

新材料与新技术

石墨烯对微胶囊铜电子浆料导电性能的影响

刘晓妮 屈银虎* 成小乐 尚润琪 刘 毅 刘少飞 符寒光

(西安工程大学机电工程学院, 西安 710048)

摘 要 以丙烯酸树脂作为微胶囊壁材溶液包覆铜粉, 石墨烯作为导电增强相, 制备了石墨烯-微胶囊铜复合电子浆料。利用金属电导率测试仪、X 射线衍射仪、四探针测试仪和扫描电子显微镜分别研究了微胶囊铜粉的电导率及其抗氧化性能, 分析了石墨烯对石墨烯-微胶囊铜复合电子浆料导电性能的影响。结果表明: 微胶囊铜粉与未包覆铜粉相比, 电导率明显提高, 且当增重率为 4% (wt, 质量分数) 时, 电导率达到最大值 41.30% IACS, 且不存在 CuO 或 Cu₂O; 石墨烯的加入对铜复合电子浆料的导电性能有增强作用, 但不同类型石墨烯的增强效果不同, 导电性能主要与石墨烯的片径、厚度、纯度相关, 其中片径约 5 μm, 厚度为 1~5 nm 的石墨烯纳米片作为导电增强相制备的铜复合电子浆料导电性能最优。

关键词 石墨烯, 微胶囊, 铜电子浆料, 导电性能

Influence of graphene on conductivity of microencapsulated copper electronic paste

Liu Xiaoni Qu Yinhu Cheng Xiaole Shang Runqi Liu Yi Liu Shaofei Fu Hanguang

(School of Mechanical and Electrical Engineering, Xi'an Polytechnic University, Xi'an 710048)

Abstract Acrylic resin was chosen as a microcapsule wall material to coat the copper powders, graphene was as an enhanced phase to prepare copper electronic paste. The conductivity and oxidation resistance of microencapsulated copper powders were investigated by metal conductivity tester, XRD diffractometer, four-probe tester and scanning electron microscope (SEM), the effect of graphene on the electrical conductivity of copper composite paste was analyzed. Results showed that compared with the uncoated copper powders, the conductivity of microencapsulated copper powders was obviously increased. When the weight gain rate was 4 wt%, the conductivity reached the maximum value of 41.30% IACS and there were no CuO or Cu₂O. The addition of graphene had enhance effect on paste, but the enhancement effect of variety of graphene was different. Electrical conductivity was mainly related to the size, thickness, purity of graphene. Graphene with about 5 μm size and 1~5 nm thickness was used to prepare copper composite paste, in which the conductivity was best.

Key words graphene, microcapsule, copper electronic paste, electrical conductivity

电子浆料作为一种新型材料, 具有环保、高效和节能等特点, 是制作电子元器件的关键材料^[1-2]。电子浆料主要由导电相、有机载体和粘结剂组成, 其中导电相在很大程度上决定了电子浆料的导电性能, 并影响导电膜的物理和力学性能^[3-4]。传统的电子浆料使用导电性能优异的贵金属作为导电相, 但随着电子浆料需求量的增多, 资源储量的限制以及贵金属价格的增长, 贵金属电子浆料已经很难满足 21

世纪电子产品的迅猛发展。因此, 当今的研究热点聚焦在贱金属电子浆料的开发研制及其综合性能的提升方面。在贱金属电子浆料中, 目前研究最广泛的是铜电子浆料。由于铜粉来源广泛, 价格低廉, 相比于金具有优良的导电性 (20℃ 时铜电阻率为 $1.72 \times 10^{-6} \Omega \cdot \text{cm}$) 及高频特性, 且不存在银离子迁移、镍结合强度低等缺陷, 因此铜电子浆料具有广阔的应用前景^[5-6]。但铜属于过渡金属, 化学性质比较

基金项目: 陕西省科学技术研究发展计划-工业攻关资助项目 (2013K09-33); 西安市科技计划项目——产学研协同创新计划 (CXY1517(3)); 西安市科技计划项目-高校院所人才服务企业工程 [2017074CG/RC037(XAGC002)]; 西安市科技计划项目-高校院所人才服务企业工程 [2017074CG/RC037(XAGC007)]

作者简介: 刘晓妮 (1993-), 女, 硕士研究生, 从事复合电子浆料研究工作。

联系人: 屈银虎 (1962-), 男, 教授, 从事复合电子浆料研究工作。

活泼,在空气或高温环境中极易被氧化生成不导电的氧化铜(CuO)和氧化亚铜(Cu_2O),尤其是比表面积较大的微细铜粉或超细铜粉,氧化程度更加明显^[7]。如果将铜直接作为导电相应用到电子浆料中,由于 CuO 和 Cu_2O 的存在,使得浆料的导电性能急剧降低,因此铜电子浆料在实现产业化应用之前必须克服铜粉易氧化问题^[8-9]。国内外对铜粉的抗氧化已有一定的研究^[10-13],主要包括金属包覆法(如银包覆铜粉)、非金属包覆法(主要包括缓蚀剂法、偶联剂法、磷化处理法等)以及其他抗氧化法。但上述方法并未完全解决浆料的导电性问题,故本研究采用微胶囊技术^[14]对铜粉进行包覆,再添加导电性能优异的石墨烯作为导电增强相来提高浆料的导电性能,研究了不同片径、厚度及纯度的石墨烯对浆料导电性能的影响,并对导电机理进行了分析。

1 实验部分

1.1 微胶囊铜粉制备方法

1.1.1 铜粉表面改性

微细铜粉(粒径 $1\mu\text{m}$,纯度 $>99.9\%$)在空气中会发生一定的氧化,生成 CuO 、 Cu_2O 等不导电性物质,严重影响铜粉及其浆料的导电性,因此需进行去氧化处理。处理方法如下:在 $1\mu\text{m}$ 铜粉中加入适量(铜粉体积 2 倍左右)稀盐酸,利用稀盐酸(质量分数 8%)与铜粉发生复分解反应去除铜粉颗粒表面的氧化膜层。超声波分散后静置 5min,倒掉表层溶液,即完成 1 次酸洗过程,重复上述步骤至少 3 次,至铜粉呈鲜红色而不明显变色为止。再多次水洗,去除铜离子和残留的稀盐酸直至铜粉无明显盐酸气味。在水洗后的铜粉中加入无水乙醇,适度搅拌,对铜粉进行分散处理。将分散后的铜粉在真空干燥箱中 50°C 保温 2h,烘干铜粉。

1.1.2 配制丙烯酸树脂壁材溶液

以 $m(\text{丙酮}):m(\text{乙酸乙酯})=4:1$ 的混合溶液作为有机溶剂。称取一定量的壁材丙烯酸树脂 [$m(\text{丙酮}):m(\text{乙酸乙酯}):m(\text{丙烯酸树脂})=4:1:20$] 溶入到有机溶剂中,再经过电磁搅拌、超声波振荡分散、水浴加热等过程形成囊壁,待丙烯酸树脂均匀、完全溶解,即完成微胶囊壁材溶液配制。

1.1.3 制备微胶囊铜粉

将微胶囊壁材溶液加入到改性铜粉中,经人工搅拌及超声波振动分散使其混合均匀,超声振荡 1h 后静置 30min,倒掉上层清液。用去离子水和无水乙醇依次清洗 2 遍,在氮气或氮气气氛中于 50°C 烘

干,即得到丙烯酸树脂包覆的微胶囊铜粉。

1.2 微胶囊铜复合电子浆料制备方法

1.2.1 配制有机载体

有机载体组分及其配比如下:松油醇 80%(wt,质量分数,下同)、乙酸乙酯 8%、乙基纤维素 6%、硅烷偶联剂 3%、消泡剂 3%。分别量取各组分于烧杯中混合,其中松油醇、乙酸乙酯为主要溶剂,乙基纤维素为增稠剂,同时添加消泡剂、硅烷偶联剂等助剂。经过电磁搅拌(70°C ,转速 $800\sim 1000\text{r/min}$)或机械搅拌使各组分完全溶解,冷却后得到淡黄色黏稠状液体即为有机载体。

1.2.2 制备微胶囊铜复合电子浆料

电子浆料的电阻率随着导电颗粒含量(体积分数)的增加而呈非线性递减。实验证明, $m(\text{导电相}):m(\text{有机载体}):m(\text{玻璃相})=72:20:8$ 时,制得的浆料烧结成膜后导电性及综合性能较好。按照该比例分别将各组分混合,得到“膏状”铜电子浆料,通过手工丝网印刷技术将“膏状”铜电子浆料印刷在无水乙醇清洗过的陶瓷基片(主要成分为 Al_2O_3)上,静置 3min 后,将样品放入自蔓延燃烧合成反应釜中,在氮气保护下升温至 470°C 并保温 20min,随炉冷却,制得复合电子浆料导电膜。

1.3 性能表征

采用金属电导率测试仪(D500K 型,东莞市鹏展电子仪器有限公司)对微胶囊铜粉的电导率进行测试,分析包覆厚度对微胶囊铜粉电导率的影响。利用四探针测试仪(ST2253 型,苏州晶格电子有限公司)测量浆料烧结后导电膜的电阻率,研究浆料的导电性。使用 X 射线衍射仪(XRD,D/max2200pc,日本理学公司)表征微胶囊铜粉的抗氧化性能并对浆料烧结后导电膜的物相进行分析。测试条件:采用 $\text{Cu-K}\alpha$ 辐射,管电流、管压分别为 40mA 和 40kV,扫描速率 $8(^{\circ})/\text{min}$, $20\sim 80^{\circ}$ 耦合连续扫描,步长 0.02° 。通过扫描电子显微镜(SEM,JSM-6700F 型,日本电子 JFOL)对浆料的微观形貌进行分析,并探究复合电子浆料的导电机理。

2 结果与讨论

2.1 SEM 分析

表观色泽是铜粉表面改性后的重要指标之一,可以在一定程度上直观反映铜粉的去氧化物效果,铜粉颜色越接近砖红色、光泽度越高,去氧化效果越好。图 1 为改性前后铜粉的 SEM 图。由图可以看出,经过酸洗、水洗、无水乙醇分散的铜粉[见图 1

(b)]颜色鲜艳,接近砖红色,与原铜粉[见图 1(a)]相比颜色更鲜亮,且粉末颗粒较为分散,未出现明显的团聚块状体,说明经过改性后铜粉表面的氧化膜层基本被去除,同时无水乙醇对铜粉起到一定的分散作用。

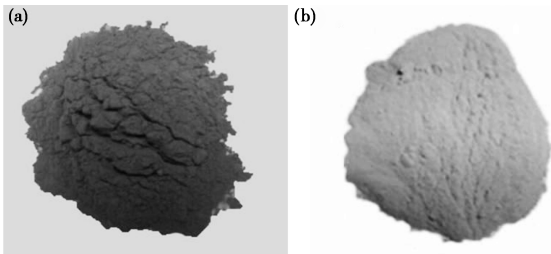


图 1 改性前后铜粉 SEM 图
[(a)原铜粉;(b)改性后铜粉]

2.2 XRD 表征

图 2 为在空气中放置 10d 的微胶囊铜粉 XRD 谱图。从图可以看出,在衍射角 2θ 为 43.25° 、 50.37° 、 73.99° 处出现衍射峰,分别对应铜的(111)、(200)、(220)晶面,且均为铜的衍射峰,未发现 Cu_2O 或 CuO 的衍射峰,表明经过包覆的微胶囊铜粉具有良好的抗氧化效果。

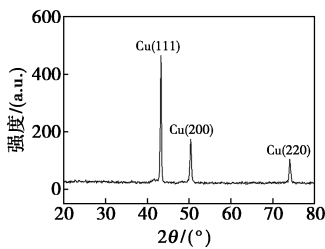


图 2 微胶囊铜粉 XRD 谱图

2.3 增重率及包覆厚度对微胶囊铜粉电导率的影响

壁材溶液包覆微胶囊铜粉示意图见图 3。其中, r 为铜粉球体半径, μm ; R 为包覆后铜粉球体半径, μm ; a 为包覆厚度, μm 。假设改性铜粉和微胶囊铜粉均为等径球体,包覆厚度计算方法见式(1)。

$$a = r \cdot \left(\sqrt[3]{\frac{M \cdot \rho_1}{m \cdot \rho_2} + 1} - 1 \right) \quad (1)$$

式中, r 为铜粉球体半径, μm ; a 为包覆厚度, μm ; m 为铜粉质量, g ; M 为壁材溶液质量, g ; ρ_1 为铜的密度, g/cm^3 ,取 8.9 ; ρ_2 为壁材溶液密度, g/cm^3 ,取 1.005 。

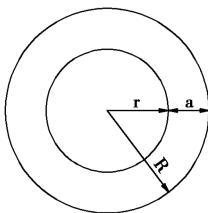


图 3 微胶囊铜粉包覆示意图

将铜粉(粒径 $1\mu\text{m}$)质量控制在 1.5g ,按照表 1 所示的增重率(壁材溶液与铜粉的质量比),依次增加壁材溶液质量,计算包覆厚度;将包覆后的微胶囊铜粉在 600MPa 压力下压块制样,得到 6 组样品,利用金属电导率测量仪测试 6 组样品的电导率并取平均值。增重率及包覆厚度对微胶囊铜粉电导率的影响见表 1。

表 1 增重率及包覆厚度对微胶囊铜粉电导率的影响

样品 编号	铜粉质 量/g	壁材溶液 质量/g	增重率/ %	包覆厚度/ μm	电导率/ IACS
1	1.5	0	0	0	9.12
2	1.5	0.015	1	0.029	10.14
3	1.5	0.030	2	0.056	12.76
4	1.5	0.045	3	0.082	20.61
5	1.5	0.060	4	0.106	41.30
6	1.5	0.075	5	0.130	35.24

从表可以看出,随着增重率的提高,微胶囊铜粉的电导率呈现出先显著增加后减小的趋势,在增重率为 4% (wt, 质量分数,下同)、包覆厚度为 $0.106\mu\text{m}$ 时,电导率达到最大值,为 41.30% IACS。主要原因是增重率过小,铜粉不能被完全包覆或者包覆层过薄,使得部分铜粉颗粒表面仍与空气接触,可能发生氧化反应;壁材溶液质量越小,裸露的铜粉颗粒就越多,被氧化的程度越严重,造成铜粉电导率较低。微胶囊铜粉增重率为 4% 时,铜粉被完全包覆,被氧化的程度小,导电性较强。但当壁材溶液质量太大(增重率大于 4%)时,一方面包覆铜粉的膜层变厚,易阻碍铜粉颗粒之间的接触,导致导电性能降低;另一方面壁材溶液本身不具有导电性,过多的壁材溶液会填充、堆积在铜粉颗粒间的孔隙,破坏了导电网格的形成,致使铜粉导电性能降低。

2.4 石墨烯对铜电子浆料导电性能的影响

用 3 种石墨烯作为导电增强相(见表 2),其中 $m(\text{石墨烯}):m(\text{铜粉})=3:97$,按照 $m(\text{导电相}):m(\text{有机载体}):m(\text{玻璃粉})=72:8:20$ 制备了石墨烯-微胶囊铜复合电子浆料。

表 2 用于制备石墨烯-微胶囊铜复合电子浆料的石墨烯类型

石墨烯类型	片径/ μm	厚度/ nm	纯度/ %	$m(\text{导电相}):m(\text{玻璃粉}):$ $m(\text{有机载体})$
纳米石墨粉	0.4~2	<40	99.9	72 8 20
石墨烯纳米片	~5	1~5	—	72 8 20
高纯鳞片石墨烯	13	—	99.9	72 8 20

为更好地研究石墨烯对复合电子浆料导电性能的影响,按照 $m(\text{导电相}):m(\text{有机载体}):m(\text{玻璃粉})=72:8:20$ 用微胶囊铜粉与未包覆铜粉分别制备了铜电子浆料,并对不同种类电子浆料电阻率进行了对比(见表 3)。从表 3 可以看出,用未包覆铜粉、微胶囊铜粉作为导电相制备的电子浆料电阻率分别为 $57.12\text{m}\Omega\cdot\text{cm}$ 和 $35.76\text{m}\Omega\cdot\text{cm}$,微胶囊铜粉制备的电子浆料电阻率降低了 37.4%,导电性能显著提高。微胶囊铜粉作为导电相,其抗氧化性能和自身导电性较好,且在浆料制备过程中,分散更加均匀,使得浆料导电膜的导电性能得到明显提高。测试发现,不同类型石墨烯-微胶囊铜复合电子浆料(样品 C-E)的导电性均有不同程度的提升,说明石墨烯的加入对复合电子浆料的导电性有增强作用,但不同类型石墨烯的增强效果不同,样品导电性的提升幅度主要与石墨烯的片径、厚度、纯度等相关。样品 C 使用纳米石墨粉(纯度为 99.9%),片径较小,为 $0.4\sim 2\mu\text{m}$,但厚度较大(见表 1),约为试样 D 厚度的数十倍,当两者质量相同时,样品 C 中含有的纳米石墨粉数量少,搭建的导电桥数量也较少,所以导电性能相对较弱。样品 E 使用高纯鳞片石墨烯(纯度为 99.9%),片径($13\mu\text{m}$)远大于铜粉粒径($1\mu\text{m}$),在浆料中高纯鳞片石墨烯与铜粉的接触面积较大,难以或很少填充在铜粉颗粒的孔隙之间形成导电桥,因此电阻率较大。

表 3 不同种类电子浆料电阻率对比

样品	导电相		电阻率/ ($\text{m}\Omega\cdot\text{cm}$)
	石墨烯	铜粉	
A	—	未包覆铜粉	57.120
B	—	微胶囊铜粉	35.760
C	纳米石墨粉	微胶囊铜粉	6.810
D	石墨烯纳米片	微胶囊铜粉	2.154
E	高纯鳞片石墨烯	微胶囊铜粉	4.032

2.5 电子浆料导电膜 XRD 分析

图 4 为用样品 A、样品 B、样品 D 制备的电子浆料导电膜 XRD 谱图。从图 4(a)可以看出,未包覆铜粉的电子浆料导电膜中除 Cu 的衍射峰之外,还出现了 CuO 衍射峰,表明未包覆铜粉的电子浆料导电膜抗氧化性能较差。图 4(b)为微胶囊铜粉电子浆料导电膜,图 4(c)为石墨烯-微胶囊铜粉复合电子浆料导电膜。与图 4(a)对比发现,图 4(b)和图 4(c)中除了 Cu 的衍射峰外,还出现 Al_2O_3 衍射峰。出现 Al_2O_3 衍射峰可能是因为 X 射线穿透烧结膜层

而显示出主要成分为 Al_2O_3 的陶瓷基板结构。图 4(c)中还存在微弱的 C 衍射峰,说明微胶囊铜粉电子浆料导电膜具有良好的抗氧化性能,能够保持 Cu 自身优良的导电性,少量石墨烯的存在同样能够提升导电膜的导电性能。

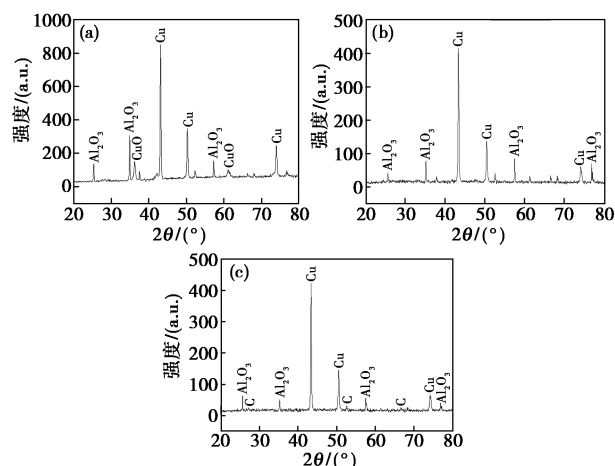


图 4 电子浆料导电膜 XRD 谱图

[(a) 未包覆铜粉电子浆料;(b) 微胶囊铜粉电子浆料;
(c) 石墨烯-微胶囊铜复合电子浆料]

2.6 铜电子浆料导电机理分析

电子浆料导电性主要通过导电颗粒间的直接或间接接触,形成导电通道来实现^[15]。图 5 为铜电子浆料导电机理结构示意图。图 5(a)和图 5(b)分别为烧结前微胶囊铜粉制备的电子浆料和石墨烯-微胶囊铜复合电子浆料。微胶囊铜粉制备的铜电子浆料中铜粉和玻璃粉颗粒基本独立分散在有机载体中,彼此之间接触少,孔隙率大,未形成导电通道;加入石墨烯之后,部分较小的石墨烯会分布在铜粉表面或填充在铜粉间隙,增加导电颗粒之间的连接,形

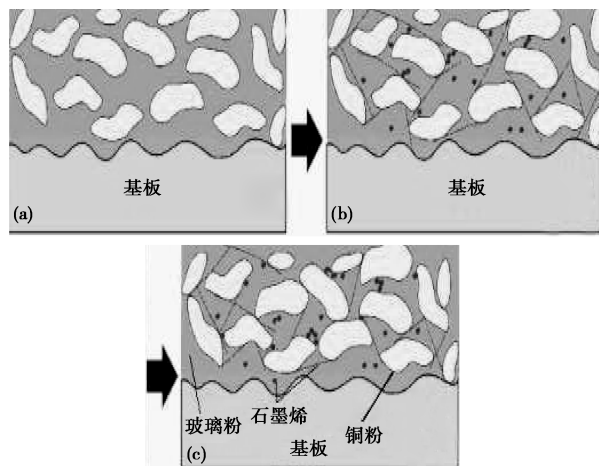


图 5 铜电子浆料导电机理结构示意图

[(a) 铜电子浆料;(b) 石墨烯-微胶囊铜复合电子浆料;
(c) 烧结后的石墨烯-微胶囊铜复合电子浆料]

成导电通道。较大的石墨烯则会在铜粉颗粒之间形成“搭桥”,从而大幅度提高电子浆料的导电性能。在一定温度烧结后,有机载体完全挥发,玻璃粉熔融并在冷却过程中拉紧、收缩铜粉和石墨烯,促使两者之间重新紧凑排列、相互接触并形成链状结构(图 5(c)),获得导电性能优异的电子浆料。

2.7 电子浆料导电膜 SEM 分析

图 6 为电子浆料导电膜 SEM 图。从图 6(a)中可明显观察到微胶囊铜粉颗粒之间的孔隙较大,部分铜粉彼此之间不接触,且铜粉与玻璃粉分散不均匀,导致形成的导电通道不牢固,致使电子浆料的导电性不稳定^[16]。加入石墨烯后,复合电子浆料导电膜表面更平整,SEM 观察发现铜粉颗粒之间的孔隙较少,组织更加致密且石墨烯能够均匀分布、填充在铜粉颗粒的孔隙之间,而且没有或很少出现团聚现象。石墨烯或横向搭接,或径向填充(如图 6(b)中方框所示),与铜粉形成并联或串联的导电通道,使复合电子浆料的导电性能有了显著提升。研究表明,热振动或者分散于导电粒子(铜粉)间隙的内部电子也会发生迁移而形成隧道电流^[17],而铜的热导率为 $401\text{W}/(\text{m}\cdot\text{K})$ [约 $24000\text{J}/(\text{m}\cdot\text{K}\cdot\text{s})$],石墨烯的热导率也高达 $5300\text{J}/(\text{m}\cdot\text{K}\cdot\text{s})$,二者优良的导热性能可引起热振动或内部的电子迁移而形成隧道电流,也会提升电子浆料的导电性能。

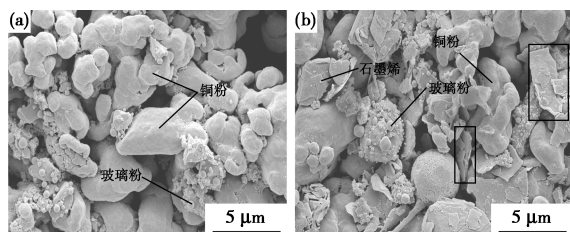


图 6 电子浆料导电膜 SEM 图

[(a)微胶囊铜粉电子浆料;(b)石墨烯-微胶囊铜复合电子浆料]

3 结论

(1)在增重率为 4.0%、包覆厚度为 $0.106\mu\text{m}$ 时,微胶囊铜粉的电导率达到最大值 41.30% IACS,且在空气中放置 10d 后未出现 Cu_2O 或 CuO 的特征峰,表明微胶囊铜粉具有良好的抗氧化性能。

(2)用微胶囊铜粉制备的铜电子浆料电阻率为 $35.76\text{m}\Omega\cdot\text{cm}$,与未包覆铜粉制备的电子浆料电阻率 $57.12\text{m}\Omega\cdot\text{cm}$ 相比,降低了 37.4%;石墨烯作为导电增强相能够显著提升石墨烯-微胶囊铜复合电子浆料的导电性能,且不同类型石墨烯的增强效果不同,导电性的提升幅度主要与石墨烯的片径、厚

度、纯度等相关。

(3)与铜电子浆料相比,石墨烯-微胶囊铜复合电子浆料中铜粉颗粒之间的孔隙较少,组织更加致密,且石墨烯能够均匀分布、填充在铜粉颗粒的孔隙之间,没有或很少出现团聚现象。石墨烯或横向搭接,或径向填充,与铜粉形成并联或串联的导电通道,使复合电子浆料的导电性能明显提升。

参考文献

- [1] 冯清福,孟宪伟,李世鸿,等.导电填料对电子浆料性能影响的研究进展[J].贵金属,2017,38(2):79-84.
- [2] 张飞进,朱晓云.电子浆料用有机载体的研究现状及发展趋势[J].材料导报 A(综述篇),2013,27(2):81-85.
- [3] 王艳萍,苏晓磊,屈银虎,等.铜电子浆料的制备及性能[J].材料科学与工程学报,2015,33(6):908-911.
- [4] Manabu Yoshida, Hideo Tokuhisa, Uichi Itoh, et al. Novel low-temperature-sintering type Cu-Alloy pastes for silicon solar cells[J].Energy Procedia,2012,21:66-74.
- [5] Wu Songping, Meng Shuyuan. Preparation of micron size copper powder with chemical reduction method[J]. Materials Letters,2006,60(20):2438-2442.
- [6] 刘晓琴,苏晓磊.铜电子浆料的研究发展现状[J].硅酸盐通报,2013,32(12):2502-2507.
- [7] 刘新峰,屈银虎,郑红梅,等.铜电子浆料的抗氧化研究和进展[J].应用化工,2014,43(8):1493-1496.
- [8] 李冰,王俊勃,苏晓磊,等.电子浆料中的贱金属导电相的改善工艺研究进展[J].材料导报,2013,27(11):35-39.
- [9] 常英,刘彦军.片状镀银铜粉的制备及性能表征[J].化工新型材料,2005,33(4):56-58.
- [10] Fu Q, Bao X H. Progress in graphene chemistry[J]. Chinese Sci Bull(Chinese Ver),2009,54(18):2657-2666.
- [11] 彭舒,唐振方,吉锐.电子浆料中微米级铜粉的抗氧化研究[J].表面技术,2008,37(3):6-8.
- [12] 罗艳,周康根,肖妍艳.导电浆料用铜粉的表面改性及其性能[J].材料与冶金学报,2006,5(2):119-124.
- [13] Zhong J H, Li Z H, Ouyang L Y. Study on the anti-oxidant property of copper powder coated silane coupling agent in isotropically conductive adhesives[J]. Advanced Materials Research,2010,139-141:117-120.
- [14] Dubey R, Shami T C, Rao B. Microencapsulation technology and applications[J]. Defence Science Journal,2009,59(1):82-95.
- [15] 王翔,屈银虎,成小乐,等.高温烧结型铜电子浆料的导电性[J].西安工程大学学报,2017,31(1):113-118.
- [16] 孙文通.贱金属电子浆料导电机理研究[J].电子元件与材料,1997,16(3):16-21.
- [17] 徐磊,张宏亮,刘显杰.电子浆料研究进展[J].船电技术,2012,32(S1):141-146.

收稿日期:2018-03-23

修稿日期:2018-07-29