method	MA Yan, JI Ya-qin, GUO Ji-liang, <i>et al.</i> (2540)
Urban Aerosol Hygroscopicity During Haze Weather	YANG Su-ying, TIAN Zhi-jie, ZHANG Tie-ning, <i>et al.</i> (2546)
Atmospheric Pollution Characteristics and Inhalation Exposure Risk of Nitrated Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in PM _{2.5} at the Ningdong Energy and Chemical Industry Base, Northwest China	LIU Pan-liang, JU Yuan-li, MAO Xiao-xuan, <i>et al.</i> (2556)
Health Benefit Evaluation for PM ₁₀ and PM _{2.5} Pollution Control in Zhengzhou, China, 2014-2016	HAN Shi-jie, WANG Jia, YAN Qi-she, <i>et al.</i> (2565)
Spatial-temporal Distribution of Aerosol Optical Depth and Its Main Influence Types in China During 1990-2017	LIU Ying, LIN Ai-wen, QIN Wen-min, <i>et al.</i> (2572)
Research on the Pollution Characteristics and Causality of Haze-sand Air Pollution in Beijing in Spring	WANG Yao-ting, LI Qing-chun, ZHENG Zuo-fang, <i>et al.</i> (2582)
Vessel Emission Inventories and Emission Characteristics for Inland Rivers in Jiangsu Province	XU Wen-wen, YIN Cheng-qi, XU Xue-ji, <i>et al.</i> (2595)
Atmospheric Nitrogen Dioxide, Nitric Acid, Nitrate Nitrogen Concentrations, and Wet and Dry Deposition Rates in a Double Rice Region in Subtropical China	OUYANG Xiu-qin, WANG Bo, SHEN Jian-lin, <i>et al.</i> (2607)
Characteristics of Stable Isotopes in Precipitation and Moisture Sources in the Headwaters of the Yangtze River	WANG Shao-yong, WANG Qiao-li, WU Jin-kui, <i>et al.</i> (2615)
Historical Trends of Atmospheric Trace Metal Pollution in Northern Guizhou Province as Reconstructed from Alpine Lake Sediments	LIANG Meng-yao, LIU En-feng, ZHANG En-lou, <i>et al.</i> (2624)
Distribution Characteristics of Microplastics in Qingdao Coastal Beaches	LUO Ya-dan, LIN Qian-hui, JIA Fang-li, <i>et al.</i> (2631)
Pollution Characteristics of Microplastics in Migratory Bird Habitats Located Within Poyang Lake Wetlands	LIU Shu-li, JIAN Min-fei, ZHOU Long-yin, <i>et al.</i> (2639)
Use of the Nitrogen/Carbon Ratio (N/C) and Two End-Member Sources Mixing Model to Identify the Origins of Dissolved Organic Matter from Soils in the Water-Level Fluctuation Zones of the Three Gorges Reservoir	JIANG Tao, JOERI Kaal, LIANG Jian, <i>et al.</i> (2647)
Effects of Photosynthesis of Submerged Aquatic Plants on CDOM in a Karst Water System: A Case Study from Xueyu Cave, Chongqing, China	FAN Jia-xin, JIANG Yong-jun, HE Qiu-fang, <i>et al.</i> (2657)
Indicators of Groundwater Evolution Processes Based on Hydrochemistry and Environmental Isotopes: A Case Study of the Dongyuan Drinking Water Source Area in Ji'nan City	ZHANG Ya, SU Chun-li, MA Yan-hua, <i>et al.</i> (2667)
Water Quality Analysis and Health Risk Assessment for Groundwater at Xiangshui, Chongzuo	ZHOU Jin-mei, JIANG Zhong-cheng, XU Guang-li, <i>et al.</i> (2675)
Chemical Characteristics of Groundwater and Material Sources Analysis in Buckwheat Field, Yunnan Province	ZHANG Yong, GUO Chun-qing, ZHU Yan-guang, <i>et al.</i> (2686)
C and N Transport Flux and Associated Changes of Water Quality Parameters from a Multiscale Subtropical Watershed in the Poyang Lake Area	LU Yao, GAO Yang, JIA Jun-jie, <i>et al.</i> (2696)
Pollutant Transport Analysis and Source Apportionment of the Entire Non-point Source Pollution Process in Combined Sewer Systems	FANG Jin-xiu, XIE Wen-xia, ZHU Yu-xi, <i>et al.</i> (2705)
Nitrogen Removal Efficiencies from Road Runoff by Dry Grass Swales with a Shallow Substrate Layer	DUAN Jin-kai, LI Tian, ZHANG Jia-wei (2715)
Migration Characteristics of Manganese During Rainfall Events and Its Impacts on Water Quality in a Drinking Water Source Reservoir	DENG Li-fan, HUANG Ting-lin, LI Nan, <i>et al.</i> (2722)
Potential for Phosphorus Uptake by Bed Sediments and Its Response to Carbon Additions in the Shiwuli River, Chaohu Lake Basin	LI Ru-zhong, BAO Qin, ZHANG Rui-gang, <i>et al.</i> (2730)
Sources and Distribution of Phosphorus in Sediments of the Jinpen Reservoir	MAO Xue-jing, HUANG Ting-lin, LI Nan, <i>et al.</i> (2738)
Water Quality Characteristics and Distribution of Bacterial Communities During Thermal Stratification in the Miyun Reservoir	WANG Yu-bing, WANG Xiao-yan, PANG Shu-jiang, <i>et al.</i> (2745)
Relationship Between the Vertical Distribution of Nutrients and Bacterial Community Structures in Sediment Interstitial Waters of Stratified Reservoirs with Different Water Temperatures	WANG Shen, ZHANG Si-si, XU You, <i>et al.</i> (2753)
Accumulation Characteristics and Release Regularity of Nutrients in Sediments of a Surface-flow Constructed Wetland After Long-term Operation	ZHU Yi-meng, JIANG Cui-ling, ZHU Li-qin, <i>et al.</i> (2764)
Application of Goethite Modified Biochar for Arsenic Removal from Aqueous Solution	ZHU Si-hang, ZHAO Jing-jing, YIN Ying-jie, <i>et al.</i> (2773)
Effects and Mechanisms of Methyl Orange Removal from Aqueous Solutions by Modified Rice Shell Biochar	SHI Yue-yue, SHAN Riu, YUAN Hao-ran (2783)
Performance and Membrane Fouling Properties in an Anaerobic Membrane Bioreactor for Salty Wastewater	YAN Huan-xi, XU Zhen-yu, JIN Chun-ji, <i>et al.</i> (2793)
Pollution Characteristics and Enhanced Removal of Organic Phosphorus in Effluent from a Wastewater Treatment Plant	WANG Xiao-dong, WANG Zi-wen, CHEN Ming-fei, <i>et al.</i> (2800)
Effects of Alkalinity on Partial Nitrification in a Zeolite Sequencing Batch Reactor	WANG Rui-xin, CHEN Jing, WANG Xiao-jun, <i>et al.</i> (2807)
Effects of the Physical Structure of Activated Sludge on Respiration Processes	GUO Yao, LI Zhi-hua, YANG Cheng-jian, <i>et al.</i> (2813)
Performance of an Aerobic Granular Reactor Treating Biogas Slurry from Pig Farm	LIAO Jie, YE Jia-qi, ZENG Zhi-chao, <i>et al.</i> (2821)
Spatial-temporal Characteristics and Driving Factors of Greenhouse Gas Emissions from Rivers in a Rapidly Urbanizing Area	LIU Ting-ting, WANG Xiao-feng, YUAN Xing-zhong, <i>et al.</i> (2827)
Influences of Biochar on Pollutant Removal Efficiencies and Nitrous Oxide Emissions in a Subsurface Flow Constructed Wetland	DENG Chao-ren, LIANG Yin-kun, HUANG Lei, <i>et al.</i> (2840)
Effects of the Veterinary Antibiotic Sulfamethazine on N ₂ O Emissions and the Associated Microbiological Mechanism in a Rice Field	WU Jie, LI Zhi-lin, XU Jia-ying, <i>et al.</i> (2847)
Effects of Different Levels of Nitrogen Fertilization on Soil Respiration Rates and Soil Biochemical Properties in an Alfalfa Grassland	HU Wei, ZHANG Ya-hong, LI Peng, <i>et al.</i> (2858)
Spatial Distribution and Risk Assessment of Heavy Metals in Soils from a Typical Urbanized Area	HE Bo, ZHAO Hui, WANG Tie-yu, <i>et al.</i> (2869)
Accumulation of Heavy Metals in Agricultural Soils and Crops from an Area with a High Geochemical Background of Cadmium, Southwestern China	LIU Yi-zhang, XIAO Tang-fu, XIONG Yan, <i>et al.</i> (2877)
Spatial Distribution Characteristics and Source Apportionment of Soil Heavy Metals in Chinese Wolfberry Land Based on GIS and the Receptor Model	BAI Yi-ru, ZHANG Xing, ZHAO Yun-peng, <i>et al.</i> (2885)
Spatial Distribution and Pollution Assessment of As at a Small Scale in Agricultural Soils of the Karst Region	WANG Hua, LIU Xiu-ming, LIU Fang, <i>et al.</i> (2895)
Soil Aggregate Stability and Its Stoichiometric Characteristics in <i>Robinia pseudoacacia</i> Forest within Different Vegetation Zones on the Loess Plateau, China	QU Qing, XU Hong-wei, WU Xuan, <i>et al.</i> (2904)
Straw Returning Plus Nitrogen Fertilizer Affects the Soil Microbial Community and Organic Carbon Mineralization in Karst Farmland	XU Xue-chi, SU Yi-rong, WANG Gui-hong, <i>et al.</i> (2912)
Effects of Biochar Application and Ageing on the Adsorption of Antibiotics in Purple Soil	YIN Wen-min, GUAN Zhuo, LIU Chen, <i>et al.</i> (2920)
Ammonia Oxidation in a Neutral Purple Soil Measured by the ¹³ C-DNA-SIP Method	LIU Tian-lin, WANG Zhi-hui, YAN Xiao-juan, <i>et al.</i> (2930)
Effects of Silver Nanoparticles and Silver Ions on Soil Nitrification Microorganisms and Ammonoxidation	WU Ling-li, ZHANG Xu, SHU Kun-hui, <i>et al.</i> (2939)
Insight into the Process of Mn-ANAMMOX in Soils of Agricultural Drainage Ditches	CHEN Shi, LI Zheng-kui, QIN Yun-bin, <i>et al.</i> (2948)
Effects of Different Concentrations of Tetracycline in Sludge on Ammonia Oxidizers During Vermicomposting	WU Ying, HUANG Kui, XIA Hui, <i>et al.</i> (2954)