
湖泊沉积物羟基自由基的形成特征及机理研究取得进展

作者：writer 来源：中国科学院

本文原地址：<https://www.iikx.com/news/progress/15738.html>

本文仅供学习交流之用，版权归原作者所有，请勿用于商业用途！

羟基自由基（HO·）是氧化性极强的活性氧物种，可通过直接或间接作用氧化环境水体中的生源要素及污染物质，对碳氮元素循环和水体环境质量具有显著影响。探明HO·形成特征及机理是揭示其环境行为和生态效应的基础。已有研究表明，光化学反应是环境水体HO·的重要来源。然而，近年来研究者发现黑暗条件下富含铁和有机质的沉积物在氧化过程可产生数量可观的HO·，其HO·的生成量甚至是光化学过程产生HO·的1~2个数量级。

鄱阳湖是典型季节性湖泊，在水位高幅度变化下大面积洪泛区洲滩暴露于空气中，使得沉积物中溶解氧和氧化还原电位升高，这为沉积物HO·的形成创造了有利条件，然而目前关于该方面的研究未有报道。

在国家优秀青年基金及江苏省杰出青年基金等项目资助下，中国科学院南京地理与湖泊研究所徐华成研究组博士杜海岩选取我国典型季节性湖泊鄱阳湖为研究对象，采集不同区域沉积物，在室内条件下模拟湖泊沉积物干/湿转换及厌氧再曝气过程，计算HO·的形成潜力和特征，明确沉积物铁和有机质的含量及形态变化过程，揭示沉积物铁和有机质等还原性物质调控HO·的形成机制。相关成果发表在环境领域期刊Water Research和Science of The Total Environment上。

该研究选取鄱阳湖吴城和南矶沉积物，比较了干/湿转换过程中沉积物HO·生成潜力。结果表明，鄱阳湖吴城和南矶点位沉积物在淹水期HO·产生量几乎为零。然而，在干/湿转换过程中，由于溶解氧含量的增加，沉积物HO·含量迅速增加。吴城沉积物HO·的最高浓度为 $2.45 \pm 0.19 \mu\text{mol kg}^{-1}$ ，而南矶沉积物HO·的最高浓度为 $0.69 \pm 0.25 \mu\text{mol kg}^{-1}$

，表明吴城点位沉积物具有更大HO·生成潜力。淹水期间吴城点位表层沉积物中Fe(II)的含量（ $589.3 \pm 37.29 \text{ mg kg}^{-1}$ ）约为南矶点位表层沉积物中Fe(II)含量（ $308.4 \pm 94.01 \text{ mg kg}^{-1}$ ）

的2倍，干/湿转换过程中沉积物聚集体表面Fe(II)的氧化对HO·的形成起重要作用。除Fe(II)外，沉积物有机质包括溶解态和胶体态有机质对HO·形成也起到重要作用。吴城点位表层沉积物溶解有机质（DOM）含量（ $14.38 \pm 2.19 \text{ mg kg}^{-1}$ ）明显高于南矶点位（ $6.82 \pm 0.37 \text{ mg kg}^{-1}$ ）

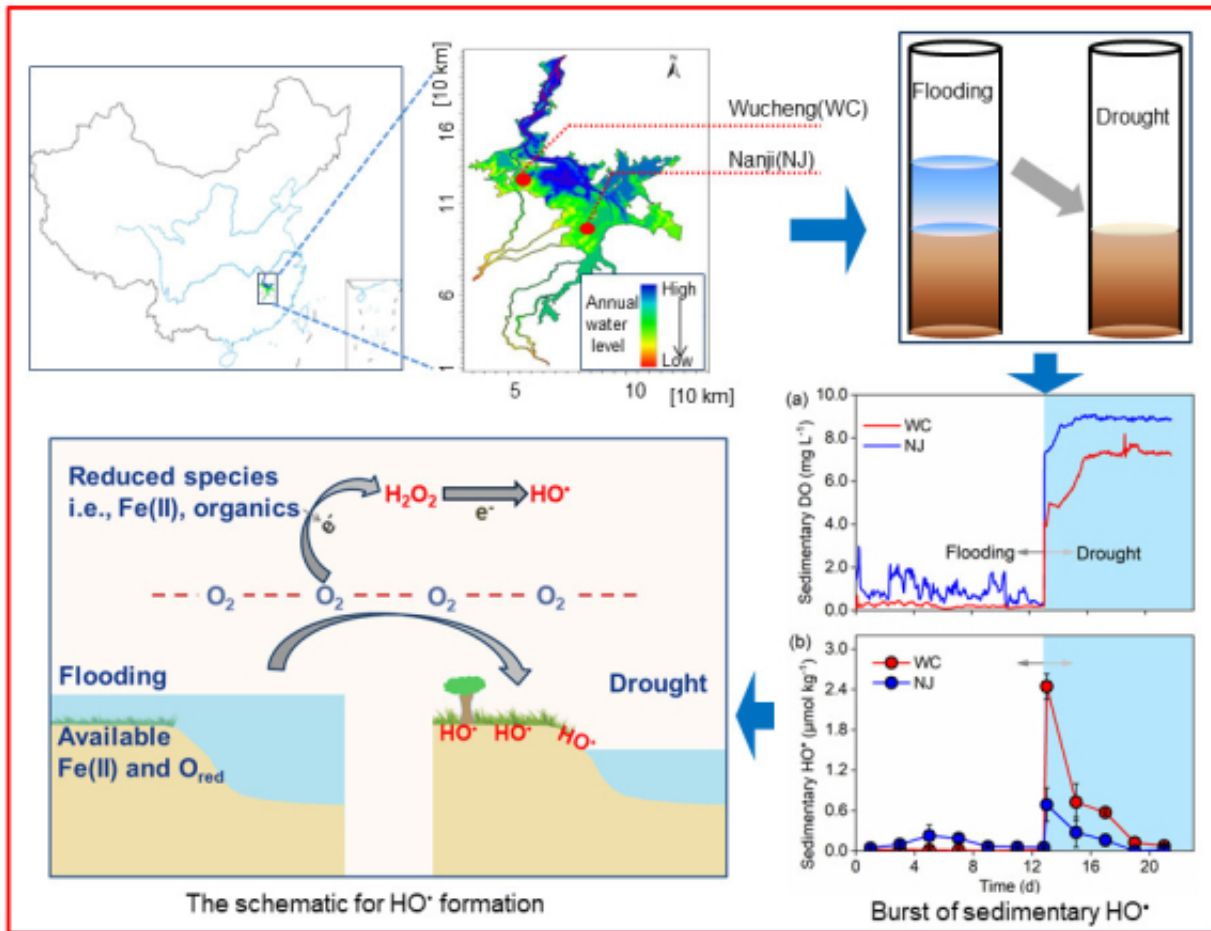
。荧光光谱结果表明，两种沉积物DOM中类蛋白质物质荧光强度在淹水期间持续升高，但在干旱期间略有下降；对于类腐殖荧光峰，其在吴城沉积物中同样呈现淹水增强和干旱下降趋势，而南矶沉积物在整个干/湿转换过程中无明显变化。与类蛋白质物质相比，类腐殖物质具有更多高活性基团，电子转移速率快，因而更易促进HO·形成。研究因此认为，鄱阳湖干/湿转换过程中沉

积物DOM中类腐殖组分的氧化作用也是HO·形成的重要原因。

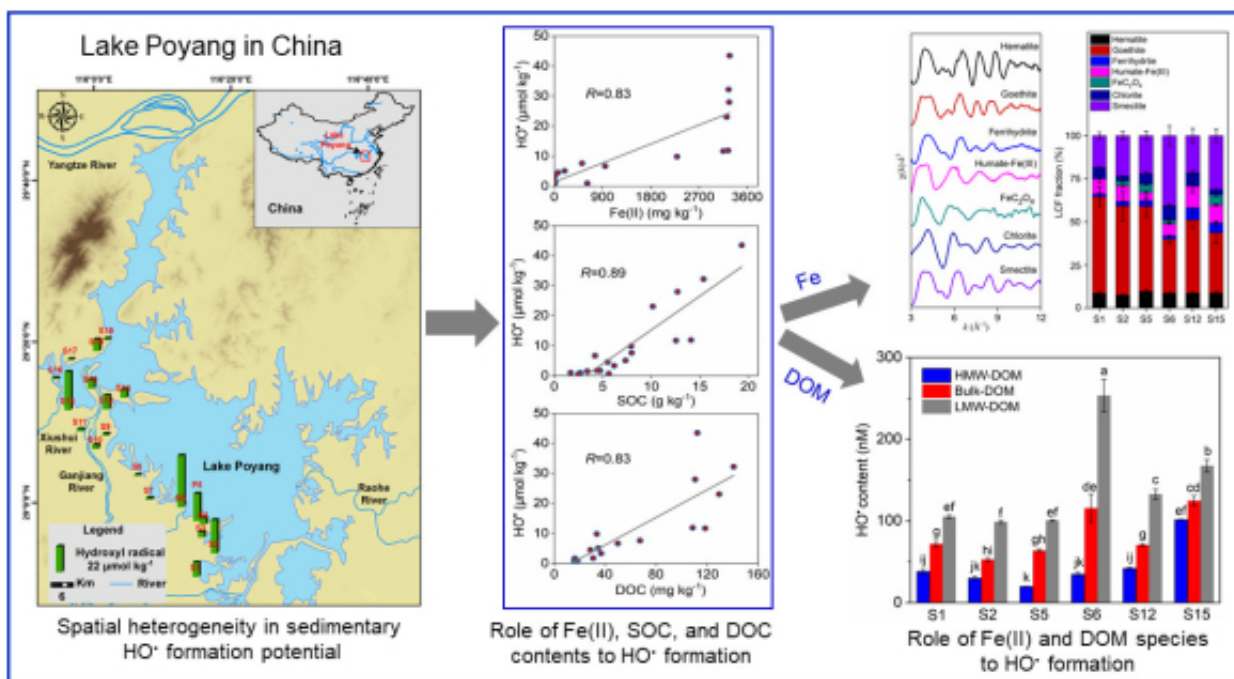
该研究进一步采集了鄱阳湖19个点位沉积物，通过模拟沉积物厌氧再曝气过程，揭示鄱阳湖沉积物Fe(II)和有机质等还原性物质调控HO·的形成机制。结果表明，鄱阳湖沉积物厌氧再曝气过程生成的HO·存在明显的空间异质性，浓度范围为 $3.75 \pm 1.13 \sim 271.8 \pm 22.81 \mu\text{mol kg}^{-1}$ ，其与Fe(II)、可溶性有机碳(DOC)的含量呈显著正相关。然而，点位S1、S2、S5、S6、S12及S15沉积物具有相似的DOC($\sim 120 \text{ mg kg}^{-1}$)和Fe(II)($\sim 3200 \text{ mg kg}^{-1}$)含量，而HO·产量却表现出极大差异性($73.13 \pm 12.25 \sim 271.8 \pm 22.81 \mu\text{mol kg}^{-1}$)，说明除还原物质含量外，其种类和形态也是影响HO·形成的重要因素。选取上述6种沉积物，利用上海光源同步辐射中心X射线吸附光谱分析沉积物中铁形态特征，发现沉积物中铁物种主要由铁氧化物(如针铁矿)、硅酸盐铁(如铁基蒙脱石)以及少量可溶性/可交换态铁组成，其中铁基蒙脱石含量与HO·的形成潜力呈现高度一致。结合沉积物厌氧再曝气过程中类过氧化物酶活性(反映铁物种HO·形成潜力)的差异，研究推测铁基蒙脱石具有较高类过氧化物酶活性，是HO·形成的关键因素。除铁矿物外，沉积物DOM也是HO·形成的重要因素，对HO·生成的贡献约为2~11%。DOM诱导的HO·生成潜力与分子量分布高度相关，沉积物DOM中低分子量($< 1 \text{ kDa}$)组分比高分子量($1 \text{ kDa} \sim 0.45 \mu\text{m}$)具有更高的HO·生成潜力。最后，沉积物矿物Fe(II)和DOM相互作用对HO·的生成有明显的协同效应，发现其对HO·生成的贡献率约2~6%。

该研究揭示了Fe(II)和DOM的含量和种类对HO·产生的重要性，为理解HO·在季节性湖泊沉积物中的形成机制提供了新见解，同时有助于对湖库水环境元素循环以及污染物环境行为和迁移归宿解析。

论文链接：[12](#)



鄱阳湖吴城和南矶点位干/湿转换过程中沉积物 HO^\cdot 形成过程



鄱阳湖沉积物还原物质[Fe(II)、DOM]调控HO·形成

研究团队单位：南京地理与湖泊研究所

更多科学进展 请访问 <https://www.iikx.com/news/progress/>

本文版权归原作者所有，请勿用于商业用途，[爱科学iikx.com](http://www.iikx.com)转发