

激光冲击强化对 NiTi 形状记忆合金力学性质的影响

夏伟光 吴先前 魏延鹏 黄晨光 王 曦

(中国科学院力学研究所, 北京 100190)

摘要 采用激光冲击强化技术对初始相为奥氏体的 NiTi 形状记忆合金进行强化处理, 研究了 NiTi 形状记忆合金力学性质的变化。实验发现激光冲击强化后 NiTi 合金的影响层深度在 300 μm 左右, 表面硬度提高了约 10%。通过数字图像相关技术从拉伸过程拍摄的照片中得到材料的应变, 从而获得 NiTi 合金的应力-应变关系的变化。激光冲击强化后 NiTi 样品的超弹性应力应变曲线表明相变应力几乎没有变化, 马氏体的屈服应力下降了约 100 MPa, 最大相变应变减少了 13%。激光冲击强化产生的超高应变率的塑性变形导致材料硬度提高, 超弹性应变减少。

关键词 激光技术; 激光冲击强化; 形状记忆合金; 数字图像相关; 马氏体相变; 超弹性; 塑性变形

中图分类号 TN249 **文献标识码** A **doi**: 10.3788/CJL201340.1103002

Mechanical Properties of NiTi Shape Memory Alloy Processed by Laser Shock Peening

Xia Weiguang Wu Xianqian Wei Yanpeng Huang Chenguang Wang Xi

(Institute of Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China)

Abstract An austenite NiTi shape memory alloy is processed by laser shock peening (LSP), and the mechanical properties is investigated. It is found that the thickness of shock affected layer is about 300 μm . The surface hardness of the specimen is increased by approximately 10% after LSP. The strain of the specimen is extracted from the images recorded in the tension by the digital image correlation technique in order to obtain the stress-strain curves. The superelastic stress-strain curves of the fully LSP processed NiTi material show no change in phase transition stress, the martensite yield stress decreases to about 100 MPa, and a loss of maximum transition strain about 13% after LSP. The ultrahigh-strain-rate plastic deformation by LSP results in dense dislocation underneath the surface which is responsible for the hardness increase and superelastic strain loss.

Key words laser technique; laser shock peening; shape memory alloy; digital image correlation; martensitic transformation; superelasticity; plastic deformation

OCIS codes 140.3390; 350.3390; 350.3850; 350.5030; 100.2000

1 引言

形状记忆合金(SMA)是近些年来重点开发的一种功能性新材料。SMA 在一定的应力和温度条件下能发生热弹性的奥氏体与马氏体的相转变, 使得材料具有一般金属材料所没有的形状记忆效应和

超弹性性能^[1]。这些特殊的性能使得 SMA 作为一种智能材料越来越广泛地在机械制造、航空航天、医疗器械和微电子机械系统等领域得到应用。抗磨损和耐疲劳是 SMA 在工程应用中要面对的首要问题^[2]。对于传统的金属材料如不锈钢和钛合金等,

收稿日期: 2013-04-09; 收到修改稿日期: 2013-06-04

基金项目: 国家自然科学基金(11002150, 10972228)、中国科学院科研装备研制项目(YZ200930)

作者简介: 夏伟光(1988—), 男, 博士研究生, 主要从事激光与物质相互作用机理方面的研究。

E-mail: xiaweiguang@imech. ac. cn

导师简介: 王 曦(1976—), 男, 博士, 副研究员, 主要从事功能材料力学性能方面的研究。

E-mail: xiwang@imech. ac. cn(通信联系人)

主要是通过喷丸强化等表面改性方法来改善抗磨损和疲劳性能^[3-4]。对于 SMA,除了要改善表面抗磨损和疲劳性能外,还需要其基体材料保留优异的形状记忆效应和超弹性性能。喷丸强化产生的残余应力层浅,引起材料的表面粗糙度大^[5],因而对于医疗器械和微电子机械系统中常用的具有复杂几何外形以及表面精度要求高的结构,喷丸强化技术无法达到工艺要求。激光冲击强化(LSP)作为一种新型的表面改性技术近些年来发展迅速^[5-7]。LSP 利用高功率密度、短脉冲的激光束辐照在金属材料表面,使材料熔化、气化、电离产生等离子体并不断吸收激光能量,而等离子体的膨胀又受到约束层的限制从而向靶材输入短脉冲高强度的冲击波。一旦冲击波的压力幅值超过了靶材的 Hugoniot 弹性极限(HEL),就会在材料的表面产生塑性变形和残余应力,从而提高材料的疲劳寿命和抗磨损性能。相对于传统的喷丸强化,激光冲击强化技术具有残余应力层深,表面粗糙度小等特点^[5]。另外,通过激光光斑的相互重叠和采用水等液体作为约束层,LSP 能够处理具有复杂几何外形的结构。由于激光束的大小很容易通过光学透镜调节,且能量的控制方便实现,因而人们还开发了微米尺度的局部激光强化技术,并且应用于半导体材料中金属薄膜的表面强化^[8-10]。LSP 的技术优势使它有可能作为一种新型的表面改性技术应用于 SMA 材料。

激光诱导冲击波的峰值压力在吉帕量级,冲击作用时间在纳秒量级,靶体材料表面的应变率达到 $10^5 \sim 10^7 \text{ s}^{-1}$ 量级。国内外对于 NiTi 形状记忆合金在这种超高应变率下变形行为的研究还很少。现有的研究成果多集中在对 NiTi 形状记忆合金在 LSP 作用后的微观结构演化与变形机制的研究,而对 NiTi 形状记忆合金的力学性质和激光冲击参数之间的定量关系的研究还没有报道。Chang 等^[11]通过 LSP 和可控的退火技术在初始相为马氏体的 NiTi 形状记忆合金表面产生了纳米晶,在保留材料韧性的同时使材料的表面硬度和强度都得到了提高。激光冲击参数与力学性质的关系能够为 NiTi 合金的强化效果提供指导,因而有必要通过系统的实验对 NiTi 合金的力学性质和激光冲击参数之间的定量关系进行研究。

本文采用水作为约束层,在不同的激光功率密度下对初始相为奥氏体的 NiTi 合金进行 LSP 实验,研究激光功率密度对表面硬度、影响层深度和超弹性行为的影响。

2 实验方法

2.1 样品制备

实验中的 NiTi 形状记忆合金是多晶体,其中 Ni 的含量为 50.5%(原子数分数)。通过光学显微镜观察,样品的晶粒尺寸在 $30 \mu\text{m}$ 左右(如图 1 所示)。典型的相转变温度通过差式扫描热分析仪(DSC, Perkin Elmer Diamond)测量获得(如图 2 所示)。4 个典型的相转变特征温度分别是:马氏体到奥氏体相转变开始温度 $A_s=277 \text{ K}$,马氏体到奥氏体相转变结束温度 $A_f=286 \text{ K}$,奥氏体到马氏体相转变开始温度 $M_s=285 \text{ K}$,奥氏体到马氏体相转变结束温度 $M_f=274 \text{ K}$ 。因此材料在室温下处于奥氏体相,在应力作用下表现出超弹性行为^[1]。在 LSP 实验之前,样品表面用一系列不同粒度的砂纸抛光,并用 $0.05 \mu\text{m}$ 的 Al_2O_3 悬浊液做最终的抛光。

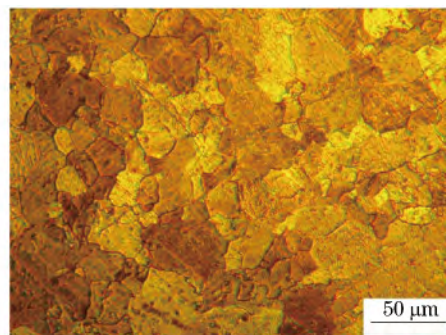


图 1 NiTi 样品微结构光学显微镜照片
Fig. 1 Optical micrograph of microstructure of NiTi sample

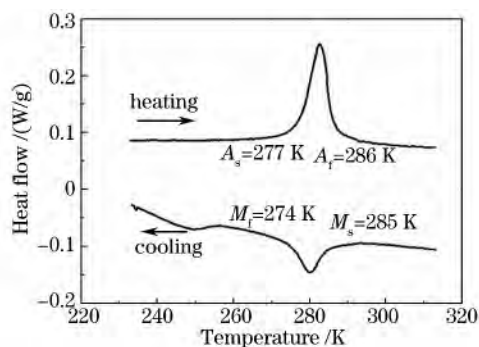


图 2 NiTi 样品的 DSC 曲线
Fig. 2 DSC curves of NiTi specimen

2.2 激光冲击强化实验

LSP 实验的原理如图 3 所示, $180 \mu\text{m}$ 厚的黑漆粘在 NiTi 样品的表面作为吸收层,水作为约束层, NiTi 样品的背面另加一个 NiTi 样品作为阻抗匹配。LSP 实验采用美国光谱物理公司(Spectra Physics-Quanta Ray)的调 Q 型 Nd:YAG 激光器对

试样表面进行冲击处理。激光波长为 1064 nm, 激光单次脉冲能量为 2.4 J, 激光脉冲的半峰全宽 (FWHM) 为 10 ns, 激光能量在空间和时间上均服从近似高斯分布。初始的激光光斑直径在 12 mm 左右, 采用聚焦透镜来调整光斑的大小, 从而改变激光功率密度的大小。本实验所研究的激光功率密度为 3.4~4.4 GW/cm²。对样品进行激光冲击时按照一定的重叠率进行冲击, 通过 x-y 平移台控制激光冲击处理的重叠率为 50%。

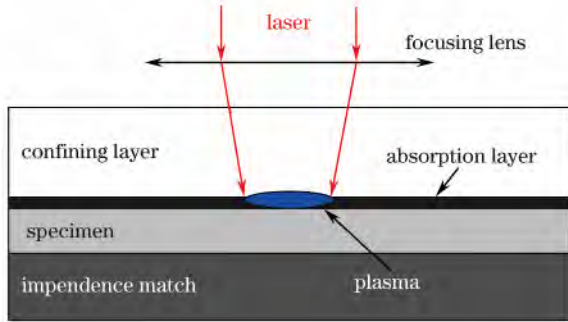


图 3 激光冲击强化处理示意图

Fig. 3 Schematic of laser shock peening

2.3 材料的特性研究

采用显微硬度计 MH-5L 测量 NiTi 样品在 LSP 作用后的表面硬度变化。LSP 对 NiTi 样品的影响层深度也通过测量样品断面上硬度的分布来获得。显微硬度测量采用金刚石四棱锥型压头, 锥角为 136°。实验中施加的载荷是 200 g, 保持时间是 10 s。每一个数据点都是 6 次实验测量取平均值的结果。

通过简单拉伸实验研究 LSP 后 NiTi 样品的超弹性行为的变化。拉伸样品的标距段长 4 mm, 宽 2 mm, 厚 0.4 mm, 样品的两面都进行激光冲击强化。为了使标距段完全冲击强化, 激光光斑以 50% 的重叠率沿标距段的拉伸方向进行冲击强化。简单拉伸实验在 Gatan Microtest 2000 微拉伸台上进行。实验采用位移加载模式, 加载速率为 0.5 mm/min, 名义应变率为 $2 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ 。在实验过程中, 载荷通过一个 2 kN 的压力传感器测量, 利用配有光学显微镜镜头的 CCD 相机对样品表面进行连续拍摄, 样品的应变通过数字图像相关方法 (DIC)^[12] 从拍摄的照片中获得。

2.4 微结构表征

透射电子显微镜 (TEM) 样品是在 FEI DualBeam 820 系统中通过聚焦离子束技术 (FIB) 从冲击强化样品的表面制备的。TEM 显微观察在 JOEL-2010 电子显微镜上进行。

3 实验结果与讨论

3.1 显微硬度

LSP 处理后 NiTi 样品断面的维氏硬度分布如图 4 所示。从图中可以看出沿着样品表面向下显微硬度 (HV) 在 290~300 kg/mm² 的范围内, 在 300 μm 深度处减小到未冲击处理样品的硬度值。这一结果表明在所研究的激光功率密度范围内, LSP 的塑性影响层深度在 300 μm 左右。LSP 处理后 NiTi 样品表面硬度随激光功率密度的变化如图 5 所示, 通过实验发现 LSP 后样品的表面硬度从 (277±5) kg/mm² 提高到 (304±9) kg/mm², 硬度提高了约 10%。在所研究的激光功率范围内, 硬度的提高不随激光功率密度变化。由于测量硬度时压头的压入深度约为 10 μm, LSP 塑性影响层深度是它的 30 倍, 因此强化后样品的表面硬度能够反映改性层的硬度大小。对样品进行 LSP 后显微硬度的离散性变大, 这是由于实验采用激光的能量在空间不是均匀分布的, 而是服从近似高斯分布。由于激光诱导产生的冲击波压力不均匀, 因而在空间的强化效果不同, 造成硬度的离散性变大。

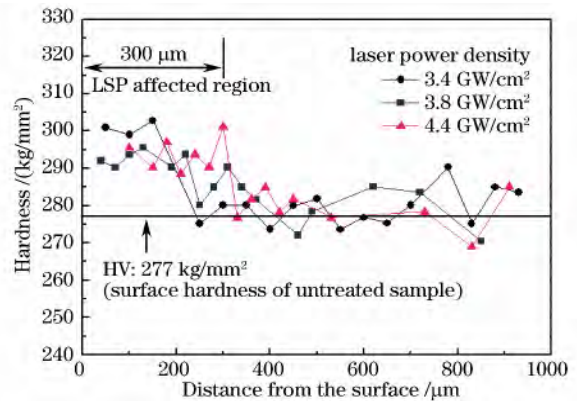


图 4 激光冲击强化后样品断面硬度随深度的变化关系

Fig. 4 Hardness as a function of depth on cross-section of peened sample

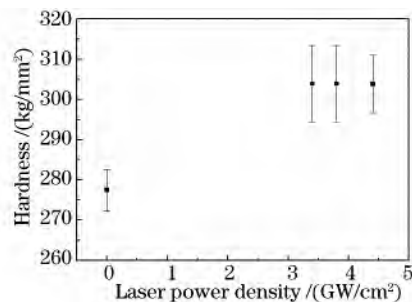


图 5 LSP 作用后表面硬度随激光功率密度的变化

Fig. 5 Surface hardness as a function of laser power density after LSP process

3.2 微结构演化

如图 6 所示,TEM 观察显示 NiTi 样品表面在 LSP 作用后产生了大量的位错结构。图 6(b)为图 6(a)中区域 A 在更高放大倍数下的 TEM 照片,可以

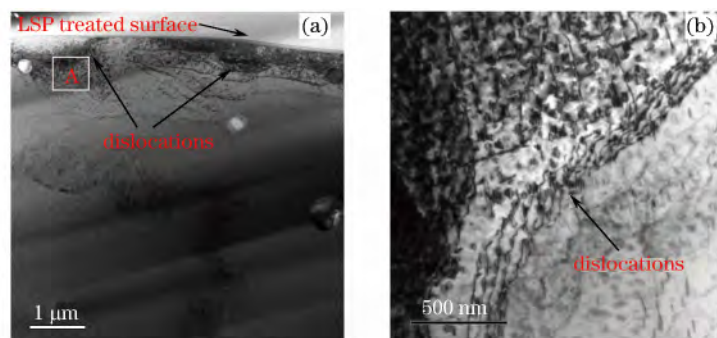


图 6 NiTi 样品表面在 LSP 作用后的微结构。(a) 表面产生位错结构的明场 TEM 照片;
(b) A 区域在更高放大倍数下的 TEM 照片

Fig. 6 Microstructure of NiTi specimen surface after LSP. (a) Bright field TEM image showing dislocations at surface;
(b) higher magnification TEM image from region A

3.3 超弹性行为

3.3.1 DIC 测应变

NiTi 形状记忆合金的超弹性行为可以通过材料的应力-应变曲线得到。由于 NiTi 形状记忆合金在载荷作用下会发生奥氏体到马氏体的相变,使材料表面产生浮凸特征(如图 7 所示),再加上相变应变很大(高达 5%^[11]),因此无法通过应变片来测量应变的大小。另外由于拉伸实验样品非常小,无法

更加清楚地观察到位错的特征。根据加工硬化的机理^[6,13-14],LSP 造成的位错密度增加能够使得材料表面硬度提高。

采用引伸计进行测量,这就需要采用新型的应变测量方法。近年来发展起来的 DIC 技术具有非接触的特点,能够满足实验要求^[15-17]。DIC 是通过对物体表面在变形前后的数字图像进行相关运算来得到物体的位移,再对位移场计算得出应变场。DIC 技术对样品的要求较低,实验过程简单,且具有较高的灵敏度和精度,能够测量全场的位移和应变,因而在实验力学中获得了广泛的应用^[18]。

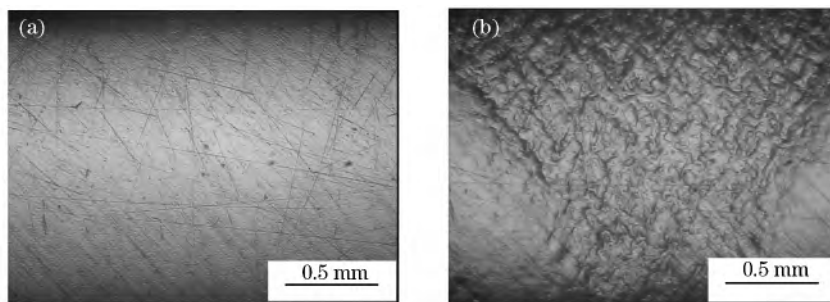


图 7 拉伸过程中 CCD 所拍摄的 NiTi 样品实验段的照片。(a) 拉伸初始时刻 NiTi 样品的表面;
(b) 拉伸过程中 NiTi 样品表面显示奥氏体到马氏体的相变过程

Fig. 7 Image of NiTi specimen recorded by a CCD camera. (a) NiTi specimen surface at beginning of tension;
(b) phase transformation from austenite to martensite of NiTi specimen

实验中样品表面采用 #400 砂纸进行打磨,使材料表面的特征更加明显,以利于 DIC 程序识别。在样品进行拉伸过程中,采用配有光学显微镜镜头的 CCD 相机来连续采集整个拉伸过程的样品表面照片,采集频率为 0.5 frame/s,如图 7 所示。然后采用 Eberl 等^[12]开发的 DIC 程序计算得到拉伸过程

中应变随时间的变化关系,计算结果如图 8(a)所示,其中计算得到的应变为工程应变。同时由压力传感器给出的载荷随时间的变化关系,可以得到应力随时间的变化关系,如图 8(b)所示,其中得到的应力为工程应力。将中间变量时间 t 消去就可以得到材料的工程应力-应变关系,如图 8(c)所示。

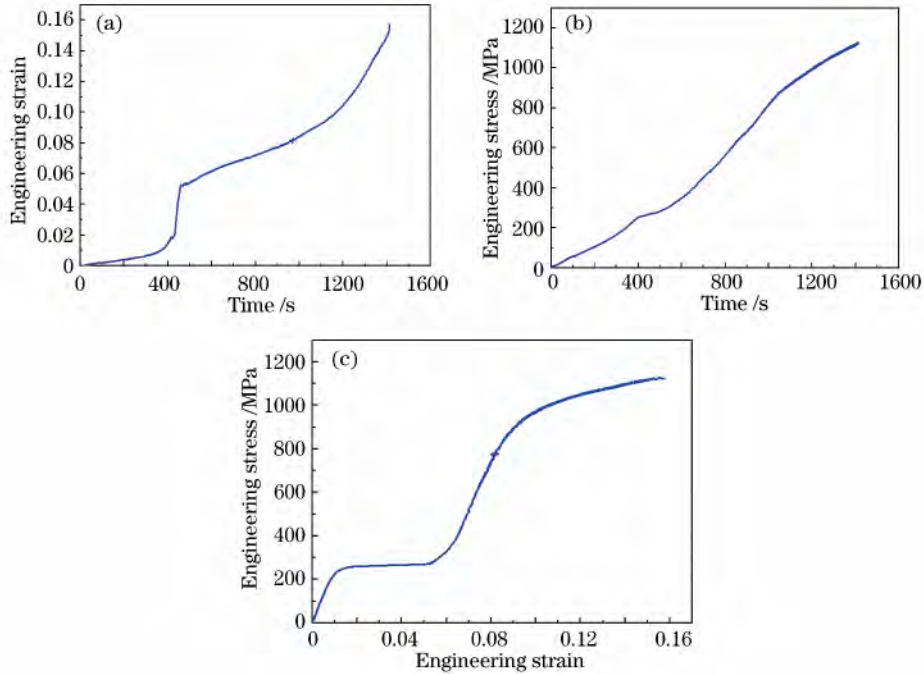


图 8 通过 DIC 技术获得 NiTi 样品的应力-应变关系。(a) 应变随时间的变化曲线；(b) 应力随时间的变化曲线；(c) 应力-应变关系

Fig. 8 Stress-strain curves of NiTi specimen with DIC. (a) Strain-time curve; (b) stress-time curve; (c) stress-strain curve

3.3.2 超弹性行为

对厚度为 0.4 mm 的拉伸样品进行双面 LSP 处理后再进行简单拉伸实验。由于 LSP 的影响层深度在 300 μm 左右,对拉伸样品进行双面冲击后能够保证拉伸样品的标距段全部被激光冲击强化。简单拉伸实验获得的应力-应变曲线如图 9 所示。样品初始相为奥氏体,当应力达到相变应力 σ_s^{AM} 时会发生奥氏体到马氏体的相变,相变完成后材料处于马氏体相,所引起的最大相变应变记作 ϵ_{tr} 。继续加载会出现

马氏体的弹性变形,当应力达到马氏体的屈服应力 σ_y^M 后继续加载会出现马氏体的屈服直至断裂。激光冲击强化对超弹性行为的影响如表 1 所示。在所研究的激光功率范围内,相变应力 σ_s^{AM} 没有发生变化,马氏体的屈服应力 σ_y^M 减少了约 100 MPa,最大相变应变 ϵ_{tr} 从未冲击处理的 4.90% 减小到 4.28%,减少了约 13% (激光功率密度为 4.4 GW/cm² 的条件下)。随着激光功率密度的增大,最大相变应变 ϵ_{tr} 减小的幅值增大。材料的断裂应变与激光功率密度没有明显的关系,这可能是因为断裂时的应变对样品在制备时引入的缺陷非常敏感。

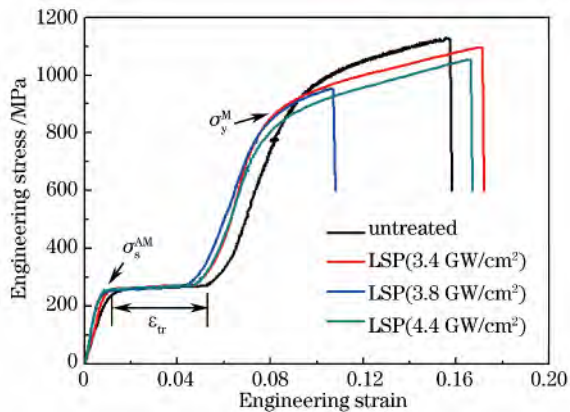


图 9 不同激光功率密度强化下 NiTi 拉伸样品的应力-应变曲线

Fig. 9 Stress-strain curves of NiTi tensile specimen treated by various laser power densities

表 1 LSP 作用后 NiTi 样品的超弹性应力应变曲线特征
Table 1 Characteristics of superelastic stress-strain curve of LSP treated NiTi specimen

Laser power density / (GW/cm ²)	0	3.4	3.8	4.4
Transition strain / %	4.90	4.64	4.37	4.28
Transition stress / MPa	256	260	253	256
Yield stress of martensite / MPa	963	872	821	830

3.4 讨 论

在 LSP 过程中,激光功率密度及激光的脉宽决定了激光诱导的冲击波的压力特征,从而决定了塑性应变和冲击诱导变形的应变率。激光诱导的冲击

压力可以在 10 ns 内迅速达到峰值,在材料的表面引起超高的应变率($10^5 \sim 10^7 \text{ s}^{-1}$)。激光诱导的冲击压力可以通过 Fabbro 模型来估算^[19],即

$$P = 0.01 \sqrt{\frac{\alpha}{2\alpha + 3}} \sqrt{Z} \sqrt{I}, \quad (1)$$

式中 α 是热能与内能之比,通常取 0.25。 I 是激光功率密度($\text{GW} \cdot \text{cm}^{-2}$), $Z = 2 Z_1 Z_2 / (Z_1 + Z_2)$ 是吸收层(黑漆,冲击阻抗 $1.98 \times 10^5 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$)和约束层(水,冲击阻抗 $1.45 \times 10^5 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$)之间的复合冲击阻抗($\text{g} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$)。由于吸收层材料和靶体材料(NiTi,冲击阻抗 $3.44 \times 10^6 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ ^[20])的阻抗不匹配,使得传入 NiTi 合金的冲击压力增大。实验中以水作为约束层,激光诱导冲击波的峰值压力从 3.9 GPa 增加到 4.5 GPa。Chang 等^[11]对初始相为马氏体的 NiTi 合金进行了 LSP 实验,在冲击波峰值压力为 5.0 GPa 时在材料中观察了晶体到非晶相的转变,这是由于高应变率的塑性变形诱导产生的缺陷和化学能紊乱造成的。初始相为奥氏体的 NiTi 合金的 LSP 更加复杂,因为在冲击压力作用下可能会出现奥氏体到马氏体的相变以容纳变形^[21]。尽管冲击诱导的马氏体在卸载后还可能全部或者部分转化为奥氏体^[21-23],但是马氏体的塑性变形产生的密集位错使得材料硬度提高,最大相变应变减少。

4 结 论

研究了初始相为奥氏体的 NiTi 合金采用水作为约束层进行激光冲击强化后 NiTi 合金力学性质的变化。发现 LSP 影响层深度是 300 μm ,LSP 后表面硬度提高约 10%。LSP 引起了超高应变率的塑性变形,在材料的表面产生大量的位错结构,导致材料的表面硬度提高。LSP 处理的样品的应力-应变曲线表明最大相变应变相对减小了 13%,超弹性性能略有下降。激光冲击强化产生的超高应变率的塑性变形导致了材料表面硬度提高及超弹性应变减少。

参 考 文 献

- 1 K Otsuka, C M Wayman. Shape Memory Materials [M]. Cambridge, Cambridge University Press, 1998. 49-64.
- 2 S Shabalovskaya, J Anderegg, J Van Humbeeck. Critical overview of Nitinol surfaces and their modifications for medical applications[J]. Acta Biomater, 2008, 4(3): 447-467.
- 3 J Lindemann, C Buque, F Appel. Effect of shot peening on fatigue performance of a lamellar titanium aluminide alloy[J]. Acta Mater, 2006, 54(4): 1155-1164.
- 4 H Y Miao, D Demers, S Larose, et al.. Experimental study of shot peening and stress peen forming [J]. J Mater Process Technol, 2010, 210(15): 2089-2102.

- 5 C S Montross, T Wei, L Ye, et al.. Laser shock processing and its effects on microstructure and properties of metal alloys: a review[J]. Inter J Fatigue, 2002, 24(10): 1021-1036.
- 6 P Peyer, R Fabbro. Laser shock processing: a review of the physics and applications[J]. Optical and Quantum Electronics, 1995, 27(12): 1213-1229.
- 7 Li Wei, Li Yinghong, He Weifeng, et al.. Development and application of laser shock processing[J]. Laser & Optoelectronics Progress, 2008, 45(12):15-19.
- 李 伟, 李应红, 何卫锋, 等. 激光冲击强化技术的发展和应 [J]. 激光与光电子学进展, 2008, 45(12): 15-19.
- 8 W W Zhang, Y L Yao. Micro scale laser shock processing of metallic components[J]. Journal of Manufacturing Science and Engineering, 2002, 124(2): 369-378.
- 9 Y N Wang, H Q Chen, J W Kysar, et al.. Response of thin films and substrate to micro-scale laser shock peening [J]. Journal of Manufacturing Science and Engineering, 2007, 129(3): 485-496.
- 10 Liu Xiaodong, Shang Deguang, Liu Hui, et al.. Study on fatigue property for electroplated copper thin film by pulsed laser shock peening[J]. Journal of Mechanical Strength, 2012, 34(5): 751-756.
- 刘小冬, 尚德广, 柳 会, 等. 脉冲激光冲击处理下电镀铜薄膜疲劳特性分析[J]. 机械强度, 2012, 34(5): 751-756.
- 11 Chang Ye, Suslov Suslo, Xueling Fei, et al.. Bimodal nanocrystallization of NiTi shape memory alloy by laser shock peening and post-deformation annealing [J]. Acta Materialia, 2011, 59(19): 7219-7227.
- 12 C Eberl, R J Thompson, D S Gianola, et al.. Free Digital Image Correlation and Tracking Functions [OL]. <http://www/mathworks.com/matlabcentral/fileexchange/12413>.
- 13 Lu Jinzhong, Luo Kaiyu, Feng Aixin, et al.. Micro-structural enhancement mechanism of LY2 Aluminum alloy by means of a single laser shock processing[J]. Chinese J Lasers, 2010, 37(10): 2662-2666.
- 鲁金忠, 罗开玉, 冯爱新, 等. 激光单次冲击 LY2 铝合金微观强化机制研究[J]. 中国激光, 2010, 37(10): 2662-2666.
- 14 Zhang Lingfeng, Xiong Yi, Zhang Yi, et al.. Microstructure of high manganese steel by laser shock processing[J]. Chinese J Lasers, 2011, 38(6): 0603025.
- 张凌峰, 熊 毅, 张 毅, 等. 高锰钢在激光冲击作用下的微观特征[J]. 中国激光, 2011, 38(6): 0603025.
- 15 T C Chu, W F Ranson, M A Sutton, et al.. Applications of digital-image-correlation techniques to experimental mechanics [J]. Exp Mech, 1985, 25(3): 232-244.
- 16 M A Sutton, M Q Cheng, W H Peters, et al.. Application of an optimized digital correlation method to planar deformation analysis[J]. Image Vis Comput, 1986, 4(3): 143-150.
- 17 H W Schreier. Investigation of Two and Three-Dimensional Image Correlation Techniques with Applications in Experimental Mechanics[M]. Columbia: University of South Carolina, 2003.
- 18 Bing Pan, Kemao Qian, Huimin Xie, et al.. Two-dimensional digital image correlation for in-plane displacement and strain measurement: a review[J]. Meas Sci Technol, 2009, 20(6): 062001.
- 19 L Berthe, R Fabbro, P Peyre, et al.. Shock waves from a water-confined laser-generated plasma [J]. J Appl Phys, 1997, 82: 2826-2832.
- 20 J C F Millett, N K Bourne. The shock-induced mechanical response of the shape memory alloy, NiTi [J]. Materials Science and Engineering: A, 2004, 378(1-2): 138-142.
- 21 Yiliang Liao, Chang Ye, Dong Lin, et al.. Deformation induced martensite in NiTi and its shape memory effects generated by low temperature laser shock peening[J]. Journal of Applied Physics, 2012, 112(3): 033515.
- 22 Y C Chen, D C Lagoudas. Impact induced phase transformation in shape memory alloys[J]. Journal of the Mechanics and Physics of Solids, 2000, 48: 275-300.
- 23 D C Lagoudas, K Ravi-Chandar, K Sarh, et al.. Dynamic loading of polycrystalline shape memory alloy rods [J]. Mechanics of Materials, 2003, 35: 689-716.

栏目编辑: 宋梅梅