

乙二胺四乙酸(EDTA)和乙二胺二琥珀酸(EDDS)对污染土壤中Cd、Pb的浸提效果及其风险评估*

赵娜^{1,2} 崔岩山² 付彧² 谢建治^{1**}

(1. 河北农业大学资源与环境科学学院,保定,071000; 2. 中国科学院研究生院,北京,100049)

摘要 为了研究EDTA和EDDS对污染土壤中Cd、Pb的去除效果和去除后土壤中Cd、Pb的风险,利用不同浓度的EDTA和EDDS(0.5、10、20、30、50 mmol·L⁻¹)对污染土壤中Cd、Pb进行浸提,并利用*in vitro*方法(人工模拟胃肠系统)对浸提后的土壤进行风险评估。结果表明,EDTA对Cd的去除率显著高于EDDS,EDTA对Cd的去除率最高为82.4%;EDDS对Cd的去除率最高为46.8%。在5—30 mmol·L⁻¹范围内,同浓度下,EDDS对Pb去除显著高于EDTA,两种整合剂在50 mmol·L⁻¹时对Pb的去除无显著差异。*in vitro*实验表明污染土壤浸提后Cd、Pb的生物可给性显著降低。经EDDS浸提后Cd的生物可给性低于EDTA浸提后,Pb的生物可给性高于EDTA浸提后的结果。

关键词 EDTA,EDDS,重金属,去除率,生物可给性。

土壤重金属污染是当今危害最大的环境问题之一。土壤重金属污染修复的主要方法有物理、化学和生物等方法^[1]。在土壤化学修复方法中,化学淋洗方法由于其修复时间短、对重金属去除率较高,同时也可与其它的修复技术联用而受到较广泛的关注^[2]。

在土壤化学淋洗过程中,EDTA(乙二胺四乙酸)和[S,S]-EDDS([S,S]-乙二胺二琥珀酸)是常用的两种整合剂。EDTA对金属离子有很高的整合能力,所以其对重金属的去除效果一般高于其它淋洗剂,同时,有研究表明,使用EDTA提取重金属后,对土壤的物理及化学性质的影响要小于酸洗方法^[3-4]。但是EDTA在环境中非常稳定,不易被降解,在土壤中残留时间较长^[5]。近年来,一种可生物降解的整合剂[S,S]-EDDS由于对重金属有很好的去除效果,同时,又有较好的生物可降解性,因而其在土壤重金属污染修复中的应用引起了人们的关注^[6-8]。

污染土壤修复后,如何评价其修复效果,是一项非常重要的研究工作。对于污染土壤修复后的风险评估方法,目前主要有土壤微生物试验^[9]、*in vitro*方法^[10]等。土壤微生物试验主要利用土壤中微生物的生物量、种类组成、功能、种间的相互作用等的变化,作为监测土壤质量变化的敏感指标。*In vitro*方法其中一种就是利用人工模拟的胃肠系统研究土壤进入人体后被人体吸收的可能性。一般把污染土壤中重金属(如Cd、Pb)进入人体的消化系统并可以被人体胃肠道溶解的部分与土壤中重金属总量的比值称为重金属(如Cd、Pb)的生物可给性^[11]。通过分析重金属的总量及生物可给性来判定重金属对人体的风险。由于*in vitro*方法操作简单,费用较低,易于控制,从而受到越来越多的研究者关注。

本文将利用不同浓度的EDTA和EDDS(0.5、10、20、30、50 mmol·L⁻¹)对污染土壤中Cd、Pb浸提,并利用*in vitro*方法(人工模拟胃肠系统)对浸提后的土壤进行风险评估,相关研究结果将为EDTA和EDDS应用于污染土壤修复及修复后土壤的健康风险评估提供参考。

1 材料与方法

1.1 供试土壤

实验土壤采自内蒙古某矿区。土壤采集后,风干,过20目筛,用于分析土壤的基本性质。土壤的pH

2010年6月4日收稿。

* 国家高技术研究发展计划(863)项目(2008AA06Z336)资助。

** 通讯联系人, E-mail: xjianzhi@126.com

值为7.7,有机质为1.4%,粘粒含量为8.2%,Cd全量为 $38.4 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$,Pb全量为 $5576.0 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 。所采集的土壤进一步过60目筛,用于重金属浸提及*in vitro*实验。

1.2 供试螯合剂

本实验所用的螯合剂为 $\text{Na}_2\text{-EDTA}$ (乙二胺四乙酸二钠,北京北化精细化学品有限责任公司)和 $\text{Na}_3\text{-[S S]-EDDS}$ ([S S]-乙二胺二琥珀酸三钠,Sigma-Aldrich公司)。

1.3 浸提试验

称取土样2.00 g置于一系列50 mL塑料离心管中,分别加入20 mL(土:液=1:10)浓度为5、10、20、30、50 $\text{mmol}\cdot\text{L}^{-1}$ $\text{Na}_2\text{-EDTA}$ 、 $\text{Na}_3\text{-[S S]-EDDS}$,每处理重复3次。以振速为 $250 \text{ 次}\cdot\text{min}^{-1}$ 振荡24 h后,以 $5000 \text{ r}\cdot\text{min}^{-1}$ 离心10 min,将所收集到的离心液全部过 $0.45 \mu\text{m}$ 膜待测。

$$\text{重金属去除率}(\%) = \text{重金属浸提量} / \text{土壤中重金属总量} \times 100\%$$

1.4 *in vitro*人工模拟胃肠实验

主要采用Ruby等^[12]提出的实验方法,并参考Rodriguez等^[13]的方法,进行了改进,它由两个连续的阶段组成,即胃阶段和小肠阶段,具体操作步骤如下:胃阶段分析每批样品时,先配制模拟胃液2 L,(内含 $0.15 \text{ mmol}\cdot\text{L}^{-1}$ NaCl,加入柠檬酸1 g、苹果酸1 g、乳酸0.84 mL、冰乙酸1 mL)用浓盐酸将pH值调到1.5,再加入胃蛋白酶(Sigma)2.5 g,将100 mL模拟胃液以及1 g风干土一并放入反应器(300 mL塑料瓶)中,置于 $37 \text{ }^\circ\text{C}$ 恒温水浴摇床中, $100 \text{ r}\cdot\text{min}^{-1}$ 振荡1 h,吸取10 mL反应液,过 $0.45 \mu\text{m}$ 滤膜, $4 \text{ }^\circ\text{C}$ 保存待测。小肠阶段用 NaHCO_3 饱和溶液将反应液pH值调至7,在每个反应器中加入胰酶(Sigma)0.054 g,胆盐(Sigma)0.18 g,继续置于 $37 \text{ }^\circ\text{C}$ 恒温水浴摇床中, $100 \text{ r}\cdot\text{min}^{-1}$ 振荡4 h,其间,每隔30 min测定反应液pH值,并使其保持为7,吸取10 mL反应液,过 $0.45 \mu\text{m}$ 滤膜, $4 \text{ }^\circ\text{C}$ 保存待测。

胃阶段或小肠阶段Cd、Pb的生物可给性可由下式计算:

$$\text{BA}(\%) = (C_N \cdot V_N) / (T_S \cdot M_S) \times 100\%$$

式中,BA为特定重金属的生物可给性(%); C_N 是评价实验的胃阶段或者小肠阶段反应液中特定Cd、Pb的可溶态总量($\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$); V_N 为各反应器中反应液的体积(L),本实验为0.1 L; T_S 是土壤样品中Cd、Pb的总量($\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$); M_S 为加入反应器中的土壤样品的重量(kg),本实验为0.001 kg。

1.5 土壤基本理化性质及胃肠液中Cd、Pb分析

土壤pH值采用水提取(土溶液=1:2.5)测定^[14];土壤有机质采用水合热重铬酸钾氧化-比色法^[15]测定;土壤粒径分级采用吸管法测定^[14];浸提液中Cd、Pb总量采用ICP-OES(Perkin-Elmer OP-TIAM-2000,USA)测定;土壤采用王水, HClO_4 消解(王水 $\text{HClO}_4 = 3:1$,体积比);Cd、Pb总量用ICP-OES测定;模拟胃肠液样品中的Cd、Pb采用ICP-OES测定。

1.6 数据分析方法

数据采用SPSS16.0统计软件进行分析,采用LSD检验法对数据进行差异显著性分析。

2 结果与讨论

2.1 土壤中Cd、Pb的去除

随EDTA、EDDS浓度的增加Cd的去除量显著增加(图1)。同一浓度下,EDTA去除Cd的量显著高于EDDS,这与Tandy等^[8]和胡忻等^[16]的研究结果一致。EDTA在浓度为 $50 \text{ mmol}\cdot\text{L}^{-1}$ 时,去除Cd的量为 $31.6 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$,去除率为82.4%。许超等^[17]利用 50 mmol EDTA对矿区土壤中Cd(总量为 $1.55 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$)的去除研究发现,Cd的去除率为45%。周涛等^[2]研究发现在人为模拟重金属污染土壤中,当EDTA与重金属总量比为2.0时,EDTA对Cd的去除率为80.6%。可见,不同研究中,EDTA对土壤Cd提取率差异很大。这与EDTA的浓度、土壤中Cd含量及形态、土壤性质、土壤的污染状态等因素有关。雷鸣等^[3]也指出EDTA对土壤重金属的提取效率取决于重金属的浓度及其迁移性以及Ca、Mg和Fe等其它离子的影响。EDDS在浓度为 $5 \text{ mmol}\cdot\text{L}^{-1}$ 时,去除Cd的量为 $6.4 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$,去除率为16.7%,浓度为 $50 \text{ mmol}\cdot\text{L}^{-1}$ 时,去除量为 $18.3 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$,去除率达46.8%。胡忻^[16]等用 4 mmol EDDS对污泥中Cd的提取率为18%—24%。本研究中采用的EDDS浓度为5—50 mmol,对Cd的提取率比胡忻等的提取率

要高,表明EDDS对土壤Cd的去除率与污染土壤的性质以及EDDS的浓度等因素有关.随EDTA、EDDS浓度的增加Pb的去除量显著增加(图2).浓度在5—50 mmol·L⁻¹变化时,EDTA去除Pb的量差异极显著($p < 0.01$).EDTA浓度为50 mmol·L⁻¹时对Pb的去除达到最大值,去除量为4646.7 mg·kg⁻¹,去除率为83.3%.周涛等^[2]的研究也表明,随EDTA浓度的增加,能显著提高Pb的去除量.EDDS浓度在5—30 mmol·L⁻¹变化时,Pb的去除量随EDDS的增加呈极显著增加($p < 0.01$),浓度为30 mmol·L⁻¹和50 mmol·L⁻¹时,EDDS对Pb的去除差异不显著.50 mmol·L⁻¹的EDDS对Pb的去除最大,去除量为4674.4 mg·kg⁻¹,去除率为83.8%.Cao等^[18]的研究表明EDDS浓度为20 mmol·L⁻¹时对Pb的去除为67%,本实验中,EDDS浓度为20 mmol·L⁻¹时的去除率为78.3%.丁竹红等^[19]用EDDS对废弃铅锌矿区和废弃铜矿区附近农田土壤中Pb的浸提发现,废弃铅锌矿区土壤Pb的浸提率为16.3%,而废弃铜矿区附近农田土壤中Pb的浸提率为2.28%.这表明EDDS对土壤Pb的去除率取决于污染土壤的类型、性质、Pb的各种形态的分布以及EDDS使用的浓度.丁竹红等^[19]也指出EDDS对重金属元素的提取率在不同土壤之间有较大差异.

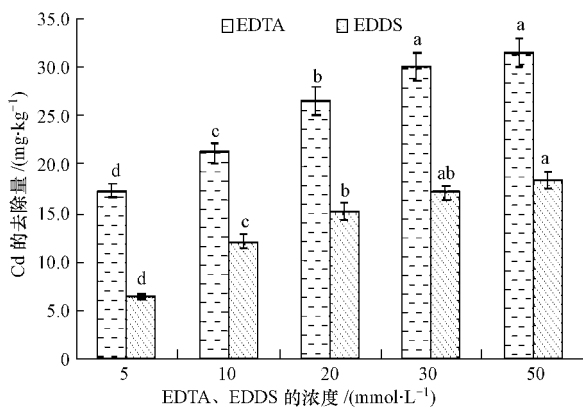


图1 EDTA、EDDS对Cd的去除

Fig. 1 Concentration of Cd extracted from soil by EDTA and EDDS

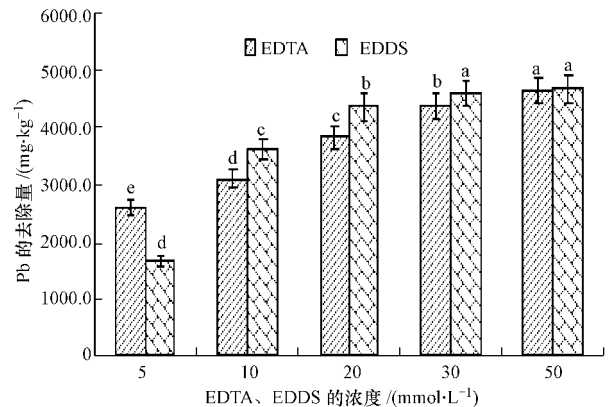


图2 EDTA、EDDS对Pb的去除

Fig. 2 Concentration of Pb extracted from soil by EDTA and EDDS

2.2 土壤中Cd、Pb的生物可给性

随EDTA、EDDS浓度的增加,Cd、Pb在胃阶段和小肠阶段的可溶态总量显著降低($p < 0.05$)(表1和表2).这是由于随EDTA、EDDS浓度的增加,土壤中Cd、Pb的去除量显著增加(图1和图2),从而土壤中剩余Cd、Pb的总量减少.

表1 EDTA浸提后Cd、Pb在胃、小肠阶段可溶态总量(mg·kg⁻¹)和浸提后的生物可给性(%)

Table 1 Concentrations of dissolved Cd, Pb in gastric and small intestinal phase (mg·kg⁻¹) and bioaccessibility of Cd, Pb (%) after EDTA leaching

EDTA 浓度 (mmol·L ⁻¹)	胃阶段				小肠阶段			
	溶出量/(mg·kg ⁻¹)		生物可给性/%		溶出量/(mg·kg ⁻¹)		生物可给性/%	
	Cd	Pb	Cd	Pb	Cd	Pb	Cd	Pb
0	36.9 ± 0.2a	5393.9 ± 37.3a	96.3 ± 0.5a	96.7 ± 0.7a	21.3 ± 0.5a	1158.4 ± 38.2a	55.4 ± 1.3a	20.8 ± 0.7b
5	15.0 ± 2.2b	2906.9 ± 55.4b	71.2 ± 9.5b	98.7 ± 1.3a	11.4 ± 1.3b	699.9 ± 36.5b	54.1 ± 5.2a	23.8 ± 1.1a
10	11.8 ± 1.1c	2170.1 ± 69.3c	69.1 ± 5.8b	87.0 ± 3.1b	9.0 ± 0.9c	555.1 ± 28.7c	52.5 ± 5.0a	22.3 ± 1.1ab
20	7.2 ± 0.3d	1331.1 ± 42.6d	61.8 ± 3.0bc	76.7 ± 1.5c	5.9 ± 0.3d	362.6 ± 11.1d	50.1 ± 3.4a	20.9 ± 0.3b
30	5.3 ± 0.1de	925.9 ± 66.0e	65.0 ± 3.2bc	77.4 ± 4.8c	4.5 ± 0.1d	266.9 ± 17.4e	55.5 ± 3.5a	22.3 ± 1.1ab
50	3.2 ± 0.1e	345.8 ± 21.9f	50.8 ± 9.8c	38.6 ± 2.2d	3.0 ± 0.1e	115.5 ± 5.4f	49.1 ± 8.9a	12.9 ± 0.5c

注:同一列中标有不同字母表示有显著差异($p < 0.05$).

人工模拟胃肠实验表明,在胃阶段,EDTA浓度在5—50 mmol·L⁻¹之间时,Cd、Pb的生物可给性降低;而EDDS浓度在5—50 mmol·L⁻¹之间时,Cd、Pb的生物可给性显著降低(表1和表2).在小肠阶段,EDTA浓度在5—50 mmol·L⁻¹之间时,Cd、Pb的生物可给性差异不显著;EDDS浓度在5—50 mmol·L⁻¹

之间时,Cd、Pb的生物可给性显著降低。Cd、Pb的生物可给性在胃阶段明显高于小肠阶段。这主要的原因是与胃中的pH值(1.5)远低于小肠中的pH值(7.0)有关,由于小肠液呈碱性使原本在胃中有较高生物可给性的金属元素的生物可给性下降。本研究中,Cd、Pb在胃阶段的生物可给性分别为96.3%和96.7%,小肠阶段分别为55.4%和20.8%。崔岩山等^[11]研究的土壤中,胃中Cd的生物可给性为6.4%—69.4%;小肠中为3.2%—37.0%。Dane等^[20]研究的无污染土壤中Pb的生物可给性为42.0%,污染土壤中为88.3%。可见,不同的研究结果中,Cd、Pb的生物可给性具有显著差异,导致差异的原因可能是土壤的性质如土壤粘粒含量、pH值、有机质等以及模拟的方法所造成的。

表2 EDDS浸提后Cd、Pb在胃、小肠阶段可溶态总量(mg·kg⁻¹)和浸提后的生物可给性(%)

Table 2 Concentrations of dissolved Cd, Pb in gastric and small intestinal phase (mg·kg⁻¹) and bioaccessibility of Cd, Pb (%) after EDDS leaching

EDDS 浓度 (mmol·L ⁻¹)	胃阶段				小肠阶段			
	溶出量/(mg·kg ⁻¹)		生物可给性/%		溶出量/(mg·kg ⁻¹)		生物可给性/%	
	Cd	Pb	Cd	Pb	Cd	Pb	Cd	Pb
0	36.9±0.2a	5393.9±37.3a	96.3±0.5a	96.7±0.7a	21.3±0.5a	1158.4±38.2a	55.4±1.3a	20.8±0.7a
5	18.8±2.3b	3301.3±62.7b	59.0±9.5b	84.7±2.0ab	10.5±1.5b	792.6±48.0b	32.9±6.0b	20.3±1.6a
10	13.4±0.6c	1647.5±92.9c	50.8±2.4bc	83.4±3.5ab	6.6±0.5c	357.9±70.5c	24.9±1.8c	18.1±3.1ab
20	10.2±0.8d	895.1±82.4d	44.1±3.8c	74.2±9.2b	4.8±0.3d	212.1±17.6d	20.7±1.5cd	17.5±1.7ab
30	9.6±1.9de	698.6±82.2e	45.4±8.5c	71.4±8.9b	4.5±0.6de	158.8±8.3de	19.6±2.6cd	16.2±0.7b
50	7.0±0.7e	518.6±14.1f	35.9±7.1c	58.3±7.2c	3.1±0.3e	128.3±4.7e	15.9±3.4d	14.3±1.0b

注:同一列中标有不同字母表示有显著差异(p < 0.05)。

EDTA浸提后,Cd的生物可给性在胃阶段为50.8%—71.2%,小肠阶段为49.1%—55.5%;Pb的生物可给性在胃阶段和小肠阶段分别为38.6%—98.7%,12.9%—23.8%。EDDS浸提后,Cd的生物可给性在胃阶段为35.9%—59.0%,小肠阶段为15.9%—32.9%;Pb的生物可给性在胃阶段和小肠阶段分别为58.3%—84.7%,14.3%—20.3%。EDTA浸提后Pb的生物可给性显著低于EDDS浸提后的生物可给性,Cd的生物可给性显著高于EDDS浸提后的结果。在胃阶段和小肠阶段,EDTA浓度在10—30 mmol·L⁻¹之间时,Cd、Pb的生物可给性差异不显著。EDTA浓度为50 mmol·L⁻¹时,Pb的生物可给性分别为38.6%和12.9%;EDDS浓度为50 mmol·L⁻¹时,Pb的生物可给性分别为58.3%和14.3%。在这一浓度得到Pb的生物可给性结果,显著低于其它浓度(5—30 mmol·L⁻¹)时的生物可给性。高浓度的EDTA浸提后Cd的生物可给性没有像Pb那样显著下降,甚至在小肠阶段,各处理间无显著差异。造成二者之间差异的原因可能与二者的性质有关,如Cd²⁺具有更好的迁移性等。同时,50 mmol·L⁻¹ EDTA浸提导致Pb的生物可给性显著降低,可能的原因是50 mmol·L⁻¹的EDTA比5—30 mmol·L⁻¹的EDTA去除了更多形态的Pb,而这些形态在模拟胃肠中有很高的溶解性。因此,对污染土壤中Pb的浸提,当EDTA达到一定的浓度,去除了更多形态的Pb,其风险才能降低到一定程度。

2.3 Cd、Pb生物可给性的相关性分析

为了进一步研究EDTA、EDDS对Cd、Pb的去除量与浸提后Cd、Pb在胃和小肠阶段的可溶态总量之间的关系,对其相互之间进行相关性分析,结果见表3和表4。

表3 EDTA浸提后Cd、Pb去除量(C_去)与EDTA浸提后胃、肠阶段可溶态总量(C_{IV})的相关性

Table 3 Correlations between concentrations of dissolved and extractable Cd, Pb after EDTA leaching

	C _{Cd去}	C _{IV Cd胃}	C _{IV Cd肠}	C _{Pb去}	C _{IV Pb胃}	C _{IV Pb肠}
C _{Cd去}	1					
C _{IV Cd胃}	-0.956**	1				
C _{IV Cd肠}	-0.960**	0.998**	1			
C _{Pb去}	—	—	—	1		
C _{IV Pb胃}	—	—	—	-0.991**	1	
C _{IV Pb肠}	—	—	—	-0.988**	0.996**	1

注: **表示极显著相关(p < 0.001); n = 15; C_{Cd去}: Cd的去除量(mg·kg⁻¹); C_{Pb去}: Pb的去除量(mg·kg⁻¹); C_{IV Cd胃}: Cd在胃阶段中的可溶态总量(mg·kg⁻¹); C_{IV Cd肠}: Cd在小肠阶段中的可溶态总量(mg·kg⁻¹); C_{IV Pb胃}: Pb在胃阶段中的可溶态总量(mg·kg⁻¹); C_{IV Pb肠}: Pb在小肠阶段中的可溶态总量(mg·kg⁻¹),下同。

表 4 EDDS 浸提后 Cd、Pb 去除量($C_{去}$)与胃、肠阶段可溶态总量(C_{IV})的相关性

Table 4 Correlations between concentrations of dissolved and extractable Cd, Pb after EDDS leaching

	$C_{Cd去}$	$C_{IV Cd胃}$	$C_{IV Cd肠}$	$C_{Pb去}$	$C_{IV Pb胃}$	$C_{IV Pb肠}$
$C_{Cd去}$	1					
$C_{IV Cd胃}$	-0.837 **	1				
$C_{IV Cd肠}$	-0.872 **	0.989 **	1			
$C_{Pb去}$	—	—	—	1		
$C_{IV Pb胃}$	—	—	—	-0.994 **	1	
$C_{IV Pb肠}$	—	—	—	-0.986 **	0.989 **	1

Cd、Pb 在胃阶段的可溶态总量与小肠阶段的可溶态总量呈极显著正相关($p < 0.001$)。Cd、Pb 的去除量与胃、小肠阶段的可溶态总量呈极显著负相关($p < 0.001$)。进一步表明了土壤中 Cd、Pb 浸提量显著影响浸提后的风险。

3 结论

(1) EDTA 对土壤中 Cd 的去除率高于 EDDS; 低浓度时 EDTA 去除 Pb 的量高于 EDDS, 高浓度的两种螯合剂对土壤中 Pb 的去除率差异不显著。

(2) 土壤中 Cd、Pb 的生物可给性浸提后显著降低。EDTA 浸提后 Cd 的生物可给性显著高于 EDDS 浸提的结果。Pb 的生物可给性 EDTA 浸提显著低于 EDDS 浸提结果。

(3) EDTA、EDDS 浸提后, 土壤中 Cd、Pb 的去除量与胃、小肠阶段的可溶态总量呈极显著负相关。Cd、Pb 在胃阶段中的可溶态总量与小肠阶段的可溶态总量呈极显著正相关。

参 考 文 献

- [1] 钱暑强, 刘铮. 污染土壤修复技术介绍[J]. 化工进展, 2000, 20(4): 10-12
- [2] 周涛, 易海涛, 陆晓华. 模拟重金属污染土壤的强化解吸与解吸液降解[J]. 环境科学与技术, 2010, 33(4): 45-48
- [3] 雷鸣, 田中干也, 廖柏寒等. EDTA 及其回收溶液治理重金属污染土壤的研究[J]. 环境工程学报, 2007, 5: 88-93
- [4] Peters R W. Chelant extraction of heavy metals from contaminated soils[J]. Journal of Hazardous Materials, 1999, 66: 151-210
- [5] Greman H, Vodnik D, Velikonja-Boltas et al. As a new chelant for environmentally safe enhanced lead phytoextraction[J]. Environmental Quality, 2003, 32: 500-506
- [6] Kos B, Le tan D. Induced phytoextraction/soil washing of lead using biodegradable chelant and permeable barriers [J]. Environmental Science and Technology, 2003, 37: 624-629
- [7] Luo Chunling, Shen Zhenguo, Li Xiangdong. Enhanced phytoextraction of Cu, Pb, Zn and Cd with EDTA and EDDS [J]. Chemosphere, 2005, 59: 1-11
- [8] Tandy S, Ammann A, Schulin R et al. Biodegradation and speciation of residual SS-ethylenediaminedisuccinic acid (EDDS) in soil solution left after soil washing[J]. Environmental Pollution, 2006, 142: 191-199
- [9] 孙云云, 赵兰坡. 土壤质量评价的生物指标及其相关性研究进展[J]. 中国农学通报, 2010, 26(5): 116-120
- [10] Schroder J L, Basta N T, Si J. *In vitro* gastrointestinal method to estimate relative bioavailable cadmium in contaminated soil [J]. Environmental Science Technology, 2003, 37(7): 1365-1370
- [11] 崔岩山, 陈晓晨. 土壤中镉的生物可给性及其对人体的健康风险评估[J]. 环境科学, 2010, 31(2): 403-407
- [12] Ruby M V, Davis A, Kempton J H et al. Lead bioavailability: dissolution kinetics under simulated gastric conditions [J]. Environmental Science and Technology, 1992, 26(6): 1242-1248
- [13] Rodriguez R R, Basta N T, Casteel S W et al. An *in vitro* gastrointestinal method to estimate bioavailable arsenic in contaminated soil and solid media [J]. Environmental Science and Technology, 1999, 33: 642-649
- [14] 鲍士旦. 土壤农化分析(第三版) [M]. 北京: 中国农业出版社, 2000
- [15] 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
- [16] 胡忻, 罗璐璐. 生物可降解的螯合剂 EDDS 提取城市污泥中 Cu, Zn, Pb 和 Cd [J]. 环境科学研究, 2007, 20(6): 110-114
- [17] 许超, 夏北城, 林颖. EDTA 和柠檬酸对污染土壤中重金属的解吸动力学及其形态的影响[J]. 水土保持学报, 2009, 23(4): 146-151
- [18] Cao Alessia, Cappai Giovanna, Carucci Alessandra et al. Heavy metal bioavailability and chelate mobilization efficiency in an assisted phytoextraction process [J]. Environmental Geochemistry and Health, 2008, 30: 115-119
- [19] 丁竹红, 胡忻, 尹大强. 土壤中重金属[S,S]-乙二胺二琥珀酸浸提及其对重金属形态分布的影响[J]. 环境化学, 2009, 28(3):

339-342

- [20] Dane T Lamb, Hui Ming, Mallavarapu Megharaj, et al. Heavy metal (Cu, Zn, Cd and Pb) partitioning and bioaccessibility in uncontaminated and long-term contaminated soils[J]. Journal of Hazardous Materials, 2009, 171: 1150-1158

LEACHING OF Cd AND Pb FROM A CONTAMINATED SOIL WITH EDTA AND EDDS: EFFECTIVENESS AND HEALTH RISK ASSESSMENT

ZHAO Na^{1,2} CUI Yanshan² FU Yu² XIE Jianzhi¹

(1. College of Resources and Environmental Science Agriculture University of Hebei, Baoding, 071000, China;

2. Graduate University of Chinese Academy of Science, Beijing, 100049, China)

ABSTRACT

Effectiveness and health risk assessment of Cd and Pb in soil was studied in a contaminated soil after remediation with EDTA and EDDS. *In vitro* method (artificial gastrointestinal system) was used to evaluate the health risk. The results showed that Cd and Pb removal increased significantly with increasing concentration of EDTA and EDDS. Cd removal by EDTA was significantly higher than that of EDDS. The highest Cd removal rate was 82.4% with EDTA and 46.8% with EDDS. Pb removal by EDTA was significantly higher than that of EDDS in the 5—30 mmol·L⁻¹ treatments. However, no difference in Pb removal was observed between two chelating agents in 50 mmol·L⁻¹. *In vitro* experiments showed that the concentrations of dissolved Cd and Pb in the gastric and small intestinal phase were reduced after leaching with the chelating agents. The bioaccessibility of Cd after EDDS leaching was lower than EDTA. However, the bioaccessibility of Pb after EDDS leaching was higher than that of EDTA leaching. The results will provide some information about remediation of heavy metal contaminated soils with EDTA and EDDS and their health risk assessment.

Keywords: EDTA, EDDS, heavy metals, removal rate, bioaccessibility.