研究论文

PYN 微量调控对 PNN-PYN-PZT 陶瓷的结构与性能影响研究

梁舒婕[1], 曾江涛[1], 司景翔[1], 史秀梅[2], 殷　俊[2], 张永丽[1,*]

(1. 上海材料研究所有限公司 上海市工程材料应用与评价重点实验室, 上海 200437; 2. 中国兵器科学研究院宁波分院, 宁波 315103)

摘要: 为协同优化压电陶瓷的压电性能、应变性能及居里温度, 采用固相烧结工艺, 在 1 140~1 200 ℃ 温度范围内制备了 0.30PNN-*x*PYN-(0.31−*x*)PZ-0.39PT 四元压电陶瓷, 系统研究了 PYN 含量对陶瓷微观结构及电学性能的影响。结果表明, PYN 的微量增加显著增大了陶瓷晶粒尺寸, 而陶瓷密度呈现非单调变化趋势, 即随 PYN 含量增加先升高后降低。相应地, 介电、压电及铁电性能亦呈现与密度相似的变化规律, 随 *x* 的增加先增强后减弱。介电损耗随温度的变化表明, PYN 的引入有效抑制了漏电流, 提升了陶瓷的可靠性。当 *x*=0.05 时, 样品具有最均匀致密的微观结构及适宜的 PYN 含量, 因而展现出最优的压电性能。在 1 160 ℃ 下烧结的 0.30PNN-0.05PYN-0.26PZ-0.39PT 样品 (*x*=0.05) 性能最佳: P_r≈39.07 μC·cm^{-2}, k_p=0.68, tanδ=1.6%, d_{33}≈715 pC·N^{-1}, S≈0.144% @20 kV·cm^{-1}。本工作阐明了 PYN 含量对 PNN-PYN-PZT 陶瓷性能的调控机制, 为设计兼具高居里温度与优异性能的压电驱动材料提供了重要依据。

关键词: PNN-PYN-PZT 陶瓷; 电学性能; 压电驱动器

中图分类号: TM221　　**文献标志码:** A

DOI: 10.3724/jfmd.2601022　　CSTR: 32180.14.jfmd.2601022

Effect of PYN micro-control on structure and properties of PNN-PYN-PZT ceramics

LIANG Shujie[1], ZENG Jiangtao[1], SI Jingxiang[1], SHI Xiumei[2], YIN Jun[2], ZHANG Yongli[1,*]

(1. Shanghai Key Laboratory of Engineering Materials Application and Evaluation, Shanghai Research Institute of Materials Co., Ltd., Shanghai 200437, China; 2. Ningbo Branch of China Academy of Ordnance Science, Ningbo 315103, China)

Abstract: To synergistically optimize the piezoelectric and strain properties along with the Curie temperature, 0.30PNN-*x*PYN-(0.31−*x*)PZ-0.39PT quaternary piezoelectric ceramics were fabricated via a conventional solid-state reaction process at sintering temperatures ranging from 1140 to 1200 °C. The effects of PYN content on the microstructure and electrical properties were systematically investigated. Results indicate that a slight increase in PYN leads to an enlargement of ceramic grain size. The density of

收稿日期: 2026−01−29;　　**修订日期:** 2026−04−01

基金项目: 上海科学院关键共性技术攻关项目(No. SKY25033003); 上海材料研究所创新项目(No. 24SG-01); 上海材料研究所有限公司创新项目(No. 25SG-06)

作者简介: 梁舒婕(2001—), 女, 硕士研究生, 研究方向为 PZT 基压电陶瓷材料及器件(E-mail: liang_sie@163.com)

通信作者: 张永丽(1992—), 女, 工程师, 研究方向为铁电压电陶瓷及器件(E-mail: zylzx56@163.com)

the ceramic exhibits a non-monotonic trend, first increasing and then decreasing as the PYN proportion rises. Correspondingly, the dielectric, piezoelectric, and ferroelectric properties all demonstrate a similar trend of initial enhancement followed by degradation with increasing x. Analysis of the temperature-dependent dielectric loss suggests that PYN incorporation effectively reduces the leakage current and improves the high-temperature stability of the ceramics. The samples with x = 0.05 exhibit the best piezoelectric properties due to their most uniform and compact microstructure and optimal PYN content. The optimal overall performance was achieved in the 0.30PNN-0.05PYN-0.26PZ-0.39PT sample (x = 0.05) sintered at 1 160 °C, exhibiting excellent properties of $P_r \approx 39.07\ \mu C\cdot cm^{-2}$, $k_p = 0.68$, $\tan\delta = 1.6\%$, $d_{33} \approx 715\ pC\cdot N^{-1}$, and $S \approx 0.144\%$ @ 20 $kV\cdot cm^{-1}$. This work clarifies the regulatory mechanism of PYN content on the performance of PNN-PYN-PZT ceramics, providing an important basis for designing high-performance piezoelectric driving materials with high Curie temperatures.

Key words: PNN-PYN-PZT ceramic; electrical performance; piezoelectric actuator

0 引言

锆钛酸铅(Pb(Zr, Ti)O_3, PZT)[1]基压电驱动器因其响应速度快、位移分辨率高等优点,在精密定位、自适应光学、微流体系统等领域发挥着不可替代的作用。作为精密致动系统的核心元件,压电驱动器对其关键材料——压电陶瓷的综合性能提出了苛刻要求,即在驱动电场下需同时具备大位移输出、快速响应以及良好的温度稳定性[2-3]。在众多材料体系中,位于准同型相界处的铌镍酸铅(Pb($Ni_{1/3}Nb_{2/3}$)O_3, PNN)-锆钛酸铅(PNN-PZT)三元体系因其高压电活性(压电系数 $d_{33} > 600\ pC\cdot N^{-1}$)和大电致应变,被视为中高压电驱动应用的理想候选材料之一[4-7]。

然而,PNN-PZT 体系固有的弛豫铁电特性及其相对较低的居里温度,导致其介电与压电性能易随温度发生漂移[8],严重影响了驱动器在宽温域工作时的输出精度与可靠性。为提升其温度稳定性,研究者普遍采用离子掺杂或构建四元固溶体的策略。然而,简单的离子掺杂(如 Bi^{3+}、La^{3+}、Dy^{3+}、Sn^{4+}、Sr^{2+}等)往往难以兼顾性能的全面提升,或对居里温度的提升有限,或以显著牺牲压电与应变性能为代价[9-13]。PNN-PYN-PZT 陶瓷是一种兼具高居里温度和高压电/应变性能的四元压电陶瓷材料,其中高居里温度的铌镱酸铅(Pb($Yb_{1/2}Nb_{1/2}$)O_3, PYN)[14]与多相共存结构实现了居里温度和压电性能的协同优化[15]。然而,目前关于 PNN-PYN-PZT 体系的研究尚不系统,尤其是 PYN 含量如何精确影响该四元体系的结构、宏观电学性能及电致应变等性能。明确 PYN 的优化含量及其对性能的调控规律,对筛选出综合性能均衡的高驱动特性压电陶瓷至关重要。

为此,本文设计了 0.30Pb($Ni_{1/3}Nb_{2/3}$)O_3-xPb($Yb_{1/2}Nb_{1/2}$)O_3-(0.31−x)PZ-0.39PT 四元陶瓷,通过精确调控 PYN 含量(x)的增加并相应降低 PZ 含量,系统研究 PYN 比例变化对材料性能的协同调控规律,阐明 PYN 对物相结构、微观结构、电学性能及应变特性的影响,为发展兼具高压电响应、高居里温度和大电致应变的压电驱动材料提供重要的理论与实践依据。

1 实验部分

1.1 陶瓷制备

采用前驱体预合成法制备 0.3PNN-xPYN-(0.31−x)PZ-0.39PT 四元系压电陶瓷(xPYN 陶瓷)。首先,将高纯度的 NiO(99%)、Yb_2O_3(99.99%)分别与 Nb_2O_5(99.5%)按化学计量比称量,置于球磨罐中充分混合 6 h 后,于 1 100 ℃ 煅烧 2 h,得到 $NiNb_2O_6$(铌酸镍,NN)和 $YbNbO_4$(铌酸镱,YN)前驱体粉末。随后采用固相合成法制备陶瓷粉末,将所得 NN、YN 粉末与高纯度 PbO(99.7%)、ZrO_2(99.5%)、TiO_2(99.5%)等按化学计量比称量,按原料∶锆球∶无水乙醇 = 1∶2∶1 的比例置于球磨罐中充分混合 6 h。将干燥后的粉末装入洁净坩埚中,于 850 ℃ 煅烧 2 h,随炉冷却后再次球磨 6 h,获得均匀细腻的 PNN-PYN-PZT 陶瓷粉末。

向干燥的陶瓷粉末中加入质量分数 7% 的聚乙烯醇溶液(PVA)作为粘结剂, 均匀混合后在 200 MPa 的单轴压力下压制成直径 15 mm、厚度约 1.5 mm 的薄圆片生胚。根据成分差异, 将生胚置于带盖的氧化铝坩埚中, 所有样品分别在 1140 ℃、1160 ℃、1180 ℃、1200 ℃ 烧结 2 h, 并随炉冷却至室温, 获得 PNN-PYN-PZT 压电陶瓷。将所得陶瓷样品抛光至 0.80 mm 厚度, 并在其两个主表面涂覆银电极后烧制, 用于电学(介电、铁电及压电)性能测试。

1.2 测试与表征

采用 X 射线衍射仪(XRD, Rigaku Smartlab SE, 日本)对前驱体粉末(YN 和 NN)及陶瓷样品进行物相分析。利用扫描电镜(SEM, TESCAN VEGA3, 中国)表征陶瓷断面的微观形貌与结构, 并通过 NanoMeasurer 软件测量约 150 颗晶粒以获取晶粒尺寸信息。陶瓷的相对密度通过体积密度与理论密度之比计算得出, 其中体积密度采用阿基米德排水法测定。使用准静态 d_{33} 测量仪(中国科学院声学所 ZJ-5A, 中国)测定样品的压电常数; 通过数字电桥(ZX8517B)测量介电损耗与电容; 利用阻抗分析仪(Agilent HP4294A, 美国)测定谐振频率与阻抗; 采用铁电/压电分析仪(Aixacct TF Analyzer 2000 E, 德国)采集电滞回线及电致应变数据。

2 实验结果与分析

图 1(a)显示了 *x*PYN 陶瓷在 $2\theta = 10°\sim80°$范围内的 XRD 图谱。结果表明, 5 个样品的 XRD 衍射峰位置几乎一致, 未检测到可识别的杂相衍射峰, 说明 *x*PYN 陶瓷呈现纯钙钛矿结构, 无明显杂相。图 1(b)中 45°附近的特征峰经放大后显示出展宽的双峰, 表明所有 5 个组分均位于准同型相界(morphotropic phase boundary, MPB)范围内。

图 2 显示了 *x*PYN 陶瓷的断面 SEM 图像。所有样品晶界清晰, 均呈现晶间断裂行为。5 个样品均具有均匀、致密的微观结构, 其中以 *x*=0.05 的样品尤为显著。需要指出的是, 断面 SEM 图像中部分凹陷是晶粒被拔出所致, 并非陶瓷内部存在的空洞或气孔, 如图 2(c)红圈内所示。随着 *x* 的增加, 陶瓷的微观结构发生明显变化。图 2(a)~(e)中的柱状图分别展示了 *x*=0.03、0.04、0.05、0.06、0.07 样品

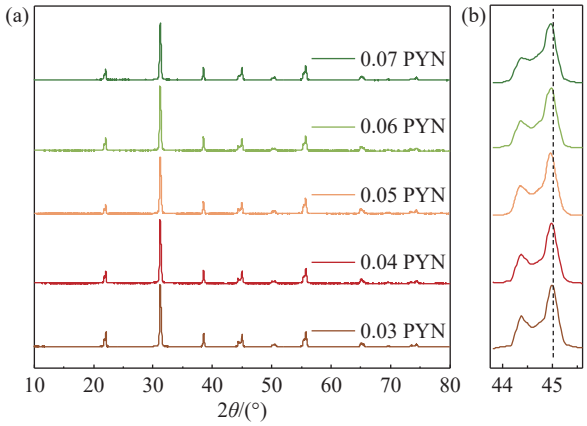


图 1 0.3PNN-*x*PYN-(0.31−*x*)PZ-0.39PT 四元陶瓷的 XRD 图谱。(a)$2\theta = 10°\sim80°$; (b)$2\theta \approx 45°$

Fig. 1 XRD pattern of 0.3PNN-*x*PYN-(0.31−*x*)PZ-0.39PT quaternary ceramic. (a) $2\theta = 10°$-$80°$; (b) $2\theta \approx 45°$

的晶粒尺寸分布, 所有样品的晶粒尺寸均符合对数正态分布。平均晶粒尺寸由 *x*=0.03 样品的 2.33 μm 逐渐增大至 *x*=0.07 样品的 3.68 μm。晶粒尺寸的逐渐增大归因于在 PNN-*x*PYN-PZT 四元体系中, Yb^{3+}(0.086 nm)和 Nb^{5+}(0.064 nm)离子进入钙钛矿结构(ABO_3)的 B 位(平均离子半径为 0.065 nm), 导致晶胞体积略微增大(图 1(b)中衍射峰位置轻微左移), 这一微小的体积变化促进了晶粒生长。

图 3 显示了在不同温度下烧结的 0.30PNN-*x*PYN-(0.31−*x*)PZ-0.39PT 陶瓷样品的密度信息。结果表明, 样品的相对密度均处于 92%～96% 范围内, 随烧结温度升高先增大后减小, 但温度变化对密度影响较小(变化幅度＜1.6%)。压电陶瓷的密度不仅受烧结温度影响, 还与成分密切相关。对比不同组分样品发现, 在相同烧结温度下, 样品密度随 PYN 含量增加呈先增大后减小的非线性变化趋势。这是由于适量 PYN 的引入促进了晶粒生长, 从而提高密度; 而当 PYN 进一步增加时, 大量大半径离子进入晶格引发晶格畸变, 抑制了晶粒的正常生长。尽管材料仍保持较高密度, 但晶粒尺寸不均及气孔等缺陷(如图 2(e)所示)导致密度有所降低。结果表明, PYN 的微量变化对 PNN-PYN-PZT 陶瓷的微观结构具有显著影响。*x*=0.05 的样品在各烧结温度下均表现出最高密度, 其中在 1160℃ 烧结时达到最大值 95.9%。较高的密度及其较小的变化率表明, *x*PYN 陶瓷具有致密的内部结构, 并在较宽的温度范围内展现出良好的烧结稳定性, 这有助于获

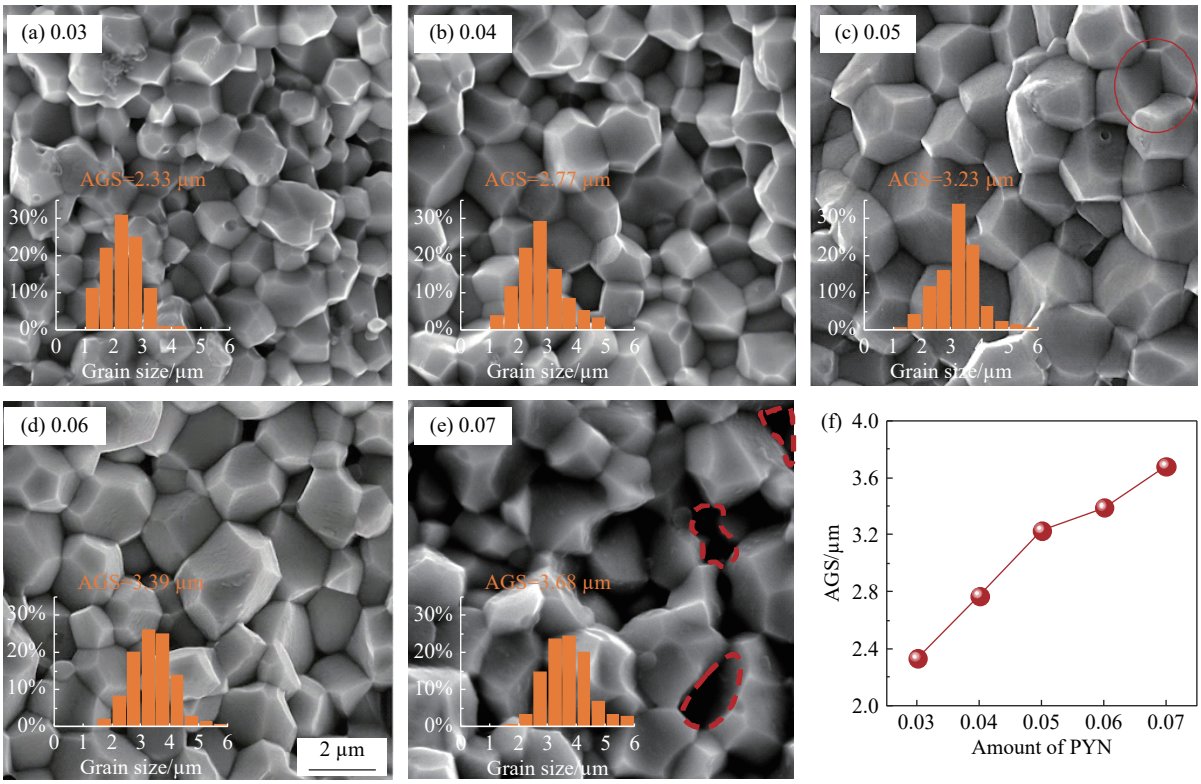


图 2　1200 ℃ 烧结的 0.30PNN-*x*PYN-(0.31−*x*)PZ-0.39PT 陶瓷断面 SEM 图像。(a)*x*=0.03; (b)*x*=0.04; (c)*x*=0.05; (d)*x*=0.06; (e)*x*=0.07; (f)平均晶粒尺寸

Fig. 2　SEM images of fracture surfaces of the 0.30PNN-*x*PYN-(0.31−*x*)PZ-0.39PT ceramics sintered at 1200 °C. (a) x = 0.03; (b) x = 0.04; (c) x = 0.05; (d) x = 0.06; (e) x = 0.07; (f) average grain size

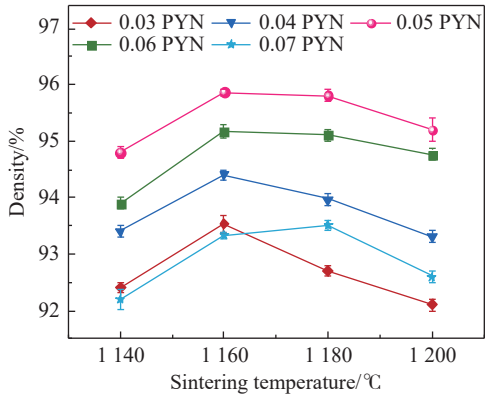


图 3　不同烧结温度下 0.3PNN-*x*PYN-(0.31−*x*)PZ-0.39PT 陶瓷的密度随 PYN 比例的变化曲线

Fig. 3　The density as a function of the PYN content in 0.3PNN-*x*PYN-(0.31−*x*)PZ-0.39PT ceramic sintered at different temperatures

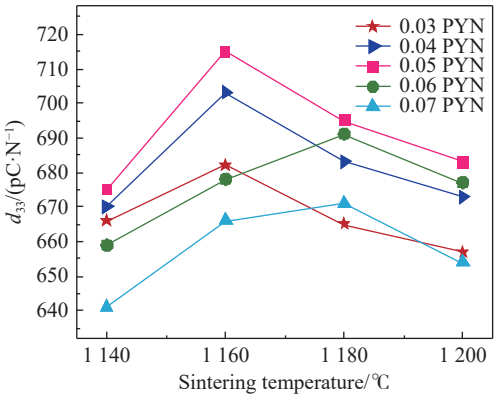


图 4　不同 PYN 比例的 0.3PNN-*x*PYN-(0.31−*x*)PZ-0.39PT 四元陶瓷的压电系数随烧结温度的变化曲线

Fig. 4　The piezoelectric coefficient d_{33} of 0.3PNN-*x*PYN-(0.31−*x*)PZ-0.39PT ceramic

得更优异的压电性能。

图 4 展示了 *x*PYN 陶瓷的压电系数(d_{33})测试结果，PYN 比例对陶瓷的 d_{33} 具有显著影响。结果表明，随着 PYN 比例的增加，d_{33} 先增大后减小；其中，PYN 含量为 0.05 的陶瓷在各烧结温度下均表现出最优的 d_{33}，这与结构表征结果一致。对比不同烧结温度下的 *x*PYN 陶瓷，各样品的 d_{33} 并未与密度完全呈正相关。例如，1200 ℃ 烧结的 x=0.07 样品密度高于 x=0.03 样品，但其 d_{33} 却低于后者。这是由

于陶瓷的压电性能不仅受密度影响, 还受成分调控: 大尺寸离子的引入占据八面体空位, 削弱了电场作用下正负电荷中心的偏移程度, 从而降低压电效应。换言之, 压电陶瓷的性能由成分与微观结构协同决定。x=0.05 的陶瓷兼具适宜的 PYN 含量和五个样品中最均匀致密的内部结构, 使其在电场作用下正负电荷中心偏移程度最大, 电畴翻转更为顺畅, 因而展现出最佳压电性能。其中, 1 160 ℃ 烧结的 x=0.05 样品获得所有样品中的最大 d_{33}(715 pC·N^{-1})。图 5 所示的机电耦合系数(k_p)和介电常数(ε_r)曲线亦呈现与 d_{33} 正相关的变化趋势, 而机械品质因数(Q_m)则呈负相关变化。上述现象表明, PYN 比例对陶瓷电性能的影响呈先增强后减弱的非单调关系。然而, PYN 比例变化对室温介电损耗(tanδ)影响较小, 介电损耗始终维持在较低的 0.016～0.020 范围内。

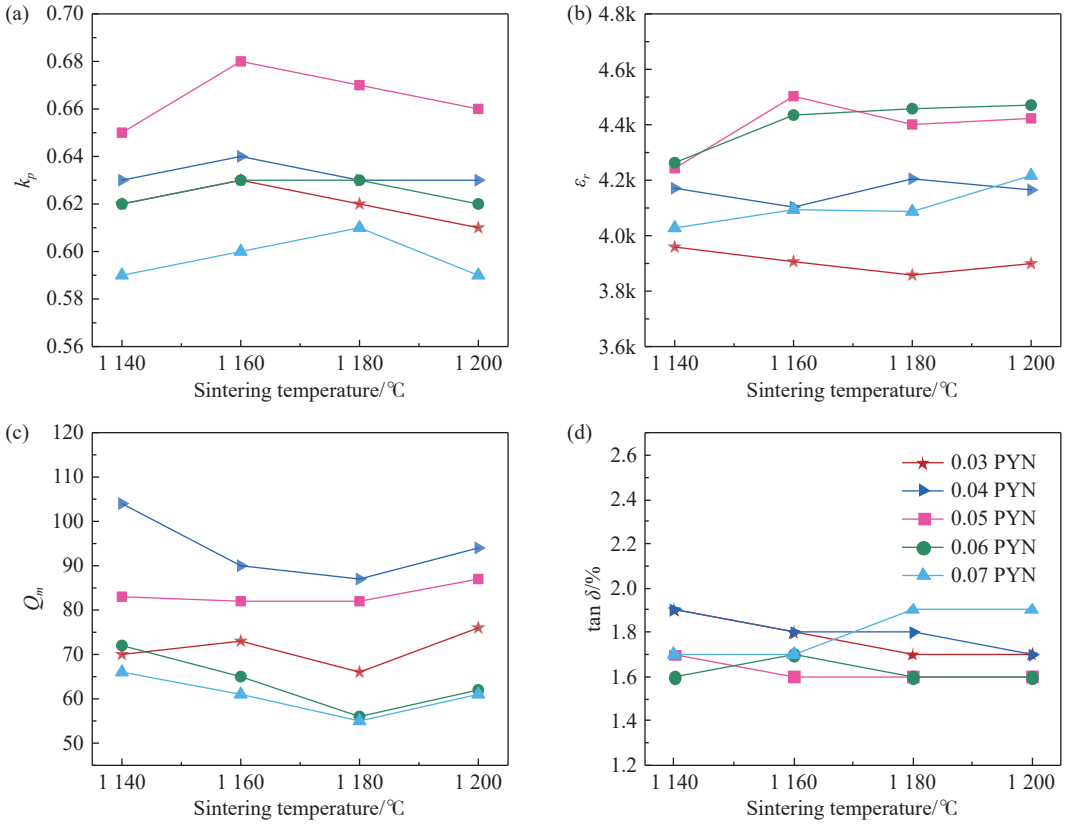
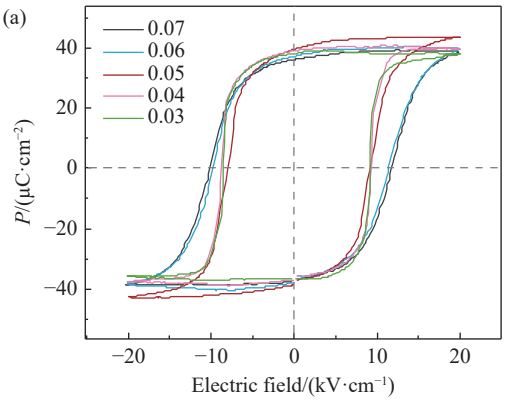


图 5　0.3PNN-xPYN-(0.31−x)PZ-0.39PT 陶瓷电学性能随温度的变化曲线。(a)k_p; (b)ε_r; (c)Q_m; (d)tanδ

Fig. 5 The temperature dependence of electric properties in the 0.3PNN-xPYN-(0.31−x)PZ-0.39PT quaternary ceramic. (a) k_p; (b) ε_r; (c) Q_m; (d) tanδ

图 6(a)显示了室温下测试的 5 个样品的电滞回线, 均呈现出饱满的环形曲线, 这反映了典型的铁电特性。图 6(b)显示, 随着 PYN 比例的增加, 剩余极化强度(P_r)由 37.29 μC·cm^{-2} 增大至 39.07 μC·cm^{-2}, 随后减小至 36.72 μC·cm^{-2}; 矫顽场(E_c)则呈现相反的变化趋势, 由 9.06 kV·cm^{-1} 减小至 8.53 kV·cm^{-1}, 随后增大至 11.04 kV·cm^{-1}。较小的 E_c 意味着陶瓷可在更小的电场下被充分极化, 而较大的 P_r 表明极化后的陶瓷具有更高的压电性能。值得注意的是, x=0.05 的样品具有最大的 P_r 和最小的 E_c, 这与



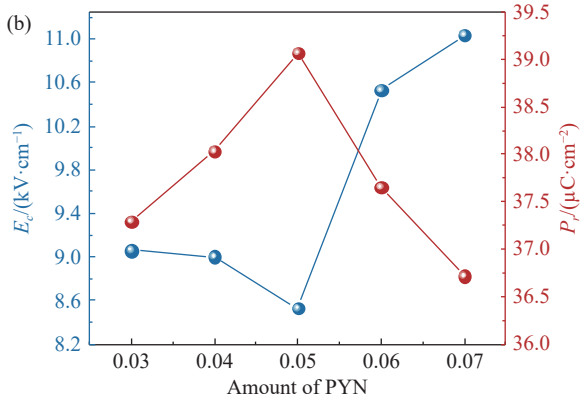


图 6　xPYN-(0.31−x)PZ-0.39PT 四元陶瓷。(a)电滞回线;(b)剩余极化强度与矫顽场随 PYN 比例的变化曲线

Fig. 6 Hysteresis loops of 0.3PNN-xPYN-(0.31−x)PZ-0.39PT ceramic under an electric field of 20 kV·cm^{-1}. (a) Hysteresis loops; (b) remnant polarization (P_r) and coercive field (E_c) as a function of the PYN content

d_{33} 随 PYN 比例变化的趋势一致,表明 PYN 比例的变化影响陶瓷的极化程度及其难易程度,从而调控其压电性能。

图 7 显示了样品在不同频率下测试的介-温(ε_r-T)曲线。5 个样品的介电常数和损耗随温度(T)的变化趋势相似。所有 ε_r-T 曲线均在居里温度(T_C)前出现 ε_r 的急剧上升,并在 T_C 后迅速下降,且仅在 T_C 处出现一个明显的介电峰,该峰值对应的温度标志着陶瓷从铁电相向顺电相的转变。仔细观察可见,PYN 比例的增加使 T_C 升高,这归因于 PYN 含量增加导致 PZ 含量减少,而 PYN 的居里温度(300 ℃)高于 PZ(230 ℃)。但由于取代量较少,该影响并不显著。对比不同测试频率下的曲线可知,ε_r 峰值随测试频率的增大而减小,但介电峰形状相似,未发生展宽或偏移,表明陶瓷具有典型的弥散相变特征,而无明显弛豫行为[16]。对 5 个样品的 tanδ-T 曲线的分析表明,在 T_C 以下,tanδ 值始终小于 0.02,曲线呈近似水平,说明 xPYN 陶瓷的损耗主要源于电场作用下电畴及畴壁的运动,此时陶瓷结构稳定,压电性能可靠[17]。当温度达到 T_C 时,陶瓷由铁电相转变为顺电相,电畴与畴壁发生剧烈运动,导致损耗出现微小变化,表明在高温区间畴壁运动对损耗存在一定影响,但作用较弱[18]。随着温度继续升高,tanδ-T 曲线(尤其在 1 kHz 时)显示出 tanδ 的显著增大,这是由于温度升高大幅提升了载流子迁移率,从而引起陶瓷漏电流显著增加[18]。过大的损耗将导致严重发热,最终引发样品击穿失效。不同 PYN 比例样品的 tanδ 随温度升高的增幅存在差异:在 390 ℃ 时,随 x 增大,tanδ 由 x=0.03 时的 4.16% 降低至 x=0.07 时的 1.35%,表明增加 PYN 比例有助于降低 xPYN 陶瓷在高温环境下的漏电

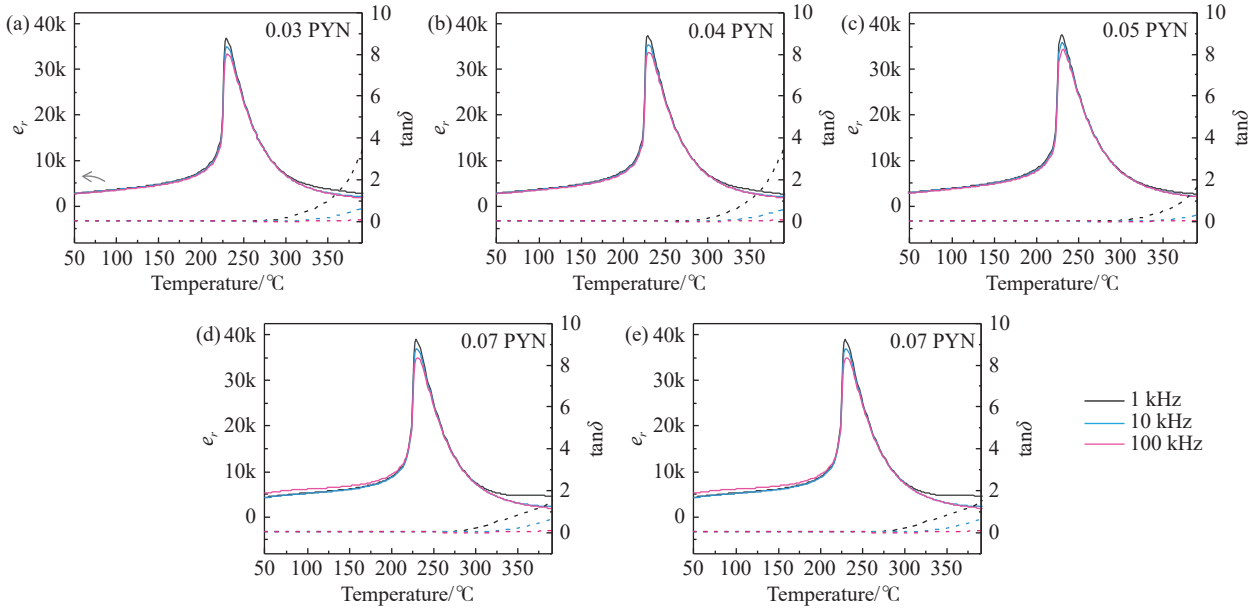


图 7　不同频率下测试的 0.3PNN-xPYN-(0.31−x)PZ-0.39PT 四元陶瓷的介电常数与介电损耗随温度变化的曲线。(a)x=0.03;(b)x=0.04;(c)x=0.05;(d)x=0.06;(e)x=0.07

Fig. 7 The dielectric-temperature curves and dielectric loss-temperature curves of 0.3PNN-xPYN-(0.31−x)PZ-0.39PT ceramic measured at different frequencies. (a) x = 0.03; (b) x = 0.04; (c) x = 0.05; (d) x = 0.06; (e) x = 0.07

流, 从而提升其稳定性和可靠性。值得注意的是, 在 T_C 至约 300 ℃ 的温度区间内, 损耗仍维持在较低水平, 表明 *x*PYN 陶瓷在居里温度以上虽因相变丧失压电性, 但仍存在一段“性能安全窗口”, 可有效避免因发热而立即发生击穿失效。

为深入探究 PYN 比例对 *x*PYN 陶瓷性能的影响, 并评估其在压电驱动器中的应用潜力, 对样品的电致应变进行了测试。压电陶瓷的应变主要源于电场作用下晶胞内离子相对位移所引起的晶格畸变, 以及电畴转向或畴壁运动。

引起的形状变化。图 8(a)显示了 *x*PYN 陶瓷在外电场(20 kV·cm^{-1})下的单极电致应变曲线(*S*-*E* 曲线)。所有样品均呈现典型的 *S*-*E* 曲线特征, 单极应变均大于 0.10%, 表明在电场作用下, *x*PYN 陶瓷中发生了显著的晶格或电畴运动。对比不同组分在 1160 ℃ 烧结 2 h 的样品, 陶瓷的单极应变先增大后减小; 其中 *x*=0.05 的样品具有最大单极应变 *S*=0.144%。压电陶瓷的有效压电系数(d^*_{33})根据式(1)计算:

$$d^*_{33} = \frac{S_{max}}{E_{max}} \tag{1}$$

式中, S_{max} 为单极应变, E_{max} 为施加的电场强度。计算结果(图 8(b))表明, 在相同电场下, 陶瓷的 d^*_{33} 变化趋势与压电性能随 PYN 比例变化的趋势一致, 即随着 PYN 含量的增加, d^*_{33} 先增大后减小。*x*=0.07 的样品因晶格畸变、气孔等结构缺陷导致电畴运动受限, 表现出明显的应变降低。当 *x*=0.05 时, 样品获得最大 d^*_{33} 值, 达 780 pm·V^{-1}。优异的电致应变与压电性能充分展现了 *x*PYN 陶瓷在压电驱动器中的应用潜力。

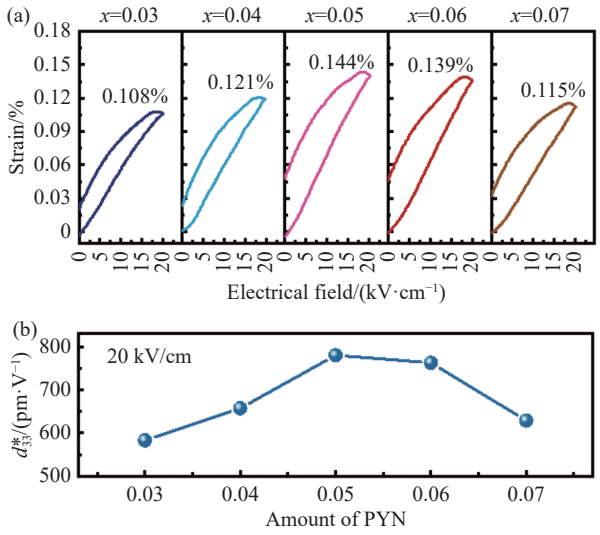


图 8　不同 PYN 含量的 0.3PNN-*x*PYN-(0.31−*x*)PZ-0.39PT 陶瓷在 20 kV/cm 电场下的电致应变结果。(a)单极应变曲线; (b)有效压电系数(d^*_{33})

Fig. 8 Electrically induced strain results of 0.3PNN-*x*PYN-(0.31−*x*)PZ-0.39PT ceramics with varying PYN contents under a 20 kV/cm electric field. (a) Unipolar strain hysteresis curves; (b) inverse piezoelectric coefficient (d^*_{33})

3　结论

本研究采用固相合成法制备了 0.30PNN-*x*PYN-(0.31-*x*)PZ-0.39PT 陶瓷(*x*=0.03、0.04、0.05、0.06、0.07), 系统研究了 PYN 含量对陶瓷微观结构及其压电、介电与铁电性能的影响。结果表明, 所有组分的 0.30PNN-*x*PYN-(0.31-*x*)PZ-0.39PT 陶瓷均呈现纯钙钛矿结构, 且随着 PYN 含量的微量增加, 晶粒尺寸增大, 致密度提高。电学性能测试显示, 介电、压电及铁电性能均呈现先增强后减弱的非单调变化趋势; 当 *x*=0.05 时, 陶瓷表现出最优综合性能(d_{33}=715 pC·N^{-1}、k_p=0.68、P_r=39.07 μC·cm^{-2}, d^*_{33}=780 pm·V^{-1}, 以及最大电致应变 *S*=0.144%)。此外, 介电损耗随温度的变化结果表明, PYN 的引入有助于降低陶瓷的漏电流, 并提升其高温可靠性。

参考文献:

[1] Jaffe B, Roth R S, Marzullo S. Piezoelectric properties of lead zirconate-lead titanate solid-solution ceramics[J]. Journal of Applied Physics, 1954, 25(6): 809-810.

[2] Hennig E. Piezoelectric ceramics and their applications for actuators[J]. Boletín de la Sociedad Españ ola de Cerámica y Vidrio, 1998, 37(2/3): 167-171.

[3] King T G, Preston M E, Murphy B J M, et al. Piezoelectric ceramic actuators: a review of machinery applications[J]. Precision Engineering, 1990, 12(3): 131-136.

[4] Cho S W, Na Y H, Baik J M, et al. Texture-controlled electrostain response in PNN-PZT multilayer piezoelectric ceramic actuators enabled by asymmetric stacking strategy[J]. Journal of the European Ceramic Society, 2025, 45(15): 117614.

[5] Zhang Jianbo, Liu Hui, Sun Shengdong, et al. Crystal structure and actuation mechanisms in morphotropic phase boundary $Pb(Zn_{1/3}Nb_{2/3})O_3$-$Pb(Zr_{1/2}Ti_{1/2})O_3$ piezoelectric ceramic[J]. Journal of the American Ceramic Society, 2021, 104(6): 2621-

2627.

[6] Gao Xiangyu, Jin Haonan, Xin Benjian, et al. Low temperature sintering of Li_2CO_3 added $Pb(Ni_{1/3}Nb_{2/3})$-Pb(Zr, Ti)O_3 ceramics with high piezoelectric properties[J]. Journal of Alloys and Compounds, 2022, 892: 162132.

[7] Zhou Xuyang, Wu Shuang, Wang Xiaoxu, et al. Review on piezoelectric actuators: materials, classifications, applications, and recent trends[J]. Frontiers of Mechanical Engineering, 2024, 19: 6.

[8] Cao Ruijuan, Li Guorong, Zeng Jiangtao, et al. The piezoelectric and dielectric properties of $0.3Pb(Ni_{1/3}Nb_{2/3})O_3$-$x$PbTi$O_3$-(0.7-$x$)PbZr$O_3$Ferroelectric ceramics near the morphotropic phase boundary[J]. Journal of the American Ceramic Society, 2010, 93(3): 737-741.

[9] Guo Feifei, Zhang Shaokun, Long Wei, et al. SnO_2 modified PNN-PZT ceramics with ultra-high piezoelectric and dielectric properties[J]. Ceramics International, 2022, 48(16): 23241-23248.

[10] Yoo J. Dielectric and piezoelectric properties of low temperature sintering PMW-PNN-PZT ceramics doped with CuO and Bi for duplex ultrasonic sensor[J]. Ferroelectrics Letters Section, 2015, 43(4-6): 120-126.

[11] Yan Yangxi, Li Zhimin, Xia Yushun, et al. Ultra-high piezoelectric and dielectric properties of low-temperature-sintered lead hafnium titanate-lead niobium nickelate ceramics[J]. Ceramics International, 2020, 46(4): 5448-5453.

[12] Qin Yue, Liu Wenbin, Ding Yi, et al. Enhanced electromechanical response in Dy^{3+}-doped PNN-PZT relaxor ferroelectrics[J]. Nanoscale, 2025, 17(17): 10685-10696.

[13] Qin Haonan, Yang Yixin, Chen Zhiwen, et al. High AC field-induced polarization switching unraveled in frequency domain: enhanced dielectric responses in lanthanum-doped $Pb(Ni_{1/3}Nb_{2/3})O_3$-Pb(Zr, Ti)O_3 relaxor-ferroelectrics[J]. Applied Physics Letters, 2025, 126(2): 022903.

[14] Liu Xin, Ren Xiaodan, Tang Mingyang, et al. Superior temperature stability of electromechanical properties and resonant frequency in PYN-PZT piezoelectric ceramics[J]. Journal of the European Ceramic Society, 2024, 44(2): 873-881.

[15] Liang Shujie, Zhang Yongli, Dong Xinpei, et al. Enhanced piezoelectric properties of $Pb(Ni_{1/3}Nb_{2/3})O_3$-$Pb(Yb_{1/2}Nb_{1/2})O_3$-Pb(Zr, Ti)O_3 ceramics by the design of multiphase coexistence[J]. Journal of the European Ceramic Society, 2026, 46(5): 118044.

[16] Wang Qian, Bian Lang, He Shuai, et al. Morphotropic phase boundary composition PNN-PZT ceramics and their outstanding electromechanical properties[J]. Journal of Alloys and Compounds, 2024, 1002: 175249.

[17] Bian Lang, Wang Qian, Qi Xudong, et al. Improved electromechanical properties of $Pb(Ni_{1/3}Nb_{2/3})O_3$-PbZrO3-$PbTiO_3$ ferroelectric ceramics *via* Sm-modification[J]. Ceramics International, 2024, 50(3): 5739-5745.

[18] Zhang Yewen, Liu Xin, Tang Mingyang, et al. Simultaneously achieving large piezoelectricity, high Curie temperature and high resistivity in niobium-doped PYN-PZT piezoelectric ceramics[J]. Ceramics International, 2025, 51(18): 25211-25217.