

我国土壤短链氯化石蜡的污染现状及治理方法探讨

王毅^{1*}, 徐蒙蒙², Phanmaha Alek³, 郑好¹, 李露露¹, 洪雪娇¹, 张俊峰¹

¹ 三川德青科技有限公司 湖北武汉

² 武汉君信环保有限责任公司 湖北武汉

³ 36 Manor International Sport Hotel, Vientiane, Laos

【摘要】短链氯化石蜡作为一类新兴的持久性有机污染物可对生态环境和人体健康造成严重威胁, 土壤是其重要“源”与“汇”。总结了我国土壤短链氯化石蜡的分布特征, 分析了其来源与危害, 并探讨了其治理方法, 以期为我国土壤短链氯化石蜡的防治工作提供参考。

【关键词】土壤; 短链氯化石蜡; 分布特征; 来源; 危害; 治理

The Discussion on the Pollution Status and Control Methods of Short-chain Chlorinated Paraffin in Soil in China

Yi Wang¹, Mengmeng Xu², Phanmaha Alek³, Hao Zheng¹, Lulu Li¹, Xuejiao Hong¹, Junfeng Zhang¹

¹ SafeCleen Technologies Co., Ltd., Wuhan, China

² Wuhan Junxin Environmental Protection Co., Ltd., Wuhan, China

³ 36 Manor International Sport Hotel, Vientiane, Laos

【Abstract】As a new kind of persistent organic pollutants, short-chain chlorinated paraffins can pose a serious threat to the ecological environment and human health, and soil is its important source and sink. The distribution characteristics of soil short-chain chlorinated paraffins in China were summarized, its sources and hazards were analyzed, and its control methods were discussed, in order to provide reference for the prevention and control of short-chain chlorinated paraffins in soil in China.

【Keywords】Soil; Short-chain chlorinated paraffins; Distribution characteristics; Source; Harm; Control

氯化石蜡(CPs), 又称多氯代正构烷烃(PCAs), 是指石蜡烃(直链烷烃)经氯化衍生的一类复杂混合物, 其氯化程度一般在 30%~70% (以质量分数计)。按照碳链长度不同, CPs 又分为含 18~30 个 C 的长链氯化石蜡(LCCPs, C₁₈~C₃₀)、含 14~17 个 C 的中链氯化石蜡(MCCPs, C₁₄~C₁₇)及含 10~13 个 C 的短链氯化石蜡(SCCPs, C₁₀~C₁₃)。3 种 CPs 中, SCCPs 具有“三致”效应, 其毒性最高、环境释放潜力也最大, 且进入环境中的 SCCPs 还具有持久性、易生物蓄积及能进行远距离迁移等特性, 因此已于 2017 年正式被《关于持久性有机污染物的斯德哥尔摩公约》附件 A 列为受控物质。SCCPs 分子式为 C_pH_{2p-q+2}Cl_q (p=10~13, q=1~13), 其具有良

好的热稳定性、化学稳定性、黏性、电绝缘性及经济性等, 因此可作为阻燃剂、高温润滑剂添加剂、增塑剂、黏合剂及密封剂等而被广泛应用。2016 年全球范围内 SCCPs 的产量至少达 1.65×10⁵t^[1], 而到 2018 年我国 CPs 的实际产量已高达 8.35×10⁵t^[2], 且 SCCPs 的生产及消耗均为世界第一。SCCPs 产品的大量生产使用势必会加重我国的生态环境压力, 研究表明^[3-4], 在我国的大气、灰尘、江河湖海水体及沉积物、土壤和生物体中均已检测出 SCCPs。实际上, SCCPs 已引起国内外学者的广泛关注。土壤是很多持久性有机污染物(POPs)的重要受体和“蓄积库”, 在远离城市和工业污染区的崇明岛^[5]、云南^[6]甚至北极^[7]土壤中均已检测到 SCCPs, 因此土壤

作者简介: 王毅(1993-)男, 汉族, 湖北咸宁人, 硕士, 助理工程师。主要研究方向为环境污染控制理论与技术。

SCCPs 的污染已不容忽视。

1 分布特征

我国土壤 SCCPs 的含量 (表 1) 在不同利用类型土壤中存在较大的差异, 在 CPs 生产厂、污水灌溉区、造纸厂及电子废物拆解区含量相对较高; 在云南远郊等远离人类活动和工业生产的地区也异常地呈现高含量, 这可能与大气的长距离传输和沉降等有关。按照 Bezchlebová 等^[8]估计的 SCCPs 对土壤生物预测无效应含量数据 ($5.28\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$), 山东 CPs 生产厂及浙江台州电子废物拆解区土壤中的 SCCPs 具有高生态风险, 而上海主城区及四川成都不同利

用类型的土壤 SCCPs 为极低生态风险。与国外监管严格的国家[如挪威和英国 ($24\pm 72\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$)^[9]、瑞士 ($3\sim 35\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$)^[10]等]或远离人类活动的地区[如北极 ($7.1\pm 0.7\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$)^[7]等]相比, 我国土壤 SCCPs 的含量整体相对处于较高水平。在垂直分布方面, 许鹏军等^[11]研究发现土壤中 SCCPs 的垂直迁移能力比较有限, SCCPs 从 0~5cm 层到 21~25cm 层质量浓度降低了 90.8%; Aamir 等^[12]则发现 SCCPs 在我国农田土壤中分布相对均匀; Huang 等^[13]则发现相比高氯代 SCCPs 而言, 低氯代 SCCPs 向深层土壤有更强的迁移扩散能力。

表 1 我国土壤 SCCPs 的含量分布情况

研究区域	样品类型	采样深度/cm	含量范围/ $\text{ng}\cdot\text{g}^{-1}$	含量均值/ $\text{ng}\cdot\text{g}^{-1}$	参考来源
中国 31 省	农田	0~20	39~1609	374	[12]
辽宁大连	CPs 生产厂	0~5	1018.4~1824.4 (厂内); 24.8~481.6 (周围)	1421.4 (厂内); 141.9 (周围)	[14]
山东	CPs 生产厂	0~5	$2.8\times 10^4\sim 5.54\times 10^5$	-	[15]
北京通州	直接污水灌溉农田	0~20	945.2~1450	1197.6	[16]
江苏	洋口化工园区	0~20	37.5~995.7	225.4	[17]
上海	主城区	0~20	ND~615	15.7	[18]
上海松江	农业区	表层	52.58~237.56	99.82	[19]
上海	崇明岛	0~20	0.42~420	62.26	[5]
浙江	造纸厂	0~20	42~3853	1043	[20]
浙江台州	电子废物拆解区	0~20	$68.5\sim 2.20\times 10^5$	4.25×10^4	[21]
四川成都	不同利用类型土壤	0~20	0.22~3.26	1.40	[22]
云南	远郊	0~20	79~948	348	[6]
广东	珠江三角洲	0~5	1.9~236	18.3 ± 35.2	[23]
广州	不同类型土壤	表层	6.8~541.2	79.6	[24]
广州	郊区不同用途土壤	0~20	7~541	84	[25]

2 来源分析

环境中的 SCCPs 目前尚未发现天然来源, 主要源于人类活动, 含 SCCPs 产品的生产加工、运输、贮存及使用等过程均可能向环境释放 SCCPs。我国主要的 CPs 产品是 CP-52 单体, 造纸厂施胶剂使用^[20]、电子垃圾拆解^[21]等工业过程已被证实均可能成为土壤 SCCPs 的主要来源。污水处理厂的出水和污泥均是土壤 SCCPs 的重要来源, Zeng 等^[16]研究发

现污水直接灌溉的农田 SCCPs 高达 $945.2\sim 1450\text{ng}\cdot\text{g}^{-1}$; 传统污水厂可将大部分 SCCPs 吸附至污泥中, Wang 等^[18]研究认为污泥施用是上海不同功能区 CPs 的主要来源之一。长距离大气输送、大气沉降、土壤-大气交换等也是土壤 SCCPs 的重要来源途径, 研究发现^[23]珠江三角洲大气中 SCCPs 含量的均值为 $17.69\text{ng}\cdot\text{m}^{-3}$, 短链和低氯代的 SCCPs 主要在工业化程度较低的区域大气中富集, 上文已述, 在远离城

市和工业污染区的崇明岛、云南、甚至北极土壤中均已检测到 SCCPs, 因此这些区域土壤中的 SCCPs 很可能与长距离大气输送、大气沉降、土壤-大气交换等作用有关。

3 危害

一方面, 土壤可能作为 SCCPs 的“源”而对其他环境介质造成二次污染。SCCPs 具有半挥发性, 因此在夏季高温季节还可能通过挥发或土壤-大气交换作用进入大气环境。2019年5月上海城区道路灰尘中 SCCPs 的几何平均含量高达 $332\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ ^[26], 因此猜测 SCCPs 也可通过扬尘作用进入大气环境。SCCPs 属于疏水性化合物, 水溶性较低, 但强于多氯联苯(PCBs)和有机氯农药, 因此土壤中的 SCCPs 可能会进入水体而造成二次污染, 此外, 低氯代的 SCCPs 还具有一定的渗透潜力, 因此可能土壤 SCCPs 还可能迁移至地下水中。另一方面, 土壤 SCCPs 还可能通过食物链危害生态系统或人体健康。Li 等^[27]发现南瓜和大豆的根可吸收并积累 SCCPs, 而 Wang 等^[28]则在我国 19 省的豆类及谷物中分别测得 SCCPs 的含量为 $328\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ 、 $343\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ (湿重)。SCCPs 在被动动物摄入后可能对其造成损害, 李勋等^[29]发现含 SCCPs 的产品可导致 SD 雄性大鼠在肺脏、肾脏及肝脏等产生明显病变。SCCPs 通过食物链传递到人体不但会产生“三致”效应, 还会干扰内分泌系统, 并对人体的生殖系统和免疫系统造成威胁。

4 治理方法

土壤中的 SCCPs 可通过吸附、氧化还原、水解、光降解及化学降解等方式实现矿化或去除, 主要治理方法可分为物化法和生物法^[30]。

4.1 物化法

(1) 一般物化法

SCCPs 具有良好的化学稳定性和热稳定性, 选用适当的吸附剂进行吸附去除是一种较好的理论方法, 但该类研究报道目前较少, Ding 等^[31]在分子动力学及密度泛函理论角度证明了单壁碳纳米管可对 CPs 产生较好的物理吸附。在一定的环境条件下使 SCCPs 还原脱氯也可实现对其的降解, Zhang 等^[32]发现适量的投加腐殖酸有利于纳米零价铁对 SCCPs 的还原脱氯, 但腐殖酸含量不宜 $>15\text{mg/L}$ 。纳米零价铁法工艺简单、效率高, 但成本较高、不适于大

规模应用。

(2) 高级氧化法

SCCPs 因缺少吸收波长 $>290\text{nm}$ 紫外光的合适取代基团而难以直接光解, 在水相发生的氧化及水解作用也很小, 因此通常需要自由基或催化剂诱导其发生氧化或水解反应, 光催化、Fenton 等高级氧化法可作为有效的 SCCPs 降解方法。Chen 等^[33]采用合成的氧化还原石墨烯纳米复合材料 (RGO/CoFe₂O₄/Ag) 作为催化剂, 在可见光下对 SCCPs 的降解去除率可高达 91.9%。张万兰^[34]研究发现在紫外光作用下以 ZnS、天然闪锌矿为催化剂对碳链较短的 SCCPs[一氯癸烷 (CD)] 的降解率分别为 64.4%、88%。Friesen 等^[35]通过 H₂O₂/UV 及改进的 Fe³⁺/H₂O₂/UV 光 Fenton 法发现, 在 H₂O₂ (0.02mol/L)/UV 酸性条件下用波长 300nm 的光照射 3h 对 SCCPs 的降解率为 80%±4%。高级氧化法处理容易、效率高、治理周期短且便于工程应用, 但受到光照强度、催化剂、pH 及温度等因素的影响, 且成本较高、催化剂加工生产复杂而不易再生, 同时还易生成有机副产物。

4.2 生物法

(1) 微生物法

CPs 具有耐普通微生物侵袭的特性, 但特定微生物可实现对其的降解去除, 该过程易受弹链长度及氯化度等的影响, 如 SCCPs 的氯化度 $<60\%$ 时就很容易被微生物氧化。微生物可通过吸附、生物代谢降解的方式去除土壤中的 SCCPs, Allpress 等^[36]通过筛选发现, 革兰氏阳性红球菌 S45-1 可将 SCCPs 作为唯一的能源和碳源进行利用并降解, 但降解周期需要 30~100d; Lu^[37]也从二沉池脱水污泥中筛选出可将 SCCPs 作为能源和碳源的假单胞菌 N35, 该菌株投加至污泥中对 SCCPs 的去除率可达 73.4%, 但降解时间也需 30d。微生物法虽然降解周期较长, 但经济成本较低且无二次污染, 具有较大的发展潜力。

(2) 植物法

植物法是指通过根系吸收等作用实现对土壤 SCCPs 的去除。研究发现^[14,38], 一些针叶植物叶片对 SCCPs 的积累可达 $1000\text{ng}\cdot\text{g}^{-1}$ 以上。Li 等^[27,39-40]发现南瓜和大豆可使 SCCPs 的碳链断裂, 还能使高氯代 SCCPs 的同系物脱氯成低氯代同系物, 且南瓜

对亲本 SCCPs 的积累程度>大豆, 而对亲本 SCCPs 的降解速度和降解程度<大豆, 此外, 南瓜、大豆根对 SCCPs 的积累量分别达到 23.6%~59.9%、1.98%~54.5%。植物法成本较低且安全、环保, 但植物的培养较慢, 不适于大规模应用。

5 结论与展望

我国在土壤的 SCCPs 方面取得了一定的进展, 但在 SCCPs 的环境风险综合评估、迁移转化、有效溯源及治理应用方面还远远不足。在未来, 应进一步探索更加有效的潜在生态风险及健康风险等的评估方法, 并扩大研究范围, 系统结合大气、水体、土壤、沉积物和生物体等多介质开展 SCCPs 的分布、传输、界面分配及迁移转化等研究, 建模(如逸度模型等)揭示 SCCPs 的传输机理和过程。在土壤 SCCPs 的治理方面, 目前仍多停留于理论或实验室阶段, 今后应加强应用研究的力度, 在不断探索新方法和新技术的同时, 开展多方法的耦合或协同应用研究。此外, 还应通过替代等方式在源头减少或避免含 SCCPs 产品的生产和使用, 并采取措施减少生产加工、运输、贮存及使用等过程中 SCCPs 的释放, 政府、环保等相关部门应采取相应措施限制 SCCPs 的排放。

参考文献

- [1] Glüge J, Wang Z Y, Bogdal C, et al. Global production, use, and emission volumes of short-chain chlorinated paraffins - A minimum scenario[J]. *Science of the Total Environment*, 2016, 573:1132-1146.
- [2] 吴红忠.新形势下氯化石蜡生产的发展方向[J].*氯碱工业*,2019,55(10):23-26.
- [3] 刘宇轩,凌欣,闫振华.环境中短链氯化石蜡的分布和蓄积及毒理效应研究进展[J].*环境与健康杂志*,2019,36(03):272-277.
- [4] 张佩萱,高丽荣,宋世杰,等.环境中短链和中链氯化石蜡的来源、污染特征及环境行为研究进展[J].*环境化学*,2021,40(02):371-383.
- [5] Wang X T, Zhang Y, Miao Y, et al. Short-chain chlorinated paraffins (SCCPs) in surface soil from a background area in China: occurrence, distribution, and congener profiles[J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2013, 20(7):4742-4749.
- [6] Wang K R, Gao L R, Zhu S, et al. Spatial distributions and homolog profiles of chlorinated nonane paraffins, and short and medium chain chlorinated paraffins in soils from Yunnan, China[J]. *Chemosphere*, 2020, 247:125855.
- [7] Li H J, Fu J J, Pan W X, et al. Environmental behaviour of short-chain chlorinated paraffins in aquatic and terrestrial ecosystems of Ny-lesund and London Island, Svalbard, in the Arctic[J]. *Science of the Total Environment*, 2017, 590-591:163-170.
- [8] Bezchlebová J, Cernohlávková J, Kobeticová Klára, et al. Effects of short-chain chlorinated paraffins on soil organisms[J]. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 2007, 67(2):206-211.
- [9] Halse A K, Schlabach M, Schuster J K, et al. Endosulfan, pentachlorobenzene and short-chain chlorinated paraffins in background soils from Western Europe[J]. *Environmental Pollution*, 2017, 220:1477-1479.
- [10] Bogdal C, Niggeler N, Glüge J, et al. Temporal trends of chlorinated paraffins and polychlorinated biphenyls in Swiss soils[J]. *Environmental Pollution*, 2017, 220:891-899.
- [11] 许鹏军,周志广,张烃,等.氯化石蜡生产厂内土壤中短链氯化石蜡的垂直分[C]//持久性有机污染物论坛 2018 暨化学品环境安全大会论文集,2018:292-294.
- [12] Aamir M, Yin S S, Zhou Y T, et al. Congener-specific C10-C13 and C14-C17 chlorinated paraffins in Chinese agricultural soils: Spatio-vertical distribution, homologue pattern and environmental behavior[J].*Environmental Pollution*,2019,245:789-798.
- [13] Huang Y M, Chen L G, Feng Y B, et al. Short-chain chlorinated paraffins in the soils of two different Chinese cities: Occurrence, homologue patterns and vertical migration[J]. *Science of the Total Environment*, 2016, 557-558:644-651.
- [14] Xu J Z, Gao Y, Zhang H J, et al. Dispersion of Short- and Medium-Chain Chlorinated Paraffins (CPs) from a CP Production Plant to the Surrounding Surface Soils and Coniferous Leaves[J]. *Environmental Science & Technology*, 2016, 50(23):12759-12766.
- [15] Wang P W, Zhao N, Cui Y, et al. Short-chain chlorinated paraffin (SCCP) pollution from a CP production plant in

- China: Dispersion, congener patterns and health risk assessment[J]. *Chemosphere*, 2018, 211:456-464.
- [16] Zeng L X, Wang T, Han W Y, et al. Spatial and Vertical Distribution of Short Chain Chlorinated Paraffins in Soils from Wastewater Irrigated Farmlands[J]. *Environmental Science & Technology*, 2011, 45(6): 2100-2106.
- [17] Huang D, Gao L R, Qiao L, et al. Concentrations of and risks posed by short-chain and medium-chain chlorinated paraffins in soil at a chemical industrial park on the southeast coast of China[J]. *Environmental Pollution*, 2020, 258:113704.
- [18] Wang X T, Wang X K, Zhang Y, et al. Short- and medium-chain chlorinated paraffins in urban soils of Shanghai: Spatial distribution, homologue group patterns and ecological risk assessment[J]. *Science of the Total Environment*, 2014, 490:144-152.
- [19] 张贝贝, 徐晨焱, 周泉, 等. 短链及中链氯化石蜡在上海市松江区农田土壤中的污染渗透及生态风险[J]. *环境科学研究*, 2021, 34(11):2757-2768.
- [20] 张佩萱, 高丽荣, 宋世杰, 等. 造纸厂土壤中短链和中链氯化石蜡的污染特征和风险评估[J]. *环境科学*, 2021, 42(3):1131-1140.
- [21] Xu C, Zhang Q, Gao L R, et al. Spatial distributions and transport implications of short- and medium-chain chlorinated paraffins in soils and sediments from an e-waste dismantling area in China[J]. *Science of The Total Environment*, 2019, 649:821-828.
- [22] 封永斌, 陈来国, 黄玉妹, 等. 成都地区不同利用类型土壤中短链氯化石蜡研究[J]. *环境科学与技术*, 2014, 37(1):33-37+47.
- [23] Wang Y, Li J, Cheng Z N, et al. Short- and Medium-Chain Chlorinated Paraffins in Air and Soil of Subtropical Terrestrial Environment in the Pearl River Delta, South China: Distribution, Composition, Atmospheric Deposition Fluxes, and Environmental Fate[J]. *Environmental Science & Technology*, 2013, 47(6):2679-2687.
- [24] 韩双, 黄玉妹, 陈来国, 等. 广州土壤中短链氯化石蜡的含量水平和分布特征[J]. *四川环境*, 2012, 31(4):56-60.
- [25] Chen L G, Huang Y M, Han S, et al. Sample pretreatment optimization for the analysis of short chain chlorinated paraffins in soil with gas chromatography-electron capture negative ion-mass spectrometry[J]. *Journal of Chromatography A*, 2013, 1274:36-43.
- [26] 周莹. 上海市城区道路灰尘中多环芳烃、氯化石蜡和多氯联苯的污染特征和健康风险评价[D]. 上海: 上海大学, 2020.
- [27] Li Y, Hou X, Yu M, et al. Dechlorination and chlorine rearrangement of 1,2,5,5,6,9,10-heptachlorodecane mediated by the whole pumpkin seedlings[J]. *Environmental Pollution*, 2017, 224:524-531.
- [28] Wang R H, Gao L R, Zheng M H, et al. Characterization of short-and medium-chain chlorinated paraffins in cereals and legumes from 19 Chinese provinces[J]. *Chemosphere*, 2019, 226:282-289.
- [29] 李勋, 刘钰晨, 陈敏杰, 等. 短链氯化石蜡急性暴露对SD雄性大鼠的组织病理学影响[J]. *江汉大学学报(自然科学版)*, 2013, 41(05):20-25.
- [30] 韩婉玲, 钱勇兴, 张会宁, 等. 环境中短链氯化石蜡去除方法的研究进展[J]. *化工进展*, 2021, 40(6):3444-3454.
- [31] Ding Q Y, Ding N, Chen X F, et al. Chlorinated paraffins wrapping of carbon nanotubes: A theoretical investigation[J]. *Applied Surface Science*, 2018, 436: 277-282.
- [32] Zhang Z Y, Lu M, Zhang Z Z, et al. Dechlorination of short chain chlorinated paraffins by nanoscale zero-valent iron[J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2012, 243: 105-111.
- [33] Chen X, Zhao Q D, Li X Y, et al. Enhanced photocatalytic activity of degrading short chain chlorinated paraffins over reduced graphene oxide/CoFe₂O₄/Ag nanocomposite[J]. *Journal of Colloid and Interface Science*, 2016, 479:89-97.
- [34] 张万兰. 典型短链氯化石蜡的光化学降解机理研究[D]. 广州: 广东工业大学, 2019.
- [35] Friesen K J, El-Morsi T M, Abd-El-Aziz A S. Photochemical oxidation of short-chain polychlorinated n-alkane mixtures using H₂O₂/UV and the photo-Fenton reaction[J]. *International Journal of Photoenergy*, 2004, 6(2):81-88.
- [36] Allpress J D, Gowland P C. Biodegradation of chlorinated paraffins and long-chain chloroalkanes by *Rhodococcus* sp.

- S45-1[J]. *International Biodeterioration & Biodegradation*, 1999, 43(4):173-179.
- [37] Lu M. Degradation of short chain polychlorinated paraffins by a new isolate: tests in pure culture and sewage sludge[J]. *Journal of Chemical Technology & Biotechnology*, 2013,88(7):1273-1279.
- [38] Wang T , Yu J , Han S , et al. Levels of short chain chlorinated paraffins in pine needles and bark and their vegetation-air partitioning in urban areas[J]. *Environmental Pollution*, 2015, 196:309-312.
- [39] Li Y , Hou X , Chen W , et al. Carbon Chain Decomposition of Short Chain Chlorinated Paraffins Mediated by Pumpkin and Soybean Seedlings[J]. *Environmental Science & Technology*, 2019, 53(12): 6765-6772.
- [40] Li Y, Chen W , Kong W , et al. Transformation of 1,1,1,3,8,10, 10, 10-octachlorodecane in Air Phase Increased by

Phytogetic Volatile Organic Compounds of Pumpkin Seedlings[J]. *Science of The Total Environment*, 2020, 704:135455.

收稿日期: 2022 年 3 月 4 日

出刊日期: 2022 年 6 月 9 日

引用本文: 王毅, 徐蒙蒙, Phanmaha Alek, 郑好, 李露露, 洪雪娇, 张俊峰, 我国土壤短链氯化石蜡的污染现状及治理方法探讨[J]. *可持续发展研究*, 2022, 1(1):1-6

DOI: 10.12208/j.jrsd.20220001

检索信息: 中国知网 (CNKI Scholar)、万方数据 (WANFANG DATA)、Google Scholar 等数据库收录期刊

版权声明: ©2022 作者与开放获取期刊研究中心 (OAJRC) 所有。本文章按照知识共享署名许可条款发表。 <http://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>



OPEN ACCESS