

$K_{0.5}Na_{0.5}NbO_3-xLiNbO_3$ 陶瓷的相转变与压电性能温度稳定性研究

肖荣振^{1,2}, 徐鹏¹, 燕小斌^{1,2}

(1. 兰州理工大学 材料科学与工程学院, 甘肃 兰州 730050;

2. 兰州理工大学 有色金属先进加工与再利用国家重点实验室, 甘肃 兰州 730050)

摘要:采用常规陶瓷工艺制备了 $K_{0.5}Na_{0.5}NbO_3-xLiNbO_3$ (KNN- x LN) 基无铅压电陶瓷。采用介电温度谱结合 XRD 系统研究了铌酸锂(LN)掺杂对 KNN 陶瓷相结构与压电性能温度稳定性的影响规律与机制。结果表明, LN 在 KNN 陶瓷中的固溶度范围内(约小于 10%(摩尔分数)), LN 掺杂具有同时提升 KNN 陶瓷的 T_C 与降低陶瓷 T_{O-T} 的效应。当 LN 的掺杂量(摩尔分数)为 6% 时, 可使陶瓷的 T_{O-T} 下移至室温, 此时陶瓷为正交相与四方相两相共存, 陶瓷的压电性能得到极大增强。 T_C 的提升增强了陶瓷的压电性能温度稳定性, 当 LN 的掺杂量(摩尔分数) $x \sim 8\%$, T_C 增加至 479 °C, 此组分陶瓷的压电性能经 470 °C 热处理后仍保持在室温时的 71%, 表现出良好的温度稳定性。当 LN 超过固溶度后, 部分 LN 倾向于与 K 元素生成第二相, 未反应的 LN 因其强热释电效应导致陶瓷的 d_{33} 呈现出随热处理温度升高而增强的伪增强趋势。

关键词: 铌酸钾钠; 铌酸锂; 相结构; 居里温度; 压电性能温度稳定性

中图分类号: TM282; TN384 **文献标识码:** A

Study on Phase Transitional Behavior and Temperature Stability of Piezoelectric Properties of $K_{0.5}Na_{0.5}NbO_3-xLiNbO_3$ Piezoelectric Ceramics

XIAO Rongzhen^{1,2}, XU Peng¹, YAN Xiaobin^{1,2}

(1. School of Materials Science and Engineering, Lanzhou University of Technology, Lanzhou 730050, China;

2. State Key Laboratory of Advance Processing and Recycling of Non-Ferrous Metals,

Lanzhou University of Technology, Lanzhou 730050, China)

Abstract: In this study, lead-free piezoelectric ceramics, based on the $K_{0.5}Na_{0.5}NbO_3-xLiNbO_3$ (KNN- x LN) system, were fabricated using a conventional method. The influence and mechanism of lithium niobate (LN) doping on the phase structure and temperature-dependent piezoelectric properties of KNN ceramics were meticulously investigated through dielectric temperature spectroscopy and X-ray diffraction (XRD) analysis. Our findings reveal that LN has a solubility limit in KNN of less than 10 mol%. Within this limit, incorporating LN induces a shift in the Curie temperature (T_C) of KNN- x LN ceramics toward higher temperatures, while the transition from orthorhombic to tetragonal phases (T_{O-T}) is pushed to lower temperatures simultaneously. At room temperature, the ceramics exhibit the coexistence of orthorhombic and tetragonal phases, significantly amplifying their piezoelectric performance. An elevated T_C improves the temperature stability of the ceramics' piezoelectric properties; specifically, with an LN doping level of approximately 8 mol%, T_C reaches approximately 479 °C, and the piezoelectric properties of this component ceramic after 470 °C heat treatment remain 71% at room temperature. Beyond the solubility threshold, excess LN is prone to forming a secondary phase with potassium, and the residual LN, influenced by its pronounced pyroelectric effect, results in an apparent increase in the d_{33} coefficient of the ceramics as the heat treatment temperature increases.

Key words: potassium sodium niobate; lithium niobate; phase structure; Curie temperature; temperature stability of piezoelectric properties

收稿日期: 2024-06-16

基金项目: 甘肃省科技计划项目-联合科研基金重点项目(23JRRC0009)

作者简介: 肖荣振(1980-), 男, 湖北省武汉市人, 博士, 副教授。通信作者: 燕小斌(1979-), 男, 博士, 副教授。

0 引言

铌酸钾钠($K_{0.5}Na_{0.5}NbO_3$, KNN)属于 ABO_3 型钙钛矿晶体结构,具有剩余极化强度高($P_s \sim 25 \mu C/cm^2$)、居里温度高($T_c \sim 420 \text{ }^\circ C$)等优点,被认为是最有希望替代铅基压电陶瓷的环境友好型无铅压电陶瓷材料体系,因此受到广泛关注和研究^[1-3]。2004年 Saito 等制备了室温压电常数 d_{33} 高达 416 pC/N 的高性能 KNN 基压电织构陶瓷^[4],此后, KNN 基压电陶瓷的室温压电性能不断增强。已有文献报道的 KNN 基压电陶瓷的室温压电常数 d_{33} 高达 700 pC/N,与纯 KNN 陶瓷压电性能相比(d_{33} 约为 80 pC/N),其室温压电性能获得极大增强,显示出 KNN 基陶瓷的高压电活性^[5]。虽然上述掺杂改性增强了 KNN 基陶瓷室温压电性能,但降低了材料的居里温度,最终限制了材料的实际应用温度范围,并对所制备的器件工作性能温度稳定性造成不利影响。

对 KNN 陶瓷的掺杂改性研究发现,铌酸锂($LiNbO_3$, LN)掺杂可同时提升 KNN 基陶瓷的压电性能与居里温度^[1],因此, LN 组元是高性能、高居里温度 KNN 基无铅压电陶瓷的重要成分之一。目前关于 LN 掺杂 KNN 的研究主要集中在室温下压电性能的增强和相应微观机理的揭示方面^[6-7],但 LN 掺杂量在 KNN 中固溶度范围内对陶瓷居里温度的影响规律,特别是高 LN 掺杂量对 KNN 陶瓷室温压电性能及其温度稳定性的影响规律,以及相应微观机制的系统研究则鲜有报道。除了室温压电性能参数, KNN 基压电陶瓷的居里温度与性能温度稳定性两个参数也是决定材料能否在服役环境中得到实际应用的关键参数^[8-10]。

本文拟采用固相合成反应与常压烧结工艺制备 LN 掺杂的 KNN 基无铅压电陶瓷材料。采用介电常数温度谱结合 X 线衍射仪(XRD)系统研究了 LN 掺杂量对 KNN 陶瓷的室温与高温相结构转变的影响规律、LN 掺杂对 KNN 陶瓷室温压电性能及温度稳定性的影响规律,揭示微观机制,为高性能温度稳定性 KNN 基环境友好型无铅压电陶瓷材料配方设计、促进 KNN 基无铅压电陶瓷的实际应用奠定相应的材料和理论基础。

1 实验

1.1 KNN-xLN 陶瓷的制备

采用固相合成反应与常压烧结工艺制备 $K_{0.5}Na_{0.5}NbO_3-xLiNbO_3$ (KNN-xLN) 陶瓷,其中摩尔分数 $x = 0 \sim 30\%$ 。陶瓷以分析纯的 Na_2CO_3 (阿拉丁试剂,下同)、 K_2CO_3 、 Li_2CO_3 、 Nb_2O_5 为原料,于 $850 \text{ }^\circ C$ 下 4 h 分别独立合成 KNN 与 LN 粉体。将两种粉体按照设计的化学计量比进行准确称量配料,然后在尼龙罐中以氧化铝球和分析纯无水乙醇为介质混料细化球磨 24 h,混合料烘干后加入 6% PVA 造粒;将造粒后的粉体干压成直径 $\varnothing 12 \text{ mm}$ 圆片试样,排胶后的试样在空气气氛中于 $1060 \sim 1100 \text{ }^\circ C$ 下 2 h 保温烧结成瓷,试样再经打磨、烧渗银电极后,置于 $100 \text{ }^\circ C$ 硅油中施加 5 kV/mm 电压直流极化 20~30 min,极化后的试样放置 24 h 后进行压电常数测试。

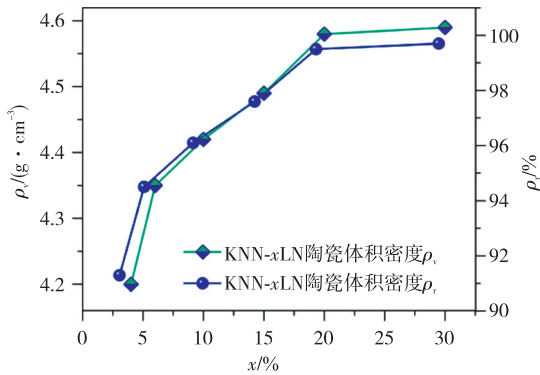
1.2 KNN-xLN 陶瓷的表征

采用德国布鲁克公司的 D8-ADVANCE 型 XRD 对陶瓷试样的相结构进行表征和分析。采用英国稳科 WK6500B 型精密阻抗分析仪和佰力博介电温度控制系统对陶瓷试样的介电常数温度谱进行测试与表征。采用咸阳惠远自动化设备有限公司 HYJH-4-5 型直流极化设备对烧渗银电极后的陶瓷试样进行直流极化。采用中国科学院声学研究所的 ZJ-4AN 型准静态 d_{33} 测量仪测量极化后陶瓷试样的压电常数 d_{33} 。

2 结果与讨论

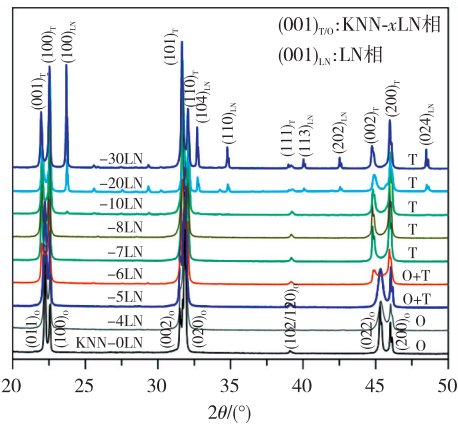
2.1 铌酸锂掺杂对 KNN 陶瓷烧结性能的影响

图 1 为 KNN-xLN 陶瓷的体积密度随 LN 掺杂量的变化趋势。由图可见,当 LN 的掺杂量 $x < 20\%$ 时, KNN-xLN 陶瓷的体积密度随 LN 掺杂量的增加而显著增加;当 LN 掺杂量 $x > 20\%$ 时, KNN-xLN 陶瓷的体积密度增长趋势趋于平缓,说明 LN 掺杂在适量范围内具有显著提升 KNN 基陶瓷烧结活性,促进烧结,获得致密 KNN 基陶瓷的效应。这种促进烧结的效应与 LN 材料自身较低的烧结温度(约 $980 \text{ }^\circ C$)有关,烧结温度低,则在升温烧结时可率先在 KNN 基体颗粒间形成液相,促进基体颗粒间的重排与传质,促进陶瓷的致密化。

图1 KNN- x LN陶瓷烧结后的体积密度图谱

2.2 铈酸锂掺杂对KNN陶瓷室温相结构与压电性能的影响

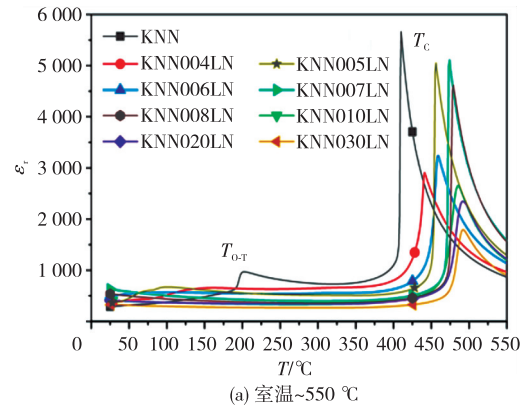
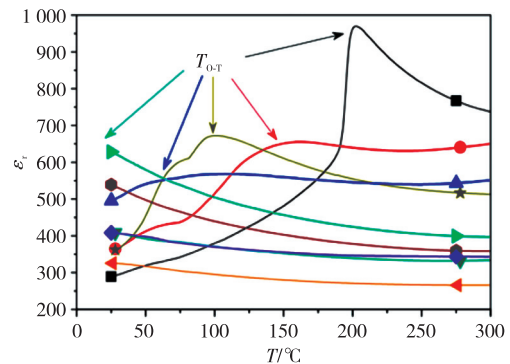
图2为KNN- x LN陶瓷的XRD相结构随LN掺杂量的变化图。

图2 KNN- x LN陶瓷的室温XRD相结构图谱

由图2可见,当LN掺杂量 $x < 10\%$ 时,KNN- x LN陶瓷呈现为单一的钙钛矿型固溶体晶相结构,说明在此掺杂量范围内,LN可固溶进KNN基体中形成单一的KNN固溶体;当LN掺杂量 $x \geq 10\%$ 时,KNN- x LN陶瓷在 23.7° 附近出现了第二相峰。经研究表征发现,这是LN的晶相峰(PDF # 20-0631),且该衍射峰的强度随着LN掺杂量的增加而增强,说明LN在KNN陶瓷中的最大固溶度应在10%内,即当LN在KNN陶瓷中的掺杂量 $x \geq 10\%$ 时,LN不再固溶进KNN晶格中,而是以第二相形式独立存在于陶瓷中。此结果与之前的研究结果^[6]有所不同。由图还可见,当LN掺杂量 $x = 5\% \sim 6\%$ 时, 45° 附近两个相邻衍射峰的相对衍射强度出现了随LN掺杂量增加由前高后低向前低后高的特征转变,说明LN掺杂导致KNN陶瓷的晶相结构发生了转变。由文献^[11-12]可知,低LN掺杂量的

KNN- x LN陶瓷相结构为正交晶相(Orthorhombic, O, PDF # 71-0946),高LN含量的KNN- x LN陶瓷相结构为四方晶相(Tetragonal, T, PDF # 71-0945),即在LN的固溶度范围内,LN掺杂量的增加引起该陶瓷的晶相结构由正交相向四方相转变。KNN陶瓷的压电性能对晶相结构的转变敏感,为了研究LN掺杂引起KNN陶瓷晶相结构转变的微观机制,进一步对KNN- x LN陶瓷进行介电性能温度谱的研究。

图3为KNN- x LN系列陶瓷在室温 $\sim 550^\circ\text{C}$ 的介电常数温度谱。

(a) 室温 $\sim 550^\circ\text{C}$ (b) 室温 $\sim 300^\circ\text{C}$ 图3 KNN- x LN陶瓷的介电常数温度谱

(测试频率 $f = 10\text{ kHz}$)

由图3(a)可见,在纯KNN陶瓷介温谱中,在 202°C 、 410°C 处存在介电常数异常峰。由文献^[13-14]可知,这两个介电常数异常峰分别对应KNN陶瓷晶型由正交相向四方相转变的相转变点(T_{O-T})以及由四方相向立方顺电相(Cubic, C)转变的相转变点(T_C),即居里温度。同时,KNN- x LN陶瓷在高于 410°C 的高温区域均存在介电常数异常峰,对比未掺杂的纯KNN在此温度区间的相转变行为,可知KNN- x LN陶瓷高温下的介电常数异常峰是其

居里温度 T_C 峰,即在本研究的 LN 掺杂剂量范围内, $KNN-xLN$ 陶瓷均为铁电相。

图 3(b)为图 3(a)中室温~300 °C 部分放大图。由图可见,与纯 KNN 的 T_{O-T} 相转变峰相比,经过 LN 掺杂后, $KNN-xLN$ 陶瓷的 T_{O-T} 相转变峰随着 LN 掺杂量的增加逐渐向低温方向移动。当 LN 的掺杂量 $x=4\%$ 时,其 T_{O-T} 相转变温度从 202 °C 降至 145 °C,对应此成分陶瓷在室温下的相结构为正交相;当 LN 的掺杂量 $x=6\%$ 时,陶瓷的 T_{O-T} 相转变温度下移至室温附近,此时陶瓷处于正交相与四方相两种铁电相共存的相结构状态;继续增加 LN 的掺杂量,即当 $x \geq 7\%$ 时,室温附近的介电谱中仅出现了介电常数随温度升高而下降的曲线部分,无 T_{O-T} 相转变峰出现,说明此时陶瓷的 T_{O-T} 相转变峰已下移至室温以下,相应陶瓷在室温以上的高温区仅存在一个居里温度峰,故此成分陶瓷在室温下的相结构为四方相结构。

采用介电性能温度谱对上述 $KNN-xLN$ 陶瓷相转变行为的研究结果与 XRD 研究结果一致。

图 4 为室温下 $KNN-xLN$ 陶瓷的介电性能随 LN 掺杂量的变化趋势图。

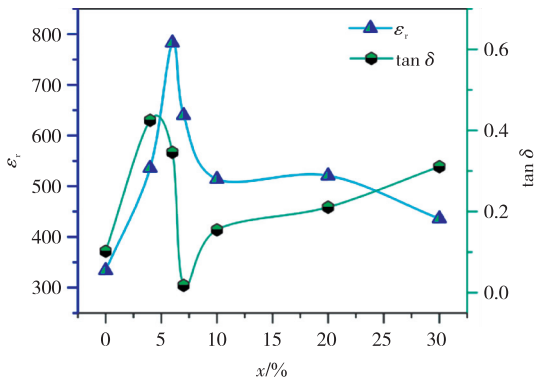


图 4 $KNN-xLN$ 陶瓷的室温介电性能随 LN 掺杂量的变化趋势图(测试频率 $f=10$ kHz)

由图 4 可见, $KNN-xLN$ 陶瓷的室温介电常数 ϵ_r 随 LN 掺杂量的增加呈先增强后降低的趋势。当 LN 的掺杂量 $x < 6\%$ 时,陶瓷的介电常数随 LN 掺杂量的增加而增加,主要由此区间陶瓷烧结后的体积密度增加所致。当 LN 的掺杂量 x 约为 6% 时,陶瓷的室温介电常数增加至极大值,这与陶瓷中正交相与四方相两种铁电相共存时提供更多的自发极化矢量方向有关; $x \sim 6\%$ 附近成分陶瓷材料的介电损耗 $\tan \delta$ 值为极小值,从侧面说明了两相共存时陶瓷材料中铁电畴容易运动的事实。当 LN 掺杂

量 $x > 6\%$ 时,陶瓷的晶体结构由两相共存逐渐转变为单一的四方相,且此时材料中 LN 逐渐以第二相形式与 KNN 的基体相共存形成复合陶瓷。由于 LN 的介电常数较低,导致该成分范围内陶瓷材料的介电常数下降。

图 5 为室温下 $KNN-xLN$ 陶瓷的压电常数 d_{33} 随 LN 掺杂量的变化趋势图。

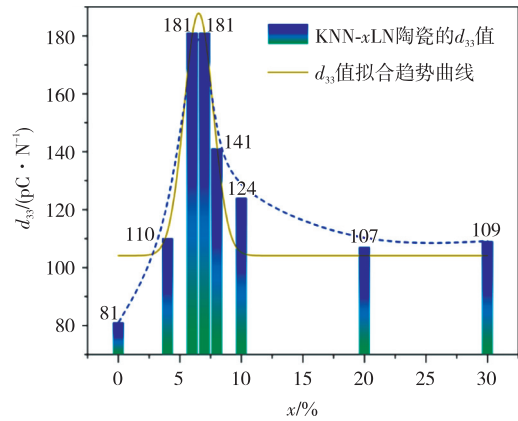


图 5 $KNN-xLN$ 陶瓷室温压电常数 d_{33} 随 LN 掺杂量变化趋势

由图 5 可见,室温下, $KNN-xLN$ 陶瓷的压电常数 d_{33} 随 LN 掺杂量的增加呈现先增强后降低的趋势。当 LN 的掺杂量 $x=4\%$ 时,陶瓷的压电常数 d_{33} 小幅增至 110 pC/N;当 LN 的掺杂量 x 增加至约 6% 时,陶瓷的压电常数 d_{33} 有极大值 181 pC/N,约是纯 KNN 的 d_{33} (约为 81 pC/N) 的两倍,即适量 LN 掺杂可使 KNN 陶瓷的压电性能得到极大增强;当 LN 的掺杂量增至 8% 时,陶瓷的 d_{33} 开始下降至 141 pC/N;当 LN 的掺杂量继续增加至 10% 时,陶瓷的压电性能持续下降至 124 pC/N;继续增加 LN 的掺杂量至 30% 时,陶瓷的压电性能持续下降并保持在 107~109 pC/N。由于 KNN 陶瓷的压电性能与其相结构关系密切,基于前面对 LN 掺杂对 KNN 陶瓷相转变行为的研究发现, LN 掺杂会引起 $KNN-xLN$ 陶瓷的 T_{O-T} 向低温方向移动,当 LN 的掺杂量小于 4% 时,陶瓷的 T_{O-T} 相转变温度高于室温,此时陶瓷室温相结构为单一的正交铁电相。当 LN 的掺杂量增加至 6% 附近时,陶瓷的 T_{O-T} 相转变温度下移至室温附近,此时陶瓷的相结构为正交相与四方相两种铁电相共存的相结构状态。由于陶瓷在两相共存结构时存在比单一相结构时更多的极化矢量方向,这使陶瓷的铁电畴在极化时有更多机会参与到铁电畴的转向排列中,从而使陶瓷的极化

更充分,以致陶瓷在室温时的压电性能得到极大增强^[13]。继续增加LN的掺杂量,会使陶瓷的 T_{O-T} 从室温向更低温度方向移动,这将导致KNN- x LN陶瓷在室温时相结构又转变为单一的四方相结构,最终引起陶瓷压电性能下降。当LN的掺杂量 $x > 10\%$ 时,LN已超过其固溶极限,此时对陶瓷室温压电性能贡献最大的基体相不再随LN掺杂量的增加而变化,表现为复合材料的压电常数 d_{33} 不再随LN掺杂量的增加而显著变化。

2.3 LN掺杂对KNN高温相转变与压电性能温度稳定性的影响

图6(a)为KNN- x LN陶瓷在380~540℃的介电常数温度谱。

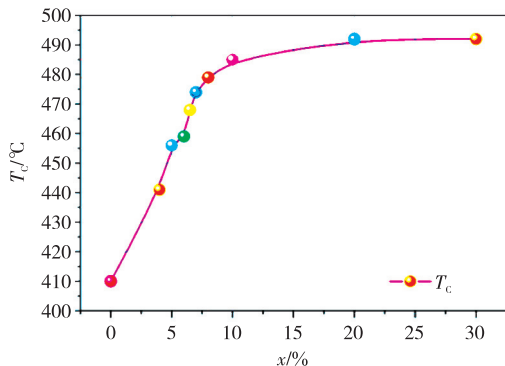
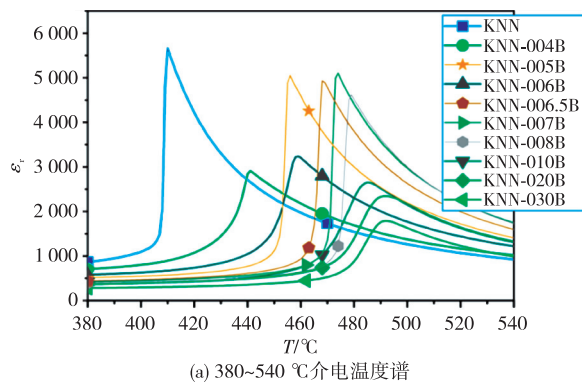


图6 KNN- x LN陶瓷介电性能图谱
(介温谱测试频率为 $f = 10$ kHz)

由图6(a)可见,经过LN掺杂后的KNN- x LN陶瓷的居里温度均高于410℃,且随着LN掺杂量的增加,陶瓷的 T_c 逐渐向高温方向移动。由图6(b)可见,当LN的掺杂量 $x \leq 8\%$ 时,KNN- x LN陶瓷的 T_c 随着LN掺杂量的增加呈线性增加;当 $x \sim 8\%$ 时,陶瓷的 $T_c \sim 479$ ℃,这比纯KNN的 T_c 增加了约70℃;当 $x > 8\%$ 时,陶瓷的居里温度增加趋缓。根据前面对KNN- x LN陶瓷相结构的分析可

知,当 $x \leq 8\%$ 时,LN可以固溶进KNN基体晶格中,因此,在固溶度成分范围内LN的掺杂对KNN陶瓷居里温度的影响最显著。当LN的掺杂量超过固溶度,过量的LN不再固溶进KNN基体晶格中,而是以第二相的形式独立存在于陶瓷中,故而失去了其对KNN基体居里温度的增强效果。由于陶瓷的居里温度对其压电性能的温度稳定性存在直接影响,故而对KNN- x LN陶瓷室温压电性能随热处理温度的变化情况开展系统研究。

图7为KNN- x LN陶瓷的压电常数 d_{33} 随热处理温度变化趋势图。由图可见,当LN掺杂量 $x \leq 4\%$ 时,陶瓷经过450℃热处理后, d_{33} 接近于0,说明这些成分的压电陶瓷只能在远低于400℃温度区间内使用。当LN的掺杂量在 $4\% < x \leq 8\%$ 时,陶瓷的 d_{33} 随热处理温度的增加均呈现出不同程度的下降趋势,但 d_{33} 出现显著下降的热处理温度均超过了450℃,其中 $x \sim 8\%$ 陶瓷的 d_{33} 开始大幅下降的热处理温度在470℃以上,这比纯KNN陶瓷压电性能开始显著下降的温度提升了约70℃,说明此成分区间LN掺杂具有增强KNN陶瓷压电性能温度稳定性的作用。当LN的掺杂量 $x \geq 10\%$ 时,KNN- x LN陶瓷在400℃以上热处理后,其压电系数 d_{33} 呈现出随热处理温度的升高而略有增强的趋势。

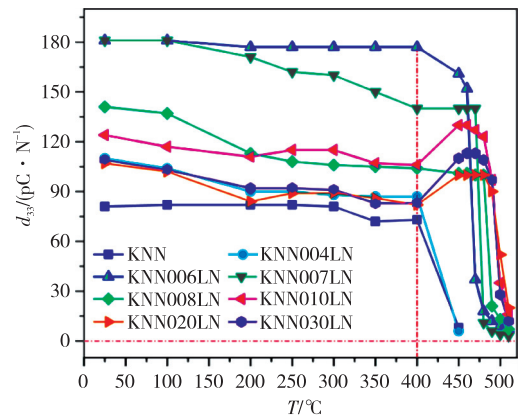


图7 KNN- x LN陶瓷的压电常数 d_{33} 随热处理温度变化趋势图

依据KNN- x LN陶瓷相结构的分析可知,此时LN已超过固溶极限并以第二相形式独立存在于陶瓷中。由于LN具有很强的热释电效应,致使该系列陶瓷高温下压电常数 d_{33} 随热处理温度的升高而轻微上升。这种热释电效应会对相应的压电器件工作时输出信号的灵敏度和有效性造成干扰,因此,这些成分的陶瓷虽然居里温度获得提升,但并

不适用于制作相应的高温压电器件。由实验结果可知,只有适量的 LN 掺杂可在提升 KNN 陶瓷居里温度的同时,提高和改善 KNN 陶瓷的压电性能温度稳定性,最终拓宽 KNN 基压电器件的工作温度范围。

3 结束语

采用介电温度谱结合 XRD 对 LN 掺杂 KNN 陶瓷相结构转变规律进行系统研究,重点研究 LN 掺杂对 KNN 陶瓷室温压电性能及其温度稳定性的影响规律和微观机制。结果表明,LN 在 KNN 陶瓷中的固溶度范围内($<10\%$)具有提升居里温度 T_C 、降低陶瓷正交相与四方相相转变温度 T_{O-T} 的效果。当 LN 的掺杂量 $x=5\% \sim 6\%$,陶瓷的 T_{O-T} 下移至室温附近,此时陶瓷处于正交相与四方相两相共存的相结构状态,使陶瓷的室温压电性能获得最大程度的增强,其压电常数 d_{33} 最大约为 181 pC/N;继续增加 LN 的掺杂量, T_{O-T} 会向更低温度方向移动,室温下陶瓷的相结构由两相共存转变为单一的四方相,导致陶瓷的压电性能下降。当 $x \sim 8\%$,陶瓷的 T_C 升高至 479 °C,其压电性能在 470 °C 热处理后仍保持在 100 pC/N,表现出良好的温度稳定性。LN 超过固溶度后将以第二相形式存于陶瓷中,过量 LN 掺杂不再对 KNN 陶瓷的 T_C 有显著影响,但是由于受到第二相 LN 热释电效应的影响,此时复合陶瓷的压电常数 d_{33} 呈现出随热处理温度的升高而略有增强的伪效果。

参考文献:

- [1] LI Jingfeng, WANG Ke, ZHU Fangyuan, et al. (K, Na)NbO₃-based lead-free piezoceramics: fundamental aspects, processing technologies, and remaining challenges[J]. Journal of the American Ceramic Society, 2013, 96(12): 3677-3696.
- [2] 王轲, 沈宗洋, 张波萍, 等. 铌酸钾钠基无铅压电陶瓷的现状、机遇与挑战[J]. 无机材料学报, 2014, 29(1): 13-22.
WANG Ke, SHEN Zongyang, ZHANG Boping, et al. (K, Na)NbO₃-based Lead-free Piezoceramics: Status, prospects and challenges[J]. Journal of Inorganic Materials, 2014, 29(1): 13-22
- [3] WU Jiagang, XIAO Dingquan, ZHU Jianguo. Potassium-sodium niobate lead-free piezoelectric materials: Past, present, and future of phase boundaries [J]. Chemical Reviews, 2015, 115(7): 2559-2595.
- [4] SATIO Y, TAKAO H, TANI T, et al. Lead-free piezoceramics[J]. Nature, 2004, 432: 84-87.
- [5] LI Peng, ZHAI Jiwei, SHEN Bo, et al. Ultrahigh piezoelectric properties in textured (K, Na)NbO₃-based lead-free ceramics[J]. Advanced Materials, 2018, 30(8): 1705171.
- [6] GUO Yiping, KAKIMOTO Ki, OHSATO H. Phase transitional behavior and piezoelectric properties of (Na_{0.5}K_{0.5}) NbO₃-LiNbO₃ ceramics [J]. Applied Physics Letters, 2004, 85(18): 4121-4123.
- [7] WANG Ke, LI Jingfeng. Domain engineering of lead-free Li-modified (K, Na)NbO₃ polycrystals with highly enhanced piezoelectricity [J]. Advanced Functional Materials, 2010, 20(12): 1924-1929.
- [8] RÖDEL J, WEBBER K G, DITTMER R, et al. Transferring lead-free piezoelectric ceramics into application[J]. Journal of the European Ceramic Society, 2015, 35(6): 1659-1681.
- [9] LIU Huan, LIU Yixuan, SONG Aizhen, et al. (K, Na) NbO₃-based lead-free piezoceramics: One more step to boost applications [J]. National Science Review, 2022, 9:1-3.
- [10] 吴超峰, 龚文, 耿进锋, 等. 高温无铅压电材料研究进展[J]. 压电与声光, 2023, 45(1): 72-81.
WU Chaofeng, GONG Wen, GENG Jinfeng, et al. Recent progress of high-temperature lead-free piezoelectric materials[J]. Piezoelectrics & Acousto-optics, 2023, 45(1): 72-81.
- [11] WANG Ke, LI Jingfeng. Analysis of crystallographic evolution in (Na,K)NbO₃-based lead-free piezoceramics by X-ray diffraction[J]. Applied Physics Letters, 2007, 91(26): 262902.
- [12] 明保全, 王矜奉, 臧国忠, 等. 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): 5962-5967.
MING Baoquan, WANG Jinfeng, ZANG Guozhong, et al. X-ray diffraction and phase transition analysis for (K, Na) NbO₃-based lead-free piezoelectric ceramics [J]. Acta Physica Sinica, 2008, 57(9): 5962-5967.
- [13] SHROUT T R, ZHANG S J. Lead-free piezoelectric ceramics: Alternatives for PZT[J]. Journal of Electroceramics, 2007, 19(1):113-126.
- [14] WU L, ZHANG J L, WANG C L. Influence of compositional ratio K/Na on physical properties in (K_xNa_{1-x}) NbO₃ ceramics[J]. Journal of Applied Physics, 2008, 103(8): 084116.