

膜过滤单元对微生物的截留性能及完整性检测概述

王小侏¹ 葛明明² 刘文君¹ 杨宏伟¹ 解跃峰^{1,3}

(1 清华大学环境学院 环境模拟与污染控制国家重点联合实验室,北京 100084; 2 苏州普滤得净化有限公司,苏州 215129;
3 Environmental Engineering Program, Pennsylvania State University, Middletown, PA17057, USA)

摘要 膜过滤在饮用水处理领域具有广阔的应用前景。膜过滤单元对微生物等颗粒物质的持续有效截留是膜过滤工艺成功应用的关键。膜组件在用于实际饮用水生产之前,需要通过微生物负荷试验确定其对微生物的截留性能。膜过滤单元在运行过程中,需要进行例行的膜完整性检测以保证其对微生物持续高效的截留效果。主要参考美国环保局的《膜过滤指南》,对微生物负荷试验、膜过滤单元的直接和间接完整性检测进行总结性介绍,重点阐明上述试验和检测之间的作用、基本原理、主要方法和相互关系。以促进制水企业及相关管理部门对膜过滤工艺的了解,并帮助国内膜生产企业完善其现有产品和控制系统。

关键词 膜过滤工艺 微生物 负荷试验 完整性检测 截留性能 饮用水处理

DOI:10.13789/j.cnki.ww1964.2014.0006

Methods for the tests of the interception performance of microorganism and the integrity in membrane filtration unit

Wang Xiaomao¹, Ge Mingming², Liu Wenjun¹, Yang Hongwei¹, Xie Yuefeng^{1,3}

(1. School of Environment, State Key Joint Laboratory of Environmental Simulation and Pollution Control, Tsinghua University, Beijing 100084, China;

2. Suzhou Purification and Engineering Group Co., Ltd., Suzhou 215129, China;

3. Environmental Engineering Program, Pennsylvania State University, Middletown, PA17057, USA)

Abstract: The membrane filtration process has been increasingly employed for drinking water treatment worldwide. The key to the successful application of this process is the membrane's interception performance of microbes and other particulate matters which must last for a reasonably long duration. The membrane modules used for drinking water production must pass the challenge test conducted to determine the interception performance of the concerned microbes. Membrane integrity tests must be routinely conducted to secure the membrane's intercepting ability during the operation. This paper, as a summary of the *Membrane filtration guidance manual issued* by the Environmental Protection Agency of the United States, briefly introduced the challenge test as well as the direct and indirect membrane integrity tests; with a focus on the purposes, the principles, the employed test methods and the inter-relationship of the three important tests. This paper might be helpful to understand the membrane filtration process by water utilities and the authorities, and to aid the domestic membrane manufacturers to improve the quality of their products and establish the rejection performance guarantee system.

Keywords: Membrane filtration process; Microorganism; Challenge test; Integrity test; Interception performance; Drinking water treatment

国家水体污染控制与治理科技重大专项(2012ZX07404002)。

0 前言

近年来,以超滤为代表的低压膜过滤工艺在饮用水处理中已得到越来越广泛的应用。随着膜成本的持续下降,膜过滤取代传统介质过滤(如砂滤)将成为趋势。与传统的介质过滤相比,膜过滤的主要优势在于膜过滤的出水水质稳定,受滤前水水质的影响极小。即便是无预处理(如混凝、沉淀)或预处理效果不好时,膜过滤仍能保证滤后水水质。超滤膜过滤对贾第鞭毛虫、隐孢子虫和大肠杆菌等致病微生物具有极好的截留效果;对病毒也有一定的截留作用。膜过滤特别适合于原水水质(如浊度)不稳定但供水水质要求较高的水厂。

不同于砂滤和无烟煤过滤以深层截留为过滤机制,超滤膜以表面截留为过滤机制,位于超滤膜表面的过滤皮层是截留污染物质的唯一屏障。超滤膜过滤皮层的厚度仅在微米量级,在运行过程中可能会发生表面破损,造成截留性能的下降。因此,饮用水处理对超滤膜的截留性能及其维持的要求很严格。截留性能的维持也即要求超滤膜在运行过程中保持完整,与之相关的检测称为膜的完整性检测。

美国环保局(USEPA)在2005年出版的《膜过滤指南》(Membrane Filtration Guidance Manual)中对超滤膜的截留性能和完整性检测做了详尽的描述^[1]。一些文献也对试验和检测的方法进行了综述^[2]。在美国,膜过滤是解决隐孢子虫问题的优选手段之一。当膜过滤取代传统砂滤和无烟煤过滤或者作为传统水处理单元的补充手段时,美国环保局要求膜生产企业必须提供膜组件对隐孢子虫的截留能力,以及要求制水企业在生产过程中对膜过滤单元进行常规和周期性的直接完整性检测和连续的间接完整性监测。

相比之下,我国对膜组件的截留能力特别是膜过滤单元在运行过程中的完整性检测的重视程度还远远不够,相关研究也较少^[3~6]。这一方面造成了制水企业及相关管理部门对膜产品和膜过滤工艺的信心不足,导致膜过滤单元一直以来作为传统过滤的补充单元存在;另一方面导致国内膜生产企业在制备膜组件和相关设备时缺乏相关政策的指导。

本文将对于饮用水处理的超滤膜截留能力的测定和完整性检测及其相互之间的关联性做简要介绍,并对每个主要的试验方法进行简单的介绍。

1 膜对微生物的截留能力

膜组件对某种微生物的截留能力通常用对数去除值(LRV)表示:

$$LRV = \log(C_i/C_p) = \log(C_i) - \log(C_p) \quad (1)$$

式(1)中 C_i 和 C_p 分别为滤前水和滤后水中该微生物的浓度。一般情况下,制水企业或相关管理部门对膜组件的微生物(特别是病原微生物,包括贾第鞭毛虫、隐孢子虫、大肠杆菌和病毒)截留能力有一个最低要求,用 LRV_T 表示。例如,美国环保局饮用水卫生标准要求隐孢子虫的去除率不低于 99%。如果采用膜过滤为主要去除手段,则 $LRV_T = 2$ 。

膜组件在出厂前,膜生产企业需要对其进行负荷试验(challenge test),得到膜产品对某微生物的截留性能,以 LRV_C 表示。只有当膜产品的截留性能优于期望值(即 $LRV_C \geq LRV_T$)时,膜产品才为合格品,否则即视为残次品(见图1)。负荷试验并不针对所有膜组件产品,而是通过随机的方式进行抽选。但是,不参与负荷试验的膜组件产品必须通过非破坏性性能测试(Non-destructive performance test, NDPT)。NDPT 类似于随后介绍的直接膜完整性检测,也可以得到对应的 LRV_C 值。 LRV_C 的确定方法如下:当测试产品数小于 20 时, LRV_C 取所有测试结果的最小值;当测试数大于 20 时, LRV_C 取所有测试结果的 10%分位数(即参与负荷试验的所有膜组件产品中有 90%的产品对某种微生物的对数去除值不小于 LRV_C)。

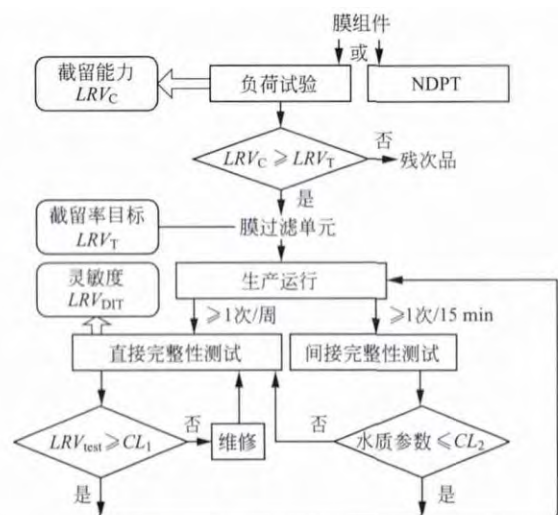


图1 膜组件负荷试验、膜过滤单元直接完整性测试和间接完整性监测的结构关系

通过负荷试验或 NDPT 的超滤膜组件可以用于制水企业的实际生产运行。由于超滤膜的实际有效厚度(即过滤皮层)仅在微米量级,在设备安装、检修或膜清洗过程中,或在待滤水中尖锐物质的作用下,可能会发生表面破损,从而造成截留性能的下降。为了保证超滤膜截留性能的持续性,需要在膜工艺运行过程中对膜进行完整性测试。膜完整性测试针对的是整套膜过滤装置,除膜组件本身以外,还可以发现装置内各管道、阀门、监测仪表连接处可能出现的泄漏问题。

膜的完整性测试包括直接完整性测试(direct integrity test)和间接完整性监测(indirect integrity monitoring)(见图 1)。直接完整性测试的灵敏度用 LRV_{DIT} 表示。灵敏度反映的是可以通过直接完整性检测确认的、该膜过滤单元对某微生物的最大截留能力。膜过滤单元对某微生物的最终截留性能,是(负荷试验得到的) LRV_C 和(直接完整性测试的灵敏度) LRV_{DIT} 两者之中的较低值。直接完整性测试的结果用 LRV_{test} 表示。当 LRV_{test} 小于某一设定的控制限值(control limit)时,说明膜的完整性可能受到破坏。此时需要找出该膜过滤单元的问题发生点。如果问题得到确认,即需对该膜过滤单元进行维修。维修完成后需再次进行直接完整性检测,检测合格后方可投入运行。直接完整性测试的控制限值最小为制水企业或管理部门的期望值(LRV_T)。但有时为了提高膜过滤单元的截留能力安全系数,控制限值可以设定得更高,主要起预警的作用。

由于目前已开发的所有直接完整性测试方法都需要暂停膜过滤单元的运行,因此不能连续不间断地进行。美国环保局为了确保对隐孢子虫的去除,要求制水企业对每一个独立的膜过滤单元进行的直接完整性检测的频率不小于 1 次/d。世界其他地区的膜工艺水厂,直接完整性检测的周期从 4 h 到 1 周不等。为了连续监测膜过滤单元的完整性,保障滤后水水质,需要进行间接完整性监测。间接完整性监测是直接完整性检测的必要补充。间接完整性测试的优点是可以连续进行,但其灵敏度(响应能力)不如直接完整性检测,因此只能起预警作用。实际操作时,制水企业可以根据自身的情况设定一个(或一些)控制限值(control limit),当间接完整性监

测的测定值超过控制限值时,即立刻启动直接完整性检测(见图 1)。美国环保局要求间接完整性检测的频率不得小于 1 次/15 min。在此频率下,可以认为是连续监测。

2 负荷试验

负荷试验的目的是在膜组件出厂前确定其对某微生物的截留能力(LRV_C 值)。美国环保局强调对隐孢子虫的去除,但该微生物可以是任何影响饮用水安全的微生物,包括隐孢子虫(粒径 $3\sim 7\ \mu\text{m}$)、贾第鞭毛虫(粒径 $7\sim 15\ \mu\text{m}$)、粪大肠杆菌(粒径 $1\sim 4\ \mu\text{m}$)、肠道病毒(粒径 $0.03\sim 0.1\ \mu\text{m}$)等。用于饮用水处理的膜组件的形式主要分为压力容器式和浸没式。两种形式的膜组件都可以在死端过滤或错流过滤方式下运行。虽然膜组件形式和运行方式有所不同,但负荷试验的操作方法和流程基本相同(见图 2)。正常情况下,用于负荷试验的膜组件必须与用于实际工程的膜组件完全相同。负荷试验的水力条件也必须与实际工程相同。

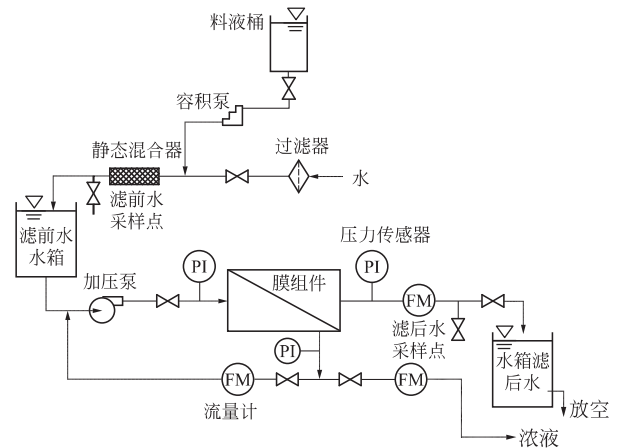


图 2 负荷试验基本流程^[1]

进行负荷试验时,可使用需去除的微生物直接配置滤前水。但更多情况下是利用“替代颗粒物”(surrogate particulate)配置滤前水。因为颗粒物粒径越大,超滤膜对其截留能力越强,因此替代颗粒物的粒径必须小于其替代的微生物。利用替代颗粒物的目的是为了操作安全简单、检测容易和减少费用。替代颗粒物可以是其他微生物、惰性颗粒物(如 latex)、分子标记物(如蛋白质分子)等。例如, *S. marcessans* 和 *P. dimunita* 常被用作隐孢子虫的替代物,而 MS2 噬菌体常被用作肠道病毒的替

代物。

负荷试验可以确定的最高 LRV_C 值为 6.5。当目标 LRV_C 值确定以后,负荷试验滤前水中微生物或替代颗粒物的浓度 C_f 为:

$$10^{6.5} DL \geq C_f \geq 10^{LRV_C} DL \quad (2)$$

式(2)中, DL 为用于负荷试验的微生物或替代颗粒物的检测限。当负荷试验的滤后水中微生物或替代颗粒物的浓度低于检测限时,须用检测限代替。微生物或替代颗粒物可以一次性投加或连续投加至滤前水箱中。为了分散更均匀,先将微生物或替代颗粒物配置成浓度更高的储备液(料液)为宜。

3 直接完整性检测

膜的直接完整性检测至关重要,它是考察膜组件在运行过程中对微生物截留能力的最直接手段。膜完整性检测的对象是单个膜过滤单元,包括其中的膜组件以及连接管路和配件等。根据检测手段不同,膜的直接完整性检测可以分为压力式(pressure-based)和标记物式(marker-based)两大类型,其中压力式应用更为普遍。无论是何种形式,其必须在分辨能力(resolution),灵敏度(sensitivity)和检测频率(frequency)满足制水企业或相关管理部门的要求。

分辨能力须根据需去除的微生物的大小决定。例如,隐孢子虫的粒径为 $3 \sim 7 \mu\text{m}$,当膜表面的缺陷超过 $3 \mu\text{m}$ 时,即可能在运行过程中在缺陷处发生隐孢子虫的泄漏,此时需要膜的直接完整性检测手段能够分辨出 $3 \mu\text{m}$ 或更小的膜表面缺陷。

灵敏度(LRV_{DIT})反映的是可以通过直接完整性检测确认的、该膜过滤单元对某微生物的最大截留能力。目前大多数直接完整性检测方法的 LRV_{DIT} 都大于 4^[2]。最灵敏的直接完整性检测方法可以在上百万根膜丝中发现一根断裂膜丝^[7]。

检测频率即针对每个膜过滤单元启动直接完整性检测的频率。检测频率根据最低微生物截留要求(LRV_T)、膜组件的破损几率以及膜组件的大小决定^[8]。由于隐孢子虫对健康的高风险,美国环保局要求检测频率最低为每天 1 次。但当膜生产企业资质优良且在长期的膜完整性检测期未发现问题时,可以适度降低检测频率。一般情况下,检测频率不高于 1 次/周。

3.1 压力式检测手段

压力式直接完整性检验利用的原理是泡点理论,即在一定的空气压力条件下,膜表面的微孔中,只有孔径大于某一数值时才能形成气泡,也即才能形成(除扩散以外的)的空气流动。虽然原理相同,但试验的形式有几种,包括压力衰减(pressure decay)试验、真空度衰减(vacuum decay)试验、恒压力时空气流量(diffusive airflow)试验以及(外压式膜组件)恒压力时膜腔内水置换速率(water displacement)试验等。其中,压力衰减试验应用最为广泛,其装置示意如图 3 所示。

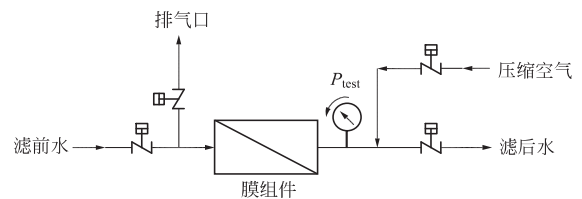


图 3 膜的直接完整性检测装置示意^[1]

根据泡点理论,起泡点压力(P_{bp} , Pa)与孔径(d_{cap} , m)之间的关系为

$$P_{bp} = \frac{4\kappa\sigma\cos\theta}{d_{cap}} \quad (3)$$

式中 κ ——孔形状修正系数;

σ ——水的表面张力, J/m^2 ;

θ ——膜表面的接触角。

压力衰减试验所需的操作压力包括起泡点压力和(微孔处的)静水压(BP),即 $P_{test} = P_{bp} + BP$ 。式(3)表明,压力衰减试验要求的分辨能力越高(d_{cap} 越小),测试所需的压力越大。膜越亲水(θ 越接近 0)、膜孔越规整(κ 越接近 1),所需测试压力也越大。通常为了保守起见, θ 值和 κ 值分别取 0 和 1, σ 取 $74.95 \text{ mJ}/\text{m}^2$ ($5 \text{ }^\circ\text{C}$ 的水),即:

$$P_{test} = \frac{0.3}{d_{cap}} + BP \quad (4)$$

压力衰减试验的检测灵敏度用式(5)表示:

$$\begin{aligned} LRV_{DIT} &= \log\left(\frac{Q_p}{VCF \cdot Q_{breach}}\right) = \log\left(\frac{Q_p \cdot ALCR}{VCF \cdot Q_{air}}\right) \\ &= \log\left(\frac{Q_p \cdot ALCR \cdot P_{atm}}{VCF \cdot \Delta P_{test} \cdot V_{sys}}\right) \end{aligned} \quad (5)$$

式中 Q_p ——被检测膜过滤单元的总产水流量 L/min ;

Q_{breach} ——膜表面最小可准确检测破损(缺陷)处的水流量, L/min ;

VCF——过滤液浓缩系数(死端过滤时 VCF 为 1; 错流过滤时过滤液被浓缩, VCF>1)。

式(5)的物理含义或基本假设是,膜表面破损处对微生物完全无截留能力,而膜表面完好处对微生物的截留能力为 100%。压力衰减测试不直接测定 Q_{breach} , 而是测定膜过滤系统的压力下降速率 (ΔP_{test} , Pa/min)。 ΔP_{test} 对应的是从膜表面破损处通过的空气流量为 Q_{air} 。对压力衰减试验而言, Q_{air} 与 ΔP_{test} 的关系为 $Q_{air} = \Delta P_{test} V_{sys} / P_{atm}$, 其中 V_{sys} 为试验装置内压缩空气的体积(L)。而 Q_{air} 与 Q_{breach} 之间的关系用 ALCR(气-液转换系数)表征, 即 $Q_{breach} = Q_{air} / ALCR$ 。ALCR 的计算方法与气/水通过膜孔的流态以及膜组件的类型(中空纤维膜或平板膜)有关, 详见参考文献[1]。

式(5)表明, Q_p 和 V_{sys} 一定的情况下, 最小可检测的 ΔP_{test} 越小, 检测灵敏度越高。 ΔP_{test} 的测定方法通常是在膜表面人为制造破损(缺陷), 缺陷的大小即试验的分辨能力 [d_{cap} , 式(4)]。如图 4 所示, 膜过滤单元中膜组件的破损点数目越多, ΔP_{test} 越大。当破损点数目达到 n 时, ΔP_{test} 可以准确测定, 该值即用于灵敏度的计算。通常情况下, 膜组件完全无破损时由于气体扩散作用导致的 ΔP_{test} 可以忽略。压力衰减测试的灵敏度通常大于 $5^{[2]}$ 。

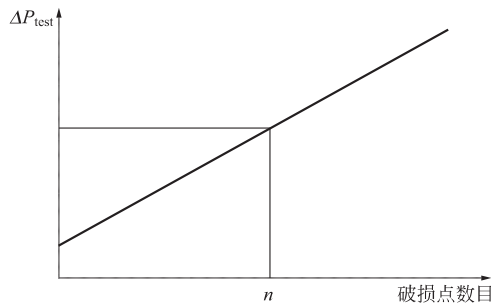


图 4 压力衰减测试的灵敏度计算示意

3.2 标记物式检测手段

标记物式直接完整性检测与膜组件的负荷试验基本相同, 因此也被称为“小型负荷试验”。标记物式检测所用的颗粒态标记物即负荷试验所用的替代颗粒物, 但必须足够安全, 不影响膜过滤出水水质。

同压力式检测相比, 标记物式检测的分辨能力和灵敏度的确定更为简单直接。标记物式检测的分辨能力即为标记物的大小。标记物式检测的灵敏度

可用式(6)表示:

$$LRV_{DIT} = \log(C_f) - \log(C_p) \quad (6)$$

式中 C_f ——滤前水中标记物的浓度;

C_p ——膜过滤单元无表面破损时滤后水中标记物的浓度。

3.3 直接完整性检测控制限值的确定

控制限值的含义是, 当膜过滤单元对微生物的截留能力低于该控制限值时, 表明膜过滤单元可能出现完整性问题(如出现膜表面缺陷等), 需要对膜过滤单元进行检查或者维护。为了与直接完整性检测的灵敏度 (LRV_{DIT}) 进行比较, 其控制限值通常也表示成对数去除值 (LRV_{CL})。对每一个膜过滤单元, 控制限值最少设置 1 个, 但也可以设置多个, 目的是逐级提供预警。控制限值的大小和数量可根据制水企业自己的需要设定, 但最小不得低于相关管理部门对过滤的最低截留率的要求 (log removal credit, LRC)。由于 LRV_{DIT} 是通过直接完整性检测得到的膜过滤单元对微生物的最大截留能力, 因此控制限值最大为 LRV_{DIT} 。

与标记物式直接完整性检测不同, 压力式直接完整性检测的响应是空气流量 (Q_{air}) 或与之相关的参数, 为了比较方便, 控制限值通常设置成操作参数。对压力衰减试验而言, 控制限值的设定与式(5)类同, 即:

$$\Delta P_{CL} = \frac{Q_p \cdot ALCR \cdot P_{atm}}{VCF \cdot 10^{LRV_{CL}} \cdot V_{sys}} \quad (7)$$

当 LRV_{CL} 为 LRC 时, 式(7)表示为

$$\Delta P_{UCL} = \frac{Q_p \cdot ALCR \cdot P_{atm}}{VCF \cdot 10^{LRC} \cdot V_{sys}} \quad (8)$$

式中, ΔP_{UCL} 为采用压力衰减法进行直接完整性检测时, 为了满足膜过滤单元最低截留率的要求, 最大可允许的压力衰减速率。

4 间接完整性检测

膜的间接完整性检测和直接完整性检测起相互补充的作用。直接完整性检测的灵敏度足够高, 但不能连续进行; 间接完整性检测能连续进行, 但灵敏度不足以验证膜过滤单元对微生物的截留效果。

与直接完整性检测不同, 间接完整性检测不直接对膜过滤单元进行物理检测, 而是通过监测滤后水的某些水质参数推断膜过滤单元是否存在完整性

问题。间接完整性检测至少需要满足以下 3 个要求:①每一个膜过滤单元的间接完整性检测必须独立;②间接完整性检测必须连续进行,其定义是每 15 min 至少有 1 次检测;③必须设定控制限值,出水水质参数超过控制限值时,启动直接完整性检测。

间接完整性检测的默认水质参数是浊度。美国环保局要求浊度的最大控制限值为 0.15 NTU,当浊度的两个连续监测值(间隔不大于 15 min)都大于 0.15 NTU 时,必须启动直接完整性检测。大部分膜过滤单元的滤后水浊度都小于 0.07 NTU,因此滤后水浊度大于 0.15 NTU 表示膜过滤单元可能出现完整性问题。制水企业可以根据自身需要,将控制限值设置在一个较 0.15 NTU 更低的水平(如 0.1 NTU)。较低的控制限值有利于为膜过滤单元提供预警。启动直接完整性检测之后,如果未发现完整性问题,该膜过滤单元可继续运行,否则必须进行检查或维护。用浊度进行间接完整性检测的优点是浊度仪价格相对便宜、浊度测定结果准确稳定,缺点是常规浊度仪的灵敏度不高、易受气泡夹带的影响。常规浊度仪的灵敏度通常小于 0.3 个 log。

除浊度之外,还可以用其他水质参数进行间接完整性检测。其中,滤后水中颗粒物数量浓度(个/mL)具有较好的潜在应用前景。相比于常规浊度仪,颗粒计数仪的灵敏度更高,可以达到 3.5 个 log。目前,美国环保局尚未对颗粒物数量浓度设定最大控制限值,因此颗粒物数量浓度尚不能取代浊度用于间接完整性检测,而只能作为附加检测手段。制水企业在利用颗粒物数量浓度进行间接完整性检测前,需确定膜完整时的背景颗粒物数量平均浓度和波动范围以及人为制造膜表面缺陷后的颗粒物数量平均浓度和波动范围等,以此确定合适的控制限值。控制限值不具有普适性,与滤前水水质以及膜过滤运行条件密切相关,必须现场确定。除此之外,利用滤后水中颗粒物的数量浓度进行检测的缺点包括颗粒计数仪价格较昂贵、易被颗粒物堵塞、颗粒物数量浓度较低时测量精度不高、易受气泡夹带的影响等。

5 结语

制水企业和相关管理部门对膜工艺的信心

来源于两个方面:一是截留能力和机械性能值得信赖的膜产品;二是灵敏可靠的膜完整性检测装置。相对而言,我国较注重膜产品本身,对完整性检测的认识和重视程度不够。在发达国家,膜的完整性检测是膜过滤工艺必备的部分。完整性检测对膜组件的机械冲击很小,对整体得水率的影响也较小。

到目前为止,尚未开发出能够不中断膜过滤的直接完整性检测手段,也未开发出灵敏度足够高的间接完整性检测手段。但是,一些正在研究中的完整性检测手段(如使用纳米金颗粒、磁性颗粒等)具有很好的应用前景。在将来,完整性检测会更加灵敏,对膜组件和膜过滤运行的影响更小。

参考文献

- 1 USEPA. Membrane Filtration Guidance Manual (EPA 815-R-06-009). United States Environmental Protection Agency, Office of Water, 2005
- 2 Guo H, Wyart Y, Perot J, et al. Low-pressure membrane integrity tests for drinking water treatment: a review. *Water Research*, 2010, 44: 41~57
- 3 高大林. 水处理低压膜技术的分析与评价. [见]: 膜分离技术在石油和化工行业中应用研讨会论文集. 2006
- 4 邵喜辉, 李星, 杨艳玲, 等. 不同颗粒检测技术监测超滤膜完整性对比研究. 膜分离技术在石油和化工行业中应用研讨会论文集. 2006
- 5 黄明珠, 叶挺进. 浸没式超滤膜完整性检测与膜丝修补方法探讨. *给水排水*, 2010, 36(3): 17~20
- 6 尹延梅, 宋新宇, 张宏伟, 等. 水处理中低压膜完整性检测. *天津工业大学学报*, 2012, 31(5): 18~24
- 7 Johnson W T. Predicting log removal performance of membrane systems using in-situ integrity testing. *Filtration & Separation*, 1998, 1(35): 26~29
- 8 Bennett A. Maintaining the integrity of filtration systems. *Filtration & Separation*, 2005, 42(1): 30~33

○ 通讯处: 100084 北京市海淀区清华大学中意环境节能楼

电话: (010)62781386

E-mail: wangxiaomao@mail. tsinghua. edu. cn

收稿日期: 2013-04-07