活性炭和沸石滤柱对饮用水中邻苯二甲酸酯类吸附性能的比较

高 旭[1]，刘宇飞[1]，郭劲松[1]，李怀茂[1]，王峰青[2]，陆 磊[2]
（1.重庆大学三峡库区生态环境教育部重点实验室，重庆 400045；2. 重庆市水务集团股份有限公司，重庆 400013）

摘 要：采用煤质活性炭和斜发沸石填料滤柱，研究比较了四种邻苯二甲酸酯类在 3 种进水浓度（20、60、100 μg·L^{-1}）和三个滤速条件（4、5、6 m·h^{-1}）下的吸附去除性能。试验结果表明，从单种物质的去除效果看，20 μg·L^{-1} 浓度进水时，活性炭对四种邻苯二甲酸酯的去除率均优于沸石；在 60 μg·L^{-1} 和 100 μg·L^{-1} 浓度进水时，活性炭滤柱对邻苯二甲酸二甲酯、邻苯二甲酸二丁酯的去除率高于沸石滤柱，而对于邻苯二甲酸二（2- 乙基己基）酯和邻苯二甲酸二辛酯两种物质，两个滤柱去除效果比较接近。滤柱出水浓度均随滤层厚度的增加而下降；滤速提高时，沸石滤柱和活性炭滤柱对四种酯类的去除率均有所下降，但对 4 种酯类物质的去除性能与 4 m·h^{-1} 滤速时相似。作为饮用水处理中的一种替代性填料，沸石具有重要的研究开发前景。

关键词：邻苯二甲酸酯；活性炭；沸石；吸附
中图分类号：TQ424　　**文献标识码**：A　　**文章编号**：1000-3770(2009)03-057-05

邻苯二甲酸酯（Phthalate Esters，PAEs）是一类常用的塑料增塑剂，在聚氯乙烯薄膜、人造革、软管、日用品、医疗用品上都有广泛应用；还多用作农药载体、染料、化妆品、润滑剂、去泡剂等的生产原料，且该类物质也属于干扰内分泌的环境激素类物质[1-3]。PAEs 类化合物中已有 6 种被美国环保局列为优先控制污染物，3 种被我国列入环境优先控制污染物黑名单[4-5]，我国新颁布的生活饮用水卫生标准（GB5749-2006）也将邻苯二甲酸二（2- 乙基己基）酯作为控制指标之一[6]。在重庆以嘉陵江和长江为水源的城市水厂进水中也发现 PAEs 类物质广泛分布，部分已接近地面水环境标准值[7]。

活性炭是目前所有饮用水深度处理技术应用最广泛的一类填料。活性炭可经济有效地去除嗅、味、色度、氯化有机物、农药、放射性有机物及其它人工合成有机物，且生产方便。沸石是一族具有连通孔道，呈架状构造的含水铝硅酸盐矿物，目前已经在水环境治理领域有较广泛的应用，多用于选择性吸附去除有机污染物、氨氮、重金属离子、降低氟含量和消除放射性物质，并且在给水滤料方面也有了一些运用[8]。因为吸附的极性选择趋势，采用沸石对 PAEs 的去除目前研究极少，但有人发现在臭氧降解 DMP 的过程中加入高硅沸石有助于提高效率[9]；还有研究表明，改性的斜发沸石对邻苯二甲酸二丁酯降解优势菌有较强的吸附作用，以斜发沸石为载体制作的固定化微生物对邻苯二甲酸二丁酯的 24 小时降解率可达到 89.9%[10]。沸石由于价格低廉，将其作为替代性填料进行研究有重要的实用意义。

本文旨在研究四种典型 PAEs（邻苯二甲酸二甲酯（$C_{10}H_{10}O_4$，DMP，分子量 194.2）、邻苯二甲酸二丁酯（$C_{16}H_{22}O_4$，DBP，分子量 278.34）、邻苯二甲酸二（2- 乙基己基）酯（$C_{24}H_{38}O_4$，DEHP，分子量 390.57）、邻苯二甲酸二辛酯（$C_{24}H_{38}O_4$，DOP，分子量 390.54）在活性炭滤柱和沸石滤柱中的吸附去除性能，为建立针对该类有毒有机污染物的经济有效的给水处理工艺提供技术参考。

收稿日期：2008-07-29
基金项目：重庆市科技攻关计划资助项目（CSTC2006AB7055）
作者简介：高 旭（1971-），男，副教授、博士，研究方向为饮用水新出现污染物处理、水处理热力学
联系电话：023-65120768；E-mail：gaoxu@cqu.edu.cn。

© 1994-2009 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved. http://www.cnki.net

1 材料与方法

1.1 试验装置

试验装置见图 1。各容器均为不锈钢材质，其中配药桶 2 个，容积 70 L；折流混合箱 1 个，尺寸为 $L\times B\times H$=750 mm×500 mm×400 mm；活性炭滤柱和沸石滤柱各 1 个，直径均为 100 mm，高度 2 m，滤层总高 1 200 mm，在 400、800 mm 处分别设有取样口。

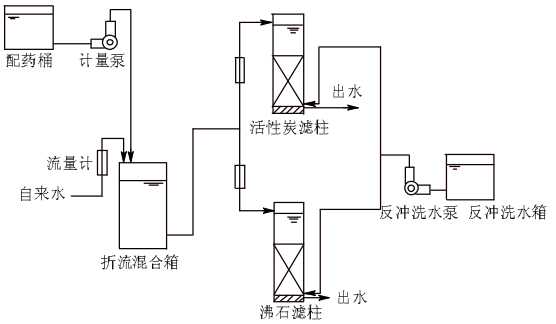

图 1 试验装置示意

Fig.1 Schematic diagram of the experiment apparatus

试验进水采用分析纯级的 4 种 PAEs 物质，经甲醇助溶后在配药桶内配制成浓度较大的母液，母液经蠕动加药泵进入折流混合箱与自来水混合，通过调节自来水的流量和母液流入量使得进水的邻苯二甲酸酯达到所需的浓度，再分别流入活性炭和沸石滤柱。参照国内水体中此类物质的浓度水平情况[11]，拟定本试验中的滤柱进水的各目标物质浓度为 20、60、100 μg·L^{-1} 三个水平。试验用活性炭为重庆产煤质柱状炭，粒径 2.5 mm，孔容积≥0.65 cm^3·g^{-1}，漂浮率≤2%，苯酚吸附值≥140 mg·g^{-1}，耐磨强度≥90%，灼烧残渣 8～15%，四氯化碳吸附率≥60%，碘吸附值≥900 mg·g^{-1}；沸石为河南巩义产天然斜发沸石，粒径 1.0～2.0 mm，比重 1.92 g·cm^{-3}，磨损率≤0.8%，含泥量≤1%，化学成分：SiO_2 68%～71%，Al_2O_3 13%～14%，Fe_2O_3 1%～1.8%，CaO 1.7%～2.2%，MgO 0.9%～1.3%，K_2O 1.5%～4%，Na_2O 0.5%～1.5%。

试验第一步控制滤速为 4 m·h^{-1}，检测不同进水 PAEs 浓度时活性炭柱和沸石柱不同滤层高度出水情况。第二步根据有效滤层厚度，检测 5 m·h^{-1} 和 6 m·h^{-1} 滤速时两柱出水各类 PAEs 浓度，并进行对比。取样时，每天取 10:00、14:00、18:00 的水样进行混合作为该取样点的当天水样，并连续测定 3 天；水样采集后在 5℃下保存。

1.2 检测方法

1.2.1 仪器和试剂

采用 SPE 小柱对样品进行萃取，美国 IST 公司产固相 C18 小柱（500 mg，6 mL）；美国 Zymark 全自动固相萃取仪；美国 CA 全自动浓缩仪。检测采用 Agilent 1100 液相色谱仪、DAD（二极管阵列）检测器；Zorbax SB-C18 色谱柱（150×4.6 mm）。试剂：甲醇（色谱纯），邻苯二甲酸酯类化合物标准（国家标物中心提供）。

1.2.2 测试分析条件

采用外标法定量。色谱柱温 35℃，柱压 4.2～7.2 MPa，检测器波长 228 nm，进样体积 20 μL，流动相为甲醇与水，流量为 1.0 mL·min^{-1}，流量梯度为 0～4 min，采用甲醇：水为 75:25；9～13 min 采用 100%甲醇。

2 结果与讨论

控制滤速为 4 m·h^{-1}，各滤层出水接触时间分别为 6、12、18 min 时，改变进水的单种 PAEs 物质浓度分别为 20、60、100 μg·L^{-1}，测定不同厚度滤层出水的目标物质浓度。

2.1 滤速为 4 m·h^{-1} 时，滤柱出水中四种 PAEs 去除情况

活性炭滤柱和沸石滤柱各厚度滤层水样的检测结果平均值如表 1 所示。

由表 1 可见，在该滤速下，对于活性炭滤柱，20 μg·L^{-1} 进水时 1 200 mm 滤层出水中，单种 PAEs 的去除率在 54.9%～82.9%的范围内，去除率最高为 DBP，最低为 DEHP，总 PAEs 去除率为 69.2%；60 μg·L^{-1} 进水时 1 200 mm 滤层出水单种 PAEs 的去除率在 49.4%～94.1%的范围内，去除率最高为 DBP，最低为 DOP，总 PAEs 去除率为 70.5%；100 μg·L^{-1} 进水时 1 200 mm 滤层出水单种 PAEs 的去除率在 53.8%～92.3%的范围内，去除率最高为 DBP，最低为 DEHP，总 PAEs 去除率为 72.3%。在 20 μg·L^{-1} 和 60 μg·L^{-1} 浓度进水条件下，活性炭柱 800 mm 与 1 200 mm 滤层出水的目标物质浓度变化和去除率变化均不显著，即增加 6 min 接触时间，出水浓度并无显著降低，可以认为 800 mm 为活性炭滤柱的有效厚度滤层。

对于沸石滤柱，四种 PAEs 的出水浓度随滤层厚度增加而逐渐下降；沸石滤柱 1 200 mm 滤层出水四种 PAEs 的去除率在 24.0%～37.2%范围内，去除率最高为 DEHP，最低为 DBP，总 PAEs 的去除率为 32.8%；60 μg·L^{-1} 进水时，1 200 mm 滤层出水四种 PAEs 的去除率在 30.1%～71.6%范围内，去除率最

© 1994-2009 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved. http://www.cnki.net

表 1　滤速 4 m·h^{-1} 时滤柱出水中四种 PAEs 去除情况

Table 1　The effluent concentrations of PAEs under 4 m·h^{-1} filtration velocity

表 1(a)　甲酯 DMP 的去除 /μg·L^{-1}

填料厚度 /mm	进水浓度 /20 μg·L^{-1}（实测）		进水浓度 /60 μg·L^{-1}（实测）		进水浓度 /100 μg·L^{-1}（实测）	
	活性炭柱	沸石柱	活性炭柱	沸石柱	活性炭柱	沸石柱
	进水 28.57	28.57	进水 48.70	48.70	进水 108.63	108.63
400	14.38	27.40	24.55	40.66	54.59	93.47
800	6.867	25.58	11.78	40.59	25.67	77.37
1 200	6.50	18.14	7.54	34.06	13.57	64.09

表 1(b)　丁酯 DBP 的去除 /μg·L^{-1}

填料厚度 /mm	进水浓度 /20 μg·L^{-1}（实测）		进水浓度 /60 μg·L^{-1}（实测）		进水浓度 /100 μg·L^{-1}（实测）	
	活性炭柱	沸石柱	活性炭柱	沸石柱	活性炭柱	沸石柱
	进水 23.69	23.69	进水 67.20	67.20	进水 98.93	98.93
400	8.45	19.76	15.73	32.64	32.62	65.18
800	4.39	19.43	5.93	22.71	17.40	53.8
1 200	4.04	17.99	3.93	19.09	7.643	46.61

表 1(c)　己酯 DEHP 的去除 /μg·L^{-1}

填料厚度 /mm	进水浓度 /20 μg·L^{-1}（实测）		进水浓度 /60 μg·L^{-1}（实测）		进水浓度 /100 μg·L^{-1}（实测）	
	活性炭柱	沸石柱	活性炭柱	沸石柱	活性炭柱	沸石柱
	进水 31.59	31.59	进水 61.65	61.65	进水 112.69	112.69
400	23.26	26.16	38.00	36.49	92.73	85.55
800	13.64	23.76	33.49	33.39	61.79	76.41
1 200	14.25	19.84	31.18	24.92	51.96	63.90

表 1(d)　辛酯 DOP 的去除 /μg·L^{-1}

填料厚度 /mm	进水浓度 /20 μg·L^{-1}（实测）		进水浓度 /60 μg·L^{-1}（实测）		进水浓度 /100 μg·L^{-1}（实测）	
	活性炭柱	沸石柱	活性炭柱	沸石柱	活性炭柱	沸石柱
	进水 20.56	20.56	进水 61.23	61.23	进水 84.41	84.41
400	16.76	18.01	43.04	41.72	69.91	65.42
800	6.815	17.38	27.235	27.57	45.91	58.50
1 200	7.38	14.18	27.70	20.80	39.01	49.34

高为 DBP，最低为 DMP，总 PAEs 的去除率为 58.6%；100 μg·L^{-1} 进水时，1 200 mm 滤层出水四种 PAEs 的去除率在 41.0%～52.9%范围内，去除率最高为 DBP，最低为 DMP，总 PAEs 的去除率为 44.7%。

综合两种滤柱来看，20 μg·L^{-1} 进水浓度下，活性炭滤柱对 DMP 和 DBP 的去除率要显著高于沸石，两滤柱对 DEHP 和 DOP 的去除率比较相近；在 60 μg·L^{-1} 进水浓度时，DMP 和 DBP 的情况相似，活性炭柱优于沸石柱。而这时对于 DEHP 和 DOP，沸石滤柱出水的去除率反而略优于活性炭。100 μg·L^{-1} 进水时的情况与 20 μg·L^{-1} 较接近，DMP、DBP 活性炭柱去除率显著要高，而高分子量的 DEHP、DOP 两柱比较接近。比较总的 PAEs 去除率，活性炭滤柱去除率优于沸石滤柱。单纯依靠滤柱的吸附能力，两类填料都不能满足 DEHP 8 μg·L^{-1} 的饮用水水质标准，因此引入臭氧或其他氧化剂对 PAEs 进行前处理就较为必要。

2.2　滤速为 5 m·h^{-1} 和 6 m·h^{-1} 时，滤柱出水中四种 PAEs 的去除情况

按照 4 m·h^{-1} 的试验结果，设计了滤速 5 m·h^{-1} 和 6 m·h^{-1} 的吸附试验。试验进水按照单种 PAEs 100 μg·L^{-1} 控制，出水取 1 200 mm 滤层水样，样品采集和前处理同前。活性炭滤柱和沸石滤柱 1 200 mm 滤层水样的检测结果平均值见表 2。

在该进水浓度，两种不同滤速时，活性炭对单种 PAEs 的去除效果要好于沸石滤柱。当滤速提高时，沸石滤柱和活性炭滤柱对四种 PAEs 的去除率均有所下降，但不明显。在单种物质的去除率上，活性炭

表 2　不同滤速时四种 PAEs 去除情况 /μg·L^{-1}

Table 2　The removal of PAEs at different filtration velocity

出水滤速 /m·h^{-1}	DMP		DBP		DEHP		DOP	
	活性炭柱	沸石柱	活性炭柱	沸石柱	活性炭柱	沸石柱	活性炭柱	沸石柱
	进水 91.73	91.73	进水 81.90	81.90	进水 87.05	87.05	进水 87.09	87.09
5	29.68	76.9	20.55	52.77	43.1	54.15	36.79	49.464
6	31.54	80.6	25.74	57.11	52.18	61.407	41.391	53.44

© 1994-2009 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved.　http://www.cnki.net

滤柱在 5 m·h^{-1} 和 6 m·h^{-1} 两种滤速下，对分子量较小的 DMP 和 DBP 表现了较高的去除率（最高去除率为 DBP），对分子量大的 DEHP 和 DOP 则去除率较低，这与 4 m·h^{-1} 滤速的结论一致。沸石对 DEHP 和 DOP 的吸附去除能力接近于活性炭，对 DMP 和 DBP 则明显比活性炭低。

试验另进行了 5 m·h^{-1} 和 6 m·h^{-1} 时，进水 20 μg·L^{-1} 与 60 μg·L^{-1} 活性炭柱 800 mm 有效滤层出水与沸石 1 200 mm 滤层出水的对比，发现 DMP 和 DBP 的去除效率活性炭明显高于沸石，而 DEHP 与 DOP 则相近或甚至低于沸石。活性炭滤柱中尤其以 DEHP 和 DOP 受滤速影响较大，沸石滤柱去除效果也随滤速提高而下降，但去除率的降低受滤速影响较小。

按照以前的研究，活性炭在液相中不仅吸附溶质，同时也吸附溶剂；不仅发生非极性分子间作用力，氢键力和范德华力吸附，还发生静电引力（库仑力）吸附。有研究显示，PAEs 的去除率随碳链（即分子量）的增加而降低，如用热力学方法对活性炭吸附水溶液中的 PAE 的机理进行分析，DMP、DBP 的吸附熵变 ΔS 均为负值，表明被吸附到活性炭表面的 DMP 和 DBP 分子与溶液中的 DMP 和 DBP 分子相比，运动受到了更大的限制；同时表明了活性炭吸附 DMP 和 DBP 的过程为焓推动为主的过程。而大分子的 DEHP 吸附熵变表现为正值，这可能与吸附质中疏水部分的疏水性以及电离程度有关，同时与溶剂的介电常数也有相当关系，活性炭吸附 DEHP 的过程为熵推动为主的过程[12]。

沸石与活性炭吸附剂不同，沸石是极性的吸附剂，不仅色散力很大，还有较大的静电力。这是因为孔穴中含有阳离子，骨架氧含有负电荷，这样在阳离子的周围便形成强大的电场。但是对于非极性的 PAEs 来说，静电力的作用相对较小，可以认为色散力起重要作用。色散力来源于分子附件其他分子诱导所致的瞬间偶极矩。当一个分子接近一个电子分布略微偏移的另一个分子时，会产生瞬间偶极矩，接近该分子的电子会稍微偏移，产生偶极 - 偶极吸引力即色散力。色散力与分子的表面区域成正比[13]。分子中电子数愈多、原子数愈多、原子半径愈大，色散力也越强。因此，对于 PAEs 来说，大分子量的 PAEs（如 DEHP 和 DOP），其含有的碳链更长，原子数也更多，其色散力较大，也可能比较容易被去除。本试验的结果亦证明了此假设。

试验也说明了沸石滤料在给水深度处理中应用的可行性。饮用水水质标准中只对大分子的 DEHP 做了规定限值，而沸石虽然对低分子量 PAEs 的去除率较有限，但在较低的浓度下和一定的滤速时，沸石对 DEHP 的去除也可以接近活性炭的水平；而沸石滤料相对廉价，因此其与活性炭的结合使用值得进一步研究，这对于降低水厂运行成本来说有着积极作用。

3 结 论

当滤速为 4 m·h^{-1} 时，在 3 种浓度进水下，活性炭对总 PAEs 的去除率在 69.2%～72.3%之间，沸石对总 PAEs 的去除效率在 32.8%～58.6%之间，活性炭滤柱对 PAEs 的去除效果优于沸石滤柱。

从单种物质的去除效果看，20 μg·L^{-1} 浓度进水时，活性炭对四种 PAEs 的去除率均优于沸石；在 60 μg·L^{-1} 和 100 μg·L^{-1} 浓度进水时，活性炭滤柱对 DMP、DBP 的去除率高于沸石滤柱，而对于 DEHP 和 DOP 这两种物质，两个滤柱去除效果比较接近。这一结果来自于活性炭与沸石中色散力与静电力作用的不同。

滤柱出水浓度均随滤层厚度的增加而下降；滤速提高时，沸石滤柱和活性炭滤柱对四种 PAEs 的去除率均有所下降，但对四种 PAEs 物质的去除性能与 4 m·h^{-1} 滤速时相似。作为一种替代性填料，沸石具有重要的可开发应用前景。

参考文献：

[1] Harrs C A , Henttu P , Parker M G. *et al*. The estrogenic activity of phthalate esters in vitro [J].Environ Health Perspect,1997,105 (8): 802-811.

[2] 邱东茹, 吴振斌, 贺锋. 内分泌扰乱化学品对动物的影响和作用机制[J].环境科学研究,2000,13(6):52-55.

[3] Moore N P. The oestrogenic potential of the phthalate esters [J]. Reprod Toxicol,2000,14(3):183-192.

[4] USEPA. List of substances on IRIS:United State Environmental Protection Agency[S].Integrated Risk System Information,2000.

[5] 阎吉昌. 环境分析[M].北京:化学工业出版社,2002:98-99.

[6] GB5749-2006[S].生活饮用水卫生标准,2006.

[7] 郭志顺, 罗财红, 张卫东, 等. 三峡库区重庆段江水中持久性有机污染物污染状况分析[J].中国环境监测,2006,22(4):45-48.

[8] 陈彬, 吴志超. 沸石在水处理中的应用[J].工业水处理,2006,26 (8):9-12.

[9] Chen Yi-Hung, Shang Neng-Chou, Hiseh Da-Cheng. Decomposition of dimethyl phthalate in an aqueous solution by ozonation with high silica zeolites and UV radiation [J].Journal of Hazardous

© 1994-2009 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved. http://www.cnki.net

Materials, 2008,157(2-3):260-268.
[10] 王琳, 罗启芳. 多种载体对邻苯二甲酸二丁酯降解优势菌吸附性能的比较[J].卫生研究,2005,34(6):653-655.
[11] 王侠. 三峡库区城市给水厂典型有毒有害有机物分布研究[D].重庆:重庆大学,2007.
[12] 杨开林. 微波 +Fenton 试剂 + 活性炭处理邻苯二甲酸酯的研究[D].重庆:重庆大学,2006.
[13] Wade L G Jr. Organic Chemistry, 有机化学[M].万有志,译.北京:化学工业出版社,2006.

ABSORPTION PERFORMANCE OF PHTHALATE ESTERS IN DRINKING WATER WITH ACTIVATED CARBON AND ZEOLITE

GAO Xu[1], LIU Yu-fei[1], GUO Jin-song[1], LI Huai-mao[1], WANG Feng-qing[2], LU Lei[2]
(1.Key Laboratory of the Three Gorges Reservoir Region´ s Eco-Environment, Ministry of Education, Chongqing 400045,China; 2.Chongqing Water(group) Corporation Limited, Chongqing 400013, China)

Abstract: Phthalate esters (PAEs) are one of the most ubiquitous classes of compounds in water environment which have been characterized as endocrine disruptors. In the experiment coal activated carbon and an kind of zeolite (clinoptilolite) being used as filter media, absorption performance of four sorts of PAEs was studied under condition of 3 influent concentrations (20,60,100 $\mu g \cdot L^{-1}$) and 3 filtration velocities (4,5,6 $m \cdot h^{-1}$). The results show that for removal of single PAE, the activated carbon has higher removal efficiency than the zeolite for all sorts of PAEs under 20 $\mu g \cdot L^{-1}$ influent concentration; while under 60 and 100 $\mu g \cdot L^{-1}$ concentration, the activated carbon filter showed higher removal efficiency for dimethyl phthalate (DMP) and di-n-butyl phthalate (DBP), but for di(2-ethylhexyl) phthalate (DEHP) and di-n-octyl phthalate (DOP), the two media has close removal performance. The PAEs concentration in the filter effluents declined with the increase of depth of filter bed; and the removal efficiency on PAEs of the two filters both descended with increasing filtration velocity. The performance under higher filtration velocities for four sorts of PAEs was similar to 4 $m \cdot h^{-1}$. The zeolite has showed its applicable perspective as an alternative filtration media in drinking water treatment.

Keywords: phthalate esters; activated carbon; zeolite; adsorption

(上接第 48 页)

5688904[P]. 1997-11-18
[13] 崔小明. 水质稳定剂 YSS-95 的合成及性能研究[J].工业水处理,2000,20(3):18-20.
[14] 国家质量监督检验检疫总局. GB/T18175－2000:水处理剂缓蚀性能测定旋转挂片法[S].北京:中国标准出版社,2001.

SYNTHESIS OF A NEW BIODEGRADABLE SCALE INHIBITOR ACONITIC ACID－SODIUM ALLYL ACID COPOLYMER

GUO Ru-hui, LIU Zhen-fa, GAO Yu-hua, LI Hai-hua, ZHAO Jun-ping, TIAN Cai-li
(Heibei Institute of Energy Sources, Hebei Energy Reseach Center for Water Saving in Industry, Shijiazhuang 050081, China)

Abstract: In this paper, a new biodegradable scale inhibitor was synthesized by the polymerization of aconitic acid which was received by molecule interior dehydration and acrylic acid. In this reaction, the molecular weight of the copolymer is regulated by a chain-transferred agent isopropanol. The performances of scale inhibition, corrosion inhibition and biodegradation are evaluated. The results showed that the copolymer had good performance of scale dispersing inhibition and biodegradation, the rate of biodegradation approached 90% in 28 days.

Keywords: aconitic acid; allylsulfonate; scale inhibitor; distribution

以水资源的可持续利用，
保证经济社会的可持续发展

© 1994-2009 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved. http://www.cnki.net