

大肠杆菌在饱和砂质壤土中非平衡运移的 CDE 数学模型模拟*

李桂花^{1,2} 李保国^{1†}

(1 中国农业大学土壤和水科学系, 农业部土壤和水重点开放实验室, 北京 100094)

(2 中国农业科学院农业资源和农业区划研究所, 北京 100081)

摘要 稳态、饱和条件下, 以速度 $v = 0.214 \text{ cm min}^{-1}$ 和 $0.470 \text{ cm min}^{-1}$ 进行混合置换实验, 研究大肠杆菌在砂质壤土中的运移, 并根据平衡与非平衡假设下, 对流-弥散方程数学模型进行数值模拟。结果表明, 含非平衡的双点吸附、且含有不可逆滞留项的模型能够较好地模拟大肠杆菌在砂质壤土中的运移。模拟和实验结果均表明, 大肠杆菌的 BTC (Breakthrough Curve 穿透曲线) 与示踪剂相比峰值明显降低, 拖尾明显, 且出现延迟, 总的流出量也明显少于示踪剂; 当水流速度由 $0.214 \text{ cm min}^{-1}$ 增至 $0.470 \text{ cm min}^{-1}$ 时, 大肠杆菌 BTC 峰值由 0.05 增至 0.2, 且随速度的增加, 滞留系数减小。

关键词 大肠杆菌; 吸附; CDE; 运移; 砂质壤土

中图分类号 S 152 文献标识码 A

细菌在土壤中的运移与农业、环保、水资源保护、人类健康等领域密切相关。从地下水的细菌污染、垃圾处理、污水灌溉到细菌对有机污染物的携带运移, 根层病害的生物防治, 原位生物修复等都与细菌的运移和吸附密切相关。20 世纪 70 年代初人们开始研究细菌在土壤中的运移, 发现许多环境因子如离子强度^[1]、水流速度^[2] 和土壤介质特性^[3] 都影响细菌在土壤中的运移。后来建立了数学模型来描述细菌在土壤中的运移^[4-6], 这些模型都是在对流-弥散方程基础上进行修正来描述细菌的生长、死亡、吸附和解吸过程。Tan 等^[1,7,8] 通过批量平衡实验发现细菌在砂土中的吸附符合线性平衡反应。但 Bales 等^[9-12] 认为在土柱实验中更适合用动力学吸附模型模拟细菌运移。还有人用双点位吸附(平衡/动力学吸附)模型来描述细菌的运移^[12,13]。

上述研究都是以砂土或玻璃珠为介质进行实验和模拟。Gannon 等^[14] 1991 年报道了以壤土为介质研究 19 种细菌在壤土中的穿透和滞留 (Retention), 认为吸附和机械过滤是细菌滞留的主要原因; Smith 等^[15] 研究了大肠杆菌在原状壤土和扰动壤土中的运移, 比较了土壤结构对细菌运移的影响, 但二者都没有进行模型模拟。本文通过混合置换 (Miscible

displacement) 实验, 研究大肠杆菌在砂质壤土中的运移特性, 并根据 van Genuchten 和 Wagenet^[16] 提出的描述溶质非平衡运移的 CDE 数学模型进行模拟分析。

1 材料与方法

1.1 供试土壤

为忽略有机质的干扰, 选取中国农业大学校园 2 m 深的底层土壤, 过 1 mm 筛, 用比重计法测定其粒径分布见表 1。按国际标准划分土壤质地是砂质壤土。

表 1 供试土壤的粒径分布

粒径 Particle size (mm)	含量 Content (%)
1~0.02	66
0.02~0.002	21
< 0.002	13

1.2 供试菌种

抗青霉素的大肠杆菌 (*Escherichia coli*) DH5 α , 由中国农业大学植物病理教研室从污水中分离, 并进行鉴定和抗性筛选。该大肠杆菌抗 50 g L^{-1} 青霉素, 从多次在抗生素平板—非抗生素平板间转接情

* 国家自然科学基金项目(40301018)资助

† 通讯作者, E-mail: libg@cau.edu.cn

作者简介: 李桂花(1968~), 女, 吉林人, 主要研究方向为土壤物理。E-mail: ahua1968@yahoo.com.cn

收稿日期: 2004-11-04; 收到修改稿日期: 2005-04-20

况来看,抗性很稳定。

1.3 土柱运移实验

土柱采用长 20 cm, 内径 5 cm 的有机玻璃管。分层装好已灭菌的砂质壤土(容重为 $1.4 \pm 0.05 \text{ g cm}^{-3}$), 用蠕动泵由下至上缓慢加入无菌去离子水饱和土柱, 流出液达稳态后, 迅速切换加入已知浓度的菌悬液, 开始计时, 同时用部分收集器收集流出液, 1 h 后再切换加入无菌去离子水。因 NaCl 溶液对大肠杆菌运移影响很大^[17], 所以示踪剂($0.01 \text{ mol L}^{-1} \text{ NaCl}$) 实验需分别进行。整个实验过程水流方向都是由下至上, 以减少重力对大肠杆菌运移的影响。温度控制在 $4 \pm 0.5 \text{ }^\circ\text{C}$, 以达到忽略大肠杆菌生长、死亡的目的。实验共进行了 4 次, 两个不同水流速度, 两次重复, 其速度分别为: $0.214, 0.223, 0.470, 0.493 \text{ cm min}^{-1}$; 初始菌的注入浓度都是 $1 \times 10^7 \text{ 个 ml}^{-1}$ 。

2 细菌运移机理和模型的建立

Tim 等^[18] 将细菌和病毒在土壤中运移和影响机制分为物理过程、地球化学过程和生物过程。(1) 物理过程主要包括对流和水动力弥散。(2) 地球化学过程是细菌和病毒浓集过程, 它阻止或延迟了细菌和病毒在土壤中的移动, 包括: 过滤、吸附、解吸和沉降。除此之外, Sarkar 等^[19] 认为“多颗粒水动力排斥 (Multiparticle hydrodynamic exclusion)” 和“孔隙桥 (Pore bridging)” 也会引起菌的滞留。(3) 生物过程主要指细菌作为活体而产生的生命过程如生长、死亡, 还有生长过程中产生的表面性质的改变, 如疏水性的变化, 也会影响细菌在土壤中的运移。

在忽略细菌的生长和死亡条件下, 以一级动力学方程表示不可逆滞留^[13,20], 平衡吸附和一级动力学吸附结合起来表示吸附和解吸过程的对流-弥散方程如下(饱和稳态条件)(简称双点模型)^[16]:

$$\left(1 + \frac{fK}{\theta}\right) \frac{\partial c}{\partial t} = D \frac{\partial^2 c}{\partial x^2} - v \frac{\partial c}{\partial x} - \frac{\alpha \rho}{\theta} [(1-f)Kc - s] - \mu_1 c \quad (1)$$

$$\frac{\partial s}{\partial t} = \alpha [(1-f)Kc - s] \quad (2)$$

式中, c 为溶液中菌的浓度 [M L^{-1}]; s 为吸附在土壤上的细菌浓度 [M M^{-1}]; f 为平衡吸附位点占总吸附位点的比值; ρ 为土壤容重 [M L^{-3}]; K 为平衡分配常数 [$\text{L}^3 \text{M}^{-1}$]; D 为水动力弥散系数 [$\text{L}^2 \text{T}^{-1}$]; v 为平均孔隙水流速度 [L T^{-1}]; θ 为体积含水量 [$\text{L}^3 \text{L}^{-3}$]; μ_1 为一级滞留反应系数 [T^{-1}]; α 为一级吸附动力学反应系数 [T^{-1}]。当 $f = 0$ 时, 方程(1)和(2)成为只含动力学吸附的一点模型; 当动力学吸附 $s = 0$ 且 $f = 1$ 时, 方程(1)成为只含平衡吸附的平衡模型。

初始和边界条件:

$$\begin{cases} c = 0, & s = 0, & 0 \leq x \leq L, & t = 0 \\ vc - D \partial c / \partial x = vc_0, & x = 0, & t \leq t_1 \\ vc - D \partial c / \partial x = 0, & x = 0, & t > t_1 \\ \partial c / \partial x = 0, & x = L, & t > 0 \end{cases} \quad (3)$$

方程(1)和(2)无量纲化后具有如下形式^[20]:

$$\beta R \frac{\partial C_1}{\partial T} = \frac{1}{P} \frac{\partial^2 C_1}{\partial Z^2} - \frac{\partial C_1}{\partial Z} - \omega (C_1 - C_2) - \mu C_1 \quad (4)$$

$$(1 - \beta) R \frac{\partial C_2}{\partial T} = \omega (C_1 - C_2) \quad (5)$$

式中, β 为分配系数; R 为延迟因子; ω 为质量转移系数; P 为 Peclet 数; C_1 为无量纲溶液菌浓度; C_2 为无量纲吸附菌浓度, 这些参数与有量纲参数间具体转换见表 2^[21]。

无量纲化后的初始和边界条件:

$$\begin{cases} C_1(z, 0) = C_2(z, 0) = 0, & 0 \leq Z \leq 1 \\ C_1(0, T) - \frac{1}{P} \frac{\partial C_1(0, T)}{\partial Z} = C_0(T), & T \leq T_1 \\ C_1(0, T) - \frac{1}{P} \frac{\partial C_1(0, T)}{\partial Z} = 0, & T > T_1 \\ \frac{\partial C_1}{\partial Z}(1, T) = 0 \end{cases} \quad (6)$$

Toride 等^[20] 开发了求解方程(4)和(5)的软件 CXTFIT。该软件基于 Levenberg-Marquardt 算法, 对均质土壤一维稳定流动中溶质混合置换实验所得到的穿透曲线进行非线性最小二乘拟合。本文采用此软件获得有关大肠杆菌的运移参数, 同时为验证所估算参数的正确性, 用双点吸附模型预报了平行实验中大肠杆菌的运移行为。

表 2 有量纲参数进行无量纲化时参数转换表

Table 2 Dimensionless parameters for the two-site model

模型 Model	T	Z	P	R	β	ω	μ	C_1	C_2
一点模型 One-site model	vt/L	x/L	vL/D	$1 + (K/\theta)$	$1/R$	$\alpha(R-1)L/v$	$L\mu_1/v$	c/c_0	s/Kc_0
双点模型 Two-site model	vt/L	x/L	vL/D	$1 + (K/\theta)$	$[1 + f(R-1)]/R$	$\alpha(1-\beta)RL/v$	$L\mu_1/v$	c/c_0	$s/(1-f)Kc_0$

3 结果与讨论

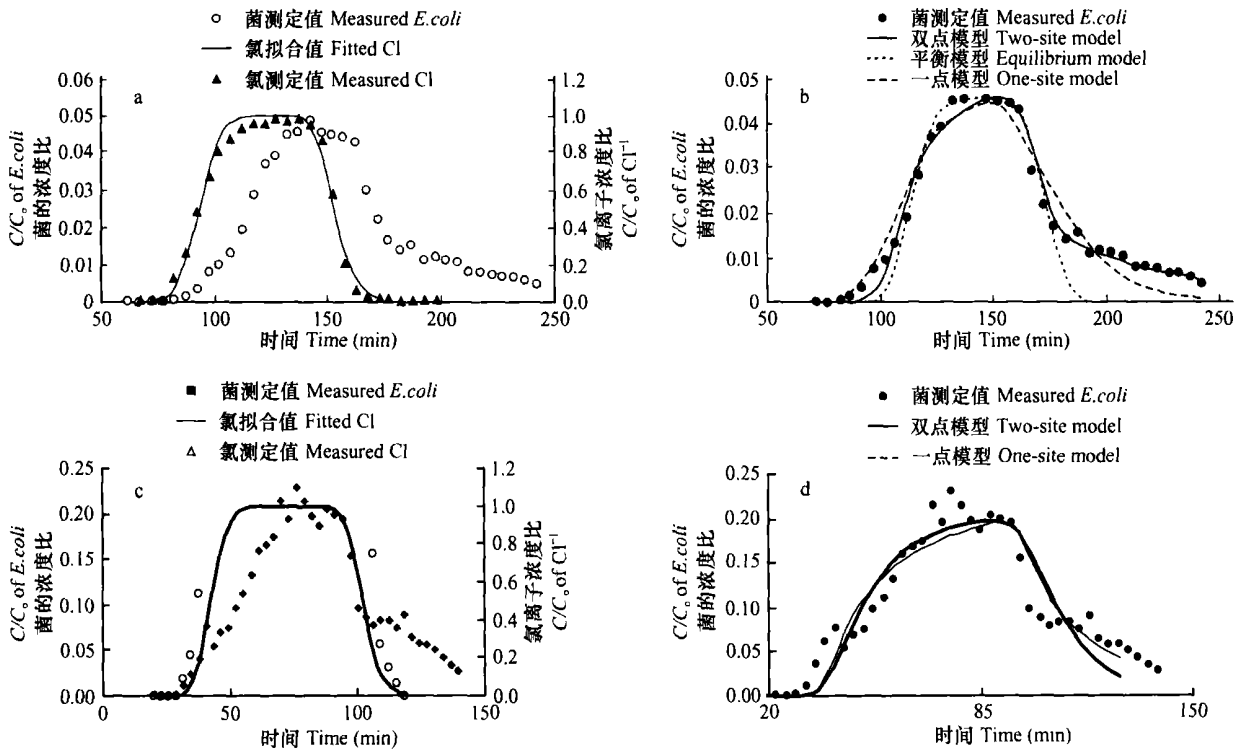
表征出流液相对浓度 (c/c_0) 和孔隙体积或时间函数关系的曲线称为穿透曲线 (Breakthrough Curve, 简称 BTC)。本文通过混合置换 (Miscible displacement) 实验, 得到了不同平均孔隙流速下大肠杆菌和示踪剂 Cl^- 的 BTC。然后用化学平衡和非平衡 (一点和双点吸附) 模型拟合 BTC。首先在已知平均孔隙流速 v 条件下, 基于示踪剂与土壤基质不发生反应, 给定 $R = 1$, 用示踪剂 BTC 拟合求 D 。然后把 v 和 D 作为已知条件, 用平衡模型、一点模型和双点模型拟合大肠杆菌的 BTC, 求得其他 4 个参数。最后用所得参数对平行实验结果进行预报。图 1 是不同速度下, 不同模型拟合大肠杆菌 BTC 结果 (仅列举两组数据), 拟合的参数值见表 3。

从表 3 的拟合结果看, 随流速的减小, 滞留系数 μ 增加, 原因是速度越小, 大肠杆菌在土柱中的停留时间越长, 与土壤颗粒发生反应的机会增加; Jin 等^[2]

也发现病毒因滞留而减少的流出量与它在土柱中的停留时间存在函数关系, 且认为滞留是不可逆的。

从不同模型比较来看, 速度较大时, 平衡吸附所占比例 (f 值) 较小, 一点和双点模型差异不大; 但速度较小时, 平衡吸附不可忽视, 因此综合起来, 还是双点模型更优。如果用只包含动力学吸附、不含滞留的对流-弥散方程^[10, 12, 23, 24], 即方程 (1) 和 (2) 中 f 和 μ_1 都为零 (简称为吸-解模型) 来描述细菌在壤土中的运移, 得到的结果与含有滞留的双点模型截然不同 (见图 2)。

从图 2 的拟合结果看, 两个模型在 BTC 的上升和下降阶段拟合基本相似, 但是在拖尾阶段, 吸-解模型的拟合结果是随时间增加, BTC 拖尾逐渐升高; 而含有滞留项的双点模型拟合结果是随时间增加, 菌的流出量逐渐下降, 这符合实际测定的结果。从大肠杆菌流出量看, 400 min (约为 10 PV) 时, 穿过土柱的菌的流出量仅为注入量的 8.16%, 说明有不可逆过程参与菌的运移。这说明拟合大肠杆菌在砂质壤土运移时, 不仅要考虑吸附, 还要考虑不可逆滞留过程。



a $v = 0.214 \text{ cm min}^{-1}$ 时大肠杆菌及对应示踪剂的 BTC b $v = 0.214 \text{ cm min}^{-1}$ 时菌 BTC 的不同模型拟合值
c $v = 0.470 \text{ cm min}^{-1}$ 时大肠杆菌及对应示踪剂的 BTC d $v = 0.470 \text{ cm min}^{-1}$ 时菌 BTC 的不同模型拟合值

a and c: BTCs of *E. coli* and tracer at two velocities of 0.214 and 0.470 cm min^{-1} ; b and d: simulated BTCs of *E. coli* with different models at two velocities of 0.214 and 0.470 cm min^{-1}

图 1 不同速度时大肠杆菌和示踪剂在砂质壤土中的 BTC 及不同模型模拟值

Fig 1 BTCs of *E. coli* and tracer through sandy loam varying with the velocities and simulated results of BTCs of *E. coli* with the models

表 3 用不同模型拟合大肠杆菌在砂质壤土的 BTC 得到的参数值

Table 3 Fitted parameters of BTCs of *E. coli* through sandy loam with different models

模型 Model	v (cm min ⁻¹)	D (cm ² min ⁻¹)	R	β	f	μ	ω	α (min ⁻¹)	决定系数 R^2
一点 One site	0.214	0.0149	1.350	0.741	0	2.950	5.241	0.160	0.947
双点 Two-site	0.214	0.0149	1.530	0.782	0.371	2.810	0.570	0.0169	0.980
一点 One site	0.223	0.0166	1.410	0.709	0	2.761	2.340	0.0636	0.864
双点 Two-site	0.223	0.0166	1.610	0.699	0.213	2.640	1.220	0.0256	0.886
一点 One site	0.493	0.0250	1.290	0.775	0	1.550	1.640	0.139	0.906
双点 Two-site	0.493	0.0250	1.290	0.787	0.054	1.551	1.610	0.147	0.913
一点 One site	0.470	0.0360	1.350	0.741	0	1.560	0.963	0.0646	0.905
双点 Two-site	0.470	0.0360	1.270	0.798	0.051	1.600	1.090	0.0998	0.899

注: 大肠杆菌初始流入浓度都是 1×10^7 个 mL⁻¹; 土柱长 20 cm Note: Initial input concentration of *E. coli* is 1×10^7 cells mL⁻¹, the length of the column is 20 cm

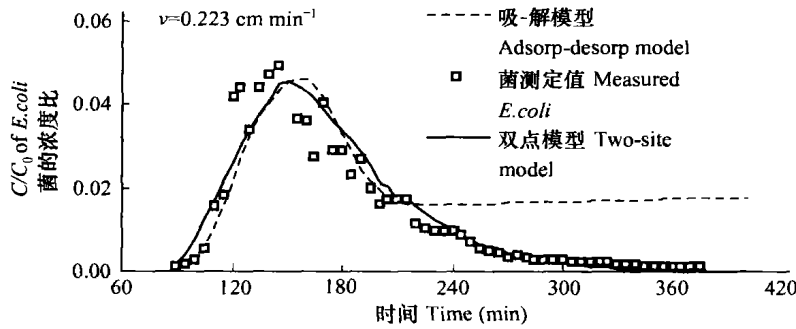


图 2 比较双点模型和吸-解模型拟合大肠杆菌 BTC 的结果

Fig 2 Comparison of the fitted results of *E. coli* between different models

4 模型检验

用平行实验对大肠杆菌运移模型进行检验。用图 1b 参数值的模拟结果与其平行实验的实测值比

较, 其结果见图 3。

用重复实验验证模型来看, 双点模型的决定系数 (R^2) 为 0.846 4, 一点模型的决定系数为 0.807 5, 表明双点模型优于一点模型。用残差分析方法进一步检验模型的结果也是双点模型优于一点模型 (将另文发表)。

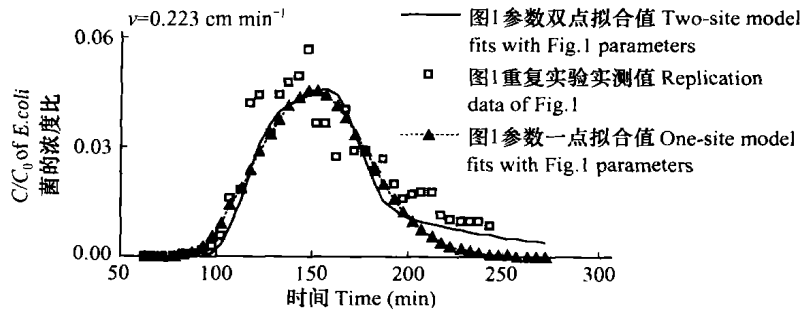


图 3 砂质壤土中大肠杆菌运移模型- 双点模型的验证

Fig 3 Verification of the two-site model for *E. coli*'s transport through sandy loam

5 小 结

本文通过稳态条件下大肠杆菌和示踪剂 Cl⁻ 在

饱和砂质壤土中的混合置换实验, 获得了反映大肠杆菌非平衡运移机理的 BTC, 并根据 van Genuchten 和 Wagnenet 提出的 CDE 数学模型和 CXFIT 软件进行拟合。结果表明, 在本文实验条件下, 含有化学

非平衡的双点吸附项和不可逆滞留项的对流-弥散方程可较好地模拟大肠杆菌在砂质壤土中的运移特性。大肠杆菌的 BTC 与示踪剂 Cl^- 相比峰值明显降低,且出现延迟,拖尾明显,总的流出量也明显少于示踪剂。当水流速度由 $0.214 \text{ cm min}^{-1}$ 增至 $0.470 \text{ cm min}^{-1}$ 时,大肠杆菌 BTC 峰值由 0.05 增至 0.2,且随速度的增加,滞留系数减小。

参考文献

- [1] Tan Y, Gannon J T, Baveye P, *et al.* Transport of bacteria in an aquifer sand: Experiments and model simulations. *Water Resour. Res.*, 1994, 30(12): 3 243~ 3 252
- [2] Bitton G, Lahav N, Henis Y. Movement and retention of *Klebsiella aerogenes* in soil columns. *Plant Soil*, 1974, 40: 373~ 380
- [3] Fontes D E, Mills A L, Hornberger G M, *et al.* Physical and chemical factors influencing transport of microorganisms through porous media. *Appl. Environ. Microbiol.*, 1991, 57(9): 473~ 481
- [4] Corapcioglu M, Haridas A. Transport and fate of microorganisms in porous media: A theoretical investigation. *J. Hydrology*, 1984, 72: 149~ 169
- [5] Corapcioglu M Y, Haridas A. Microbial transport in soils and groundwater: a numerical model. *Adv. Water Resources*, 1985, 8: 188~ 200
- [6] Taylor S W, Jaffe P R. Substrate and biomass transport in porous medium. *Water Resource Res.*, 1990, 26(9): 2 181~ 2 194
- [7] Huysman F, Verstraete W. Water-facilitated transport of bacteria in unsaturated soil columns: Influence of cell surface hydrophobicity and soil properties. *Soil Biol. Biochem.*, 1993, 25(1): 83~ 90
- [8] Jenkins M B, Lion L W. Mobile bacteria and transport of polynuclear aromatic hydrocarbons in porous media. *Appl. Environ. Microbiol.*, 1993, 59(10): 3 306~ 3 313
- [9] Bales R C, Hinkle S R. Bacteriophage adsorption during transport through porous media: Chemical perturbations and reversibility. *Environ. Sci. Technol.*, 1991, 25: 2 088~ 2 095
- [10] Lindqvist R, Cho J S, Enfield C G. A kinetic model for cell density dependent bacterial transport in porous media. *Water Resour. Res.*, 1994, 30(12): 3 291~ 3 299
- [11] Sim Y, Chrysikopoulos C V. Virus transport in unsaturated porous media. *Water Resour. Res.*, 2000, 36(1): 173~ 179
- [12] Bengtsson G, Lindqvist R. Transport of soil bacteria controlled by density-dependent sorption kinetics. *Water Resour. Res.*, 1995, 31(5): 1 247~ 1 256
- [13] Bai G Y, Busseau M L, Miller R M. Influence of a rhamnolipid biosurfactant on the transport of bacteria through a sandy soil. *Appl. Environ. Microbiol.*, 1997, 63(5): 1 866~ 1 873
- [14] Gannon J T, Mingeelrin U, Alexander M, *et al.* Bacterial transport through homogeneous soil. *Soil Biol. Biochem.*, 1991, 23(12): 1 155~ 1 160
- [15] Smith M S, Thomas G W, White R E, *et al.* Transport of *Escherichia coli* through intact and disturbed soil column. *J. Environ. Qual.*, 1985, 14: 87~ 90
- [16] van Genuchten M Th, Wagenet R J. Two-site/ two-region models for pesticide transport and degradation: Theoretical development and analytical solutions. *Soil Sci. Soc. Am. J.*, 1989, 53: 1 303~ 1 310
- [17] 李桂花, 李保国. 大肠杆菌在饱和砂土中的运移及其模拟. *土壤学报*, 2003, 40(5): 783~ 786. Li G H, Li B G. Bacterial transport in sandy soil: Experiment and modeling (In Chinese). *Acta Pedologica Sinica*, 2003, 40(5): 783~ 786
- [18] Tim U S, Mostaghimi S. Model for predicting virus movement through soils. *Ground Water*, 1991, 29(2): 251~ 259
- [19] Sarkar A K, Georgiou G, Shama M M. Transport of bacteria in porous media: an experimental investigation. *Biotechnology and Bioengineering*, 1994, 44: 489~ 497
- [20] Jin Y, Ellen P, Marylynn V Y. Effect of mineral colloids in virus transport through saturated sand columns. *J. Environ. Qual.*, 2000, 29: 532~ 539
- [21] Toride N, Leij F J, van Genuchten M Th. The CXTFIT code for estimating transport parameters from laboratory or field tracer experiments. Version 2.0. U. S. Salinity Laboratory, Research Report No. 137. CA: Riverside, 1995
- [22] Jin Y, Yates M V, Thompson S S, *et al.* Sorption of viruses during flow through saturated sand columns. *Environ. Sci. Technol.*, 1997, 31: 548~ 555
- [23] Hornberger G M, Mills A L, Heman J S. Bacterial transport in porous media: Evaluation of a model using laboratory observations. *Water Resour. Res.*, 1992, 28(3): 915~ 938
- [24] McCaulou D R, Bales R, Arnold R G. Effect of temperature-controlled motility on transport of bacteria and microspheres through saturated sediment. *Water Resour. Res.*, 1995, 31(2): 271~ 280

NON-EQUILIBRIUM TRANSPORT OF *ESCHERICHIA COLI* THROUGH SATURATED SANDY LOAM AND ITS SIMULATION WITH CDE MODEL

Li Guihua^{1,2} Li Baoguo^{1†}

(1 Key Laboratory of Soil and Water, MOA, Department of Soil and Water Sciences, China Agricultural University, Beijing 100094, China)

(2 Institute of Agricultural Resources and Regional Planning, Chinese Academy of Agricultural Sciences, Beijing 100081, China)

Abstract Transport of bacteria through subsurface environment was studied from different perspectives, including the fate of genetically engineered microorganisms in the environment, waste management, public health, microbially enhanced oil recovery and *in-situ* remediation of contaminated subsurface. The objective of this study was to investigate transport and sorption of bacteria in saturated sandy loam. *Escherichia coli* and Cl^{-1} tracer solution were introduced separately into saturated soil columns as a pulse function under steady water flow. A mathematical model based on one-dimensional convection-dispersion equation (CDE), including the local equilibrium assumption and non-equilibrium assumption, was formulated to describe *E. coli*'s transport. The CXTFIT program was used to fit mathematical solutions of different theoretical transport models, based upon the CDE, to experimental results. The results show transport of *E. coli* through sandy loam was well described by the chemical nonequilibrium two-sites model when a first-order kinetic removal process was assumed. Bacteria were removed at a significantly greater rate than Cl^{-1} tracer. Breakthrough Curve (BTC) of *E. coli* was retarded and had a longer elution tailing when it was compared with that of Cl^{-1} tracer, and the relative concentration of *E. coli* at the peak of BTC was much lower than that of the tracer. The total breakthrough of *E. coli* was also much smaller than that of the tracer. The increase in flow velocity from 0.214 to 0.470 cm min^{-1} resulted in marked increase in *E. coli* from 0.05 to 0.2 at the peak of BTC, but decrease in retention coefficient.

Key words *Escherichia coli*; Adsorption; CDE; Transport; Sandy loam