

载锰活性氧化铝对地下水除氟机理研究

由 昆,范维利,傅金祥,高禹佳,高连松

(沈阳建筑大学市政与环境工程学院,辽宁 沈阳 110168)

摘 要 为了提高活性氧化铝除氟效果,对活性氧化铝进行载锰改性,探究载锰活性氧化铝吸附除氟机理。**方法** 采用静态吸附动力学和吸附热力学试验,分析载锰活性氧化铝在不同初始质量浓度和不同温度条件下,载锰活性氧化铝的吸附效果。**结果** XRD 和 SEM 显示锰的氧化物成功附着在活性氧化铝表面,载锰活性氧化铝表面出现锰氧化物和氢氧化物的特征峰,且具有不规则凸起刺状结构,改性后除氟效果提升了70%。载锰活性氧化铝吸附氟离子的准二级动力学拟合效果优于准一级动力学,二级回归系数分别为0.997 6和0.999 5。Freundlich 模型与载锰活性氧化铝除氟吸附过程拟合度更高,在25℃、35℃、45℃条件下回归系数分别为0.999 1、0.991 6及0.997 1。**结论** 载锰活性氧化铝吸附氟离子以多层化学吸附为主,吸附反应是自发进行的吸热反应。吸附速率受外部扩散和颗粒内扩散共同控制,以颗粒内扩散控制为主。

关键词 氟离子;活性氧化铝;吸附;地下水;热力学

中图分类号 TU991.21 文献标志码 A

Removal Mechanism of Fluoride in Groundwater by Manganese-Supported Activated Alumina

YOU Kun, FAN Weili, FU Jinxiang, GAO Yujia, GAO Liansong

(School of Municipal and Environmental Engineering, Shenyang Jianzhu University, Shenyang, China, 110168)

Abstract: In order to alleviate the problem of excessive fluorine in groundwater, in this paper activated alumina was modified with manganese, and the mechanism of adsorption and removal of fluoride was studied by it. The adsorption efficiency of manganese-loaded activated alumina at different initial concentrations and temperatures were analyzed in static adsorption kinetics and adsorption thermodynamics experiments. According to XRD pattern and SEM image there are characteristic peaks of manganese oxide and hydroxide and an irregular convex structure on the surface of manganese-supported activated alumina, which stand for manganese oxide successfully attached to the surface of activated alumina. The effect of removing fluoride after modification is

收稿日期:2019-09-10

基金项目:国家水体污染控制与治理重大专项(2018ZX07601001-3)

作者简介:由昆(1978—),女,副教授,博士研究生,主要从事饮用水处理方面研究。

increased by 70%. For fluoride ion adsorption the quasi-secondary kinetics fitting effect of manganese-loaded activated alumina is better than that of quasi-first-order kinetics. And its regression coefficients are 0.997 6 and 0.999 5. Compared with the Langmuir adsorption thermodynamic model, the Freundlich model has a higher fitting to the adsorption process of manganese-supported activated alumina. The fitting coefficients were 0.999 1, 0.991 6 and 0.997 1 at temperatures of 25 °C, 35 °C and 45 °C. So the adsorption of fluoride ions by manganese-loaded activated alumina is multi-layer chemical adsorption, and the adsorption reaction is a spontaneous endothermic reaction. The adsorption rate is controlled by external diffusion and intraparticle diffusion, and is dominated by intraparticle diffusion control.

Key words: fluoride ion; activated alumina; adsorption; groundwater; thermodynamics

氟是人体生命活动所需的微量元素,适量摄入具有一定益处^[1],若长期超标摄入则有可能导致氟中毒^[2]。在我国,高氟地下水分布范围非常广泛,特别是一些农村地区由于经济环境条件有限,无法采用常规改水措施防氟,且一些除氟设施并未正常投入使用^[3]。目前,在工程实践中,多用沉淀法^[4]、膜分离法、吸附法等对地下水进行除氟。沉淀法是向水中投加的化学药剂与氟离子反应生产沉淀而被去除。混凝法除氟成本低廉、操作简便,但投药量较大,且沉淀时间较长。纳滤、反渗透等膜分离方法^[5]是以压力、浓度差等为驱动力,将氟化物通过选择透过膜分离的过滤方法,除氟效果一般在50%~98%,效果稳定、管理简单,但价格昂贵,且使用过程中膜容易被污染和堵塞,产水率低,不适用于农村。吸附法^[6-9]主要通过吸附剂与含氟溶液接触,利用固、液相分配系数的差异,氟离子通过物理、化学作用附着于吸附剂上,从而达到除氟的效果。吸附剂吸附饱和和后可使用再生液对其进行再生,恢复其除氟能力。该方法由于操作简便、成本低廉等优势被广泛使用,但常规吸附剂平衡吸附容量较低,因此笔者研究旨在提高传统吸附剂的除氟性能。近年来,相关研究证明锰矿对氟离子具有很强的吸附性能^[10-11]。其中 γ 型 MnOOH 吸附性能比其他锰砂更好一些^[11]。笔者对活 性 氧 化 铝 (Activated

Alumina, AA) 进行改性;通过扫描电子显微镜(SEM)和 X 射线衍射(XRD)分析其结构和性能特征;通过吸附动力学试验和吸附热力学试验来探究其除氟机理。

1 试 验

1.1 主要材料

活性氧化铝(AA); $\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3$; MnSO_4 ; 30% 的 H_2O_2 ; $\text{Cl}_2\text{H}_8\text{N}_2$, $\text{C}_2\text{H}_4\text{O}_2$, NaF, $(\text{NH}_4)_2\text{Fe}(\text{SO}_4)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, HCl, $\text{NH}_3\text{H}_2\text{O}$, $\text{CH}_3\text{COONH}_4$, $\text{NH}_2\text{OH} \cdot \text{HCl}$, NaOH, HNO_3 均为分析纯。

1.2 吸附剂的制备和材料表征分析

载锰活性氧化铝($\text{MnOOH}@\text{AA}$)制备:将 $\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3$ 活化后的 100 g 活性氧化铝加入 MnSO_4 溶液中,并缓慢加入 10.2 mL 的过氧化氢,在 95 °C 条件下,加入 0.2 mol/L 的氨水 150 mL,加热搅拌 6 h 后,在颗粒表面会生成碱式氧化锰(MnOOH)的棕褐色沉淀。

材料表征:采用 X 射线衍射仪(X-Ray Diffractometer, XRD)和扫描电子显微镜(Scanning electron microscope, SEM)测定分析改性前和改性后活性氧化铝的形貌和结构等。

1.3 水质检测项目与方法

根据《生活饮用水标准检验方法》(GB/T 5750—2006)进行氟化物、总铁、pH 水质指标分析。检测指标及分析方法如表 1 所示。

表1 检测指标及分析方法

Table 1 Experimental items and methods	
检测项目	分析方法
氟化物(F ⁻)	氟试剂分光光度法
总铁	分光光度法
pH	玻璃电极法
温度	直读法

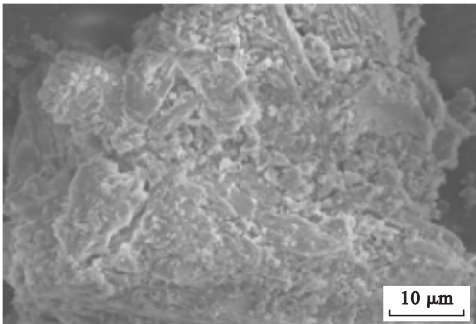
1.4 吸附试验

1.4.1 吸附动力学分析

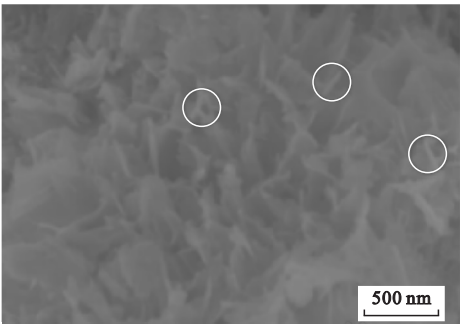
在铁离子质量浓度为 2 mg/L 时,分别模拟 5 mg/L 和 2 mg/L 氟化物水样。为保证在一定温度下,向锥形瓶中加入 MnOOH@AA,在 pH 为 4,120 r/min 条件下,定时测定上清液中氟化物质量浓度,建立不同氟化物浓度的 MnOOH@AA 吸附动力学模型。试验总历时 74 h,共取样 13 次,误差较小,不影响试验结果准确性。

1.4.2 吸附等温线分析

在铁离子质量浓度为 2 mg/L,氟化物质量浓度为 2 mg/L、5 mg/L、8 mg/L、11 mg/L、15 mg/L 的水样,检测 120 r/min 振荡吸附 12 h后,25 ℃、35 ℃、45 ℃条件下上清液中氟化物浓度,分析 MnOOH@AA 除氟机理。



(a)AA



(b)MnOOH@AA

图2 SEM 图像分析

Fig.2 Scanning electron microscope image of AA and MnOOH@AA

从图2可以看出,改性前后活性氧化铝表面形貌变化明显,MnOOH@AA 表面出现不规则的、凸起的刺状结构,表面变得更加的粗糙。这说明 MnOOH@AA 表面具有更多

2 结果与分析

2.1 载锰活性氧化铝的表征

2.1.1 XRD 分析

图1为载锰活性氧化铝的 XRD 对比图。可以看出,改性后颗粒结构变化较大。峰值的强度变化说明改性后产生了新物相,18.7°、26.4°、36.6°和 55.2°附近的衍射峰强度显著增强,通过载锰活性氧化铝 XRD 谱线与粉末衍射数据库的对比,可知锰的氢氧化物和氧化物的特征峰即为增强的衍射峰,说明锰的氧化物成功附着在活性氧化铝表面,改性后有更多的吸附位点和更好的吸附效果。

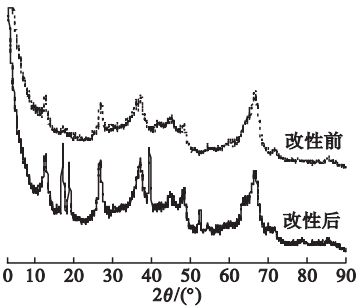


图1 改性前后活性氧化铝的 XRD 图

Fig.1 XRD image of AA and MnOOH@AA

2.1.2 SEM 分析

图2为改性前后活性氧化铝的 SEM 图。

2.2 吸附动力学模型分析

2.2.1 准一级动力学和准二级动力学模型拟合分析

尽管原水氟化物质量浓度不同,但吸附速率曲线变化趋势基本相似。吸附过程整体可分为快速吸附、慢速吸附和平衡阶段^[13]。图3为动力学拟合结果。氟化物初始质量浓度为2 mg/L的准一级动力学和准二级动力学 R^2 值为0.917 6和0.997 6;而初始质量

浓度为5 mg/L的准一级动力学和准二级动力学 R^2 值为0.878 6和0.999 5。通过回归系数对比,发现载锰活性氧化铝对氟离子的吸附过程更符合准二级动力学模型,因此该过程以化学吸附为主。在溶液中化学反应过程为MnOOH发生表面羟基化。酸性条件下,由于 OH^- 与 F^- 的水合半径相近, F^- 与 $\text{R}-(\text{Al}_2\text{O}_3)_n\cdot\text{Mn}(\text{OH})_2$ 发生置换反应,从而去除溶液中的氟离子。

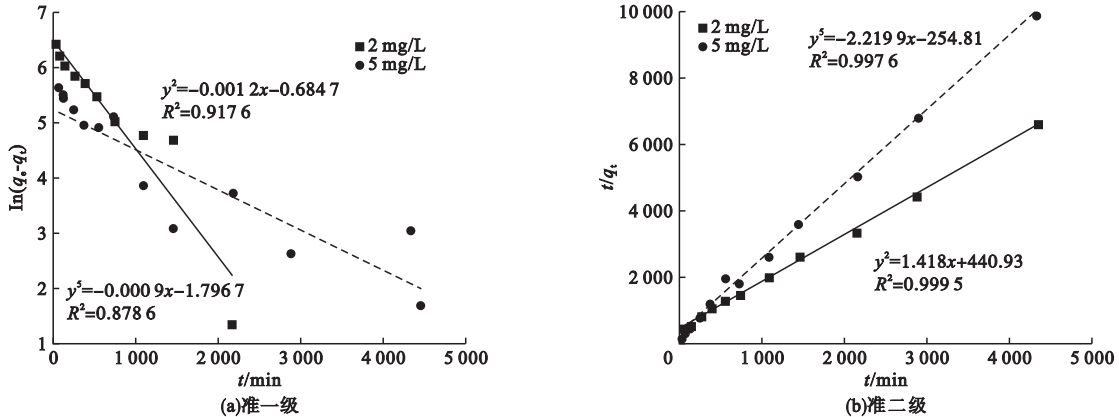


图3 动力学的试验数据拟合分析

Fig.3 Fitting curve for kinetics

由准二级动力学拟合系数可知,氟化物初始质量浓度为2 mg/L时,吸附速率常数为0.019 3,吸附量为0.705 mg/g;初始质量浓度为5 mg/L的吸附速率常数为0.004 6,吸附量为0.45 mg/g。由此可知,当氟化物浓度越低时,吸附位点的竞争越小,在较短的时间内能达到吸附平衡^[14]。因此,初始氟化物浓度越小,吸附速率常数越大。

2.2.2 颗粒内扩散模型拟合分析

载锰活性氧化铝对氟离子的吸附过程主要分为3个步骤:①氟离子从溶液中迁移到载锰活性氧化铝颗粒表面的过程,即外部扩散;②氟离子由载锰活性氧化铝颗粒得外表面向微孔中的内表面扩散,即内部扩散;③氟离子被吸附在载锰活性氧化铝颗粒的活性位点上,即化学吸附。通常情况下,化学吸附的速率很快,反应速率主要由外部扩散和内部扩散决定。

通过 q_t 对 $t^{0.5}$ 作图,可得载锰活性氧化铝吸附氟离子的颗粒内扩散模型拟合曲线(见图4)。

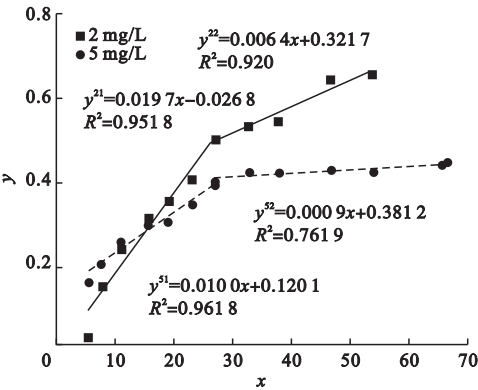


图4 颗粒内扩散的拟合

Fig.4 Fitting curve of intraparticle diffusion

氟离子初始质量浓度为2 mg/L和5 mg/L的拟合线都是具有明显拐点且不过原点的折线,表明吸附速率受颗粒内扩散和外部扩散的同时控制^[15]。0~26 min^{1/2}是第

一部分,代表外部扩散; $26 \sim 67 \text{ min}^{\frac{1}{2}}$ 是第二部分,代表了颗粒内扩散的过程。表 2 为图 4 得到的颗粒内扩散模型相关参数。

表 2 颗粒内扩散模型拟合参数

Table 2 Fitting parameters of intraparticle diffusion model		
ρ (初始质量浓度)/($\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$)	吸附速率 $k/$ ($\text{mg}\cdot(\text{g}\cdot\text{min}^{\frac{1}{2}})^{-1}$)	边界层系数 C
2	0.019 8	0.028 2
	0.006 4	0.321 7
5	0.009 8	0.122 5
	0.000 9	0.381 2

由表 2 中颗粒内扩散模型拟合数据可得,边界层系数 C_{21} (0.028 2) < C_{22} (0.321 7) 且 C_{51} (0.122 5) < C_{52} (0.381 2)。尽管初始氟化物质量不同,但第二阶段的边界层厚度均比第一阶段大,说明边界效应对其影响较大,导致内扩散阻力更大^[16]。同时,吸附速率也有

差异, k_{21} (0.019 8) > k_{22} (0.006 4) 且 k_{51} (0.009 8) > k_{52} (0.000 9)。由于外扩散吸附速率大于颗粒内扩散吸附速率,说明内扩散速率决定过程的速率。

2.3 吸附热力学模型分析

不同氟离子质量浓度的原水在 25 ℃、35 ℃、45 ℃下吸附等温线变化趋势基本一致。吸附量随着初始氟化物的增加而增大。当水中氟化物浓度较大时,MnOOH@ AA 内外溶液氟离子质量浓度梯度增加,扩散过程速度加快,促进吸附的发生^[17]。在吸附达到平衡时,温度越高平衡吸附量越大。

2.3.1 载锰活性氧化铝对氟离子吸附等温模型拟合

采用 Langmuir 模型和 Freundlich 模型对载锰活性氧化铝对氟离子的吸附过程进行拟合(见图 5)

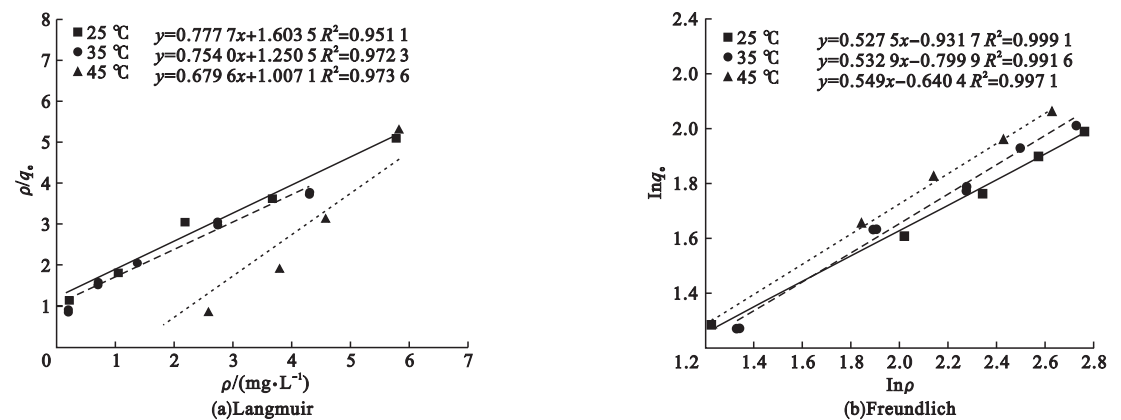


图 5 吸附等温方程拟合曲线

Fig. 5 Langmuir and Freundlich adsorption isotherm equation fitting curve

从图 5 可知,Langmuir 模型的相关性 R^2 均在 0.9 以上,可以描述载锰活性氧化铝对氟离子的吸附过程。但相较于 Langmuir 模型,Freundlich 模型在 25 ℃、35 ℃、45 ℃时, R^2 值分别为 0.999 1、0.991 6 及 0.997 1,说明和 Langmuir 模型相比较,Freundlich 模型显著性更好,能更好地说明 MnOOH@ AA 对氟化物的吸附过程,MnOOH@ AA 对氟化物的吸附是多层吸附为主。

Freundlich 方程中 25 ℃、35 ℃、45 ℃时 $1/n$ 值分别为 0.527 5、0.532 9、0.549 7,均正在 0 ~ 1,说明 MnOOH@ AA 具有优先吸附氟化物的能力,当进水氟化物浓度较低时,吸附效果也较好。由 25 ℃、35 ℃、45 ℃时吸附平衡常数 K_F (0.393 9、0.449 4、0.527 1) 可知,温度越高, K_F 越大,说明温度升高有利于 MnOOH@ AA 对氟化物的吸附。

Langmuir 模型温度分别为 25 ℃、35 ℃、

45 ℃时,相关系数 R^2 为 0.951 1~0.973 6,与 Freundlich 模型相比,拟合度偏低。Langmuir 模型中的吸附平衡常数 K_L 可以表示载锰活性氧化铝对氟离子的亲和力,随着温度的升高 K_L 逐渐升高,由 0.485 升高到 0.675,表明吸附过程主要以化学吸附为主^[17]。

2.3.2 载锰活性氧化铝对氟离子吸附热力学参数计算

根据范特霍夫方程可计算 25 ℃、35 ℃、

45 ℃热力学常数,计算 MnOOH@ AA、吸附自由能 ΔG 、吸附焓 ΔH 、吸附熵 ΔS ,通过 ΔG 、 ΔH 、 ΔS 计算,识别吸附过程为放热反应还是吸热反应,判断反应是否为自发进行^[18],所得热力学参数详如表 3 所示。从表 3 中可知,温度升高,吸附自由能(ΔG)逐渐减小,表明温度升高有利于吸附反应进行。不同温度条件下吸附自由能均小于零,说明 MnOOH@ AA 对氟化物的吸附过程是自发进行的^[19]。

表 3 载锰活性氧化铝对氟离子吸附热力学参数

Table 3 MnOOH@ AA's thermodynamic parameters

$\rho/(\text{mg}\cdot\text{L}^{-1})$	$\Delta H/(\text{kJ}\cdot\text{mol}^{-1})$	$\Delta G/(\text{kJ}\cdot\text{mol}^{-1})$			$\Delta S/(\text{J}\cdot(\text{mol}\cdot\text{K})^{-1})$		
		25℃	35℃	45℃	25℃	35℃	45℃
2	195.68	-17.01	-17.58	-18.15	57.73	57.10	60.09
5	236.05	-16.25	-16.80	-17.34	55.33	54.56	56.76
8	268.35	-16.54	-17.09	-17.65	56.40	55.52	57.99
11	172.38	-8.69	-8.99	-9.28	29.87	29.19	29.28
15	167.75	-7.20	-7.44	-7.68	24.71	24.16	24.21

一般物理吸附的 $\Delta H \leq 20 \text{ kJ/mol}$,化学吸附的 $\Delta H > 100 \text{ kJ/mol}$ 。同时温度升高有利于离子交换发生。从表 3 可知,载锰活性氧化铝对氟离子的吸附焓(ΔH)均大于零,说明 MnOOH@ AA 对氟化物吸附过程是吸热反应,化学吸附是主要的反应^[19]。

吸附熵 $\Delta S > 0$,表明 MnOOH@ AA 吸附氟化物的过程是熵增的过程,有序性在反应的过程中减小,固液面混乱度增大^[20]。

在吸附反应开始时,氟化物与 MnOOH@ AA 发生化学反应,吸收的热量最大,随着吸附到 MnOOH@ AA 颗粒上的氟离子增多,能发生化学反应的吸附位点数量越来越少,后期的氟离子只能被吸附到能量较低的位点上,这时吸附的热量减少^[19]。

3 结 论

(1) MnOOH@ AA 表面附着锰氧化物后,吸附位点增加,增强了 AA 对氟化物的吸附能力。使得 MnOOH@ AA 除氟效果比改

性前提高了 70%。

(2) 准二级动力学模型的回归系数为 0.997 6 和 0.999 5,更适于描述载锰活性氧化铝对氟离子的吸附动力学。载锰活性氧化铝除氟吸附过程以化学吸附为主。颗粒内扩散主要控制着吸附速率。

(3) 吸附过程均可用 Langmuir 模型和 Freundlich 模型描述。但 Freundlich 模型显著性更强,多层化学吸附是吸附的主要过程为。吸附过程是自发进行的吸热反应。

参考文献

[1] KUMARI U, BEHERA S K, SIDDIQI H, et al. Facile method to synthesize efficient adsorbent from alumina by nitric acid activation: batch scale defluoridation, kinetics, isotherm studies and implementation on industrial wastewater treatment[J]. Journal of hazardous materials, 2020, 381: 1-15.

[2] 王俊东, 孙子龙. 氟的毒理学研究[J]. 山西农业大学学报(自然科学版), 2018, 38(6): 1-7.

(WANG Jundong, SUN Zilong. Research on the fluorine toxicological [J]. Journal of Shanxi agricultural university (natural science edition), 2018, 38(6): 1-7.)

- [3] 李斌,杨继富,赵翠,等.农村高氟水处理现状典型调查与分析[J].中国农村水利水电,2018(9):106-110.
(LI Bin, YANGJifu, ZHAO Cui, et al. Typical investigation and analysis of the status of high fluoride water treatment in rural areas [J]. China rural water and hydropower, 2018(9): 106-110.)
- [4] LOKSHIN E P, BELIKOV M L. On purification of wastewater containing complex aluminum and silicon fluorides to remove fluorine [J]. Russian journal of applied chemistry, 2008, 81(2):165-169.
- [5] SAMRAT M V V N, KESAVA R K, SENGUPTA A K, et al. Defluoridation of reject water from a reverse osmosis unit and synthetic water using adsorption[J]. Journal of water process engineering, 2018, 23:327-337.
- [6] CRAIG L, STILLINGS L L, DECKER D L. Assessing changes in the physic-chemical properties and fluoride adsorption capacity of activated alumina under varied conditions[J]. Applied geochemistry, 2017, 76:112-123.
- [7] 马兴冠,贺一达,高强,等.活性氧化铝吸附法处理含氟污水工况研究及应用[J].沈阳建筑大学学报(自然科学版),2015,31(6):1120-1128.
(MA Xingguan, HE Yida, GAO Qiang, et al. Application analysis on the adsorption method with activated alumina for processing the fluorine-containing sewage [J]. Journal of Shenyang jianzhu university (natural science), 2015, 31(6): 1120-1128.)
- [8] YOSHIYUKI Y, NAMBAS, KINOSHITAJ, et al. VSC sorption onto Mg-Fe-F layered double hydroxide and its fluoride release in aqueous solution [J]. Key engineering materials, 2016, 720:37-40.
- [9] 刘锐平.饮用水氟污染控制原理与技术[J].应用生态学报,2019,30(1):30-36.
(LIU Ruiping. Principle and techniques for fluoride pollution control in drinking water [J]. Chinese journal of applied ecology, 2019, 30(1): 30-36.)
- [10] 张建锋,张苑茹,王晓昌.氧化锰涂层活性氧化铝除氟性能研究[J].水处理技术,2008(2):38-40,53.
(ZHANG Jianfeng, ZHANG Yuanru, WANG Xiaochang. Adsorption of fluoride from water by activated alumina coated with manganese oxide[J]. Technology of water treatment, 2008(2): 38-40, 53.)
- [11] 孙丽萍.地下水同步除锰降氟技术研究[D].西安:西安建筑科技大学,2011.
(SUN Liping. The synchronous removal of manganese and fluorine performance in groundwater [D]. Xi'an: Xi'an University of Architecture and Technology, 2011.)
- [12] KUMARI U, BEHERA S K, MEIKAP B C. Defluoridation of synthetic and industrial wastewater by using acidic activated alumina adsorbent: characterization and optimization by response surface methodology [J]. Environmental letters, 2019, 54(1):1-10.
- [13] 郑晓青,韦安磊,张一璇,等.铁锰氧化物/生物炭复合材料对水中硝酸根的吸附特性[J].环境科学,2018,39(3):1220-1232.
(ZHENG Xiaoqing, WEI Anlei, ZHANG Yixuan, et al. Characteristic of nitrate adsorption in aqueous solution by iron and manganese oxide/biochar composites [J]. Environmental science, 2018, 39(3): 1220-1232.)
- [14] FLORENT L, ALIZEE B. Kinetics and mechanism of the reduction-dissolution of cerium oxide catalyzed by fluoride ions in hydrochloric acid solution [J]. Hydrometallurgy, 2019, 183:193-198.
- [15] 李永富.基于新型交联剂的改性壳聚糖制备及除氟性能研究[D].青岛:中国海洋大学,2011.
(LI Yongfu. Study on the preparation and defluoridation properties of modified chitosan using new crosslinking agent [D]. Qingdao: Ocean University of China, 2011.)
- [16] 马培根,张海涛,丁文明.颗粒改性活性氧化铝吸附除氟动力学和热力学的研究[J].北京化工大学学报(自然科学版),2019,46(3):1-6.
(MA Peigen, ZHANG Haitao, DING Wenming. Kinetics and thermodynamics of modified granular activated alumina for fluoride removal [J]. Journal of Beijing university of chemical technology (natural science edition), 2019, 46(3): 1-6.)
- [17] DHAWANE S H, KHAN A A, SINGH K, et al. Insight into optimization, isotherm, kinetics, and thermodynamics of fluoride adsorption onto activated alumina [J]. Environmental progress & sustainable energy, 2018, 37(2):766-776.
- [18] 邓燕,张艺潇,朱红庆,等.磁性硅气凝胶对水中结晶紫的吸附作用[J].沈阳药科大学学报,2018,35(7):587-592.
(DENG Yan, ZHANG Yixiao, ZHU Hongqing, et al. Studies on adsorption of crystal violet by magnetic silica aerogel [J]. Journal of Shenyang pharmaceutical university, 2018, 35(7): 587-592.)
- [19] 王家宏,毛敏,尹小龙.锆改性凹凸棒土对水中氟的吸附热力学与动力学研究[J].环境化学,2016,35(5):1067-1075.
(WANG Jiahong, MAO Min, YIN Xiaolong. Thermodynamic and kinetic of fluoride adsorption onto zirconium modified attapulgite [J]. Environmental chemistry, 2016, 35(5): 1067-1075.)
- [20] 徐卫华,冯莉,张曼,等.羟基磷灰石球状滤料的合成及其吸附性能研究[J].环境科学学报,2013,33(6):1570-1575.
(XU Weihua, FENG Li, ZHANG Man, et al. Preparation and adsorption performance of hydroxyapatite globular filter material [J]. Acta scientiae circumstantiae, 2013, 33(6): 1570-1575.)
- (责任编辑:徐玉梅 英文审校:唐玉兰)