达里诺尔湖表层沉积物中 Hg、As 的形态分布及释放特性

李云飞1,何 江1,2*, 吕昌伟1,2,恩 和1,都达古拉1,谢志磊1

(1.内蒙古大学环境与资源学院,呼和浩特 010021; 2.内蒙古大学环境地质研究所,呼和浩特 010021)

摘 要:以达里诺尔湖为研究对象,采用七步逐级连续化学提取法,系统开展了表层沉积物中 Hg、As 的形态分析研究,重点模拟了 不同 pH 下表层沉积物中 Hg、As 的释放特性。结果表明,达里诺尔湖表层沉积物中 Hg 的生物有效态主导形态为腐植酸结合或络合 态,As 的生物有效态主导形态为碳酸盐与铁锰氧化物结合态。在实验 pH 范围内,碱性或弱碱性环境不利于 Hg 和 As 的释放,强碱 性环境利于 Hg 和 As 的释放;经酸溶液浸提过的沉积物,因金属氧化物的溶解使腐植酸结合或络合态的 Hg、As 暴露并在碱提取液 中释放;经碱溶液浸提过的沉积物,因腐植酸的溶解使铁锰氧化物结合态 Hg、As 暴露并在酸提取液中释放。保持达里诺尔湖水体 偏碱性状态对湖泊的水环境健康和生态安全至关重要。

关键词:达里诺尔湖;沉积物;Hg;As;形态;释放

中图分类号:X52 文献标志码:A 文章编号:1672-2043(2014)11-2228-06 doi:10.11654/jaes.2014.11.022

Fractions and Releases of Mercury and Arsenic in Sediments of Dalinuoer Lake, China

LI Yun-fei¹, HE Jiang^{1,2*}, LÜ Chang-wei^{1,2}, Enhe¹, Dudagula¹, XIE Zhi-lei¹

(1.College of Environment and Resources, Inner Mongolia University, Hohhot 010021, China; 2.Institute of Environmental Geology, Inner Mongolia University, Hohhot 010021, China)

Abstract: Fractions and releases of a heavy metal in sediments affect its environmental behaviors. In this work, a seven-step sequential extraction method was used to extract mercury(Hg) and arsenic(As) in the surface sediments from Dalinuoer Lake. Also, releasing of Hg and As from the sediments at different pH was examined. The results showed that Hg bioavailability in sediments was primarily fraction bound to humic acid, and that of As was carbonates and Fe-Mn oxides fractions. Releases of Hg and As from the sediments were little in alkali and weak alkaki solution, but significant in strong alkali solution. Pre-extraction by acid solution resulted in more Hg and As released in alkaline extraction because dissolution of the metal oxides exposed more metals bound to humic acid. Likewise, more Hg and As were extracted in acid solution after the sediments were pre-extracted with alkali solution, due to exposed Fe-Mn oxides from dissolution of the humic acid by alkali solution. Keeping lake water under weak alkaline conditions is the key to health and ecological safety in Dalinuoer Lake.

Keywords: Dalinuoer Lake; sediments; mercury; arsenic; fractions; releasing

Hg、As为有害元素,均被美国环保局(USEPA)列 为清洁水源优先控制污染物^{III}。不同领域的学者对生态环境中 Hg、As及其化合物的生物地球化学循环均 给予了高度重视^{I2-4I}。沉积物是湖泊生态系统的重要组 成部分,进入湖泊的 Hg、As通过絮凝或沉淀作用以 不同形态存在于沉积物中,成为 Hg、As的汇,在特定 环境地球化学条件下又会重新向上覆水体释放,成为

基金项目:国家自然科学基金(40863003,41163006)

潜在污染源^[5-6]。生物分析与毒性研究证明,环境中特 定元素的赋存形态很大程度上决定了该元素的环境 行为和生物效应^[7],水体沉积物中 Hg、As 的迁移转化 及潜在环境危害则取决于其生物有效态 Hg、As 的含 量。开展 Hg、As 在沉积物中的形态分布和生物有效 性研究,对水环境污染防治及预测 Hg、As 的潜在生 态风险具有重要意义^[8]。

本文以达里诺尔湖为研究对象,采用七步逐级化 学提取法,开展了表层沉积物中 Hg、As 的形态分析研 究,并针对湖水的碱性特征,重点开展了不同 pH 下表 层沉积物中 Hg、As 的释放特性研究,以期为达里诺尔 湖水体沉积物 Hg、As 的污染防治提供科学依据。

收稿日期:2014-06-11

作者简介:李云飞(1988—),男,硕士研究生,研究方向为环境地球化 学。

^{*}通信作者:何 江 E-mail:ndjhe@imu.edu.cn

1 材料与方法

1.1 研究区概况

达里诺尔湖(43°13′~43°23′N,116°26′~116°45′ E)位于内蒙古自治区赤峰市克什克腾旗西部。湖泊 面积约 228 km²,是内蒙古四大湖泊之一。湖盆东浅西 深,平均水深 6.8 m,最大水深 13 m,储水量约 1.6×10° m³。湖区位于中温带半湿润、半干旱区过渡带,年降水 量 350~400 mm,年蒸发量 1287 mm。达里诺尔湖属堰 塞湖,无外流河流,湖泊补给水源主要来自贡格尔河、 沙里河、耗来河和亮子河等入湖河流(图1)及地下水 和雨水等,湖水的主要损耗方式为蒸发。水质类型为 碳酸钠 I 型水,盐分以碳酸盐为主,总碱度高达 53.57 mmol·L⁻¹,平均 pH 值为 9.50。近年来,由于气候干旱 和人类活动的影响,水位连年下降,湖泊面积逐年萎 缩,水体盐碱度不断增高,对达里诺尔国家自然保护 区内的珍稀候鸟、渔业生产以及周边区域的可持续发 展构成了潜在威胁和风险¹⁹。

1.2 样品采集及保存

依据《湖泊生态系统观测方法》,针对湖泊现有水 域面积及湖泊生态系统类型设置8个采样点(图1), 于2011年8月进行了系统的现场监测和样品采集。 表层沉积物样(0~10 cm)用挪威 Swedag 公司产 KC mod A och B 型无扰动采样器及荷兰 Eijkelkamp 公司 产 SA Beeker 型沉积物原状采样器采集。样品装入聚 乙烯塑料袋封口后,回实验室于-24℃冷冻保存。采 样点用 GPS 定位。

1.3 样品处理及测定

将沉积物样品解冻,室温下自然风干,用尼龙筛

筛取<63 μm 部分备用。Hg、As 的形态分析采用七步 逐级化学提取法[10](表1),20%的样品设置 2~3 个平 行样,每批样品设置3个空白平行样。

取 0.5 g 表层沉积物样品共 100 个,每个样品设 置 3 个平行样,用 HCl和 KOH 调节成不同 pH 值的 浸提液进行沉积物中 Hg、As 的释放实验(表 2),实验 过程中用 HCl 和 KOH 控制体系的 pH。

2 结果与讨论

2.1 表层沉积物中 Hg、As 的形态分布特征

研究表明,表层沉积物中 Hg 的主导形态为腐植 酸结合或络合态,次为残渣态或晶格态,各形态百分 含量依序为腐植酸结合或络合态>残渣态或晶格态> 水溶态>难氧化降解有机质及某些硫化物结合态>可 交换态>碳酸盐与铁锰氧化物及部分有机质结合态> 易氧化降解有机质结合态。As 的主导形态为残渣或 晶格态,其次为碳酸盐与铁锰氧化物结合态,各形态 百分含量依序为残渣态或晶格态>碳酸盐与铁锰氧化 物及部分有机质结合态>腐植酸结合或络合态>水溶 态>易氧化降解有机质结合态>难氧化降解有机质及 某些硫化物结合态>可交换态(图 2)。

水溶态和可交换态 Hg 的含量介于 1.39~3.49 μg·kg⁻¹之间,平均 2.27 μg·kg⁻¹,占表层沉积物总 Hg 的 3.8%~10.0%, 平均占 7.28%; 水溶态和可交换态 As 的含量介于 0.14~1.08 mg·kg⁻¹ 之间,平均 0.61 mg·kg⁻¹, 占表层沉积物总 As 的 1.99%~11.77%,平均占 7.29% (图 2)。尽管表层沉积物中水溶态及可交换态 Hg 和 As 的含量及占比均较低,但因该两种形态的生物可 利用性大,能直接为水生生物吸收,故可能有一定的



Figure 1 Sampling points of Dalinuoer Lake

农业环境科学学报 第 33 卷第 11 期

表 1 沉积物中 Hg、As 的连续提取方法^[10]

Table 1 Sequential extraction procedure for Hg and As fractions in sediments

	Hg、As形态	提取方法
第一态	水溶态	准确秤取 0.500 0 g 沉积物样品,盛于 50 mL 聚乙烯螺口离心管中,向管内加入 20 mL 去离子水,25 ℃振荡 30 min 后,离心获取上清液,经 0.45 µm 滤膜过滤后定容至 25 mL,移取 10 mL 溴化测 Hg,剩余溶液加硫脲- 抗坏血酸还原后重新定容至 25 mL 测 As
第二态	可交换态	在上步残渣中加入 20 mL 0.5 mol·L ⁻¹ MgCl₂(pH=7),25 ℃振荡 30 min 后,离心获取上清液,经 0.45 μm 滤膜 过滤后定容至 25 mL,移取 10 mL 溴化测 Hg,剩余溶液加硫脲-抗坏血酸还原后重新定容至 25 mL测 As
第三态	碳酸盐、铁锰氧化物及 部分有机质结合态	在上步残渣中加入 0.3 mol·L ⁻¹ HCl 20 mL,25 ℃振荡 30 min,离心获取上清液,经 0.45 μm 滤膜过滤后定容 至 25 mL,移取 10 mL 溴化测 Hg,剩余溶液加硫脲-抗坏血酸还原后重新定容至 25 mL 测 As
第四态	腐植酸结合或 络合态	在上步残渣中加入 1%KOH 20 mL,25 ℃振荡 30 min,放置过夜,离心分离取上清液,经 0.45 μm 滤膜过滤后 定容至 25 mL,移取 10 mL 溴化测 Hg,剩余溶液加硫脲-抗坏血酸还原后重新定容至 25 mL 测 As
第五态	易氧化降解有机质 结合态	在上步残渣中加入 3%H2O2(pH=2)20 mL,于 80 ℃水浴中加热 4 h,离心分离取上清液,经 0.45 μm 滤膜过滤 后定容至 25 mL,移取 10 mL 直接测 Hg,剩余溶液加硫脲-抗坏血酸还原后重新定容至 25 mL测 As
第六态	难氧化降解有机质及 某些硫化物结合态	在上步残渣中加入 30%H ₂ O ₂ (pH=2)20 mL, 于 80 ℃水浴中加热 4 h,离心分离取上清液,用 pH=2 的水洗两次,经 0.45 μm 滤膜过滤后定容至 25 mL,移取 10 mL 直接测 Hg,剩余溶液在电热板上 120 ℃消解 12 h 以 上使 H ₂ O ₂ 分解,加硫脲-抗坏血酸还原并重新定容至 25 mL测 As
第七态	残渣态或晶格态	将上步残渣转移至微波消解罐中,加入8mL 王水,2mL HF,于180℃微波消解25min,定容至25mL 聚四 氟乙烯容量瓶中,移取10mL 直接测Hg,剩余溶液加硫脲-抗坏血酸还原后重新定容至25mL 测As

表 2 不同 pH 下表层沉积物中 Hg、As 的释放实验

Table 2 Experiments for Hg and As releases from sediments at different pH

项目	方法
第一项	不同 pH(7、8、9、10、11.1、12.2、13.2)碱溶液对原状沉积物的浸提
第二项	分别用强碱性(pH=13.2)和碱性(pH=10)溶液对经不同 pH(7、6、5、4、2.8、1.8、0.7)酸溶液提取后沉积物的再浸提
第三项	分别用强酸性(pH为0.7和2.8)溶液对经不同pH(7、8、9、10、11.1、12.2、13.2)碱溶液提取后沉积物的再浸提
第四项	先后用强酸性(pH=0.7)溶液和强碱性(pH=13.2)溶液反复浸提沉积物三次
45	10-



Figure 2 Contents and percentages of different fractions of Hg and As in surface sediments

生态风险。

碳酸盐与铁锰氧化物及部分有机质结合态 Hg 的含量较低,占表层沉积物总 Hg 的 0.06%~3.15%, 平均占 2.12%。碳酸盐与铁锰氧化物及部分有机质结 合态 As 的含量较高,占表层沉积物总 As 的 24.03%~ 34.95%,平均占28.50%。本课题组前期研究表明¹⁹,近 30余年来,达里诺尔湖湖水碳酸钙饱和系数在 31.59~166.92之间,为自生碳酸盐的沉淀提供了必要 条件。碱性环境中,因铁的氧化作用增强导致三价铁 沉淀^[1]。此外,表生条件下,氢氧化铁沉积物中富集 As,同时 As⁵+形成的砷酸根络阴离子易与 Fe³⁺结合形 成砷铁矿[Fe₃(AsO₄)₂·8H₂O]^[12]。碳酸盐与铁锰氧化物 及部分有机质结合态的 As 对 pH 最为敏感,在酸性 条件下易释放,随体系 pH 升高,粘土矿物、水合氧化 物和有机质表面的负电荷增加^[13-14],对 As 的吸附能 力增强,从而导致碳酸盐与铁锰氧化物及部分有机质 结合态 As 含量升高。达里诺尔湖常年处于碱性环境 (pH平均为9.50),不利于此形态As的释放,所以此 形态 As 对达里诺尔湖水环境的潜在危害较小。

Hg和As的有机质结合态包括腐植酸结合或络 合态、易氧化降解有机质结合态、难氧化降解有机质 及某些硫化物结合态。达里诺尔湖表层沉积物中 Hg 的主导形态为腐植酸结合或络合态,其含量范围为 7.76~26.18 µg·kg⁻¹, 平均为 17.11 µg·kg⁻¹, 占表层沉 积物中总 Hg 的 41.68%~71.65%, 平均占 57.39%(图 2)。前人研究表明[15-16],腐殖质对土壤中的 Hg 表现极 大的亲合性,且腐植酸结合或络合态 Hg 的生物有效 性低于水溶态和可交换态 Hg, 腐植酸可作为环境中 Hg 活性的抑制剂^[17]。达里诺尔湖表层沉积物中腐植 酸结合或络合态 As 的含量也相对较高,其含量范围 为 0.16~1.49 mg·kg⁻¹, 平均为 0.95 mg·kg⁻¹, 占表层沉 积物总 As 的 2.14%~14.79%,平均占 11.30%。表层沉

积物中易氧化降解有机质结合态、难氧化降解有机质 与硫化物结合态 Hg 的含量之和及 As 的含量之和均 较低,占总 Hg 和总 As 的平均百分含量分别为 5.27% 和 6.32%。由于有机质在表层沉积物中发生降解、分 解和腐殖化,致使3种有机质结合态的Hg、As在沉积 成岩作用过程中相互转化,进而使腐植酸结合或络合 态 Hg、As 的比例增大,易、难氧化降解有机质结合态 Hg、As 的比例相应减小^[10]。本组前期研究表明^[18],近年 来达里诺尔湖水体富营养化不断加剧,水体沉积物常 年处于还原环境,利于有机质的保存,这可能是达里 诺尔湖表层沉积物中 Hg、As 有机质结合态含量较高 的原因之一。

2.2 不同 pH 下表层沉积物中 Hg、As 的释放实验

不同 pH 碱溶液对原状沉积物的浸提实验结果 表明(表 2,图 3),在 pH 为 7~10 的区间内, Hg 和 As 的释放量均随 pH 的升高而减小;在 pH 为 10~13.2 的区间内,Hg和As的释放量均随pH的升高而增 大。研究结果揭示,在实验 pH 范围内,碱性或弱碱性 环境不利于 Hg 和 As 的释放,强碱性环境则利于 Hg 和 As 的释放,鉴于达里诺尔湖的现有 pH 条件,可以 认为表层沉积物中 Hg 和 As 的生态风险较小。

强碱性(pH=13.2)和碱性溶液(pH=10)对经不同 pH 酸溶液提取后沉积物的再浸提实验结果表明,Hg 和 As 的释放量均随酸提取溶液 pH 的减小而增大 (表 2,图 4)。强酸性溶液(pH 分别为 0.7 和 2.8)对经 不同 pH 碱溶液提取后沉积物的再浸提实验结果表 明,Hg和As的释放量总体上均随碱提取溶液pH的 增大而增大(表 2,图 5)。先后用强酸性(pH=0.7)溶液 和强碱性(pH=13.2)溶液反复浸提沉积物三次的实验 结果表明,后两次实验浸出的 Hg、As 分别占总浸出 Hg、As的35%和36%(表2,图6)。上述实验表明,酸 溶态和碱溶态 Hg、As 的溶出可互为条件并相互促







图 4 强碱性(pH=13.2)和碱性溶液(pH=10)对经不同 pH 酸溶液提取后沉积物的再浸提过程中 Hg 和 As 的释放量 Figure 4 Releases of Hg and As from sediments pre-extracted by different pH acid solution by strong alkali(pH13.2) and alkali(pH10.0) extractants



图 5 强酸性溶液(pH 分别为 0.7 和 2.8)对经不同 pH 碱溶液提取后沉积物的再浸提过程中 Hg 和 As 的释放量 Figure 5 Releases of Hg and As from sediments pre-extracted by different pH alkali solution by strong acid(pH0.7) and acid(pH2.8) extractants



图 6 先后用强酸性(pH=0.7)溶液和强碱性(pH=13.2)溶液反复浸提沉积物三次所得 Hg 和 As 释放量和释放百分比 Figure 6 Amounts and percentages of Hg and As extracted from sediments with pH0.7 and pH13.2 solutions sequentially for three cycles

进,这可能与腐植酸和 Fe、Mn、Al、Ca 等金属氧化物 形成不溶性沉淀¹⁹,并最终形成相互荫蔽有关。经酸 溶液浸提过的沉积物,因金属氧化物的溶解使腐植酸 结合或络合态的 Hg、As 暴露并在碱提取液中释放; 经碱溶液提取过的沉积物,因腐植酸的溶解使铁锰氧化物结合态 Hg、As 暴露并在酸提取液中释放。由此推之,保持达里诺尔湖水的偏碱性状态对湖泊的水体环境健康和生态安全至关重要。

3 结论

形态分析结果表明,达里诺尔湖表层沉积物中 Hg 的生物有效态主导形态为腐植酸结合或络合态, As 的生物有效态主导形态为碳酸盐与铁锰氧化物结 合态。

不同 pH 下表层沉积物中 Hg、As 的释放实验结 果表明,在实验 pH 范围内,碱性或弱碱性环境不利 于 Hg 和 As 的释放,强碱性环境利于 Hg 和 As 的释 放;经酸溶液浸提过的沉积物,因金属氧化物的溶解 使腐植酸结合或络合态的 Hg、As 暴露并在碱提取液 中释放;经碱溶液提取过的沉积物,因腐植酸的溶解 使铁锰氧化物结合态 Hg、As 暴露并在酸提取液中释 放。保持达里诺尔湖水的偏碱性状态对湖泊的水体环 境健康和生态安全至关重要。

参考文献:

- USEPA. Priority Pollutants 2011[EB/OL]. [2014-05-06]. http://water. epa. gov/scitech/methods /cwa/ pollutants. cfm.
- [2] Smedley P L, Kinniburgh D G. A review of the source, behavior and distribution of arsenic in natural waters[J]. *Applied Geochemistry*, 2002, 17 (5):517–568.
- [3] Ng J C. Environmental contamination of arsenic and its toxicological impact on humans[J]. *Environmental Chemistry*, 2005, 2(3): 146–160.
- [4] 朱金山. 三峡库区消落带汞的形态转化与释放特征[D]. 重庆:西南 大学, 2012.

ZHU Jin-shan. Transformation and release of mercury in water-levelfluctuating zone of three gorges reservoir area, China[D]. Chongqing: Southwest University, 2012.

- [5] Wang Y W, Yuan C G, Jin X L, et al. Application of chemo metrics methods for the estimation of heavy metals contamination in river sedi– ments[J]. Journal of Environmental Sciences, 2005, 17(4):540–544.
- [6] O'Connor D J, Connolly J P. The effect of concentration of adsorbing solids on the partition coefficient[J]. Water Research, 1980, 14(10): 1517–1523.
- [7] Korfali S I, Davies B E. A comparison of metals in sediments and water in the river Nahr–Ibrahim, Lebanon: 1996 and 1999[J]. *Environmental Geochemistry and Health*, 2003, 25(1):41–50.
- [8] 刘爱菊, 王洪海, 潘嘉芬, 等. 孝妇河表层沉积物中重金属赋存形态 与微生物群落组成[J]. 中国环境科学, 2010, 30(8):1103–1109. LIU Ai-jü, WANG Hong-hai, PAN Jia-fen, et al. Relationship between heavy metals speciation and microbial community structure in surface sediment of Xiaofu River[J]. *China Environmental Science*, 2010, 30 (8):1103–1109.
- [9] 孙园园,何 江,吕昌伟,等.达里诺尔湖沉积物中无机碳的形态组成[J].生态学报,2013,33(2):610-618.

SUN Yuan-yuan, HE Jiang, LÜ Chang-wei, et al. Forms composition of inorganic carbon in sediments from Dalinuoer Lake[J]. Acta Ecologica

Sinica, 2013, 33(2):610-618.

[10] 林玉环, 康德梦, 刘静宜, 等. 蓟运河底泥中汞的形态分布[J]. 环境 化学, 1983, 12(6):10-19.

LIN Yu-huan, KANG De-meng, LIU Jing-yi, et al. Forms distribution of mercury in sediments of Jiyun River[J]. *Environmental Chemistry*, 1983, 12(6):10–19.

[11] 鲁新川. 临夏盆地 14-4. 4Ma 湖相沉积物元素地球化学特征与气候变化[D]. 兰州:兰州大学, 2007.
LU Xin-chuan. Elemental geochemical characters and palaeoclimatic

changes of lacustrine sediments of 14–4. 4Ma in Linxia Basin[D]. Lanzhou: Lanzhou University, 2007.

[12] 刘英俊, 曹励明, 李兆麟, 等. 元素地球化学[M]. 北京:科学出版社, 1984.

LIU Ying-jun, CAO Li-ming, LI Zhao-lin, et al. Element geochemistry [M]. Beijing: Science Press, 1984.

[13] 樊庆云. 黄河包头段沉积物重金属的生物有效性研究[D]. 呼和浩特: 内蒙古大学, 2008.

FAN Qing-yun. Heavy metals bioavailability on sediments of the Baotou Section of The Yellow River[D]. Hohhot: Inner Mongolia University, 2008.

[14] 丁疆华, 温琰茂, 舒强. 土壤环境中镉、锌形态转化的探讨[J]. 城市环境与城市生态, 2001, 14(2):47-48.

DING Jiang-hua, WEN Yan-mao, SHU Qiang. Fraction transformation of cadmium and zinc in soils[J]. Urban Environment & Urban Ecology, 2001, 14(2):47-48.

[15] 姚爰军, 青长乐. 腐植酸对矿物结合汞挥发活性影响的动态特征[J]. 土壤学报, 2000, 37(2):202-208.

YAO Ai-jun, QING Chang-le. Kinetic characteristics of the influence of humus on the volatility of mineral bound Hg[J]. *Acta Pedologica Sinica*, 2000, 37(2):202–208.

 [16] 姚爱军, 青长乐, 牟树森. 腐植酸对矿物结合汞挥发活性的影响[J]. 土壤学报, 1999, 36(4):477-483.
YAO Ai-jun, QING Chang-le, MOU Shu-sen. Effect of humus on the

activity of mineral-bound Hg[J]. *Acta Pedologica Sinica*, 1999, 36(4): 477–483.

[17]李 波,魏世强,青长乐.腐植酸对土壤吸持汞的影响研究[J].环境 科学与技术,2004,27(2):1-2.

LI Bo, WEI Shi-qiang, QING Chang-le. Effect of humus on mercury adsorption in soil[J]. *Environmental Science and Technology*, 2004, 27 (2):1–2.

- [18] 赵万苍,何 江,宋文杰,等. 达里诺尔湖表层沉积物中腐殖质的分 布特征[J]. 农业环境科学学报, 2011, 30(2):341-346. ZHAO Wan-cang, HE Jiang, SONG Wen-jie, et al. The spatial distribution of humus components and species and the pollution characters of the surface sediments in the Dalinuoer Lake, China[J]. Journal of
- [19] 庞叔薇, 邱光葵, 孙景芳. 连续化学浸提法测定底泥中不同形态汞 的探讨[J]. 环境科学学报, 1981, 1(3):234-241.

Agro-Environment Science, 2011, 30(2): 341-346.

PANG Shu-wei, QIU Guang-kui, SUN Jing-fang. Sequential chemical extraction for speciation of mercury in river sediment[J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 1981, 1(3):234–241.