



单分散铋铁氧体微米片的制备及其磁学和光催化活性

李文强, 刘顺, 许铭冬, 银辉, 杨志逸, 尹思敏

(浙江理工大学机械与自动控制学院, 杭州 310018)

摘要: 为实现铋铁氧体微纳米晶体的形貌尺寸调控, 采用一步水热法成功实现了单分散 BiFeO₃ (BFO) 微纳米结构的可控合成, 并对其结构和性能进行了系统研究。结果表明: 所制备的 BFO 样品为规则圆片状单分散单晶颗粒, 其直径约 2 μm, 厚度约 250 nm, 表面光滑; 样品的形貌和晶相演变取决于水热反应中矿化剂 NaOH 的浓度。该 BFO 样品在 120 min 内对 1×10^{-5} mol/L 亚甲基蓝 (MB) 水溶液的催化降解效率为 93.8%, 同时其在室温下具有一定的铁磁性, 为后续深入研究光催化材料的磁性回收提供了可能性。研究结果对新型磁性催化类功能材料的设计开发和应用具有一定的参考意义。

关键词: BiFeO₃; 微米片; 单分散; 光催化; 磁性

中图分类号: TB34

文献标志码: A

文章编号: 1673-3851 (2021) 11-0730-06

Preparation of mono-dispersed Bismuth ferrite microplates and their magnetic and photocatalytic properties

LI Wenqiang, LIU Shun, XU Mingdong, YIN Hui, YANG Zhiyi, YIN Simin

(Faculty of Mechanical Engineering & Automation, Zhejiang Sci-Tech University, Hangzhou 310018, China)

Abstract: To achieve the morphology and size control of bismuth ferrite microplates, controllable synthesis of mono-dispersed BiFeO₃ (BFO) with micro-nano structure was successfully realized by the one-step hydrothermal method, and its structure and properties were systematically studied. The results showed that, the prepared BFO samples are regular circular mono-dispersed single crystal particles with smooth surface (about 2 μm in radius and 250 nm in thickness). NaOH concentration played a crucial role in the morphology and phase evolution of the samples. The photocatalytic efficiency of the BFO sample to 1×10^{-5} mol/L methylene blue (MB) aqueous solution within 120 min was 93.8%. Besides, it had certain ferromagnetic property at room temperature, providing the possibility for further research on magnetic recovery of photocatalytic materials. The research results have certain reference significance for the design, development and application of new magnetic photocatalytic materials.

Key words: BiFeO₃; microplate; mono-dispersed; photocatalysis; magnetic

0 引言

化石燃料的大量消耗带来了日益严重的能源危机和环境压力, 环境治理已成为目前工业界广泛关

注的研究课题。积极探索和开发利用清洁能源、降解水体污染物是当前科学的重要方向。其中, 利用半导体材料的光学特性来实现光解水制氢产氧、CO₂ 还原或污染物的降解等, 成为水体污染物

处理领域的关键技术^[1]。近年来,钙钛矿材料因其特殊的光电转化性能而广泛应用于太阳能电池领域^[2-4]。与传统的半导体材料 TiO_2 (禁带宽度约为 3.2 eV)相比, $BiFeO_3$ (BFO)具有更窄的带隙宽度(约为 2.2~2.8 eV),能吸收波长为 590 nm 以下的光,理论上具有更好的光响应性能和更显著的可见光催化活性^[5-6]。研究者通常会采用化学合成条件的变化来调控 BFO 的晶体形貌和物相,获得具有更大比表面的样品,促进光子的吸收;或者通过晶体工程技术调控 BFO 的晶体生长过程,实现高反应活性晶面的生长,从而获得更优良的催化反应活性^[7-8]。

BFO 是一种典型的菱方钙钛矿结构多铁性材料,在室温条件下同时具有铁电性和反铁磁性,铁电居里温度 T_c 约为 820 °C,反铁磁奈尔温度 T_N 约为 370 °C^[9],铁电性与反铁磁性二者可相互作用产生磁电耦合效应。同时,单晶 BFO 还具有良好的压电性、巨磁阻效应等物理性能^[10-13],这使得 BFO 材料被广泛应用于高速高密度信息存储器、激光器、显示器、红外探测器、纳米发电机等设备中^[14-17],是当前被研究的热门多铁材料之一。已有研究表明^[5-8],BFO 的性能与其微观结构具有紧密联系。通过探索 BFO 的微观结构、尺寸与铁磁、铁电性及光催化性能之间的关系,可以更好地建立 BFO 微观结构和这些性能之间的联系,为发现 BFO 新结构、优化 BFO 光催化性能提供理论依据,并为具有独特的功能型新材料和光电功能器件的设计和进一步开发提供可能^[18-19]。因此,探索简单、环境友好型的合成方法来制备具有规则形貌和不同暴露晶面的单分散 BFO 微纳米结构材料,具有十分重要的理论和应用价值^[20]。

本文通过简单的一步水热合成法,在不使用有机表面修饰剂条件下,通过调控水热反应中矿化剂 $NaOH$ 的浓度,对 BFO 微纳米结构的形貌进行了调控,成功制备了单分散 BFO 微米圆片。在室温(27 °C)下对所获得样品进行了磁测量,并通过样品在对可见光下亚甲基蓝(MB)水溶液的降解效率,评价了所制备的 BFO 晶体的光催化活性,为后续探索磁性催化剂微纳米材料的合成及利用提供了一定的基础。

1 材料与方法

1.1 实验试剂

九水硝酸铁($Fe(NO_3)_3 \cdot 9H_2O$,分析纯,麦克林生化科技有限公司);五水硝酸铋($Bi(NO_3)_3 \cdot 5H_2O$,

分析纯,麦克林生化科技有限公司);氢氧化钠($NaOH$,分析纯,阿拉丁试剂上海有限公司);硝酸(HNO_3 ,分析纯,国药集团化学试剂有限公司);无水乙醇(C_2H_6O ,分析纯,国药集团化学试剂有限公司);亚甲基蓝($C_{16}H_{18}N_3ClS$,分析纯,浙江温州市东升化工试剂厂);去离子水(H_2O ,分析纯,实验室自制)。

1.2 BFO 的合成

BFO 的合成参照文献[21-22]。将 2 mmol 的 $Fe(NO_3)_3 \cdot 9H_2O$ 和 1 mmol 的 $Bi(NO_3)_3 \cdot 5H_2O$ 溶解于 10 mL 1 mol/L 稀硝酸溶液中,磁力搅拌获得无色透明混合液;用移液管将 20 mL $NaOH$ 溶液逐滴加入上述混合溶液中,搅拌 0.5~1.0 h。之后,将上述混合溶液转移到 50 mL 的不锈钢高压反应釜(聚四氟乙烯内衬),在 200 °C 条件下水热反应 12.0 h。反应完成后,待样品自然冷却至室温,将样品倒入离心管,进行清洗,在离心机中 4000 r/min 离心 3 min,重复数次(先去离子水洗涤 3 次,再稀硝酸洗涤 3 次,最后无水乙醇洗涤 3 次),之后在 80 °C 下干燥 24.0 h,得到样品,待测试。

1.3 测试与表征

1.3.1 材料的物相组成分析

采用岛津 XRD-6000 型 X 射线衍射仪表征材料的晶体结构,以 $Cu K_\alpha (\lambda = 0.15406 \text{ nm})$ 为放射源,扫描速度为 4 (°)/min,扫描范围为 10.0°~80.0°。

1.3.2 材料的微观形貌表征

采用德国 Zeiss 公司 ULTRA-55 型扫描电子显微镜表征材料的表面形貌,加速电压为 5 kV。

采用 JEOL-200CX 型透射电子显微镜对材料的精细结构进行表征。加速电压为 200 kV,晶格分辨率小于 0.15 nm,点分辨率 0.21 nm。

1.3.3 光催化活性测试

将 20 mg 的粉末样品分散于 50 mL 1×10^{-5} mol/L MB 水溶液中,在暗室中搅拌 30 min,使其达到吸附平衡。随后,将其放置于光化学反应器中,300 W 氙灯可见光(滤光器($\lambda > 420 \text{ nm}$))照射下降解 MB 水溶液。

在持续搅拌和光照下以每 20 min 为间隔取出 5 mL 混合溶液,并以 4000 r/min 的速度离心 5 min 去除其中沉淀物,将分离出的 MB 水溶液在紫外-可见分光光度计(TU-190 型,北京普析通用仪器有限公司)下测量其 664 nm 处的吸收峰。为直观地表达 MB 的降解效率^[23-24],通过式(1)所示的降解率公式和式(2)所示的伪一阶模型拟合公式对数据进行处理:

$$C/C_0/\% = (C_0 - C)/C_0 \times 100 \quad (1)$$

$$\ln(C/C_0) = kt \quad (2)$$

其中: C_0 为 MB 初始浓度, C 为 MB 在某时刻 t 的浓度, k 为假一级反应表观速率常数。

1.3.4 磁学性能测试

采用综合物理测试系统(PPMS-9),在 27 °C 下对所制备的 BFO 样品进行磁学性能测试,测试范围为 -2~2 T。

2 结果与表征分析

2.1 BFO 的物相分析

图 1 为水热条件下 NaOH 浓度分别为 2、4 mol/L 以及 6 mol/L 时合成样品的 X 射线衍射图谱。由图 1 可见,当 NaOH 浓度为 2 mol/L 和 4 mol/L 时,所获得的样品具有尖锐的衍射峰,根据对照标准 X 射线标准衍射图谱可知,图谱中三强峰分别对应着 BFO (JCPDS: 20-0169) 的 (101)、(012) 和 (110) 晶面,此外,衍射图谱中,还检测出少量的 Fe_2O_3 (JCPDS: 33-0664) 的衍射峰,其强度稍弱。NaOH 浓度为 2 mol/L 时合成样品的衍射强度要高于为 4 mol/L 时的样品,表明前者的结晶程度更高。当 NaOH 浓度增至 6 mol/L 时,产物的衍射峰均为 $\text{Bi}_2\text{Fe}_4\text{O}_9$ (JCPDS: 25-0090) 相,衍射峰尖锐,未观察到其他杂质衍射峰,说明当 NaOH 浓度高于 4 mol/L 时,所制备的样品为纯相 $\text{Bi}_2\text{Fe}_4\text{O}_9$ (JCPDS: 25-0090)。

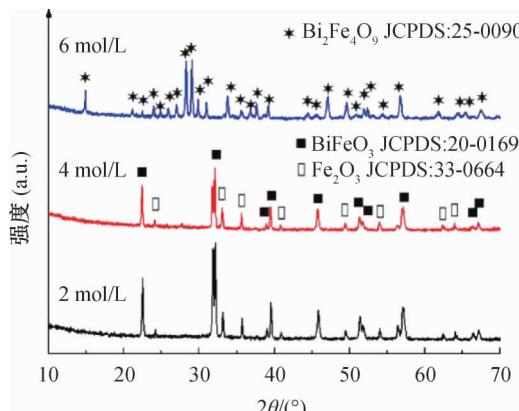


图 1 不同 NaOH 浓度下水热反应 12.0 h 所得 BFO 的 XRD 图谱

2.2 BFO 的形貌分析

图 2 为水热条件下 NaOH 浓度分别为 2、4 mol/L 以及 6 mol/L 时合成样品的 SEM 图像。由图 2(a) 和 (b) 可知,当 NaOH 浓度为 2 mol/L 时,所制备的样品为微米圆柱体,其径向尺寸约 1.5 μm, 厚度为 500~800 nm, 形貌规则, 晶体颗粒

存在部分聚集。当 NaOH 浓度提高至 4 mol/L 时,所制备的样品为表面光滑且单分散的微米圆片,其厚度明显比 NaOH 为 2 mol/L 时的样品更小,样品直径约 2 μm, 厚度约 250 nm。进一步观察发现,微米圆片表面有很少量的颗粒附着,可能与图 1 中 XRD 衍射结果中的杂质相有关。进一步提高水热反应中矿化剂浓度,如图 2(c) 可知,当 NaOH 为 6 mol/L 时所制备的样品为边长约 1 μm 的立方体^[21],且存在一定程度的聚集倾向。结合图 1 中样品 XRD 的衍射结果可知,所制备的样品物相、形貌和尺寸均受到水热反应中矿化剂 NaOH 浓度的影响。NaOH 浓度更高的条件下(>4 mol/L)更容易获得纯相的铋铁氧体产物,NaOH 浓度低的条件下(≤4 mol/L)所制备的产物中更容易出现以铁的氧化物形式存在的杂质相。且 NaOH 浓度的增加,有利于铋铁氧体从 BiFeO_3 向 $\text{Bi}_2\text{Fe}_4\text{O}_9$ 相的转变。

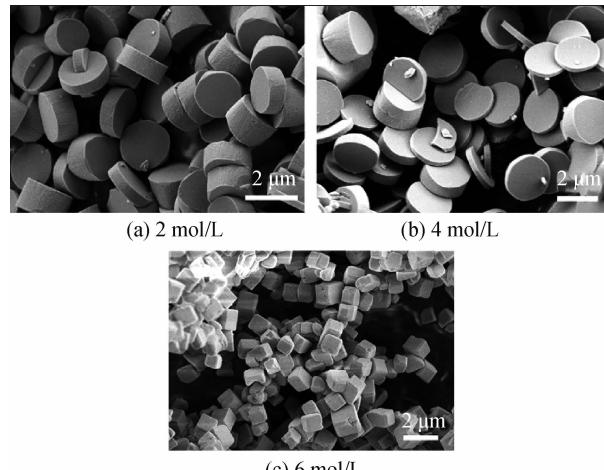


图 2 不同 NaOH 浓度下水热反应 12.0 h 所得 BFO 的 SEM 图像

为了进一步确认 NaOH 浓度为 4 mol/L 时所制备样品的晶体结构和相貌,采用 TEM 对微米片样品晶体进行观测。图 3(a) 和图 3(b) 分别为 NaOH 浓度为 4 mol/L 时制备所得样品的 TEM 图和其中一个微米原片的 HRTEM 图,从图中可见,微米圆片相貌规则,轮廓边缘清晰,其直径在 2 μm 左右,与图 2(b) SEM 的结果较为吻合。图 3(b) 中微米圆片的晶格清晰,其晶面间距分别为 0.28 nm 和 0.39 nm,与 BFO (JCPDS: 20-0169) 的 (012) 和 (101) 晶面相对应。结合图 1 中 XRD 衍射结果和图 3(a) 的 TEM 分析可以推断,使用 NaOH 浓度为 4 mol/L 时所获得的单分散微米圆片确定为 BFO (JCPDS: 20-0169)。

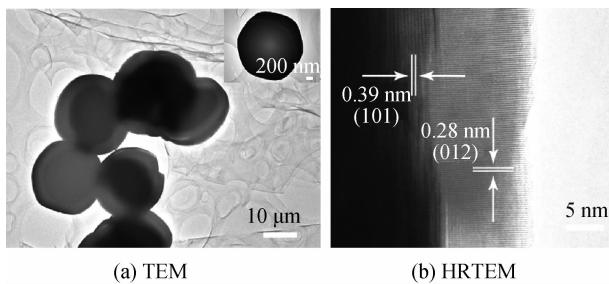
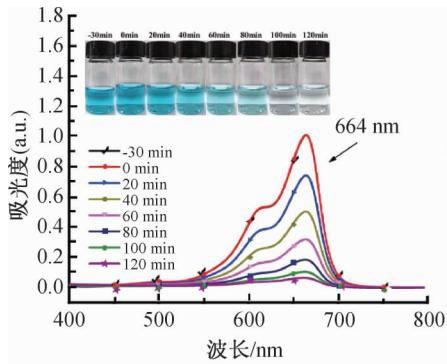


图3 BFO微米圆片的TEM和HRTEM图

2.3 BFO的光催化性能分析

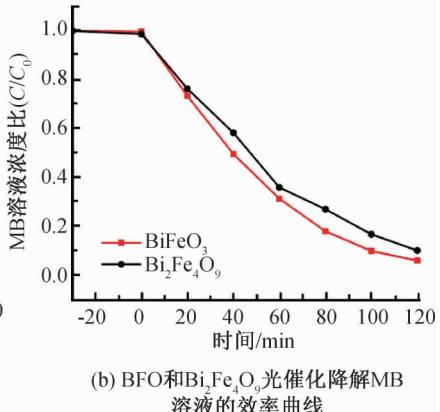
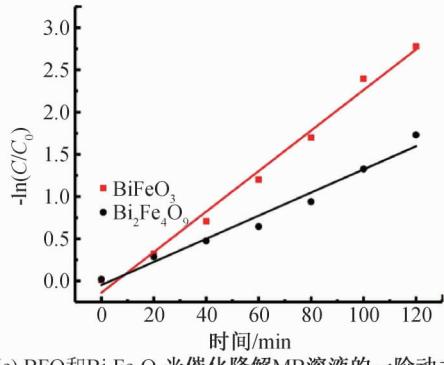
为了研究不同NaOH浓度合成样品在可见光下的光催化性能,选取NaOH浓度为4 mol/L时合成的BFO微米圆片和NaOH浓度为6 mol/L时获得的 $\text{Bi}_2\text{Fe}_4\text{O}_9$ 立方体,进行了可见光催化降解MB溶液实验。

图4(a)为NaOH浓度为4 mol/L时获得的微米圆片在可见光下降解MB溶液的紫外可见吸收光谱曲线及每20 min为间隔取出的MB溶液照片插图。图4(a)表明,664 nm处的极峰为MB的主要吸收峰,随着光照时间的增加,MB的吸收峰快速降低,证明了MB在催化剂的作用下可被有效降解。



(a) NaOH浓度为4 mol/L时合成的BFO降解MB溶液的紫外吸收光谱

同时,从MB溶液的插图照片也可以明显观察到,随着可见光照时间的增加,MB溶液从开始的蓝色逐渐转变为浅蓝色直至无色透明。从以上分析可得出,以BFO作为光催化剂,在可见光下可对MB溶液进行有效降解。图4(b)为NaOH浓度为4 mol/L和6 mol/L时合成的样品在可见光下催化降解MB的催化效率对比图,图4(c)为其相对应的一阶动力学拟合曲线。由降解率公式式(1),计算出BFO和 $\text{Bi}_2\text{Fe}_4\text{O}_9$ 在120 min内对MB的降解率分别为93.8%和89.7%。此外,由式(2)伪一阶模型拟合公式,计算出NaOH浓度为4 mol/L时获得样品对应的一阶动力学拟合曲线的k值为0.024 min⁻¹,也要明显大于6 mol/L时合成样品的k值。由此可以认为:NaOH浓度为4 mol/L时合成的BFO微米圆片的光催化性能要明显优于NaOH浓度为6 mol/L时合成的 $\text{Bi}_2\text{Fe}_4\text{O}_9$ 立方体。其原因可能是,BFO微米圆片具有更小的颗粒尺寸,因而具有较大比表面积,从而拥有更多的活性位点,使其具有更好的光催化活性^[5-6]。

(b) BFO和 $\text{Bi}_2\text{Fe}_4\text{O}_9$ 光催化降解MB溶液的效率曲线(c) BFO和 $\text{Bi}_2\text{Fe}_4\text{O}_9$ 光催化降解MB溶液的一阶动力学拟合曲线图4 BFO对MB溶液降解的紫外吸收光谱及BFO和 $\text{Bi}_2\text{Fe}_4\text{O}_9$ 对MB溶液的光催化降解曲线

2.4 BFO的磁性分析

图5为NaOH浓度为2、4 mol/L和6 mol/L条件下合成的样品在室温下的磁滞回线,可以看出所有合成的样品均呈现出典型的磁滞回线的特征,

表明所合成样品在室温下均具有一定的弱铁磁性^[25-27]。不同NaOH浓度合成样品的饱和磁化强度和矫顽力如表1所示,从数据中可以看出,NaOH浓度为4 mol/L时所合成的BFO微米圆片的饱和

磁化强度和矫顽力分别为 $0.52202 \text{ A} \cdot \text{m}^2/\text{kg}$ 和 100.88 kA/m , NaOH 浓度为 6 mol/L 时合成的 $\text{Bi}_2\text{Fe}_4\text{O}_9$ 立方体的饱和磁化强度和矫顽力分别为 $0.48248 \text{ A} \cdot \text{m}^2/\text{kg}$ 和 27.00 kA/m 。结合图 1 的 XRD 图像分析, 可能是 NaOH 浓度为 2 mol/L 和 4 mol/L 时, 合成样品中所含有的 Fe_2O_3 对样品的磁性起到了一定的加强作用^[28]。

表 1 不同 NaOH 浓度合成的样品在室温(27°C)的磁性参数

测试温度/ $^\circ\text{C}$	NaOH 浓度/ $(\text{mol} \cdot \text{L}^{-1})$	饱和磁化强度/ $(\text{A} \cdot \text{m}^2 \cdot \text{kg}^{-1})$	矫顽力/ $(\text{kA} \cdot \text{m}^{-1})$
27	2	0.50936	64.97
27	4	0.52202	100.88
27	6	0.48248	27.00

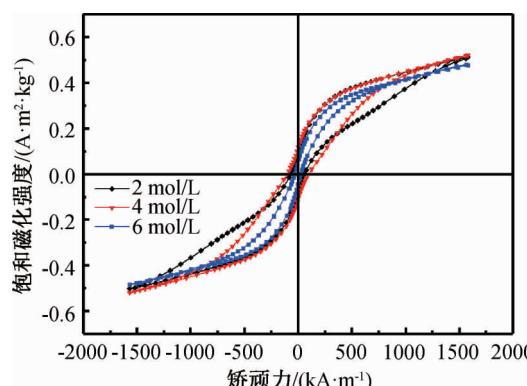


图 5 不同 NaOH 浓度下水热反应 12.0 h 所获得的 BFO 和 $\text{Bi}_2\text{Fe}_4\text{O}_9$ 在室温下的磁滞回线

3 结 论

本文通过改变水热反应中矿化剂 NaOH 的浓度, 实现了多铁材料铋铁氧化物的调控生长, 成功制备出具有单分散性的 BFO 微米圆片。通过微结构和性能的系统表征分析, 得到主要结论如下:

a) 当 NaOH 浓度为 4 mol/L 时, 可通过简单的水热法制备出直径约 $2 \mu\text{m}$, 厚度约 250 nm 的 BFO (JCPDS: 20-0169) 微米圆片; 随着 NaOH 浓度进一步增加至 6 mol/L , 所制备样品则转变成边长为 $1 \sim 2 \mu\text{m}$ 的纯相 $\text{Bi}_2\text{Fe}_4\text{O}_9$ (JCPDS: 25-0090) 立方体。

b) 在可见光下, 使用不同 NaOH 浓度合成的样品对 MB 水溶液进行降解, 证实 NaOH 浓度为 4 mol/L 时所合成的 BFO 微米圆片对 $1 \times 10^{-5} \text{ mol/L}$ 的 MB 水溶液的降解效率为 93.8% , 要明显优于 NaOH 浓度为 6 mol/L 时所合成的 $\text{Bi}_2\text{Fe}_4\text{O}_9$ 立方体 89.7% 的降解效率。

c) 所制备 BFO 样品表现出一定的室温铁磁性, 结合 BFO 的可见光催化性能, 有望实现光催化剂的

磁性回收再利用, 为磁性催化剂的研究做出了初步探索。

参 考 文 献:

- Akerdi A G, Bahrami S H. Application of heterogeneous nano-semiconductors for photocatalytic advanced oxidation of organic compounds: A review[J]. Journal of Environmental Chemical Engineering, 2019, 7(5): 103283.
- Wang M, Wang H X, Li W, et al. Defect passivation using ultrathin PTAA layers for efficient and stable perovskite solar cells with a high fill factor and eliminated hysteresis[J]. Journal of Materials Chemistry A, 2019, 7(46): 26421-26428.
- Zhou H, Chen Q, Li G, et al. Interface engineering of highly efficient perovskite solar cells[J]. Science, 2014, 345(6196): 542-546.
- Jiang Q, Chu Z M, Wang P Y, et al. Planar-structure perovskite solar cells with efficiency beyond 21% [J]. Advanced Materials, 2017, 29(46): 1703852.
- 王新, 刘诗琳, 刘奇霖, 等. BiFeO_3 的制备及其应用于光催化降解有机污染物研究进展[J]. 辽宁大学学报(自然科学版), 2020, 47(3): 238-244.
- Gao F, Chen X, Yin K, et al. Visible-light photocatalytic properties of weak magnetic BiFeO_3 nanoparticles[J]. Advanced Materials, 2007, 19(19): 2889-2892.
- 县涛, 杨华, 戴剑锋, 等. 粒径可控的纳米铁酸铋的制备及其光催化性能[J]. 催化学报, 2011, 32(4): 618-623.
- Li S, Lin Y H, Zhang B P, et al. Controlled fabrication of BiFeO_3 uniform microcrystals and their magnetic and photocatalytic behaviors [J]. The Journal of Physical Chemistry C, 2010, 114(7): 2903-2908.
- Hasan M, Basith M A, Zubair M A, et al. Saturation magnetization and band gap tuning in BiFeO_3 nanoparticles via co-substitution of Gd and Mn [J]. Journal of Alloys and Compounds, 2016, 687: 701-706.
- 姚携菲, 张金星. 磁电多铁性材料的宠儿: 铁酸铋 (BiFeO_3) 研究进展的十年回顾[J]. 物理, 2014, 43(4): 227-235.
- Ramesh R, Spaldin N A. Multiferroics: Progress and prospects in thin films[J]. Nature Materials, 2007, 6(1): 21-29.
- Jia H, Chen J G. Tailoring the tetragonal distortion to obtain high Curie temperature and large piezoelectric properties in $\text{BiFeO}_3\text{-PbTiO}_3\text{-BaTiO}_3$ solid solutions [J]. Journal of the European Ceramic Society, 2021,

41(4): 2443-2449.

[13] 张金星,于浦.多铁性材料BiFeO₃的磁学、电学性质及磁电耦合效应[J].硅酸盐学报,2013,41(7): 905-915.

[14] Zhou J C, Huang J. Photodetectors based on organic-inorganic hybrid lead halide perovskites[J]. Advanced Science, 2018, 5(1): 1700256.

[15] 林元华,姜庆辉,何泓材,等.多铁性氧化物基磁电材料的制备及性能[J].硅酸盐学报,2007(S1): 10-21.

[16] 姚丽娟,方铉,房丹,等.有机-无机杂化卤化物钙钛矿材料稳定性及其在光电探测器方面的研究进展(特邀)[J].光子学报,2021,50(1): 34-52.

[17] 刘红日,刘堂昆.铁磁电材料BiFeO₃及研究进展[J].材料导报,2005(5): 90-93.

[18] Bae I T, Naganuma H, Ichinose T, et al. Thickness dependence of crystal and electronic structures within heteroepitaxially grown BiFeO₃ thin films[J]. Physical Review B, 2016, 93(6): 064115.

[19] Lv Y, Xing J, Zhao C C, et al. The effect of solvents and surfactants on morphology and visible-light photocatalytic activity of BiFeO₃ microcrystals [J]. Journal of Materials Science: Materials in Electronics, 2015, 26(3): 1525-1532.

[20] Lam S M, Sin J C, Mohamed A R. A newly emerging visible light-responsive BiFeO₃ perovskite for photocatalytic applications: A mini review[J]. Materials Research Bulletin, 2017, 90: 15-30.

[21] Zhang X Y, Lv J, Bourgeois L, et al. Formation and photocatalytic properties of bismuth ferrite submicrocrystals with tunable morphologies[J]. New Journal of Chemistry, 2011, 35: 937-941.

[22] Niu F, Gao T, Zhang N, et al. Hydrothermal synthesis of BiFeO₃ nanoparticles for visible light photocatalytic applications[J]. Journal of Nanoscience and Nanotechnology, 2015, 15(12): 9693-9698.

[23] Bajpai O P, Mandal S, Ananthakrishnan R, et al. Structural features, magnetic properties and photocatalytic activity of bismuth ferrite nanoparticles grafted on graphene nanosheets[J]. New Journal of Chemistry, 2018, 42(13): 10712-10723.

[24] Xian T, Yang H, Dai J F, et al. Photocatalytic properties of BiFeO₃ nanoparticles with different sizes [J]. Materials Letters, 2011, 65(11): 1573-1575.

[25] 钱潜,刘银,马立云,等.熔盐法合成铁酸铋粉体及其磁性能[J].硅酸盐学报,2014,42(4): 471-475.

[26] Guo R Q, Fang L, Dong W, et al. Magnetically separable BiFeO₃ nanoparticles with a γ -Fe₂O₃ parasitic phase: controlled fabrication and enhanced visible-light photocatalytic activity [J]. Journal of Materials Chemistry, 2011, 21(46): 18645.

[27] Hu Z T, Chen B, Lim T T. Single-crystalline Bi₂Fe₄O₉ synthesized by low-temperature coprecipitation: Performance as photo- and Fenton catalysts[J]. RSC Advances, 2014, 4 (53): 27820-27829.

[28] Baqiah H, Talib Z A, Shaari A H, et al. Synthesis, optical and magnetic behavior of (BiFeO₃)_{1-x}(α -Fe₂O₃)_x nanocomposites[J]. Materials Science and Engineering: B, 2018, 231: 5-10.

(责任编辑:刘国金)