

สมบัติไดอิเล็กทริกของเซรามิก PZT แปรค่า ZT

ชมพูนุช พิษมาก

Dielectric properties of PZT ceramics with various ZT contents

Chompoonuch Puchmark

ภาควิชาฟิสิกส์ คณะวิทยาศาสตร์ มหาวิทยาลัยนครสวรรค์ จังหวัดพิจิตร 65000

Corresponding author. E-mail: kungmic2002@yahoo.com

บทคัดย่อ

งานวิจัยนี้ ได้ทำการเตรียมเซรามิกเลดเซอร์โคเนตไททานเนต: $Pb(Zr_xTi_{1-x})O_3$ โดยแปรค่าอัตราส่วนจำนวนโมลของเซอร์โคเนียมต่อไททานเนียม ($Zr/Ti : ZT$) เป็น 10/90, 30/70, 50/50, 70/30 และ 90/10 ซึ่งทำการเตรียมผงผลึกโดยวิธีมิกซ์ออกไซด์แบบดั้งเดิม และเผาเคลือบที่อุณหภูมิ $800\text{ }^{\circ}\text{C}$ เป็นเวลา 2 ชั่วโมง ด้วยอัตราการให้ความร้อน $5\text{ }^{\circ}\text{C}/\text{นาที}$ ผงผลึกที่เผาเคลือบแล้วทำการขึ้นรูปและเผาซินเตอร์ที่อุณหภูมิ $1250\text{ }^{\circ}\text{C}$ เป็นเวลา 2 ชั่วโมง ด้วยอัตราการให้ความร้อน $5\text{ }^{\circ}\text{C}/\text{นาที}$ ตรวจสอบโครงสร้างจุลภาคด้วยกล้องจุลทรรศน์อิเล็กตรอนแบบส่องกราด หาค่าความหนาแน่นโดยวิธีอาร์คิมิดีส ผลของอัตราส่วน ZT ต่อค่าคงที่ไดอิเล็กทริกและค่าการสูญเสียทางไดอิเล็กทริกทำการวัดด้วยเครื่อง LCR ที่ความถี่ 1, 10, 100, 500 kHz และ 1 MHz พบว่าเซรามิกมีความหนาแน่นอยู่ในช่วง 6.67 – 7.72 g/cm^3 และเซรามิก $Pb(Zr_{0.5}Ti_{0.5})O_3$ มีค่าความหนาแน่นสูงสุด จากโครงสร้างจุลภาคชี้ให้เห็นว่าอัตราส่วนของ ZT ที่สูงขึ้นในเซรามิก $Pb(Zr_xTi_{1-x})O_3$ ทำให้ขนาดของเกรนเฉลี่ยลดลงจาก 4.3 เป็น 1.3 μm อัตราส่วน ZT ที่เหมาะสมคือ 50/50 นั่นคือ เซรามิก $Pb(Zr_{0.5}Ti_{0.5})O_3$ ให้ค่าคงที่ไดอิเล็กทริกสูงสุด และค่าการสูญเสียทางไดอิเล็กทริกต่ำสุด ในทุกความถี่ที่ใช้วัด ซึ่งสอดคล้องกับค่าความหนาแน่นที่สูงที่สุดของเซรามิก

คำสำคัญ: เซรามิก PZT สมบัติไดอิเล็กทริก เผาเคลือบ เผาซินเตอร์

Abstract

In this research, $\text{Pb}(\text{Zr}_x\text{Ti}_{1-x})\text{O}_3$ ceramics varied molar ratio of Zr/Ti were 10/90, 30/70, 50/50, 70/30 and 90/10. These powders were prepared by the conventional mixed oxide method and calcined at 800°C for 2h with heating rate $5^\circ\text{C}/\text{min}$. The calcined powders were pressed into a disc shape and sintered at 1250°C for 2 h with heating rate of $5^\circ\text{C}/\text{min}$. The microstructural of the varied ceramics was examined by scanning electron microscopy (SEM) and calculated grains size. Density of the sintered samples was measured by Archimedes method with distilled water as the fluid medium. The effects of ZT ratio on dielectric constant and dielectric loss of $\text{Pb}(\text{Zr}_x\text{Ti}_{1-x})\text{O}_3$ ceramics were investigated using LCR meter at 1, 10, 100, 500 kHz and 1 MHz. It was found that, the value of density is in range of $6.67 - 7.72 \text{ g/cm}^3$ and the $\text{Pb}(\text{Zr}_{0.5}\text{Ti}_{0.5})\text{O}_3$ ceramic was the highest density. The microstructure indicates that the increased ZT ratio in $\text{Pb}(\text{Zr}_x\text{Ti}_{1-x})\text{O}_3$ ceramics could be significantly reduce the mean grain size from 4.3 to 1.3 μm . The optimum of ZT molar ratio was found in 50/50. The highest dielectric constant and the lowest loss of dielectric of $\text{Pb}(\text{Zr}_{0.5}\text{Ti}_{0.5})\text{O}_3$ ceramic with all of measurement frequencies and corresponding of the highest densification ceramic.

Keywords: PZT ceramics, dielectric properties, calcinations, sintering

บทนำ

เลดเซอร์โคเนตไททานเนต (PZT) เป็นสารเฟอร์โรอิเล็กทริกแบบปกติ (normal ferroelectric) ที่ถูกค้นพบและพัฒนาเพื่อประยุกต์ใช้งานทางด้านอิเล็กทรอนิกส์มากมาย (Haertling, 1999; Jaffe *et al.*, 1971) เช่น ตัวแปลงพลังงานไฟฟ้าเป็นพลังงานกล โซนาร์ ตัวขับเคลื่อนแบบหมุน (Matsuo and Sasaki, 1965; Chandatreyia *et al.*, 1981; Hiramath *et al.*, 1983) อุปกรณ์ที่มีสัมประสิทธิ์อุณหภูมิเป็นบวก วาร์ลปิดเปิดแสงไฟฟ้าแบบเบา ตัวขับเคลื่อนระดับไมโคร และตัวตรวจวัดทางไฟฟ้าที่อุณหภูมิสูง (Haertling, 1999; Buchanan, 1986) เนื่องจาก PZT เป็นสารที่แสดงสมบัติไพโซอิเล็กทริกที่โดดเด่น สามารถเปลี่ยนพลังงานกลไปเป็นพลังงานไฟฟ้าได้สูงถึงร้อยละ 45-55 ขึ้นกับสารที่เจือ ยิ่งไปกว่านั้น PZT ยังมีอุณหภูมิคูรีที่สูง จาก $230-490^\circ\text{C}$ ขึ้นกับอัตราส่วน Zr:Ti (Jaffe *et al.*, 1971; Moulson and Herbert, 2003) งานวิจัยนี้จึงมุ่งเน้นในการแปรค่าอัตราส่วนของ Zr:Ti ในเซรามิก PZT แล้วทำการศึกษาโครงสร้างจุลภาค ความหนาแน่น สมบัติไดอิเล็กทริกเมื่อแปรค่าปริมาณอัตราส่วนของ Zr:Ti ในปริมาณต่างๆ กัน โดยใช้วิธีการเตรียมแบบมิกซ์ออกไซด์แบบดั้งเดิม ซึ่งเป็นวิธีการหนึ่ง

เหมาะสมในการเตรียมในปริมาณมากๆ และมีค่าใช้จ่ายไม่สูงมากนัก เมื่อเทียบกับวิธีอื่นๆ จึงทำให้เป็นที่นิยมใช้กันมาจนถึงปัจจุบัน (Buchanan, 1986)

ระเบียบวิธีการวิจัย

ในการทดลองนี้ได้เตรียมเซรามิกเลดเซอร์โคเนตไททานเนต: $Pb(Zr_xTi_{1-x})O_3$ โดยแปรค่าอัตราส่วนจำนวนโมลของเซอร์โคเนียมต่อไททานเนียม (Zr/Ti: ZT) เป็น 10/90, 30/70, 50/50, 70/30 และ 90/10 สารตั้งต้นที่ใช้ได้แก่ เลดออกไซด์ (PbO) เซอร์โคเนียมไดออกไซด์ (ZrO_2) และไททานเนียมไดออกไซด์ (TiO_2) ทำการบดผสมเปียกโดยใช้ลูกบดเซอร์โคเนียเป็นตัวบด และใช้อทานอลเป็นตัวช่วยกระจายตัวของอนุภาค เป็นเวลา 24 ชั่วโมง จากนั้นนำสารผสมที่บดละเอียดแล้วมาทำให้แห้งแล้วคัดขนาดโดยการร่อนผ่านตะแกรง นำผงผสมที่ได้ทำการเผาแคลไซน์ด้วยเตาไฟฟ้า ผลิตโดยบริษัท Lenton Furnances รุ่น 4279 ที่อุณหภูมิ 800 °C เป็นเวลา 2 ชั่วโมง ด้วยอัตราการให้ความร้อน 5 °C/นาที่ วิเคราะห์การก่อเกิดเฟสโดยใช้เครื่องตรวจสอบการเลี้ยวเบนของรังสีเอ็กซ์ (X-ray diffraction: XRD) รุ่น X'Pert ผลิตโดยบริษัท Philips ประเทศเนเธอร์แลนด์ นำผงผลึก $PbZr_xTi_{(1-x)}O_3$ ทุกการแปรค่าของ x ที่เผาแคลไซน์แล้วมาร้อนคัดขนาดอีกครั้งหนึ่ง จากนั้นนำผสมกับโพลีไวนิลแอลกอฮอล์ (Polyvinyl alcohol: PVA) ซึ่งเป็นสารยึดเหนี่ยว ร้อยละ 1 โดยน้ำหนัก นำไปอัดขึ้นรูปให้เป็นทรงกระบอกที่มีขนาดเส้นผ่านศูนย์กลางประมาณ 15 mm และหนาประมาณ 1.5 mm โดยใช้เครื่องอัดระบบไฮดรอลิก (SPACAC) ด้วยความดันขนาด 40 MPa เป็นเวลานาน 25 - 30 วินาที จากนั้นนำสารที่ผ่านการขึ้นรูปแล้วไปทำการเผาซินเตอร์ด้วยเตาไฟฟ้า ที่อุณหภูมิ 1250 °C เป็นเวลา 2 ชั่วโมง ด้วยอัตราการให้ความร้อน 5 °C/นาที่ ตรวจสอบโครงสร้างจุลภาคด้วยกล้องจุลทรรศน์อิเล็กตรอนแบบส่องกราด (Scanning Electron Microscope: SEM) รุ่น LEO-1455VP จากประเทศอังกฤษ กำหนดหาขนาดของเกรนเฉลี่ยด้วยวิธีจุดตัดบนเส้นตรง (Meyers and Chawla, 1999) หาความหนาแน่นโดยวิธีอาร์คิมิดีส (วีระศักดิ์ อุดมกิจเดชา และคณะ, 2543) สำหรับสมบัติไดอิเล็กทริกนั้น ทำการวัดโดยนำเซรามิกที่ผ่านการเผาซินเตอร์แล้วมาขัดผิวหน้าให้เรียบและทำขั้วไฟฟ้าด้วยกาวเงิน มาวัดค่าความจุไฟฟ้า และค่าการสูญเสียความร้อนทางไดอิเล็กทริกของเซรามิก ด้วยเครื่อง LCR (Precision LCR meter) รุ่น E 4980 A, 20 Hz – 2 MHz บริษัท Agilent ประเทศญี่ปุ่น ที่ความถี่ 1, 10, 100, 500 kHz และ 1 MHz ณ อุณหภูมิห้อง เพื่อคำนวณหาค่าคงที่ไดอิเล็กทริกตามสมการ (1)

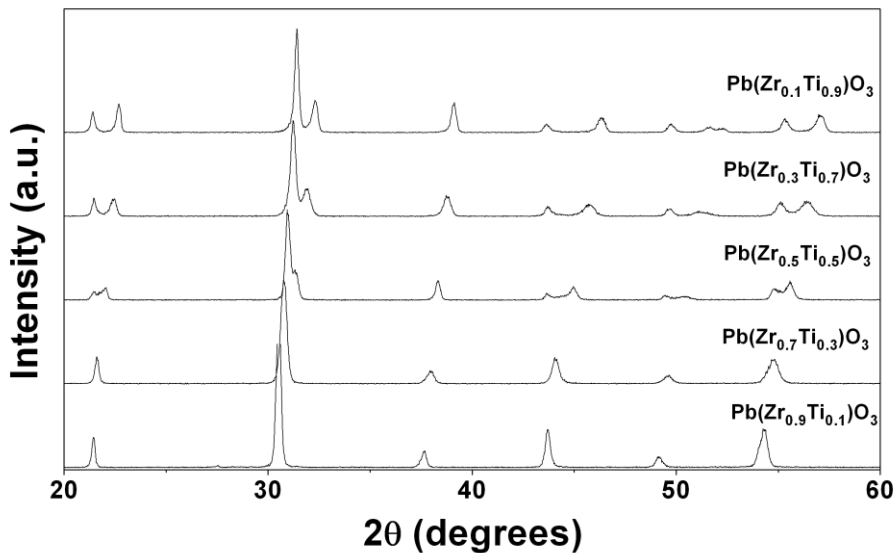
$$\epsilon_r = \frac{tC}{\epsilon_0 A} \quad (1)$$

โดยที่ ϵ_r เป็นค่าคงที่ไดอิเล็กทริกของชิ้นงาน

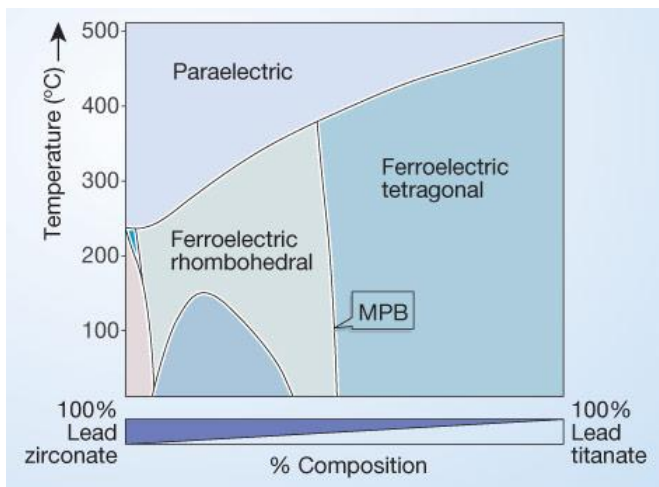
ϵ_0 เป็นค่าคงที่ไดอิเล็กทริกของสุญญากาศมีค่าประมาณ 8.854×10^{-15} F/mm

C เป็นค่าความจุไฟฟ้า, t เป็นความหนาของชิ้นงาน และ A เป็นพื้นที่หน้าตัดของชิ้นงาน

ผลการทดลองและการอภิปรายผล



รูป 1 รูปแบบการเลี้ยวเบนของรังสีเอ็กซ์ของผงผลึก $PbZr_xTi_{(1-x)}O_3$ แปรค่า $x = 0.1, 0.3, 0.5, 0.7$ และ 0.9 เผาเคลงในเตาที่อุณหภูมิ $800\text{ }^{\circ}\text{C}$ เป็นเวลา 2 ชั่วโมง

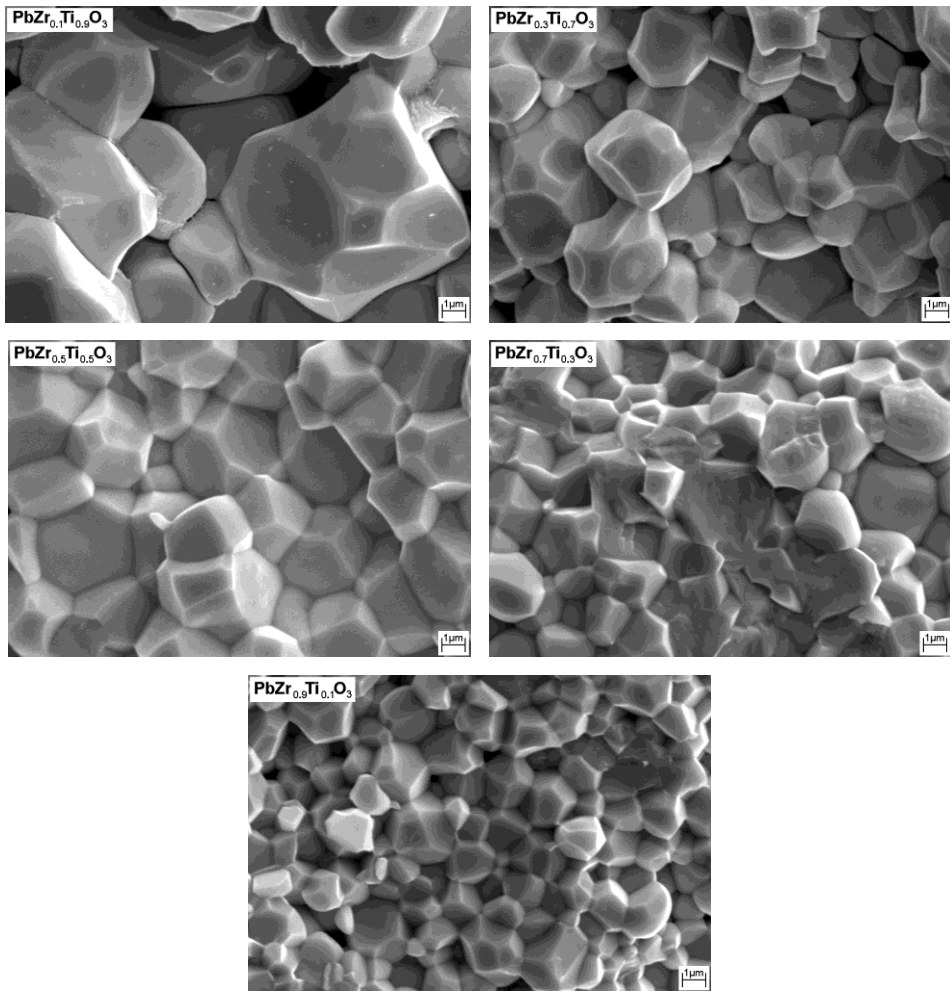


รูป 2 phase diagram ของ PZT (PZT phase diagram, 2004)

จากรูป 1 เป็นผลการวิเคราะห์สารด้วยการเลี้ยวเบนของรังสีเอ็กซ์ของผงผลึก PZT แปรค่าอัตราส่วนจำนวนโมล Zr/Ti (หรือ ZT) เป็น 10/90, 30/70, 50/50, 70/30 และ 90/10 หรือในสมการ $PbZr_xTi_{(1-x)}O_3$ แปรค่า $x = 0.1, 0.3, 0.5, 0.7$ และ 0.9 เผาเคลงในเตาที่อุณหภูมิ $800\text{ }^{\circ}\text{C}$ ได้ผงผลึกที่

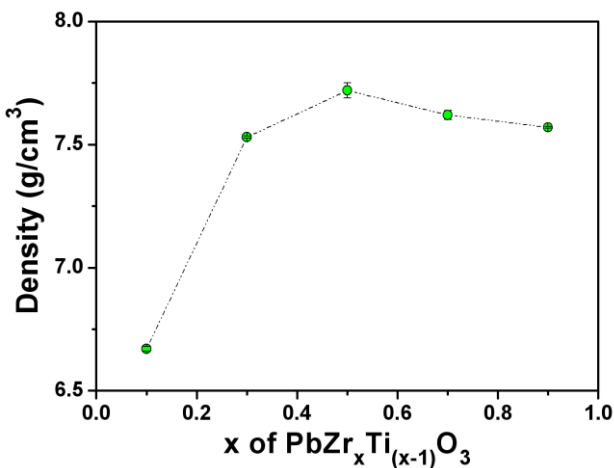
บริสุทธิ์ เมื่อปริมาณของอัตราส่วน ZT เป็น 10/90 (หรือ $x = 0.1$) โครงสร้างเฟสเป็นเตตระโกนอล จากนั้นความเป็นเตตระโกนอลจะลดลงเมื่ออัตราส่วน ZT ของผงผลึกนี้เป็น 30/70 (หรือ $x = 0.3$) และ 50/50 (หรือ $x = 0.5$) เมื่ออัตราส่วนของ ZT เป็น 70/30 (หรือ $x = 0.7$) และ 90/10 (หรือ $x = 0.9$) โครงสร้างเฟสของผงผลึก PZT จะเป็นรอมโบฮีดรอล ซึ่งเป็นไปตาม phase diagram ของ PZT (PZT phase diagram, 2004) ดังรูป 2

นำผงผลึก $\text{PbZr}_x\text{Ti}_{(1-x)}\text{O}_3$ ที่เผาเคลือบแล้วทำการแปรค่าของ x มาอัดขึ้นรูปแล้วนำไปเผาซินเตอร์ที่อุณหภูมิ 1250°C เป็นเวลา 2 ชั่วโมง ด้วยอัตราการให้ความร้อน $5^\circ\text{C}/\text{นาท}$ นำเซรามิก $\text{PbZr}_x\text{Ti}_{(1-x)}\text{O}_3$ ที่เผาซินเตอร์ได้ทั้งหมดมาตรวจสอบลักษณะพื้นฐานวิทยาด้วยกล้องจุลทรรศน์อิเล็กตรอนแบบส่องกราดได้ผลดังรูป 3



รูป 3 ภาพถ่ายจากกล้องจุลทรรศน์อิเล็กตรอนแบบส่องกราดที่บริเวณรอยหักของเซรามิก $\text{PbZr}_x\text{Ti}_{(1-x)}\text{O}_3$ แปรค่า $x = 0.1, 0.3, 0.5, 0.7$ และ 0.9 เผาซินเตอร์ที่อุณหภูมิ 1250°C เป็นเวลา 2 ชั่วโมง

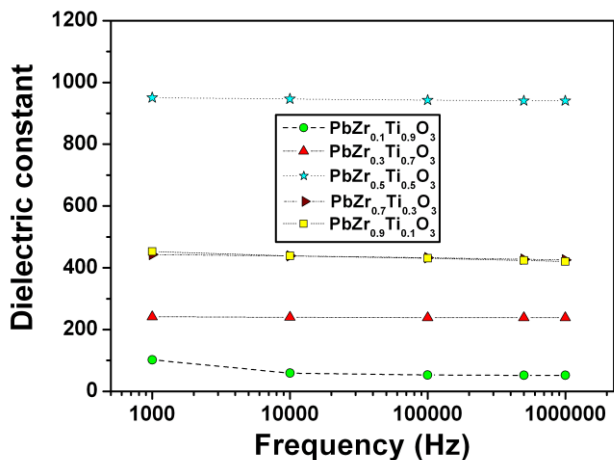
ภาพถ่ายด้วยกล้องจุลทรรศน์อิเล็กตรอนแบบส่องกราด ณ บริเวณรอยหักของเซรามิก $PbZr_xTi_{(1-x)}O_3$ แปรค่า $x = 0.1, 0.3, 0.5, 0.7$ และ 0.9 แสดงดังรูป 3 พบว่าลักษณะเกรนของเซรามิก $PbZr_xTi_{(1-x)}O_3$ ทุกการแปรค่าของ x มีลักษณะค่อนข้างกลมหลายเหลี่ยม และเมื่อปริมาณ x เพิ่มขึ้นขนาดของเกรนเฉลี่ยจะเล็กลง โดยขนาดของเกรนเฉลี่ยอยู่ในช่วง $4.3 - 1.3 \mu m$



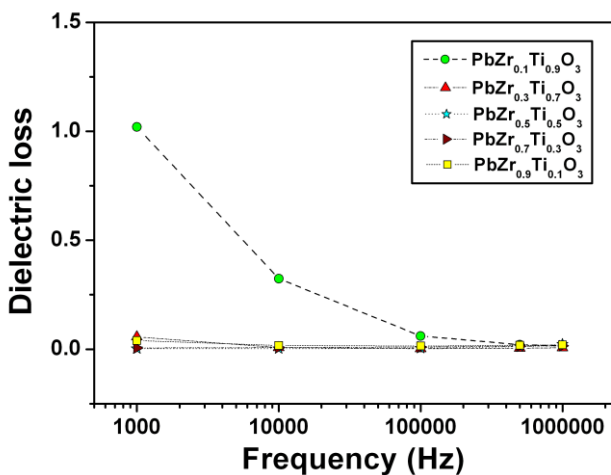
รูป 4 ความหนาแน่นของเซรามิก $PbZr_xTi_{(1-x)}O_3$ แปรค่า $x = 0.1, 0.3, 0.5, 0.7$ และ 0.9 เผาซินเตอร์ที่อุณหภูมิ $1250^\circ C$ เป็นเวลา 2 ชั่วโมง

นำเซรามิก $PbZr_xTi_{(1-x)}O_3$ ที่เผาซินเตอร์แล้วมาหาค่าความหนาแน่นเทียบกับปริมาณการแปรค่าของ x แสดงดังกราฟในรูป 4 พบว่าเมื่อปริมาณ x เพิ่มขึ้น ค่าความหนาแน่นของเซรามิกนี้มีค่าเพิ่มขึ้น โดยเมื่อ x เพิ่มจาก 0.1 ถึง 0.5 ค่าความหนาแน่นของเซรามิกเพิ่มขึ้นประมาณร้อยละ 16 และเมื่อปริมาณ x เพิ่มขึ้นเป็น 0.7 และ 0.9 ค่าความหนาแน่นของเซรามิก $PbZr_xTi_{(1-x)}O_3$ มีค่าลดลงเล็กน้อย เซรามิกที่มีความหนาแน่นสูงสุดพบว่าเป็นเซรามิกที่มีปริมาณ x เป็น 0.5 (เซรามิก $PbZr_{0.5}Ti_{0.5}O_3$)

ทำการวัดสมบัติไดอิเล็กทริก โดยการวัดค่าความจุไฟฟ้า และค่าการสูญเสียความร้อน เนื่องจากไดอิเล็กทริก ของเซรามิก $PbZr_xTi_{(1-x)}O_3$ ที่แปรค่า $x = 0.1, 0.3, 0.5, 0.7$ และ 0.9 ที่ความถี่ 1, 10, 100, 500 kHz และ 1 MHz (1000 kHz) ณ อุณหภูมิห้อง แล้วนำมาคำนวณหาค่าคงที่ไดอิเล็กทริกตามสมการ (1) นำมาเขียนกราฟความสัมพันธ์ระหว่างความถี่ที่ใช้วัดกับค่าคงที่ไดอิเล็กทริก และกราฟความสัมพันธ์ระหว่างความถี่ที่ใช้วัดกับค่าการสูญเสียความร้อนเนื่องจากไดอิเล็กทริก ของเซรามิก $PbZr_xTi_{(1-x)}O_3$ ที่ปริมาณของ x ต่างกันดังรูป 5 และ 6 ตามลำดับ



รูป 5 ค่าคงที่ไดอิเล็กทริกของเซรามิก $PbZr_xTi_{(1-x)}O_3$ แปรค่า $x = 0.1, 0.3, 0.5, 0.7$ และ 0.9 เมาซินเตอร์ที่อุณหภูมิ $1250\text{ }^{\circ}C$ เป็นเวลา 2 ชั่วโมง



รูป 6 ค่าการสูญเสียความร้อนเนื่องจากไดอิเล็กทริกของเซรามิก $PbZr_xTi_{(1-x)}O_3$ แปรค่า $x = 0.1, 0.3, 0.5, 0.7$ และ 0.9 เมาซินเตอร์ที่อุณหภูมิ $1250\text{ }^{\circ}C$ เป็นเวลา 2 ชั่วโมง

จากรูป 5 จะพบว่าค่าคงที่ไดอิเล็กทริกของเซรามิก $PbZr_{0.5}Ti_{0.5}O_3$ ($x = 0.5$) มีค่าสูงสุดทุกความถี่ของการวัด และเมื่อพิจารณาเทียบกับกราฟความหนาแน่นของเซรามิก $PbZr_xTi_{(1-x)}O_3$ ในรูป 4 พบว่าค่าคงที่ไดอิเล็กทริกที่ได้นี้มีความสอดคล้องกับค่าความหนาแน่นของเซรามิก นั่นคือเซรามิกที่มีค่าความหนาแน่นสูงจะให้ค่าคงที่ไดอิเล็กทริกมีค่าสูงด้วย ส่วนกราฟในรูป 6 พบว่าเซรามิก $PbZr_{0.1}Ti_{0.9}O_3$ ($x = 0.1$) มีค่าสูญเสียความร้อนเนื่องจากไดอิเล็กทริกมากที่สุด เพราะว่าเซรามิก

$\text{PbZr}_{0.1}\text{Ti}_{0.9}\text{O}_3$ มีความหนาแน่นน้อยที่สุดเมื่อเทียบกับเซรามิก $\text{PbZr}_x\text{Ti}_{(1-x)}\text{O}_3$ ที่แปรค่า x อื่นๆ สำหรับเซรามิก $\text{PbZr}_{0.5}\text{Ti}_{0.5}\text{O}_3$ นั้น มีค่าการสูญเสียความร้อนเนื่องจากไดอิเล็กทริกน้อยที่สุดในทุกความถี่ของการวัด จะเห็นได้ว่าเซรามิก $\text{PbZr}_{0.5}\text{Ti}_{0.5}\text{O}_3$ มีสมบัติไดอิเล็กทริกที่ดีที่สุดเมื่อเทียบกับการแปรค่า x อื่นๆ ในการทดลองนี้ สอดคล้องกับข้อมูลค่าคงที่ไดอิเล็กทริกที่มีค่าสูงที่สุด ณ รอยต่อเฟสที่มีสัณฐานเหมือนกัน (Morphotropic phase boundary: MPB) ซึ่งมีอัตราส่วนระหว่าง PZ:PT เป็น 52:48 (Jaffe *et al.*, 1971; Moulson and Herbert, 2003)

สรุปผลการทดลอง

ผงผลึก $\text{PbZr}_x\text{Ti}_{(1-x)}\text{O}_3$ ที่แปรค่า $x = 0.1, 0.3, 0.5, 0.7$ และ 0.9 พบว่าเมื่อปริมาณ $x = 0.1$ มีโครงสร้างเฟสเป็นเตตระโกนอล จากนั้นความเป็นเตตระโกนอลของผงผลึกนี้จะลดลงและมีความเป็นรอมโบฮีดรอลเพิ่มขึ้นเมื่อปริมาณ x สูงขึ้น เมื่อเผาซินเตอร์เป็นเซรามิก $\text{PbZr}_x\text{Ti}_{(1-x)}\text{O}_3$ ณ อุณหภูมิ 1250°C นั้นขนาดของเกรนเฉลี่ยเล็กลงเมื่อปริมาณ x มากขึ้น ค่าความหนาแน่นของเซรามิกมากที่สุดเมื่อ $x = 0.5$ และมีสมบัติไดอิเล็กทริกดีที่สุด โดยมีค่าคงที่ไดอิเล็กทริกสูง และค่าการสูญเสียความร้อนเนื่องจากไดอิเล็กทริกต่ำ

กิตติกรรมประกาศ

งานวิจัยนี้ได้รับทุนอุดหนุนการวิจัยจากมหาวิทยาลัยขอนแก่น งบประมาณรายได้ปีงบประมาณ 2553 ได้รับความสะดวกในการใช้เครื่องมือการทดลอง ณ ภาควิชาฟิสิกส์ คณะวิทยาศาสตร์ มหาวิทยาลัยขอนแก่น และผู้วิจัยขอกราบขอบพระคุณศาสตราจารย์เกียรติคุณ ดร.ทวีตันนศิริ และรองศาสตราจารย์ ดร.กอบวุฒิ รุจิณากุล ที่อำนวยความสะดวกในการใช้เครื่องมือวัดในห้องปฏิบัติการอิเล็กทรอนิกส์ โทรมเซรามิก ภาควิชาฟิสิกส์และวัสดุศาสตร์ คณะวิทยาศาสตร์ มหาวิทยาลัยเชียงใหม่

เอกสารอ้างอิง

- รศ.ดร. วีระศักดิ์ อุดมกิจเดชา และคณะ. (2543). *เครื่องมือวิจัยทางวัสดุศาสตร์: ทฤษฎีและหลักการดำเนินงานเบื้องต้น*, กรุงเทพฯ, จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย
- Buchanan, R.C. (1986). *Ceramic Materials for Electronics: Processing, Properties and Applications*, (1st ed.), New York: Marcel Dekker, Inc.
- Chandatreya, S.S., Fulath, R.M. and Pask, J.A. (1981). Reaction mechanisms in the formation of PZT solid solution. *Journal of the American Ceramic Society*, 64, 422-425.

- Haertling, G.H. (1999). Ferroelectric ceramics: history and technology. *Journal of the American Ceramic Society*, 82, 797-818.
- Hiramath, B.V., Kingon, A.I. and Biggers, J.V. (1983). Reaction sequence in the formation of lead zirconate-lead titanate solid solutions: role of raw materials. *Journal of the American Ceramic Society*, 66, 790-793.
- Jaffe, B., Cook, W.R. and Jaffe, H. (1971). *Piezoelectric ceramics*. R.A.N. Publishers.
- Matsuo, Y. and Sasaki, H. (1965). Formation of lead zirconate-lead titanate solid solutions. *Journal of the American Ceramic Society*, 48, 289-291.
- Meyers, M.A. and Chawla, K.K. (1999), *Mechanical Behaviors of Materials*, Prentice-Hall International, Inc.
- Moulson, A.J. and Herbert, J.M. (2003). *Electroceramics: Material, Properties and Applications*, (2nd ed.), Chapman & Hall, London.
- PZT phase diagram. (2004). Retrieved September 22, 2010, from www.nature.com/materials/news/ne..._f2.html