

两种污染土壤中重金属 Pb Cd Zn 的 EDTA 萃取及形态变化

雷 鸣¹, 廖柏寒², 曾清如¹, 周细红¹, 刘 丽¹

(1. 湖南农业大学资源环境学院, 湖南 长沙 410128; 2. 中南林学院资源与环境学院, 湖南 长沙 410004)

摘 要:用 Tessier 连续提取法研究了 EDTA 萃取前后受污染覆盖土和灌溉土土壤中重金属 Pb、Cd、Zn 的形态变化。结果表明, 2 种污染土壤中的重金属 Pb、Cd、Zn 的形态分布各有差异, 均以残渣态为主。在 5.0 mmol·L⁻¹ 浓度条件下, EDTA 对 Pb 和 Cd 的萃取能力较其对 Zn 的萃取能力强; 经 EDTA 萃取后的土壤中 Pb、Cd、Zn 残渣态、碳酸盐结合态、铁锰氧化物结合态、交换态含量分别有所下降, Pb 和 Cd 减少顺序为残渣态>碳酸盐结合态>铁锰氧化物结合态>交换态, Zn 减少顺序为残渣态>交换态>铁锰氧化物结合态>碳酸盐结合态; 而有机物结合态 Pb、Cd、Zn 的含量却有所增加, 其增加幅度为 Zn>Pb>Cd。

关键词:污染土壤; 重金属; 乙二胺四乙酸二钠盐; 形态分布
中图分类号: X53 **文献标识码:** A **文章编号:** 1672-2043(2005)06-1233-05

EDTA Extraction and Changes of Pb, Cd, and Zn Fractions in Two Contaminated Soils

LEI Ming¹, LIAO Bo-han², ZENG Qing-ru¹, ZHOU Xi-hong¹, LIU Li¹

(1. College of Resources and Environment, Hunan Agricultural University, Changsha 410128, China; 2. College of Resources and Environment, Central South Forestry University, Changsha 410004, China)

Abstract: In order to evaluate chemical behaviors and bioavailability of heavy metals in contaminated soils, two types of topsoil samples were collected at a Pb-Zn mining area located in Chenzhou city, southern Hunan Province (southern China), where mining activities of heavy metals have been conducted for about 500 years and ore waste tailings have been piled up around. In recent decades, high contents of heavy metals such as Pb, Cd, Zn, Cu, Cr, and As have been found in environment nearby due to the collapse of a tailing dam in 1985, especially in the soils and stream water. The batch experiment of effect on fractions distribution of Pb, Cd, and Zn the two contaminated soils before and after extracted by an EDTA solution was carried. And Tessier's sequential extraction technique was conducted for in two contaminated soils. The results showed that before EDTA extraction, the two tested soils had different fractions distribution of Pb, Cd, and Zn, and the most important fractions were all residual forms. An EDTA solution of 5.0 mmol·L⁻¹ had a stronger ability to extract soil Pb and Cd than soil Zn. After EDTA extraction, fractions of Pb, Cd, and Zn bound to residual, carbonate, Fe/Mn oxides, and exchangeable forms decreased to some extent. For Pb and Cd, decreased amounts of the fractions were in a sequence of residual, carbonate, Fe/Mn oxides, and exchangeable forms; for Zn, however, this sequence was residual > exchangeable > Fe/Mn oxides > carbonate forms. EDTA extraction led to increases of Pb, Cd, and Zn bound to organic matter, and the increased amounts were Zn > Pb > Cd.

Keywords: contaminated soils; heavy metal; disodium ethylenediaminetetraacetate; fraction distribution

土壤重金属污染问题是全球严重的环境问题之

收稿日期: 2005-02-26
基金项目: 科技部中法先进研究计划(PRA E00-04); 教育部科学技术研究重点项目(教技司[2000]156-00209); 湖南省教育厅重点科研项目(00A003)
作者简介: 雷 鸣(1975—), 男, 汉族, 湖南农业大学硕士研究生, 讲师。
联系人: 廖柏寒 E-mail: liao.bh@tom.com

一。重金属污染因其潜伏性和长期性而受到极大关注。一般而言, 土壤中重金属总量越高, 潜在环境危害越大。但近年来一些研究结果发现, 重金属在土壤中总量并不能完全决定其环境行为和生态效应, 重金属在土壤中的存在形态和各形态比例才是决定其对环境及周围生态系统造成影响的关键因素^[1]。在重金属

污染的土壤中,有效态重金属含量更能反映重金属对作物的危害程度^[2]。因此,研究重金属环境效应必须研究其在土壤中的形态及形态转化过程的动态变化。目前关于土壤重金属化学萃取的研究主要集中在化学萃取剂选择^[3,4]、萃取效果分析^[3,4]、萃取方法完善^[5-7]等方面,而对化学萃取后土壤中重金属形态的变化重视不够。乙二胺四乙酸二钠盐(EDTA)对土壤中重金属有很高的螯合效率,且性质稳定,对生物的毒性较小,因而成为当前最普遍的化学萃取剂^[8-10]。矿山开采产生大量酸性矿井水和尾矿砂是造成矿区及其周围地区生态系统重金属污染的主要原因之一^[11]。用 EDTA 萃取矿区周围尾砂覆盖土和污水灌溉土中的重金属,分析萃取后土壤中重金属形态变化,当前尚未见报

道。本文以矿区周围受重金属污染尾砂覆盖土和污水灌溉土为研究对象,采用 Tessier 连续提取法划分重金属形态^[12],分析土壤中各形态重金属含量变化,探讨污染土壤中重金属经 EDTA 萃取后的形态转化,为化学法修复重金属污染土壤提供实验及理论依据。

1 材料与方法

1.1 供试土壤

供试土壤为尾砂覆盖土(A)和污水灌溉土(B),采自湖南郴州某铅锌矿区附近污染土壤。土壤样品经自然风干后,过 2 mm 尼龙筛,保存待测。供试土壤的部分理化性质及主要重金属总量见表 1。

1.2 试验方法

表 1 供试土壤的部分理化性质及主要重金属总量

Table 1 Some physical chemical properties and contents of major heavy metals in the tested soils								
土壤代码	土壤类型	污染来源	pH 值	CEC /cmol·kg ⁻¹	有机质 /%	Pb 总量 /mg·kg ⁻¹	Cd 总量 /mg·kg ⁻¹	Zn 总量 /mg·kg ⁻¹
A	菜园土	尾砂覆盖	5.37	8.63	1.05	1 267.36	7.68	1332.08
B	水稻土	污水灌溉	4.76	6.12	1.51	717.81	3.48	353.53

1.2.1 EDTA 对土壤重金属的萃取试验

分别称取 (2.00±0.01)g 的土壤 A 和土壤 B 样品于 80.00 mL 塑料离心管中,加入 5.0 mmol·L⁻¹ 的 EDTA 溶液 10.00 mL 进行萃取,设 1 组重复。每 12 h 振荡 15 min,48 h 后以 4 000 r·min⁻¹ 离心 15 min,连续萃取 10 次,将所收集到的离心液全部过 0.45 μm 膜,装在塑料瓶中,并加入 1 滴浓 HNO₃,密封后于 4℃下保存,用于测定 Pb、Cd、Zn。将经 10 次连续萃取后的土样残渣 A 和 B 自然风干,运用 Tessier 连续提取法分析土样重金属 Pb、Cd、Zn 的形态。

1.2.2 土壤重金属形态分析

参照 Tessier 连续提取法^[12]将土壤重金属 Pb、Cd、Zn 分成交换态(Ⅰ)、碳酸盐结合态(Ⅱ)、无定型铁锰氧化物结合态(Ⅲ)、有机结合态(Ⅳ)、残渣态(Ⅴ)等 5 种主要形态。

1.2.3 测试方法

土壤 pH 值用 pH 计测定 (5.00 g 土壤加 25 mL 去离子水,振荡 30 min)^[13];土壤 CEC 用 Hendershot-Duquette 的方法测定 (4.5 g 土壤加 30 mL0.1 mol·L⁻¹ BaCl₂ 溶液,振荡 2 h)^[14];土壤有机质用高温外热重铬酸钾氧化-容量法测定^[15];土壤重金属 Pb、Cd、Zn 的总量用浓 HCl+浓 HNO₃+HClO₄ 消化^[15];溶液中重金属 Pb、Cd、Zn 及其他阳离子浓度由火焰法-原子吸收分光光度法(AA-646,日本岛津)测定,所用试剂均为分

析纯或优质纯。

2 结果与讨论

2.1 污染土壤中 Pb、Cd、Zn 的总量及形态分布

由表 1 可知,EDTA 萃取前,土壤 A 中重金属 Pb、Cd、Zn 的总量分别为 1 267.36、7.68、1 332.08 mg·kg⁻¹,分别为国家土壤环境质量二级标准(GB15618-1995,蔬菜地标准)^[16]的 5.0、25.6、6.7 倍。土壤 B 中重金属 Pb、Cd、Zn 的总量分别为 717.81、3.48、353.53 mg·kg⁻¹,Pb、Cd 的含量分别为国家土壤环境质量三级标准(GB15618-1995,农田土壤标准)的 1.4、3.5 倍,而 Zn 低于三级标准(500 mg·kg⁻¹)^[16]。重金属总量测定结果表明,土壤 A 中重金属 Pb、Cd、Zn 含量均严重超标,土壤 B 中重金属 Pb、Cd 含量超标,Zn 未超标。

运用 Tessier 连续提取法分析供试土壤中重金属 Pb、Cd 和 Zn 的各形态含量,并计算各形态含量的平均值,利用百分比计算公式($F_x \times 100$)/ T (其中 F_x 代表重金属某一形态的含量, T 代表重金属各形态含量总和)求得各形态所占的百分比,其结果列在表 2 中。重金属 Pb、Cd 和 Zn 各形态含量之和与供试土壤中该金属的总量比较吻合,这说明形态分析结果是合理的。由表 2 可知,土壤 A 和土壤 B 中 Pb、Cd、Zn 的主要形态是残渣态,其中残渣态 Pb 分别占其总量的 64.32%和 64.19%,残渣态 Cd 分别为 38.04%和

32.26%,残渣态 Zn 分别为 56.53%和 46.68%。土壤 A 中 Pb、Cd、Zn 各形态含量分别大于土壤 B 中 Pb、Cd、Zn 各形态含量。究其原因,一方面与其总量有关,另一方面是其来源不同。土壤 A 是尾砂覆盖土,土壤 B 为洗矿水灌溉土,其形态分布有较大差异^[7];再者,由于土壤 B 是洗矿水灌溉土,洗矿水中酸性较强,pH 值

较低,使土壤 B 中重金属发生形态变化,部分重金属由于溶解而离开土壤。土壤 B 中有有机物结合态 Pd、Cd 和 Zn 的含量较土壤 A 的小,但在 5 种形态中所占百分率却比土壤 A 的高,这与土壤 B 中有机质的含量高于土壤 A 有关。

土壤中重金属对植物的污染危害不仅与重金属

表 2 EDTA 萃取前土壤重金属形态分布的比较
Table 2 Comparison of heavy metal fractions in the tested soils before EDTA extraction

土壤	重金属	I		II		III		IV		V		各形态之和 /mg·kg ⁻¹
		含量 /mg·kg ⁻¹	百分率 /%	含量 /mg·kg ⁻¹	百分率 /%	含量 /mg·kg ⁻¹	百分 /%	含量 /mg·kg ⁻¹	百分率 /%	含量 /mg·kg ⁻¹	百分率 /%	
A	Pb	37.90	3.02	154.40	12.30	106.86	8.51	148.70	11.85	807.32	64.32	1 255.18
	Cd	1.25	16.98	1.23	16.71	1.43	19.43	0.65	8.83	2.80	38.04	7.36
	Zn	85.75	6.59	57.35	4.41	252.08	19.37	170.60	13.11	735.85	56.53	1 301.63
B	Pb	29.18	4.12	73.58	10.39	64.95	9.17	85.91	12.13	454.55	64.19	708.16
	Cd	0.67	19.65	0.63	18.48	0.69	20.23	0.32	9.39	1.10	32.26	3.41
	Zn	29.18	8.46	20.65	5.99	88.04	25.53	45.97	13.33	160.96	46.68	344.80

的结合形态有关,而且与土壤中生物可利用态重金属的浓度和价态有关。目前人们普遍认为生物可利用态重金属主要是指交换态(包括水溶态)重金属,该形态重金属容易被植物吸收;潜在生物可利用态主要是碳酸盐结合态,铁锰氧化物结合态和有机物结合态三种形态,它们在比较强的酸性介质及适当的环境条件下才能释放出来,成为生物可利用态,是可利用态重金属的直接提供者;不可利用态一般是指残渣态^[18]。

根据以上分类,从表 3 可知,土壤 A 中不可利用

态重金属 Pd、Cd 和 Zn 的浓度分别为 807.32、2.80、735.85 mg·kg⁻¹,比土壤 B 中对应的重金属浓度(Pd 454.55 mg·kg⁻¹、Cd 1.10 mg·kg⁻¹、Zn 160.96 mg·kg⁻¹)要高。土壤 A 中生物可利用态和潜在可利用态 Pd、Cd 和 Zn 的浓度也比土壤 B 中的要高,但从所占的百分率来看,土壤 B 中的生物可利用态与潜在可利用态的含量占总量的百分率均较土壤 A 的要高,即土壤 B 中的重金属 Pd、Cd 和 Zn 较土壤 A 易被生物所吸收,对生物造成危害的机会更大。

表 3 供试土壤中重金属 Pb、Cd、Zn 的生物可利用性
Table 3 Bioavailability of Pd, Cd and Zn in the tested soils

土壤	重金属	生物可利用态		生物潜在可利用态		生物不可利用态	
		含量/mg·kg ⁻¹	百分率/%	含量/mg·kg ⁻¹	百分率/%	含量/mg·kg ⁻¹	百分率/%
A	Pb	37.90	3.02	409.96	32.66	807.32	64.32
	Cd	1.25	16.98	3.31	44.97	2.80	38.04
	Zn	85.75	6.59	480.03	36.88	735.85	56.53
B	Pb	29.18	4.12	224.43	31.69	454.55	64.19
	Cd	0.67	19.65	1.64	48.09	1.10	32.26
	Zn	29.18	8.46	154.66	44.85	160.96	46.68

2.2 EDTA 溶液对土壤重金属 Pb、Cd、Zn 的萃取

由图 1 可知,EDTA 溶液对土壤 A 和 B 中重金属 Pb、Cd、Zn 具有一定萃取能力,随着萃取时间的增加,重金属 Pb、Cd、Zn 的萃取量下降,直至检测不出。在第 2 d,EDTA 萃取重金属 Pb、Cd、Zn 的量最大,土壤 A 中 Pb、Cd、Zn 的萃取量分别为 212.40、2.27、57.77 mg·kg⁻¹,分别占总萃取量的 32.61%、54.05%、32.79%;土壤 B 中萃取量分别为 102.30、0.96、20.85

mg·kg⁻¹,分别占总萃取量的 33.19%、58.90%、34.80%。经过 EDTA 连续 10 次萃取后,土壤 A 和土壤 B 中重金属 Pb、Cd、Zn 的总萃取量见表 4,括号内表示 EDTA 对重金属 Pb、Cd、Zn 的萃取率,即每种重金属萃取量的平均值分别与土壤中该金属总量的比值。

由表 4 可知,在相同浓度条件下,EDTA 对土壤 A 和土壤 B 中 Zn 的萃取率(13.08%、16.95%)相对 Pb

(51.39%,42.94%)和 Cd(54.69%,46.83%)要弱,这是 EDTA 本身对 Zn 萃取能力较弱的原因所致^[19,20]。经 EDTA 萃取后,土壤 A 和 B 中重金属 Pb、Cd、Zn 总量有明显下降,但由于土壤 A 中重金属 Pb、Cd、Zn 的总量很高,所以土壤 A 中重金属 Pb(616.04 mg·kg⁻¹)、Cd(3.48 mg·kg⁻¹)、Zn(1 157.90 mg·kg⁻¹)的含量仍超

过国家土壤环境质量二级标准 (Pb 250 mg·kg⁻¹、Cd 0.3 mg·kg⁻¹、Zn 200 mg·kg⁻¹)^[16]; 土壤 B 重金属 Pb (409.59 mg·kg⁻¹)、Zn(293.61 mg·kg⁻¹)的含量低于国家土壤环境质量三级标准 (Pb 500 mg·kg⁻¹、Zn 500 mg·kg⁻¹)^[16], 而 Cd 的含量(1.85 mg·kg⁻¹)超过国家土壤环境质量三级标准(Cd 1.00 mg·kg⁻¹)。

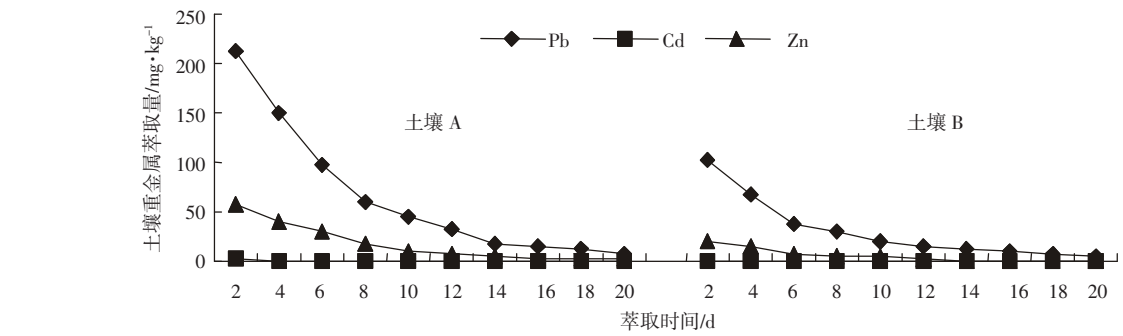


图1 EDTA 萃取土壤 A 和 B 中重金属的量与萃取时间的关系

Figure 1 The relationships between quantities heavy metals and time by EDTA extraction

表 4 供试土壤中重金属 Pb、Cd、Zn 的 EDTA 萃取量

Table 4 Extracted amounts of Pd, Cd, and Zn from the tested soils treated with EDTA solutions

土壤 重金属	A			B		
	Pb	Cd	Zn	Pb	Cd	Zn
浓度/mg·kg ⁻¹	651.32 (51.39)*	4.20 (54.69)	174.18 (13.08)	308.22 (42.94)	1.63 (46.83)	59.92 (16.95)

注:* 括号内数值表示 EDTA 对重金属 Pb、Cd、Zn 的萃取率(%)。

2.3 EDTA 萃取后土壤中 Pb、Zn、Cd 的形态分析

图 2 表明,经过 EDTA 连续萃取后土壤中重金属 Pb、Zn、Cd 的交换态(Ⅰ)、碳酸盐结合态(Ⅱ)、铁锰氧化物结合态(Ⅲ)、残渣态(Ⅴ)含量均有所下降,但有机结合态(Ⅳ)的 Pb、Cd、Zn 含量却有所增加,这可能是由于 EDTA 与土壤重金属发生了螯合作用,生成了有机结合态重金属。土壤 A 和土壤 B 中 Pb(Ⅴ)因其含量最多,被 EDTA 萃取的量也最多,分别从 807.32、454.55 mg·kg⁻¹ 下降到 318.32、236.20 mg·kg⁻¹; 由于 EDTA 溶液 pH 为 4.82±0.02,呈酸性,在酸性条件下, Pb(Ⅰ)和 Pb(Ⅱ)会被释放,经 EDTA 萃取后,土壤 A 和 B 中 Pb(Ⅰ)的含量分别由 37.90、29.18 mg·kg⁻¹ 减少了 17.22、9.8 mg·kg⁻¹, Pb(Ⅱ)分别由 154.40、73.58 mg·kg⁻¹ 下降到 35.18、22.37 mg·kg⁻¹; Pb(Ⅲ)性质较稳定,土壤 A 和 B 分别被 EDTA 萃取出来 36.33、21.86 mg·kg⁻¹; Pb(Ⅳ)的含量分别增加到 171.33、88.56 mg·kg⁻¹,分别增加了 22.63、2.65 mg·kg⁻¹。

经 EDTA 萃取后,土壤 A 和土壤 B 中的 Cd(Ⅴ)含量分别由原来的 2.80、1.10 mg·kg⁻¹ 下降到 1.09、0.56 mg·kg⁻¹。土壤 A 中 Cd 的(Ⅰ)、(Ⅱ)、(Ⅲ)的分别

被 EDTA 萃取 0.75、0.83、0.80 mg·kg⁻¹,土壤 B 中的这 3 种形态分别被 EDTA 萃取出 0.32、0.42、0.39 mg·kg⁻¹;而土壤 A 和土壤 B 中 Cd(Ⅳ)的含量分别增加了 0.21、0.10 mg·kg⁻¹。EDTA 本身对 Zn 的萃取能力不是很强,经 EDTA 萃取后,土壤 A 和土壤 B 中 Zn(Ⅴ)分别下降了 64.96、18.16 mg·kg⁻¹, Zn(Ⅰ)分别下降到 33.9、7.67 mg·kg⁻¹, Zn(Ⅱ)分别被萃取出 30.53、9.12 mg·kg⁻¹, Zn(Ⅲ)分别被萃取出 30.93、17.31 mg·kg⁻¹;土壤 A 和土壤 B 中 Zn(Ⅳ)的含量分别增加了 34.54、14.91 mg·kg⁻¹。

3 结论

(1)本研究表明,EDTA 对污染土壤中重金属 Pd、Cd、Zn 有一定萃取能力,但是对 Pb、Cd 的萃取效果较其对 Zn 的要好。三者的萃取率排序为 Pb>Cd>Zn;而三者的萃取总量排序为 Pb>Zn>Cd。

(2)从各重金属生物可利用性大小来看,土壤 A 和土壤 B 均以不可利用态为主,土壤 A 中生物可利用态和潜在可利用态 Pb、Cd、Zn 的量均较土壤 B 的高。土壤 B 中的生物可利用态与潜在可利用态的百

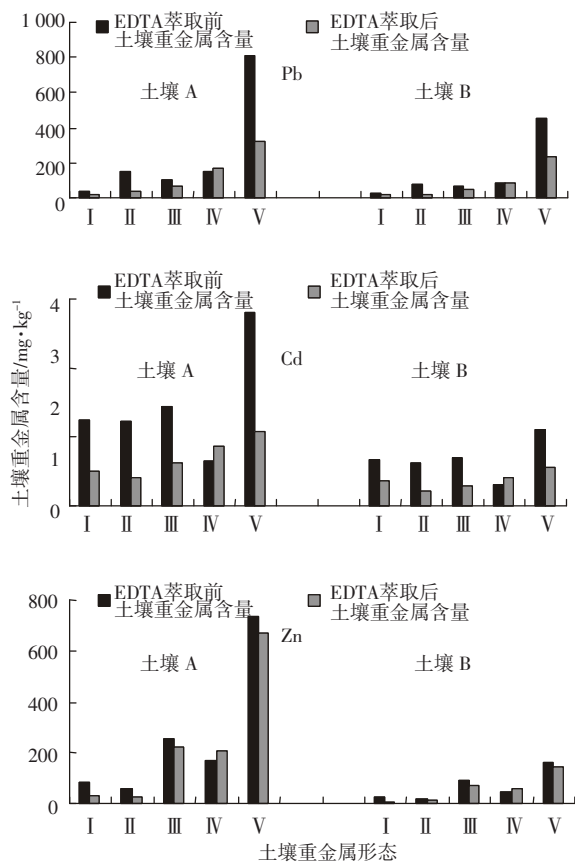


图2 供试土壤 EDTA 萃取前后重金属形态的变化

Figure 2 Changes of heavy metal fractions in the tested soils before and after EDTA extraction

分率则分别较土壤 A 的要高。

(3)经 EDTA 萃取后,与原污染土壤相比,土壤 A 和土壤 B 中重金属 Pb、Cd 和 Zn 的残渣态、碳酸盐结合态、铁锰氧化物结合态及交换态含量均有一定程度减少。Pb 和 Cd 减少的量为残渣态>碳酸盐结合态>铁锰氧化物结合态>交换态,Zn 减少的量为残渣态>交换态>铁锰氧化物结合态>碳酸盐结合态。土壤 A 和土壤 B 中 Pb、Cd 和 Zn 的有机物结合态含量却有所增加,增加顺序为有机物结合态 Zn>有机物结合态 Pb>有机物结合态 Cd。

参考文献:

- [1] 刘清,王子健,汤鸿霄.重金属形态与生物毒性及生物有效性关系的研究进展[J].环境科学,1996,17(1):89-92.
- [2] Williams D E. Trace element accumulation, movement and distribution

in the soil profile from massive application of sewage sludge [J]. *Soil Science*, 1980, 145(2): 119-129.

- [3] Hong J H, Pintauro P N. Desorption-complexation-dissolution characteristics of adsorbed cadmium from kaolin by chelators [J]. *Water, Air and Soil Pollution*, 1996, 86: 35-50.
- [4] 贺建群,许嘉琳,杨居荣,等.土壤中有效态 Cd、Cu、Zn、Pb 提取剂的选择[J].农业环境保护,1994,13(6):246-251.
- [5] 谢建治,尹君,王殿武.土壤中有效态重金属 Cd、Hg 提取方法的研究[J].农业环境保护,1998,17(3):116-119.
- [6] 李发生,韩梅,熊代群,等.不同浸提剂对几种典型土壤中重金属有效态的浸提效率研究[J].农业环境科学学报,2003,22(6):704-706.
- [7] 邵孝侯,刑光熹,侯文华.连续提取法区分土壤重金属元素形态的研究及其应用[J].土壤学进展,1994,22(3):40-46.
- [8] Kari F G, Giger W. Speciation and fate of ethylenediametetaacetate (EDTA) in municipal wastewater treatment [J]. *Water Research*, 1996, 30(1): 122-134.
- [9] Irene M C L O, Yang X Y. EDTA extraction heavy metals from different soil fractions and synthetic soils [J]. *Water, Air and Soil Pollution*, 1999, 109: 219-236.
- [10] Papassopi N, Tambouris S, Kontopoulos A. Removal of heavy metals from calcareous contaminated soils by EDTA leaching [J]. *Water, Air and Soil Pollution*, 1999, 109: 1-15.
- [11] 蔡美芳,党志,文震,等.矿区周围土壤中重金属危害性评估研究[J].生态环境,2004,13(1):6-8.
- [12] Tessier A, Campbell P G, Blason M. Sequential extraction procedure for the speciation of particulate trace metals [J]. *Anal Chem*, 1979, 51(7): 844-851.
- [13] Liao B H, Seip H M, Larssen T. Response of two Chinese forest soils to acidic inputs: leaching experiment [J]. *Geoderma*, 1997, 75: 53-73.
- [14] Hendershot W H, Duquette M. A simple barium chloride method for determining cation exchange capacity and exchangeable cations[J]. *Soil Sci Soc Am J*, 1986, 50: 605-608.
- [15] 鲁如坤.土壤农业化学分析方法[M].北京:中国农业科学出版社,1999.
- [16] 国家环境保护局. GB15618-1995,土壤环境质量标准[S].1996.
- [17] 曾清如,周细红,杨仁斌,等.不同来源重金属在土壤中的形态分布差异[J].农村生态环境,1994,10(3):48-51.
- [18] Mao M Z. Speciation of metals in sediments along the Le An River. CERP Final Report, France: Imprimerie Jouve Mayenne. 1996, 55-57.
- [19] 曾清如,廖柏寒,杨仁斌,等.EDTA 溶液萃取污染土壤中的重金属及其回收技术[J].中国环境科学,2003,23(6):597-601.
- [20] Barona A, Aranguiz I, Elias A. Metal associations in soils before and after EDTA extractive decontamination: implications for the effectiveness of further clean-up procedures [J]. *Environmental Pollution*, 2001, 113: 79-85.