

Sm 掺杂 PMN-PT 弛豫铁电陶瓷的大信号径向谐振响应

吴金涛, 凌志远

(华南理工大学材料科学与工程学院, 广州 510640)

摘 要: 弛豫铁电材料因具有高的介电常数和压电系数而广泛应用于致动器、换能器等领域。实际使用中往往需要施加
大信号激励驱动谐振, 因此了解掌握大信号激励下的谐振特性变化极为重要。然而, 目前这方面的研究却少有文献报道。
针对这一问题, 以二步氧化物固相反应法制备了高压电性 $\text{Pb}_{0.9625}\text{Sm}_{0.025}[(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})_{0.71}\text{Ti}_{0.29}]\text{O}_3$ 陶瓷材料, 用本人搭建
的大信号谐振响应测试系统研究了驱动场幅值和温度对径向谐振特性的影响。结果表明: 低驱动场下谐振响应能保持单
一谐振峰直至完全退极化, 但随着驱动场的增大谐振响应变得复杂, 即使在低温也呈现多个谐振峰。谐振特性的变化与
机械品质因子 Q_m 、铁电畴尺寸及相组成密切相关, 低 Q_m 材料在大驱动场下产生的内热加速了畴裂解并引发了二
级铁电相变。谐振特性的不稳定及较大谐振频率温度系数限制了 Sm 改性 PMN-PT 弛豫铁电陶瓷的应用, 尤其是在大
信号下。

关键词: 弛豫铁电陶瓷; 铌镁酸铅-钛酸铅; 大信号; 径向谐振响应

中图分类号: TB34 文献标志码: A 文章编号: 0454-5648(2023)06-1484-06

网络出版时间: 2023-05-16



Large Signal Radial Resonant Responses of Sm-Doped PMN-PT Relaxor Ferroelectric Ceramics

WU Jintao, LING Zhiyuan

(College of Materials Science and Engineering, South China University of Technology, Guangzhou 510640, China)

Abstract: $\text{Pb}_{0.9625}\text{Sm}_{0.025}[(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})_{0.71}\text{Ti}_{0.29}]\text{O}_3$ ceramic material with a high piezoelectricity was prepared by a two-step oxide solid
reaction method. The effects of driving field amplitude and temperature on the radial resonance characteristics were investigated by a
large signal resonant response test system. The results show that the resonant response at a low driving field can maintain a single
resonant peak until complete depolarization. However, the resonant response becomes complicated, and some multiple resonant peaks
appear even at a low temperature as a driving field increases. The resonant properties are closely related to the mechanical quality
factor Q_m , ferroelectric domain size and phase composition. The thermal effect produced by applying a high driving field on the low
 Q_m material accelerates the splitting of macro-domains and induces a first-order ferroelectric phase transition. The instability of
resonant characteristics and the large resonant frequency temperature coefficient restrict the application of Sm-doped PMN-PT relaxor
ferroelectric ceramics, especially at a high driving field.

Keywords: relaxor ferroelectric ceramics; lead magnesium niobate-lead titanate; large signal; radial resonant responses

铌镁酸铅($\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$, PMN)是一种典型
的 B 位取代钙钛矿结构弛豫铁电体, 与钛酸铅

(PbTiO_3 , PT)反应形成的固溶体 $(1-x)\text{PMN}-x\text{PT}$ 在
 $0.27 \leq x < 0.34$ 处存在 1 个准同型相界区(MPB),

收稿日期: 2023-03-16。 修订日期: 2023-04-07。

基金项目: 超声波接近传感器的研制(D8174380)。

第一作者: 吴金涛(1997—), 男, 硕士研究生。

通信作者: 凌志远(1965—), 男, 博士, 教授。

Received date: 2023-03-16. Revised date: 2023-04-07.

First author: WU Jintao(1997—), male, Master candidate.

E-mail: 584406730@qq.com.

Correspondent author: LING Zhiyuan (1965—), male, Ph.D., Professor.

E-mail: imzyling@scut.edu.cn.

$x=0.345$ 时展现出强压电活性, 压电电荷系数 d_{33} 达 720 pC/N ^[1-4]。以 Sm 部分取代 Pb, 压电性进一步增强, $d_{33}>1500 \text{ pC/N}$ ^[5]。超高的压电性十分有利于该材料系统在传感器、执行器、能量收集器等领域中的应用。

为解释 $(1-x)\text{PMN}-x\text{PT}$ 固溶体为何具有超高的压电性, 研究者曾提出过各种假说和理论, 如工程畴理论、极化旋转理论、单斜相的存在等 ^[6-9]。目前普遍接受的观点是: 弛豫铁电体中因化学组成微区起伏致使铁电宏畴与极性纳米微区(PNR)共存 ^[10-12]; 菱方相(R)与四方相(T)间的 MPB 区中至少存在 2 种单斜结构相, M_B (点群 C_m)和 M_C (点群 P_m) ^[13-15]; 随 PT 含量增大, 铁电相变的顺序为 $R \rightarrow M_B \rightarrow M_C \rightarrow T$ ^[13, 16]; M_B 和 M_C 起过渡桥梁作用, 平滑了 R 与 T 相的能量表面, 使极化强度矢量易于在弱外场作用下旋转, 从而呈现出超高的压电性 ^[8, 17-19]。尤其是, 高压电性 $(1-x)\text{PMN}-x\text{PT}$ 的机械品质因子 Q_m 很小, 在外场作用下铁电畴反复开关极易产生内热, 致使电极化后处于亚稳定状态的铁电宏畴裂解, 同时随着温度升高还将发生 M_B 或 $M_C \rightarrow T$ 二级相变和 $T \rightarrow C$ 一级相变 ^[14, 20-22]。这些信息容易让人产生这样一个直觉: 高压电性 $(1-x)\text{PMN}-x\text{PT}$ 材料不适合于大信号下使用, 尤其是在需要用到压电谐振特性的场合。在外场作用下, 铁电宏畴裂解及一级和二级相变有可能诱发谐振频率突变, 也有可能产生多个谐振频率 ^[23-26]。

为证实这一猜测, 用二步氧化物固相反应法合成了 2.5%(摩尔分数)Sm 掺杂的 0.71PMN-0.29PT 材料, 以驱动电场幅值和温度为变量模拟真实工作状态, 测试了系列径向谐振响应, 并对相关结果进行了讨论。

1 实验

1.1 样品制备

以高纯氧化物为原料, 用二步氧化物固相反应法制备实验所需样品 $\text{Pb}_{0.9625}\text{Sm}_{0.025}[(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})_{0.71}\text{Ti}_{0.29}\text{O}_3]$ ^[5, 27]。首先, 按正化学计量比精确称量 $(\text{MgCO}_3)_4 \cdot \text{Mg}(\text{OH})_2 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$ 和 Nb_2O_5 原料, 混合均匀后在 1200°C 煅烧 6 h 合成铌铁矿结构 MgNb_2O_6 前驱体; 其次, 按正化学计量比称量将经粉碎的前驱体与 Pb_3O_4 和 TiO_2 混合均匀在 850°C 煅烧 2 h。为弥偿高温下的 Pb 损失, 额外加入了 0.3% (质量分数) Pb_3O_4 。煅烧后粉体经再次粉碎与聚乙烯醇(PVA)混合造粒, 在 20 MPa 压力下压制成圆片; 随后, 排

胶并置于密封刚玉坩埚中在 1250°C 烧制 2 h。所获瓷体表面研磨后被上银电极, 最终样品尺寸为直径 22 mm、厚度 1.4 mm、银电极直径为 19 mm。

1.2 样品表征

为保证压电谐振响应测试的准确性, 样品在每轮测试前均进行极化处理: 将样品置于油槽中, 室温下施加 1 kV/mm 直流电场保持 15 min, 极化后在室温下放置 24 h。晶体结构采用 PANalytical X'Pert 3 型 X 射线衍射仪($\text{CuK}\alpha_1$, $\lambda=0.15406 \text{ nm}$)测定, 步长及停留时间分别为 0.016° 和 0.5 s。采用 TH2816A 型宽频 LCR 数字电桥和 ZJ-3A 型准静态 d_{33} 表获取介电性能及室温下压电电荷系数 d_{33} 。采用自己搭建的大信号谐振响应测试系统获取不同驱动电场幅值和温度下谐振频率 f_m 、反谐振频率 f_n 及对应的均方根电流值。视最大电流对应频率为 f_m 、最小电流对应频率为 f_n 。径向机电耦合性能以 $\Delta f/f_m=(f_n-f_m)/f_m$ 值表征。

所搭建的大信号谐振响应测试系统由 JDS6600 函数发生器、ATA2021H 高电压放大器、Keithley2010 数字万用表、GZ-ESPEC MC710P 环境试验箱和计算机组成。函数发生器产生的正弦波信号馈入高电压放大器, 放大信号经数字万用表施加于待测样品, 环境试验箱提供所需环境温度。高压放大器的工作频率范围为直流至 1 MHz、最大输出电压 200 V_{pp} 、最大输出电流 500 mA_p 、电压转换速率大于 $445 \text{ V}/\mu\text{s}$; 数字万用表的均方根电流测试频率范围为 30 Hz 至 300 kHz、中速下电流范围为 $1 \mu\text{A}$ 至 3 A; 环境试验箱的工作温度范围为 -55°C 至 140°C 、温度控制精度 $\leq 1^\circ\text{C}$ 。以上仪表仪器参数为本研究工作的数据准确性提供了保障。

测试前先根据样品的径向振动频率常数确定基波振动模态频率范围为 70 kHz 至 130 kHz, 随后在一定驱动场下以 $1^\circ\text{C}/\text{min}$ 升温速率从 -50°C 开始测试, 记录每度下频率-电流数据直至谐振峰完全消失。驱动场由低至高逐步增大, 顺序为 $10.00 \text{ V/mm} \rightarrow 12.50 \text{ V/mm} \rightarrow 13.75 \text{ V/mm} \rightarrow 15.00 \text{ V/mm} \rightarrow 17.50 \text{ V/mm} \rightarrow 20.00 \text{ V/mm}$ 。

2 结果与讨论

为避免数据离散及反复测试引起的材料结构变化影响, 本工作自始至终针对同一典型样品进行大信号测试。每轮测试前样品先在 500°C 热退火 30 min, 重新极化后在室温下放置 24 h。图 1 为每轮测试前的 d_{33} 值。除第一轮(10 V/mm) d_{33} 偏高 5.9%外, 其

余均小于 3%，算术平均值为 1 119 pC/N。因此，每轮测试样品的起始态可视为相同。

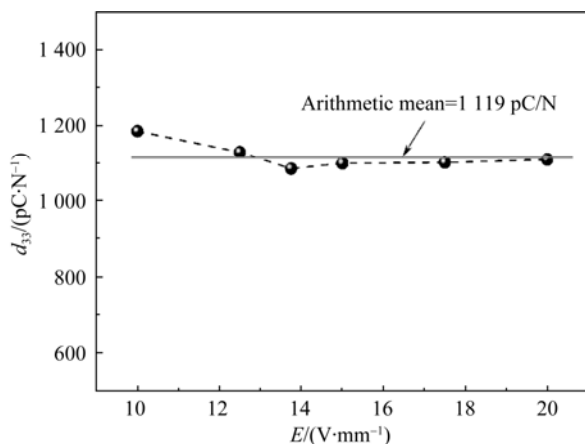


图 1 测试前的压电电荷系数 d_{33}

Fig. 1 Piezoelectric charge coefficient d_{33} before testing

图 2 为不同驱动场下样品径向谐振响应随温度的变化。为便于细节分辨，相邻曲线的温度间隔经仔细调整后设置为 3 °C。明显地，驱动场对谐振响应产生了重大影响。驱动场为 10 V/mm 时，谐振响应由 -50 °C 逐步增大直至完全退极化始终能保持单一模式，与 1.4 V/mm 驱动场下测试结果相一致(图 3)；12.5 V/mm 时，高温处谐振响应变得复杂，除原有谐振峰外，出现了多个弱谐振峰；增大至 13.75 V/mm，之前的弱谐振峰明显增强，呈现向低温发展趋势；到达 15 V/mm 时，谐振响应变化最显著，即使在低温也至少存在 2 个以上谐振峰，并且谐振峰强度明显下降；但进一步增大驱动场，谐振模式又有回到 10 V/mm 状态的趋势，17.5 V/mm 低温下的谐振响应再次转变为单一模式；20 V/mm 出现 1 临界温度，低于该温度仅有单个谐振峰，高于该温度谐振响应仍然复杂，存在多个谐振峰。

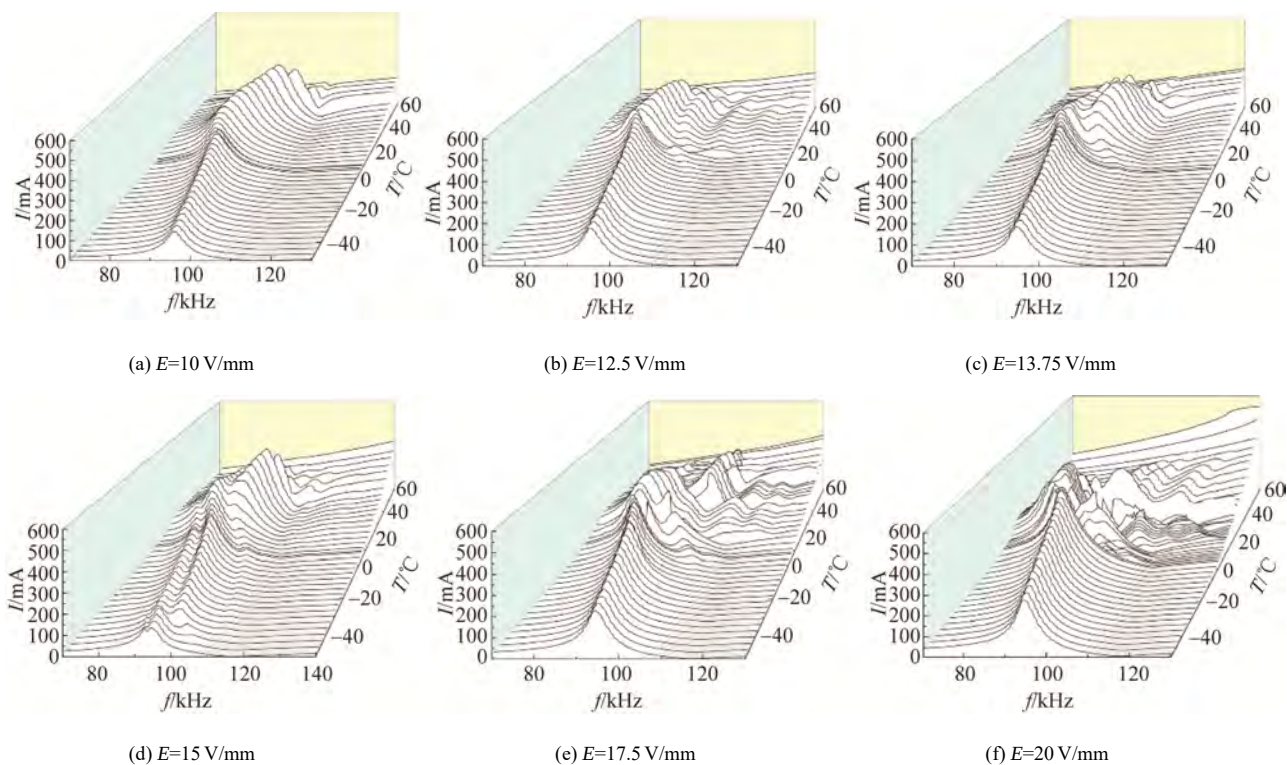


图 2 不同驱动场下压电径向谐振响应随温度变化曲线

Fig. 2 Temperature dependence of the piezoelectric radial resonant response under different driving field

为更直观地了解不同驱动场下谐振频率随温度的变化情况，由图 2 中提取数据形成谐振频率 f_m 与温度关系。图 4 为不同驱动场下谐振峰频率随温度变化曲线。由图 4 可见，不同驱动场下 f_m 随温度的变化均可划分成 2 个区域：1 和 2。区域 1 中，至少存在 1 个连续单调随温度升高而减小的 f_m ；区域 2 中， f_m 随温度升高或增大，或产生突变，或不连续，

或存在多个谐振频率，或几种特征兼而有之。驱动场从 10 V/mm 增大至 15 V/mm，2 个区域的分界线保持不变，稳定在 18 °C；继续增大驱动场，分界线向低温方向移动，17.5 V/mm 为 10 °C，20 V/mm 为 3 °C。特别是，区域 1 也会出现 2 个以上谐振峰，尤其在靠近分界线处。一旦出现另一谐振峰，其它谐振峰的 f_m 减小速率就会明显加快。

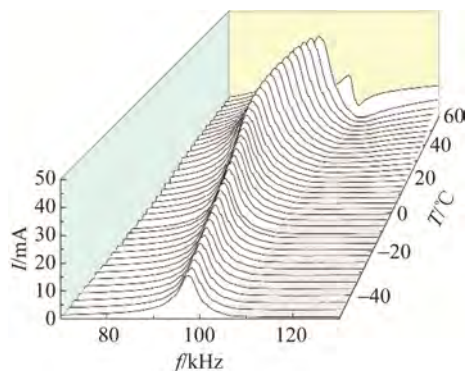


图 3 1.4 V/mm 驱动场下径向谐振响应随温度变化曲线

Fig. 3 Temperature dependence of the radial resonant response under 1.4 V/mm

区域 1 和区域 2 的分界线表明了什? 分析驱动场 10 V/mm 下机电耦合系数 $\Delta f/f_m$ 随温度的变化(图 5), 可见从 $-50\text{ }^{\circ}\text{C}$ 升高至分界线温度(T_i) $\Delta f/f_m$ 线性增大。 $T > T_i$ 后, $\Delta f/f_m$ 迅速减小直至在 $T_d = 54\text{ }^{\circ}\text{C}$ 接近于零。毫无疑问, T_d 就是退极化温度。X 射线衍射分析表明(图 6), 样品的晶体结构为钙钛矿相, 仅有极少量烧绿石相存在。 39° 处(111)峰为单峰; 45° 附近(200)峰呈现左右不对称, 极化后虽未发生位移, 但衍射强度变化类似四方相为电场取向(002)和(200)峰强度变化。对比 Singh 等的实验及精修结果, 极化前 45° 和 65.6° 衍射峰与 0.66PMN-0.34PT 未极化样品 XRD 谱(200)和(220)峰轮廓一致^[13-15]。考虑 Sm 部分取代 Pb 会使 MPB 区向富 PMN 方向移动,

认为 $\text{Pb}_{0.9625}\text{Sm}_{0.025}[(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})_{0.71}\text{Ti}_{0.29}]\text{O}_3$ 陶瓷极化前的晶体结构应为单斜 M_C 相(空间点群为 Pm), 测试前的极化使 M_C 相向四方相转变, 纳米畴的极化强度矢量相互耦合为外电场所取向, 形成了四方相结构宏畴, 或称为“假宏畴”^[5, 28]。这些宏畴极不稳定, 易随温度升高逐步退耦合, 宏畴尺寸减小, 释放非 180° 畴转在畴壁处积累的弹性势能, 致使弹性柔顺模量 s_{11} 增大, 由于 $f_m \propto \sqrt{\frac{1}{(1-\sigma^2)s_{11}\rho}}$, 宏

观上表现为 f_m 减小, 其中: σ 为 Poisson's 比; ρ 为体积密度^[17, 24]。同时, 因畴尺寸的减小, 极化强度矢量更易于旋转, $\Delta f/f_m$ 增大。考虑样品极化后铁电畴极化强度为外电场取向, 畴壁移及畴转使弹性势能增大, 四方铁电宏畴处于亚稳定状态。温度低于退极化温度 T_d 且驱动场小于等于 10 V/mm 时, 晶体结构稳定, 径向振动呈现单一谐振峰; 进一步增大驱动场, 铁电畴开关过程中因低机械品质因子(室温下 Q_m 约为 25)内耗很大, 当内热上升至某一临界值时铁电宏畴裂解, 部分畴的极化强度矢量重新取向, $T \rightarrow M_C$ 二级相变使 s_{11} 分布不均匀, 展现出多谐振峰(需要指出: 低温下 15 V/mm 时表观上 2 个呈现 2 个谐振峰, 实则有许多强度非常小的谐振峰); 继续增大驱动场至 20 V/mm, 宏畴裂解进入另一个亚稳定状态, 此时 s_{11} 分布均匀, 径向振动又呈现单一谐振峰。

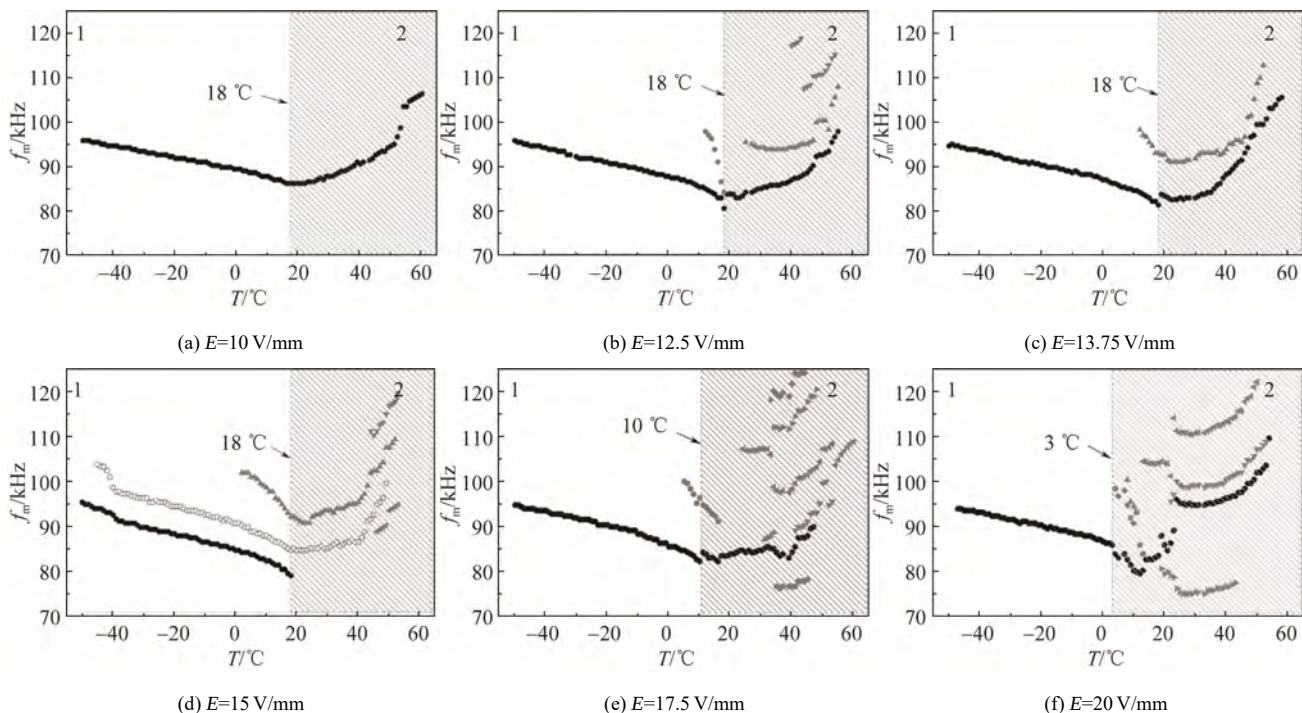


图 4 不同驱动场下谐振峰频率随温度变化曲线

Fig. 4 Temperature dependence of the resonant frequencies under different driving field

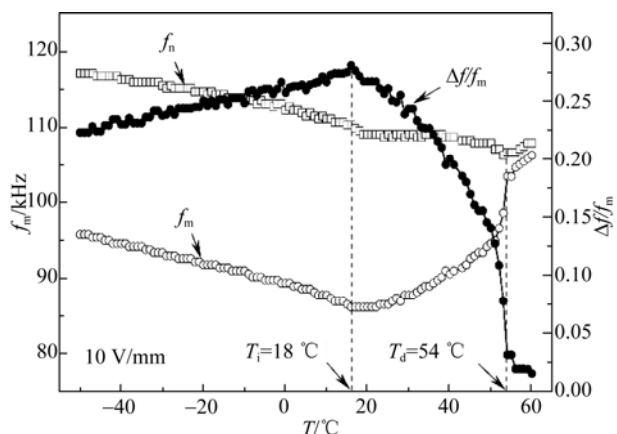


图5 谐振频率 f_m 、反谐振频率 f_n 及径向机电耦合系数 $\Delta f/f_m$ 在驱动场10 V/mm条件下随温度变化曲线

Fig. 5 Temperature dependence of the resonant frequency f_m , anti-resonant frequency f_n and radial electromechanical coupling coefficient $\Delta f/f_m$ under the driving field of 10 V/mm

驱动场10 V/mm和20 V/mm下样品随测试循环数增大径向谐振响应变化如图7所示。由图7可见，10 V/mm下10个测试循环后 f_m 和 f_n 变化很小；但

20 V/mm下变化显著， f_m 和 f_n 随循环数增大分别增大和减小， $\Delta f/f_m = (f_n - f_m)/f_m$ 值减小表明样品正处于退极化过程，与图4和图5相一致。由于测试是在恒温下进行(25 °C)，这一结果同时又表明内热随驱动场增大呈现非线性增大。

3 结论

采用自己搭建的大信号谐振响应测试系统对具有高压电性的Sm掺杂PMN-PT弛豫铁电陶瓷的径向谐振响应温谱进行了测试。结果表明，低驱动场下呈单一谐振模式，随着驱动场增大多谐振峰出现，特别是在较高温度时。谐振特性的变化与铁电畴尺寸及相组成密切相关，10 V/mm驱动场下宏畴随温度升高逐渐裂解呈现较大的负谐振频率温度系数，驱动场的增大加速宏畴裂解，当畴尺寸小到某一临界值时将发生二级铁电相变，谐振特性变得复杂。具有高压电性的Sm改性PMN-PT弛豫铁电陶瓷不适合于用于大信号谐振器使用，即使在小信号下也需要改善谐振频率温度系数。

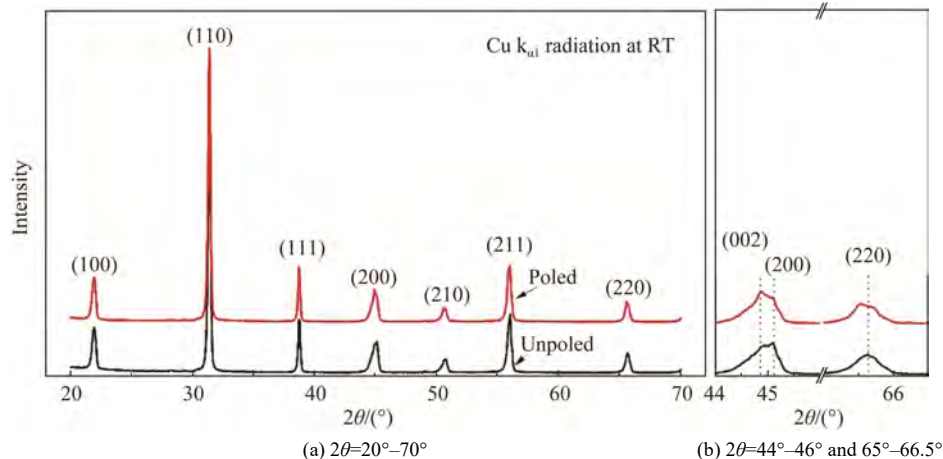


图6 极化前后XRD变化曲线

Fig. 6 Variation of XRD patterns before and after poling

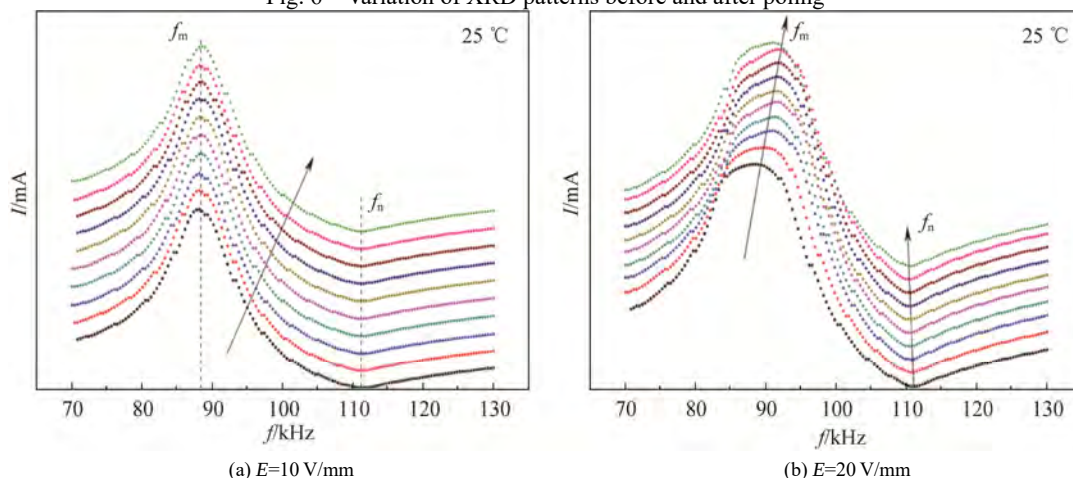


图7 驱动场10 V/mm和20 V/mm下径向谐振响应经10个测试循环后变化结果

Fig. 7 Variations of the radial resonant response after 10 test cycles under 10 V/mm and 20 V/mm

参考文献:

- [1] SWARTZ S L, SHROUT T R, SCHULZE W A, and CROSS L E. Dielectric properties of lead-magnesium niobate ceramics[J]. J Am Ceram Soc, 1984, 67(5): 311–315.
- [2] SHROUT T R and SWARTZ S L. Dielectric properties of pyrochlore lead Magnesium Niobate[J]. Mater Res Bull, 1983, 18: 663–667.
- [3] KELLY J, LEONARD M, TANTIGATE C, and SAFARI A. Effect of composition on the electromechanical properties of $(1-x)\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ - $x\text{PbTiO}_3$ ceramics[J]. J Am Ceram Soc, 1997, 80(4): 957–964.
- [4] ALGUERO M, ALEMANY C, and PARDO L. Piezoelectric resonances, linear coefficients and losses of morphotropic phase boundary $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ - PbTiO_3 ceramics[J]. J Am Ceram Soc, 2005, 88(10): 2780–2787.
- [5] FEI L, DABIN L, ZIBIN C, ZHENXIANG C, et al. Ultrahigh piezoelectricity in ferroelectric ceramics by design[J]. Nat Mater, 2018, 17: 349–354.
- [6] PARK S E and SHROUT T R. Ultrahigh strain and piezoelectric behavior in relaxor based ferroelectric single crystals[J]. J Appl Phys, 1997, 82(4): 1804–1811.
- [7] HUAXIANG F and COHEN R E. Polarization rotation mechanism for ultrahigh electromechanical response in single-crystal piezoelectrics[J]. Nature, 2000, 403: 281–283.
- [8] KISI E H, PILTZ R O, FORRESTER J S and HOWARD C J. The giant piezoelectric effect: electric field induced monoclinic phase or piezoelectric distortion of the rhombohedral parent?[J]. J Phys: Condens Matter, 2003, 15: 3631–3640.
- [9] SHUJUN Z and FEI L. High performance ferroelectric relaxor- PbTiO_3 single crystals: Status and perspective[J]. J Appl Phys, 2012, 111: 031301.
- [10] BOKOV A A and YE Z G. Recent progress in relaxor ferroelectrics with perovskite structure[J]. J Mater Sci, 2006, 41: 31–52.
- [11] KLEEMANN W. Relaxor ferroelectrics: Cluster glass ground state via random fields and random bonds[J]. Phys Status Solidi B, 2014, 251: 1993–2002.
- [12] WESTPHAL V, KLEEMANN W and GLINCHUK M D. Diffuse phase transitions and random-field-induced domain states of the "relaxor" ferroelectric $\text{PbMg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3}\text{O}_3$ [J]. Phys Rev Lett, 1992, 68(6): 847–850.
- [13] SINGH A K and PANDEY D. Evidence for M_B and M_C phases in the morphotropic phase boundary region of $(1-x)[\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3]$ - $x\text{PbTiO}_3$: A Rietveld study[J]. Phys Rev B, 2003, 67: 064102.
- [14] NOHEDA B, COX D E, and SHIRANE G. Phase diagram of the ferroelectric relaxor $(1-x)\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ - $x\text{PbTiO}_3$ [J]. Phys Rev B, 2002, 66: 054104.
- [15] TOPOLOV V Y and YE Z G. Coexistence of morphotropic phases in $(1-x)\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ - $x\text{PbTiO}_3$ solid solutions[J]. Phys Rev B, 2004, 70: 094113.
- [16] CAO H, JIEFANG L, and VIEHLAND D. Structural origin of the relaxor-to-normal ferroelectric transition in $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ - $x\text{PbTiO}_3$ [J]. J Appl Phys, 2006, 100: 034110.
- [17] KUTNJAK Z and BLINC R. Electric field induced critical points and polarization rotations in relaxor ferroelectrics[J]. Phys Rev B, 2007, 76: 104102.
- [18] FEI L, MATTHEW J C, BIN X, et al. Giant piezoelectricity of Sm-doped $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ - PbTiO_3 single crystals[J]. Science, 2019, 364: 264–268.
- [19] MALIC B and ROJAC T. High piezoelectricity via enhanced disorder[J]. Nat Mater, 2018, 17: 292–300.
- [20] SHERLOCK N P, SHUJUN Z, JUN L, HO-YONG L, et al. Large signal electromechanical properties of low loss single Crystals[J]. J Appl Phys, 2010, 107: 074108.
- [21] GUANGYONG X, ZHONG Z, BING Y, Z-G Y and SHIRANE G. Electric-field-induced redistribution of polar nano-regions in a relaxor ferroelectric[J]. Nat Mater, 2006, 5: 134–140.
- [22] SOMME R, YUSHIN N K and KLICK J J. Polar metastability and an electric-field-induced phase transition in the disordered perovskite $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ [J]. Phys Rev B, 1993, 48(18): 13230–13237.
- [23] MANLEY M E, ABERNATHY D L, SAHUL R, et al. Giant electromechanical coupling of relaxor ferroelectrics controlled by polar nanoregion vibrations[J]. Sci Adv, 2016, 2: e1501814.
- [24] CAI L, PATNAIK R, LUNDEEN J, and TOULOUSE J. Piezoelectric polar nanoregions and relaxation-coupled resonances in relaxor ferroelectrics[J]. Phys Rev B, 2018, 98: 134113.
- [25] WU H H and COHEN R E. Electric-field-induced phase transition and electrocaloric effect in PMN-PT[J]. Phys Rev B, 2017, 96: 054116.
- [26] VIEHLAND D, LI J F, and COLLA E. V. Domain structure changes in $(1-x)\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ - $x\text{PbTiO}_3$ with composition, dc bias, and ac field[J]. J Appl Phys, 2004, 96(6): 3379–3381.
- [27] JIE C and Harmer M P. Microstructure and dielectric properties of lead magnesium niobate-pyrochlore diphasic mixtures[J]. J Am Ceram Soc, 1990, 73(1): 68–73.
- [28] FEI L, SHUJUN Z, TIANNAN Y. The origin of ultrahigh piezoelectricity in relaxor-ferroelectric solid solution crystals[J]. Nat Commun, 2016, 7: 13807.