

氧化石墨烯对 HVFA 混凝土力学和耐磨性能的影响

刘建邦¹, 汪洋²

(1. 山西水利职业技术学院 工程管理系, 山西 太原 030027; 2. 武汉大学 土木建筑工程学院, 湖北 武汉 430072)

摘要: 为了研究氧化石墨烯对大体积粉煤灰(HVFA)混凝土表面耐磨性的影响, 采用质量含量为 0、0.01%、0.05% 和 0.1% 的氧化石墨烯进行改性混凝土的研制, 并以普通混凝土为参照组, 测试了混凝土试件的抗压强度、显微硬度和磨损率, 并对各指标的相关性进行了分析。试验结果表明: HVFA 混凝土的表面耐磨性随氧化石墨烯含量呈增长趋势; 在 HVFA 混凝土中掺入氧化石墨烯后, 在宏观上提高了试件的抗压强度, 微观上增加了混凝土的显微硬度, 二者均与试件的表面耐磨性有显著的相关性; 在 0.05% 的氧化石墨烯掺量下, 改性混凝土的硬度随氧化石墨烯含量增加有明显提升; 当氧化石墨烯掺量大于 0.05% 时可能会发生结块效应, 限制了显微硬度的提升。本研究结果可为氧化石墨烯混凝土的研制提供可靠的依据。

关键词: 大体积粉煤灰混凝土; 氧化石墨烯; 掺量; 强度; 耐磨性; 微观结构

中图分类号: TU42

文献标志码: A

文章编号: 1006-7930(2020)05-0693-07

Study on the effect of graphene oxide on the mechanics and wear resistance of high-volume fly ash concrete

LIU Jianbang¹, WANG Yang²

(1. Department of Engineering Management, Shanxi Conservancy Technical Institute, Taiyuan 030027, China;

2. School of Civil Engineering, Wuhan University, Wuhan 430072, China)

Abstract: In order to study the modification effects of graphene oxide with quantity on the surface wear resistance of high-volume fly ash concrete, different contents of graphene oxide high-volume fly ash concrete samples are prepared, with the common concrete as the reference group. The compressive strength, microhardness and wear rate of modified mass fly ash concrete are measured. And correlation of strength, hardness and wear resistance are analyzed. Results show that the surface wear resistance of concrete increases with the content of graphene oxide. With the addition of graphene oxide to concrete, the compressive strength of the specimens is improved, and the microhardness of the concrete is also increased at the low level of graphene oxide contents. During the content increases from 0 to 0.05%, the hardness of the modified concrete increased significantly. Caking effect may occur when graphene oxide content is greater than 0.05%, limiting the improvement of microhardness and abrasive resistance. Results of the study can provide a reliable basis for the development of graphene oxide modified concrete.

Key words: high-volume fly ash concrete; graphene oxide; content; strength; wear resistance; microhardness; microstructure

大体积粉煤灰 High Volume Fly Ash (HVFA) 混凝土是指采用取代率高于 30% 的粉煤灰替代水泥配制的混凝土^[1]。近年来, 混凝土中掺入粉煤灰的应用已很普遍, 但在混凝土路面中的应用较少。究其原因, 主要是因为粉煤灰改性混凝土路面存在易开裂、耐磨性较差等缺陷。然而, 经过改性的 HVFA 混凝土不仅可以节约大量水泥, 降低水化热升温, 改善混凝土和易性, 还具有高强度、高渗透性、高耐磨性及低收缩性等优良的

工作性能。相比普通硅酸盐水泥混凝土, 在力学性能和耐久性性能上没有显著减弱的基础上, HVFA 混凝土是一种更环保、更符合可持续发展要求的建筑材料^[2]。Naik 等^[3]的研究表明与普通混凝土相比, HVFA 混凝土的耐久性具有显著优势; Siddique 等^[4]认为当 HVFA 混凝土的抗渗透性能比普通混凝土有所提高。史琛等^[5]根据试验发现在水化反应的后期, 高掺量的粉煤灰使得混凝土的抗渗性有所提高。尽管 HVFA 混凝土具有众

多优势,但在使用大体积粉煤灰代替水泥有一个主要缺点,即由于粉煤灰颗粒的水化反应不充分,导致混凝土的早期强度增长不足^[6]。另外,由于混凝土的抗压强度与表面耐磨性呈正相关,HVFA 混凝土试件的耐磨性能存在一定的问题^[7],耐磨性下降现象也是 HVFA 混凝土在道路路面应用中的最大问题^[8]。影响混凝土表面耐磨性的因素很多,包括混凝土的强度、骨料性能、表面处理方法和养护条件等^[9]。Kodur 等的研究表明,粉煤灰改性混凝土的表面耐磨性与抗压强度存在显著的正相关特点,影响混凝土抗压强度的因素,如水灰比、外加剂和含气量等,也会对混凝土的表面耐磨性起到重要影响^[10]。此外,Atis 等的研究表明混凝土的耐磨性与抗弯、抗拉强度之间也存在较强的相关性^[11]。

为了提高 HVFA 混凝土的表面耐磨性,一些学者通过在水泥砂浆中添加纳米材料来提高 HVFA 混凝土的性能^[12]。氧化石墨烯 Graphene Oxide (GO)是石墨烯材料经过氧化化学反应得到一种化合物,由于氧化反应的作用,氧化石墨烯材料具有众多对其性能有所改善的含氧官能团^[13]。氧化石墨烯通常以粉末状的形式存在,其微观结构异常复杂,具有独特的层状结构和表面性能,能够对水泥基复合材料的物理、化学变化过程和微观结构得到改善^[14]。近年来,国内外学者对氧化石墨烯材料的工程应用进行大量探索,研究表明氧化石墨烯可以作为一种纳米级添加剂用以改善水泥复合材料的力学性能和耐久性^[15]。氧化石墨烯粉末溶于水后可以很好地以单层的形式分布,在混凝土中掺入低浓度的氧化石墨烯可以显著提高混凝土的力学性能,改善流动性能以及增强耐久性能等^[16]。

前人的研究,很少关注氧化石墨烯对 HVFA 混凝土表面磨损性能的影响以及相关机理。本研究主要通过试验,分析了改性的 HVFA 混凝土材料性能(包括抗压强度、表面耐磨性、显微硬度和微观结构)随氧化石墨烯含量增加的变化规律,并阐明氧化石墨烯改性所引起的 HVFA 混凝土材料性能发生变化原理。

1 实验

1.1 材料

用于混凝土配制的细骨料是天然河砂,其最大公称尺寸为 4.75 mm,细度模量为 2.7;使用的粗骨料是经过破碎和筛分的碎石,其最大公称尺寸为 19 mm。用于溶液配制的水采用实验室的自来水,减水剂选取聚羧基醚型高效减水剂(HR-WRA),pH 值为 5.0,比重为 1.075,固体含量为 29.4%,减水剂的质量始终为用水量的 0.8%。水泥选用复合硅酸盐水泥,标号 P.C42.5。采用燃煤发电厂生产的二级粉煤灰以 60% 的取代率替代的水泥进行 HVFA 混凝土的配制。水泥和粉煤灰的化学性质如表 1 所示,粉煤灰颗粒与水泥颗粒的颗粒粒径分布曲线如图 1 所示,可以看出粉煤灰的平均粒径明显比水泥颗粒小。本研究采用的外加剂—氧化石墨烯采用 Hummers 法进行制备,氧化石墨烯的粉末如图 2 所示。本研究采用的氧化石墨烯的比表面积为 30.4 m²/g,平均抗拉强度和弹性模量分别为 125 MPa 和 32 GPa。氧化石墨烯粉末表面有大量的带负电荷的化学基团,在中性水溶液中电位约为 30 mV。首先将氧化石墨烯粉末配置成浓度为 4 mg/mL 的溶液;然后将 4 mg/mL 的溶液加水进一步稀释至 2、1、0.5 mg/mL;最后按实验所需的配比掺入混凝土物料中。

表 1 水泥和粉煤灰的化学成分
Tab. 1 Chemical components of cement and fly ash

成分	Al ₂ O ₃	SiO ₂	Fe ₂ O ₃	CaO	MgO	Na ₂ O	K ₂ O	SO ₃
粉煤灰/%	18.3	33.5	5.5	28.4	6.5	6.2	0.5	1.1
水泥/%	4.8	20.5	4.6	61.8	2.6	0.3	1.9	3.5

1.2 试件制备

本研究共对 4 种不同氧化石墨烯质量含量(0、0.01%、0.05% 和 0.1%)的改性 HVFA 混凝土进行了配制。混凝土中粉煤灰的替代率始终保持为 60%,不同含量的氧化石墨烯改性混凝土试件分别标记为 FG0、FG1、FG2 和 FG3,另外开展一组相同基本物料的普通混凝土试件的对照实验,

对照组标记为 OPC。采用浇筑法进行混凝土试件的配制,配合比如表 2 所示。值得注意的是,HVFA 混凝土的水胶比为 0.3,而 OPC 混凝土的水胶比为 0.4。在浇筑 HVFA 混凝土时采用了较低的水胶比,主要是因为以水胶比较高的普通混凝土为对照有利于显示普通混凝土与 HVFA 混凝土的性能差异。

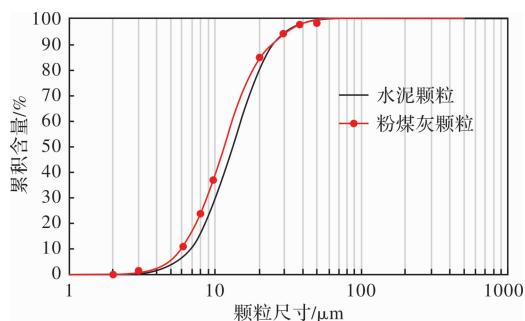


图 1 水泥和粉煤灰的颗粒粒径分布

Fig. 1 Particle size distribution of cement and fly ash particles



图 2 氧化石墨烯粉末照片

Fig. 2 Photo of graphene oxide powder

表 2 混凝土试件的配合比

Tab. 2 Mix ratio of concrete specimens

材料	OPC	FG0	FG1	FG2	FG3
水泥 /kg/m ³	525	210	210	28.4	6.5
粉煤灰 /kg/m ³	0	315	315	61.8	2.6
水 /kg/m ³	210	158	158	158	158
砂 /kg/m ³	614.5	614.5	614.5	614.5	614.5
碎石 /kg/m ³	820	820	820	820	820
氧化石墨烯 /%	0	0	0.01	0.05	0.1

进行混凝土制备时, 先将粗、细骨料、水泥和粉煤灰的混合料放在搅拌锅中进行干拌; 然后加入水和一定质量的氧化石墨烯, 充分搅拌均匀; 最后将砂浆注入边长为 150 mm 的立方体模具中浇筑成型, 将浆料在标准环境中静置 3 d 后脱模; 在标准养护箱中进行养护 28 d, 通过钻芯制样的方式从立方体试件中获得直径 61.8 mm, 高度 120 mm 的圆柱体试件用以压缩试验; 再经过精细切割得到 10 mm×10 mm×10 mm 的立方体试件, 用以进行显微硬度测试和 SEM 扫描。

1.3 试样仪器及方法

本试验利用伺服式液压单轴压缩仪进行力学测试, 试样的直径为 61.8 mm, 高度为 120 mm。压缩测试的加载方式设置为位移控制式, 加载速度设为 0.05 mm/min, 进行连续加载至试样发生完全破坏。在测试中由计算机记录混凝土试样的轴向应力与轴向位移的数据。在压缩试验中, 取应力-位移曲线的峰值强度为混凝土试样的抗压强度。

使用混凝土旋转磨耗试验机对干燥条件下的立方体混凝土试样进行磨损试验。利用该试验装置进行试验时, 首先称量混凝土立方体的初始质量; 再放置于仪器的水平转盘上, 使磨损面与试

件的顶面保持平行, 并用夹具将试件固定约束; 然后启动花轮刀片在 200 N 的轴向力作用下进行旋转磨损, 转速设为 100 r/min, 试验时间持续 5 min; 最后取下混凝土试件清理表面的粉尘并称重, 记录相应的质量计算质量损失率 w。

$$w = \frac{m_1 - m_2}{m_1} \times 100\% \quad (1)$$

式中: w(%) 为磨损率; m_1 和 m_2 分别为混凝土的初始质量和磨损试验后质量, g。

使用 FALCON 400 型维氏显微硬度测试系统对混凝土进行显微硬度压痕测量。首先, 对试样进行抛光并用乙醇进行超声清洗, 在相对湿度为 40% 的容器中干燥 12 h; 然后对试样表面施加 0.01 kN 的水平荷载并保持 15 s; 再通过四棱锥形的金刚石压头施加竖向荷载 P, 荷载大小可依据材料硬度差异而自动调整; 最后, 利用显微镜测量金刚石压入试样表面形成的凹坑对角线长度 d。显微硬度的计算公式如下:

$$HV = \frac{1.854P}{d^2} \quad (2)$$

式中: HV 为显微硬度; P 为竖向载荷, kN; d 为凹坑的平均对角线长度, mm。

2 实验结果

2.1 抗压强度

不同氧化石墨烯含量下混凝土的抗压强度测试结果如图 3 所示, 可以看出用大掺量粉煤灰代替水泥后, 混凝土的抗压强度有所降低。而在混凝土中加入氧化石墨烯可以减轻强度的损失, 且强度改良效果随氧化石墨烯掺量增加而不断提高。具体而言, 与不含氧化石墨烯的 HVFA 混凝土相比, 在 HVFA 混凝土中加入 0.01%~0.1% 的氧化石墨烯后, 抗压强度提高了 12%~15%。究其原因, 混凝土抗压强度提高不仅与氧化石墨烯本身优异的力学性能有关, 还得益于水泥水化反应程度的提高, 掺入氧化石墨烯可以抑制混凝土中裂纹的产生和扩展, 这也一定程度上提高了材料的承载性能。

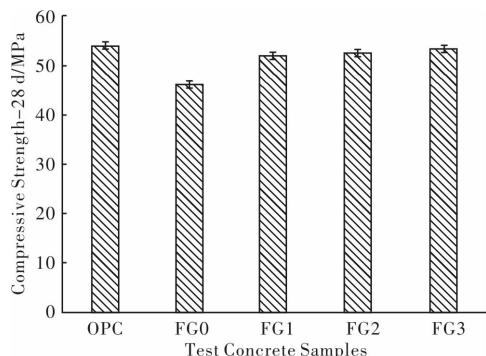


图 3 养护 28 d 后混凝土的抗压强度

Fig. 3 Compression strength of concrete after curing for 28 days

2.2 表面耐磨性

混凝土表面磨损率试验结果如图 4 所示, 可以看出与不含氧化石墨烯的混凝土试样(FG0)相比, 氧化石墨烯的掺入显著降低了 HVFA 混凝土的磨损率, 提高了混凝土的表面耐磨性。当 HVFA 混凝土中氧化石墨烯的质量含量超过 0.05% 时, 氧化石墨烯改性的 HVFA 混凝土的耐磨性高于 OPC 混凝土。这主要是由于掺合氧化石墨烯增加了材料的密实度, 进而提高了耐磨性能。

图 5 显示了混凝土试件的抗压强度与表面耐磨性指标之间的数学关系。为了充分反映二者的相关性, 对含有相同剂量氧化石墨烯的普通混凝土(OPC)进行了压缩和耐磨性试验, 得到的结果如图 5 中的数据点所示。可以看出, HVFA 混凝土磨损率随抗压强度的增加而显著降低, 说明表面耐磨性与抗压强度密切相关。通过数据分析, 发现两者关系的最佳拟合方程可通过对数据进行幂

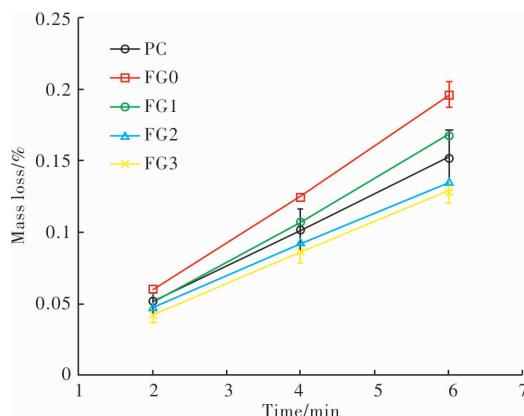


图 4 混凝土试件耐磨性试验结果

Fig. 4 Abrasion resistance test results of concrete specimens

函数回归得到, 确定性系数为 0.867。而其他学者采用线性、多项式和对数函数对混凝土表面磨损率和抗压强度之间关系进行描述也取得了较好的效果, 造成这种差异的原因可能与混凝土的配合比以及测试方法不同有关^[17]。

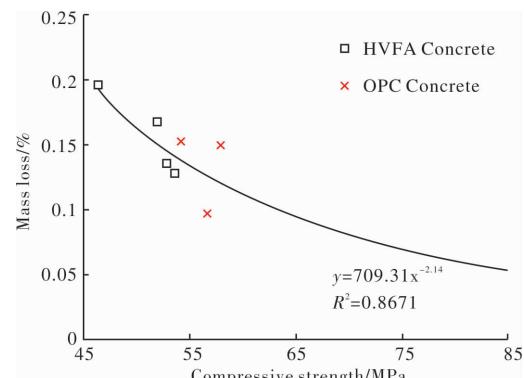


图 5 混凝土试件强度与耐磨性指标的关系

Fig. 5 Relationship between concrete specimen strength and wear resistance index

2.3 显微硬度

常规的磨损测试结果反映的是混凝土宏观耐磨性能, 而显微硬度测试结果表征了混凝土中局部位置的凝胶体耐磨性。由于水泥、粉煤灰凝胶体的耐磨性明显比粗骨料低, 在微观水平上研究含有氧化石墨烯的混凝土凝胶体耐磨性具有重要意义。本研究用显微硬度验证掺入氧化石墨烯对混凝土的微观结构性能的改良作用。通常的水泥基材料的显微硬度的数据被认为符合正态分布的特征, 显微硬度值通常由测量值的平均值进行表征, 水化反应越彻底, 显微硬度越高。在本研究中, 对每个混凝土试样进行了 100 次测量, 结果如图 6 所示。可以看出 HVFA 混凝土试件的显微硬度频率分布不符合常规的正态分布模型, 出现了

多个峰值。普通 HVFA 混凝土试件的显微硬度低于氧化石墨烯改性混凝土, 说明 HVFA 混凝土在养护 28 d 后的水化产物耐磨性比普通混凝土低。而当氧化石墨烯含量超过 0.05% 后, 显微硬度超

过了普通混凝土试件。究其原因, 主要是由于粉煤灰颗粒在养护阶段抑制了水泥水化反应造成的, 而在 HVFA 砂浆中掺入氧化石墨烯促进了水泥的水化反应。

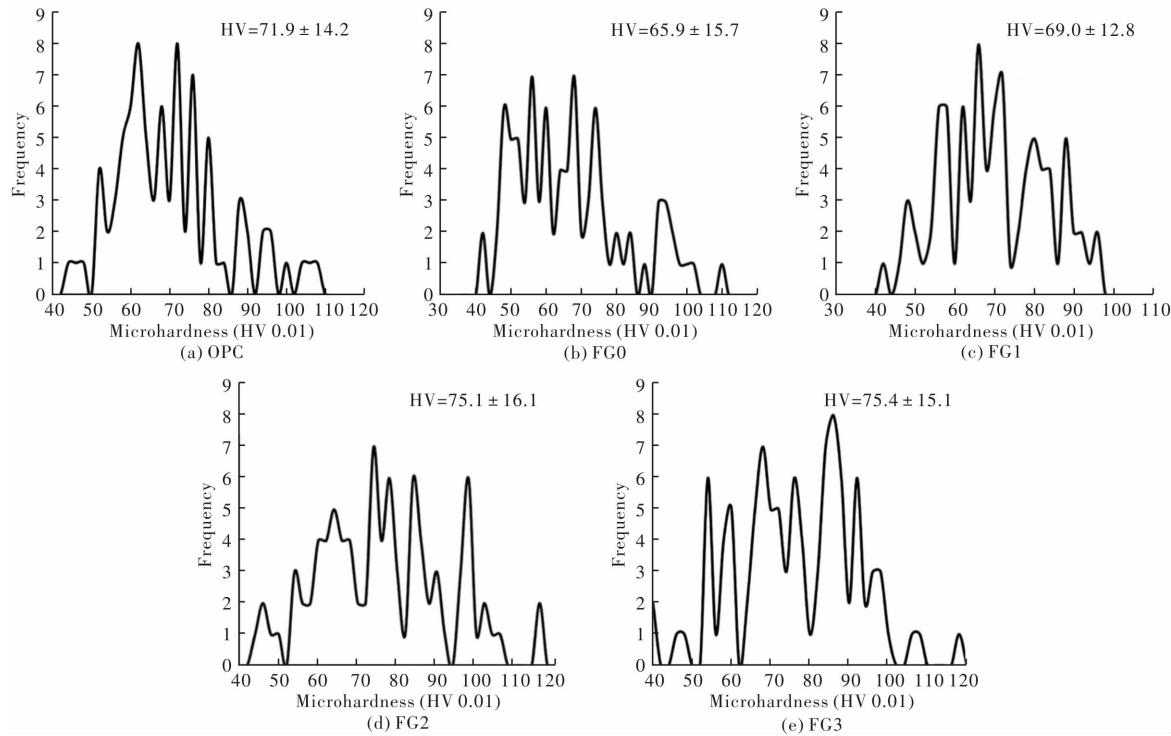


图 6 混凝土试件显微硬度测试的结果

Fig. 6 Microhardness testing results of concrete specimens

从图 7 可以看出, 随着显微硬度的增大, 混凝土表面磨损率呈直线下降的趋势, 且确定性系数达 0.99, 表明两者的相关性很好。事实上, 由于显微硬度测试可以产生与磨损试验类似的损伤机制, 故显微硬度也可以很好地衡量材料的表面耐磨性。虽然数据点的数量有限, 但从机理上来看, 显微硬度测试不失为一种可以合理评价混凝土表面耐磨性的方法。回归分析的结果也表明, 显微硬度参数比强度指标更能合理地预测混凝土表面的耐磨性指标。

2.4 微观结构

在显微硬度试验后会在混凝土内部形成裂纹, 本研究采用图 8 所示的扫描电镜(SEM)图像观察了不同试件在显微硬度试验后的微观结构。图 8(a)和(b)所示的是普通混凝土和 HVFA 混凝土的裂缝形态, 这两种混凝土裂纹通常以连通的方式穿过了水化硅酸盐。如图 8(c)~(e)所示, 经过氧化石墨烯改性的 HVFA 混凝土内部的裂纹宽度和长度减小, 偶见分支, 连通程度较低。当氧化石墨烯含量超过 0.05% 后, 凝胶体中会出现了“结块现象”, 这主要是由于当氧化石墨烯颗粒含量过多

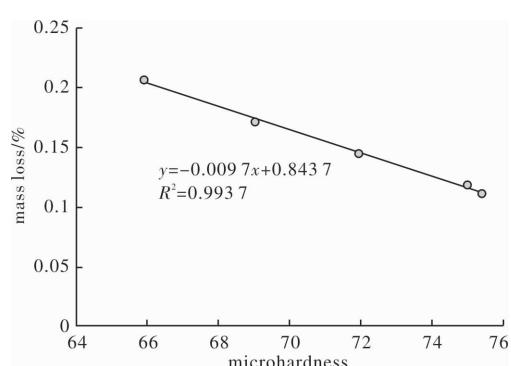


图 7 混凝土试件显微硬度与耐磨性指标的关系

Fig. 7 Relationship between the microhardness and wear resistance index of concrete

引起了水泥、粉煤灰的团聚。出现微观结构变化的原因是: 氧化石墨烯为水泥、粉煤灰等胶凝材料与水的反应提供了吸附位点, 通过成核作用生成晶核, 从而实现水化反应的加速和水化硅酸钙产物的增加。氧化石墨烯颗粒还可以降低混凝土的孔隙率, 形成屏障阻止裂纹扩展, 达到改善水泥基复合材料孔隙结构的目的。氧化石墨烯纳米片基面的含氧官能团(如羟基和羧基)也可以与水泥水化物发生化学反应使结构趋于稳定, 增强水

泥基复合材料的耐久性^[18]。综上,氧化石墨烯的适量掺入,可以在混凝土中促进水化物之间致密微观结构的形成,从而提高抗压强度、显微硬度和

耐磨性能,过多的氧化石墨烯参量会引起“结块现象”,氧化石墨烯含量超过一定值后,混凝土试件的强度、硬度和耐磨性等指标没有明显提升。

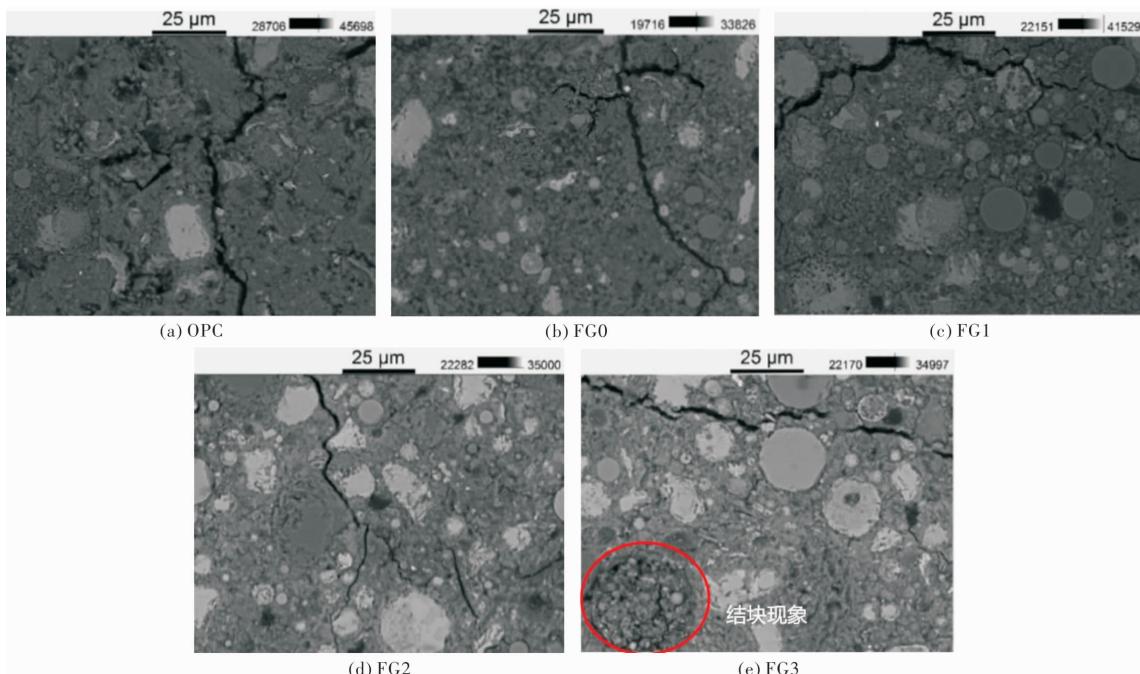


图 8 混凝土试件 SEM 图像

Fig. 8 SEM image of concrete specimens

3 结论

本研究从实验角度评价了氧化石墨烯对大体积粉煤灰混凝土的改性效果,主要得到了以下结论:

(1)在 HVFA 混凝土中掺加少量的氧化石墨烯(含量为 0.01%~0.1%)可以显著提高 HVFA 混凝土的抗压强度和表面耐磨性,混凝土的表面耐磨性受其抗压强度的影响较大。

(2)随着氧化石墨烯含量的增加,HVFA 混凝土的显微硬度先提高后保持不变。混凝土的表面磨损率与显微硬度保持良好的线性关系,说明显微硬度可以作为评价混凝土表面耐磨性的一个参数。

(3)氧化石墨烯与粉煤灰、水泥之间存在表面相互作用促进了水化产物的形成,阻碍了裂隙的扩展,使得混凝土的微观结构更加致密。当氧化石墨烯含量超过一定值后出现了“结块现象”,使得改性效果不再发生明显提升。

参考文献 References

- [1] 赵瑜,靳彩,冯幸芳. 大掺量粉煤灰在大体积混凝土中的应用研究[J]. 新型建筑材料,2002(8):34-35.

ZHAO Yu, JIN Cai, FENG Xingfang. Application high volume fly ash concrete in mass concrete engineering[J]. New Building Materials, 2002(8):34-35.

- [2] SHAIKH F U A, SUPIT S W M. Mechanical and durability properties of high-volume fly ash (HVFA) concrete containing calcium carbonate (CaCO₃) nanoparticles [J]. Constr. Build. Mater. 2014, 70 (1): 309-321.
- [3] NAIK T R, SINGH S S, HOSSAIN M M. Properties of high performance concrete systems incorporating large amounts of high-lime fly ash [J]. Construction and Building Material. 1995, 9:195-204.
- [4] SIDDIQUE R, KAPOOR K. Effect of polyester fibres on the compressive strength and abrasion resistance of HVFA concrete[J]. Construction and Building Material, 2012, 29:270-278.
- [5] 史琛,何廷树,李益民,等. 粉煤灰对硅酸盐水泥-铝酸盐水泥-石膏三元体系性能的影响[J]. 西安建筑科技大学学报:(自然科学版),2016(3):459-462.
- SHI Chen, HE Tingshu, LI Yimin, et al. Effects of fly ash on the performances of portland cement-aluminate cement-gypsum ternary cementitious system[J]. J. Xi'an Univ. of Arch. & Tech.: (Natural Science Edi-

- tion), 2016(3):459-462.
- [6] SAEED M K, RAHMAN M K, BALUCH M H. Influence of steel and polypropylene fibers on cracking due to heat of hydration in mass concrete structures [J]. Structural Concrete, 2019, 20(2):808-822.
- [7] CHALEE W, TEEKAVANIT M, KIATTIKOMOL K, et al. Effect of W/C ratio on covering depth of fly ash concrete in marine environment [J]. Construction and Building Materials, 2007, 21: 965-71.
- [8] SHIRZADI J A A. Packing density and surface finishing condition effects on the mechanical properties of various concrete pavements containing cement replacement admixtures[J]. Constr. Build. Mater. 2017, 41 (1):307-314.
- [9] RASHAD A M, SELEEM H E H, SHAHEEN A F, et al. Effect of silica fume and slag on compressive strength and abrasion resistance of hvfa concrete[J]. International Journal of Concrete, Structures and Materials, 2014(8) 69-81.
- [10] KODUR V K R, DWAIKAT M. A numerical model for predicting the fire resistance of reinforced concrete beams[J]. Cement and Concrete Composites, 2007, 30 (5):431-443.
- [11] ATIS C D, CELIK O N. Relation between abrasion resistance and flexural strength of high volume fly ash concrete[J]. Mat Struct, 2020, 35:257-260.
- [12] 韩同伟, 贺鹏飞. 石墨烯力学性能研究进展[J]. 力学进展, 2011, 41(3): 279-292.
HAN Tongwei, HE Pengfei. Research progress in the mechanical properties of graphene [J]. Advances In Mechanics, 2011, 41(3): 279-292.
- [13] 刘春燕, 李慧民, 李东波. 基于分子动力学的多晶石墨烯拉伸力学性能的应变率相关性[J]. 西安建筑科技大学学报(自然科学版), 2017, 49(4):604-610.
- LIU Chunyan, LI Huimin, LI Dongbo. Effects of tensile strain rate on mechanical properties of polycrystalline graphene based on molecular dynamics[J]. J. Xi'an Univ. of Arch. & Tech. (Natural Science Edition), 2017, 49(4):604-610.
- [14] PAN Z, HE L, QIU L, et al. Mechanical properties and microstructure of a graphene oxide-cement composite[J]. Cem. Concr. Compos. 2015, 58: 140-147.
- [15] MAZZOLI A, CORINALDESI V, DONNINI J, et al. Effect of graphene oxide and metallic fibers on the electromagnetic shielding effect of engineered cementitious composites[J]. Journal of Building Engineering, 2018, 18:33-39.
- [16] AHMADI M, ANSARI R, ROUHI S. Response of graphene reinforced concrete to the external compressive load: A multiscale approach[J]. Structural Concrete, 2018, 19(6):1702-1712.
- [17] 徐朋辉, 李相国, 刘卓霖, 等. 氧化石墨烯对粉煤灰水泥的水化和力学性能的影响[J]. 硅酸盐通报, 2016, 35 (12):4066-4069.
XU Penghui, LI Xiangguo, LIU Zhuolin, et al. Influence of graphene oxide on hydration and mechanical properties of fly ash-cement[J]. Bulletin of the Chinese Ceramic Society, 2016, 35(12):4066-4069.
- [18] 吕生华, 马宇娟, 邱超超, 等. 氧化石墨烯对水泥水化晶体形貌的调控作用及对力学性能的影响[J]. 功能材料, 2013, 44(10):1487-1492.
LÜ Shenghua, MA Yujuan, QIU chaochao, et al. The regulation of graphene oxide on micromorphology of cement hydrate crystals and its impact on mechanical properties[J]. Journal of Functional Materials, 2013, 44(10):1487-1492.

(编辑 桂智刚)