引用格式：魏子尧，楼志豪，卢铭鑫，等.高熵化设计与热处理协同优化钛酸锶基钙钛矿陶瓷热输运性能[J].材料工程，2025，53(12)：163-169.
WEI Ziyao，LOU Zhihao，LU Mingxin，et al.High-entropy design and heat treatment synergistic optimization of thermal transport properties of strontium titanate-based perovskite ceramics[J].Journal of Materials Engineering，2025，53(12)：163-169.

高熵化设计与热处理协同优化钛酸锶基钙钛矿陶瓷热输运性能

High-entropy design and heat treatment synergistic optimization of thermal transport properties of strontium titanate-based perovskite ceramics

魏子尧，楼志豪，卢铭鑫，李岱恒，彭铭宇，许 杰，高 峰*
（西北工业大学 材料学院 凝固技术全国重点实验室，西安 710072）
WEI Ziyao，LOU Zhihao，LU Mingxin，LI Daiheng，
PENG Mingyu，XU Jie，GAO Feng*
（State Key Laboratory of Solidification Processing，School of Materials Science and Engineering，Northwestern Polytechnical University，Xi'an 710072，China）

摘要：采用传统固相法制备钛酸锶基钙钛矿结构高熵陶瓷$(Ca_{0.25}Sr_{0.25}Ba_{0.25}Pb_{0.25})(Zr_xTi_{1-x})O_3$，研究构型熵以及退火热处理工艺对陶瓷相组成、微观结构和热导率的影响。结果表明：在熵工程以及热处理工艺的共同影响下，陶瓷孔隙率提升，具有低热导率的PbO纳米第二相析出且晶粒平均尺寸减小，热导率大幅下降。高熵组分引入的结构无序性，有效提升了陶瓷热导率的稳定性，并使其表现出类玻璃的热输运特性。当$x=0.20$时，陶瓷具有最佳的隔热性能及热导率稳定性，即$\kappa_{800\,℃}=0.89\ W\cdot m^{-1}\cdot K^{-1}$，且$\Delta\kappa_{100\text{-}800\,℃}=0.07\ W\cdot m^{-1}\cdot K^{-1}$，为高温隔热应用提供了备选材料。

关键词：隔热材料；高熵陶瓷；热处理；微观结构；热输运性能
doi：10.11868/j.issn.1001-4381.2024.000222 **CSTR**：32421.14.j.issn.1001-4381.2024.000222
中图分类号：TB34 **文献标识码**：A **文章编号**：1001-4381(2025)12-0163-07

Abstract: Using the conventional solid-state method, high-entropy ceramics with a perovskite structure $(Ca_{0.25}Sr_{0.25}Ba_{0.25}Pb_{0.25})(Zr_xTi_{1-x})O_3$ are prepared. The effects of configurational entropy and annealing heat treatment on the phase composition, microstructure, and thermal conductivity of the ceramics are investigated. The results show that the combined influence of entropy engineering and heat treatment processes results in an increase in the porosity of the ceramics, the precipitation of the PbO nano-second phases with low thermal conductivity, a reduction in the average grain size, and a significant reduction in the thermal conductivity. The structural disorder introduced by the high-entropy composition effectively enhances the stability of the thermal conductivity and imparts glass-like thermal transport characteristics to the ceramics. When $x=0.20$, the ceramic exhibits optimal thermal insulation performance and thermal conductivity stability, with $\kappa_{800\,℃}=0.89\ W\cdot m^{-1}\cdot K^{-1}$ and $\Delta\kappa_{100\text{-}800\,℃}=0.07\ W\cdot m^{-1}\cdot K^{-1}$, providing alternative materials for high-temperature thermal insulation applications.

Key words: thermal insulation material; high-entropy ceramic; heat treatment; microstructure; thermal transport property

热防护系统是保障飞行器安全的关键系统之一，随着超高速飞行器的不断发展，对热防护系统提出了更高的要求[1]。目前飞行器在应对中高温时使用的隔热材料主要是刚性隔热瓦，但是仍然存在力学强度低，高温下热导率升高等问题[2]，严重限制了高速飞行器的进一步发展，因此，研制具有良好力学性能的新型耐高温隔热材料迫在眉睫。以钛酸锶为代表的钙钛矿陶瓷具有熔点高、高温下力学性能稳定等优

点，有望成为新一代隔热材料[3]，然而，其本征热导率较高[4]，阻碍了其进一步在航空航天隔热领域的应用。

自从2015年以来，高熵化的材料设计理念步入陶瓷领域，为隔热材料的研究开辟了新的思路。高熵体系通常具有4种效应[5]：在热力学上为高熵效应；在动力学上为延迟扩散效应；在结构上为晶格畸变效应；在性能上为鸡尾酒效应。王云平等[6]还指出：高熵材料在高温下可大幅降低吉布斯自由能，从而提升材料的热稳定性。通过合理的配方设计，可以获得高强度、高硬度、高稳定性、耐高温氧化及低热导率的高熵材料，因此，高熵陶瓷成为隔热材料领域的研究热点[7]。Chen等[8]采用放电等离子烧结技术制备了$RETa_3O_9$(RE=La，Sm，Eu，Gd，Dy，Ho，Er，Tm)高熵陶瓷，具有较低的导热系数(1.5 $W\cdot m^{-1}\cdot K^{-1}$)以及较高的硬度(10 GPa)。Turcer等[9]制备了单相的β-$(Y_{0.2}Yb_{0.2}Sc_{0.2}Gd_{0.2}Lu_{0.2})Si_2O_7$高熵陶瓷，$A$位多种阳离子提升了质量无序因子，显著增强声子散射，热导率仅为1.52 $W\cdot m^{-1}\cdot K^{-1}$。综上可知，熵工程可以有效地降低晶格热导率，但是多数高熵致密陶瓷热导率仍在1 $W\cdot m^{-1}\cdot K^{-1}$以上，无法满足实际热防护需求。而降低陶瓷热导率的另一种方法是增加材料的孔隙率，由于空气的热导率较低(0.026 $W\cdot m^{-1}\cdot K^{-1}$)，故在隔热材料中引入气相可有效降低热导率，传统制备多孔陶瓷的方法包括造孔剂法、泡沫凝胶浇筑法以及3D打印法等[10]。但这些方法都存在操作工艺复杂、易引入有机相等问题。Xing等[11]提出采用还原性气氛退火处理的方法，有效地提升了陶瓷的孔隙率。

因此，本工作以钙钛矿结构钛酸锶基高熵陶瓷$(Ca_{0.25}Sr_{0.25}Ba_{0.25}Pb_{0.25})(Zr_xTi_{1-x})O_3$作为研究对象，通过调节构型熵以及还原退火处理，探究材料相组成、微观组织以及热导率的变化规律，以期获得低热导率的钛酸锶基高熵陶瓷材料。

1 实验材料与方法

采用固相法制备$(Ca_{0.25}Sr_{0.25}Ba_{0.25}Pb_{0.25})(Zr_xTi_{1-x})O_3$高熵陶瓷($x$=0.05，0.10，0.15，0.20)，样品编号分别为Zr05、Zr10、Zr15、Zr20。选用分析纯(AR)的$CaCO_3$、$SrCO_3$、$BaCO_3$、PbO、ZrO_2、TiO_2为原料，首先按照化学计量比称取氧化物原材料，以酒精为球磨介质混合8 h，烘干后在850 ℃下预烧4 h，再进行二次球磨8 h，烘干后加入PVA黏结剂造粒，在100 MPa下压成Φ12 mm×1 mm的圆形素坯体后于500 ℃保温1 h排胶。将陶瓷在1350 ℃保温2 h烧结成瓷后，在氩气气氛保护下利用石墨粉进行还原退火处理。实验所用原料如表1所示。

采用阿基米德排水法测定陶瓷的表观密度(ρ)。通过X射线衍射仪(X-ray diffraction，XRD，D8DISCOVER)分析相组成。采用扫描电子显微镜(scanning electron microscope，SEM，GEMINI SEM)观察陶瓷的微观组织结构。采用高温激光热导仪(LFA-1000)和差热分析仪(NETZSCH，DSC/404C)分别测试热扩散系数(D)和比热容(C_p)，热导率(κ)通过式(1)计算获得：

$$\kappa = DC_p\rho \tag{1}$$

表1 实验原材料

Table 1 Raw materials used in the experiment

Reagent	Grade	Purity/%	Manufacturer
$CaCO_3$	AR	99.0	Sinopharm Chemical Reagent Co., Ltd.
$SrCO_3$	AR	99.0	Sinopharm Chemical Reagent Co., Ltd.
$BaCO_3$	AR	99.0	Sinopharm Chemical Reagent Co., Ltd.
PbO	AR	99.0	Sinopharm Chemical Reagent Co., Ltd.
ZrO_2	AR	99.0	Sinopharm Chemical Reagent Co., Ltd.
TiO_2	AR	99.8	Xuancheng Jingrui New Material Co., Ltd.
C	AR	99.0	Sinopharm Chemical Reagent Co., Ltd.
$[—CH_2CHOH—]_n$	AR	87.0-89.0	Shanghai yuanye Biological Technology Co., Ltd.

2 结果与分析

2.1 陶瓷的相组成与微观结构

对于钙钛矿结构，常采用容差因子(t)来预测结构的稳定性[12]：

$$t = \frac{R_A + R_B}{\sqrt{2}(R_B + R_O)} \tag{2}$$

式中：R_A、R_B与R_O分别是钙钛矿结构中A、B位阳离子平均半径以及氧离子的半径；t越接近于1，钙钛矿结构越稳定。表2列出了各组分陶瓷的容差因子和构型

表 2　$(Ca_{0.25}Sr_{0.25}Ba_{0.25}Pb_{0.25})(Zr_xTi_{1-x})O_3$陶瓷的容差因子($t$)及构型熵($\Delta S_{Conf}$)

Table 2　Tolerance factor(t) and configuration entropy(ΔS_{Conf}) of $(Ca_{0.25}Sr_{0.25}Ba_{0.25}Pb_{0.25})(Zr_xTi_{1-x})O_3$ ceramics

Sample ID	t	ΔS_{Conf}
Zr05	1.009	1.49R
Zr10	1.006	1.55R
Zr15	1.004	1.60R
Zr20	1.000	1.64R

熵，容差因子值均在 1.00～1.01 之间，故其稳定性较好。系统构型熵的表达式为[13]：

$$\Delta S_{Conf}=-R\sum_{i=1}^{n}x_i\ln x_i \tag{3}$$

式中：R为气体常数；x_i为第i个元素的原子分数，通常将构型熵大于 1.5R 的材料体系称之为高熵体系[14]。由表 2 数据可知，当陶瓷 B 位 Zr 元素含量高于 0.05 时成为高熵陶瓷。

图 1 为陶瓷表观密度与闭口孔隙率随 Zr 元素含量的变化图，由图可清晰看出：陶瓷的密度随着构型熵的增加以及退火处理而降低。经过退火处理后的样品孔隙率均在 20% 以上，且随构型熵增加而升高，特别是 Zr 含量由 0.10 增加至 0.15 时，孔隙率大幅上升，该变化是由高构型熵对体系微观结构的影响造成的，当 Zr 含量为 0.20 时，孔隙率最大(30.8%)。

对陶瓷进行相组成分析，图 2(a)为陶瓷退火前的 XRD 谱图，可以看出，退火前陶瓷的衍射峰均与立方钙钛矿结构 $SrTiO_3$ 标准卡片(PDF#84-0444)吻合，这

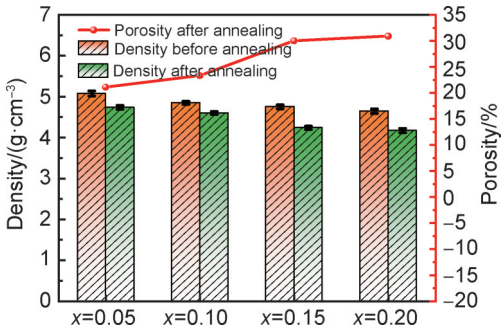


图 1　$(Ca_{0.25}Sr_{0.25}Ba_{0.25}Pb_{0.25})(Zr_xTi_{1-x})O_3$陶瓷的表观密度与闭口孔隙率

Fig.1　Apparent density and closed porosity of $(Ca_{0.25}Sr_{0.25}Ba_{0.25}Pb_{0.25})(Zr_xTi_{1-x})O_3$ ceramics

表明各元素均进入晶格，形成了单相固溶体。这可以归因于各组分陶瓷都有接近于 1 的容差因子。根据 32°附近的局部放大谱图显示，(110)主衍射峰随着 B 位 Zr 含量的增加而向小角度方向偏移，说明晶格常数增大，这是由于 Zr 的离子半径大于 Ti(表 3)，故随 Zr 元素进入晶格，晶格体积膨胀。图 2(b)为陶瓷退火后的 XRD 谱图，图中可见各个组分的陶瓷均出现了第二相衍射峰，根据三强峰特征进行标识得出第二相为 PbO。这是由于在高温退火的过程中晶格中的 Pb 元素挥发出来，并迅速与被碳粉还原出的晶格氧相结合生成 PbO。对第二相含量进行定量分析，各组分样品的 PbO 质量分数在 3%～4% 之间。PbO 的热导率远低于 $SrTiO_3$ 的热导率[15-16]，在 $SrTiO_3$ 基高熵陶瓷的热输运过程中阻碍热量的传递。

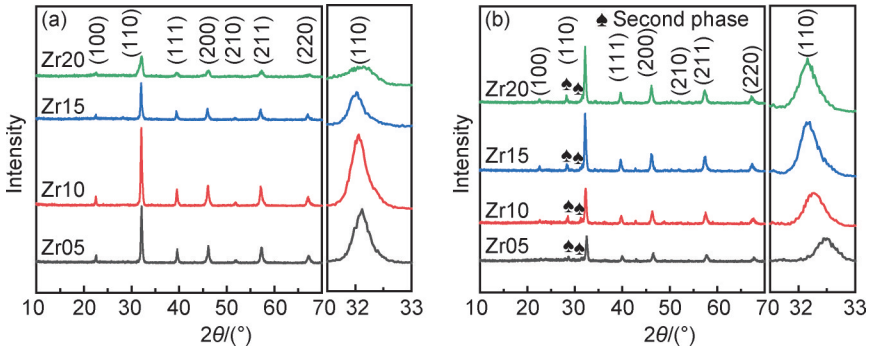


图 2　$(Ca_{0.25}Sr_{0.25}Ba_{0.25}Pb_{0.25})(Zr_xTi_{1-x})O_3$陶瓷退火前(a)后(b)XRD 谱图

Fig.2　XRD patterns of $(Ca_{0.25}Sr_{0.25}Ba_{0.25}Pb_{0.25})(Zr_xTi_{1-x})O_3$ ceramics before(a) and after(b) annealing

为了进一步确定第二相的存在对材料热导率的影响，对 Zr05 陶瓷自然断面进行背散射电子成像(backscattered electron imaging，BSE)，结果如图 3 所示，第二相在材料中的存在方式为纳米团簇。这些第二相在成为额外的声子散射中心的同时，由于纳米相晶界密度大的特点，晶界对于声子的非相干散射增强[17]，故在体系中引入纳米第二相可显著降低晶格热导率。本研究采用还原退火的处理工艺，在不掺杂的前提下诱导基体形成了低热导率的纳米第二相，这对于降低材料热导率有很大的贡献。

图 4 为各组分陶瓷退火前后的断面 SEM 图，由图

表3 $(Ca_{0.25}Sr_{0.25}Ba_{0.25}Pb_{0.25})(Zr_xTi_{1-x})O_3$陶瓷中元素信息

Table 3 Element information in $(Ca_{0.25}Sr_{0.25}Ba_{0.25}Pb_{0.25})(Zr_xTi_{1-x})O_3$ ceramics

Element	Oxidation number	Coordination number	r_c/pm
Ca	+2	Ⅻ	134.0
Sr	+2	Ⅻ	144.0
Ba	+2	Ⅻ	161.0
Pb	+2	Ⅻ	149.0
Zr	+4	Ⅵ	72.0
Ti	+4	Ⅵ	60.5
O	−2	Ⅵ	140.0

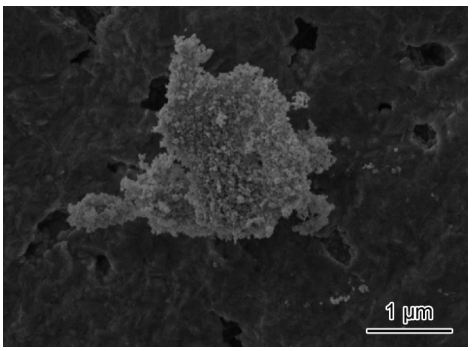


图3 Zr05陶瓷断面BSE图

Fig.3 BSE image of the cross-section of Zr05 ceramic

可见,退火后的Zr20已形成多孔材料的微观结构,孔洞均匀且密集。孔隙率的增加是由于随着陶瓷构型熵不断增加所带来的晶格畸变效应,降低了晶粒之间的连接性,从而出现大量气孔。此外,在高温还原退火的过程中由于碳粉的不完全燃烧以及与样品表面的水蒸气发生反应生成了CO和H_2,还原了陶瓷晶格中的氧,生成氧空位[18],这也会导致孔隙率的提升。氧空位浓度的增加还有助于阻碍热量的传递,由于陶瓷基体中存在均匀的封闭气孔,可降低热传导效率,减少了热量传播过程中的对流。从图4还可以看出,晶粒尺寸随构型熵的增加逐渐减小,一方面是因为第二相的析出会起到钉扎晶界、阻碍晶界迁移的作用,另一方面随着体系构型熵逐渐增大,材料动力学上具有迟滞扩散的现象,促使细小晶粒的形成。随着晶粒尺寸的减小,体系内部晶界密度大幅增加,有效阻碍了声子的传输。

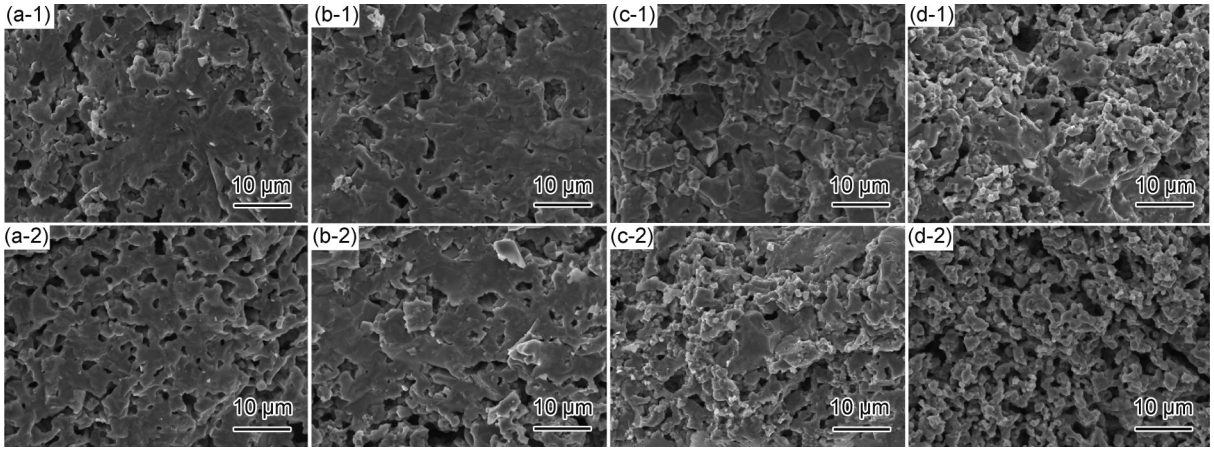


图4 $(Ca_{0.25}Sr_{0.25}Ba_{0.25}Pb_{0.25})(Zr_xTi_{1-x})O_3$陶瓷退火前(1)后(2)的断面SEM图

(a)Zr05;(b)Zr10;(c)Zr15;(d)Zr20

Fig.4 SEM images of cross-section of $(Ca_{0.25}Sr_{0.25}Ba_{0.25}Pb_{0.25})(Zr_xTi_{1-x})O_3$ ceramics before(1) and after(2) annealing

(a)Zr05;(b)Zr10;(c)Zr15;(d)Zr20

2.2 陶瓷的热输运性能

图5为陶瓷的热输运性能随温度的变化曲线,从图5(a)可以看出,随着温度升高,各组分陶瓷比热容均提升。而由图5(b)可知,陶瓷热扩散系数随温度升高而降低。图5(c)是根据陶瓷密度、比热容和热扩散系数计算出的热导率,其随温度的升高而略微下降。随着构型熵的增加,陶瓷的热导率呈下降趋势,表明高熵化设计以及较高的孔隙率有效地阻碍了热传输,其中Zr20在800 ℃时获得0.89 $W\cdot m^{-1}\cdot K^{-1}$的极低热导率,与块状$SrTiO_3$相比下降了约72%。这是还原退火以及熵工程协同优化的结果。然而,在100~800 ℃的温度范围内,陶瓷的热导率变化维持在很小的范围内,各组分陶瓷由100 ℃升高至800 ℃时热导率的降低值通过式(4)计算:

$$\Delta\kappa_{100\text{-}800\,℃}=\left|\kappa_{800\,℃}-\kappa_{100\,℃}\right| \tag{4}$$

计算结果列于表4,可以发现各组分陶瓷热导率降低范围均小于0.2 $W\cdot m^{-1}\cdot K^{-1}$,且随着构型熵的增加,热导率的变化范围逐渐减小,Zr20在700 ℃的升温区间内热导率仅降低0.07 $W\cdot m^{-1}\cdot K^{-1}$。这是由于随着体系内熵的增加,短程化学无序性以及结构

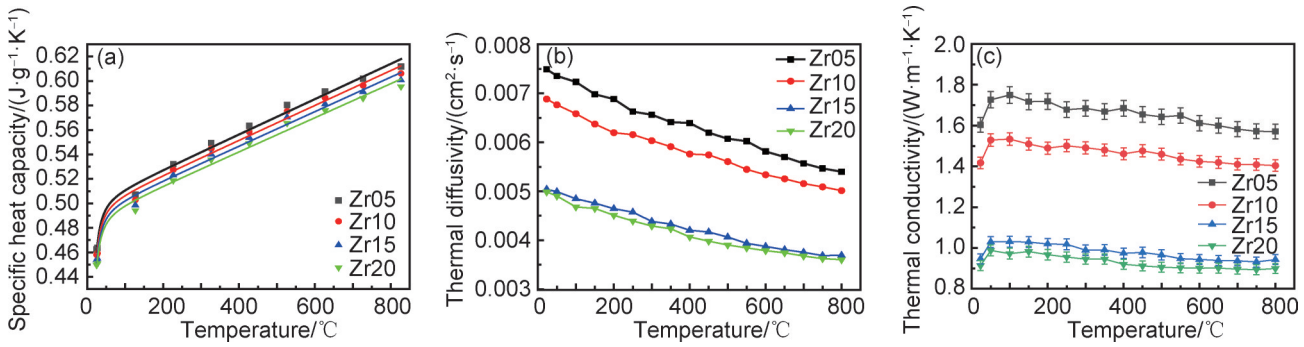


图 5　$(Ca_{0.25}Sr_{0.25}Ba_{0.25}Pb_{0.25})(Zr_xTi_{1-x})O_3$陶瓷的热输运性能随温度的变化

(a)比热容;(b)热扩散系数;(c)热导率

Fig.5　Temperature dependent thermal transport properties of $(Ca_{0.25}Sr_{0.25}Ba_{0.25}Pb_{0.25})(Zr_xTi_{1-x})O_3$ ceramics

(a)specific heat capacity;(b)thermal diffusivity;(c)thermal conductivity

表 4　$(Ca_{0.25}Sr_{0.25}Ba_{0.25}Pb_{0.25})(Zr_xTi_{1-x})O_3$陶瓷的热导率降低值

Table 4　Reduced thermal conductivity of $(Ca_{0.25}Sr_{0.25}Ba_{0.25}Pb_{0.25})(Zr_xTi_{1-x})O_3$ ceramics

Sample ID	$\Delta\kappa_{100\text{-}800\,℃}/(W\cdot m^{-1}\cdot K^{-1})$
Zr05	0.18
Zr10	0.13
Zr15	0.09
Zr20	0.07

无序性程度提高，获得了类似于玻璃态的热导曲线[19]。

陶瓷热输运机制如图 6 所示。对于固体来说，热传递需要依靠物质内部微观粒子相互碰撞与交换能量来实现，这些微观粒子主要包括声子、光子、载流子。光子的导热一般发生在极高温区域，在本研究中不予考虑，且本实验陶瓷均为绝缘体，故只需要考虑声子导热。若要降低材料的热导率，需要阻碍声子的输运，加强对声子的散射。声子的散射机制主要包括界面散射、声子-声子散射以及缺陷散射[20]等。在声子的散射过程中，不同频率的声子表现出显著的行为差异，这种差异是由声子的色散关系以及晶体的独特结构特征造成。因此，为最大程度地降低材料的热导率，需要引入多种散射机制，实现对宽频声子的散射[21]。通过对材料相组成以及微观组织结构的表征与分析，可知材料内部存在丰富的声子散射中心。陶瓷在退火过程中产生的均匀弥散的气孔以及低热导率的 PbO 第二相可以减少材料内部热量的对流。材料体系内还存在丰富的界面：首先，迟滞扩散效应所引起的晶粒细化现象导致晶界密度增加；其次，第二

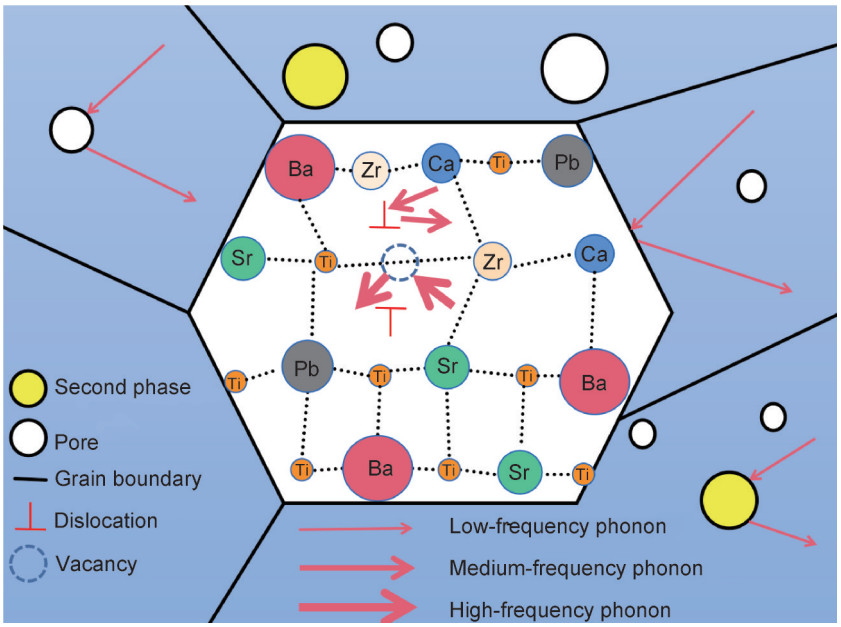


图 6　$(Ca_{0.25}Sr_{0.25}Ba_{0.25}Pb_{0.25})(Zr_xTi_{1-x})O_3$陶瓷热输运机制图

Fig.6　Thermal transport mechanism diagram of $(Ca_{0.25}Sr_{0.25}Ba_{0.25}Pb_{0.25})(Zr_xTi_{1-x})O_3$ ceramics

相团簇形成了纳米尺度界面;同时,均匀而弥散的气孔引入固-气相界面。这些不同尺度的界面对散射低频声子具有重要作用[22]。此外,高熵化设计使得多种元素相互竞争进入钙钛矿结构晶格中形成固溶体,产生了剧烈的晶格畸变效应和应变场[23],这不仅会使原子偏离正常的平衡位置,增加声子散射中心,还会出现多种尺度的结构缺陷,包括空位、位错、亚晶界等[24]。其中,空位可以散射高频声子(5~15 THz),其弛豫时间依赖于原子尺寸波动以及质量波动,位错有助于增强中低频声子的散射(<5 THz),高熵体系内丰富的元素种类提供了足够的尺寸以及质量无序度,多尺度的结构缺陷散射了各频率的声子,降低了声子平均自由程,从而影响材料中的热输运[25],获得了低热导率的钙钛矿结构高熵陶瓷材料。

3 结论

(1)采用传统固相法制备了$(Ca_{0.25}Sr_{0.25}Ba_{0.25}Pb_{0.25})(Zr_xTi_{1-x})O_3$陶瓷($x$=0.05,0.10,0.15,0.20),由于高熵效应以及退火热处理工艺的协同作用,陶瓷孔隙率提升,晶粒尺寸减小,并析出了具有低热导率的PbO纳米第二相。材料内部呈现多种声子散射机制,最终Zr20获得了0.89 $W\cdot m^{-1}\cdot K^{-1}$的低热导率。

(2)由于高熵化设计提供的结构无序性,各组分陶瓷热导率均表现出高稳定性,其中Zr20从100 ℃升高至800 ℃时热导率仅降低0.07 $W\cdot m^{-1}\cdot K^{-1}$。

参考文献

[1] 向阳, 莫琛, 彭志航, 等. 防隔热一体化TPS材料制备及耐高温性能[J]. 材料工程, 2023, 51(8): 207-214.
XIANG Y, MO C, PENG Z H, et al. Preparation and high temperature resistance of TPS material with integrated heat insulation and protection[J]. Journal of Materials Engineering, 2023, 51(8): 207-214.

[2] 陈玉峰, 洪长青, 胡成龙, 等. 空天飞行器用热防护陶瓷材料[J]. 现代技术陶瓷, 2017, 38(5): 311-390.
CHEN Y F, HONG C Q, HU C L, et al. Ceramic-based thermal protection materials for aerospace vehicles[J]. Advanced Ceramics, 2017, 38(5): 311-390.

[3] 薛召露, 郭洪波, 宫声凯, 等. 新型热障涂层陶瓷隔热层材料[J]. 航空材料学报, 2018, 38(2): 10-20.
XUE Z L, GUO H B, GONG S K, et al. Novel ceramic materials for thermal barrier coatings[J]. Journal of Aeronautical Materials, 2018, 38(2): 10-20.

[4] YU C, SCULLIN M L, HUIJBEN M, et al. Thermal conductivity reduction in oxygen-deficient strontium titanates[J]. Applied Physics Letters, 2008, 92(19): 191911.

[5] REN J T, CHEN L, WANG H Y, et al. High-entropy alloys in electrocatalysis: from fundamentals to applications[J]. Chemical Society Reviews, 2023, 52(23): 8319-8373.

[6] 王云平, 刘世民, 董闯. 高熵陶瓷材料研究进展及挑战[J]. 材料工程, 2024, 52(1): 83-100.
WANG Y P, LIU S M, DONG C. Research progress and challenge of high entropy ceramic materials[J]. Journal of Materials Engineering, 2024, 52(1): 83-100.

[7] 赖丽萍, 汪俊, 种晓宇, 等. 潜在高熵陶瓷热障涂层材料的研究进展[J]. 材料工程, 2023, 51(7): 61-77.
LAI L P, WANG J, CHONG X Y, et al. Research progress in potential high-entropy ceramic thermal barrier coating materials[J]. Journal of Materials Engineering, 2023, 51(7): 61-77.

[8] CHEN L, LI B, GUO J, et al. High-entropy perovskite $RETa_3O_9$ ceramics for high-temperature environmental/thermal barrier coatings[J]. Journal of Advanced Ceramics, 2022, 11(4): 556-569.

[9] TURCER L R, SENGUPTA A, PADTURE N P. Low thermal conductivity in high-entropy rare-earth pyrosilicate solid-solutions for thermal environmental barrier coatings[J]. Scripta Materialia, 2021, 191: 40-45.

[10] 王蒙蒙, 隋学叶, 綦开宇, 等. 多孔陶瓷隔热材料的研究进展[J]. 硅酸盐通报, 2024, 43(2): 637-648.
WANG M M, SUI X Y, QI K Y, et al. Research progress of porous ceramic insulation material[J]. Bulletin of the Chinese Ceramic Society, 2024, 43(2): 637-648.

[11] XING X, ZHANG G, DELL'AMICO M, et al. Effect of annealing on properties of carbonaceous materials. Part Ⅱ: porosity and pore geometry[J]. Metallurgical and Materials Transactions B, 2013, 44(4): 862-869.

[12] GOLDSCHMIDT V M. Die gesetze der krystallochemie[J]. Die Naturwissenschaften, 1926, 14(21): 477-485.

[13] AKRAMI S, EDALATI P, FUJI M, et al. High-entropy ceramics: review of principles, production and applications[J]. Materials Science and Engineering: R: Reports, 2021, 146: 100644.

[14] ANANDKUMAR M, TROFIMOV E. Synthesis, properties, and applications of high-entropy oxide ceramics: current progress and future perspectives[J]. Journal of Alloys and Compounds, 2023, 960: 170690.

[15] ANISIMOVA N I, BORDOVSKY G A, BORDOVSKY V A, et al. Electrical and thermal properties of Bi_2O_3, PbO and mixed oxides of Bi_2O_3-PbO system[C]//Proceedings of the 2004 IEEE International Conference on Solid Dielectrics. Toulouse: IEEE, 2004: 141-142.

[16] 李宁. 热电氧化物钛酸锶的热传导研究[D]. 厦门: 厦门大学, 2014.
LI N. Thermal conductivity studies of thermoelectric oxide $SrTiO_3$[D]. Xiamen: Xiamen University, 2014.

[17] WU Y, FAN R, YANG P. Block-by-block growth of single-crystalline Si/SiGe superlattice nanowires[J]. Nano Letters, 2002, 2(2): 83-86.

[18] 秦梦婕. $SrTiO_3$基热电织构陶瓷的设计、制备与性能研究[D]. 西安: 西北工业大学, 2020.
QIN M J. Design, preparation, and electrical properties of $SrTiO_3$-based thermoelectric textured ceramics[D]. Xi'an:

Northwestern Polytechnical University, 2020.

[19] ZHANG P, GONG L Y, LOU Z H, et al. Reduced lattice thermal conductivity of perovskite-type high-entropy ($Ca_{0.25}Sr_{0.25}Ba_{0.25}RE_{0.25}$) TiO_3 ceramics by phonon engineering for thermoelectric applications[J]. Journal of Alloys and Compounds, 2022, 898: 162858.

[20] KIM W. Strategies for engineering phonon transport in thermoelectrics[J]. Journal of Materials Chemistry C, 2015, 3(40): 10336-10348.

[21] YANG J, XI L L, QIU W J, et al. On the tuning of electrical and thermal transport in thermoelectrics: an integrated theory-experiment perspective[J]. NPJ Computational Materials, 2016, 2: 15015.

[22] ZHANG P, QIN M J, LOU Z H, et al. Grain orientation evolution and multi-scale interfaces enhanced thermoelectric properties of textured $Sr_{0.9}La_{0.1}TiO_3$ based ceramics[J]. Journal of the European Ceramic Society, 2022, 42(15): 7017-7026.

[23] TWAHA S, ZHU J, YAN Y, et al. A comprehensive review of thermoelectric technology: materials, applications, modelling and performance improvement[J]. Renewable and Sustainable Energy Reviews, 2016, 65: 698-726.

[24] SANTODONATO L J, ZHANG Y, FEYGENSON M, et al. Deviation from high-entropy configurations in the atomic distributions of a multi-principal-element alloy[J]. Nature Communications, 2015, 6: 5964.

[25] ZHANG P, LOU Z H, QIN M J, et al. High-entropy ($Ca_{0.2}Sr_{0.2}Ba_{0.2}La_{0.2}Pb_{0.2}$) TiO_3 perovskite ceramics with *A*-site short-range disorder for thermoelectric applications[J]. Journal of Materials Science & Technology, 2022, 97: 182-189.

基金项目:国家自然科学基金(52272123)

收稿日期:2024-03-26;**录用日期**:2024-06-12

通讯作者:高峰(1976—),男,教授,博士生导师,主要从事电子功能陶瓷材料及元器件的基础与应用研究工作,联系地址:陕西省西安市友谊西路127号西北工业大学材料学院(710072),E-mail:gaofeng@nwpu.edu.cn

(本文责编:寇凤梅)