

Nd 掺杂 $K_{0.53}Na_{0.47}NbO_3$ 基无铅压电陶瓷的结构和性能

刘绍军^{1,2}, 王鹏飞², 万冰冰², 马清²

(1. 中南大学 粉末冶金国家重点实验室, 长沙 410083;

2. 哈尔滨工业大学 深圳研究生院 材料科学与工程学科部, 深圳 518055)

摘要: 采用固相反应合成法制备稀土 Nd 掺杂 $0.942(Na_{0.53}K_{0.47})NbO_3-0.058LiNbO_3(KNNLN)$ 无铅压电陶瓷。采用 XRD、红外和拉曼等方法对其结构进行表征, 并测试其介电性能。结果表明: 掺杂稀土 Nd 能够有效地固溶到 KNNLN 基体中; Nd 掺杂通过 Nb 位替代而扰乱了 Nb—O₆ 键并使得其强度变弱, 进而导致 KNNLN 样品的相结构变化。Nd 掺杂量在 1%~2% 时, 样品中出现了四方相和立方相共存区; 随着 Nd 掺杂量的进一步增加, KNNLN 的晶体结构发生从四方和斜方相共存向四方和立方相共存的连续变化; 稀土 Nd 掺杂能够明显地提高样品的室温介电常数并在一定程度上降低 KNNLN 基陶瓷的室温介电损耗。2%Nd 掺杂 KNNLN 压电陶瓷样品的压电系数 d_{33} 和介电常数 ϵ_r 值分别约为 128 pC/N 和 694。相比之下, 未掺杂 KNNLN 压电陶瓷的 d_{33} 和 ϵ_r 值分别约为 87 pC/N 和 545。

关键词: Nd; 铌酸钠钾; 无铅压电陶瓷; 压电性能

中图分类号: TM282 **文献标志码:** A

Structural and electrical properties of Nd doped $K_{0.53}Na_{0.47}NbO_3$ based lead-free piezoceramics

LIU Shao-jun^{1,2}, WANG Peng-fei², WAN Bing-bing², MA Qing²

(1. State Key Laboratory for Powder Metallurgy, Central South University, Changsha 410083, China;

2. Division of Materials Science and Engineering, Shenzhen Graduate School, Harbin Institute of Technology, Shenzhen 518055, China)

Abstract: The Nd doped $0.942(Na_{0.53}K_{0.47})NbO_3-0.058LiNbO_3$ (KNNLN) lead-free piezoceramics were prepared by the solid reaction method. The structure, phase transition and electrical properties were studied by XRD, infrared spectra and Raman spectra. The results show that the single phase perovskite is dominant in these samples. The continuous change of the bond of NbO₆ is closely related to B-site Nd substitution in KNNLN. The successive phase transitions from tetragonal to orthorhombic, and then to cubic are observed in Nd doped KNNLN ceramics. The piezoelectric constant (d_{33}) and dielectric constant (ϵ_r) are significantly improved by Nd doping due to the appearance of phase coexistence zone. The highest d_{33} of 128 pC/N appears in 2% Nd doped ceramics and its dielectric constant ϵ_r is 694. In contrast, the values of d_{33} and ϵ_r of undoped KNNLN are 87 pC/N and 545, respectively.

Key words: Nd; $K_{0.5}Na_{0.5}NbO_3$; lead-free piezoceramics; piezoelectric property

铅基压电陶瓷具有优异的介电和压电性能、易掺杂改性、稳定性好等特点以及很宽的工作温度范围(−50~150 ℃), 一直是各类传感器、微电机和超声换能器中的核心材料^[1-3], 但以 Pb(Zr, Ti)O₃ 为代表的铅基

压电陶瓷主要成分 Pb 为有毒物质, 会给环境带来严重危害。因此, 寻找环境友好的无铅压电陶瓷材料已成为材料学和凝聚态物理的研究热点。(K, Na)NbO₃(KNN)基无铅压电陶瓷是目前最受关注的体系之一^[4-6]。

基金项目: 教育部归国留学人员启动基金资助项目; 哈尔滨工业大学科研创新基金资助项目

收稿日期: 2011-07-26; **修订日期:** 2011-12-12

通信作者: 刘绍军, 副教授, 博士; 电话: 0755-26032046; E-mail: shaojunliu@gmail.com

现在已清楚, 不同于 $Pb(Zr, Ti)O_3$ 基压电陶瓷压电性能的提高与相组织边界(MPB)密切相关, KNN 无铅压电陶瓷压电性能的提高是与斜方相和四方相两相共存区的出现及其室温附近的移动密切相关^[7]。但采用传统陶瓷工艺制备的 KNN 陶瓷烧结密度较低且其压电常数(d_{33})和机电耦合系数(k_p)仅为 80 pC/N 和 0.36, 因而限制了其商业应用。此外, KNN 中包含易挥发的 Na 和 K, 两者在高温烧结过程中的挥发导致化学计量比偏离及杂相的产生, 使得研究和控制其结构和性能变得十分困难^[8-9]。尽管采用反应模板晶粒生长法制备的组织型 Li、Ta 和 Sb 共掺杂 KNN 基无铅压电陶瓷具有与商用压电陶瓷相媲美的性能^[10]。然而, 其工艺过程的复杂性成为其工业化生产的最大障碍。因此, 采用传统陶瓷技术, 通过掺杂改性来制备高性能的 KNN 基无铅压电陶瓷依旧是目前主要的研究方向。

针对 KNN 陶瓷烧结性差和压电性能偏低的特点, 通过 A 位或 B 位掺杂, 调控 KNN 中 Na 和 K 的比例, 以及添加烧结助剂都可以显著提高 KNN 基无铅压电陶瓷的主要性能。例如, GUO 等^[11]报道了 Li 和 Ta 掺杂使得 KNN 陶瓷的烧结特性和压电性能获得了大幅改善。SAITO 等^[10]报道了采用 Li^+ 、 Ta^{5+} 和 Sb^{5+} 对 KNN 基无铅压电陶瓷的 A 位和 B 位进行共掺杂, 其 d_{33} 可达到 300 pC/N。LIU 等^[12]已发现了极细微的化学计量比变化对 KNN 基无铅压电陶瓷结构和压电性能的显著影响。除了以上掺杂剂, 稀土氧化物掺杂也能够显著地改善铅基压电陶瓷的结构和压电性能^[13-14]。稀土氧化物一直被广泛应用于 $BaTiO_3$ (BT)和 $SrTiO_3$ (ST)陶瓷的掺杂改性, 其掺杂改性是通过对 BT 晶粒中的壳核结构及其体积分数的变化来实现^[15]。然而, 相关研究在 KNN 基无铅压电陶瓷领域还鲜有报道。本文作者以稀土氧化物(Nd_2O_3)为例, 研究其对 0.942($Na_{0.53}K_{0.47}$) NbO_3 -0.058LiNbO₃(KNNLN)陶瓷的相结构、两相共存区以及介电和压电性能的影响。

1 实验

样品制备采用传统的陶瓷过程工艺。将纯度(质量分数)大于 99%的 K_2CO_3 、 Na_2CO_3 、 Li_2CO_3 、 Nd_2O_3 和 Nb_2O_5 粉末按照化学配比 0.942($Na_{0.53}K_{0.47}$) NbO_3 -0.058LiNbO₃- xNd_2O_3 ($x=0, 0.1\%, 0.5\%, 1\%, 2\%, 4\%$)称量后放入陶瓷罐中, 加入二氧化锆磨球和无水酒精一起在轻型球磨机中进行机械混合, 混料时间为 24 h。混好的样品进行烘干并在 750 °C 焙烧 3 h。随后,

重复以上过程后, 将所得培烧产物在 250 MPa 下压制成圆形柱状样品并在 1 080 °C 下烧结 3 h。升温速率均为 5 °C/min。采用测量体积及质量的方法计算烧结密度。

样品在材料表征和性能测试前都用砂纸把表面抛光。采用 Aglient E4980A LCR 阻抗仪测量表面镀银样品的介电常数和介电损耗($\tan \delta$)。介电常数随温度变化曲线的测量是在具有程序控制的高温炉中进行。压电常数 d_{33} 测试采用中科院声学研究所的 ZJ-3A 型压电常数仪测量。测量前, 样品在 130 °C 的硅油中采用 30kV/cm 的直流电压进行极化。晶体结构的测定采用高分辨 X 射线衍射仪(D/max 2500PC, Rigaku), 扫描速度和步进分别为 1 (°)/min 和 0.02°, 扫描范围 2θ 为 10°~90°。样品的微观结构表征使用 Hitachi S-4700 场发射扫描电子显微镜。采用傅里叶变换红外分析仪(Nicolet 380, Thermo)对粉末样品进行红外光谱测试, 测量波数范围从 4 000 cm^{-1} 到 400 cm^{-1} 。以 514.5 nm 的氩离子蓝光作为光源, 采用拉曼分析仪(Renishaw InVia Reflex)测试粉末样品的拉曼光谱, 扫描波数范围为 1 000~100 cm^{-1} 。

2 结果与讨论

2.1 XRD 谱

图 1(a)所示为具有不同 Nd 掺杂含量的 KNNLN 样品 XRD 谱。图 1(b)所示为图 1(a)中在 $2\theta=45^\circ\sim 60^\circ$ 区间附近的衍射峰放大图。与以前的报道相一致^[12], 未掺杂 KNNLN 陶瓷中为四方相和斜方相两相共存(见图 1(a))。由于 Nd^{5+} 和 Nb^{5+} 的离子半径分别为 0.69 Å 和 1.04 Å^[16], 随着 Nd 掺杂量的增加, XRD 谱的衍射峰向高角度方向移动。同时, 当 Nd 含量增加到 4%时, 没有杂质相的衍射峰出现, 这表明稀土元素 Nd 已完全固溶到 KNN 陶瓷晶格中且其固溶度大于 4%。目前, 对于铌酸钾钠基压电陶瓷的相结构分析还没有形成统一认识, 但通常可通过观察 XRD 谱中 $2\theta=45^\circ$ 附近衍射峰的相对高低来判断^[17]。由图 1(b)可见, 微量 Nd 的掺杂对 KNNLN 晶体结构有十分显著的影响, 其晶体结构随 Nd 掺杂量的增加而发生明显的变化。在掺杂量低于 2%的范围内, $2\theta=45^\circ$ 附近的衍射峰的劈裂峰由前高后低逐渐演变为前低后高。以前的研究表明^[17], 在 $2\theta=45^\circ$ 衍射峰附近, 斜方相的衍射峰具有前高后低的特征, 而四方相的衍射峰则具有前低后高的特征。需要说明的是, 在所有 KNNLN 陶瓷样品中都没有观察到单一的四方或斜方相。因此, 0.1%和 0.5%

Nd 掺杂使得 KNNLN 陶瓷由以斜方相占优而转变为以四方相占优。当 Nd 掺杂量高于 1% 时, 在 2θ 为 45° 、 52° 和 57° 附近的衍射峰的劈裂峰逐渐消失, 这在 $2\theta=57^\circ$ 附近更为明显。结合以下红外光谱和拉曼光谱的结果可以显示, KNNLN 基压电陶瓷随着 Nd 掺杂量的增加而逐渐向立方相转变。4% 的 Nd 掺杂量使得其向立方相的转变基本完成。由此可以判断, Nd 掺杂使得 KNNLN 陶瓷的晶体结构从四方和斜方相共存向四方和立方相共存发生连续的变化。尽管有待进一步的试验证明, 但可以推测这样的晶体结构变化与 Nd 在 KNN 晶格中固溶量的增加所导致的晶格变化密切相关。

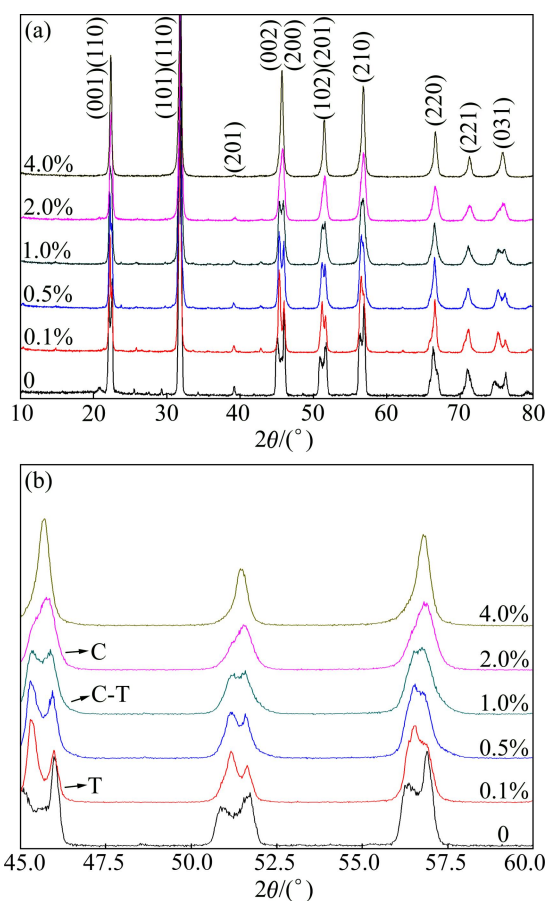


图 1 KNNLN 陶瓷经过 $1\ 080\ ^\circ\text{C}$ 烧结保温 3 h 后样品的 XRD 谱

Fig. 1 XRD patterns of KNNLN samples calcined at $1\ 080\ ^\circ\text{C}$ for 3 h: (a) Samples with different $x(\text{Nd}_2\text{O}_3)$; (b) Enlarged XRD patterns

2.2 红外光谱和拉曼光谱图

红外光谱通过检测物质吸收的特性峰来鉴别相应键的变化以反映其内部晶体结构的变化。拉曼光谱是一种对固态相结构的变化十分敏感的工具, 它可通过

检测物质反射的特征峰来鉴别相应价键的变化^[12]。图 2(a)所示为 Nd 掺杂 KNNLN 系列陶瓷粉末样品在 $100\sim 1\ 000\ \text{cm}^{-1}$ 区间的拉曼光谱曲线。其中 A_1 ($265\ \text{cm}^{-1}$)、 A_2 ($625\ \text{cm}^{-1}$) 和 A_3 ($860\ \text{cm}^{-1}$) 峰是 KNN 陶瓷中 NbO_6 八面体在拉曼光谱中的 3 个特定振动模型, 常定义为 ν_1 、 ν_5 、 $\nu_1+\nu_5$ ^[18]。除了两个在 625 和 $265\ \text{cm}^{-1}$ 附近的强峰外, 在 $625\ \text{cm}^{-1}$ 峰低频边附近可以观察到一个明显强度较低的枕肩峰。它是 KNN 陶瓷中的斜方相和四方相的特征枕肩峰^[19]。这个峰在 4%Nd 掺杂的 KNNLN 样品中几乎消失。随着 Nd 掺杂量的增加至 2% 以上, NbO_6 八面体的特征拉曼峰逐渐宽化, 强度降低且向低波数段移动。这是由于掺杂 Nd 固溶到 KNNLN 晶格中的 B 位而形成 Nb 位替代, 导致 KNNLN 晶体结构的有序度降低^[20]。

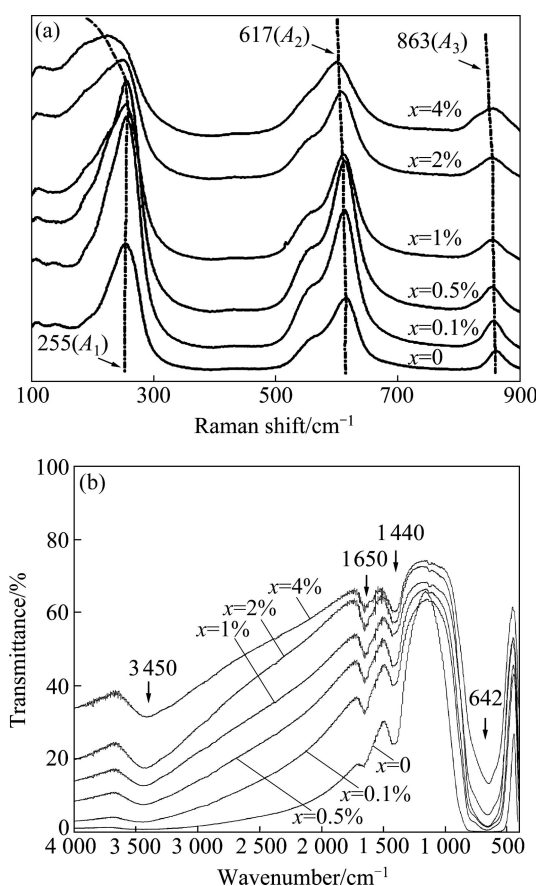


图 2 不同 $x(\text{Nd}_2\text{O}_3)$ 值 KNNLN 样品的拉曼光谱图和红外光谱图

Fig. 2 Raman spectra (a) and FT-IR spectra (b) of samples with different $x(\text{Nd}_2\text{O}_3)$ values

图 2(b)所示为 Nd 掺杂 KNNLN 陶瓷粉末的红外光谱。由图 2(b)可见, 随着 Nd 掺杂量的增加, 各样品的透光率曲线发生明显变化。在 $1\ 700$ 和 $3\ 750\ \text{cm}^{-1}$ 波数处, 与未掺杂陶瓷样品的透光率相比, Nd 掺杂后

KNNLN 陶瓷样品的透光率显著提高, 这样的变化在 Nd 掺杂量大于 1% 的样品中更为显著。这些结果表明, Nd 掺杂扰乱了 Nb—O₆ 键并使得 Nb—O₆ 键的连接强度变弱, 进而导致 KNNLN 陶瓷样品的相结构发生变化。

2.3 烧结密度和 SEM 微观结构

图 3 所示为 Nd 掺杂 KNNLN 陶瓷的相对密度曲线。由图 3 可见, 样品的相对密度随着 Nd 掺杂量的增加而显著增大, 未掺杂样品的密度仅为 3.87 g/cm^3 (其相对密度为 86%), 而 4%Nd 掺杂的 KNNLN 样品的相对密度高达 92%。这表明 Nd 掺杂可以帮助提高 KNN 基压电陶瓷的烧结性能。图 4 所示为不同 Nd 掺杂量 KNNLN 陶瓷样品的横断面 SEM 像。由图 4 可见, 未掺杂陶瓷样品晶粒呈现典型的方块形状, 晶粒尺寸较大且不均匀, 晶粒平均直径在 $2.5\sim 5 \mu\text{m}$ 左右。

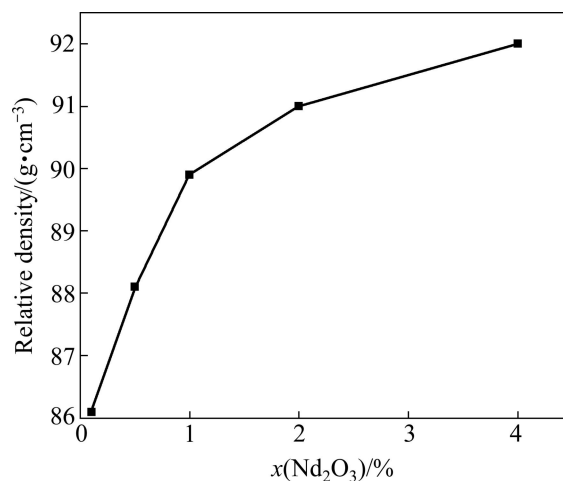


图 3 不同 $x(\text{Nd}_2\text{O}_3)$ 值 KNNLN 样品的相对密度

Fig. 3 Relative density of KNNLN samples with different $x(\text{Nd}_2\text{O}_3)$ values

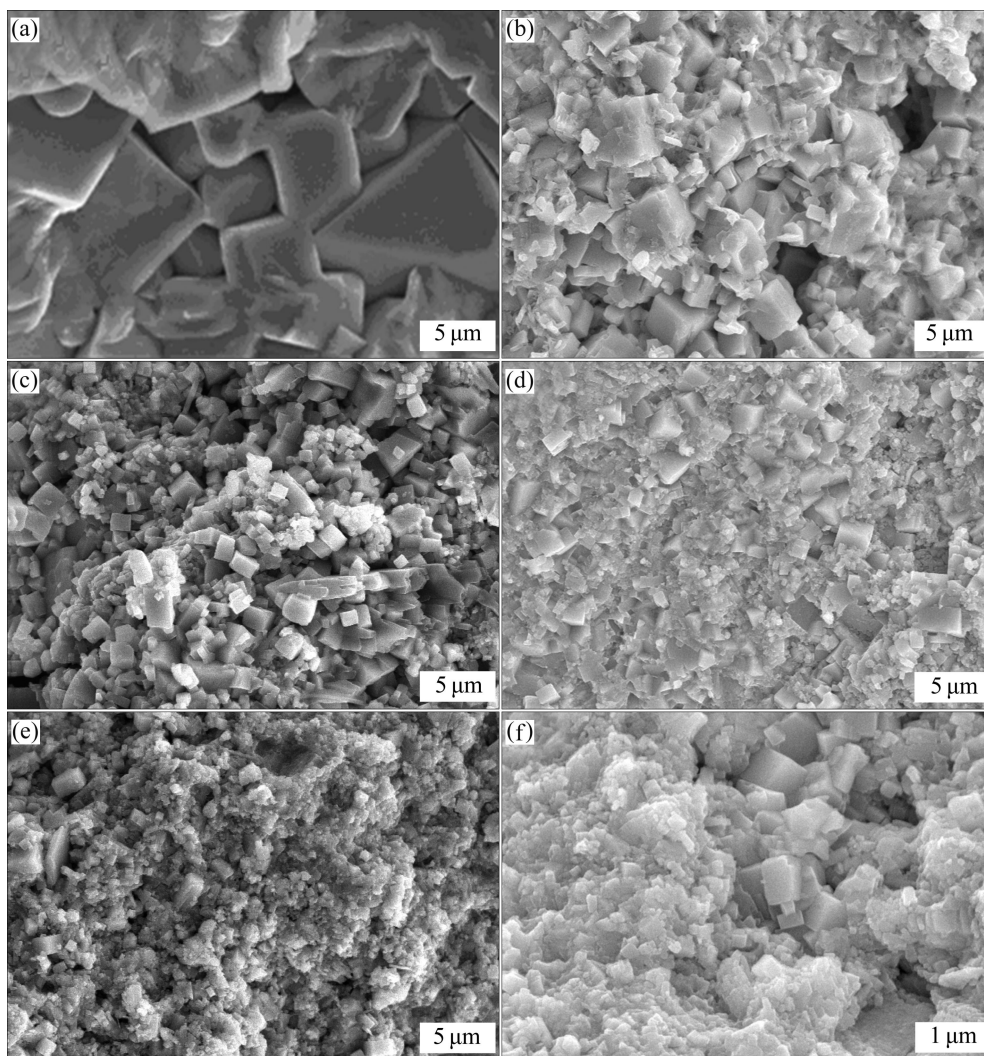


图 4 KNNLN 样品界面的 SEM 像

Fig. 4 SEM images of KNNLN samples with different $x(\text{Nd}_2\text{O}_3)$ values: (a) 0; (b) 0.1%; (c) 0.5%; (d) 1%; (e) 2%; (f) 4%

尽管依旧存在少量的较粗大晶粒, 0.1%Nd 掺杂已显著地减小了晶粒平均尺寸(0.5~1.5 μm)。在 Nd 掺杂量大于 1%的 KNNLN 样品中, 出现了大量的纳米级(< 15 nm)颗粒。

图 5 所示为不同 Nd 掺杂量 KNNLN 样品随温度变化的介电常数曲线。由图 5 可以看出, 不同 Nd 掺杂量 KNNLN 样品在 400~420 $^{\circ}\text{C}$ 之间均存在着一个尖锐的介电常数峰。表 1 进一步概括了从温度-介电常数曲线中得到的介电常数(ϵ_r 和 ϵ_{T-C})、介电损耗(D_r)和居里温度点(t_c)值。对比未掺杂样品的 t_c , 除了 2%Nd 掺杂 KNNLN 样品的 t_c 约为提高外, 其它样品的 t_c 都低于未掺杂样品 t_c , 4%Nd 掺杂 KNNLN 样品的 t_c 仅为 400 $^{\circ}\text{C}$ 。从表 1 可见, 室温介电常数在较大的范围内波动, 其中 1%和 2%Nd 掺杂 KNNLN 样品的介电常数显著提高。显然, 介电常数与晶体结构和显微结构密切相关^[21], 因而 Nd 掺杂样品表现了显著不同的晶体结构和微观结构。图 6 所示为不同 Nd 掺杂量的

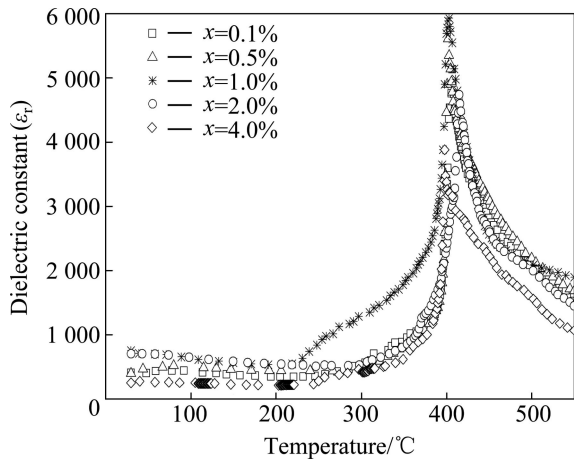


图 5 KNNLN 样品随温度变化的介电常数曲线
Fig. 5 Curves of dielectric constants vs temperature for KNNLN samples with different $x(\text{Nd}_2\text{O}_3)$ values

表 1 Nd 掺杂 KNNLN 陶瓷的介电常数、介电损耗、居里温度点和压电常数 d_{33}

$x(\text{Nd}_2\text{O}_3)/\%$	ϵ_r	ϵ_{T-C}	D_r	$t_c/^{\circ}\text{C}$	d_{33}
0	545	3 830	0.169	412	87
0.1	403	5 133	0.129	405	82
0.5	391	5 608	0.205	406	84
1	749	5 931	0.081	406	93
2	696	4 740	0.144	417	128
4	247	3 870	0.169	400	117

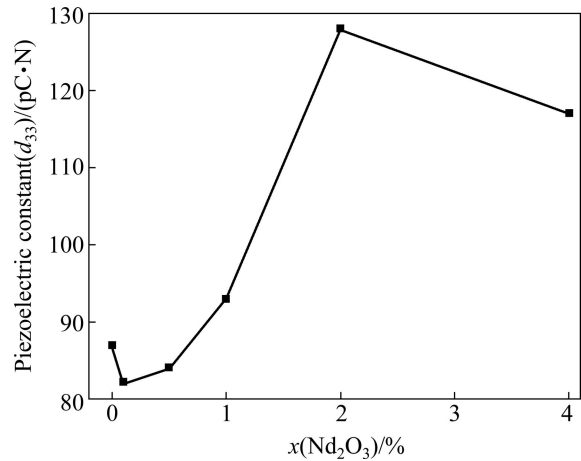


图 6 KNNLN 样品随 $x(\text{Nd}_2\text{O}_3)$ 值变化的 d_{33} 曲线
Fig. 6 Curves of d_{33} vs $x(\text{Nd}_2\text{O}_3)$ values for KNNLN samples

KNNLN 陶瓷压电常数 d_{33} 值。Nd 掺杂量大于 1%时, KNNLN 样品的压电常数 d_{33} 得到提高。掺杂系列压电常数 d_{33} 的最高值出现在 2%Nd 样品处, 约为 128 pC/N。

3 结论

- 1) 随着 Nd 掺杂量的增加, 连续的相转变相继发生, 先由四方-斜方相转变为四方-立方相, 再转变为立方相。
- 2) Nd 掺杂显著地改善了 KNNLN 陶瓷的烧结密度并减小其晶粒尺寸, Nd 掺杂量大于 1%时, KNNLN 陶瓷样品中存在着大量纳米级颗粒。
- 3) Nd 掺杂提高 KNNLN 基压电陶瓷的居里温度, 达到 400 $^{\circ}\text{C}$ 上, 并降低了其室温下的介电损耗; Nd 掺杂同时显著地提高 KNNLN 的压电常数 d_{33} 。2%Nd 掺杂样品的压电常数值约为 128 pC/N, 其室温介电常数 ϵ_r 约为 694。而未掺杂 KNNLN 样品的 d_{33} 和 ϵ_r 分别为 87 pC/N 和 545。

REFERENCES

[1] NOHEDA B, COX D E, SHIRANE G, GONZALO J A, CROSS L E, PARK S E. A monoclinic ferroelectric phase in the $\text{Pb}(\text{Zr}_{1-x}\text{Ti}_x)\text{O}_3$ solid solution [J]. Applied Physics Letters, 1999, 74(14): 2059-2061.

[2] KIAT J M, UESU Y, DKHIL B, MATSUDA M, MALIBERT C, CALVARIN G. Monoclinic structure of undoped morphotropic high piezoelectric PMN-PT and PZN-PT compounds [J]. Physical Review Letters, 2002, 65: 65-102.

- [3] PARK S E, SHROUT T R. Ultrahigh strain and piezoelectric behavior in relaxor based ferroelectric single crystals [J]. *Journal of Applied Physics*, 1997, 82(4): 1804–1811.
- [4] ZHANG S J, LEE H J, MA C, TAN X L. Sintering effect on microstructure and properties of $(K, Na)NbO_3$ ceramics [J]. *Journal of the American Ceramic Society*, 2011, 94: 3659–3665.
- [5] LI Y, MOON K, WONG C P. Electronics without lead [J]. *Science*, 2005, 308(5727): 1419–1420.
- [6] ERLING R, THOM W. Lead-free piezoceramics based on alkali niobates [J]. *Journal of the American Ceramic Society*, 2005, 25(12): 2701–2706.
- [7] DAI Y J, ZHANG X W, ZHOU G Y. Phase transitional behavior in $K_{0.5}Na_{0.5}NbO_3$ - $LiTaO_3$ ceramics [J]. *Appl Phys Lett*, 2007, 90(26): 262903–262905.
- [8] ZHAO P, ZHANG B P, LI J F. High piezoelectric coefficient d_{33} in Li-modified $(K, Na)NbO_3$ lead-free ceramics sintered at optimal temperature [J]. *Applied Physics Letter*, 2007, 90: 242909.
- [9] ZHAO P, ZHANG B P, LI J F. Enhanced dielectric and piezoelectric properties in $LiTaO_3$ -doped lead-free $(K, Na)NbO_3$ ceramics by optimizing sintering temperature [J]. *Scripta Materialia*, 2008, 58: 429–432.
- [10] SAITO Y, TAKAO H, TANI T, NONOYAMA T, TAKATORI K, HOMMA T, NAGAYA T, NAKAMURA M. Lead-free piezoceramics [J]. *Nature*, 2004, 432(7013): 84–87.
- [11] GUO Y, KAKIMOTO K, OHSATO H. Phase transitional behavior and piezoelectric properties of $Na_{0.5}K_{0.5}NbO_3$ - $LiNbO_3$ ceramics [J]. *Applied Physics Letters*, 2004, 85: 4121–4123.
- [12] LIU S J, WAN B B, WANG P F, SONG S H. Influence of A-Site nonstoichiometry on structure and electrical properties of $K_{0.5}Na_{0.5}NbO_3$ based lead-free piezoelectric ceramics [J]. *Scripta Materialia*, 2010, 63(1): 124–127.
- [13] KISHI H, KOHZU N, MIZUNO Y, IGUCHI Y, SUGINO J, OHSATO H, OKUDA T. Effect of occupational sites of rare earth elements on the microstructure in $BaTiO_3$ [J]. *Japan Journal of Applied Physics*, 1999, 38 (9B): 5452–5456.
- [14] MOHR D, CAMARGO A S S, SCHNEIDER J F, QUEIROZ T B, ECKERT H, BOTERO É R, GARCIA D, EIRAS J A. Solid state NMR as a new approach for the structural characterization of rare-earth doped lead lanthanum zirconate titanate laser ceramics [J]. *Solid State Science*, 2008.10(10): 1401–1407.
- [15] HENNING D, ROSENTEIN G. Temperature-stable dielectric based chemically inhomogeneous $BaTiO_3$ [J]. *J. Am. Ceram. Soc.* 1984, 67: 249–254.
- [16] SHANNON R D, PREWITT C T. Effective ionic radii in oxides and fluorides [J]. *Acta Cryst*, 1969, B25:925–946.
- [17] 明保全, 王矜奉, 臧国忠, 王春明, 盖志刚, 杜 鹏, 郑立梅. 铌酸钾钠基无铅压电陶瓷的 X 射线衍射与相变分析[J]. *物理学报*, 2008, 57(9): 5962–5966.
- MING Bao-quan, WANG Jin-feng, ZANG Guo-zhong, WANG Chun-ming, GAI Zhi-gang, DU Juan, ZHENG Li-mei. X-ray diffraction and phase transition analysis for $(K, Na)NbO_3$ -based lead-free piezoelectric ceramics [J]. *Acta Physica Sinica*, 2008, 57(9): 5962–5966.
- [18] LIMA R J C, PARAGUASSU W, FREIRE P T C, SASAKI J M, MELO F E A, FILHO J M, LANFREDI S. Temperature-dependent raman spectra of $K_{0.2}Na_{0.8}NbO_3$ ceramics [J]. *Journal of Raman Spectroscopy*, 2005, 36(1): 28–32.
- [19] KLEIN N, HOLLENSTEIN E, DAMJANOVIC D, TRODAHL H J, SETLER N, KUBALL M. A study of the phase diagram of $(K, Na, Li)NbO_3$ determined by dielectric and piezoelectric measurements, and Raman spectroscopy [J]. *J Appl Phys*, 2007, 102(1): 014112–014119.
- [20] SEO S N, CHO J H, KIM B L, KIM E S. Relationships between crystal structure and electrical properties of $Li_{0.055}[Ag_x(K_{0.5}Nb_{0.5})_{1-x}]_{0.945}(Nb_{1-y}Ta_y)O_3$ ceramics [J]. *Ceramics International*, 2012, 38(s1): s327–s330.
- [21] LIU S J, ZENOU V Y, SUS I, KOTANI T, SCHILFGAARDE M, NEWMAN N. Structure-dielectric property relationship for vanadium-and scandium-doped barium strontium titanate [J]. *Acta Materialia*, 2007, 55(8): 2647–2657.

(编辑 何学锋)