文章编号：1004-0609(2013)04-1040-07

高性能 SiC 增强 Al 基复合材料的显微组织和热性能

刘玫潭[1,2]，蔡旭升[1,2]，李国强[1,2]

(1. 华南理工大学 发光材料与器件国家重点实验室，广州 510640；
2. 华南理工大学 材料科学与工程学院，广州 510640)

摘　要：采用模压成型和无压浸渗工艺制备了高体积分数 SiC 增强 Al 基复合材料(AlSiC)，对其物相和显微结构进行研究。结果表明：用上述方法制备的 AlSiC 复合材料组织致密，两种粒径的 SiC 颗粒均匀分布于 Al 基质中，界面结合强度高；SiC 增强颗粒与 Al 基质界面反应控制良好，未出现 Al_4C_3 等脆性相。分析指出：Al 合金中 Si 元素的存在有利于防止脆性相 Al_4C_3 的形成，Mg 元素的加入提高了 Al 基体和 SiC 增强体之间的润湿性。所获得复合材料的平均热膨胀系数为 9.31×10^{-6} K^{-1}，热导率为 238 W/(m·K)，密度为 2.97 g/cm^3，表现出了良好的性能，完全满足高性能电子封装材料的要求。

关键词：AlSiC；显微结构；物相；界面；热膨胀系数
中图分类号：TG146　　**文献标志码**：A

Microstructure and thermal properties of high-performance SiC reinforced Al matrix composite

LIU Mei-tan[1,2], CAI Xu-sheng[1,2], LI Guo-qiang[1,2]

(1. State Key Laboratory of Luminescent Materials and Devices, South China University of Technology, Guangzhou 510640, China;
2. School of Materials Science and Engineering, South China University of Technology, Guangzhou 510640, China)

Abstract: The SiC reinforced Al matrix composite (AlSiC) with high SiC volume fraction was prepared by combination of compression molding for SiC preform and pressureless infiltration. The microstructure and phase of AlSiC composite were studied. The results show that the AlSiC composite fabricated by above-mentioned methods is free of porosity, the SiC particles with two sizes are distributed uniformly, and the high interfacial bonding strength is achieved. Moreover, the interfacial reaction is well controlled so that some harm phases especially Al_4C_3 fragility phase are absence from interfacial reaction products. The physical mechanism behind those experimental phenomena was analyzed in detail. The existence of silicon in the aluminum alloy prevents the formation of Al_4C_3 fragility phase and the addition of magnesium to the aluminum alloy significantly improves the wetting property of SiC with aluminum. The thermal expansion coefficient of AlSiC composite is 9.31×10^{-6} K^{-1}, the thermal conductivity is 238 W/(m·K), and the density is 2.97 g/cm^3. The AlSiC composite exhibits excellent properties and can fully meets the requirements of high-end electronic packaging materials.

Key words: AlSiC; microstructure; phase; interface; thermal expansion coefficient

随着微电子器件向高性能、轻量化和小型化方向发展，微电子对封装材料提出越来越苛刻的要求，传统的封装材料包括硅基板、金属基板和陶瓷基板等。硅和陶瓷基板加工困难，成本高，热导率低；金属材

基金项目：国家安全重大基础研究项目；国家自然科学基金资助项目(51002052)；广东省战略新兴产业专项资金资助项目(2011A081301010)
收稿日期：2012-06-11；**修订日期**：2012-11-26
通信作者：李国强，教授，博士；电话：020-87112957；E-mail: msgli@scut.edu.cn

料的热膨胀系数与微电子芯片不匹配，在使用过程中将产生热应力而翘曲。因此这些传统的封装材料很难满足封装基板的苛刻需求。为此，国内外开发了一些新型散热基板材料，如金属芯印刷电路板[1](MCPCB)、覆铜陶瓷板[2](DBC)和金属基低温烧结陶瓷基板[3](LTCC-M)。其中，金属芯印刷电路板热导率受到绝缘层的限制，热导率低，且不能实现板上封装；覆铜陶瓷板采用直接键合方式将陶瓷和金属键合在一起，提高了热导率，同时使得热膨胀系数控制在一个合适的范围，但金属和陶瓷的反应能力低，润湿性不好，使得键合难度高，界面结合强度低，易脱落；金属基低温烧结陶瓷基板对成型尺寸精度要求高，工艺复杂，也同样存在金属和陶瓷润湿性不好、易脱落的难题。

近年来，SiC 增强 Al 基复合材料由于原材料价格便宜，能近净成形复杂形状，且具有热导率高、膨胀系数可调、比刚度大、密度小，使封装结构具有功率密度高、芯片寿命长、可靠性高和质量轻等特点，在电子封装领域展现出了良好的应用前景[4−6]。SiC 颗粒作为增强材料具有性能优异、成本低廉的优点，其热膨胀系数为 $4.7\times10^{-6}\,K^{-1}$，与 Si 的热膨胀系数最为接近，热导率为 80~170 W/(m·K)，弹性模量达 450 GPa，密度为 3.2 g/cm^2 。同时 Al 作为基板材料，具有高热导率(170~220 W/(m·K))、低密度(2.97 g/cm^2)、价格低廉和易于加工等优点，其缺点是热膨胀系数较高。但形成 AlSiC 复合材料以后，却能发挥出 SiC 和 Al 各自的优点，又克服了各自的缺点，能表现优异的综合性能。更为重要的是，AlSiC 的热膨胀系数可以通过 SiC 的加入量来调节，从而可以获得精确的热膨胀系数匹配，可以实现电子芯片的板上封装。

AlSiC 电子封装构件的制备方法由 SiC 预制件制备和融熔铝合金液浸渗两步组成。目前，预制件的制备方法主要有模压成型、美国 AFT 公司的粉末注射成型和美国 CPS 公司的 Quickset^{TM} 注射成型技术。其中，模压成型适用于一些结构简单的构件，成型模具制造简单、操作方便、周期短、效率高，便于实现自动化生产，较适用于 AlSiC 封装材料的前期研制。浸渗工艺主要有真空压力浸渗和无压浸渗。真空压力浸渗虽然可以得到性能优良、气孔缺陷较少的 AlSiC 复合材料，但真空压力浸渗对设备材料要求较高，设备投资和模具成本高，生产周期长，生产成本高，工艺实施起来相对复杂。无压浸渗利用反应诱发润湿来实现良好浸渗，目前能实现高体积分数粉末增强金属基复合材料的近净成形[7]。无压浸渗工艺过程中没有压力作用，也不需要真空条件和昂贵的设备，生产成本低，工艺简单。然而，这样制备出的 AlSiC 复合材料，通常会存在 Al_4C_3 脆性相[8−9]，Al 基体和 SiC 增强体之间的润湿性也较差[10]。这严重降低了复合材料的力学性能。

本文作者采用模压成型和无压浸渗的方法制备 AlSiC 复合材料，探究采用无压浸渗工艺制得的复合材料的显微结构，物相和热性能。通过使用 Al-Mg-Si 合金作为原料，成功地控制了 Al_4C_3 脆性相在 AlSiC 复合材料中的生成，并增强了 Al 基体和 SiC 增强体之间的润湿性。本研究结果对于高性能 AlSiC 复合材料的原料选择和制备工艺具有重要的指导意义。

1　实验

1.1　材料制备

增强体选用平均尺寸分别为 45 和 3.5 μm 的两种 SiC 颗粒；Al 合金为自制的 Al-Mg-Si 系合金材料。将大小两种 SiC 颗粒按质量比 3:1 充分混合后，经过模压成型和无压浸渗两步工艺制得 AlSiC 复合材料。

1.2　分析测试

复合材料的热膨胀系数采用德产耐驰 DIL402PC 热膨胀仪，在 20~600 ℃的范围内测试。试样尺寸为 5 mm×5 mm×20 mm，升温速率为 10 ℃/min。为保证测试时温度均匀并防止试样氧化，实验在氮气气氛保护下进行，氮气流量为 20 mL/min。导热系数采用综合物性测量系统 PPMS−9 测定，试样尺寸为 5 mm×5 mm×15 mm，用电子扫描电镜(SEM)观察复合材料断口和抛光表面形貌，并分别用 X 射线能谱(EDS)对断口和抛光表面做成分分析。用 X 射线衍射分析(XRD)进行复合材料的物相鉴定，试样尺寸为 3 mm×10 mm×10 mm。

2　结果与分析

2.1　复合材料的显微结构

图 1(a)所示为复合材料抛光表面的 SEM 形貌。图 1(b)所示为打磨未抛光表面低倍背反射 EBSD 像。由图 1 可看出，大粒径的 SiC 颗粒均匀分布于 Al 基体中，小颗粒 SiC 填充在大颗粒 SiC 形成的空隙中，从而提高了复合材料中 SiC 的体积分数。实验制备的复合材

料，SiC 的体积分数为 67%。经测量，大颗粒 SiC 的粒径在 41~49 μm 之间，小颗粒 SiC 的粒径在 2.5~4.5 μm 之间，与 SiC 原材料的尺寸相吻合。以单一粒径的陶瓷粉体为原料，很难制备固相体积分数为 60% 以上的金属基复合材料。郑超和于家康[11]、吴金方等[12]、熊德赣等[13]以及陈闯等[14]也都采用两种甚至多种粒径相混合的 SiC 颗粒做复合材料增强体，以获得高 SiC 体积分数的复合材料。

图 2 所示为复合材料的断口形貌。由图 2 可见，部分 SiC 颗粒被拉断，但没有颗粒脱离和拔出，由此可以表明 Al 基体和增强体界面结合状况非常理想。由于图中未看到气孔等缺陷，因此，这说明了 Al 的浸渗很充分，也从另一个角度说明了 SiC 多孔预制件中两种颗粒混合足够均匀，未出现小颗粒的团聚而形成闭孔。

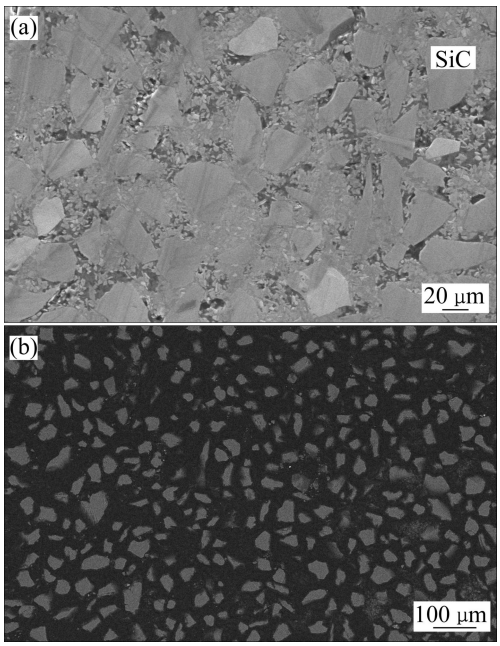

图 1 AlSiC 复合材料的抛光表面 SEM 形貌和打磨表面 EBSD 像

Fig. 1 SEM microstructure of polished surface(a) and EBSD microstructure of rough polished surface(b) of AlSiC composite

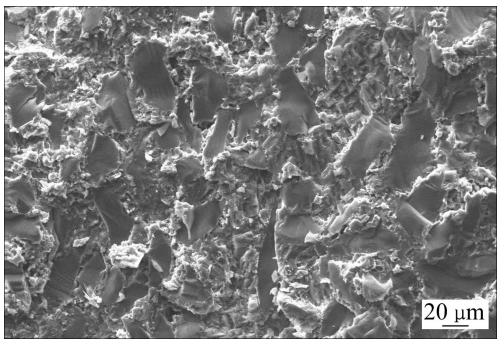

图 2 AlSiC 复合材料的 SEM 断口形貌

Fig. 2 SEM fractograph of AlSiC composite

2.2 复合材料的物相分析

使用 XRD 对复合材料所含有的物相进行了分析，如图 3 所示。由图 3 可知，复合材料中主要含有 SiC 相、Al 相、MgO 相和 Mg_2Si 相。在郑超和于家康[11]，陈闯等[14]的研究中出现了 $MgAl_2O_4$ 相。在 PECH-CANUL 等[15]的研究中讨论了 Al_4C_3 相的产生。RODRI´GUEZ- REYES 等[16]以及 PARK 和 LUCAS[17]研究发现，Al_4C_3 在潮湿的环境中会分解形成 $Al(OH)_3$。以上这些相特别是 Al_4C_3 为脆性相，会严重影响 AlSiC 复合材料的力学性能。因此，在物相分析时对上述诸相特别留意，但没有发现复合材料中存在 Al_4C_3 相、$MgAl_2O_4$ 相、$Al(OH)_3$ 相、Al_2O_3 相和 Al_4SiC_4 相。

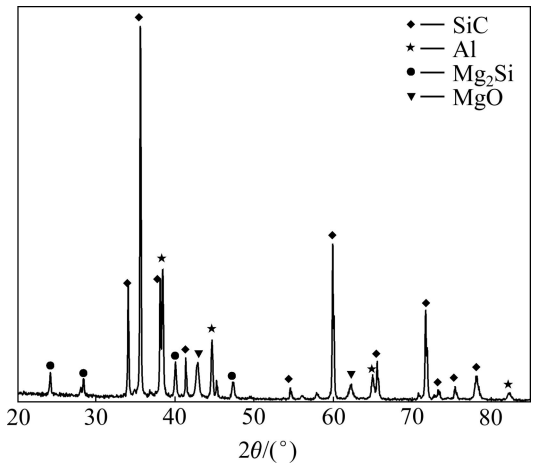

图 3 AlSiC 复合材料的 XRD 谱

Fig. 3 XRD pattern of AlSiC composite

SiC 相和 Al 相是复合材料中含量最多的两个相。基质中主要是 Al 和 Mg_2Si 相，如图 4 所示。这是由于 Al 合金中含有 Mg 和 Si 等成分，它们在高温浸渗过程中发生了如下反应。

$$Mg+Si═Mg_2Si \quad (1)$$

Mg_2Si 相存在的事实，可以由如图 5 所示的 EDS 元素分布图印证。比较图 5(b)、(c)和(d)可看出，Al 元素和 Mg 元素的分布区域一致，都存在于基质中；比较图 5(b)和(d)可看出，Mg 元素含量多的区域 Si 元素含量也较多，而 Al 元素和 Si 元素之间不存在这样的对应关系。这从另一方面印证了复合材料中存在 Mg_2Si 相。XRD 分析结果中未发现 Mg 相，说明 Mg 元素以 Mg_2Si 的形式存在于复合材料基质中。

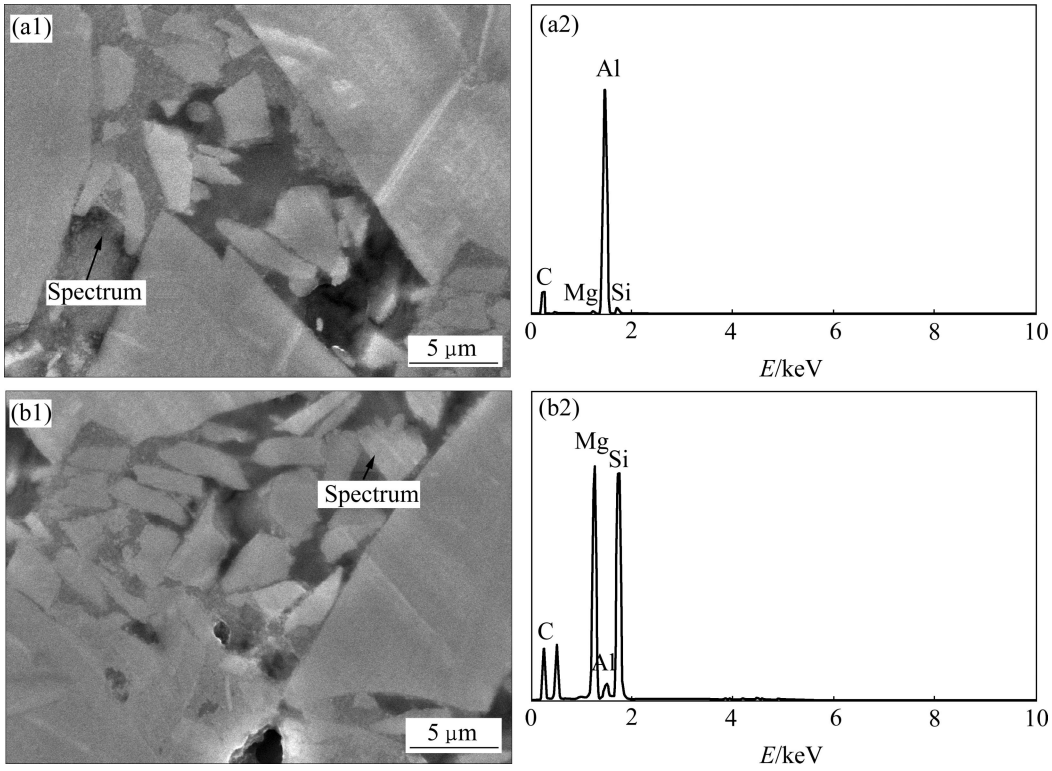

图 4　基质中的 Al 和 Mg_2Si 的形貌及能谱分析

Fig. 4　Morphologies of Al(a1) and Mg_2Si(b1) and EDS spectra((a2), (b2)) in matrix

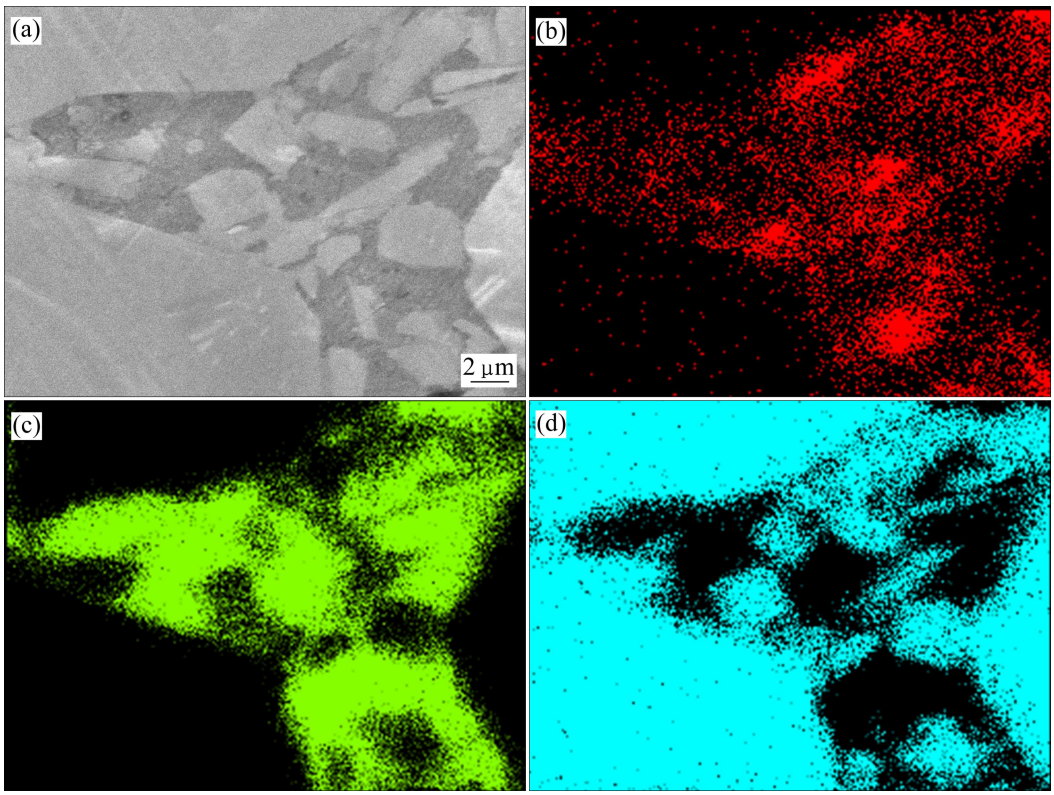

图 5　元素分布图选定区域以及 Mg、Al 和 Si 元素分布图

Fig. 5　Selected area of elements distribution analysis(a) and Mg(b), Al(c) and Si(d) elements distributions

Al 合金在空气中放置，裸露在表面的 Al 可能部分被氧化成 Al_2O_3。另外，浸渗时 Al 液前沿可能被多孔预制件孔隙中残留的少量空气氧化。Al 合金原料中的 Mg 可能会与 Al_2O_3 发生如下反应。

$$3Mg(l)+Al_2O_3(s)=3MgO(s)+2Al(l) \quad (2)$$

$$Mg(l)+4/3Al_2O_3(s)=MgAl_2O_4(s)+2/3Al(l) \quad (3)$$

由于 Al 合金中 Mg 元素的含量要远多于 Al_2O_3 含量，因此会发生第一个反应。此反应降低了 Al 合金液的表面张力，提高润湿性，相应地也使复合材料中出现了 MgO 相。另外，由于 Mg 表面能比 Al 表面能低，熔融时 Al 合金中的 Mg 会自发地富集到 Al 合金表面，使合金液表面能降低[18]。由此可见，Al 合金中的 Mg 不但可以分解掉由于 Al 氧化产生的 Al_2O_3，而且还可以改善浸润性[15, 18]。樊子民等[19]研究了 Mg 的加入量对浸渗过程的影响，发现在一定的加入量范围内，随着 Mg 加入量的增加，Al 合金液在 SiC 预制件中的浸渗深度增加很快，当 Mg 的加入量超过一定量时，随 Mg 量的增加，浸渗深度不再有明显的变化。

对于一些二元体系，在升温过程中，两组分能以任何比例互相熔成一个液相。如果两个组分以适当比例混合，在某一温度下两个固体组分可同时熔化，且这个温度通常低于每一个纯组分的熔点，该温度叫低共熔温度。例如，Si 与 Al 二元系统中，Si 的熔点为 1 414 ℃，Al 的熔点为 660 ℃，但它们的共熔温度低至 577 ℃，约为 Si 熔点的 0.4 倍。类似地，SiC 的熔点为 2 730 ℃，却能在 700 ℃与 Al 共熔并进而发生溶解反应。早在 1985 年，就有研究者推测[20]，在 Al-C-Si 体系中，当温度达到(849±1) K 时，Al、Si(s)、SiC(s)将发生共熔反应，形成液态熔液。

另外，融熔的铝合金分子能量高，分子运动剧烈，在界面处会攻击 Si—C 键，也会促进 Si—C 键的断裂。在 923 K 附近发生溶解反应：

$$4Al+3SiC=Al_4C_3+3Si \quad (4)$$

$$4Al+4SiC=Al_4SiC_4+3Si \quad (5)$$

可见，Al 合金中添加 Si 元素可以抑制界面处 SiC 被 Al 液溶解。于是，Si 的添加阻止了脆性相 Al_4C_3 及杂质相 Al_4SiC_4 的形成[21−22]，抑制了 SiC 的溶解。

含有 Al_4C_3 的复合材料长期放置在潮湿的空气中会发生如下反应[15, 17]。

$$Al_4C_3+12H_2O=3CH_4+4Al(OH)_3 \quad (6)$$

$$Al_4C_3+18H_2O=4Al(OH)_3+3CO_2+12H_2 \quad (7)$$

而物相分析结果表明，AlSiC 复合材料中未出现 $Al(OH)_3$ 相，这也从另一个角度印证复合材料界面处未形成 Al_4C_3 脆性相，界面反应控制较好。

2.3 复合材料的热性能

图 6 所示为所制备的 AlSiC 复合材料的热膨胀系数随温度变化的曲线。由图 6 可以看出，AlSiC 复合材料的热膨胀系数在 7.77×10^{-6}~10.89×10^{-6} K^{-1} 之间变化，在 30~500 ℃内的平均热膨胀系数为 9.31×10^{-6} K^{-1}。这可以与陶瓷基片保持良好的热匹配。由图 6 可见，随着温度升高，复合材料的热膨胀系数随温度升高先增大后减小，在 340 ℃左右达到最大值。这与张强等[23]的研究结果类似。张强等[23]认为基体中较多的 Si 会导致在高温阶段 Al 的固溶度急剧增加，从而降低了 Al 的晶格常数，导致高温时复合材料的热膨胀系数降低。

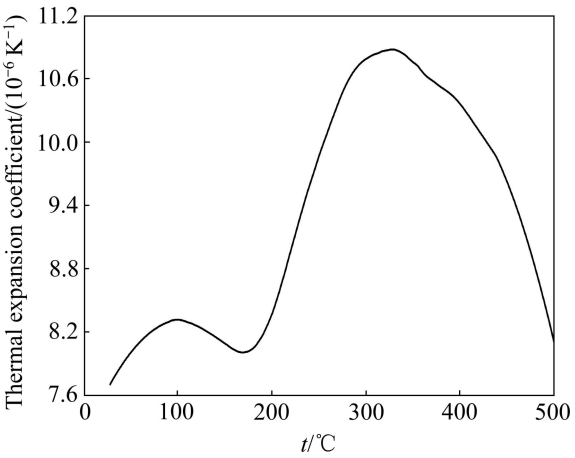

图 6 AlSiC 复合材料的热膨胀性能

Fig. 6 Thermal expansion property of AlSiC composite

由综合物性测量系统 PPMS−9 测得复合材料的室温热扩散率为 56.16 mm^2/s，热导率为 238 W/(m·K)，具有很好的散热性能。密度为 2.97 g/cm^3，完全满足封装材料要求。

3 结论

1) 无压浸渗法制备的 AlSiC 复合材料性能良好。AlSiC 复合材料中两种粒径的 SiC 颗粒均匀分布在 Al 基体中，小颗粒 SiC 填充在大颗粒 SiC 形成的空隙中。SiC 和基质结合强度高，材料致密，未出现空洞等缺

陷。

2) AlSiC 复合材料中主要含有 SiC、Al、Mg_2Si 和 MgO。复合材料界面反应控制很好，未出现 Al_4C_3 脆性相。

3) Al 合金中 Si 元素的加入有利于防止脆性相 Al_4C_3 形成，Mg 元素的加入提高了 Al 基体和 SiC 增强体之间的润湿性。

4) AlSiC 复合材料的平均热膨胀系数为 9.31×10^{-6} K^{-1}，热导率为 238 W/(m·K)，密度为 2.97 g/cm^3，表现出了良好的性能，完全满足封装材料的要求。

REFERENCES

[1] 田大垒, 关荣锋, 王　杏. 新型封装材料与大功率 LED 封装热管理[J]. 电子元件与材料, 2007, 26(8): 5−7.
TIAN Da-lei, GUAN Rong-feng, WANG Xing. Novel packaging materials and thermal management of high-power LED packaging[J]. Electronic Components and Materials, 2007, 26(8): 5−7.

[2] IVANOVA M, AVENAS Y, SCHAEFFER C, DEZORD J B, SCHULZ-HARDER J. Heat pipe integrated in direct bonded copper (DBC) technology for the cooling of power electronics packaging[C]//IEEE Power Electronics Specialists Conference. New York: IEEE, 2005: 1750−1755.

[3] PARK J K, SHIN H D, PARK Y S, PARK S Y, HONG K P, KIM B M. A Suggestion for high power LED package based on LTCC[C]//IEEE Power Electronics Specialists Conference. New York: IEEE, 2006: 1070−1075.

[4] ZWEBEN C. Metal matrix composites for electronic packaging[J]. JOM, 1992, 44(7): 47−51.

[5] 龙　乐. 电子封装中的铝碳化硅及其应用[J]. 电子与封装, 2006, 6(6): 16−20.
LONG Yue. AlSiC metal matrix components and its application in microelectronics packaging[J]. Electronics & Packaging, 2006, 6(6): 16−20.

[6] ZWEBEN C. Advances in composite materials for thermal management in electronic packaging[J]. JOM, 1998, 50(6): 47−51.

[7] LAI S W, CHUNG D D L. Fabrication of particulate aluminium-matrix composites by liquid metal infiltration[J]. Journal of Materials Science, 1994, 29: 3128−3150.

[8] LEE J C, LEE J I, LEE H I. Methodologies to observe and characterize interfacial reaction products in $(Al_2O_3)_p$/Al and SiC_p/Al composites-using SEM, XRD, TEM[J]. Scripta Materialia, 1996, 35(6): 721−726.

[9] LEE J C, LEE J I, LEE H I. Observation of three-dimensional interfacial morphologies in SiC_p/Al composites and its characterization[J]. Journal of Materials Science Letters, 1996, 15: 1539−1542.

[10] 王　玲, 赵浩峰, 蔚晓嘉, 宋秀安, 林万明, 谷锦梅, 郭胜利. 金属基复合材料及其浸渗制备的理论和实践 [M]. 北京: 冶金工业出版社, 2005: 237−267.
WANG Ling, ZHAO Hao-feng, WEI Xiao-jia, SONG Xiu-an, LIN Wan-ming, GU Jin-mei, GUO Sheng-li. Metal matrix composites and theory in infiltration process[M]. Beijing: Metallurgical Industry Press, 2005: 237−267.

[11] 郑　超, 于家康. 热处理及致密度对高体积分数 SiC_p/Al 复合材料性能的影响[J]. 材料热处理, 2006, 35(20): 43−63.
ZHENG Chao, YU Jia-kang. Effect of heat treatment and densification on properties of SiC_p/Al composite with high volume fraction of SiC_p[J]. Material & Heat Treatment, 2006, 35(20): 43−63.

[12] 吴金方, 刘君武, 丁　锋, 李青鑫, 郑治祥. AlSiC 电子封装材料的凝胶注模法制备[J]. 合肥工业大学学报:自然科学版, 2011, 34(3): 336−340.
WU Jin-fang, LIU Jun-wu, DING Feng, LI Qing-xin, ZHENG Zhi-xiang. Preparation of AlSiC electronic package materials by gel-casting[J]. Journal of Hefei University of Technology: Natural Science Edition, 2011, 34(3): 336−340.

[13] 熊德赣, 刘希从, 鲍小恒, 白书欣, 杨盛良, 赵　恂. AlSiC 电子封装基片的制备与性能[J]. 中国有色金属学报, 2006, 16(11): 1913−1917.
XIONG De-han, LIU Xi-cong, BAO Xiao-heng, BAI Shu-xin, YANG Sheng-liang, ZHAO Xun. Fabrication and property of aluminum silicon carbide electronic packaging baseplates[J]. The Chinese Journal of Nonferrous Metals, 2006, 16(11): 1913−1917.

[14] 陈　闯, 于家康, 杨　博. SiC_p/Al 电子封装材料与陶瓷元件浸渗连接机理研究[J]. 金属铸锻焊技术, 2008, 37(23): 1−4.
CHEN Chuang, YU Jia-kang, YANG Bo. Mechanism of infiltration jointing between SiC_p/Al electronic packaging materials and ceramic components[J]. Casting Forging Welding, 2008, 37(23): 1−4.

[15] PECH-CANUL M I, KATZ R N, MAKHLOUF M M. Optimum parameters for wetting silicon carbide by aluminum alloys[J]. Metallurgical and Materials Transactions A, 2000, 31: 565−573.

[16] RODR´GUEZ-REYES M, PECH-CANUL M I, PARGA-TORRES J R, ACEVEDO-DA´VILA J L, SA´NCHEZ-ARAIZA M, LOPEZ H F. Development of aluminum hydroxides in Al-Mg-Si/SiC_p in infiltrated composites exposed to moist air[J]. Ceramics International, 2011, 37: 2719−2722.

[17] PARK J K, LUCAS J P. Moisture effect on SiC_p/6061Al MMC: Dissolution of interfacial Al_4C_3[J]. Scripta Materialia, 1997,

37(4): 511−516.

[18] 张志杰, 吕　明, 刘粤惠, 尹　芪. 材料物理化学[M]. 北京: 化学工业出版社, 2012(3): 153.
ZHANG Zhi-jie, LÜ Ming, LIU Yue-hui, YIN Zhi. Physical chemistry of materials[M]. Beijing: Chemical Industry Press, 2012: 153.

[19] 樊子民, 王晓刚, 田欣伟, 马宁强. SiC/Al 基电子封装复合材料的无压浸渗法制备与热性能研究[J]. 铸造技术, 2009, 30(6): 741−744.
FAN Zi-min, WANG Xiao-gang, TIAN Xin-wei, MA Ning-qiang. Presureless infiltration and thermal-properties of SiC porous ceramics reinforced Al composites for electronic packaging[J]. Foundry Technology, 2009, 30(6): 741−744.

[20] VIALA J C, FORTIER P, BOUIX J. Stable and metastable phase equilibria in the chemical interaction between aluminium and silicon carbide[J]. Journal of Materials Science, 1990, 25: 1842−1850.

[21] 张永俐, 罗素华. SiC-Al 界面 Al_4C_3 的生成及其控制[J]. 材料科学与工程, 1998, 16(1): 32−35.
ZHANG Yong-li, LUO Su-hua. The formation and control of Al_4C_3 at the interface of SiC-Al[J]. Materials Science & Engineering, 1998, 16(1): 32−35.

[22] LEE J C, BYUN J Y, PARK S B, LEE H I. Prediction of Si contents to suppress the formation of Al_4C_3 in the SiC_p/Al composite[J]. Acta Mater, 1998, 46(5): 1771−1780.

[23] 张　强, 修子杨, 宋美惠, 武高辉. 电子封装用 SiC_p/Al 复合材料的组织与性能[J]. 功能材料, 2004, 35(s): 1073−1076.
ZHANG Qiang, XIU Zi-yang, SONG Mei-hui, WU Gao-hui. Microstructure and properties of SiC_p/Al composites used for electronic packaging applications[J]. Journal of Functional Materials, 2004, 35(s): 1073−1076.

(编辑　李艳红)