

青年园地

非均匀微观组织对 AA2099-T8 新型铝锂合金 及其阳极氧化膜耐腐蚀性能的影响

麻彦龙

(重庆理工大学材料科学与工程学院 重庆市模具技术重点实验室, 重庆 400054)

摘要: 围绕 AA2099-T8 合金, 全面综述了第三代新型铝锂合金在微观组织、腐蚀行为及阳极氧化等方面取得的最新研究进展, 重点分析了该合金的微观组织对合金阳极氧化前后耐腐蚀性能的影响。研究发现: 在 3.5% NaCl 溶液中, AA2099-T8 合金上发生了亚稳态局部腐蚀和严重局部腐蚀两类腐蚀, 前者主要由 Al-Fe-Mn-Cu-(Li) 第二相颗粒引起, 后者则与热机械加工过程中的局部塑性变形及 T_1 (Al_2CuLi) 相的非均匀析出有关。在酒石酸-硫酸阳极氧化 (TSA) 条件下, Al-Fe-Mn-Cu-(Li) 第二相颗粒的阳极氧化行为明显不同于铝合金基体, 破坏了阳极氧化膜的连续性, 对阳极氧化处理合金的耐腐蚀性能产生不利影响。

关键词: 铝锂合金; 微观组织; 局部腐蚀; 阳极氧化

中图分类号: TG146.2 **文献标识码:** A **文章编号:** 1674-3962 (2015)12-0928-05

Effect of Heterogeneous Microstructure on Corrosion Resistance of AA2099-T8 Aluminum-Lithium Alloy and Its Anodic Films

MA Yanlong

(Chongqing Municipal Engineering Research Center for Mould Technology,
School of Materials Science and Engineering, Chongqing University of Technology, Chongqing 400054, China)

Abstract: State-of-the-art research progress on microstructure, corrosion resistance and anodizing behavior of the third generation aluminum-lithium alloys has been reviewed, with particular focus on the effect of microstructure on corrosion resistance of the new-type aluminum-lithium alloy AA2099-T8 before and after anodizing. It was found that two types of localized corrosion occurred in the alloy in 3.5% NaCl solution, namely metastable localized corrosion and severe localized corrosion. The metastable localized corrosion is ascribed to Al-Fe-Mn-Cu-(Li) constituent particles while the severe localized corrosion is associated with localized plastic deformation and heterogeneous precipitation of the T_1 (Al_2CuLi) phase. During tartaric-sulphuric acid anodizing (TSA), the Al-Fe-Mn-Cu-(Li) constituent particles behaved differently compared with the alloy matrix, leading to the formation of discontinuities in the anodic film, which deteriorates the corrosion resistance of the anodized alloy.

Key words: aluminum-lithium alloy; microstructure; localized corrosion; anodizing

1 前言

铝锂合金发展大致经历三个发展阶段^[1-7]。第一、第二代铝锂合金由于断裂韧性、热稳定性和耐腐蚀性较

差且各向异性严重而未得到广泛应用^[1-4]。20 世纪 90 年代发展起来的新型铝锂合金 (即第三代铝锂合金) 较前两代铝锂合金具有更小的各向异性, 更好的强-韧平衡性、热稳定性、耐腐蚀性和加工性能以及更高的损伤容限^[5]。目前, 空客 A380 的蒙皮、机翼横梁、地板梁、座椅滑轨、座舱等结构件就使用了 2196、2099 以及 2199 等新型铝锂合金, 实现减重几百公斤; 国产 C919 大型客机、波音公司下一代 B777-X 客机以及俄罗斯下一代窄体客机 MS-21 的机身都将大量采用新型铝锂合金^[6]。2014 年, 美国铝业公司 (Alcoa) 在拉斐特 (Lafayette) 正式成立世界上最大的铝锂合金产品工厂, 专为航空和航天工业提供

收稿日期: 2015-07-15

基金项目: 国家自然科学基金 (51301214; 51441002); 重庆市基础与前沿研究计划项目 (cstc2013jcyjA50017); 留学回国人员科研启动基金 (第 47 批)

作者简介: 麻彦龙, 男, 1978 年生, 教授, 硕士生导师, Email: myl@cqu.edu.cn

DOI: 10.7502/j.issn.1674-3962.2015.12.10

先进的第三代铝锂合金。

由于 Li 元素极活泼, 新型铝锂合金中含 Li 相与非含 Li 相及 Al 基体之间的腐蚀电位差较大, 导致该合金容易发生局部腐蚀。Buchheit 及其合作者^[8-9]研究了不同时效热处理工艺对新型铝锂合金耐腐蚀性能的影响, 发现时效时晶界析出的 T_1 (Al_2CuLi) 相增加了合金的腐蚀倾向, 导致晶间腐蚀或亚晶间腐蚀。Li 等^[10-11]通过模拟方法研究了 T_1 相在铝锂合金局部腐蚀中的作用机理, 表明 T_1 相在腐蚀过程中会发生从阳极性向阴极性的转变。李红英等^[12]研究了某铝锂合金在 T6 和 T8 状态下的剥蚀行为, 发现由于 T6 比 T8 状态下晶界 T_1 相的尺寸更大、数量更多, 所以 T6 比 T8 状态更容易发生剥落腐蚀。廖忠全等^[17]研究了时效制度对 2A97 新型铝锂合金腐蚀行为和微观组织的影响, 发现在 $135\text{ }^{\circ}\text{C} \times 36\text{ h} + 175\text{ }^{\circ}\text{C} \times 24\text{ h}$ 双级时效时合金具有最优的力学性能和耐腐蚀性能。陈永来等^[14]研究了热处理对某新型铝锂合金晶间腐蚀和剥蚀性能的影响, 表明该合金在固溶状态下具有最佳的耐晶间腐蚀和剥蚀性能, 随着时效时间的延长, 该合金耐晶间腐蚀和剥蚀性能变差。潘清林等^[15]研究了预变形对新型含钪 Al-Cu-Li-Zr 合金剥蚀性能的影响, 表明预轧变形促进 T_1 相的形核与长大, 预轧变形后合金中 T_1 相粗化、PFZ 变宽, 剥落腐蚀程度加重。

从文献分析可以看出, 目前国内外关于铝锂合金腐蚀行为的研究主要集中在热处理工艺和晶界析出物 T_1 相对合金局部腐蚀行为的影响方面, 但针对铝锂合金局部腐蚀特别是严重局部腐蚀的萌生和扩展等关键问题的研究相对较少。主要原因包括: ①新型铝锂合金本身从问世到应用不到 20 年, 且早期研究主要集中在机械性能的改善方面; ②不同体系铝合金的化学成分和组织结构不同, 其腐蚀成因也有所差别, 因而对于新型铝锂合金缺乏直接经验可以借鉴; ③铝合金局部腐蚀的萌生和扩展往往与合金中特定区域的微观组织相联系, 而传统的电化学方法等, 很难准确建立合金局部微观组织与其腐蚀行为的对应关系, 一定程度上制约了铝锂合金局部腐蚀理论的发展。

第三代新型铝锂合金 AA2099 由美国 Alcoa 公司研发

并于 2003 年正式注册^[16], 该合金具有平面各向异性小、热暴露稳定性高、裂纹扩展速率低、耐蚀性良好等优点, 因而具有广阔的应用前景。目前 AA2099 合金已在 A380 飞机结构件上应用, 并被西方国家用来代替 2195 合金作为航天飞机低温燃料贮箱用材^[18]。本文全面综述了近年来课题组围绕 AA2099-T8 合金微观组织、腐蚀机理及环保型阳极氧化表面处理方面的最新研究进展, 重点分析了非均匀微观组织对该合金及其阳极氧化膜耐腐蚀性能的影响。

2 AA2099-T8 铝锂合金的组织特点

AA2099-T8 铝锂合金的化学成分如表 1 所示。主加元素 Cu 和 Li 在高温时在 Al 中有较高的固溶度 (4% ~ 5%, 质量分数), 但它们的固溶度随着温度的降低显著下降, 因此 AA2099-T8 合金具有强烈的时效强化效果^[19]。AA2099-T8 合金中的时效强化相主要有 δ' (Al_3Li)、 T_1 (Al_2CuLi) 和 θ' (Al_2Cu) 三种^[24]。Zn 元素的添加可以促进 δ' 相的析出^[25]; 同时 Zn 元素可以降低铝合金的层错能, 有利于全位错分解为不全位错, 而不全位错有利于高纵横比的 T_1 相的析出^[26]。Mg 在铝中的固溶度比较大, 有很强的固溶强化效果; 同时 Mg 的固溶增加了共格 δ' 相与铝基体之间的错配度, 进一步提高了 δ' 相的强化效果^[23]。Mn 和 Zr 的加入形成了 β' (Al_3Zr) 和 $Al_{20}Cu_2Mn_3$ 两种弥散相, 这些弥散相的存在能有效阻止合金发生再结晶转变^[24]。Fe 是主要杂质元素, 它与其它合金元素一起, 形成粗大第二相颗粒, 对合金的腐蚀和力学性能都有不利影响。AA2099-T8 合金中的粗大第二相颗粒主要包括低 Cu 和高 Cu 两种 Al-Fe-Cu-Mn 相, 采用 EDX 求得两种第二相颗粒的平均成分如表 2 所示。有趣的是, 最近作者采用电子能量损失谱 (EELS) 在高 Cu 的 Al-Fe-Cu-Mn 相中探测到了高含量的 Li 元素^[25]。分析表明, 高 Cu 相在铸造过程中形成, 而低 Cu 相则是高 Cu 相在随后热机械加工过程中发生 Cu/Li 元素向周围合金基体扩散的结果^[20]。在挤压、轧制等变形过程中, 第二相颗粒会被破碎和重新分布, 所以它们通常有沿着挤压方向分布的趋势。

表 1 AA2099-T8 铝锂合金的化学成分

Table 1 Chemical composition of the AA2099-T8 aluminum lithium alloy/wt%

Cu	Li	Zn	Mg	Mn	Zr	Ti	Fe	Si	Be	Other	Al
2.4 ~ 3.0	1.6 ~ 2.0	0.4 ~ 1.0	0.10 ~ 0.50	0.10 ~ 0.50	0.05 ~ 0.12	<0.10	<0.07	<0.05	<0.0001	<0.15	Re.

表 2 用 EDX 求得两种 Al-Fe-Cu-Mn 第二相颗粒的平均成分/%

Table 2 Average composition of the two-type Al-Fe-Cu-Mn constituent particles determined by EDX/%

	Low-copper-containing phase	High-copper-containing phase
Al	75.7 ± 3.0	58.3 ± 4.6
Mn	8.5 ± 1.7	6.5 ± 1.9
Fe	11.9 ± 2.0	12.4 ± 1.9
Cu	4.0 ± 0.6	22.8 ± 4.5

3 AA2099-T8 铝锂合金的局部腐蚀行为

将 AA2099-T8 合金浸泡在 3.5% NaCl 溶液中, 在该合金的表面将形成亚稳态局部腐蚀和严重局部腐蚀两类腐蚀。亚稳态局部腐蚀直接发生在粗大第二相颗粒所在

的位置, 它们一般在腐蚀的初期形成, 随着腐蚀时间的延长而逐渐停止^[26]。这一类腐蚀往往在合金的表面留下腐蚀沟槽或者腐蚀坑, 见图 1。图 1a 中所示的腐蚀沟槽与低 Cu 的 Al-Fe-Mn-Cu 颗粒有关; 图 1b 中所示的腐蚀坑与高 Cu 的 Al-Fe-Mn-Cu-(Li) 颗粒有关。低 Cu 颗粒的腐蚀电位比铝基体更正, 可充当腐蚀微电池的阴极, 使该颗粒周围的铝基体发生阳极溶解, 从而在第二相颗粒的周围留下腐蚀沟槽。而高 Cu 颗粒中因含有化学性质活泼的 Li 元素, 所以这些颗粒将首先发生选择性腐蚀; 而选择性腐蚀所留下的富 Cu 残余物又与周围铝基体之间建立起腐蚀微电池, 使周围铝基体发生阳极溶解。图 1c 为 AA2099-T8 合金在 NaCl 溶液中浸泡 2 h 后, 发生的选择性腐蚀的 Al-Fe-Mn-Cu-(Li) 颗粒。

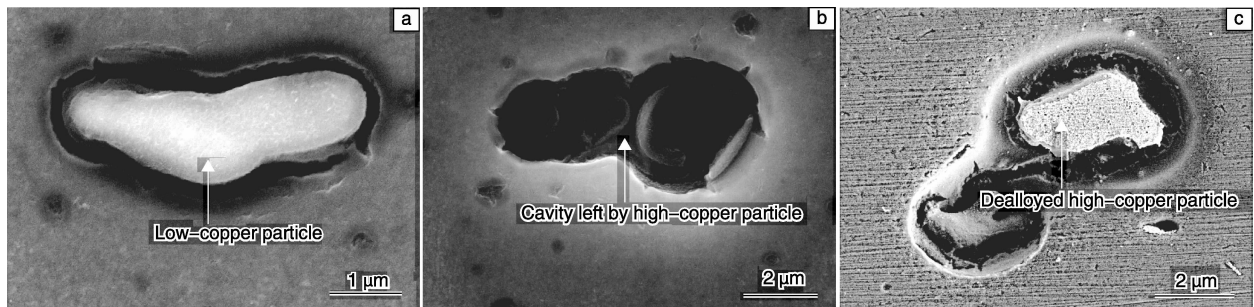


图 1 与第二相颗粒有关的亚稳态局部腐蚀

Fig. 1 Metastable localized corrosion associated with coarse intermetallics

严重局部腐蚀一旦形成, 能够自催化地沿纵向持续扩展, 并伴随着 H_2 在腐蚀中心位置溢出以及腐蚀产物在周围呈环状沉积^[29]。图 2a 为通过数码光学显微镜拍摄到的严重局部腐蚀形成初期的气泡形貌, 图 2b 为腐蚀发展至中后期的腐蚀环形貌。在扫描电镜下观察严重局部腐蚀的中心位置, 发现这种腐蚀常常以晶界或亚晶界腐蚀为特征(图 2c), 并在合金表面以下沿活性通路向纵深扩展。目前, 对铝合金中严重局部腐蚀形成机理的认识仍不全面。Hughes 等^[26-29]根据 AA2024-T3 铝合金中严

重局部腐蚀的部位与第二相颗粒分布的关系, 提出第二相颗粒簇群, 特别是 $S-Al_2CuMg$ 相簇群容易引发严重局部腐蚀。Zhou 等^[30]根据 AA2024-T3 铝合金中发生晶间腐蚀的晶界数量远远多于析出物的晶界数量的现象, 提出晶粒内部的储存能引发晶间腐蚀的观点, 进而将严重局部腐蚀与晶粒的储存能联系起来^[31-32]。近期, 作者在 AA2099-T8 合金中的严重局部腐蚀区域发现腐蚀行为有沿着滑移迹线扩展的倾向(图 3), 并结合 T_1 相易在位错等晶体缺陷上析出这一研究事实^[33-34], 提出了 AA2099-

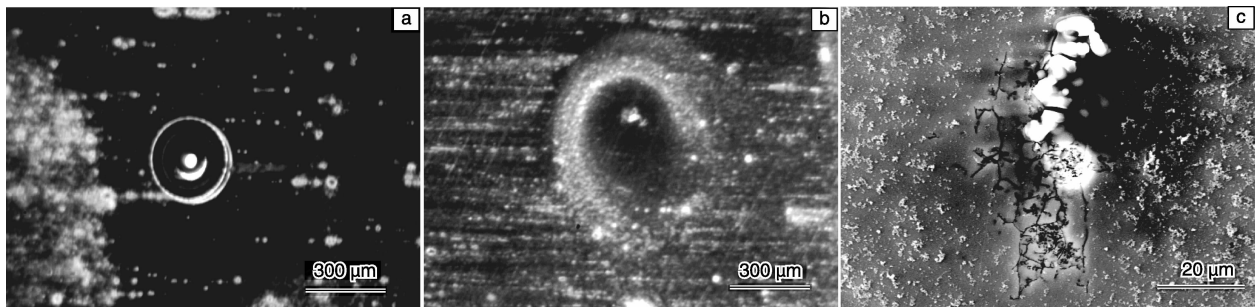


图 2 严重局部腐蚀区域光学照片(a, b)及 SEM 照片(c): 腐蚀初期(a), 腐蚀中后期(b)和腐蚀中后期的腐蚀中心(c)

Fig. 2 Optical micrographs(a, b) and SEM image (c) of the severe localized corrosion site: (a) in early state, (b) in late state and (c) the center of the corrosion site in (b)

T8 合金中严重局部腐蚀可能与合金在预冷变形过程中的非均匀塑性变形以及时效过程中 T_1 相的非均匀析出有关, 相关研究仍在进行之中, 尚未形成明确的腐蚀机理模型。

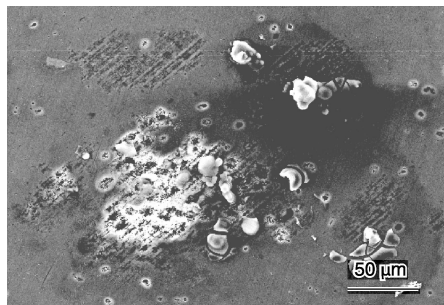


图 3 严重局部腐蚀区域沿滑移迹线扩展的局部腐蚀

Fig. 3 Corrosion propagation along the traces of slip bands in the severe localized corrosion region

4 AA2099-T8 铝锂合金环保型阳极氧化

通常航空工业中通过铬酸阳极氧化(CAA)来提高铝合金的耐腐蚀性能。但由于铬酸阳极氧化溶液中含有六价铬离子, 对人体和环境有严重危害, 所以铬酸阳极氧化工艺正在被限制或禁用。在其它领域广泛应用的硫酸阳极氧化(SAA)工艺也不能满足航空铝锂合金的要求, 这一方面是因为硫酸阳极氧化膜硬而厚, 会降低构件的抗疲劳性能; 另一方面, 硫酸阳极氧化膜的抗腐蚀性能不足, 需要在含铬的溶液中进行封闭后处理, 无法彻底去除六价铬离子。20 世纪 90 年代, 波音公司开发了硼酸-硫酸阳极氧化工艺^[35], 该工艺具有较好的耐蚀性能, 对基体的疲劳性能影响也比较小, 但硼酸-硫酸阳极氧化工艺仍需使用含铬稀溶液对氧化膜进行封闭后处理, 因而仍无法彻底从生产工艺中去除六价铬离子。近期空客公司开发了一种新型环保的航空铝合金表面处理工艺——酒石酸-硫酸阳极氧化(TSA)工艺^[36], 已逐渐在新型铝锂合金上推广使用。

作者研究发现^[37-39], AA2099-T8 合金在酒石酸-硫酸体系中阳极氧化的成膜机理符合经典的铝阳极氧化理论, 但由于粗大第二相颗粒的化学成分显著不同于合金基体, 导致在阳极氧化膜中出现成分、结构不连续的氧化膜缺陷, 如图 4 所示。在 TSA 阳极氧化过程中, 高 Cu 的 Al-Fe-Mn-Cu-(Li) 颗粒在电场及电解液的作用下发生快速溶解, 结果在氧化膜中形成尺寸与第二相颗粒相当的孔洞; 一旦孔洞形成, 电流将瞬时集中于孔洞底部的铝基体之上, 使此处的阳极氧化速度明显大于别处, 最终在氧化膜/合金基体界面上留下一个凹型坑(图 4a)。低 Cu 的 Al-Fe-Mn-Cu 颗粒的阳极氧化速度约为铝基体的一半, 所

以随着氧化时间的延长, 第二相颗粒将逐渐伸入到氧化膜的内部(图 4b); 如果阳极氧化的时间足够长, 则未氧化的第二相颗粒将被包裹到周围铝基体上所形成的氧化膜之中。氧化膜中的这些缺陷破坏了氧化膜的连续性, 所以它们有可能成为腐蚀和疲劳裂纹的萌生部位。

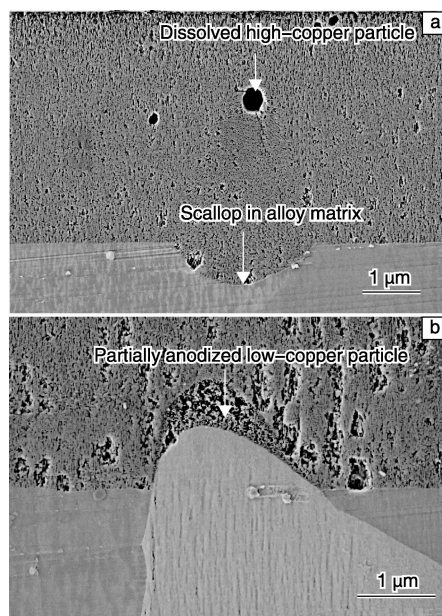


图 4 与第二相颗粒有关的阳极氧化膜缺陷

Fig. 4 Discontinuities in the anodic film associated with intermetallics

5 结 语

① AA2099-T8 合金在 3.5% NaCl 溶液中浸泡时, 由 Al-Fe-Mn-Cu-(Li) 第二相颗粒与合金基体之间形成的腐蚀微电池, 是导致合金亚稳态局部腐蚀的重要原因之一。但由于其尺寸太小, 且成分在一定范围内变化, 目前国内外尚未对相关第二相颗粒的电化学行为展开研究; ② AA2099-T8 合金在 3.5% NaCl 溶液中浸泡时发生的严重局部腐蚀表现为局部区域内晶界和晶粒组织的择优腐蚀, 且与合金热机械加工过程中晶粒尺度上的非均匀塑性变形及 T_1 相的择优析出有关; ③ AA2099-T8 合金在酒石酸-硫酸体系中阳极氧化时, Al-Fe-Mn-Cu-(Li) 第二相颗粒的阳极氧化行为明显不同于合金基体, 导致在阳极氧化膜中出现成分、结构不连续的氧化膜缺陷。

参考文献 References

- [1] Starke E A, Staley J T. *Progress in Aerospace Sciences* [J], 1996, 32: 131.
- [2] Prasad E N, Gokhale A, Wanhil R J H. *Aluminum-Lithium Alloys, Processing, Properties, and Applications* [M]. Amsterdam-

- Boston-Heidelberg-London-New York-Oxford-Paris-Sane Siego-Sane Francisco-Singapore-Sydney-Tokyo: Elsevier Inc, 2014.
- [3] Sugamata M, Blankenship C P J, Starke E A J. *Materials Science and Engineering* [J], 1993, 163(1): 1-10.
- [4] Zhu Xiaohui(朱小辉). *The Microstructure and Performance of Aluminum-Lithium Alloys Extruded*(铝锂合金(2099 和 2196)挤压型材组织与性能的研究)[D]. Changsha: Central South University, 2010.
- [5] Li Jinfeng(李劲风), Zheng Ziqiao(郑子樵), Chen Yonglai(陈永来), et al. *Aerospace Materials & Technology*(宇航材料工艺)[J], 2012, 42(1): 13.
- [6] Zheng Ziqiao(郑子樵), Li Jinfeng(李劲风), Li Hongying(李红英), et al. 新型铝锂合金的研究进展与应用[C]//*The 14th Symposium on Materials Science and Engineering Alloy Processing of the Nonferrous Metals Society of China*(第十四届中国有色金属学会材料科学与工程合金加工学术研讨会文集), Sanya, 2011.
- [7] Wang Zhutang(王祝堂). *The Chinese Journal of Nonferrous Metals*(中国有色金属学报)[J], 2012, 6: 1-3.
- [8] Buchheit R G, Mathur D, Gouma P I. Grain Boundary Corrosion and Stress Corrosion Cracking Studies of Al-Li-Cu -Cu alloy AF/C 458[M] // Shaw B A, Buchheit R G, Moran J P, et al. *Corrosion and Corrosion Prevention of Low Density Metals and Alloys*. Pennington, New Jersey: The Electrochem-Ical Society, 2001: 444-452.
- [9] Kertz J E, Gouma P I, Buchheit R G. *Metallurgical and Materials Transactions A*[J], 2001, 32(A): 2 561-2 573.
- [10] Li J F, Zheng Z Q, Li S C, et al. *Corrosion Science*[J], 2007, 49(6): 2 436-2 449.
- [11] Li J F, Zheng Z Q, Jiang N, et al. *Materials and Corrosion*[J], 2005, 56(3): 192-196.
- [12] Li H Y, Tang Y, Zeng Z D, et al. *Transactions of Nonferrous Metals Society of China*[J], 2008, 18(4): 778-783.
- [13] Liao Zhongquan(廖忠全), Zheng Ziqiao(郑子樵), Zhong Shen(钟申), et al. *Material Science and Engineering of Powder Metallurgy*(粉末冶金材料科学与工程)[J], 2011, 16(4): 478.
- [14] Chen Yonglai(陈永来), Du Zhihui(杜志惠), Zhang Weiyu(张宇玮), et al. *Aerospace Material & Technology*(宇航材料工艺)[J], 2011(2): 87-89.
- [15] Pan Qinglin(潘清林), Li Yunchun(李运春), Liang Wenjie(梁文杰), et al. *Journal of Central South University: Science and Technology*(中南大学学报(自然科学版))[J], 2008, 39(4): 735-740.
- [16] Csontos A A, Starke J E A. *Metallurgical and Materials Transactions A*[J], 2000, 31(8): 1 965-1 976.
- [17] Vander K D C, Park W, Hilton M R. *Scripta Materialia*[J], 1999, 41(11): 1 185-1 190.
- [18] Romios M, Tiraschi R, Ogren J R, et al. *Journal of Materials Engineering and Performance*[J], 2005, 14(5): 641-646.
- [19] Predel B, Madelung O. Group IV Physical Chemistry-Phase Equilibria[M]//Landolt-Bornstein. *Crystallographic and Thermodynamic Data of Binary Alloys*. Berlin: Springer-Verlag, 1998.
- [20] Ma Y, Zhou X, Thompson G E, et al. *Materials Chemistry and Physics*[J], 2011, 126(1): 46-53.
- [21] Baumann S F, Williams D B. Al-Li Alloys II[M]//Warrendale: TMS-AIME, 1984: 17.
- [22] Pickens J R, Kramer L S, Langen T J, et al. Aluminium-Lithium Alloys VI [M]//DGM Information-sgesellschaft mbH. Garmisch-Partenkirchen, Germany: 1992: 357.
- [23] Polmear I J. Chapter 3, Wrought Aluminium Alloys[M]//Butterworth-HeinemannLight. *Alloys from Traditional Alloys to Nanocrystals(4th Edition)*, Oxford: Elsevier, 2006: 97.
- [24] Warner T. *Mater Sci Forum*[J], 2006, (519-521): 1 271.
- [25] Ma Y, Zhou X, Huang W, et al. *Materials Chemistry and Physics*[J], 2015, 161(7): 201-210.
- [26] Hughes A, Muster T H, Boag A, et al. *Corrosion Science*[J], 2010(52): 665-668.
- [27] Boag A, Taylor R J, Muster T H, et al. *Corrosion Science* [J], 2010(52): 90-103.
- [28] Boag A, Hughes A E, Glenn A M, et al. *Corrosion Science* [J], 2011(53): 17-26.
- [29] Boag A, Hughes A E, Glenn A M, et al. *Corrosion Science*[J], 2011(53): 27-39.
- [30] Luo C, Zhou X, Thompson G E, et al. *Corrosion Science*[J], 2012 (61): 35-44.
- [31] Zhou X, Luo C, Ma Y, et al. *Surface and Interface Analysis* [J], 2013, 45(10): 1 543-1 547.
- [32] Ma Y, Zhou X, Huang W, et al. *Science and Technology*[J], DOI: 10.1179/1743278214Y. 0000000237. 2015.
- [33] Buchheit R G. *Journal of The Electrochemical Society*[J], 1995, 142(11): 3 994.
- [34] Yoshimura R, Konno T J, Abe E, et al. *Acta Mater*[J], 2003, 51(14): 4 251-4 266.
- [35] Wong C, Moji Y. USA, 4894127 [P]. 1990.
- [36] Alenia Aeronautica SPA. Europe, 1233084A2[P]. 2002.
- [37] Ma Y, Zhou X, Thompson G E, et al. *Journal of The Electrochemical Society*[J], 2011, 158(2): C17.
- [38] Ma Y, Zhou X, Thompson G E, et al. *Electrochimica Acta*[J], 2012, 80(10): 148.
- [39] Ma Y, Zhou X, Thompson G E, et al. *Corrosion Science*[J], 2011, 53(12): 4 141-4 151.

(编辑 王 方)