

电子废弃物拆解区周边农田土壤重金属污染及生态风险

任露陆, 曹美苑, 王固宁, 蔡云梅 (广东环境保护工程职业学院, 广东佛山 528216)

摘要 采集了典型的电子废弃物拆解区周边农田土壤, 分析了 6 种重金属元素(As、Cd、Cu、Hg、Pb、Zn)的含量, 计算了污染指数、富集因子和潜在生态风险指数, 用于评价研究区域生态系统风险。结果表明: 研究区域土壤中的 Cd、Pb、Cu、Zn 含量显著增加, 均超出农用地土壤污染风险筛选值标准, 超标率分别为 Cd 100%、Pb 100%、Cu 91.3% 和 Zn 26.1%; 富集因子值进一步表明, Cd、Cu、Zn、Hg 是该区域富集最明显的金属, 这可能与电子垃圾活动有关; Cu、Pb、Zn 这 3 种重金属极显著相关($P < 0.01$), 可能具有相同的来源, Cd、Hg、As 与其他元素的相关系数较小, 可能有电子废物之外的来源; 6 种重金属综合潜在生态风险指数显示, 该区域属于潜在生态风险很强的区域, 其中 Cd 和 Hg 对生态危害贡献率达到 85.54%。

关键词 电子废物; 农田土壤; 重金属; 污染; 生态风险

中图分类号 X 825

文献标识码 A

文章编号 0517-6611(2020)10-0050-04

doi: 10.3969/j.issn.0517-6611.2020.10.014



开放科学(资源服务)标识码(OSID):

Heavy Metal Contamination and Ecological Risks in the Farmland Soils around the E-waste Disassembling Site

REN Lu-lu, CAO Mei-yuan, WANG Gu-ning et al (Guangdong Vocational College of Environmental Protection Engineering, Foshan, Guangdong 528216)

Abstract In this study, soil samples collection was conducted in farmland around a typical disassembling site, and the concentrations of six heavy metals (As, Cd, Cu, Hg, Pb, and Zn) were analyzed, calculated the pollution index, enrichment factor and potential ecological risk index, and used them to evaluate the ecological system risk. The results showed that the mean concentrations of Cd, Pb, Cu, and Zn were significantly higher than their standard values of risk screening values in agricultural land, the excess portion was 100% for Cd, 100% for Pb, 91.3% for Cu, and 26.1% for Zn; the values of enrichment factors further demonstrated that Cd, Cu, Zn and Hg were the most significantly enriched metals in the study area, which might be associated with e-waste activities; Cu, Pb, and Zn in soils may originated from the same source for their highly significant correlation ($P < 0.01$) while Cd, Hg, and As may differ from different sources; the potential ecological risk of 6 heavy metals indicated that this region with much higher potential ecological risks, and the contribution rate of Cd and Hg to ecological risk reaches 85.54%.

Key words E-waste; Farmland soil; Heavy metal; Contamination; Ecological risk

长期以来, 由于我国的劳动力低廉和相关环保制度不健全, 全世界约有 70% 的电子废物在中国完成了从拆解到最终处置的过程, 并且形成了包括广东清远的龙塘石角、汕头贵屿以及浙江台州在内的聚集基地^[1]。重金属由于具有特殊性能而被广泛地用于电子产品的生产, 不规范的拆解行为加剧了重金属的释放, 每年电子拆解过程排放的 Cu 达到 5 000 t^[2]。前人的许多研究报道已表明, 电子拆解成为了拆解区域土壤重金属污染的重要来源, 并且呈现出 Cd、Cu、Pb 和 Zn 等多金属复合污染^[3-6], 在土壤-作物体系内, 金属间因存在拮抗或协同效应, 多金属在作物体内的迁移通常比单金属更复杂^[3]。在此背景下, 以电子废弃物拆解区污染农田为研究对象, 开展多种重金属污染特征与生态风险研究, 对于重金属复合污染农田的安全利用具有重要意义。

1 材料与方法

1.1 研究区概况 龙塘镇地处广东省清远市清城区中部、北江的中下游, 属珠江三角洲冲积平原的北端, 西临北江, 北与清城市区接壤, 南毗广州市花都区, 距广州市中心 60 km², 总面积 153 km²。该地的废旧拆解行业有 30 年发展历史, 是我国最大的电子拆解基地之一。该地区属亚热带季风气候区, 温暖湿润, 一年四季均可耕作, 区内地貌类型以丘陵为主, 主要植被是人工林和灌木, 村民以农业耕作为主, 主要是生产水稻、花生和其他杂粮以及经营规模性种植和养殖等。

基金项目 广东高校省级重点平台和重大科研项目(2017GKQNCX046)。

作者简介 任露陆(1983—), 女, 江西上饶人, 硕士研究生, 研究方向: 水环境。

收稿日期 2019-10-18

1.2 样品采集

1.2.1 土壤采集。 2017 年 11 月水稻秋收后, 在电子废弃物拆解区周围的农田采集土壤样品, 并在研究区域上游和逆风方向 10 km 以外的稻田采集 3 个参考土样品, 以消除任何电子垃圾回收的影响。

采集表层土壤样品(0~20 cm), 聚乙烯袋封装(视地块大小每个样品由在一定范围内采集的 5 个样品混合而成, 同时记录采样中心点经纬度及周围环境情况), 共获得土壤样品 23 个。样品在实验室室温风干后, 研磨过 100 目(0.15 mm)尼龙筛, 用于 pH 和重金属分析。

1.2.2 土壤分析方法。 土壤 pH 按照土水比 1:2.5 采用电位法测定; 土壤重金属 Cu、Zn 含量经盐酸—硝酸—氢氟酸消解, 采用原子吸收分光光度法(AA-6300, 岛津)测定; 由于样品中 Pb、Cd 的浓度较低, 因此采用石墨炉原子吸收光谱法(ICE3400, 赛默飞)测定 Pb、Cd 的浓度; 砷的测定采用氢化物发生—原子荧光光谱法(AFS-9700, 北京海光), 汞的测定采用冷蒸汽原子荧光光谱法(AFS-9700, 北京海光)。质量保证和质量控制(QA/QC)程序按照《土壤环境监测技术规范》(HJ/T 166—2004)已经各项目分析方法标准等相关要求进行, 开展了室内空白、室内平行样以及加标回收率分析等质量控制措施。

1.3 样品分析

1.3.1 单因子污染指数法。 单因子污染指数法^[7], 是一种对单个污染因子与其本身的标准限值进行比较评价污染成度的环境质量指数。质量评价分级如表 1, 计算公式如下:

$$P_i = C_i/S_i$$

式中, P_i 为土壤中污染物的环境质量指数; C_i 为污染物的实测质量分数 (mg/kg); S_i 为污染物的标准限值 (mg/kg)。

表 1 单因子指数法评价土壤环境质量评价分级

Table 1 Soils contamination level classified by pollution index

等级 Grade	P_i 值 P_i value	污染评价 Pollution assessment
I	$P_i \leq 1$	无污染
II	$1 < P_i \leq 2$	轻微污染
III	$2 < P_i \leq 3$	轻度污染
IV	$3 < P_i \leq 5$	中度污染
V	$P_i > 5$	重度污染

1.3.2 富集因子计算。富集因子 (enrichment factor) 用来评价人类活动对土壤中重金属富集程度的影响^[8], 据此可以区分土壤中重金属富集的自然和人为的环境影响。富集因子的计算公式可以表示为^[9]:

$$EF = \frac{(C_x/C_{ref})_{sample}}{(C_x/C_{ref})_{background}}$$

式中, EF 为污染物 X 的富集因子; C_x 为污染物的实测浓度 (mg/kg); C_{ref} 为参考元素的实测浓度 (mg/kg); (C_x/C_{ref}) 是土壤中的目标元素和参考元素浓度之比, 参考元素主要来源于土壤母质, 很少受到人为活动的污染。在前人研究的基础上, 采用 Mn 作为参考。此外, 土壤中微量元素的背景浓度来自中国环境监测中心^[10], 根据富集因子的大小, 元素的污染程度分为 5 个级别, 如表 2 所示^[11]。

表 2 富集因子分级

Table 2 The grades of enrichment factor

级别 Level	EF	污染评价 Pollution assessment
1	$EF < 2$	轻微污染
2	$2 \leq EF < 5$	中度污染
3	$5 \leq EF < 20$	显著污染
4	$20 \leq EF < 40$	强烈污染
5	$EF \geq 40$	极强污染

1.3.3 生态风险评价方法。潜在生态风险指数法 (potential ecological risk index)^[12-13] 是用于评价重金属潜在生态风险的一种相对快速、简便和标准的方法。由于综合考虑了多元素的协同作用、毒性水平、污染浓度及生态对重金属的敏感性等方面的因素, 潜在生态风险指数法得到了较为广泛的应用, 污染程度评价参照表 3, 其计算公式如下:

$$C_j^i = C_s^i / C_n^i$$

$$E_r^i = T_r^i \times C_j^i$$

$$RI = \sum_{i=1}^n E_r^i = \sum_{i=1}^n T_r^i \times C_j^i = \sum_{i=1}^n T_r^i \times \frac{C_s^i}{C_n^i}$$

式中, RI 为多种重金属的潜在生态风险指数; E_r^i 为第 i 种重金属的潜在生态风险指数; C_j^i 为第 i 种重金属的污染系数; C_s^i 为样品中第 i 种重金属含量的实测值 (mg/kg); C_n^i 为第 i 种重金属的广东省土壤背景值 (mg/kg); T_r^i 为第 i 种重金属的毒性响应参数, As、Cd、Cu、Hg、Pb、Zn 的毒性系数分别为

10、30、5、40、5、1^[14-15]。

重金属含量采用 SPSS 16.0 和 Excel 进行统计分析。

表 3 潜在生态风险指数法分级标准

Table 3 Hazard classification standard of potential ecological risk index

项目 Project	数值区间 Numerical interval	生态风险 Ecological risk
E_r^i 与污染程度 E_r^i and pollution degree	$E_r^i < 40$ $40 \leq E_r^i < 80$ $80 \leq E_r^i < 160$ $160 \leq E_r^i < 320$ $E_r^i \geq 320$	轻微生态危险 中等生态危险 强生态危险 很强生态危险 极强生态危险
RI 与污染程度 RI and pollution degree	$RI < 150$ $150 \leq RI < 300$ $300 \leq RI < 600$ $RI \geq 600$	轻微生态危险 中等生态危险 强生态危险 极强生态危险

2 结果与讨论

2.1 电子废物拆解区土壤重金属含量 由表 4 可知, 土壤 pH 范围 4.86~5.98, 均值 5.26, 属于弱酸性土壤, 这为土壤重金属的释放提供了有利条件, 使土壤中重金属呈活性形态, 更加具有迁移性, 通过纵向迁移过程导致深层土壤的污染, 也更容易通过地表径流等迁移到河流中^[16], pH 变异系数为 0.05, 说明该研究区域土壤理化性质趋于稳定。研究区域土壤中 6 种重金属元素的平均含量按递减顺序排列为 Zn>Pb>Cu>As>Cd>Hg。根据土壤环境质量农用地土壤污染风险管控标准, Cd、Pb、Cu 和 Zn 浓度均超出农用地土壤污染风险筛选值标准, 超标率分别为 Cd 100%、Pb 100%、Cu 91.3% 和 Zn 26.1%, 同时, 这 4 种元素的平均浓度分别比对照点高出 1.13、2.40、6.29 和 3.38 倍。变异系数 <10% 为弱变异, 10%~30% 为中等变异, >30% 为强变异, 从各元素的变异系数值来看, 除 As 外, 其他金属均为强变异, 表明研究区域土壤在遭受了不同程度的 Cd、Pb、Cu、Zn 污染。与广东省土壤重金属背景值相比, 所有元素的平均浓度均大大高于相应的土壤背景值, 这表明 Cd、Pb、Cu、Zn 已经在电子废物拆解区周边土壤中大量累积。

有研究者对龙塘镇电子废物拆解废渣周边的农田土壤进行了调查研究, 发现废渣周边农田土壤中的 Cd、Cu、Pb、Zn 浓度均值分别为 0.42、146.92、319.60、250.58 mg/kg, 比较可知, Cd 含量要低于此次调查结果, Cu、Zn 含量与此次调查结果相近, 这表明除废渣周边外, Cd、Cu、Zn 等重金属已经在拆解区周边大范围农田土壤中大量累积。

2.2 电子废物拆解区重金属污染指数及富集因子 从表 5 中研究区域内土壤的单因子污染指数 (PI) 可以看出, 大部分土壤均受到 Cd、Cu 和 Pb 的污染, 中重度污染率分别为 17.39%、20.74% 和 13.04%, 各重金属污染程度的不同可能有两方面的原因, 一方面可能是与采样点与拆解作坊的距离有关, 相近的污染相对较高, 另一方面各重金属不同的迁移、富集能力以及调查区各采样点重金属本底值的差异也会导致污染程度的不同。富集因子 (EF) 的大小顺序为 Cd>Cu>Zn>

Hg>Pb>As,与污染评价结果一致,富集因子计算结果表明,Cd、Cu、Zn、Hg是该区域富集最明显的金属。结果可能与广

泛使用Cd、Cu、Zn和Hg的电子产品有关,如印刷电路板中的Cd、电线中的Cu和汞电池中的Hg^[18]。

表4 研究区域及对照区农田土壤重金属含量统计分析

Table 4 Descriptive statistics of heavy metal concentrations in farmland soils in the study area and the reference sites

项目 Project	As//mg/kg	Cd//mg/kg	Cu//mg/kg	Hg//mg/kg	Pb//mg/kg	Zn//mg/kg	pH
最小值 Min	22.55	0.38	48.00	0.18	92.7	132.00	4.86
最大值 Max	34.32	1.52	340.00	1.01	461.00	387.00	5.98
平均值 Mean	27.97	0.68	110.74	0.35	167.33	193.74	5.26
中值 Median	27.81	0.54	65.00	0.24	126.00	156.00	5.23
变异系数 CV	0.09	0.52	0.82	0.63	0.57	0.40	0.05
污染风险筛选值 ^[17] RSVs	30.00	0.30	50.00	0.5	80.00	200.00	—
平均背景值 ^[11] ABVs	8.90	0.06	17.00	0.08	36.00	47.30	—
对照点均值 Reference	16.79	0.60	17.61	0.15	69.65	71.21	—

表5 农田土壤中重金属污染指数及富集因子分布

Table 5 Heavy metal pollution index and enrichment factors distribution of farmland soils

项目 Project	污染程度 Pollution degree	As	Cd	Cu	Hg	Pb	Zn
单因子污染指数 Single factor pollution index(PI)	非污染	83.00	0.00	8.70	78.00	0.00	73.91
	轻污染	17.00	82.61	69.56	22.00	86.96	26.09
	中污染	0.00	13.04	8.70	0.00	8.70	0.00
	重污染	0.00	4.35	13.04	0.00	4.34	0.00
富集因子 Enrichment factor(EF)	轻微污染	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
	中度污染	82.61	0.00	34.78	60.87	47.83	56.52
	显著污染	17.39	73.91	47.83	34.78	52.17	43.48
	强烈污染	0.00	26.09	17.39	4.35	0.00	0.00
	极强污染	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00

2.3 重金属相关性分析 电子废物品种繁多,同类电子废物通常含有相同的一种或多种重金属,在粗放式的回收活动中被共同释放到环境中。因此,研究不同重金属之间的相关性能够更好的分析污染的主要来源信息。该研究对调查区域内23个表层土壤中6种重金属含量进行相关性分析,结果见表6,Cu、Pb、Zn这3种重金属相互之间在0.01水平上显著相关,这说明了这些元素来源单一,具有相同的来源,与电子垃圾拆解产生的“三废”中同时富含Cu、Pb、Zn等多种重金属是相符的,这或许进一步证实了当地农田重金属污染与当地多年进行电子废物拆解活动有关。Cd、Hg、As与其他元素的相关系数较小,表明Cd、Hg、As污染可能还有电子废物之外的来源^[19]。此外,农田大量施放携带Cd的磷肥、含Cu农药和含Zn量较高的有机肥也是土壤重金属来源之一。

表6 土壤重金属相关性分析

Table 6 Correlation analysis of heavy metal in soil

元素 Element	As	Hg	Cu	Zn	Pb	Cd
As	1					
Hg	-0.080	1				
Cu	-0.237	-0.115	1			
Zn	-0.327	-0.101	0.927**	1		
Pb	-0.163	-0.108	0.809**	0.907**	1	
Cd	0.001	-0.066	0.194	0.255	0.144	1

注: **、* 分别表示在0.01、0.05水平(双侧)上显著相关

Note: **, * stand for significant correlation at 0.01, level, respectively

采用因子分析法分析6种重金属元素(图1),根据特征值>0.8,提取的前3个主成分可以解释总变量的83.427%,其

中Pb、Zn、Cu在成分1中有较高的正载荷,表明Pb、Zn、Cu的来源比较接近,可能与当地的电子废物拆解形成的废物有关。

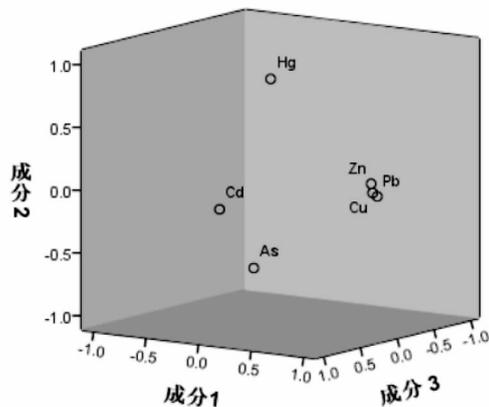


图1 土壤重金属主成分因子载荷图

Fig.1 Factor loading plot of heavy metals in soil

2.4 生态风险评价 根据潜在风险危害指数计算公式,调查区域土壤中6种重金属的潜在生态危害指数(E_i^p)如表7所示,6种重金属在电子废物拆解场地周边土壤中的生态危害指数范围为2.8~814.3,其中As、Cu、Pb、Zn的平均 E_i^p 值均<40,生态风险较低。相比之下,Cd和Hg的 E_i^p 值要高的多(Hg为178.2,Cd为362.0),生态风险较大,6种重金属的潜在生态危害系数排序是Cd>Hg>Cu>As>Pb>Zn。

研究区域内,6种重金属综合潜在生态危害指数RI值范围为350.23~1540.45,平均值为631.53,属于潜在生态风险

很强的区域,全部样本的 RI 值都高于 300,其中 65.2%的样品 RI 值在 300~600 之间,34.8%的样品 RI 值>600,Cd 和 Hg 对生态危害贡献率达到 85.54%。有相关研究表明,在电子

废物拆解区附近,Cd 对潜在的生态风险有明显的贡献,因此,电子废物拆区土壤中 Cd 和 Hg 的生态危害应引起高度重视。

表 7 土壤重金属生态风险指数统计分析

Table 7 Statistical analysis of ecological risk index of heavy metals in soil

元素 Element	潜在生态危害单项指数 Element individual index of potential ecological risk				生态危害分布百分比 Percentage of distribution classes based upon potential ecological risk//%				
	最小值 Min	最大值 Max	平均值 Mean	标准差 SD	轻微 Low	中等 Moderate	强 Higher	很强 Much higher	极强 Serious
As	25.34	38.56	31.43	2.94	100	0	0	0	0
Hg	91.53	515.39	178.23	113.12	0	0	73.92	13.04	13.04
Cu	14.12	100.00	32.57	26.80	78.26	8.70	13.04	0	0
Zn	2.79	8.18	4.10	1.63	100	0	0	0	0
Pb	12.88	64.03	23.24	13.15	86.96	13.04	0	0	0
Cd	203.57	814.29	361.96	187.16	0	0	0	65.22	34.78
RI	350.23	1540.45	631.53	344.80	0	0	65.22	34.78	—

3 结论

该研究调查了典型电子废物拆解区农田土壤中 As、Hg、Cu、Zn、Cd、Pb、Cd 的浓度、相关性和潜在风险,得出以下结论:

(1) 受到电子废物拆解回收的影响,研究区域土壤中的 Cd、Pb、Cu、Zn 含量显著增加,均超出农用地土壤污染风险筛选值标准,超标率分别为 Cd 100%、Pb 100%、Cu 91.3% 和 Zn 26.1%;调查区域内农田土壤的单因子污染指数显示,大部分土壤均受到 Cd、Cu 和 Pb 的污染,中重度污染率分别为 17.39%、20.74% 和 13.04%,严重威胁农产品安全;富集因子计算结果表明,Cd、Cu、Zn、Hg 是该区域富集最明显的金属。

(2) 6 种重金属的相关性分析表明,Cu、Pb、Zn 这 3 种重金属相互之间在 0.01 水平上显著相关,这说明了这些元素来源单一,具有相同的来源,与电子垃圾拆解产生的“三废”中同时富含 Cu、Pb、Zn 等多种重金属是相符的;Cd、Hg、As 与其他元素的相关系数较小,表明 Cd、Hg、As 污染可能还有电子废物之外的来源。

(3) 6 种重金属综合潜在生态危害指数显示,该区域属于潜在生态风险很强的区域,全部样本的 RI 值都高于 300,其中 65.2%的样品 RI 值为 300~600,34.8%的样品 RI 值大于 600,Cd 和 Hg 对生态危害贡献率达到 85.54%。6 种重金属的潜在生态危害系数排序是 Cd>Hg>Cu>As>Pb>Zn。

由此可知,电子废物拆解区周边农田土壤中的 Cd、Pb、Cu 和 Zn 等重金属含量显著增加,潜在生态风险很强(尤其是 Cd 和 Hg),主要与电子废物回收活动有关,这意味着当地生态系统和居民生活面临相当大的风险,该研究结果可为地方当局有效规范电子垃圾回收产业及土壤修复提供参考。

参考文献

[1] TANG X J, SHEN C F, SHI D Z, et al. Heavy metal and persistent organic compound contamination in soil from Wenling: An emerging e-waste recycling city in Taizhou area, China[J]. Journal of hazardous materials, 2010, 173: 653-660.

[2] BERTRAM M, GRAEDEL T E, RECHBERGER H, et al. The contemporary European copper cycle; Waste management subsystem[J]. Ecological economics, 2002, 42: 43-57.

[3] GALENDE M A, BECERRIL J M, BARRUTIA O, et al. Field assessment of the effectiveness of organic amendments for aided phytostabilization of a Pb-Zn contaminated mine soil[J]. Journal of geochemical exploration, 2014, 145: 181-189.

[4] 陈海棠, 周丹丹, 薛南冬, 等. 电子固体废物拆解作坊附近土壤重金属污染特征及风险[J]. 环境化学, 2015, 34(5): 956-964.

[5] 梁啸, 刘晓文, 吴文成, 等. 电子废物拆解废渣周边农田重金属的污染特征及风险评价[J]. 生态环境学报, 2015, 24(10): 1718-1724.

[6] 张金莲, 丁疆峰, 卢桂宁, 等. 广东清远电子垃圾拆解区农田土壤重金属污染评价[J]. 环境科学, 2015, 36(7): 2633-2640.

[7] 张玉莲, 闫天增. 内梅罗指数法在土壤重金属污染评价中的应用[J]. 河南教育学院学报(自然科学版), 2012, 21(2): 35-39.

[8] ANSARI A A, SINGH I B, TOBSCHALL H J. Importance of geomorphology and sedimentation processes for metal dispersion in sediments and soils of the Ganga Plain: Identification of geochemical domains[J]. Chemical geology, 2000, 162: 245-266.

[9] SAEEDI M, LI L Y, SALMANZADEH M. Heavy metals and polycyclic aromatic hydrocarbons: Pollution and ecological risk assessment in street dust of Tehran[J]. J Hazard Mater, 2012; 227/228: 9-17.

[11] 国家环境监测总站. 中国土壤元素背景值[M]. 北京: 中国环境科学出版社, 1990: 1-501.

[11] CHEN H Y, TENG Y G, LU S J, et al. Contamination features and health risk of soil heavy metals in China[J]. Sci Total Environ, 2015, 512/513: 143-153.

[12] 王玉军, 吴同亮, 周东美, 等. 农田土壤重金属污染评价研究进展[J]. 农业环境科学学报, 2017, 36(12): 2365-2378.

[13] 韦绪好, 孙庆业, 程建华, 等. 焦岗湖流域农田土壤重金属污染及潜在生态风险评价[J]. 农业环境科学学报, 2015, 34(12): 2304-2311.

[14] HAKANSON L. An ecological risk index for aquatic pollution control. A sedimentological approach[J]. Water research, 1980, 14(8): 975-1001.

[15] SURESH G, SUTHARSAN P, RAMASAMY V, et al. Assessment of spatial distribution and potential ecological risk of the heavy metals in relation to granulometric contents of Veeranam lake sediments, India[J]. Ecotoxicol Environ Saf, 2012, 84: 117-124.

[16] 丁疆峰. 电子垃圾拆解区土壤重金属和多氯联苯污染研究[D]. 南宁: 广西大学, 2015.

[17] 生态环境部. 土壤环境质量 农用地土壤污染风险管控标准(试行): GB 15618—2018[S]. 北京: 中国环境出版集团, 2018.

[18] SONG Q B, LI J H. A review on human health consequences of metals exposure to e-waste in China[J]. Environ Pollut, 2015, 196: 450-461.

[19] 张朝阳, 彭平安, 刘承帅, 等. 华南电子垃圾回收区农田土壤重金属污染及其化学形态分布[J]. 生态环境学报, 2012, 21(10): 1742-1748.