

## 铌镁酸铅基弛豫铁电厚膜的研究进展

陈 晋<sup>1</sup>, 樊慧庆<sup>2</sup>

(1. 西安建筑科技大学 材料学院, 西安 710055; 2. 西北工业大学 材料学院, 西安 710072)

**摘 要:** 铌镁酸铅( $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ , 简称 PMN)基弛豫铁电厚膜材料及器件因其具有良好的电学性能而成为近年来研究热点. 本文分别从丝网印刷技术、复合溶胶-凝胶法(Sol-Gel)、流延法、电泳沉积法和水热法等五个方面, 归纳和分析了近年来 PMN 基弛豫铁电厚膜的研究进展. 然而, PMN 基厚膜电学性能及其内在物理机制的研究相对滞后. 今后的研究重点将集中在厚膜的低温制备、物理机制的探究以及新器件的开发上, 并为研究新型高性能的无铅型高性能弛豫铁电厚膜打下良好的基础.

**关 键 词:** 铌镁酸铅; 弛豫; 铁电; 厚膜; 综述

中图分类号: TB34

文献标识码: A

## Researches and Developments of PMN-based Relaxor Ferroelectric Thick Film

CHEN Jin<sup>1</sup>, FAN Hui-Qing<sup>2</sup>

(1. School of Materials Science and Engineering, Xi'an University of Architecture and Technology, Xi'an 710055, China;  
2. State Key Laboratory of Solidification Processing, School of Materials Science and Engineering, Northwestern Polytechnical University, Xi'an 710072, China)

**Abstract:** The thick films and devices of PMN-based relaxor ferroelectric have attracted considerable attentions because they have excellent electric properties. In this paper, the research progress and trend of PMN-based thick films are summarized with emphases on screen printing, composite Sol-Gel, tape-casting, electrophoretic deposition and hydrothermal method. On the other hand, relatively slow progress was achieved in theoretical studies aimed in explaining the relaxor ferroelectric properties and the relaxor mechanism of the PMN-based thick film. Therefore, future works should involve in the low-temperature fabricating process, the physical mechanism and the new devices, which can be applied to new-type lead-free relaxor ferroelectric thick films with excellent properties.

**Key words:** PMN; relaxor; ferroelectric; thick film; review

自从前苏联科学家 Smolensky 等首次合成复合钙钛矿结构铌镁酸铅以来, 近年来弛豫铁电体因其具有优异电学性能而日益受到人们的重视<sup>[1-3]</sup>. 弛豫铁电陶瓷具有很高的介电常数、较小的温度变化率和相对低的烧结温度, 是多层陶瓷电容器的重要材料. 此外该类材料还具有大的电致伸缩效应、压电效应等特点, 在微位移器、致动器和智能材料与器件等方面也能获得广泛的应用<sup>[4-6]</sup>. 另外, 随着铁电存储技术、微光学电子机械系统和铁电集成电子学的发展, 铁电薄膜/厚膜的制备和应用也成为研究

的热点<sup>[7]</sup>.

PMN 铁电体材料是典型的 B 位复合离子钙钛矿结构弛豫铁电体, 居里温度为  $-10^\circ\text{C}$ , 它能与  $\text{PbTiO}_3$ (PT)形成固溶体, 随着 PT 含量的增加其居里温度向高温移动; 在 PT 含量约为 35 mol%附近存在一准同型相界(morphotropic phase boundary, 简称 MPB)<sup>[8]</sup>, 成分在 MPB 附近的 PMN-PT 铁电体有异常高的介电和压电性能<sup>[4]</sup>. 介电行为在 MPB 两侧发生突变, 在 PT 含量低于 MPB 相界成分的一侧表现出强烈的介电弛豫特征; 而在 PT 含量超过 MPB 相

收稿日期: 2009-11-16, 收到修改稿日期: 2010-01-28

基金项目: 西安建筑科技大学人才科技基金(RC0934); 陕西省重点学科建设专项基金; 濮耐教育奖学金

作者简介: 陈 晋(1978-), 男, 博士, 讲师. E-mail: chainjim@sina.com

界成分的另一侧则表现出典型的普通铁电体特征。

随着电子元器件向小型、高灵敏、集成、多功能化方向发展,薄/厚膜材料及器件逐渐成为研究的重点。铁电厚膜兼顾了体材料和薄膜材料的优点,PMN 基铁电材料广泛应用于制备压电、铁电、热释电器件,其工作电压低、使用频率宽,能够与半导体集成电路兼容,而且电学性能优于薄膜材料<sup>[9]</sup>。目前国内外研究 PMN 基弛豫铁电陶瓷、单晶和薄膜材料较多,对其厚膜的研究也刚刚开始。本文综述了 PMN 厚膜的制备方法和研究进展,并对其厚膜技术研究和发提出一些建议。

## 1 PMN 基弛豫铁电厚膜的制备方法

厚膜的制备技术已有 40 多年的发展,其中丝网印刷技术最为成熟。近年来,PMN 基弛豫铁电厚膜的制备技术得到了很大的发展,如丝网印刷技术<sup>[10-12]</sup>、复合溶胶-凝胶法(Sol-Gel)<sup>[13]</sup>、流延法<sup>[14]</sup>、电泳沉积法<sup>[15-16]</sup>和水热法<sup>[17]</sup>等。

### 1.1 丝网印刷法

丝网印刷法是将预烧好的铁电粉体与有机载体混合制备成均匀的厚膜浆料。有机载体中通常加入一定量的粘结剂、分散剂、增塑剂或低熔点玻璃粉体等。然后将浆料经过网孔转移,沉淀到基片上,形成湿厚膜,经过干燥后在 850~1200℃左右烧结而成。可以根据自己所需要的厚度来决定印刷的次数。该方法是传统的制备厚膜集成电路工艺,过程简单、成本低、易得到印刷厚膜图形、厚膜的致密度高、适于批量生产,能与微机电系统(Micro-Electro-Mechanical Systems, 简称 MEMS)技术兼容,可用来制备 MEMS 压电微执行器。Gentil 等<sup>[10-11]</sup>用丝网印刷在硅基底上印制了膜厚达 20 μm 的 0.65PMN-0.35PT 厚膜。但该方法不足之处是浆料难以混合均匀,有玻璃相成分,且难以获得介电性能良好的 0.65PMN-0.35PT 厚膜。随后 Kosec 等<sup>[12]</sup>利用机械力合成的纳米粉体在 950℃左右合成了性能优异的 0.65PMN-0.35PT 厚膜。

目前 PMN 基厚膜的丝网印刷制备工艺的研究重点在于:如何提高厚膜的致密度,降低烧结温度,减少界面反应以及硅加工工艺的兼容性研究。

### 1.2 复合溶胶-凝胶法

复合溶胶-凝胶法是将 PMN 铁电粉体分散于 PbTiO<sub>3</sub> 溶胶中,充分混合后形成均匀、稳定的浆料,然后再匀胶沉积成膜,最后经 300℃热分解后于 550℃热处理得到初始厚膜;随后需要再次沉积 PT

溶胶来降低厚膜内应力并填充厚膜空隙,并经 300℃热分解后在 550℃时热处理得到最终 PMN 复合厚膜,然后利用反复涂敷技术来增加厚膜的厚度<sup>[13]</sup>。复合溶胶-凝胶法可以制备从纳米级薄膜到几十微米厚膜的技术,其保持了普通 Sol-Gel 法的基本特点,同时又解决了普通的 Sol-Gel 法难以制备出厚度大于 1 μm 的膜材料,厚度增加膜易产生裂纹甚至脱落<sup>[18]</sup>。因此复合 Sol-Gel 制膜技术已经成为制备铁电厚膜材料的较理想的技术。这种方法已制备出 Pb(Zr,Ti)O<sub>3</sub>、(Pb,La)(Zr,Ti)O<sub>3</sub> 和 PMN-PT 等铁电厚膜<sup>[19-20]</sup>。

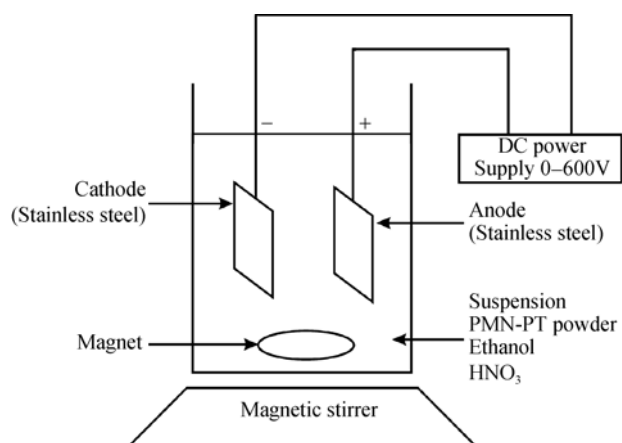
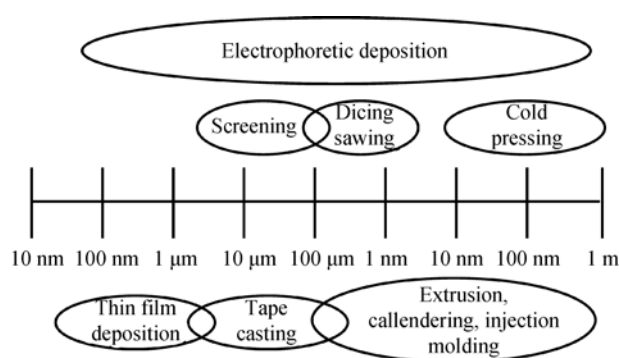
### 1.3 流延成型

流延成型法就是将粉碎好的陶瓷粉体与由溶剂、分散剂、粘结剂和塑性剂所组成的溶液按适当配比混合制成具有一定粘度的料浆,料浆从容器中流下,用刮刀以一定厚度刮压涂敷在专用基带上,经干燥、固化后从基带上剥下成为生坯带的厚膜,然后根据成品的尺寸和形状需要对生坯带作冲切、层合等加工处理,制成待烧结的毛坯成品。其特点是设备简单,工艺稳定,可连续操作,生产效率高,可实现高度自动化<sup>[21-22]</sup>。流延成型工艺除了具有胶态成型法的特点外,还具有以下优点:(a)成型后出现的最大缺陷尺寸只限制在单层膜的厚度方向,多数情况下缺陷远小于厚度尺寸;(b)在层状材料的制备中,后期的热压叠层可显著减小甚至消除素坯中的气孔;(c)可以根据结构设计需要,沿厚度方向叠加不同组分的素坯,制备功能梯度材料;(d)可制备晶粒取向生长的陶瓷厚膜材料。

### 1.4 电泳沉积法

电泳沉积是一种在直流电场作用下直接成型的陶瓷制备技术,是电泳和沉积两个过程的综合。陶瓷粉体在与极性介质如水、乙醇、丙酮等接触的界面上发生电离,从而使陶瓷粉体表面带正电或负电,在外加电场的作用下可使粉体沉积到与其所带电荷相反的电极上<sup>[23]</sup>,图 1 所示为电泳沉积装置示意图<sup>[15]</sup>。

相对于其他制备厚膜的方法,电泳沉积具有不可比拟的优点。首先,电泳沉积技术适用于制备不同膜厚的涂层,可控厚度范围很宽<sup>[24]</sup>,如图 2 所示;其次,电泳沉积技术是一种温和的表面涂层方法,可避免高温过程中引起的相变和脆裂,有利于增强基底金属与陶瓷涂层之间的结合力;同时,电泳沉积过程是非直线过程,可以在形状复杂和表面多孔的金属材料表面制备均匀的功能陶瓷薄膜;另外,电泳沉积方法还具有所需设备简单、操作方便、沉

图1 电泳沉积实验装置示意图<sup>[15]</sup>Fig. 1 Schematic diagram of electrophoretic deposition system<sup>[15]</sup>图2 不同制膜技术及其应用范围<sup>[24]</sup>Fig. 2 Various processing techniques and the dimensional ranges obtainable with state of the art equipment and processing<sup>[24]</sup>

积工艺易控制等优点。但是, 电场强度太低会使沉积速率降低、膜厚度减小; 电场强度太高导致膜层粗糙易开裂, 电极上也易发生其它电化学反应, 影响陶瓷厚膜的电性能。由于初始电泳沉积厚膜不够致密, 使得在烧结后因厚膜内的热残余应力会导致厚膜的开裂, 或者不够致密, Chen<sup>[15-16]</sup>和 Zhang<sup>[25]</sup>等在烧结前采用 200 MPa 冷等静压的预处理可以得到致密的电泳沉积陶瓷厚膜。

### 1.5 水热法

水热法是指在特制的密闭高压釜中采用水溶液作为反应体系, 通过对体系加热、加压、或自生蒸汽压创造一个相对高温、高压的反应环境, 使得通常难溶或不溶的物质溶解并且重结晶而进行无机合成和厚膜制备的方法<sup>[17]</sup>, 水热法是合成具有特殊结构、性质和功能的固体化合物和新型材料的重要合成途径和有效方法。

水热法可以在非常低的温度( $< 220^{\circ}\text{C}$ )下制备 PMN 基铁电厚膜, 相比之下可以更加节能和低成本制备粉体, 并且是环境友好的制备方法。该方法可

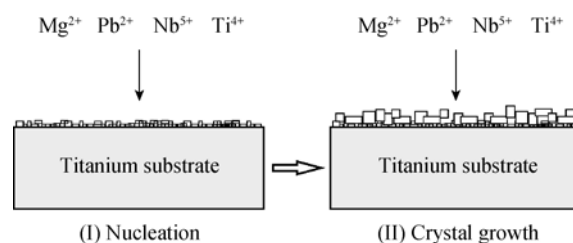
以直接将初始氧化物放入高压釜中, 加入去离子水和矿化剂(KOH 或 NaOH), 控制矿化剂浓度和反应时间及温度, 即可制备厚膜, 具体反应机理如图 3 所示<sup>[26]</sup>。

水热工艺之所以在制备陶瓷厚膜方面得到广泛的认可, 是因为选用水热工艺制备陶瓷膜具有独特的优越性: (1)工艺过程温度低, 易于制备含有易挥发组分或在高温下易发生相分离的多元体系材料; (2)工艺设备要求简单, 无需真空条件; (3)对于基底的形状没有限制, 甚至可以在曲面上制备陶瓷膜; (4)易制得均匀多组分氧化物膜, 可以有效地控制薄膜成分及微观结构。

## 2 PMN 基弛豫铁电厚膜的研究热点

### 2.1 无基底厚膜的制备和应用

弛豫铁电压电致动器都是通过陶瓷或者有基底厚膜制备成的, 为了确保得到足够的位移量需要降低厚膜基底的厚度<sup>[27]</sup>。有基底厚膜经过成型和烧结后, 其厚膜被钳制在非弹性的基底上, 使其位移量大为减小; 因此制备无基底厚膜可以得到高的位移量, 这成为 PMN 基厚膜制备的主要研究方向。Shih 等<sup>[14]</sup>采用流延成型法制备了无基底的 0.63PMN-0.37PT 陶瓷厚膜, 通过流延成型得到单层厚膜, 直接在双层氧化铝坩埚中烧结成无基底厚膜; 所得到的 0.63PMN-0.37PT 厚膜压电系数 $-d_{31}=2000 \text{ pm/V}$  (激励电场  $E > 7 \text{ kV/cm}$ ), 远超过其单晶和陶瓷块体的性能。Ursic 等<sup>[28]</sup>采用丝网印刷法制备无基底厚膜, 经过成型和烧结后把厚膜从基底上剥离下来; 所得到的厚膜其位移量在 18 V 电压下可以达到  $100 \mu\text{m}$  (激励电场  $3.6 \text{ kV/cm}$ ), 致动器尺寸为  $1.8 \text{ cm} \times 2.5 \text{ cm} \times 50 \mu\text{m}$ , 相对位移量为  $55 \mu\text{m/cm}$ 。而 Hall 等<sup>[29]</sup>制备的致动器尺寸为  $3 \text{ cm} \times 8 \text{ mm} \times 1.2 \text{ mm}$ , 相对位移量仅有  $13 \mu\text{m/cm}$ , 而激励电场为  $5 \text{ kV/cm}$ 。

图3 0.80PMN-0.20PT 陶瓷厚膜在水热环境中的生长机制<sup>[26]</sup>Fig. 3 Scheme of the preparation process of 0.80PMN-0.20PT thick film under the hydrothermal condition<sup>[26]</sup>

(I) Nucleation; (II) Crystal growth

## 2.2 取向陶瓷厚膜的制备

PMN 基弛豫铁电单晶具有非常优异的性能, 但是其单晶生长速度缓慢, 制备成本高, 晶体的成分分布不均匀以及机械加工性能差等问题严重制约了 PMN 基铁电单晶的广泛使用。然而使 PMN 基陶瓷晶粒沿某一方向取向生长后, 其性能可以比晶粒自由生长陶瓷的性能大幅提高, 可以达到晶粒自由生长的 2~3 倍, 是同组分单晶的 60%~80%, 并具有时间短成本低的特点。因此, 压电铁电陶瓷的晶粒取向生长技术成为近年来信息功能陶瓷制备技术发展的一个重要方向<sup>[30]</sup>。

近年来, PMN 基弛豫铁电取向陶瓷的制备有很多种方法, 使用最普遍的是流延成型和模板晶粒生长(Templated Grain Growth, TGG)相结合的方法制备<sup>[31-33]</sup>。图 4 是流延法使模板粒子定向和模板晶粒生长的示意图<sup>[34]</sup>。取向陶瓷可以采用同质和异质模板制备, 比如 0.75PMN-0.25PT 立方单晶<sup>[35]</sup>, BaTiO<sub>3</sub> 模板<sup>[32]</sup>, SrTiO<sub>3</sub> 模板<sup>[36]</sup>等。但是就 PMN 基弛豫铁电取向陶瓷厚膜还未见报道, 相信这必将是未来几年的研究热点。

## 2.3 低温制备 PMN 基弛豫铁电厚膜

PMN 基厚膜具有优异的性能, 但现在遇到的最大困难是如何降低其烧结温度, 使其和硅工艺结合起来制备 MEMS 等光电信息功能器件。由于铅基厚膜和硅基底在高温烧结过程中会出现相互扩散的现象, 因此在 PMN 基粉体中需要加入一些玻璃相来降低烧结温度。Gentil 等<sup>[11]</sup>在 0.65PMN-0.35PT 粉体中加入 Li<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> 后, 在硅基底上于 890℃ 烧结后其介

电峰值为 6000; 在基底和厚膜间加入六甲基二硅烷过渡层, 阻碍 PbO 向硅基底的扩散, 使介电常数峰值提高到 13000, 而介电损耗仅为 2%。Wu 等<sup>[13]</sup>采用复合溶胶-凝胶法制备 2 μm 厚的 PMN-PT/PT 复合厚膜, 其制备温度仅为 550℃, 其介电常数峰值为 1100, 剩余极化强度为 32 mC/cm<sup>2</sup>, 矫顽场为 166 kV/cm。Kosec 等<sup>[12]</sup>采用机械力化学合成法制备的 0.65PMN-0.35PT 纳米粉体通过丝网印刷法制备厚膜, 因纳米粉体的高活性, 其厚膜只需要在 950℃ 烧结就可以得到致密的厚膜材料, 其介电常数峰值为 41000, 剩余极化强度为 26 mC/cm<sup>2</sup>, 矫顽场为 166 kV/cm,  $d_{33}$  为 170 pC/N。

## 3 结束语

PMN 基弛豫铁电厚膜有着重要的应用前景, 可制备电学性能优异的微位移器、致动器、光电器件和智能器件等, 还可直接用于厚膜混合集成电路, 将有力地推动集成铁电学和电子产业的发展。现阶段国内外在 PMN 基厚膜的制备和应用上相对于 PZT 等压电厚膜较少, 更多的工作只是工艺的研究上, 对其电学性能的研究以及内在物理机制的研究还是较少。今后的研究重点将集中在厚膜的低温制备、制备工艺的优化、物理机制的探究以及新器件的开发上, 并为研究新型高性能的无铅型高性能弛豫铁电厚膜打下良好的基础。

## 参考文献:

- [1] Cross L E. Relaxor ferroelectrics. *Ferroelectrics*, 1987, **76**(1): 241-267.
- [2] Ye Zuo-Guang. Relaxor ferroelectric Pb(Mg<sub>1/3</sub>Nb<sub>2/3</sub>)O<sub>3</sub>: properties and present understanding. *Ferroelectrics*, 1996, **184**(1): 193-208.
- [3] Bokov A A, Ye Z G. Recent progress in relaxor ferroelectrics with perovskite structure. *J. Mater. Sci.*, 2006, **41**(1): 31-52.
- [4] Cross L E. Relaxor ferroelectrics: an overview. *Ferroelectrics*, 1994, **151**(1): 305-320.
- [5] 李龙土(LI Long-Tu). 弛豫铁电陶瓷的研究进展. 硅酸盐学报 (Journal of the Chinese Ceramic Society), 1992, **20**(5): 476-483.
- [6] Newman R E, Ruschau G R. Smart electroceramics. *J. Am. Ceram. Soc.*, 1991, **74**(3): 463-480.
- [7] Liu A Y, Meng X J, Xue J Q, et al. Electrical and optical properties of Pb(Mg<sub>1/3</sub>Nb<sub>2/3</sub>)O<sub>3</sub>-PbTiO<sub>3</sub> thin films prepared by chemical solution deposition. *Appl. Phys. Lett.*, 2005, **87**(7): 072903-1-3.
- [8] Randall C A, Bhalla A S, Shrout T R, et al. Classification and consequences of complex lead perovskite ferroelectrics with regard to B-site cation order. *J. Mater. Res.*, 1990, **5**(4): 829-834.
- [9] Szwagierczak D, Kulawik J. Thick film capacitors with relaxor dielectrics. *J. Eur. Ceram. Soc.*, 2004, **24**(7): 1979-1985.
- [10] Gentil S, Damjanovic D, Setter N. Pb(Mg<sub>1/3</sub>Nb<sub>2/3</sub>)O<sub>3</sub> and (1-x)Pb(Mg<sub>1/3</sub>Nb<sub>2/3</sub>)O<sub>3</sub>-xPbTiO<sub>3</sub> relaxor ferroelectric thick films: processing and electrical characterization. *J. Electroceram.*, 2004,

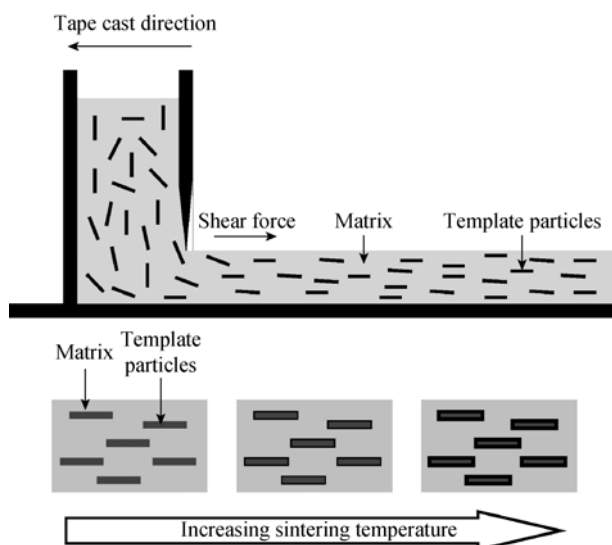


图 4 流延法使模板粒子定向及模板晶粒生长<sup>[34]</sup>

Fig. 4 Schematic diagram of template alignment by tape casting and the texture fraction increase with increase of heating temperature<sup>[34]</sup>

- 12(3):** 151–161.
- [11] Gentil S, Damjanovic D, Setter N. Development of relaxor ferroelectric materials for screen-printing on alumina and silicon substrates. *J. Eur. Ceram. Soc.*, 2005, **25(12)**: 2125–2128.
- [12] Kosec M, Holc J, Kuscer D, *et al.* Pb(Mg<sub>1/3</sub>Nb<sub>2/3</sub>)O<sub>3</sub>-PbTiO<sub>3</sub> thick films from mechanochemically synthesized powder. *J. Eur. Ceram. Soc.*, 2007, **27(13/14/15)**: 3775–3778.
- [13] Wu A Y, Vilarinho P M, Kholkin A. Low temperature preparation of ferroelectric relaxor composite thick films. *J. Am. Ceram. Soc.*, 2007, **90(4)**: 1029–1037.
- [14] Shih W Y, Luo H Y, Li H D, *et al.* Sheet geometry enhanced giant piezoelectric coefficients. *Appl. Phys. Lett.*, 2006, **89(24)**: 242913–1–3.
- [15] Chen J, Fan H Q, Chen X L, *et al.* Fabrication of pyrochlore-free PMN-PT thick films by electrophoretic deposition. *J. Alloys Compd.*, 2009, **471(1/2)**: L51–L53.
- [16] Chen J, Fan H Q, Ke S M, *et al.* Relaxor behavior and dielectric properties of lead magnesium niobate-lead titanate thick films prepared by electrophoresis deposition. *J. Alloys Compd.*, 2009, **478(1/2)**: 853–857.
- [17] Chen X L, Fan H Q, Liu L J, *et al.* Low-temperature growth of lead magnesium niobate thick films by a hydrothermal process. *Ceram. Int.*, 2008, **34(4)**: 1063–1066.
- [18] 董金美, 沈建兴, 李传山, 等. PZT 压电厚膜的发展及其应用. *中国陶瓷*, 2007, **43(8)**: 3–6.
- [19] Vilarinho P M, Wu A Y, Kholkin A. Method for Producing Composite Thick Ceramic Films by Sedimentation and Infiltration of Sol-Gel Solution. Portuguese Patent, 102909. 2005.
- [20] 夏冬临, 刘梅冬, 曾亦可, 等(XIA Dong-Lin, *et al.*). 新型 Sol-Gel 技术制备 PZT 铁电厚膜的制备及电学性能研究. *无机材料学报(Journal of Inorganic Materials)*, 2001, **16(6)**: 1156–1160.
- [21] Nieto E, Fernandez J F, Moure C, *et al.* Multilayer piezoelectric devices based on PZT. *J. Mater. Sci. Mater. Electron*, 1996, **7(1)**: 55–60.
- [22] Yoon D H, Lee B I. Processing of barium titanate tapes with different binders for MLCC applications-part I: optimization using design of experiments. *J. Eur. Ceram. Soc.*, 2004, **24(5)**: 739–752.
- [23] Sarker P, Nicholson P S. Electrophoretic deposition (EPD): mechanisms kinetics and application to ceramic. *J. Am. Ceram. Soc.*, 1996, **79(8)**: 1987–2002.
- [24] Ogata N, Tassel J V, Randall C A. Electric formation by electrophoretic deposition of nanopowders. *Mater. Lett.*, 2001, **49(5)**: 7–14.
- [25] Zhang L, Zhai J W, Yao X. Dielectric properties of electrophoretically deposited and isothermally pressed BaTiO<sub>3</sub> thick films. *J. Am. Ceram. Soc.*, 2008, **91(6)**: 2075–2077.
- [26] 陈秀丽. 复合钙钛矿铌酸盐材料的制备、结构及其电学性能研究. 西安: 西北工业大学博士论文, 2009.
- [27] Takeuchi Y, Kimura K. Method of producing a piezoelectric/electrostrictive actuator. US Patent, 5681410. 1997.07.01.
- [28] Ursic H, Hrovat M, Holc J, *et al.* A large-displacement 65Pb(Mg<sub>1/3</sub>Nb<sub>2/3</sub>)O<sub>3</sub>-35PbTiO<sub>3</sub>/Pt bimorph actuator prepared by screen printing. *Sensors and Actuators B: Chemical*, 2008, **133(2)**: 699–704.
- [29] Hall A, Akdogan E K, Safari A. Fatigue properties of piezoelectric-electrostrictive Pb(Mg<sub>1/3</sub>Nb<sub>2/3</sub>)O<sub>3</sub>-PbTiO<sub>3</sub> monolithic bilayer composites. *J. Appl. Phys.*, 2006, **100(9)**: 094105–1–7.
- [30] 杜红亮, 张孟, 苏晓磊, 等(DU Hong-Liang, *et al.*). 压电陶瓷晶粒取向生长技术的研究进展. *无机材料学报(Journal of Inorganic Materials)*, 2008, **23(1)**: 1–7.
- [31] Brosnan K H, Poterala S F, Meyer R J, *et al.* Templated grain growth of <001> textured PMN-28PT using SrTiO<sub>3</sub> templates. *J. Am. Ceram. Soc.*, 2009, **92(S1)**: S133–S139.
- [32] Sabolsky E M, James A R, Kwon S, *et al.* Piezoelectric properties <001> textured Pb(Mg<sub>1/3</sub>Nb<sub>2/3</sub>)O<sub>3</sub>-PbTiO<sub>3</sub> ceramics. *Appl. Phys. Lett.*, 2001, **78(17)**: 2551–2554.
- [33] Amorin H, Santacruz I, Holc J, *et al.* Tape-casting performance of ethanol slurries for the processing of textured PMN-PT ceramics from nanocrystalline powder. *J. Am. Ceram. Soc.*, 2009, **92(5)**: 996–1001.
- [34] Messing G L, Trolier-Mckinstry S, Sabolsky E M, *et al.* Templated grain growth of textured piezoelectric ceramics. *Critical Reviews in Solid State and Materials*, 2004, **29(2)**: 45–96.
- [35] Pham-Thi M, Hemery H, Dammak H. X-Ray investigation of high oriented (1-x)Pb(Mg<sub>1/3</sub>Nb<sub>2/3</sub>)O<sub>3</sub>-xPbTiO<sub>3</sub> ceramics. *J. Eur. Ceram. Soc.*, 2005, **25(12)**: 2433–2437.
- [36] Richter T, Denneler S, Schuh C, *et al.* Textured PMN-PT and PMN-PZT. *J. Am. Ceram. Soc.*, 2008, **91(3)**: 929–933.