

# 硅灰石表面有机改性及性能表征

徐昊<sup>1</sup>, 杨云川<sup>1</sup>, 王余莲<sup>1,2</sup>, 李闯<sup>1,2</sup>, 宛天成<sup>1</sup>, 谭瑞林<sup>1</sup>, 史先飞<sup>1</sup>, 王许<sup>1</sup>, 袁志刚<sup>1</sup>

1. 沈阳理工大学 材料科学与工程学院, 辽宁 沈阳 110159;  
2. 矿物加工科学与技术国家重点实验室, 北京 100160

中图分类号: TD985 文献标识码: A 文章编号: 1001-0076(2020)04-0117-07  
DOI: 10.13779/j.cnki.issn1001-0076.2020.04.014

**摘要** 利用干法工艺改性法库地区硅灰石,研究了改性剂种类及用量、改性温度和改性时间对改性效果的影响。借助接触角测量仪、X射线衍射仪、红外光谱、热重分析和扫描电子显微镜表征改性前后硅灰石的性能。结果表明,适宜的改性剂为KH-570,最佳改性工艺为改性剂用量3%(占粉体总质量),改性温度80℃,改性时间40min。最佳条件下,改性硅灰石的接触角为109.186°,活化指数为99.97%。表面改性过程对硅灰石的物相组成、化学结构、热分解和形貌没有明显影响。KH-570改性硅灰石的实质为KH-570水解生成硅醇或硅羟基,包覆在硅灰石表面,从而使得硅灰石表面由亲水性变为疏水性。  
**关键词** 硅灰石;KH-570;表面改性;性能

硅灰石是极其重要的非金属矿物,主要化学组成为偏硅酸钙( $\text{CaSiO}_3$ ),属三方晶系,呈灰白色<sup>[1]</sup>。硅灰石具有长径比大、各向异性强的天然针状结构特性,性能稳定,是一种极佳的补强材料<sup>[2]</sup>。除了天然纤维状结构外,硅灰石还有极低的吸油率、电导率和介电损耗,被广泛应用于塑料、橡胶、油漆、涂料等领域<sup>[3-4]</sup>,可明显改善基体的机械和摩擦学性能,提高制品的热稳定性和尺寸稳定性<sup>[5-6]</sup>。

然而,天然硅灰石具有亲水性,与有机聚合物共混时因极性不同导致分散不均匀,从而降低其填充制品的力学性能<sup>[7]</sup>。因此为了提高其在有机基体中的分散性、相容性、以及制品的机械性能<sup>[8]</sup>,需要对硅灰石进行表面改性处理。

硅灰石的表面改性方法主要包括机械力化学改性和复合改性,目前关于硅灰石表面改性及其在复合材料中的应用报道较多。梁宇等<sup>[9]</sup>利用无皂乳液聚合方法,将聚甲基丙烯酸甲酯(PMMA)通过化学键接枝对硅灰石进行包覆,探究影响包覆率和接触角的因素,通过SEM等表征方法分析改性前后硅灰石的微观结构。

孙楠等<sup>[10]</sup>以硅灰石为主要填料,以PP-SBM相容剂改性硅灰石并将其与PP进行复合,质量分数达到30%时,PP/W的力学性能最佳,维卡软化温度提高了14.4℃。顾善发等<sup>[11]</sup>以硬脂酸钠为改性剂对硅灰石进行表面改性,结果表明改性后硅灰石的接触角由10.83°增加到69.33°,表面自由能由102.17 mJ/m<sup>2</sup>降低至41.78 mJ/m<sup>2</sup>,改性后硅灰石在煤油中的分散性得到显著提高。陈苗<sup>[12]</sup>等以盐酸为改性剂对硅灰石进行改性,与未改性硅灰石浆料相比,改性后硅灰石浆料的抗拉强度提高73%。胡鸿<sup>[13]</sup>等以阳离子聚丙烯酰胺(CPAM)为改性剂对硅灰石进行改性,结果表明利用改性硅灰石纤维填充所得纸张的物理性能更好,可以替代部分植物纤维。综上,硅灰石的改性及应用研究报道虽较多,但均尚未详细阐述改性工艺及其改性机理,且缺乏对硅灰石表面改性的系统研究。

据此,本文采用干法工艺改性硅灰石( $\text{CaSiO}_3$ ),主要研究改性剂种类和用量、改性温度和改性时间等因素对改性效果的影响,借助接触角测量仪、X射线衍射仪、红外光谱、综合热分析和扫描电镜等检测手段表征

收稿日期:2020-03-25

基金项目:国家自然科学基金(51804200);矿物加工科学与技术国家重点实验室开放基金资助(BGRIMM-KISKL-2019-14);辽宁省自然科学基金博士启动基金(20180540104),辽宁省教育厅科学研究经费项目(LG201927);国家级大学生创新创业训练计划项目(201910144002)。

作者简介:徐昊(1995-),男,辽宁沈阳人,硕士研究生。

通信作者:杨云川(1961-),男,辽宁沈阳人,博士,教授,主要从事颗粒分形维数表征研究。王余莲(1986-),女,湖南衡阳人,博士,副教授,主要从事矿物材料的制备与应用研究。

改性前后硅灰石的性能,并进一步分析其改性机理。

## 1 实验

### 1.1 试验原料与仪器

原料为辽宁法库地区中值粒径( $D_{50}$ )为 2.88  $\mu\text{m}$  的天然硅灰石,其主要化学组成为: $\text{SiO}_2$  (51.75%)、 $\text{CaO}$  (48.25%)。硬脂酸锌(YZSX)、硬脂酸钠(YZSN)、硅烷偶联剂(KH-550、KH-570)均为分析纯,天津科密欧化学试剂有限公司;无水乙醇,分析纯,沈阳化学试剂厂;去离子水,自制。

数显悬臂式搅拌机,RW20.n型,广州仪科实验室技术有限公司;集热式恒温磁力搅拌器,DF-1型,江苏省金坛市荣华仪器制造有限公司;接触角测量仪,JC2004A型,上海中晨公司。

### 1.2 改性硅灰石的制备

称取一定质量的硅灰石粉末置于 500 mL 锥形瓶中,将锥形瓶置于水浴锅中升温至不同温度。量取适量无水乙醇倒入烧杯中,加入一定质量的表面改性剂(占硅灰石粉末的总质量)置于烧杯中,搅拌使其溶解,得到混合溶液。将含改性剂的混合溶液加入已达到改性温度的硅灰石粉末所在锥形瓶中,以 1 300 r/min 的速率恒温搅拌一定的时间后,将产物置于 120  $^{\circ}\text{C}$  的恒温干燥箱内烘干 3 h 得到改性产品。

### 1.3 硅灰石改性效果的表征

#### 1.3.1 接触角的测量

取 3 g 改性硅灰石样品,采用压片机将样品压成直径为 12 mm、表面光滑的的圆片,利用接触角测定仪以及量角法测定水滴在样品表面的接触角,测量 3 次取平均值,即为样品的接触角。

#### 1.3.2 活化指数的测定

称取 2 g(精确至 0.001 g)改性硅灰石,研磨均匀,置于盛有 100 mL 去离子水的烧杯中,超声振荡 5 min,再搅拌 2 min 后静置 30 min,待明显分层后刮去浮在水面的粉体,将沉入烧杯底部的粉体过滤,移入恒温箱内,在 105  $^{\circ}\text{C}$  的条件下干燥至质量不再变化,称量,计算活化指数,计算公式为

$$H = \frac{m_1 - m_2}{m_1} \quad (1)$$

式中: $H$  为活化指数,%; $m_1$  为投入物料量,g; $m_2$  为沉入烧杯底的物料量,g。

### 1.3.3 性能表征

采用日本 Rigaku 公司的 Ultima IV 型 X 射线衍射仪(XRD)检测改性前后样品的物相结构,辐射源为 Cu 靶  $K_{\alpha}$ ,  $\lambda = 0.1541 \text{ nm}$ ,镍滤波片,超能探测器,管电压 40 kV,管流 45 mA,扫描速率 4 ( $^{\circ}/\text{min}$ ),扫描范围  $5^{\circ} \sim 90^{\circ}$ 。采用日立公司 SN-3400 型扫描电子显微镜(SEM)观察改性前后样品的形貌,加速电压为 20 kV。采用德国 NETZSCH 公司 STA-449F3 型综合热分析仪(TG-DSC)分析改性前后样品的热稳定性,空气气氛下,升温速率 10  $^{\circ}\text{C}/\text{min}$ ,升温范围 20 ~ 900  $^{\circ}\text{C}$ 。采用美国 PerkinElmer 公司 Spectrum One 型 Fourier 变换红外光谱仪(FT-IR)检测改性前后样品的化学基团组成,采用 KBr 压片法制样,扫描范围 400 ~ 4 000  $\text{cm}^{-1}$ ,分辨率为 2  $\text{cm}^{-1}$ ,扫描次数 20 次。

## 2 结果与讨论

### 2.1 硅灰石原矿石粉末物相分析

硅灰石原料的 XRD 谱如图 1 所示。由图 1 可见,样品中所有特征峰均与  $\text{CaSiO}_3$  的标准峰对应,峰形尖锐、强度高、基底平滑,无其他杂质峰,表明硅灰石纯度较高。

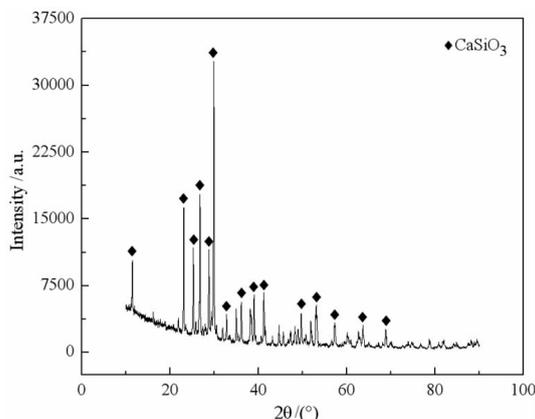


图 1 硅灰石原矿石粉末的 XRD 谱

Fig. 1 XRD pattern of prepared wollastonite

### 2.2 改性条件对硅灰石改性效果的影响

#### 2.2.1 改性剂种类的影响

固定改性剂用量 3% (占粉体干重,质量分数)、改性时间 40 min,改性温度 80  $^{\circ}\text{C}$ ,研究改性剂种类对硅灰石改性效果的影响,结果见表 1。

表1 不同改性剂对硅灰石的接触角和活化指数的影响

Table 1 Effect of modifier type on contact angle and activation index of wollastonite

Modifier types	Contact angle/( $^{\circ}$ )	Activation index/%
KH-570	109.186	99.97
KH-550	44.044	54.3
YZSN	87.039	81.7
YZSX	99.378	90.69

由表1可知,单一改性剂作用下,经KH-570改性处理后的硅灰石改性效果最好,其接触角和活化指数均最大,分别为 $109.186^{\circ}$ 和 $99.97\%$ ,其次分别为硬脂酸锌、硬脂酸钠和KH-550,经KH-570改性后的硅灰石在水溶液中几乎不被润湿,说明改性完全;其原因可能是:KH-570水解时会生成硅醇 $\text{Si}(\text{OH})_3$ 或硅羟基,并与硅灰石表面的羟基发生水解缩聚反应;而硬脂酸锌不溶于水,溶于热醇;硬脂酸钠易溶于热水和热醇,也可缓慢地溶于冷水,而本试验过程中将四种改性剂分别在 $30^{\circ}\text{C}$ 无水乙醇溶液中进行预处理时,KH-570溶解量最大,硬脂酸锌的溶解量比硬脂酸钠的溶解量大,KH-550最少,在改性过程中,KH-570溶液与硅灰石充分接触,改性完全,因此改性效果较好。

### 2.2.2 改性剂用量的影响

选择KH-570为改性剂,固定改性温度 $80^{\circ}\text{C}$ 、改性时间 $40\text{ min}$ ,改性剂用量对接触角和活化指数的影响见图2。

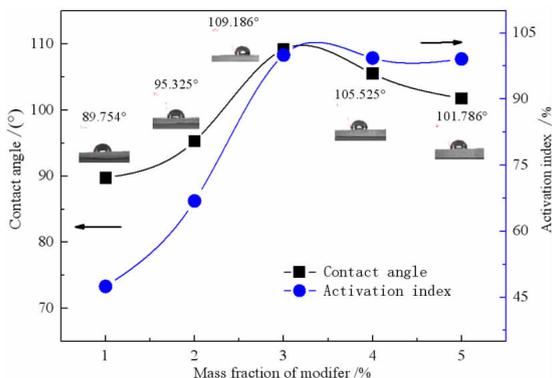


图2 改性剂用量对接触角和活化指数的影响

Fig. 2 Effect of modifier dosage on contact angle and activation index

由图2可知,改性后硅灰石的接触角和活化指数随改性剂用量的增大而呈线性增加;当改性剂用量为 $3\%$ 时两者均达到最大值,分别为 $109.186^{\circ}$ 和 $99.97\%$ ;继续增加改性剂用量,两者变化趋于平缓。出现上述变化的原因为:KH-570用量较低( $<3\%$ )时,没有足

量的KH-570与硅灰石充分接触,晶体表面改性不完全,表面极性和亲水性仍较强,大部分硅灰石沉入水中,故活化指数较小;用量为 $3\%$ 时,改性效果最好,表明此时KH-570与硅灰石表面羟基反应完全;继续增加KH-570( $>4\%$ ),由于亲固基和疏水基的差异,改性作用不再明显,因此接触角和活化指数变化不大。故选择最佳改性剂用量为 $3\%$ 。

### 2.2.3 改性温度的影响

选择KH-570为改性剂,并固定其用量为 $3\%$ ,改性时间为 $40\text{ min}$ ,改性温度对硅灰石接触角和活化指数的影响,结果如图3所示。

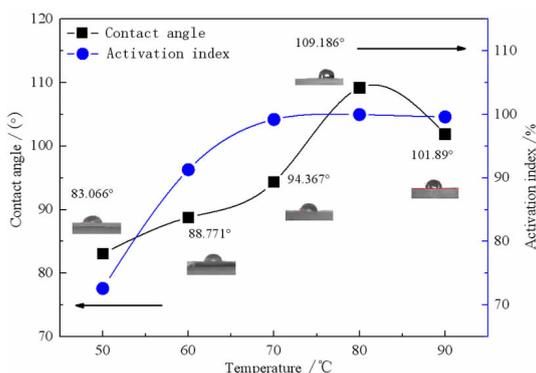


图3 改性温度对接触角和活化指数的影响

Fig. 3 Effect of modification temperature on contact angle and activation index

从图3可看出,改性后硅灰石接触角和活化指数随着改性温度的升高先增大后减小;两者在改性温度为 $80^{\circ}\text{C}$ 时均达最大值,温度继续升高,接触角略微降低,活化指数趋于平稳。这是由于KH-570改性硅灰石的作用过程是KH-570先稀释于无水乙醇中,离解成离子状态以便包覆在硅灰石表面,从而对硅灰石起到改性作用;而温度过低和过高都会降低其对硅灰石的改性作用。本试验中KH-570虽经过无水乙醇预处理,但这是一个缓慢的溶解过程。当预处理后的改性剂溶液加入至不同温度的硅灰石粉料中,改性时间相同,当改性温度较低时,能离解成离子状态的KH-570数量相对较少,改性作用较弱;改性温度升高,KH-570的反应活性得到提高,其溶解速度加快,在硅灰石表面的吸附量增多,因此改性效果增强;温度过高时,会对形成的键产生破坏,使改性效果降低。考虑到能耗问题,选择适宜的改性温度为 $80^{\circ}\text{C}$ 。

### 2.2.4 改性时间的影响

固定KH-570用量为 $3\%$ ,改性温度为 $80^{\circ}\text{C}$ ,考察改性时间对碱式碳酸镁改性效果的影响,结果见图4。

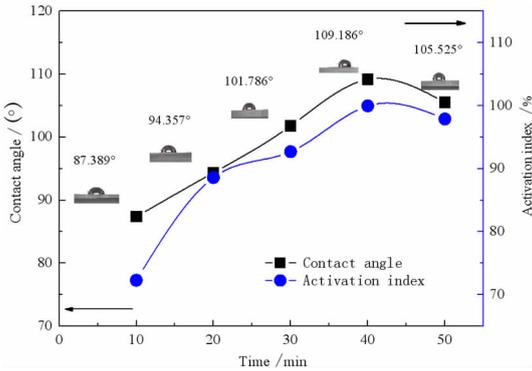


图4 改性时间对接触角和活化指数的影响

Fig. 4 Effect of modification time on contact angle and activation index

由图4可知,接触角和活化指数随改性时间的延长先增大后减小,在改性时间为40 min时达最大值109.186°;改性时间继续延长,两者略微减小。这是由于改性时间较短,KH-570与硅灰石的作用时间短,接触几率小,无法将晶体表面完全包覆;改性时间延长,KH-570能够与晶体表面充分接触,改性效果好;继续延长改性时间,反而会使已经包覆在硅灰石表面的硅烷偶联剂发生脱落,搅拌机械力作用难以使其改性剂解吸,因此改性效果变差。综上所述,选择适宜的改性时间为40 min。

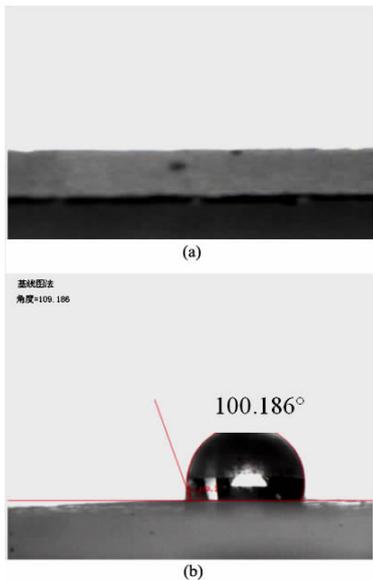


图5 改性前后硅灰石的接触角测定:(a)改性前;(b)改性后

Fig. 5 Contact angle of wollastonite before and after modification: (a) before modification; (b) after modification

## 2.3 改性前后硅灰石性能表征

选择KH-570作为表面改性剂,在改性剂用量为3%(占粉体干重)、改性时间为40 min、改性温度为80

℃的工艺下对硅灰石进行表面改性处理,对改性前后产物进行疏水性能以及XRD、FT-IR、TG-DSC和SEM表征,结果如图5~图9所示。

### 2.3.1 疏水性能

图5是改性前后硅灰石的接触角测定结果。由图5可知,水滴在未改性的硅灰石压片表面瞬间铺展,说明其不具有疏水性;而在改性后的硅灰石压片表面,水滴保持较完整的水珠状态,水珠底部表面明显黏着粉体,接触角为100.186°,活化指数接近100%,表明硅灰石经KH-570处理后,疏水效果非常好。

### 2.3.2 XRD分析

图6是改性前后硅灰石的XRD谱图。

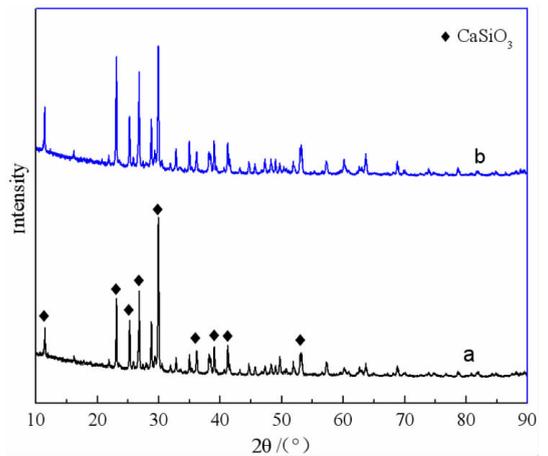


图6 改性前后硅灰石的XRD谱图:a-改性前;b-改性后  
Fig. 6 XRD patterns of wollastonite before and after modification: a - before modification; b - after modification

由图6可见,与改性前硅灰石的XRD图谱相比,改性后硅灰石衍射峰尖锐,基底平滑、衍射峰强度高,未见其他衍射峰,说明KH-570改性硅灰石过程中并未改变其物相组成。

### 2.3.3 红外光谱分析

采用FT-IR分析KH-570对硅灰石的作用形式,结果如图7所示。

图7中改性前图谱,具有典型的硅灰石的红外光谱特征,890~930 cm<sup>-1</sup>的强吸收带为Si-O-Si不对称伸缩振动、O-Si-O的对称以及不对称伸缩振动;500~750 cm<sup>-1</sup>的中强带表示硅氧四面体上Si-O-Si的对称伸缩振动;520 cm<sup>-1</sup>以下的表示Ca<sup>2+</sup>的振动和硅氧键的变形振动,以上都是硅灰石的特征吸收带<sup>[15]</sup>。在改性后谱图中,3550~3950 cm<sup>-1</sup>出现多峰,对应为O-H伸缩振动吸收峰发生偏移、峰强度变大,

推断为由于硅烷偶联剂水解为硅醇,导致羟基数量增加<sup>[16]</sup>。改性前后硅灰石谱图基本重合,表明偶联剂处理硅灰石并未改变硅灰石的特征峰,说明 KH-570 包覆在硅灰石表面。

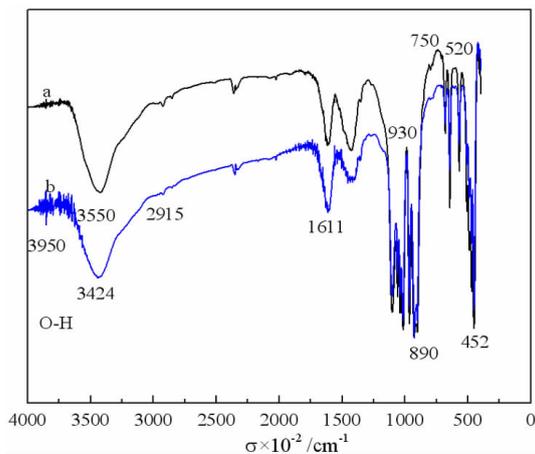


图 7 改性前后硅灰石的红外光谱图:a - 改性前;b - 改性后  
Fig. 7 FT-IR patterns of wollastonite before and after modification; a - before modification; b - after modification

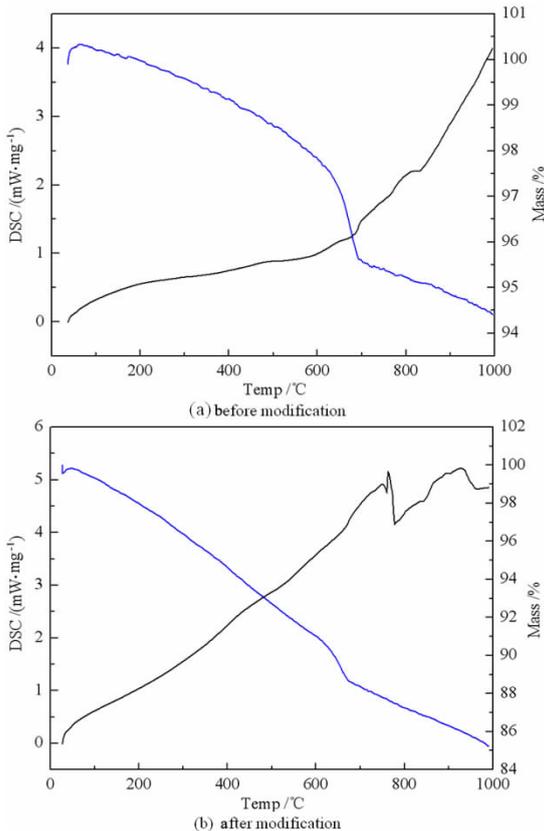


图 8 改性前后硅灰石的 TG-DSC 曲线  
(a) before modification; (b) after modification  
Fig. 8 TG-DSC curves of wollastonite before and after modification

### 2.3.4 热分析

硅灰石的热稳定性对其应用具有重要影响,图 8 是改性前后硅灰石的 TG-DSC 曲线。

由图 8 可见,硅灰石在 600 °C 出现失重台阶,对应结晶水的脱去;改性前后 TG 曲线相似,在 700 ~ 800 °C 之间,硅灰石表面包覆的 KH-570 发生脱落,导致改性后的 DSC 曲线存在明显吸收峰;对应温度区间内的 TG 曲线未有明显变化,验证红外光谱检测结果,改性过程未发生化学变化,KH-570 包覆在硅灰石表面。

### 2.3.4 扫描电镜分析

图 9 是改性前后硅灰石的 SEM 照片。

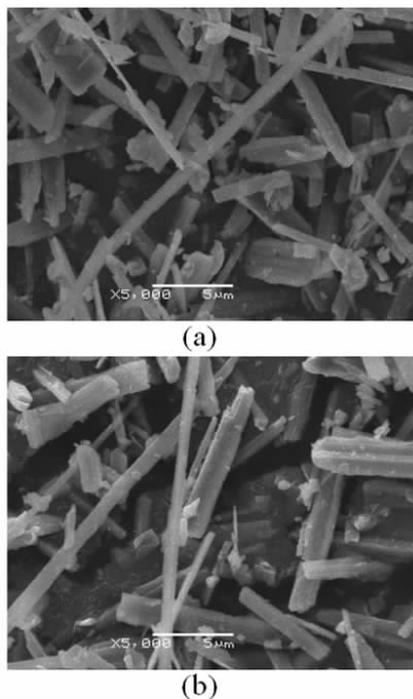


图 9 改性前后硅灰石的 SEM 照片:(a) 改性前;(b) 改性后  
Fig. 9 SEM images of wollastonite before and after modification; (a) before modification; (b) after modification

由图 9 (a) 可以看出,改性前硅灰石为晶须状,平均直径为 1.429 μm,长径比为 7.998;改性后晶须状结构以及长径比未发生明显变化。

## 3 机理分析

在改性过程中 KH-570 先水解为硅醇,与此同时硅烷偶联剂分子的硅醇之间也存在一定的相互缔合作用,使 KH-570 最终形成膜包覆在硅灰石粉末的表面<sup>[17]</sup>,从而使硅灰石粉体表面由亲水性变为疏水性。反应机理如图 10 所示。

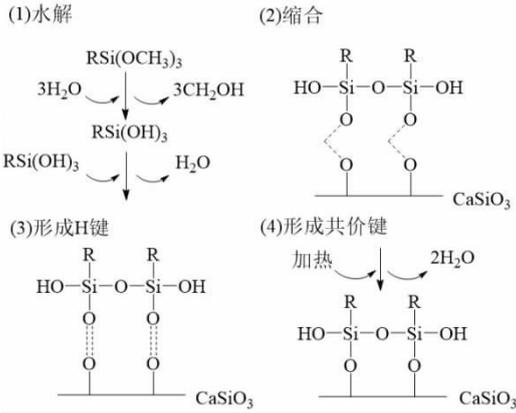


图 10 KH-570 改性硅灰石的改性机理  
Fig. 10 Modification mechanism of KH-570 modified wollastonite

### 4 结论

(1) 硅灰石的适宜佳改性条件为: KH-570 为表面改性剂, 改性剂用量 3%, 改性温度 80 ℃, 改性时间 40 min, 在此条件下, 改性后硅灰石的接触角为 109.186°, 活化指数为 99.97%。

(2) XRD、FT-IR、TG-DSC 和 SEM 结果表明, 经 KH-570 改性后的硅灰石物相组成、热分解过程、形貌无明显变化。

(3) KH-570 改性硅灰石的实质主要是 KH-570 产生的硅醇使硅灰石晶体表面有机化, 而疏水基朝外, 从而使得硅灰石表面由亲水性变为疏水性。

### 参考文献:

[1] 王锡麟, 易红玲, 林珩, 等. 表面改性硅灰石增韧环氧树脂的研究

[J]. 塑料工业, 2012, 40(06): 41-43, 52.  
 [2] 严春杰, 刘意, 李珍, 等. 粘土硅酸盐矿物改性技术研究现状[J]. 矿产保护与利用, 2018(5): 139-142.  
 [3] 陈科. 硅灰石粉填充改性聚丙烯复合材料性能研究[J]. 塑料科技, 2016, 44(2): 34-36.  
 [4] 吴平飞, 袁斌, 徐永华, 等. 针状硅灰石在环氧自流平地坪漆中的应用[J]. 涂层与防护, 2019, 40(6): 16-20.  
 [5] 王鉴, 邹双艳, 祝宝东, 等. 线性低密度聚乙烯与硅灰石共混改性聚丙烯研究[J]. 当代化工, 2018, 47(8): 1637-1640.  
 [6] 魏建新, 葛学贵, 石磊, 等. 超细粉碎硅灰石的表面改性及在橡胶中的应用[J]. 化工矿物与加工, 2006(1): 13-15, 27.  
 [7] 宋世坤, 彭鹤松, 李永安, 等. 硅烷改性剂对硅灰石填充 ABS 复合材料的性能影响[J]. 山东工业技术, 2017(21): 244-245.  
 [8] 陶勇. 硅灰石表面改性研究现状与应用进展[J]. 中国非金属矿工业导刊, 2008(6): 9-12, 18.  
 [9] 梁宇, 王玉龙, 姜艳峰, 等. 聚甲基丙烯酸甲酯/硅灰石复合粒子的制备与表征[J]. 精细石油化工进展, 2017, 18(4): 37-41.  
 [10] 孙楠, 白雪, 徐雅洁. 合成树脂/硅灰石复合材料性能分析及其在室内家具中的应用[J]. 塑料工业, 2018, 46(7): 121-124, 154.  
 [11] 顾善发. 硅灰石表面有机改性及对颗粒分散性的影响[J]. 中国粉体技术, 2017, 23(1): 14-18.  
 [12] 陈苗. 改性硅灰石粉对砂浆早期抗拉强度的影响研究[J]. 北方交通, 2018(7): 62-64.  
 [13] 胡鸿达. 硅灰石矿物纤维对纸张性能的影响[J]. 江西化工, 2017(6): 126-128.  
 [14] 王泽红, 周鸭羊, 宁国栋. 高长径比硅灰石制备及机理研究[J]. 矿产保护与利用, 2015(1): 49-53.  
 [15] 何伟平, 郭淑琴, 梁少俊, 等. 硅灰石热稳定性的分析与观察[J]. 广西师范大学学报(自然科学版), 1994(2): 47-49.  
 [16] 赵梓年, 梁李爽, 吕爱龙. 偶联剂处理针状硅灰石及 PP 复合材料的研究[J]. 塑料工业, 2014, 42(12): 87-92.  
 [17] 马云海, 佟金. 硅灰石表面改性研究[J]. 电子显微学报, 2002(5): 749-750.

## Surface Organic Modification and Characterization of Wollastonite

XU Hao<sup>1</sup>, YANG Yunchuan<sup>1</sup>, WANG Yulian<sup>1,2</sup>, LI Chuang<sup>1,2</sup>, WAN Tiancheng<sup>1</sup>, TAN Ruilin<sup>1</sup>, SHI Xianfei<sup>1</sup>, WANG Xu<sup>1</sup>, YUAN Zhigang<sup>1</sup>

1. School of Materials Science and Engineering, Shenyang Ligong University, Shenyang 110159, China;

2. State of Key Laboratory of Mineral Processing, Beijing 100160, China

**Abstract:** Surface modification of wollastonite with dry – modification method was investigated. The influences of type and dosage of surface modifier, modification temperature and time on modification effect of wollastonite were studied. Modified wollastonite powders were characterized by contact angle measuring instrument, X – ray diffraction, Fourier transform infrared spectroscopy, thermogravimetric analysis and scanning electron microscopy. Results showed that the suitable modifier was KH – 570 and the optimum condition was modifier dosage of 3% (in mass), modification temperature of 80 °C and time of 40 min. Under the optimum condition, contact angle of modified product was 109.186° and activation index was 99.97%. There was no obvious effect of surface modification on the phase composite, chemical structure, thermal decomposition and morphology of wollastonite. The mechanism of KH – 570 modified wollastonite could be explained as follow. The KH – 570 was hydrolyzed silanol or silanol groups, which could coat on the surface of wollastonite. As a result, the surface of wollastonite transformed from hydrophilic to hydrophobic.

**Key words:** wollastonite; KH – 570; modification; property

引用格式:徐昊,杨云川,王余莲,李闯,宛天成,谭瑞林,史先飞,王许,袁志刚. 硅灰石表面有机改性及性能表征[J]. 矿产保护与利用, 2020,40(4):117-123.

Xu H, Yang YC, Wang YL, Li C, Wan TC, Tan RL, Shi XF, Wang X and Yuan ZG. Surface organic modification and characterization of wollastonite[J]. Conservation and utilization of mineral resources, 2020, 40(4): 117 – 123.

投稿网址: <http://kcbh.cbpt.cnki.net>

E – mail: [kcbh@chinajournal.net.cn](mailto:kcbh@chinajournal.net.cn)