

高浓度氨氮消化污泥脱水液半短程硝化试验研究

张树军^{1,2}, 孟凡能¹, 吕鑑¹, 甘一萍², 王洪臣², 彭永臻^{1*}

(1. 北京工业大学水质科学与水环境恢复工程重点实验室, 北京 100022; 2. 北京城市排水集团有限责任公司, 北京 100038)

摘要:采用 A/O 工艺考察了消化污泥脱水液半短程硝化及维持的影响因素和控制方法. 结果表明, 在温度 9~20℃、平均 DO 浓度 5.4 mg/L、SRT 30 d 左右时, 进水氨氮负荷(以 N 计, 下同) 0.64 kg/(m³·d) 的条件下启动, 经过 29 d 实现了短程硝化, 此后的 65 d 内, 动态控制反应器游离氨 FA > 4 mg/L 时, 70% 亚硝氮累积率的短程硝化得以维持; 在实现短程硝化的基础上, 进而实现了半短程硝化, 出水氨氮与亚硝氮浓度比维持在 1:1.32 左右; 当氨氮负荷降至 0.19 kg/(m³·d) 时 (FA < 1 mg/L), 短程遭到破坏, 在不同 FA 下取样做 FISH 分析, 进一步证明了高 FA 是维持半短程硝化的主要因素; 在进水中 COD 为 282 mg/L, C/N 仅为 0.85 的条件下, 由于实现了短程硝化, 系统 TN 去除量约为 91 mg/L. 结果分析表明, 消化污泥脱水液在中低温、高 DO 浓度、长 SRT 下, 通过动态控制氨氮负荷和 pH 值等运行参数, 在系统中维持适宜的 FA 浓度 (> 4 mg/L), 可以实现并维持半短程硝化, 为后续的厌氧氨氧化提供进水或回流到污水厂主流区而节省反硝化碳源.

关键词: 高氨氮; 低 C/N; 污泥脱水液; 半短程硝化; 高 FA

中图分类号: X703.1 **文献标识码:** A **文章编号:** 0250-3301(2009)05-1437-05

Half-nitrosification of Dewatering Liquid of Digested Sludge with High Ammonia

ZHANG Shu-jun^{1,2}, MENG Fan-neng¹, LÜ Jian¹, GAN Yi-ping², WANG Hong-chen², PENG Yong-zhen¹

(1. Key Laboratory of Beijing for Water Quality Science and Water Environmental Recovery Engineering, Beijing University of Technology, Beijing 100022, China; 2. Beijing Drainage Group Co. Ltd., Beijing 100038, China)

Abstract: The affecting factors and controlling methods of how realizing and maintaining half-nitrosification of dewatering liquid of digested sludge were investigated in an A/O process. The experimental results showed that the nitritation was obtained in 29 d under bulk liquid temperature of 9-20℃, average DO of 5.4 mg/L, SRT of about 30 d and influent ammonia loading rate of 0.64 kg/(m³·d). The nitritation with 70% nitrite accumulation efficiency was maintained during 65 d when average FA concentration in A/O reactor was more than 4 mg/L. Furthermore, the half-nitrosification with effluent ammonia and nitrite ratio of 1:1.32 was obtained. When the ammonia loading rate reduced to 0.19 kg/(m³·d) (FA < 1 mg/L), the nitritation disappeared, and the high FA as a main factor of maintaining half-nitrosification was proved again with FISH under the condition of different FA. TN removal concentration was about 91 mg/L under influent COD of 282 mg/L and raw C/N ratio of 0.85 in the A/O system, which due to nitritation saving much carbon sources. The study showed that the half-nitrosification of the dewatering liquid was obtained and stably maintained when FA was more than 4 mg/L in the A/O reactor by dynamic controlling influent ammonia loading rate and pH value in the system under middle or low temperature, high DO, long SRT.

Key words: high ammonia; low C/N; dewatering liquid of digested sludge; half-nitrosification; high FA

随着 SHARON-ANAMMOX (single reactor system for high activity ammonia removal over nitrite-anaerobic ammonium oxidation) 组合工艺的应用, 其它通过控制 DO 实现的限氧亚硝化工艺与 ANAMMOX 工艺的组合工艺^[1]、通过长污泥龄与低溶解氧控制实现的常温亚硝化工艺与 ANAMMOX 工艺的组合工艺^[2]等短程硝化-厌氧氨氧化的组合工艺引起了广泛的研究. ANAMMOX 是 Mulder 等^[3]在反硝化流化床中发现的, 它的基本原理是: 在厌氧条件下, 以亚硝酸盐作为电子受体, 将氨氮直接氧化生成氮气. ANAMMOX 是迄今为止最简捷的生物脱氮技术^[4-7], 但实现的前提是获得稳定的半短程硝化.

基于 ANAMMOX 工艺进水所需基质氨氮与亚硝氮的摩尔浓度比约为 1:1.32^[8], 消化污泥脱水液属

于高氨氮低 C/N 的废水, 为达到 ANAMMOX 工艺进水的水质条件, 提出了半短程硝化的概念, 即在碱度缺乏条件下, 只需 50% 左右氨氮被氧化为亚硝氮, 正因为仅一半氨氮被氧化而且硝化过程仅进行到亚硝化阶段, 故被称为半短程硝化^[9]. SHARON 工艺虽然与其它工艺相比有着较大的优势, 但是 SHARON 工艺需要保持温度在 30~35℃ 的范围内. 而本研究是利用污泥消化脱水液高氨氮、碱度不足的水质特点, 在 9~20℃、DO > 5 mg/L 的条件下, 维持 30 d 左

收稿日期: 2008-08-05; 修订日期: 2008-11-27

基金项目: 北京市科技计划项目 (D07050601500000); 北京市教委科技创新平台项目 (PXM2008-014204-050843); 北京市高校人才强教深化计划高层次人才项目

作者简介: 张树军 (1970~), 男, 博士, 高级工程师, 主要研究方向为污水生物处理理论及技术, E-mail: lxzsj@tom.com

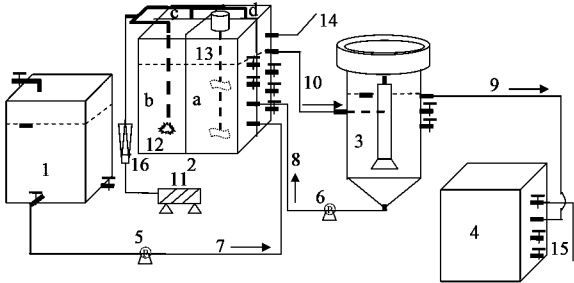
* 通讯联系人, E-mail: pyz@bjut.edu.cn

右 SRT, 在传统的 A/O(缺氧-好氧)工艺中, 在进水氨氮负荷 $0.64 \text{ kg}/(\text{m}^3 \cdot \text{d})$ 的条件下, 实现了稳定的半短程硝化. 同时, 由于氨氮硝化只需进行一半而且停留在亚硝氮阶段, 节省了碱度和反硝化所需的碳源, 非常适合于消化污泥脱水液高氨氮和低 C/N、低碱度的水质特点, 为实现污泥脱水液的高效脱氮提供了切实可行的新技术.

1 材料与方法

1.1 试验装置

实验模型由 A/O 反应器(包括缺氧区和好氧区)和二沉池组成(图 1). 反应装置由有机玻璃制成, 平均分成 4 个格室, 每格室有效容积 4.5 L , 第 1 格室为缺氧区(图 1 中 a 点), 后 3 格室为好氧区(图 1 中 b、c、d 点); 二沉池采用竖流式, 有效容积为 12 L . 试验进水和污泥回流均采用蠕动泵控制, 反应器运行期间进水量约为 $34 \text{ L}/\text{d}$, 相应的水力停留时间(HRT)约为 12.7 h , 污泥回流比为 50% . 曝气装置采用砂头曝气头, 曝气量控制在 $8 \sim 10 \text{ L}/\text{min}$, 好氧区 DO 浓度平均为 $5.4 \text{ mg}/\text{L}$.



1.原水箱 2.A/O 反应器 3.二沉池 4.出水箱 5.进水泵
6.污泥回流泵 7.进水管 8.内回流管 9.二沉池出水管
10.A/O 反应器出水管 11.气泵 12.砂头曝气头 13.搅拌机
14.A/O 反应器溢流管 15.出水箱排水管 16.气体流量计
a 为缺氧格室 b、c、d 分别为第 1、第 2、第 3 好氧格室
A/O 反应器的推流方向为 a→b→c→d

图 1 A/O 工艺半短程硝化

Fig. 1 Schematic diagram of half-nitrosification in an A/O process

1.2 试验原水水质

试验原水采用高碑店污水处理厂消化污泥脱水液, 水质参数如表 1.

1.3 分析项目及方法

表 1 试验进水水质

Table 1 Influent characteristics

项目	pH	$t/^{\circ}\text{C}$	$\text{NH}_4^+-\text{N}/\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$	$\text{COD}/\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$	碱度/ $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$	$\text{P}/\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$
范围	7.4~8.2	9~20	270~430	145~632	1 730~2 340	15~28
平均值	7.6	15	330	282	1 835	20

COD 采用重铬酸钾法; 氨氮采用纳氏试剂分光光度法; 硝酸盐采用麝香草酚分光光度法; 亚硝酸盐采用 *N*-(1-萘基)-乙二胺分光光度法; pH 值及温度采用 pH 计及温度探头(德国 WTW); DO 采用 DO 测定仪(德国 WTW); 碱度采用酸碱指示剂滴定法; 溶解性磷采用钼锑抗分光光度法; MLSS 采用重量法.

2 结果与讨论

试验接种活性污泥取自北京市高碑店污水处理厂二沉池回流污泥, 该接种污泥为全程硝化污泥, 接种后污泥浓度 MLSS 为 $2\,500 \text{ mg}/\text{L}$, 试验时间共 96 d . 试验在中低温、高 DO 浓度下, 采用高氨氮负荷方式启动, 进水氨氮负荷平均为 $0.64 \text{ kg}/(\text{m}^3 \cdot \text{d})$, 最高达到 $0.84 \text{ kg}/(\text{m}^3 \cdot \text{d})$.

2.1 半短程硝化的启动、影响因素及稳态分析

短程硝化的标志被普遍认为是亚硝氮累积率稳定在 50% 以上, 在短程硝化的基础上, 半短程硝化

要求大约一半的氨氮不被硝化, 而被硝化的氨氮停留在亚硝氮阶段. 据文献报道, 影响亚硝氮积累的因素主要有进水氨氮浓度、pH 值、FA、DO、温度和 SRT 等^[10, 11]. 其中, FA 主要受进水氨氮浓度和 pH 值的影响.

2.1.1 2 种氨氮负荷下进出水三氮变化

从图 2 可知, 进水中氨氮多大于 $300 \text{ mg}/\text{L}$ ($\text{FA} > 4 \text{ mg}/\text{L}$), 而亚硝氮和硝氮大都在 $0 \sim 1 \text{ mg}/\text{L}$, 属高浓度氨氮工况. 进水氨氮虽有较大波动, 但出水呈下降趋势, 硝氮亦趋于下降, 而亚硝氮逐渐增加, 且三氮均趋于稳定. 在第 25 d 时, 硝氮开始下降明显, 而亚硝氮相反, 且二者检测值之差也越来越大. 说明随着时间的延续, 在高氨氮浓度下, 亚硝氮累积率升高, 反应逐渐停止在亚硝化阶段.

图 3 表明氨氮浓度降至 $100 \text{ mg}/\text{L}$ ($\text{FA} < 1 \text{ mg}/\text{L}$), 亚硝氮和硝氮仍然在 $0 \sim 1 \text{ mg}/\text{L}$, 属低浓度氨氮工况. 由于采取了人工添加氯化铵, 故进水浓度较

稳定,出水趋于下降,且稳定在 20 mg/L左右.与高浓度工况不同的是,亚硝氮下降很快,第 4 d 时已几乎降至 0,此后出水中都几乎检测不到;相反硝氮稳步上升,最高达到 60 mg/L.说明降低氨氮浓度至 100 mg/L时,导致了 FA 从大于 4 mg/L到小于 1 mg/L,短程硝化很快就会消失,反应向全程硝化反应转变.

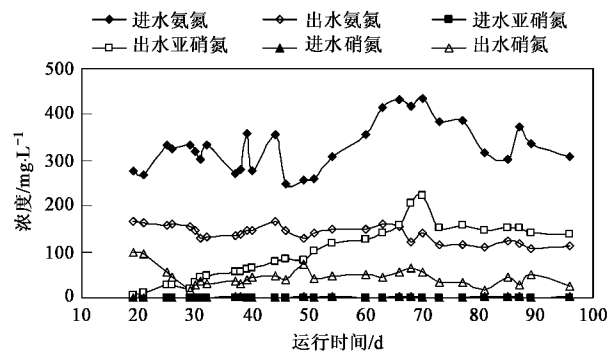


图 2 高氨氮浓度下三氮进出水变化关系

Fig.2 Variation of $\text{NH}_4^+\text{-N}$, $\text{NO}_2^-\text{-N}$ and $\text{NO}_3^-\text{-N}$ with high ammonia

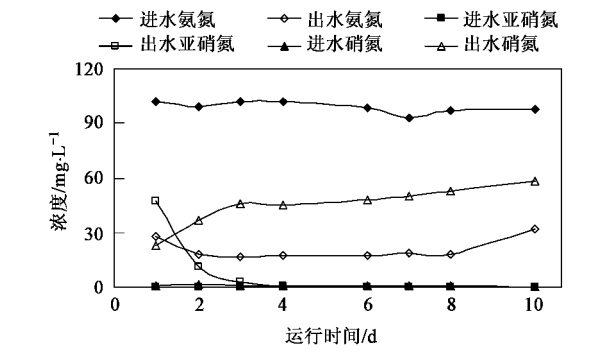


图 3 低氨氮浓度下三氮进出水变化关系

Fig.3 Variation of $\text{NH}_4^+\text{-N}$, $\text{NO}_2^-\text{-N}$ and $\text{NO}_3^-\text{-N}$ with low ammonia

2.1.2 游离氨的控制及影响

FA 对硝酸菌活性的抑制可以用选择性抑制机制来解释,即硝化基质浓度超过硝酸菌的转化利用阈值,而低于亚硝酸菌的转化利用阈值,代表性理论是 Anthonisen 的选择性抑制学说^[12].目前,许多研究者发现 FA 浓度的大小是形成亚硝酸盐积累的一个重要原因^[13].而 FA 的大小又受 pH 值的决定性影响,pH 值对形成亚硝酸盐积累的原因主要有两方面:一方面亚硝酸菌(AOB)生长繁殖需要适宜的 pH 值环境;另一方面 pH 值会影响 FA 浓度,进而影响硝酸菌(NO₃)的活性.

从图 4 可知,高氨氮浓度下,在试验启动的第 29 d,亚硝氮累积率首次超过了 50%,此后逐步平稳上升.直至运行结束,亚硝氮累积率都维持在 70%

左右,最高达到了 90.2%.在整个运行期间,FA 的平均浓度值为 4.16 mg/L,最高为 10.14 mg/L,实现了较好的亚硝化效果,与 Anthonisen 等^[12]得到的 FA 浓度对 NOB 和 AOB 的抑制范围分别为 0.1 ~ 1.0 mg/L和 10 ~ 150 mg/L相一致.另外,试验从开始到结束,温度在 9 ~ 20℃范围内,好氧区的 DO 平均浓度在 5.4 mg/L,远远大于 1.5 mg/L(亚硝酸菌饱和常数一般为 0.2 ~ 0.4 mg/L,硝酸菌的为 1.2 ~ 1.5 mg/L),SRT 在 30 d 左右,由此可知,维持高氨氮负荷即高 FA 值可以实现半短程硝化.

为进一步说明主要由高浓度氨氮导致的高 FA 在本试验中是实现及维持半短程硝化的关键条件,采取降低进水氨氮浓度以减小 FA,观察短程硝化是否会遭受破坏,如图 5 所示.由于氨氮浓度降低至 100 mg/L,FA 也迅速降到了 0.3 ~ 0.8 mg/L,而亚硝氮累积率在第 4 d 时已几乎为 0,且此后一直维持在 0 附近.说明在高 DO、长 SRT 条件下,高 FA 是维持半短程硝化进行的必要条件.

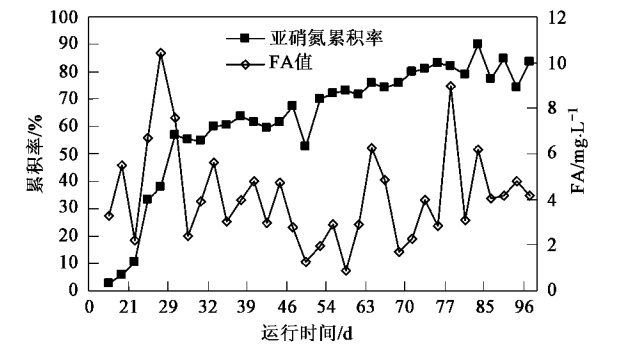


图 4 高氨氮浓度下 FA 与亚硝氮累积率的关系

Fig.4 Relation between FA and nitrite accumulation with high ammonia

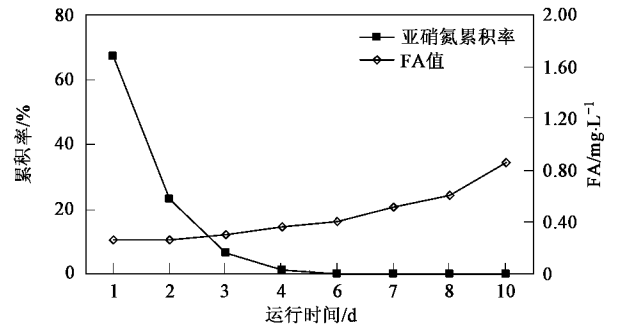


图 5 低氨氮浓度下 FA 与亚硝氮累积率的关系

Fig.5 Relation between FA and nitrite accumulation with low ammonia

同时,在高 FA 和低 FA 时,即半短程硝化稳定期和破坏期,采用 FISH (fluorescence in situ

hybridisation)技术^[14,15]对系统中 AOB 和 NOB 作了检测.经数学方法统计,高 FA 下 AOB 和 NOB 存在率分别为 7.90%、3.18%;低 FA 下 AOB 和 NOB 存在率分别为 6.93%、4.86%.尽管 FA 浓度在 0.3 ~ 10.14 mg/L变化,但 NOB 均有一定的存在率,说明即使高 FA 下也有相当数量的 NOB 存在于系统中,仅活性遭到了抑制,一旦 FA 降至较低浓度(小于 0.8 mg/L),其活性便得到恢复,数量开始增加.但高 FA 下有较高 AOB、较低 NOB 存在率,且 NOB 活性也较低,从分子生物学角度证明了 FA 是维持半短程硝化的重要因素.

本试验与 SHARON 工艺需维持温度在 30 ~ 35℃之间相比,该工艺无需加热保温,可以降低能耗;与 OLAND 工艺及 CANON 工艺需维持低 DO 相比,该工艺可以加快硝化速度,提高硝化速率,减小反应器的体积.由此可见,中低温、高 DO 浓度下,维持高氨氮负荷即高 FA 条件,可以较快地实现短程硝化,进而实现半短程硝化.

2.1.3 稳态运行时的氮素变化规律分析

试验高氨氮浓度稳态运行至第 71 d 时,进行取样分析,部分参数如图 6 所示.测得原水温度为 9.4℃,pH 值为 7.65,FA 值为 4.11 mg/L,氨氮浓度为 436 mg/L.当原水到缺氧区(图 1a 点)后,经检测,温度为 12.4℃,pH 值为 7.56,FA 值为 2.65 mg/L,氨氮浓度为 232 mg/L,亚硝氮浓度为 151 mg/L,亚硝氮累积率为 76.8%,亚硝氮与氨氮比值为 0.65.混合液从缺氧区到好氧区(图 1b、c、d 点),在 DO 浓度均大于 5 mg/L的情况下,沿程氨氮、FA 逐渐降低,亚硝氮、亚硝氮累积率和亚硝氮与氨氮比值逐渐升高. A/O反应器出水端的 pH 值为 7.15,FA 值为 0.58 mg/L,氨氮浓度为 152 mg/L,亚硝氮浓度为 222 mg/L,亚硝氮累积率为 87.3%,亚硝氮与氨氮比值

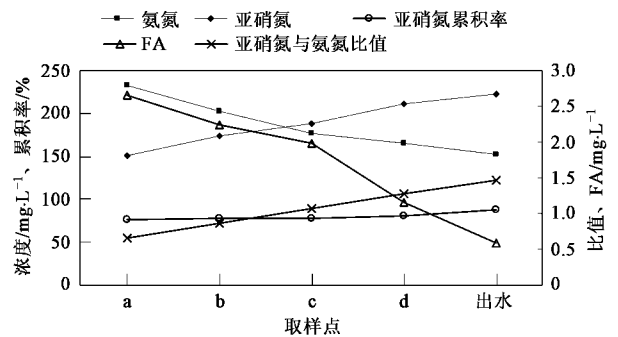


图 6 稳态运行时沿程参数变化

Fig. 6 Parameter variations in flow pathway during stable operation period

1.46:1.从图 6 可见,FA 变化趋势最为明显,而相应的氨氮浓度和 pH 值变化也较大,故 FA 主要受二者因素的影响.

2.2 出水氨氮与亚硝氮的比例关系

试验运行第 19 ~ 96 d 的出水氨氮和亚硝氮及二者比值关系的整体状况如图 7 所示,可以看出,出水氨氮和亚硝氮的比值不断升高,最后稳定在 1:1.32.由于进水是实际的消化污泥脱水液,没有人为调整,故进水氨氮有波动.该时段运行期间,进水氨氮平均浓度值为 330 mg/L,出水氨氮平均浓度值为 119 mg/L,平均硝化率为 63.9%,平均亚硝化率为 64.2%.在前 30 d,接种活性污泥处于驯化阶段,而且 SRT 在 30 d 左右,好氧区又采用高 DO 浓度运行,虽然平均 FA 在 5 mg/L 以上,但 NOB 的活性尚未被完全抑制,故 AOB 没有成为优势菌种,亚硝氮累积值也比较低.在 30 d 以后的时间里,NOB 开始处于被高 FA 严重抑制的状态,而 AOB 几乎没有受到抑制,由图 4 可以看出,出水亚硝氮累积率升高趋势明显,最高达到 222 mg/L,亚硝氮与氨氮比值关系逐渐维持在 1:1.32 附近,实现了为 ANAMMOX 提供进水的水质条件.

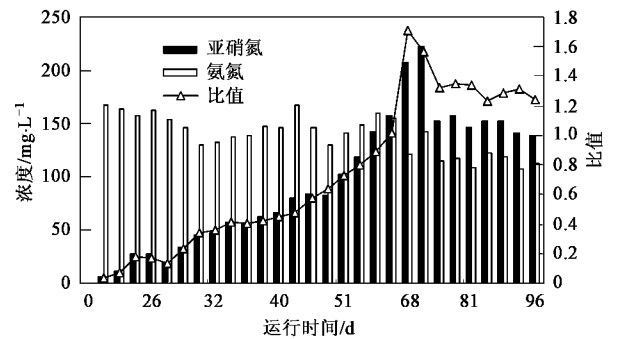


图 7 出水氨氮与亚硝氮的比值变化

Fig. 7 Ratio's change between ammonia and nitrite in effluent

2.3 总氮去除与 COD 之间的关系

短程硝化反硝化生物脱氮的过程为 $\text{NH}_4^+ \rightarrow \text{NO}_2^- \rightarrow \text{N}_2$,根据化学计量学该过程与传统硝化反硝化过程相比可节约反硝化所需碳源 40% 左右^[16].本试验用水属于低碳氮比($\text{C/N} \approx 1.0$)废水,如果在不投加碳源和碱度的情况下,无论是采取传统硝化反硝化脱氮方式(脱氮完全所需 $\text{C/N} \geq 4.0$)还是短程硝化反硝化脱氮方式(脱氮完全所需 $\text{C/N} \geq 2.5$ ^[17-19])都很难实现较好的脱氮效果,但此水质条件适合于半短程硝化的实现.半短程硝化出水,既可以直接回流至缺氧区进行短程脱氮,又可以

ANAMMOX 工艺提供进水进一步脱氮.由图 8 可知,从总体上看,总氮的去除量和进水 COD 有较好的平行关系,即如果进水 COD 值较高,出水总氮去除量就比较大,相应的总氮去除率也随之升高.但整体来说,虽然反硝化所需碳源能够节省 40% 左右,但是进水 COD 值普遍较低,平均值仅为 282 mg/L, C/N 不足 1.0,所以总氮的去除率仅为 29.2%,去除量在 91 mg/L 左右.本试验的主要目的是实现半短程硝化,为后续的 ANAMMOX 工艺提供进水,使氨氮与亚硝氮的比值维持在 ANAMMOX 所需要的进水基质浓度比,最终在无需投加碳源的情况下,实现全程自养脱氮.

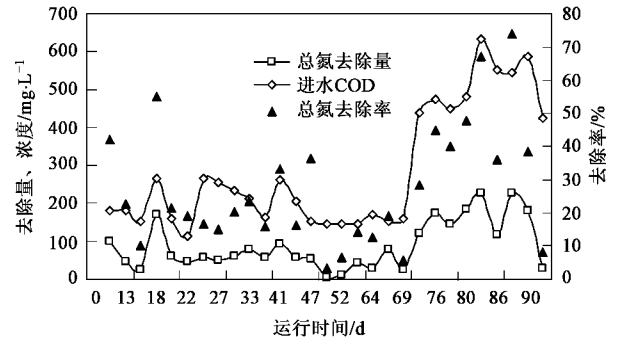


图 8 总氮去除与 COD 之间的关系
Fig.8 Relation between TN and COD

3 结论

- (1) 采用 A/O 工艺,在 9 ~ 20℃ 温度范围内,好氧区平均 DO > 5 mg/L, SRT 在 30 d 左右时,进水氨氮负荷平均为 0.64 kg/(m³·d) 的条件下启动,成功实现了短程硝化.
- (2) 本试验半短程硝化的实现及维持主要受 FA 的影响,而 FA 的大小又主要由氨氮浓度和 pH 值控制.通过动态控制使 FA 平均值大于 4 mg/L 时,能够维持 70% 左右的亚硝氮累积率.采用降低氨氮浓度导致短程破坏和 FISH 技术检测 AOB 和 NOB 存在率进一步证实了高 FA 是维持短程硝化的必要条件.在系统稳定运行时,出水中氨氮与亚硝氮的比值逐步稳定在 1:1.32 附近,实现了半短程硝化.
- (3) 进水中 COD 282 mg/L, C/N < 1.0,但是出水中总氮去除率平均维持在 29.2%,平均去除 91 mg/L.

参考文献:

[1] Dongen V U, Jetten M S M. The SHARON-ANAMMOX process for treatment of ammonium rich wastewater [J]. Wat Sci Tech, 2001, 44(1): 153-160.

[2] 叶建锋. 亚硝酸型硝化-厌氧氨氧化脱氮技术研究[D]. 南京:河海大学,2005. 17-22.

[3] Mulder J W, Rogier V K. N-removal by SHARON [R]. IAWQ Conference, 1997. 30-31.

[4] 左剑恶, 蒙爱红. 一种新型生物脱氮工艺——SHARON-ANAMMOX组合工艺[J]. 给水排水, 2001, 27(10): 22-27.

[5] Graff A A. Metabolic pathway of anaerobic ammonium oxidation on the basis of 15N studies in a fluidized bed reactor [J]. Microbiology, 1997, 143(7): 5-21.

[6] 郑平,冯孝善. 厌氧氨氧化菌基质转化特性的研究[J]. 浙江农业大学学报, 1998, 23(4): 409-413.

[7] Strous M, Gerren E V, Zheng P. Ammonium Removal From Concentrated Waste Stream with the Anaerobic Ammonium Oxidation (Anamox) Process in Different Reactor Configurations [J]. Wat Res, 1997, 31(8): 1995-1962.

[8] Strous M, Kuenen J G, Jetten M S M. Key physiology of anaerobic ammonium oxidation [J]. Appl Environ Microbiol, 1999, 65(7): 3248-3250.

[9] 汪慧珍,吴俊奇,高志明. 半硝化-厌氧氨氧化脱氮新工艺[J]. 环境工程, 2001, 19(5): 7-8.

[10] 陈雷,佩时,南军. 石油开采废水处理技术的现状与展望[J]. 中国给水排水, 1999, 15(11): 33-35.

[11] 张英杰,张隽超,胡跃城. 亚硝酸型硝化的控制途径[J]. 中国给水排水, 2002, 18(6): 29-31.

[12] Anthonisen A C. Inhibition of Nitrification by Ammonia and Nitrous Acid[J]. JWPCF, 1976, 48: 835-852.

[13] Abeling U, Seyfrid C F. Anaerobic-aerobic treatment of high strength ammonium wastewater nitrogen removal via nitrite [J]. Wat Sci Tech, 1992, 26(5): 1007-1015.

[14] 杜连祥,路福平. 微生物实验技术[M]. 北京:中国轻工业出版社,2005. 73-77.

[15] 贝蒂著,王瑛译. FISH 荧光原位杂交技术[M]. 天津:天津科技翻译出版公司, 2003. 1-3.

[16] 周少奇,周吉林. 生物脱氮新技术研究进展[J]. 环境污染治理技术与设备, 2000, 1(6): 11-17

[17] Ruiz G, Jeison D, Chamy R. Nitrification with high nitrite accumulation for the treatment of wastewater with high ammonia concentration [J]. Wat Res, 2003, 37(6): 1371-1377.

[18] Van Loosdrecht M C M, Jetten M S M. Microbiological conversions in nitrogen removal [J]. Wat Sci Tech, 1998, 38(1): 1-7.

[19] Hellinga C, Schellen A A J C, Mulder J W, et al. The SHARON-process: an innovative method for nitrogen removal from ammonium rich wastewater [J]. Wat Sci Tech, 1998, 37(9): 135-142.