

Na₂O 含量对 BaO-SrO-Nb₂O₅-B₂O₃-SiO₂ 系 玻璃陶瓷微结构和性能的影响

张文俊¹, 陈国华^{1,2}, 周昌荣^{1,2}, 江民红^{1,2}, 王 华^{1,2}, 刘心宇^{1,2}

(1. 桂林电子科技大学 材料科学与工程学院, 桂林 541004;

2. 桂林电子科技大学 广西信息材料重点实验室, 桂林 541004)

摘 要: 采用熔融法制备 NaO-BaO-SrO-Nb₂O₅-B₂O₃-SiO₂ 玻璃陶瓷。借助 DSC、XRD、SEM 和电学性能测试研究不同含量的 Na₂O 对其相组成、显微结构、介电性能、体积电阻率及击穿强度的影响。结果表明: 随着 Na₂O 含量(摩尔分数)的增加, 玻璃转变温度(T_g)和第一析晶放热峰(T_{p1})温度逐渐降低, 而第二析晶放热峰温度(T_{p2})呈先降低后升高再降低的变化。经(800 °C, 3 h)+(900 °C, 3 h)热处理后, 未添加 Na₂O 的样品析出单相四方钨青铜结构的 Ba_{0.5}Sr_{0.5}Nb₂O₆, 而添加 5%Na₂O(摩尔分数)的样品变为单相 Ba_{0.25}Sr_{0.75}Nb₂O₆。当 Na₂O 为 10%时, 样品的主晶相仍为 Ba_{0.25}Sr_{0.75}Nb₂O₆, 但析出 NaSr_{1.2}Ba_{0.8}Nb₅O₁₅ 和 Na₂Ba₂Si₂O₇ 相; 继续增加 Na₂O 量到 15%时, 样品的晶相种类不变而衍射峰强度有所增强。样品的介电常数随 Na₂O 含量的增加呈“N”字形变化, 样品的体积电阻率和击穿强度随 Na₂O 含量的增加而降低, 未添加 Na₂O 试样的击穿强度最大为 1 500 kV/cm, 其储能密度达 3 J/cm³。

关键词: 玻璃陶瓷; 电学性能; 微结构; 击穿强度; 储能密度

中图分类号: TQ171.1

文献标志码: A

Effects of Na₂O content on microstructure and properties of NaO-BaO-SrO-Nb₂O₅-B₂O₃-SiO₂ system glass-ceramics

ZHANG Wen-jun¹, CHEN Guo-hua^{1,2}, ZHOU Chang-rong^{1,2}, JIANG Min-hong^{1,2}, WANG Hua^{1,2}, LIU Xin-yu^{1,2}

(1. School of Materials Science and Engineering, Guilin University of Electronic Technology, Guilin 541004, China;

2. Guangxi Key Laboratory of Information Materials, Guilin University of Electronic Technology, Guilin 541004, China)

Abstract: NaO-BaO-SrO-Nb₂O₅-B₂O₃-SiO₂ glass-ceramics were prepared using melting method. The effects of different Na₂O contents on the phase compositions, microstructure, dielectric properties, volume resistivity and breakdown strength were investigated by differential scanning calorimetry (DSC), X-ray diffractometry (XRD), scanning electric microscopy (SEM) and electrical property measurements. The results show that with increasing Na₂O content, the glass transition temperature (T_g) and the first crystallization peak temperature (T_{p1}) gradually decrease, but the second crystallization peak temperature (T_{p2}) firstly decreases and then increases and finally decreases. Under the same heat treatment condition ((800 °C, 3 h)+(900 °C, 3 h)), the single phase tetragonal tungsten bronze Ba_{0.5}Sr_{0.5}Nb₂O₆ occurs in the sample without Na₂O. The pure phase, Ba_{0.25}Sr_{0.75}Nb₂O₆, is obtained when Na₂O content (mole fraction) is 5%. As Na₂O content (mole fraction) is 10%, the main crystalline phase is still Ba_{0.25}Sr_{0.75}Nb₂O₆, however, the phases of NaSr_{1.2}Ba_{0.8}Nb₅O₁₅ and Na₂Ba₂Si₂O₇ appear. For the sample with 15%Na₂O, the types of the crystalline phases are unchanged, but the intensity of the diffraction peak slightly increases. With increasing Na₂O content, the dielectric constant of glass-ceramics changes like a “N” letter, while the breakdown strength and volume resistivity decrease. The sample without Na₂O has the highest breakdown strength (1 500 kV/cm), and its energy storage density is 3 J/cm³.

Key words: glass-ceramic; electrical properties; microstructure; breakdown strength; energy density

基金项目: 广西信息材料重点实验室基金资助项目(桂科能 0710908-01-Z)

收稿日期: 2010-05-31; 修订日期: 2010-12-30

通信作者: 陈国华, 教授, 博士; 电话: 0773-5601434; 传真: 0773-2191903; E-mail: cgh1682002@163.com; chengh@guet.edu.cn

近年来,高储能密度陶瓷介质材料在全电动军舰和战斗用车辆、电热电磁轨道炮武器、受控激光聚变、大功率能量发生器等国防重大军事科研方面有着潜在的应用前景,日益引起发达国家的广泛关注^[1-2]。制备这类材料的方法通常有烧结法^[3]和微晶玻璃法^[4]两种。SHYU 和 CHEN^[5]采用烧结法制备的 SrO-BaO-Nb₂O₅-SiO₂ 玻璃陶瓷电容器介电常数可达 351,但由于烧结法存在难以消除的气孔缺陷,致使材料的耐击穿强度较低,因此,该类材料实际储能密度上升的空间较小,难以满足大功率脉冲设备对高储能密度介质材料的要求。利用微晶玻璃法制备的玻璃陶瓷具有玻璃态物质的高击穿强度与介电陶瓷体系的高介电常数的双重优势,成为高储能介质材料研究的热点^[6-7]。DU 等^[8]在 Na₂O-PbO-Nb₂O₅-SiO₂ 玻璃体系中,经 850 ℃、3 h 热处理可获得纳米晶 NaNbO₃ 和 PbNb₂O₆ 玻璃陶瓷,其介电常数达 600。LUO 等^[9]基于该体系制备的多层结构电容器的储能密度达 8 J/cm³。CHENG 等^[10]报道了 PbO-BaO-SrO-Nb₂O₅-B₂O₃-SiO₂ 玻璃陶瓷体系,经过 760 ℃、2 h 处理材料的介电常数达 200。这些材料虽然具有较高的介电常数和储能密度,但玻璃组成中含有 PbO 有毒组分,这势必对环境 and 人类造成危害,不符合现代绿色电子制造的要求,无疑会限制其大量应用。LIU 等^[11]进行了以 SrO 替代 PbO 的研究,发现经过适当的热处理,材料的介电常数可达 500,但没有报道材料的击穿强度和储能密度。迄今为止,有关无铅铌酸盐玻璃陶瓷用于高储能密度介质材料的研究尚未见文献报道。

本文作者选择以多元 Na₂O-BaO-SrO-Nb₂O₅-SiO₂-B₂O₃ 无铅玻璃陶瓷体系为研究对象,着重探讨不同 Na₂O 含量对该体系玻璃陶瓷的相组成、微观结构、介电性能及击穿强度的影响。

1 实验

1.1 玻璃陶瓷的制备

制备玻璃所用原料为分析纯 Na₂CO₃(99.80%)、SrCO₃(99.00%)、BaCO₃(99.00%)、Nb₂O₅(99.50%)、SiO₂(99.00%)、H₃BO₃(99.50%)。玻璃的具体组成见表 1。按照配方计算并准确称量制备玻璃配合料。以无水乙醇为介质球磨 6 h,干燥后将配合料放入刚玉坩埚中,在 1 530 ℃下熔融 2~3 h。将熔化好的玻璃液浇注于预热的铜板模具上成型,然后送入预热到 600 ℃的马弗炉内退火处理 10 h 以消除内应力,之后随炉冷却。所得玻璃用切割机加工成尺寸为 10 mm×10 mm×

表 1 原始玻璃的化学组成

Table 1 Chemical composition of original glasses

Sample	Mole fraction/%					
	Na ₂ O	SrO	BaO	Nb ₂ O ₅	SiO ₂	B ₂ O ₃
GC-1	0	22.50	22.50	20.00	30	5
GC-2	5	20.77	20.77	18.46	30	5
GC-3	10	19.04	19.04	16.92	30	5
GC-4	15	17.31	17.31	15.38	30	5

1 mm 的薄片,在预定的热处理制度下处理得到所需的玻璃陶瓷样品。

1.2 性能测试

采用 STA-449-F3-Jupiter 型热分析仪测定玻璃样品的晶化过程,用以确定热处理制度。测试温度范围为 100~1 000 ℃,用 α -Al₂O₃ 做参比物,升温速度为 10 ℃/min。采用德国 Brucker 公司生产的 D8-ADVANCE 型 X 射线衍射仪(Cu K α 辐射线, $\lambda=0.154$ 1 nm)对所制备的样品进行物相分析。热处理后样品经过抛光在 1%HF 溶液中腐蚀 15 s,清洗、干燥、喷金,采用日本生产的 JSM-5610LV 型 SEM 观察样品的微观形貌,扫描加速电压为 20 kV。采用 Aglient 公司的 HP-4292A LCR 阻抗分析仪测量样品的介电性能(室温,测试频率为 1 kHz)。采用上海精密仪器仪表有限公司生产的 ZC46A 型高阻仪测样品的体积电阻率。采用直流磁控溅射镀膜机在圆形样品上下表面喷铂金,然后在铂金表面上涂敷银浆,焙烧制备出电极,用 Marx 高压脉冲源测试样品的击穿强度 E 。

2 结果与讨论

2.1 差热分析

图 1 所示为不同 Na₂O 含量玻璃样品的热分析曲线。由图 1 可知,所有样品均有两个析晶放热峰。随着 Na₂O 含量的增加,玻璃转变温度(T_g)逐渐降低(由 875 ℃降到 770 ℃);第一个析晶放热峰 T_{p1} 也随之向低温移动(由 925 ℃降到 800 ℃)。当 Na₂O 含量由 0 增加到 5%(摩尔分数)时,第二个析晶放热峰温度 T_{p2} 则由 995 ℃降到 930 ℃,当 Na₂O 含量为 10%时, T_{p2} 又增加到 947 ℃,继续增加 Na₂O 含量到 15%时, T_{p2} 温度又下降至 920 ℃。由于析晶放热峰对应于从玻璃中析出不同的晶相,因此,不同 Na₂O 含量势必影响玻璃陶瓷的相组成。前期实验研究发现,该体系玻璃在 1 000 ℃以上热处理时,样品容易发生变形,不适合后

续加工处理及性能测试。为便于比较和分析不同样品的性能, 选择所有样品均在相同的热处理制度下((800 $^{\circ}\text{C}$, 3 h)+(900 $^{\circ}\text{C}$, 3 h))进行热处理。

2.2 X 射线衍射分析

原始玻璃和不同 Na_2O 含量样品经过(800 $^{\circ}\text{C}$, 3 h)+(900 $^{\circ}\text{C}$, 3 h)热处理后的 XRD 谱如图 2 所示。由图 2 可知, 原始玻璃为典型的非晶态。未添加 Na_2O 的样品析出典型四方钨青铜型结构的 $\text{Ba}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{Nb}_2\text{O}_6$ 晶体。当 Na_2O 含量为 5% 时, 晶相变为单一的 $\text{Ba}_{0.25}\text{Sr}_{0.75}\text{-}$

Nb_2O_6 。这可能是添加 Na_2O 促进玻璃的分相, 导致玻璃的组分发生偏聚, 使得有利于富 Sr 的铌酸锶钡晶体析出。当 Na_2O 含量增加到 10% 时, 样品中主晶相仍为 $\text{Ba}_{0.25}\text{Sr}_{0.75}\text{Nb}_2\text{O}_6$, 但同时析出 $\text{NaSr}_{1.2}\text{Ba}_{0.8}\text{-Nb}_5\text{O}_{15}$ 和 $\text{Na}_2\text{Ba}_2\text{Si}_2\text{O}_7$ 相, 这也验证了 Na_2O 导致玻璃的组分发生偏聚的事实。当 Na_2O 含量为 15% 时, 晶相的种类保持不变, 但晶体的衍射峰强度有所增加, 意味着析出较多数量的晶体。过高的 Na_2O 含量($\geq 10\%$)使得样品析出非铁电相 $\text{Na}_2\text{Ba}_2\text{Si}_2\text{O}_7$, 这会影响样品的介电常数和击穿强度。

2.3 介电常数分析

图 3 所示为经(800 $^{\circ}\text{C}$, 3 h)+(900 $^{\circ}\text{C}$, 3 h)热处理的玻璃陶瓷样品的介电常数随 Na_2O 含量的变化(室温和 1 kHz 频率下测试)。从图 3 可知, 随 Na_2O 含量增加, 介电常数呈“N”字形变化。当 Na_2O 含量为 5% 时, 介电常数达到最大值 45。其原因主要为添加 5% Na_2O 样品中析出纯的 $\text{Ba}_{0.25}\text{Sr}_{0.75}\text{Nb}_2\text{O}_6$ 晶相(见图 2), 虽然此时 $\text{Ba}_{0.25}\text{Sr}_{0.75}\text{Nb}_2\text{O}_6$ 晶相衍射强度并不高, 但相对于 $\text{Ba}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{Nb}_2\text{O}_6$ 而言, 析出的 $\text{Ba}_{0.25}\text{Sr}_{0.75}\text{Nb}_2\text{O}_6$ 晶体具有较大的介电常数^[12], 因此总的结果使得介电常数增加。当 Na_2O 含量增至 10% 时, 由于非铁电相 $\text{Na}_2\text{Ba}_2\text{Si}_2\text{O}_7$ 的析出(见图 2), 导致介电常数下降。 Na_2O 含量继续增加达到 15% 时, 虽然析出晶体种类保持不变, 但衍射强度有所增加, 意味着铁电相的数量相对增加, 使得介电常数又有所增加。

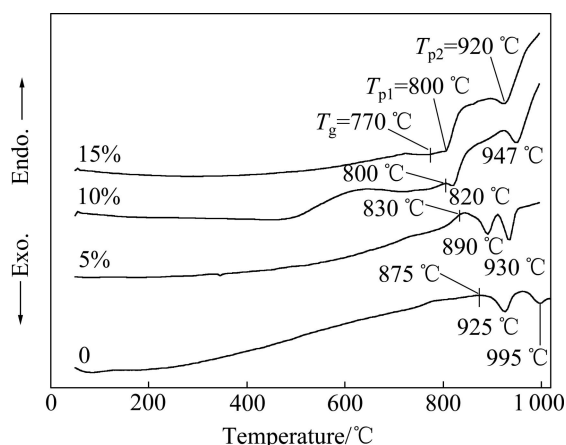


图 1 升温速度为 10 $^{\circ}\text{C}/\text{min}$ 时不同 Na_2O 含量玻璃 DSC 曲线

Fig.1 DSC curves of glass samples with various Na_2O contents at heating rate of 10 $^{\circ}\text{C}/\text{min}$

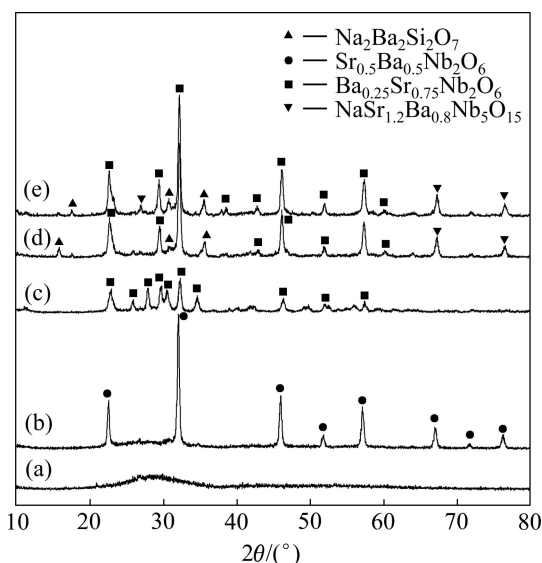


图 2 经(800 $^{\circ}\text{C}$, 3 h)+(900 $^{\circ}\text{C}$, 3 h)热处理后样品的 XRD 谱
Fig.2 XRD patterns of samples after heated at (800 $^{\circ}\text{C}$, 3 h)+(900 $^{\circ}\text{C}$, 3 h): (a) Original glass; (b) 0; (c) 5%; (d) 10%; (e) 15%

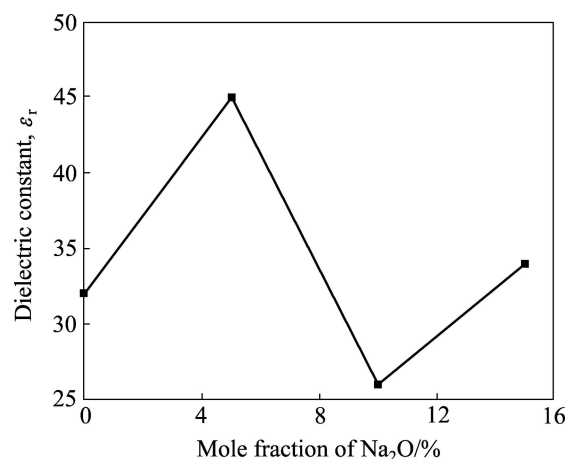


图 3 样品的介电常数随 Na_2O 含量的变化

Fig.3 Dielectric constant of samples as function of Na_2O contents

2.4 扫描电镜分析

图 4 所示为经(800 $^{\circ}\text{C}$, 3 h)+(900 $^{\circ}\text{C}$, 3 h)热处理后各样品的 SEM 像。由图 4 可见, 所有样品均呈致

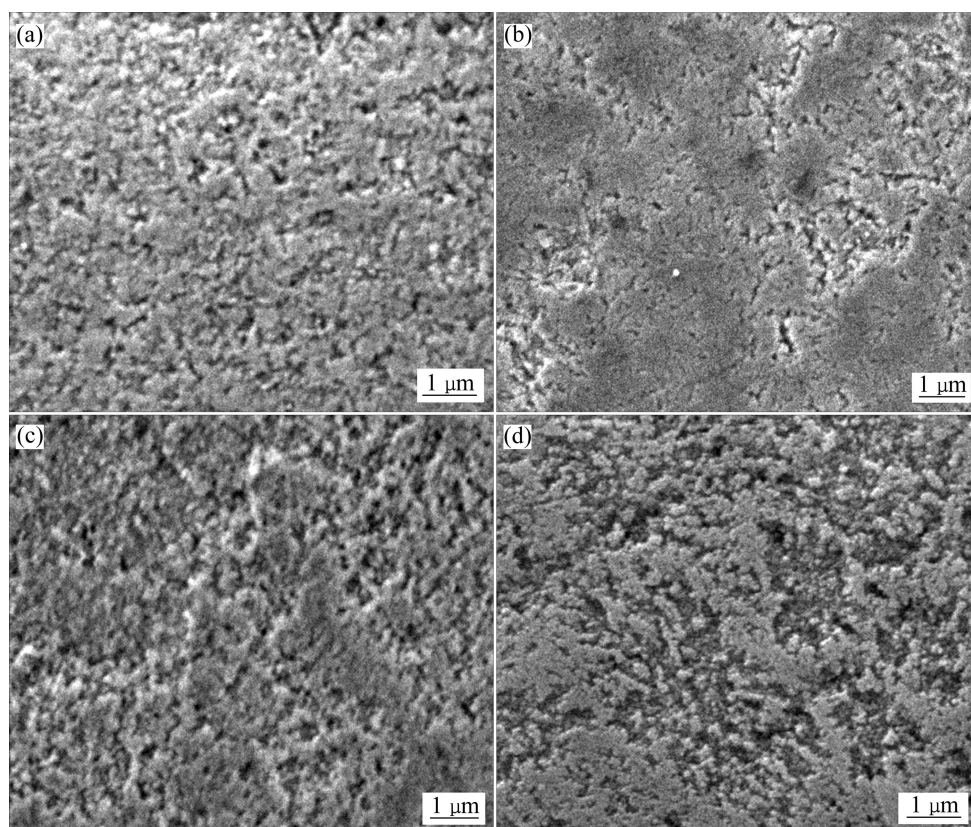


图 4 不同 Na_2O 含量玻璃陶瓷试样的 SEM 像

Fig.4 SEM images of glass-ceramics with different Na_2O contents: (a) 0; (b) 5%; (c) 10%; (d) 15%

密的显微组织结构。未添加 Na_2O 样品晶粒约为 338 nm, 析出的纳米晶体均匀分布在玻璃基体中。添加 5% Na_2O 的样品晶粒变得细小(约 222 nm)。继续增加 Na_2O 含量晶粒尺寸逐渐长大(260~280 nm)。利用 Jade 软件采用 Hall 法计算出各样品晶粒尺寸如下: 未添加 Na_2O 样品的晶粒尺寸为 328 nm; 添加 5%、10% 和 15% 的样品的晶粒尺寸分别为 212 nm、267 nm 和 284 nm。可见, 与 SEM 照片估算出的晶粒大小和计算出的非常吻合。可以认为, 添加少量 Na_2O 能够促进 $\text{Ba}_{0.25}\text{Sr}_{0.75}\text{Nb}_2\text{O}_6$ 的析晶, 细化晶粒尺寸(约 200 nm), 但过多的 Na_2O 导致 $\text{Ba}_{0.27}\text{Sr}_{0.75}\text{Nb}_2\text{O}_6$ 晶粒的长大, 且分布不均匀, 同时析出非铁电晶相, 这不利于击穿强度的提高。

2.5 体积电阻率

不同 Na_2O 含量玻璃陶瓷样品的体积电阻率如图 5 所示。由图 5 可看出, 体积电阻率(数量级为 10^7)随着 Na_2O 含量增加而明显降低, 这与 $\text{Na}_2\text{O}-\text{Al}_2\text{O}_3-\text{SiO}_2$ 系统霞石微晶玻璃的体积电阻率数量级相当^[13]。说明材料的离子电导率随 Na_2O 含量增加而增加。这是由于在含有碱金属离子的玻璃中, 基本上表现为离子电

导。而电导率与碱金属离子浓度有直线关系, 到一定限度时, 电导率指数增长。在本研究的体系中, 由于析出晶体数量较少, 主要还是玻璃相为主, 因此 Na^+ 浓度的增加显然会增加电导载流子数。继续增加 Na_2O 含量(增加 Na^+), 必然使玻璃结构进一步松散, 导致活化能降低, 电导率上升(体积电阻率下降), 这必然会恶化材料的击穿强度^[14]。

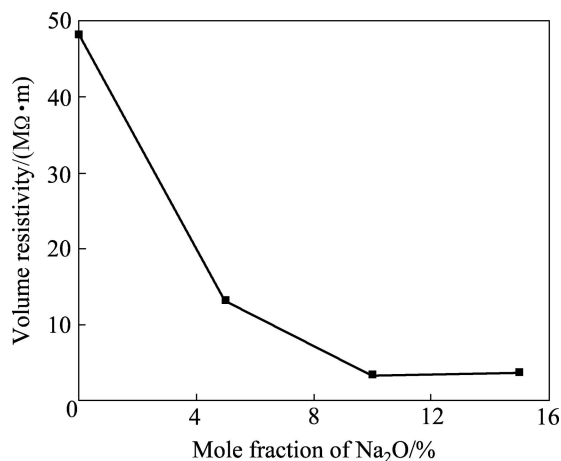


图 5 样品体积电阻率随 Na_2O 含量的变化

Fig.5 Volume resistivity of samples as function of Na_2O contents

2.6 击穿强度和储能密度

图 6 所示为不同 Na₂O 含量玻璃陶瓷样品的击穿强度。从图 6 可知, 击穿强度随 Na₂O 含量的增加而下降。未添加 Na₂O 样品击穿强度最大可达 1 500 kV/cm, 显然玻璃组成对击穿强度影响很大。根据电化学击穿原理^[15], 电化学击穿与玻璃电导率大小有关, 由于在外电场作用下, Na⁺向阴极方向运动的结果使阳极附近 Na⁺减少, 而电阻增加, 电解前, 原来电位分布是均匀的, 但在电解后大部分电压降低, 在电阻率比较大的阳极附近可能超过玻璃的抗电强度, 而导致击穿。可见, Na⁺含量越多击穿效应越明显, 这与样品体积电阻率的变化相符合(见图 5)。

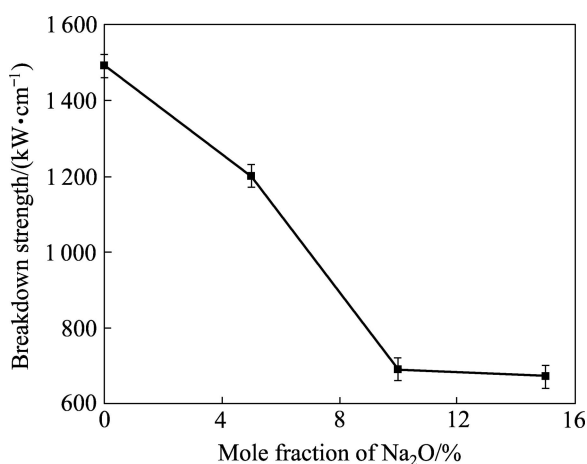


图 6 试样击穿强度随 Na₂O 含量的变化

Fig.6 Breakdown strength of samples as function of Na₂O contents

介质材料的储能密度可用公式 $D = \frac{1}{2} \epsilon_0 \epsilon_r E^2$ 来计算^[16]。式中: D 为储能密度, J/cm³; ϵ_0 为真空介电常数, 8.854×10^{-12} F/m; ϵ_r 为相对介电常数; E 为击穿强度, kV/cm。

各玻璃陶瓷样品的储能密度如表 2 所列。从表 2 中可看出, 随着 Na₂O 含量的增加, 样品的储能密度

表 2 不同 Na₂O 含量玻璃陶瓷样品能量储存密度

Table 2 Energy storage density of glass-ceramics with different Na₂O contents

Sample	Mole fraction of Na ₂ O/%	Energy storage density/(J·cm ⁻³)
GC-1	0	3.0
GC-2	5	2.8
GC-3	10	0.5
GC-4	15	0.6

呈减小趋势。当 Na₂O 含量超过 5% 时, 储能密度明显降低。由式(1)可知, 储能密度取决于介电常数和击穿强度。本实验各样品的介电常数差别不算太大, 属于同一数量级, 但耐击穿强度随 Na₂O 含量的变化差别很大, 尤其是 Na₂O 含量超过 5% 时更为显著。因此, 击穿强度是决定样品的储能密度的主要因素。

3 结论

1) 随着 Na₂O 含量的增加, 玻璃转变温度(T_g)和第一析晶放热峰(T_{p1})温度逐渐降低, 而第二析晶放热峰温度(T_{p2})呈先降低后升高再降低的变化。

2) 添加 Na₂O 影响了析出晶体的类型, 未添加 Na₂O 样品析出 Ba_{0.5}Sr_{0.5}Nb₂O₆ 单相, Na₂O 含量为 5% 时 Ba_{0.25}Sr_{0.75}Nb₂O₆ 成为主相; 当 Na₂O 含量大于 10% 时, 主晶相仍为 Ba_{0.25}Sr_{0.75}Nb₂O₆, 但出现 NaSr_{1.2}Ba_{0.8}Nb₅O₁₅ 和 Na₂Ba₂Si₂O₇ 相。

3) 介电常数随 Na₂O 含量增加呈“N”字形变化。Na₂O 含量为 5% 时玻璃陶瓷样品的介电常数最大达 48。体积电阻率和击穿强度均随 Na₂O 含量增加而下降。未添加 Na₂O 样品经过(800 °C, 3 h)+(900 °C, 3 h)热处理后具有最大的击穿强度 1 500 kV/cm, 其储能密度为 3.0 J/cm³。

REFERENCES

- [1] GORZKOWSKI E P, PAN M J, BENDER B, WU C C M. Glass-ceramics of barium strontium titanate for high energy density capacitors[J]. J Electroceram, 2007, 18(3/4): 269–276.
- [2] ZHANG Q M, WANG L, LUN J, TANG Q, DU J. Improved energy storage density in barium strontium titanate by addition of BaO-SiO₂-B₂O₃ glass[J]. J Am Ceram Soc, 2009, 92(8): 1871–1873.
- [3] 成 钧, 陈国华, 刘心宇, 徐华蕊. 氧化铈对 CaO-Al₂O₃-SiO₂ 系微晶玻璃烧结和性能的影响[J]. 中国有色金属学报, 2010, 20(3): 534–539.
- CHENG Jun, CHEN Guo-hua, LIU Xin-yu, XU Hua-rui. Effect of ceria on sintering and properties of CaO-Al₂O₃-SiO₂ system glass-ceramics[J]. The Chinese Journal of Nonferrous Metals, 2010, 20(3): 534–539.
- [4] CHEN J C, ZHANG Y, DENG C S, DAI X M. Improvement in the microstructures and dielectric properties of barium strontium titanate glass-ceramics by AlF₃/MnO₂ addition[J]. J Am Ceram Soc, 2009, 92(8): 863–866.
- [5] SHYU J J, CHEN C H. Sinterable ferroelectric glass-ceramics containing (Sr, Ba)Nb₂O₆ crystals[J]. Ceram Int, 2003, 29(4):

- 447–453.
- [6] CHU B, ZHOU X, REN K, NEESE B, LIN M, WANG Q, BAUER F, ZHANG Q M. A dielectric polymer with electric energy density and fast discharge speed[J]. *Science*, 2006, 313(5785): 334–336.
- [7] GRACA M P F, FERREIRA DA SILVA M G, SOMBRA A S B, VALENTE M A. Electric and dielectric properties of $\text{SiO}_2\text{-Na}_2\text{O-Nb}_2\text{O}_5$ glass subject to a controlled heat-treatment process[J]. *Physica B*, 2007, 396(1/2): 62–69.
- [8] DU J, BETH J, LANAGAN M. Preparation and characterization of dielectric glass-ceramics in $\text{Na}_2\text{O-PbO-Nb}_2\text{O}_5\text{-SiO}_2$ system[J]. *Mater Lett*, 2005, 59(22): 2821–2826.
- [9] LUO J, DU J, TANG Q, MAO C H. Lead sodium niobate glass-ceramic dielectric and internal electrode structure for high energy storage density capacitors[J]. *IEEE Trans Electron Devices*, 2008, 55(12): 3549–3554.
- [10] CHENG C T, LANAGAN M, BETH J. Crystallization kinetics and phase development of $\text{PbO-BaO-SrO-Nb}_2\text{O}_5\text{-B}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ -based glass-ceramics[J]. *J Am Ceram Soc*, 2005, 88(11): 3037–3042.
- [11] LIU W, MAO C H, DONG G X, DU J. Effects of PbO and SrO contents on crystallization and dielectric properties of $\text{PbO-SrO-Na}_2\text{O-Nb}_2\text{O}_5\text{-SiO}_2$ glass-ceramics system[J]. *Ceram Int*, 2009, 35(3): 1261–1265.
- [12] QU Y Q, LI A D, SHAO Q Y, TANG Y F, WU D, MAK C L, WONG K H, MING N B. Structure and electrical properties of strontium barium niobate ceramics[J]. *Mater Res Bull*, 2002, 37(3): 503–513.
- [13] 刘小波, 李白雅, 肖秋国, 付勇坚. 热处理过程对 $\text{Na}_2\text{O-Al}_2\text{O-SiO}_2$ 系统霞石微晶玻璃电阻率影响的研究[J]. *功能材料*, 1997, 28(5): 526–528.
- LIU Xiao-bo, LI Bai-ya, XIAO Qiu-guo, FU Yong-jian. Research for the effect of heat treatment process on the resistivity of $\text{Na}_2\text{O-Al}_2\text{O-SiO}_2$ nepheline glass-ceramics[J]. *Functional Materials*, 1997, 28(5): 526–528.
- [14] KINGERY W D, BOWEN H K, UHLMANN D R. Introduction to ceramics[M]. Singapore: John Wiley and Sons, 1976.
- [15] VERMEER J. On the relation between ionic conductivity and breakdown strength of glass[J]. *Physica*, 1956, 22(6/12): 1269–1278.
- [16] SCHNEUWLY A, GRONING P, SCHLAPBACH L, IRRGANG C, VOGT J. Breakdown behavior of oil-impregnated polypropylene as dielectric in film capacitors[J]. *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, 1998, 5(6): 862–868.

(编辑 李艳红)