

Leaching Remediation of Heavy Metal Contaminated Soil with a Novel Ethylenediamine Triacetate Chelating Surfactant

Zhongli Peng, Hongyan Chen

School of Chemistry and Materials Engineering, Huizhou University, Huizhou Guangdong
Email: zsupzl@126.com

Received: Jan. 16th, 2018; accepted: Jan. 31st, 2018; published: Feb. 8th, 2018

Abstract

The leaching effect of heavy metal contaminated farmland soil by a novel ethylenediamine triacetate (ED3A) chelating surfactant sodium N-(3-dodecyloxy-2-hydroxypropyl) ethylenediamine triacetate (C₁₂-ED3A3Na) was investigated. The results showed that C₁₂-ED3A3Na solution could obtain the optimal heavy metal removal effect when its concentration was 0.1 mol/L, its pH was 11.48, the leaching time was 8 h, and the leaching temperature was 35°C. Under these leaching conditions, its removal efficiency was 37.12% for Pb, 32.60% for Cu and 19.77% for Zn, respectively. The chelating surfactant could effectively remove the metals in the exchangeable, carbonates-bound and Fe/Mn oxides of low crystallinity fractions in the soil, and also had a certain metal removal effect on their organic-bound and residual fractions.

Keywords

Ethylenediamine Triacetate, Chelating Surfactant, Heavy Metal, Soil Remediation, Leaching

新型ED3A类螯合性表面活性剂淋洗修复重金属污染土壤的研究

彭忠利, 陈鸿雁

惠州学院化学与材料工程学院, 广东 惠州
Email: zsupzl@126.com

收稿日期: 2018年1月16日; 录用日期: 2018年1月31日; 发布日期: 2018年2月8日

摘要

研究了新型乙二胺三乙酸盐(ED3A)类螯合性表面活性剂N-(3-十二烷基-2-羟基丙基)乙二胺三乙酸钠(C₁₂-ED3A3Na)淋洗修复重金属污染农田土壤的淋洗效果。结果表明, C₁₂-ED3A3Na在浓度为0.05 mol/L, pH值为11.48, 淋洗时间为8 h时, 可达到最佳淋洗效果; 在最佳淋洗条件下C₁₂-ED3A3Na溶液对土壤中Pb、Cu和Zn的去除率分别达到37.12%、32.60%和19.77%; C₁₂-ED3A3Na不仅能有效去除土壤中可交换态、碳酸盐结合态和铁锰氧化态的Pb、Cu和Zn, 对有机态的和残渣态的Pb、Cu和Zn也有一定去除作用。

关键词

乙二胺三乙酸盐, 螯合性表面活性剂, 重金属, 土壤修复, 淋洗

Copyright © 2018 by authors and Hans Publishers Inc.

This work is licensed under the Creative Commons Attribution International License (CC BY).

<http://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>



Open Access

1. 引言

土壤重金属污染因其污染的隐蔽性, 长期性和不可逆性而备受世界的关注, 它不仅退化了土壤的肥力, 降低了作物产量和品质, 而且引发水资源的污染, 并通过食物链危害人类的生命和健康[1]。已有的研究表明土壤淋洗技术能够高效、彻底地去除污染土壤中的重金属[2] [3] [4]。

目前常用的淋洗剂的主要有人工螯合剂[4]、表面活性剂[5] [6]及复合淋洗剂[7] [8]等。人工螯合剂如EDTA能在较宽的pH范围内与重金属离子形成稳定的螯合物, 对大部分重金属污染土壤都有较高的修复效果。但是这种淋洗剂回收利用难度较大[9]。表面活性剂是通过改变土壤表面性质, 增强有机配体在水中的溶解性, 或是发生离子交换, 来促进金属阳离子或配合物从固相转移到液相中。目前, 表面活性剂的回收技术已经有很大进步, 如采用胶团强化超滤技术(MEUF)可实现绝大部分表面活性剂回收[10] [11], 但是使用普通表面活性剂的淋洗效果并不好[8]。

生物表面活性剂具有对土壤中一些重金属去除效果好、毒性低、生物可降解性和表面活性高等优点, 并可回收利用, 其在治理重金属污染土壤方面的应用已引起了研究者的关注[12]。但是, 生物表面活性剂对土壤中重金属的去除效果总体上比螯合剂差, 原因主要是生物表面活性剂无法对土壤中残渣态重金属产生较好的去除效果[13]; 另外, 现阶段部分生物表面活性剂的价格较高[14]。

复合淋洗剂是指多种淋洗剂复合应用, 如黄川等利用草酸和EDTA混合液淋洗重金属污染土壤[7]以及蒋煜峰等[8]用表面活性剂强化EDTA络合洗脱污灌土壤中重金属等; 复合淋洗剂能提高淋洗效果, 但是也提高了回收淋洗剂的难度。

从各种淋洗剂的淋洗效果来看, 具有一定螯合功能的淋洗剂明显比不具有螯合功能的淋洗剂的淋洗效果好, 如有机酸、生物表面活性剂、人工螯合剂等优于普通表面活性剂; 然而, 就淋洗剂来源和回收利用来说, 普通表面活性剂则优于上述具有一定螯合功能的淋洗剂。因此, 我们有理由推断: 如果用人工合成的具有螯合功能的表面活性剂(螯合性表面活性剂)为淋洗剂来治理重金属污染土壤, 那么它也会有良好的淋洗效果, 同时也易于回收利用, 这样, 化学淋洗治理重金属污染土壤就容易实现商业化。遗憾的是, 目前很少有用螯合性表面活性剂作为淋洗剂修复重金属污染土壤的报道。

目前研究最多的螯合性表面活性剂是 N-酰基 ED3A (乙二胺三乙酸) [15]和 N-烷基 ED3A 表面活性剂 [16]。为了提高 ED3A 表面活性剂分子的柔性, 我们合成了一类新 ED3A 类螯合性表面活性剂[17]。本文以这类表面活性剂的其中一种螯合性表面活性剂 N-(3-十二烷氧基-2-羟基丙基)乙二胺三乙酸钠 (C_{12} -ED3A3Na)为淋洗剂, 研究淋洗剂溶液对重金属污染农田土壤的淋洗效果, 着重研究淋洗条件对淋洗效果的影响, 为实际淋洗工程提供数据。

2. 材料与方法

2.1. 材料

N-(3-十二烷氧基-2-羟基丙基)乙二胺三乙酸钠(C_{12} -ED3A3Na), 按照文献[17]所述方法自制, 其结构见图 1; 十二烷基硫酸钠(SDS), 分析纯, 广东汕头市西陇化工厂; 冰醋酸, 硝酸, 氢氟酸, 高氯酸为优级纯(GR)试剂; 其他化学试剂均为分析纯; 所用土壤为重金属污染土壤, 来自广东省韶关市大宝山矿山附近的被酸性矿水污染的上坝村农田土壤; 实验用水由 FBZ2001-UP-P 超纯水机(青岛富勒姆科技有限公司)制备, 电阻率为 18.25 $M\Omega\cdot cm$ 。

2.2. 土壤样品的制备及土壤分析

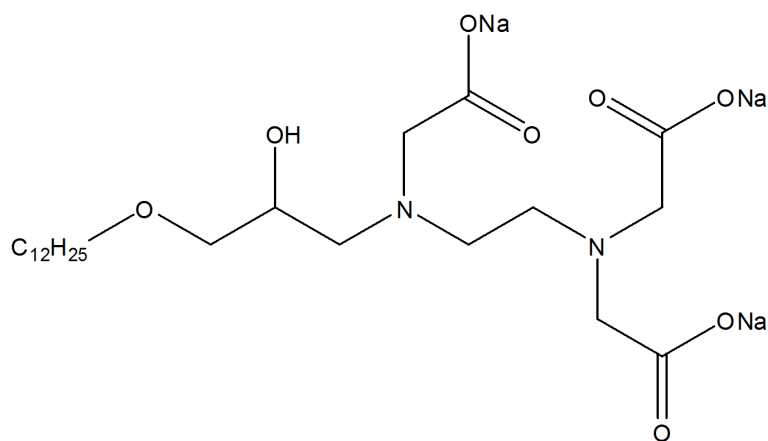
将采集到的的农田土壤自然风干, 挑出树枝, 石头等杂物, 人工将泥土混合均匀, 用 SHR 系列快速混合机将泥土粉碎, 搅拌使泥土充分混合均匀, 再将其过 100 目尼龙筛, 装样备用。

以水土比为 2.5:1 将土壤与水混合、搅拌均匀, 用 PHS-3C 酸度计(上海虹益仪器仪表有限公司)测量土壤的 pH 值。土壤有机质含量用重铬酸钾容量法-外加热法测定; 土壤阳离子交换量(CEC)用乙酸铵法测定; 土壤颗粒分析用欧美克 LS-POP(III)激光粒度分析仪测试。

以聚四氟乙烯坩埚为容器, 用硝酸-氢氟酸-高氯酸消解土壤制备消解液, 同时做试剂空白实验, 用 ICP-OES 测定重金属全量。所有实验均重复三次。

2.3. 螯合性表面活性剂淋洗条件的选择

分别准确称取 1.0000 g (± 0.0005 g)过 100 目尼龙筛的土壤样品并分别装入若干 50 mL 塑料离心管中, 加入一定体积一定浓度和一定 pH 值的 C_{12} -ED3A3Na 溶液, 同时做试剂空白试验。然后在一定温度下将离心管放置在摇床上振荡一定时间(150 r/min), 将所得样品以 4000 r/min 离心 20 min, 取上清液用 ICP-OES



Scheme 1. Structure of chelating surfactant C_{12} -ED3A3Na
图 1. 螯合性表面活性剂 C_{12} -ED3A3Na 结构式

测定重金属 Pb、Cu 和 Zn 的含量。其中, 螯合性表面活性剂溶液的 pH 值用氢氧化钠溶液和硝酸溶液调节。

2.4. 较佳淋洗条件下的淋洗试验

根据 2.3 的实验结果确定 C_{12} -ED3A3Na 的较佳淋洗条件。在最佳淋洗条件下, 按照 2.3 所述方法测定重金属 Pb、Cu 和 Zn 的含量, 同时也测试浓度为 0.1 mol/L pH 值为 7.84 的十二烷基硫酸钠(SDS)溶液(淋洗时间为 8 h)的淋洗效果(供比较用)。将等量未经淋洗的重金属污染土壤和上述经淋洗、分离及用超纯水洗涤后的土壤残渣, 按文献[18] [19]所述的提取法制备土壤金属各形态的待测溶液, 用 ICP-OES 测定重金属各形态含量。

2.5. 数据处理与分析

采用 Excel 2007 和 SPSS13.0 软件对数据进行相关分析, 用最小显著性差异法(LSD)进行显著差异检验($P < 0.05$)。

3. 结果与讨论

3.1. 土壤样品分析

从表 1 中的数据可知, 土壤样品为酸性, 质地为粉粒。土壤中重金属 Pb、Zn 和 Cu 的含量非常高。

3.2. 淋洗条件对金属去除率的影响

3.2.1. 液固比对金属去除率的影响

从图 1 为在常温 27℃, 淋洗剂(用超纯水直接配制)浓度为 0.1 mol/L, 淋洗时间为 12 小时的情况下, 不同液固比对金属去除率的影响图。可以看出, 当液固比由 5:1 上升到 15:1 时, 重金属的去除率是上升的。液固比为 15:1 时, 金属的去除率达到最高, Pb、Cu 和 Zn 的去除率分别为 32.06%, 28.08% 和 12.68%。而后, 随着液固比继续增大, 金属的去除率反而有所下降。这是因为当淋洗剂浓度一定时, 增加液固比实际上是增加淋洗剂的用量, 当淋洗剂用量没有满足土壤所需量时, 增加液固比必然时金属去除率上升; 但是当淋洗剂用量满足土壤所需量时, 这时再增加液固比, 只是起到稀释作用而已, 不会提升金属去除率。

3.2.2. 淋洗剂浓度对金属去除率的影响

在液固比一定时, 增加浓度意味着淋洗剂的用量增大。由图 2 为在淋洗温度、淋洗时间和液固比分别为 27℃、12 小时和 15:1 的情况下, C_{12} -ED3A3Na 溶液(直接用超纯水配制)浓度对金属去除率的影响。可以看出, 低浓度时 Pb、Cu、Zn 的去除率先随着 C_{12} -ED3A3Na 浓度的增大而迅速增大, 当 C_{12} -ED3A3Na 浓度增大到 0.05 mol/L 时, Pb、Cu 和 Zn 去除率升高变缓, C_{12} -ED3A3Na 浓度增大到 0.1 mol/L 时, Pb、Cu 和 Zn 去除率达到最高, 此时 Pb、Cu 和 Zn 的去除率分别为 28.74%、27.35% 和 7.80%; 而后, 随着 C_{12} -ED3A3Na 浓度继续增大, Pb、Cu 和 Zn 的去除率变化很小。这说明, 螯合性表面活性剂确实是一种有效的重金属淋洗剂; 淋洗剂用量没有满足土壤所需量时, 增加淋洗剂浓度同样会提高金属去除率。

3.2.3. 淋洗液 pH 值对金属去除率的影响

由于 C_{12} -ED3A3Na 在酸性下会转变为相应难溶于水的羧酸衍生物而失去螯合重金属离子功能。因此, 这种淋洗液只能在中性或碱性环境下使用。从表 2 可以看出, 土壤经过碱性淋洗剂淋洗后由酸性变为碱性。

Table 1. Characteristics of the studied soil

表 1. 土壤特性分析

pH	有机质(g/kg)	砂粒/粉粒/粘粒(%)	阳离子交换量(cmol/Kg)	全铅(mg/kg)	全铜(mg/kg)	全锌(mg/kg)
4.45	13.38	14/58/26	3.58	463.1 ± 13.8	506.2 ± 7.3	420.4 ± 27.5

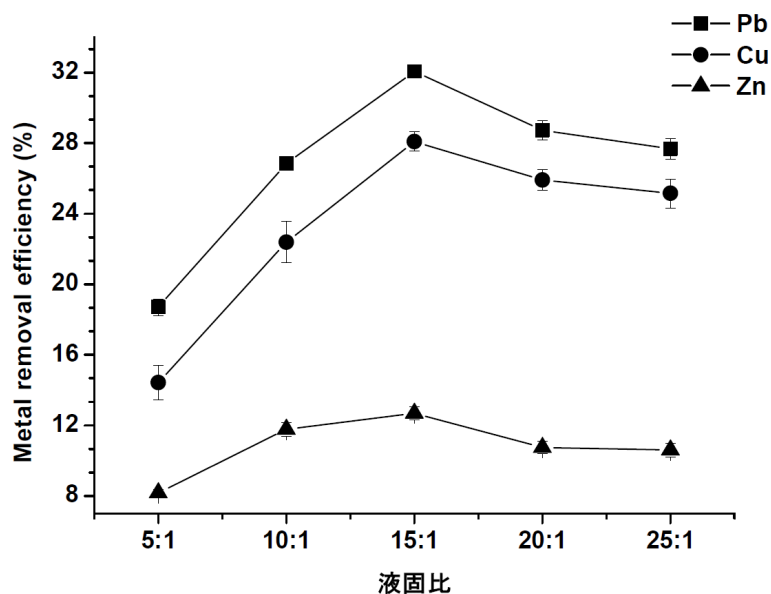


Figure 1. Liquid-to-solid ratio on metal removal efficiency

图 1. 液固比对金属去除率的影响

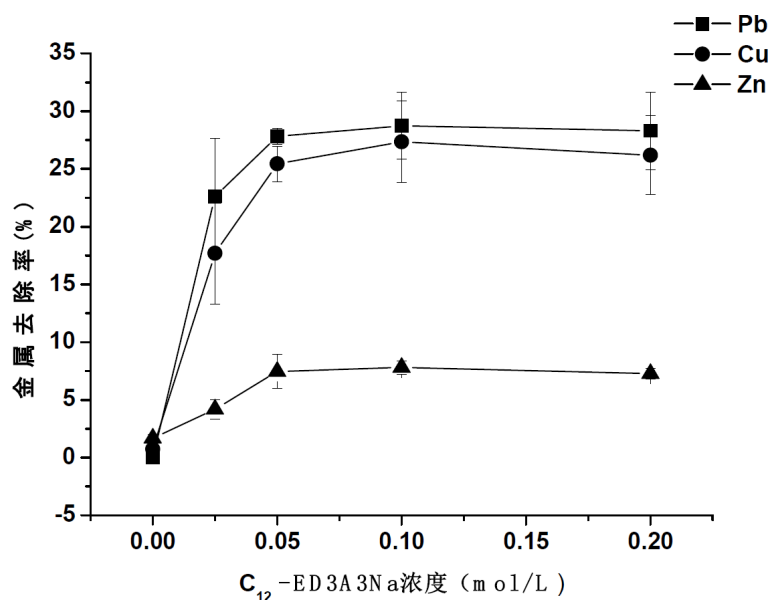


Figure 2. Effect of C₁₂-ED3A3Na concentration on metal removal efficiency

图 2. C₁₂-ED3A3Na 浓度对金属去除率的影响

Table 2. pH values of C₁₂-ED3A3Na solution and the washed soil

表 2. C₁₂-ED3A3Na 溶液及相应被淋洗后土壤的 pH 值

C ₁₂ -ED3A3Na 溶液 pH 值	7.84	9.41	10.68	11.48
淋洗后土壤的 pH 值	7.56	9.17	9.98	10.39

图 3 为在淋洗剂浓度、淋洗温度、淋洗时间和液固比分别为 0.1 mol/L、27°C、12 小时和 15:1 情况下, C₁₂-ED3A3Na 溶液 pH 值对金属去除率的影响图。可以看出, 随着 C₁₂-ED3A3Na 溶液的 pH 由 7.84 增大至 10.68 时, 土壤中的 Pb、Cu 和 Zn 的去除率都是缓慢提高。但淋洗液 pH 从 10.68 升至 11.48 时,

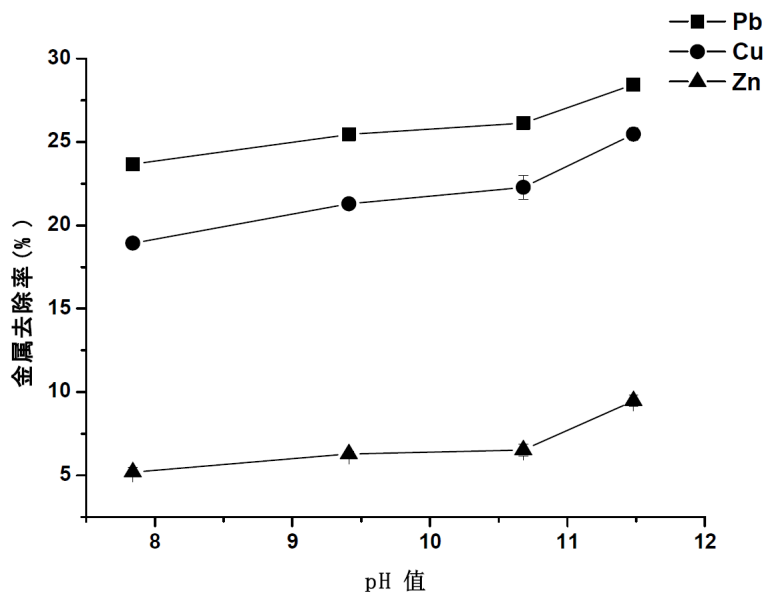


Figure 3. Effect of pH value of C_{12} -ED3A3Na solution on metal removal efficiency

图 3. C_{12} -ED3A3Na 溶液 pH 值对金属去除率的影响

Pb、Cu 和 Zn 的去除率递增幅度较大。

一般来说, C_{12} -ED3A3Na 随溶液 pH 值升高, 其水溶性增强, 容易与金属离子形成水溶性络合物, 这样能提高重金属去除率; 然而, 金属离子随溶液 pH 值升高, 容易形成难溶的氢氧化物, 使其与螯合性表面活性剂形成络合物的能力下降, 这样导致金属去除率下降。但是从图 3 的实验结果看, 随溶液 pH 值升高, 金属去除率是提高的, 说明 C_{12} -ED3A3Na 的不但可以与离子状态的金属发生螯合作用, 也能与难溶的重金属氢氧化物发生作用, 并以溶液形式出现。当淋洗液的 pH 值为 11.48 时, 土壤的实际 pH 值只有 10.39 (该值还略小于 C_{12} -ED3A3Na 直接溶于蒸馏水的溶液 pH 值(pH = 10.68)), 相比在其他土壤 pH 环境中来说, 此时的 C_{12} -ED3A3Na 水溶性最好, 与金属的螯合性能也最好, 因此, 不难理解淋洗液 pH 为 11.48 时, 各金属的去除率最好了。

3.2.4. 淋洗时间对金属去除率的影响

在淋洗剂浓度、淋洗温度和液固比分别为 0.1 mol/L、27°C 和 15:1 情况下, 当淋洗时间从 1 h 变化到 8 h 时, 3 种重金属的去除率均呈小幅上升; 但是由 8 h 变化到 12 h 时, 3 种重金属的去除率有明显下降 (图 4)。这可能是从 1 h 到 8 h, 淋洗剂主要解吸的是吸附在土壤表面的水溶态重金属, 在 8 h 到 12 h 时才开始淋洗吸附在土壤表面的难溶态的重金属, 但还未达到吸附解吸平衡, 有很多螯合性表面活性剂或螯合物吸附在土壤表面, 导致金属去除率下降。相反, 当淋洗时间从 12 h 变化到 24 h 时, 重金属的去除率又小幅上升, 说明螯合性表面活性剂在土壤表面的解吸与吸附逐渐达到平衡。但在 24 h 时的金属去除率仍比淋洗 8 h 的小。因此, 用 C_{12} -ED3A3Na 为淋洗剂时, 8 h 为最佳淋洗时间, Pb、Cu 和 Zn 的去除率分别为 27.65%、24.45% 和 9.19%。

3.2.5. 淋洗温度对金属去除率的影响

从表 3 可以看出, 随着淋洗温度升高, Pb、Cu 和 Zn 的去除率都是增大的, 这说明温度升高有利于重金属去除。这是因为, 温度升高, C_{12} -ED3A3Na 的水溶性提高, 有助于它将土壤中的金属离子或土壤表面的金属转移到液相中来, 从而提高金属去除率。综合金属去除率和能耗问题, 淋洗温度为 35°C 是比较适合的。

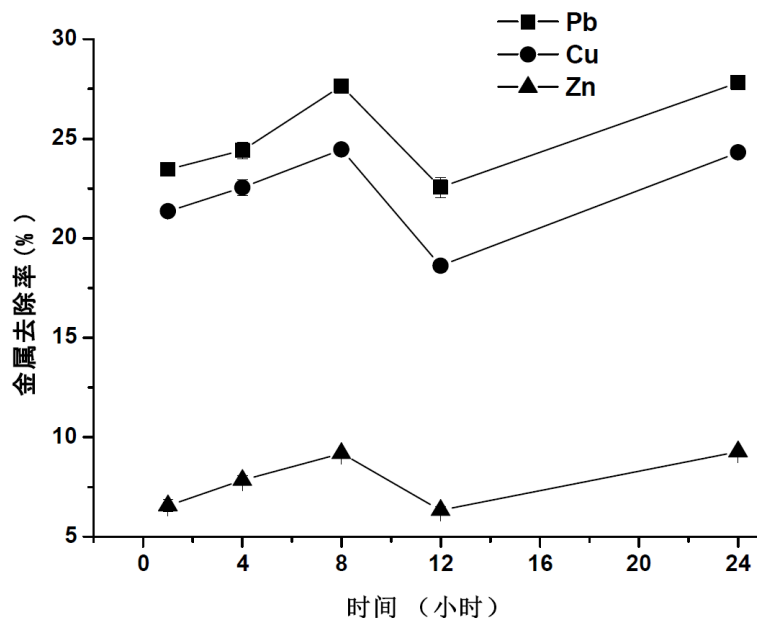


Figure 4. Effect of leaching time on metal removal efficiency

图 4. 淋洗时间对金属去除率的影响

Table 3. Effect of leaching temperature on metal removal efficiency

表 3. 淋洗温度对金属去除率的影响

淋洗温度(°C)	金属去除率(%)		
	Pb	Cu	Zn
20	23.33 ± 0.75	21.82 ± 0.70	5.08 ± 0.14
27	23.67 ± 0.44	22.56 ± 0.62	8.21 ± 0.20
35	28.96 ± 0.42	27.62 ± 0.47	11.81 ± 0.47

3.3. 最佳淋洗条件下淋洗效果以及淋洗前后重金属形态变化

从 3.2 的淋洗条件选择实验看, C₁₂-ED3A3Na 的最佳淋洗条件是: 液固比为 15:1, 浓度 0.1 mol/L, 淋洗 pH 值 11.48, 淋洗时间 8 h, 淋洗温度为 35°C; 在此条件下, 我们测试了淋洗剂的淋洗效果和淋洗前后重金属形态变化, 并与 SDS 为淋洗剂的淋洗效果做了比较。

3.3.1. 金属去除率比较

由图 5 可知, 螯合性表面活性剂 C₁₂-ED3A3Na 对土壤中的 Pb、Cu 和 Zn 的去除作用最为明显, 而 SDS 对土壤中 Pb、Cu 和 Zn 的去除作用不明显。C₁₂-ED3A3Na 可以使 Pb、Cu 和 Zn 的去除率分别达到 37.12%、32.60% 和 19.77%; SDS 只能使 Pb、Cu 和 Zn 的去除率则分别是 1.30%、1.16% 和 3.71%, 这个结果与蒋煜峰等人[8]用 SDS 淋洗污灌土壤的实验结果接近。这说明 C₁₂-ED3A3Na 淋洗修复重金属污染土壤的能力远远大于非螯合性表面活性剂 SDS。

3.3.2. 淋洗前后重金属形态分布变化

由图 6 可知, 淋洗前后 Pb、Cu 和 Zn 的形态变化规律类似。淋洗前土壤中 Pb、Cu 和 Zn 主要以较为稳定的残渣态为主, 分别为 63.64%, 62.49% 和 67.62%, 其次是铁锰氧化态(Pb 为 18.61%, Cu 为 19.41%, Zn 为 20.36%); 不同之处在于淋洗前土壤中 Pb 的可交换态含量较多(10.29%), 有机态 Pb 含量较少(2.93%),

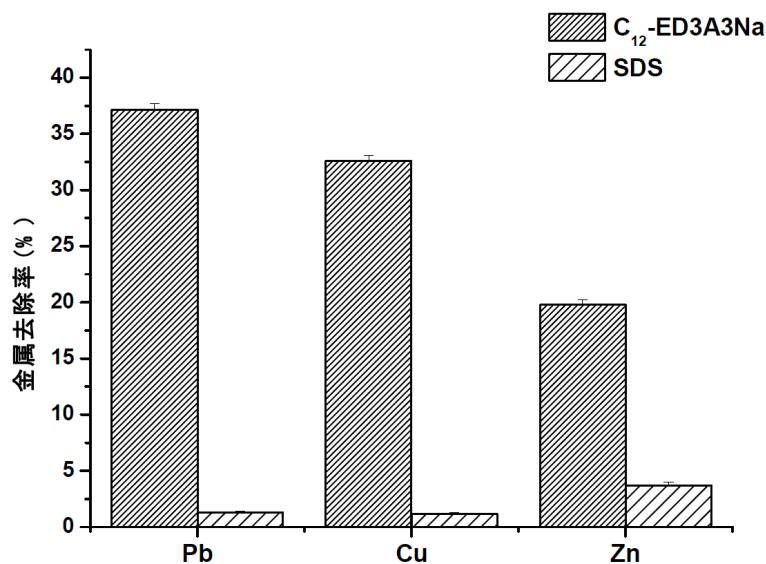


Figure 5. The metal removal efficiencies of C₁₂-ED3A3Na under the optimal leaching conditions

图 5. C₁₂-ED3A3Na 在最佳淋洗条件下的金属去除率

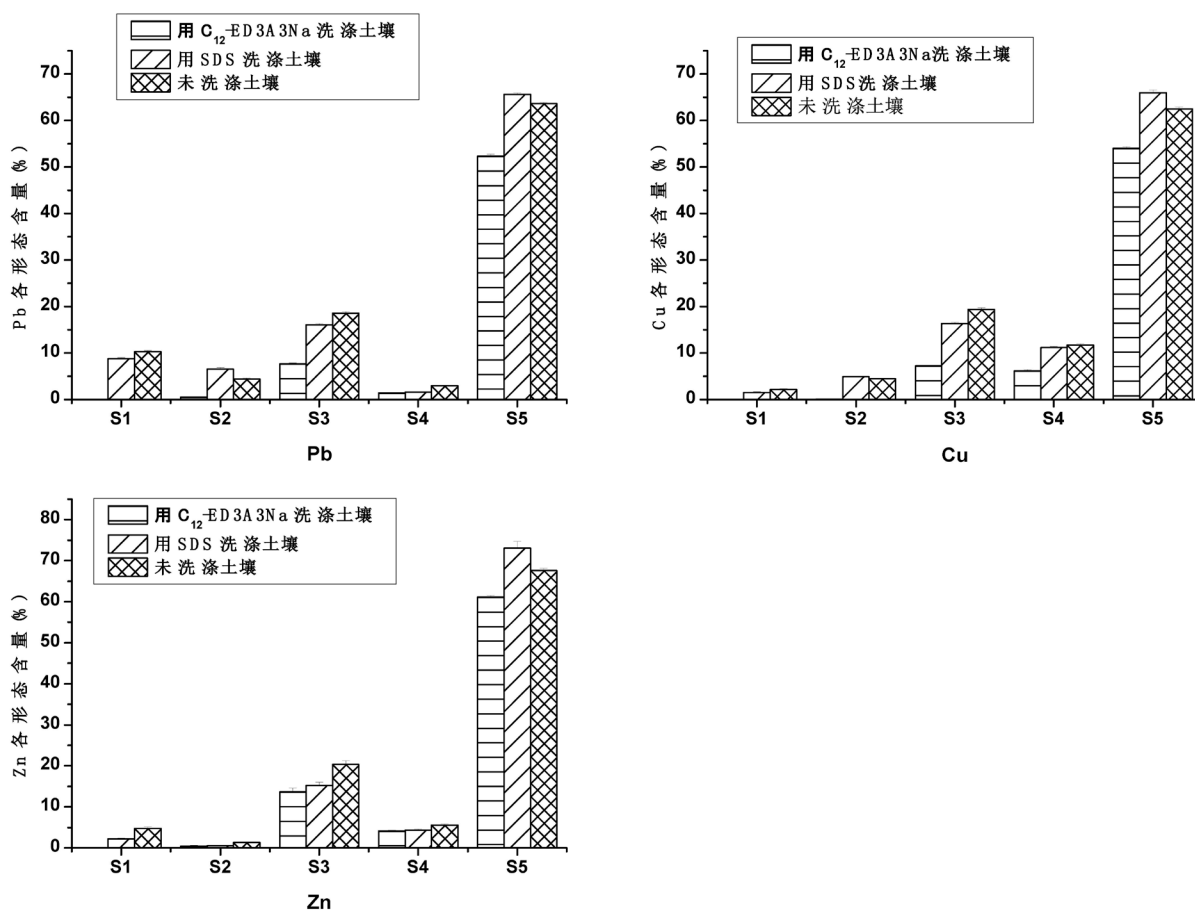


Figure 6. Metal fractions affected by surfactant-enhanced soil leaching (the metal percentages are calculated based on their individual contents in the unwashed soil)

图 6. 表面活性剂淋洗土壤对金属形态的影响(金属形态含量按各自金属在未洗土壤中的全量为基础计算)

而 Cu 则刚好相反, 可交换态含量较少(2.15%), 有机态 Cu 含量较多(11.66%), Zn 的可交换态和有机态含量差别不大, 分别为 4.74% 和 5.61%。三者的碳酸盐结合态含量也较少(Pb 为 4.40%, Cu 为 4.44%, Zn 为 1.34%)。土壤经 C₁₂-ED3A3Na 溶液淋洗后, 可交换态和碳酸盐结合态 Pb、Cu 和 Zn 基本都被淋洗出来, Pb、Cu 的铁锰氧化态含量降低较多, 均超过 56%, 而 Zn 的铁锰氧化态含量降低相对较少, 低于 31%; 这种螯合性表面活性剂对三种金属的有机结合态和残渣态的去除也有一定作用, 如 Pb 的有机结合态的含量比之前降低超过 48%, 残渣态的 Pb 和 Cu 的含量均比淋洗前降低 12% 以上。这与 EDTA [19] 或 EDTA 衍生物(PDFA) [20] 为淋洗剂, 增大淋洗剂用量时, 也能降低土壤中有有机态和残渣态的重金属含量的结果一样。所以我们推断 C₁₂-ED3A3Na 也能与部分有机态和残渣态的重金属发生络合作用, 并能将它们从土壤中解吸出来。

然而, 用浓度为 0.1 mol/L 的 SDS 淋洗土壤 8 h 后, 土壤中除了有机结合态的 Pb 比淋洗前降低较多, 约 50%, 可交换态, 铁锰氧化态的 Pb、Cu 和 Zn 的百分含量只比淋洗前有小幅所降低, 而 Pb 和 Cu 的碳酸盐结合态以及三种金属的残渣态的百分含量还高出了淋洗前的百分含量。这也说明, SDS 去除土壤重金属的能力很差, 而且在淋洗过程中, 发生金属形态转变, 由可交换态, 有机结合态的金属转变为碳酸盐结合态和残渣态。

4. 结论

1) 在液固比、淋洗液浓度、淋洗液 pH 值、淋洗时间和淋洗温度分别为 15:1、0.1 mol/L、11.48、8 h 和 35℃ 时, 新型螯合性表面活性剂 C₁₂-ED3A3Na 淋洗矿山附近农田土壤可达到最佳淋洗效果, 对土壤中 Pb、Cu 和 Zn 的去除率分别达到 37.12%、32.60% 和 19.77%。这种表面活性剂去除土壤重金属的能力远高于 SDS 的金属去除能力(Pb、Cu 和 Zn 的去除率仅仅分别 1.30%、1.16% 和 3.71%)。

2) C₁₂-ED3A3Na 螯合性表面活性剂对土壤中各种形态的 Pb、Cu 和 Zn 都有一定的去除效果, 基本能去除可交换态和碳酸盐结合态 Pb、Cu 和 Zn。因此, C₁₂-ED3A3Na 适合用于重金属污染土壤的淋洗修复。

基金项目

本文得到广东省自然科学基金(2015A030313677)资助。

参考文献 (References)

- [1] Lee, C.S., Li, X., Shi, W., *et al.* (2006) Metal Contamination in Urban, Suburban, and Country Park Soils of Hong Kong: A Study Based on GIS and Multivariate Statistics. *Science of the Total Environment*, **356**, 45-62. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2005.03.024>
- [2] Torres, L.G., Lopez, R.B. and Beltran, M. (2012) Removal of As, Cd, Cu, Ni, Pb, and Zn from a Highly Contaminated Industrial Soil Using Surfactant Enhanced Soil Washing. *Physics and Chemistry of the Earth*, **37-39**, 30-36. <https://doi.org/10.1016/j.pce.2011.02.003>
- [3] Abumaizar, R.J. and Smith, E.H. (1999) Heavy Metal Contaminants Removal by Soil WASHING. *Journal of Hazardous Materials*, **70**, 71-86. [https://doi.org/10.1016/S0304-3894\(99\)00149-1](https://doi.org/10.1016/S0304-3894(99)00149-1)
- [4] Evangelou, M.W.H., Ebel, M. and Schaeffer, A. (2007) Chelate Assisted Phytoextraction of Heavy Metals from Soil: Effect, Mechanism, Toxicity, and Fate of Chelating Agents. *Chemosphere*, **68**, 989-1003. <https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2007.01.062>
- [5] Slizovskiy, I.B., Kelsey, J.W. and Hatzinger, P.B. (2011) Surfactant-Facilitated Remediation of Metal-Contaminated Soils: Efficacy and Toxicological Consequences to Earthworms. *Environmental Toxicology and Chemistry*, **30**, 112-123. <https://doi.org/10.1002/etc.357>
- [6] Swarnkar, V., Agrawl, N. and Tomar, R. (2012) Sorption of Chromate and Arsenate Bysurfactant Modified Erionite (E-SMZ). *Journal of Dispersion Science and Technology*, **33**, 919-927. <https://doi.org/10.1080/01932691.2011.580183>
- [7] 黄川, 李柳, 黄珊, 等. 重金属污染土壤的草酸和 EDTA 混合淋洗研究[J]. 环境工程学报, 2014, 8(8): 3480-3486.
- [8] 蒋煜峰, 展惠英, 袁建梅, 等. 表面活性剂强化 EDTA 络合洗脱污灌土壤中重金属的试验研究[J]. 农业环境科学

学报, 2006, 25(1): 119-123.

- [9] Chang, F.-C., Lo, S.-L. and Ko, C.-H. (2007) Recovery of Copper and Chelating Agents from Sludge Extracting Solutions. *Separation and Purification Technology*, **53**, 49-56. <https://doi.org/10.1016/j.seppur.2006.06.011>
- [10] Jung, J., Yang, J.-S., Kim, S.-H., et al. (2008) Feasibility of Micellar-Enhanced Ultrafiltration (MEUF) or the Heavy Metal Removal in Soil Washing Effluent. *Desalination*, **222**, 202-211. <https://doi.org/10.1016/j.desal.2007.01.154>
- [11] Li, X., Zeng, G.-M., Huang, J.-H., et al. (2009) Recovery and Reuse of Surfactant SDS from a MEUF Retentate containing Cd^{2+} or Zn^{2+} by Ultrafiltration. *Journal of Membrane Science*, **337**, 92-97. <https://doi.org/10.1016/j.memsci.2009.03.030>
- [12] Chen, W.J., Hstao, L.C., Chen, K.K., et al. (2008) Metal Desorption from Copper (II)/Nickel (II) Spiked Kaolins a Soil Component using Plant-Derived Saponin Biosurfactant. *Process Biochemistry*, **43**, 488-498. <https://doi.org/10.1016/j.procbio.2007.11.017>
- [13] Beveridge, P. (1983) The Influence of Surfactants on the Adsorption of Heavy Metal Ions by Clays. *Water Research*, **17**, 215-225. [https://doi.org/10.1016/0043-1354\(83\)90102-1](https://doi.org/10.1016/0043-1354(83)90102-1)
- [14] Kulikowska, D., Gusiainz, M., Bulkowskak, et al. (2015) Humic Substances from Sewage Sludge Compost as Washing Agent Effectively Remove Cu and Cd from Soil. *Chemosphere*, **136**, 42-49. <https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2015.03.083>
- [15] 牛金平, 韩亚明. N-酰基乙二胺三乙酸类表面活性剂的结构特点与物化性能[J]. 日用化学品科学, 2002, 25(5): 4-27, 33.
- [16] 梁政勇, 叶志文, 吕春绪. 新型螯合性表面活性剂的合成[J]. 精细与专用化学品, 2004(12): 18-23.
- [17] 惠州学院. 含羟氧基的二胺类螯合性表面活性剂[P]. 中国专利, 201610517956.8, 2016-12-07.
- [18] Tessier, A., Campbell, P.G.C. and Bisson, M. (1979) Sequential Extraction Procedure for the Speciation of Particulate Trace Metals. *Analytical Chemistry*, **51**, 844-851. <https://doi.org/10.1021/ac50043a017>
- [19] Zhang, W., Huang, H., Tan, F., et al. (2010) Influence of EDTA Washing on the Species and Mobility of Heavy Metals Residual in Soils. *Journal of Hazardous Materials*, **173**, 369-376. <https://doi.org/10.1016/j.jhazmat.2009.08.087>
- [20] Zhang, T., Wei, H., Yang, X.-H., et al. (2014) Influence of the Selective EDTA Derivative Phenyl Diamine Tetraacetic Acid on the Speciation and Extraction of Heavy Metals from a Contaminated Soil. *Chemosphere*, **109**, 1-6. <https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2014.02.039>

知网检索的两种方式:

1. 打开知网页面 <http://kns.cnki.net/kns/brief/result.aspx?dbPrefix=WWJD>
下拉列表框选择: [ISSN], 输入期刊 ISSN: 2164-5485, 即可查询
2. 打开知网首页 <http://cnki.net/>
左侧“国际文献总库”进入, 输入文章标题, 即可查询

投稿请点击: <http://www.hanspub.org/Submission.aspx>
期刊邮箱: aep@hanspub.org