doi:10.11918/j.issn.0367-6234.2016.02.011

齐齐哈尔工业区春季大气中 PBDEs 的污染及气粒分配

孟 博[1,2],刘丽艳[1],马万里[1],李文龙[1],宋薇薇[1],李一凡[1]

(1.哈尔滨工业大学 国际持久性有毒物质联合研究中心,150090 哈尔滨; 2.哈尔滨学院 理学院,150086 哈尔滨)

摘 要: 齐齐哈尔富拉尔基区为典型的国家重工业集中区域,为研究其大气中多溴联苯醚(PBDEs)的质量浓度水平、污染特征和气/粒分配规律,分别在其下风向和上风向采集大气颗粒相和气相样品,对 PBDEs 的质量浓度进行测定.结果表明,大气中 PBDEs 总质量浓度为 13.9~102 pg·m^{-3},平均值为 53.6 pg·m^{-3},BDE-209 是质量浓度最高的同系物.来源分析表明,PBDEs 主要来源于商用五溴联苯醚和十溴联苯醚的使用.由 log K_P 和 log p_L^o 线性回归得到的斜率均高于平衡状态理论值-1,说明大气中的 PBDEs 气粒分配未达到平衡状态.采用 Junge-Pankow 吸附模型和 Harner-Bidleman 吸收模型对 PBDEs 颗粒态百分比(φ)进行了模拟,结果均高于实际值.

关键词: 多溴联苯醚;污染特征;气粒分配;大气;工业区

中图分类号: X831 **文献标志码**: A **文章编号**: 0367-6234(2016)02-0063-05

Atmospheric occurrence and gas-particle partitioning of PBDEs in an industrial area of Qiqihar in spring

MENG Bo[1,2], LIU Liyan[1], MA Wanli[1], LI Wenlong[1], SONG Weiwei[1], LI Yifan[1]

(1.International Joint Research Center for Persistent Toxic Pollutants (IJRC-PTS), Harbin Institute of Technology, 150090 Harbin, China; 2.School of Science, Harbin University, 150086 Harbin, China)

Abstract: Fularji district of Qiqihar is a typical heavy industry district in China. Gas and particle phases air samples were collected using active air sampler at upwind and downwind of the district in order to study the occurrence, pollution characteristic, and gas/particle partitioning of polybrominated diphenyl ethers (PBDEs). The results indicated that the total concentration (gas plus particle phases) of PBDEs ranged from 13.9 to 102 pg·m^{-3} with the mean concentration of 53.6 pg·m^{-3}, and BDE-209 was the dominant congener. According to the results of source analysis, PBDEs in air were mainly originated from Commercial Deca-BDEs and Commercial Penta-BDEs. The slopes obtained from the linear regression between log K_P and log p_L^o were lower than the theoretical value of -1, suggesting the non-equilibrium between gas and particle phases. The particle bound fraction (φ) values were modeled using the Junge-Pankow Adsorption Model and the Harner-Bidleman Absorption Model. The values of φ from both the two models were overestimate compared to those obtained from field measurement.

Keywords: polybrominated diphenyl ethers; pollution characteristic; gas-particle partitioning; air; industrial region

多溴联苯醚 (polybrominated diphenyl ethers, PBDEs) 是溴代阻燃剂的一种.其化学通式为 $C_{12}H_{(0-9)}Br_{(1-10)}O$,根据其溴原子取代数量不同共分为 10 个同系组,有 209 种单体化合物[1].PBDEs 具有良好的阻燃性能,广泛应用于塑料、纺织品、家具、电线外皮以及电子产品等工业产品及日常用品中,并在生产、使用和废弃处理过程中释放到环境中[2-5].PBDEs 是一类典型的持久性有机污染物,具有生物积累性、持久性和生物毒性等环境特征.自 20 世纪 70 年代以来多溴联苯醚的生产和使用已造成 PBDEs 的全球性环境污染.近年来,在各种环境介质、生物体及人体中均检测到 PBDEs 及其代谢产物的存在[6-9],其污染情况已引起全球的广泛关注,主要集中于对电子垃圾回收、阻燃剂生产厂等严重污染区域的调查研究[10-12],而对可能引起 PBDEs 污染的工业区等污染源报道较少.这些工业区含有大

收稿日期: 2014-12-05.

基金项目: 国家自然科学基金面上项目(21277038);国家自然科学基金(41401550);黑龙江省自然科学基金面上项目(C201438).

作者简介: 孟 博(1979—),男,讲师, 博士研究生;
李一凡(1949—),男,教授,博士生导师.

通信作者: 李一凡, dr_li_yifan@163.com.

量的工业设备及多种 PBDEs 可能污染源,通常又紧邻生活区,从而可能导致一系列的健康问题[13].因此,对工业区环境中 PBDEs 的监测极为重要.

齐齐哈尔市富拉尔基区坐落于黑龙江省西部,城区人口近 30 万,是我国东北重工业发展的重点建设基地.重型机械厂、大型钢厂、热电厂、化工厂等大型重工业集中于城区 37 平方公里范围内.由于其大型工业密度大,且紧邻居民生活区,污染物容易经大气干湿沉降污染环境,对当地居民健康产生影响,具有典型性.选择富拉尔基区作为研究区域,分析其工业核心区及周边居民区大气中 PBDEs 的污染水平和空间分布特征及气粒分配行为,并利用 Junge-Pankow 吸附模型和 Harner-Bidleman 吸收模型对气粒分配行为进行进一步探讨,以期为当地生态环境保护、产业优化和污染治理提供科学依据.

1　实　验

1.1　样品采集

在齐齐哈尔市富拉尔基工业区共设两个大气采样点(见图 1),其常年及春季主导风向为北风及西北风.采样点 A 位于工业区主导风向下风向 (123°37′13.98E, 47°10′58.12 N),采样点 B 位于市区校园内处于主导风向上风向(123°37′36.79E, 47°12′14.46N),两采样点相距 2.5 km.采样时间为 2013 年 4 月 26、27 日,4 月 29、30 日,风向为北风、西北风,共得 4 对大气样品;2014 年 5 月 1 日至 5 日,风向为东北风、西北风,共得 4 对大气样品.

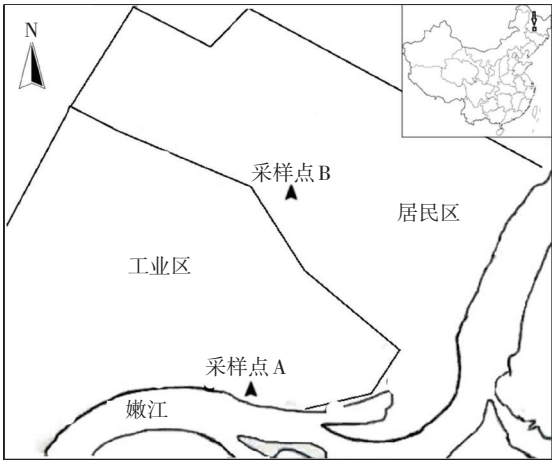


图 1　大气主动采样点位置

利用大流量主动空气采样器(KB-1000)同时采集 2 个采样点的空气样品,采样流速为 0.8 $m^3 \cdot min^{-1}$,持续 24 h 累计流量约 1 150 m^3.颗粒态和气态样品分别通过玻璃纤维滤膜(GFF,20 cm×25 cm) 和 2 个串联的聚氨酯泡沫(PUF,直径 9.5 cm,高度 5 cm) 进行采集.样品采样期间富拉尔基区平均温度为 12 ℃.

1.2　样品处理和分析

大气样品处理采用索氏萃取法对 PUF 和 GFF 进行提取,加入代标物 PCB-155 作为回收率指示物,滤膜和 PUF 用丙酮和正己烷混合液 (1∶1,体积比) 萃取 24 h, 萃取液经异辛烷溶剂置换后, 经旋转蒸发仪浓缩, 再用活化后的硅胶层析柱分离净化,将洗脱液加入异辛烷再次旋转蒸发浓缩,氮吹定容到 0.3 mL, 用于分析.

PBDEs 标样 (Wellington Laboratories Inc., Canada):PBDEs 混合标样含 12 种同系物,分别为 BDE-17、-28、-47、-66、-85、-99、-100、-138、-153、-154、-183、-209, 内标为 BDE71 (Accustandard Inc., USA).采用安捷伦 6890GC/5975MS 对 12 种 PBDEs 进行分析,以无分流方式进样 2 μL,反应气为甲烷气,载气为高纯氦气.采用 DB5-MS 毛细色谱柱(15 m × 0.25 μm × 0.1 μm),柱流量为 1.7 mL·min^{-1}.升温程序为:110 ℃ 保持 0.5 min,以 5 ℃·min^{-1}升到 220 ℃,再以 15 ℃·min^{-1}升到 310 ℃,保持 15 min,进样口温度为 250 ℃,离子源和四级杆的温度为 150 ℃.代标为 PCB-155,采用 GC-ECNI-MS进行检测.

1.3　质量保证与质量控制

为了考察采样过程中污染物的穿透情况,将第二块 PUF 沿横截面切成两块,共进行 2 次穿透实验.结果表明, 本实验中串联的 3 个 PUF 在采集大气中,最后一块 PUF 中同系物的质量浓度不到气相总量的 10%,故不考虑 PUF 的超载问题.样品萃取过程中跟踪空白样(method blank)和加标空白样(spike blank),每个样品添加代标物质 PCB-155 检验处理过程的回收率.结果表明,PCB-155 在气相中的回收率在 76%~122%,在颗粒物样品中的回收率在 82%~111% .气相和颗粒相在加标空白样品的回收率分别为 65%~124% 和 67%~117%.在空白样品中目标物质的质量浓度均低于检出限,检出限为 3 倍的信噪比,12 种 PBDEs 的仪器检测限在 0.01~0.53 ng·mL^{-1}.

2　结果与讨论

2.1　PBDEs 的污染水平

在所有样品中均检测到 PBDEs 的存在,表明该工业区大气普遍受到 PBDEs 的污染.其中 BDE-17、-28、-47、-66、-100、-99、-154、-153、-209 的检出率为 100%,BDE-138 检出率为 81.3%,BDE-85 在所有样品中均未检出.样品采集时间段内 12 种 PBDEs 的质量浓度为 13.9~102 pg·m^{-3},平均值为 53.6 pg·m^{-3}. BDE-209 的质量浓度为 9.44~

98.2 pg·m^{-3}，平均值为 49.0 pg·m^{-3}.表 1 列出世界部分地区大气中 PBDEs 的污染程度，可以看出，富拉尔基地区大气中的 PBDEs 的质量浓度远低于广州工业区[14]及浙江台州电子垃圾拆解地[15]，山东潍坊[12]等 PBDEs 使用及生产的高度污染区域，与意大利工业区[16]污染程度相当.说明 PBDEs 生产地及电子产品生产及回收是造成大气中 PBDEs 污染的主要途径，而一些含有 PBDEs 工业品的使用对 PBDEs 污染贡献率较低.同主要城市大气污染水平相比，富拉尔基区由于人口密度低、规模小，其污染程度也显著低于广州[14]、西安[17]等大城市，与日本京都市[18]污染程度相当.

表 1　世界部分地区大气中 PBDEs 的质量浓度

采样点类型	采样时间	同系物个数	低溴 ΣPBDEs/(pg·m^{-3})	低溴 PBDEs 质量浓度较高单体	BDE-209/(pg·m^{-3})	文献
广州-工业区 1	2004	11	170.4~6 594(3 673)	BDE-47,-99	230.2~11 464(4 200)	[14]
广州-工业区 2	2004	11	172.7~354.3(229.6)	BDE-47,-99	169.4~1 420(749.8)	[14]
意大利 Florenc-工业区	2011	8	21.4~44.3	BDE-47,-153	29.6~79.2(51.9)	[16]
台州-电子垃圾拆解地	2006	13	135.1~362(216±115)	BDE-47,-99,-183	137.7~304(290.4±85.3)	[15]
潍坊-生产源	2011—2012	8	(228)	BDE-28,-47,-153,-183	1.5×10^4~2.4×10^5 (1.4×10^5)	[12]
西安-城市	2008	12	16.32~86.49	BDE-47,-99	16.34~576	[17]
广州-城市	2004	11	64.0~110.0(88.8)	BDE-47,-99	99.9~444(263. 8)	[14]
意大利 Florence-城市	2011	8	12.1~27.9	BDE-47,-99	18.1~26.8(22.7)	[16]
日本京都-城市	2000—2001	11	4.5~65	BDE-47,-99,-183	ND~48	[18]
齐齐哈尔-工业区	2013	12	2.11~6.54(5.04)	BDE-47,-99	9.44~98.2(49.0)	本研究

2.2　PBDEs 的分布特征及来源解析

图 2 给出了 2 个采样点大气中各单体的平均质量浓度，其中采样点 A 的 PBDEs 总质量浓度是 B 的 7.4 至 1.3 倍，平均为 2.6 倍(T 检验，$P<0.01$).由此可见，工业区对大气中 PBDEs 的贡献率显著高于上风向邻近市区的贡献率.11 种 PBDEs 同系物中质量浓度最高的是 BDE-209 ，占 68.0%~95.9%.在低溴代单体中(三溴~七溴)质量浓度较高的是 BDE-99、BDE-47 和 BDE-183，分别占 Σ_{11}PBDEs 的 2.73%、1.80%和1.77%.组成五溴联苯醚的 5 种主要同系物(BDE-47,-99,-100,-153,-154)占 Σ_{10}PBDEs(低溴代单体，不包括 BDE-209)总量的 54.4%(A) 和 55.9%(B).八溴工业品中 2 种主要同系物 (BDE-138, BDE-183) 占 Σ_{10}PBDEs 的 18.6%(A) 和 17.1%(B).该结果表明，该地区主要污染物为工业品十溴联苯醚和五溴联苯醚，同时八溴联苯醚也有一定程度的污染.

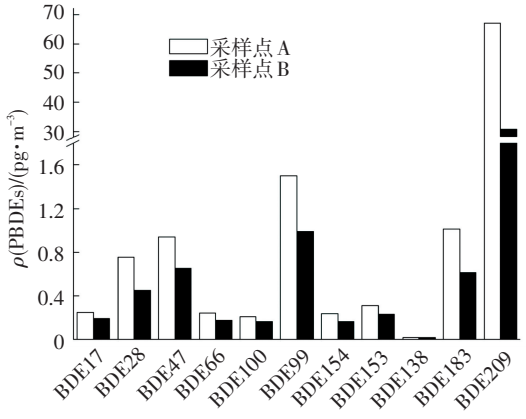


图 2　采样点各同系物质量浓度平均值

2.3　PBDEs 在气相和颗粒物上的分配

PBDEs 在气相和颗粒相中的分布影响其在大气中的沉降、降解、迁移及其归宿.图 3 为 2 个采样点 10 种 PBDEs 在气相和颗粒相的平均质量分数.BDE-85 在所有样品中均未检出，BDE-138 在部分样品中质量分数低于检测线，BDE-209 只在采样点 A 的一个样品的气相中有少量检出，占大气中 BDE209 的 3%，所以没有列出这 3 种同系物.由图 3 可以看出，三溴联苯醚(BDE-17、-28)主要存在于气相中，气相比例为 75.5%~84.0%，四溴联苯醚(BDE-47、-66)在气相的比例为 44.43%~61.3%，五溴至七溴联苯醚(BDE-100、-99、-154、-153、-183)都是颗粒相质量分数高于气相质量分数(气相占4.38%~28.3%).随着溴原子个数的增加，PBDE 单体在颗粒相质量分数的比重有增大的趋势.在采样期间，颗粒相所占质量分数在 87%以上，可以看出 PBDEs 主要存在于颗粒相中.

气-粒分配系数 (K_P) 常用来描述半挥发性有机化合物的气-粒分配行为，即

$$K_P = \frac{\rho_p/\rho_{TSP}}{\rho_g}.$$

式中：ρ_p、ρ_g分别为 PBDEs 的颗粒态、气态质量浓度(pg·m^{-3})，ρ_{TSP}为总悬浮颗粒物 (μg·m^{-3}).气-粒分配过程存在两种机理[19-20]，即污染物吸附到颗粒物的表面和污染物吸附到颗粒物的有机质中.对于两种分配机理，理论上存在如下的线性关系：

$$\log K_P = m_r \log p_L^o + b_r,$$

$$\log p_L^o = m_L/T + b_L.$$

式中：p_L^o为过冷饱和蒸汽压(Pa)；系数 m_r和 b_r通过

log K_P 和 log p_L^o 线性回归分析得到；m_L、b_L 参考 Tittlemier[21] 提供的值；T 为采样时的平均温度(K).应用以上计算方法获得采样平均温度 12 ℃下 PBDEs 的蒸气压,结果如图 4 所示.可以看出,A、B 两采样点斜率均大于 −1,表明两采样点大气中气粒分配均处于非平衡状态,这与意大利工业区[16]及中国电子垃圾拆解地[22]大气中 PBDEs 气粒分配研究相一致.

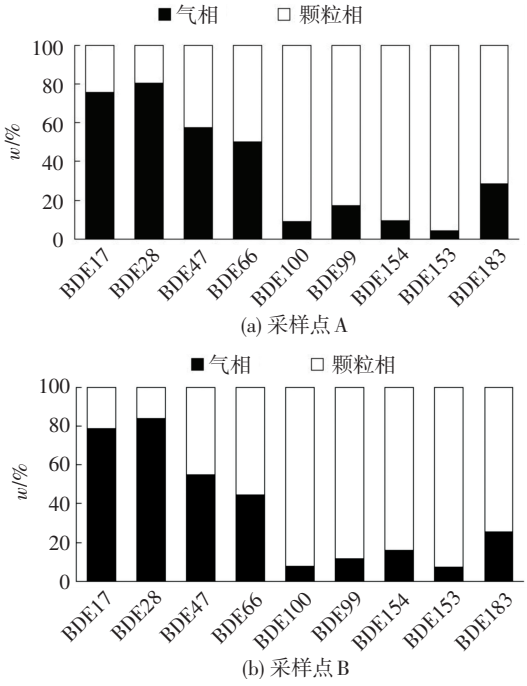


图 3 气相颗粒相质量分数

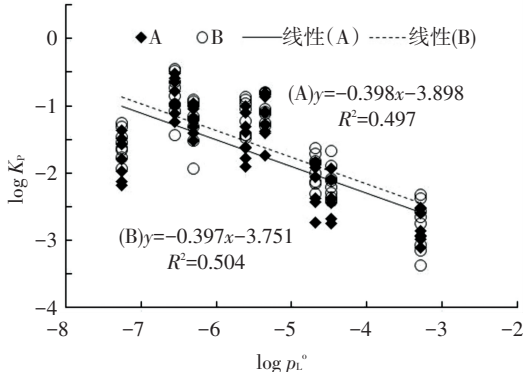


图 4 log K_P和 log p_L^o线性回归

2.4 分配模型的探讨

运用 Junge-Pankow[19] 吸附模型和 Harner-Bidleman[23]吸收模型分别对大气中的 PBDEs 气粒分配进行进一步分析,并与实测值对比.

Junge-Pankow 模型中,φ、K_P分别表示为

$$\varphi = \frac{\rho_p}{\rho_g + \rho_p} = \frac{c\theta}{p_L^o + c\theta},$$

$$\log K_P = \log \frac{c\theta}{\rho_{TSP}} - \log p_L^o.$$

式中:θ 为总悬浮颗粒物的有效表面积($m^2 \cdot m^{-3}$),c 为基于化学性质及表面冷凝热的常数.预测时 c = 0.172 Pa·m,城市、农村和干净背景的 θ 分别取1.1×10^{-3}、1.5×10^{-4}、4.2×10^{-5} $m^2\cdot m^{-3}$[24].

Harner-Bidleman 吸收模型的表达式如下:

$$\varphi = \frac{\rho_p}{\rho_g + \rho_p} = \frac{K_P \times \rho_{TSP}}{1 + K_P \times \rho_{TSP}},$$

$$\log K_P = \log K_{OA} + \log f_{OM} - 11.91.$$

式中:f_{OM}为颗粒物中有机质质量分数,其取值与当地环境因素及颗粒物特征有关,对 K_P值的预测中f_{OM}取 10%,20%,30%;K_{OA}为辛醇-空气分配系数[23].

将 Junge-Pankow 模型中和 Harner-Bidleman 模型中预测的 φ 值与实测值进行比较,结果分别如图 5、6 所示.

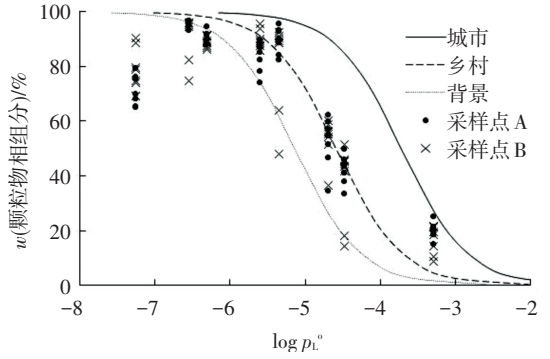


图 5 φ 的实测值与 Junge-Pankow 模型预测值比较

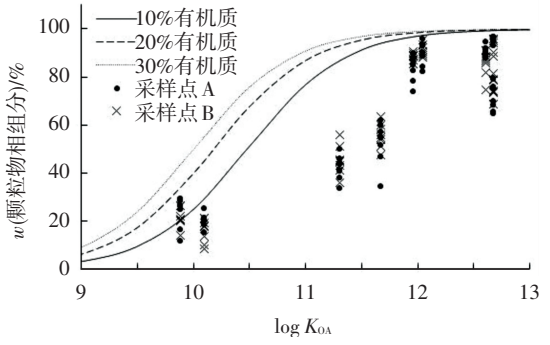


图 6 φ 的实测值与 Harner-Bidleman 模型预测值比较

在 Junge-Pankow 模型中,所有 φ 的实测值比采用城市的 θ 预测值要低,高溴代同系物的 φ 值甚至低于背景点预测值,这可能与参数 θ 的假设值有关.当 φ 值较低时(φ<20%),φ 的实测值更接近于城市预测线.对于 Harner-Bidleman 吸收模型,所有 PBDEs 同系物的 φ 实测值均低于 10%有机质质量分数的预测限.由于f_{OM}的取值因采样点环境而异,本次以经验值替代工业区大气颗粒物的f_{OM}真实值可能是致使 Harner-Bidleman 模型过高估计了工业区大气中 φ 值的原因.另一方面,由于 PBDEs 在大气中以非平衡态存在,且样品在采样过程中白天和晚上温差有一定的变化,导致其预测值与实测值偏差大,尤其是对于较低相对分子质量同系物,这与 Li 等[25]的分析一致.

3 结 论

1) 富拉尔基工业区大气中 PBDEs 质量浓度为

13.9~102 pg·m^{-3},平均值为 53.6 pg·m^{-3},BDE-209 的质量浓度为 9.44 ~ 98.2 pg·m^{-3},平均值为 49.0 pg·m^{-3}.在国内外处于偏低的污染水平.

2)PBDEs 的来源解析表明,富拉尔基工业区大气中的 PBDEs 主要来源于商用五溴联苯醚和十溴联苯醚的使用.

3)PBDEs 在气相和颗粒物上的分配表明,气/粒分配随着含溴数量的增加 PBDE 单体在颗粒相质量分数的比重有增大的趋势.由 log K_p 和 log p_L^o 线性回归得到的斜率大于 -1,表明工业区大气中的 PBDEs 气粒分配未达到平衡状态.运用 Junge-Pankow 吸附模型和 Harner-Bidleman 吸收模型对颗粒态所占百分比 φ 进行预测并实测值进行比较,发现两种模型均高估了 φ 值.

参考文献

[1] YANG Meng, JIA Hongliang, MA Wanli, et al. Levels, compositions, and gas-particle partitioning of polybrominated diphenyl ethers and dechlorane plus in air in a Chinese northeastern city[J]. Atmospheric Environment, 2012, 55:73-79.

[2] DE WIT C A, HERZKE D, VORKAMP K. Brominated flame retardants in the Arctic environment-trends and new candidates [J]. Science of the Total Environment, 2010, 40(8):2885-2918.

[3] ZHU Ningzheng, QI Hong, ZHANG Feng, et al. Concentration, sources and human exposure of poly brominated diphenyl ethers in indoor dust in Heilongjiang province, China [J]. B Environ Contam Tox, 2013, 91(6):640-644.

[4] QI Hong, LI Wenlong, LIU Liyan, et al. Brominated flame retardants in the urban atmosphere of Northeast China: concentrations, temperature dependence and gas-particle partitioning [J]. Science of the Total Environment, 2014, 491/492:60-66.

[5] DARNERUD P O.Toxic effects of brominated flame retardants in man and in wildlife [J]. Environment International, 2003, 29(6):841-853.

[6] 刘宗峰, 郎印海, 曹正梅, 等. 环境中多溴联苯醚(PBDEs)分布特征研究进展 [J]. 土壤通报, 2007, 38(6):1227-1233.

[7] HITES R A.Polybrominated diphenyl ethers in the environment and in people: a meta-analysis of concentrations [J]. Environmental Science & Technology, 2004, 38(4): 945-956.

[8] LA GUARDIA M J, HALE R C, HARVEY E. Detailed polybrominated diphenyl ether (PBDE) congener composition of the widely used penta-, octa-, and deca-PBDE technical flame-retardant mixtures [J]. Environmental Science & Technology, 2006, 40(20):6247-6254.

[9] 任金亮, 王平. 多溴联苯醚环境行为的特征与研究进展 [J]. 化工进展, 2006, 25(10):1152-1157.

[10] AGRELL C, SCHURE A F H, SVEDER J, et al. Polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) at a solid waste incineration plant I: atmospheric concentrations [J]. Atmospheric Environment, 2004, 38(30):5139-5148.

[11] WANG Junxia, LIN Zhenkun, LIN Kuangfei, et al. Polybrominated diphenyl ethers in water, sediment, soil, and biological samples from different industrial areas in Zhejiang, China[J]. Journal of Hazardous Materials, 2011, 197:211-219.

[12] 吴辉, 金军, 王英, 等. 典型地区大气中多溴联苯醚和新型溴代阻燃剂的水平及组成分布[J]. 环境科学, 2014, 35(4):1230-1237.

[13] ZHANG Yongfei, FU Shan, LIU Xinchun, et al. Polybrominated diphenyl ethers in soil from three typical industrial areas in Beijing, China [J]. Journal of Environmental Sciences (China), 2013, 25(12):2443-2450.

[14] CHEN Laiguo, MAI Bixian, BI Xinhui, et al. Concentration levels, compositional profiles, and gas-particle partitioning of polybrominated diphenyl ethers in the atmosphere of an urban city in South China [J]. Environmental Science & Technology, 2006, 40(4):1190-1196.

[15] HAN Wenliang, FENG Jialiang, GU Zeping, et al. Polybrominated diphenyl ethers in the atmosphere of Taizhou, a major E-waste dismantling area in China [J]. Bulletin of Environmental Contamination and Toxicology, 2009, 83(6):783-788.

[16] ALESSANDRA C, FRANCESCA P, TANIA M, et al. Atmospheric occurrence and gas-particle partitioning of PBDES in an industrialised and urban area of Florence, Italy [J]. Aerosol and Air Quality Research, 2014, 14:1121-1130.

[17] 蒋君丽, 张承中, 马万里, 等. 西安城区秋季大气中多溴联苯醚的污染特征及来源分析 [J]. 环境科学, 2011, 32(8):2226-2230.

[18] HAYAKAWA K, TAKATSUKI H, WATANABE I, et al. Polybrominated diphenyl ethers (PBDEs), polybrominated dibenzo-p-dioxins/dibenzofurans (PBDD/Fs) and monobromo-polychlorinated dibenzo-p-dioxins/dibenzofurans (MoB-PXDD/Fs) in the atmosphere and bulk deposition in Kyoto, Japan [J]. Chemosphere, 2004, 57(5):343-356.

[19] PANKOW J F. Absorption model of gas/particle partitioning of organic compounds in the atmosphere [J]. Atmospheric Environment, 1994, 28:185-188.

[20] PANKOW J F, BIDLEMAN T F. Interdependence of the slopes and intercepts from log-log correlations of measured gas-particle partitioning and vapor pressure-I, theory and analysis of available data [J]. Atmospheric Environment, 1994, 29:107-116.

[21] TITTLEMIER S A, HALLDORSON T, STERN G A, et al. Vapor pressures, aqueous solubilities, and Henry's law constants of some brominated flame retardants [J]. Environmental Toxicology and Chemistry, 2002, 21(9): 1804-1810.

[22] 李英明, 江桂斌, 王亚韡, 等. 电子垃圾拆解地大气中二英、多氯联苯、多溴联苯醚的污染水平及相分配规律 [J]. 科学通报, 2008, 53(2):165-171.

[23] TOM H, MAHIBA S. Measurements of octanol-air partition coefficients (K_{OA}) for Polybrominated Diphenyl Ethers (PBDEs): predicting partitioning in the environment [J]. Chem Eng Data, 2002, 47: 228-232.

[24] HE Jun, BALASUBRAMANIAN R. A study of gas/particle partitioning of SVOCs in the tropical atmosphere of Southeast Asia [J]. Atmospheric Environment, 2009, 43:4375-4383.

[25] LI Yifan, JIA Hongliang. Prediction of gas/particle partition quotients of Polybrominated Diphenyl Ethers (PBDEs) in north temperate zone air: an empirical approach [J]. Ecotoxicology and Environmental Safety, 2014, 108:65-71.

(编辑　刘　彤)