

## Dielectric properties of $0.6\text{Pb}(\text{Sc}_{1/2}\text{Ta}_{1/2})\text{O}_3$ - $0.4\text{PbTiO}_3$ ceramics prepared by the molten salt synthesis method

Kyung Bong Park<sup>†</sup>, Tae Hui Kim, Seung Hyup Kwon and Dong Ju Lim

School of Advanced Materials Engineering, Andong National University, Andong 760-749, Korea

(Received January 4, 2007)

(Accepted March 13, 2007)

**Abstract**  $0.6\text{Pb}(\text{Sc}_{1/2}\text{Ta}_{1/2})\text{O}_3$ - $0.4\text{PbTiO}_3$  (hereafter PSTT) ceramics were prepared by the molten salt synthesis (MSS) method using KCl as a flux. Formation of perovskite phase was investigated by a differential thermal analysis (DTA) and X-ray diffraction (XRD) analysis in the temperature range from  $600^\circ\text{C}$  to  $850^\circ\text{C}$ . A 92% perovskite phase was synthesized at  $750^\circ\text{C}$  for 2 hrs using the MSS method, while 82% perovskite phase was synthesized at  $850^\circ\text{C}$  for 4 hrs using the calcining of mixed oxide (CMO) method. This result could be due to the improvement in reactivity of  $\text{Sc}_2\text{O}_3$  by melting of KCl. The MSS specimen sintered at  $1,100^\circ\text{C}$  for 4 hrs showed a dielectric constant of 11,200, a remnant polarization of  $13.5 \mu\text{C}/\text{cm}^2$  and a coercive field of  $10.198 \text{ kV}/\text{cm}$ , which was discussed in view of the microstructure.

**Key words** Molten salt synthesis, Perovskite, Dielectrics, Relaxor

## 용융염 합성법에 의해 제조된 $0.6\text{Pb}(\text{Sc}_{1/2}\text{Ta}_{1/2})\text{O}_3$ - $0.4\text{PbTiO}_3$ 세라믹스의 유전성

박경봉<sup>†</sup>, 김태희, 권승협, 임동주

안동대학교 공과대학 신소재공학부, 안동, 760-749

(2007년 1월 4일 접수)

(2007년 3월 13일 심사완료)

**요약**  $0.6\text{Pb}(\text{Sc}_{1/2}\text{Ta}_{1/2})\text{O}_3$ - $0.4\text{PbTiO}_3$ (이후 PSTT) 세라믹스를 KCl을 flux로 사용한 용융염 합성법을 이용하여 제조하였다.  $600^\circ\text{C}$ 에서  $850^\circ\text{C}$ 까지 온도를 상승시키면서, 시차열분석기와 X-선 회절기를 이용하여 perovskite 상의 형성과정을 조사하였다. 용융염 합성법의 경우  $750^\circ\text{C}$ 에서 2시간 하소하였을 때, 92%의 perovskite 상의 생성율을 나타낸 반면, 일반하소법의 경우는  $850^\circ\text{C}$ 에서 4시간 하소하였을 때도 82%의 perovskite 상의 생성율을 나타내었다. 이는 flux로 사용된 KCl의 용융으로 인한  $\text{Sc}_2\text{O}_3$ 의 반응성의 향상에 기인한 것으로 생각된다.  $1,100^\circ\text{C}$ 에서 4시간 소결한 PSTT 시편의 경우, 용융염 합성법으로 제조된 시편이 일반하소법으로 제조된 시편에 비해 큰 11,200의 유전상수와  $13.5 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ 의 잔류분극,  $10.198 \text{ kV}/\text{cm}$ 의 항전계 값을 나타내었으며 이를 미세구조 관점에서 고찰하였다.

### 1. 서론

$\text{Pb}(\text{B}_1\text{B}_2)\text{O}_3$ 의 일반식으로 표시되는 perovskite 구조의 물질은 대부분 잘 알려진 완화형 유전체(relaxor dielectrics)이다[1, 2]. 완화형 유전체란 확산 상전이(diffuse phase transition)를 나타내어 상전이 온도 부근에서 넓은 유전상수 값을 가지는 특징이 있다. 이들 중  $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ [3],  $\text{Pb}(\text{Zn}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ [4],  $\text{Pb}(\text{Fe}_{1/2}\text{Nb}_{1/2})\text{O}_3$ [5, 6] 등은 높은 유전상수 및 비교적 낮은 소결 온도 등으로 특히 연구가 많이 되는 물질이다. 본 논문에서 연

구한  $\text{Pb}(\text{Sc}_{1/2}\text{Ta}_{1/2})\text{O}_3$ (이후 PST)는 전형적인 완화형 강유전체의 하나로서 뛰어난 강유전성, 압전성 및 초전성(pyroelectricity)을 가지고 있다[7]. 그러나 큐리온도(curie temperature)는 매우 낮은  $-10\sim 26^\circ\text{C}$  부근이고(B위치에 따른 규칙도에 따라 변화),  $1500^\circ\text{C}$  이상의 높은 소결온도를 필요로 한다[8]. 따라서 큐리온도가  $490^\circ\text{C}$ 인  $\text{PbTiO}_3$ (이후 PT)를 PST에 첨가하여 복합 perovskite 구조를 가진 고용체를 형성하게 되면, PST의 큐리온도는 증가하고, 소결온도는 낮추어질 수 있고, PST 세라믹스의 전자 부품으로서의 응용범위도 확대될 수 있다[9].

그런데 이들 PST와 같은 Pb계 복합 perovskite 세라믹스는 일반적인 하소법(calcining of mixed oxide method-CMO)을 사용해서 단일 상을 제조하기 매우 어려운 것으로 보고되어 있다[10]. 반응하는 중간에 생성된 중간

<sup>†</sup>Corresponding author

Tel: +82-54-820-5427

Fax: +82-54-820-5427

E-mail: kbpark@andong.ac.kr

상(intermediate phase)인 pyrochlore 상이 반응 후에도 잔존하게 되어 결국은 유전 상수를 비롯한 전기적 성질 등의 저하를 초래한다. 이 문제를 해결하기 위하여  $\text{Sc}_2\text{O}_3$ 와  $\text{Ta}_2\text{O}_5$ 의 화합물인  $\text{ScTaO}_4$ 를 먼저 제조한 후  $\text{PbO}$ 와 반응시키는 소위 Wolframite법을 많이 이용하여 왔다 [11]. 그러나 이 방법은 여러 단계의 공정이 필요하며 특히 완전히 pyrochlore 상을 제거하지 못 했다.

본 연구에서 사용된 용융염 합성법(molten salt synthesis method-MSS)은 일반 하소법에 비해 flux의 첨가에 따른 수세(washing) 과정만 추가되므로 비교적 공정이 간단하며, 비교적 짧은 시간에 낮은 온도에서 상의 형성이 가능하다. 또한 입자 크기 및 입자 형상(morphology) 조절에도 효과적이다[12].

한편 L.E. Cross 등에 따르면 PST와 PT간에는 전 조성범위에서 완전 고용이 일어나며, morphotropic phase boundary가 0.4~0.45의 PT 조성에서 능면체(rhombohedral) 상과 직육면체(tetragonal) 상간에 존재하는 것을 밝혀내었으며 이 영역에서의 유전 및 압전 성질이 우수한 것으로 보고 하였다[13]. 따라서 본 연구에서는 이 영역에 속하는  $0.6\text{Pb}(\text{Sc}_{1/2}\text{Ta}_{1/2})\text{O}_3$ - $0.4\text{PbTiO}_3$ (이후 PSTT)를 기본 조성으로 선택하여 수세가 용이한 KCl을 flux로 실험을 수행하였다.

## 2. 실험 방법

PSTT를 제조하기 위해 사용된 시약은  $\text{PbO}$ (99.9%, Aldrich Chem. Co, U.S.A),  $\text{Sc}_2\text{O}_3$ (99.99%, Strem Chem. Co, U.S.A),  $\text{Ta}_2\text{O}_5$ (99.9%, Aldrich Chem. Co, U.S.A),  $\text{TiO}_2$ (99.9%, Aldrich Chem. Co, U.S.A), KCl(99.9%, Alfa Aesar, U.S.A), 이었다. Fig. 1에 본 실험의 공정을 나타내었다. 이때 첨가하는 KCl과 원료 물질과의 중량비(WKCl/Wraw materials)는 0.5로 고정하여 실험하였다.

이 출발 원료를  $\text{Y}_2\text{O}_3$ 로 안정화된 zirconia mall과 isopropyl alcohol을 함께, 고속의 회전 볼밀(planetary mill, Germany)을 사용하여 4시간 혼합한 후 온도가 조절된 교반기 위에서 계속 교반하면서 건조하였다. 건조 후 알루미늄 도가니를 사용하여  $600\sim 850^\circ\text{C}$ 까지 온도를 변화시키면서 하소한 후, 공기 중에서 급랭하였다. 하소 후 잔존하는 염은 이차 이온 교환수로 세척하였고,  $\text{AgNO}_3$ 를 이용하여 Cl-의 잔존 여부를 검사하였다.

이들 시료를 시차열분석기(Setaram, France)를 사용하여 혼합물의 승온시 나타나는 상 형성 및 반응들을 알아 보았다. 이때의 승온속도는  $10^\circ\text{C}/\text{min}$ 로 하였다. 하소 후 잔존하는 상을 분석하기 위해 X-선 회절기(Rigaku, D-MaxIII, Japan)를 사용하였으며, 이때 분석 조건은  $\text{CuK}\alpha$ ,

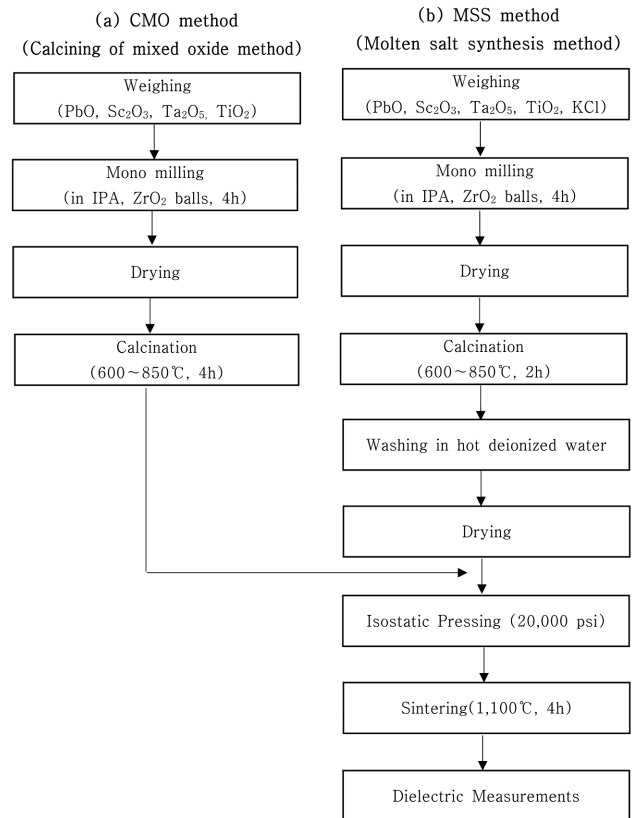


Fig. 1. Flow chart of specimen preparation.

Ni filter, 40 kV, 20 mA 이었다. 존재하는 perovskite 상의 상대 량은 다음 식에 따라 계산하였다.

$$\% \text{ perovskite} = \frac{I_{\text{pero}}}{I_{\text{pero}} + I_{\text{pyro}}} \times 100 \quad (1)$$

여기서  $I_{\text{pero}}$ 와  $I_{\text{pyro}}$ 는 각각 perovskite 상의 (110) 피크와 pyrochlore 상의 (222) 피크의 X-선 강도를 취하였다.

수세한 분말을 건조시킨 후  $0.8 \text{ ton}/\text{cm}^2$ 로 예비 성형한 후, 20,000 psi의 압력으로 등압성형(isostatic pressing)하여 원판형 시편을 준비하였으며 소결 및 유전특성의 균일성을 위해 결합제는 첨가하지 않았다. 이와 같이 준비된 성형시편을 전기로 내에서 2중 도가니법을 이용하여  $1100^\circ\text{C}$ 에서 시간당  $300^\circ\text{C}$ 의 승온 속도로 4시간 동안 소결하였다. 이때  $\text{PbO}$ 의 휘발을 억제하기 위해  $\text{PbO}$ 와  $\text{ZrO}_2$ 를  $850^\circ\text{C}$  6시간 하소하여  $\text{PbZrO}_3$ 를 합성한 후 여기에 5 wt%  $\text{ZrO}_2$ 를 혼합한 분말을 분위기 분말로 사용하였다[14].

소결된 시편의 미세구조는 시편의 표면을 열에칭한 후 주사전자현미경(SEM, S-2500C, Jeol, Japan)으로 관찰하였다. 또한 소결 시편은 두께 0.5 mm로 연마한 후 초음파 세척기로 잘 세척하여 표면의 오염물을 제거한 후 전극으로 은 페이스트를 도포하여  $400^\circ\text{C}$ 에서 10분간 열처리 하였다. 은 전극을 도포한 시편을  $350^\circ\text{C}$ 까지 승온

하여 열 방전(thermal discharge) 시킨 후 300°C에서 50°C 까지 분당 1°C의 냉각속도로 서서히 냉각시키면서 1 kHz의 주파수에서 정밀 LCR 미터(HP4284A, U.S.A)를 이용하여 유전성을 측정하였다. 또한 강유전체 시험기(RT66A, Radiant Technology Inc., USA)를 사용하여 인가전압(E) 500~2,000 V의 범위에서 분극(P, polarization)값을 측정하여, P-E 이력곡선(hysteresis loop)을 구하였다.

### 3. 결과 및 고찰

Fig. 2는 일반 하소법 과 용융염 합성법에 따른 출발 물질의 시차 열분석 곡선을 나타낸 것이다. 일반 하소법 및 용융염 합성법 모두에서 170°C 및 300°C 부근에서 흡열피크를 나타내고 있는데, 170°C 부근에서의 흡열피크는 PbO를 isopropyl alcohol 내에서 혼합할 때 생성되는 Pb<sub>3</sub>(CO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>(OH)<sub>2</sub>가 PbO(red) 등으로 분해하는 반응이며, 300°C 부근에서의 흡열피크는 생성된 PbO(red)의 Pb<sub>3</sub>O<sub>4</sub>로의 상전이에 따른 변화를 나타내고 있다[15]. 한편 일반하소법의 경우 350°C에서 나타나는 발열반응은 PbO와 Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>의 반응에 따른 pyrochlore 상의 생성 피크라고 생각되며, 두 방법 모두에서 나타나는 600°C 부근에서의 약한 발열 피크는 perovskite 상에 기인한 것으로 사료되며 유사한 반응이 Pb(Fe<sub>1/2</sub>Nb<sub>1/2</sub>)O<sub>3</sub>[16], Pb(Sc<sub>1/2</sub>Nb<sub>1/2</sub>)O<sub>3</sub>[17]의 시차 열 분석곡선에서도 관찰되었다. 그러나 perovskite 상이나 pyrochlore 상의 정확한 조성은 현재 연구 중에 있다. KCl을 사용한 용융염 합성법의 경우는 750°C 부근에서 시작되는 매우 뚜렷한 흡열 피크가 나타나는데, 이는 KCl의 용융에 의해 생성된 것이다.

Fig. 3과 4는 각각 일반 하소법 및 용융염 합성법의

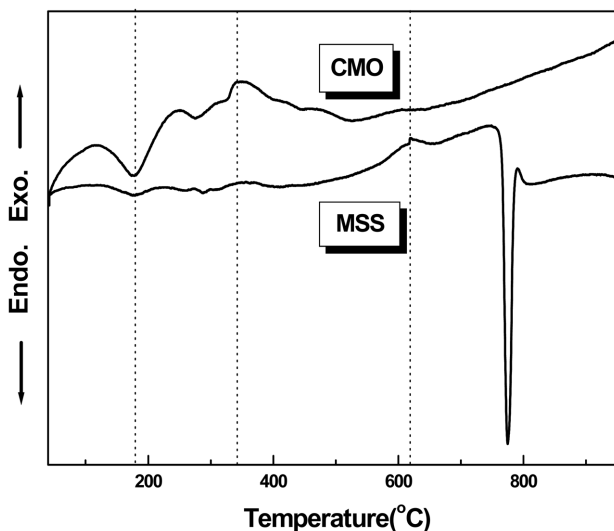


Fig. 2. DTA curves of mixtures prepared by CMO method and MSS method.

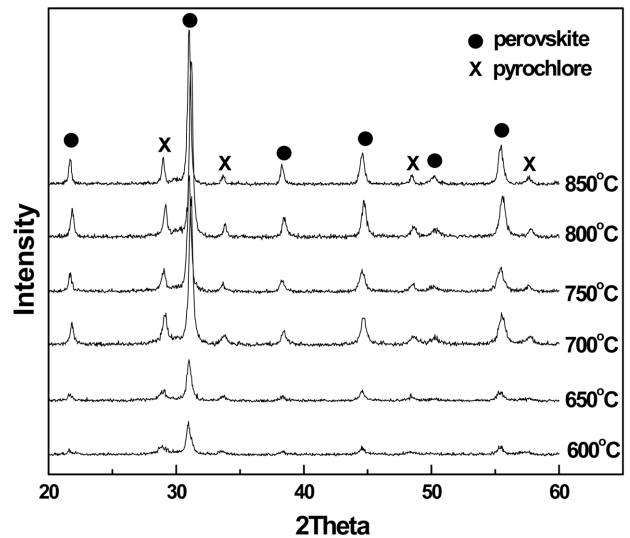


Fig. 3. XRD patterns of reaction products prepared by CMO method.

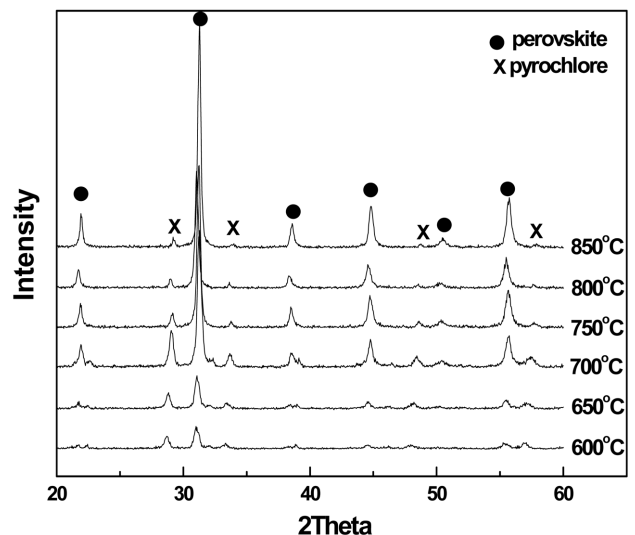


Fig. 4. XRD patterns of reaction products prepared by MSS method.

하소 온도 변화에 따른 반응 생성물의 XRD 도형을 나타낸 것이며, Fig. 5는 Swartz 등이 제시한 식(1)에 의해 구한 perovskite 상의 양을 하소 온도에 따라 나타낸 것이다. 두 방법 모두 이미 600°C에서 perovskite 상이 생성되어 있으며 이는 Fig. 2의 열분석 결과에서 보듯이 600°C에서 급격한 perovskite 상의 생성반응이 시작된 것을 알 수 있다. 그러나 일반하소법과 용융염 합성법으로 제조된 perovskite 상의 조성은 서로 다를 수 있는데, XRD 피크를 통해 Fig. 5에서 알 수 있는데, 일반하소법의 경우는 Ti의 확산속도가 Sc보다 빨라서 먼저 PbTiO<sub>3</sub>가 과량인 복합 perovskite 상이 형성되고 여기에 Sc가 확산되어 들어가며 Pb(Sc<sub>x</sub>, Ti<sub>y</sub>, Ta<sub>z</sub>)O<sub>3</sub>의 복합 perovskite 상이 생성되어 가는 반응 기구를 생각할 수 있고, 따라서

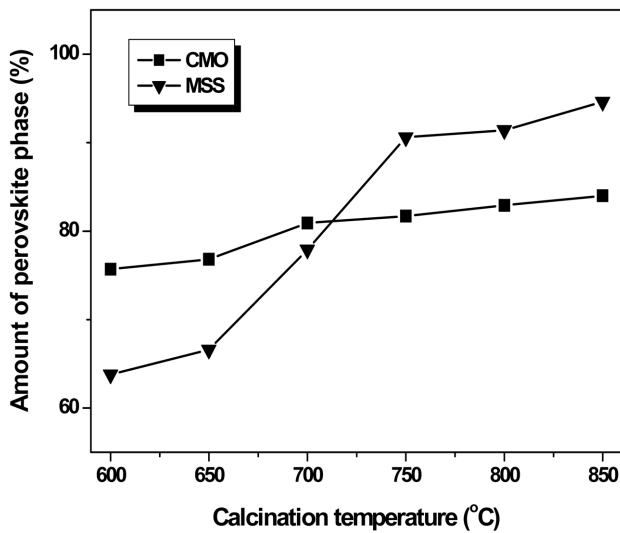


Fig. 5. Perovskite phase percentages of powders prepared by CMO and MSS method.

하소온도가 증가되어도 급격한 perovskite 상의 증가가 관찰되지 않고 결국 상당량의 pyrochlore 상이 잔존하고 있음을 볼 수 있다[10, 11, 13]. 이에 반해 용융염 합성법의 경우는 flux로 사용된 KCl의 용융 이전에는 일반하소법과 유사하게  $PbTiO_3$ 가 과량인 복합 perovskite 상이 생성되지만, 사용된 flux인 KCl이 오히려 반응의 장애가 되어 일반하소법보다 상형성이 적으며, KCl이 용융되기 시작하는 750°C 부근에서는 Sc와 Ta의 확산속도가 매우 빨라져서 Ti, Sc, Ta가 모두 반응하는  $Pb(Sc_x, Ti_y, Ta_z)O_3$ 의 복합 perovskite 상이 급격히 형성되고 있음을 알 수 있다.

일반적으로  $Pb(B_1, B_2)O_3$ 로 표현되는 Pb계 perovskite 구조 물질의 고상반응에 의한 합성이 어려운 이유는 구성성분 중의 하나인 MgO, ZnO,  $Sc_2O_3$ ,  $Fe_2O_3$ , 등이 PbO,  $Nb_2O_5$ ,  $Ta_2O_5$ 에 비해 낮은 분산성(dispersibility) 및 반응성(reactivity) 때문인 것으로 보고되어 있다[18]. 따라서 flux로 사용된 KCl이 녹기 전인 750°C 미만의 온도에서는 혼합된 KCl이 오히려 방해 층(blocking layer)으로 작용하여, 일반 하소법의 경우보다, perovskite 상의 형성이 억제되었으나, Fig. 2의 시차 열분석 곡선에서 확인된바, KCl의 녹는점인 750°C 이상의 온도에서는 KCl의 용융에 따라 각 구성 성분 간의 반응성이 커지고, 이동도(mobility)가 증진되어, 결국은 급격한 perovskite 상의 생성을 가져왔다고 할 수 있다. 이것으로서 일반하소법에 비해 용융염 합성법의 경우가 perovskite 상의 생성에 매우 효과적이며 적절한 flux의 사용에 의해 perovskite 상의 생성율을 증가시킬 수 있음을 알 수 있다.

Fig. 6은 800°C에서 하소한 분말의 주사 전자 현미경 사진을 나타낸 것이다. 본 연구에서 수행한 일반하소법의 경우, 반응생성물의 perovskite 상의 분율이 이전에

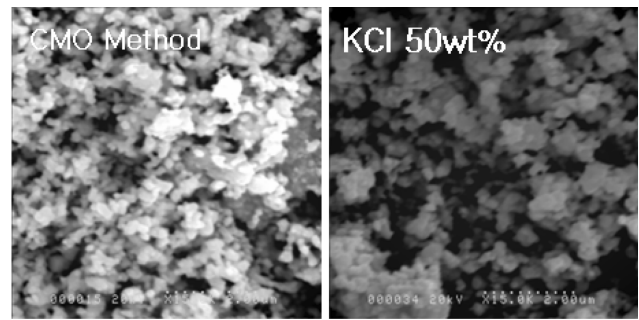


Fig. 6. SEM photographs of the PSTT powders calcined at 800°C.

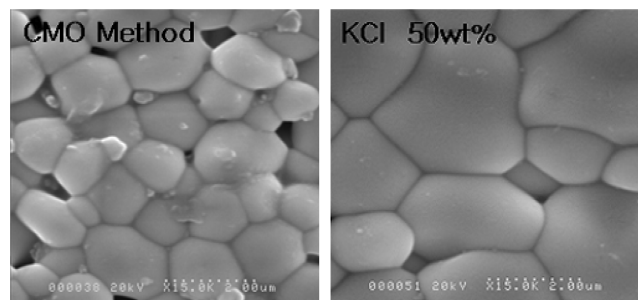


Fig. 7. SEM photographs of the PSTT ceramics sintered at 1100°C for 4 hrs.

보고된 연구 보다 많았는데[19], 이것은 분말 혼합과정에서 평형 볼밀이 아닌 고속의 회전 밀(planetary mill)을 이용함으로써 높은 분쇄 에너지에 의해 분말들이 모두 1 μm 이하로 분쇄되고 매우 미세하게 혼합 되어 물질간의 반응성이 높았던 것을 알 수 있다.

Fig. 7은 일반하소법과 용융염 합성법의 소결 특성을 살펴보기 위하여 1,100°C에서 4시간 소결한 소결체의 주사 전자 현미경 사진을 나타낸 것이다. 800°C에서 하소한 분말을 사용하였으며, 소결온도는 Wang 등이 실험한 온도인 1,200°C보다 낮은 1,100°C를 사용하였다[20]. 일반하소법의 경우는 기공이 관찰되고 약 1.5 μm 정도의 결정립을 나타내는 반면, KCl을 중량비로 50% 사용한 용융염 합성법인 경우 2 μm 이상의 상대적으로 큰 결정립에 치밀한 미세 구조를 나타내고 있다. 이는 일반하소법의 경우는 소결 과정에서 치밀화와 더불어 복합 perovskite 상의 생성이 급격히 진행되며, 이에 따라 치밀화 과정에 방해가 되어 기공이 잔존하는 미세구조를 나타냈다고 볼 수 있고, 용융염 합성법의 경우는 이미 하소과정에서 상의 생성이 거의 종결되어 치밀화와 결정립 성장 과정이 보다 용이하게 이루어졌음을 보여주고 있다.

Fig. 8은 일반하소법과 용융염 합성법으로 제조된 분말을 이용하여 소결한 시편의 유전상수를 온도에 따른 변화를 나타낸 것이다.

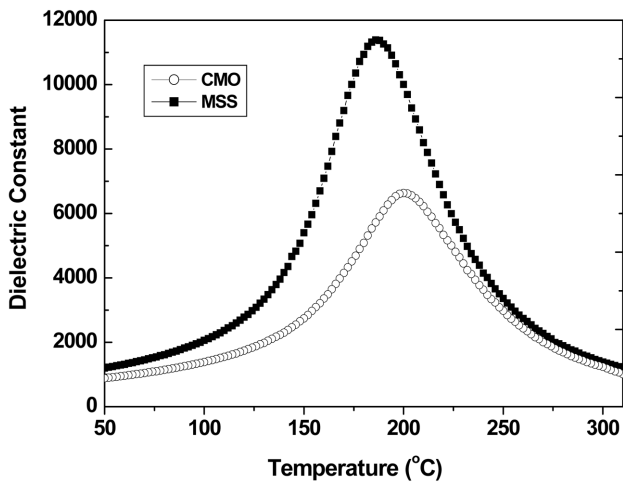


Fig. 8. Dielectric constant of the PSTT ceramics sintered at 1100°C for 4 hrs.

일반하소법의 경우는 큐리온도 영역이 비교적 완만한 확산형 상전이를 나타내고 큐리온도는 200°C에서 유전상수는 6,800의 값을 나타내고 있다. 이에 반해 용융염 합성법으로 제조된 시편의 경우 일반하소법보다 높은 11,200 정도의 유전상수를 가지고 있으며 큐리 온도는 일반 하소법보다 25°C가 낮은 175°C를 나타내고 있다. 큐리온도의 차이는 일반하소법의 경우 Ti가 과량으로 들어가 있는 복합 perovskite 상의 생성으로 보다 높은 큐리 온도를 나타내었다고 볼 수 있는데, 이는 PbTiO<sub>3</sub>의 큐리온도는 490°C로 PST의 큐리온도인 -10~26°C 보다 매우 높은 것에 기인한다고 생각된다. 유전상수의 경우는 치밀화와 결정립 크기로 고찰 해볼 수 있는데, 용융염 합성법의 경우가 치밀화와 결정립 크기가 더 큰데 기인하여 유전상수 값이 더 큰 값을 갖는 것으로 생각된다.

Fig. 9은 일반하소법과 용융염 합성법으로 제조된 시

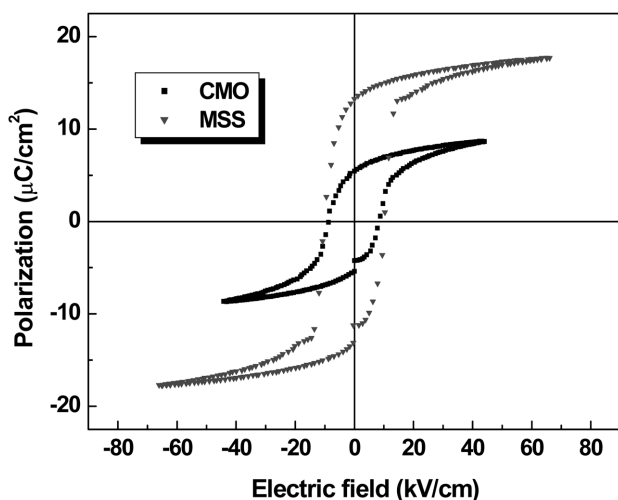


Fig. 9. Ferroelectric hysteresis loops of the PSTT ceramics sintered at 1100°C for 4 hrs.

편의 P-E 이력 측정 결과를 나타내었다. 용융염 합성법으로 제조된 시편이 일반하소법에 비해 2배 가량 높은 13.5 μC/cm<sup>2</sup>의 잔류분극(remnant polarization), 항전계(coercive force)는 10.198 kV/cm의 우수한 강유전성 값을 나타내었으며 이는 큰 결정립 크기와 큰 유전상수에 기인한다고 볼 수 있다.

#### 4. 결 론

1) 열분석과 XRD 분석 결과 분말 제조방법에 관계없이 600°C 이상에서 페롭스카이트 상을 관찰 할 수 있었으며, 750°C 미만의 온도에서는 flux로 사용된 KCl이 물질간의 반응을 방해하여 용융염 합성법이 일반하소법으로 제조된 분말 보다 perovskite 상의 형성이 작게 된 것을 알 수 있다.

2) 일반하소법의 경우는 750°C 이상의 온도에서 4시간 하소하였을 때도 완전한 perovskite 상의 형성으로 85% 이하의 상 형성율을 나타내지만, KCl을 flux로 사용한 용융염 합성법의 경우 750°C에서 2시간 하소 시 KCl의 용융에 의한 반응성의 증대로 급격한 상 형성을 이루어 92% 이상의 perovskite 상의 생성율을 나타내었다.

3) 1,100°C에서 4시간 소결한 시편의 유전상수 및 분극값은 보다 치밀하고 큰 결정립 크기의 미세구조를 가진 용융염 합성법으로 제조된 시편이 일반하소법으로 제조된 시편에 비해 큰 11,200의 유전상수와 13.5 μC/cm<sup>2</sup>의 잔류분극, 항전계는 10.198 kV/cm 값을 나타내었다.

#### 감사의 글

이 논문은 2004학년도 안동대학교 특별연구비에 의하여 연구되었으며, 이에 감사드립니다.

#### 참 고 문 헌

- [1] K. Uchino, "Electrostrictive actuators: materials and applications", Am. Ceram. Soc. Bull. 65 (1986) 647.
- [2] S.L. Swartz, T.R. Schrouf, W.A. Schulze and L.E. Cross, "Dielectric properties of lead magnesium niobate ceramics", J. Am. Ceram. Soc. 67 (1984) 311.
- [3] J.C. Ho, K.S. Liu and I.N. Lin, "Synthesis of Pb(Mg<sub>1/3</sub>Nb<sub>2/3</sub>)O<sub>3</sub> perovskite by an alkoxide method", J. Mater. Sci. 30 (1995) 3936.
- [4] J. Kuwata, K. Uchino and S. Nomura, "Diffuse phase transition in lead zinc niobate", Ferroelectrics 22 (1979) 863.
- [5] K.B. Park and K.H. Yoon, "Effect of the initial particle

- size on the dielectric properties of  $\text{Pb}(\text{Fe}_{1/2}\text{Nb}_{1/2})\text{O}_3$  ceramics”, *Ferroelectrics* 133 (1992) 283.
- [ 6 ] K.B. Park and K.H. Yoon, “Reaction mechanisms in the formation of perovskite  $\text{Pb}(\text{Fe}_{1/2}\text{Nb}_{1/2})\text{O}_3$  by molten salt synthesis method”, *Ferroelectrics* 132 (1992) 1.
- [ 7 ] F. Chu, N. Setter and A.K. Tagantsev, “The spontaneous relaxor-ferroelectric transition of  $\text{Pb}(\text{Sc}_{0.5}\text{Ta}_{0.5})\text{O}_3$ ”, *J. Appl. Phys.* 74 (1993) 5129.
- [ 8 ] N. Setter and L.E. Cross, “The contribution of structural disorder to diffuse phase transitions in ferroelectrics”, *J. mater. Sci.* 15 (1980) 2478.
- [ 9 ] F. Chu, G.R. Fox and N. Setter, “Dielectric properties of complex perovskite lead scandium tantalate under DC bias”, *J. Am. Ceram. Soc.* 81 (1998) 1577.
- [10] M. Lejeune and J.P. Boilot, “Formation mechanism and ceramic process of the ferroelectric perovskites:  $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$  and  $\text{Pb}(\text{Fe}_{1/2}\text{Nb}_{1/2})\text{O}_3$ ”, *Ceram. Int.* 8 (1982) 1245.
- [11] T.R. Shrout and A. Halliyal, “Preparation of lead-based ferroelectric relaxors for capacitors”, *Am. Ceram. Soc. Bull.* 66 (1987) 704.
- [12] R.H. Ardent, “Lead zirconate titanate ceramics from molten salt solvent synthesized powders”, *Mat. Res. Bull.* 14 (1979) 703.
- [13] L.E. Cross, “Relaxor ferroelectrics”, *Ferroelectrics* 76 (1987) 241.
- [14] E.K.W. Goo, R.K. Mishra and G. Thomas, “Transmission electron microscopy of  $\text{Pb}(\text{Zr}_{0.52}\text{Ti}_{0.48})\text{O}_3$ ”, *J. Am. Ceram. Soc.* 64 (1981) 517.
- [15] M. Dambekalne, A. Sternberg, I. Brante, M. Antonova and A. Kapenieks, “Production of complex lead-containing niobates transparent ferroelectric ceramics”, *Ferroelectrics* 69 (1986) 21.
- [16] K.B. Park and K.H. Yoon, “Dielectric properties of  $x\text{Pb}(\text{Fe}_{1/2}\text{Nb}_{1/2})\text{O}_3-(1-x)\text{Pb}(\text{Co}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$  ceramics prepared by molten salt synthesis method”, *Ferroelectrics* 145 (1993) 195.
- [17] K.B. Park and T.H. Kim, “용융염 합성법에 의해 제조된  $x\text{Pb}(\text{Fe}_{1/2}\text{Nb}_{1/2})\text{O}_3-(1-x)\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ 계 세라믹스의 유전특성”, *J. Kor. Ass. Crystal Growth* 5 (1995) 152.
- [18] K.H. Yoon, D.H. Kang and C.K. Kwak, “Dielectric properties of  $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$  ceramics prepared by KCl molten salt synthesis”, *Ferroelectrics* 116 (1991) 231.
- [19] X. Yue, D. Xiao, J. Cao, X. Yuan, G. Yu, X. Xiong, L. Wei and J. Zhu, “The crystalline and dielectric properties of  $(1-x)\text{Pb}(\text{Sc}_{1/2}\text{Ta}_{1/2})\text{O}_3-(x)\text{PbTiO}_3$  ceramics prepared by one-step-sintering-method”, *Ceram. Int.* 30 (2004) 1905.
- [20] J. Lim, J.M. Xue and J. Wang, “Ferroelectric lead scandium tantalate from mechanical activation of mixed oxides”, *Mat. Chem. Phys.* 75 (2002) 157.