J. Lake Sci.(湖泊科学), 2009, **21**(6): 789-794
http://www.jlakes.org. E-mail: jlakes@niglas.ac.cn
©2009 by *Journal of Lake Sciences*

固定化氮循环细菌修复城市湖泊水体脱氮效果及 N_2O 排放*

杨竹攸, 李正魁**, 石鲁娜, 张晓姣, 王月明, 陈祈春, 吴　凯, 冯露露
(南京大学环境学院污染控制与资源化研究国家重点实验室, 南京 210093)

摘　要: 利用从镇江金山湖天然水体中筛选分离出的土著氨化、亚硝化、硝化和反硝化细菌, 将氮循环细菌固定化后在金山湖示范工程区进行水体脱氮净化效果研究. 结果表明, 运行一段时间后水质明显得到改善, 氨氮、亚硝酸盐氮、硝酸盐氮以及总氮浓度均显著下降, 氨氮浓度指标达到国家水质Ⅰ类标准, 总氮浓度指标达到水质Ⅱ类标准. 同时, 对湖泊水体的 N_2O 气体排放通量进行了检测, 结果显示, 随着实验的进行, 金山湖区的 N_2O 气体排放通量逐渐升高, 4 月份的平均值为 23.51μg/(m^2·h)、5 月份的平均值为 29.52μg/(m^2·h)、6 月份的平均值为 59.10μg/(m^2·h). 水质氮素指标以及 N_2O 气体排放通量数据说明利用微生物固定化载体强化净化技术对城市湖泊水质净化具有显著效果和重要意义.
关键词: 固定化氮循环细菌; 城市湖泊; 硝化; 反硝化; N_2O 排放通量; 金山湖

Nitrogen removal and N_2O emission from water purification process by immobilized nitrogen cycling bacteria in urban lake

YANG Zhuyou, LI Zhengkui, SHI Luna, ZHANG Xiaojiao, WANG Yueming, CHEN Qichun, WU Kai & FENG Lulu
(*State Key Laboratory of Pollutant Control and Resources Reuse, School of Environment, Nanjing University, Nanjing* 210093, *P.R.China*)

Abstract: The process of water purification was studied using immobilized nitrogen cycling bacteria, including ammonibacteria, nitrosobacteria, nitrifying bacteria and denitrifying bacteria, which applied and screened for natural water of Lake Jinshan. The result showed that the water quality was improved obviously after running a period of time. Concentrations of NH_4^+-N, NO_2^--N, NO_3^--N and TN declined. NH_4^+-N concentration had reached national Ⅰ class of water quality index. TN concentration had reached Ⅱ class. The N_2O flux of Lake Jinshan increased during three months from April to June, which were 23.51μg/(m^2·h), 29.52μg/(m^2·h) and 59.10μg/(m^2·h) respectively. The experiment has proved that the techniques of immobilized nitrogen cycling bacteria could purify the urban lakes significantly.
Keywords: Immobilized nitrogen cycling bacteria; urban lake; nitrification; denitrification; N_2O flux; Lake Jinshan

城市湖泊是城市湿地的重要组成部分, 在现代城市发展过程中发挥着旅游、娱乐、洪涝调蓄排水、调节气候和改善城市生态环境等多种重要功能[1]. 然而, 随着城市化进程的加快, 围湖开垦以及城市开发使城市湖泊面积锐减, 且大量工农业废水、生活污水的排放, 使城市湖泊生态系统遭到严重破坏. 因此, 有关城市湖泊污染治理、生态修复的研究一直受到国际环境科学及湖泊学界的重视, 同时, 由于与人类生存与发展紧密相连, 也受到政府与社会的高度关注[2].

* 国家重点基础研究发展计划(973)项目(2008CB418003)、国家科技重大专项(863)项目(2008ZX07101-012-04-03, 2008ZX07101-004-02)、国家科技支撑计划项目(2006BAJ08B01-02)和国家高新技术研究发展计划(863)项目(2003AA601100-4)联合资助. 2009−04−10 收稿; 2009−06−01 收修改稿. 杨竹攸, 男, 1984 年生, 硕士研究生; E-mail: yangzhuyou2002@163.com.
** 通讯作者; E-mail: zhkuili@nju.edu.cn.

氮素污染是城市水体水质下降的重要原因, 往往会导致水体的富营养化. 湖泊生态系统中氮素的循环是开放式循环, 湖泊中来源于地表水、大气中的铵盐, 在有氧环境中经过硝化作用, 最终生成硝态氮; 而硝酸盐则在缺氧环境中通过反硝化作用生成氮气, 散逸到大气圈. 硝化作用和反硝化作用都能产生亚硝酸盐, 不同来源的亚硝酸盐可参与硝化、反硝化、厌氧氨氧化[3]. 氮循环细菌在进行硝化和反硝化反应的同时, 也会产生 N_2O、NO、NO_2 等气态中间产物, 将氮素从水相中脱除进入气相.

金山湖位于镇江市西北, 紧靠金山寺, 是镇江市重要的旅游资源, 也是典型的城市湖泊. 其周边无大型工业企业, 湖泊主要污染来自于面源污染, 其中包括: 养鱼投放的大量饵料、湖区住户的生活污水以及部分倾倒入湖的生活垃圾. 面源污染使得金山湖生态系统受到严重的威胁, 尤其是使得湖水中 N、P 营养元素浓度急剧升高, 水体富营养化情况严重, 亟待治理. 为了减轻金山湖富营养化程度, 削减湖泊 N、P 污染, 科技部实施了国家 863"十五"重大科技专项——"镇江水环境质量改善与生态修复技术研究及示范"项目, 对金山湖区水体修复进行示范研究. 项目初期分离与筛选了金山湖土著脱氮菌种, 采用固定化技术制备了载体, 并对土著微生物进行了固定化, 在实验室进行了净化模拟人工净化废水实验, 取得很好的脱氮效果[4]. 项目执行前期, 采用固定化微生物技术在金山湖区水体原位修复的应用使得水质得到了初步净化, 氮磷污染物浓度逐渐下降. 本实验在项目执行前期成果基础上, 采用固定化微生物技术, 对金山湖水体进行强化净化. 实验主要研究固定化微生物载体投入金山湖示范工程区之后, 湖水中各形态氮素的浓度变化, 观测固定化载体对金山湖水体的脱氮效果. 同时, 实验还研究了整个净化过程中金山湖水体中 N_2O 气体的排放规律, 以期进一步说明固定化微生物载体修复水体的脱氮效果.

1 实验材料和方法

1.1 示范工程区背景概况

金山湖示范工程区位于金山湖区的西北角, 根据金山湖周边污染以及金山湖水体水质特征而建立, 有效水体面积为 27000m^2, 水深常年维持在 1.0–1.2m 之间. 2004 年 4 月至 2005 年 9 月的 5 次现场监测资料显示, 湖区水质中 COD 浓度为 25.6–107.2mg/L, NH_4^+-N 浓度为 0.8–2.23mg/L, TN 浓度为 0.88–3.95mg/L, TP 浓度为 0.77–2.23mg/L. 经过项目前期治理, 至 2007 年 10 月, 湖区水质中 NH_4^+-N 浓度与 TN 浓度已分别下降至 0.4mg/L 和 1.70mg/L. 本实验从 2008 年 3 月开始, 继续应用生态修复技术——固定化氮循环细菌技术对水体进行生态修复, 研究水质净化过程中各形态氮素的浓度变化以及水体的 N_2O 排放规律.

1.2 土著脱氮菌种采集、分离与筛选

采集镇江金山湖中不同深度、不同位置的水样及底泥, 接种至选择性培养基上, 然后富集筛选出纯化的金山湖土著氨化、硝化、亚硝化以及反硝化细菌.

1.3 载体的制备

将亲水性玻璃态单体甲基丙烯酸-β-羟乙酯(2-Hydroxyethyl methylacrylate(HEMA))、丙烯酸羟乙酯(2-Hydroxyethyl acrylate(HEA))与蒸馏水按照一定的体积比混合均匀, 用氮气充至饱和, 在–78℃温度条件下, 采用辐射剂量为 1×10^4Gy 的 ^{60}Co-γ 射线辐照制备形成生物相容性固定化聚合物载体[5].

1.4 菌种的固定化

将辐射聚合后制备的固定化载体切成 5mm 见方的小块, 用蒸馏水浸泡至充分膨胀. 再用人工合成废水浸泡, 28℃振荡 24h 并交换 3 次. 加入经活化培养进入对数生长期的氨化、硝化、亚硝化和反硝化细菌培养液各 200ml, 28℃振荡 24h、静置 48h, 使氨化、硝化、亚硝化和反硝化细菌交替在有氧条件及厌氧条件下吸附于固定化载体表面, 并通过增殖进入多孔载体内部使之固定.

1.5 原位修复实验方法

在呈四方形的示范区内布设 2 个面积为 64m^2 生态浮岛, 分别放置于湖面两侧, 浮岛上引种景观植物香蒲, 浮岛下方 20–30cm 处悬挂一个固定化氮循环细菌释放装置, 将 5kg 固定化氮循环细菌载体放置于特制的具有网眼的装置中, 使得固定化细菌载体能够充分接触水体, 令其中附着生长的脱氮微生物充分扩散至示范工程水体, 对水质进行强化净化. 为了保证整个实验过程示范水体中脱氮微生物的数量维持在较高水平从而保证水体的脱氮效果, 本实验使用的载体每个月用重新负载好微生物的载体更换一次.

在湖面的 4 个方向设置 4 个水样及气样采集点(图 1), 用以采集水样和气样进行水质检测和气体分析. 同时, 选取示范工程附近生态状况以及污染情况相类似, 但未放置生态浮岛和微生物载体的水体作为对照, 采集水样和气样用于对比.

此外, 在金山湖旁边未经生态工程修复的, 有共同氮、磷污染源来源的水体取样检测水质指标以提供对照. 2008 年 3 月份, 对照水体经过水质检测, 结果是 NH_4^+-N 浓度为 0.47–0.62mg/L, NO_3^--N 浓度为 0.32–0.41mg/L, 总氮浓度为 1.4–1.7mg/L, 与同期金山湖水质指标相类似.

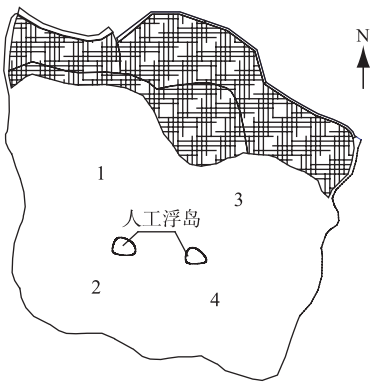


图 1 示范工程平面图及采样点分布

Fig.1 Overall plan of demonstration project district and sampling sites

1.6 水质测试项目与方法

氨氮采用纳氏试剂分光光度法, 硝酸盐氮采用酚二磺酸分光光度法, 亚硝酸盐氮采用 N-(1-萘基)-乙二胺分光光度法, 总氮采用过硫酸钾氧化、紫外分光光度法[6].

1.7 N_2O 气体收集装置及收集方法

N_2O 气体是硝化反硝化过程的重要中间产物, 其产生过程同时受到硝化作用与反硝化作用的影响[7]. 本实验 N_2O 气体排放通量观测采用密闭静态箱法. 气体采样装置由顶部密封的有机玻璃柱状筒箱体和中通的塑料底座两部分组成. 箱体规格为 50cm×50cm×80cm, 箱体顶部开有 3 个小孔, 分别为采气孔、风扇接线口和箱内温度计插口, 顶部安装有搅拌小风扇, 由 12V 蓄电池供电, 以保证采样时箱内气体混合均匀. 底座规格为 52cm×52cm×120cm, 上部内缘加密封槽(宽 4cm, 深 4cm)[8].

采样地点选择在离生态浮岛微生物载体悬挂处 5m 左右的开放水体. 采样时, 先将底座固定于采样点的底泥中, 根据水深调整插入深度, 以使底座上缘与水面基本等高. 开启箱顶的小风扇混合箱内气体, 将密闭箱放置于底座上缘的密闭槽内, 在槽中灌水水封以保证其密闭, 此时用真空瓶及采样针通过箱体的采样孔采集第 1 个气样. 之后每隔 10min 采 1 次气样, 1 个采样点共采集 4 个气样用以分析. 有研究表明[9], N_2O 排放的日平均值出现在 09:00 和 19:00 时, 但是排放的规律并非固定不变, 通常气温决定了其排放的模式. 为尽可能保证样品具有很好的全天代表性, 样品采集设在上午 9:00–10:30.

1.8 N_2O 气体测定方法

收集于真空瓶的气样中 N_2O 气体的浓度用带 ECD 检测器的气相色谱仪(岛津 GC-12B)测定, 柱温 65℃, 检测器温度 300℃. 以 95%氩气+5%甲烷作为载气, 流速 40ml/min. CH_4 和 N_2O 标准气体均由日本国立农业环境技术研究所提供.

1.9 N_2O 气体排放通量及其计算方法

N_2O 通量是指单位时间内单位面积上 N_2O 变化量, 正值表示气体从土壤或水体向大气排放, 负值表示土壤或水体吸收消耗大气中该气体, 其通量 F 公式如下:

$$F = \rho \frac{V}{A} \frac{\Delta c}{\Delta t} \frac{273}{273+T}$$

式中, F 为 N_2O 排放通量(以 N 计)(μg/(m^2·h)); ρ 为标准状态下 N_2O 的密度(1.25kg/m^3); V 为密闭箱内有效的空间体积(m^3); A 为密闭箱覆盖的水面面积(m^2); Δc 为 N_2O 气体浓度差(表示为占空气的体积分数); Δt 为采样的时间间隔(h); T 为采样时密闭箱的温度[10].

2 结果与讨论

2.1 金山湖水体脱氮效果

从 2008 年 3 月 31 日将微生物固定化载体悬挂在浮岛下开始实验, 定期对金山湖水质中的氨氮、亚硝态氮、硝态氮以及总氮指标进行检测.

2.1.1 氨氮脱除效果 原位修复期间, 金山湖水质中氨氮指标的变化趋势(图 2a)表明, 金山湖水中的氨氮

浓度在 3 月底(实验开始时), 维持在 0.3mg/L 左右, 之后经历了一个短暂的上升过程, 在 4 月上旬(净化 12d)时达到了最大值 0.4mg/L 左右. 分析其原因一方面是由于春季降雨形成地表径流带入了湖区附近的面源污染, 对照水体同样也由于此原因出现了氨氮浓度的升高; 另一方面, 由于微生物载体放入湖中的时间尚短, 其中负载的大量脱氮微生物尚未完全扩散, 脱氮效果尚未充分发挥, 造成了氨氮的短时间积累. 随着净化时间的延长, 载体中的微生物逐渐扩散, 而水温的逐渐升高也为微生物活性的提高创造了条件, 因此, 金山湖水中的氨氮浓度逐渐降低, 趋势明显. 经过 4 月中旬至 5 月上旬的净化, 湖水中的氨氮浓度已经降至 0.15mg/L 左右. 从 5 月份直至 7 月底, 氨氮浓度一直基本保持稳定, 最终降至 0.139mg/L, 达到国家地表水水质Ⅰ类水标准[11].

未经修复水体的氨氮浓度一直高于金山湖水体, 由于受地表径流的污染, 呈现无规律的波动现象, 实验后期, 其氨氮浓度大致维持在 0.410–0.510mg/L 的范围内. 整个实验期, 未经修复水体的氨氮平均值为 0.485mg/L, 为经修复后的金山湖水体氨氮浓度 0.139mg/L 的 3 倍多. 通过氨氮浓度的数据比较, 可见固定化载体对氨氮的氧化效果良好, 能够有效促进水体的硝化过程.

2.1.2 亚硝态氮脱除效果 从 3 月底实验开始至 7 月底实验结束, 金山湖水体中 NO_2^--N 的浓度一直维持在 0.005–0.010mg/L 这一很低的范围之间, 平均值为 0.007mg/L. 对未经修复的采样点所采水样的分析表明, 未经修复采样点的 NO_2^--N 浓度比金山湖水体中的 NO_2^--N 浓度略高, 且波动范围也不大. 这说明固定化微生物载体在原位修复进行的脱氮过程比较彻底, 并没有引起水体中 NO_2^--N 的积累, 不会对水体中的水生生物造成毒害.

2.1.3 硝态氮脱除效果 金山湖硝态氮指标变化趋势与氨氮变化趋势相同, 从 3 月底的 0.35mg/L, 逐渐下降至 5 月上旬(净化 40d)的 0.15mg/L, 之后基本保持稳定在 0.15–0.17mg/L 的范围之间. 最开始的几天内硝态氮浓度略有上升, 原因是由于投加固定化微生物载体后, 其中的亚硝化细菌以及硝化细菌率先产生作用, 将水体中的氨氮氧化为硝态氮, 从而致使水体硝态氮浓度略微提高. 但是之后, 硝态氮的浓度一直呈现不断下降至稳定的趋势, 净化 40d 左右, 水体中的硝态氮浓度基本稳定. 到 7 月底, 经净化后的金山湖水硝态氮浓度维持在 0.167mg/L(图 2b).

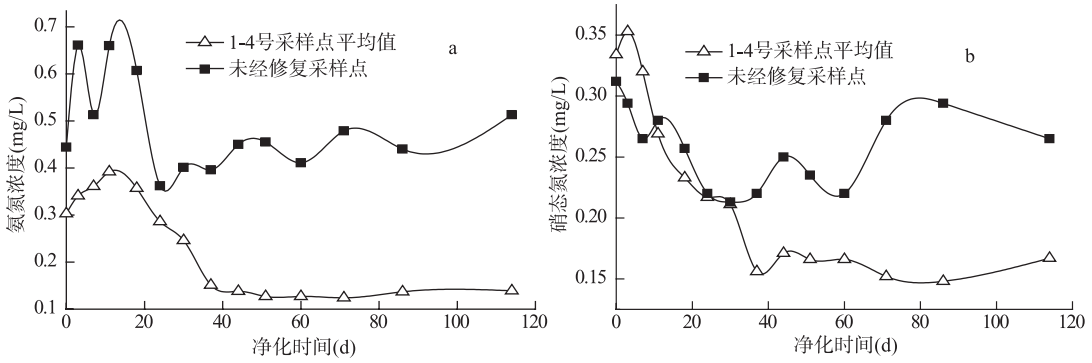


图 2 金山湖水体 NH_4^+-N(a)和 NO_3^--N(b)变化趋势

Fig.2 Variation of ammonia(a) and nitrate(b) in Lake Jinshan

此结果说明实验采用的微生物固定化载体中负载的反硝化细菌发挥了良好的作用, 水体中的反硝化作用得到了促进, 在氨氮不断被硝化成硝态氮的同时没有造成硝态氮的积累. 而未经修复的水体中的硝态氮浓度变化波动较大, 浓度维持在 0.22–0.32mg/L 的范围内, 平均值为 0.258mg/L, 是经固定化载体修复过的金山湖水体的硝态氮浓度的 1.5 倍左右. 实验结果表明固定化氮循环细菌对水体反硝化作用的良好促进作用.

2.1.4 总氮脱除效果 实验开始时, 金山湖水质中的总氮浓度较高, 为 1.100mg/L 左右, 经过 40d 的水质净化, 至 5 月上旬, 湖水总氮浓度已经降至 0.4mg/L, 之后总氮浓度继续下降, 至 7 月底降至 0.343mg/L, 达

到国家地表水质Ⅱ类水标准. 总氮浓度指标的变化反映出固定化氮循环细菌在示范工程中具有较高的脱氮效果(图 3a).

相比较而言, 未经修复水体中的总氮浓度从实验开始时的 1.521mg/L, 经过春季降雨过程的稀释稍稍降低了一段时间后, 受到地表径流的污染再次回升, 在 7 月底实验结束时又恢复到 1.530mg/L, 略微超过了实验开始时的数值. 数据表明, 未经修复的水体自净能力差, 基本不能够有效脱除水体中的氮素, 结果表明, 采用固定化微生物原位修复氮素污染的湖泊水体具有重要实际应用价值.

采用 MPN 法对水体中的微生物数量进行检测, 结果表明, 载体悬挂之后, 水体中脱氮微生物的数量迅速上升, 氨化细菌、硝化细菌的数量在一周左右达到最大值, 分别为 3.5×10^7cells/L、1.4×10^7cells/L, 亚硝化细菌、硝化细菌的数量在两周左右达到最大值, 分别为 1.6×10^8cells/L、0.9×10^6cells/L, 比对照水体分别提高 2–3 个数量级[12]. 伴随着微生物的逐渐释放, 载体上附着的脱氮微生物数量逐渐减少, 示范工程水体中的脱氮微生物数量也逐渐减少, 因此本实验中, 浮岛下悬挂的载体每个月更换一次, 以保证示范工程水体中脱氮微生物的数量从而保证水体的脱氮效果.

2.2 金山湖水体 N_2O 排放规律

从 2008 年 3 月 31 日将微生物载体放入金山湖中开始, 定期对示范工程水体的 N_2O 气体排放通量进行检测. 结果表明, 金山湖示范工程的 N_2O 气体排放通量呈现逐渐上升的趋势(图 3b). 3 月底实验开始时, 湖区水面 N_2O 气体排放通量较低, 为 2.1μg/(m^2·h), 随着温度逐渐上升, N_2O 气体排放通量同步波动上升, 至 6 月底达到 89.55μg/(m^2·h). 在整个实验期间, 4、5、6 三个月金山湖湖区 N_2O 气体排放通量的每月平均值分别为 23.51μg/(m^2·h)、29.52μg/(m^2·h)、59.10μg/(m^2·h). 而未放置微生物载体的水体中 N_2O 气体排放通量虽然随着气温的上升也呈现逐渐升高的趋势, 但其上升的速度低于示范工程, 对照水体 4、5、6 三个月的 N_2O 气体排放通量平均值分别为 15.63μg/(m^2·h)、20.37μg/(m^2·h)、33.64μg/(m^2·h), 明显小于示范工程同期的 N_2O 气体排放通量. 气态中间产物产量的差异是由水体中硝化反应和反硝化反应程度不同而造成的, 金山湖水体由于引入了固定化微生物载体, 使得其中氮循环细菌的数量大大增加, 促进了水体中的脱氮过程, 造成了脱氮气态中间产物排放量的增加. 这一结果从气态产物的角度显示了固定化微生物载体对水体脱氮作用的促进. 熊正琴等[13]对太湖水体 N_2O 排放的研究显示, 太湖水体全年 N_2O 排放通量为 0–20μg/(m^2·h), 小于金山湖水体, 表明与太湖相比较, 金山湖水体中的脱氮过程更为活跃.

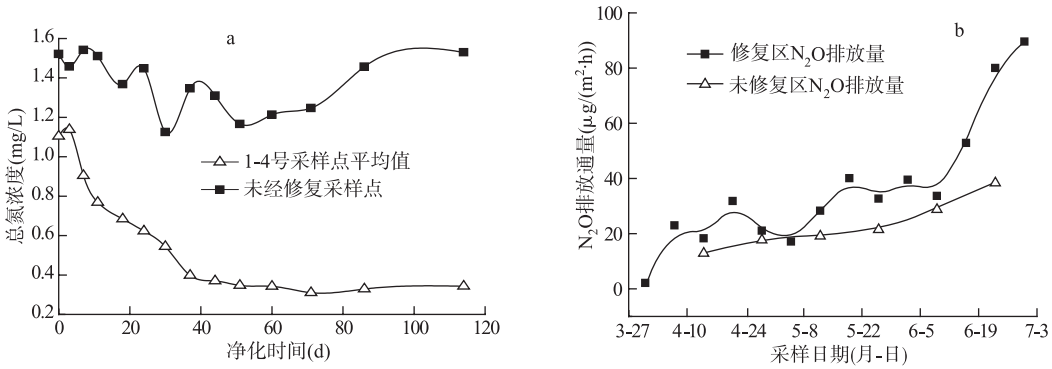


图 3 金山湖水体总氮(a)和 N_2O 气体排放通量(b)变化趋势

Fig.3 Variation of total nitrogen(a) and N_2O flux(b) in Lake Jinshan

根据杨龙元等于 1998 年测得 N_2O 排放量约占沉积物反硝化率的 13%[14], 则可推算金山湖示范工程湖区在 4、5、6 月份的脱氮速率分别为 180.56μg/(m^2·h)、227.11μg/(m^2·h)、454.65μg/(m^2·h). 这从另一个方面反映了固定化氮循环细菌在金山湖示范工程中增加了去除湖水中氮素的能力.

由于湖区环境季节性变化明显, N_2O 气体的排放也受到多种环境和生物因素的影响, 其中包括土壤温度、水分、硝化以及反硝化过程等等[15]. 实验结果也显示出金山湖湖区 N_2O 气体排放通量的季节变化

显著, 夏季明显高于春季.

在实际工程应用中, 影响 N_2O 气体排放通量的因素众多, 尤其是微生物的硝化过程与反硝化过程更是关系到水体氮素的迁移转化. 如何进一步说明硝化过程以及反硝化过程对 N_2O 气体排放通量的影响, 并在保证水体脱氮效果的前提下通过调节硝化与反硝化过程来降低温室气体 N_2O 的排放量, 将是十分有意义的研究方向.

3 参考文献

[1] 彭俊杰, 李传红, 黄细花. 城市湖泊富营养化成因和特征. 生态科学, 2004, **23**(4): 370-373.

[2] 《湖泊及流域学科发展战略研究》秘书组. 湖泊及流域科学研究进展与展望. 湖泊科学, 2002, **14**(4): 289-300.

[3] 曾 巾, 杨柳燕, 肖 琳等. 湖泊氮素生物地球化学循环及微生物的作用. 湖泊科学, 2007, **19**(4): 382-389.

[4] 宁 安, 李正魁, 赖鼎东等. 固定化土著纯种细菌流化床的脱氮效果研究. 中国给水排水, 2007, **23**(17): 71-75.

[5] Li Zhengkui, Pu Peimin, Hu Weipin *et al*. Improvement of Taihu water quality by the technology of immobilized nitrogen cycle bacteria. *Nuclear Science and Techniques*, 2002, **13**(2): 115-120.

[6] 国家环境保护总局. 水和废水监测分析方法(第 4 版). 北京: 中国环境科学出版社, 2002.

[7] Bonin P, Tamburini C, Michotey V. Determination of the bacterial processes which are sources of nitrous oxide production in marine samples. *Water Research*, 2002, **36**(3): 722-732.

[8] 宋长春, 张丽华, 王毅勇等. 淡水沼泽湿地 CO_2、CH_4 和 N_2O 排放通量年际变化及其对氮输入的响应. 环境科学, 2006, **27**(12): 2369-2375.

[9] Dong YS, Zhang S, Qi YC *et al*. Fluxes of CO_2、N_2O and CH_4 from a typical temperate grassland in Inner Mongolia and its daily variation. *Chinese Science Bulletin*, 2000, **45**(17): 1590-1594.

[10] 刘景双, 王金达, 李仲根等. 三江平原沼泽湿地 N_2O 浓度与排放特征初步研究. 环境科学, 2003, **24**(1): 33-39.

[11] GB 3838–2002. 地表水环境质量标准. 北京: 国家环境保护总局, 国家质量监督检验检疫总局, 2002.

[12] 张晓姣, 李正魁, 杨竹攸等. 固定化土著氮循环细菌在城市湖泊水体净化中的应用. 湖泊科学, 2009, **21**(3): 351-356.

[13] 熊正琴, 邢光熹, 沈光裕等. 太湖地区湖水与河水中溶解 N_2O 及其排放. 环境科学, 2002, **23**(6): 26-30.

[14] 杨龙元, 蔡启铭, 秦伯强等. 太湖梅梁湾沉积物-水界面氮迁移特征初步研究. 湖泊科学, 1998, **10**(4): 41-47.

[15] 孙 丽, 宋长春, 黄 耀. 沼泽湿地 N_2O 通量特征及 N_2O 与 CO_2 排放间的关系. 中国环境科学, 2006, **26**(5): 532-536.