

## 电沉积条件对 Pd-Co 合金微观相结构和耐蚀性的影响

关晓洁<sup>1</sup>, 钟美娥<sup>2</sup>, 肖耀坤<sup>3</sup>, 陈宗璋<sup>4</sup>

- (1. 广东省城市建设技工学校 工业分析与质量检验专业, 广州 510650;
2. 华南理工大学 材料科学与工程学院, 广州 510641;
3. 湖南大学 材料学院, 长沙 410082; 4. 湖南大学 化学化工学院, 长沙 410082)

**摘要:** 利用 X 射线衍射分析和动电位扫描技术等测试手段, 考察电沉积工艺条件对 Pd-Co 合金镀层微观相结构和耐蚀性的影响。结果表明: 钯钴合金沉积层的晶粒尺寸  $D_{(111)}$  随电流密度、pH 值和沉积时间的增加呈先减小后增大的变化趋势, 随着镀液温度的升高而不断增大; 当电流密度为  $1.0 \text{ A/dm}^2$ , pH 值为 8.3, 沉积时间为 30 min 时, 其晶粒尺寸最小, 为  $8.2396 \text{ nm}$ ; 当电流密度为  $1.0 \text{ A/dm}^2$ , 镀液温度为  $35 \text{ }^\circ\text{C}$ , pH 值为 8.3 时, 钯钴合金沉积层的耐蚀性最强; 而沉积时间对合金耐蚀性的影响不大。

**关键词:** Pd-Co 合金; 电沉积; 微观结构; 耐蚀性

中图分类号: TQ 153.2

文献标识码: A

## Effects of process conditions on microstructure and corrosion-resistance of electrodepositing Pd-Co alloy

GUAN Xiao-jie<sup>1</sup>, ZHONG Mei-e<sup>2</sup>, XIAO Yao-kun<sup>3</sup>, CHEN Zong-zhang<sup>4</sup>

- (1. Industry Analysis and Quality Check, Guangdong Province Urban Construction Technical School, Guangzhou 510650, China;
2. School of Materials Science and Engineering, South China University of Technology, Guangzhou 510641, China;
3. School of Material, Hunan University, Changsha 410082, China;
4. School of Chemistry and Chemical Engineering, Hunan University, Changsha 410082, China)

**Abstract:** The influence of process parameters on the microstructure and corrosion-resistance of Pd-Co alloy was studied by X-ray diffractometry and potentiodynamic polarization techniques. The results show that with the increase of current density, pH value and electrodeposited time, the crystallite size of Pd-Co alloy decreases firstly whereas increases subsequently. With the increase of bath temperature, the crystallite size increases. When the current density is  $1.0 \text{ A/cm}^2$ , pH is 8.3, and deposited time is 30 min, the crystallite size of Pd-Co alloy reaches the minimum value, which is  $8.2396 \text{ nm}$ . When the current density is  $1.0 \text{ A/cm}^2$ , temperature is  $35 \text{ }^\circ\text{C}$ , pH is 8.3, Pd-Co alloy exhibits the maximum corrosion-resistance, but the electrodeposited time has little influence on it.

**Key words:** Pd-Co alloy; electrodepositing; microstructure; corrosion-resistance

钯及其合金外观优美,具有较高的硬度、较低的孔隙率、较强的耐蚀性、较低的接触电阻及可靠的焊接性能,已被广泛地应用于装饰行业和电子工业等领域<sup>[1-8]</sup>。目前,人们研究较多的钯合金镀层为 Pd-Ni

合金。但是,当沉积层以镍为底层时, Pd-Ni 合金无法以 X 射线荧光法准确测定其组成和镀层厚度,该合金镀层在温度高于  $125 \text{ }^\circ\text{C}$  时不稳定,且人体对镍过敏,产生危害<sup>[9]</sup>。而 Pd-Co 合金沉积层能克服 Pd-Ni 合金

的缺点且具有许多优越性能, 如较高的硬度、较强的抗磨损性、较长的使用寿命等, 该合金还具有较低的孔隙率和极强的抗腐蚀性, 因此, 研究 Pd-Co 合金具有重要意义<sup>[10-12]</sup>。目前, 人们对钯钴合金的研究报道较少, 且电沉积条件对钯钴合金的结构和性能有极其重要的影响, 在此, 本文作者采用 X 射线衍射分析 (XRD) 和动电位扫描技术考察电流密度、pH 值、镀液温度和沉积时间等对钯钴合金的微观结构和耐蚀性能的影响。

## 1 实验

### 1.1 镀液组成及工艺条件

纯钯质量浓度为 4.5 g/L; 钴质量浓度为 2.4 g/L; pH 值(用氨水调节)为 7.8~8.7; 温度为 35~60 °C; 电流密度  $D_c$  为 0.5~2.0 A/dm<sup>2</sup>; 镀液质量浓度(用氯化铵调)为 1.067 g/L; 阳极为 Pt 电极; 阳极与阴极面积比为 4:1。

实验中所用药品均为分析纯, 溶液采用去离子水配制。

### 1.2 试样制备及镀层微观结构和耐蚀性的测定

基底材料为 0.5 cm<sup>2</sup> 紫铜片, 其非工作面用环氧树脂绝缘。沉积之前将工作面依次经过 4<sup>#</sup>~6<sup>#</sup> 金相砂纸打磨抛光、除油、酸洗, 在以上工艺条件下直流电沉积 30 min(除制备不同沉积时间的样品外)。

利用德国 Siemens-D5000 型 X 射线衍射仪, 采用 CuK<sub>α</sub> 靶(电压为 35 kV, 电流为 30 mA), 波长  $\lambda=0.154\ 06\ \text{nm}$ , 扫描速度为 2 (°)/min, 扫描范围为 10°~110°, 对镀层进行微观结构分析。实验结果中晶粒尺寸采用 Sherrer 公式进行计算:

$$D_{hkl} = K\lambda / (\beta \cos\theta) \quad (1)$$

式中  $K$  为 Sherrer 常数, 取 0.89;  $\beta$  为衍射峰的半高宽。

电化学实验在上海辰华 CHI660B 电化学工作站上进行。采用 Tafel 技术测定钯钴合金镀层在 3.5% NaCl 溶液中的腐蚀曲线, 电位扫描在开路电位 ±250 mV 范围内进行。测试时, 系统温度为室温, 扫描速度为 0.5 mV/s, 研究电极面积为 0.5 cm<sup>2</sup>, 参比电极为饱和甘汞电极, 辅助电极为大面积铂片。

## 2 结果与讨论

### 2.1 电流密度对 Pd-Co 合金镀层微观结构的影响

图 1 所示为不同电流密度下 Pd-Co 合金镀层的 XRD 结果。将其与标准 XRD 图谱对照可知, 这些峰是 PdCo<sub>2</sub> 和基体铜的不同晶面衍射峰。另外, 衍射图上还出现 1 个无定形物质的衍射峰。将封胶基体与不封胶基体对比并进行 XRD 测试, 结果表明该衍射峰是绝缘材料环氧树脂的衍射峰。另外, 由图 1 中 Pd-Co 合金的衍射峰的峰位, 可求出各衍射线的  $\sin^2\theta$  之比, 即  $\sin^2\theta_1:\sin^2\theta_2:\sin^2\theta_3:\sin^2\theta_4=3:4:8:11$ , 与该 4 个角( $\theta_1$ ,  $\theta_2$ ,  $\theta_3$  和  $\theta_4$ )相对应的晶面为(111), (200), (220)和(311), 表明钯钴合金沉积层在电流密度为 0.5, 1.0 和 2.0 A/dm<sup>2</sup> 时均为面心立方晶格(FCC), 电流密度对镀层的相结构没有影响, 镀层的晶粒尺寸  $D_{(111)}$  分别为 14.457 1, 8.239 6 和 9.545 1 nm。

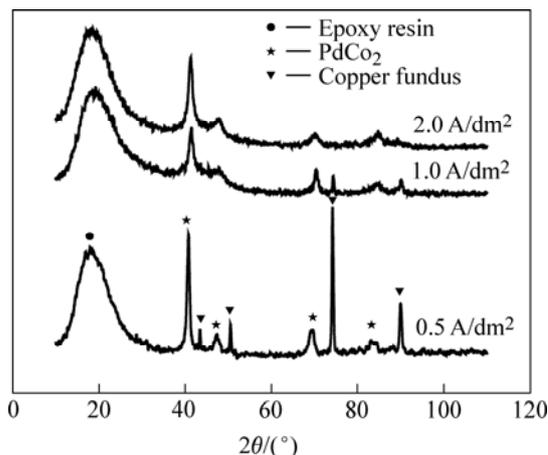


图 1 不同电流密度下制备的 Pd-Co 合金镀层 XRD 结果  
Fig.1 XRD patterns of Pd-Co alloy prepared with different current densities

根据电结晶理论, 电沉积层的晶粒大小取决于两个因素: 一是新晶核的生成速度; 二是已有晶核的生长速度。钯钴共沉积过程受阴极极化和浓差极化的影响, 当阴极极化起控制作用时, 随着电流密度的增加, 新晶核的生成速度增大, 沉积层的晶粒尺寸随电流密度的增加而减小; 当浓差极化起控制作用时, 随着电流密度的增加, 阴极-溶液界面上 Pd<sup>2+</sup> 和 Co<sup>2+</sup> 的损耗变大, 在直流电沉积时, 这种损耗得不到及时补充, 出现浓差极化, 从而导致成核率降低, 晶粒增大。由此可见, 钯钴共沉积过程在电流密度小于 1.0 A/dm<sup>2</sup> 时主要受阴极极化的影响; 当电流密度大于 1.0 A/dm<sup>2</sup>

时, 其沉积过程则受扩散控制。

图2和图3所示分别为钯钴合金沉积层在电流密度为0.5和1.0 A/dm<sup>2</sup>的SEM图片。由图2和图3可知, 当电流密度小于1.0 A/dm<sup>2</sup>时, 随着电流密度的增大, 晶粒尺寸减小, 但是两者尺寸变化并不大。这与XRD分析结果一致。

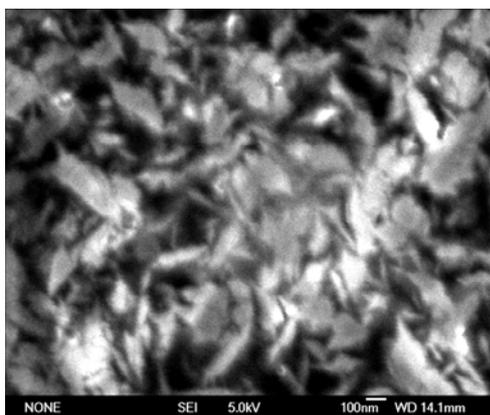


图2  $D_c=0.5$  A/dm<sup>2</sup>时Pd-Co合金的SEM图

Fig.2 SEM image of Pd-Co alloy when current density is 0.5 A/dm<sup>2</sup>

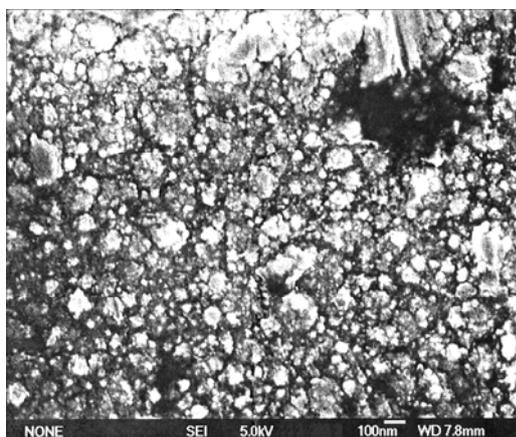


图3  $D_c=1.0$  A/dm<sup>2</sup>时Pd-Co合金的SEM图

Fig.3 SEM image of Pd-Co alloy when current density is 1.0 A/dm<sup>2</sup>

图4和表1示出了上述相应电流密度下制备的钯钴合金镀层在3.5% NaCl溶液中的耐蚀性。由图4和表1可知, 随着沉积电流密度的增大, 腐蚀电流不断增大, 当沉积电流密度大于1.0 A/dm<sup>2</sup>时, 腐蚀电流增加幅度较小, 而腐蚀电位在沉积电流密度为1.0 A/dm<sup>2</sup>时最小。由文献[13-14]可知, 沉积电流密度增大, 合金镀层的钴含量迅速增加, 当沉积电流密度大于1.0 A/dm<sup>2</sup>时, 合金中的钴含量随电流密度的变化

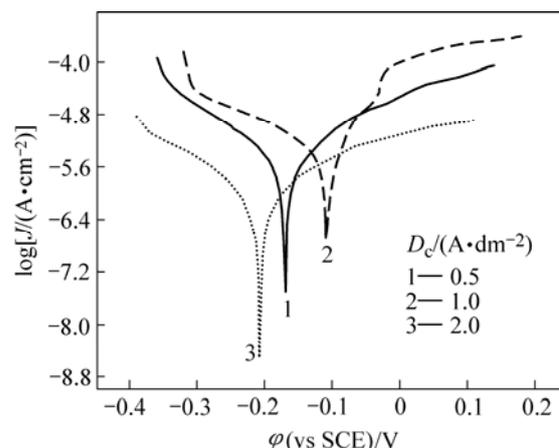


图4 沉积电流密度对钯钴合金镀层在3.5% NaCl溶液中耐蚀性的影响

Fig.4 Tafel curves of Pd-Co alloy prepared with different current densities in 3.5% NaCl solution

表1 沉积电流密度对Pd-Co合金镀层腐蚀电流密度和腐蚀电位的影响

Table 1  $\varphi_{\text{corr}}$  and  $J_{\text{corr}}$  of Pd-Co deposits prepared with different current densities

$D_c$ /(A·dm <sup>-2</sup> )	$J_{\text{corr}}$ /( $\mu\text{A}\cdot\text{cm}^{-2}$ )	$\varphi_{\text{corr}}$ /V
0.5	2.746 8	-0.168 9
1.0	6.165 0	-0.108 7
2.0	6.202 0	-0.207 5

趋于缓慢。而合金沉积层的耐蚀性与镀层中的钴含量有关, 当沉积电流密度为1.0 A/dm<sup>2</sup>时, 获得钴含量为26.7%的Pd-Co合金镀层, 此时镀层的耐蚀性最强。该结果与本文的研究结果一致, 即当沉积电流密度为1.0 A/dm<sup>2</sup>时, 镀层的耐蚀性最强。

## 2.2 温度对Pd-Co镀层微观结构的影响

温度是影响镀层的结构和性能的重要因素之一。图5所示为不同温度下制得的Pd-Co合金镀层的XRD结果。可见, 温度对钯钴合金镀层的相结构没有影响, 在镀液温度为35, 50和60℃时, 钯钴合金镀层仍为面心立方晶格(FCC)。此外, 计算各温度下所得镀层的晶粒尺寸 $D_{(111)}$ 分别为8.239 6, 9.115 8和11.990 5 nm, 即镀层的晶粒尺寸随温度的升高而不断增大。这可能是由于提高温度能够降低结晶过电位, 从而晶核的数目减少, 晶粒的尺寸增大; 同时, 温度提高将使晶核的生长速度增大, 从而使晶核长大。

图6和表2示出了上述相应镀液温度下制备的钯

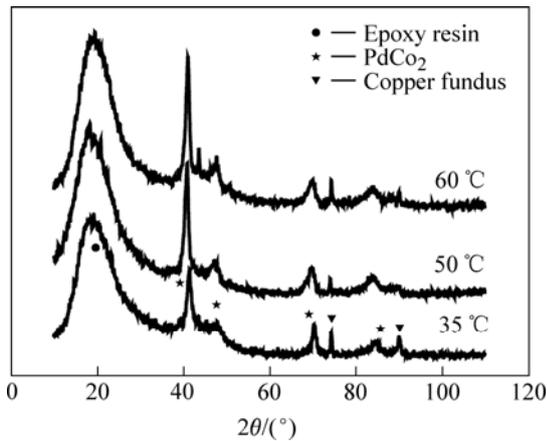


图 5 不同温度下制备的钯钴合金镀层的 XRD 结果  
Fig.5 XRD patterns of Pd-Co alloy at different temperatures

钴合金镀层在 3.5% NaCl 溶液中的腐蚀行为。可见, 随着镀液温度的升高, 腐蚀电位逐步负移, 腐蚀电流在镀液温度为 60 °C 时最大。由文献[13-14]可知: 镀层中的钴含量随镀液温度的升高而略有升高, 但当温度大于 50 °C 时, 镀层中的钴含量随温度的升高反而迅速下降; 此外, 镀层的耐蚀性与镀层中钴的含量有关,

表 2 镀液温度对 Pd-Co 合金镀层腐蚀电流密度和腐蚀电位的影响

$\theta/^\circ\text{C}$	$J_{\text{corr}}/(\mu\text{A}\cdot\text{cm}^{-2})$	$\varphi_{\text{corr}}/\text{V}$
35	6.165 0	-0.1087
50	5.000 3	-0.172 8
60	34.994 5	-0.258 2

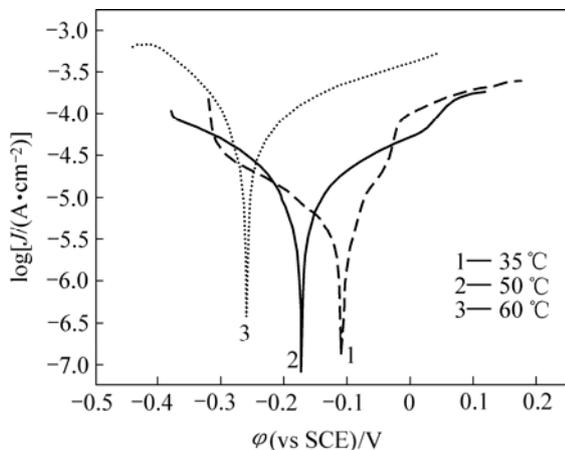


图 6 镀液温度对 Pd-Co 合金镀层在 3.5% NaCl 溶液中耐蚀性的影响  
Fig.6 Tafel curves of Pd-Co alloy at different temperatures in 3.5% NaCl solution

当镀液温度为 35 °C 时, 获得钴含量为 26.7% 的最佳耐蚀镀层。这与本文的研究结果一致。

### 2.3 pH 值对 Pd-Co 镀层微观结构的影响

pH 值对钯钴合金镀层微观结构的影响如图 7 所示。可见, 当镀液 pH 值为 7.8, 8.3 和 8.7 时, pH 值对合金镀层的相结构没有影响, 均为面心立方晶体 (FCC), 且随着镀液 pH 值的升高, 镀层的特征峰逐渐变弱, 在高角度处呈现铜基体的择优取向峰。此外, 计算相应条件下镀层的晶粒尺寸分别为 9.322 6, 8.239 6 和 9.764 9 nm, 即随着镀液 pH 值的增大, 晶粒尺寸呈先减小后增大的趋势。

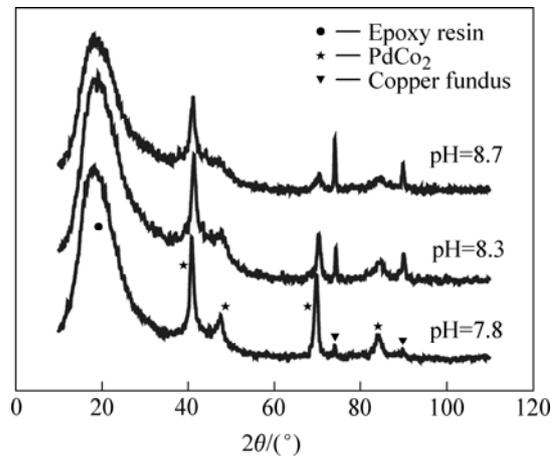


图 7 不同 pH 时制备的 Pd-Co 合金镀层的 XRD 结果  
Fig.7 XRD patterns of Pd-Co alloy at different pH values

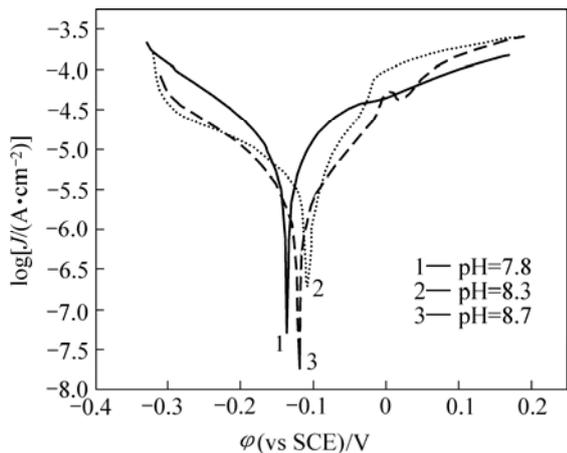
pH 值对金属共沉积的影响主要是它改变了金属离子的化学结合状态, 并有许多络合离子的组成是 pH 值的函数<sup>[15]</sup>。当镀液 pH 值较低时, 溶液中的金属离子尚未络合完全, 随着镀液 pH 值的升高, 金属离子的络合度逐渐增大, 金属的沉积电位逐步负移, 阴极极化增大, 晶核数目增加, 镀层的晶粒细化。但是, 当 pH 值升高到一定程度时, 金属离子达到络合平衡, 此时, 继续升高镀液 pH 值对沉积过电位的影响不大; 又由于过电位较大时, 容易在电极表面引起浓差极化, 当浓差极化对成核率的影响大于过电位的增加对成核率的影响时, 成核数目减少, 晶粒尺寸增大。所以, 钯钴合金镀层的晶粒尺寸随镀液 pH 值的升高呈现先减小后增大的趋势。pH 值对钯钴合金镀层在 3.5% NaCl 溶液中耐蚀性的影响如图 8 和表 3 所示。

由图 8 和表 3 可知: pH 值对合金镀层耐蚀性的影响没有一定的规律, 当镀液 pH 值为 8.3 时, 其腐蚀电位最小。由文献[13-14]可知: 镀液 pH 值对合金中钴含量的影响有一最佳范围, 当镀液 pH 值为 8.0~8.5 时,

**表 3** 镀液 pH 值对钯钴合金镀层腐蚀电流密度和腐蚀电位的影响

**Table 3**  $\varphi_{\text{corr}}$  and  $J_{\text{corr}}$  of Pd-Co at different pH values

pH	$J_{\text{corr}}$ ( $\mu\text{A}\cdot\text{cm}^{-2}$ )	$\varphi_{\text{corr}}/$ V
7.8	4.529 0	-0.135 6
8.3	6.165 0	-0.108 7
8.7	1.642 5	-0.119 8



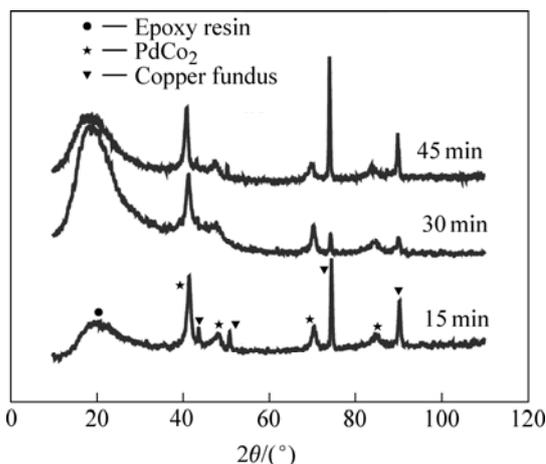
**图 8** 镀液 pH 值对 Pd-Co 合金镀层在 3.5% NaCl 溶液中耐蚀性的影响

**Fig.8** Tafel curves of Pd-Co alloy at different pH values in 3.5% NaCl solution

合金中钴含量达最大,且随镀液 pH 值的变化基本不变;当 pH 值大于 8.5 时,镀层中钴含量随 pH 值的升高反而降低。又因为钯钴镀层的耐蚀性与镀层中的钴含量有关,当镀液 pH 值为 8.3 时获得的镀层耐蚀性最强。这与本文的研究结果一致,即当镀液 pH 值为 8.3 时,合金镀层的耐蚀性最强。

**2.4 沉积时间对 Pd-Co 合金微观结构的影响**

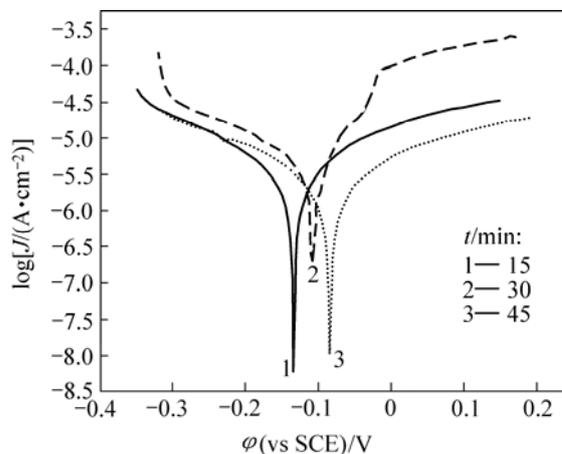
沉积时间对 Pd-Co 合金微观结构的影响如图 9 所示。由图 9 可知,沉积时间对 Pd-Co 合金的微观结构没有影响,均为面心立方晶体(FCC),且当沉积时间为 15 min 和 45 min 时,合金沉积层在高角度处出现铜基体的择优取向峰。镀层的晶粒尺寸在沉积时间为 15, 30 和 45 min 时分别为 10.778 7, 8.239 6 和 10.492 8 nm,即随着沉积时间的增大呈先减小后增大的变化趋势。这表明镀层的晶粒尺寸并不随着沉积时间的延长而增大,而是与镀层的择优取向程度有关。这可能是随着时间的变化, Pd-Co 合金在某个晶面上的生长速度发生变化,而使得其晶粒尺寸发生相应改变。



**图 9** 不同沉积时间制备的钯钴合金镀层的 XRD 结果

**Fig.9** XRD patterns of Pd-Co alloy deposits in different depositing time

沉积时间对 Pd-Co 合金镀层在 3.5% NaCl 溶液中的耐蚀性的影响如图 10 和表 4 所示。可见,沉积时间对合金镀层腐蚀电位的影响并不大,在沉积时间为 45 min 时,腐蚀电位略小。



**图 10** 沉积时间对 Pd-Co 合金镀层在 3.5% NaCl 溶液中耐蚀性的影响

**Fig.10** Tafel curves of Pd-Co alloy deposits in different depositing time in 3.5% NaCl solution

**表 4** 电沉积时间对钯钴合金镀层腐蚀电流密度和腐蚀电位的影响

**Table 4**  $\varphi_{\text{corr}}$  and  $J_{\text{corr}}$  of Pd-Co at different depositing time

t/min	$J_{\text{corr}}/(\mu\text{A}\cdot\text{cm}^{-2})$	$\varphi_{\text{corr}}/$ V
15	1.188 5	-0.133 9
30	6.165 0	-0.108 7
45	0.837 5	-0.084 4

这是因为, 简单地延长沉积时间并不能改变镀层的成分, 而钯钴合金镀层的耐蚀性与镀层的成分有关, 故沉积时间对合金镀层耐蚀性的影响不大。

## 2.5 腐蚀介质对 Pd-Co 合金镀层的耐蚀性的影响

通过研究 Pd-Co 合金镀层在 1.0 mol/L HCl, 3.5% NaCl 和 1.0 mol/L NaOH 3 种不同腐蚀介质中的耐蚀性发现, 钯钴合金镀层的耐蚀性按腐蚀介质为中性、酸性、碱性的顺序逐步降低, 从而说明钯钴合金镀层在碱性介质中的耐蚀性最弱。

## 3 结论

1) Pd-Co 合金镀层的晶粒尺寸  $D_{(111)}$  随电流密度、pH 值和沉积时间的增加呈先减小后增大的变化趋势, 随着镀液温度的升高而增大。当电流密度为 1.0 A/dm<sup>2</sup>, pH 值为 8.3, 沉积时间为 30 min 时, 其晶粒尺寸最小, 为 8.239 6 nm。

2) Pd-Co 合金共沉积过程在电流密度小于 1.0 A/dm<sup>2</sup> 时主要受阴极极化的影响; 当电流密度大于 1.0 A/dm<sup>2</sup> 时则受浓差极化的控制。

3) 当电流密度为 1.0 A/dm<sup>2</sup>, 温度为 35 °C, pH 值为 8.3 时, Pd-Co 合金沉积层的耐蚀性最强, 而沉积时间对合金的耐蚀性影响不大。

4) 通过比较工艺条件对镀层微观结构的影响还发现, 当钯钴合金镀层的晶粒尺寸较小时, 合金镀层的耐蚀性最强, 其原因还有待进一步研究。

## REFERENCES

- [1] 杨防祖, 黄 令, 姚士冰, 等. 钯及其合金的电沉积[J]. 电镀与涂饰, 2002, 24(2): 20-27.  
YANG Fang-zu, HUANG Ling, YAO Shi-bing, et al. Electrodeposition of palladium and its alloys[J]. Plating & Finishing, 2002, 24(2): 20-27.
- [2] 王丽丽. 电镀钯[J]. 半导体技术, 1996(6): 42-43.  
WANG Li-li. Palladium plating [J]. Semiconductor Technology, 1996(6): 42-43.
- [3] 徐明丽, 张正富, 杨显万, 等. 钯及其合金电镀的研究现状[J]. 材料保护, 2003, 36(10): 4-8.  
XU Ming-li, ZHANG Zheng-fu, YANG Xian-wan, et al. Present study of palladium and its alloy electroplating[J]. Materials Protection, 2003, 36(10): 4-8.
- [4] 李宏弟. 电镀金-钯-铜三元合金[J]. 电镀与环保, 1996, 16(1):

- 28-29.  
LI Hong-di. Au-Pd-Cu tri-alloys plating [J]. Electroplating & Pollution Control, 1996, 16(1): 28-29.
- [5] 文明芬, 郭忠诚. 钯及钯合金镀层的应用[J]. 云南冶金, 1998, 27(4): 48-54.  
WEN Ming-fen, GUO Zhong-cheng. Applications of palladium and its alloys [J]. Yunnan Metallurgy, 1998, 27(4): 48-54.
- [6] Moretti G, Guidi F, Tonini R. Alloys at low nickel-release: Pd-Ni coatings on copper[J]. Plating and Surface Finishing, 2001, 88(4): 70-73.
- [7] Pap A E, Kordas K, Peura R, et al. Simultaneous chemical silver and palladium deposition on porous silicon; FESEM, TEM, EDX and XRD investigation[J]. Applied Surface Science, 2002, 201(1-4): 56-60.
- [8] Quayum M E, SHEN Ye, Uosaki K. Mechanism for nucleation and growth of electrochemical palladium deposition on an Au(111) electrode[J]. Journal of Electroanalytical Chemistry, 2002, 520(1-2): 126-132.
- [9] Abys J A, Breck G F, Straschil H K, et al. The electrodeposition & material properties of palladium-cobalt [J]. Plating and Surface Finishing, 1999, 86(1): 108-115.
- [10] 杨瑞鹏, 蔡 旬, 陈秋龙. 钯和钯合金及其在电子元器件方面的应用[J]. 电子元件和材料, 2000, 19(2): 30-31.  
YANG Rui-peng, CAI Xun, CHEN Qiu-long. Palladium and its alloys: properties and application on electronic components[J]. Electronic Components & Materials, 2000, 19(2): 30-31.
- [11] 杨富国, 朱琼霞. Pd-Co 合金电镀工艺及其维护[J]. 材料保护, 2000, 33(8): 21.  
YANG Fu-guo, ZHU Qiong-xia. Process and maintenance of Pd-Co alloy [J]. Materials & Protection, 2000, 33(8): 21.
- [12] Fan C, Xu C, Kudrak E J, et al. Ultra-thin Pd/Co Au surface finishes for electronic packaging[J]. Plating and Surface Finishing, 2004, 91(4): 44-47.
- [13] XIAO Yao-kun, ZHONG Mei-e, CHEN Zong-zhang. Studies of microstructure and properties on electrodeposited Pd-Co alloy[J]. Journal of Applied Surface Finishing, 2006, 1(4): 25-30.
- [14] 钟美娥, 何莉萍, 肖耀坤, 等. 电沉积钯钴合金的工艺研究[J]. 材料保护, 2006, 39(6): 26-29.  
ZHONG Mei-e, HE Li-ping, XIAO Yao-kun, et al. Electrodepositing technology of Pd-Co alloy[J]. Material Protection, 2006, 39(6): 26-29.
- [15] 屠振密. 电镀合金的原理与工艺[M]. 北京: 国防工业出版社, 1993: 117.  
TU Zhen-mi. Principle and Technology of Electrodepositing Alloy[M]. Beijing: National Defence Industry Press, 1993: 117.

(编辑 陈灿华)