

DOI: 10.11766/trxb202303060092

吴拓铮, 詹娟, 周嘉文, 周通, 李柱, 胡鹏杰, 黄化刚, 李廷轩, 张锡洲, 骆永明. 滇东地质高背景区土壤镉的伴矿景天修复及其对后茬水稻的影响[J]. 土壤学报, 2024, 61 (5): 1349–1359.

WU Tuo Zheng, ZHAN Juan, ZHOU Jiawen, ZHOU Tong, LI Zhu, HU Pengjie, HUANG Huagang¹, LI Tingxuan, ZHANG Xizhou, LUO Yongming. Phytoextraction of the Soils from the East of Yunnan Province with a High Cadmium Geological Background and Its Effect on Rice Cadmium Uptake[J]. Acta Pedologica Sinica, 2024, 61 (5): 1349–1359.

滇东地质高背景区土壤镉的伴矿景天修复及其对后茬水稻的影响^{*}

吴拓铮^{1, 2}, 詹娟^{1†}, 周嘉文¹, 周通¹, 李柱¹, 胡鹏杰¹, 黄化刚¹,
李廷轩², 张锡洲², 骆永明¹

(1. 土壤与农业可持续发展全国重点实验室 (中国科学院南京土壤研究所), 南京 211135; 2. 四川农业大学资源学院, 成都 611130)

摘要: 云南是我国典型的重金属元素地球化学高背景区, 超积累植物能否有效修复镉 (Cd) 地质高背景土壤, 从而实现农产品安全生产, 尚鲜见报道。以云南石林、富源和罗平等三地的典型 Cd 地质高背景农田土壤为对象, 开展温室盆栽试验, 探究 Cd、锌 (Zn) 超积累植物伴矿景天对土壤 Cd 的吸取修复效果, 及对后茬水稻生长和 Cd 吸收的作用。结果表明, 种植三季伴矿景天使三地土壤全量 Cd 分别下降 24.8%、30.9% 和 58.8%; 伴矿景天在富源玄武岩风化物母质发育的土壤上长势最好, 与富源土壤肥力相对最高有关; 伴矿景天在罗平石灰岩风化物发育的土壤上重金属吸取修复效果最佳, 与罗平土壤呈中性、酸化作用更为明显有关, 这些差异由土壤母质、养分与重金属有效性等综合影响所致。经伴矿景天吸取修复三季后, 全生育期淹水种稻, 其糙米和秸秆 Cd 浓度均大幅降低, 可实现糙米 Cd 安全生产。未经植物吸取修复, 旱作处理下水稻糙米 Cd 存在超标风险。植物吸取修复后种植水稻, 再结合水分管理措施, 可进一步降低稻米中 Cd 浓度, 实现稻米安全生产, 为 Cd 地质高背景区土壤的农作物安全生产提供理论依据和技术支撑。

关键词: 土壤镉; 地质高背景; 植物吸取修复; 水稻; 水分管理

中图分类号: X53 文献标志码: A

Phytoextraction of the Soils from the East of Yunnan Province with a High Cadmium Geological Background and Its Effect on Rice Cadmium Uptake

WU Tuo Zheng^{1, 2}, ZHAN Juan^{1†}, ZHOU Jiawen¹, ZHOU Tong¹, LI Zhu¹, HU Pengjie¹, HUANG Huagang¹,
LI Tingxuan², ZHANG Xizhou², LUO Yongming¹

(1. State Key Laboratory of Soil and Sustainable Agriculture, Institute of Soil Science, Chinese Academy of Sciences, Nanjing 211135, China;
2. College of Resources, Sichuan Agricultural University, Chengdu 611130, China)

Abstract: [Objective] Yunnan Province is one of the typical high geological background regions in China. However, a few

^{*} 国家自然科学基金项目 (U2002210) 资助 Supported by the National Natural Science Foundation of China (No. U2002210)

[†] 通讯作者 Corresponding author, E-mail: zhanjuan@issas.ac.cn

作者简介: 吴拓铮 (1997—), 男, 浙江平湖人, 硕士研究生, 主要从事土壤重金属污染与修复研究。E-mail: wtzplant@163.com

收稿日期: 2023-03-06; 收到修改稿日期: 2023-06-16; 网络首发日期 (www.cnki.net): 2023-09-05

studies have focused on the phytoextraction of high geological soils for safe agricultural production. 【 Method 】 This research was conducted to investigate cadmium (Cd) phytoextraction efficiency of the high geological background soils from Shilin, Fuyuan, and Luoping in Yunnan Province by the Cd/zinc (Zn) hyperaccumulator *Sedum plumbizincicola* and its effect on plant growth and Cd uptake by rice (*Oryza sativa*) through pot experiments. 【 Result 】 After triple-cropping of *S. plumbizincicola*, the total Cd and available Cd concentrations in soils showed a substantial decrease, with the total Cd decreasing to 24.8%, 30.9%, and 58.8% of the original values for soils from Shilin, Fuyuan, and Luoping, respectively. *S. plumbizincicola* showed better growth when grown in soils from Fuyuan developed from basalt with more soil nutrients but presented a greater Cd phytoextraction efficiency when grown in soils from Shilin developed from limestone with higher soil pH, thereby greater Cd mobilization capacity. These significant differences indicated that plant growth and heavy metal accumulation of hyperaccumulators were affected by the comprehensive effects of soil parent materials, soil nutrients, and heavy metal availability in soils. After a triple-cropping of *S. plumbizincicola*, Cd concentration in brown rice and rice straw was significantly decreased under flooding conditions through the whole growth period, resulting in a Cd-safe production. However, the rice grain possessed a high Cd pollution risk without phytoextraction when grown under a dry cultivation system. 【 Conclusion 】 The phytoextraction of high geological background soils by *S. plumbizincicola* combing with water management measures benefits greatly the safe production of rice crops, thereby providing a theoretical basis and technical support for the safe production of the high geological background soils.

Key words: Soil cadmium: High geological background: Phytoextraction: *Oryza sativa*: Water management

我国土壤重金属污染问题突出, 严重危及农作物安全生产^[1]。土壤重金属污染或异常成因可分为人为和自然来源两大类^[2-3], 其中, 后者主要表现为成土母质本身重金属含量高而导致土壤重金属富集^[4-5]。我国地质高背景地区土壤重金属超标率高、成因复杂且面积广, 主要分布于我国西南等地区^[5-6]。不同地区土壤重金属的富集类型不同, 包括残坡积型、运积型及次生富集型^[7]。成土母质的岩性、河流冲积类型以及风化侵蚀程度会影响土壤重金属的分布特征^[8-9]。

我国西南地区分布有大面积的玄武岩和碳酸盐岩, 土壤重金属元素富集程度高, 是典型的重金属元素地球化学高背景区^[4, 10-11]。例如, 云南省土壤镉 (Cd) 背景值为 $0.155 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$, 调查发现, 云南宣威热水镇碳酸盐岩分布区表层土壤 Cd 超标严重, 潜在生态风险达“中度污染”以上的样品占 10.9%^[12]; 贵州赫章县、威宁县、长顺县和册亨县农田土壤 Cd 超标率分别达 100%、100%、80%和 50%^[13]。地质高背景地区土壤重金属异常富集对农产品安全生产造成潜在危害, 调查发现马铃薯^[13]、水稻^[14]等主栽作物均存在超标现象。总体而言, 我国西南地质高背景区土壤重金属污染呈现“总量高、有效性低”的特征, 存在农作物可食部分重金属超标现象; 同时, 地质高背景区土壤母质的不同也可能导致重金属的有效性和作物吸收性差异较大^[14]。因此, 我国西南地质高背景区的农作物安全生产风险应予重视。

伴矿景天 (*Sedum plumbizincicola*) 是一种 Cd、锌 (Zn) 超积累植物^[15], 有关超积累植物是否能有效吸收、去除地质高背景土壤中的 Cd, 从而实现土壤 Cd 总量和有效态的降低以及农产品的安全生产, 尚鲜有报道; 超积累植物对地质高背景土壤上 Cd 的去除、修复能力与可行性尚待探讨。因此, 本研究以云南石林、富源和罗平等三地 Cd 高背景农田土壤为对象, 开展温室盆栽试验, 探究 Cd、Zn 超积累植物伴矿景天对云南典型地质高背景土壤 Cd 的吸取修复潜力, 进一步研究超积累植物吸取修复以及土壤水分调控对后茬水稻安全生产的影响, 以期对地质高背景土壤中 Cd 总量和有效态的降低以及农产品安全生产提供理论依据和技术支撑。

1 材料与方法

1.1 供试土壤与植物

供试土壤采自云南省昆明市石林县圭山镇海邑下海子村 (24.64° N , 103.55° E)、曲靖市富源县营山镇大坪村石板沟村 (25.49° N , 104.37° E) 和曲靖市罗平县马街镇拖康素村 (25.27° N , 104.24° E) 等地农田 0~20 cm 表层土壤, 均为云南典型镉地质高背景土壤。其中, 石林和罗平土壤母质均为石灰岩风化物, 土壤质地分别为粉砂质黏土、黏土; 富源土壤由玄武岩风化物发育, 土壤质地为黏土, 三地供试土壤部分

化学性质如表 1。将采集的土壤去除杂物,自然风干,破碎、研磨,过 10 目尼龙筛,混匀后装盆。供试伴矿

景天采自浙江省杭州市郊区的试验基地,供试水稻品种为甬优 15,由浙江富阳农业和林业局提供。

表 1 供试云南镉地质高背景土壤基本化学性质

Table 1 Selected chemical properties of the tested soils with a high cadmium geological background from Yunnan Province

土壤名称与采集地 Soil type and location	土壤代号 Soil code	pH	SOM/ (g·kg ⁻¹)	TN/ (g·kg ⁻¹)	TP/ (g·kg ⁻¹)	TK/ (g·kg ⁻¹)	AN/ (mg·kg ⁻¹)	AP/ (mg·kg ⁻¹)	AK/ (mg·kg ⁻¹)	TCd/ (mg·kg ⁻¹)	TZn/ (mg·kg ⁻¹)
水耕人为土,云南石林 ^①	PS-SL	6.13	35.8	1.49	1.07	28.6	59.8	3.40	39.8	0.72±0.03	253±24
铁铝土,云南富源 ^②	RS-FY	5.60	46.9	2.09	1.32	29.3	111	18.2	42.1	0.83±0.02	225±7
水耕人为土,云南罗平 ^③	PS-LP	6.72	46.6	2.00	1.69	18.2	112	57.0	111	0.78±0.05	215±14

注: SOM, 土壤有机质; TN, 全氮; TP, 全磷; TK, 全钾; AN, 碱解氮; AP, 有效磷; AK, 速效钾; TCd, 全量 Cd; TZn, 全量 Zn。Note: SOM, soil organic matter; TN, total nitrogen; TP, total phosphorus; TK, total potassium; AN, available nitrogen; AP, available phosphorus; AK, available potassium; TCd, total Cd; TZn, total Zn。①Stagnic Anthrosols, Shilin, Yunnan, ②Ferralsols, Fuyuan, Yunnan, ③Stagnic Anthrosols, Luoping, Yunnan.

1.2 试验设计与实施

1.2.1 试验一: 镉高背景土壤超积累植物吸取修复试验 试验在中国科学院南京土壤研究所(简称“土壤所”)玻璃温室进行,选取采集的三地土壤,设置两种处理:(1)种植伴矿景天;(2)不种植伴矿景天(对照),每处理重复 4 次,共 24 盆,每盆装土 1.5 kg(烘干基),种植 3 株伴矿景天。第一季吸取修复试验于 2019 年 9 月 15 日开始,生长 90 d 后(12 月 14 日)收获植株地上部;第二年种植水稻(详见试验二);水稻收获后放置一年,于 2021 年 10 月 10 日种植第二季伴矿景天,2022 年 3 月 31 日收获并留茬,继续种植第三季伴矿景天,6 月 15 日收获。试验在伴矿景天移栽或留茬 15 d 后施肥,每次施用分析纯尿素和磷酸二氢钾各 1.00 g;植物生长期注意浇水以保持土壤水分在田间持水量的 70%左右。

1.2.2 试验二: 植物吸取修复对后茬水稻生长及镉吸收影响试验 上述三地 Cd 地质高背景土壤,经伴矿景天吸取修复一季后,于土壤所温室开展水稻种植盆栽试验,同时设置“未经伴矿景天吸取修复”处理作为对照。水稻采用直播法,于 2020 年 5 月 31 日播种,出苗一周后定苗每盆 2 株,10 月 27 日收获。期间,分别于 6 月 8 日、6 月 25 日、7 月 2 日、9 月 9 日施用追肥,每次施用分析纯尿素和磷酸二氢钾各 1.00 g;具体水分管理措施为:播种后保持水层厚度约为 2 cm,出苗 45 d 后烤田 3 d,其后继续保持约 2 cm 淹水层。

1.2.3 试验三: 不同水分管理方式对镉高背景土壤上水稻生长和 Cd 吸收性影响试验 鉴于试验二中所有处理种植的水稻糙米 Cd 含量未超标,设计

了不同水分管理条件下的水稻种植试验,探究地质高背景土壤上种植水稻的安全风险,也进一步说明植物修复的必要性。本试验亦在土壤所玻璃温室进行,选取云南富源未进行植物吸取修复的 Cd 高背景土壤,设置三种水分管理方式:(1)淹水,保持盆栽水层距土表约 2 cm;(2)干湿交替,先浇水至约 2 cm 水层,土壤水分蒸腾、蒸发至约土壤最大田间持水量(WHC)的 60%左右再浇水至约 2 cm 水层,如此循环;(3)旱作,维持含水量在 WHC 的 60%~80%。每处理重复 4 次,共 12 盆。每盆装土 1.5 kg(烘干基)。水稻于 2021 年 6 月 8 日播种,出苗一周后定苗每盆 2 株,分别于 6 月 26 日、7 月 17 日、8 月 4 日、9 月 16 日施肥,每次施用分析纯尿素和磷酸二氢钾各 1.00 g。水稻烤田完成后,于 7 月 14 日开始实施不同水分管理方式,持续至 10 月 19 日收获。

1.2.4 样品采集与处理 采集试验一的伴矿景天地上部样品,先用自来水洗净,再用去离子水冲洗 2~3 次,用吸水纸吸干表面水分,105 °C 杀青 30 min、75 °C 下烘干至恒重,称取干物质质量,最后用不锈钢粉碎机磨碎。

采集试验二和试验三的水稻秸秆和稻穗。秸秆同上清洗烘干后,称重、不锈钢粉碎机磨碎。稻穗则晾干后脱粒,稻谷用小型砻谷机出糙,再用不锈钢粉碎机磨碎。

伴矿景天盆栽和水稻盆栽每盆土壤经充分混匀后,取鲜土约 100 g,风干后过 10 目和 100 目筛,用于测定土壤 Cd/Zn 全量和提取态浓度以及化学形态。

1.3 样品测定

土壤基本理化性质测定:参考《土壤农业化学

分析方法》^[16]。

土壤全量 Cd/Zn 测定: 称量约 0.200 0 g 过 100 目尼龙筛的土壤样品于聚四氟乙烯 (Polyfluoroalkoxy, PFA) 消解罐中, 加入 5 mL HNO₃ (GR) 和 5 mL HCl (GR) 在 105 °C 下密封消解 6 h, 放置电热板上蒸至约 1 mL 定容, 过滤, 消解液重金属浓度利用电感耦合等离子体质谱仪 (ICP-MS, Nexion 2000, Perkin Elmer, 美国) 测定。为保证分析质量, 每消解批次均包含土壤标准物质 GSS-5 进行质量控制, 其 Cd 和 Zn 浓度测定值均在参考值的 100%±10% 范围内; 同时, 每消解批次还设置试剂空白, 用以分析消解过程中可能存在的污染。

土壤 CaCl₂ 提取态 Cd/Zn 测定: 称量 2.50 g 过

10 目尼龙筛的土壤样品于 50 mL 离心管内, 加入 25 mL 0.01 mol·L⁻¹ 的 CaCl₂ 溶液, 置于水平振荡器中, 以 180 r·min⁻¹ 的频率振荡 2 h, 离心、过滤, 提取液重金属浓度利用电感耦合等离子体质谱仪 (ICP-MS, Nexion 2000, Perkin Elmer, 美国) 测定。

植物样品全量 Cd/Zn 测定: 采用 8 mL 1:3 的优级纯 H₂O₂-HNO₃ 混合酸进行消解, 利用电感耦合等离子体原子发射光谱仪 (ICP-OES, Avio™ 200, Perkin Elmer, 美国) 或 ICP-MS 测定。

土壤 Cd/Zn 化学形态测定: 采用 BCR (European Community Bureau of Reference, 欧洲共同体参比司) 连续分级提取法, 略作修改, 详细步骤见表 2。

表 2 BCR (欧洲共同体参比司) 连续分级提取步骤

Table 2 The BCR (European Community Bureau of Reference) analytical procedure for different chemical fractions of soil heavy metals

化学形态 Fractions	浸提剂 Extraction solutions	操作步骤 Steps
F1 (弱酸可溶态, Acid-soluble)	20 mL 0.11 mol L ⁻¹ CH ₃ CH ₂ COOH	室温振荡 16 h, 3 000 r·min ⁻¹ 离心 10 min, 过滤
F2 (可还原态, Reducible)	20 mL 0.50 mol L ⁻¹ NH ₂ OH·HCl (pH 2.00)	室温振荡 16 h, 3 000 r·min ⁻¹ 离心 10 min, 过滤
F3 (可氧化态, Oxidizable)	10 mL 30% H ₂ O ₂ ; 25 mL 1.0 mol L ⁻¹ NH ₄ OAc (pH 5.00)	30% H ₂ O ₂ 室温消化 1 h, 恒温水浴 (85±2 °C) 消化 1 h, 至体积小于 1 mL, 重复上述步骤; 然后加 NH ₄ OAc 溶液, 室温振荡 16 h, 3 000 r·min ⁻¹ 离心 20 min, 过滤
F4 (残渣态, Residual)	2 mL HNO ₃ + 1 mL HClO ₄ + 1 mL HF	2 mL 浓 HNO ₃ 和 1 mL HClO ₄ 120 °C 消解 2 h 后, 温度升至 200 °C 消解 4 h, 开盖蒸发掉 HNO ₃ 后加入 1 mL HF 继续消解 1 h, 待溶液清亮时 200 °C 蒸干, 然后用 1% HNO ₃ 溶液定容至 10 mL, 过滤上机

1.4 数据处理

植物吸取修复效率/% = (地上部生物量 (g·pot⁻¹) × 地上部重金属浓度 (mg·kg⁻¹)) / (修复前土壤重金属浓度 (mg·kg⁻¹) × 土壤质量 (g·pot⁻¹)) × 100。

所有数据使用 Excel 2016 和 SPSS 16.0 统计软件进行分析, 采用单因素方差分析 (ANOVA) 对处理间的差异进行检验 ($P < 0.05$), 多重比较方法为最小显著性差异法 (LSD)。

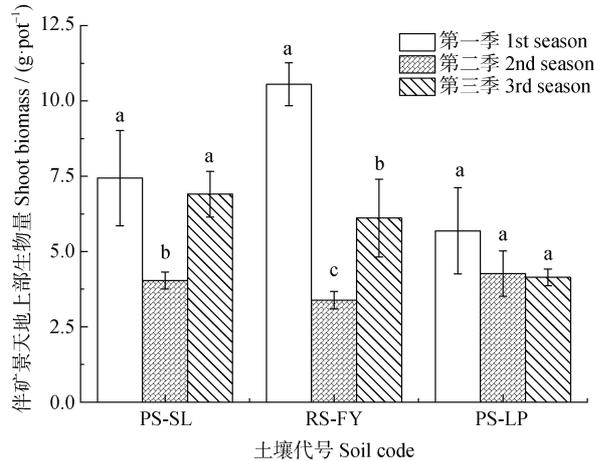
2 结果

2.1 镉地质高背景土壤上伴矿景天生物量及镉锌吸收

伴矿景天生物量结果显示, 第一季种植于富源

(RS-FY) 土壤上的伴矿景天长势最好, 其生物量较石林 (PS-SL) 和罗平 (PS-LP) 土壤上种植的伴矿景天分别高 42.0%、86.0% (图 1); 第二季和第三季伴矿景天生物量相较于第一季均显著降低, 除生长季节差异外, 还可能与镉锌有效性下降不利于超积累植物生长等因素有关。

修复第二季时, 种植于 PS-LP 土壤上的伴矿景天地上部 Cd、Zn 浓度均显著高于石林和富源, 分别为 PS-SL 和 RS-FY 土壤的 1.9 倍、1.2 倍 (图 2); 修复第三季时, 三地土壤上伴矿景天地上部 Cd 浓度无明显差异。RS-FY 和 PS-LP 土壤上第二季种植的伴矿景天地上部 Zn 浓度较高。综合第三季伴矿景天重金属吸取量, 计算植物吸取修复效率, 以 PS-SL 和 PS-LP 土壤上种植的伴矿景天 Cd 吸收量和修复



注：图中不同小写字母表示同一土壤上不同修复季间差异显著 ($P < 0.05$)。Note: Different lowercase letters indicate significant differences in different phytoextraction seasons in the same soil ($P < 0.05$). The same as below.

图 1 供试云南镉地质高背景土壤上伴矿景天生物量
Fig. 1 The dry biomass of *Sedum plumbizincicola* grown in the tested soils with a high Cd geological background from Yunnan Province

效率最高，其修复效率分别达 82.1%和 68.8%。伴矿景天对三地土壤 Zn 的吸收量较低，3 季修复效率仅为 5.53%~6.68%。

分析吸取修复前后供试地质高背景土壤 Cd、Zn 全量变化，发现伴矿景天吸取修复三季后土壤全量 Cd、Zn 浓度均显著低于修复前土壤，降低率分别为 24.8%~58.8%和 3.70%~26.3%，以罗平土壤的全量 Cd、Zn 降幅最大（表 3）。与修复前土壤相比，经

吸取修复 3 季后三地土壤的 CaCl_2 提取态 Cd、Zn 浓度均显著降低，RS-FY 土壤修复 3 季后 CaCl_2 提取态 Cd、Zn 浓度高于 PS-SL 和 PS-LP（表 3）。进一步分析 BCR 法连续提取态土壤 Cd、Zn 浓度变化（图 3），发现三个地质高背景土壤修复前后 Cd 均以可还原态和残渣态为主。相较于修复前土壤，修复 3 季后 PS-SL 和 RS-FY 土壤可还原态 Cd 比例降低、残渣态 Cd 比例增加，说明可还原态 Cd 被植物大量吸收；PS-LP 土壤则表现为可还原态 Cd 比例增加、可氧化态 Cd 比例降低的趋势，说明可能存在可氧化态 Cd 向可还原态 Cd 活化并被植物吸收的现象。供试三地土壤吸取修复前后土壤 Zn 形态均以残渣态为主，占比达 78.3%~94.4%。相较于修复前土壤，修复 3 季后 PS-SL 土壤 Zn 形态组成变化不明显；RS-FY 土壤弱酸可溶态、可还原态和可氧化态 Zn 比例降低，残渣态 Zn 比例增加，说明弱酸可溶态、可还原态和可氧化态 Zn 被超积累植物吸收；PS-LP 土壤则表现为弱酸可溶态、可还原态和可氧化态 Zn 比例增加、残渣态 Zn 比例降低的趋势。

2.2 超积累植物吸取修复对后茬水稻生长和镉锌吸收的影响

表 4 列出了经伴矿景天修复 1 季后与未经伴矿景天修复的土壤种植水稻的秸秆和糙米生物量。可以看出，经伴矿景天修复 1 季后的 PS-LP 和 RS-FY 土壤上种植水稻秸秆的生物量较未修复处理有所降低，而修复与否对后茬水稻糙米生物量的影响不显著。

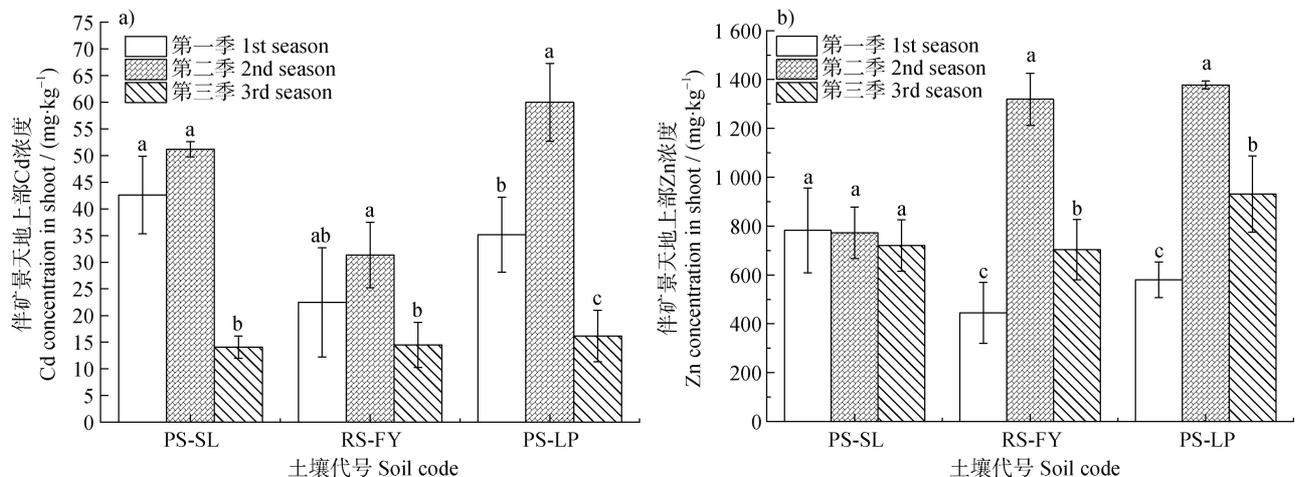


图 2 供试云南镉地质高背景土壤上伴矿景天地上部镉 (a) 和锌 (b) 浓度

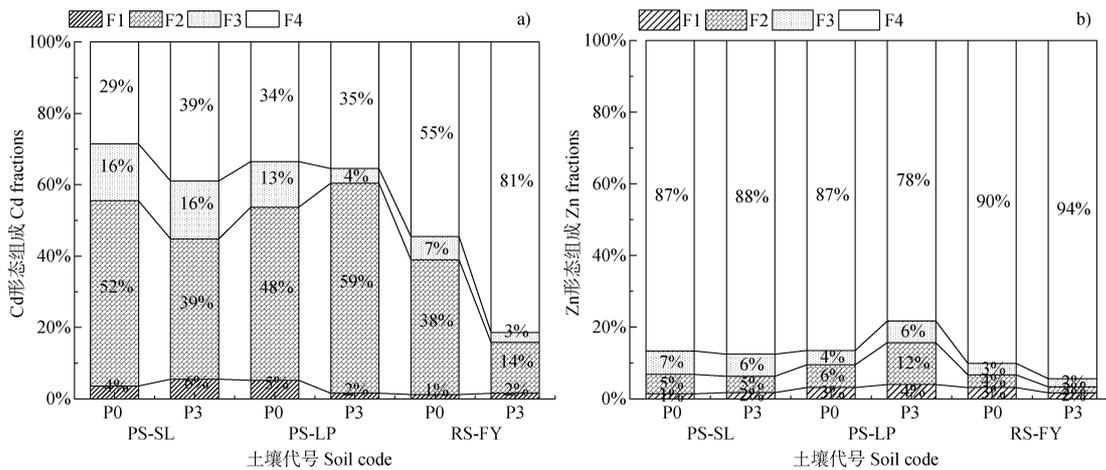
Fig. 2 Shoot Cd (a) and Zn (b) concentrations of *Sedum plumbizincicola* grown in the tested soils with a high Cd geological background from Yunnan Province

表 3 伴矿景天修复 3 季对云南镉地质高背景土壤全量及 CaCl₂ 提取态镉锌浓度的影响

Table 3 Effect of phytoextraction with three crops on the total and CaCl₂-extractable Cd and Zn concentrations of the three soils with a high Cd geological background from Yunnan Province

土壤代号 Soil code	修复 3 季后土壤全量镉锌 Soil total Cd and total Zn after the third season				CaCl ₂ 提取态镉锌 CaCl ₂ extractable Cd and Zn concentration/ (μg·kg ⁻¹)			
	浓度		降低率		未修复		修复 3 季后	
	Total concentration/(mg·kg ⁻¹)		Reducing rate/%		Before phytoextraction		After the third season	
	Cd	Zn	Cd	Zn	Cd	Zn	Cd	Zn
PS-SL	0.54±0.02	219±11	24.8	13.5	13.7±3.4*	55.8±11.0*	4.39±0.92	2.93±1.30
RS-FY	0.58±0.01	216±8	30.9	3.70	42.0±5.7*	534±167*	29.0±7.0	290±47
PS-LP	0.32±0.01	158±9	58.8	26.3	12.4±2.4*	29.3±15.6	2.18±1.25	13.5±4.3

注:表中“*”表示同一土壤修复前和修复 3 季后全量或 CaCl₂ 提取态重金属浓度差异显著 (P < 0.05)。Note:“*” indicate significant differences of total or CaCl₂-extractable metal concentrations between soil before phytoextraction and after the third season (P < 0.05) .



注: F1 为弱酸可溶态, F2 为可还原态, F3 为可氧化态, F4 为残渣态; P0 为修复前土壤, P3 为修复三季后土壤。Note: F1, acid soluble fraction; F2, reducible fraction; F3, oxidisable fraction; F4, residual fraction. P0, soil before phytoextraction; P3, soil after the third season.

图 3 连续修复 3 季对云南三地镉地质高背景土壤镉 (a) 和锌 (b) 化学形态组成的影响

Fig. 3 Effect of phytoextraction with three crops on Cd (a) and Zn (b) chemical fractions in the three soils with a high Cd geological background from Yunnan Province

表 4 植物吸取修复对镉地质高背景土壤上水稻生物量的影响

Table 4 Effect of phytoextraction on the biomass of rice cultivated in the soils with a high Cd geological background / (g·pot⁻¹)

土壤代号 Soil code	糙米生物量 Brown rice biomass		秸秆生物量 Straw biomass	
	未修复	修复 1 季后	未修复	修复 1 季后
	Before remediation	After remediation	Before remediation	After remediation
PS-SL	31.2±0.4	33.7±1.6	38.0±1.9	48.5±1.0
RS-FY	34.6±0.6	31.4±1.3**	50.7±1.2	40.5±1.3**
PS-LP	30.1±1.6	31.8±1.7	46.3±1.5	39.1±1.2**

注:表中“*”表示同一土壤经修复 1 季和未经修复处理间差异显著 (P < 0.05); “**”表示同一土壤经修复 1 季和未经修复处理间差异极显著 (P < 0.01)。下同。Note: “*” indicate significant differences in soils before remediation and after remediation with one season at P < 0.05; “**” indicate extremely significant differences in soils before remediation and after remediation with one season at P < 0.01. The same as below.

由表 5 可知,石林、富源、罗平等三地镉地质高背景土壤经伴矿景天吸取修复 1 季后种植水稻,其糙米 Cd 浓度均显著降低,降低幅度分别为 58.3%、33.3%和 33.3%。经伴矿景天吸取修复 1 季后,水稻糙米 Cd 浓度均远低于《食品安全国家标准 食品中

污染物限量》(GB 2762—2022)规定的水稻糙米 Cd 浓度 $0.2 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 限量;植物吸取修复对后茬水稻糙米 Zn 浓度影响与 Cd 相比不明显,仅修复 1 季后 RS-FY 土壤种植的水稻糙米 Zn 浓度较未修复处理显著降低。

表 5 植物吸取修复对镉地质高背景土壤上水稻糙米和秸秆镉、锌浓度的影响

Table 5 Effect of phytoextraction on Cd and Zn concentrations in brown rice and rice straw in the soils with a high Cd geological background/ ($\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$)

土壤代号 Soil code	糙米 Cd Brown rice Cd		秸秆 Cd Straw Cd		糙米 Zn Brown rice Zn		秸秆 Zn Straw Zn	
	未修复 Before remediation	修复 1 季后 After remediation						
PS-SL	0.12 ± 0.02	$0.05\pm 0.00^*$	0.21 ± 0.06	0.26 ± 0.04	36.7 ± 1.6	38.6 ± 0.9	81.8 ± 5.1	75.3 ± 5.1
RS-FY	0.09 ± 0.01	$0.06\pm 0.00^*$	0.42 ± 0.07	0.32 ± 0.06	43.4 ± 1.6	$35.1\pm 0.5^*$	95.2 ± 7.4	89.6 ± 6.3
PS-LP	0.09 ± 0.01	$0.06\pm 0.00^*$	0.35 ± 0.05	$0.19\pm 0.03^*$	37.2 ± 2.3	36.3 ± 1.6	70.5 ± 7.8	88.5 ± 4.7

2.3 水分管理对地质高背景土壤上水稻生长和镉锌吸收的影响

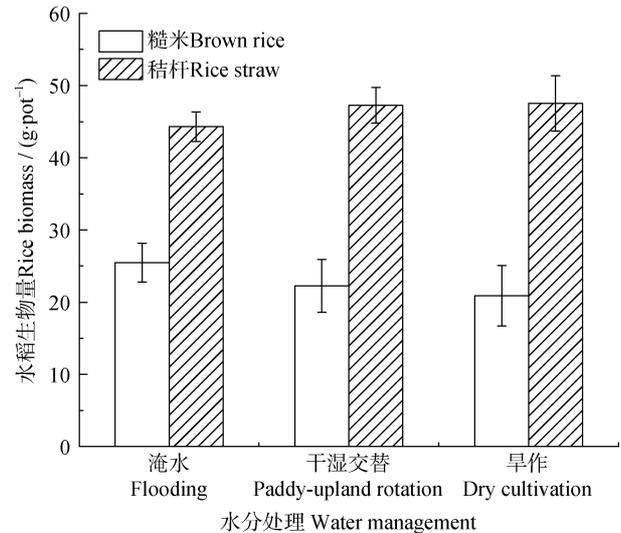
采用云南富源玄武岩风化物发育的镉地质高背景土壤,开展不同水分管理措施(淹水、干湿交替、旱作)对水稻生长和 Cd、Zn 吸收影响试验。图 4 结果显示,不同水分管理措施对水稻糙米和秸秆生物量的影响不显著。对水稻秸秆和糙米 Cd、Zn 浓度进行比较后发现,淹水处理下水稻糙米 Cd、秸秆 Cd 浓度显著低于旱作处理。与 Cd 变化趋势相似,淹水处理下水稻秸秆和糙米 Zn 浓度显著低于旱作处理(图 5)。

3 讨论

3.1 镉地质高背景土壤的超积累植物吸取修复效果

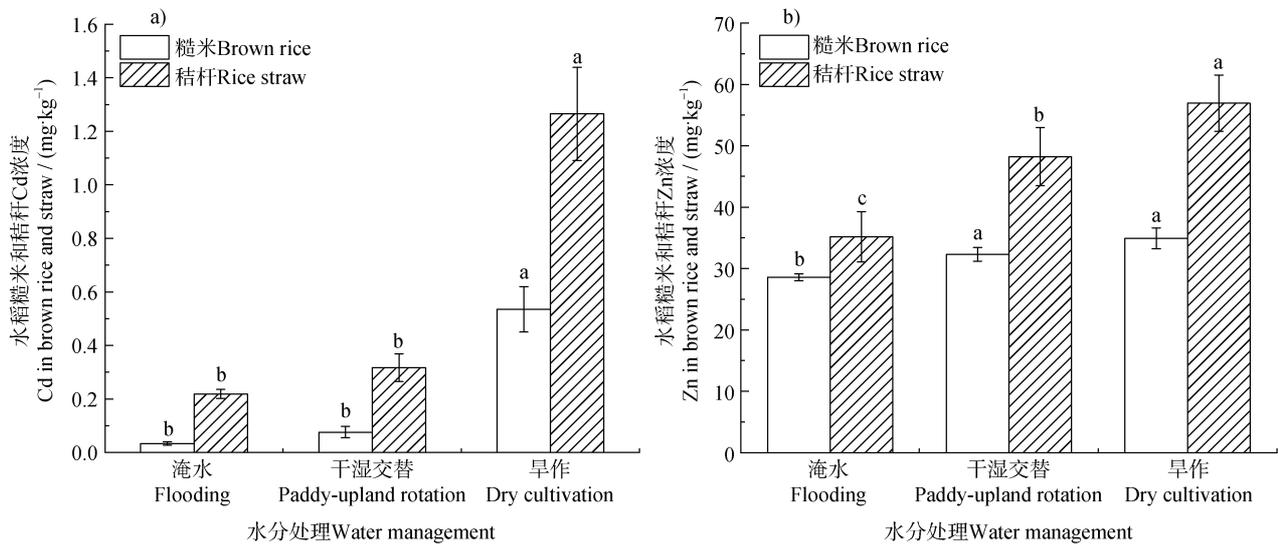
由图 1 和图 2 结果可知,镉地质高背景土壤上伴矿景天长势较好,但其生物量与文献[17-18]报道的相同盆栽土壤用量情形下相比略低,可能与供试土壤肥力相对较低以及地质高背景土壤镉锌有效性较低有关。据报道,Cd 与超积累植物的碳酸酐酶活性显著正相关^[19],Zn 是植物必需元素。因此,一定浓度范围内,土壤镉锌浓度的增加会促进植物的生长。然而,本研究供试三地土壤 Cd 全量小于 $1 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$,而 Zn 全量约为 $250 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$,且有效性

较人为重金属污染土壤低,不利于镉锌超积累植物的生长和对重金属的吸收。三地土壤中,第一季种植于富源土壤上的伴矿景天长势最好,可能与该土壤的肥力相对最高有关(表 1);第二季和第三季伴



注:图中不同水分处理下水稻糙米/秸秆生物量均无显著差异 ($P > 0.05$)。Note: There were no significant differences in the biomass of brown rice or rice straw under different water treatments ($P > 0.05$)。)

图 4 不同水分处理对水稻糙米和秸秆生物量的影响
Fig. 4 Effect of different water treatments on biomass of brown rice and rice straw



注：不同小写字母表示相同部位不同水分处理下水稻 Cd/Zn 浓度差异显著 ($P < 0.05$)。Note: Different lowercase letters indicate significant differences for Cd/Zn concentrations of rice in the same organ under different water treatments ($P < 0.05$).

图 5 不同水分管理措施对水稻糙米和秸秆镉 (a)、锌 (b) 浓度的影响

Fig. 5 Effect of different water managements on Cd (a) and Zn (b) concentrations of brown rice and rice straw

矿景天生物量相较于第一季均有显著降低，除生长季节差异外，连续修复过程中土壤镉锌有效性下降，也将不利于超积累植物生长。

通常，超积累植物对土壤有效态重金属的快速吸收将导致第二季超积累植物体内重金属浓度显著降低^[17-18]。本研究中，Cd 地质高背景土壤上超积累植物吸取修复第二季，其地上部 Cd 浓度高于第一季；第三季则大幅降低，且低于第一季和第二季 (图 2a)。由此可见，三季的整体变化趋势与前期研究结果^[20]相一致。伴矿景天第二季地上部 Cd 浓度增加可能主要与植物生长的“稀释效应”有关，第一季由于土壤养分供应相对充足，伴矿景天生长更好，地上部 Cd 浓度较低；第二季由于连续修复过程中土壤养分和镉锌有效性下降，伴矿景天生长变差，地上部 Cd 浓度较高。伴矿景天第三季地上部 Cd 浓度显著降低，一是与土壤有效 Cd 的耗竭有关，二是留茬后伴矿景天地上部 Cd、Zn 浓度一般低于再次扦插的植物^[21]。对于 Zn 吸收而言，伴矿景天地上部 Zn 浓度总体上表现为第二季和第三季均高于第一季，以第二季最高 (图 2b)。其中，罗平土壤 (PS-LP) 上生长的伴矿景天第三季地上部 Zn 浓度较第一季增幅更大，主要与土壤残渣态 Zn 的活化吸收有关 (图 3)。供试三地土壤经伴矿景天吸取修复

三季后，土壤 Cd、Zn 全量和有效性均大幅下降，为后茬农作物的安全生产提供了可能性。供试三地土壤中，罗平土壤上种植的伴矿景天三季 Cd、Zn 吸取修复效率最高，修复后土壤 Cd、Zn 降低率最高，且 Cd 有效性最低 (表 3)，可能与伴矿景天连续种植过程中对土壤 Cd 的活化吸收作用 (图 3) 有关。罗平土壤 (PS-LP) pH 呈中性，高于石林和富源，伴矿景天对其酸化作用更为明显^[22-23]。供试三种土壤上植物生长和重金属积累的差异，可能还与土壤母质有关，罗平土壤为石灰岩发育土壤，K、Ca、Mg 含量丰富；富源土壤由玄武岩发育而来，长期风化过程中，盐基离子易损失，且质地较黏，不利于植物生长。由表 1 数据可知，罗平土壤速效钾含量最高，这一定程度上反映了土壤母质的差异。土壤钾养分的充足供应可促进伴矿景天生长和镉锌向地上部的转运和积累^[24]。此外，三地土壤伴矿景天重金属积累的差异还可能受耕作利用后土壤养分与重金属有效性等的综合影响^[25-26]。

3.2 镉地质高背景土壤上农作物安全生产

碳酸盐岩发育的地质高背景土壤通常呈现出“Cd 总量高、有效性低”的特点，作物 Cd 超标风险普遍较低^[9, 15]。例如，代子雯等^[27]利用广西云表碳酸盐岩母质高背景土壤 (全量 Cd $2.66 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$) 开

展水稻盆栽试验,发现糙米 Cd 均未超过国家限值(GB 2762—2017)。唐豆豆等^[14]对浙江北部丘陵地区和广西中部岩溶地区碳酸盐岩高背景土壤和水稻重金属含量进行采样调查,发现两地地质高背景土壤上水稻糙米 Cd 超标风险较低,明显低于人为污染农田土壤。本研究中,罗平、石林、富源等三地 Cd 地质高背景土壤上生长的水稻,糙米 Cd 浓度为 0.09~0.12 mg·kg⁻¹(表 5),不存在超标现象(参照 GB 2762—2022),一定程度上说明了供试高背景土壤 Cd 生物有效性不高的现象。经伴矿景天吸取修复一季后,石林、富源和罗平等三地土壤上种植的水稻糙米 Cd 浓度均明显降低,降幅分别达 58.3%、33.3%和 33.3%(表 5)。伴矿景天吸取修复显著降低了土壤 Cd 全量和生物有效性(表 3),因而后茬水稻重金属吸收明显降低,为后茬作物的安全生产提供了保障。本研究中,考虑到伴矿景天残茬会增加土壤重金属有效性从而使下一季作物地上部积累增加的问题,经伴矿景天吸取修复一季后,第二年夏季种植水稻,此时伴矿景天根系残茬已基本腐解,释放的 Cd 也已被土壤固相吸附固定,水稻重金属吸收主要与土壤总量和固相的释放有关,更接近于常规水稻种植的结果^[18]。水稻收获后连续种植两季伴矿景天,目的是进一步探究 Cd 超积累植物是否能够大幅降低地质高背景土壤 Cd 总量和有效性,以期实现高背景、农产品超标土壤的“长久安全利用”。相似的,程晨等^[28]关于人为源重金属污染土壤修复的研究也发现,经超积累植物吸取修复两季后,水稻籽粒 Cd 浓度下降了 70.0%~75.6%。本研究中 Cd 地质高背景土壤上伴矿景天的吸取修复作用与人为污染土壤上的修复效应相似^[29],只是 Cd 去除效率略低^[28, 30],这与地质高背景土壤重金属有效性较低的特性相吻合。

3.3 水分管理对地质高背景土壤上水稻镉吸收与安全生产的影响

大量研究证明,重金属污染土壤上种植水稻结合淹水等农艺调控措施,可有效降低稻田土壤 Cd 有效性和糙米 Cd 浓度^[31-32]。本研究利用富源玄武岩风化物发育的镉地质高背景土壤,探讨不同水分管理措施(淹水、干湿交替、旱作)对水稻 Cd 吸收的影响,也获得了一致结论(图 5)。这主要是因为,淹水条件下土壤 pH 趋于中性,土壤重金属有效性较低^[33-34];其次,长期淹水使土壤氧化-还原电

位(Eh)迅速下降,硫酸盐在厌氧条件下被还原为 S²⁻,与土壤中 Cd 等重金属形成沉淀,显著降低其有效性^[34-35]。

云南部分地区水稻灌溉主要依靠自然降雨,水稻生长期内稻田水分变化大;部分地方因不具备灌溉条件而选择种植旱稻^[36]。本研究发现,旱作处理条件下糙米 Cd 浓度较淹水处理高达 10 倍(图 5),说明旱作条件下云南镉地质高背景土壤上生长的水稻仍有较大的糙米 Cd 超标隐患,需采取相应的修复措施降低 Cd 全量及有效态浓度,确保 Cd 地质高背景地区土壤 Cd 的作物有效性足够低,才能实现水稻长期安全生产。因此,依据地质高背景土壤污染特征,有效结合超积累植物吸取修复技术和农艺调控措施,对于地质高背景土壤的“长久、安全利用”十分必要。

4 结 论

云南石林、富源、罗平等地 Cd 地质高背景土壤经伴矿景天吸取修复三季后,土壤全量和有效 Cd 浓度均大幅下降;伴矿景天吸取修复一季使后茬水稻糙米 Cd 显著下降,利于实现安全生产;淹水管理下水稻糙米和秸秆 Cd 浓度大幅度降低,旱作条件下稻米仍有一定的超标风险,植物吸取修复可有效降低地质高背景土壤 Cd 全量和有效性,利于糙米 Cd 吸收量的降低,保障农产品安全生产。

参考文献 (References)

- [1] Zhao F J, Ma Y B, Zhu Y G, et al. Soil contamination in China: Current status and mitigation strategies[J]. *Environmental Science & Technology*, 2015, 49(2): 750—759.
- [2] Dai B, Lü J S, Zhan J C, et al. Assessment of sources, spatial distribution and ecological risk of heavy metals in soils in a typical industry-based city of Shandong Province, Eastern China[J]. *Environmental Science*, 2015, 36(2): 507—515. [戴彬, 吕建树, 战金成, 等. 山东省典型工业城市土壤重金属来源、空间分布及潜在生态风险评价[J]. *环境科学*, 2015, 36(2): 507—515.]
- [3] Zhan J, Li X Y, Christie P, et al. A review of soil potentially toxic element contamination in typical karst regions in Southwest China[J]. *Current Opinion in Environmental Science & Health*, 2021, 23: 100284.
- [4] Cao J H, Yuan D X, Tong L Q, et al. An overview of karst ecosystem in Southwest China: Current state and future

- management[J]. Journal of Resource and Ecology, 2015, 6 (4): 247—256.
- [5] Wen Y B, Li W, Yang Z F, et al. Enrichment and source identification of Cd and other heavy metals in soils with high geochemical background in the Karst region, Southwestern China[J]. Chemosphere, 2020, 245: 125620.
- [6] Luo H, Liu X M, Wang S J, et al. Pollution characteristics and sources of cadmium in soils of the karst area in South China[J]. Chinese Journal of Ecology, 2018, 37 (5): 1538—1544. [罗慧, 刘秀明, 王世杰, 等. 中国南方喀斯特集中分布区土壤 Cd 污染特征及来源[J]. 生态学杂志, 2018, 37 (5): 1538—1544.]
- [7] Sun B, Wei Z M, Zhang L H, et al. Distribution of heavy metals and microbial community structure in soils high in geological background value[J]. Acta Pedologica Sinica, 2021, 58 (5): 1246—1255. [孙斌, 魏志敏, 张力浩, 等. 地质高背景土壤重金属赋存特征及微生物群落结构差异[J]. 土壤学报, 2021, 58 (5): 1246—1255.]
- [8] Huang J, Li X Y, Wen S, et al. Effects of water management on soil properties and Cd behavior of typical paddy soils[J]. Environmental Science, 2020, 41 (7): 3418—3425. [黄敬, 李欣阳, 文沙, 等. 不同母质发育土壤 Cd 环境行为对水分管理模式响应差异[J]. 环境科学, 2020, 41 (7): 3418—3425.]
- [9] Sun B. Accumulation characteristics and impact factors of rice cadmium accumulation in paddy soils with different high geological backgrounds[D]. Nanjing: Nanjing Agricultural University, 2020. [孙斌. 不同地质高背景农田土壤水稻 Cd 积累特征及影响因素[D]. 南京: 南京农业大学, 2020.]
- [10] Tang R L, Wang H Y, Lü X P, et al. Ecological risk assessment of heavy metals in farmland system from an area with high background of heavy metals, southwestern China[J]. Geoscience, 2020, 34 (5): 917—927. [唐瑞玲, 王惠艳, 吕许朋, 等. 西南重金属高背景区农田系统土壤重金属生态风险评估[J]. 现代地质, 2020, 34 (5): 917—927.]
- [11] Liu H Y, Tu Y, Gu X F, et al. Accumulative effect and environmental impact of cadmium in farmland soil with high background of geochemistry[J]. Journal of Mountain Agriculture and Biology, 2018, 37 (5): 1—5. [刘鸿雁, 涂宇, 顾小凤, 等. 地球化学高背景农田土壤重金属镉的累积效应及环境影响[J]. 山地农业生物学报, 2018, 37 (5): 1—5.]
- [12] Zhang F G, Peng M, Wang H Y, et al. Ecological risk assessment of heavy metals at township scale in the high background of heavy metals, Southwestern China[J]. Environmental Science, 2020, 41 (9): 4197—4209. [张富贵, 彭敏, 王惠艳, 等. 基于乡镇尺度的西南重金属高背景区土壤重金属生态风险评估[J]. 环境科学, 2020, 41 (9): 4197—4209.]
- [13] Wang X L, Liu H Y, Zhou X Y, et al. Risk threshold for soil cadmium, based on potato quality in a high geological background area[J]. Journal of Agro-Environment Science, 2021, 40 (2): 355—363. [王旭莲, 刘鸿雁, 周显勇, 等. 地质高背景区马铃薯安全生产的土壤镉风险阈值[J]. 农业环境科学学报, 2021, 40 (2): 355—363.]
- [14] Tang D D, Yuan X Y, Wang Y M, et al. Enrichment characteristics and risk prediction of heavy metals for rice grains growing in paddy soils with a high geological background[J]. Journal of Agro-Environment Science, 2018, 37 (1): 18—26. [唐豆豆, 袁旭音, 汪宜敏, 等. 地质高背景农田土壤中水稻对重金属的富集特征及风险预测[J]. 农业环境科学学报, 2018, 37 (1): 18—26.]
- [15] Li S L, Li N, Xu L S, et al. Characters of Zn and Cd accumulation and distribution in leaves of *Sedum plumbizincicola* at different ages[J]. Soils, 2010, 42 (3): 446—452. [李思亮, 李娜, 徐礼生, 等. 不同生境下锌镉在伴矿景天不同叶龄叶中的富集与分布特征[J]. 土壤, 2010, 42 (3): 446—452.]
- [16] Lu R K. Analytical methods for soil and agro-chemistry[M]. Beijing: China Agricultural Science and Technology Press, 2000. [鲁如坤. 土壤农业化学分析方法[M]. 北京: 中国农业科技出版社, 2000.]
- [17] Jiang J P, Wu L H, Li N, et al. Effects of multiple heavy metal contamination and repeated phytoextraction by *Sedum plumbizincicola* on soil microbial properties[J]. European Journal of Soil Biology, 2010, 46: 18—26.
- [18] Hu P J, Zhang Y, Dong B, et al. Assessment of phytoextraction using *Sedum plumbizincicola* and rice production in Cd-polluted acid paddy soils of south China: A field study[J]. Agriculture, Ecosystems and Environment, 2019, 286: 106651.
- [19] Liu M Q, Yanai J, Jiang R F, et al. Does cadmium play a physiological role in the hyperaccumulator *Thlaspi caerulescens*[J]. Chemosphere, 2008, 71 (7): 1276—1283.
- [20] Deng L, Li Z, Wang J, et al. Long-term field phytoextraction of zinc/cadmium contaminated soil by *Sedum plumbizincicola* under different agronomic strategies[J]. International Journal of Phytoremediation, 2016, 18 (2): 134—140.
- [21] Li N. Phytoextraction of heavy metal contaminated soil by *Sedum plumbizincicola* under different agronomic strategies[D]. Nanjing: Institute of Soil Science, Chinese Academy of Sciences, 2008. [李娜. 重金属污染土壤的伴矿景天吸取修复及其农艺调控研究[D]. 南京: 中国科学院南京土壤研究所, 2008.]
- [22] Li T Q. Mechanisms of zinc activation, absorption and transport by hyperaccumulator of *Sedum alfredii* Hance[D]. Hangzhou: Zhejiang University, 2005. [李廷强. 超积累植物东南景天 (*Sedum alfredii* Hance) 对锌的活化、吸收及转运机制研究[D]. 杭州: 浙江大学,

- 2005.]
- [23] Li T Q, Tao Q, Liang C F, et al. Complexation with dissolved organic matter and mobility control of heavy metals in the rhizosphere of hyperaccumulator *Sedum alfredii*[J]. Environmental Pollution, 2013, 18: 248—255.
- [24] Shen L B, Wu L H, Han X R, et al. Effects of nutrient regulation and control on plant growth and Zn/Cd uptake by hyperaccumulator *Sedum plumbizincicola*[J]. Soils, 2011, 43 (2): 221—225. [沈丽波, 吴龙华, 韩晓日, 等. 养分调控对超积累植物伴矿景天生长及锌镉吸收性的影响[J]. 土壤, 2011, 43 (2): 221—225.]
- [25] Wen Y B, Li W, Yang Z F, et al. Evaluation of various approaches to predict cadmium bioavailability to rice grown in soils with high geochemical background in the Karst region, Southwestern China[J]. Environmental Pollution, 2020, 258: 113645.
- [26] Zhang Z M, Wu X L, Tu C L, et al. Relationships between soil properties and the accumulation of heavy metals in different *Brassica campestris* L. growth stages in a Karst mountainous area[J]. Ecotoxicology and Environmental Safety, 2020, 206: 111150.
- [27] Dai Z W, Fang C, Sun B, et al. Cadmium accumulation characteristics and impacting factors of different rice varieties under paddy soils with high geological backgrounds[J]. Environmental Science, 2021, 42 (4): 2016—2023. [代子雯, 方成, 孙斌, 等. 地质高背景农田土壤下不同水稻品种对 Cd 的累积特征及影响因素[J]. 环境科学, 2021, 42 (4): 2016—2023.]
- [28] Cheng C, Gao W Y, Hu P J, et al. Effects of phytoextraction and stabilization on Cd uptake by rice[J]. Soils, 2017, 49 (3): 476—481. [程晨, 高文娅, 胡鹏杰, 等. 植物吸取修复及钝化处理对后茬水稻镉吸收的影响[J]. 土壤, 2017, 49 (3): 476—481.]
- [29] Li Z, Jia M Y, Wu L H, et al. Changes in metal availability, desorption kinetics and speciation in contaminated soils during repeated phytoextraction with the Zn/Cd hyperaccumulator *Sedum plumbizincicola*[J]. Environmental Pollution, 2016, 209: 123—131.
- [30] Wu L H, Zhou J W, Zhou T, et al. Estimating cadmium availability to the hyperaccumulator *Sedum plumbizincicola* in a wide range of soil types using a piecewise function[J]. Science of the Total Environment, 2018, 637/638: 1342—1350.
- [31] Hu P J, Ouyang Y N, Wu L H, et al. Effects of water management on arsenic and cadmium speciation and accumulation in an upland rice cultivar[J]. Journal of Environmental Sciences, 2015, 27: 225—231.
- [32] Chen H P, Wang P, Gu Y, et al. The within-field spatial variation in rice grain Cd concentration is determined by soil redox status and pH during grain filling[J]. Environmental Pollution, 2020, 261: 114151.
- [33] Huang B Y, Zhao F J, Wang P. The relative contributions of root uptake and remobilization to the loading of Cd and As into rice grains: Implications in simultaneously controlling grain Cd and As accumulation using a segmented water management strategy[J]. Environmental Pollution, 2022, 293: 118497.
- [34] Li H B, Zhang H Q, Yang Y J, et al. Effects and oxygen-regulated mechanisms of water management on cadmium (Cd) accumulation in rice (*Oryza sativa*) [J]. Science of the Total Environment, 2022, 846: 157484.
- [35] Liu Z, Wang Q Q, Huang S Y, et al. The risks of sulfur addition on cadmium accumulation in paddy rice under different water-management conditions[J]. Journal of Environmental Sciences, 2022, 118: 101—111.
- [36] Xu J X, Yang J, Li S Z, et al. Effect of drought stress on major agronomic traits of Yunnan upland rice varieties cultivated in the paddy and upland field[J]. Chinese Agricultural Science Bulletin, 2014, 30 (30): 111—116. [徐建欣, 杨洁, 李树忠, 等. 水分胁迫对云南陆稻主要农艺性状的影响[J]. 中国农学通报, 2014, 30 (30): 111—116.]

(责任编辑：陈荣府)