

BNKT-BZN 无铅压电陶瓷的制备及电学性能研究

王 珊, 陆翠敏, 赛玉荣, 郭英健, 李 铭, 祁永霞

(天津理工大学 材料科学与工程学院, 天津 300384)

摘 要:采用传统固相法制备得到 $(0.8-x)\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5}\text{TiO}_3-0.2\text{Bi}_{0.5}\text{K}_{0.5}\text{TiO}_3-x\text{Bi}(\text{Zn}_{2/3}\text{Nb}_{1/3})\text{O}_3$ (摩尔分数 $0 \leq x \leq 0.06$) (简称 $(0.8-x)\text{BNT}-0.2\text{BKT}-x\text{BZN}$)无铅压电陶瓷。利用 XRD、SEM 等测试技术表征了该体系陶瓷的晶体结构、表面形貌及介电和压电性能。研究结果表明,所有组分的陶瓷样品均形成典型的钙钛矿结构;同一烧结温度下,随着 $\text{Bi}(\text{Zn}_{2/3}\text{Nb}_{1/3})\text{O}_3$ 含量的增加,晶粒尺寸增加;在 $1180\text{ }^\circ\text{C}$ 烧结温度保温 2 h 的条件下,组成为 $x=0.02$ 的陶瓷样品经极化后,压电常数 $d_{33}=48\text{ pC/N}$, 相对介电常数 $\epsilon_{33}^T/\epsilon_0=598.9$, 介电损耗 $\tan \delta=0.04845$ 。

关键词:无铅压电陶瓷;钙钛矿;晶体结构;表面形貌;介电性能;压电性能

中图分类号: TM282

文献标识码: A

Study on Preparation and Electrical Properties of BNKT-BZN Lead-free Piezoelectric Ceramics

WANG Shan, LU Cuimin, SAI Yurong, GUO Yingjian, LI Ming, QI Yongxia

(School of Materials Science and Engineering, Tianjin University of Technology, Tianjin 300384, China)

Abstract: The Lead-free piezoelectric ceramics $(0.8-x)\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5}\text{TiO}_3-0.2\text{Bi}_{0.5}\text{K}_{0.5}\text{TiO}_3-x\text{Bi}(\text{Zn}_{2/3}\text{Nb}_{1/3})\text{O}_3$ (mole fraction $0 \leq x \leq 0.06$) ($(0.8-x)\text{BNT}-0.2\text{BKT}-x\text{BZN}$) were prepared by the conventional ceramic sintering technique. The microstructures, surface topography, dielectric properties and piezoelectric properties of these piezoelectric ceramics were studied by XRD and SEM. The X-ray diffraction analysis showed that all the samples became the typical perovskite structure; From the result of SEM, at the same sintering temperature, as the amounts of $\text{Bi}(\text{Zn}_{2/3}\text{Nb}_{1/3})\text{O}_3$ increase, it promotes the growth of crystalline grains; in the condition of sintering temperature of $1180\text{ }^\circ\text{C}$ and 2 h heat preservation, when the $x=0.02$, the $(0.8-x)\text{BNT}-0.2\text{BKT}-x\text{BZN}$ ceramic get its piezoelectric and dielectric property with the piezoelectric constant $d_{33}=48\text{ pC/N}$, dielectric constant $\epsilon_{33}^T/\epsilon_0=598.9$ and the dielectric loss $\tan \delta=0.04845$.

Key words: lead-free piezoelectric ceramics; perovskite; crystal structure; surface topography; dielectric properties; piezoelectric properties

0 引言

压电陶瓷是重要的机-电能量转换材料,在电子和微电子领域应用广。铅基压电陶瓷是目前应用较多的压电陶瓷材料。但由于铅有毒,会给环境和人类健康带来危害,其应用受限,所以开发环境友好型无铅压电陶瓷材料就成为这个领域研究的热点。

钛酸铋钠($\text{Na}_{0.5}\text{Bi}_{0.5}\text{TiO}_3$, 简称 BNT)是一种 A 位复合取代的 ABO_3 型钙钛矿铁电体,其剩余极化强度大 ($P_r=38\text{ }\mu\text{C/cm}^2$),居里温度高 ($T_c=320\text{ }^\circ\text{C}$);钛酸铋钾($\text{K}_{0.5}\text{Bi}_{0.5}\text{TiO}_3$, 简称 BKT)也是

一种 ABO_3 钙钛矿型 A 位离子复合取代的铁电体。 $(1-x)\text{BNT}-x\text{BKT}$ 在准同型相界 ($x=0.16\sim 0.20$)处具有良好的压电性能, $x>0.02$ 时, BNT-BKT 系为四方相结构^[1]。为进一步改善其性能,可对其进行取代掺杂,如 BaTiO_3 ^[2]、 LiNbO_3 ^[3]、 $(\text{Bi}_{0.5}\text{Ag}_{0.5})\text{TiO}_3$ ^[4]、 NaNbO_3 ^[5]、 $\text{Bi}_{0.5}\text{Li}_{0.5}\text{TiO}_3$ ^[6] 等的掺杂可使压电陶瓷的性能有所提高。 $\text{Pb}(\text{Zn}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ 具有钙钛矿结构,室温下为三方相。Bi 在元素周期表上与 Pb 相邻,具有相同的电子分布、相近的离子半径和相似原子质量,将 $\text{Pb}(\text{Zn}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ 进

收稿日期:2012-10-29

基金项目:天津市自然科学基金资助项目(09JCZDJC23000)

作者简介:王珊(1991-),男(满),辽宁沈阳人,本科生,主要从事陶瓷材料的研究。通信作者:陆翠敏(1978-),女,河北沧州人,讲师,博士,主要从事功能材料的研究。E-mail:lucuiimin@sina.com

行 Bi 的 A 位取代, $\text{Bi}(\text{Zn}_{2/3}\text{Nb}_{1/3})\text{O}_3$ (BZN) 也具有钙钛矿结构。本文以三元 Bi 基钙钛矿型 $(0.8-x)\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5}\text{TiO}_3-0.2\text{Bi}_{0.5}\text{K}_{0.5}\text{TiO}_3-x\text{Bi}(\text{Zn}_{2/3}\text{Nb}_{1/3})\text{O}_3$ ($(0.8-x)\text{BNT}-0.2\text{BKT}-x\text{BZN}$) 无铅压电陶瓷为研究对象, 研究其组成与电学性能的变化规律。

1 实验

实验选取的化学原料分别为 Na_2CO_3 、 K_2CO_3 、 Bi_2O_3 、 TiO_2 、 ZnO 、 Nb_2O_5 , 均为分析纯。所选配方为 $(0.8-x)\text{BNT}-0.2\text{BKT}-x\text{BZN}$, 其中 $x=0, 0.02, 0.04, 0.06$; 按摩尔分数每组配方均配制 40 g。每组配方均放入研钵中研磨 8 h 左右, 然后用 70 目筛子过筛; 将经过研磨、过筛的粉料放入箱式炉中缓慢加热至 950 °C 并保温 2 h 进行预烧; 预烧合成的粉料重新放入研钵中进行二次研磨; 每组经二次研磨的配方中加入 10% 的 PVA 粘结剂约 2 g, 经研钵混合均匀后过 40 目的筛子, 进行造粒; 采用单向压制的方法, 压成厚 1.5~2 mm 的小片; 将压制好的陶瓷片和剩余的粉料均放在陶瓷板上, 炉温缓慢升温至 600 °C 完成排塑; 最后分别在 1 120 °C、1 140 °C、1 160 °C、1 180 °C 下烧结并保温 2 h; 烧结样品经磨光后被银电极, 在 70~100 °C 的硅油中极化, 极化场强 2~5 kV/mm, 极化时间大于 20 min, 极化后的样品放置 24 h 后测试其性能。

2 结果与讨论

2.1 陶瓷样品的 XRD 分析

图 1 为 $(0.8-x)\text{BNT}-0.2\text{BKT}-x\text{BZN}$ 体系中 4 种配方的粉末在 950 °C 预烧温度下保温 2 h 合成粉末的 XRD 图谱。由图可看出, 950 °C 合成时, 4 个配方的合成产物在 XRD 谱线的主峰均与标准 BNT 样品的谱线主峰一致, 说明 950 °C 合成温度是合适的。当 $x=0.04$ 时, 在 27.7° 处出现了 Na_2O_2 的杂峰。对于组成为 $x=0.06$ 的配方, 在 29.8° 和 30.4° 分别出现了 $\text{Bi}_7\text{Ti}_4\text{NbO}_{21}$ 和 $\text{Na}_{0.5}\text{Bi}_{1.5}\text{Ti}_7\text{O}_{27}$ 杂相。说明在体系中 $\text{Bi}(\text{Zn}_{2/3}\text{Nb}_{1/3})\text{O}_3$ 的量 $x>0.04$ 时, 不利于形成单一的钙钛矿结构。图 2 为 1 180 °C 烧结温度下, $(0.8-x)\text{BNT}-0.2\text{BKT}-x\text{BZN}$ 陶瓷片的 XRD 图谱。由图可看出, 与烧结前相比较, $x=0.04$ 的陶瓷样品谱线中, 原来 27.7° 处的 Na_2O_2 杂峰消失, 可能的原因是高温下 Na^+ 的部分挥发。此外, 随着 $\text{Bi}(\text{Zn}_{2/3}\text{Nb}_{1/3})\text{O}_3$ 含量的增加, 衍射峰稍微向右偏移, 由 $n\lambda=2d\sin\theta$ (其中, n 为反射级数, λ 为 X 线的波长, d 为晶面间距, θ 为布喇格角) 可知, 衍射峰右移, 即 θ 值增大, 晶格常数发生变化, d 值减小。

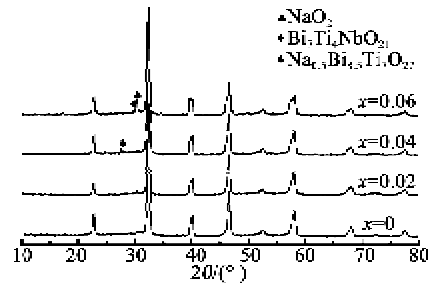


图 1 950 °C 预烧温度下 $(0.8-x)\text{BNT}-0.2\text{BKT}-x\text{BZN}$ 合成粉末的 XRD 分析

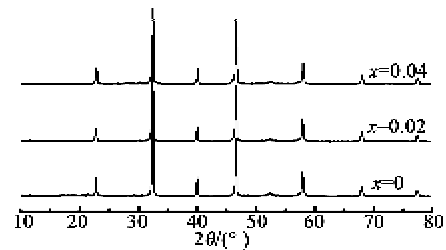


图 2 1 180 °C 烧结温度下, $(0.8-x)\text{BNT}-0.2\text{BKT}-x\text{BZN}$ 陶瓷片的 XRD 分析

2.2 陶瓷样品的微观形貌特征

图 3 为在烧结温度 1 180 °C 保温 2 h 下, $(0.8-x)\text{BNT}-0.2\text{BKT}-x\text{BZN}$ 陶瓷样品的表面微观形貌图。由图可看出, 所有组成的陶瓷样品晶粒发育良好, 均表现为四方相, 晶界明显。 $x=0$ 时, $0.8\text{BNT}-0.2\text{BKT}$ 陶瓷的晶粒尺寸相近, 瓷体较致密。 $x=0.02$ 时晶粒尺寸有所增加; 当 $x>0.02$ 时, 陶瓷样品的结构开始变得疏松, 且出现较多的气孔, 瓷体的致密度下降。其压电性能也会因此而下降。

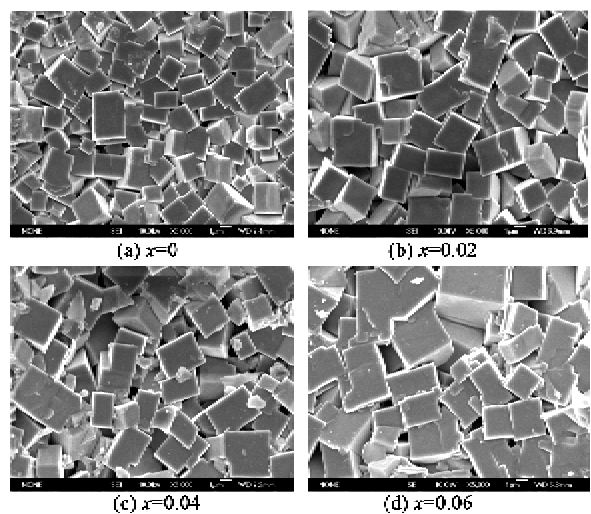


图 3 $(0.8-x)\text{BNT}-0.2\text{BKT}-x\text{BZN}$ 陶瓷的表面微观形貌图

2.3 陶瓷的介电和压电性能

考虑到快速施加极化电场时, 电畴极化所引起

的内应力的作用会使陶瓷片突然发生剧烈形变而导致击碎。为减少击碎情况的发生,在极化时,采取缓慢施加极化电场的方法:首先将极化场强缓慢加至 2 kV/mm,恒温极化 5~10 min;然后每次增加 0.25 kV/mm,恒温极化 5~10 min;直至极化场强加至约 4 kV/mm,恒温保持一段时间后取出。图 4 为 $(0.8-x)\text{BNT}-0.2\text{BKT}-x\text{BZN}$ 陶瓷样品的室温介电常数 $\epsilon_{33}^T/\epsilon_0$ 和介电损耗 $\tan \delta$ 随 $\text{Bi}(\text{Zn}_{2/3}\text{Nb}_{1/3})\text{O}_3$ 含量的变化关系,由图可知,随 $\text{Bi}(\text{Zn}_{2/3}\text{Nb}_{1/3})\text{O}_3$ 的增加,陶瓷样品的 $\epsilon_{33}^T/\epsilon_0$ 先下降后上升,在 $x=0.02$ 时达到最低值; $\tan \delta$ 则逐渐降低。

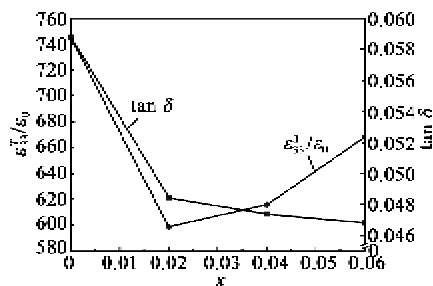


图 4 室温下 $\epsilon_{33}^T/\epsilon_0$ 、 $\tan \delta$ 随着 x 含量的变化关系图

图 5 为陶瓷样品的压电常数 d_{33} 随着 $\text{Bi}(\text{Zn}_{2/3}\text{Nb}_{1/3})\text{O}_3$ 含量的变化关系图。由图可看出,随着 $\text{Bi}(\text{Zn}_{2/3}\text{Nb}_{1/3})\text{O}_3$ 的增加,陶瓷样品的 d_{33} 先上升后下降,在 $x=0.02$ 时 d_{33} 达到最大值。Bi 的含量对陶瓷样品的压电性能有较大影响^[7],对于 $(0.8-x)\text{BNT}-0.2\text{BKT}-x\text{BZN}$ 陶瓷,Bi 的含量 $(0.5+0.5x)$ 随 $\text{Bi}(\text{Zn}_{2/3}\text{Nb}_{1/3})\text{O}_3$ 的增加而增加,由此可能导致陶瓷的 d_{33} 在 $x=0.02$ 处有提高;同时,由图 1、3 分析可知,在 $x=0.04$ 、 0.06 处分别出现了 NaO_2 和 $\text{Bi}_7\text{Ti}_4\text{NbO}_{21}$ 、 $\text{Na}_{0.5}\text{Bi}_{8.5}\text{Ti}_7\text{O}_{27}$ 杂相且陶瓷样品的结构疏松、气孔较多,导致陶瓷样品的压电性能开始下降;另外,根据软性掺杂与硬性掺杂理论^[8-9],B 位离子 Zn^{2+} 、 Nb^{5+} 取代原来的 Ti^{4+} ,但 Zn^{2+} 的含量较高,对掺杂后的性能影响较大,导致电价不平衡,产生了氧空位,氧空位的产生为硬性掺杂,电畴壁不能充分运动,这也可能是 d_{33} 在 $x>0.02$ 时降低的原因。

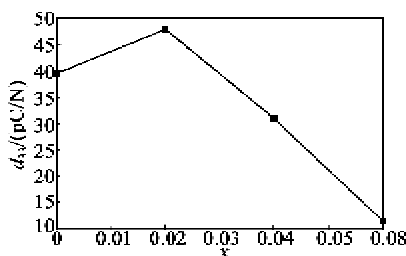


图 5 d_{33} 随 x 含量的变化关系图

图 6 为 $(0.8-x)\text{BNT}-0.2\text{BKT}-x\text{BZN}$ 陶瓷样品的室温 $\epsilon_{33}^T/\epsilon_0$ 和 $\tan \delta$ 与频率 f 的关系曲线。由图可看出,各组分陶瓷样品的室温 $\epsilon_{33}^T/\epsilon_0$ 随着 f 的增加逐渐降低。外加电场的频率较低时,各种极化机制均来得及建立,所以此时的 $\epsilon_{33}^T/\epsilon_0$ 较高;随着 f 的逐渐增加,松弛极化与电畴转向极化逐渐跟不上外加电场的变化, $\epsilon_{33}^T/\epsilon_0$ 逐渐降低,同时产生极化损耗;另外,随着 f 的增加,电畴运动加剧,畴壁间的摩擦也会导致 $\tan \delta$ 的增加。由图 6(a)可看出,在对数频率为 5~6,所有陶瓷样品几乎在同一位置出现 2 个极值,分别对应体系压电陶瓷的谐振频率和反谐振频率。由图 6(b)可看出,同一位置也出现一个 $\tan \delta$ 的极大值。

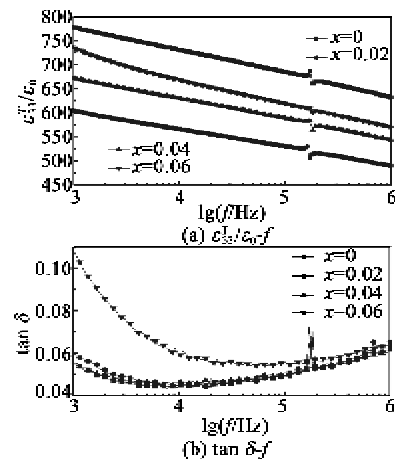


图 6 $(0.8-x)\text{BNT}-0.2\text{BKT}-x\text{BZN}$ 陶瓷样品的 $\epsilon_{33}^T/\epsilon_0$ 、 $\tan \delta$ 与 f 的关系

2.4 极化场强对介电电压性能的影响

图 7 为 $x=0.02$ 的陶瓷样品在不同极化场强下的 $\epsilon_{33}^T/\epsilon_0$ 和 d_{33} 变化。由图可看出,当极化场强从 2 kV/mm 逐渐加至 5 kV/mm 时,该组成陶瓷片的 d_{33} 逐渐上升而 $\epsilon_{33}^T/\epsilon_0$ 逐渐下降。

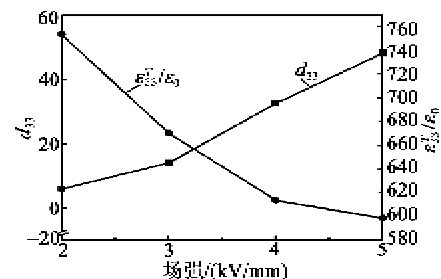


图 7 不同极化场强下的 $\epsilon_{33}^T/\epsilon_0$ 和 d_{33}

陶瓷片的介电、压电性能的变化与材料中电畴结构和极化时电畴的转向有关。极化过程中, 180° 的电畴在较低的极化场强下就能实现转向,而 90° 的电畴转向需在较高的极化场强下才能进行。 $\epsilon_{33}^T/\epsilon_0$

ϵ_0 的降低与 90° 畴的转向有关,随着极化场强的逐渐升高, 180° 的畴壁消失, d_{33} 增加;当 90° 畴发生转向时,畴壁移动,晶体发生变形,介电性能各向异性, $\epsilon_{33}^T/\epsilon_0$ 降低。

3 结论

采用传统固相法,制备了 $(0.8-x)$ BNT- 0.2 BKT- x BZN (x 为 $0, 0.02, 0.04, 0.06$) 体系无铅压电陶瓷,研究和分析了该陶瓷的微观结构、介电性能以及压电性能。得到结果如下:

1) XRD 分析表明, 950°C 预烧温度下,各组成的陶瓷样品均形成四方晶系钙钛矿结构。 $x=0.04$ 时,出现了 NaO_2 的杂峰; $x=0.06$ 时,出现了 $\text{Bi}_7\text{Ti}_4\text{NbO}_{21}$ 和 $\text{Na}_{0.5}\text{Bi}_{3.5}\text{Ti}_7\text{O}_{27}$ 杂相。 1180°C 烧结温度下, $x=0.04$ 组分的陶瓷样品的 NaO_2 的杂峰消失,且随着 x 的增加,衍射峰右移。

2) 所有组成的陶瓷样品晶粒发育良好,晶界明显。随着 $\text{Bi}(\text{Zn}_{2/3}\text{Nb}_{1/3})\text{O}_3$ 的增加,晶粒尺寸逐渐增加; $x>0.02$ 时,陶瓷样品的结构较疏松,出现了较多的气孔,压电性能降低。

3) 陶瓷样品在 $x=0.02$ 时, $\epsilon_{33}^T/\epsilon_0 = 598.9$, $\tan \delta = 0.04845$, $d_{33} = 48 \text{ pC/N}$ 。

参考文献:

- [1] 李月明. $\text{Na}_{0.5}\text{Bi}_{0.5}\text{TiO}_3$ 基无铅压电陶瓷的制备、结构与电性能研究[D]. 武汉:武汉理工大学,2004.
- [2] 魏敏先,黄新友,高春华,等. NBT-KBT-BT 三元系无铅压电陶瓷的研究[J]. 压电与声光,2008,30(5):608-610.
WEI Minxian, HUANG Xinyou, GAO Chunhua, et al. Study on NBT-KBT-BT ternary system lead-free piezoelectric ceramics[J]. Piezoelectrics & Acousto-optics,

2008,30(5):608-610.

- [3] 周昌荣,刘心宇,杨桂华,等. 新型无铅压电陶瓷 $\text{Bi}_{0.5}(\text{Na}_{0.82}\text{K}_{0.18})_{0.5}\text{TiO}_3\text{-LiNbO}_3$ 的研究[J]. 航天材料学报,2009,29(4):94-97.
ZHOU Changrong, LIU Xinyu, YANG Guihua, et al. Study of new lead-free piezoelectric ceramics of $(\text{Na}_{0.82}\text{K}_{0.18})_{0.5}\text{TiO}_3\text{-LiNbO}_3$ [J]. Journal of Aeronautical Materials, 2009,29(4):94-97.
- [4] LU Yiqing, LI Yongxiang, WANG Dong, et al. Lead-free piezoelectric ceramics of $(\text{Bi}_{1/2}\text{Na}_{1/2})\text{TiO}_3\text{-(Bi}_{1/2}\text{K}_{1/2})\text{TiO}_3\text{-(Bi}_{1/2}\text{Ag}_{1/2})\text{TiO}_3$ system[J]. J Electroceram, 2008,21:309-313.
- [5] YUAN Ying, ZHAN Shuren, LIU Jingsong. Dielectric and piezoelectric properties of $(0.97-x)\text{Bi}_{1/2}\text{Na}_{1/2}\text{TiO}_3\text{-}x\text{Bi}_{1/2}\text{K}_{1/2}\text{TiO}_3\text{-}0.03\text{NaNbO}_3$ ceramics[J]. J Mater Sci, 2006,41:3561-3567.
- [6] LIN Dunmin, ZHENG Qiaoqi, XU Chenggang, et al. Structure, electrical properties and temperature characteristics of $\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5}\text{TiO}_3\text{-Bi}_{0.5}\text{K}_{0.5}\text{TiO}_3\text{-Bi}_{0.5}\text{Li}_{0.5}\text{TiO}_3$ lead-free piezoelectric ceramics[J]. Appl Phys A, 2008,93:549-558.
- [7] ZHOU Changrong, LIU Xinyu. Dielectric and piezoelectric properties of bismuth-containing complex perovskite solid solution of $\text{Bi}_{1/2}\text{Na}_{1/2}\text{TiO}_3\text{-Bi}(\text{Mg}_{2/3}\text{Nb}_{1/3})\text{O}_3$ [J]. J Mater Sci, 2008,43(3):1016-1019.
- [8] 陆翠敏,孙清池,徐明霞,等. $\text{Pb}(\text{Mn}_{1/3}\text{Sb}_{2/3})_{0.05}\text{Zr}_x\text{Ti}_{0.95-x}\text{O}_3$ 压电陶瓷准同型相界附近的性能[J]. 硅酸盐学报,2005,33(5):542-546.
LU Cuimin, SUN Qingchi, XU Mingxia, et al. Properties of $\text{Pb}(\text{Mn}_{1/3}\text{Sb}_{2/3})_{0.05}\text{Zr}_x\text{Ti}_{0.95-x}\text{O}_3$ piezoelectric ceramics near morphotropic phase boundary[J]. Journal of the Chinese Ceramic Society, 2005,33(5):542-546.
- [9] 王莹. PSN-PZT 压电陶瓷低温烧结研究[D]. 武汉:华中科技大学,2011.

(上接第 729 页)

- [11] ZHOU C G, LIU X Y, LI W Z, et al. Microstructure and electrical properties of $\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5}\text{TiO}_3\text{-Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5}\text{-LiNbO}_3$ lead-free piezoelectric ceramics [J]. Journal of Physics and Chemistry of Solids, 2009(70):541-545.
- [12] FAN G F, LU W Z, WANG X H, et al. Morphotropic phase boundary and piezoelectric properties of Investigation of $(\text{Bi}_{1/2}\text{Na}_{1/2})\text{TiO}_3\text{-(Bi}_{1/2}\text{K}_{1/2})\text{TiO}_3\text{-KNbO}_3$ lead-free piezoelectric ceramics [J]. Appl Phys Lett, 2007(91):202908.
- [13] CHOY S H, WANG X X, CHAN H L W, et al. Electromechanical and ferroelectric properties of $(\text{Bi}_{1/2}\text{Na}_{1/2})\text{TiO}_3\text{-(Bi}_{1/2}\text{K}_{1/2})\text{TiO}_3\text{-(Bi}_{1/2}\text{Li}_{1/2})\text{TiO}_3\text{-BaTiO}_3$ lead-free piezoelectric ceramics for accelerometer application [J]. Appl Phys A, 2007(89):775-781.
- [14] LU Y Q, LI Y X, WANG D, et al. Lead-free piezoelectric ceramics of $(\text{Bi}_{1/2}\text{Na}_{1/2})\text{TiO}_3\text{-(Bi}_{1/2}\text{K}_{1/2})\text{TiO}_3\text{-}$

$(\text{Bi}_{1/2}\text{Ag}_{1/2})\text{TiO}_3$ system [J]. J Electroceram, 2007:9145.

- [15] 郑雷,夏峻,杨镇宾,等. 锆钛酸钡(BZT)陶瓷制备研究[J]. 重庆科技学院学报,2007,9(4):24-27.
ZHENG Lei, XIA Jun, YANG Zhengbin, et al. Study and preparation of piezoelectric ceramics of zirconium barium titanate (BZT) [J]. Science and Technology University of Chongqing, 2007,9(4):24-27.
- [16] 陈志武. BNT-BT 和 BNT-BKT 基无铅压电陶瓷研究进展 [J]. 材料导报,2006,20(1):14-18.
CHEN Zhiwu. Reserch progress of BNT-BT and BNT-BKT based of lead-free piezoelectric ceramics [J]. Mater Rev, 2006,20(1):14-18.
- [17] XIONG W, ZENG B, CAO W Q. Investigation of dielectric and reaxor ferroelectric properties in $\text{Ba}(\text{Zr}_x\text{Ti}_{1-x})\text{O}_3$ ceramics [J]. J Electroceram, 2008(21):124-127.