

垃圾填埋污染场地的微生物变化特征与污染物行为研究

董军, 赵勇胜, 韩融, 洪梅, 张伟红

(吉林大学环境与资源学院, 长春 130026)

摘要: 通过静态和动态模拟实验研究了垃圾填埋污染场地的微生物变化特征及其与污染物的衰减、形态分布和生物有效性变化之间的关系。结果表明, 土壤和细砂中微生物活性随时间均呈先升高后降低的变化趋势, 升高阶段其平均增长速率分别达到 0.081 d^{-1} 和 0.022 d^{-1} , 而降低阶段其衰减速率分别达到 0.0095 d^{-1} 和 0.0051 d^{-1} ; COD 随时间的衰减与微生物活性变化之间有明显的相关性, 其在土壤中的去除率较细砂高 30% 左右, 在砂土中的衰减速率 (以 O_2 计) 为 500 mg/d ; 氨氮随时间的衰减与微生物活性变化之间在短时间内没有明显的相关性; 重金属的形态变化和生物有效性与其本身的性质、氧化还原环境等因素有一定的关系。

关键词: 垃圾渗滤液; 污染场地; 生物降解; 微生物活性

中图分类号: X523; X172 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2009)07-2160-05

Characteristics of Bacteria Variation and Pollutants Behavior in Landfill Leachate Polluted Site

DONG Jun, ZHAO Yong-sheng, HAN Rong, HONG Mei, ZHANG Wei-hong

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

Abstract: Static and dynamic simulated experiments were conducted to investigate the characteristics of bacterial variation in landfill leachate polluted site, and relations between attenuation, species-distribution, bioavailability of pollutants and bacterial activity. Results indicated that bacterial activity in soil and fine sand showed a trend of increase first and then decreased with time; the increase rate was up to 0.081 d^{-1} and 0.022 d^{-1} at the increasing stage, and the decrease rate reached 0.0095 d^{-1} and 0.0051 d^{-1} at the decreasing stage, respectively. A clear correlation between attenuation of COD and variation of bacterial activity with time was shown; the removal efficiency of COD in soil was about 30% higher than that in fine sand, and the attenuation rate of COD was 500 mg/d in fine sand approximately. There was no clear correlation between ammonium-nitrogen attenuation and bacterial activity in short term with time. Variation of heavy metals species and bioavailability was related to their properties, redox environment, and other factors.

Key words: landfill leachate; polluted site; biodegradation; microbial activity

垃圾渗滤液是一种成分复杂、污染物浓度很高的特殊废水, 其渗入地下不但污染了土壤, 还改变了地下的环境条件, 直接影响着污染物的迁移和转化。在地下环境中, 几乎所有的地球化学转化作用直接或间接地都和微生物有关, 地层中的各种电子受体, 如 O_2 、 NO_3^- 、铁锰氧化物、 SO_4^{2-} 、 CO_2 等在微生物的作用下将有机污染物降解^[1-5]; 微生物在利用物质、能量和营养进行生长的同时也改变了周围地下环境的化学组成、pH、碱度和氧化还原等条件, 从而对有机污染物的降解和无机化学反应的进行控制, 使得污染物的迁移转化直接或间接受到影响, 关于这方面国内外都已有一定的研究^[1-12]。对于微生物在垃圾污染地下环境中的生长、变化特征及其与污染物的衰减、迁移转化以及形态转变等之间的关系则鲜见报道, 本试验以此为出发点, 对垃圾污染场地的微生物变化特征和垃圾渗滤液污染物在地下环境中的衰

减机制、形态转化进行研究, 以期垃圾渗滤液污染控制和恢复治理提供理论依据和参考。

1 材料与方法

1.1 实验装置、材料

实验用砂土取自长春市伊通河畔 20 cm 以下, 土壤取自长春市郊区地表 0~20 cm 处, 其初始性质见表 1; 垃圾渗滤液取自长春市三道垃圾填埋场, 其初始理化性质见表 2。

1.2 实验方法

1.2.1 静态实验

同时将等量的垃圾渗滤液一次性分别注入等量

收稿日期: 2008-07-21; 修订日期: 2008-10-20

基金项目: 国家自然科学基金项目(40802055); 博士点基金(新教师)项目(200801831034)

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

表 1 土壤和细砂的初始性质

Table 1 Properties of soil and fine sands

类型	pH	含水率 /%	腐殖质 /g·kg ⁻¹	有机质 /g·kg ⁻¹	吸光度 (微生物活性)
土壤	7.87	7.83	5.8	7.7	0.206
细砂	7.15	7.72	0.4	1.4	0.152

表 2 垃圾渗滤液的初始理化性质

Table 2 Physical and chemical properties of landfill leachate

pH	Eh /mV	COD /mg·L	BOD /mg·L	NH ₄ ⁺ -N /mg·L	NO ₃ ⁻ -N /mg·L	NO ₂ ⁻ -N /mg·L
6.68	-358.2	11432.0	4812.9	1667.9	3.1	0.2

的土壤和细砂 2 个系列中, 依照地层介质: 垃圾渗滤液= 100 g: 40 mL 的比例, 搅拌均匀、静置, 在不同时间取样, 分别对土壤和细砂中的生物活性、有机质、pH、氨氮等进行分析。

1.2.2 动态模拟实验

动态模拟实验装置是长为 60 cm、内径为 14 cm 的有机玻璃柱。将 7 kg 经 2 mm 筛的土壤和细砂分若干次分别填充在柱内并压实。将垃圾渗滤液自上而下注入柱内, 入渗量约为 250 mL/d, 在模拟柱底部进行取样, 时间间隔为 1~ 2 d。

1.3 样品分析方法

微生物活性的测定采用 FDA 荧光素染色法, 利用荧光素乙酰乙酸盐对活性细胞染色, 用吸光度值表征样品中的微生物活性^[13], 重金属的形态分析采用 Tessier 分级提取法^[14], 重金属采用 ICP-MS(美国安捷伦公司)分析, 其它指标均采用常规方法测得^[15]。

2 结果与分析

2.1 微生物活性变化特征分析

微生物活性是表征微生物量的参数, 本试验中用吸光度值来表示微生物活性的相对大小。图 1 表明, 随着时间的推移, 土壤和细砂中的微生物活性均呈现先升高后降低的变化趋势。在微生物活性增长阶段, 其在土壤中的增长速率大于在细砂中的, 土壤中的微生物活性在第 3 d 就达到了最高值 0.259, 平均增长速率为 0.081 d⁻¹, 而细砂中的微生物活性在第 6 d 才达到最高值 0.197, 平均增长速率为 0.022 d⁻¹。这主要受 2 个因素的影响: ①介质的吸附容量。土壤较细砂具有更强的吸附能力, 垃圾渗滤液中的有机污染物在土壤中吸附滞留的较多, 碳源相对比较充足, 营养相对比较丰富, 为微生物的生长繁殖提供了较好的环境; ②介质中有机质的含量。一方

面, 介质中的有机质也能为微生物的生长提供有力支持; 另一方面, 较高的有机质含量也增强了介质的吸附能力。图 2 表明, 土壤介质中有机质的含量远高于细砂, 而且随着时间的推移, 有机质的含量不断下降, 随着可利用有机质、电子受体等的消耗, 微生物代谢产物、有毒有害物质的累积, 酸碱及氧化还原环境的改变, 微生物的生长逐渐受到了抑制, 其活性则不断降低, 进入衰亡阶段。由图 1 可知, 细砂微生物的衰亡速率大于土壤, 微生物活性的衰减速率分别为 0.009 5 d⁻¹ 和 0.005 1 d⁻¹, 截至实验结束时土壤和细砂中的微生物活性值均仍高于实验初始阶段, 总体来看, 土壤的微生物活性区间持续时间较细砂长。

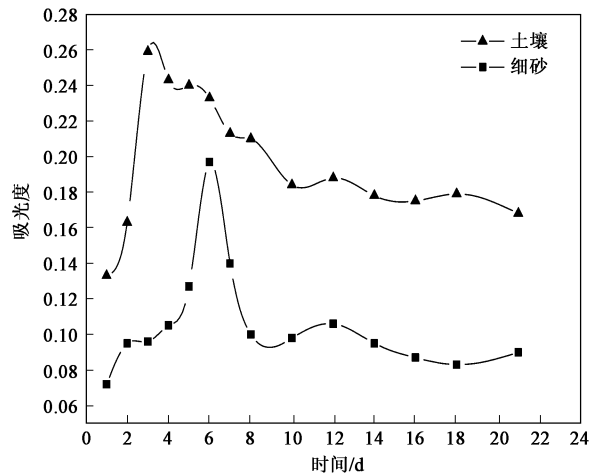


图 1 微生物活性随时间变化

Fig. 1 Variations of microbial activity with time

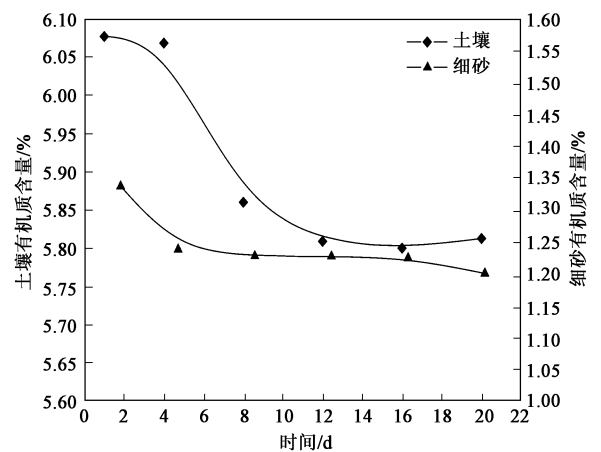


图 2 有机质含量随时间变化

Fig. 2 Variations of organic substrate with time

2.2 污染物与微生物活性的关系

由图 3 和图 4 可以看出, 有机污染物在土壤和细砂中的衰减能力有明显的差异, 垃圾渗滤液通过

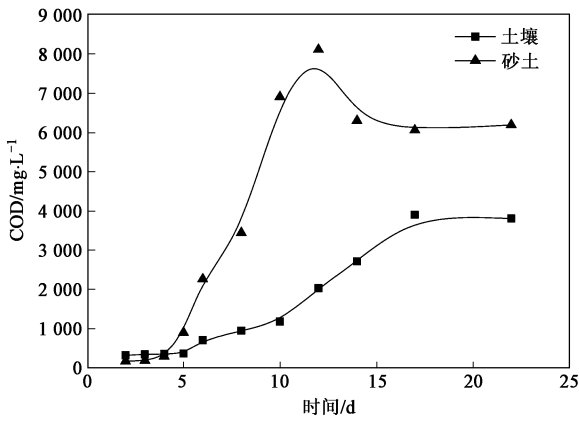


图 3 COD 随时间变化

Fig. 3 Variations of COD with time

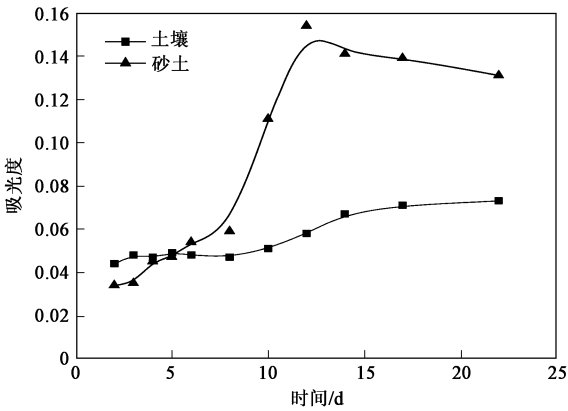


图 4 生物活性随时间变化

Fig. 4 Variations of microbial activity with time

土壤介质后, COD 的平均去除率较砂土高出 30% 左右, 这说明介质的岩性是影响有机污染物衰减的重要因素之一. 垃圾渗滤液经过 2 种介质后其中 COD 随时间的变化趋势与微生物活性的变化趋势类似, 它们之间具有明显的相关性. 具体来说, 在 13 d 以前, 微生物还处于适应环境和繁殖增长阶段, 因此, 微生物对 COD 的降解速度和介质对 COD 的吸附截留速度远小于污染速度, 因而出水中的 COD 迅速增加; 13 d 以后, 出水 COD 开始下降并趋于平缓, 这时介质对有机物的吸附已饱和并穿透, 此时, 微生物量相对较大, COD 的衰减主要依靠微生物降解作用. COD 在砂土中的平均衰减速率(以 O₂ 计) 约为 500 mg/d, 而土壤具有相对较大的比表面积、较高的有机质含量、较多的微生物种类和数量等, 这就决定了其对有机污染物具有较强的污染缓冲作用和衰减作用, 因而出水中的 COD 升高相对比较缓慢, 出水中的微生物活性持续升高, 这说明微生物还处于稳定

持续增长阶段, 对 COD 的降解能力不断增强, 这也说明介质中有机质的含量对微生物的代谢作用有一定的影响.

图 5 表明, 经过土壤和砂土的垃圾渗滤液在初期的 2~ 4 d 硝酸盐氮迅速降低, 随后保存稳定, 但经过砂土后硝酸盐的浓度始终高于经过土壤的, 这说明介质的岩性对硝酸盐氮的衰减也有一定的影响. 由图 4 可知, 此时生物活性稳定在 0.04 左右, 根据生物地球化学原理可知, 这一阶段主要是硝酸盐还原菌利用硝酸盐为电子受体对污染物进行反硝化代谢. 由图 6 可知, 氨氮浓度随着时间的延长而不断升高, 其变化与微生物活性之间并没有明显的相关性, 但这并不能说明氨氮的衰减与生物作用没有关系, 因为氨氮的衰减是一个极为复杂的过程, 尤其是在地下环境中, 微生物可将有机氮转换为 NH₄⁺-N, 使其浓度升高, 同时也可以发生硝化作用和厌氧氨氧化作用, 使 NH₄⁺-N 浓度降低. 因此, 氨氮在地下环境中的生物降解是一个长期的过程, 在短期内并未

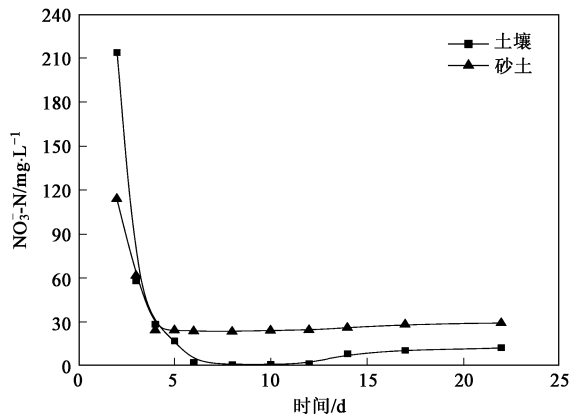


图 5 NO₃-N 随时间变化

Fig. 5 Variations of NO₃-N with time

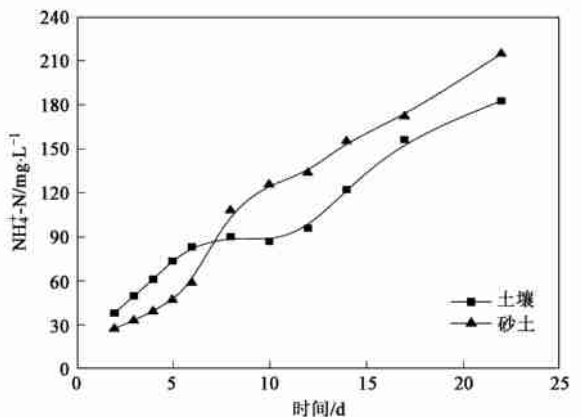


图 6 NH₄⁺-N 随时间变化

Fig. 6 Variations of NH₄⁺-N with time

见明显的效果。

2.3 重金属生物有效性变化分析

一般情况下, 重金属的生物有效性和其存在形态有一定的关系, 可交换态是沉积物中的不稳定部分, 具有较高的生物可给性; 碳酸盐结合态在弱还原及氧化环境中也可溶解, 具有一定的生物可给性; 铁锰结合态和有机物结合态在一般条件下是比较稳定的, 但在环境变化时能部分解析, 具有潜在的生物可给性。

由图 7 可以看出, 土壤沉积物中 Zn 的主要赋存形态为铁锰结合态和有机结合态, 随着污染程度的增加, 有机结合态明显增高、可交换态和碳酸盐结合态减小, 未见明显的迁移现象; 另外, 在污染源附近, 由于垃圾渗滤液中有有机物累积形成的强还原环境也可使 Zn 以硫化物形式沉淀。土壤沉积物中 Mn 的主要赋存形态为离子交换态和铁锰结合态, 而且各种形态的 Mn 随距离的变也化较明显, 总体呈先升高后降低的趋势, 随着污染程度的加重, 锰明显发生迁移并在一定的距离内沉积下来, 到 30 cm 处达到最高, 而且其形态和生物有效性均发生了较大的变化, 铁锰结合态的含量大幅上升, 这是因为在污染源附近, 随着有机物的富集和微生物活动的进行改变了土壤的 pH、碱度、以及氧化还原环境, 使铁锰氧化物被还原, 随垃圾渗滤液迁移并在一定的环境条件下沉积。土壤沉积物中 Cr 的主要赋存形态为可交换态、铁锰结合态和有机结合态, 其含量随距离没有明

显变化, 而碳酸盐结合态随距离增加略有升高, 这说明 Cr 在污染土壤中相对比较稳定。

图 8 表明, 重金属在细砂中的存在形态和生物有效性与在土壤中完全不同, 细砂中 Zn 的可交换态、碳酸盐结合态以及有机结合态随距离没有明显变化, 但铁锰结合态随污染程度的加重而降低; Mn 随污染程度的加重主要以碳酸盐结合态沉积, Cr 则几乎没有变化。

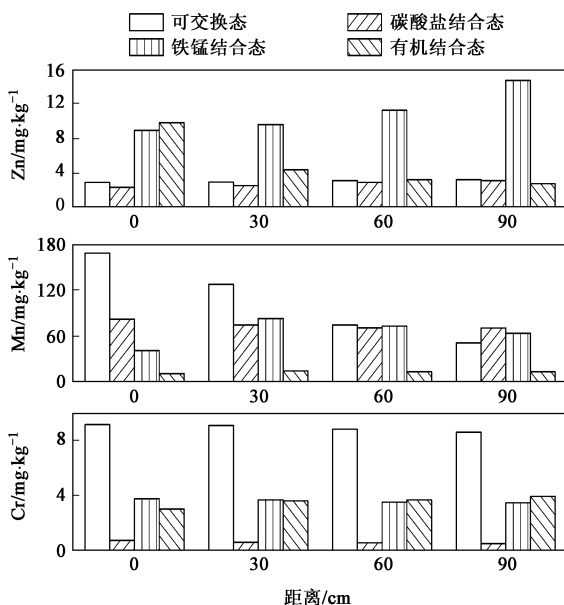


图 8 砂中重金属形态随距离的变化

Fig. 8 Variations of heavy metal species in sand with distance

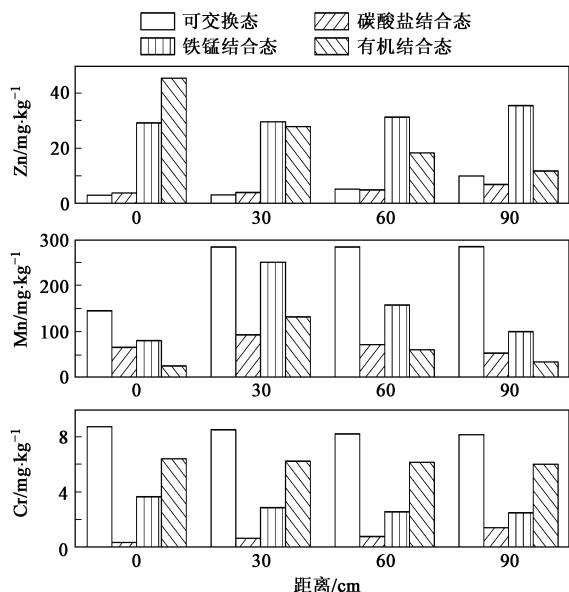


图 7 土壤中重金属形态随距离的变化

Fig. 7 Variations of heavy metal species in soil with distance

通过以上对比研究发现, 在相同的条件下, 不同重金属的赋存形态和生物有效性有所不同, 有机质含量、氧化还原环境、介质的岩性以及重金属本身的性质对其在垃圾污染场地的形态转化和生物有效性有一定的影响。

3 结论

(1) 随着时间的推移, 土壤和细砂中微生物活性均呈现先增高后降低的变化趋势。土壤中微生物活性平均增长速率为 0.081 d^{-1} ; 细砂中微生物活性平均增长速率为 0.022 d^{-1} 。微生物活性的衰减速率细砂大于土壤, 衰减速率分别达到 0.0095 d^{-1} 和 0.0051 d^{-1} 。

(2) COD 随时间的变化与生物活性的变化有明显的相关性; 其在土壤中的平均去除率较砂土高出 30% 左右, 而氨氮的衰减与微生物活性之间短时间内并没有明显的相关性。

(3) 在相同的条件下, 不同重金属的赋存形态和生物有效性有所不同, 介质有机质含量、氧化还原环境、介质的岩性以及重金属本身的性质对其在垃圾污染场地的形态转化和生物有效性有明显的影

参考文献:

- [1] 董军, 赵勇胜, 韩融, 等. 垃圾渗滤液污染羽在地下环境中的分带现象研究[J]. 环境科学, 2006, 27(9): 1901-1905.
- [2] 董军, 赵勇胜, 张伟红, 等. 渗滤液中有机物在不同氧化还原带中的降解机理与效率研究[J]. 环境科学, 2007, 28(9): 2041-2045.
- [3] 董军, 赵勇胜, 洪梅, 等. 垃圾渗滤液中重金属在不同氧化还原带中的衰减[J]. 中国环境科学, 2007, 27(6): 743-747.
- [4] Christensen T H, Bjerg P L, Banwart S A, *et al.* Characterization of redox conditions in groundwater contaminant plumes [J]. Journal of Contaminant Hydrology, 2000, 45(3-4): 165-241.
- [5] 董军, 赵勇胜, 王翊虹, 等. 渗滤液污染羽中沉积物氧化还原缓冲能力研究[J]. 环境科学, 2006, 27(12): 2558-2563.
- [6] Baun A, Reitzel L A, Ledin A, *et al.* Natural attenuation of xenobiotic organic compounds in a landfill leachate plume (Vejen, Denmark) [J]. J Contam Hydrol, 2003, 65(3-4): 269-291.
- [7] Ludvigsen L, Albrechtsen H J, Heron G, *et al.* Anaerobic microbial redox processes in a landfill leachate contaminated aquifer (Grindsted, Denmark) [J]. J Contam Hydrol, 1998, 33(3-4): 273-291.
- [8] Christensen T H, Kjeldsen P, Albrechtsen H J, *et al.* Attenuation of landfill leachate pollutants in aquifers [J]. Crit Rev Environ Sci Technol, 1994, 24(2): 119-202.
- [9] Bjerg P L, Ruge K, Pedersen J K, *et al.* Distribution of redox-sensitive groundwater quality parameters downgradient of a landfill (Grindsted, Denmark) [J]. Environ Sci Technol, 1995, 29(5): 1387-1394.
- [10] Ruge K, Bjerg P L. Fate of MCPP and atrazine in an anaerobic landfill leachate plume (Grindsted, Denmark) [J]. Wat Res, 1999, 33(10): 2455-2458.
- [11] Ruge K, Bjerg P L, Christensen T H. Distribution of organic compounds from municipal solid waste in the groundwater downgradient of a landfill (Grindsted, Denmark) [J]. Environ Sci Technol, 1995, 29(5): 1395-1400.
- [12] Christensen T H, Kjeldsen P, Bjerg P L, *et al.* Biogeochemistry of landfill leachate plumes [J]. Applied Geochemistry, 2001, 16(67): 659-718.
- [13] Swisher R, Carroll G C. Fluorescein diacetate hydrolysis as an estimator of microbial biomass on coniferous needle surfaces [J]. Microbial Ecology, 1980, 6: 217-226.
- [14] Tessier A. Sequential extraction procedure for the speciation of particulate trace metals [J]. Analysis Chemistry, 1979, 51(7): 844-851.
- [15] 国家环境保护总局. 水和废水监测分析方法 [M]. (第四版). 北京: 中国环境科学出版社, 2002.