ISSN 0250-3301 CODEN HCKHDV

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第33卷 第12期

Vol.33 No.12

2012

中国科学院生态环境研究中心 主办

科学出版社 出版

双奖期刊

环境科学
(HUANJING KEXUE)
ENVIRONMENTAL SCIENCE
第 33 卷 第 12 期
2012 年 12 月 15 日

目 次

特别策划:再生水灌溉利用生态风险研究专题
序 …… 陈卫平(4069)
再生水灌溉利用的生态风险研究进展 …… 陈卫平,张炜铃,潘能,焦文涛(4070)
绿地再生水灌溉土壤微生物量碳及酶活性效应研究 …… 潘能,侯振安,陈卫平,焦文涛,彭驰,刘文(4081)
绿地再生水灌溉土壤盐度累积及风险分析 …… 潘能,陈卫平,焦文涛,赵忠明,侯振安(4088)
再生水灌溉对土壤性质及重金属垂直分布的影响 …… 赵忠明,陈卫平,焦文涛,王美娥(4094)
模型模拟再生水灌溉对土壤水盐运动的影响 …… 吕斯丹,陈卫平,王美娥(4100)
模型模拟土壤性质和植被种类对再生水灌溉水盐运移的影响 …… 吕斯丹, 陈卫平, 王美娥(4108)
再生水灌溉农田土壤镉累积规律模拟研究 …… 赵忠明,陈卫平,焦文涛,王美娥(4115)
再生水灌溉土壤人工合成麝香累积模型模拟 …… 王美娥,陈卫平,焦文涛(4121)
城市绿化草坪再生水灌溉对地下水水质影响研究 …… 王巧环,陈卫平,王效科,任玉芬,张烨(4127)
北京市再生水的公众认知度评估 …… 张炜铃,陈卫平,焦文涛(4133)
研究报告
北京地区臭氧时空分布特征的飞机探测研究 …… 陈鹏飞,张蔷,权建农,高扬,黄梦宇(4141)
世博会期间上海市大气挥发性有机物排放强度及污染来源研究 …… 王红丽, 陈长虹, 黄海英, 王倩, 陈宜然, 黄成, 李莉, 张钢锋, 陈明华,楼晟荣, 乔利平(4151)
贡嘎山本底站大气中 VOCs 的研究 …… 张军科,王跃思,吴方堃,孙杰(4159)
区域大气环境风险源识别与危险性评估 …… 张晓春, 陈卫平, 马春, 詹水芬, 焦文涛(4167)
稻草烟尘中正构烷烃和正构脂肪酸的碳同位素 …… 刘刚,孙丽娜,李久海,徐慧 (4173)
汽油轿车 NEDC 循环超细颗粒物排放特性 …… 胡志远,李金,谭丕强,楼狄明(4181)
城市道路绿化带不同植物叶片附尘对大气污染的磁学响应 …… 隆茜,周菊珍,孟颉,达良俊(4188)
闽江口养殖塘水-大气界面温室气体通量日进程特征 …… 杨平,仝川,何清华,黄佳芳(4194)
模拟增温对冬小麦-大豆轮作农田土壤呼吸的影响 …… 刘艳, 陈书涛, 胡正华, 任景全, 沈小帅(4205)
广西大石围天坑中多环芳烃的大气传输与分异 …… 孔祥胜, 祁士华,孙骞,黄保健(4212)
松花江流域冰封期水体中多环芳烃的污染特征研究 …… 马万里,刘丽艳,齐虹,白杨,沈吉敏,陈忠林,李一凡(4220)
温州城市河流中多环芳烃的污染特征及其来源 …… 周婕成,陈振楼,毕春娟,吕金刚,许世远,潘琪(4226)
温州城市河流河岸带土壤中 PAHs 的污染特征与来源 …… 周婕成,毕春娟,陈振楼,王璐,许世远,潘琪(4237)
辽河水系沉积物中 PAHs 的分布特征及风险评估 …… 武江越,刘征涛,周俊丽,高富(4244)
某炼油厂退役场地土壤与浅层地下水酚类污染特征研究 …… 裴芳, 罗泽娇, 彭进进,祁士华(4251)
某大型焦化企业污染场地中多环芳烃空间分布的分异性特征 …… 刘庚,郭观林,南锋,魏文侠,李发生,毕如田(4256)
太原市污灌区有机氯农药垂直分布特征及源解析 …… 廖小平,张彩香,赵旭,向青清,李佳乐(4263)
上海市崇明岛农田土壤中多环芳烃分布和生态风险评价 …… 吕金刚,毕春娟,陈振楼,周婕成,韩景超(4270)
近 50 年来深圳湾红树林湿地 Hg、Cu 累积及其生态危害评价 …… 李瑞利,柴民伟,邱国玉,贺蓓(4276)
北运河源头区沙河水库沉积物重金属污染特征研究 …… 张伟,张洪,单保庆(4284)
太湖表层沉积物重金属赋存形态分析及污染特征 …… 秦延文,张雷,郑丙辉,曹伟(4291)
典型季风型温冰川消融期融水化学日变化特征 …… 朱国锋,蒲焘,何元庆,王培震, 孔建龙,张宁宁,辛惠娟(4300)
螺-草水质净化系统氮素环境归趋的实验研究 …… 周露洪,谷孝鸿,曾庆飞,毛志刚,高华梅,孙明波(4307)
固定化果胶酶抑制铜绿微囊藻生长研究 …… 沈清清,彭谦,赖泳红,纪开燕,韩秀林(4316)
采用膜污染指数评估天然有机物在低压超滤膜中的污染行为 …… 肖萍,肖峰,赵锦辉,秦潼,王东升,冯金荣,许光(4322)
水体中甲基汞光化学降解特征研究 …… 孙荣国,毛雯,马明,张成,王定勇(4329)
土霉素在乙酸水溶液中的臭氧氧化降解研究 …… 李时银,李小荣,朱怡苹,朱江鹏,王国祥(4335)
酰胺咪嗪光降解效能与机制及其影响因素研究 …… 陈超,赵倩,封莉,张立秋 (4340)
利用 FeS 去除水中硝基苯的试验研究 …… 王夏琳,李睿华(4346)
地下污水管线泄漏原位自动监测模拟实验研究 …… 郭磊,贾永刚,付腾飞,刘晓磊,赵战坤(4352)
表面活性剂改性沸石对水中酚类化合物吸附性能研究 …… 谢杰,王哲,吴德意,李春杰(4361)
抗生素类制药废水厌氧消化产物急性毒性的检测 …… 季军远,邢雅娟,郑平(4367)
废砖块作为人工湿地填料的除磷能力研究 …… 王振,刘超翔,李鹏宇,董健,刘琳,朱葛夫(4373)
基于生物沸石复合滤料的间歇式脱氮水处理 …… 庆承松,鲍韬,陈天虎,陈冬,谢晶晶(4380)
硝酸盐对厌氧生物膜和颗粒污泥的同时产甲烷反硝化性能影响研究 …… 钟晨宇,叶杰旭,李若愚,陈胜,孙德智(4387)
水平电场作用下活性污泥的脱水研究 …… 季雪元,王毅力,冯晶(4393)
多重环境因子对氟胺磺隆在土壤中降解的影响 …… 宋宁慧,单正军,石利利,郭敏,许静,孔德洋 (4400)
碱后处理对互花米草沼渣理化特性的影响研究 …… 陈广银,郑正,常志州,王海芹,叶小梅(4406)
含砷废渣高温烧结过程砷的矿物相结构变化与环境释放行为 …… 王兴润,农泽喜,王琪(4412)
国家大气污染物排放标准体系研究 …… 江梅,张国宁,张明慧,邹兰,魏玉霞,任春(4417)
环境基准向环境标准转化的机制探讨 …… 毕岑岑,王铁宇,吕永龙(4422)
对“有毒重金属”实施 2 种总量控制监管方式的利害分析 …… 傅国伟(4428)
《环境科学》第 33 卷(2012 年)总目录 …… (4434)
《环境科学》征订启事(4099) 《环境科学》征稿简则(4166) 信息(4180, 4219, 4225, 4275) 专辑征稿通知(4172)

水体中甲基汞光化学降解特征研究

孙荣国[1],毛雯[1],马明[1],张成[1],王定勇[1,2]*

(1. 西南大学资源环境学院,三峡库区生态环境教育部重点实验室,重庆 400715; 2. 重庆市农业资源与环境研究重点实验室,重庆 400716)

摘要: 为探究水体中甲基汞(MMHg)的光化学行为,采用室内模拟实验,以不同波长紫外灯及室内可见光为光源,探讨紫外光波长、光强度等因素对 MMHg 光降解的影响,并根据生成物 Hg^0 的量变化分析 MMHg 光降解反应历程. 研究表明,MMHg 光降解最终产物中含有 Hg^0,且光照条件对 MMHg 光降解速率、Hg^0 的产量有影响. 在反应器暴露于紫外光条件下时,MMHg 光降解速率随紫外光波长的变短而增加,随紫外光强度的提高而增加,且 MMHg 光降解呈一级动力学反应,速率常数分别为 K_{UVA} 0.403 ~ 0.562 h^{-1}、K_{UVB} 0.961 h^{-1}、K_{UVC} 1.221 h^{-1}和 $K_{VL+UVA+UVB}$ 1.346 h^{-1}; Hg^0 释放通量为 0.166 ~ 0.392 ng·min^{-1}. 当反应器暴露于可见光条件下时,反应器内 MMHg 浓度下降速率较慢,K_{VL} 0.061 h^{-1}; Hg^0 释放通量为 0.008 ng·min^{-1}. 而在黑暗条件下没有发现反应器内 MMHg 浓度下降,无 Hg^0 生成. 可见紫外光是导致 MMHg 降解的主要原因,光波波长与强度对 MMHg 的环境地球化学行为有重要影响.

关键词:甲基汞; 光化学降解; 反应历程; 紫外光; 波长; 光强度

中图分类号: X131.2; X52 **文献标识码**: A **文章编号**: 0250-3301(2012)12-4329-06

Characteristics of Monomethylmercury Photodegradation in Water Body

SUN Rong-guo[1], MAO Wen[1], MA Ming[1], ZHANG Cheng[1], WANG Ding-yong[1,2]

(1. Key Laboratory of the Three Gorges Reservoir Region's Eco-Environment, Ministry of Education, College of Resources and Environment, Southwest University, Chongqing 400715, China; 2. Chongqing Key Laboratory of Agricultural Resources and Environment, Chongqing 400716, China)

Abstract: To investigate the photochemical process of monomethylmercury (MMHg) in the water environment, laboratory experiments were conducted using artificial and visible light sources to confirm the effects of wavelength and light intensity on MMHg photodegradation (PD), and the reaction process of MMHg PD was discussed based on Hg^0 emission rate. The results indicated that Hg^0 was the end product of MMHg PD, and the light conditions had an effect on the rate constant of MMHg PD and Hg^0 flux. When the reactor was exposed to UV light conditions, the rate constant of MMHg PD increased with the decrease in wavelength and the increase in light intensity. The rate of MMHg PD was first-order with respect to MMHg concentration in the reactor, and the rate constants were K_{UVA} 0.403-0.562 h^{-1}, K_{UVB} 0.961 h^{-1}, K_{UVC} 1.221 h^{-1} and $K_{VL+UVA+UVB}$ 1.346 h^{-1}, respectively and the emission rates of Hg^0 were 0.166-0.392 ng·min^{-1}. When the reactor exposed to visible light conditions, the rate of MMHg PD was only 0.061 h^{-1}, and the emission rate of Hg^0 was 0.008 ng·min^{-1}. In the experiments conducted under dark conditions, we did not observe MMHg PD and no Hg^0 was found. All the results suggest that the degradation of MMHg in artificial waters is mediated by ultraviolet (UV) radiation, and UV radiation plays a key role in the photochemical process of MMHg in freshwater lakes.

Key words: monomethylmercury; photodegradation; react process; ultraviolet radiation; wavelength; light intensity

无机汞转化为脂溶性强、高毒性的甲基汞(MMHg)后,在生态系统中具有很强的生物累积与生物放大效应,通过食物链对食鱼生物及人类健康造成危害[1,2],因此汞在生态系统中的环境地球化学行为[3,4]成为研究热点. 然而目前的研究主要集中于生态系统中 MMHg 的来源、生物化学过程中 MMHg 的产率[5]等,对于去甲基化,特别是非生物去甲基化的研究相对较少.

尽管微生物可以在水生生态系统的表层与底泥中发生去甲基化反应[6~8],但有报道称由光照引发的水体表层 MMHg 降解是水环境中 MMHg 浓度维持在较低水平的主要原因[9]. 在湖水汞循环研究中,Sellers 等[9]首次证明了在湖水表层存在着 MMHg 光降解,降解速率与太阳光照强度、水中 MMHg 浓度等因素相关. 经计算湖水中约有 82.9% 的 MMHg 被光解掉,且水中 MMHg 约有 54.9% 来自于底泥释放,在其他生态系统中也发现了约有 31.4% ~79% 的 MMHg 发生光降解[10,11]. 可见,除微生物可以发生去甲基化反应,MMHg 光降解在汞

收稿日期: 2012-02-14; **修订日期**: 2012-04-10

基金项目: 国家自然科学基金项目(41173116, 40973079); 西南大学研究生科技创新基金项目(kb2011013)

作者简介: 孙荣国(1984 ~),男,博士研究生,主要研究方向为环境化学,E-mail:sunrongguo88@163.com

* 通讯联系人,E-mail:dywang@swu.edu.cn

的环境地球化学行为中起重要作用. 日本学者 Inoko[12] 研究了经低压汞灯(185 ~ 254 nm)照射 MMHg 溶液的产物并分析了 MMHg 光降解机制. 有研究发现单线态氧($^1O_2$)是诱发水体 MMHg 光降解的主要原因[13],而 Chen 等[14]研究发现光照引发水体中的硝酸盐产生·OH是促进表层水中 MMHg 光降解的重要途径. Tossell 等[15]通过室内模拟实验,运用量子力学理论证明了 CH_3HgCl 的光降解产物为·CH_3 和·HgCl,并初步分析了 MMHg 降解机制. 目前通过室内外实验证实了在不同生态环境中均存在 MMHg 光降解,而对于 MMHg 光降解途径、机制、反应动力学、影响因素等仍不确定.

基于 MMHg 光降解对汞的环境地球化学行为有重要影响,目前 MMHg 光降解反应影响因素、动力学、产物及历程等不明确,本研究采用室内模拟实验,探讨了紫外光波长、光照强度等因素对 MMHg 光降解的影响及 MMHg 光降解反应动力学,同时根据载气中 Hg^0 的实时浓度分析了 MMHg 光解反应进行程度,以期为今后深入研究 MMHg 光化学行为提供基础.

1 材料与方法

1.1 实验材料与准备

MMHg 标准使用液购自美国布鲁克斯(Brooks Rand)公司. 实验过程中所使用的所有玻璃仪器在使用前均用硝酸(25%,体积比)浸泡 24 h,然后经马弗炉 500℃ 灼烧 30 min,在洁净无汞的环境下冷却后使用. 实验所使用的管子均为聚四氟乙烯管(Brooks Rand). 为避免污染,在实验过程中需佩戴一次性手套并防止交叉污染. 无汞超纯水的水温为 20℃, 室内温度为 20℃ ±0.7℃.

1.2 实验装置

实验装置(图 1)采用以石英玻璃为材料制成圆柱形反应容器,内径 15 cm,高 25 cm[16]. 氩气作为载气,经金汞齐净化后由底部进入反应器,将 MMHg 光降解生成的 Hg^0 吹出,经干燥剂(Soda lime, 购自 Sigma-Alorich 公司, 德国产)除湿后以 $RA915^+$ (Lumex Ltd., Russia)多功能汞分析仪测定载气中 Hg^0 的浓度,由此表征 MMHg 光降解生成 Hg^0 的量. 以波长分别为 365(UVA)、310(UVB)、254 nm(UVC)的紫外灯(每盏 8 W,购自深圳创洁有限责任公司)及室内可见光作为光源. 灯与石英反应器间的距离以反应器表面的光照强度为依据. 在进行可见光(VL,反应器表面光强度为 3.2 klx)实验时,将石英反应器置于多重透明玻璃罩内,以去除可见光中的紫外光线; 在进行纯紫外光影响实验时,需将反应器放在内壁附有反光镜的罩子内; 在进行可见光与紫外光组合(VL + UVA + UVB,反应器表面光强度为 4.0 klx)实验时,将紫外灯安装在透明的玻璃罩内即可; 在进行黑暗(dark)对照实验时,直接将反应器置于不透明的罩内.

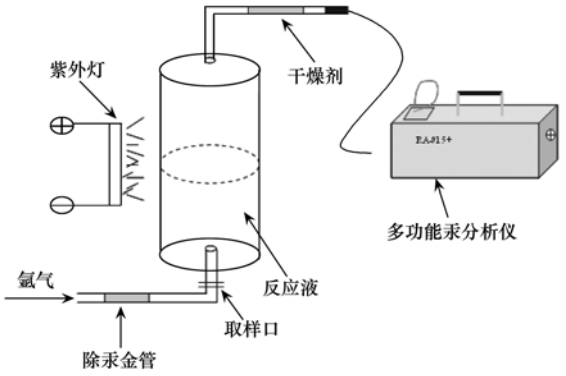

图 1 反应装置示意

Fig. 1 Schematic of the reactor

1.3 实验方法与设计

首先向洁净无汞的石英反应器内注入 2 L 无汞超纯水,按图 1 所示链接好所有的管路,通入氩气,流量为 1.2 L·min^{-1}. 为了去除水中痕量的汞,在加入反应试剂前应至少通气 30 min 以上,并同时加以 310 nm 的紫外灯照射. 然后关闭紫外灯,准确加入 1 mL 100 ng·mL^{-1} MMHg 溶液,使反应器处在相应的光照条件下. 每隔 1 h 从反应器底部取样 0.5 mL 用于分析溶液中残留的 MMHg,残留 MMHg 的检测方法严格按照美国环境保护署 Method 1630[17] 进行检测. MMHg 光降解产生的 Hg^0 直接由 $RA915^+$ 在线监测.

为研究波长对 MMHg 光降解的影响,将反应器分别暴露于 UVA、UVB、UVC、VL + UVA + UVB、VL 和 dark 条件下,其中 UVA、UVB、UVC 处理的光照强度相同(反应器表面光强度均为 0.8 klx). 为验证光照强度对 MMHg 光降解的影响,分别使反应器暴露于 3 盏(3 UBA lamps)、2 盏(2 UBA lamps)、1 盏(1 UBA lamp)UVA 紫外灯,以及 VL 和 dark 条件下,反应器表面光照强度分别为 0.8、0.4、0.2、3.2、0 klx.

1.4 计算方法

MMHg 光降解反应按照一级动力学进行拟合:

$$\ln[(MMHg)_t/(MMHg)_0] = -kt$$

式中,$(MMHg)_t$ 和 $(MMHg)_0$ 分别指在 t 时刻和 0

时刻溶液中 MMHg 的浓度，k 指反应速率常数.

Hg^0 的释放通量按下式进行计算：

$$F = c \times V \times t$$

式中，F 指 Hg^0 的释放通量(ng)，c 指载气中 Hg^0 的平均浓度($ng \cdot L^{-1}$)，V 指气体流速($L \cdot min^{-1}$)，t 指时间(min).

数据分析与作图分别使用软件 SPSS 13.0 与 Origin 8.0.

2　结果与分析

2.1　紫外灯波长对 MMHg 光化学降解影响

经不同光照条件处理后，反应器内 MMHg 浓度随时间变化并不相同[图 2(a)]. 在有紫外光的条件下，反应前 2 h 反应器内 MMHg 浓度下降速率较快，然后趋于平缓；在反应器暴露于可见光条件下，整个反应时间段内 MMHg 浓度下降的速率较缓慢；在反应器暴露于可见光与紫外光组合条件下，反应器内 MMHg 浓度变化规律与纯紫外光照射时一致；而在黑暗条件下，反应器内 MMHg 浓度基本无变化. 可见 MMHg 浓度的下降主要是由紫外光而非可见光引起的. 对 MMHg 光化学降解动力学计算发现该反应为一级动力学反应，且反应速率常数随紫外波长变短而增加(表 1). 由方差分析发现，除 UVC 与 VL + UVA + UVB 间差异不显著($P = 0.14$)，其余处理两两间均存在显著性差异($P < 0.05$)，说明波长对 MMHg 光化学降解有着重要影响.

根据光子能量公式 $\varepsilon = hv/\lambda$[18](式中，ε 为光子能量，h 为 Planck 常数，v 为光速，λ 为波长)，已知光子所能够提供的能量随波长的增加而降低，故反应器暴露于短波长紫外光条件下，反应器内 MMHg 浓度低，MMHg 降解速率快. 而在可见光条件下，虽然光照强度大于紫外光处理，但是由于该波段的光子能量低，不易致使 MMHg 光降解，所以反应器内 MMHg 浓度高，MMHg 降解速率慢. 在黑暗条件下，MMHg 浓度没有发生变化，说明在黑暗时若无其他因素作用，MMHg 不会降解. 而在自然水体中，黑暗情况下 MMHg 依然会发生降解，主要是由微生物作用引起的[19].

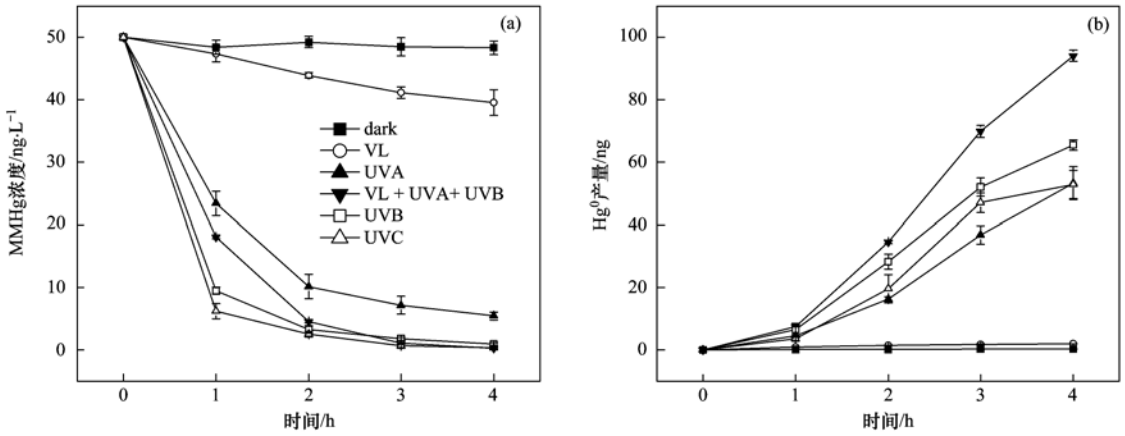

图 2　不同波长紫外灯照射下，反应器内 MMHg 浓度变化趋势及生成 Hg^0 的规律

Fig. 2　Degradation of MMHg and emission flux of Hg^0 in the reactor exposed to various light conditions

表 1　MMHg 光化学降解速率常数

Table 1　Measured rate constants of MMHg photodegradation under various experimental treatments

处理	VL	UVA	UVB	UVC	VL + UVA + UVB
平均反应速率常数 K/h^{-1}	0.061	0.562	0.961	1.221	1.346
回归系数	0.990	0.950	0.949	0.963	0.996

反应器暴露于不同的光照条件下，反应产物 Hg^0 随时间变化规律也不相同[图 2(b)]. 在有紫外灯的处理中，明显有 Hg^0 生成. 其中当反应器暴露于 VL + UVA + UVB 条件时生成 Hg^0 的量最多(94.056 ng，平均释放通量为 0.392 $ng \cdot min^{-1}$)，其次为 UVB 处理(65.425 ng，平均释放通量为 0.273 $ng \cdot min^{-1}$)，UVC 和 UVA 处理生成 Hg^0 的量均小于含有 UVB 波段紫外光处理. VL 处理生成 Hg^0 的量较少，仅为 1.987 ng，平均释放通量为 0.008 $ng \cdot min^{-1}$，而在黑暗条件下基本无 Hg^0 生成. 由此推断 MMHg 光降解生成最终产物 Hg^0 的过程可能主要是由紫外光引起的，且 UVB 对这一过程起主要作用. 从图 2 中发现在经 VL、UVA、UVB、UVC 和 VL + UVA + UVB 处理，反应 4 h 后，剩余 MMHg 占

所有形态汞的比例分别为 79.105%、10.887%、1.893%、0.692%和0.488%,生成的 Hg^0 占所有形态汞的比例分别为 1.987%、53.263%、65.425%、52.758%和94.056%. 可见 MMHg 在暴露于含有紫外光波段光照条件时,约有 90%以上的 MMHg 被光降解,且有超过 50%的部分生成 Hg^0.

2.2 光照强度对 MMHg 光化学降解影响

在不同光照强度紫外灯(UVA)照射下,反应器内 MMHg 浓度随光照强度的增加而降低[图 3(a)],即 MMHg 光化学降解速率随紫外光光照强度的增加而增加. 尽管可见光光照强度要明显高于紫外灯的光照强度,而经 VL 处理的反应器内 MMHg 浓度在反应 4 h 结束时为 UVA 处理的 3.7 ~ 7.3 倍,显著高于紫外光处理. 这进一步证明了 MMHg 降解主要是由紫外光引起的. 动力学计算发现,不同光强度紫外光照射下 MMHg 光降解反应仍为一级动力学反应,经 3、2、1 UVA lamp 处理的 MMHg 光降解速率常数分别为 0.562、0.509、0.403 h^{-1},随光照强度的增加而增加.

MMHg 发生光化学降解反应过程实际是光子为 CH_3—HgCl 键提供能量并使其断裂的过程. 随着紫外光强度的增加,溶液中光通量密度越大,光子有效撞击 CH_3—HgCl 键能力逐渐提高,因此 MMHg 光降解速率会逐渐提高. 而在 VL 条件下,虽然溶液中光通量密度较大,但是由于 VL 波长长,光子能量低,所提供的能量不足以打断 CH_3—HgCl 键,导致 MMHg 光降解速率较慢. 同理在黑暗条件下,没有光子为 CH_3—HgCl 键提高能量,没有发现 MMHg 降解.

在分别经 3 UVA lamps、2 UVA lamps、1 UVA lamp、VL 和 dark 处理后,Hg^0 的平均释放通量分别为 0.222、0.207、0.166、0.008 $ng \cdot min^{-1}$. 即反应器暴露于不同的光强度条件下,MMHg 光降解产物 Hg^0 的生成量及其反应时间内的平均释放通量均表现为随紫外光强度的增加而增加[图 3(b)]. 尽管 VL 条件下光强度明显高于紫外光光强,而经不同强度紫外光处理后 Hg^0 的生成量均明显高于 VL 处理,这也进一步说明 UVA 在 Hg^0 生成中起主要作用.

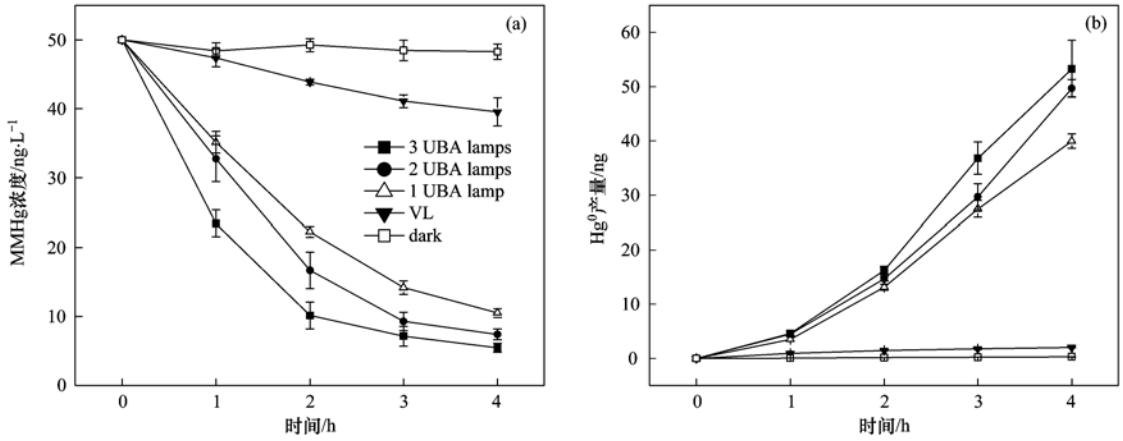

图 3 不同光照强度照射下,反应器内 MMHg 浓度变化趋势及生成 Hg^0 的规律

Fig. 3 Degradation of MMHg and emission flux of Hg^0 in the reactor exposed to various light intensities

2.3 Hg^0 释放速率

本实验中载气中 Hg^0(gas elemental mercury, GEM)的浓度可以反应出 Hg^0 的释放速率,而 Hg^0 的释放速率决定于溶液中溶解性气态汞(dissolved gaseous mercury, DGM)的浓度,DGM 的生成速率决定于溶液中 MMHg 光降解反应的进行程度(关于 MMHg 光降解机制及产物详见 3 节),所以根据载气中 Hg^0 浓度随时间变化的趋势(图 4)可以定性分析 MMHg 光降解反应的进行程度,也可定量分析该反应的主要产物. 从图 4 中可以发现,基本所有处理的载气中 Hg^0 浓度均表现为先上升后下降. 在反应开始的一瞬间,MMHg 还未降解,溶液中无·HgCl生成,DGM 的浓度为 0. 随着反应的进行,MMHg 逐步降解,不断有·HgCl生成,·HgCl会发生反应生成 Hg^0 和 Hg^{2+},Hg^{2+} 又会发生还原反应生成 Hg^0,溶液中 DGM 的浓度不断累积,Hg^0 的释放速率逐渐增加,表现为载气中 Hg^0 的浓度不断增加,即在反应初期,溶液中 DGM 的生成速率要大于其释放速率,说明溶液中发生的主要反应为 MMHg 光降解. 当该反应进行到一定程度后,DGM 的生成速率要等于其释放速率,Hg^0 的释放速率达到最大值,表现为载气中 Hg^0 的浓度最高.

随着反应的进一步进行，溶液中 MMHg 的浓度不断下降，生成·HgCl和 Hg^{2+} 的量也随之减少，导致 DGM 的生成速率下降，所以此时 DGM 的生成速率要小于其释放速率，载气中 Hg^0 浓度也不断减小，说明溶液中此时发生的主要反应为生成的 Hg^{2+} 还原为 Hg^0 及 Hg^0 的释放.

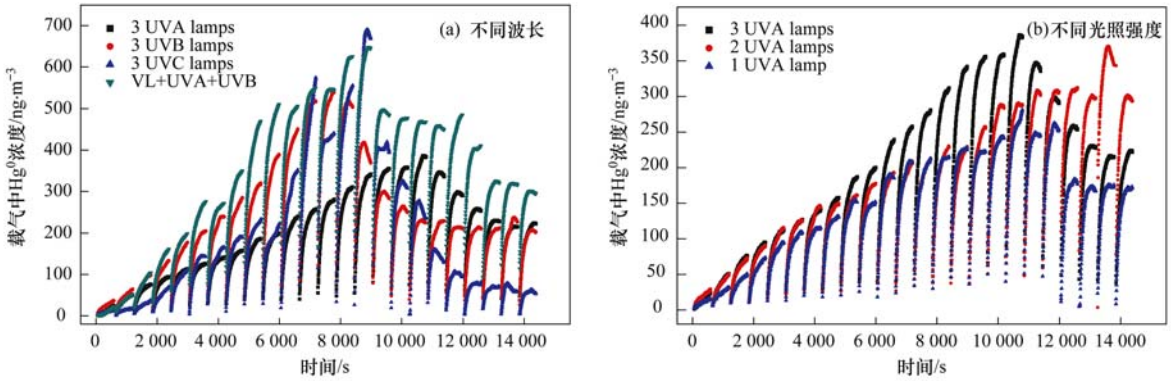

图 4　不同波长与光照强度处理下，载气中 Hg^0 的浓度随时间变化规律

Fig. 4　GEM concentration in argon in the reactor exposed to various light conditions of wavelength and light intensity

3　讨论

目前对于 MMHg 的降解途径、机制及产物仍不明确. 研究发现由光照引发水体产生的羟基自由基、单线态氧可能是诱发 MMHg 光降解的主要活性基团[13,15]，天然有机物中的还原性巯基与 MMHg 结合增加了 MMHg 的电负性，使其更易于降解[20]. MMHg 溶液经 185 ~ 254 nm 汞灯照射后会生成 Hg^0、Hg_2Cl_2、CH_3—CH_3 与 CH_3Cl[12]，MMHg 光降解机制可能为：

$$CH_3HgCl \xrightarrow{h\nu} \cdot CH_3 + \cdot HgCl \quad (1)$$

$$2 \cdot CH_3 \longrightarrow CH_3—CH_3 \quad (2)$$

$$2 \cdot HgCl \longrightarrow Hg_2Cl_2 \quad (3)$$

$$\cdot CH_3 + \cdot HgCl \longrightarrow Hg^0 + CH_3Cl \quad (4)$$

由于 Hg(Ⅰ)在水溶液中极不稳定，很容易发生歧化反应($2 \cdot HgCl \longrightarrow Hg^0 + HgCl_2$)生成较为稳定的 Hg^0 和 Hg^{2+}，所以溶液中 Hg(Ⅰ)的量极少，可以忽略不计. 因此在本实验中未加入其他物质的情况下，溶液中主要的汞形态为未分解的 MMHg，及生成的 Hg^{2+} 和 Hg^0. 由羟基自由基引发的 MMHg 光降解呈二级动力学反应[14]，而本结果与 Sellers 等[9]研究结果一致，呈一级动力学反应. 本实验以 RA915$^+$ (Lumex Ltd., Russia)多功能汞测定仪测定气体中的 Hg^0 的浓度，每 5 s 读数一次，根据载气中 Hg^0 的实时浓度可以定性分析分析 MMHg 光降解反应的进行程度，也可定量分析 Hg^0 的产量与释放速率. 与国外一些研究方法[14](基本都未考虑 MMHg 光降解的反应历程)相比，较精确方便.

日光可以引发苯基汞直接光解，只有 UVC 可以引起甲基汞、二甲基汞降解[21,22]，本实验发现 MMHg 光降解速率随紫外光波长的变短而增强，主要是由于光子所能够提供的能量随波长的增加而降低. 在自然条件下，UVC 波段紫外线基本不存在，UVA 波段紫外线能量低但占主要部分，约为 98%，故湖泊中 MMHg 光降解主要是由 UVA 引起的，且不同波长紫外光降解 MMHg 的能力不同，分别为 k_{pd}(UVA) = 3.22 × 10^{-3} $m^2 \cdot E^{-1}$，k_{pd}(UVB) = 0.87 × 10^{-3} $m^2 \cdot E^{-1}$，k_{pd}(可见光) = 0.31 × 10^{-3} $m^2 \cdot E^{-1}$[10]. 故波长对 MMHg 光降解速率影响较大. 由于 MMHg 光降解会产生 Hg^{2+}，且波长对 Hg^{2+} 的还原反应也有一定影响，有研究发现 UVB 对土壤及雪中 Hg^{2+} 的还原起主要作用[23,24]，所以本研究发现经含有 UVB 波段紫外光的处理生成 Hg^0 的量最多.

MMHg 光降解在汞的环境地球化学行为中起重要作用，而无机汞光化学甲基化等行为同样起重要作用. 近年有研究发现在淡水湖表层，MMHg 的浓度与日光照射强度呈正相关关系[25]，且发现光化学甲基化过程与水环境中溶解性有机质的相对分子质量组成和浓度、pH 值、温度等因素相关[26,27]. 而在本研究中并未发现 MMHg 浓度上升，说明在无其他离子、络合物及生物因素作用的情况下，纯 MMHg 降解后不会发生甲基化作用. 本实验仅研究了纯 MMHg 的光降解反应，今后的工作应着重于研究实地水环境中 MMHg 光化学甲基化与去甲基化的净速率、光照对水体中汞环境化学行为影响，以及各种离子、络合物、有机质等对这些过程的影响.

4 结论

(1)本研究所采用的实验方法实现了对 MMHg 光降解反应历程分析,解决了目前仅以残留的 MMHg 浓度来分析 MMHg 光降解反应速率,且分析反应历程难的问题,具有一定的适用性,方便精确.

(2)光照对 MMHg 环境地球化学行为有重要影响,可以使其发生脱甲基化反应,其中紫外光(280~400 nm)起主要作用. MMHg 光降解主要产物为 Hg^0,呈一级动力学反应. 光波波长、强度对 MMHg 光降解反应速率、历程有重要影响.

参考文献:

[1] Morel F M M, Krepiel A M L, Amyot M. The chemical cycle and bioaccumulation of mercury[J]. Annual Review of Ecology and Systematics, 1998, **29**(1): 543-566.

[2] Mergler D, Anderson H A, Chan L H M, *et al*. Methylmercury exposure and health effects in humans: a worldwide concern[J]. AMBIO: A Journal of the Human Environment, 2007, **36**(1): 3-11.

[3] 何天容, 冯新斌, 郭艳娜, 等. 红枫湖沉积物中汞的环境地球化学循环[J]. 环境科学, 2008, **29**(7): 1768-1774.

[4] 丁振华, 王文华, 刘彩娥, 等. 黄浦江江水和沉积物中汞的分布和形态特征[J]. 环境科学, 2005, **26**(5): 62-66.

[5] Ullrich S M, Tanton T W, Abdrashitova S A. Mercury in the aquatic environment: a review of factors affecting methylation [J]. Critical Reviews in Environmental Science and Technology, 2001, **31**(3): 241-293.

[6] Oremland R S, Culbertson C W, Winfrey M R. Methylmercury decomposition in sediments and bacterial cultures-involvement of methanogens and sulfate reducers in oxidative demethylation[J]. Applied and Environmental Microbiology, 1991, **57**(1): 130-137.

[7] Marvin-DiPasquale M, Agee J, McGowan C, *et al*. Methyl-mercury degradation pathways: a comparison among three mercury impacted ecosystems[J]. Environmental Science and Technology, 2000, **34**(23): 4908-4916.

[8] Schaefer J K, Yagi J, Reinfelder J R, *et al*. Role of the bacterial organomercury lyase (MerB) in controlling methylmercury accumulation in mercury-contaminated natural waters [J]. Environmental Science and Technology, 2004, **38**(16): 4304-4311.

[9] Sellers P, Kelly C A, Rudd J W M, *et al*. Photodegradation of methylmercury in lakes[J]. Nature, 1996, **380**(5576): 694-697.

[10] Lehnherr I, St Louis V L. Importance of ultraviolet radiation in the photodemethylation of methylmercury in freshwater ecosystems [J]. Environmental Science and Technology, 2009, **43**(15): 5692-5698.

[11] Li Y B, Mao Y X, Liu G L, *et al*. Degradation of methylmercury and it's effects on mercury distribution and cycling in the Florida Everglades[J]. Environmental Science and Technology, 2010, **44**(17): 6661-6666.

[12] Inoko M. Studies on the photochemical decomposition of organomercurials-methylmercury (Ⅱ) chloride [J]. Environmental Pollution (Series B), 1981, **2**(1): 3-10.

[13] Suda I, Suda M, Hirayama K. Degradation of methyl and ethyl mercury by singlet oxygen generated from sea water exposed to sunlight or ultraviolet light[J]. Toxicology, 1993, **67**(5): 365-368.

[14] Chen J, Pehkonen S O, Lin C J. Degradation of monomethylmercury chloride by hydroxyl radicals in simulated natural waters[J]. Water Research, 2003, **37**(10): 2496-2504.

[15] Tossell J A. Theoretical study of the photodecomposition of methyl Hg complexes[J]. The Journal of Physical Chemistry A, 1998, **102**(20): 3587-3591.

[16] Zhang Y T, Sun R G, Ma M, *et al*. Study of inhibition mechanism of NO_3^- on photoreduction of Hg(Ⅱ) in artificial water[J]. Chemosphere, 2012, **87**(2): 171-176.

[17] United States EPA-821-R-01-020, Method 1630: Methyl mercury in water by distillation, aqueous ethylation, purge and trap, and CVAFS[S].

[18] 鲁新宇, 刘建兰, 冯鸣. 物理化学[M]. 北京: 化学工业出版社, 2008. 249-250.

[19] Robinson J B, Tuovinen O H. Mechanisms of microbial resistance and detoxification of mercury and organomercury compounds-physiological, biochemical and genetic analyses[J]. Microbiological Reviews, 1984, **48**(2): 95-124.

[20] 阴永光, 李雁宾, 蔡勇, 等. 汞的环境光化学[J]. 环境化学, 2011, **30**(1): 84-90.

[21] 左跃钢. 汞的形态分析及其在环境化学研究中的应用[D]. 北京: 中国科学院生态环境研究中心, 1984. 1-24.

[22] Takizawa Y, Minagawa K, Hisamatsu S. Studies on mercury behavior in man's environment (report Ⅴ) photodegradation of methylmercury in the atmosphere by ultraviolet rays with sterilization[J]. Japanese Journal of Public Health, 1981, **28**(1): 313-320.

[23] Choi H D, Holsen T M. Gaseous mercury emissions from unsterilized and sterilized soils: the effect of temperature and UV radiation[J]. Environmental Pollution, 2009, **157**(5): 1673-1678.

[24] Lalonde J D, Amyot M, Doyon M R, *et al*. Photo-induced Hg(Ⅱ) reduction in snow from the remote and temperate experimental lakes area (Ontario, Canada)[J]. Journal of Geophysical Research-Atmospheres, 2003, **108**(D6): 4200.

[25] Lean D R S, Siciliano S D. Production of methylmercury by solar radiation[J]. Journal de Physique Ⅳ, 2003, **107**(1): 743-747.

[26] Siciliano S D, O'Driscoll N J, Tordon R, *et al*. Abiotic production of methylmercury by solar radiation [J]. Environmental Science and Technology, 2005, **39**(4): 1071-1077.

[27] Celo V, Lean D R S, Scott S L. Abiotic methylation of mercury in the aquatic environment [J]. Science of the Total Environment, 2005, **368**(1): 126-137.

HUANJING KEXUE

Environmental Science (monthly)

Vol. 33 No. 12

Dec. 15, 2012

CONTENTS

Preface ····· CHEN Wei-ping (4069)

Ecological Risks of Reclaimed Water Irrigation: A Review ····· CHEN Wei-ping, ZHANG Wei-ling, PAN Neng, *et al.* (4070)

Study on Soil Enzyme Activities and Microbial Biomass Carbon in Greenland Irrigated with Reclaimed Water ····· PAN Neng, HOU Zhen-an, CHEN Wei-ping, *et al.* (4081)

Soil Salinity in Greenland Irrigated with Reclaimed Water and Risk Assessment ····· PAN Neng, CHEN Wei-ping, JIAO Wen-tao, *et al.* (4088)

Effect of Reclaimed Water Irrigation on Soil Properties and Vertical Distribution of Heavy Metal ····· ZHAO Zhong-ming, CHEN Wei-ping, JIAO Wen-tao, *et al.* (4094)

Simulation of Effect of Irrigation with Reclaimed Water on Soil Water-Salt Movement by ENVIRO-GRO Model ····· LÜ Si-dan, CHEN Wei-ping, WANG Mei-e (4100)

Simulation of Effects of Soil Properties and Plants on Soil Water-salt Movement with Reclaimed Water Irrigation by ENVIRO-GRO Model ····· LÜ Si-dan, CHEN Wei-ping, WANG Mei-e (4108)

Modeling the Cd Accumulation in Agricultural Soil Irrigated with Reclaimed Water ····· ZHAO Zhong-ming, CHEN Wei-ping, JIAO Wen-tao, *et al.* (4115)

Model Simulation of the Transportation, Transformation and Accumulation of Synthetic Musks in Soils Input Through Recycle Water Irrigation ····· WANG Mei-e, CHEN Wei-ping, JIAO Wen-tao (4121)

Impacts of Reclaimed Water Irrigation of Urban Lawn on Groundwater Quality ····· WANG Qiao-huan, CHEN Wei-ping, WANG Xiao-ke, *et al.* (4127)

Public Awareness Assessment of Water Reuse in Beijing ····· ZHANG Wei-ling, CHEN Wei-ping, JIAO Wen-tao (4133)

Temporal and Spatial Distribution of Ozone Concentration by Aircraft Sounding over Beijing ····· CHEN Peng-fei, ZHANG Qiang, QUAN Jian-nong, *et al.* (4141)

Emission Strength and Source Apportionment of Volatile Organic Compounds in Shanghai During 2010 EXPO ····· WANG Hong-li, CHEN Chang-hong, HUANG Hai-ying, *et al.* (4151)

Study on Atmospheric VOCs in Gongga Mountain Base Station ····· ZHANG Jun-ke, WANG Yue-si, WU Fang-kun, *et al.* (4159)

Regional Atmospheric Environment Risk Source Identification and Assessment ····· ZHANG Xiao-chun, CHEN Wei-ping, MA Chun, *et al.* (4167)

Carbon Isotopic Compositions of *n*-Alkanes and *n*-Alkanoic Acids in the Smoke from Combustion of Rice Straw ····· LIU Gang, SUN Li-na, LI Jiu-hai, *et al.* (4173)

Research on NEDC Ultrafine Particle Emission Characters of a Port Fuel Injection Gasoline Car ····· HU Zhi-yuan, LI Jin, TAN Pi-qiang, *et al.* (4181)

Magnetic Response of Street Tree Leaves to Particulate Pollution in Shanghai ····· LONG Qian, ZHOU Ju-zhen, MENG Jie, *et al.* (4188)

Diurnal Variations of Greenhouse Gas Fluxes at the Water-Air Interface of Aquaculture Ponds in the Min River Estuary ····· YANG Ping, TONG Chuan, HE Qing-hua, *et al.* (4194)

Effects of Simulated Warming on Soil Respiration in a Cropland Under Winter Wheat-Soybean Rotation ····· LIU Yan, CHEN Shu-tao, HU Zheng-hua, *et al.* (4205)

Transport and Differentiation of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Air from Dashiwei Karst Sinkholes in Guangxi, China ····· KONG Xiang-sheng, QI Shi-hua, SUN Qian, *et al.* (4212)

Pollution Characteristics of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Water of Songhua River Basin During the Icebound Season ····· MA Wan-li, LIU Li-yan, QI Hong, *et al.* (4220)

Pollution Characteristics and Sources of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Urban Rivers of Wenzhou City ····· ZHOU Jie-cheng, CHEN Zhen-lou, BI Chun-juan, *et al.* (4226)

Pollution Characteristics and Sources of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Riparian Soils Along Urban Rivers of Wenzhou City ··· ZHOU Jie-cheng, BI Chun-juan, CHEN Zhen-lou, *et al.* (4237)

Spatial Distribution and Risk Assessment of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Partial Surface Sediments of Liaohe River ····· WU Jiang-yue, LIU Zheng-tao, ZHOU Jun-li, *et al.* (4244)

Phenols Pollutants in Soil and Shallow Groundwater of a Retired Refinery Site ····· PEI Fang, LUO Ze-jiao, PENG Jin-jin, *et al.* (4251)

Heterogeneous Characteristic of PAHs' Spatial Distribution in a Large Coking Site of China ····· LIU Geng, GUO Guan-lin, NAN Feng, *et al.* (4256)

Vertical Distribution and Source Analysis of Organochlorine Pesticides in Sewage Irrigation Area, Taiyuan City ····· LIAO Xiao-ping, ZHANG Cai-xiang, ZHAO Xu, *et al.* (4263)

Distribution and Ecological Risk Assessment of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Agricultural Soil of the Chongming Island in Shanghai ····· LÜ Jin-gang, BI Chun-juan, CHEN Zhen-lou, *et al.* (4270)

Mercury and Copper Accumulation During Last Fifty Years and Their Potential Ecological Risk Assessment in Sediment of Mangrove Wetland of Shenzhen, China ····· LI Rui-li, CHAI Min-wei, QIU Guo-yu, *et al.* (4276)

Characteristics of Heavy Metal Pollution in the Sediments from Shahe Reservoir, the Upper Reach of the North Canal River ····· ZHANG Wei, ZHANG Hong, SHAN Bao-qing (4284)

Speciation and Pollution Characteristics of Heavy Metals in the Sediment of Taihu Lake ····· QIN Yan-wen, ZHANG Lei, ZHENG Bing-hui, *et al.* (4291)

Chemical Composition and Daily Variation of Melt Water During Ablation Season in Monsoonal Temperate Glacier Region: A Case Study of Baishui Glacier No. 1 ····· ZHU Guo-feng, PU Tao, HE Yuan-qing, *et al.* (4300)

Experimental Study on the Environmental Fate of Nitrogen in Snail-Macrophyte Ecosystem for Water Purification ····· ZHOU Lu-hong, GU Xiao-hong, ZENG Qing-fei, *et al.* (4307)

Growth Inhibition Effect of Immobilized Pectinase on *Microcystis aeruginosa* ····· SHEN Qing-qing, PENG Qian, LAI Yong-hong, *et al.* (4316)

A Novel Approach of Using Fouling Index to Evaluate NOM Fouling Behavior During Low Pressure Ultrafiltration Process ····· XIAO Ping, XIAO Feng, ZHAO Jing-hui, *et al.* (4322)

Characteristics of Monomethylmercury Photodegradation in Water Body ····· SUN Rong-guo, MAO Wen, MA Ming, *et al.* (4329)

Degradation of Oxytetracycline with Ozonation in Acetic Acid Solvent ····· LI Shi-yin, LI Xiao-rong, ZHU Yi-ping, *et al.* (4335)

Photodegradation Performance and Mechanisms of Carbamazepine and Its Impact Factors ····· CHEN Chao, ZHAO Qian, FENG Li, *et al.* (4340)

Investigation of Nitrobenzene Removal by Iron Sulfide (FeS) ····· WANG Xia-lin, LI Rui-hua (4346)

Experimental Research on *In-Situ* Auto-Monitoring for Underground Sewage Pipeline Leakage ····· GUO Lei, JIA Yong-gang, FU Teng-fei, *et al.* (4352)

Adsorption of Phenol Chemicals by Surfactant-Modified Zeolites ····· XIE Jie, WANG Zhe, WU De-yi, *et al.* (4361)

Acute Toxicity of Antibiotics and Anaerobic Digestion Intermediates in Pharmaceutical Wastewaters ····· JI Jun-yuan, XING Ya-juan, ZHENG Ping (4367)

Study on Phosphorus Removal Capability of Constructed Wetlands Filled with Broken Bricks ····· WANG Zhen, LIU Chao-xiang, LI Peng-yu, *et al.* (4373)

Denitrification Water Treatment with Zeolite Composite Filter by Intermittent Operation ····· QING Cheng-song, BAO Tao, CHEN Tian-hu, *et al.* (4380)

Influence of Nitrate on the Simultaneous Methanogenesis and Denitrification Reaction of Anaerobic Biofilm and Granular Sludge ····· ZHONG Chen-yu, YE Jie-xu, LI Ruo-yu, *et al.* (4387)

Study on Dewatering of Activated Sludge Under Applied Electric Field ····· JI Xue-yuan, WANG Yi-li, FENG Jing (4393)

Effects of Multiple Environmental Factors on Triflulsulfuron-methyl Degradation in Soils ····· SONG Ning-hui, SHAN Zheng-jun, SHI Li-li, *et al.* (4400)

Effect of Alkaline Post-Treatment on Physicochemical Property of Digested *Spartina alterniflora* ····· CHEN Guang-yin, ZHENG Zheng, CHANG Zhi-zhou, *et al.* (4406)

Structural Changes in Mineral Phases and Environmental Release Behavior of Arsenic During Sintering of Arsenic-containing Waste ····· WANG Xing-run, NONG Ze-xi, WANG Qi (4412)

Study on Emission Standard System of Air Pollutants ····· JIANG Mei, ZHANG Guo-ning, ZHANG Ming-hui, *et al.* (4417)

Mechanism for Transformation of Environmental Criteria into Environmental Standards in China ····· BI Cen-cen, WANG Tie-yu, LÜ Yong-long (4422)

Effect Analysis on the Two Total Load Control Methods for Poisonous Heavy Metals ····· FU Guo-wei (4428)

《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）

2012 年 12 月 15 日　33 卷　第 12 期

ENVIRONMENTAL SCIENCE

（Monthly　Started in 1976）

Vol. 33　No. 12　Dec. 15, 2012

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：70.00 元　　**国外发行代号**：M 205

国 内 外 公 开 发 行