

过量 PbO 对 TGG 法制备 0.675PMN-0.325PT 织构陶瓷的影响

文 佳, 周科朝, 李志友, 张晓泳

(中南大学 粉末冶金国家重点实验室, 长沙 410083)

摘 要: 以 0.675PMN-0.325PT 反应原料为基体, $\langle 001 \rangle$ 取向的片状 SrTiO_3 为模板, 利用模板晶粒生长技术在较低的温度下制备出具有一定取向度的 0.675PMN-0.325PT 多晶织构陶瓷。研究了烧结过程中基体晶粒自身长大和模板外延生长情况以及 PbO 添加量对织构组织形成的影响。结果表明: 增加 PbO 含量可加快基体晶粒溶解-析出过程, 促进基体晶粒的长大; 同时液相含量的增加还有利于模板的外延生长以及织构组织的形成; 与以 PMNT 为基体相比, 以反应原料为基体可大幅度降低烧结温度; 添加 3% 过量 PbO 后, 在 1 000 °C 保温 2 h 后即可获得取向度为 40% 的 PMN-PT 多晶织构陶瓷。

关键词: PbO; 0.675PMN-0.325PT; TGG 法; 多晶织构陶瓷

中图分类号: TM 28

文献标识码: A

Effect of excess PbO on preparation textured 0.675PMN-0.325PT ceramics by TGG method

WEN Jia, ZHOU Ke-chao, LI Zhi-you, ZHANG Xiao-yong

(State Key laboratory of Powder Metallurgy, Central South University, Changsha 410083, China)

Abstract: Textured 0.675PMN-0.325PT polycrystalline ceramics with certain orientation degree were prepared using mixed oxide powders 0.675PMN-0.325PT as matrix and $\langle 001 \rangle$ tabular SrTiO_3 as templates at relative low temperatures by templated grain growth technique. The effects of self-growth of matrix grains during sintering process, epitaxial growth of templates and excess PbO on texture formation were also studied. The results show that the increase of excess PbO can accelerate the dissolution-precipitation process of the matrix, and then improve the matrix grains growth. Meanwhile, the increase of liquid content also can promote both epitaxial growth of template and formation of textures. The sintering temperatures when reactive material used as matrix are much lower than those when PMNT used as matrix. Holding at 1 000 °C for 2 h, the textured PMN-PT ceramic with orientation degree of 40% are obtained after adding 3% excess PbO.

Key word: PbO; textured 0.675PMN-0.325PT; TGG method; polycrystalline texture ceramic

$\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3\text{-xPbTiO}_3$ (PMNT)^[1-3] 由于其优异的压电性能 (d_{33} 约为 2 000~2 500 pC/N, k_{33} 可以达到 90% 以上, 最大形变可以达到 1.7%^[4-5]), 在声探测、超声成像以及高应变驱动器等电声转化器件方面具有非常广泛的应用前景^[6]。但 PMNT 单晶的制备周期长、

生产成本低且容易产生组分偏析而难以获得品质稳定的大尺寸单晶。多晶陶瓷虽然制备工艺简单, 但由于晶粒无规排列, 极化率低, 因而不具有相应单晶优异的压电性能。多晶织构压电陶瓷既可以弥补压电单晶制备成本高、品质稳定性差的缺陷^[7], 又能够大幅

提高普通陶瓷的压电性能^[8-9],是目前压电材料的研究热点。其中,模板晶粒生长技术(Templated grain growth method, TGG)是一种重要的织构压电陶瓷制备方法^[10-12],其基本工艺流程是选取合适的模板材质并制备出相应的低维度模板材料,然后将模板按其特征形貌和晶体取向在基体内定向排列,最终通过高温处理使基体晶粒在模板晶粒上形核并促使模板定向外延生长后形成织构组织。

BaTiO₃和SrTiO₃与PMNT同为钙钛矿结构,且它们间晶格匹配度良好,同时又能制备出相应的低维度形貌晶粒,适合用作制备PMNT多晶织构陶瓷的模板材料。但BaTiO₃由于受其生长习性的限制,合成出片状BaTiO₃晶粒通常以(110)或(111)面为主晶面^[13],不能制备出具有最优压电性能的<001>取向织构型PMNT多晶陶瓷。SABOLSKY等^[14]合成得到以(001)为主晶面的BaTiO₃模板,但其尺寸较大(200~300 μm),烧结活性较低。因而,为了获得高致密度的陶瓷体,往往需要采用热压等高成本的强化烧结手段。SrTiO₃则可以在制备过程中较容易地实现其片状形貌尺寸的调控,从而成为TGG技术制备PMNT多晶织构陶瓷最常用的模板材料^[15-16]。另外,文献中所报道的TGG技术制备PMNT织构陶瓷多采用预先合成好的PMNT粉体作为基体,尚未见以用于合成PMNT粉体的反应物原料作为基体粉末的相关报道,而与前者相比,后者在织构陶瓷制备过程中同时实现了合成PMNT物相、形成织构组织以及烧结致密化,可以大幅度降低制备成本。因此,本研究以合成PMNT的反应原料作为基体粉末,<001>片状SrTiO₃为模板材料,采用TGG技术通过反应-烧结的方式制备PMNT多晶织构陶瓷,并研究烧结过程中基体晶粒自身长大和模板外延生长情况以及PbO添加量对织构组织形成的影响。

1 实验

将PbO、Nb₂O₅、(MgCO₃)₄Mg(OH)₂5H₂O和TiO₂粉末(分析纯,纯度大于99.99%)按生成0.675PMN-0.325PT的配比并分别过量1%和3%PbO称量在乙醇/丁酮介质中球磨12 h,然后加入分散剂磷酸三乙酯、粘结剂聚乙烯醇缩丁醛和增塑剂聚乙二醇及邻苯二甲酸二乙酯(DEP)继续球磨12 h,取出浆料并加入片状SrTiO₃模板磁力搅拌4 h,其中SrTiO₃模板采用二次熔盐合成技术制得^[17-19],加入量为固体粉末总体积的8%。流延成形在光洁玻璃衬底上进行,流延厚度约为200~300 μm,干燥后切片叠层至1~2 mm的厚度。所

得坯体缓慢升温至500℃进行脱脂,经100 MPa冷等静压后填埋在Al₂O₃/PbO混合粉末中进行烧结,烧结温度和保温时间分别为800~1 000℃和1~6 h。

将样品表面抛光后用XRD确定PMNT织构陶瓷的物相组成和织构取向度,取向因子 f 通过下式计算得到:

$$f_{(h00)} = (P_{(h00)} - P_0) / (1 - P_0)$$

$$P_{(h00)} = \sum I_{(h00)} / \sum I_{(hkl)}$$

$$P_0 = \sum I_{0(h00)} / \sum I_{0(hkl)} \quad (1)$$

其中 $\sum I_{(h00)}$ 和 $\sum I_{(hkl)}$ 分别为(h00)衍射峰强度总和以及所有衍射峰强度总和; $\sum I_{0(h00)}$ 和 $\sum I_{0(hkl)}$ 则分别为无取向PMNT多晶陶瓷的相应衍射峰强度之和。用JSM-6360LV扫描电子显微镜对烧结样品的断口进行SEM分析。采用截距法估算样品基体晶粒尺寸,模板的外延生长尺寸则通过对模板晶粒外延生长厚度进行统计取平均值获得。

2 结果与讨论

图1所示为加入8%(体积分数)SrTiO₃模板的样品经脱脂后的断口形貌。由图1可见,通过流延成型后片状SrTiO₃模板晶粒均匀地定向排列在细小的基体晶粒中。

2.1 过量 PbO 对基体晶粒生长的影响

图2所示为过量1%和3%(质量分数)PbO样品分别在900℃和1 000℃保温2 h的SEM像。由图2可见,添加过量1%和3%PbO的样品基体在900℃保温2 h后晶粒尺寸相差不大,而当温度升高到1 000℃时,过量3%PbO的样品基体晶粒尺寸大于过量1%PbO的样品基体晶粒尺寸。

为了更好地显示基体晶粒生长情况,在图3中给出了添加不同过量PbO时基体晶粒生长尺寸与烧结温度和保温时间的关系曲线。从图3中可看出:由于800℃时PbO未熔化,仍为固相烧结,因此在低温下过量PbO对基体晶粒长大的影响并不明显;当温度升高至900℃时,PbO熔化形成液相后烧结过程转变为液相烧结,细小晶粒溶解在液相中通过扩散通道在大晶粒表面析出,同时液相中的物质迁移速率要比固相快1~2个数量级,因此基体晶粒的平均粒径增大;在1 000℃时,添加3%PbO的样品基体晶粒尺寸均大于1%PbO的样品基体晶粒尺寸,这是由于一方面高温

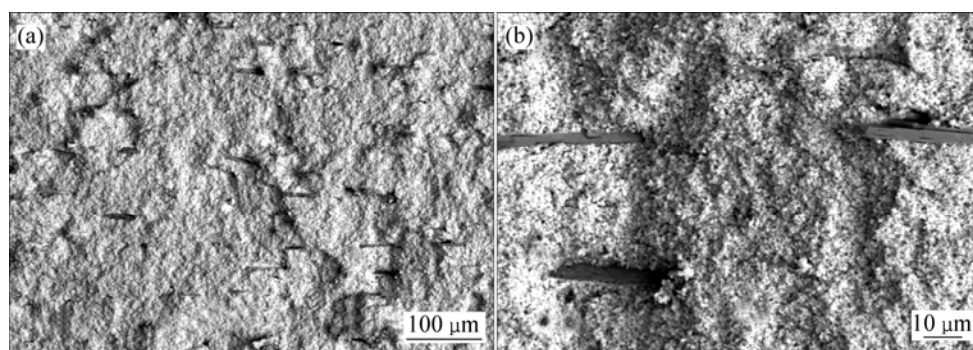


图 1 加入 8% SrTiO_3 模板样品脱脂后的断口形貌

Fig.1 Fracture morphologies of degreased sample with 8% SrTiO_3 templates

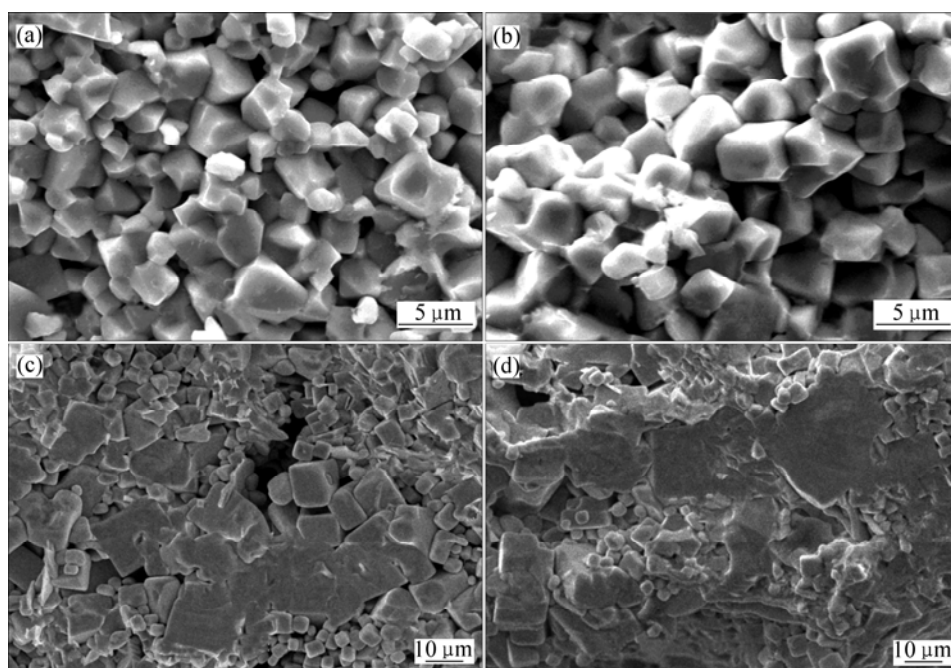


图 2 过量 1% 和 3% PbO 样品在 900 和 1000 °C 保温 2 h 的 SEM 像

Fig.2 SEM images of samples holding at 900 and 1000 °C for 2 h with 1% and 3% excess PbO : (a) 1% PbO , 900 °C; (b) 3% PbO , 900 °C; (c) 1% PbO , 1000 °C; (d) 3% PbO , 1000 °C

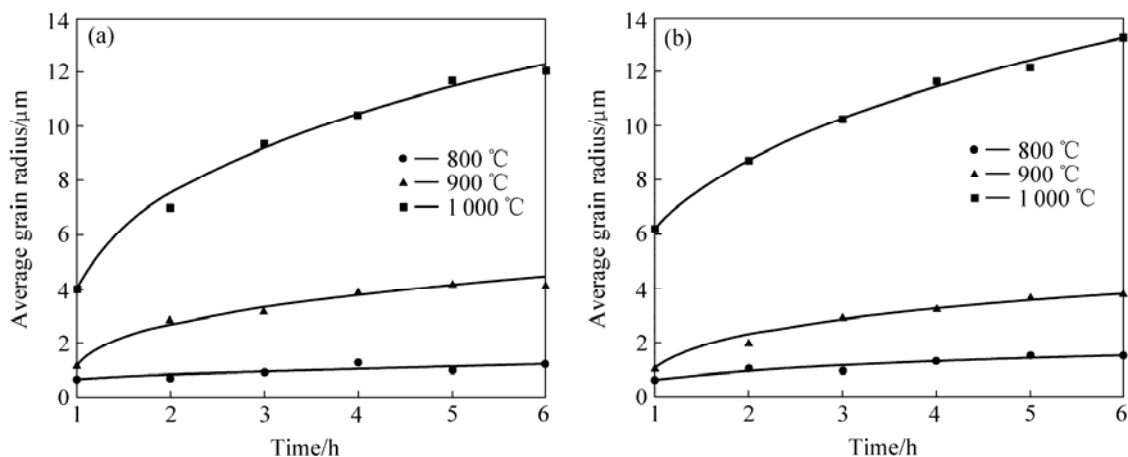


图 3 添加不同过量 PbO 基体的晶粒生长尺寸与烧结温度和保温时间的关系

Fig.3 Relationships between grain growth of matrix and temperature and holding time with different contents of excess PbO : (a) 1% PbO ; (b) 3% PbO

下液相含量增加,使物质扩散通道增多,同时温度的升高使得液相粘度降低,从而加快了物质迁移率,有效促进基体晶粒溶解-析出过程的进行;另一方面,液相含量的增加还有利于颗粒重排和获得充分的颗粒间填充,这也会在一定程度上促进基体晶粒的长大。

另外,由图3还可以发现,在保温初期,基体晶粒的生长速率最快,随着保温时间的延长,生长速率趋于平缓。这是由于烧结过程中表面自由能是晶粒生长的驱动力来源,在烧结初期,基体晶粒尺寸相对较小,高的比表面积使其具有较大的生长驱动力,故而生长速率较快;随着保温时间的延长,基体晶粒逐渐长大,表面自由能因比表面积的减小而降低,导致生长驱动力也随之降低,因此晶粒的生长趋于缓慢,直至生长尺寸达到饱和。同时,PbO在高温下熔化后形成液相烧结,物质通过在液相中的溶解-析出过程使得基体晶粒熟化长大,而熟化长大过程会导致固液界面逐渐减少,溶解-析出过程也随之减慢,基体晶粒生长逐渐达到饱和。此外,PbO的挥发量会随着保温时间的延长有所增加,液相含量的减少在一定程度上也减缓了晶粒生长速率。

图4所示为1000℃的温度下PbO过量1%和3%的 $\lg r - \lg t$ 的关系。图中所示 $\lg r$ 与 $\lg t$ 呈线性关系,斜率约为1/3。由此可知,过量1%和3%PbO的样品基体平均粒径随着保温时间的延长呈三次方增长,与文献[20]中LAY提出的基体晶粒生长模型相符。

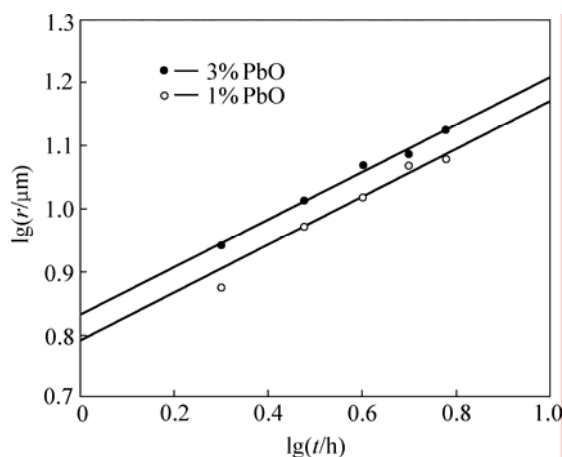


图4 1000℃时PbO过量1%和3%基体的 $\lg r - \lg t$ 曲线

Fig.4 $\lg r - \lg t$ curves of matrix with excess 1% and 3% PbO at 1000℃

2.2 过量PbO对SrTiO₃模板外延生长的影响

图5所示为过量1%和3%PbO样品在900℃保温2h的SEM像。从图5中可知,在900℃保温1h时,模板已经开始发生明显的外延生长,但不同PbO过量

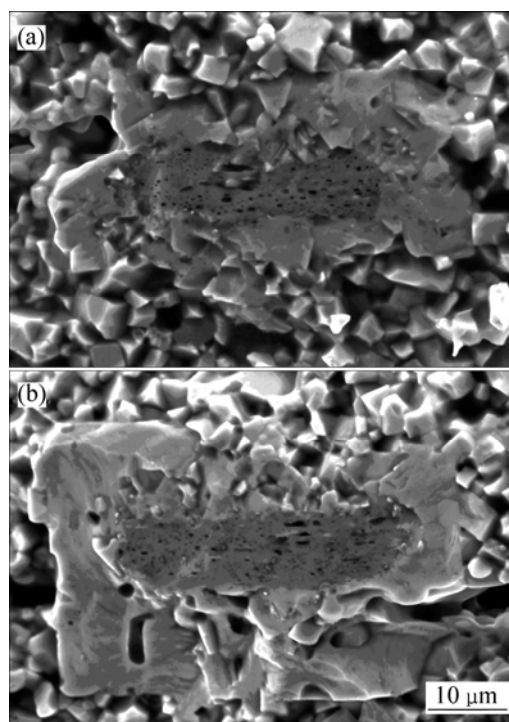


图5 过量1%(a)和3%(b)PbO的样品在900℃保温1h的SEM像

Fig.5 SEM images of samples holding at 900℃ for 1 h with excess 1%(a) and 3%(b) PbO

的样品外延生长尺寸相差不大。

图6所示为不同过量PbO的样品模板外延生长与烧结温度和保温时间的关系。由图6可见,过量PbO含量为1%和3%的烧结样品在800℃时模板均未发生明显的外延生长;当温度升高至900℃保温1h时,模板发生外延长大,但由于PbO刚开始熔化,液相含量对模板外延生长的影响并不显著;当温度进一步升高到1000℃保温1h时,对于PbO过量1%的烧结样品,其模板外延生长尺寸约为38μm,延长保温时间至4h时外延尺寸增加到58μm;而PbO过量3%的烧结样品在此温度下保温1h和4h后的模板外延尺寸分别为43μm和70μm,均明显高于PbO过量1%的烧结样品。这是由于在1000℃的温度下PbO液相粘度降低,在加快物质扩散速率的同时促进基体晶粒在模板上溶解-析出过程的进行,因此液相含量的增加可明显促进模板的外延生长。从曲线中还可看出,同基体晶粒一样,烧结温度对模板外延生长的影响大于保温时间的影响,这是由于随着保温时间的延长,一方面充分长大的模板晶粒间可能会发生碰撞;另一方面基体晶粒自身也发生长大,从而导致界面能降低,这也降低了模板生长驱动力,因此模板外延生长趋势变缓甚至停止生长。

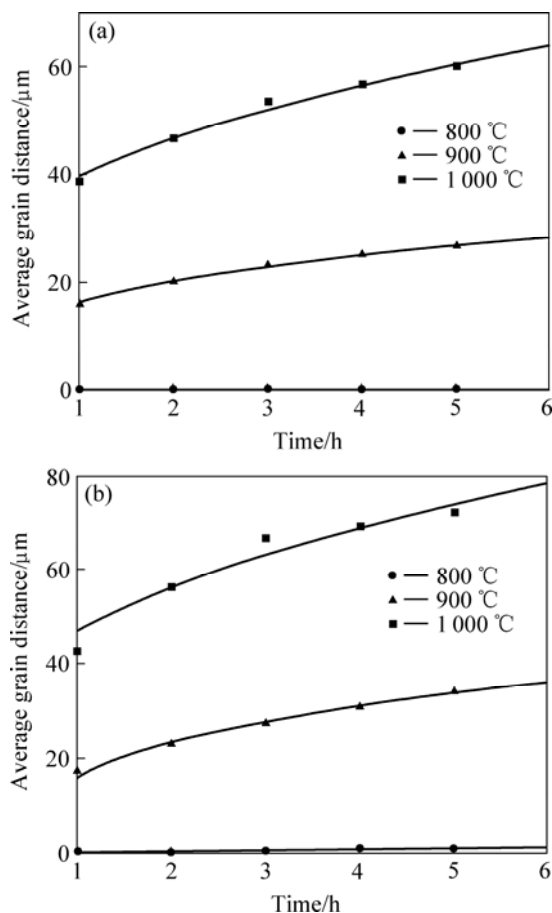


图 6 不同过量 PbO 的模板外延尺寸与烧结温度和保温时间的关系

Fig.6 Relationships between grain growth of template and temperature and holding time with different excess PbO: (a) 1% PbO; (b) 3% PbO

2.3 过量 PbO 对织构取向和微观组织结构的影响

图 7 所示为无织构取向样品和不同 PbO 过量的样品在 1000 °C 保温 2 h 的 XRD 谱。由图 7 可见, PbO 过量 1% 样品 (hkl) 衍射峰强度有所降低, ($h00$) 相对衍射峰强度提高, 说明烧结样品内部晶粒形成定向排列, 但织构化程度不高; 而 PbO 过量 3% 的样品 ($h00$) 衍射峰相对强度大幅提高, (hkl) 衍射峰强度则显著降低, 表明样品已经获得一定程度的织构。由式(1)计算可得: PbO 过量 1% 样品的晶粒取向度仅为 10%; 当过量 PbO 的添加量增加到 3% 时, 样品的晶粒取向度则提高到 40%, 说明过量 PbO 含量的增加有利于多晶织构的形成及晶粒取向度的提高。实验制得的 PMNT 织构陶瓷, 虽然取向度比文献[14]中所获得的 70% 要低, 但其合成温度大幅降低, 这是由于一方面采用 PMNT 原料粉末作为基体, 在烧结过程中, 细小的晶粒具有高反应活性、大比表面积, 从而加快了基体晶粒的生

长速率; 另一方面, 原料粉末反应合成 PMNT 基体晶粒后, 细小的晶粒会立刻附着在模板上进行溶解-析出过程, 这也在一定程度上降低了反应合成温度。

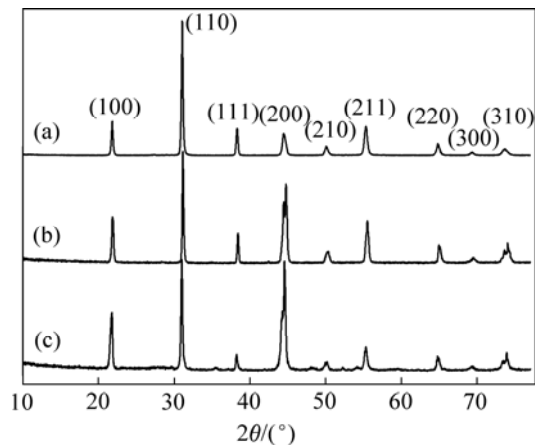


图 7 不同样品在 1000 °C 保温 2 h 的 XRD 谱

Fig.7 XRD patterns of different samples holding at 1000 °C for 2 h: (a) Without orientation degree; (b) With 1% excess PbO; (c) With 3% excess PbO

图 8 所示为过量不同 PbO 的样品在 1000 °C 保温 2 h 后的断口形貌。由图 8 可见, 在 1000 °C 保温 2 h 后, 过量 1% PbO 的烧结样品基体晶粒局部长大并定向排列, 但仍存在大量尺寸较小的等轴状基体晶粒未依附模板外延长大形成定向排列; 而过量 3% PbO 的烧结样品大部分基体晶粒已经依附在模板晶粒上长大转变成规则的矩形并形成了一定程度的织构, 这一现象与 XRD 检测结果相一致。这是由于液相烧结过程中 PMNT 多晶定向生长主要受扩散和溶解-析出过程影响, 基体晶粒在液相介质中扩散速率较快, 细小的基体晶粒通过液相溶解并在尺寸较大的模板晶粒表面析出而发生外延长大。液相含量的增加在促进扩散过程进行的同时还加快了基体晶粒在模板表面溶解-析出的速率, 从而有利于基体晶粒的定向排列形成多晶织构。

此外, 由图 8 还可知, PbO 过量 1% 时, 由于基体晶粒的生长速率高于模板的外延生长速率, 基体晶粒的长大粗化阻碍了模板吞并细小晶粒进行外延生长, 从而形成局部晶粒异常长大的形貌, 同时存在大量细小晶粒与孔隙; 而当 PbO 过量 3% 时, 基体晶粒的生长速率低于模板外延生长速率, 基体晶粒在模板表面溶解-析出发生外延长大的行为优先于基体晶粒自身的长大, 因此形成大块规则的矩形形貌及一定程度的织构, 但由于模板的外延生长速率随着保温时间

的延长趋于缓慢,甚至停止生长,因此晶粒间存在缝隙,这会在一定程度上影响样品的性能。由此可知,液相含量的加入存在一最优化值,使基体晶粒生长与模板外延生长速率的比值适合生长出既无局部晶粒异常长大又无缝隙存在的织构形貌,本研究初步确定这一最优值介于 1%和 3%之间,具体数值的确定有待进一步的研究。

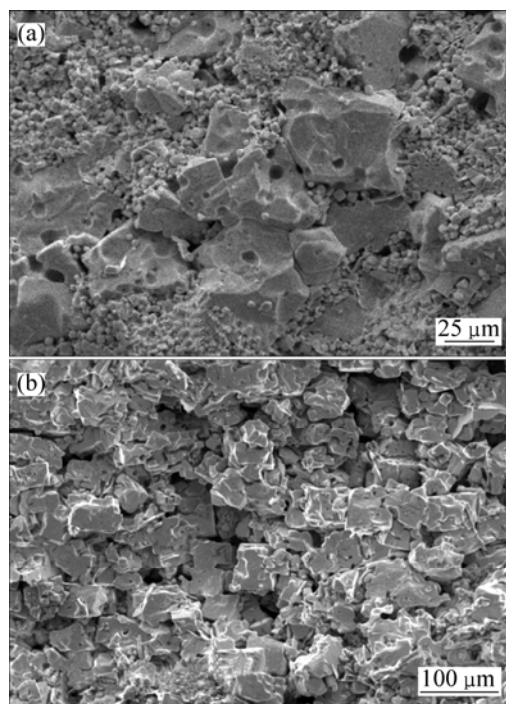


图 8 不同过量 PbO 样品在 1 000 ℃ 保温 2 h 后的断口形貌
Fig.8 Fracture morphologies of samples holding at 1 000 ℃ for 2 h with different contents of excess PbO: (a) 1% PbO; (b) 3% PbO

3 结论

1) 液相含量的增加可加快基体晶粒间溶解-析出及物质迁移速率,同时有效降低颗粒间的摩擦利于颗粒重排和颗粒间的填充,增加了颗粒间的接触面积,使得物质扩散通道增多从而促进基体晶粒的长大。

2) 细小的基体晶粒通过液相溶解并在尺寸较大的模板晶粒表面析出而发生外延长大,液相含量的增加在提高物质扩散速率的同时促进基体晶粒在模板上溶解-析出过程的进行,有利于模板的外延生长并形成多晶织构。

3) 以 PMN-PT 反应原料为基体粉末,添加 3%过量 PbO,在 1 000 ℃ 保温 2 h 后可获得取向度为 40%

的 PMN-PT 多晶织构陶瓷。液相含量的加入存在一个介于 1%和 3%之间的最优化值,使基体晶粒生长与模板外延生长速率的比值适合生长出既无局部晶粒异常长大又无缝隙存在的织构形貌。

REFERENCES

- [1] 罗豪甦, 徐海清, 王评初, 殷庆瑞, 殷之文. 新型压电单晶 PMNT 的生长和性能研究[J]. 哈尔滨理工大学学报, 2002, 7(6): 98-104.
LUO Hao-su, XU Hai-qing, WANG Ping-chu, YIN Qing-rui, YIN Zhi-wen. Growth and properties of a new typical piezoelectric single crystal PMNT[J]. Journal of Harbin University of Science and Technology, 2002, 7(6): 98-104.
- [2] 王评初, 罗豪甦, 李东林, 潘晓明, 陈辛尘, 殷之文. PMNT 单晶与陶瓷在性能及相变方面的特点[J]. 无机材料学报, 2001, 16(1): 56-62.
WANG Ping-chu, LUO Hao-su, LI Dong-lin, PAN Xiao-ming, CHEN Xin-chen, YIN Zhi-wen. Characters of piezoelectricity and phase transition of PMN-PT single crystals and ceramics[J]. Journal of Inorganic Materials, 2001, 16(1): 56-62.
- [3] 龙 伟, 惠增哲, 刘建康, 坚增运, 焦藏桢, 王 锋. 退火对 PMN-32PT 弛豫铁电单晶电畴组态的影响[J]. 西安工业学院学报, 2005, 25(1): 64-67.
LONG Wei, XI Zeng-zhe, LIU Jian-kang, JIAN Zeng-yun, JIAO Cang-zhen, WANG Feng. Effect of annealing treatment on the domain of relaxor ferroelectrics PMN-32PT single crystal[J]. Journal of Xi'an Institute of Technology, 2005, 25(1): 64-67.
- [4] SEUNG-EEK P, SHROUT T R. Characteristics of relaxor-based piezoelectric single crystals for ultrasonic transducers[J]. IEEE Ultrasonics Symposium, 1996, 2(3/6): 935-942.
- [5] SEUNG-EEK P, SHROUT T R. Ultrahigh strain and piezoelectric behavior in relaxor based ferroelectric single crystals[J]. Journal of Applied Physics, 1997, 82(4): 1804-1811.
- [6] FU Hua-xiang, COHEN R E. Polarization rotation mechanism for ultrahigh electromechanical response in single-crystal piezoelectrics[J]. Nature, 2000, 403(6767): 281-283.
- [7] MARTINEZ E, ANGUREL L A, DIEZ J C, LARREA A, AEUILO M, NAVARRO R. Grain texture and bulk magnetic anisotropy correlation in polycrystalline $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ thin rods[J]. Physica C, 2000, 333(1/2): 93-103.
- [8] 李月明, 张玉平, 廖润华, 程 亮. 晶粒定向技术制备无铅压电陶瓷的研究现状与进展[J]. 陶瓷学报, 2006, 27(2): 205-211.
LI Yue-ming, ZHANG Yu-ping, LIAO Run-hua, CHENG Liang. Research and progress of lead-free piezoelectric ceramics prepared by the grain orientation technique[J]. Journal of Ceramics, 2006, 27(2): 205-211.

- [9] 曾江涛, 李永祥, 杨群保, 殷庆瑞. 压电陶瓷晶粒定向技术[J]. 电子元件与材料, 2004, 23(11): 66-70.
ZENG Jiang-tao, LI Yong-xiang, YANG Qun-bao, YIN Qing-rui. Grain orientation techniques of piezoelectric ceramics[J]. Electronic Components & Materials, 2004, 23(11): 66-70.
- [10] SEABAUGH M M, CHENEY G L, HASINSKA K, AZAD A M, SABOLSKY E M, SWARTZ S L, DAWSON W J. Development of a templated grain growth system for textureing piezoelectric ceramics[J]. Journal of Intelligent Materials System and Structures, 2004, 15(3): 209-214.
- [11] MESSING G L, TROLIER-MCKINSTRY S, SABOLSKY E M, DURAN C, KWON S, BRAHMAROUTU B, PARK P, OH K S. Templated grain growth of textured piezoelectric ceramics[J]. Critical Review In Solid State and Materials Science, 2004, 29(2): 45-96.
- [12] KIMURA T, MIURA Y, FUSE K. Texture development in barium titanate and PMN-PT using hexabarium 17-titanate heterotemplates[J]. International Journal of Applied Ceramic Technology, 2005, 2(1): 15-23.
- [13] JAMES A. Processing and properties of textured $0.7\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ - 0.3PbTiO_3 by reactive of templated grain growth on SrTiO_3 templates[J]. Journal of the American Ceramic Society, 2001, 4(6): 22-25.
- [14] SABOLSKY E M, TROLIER-MCKINSTRY S, MESSING G L. Kinetics of templated grain growth of $0.65\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ - 0.35PbTiO_3 [J]. Journal of American Ceramic Society, 2001, 84(11): 2507-2513.
- [15] KWON S, SABOLSKY E M, MESSING G L, TROLIER-MCKINSTRY S. High strain, $\langle 001 \rangle$ textured $0.675\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ - 0.325PbTiO_3 ceramics: templated grain growth and piezoelectric properties[J]. Journal of American Ceramic Society, 2005, 88(2): 312-317.
- [16] BRENNAN R E, ALLAHVERDI M, SAFARI A. Templated grain growth(TGG) of PMN-PT textured components using SrTiO_3 templates[C]//IEEE International Symposium on Applications of Ferroelectrics 2004. New Jersey: IEEE, 2005: 270-273.
- [17] 张晓泳, 周科朝, 李志友, 侯俊峰. 熔盐合成技术制备片状 $(\text{Sr}, \text{Ba})\text{TiO}_3$ 晶粒[J]. 中国有色金属学报, 2007, 17(6): 871-877.
ZHANG Xiao-yong, ZHOU Ke-chao, LI Zhi-you, HOU Jun-feng. Synthesis of tabular $(\text{Sr}, \text{Ba})\text{TiO}_3$ crystals by molten salt method[J]. The Chinese Journal of Nonferrous Metals, 2007, 17(6): 871-877.
- [18] EBRAHIMI M E, ALLAHVERDI M, SAFARI A. Synthesis of high aspect ratio platelet SrTiO_3 [J]. Journal of American Ceramic Society, 2005, 88(8): 2129-2132.
- [19] AKDOGAN E K, BRENNAN R E, ALLAHVERDI M, SAFARI A. Effects of molten salt synthesis(MSS) parameters on the morphology of $\text{Sr}_3\text{Ti}_2\text{O}_7$ [J]. Journal of Electroceramic, 2006, 16(2): 159-165.
- [20] LAY K W. Grain growth in UO_2 - Al_2O_3 in the presence of a liquid phase[J]. Journal of American Ceramic Society, 1968, 51(7): 373-376.

(编辑 李艳红)