

pH 和发酵时间对厨余垃圾发酵产乳酸及光学特性的影响

张波, 何晶晶*, 邵立明

(同济大学污染控制与资源化研究国家重点实验室, 上海 200092)

摘要:通过间歇实验探讨了在中温、非灭菌条件下, pH 和发酵时间对厨余垃圾发酵产乳酸及其光学特性的影响. 结果表明, 采用非灭菌的厨余垃圾发酵产乳酸, 发酵液中还原糖浓度低, pH 调节到近中性和偏碱性(pH 为 6~8)的各组还原糖浓度高于偏酸性组(pH=5 和 pH=4 的对照组); 在控制 pH 为 7 时, 总乳酸产生速率达到 $0.59 \text{ g} \cdot (\text{L} \cdot \text{h})^{-1}$, 单位挥发性固体的乳酸产量达到 $0.62 \text{ g} \cdot \text{g}^{-1}$; 控制 pH 为 7 和 8 时, 以有机碳表示的乳酸分别占发酵液总有机碳的 78% 和 89%; 控制 pH 为 8 时, L-乳酸是主要的异构体形式, 单位挥发性固体 L-乳酸产量达到 $0.48 \text{ g} \cdot \text{g}^{-1}$; 响应面分析结果表明, 发酵时间在 120 h 前, 随着 pH 升高和发酵时间的延长, 发酵液中 L-乳酸浓度增大, 120 h 后则下降; pH 和发酵时间对 L-乳酸占总乳酸的比例有明显影响: 偏酸性条件(未调 pH 及 pH=5), 发酵前 120 h, 该比例随发酵时间逐渐增大, L-乳酸在总乳酸中的比例达到 0.9, 其后, 则逐渐下降; 偏碱性条件下(pH=8), L-乳酸在总乳酸中的比例在整个发酵时间段内都保持在 0.86 以上, 在发酵时间 48 h 时达到 0.93, 而在 pH 中性条件下, 该比例在发酵后期显著下降; 控制 pH 为 8 时, 可以同时获得高的乳酸产量和光学纯度.

关键词:厨余垃圾; 乳酸; 异构体; 光学纯度; pH; 发酵时间

中图分类号: X705 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2007)04-0881-05

Effect of pH and Fermentation Time on Yield and Optical Purity of Lactic Acid from Kitchen Wastes Fermentation

ZHANG Bo, HE Pin-jing, SHAO Li-ming

(State Key Laboratory of Pollution Control & Resource Reuse, Tongji University, Shanghai 200092, China)

Abstract: Batch experiments were carried out to analyze the effect of pH and fermentation time on the yield of total lactic acid and the distribution of L- and D-lactic acid among total lactic acid during the non-sterilized fermentation of kitchen wastes. The results show that the concentration of reduced sugar (calculated as organic carbon) is low, and its concentration was higher at neutral and alkali conditions (pH 6~8) than at acidic conditions (non-controlled pH and pH=5). The maximum total lactic acid production rate and yield is $0.59 \text{ g} \cdot (\text{L} \cdot \text{h})^{-1}$ and 0.62 g per gram VS at pH 7, respectively. The proportion of lactic acid (calculated as organic carbon) among the TOC reaches 78% and 89% at controlled pH 7 and 8, respectively. The L-lactic acid is the predominant isomer form at pH 8. Lactic acid concentration depends on pH, fermentation time and interaction from the response surface analysis. pH and fermentation time have a significant effect on the optical purity of lactic acid. At acidic conditions, the ratio of L-lactic acid to the total lactic acid increases with the fermentation time before 120 h, and the ratio reaches 0.9 at 120 h. At alkaline conditions, the ratio keeps at above 0.86 in the whole experimental fermentation time and reaches the maximum value(0.93) at 48 h. It decreases with fermentation time at pH 7. To obtain high lactic acid yield and optical purity simultaneously, it is suggested that pH should be controlled at 8.

Key words: kitchen wastes; lactic acid; isomer; optical purity; pH; fermentation time

乳酸是具有多种功能的化学物质, 广泛应用于食品、医药、纺织和化工等行业. 乳酸有 2 种同分异构体, 即 L-乳酸和 D-乳酸. 高光学纯度的 L-乳酸或 D-乳酸是食品行业和聚乳酸生产过程中的最佳原料^[1, 2]. 利用化学合成法只能得到乳酸的消旋体, 而微生物发酵法则可以通过接种适宜的菌种和调控发酵条件得到特定的旋光异构体^[3, 4]. 目前, 利用富含碳水化合物的有机废物(如麦麸、污泥和厨余等)发酵产乳酸, 因其资源与环境意义得到了广泛的研究^[5~8], 其焦点之一是提高乳酸的光学纯度, 通常的方法是在灭菌条件下投入纯培养菌种^[2, 5]. 但利用

纯菌种发酵产乳酸, 对废物灭菌需要消耗大量能量, 且单一菌种发酵难以充分利用废物中不同结构的碳水化合物^[9]. 尽管一些研究者认为, 利用非灭菌的有机废物发酵产乳酸, 得到的乳酸光学纯度低. 但有关未灭菌发酵系统中, 乳酸发酵产生的 L-乳酸或 D-乳酸的浓度水平、在总乳酸中的比例及影响因素却鲜有报道, 因此难以判断在非灭菌条件下接种何种类

收稿日期: 2006-06-07; 修订日期: 2006-08-27

基金项目: 2004 年度科技部中法先进研究计划项目(PRA E04-03); 中国博士后科学基金项目(20060390653)

作者简介: 张波(1977~), 女, 博士后, 主要研究方向为固体废物处理与资源化.

* 通讯联系人, E-mail: solidwaste@mail.tongji.edu.cn

型的微生物菌种(L-乳酸菌或 D-乳酸菌),以及根据实际应用中对乳酸光学纯度的需求有无必要接种纯种微生物.本研究以本身含有丰富土著产乳酸菌^[10]的厨余垃圾为对象,研究不同 pH 和发酵时间对乳酸产率及其光学特性变化的影响,以期为提高非灭菌厨余垃圾发酵产乳酸的光学纯度提供依据.

1 材料与方法

1.1 厨余垃圾的来源和特性

本实验所用厨余垃圾取自某大学学生食堂,主要包括米饭、蔬菜、肉和豆腐等.取来的厨余垃圾经过小型搅碎机粉碎后,放入 4℃ 冰箱保存待用.厨余垃圾的主要性质见表 1.其挥发性固体(VS)与总固体(TS)的比值表明,厨余垃圾中有机组分含量高,占 98.2%.在有机组分中,淀粉、总糖和还原糖等碳水化合物分别占 42.3%、28.3%和 3.5%.

表 1 厨余垃圾的性质¹⁾

Table 1 Characteristics of kitchen wastes			
测试指标	测量值/%	测试指标	测量值/%
TS	14.3±0.2	O	48.7±0.8
VS/TS	98.2±0.1	蛋白质	17.8±0.9
C	42.1±1.0	还原糖	3.5±0.4
H	6.5±0.3	总糖	28.3±1.2
N	2.0±0.1	淀粉	42.3±1.5
S	0.7±0.05		

1)除 TS 外,其余指标均为占 VS 的质量分数

1.2 实验条件和操作

量取 58.5 g 厨余垃圾放置在 100 mL 聚乙烯瓶中,加入 80 mL 0.004 mol·L⁻¹ K₂HPO₄ 和 KH₂PO₄ 缓冲溶液,再以 5% 的 NaOH 或 1 mol·L⁻¹ 的 HCl 调节 pH 至设定值(pH 为 5、6、7 和 8),以后每 12 h 用相同溶液进行重复调整;对照反应瓶,不调节 pH 和不加入缓冲溶液(实测 pH≈4);聚乙烯瓶用带有出气孔的橡胶塞密闭后,置于 35℃ 恒温水浴摇床中进行培养.每 12h 测定培养液 pH,第 8、24、32、48、72、96、120、144 h 测定培养液化学组成.

1.3 分析方法

pH, TS, VS 根据标准方法测定^[11].总有机碳(TOC)采用 multi N/C 3000 分析仪 (Analytik jena, German)测定. C、H、N、S 通过元素分析仪 CHNS-900 测定 (LECO, USA).还原糖通过 3,5 二硝基苯磺酸法测定^[11].在测定总糖和淀粉之前,首先将厨余垃圾在 105℃ 下烘干,然后采用 6 mol·L⁻¹ 的 HCl 分别煮沸 30 min 和 2 h,产生的水解液采用与还原糖相同的测试方法测定.在乳酸、挥发性有机酸和乙醇测定

前,样品首先经 4 000 r·min⁻¹ 离心 10 min,然后以 0.45 μm 滤膜过滤,取滤液测定.乳酸用装有手性分离柱 Astec CLC (Dikma, USA)的高效液相色谱 1100 (Varian, USA)测定,流动相为 5 mmol·L⁻¹ CuSO₄ 溶液,流量 1 mL·min⁻¹.挥发性有机酸采用液相色谱 LC-20AD (Shimadzu, Japan)测定,流动相采用甲苯磺酸, CDD 检测器.乙醇采用气相色谱 GC102 分析 (上海精密科学仪器有限公司).

1.4 统计分析

应用响应面分析法(response surface methodology, RSM)研究 pH 和发酵时间对 L-乳酸产生浓度的交互影响.响应面生成和误差分析由统计分析软件 Design-Expert Version 7.0 (Stat-Ease, Minneapolis, USA)完成.

2 结果与讨论

2.1 还原糖

颗粒态物料发酵产乳酸需要经过水解、糖化和发酵产乳酸 3 个阶段,只有每个阶段的产物迅速被利用,才能保持代谢的连续性,否则将会发生产物积累,引起对代谢过程的抑制^[12].在本实验中糖化和产乳酸过程是同步进行的.图 1 显示了不同 pH 条件下,厨余垃圾发酵液中还原糖浓度的变化.在各个 pH 条件下,发酵液中还原糖浓度都很低,且均呈先升高,后下降到最低的趋势. pH 调节到近中性和偏碱性的各组(pH 为 6、7、8),还原糖浓度高于偏酸性组(pH=5 和对照组),这是由于调节 pH 能够明显提高厨余垃圾的水解效率^[13, 14].

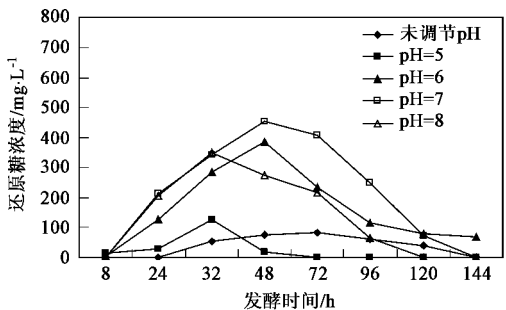


图 1 pH 对厨余垃圾发酵液中还原糖浓度的影响
Fig.1 Effect of pH on the production of reduced sugar from kitchen wastes fermentation

2.2 乳酸

不同 pH 条件下乳酸浓度的变化如图 2 所示.在 120 h 的发酵时间内,不同 pH 条件下,乳酸浓度随发酵时间均呈线性递增(pH = 8, 线性回归方程

$y = 0.43x$, $R^2 = 0.960$; pH = 7, 线性回归方程 $y = 0.59x$, $R^2 = 0.909$; pH = 6, 线性回归方程 $y = 0.35x - 6.3$, $R^2 = 0.916$; pH = 5, 线性回归方程 $y = 0.15x - 3.31$, $R^2 = 0.853$; 未调节 pH, 线性回归方程 $y = 0.06x - 0.04$, $R^2 = 0.926$). 由线性回归结果可知, 控制 pH 为 7 时, 乳酸的产生速率最大为 $0.59 \text{ g} \cdot (\text{L} \cdot \text{h})^{-1}$; 原料 VS 的乳酸转化率同样最高达 $0.62 \text{ g} \cdot \text{g}^{-1}$. 而未调节 pH 和 pH = 5 时, 在整个实验时间内, 乳酸的产生随发酵时间增长缓慢. Sakai 等^[15]的研究也表明, 中温条件下, 控制 pH 为中性有利于厨房垃圾在非灭菌系统中乳酸的生成.

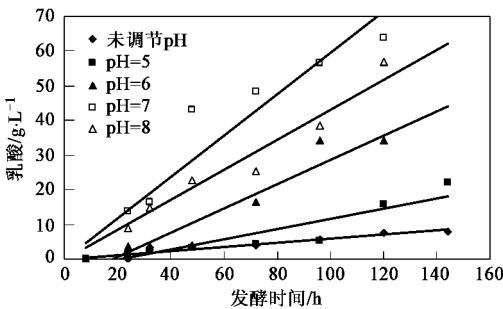


图2 pH对厨余垃圾发酵液中乳酸浓度的影响
Fig.2 Effect of pH on the production of lactic acid from kitchen wastes fermentation

图3显示了厨余垃圾在发酵120 h时, 各发酵产物的组成(以碳表示). 乳酸在发酵产物中占较高比例, 尤其在控制 pH = 7 和 pH = 8 时, 以有机碳表示的乳酸占发酵液总有机碳的 78% 和 89%, 而 VFA 和乙醇的比例则相对较低.

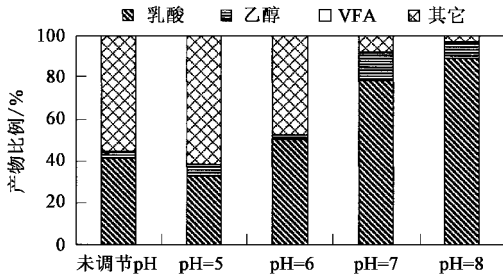


图3 pH对厨余垃圾主要发酵产物组成的影响
Fig.3 Effect of pH on the distribution of fermentation products from kitchen wastes fermentation

2.3 乳酸的光学特性

如图4所示, 厨余垃圾乳酸发酵过程中, 乳酸的2个同分异构体中, 各 pH 条件下, L-乳酸浓度在实验前期均稳定上升, 但最高浓度和出现时间有异. 最高浓度与 pH 值呈反比, pH = 8 组最高浓度为 $49 \text{ g} \cdot \text{L}^{-1}$, L-乳酸产量为 $0.48 \text{ g} \cdot \text{g}^{-1}$; 出现时间次序分别为: 72 h (pH = 7)、96 h (pH = 6)、120 h (pH = 8 和未调节) 和 144 h (pH = 5). 除未调节 pH 组外, 各组 D-乳酸浓度上升均滞后于 L-乳酸, 因此, L-乳酸在总乳酸中的比例, 随发酵时间基本呈下降趋势, 如 pH = 7 组, 乳酸光学纯度, 从最高的 0.86 (72 h), 至 144 h 降为 0.44; 但 pH = 8 组, 在整个发酵时间内, L-乳酸在总乳酸中的比例始终保持在 0.86 以上, 最大为发酵 48 h 时 (0.93).

$\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$, L-乳酸产量为 $0.48 \text{ g} \cdot \text{g}^{-1}$; 出现时间次序分别为: 72 h (pH = 7)、96 h (pH = 6)、120 h (pH = 8 和未调节) 和 144 h (pH = 5). 除未调节 pH 组外, 各组 D-乳酸浓度上升均滞后于 L-乳酸, 因此, L-乳酸在总乳酸中的比例, 随发酵时间基本呈下降趋势, 如 pH = 7 组, 乳酸光学纯度, 从最高的 0.86 (72 h), 至 144 h 降为 0.44; 但 pH = 8 组, 在整个发酵时间内, L-乳酸在总乳酸中的比例始终保持在 0.86 以上, 最大为发酵 48 h 时 (0.93).

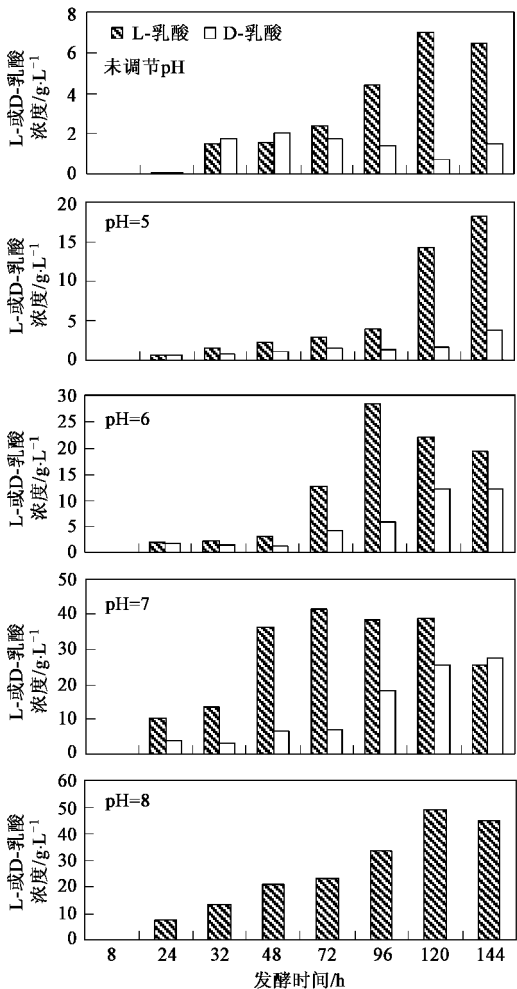


图4 pH对厨余垃圾发酵液中L-或D-乳酸产生浓度的影响
Fig.4 Effect of pH on the production of L- or D-lactic acid from kitchen wastes fermentation

由于 L-乳酸是主要的乳酸异构体形式, 因此应用 RSM 分析了 pH 和发酵时间对 L-乳酸产生的交互影响, 如图5所示. 得到的响应面方程为: $\text{Sqrt}(\text{L-乳酸}) = 38.77 - 21.00 \times A - 0.078 \times B + 0.034 \times A \times B + 1.44\text{E} - 004 \times B^2 - 1.56\text{E} - 004 \times A \times B^2 - 0.20 \times A^3$. 实验因素、水平及响应值和方差分析结果分别见表2、表3. 响应面方程差异性显著, 方差为 0.919.

RSM 分析表明,从总体上看,发酵前 120 h,随着 pH 的升高和发酵时间的延长,L-乳酸浓度会逐渐增大,但继续延长发酵时间,L-乳酸浓度下降.

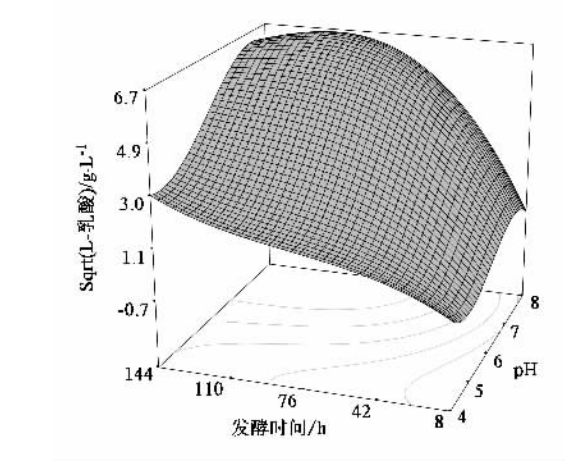


图 5 pH 和发酵时间对厨余垃圾发酵液中 L-乳酸浓度影响的响应面分析

Fig.5 Response surface for L-lactic acid production as a function of pH and fermentation time

表 2 实验因数、水平及响应值

Table 2 Factors, levels and response value of designed experiments					
因素 A-pH	因素 B- 发酵时 间/h	响应值 L-乳酸 /g·L ⁻¹	因素 A-pH	因素 B- 发酵时 间/h	响应值 L-乳酸 /g·L ⁻¹
4	8	0.0	4	72	2.4
5	8	0.0	5	72	2.9
6	8	0.0	6	72	12.5
7	8	0.0	7	72	41.5
8	8	0.0	8	72	23.1
4	24	0.1	4	96	4.4
5	24	0.6	5	96	3.9
6	24	1.9	6	96	28.4
7	24	10.3	7	96	38.4
8	24	7.6	8	96	33.5
4	32	1.5	4	120	7.0
5	32	1.5	5	120	14.3
6	32	2.1	6	120	22.0
7	32	13.3	7	120	38.6
8	32	13.3	8	120	49.0
4	48	1.5	4	144	6.5
5	48	2.3	5	144	18.1
6	48	3.0	6	144	19.3
7	48	36.3	7	144	25.2
8	48	21.0	8	144	45.0

乳酸具有 L-乳酸和 D-乳酸 2 个光学异构体是由于乳酸脱氢酶具有立体异构性,分为 L-乳酸脱氢酶和 D-乳酸脱氢酶,脱氢酶的类型决定着乳酸的光学纯度^[16].多数乳酸细菌只具有 1 种脱氢酶,因此只产生 L-乳酸或 D-乳酸;同时,有些乳酸菌先产生

表 3 pH 和发酵时间对厨余垃圾发酵液中 L-乳酸浓度影响的响应面误差分析¹⁾

Table 3 Analysis of variance of response surface of the influence of pH and fermentation time on L-lactic acid concentration

影响因素	方差和	自由度	均方差	F	P
Model	169.19	9	18.80	37.64	<0.000 1 S
A-pH	27.47	1	27.47	54.99	<0.000 1 S
B-发酵时间	6.11	1	6.11	12.23	0.001 5
AB	3.87	1	3.87	7.74	0.009 3
A ²	0.14	1	0.14	0.27	0.605 7 NS
B ²	12.49	1	12.49	25.00	<0.000 1
A ² B	0.058	1	0.058	0.12	0.735 7 NS
AB ²	5.40	1	5.40	10.82	0.002 6
A ³	4.61	1	4.61	9.24	0.004 9
B ³	0.65	1	0.65	1.29	0.264 4 NS

1)S,显著; NS,不显著

L-乳酸,但当 L-乳酸积累和其它环境条件,如曝气、pH、温度和营养等条件变化时^[17~19],会诱导 1 种消旋酶,该酶把 L-乳酸转化为 D-乳酸,直至达到平衡^[20].*Lactobacillus helveticus*, *Lactobacillus plantarum*, *Lactobacillus cocus* 等乳酸菌能够产生消旋混合物.因此,对于包含多种微生物种群的厨余垃圾,非灭菌、批式发酵条件下,发酵产生乳酸的光学纯度,既受微生物种群结构的影响,也与发酵环境条件和时间相关(影响乳酸累积水平).

尽管由于发酵系统中多样的微生物菌群结构会限制乳酸光学异构体纯度的进一步提高,但中温和非灭菌条件,却有利于大多数乳酸细菌和各类水解微生物的生长,因此,可以得到比接种单一菌株的灭菌反应器更高的乳酸产量.本研究发现,pH 控制为 8 和发酵时间 120 h 条件下,可同时得到较高的乳酸产量和光学纯度的结果,对有机垃圾乳酸发酵的工艺优化具有参考价值.

3 结论

(1) 采用非灭菌的厨余垃圾发酵产乳酸,发酵液中还原糖浓度低,pH 中性条件下,总乳酸产率和产量最大,分别为 0.59 g·(L·h)⁻¹和 0.62 g·g⁻¹.

(2) 控制 pH 为 8 时,L-乳酸是主要的异构体形式,最大的 L-乳酸产量可达到 0.48 g·g⁻¹.响应面分析表明,发酵前 120 h,随着 pH 的升高和发酵时间的延长,L-乳酸浓度会逐渐增大,但继续延长发酵时间,L-乳酸浓度下降.

(3) pH 和发酵时间对 L-乳酸占总乳酸的比例有明显影响:偏酸性条件(未调 pH 及 pH = 5),发酵前 120 h,该比例随发酵时间逐渐增大,L-乳酸在总

乳酸中的比例达到 0.9; 偏碱性条件下 ($\text{pH} = 8$), L-乳酸在总乳酸中的比例在整个发酵时间段内都保持在 0.86 以上, 在发酵时间 48h 时达到 0.93; 而在 pH 中性条件下, 该比例在发酵后期显著下降. 为同时获得高的乳酸产量和光学纯度, 最优的 pH 应控制在 8.

参考文献:

[1] Altaf M, Naveena B J, Venkateshwar M, *et al.* Single step fermentation of starch to L (+) lactic acid by *Lactobacillus amylophilus* GV6 in SSF using inexpensive nitrogen sources to replace peptone and yeast extract-Optimization by RSM[J]. *Process Biochemistry*, 2006, **41**(2): 465 ~ 472.

[2] Hofvendahl K, Hahn-Hägerdal B. L-lactic acid production from whole wheat flour hydrolysate using strains of *Lactobacilli* and *Lactococci*[J]. *Enzyme and Microbial Technology*, 1997, **20**(4): 301 ~ 307.

[3] Miura S, Arimura T, Noriakiitoda, *et al.* Production of L-lactic acid from corn cob[J]. *Journal of Bioscience and Bioengineering*, 2004, **97**(3): 153 ~ 157.

[4] Yun J S, Wee Y J, Ryu H W. Production of optically pure L (+)-lactic acid from various carbohydrates by batch fermentation of *Enterococcus faecalis* Rky1[J]. *Enzyme and Microbial Technology*, 2003, **33**(4): 416 ~ 423.

[5] Garde A, Gunnar J, Anette S, *et al.* Lactic acid production from wheat straw hemicellulose hydrolysate by *Lactobacillus pentosus* and *Lactobacillus brevis*[J]. *Bioresource Technology*, 2002, **81**(3): 217 ~ 223.

[6] Nakasake K, Akadura N, Adachi T, *et al.* Use of wastewater sludge as a raw material for production of L-lactic acid [J]. *Environmental Science and Technology*, 1999, **33**(1): 198 ~ 200.

[7] Wang Q H, Yamabe K, Narita J, *et al.* Suppression of growth of putrefactive and food poisoning bacteria by lactic acid fermentation of kitchen waste[J]. *Process Biochemistry*, 2001, **37**(4): 351 ~ 357.

[8] Sakai K, Taniguchi M, Miura S, *et al.* Making plastics from garbage [J]. *Journal of Industrial Ecology*, 2004, **7**(3 ~ 4): 62 ~ 74.

[9] Sakai K, Mori M, Fujii A, *et al.* Fluorecent *in situ* hybridization

analysis of open lactic acid fermentation of kitchen refuse using rRNA-targeted oligonucleotide probes[J]. *Journal of Bioscience and Bioengineering*, 2004, **98**(1): 48 ~ 56.

[10] 王旭明, 汪群慧, 任南琪, 等. 厨房垃圾中高效乳酸细菌的分离筛选及其发酵性能的研究[J]. *高技术通讯*, 2004, **10**: 75 ~ 79.

[11] 国家环境保护总局. 水和废水监测分析方法[M]. (第四版). 北京: 中国环境科学出版社, 2002. 258 ~ 285.

[12] Wang Q H, Narita J, Xie W M, *et al.* Effects of an anaerobic/aerobic incubation and storage temperature on preservation and deodorization of kitchen garbage[J]. *Bioresource Technology*, 2002, **84**(3): 213 ~ 220.

[13] 何晶晶, 潘修疆, 吕凡, 等. pH 值对有机垃圾厌氧水解和酸化速率的影响[J]. *中国环境科学*, 2006, **26**(1): 57 ~ 61.

[14] 吕凡, 何晶晶, 邵立明, 等. pH 值对易腐性有机垃圾厌氧发酵产物分布的影响[J]. *环境科学*, 2006, **27**(5): 991 ~ 997.

[15] Sakai K, Murata Y, Yamazumi H, *et al.* Selective proliferation of lactic acid bacteria and accumulation of lactic acid during open fermentation of kitchen refuse with intermittent pH adjustment[J]. *Food Science and Technology Research*, 2000, **6**: 140 ~ 145.

[16] Hofverdahl K, Hahn-hägerdal B. Factors affecting lactic acid production from renewable resources[J]. *Enzyme and Microbial Technology*, 2000, **26**(2 ~ 4): 87 ~ 107.

[17] Akerberg C, Hofvendahl K, Zacchi G, *et al.* Modeling the influence of pH, temperature, glucose and lactic acid concentration on the kinetics of lactic acid production by *Lactococcus lactis* spp. *lactis* ATCC19435 growing on maltose[J]. *Applied Microbiology and Biotechnology*, 1998, **49**(6): 682 ~ 690.

[18] Bobillo M, Marshall V M. Effect of salt and culture aeration on lactate and acetate production by *Lactobacillus plantarum*[J]. *Food Microbiology*, 1991, **8**(2): 153 ~ 160.

[19] Siebold M, von Frieling P, Joppien R, *et al.* Comparison of the production of lactic acid by three different *Lactobacilli* and its recovery by extraction and electro dialysis[J]. *Process Biochemistry*, 1995, **30**(1): 81 ~ 95.

[20] 杨洁彬, 郭兴华, 凌代文, 等. 乳酸菌——生物学基础及应用[M]. 北京: 中国轻工业出版社, 1996. 106.