



# 快速萃取在海洋有机物分析中的应用

## Application of rapid extraction techniques in analyzing organic compounds in marine matrices

周俊丽<sup>1</sup>, 吴莹<sup>1</sup>, 张经<sup>1,2</sup>

(1.华东师范大学 河口海岸国家重点实验室,上海 200062; 2.中国海洋大学 化学化工学院,山东 青岛 226003)

中图分类号: X132 文献标识码: B 文章编号: 1000-3096(2004)04-0070-06

海洋环境中有机化合物的研究是海洋研究中的一项重要内容,而样品的前处理又是其中最费时、最关键的环节,如何快速准确地获得目标待测有机物,一直是国内外学者所关注的问题。传统的萃取方法,如索氏提取由于其耗时长、溶剂用量多等缺点已被许多实验室所淘汰,超声波提取也存在类似的缺点,因此先后提出了超临界流体萃取(SFE)、微波萃取(MAE)、加速溶剂萃取(ASE或PLE)等方法。这些方法的共同点在于,都采用了高压技术,从而大大提高了萃取速率。

### 1 超临界流体萃取

典型的超临界流体是二氧化碳,通常在温度大于31.1℃,压力为 $7.58 \times 10^6$  Pa的条件下,从基体中提取有机物。周长利等<sup>[1]</sup>用SFE和索氏抽提分别对土壤样品中的烃类组分进行分析,结果表明,SFE萃取回收率是索氏抽提的2.3~11.1倍,而索氏抽提背景干扰严重,萃取选择性明显低于SFE技术。

由于受极性的限制,超临界CO<sub>2</sub>对极性化合物的溶解性较差,要扩大其溶解范围,则要对其进行改性处理,即采用CO<sub>2</sub>和其它有机溶剂的混合溶剂。改性剂的加入浓度一般很低,体积分数 $\Phi \leq 5\%$ 。常用的改性剂为甲醇、丙酮等。

超临界流体萃取中基体效应显得格外重要。Seidle<sup>[2]</sup>从土壤中萃取六氯苯时发现,添加的样品能获得98%的回收率,而真实土样的回收率则只有50%,且重现性明显降低。而那些分子质量小、相对挥发性大的有机物基体效应更强,更难以萃取。

因此,超临界流体萃取多用于分子质量较大、挥发性较弱且极性不太高的有机化合物。

温度和压力是超临界流体萃取中的两个重要参数。Hawthorne<sup>[3]</sup>和Langenfeld等<sup>[4]</sup>均提出,高温可减弱待测组分与样品基体紧密结合的动力学限制,克服脱附过程的能量障碍,提高萃取效率。Langenfeld等<sup>[4]</sup>用超临界CO<sub>2</sub>萃取了土壤、降尘、河底泥中的PCBs(多氯联苯)和PAHs(多环芳烃),实验证明200℃时的萃取效率高于50℃。Yu用CO<sub>2</sub>-二乙胺萃取海洋沉积物中的PAHs,200℃萃取效果优于低温及索氏提取18h的结果,并证实不受样品基体效应的影响<sup>[5]</sup>。

对于不同的有机物萃取压力是不同的。当采用超临界CO<sub>2</sub>进行萃取时,对于烃类和极性低的脂溶性有机化合物,在7~10 MPa低压时即可进行;而对于含羟基和羧基等极性功能基的有机化合物,则需提高萃取压力;对于糖类和氨基酸类等极性更强的物质,40 MPa压力下仍难以实现。

然而,由于SFE装置价格昂贵,对操作者要求较高。在实际应用中,只能提取固体样品(如沉积

收稿日期: 2002-11-06; 修回日期: 2003-09-07

基金项目: 国家重点基础研究专项经费资助项目(G1999043705); 上海市重点学科资助和高等学校骨干教师资助计划; 国家自然科学基金资助项目(40006008); 国家重点实验室开放基金资助项目(9903)

作者简介: 周俊丽(1977-),女,江苏宜兴人,硕士研究生,研究方向: 海洋生物地球化学, E-mail: junlizh@hotmail.com



物、土壤、植物等) 中的有机物, 不适用于液态样品, 从而限制了其在一般实验室中的应用普及。

## 2 微波萃取

1986年, 匈牙利的 Ganzler 等首次报道利用微波萃取为有机分析特别是环境有机分析样品预处理开辟了一条崭新的路子。

与传统的提取方法不同的是, 微波加热的能量直接作用于被加热物质, 空气及容器对微波基本上不吸收和反射, 从而保证了能量的快速传导和充分利用。且微波萃取能对体系中的不同组分进行选择性的加热, 从而使目标组分直接从基体分离, 具有很好的选择

性。国外目前就微波萃取已开展了大量工作(表 1)。

溶剂的极性对于萃取效率有很大的影响。由于非极性溶剂不吸收微波能, 因此微波提取一般选用极性有机溶剂, 且所选溶剂对目标萃取物必须具有较强的溶解能力, 对萃取成分的后续操作干扰较少。已报道用于微波萃取的有机溶剂有: 甲醇、乙醇、异丙醇、丙酮、乙酸、二氯甲烷、甲苯、乙腈等, 或在非极性溶剂中加入一定比例的极性溶剂来使用, 常用的混合溶剂有: 丙酮/环己烷、二氯甲烷/甲醇等。但提取植物中的有机化合物时, 一般选用非极性溶剂, 这主要是因为非极性溶剂介电常数小, 使微波射线易于到达植物细胞内, 细胞内的水分在微

表 1 不同参数对微波萃取环境样品中有机物的影响

样品	待测 有机物	提取剂	提取剂体 积 (mL)	提取时间	萃取温度 (°C)	回收率 (%)	参考 文献
沉积物	PAHs, PCBs, 杀虫剂等	甲苯-水 (10:1)	11	6min	-	97~102	[6]
沉积物	OCPs	正辛烷-丙酮 (1:1)	2	30s, 冷却 2~5min, 重复 5 次	-	74~95.3	[7]
沉积物	PAHs	环己烷-丙酮 (1:1)	20	10min	100	90~109	[8]
沉积物	PAHs	环己烷-水 (3:1)	20	10min	100	77~98	[8]
沉积物	PAHs	正己烷-丙酮 (1:1)	20	10min	100	85~102	[8]
沉积物	PAHs	正己烷-水 (3:1)	20	10min	100	76~121	[8]
沉积物	PAHs	正己烷-丙酮 (1:1)	30	5min	115	73.5~136.8	[9]
标准参考 沉积物	PAHs, OCPs 等	正己烷-丙酮 (1:1)	30	5min	115	75 (平均)	[10]
土壤	PCBs	正己烷-丙酮 (不同配比)	15-30	16.5~33.5 min	-	>95	[11]
土壤	PCBs	正己烷-丙酮 (1:1)、 甲醇、 1M KOH 甲醇溶液	30	6min	-	>83	[12]
土壤	PAHs	环己烷-丙酮 (1:1)、 正己烷-丙酮 (1:1)、 二氯甲烷	20	10min	-	87~102	[13]
植物	PAHs	正己烷-丙酮 (3:2)	50	20min	140	95.3~102.9	[14]
海洋 动物组织	PCBs	正己烷	10	30s, 冷却 5min	-	95.5~101.1	[15]

注: OCPs 为有机氯杀虫剂; 括号中均为体积比, 以下同。



波的交变电磁场作用下引起强烈的极性振荡,导致细胞膜结构破裂,从而加速了溶剂分子对基体的渗透和目标组分的溶剂化。由此可见,基体中的水分对微波萃取具有重要的作用,定量水分实质上作为极性溶剂有助于提高萃取效率。熊国华等<sup>[16]</sup>试验了以丙酮-正己烷(1:1,体积分数)和二氯甲烷为萃取剂时土壤中水分的大小对微波萃取 PAHs 回收率的影响,结果表明,试样中小于 20% 的水分使丙酮-正己烷的萃取能力提高,而水分高于 5% 则使二氯甲烷的萃取能力略有降低。但 Lopez-Avila 等对干燥土壤和未干燥土壤进行对比实验,发现干燥土壤中的碱性化合物、苯甲酸和酚类化合物的回收率高于干燥土壤。因此,在进行对样品的前处理时,还应考虑目标待测物的性质,从而选择不同的条件。

在微波密闭容器中,由于内部压力可达到 1 MPa 以上,因此溶剂沸点比在常压下提高许多,从而使待

测组分的溶解度提高。由于萃取时间短,避免了长时间加热引起的热分解,有利于极性和热不稳定化合物的萃取。

微波萃取的主要优点是快速(通常 10~30 min)、溶剂用量少(约 25~50 mL)、重现性提高,副反应少,溶剂利用率高。以提取脂肪酸为例,微波萃取的回收率可以达到 80% 以上,而时间仅需 10 min(索氏提取 24 h),提取剂用量 30 mL(索氏提取 500 mL)。与超临界流体萃取不同的是,微波萃取可以同时分析 14 个样品,大大提高了工作效率,因此受到不同领域研究人员的重视。但迄今为止,还不能像超临界流体萃取那样实现与检测仪器的在线联机。

### 3 加速溶剂萃取

加速溶剂萃取是由 Bruce 等自 1995 年以来介绍的一种萃取技术,适用于固体和半固体样品的前处

表 2 不同参数对加速流体萃取环境样品中有机物的影响

样品	目标 提取物	提取剂	提取时间 (min)	萃取压力 ( $\times 10^7$ Pa)	萃取温度 ( $^{\circ}$ C)	检测到的 化合物数目(个)	参考 文献
沉积物	PAHs	二氯甲烷	5	1.40	100	18	[17]
沉积物	PCBs	二氯甲烷	5	1.40	100	18	[17]
沉积物	OCPs	正己烷-丙酮(1:1)、 乙腈、二氯甲烷	5	1.38	100	12	[17]
土壤	PCBs	正己烷-丙酮(1:3)	13	1.45	100	4	[18]
土壤	OCPs	丙酮-二氯甲烷(1:1)	5 $\times$ 2	-	100	7	[19]
土壤	PCDDs	甲苯-甲醇(3:1)	5	1.50	200	17	[20]
飘尘	PCDDs	甲苯-甲醇(3:1)	5	1.50	200	17	[20]
悬浮颗粒物	PAHs	正己烷-丙酮(1:1)	5	1.40	100	17	[21]
悬浮颗粒物	PCBs	正己烷-丙酮(1:1)	5	1.40	100	102	[21]
贻贝	PAHs	二氯甲烷、乙腈、 正己烷-丙酮(1:1)	5	1.40	100	26	[17]
贻贝	PCBs	二氯甲烷、乙腈、 正己烷-丙酮(1:1)	5	1.40	100	18	[17]
贻贝	OCPs	正己烷-丙酮(1:1)、 乙腈、二氯甲烷	5	1.38	100	10	[17]
牡蛎	PCBs	正己烷-丙酮(1:1)	5	1.40	100	6	[22]
鱼	OCPs	正己烷-丙酮(1:1)、 乙腈、二氯甲烷	5	1.38	100	11	[17]

注: PCDDs 为多氯二苯并二恶英。





理。将样品装入萃取池，收集瓶与萃取池相连接，萃取池在加热炉内被加温和加压（50~200 °C， $1.01 \times 10^7$  Pa 以上），静态萃取 5~10 min，萃取液自动经过滤膜进入收集瓶，用氮气吹洗萃取池和管道。萃取的整个过程采用自动化操作，提取时间大大缩短。只要采用较高的温度，选取合适的溶剂，这种方法适用于环境中多种样品的有机物分析<sup>[23]</sup>。加速溶剂萃取无疑是目前较为先进的一种提取技术，与其它方法相比，提取剂用量少、提取效率高，10 g 样品仅需 15 mL 溶剂，完成一次萃取全过程的时间仅需 15 min。

加速溶剂萃取的主要优点在于萃取快速，不破坏成分的形态，萃取剂用量少，且受基体影响小，对不同基体可用相同的萃取条件。由于加速溶剂萃取是在高压下加热，且高温的时间一般小于 10 min，因此，热降解不甚明显。

如表 2 所示，加速流体萃取已广泛应用于从环境样品中提取 PAHs,PCBs,PCDDs,OCPs 等有机污染物，许多文献中所列举的萃取条件都参考了美国 EPA 标准方法，方法编号 3545。从表 2 中可以看出，萃取剂都选用极性溶剂，因为若单独使用非极

性溶剂最萃取剂则萃取效率降低。Saim 等<sup>[24]</sup>比较了用不同溶剂萃取土壤中的 PHAs，结果发现丙酮、二氯甲烷、甲醇、乙腈和正己烷-丙酮（1:1）得到了相似的数据，而用正己烷作萃取剂得到了较低的回收率（84%）。甲苯作为提取剂引起了一些科学家的兴趣。有研究表明<sup>[19]</sup>，甲苯比二氯甲烷-丙酮（1:1）和正己烷-丙酮（1:1）获得更高的回收率。Kenny 和 Olesik<sup>[25]</sup>用甲苯作为提取剂比用甲醇和二氯甲烷获得了更高的 PAHs 回收率。但 Kenny 和 Olesik<sup>[25]</sup>以及 Popp 等<sup>[19]</sup>同时提出用甲苯作提取剂比用其它有机溶剂所获得的结果准确度要低。PCDDs 的提取与其它有机污染物相比，最大的不同在于使用了更高的萃取温度（200 °C），并且在萃取前通常进行酸化以使待分析物与基体分离。

#### 4 结语

先进的萃取技术基本采用自动化的处理手段，在现代实验室中已受到越来越广泛的重视。表 3 列出了不同提取方法的特点，从中可以看出新的提取技术在提取效率上与传统的提取方法相比有着不可比

表 3 不同提取方法的特点比较

提取方法	索氏抽提	超声波提取	SFE	MAE	ASE
样品量(g)	10	30	1~10	2~5	10
提取时间	6, 12 或 24h	3×3min	30min~1h	20min(加上冷却与降压时间 30min)	12min
提取剂类型	二氯甲烷、丙酮-正己烷(1:1)、丙酮-二氯甲烷(1:1)、甲苯-甲醇(10:1)等	二氯甲烷、正己烷、丙酮-二氯甲烷(1:1)等	二氧化碳(加有机改进剂)	要求提取剂能吸收微波能	丙酮、二氯甲烷、甲醇、乙腈、丙酮-正己烷(1:1)、丙酮-二氯甲烷(1:1)等
提取剂用量(mL)	150~300	100×3	10~20	25~45	15
提取方法	加热	超声波	加温加压	加温加压	加温加压
操作规程	逐个提取样品	逐个提取样品	逐个提取样品	可同时提取 14 个样品	逐个提取样品
方法发展时间	短	短	长	长	长
对操作者技术要求	低	中等	高	中等	中等
仪器成本	低	低	高	中等	高
自动化水平	低	低	低-高	低	高





理。将样品装入萃取池，收集瓶与萃取池相连接，萃取池在加热炉内被加温和加压（50~200 °C， $1.01 \times 10^7$  Pa 以上），静态萃取 5~10 min，萃取液自动经过滤膜进入收集瓶，用氮气吹洗萃取池和管道。萃取的整个过程采用自动化操作，提取时间大大缩短。只要采用较高的温度，选取合适的溶剂，这种方法适用于环境中多种样品的有机物分析<sup>[23]</sup>。加速溶剂萃取无疑是目前较为先进的一种提取技术，与其它方法相比，提取剂用量少、提取效率高，10 g 样品仅需 15 mL 溶剂，完成一次萃取全过程的时间仅需 15 min。

加速溶剂萃取的主要优点在于萃取快速，不破坏成分的形态，萃取剂用量少，且受基体影响小，对不同基体可用相同的萃取条件。由于加速溶剂萃取是在高压下加热，且高温的时间一般小于 10 min，因此，热降解不甚明显。

如表 2 所示，加速流体萃取已广泛应用于从环境样品中提取 PAHs,PCBs,PCDDs,OCPs 等有机污染物，许多文献中所列举的萃取条件都参考了美国 EPA 标准方法，方法编号 3545。从表 2 中可以看出，萃取剂都选用极性溶剂，因为若单独使用非极

性溶剂最萃取剂则萃取效率降低。Saim 等<sup>[24]</sup>比较了用不同溶剂萃取土壤中的 PHAs，结果发现丙酮、二氯甲烷、甲醇、乙腈和正己烷-丙酮（1:1）得到了相似的数据，而用正己烷作萃取剂得到了较低的回收率（84%）。甲苯作为提取剂引起了一些科学家的兴趣。有研究表明<sup>[19]</sup>，甲苯比二氯甲烷-丙酮（1:1）和正己烷-丙酮（1:1）获得更高的回收率。Kenny 和 Olesik<sup>[25]</sup>用甲苯作为提取剂比用甲醇和二氯甲烷获得了更高的 PAHs 回收率。但 Kenny 和 Olesik<sup>[25]</sup>以及 Popp 等<sup>[19]</sup>同时提出用甲苯作提取剂比用其它有机溶剂所获得的结果准确度要低。PCDDs 的提取与其它有机污染物相比，最大的不同在于使用了更高的萃取温度（200 °C），并且在萃取前通常进行酸化以使待分析物与基体分离。

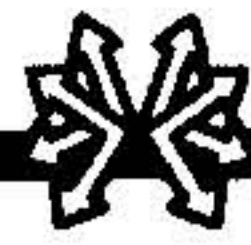
#### 4 结语

先进的萃取技术基本采用自动化的处理手段，在现代实验室中已受到越来越广泛的重视。表 3 列出了不同提取方法的特点，从中可以看出新的提取技术在提取效率上与传统的提取方法相比有着不可比

表 3 不同提取方法的特点比较

提取方法	索氏抽提	超声波提取	SFE	MAE	ASE
样品量(g)	10	30	1~10	2~5	10
提取时间	6, 12 或 24h	3×3min	30min~1h	20min(加上冷却与降压时间 30min)	12min
提取剂类型	二氯甲烷、丙酮-正己烷(1:1)、丙酮-二氯甲烷(1:1)、甲苯-甲醇(10:1)等	二氯甲烷、正己烷、丙酮-二氯甲烷(1:1)等	二氧化碳(加有机改进剂)	要求提取剂能吸收微波能	丙酮、二氯甲烷、甲醇、乙腈、丙酮-正己烷(1:1)、丙酮-二氯甲烷(1:1)等
提取剂用量(mL)	150~300	100×3	10~20	25~45	15
提取方法	加热	超声波	加温加压	加温加压	加温加压
操作规程	逐个提取样品	逐个提取样品	逐个提取样品	可同时提取 14 个样品	逐个提取样品
方法发展时间	短	短	长	长	长
对操作者技术要求	低	中等	高	中等	中等
仪器成本	低	低	高	中等	高
自动化水平	低	低	低-高	低	高





拟的优势,当然也存在着仪器成本高昂,对操作者要求较高等一些限制条件,但科技高速发展的今天,这些先进的萃取技术必然能展现其越来越强大的生命力。

#### 参考文献:

- [1] 周长利,崔兆杰,高连存,等. 土壤中烃类污染物的超临界流体萃取[J]. 分析化学, 1997, 25(7): 796-799.
- [2] Seidle V, Lindner W. Evaluation of a supercritical fluid extraction method for hexachlorobenzene from artificially spiked and naturally contaminated oil seeds and soil samples[J]. *Intern J Environ Anal Chem*, 1995, 59: 1-13.
- [3] Hawthorne S B, Miller D J. Direct comparison of soxhlet and low- and high-temperature supercritical CO<sub>2</sub> extraction efficiencies of organics from environmental solids [J]. *Anal Chem*, 1994, 66(22): 4 005-4 012.
- [4] Langenfeld J J, Hawthorne S B, Miller D J, *et al.* Effects of temperature and pressure on supercritical fluid extraction efficiencies of polycyclic aromatic hydrocarbons and polychlorinated biphenyls[J]. *Anal Chem*, 1993, 65(4): 338-344.
- [5] Yu Y, Gharaibeh A, Hawthorne S B, *et al.* Combined temperature/modifier effects on supercritical CO<sub>2</sub> extraction efficiencies of polycyclic aromatic hydrocarbons from environmental samples[J]. *Anal Chem*, 1995, 67(3): 641-646.
- [6] Pastor A, Vázquez E, Ciscar R, *et al.* Efficiency of the microwave-assisted extraction of hydrocarbons and pesticides from sediments[J]. *Anal Chim Acta*, 1997, 344: 241-249.
- [7] Onuska F I, Terry K A. Extraction of pesticides from sediments using a microwave technique[J]. *Chromatographia*, 1993, 36: 191-194.
- [8] Youn Y S, Robert C L, Chung H C, *et al.* Analysis of polycyclic aromatic hydrocarbons in sediment reference materials by microwave-assisted extraction[J]. *Chemosphere*, 2000, 41: 1 709-1 716.
- [9] Chee K K, Wong M K, Lee H K. Optimization of microwave-assisted solvent extraction of polycyclic aromatic hydrocarbons in marine sediments using a microwave extraction system with high-performance liquid chromatography-fluorescence detection and gas chromatography-mass spectrometry[J]. *J Chromatogr A*, 1996, 723: 259-271.
- [10] Lopez-Avila V, Young R. Microwave-assisted extraction of organic compounds from standard reference soils and sediments[J]. *Anal Chem*, 1994, 66: 1 097-1 106.
- [11] Zuloaga O, Etxebarria N, Fernández L A, *et al.* Optimisation and comparison of microwave-assisted extraction and Soxhlet extraction for the determination of polychlorinated biphenyls in soil samples using an experimental design approach[J]. *Talanta*, 1999, 50: 345-357.
- [12] Xiong G H, He X Q, Zhang Z X. Microwave-assisted extraction or saponification combined with microwave-assisted decomposition applied in pretreatment of soil or mussel samples for the determination of polychlorinated biphenyls[J]. *Anal Chim Acta*, 2000, 413: 49-56.
- [13] Youn Y S, Teh L L. Effect of moisture on the extraction efficiency of polycyclic aromatic hydrocarbons from soils under atmospheric pressure by focused microwave-assisted extraction[J]. *J Chromatogr A*, 2001, 927: 131-141.
- [14] Tomaniová M, Hajslová J, Pavelka Jr J, *et al.* Microwave-assisted solvent extraction — a new method for isolation of polynuclear aromatic hydrocarbons from plants[J]. *J Chromatogr A*, 1998, 827: 21-29.
- [15] Hummert K, Vetter W, Luckas B. Fast and effective sample preparation for determination of organochlorine compounds in fatty tissue of marine mammals using microwave extraction[J]. *Chromatographia*, 1996, 42: 300-304.
- [16] 熊国华, 梁今明, 邹世春, 等. 微波萃取土壤中 PAHs 的研究[J]. 高等学校化学学报, 1998, 19(10): 1 560-1 565.
- [17] Schantz M M, Nichols J J, Wise S A. Evaluation of pressurized fluid extraction for the extraction of environmental matrix reference materials[J]. *Anal Chem*, 1997, 69(20): 4 210-4 219.
- [18] Zuloaga O, Etxebarria N, Fernández L A, *et al.* Comparison of accelerated solvent extraction with microwave-assisted extraction and Soxhlet for the extraction of chlorinated biphenyls in soil samples[J]. *Trends Anal Chem*, 1998, 17(10): 642-647.
- [19] Popp P, Keil P, Möder M, *et al.* Application of accelerated solvent extraction followed by gas chromatography, high-performance liquid chromatography and gas chromatography-mass spectrometry for the determination of polycyclic aromatic hydrocarbons, chlorinated pesticides and polychlorinated dibenzo-p-dioxins and dibenzofurans in solid wastes[J]. *J Chromatogr A*, 1997, 774: 203-211.
- [20] Bautz H, Polzer J, Stieglitz L. Comparison of pressurised liquid extraction with Soxhlet extraction for the analysis of polychlorinated dibenzo-p-dioxins and dibenzofurans from fly ash and environmental matrices[J]. *J Chromatogr A*, 1998, 815: 231-241.
- [21] Heemken O P, Theobald N, Wenclawiak B W. Compari





- son of ASE and SPE with Soxhlet, sonication, and methanolic saponification extractions for the determination of organic micropollutants in marine particulate matter[J]. **Anal Chem**, 1997, **69**(11): 2 171-2 180.
- [22] Richter B E, Jones B A, Ezzell J L, *et al.* Accelerated solvent extraction: a technique for sample preparation[J]. **Anal Chem**, 1996, **68**(6): 1 033-1 039.
- [23] Erland B, Tobias N. Pressurised liquid extraction of persistent organic pollutants in environmental analysis[J]. **Trends in Analytical Chemistry**, 2000, **19** (7): 434-445.
- [24] Saim N, Dean J R, Abdullah M P, *et al.* An experimental design approach for the determination of polycyclic aromatic hydrocarbons from highly contaminated soil using accelerated solvent extraction[J]. **Anal Chem**, 1998, **70** (2): 420-424.
- [25] Kenny D W, Olesik S V. Extraction of lignite coal fly ash for polynuclear aromatic hydrocarbons: modified and unmodified supercritical fluid extraction, enhanced-fluidity solvents, and accelerated solvent extraction[J]. **J Chromatogr Sci**, 1998, **36**: 59-65.

(本文编辑: 张培新)