

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第34卷 第9期

Vol.34 No.9

2013

中国科学院生态环境研究中心 主办
科学出版社 出版



目次

利用PUF被动采样技术研究长三角城市群大气中多环芳烃的时空分布及来源 张利飞, 杨文龙, 董亮, 史双昕, 周丽, 张秀蓝, 李玲玲, 钮珊, 黄业茹 (3339)

FTIR对大气颗粒物PM_{2.5}中硝酸盐的定量分析 刘娜, 魏秀丽, 高闽光, 徐亮, 焦洋, 李胜, 童晶晶, 程巴阳 (3347)

福建茫荡山地区春季大气O₃、HONO、HCHO、H₂O₂对·OH的贡献率研究 刘昊, 王会祥 (3352)

水体类固醇雌激素污染现状研究进展 都韶婷, 金崇伟, 刘越 (3358)

嘉兴市地表水中兽用抗生素的污染现状调查 闫幸, 余卫娟, 兰亚琼, 李立, 吕升, 叶朝霞, 张永明, 刘锐, 陈吕军 (3368)

上海食用鱼中短链氯化石蜡的污染特征 姜国, 陈来国, 何秋生, 孟祥周, 封永斌, 黄玉妹, 唐才明 (3374)

水体环境内毒素活性的鲎法定量检测及影响因素研究 张灿, 刘文君, 张明露, 田芳, 孙雯, 钱令嘉, 战锐 (3381)

四环素类抗生素对淡水绿藻的毒性作用 徐冬梅, 王艳花, 饶桂维 (3386)

光照对东海典型赤潮藻生长及硝酸还原酶活性的影响 李鸿妹, 石晓勇, 丁雁雁, 唐洪杰 (3391)

围隔实验中浒苔在不同营养盐条件下的生长比较 庞秋婷, 李凤, 刘湘庆, 王江涛 (3398)

长江口及邻近海域浮游植物色素分布与群落结构特征 赖俊翔, 俞志明, 宋秀贤, 韩笑天, 曹西华, 袁涌铨 (3405)

长江中下游湖泊超微型真核藻类遗传多样性研究 李胜男, 史小丽, 谢薇薇, 龚伊, 孔繁翔 (3416)

峡谷型水源水库的氮、磷季节变化及其来源分析 黄廷林, 秦昌海, 李璇 (3423)

九龙江河流-库区系统沉积物磷特征及其生态学意义 鲁婷, 陈能汪, 陈朱虹, 王龙剑, 吴杰忠 (3430)

氮在高含沙水向人工浅水湖泊补水期间的变化规律 陈友媛, 申宇, 杨世迎 (3437)

石灰石和黄铁矿-石灰石人工湿地净化河水的研究 张菁, 李睿华, 李杰, 胡俊松, 孙茜茜 (3445)

杭州湾潮滩湿地3种优势植物碳氮磷储量特征研究 邵学新, 李文华, 吴明, 杨文英, 蒋科毅, 叶小齐 (3451)

滇池优势挺水植物茭草和芦苇降解过程中DOM释放特征研究 谢理, 杨浩, 渠晓霞, 朱元荣, 鄢元波, 张明礼, 吴丰昌 (3458)

自来水处理工艺对溶解相中全氟化合物残留的影响 张鸿, 陈清武, 王鑫璇, 柴之芳, 沈金灿, 杨波, 刘国卿 (3467)

J市饮用水氯消毒副产物分析及其健康风险评价 李晓玲, 刘锐, 兰亚琼, 余素林, 文晓刚, 陈吕军, 张永明 (3474)

水中硫酸根及溶解氧质量浓度变化对管垢金属元素释放的影响 吴永丽, 石宝友, 孙慧芳, 张枝焕, 顾军农, 王东升 (3480)

重金属捕集剂对水中微量Hg(II)的处理研究 胡运俊, 盛田田, 薛晓芹, 谭丽莎, 徐新华 (3486)

聚合氯化铁-聚(环氧氯丙烷-二甲胺)复合絮凝剂在模拟水处理中的混凝特性研究 刘新新, 杨忠莲, 高宝玉, 王燕, 岳钦艳, 李倩 (3493)

镁铝复合脱色絮凝剂的微观结构形态及絮凝机制 桑义敏, 常雪红, 车越, 谷庆宝 (3502)

钴掺杂铁酸铋活化过硫酸盐降解水中四溴双酚A的研究 欧阳磊, 丁耀彬, 朱丽华, 唐和清, 廖海星 (3507)

以海泡石为载体的双金属多相类芬顿催化剂的制备及表征 宿程远, 李伟光, 刘兴哲, 王恺尧, 王勇 (3513)

氧化还原介体调控亚硝酸盐反硝化特性研究 赵丽君, 马志远, 郭延凯, 席振华, 杜海峰, 刘晓宇, 郭建博 (3520)

缓释碳源滤池用于二级出水的深度脱氮 唐蕾, 李彭, 左剑恶, 袁琳, 李再兴 (3526)

微膨胀对好氧颗粒污泥脱氮过程中N₂O产生量的研究 陈丽丽, 高大文 (3532)

Fenton试剂与CPAM联合调理对污泥脱水效果的影响研究 马俊伟, 刘杰伟, 曹芮, 岳东北, 王洪涛 (3538)

高效厌氧氨氧化颗粒污泥的动力学特性 唐崇俭, 熊蕾, 王云燕, 郑平 (3544)

内蒙古温带草原氮沉降的观测研究 张菊, 康荣华, 赵斌, 黄永梅, 叶芝祥, 段雷 (3552)

湘中矿区不同用地类型面源Cd输出负荷的原位实验研究 刘孝利, 曾昭霞, 陈喆, 铁柏清, 陈永稳, 叶长城 (3557)

蠡湖沉积物重金属形态及稳定性研究 王书航, 王雯雯, 姜霞, 宋倩文 (3562)

密云县境内潮河流域土壤重金属分析评价 于洋, 高宏超, 马俊花, 李迎霞, 莫雁, 孔彦鸿 (3572)

西北干旱区黄河沿岸典型工业带表土磁性特征及其环境意义 许淑婧, 张英, 余晔, 王博, 夏敦胜 (3578)

复合稳定剂对砷污染土壤的稳定研究 王浩, 潘利祥, 张翔宇, 李萌, 宋宝华 (3587)

湖南下水湾铅锌尾矿库优势植物重金属含量及富集特征 何东, 邱波, 彭尽晖, 彭亮, 胡凌霄, 胡瑶 (3595)

安太堡露天矿复垦地不同人工植被恢复下的土壤酶活性和肥力比较 王翔, 李晋川, 岳建英, 周小梅, 郭春燕, 卢宁, 王宇宏, 杨生权 (3601)

三苯基锡的微生物降解及其对降解菌的影响 叶锦韶, 田云, 尹华, 彭辉, 黄捷, 麻榆佳 (3607)

二氯甲烷降解菌 *Methylobacterium rhodesianum* H13 的分离鉴定及降解特性研究 刘洪霞, 朱润晔, 欧阳杜娟, 庄庆丰, 陈东之, 陈建孟 (3613)

引物选择对污泥微生物多样性分析的影响 徐爱玲, 吴等等, 宋志文, 任杰, 夏岩, 董珊珊, 刘梦 (3620)

钙铝类水滑石衍生复合氧化物的SO₂储存性能研究 曹琳, 王海滨, 解强 (3627)

基于转运站满负荷的北京市新东西城区生活垃圾物流优化方案研究 袁京, 李国学, 张红玉, 罗一鸣 (3633)

重金属污染土壤治理与生态修复论坛会议论文

多证据分析技术在场地重金属污染评价中的应用研究 姜林, 钟茂生, 朱笑盈, 姚珏君, 夏天翔, 刘辉 (3641)

我国城市不同功能区地表灰尘重金属分布及来源 李晓燕, 刘艳青 (3648)

黄河下游滩区开封段土壤重金属分布特征及其潜在风险评价 张鹏岩, 秦明周, 闫江虹, 胡长慧, 赵亚平 (3654)

青岛北站规划区原场地表层土壤重金属污染研究 朱磊, 贾永刚, 潘玉英 (3663)

某铅蓄电池厂土壤中铅的含量分布特征及生态风险 郑立保, 陈卫平, 焦文涛, 黄锦楼, 魏福祥 (3669)

某铅冶炼厂对周边土壤质量和人体健康的影响 周小勇, 雷梅, 杨军, 周广东, 郭广慧, 陈同斌, 万小铭, 梁琪, 乔鹏伟 (3675)

某铅蓄电池厂表土不同粒径中铅分布规律研究 岳希, 孙体昌, 黄锦楼 (3679)

原位生物稳定固化技术在铬污染场地治理中的应用研究 张建荣, 李娟, 许伟 (3684)

淋洗剂对多金属污染尾矿土壤的修复效应及技术研究 朱光旭, 郭庆军, 杨俊兴, 张晗芝, 魏荣菲, 王春雨, Marc Peters (3690)

铅蓄电池厂污染土壤中重金属铅的清洗及形态变化分析 任贝, 黄锦楼, 苗明升 (3697)

超声波辅助化学萃取对某工业场地铅污染土壤修复效果研究 王鑫杰, 黄锦楼, 刘志强, 岳希 (3704)

摩擦清洗修复铅污染土壤的参数优化及清洗效率评价 杨雯, 黄锦楼, 彭会清, 李思拓 (3709)

土壤重金属钝化修复剂生物炭对镉的吸附特性研究 郭文娟, 梁学峰, 林大松, 徐应明, 王林, 孙约兵, 秦旭 (3716)

无机稳定剂对重金属污染土壤的化学稳定修复研究 曹梦华, 祝玺, 刘黄诚, 王琳玲, 陈静 (3722)

《环境科学》征稿简则(3404) 《环境科学》征订启事(3444) 信息(3492, 3551, 3696, 3715)

三苯基锡的微生物降解及其对降解菌的影响

叶锦韶¹, 田云¹, 尹华^{2*}, 彭辉¹, 黄捷¹, 麻榆佳¹

(1. 暨南大学环境工程系, 广东省高校水土环境毒性污染防治与生物修复重点实验室, 广州 510632; 2. 华南理工大学环境与能源学院, 工业聚集区污染控制与生态修复教育部重点实验室, 广州 510006)

摘要: 为了探明三苯基锡 (TPhT) 微生物降解途径, 分析 TPhT 生物降解机制, 及降解过程 TPhT 对降解菌的毒性影响, 采用 Biolog 法研究了克雷伯氏菌处理不同浓度 TPhT 后菌体利用碳源能力的改变, 并利用 GC-MS 和 X 射线光电子能谱检测了 TPhT 的降解产物. 处理 2 h 后, $1 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ TPhT 对降解菌利用碳源的促进作用最强. 原子力显微镜观察发现, 降解 TPhT 后部分菌体内含物流失, 细胞凋亡, 但大部分菌体保持完整形态, 对照菌体表面出现细小褶皱. 胞内酶在 120 h 内对 $3 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ TPhT 的降解率即可达 66.0%, 效果明显优于菌体细胞. 综合 GC-MS 和 XPS 分析结果发现, TPhT 降解过程会产生二苯基锡 (DPHT) 和一苯基锡 (MPHT), 并最终形成无机的 Sn^{4+} .

关键词: 克雷伯氏菌; 三苯基锡; 生物降解; 降解途径; 有机锡

中图分类号: X172 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2013)09-3607-06

Biodegradation of Triphenyltin and Its Effect on *Klebsiella pneumoniae*

YE Jin-shao¹, TIAN Yun¹, YIN Hua², PENG Hui¹, HUANG Jie¹, MA Yu-jia¹

(1. Key Laboratory of Water/Soil Toxic Pollutants Control and Bioremediation of Guangdong Higher Education Institutes, Department of Environmental Engineering, Jinan University, Guangzhou 510632, China; 2. Key Laboratory of Pollution Control and Ecosystem Restoration in Industry Clusters, Ministry of Education, College of Environment and Energy, South China University of Technology, Guangzhou 510006, China)

Abstract: To investigate the pathway and mechanism of triphenyltin (TPhT) biodegradation by *Klebsiella pneumoniae*, and the effects of TPhT on cells during the degradation process, the alteration of carbon utilization ability of the strain after dealing with different concentrations of TPhT was studied by the Biolog method, and the degradation pathway of TPhT was explored by GC-MS and X-ray photoelectron spectroscopy (XPS). After degradation for 2 h, the nutrient utilization capacity of *K. pneumoniae* was significantly improved by $1 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ TPhT. Atomic force microscope observation found that exposure to TPhT changed the cellular morphology, inducing the apoptosis of some cells, but most of the cells still maintained intact and had smooth cell wall. The efficiencies of TPhT removal by intracellular enzyme were up to 66.0% within 120 h, which demonstrated that endoenzyme was more effective than the intact cells. The results of GC-MS and XPS revealed that during the biodegradation process, TPhT was transformed to diphenyltin, monophenyltin and finally inorganic tin.

Key words: *Klebsiella pneumoniae*; triphenyltin (TPhT); biodegradation; degradation pathway; organotin

有机锡化合物 (OTC) 是目前排放量最大的有机金属之一^[1,2], 常用作防污涂料、塑料、杀虫剂和杀菌剂等的有效成分或添加剂, 广泛地应用于工业、农业、交通、化工等领域^[3-6]. 近年来, 大量的 OTC 通过各种途径进入水环境中, 对海洋生物造成了严重的毒害, 引起软体动物、鱼类等物种发生性畸变^[7,8], 其中对海洋影响最大的为三苯基锡 (TPhT) 和三丁基锡 (TBT). 而且, OTC 能通过食物链的富集作用积累, 进而对人体健康造成潜在危害^[9]. 由于其高毒性和持久性, 水环境中的有机锡污染一直受到普遍关注^[10].

关于 OTC 生物降解方面的研究, 目前主要侧重于降解菌的选育、降解性能影响因素分析和降解产物检测手段的改进^[11,12]. 性能研究发现, 共存污染物、环境中溶解氧浓度和有机锡污染物的初始浓度

等因素均会对有机锡的生物降解效果产生影响^[13,14]. 对于 OTC 微生物降解过程降解菌的生理生化指标、微观形态与 OTC 降解机制等方面的研究还有待深化. 本研究利用课题组前期筛选的 TPhT 高效降解菌克雷伯氏菌 (*Klebsiella pneumoniae*)^[14] 开展 TPhT 的微生物降解, 同时从污染物和降解菌的角度, 分析 TPhT 对菌体的影响, 以及菌体对 TPhT 的降解途径, 以期阐明有机锡污染物的生物降解机制提供实验依据.

收稿日期: 2012-12-31; 修订日期: 2013-01-30

基金项目: 国家自然科学基金项目 (21007020); 广州市珠江科技新星专项 (2012J2200056)

作者简介: 叶锦韶 (1977~), 男, 博士, 副教授, 主要研究方向为水环境生物修复技术, E-mail: jsye@jnu.edu.cn

* 通讯联系人, E-mail: huayin@scut.edu.cn

1 材料与方法

1.1 实验材料

TPhT 储备液:称取定量 TPhT,用色谱级甲醇溶解,配制成 $1 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$ 的储备液, 4°C 下保存待用.

实验菌种:TPhT 高效降解菌 *K. pneumoniae* 由本课题组于有机锡污染的环境中筛选获得^[14].

牛肉膏蛋白胨培养基:牛肉膏 3 g,蛋白胨 10 g, NaCl 5 g,蒸馏水 1 000 mL, pH 值调节至 7.2~7.4.

1.2 TPhT 的生物降解实验

1.2.1 菌悬液配制

K. pneumoniae 于牛肉膏蛋白胨培养基中培养 36 h 后,在 $4\ 000 \text{ r}\cdot\text{min}^{-1}$ 的转速下离心 5 min 后所得菌体用蒸馏水洗涤 2 次,配成 $100 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$ 的菌悬液.

1.2.2 TPhT 生物降解

加入 TPhT 待甲醇挥发后加入菌悬液,补充无菌双蒸水至处理体系总体积为 10 mL,并使 TPhT 的浓度为 $3 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$,投菌量湿重为 $5 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$. 在 30°C 、 $130 \text{ r}\cdot\text{min}^{-1}$ 条件下避光降解.

1.3 菌体降解 TPhT 过程对 31 种碳源的利用效果

在降解时间分别为 2 h 和 120 h 时,于 TPhT 生物降解体系取样,稀释后加入 ECO 板中,利用 Biolog 法于 1~168 h 测定菌体降解 TPhT 过程对 31 种碳源的利用能力,并设置不加污染物的对照实验,每组设 3 个平行.

1.4 TPhT 降解菌的微观形态观察

取等量在牛肉膏蛋白胨培养基和含 $3 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ TPhT 的蒸馏水中振荡 120 h 后的菌体,及没处理污染物的对照菌体,于 PHILIPS XL-30ESEM 原子力显微镜中观察菌体表面微观形态.

1.5 *K. pneumoniae* 及其胞内酶液对 TPhT 的降解

胞内酶液的提取:将牛肉膏蛋白胨培养基培养 36 h 的菌体洗涤,称取一定量用超声波破碎(工作 5 s,间隔 10 s,超声 50 次,功率 450 W)后,离心 10 min 取上清液用 $0.22 \mu\text{m}$ 滤膜抽滤即得胞内酶液.

胞内酶液中蛋白含量的测定:分别在 1~6 号试管中加入标准蛋白溶液 0、0.2、0.4、0.6、0.8 和 1.0 mL,补充蒸馏水至体积为 1.0 mL(此时蛋白含量依次为 0、20、40、60、80、 $100 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$),之后依次加入 5 mL 考马斯亮蓝溶液,混合放置 5 min 后在 595 nm 下比色,绘制标准曲线. 样品提取液中蛋白质浓度的测定方法与标准曲线测定方法一致.

1.6 TPhT 降解产物的 GC-MS 检测

标样的预处理:取 5 mL 利用甲醇作为溶剂、浓度均为 $1 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 的 TPhT、DPhT、MPhT,加入 5 mL 醋酸钠/冰乙酸缓冲溶液($\text{pH} = 4.5$)和 2 mL 2% 的四甲基硼化钠(NaDDTC)溶液,超声 15 min,加入 5 mL 正己烷,超声 15 min,静置分层,取上层有机相进行 GC-MS 分析.

样品的预处理: $3 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ TPhT 在投菌量为 $5 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$ 的 10 mL 降解体系中分别降解 24、72 和 144 h 后,用 10 mL 正己烷萃取 2 次,合并有机相在 25°C 下旋转蒸发,加 5 mL 甲醇洗脱,然后按照标样的预处理方法进行实验.

GC 条件:DB-5MS 色谱柱($30 \text{ m}\times 0.25 \text{ mm}\times 0.25 \mu\text{m}$);柱温采用程序升温. 升温程序:初温 50°C ,保持 1.5 min 后以 $10^\circ\text{C}\cdot\text{min}^{-1}$ 速率升至 300°C ,保持 4 min;进样口温度 280°C ;载气为高纯氦(纯度 $>99.999\%$),流速 $1.1 \text{ mL}\cdot\text{min}^{-1}$;不分流进样,1.0 min 后开阀;进样量为 $2 \mu\text{L}$.

MS 条件:电离方式为电子轰击;电子能量 70 eV,离子源温度 250°C ,溶剂延迟 2.6 min,全扫描及选择离子监测,扫描范围 50~650 u,根据各种苯基锡化合物的保留时间及特征离子峰进行定性分析.

1.7 X 射线光电子能谱(XPS)实验

离心收集降解 TPhT 后的菌体,用冷冻干燥仪干燥 24 h 后,利用 XPS 仪将其与标样分别进行光电子能谱分析.

2 结果与分析

2.1 不同浓度 TPhT 对降解菌的毒性影响

Biolog-ECO 板共有 31 种碳源,常用于微生物特性研究,用每孔平均吸光度变化(AWCD)来衡量微生物利用不同碳源的整体能力^[15~17]. 实验结果如图 1 所示,*K. pneumoniae* 处理 4 种不同浓度的 TPhT

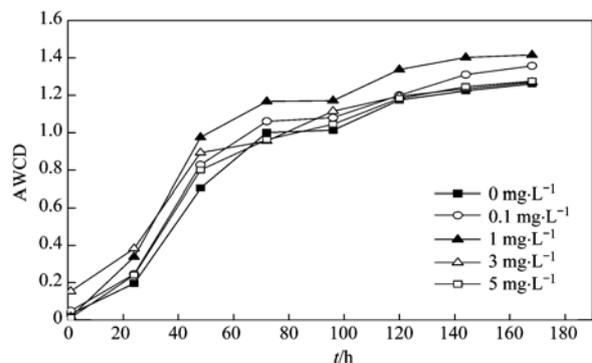


图 1 处理 TPhT 2 h 后菌体对碳源的利用效果

Fig. 1 Utilization of carbon nutrients by cells after degradation of TPhT for 2 h

2 h 后,微生物活性随培养时间延长而提高,在 120 h 左右达到平衡. 达到平衡时,处理 $1 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ TPhT 2 h 后的菌体利用碳源的整体能力最强,其次为处理 $0.1 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ TPhT 的菌体,而处理 $3 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 和 $5 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ TPhT 的菌体与对照菌体差别不大. 说明短时间内,低浓度 TPhT 的毒性作用可刺激菌体的生长,从而提高菌体对碳源的利用效率.

与处理 2 h 的结果相比,降解 TPhT 120 h 后的菌体在 ECO 板中培养 168 h 后,对碳源利用能力最强的是对照组(如图 2). 降解 $0.1 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 和 $1 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ TPhT 后的菌体 AWCD 值略大于 $3 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 和 $5 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ TPhT 处理后的菌体. 而在前 72 h,与污染物接触后的菌体对碳源的利用效果都比对照组的好. 除 $5 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 外,其余浓度呈现浓度越高菌体对碳源利用率越高的趋势. 在降解体系中,由于菌体利用 TPhT 做为唯一的能源物质生长繁殖,菌

体利用碳源能力的提升是由于菌体处理这些浓度 TPhT 后,体系中的菌量多于对照体系. ECO 板 96 h 时 AWCD 的变化规律显示,作为内分泌干扰物,高

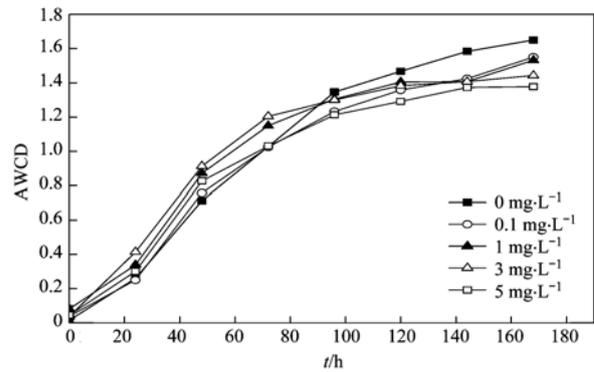


图 2 处理 120 h TPhT 后菌体对碳源的利用效果
Fig. 2 Utilization of carbon nutrients by cells after degradation of TPhT for 120 h

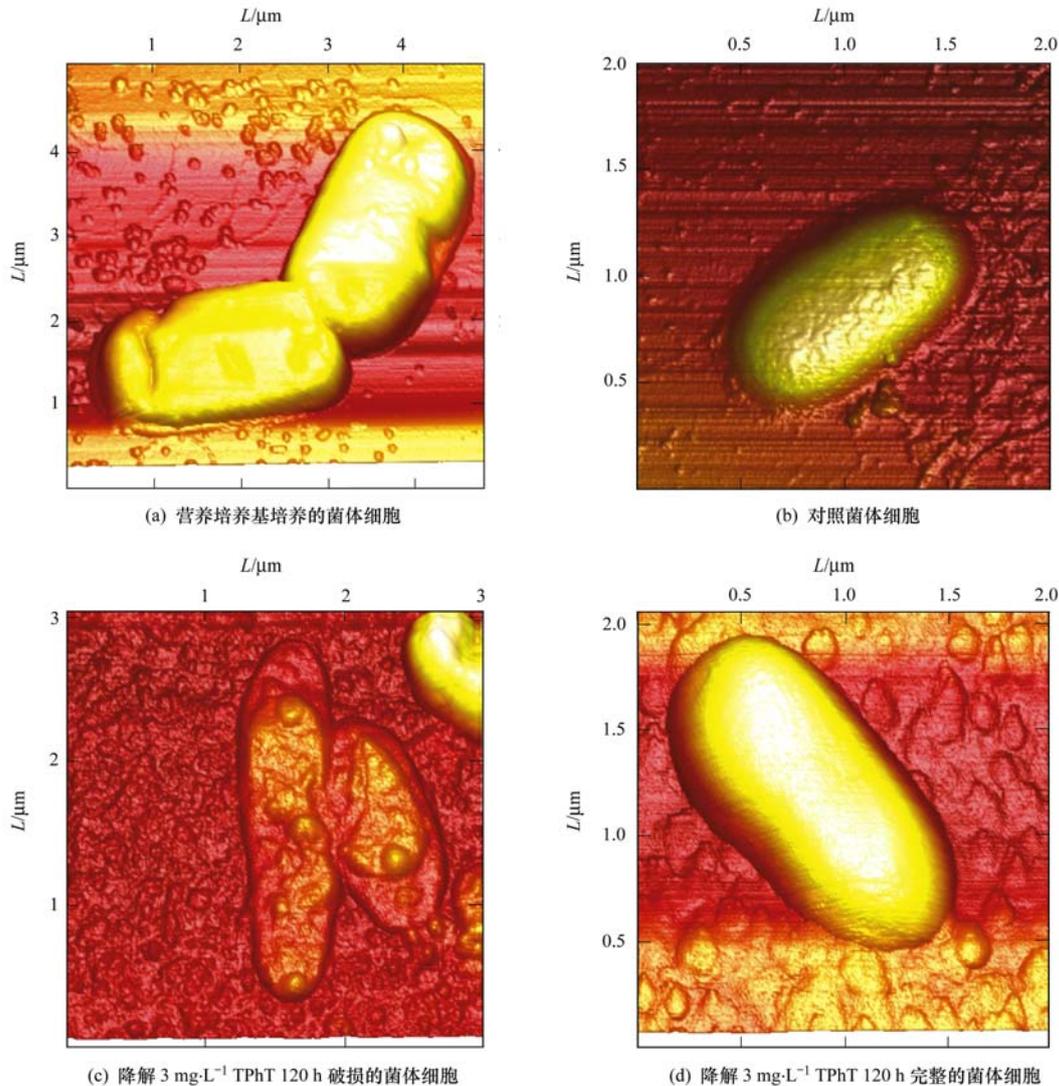


图 3 *K. pneumoniae* 菌体细胞表面微观形态
Fig. 3 Surface morphology of *K. pneumoniae*

浓度的 TPhT 会抑制菌体的生长,并削弱菌体对碳源的最终利用能力.

2.2 菌体降解 TPhT 前后表面微观形态变化

原子力显微镜的观察结果表明,营养培养基中生长的细胞由于经过了蒸馏水的清洗,表面出现少许凹陷[图 3(a)];而在蒸馏水体系里振荡 120 h 的对照菌体,在渗透压的作用下表面细小褶皱很多[图 3(b)];处理 TPhT 120 h 后的菌体由于 TPhT 的毒性作用,个别菌体内含物流失[图 3(c)],但仍有部分菌体能够保持良好的形态,表面光滑,个体饱满[图 3(d)]. TPhT 的存在对菌体造成一定损害的同时,也能供应能源维系正常的生理活动,并在一定程度上调节渗透压的平衡. 图 3(d) 也进一步说明了该降解菌对 TPhT 具有很强的适应性,降解 TPhT 120 h 后,部分菌体的微观形态仍然正常,细胞饱满.

2.3 *K. pneumoniae* 及其胞内酶液对 TPhT 的降解

为了研究胞内酶对 TPhT 的降解效果,实验采用超声法提取了菌体的胞内酶液,并且应用考马斯亮蓝法对菌体胞内酶液中的蛋白含量进行了测定. 利用标准蛋白质制作标准曲线,确定不同吸光度下的蛋白含量,结果如图 4 所示,可知曲线的相关性良好, r^2 值达到 0.996. 据此测定投菌量为 $5 \text{ g} \cdot \text{L}^{-1}$ 时菌体的胞内酶液的蛋白浓度为 $41.9 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$,蛋白含量为 $8.4 \text{ mg} \cdot \text{g}^{-1}$.

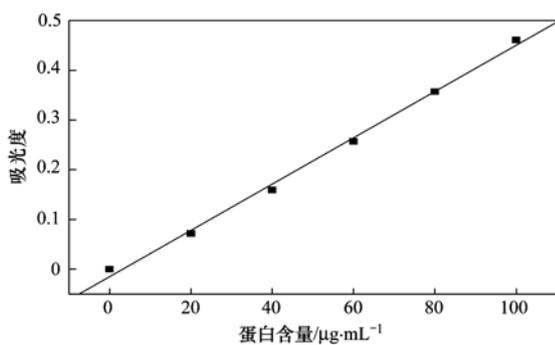


图 4 蛋白含量标准曲线

Fig. 4 Calibration curve of protein

提取等量菌体的胞内酶液和菌体分别降解 $3 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ TPhT 的效果显示(图 5),随着降解时间的延长,降解率均呈现逐渐增长的趋势,且胞内酶对 TPhT 的降解率明显高于菌体. 胞内酶液和菌体在降解时间为 120 h 时,对 TPhT 的降解率分别为 66.0% 和 60.4%. 由于 TPhT 作为一种难降解的有机金属化合物,降解前菌体首先要将其运

输到体内,并主要由胞内酶完成降解过程. 直接加入胞内酶液缩短了其与 TPhT 接触所需要的运输时间,接触面积也大大增加,因此降解效率更高.

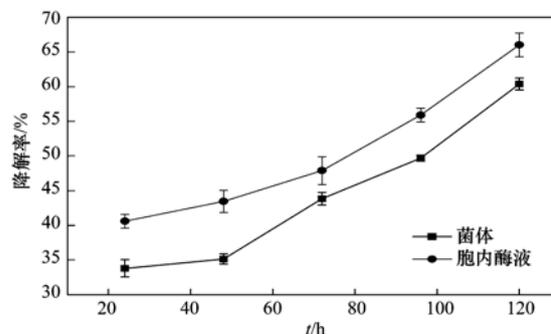


图 5 *K. pneumoniae* 及其胞内酶对 TPhT 的降解

Fig. 5 Degradation of TPhT by *K. pneumoniae* and endoenzyme

2.4 TPhT 的降解途径研究

在 TPhT 降解途径的摸索中,利用衍生化试剂 NaDDTC 对 TPhT 及其可能产生的中间产物 DPhT、MPhT 的混标进行了衍生化处理,并采用 GC-MS 进行产物检测^[18~22]. 图 6 中出现的 3 个峰根据其出峰时间的先后顺序依次为 MPhT、DPhT 和 TPhT,表 1 为 3 种有机锡化合物的保留时间及其特征离子质核比.

对 TPhT 降解 120 h 后的样品衍生化处理分析发现,TPhT 降解后出现了 DPhT 和 MPhT(图 7). 证明 *K. pneumoniae* 对 TPhT 的微生物降解,是将大分子的 TPhT 逐渐降解为分子结构更为简单、毒性更低的 DPhT 和 MPhT,该过程是 TPhT 脱苯解毒的过程.

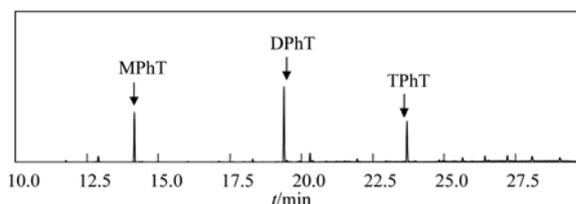


图 6 TPhT、DPhT 和 MPhT 的 GC-MS 谱图

Fig. 6 GC-MS spectra of TPhT, DPhT and MPhT

表 1 3 种有机锡化合物的选择离子检测条件

组别	保留时间/min	代表物质	特征离子(m/z)
1	14.164	MPhT	255, 253, 197
2	19.391	DPhT	303, 301, 275
3	23.685	TPhT	351, 349, 197

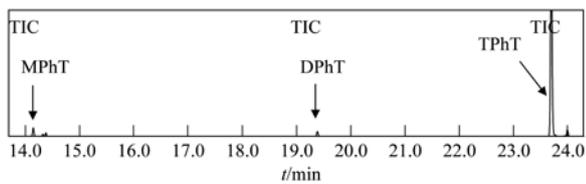


图7 TPhT及其产物的GC-MS谱图

Fig. 7 GC-MS spectra of TPhT and its metabolites

2.5 X-射线光电子能谱实验

GC-MS方法只能对有机锡化合物进行检测,而无法对终产物无机锡的形态进行分析,为了完善有机锡的降解途径,考虑到有机锡独特的有机-无机特性,本实验选择了针对固体样品元素形态进行无损分析的X-射线光电子能谱仪,对Sn的形态进行分析。

XPS技术可以为固体物质提供厚度约为2~5 nm的表面成分分析,目前已经被成熟地应用于分析各类材料,但其应用于生物表面的分析并不多见^[23,24]。对 $\text{SnCl}(\text{C}_6\text{H}_5)_3$ 标准品进行了XPS检测,将其作为降解后菌体表面Sn元素分析的对照。TPhT中Sn 3d5峰谱图经软件XPSpeak拟合,此峰位结合能为487.0 eV(图8)。降解TPhT 120 h后的样品Sn 3d5峰谱图,经拟合得到2个峰(图9),该峰位的结合能分别为486.5 eV和487.0 eV,与标准谱库^[25]对照发现,486.5 eV结合能代表的物质是 SnO_2 。于是,对无机锡中的 SnO_2 标准样品进行了XPS检测,所得Sn 3d5峰谱图经拟合得到1个峰,峰位的结合能为486.5 eV(图10)。因此TPhT降解的终产物为无机的 Sn^{4+} 。由此推导出TPhT的降解途径为逐步的脱苯解毒的过程,而终产物为无机锡。TPhT的降解途径可以用以下简式表示:

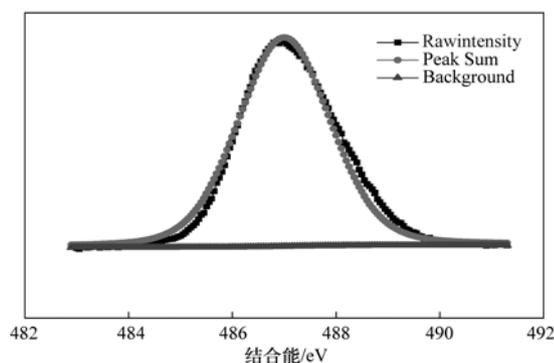
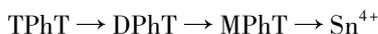


图8 TPhT的Sn 3d5峰谱图

Fig. 8 XPS spectra of TPhT

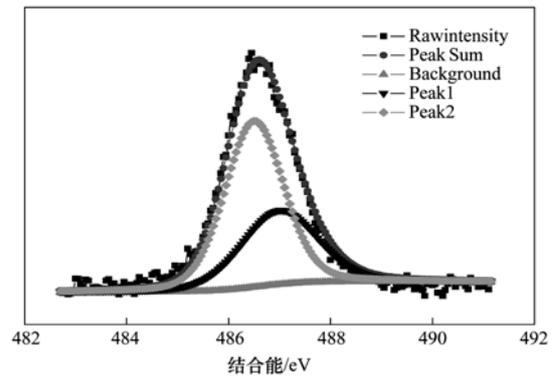
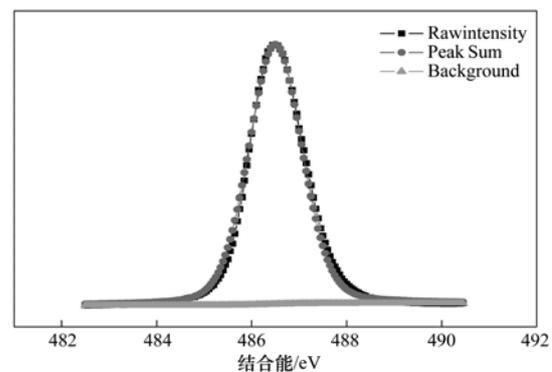


图9 降解TPhT 120 h后菌体的Sn 3d5峰谱图

Fig. 9 XPS spectra of *K. pneumoniae* after biodegradation of TPhT for 120 h图10 SnO_2 的Sn 3d5峰谱图Fig. 10 XPS spectra of SnO_2

3 结论

(1)低浓度TPhT会刺激菌体对碳源的利用,但在高浓度时则起了抑制效果。处理不同浓度的TPhT 2 h后, $1 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ TPhT对*K. pneumoniae*利用碳源的刺激效果最好;而处理TPhT 120 h后,高浓度TPhT会导致菌体对碳源利用能力的减弱。

(2)营养培养基培养的菌体经蒸馏水清洗后表面凹陷,降解 $3 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ TPhT 120 h后,大部分菌体生长良好,但部分菌体内含物流失,细胞凋亡。

(3)胞内酶对TPhT的降解效果优于菌体细胞;*K. pneumoniae*对TPhT的降解途径为逐步脱苯解毒和无机化的过程: $\text{TPhT} \rightarrow \text{DPhT} \rightarrow \text{MPhT} \rightarrow \text{Sn}^{4+}$ 。

参考文献:

- [1] Kucuksezgin F, Aydin-Onen S, Conul L T, et al. Assessment of organotin (butyltin species) contamination in marine biota from the Eastern Aegean Sea, Turkey[J]. Marine Pollution Bulletin, 2011, 62(9): 1984-1988.
- [2] Díez S, Jover E, Albaigés J, et al. Occurrence and degradation of butyltins and wastewater marker compounds in sediments from Barcelona harbor, Spain[J]. Science Direct, 2006, 32(7):

- 858-865.
- [3] Zachariadis G A, Rosenberb E. Determination of butyl- and phenyltin compounds in human urine by HS-SPME after derivatization with tetraethylborate and subsequent determination by capillary GC with microwave-induced plasma atomic emission and mass spectrometric detection[J]. *Talanta*, 2009, **78**(2): 570-576.
- [4] Cruz A, Caetano T, Suzuki S, *et al.* *Aeromonas veronii*, a tributyltin (TBT)-degrading bacterium isolated from an estuarine environment, Ria de Aveiro in Portugal[J]. *Science Direct*, 2007, **64**(5): 639-650.
- [5] Liu L L, Wang J T, Chung K N, *et al.* Distribution and accumulation of organotin species in seawater, sediments and organisms collected from a Taiwan mariculture area[J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2011, **63**(5-12): 535-540.
- [6] Radke B, Wasik A, Jewell L L, *et al.* Seasonal changes in organotin compounds in water and sediment samples from the semi-closed Port of Gdynia [J]. *Science of the Total Environment*, 2012, **441**(15): 57-66.
- [7] Hassani L H, Frenich A G, Vidal J L M, *et al.* Study of the accumulation of tributyltin and triphenyltin compounds and their main metabolites in the sea bass, *Dicentrarchus labrax*, under laboratory condition [J]. *Science of the Total Environment*, 2005, **348**(1-3): 191-198.
- [8] Sousa A, Matsudaria C, Takahashi S, *et al.* Integrative assessment of organotin contamination in a southern European estuarine system (Ria de Aveiro, NW Portugal); tracking temporal trends in order to evaluate the effectiveness of the EU ban [J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2007, **54**(10): 1645-1653.
- [9] Lee C C, Wang T, Hsieh C Y, *et al.* Organotin contamination in fishes with different living patterns and its implications for human health risk in Taiwan [J]. *Environmental Pollution*, 2005, **137**(2): 198-208.
- [10] Luan T G, Jin J, Chan S M N, *et al.* Biosorption and biodegradation of tributyltin (TBT) by alginate immobilized *Chlorella vulgaris* beads in several treatment cycles [J]. *Process Biochemistry*, 2006, **41**(7): 1560-1565.
- [11] Ye J S, Yin H, Peng H, *et al.* Biosorption and biodegradation of triphenyltin by *Brevibacillus brevis* [J]. *Bioresource Technology*, 2013, **129**: 236-241.
- [12] Heroult J, Nia Y, Denaix L, *et al.* Kinetic degradation processes of butyl- and phenyltins in soils [J]. *Chemosphere*, 2008, **72**(6): 940-946.
- [13] Antes F G, Flores E M, Dressler V L, *et al.* Speciation and degradation of triphenyltin in typical paddy fields and its uptake into rice plants [J]. *Environmental Science & Technology*, 2011, **45**(24): 10524-10530.
- [14] 佟瑶, 叶锦韶, 尹华, 等. 金属离子对三苯基锡酶促降解的影响 [J]. *环境科学*, 2011, **32**(3): 779-783.
- [15] 王强, 戴九兰, 吴大千, 等. 微生物生态研究中基于 BIOLOG 方法的数据分析 [J]. *生态学报*, 2010, **30**(3): 817-823.
- [16] Mary S, Richard D. Shifts in substrate utilization potential and structure of soil microbial communities in response to carbon substrates [J]. *Soil Biology & Biochemistry*, 2001, **33**(11): 1481-1491.
- [17] 李跃鹏, 尹华, 叶锦韶, 等. 外源微生物对土壤中锡形态及微生物多样性的影响 [J]. *化工学报*, 2012, **63**(6): 1850-1858.
- [18] Zachariadis G A, Rosenberg E. Speciation of organotin compounds in urine by GC-MIP-AED and GC-MS after ethylation and liquid-liquid extraction [J]. *Journal of Chromatography B*, 2009, **877**(11-12): 1140-1144.
- [19] Bernat P, Długoński J. Isolation of *Streptomyces* sp. strain capable of butyltin compounds degradation with high efficiency [J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2009, **171**(1-3): 660-664.
- [20] Martínez L S, Blanco A B, Falcó P C, *et al.* Improving detection limits for organotin compounds in several matrix water samples by derivatization-headspace-solid-phase microextraction and GC-MS [J]. *Talanta*, 2010, **80**(5): 1888-1893.
- [21] Devos C, David F, Sandra P. A new validated analytical method for the determination of tributyltin in water samples at the quantification level set by the European Union [J]. *Journal of Chromatography A*, 2012, **1261**(43): 151-157.
- [22] Chou C C, Lee M R. Determination of organotin compounds in water by headspace solid phase microextraction with gas chromatography-mass spectrometry [J]. *Journal of Chromatography A*, 2005, **1064**(1): 1-8.
- [23] Pisarek M, Lewandowska M, Roguska A, *et al.* SEM, scanning auger and XPS characterization of chemically pretreated Ti surfaces intended for biomedical applications [J]. *Materials Chemistry and Physics*, 2007, **104**(1): 93-97.
- [24] Baer D R, Engelhard M H. XPS analysis of nanostructured materials and biological surfaces [J]. *Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena*, 2010, **178-179**: 415-432.
- [25] <http://srdata.nist.gov/xps/relEnergyType.aspx>.

CONTENTS

PUF Passive Air Sampling of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Atmosphere of the Yangtze River Delta, China: Spatio-Temporal Distribution and Potential Sources	ZHANG Li-fei, YANG Wen-long, DONG Liang, <i>et al.</i> (3339)
Quantitative Analysis of Nitrate in Atmospheric Particulates PM _{2.5} with Fourier Transform Infrared Spectroscopy	LIU Na, WEI Xiu-li, GAO Min-guang, <i>et al.</i> (3347)
Study on Contribution Factor to Atmospheric ·OH by O ₃ , HONO, HCHO and H ₂ O ₂ in Spring at Mangdang Mountain, Fujian Province	LIU Hao, WANG Hui-xiang (3352)
A Review on Current Situations of Steroid Estrogen in the Water System	DU Shao-ting, JIN Chong-wei, LIU Yue (3358)
A Study on the Veterinary Antibiotics Contamination in Groundwater of Jiaying	LÜ Xing, YU Wei-juan, LAN Ya-qiong, <i>et al.</i> (3368)
Contamination Characteristics of Short-Chain Chlorinated Paraffins in Edible Fish of Shanghai	JIANG Guo, CHEN Lai-guo, HE Qiu-sheng, <i>et al.</i> (3374)
Detection of Endotoxin Activity in Water Environment and Analysis of Influence Factors for TAL Assay	ZHANG Can, LIU Wen-jun, ZHANG Ming-lu, <i>et al.</i> (3381)
Cellular Response of Freshwater Green Algae to the Toxicity of Tetracycline Antibiotics	XU Dong-mei, WANG Yan-hua, RAO Gui-wei (3386)
Illumination's Effect on the Growth and Nitrate Reductase Activity of Typical Red-Tide Algae in the East China Sea	LI Hong-mei, SHI Xiao-yong, DING Yan-yan, <i>et al.</i> (3391)
Compare the Growth of <i>Enteromorpha prolifera</i> Under Different Nutrient Conditions	PANG Qiu-ting, LI Feng, LIU Xiang-qing, <i>et al.</i> (3398)
Phytoplankton Pigment Patterns and Community Structure in the Yangtze Estuary and Its Adjacent Areas	LAI Jun-xiang, YU Zhi-ming, SONG Xiu-xian, <i>et al.</i> (3405)
Genetic Diversity of Picoeukaryotic Phytoplankton in the Lakes Along the Middle-lower Reaches of the Yangtze River	LI Sheng-nan, SHI Xiao-li, XIE Wei-wei, <i>et al.</i> (3416)
Studies on Seasonal Variation and Sources of Nitrogen and Phosphorus in a Canyon Reservoir Used as Water Source	HUANG Ting-lin, QIN Chang-hai, LI Xuan (3423)
Characteristics of Sediment Phosphorus in the Jiulong River-Reservoir System and Its Ecological Significance	LU Ting, CHEN Neng-wang, CHEN Zhu-hong, <i>et al.</i> (3430)
Variation of Nitrogen During the High Suspended Sediments Concentration Water Supply in an Artificial Shallow Lake	CHEN You-yuan, SHEN Yu, YANG Shi-ying (3437)
Limestone and Pyrite-Limestone Constructed Wetlands for Treating River Water	ZHANG Jing, LI Rui-hua, LI Jie, <i>et al.</i> (3445)
Dynamics of Carbon, Nitrogen and Phosphorus Storage of Three Dominant Marsh Plants in Hangzhou Bay Coastal Wetland	SHAO Xue-xin, LI Wen-hua, WU Ming, <i>et al.</i> (3451)
Dissolved Organic Matter Release of <i>Zizania caduciflora</i> and <i>Phragmites australis</i> from Lake Dianchi	XIE Li, YANG Hao, QU Xiao-xia, <i>et al.</i> (3458)
Influence of Tap Water Treatment on Perfluorinated Compounds Residue in the Dissolved Phase	ZHANG Hong, CHEN Qing-wu, WANG Xin-xuan, <i>et al.</i> (3467)
Study on Chlorinated Disinfection Byproducts and the Relevant Health Risk in Tap Water of J City	LI Xiao-ling, LIU Rui, LAN Ya-qiong, <i>et al.</i> (3474)
Effect of the Change in Sulphate and Dissolved Oxygen Mass Concentration on Metal Release in Old Cast Iron Distribution Pipes	WU Yong-li, SHI Bao-you, SUN Hui-fang, <i>et al.</i> (3480)
Research on Low-level Hg(II) Removal from Water by the Heavy Metal Capturing Agent	HU Yun-jun, SHENG Tian-tian, XUE Xiao-qin, <i>et al.</i> (3486)
Coagulation Characteristics of Polyferric Chloride-Poly (Epiclorohydrin-Dimethylamine) Composite Flocculant for Simulated Water Treatment	LIU Xin-xin, YANG Zhong-lian, GAO Bao-yu, <i>et al.</i> (3493)
Microstructure Morphology and Flocculation Mechanism of the Decolorizing Flocculant Poly-aluminum(III)-magnesium(II)-sulfate	SANG Yi-min, CHANG Xue-hong, CHE Yue, <i>et al.</i> (3502)
Efficient Degradation of Tetrabromobisphenol A in Water by Co-doped BiFeO ₃	OUYANG Lei, DING Yao-bin, ZHU Li-hua, <i>et al.</i> (3507)
Preparation Bimetallic Heterogeneous Fenton-Like Catalyst as Sepiolite Supported and Its Surface Chemical Characterization	SU Cheng-yuan, LI Wei-guang, LIU Xing-zhe, <i>et al.</i> (3513)
Nitrite Denitrification Characteristics with Redox Mediator	ZHAO Li-jun, MA Zhi-yuan, GUO Yan-kai, <i>et al.</i> (3520)
Advanced Nitrogen Removal Using Innovative Denitrification Biofilter with Sustained-Release Carbon Source Material	TANG Lei, LI Peng, ZUO Jian-e, <i>et al.</i> (3526)
N ₂ O Production in Nitrogen Removal by Micro-expansion of Granular Sludge	CHEN Li-li, GAO Da-wen (3532)
Sludge Dewaterability with Combined Conditioning Using Fenton's Reagent and CPAM	MA Jun-wei, LIU Jie-wei, CAO Rui, <i>et al.</i> (3538)
Kinetic Characteristics of High-rate ANAMMOX Granules	TANG Chong-jian, XIONG Lei, WANG Yun-yan, <i>et al.</i> (3544)
Monitoring Nitrogen Deposition on Temperate Grassland in Inner Mongolia	ZHANG Ju, KANG Rong-hua, ZHANG Bin, <i>et al.</i> (3552)
Non-Point Loads of Soluble Cadmium by <i>in situ</i> Field Experiment with Different Landuses, in Central Hunan Province Mining Area	LIU Xiao-li, ZENG Zhao-xia, CHEN Zhe, <i>et al.</i> (3557)
Heavy Metal Speciation and Stability in the Sediment of Lihu Lake	WANG Shu-hang, WANG Wen-wen, JIANG Xia, <i>et al.</i> (3562)
Analysis and Evaluation of Heavy Metals Along the Chaohe River in Miyun County	YU Yang, GAO Hong-chao, MA Jun-hua, <i>et al.</i> (3572)
Magnetic Properties of Topsoils in Typical Industrial Belt Along the Yellow River in Arid Regions in Northwest China and Their Environmental Significance	XU Shu-jing, ZHANG Ying, YU Ye, <i>et al.</i> (3578)
Study on Composite Stabilization of Arsenic (As) Contaminated Soil	WANG Hao, PAN Li-xiang, ZHANG Xiang-yu, <i>et al.</i> (3587)
Heavy Metal Contents and Enrichment Characteristics of Dominant Plants in a Lead-Zinc Tailings in Xiashuiwan of Hunan Province	HE Dong, QIU Bo, PENG Jin-hui, <i>et al.</i> (3595)
Comparison of Soil Fertility Among Open-pit Mine Reclaimed Lands in Antaibao Regenerated with Different Vegetation Types	WANG Xiang, LI Jin-chuan, YUE Jia-wei, <i>et al.</i> (3601)
Biodegradation of Triphenyltin and Its Effect on <i>Klebsiella pneumoniae</i>	YE Jin-shao, TIAN Yun, YIN Hua, <i>et al.</i> (3607)
Isolation and Degradation Characteristics of Dichloromethane-Degradation Bacterial Strain by <i>Methylobacterium rhodesianum</i> H13	LIU Hong-xia, ZHU Run-ye, OUYANG Du-juan, <i>et al.</i> (3613)
Effect of Different Primers on Microbial Community of Activated Sludge	XU Ai-ling, WU Deng-deng, SONG Zhi-wen, <i>et al.</i> (3620)
Reaction of SO ₂ over CaAl Mixed Oxides Derived from Hydrotalcites Samples	CAO Lin, WANG Hai-lin, XIE Qiang (3627)
Optimization for MSW Logistics of New Xicheng and New Dongcheng Districts in Beijing Based on the Maximum Capacity of Transfer Stations	YUAN Jing, LI Guo-xue, ZHANG Hong-yu, LUO Yi-minget <i>al.</i> (3633)
Application of Multiple Lines of Evidence Analysis Technology in the Assessment of Sites Contaminated by Heavy Metals	JIANG Lin, ZHONG Mao-sheng, ZHU Xiao-yong, <i>et al.</i> (3641)
Heavy Metals and Their Sources in Outdoor Settled Dusts in Different Function Areas of Cities	LI Xiao-yan, LIU Yan-qing (3648)
Study on Distribution Characteristics and Potential Ecological Risk of Soil Heavy Metals in the Yellow River Beach Region in Kaifeng City	ZHANG Peng-yang, QIN Ming-zhou, YAN Jiang-hong, <i>et al.</i> (3654)
Study on Pollution Evaluation of Heavy Metal in Surface Soil of the Original Site of Qingdao North Station	ZHU Lei, JIA Yong-gang, PAN Yu-ying (3663)
Distribution Characteristics and Ecological Risk of Pb in Soils at a Lead Battery Plant	ZHENG Li-bao, CHEN Wei-ping, JIAO Wei-tao, <i>et al.</i> (3669)
Effect of Lead on Soil Quality and Human Health Around a Lead Smeltery	ZHOU Xiao-yong, LEI Mei, YANG Jun, <i>et al.</i> (3675)
Distribution Characteristics of Lead in Different Particle Size Fractions of Surface Soil of a Lead-acid Battery Factory Contaminated Site	YUE Xi, SUN Ti-chang, HUANG Jin-lou (3679)
Research on the Application of <i>In-situ</i> Biological Stabilization Solidification Technology in Chromium Contaminated Site Management	ZHANG Jian-rong, LI Juan, XU Wei (3684)
Research on the Effect and Technique of Remediation for Multi-Metal Contaminated Tailing Soils	ZHU Guang-xu, GUO Qing-jun, YANG Jun-xing, <i>et al.</i> (3690)
Analysis of Washing Efficiency and Change in Lead Speciation in Lead-contaminated Soil of a Battery Factory	REN Bei, HUANG Jin-lou, MIAO Ming-sheng (3697)
Remediation Efficiency of Lead-Contaminated Soil at an Industrial Site by Ultrasonic-assisted Chemical Extraction	WANG Xin-jie, HUANG Jin-lou, LIU Zhi-qiang, <i>et al.</i> (3704)
Parameters Optimization and Cleaning Efficiency Evaluation of Attrition Scrubbing Remediation of Pb-Contaminated Soil	YANG Wen, HUANG Jin-lou, PENG Hui-qing, <i>et al.</i> (3709)
Adsorption of Cd ²⁺ on Biochar from Aqueous Solution	GUO Wen-juan, LIANG Xue-feng, LIN Da-song, <i>et al.</i> (3716)
Effect of Inorganic Amendments on the Stabilization of Heavy Metals in Contaminated Soils	CAO Meng-hua, ZHU Xi, LIU Huang-cheng, <i>et al.</i> (3722)

《环境科学》第6届编辑委员会

主 编: 欧阳自远

副主编: 赵景柱 郝吉明 田 刚

编 委: (按姓氏笔画排序)

万国江 王华聪 王凯军 王绪绪 田 刚 田 静 史培军
朱永官 刘志培 汤鸿霄 陈吉宁 孟 伟 周宗灿 林金明
欧阳自远 赵景柱 姜 林 郝郑平 郝吉明 聂永丰 黄 霞
黄 耀 鲍 强 潘 纲 潘 涛 魏复盛

环 境 科 学

(HUANJING KEXUE)

(月刊 1976年8月创刊)

2013年9月15日 34卷 第9期

ENVIRONMENTAL SCIENCE

(Monthly Started in 1976)

Vol. 34 No. 9 Sep. 15, 2013

主 管	中国科学院	Superintended	by	Chinese Academy of Sciences
主 办	中国科学院生态环境研究中心	Sponsored	by	Research Center for Eco-Environmental Sciences, Chinese Academy of Sciences
协 办	(以参加先后为序) 北京市环境保护科学研究院 清华大学环境学院	Co-Sponsored	by	Beijing Municipal Research Institute of Environmental Protection School of Environment, Tsinghua University
主 编	欧阳自远	Editor-in -Chief		OUYANG Zi-yuan
编 辑	《环境科学》编辑委员会 北京市2871信箱(海淀区双清路 18号, 邮政编码:100085) 电话:010-62941102, 010-62849343 传真:010-62849343 E-mail: hjkx@ rcees. ac. cn http://www. hjkx. ac. cn	Edited	by	The Editorial Board of Environmental Science (HUANJING KEXUE) P. O. Box 2871, Beijing 100085, China Tel:010-62941102, 010-62849343; Fax:010-62849343 E-mail: hjkx@ rcees. ac. cn http://www. hjkx. ac. cn
出 版	科 学 出 版 社 北京东黄城根北街16号 邮政编码:100717	Published	by	Science Press 16 Donghuangchenggen North Street, Beijing 100717, China
印 刷 装 订	北京北林印刷厂	Printed	by	Beijing Bei Lin Printing House
发 行	科 学 出 版 社 电话:010-64017032 E-mail: journal@ mail. sciencep. com	Distributed	by	Science Press Tel:010-64017032 E-mail: journal@ mail. sciencep. com
订 购 处	全国各地邮电局	Domestic		All Local Post Offices in China
国外总发行	中国国际图书贸易总公司 (北京399信箱)	Foreign		China International Book Trading Corporation (Guoji Shudian), P. O. Box 399, Beijing 100044, China

中国标准刊号: ISSN 0250-3301
CN 11-1895/X

国内邮发代号: 2-821

国内定价: 90.00元

国外发行代号: M 205

国内外公开发行