

有机质各组分还原水铁矿及其官能团的研究

研究生：张雪；导师：姜杰 副教授

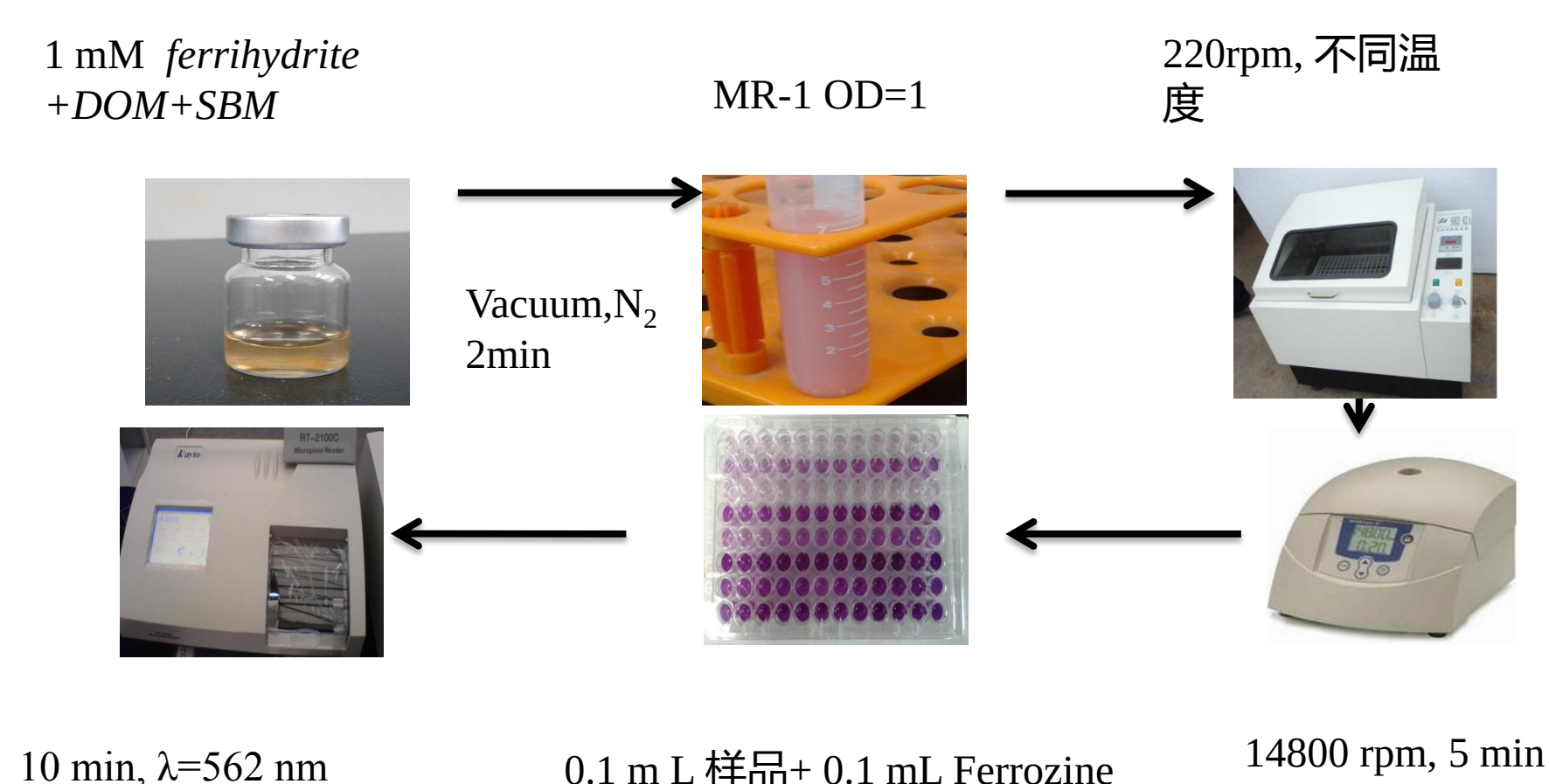


研究背景

1. 溶解性有机质（DOM）来源于生物代谢物或残体分解，普遍存在于陆地、海水和土壤沉积物中。既含有大分子量物质，如腐殖质(HS)，酶、多酚等，也含有低分子量物质，如游离态氨基酸、有机酸和碳水化合物等。其中，HS为DOM的主要成分
2. HS作为微生物与污染物之间的电子载体加速污染物的降解
3. HS 氧化还原能力取决于氧化还原官能团的种类与数量

研究方法

实验方法



官能团研究方法

三维荧光光谱法



参数设置

激发光源：150W氙弧灯；
信噪比：> 110；
PMT电压：700V；
扫描速度：1200 nm/min；
响应时间：自动；
带通（Bandpass）：Ex=5 nm，Em=1 nm；
扫描光谱进行仪器自动校正；
激发波长范围为200—500 nm，发射波长范围为300—600 nm。

结果与讨论

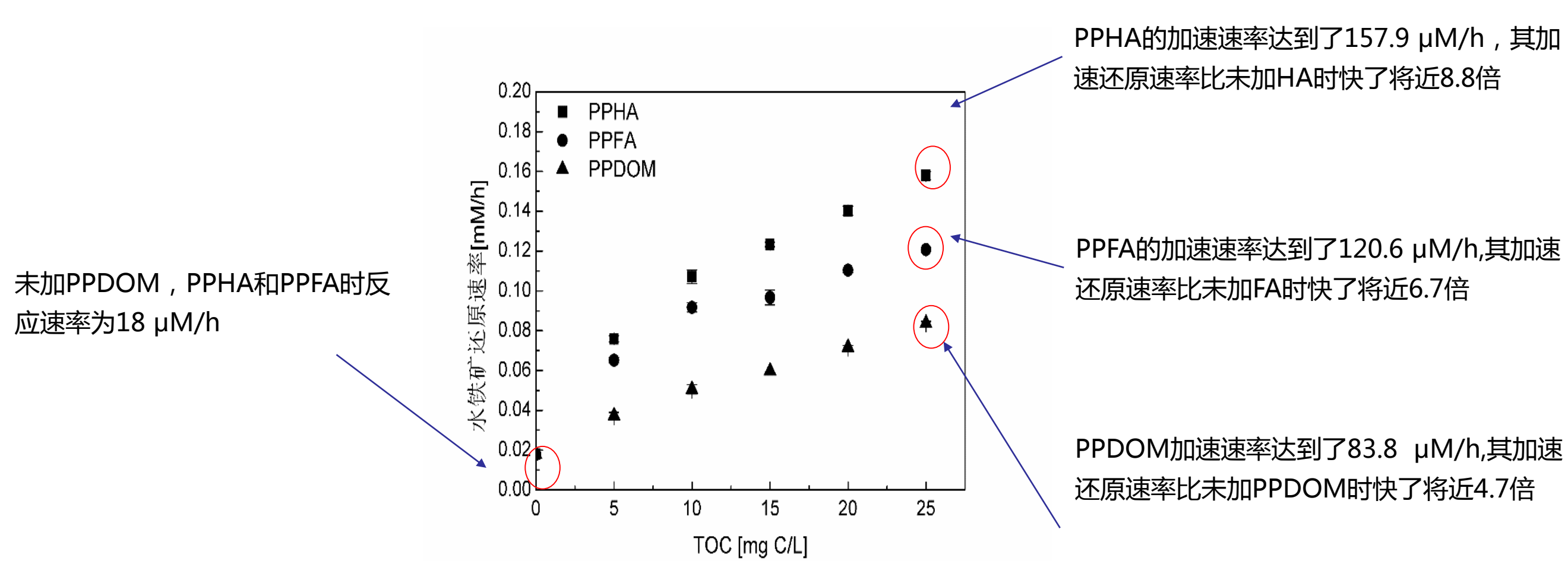
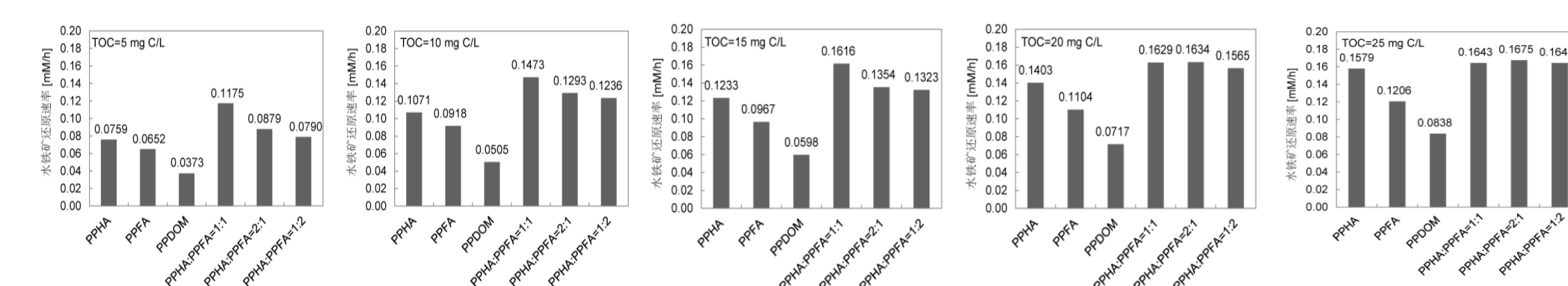


图1 水铁矿在PPDOM, PPHA或PPFA不同TOC浓度下被 *Shewanella oneidensis* MR-1还原的速率团

- 这是由于HA含有较多的氧化还原官能团（如醌基），PPDOM含有较少的氧化还原官能团
- DOM中亲水性有机物组分（HyI）所占比例远远大于腐殖酸和富里酸，且HyI中起到电子穿梭作用的氧化还原官能团含量较少且易被微生物破坏，失去电子穿梭的特性。

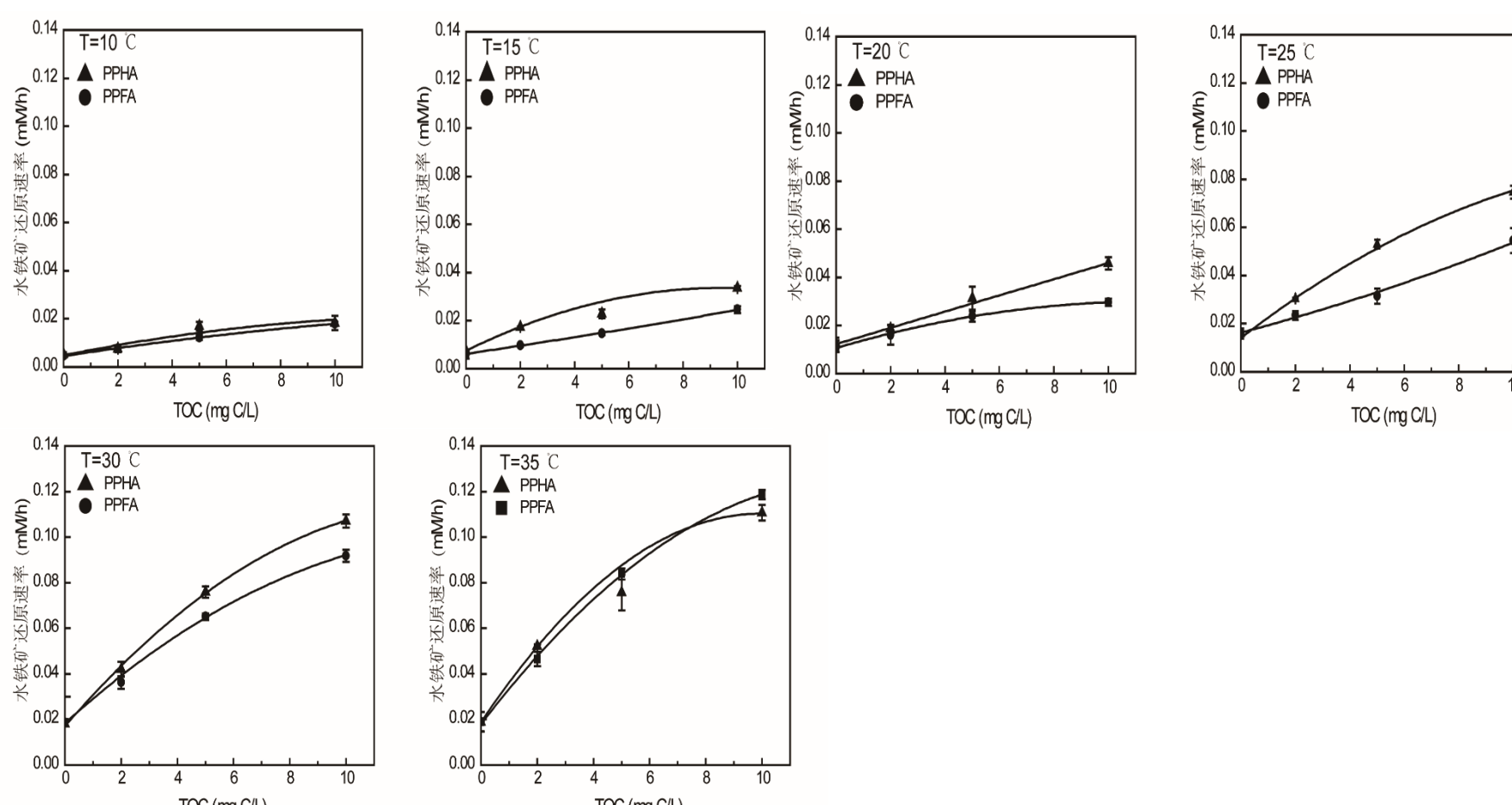
HA与FA的混合程度对水铁矿还原速率的影响



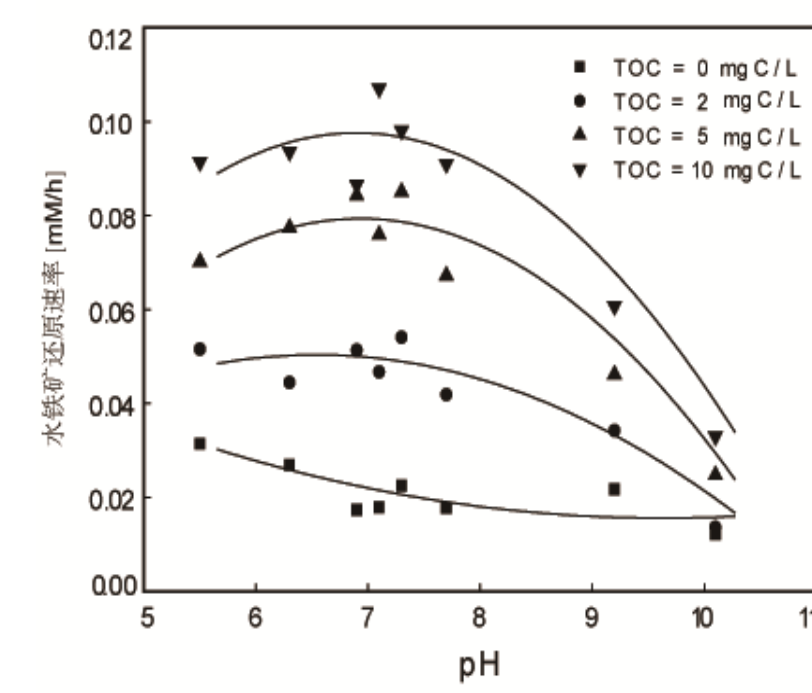
结论

1. 不论HA与FA的TOC浓度比为多少，HA与FA的混合物均能加速微生物还原水铁矿，且HA与FA的混合物的水铁矿还原速率均比单独HA或FA的速率大。
2. TOC=0—15 mg C/L，HA与FA浓度配比为THA:TFA=1:1时，水铁矿还原速率明显高于配比为THA:TFA==1:2和THA:TFA=2:1；TOC=15—25 mg C/L，三者差别不大。

温度不同



Ph值不同



结论：1. 在一般温度区域范围（10—35 °C）内，提高温度可以增强微生物酶的活性，并提高微生物的新陈代谢能力，有利于铁还原的进行。

2. 微生物MR-1利用PPHA和PPFA加速还原水铁矿的胞外分泌物不同

3. 酸性与中性条件下还原速率差异不大，而当PH大于7.47时，还原速率明显下降, 且当TOC=5—10 mg C/L时，水铁矿还原速率均随pH的升高均下降大约63%。

结论：1. 不同浓度的 PPHA、PPFA与PPDOM的3DEEM表明，荧光基团中多种官能团含量随浓度增加而增加。PPHA表现为类腐殖酸荧光，PPFA和PPDOM表现为类富里酸荧光。水铁矿还原速率的快慢与醌基的多寡有直接关系

2. 不同HA与FA浓度配比的混合物的3DEEM表明。当T_{HA}:T_{FA}=1:1时，混合物荧光特性主要表现为类腐殖酸荧光和类蛋白荧光；当T_{HA}:T_{FA}=2:1和1:2时，混合物荧光特性均主要表现为类腐殖酸荧光和类富里酸荧光

3. 不同pH值环境中HA的3DEEM的表明每当速率明显下降时，PPHA溶液的主要荧光特性都由类腐殖酸荧光变为类蛋白荧光

结论

1. 醌基基团的多寡会影响有机质的电子转移能力
2. PPHA和PPFA的浓度比会影响混合物电子转移能力
3. 环境温度会影响有机质电子转移能力
4. 环境pH值条件会影响有机质电子转移能力

致谢

感谢姜杰老师、116师弟师妹以及舍友对本论文的支持。在这三年的时间里，不仅使我在专业知识和学术水平上有了相当的提高，也使我在处事态度和性格上都更加成熟，这些收获是我终生受之不尽的！值此论文完成之际，向大家致以我最崇高的敬意和最衷心的感谢！

取得的主要研究成果：

- （1）《腐殖质氧化还原官能团研究的新方法》；
- （2）《腐殖质参与的希瓦氏菌MR-1还原Fe₃O₄的作用机理研究》