

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第37卷 第6期

Vol.37 No.6

2016

中国科学院生态环境研究中心 主办
科学出版社 出版



目次

双级虚拟撞击采样器应用于固定污染源 PM ₁₀ 和 PM _{2.5} 排放测量	蒋靖坤, 邓建国, 李振, 马子轲, 周伟, 张强, 段雷, 郝吉明 (2003)
黄山夏季气溶胶吸湿性及与化学组分闭合	陈卉, 杨素英, 李艳伟, 银燕, 张泽锋, 于兴娜, 康娜, 严殊祺, 夏航 (2008)
沈阳大气气溶胶中水溶性无机离子的观测研究	苗红妍, 温天雪, 王璐, 徐慧 (2017)
南京夏秋季节大气干沉降水溶性离子特征及来源分析	秦阳, 朱彬, 邹嘉南, 庞博 (2025)
太原市大气颗粒物粒径和水溶性离子分布特征	曹润芳, 闫雨龙, 郭利利, 郭文帝, 何秋生, 王新明 (2034)
2014 年北京市城区臭氧超标日浓度特征及与气象条件的关系	程念亮, 李云婷, 张大伟, 陈添, 王欣, 邹宁, 陈晨, 孟凡 (2041)
机动车尾气烟尘中烷烃和有机酸的组成	袁佳雯, 刘刚, 李久海, 徐慧 (2052)
DOC/CCRT 老化对柴油公交车气态物排放特性的影响	楼狄明, 贺南, 谭丕强, 胡志远 (2059)
紫外辐照改性生物炭对 VOCs 的动态吸附	李桥, 雍毅, 丁文川, 侯江, 高屿涛, 曾晓岚 (2065)
三峡库区内陆腹地典型水库型湖泊中 DOM 吸收光谱特征	江韬, 卢松, 王齐磊, 白薇扬, 张成, 王定勇, 梁俭 (2073)
三峡库区典型农业小流域水体中溶解性有机质的光谱特征	王齐磊, 江韬, 赵铮, 梁俭, 木志坚, 魏世强, 陈雪霜 (2082)
高分辨率降水氧氮同位素变化及洞穴水响应: 以河南鸡冠洞为例	孙喆, 杨琰, 张萍, 刘肖, 梁沙, 张娜, 聂旭东, 梁胜利, 李建仓, 凌新有, 张志钦 (2093)
不同雨强条件下河流水质对流域土地利用类型与格局空间响应	季香, 刘红玉, 李玉凤, 皋鹏飞, 孙一鸣, 李玉玲 (2101)
丹江口水库沉积物重金属背景值的确定及潜在生态风险评估	赵丽, 王雯雯, 姜霞, 王书航, 李佳璐, 陈俊伊 (2113)
滴水湖及其环湖水系沉积物、土壤中多氯联苯的空间分布特征及风险评价	王薛平, 黄星, 毕春娟, 贾晋璞, 郭雪, 陈振楼 (2121)
粤桂水源地有机氯农药的污染特征及生态风险	阳宇翔, 刘昕宇, 詹志薇, 解启来, 汤嘉骏, 欧阳培毓, 陈镇新, 徐晨 (2131)
鄱阳湖浮游植物叶绿素 a 及营养盐浓度对水位波动的响应	刘霞, 刘宝贵, 陈宇炜, 高俊峰 (2141)
周期性的温度扰动对藻类群落结构演替的影响	贡丹丹, 刘德富, 张佳磊, 杨正健, 朱晓明, 谭纤茹 (2149)
溴酸盐对普通小球藻的生长以及生理特性的影响	王执伟, 刘冬梅, 张文娟, 崔福义 (2158)
微囊藻水华对水体中氮转化及微生物的影响	李洁, 张思凡, 肖琳 (2164)
城市污染河道沉积物碳氮赋存对有机质分解的影响	唐千, 刘波, 王文林, 邢鹏, 袁婧雯, 嵇玮, 沈晓宇, 季家乐 (2171)
两亲性共聚物共混 PVDF 超滤膜的界面性质与抗蛋白质污染的研究	孟晓荣, 鲁冰雪, 付东会, 辛晓强, 唐卫婷 (2179)
巯基改性海泡石吸附水中的 Hg(II)	谢婧如, 陈本寿, 张进忠, 刘江 (2187)
改性芦苇生物炭对水中低浓度磷的吸附特征	唐登勇, 黄越, 胥瑞晨, 胡洁丽, 张聪 (2195)
UiO-66 对废水中二氯苯氧乙酸的吸附特性	任天昊, 杨智临, 郭琳, 陈海, 杨琦 (2202)
对硝基苯酚在高炉水淬渣上的吸附机制及表面形研究	王哲, 黄国和, 安春江, 陈莉荣, 张思思 (2211)
高岭石、针铁矿及其二元体对胡敏酸的吸附特性	牛鹏举, 魏世勇, 方敦, 但悠梦 (2220)
硫铁比对再生水深度脱氮除磷的影响	周彦卿, 郝瑞霞, 王珍, 朱晓霞, 万京京 (2229)
单质硫颗粒尺寸及反应器类型对硫自养反硝化反应器启动的影响	马航, 朱强, 朱亮, 李祥, 黄勇, 魏凡凯, 杨朋兵 (2235)
钛盐混凝剂调对活性污泥絮体理化性质的影响作用机制	王彩霞, 张伟军, 王东升, 王庆飞, 喻德忠 (2243)
城市污水管网中产甲烷菌的分布特性规律	孙光溪, 金鹏康, 宋吉娜, 王先宝, 杨柯瑶 (2252)
低 DO 下 AGS-SBR 处理低 COD/N 生活污水长期运行特征及种群分析	信欣, 管蕾, 姚艺朵, 羊依金, 郭俊元, 程庆峰 (2259)
微丝菌 (<i>Microthrix parvicella</i>) 原位荧光杂交 (FISH) 定量过程的条件优化	王润芳, 张红, 王琴, 王娟, 顾剑, 齐嵘, 杨敏 (2266)
基于高通量测序解析碳化温度对麻杆电极微生物群落影响	吴义诚, 贺光华, 郑越, 陈水亮, 王泽杰, 赵峰 (2271)
1 株高效去除氨氮的红假单胞菌的分离鉴定及特性	黄雪娇, 杨冲, 倪九派, 李振刚 (2276)
长期保护性耕作制度下紫色土剖面无机磷变化特征	韩晓飞, 高明, 谢德体, 王子芳 (2284)
有机物料对两种紫色土氮素矿化的影响	张名豪, 卢吉文, 赵秀兰 (2291)
生物质炭和秸秆配合施用对土壤有机碳转化的影响	张婷, 王旭东, 逢萌雯, 刘恩新, 白如霞, 黎妮, 王钰莹 (2298)
多元统计与铅同位素示踪解析旱地垂直剖面土壤中重金属来源	孙境蔚, 胡恭任, 于瑞莲, 苏光明, 王晓明 (2304)
苏南某镇土壤重金属污染的景观格局特征	陈昕, 潘剑君, 王文勇, 李炳亚 (2313)
河南洛阳市不同功能区土壤重金属污染特征及评价	刘亚纳, 朱书法, 魏学锋, 苗娟, 周鸣, 关凤杰 (2322)
杭州蔬菜基地重金属污染及风险评价	龚梦丹, 朱维琴, 顾燕青, 李淑英, 加那提·吐尼克 (2329)
土壤溶解性有机质荧光特征及其与铜的络合能力	田雨, 王学东, 陈潇霖, 华珞 (2338)
添加稳定剂对尾矿土中砷形态及转换机制的影响	陈志良, 赵述华, 钟松雄, 桑燕鸿, 蒋晓璐, 戴玉, 王欣 (2345)
应用 SHIME 模型研究肠道微生物对土壤中镉、铬、镍生物可给性的影响	尹乃毅, 都慧丽, 张震南, 蔡晓琳, 李泽蛟, 孙国新, 崔岩山 (2353)
不同基因型杨树的光合特征与臭氧剂量的响应关系	辛月, 高峰, 冯兆忠 (2359)
苾芻对 5 种羊茅属植物根系分泌的几类低分子量有机物的影响	潘声旺, 袁馨, 刘灿, 李亚阗, 杨婷, 唐海云, 黄方玉 (2368)
维管束植物樟树和马尾松叶组织氮、硫含量指示贵阳地区大气氮、硫沉降的空间变化	徐宇, 肖化云, 郑能建, 张忠义, 瞿玲露, 赵晶晶 (2376)
苏北潮滩温室气体排放的时空变化及影响因素	许鑫王豪, 邹欣庆, 刘晶茹 (2383)
g-C ₃ N ₄ /Bi ₂ S ₃ 复合物的制备及可见光催化降解 MO	张志贝, 李小明, 陈飞, 杨麒, 钟宇, 徐秋翔, 杨伟强, 李志军, 陈寻峰, 谢伟强 (2393)
海南省淘汰落后产能政策的污染物协同减排效应评价	耿静, 任丙南, 吕永龙, 王铁宇 (2401)
《环境科学》征订启事 (2130) 《环境科学》征稿简则 (2251) 信息 (2178, 2344)	

应用 SHIME 模型研究肠道微生物对土壤中镉、铬、镍生物可给性的影响

尹乃毅^{1,2}, 都慧丽^{1,2}, 张震南^{1,2}, 蔡晓琳^{1,2}, 李泽姣^{1,2}, 孙国新², 崔岩山^{1,2*}

(1. 中国科学院大学资源与环境学院, 北京 101408; 2. 中国科学院生态环境研究中心, 北京 100085)

摘要: 为了研究人体肠道微生物对土壤中 Cd、Cr、Ni 生物可给性的影响. 本文采集我国一些地区的 5 种土壤, 利用 *in vitro* 方法 (PBET 和 SHIME 联用) 研究了这些土壤中 Cd、Cr、Ni 在胃、小肠、结肠阶段的生物可给性及其对人体的健康风险. 结果表明, 土壤中 Cd、Cr、Ni 在胃阶段的生物可给性分别为 4.3% ~ 94.0%、6.4% ~ 21.6%、11.3% ~ 47.3%; 小肠阶段, 土壤中 Cr 和 Ni 的生物可给性与胃阶段一致或有一定升高, 但 Cd 的生物可给性降低了 1.4 ~ 1.6 倍 (土壤 2 除外); 结肠阶段, Cd 的平均生物可给性较高, 而 Cr 的较低. 结肠阶段, 土壤中 Cr 和 Ni 的生物可给性均升高, 是小肠阶段的 1.3 ~ 2.4 倍和 1.0 ~ 2.1 倍, 分别达到了 17.6% ~ 38.7% 和 25.4% ~ 56.0%; 而 Cd 的生物可给性也升高 (土壤 3 和 4 除外); Ni 的平均生物可给性最高. 由此可见, 肠道微生物可以促进土壤中 Cd、Cr、Ni 的溶出释放, 提高了三者的生物可给性, 可能增大了人体的健康风险.

关键词: 土壤; 金属生物可给性; 人体肠道微生物; PBET 方法; SHIME 模型

中图分类号: X131; X820.4 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2016)06-2353-06 DOI: 10.13227/j.hjks.2016.06.045

Effects of Human Gut Microbiota on Bioaccessibility of Soil Cd, Cr and Ni Using SHIME Model

YIN Nai-yi^{1,2}, DU Hui-li^{1,2}, ZHANG Zhen-nan^{1,2}, CAI Xiao-lin^{1,2}, LI Ze-jiao^{1,2}, SUN Guo-xin², CUI Yan-shan^{1,2*}

(1. College of Resources and Environment, University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 101408, China; 2. Research Center for Eco-Environmental Sciences, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100085, China)

Abstract: The influence of human gut microbiota on bioaccessibilities of soil Cd, Cr, and Ni were investigated in this study. Five soil samples were collected from some sites of China, and the bioaccessibilities of soil Cd, Cr, and Ni in the gastric, small intestinal, and colon phases were determined using the PBET method (physiologically based extraction test) combined with SHIME model (simulator of human intestinal microbial ecosystem). The results showed that the bioaccessibilities of Cd, Cr, and Ni in the gastric phase were 4.3%-94.0%, 6.4%-21.6%, and 11.3%-47.3%, respectively. In the small intestinal phase, the bioaccessibilities of Cr and Ni were either congruent or slightly increased, while for Cd, the values were reduced by 1.4-1.6 folds except for soil 2. In the gastric and small intestinal phases, the mean bioaccessibility of Cd was higher but that of Cr was lower. In the colon phase, the bioaccessibilities of Cr and Ni were 1.3-2.4 and 1.0-2.1 times higher than those in the small intestinal phase. Furthermore, the bioaccessibility of Cd also increased except for soil 3 and 4. Human gut microbiota could induce Cd, Cr, and Ni release from soils and increase their bioaccessibilities, which may result in high risk to human health.

Key words: soil; metal bioaccessibility; human gut microbiota; PBET method; SHIME model

土壤重金属污染已成为全球最为严重的环境问题之一, 受到国内外极大的关注, 其中镉、镍、铬均被收录在 2015 年有害物质优先处理清单中^[1]. 土壤中重金属进入人体的途径包括食物链、无意口部摄入、呼吸和皮肤接触等^[2~4]; 而无意口部摄入, 尤其是儿童, 对体内有害金属摄入量的贡献率越来越高, 甚至成为主要途径. 在人体健康风险评价中, 主要有体内实验 (*in vivo*, 测定生物有效性, 指被人体吸收后进入血液, 并在体内重新分布的污染物或营养物的含量) 和体外实验 (*in vitro*, 测定生物可给性, 指在模拟胃肠条件下, 介质中的污染物溶解到消化液中的部分) 两种方法, 而 *in vitro* 方法具有操作简单、快速、费用较低等优点, 并受到国内外研究者

的广泛关注^[5~9]. 目前, *in vitro* 方法主要有 PBET (physiologically based extraction test)、UBM (unified bioaccessibility research group of Europe method)、SBRC (solubility bioaccessibility research consortium assay)、IVG (*in vitro* gastrointestinal extraction method) 和 DIN (German standard bioaccessibility methodology) 等. 影响土壤中金属生物可给性的主要因素有土壤 pH、有机质、黏粒、铁锰氧化物、*in*

收稿日期: 2015-12-28; 修订日期: 2016-01-18

基金项目: 国家自然科学基金项目 (41271493)

作者简介: 尹乃毅 (1988 ~), 男, 博士研究生, 主要研究方向为土壤重金属对人体的健康风险, E-mail: yinnaiyi12@mails.ucas.ac.cn

* 通讯联系人, E-mail: cuiyanshan@ucas.ac.cn

vitro pH、固液比、停留时间等。

这些体外方法主要探究胃和小肠阶段土壤中金属的生物可给性,不太全面地评价其对人体的健康风险。通常认为,小肠是人体主要的吸收器官,土壤中金属在小肠阶段溶出后基本会被吸收;但是依附于土壤固相上的金属会到达人体的大肠,即结肠阶段,这里寄生着丰富的肠道微生物,有很强的代谢能力^[10~13]。SHIME 模型(simulator of human intestinal microbial ecosystem)是一种在体外条件下重现人体胃肠及微生物生态系统的模拟实验方法^[10]。在已有的报道中,SHIME 模型主要探究了肠道微生物对土壤和食物中砷的代谢^[11~13],但是国内外有关肠道微生物对土壤中 Cd、Cr、Ni 的溶出影响的研究报道几乎没有。同时,由于饮食习惯、性别、年龄和地域等不同^[14~16],人体肠道微生物的结构及活性是有差异的。目前有少量报道关于中国人群肠道微生物对土壤污染物代谢的研究,本研究是第一次报道中国人群肠道微生物对土壤中 Cd、Cr、Ni 的代谢作用,并应用于人体健康风险评价。本研究将采集我国一些地区的污染土壤,利用改进的 PBET 方法和 SHIME 模型分析胃肠及结肠阶段 3 种金属元素(Cd、Cr、Ni)的生物可给性,并初步探讨肠道微生物对土壤中金属生物可给性的影响。本研究结果将对更全面地进行无意口部摄入的重金属污染土壤的人体健康风险评价起到一定的推动作用,并对土壤中金属在我国人群胃肠系统中消化吸收的研究也起到一定的推动作用。

1 材料与方法

研究所用的 5 个土壤采自我国广西区和湖南省,土壤样品风干后,过 20 目、100 目筛用于基本理化性质分析,具体的测试方法详见文献^[17];过 60 目筛后用于 *in vitro* 实验。所采集的土壤的基本理化性质和土壤中金属元素的含量有很大的变化范围(表 1)。pH 值范围为 2.2~7.6。土壤中铁、锰、铝氧化物(FeO、MnO、AlO)的含量分别为 0.8~50.2、0.1~0.5、0.5~1.5 g·kg⁻¹。土壤中 Cd、Cr、Ni 的含量范围分别为 4.8~332.9、18.5~66.8、8.1~32.0 mg·kg⁻¹。

1.1 SHIME 模型

SHIME 模型包括胃、小肠、升结肠、横结肠和降结肠这 5 个阶段。之前关于 SHIME 模型的研究中选用了一名志愿者^[11,12],因此本研究中选用了一名 28 岁的男性健康寄主(在过去一年里未食用抗

生素之类的药物)。新鲜粪便采集后,接种微生物于 3 个结肠阶段。每天输入 3 次食物液以保证结肠微生物消化的营养。SHIME 模型自动调整 pH,磁力搅拌器进行搅拌,通过恒温水浴箱模拟人体 37℃ 的恒温效果,每天通入氮气 15 min 以保证厌氧环境。经过 3~4 周的培养,微生物群落达到稳定期可用于后续实验。SHIME 模型各项稳定参数见文献^[13]。

1.2 *in vitro* 实验

本研究使用的 *in vitro* 实验方法主要结合 PBET 方法^[4]和 SHIME 模型,由 3 个连续的阶段组成,即胃阶段、小肠阶段和结肠阶段,具体操作步骤如下。

(1)胃阶段 配制模拟胃液(内含 NaCl、柠檬酸、苹果酸、乳酸、冰乙酸、胃蛋白酶等,并用浓盐酸将 pH 值调为 1.5),将过 60 目筛的土壤样品(0.3 g)及模拟胃液(30 mL)以 1:100 的比例混合于 50 mL 离心管内,每种土壤 2 个平行。置于 37℃,150 r·min⁻¹的恒温振荡仪中。在 1 h 时,吸取 5 mL 反应液,过 0.45 μm 滤膜,4℃ 保存待测。

(2)小肠阶段 胃阶段后,用 NaHCO₃ 粉末将胃反应液 pH 调至 7.0,加入胰酶、胆盐,继续置于 37℃,150 r·min⁻¹的恒温振荡仪中。在 4 h 时吸取 5 mL 反应液,过 0.45 μm 滤膜,4℃ 保存待测。

(3)结肠阶段 将小肠液转移至 100 mL 厌氧血清瓶内,从 SHIME 模型的降结肠阶段吸取等量的反应液加入,土液比为 1:200。迅速通入氮气 20~30 min 以保证厌氧条件。继续置于 37℃,150 r·min⁻¹的恒温振荡仪中。在 48 h 后,吸取 5 mL 反应液,过 0.45 μm 滤膜,−80℃ 保存待测。各阶段生物可给性的计算方法详见文献^[7]。

1.3 数据分析方法

采用 SPSS 18(IBM)和 OriginPro 8 对数据进行分析。

2 结果与分析

2.1 胃肠阶段土壤中重金属的溶解态含量及其生物可给性

土壤中金属元素的溶解态含量及其生物可给性变化很大(表 1)。胃阶段,土壤中 Cd、Cr、Ni 的溶解态含量分别为 2.3~14.2、3.4~5.0、3.1~4.4 mg·kg⁻¹,而其生物可给性分别为 4.3%~94.0%、6.4%~21.6%、11.3%~47.3%。从胃阶段到小肠阶段,土壤中 Cr 和 Ni 的生物可给性与胃阶段基本一致或有一定的升高,其中升高的最大倍数分别是 2.2 倍和 1.5 倍。而土壤中 Cd 在小肠阶段的生物可给性

降低了 1.4~1.6 倍(除了土壤 2 有轻微升高). 土壤中 Cd 在胃肠阶段平均生物可给性均最高,分别达到 40.6% 和 28.5%; 而 Cr 的生物可给性较低,仅 12.1% 和 16.5%. 此外在胃肠阶段,土壤 1 和 2 中 Ni 的生物可给性较高,Cd 的生物可给性较低; 但土壤 3~5 呈现出 Cd 较高的和 Cr 较低的生物可给性.

表 1 土壤的基本性质 (n=2)
Table 1 Basic characteristics of the soils (n=2)

编号	采样地点	有机质 (OM)/%	pH	黏粒(Clay) /%	FeO ¹⁾ /g·kg ⁻¹	MnO ¹⁾ /g·kg ⁻¹	AlO ¹⁾ /g·kg ⁻¹	Fe /g·kg ⁻¹	Mn /g·kg ⁻¹	Cd /mg·kg ⁻¹	Cr /mg·kg ⁻¹	Ni /mg·kg ⁻¹
1	广西河池	3.9	2.2	3.3	50.2	0.1	0.3	129.4	0.6	33.1	18.5	8.1
2	广西河池	1.7	3.1	8.0	29.2	0.5	0.8	66.9	0.7	332.9	23.8	16.2
3	湖南郴州	2.5	7.6	19.3	11.4	4.4	1.5	51.2	8.5	31.0	42.7	21.4
4	湖南株洲	3.7	5.6	3.1	3.4	0.1	1.3	22.3	0.2	5.3	66.8	27.6
5	湖南郴州	0.9	5.8	31.3	0.8	0.4	0.5	35.5	0.5	4.8	54.4	32.0

1) 草酸-草酸铵提取态

2.2 结肠阶段土壤中金属元素的生物可给性

结肠阶段(表 2 和图 1)土壤中 Cd、Cr、Ni 的溶解态含量分别为 1.4~91.1、7.1~15.5、4.5~8.1 mg·kg⁻¹. 土壤中 Cr 和 Ni 的生物可给性是小肠阶段的 1.3~2.4 倍和 1.0~2.1 倍,分别达到了 17.6%~38.7% 和 25.4%~56.0%. 土壤 Ni 结肠

阶段的平均生物可给性最高(36.6%). 从小肠阶段到结肠阶段,除了土壤 3 和 4 外,土壤中 Cd 的生物可给性也升高了 1.9~3.9 倍. 同时,土壤 1、2、5 中 3 种金属元素在结肠阶段的生物可给性均升高了. 结果显示,肠道微生物促进了土壤中 Cr 和 Ni 的溶出释放.

表 2 土壤中金属元素在结肠阶段的溶解态含量及生物可给性¹⁾ (n=2)
Table 2 Dissolved concentrations and bioaccessibility of soil metals in the colon phase (n=2)

编号	Cd		Cr		Ni	
	A	B	A	B	A	B
1	8.1±1.3	24.5±3.9	7.1±0.0	38.7±0.2	4.5±0.9	56.0±10.7
2	91.1±1.8	27.4±0.5	7.7±1.0	32.3±4.1	6.4±0.5	39.4±3.0
3	5.4±0.2	17.5±0.5	11.2±0.6	27.4±1.4	7.9±0.3	36.9±1.4
4	1.4±0.1	25.7±1.9	11.8±0.9	17.6±1.4	7.0±0.1	25.4±0.2
5	3.0±0.5	62.5±10.1	15.5±0.2	28.5±0.4	8.1±1.2	25.4±3.8

1) A 表示溶解态浓度(C-D) (mg·kg⁻¹); B 表示生物可给性(C-B) (%)

2.3 各因素间关系分析

对土壤样品的基本理化性质、土壤中 3 种金属元素在结肠阶段的溶解态含量及其生物可给性进行相关性分析,各因素相关系数见表 3. 可见,铁氧化物、土壤总 Fe 与 Cr、Ni 的生物可给性、溶解态浓度呈正相关性; 土壤总 Cr、Ni 与其生物可给性呈负相关性; 土壤 pH 与 Ni 的溶解态浓度呈正相关性. 此外,土壤中总 Cd 与其溶解态浓度呈正相关性.

3 讨论

3.1 胃肠阶段金属元素生物可给性

不同土壤中 Cd、Cr、Ni 的生物可给性差异很大. 本研究中,土壤中 Cd 的生物可给性在胃阶段较高,而小肠阶段的生物可给性降低; 对于 Cr 和 Ni, 小肠阶段的生物可给性接近或高于胃阶段. 此外,土壤中 Cd 在胃肠阶段平均生物可给性均最高,但 Cr 的生物可给性较低. 这些结果与之前关于土壤中

金属的生物可给性研究发现相似^[7~9, 17, 18]. 土壤中金属元素在胃肠阶段生物可给性的差异主要与土壤理化性质(土壤 pH、黏粒、有机质、铁锰铝氧化物等)和 *in vitro* 参数(*in vitro* pH、固液比、停留时间等)等影响因素有关.

有研究显示,有较高有机质含量的酸性土壤可能会增加 Ni 的移动性^[18],这可能是土壤 1 中 Ni 生物可给性最高的原因. Ni 的生物可给性与土壤总 Ni、铁锰铝氧化物呈负相关性^[18]. Cr 的移动性与其形态有很大关系,土壤中 Cr(VI)的移动性和毒性均强于 Cr(III)^[19]. 此外,土壤中有有机质逐渐溶出,导致土壤中有有机质含量降低,其对 Cr、Ni 的吸附能力降低^[20]. Cd 的溶解性与 pH 有很大的关系,从胃阶段到小肠阶段, *in vitro* pH 从 1.5 升高到 7.0,在较高 pH 时,共沉淀的作用使 Cd 的溶解性降低^[8]. 这可能导致小肠阶段 Cd 的生物可给性较低.

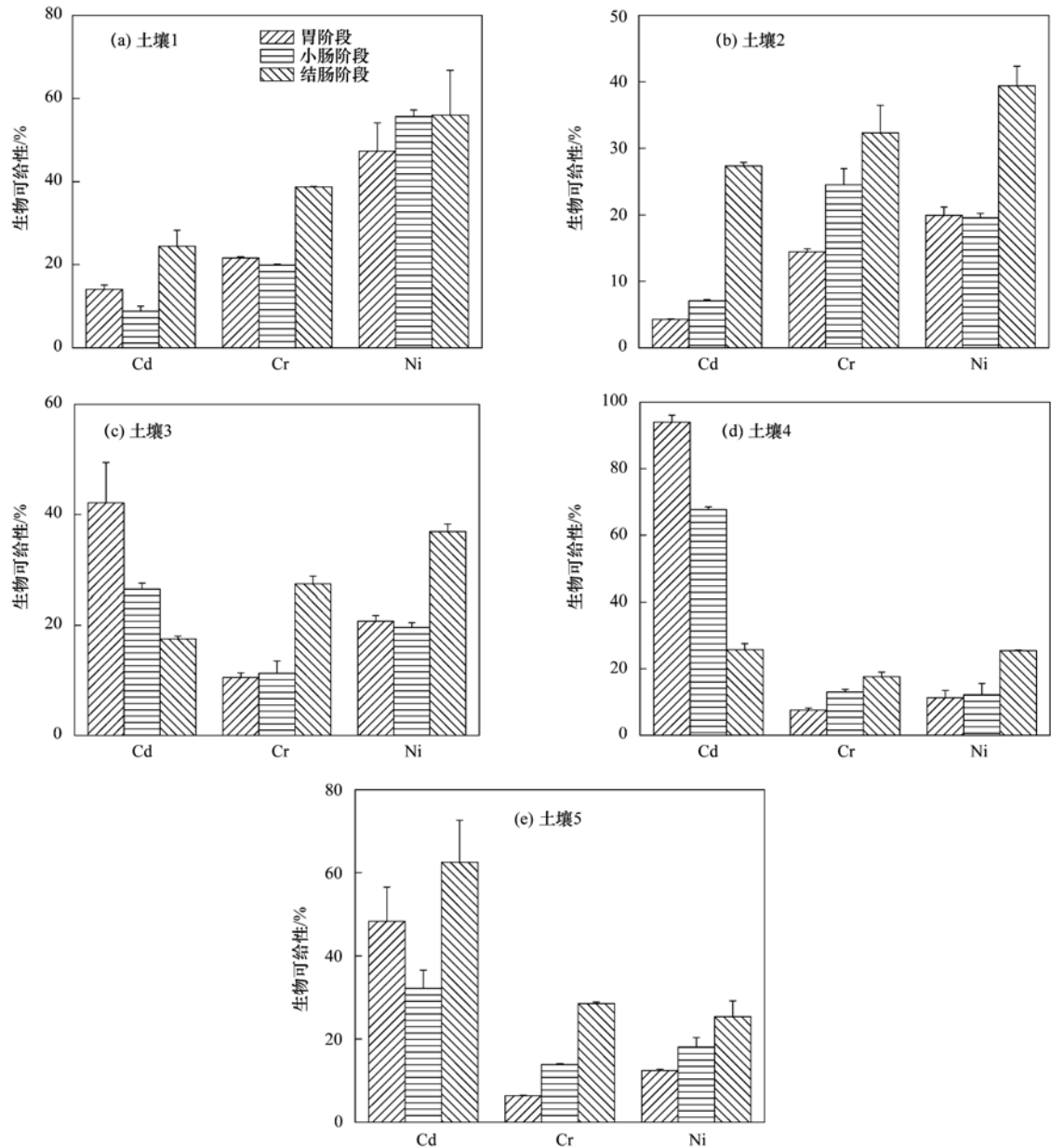


图 1 土壤中 Cd、Cr、Ni 在胃、小肠和结肠阶段的生物可给性

Fig. 1 Bioaccessibility of soil Cd, Cr and Ni in the gastric, small intestinal and colon phases

3.2 结肠阶段金属元素的生物可给性

本研究中,土壤 Cd、Cr 和 Ni 在结肠阶段的生物可给性分别为 1.3% ~62.5%、17.6% ~38.7%、25.4% ~56.0%;所有生物可给性均高于小肠阶段,除了土壤 3 和 4 中 Cd 的生物可给性略低外,结果表明肠道微生物可以促进 3 种金属元素从土壤固相上的释放。这是第一次报道肠道微生物土壤 Cd、Cr、Ni 生物可给性的影响。土壤中金属氧化物的吸附与解吸作用影响着 Cd、Cr、和 Ni 的移动性。结肠阶段是厌氧环境,肠道微生物的还原作用使 Fe(Ⅲ) 转化为 Fe(Ⅱ),可能增加 Fe 的释放,进而降低了铁氧化物对金属元素的吸附能力,这可能导致了 Cd、Cr

和 Ni 的溶出增加^[8,21]。在之前的研究中, Van de Wiele 等^[12]和 Yin 等^[13]发现肠道微生物可以将 As(V) 还原为 As(Ⅲ),笔者推断肠道微生物可能会将 Cr(VI) 还原为 Cr(Ⅲ)。形态分析在准确评估土壤暴露下人体健康风险评价中的作用越来越重要, Cr 形态变化值得进一步研究。此外,土壤中金属元素的赋存形态与其溶出有很大的关系^[22,23]。结肠阶段的 pH 为 7.0 左右, Fe、Al 氢氧化物可能会生成^[24];结肠环境中含有大量的有机物质^[13],这些都可能会对 Cd、Cr 和 Ni 有一定的吸附固定作用。土壤中铁氧化物和黏粒表面的负电荷增加,对 Cd²⁺ 的专性吸附增强^[25],以上作用可能导致了某些土壤中 Cd 的生物可给性降

低. 土壤中金属的生物可给性可能是受多种因素共同作用的结果.

表 3 各因素之间的相关性分析¹⁾ ($n = 5$)
Table 3 Correlations matrix for the factors ($n = 5$)

	OM	pH	Clay	FeO	MnO	AlO	Fe	Mn	Cd
OM	1	-0.261	-0.812	0.432	-0.099	0.157	0.399	-0.037	-0.328
pH		1	0.581	-0.832	0.698	0.729	-0.745	0.672	-0.470
Clay			1	-0.576	0.332	-0.072	-0.413	0.294	-0.255
FeO				1	-0.218	-0.532	0.967 **	-0.172	0.344
MnO					1	0.660	-0.152	0.997 **	-0.131
AlO						1	-0.605	0.644	-0.081
Fe							1	-0.099	0.152
Mn								1	-0.165
Cd									1

	Cd-C-D	Cd-C-B	Cr	Cr-C-D	Cr-C-B	Ni	Ni-C-D	Ni-C-B
OM	-0.346	-0.693	-0.079	-0.511	-0.049	-0.495	-0.637	0.454
pH	-0.481	0.080	0.712	0.763	-0.666	0.718	0.885 *	-0.676
Clay	-0.243	0.725	0.308	0.797	-0.045	0.628	0.753	-0.480
FeO	0.331	-0.428	-0.915 *	-0.898 *	0.840	-0.974 **	-0.927 *	0.969 **
MnO	-0.167	-0.407	0.019	0.161	-0.091	0.035	0.467	-0.007
AlO	-0.106	-0.529	0.498	0.203	-0.722	0.329	0.533	-0.440
Fe	0.139	-0.315	-0.885 *	-0.766	0.896 *	-0.924 *	-0.875	0.980 **
Mn	-0.202	-0.442	-0.006	0.126	-0.063	-0.012	0.413	0.045
Cd	0.999 **	-0.192	-0.550	-0.558	0.310	-0.367	-0.195	0.205
Cd-C-D	1	-0.154	-0.536	-0.539	0.304	-0.345	-0.190	0.185
Cd-C-B		1	0.326	0.681	-0.015	0.610	0.404	-0.486
Cr			1	0.813	-0.924 *	0.904 *	0.706	-0.902 *
Cr-C-D				1	-0.579	0.938 *	0.857	-0.832
Cr-C-B					1	-0.766	-0.634	0.850
Ni						1	0.874	-0.971 **
Ni-C-D							1	-0.852
Ni-C-B								1

1) * 表示显著相关($P < 0.05$); ** 表示极显著相关($P < 0.01$)

4 结论

(1)土壤中 Cd、Cr、Ni 在胃肠阶段的生物可给性有明显差异. Cd 的平均生物可给性均最高,而 Cr 的生物可给性较低. 与胃阶段相比,Cd 的生物可给性在小肠阶段降低了;对于 Cr 和 Ni,小肠阶段的生物可给性接近或高于胃阶段.

(2)结肠阶段,土壤中 Cd、Cr、Ni 的生物可给性高于小肠阶段,这表明肠道微生物可以促进 Cd、Cr、Ni 的释放,这可能增加了 3 种金属元素对人体的健康风险.

参考文献:

[1] Agency for Toxic Substances and Disease Registry (ATSDR). The 2015 priority list of hazardous substances[R]. Atlanta, GA: ATSDR, 2015.

[2] Abrahams P W. Soils: their implications to human health[J]. Science of the Total Environment, 2002, **291**(1-3): 1-32.

[3] 陈晓晨, 牛佳, 崔岩山. 城市表层土壤中铅的生物可给性及其对人体的健康风险评价: 以首钢厂区附近小区域为例

[J]. 环境科学, 2010, **31**(12): 3028-3035.

[4] 唐翔宇, 朱永官. 土壤中重金属对人体生物有效性的体外试验评估[J]. 环境与健康杂志, 2004, **21**(3): 183-185.

[5] 崔岩山, 陈晓晨, 付瑾. 污染土壤中铅、砷的生物可给性研究进展[J]. 生态环境学报, 2010, **19**(2): 480-486.

[6] Tang X Y, Zhu Y G, Cui Y S, *et al.* The effect of ageing on the bioaccessibility and fractionation of cadmium in some typical soils of China[J]. Environment International, 2006, **32**(5): 682-689.

[7] 崔岩山, 陈晓晨. 土壤中镉的生物可给性及其对人体的健康风险评估[J]. 环境科学, 2010, **31**(2): 403-408.

[8] Wragg J, Cave M, Basta N, *et al.* An inter-laboratory trial of the unified BARGE bioaccessibility method for arsenic, cadmium and lead in soil[J]. Science of the Total Environment, 2011, **409**(19): 4016-4030.

[9] 付瑾, 崔岩山. *In vitro* 系统评价胃肠液 pH 及土液比对铅、镉、砷生物可给性的影响[J]. 农业环境科学学报, 2012, **31**(2): 245-251.

[10] Van de Wiele T R, Verstraete W, Siciliano S D. Polycyclic aromatic hydrocarbon release from a soil matrix in the *in vitro* gastrointestinal tract [J]. Journal of Environmental Quality,

- 2004, **33**(4): 1343-1353.
- [11] Sun G X, Van de Wiele T, Alava P, *et al.* Arsenic in cooked rice: effect of chemical, enzymatic and microbial processes on bioaccessibility and speciation in the human gastrointestinal tract [J]. *Environmental Pollution*, 2012, **162**: 241-246.
- [12] Van de Wiele T, Gallawa C M, Kubachka K M, *et al.* Arsenic metabolism by human gut microbiota upon *in vitro* digestion of contaminated soils [J]. *Environmental Health Perspectives*, 2010, **118**(7): 1004-1009.
- [13] Yin N Y, Zhang Z N, Cai X L, *et al.* *In vitro* method to assess soil arsenic metabolism by human gut microbiota: arsenic speciation and distribution [J]. *Environmental Science & Technology*, 2015, **49**(17): 10675-10681.
- [14] Arumugam M, Raes J, Pelletier E, *et al.* Enterotypes of the human gut microbiome [J]. *Nature*, 2011, **473**(7346): 174-180.
- [15] David L A, Maurice C F, Carmody R N, *et al.* Diet rapidly and reproducibly alters the human gut microbiome [J]. *Nature*, 2013, **505**(7484): 559-563.
- [16] Greenblum S, Carr R, Borenstein E. Extensive strain-level copy-number variation across human gut microbiome species [J]. *Cell*, 2015, **160**(4): 583-594.
- [17] 尹乃毅, 崔岩山, 张震南, 等. 土壤中金属的生物可给性及其动态变化的研究 [J]. *生态环境学报*, 2014, **23**(2): 317-325.
- [18] Palmer S, Cox S F, McKinley J M, *et al.* Soil-geochemical factors controlling the distribution and oral bioaccessibility of nickel, vanadium and chromium in soil [J]. *Applied Geochemistry*, 2014, **51**: 255-267.
- [19] Jardine P M, Stewart M A, Barnett M O, *et al.* Influence of soil geochemical and physical properties on chromium (VI) sorption and bioaccessibility [J]. *Environmental Science & Technology*, 2013, **47**(19): 11241-11248.
- [20] Tyler G, Olsson T. Concentrations of 60 elements in the soil solution as related to the soil acidity [J]. *European Journal of Soil Science*, 2001, **52**(1): 151-165.
- [21] Brown P H, Dunemann L, Schulz R, *et al.* Influence of redox potential and plant species on the uptake of nickel and cadmium from soils [J]. *Zeitschrift für Pflanzenernährung und Bodenkunde*, 1989, **152**(1): 85-91.
- [22] 陈志凡, 赵烨, 郭廷忠, 等. 北京市不同区位耕作土壤中重金属总量与形态分布特征 [J]. *环境科学*, 2013, **34**(6): 2399-2406.
- [23] 刘春早, 黄益宗, 雷鸣, 等. 湘江流域土壤重金属污染及其生态环境风险评价 [J]. *环境科学*, 2012, **33**(1): 260-265.
- [24] Ščančar J, Milačič R. Aluminium speciation in environmental samples: a review [J]. *Analytical and Bioanalytical Chemistry*, 2006, **386**(4): 999-1012.
- [25] 杜彩艳, 祖艳群, 李元. pH 和有机质对土壤中镉和锌生物有效性影响研究 [J]. *云南农业大学学报*, 2005, **20**(4): 539-543.

CONTENTS

Application of a Two-stage Virtual Impactor in Measuring of PM ₁₀ and PM _{2.5} Emissions from Stationary Sources	JIANG Jing-kun, DENG Jian-guo, LI Zhen, <i>et al.</i> (2003)
Hygroscopic Properties and Closure of Aerosol Chemical Composition in Mt. Huang in Summer	CHEN Hui, YANG Su-ying, LI Yan-wei, <i>et al.</i> (2008)
Characteristics of Water-soluble Inorganic Ions in Atmospheric Aerosols in Shenyang	MIAO Hong-yan, WEN Tian-xue, WANG Lu, <i>et al.</i> (2017)
Characteristics and Source Apportionment of Water-soluble Ions in Dry Deposition in the Summer and Autumn of Nanjing	QIN Yang, ZHU Bin, ZOU Jia-nan, <i>et al.</i> (2025)
Distribution Characteristics of Water-soluble Ions in Size-segregated Particulate Matters in Taiyuan	CAO Run-fang, YAN Yu-long, GUO Li-li, <i>et al.</i> (2034)
Characteristics of Ozone over Standard and Its Relationships with Meteorological Conditions in Beijing City in 2014	CHENG Nian-liang, LI Yun-ting, ZHANG Da-wei, <i>et al.</i> (2041)
Chemical Composition of Alkanes and Organic Acids in Vehicle Exhaust	YUAN Jia-wen, LIU Gang, LI Jiu-hai, <i>et al.</i> (2052)
Effect of DOC/CCRT Aging on Gaseous Emission Characteristics of an In-used Diesel Engine Bus	LOU Di-ming, HE Nan, TAN Pi-qiang, <i>et al.</i> (2059)
Studies of Dynamic Adsorption Behavior of VOCs on Biochar Modified by Ultraviolet Irradiation	LI Qiao, YONG Yi, DING Wen-chuan, <i>et al.</i> (2065)
Absorption Spectral Characteristic Dynamics of Dissolved Organic Matter (DOM) from a Typical Reservoir Lake in Inland of Three Gorges Reservoir Areas: Implications for Hg Species in Waters	JIANG Tao, LU Song, WANG Qi-lei, <i>et al.</i> (2073)
Spectral Characteristics of Dissolved Organic Matter (DOM) in Waters of Typical Agricultural Watershed of Three Gorges Reservoir Areas	WANG Qi-lei, JIANG Tao, ZHAO Zheng, <i>et al.</i> (2082)
High-resolution Variations of Oxygen and Hydrogen Isotopes of Precipitation and Feedback from Cave Water: An Example of Jiguan Cave, Henan	SUN Zhe, YANG Yan, ZHANG Ping, <i>et al.</i> (2093)
Spatial Response of River Water Quality to Watershed Land Use Type and Pattern Under Different Rainfall Intensities	JI Xiang, LIU Hong-yu, LI Yu-feng, <i>et al.</i> (2101)
Determination of Background Value and Potential Ecological Risk Assessment of Heavy Metals in Sediments of the Danjiangkou Reservoir	ZHAO Li, WANG Wen-wen, JIANG Xia, <i>et al.</i> (2113)
Spatial Distribution Characteristics and Risk Assessment of Polychlorinated Biphenyls (PCBs) in Sediments and Soils from the Dishui Lake and Its River System	WANG Xue-ping, HUANG Xing, BI Chun-juan, <i>et al.</i> (2121)
Pollution Characteristics and Ecological Risk Assessment of Organochlorine Pesticides in Water Source Areas of Guangdong and Guangxi	YANG Yu-xiang, LIU Xin-yu, ZHAN Zhi-wei, <i>et al.</i> (2131)
Responses of Nutrients and Chlorophyll a to Water Level Fluctuations in Poyang Lake	LIU Xia, LIU Bao-gui, CHEN Yu-wei, <i>et al.</i> (2141)
Influence of Periodic Temperature Disturbance on the Succession of Algal Community Structure	GONG Dan-dan, LIU De-fu, ZHANG Jia-lei, <i>et al.</i> (2149)
Effects of Bromate on the Growth and Physiological Characteristics of <i>Chlorella vulgaris</i>	WANG Zhi-wei, LIU Dong-mei, ZHANG Wen-juan, <i>et al.</i> (2158)
Effect of Water Bloom on the Nitrogen Transformation and the Relevant Bacteria	LI Jie, ZHANG Si-fan, XIAO Lin (2164)
Effect of Carbon and Nitrogen Forms on Decomposition of Organic Matter in Sediments from Urban Polluted River	TANG Qian, LIU Bo, WANG Wen-lin, <i>et al.</i> (2171)
Interfacial Property of Amphiphilic Copolymer Blending PVDF UF Membrane and Protein Anti-fouling	MENG Xiao-rong, LU Bing-xue, FU Dong-hui, <i>et al.</i> (2179)
Adsorption of Hg(II) in Water by Sulfhydryl-Modified Sepiolite	XIE Jing-ru, CHEN Ben-shou, ZHANG Jin-zhong, <i>et al.</i> (2187)
Adsorption Behavior of Low Concentration Phosphorus from Water onto Modified Reed Biochar	TANG Deng-yong, HUANG Yue, XU Rui-chen, HU Jie-li, <i>et al.</i> (2195)
Adsorption Characteristics of 2,4-D on UiO-66 from Wastewater	REN Tian-hao, YANG Zhi-lin, GUO Lin, <i>et al.</i> (2202)
Mechanism and Surface Fractal Characteristics for the Adsorption of <i>p</i> -nitrophenol on Water-quenched Blast Furnace Slag	WANG Zhe, HUANG Guo-he, AN Chun-jiang, <i>et al.</i> (2211)
Adsorption Characteristics for Humic Acid by Binary Systems Containing Kaolinite and Goethite	NIU Peng-ju, WEI Shi-yong, FANG Dun, <i>et al.</i> (2220)
Effects of Sulfur/sponge Iron Ratio for Deep Denitrification and Phosphorus Removal of Reclaimed Water	ZHOU Yan-qing, HAO Rui-xia, WANG Zhen, <i>et al.</i> (2229)
Effect of Element Sulfur Particle Size and Type of the Reactor on Start-up of Sulfur-based Autotrophic Denitrification Reactor	MA Hang, ZHU Qiang, ZHU Liang, <i>et al.</i> (2235)
Influencing Mechanism of Titanium Salt Coagulant Chemical Conditioning on the Physical and Chemical Properties of Activated Sludge Flocs	WANG Cai-xia, ZHANG Wei-jun, WANG Dong-sheng, <i>et al.</i> (2243)
Distribution Characteristics of Methanogens in Urban Sewer System	SUN Guang-xi, JIN Peng-kang, SONG Ji-na, <i>et al.</i> (2252)
Long-term Performance and Bacterial Community Composition Analysis of AGS-SBR Treating the Low COD/N Sewage at Low DO Concentration Condition	XIN Xin, GUAN Lei, YAO Yi-duo, <i>et al.</i> (2259)
Optimization for <i>Microthrix parvicella</i> Quantitative Processing of Fluorescence <i>in situ</i> Hybridization (FISH)	WANG Run-fang, ZHANG Hong, WANG Qin, <i>et al.</i> (2266)
Influence of Carbonization Temperature on Bacterial Community of the Biological Carbon Electrode Based on High-throughput Sequencing Technology	WU Yi-cheng, HE Guang-hua, ZHENG Yue, <i>et al.</i> (2271)
Isolation, Identification and Characteristics of a <i>Rhodospseudomonas</i> with High Ammonia-nitrogen Removal Efficiency	HUANG Xue-jiao, YANG Chong, NI Jiu-pai, <i>et al.</i> (2276)
Variation Characteristics of Inorganic Phosphorus in Purple Soil Profile Under Different Conservation Tillage Treatments	HAN Xiao-fei, GAO Ming, XIE De-ti, <i>et al.</i> (2284)
Effect of Different Organic Materials on Nitrogen Mineralization in Two Purple Soils	ZHANG Ming-hao, LU Ji-wen, ZHAO Xiu-lan (2291)
Impacts of Biochar and Straw Application on Soil Organic Carbon Transformation	ZHANG Ting, WANG Xu-dong, PANG Meng-wen, <i>et al.</i> (2298)
Tracing Sources of Heavy Metals in the Soil Profiles of Drylands by Multivariate Statistical Analysis and Lead Isotope	SUN Jing-wei, HU Gong-ren, YU Rui-lian, <i>et al.</i> (2304)
Landscape Patterns Characteristics of Soil Heavy Metal Pollution in a Town of Southern Jiangsu	CHEN Xin, PAN Jian-jun, WANG Wen-yong, <i>et al.</i> (2313)
Assessment and Pollution Characteristics of Heavy Metals in Soil of Different Functional Areas in Luoyang	LIU Ya-na, ZHU Shu-fa, WEI Xue-feng, <i>et al.</i> (2322)
Evaluation on Heavy Metal Pollution and Its Risk in Soils from Vegetable Bases of Hangzhou	GONG Meng-dan, ZHU Wei-qin, GU Yan-qing, <i>et al.</i> (2329)
Fluorescence Spectroscopic Characteristics and Cu ²⁺ -complexing Ability of Soil Dissolved Organic Matter	TIAN Yu, WANG Xue-dong, CHEN Xiao-lin, <i>et al.</i> (2338)
Effect of Stabilizer Addition on Soil Arsenic Speciation and Investigation of Its Mechanism	CHEN Zhi-liang, ZHAO Shu-hua, ZHONG Song-xiong, <i>et al.</i> (2345)
Effects of Human Gut Microbiota on Bioaccessibility of Soil Cd, Cr and Ni Using SHIME Model	YIN Nai-yi, DU Hui-li, ZHANG Zhen-nan, <i>et al.</i> (2353)
Photosynthetic Characteristics and Ozone Dose-response Relationships for Different Genotypes of Poplar	XIN Yue, GAO Feng, FENG Zhao-zhong (2359)
Effects of Pyrene on Low Molecule Weight Organic Compounds in the Root Exudates of Five Species of <i>Festuca</i>	PAN Sheng-wang, YUAN Xin, LIU Can, <i>et al.</i> (2368)
N% and S% in Leaves of Vascular Plants <i>Cinnamomum camphora</i> and <i>Pinus massoniana</i> Lamb. for Indicating the Spatial Variation of Atmospheric Nitrogen and Sulfur Deposition	XU Yu, XIAO Hua-yun, ZHENG Neng-jian, <i>et al.</i> (2376)
Temporal and Spatial Dynamics of Greenhouse Gas Emissions and Its Controlling Factors in a Coastal Saline Wetland in North Jiangsu	XU Xin-wanghao, ZOU Xin-qing, LIU Jing-ru (2383)
Preparation of Visible-light-induced g-C ₃ N ₄ /Bi ₂ S ₃ Photocatalysts for the Efficient Degradation of Methyl Orange	ZHANG Zhi-bei, LI Xiao-ming, CHEN Fei, <i>et al.</i> (2393)
Estimation of Co-benefits from Pollution Emission Reduction by Eliminating Backward Production Capacities in Hainan Province	GENG Jing, REN Bing-nan, LÜ Yong-long, <i>et al.</i> (2401)

《环境科学》第6届编辑委员会

主 编: 赵进才

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 刘 毅 汤鸿霄 孟 伟 周宗灿 林金明
赵进才 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)

2016年6月15日 第37卷 第6期

ENVIRONMENTAL SCIENCE

(Monthly Started in 1976)

Vol. 37 No. 6 Jun. 15, 2016

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	赵进才	Editor-in -Chief		ZHAO Jin-cai
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: 120.00元

国外发行代号: M 205

国内外公开发行