

Tape Casting법에 의한 PMS-PZT계 세라믹스 제조 및 전기적 특성

정현재 · 나은상 · 최성철[†]

한양대학교 세라믹공학과

(2001년 7월 27일 접수; 2001년 8월 23일 승인)

The Fabrication and Electrical Properties of PMS-PZT Ceramics using a Tape Casting Method

Hyun-Jae Jung, Eun-Sang Na and Sung-Churl Choi[†]

Department of Ceramic Engineering, Hanyang University, Seoul 133-791, Korea

(Received July 27, 2001; Accepted August 23, 2001)

초 목

본 논문은 출발물질로서 2 mol% CdO가 치환된 0.05Pb(Mn_{1/3}Sb_{2/3})O₃-0.95Pb(Zr_{0.52}Ti_{0.48})O₃ 분말을 제조 후, 닥터 블레이드 방법으로 green sheet를 제조하기 위한 slurry의 최적 공정첨가제 조성에 관한 연구를 수행하였다. 또한, 제조된 green sheet에 대하여 소결 특성과 두께 변화에 따른 유전 및 압전 특성을 관찰하였다. 공정첨가제의 첨가에 따른 점도거동을 통하여 slurry를 최적화하였고, TGA 분석으로 소결조건을 정하였으며, sheet의 특성은 미세구조와 XRD등으로 측정하였다. 최적의 slurry는 고형분량 30 vol%에 대해 분산제 3.0 wt%에서 가장 안정화되었고, 이후 바인더/가소제(0.75/0.25) 3.0 wt% 첨가시 점도는 7.55 Pa·s이었다. Green sheet의 유전 및 압전 특성들은 각각 900°C, 950°C, 1000°C로 소결온도를 증가함에 따라 다소 증가하였지만, 두께에 따른 특성들은 큰 변화가 관찰되지 않음을 확인하였다.

ABSTRACT

After manufacturing 2 mol% CdO substituted 0.05Pb(Mn_{1/3}Sb_{2/3})O₃-0.95Pb(Zr_{0.52}Ti_{0.48})O₃ piezoelectric ceramics powder as starting material, to manufacture green sheets using Doctor Blade method, the optimum composition of slurry was studied. Moreover, the sintering properties and the dielectric and piezoelectric properties with variation a thickness of the manufactured sheets were investigated. The optimum of slurry was investigated by the rheology with addition of additives, the sintering condition was decided by TGA. And the properties of sheet were investigated through SEM, XRD. The optimum of slurry was the stablest at dispersant 3.0 wt% to solid loading 30 vol%. After, at addition of binder/plasticizer (0.75/0.25) 3.0 wt%, viscosity was 7.55 Pa·s. The dielectric and piezoelectric properties of the sheet were increased a little with the increasing of sintering temperature but were not variable with variation of sheet thickness.

Key words : Tape casting, Slurry, PMS-PZT, Green sheet

1. 서 론

압전변압기는 1880년 Pierre와 Curie 형제의 압전 효과¹⁾가 최초 발견된 이후 이를 응용하여 1957년 R. S. Rosen (U.S.A)²⁾이 최초로 Piezoelectric Ceramic Transformer 이론을 정립하였고, 많은 재료들이 연구되어졌다.³⁻⁶⁾ 현재 Pb(Mn_{1/3}Sb_{2/3})O₃-PZT와 Pb(Mn_{1/3}Nb_{2/3})O₃-PZT 재료들이 상용되고 있으며, 높은 전기적 특성과 저온소결을 위해 분말의 미분화에 초점을 맞추고 있다. 이 중 Pb(Mn_{1/3}Sb_{2/3})O₃-PZT는 높은 전기기계 결합계수(K_p)와 기계적 품질계수(Q_m)를 가지므로 압전 변압기용으로 적합할 뿐 아니라 저온 소

결이 가능하고, 낮은 소결온도에서도 전기적 특성이 우수하여 적층 압전 변압기로 응용될 수 잇점이 있다. 특히, 높은 송압비(set-up ratio)가 요구되는 고전력 소자(high power device)의 경우에는 적층화가 필수적이며, 적층공정은 닥터 블레이드 방법이 주로 쓰이는데 닥터 블레이드법은 1947년 Howatt⁷⁾ 등이 Titanate 세라믹스 축전기 제조에서 처음 사용되었고, 이런 적층형 소자들을 제조시 가장 손쉽고, 빠르고, 저렴하게 만들 수 있는 제조 공정이다. 태입 캐스팅공정은 사용하는 용매에 따라 수계와 비수계로 나뉘어지는데 비수계는 현재 환경오염이라는 단점을 안고 있지만, 건조속도가 빠르고, 분말의 수화방지, 미립의 분말을 사용하여도 용매가 수계처럼 큰 극성을 나타내지 않고, 낮은 유전상수 값을 나타내므로 분말의 응집현상이 줄어들어 안정된 slurry를

[†]Corresponding author : choi0505@hanyang.ac.kr

제어 할 수 있어 고품질의 성형체를 얻을 수 있는 장점이 있으므로, 산업체에서 널리 쓰이는 공정이다.⁸⁾

본 연구에서는 $0.05\text{Pb}(\text{Mn}_{1/3}\text{Sb}_{2/3})\text{O}_3$ - $0.95\text{Pb}(\text{Zr}_{0.52}\text{Ti}_{0.48})\text{O}_3$ 계에 2 mol% CdO를 첨가한 분말을 이용하여 태입 캐스팅 방법으로 green sheet를 제작하기 위한 최적의 공정첨가제 조성을 찾는 데 주안점을 두었으며, 또한, 제조된 sheet의 저온 소결과 두께에 따른 유전 및 압전 특성을 조사하고자 하였다.

2. 실험방법

2.1. PMS-PZT 합성

본 연구에 사용된 출발 원료로 PbO(99.9%, High Purity Chemicals Co.), TiO_2 (99.9%, High Purity Chemicals Co.), ZrO_2 (99.9%, High Purity Chemicals Co.), CdO(99.9%, Hayashi Pure Chemical Industries LTD.), MnO_2 (99.9%, Hayashi Pure Chemical Industries LTD.), Sb_2O_3 (99.9%, High Purity Chemicals Co.)이 사용되었다. 또한 상경계 조성(Morphotopic Phase Boundary, MPB) 부근에서 유전성과 압전성이 최대가 되는 $\text{Zr}_{0.52}/\text{Ti}_{0.48}$ 의 상경계 조성을 선택하였다.⁹⁾ Columbite Precursor¹⁰⁾ 방법을 이용하여 MnO와 Sb_2O_5 를 1:1 몰비로 600°C에서 2시간 하소한 MnSb_2O_5 분말과 소결조제인 CdO를 2 mol% 첨가하여 $0.05\text{Pb}(\text{Mn}_{1/3}\text{Sb}_{2/3})\text{O}_3$ - $0.95\text{Pb}(\text{Zr}_{0.52}\text{Ti}_{0.48})\text{O}_3$ 의 분말을 제조하였다. 용매로는 아세톤을 사용하였고, 승온 속도는 5°C/min, 850°C에서 2시간 하소하였다. 하소된 분말은 80 mesh에 체가름 한 후 laser scattering technique (90 Plus, Brookhaven Instruments Corp., Holtsville, NY, U.S.A.) 방법으로 합성한 분말의 입도분석을 하였고, Autosorb-1(Quantachrome Corp., Boynton Beach, FL, U.S.A.) 장비로 BET 측정을 하였다.

2.2. Slurry 제조

하소한 분말과 유기첨가제를 사용하여 slurry를 제조하였는데, 용매는 휘발성을 고려한 azeotropic 용매(Toluene : MEK : Ethyl Alcohol = 6 : 2 : 2)를 사용하였고, 분산제(Manhaden fish oil), 결합제(P.V.B.) 가소제(D.B.P.)를 사용하였다. Fig. 1은 본 실험의 공정 순서도이다.

Slurry의 최적화를 위해 0~40 vol%에서 점도 측정을 하였고, 이때 점도계는 MCR 300(Physica, Germany)을 사용하였다. 또한 각각의 고형 분량에 따라 분산제를 변화시키면서 최적 분산을 시켰다. 바인더/가소제 비율은 0.75/0.25로 고정¹¹⁾ 후 바인더/가소제의 양을 증가시키면서 태입 캐스팅에 적절한 slurry의 점도조건(7~10 Pa·s)을 조사하였다.¹²⁾

2.3. Green sheet 제조 및 특성 평가

닥터 블레이드는 STC-40D(Hansung system INC., Korea)를 사용하며, sheet의 속도는 4 mm/s, 건조온도를 28°C,

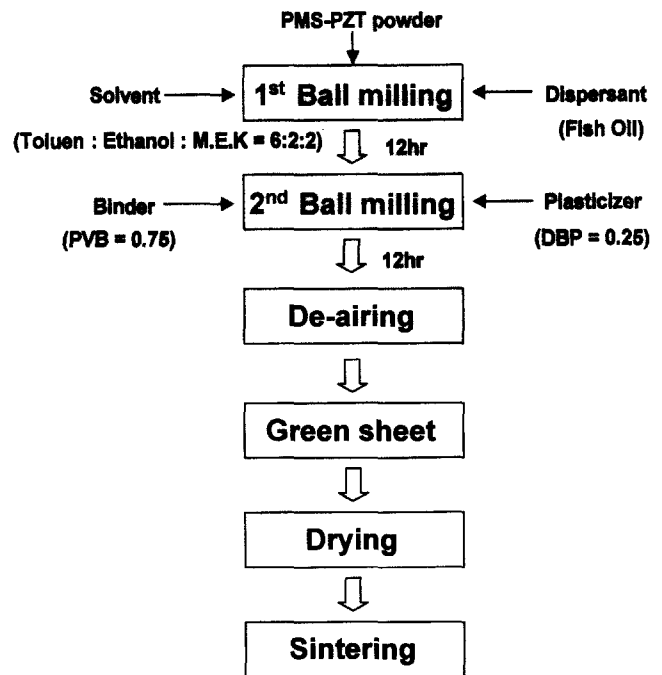


Fig. 1. Experimental procedure.

50°C, 80°C 3단계로 나누어 crack 등의 결함이 일어나지 않는 조건으로 정하였다. 이때, 닥터 블레이드의 gap size는 30 μm 로 고정하여 균일한 green sheet(tape)를 제조하였다. 적층시 조건은 압력 250 kg/cm^2 , 온도 65°C하였다. 제조된 green sheet는 소결 공정중 탈지(binder burn-out) 공정을 알아보기 위해 승온속도 10°C/min 질소분위기 조건에서 TGA 분석을 실시하였으며, 900°C, 950°C, 1000°C에서 2시간 소결 후 hydrostatic method(ASTM STD C373에 의거)로 밀도를 측정하였다. 또한, XRD(X-Ray Diffractometer, Rigaku Co., Japan) 및 SEM(Scanning Electronic Microscopy, Hitachi S-2700, Japan)을 통해 상 분석과 미세구조 관찰을 하였다. 실험 조건은 $\text{Cu-K}\alpha$ radiation($\lambda = 1.5406 \text{ \AA}$)을 사용하여 2θ 는 20~60°에서 조사하였고, scanning step 0.02°, step time 5 sec, scanning power 40 kV, 30 mA로써 회절 패턴을 얻었다. sheet의 미세 구조는 표면을 #2000으로 polishing하여 thermal etching 후 관찰하였다. 평균 입경은 연마면의 SEM 사진으로부터 linear intercept technique를 써서 구하였다.

Sheet는 적층작업을 거쳐 시편의 크기를 2×2 cm 자른 후 두께를 200 μm , 250 μm , 300 μm 으로 제작하였다. Sheet의 전기적 특성을 측정하기 위해 sheet 양면에 전극을 silk screen법으로 도포한 후, 600°C에서 15분간 유지하면서 열처리한 후, 34 kV/cm의 전계로 실리콘오일(150°C)에서 15분간 분극처리 하였다. 전기적 특성은 IRE 공진법에 따라 Impedance Analyzer(Hewlett Packard-4194A, U.S.A.)를 사용하여 1 kHz에서 capacitance를 측정하였다.

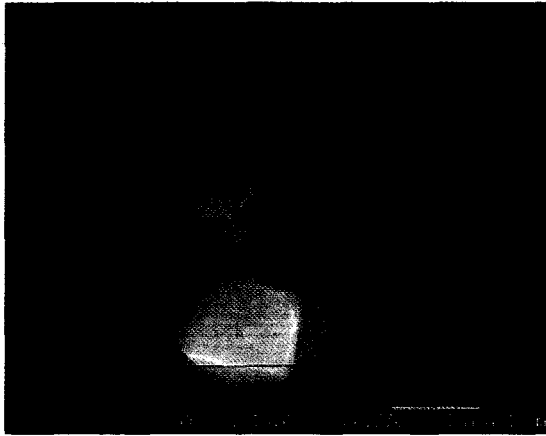


Fig. 2. SEM photograph of PMS-PZT particles.

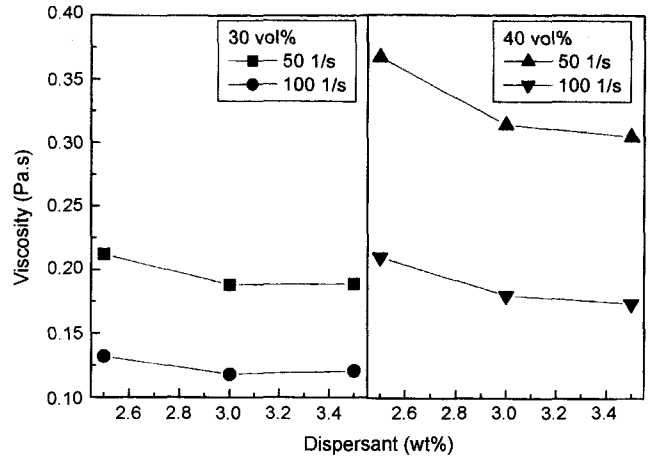


Fig. 4. Variations of viscosity with addition of dispersant at 30 vol% and 40 vol%.

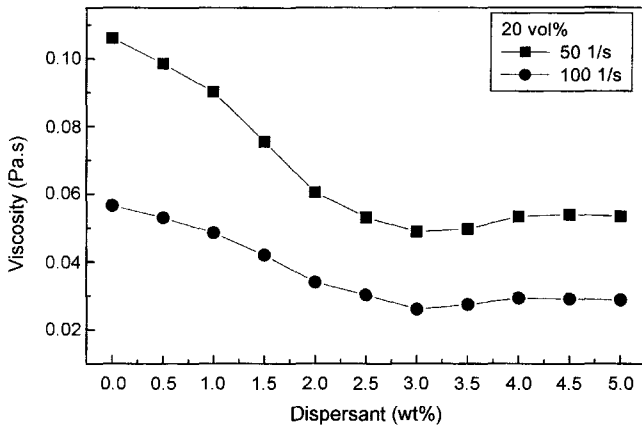


Fig. 3. Variations of viscosity with addition of dispersant at 20 vol%.

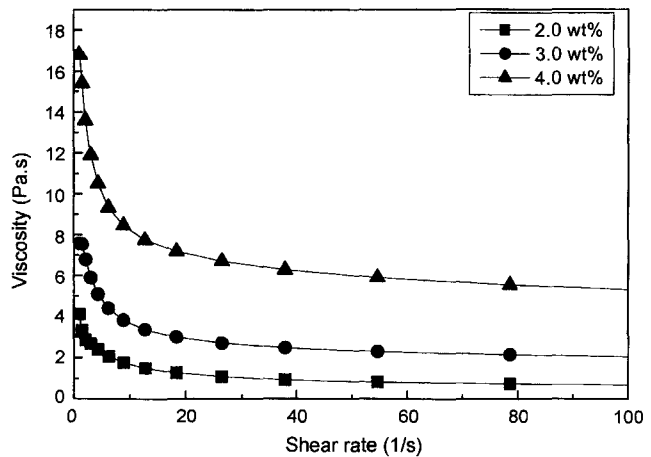


Fig. 5. Viscosity with addition of binder/plastizer = 0.75/0.25 at 30 vol%.

3. 결과 및 고찰

3.1. Slurry의 특성 평가

Fig. 2는 제조된 분말의 모양을 전자현미경으로 관찰한 그림이다. 하소된 분말의 특성을 알아보기 위해 입도분석을 실시한 결과 평균입경이 0.995 μm 의 입경 크기를 나타냈고, 입자의 비표면적 측정은 2.092 m^2/g 이었다. 이 분말을 사용하여 분산제 첨가에 따른 점도측정 결과 고형분량이 20 vol% 이상에서 점도변화는 모두 의기소성거동을 나타내었다.

Fig. 3은 20 vol%에 대한 분산제의 변화에 따른 점도거동이다. Shear rate 50(1/s)와 100(1/s)에서 각각 측정된 결과 3.0 wt%에서 점도가 가장 낮았으며, 이는 입자들간에 분산이 잘된 상태(well dispersed state)로 판단된다. 이 후에 분산제의 증가에 따라 점도가 약간 상승하였는데 이는 분산제가 서로 영키는 bridging현상¹³⁾이 되어 점도가 약간 상승한 것으로 사료된다. 이후 고형 분량을 높이기 위해 30 vol%와 40 vol%에서 점도를 측정하였다. 각 고형분량에 대해 분산제 3.0 wt% 첨가시 초기 점도는 30 vol%에서 1.29 Pa · s,

40 vol%에서 7.29 Pa · s이었다. 40 vol%에서는 상대적으로 용매의 첨가량이 많이 줄어들어서 입자들을 완전한 적심을 하지 못하였고, 점도 측정을 가능하게 하기 위하여 더 오랜 시간 불 밀과 초음파 분쇄기를 통하여 점도를 관찰하였으나 태입 캐스팅에 적절한 점도값을 얻지는 못하였다.

Fig. 4는 30 vol%와 40 vol%에서 분산제 첨가에 따른 점도거동을 조사한 결과인데 30 vol%와 40 vol%에서도 20 vol%와 같이 분산제 3.0 wt% 이상에서 점도 변화가 크게 변하지 않았지만, 40 vol%에서는 분산제 3.0 wt% 이상에서도 점도가 낮아지는 현상이 관찰되었는데 이는 과도한 불 밀과 초음파 분쇄로 인해 입자의 크기가 변하여 점도가 낮아진 것으로 사료된다. 그러므로 최적의 고형 분량은 30 vol%에서 결정하였고, 분산제 최적 첨가량은 고형분량에 대해 분산제 3.0 wt%임을 확인할 수 있었다.

Fig. 5는 최적 분산상태에서 바인더/가소제를 첨가함으로써 slurry의 점도거동을 관찰한 그래프이다. 바인더/가소제의

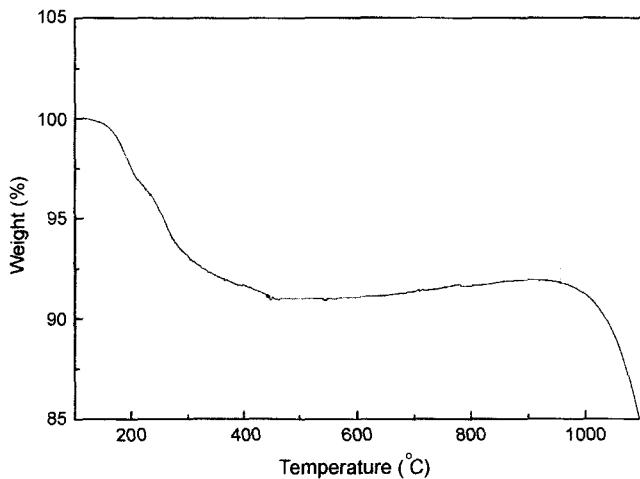


Fig. 6. Thermogravimetric analysis of green sheet.

비가 0.75/0.25일 때 가장 성형밀도가 크다는 연구 결과¹¹⁾를 토대로 바인더와 가소제의 비율을 0.75/0.25으로 결정하였다. 바인더와 가소제 비의 양이 증가할수록 점도는 증가하였고, 모두 의가소성거동을 나타내었다. 바인더/가소제비의 양이 3.0 wt%일 때 점도가 7.55 Pa·s로 태입 캐스팅에 가장 적절하다고 판단되었다.

3.2. TGA와 sheet의 물성평가

적절한 조성의 공정 첨가제들을 첨가하여 안정한 slurry를 만든 후 sheet를 제작한 후, Fig. 6에서 보듯 소결시 burn-out 온도를 결정하기 위하여 green sheet의 TGA 변화를 관찰한 결과 158°C에서 공정첨가제들이 휘발되기 시작하여 430°C까지 완전히 탈지된 후 거의 중량변화가 관찰된 후 낮은 융점을 갖는 PbO의 휘발되기 시작하는 920°C 부근에서 큰 중량 감소가 발생하였다. 그러므로 450°C에서 burn out 온도를 결정하였고, green sheet내 유기 첨가제들의 급격한 휘발에 의한 균열과 기공을 방지하기 위해 승온속도를 2°C/min로 하였고, 완전한 유기 첨가제의 휘발을 위해 450°C에서 4시간 유지하였다. 또한, PbO의 휘발로 인한 조성변화를 막기 위해 분위기 분말(PbZrO₃)을 사용하여 PbO의 휘발을 보상하였다.

그리고 sheet의 유기 첨가제의 휘발 여부를 관찰하기 위해 잔류탄소분석을 실시하여 Table 1에 나타내었다. 소결 온도의 상승으로 잔류탄소함유량은 감소하였지만 미량의 값을 나타내었고, sheet의 특성들에 큰 영향을 미치지 못하는 정

Table 1. Residual Carbon Content with Sintered Temperature

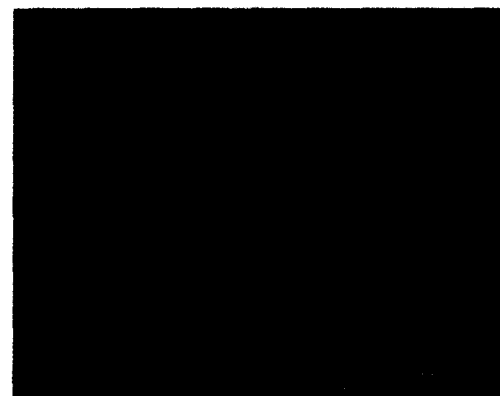
| Sintered Temperature | Residual carbon content |
|----------------------|-------------------------|
| 900°C | 0.016 wt% |
| 950°C | 0.008 wt% |
| 1000°C | 0.007 wt% |



(a) 900°C



(b) 950°C



(c) 1000°C

Fig. 7. Scanning Electron Microscope of sheet sintered at (a) 900, (b) 950, (c) 1000°C for 2 h respectively.

도의 함유량이라 판단된다.

Fig. 7은 900°C, 950°C, 1000°C에서 2시간 소결한 시편의 미세구조 사진이다. 평균입경은 소결온도가 증가하면서 1.12 μm, 1.37 μm, 1.46 μm로 입경이 약간 증가하는 현상을 나타내었다. 이러한 결정립 성장은 소결 밀도와 전기적 특성 측정에서도 확인할 수 있었다.

Fig. 8은 각 온도별로 소결한 sheet의 소결 밀도를 측정 한 결과이다. 소결온도가 증가하면서 900°C에서 7.86 g/cm³,

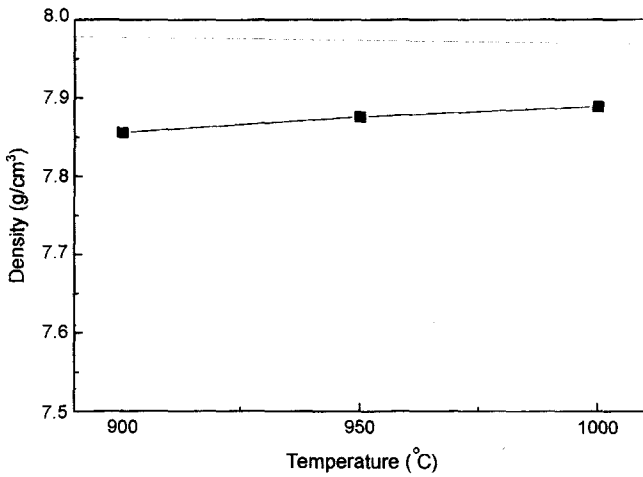


Fig. 8. Bulk density of sheet at 900, 950, 1000°C for 2 h respectively.

Table 2. Sintering Shrinkage with Thickness and Length of Sheet

| Sintered Temperature | Shrinkage of length | Shrinkage of thickness |
|----------------------|---------------------|------------------------|
| 900°C | 14.88% | 11.90% |
| 950°C | 16.18% | 11.93% |
| 1000°C | 17.05% | 11.95% |

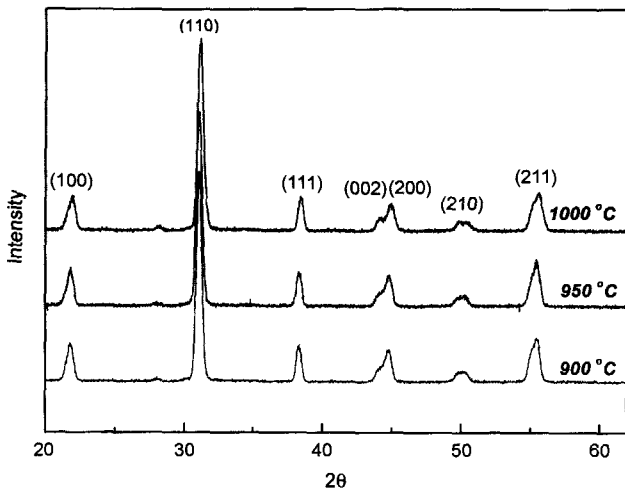


Fig. 9. X-ray diffraction of sheet at 900, 950, 1000°C for 2 h respectively.

1000°C에서 7.89 g/cm³로 소결밀도가 약간 증가하였다. 이는 Table 2에서 보듯 소결온도가 증가하면서 소결수축율이 증가와 평균입경의 증가에 기인한다. 또한, 높은 소결밀도를 나타낸 것은 CdO를 첨가하지 않은 경우보다 첨가한 경우 PbO와 CdO의 공융반응에서 A-site자리인 Pb²⁺에 Cd²⁺가 100% 치환된 것뿐만 아니라 일부가 액상 형성에 참여하여¹⁴⁾ 입자의 치밀화가 발생된 것으로 판단되어진다.

또한, 시편의 상 분석과 잔존 유기물들의 확인을 위해 XRD를 분석하였다. Fig. 9는 각 소결 온도별로 2시간 소결한 시편의 XRD 피크 결과를 나타내고 있다. 역시 잔존 유기물에 대한 피크는 검출되지 않았고, 각 시편은 이차상인 파이로클로아상이 존재하지 않는 단일상의 페로브스카이트 구조의 패턴을 나타내었다. 이는 Swartz Shroud 등이 제시한 columbite precursor를 이용¹⁰⁾하여 이차상 생성을 충분히 억제하였기 때문이라 판단된다. 또한, $2\theta = 42 \sim 46^\circ$ 부근에서 정방정체과 능정면체를 나타내는 (002)와 (200)의 피크를 보였다. 이는 상경계부근에서의 조성을 의미하는 것으로 MPB 영역에서 조성을 선택했기 때문이다.¹⁵⁾

3.3. Sheet의 전기적 특성

잔류 유기물 없이 성형된 sheet는 낮은 소결온도에서 두께에 따라 유전 및 압전특성을 측정하였다. Fig. 10는 소결

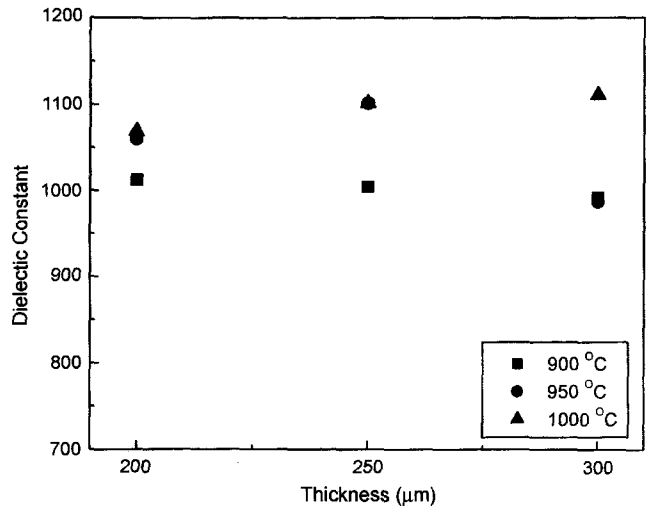


Fig. 10. Capacitance with variations of sheet thickness.

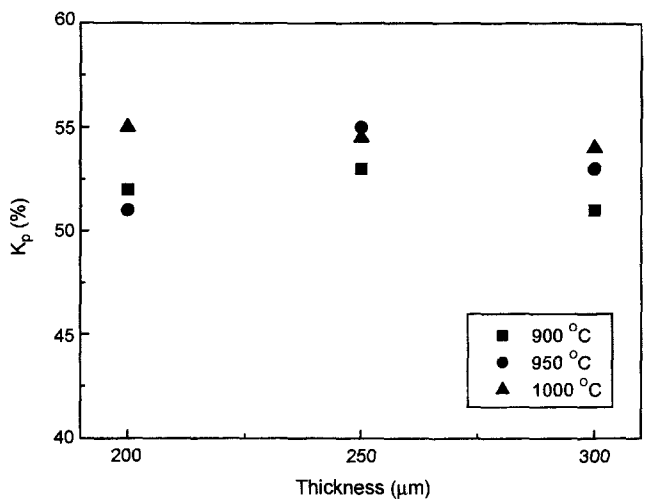


Fig. 11. K_p with variations of sheet thickness.

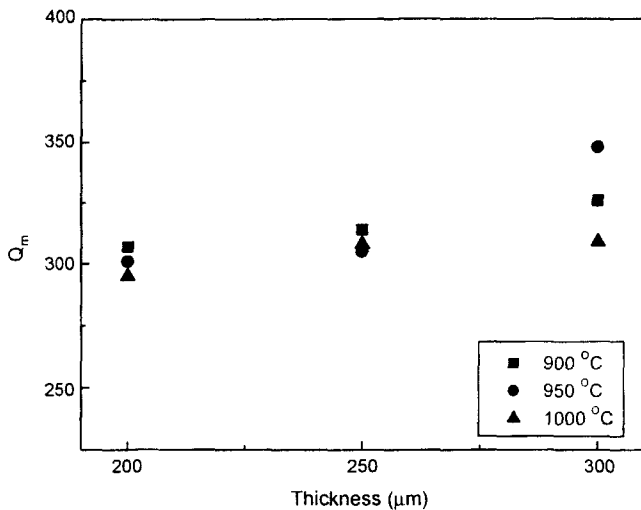


Fig. 12. Q_m with variations of sheet thickness.

온도와 두께에 따른 sheet의 유전상수를 나타낸다. 전반적으로 각 소결온도에서 두께에 따른 유전상수는 크게 변하지 않았다.

또한, Fig. 11와 Fig. 12의 그래프는 같은 조건에서 sheet의 전기기계적결합계수(K_p)와 기계적품질계수(Q_m)값을 각각 조사하였는데 역시 유전상수의 값과 같은 현상으로 두께에 따른 K_p 와 Q_m 값은 큰 변화를 안 보이고 비교적 일정하였다. 그러나, 소결온도가 증가하면서 유전상수와 K_p 는 약간 증가하는 반면 Q_m 값은 다소 떨어짐을 확인 할 수 있었다. 유전상수와 K_p 의 증가는 sheet의 미세구조와 소결밀도에서도 관찰되었듯이 결정립 크기의 증가와 소결밀도의 증가로 인해 전기적 특성이 향상되었기 때문이다. 반면, Q_m 는 분역 운동에 대한 내부저항의 역수로 결정립 내부의 결함, 크기, 계면의 조직 등 내부 결정구조 의해 영향을 받는데 CdO의 첨가로 인해 PbO의 자리와 결합하여 소결온도가 증가하면서 분역 이동도가 증가되어 Q_m 의 값이 감소한 것으로 판단된다.¹⁶⁾

4. 결 론

2 mol% CdO가 치환된 $0.05\text{Pb}(\text{Mn}_{1/3}\text{Sb}_{2/3})\text{O}_3\text{-}0.95\text{Pb}(\text{Zr}_{0.52}\text{Ti}_{0.48})\text{O}_3$ 의 분말을 제조한 후, slurry의 최적 공정첨가제 조성 and sheet의 특성들을 조사하였다. 고형분량 30 vol%에서 분산제 3.0 wt%, 바인더/가소제(0.75/0.25) 3.0 wt% 첨가시 태입 캐스팅에 적절한 slurry를 제조할 수 있었다. 또한, 두께 변화에 따른 green sheet의 전기적 특성들은 큰 변화가 없었고, 900°C에서 소결한 경우 1000°C에서 소결한 경우보다 sheet의 소결 및 전기적 특성들이 큰 차이를 보이지 않아 900°C의 낮은 소결 온도에서도 비교적 높은 유전 및 압전 특성을 확인할 수 있었다.

감사의 글

본 연구는 과학기술부·한국과학재단 지정 세라믹공정연구센터의 연구비 지원에 의해 수행되었으며, 이에 감사드립니다.

REFERENCES

1. W. Mason, *Piezoelectric Crystals and Their Application to Ultrasonics*, New York : D. Vand Nostrand Co., 1-10 (1950).
2. C. A. Rosen, "Ceramic Transformer and Filter," *Proc. Electronic Comp. Symp.*, 205-211 (1956).
3. G. Bayer, "New Perovskite Type Compounds A_2BTeO_6 ," *J. Am. Ceram. Soc.*, **46**(12), 604-605 (1963).
4. L. L. Tu, Y. Y. Jin and M. Z. Han, "Piezoelectric Ceramic Transformer," *Ferroelectrics*, **28**, 403-406 (1980).
5. A. X. Knang, Y. Chai, S. N. Pan and T. S. Zhou, "Piezoelectric Ceramic Transformer High Voltage Power Supply," *IEEE Proc.*, 689-692 (1986).
6. S. Takahashi, Y. Sasaki, S. Hirose and K. Uchino, "Stability of $\text{PbZrO}_3\text{-PbTiO}_3\text{-Pb}(\text{Mn}_{1/3}\text{Sb}_{2/3})\text{O}_3$ Piezoelectric Ceramics Under Vibration-level Change," *Jpn. J. Appl. Phys.*, **34**(9B), 5328-5331 (1995).
7. H. J. C. Williams, "In Ceramic Fabrication Process," E. by F. Y. Wang Academic Press, New York, 173-198 (1976).
8. 오영제, 정형진, "세라믹스 테이프캐스팅(Tape Casting) 성형기술," *요업기술*, **12**(1) 3-11 (1997).
9. E. S. Na and S. C. Choi, "Effect of CuO on Dielectric and Piezoelectric Properties of $\text{Pb}(\text{Ni}, \text{Nb})\text{O}_3\text{-Pb}(\text{Zr}, \text{Ti})\text{O}_3$ Prepared from Two Types of Columbite Precursors," *J. Kor. Ceram. Soc.*, **36**(11), 1235-1242 (1999).
10. S. L. Swartz, T. R. Shrout, W. A. Shulze and L. E. Cross, "Dielectric Properties of Lead Magnesium Niobate Ceramics," *J. Am. Ceram. Soc.*, **67**(5), 311-314 (1984).
11. J. K. Song, "Effect of Polymer Molecular Weight Variations on PZT Slip for Tape Casting," *J. European. Ceram. Soc.*, **20**, 685-688 (2000).
12. W. G. Yoon, J. J. Kim and S. H. Cho, "Effects of Particle Size Distribution of Alumina on Behaviors of Tape Casting," *J. Kor. Ceram. Soc.*, **34**(11), 1173-1181 (1997).
13. J. Theodoor, G. Overbeek, et al., "Recent Development in the Understanding of Colloid Stability," *J. Colloid Interface Sci.*, **58**(2), 408-422 (1977).
14. H. T. Chung, J. H. Cho and H. G. Kim, "Effects of Cd-substitution Site on PbO evaporation in $\text{Pb}(\text{Ni}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3\text{-PbZrO}_3\text{-PbTiO}_3$ Ceramics," *Jpn. J. Appl. Phys.*, **37**(5), 2248-2553 (1998).
15. M. J. Kim and S. C. Choi, "The Effect of ZnO Addition on the Electric Properties and Microstructure of $\text{Pb}(\text{Mn}_{1/3}\text{Sb}_{2/3})\text{O}_3\text{-Pb}(\text{Zr}_{0.52}\text{Ti}_{0.48})\text{O}_3$ Ceramics," *J. Kor. Ceram. Soc.*, **36**(10), 1108-1114 (1999).
16. N. Uchida and T. Ikeda, "Electrostriction in Perovskite Type Ferroelectric Ceramics," *Jpn. J. Appl. Phys.*, **6**(9), 1079-1088 (1967).