

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第36卷 第12期

Vol.36 No.12

2015

中国科学院生态环境研究中心 主办
科学出版社 出版



目次(卷终)

2014年APEC前后北京城区PM _{2.5} 中水溶性离子特征分析	杨懂艳,刘保献,张大伟,石爱军,周健楠,景宽,富佳明(4325)
2013年北京市不同方位PM _{2.5} 背景浓度研究	李云婷,程念亮,张大伟,孙瑞雯,董欣,孙乃迪,陈晨(4331)
APEC期间北京空气质量改善对比分析	李文涛,高庆先,刘俊蓉,李亮,高文康,苏布达(4340)
嘉兴市春季PM、主要污染气体和气溶胶粒径分布的周末效应	沈利娟,王红磊,吕升,李莉,张孝寒,章国骏,王翥(4348)
烟花燃放对珠三角地区春节期间空气质量的影响	赵伟,范绍佳,谢文彰,孙家仁(4358)
典型钢铁行业汞排放特征及质量平衡	张雅惠,张成,王定勇,罗程钟,杨熹,徐凤(4366)
上海市公园绿地树叶对大气重金属污染的磁学响应	刘飞,褚慧敏,郑祥民(4374)
重庆金佛山降雪中飞灰单颗粒特征及来源解析	于正良,杨平恒,景伟力,袁道先,任坤,李林立(4381)
利用新型组合填料的生物滴滤塔净化混合废气研究	梅瑜,成卓韦,王家德,陆胤(4389)
低浓度CO ₂ 在聚苯胺/Y分子筛复合材料上的吸附	刘凤玲,卢霞,张慧,葛鑫,刘杰,张泳真(4396)
红壤丘陵区冬季大气湿沉降化学特征及森林冠层对其截留作用机制	郝卓,高扬,张进忠,于贵瑞(4403)
中亚热带常绿阔叶林湿沉降过程中盐基离子变化特征	安思危,孙涛,马明,王定勇(4414)
基于Landsat 8影像估算新安江水库光合有效辐射衰减系数	张毅博,张运林,查勇,施坤,周永强,刘明亮(4420)
白石水库颗粒有机物及沉积物中碳、氮稳定同位素的空间分布特征	郭凯,赵文,王珊,戴玉新,张荣坤,李东明(4430)
小关水库夏季浮游植物功能群对富营养化特征的响应	李磊,李秋华,焦树林,李钥,肖晶,邓龙,孙荣国,高永春,骆兰(4436)
湖泊基质客土改良的环境效应:对芦苇生长及光合荧光特性的影响	余居华,钟继承,范成新,黄蔚,商景阁,古小治(4444)
贵州纳朵洞洞穴水水文地球化学变化特征及其环境意义	沈蔚,王建力,王家录,蒋先淑,毛庆亚,陈挚秋,刘肖(4455)
碧水岩地下河中微量金属元素对降雨的响应特征及来源分析	邹艳娥,蒋萍萍,张强,汤庆佳,康志强,龚晓萍,陈长杰,俞建国(4464)
钱塘江(杭州段)表层水中全氟化化合物的残留水平及分布特征	张明,唐访良,俞雅雯,徐建芬,李华,吴敏华,张伟,潘见阳(4471)
长江中游沉积物中多溴联苯醚的污染特征及风险评价	田奇昌,唐洪波,夏丹,王莎莎,高丽荣(4479)
城市地表水表层沉积物重金属污染特征与潜在生态风险评估:以永康市为例	齐鹏,余树全,张超,梁立成,车继鲁(4486)
柠檬酸对三峡水库消落区土壤中汞活化及甲基化的影响	覃蔡清,梁丽,游蕊,邓晗,王定勇(4494)
微生物对冰封期湖泊沉积物中有机磷降解释放的影响	左乐,吕昌伟,何江,王伟颖,颜道浩(4501)
扰动和加藻共同作用下太湖沉积物中形态磷变化规律	陈俊,李大鹏,朱培颖,黄勇,王忍(4509)
生态沟渠对氮、磷污染物的拦截效应	张树楠,肖润林,刘锋,吴金水(4516)
开放系统下方解石对磷的去除	李振炫,刁家勇,黄利东,陈艳芳,刘大刚,许正文(4523)
铜在壳核结构磁性颗粒上的吸附:效能与表面性质的关系	李秋梅,陈静,李海宁,张晓蕾,张高生(4531)
基于优质碳源提供的CAMBR复合工艺短程硝化-反硝化除磷研究	程继辉,吴鹏,程朝阳,沈耀良(4539)
ANAMMOX菌利用零价铁转化氨和硝酸盐实验	周健,黄勇,袁怡,刘忻,李祥,沈杰,杨朋兵(4546)
基于GIS的天津市饮用水水质健康风险评价	符刚,曾强,赵亮,张玥,冯宝佳,王睿,张磊,王洋,侯常春(4553)
北京自备井水源内毒素污染及与其他水质参数的相关分析	张灿,刘文君,敖澍,史云,安代志,刘治平(4561)
广州市小学生多环芳烃内暴露水平	苏慧,赵波,张素坤,刘珊,任明忠,李杰,石小霞(4567)
构建三元混合污染物的三维等效图	刘雪,刘树深,刘海玲(4574)
化学提取法表征污染土壤中PAHs老化规律和蚯蚓富集特征	张亚楠,杨兴伦,卞永荣,谷成刚,刘总堂,李娇,王代长,蒋新(4582)
不同取样尺度下华北落叶松人工林土壤呼吸的空间变异性	严俊霞,梁雅南,李洪建,李君剑(4591)
基于环境效应的土壤重金属临界负荷制图	施亚星,吴绍华,周生路,王春辉,陈浩(4600)
土壤中铅锌的稳定化处理及机制研究	谢伟强,李小明,陈灿,陈寻峰,钟宇,钟振宇,万勇,王琰(4609)
纳米氧化锌、硫酸锌和AM真菌对玉米生长的影响	李帅,刘雪琴,王发园,苗艳芳(4615)
蜈蚣草中砷与砷的赋存特征及其相互作用	张玉秀,马旭,廖晓勇,阎秀兰,马栋,龚雪刚(4623)
纳米沸石对土壤Cd形态及大白菜Cd吸收的影响	熊仕娟,徐卫红,谢文文,陈蓉,陈永勤,迟苏琳,陈序根,张进忠,熊治庭,王正银,谢德体(4630)
黑麦草、丛枝菌根对番茄Cd吸收、土壤Cd形态的影响	陈永勤,江玲,徐卫红,迟苏琳,陈序根,谢文文,熊仕娟,张进忠,熊治庭(4642)
耐盐类固醇激素降解菌交替赤杆菌MH-B5的降解特性、降解途径及其固定化	马聪,秦丹,孙倩,于昌平(4651)
浙江省瓯江氨氧化古菌和氨氧化细菌分布及多样性特征	李虎,黄福义,苏建强,洪有为,俞慎(4659)
缙云山马尾松林和柑橘林土壤微生物PLFA沿海拔梯度的变化	曾清苹,何丙辉,毛巧芝,吴耀鹏,黄祺,李源(4667)
华北平原耕作土壤特性对基因工程菌迁移的影响	张静,刘平,刘春,陈晓轩,张磊(4676)
再生铜冶炼过程多氯萘与二噁英类排放特征分析与控制技术评估	田亚静,姜晨,吴广龙,丁琼,王铁宇,吕永龙(4682)
《环境科学》第36卷(2015年)总目录	(4690)
《环境科学》征订启事(4347)	《环境科学》征稿简则(4454)
信息(4463,4530,4573,4581)	

柠檬酸对三峡水库消落区土壤中汞活化及甲基化的影响

覃蔡清¹, 梁丽¹, 游蕊¹, 邓晗¹, 王定勇^{1, 2, 3*}

(1. 西南大学资源环境学院, 重庆 400715; 2. 重庆市三峡库区农业面源污染控制工程技术研究中心, 重庆 400716; 3. 重庆市农业资源与环境研究重点实验室, 重庆 400716)

摘要: 利用室内模拟实验, 用不同浓度柠檬酸溶液分别浸提和培养土壤, 探讨了植被根系分泌物的主要成分柠檬酸对三峡库区消落带土壤中汞活化及甲基化的影响。结果表明, 添加柠檬酸后浸提液中汞含量在达到最高值之前均高于对照组 ($0 \text{ mmol} \cdot \text{L}^{-1}$), 且随柠檬酸浓度的增加而增大。0、1、2、4、5、6、8 $\text{mmol} \cdot \text{L}^{-1}$ 浓度下最大汞溶出量随柠檬酸浓度的增加先增大而后保持稳定, 分别占供试土壤总汞的 1.03%、1.67%、1.99%、2.47%、2.68%、2.73%、2.73%。培养实验中, 土壤甲基汞 (MeHg) 含量在前 3 h 内基本维持稳定, 随后除对照组增加缓慢外, 其余组均开始上升, 且上升速率随柠檬酸浓度的升高而增大。在同一培养时段内, 土壤 MeHg 含量及增加量随柠檬酸浓度的升高而增大。表明柠檬酸对土壤中无机汞向甲基汞的转化过程有一定的促进作用, 且促进作用随着柠檬酸浓度的增加而愈加显著。

关键词: 柠檬酸; 消落区; 土壤; 汞; 活化

中图分类号: X131 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2015)12-4494-07 DOI: 10.13227/j.hjks.2015.12.022

Effects of Citric Acid on Activation and Methylation of Mercury in the Soils of Water-Level-Fluctuating Zone of the Three Gorges Reservoir

QIN Cai-qing¹, LIANG Li¹, YOU Rui¹, DENG Han¹, WANG Ding-yong^{1, 2, 3*}

(1. College of Resources and Environment, Southwest University, Chongqing 400715, China; 2. Chongqing Engineering Research Center for Agricultural Non-Point Source Pollution Control in the Three Gorges Reservoir Area, Chongqing 400716, China; 3. Chongqing Key Laboratory of Agricultural Resources and Environment, Chongqing 400716, China)

Abstract: To investigate effects of the main component of vegetation root exudates-citric acid on activation and methylation of mercury in the soil of water-level-fluctuating zone (WLFZ) of the Three Gorges Reservoir area, simulation experiments were conducted by extracting and cultivating soil with different concentrations of citric acid. The results showed that after adding citric acid, the total mercury content in leaching solution before reaching peak were higher than that of the control, and increased with the increase of citric acid concentrations. The maximum amount of mercury complexes increased initially and then reached plateaus with the percentage against the total mercury in soil of 1.03%, 1.67%, 1.99%, 2.47%, 2.68%, 2.73% and 2.73% for different citric acid concentrations (0, 1, 2, 4, 5, 6 and 8 $\text{mmol} \cdot \text{L}^{-1}$). In addition, concentrations of methylmercury (MeHg) in soil remained stable in the first 3 hours, and then increased accompanying with the increasing rate rising with the concentration of citric acid (besides the control group). This result indicated that citric acid probably could promote the transformation process from inorganic mercury to MeHg in soil, which increased with the concentration of citric acid.

Key words: citric acid; water-level-fluctuating zone (WLFZ); soil; mercury; activation

水库是典型的“汞 (Hg) 敏感生态系统”^[1], 汞在水库生态系统中的环境化学行为成为各国相关学者研究的热点问题之一^[2~4]。有研究报道, 水库环境有利于汞的活化及甲基化^[5], 被淹没的土壤和植被是新建水库水体和鱼体中甲基汞 (MeHg) 的重要来源^[6, 7]。三峡水库是我国特大型年调节水库, 其特殊的调度方式使其在库周形成垂直高度为 30m, 面积超过 400 km^2 的消落带^[8]。该消落带具有周期性淹水与退水的特点, 每年 4~9 月的出露期间会生长出大片茂密的草本植被, 随后水位上涨, 将消落区淹没。在土壤进行着干湿交替的变换时, 植物也呈现出生长-淹没分解-再生长的更新过程, 而植被在

生长过程中会因环境因子的胁迫而向周围土壤分泌大量的有机物^[9, 10], 使其在局部土壤中过度积累而达到较高的浓度, 这些分泌物可通过降低土壤 pH、提高微生物活性等机制, 来增加某些元素的溶解性和移动性而形成特殊的环境条件。根系分泌物成分复杂, 其中包含大量的小分子有机酸 (如柠檬酸、草酸、酒石酸等), 它们能通过络合、吸附、氧化还原

收稿日期: 2015-06-11; 修订日期: 2015-07-08

基金项目: 国家重点基础研究发展规划 (973) 项目 (2013CB430004); 国家自然科学基金项目 (41373113, 41173116); 中央高校基本业务费专项 (XDJK2015C124)

作者简介: 覃蔡清 (1991~), 男, 硕士研究生, 主要研究方向为环境污染化学, E-mail: 18883319112@163.com

* 通讯联系人, E-mail: dywang@swu.edu.cn

等作用影响重金属的迁移转化^[11, 12], 这势必会影响土壤中汞的化学行为。因此, 讨论在有机酸条件下土壤汞含量及其形态的变化特征, 是研究“水库汞效应”的重要环节。

国内外已经有许多实验表明, 外加柠檬酸、草酸、酒石酸等对土壤中 Cd、Cu、Pb 等重金属均有一定的活化能力^[13~16], 但关于有机酸对土壤中 Hg 化学行为影响的报道相对偏少^[17, 18]。目前普遍认为, 低分子量有机酸对土壤中重金属的活化效应是酸化、络合、还原以及微生物共同作用的结果, 然而不同重金属之间存在差异, 不同种类的有机酸对不同地区土壤的影响效果也不尽相同。因此, 关于低分子量有机酸对三峡水库消落区土壤中汞解吸及活化的研究, 仍然有很多内容值得深入探索。而柠檬酸是植物根系分泌物中典型的低分子量有机酸, 为三元酸, 含有的羧基功能团及活性位点较多。为此, 本研究采集了消落区土壤, 通过室内模拟实验, 用不同浓度柠檬酸溶液分别浸提和培养土壤后, 探讨不同浓度柠檬酸和浸提时间对三峡水库消落区土壤中汞解吸及活化的影响, 并分析土壤中甲基汞含量随柠檬酸浓度和培养时间的变化特征。

表 1 供试土壤的基本理化性质

Table 1 Physicochemical properties of soils used in this research

pH	有机质 /g·kg ⁻¹	CEC ¹⁾ /cmol·kg ⁻¹	机械组成/%				汞含量	
			<0.002 mm	<0.02 mm	0.02~0.25 mm	>0.25 mm	THg/μg·kg ⁻¹	MeHg/ng·kg ⁻¹
7.46	9.55	17.12	19.28	50.28	48.69	1.03	45.09 ± 0.12	249.46 ± 10.28

1) CEC(cation exchange capacity): 阳离子交换量

1.2 实验方法与设计

1.2.1 浸提液中汞含量随柠檬酸浓度和浸提时间的变化

在 50 mL 的离心管中分别加入 2 g 供试土样(空白处理不加土)、20 mL 各个浓度的柠檬酸, 每个处理各设 3 个重复。在 25℃ 恒温黑暗条件下, 220 r·min⁻¹ 振荡 120 min, 并于不同时间点进行取样, 取样点设置为 1、5、10、30、60、90、120 min。样品取出后立即放进离心机中, 在 25℃、4 000 r·min⁻¹ 下离心 5 min。结束后将样品上清液分成两份, 一份过 0.45 μm 滤膜(Millipore, 美国), 用于分析溶解态汞(DHg); 剩余样品用于分析上清液中总汞即土壤可提取态汞(THg)、活性汞(RHg)。土壤样品取出后放入自封袋, 经冻干机避光冻干和玛瑙研钵磨细过 100 目筛, 用于分析剩余的土壤总汞。

1.2.2 培养土壤中 MeHg 含量随柠檬酸浓度和培养时间的变化

称取 5 g 的供试土样于洁净无汞的硼硅玻璃瓶

1 材料与方法

1.1 实验材料与准备

供试土壤于 2014 年 7 月采自三峡水库腹心地带重庆忠县石宝寨新政村(N30° 25' 7.5", E108° 10' 5.5")消落区裸露试验地, 其基本理化性质见表 1。将土样去除植物残体和砂粒, 冻干机(LGJ-10C, 北京)避光冻干后用玛瑙研钵磨碎, 过 60 目筛, 于 -80℃ 超低温冰箱(中科美菱 DW-HW328, 安徽)避光保存待用。所用的柠檬酸(成都市科龙化工试剂厂)为优级纯, 将其配制成浓度梯度为 0(对照组)、1、2、4、5、6、8 mmol·L⁻¹ 的溶液后, 均至少通入氙气 1 h 以上, 以去除试剂中的痕量汞。实验所需的离心管和玻璃器皿在使用前均用硝酸(25%, 体积比)浸泡 24 h 以上, 再用超纯水(18.2 MΩ·cm, Millipore integral 3, Molsheim France)清洗, 离心管在烘箱中烘干后使用, 玻璃器皿经马弗炉 500℃ 灼烧 1 h, 在洁净无汞的环境下冷却后使用。实验所用的管子均为聚四氟乙烯管(Brooks Rand)。实验全过程佩戴一次性手套, 避免交叉污染, 室内温度为 25℃ ± 2℃。

中, 加入 2.5 mL 不同浓度的柠檬酸将土壤浸透混匀(空白处理加同样量的超纯水), 轻微覆盖一层保鲜膜后放入人工气候培养箱中(湿度 60%、温度 25℃、光照 0 lx)培养, 所有样品均做 3 个重复。于不同时间点进行取样, 取样点设置为 1、3、5、10、20、30、45、60、90 h。样品取出后立即用冻干机避光冻干, 再用玛瑙研钵磨细过 100 目筛, 测定其中的 MeHg。

1.3 样品分析方法和质量控制

离心后上清液的 THg 按照美国环境保护署 Method 1631^[19] 方法测定; RHg 测定前上清液需加 SnCl₂, 用金管预富集、二次金汞齐-冷原子荧光法测定; DHg 测定前上清液需过 0.45 μm 滤膜, 加 0.5% BrCl 氧化放置 24 h, 测定前 30 min 加入 0.2% 盐酸羟氨溶液去除游离卤素, 采用金汞齐预富集-冷原子荧光法测定。原供试土样以及离心后剩余底泥的总汞用 DMA-80 固体进样自动测汞仪(意大利麦尔斯通公司)直接测定。原供试土样以及培养后土壤中的甲基汞含量采用硝酸和硫酸铜溶液浸提, 二

氯甲烷萃取并结合水相乙基化等温气相色谱——冷原子荧光法(GC-CVAFS)测定^[20].

分析过程中的质量控制采用空白实验、加标回收率及平行样控制. 方法检出限(MDL,即3倍空白的标准偏差)分别为0.2 ng·L⁻¹(THg)和0.08 ng·L⁻¹(MeHg),而方法空白均低于检出限. 加标回收率为97%~110%(THg)和88%~106%(MeHg),平行样分析的相对标准偏差为5.1%(THg)和8.6%(MeHg).

1.4 计算方法

柠檬酸浸提土壤后络合汞的量(A)用公式(1)计算:

$$A = c_{(\text{THg})} - c_{(\text{RHg})} \tag{1}$$

式中, $c_{(\text{THg})}$ 和 $c_{(\text{RHg})}$ 分别指离心后上清液中对应THg和RHg的含量($\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$).

柠檬酸浸提汞反应的前半段用对数方程[式(2)]拟合;后半段反应的级数采用尝试法分析计算^[21],按照二级动力学方程[式(3)]进行拟合:

$$c_t = k \ln t + b \tag{2}$$

$$\frac{1}{c_t} - \frac{1}{c_\infty} = kt \tag{3}$$

式中, c_∞ 与 c_t 分别指某浓度柠檬酸处理下A值的最大值及t时刻的A值($\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$),t为振荡时间(min),k与b为对应方程的参数.

数据处理与图形制作分别使用软件SPSS 18.0与Origin 8.1.

2 结果与分析

2.1 浸提液中汞含量随柠檬酸浓度和浸提时间的变化

从图1(a)和1(c)中可以看出不同浓度柠檬酸处理土壤后,浸提液中RHg、THg的含量在达到最

高值的振荡时间点之前与对照组(0 mmol·L⁻¹)相比均有所提升,且随柠檬酸浓度的增加而增大. 此外,同一浓度柠檬酸处理下,THg和RHg含量随振荡时间变化的趋势均一致. 除0、1 mmol·L⁻¹的处理下THg和RHg含量都随着振荡时间的增加而增加外,其余浓度条件下两者均是先增加后减少,且出现最高值的时间点随着柠檬酸浓度的升高而提前,其中2 mmol·L⁻¹、6 mmol·L⁻¹的条件下在60 min时达到最大值,5 mmol·L⁻¹、6 mmol·L⁻¹条件下的最大值出现在30 min时,而8 mmol·L⁻¹的柠檬酸处理下则使最大值提前在10 min时出现. 但图1(b)显示,浸提液中DHg含量除了在第3 min时有明显上升外,之后基本保持不变,且随柠檬酸浓度变化的幅度很小. 表明DHg在浸提3 min后已大致全部溶出,其溶出量不受柠檬酸浓度的影响.

A值随柠檬酸浓度及振荡时间的变化趋势与THg相同. 对比图1(c)和1(d)可以发现,两者图形的曲线特征基本接近,统计分析显示,在振荡过程中,A值与THg显著相关($P<0.05$),表示柠檬酸处理土壤后络合汞的量主要体现在THg含量中. 经过计算发现(表2),除对照组外,A值随振荡时间的变化在上升阶段可以很好地用对数方程进行拟合,而在下降阶段基本符合二级动力学的变化规律. 这也从侧面反映了柠檬酸对土壤汞解吸及活化的反应机制与纯水是有差异的.

用表2中各方程的k值来反映其反应速率. 结合图1(d)和表2可以发现,A值在随振荡时间变化曲线的上升阶段,其汞络合速率大致随柠檬酸浓度(6 mmol·L⁻¹除外)的升高而增加,而下降阶段的二级动力学反应速率常数也基本上随柠檬酸浓度的增加而变大.

表2 不同浓度柠檬酸条件下,土壤汞络合量的拟合结果及参数

Table 2 Fitting results and parameters of mercury complexation in soil for the treatments with different citric acid concentrations					
拟合方程	柠檬酸浓度 /mmol·L ⁻¹	振荡时间段/min	参数		相关系数 R ²
			k	b	
$c_t = kt + b$	0	0~120	0.091 7	12.277	0.997 9
	1	0~120	5.020 6	13.123	0.985 7
	2	0~60	6.545 8	17.217	0.989 1
	4	0~60	8.507 0	18.961	0.979 3
	5	0~30	11.496	19.966	0.990 5
	6	0~30	10.464	25.105	0.996 1
	8	0~10	12.413	33.334	0.998 9
$\frac{1}{c_t} - \frac{1}{c_\infty} = kt$	2	60~120	0.000 1		0.990 9
	4	60~120	0.000 2		0.991 3
	5	30~120	0.000 2		0.989 4
	6	30~120	0.000 3		0.996 1
	8	10~120	0.000 3		0.998 8

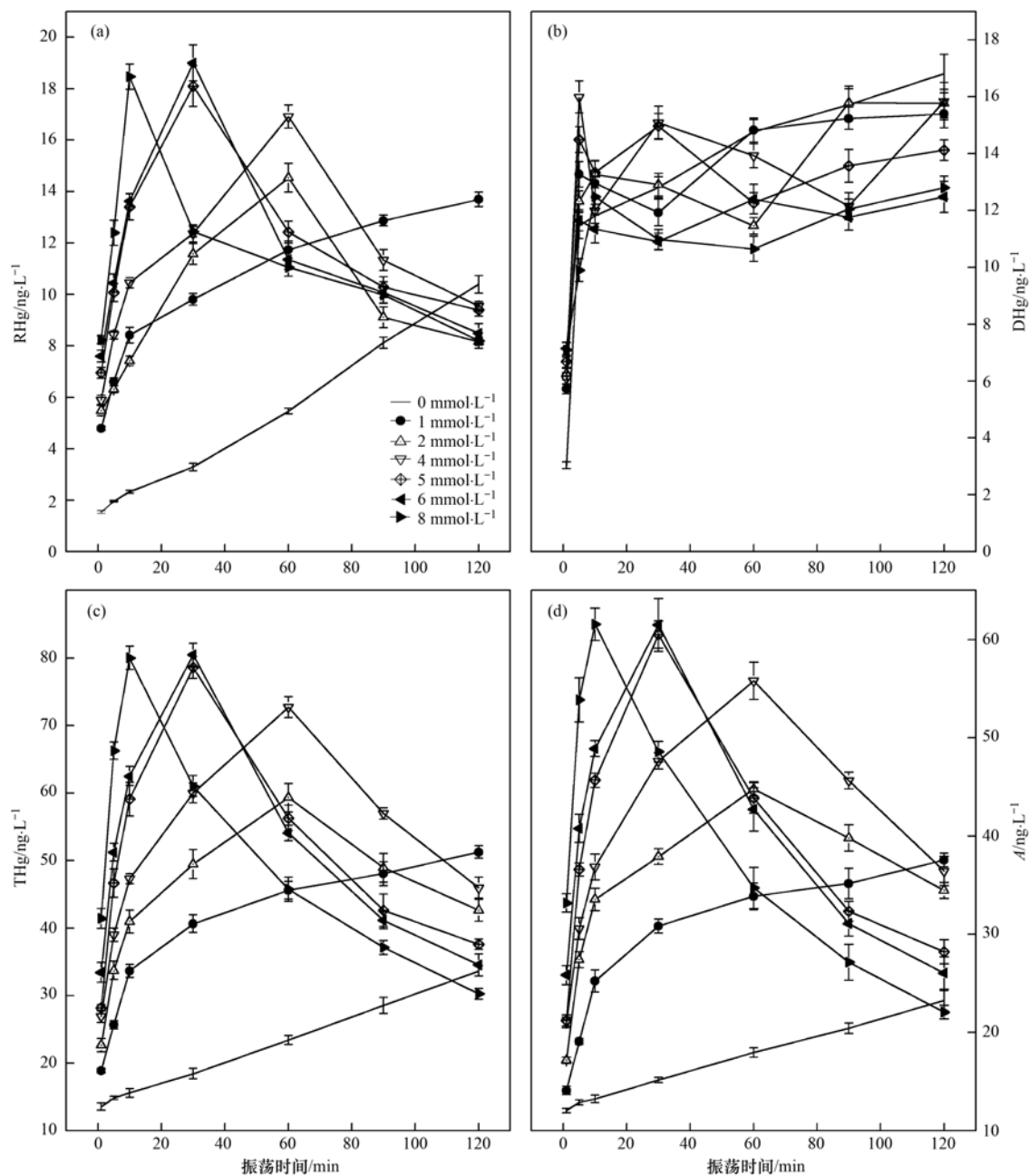


图1 不同浓度柠檬酸处理下各时间点的 RHg、DHg、THg 以及 A 值

Fig. 1 Contents of RHg, DHg, THg and A in each time point for the treatments with different citric acid concentrations

将不同柠檬酸浓度处理下 RHg、THg、A 值所出现的最大值($RHg_{\max}$ 、 $THg_{\max}$ 、 $A_{\max}$)分别对该柠檬酸浓度作图得出各自的关系曲线与相应的多元方程式(图2),发现 $RHg_{\max}$ 、 $THg_{\max}$ 以及 $A_{\max}$ 都与柠檬酸浓度表现出二次线性关系,呈显著相关($r^2 = 0.97, P < 0.01$; $r^2 = 0.99, P < 0.01$; $r^2 = 0.98, P < 0.01$),表明增加柠檬酸浓度对络合土壤中的汞有促进作用。从图2中可以发现,当柠檬酸浓度达到 $5 \text{ mmol} \cdot \text{L}^{-1}$ 之后,三者的变化曲线均接近于水平,表明继续增加柠檬酸浓度不会使浸提液中 RHg、THg

含量以及汞络合量出现较大的增值。

0、1、2、4、5、6、8 $\text{mmol} \cdot \text{L}^{-1}$ 柠檬酸浓度处理下 $A_{\max}$ 分别占供试土壤总汞的 1.03%、1.67%、1.99%、2.47%、2.68%、2.73%、2.73%; 设 $A_{\max}$ 出现最大值时(6 $\text{mmol} \cdot \text{L}^{-1}$ 柠檬酸)络合率为 100%,则各个柠檬酸浓度下络合率分别为 37.78%、61.01%、72.77%、92.29%、99.91%、100%、99.70%,表明柠檬酸浓度为 $5 \text{ mmol} \cdot \text{L}^{-1}$ 时对供试土壤中汞的络合率接近于 100%。将与各个柠檬酸浓度下的 $A_{\max}$ 对应的土壤表示为 T0、T1、

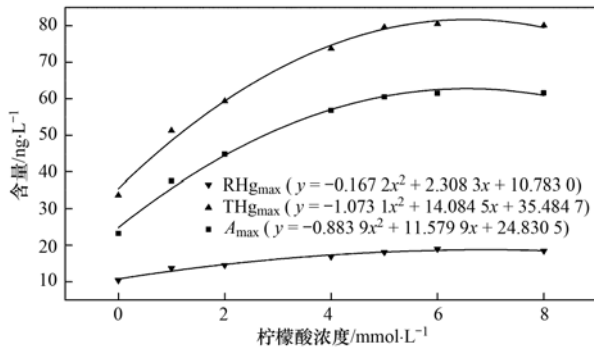


图2 柠檬酸浓度对浸提液中汞含量的影响

Fig. 2 Effects of different citric acid concentrations on RHg, THg and mercury activation in extracts

T2、T4、T5、T6、T8,发现其汞含量均明显低于原土,且逐渐降低,直至T5后则无明显变化(图3).表明随着浸提土壤的柠檬酸浓度的升高,振荡离心后各处理土壤总汞的释放量增加,这与相应浸提液中 $A_{\max}$ 随柠檬酸浓度的增加是一致的.

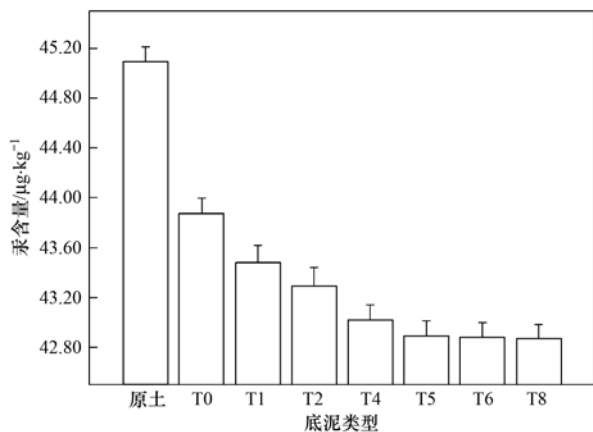


图3 底泥中总汞的含量

Fig. 3 Concentrations of total mercury in different sediments

2.2 培养土壤中 MeHg 含量随柠檬酸浓度和培养时间的变化

不同浓度的柠檬酸培养土壤后,土壤中 MeHg 含量随培养时间的变化显示(图4),在前3 h内,MeHg 含量基本维持稳定,第3 h后,除对照组增加缓慢外,其余柠檬酸浓度培养的土壤中 MeHg 含量均开始明显上升,且上升速率随着柠檬酸浓度的升高而越来越快.另外,在同一培养时段内,土壤 MeHg 含量及增加量也随柠檬酸浓度的升高而增大.表明柠檬酸对土壤中无机汞向甲基汞的转化过程有一定的促进作用,且促进作用随着柠檬酸浓度的增加而愈加显著.

有研究表明,厌氧微生物(如铁还原菌^[22]和硫酸盐还原菌^[23])所引起的甲基化作用是土壤中

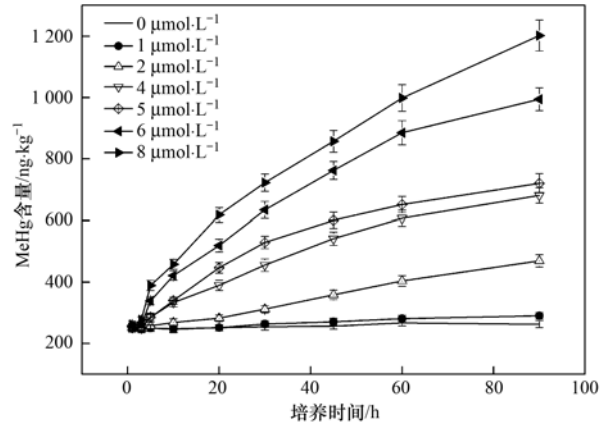


图4 不同浓度柠檬酸培养下各时间点的土壤 MeHg 含量

Fig. 4 Contents of MeHg in each time point in soil for the treatments with different citric acid concentrations

MeHg 产生的主要因素.本实验中1~3 h内 MeHg 含量较低,可能是因为此时土壤中厌氧菌数量较少,甲基化作用很弱.随后土壤中 MeHg 含量上升,说明将土壤浸透可能形成了一定的厌氧环境,使厌氧菌数量随着培养时间的延长而增加,从而甲基化作用增强.但有学者报道^[24, 25],在有氧情况下也存在甲基化现象,Xiang 等^[26]在研究三峡水库消落区土壤中TCB(total culturable bacteria)与甲基汞的关系时也曾推测某些好氧菌在汞的甲基化中可能具有重要作用.而浸透土壤中存在一定的溶解氧,这或许也是本研究中土壤 MeHg 含量有所上升的原因之一.至于微生物在厌氧或好氧条件下对汞的具体甲基化作用机制还有待进一步研究.

本实验中 MeHg 含量随培养时间的增加而一直上升,没有出现平缓或下降的现象,有可能是因为培养时间不够长,没有形成足够的厌氧环境亦或溶解氧没有完全消耗殆尽,土壤中的有机质也未完全分解,汞的甲基化与去甲基化还没有达到新的平衡状态.

3 讨论

有研究指出^[27, 28],土壤中的低分子量有机酸会给周围环境带来大量的质子以及有机酸根阴离子,其中质子能够通过酸化土壤而使其中的原生矿物溶解,导致大量的重金属被释放出来.而有机酸根阴离子能对重金属产生足够强的亲和力,能和其它阴离子以及土壤胶体矿物表面的阳离子吸附位点竞争重金属离子,从而生成有机酸重金属的复合体,使得重金属离子在土壤固-液相间的吸附平衡向液相偏移,导致溶液中重金属离子的数量增多.

由于有机酸(如柠檬酸、酒石酸、琥珀酸等)包含的羧基、羟基等官能团能络合重金属,故常作为络合剂活化土壤重金属,用于污染土壤的修复^[29, 30]。许多报道^[16, 31, 32]显示柠檬酸解吸及活化土壤中 Cu、Pb 的效果较好,主要是因为柠檬酸是三元酸,含有的羧基功能团及活性位点较多。而柠檬酸与 Hg 络合的稳定性也较高,柠檬酸-Hg 络合物的稳定系数为 $10^{10.9[33]}$,因此本研究中用柠檬酸溶液浸提的土壤与对照相比,汞的络合量 A 值明显上升。但随着培养时间的增加, A 值逐渐降低,可能是由于已经形成的柠檬酸-Hg 螯合物在振荡时又被吸附或包裹在土壤颗粒中,并在离心时进入底泥,最终导致后期浸提液中汞含量逐渐下降。

重金属在土壤中以多种形态存在,不同赋存形态的重金属与土壤胶体结合强度不一,因此解吸及活化所需的化学能也有差异。相关研究表明^[34],低分子量有机酸对土壤中重金属的解吸作用主要发生在有效态重金属这一部分,一般而言,有效态所占的比例越高,解吸量也就越大。本实验中,随着柠檬酸浓度的增加,土壤中可解吸的汞含量的溶出量随之升高,直至接近或等于最终可解吸的汞含量(图2)。此时 $A_{\max}$ 占供试土壤总汞的 2.73%,这也从侧面反映了供试土壤中能被柠檬酸络合的弱酸溶解态及可交换态汞占总汞的比例是 2.73%。

另外,柠檬酸浓度的增加提高了环境中 H^+ 的浓度,使其 pH 值降低,这不仅促进矿物的溶解而释放汞,同时能消耗土壤胶体和矿物表面的阳离子吸附位点^[35]。其次,由于柠檬酸是微生物的能量来源之一,且弱酸性环境比酸性或中碱性环境更利于汞的甲基化^[36],所以也为微生物将无机汞转化为甲基汞创造了更优越的条件。

4 结论

(1) 柠檬酸对三峡水库消落区土壤中的汞有解吸及活化作用,且提高柠檬酸浓度能促进土壤中汞的活化。汞络合量随柠檬酸浓度的增加先增大而后保持稳定,最大可占供试土壤总汞的 2.73%。

(2) 柠檬酸对土壤汞的络合在上升阶段能用对数方程拟合,且络合速率基本随柠檬酸浓度的增加而增大;在下降阶段符合二级动力学的变化规律,且反应速率常数也大致随柠檬酸浓度的增加而变大。

(3) 柠檬酸对土壤中无机汞向甲基汞的转化过程有一定的促进作用,且促进作用随着柠檬酸浓度

的增加而愈加显著。

参考文献:

- [1] Wiener J G, Krabbenhoft D P, Heinz G H, *et al.* Ecotoxicology of mercury [M]. Boca Raton: Lewis Publishers, 2003. 409-462.
- [2] Hall B D, Rosenberg D M, Wiens A P. Methyl mercury in aquatic insects from an experimental reservoir [J]. Canadian Journal of Fisheries and Aquatic Sciences, 1998, **55**(9): 2036-2047.
- [3] Gray J E, Hines M E. Biogeochemical mercury methylation influenced by reservoir eutrophication, Salmon Falls Creek Reservoir, Idaho, USA [J]. Chemical Geology, 2009, **258**(3-4): 157-167.
- [4] 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.
- [5] Lucotte M, Schetagne R, Thérien N, *et al.* Mercury in the biogeochemical cycle: natural environments and hydroelectric reservoirs of northern Québec (Canada) [M]. Berlin: Springer, 1999. 1-334.
- [6] Jackson T A. The mercury problem in recently formed reservoirs of northern Manitoba (Canada): effects of impoundment and other factors on the production of methyl mercury by microorganisms in sediments [J]. Canadian Journal of Fisheries and Aquatic Sciences, 1988, **45**(1): 97-121.
- [7] Yan H Y, Rustadbakken A, Yao H, *et al.* Total mercury in wild fish in Guizhou reservoirs, China [J]. Journal of Environmental Sciences, 2010, **22**(8): 1129-1136.
- [8] 牛志明, 解明曙. 三峡库区水库消落区水土资源开发利用的前期思考[J]. 科技导报, 1998, **16**(4): 61-62.
- [9] Pellet D M, Grunes D L, Kochian L V. Organic acid exudation as an aluminum-tolerance mechanism in maize (*Zea mays* L.) [J]. Planta, 1995, **196**(4): 788-795.
- [10] Cieślinski G, Van Rees K C J, Szmigielska A M, *et al.* Low-molecular-weight organic acids in rhizosphere soils of durum wheat and their effect on cadmium bioaccumulation [J]. Plant and Soil, 1998, **203**(1): 109-117.
- [11] Hammer D, Keller C. Changes in the rhizosphere of metal-accumulating plants evidenced by chemical extractants [J]. Journal of Environmental Quality, 2002, **31**(5): 1561-1569.
- [12] 赵士波, 孙荣国, 王定勇, 等. 低分子有机酸对汞氧化还原反应的影响[J]. 环境科学, 2014, **35**(6): 2193-2200.
- [13] Qin F, Shan X Q, Wei B. Effects of low-molecular-weight organic acids and residence time on desorption of Cu, Cd, and Pb from soils [J]. Chemosphere, 2004, **57**(4): 253-263.
- [14] Liu J G, Qian M, Cai G L, *et al.* Variations between rice cultivars in root secretion of organic acids and the relationship with plant cadmium uptake [J]. Environmental Geochemistry and Health, 2007, **29**(3): 189-195.
- [15] Han F, Shan X Q, Zhang S Z, *et al.* Enhanced cadmium accumulation in maize roots—the impact of organic acids [J]. Plant and Soil, 2006, **289**(1-2): 355-368.
- [16] 黄国勇, 付庆灵, 朱俊, 等. 低分子有机酸对土壤中 Cu 化学

- 形态的影响[J]. 环境科学, 2014, **35**(8): 3091-3095.
- [17] Jiang H, Zhang L, Zheng B H, *et al.* Role of organic acids in desorption of mercury from contaminated soils in eastern Shandong province, China[J]. Chinese Geographical Science, 2012, **22**(4): 414-421.
- [18] Smoolińska B, Król K. Leaching of mercury during phytoextraction assisted by EDTA, KI and citric acid[J]. Journal of Chemical Technology and Biotechnology, 2012, **87**(9): 1360-1365.
- [19] United States EPA-821-R-02-019, Method 1631: Mercury in water by oxidation, purge and trap, and cold vapor atomic fluorescence spectrometry[S].
- [20] 何天容, 冯新斌, 戴前进, 等. 萃取-乙基化结合 GC-CVAFS 法测定沉积物及土壤中的甲基汞[J]. 地球与环境, 2004, **32**(2): 83-86.
- [21] 鲁新宇, 刘建兰, 冯鸣. 物理化学[M]. 北京: 化学工业出版社, 2008. 218-224.
- [22] Fleming E J, Mack E E, Green P G, *et al.* Mercury methylation from unexpected sources: molybdate-inhibited freshwater sediments and an iron-reducing bacterium[J]. Applied and Environmental Microbiology, 2006, **72**(1): 457-464.
- [23] King J K, Kostka J E, Frischer M E, *et al.* A quantitative relationship that demonstrates mercury methylation rates in marine sediments are based on the community composition and activity of sulfate-reducing bacteria[J]. Environmental Science & Technology, 2001, **35**(12): 2491-2496.
- [24] Vonk J W, Sijpesteijn A K. Studies on the methylation of mercuric chloride by pure cultures of bacteria and fungi[J]. Antonie Van Leeuwenhoek, 1973, **39**(1): 505-513.
- [25] Hamdy M K, Noyes O R. Formation of methyl mercury by bacteria[J]. Applied and Environmental Microbiology, 1975, **30**(3): 424-432.
- [26] Xiang Y P, Du H X, Shen H, *et al.* Dynamics of total culturable bacteria and its relationship with methylmercury in the soils of the water level fluctuation zone of the Three Gorges Reservoir[J]. Chinese Science Bulletin, 2014, **59**(24): 2966-2972.
- [27] Davis A, Ruby M V, Bergstrom P D. Bioavailability of arsenic and lead in soils from the Butte, Montana, mining district[J]. Environmental Science & Technology, 1992, **26**(3): 461-468.
- [28] Davis A, Drexler J W, Ruby M V, *et al.* Micromineralogy of mine wastes in relation to lead bioavailability, Butte, Montana[J]. Environmental Science & Technology, 1993, **27**(7): 1415-1425.
- [29] Duquène L, Vandenhove H, Tack F, *et al.* Enhanced phytoextraction of uranium and selected heavy metals by Indian mustard and ryegrass using biodegradable soil amendments[J]. Science of the Total Environment, 2009, **407**(5): 1496-1505.
- [30] Wu Q T, Deng J C, Long X X, *et al.* Selection of appropriate organic additives for enhancing Zn and Cd phytoextraction by hyperaccumulators[J]. Journal of Environmental Sciences, 2006, **18**(6): 1113-1118.
- [31] 倪才英, 田光明, 骆永明, 等. 有机化合物和硝酸溶液对复合污染土壤中 Cu、Zn、Pb 释放的影响[J]. 土壤学报, 2004, **41**(2): 237-244.
- [32] 钱翌, 刘莹, 彭晓丽. 低分子有机酸对土壤中 Pb 形态的影响[J]. 水土保持学报, 2011, **25**(4): 261-264.
- [33] Ravichandran M. Interactions between mercury and dissolved organic matter—a review[J]. Chemosphere, 2004, **55**(3): 319-331.
- [34] Elliott H A, Shastri N L. Extractive decontamination of metal-polluted soils using oxalate[J]. Water, Air, and Soil Pollution, 1999, **110**(3-4): 335-346.
- [35] 胡红青, 刘华良, 贺纪正. 几种有机酸对恒电荷和可变电荷土壤吸附 Cu^{2+} 的影响[J]. 土壤学报, 2005, **42**(2): 232-237.
- [36] 邹嫣, 司友斌, 颜雪, 等. *Geobacter sulfurreducens* 对汞的甲基化及其影响因素研究[J]. 环境科学, 2012, **33**(9): 3247-3252.

CONTENTS

Characterization of Water-soluble Ions in PM _{2.5} of Beijing During 2014 APEC	YANG Dong-yan, LIU Bao-xian, ZHANG Da-wei, <i>et al.</i> (4325)
PM _{2.5} Background Concentration at Different Directions in Beijing in 2013	LI Yun-ting, CHENG Nian-liang, ZHANG Da-wei, <i>et al.</i> (4331)
Comparative Analysis on the Improvement of Air Quality in Beijing During APEC	LI Wen-tao, GAO Qing-xian, LIU Jun-rong, <i>et al.</i> (4340)
Weekend Effect in Distributions of Particulate Matters, Main Gas Pollutants and Aerosol Size in Spring of Jiaxing	SHEN Li-juan, WANG Hong-lei, LÜ Sheng, <i>et al.</i> (4348)
Influence of Burning Fireworks on Air Quality During the Spring Festival in the Pearl River Delta	ZHAO Wei, FAN Shao-jia, XIE Wen-zhang, <i>et al.</i> (4358)
Characteristic of Mercury Emissions and Mass Balance of the Typical Iron and Steel Industry	ZHANG Ya-hui, ZHANG Cheng, WANG Ding-yong, <i>et al.</i> (4366)
Magnetic Response of Dust-loaded Leaves in Parks of Shanghai to Atmospheric Heavy Metal Pollution	LIU Fei, CHU Hui-min, ZHENG Xiang-min (4374)
Characteristics and Resources of Fly Ash Particles in the Snowpack of Jinpo Mountain, Chongqing	YU Zheng-liang, YANG Ping-heng, JING Wei-li, <i>et al.</i> (4381)
Removal of Mixed Waste Gases by a Biotrickling Filter Packed with a Novel Combined Packing Material	MEI Yu, CHENG Zhuo-wei, WANG Jia-de, <i>et al.</i> (4389)
Low-Concentration CO ₂ Adsorption on Polyaniline/Zelite Y Composites	LIU Feng-ling, LU Xia, ZHANG Hui, <i>et al.</i> (4396)
Chemical Characteristics of Atmospheric Wet Deposition in Winter and Its Forestry Canopy Interception Mechanism in Red Soil Hilly Area	HAO Zhuo, GAO Yang, ZHANG Jin-zhong, <i>et al.</i> (4403)
Dynamic Characteristics of Base Cations During Wet Deposition in Evergreen Broad-leaf Forest Ecosystem	AN Si-wei, SUN Tao, MA Ming, <i>et al.</i> (4414)
Estimation of Diffuse Attenuation Coefficient of Photosynthetically Active Radiation in Xin'anjiang Reservoir Based on Landsat 8 Data	ZHANG Yi-bo, ZHANG Yun-lin, ZHA Yong, <i>et al.</i> (4420)
Spatial Distribution of Stable Isotopes in Particle Organic Matters and Sediments from Baishi Reservoirs	GUO Kai, ZHAO Wen, WANG Shan, <i>et al.</i> (4430)
Response of Phytoplankton Functional Groups to Eutrophication in Summer at Xiaoguan Reservoir	LI Lei, LI Qiu-hua, JIAO Shu-lin, <i>et al.</i> (4436)
Environmental Effect of Substrate Amelioration on Lake; Effects on <i>Phragmites communis</i> Growth and Photosynthetic Fluorescence Characteristics	YU Ju-hua, ZHONG Ji-cheng, FAN Cheng-xin, <i>et al.</i> (4444)
Variation Characteristics of Cave Water Hydrogeochemistry in Naduo Cave of Guizhou and Its Implications for Environment Research	SHEN Wei, WANG Jian-li, WANG Jia-lu, <i>et al.</i> (4455)
Response Mechanism of Trace Metals in the Bishuiyan Subterranean River to the Rainfall and Their Source Analysis	ZOU Yan-e, JIANG Ping-ping, ZHANG Qiang, <i>et al.</i> (4464)
Residue Concentration and Distribution Characteristics of Perfluorinated Compounds in Surface Water from Qiantang River in Hangzhou Section	ZHANG Ming, TANG Fang-liang, YU Ya-yun, <i>et al.</i> (4471)
Pollution Characteristics and Risk Assessment of Polybrominated Diphenyl Ethers in the Surface Sediments from Middle Reaches of the Yangtze River	TIAN Qi-chang, TANG Hong-bo, XIA Dan, <i>et al.</i> (4479)
Pollution Characteristics and Potential Ecological Risk of Heavy Metals in Urban Surface Water Sediments from Yongkang	QI Peng, YU Shu-quan, ZHANG Chao, <i>et al.</i> (4486)
Effects of Citric Acid on Activation and Methylation of Mercury in the Soils of Water-Level-Fluctuating Zone of the Three Gorges Reservoir	QIN Cai-qing, LIANG Li, YOU Rui, <i>et al.</i> (4494)
Impacts of Microorganisms on Degradation and Release Characteristics of Organic Phosphorus in Lake Sediments During Freezing Season	ZUO Le, LÜ Chang-wei, HE Jiang, <i>et al.</i> (4501)
Sedimentary Phosphorus Forms Under Disturbances and Algae in Taihu Lake	CHEN Jun, LI Da-peng, ZHU Pei-ying, <i>et al.</i> (4509)
Interception Effect of Vegetated Drainage Ditch on Nitrogen and Phosphorus from Drainage Ditches	ZHANG Shu-nan, XIAO Run-lin, LIU Feng, <i>et al.</i> (4516)
Removal of Phosphate by Calcite in Open-System	LI Zhen-xuan, DIAO Jia-yong, HUANG Li-dong, <i>et al.</i> (4523)
Adsorption of Cu on Core-shell Structured Magnetic Particles: Relationship Between Adsorption Performance and Surface Properties	LI Qiu-mei, CHEN Jing, LI Hai-ning, <i>et al.</i> (4531)
Shortcut Nitrosation-Denitrifying Phosphorus Removal Based on High-quality Carbon Source in Combined Process of CAMBR	CHENG Ji-hui, WU Peng, CHENG Chao-yang, <i>et al.</i> (4539)
Simultaneous Biotransformation of Ammonium and Nitrate via Zero-Valent Iron on Anaerobic Conditions	ZHOU Jian, HUANG Yong, YUAN Yi, <i>et al.</i> (4546)
Health Risk Assessment of Drinking Water Quality in Tianjin Based on GIS	FU Gang, ZENG Qiang, ZHAO Liang, <i>et al.</i> (4553)
Endotoxin Contamination and Correlation with Other Water Quality Parameters of Groundwater from Self-Contained Wells in Beijing	ZHANG Can, LIU Wen-jun, AO Lu, <i>et al.</i> (4561)
Internal Exposure Levels of PAHs of Primary School Students in Guangzhou	SU Hui, ZHAO Bo, ZHANG Su-kun, <i>et al.</i> (4567)
Construction of Three-Dimensional Isobologram for Ternary Pollutant Mixtures	LIU Xue, LIU Shu-shen, LIU Hai-ling (4574)
Aging Law of PAHs in Contaminated Soil and Their Enrichment in Earthworms Characterized by Chemical Extraction Techniques	ZHANG Ya-nan, YANG Xing-lun, BIAN Yong-rong, <i>et al.</i> (4582)
Spatial Heterogeneity of Soil Respiration in a Larch Plantation of North China at Different Sampling Scales	YAN Jun-xia, LIANG Ya-nan, LI Hong-jian, <i>et al.</i> (4591)
Mapping Critical Loads of Heavy Metals for Soil Based on Different Environmental Effects	SHI Ya-xing, WU Shao-hua, ZHOU Sheng-lu, <i>et al.</i> (4600)
Stabilization Treatment of Pb and Zn in Contaminated Soils and Mechanism Studies	XIE Wei-qiang, LI Xiao-ming, CHEN Can, <i>et al.</i> (4609)
Effects of ZnO Nanoparticles, ZnSO ₄ and Arbuscular Mycorrhizal Fungus on the Growth of Maize	LI Shuai, LIU Xue-qin, WANG Fa-yuan, <i>et al.</i> (4615)
Occurrence Characteristics of Pyrene and Arsenate and Their Interaction in <i>Pteris vittata</i> L.	ZHANG Yu-xiu, MA Xu, LIAO Xiao-yong, <i>et al.</i> (4623)
Effect of Nano Zeolite on Chemical Fractions of Cd in Soil and Its Uptake by Cabbage	XIONG Shi-juan, XU Wei-hong, XIE Wen-wen, <i>et al.</i> (4630)
Effect of Ryegrass and Arbuscular Mycorrhizal on Cd Absorption by Varieties of Tomatoes and Cadmium Forms in Soil	CHEN Yong-qin, JIANG Ling, XU Wei-hong, <i>et al.</i> (4642)
Degradation of Steroidal Hormones by Salt-tolerant <i>Altererythrobacter</i> Strain MH-B5; Degradation Characteristics, Metabolites and Its Immobilization	MA Cong, QIN Dan, SUN Qian, <i>et al.</i> (4651)
Distribution and Diversity of Ammonium-oxidizing Archaea and Ammonium-oxidizing Bacteria in Surface Sediments of Oujiang River	LI Hu, HUANG Fu-yi, SU Jian-qiang, <i>et al.</i> (4659)
Effects of Different Altitudes on Soil Microbial PLFA and Enzyme Activity in Two Kinds of Forests	ZENG Qing-ping, HE Bing-hui, MAO Qiao-zhi, <i>et al.</i> (4667)
Effects of Cultivation Soil Properties on the Transport of Genetically Engineered Microorganism in Huabei Plain	ZHANG Jing, LIU Ping, LIU Chun, <i>et al.</i> (4676)
Assessment of Emission and Co-Reduction of PCDD/Fs and PCNs in the Secondary Copper Production Sector	TIAN Ya-jing, JIANG Chen, WU Guang-long, <i>et al.</i> (4682)

《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 刘 毅 汤鸿霄 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)

2015年12月15日 第36卷 第12期(卷终)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

(Monthly Started in 1976)

Vol. 36 No. 12 Dec. 15, 2015

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: 120.00 元

国外发行代号: M 205

国 内 外 公 开 发 行