

## Pb(Mg<sub>1/3</sub>Nb<sub>2/3</sub>)O<sub>3</sub>-PbTiO<sub>3</sub>계 완화형 강유전체의 특성에 미치는 PbTiO<sub>3</sub> 첨가량의 변화

### -I. 유전특성 및 초전특성-

박재환 · 홍국선 · 박순자

서울대학교 무기재료공학과

(1996년 1월 26일 접수)

## Effect of PbTiO<sub>3</sub> Concentration on the Properties of Pb(Mg<sub>1/3</sub>Nb<sub>2/3</sub>)O<sub>3</sub>-PbTiO<sub>3</sub> Relaxor Ferroelectrics

### -I. Dielectric and Pyroelectric Properties-

Jae-Hwan Park, Kug Sun Hong and Soon Ja Park

Dept. of Inorg. Mater. Eng., Seoul Nat. Univ.

(Received January 26, 1996)

### 요 약

PMN계에서 유전적 성질에 관한 연구들은 광범위하게 이루어져 왔으나 전계인가 변위특성에 관한 폭넓은 연구는 매우 드물다. 본 연구에서는 완화형 강유전체의 가장 대표적인 PMN계에서 PT의 함량 및 측정 온도의 변화에 따른 유전적 성질 및 전계인가 변위특성을 광범위하게 조사하는 것을 목표로 하고 있다. 전형적인 columbite precursor법에 의해 분말을 준비하고 고상소결방법에 의하여 모든 시편을 제조하였다. PT의 함량이 증가하면서 직선적으로  $T_{\text{max}}$ 가 증가하였으며 유전율은 13000~22000 사이의 값을 보였다. 유전율의 온도 의존성은 순수한 PMN의 경우 전형적인 완화형 강유전체의 유전 특성을 보이지만 PT의 함량이 증가될수록 보통 강유전체의 sharp한 거동을 보였다. 전계인가 변위특성에서는 단순히 유전율이 최대가 되는 온도에서 발생 strain이 최대가 되는 것은 아니며 tetragonal-cubic의 phase transition에서는 strain의 증가가 없고 rhombohedral에서 tetragonal 혹은 rhombohedral에서 cubic으로의 상전이에서만 strain이 크게 나타남을 알 수 있었다.

### ABSTRACT

In order to understand the electrostrictive behavior of Pb(Mg<sub>1/3</sub>Nb<sub>2/3</sub>)O<sub>3</sub>-PbTiO<sub>3</sub> (PMN-PT) solid solutions, the dielectric constants and the electric-field-induced strains in (1-x)PMN-xPT (x=0.0~0.4) were investigated in the temperature range -50°C~200°C. Powders of (1-x)Pb(Mg<sub>2/3</sub>Nb<sub>2/3</sub>)O<sub>3</sub>-xPbTiO<sub>3</sub> (x=0.0, 0.1, 0.2, 0.3, 0.35, and 0.4) were prepared from the the oxide forms of Pb, Mg, Nb and Ti via a columbite precursor method. As the amount of PbTiO<sub>3</sub> increases, the temperature of maximum dielectric constant ( $T_{\text{max}}$ ) increases and the phase transition become less diffusive. The strain maximum occurs only when the diffuse phase transition occurs from rhombohedral to cubic or rhombohedral to tetragonal as in x=0.1~0.35. The strains monotonically decrease with temperature in the materials in which phase transition occurs from tetragonal to cubic as in x=0.4.

**Key words:** Pb(Mg<sub>1/3</sub>Nb<sub>2/3</sub>)O<sub>3</sub>, Electric-field-induced strain, Diffused phase transition, Relaxors, Electrostrictive

### 1. 서 론

Pb(Mg<sub>1/3</sub>Nb<sub>2/3</sub>)O<sub>3</sub> (PMN)계 완화형 강유전체에서 다른 강유전체를 첨가하는 것에 관한 많은 연구들이 이루어지고 있는데<sup>1-10)</sup> 그 이유는 첨가제를 넣음으로서 순수한

PMN계에 비해 안정한 perovskite 상을 형성하기가 용이하기 때문이며<sup>11)</sup> 또한 전체적인 조성이 PMN과 첨가하는 강유전체 사이의 MPB(Morphotropic Phase Boundary) 쪽으로 근접하기 때문에 상전이 온도를 실온 근방으로 이동시킬 수 있어서 실온에서의 유전상수 및

전왜정수도 상당히 증가되는 등 MPB 근방의 좋은 물성을 기대할 수 있기 때문이다. 그 중에서도  $\text{PbTiO}_3$  (PT)의 첨가에 대한 보고들이 많은데 이는 순수한 PMN은 안정한 perovskite 상을 얻기가 어려우며 순수한 PT도 심한 이방성으로 인해 소결체로서 안정성이 없으나 PMN에 PT를 10 mol% 이상 첨가할 때 perovskite상이 거의 100% 얻어지며 이에 따라서 유전특성도 매우 향상되기 때문이다. 뿐만 아니라 Curie 온도가  $490^\circ\text{C}$ 인 PT를 상전이 온도가  $-5^\circ\text{C}$  부근인 PMN에 10 mol% 가량 첨가할 경우 상전이 온도가 실온 근방에 위치하게 되어 순수한 PMN에 비하여 실용적으로 큰 유전율과 전왜정수를 실온 근방에서 이용할 수 있다는 이점이 있다.

이에 따라 PT 첨가에 따른 많은 보고들이 있었으며 PT 함량 10 mol%를 중심으로 하여 첨가량 변화에 따른 perovskite 상의 안정화, 상전이 온도의 상승 및 격자상수의 변화, 유전상수의 증가 등에 대한 상세한 보고들이 많다<sup>4,5,7,11</sup>. 특히 고유전율 유전체로서의 응용과 연관된 PT 함량 0~40 mol%까지의 범위에서 유전특성에 관한 연구는 매우 폭 넓게 보고된 바 있으며 조성에 따른 상(phase)관계도 보고된 바 있다<sup>4,12-15</sup>. 이에 따르면 MPB 영역은 PT가 35 mol% 첨가되는 부근의 조성으로 보고되었다. 그러나 전왜 특성은 PT 함량이 0~40% 변화되는 넓은 범위에서 조사된 바 없으며 PT 함량이 10% 첨가된 0.9PMN-0.1PT에 대하여는 전왜특성이 보고된 바 있으나<sup>5</sup> 실온에서의 측정이 대부분이다. 본 연구에서는 PMN에 첨가제로서  $\text{PbTiO}_3$ 를 0~40 mol% 첨가하여서  $-50^\circ\text{C}$ ~ $200^\circ\text{C}$ 까지의 유전특성 및 전계인가 범위 특성을 조사하였다.

## 2. 실험방법

전형적인 고상반응방법에 의하여 분말을 준비하고 고상소결방법에 의하여 소성하였다. PMN 소결체의 제조에서는 columbite precursor 방법<sup>16,17</sup>)이나 용융법을 이용하는 방법<sup>18</sup>) 등으로 거의 100%에 가까운 상을 형성할 수 있는데 특히 columbite precursor 방법은 첨가제의 혼입이 없이 공정의 조절만으로 100%에 가까운 perovskite 상을 형성한다는 장점이 있다. 본 연구에서는 columbite precursor 법에 의해 모든 시편을 제조하였다.

본 실험에서 사용된 원료분말은 고순도의 특급시약인  $\text{PbO}$ ,  $\text{MgO}$ ,  $\text{Nb}_2\text{O}_5$ , 및  $\text{TiO}_2$ (모두 Aldrich Chemical Co., 99.5%)이며 이로부터  $(1-x)\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3-x\text{PbTiO}_3$ 의 조성이 되도록 준비하였고  $\text{PbTiO}_3$ 의 함량  $x$ (PT)는 0~0.4까지 변화되도록 하였다. 먼저  $\text{MgO}$ 와  $\text{Nb}_2\text{O}_5$ 를 혼합

하여  $\text{MgNb}_2\text{O}_6$  columbite 상을 형성하였다. 이 때  $\text{MgO}$ 의 경우 5 mol%를 과량 첨가하여 columbite 상의 형성을 촉진하였다<sup>19</sup>). 칭량된 분말을 12시간동안 ethyl alcohol(Aldrich Chemicals Co., 99.9%)과 zirconia ball을 사용하여 폴리에틸렌 용기에서 습식으로 혼합하였다. 혼합 후 건조기에서 충분히 건조하고 건조된 분말을 100 mesh체로 체거름 한 후  $1000^\circ\text{C}$ 에서 4시간 하소하여  $\text{MgNb}_2\text{O}_6$  columbite 상을 형성하였다. 하소 이후 최종적인 시편의 조성인  $(1-x)\text{PMN}-x\text{PT}$ 으로  $x$ 의 함량이 각각 0, 0.1, 0.2, 0.3, 0.35, 0.4가 되도록  $\text{MgNb}_2\text{O}_6$  columbite와  $\text{PbO}$ ,  $\text{ZrO}_2$ , 및  $\text{TiO}_2$  분말을 칭량하여 다시 12시간동안 습식혼합하였다. 혼합 후 건조하고 알루미늄나 도가니에서  $900^\circ\text{C}$ 에서 2시간 하소하였고 하소한 분말을 다시 습식방법으로 분쇄한 후 건조하였다. 준비된 분말을 성형하기전 성형성을 증진시키기 위해 PVA 바인더(# 020-63165, Osaka Chemical Co., 99.5%)를 첨가하였는데 0.5 wt%의 함량이 되도록 칭량한 후 2%의 수용액으로 만들었다. PVA 용액을 첨가한 이후 100 mesh 표 준체를 이용하여 조립화하였다. 조립화된 분말을 지름 12 mm의 mold를 이용하여  $3 \times 10^7$  Pa의 압력으로 일축가압 성형한 후 다시  $2 \times 10^8$  Pa의 압력으로 정수압 성형하였다. 성형체는  $500^\circ\text{C}$ 에서 2시간 유지하여 PVA 바인더를 제거하였으며 이 후  $300^\circ\text{C}/\text{hr}$ 로  $1200^\circ\text{C}$ 까지 승온한 후  $1200^\circ\text{C}$ 에서 2시간 소결하였다.

소결할 때  $\text{PbO}$ 의 휘발을 억제하기 위해 이중 알루미늄나 도가니와 시편과 동일한 분위기의 분말을 깔고 소결하였다. 백금판 위에 시편을 배치한 후 분위기분말을 덮고 알루미늄나 도가니로 밀봉한 후 다시 그 바깥을 알루미늄나 도가니로 밀봉하는 이중 밀봉방식을 채택하였다. 소결한 후 최종적인 시편의 형상이 직경 10 mm, 두께 1 mm가 되도록 연마하였으며 연마 후에 은 페이스트를 시편의 양쪽 면에 바르고  $600^\circ\text{C}$ 에서 30분간 열처리하여 전극을 형성하였다. 전계인가변위의 측정을 위하여 스트레인 게이지(B-FAE, Minebea, Japan)를 전극의 한쪽 면에 부착시켰다<sup>1-3</sup>). 시편과 게이지를 함께 실리콘 오일에 넣어  $-50^\circ\text{C}$ ~ $200^\circ\text{C}$ 의 온도변화를 주면서 유전율과 전계인가변위를 측정하였다. 온도는 드라이아이스 및 히터에 의하여 조절하였다.

## 3. 결과 및 고찰

### 3.1. PT 함량에 따른 유전특성

Fig. 1에 PT 함량이 0~40 mol%로 변화될 때 1 kHz에서의 유전특성의 변화를 나타내었다. 순수한 PMN의

경우는 유전율의 최대온도가 약 -5°C에서 나타났으며 최대유전율은 약 12000 정도의 값을 보이고 있다. PT의 함량이 증가하면서 기존의 보고들<sup>12,13)</sup>과 같이 유전율의 최대온도(T<sub>εmax</sub>)가 거의 직선적으로 증가하고 있으며 PT 함량이 40 mol%에 이르면 약 200°C에서 유전율이 최대를 나타낸다. 온도의 변화에 따른 유전상수변화의 완만함 정도는 x=0.3까지는 서서히 감소하다가 그 이후에는 sharp한 형태로 바뀌었으며 PT 함량이 40 mol%에 이

르면 거의 일반적인 강유전체의 변화형태를 보인다. 유전율은 12000~22000 사이의 값을 보이고 있으며 x=0.1에서 가장 큰 유전상수의 최대값이 나타났다. 그림에서는 나타내지 않았지만 유전율을 측정하는 주파수를 100

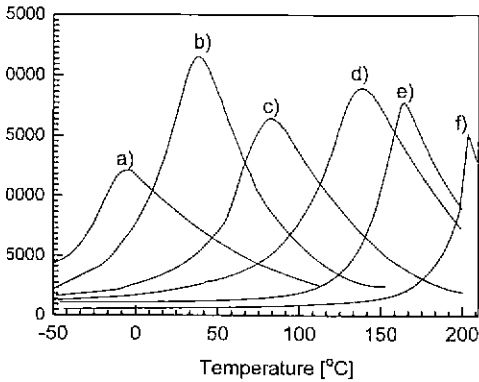


Fig. 1. Temperature dependence of the dielectric constants measured at 1 kHz in (1-x)PMN-xPT, where x=0.00 (a), x=0.10 (b), x=0.20 (c), x=0.30 (d), x=0.35 (e) and x=0.40 (f).

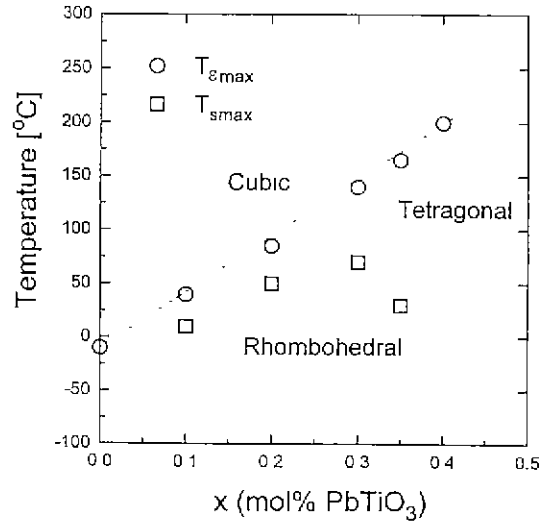


Fig. 2. The dielectric maximum temperatures and the strain maximum temperatures in (1-x)PMN-xPT. Reported phase relationships by Choi *et al* are shown by dotted line<sup>12,13)</sup>.

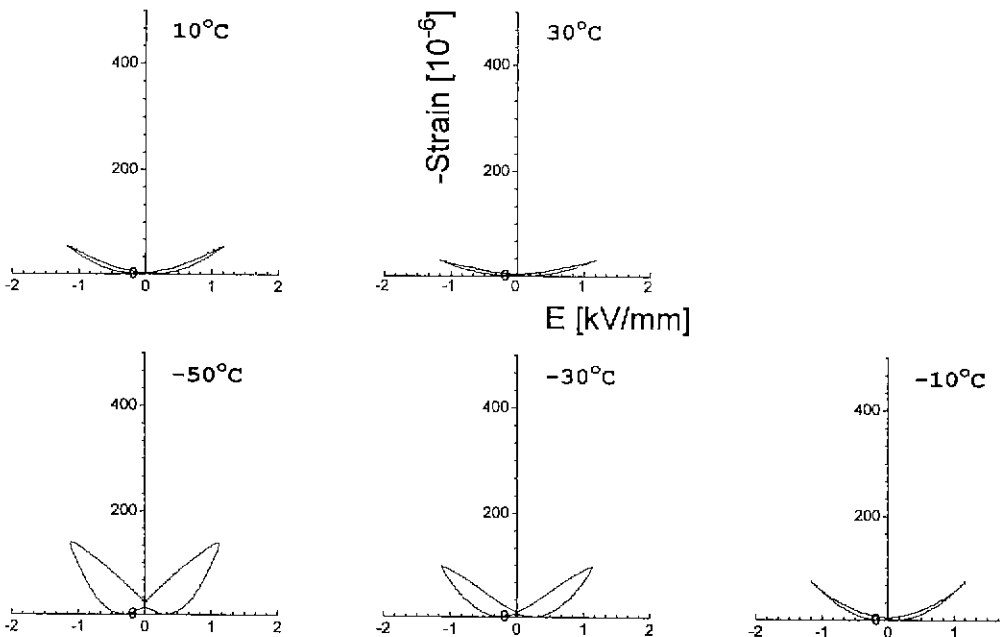


Fig. 3. (a) Temperature dependence of the S-E curve in (1-x)PMN-xPT, where x=0.0. T<sub>εmax</sub> is ca. -5°C.

Hz에서 100 kHz까지 변화시켰을 때  $T_{\text{emax}}$ 의 주파수 의존성( $T_{\text{emax}(100\text{Hz})} - T_{\text{emax}(10\text{Hz})}$ )의 정도는 PMN의 경우가 가장 크게 나타났으며 PT의 함량이 증가할수록 감소하여 PT 함량이 40 mol%에 이르면 측정주파수에 따른 유전율 최대 온도의 차이가 거의 나타나지 않았다. 이를 통해서 순수한 PMN은 전형적인 완화형 강유전체의 유전특성을 보이지만 PT의 함량이 증가될수록 보통 강유전체의 sharp한 상전이를 보이게 된다는 것을 알 수 있다.

Fig. 2에서는 각 조성별로 유전율이 최대가 되는 온도를 정리하여 나타내었으며 아울러서 Choi 등에 의하여 보고된 바 있는  $(1-x)\text{PMN}-x\text{PT}$ 계에서의 상관계를 같이 나타내었다<sup>12,13</sup>. 각 조성별로 유전율이 최대온도가 되는 온도를 살펴보면 Choi 등에 의하여 보고된 결과와 본 연구에서의 결과가 잘 일치하는 것을 볼 수 있다. 전체

적인 상관계를 먼저 살펴보면 실온 영역에 상전이 온도를 위치하게 하여 높은 유전상수를 얻으려면 PT 함량 ( $x$ )이 5~10 mol% 가량 첨가되어야 함을 알 수 있다.  $x=0.25\sim 0.35$ 의 조성에서는 한가지의 조성에 대하여 상전이가 온도에 따라서 rhombohedral-tetragonal-cubic으로 서 두번 일어나는 것도 알 수 있다

### 3.2. PT 함량에 따른 S-E plot의 변화

Fig. 3에는  $(1-x)\text{PMN}-x\text{PT}$ 계에서 PT 함량의 변화에 따른 각 조성별로 전계인가 변위특성 (S-E plot)을 넓은 온도범위에서 나타내었다. Fig. 3(a)에는 순수한 PMN에서 온도에 따른 S-E plot을 나타내었다.  $T_{\text{emax}}(-5^\circ\text{C})$  이상으로 온도가 증가될 때는 전계인가에 따른 변위가 점차 작아지면서 인가되는 전계의 제곱에 비례하는 전

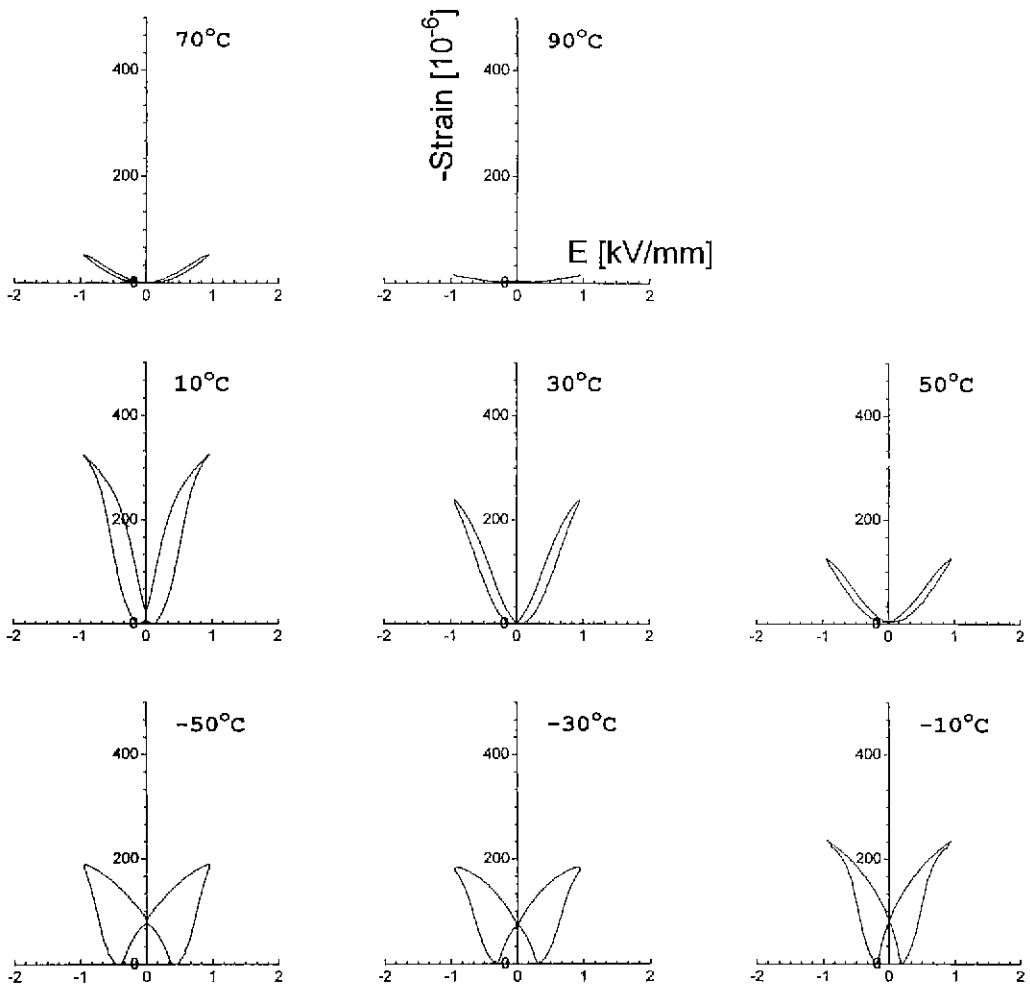


Fig. 3. (b) Temperature dependence of the S-E curve in  $(1-x)\text{PMN}-x\text{PT}$ , where  $x=0.1$ .  $T_{\text{emax}}$  is ca.  $40^\circ\text{C}$ .

왜적 변위거동을 보이고 있으며  $T_{\text{max}}$  이하로 온도가 내려가면서는 항전계와 잔류변위가 발생하는 소위 나비형의 압전형 변위거동이 서서히 나타나고 있다. 변위의 크기는 온도가 내려갈수록 계속 증가하고 있으며  $-50^{\circ}\text{C}$ 에서  $1.2\text{ kV/mm}$ 의 전계인가에 대하여 약  $150 \times 10^{-6}$  정도의 변위가 나타났다.  $T_{\text{max}}$ 인  $-5^{\circ}\text{C}$  부근에서 변위의 최대값이 얻어지는 것이 아니라 온도가 감소함에 따라 계속 증가하고 있는 것이 주목된다.

Fig. 3(b)에는  $x(\text{PT})=0.1$ 인 경우에 있어서의 온도에 따른 S-E plot을 나타내었다.  $T_{\text{max}}$ 인  $40^{\circ}\text{C}$  이하에서는 항전계와 residual strain이 존재하는 ferroelectric type의 나비형 변위특성을 보이고 있고  $T_{\text{max}}$  이상으로 온도가 증가할 때는 변위의 이력이 급격히 줄어들면서 인가전계의 제곱에 비례하는 electrostrictive한 변위곡선이 얻

어지는 것을 볼 수 있다. 그러나 이러한 변위거동의 변화는 급격한 것이 아니라  $T_{\text{max}}$ 를 전후로 완만하게 진행되고 있음을 볼 수 있다. 최대 strain은  $T_{\text{max}}$ 보다  $30^{\circ}\text{C}$  정도 더 낮은  $10^{\circ}\text{C}$  부근에서 얻어졌으며  $330 \times 10^{-6}$  정도로 나타났다. 이는 0.04%의 변화로서 다른 연구자들에 의해 일반적으로 보고되고 있는 값과 비슷하다<sup>9,15)</sup>.  $100^{\circ}\text{C}$  이상의 온도에서는 측정이 거의 불가능할 정도로 작은 strain이 검출되고 있다.

Fig. 3(c)에서는  $x(\text{PT})=0.2$ 인 경우의 결과를 나타내었다. 모든 양상이  $x(\text{PT})=0.1$ 의 결과와 비슷하며 최대 strain은  $T_{\text{max}}$ ( $80^{\circ}\text{C}$ )보다도  $30^{\circ}\text{C}$  정도 낮은  $50^{\circ}\text{C}$ 에서 나타났으며 이는  $x(\text{PT})=0.1$ 의 경우와 일치하는 결과이다.  $T_{\text{max}}$  이상으로 온도가 증가하면 발생 strain은 급속히 감소하지만 온도가  $T_{\text{max}}$  아래로 내려갈 때의 온도변화에

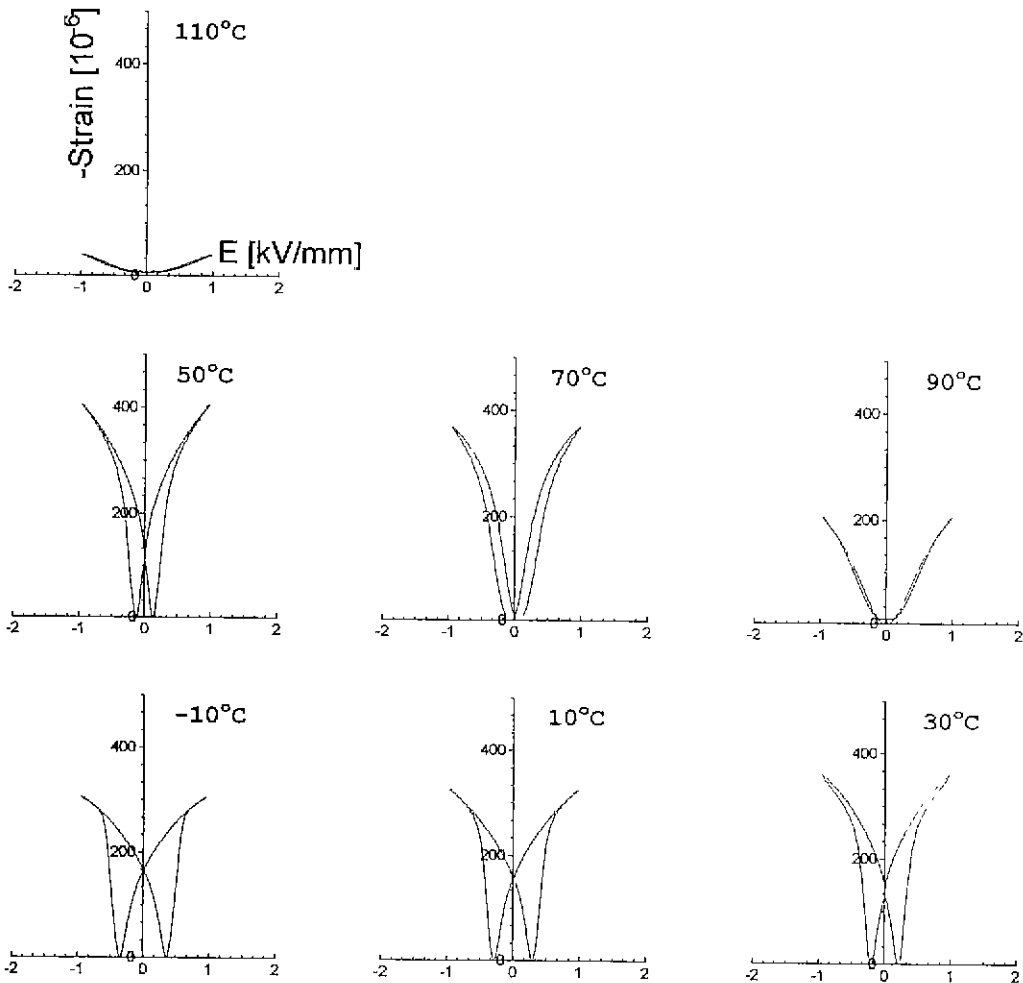


Fig. 3. (c) Temperature dependence of the S-E curve in  $(1-x)\text{PMN}-x\text{PT}$ , where  $x=0.2$ .  $T_{\text{max}}$  is ca.  $80^{\circ}\text{C}$ .

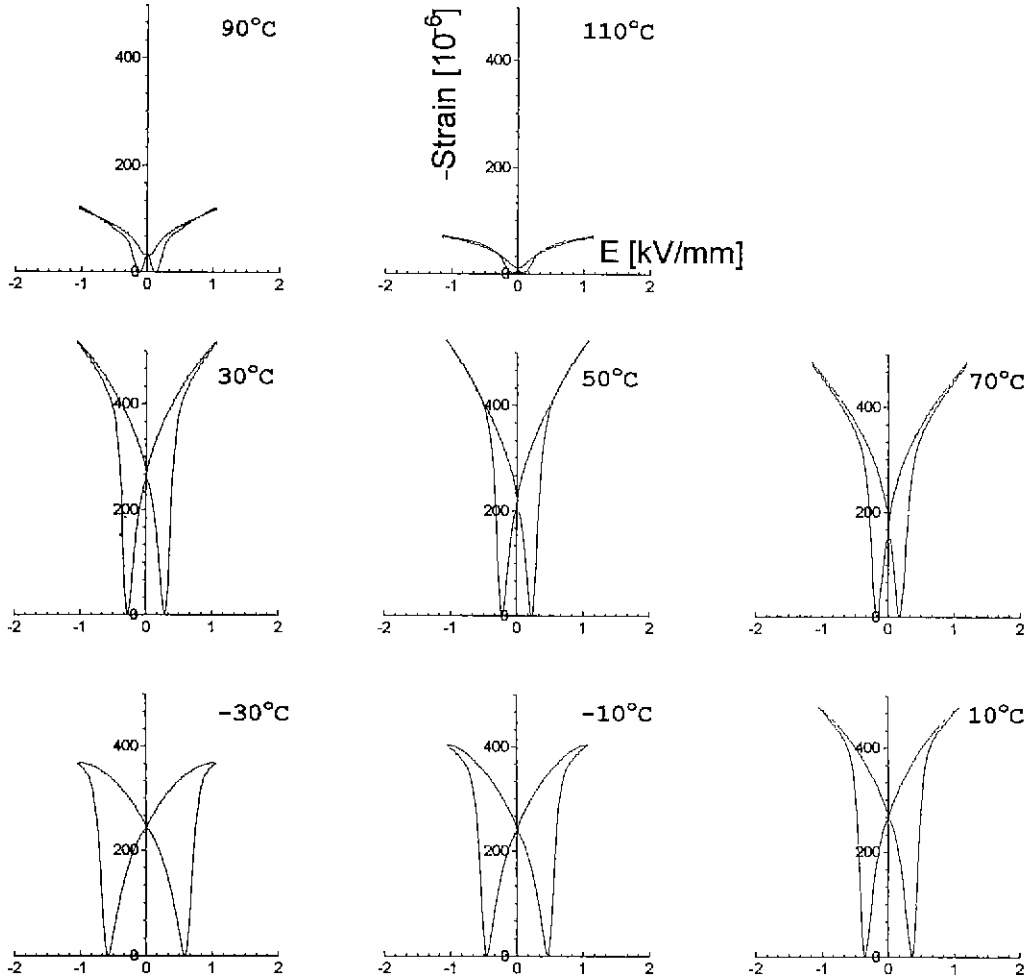


Fig. 3. (d) Temperature dependence of the S-E curve in  $(1-x)\text{PMN}-x\text{PT}$ , where  $x=0.3$ .  $T_{\text{cmax}}$  is ca.  $140^\circ\text{C}$ .

따른 strain의 변화는 상당히 완만함을 볼 수 있다. 전체적인 발생 strain의 크기는  $x=0.1$ 의 경우와 비슷한  $400 \times 10^{-6}$  정도의 값을 보인다.  $-10^\circ\text{C}$  정도의 저온에서는 분명한 나비형의 S-E curve를 볼 수 있는데 이 때의 항전계는 약  $400 \text{ V/mm}$ , 잔류범위는  $160 \times 10^{-6}$  정도의 값이다.

Fig. 3(d)에는  $x(\text{PT})=0.3$ 의 결과들이다.  $T_{\text{cmax}}$ 가  $140^\circ\text{C}$ 이므로  $110^\circ\text{C}$ 까지 계속 항전계와 잔류범위가 나타나고 있음은 당연한 결과이다. 이 시편의 경우는  $90^\circ\text{C}$  이상의 고온에서는 시편자체에 고압을 인가할 때 전류가 많이 흘러서 측정간에 상당한 drift와 noise를 유발하여 더 이상의 고온에서의 측정은 불가능하였다. 특이한 점으로는  $T_{\text{cmax}}$ 인  $140^\circ\text{C}$ 보다 훨씬 저온인  $70^\circ\text{C}$  이상부터 급격히 발생 strain이 감소하고 있다는 점이다. 최대 st-

rain은  $50^\circ\text{C}$ 에서 약  $500 \times 10^{-6}$  정도의 값을 보이고 있으며  $90^\circ\text{C}$ 를 지나면서  $100 \times 10^{-6}$  이하의 값으로 떨어지고 있다. 저온에서의 항전계 및 잔류범위의 값들은 PT 함량이 작은 경우보다 더욱 증가되어 분명한 나비형의 S-E curve를 나타내고 있다.

Fig. 3(e)는  $x(\text{PT})=0.35$ 인 경우의 결과들이다. 다른 조성의 경우들과 동일하지만 저온에서의 나비형의 S-E curve가 되는 양상은 더욱 분명해지고 전계에 의해 발생하는 strain의 크기들은 전반적으로 더욱 증가되고 있다.  $30^\circ\text{C}$ 에서 약  $600 \times 10^{-6}$  정도의 값이 얻어지고 있다. 특이한 점은  $x(\text{PT})=0.35$ 인 경우의  $T_{\text{cmax}}$ 는  $165^\circ\text{C}$ 로서  $x(\text{PT})=0.3$ 인 경우보다 더 높지만 발생 strain이 최대가 되는 온도는 더 낮게 나타난다는 점이다.  $100^\circ\text{C}$  이상의 온도가 되면 거의 측정하기 어려운 정도로 매우 작은

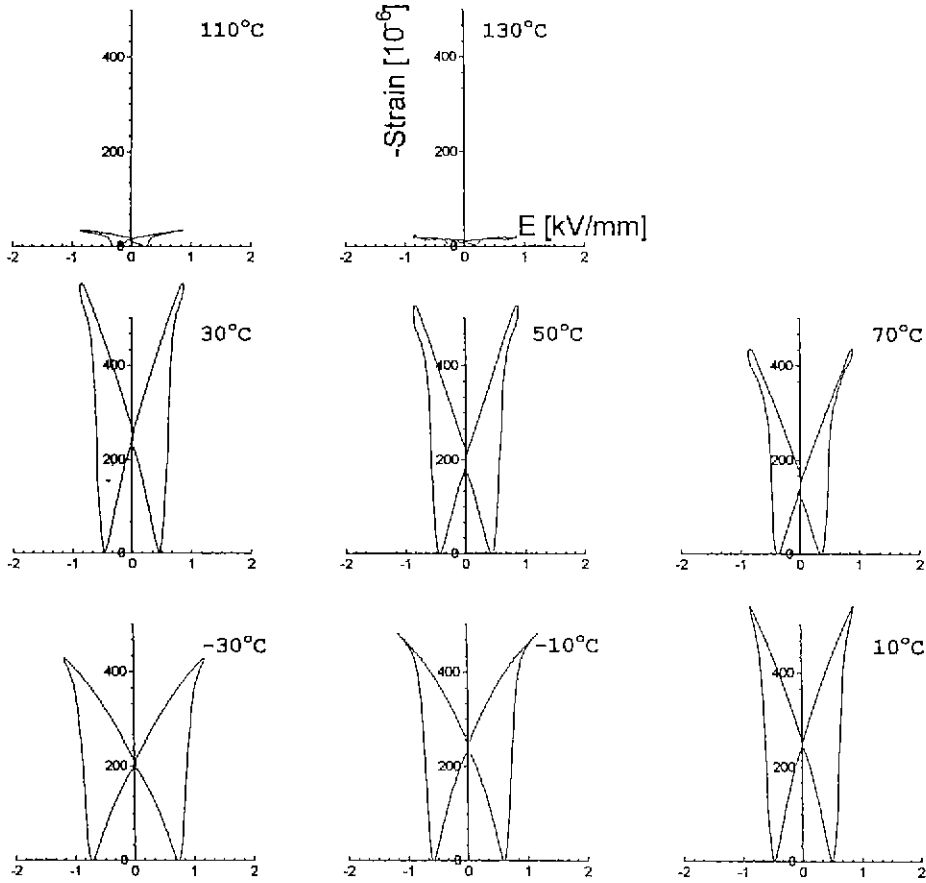


Fig. 3. (e) Temperature dependence of the S-E curve in (1-x)PMN-xPT, where x=0.35.  $T_{\text{emax}}$  is ca. 165°C.

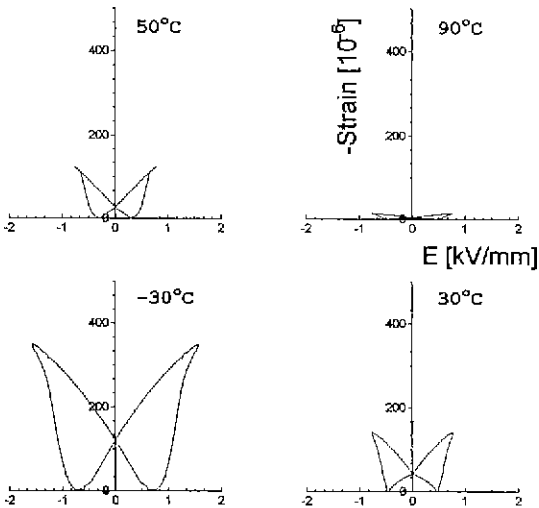


Fig. 3. (f) Temperature dependence of the S-E curve in (1-x)PMN-xPT, where x=0.4.  $T_{\text{emax}}$  is ca. 200°C.

strain이 나타났다.

Fig. 3(f)에는  $x(\text{PT})=0.4$ 인 경우에 해당하는 결과를 나타내었다. 온도가 감소하면서 발생하는 strain은 전 온도구간에서 단조감소하고 있음을 알 수 있다. Fig. 2를 참고로 하면 200°C 이하의 전 온도영역이 tetragonal 상 영역인데 온도증가에 따라 계속 항전계와 residual strain, 발생 strain의 크기가 단조감소하고 있다.  $T_{\text{umax}}$  (200°C) 부근에서 strain은 증가하지 않을 뿐 아니라 측정할 수 없을 정도의 양이었다. 최대 발생 strain은 측정정이 이루어진 온도 가운데서 가장 저온인 -30°C에서 약  $350 \times 10^{-6}$  정도의 값으로서  $x(\text{PT})=0.35$ 인 경우보다 더 낮게 나타났다.

#### 4. 요약 및 결론

Fig. 2에서 각 조성에 따른  $T_{\text{emax}}$ 와 아울러 strain이 최대가 되는 온도( $T_{\text{emax}}$ )를 정리하여 나타내었다. 이상의

모든 결과들을 종합해 보면 단순히 유전율이 최대가 되는 온도에서 발생 strain이 최대가 되는 것은 아니라는 것을 알 수 있다. 또한 PT의 함량이 많아질수록  $T_{\text{max}}$ 가 strain이 최대가 되는 온도의 차이가 커지는 것을 볼 수 있다.  $x(\text{PT})=0.30\sim 0.35$ 의 조성에 있어서는 유전율의 peak는 rhombohedral-tetragonal transition에서는 나타나지 않고 tetragonal-cubic transition에서 나타나는 것을 볼 수 있다. 그러나  $T_{\text{max}}$ 는 rhombohedral-tetragonal transition과 대략 일치됨을 볼 수 있다. Tetragonal-cubic transition에서는 strain의 증가가 전혀 관찰되지 않는다.  $x=0.4$ 인 경우 strain은 전 온도구간에서 단조감소하였고 유전율 최대인 tetragonal-cubic 전이 온도에서 strain은 증가하지 않을 뿐 아니라 측정할 수 없을 정도의 양이었다. 이를 통해 tetragonal-cubic의 phase transition에서는 strain의 증가가 없고 rhombohedral에서 tetragonal 혹은 rhombohedral에서 cubic으로의 상전이에서만 strain의 크게 나타남을 볼 수 있다.

## REFERENCES

1. Jae-Hwan Park, Byung-Kook Kim, Kug-Hyun Song, and Soon Ja Park, "Temperature Dependence of the Electric-Field-Induced Strains in  $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ -Based Relaxor Ferroelectrics," *Journal of Ceramic Society of Japan*, **103**(1), 16-19 (1995).
2. Jae-Hwan Park, Byung-Kook Kim, Kug-Hyun Song, and Soon Ja Park, "Electric-Field-Induced Strains and Pyroelectric Coefficients in Lead Magnesium Niobate-Lead Titanate Solid Solutions," *Material Research Bulletin*, **30**(4), 435-441 (1995).
3. Jae-Hwan Park, Byung-Kook Kim, and Soon Ja Park, "Electrostrictive Coefficients of  $0.9\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ - $0.1\text{PbTiO}_3$  Relaxor Ferroelectric Ceramics in the Ferroelectricity-Dominated Temperature Range," *Journal of the American Ceramic Society*, **78**(2), 430-34 (1996).
4. J.C. Ho, K.S. Liu and I.N. Lin, "Study of Ferroelectricity in the PMN-PT System near the Morphotropic Phase Boundary," *J. Mater. Sci.*, **28**, 4497-502 (1993).
5. Q. Zhang, W. Pan, A. Bhalla, and L.E. Cross, "Electrostrictive and Dielectric Response in Lead Magnesium Niobate Lead titanate [0.9PMN-0.1PT] and Lead Lanthanum Zirconate Titanate [PLZT 9.5/65/35] under variation of Temperature and Electric-field," *J. Am. Ceram. Soc.*, **72**(4), 599-604 (1989).
6. H. Ohuchi, M. Nishida and S. Hayakawa, "Piezoelectric Properties of  $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ - $\text{PbTiO}_3$ - $\text{PbZrO}_3$  Ceramics Modified with Certain Additives," *J. Am. Ceram. Soc.*, **49**, 577- (1966).
7. M. Massuda, K. Bridger, J.D. Prodey, and S.M. Pilgrim, "High-Field Electromechanical Properties of Some  $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ - $\text{PbTiO}_3$ -Based Relaxors," *Ferroelectrics*, **158**, 337-42 (1994).
8. M. Villegas, J.R. Jurado, C. Moure, and P. Duran, "Processing and Properties of  $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ - $\text{PbZrO}_3$ - $\text{PbTiO}_3$  Ceramics Relaxors," *J. Mat. Sci.*, **29**(4), 1090-96 (1994).
9. S.M. Pilgrim, M. Massuda, and A.E. Sutherland, "Electromechanical Determination of the High-Field Phase-Transition of  $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ - $\text{PbTiO}_3$ -(Ba, Sr)  $\text{TiO}_3$  Relaxor Ferroelectrics," *J. Am. Ceram. Soc.*, **75** (7), 1970-74 (1992).
10. S.M. Pilgrim, M. Massuda, J.D. Prodey, and A.P. Ritter, "Electromechanical Properties of Some  $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ - $\text{PbTiO}_3$ -(Ba, Sr)  $\text{TiO}_3$  Ceramics: I," *J. Am. Ceram. Soc.*, **75**(7), 1964-69 (1992).
11. O. Bouquim, M. Lejeune and J.P. Boilot, "Formation of the Perovskite Phase in the  $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ - $\text{PbTiO}_3$  System," *J. Am. Ceram. Soc.*, **74**, 1152- (1991).
12. S.W. Choi, T.R. Shrout, S.J. Jang, and A.S. Bhalla, "Dielectric and Pyroelectric Properties in the  $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ - $\text{PbTiO}_3$  System," *Ferroelectrics*, **100**, 29-38 (1989).
13. S.W. Choi, T.R. Shrout, S.J. Jang, and A.S. Bhalla, "Morphotropic Phase Boundary in  $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ - $\text{PbTiO}_3$  Systems," *Mater. Lett.*, **8**(6,7), 253-55 (1989).
14. F. Furuta and K. Uchino, "Electric-Field-Induced Strains in  $(\text{Pb},\text{La})(\text{Zr},\text{Ti})\text{O}_3$  Ceramics." *Adv. Ceram. Mater.*, **1**, 61- (1986).
15. K. Uchino, "Electrostrictive Actuators: Materials and Applications," *Am. Ceram. Soc. Bull.*, **65**(4), 647-52 (1986).
16. S.L. Swartz, T.R. Shrout, W.A. Schulze, and L.E. Cross, "Dielectric Properties of Lead Magnesium Niobate Ceramics," *J. Am. Ceram. Soc.*, **57**(5), 311-15 (1993).
17. S.L. Swartz and T.R. Shrout, "Fabrication of Perovskite Lead Magnesium Niobate," *Mater Res Bull.*, **17**, 1245-50 (1982).
18. K.H. Yoon, Y.S. Cho, D.H. Lee, and D.H. Kang, "Powder Characteristics of  $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$  Prepared by Molten-Salt Synthesis," *J. Am. Ceram. Soc.*, **76**(5), 1373-76 (1993).
19. H.C. Wang and W.A. Schulze, "The Role of Excess Magnesium-Oxide or Lead-Oxide in Determining the Microstructure and Properties of Lead Magnesium Niobate," *J. Am. Ceram. Soc.*, **73**, 825-32 (1990).