

DOI :10.3969/j.issn.1004-6933.2011.02.013

# 泥藻的固定化方法研究及应用

程东祥<sup>1,2</sup>, 李红艳<sup>3,4</sup>

(1. 南京交通职业技术学院, 江苏 南京 211188; 2. 吉林大学环境与资源学院, 吉林 长春 130061; 3. 中国科学院湿地生态与环境重点实验室东北地理与农业生态研究所, 吉林 长春 130012; 4. 中国科学院研究生院, 北京 100039)

**摘要** 利用 7 种常见包埋固定化方法, 筛选出以聚乙烯醇-海藻酸钠-硼酸包埋法作为最佳固定化包埋方法; 对该方法进行优化, 制备生物吸附剂的最佳配方: 10% 的 PVA 溶液; 1% 的海藻酸钠溶液; 剩余活性污泥(淡水藻类) 20%; 1.0% 的 CaCl<sub>2</sub> 溶液; 50.0 mol/L 的 OP 乳化液的饱和溶液; H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub> 溶液; 10% 的 Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> 溶液调节 pH 至 6.7; 3 mm 左右的球形颗粒; 固定化 4 h 以上, 蒸馏水洗净。初步应用固定化空白小球和固定化 WAS 和固定化淡水藻吸附剂进行吸附 Pb<sup>2+</sup>、Hg<sup>2+</sup> 试验, 效果较为显著。

**关键词** 泥藻; 固定化方法; 生物吸附剂; 配方

中图分类号: X703 文献标识码: A 文章编号: 1004-6933(2011)02-0058-05

## Study and application of slime algae's immobilized technology

CHENG Dong-xiang<sup>1, 2</sup>, LI Hong-yan<sup>3, 4</sup>

(1. Nanjing Communications Institute of Technology, Nanjing 211188, China; 2. College of Environment and Resource, Jilin University, Changchun 130026, China; 3. Key Laboratory of Wetland Ecology and Environment, Northeast Institute of Geography and Agroecology, Changchun 130012, China; 4. Graduate School of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100039, China)

**Abstract**: Of 7 kinds of common embedment immobilized technologies, the best embedment immobilized technology, using polyvinyl alcohol (PVA)-sodium alga acid-boric acid, was screened out. With the optimal technology, the best prescription of biosorbent preparation was 10% of the PVA solution, 1% of the sodium alga acid solution, 20% of the remnant active silt (fresh water algae), 1.0% of the CaCl<sub>2</sub> solution, 50.0 mol/L LOP of emulsification saturated H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub> solution, and 10% of the Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> solution adjusted to a pH value to 6.7. The diameter of the spherical particle was 3 mm, the immobilization time was more than 4 hours, and the particle was cleaned with distilled water afterwards. The blank immobilized small ball, immobilized WAS, and fresh water algae adsorbent was applied to adsorb Pb<sup>2+</sup> and Hg<sup>2+</sup> in a preliminary experiment. The results were significant.

**Key words**: silt algae; immobilized technology; biosorption agent; prescription

微生物固定化 (immobilized microorganism, IM) 技术是微生物发挥高效作用的重要途径, 尤其在污染治理领域中, IM 技术正在成为某些水处理、固体废弃物处置和有机气溶胶快速去除等工艺的核心技术而发挥积极的作用, 成为当前环境科学与工程研究的热点。在实际应用中, 根据实际情况选择适宜的吸附剂, 这对处理重金属离子污染的水体具有

重要意义<sup>[1-6]</sup>。笔者通过研究剩余活性污泥和藻类的固定化方法, 为实际修复重金属 (铅汞) 污染水体提供固定泥藻的科学依据及相关参数。

### 1 实验部分

#### 1.1 仪器和材料

主要仪器: 原子吸收光谱仪、恒温磁力搅拌器、

电热恒温鼓风干燥箱、恒温振荡器、离心机、灭菌锅、显微镜、注射器等。主要材料及试剂:海藻酸钠、聚乙烯醇、聚丙烯酰胺、卡拉胶、明胶、氯化钙、硼酸、戊二醛、N,N'-亚甲基双丙烯酰胺、四甲基乙二胺、过硫酸钾、吐温 20、吐温 80、乳化剂 OP-10、分散剂 C、氯化钠等。

## 1.2 剩余活性污泥和藻类的预处理

剩余活性污泥的预处理 向污泥中加入 3 倍体积的生理盐水洗涤、过筛 经 3000 r/min 离心分离 5 min, 弃去上清液 如此循环洗涤 3 次后经高压灭菌锅在 12℃、0.1 MPa 条件下进行灭菌处理 采用 0.1 mol/L 的 NaOH 溶液浸泡活性污泥 30 min 后离心 所得的剩余活性污泥放在阳光下晾晒 研磨过筛后得到直径小于 0.5 mm 活性污泥干颗粒 置于冰箱保存备用。

淡水藻类的预处理 先将淡水藻用蒸馏水清洗干净 然后在日照下干燥 6 h 再将其粉碎并筛选出尺寸在 2~3 mm 之间的作为吸附剂 然后用 0.1 mol/L 盐酸溶液在 50~60℃的水浴锅对藻类进行预处理 洗掉水藻上吸附的金属离子  $\text{Ca}^{2+}$ 、 $\text{Mg}^{2+}$ 、 $\text{Na}^{+}$  和其他一些可溶性物质 从而增加藻类的吸附点 有利于吸附。最后在 40~60℃的烘箱中烘干干燥 粉碎。

## 1.3 最佳固定化方法的选择

采用海藻酸钠、聚乙烯醇、聚丙烯酰胺、明胶、戊二醛、卡拉胶等载体材料进行固定化试验 考察固定化过程中成型的难易、成本的高低、机械强度的大小等 以确定最佳固定化方法。

## 1.4 聚乙烯醇-海藻酸钠固定化方法的优化

a. 不同比例聚乙烯醇/海藻酸钠对颗粒成型影响。聚乙烯醇/海藻酸钠配比试验 :6:0.5 ;6:1.0 ;6:1.5 ;8:0.5 ;8:1.0 ;8:1.5 ;10:0.5 ;10:1.0 ;10:1.5 ;考察聚乙烯醇包埋藻类和剩余污泥的成粒情况。

b. 分散剂的选择。选用吐温 20、吐温 80、乳化剂 OP-10、分散剂 C 进行固定化生物体的研究。主要评价指标包括黏度、物理状态、分散作用、影响吸附情况、取用难度、与重金属反应与否、来源稳定性等。

c. 不同碱溶液对饱和  $\text{H}_3\text{BO}_3$  交联剂影响。采用 10% 的 NaOH、KOH、 $\text{Na}_2\text{CO}_3$  分别调节饱和  $\text{H}_3\text{BO}_3$  交联溶液的 pH 值 考察固定化颗粒成型情况。

d.  $\text{CaCl}_2$  浓度不同对颗粒成型的影响。分别观察混合溶液中  $\text{CaCl}_2$  浓度(质量百分比浓度)为 0.1%、0.5%、1.0%、2.0%、5.0% 时 固定化颗粒成型受到的影响。

e. 颗粒直径成型影响。利用注射器的不同型号的针头控制菌球粒径分别为 :1、2、3、4、5 mm 进行吸附实验。通过机械强度和物理稳定性测定并结合固定造粒的难易程度确定最佳粒径。

## 1.5 最佳固定化方法下固定化颗粒的制备

a. 空白小球颗粒的制备。①取质量比为 PVA:海藻酸钠 = 10:1 加热溶解于一定体积的水中 使其质量百分比分别为 10%和 1% 加热成为黏稠液体 ;②用定形器加到含有 1.0%的  $\text{CaCl}_2$ 、50.0 mol/L 的 OP-10 乳化液的饱和溶液  $\text{H}_3\text{BO}_3$  溶液中 ;③用 10% 的  $\text{Na}_2\text{CO}_3$  溶液调节交联溶液 pH 为 6.7 ;④滤出 3 mm 左右的固定化颗粒 然后固化 4h 以上 用蒸馏水洗净 备用。

b. 剩余活性污泥和淡水藻类固定化吸附剂制备。①加热溶解 PVA:海藻酸钠 = 10%:1% 溶液 200 mL 使其成为黏稠液体 ;②将预处理的剩余活性污泥(淡水藻类)20 g 加入到上述溶液中混合均匀 用定形器加到含有 1.0%  $\text{CaCl}_2$ 、50.0 mol/L OP 乳化液的饱和溶液  $\text{H}_3\text{BO}_3$  溶液中 ;③该交联溶液用 10% 的  $\text{Na}_2\text{CO}_3$  溶液调节 pH 为 6.7 ;④滤出 3 mm 左右的固定化颗粒 用蒸馏水洗净 备用。不加入生物 制作方法同上。

## 1.6 吸附剂净化 $\text{Pb}^{2+}$ 、 $\text{Hg}^{2+}$ 污染水体的实验

将 pH 为 5.0、质量浓度为 100 mg/L 的  $\text{Pb}^{2+}$ 、 $\text{Hg}^{2+}$  溶液取 200 mL 加入到 500 mL 三角瓶中 加入 1.0 g 固定化颗粒(空白小球、固定化剩余活性污泥、固定化淡水藻类颗粒) 盖好棉纱布 用空白溶液作对照 在 20℃、100 r/min 振荡器中振荡作用 将吸附后的溶液在 5000 r/min 条件下离心 15 min 上清液准备进行测试。

## 1.7 固定化颗粒的宏观性状表征

主要描述固定化颗粒宏观形状 :大小、颜色、形状。

## 2 结果与讨论

### 2.1 最佳固定化包埋方法的确定

目前经常采用的生物固定化方法主要有吸附法、包埋法、交联法和共价结合法 各种固定化方法和载体都各有特点<sup>[7]</sup> 4 种方法中以包埋法在制备固定化颗粒过程中成本低、稳定性高 为推广应用提供了依据 比较几种方法 采用包埋法进行剩余活性污泥和淡水藻类的固定化吸附剂的制备。通过 7 个包埋方法试验 结果如表 1 所示。

使用包埋法制备固定化颗粒 要求包埋小球成型均匀 大小适宜 机械强度高 要求包埋剂有一定的黏度。但黏度太高 易导致包埋小球成型难 减小原水与小球接触比表面积 从而影响处理效果 黏度太低会导致成球大小不均匀 机械强度低 小球容易破碎 影响处理效果 整个制备过程成本高等。由表 1 可知 7 种固定化包埋方法以聚乙烯醇与海藻酸钠包埋法制备的固定化颗粒性能最好 笔者将聚乙烯

表 1 7种固定化包埋方法的比较

方法名称	固定化成型过程现象及相关分析
海藻酸钠包埋法	海藻酸钠在 CaCl <sub>2</sub> 液中成型速度很快,颗粒之间完全没有粘连现象。但颗粒载体 14h 后即变软,随后松软不呈球形,说明海藻酸钠不稳定
聚乙烯醇包埋法	聚乙烯醇形成的凝胶颗粒机械性能等均不受培养基的影响,放置时间较长后,未见任何胀破颗粒或颗粒之间磨损现象。但在聚乙烯醇固定化过程中发现,聚乙烯醇的固化很慢,在滴加时颗粒之间易于相互粘连而形成一个颗粒的聚集体,成球困难,且成球后球体机械强度较差
聚丙烯酰胺包埋法	聚丙烯酰胺凝胶成球后,机械强度差
明胶-戊二醛包埋法	形成的小球机械强度较差,易碎,传质性能差
卡拉胶包埋法	形成的小球机械强度较差,易碎
聚乙烯醇与海藻酸钠包埋法	在聚乙烯醇交联成型液中也含有 CaCl <sub>2</sub> ,因而考虑在聚乙烯醇溶液中加入少量海藻酸钠,不仅容易成球,还有效防止了粘连现象,成型操作获得了良好的效果,且从颗粒的运转情况看,添加海藻酸钠的颗粒未出现变松软的现象,海藻酸钠和聚乙烯醇凝胶机械强度和传质性能均较好
聚丙烯酰胺-海藻酸钠包埋法	机械强度和传质性能均较好

醇-海藻酸钠包埋方法应用到剩余活性污泥和淡水藻类的固定化生物吸附剂的制备中。

## 2.2 聚乙烯醇/海藻酸钠固定化方法的优化

a. 不同比例聚乙烯醇/海藻酸钠对颗粒成型的影响。通过不同配比实验,结果如表 2 所示( $w_{聚}$ 、 $w_{海}$  分别为聚乙烯醇和海藻酸钠的质量百分比)。

表 2 不同比例聚乙烯醇/海藻酸钠的固定化颗粒物理性质

比例	$w_{聚} = 6\%$	$w_{聚} = 8\%$	$w_{聚} = 10\%$
$w_{海} = 0.5\%$	胶液稀,易于滴加,粒间易粘连	胶液较稀,易于滴加,粒间易粘连	胶液较稠,可滴加,粒间少粘连
$w_{海} = 1.0\%$	胶液较稀,易于滴加,粒间易粘连	胶液较稠,易于滴加,粒间少粘连	胶液稠,可滴加,粒间不粘连
$w_{海} = 2.0\%$	胶液较稠,易于滴加,粒间少粘连	胶液稠,可滴加,粒间不粘连	胶液稠,难滴加,粒间不粘连

由表 2 可知,在海藻酸钠浓度较低时颗粒之间易于粘连,提高海藻酸钠浓度可减少或消除粘连现象,提高聚乙烯醇浓度也有减少粘连的作用,聚乙烯醇:海藻酸钠的比例控制在 8:2 或 10:1 时,胶液稠,可滴加,粒间不粘连。考虑到聚乙烯醇比海藻酸钠的市场价格便易,笔者选用聚乙烯醇:海藻酸钠 = 10:1。

b. 分散剂的选择。往固定化试剂中加入一定量的分散剂,可以保证剩余活性污泥和淡水藻在固定化颗粒中分散得均匀,确保固定化后的生物体系分布均匀。单纯从乳化、分散这一作用出发,通常可以选择很多种分散剂。但是,由于绝大多数的分散剂对酶的活性是有影响的,并且绝大多数分散剂是混合物,成分难以恒定。在固定化过程中,分散剂的用量很少,最好不要用不均一的试剂。对于重金属来说,分散剂不应与其发生反应,并且要求分散剂对于重金属的吸附有促进作用,或者不发生影响,至少不应使重金属的吸附量减少太多。生化上常用的表面活性剂一般可以满足这一要求,尤其是非离子型表面活性剂较为适合。实验结果如表 3 所示。由表

3 可知,分散剂选择 OP-10 乳化剂最为适宜。

表 3 分散剂的选择

分散剂	黏度	物理状态	分散作用	与重金属反应与否	取用难度	影响吸附情况	来源稳定性
吐温 20	大	粘稠液体	好	否	大	不影响	稳定
吐温 80	大	粘稠液体	好	否	大	不影响	稳定
乳化剂 OP-10	小	液体	好	否	小	促进	稳定
分散剂 C	小	液体稍粘	好	否		促进	稳定

c. 不同碱溶液对饱和 H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub> 交联剂影响。饱和 H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub> 的 pH 值为 4.0,实验证明仅用 NaOH 或 KOH 调节并不能使聚乙烯醇成粒。用 10% 的 Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> 溶液调节饱和 H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub> 交联溶液,使其 pH 值为 6.7 时,进行硬化处理,使小球机械强度得到提高。为此选用 10% 的 Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> 溶液作为调节 pH 为 6.7 饱和 H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub> 交联溶液的碱溶液。

d. CaCl<sub>2</sub> 浓度不同对颗粒成型影响。采用 NaOH、KOH、Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> 分别调节饱和 H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub> 交联溶液的 pH 值,考察固定化颗粒成型情况。在聚乙烯醇交联成型液中,CaCl<sub>2</sub> 的浓度对于固定化颗粒的性能也有很大影响。由表 3 和表 4 可知,当 CaCl<sub>2</sub> 浓度大于 1% 时,交联液中会形成少量 CaCO<sub>3</sub> 固体颗粒;当 CaCl<sub>2</sub> 浓度小于 1%,形成的固定化颗粒不规则,机械强度差,颗粒内部形成的孔隙率低,则选定交联液中 CaCl<sub>2</sub> 浓度为 1%。

表 4 不同浓度 CaCl<sub>2</sub> 的固定化颗粒物理性能

编号	$u(\text{CaCl}_2)/\%$	小球强度	传质性能	成型难易
1	0.10	较弱	一般	一般
2	0.50	一般	一般	一般
3	1.00	一般	较好	一般
4	2	强	好	易
5	5	强	好	易

e. 颗粒直径对成型影响分析。通过机械强度和物理稳定性测定,并结合固定造粒的难易程度,确定 3mm 为最佳粒径。



图1 固定化吸附剂颗粒宏观形状

### 2.3 固定化颗粒宏观形态表征

空白小球颗粒和固定化剩余活性污泥及淡水藻类颗粒宏观形状如图1所示。

由图1可知,3种颗粒皆为球形,其中空白小球颗粒为白色,固定化剩余活性污泥和淡水藻类吸附剂颗粒的颜色分别为草绿色和灰黑色,球体直径皆为3mm左右。

### 2.4 净化 $Pb^{2+}$ 、 $Hg^{2+}$ 污染水体实验结果分析

**a. 空白小球颗粒。**当测得  $Pb^{2+}$ 、 $Hg^{2+}$  的空白溶液质量浓度分别为 99.98、99.89 mg/L 时,固定化空白小球颗粒吸附  $Pb^{2+}$ 、 $Hg^{2+}$  的效果如图2所示。由图2可知,固定化空白小球颗粒对  $Pb^{2+}$  的吸附率随着时间的变化,出现动态变化。在 30 min 吸附率达到 18.20%,此时吸附量为 3.64 mg/g。对  $Hg^{2+}$  的吸附率随着时间的变化,同样出现动态变化,但固定化空白颗粒吸附  $Hg^{2+}$  在 45 min 达到较大吸附率,即 12.06%,此时吸附量为 2.41 mg/g。由试验可知,固定化空白颗粒吸附这2种重金属离子的特性是不同的。这主要是因为这2种重金属离子与固定化颗粒的作用机制不同。

**b. 固定化剩余活性污泥颗粒。**当测得  $Pb^{2+}$ 、

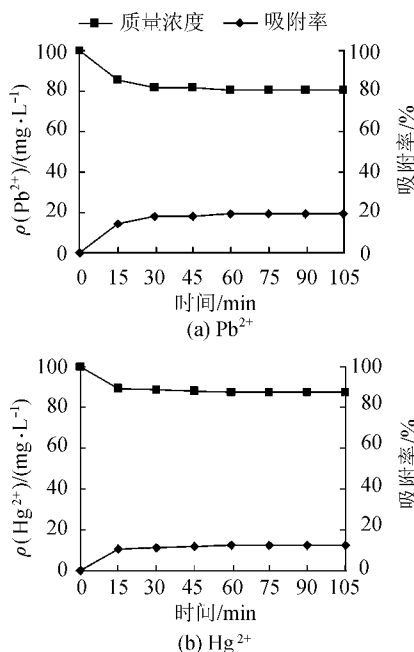


图2 固定化空白颗粒吸附  $Pb^{2+}$ 、 $Hg^{2+}$  的效果

$Hg^{2+}$  的空白溶液质量浓度分别为 99.89、99.98 mg/L 时,固定化剩余活性污泥颗粒吸附  $Pb^{2+}$ 、 $Hg^{2+}$  的效果如图3所示。由图3可知,固定化剩余活性污泥颗粒对  $Pb^{2+}$  的吸附随着时间的变化,同空白小球颗粒吸附规律比较一致,出现动态变化。在 30 min 时,固定化剩余活性污泥颗粒对  $Pb^{2+}$  的吸附率为 58.10%,此时吸附量为 11.49 mg/g。之后随着时间的延长,吸附  $Pb^{2+}$  的速度减小,在 45 min 时,吸附率为 63.20%,吸附量达到 12.50 mg/g,之后吸附量缓慢增大;在 60 min 时,吸附率达到 64%,吸附量达到 12.66 mg/g。固定化剩余活性污泥颗粒对  $Hg^{2+}$  的吸附率随着时间的变化,相对于空白小球和固定化剩余活性污泥吸附剂,吸附速率相对较快,在 30 min 吸附率快速达到 40.40%,此时吸附量为 8.08 mg/g,之后随着时间的延长,吸附率缓慢增大,处于动态平衡过程。由本试验结果可知,对于相同质量的小球颗粒,固定化剩余活性污泥颗粒吸附这2种重金属离子的性能得到了加强,这主要是因为剩余活性污泥颗粒固定到固定化剂后,吸附作用得到强化,固定化剩余活性污泥颗粒吸附  $Pb^{2+}$  的效果比吸附  $Hg^{2+}$  的效果好。

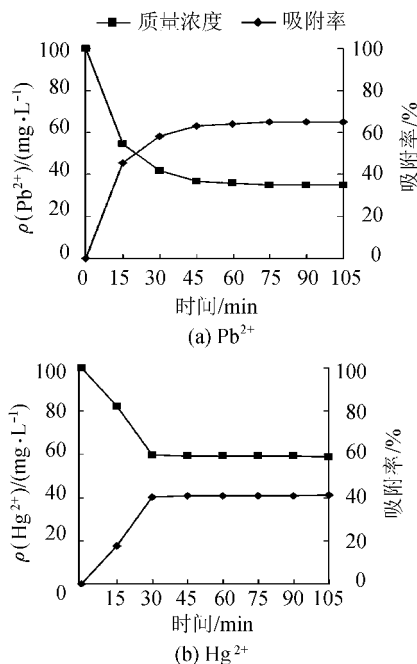


图3 固定化剩余活性污泥颗粒吸附  $Pb^{2+}$ 、 $Hg^{2+}$  的效果

c. 固定化淡水藻颗粒。当测得  $Pb^{2+}$ 、 $Hg^{2+}$  的空白溶液质量浓度分别为 99.89、99.98 mg/L 时,固定化淡水藻类小球颗粒吸附  $Pb^{2+}$ 、 $Hg^{2+}$  的效果如图 4 所示。

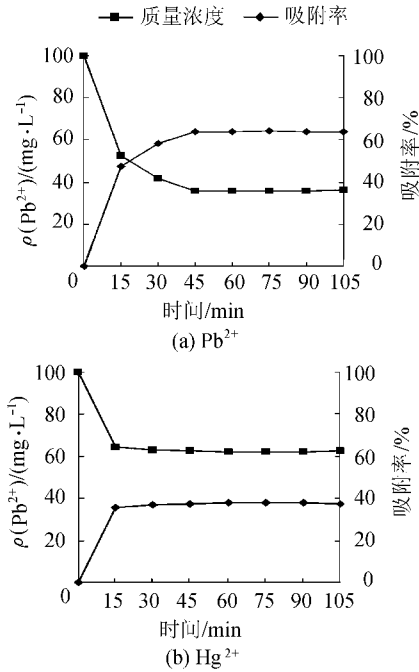


图 4 固定化淡水藻类颗粒吸附  $Pb^{2+}$ 、 $Hg^{2+}$  的效果

由图 4 可知,固定化淡水藻颗粒吸附  $Pb^{2+}$ 、 $Hg^{2+}$  的效率随着时间的变化,同空白小球颗粒、固定化剩余活性污泥吸附剂吸附规律比较一致,出现动态变化。在 30 min 时,固定化淡水藻类吸附剂吸附  $Pb^{2+}$  的效率为 58.20%,此时吸附量为 11.63 mg/g。之后随着时间的延长,吸附  $Pb^{2+}$  的速度减小,在 45 min 时,吸附量达到 12.79 mg/g,之后吸附量呈现动态平衡状态,吸附量趋于饱和。固定化淡水藻类吸附剂吸附  $Hg^{2+}$  的效率随着时间的变化,同样出现动态变化,在 15 min 时快速达到较大吸附率,即 35.70%,此时吸附量为 7.14 mg/g,在 60 min 时,吸附量为 7.58 mg/g,之后随着时间的延长出现动态平衡。由试验结果可知,对于相同质量固定化空白颗粒、剩余活性污泥颗粒、固定化淡水藻类颗粒,三者吸附  $Pb^{2+}$ 、 $Hg^{2+}$  的能力从大到小顺序相同,即:固定化剩余活性污泥颗粒、固定化藻类颗粒、固定化空白颗粒。

### 3 结论

利用 7 种常见包埋固定化方法,筛选出以聚乙烯醇-海藻酸钠-硼酸包埋法作为最佳固定化包埋方法,对该方法进行优化,制备生物吸附剂的最佳配方:聚乙烯醇:海藻酸钠 = 10% : 1% 溶液 200 mL;剩余活性污泥(淡水藻类) 20 g; 1.0% 的  $CaCl_2$ 、50.0

mol/L 的 OP 乳化液的饱和  $H_3BO_3$  溶液; 10% 的  $Na_2CO_3$  溶液调节 pH = 6.7; 3 mm 左右的球形颗粒; 固定化 4 h 以上,蒸馏水洗净。

对于相同质量空白固定化吸附剂、固定化剩余活性污泥(WAS)吸附剂、固定化淡水藻吸附剂,三者吸附  $Pb^{2+}$ 、 $Hg^{2+}$  的能力从大到小顺序均为:固定化 WAS 吸附剂、固定化藻类吸附剂、空白固定化吸附剂。固定化剩余活性污泥颗粒和固定化淡水藻类颗粒吸附 2 种重金属的能力都较固定化前有所提高。试验为系统地研究固定化 WAS 生物吸附剂、固定化淡水藻类吸附剂及共固定化泥藻生物吸附剂净化 2 种重金属污染水体的性能提供了基础可靠的数据,吸附 2 种重金属离子的效果有望在进一步系列研究中得到提高。

### 参考文献:

- [1] ADELA K, ALEKSANDER P. Comparison of rhizopus nigricans in a pelleted growth form with some other types of waste microbial biomass as biosorbents for metal ions[J]. World Journal of Microbiology & Biotechnology, 2001, 17: 677-685.
- [2] 孙少晨, 林永波, 寇广孝. 包埋法固定化细胞技术及其在水处理中的应用研究[J]. 环境科学与管理, 2006, 31(4): 95-97.
- [3] 宋应民, 欧富初. 包埋法固定化微生物处理化工废水[J]. 广东化工, 2006, 33(8): 68-70.
- [4] 徐雪芹, 李小明, 杨麒, 等. 固定化微生物技术及其在重金属废水处理中的应用[J]. 环境污染治理技术与设备, 2006, 7(7): 99-105.
- [5] 田建民. 生物吸附法在含重金属废水处理中的应用[J]. 太原理工大学学报, 2000, 31(1): 74-77.
- [6] 马前, 张小龙. 国内外重金属废水处理新技术的研究进展[J]. 环境工程学报, 2007, 1(7): 10-14.
- [7] 蒋宇红, 黄霞, 俞毓馨. 几种固定化细胞载体的比较[J]. 环境科学, 1993, 14(2): 11-15.

(收稿日期 2010-05-06 编辑 徐娟)

