

短程硝化最优曝气时间控制与硝化种群调控

彭永臻^{1,2}, 杨岸明¹, 李凌云³, 吴 蕾¹

- (1. 北京工业大学 北京市水质科学与水环境恢复工程重点试验室, 100124 北京;
2. 哈尔滨工业大学 城市水资源与水环境国家重点实验室, 150090 哈尔滨;
3. 机科发展科技股份有限公司 环境与生态工程事业部, 100044 北京)

摘 要: 为确定实现短程硝化的最优曝气时间, 采用 3 个平行的序批式间歇反应器(SBR)处理生活污水, 在 pH 为 7.9 ~ 8.0 时, “氨谷”出现前 $t/2$ 、 $t/4$ 、 $t/8$ (t 为曝气时间) 停止曝气, 实现短程硝化. 运行 145 d 后, 系统亚硝态氮积累率分别提高到 50%、65%、90%. 荧光原位杂交技术(FISH)定量分析表明, 反应器中氨氧化菌(AOB)的比例都有不同程度提高, 3#SBR最为显著, AOB、亚硝酸盐氧化菌(NO₂-oxidizing bacteria)占全菌的比例分别为 3.89%、0.27%, AOB 为硝化菌群中的优势菌. 最优曝气时间控制协同游离氨(FA)抑制作用可能是快速实现和维持短程硝化的主要因素.

关键词: 最优曝气时间; 硝化种群调控; 亚硝态氮积累率; 短程硝化反硝化; 序批式间歇反应器

中图分类号: X703.1 **文献标志码:** A **文章编号:** 0367-6234(2013)02-0101-05

Optimal control of aeration duration and nitrifying population regulation for partial nitrification

PENG Yongzhen^{1,2}, YANG Anming¹, LI Lingyun³, WU Lei¹

- (1. Key Laboratory of Beijing for Water Quality Science and Water Environmental Recovery Engineering, Beijing University of Technology, 100124 Beijing, China; 2. State Key Laboratory of Urban Water Resource and Environment, Harbin Institute of Technology, 150090 Harbin, China; 3. Environmental and Ecological Department, Machinery Technology Development Co. Ltd, 100044 Beijing, China)

Abstract: Domestic wastewater was treated by using three parallel sequencing batch reactors (SBR) at the pH of 7.9 – 8.0 to optimize aeration duration of partial nitrification. The partial nitrification was achieved and maintained by controlling the aeration time of $t/2$, $t/4$, $t/8$ respectively (t was aeration time) before appearance of " ammonia valley ". Nitrite accumulation ratios were improved by 50%, 65%, 90% respectively in the three reactors which were operated in 145 days. FISH quantitative analysis showed that the percentage of ammonia oxidizing bacteria (AOB) in the reactors increased differently. AOB and nitrite oxidizing bacteria (NOB) was 3.89% and 0.27% of the total bacteria respectively in No. 3 reactor, which showed that AOB is the dominant bacteria in nitrifying bacteria. It is concluded that synergistic effect between the optimal control of aeration duration and the inhibition of FA would be the key factors to rapid start-up and maintain the stable nitrification.

Key words: optimum aeration duration; nitrifying community regulation; nitrite accumulation ratio; partial nitrification and denitrification; sequencing batch reactor

短程硝化反硝化生物脱氮工艺具有节省曝气

能耗、缩短反应时间、节省反硝化碳源和减少污泥产量、减少反应器有效容积、节约基建费用等优点^[1-2]. 因此, 实现与维持稳定的短程硝化反硝化具有实际意义和工程应用价值^[3-4]. 生物短程硝化反硝化的实质是将硝化反应控制在亚硝态氮阶段, 从种群迁移的角度看, 就是在硝化反应过程

收稿日期: 2012-03-09.

基金项目: 国家自然科学基金资助项目(21177005); “十一五”国家科技支撑计划重点项目(2009BAC57B01).

作者简介: 彭永臻(1949—), 男, 教授, 博士生导师.

通信作者: 彭永臻, pyz@bjut.edu.cn.

中 AOB 相对于 NOB 优势增殖,使 AOB 成为硝化菌群中的优势种群^[5-6]. 实现与维持稳定短程硝化反硝化的条件相对苛刻:维持高温($>30\text{ }^{\circ}\text{C}$)^[7-8],由于水的比热容大,能耗高;维持低氧($<0.5\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$)^[9-10],氨氧化速率低,硝化时间长,效率低;使用抑制剂,由于不同的抑制剂对硝化细菌的抑制原理和抑制程度不同,且投加量不当会同时杀死 AOB 与 NOB,不利于 AOB 的培养^[11-12].

除上述环境因素外,曝气时间是实现和维持稳定短程硝化的主要控制因素,曝气时间短导致硝化反应不完全,出水不达标;曝气时间过长,亚硝态氮($\text{NO}_2^- - \text{N}$)在 NOB 作用下氧化为硝态氮($\text{NO}_3^- - \text{N}$),难以实现或维持短程硝化,因此,研究和确定短程硝化的最优曝气时间尤为重要.

1 实验

1.1 实验用水水质

实验用水为北京工业大学家属区化粪池的生活污水. 原水 COD 为 $127.8 \sim 279.7\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$, $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ 为 $44.0 \sim 65.0\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$, BOD_5 为 $105.0 \sim 150.0\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$, $\text{NO}_3^- - \text{N}$ 为 $0.04 \sim 0.42\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$, $\text{NO}_2^- - \text{N}$ 为 $0.06 \sim 0.15\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$, pH 为 $7.0 \sim 7.6$,碳氮比为 $3.3 \sim 4.3$,属于低碳氮比污水.

1.2 分析方法

COD、 $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ 、 $\text{NO}_3^- - \text{N}$ 、 $\text{NO}_2^- - \text{N}$ 、总碱度、MLSS 等指标均采用国家规定的标准方法测定,DO 采用 WTW-level2 溶解氧在线仪测定, pH 采用 WTW-pH/Oxi340i 在线测定仪.

按照文献[13]的操作方法进行荧光原位杂交技术分析. 首先对污泥样品进行固定. 取固定后的污泥样品经超声分解后,滴加在明胶包被过的载玻片上,在空气中干燥后先后浸泡于体积分数为 50%、80% 和 98% 的乙醇溶液中脱水 3 min. 随后将荧光标记的寡核苷酸探针溶解于杂交缓冲液中,在 $46\text{ }^{\circ}\text{C}$ 下与污泥样品杂交 2 h. 杂交结束后,采用洗脱缓冲液在 $48\text{ }^{\circ}\text{C}$ 下洗脱 20 min. 在干燥后的样品上滴加抗荧光衰减液,对每个污泥样品随机拍摄 20~25 张照片用于定量分析.

1.3 实验方案

1.3.1 预演实验

采用有效容积为 10 L 的 SBR 反应器,接种含硝化细菌的活性污泥,污泥质量浓度为 $3.50\text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$,维持 DO 在 $2.0\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 左右,反应温度 $25\text{ }^{\circ}\text{C}$, pH 为 $7.9 \sim 8.0$,稳定运行 10 个周期,考察曝气时间与氮素转化的关系.

1.3.2 批次实验

采用 3 个有效容积为 10 L 的 SBR 反应器,初始 MLSS 在 $3.05 \sim 3.50\text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$,其他条件与预演实验相同,步骤如下.

1) 用 pH 和 DO 在线检测仪实时检测硝化过程中 DO 和 pH 的变化,直到出现“氨谷”,记录 3 个反应器的硝化反应时间 t_{11}, t_{21}, t_{31} ,同时固定泥样,利用分子生物学荧光原位杂交技术观察污泥种群结构,记录 AOB 与 NOB 在整个污泥中所占的比例;

2) 控制 3 个反应器的曝气时间分别为 $t_{11}/2$ (提前 $t_{11}/2$ 的时间停曝气), $3t_{21}/4$ (提前 $t_{21}/4$ 的时间停曝气), $7t_{31}/8$ (提前 $t_{31}/8$ 的时间停曝气),运行 10 个周期,同时固定泥样,记录 AOB 和 NOB 在整个污泥中所占的比例;

3) 使 3 个反应器再次都出现“氨谷”,记录硝化反应时间分别为 t_{12}, t_{22}, t_{32} ;

4) 控制 3 个反应器的曝气时间分别为 $t_{12}/2$, $3t_{22}/4$, $7t_{32}/8$,运行 10 个周期,记录 AOB 和 NOB 在整个污泥中所占的比例;

5) 重复步骤 3)、4),运行一定时间,记录每个 SBR 的亚硝态氮积累率的变化,积累率最高者,则该提前停曝气的时间为最佳曝气时间.

2 结果与讨论

2.1 硝化过程中曝气时间与氮素转化的关系

在一定试验条件下,硝化反应过程中 $\text{NO}_2^- - \text{N}$ 的生成量随曝气时间逐渐增加,即 $\text{NO}_2^- - \text{N}$ 积累与曝气时间的长短密切相关. 如图 1,该反应周期曝气时间为 458 min,但是曝气进行到 400 min 时, $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ 已经降至 $2.43\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$, $\text{NO}_2^- - \text{N}$ 达到最大值 $18.0\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$. 继续曝气至 458 min, $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ 仅降至 $1.81\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$,但是有 $6.5\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ $\text{NO}_2^- - \text{N}$ 被氧化为 $\text{NO}_3^- - \text{N}$,这对实现短程硝化极为不利.

因此,在保证出水 $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ 达标的前提下,“氨谷”之前停曝气,能保证 AOB 充分增殖并逐渐淘汰 NOB,此时新增污泥中 AOB 的比例大于原有污泥中 AOB 所占的比例,即 $\frac{\text{新增 AOB}}{\text{新增 AOB} + \text{新增 NOB}} \geq$

$\frac{\text{原有污泥中 AOB}}{\text{原有污泥中 AOB} + \text{原有污泥中 NOB}}$,通过控制适当的污泥龄,每个周期曝气结束不断排除定量的污泥,达到逐渐淘汰 NOB 的目的.

通过观察 pH 的变化和 $\text{NO}_2^- - \text{N}$ 积累的规律,将曝气时间提前该周期好氧时间的 $1/2$ 、 $1/4$ 、 $1/8$,考察反应过程中 $\text{NO}_2^- - \text{N}$ 积累情况,以确定最佳曝

气时间.

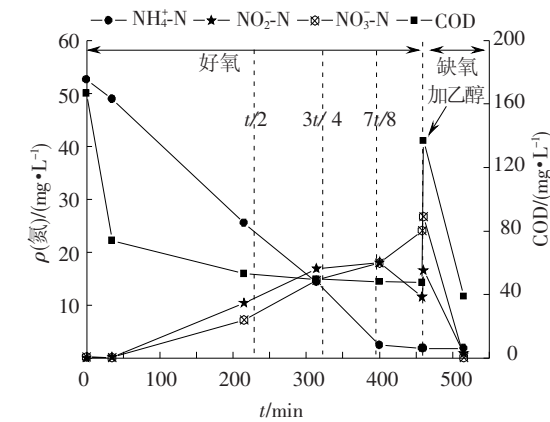


图 1 NO₂⁻-N 积累与曝气时间的关系 (t = 458 min)

2.2 SBR 生化系统硝化性能与亚硝态氮积累

系统启动前,不调节进水 pH,经过 7 d 稳定运行,确定“氨谷”出现的时间为 520 min,3 个反应器曝气时间分别提前 260、130、65 min,即曝气时间控制为 260、390、455 min.

由于进水负荷比较稳定,NH₄⁺-N 去除率主要受曝气时间长短的影响,其中,1#、2#反应器 NH₄⁺-N 去除率分别在 45% ~ 50% 和 70% ~ 75%. 3#反应器曝气时间充分,硝化反应进行得比较完全,NH₄⁺-N 去除率较高且稳定,多数在 80% 以上.

1#反应器中亚硝态氮积累率在 5% 左右,2#反应器为 2% 左右,3#反应器为 3% 以下. 3 个反应器中亚硝态氮积累率均很低.

从第 8 天开始,将系统反应初始 pH 调整为 7.9 ~ 8.0,3 个反应器的曝气时间仍然都控制在“氨谷”出现之前,分别提前该周期好氧时间的 1/2、1/4、1/8,但每个反应器提前的时间不同. 3 个 SBR 系统运行 80 d 后,NH₄⁺-N 去除和 NO₂⁻-N 的积累都发生了明显的变化. 图 2 为 1#反应器 1 个典型周期 COD 去除和“三氮”(NH₄⁺-N、NO₂⁻-N、NO₃⁻-N)质量浓度的变化.

1#SBR 曝气时间控制为 260 min. 进水混合后,系统内 COD 和 NH₄⁺-N 的质量浓度分别为 79.11 和 43.41 mg · L⁻¹. 首先是异养菌以有机物为底物进行增殖,之后是硝化细菌以 NH₄⁺-N 为底物进行代谢,曝气 25 min 后 COD 基本降解完毕,260 min 后停止曝气,COD 降为 36.97 mg · L⁻¹,NH₄⁺-N 降为 15.88 mg · L⁻¹,氧化产生的 NO₂⁻-N、NO₃⁻-N 分别为 3.65 和 19.88 mg · L⁻¹,亚硝态氮积累率提高 15.5%. 之后向反应器加入适量的乙醇进行反硝化,最后出水 COD 为 35.23 mg · L⁻¹,NH₄⁺-N 质量浓度为 13.74 mg · L⁻¹,NO₂⁻-N 和 NO₃⁻-N 质量浓度接近为零. 由图 2 还可以看出,

曝气过程中 NH₄⁺-N 质量浓度变化曲线的斜率几乎不变,说明 NH₄⁺-N 氧化以恒定速率进行,提前 t/2 停曝气,NH₄⁺-N 氧化不充分,有大量 NH₄⁺-N 剩余.

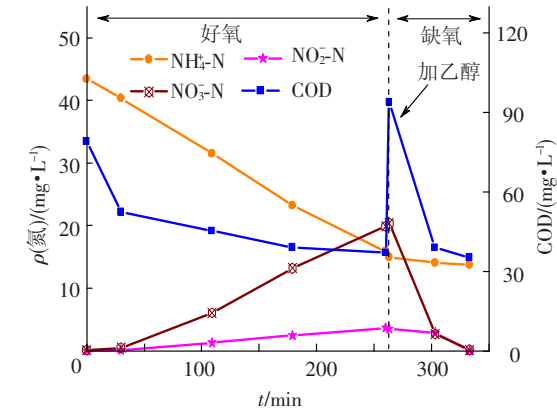


图 2 1#SBR 系统典型周期氮的变化

图 3 为 2#反应器 1 个典型周期 COD 去除和“三氮”质量浓度的变化. 2#SBR 曝气时间控制为 390 min. 有机物和 NH₄⁺-N 的去除规律与 1 号反应器类似,曝气过程中首先降解 COD,30 min 后,NH₄⁺-N 氧化几乎以相同的速率进行. 曝气停止时,NH₄⁺-N 的质量浓度为 9.46 mg · L⁻¹,NO₂⁻-N 质量浓度达 12.08 mg · L⁻¹,NO₃⁻-N 质量浓度为 22.28 mg · L⁻¹,亚硝态氮积累率提高到 35.16%. 向反应器投加碳源乙醇缺氧搅拌后,反硝化比较彻底. 但是由于部分 NH₄⁺-N 氧化不充分,出水 NH₄⁺-N 剩余 8.45 mg · L⁻¹.

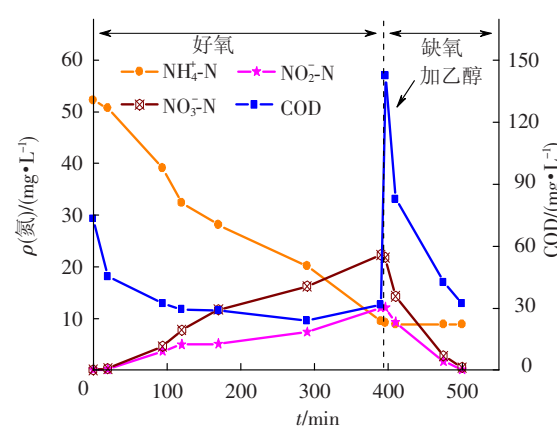


图 3 2#SBR 系统典型周期氮的变化

图 4 为 3#反应器 COD 去除和“三氮”质量浓度的变化. 3#SBR 曝气时间控制为 455 min. 进水混合后,系统内 COD 和 NH₄⁺-N 的质量浓度分别为 90.27 和 51.36 mg · L⁻¹. 停曝气时 NH₄⁺-N 基本氧化完全,亚硝态氮积累达最高值 26.82 mg · L⁻¹,积累率为 86.64%. 向反应器投加适量乙醇反硝化后,最终出水 COD 为 46.73 mg · L⁻¹,NH₄⁺-N 为

4. 57 mg · L⁻¹, NO₂⁻-N 和 NO₃⁻-N 为 0.

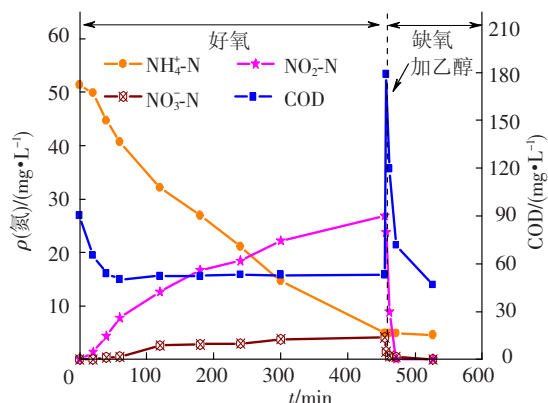


图 4 3#SBR 系统典型周期氮的变化

随着运行周期的增加,3 个反应器中亚硝态氮积累率都有了明显提高.由图 5 可以看出,运行 100 d 后,在曝气结束时,1#反应器中亚硝态氮积累率由 5% 逐渐上升到 50%,2#反应器由 2% 逐渐上升到 65%,3#反应器中亚硝态氮积累率上升速率最快,从 3% 升高到 90% 左右.3#反应器亚硝态氮积累率最高,亚硝态氮积累的速率也最快,2#反应器次之,1#反应器最慢.

原因是 1#和 2#反应器曝气时间相对较短,氨氧化时间较短,AOB 无法完全消耗 NH₄⁺-N 基质,也无法获得较高的产率,导致 AOB 相对于 NOB 的增长优势不明显,需要更长的运行时间优化硝化菌群结构、实现短程硝化.

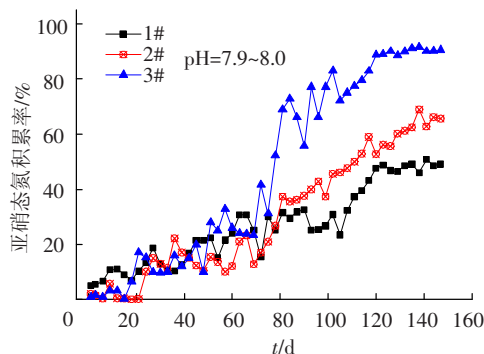


图 5 运行过程中系统亚硝态氮积累率的变化

随着运行周期增加,3 个系统的比氨氧化速率(即反应过程中去除的氨氮除以污泥浓度和对应的反应时间)相对于启动初期也发生了变化.由图 6 可看出,2#和 3#反应器的比氨氧化速率都有不同程度的提高,比氨氧化速率分别达 0.066 7 和 0.083 5 mg · (g · min)⁻¹,比启动初期(0.050)提高了 1.33 和 1.67 倍.而 1#反应器的比氨氧化速率却下降到 0.023 7 mg · (g · min)⁻¹,原因是硝化时间不足导致硝化细菌在全菌中的比例不断下降.曝气开始异养菌先利用有机物增殖,过早地停曝气导致 NH₄⁺-N 氧化不完全, NH₄⁺-N 去除率较低,硝化细菌本身生长较慢且没有足够的生长时间,长

期运行的结果是最终硝化细菌在整个活性污泥中的比例较系统启动时减小,导致氨氧化速率减小.

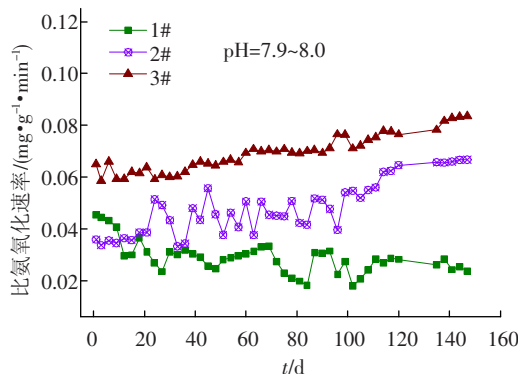


图 6 运行过程中比氨氧化速率变化

2.3 初始 pH 及游离氨对短程硝化的影响

相对于 NOB,AOB 的生长需要高 pH.根据 NH₄⁺ + OH⁻ ⇌ NH₃ + H₂O,高 pH 环境中,会形成更多游离氨,抑制了亚硝酸盐氧化菌的活性.游离氨的质量浓度可由下式求得:

$$\rho(\text{FA}) = \frac{17 \times \rho(\text{NH}_4^+\text{-N}) \times 10^{\text{pH}}}{14 \times \left(\frac{K_b}{K_w} + 10^{\text{pH}} \right)}$$

式中:ρ(FA) 为游离氨质量浓度,mg · L⁻¹; K_b 为氨的离解常数, K_b = 10^{-9.24} (20 ℃); K_w 为水的离解常数, K_w = 0.69 × 10⁻¹⁴ (20 ℃); K_b/K_w = e^{6.344/(273+t)}.由此可见,pH 不仅对硝化菌群的生长有影响,还对游离氨质量浓度有影响,从而影响硝化菌群的活性.

Anthonisen 的选择性抑制学说认为:游离氨对两类硝化细菌的抑制作用(毒性)不同,NOB 对游离氨的敏感程度要高于 AOB,FA 对硝化菌的活性有抑制作用.已有报道表明 FA 对 AOB 和 NOB 抑制范围分别是 10 ~ 150 和 0.1 ~ 1.0 mg · L⁻¹ [14].

Kim 等 [8] 发现,当 FA 质量浓度为 0.7 mg · L⁻¹ 时,NOB 氧化 NO₂⁻-N 的活性降低 50%.以 3#反应器为例,硝化反应初始 FA 质量浓度为 3.26 mg · L⁻¹,硝化过程中,由于 NH₄⁺-N 和 pH 不断下降,FA 质量浓度不断降低,在硝化终点 FA 质量浓度仅为 0.05 mg · L⁻¹ (见图 7),在曝气结束时亚硝态氮积累率为 88.4%,推测在好氧曝气的绝大部分时间内 FA 抑制了 NOB 的活性,导致 NO₂⁻-N 的积累.

在 3#反应器中,提前 65 min (t/8) 停曝气,处于亚硝态氮积累率最高的阶段,因此,通过控制硝化阶段的曝气时间,提高系统反应初始 pH,同时在曝气结束时排出定量的污泥可以富集 AOB,淘汰 NOB,实现短程硝化.

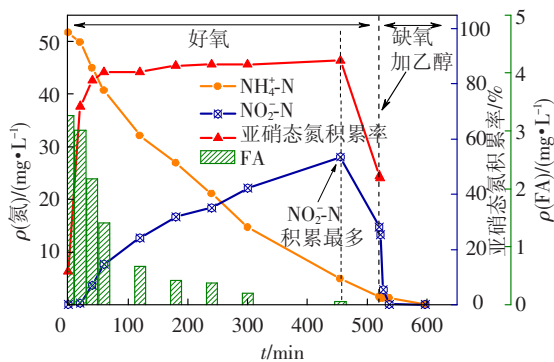


图7 典型周期 SBR 反应器 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 、FA、 $\text{NO}_2^-\text{-N}$ 、亚硝态氮积累率的变化

2.4 FISH 技术分析微生物种群特性结果

采用 FISH 分析方法对 SBR 系统内 AOB 和 NOB 的相对比例作统计分析. 系统启动时, AOB 和 NOB 分别占总生物量的 1.06%、1.45%. 当 3 个 SBR 生化系统稳定运行至第 145 天, 取活性污泥样品进行 FISH 分析. 1#反应器中, 二者分别约占生物量的 1.70%、0.42%; 2#反应器中, 二者的比例分别为 2.95%、0.51%; 3#反应器中, 二者的比例分别为 3.89%、0.27%. 充分表明系统处于稳定的生物短程硝化过程, 相对于 NOB, AOB 已经成为硝化菌群中的优势菌种. 从分子生物学角度验证了采用 FA 抑制与最优曝气时间优化控制的协同作用可以实现 SBR 系统持久、稳定的短程硝化.

3 结 论

1) 当 pH 为 7.9 ~ 8.0 时, 3 个 SBR 系统在“氨谷”之前停曝气, 抑制了 NOB 的大量增殖, 新增污泥中 AOB 的比例大于原有污泥中 AOB 占的比例. 通过每个周期曝气结束不断排除定量污泥, 逐渐淘汰 NOB, 实现了 AOB 的富集. 最终 3#反应器亚硝态氮积累率高达 90%, 2#反应器次之 (65%), 1#反应器最低 (50%).

2) 比氨氧化速率发生变化 (升高或降低) 的原因可能是硝化细菌在全菌中的比例发生改变. 其中 1#反应器硝化细菌的比例有所下降, 2#、3#反应器硝化细菌的比例有不同程度的升高.

3) 在亚硝态氮积累率最高的阶段停曝气, 即提前 65 min ($t/8$) 停曝气, 实现了亚硝态氮的积累. 通过最优曝气时间控制协同 FA 抑制作用, 快速实现和维持了稳定的短程硝化.

4) FISH 对 SBR 系统内 AOB 和 NOB 的相对比例分析表明, 系统处于稳定的短程生物硝化过程, AOB 已经成为硝化菌群中的优势种菌.

参考文献

[1] RUIZ G, JEISON D, CHAMY R. Nitrification with high

nitrite accumulation for the treatment of wastewater with high ammonia concentration [J]. Wat Res, 2003, 37: 1371 - 1377.

[2] 高大文, 彭永臻, 杨庆, 等. 应用实时控制实现和稳定短程硝化反硝化 [J]. 中国给水排水, 2003, 19 (12): 1 - 5.

[3] PENG Yongzhen, ZHU Guibing. Biological nitrogen removal with nitrification and denitrification via nitrite pathway [J]. Applied Microbiology and Biotechnology, 2006, 73: 15 - 26.

[4] 祝贵兵, 彭永臻, 郭建华. 短程硝化反硝化生物脱氮技术 [J]. 哈尔滨工业大学学报, 2008, 40 (10): 1552 - 1557.

[5] ANTILEO C, WERNER A, CIUDAD G, et al. Novel operational strategy for partial nitrification to nitrite in a sequencing batch rotating disk reactor [J]. Biochemical Engineering Journal, 2006, 32: 69 - 78.

[6] ZENG Wei, ZHANG Yue, LI Lei, et al. Control and optimization of nitrifying communities for nitrification from domestic wastewater at room temperatures [J]. Enzyme and Microbial Technology, 2009, 45: 226 - 232.

[7] BLACKBURNE R, YUAN Zhiguo, KELLER J. Demonstration of nitrogen removal via nitrite in a sequencing batch reactor treating domestic wastewater [J]. Water Reserch, 2008, 42: 2166 - 2176.

[8] KIM D J, LEE D I, KELLER J. Effect of temperature and free ammonia on nitrification and nitrite accumulation in landfill leachate and analysis of its nitrifying bacterial community by FISH [J]. Bioresource Technology, 2006, 97: 459 - 468.

[9] GUO J, PENG Yongzhen, WANG Shuying, et al. Long-term effect of dissolved oxygen on partial nitrification performance and microbial community structure [J]. Bioresource Technology, 2009, 100: 2796 - 2802.

[10] ASLAN S, MILLER L, DAHAB M. Ammonium oxidation via nitrite accumulation under limited oxygen concentration in sequencing batch reactors [J]. Bioresource Technology, 2009, 100: 659 - 664.

[11] BAE W, BAEK S, CHUNG J, et al. Optimal operational factors for nitrite accumulation in batch reactors [J]. Biodegradation, 2002, 12: 359 - 366.

[12] XUE Yuan, YANG Fenglin, LIU Sitong, et al. The influence of controlling factors on the start-up and operation for partial nitrification in membrane bioreactor [J]. Bioresource Technology, 2009, 100: 1055 - 1060.

[13] AMANN R I. Molecular microbial ecology manual [M]. Netherlands: Kluwer Academic Publishers, 1995: 1 - 15.

[14] ANTHONISEN A C, LOEHR R C, PRAKASAM T B S, et al. Inhibition of nitrification by ammonia and nitric acid [J]. Journal Water Pollution Control Federation, 1976, 48: 835 - 852.

(编辑 刘 彤)