

胡敏素在土壤重金属污染修复中的研究进展

王 平, 门姝慧, 黄占斌

(中国矿业大学(北京)化学与环境工程学院, 北京 100083)

摘 要: 研发功能性明显、安全和经济实用的环境材料是修复土壤重金属污染研究领域的一个重要方向。胡敏素是土壤有机质的重要组成部分, 具有分子量大和不溶于酸碱溶液等特征, 对土壤重金属的转化、迁移等方面起到关键性作用。对胡敏素来源、性质和修复土壤重金属污染的机制进行总结分析。提出胡敏素对土壤重金属污染的修复机理主要包括离子交换、静电吸附、物理吸附、络合反应和化学沉淀; 结合胡敏素资源利用面临的问题, 提出胡敏素改性是其重要的发展方向。通过实验证明, 通过物理和化学方法改性后, 胡敏素对重金属元素吸附钝化效果更突出。加强改性胡敏素在农田土壤重金属钝化效应和土壤改良等方面的规模试验, 是其未来真正应用于重金属土壤污染修复需要开展的重要工作。

关键词: 胡敏素; 改性; 土壤修复; 重金属; 作用机制

中图分类号: X53 **文献标识码:** A **文章编号:** 1674-3962(2021)02-0147-05

Research Advances in Heavy Metal Contaminated Soil Remediation by Humic

WANG Ping, MEN Shuhui, HUANG Zhanbin

(School of Chemical and Environmental Engineering, China University of Mining and Technology-Beijing, Beijing 100083, China)

Abstract: The research and development of functional, safe and economical environmental materials are an important research direction for soil remediation of heavy metal pollution. As an important component of soil organic matter, humic (HM) possesses the properties of large molecular weight and insolubility, and plays an important role in the transformation and migration of heavy metals in soil. This paper summarizes and analyzes the sources, properties and remediation mechanism of humic. The remediation mechanism of soil heavy metal pollution by humic mainly includes ion exchange, electrostatic adsorption, physical adsorption, complexation and chemical precipitation. Combining with the problems in the resources utilization of humic resources, we put forward the idea that the modification of humic is a major research direction. The results showed that the adsorption and passivation effect of humic is more prominent after physical and chemical modification. Strengthening the farmland soil experiments of humic remediation for heavy metal contamination is the inevitable course to the humic application in heavy metal contaminated soil remediation.

Key words: humic; modification; soil remediation; heavy metal; mechanism

1 土壤重金属污染及其修复技术

近年来, 随着工农业的快速发展, 我国土壤重金属污染问题日渐突出。通过大量施肥、灌溉、大气沉降等途径, 重金属进入土壤并造成污染^[1]。2014 年国家公布的《全国土壤污染状况调查公报》表明, 我国土壤污染总

点位超标率为 16.1%, 其中耕地最高达 19.4%, 重金属 Cd 点位超标率达 7%。据报道, 我国 24 个省市约有 320 个重点污染区, 这些区域重金属 Cd, Cu, Pb, Hg 及其复合含量超标的农产品占 80% 以上。我国每年因重金属污染导致粮食减产约 1000 万吨, 经济损失达 200 亿元。这些污染物在环境中累积, 通过食物链传递, 对人类健康构成潜在威胁。

针对土壤重金属污染问题, 2016 年 5 月国务院发布《土壤污染防治行动计划》(国发[2016]31 号, 也称为“土十条”), 2019 年 1 月 1 日全国实施《土壤污染防治法》。随着我国社会经济的发展和生态文明建设, 土壤重金属污染治理工程和应用势在必行。

收稿日期: 2020-02-24 修回日期: 2020-05-22

基金项目: 国家科技支撑计划课题(2015BAD05B03)

第一作者: 王 平, 女, 1991 年生, 博士研究生

通讯作者: 黄占斌, 男, 1961 年生, 教授, 博士生导师,

Email: 108742@cumt.edu.cn

DOI: 10.7502/j.issn.1674-3962.202002010

土壤重金属污染治理途径主要有两种：一是削减土壤重金属总量；二是削减有效态重金属含量，降低重金属环境迁移性及其生物有效性。主要技术包括物理、化学、生物等技术^[2]。重金属污染农田治理主要用化学钝化稳定化、生物修复和农艺技术，其中，化学钝化稳定化技术应用和发展较快。重金属钝化稳定化技术是向污染土壤添加钝化剂，通过对重金属的吸附、离子交换、有机络合、氧化还原、拮抗或沉淀作用，改变其在土壤中的赋存形态，使其固化或钝化，减少向土壤深层和地下水迁移，并降低其生物有效性。

环境功能材料(envir-functional materials)是近年农田环境治理与研究中发展较快的新理念^[3]，环境功能材料有 3 个主要特征：一是功能性，即材料所具有的使用性能或先进性，材料的功能越多，其价值也就越高；二是环境协调性(环保性)，即材料不能产生二次污染；三是舒适性(经济性)，即材料物美价廉。因此，研发具有功能性明显、安全且经济实用的环境功能材料，是重金属钝化剂研发的重要方向，而胡敏素(humin, HM)是近年来发展较快的环境功能材料之一。

2 胡敏素来源与性质

2.1 胡敏素来源

腐殖质是有机质中重要的组成部分，是一类天然的高分子有机化合物，可来源于土壤、沉积物和水体等，其中土壤和沉积物中腐殖质约占 60%~80%^[4]。腐殖质具有修复水体重金属污染^[5-7]、钝化土壤重金属^[8,9]、提高土壤肥力^[10]、刺激植物生长^[11,12]、提高作物产量^[13]等作用。根据分离特性的不同分为 3 类：富里酸、胡敏酸和胡敏素。其中富里酸(fulvic acids, FA)聚合程度和分子量相对较低，可以溶于碱性溶液和酸性溶液；胡敏酸(humic acids, HA)聚合程度和分子量相对居中，可溶于碱性溶液但不溶于酸性溶液；胡敏素(humin)聚合程度最高，它既不溶于碱性溶液也不溶于酸性溶液。

近年来，腐殖质(胡敏酸和富里酸)作为肥料添加剂和环境材料等得到企业和专家的重视，国内研究也多集中在胡敏酸和富里酸的应用方面^[12,14]，而针对胡敏素的研究相对较少。在腐植酸工业生产中，在风化煤、褐煤中提取富里酸和胡敏酸时，会产生大量腐植酸废渣，主要成分是黑腐酸(胡敏素)，其多被废弃。据 2005 年调查，我国仅褐煤年开采量 5000 万吨，其中内蒙古最多，褐煤年产量占全国 1/2^[15]。如果 30% 即 1500 万吨用于提取富里酸和胡敏酸，则每年将有 1200 万吨黑腐酸(胡敏素)废渣。这些废渣因生产工艺采用碱法、酸法等而偏酸(pH 在 4~5)或偏碱(pH 在 9~10)，许多腐植酸生产企业将废渣自行处理或乱排而被罚款，有些则将这些废渣

直接填埋，不仅造成资源极大浪费，而且对环境构成潜在危害。因此，如何将矿源胡敏素废渣转化为一种资源，应用于重金属修复，以及对矿源胡敏素废渣进行改性，提高其对重金属的吸附性能，成为目前开发矿源胡敏素废渣资源的关键因素。

目前胡敏素的提取和纯化方法是^[16]：首先将样品(泥炭、土壤和原煤等)研磨成粉末，依次加入蒸馏水和稀盐酸去除水浮物和碳酸盐，然后加入 NaOH 溶液连续提取，直到上层液颜色变淡，抽滤得到碱不溶物，经 HCl-HF 混合溶液进行纯化后，用蒸馏水洗涤直到溶液中无 Cl^{-1} ，最后将纯化后的样品冻干研磨过筛即得胡敏素。

2.2 胡敏素的性质

胡敏素是腐植酸中一类大分子有机化合物，分子量大、难降解，约占总有机碳的 50%。由于本身的非溶解性，使得其在土壤重金属污染物累积、转化、迁移以及生物有效性方面起关键性作用。通过红外光谱(FTIR)、元素分析仪和 X 射线光电子能谱(XPS)等方法分析，发现胡敏素主要由 C, H, O, N, S 等元素组成，其结构单元主要由芳核、桥键和活性基团组成(图 1)。芳核多由芳环或杂环组成，如苯、蒽、蒽醌、吡咯、呋喃、噻吩、吡啶等；桥键主要是—O—、— CH_2 —、—N=、—NH—、—S—，和其它基团桥接；活性基团主要包括羧基、羟基、氨基、醇羟基、酚羟基、甲氧基、酮、醛、醚等 20 多种，形成胡敏素多样功能性表面^[17]。这些官能团使得胡敏素具有亲水性、螯合络合、阳离子交换能力(cation exchange capacity, ECE)以及对酸碱的缓冲能力。

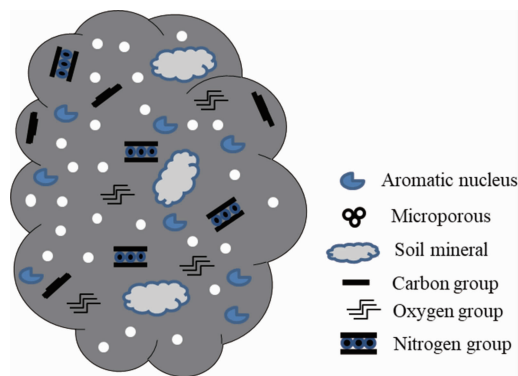


图 1 胡敏素结构

Fig. 1 The structure of humin

3 胡敏素修复土壤重金属污染的作用机制

腐植酸是土壤腐殖质的主要活性成分，有着复杂的化学结构，含有多种活性官能团(羟基、羧基、酚羟基、醇羟基、醚基和羰基等)，能与土壤中的重金属离子发生吸附、螯合络合和氧化还原等作用，对重金属的修复起

着重要作用^[8, 18, 19]。研究证明, 腐植酸的羧基、羰基和酚羟基等与 Pb^{2+} 通过离子键和配位键发生螯合络合反应, 产生沉淀^[20]。研究表明, 腐植酸对重金属的吸附能力主要是依靠于酸性官能团, 尤其是羧基^[21]。胡敏酸和胡敏素的分子结构相似, 属于同一类型的腐植酸, 通过对腐植酸改性能够增加羧基、酚羟基等活性官能团的含量, 增强与重金属的结合能力, 从而达到修复土壤重金属污染的目的^[7, 22, 23] (图2)。

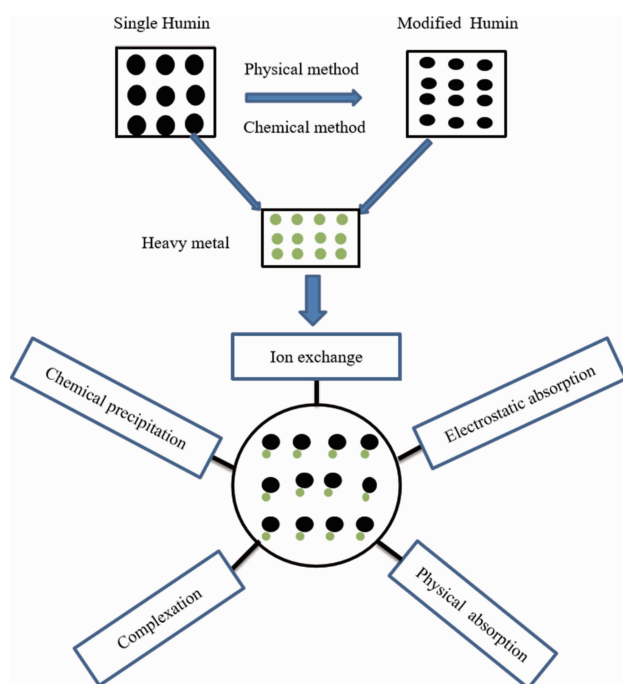


图2 胡敏素对土壤重金属吸附机理示意图

Fig.2 Schematic of adsorption mechanism for heavy metals in soil by humin

白玲玉等^[24]证实, 腐植酸分子量与重金属离子络合稳定常数有关。与分子量较小的富里酸相比, 胡敏素更有利于重金属钝化。姚爱军等^[25]证明, 腐植酸各组分对汞吸附量和络合稳定性有差异, 其中黄腐酸络合容量最高, 但络合强度最低; 胡敏素则相反, 具有较高络合强度, 与重金属汞结合, 使其活性和生物有效性均降低。在胡敏素吸附铜离子前后的 FTIR 谱图中发现, 3286, 1713, 1517 和 1237 cm^{-1} 处的吸收峰强度明显降低, 且有峰位偏移的现象, 说明胡敏素表面的羟基和羧基参与了重金属铜离子的吸附反应^[26]。

对胡敏素进行改性能够提高其对重金属的吸附能力。常用的改性方法主要有化学方法和物理方法。化学方法如巯基化、钙化和铁离子等改性, 通过改性使含硫基团、钙离子和铁离子键合在胡敏素物质表面, 从而增加胡敏素中含硫基团、钙和铁的质量分数, 最终通过离子交换、

静电结合和共价结合的方式达到特异性吸附重金属的目的。物理方法如超声等, 通过增加胡敏素的比表面积, 提供更多的活性位点, 增强对重金属的吸附能力。

4 胡敏素对重金属污染土壤的修复效果

近年来, 关于腐植酸对土壤重金属钝化和降低生物有效性的报道增多。章明奎等^[27]认为, 土壤有机质含量与重金属富集呈正相关, 表土层 40% 以上重金属以有机结合态存在。焦文涛等^[28]发现, 随土壤腐植酸含量减少 (乌栅土 > 黄泥土 > 红壤), Cd 吸附量相应降低, 但解吸率却依次增加 (分别为 19%、42%、50%)。陆中桂等^[29]研究证实, 风化煤氨化腐植酸对 Pb、Cd 的吸附为物理吸附和化学吸附复合过程。蒋煜峰等^[30]的研究表明, 在污染土壤中添加腐植酸可使可溶态重金属离子急减 60%~80%, 氧化物结合态、碳酸盐结合态及有机结合态增加, 降低重金属在土壤中的活性和生物可利用性。因此, 腐殖质作为重金属钝化剂具有较大潜力。

相关研究表明, 不同来源的胡敏素对土壤重金属的修复效果不同, 这与胡敏素的结构和不溶性有关。孙海洋从沉积物中提取了不同组分的胡敏素, 其在元素组成、结构特征等方面存在差异, 导致对重金属 Cu 的吸附能力不同^[31]。而胡敏素本身具有非均质性, 从我国东北黑土中提取的胡敏素具有较高的纤维素含量, 但是其结构又不同于其他纤维素含量高的腐殖质^[17]。Wang 等^[9]从荷兰泥炭中提取胡敏素, 结果表明胡敏素对 Pb 的吸附能力大于 Cd 和 Cu, 能够应用于农田土壤重金属修复。

目前, 对胡敏素的研究集中于吸附解析试验和室内培养试验, 且胡敏素的用量为 0%~10% 不等, 具体施用量还需根据胡敏素的类型、土壤污染程度和重金属污染类型进行确定。但胡敏素 (主要含有碳) 的施用量不能太高, 否则会影响土壤碳氮比, 导致土壤碳氮比失衡。相关研究表明, 土壤碳氮比能够反映土壤有机质组成和养分有效性的关系, 中国土壤的碳氮比平均值在 10:1~12:1^[32], 因此过量施用胡敏素对土壤环境条件造成不利影响。有关胡敏素应用于田间试验修复土壤重金属的报道还未见到。因此还需开展大规模的试验示范, 验证胡敏素能够作为一种重金属钝化材料应用于农田修复, 并明确胡敏素的施用量。

4.1 未改性胡敏素对重金属污染土壤的修复

关于胡敏素吸附重金属的研究起步较晚。2008 年, 张晋京等^[33]研究了土壤粗胡敏素对 Cu^{2+} 的吸附作用及其影响因素, 随着温度和 pH 的升高, 土壤粗胡敏素对 Cu^{2+} 的吸附量增加。Zhang 等^[16]从吉林省黑土中提取胡敏素, 研究结果表明胡敏素对 Cu^{2+} 有吸附能力。Wang

等^[9]从东北地区黑土中提取胡敏素,研究指出,其表面的苯酚和羟基等官能团是还原 Cr(VI)的主要电子供体,能够抑制电解质离子,达到钝化重金属的目的。王雅辉等^[34]发现,一定条件下胡敏素对水中 Cu^{2+} 有较强的吸附作用。燕爱春等^[26]的研究表明,随着 pH 值、温度、接触时间增加,土壤胡敏素对 Cu^{2+} 吸附量也随之增加。Shi 等^[8]研究证明,从泥炭中提取的胡敏素含有大量活性官能团,能够降低重金属的生物有效性和迁移性,达到原位钝化的目的。李丽明等^[35]的研究表明,胡敏素可显著降低重金属浸出浓度。在土壤中添加 2% 胡敏素,5 d 后重金属 Cu、Pb 浸出浓度分别下降 45.16% 和 56.97%,30 d 后土壤中交换态 Cu、Pb 所占比例分别由原来 15.68% 和 15.79% 下降到 0.48% 和 1.22%,而有机态 Cu、Pb 比例则分别由 5.35% 和 10.93% 上升到 13.24% 和 27.32%,表明胡敏素可促进可交换态重金属向有机态和残渣态转化。

4.2 改性胡敏素对重金属污染土壤的修复

胡敏素能够应用于重金属吸附,但是由于其对重金属的吸附量低,需通过物理、化学和生物等方法进行改性,以提高其对重金属的吸附能力。研究表明,对胡敏素进行巯基化改性,室温下改性材料对 Cd 饱和吸附量为 8.908 mg/g,较胡敏素对 Cd 理论饱和吸附量 6.534 mg/g 高 36.3%,表明在胡敏素表面增加巯基数量可显著提高其对 Cd 的吸附能力^[36]。王燕诗等^[37]从海南的富硒土壤中提取胡敏素,利用 $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ 制备胡敏素-赤铁矿复合物作为钝化剂,修复重金属 Cd 污染,结果表明,改性胡敏素对富硒土壤中 Cd 具有较强的吸附能力,能够降低土壤有效态 Cd 高达 27.75%。陈玉萍等^[38]研究证明,胡敏素和磷酸盐配合施用,能够降低土壤中 Cu 的迁移性,达到钝化的目的。他们通过吸附试验研究表明,未改性胡敏素和钙化改性胡敏素对 Cd^{2+} 的最大吸附量分别为 15.29 和 41.84 $\text{mg} \cdot \text{g}^{-1}$,表明通过改性能明显提高对重金属的吸附能力。

5 结 语

(1)在腐植酸工业生产过程中产生胡敏素废渣,这些废渣随意堆放,不仅造成资源的浪费,而且对环境构成潜在危害。若对胡敏素关于重金属的钝化效应及其机理进行充分研究,筛选吸附性强的胡敏素作为钝化稳定化新材料,则能解决废渣的环保问题和再利用问题。

(2)不同地区、不同组分的胡敏素对土壤重金属污染的修复效果不同,选择适合土壤条件和重金属污染类型的胡敏素尤为重要。未来应针对某一地区的特征以及污染类型,研发绿色高效的胡敏素产品。

(3)胡敏素改性后具有高效修复重金属污染的潜力,研究表明胡敏素改性后对重金属的吸附钝化能力提升明显。但胡敏素的性质千差万别,目前对胡敏素与目标重金属的相互作用机理的研究相对较少,应加强深入系统研究。

参考文献 References

- [1] CHI T, ZUO J, LIU F. *Frontiers of Environmental Science & Engineering*[J], 2017, 11(2): 157-164.
- [2] 郝汉舟, 陈同斌, 靳孟贵, 等. *应用生态学报*[J], 2011, 22(3): 816-824.
HAO H Z, CHEN T B, JIN M G, *et al.* *Chinese Journal of Applied Ecology*[J], 2011, 22(3): 816-824.
- [3] 李嘉竹, 黄占斌, 陈威, 等. *水土保持学报*[J], 2012, 26(1): 232-236.
LI J Z, HUANG Z B, CHEN W, *et al.* *Journal of Soil and Water Conservation*[J], 2012, 26(1): 232-236.
- [4] LIPCZYNSKA-KOCHANY E. *Chemosphere* [J], 2018, 202: 420-437.
- [5] ANIRUDHAN T S, SUCHITHRA P S. *Chemical Engineering Journal* [J], 2010, 156(1): 146-156.
- [6] ANIRUDHAN T S, SUCHITHRA P S. *Journal of Industrial and Engineering Chemistry*[J], 2010, 16(1): 130-139.
- [7] GUO Z, ZHANG J, KANG Y, *et al.* *Ecotoxicology and Environmental Safety*[J], 2017, 145: 442-448.
- [8] SHI W, LÜ C, HE J, *et al.* *Ecotoxicology and Environmental Safety* [J], 2018, 154: 59-68.
- [9] WANG Y, LI L, ZOU X, *et al.* *Soil & Sediment Contamination*[J], 2016, 25(6): 700-715.
- [10] SUGIER D, KOŁODZIEJ B, BIELIŃSKA E. *Journal of Geochemical Exploration*[J], 2013, 129: 76-81.
- [11] NARDI S, PIZZEGHELLO D, MUSCOLO A, *et al.* *Soil Biology and Biochemistry*[J], 2002, 34(11): 1527-1536.
- [12] CANELLAS L P, OLIVARES F L, AGUIAR N O, *et al.* *Scientia Horticulturae*[J], 2015, 196: 15-27.
- [13] DIN I U. *Pure and Applied Biology*[J], 2018, 7(2): 590-594.
- [14] 王平, 付战勇, 李絮花, 等. *中国土壤与肥料*[J], 2018(4): 28-33.
WANG P, FU Z Y, LI X H, *et al.* *Soil and Fertilizer Sciences in China*[J], 2018(4): 28-33.
- [15] 尹立群. *煤炭科学技术*[J], 2004, 32(8): 12-14.
YIN L Q. *Coal Science and Technology*[J], 2004, 32(8): 12-14.
- [16] ZHANG J, WANG S, WANG Q, *et al.* *Environmental Chemistry Letters*[J], 2013, 11(1): 41-46.
- [17] ZHANG J, YIN H, WANG H, *et al.* *Environmental Science and Pollution Research*[J], 2018, 25(17): 16913-16921.
- [18] YIP T C M, YAN D Y S, YUI M M T, *et al.* *Chemosphere*[J], 2010, 80(4): 416-421.

- [19] CHEN W, HABIBUL N, LIU X, *et al.* Environmental Science & Technology [J], 2015, 49(4): 2052–2058.
- [20] 陈盈, 张满利, 关连珠, 等. 中国农学通报[J], 2010, 26(12): 67–69.
CHEN Y, ZHANG M L, GUAN L Z, *et al.* Chinese Agricultural Science Bulletin[J], 2010, 26(12): 67–69.
- [21] YANG K, MIAO G, WU W, *et al.* Chemosphere[J], 2015, 138: 657–663.
- [22] ZHANG J, YIN H, WANG H, *et al.* Science of the Total Environment[J], 2019, 651: 2975–2984.
- [23] YANG T, HODSON M E. Science of The Total Environment[J], 2018, 635: 1036–1046.
- [24] 白玲玉, 陈世宝, 华璐, 等. 核农学报[J], 2000, 14(1): 44–48.
BAI L Y, CHEN S B, HUA L, *et al.* Journal of Nuclear Agricultural Sciences[J], 2000, 14(1): 44–48.
- [25] 姚爱军, 青长乐, 牟树森. 中国生态农业学报[J], 2006, 14(3): 138–140.
YAO A J, QING C L, MOU S S. Chinese Journal of Eco-Agriculture [J], 2006, 14(3): 138–140.
- [26] 燕爱春, 谢修鸿, 范春莹, 等. 环境科学学报[J], 2018, 38(12): 4779–4788.
YAN A C, XIE X H, FAN C Y, *et al.* Acta Scientiae Circumstantiae [J], 2018, 38(12): 4779–4788.
- [27] 章明奎, 方利平, 周翠. 生态环境[J], 2005, 14(5): 650–653.
ZHANG M K, FANG L P, ZHOU C. Ecology and Environmental Sciences[J], 2005, 14(5): 650–653.
- [28] 焦文涛, 蒋新, 余贵芬, 等. 环境化学[J], 2005, 24(5): 545–549.
JIAO W T, JIANG X, YU G F, *et al.* Environmental Chemistry[J], 2005, 24(5): 545–549.
- [29] 陆中桂, 黄占斌, 李昂, 等. 环境科学学报[J], 2018, 38(9): 3721–3729.
LU Z G, HUANG Z B, LI A, *et al.* Acta Scientiae Circumstantiae [J], 2018, 38(9): 3721–3729.
- [30] 蒋煜峰, 袁建梅, 卢子扬, 等. 西北师范大学学报(自然科学版)[J], 2005, 41(6): 48–52.
JIANG Y F, YUAN J M, LU Z Y, *et al.* Journal of Northwest Normal University(Natural Science)[J], 2005, 41(6): 48–52.
- [31] 孙海洋. 乌梁素海沉积物中不同组分胡敏素对铜作用机制研究[D]. 呼和浩特: 内蒙古大学, 2018.
SUN H Y. Binding Characteristics of Copper to Natural Humic Fractions Sequentially Extracted from the Lake Wuliangsu Hai Sediments [D]. Huhehaote: Inner Mongolia University, 2018.
- [32] 王绍强, 于贵瑞. 生态学报[J], 2008, 28(8): 3937–3947.
WANG S Q, YU G R. Acta Ecologica Sinica[J], 2008, 28(8): 3937–3947.
- [33] 张晋京, 王帅, 窦森, 等. 环境科学学报[J], 2008, 128(12): 2527–2533.
ZHANG J J, WANG S, DOU S, *et al.* Acta Scientiae Circumstantiae [J], 2008, 128(12): 2527–2533.
- [34] 王雅辉, 吕文英, 邹雪刚, 等. 环境科学学报[J], 2017, 37(2): 624–632.
WANG Y H, LV W Y, ZOU X G, *et al.* Acta Scientiae Circumstantiae[J], 2017, 37(2): 624–632.
- [35] 李丽明, 丁玲, 姚琨, 等. 环境工程学报[J], 2016, 10(6): 3275–3280.
LI L M, DING L, YAO K, *et al.* Chinese Journal of Environmental Engineering[J], 2016, 10(6): 3275–3280.
- [36] 李丽明. 改性胡敏素钝化修复重金属污染土壤的研究[D]. 广州: 广东工业大学, 2015.
LI L M. Effect of Immobilization of Heavy Metal Contaminated Soil Using Modified Humic [D]. Guangzhou: Guangdong University of Technology, 2015.
- [37] 王燕诗, 李小峰, 王征, 等. 环境工程学报[J], 2020, 14(2): 480–489.
WANG Y S, LI X F, WANG Z, *et al.* Chinese Journal of Environmental Engineering[J], 2020, 14(2): 480–489.
- [38] 陈玉萍, 王雅辉, 杨子鹏, 等. 环境化学[J], 2019, 38(8): 1793–1800.
CHEN Y P, WANG Y H, YANG Z P, *et al.* Environmental Chemistry[J], 2019, 38(8): 1793–1800.

(编辑 惠琼)