

文章编号: 1000-324X(2008)05-0891-06

# 铈掺杂钛酸钡微粉制备与微波吸收特性研究

刘延坤<sup>1</sup>, 田 言<sup>2</sup>, 冯玉杰<sup>1</sup>, 武晓威<sup>1</sup>, 韩霞光<sup>1</sup>

(1. 哈尔滨工业大学 环境科学与工程系, 哈尔滨 150090; 2. 黑龙江省化工研究院, 哈尔滨 150076)

**摘 要:** 采用溶胶-凝胶法制备了稀土铈掺杂钛酸钡纳米晶粉体, 借助 XRD、Raman、SEM 以及矢量网络分析仪等分析测试手段对样品晶相、晶格常数、粒径、表面形貌及微波吸收特性进行了研究, 结果表明: 铈掺杂样品均形成四方相钛酸钡微晶, 晶粒发育良好. 随着铈掺杂量增大, 晶粒逐渐细化, 晶格常数  $a$  变大, 晶格常数  $c$  减小; 与未掺杂钛酸钡相比, 在 2~18GHz 频率范围内, 稀土铈掺杂材料 (掺杂量 0.2%) 的反射损耗明显地提高, 反射峰发生蓝移, 尤其 5.8GHz 和 7GHz 处反射损耗分别提高了 15dB 和 30dB, 频带拓宽近 2 倍. 由此可见铈掺杂有利于改善钛酸钡材料的微波吸收特性.

**关 键 词:** 稀土铈; 掺杂; 钛酸钡; 微波吸收特性

**中图分类号:** TB34      **文献标识码:** A

## Preparation and Microwave Absorption Properties of Ce-doped BaTiO<sub>3</sub>

LIU Yan-Kun<sup>1</sup>, TIAN YAN<sup>2</sup>, FENG Yu-Jie<sup>1</sup>, WU Xiao-Wei<sup>1</sup>, HAN Xia-Guang<sup>1</sup>

(1. Department of Environmental Science and Engineering, Harbin Institute of Technology, Harbin 150090, China; 2. Institute of Petrochemical of Heilongjiang Province, Harbin 150076, China)

**Abstract:** Nano-particles of Ce-doped BaTiO<sub>3</sub> were prepared by sol-gel method. The structure, micrograph and microwave absorption properties of the materials were characterized by using X-ray diffraction (XRD), Raman spectroscopy, Scanning Electron Microscope (SEM) and vector network analyzer. The BaTiO<sub>3</sub> powders doped with different Ce contents have the same crystalline tetragonal structure. With the increase of Ce content, the crystal sizes of the BaTiO<sub>3</sub> powders decrease with lattice constants  $a$  enlarges and  $c$  decreases. Within the bandwidth of 2~18GHz, the reflection loss of 0.2% Ce-doped BaTiO<sub>3</sub> powders is increased and reflection peak has blue shift compared with pure BaTiO<sub>3</sub> powders. Reflection losses of 0.2% Ce-doped BaTiO<sub>3</sub> powders are increased by 15dB and 30dB at 5.8GHz and 7GHz, respectively, and the bandwidth is widened two times. The above shows that Ce-doping can greatly improve the microwave absorption properties of the BaTiO<sub>3</sub> powders.

**Key words:** Ce-doping; BaTiO<sub>3</sub>; microwave absorption properties

## 1 引言

钛酸钡材料由于其具有较高的介电常数、良好的铁电、压电及绝缘性能, 广泛应用于陶瓷滤波器、声表面波滤波器、晶界层电容器以及 PTC 热敏电阻器等电子器件中<sup>[1-6]</sup>. 对钛酸钡材料的研究主要集中在制备工艺<sup>[7-10]</sup>、尺寸效应<sup>[11]</sup>以及低频

介电特性<sup>[12-15]</sup>等方面. 近年来, 随着微波通讯、雷达、电子对抗等科学技术的发展, 吸波材料越来越受到人们的高度重视<sup>[16-18]</sup>. 钛酸钡材料是一种很有前途的吸波材料<sup>[19,20]</sup>, 但其吸收强度、频带宽度无法满足新型吸波材料的要求, 因此钛酸钡的改性研究对于改善材料微波吸收性能和拓宽吸收频段有着积极的意义.

收稿日期: 2007-10-18, 收到修改稿日期: 2007-12-28

作者简介: 刘延坤 (1979-), 女, 博士研究生. E-mail: liu6643513@yahoo.com.cn 通讯联系人: 冯玉杰, 教授. E-mail: yujief@hit.edu.cn

稀土元素在电、光、磁等方面具有独特的性质, 这些特异性使得稀土元素对吸波材料的改性作用引起研究人员的高度重视<sup>[21,22]</sup>, 它既能改善材料的电磁性能, 又能赋予材料复合特性, 还可以使材料产生新的功能特性. 在稀土元素中, 铈离子与 BaTiO<sub>3</sub> 材料的其它阳离子的半径相差较大, 会在晶粒内部产生较多的电偶极子, 增大材料的介电损耗, 进而提高材料的微波吸收特性, 但通过掺杂稀土 Ce 改善钛酸钡材料微波吸收特性方面的工作尚少见报道. 因此, 本工作选择稀土铈为掺杂元素, 采用溶胶-凝胶法制备了稀土 Ce 掺杂 BaTiO<sub>3</sub> 微粉, 并对稀土 Ce 的添加对 BaTiO<sub>3</sub> 材料的结构、微波吸收特性的影响进行了研究, 探讨了稀土铈掺杂改性的作用机理.

## 2 试验和方法

### 2.1 铈掺杂钛酸钡微粉的制备

将一定量的醋酸钡 (Ba(CH<sub>3</sub>COO)<sub>2</sub>, 分析纯)、硝酸铈 (Ce(NO<sub>3</sub>)<sub>3</sub>, 纯度 99.99%) 依次溶解于蒸馏水中, 再加入表面活性剂聚乙二醇 (HO(CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>O)<sub>n</sub>H, 化学纯), 搅拌至完全溶解获得含钡、稀土铈溶液; 定量无水乙醇 (CH<sub>3</sub>CH<sub>2</sub>OH, 分析纯) 滴加到一定量钛酸四丁酯 (Ti(OC<sub>4</sub>H<sub>9</sub>)<sub>4</sub>, 化学纯) 中, 搅拌混合均匀后, 在强烈搅拌条件下向其中依次缓慢滴加冰乙酸 (CH<sub>3</sub>COOH, 分析纯), 含钡、稀土铈溶液, 获得均匀透明的黄色溶胶. 将溶胶置于恒温水浴中, 使之形成半透明的冻状凝胶, 在常温下陈化 4h 后放入 80°C 干燥箱中干燥 12h, 得到干凝胶. 将干凝胶在 850°C 下煅烧 2h, 即可得到稀土铈掺杂钛酸钡微粉.

### 2.2 结构表征与分析方法

粉体晶体结构由日本岛津 D/max-rA、英国 BADE D1 转靶 X 射线衍射仪测定, 测试条件: 管压为 35kV, 管电流为 25mA, Cu(λ=0.15418nm) 靶作为 X 射线源, 扫描步长为 0.25°/s, 扫描范围为 20°~90°; 采用日本 HITACHI 生产的 S-3000N 型扫描电镜观察粉体粒子分布情况及表面形貌. 利用英国 Renishaw 公司生产的共焦显微 Raman 光谱仪进行 Raman 光谱检测, 激光波长为 Ar<sup>+</sup> 514nm, 最大功率 150W, 测试功率 7.5W, 扫描步长为 1800Line/min, 曝光时间为 10s.

### 2.3 微波吸收特性

将制得的稀土铈掺杂 BaTiO<sub>3</sub> 微粉与石蜡按照

质量比 75% 混合制成 2.00mm 厚的块状复合材料, 利用 HP8722ES 全自动矢量网络分析仪, 测定样品的复介电常数、复磁导率的实部和虚部 (ε', ε'', μ', μ'').

## 3 结果和讨论

### 3.1 铈掺杂钛酸钡微粉晶体结构分析

#### 3.1.1 XRD 分析

图 1 为不同 Ce 掺杂量 (0.1%、0.2%、0.3%、0.4%) 的 BaTiO<sub>3</sub> 微粉 XRD 图谱, 相同条件下制得的纯钛酸钡微粉作对比分析. 由图 1 定性分析得出所有粉末样品均形成了四方相钛酸钡微晶, 晶粒发育良好. 从 XRD 图上并没有发现与 Ce 相对应的氧化物物相, 说明 Ce 可能以置换或间隙方式进入 BaTiO<sub>3</sub> 晶格. 与未掺杂 BaTiO<sub>3</sub> 的 XRD 图谱相比, 稀土 Ce 的添加使得 BaTiO<sub>3</sub> 晶相所对应的衍射峰强度变弱且峰形略宽化.

根据 Bragg 方程  $2d\sin\theta = n\lambda$  和四方晶系晶面间距公式  $\frac{1}{d^2} = \frac{h^2+k^2}{a^2} + \frac{l^2}{c^2}$ , 对衍射峰进行计算, 可分别获得所有样品的晶胞参数  $a$ 、 $c$ , 根据材料的晶胞参数分别按照式  $\rho = \frac{2M}{N_A V_{\text{cell}}}$ ,  $V_{\text{cell}} = \frac{\sqrt{3}}{2}a^2c$  (其中:  $M$  为摩尔质量,  $V_{\text{cell}}$  为单位体积,  $a$  和  $c$  为晶格常数,  $N_A = 6.02 \times 10^{23}$ ), 可计算得到样品的密度  $\rho$ 、晶胞体积  $V_{\text{cell}}$ . 样品的平均粒径由 Scherrer 公式  $D = \frac{k\lambda}{\beta \cos\theta}$  (其中,  $D$  为晶粒的粒径;  $k$  为仪器常数;  $\lambda$  为 X 射线的波长;  $\beta$  为半峰宽减去 0.2 后化成的弧度值;  $\theta$  为衍射角度) 计算获得. 详细数据如表 1.

从表 1 可以看出, 与未掺杂 BaTiO<sub>3</sub> 相比, 离子半径相对小的 Ce<sup>3+</sup> 取代离子半径大的 Ba<sup>2+</sup> 后造成晶格常数  $a$  增大, 晶格常数  $c$  减小、晶胞体积变小. 对于不同掺杂量铈掺杂 BaTiO<sub>3</sub> 系列材料而

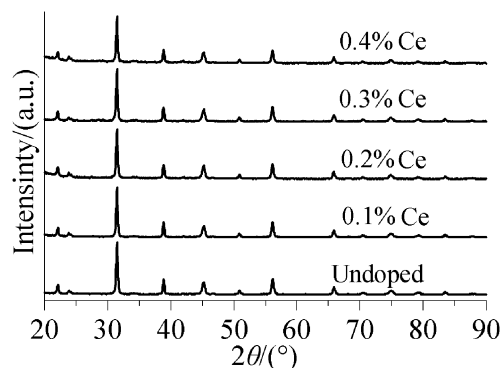


图 1 稀土 Ce 掺杂 BaTiO<sub>3</sub> 微粉的 XRD 图谱

Fig. 1 XRD patterns of Ce-doped BaTiO<sub>3</sub> powders

表 1 稀土铈掺杂 BaTiO<sub>3</sub> 系列微粉的晶胞参数  
Table 1 Lattice parameters of Ce-doped BaTiO<sub>3</sub> powders

| Substitution | $a = b/\text{\AA}$ | $c/\text{\AA}$ | $c/a$   | $V_{\text{cell}}/\text{\AA}^3$ | $\rho/\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$ | $D/\text{nm}$ |
|--------------|--------------------|----------------|---------|--------------------------------|------------------------------------|---------------|
| 0%Ce         | 4.00537            | 4.02856        | 1.00579 | 64.63                          | 5.9923                             | 63.1          |
| 0.1%Ce       | 4.00720            | 4.01591        | 1.00217 | 64.49                          | 6.0057                             | 40.5          |
| 0.2%Ce       | 0.00872            | 4.01681        | 1.00202 | 64.54                          | 6.0070                             | 39.8          |
| 0.3%Ce       | 4.00900            | 4.01396        | 1.00124 | 64.51                          | 6.0032                             | 39.5          |
| 0.4%Ce       | 4.01146            | 4.00816        | 0.99918 | 64.50                          | 6.0045                             | 36.7          |

言, 随着 Ce 掺杂量增大, 晶化程度趋好, 粒径逐渐变小, 证明 Ce 掺杂可以细化晶粒. 这是因为 Ce 粒子可以吸附在晶粒表面, 造成晶粒表面缺陷, 抑制了晶粒的生长. 同时随着掺杂量的增加, 晶格常数  $a$  增大, 掺杂量为 0.2% 时, 晶格常数  $c$  存在一最大值, 这可能是由于不同掺杂量的 Ce 进入晶格时所受到的各个方向上的作用不同, 造成其半径在各方向不同, 因而引起不同方向上晶格常数的变化也有所不同. 而晶轴比随掺杂量的增加不断减小, 逐渐趋于 1, 说明随着掺杂量增大, 样品由四方相逐渐趋向于立方相, 符合立方相在粒径小能量高时更易于存在的原理.

### 3.1.2 Raman 光谱分析

从图 2 中可以看出, Ce 稀土使得 BaTiO<sub>3</sub> 的各光声子模对应的拉曼峰的峰形展宽, 强度降低, 峰位置轻微红移. 这是由于稀土铈的掺杂细化了晶粒粒径, 晶轴比  $c/a$  减小, 晶胞对称性增强, 使长程静电力减弱, 进而使与之相对应的光学声子频率降低, 同时亦使各点上原子热运动能增强, 导致短程力增强, 而短程力的扰动对偶极子的取向起破坏作用, 在降低声子频率的同时还缩短了声子的寿命, 使衰减系数增大, 半高峰宽增大. 可见稀土掺杂后, BaTiO<sub>3</sub> 微粉仍保持四方相不变, 只是更加接近于立方相, 这与 XRD 分析结果相符.

### 3.2 SEM 分析

由 SEM 图像可知 (图 3), 稀土铈掺杂 BaTiO<sub>3</sub> 纳米晶粉体呈团聚状, 团聚颗粒粒径分布在 1~40  $\mu\text{m}$  之间, 为不规则形状, 大小基本均匀, 分散性较好; 轻摇粉体可发现其流动性好且松散, 属于软团聚. 纯的 BaTiO<sub>3</sub> 纳米晶粉体为纯白色, 铈掺杂粉体为淡黄色.

### 3.3 铈掺杂对材料电磁参数的影响

根据吸波材料的基本原理可知, 当电磁波通过吸波材料时, 通过能量转化来损耗电磁能. 吸波材料与电磁波的相互作用通过复介电常数和复磁导

率两个参数来表征. 在电磁场的作用下两者均以复数形式存在, 分别是  $\epsilon = \epsilon' - j\epsilon''$  及  $\mu = \mu' - j\mu''$ . 其中  $\epsilon'$ 、 $\mu'$  分别指复介电常数实部、复磁导率实部, 代表材料对能量的积蓄能力;  $\epsilon''$ 、 $\mu''$  分别指复介电常数虚部, 复磁导率虚部, 代表材料对电磁能量的损耗能力. 由于各掺杂量样品的  $\epsilon'$ 、 $\epsilon''$ 、 $\mu'$ 、 $\mu''$  变化规律相似, 所以本实验以掺杂量为 0.2% 的稀土铈掺杂 BaTiO<sub>3</sub> 材料为例, 比较其电磁参数与 BaTiO<sub>3</sub> 电磁参数的差异, 寻求稀土铈对 BaTiO<sub>3</sub> 微波吸收特性的影响规律. 本试验所制备的未掺杂 BaTiO<sub>3</sub> 和稀土铈掺杂 BaTiO<sub>3</sub> 的  $\epsilon'$ 、 $\epsilon''$ 、 $\mu'$ 、 $\mu''$  值见图 4.

由图 4(a) 可以看出, 在 2~12GHz 测试频段范围内, 未掺杂钛酸钡和稀土铈掺杂钛酸钡的介电常数实部  $\epsilon'$  基本上与频率无关, 未掺杂钛酸钡介电常数和稀土铈掺杂钛酸钡介电常数实部分别保持在 22~24 之间、22~23 之间; 在 12.0~18.0GHz 测试频段范围内, 未掺杂钛酸钡和稀土铈掺杂钛酸钡的介电常数实部均出现了二个峰, 未掺杂钛酸钡介电常数实部峰出现在 14.4、16.4GHz, 而稀土铈掺杂钛酸钡介电常数实部峰出现在 14.8、16.8GHz. 在整个频段范围内, 稀土铈的引入使得样品的介电常数实部发生蓝移, 移动了约 0.4GHz, 峰值略有减小.

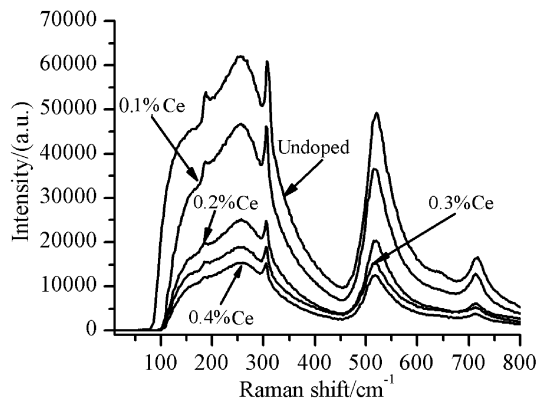
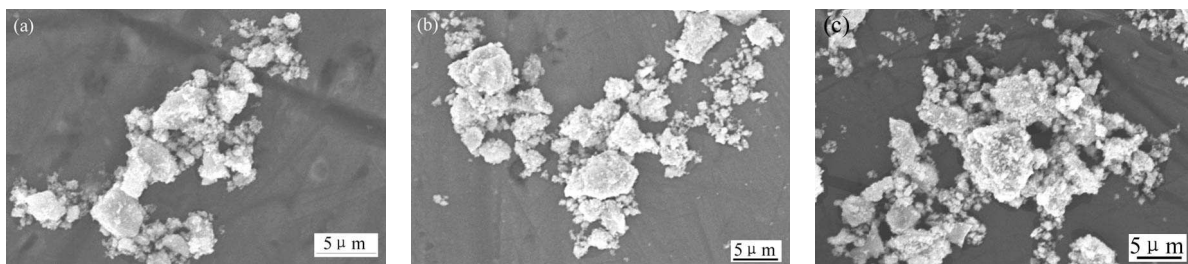
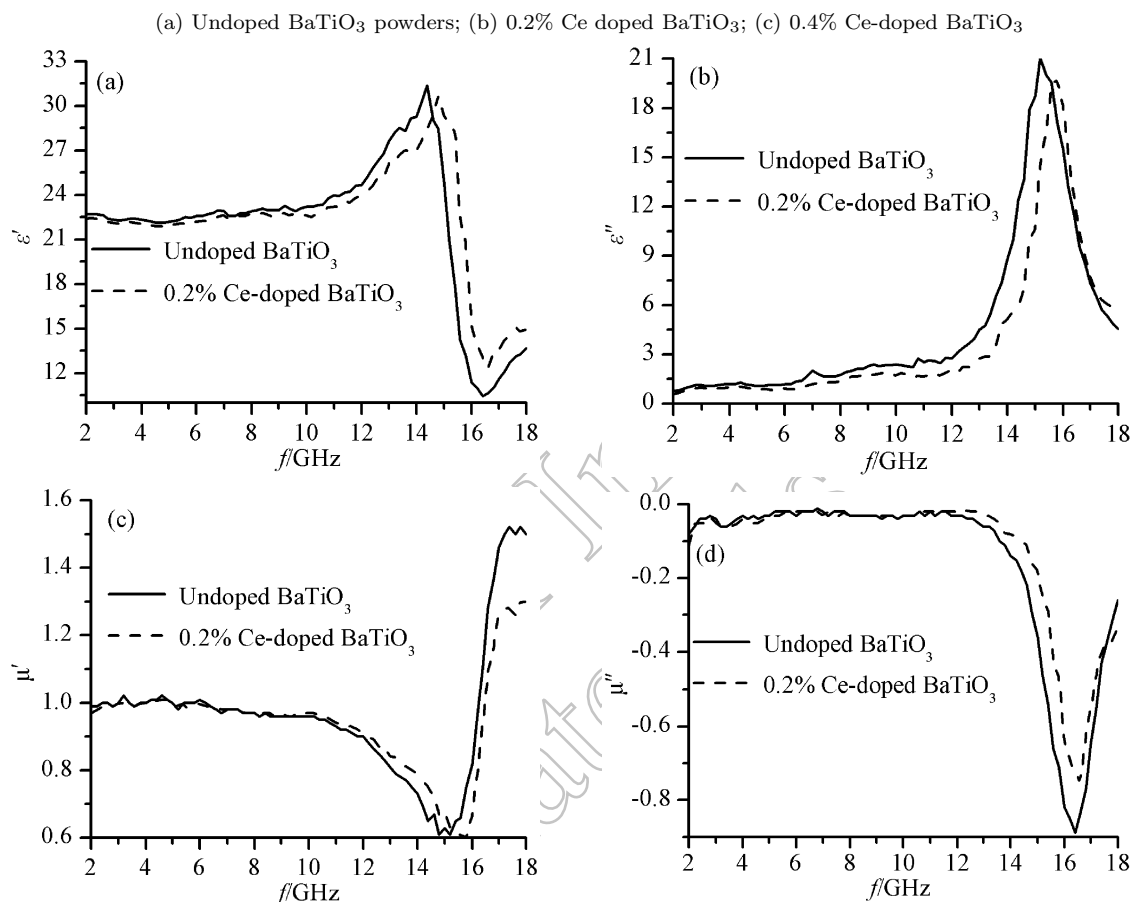


图 2 稀土铈掺杂钛酸钡微粉的 Raman 光谱图

Fig. 2 Raman spectra of Ce-doped BaTiO<sub>3</sub> powders

图3 Ce掺杂BaTiO<sub>3</sub>粉体的SEM照片Fig. 3 SEM micrographs of Ce-doped BaTiO<sub>3</sub> powders图4 稀土铈掺杂与未掺杂的BaTiO<sub>3</sub>系列材料电磁参数与频率之间的关系曲线Fig. 4 Relationship between the electromagnetic parameters and frequency of Ce-doped and undoped BaTiO<sub>3</sub> powders(a)  $\epsilon' - f$ ; (b)  $\epsilon'' - f$ ; (c)  $\mu' - f$ ; (d)  $\mu'' - f$ 

未掺杂钛酸钡样品及稀土铈掺杂钛酸钡微粉介电常数虚部只出现了一个峰(如图4(b)),分别出现在15.2、15.8GHz。稀土铈的引入使得钛酸钡介电常数虚部发生蓝移,移动了约0.6GHz,数值略有减小。这是因为Ba<sup>2+</sup>离子半径为1.43Å, Ti<sup>4+</sup>离子半径为0.64Å, Ce<sup>3+</sup>离子半径为1.03Å, Ce<sup>3+</sup>离子处于Ba<sup>2+</sup>、Ti<sup>4+</sup>离子之间靠近Ba<sup>2+</sup>离子一侧,因此Ce<sup>3+</sup>离子取代的是Ba<sup>2+</sup>离子。而Ce<sup>3+</sup>离子的Ba<sup>2+</sup>位取代导致氧八面体间隙收缩, Ti<sup>4+</sup>位取代受到抑制,氧空位数降低,晶粒增长受到抑制,同时Ti<sup>4+</sup>位离子偏离平衡位置进行自发极化的作用

也受到抑制,介电常数实部、虚部略有减小。

磁导率实部、虚部变化规律如图4(c)、(d)所示,稀土铈掺杂钛酸钡材料与未掺杂样品相比磁导率实部、虚部均向高频移动,其值也有所增大,且均存在一峰值,未掺杂钛酸钡样品和稀土铈掺杂样品峰值均出现在12~18GHz范围内。

稀土铈引入导致电磁参数发生蓝移,这主要是铈引入使晶粒细化,由于纳米粒子的表面效应,纳米颗粒变小,粒子表面张力变大,使得晶格畸变,晶格常数变化,键长变短导致纳米粒子的键本征振动频率增大,结果使得吸收带移向高频,宏观表

现为电磁参数向高频移动。

### 3.4 铈掺杂对材料微波吸收特性的影响

材料的微波吸收特性可以由反射损耗最直观的表达, 理论上当电磁波垂直入射样品时, 反射损耗  $R(\text{dB})$  可以按照下式计算:

$$R(\text{dB}) = 20\lg \left| \frac{Z_{\text{in}} - Z_0}{Z_{\text{in}} + Z_0} \right| = 20\lg \left| \frac{Z_{\text{in}}/Z_0 - 1}{Z_{\text{in}}/Z_0 + 1} \right| \quad (1)$$

式中  $Z_{\text{in}}/Z_0$  为等效阻抗, 为:

$$\frac{Z_{\text{in}}}{Z_0} = \sqrt{\mu/\epsilon} \tanh[j(2\pi ft/c)\sqrt{\mu\epsilon}] \quad (2)$$

式中:  $Z_{\text{in}}$ , 复合材料的阻抗;  $Z_0$ , 自由空间阻抗;  $c$ , 光速;  $t$ , 厚度;  $f$ , 电磁波频率;  $\epsilon = \epsilon' - j\epsilon''$ , 复介电常数;  $\mu = \mu' - j\mu''$ , 复磁导率。

将两种样品的  $\epsilon'$ 、 $\epsilon''$ 、 $\mu'$ 、 $\mu''$  值代入式 (1) 和式 (2), 假定厚度为 0.25cm, 用 Matlab 编程计算出一定厚度的样品的反射损耗随频率变化的曲线, 如图 5 所示。在 2~18GHz 频率范围内, 未掺杂钛酸钡有 9 个吸收峰, 出峰位置大概在 4.4、5.6、7.0、8.2、9.6、10.8、12.0、13.2、17.8GHz 处。其中, 4.4GHz 处反射损耗峰值达到 -25dB; 5.6、7.0、8.2、9.6、10.8、17.8GHz 处反射损耗峰值在 -10~-15dB 之间; 12.0、13.2GHz 处反射损耗峰值在 -5~-10dB 之间。在 8~12GHz 范围内, 反射损耗处于 -5~-15dB 之间, 频带宽度约为 0.6GHz。铈掺杂使得钛酸钡材料的反射损耗峰发生蓝移, 且峰强增强, 尤其 5.8 和 7.0GHz 处的吸收峰强度分别增加了 15dB 和 30dB。在 8~12GHz 范围内, 反射损耗显著提高, 可达 -5~-15dB, 频带宽度拓宽到 1.1GHz。

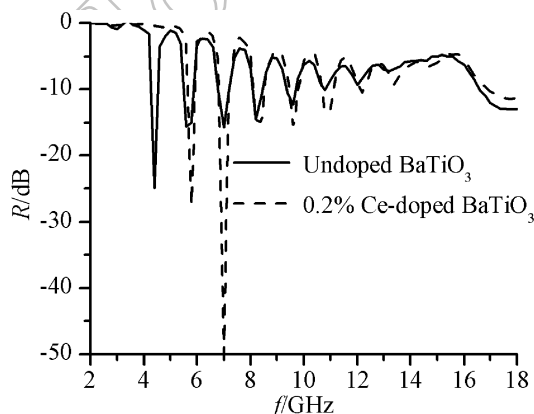


图 5 稀土铈掺杂与未掺杂的  $\text{BaTiO}_3$  系列材料反射损耗与频率的关系曲线

Fig. 5 Relationship between reflection loss and frequency of Ce-doped and undoped  $\text{BaTiO}_3$  powders

综上所述, 铈掺杂显著提高了钛酸钡材料的微波特性。掺杂的稀土铈主要从以下三个方面影响钛酸钡材料的微波吸收特性: (1) 掺杂稀土铈后, 由于晶粒细化和晶格畸变造成晶粒不规则, 粒径表面出现阶梯状台阶, 使微波在其内部传播增加反射次数, 所以材料在整个微波段的吸收特性得到提高; (2) 掺杂形成间隙杂质能级, 使价带电子更容易跃迁到导带上, 提高材料的电导率, 增大材料的涡流损耗, 宏观表现为吸波性能的提高; (3) 稀土铈会通过影响电偶极子弛豫共振和畴壁共振来改变材料的微波吸收特性。由于铈离子与其它阳离子的半径相差较大, 会在晶粒内部产生较多的电偶极子, 增大材料的极化弛豫损耗, 宏观表现为微波吸收特性的提高。

## 4 结论

1) 利用溶胶-凝胶技术制备的铈掺杂钛酸钡纳米微粉, 经 XRD 确定为四方相, 与未掺杂  $\text{BaTiO}_3$  相比, 晶化程度趋好, 晶粒细化, 晶格常数  $a$  增大, 晶格常数  $c$  减小、晶胞体积变小。对于不同掺杂量铈掺杂  $\text{BaTiO}_3$  系列材料而言, 随着掺杂量的增加, 晶格常数  $a$  增大, 掺杂量为 0.2% 时, 晶格常数  $c$  存在一最大值, 这可能是由于不同掺杂量的 Ce 进入晶格时所受到的各个方向上的作用不同, 造成其半径在各方向不同, 因而引起的不同方向上晶格常数的变化也有所不同。Raman 光谱进一步证实了 XRD 分析结果。SEM 照片证明稀土铈掺杂  $\text{BaTiO}_3$  微粉呈软团聚状, 颗粒为不规则形状, 大小基本均匀, 分散性较好。

2) 铈掺杂使得钛酸钡微粉的反射损耗峰发生蓝移, 且峰值明显的增强, 尤其 5.8 和 7.0GHz 处的峰值分别增加了 15 和 30dB。在 8~12GHz 范围内, 反射损耗也有所提高, 可达 -5~-15dB, 频带宽度拓宽了近 2 倍。由此可见, 掺入稀土元素铈能有效地改善  $\text{BaTiO}_3$  材料的微波吸收特性。

## 参考文献

- [1] Ezhilvalavan S, Tseng Tseung Yuen. *Materials Chemistry and Physics*, 2000, **65** (3): 227-248.
- [2] PANDA B, Samantaray C B, Dhar A, et al. *Journal of Materials Science*, 2002, **13** (5): 263-268.
- [3] Zhu W, Tan O K. *J. Mater. Res.*, 2000, **15** (6): 1291-1302.
- [4] 唐小锋, 陈海龙, 周志刚 (TANG Xiao-Feng, et al). 无机材料学报 (*Journal of Inorganic Materials*), 2000, **15** (4): 697-703.

- [5] 霍伟荣, 曲远方, 于天来. 稀有金属材料与工程, 2006, **35** (S2): 291–293.
- [6] Ratheesh R, Sebastian M T, Mohanan P, *et al.* *Materials Letter*, 2000, **45** (5): 279–285.
- [7] Peng Zifei, Chen Yun. *Microelectronic Engineering*, 2003, **66** (1/4): 102–106.
- [8] Dixit A, Majumder S B, Savvinov A, *et al.* *Materials Letters*, 2002, **56** (6): 933–940.
- [9] 刘 勇, 卢启芳, 陈长龙, 等 (LIU Yong, *et al.*). 无机材料学报 (Journal of Inorganic Materials), 2006, **21** (6): 1487–1490.
- [10] 朱启安, 宋方平, 陈万平, 等. 高等学校化学学报, 2006, **27** (9): 1612–1614.
- [11] 赵 鹏, 姚 熹. 硅酸盐学报, 2005, **33** (10): 1208–1214.
- [12] 李玲霞, 明 翠, 孙晓东. 稀有金属材料与工程, 2006, **35** (7): 1092–1095.
- [13] 李 波, 张树人, 周晓华 (LI Bo, *et al.*). 无机材料学报 (Journal of Inorganic Materials), 2007, **22** (4): 706–710.
- [14] Ohsato H. *Journal of the European Ceramic Society*, 2001, **21** (15): 2703–2711.
- [15] Chen X M, Sun Y H, Zheng X H. *Journal of the European Ceramic Society*, 2003, **23** (10): 1571–1575.
- [16] Magali Silveira Pinho, Maria Luisa Gregori, Regina Celia Reis Nunes, *et al.* *European Polymer Journal*, 2002, **38** (11): 2321–2327.
- [17] Guan Hongtao, Liu Shunhua, Duan Yuping, *et al.* *Cement & Concrete Composites*, 2006, **28** (5): 468–474.
- [18] Duan Yuping, Liu Shunhua, Guan Hongtao. *Science and Technology of Advanced Materials*, 2005, **6** (5): 513–518.
- [19] 王桂芹, 陈晓东, 段玉平, 等 (WANG Gui-Qin, *et al.*). 无机材料学报 (Journal of Inorganic Materials), 2007, **22** (2): 293–297.
- [20] 陈晓东, 王桂芹, 段玉平, 等 (CHEN Xiaodong, *et al.*). 硅酸盐学报 (Journal of the Chinese Ceramic Society), 2006, **34** (12): 1446–1451.
- [21] 李国栋, 云月厚, 显 康, 等. 磁性材料及器件, 2001, **32** (5): 14–16.
- [22] 阚 涛, 娄明连. 磁性材料及器件, 2001, **32** (6): 18–21.