环境科学

ENVIRONMENTAL SCIENCE

ISSN 0250-3301 CODEN HCKHDV
HUANJING KEXUE

■ 主办 中国科学院生态环境研究中心
■ 出版 科学出版社

2019
Vol.40 No.2
第40卷 第2期

环 境 科 学
(HUANJING KEXUE)
ENVIRONMENTAL SCIENCE
第40卷 第2期
2019年2月15日

目 次

艺方知库
Eco-Environmental Knowledge Web

环 境 科 学
Environmental Science

第 40 卷 第 2 期 2019 年 2 月
Vol. 40, No. 2 Feb., 2019

异龙湖沉积物重金属人为污染与潜在生态风险

李小林[1], 刘恩峰[1,2*], 于真真[2,3,4], 张恩楼[2], 林琪[2,4], 王荣[2], 沈吉[2]

(1. 山东师范大学地理与环境学院, 人地协调与绿色发展山东省高校协同创新中心, 济南 250358; 2. 中国科学院南京地理与湖泊研究所, 湖泊与环境国家重点实验室, 南京 210008; 3. 中国科学院地理科学与资源研究所, 北京 100101; 4. 中国科学院大学, 北京 100049)

摘要: 本文通过对云南省异龙湖 4 个沉积短岩芯中 Al、Ti、As、Cd、Cr、Cu、Ni、Pb、Hg、Zn 等金属元素含量与赋存形态的分析, 研究了重金属污染特征和潜在生态风险. 结果表明, 除 Cd 之外, 沉积物中其余金属元素含量变化较小, 变异系数均小于 0.3. 根据聚类分析结果, 所有元素可分为两组, 第Ⅰ组元素包括 As、Cd、Hg 和 Pb, 第Ⅱ组元素包括 Al、Ti、Cr、Cu、Ni 和 Zn; 各沉积岩芯中每组元素具有相似的垂向变化规律, 但不同沉积岩芯中各组元素变化趋势存在较大差异, 反映了较为复杂的沉积环境特征. 相关分析表明, 沉积物中金属元素含量的变化明显受到沉积物质地变化的影响. 沉积物中 Cd 和 Pb 以可还原态为主, 平均质量分数分别为 48% 和 42%; Cr、Cu、Zn 和 Ni 主要赋存于残渣态中, 平均质量分数分别为 68% ~82%. 根据重金属富集系数和次生相富集系数评价结果, Cd 为主要的污染元素, 平均达到了中等污染程度, 而其他元素为无污染至弱污染水平; 人为贡献的重金属主要赋存于可提取态中. 综合生态风险指数与沉积物质量基准评价结果、以及重金属污染水平与赋存形态, 异龙湖表层沉积物中 As、Cu、Hg、Ni、Pb 和 Zn 具有低等程度的潜在生态风险, Cd 具有较高程度的潜在生态风险.

关键词: 异龙湖; 沉积物; 重金属; 含量与形态; 污染; 潜在生态风险

中图分类号: X524 **文献标识码**: A **文章编号**: 0250-3301(2019)02-0614-11 **DOI**: 10.13227/j.hjkx.201805112

Contamination and Potential Ecological Risk Assessment of Heavy Metals in the Sediments of Yilong Lake, Southwest China

LI Xiao-lin[1], LIU En-feng[1,2*], YU Zhen-zhen[2,3,4], ZHANG En-lou[2], LIN Qi[2,4], WANG Rong[2], SHEN Ji[2]

(1. Collaborative Innovation Center of Human-Nature and Green Development in Universities of Shandong, College of Geography and Environment, Shandong Normal University, Ji'nan 250358, China; 2. State Key Laboratory of Lake Science and Environment, Nanjing Institute of Geography and Limnology, Chinese Academy of Sciences, Nanjing 210008, China; 3. Institute of Geographic Sciences and Natural Resources Research, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100101, China; 4. University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China)

Abstract: The concentrations of Al, Ti, As, Cd, Cr, Cu, Ni, Pb, Zn, and Hg and chemical speciation of Cd, Cr, Cu, Ni, Pb, and Zn in four short cores sampled from the Yilong Lake, Yunnan Province were analyzed. The vertical and spatial features in the pollution levels and potential ecological risks of heavy metals in the sediments were studied. Except for the wide concentration ranges of Cd, the metals in the sediments showed narrow variations in their concentrations with coefficients of variation less than 0.3. According to the cluster analysis results, all metals could be classified into two groups: metals in group Ⅰ included As, Cd, Hg, and Pb, while metals in group Ⅱ included Al, Ti, Cr, Cu, Ni, and Zn. The metals in each group exhibited similar vertical variations in each core, but their variations were highly different between the cores. The correlation analysis results demonstrated that the variations in metal concentrations in the sediments were greatly regulated by the sediment texture. Therefore, the enrichment factor (EF) method was used for the differentiation of metals from the natural and anthropogenic sources and for the pollution assessment based on the total metal concentrations. The Cd and Pb in the sediments were mainly presented in the reducible speciation with percentages of 48% and 42%, respectively; Cr, Cu, Zn, and Ni were primarily (68%-82%) associated with the residual speciation. Based on the EF and chemical speciation of metals and their enrichment coefficients of the secondary phase, Cd was the typical pollutant with moderate pollution on average, and the other elements were observed in non- to weak pollution levels. Anthropogenic metals were mainly associated with the extractable speciation in the sediment. Combining the ecological risk index, the sediment quality guidelines, as well as the pollution level and chemical speciation of metals, As, Cu, Hg, Ni, Pb, and Zn in the surface sediments of Yilong Lake should have low potential ecological risk. However, Cd may pose a high potential ecological risk.

Key words: Yilong Lake; sediment; heavy metals; concentration and chemical speciation; pollution; potential eco-risk

重金属因其来源广泛, 具有高毒性、难降解性、生物累积性和食物链放大等生态环境效应[1~4], 成为备受关注的污染物之一. 人为排放的重金属在水环境中大部分通过吸附与络合等方式与黏土及有机质等结合、或以金属氧化物的形式埋藏

收稿日期: 2018-05-13; **修订日期**: 2018-08-03
基金项目: 中国湖泊沉积物底质调查专项(2014FY110400); 国家自然科学基金项目(41271214, 41672354)
作者简介: 李小林(1991 ~), 男, 硕士研究生, 主要研究方向湖泊沉积与环境地球化学, E-mail: 2967016225@qq.com
* 通信作者, E-mail: liuenfeng@sdnu.edu.cn

于沉积物中[2,5,6]；与自然来源的重金属相比，沉积物中人为源的重金属具有较高的生物可给性，对水体生态系统潜在危害更大[3,6,7]．除了人为污染之外，水体沉积物中细颗粒物质通常对重金属具有显著的“富集效应”[8,9]．物理筛分与惰性元素矫正技术为定量区分沉积物中重金属含量变化的影响因素，量化人为贡献提供了良好的方法[6,8,9]．沉积物中重金属的生物可给性和毒性以及它们在水环境中迁移转化潜力不仅与重金属含量有关，更取决于其赋存形态[4,10]，重金属形态连续提取技术在反映其可迁移性和潜在生态危害方面更具优势[4,9~13]．国内外学者提出了多种基于沉积物重金属含量与形态分析结果的污染与生态风险评价方法，但基于不同方法得到的结论不尽相同[6,7,9]，这给科学评估沉积物重金属污染与生态风险带来了一定的不确定性；部分研究对不同评价结果的可靠性与差异原因进行了初步分析[7,9]，但还有待进一步深入，需要更多的研究加以验证．

改革开放以来，伴随着我国经济的快速发展，各种污染物排放量不断增加，重金属污染已经成为湖泊等水体突出的环境问题之一，这在东部工业发达地区尤为突出，同时也开展了较为深入和系统的研究[2,3,13~15]．云贵高原是我国五大湖区之一，经济相对欠发达；该地区面积 10 km^2 以上的湖泊有 11 个，大部分湖泊面临水质下降、湖泊富营养化与水生生物多样性降低等问题[16,17]；同时，有研究也发现滇池[7,18]、程海[19]、洱海[20]等人类活动影响程度较高的大型湖泊存在不同程度的重金属污染，而对其他中小型特别是农业区湖泊重金属污染的研究还较为薄弱，这一定程度上影响了对区域湖泊环境质量的全面认识．异龙湖位于云南省东南部的石屏县，流域经济以农业为主，农业用地面积占流域总面积的 40% 左右[21]，近年来形成了以农副产品加工业为主的工业体系．调查研究表明，异龙湖面临着水体污染、沼泽化、富营养化、生态系统退化和生物多样性锐减等诸多问题[22~24]．异龙湖是石屏县重要的渔业基地，重金属污染可能成为影响渔产品质量甚至危害人类健康的重要因子[25]，但目前对异龙湖重金属污染状况的研究还十分薄弱．Bai 等[26]对异龙湖表层沉积物重金属的含量与潜在生态风险进行了初步分析，认为重金属斑块状高值主要与人为污染有关，但未考虑沉积物质地变化对重金属含量的影响，关于重金属来源结果的可靠性有待进一步证实，并且对沉积物重金属污染程度和赋存形态也缺乏必要的研究．

本文以异龙湖不同湖区 4 个沉积短岩芯为研究材料，利用重金属含量与赋存形态分析结果，采用富集系数法和潜在生态风险评价法[27]，并参考沉积物质量基准[28]，研究了沉积物重金属的污染程度及潜在生态风险特征，并对不同污染与生态风险评价结果进行了对比分析，以期为全面了解异龙湖环境质量状况、有针对性开展环境保护与污染治理提供科学依据，也可为全面了解我国云贵高原不同人类活动影响下的湖泊重金属污染态势提供参考．

1　材料与方法

1.1　区域概况

异龙湖是云南省九大高原湖泊之一，流域面积约 360 km^2，流域内人口约 13.2 万，占石屏县人口总数的 44%[21]．异龙湖具有提供工农业生产用水、水产养殖、防洪、调蓄等多种功能，围湖造田等人类活动影响以及湖泊淤积等原因，湖泊面积由上世纪 50 年代的 53 km^2 缩减至目前的 31 km^2[24]．异龙湖最大水深 5.7 m，多年平均水深 3.9 m[22]，属于典型的浅水湖泊；湖水主要依靠大气降水和地表径流补给，其中湖面降水与地表径流占总集水量 77% ~89%[24]；受降水波动等因素的影响，湖泊面积与水位波动较大[29]．据云南省水质监测资料显示，20 世纪 50 年代至 20 世纪末，异龙湖水质以Ⅲ类为主；近年来，流域农业发展导致面源污染较为突出[24]，水体中总氮和总磷平均质量浓度为 3.99 $mg·L^{-1}$和 0.11 $mg·L^{-1}$，湖水水质降为劣Ⅴ类[23]；水生生态系统结构与功能也呈现明显的退化趋势[22]．

1.2　样品采集

2015 年，使用奥地利产 UWTTEC 重力采样器在异龙湖不同湖区采集了 4 根沉积短岩芯，采样点位置与岩芯编号见图 1．沉积物样品现场以 1 cm 间隔分样，样品编号按照岩芯号和深度模式，如 YLH3-17 代表 YLH3 岩芯深度 16 ~ 17 cm 的样品．所有样品均装入聚乙烯袋中密封，带回实验室低温保存．

1.3　实验分析

冷冻干燥后的沉积物样品经玛瑙研钵研磨后，采用 $HCl-HNO_3-HF-HClO_4$进行消解，用于金属元素含量（总量）分析[30]．沉积物样品中 Cd、Cr、Cu、Ni、Pb 和 Zn 赋存形态采用 BCR（European Communities Bureau of Reference）方法进行连续提取[5]，主要包括 F1（酸可提取态）、F2（可还原态）、F3（可氧化态）和 F4（残渣态），其中 F1、F2 和 F3 态称为可提取态或生物可利用态．残渣态金属含量采用其总量与可提取态差值表示．表层沉积物重金

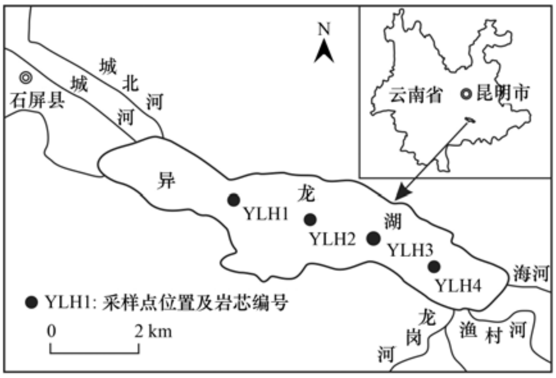

图1 异龙湖及采样点位置示意

Fig. 1 Location of Yilong Lake and the sampling sites

属含量反映了当前水环境的污染状况，同时也是重金属在水体-沉积物之间交换的主要源或汇，与底栖生物健康状况最为密切[1, 11]. 因此，本文只对YLH3 岩芯及其他岩芯表层(0 ~ 1 cm)沉积物中金属形态组成进行了分析.

上述消解与 BCR 方法连续提取后的溶液中 As、Cd、Cr、Cu、Ni 和 Pb 的质量浓度采用电感耦合等离子体质谱仪(ICP-MS, Agilent 7700)测定，Al、Ti、Zn 质量浓度采用电感耦合等离子体原子发射光谱仪(ICP-AES, Leeman Labs, Profile DV)测定. 沉积物样品中 Hg 含量采用美国 Leeman Labs HydraⅡ C 型全自动测汞仪测定. 金属元素总量分析过程中采用标准参考物质 GBW07309 进行质量控制，各金属元素含量回收率为 92% ~106%，平行测量误差小于 10%. 连续提取过程中采用 GBW07436 标准物质进行质量控制，各金属元素赋存形态提取结果均在标准值范围内.

取 1 g 左右的沉积物样品经 5% 的 HCl 和 5% 的 H_2O_2 处理后，采用英国 Malvern 公司生产的 Mastersizer-2000 型激光粒度仪进行粒度分析. 取 0. 5 g 左右沉积物样品经 5% 的 HCl 去除碳酸盐并用蒸馏水洗至中性后进行冷冻干燥，研磨后采用 Flash EA 1112 元素分析仪测定总有机碳(TOC)含量. 沉积岩芯中^{210}Pb、^{226}Ra 及^{137}Cs 活度采用美国 EG&G Ortec 公司生产的高纯锗井型探测器(HPGeGWL-120-15)测定，本文主要对 YLH3 岩芯年代进行了分析.

1.4 重金属污染与潜在生态风险评价方法

除了人为污染之外，沉积物中重金属含量还受到沉积物质地的影响，对于粒度组成相对较粗的河口和海岸带沉积物，通常采用物理筛分法分离出细颗粒(<63 μm)组分用于重金属含量分析，进而降低“粒度效应”对污染评价不确定性的影响[8]. 湖泊沉积物粒度组成一般以黏土和粉砂成分为主，其粒度组成的变化也会对重金属含量产生一定的影响[9]，但对湖泊沉积物不同颗粒组分进行物理分离实验操作难度较大，通常采用参比元素矫正减小“粒度效应”对重金属含量与污染评价不确定的影响[6, 9]，参考富集系数(EF)定量判识重金属的来源与污染程度[6, 9]. 异龙湖沉积物重金属富集系数计算过程中采用惰性元素 Al 作为参比元素，计算公式见文献[9]. 重金属污染等级划分参考 Sutherland[31]提出的标准: EF < 2，无污染到弱污染; 2≤EF <5，中等污染; 5≤EF <20，重污染; EF ≥20，极重污染.

已有研究表明，人为来源的重金属主要赋存于可提取态(次生相)中[9, 13]，采用样品 YLH3-17 中重金属的可提取态含量作为参考背景，计算得到 YLH3 岩芯其余样品及表层沉积物中重金属的次生相富集系数.

潜在生态风险指数法和沉积物质量基准(SQGs)是两种具有代表性的重金属潜在生态风险评价方法[27,28]. 潜在生态风险指数包括单因子潜在生态风险指数(E_r)和潜在生态风险指数(RI)，该方法综合考虑了重金属的毒性、迁移和转化的能力，E_r 和 RI 的计算方法见文献[27]. 单因子潜在生态风险等级与重金属毒性系数参考 Håkanson 提出的标准[27]; 由于本文仅对 RI 标准中涉及的 7 种元素进行了分析，采用原有的 RI 标准可能低估重金属的潜在生态风险; 采用加权平均法，对 RI 风险阈值进行了修定[19]，RI < 108，低生态风险; 108≤RI < 216，中等生态风险; 216≤RI < 432，重生态风险; RI≥432，严重生态风险. 沉积物质量基准包括阈值效应含量(TEC)与可能效应含量(PEC)[28]. 当重金属的含量小于 TEC 时，不会对底栖生物产生毒性效应; 若重金属含量大于 PEC，则会对底栖生物产生毒性; 若含量介于两者之间，则可能会产生毒性效应[22].

2 结果与讨论

2.1 沉积岩芯年代

YLH3 岩芯底部$^{210}Pb_{tot}$与^{226}Ra 并未达到平衡，根据$^{210}Pb_{tot}$与^{226}Ra 差值获得的过剩$^{210}Pb_{ex}$活度波动较大，因此$^{210}Pb_{ex}$方法不适合进行沉积岩芯精确年代序列的建立[32]. YLH3 岩芯 10. 5 cm 处^{137}Cs 存在明显峰值，对应于 1963 年全世界核爆炸实验大气沉降的峰值，可作为年代时标[25]. 根据 1963 年以来的平均沉积速率，YLH3 岩芯底部 (17 cm)沉积年代约为 1920 年. YLH3 岩芯沉积速率明显小于中部湖区[33]，这与浅水湖泊沉积环境空间差异性较

大的特点吻合.

2.2 沉积物中重金属含量

2.2.1 沉积岩芯中重金属含量变化

异龙湖 4 个沉积岩芯中各金属元素含量统计如表 1 所示. 除 Cd 之外, 其他元素的变异系数均小于 0.3. 各岩芯之间 Cd 的平均含量差异较大, 最大值为最小值的 3.4 倍; 各沉积岩芯间其余元素平均含量差异较小, 最大值为最小值的 1.4 ~ 2.0 倍.

表 1　异龙湖沉积物与背景样品中金属元素含量统计分析

Table 1　Statistical descriptions of metal concentrations in the sediments from Yilong Lake and background materials

项目		Al /g·kg^{-1}	Ti /g·kg^{-1}	As /mg·kg^{-1}	Cd /mg·kg^{-1}	Cu /mg·kg^{-1}	Cr /mg·kg^{-1}	Hg /μg·kg^{-1}	Ni /mg·kg^{-1}	Pb /mg·kg^{-1}	Zn /mg·kg^{-1}
表层沉积物	最大值	77.8	35.6	23.8	1.02	28.1	93.6	75	34.5	50.9	93
	最小值	34.9	13.9	14.8	0.42	12.6	42.5	36	15.6	22.4	47
	均值	62.3	27.7	20.4	0.85	22.6	77.6	63	28.8	41.8	80
	变异系数	0.26	0.30	0.17	0.30	0.26	0.26	0.2	0.27	0.28	0.2
沉积岩芯	最大值	97.0	43.9	27.0	1.08	33.2	123.3	78	43.8	53.2	101
	最小值	34.9	13.9	9.9	0.16	12.6	42.5	28	15.6	16.6	41
	均值	71.6	31.5	20.2	0.70	25.6	88.6	62	32.5	39.4	83
	变异系数	0.18	0.21	0.23	0.50	0.17	0.19	0.2	0.18	0.29	0.2
沉积岩芯背景值		42.8	18.9	11.7	0.16	15.3	53.7	43	19.4	16.6	41
云南土壤背景值[34]		–	–	18.4	0.22	46.3	65.2	60	42.5	40.6	90
沉积物质量基准[28]	TEC	–	–	9.8	0.99	32	43	180	23	35.8	121
	PEC	–	–	33	5	149	111	1 060	49	128	459

垂向上, 每一种金属元素在 4 个沉积岩芯中的变化趋势差异较大(图 2). 为进一步分析各金属元素在不同岩芯中的变化规律与相互关系, 对金属元素进行聚类分析. 10 种金属元素在各沉积岩芯中的聚类结果与多岩芯综合聚类结果相似, 可划分为 2 组(图 3), 第Ⅰ组元素包括 Hg、As、Cd 和 Pb, 第Ⅱ组元素包括 Cr、Ni、Cu、Zn、Al 和 Ti. 各岩芯中同一组元素呈相似的垂向变化趋势, 而各组元素在不同岩芯中变化趋势不尽相同(图 2). 第Ⅰ组元素含量由 YLH1 岩芯底部至 9 cm 呈逐渐增加趋势, 在岩芯上部保持相对稳定的高值; 该组元素含量在 YLH2 岩芯 7 cm 深度以下含量较低, 在岩芯上部含量较高且较为稳定; YLH3 和 YLH4 岩芯底部第Ⅰ组元素含量总体较低. 第Ⅱ组元素含量在 YLH1 岩芯底部与顶部样品中含量较低, 在岩芯中部含量较高; YLH2 岩芯中第Ⅱ组元素与第Ⅰ组元素的含量变化趋势相反; YLH3 岩芯中第Ⅱ组元素含量由下向上呈低→高→低→平稳的变化趋势; YLH4 岩芯底部第Ⅱ组元素含量较高. 沉积岩芯中金属元素含量的变化反映了异龙湖较为复杂的沉积环境, 可能与频繁的风浪扰动以及人类活动影响下的流域侵蚀变化有关[33]. 沉积物中 Al、Ti 等铝硅酸盐类元素主要为流域自然来源, 因此 Cr、Ni、Cu、Zn 含量变化可能与沉积物粒度等因素有关[35]; 而 Hg、As、Cd 和 Pb 与其他重金属具有不同的组合特征, 说明除了流域自然来源之外, 还可能受到人为污染的影响.

4 个岩芯中, YLH3 岩芯底部样品(样号 YLH3-17)重金属含量较低, 且低于云南省土壤背景值(表 1), 这可能与两者质地组成或碎屑物质母质成分差异有关[6,8,9]. 结合年代结果与区域经济发展历史特点, YLH3-17 样品可作为准自然背景值用于异龙湖近现代沉积物重金属污染评价.

2.2.2 表层沉积物金属含量变化

异龙湖表层沉积物金属元素平均含量依次为 Al > Ti > Zn > Cr > Pb > Ni > Cu > As > Cd > Hg. 表层沉积物中金属元素含量为沉积岩芯背景值的 0.8 ~5.3 倍. 与 Bai 等[26]于 2004 年采集的表层沉积物相比, 本研究中表层沉积物重金属含量并未明显增加, 这与前文沉积岩芯重金属含量垂向变化分析结果吻合.

2.2.3 沉积物粒度组成、有机碳及其与金属含量的相关性分析

异龙湖沉积物以粉砂和黏土为主, 其平均质量分数分别为 54% 和 30%, 这与其他研究相似[21,33]. 4 个沉积岩芯中粒度组成并无明显的垂向变化规律, 但各沉积岩芯粒度组成存在较大差异(图 2). YLH1 岩芯中细粉砂与黏土组分(< 16 μm)质量分数较低, 平均为 31%, YLH2 ~ YLH4 岩芯中沉积物以细粉砂与黏土组分为主, 其质量分数分别为 66%、67% 和 62%. 异龙湖沉积物中 TOC 含量为 35 ~133 g·kg^{-1}, 均值为 8.9 g·kg^{-1}, 略低于异龙湖中部湖区沉积短岩芯研究结果[33].

粒度组成和有机质含量被认为是影响沉积物中重金属含量的重要因素[8,10], 细粉砂与黏土等细颗粒组分以及有机质对重金属具有一定的富集效应[9].

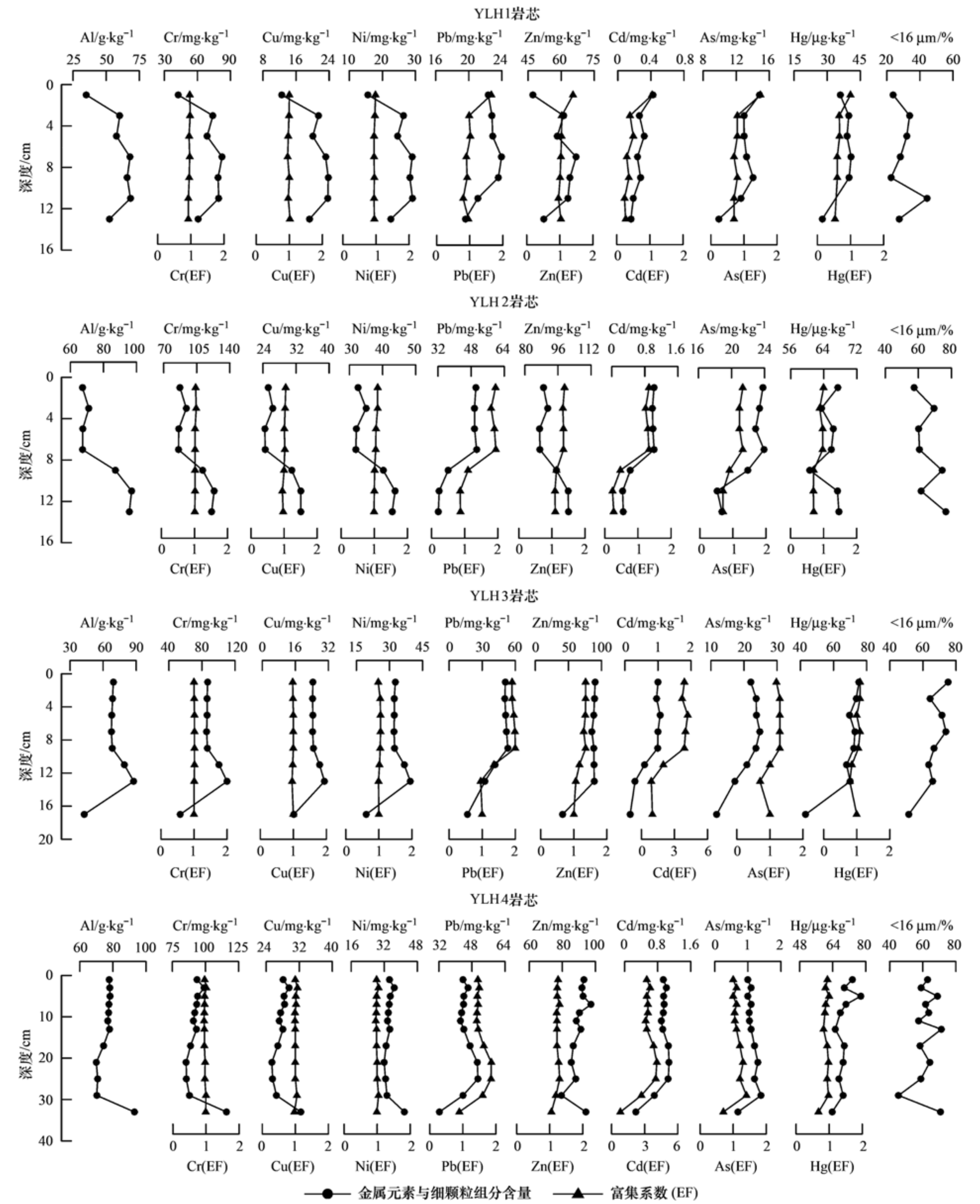

图2 YLH1～YLH4岩芯中金属元素含量、富集系数(EF)及细颗粒组分(<16 μm)质量分数

Fig. 2 Vertical variations in concentrations and enrichment factors (EF) of metals and fine-grained fraction (<16 μm) percentage in cores YLH1-YLH4 from Yilong Lake

异龙湖沉积物中所有金属元素与细颗粒(<16 μm)组分含量呈显著正相关(表2)；Al、Ti、Zn、Cu、Ni和Cr与TOC含量呈显著负相关，而其余元素与TOC含量无显著相关关系(表2). 表明沉积物粒度组成对金属元素含量变化有较大影响，而有机质含量对重金属的富集效应不明显，这可能主要与异龙湖沉积物中有机质以流域外源输入为主有关[21].

2.3 重金属形态组成

YHL3沉积岩芯中各金属元素形态组成如图4所示. Cr、Cu、Zn和Ni主要赋存于残渣态中，平均

表 2　异龙湖 YLH1 ~ YLH4 岩芯中金属元素含量及其与细颗粒组分(<16 μm)、TOC 含量间相关系数[1)]

Table 2　Correlation coefficients of metal concentrations and fine-grained fractions (<16 μm) percentage and TOC concentrations in cores YLH1-YLH4 from Yilong Lake

	Al	Ti	Zn	Cu	Ni	Cr	As	Pb	Cd	Hg	<16 μm
Ti	0.981**										
Zn	0.843**	0.887**									
Cu	0.988**	0.981**	0.882**								
Ni	0.978**	0.979**	0.904**	0.984**							
Cr	0.986**	0.978**	0.864**	0.979**	0.994**						
As	0.368*	0.463**	0.752**	0.459**	0.495**	0.409*					
Pb	0.297	0.386*	0.737**	0.385*	0.433*	0.343*	0.948**				
Cd	0.079	0.180	0.564**	0.181	0.196	0.099	0.876**	0.941**			
Hg	0.619**	0.694**	0.881**	0.668**	0.707**	0.642**	0.860**	0.851**	0.719**		
<16 μm	0.635**	0.711**	0.829**	0.661**	0.726**	0.680**	0.697**	0.700**	0.541**	0.864**	
TOC	-0.740**	-0.701**	-0.458**	-0.653**	-0.679**	-0.735**	0.109	0.063	0.269	-0.263	-0.298

1) ** 表示在 0.01 水平上显著相关，* 表示在 0.05 水平上显著相关

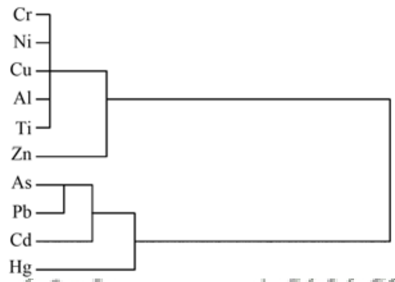

图 3　异龙湖 YLH1 ~ YLH4 岩芯中金属元素聚类分析结果

Fig. 3　Cluster analysis of metals in cores YLH1-YLH4 from Yilong Lake

质量分数分别为 80%、70%、71% 和 82%. Cd 和 Pb 以可还原态为主，平均质量分数均为 48%. 垂向上，Cr 和 Ni 的形态组成变化较小；而 Zn 的可提取态质量分数在岩芯下部（13 ~ 17 cm）较低（22%），仅为岩芯上部的 2/3；Cu 的可提取态含量变化较小，但其质量分数由下向上总体呈减小趋势；Cd 和 Pb 的可提取态含量在岩芯下部（13 ~ 17 cm）较低，岩芯上部含量增加，Cd 和 Pb 可提取态质量分数垂向变化趋势总体相似，在岩芯下部较低，岩芯中部较高.

表层沉积物中 Cr、Cu、Zn 和 Ni 的形态组成与背景沉积物（YLH3-17）相似（图 5），主要赋存于残渣态，其平均质量分数分别为 82%、68%、69% 和 82%. 表层沉积物中 Cd 和 Pb 以可还原态为主，其平均质量分数分别为 46% 和 37%，这与 YLH3 岩芯上部样品相似. 除了 YLH1 岩芯表层沉积物中 Cr、Ni 和 Cu 的可提取态含量与背景样品相似之外，其余表层沉积物中各金属元素（尤其是 Cd、Pb 和 Zn）可提取态含量均显著高于背景沉积物（为 3.0 ~7.1 倍）.

以酸可提取态存在的重金属被认为具有较高的可迁移性和生物可给性[12, 13]. 异龙湖沉积物中 Cr、Cu、Ni、Pb 和 Zn 的酸可提取态含量较低，其平均

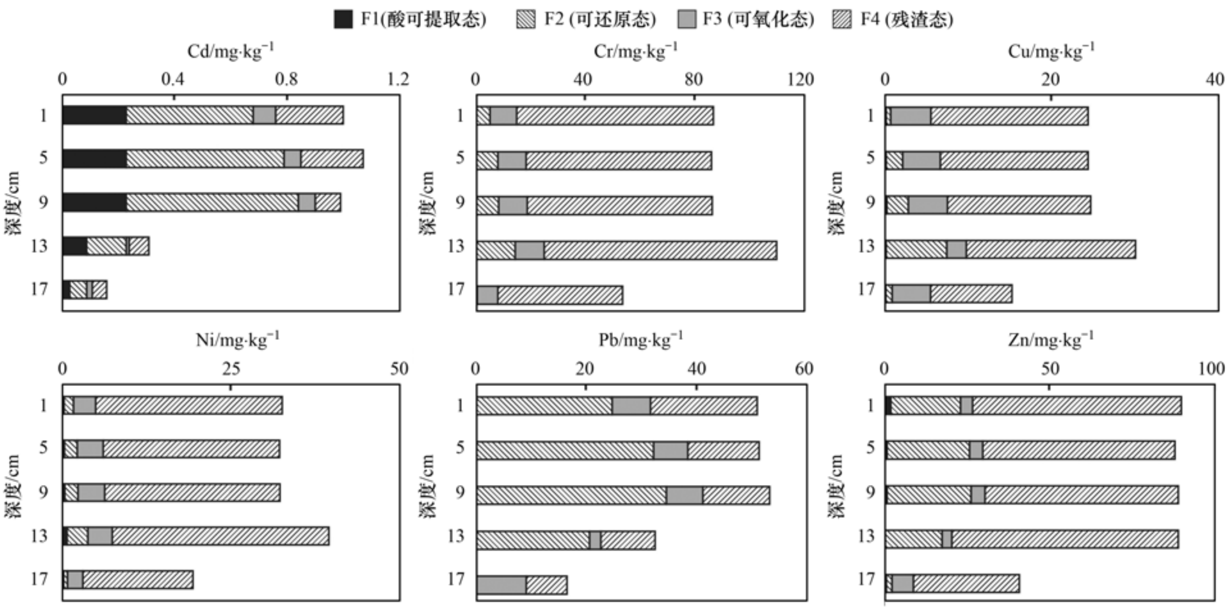

图 4　异龙湖 YLH3 沉积岩芯中金属元素形态分布特征

Fig. 4　Chemical speciation of metals in core YLH3 from Yilong Lake

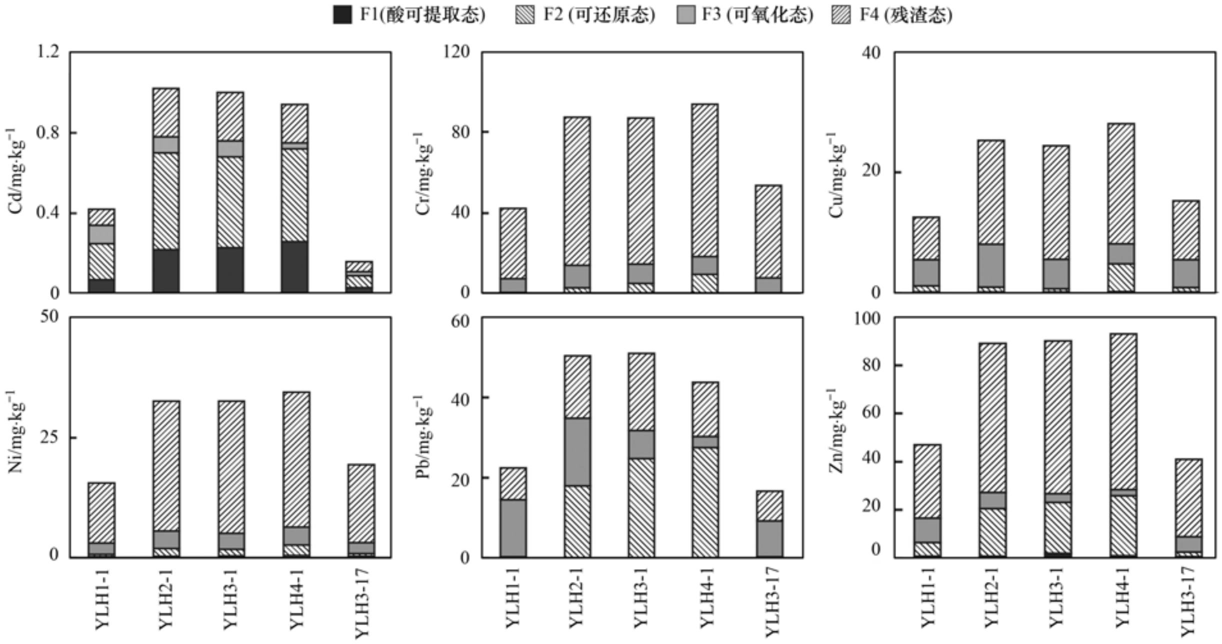

图 5　异龙湖表层沉积物(YLH1-1、YLH2-1、YLH3-1、YLH4-1)与背景样品(YLH3-17)中重金属形态分布特征

Fig. 5　Chemical speciation of heavy metals in surface sediments (YLH1-1, YLH2-1, YLH3-1 and YLH4-1) and background sediment (YLH3-17) from Yilong Lake

质量分数最高为2%；Cd的酸可提取态质量分数较高，平均为23%，这一特征与其他研究一致[13,14,36]，一方面与Cd的地球化学性质有关，即Cd在沉积物中易吸附在细颗粒表面，在碳酸盐矿物形成的过程中易与Ca^{2+}发生替代反应[36]；除此之外还可能与人为污染程度较重有关[13,14,36].

2.4　重金属污染评价

2.4.1　基于重金属总量的污染评价

异龙湖沉积物中Al含量与细颗粒组分(<16 μm)质量分数呈显著正相关(表2)，因此，可作为参比元素对重金属变化的“粒度效应”进行矫正[8,20]. 4个沉积岩芯中各金属元素富集系数平均值依次为：Cd(2.7)>Pb(1.4)>Zn(1.2)>As(1.0)≈Cu(1.0)≈Ni(1.0)≈Cr(1.0)≈Hg(1.0)，其变化范围分别为：0.7~4.3、0.8~2.0、1.0~1.4、0.7~1.6、0.7~1.5、1.0~1.1、0.9~1.1、0.9~1.1和0.5~1.1. Cd的EF值明显高于其他金属元素，Cd平均达到了中等污染程度；As、Pb和Zn的富集系数在岩芯顶部略高(图2)，但总体为弱污染水平；而Cr、Cu、Ni和Hg的EF值接近于1，主要为自然来源，这与聚类分析结果(图3)基本一致. 结合YLH3岩芯1963年时标，Cd污染开始于20世纪60年代左右，但近年来其污染程度并无明显的增加趋势；这与异龙湖流域经济发展历史过程以及洱海、抚仙湖、程海以及泸沽湖等近年来重金属污染逐渐加重的规律不同[19,20,30,37]，可能是与浅水湖泊风浪及较强人为活动导致的表层沉积物扰动及其层序破坏有关[38].

2.4.2　基于重金属形态组成的污染评价

YLH3岩芯及表层沉积物中金属元素的次生相富集系数如图6所示. YLH2~YLH4岩芯表层沉积物中Cd和Pb的次生相富集系数相对较高，平均分别为6.9和3.5；高值出现在0~9 cm，平均分别为7.6和4.0. 表层沉积物与YLH3岩芯0~9 cm沉积物中Zn的次生相富集系数平均分别为2.9和3.3；其余金属次生相富集系数较低(≤2.0). 根据次生相富集系数结果，Cd、Pb和Zn明显受到人为污染的影响，而Cr、Ni和Cu人为污染较弱，这与基于总量的富集系数评价结果基本一致.

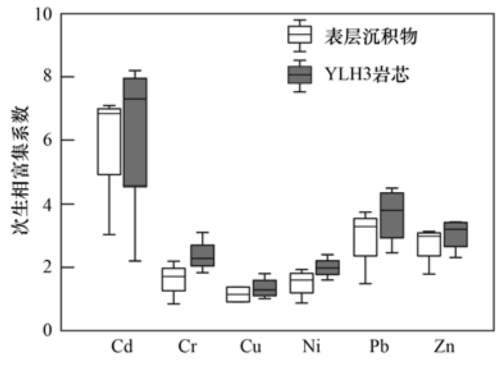

图 6　异龙湖表层沉积物及YLH3岩芯中金属元素次生相富集系数

Fig. 6　Enrichment coefficient of the secondary phases for heavy metals in surface sediments and core YLH3 from Yilong Lake

为了进一步分析人为重金属的赋存形态以及沉积物质地变化对重金属污染评价的影响，选取污染

相对较重的 Cd、Pb 和 Zn 为代表，根据重金属总量与形态分析结果，基于富集系数[20]、次生相富集系数[3]、以及未进行粒度效应矫正的污染系数方法[6,8]，分别估算了表层沉积物中重金属人为贡献量(图 7)．结果表明，基于富集系数得到的人为重金属含量仅略高于基于形态组成的估算值，表明人为重金属主要以可提取态赋存于沉积物中，这与其它研究一致[9,36]．而基于污染系数得到的人为重金属的含量显著高于另外两种估算结果(尤其是 Zn)，说明若不考虑沉积物质地变化对重金属含量的影响，可能导致重金属人为污染程度与人为贡献量估算结果的较大偏差．空间上，除了 YLH1 岩芯之外，其余岩芯表层沉积物中重金属的人为贡献量差异不大，反映了面源污染输入的特征[19]；而 YLH1 岩芯表层沉积物中人为重金属含量较低与其沉积物质地较粗有关(图 2)．

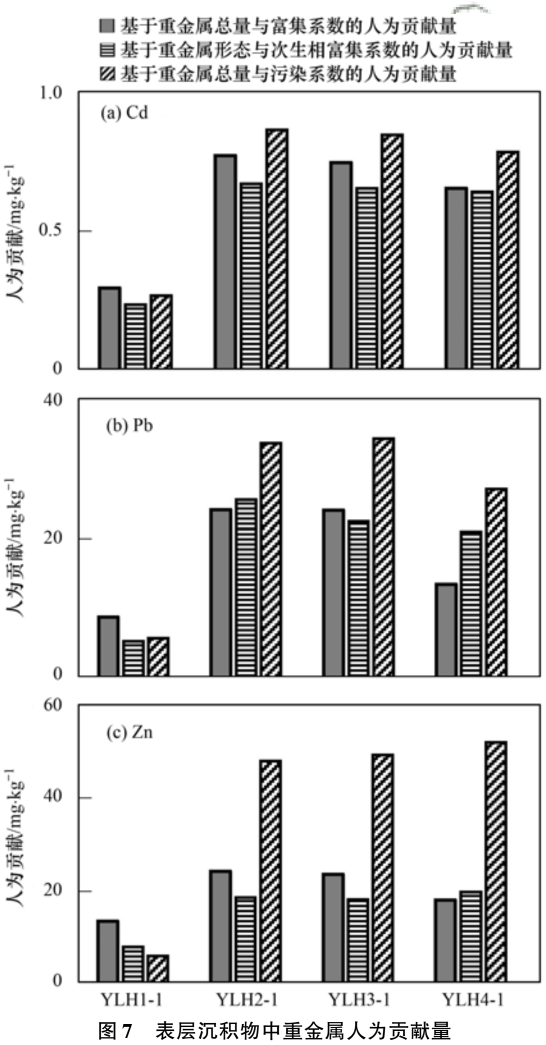

图 7　表层沉积物中重金属人为贡献量

Fig. 7　Concentrations of anthropogenic metals in the surface sediments from Yilong Lake

2.4.3　云贵高原湖泊重金属污染对比及异龙湖沉积物人为重金属来源

比较异龙湖与云贵高原湖泊研究结果可以发现，Cd、Pb 和 Zn 为典型的污染元素[18~20,30,37]．在污染水平上，滇池沉积物中 Zn、Pb 为中度污染程度，Cd 属严重污染[18]，其污染程度明显高于异龙湖．抚仙湖表层沉积物中 Cd 达到重度污染水平，Pb 和 Zn 为中等污染[37]，其污染程度也高于异龙湖．异龙湖沉积物中 Pb、Zn 污染水平与洱海相当，但 Cd 污染程度明显低于洱海(EF = 7.3)[20]．Hg 被认为是典型的污染元素，异龙湖表层沉积物中 Hg 的含量(平均 63 $\mu g \cdot kg^{-1}$)与程海(平均 42 $\mu g \cdot kg^{-1}$)相当[19]，为无污染-弱污染水平，这与洱海 Hg 的重度污染(EF = 6.7)明显不同[20]．对比可以发现，云贵高原不同湖泊重金属污染程度存在明显差异性，这可能与其来源不同有关．

湖泊等水体沉积物中重金属污染来源十分广泛，主要包括工业来源和农业来源，大气沉降和地表径流是主要的输入途径．化肥的施用对农业区湖泊 Cd、Pb、Zn 等污染具有较大贡献[39]；有色金属冶炼释放及大气沉降是云贵高原湖泊重金属污染的主要来源之一，云贵高原湖泊沉积物中 Cd、Pb、Zn 等普遍受到大气沉降的影响[30,37]．异龙湖流域以农业经济为主，其沉积物中重金属污染可能主要来源于农业源和大气沉降，其污染程度较低与流域内及周边地区经济发展较为落后的特点吻合．

2.5　重金属潜在生态风险评价

表层沉积物中重金属可直接或间接地对底栖生物产生危害，还可通过生物富集和生物放大作用影响到水体多营养级生态安全[1,25]．因此，本文重点对表层沉积物重金属潜在生态风险状况进行了探讨．异龙湖表层沉积物中 As、Cr、Cu、Pb 和 Zn 的 E_r 值均小于 40(图 8)，具有较低的潜在危害；Cd 和 Hg 的 E_r 值分别为 79 ~ 192 和 34 ~ 70，均值分别为 158 和 59，分别具有较重、中等潜在生态风险．7 种重金属的 RI 值为 138 ~ 305(图 8)，均值为 259，属于重度生态风险等级．其中 Cd 贡献最大，占到了 61%，这与其较高的毒性系数和污染程度有关．

异龙湖表层沉积物中 Cd、Cu、Hg 和 Zn 的含量均低于 SQGs 中的 TEC 阈值[28]；As 和 Cr 的含量介于 TEC 和 PEC 阈值之间[28]；Ni 和 Pb 的含量均低于 PEC 阈值[28]，但其最高含量大于 TEC 阈值．根据 SQGs 生态风险等级标准[28]，Cd、Cu、Hg 和 Zn 不会对底栖生物产生毒性效应，As、Cr、Ni 和 Pb 可能会对底栖生物产生毒性效应．

基于潜在生态风险指数法和沉积物质量基准法得到的 As、Cd、Cr、Pb 和 Hg 的生态风险等级具有明显的差异．沉积物质量基准法主要考虑了重金属的含量与毒性效应，但并未考虑重金属形态组成的

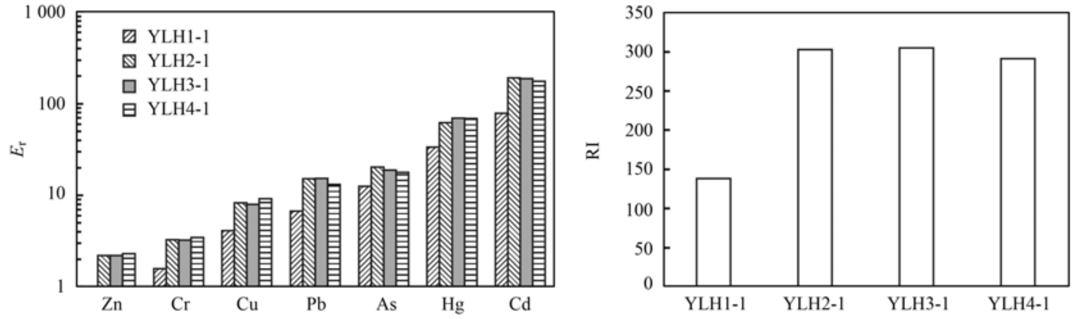

图 8 异龙湖表层沉积物重金属单因子潜在生态风险系数(E_r)和潜在生态风险指数(RI)

Fig. 8 Ecological risk factor (E_r) and ecological risk index (RI) of heavy metals in surface sediments from Yilong Lake

差异[28]，并且不同水体沉积物物理化学性质的差异也会造成其生态风险阈值的波动[10,40]；生态风险指数法考虑了重金属含量和毒性效应，但未考虑沉积物中重金属形态组成的变化[27]. 异龙湖表层沉积物中 Hg 含量均低于 TEC 阈值，且仅为无污染至弱污染水平，因此，笔者认为 Hg 产生生态风险的可能性较低. 表层沉积物中 Cr、Cu、Ni 和 Zn 均以残渣态为主(图 5)，为污染物-弱污染水平；As 的含量虽然高于 TEC 值，但属于污染物-弱污染等级，因此它们具有较低的潜在生态风险. 表层沉积物中 Pb 主要赋存于可提取态中(图 5)，但 Pb 的毒性系数较低，可能具有一定的潜在生态风险，但生态风险较低. 表层沉积物中 Cd 的含量略低于 TEC 值，但具有中等程度的污染，并且 Cd 主要赋存于可提取态中(图 5)，因此，Cd 产生生态风险的可能性较大. 根据沉积物质量基准法和潜在生态风险指数法评价结果，并结合重金属赋存形态和污染程度评价结果进行综合分析，笔者认为异龙湖表层沉积物中 As、Ni、Cu、Hg、Zn 和 Pb 潜在生态风险较低，Cd 是异龙湖沉积物的主要污染物，并且具有较高的潜在生态风险.

3 结论

异龙湖沉积物中所分析的 10 种金属元素含量变化较大，其中 Cd 具有较高的时空变异性. 除了人为污染之外，沉积物重金属含量显著受粒度组成等沉积物质地变化的影响. 沉积岩芯及表层沉积物中，Cd 和 Pb 以可还原态为主，Cr、Cu、Zn 和 Ni 主要赋存于残渣态中. 根据重金属富集系数和形态组成，Cd 为主要的污染元素，平均达到了中等污染程度，人为重金属主要赋存于可提取态中；沉积岩芯上部 As、Pb 和 Zn 存在较弱的人为污染，而其他元素主要为自然来源. 基于沉积物总量和富集系数得到的人为重金属含量与赋存形态分析结果具有较好的一致性；若未考虑沉积物质地变化，基于污染系数评价方法估算的人为重金属含量结果可能具有较大偏差. 相比云南地区其他大型湖泊而言，异龙湖沉积物重金属污染程度相对较轻，与其流域经济不发达的特点一致. 综合生态风险指数与沉积物质量基准评价结果、以及重金属污染水平与赋存形态，异龙湖表层沉积物中 As、Cu、Hg、Ni、Pb 和 Zn 具有低水平的潜在生态风险，Cd 具有较高的潜在生态风险.

致谢：袁和忠、罗文磊、宁栋梁等参加野外采样，蒋庆丰副教授、朱育新副研究员、夏威岚高级工程师、蔡艳杰、刘一兰协助完成室内实验分析，在此深表感谢.

参考文献：

[1] Zuo J X, Fan W H, Wang X L, *et al*. Trophic transfer of Cu, Zn, Cd, and Cr, and biomarker response for food webs in Taihu Lake, China[J]. RSC Advances, 2018, **8**(7): 3410-3417.

[2] Yang Z F, Wang Y, Shen Z Y, *et al*. Distribution and speciation of heavy metals in sediments from the mainstream, tributaries, and lakes of the Yangtze River catchment of Wuhan, China[J]. Journal of Hazardous Materials, 2009, **166**(2-3): 1186-1194.

[3] 陈春霄，姜霞，战玉柱，等. 太湖表层沉积物中重金属形态分布及其潜在生态风险分析[J]. 中国环境科学, 2011, **31**(11): 1842-1848.
Chen C X, Jiang X, Zhan Y Z, *et al*. Speciation distribution and potential ecological risk assessment of heavy metals in sediments of Taihu Lake[J]. China Environmental Science, 2011, **31**(11): 1842-1848.

[4] De Jonge M, Teuchies J, Meire P, *et al*. The impact of increased oxygen conditions on metal-contaminated sediments part II: effects on metal accumulation and toxicity in aquatic invertebrates[J]. Water Research, 2012, **46**(10): 3387-3397.

[5] Rauret G, López-Sánchez J F, Sahuquillo A, *et al*. Improvement of the BCR three step sequential extraction procedure prior to the certification of new sediment and soil reference materials[J]. Journal of Environmental Monitoring, 1999, **1**(1): 57-61.

[6] Dung T T T, Cappuyns V, Swennen R, *et al*. From geochemical background determination to pollution assessment of heavy metals in sediments and soils[J]. Reviews in Environmental Science and Bio/Technology, 2013, **12**(4): 335-353.

[7] 李梁，胡小贞，刘娉婷，等. 滇池外海底泥重金属污染分布特征及风险评价[J]. 中国环境科学, 2010, **30**(S1): 46-51.
Li L, Hu X Z, Liu P T, *et al*. Heavy metals distribution characteristics and potential ecological risk evaluation in the sediment of outer area of Lake Dianchi[J]. China Environmental

Science, 2010, **30**(S1): 46-51.

[8] Birch G F. Determination of sediment metal background concentrations and enrichment in marine environments - A critical review[J]. Science of the Total Environment, 2017, **580**: 813-831.

[9] Liu E F, Shen J. A comparative study of metal pollution and potential eco-risk in the sediment of Chaohu Lake (China) based on total concentration and chemical speciation [J]. Environmental Science and Pollution Research, 2014, **21**(12): 7285-7295.

[10] Campana O, Blasco J, Simpson S L. Demonstrating the appropriateness of developing sediment quality guidelines based on sediment geochemical properties[J]. Environmental Science & Technology, 2013, **47**(13): 7483-7489.

[11] Belzunce-Segarra M J, Simpson S L, Amato E D, *et al*. The mismatch between bioaccumulation in field and laboratory environments: Interpreting the differences for metals in benthic bivalves[J]. Environmental Pollution, 2015, **204**: 48-57.

[12] Roig N, Sierra J, Ortiz J D, *et al*. Integrated study of metal behavior in Mediterranean stream ecosystems: A case-study[J]. Journal of Hazardous Materials, 2013, **263**: 122-130.

[13] 包先明, 晁建颖, 尹洪斌. 太湖流域滆湖底泥重金属赋存特征及其生物有效性[J]. 湖泊科学, 2016, **28**(5): 1010-1017.
Bao X M, Chao J Y, Yin H B. Occurrence characteristics and bioavailability of heavy metals in surface sediments of Lake Gehu, Taihu Basin[J]. Journal of Lake Sciences, 2016, **28**(5): 1010-1017.

[14] 秦延文, 张雷, 郑丙辉, 等. 太湖表层沉积物重金属赋存形态分析及污染特征[J]. 环境科学, 2012, **33**(12): 4291-4299.
Qin Y W, Zhang L, Zheng B H, *et al*. Speciation and pollution characteristics of heavy metals in the sediment of Taihu Lake[J]. Environmental Science, 2012, **33**(12): 4291-4299.

[15] Cheng H X, Li M, Zhao C D, *et al*. Concentrations of toxic metals and ecological risk assessment for sediments of major freshwater lakes in China [J]. Journal of Geochemical Exploration, 2015, **157**: 15-26.

[16] Wang R, Dearing J A, Langdon P G, *et al*. Flickering gives early warning signals of a critical transition to a eutrophic lake state[J]. Nature, 2012, **492**(7429): 419-422.

[17] 蔡佳亮, 苏玉, 文航, 等. 滇池流域入湖河流丰水期大型底栖动物群落特征及其与水环境因子的关系[J]. 环境科学, 2011, **32**(4): 982-989.
Cai J L, Su Y, Wen H, *et al*. Characteristics of Macrozoobenthic assemblages and their relationship with aquatic environmental factors in streams of Lake Dianchi Watershed in the wet season [J]. Environmental Science, 2011, **32**(4): 982-989.

[18] 刘勇, 朱元荣, 吴丰昌, 等. 滇池沉积物中重金属污染特征及其生态风险评估[J]. 生态环境学报, 2014, **23**(7): 1181-1186.
Liu Y, Zhu Y R, Wu F C, *et al*. Pollution characteristics and ecological risk assessment of heavy metals in sediments of Dianchi Lake[J]. Ecology and Environmental Sciences, 2014, **23**(7): 1181-1186.

[19] 于真真, 刘恩峰, 张恩楼, 等. 程海沉积物重金属时空变化及人为污染与潜在生态风险[J]. 环境科学, 2017, **38**(10): 4169-4177.
Yu Z Z, Liu E F, Zhang E L, *et al*. Spatio-temporal variations, contamination and potential ecological risk of heavy metals in the sediments of Chenghai Lake[J]. Environmental Science, 2017, **38**(10): 4169-4177.

[20] Lin Q, Liu E F, Zhang E L, *et al*. Spatial distribution, contamination and ecological risk assessment of heavy metals in surface sediments of Erhai Lake, a large eutrophic plateau lake in southwest China[J]. CATENA, 2016, **145**: 193-203.

[21] 吴汉. 异龙湖近百年来湖泊沉积物有机碳、氮同位素特征及其环境指示意义[D]. 昆明: 云南师范大学, 2016.

[22] 魏翔, 唐光明. 异龙湖近 20 年来营养盐与水生生态系统变化[J]. 环境科学导刊, 2014, **33**(2): 9-14.
Wei X, Tang G M. Changes of nutrients and aquatic ecosystem of Yilong Lake in recent twenty decades[J]. Environmental Science Survey, 2014, **33**(2): 9-14.

[23] 邹锐, 苏晗, 余艳红, 等. 基于水质目标的异龙湖流域精准治污决策研究[J]. 北京大学学报(自然科学版), 2018, **54**(2): 426-434.
Zou R, Su H, Yu Y H, *et al*. Object-oriented precise decision-making (OOPD) for water quality improvementin Lake Yilong [J]. Acta Scientiarum Naturalium Universitatis Pekinensis, 2018, **54**(2): 426-434.

[24] 刘晓海, 宁平, 张军莉, 等. 围湖造田和退田还湖对异龙湖的影响[J]. 昆明理工大学学报(理工版), 2006, **31**(5): 78-81, 94.
Liu X H, Ning P, Zhang J L, *et al*. Towards the effects of reclaiming the land from the lake and restoring the lake from the land in Yilong Lake [J]. Journal of Kunming University of Science and Technology (Science and Technology), 2006, **31**(5): 78-81, 94.

[25] Dalzochio T, Rodrigues G Z P, Simões L A R, *et al*. In situ monitoring of the Sinos River, southern Brazil: water quality parameters, biomarkers, and metal bioaccumulation in fish[J]. Environmental Science and Pollution Research, 2018, **25**(10): 9485-9500.

[26] Bai J H, Cui B S, Chen B, *et al*. Spatial distribution and ecological risk assessment of heavy metals in surface sediments from a typical plateau lake wetland, China [J]. Ecological Modelling, 2011, **222**(2): 301-306.

[27] Håkanson L. An ecological risk index for aquatic pollution control. a sedimentological approach[J]. Water Research, 1980, **14**(8): 975-1001.

[28] MacDonald D D, Ingersoll C G, Berger T A. Development and evaluation of consensus-based sediment quality guidelines for freshwater ecosystems [J]. Archives of Environmental Contamination and Toxicology, 2000, **39**(1): 20-31.

[29] 肖茜, 杨昆, 曹璪, 等. 杞麓湖与异龙湖水体提取及湖泊面积变化动态监测[J]. 安徽农学通报, 2017, **23**(24): 123-124, 141.

[30] Lin Q, Liu E F, Zhang E L, *et al*. Reconstruction of atmospheric trace metals pollution in Southwest China using sediments from a large and deep alpine lake: historical trends, sources and sediment focusing [J]. Science of the Total Environment, 2018, **613-614**: 331-341.

[31] Sutherland R A. Bed sediment-associated trace metals in an urban stream, Oahu, Hawaii [J]. Environmental Geology, 2000, **39**(6): 611-627.

[32] Appleby P G. Chronostratigraphic techniques in recent sediments [A]. In: Last W M, Smol J P (Eds.). Tracking Environmental Change Using Lake Sediments. Vol 1: Basin Analysis, Coring, and Chronological Techniques[M]. Dordrecht: Springer, 2002. 171-203.

[33] 陈思思, 张虎才, 常凤琴, 等. 异龙湖湖泊沉积对流域人类活动的响应[J]. 山地学报, 2016, **34**(3): 274-281.

Chen S S, Zhang H C, Chang F Q, *et al*. Human activities indicated by the sediments at the Yilong Lake[J]. Mountain Research, 2016, **34**(3): 274-281.

[34] 中国环境监测总站. 中国土壤元素背景值[M]. 北京: 中国环境科学出版社, 1990.

[35] Boës X, Rydberg J, Martinez-Cortizas A, *et al*. Evaluation of conservative lithogenic elements (Ti, Zr, Al, and Rb) to study anthropogenic element enrichments in lake sediments[J]. Journal of Paleolimnology, 2011, **46**(1): 75-87.

[36] Ma X L, Zuo H, Tian M J, *et al*. Assessment of heavy metals contamination in sediments from three adjacent regions of the Yellow River using metal chemical fractions and multivariate analysis techniques[J]. Chemosphere, 2016, **144**: 264-272.

[37] 燕婷, 刘恩峰, 张恩楼, 等. 抚仙湖沉积物重金属时空变化与人为污染评价[J]. 湖泊科学, 2016, **28**(1): 50-58.
Yan T, Liu E F, Zhang E L, *et al*. The spatio-temporal variations of heavy metals in the sediment of Lake Fuxian and the contamination assessment[J]. Journal of Lake Sciences, 2016, **28**(1): 50-58.

[38] Qin B Q, Hu W P, Gao G, *et al*. Dynamics of sediment resuspension and the conceptual schema of nutrient release in the large shallow Lake Taihu, China[J]. Chinese Science Bulletin, 2004, **49**(1): 54-64.

[39] Tang W Z, Shan B Q, Zhang H, *et al*. Heavy metal sources and associated risk in response to agricultural intensification in the estuarine sediments of Chaohu Lake Valley, East China[J]. Journal of Hazardous Materials, 2010, **176**(1-3): 945-951.

[40] Palma P, Ledo L, Alvarenga P. Assessment of trace element pollution and its environmental risk to freshwater sediments influenced by anthropogenic contributions: the case study of Alqueva reservoir (Guadiana Basin)[J]. CATENA, 2015, **128**: 174-184.

HUANJING KEXUE

Environmental Science (monthly)

Vol. 40 No. 2

Feb. 15, 2019

CONTENTS