

基于颗粒形貌及成分分析的激光除漆去除机理研究

王德良 冯国英 邓国亮 陈康喜

四川大学电子信息学院激光微纳工程研究所, 四川 成都 610064

摘要 通过对纳秒 Nd:YAG 脉冲激光辐照油漆过程中所喷溅的颗粒形貌及成分的分析,研究激光除漆的物理机理。扫描电子显微镜的结果表明,在激光除漆的过程中产生微米量级和纳米量级的颗粒以及纳米网状结构。微米尺度的颗粒形状不规则,表面粗糙;纳米尺度的颗粒呈球形,表面光滑。随着激光能量的增大,微米量级和纳米量级的颗粒平均尺寸都变大。X射线能谱仪的结果显示,微米量级的颗粒成分与激光辐照前漆的成分相当,与振动去除机制有关,而纳米颗粒中碳的含量(原子数分数)下降超过 50%,是由于激光对漆的烧蚀作用所导致。该研究为激光除漆基本物理机理的研究提供新的思路和方法。

关键词 激光技术;激光除漆;喷溅颗粒;成分分析;脉冲激光沉积

中图分类号 TN249 文献标识码 A

doi: 10.3788/CJL201542.1003007

Study of Mechanism on Laser Paint Removal Based on the Morphology and Element Composition of Ejected Particle

Wang Deliang Feng Guoying Deng Guoliang Chen Kangxi

Institute of laser & Micro/Nano Engineering, College of Electronics & Information Engineering, Sichuan University, Chengdu, sichuan 610064, China

Abstract Laser paint removal mechanism is studied by analyzing the morphology and element composition of the ejected particle coming from nanosecond Nd:YAG pulse laser radiation. The scanning electron microscope results show that the micro-/nano-particles, web-like aggregates are produced respectively in the process of laser paint removal. Micro-particles have irregular shapes and rough surfaces while nano-particles exhibit spherical and smooth surfaces. The average sizes of micro- and nanoparticles become larger as the laser energy increase. The energy dispersive X-ray spectrometer results indicate that the components of micro-particles are the same as the bulk material, related to the vibration removal mechanism. However, the content (atomic fraction) of C element for nanoparticles decrease seriously, more than 50%, resulting from the effect of laser ablation to paint. The research provides a new idea and method for studying the basic physical mechanism of laser paint removal.

Key words laser technique; laser paint removal; ejected particles; component analysis; pulsed laser deposition

OCIS codes 140.3330, 140.3390, 350.4990, 240.6690, 140.6810

1 引言

随着激光技术的快速发展,它被广泛应用于各个领域,如医学、通信和工业等。其中,激光辐照是一种新型及高效的材料处理手段,特别是在清洗领域中,激光清洗与机械刷磨、化学试剂、超声波清洗等传统方法相比,有很多优点^[1-3]:1)产生的废料易处理,降低环境污染;2)非接触式清洗;3)可控性好、效率高、成本低等。

激光清洗的研究是一个很重要的课题,尤其是对清洗机理的研究,但其物理机理相当复杂,对科研人员来说是个挑战。在过去十几年中,很多工作者通过不懈的努力并取得了一些成果。1998年,Lu等^[4]建立微

收稿日期:2015-04-23;收到修改稿日期:2015-06-03

作者简介:王德良(1990—),男,硕士研究生,主要从事新型激光技术等方面的研究。E-mail: 932367791@qq.com

导师简介:冯国英(1969—),女,教授,博士生导师,主要从事新型激光技术方面的研究。

E-mail: guoing_feng@scu.edu.cn(通信联系人)

粒清除理论模型,引入动力学能量分析方法,计算静态粘附力和范德瓦耳斯结合能,求解动力学加速度方程,得出清洗条件;2000年,Watkins^[5]将激光清洗机制系统地总结为6种:烧蚀、快速加热和冷却导致的振动波、选择性汽化、光压力、气化压力、等离子体爆发;2002年, Lee等^[6]数值模拟求解激光作用下的三维热弹性振动方程,计算了温度、形变和应力变化;2006年, Bloisi^[7]和 Kim^[8]证明了热弹性振动模型在激光清洗中的应用;2003年, Arnold^[9]的研究表明激光清洗颗粒是因热膨胀,根据尺寸大小表现出不同的去除机制;2005年, Autric等^[10]的研究表明吸收介质的主要作用机制是烧蚀机制,透明介质的主要机制是热-机械作用;2006年, Brygo等^[11]在热限制机制下建立一维热模型,描述高重复率激光加热,研究了烧蚀阈值与激光参数的关系;2009年, Coutouly等^[12]研究了红外激光辐照金属表面油漆的温度场分布,进而选择合适的激光参数;2012年, Shi等^[13]根据热传导理论建立涂层-基底系统,数值模拟系统中的温度、应力分布,发现使用平顶高斯光束除漆具有更高的效率;2014年, Zou等^[14]建立热应力的模型,表明热应力是短脉冲去除油漆的主要机制。然而,已有的研究主要是建立理论模型进行数值模拟,选择合适的清洗参数,通过清洗效果表征所建立的理论机制,但从实验现象直接表征去除机制的研究还比较少, Vatry等^[15-16]研究了激光清洗托卡马克装置中的颗粒,将收集板上的颗粒与基底上的颗粒对比,分析了清洗效率与激光参数的关系及其去除机制。

基于此,通过对所收集的喷溅颗粒的形貌和成分分析,证明激光除漆过程中存在的去除机理。通过脉冲激光沉积(PLD)的方法,在洁净硅片上沉积激光除漆过程中所喷溅的颗粒,使用扫描电子显微镜(SEM)观察颗粒的形貌特征,统计其颗粒尺寸分布,并使用X射线能谱仪(EDS)分析颗粒元素,为激光清洗机理的研究提供一种新的思路和方法。结果表明,在激光除漆的过程中产生了不规整的微米颗粒和光滑的球形纳米颗粒以及纳米网状结构。微米颗粒成分与油漆相近,来源于振动;纳米颗粒中C元素下降很多,来源于激光烧蚀。在本实验条件下,纳秒Nd:YAG脉冲激光去除油漆的机制包含振动机制和烧蚀机制。

2 实验系统与方法

实验系统如图1所示。电光调Q Nd:YAG激光器发射的脉冲激光被45°反射镜全反射,经透镜(焦距为45 mm)聚焦后以45°角入射到样品表面。激光器出射激光波长为1064 nm,脉宽为7 ns,经聚焦后烧蚀点光斑尺寸为1 mm,脉冲重复频率为1 Hz,脉冲能量在100 mJ以内可调,实验选取10 mJ和30 mJ。样品是均匀喷洒油漆的铝漆板,被固定在移动平台上,可通过个人计算机调整激光脉冲烧蚀的位置。硅片作为收集颗粒的基底,尺寸为2 mm×2 mm,距离样品约17 mm,并与样品表面平行且正对烧蚀口。吸收池用于吸收经样品反射的激光。He-Ne激光作为准直光和参考光,对光路进行准直。

实验中,先将所用硅片置于乙醇溶液中进行5 min的超声波清洗处理,清除其表面杂物。实验所用的油漆是Botny牌汽车油漆,选取的颜色为:黄色、白色和红褐色。油漆均匀喷洒在经抛光后的铝板上,漆层厚度为200~300 μm。

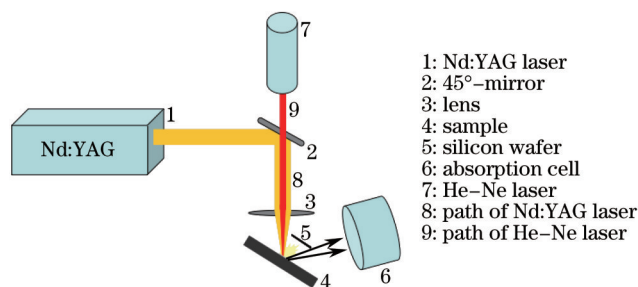


图1 实验系统示意图

Fig.1 Schematic of the experimental systems

按PLD的方法在硅片上收集激光辐照油漆所喷溅的颗粒后,使用SEM(HITACHI High-Technologies公司, SU8220)对颗粒的形貌进行观察,并通过EDS(EDAX公司, Octne Plus)对未烧蚀前的样品油漆和沉积在硅片上的颗粒进行元素成分测量,利用Ocean Optics USB 4000光纤光谱仪探测等离子体发光谱。

3 实验结果与讨论

3.1 实验结果

10 mJ 激光辐照下,沉积在硅片上颗粒的形貌如图 2 所示(图中实验样品为黄色油漆)。图 2(a)为整体形貌,其放大倍数为 60 倍,从中可以看出在硅片的表面沉积有大小不一的微米量级的颗粒。在更大的放大倍数下(5000×~7000×),能够观察到微米量级颗粒的形貌,如图 2(b)、(c)所示,其形状不规则,表面干皱不平整。在约 200000×的放大倍数下,可以观察到如图 2(d)、(e)所示的纳米量级的颗粒以及网状结构,纳米颗粒表面均匀,形状规整,呈球形;经测量统计,其中相对较大的颗粒约为几十纳米,网状结构中的颗粒约为几纳米或更小。对于不同颜色漆板样品,颗粒形貌和尺寸分布没有表现出明显区别。

30 mJ 激光辐照下,颗粒形貌和尺寸分布与图 2(a)~(d)相似,但其纳米颗粒形成网状结构时,颗粒平均尺寸相对较大,形貌如图 3 所示,其颗粒大小约为十几纳米,是图 2(e)网状结构中颗粒的几倍。

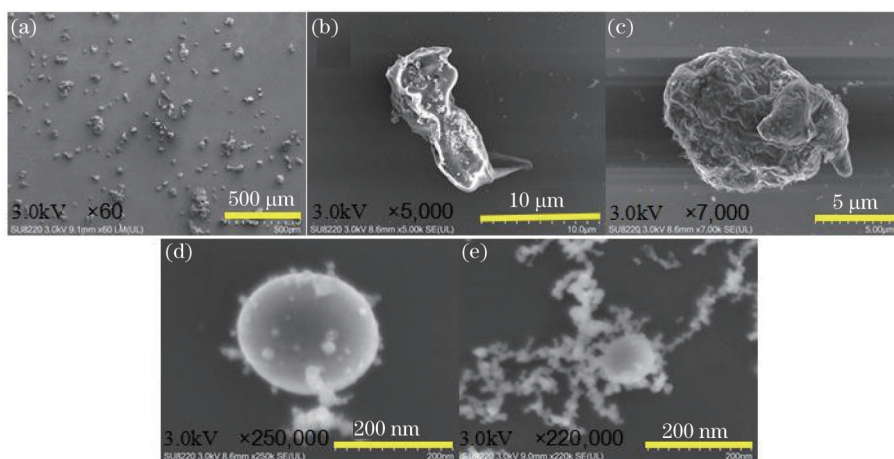


图 2 10 mJ 脉冲激光辐照黄色漆板时所收集颗粒的 SEM 测量结果。(a)靠近硅片中心区域的局部形貌;(b)~(c)微米颗粒形貌;(d)亚微米颗粒形貌;(e)纳米颗粒及网状结构形貌

Fig.2 SEM measurements of particles under pulse laser irradiation of 10 mJ. (a) Local morphology near the central of wafer; (b)~(c) morphologies of micro-particle; (d) morphology of sub micro-particle; (e) morphology of nano-particle and web-like aggregates



图 3 30 mJ 脉冲激光辐照黄色漆板所收集的纳米网状结构的形貌

Fig.3 Morphology of web-like aggregates under pulse laser irradiation of 30 mJ

对不同激光能量下的颗粒尺寸和数量进行统计,得到其颗粒分布情况如图 4 所示。其中,图 4(a)和(c)分别为 10 mJ 脉冲激光辐照下产生的微米、纳米颗粒的尺寸分布;图 4(b)和(d)分别为 30 mJ 脉冲激光辐照下产生的微米和纳米颗粒的尺寸分布。从图中可以看出,颗粒尺寸的分布变化趋近于正态分布,这与文献[17-18]中所表述的分布情况相同。10 mJ 脉冲激光辐射时,分布较为集中,微米颗粒平均尺寸约为 15 μm,纳米颗粒平均尺寸约为 12 nm;30 mJ 脉冲激光辐射时,颗粒尺寸分布范围相对较广,有更大的颗粒产生,微米颗粒平均尺寸约为 31 μm,纳米颗粒平均尺寸约为 26 nm。

为进一步研究除漆机理,通过 EDS 对所收集颗粒做元素成分及含量测量。对于未进行激光辐照的漆板样品,检测结果如图 5 所示(此处只列出了黄色油漆 EDS 图)。由图可知,黄色油漆主要含 C 和 Pb 等元素,其原子数分数分别为 84.54%和 0.36%等;白色油漆主要含 C 和 Ti 等元素,其原子数分数分别为 80.28%和 4.79%;

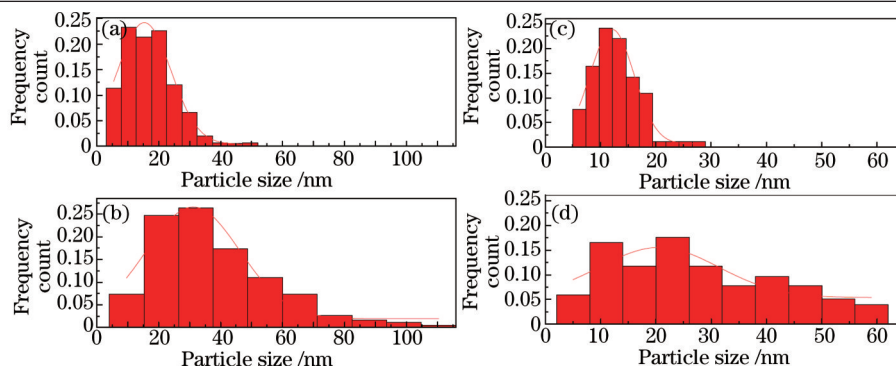


图4 不同尺寸的颗粒数量比。(a) 10 mJ脉冲激光辐照漆板时所收集的微米颗粒的尺寸分布;(b) 30 mJ脉冲激光辐照漆板时所收集微米颗粒的尺寸分布;(c) 10 mJ脉冲激光辐照漆板时所收集的纳米颗粒的尺寸分布;(d) 30 mJ脉冲激光辐照漆板时所收集的纳米颗粒的尺寸分布

Fig.4 Percentages of different particles' amount. The size distribution of micro-particles under 10 mJ (a) and 30 mJ (b) pulse laser irradiation; the size distribution of nano-particles under 10 mJ (c) and 30 mJ (d) pulse laser irradiation
 红褐色油漆主要含C和Fe等元素,其原子数分数分别为81.24%和3.48%。图6为10 mJ脉冲激光辐照黄色漆板时产生的不规整颗粒和均匀颗粒的EDS分析结果。实验中分别使用了10 mJ和30 mJ激光能量辐照不同颜色的漆,将所有情况下颗粒的EDS检测结果整理在表1中,且将C元素原子数分数对比结果单独列于图7中。

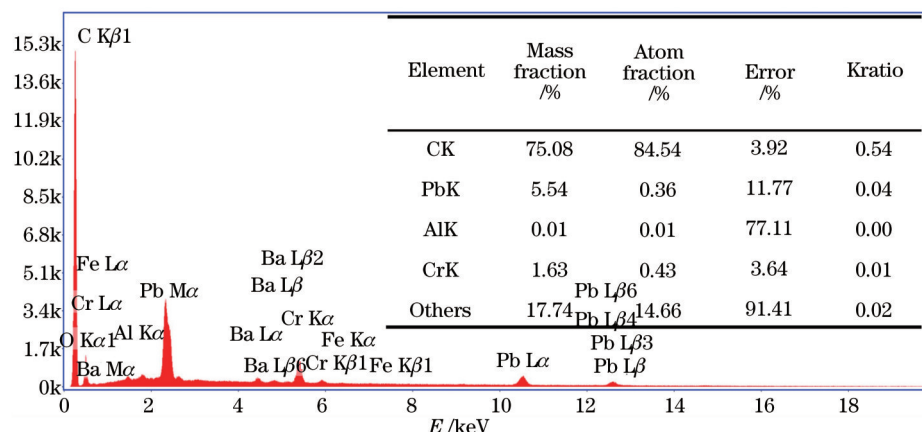


图5 黄色油漆的EDS分析结果(插图为某些元素含量表)

Fig.5 EDS measurements of the yellow paint (illustration is contents of the certain elements)

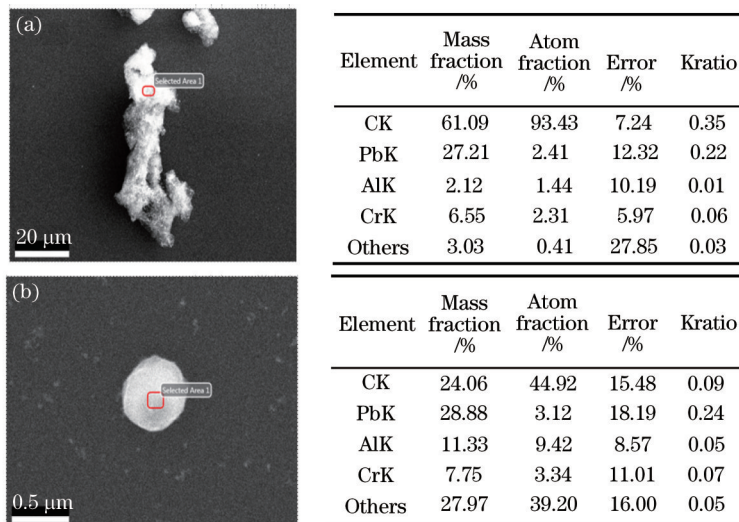


图6 10 mJ脉冲激光辐照样品时产生的(a)不规整颗粒和(b)均匀颗粒形貌和EDS分析结果

Fig.6 Morphologies and EDS measurements of (a) irregular particles and (b) uniform particles under pulse laser irradiation of 10 mJ

表1 10 mJ 和 30 mJ 脉冲激光辐照不同颜色(黄、白、红褐色)漆板时,所收集颗粒特定成分原子的数分数
Table 1 Atom fractions of the certain element for particles when the paint with different colours(yellow、white、bronzing) are irradiated by pulse lasers of 10 mJ and 30 mJ

Atom fraction /%			Laser energy /mJ	
			10 mJ	30 mJ
Yellow paint	Bulk materials	C		84.54%
		Pb		0.36%
	Irregular particles	C	93.43%	79.04%
		Pb	2.41%	1.21%
	Uniform particles	C	44.92%	24.33%
		Pb	3.12%	2.75%
White paint	Bulk materials	C		80.28%
		Ti		4.79%
	Irregular particles	C	76.73%	70.96%
		Ti	6.08%	6.47%
	Uniform particles	C	16.31%	19.83%
		Ti	6.51%	4.47%
Bronzing paint	Bulk materials	C		81.24%
		Fe		3.48%
	Irregular particles	C	73.40%	71.19%
		Fe	1.39%	0.48%
	Uniform particles	C	36.37%	33.95%
		Fe	3.17%	3.55%

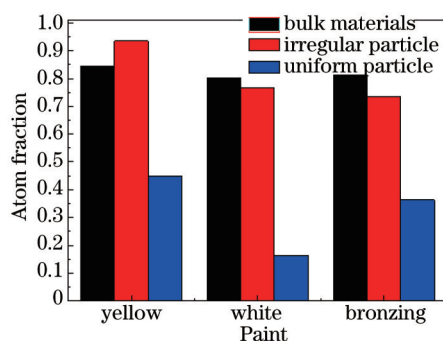


图7 10 mJ 脉冲激光辐照不同颜色漆板时,体材料与所收集到的不同形貌颗粒的 C 原子数分数

Fig.7 C-atom fractions of bulk materials and particles under pulse laser irradiation of 10 mJ

3.2 讨 论

从图2~4可得出:不规整颗粒与均匀颗粒的产生可能与作用机制有关,激光除漆过程中同时存在振动和烧蚀机制^[19-22];不同能量的激光脉冲辐照不同颜色的漆板所收集到颗粒表现出的形貌以及成分含量表现出共同的特征,故在本实验条件下,不同激光参数、作用条件、作用对象下存在相同的去除机制。图2(b)、(c)中的不规整颗粒可能是由于油漆材料受力的作用撕裂飞溅出来,致使形状不一、表面不规整,其油漆去除机制可能主要是振动机制;而图2(d)、(e)以及图3中的均匀颗粒可能是由于油漆材料受热发生相变,气化蒸发在洁净硅片上快速冷凝成液滴,形成均匀的纳米颗粒^[17,23],其油漆去除机制可能主要是烧蚀机制。纳米级尺寸的颗粒尺度,小到几纳米,大到200多纳米(实际属亚微米),虽尺寸跨度达两个量级以上,但都起源于激光对油漆的烧蚀;纳米颗粒是经历碰撞、凝并、团聚等一系列的过程而形成的,其大小取决于再凝固速度,吸收较高能量的部分将会有充足的再凝固时间,就有足够的时间生长得更大,吸收较低能量的部分再凝结速度快,无法充足生长,因此尺寸较小^[17,23]。另外,在激光作用下,喷溅颗粒尺寸的分布受入射激光能量影响;当激光能流密度增大时,存在微米、纳米量级颗粒且平均尺度变大,这表明在本实验激光能流密度范围内,激光对漆的去除同时包含上述两种机理。

元素分析表明油漆材料中C含量(原子数分数,下同)所占比重比较大,且C含量在不同类型的颗粒中差别较大。同时,从表1及图6中可以看出C元素原子数分数与颗粒形貌有一定联系:类似于图2(b)、(c)中的不规整颗粒,C元素原子数分数与体材料相差不大(图7中黑色与红色柱),这表明不规整颗粒是因力学原因而产

生,即油漆和基底铝板吸热和冷却在很短时间内完成,发生瞬时热膨胀,引起油漆与基底交界面产生很大的应力梯度,从而形成振动波^[24-25],使位移力大于油漆层与铝基板粘合力,油漆材料直接喷溅出来,这表明在激光除漆过程中存在振动机制;而类似于图2(d)、(e)和图3中的均匀颗粒,C元素原子数分数与体材料和不规整颗粒相差很多(如图7中蓝色柱高度明显更低),这表明均匀颗粒是因漆层发生烧蚀反应而产生的,即油漆材料吸收激光能量,当温度达到和超过油漆的燃烧点或是汽化温度时,将发生激烈燃烧或是汽化蒸发,其中的C元素与空气中的氧气结合产生二氧化碳使剩下的C元素含量降低,高温气体或液滴在洁净硅片上快速冷凝,形成了均匀的颗粒或是网状颗粒聚集体,这表明在激光除漆过程中存在烧蚀机制。

通过PLD的方法收集颗粒,对其形貌和成分进行分析,并对所得数据进行讨论可得:激光作用于油漆,一方面会发生烧蚀反应,通过热效应破坏材料自身的结构使漆层去除;另一方面由于脉冲加热,材料急剧膨胀,产生应力克服粘合力 and 横截面结合力,使漆层撕裂而剥离。在成分分析中,为了进一步说明上述C元素原子数分数的改变,使用Ocean Optics USB 4000光纤光谱仪检测激光辐照油漆过程中诱发的等离子体发光谱,此处特别关注C元素发光谱。光谱测试结果如图8所示,在波长约为588 nm处出现了峰值且光谱强度较大,由技术手册^[26]可知该谱线峰值对应C II原子线,这说明在激光辐照油漆过程中C元素受激光诱导激发作用较强,激光烧蚀油漆较激烈。

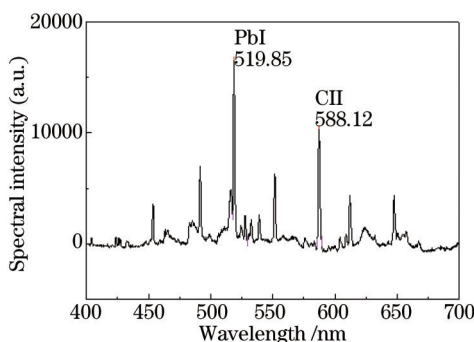


图8 等离子体发光谱

Fig.8 Spectra of plasma plume

4 结 论

通过Nd:YAG纳秒激光辐照漆板,使用洁净的硅片收集喷射的颗粒,在SEM下分析观察形貌特征,并通过EDS测量颗粒的元素成分及含量。实验结果表明,激光除漆过程中产生形状、尺寸不一和特定元素含量有较大差异的颗粒。微米颗粒普遍独立存在,形状不规则;亚微米颗粒普遍较均匀,形状规整,一般呈球形;几纳米到几十纳米的颗粒聚集成网状结构,在相对较高能量激光辐照下产生的网状结构中的颗粒较大。不规整颗粒C元素含量与体材料含量相差不大,产生机制主要是振动机制;均匀颗粒中C元素含量比体材料和不规整颗粒中C含量少很多,产生机制主要是烧蚀机制。该结果为激光与有机物作用的物化过程的研究提供一些参考与启示。

参 考 文 献

- 1 Song Feng, Liu Shujing, Yan Boxia. Laser cleaning—a novel cleaning method[J]. *Cleaning World*, 2004, 20(5): 43–48.
宋 峰, 刘淑静, 颜博霞. 激光清洗——富有前途的环保型清洗方法[J]. *清洗世界*, 2004, 20(5): 43–48.
- 2 Ye Yayun, Qi Yang, Yuan Xiaodong, *et al.* Laser cleaning of the contamination on the surface of sandstones and optics[J]. *Chinese J Laser*, 2012, 39(S1): S103006.
叶亚云, 齐 扬, 袁晓东, 等. 利用激光清洗技术清除砂岩及光学元件表面污染物[J]. *中国激光*, 2012, 39(S1): S103006.
- 3 Ye Yayun, Qi Yang, Qin Lang, *et al.* Laser cleaning of contaminations on the surface of stone relics[J]. *Chinese J Lasers*, 2013(9): 0903005.
叶亚云, 齐 扬, 秦 朗, 等. 激光清除石质文物表面污染物[J]. *中国激光*, 2013(9): 0903005.
- 4 Lu Y, Song W, Hong M, *et al.* Theoretical modeling for laser cleaning of micro-particles from solid surface[C]. *MRS Proceedings*, 1997: 399.
- 5 Watkins K G. Mechanisms of laser cleaning[C]. *Proceeding of OPIE High-Power Lasers in Manufacturing*, 2000, 3888: 165–174.

- 6 Lee K C, Lin J. Transient deformation of thin metal sheets during pulsed laser forming[J]. Optics & Laser Technology, 2002, 34(8): 639-648.
- 7 Bloisi F, Blasio G D, Vicari L, *et al.*. One-dimensional modelling of 'verso' laser cleaning[J]. Journal of Modern Optics, 2006, 53(8): 1121-1129.
- 8 Kim D, Oh B, Jang D, *et al.*. Experimental and theoretical analysis of the laser shock cleaning process for nanoscale particle removal [J]. Applied Surface Science, 2007, 253(19): 8322-8327.
- 9 Arnold N. Theoretical description of dry laser cleaning[J]. Applied Surface Science, 2003, 208: 15-22.
- 10 Autric M, Oltr R. Basic processes of pulsed laser materials interaction: Applications to laser cleaning of oxidized surfaces[C]. Proceeding of SPIE Xv International Symposium on Gas Flow, Chemical Lasers, and High-Power Lasers, 2005, 5777: 982-985.
- 11 Brygo, F, Semerok A, Oltra R, *et al.*. Laser heating and ablation at high repetition rate in thermal confinement regime[J]. Applied Surface Science, 2006, 252(23): 8314-8318.
- 12 Coutouly J F, Deprez P, Breaban F, *et al.*. Optimisation of a paint coating ablation process by CO₂ TEA laser: Thermal field modelling and real-time monitoring of the process[J]. Journal of Materials Processing Technology, 2009, 209(17): 5730-5735.
- 13 Shi S D, Li W, Du P, *et al.*. Removing paint from a metal substrate using a flattened top laser[J]. Chinese Physics B, 2012, 21(10): 104209.
- 14 Zou W F, Xie Y M, Xiao X, *et al.*. Application of thermal stress model to paint removal by Q-switched Nd: YAG laser[J]. Chinese Physics B, 2014, 23(7): 074205.
- 15 Vatry A, Marchand A, Delaporte P, *et al.*. Tokamak-like dust removal induced by laser irradiation[J]. Journal of Nuclear Materials, 2011, 415(1): S1115-S1118.
- 16 Vatry A, Marchand A, Delaporte P, *et al.*. Studies of laser-induced removal mechanisms for tokamak-like particles[J]. Applied Surface Science, 2011, 257(12): 5384-5388.
- 17 Tull B R, Carey J E, Sheehy M A, *et al.*. Formation of silicon nanoparticles and web-like aggregates by femtosecond laser ablation in a background gas[J]. Applied Physics A, 2006, 83(3): 341-346.
- 18 Glover T E, Ackerman G D, Lee R W, *et al.*. Metal-insulator transitions in an expanding metallic fluid: Particle formation during femtosecond laser ablation[J]. Chemical Physics, 2004, 299(2-3): 171-181.
- 19 Wang Zemin, Zeng Xiaoyan, Huang Weiling. Parameters and mechanisms of laser cleaning rubber layer on a tyre mould[J]. Chinese J Lasers, 2000, 27(11): 1050-1054.
王泽敏, 曾晓雁, 黄维玲. 激光清洗轮胎模具表面橡胶层的机理与工艺研究[J]. 中国激光, 2000, 27(11): 1050-1054.
- 20 Liu K, Garmire E. Paint removal using lasers[J]. Applied Optics, 1995, 34(21): 4409-4415.
- 21 Shi Shudong, Du Peng, Li Wei, *et al.*. Research on paint removal with 1064 nm quasi-continuous-wave laser[J]. Chinese J Lasers, 2012, 39(9): 0903001.
施曙东, 杜鹏, 李伟, 等. 1064 nm 准连续激光除漆研究[J]. 中国激光, 2012, 39(9): 0903001.
- 22 Zhang Heng, Liu Weiwei, Dong Yazhou, *et al.*. Experimental and mechanism research on paint removal with low frequency YAG pulsed laser[J]. Laser & Optoelectronics Progress, 2013, 50(12): 121401.
章恒, 刘伟巍, 董亚洲, 等. 低频 YAG 脉冲激光除漆机理和实验研究[J]. 激光与光电子学进展, 2013, 50(12): 121401.
- 23 Dolgaev S, Simakin A, Voronov V, *et al.*. Nanoparticles produced by laser ablation of solids in liquid environment[J]. Applied Surface Science, 2002, 186(1): 546-551.
- 24 Rosa G, Psyllaki P, Oltra R, *et al.*. Simultaneous laser generation and laser ultrasonic detection of the mechanical breakdown of a coating-substrate interface[J]. Ultrasonics, 2001, 39(5): 355-365.
- 25 Wang H, Qian M L, Liu W. Laser ultrasonic characterization of adhesive bonds between epoxy coating and aluminum substrate[J]. Ultrasonics, 2006, 44: e1349-e1353.
- 26 Reader J, Corliss C H, Wiese W L, *et al.*. Wavelengths and transition probabilities for atoms and atomic ions: Part 1. Wavelengths, part 2. Transition probabilities[J]. NSRDS-NBS, 1980, 68: 1.

栏目编辑: 张浩佳