

# 액상천이공정에 의한 PZTN의 저온소결에 관한 연구

論文

50C - 12 - 1

## Low Temperature Sintering of PZTN by the Liquid Phase Transient Processing

金 燦 泳\*  
(Chan Young Kim)

**Abstract** – Transient liquid phase processing was investigated to decrease processing temperatures while maintaining useful piezoelectric properties in the lead zirconate titanate (PZT) system. Niobium oxide( $Nb_2O_5$ ) modified crystalline PZT (PZTN) powder was combined with lead silicate (PS;  $PbO-SiO_2$ ) glass powder and crystalline titania, zirconia, and niobia. Firing above the melting temperature of the lead silicate (PS;  $T_m \approx 714^\circ C$ ) resulted in liquid phase densification of the PZTN followed by dissolution of the titania, zirconia, and niobia into the liquid phase, and crystallization of additional PZTN. The addition of crystalline titania, zirconia, and niobia to react with the lead oxide from the lead silicate phase resulted in an increase in the dielectric and piezoelectric properties.

**Key Words** : PZT, Transient liquid phase processing, Piezoelectric properties, Densification, Crystallization

### 1. 서 론

PZT는 액츄에이터, 센서, 필터, 트랜스듀서 등에 사용되는 다결정 압전 세라믹 재료로써 광범위하게 활용되고 있다. 그러나 PZT는 소결온도가  $1,200^\circ C$  이상으로 높기 때문에, 소결 중에 산화납( $PbO$ )이 회발되어 환경문제를 야기할 수 있고, 성분 함량이 변화되어 전기적 특성에 영향을 미칠 수 있으며, 다층 압전체에는 고가의 전극재료를 사용하여야 한다. 따라서 소결온도를 낮추기 위한 많은 연구가 진행되어 왔다. 소결온도를 낮추기 위한 방법으로는 PZT에 용융점이 낮은 글래스[1,2,3] 또는 산화물[4,5,6,7]을 첨가하는 방법, 글래스-세라믹 파우더 공정[8,9,10,11,12], 졸-겔 법에 의한 방법[13,14], 핫 프레스 소결[15], 양이온 대체[16,17] 등이 있다. 이 논문에서는 PZT 계의 공정온도를 낮추면서 우수한 전기적 특성을 유지하기 위한 방법으로 액상천이공정을 제시하였고, 액상천이공정으로 제작된 PZTN을 액상공정과 전통적인 공정으로 제작된 PZTN과 비교하여 분석하였다.

### 2. 조성 및 실험방법

#### 2.1 조성

실험을 위하여 표 1과 같이 조성 1, 2, 3을 준비하였다. 조성 1은  $0.5\%[wt. \text{ }]$ 의  $Nb_2O_5$ 가 추가된 PZT이고, 조성 2는 액상 공정을 위하여 조성 1에 PS 글래스를 첨가한 것이고, 조성 3은 액상천이공정을 위하여 조성 1에 PS 글래스와 결정 첨가

물( $TiO_2$ ,  $ZrO_2$ ,  $Nb_2O_5$ )을 넣은 것이다. 표 1에서 조성 2와 조성 3의 체적비는 각 혼합물의 중량비와 밀도로 계산하였다.

**표 1. 하소된 PZTN, PS 클래스, 결정 첨가물에 기초한 조성 1, 2, 3(중량%/체적%)**

**Table 1. Compositions 1, 2, 3 based on calcined PZTN, PS Glass, and crystalline filler contents(wt.%/vol.%)**

Composition Contents Composition	Calcined PZTN	PS Glass	Crystalline Fillers		
			$ZrO_2$	$TiO_2$	$Nb_2O_5$
comp. 1	100/100	-	-	-	-
comp. 2	71.4/70.5	28.6/29.5	-	-	-
comp. 3	71.4/67.5	20.6/19.8	5.4/7.0	3.1/5.5	0.1/0.2

하소된 PZTN은  $1.0PbO$ ,  $0.47TiO_2$ ,  $0.53ZrO_2$ ,  $0.005Nb_2O_5$  산화물을 혼합하고 하소 및 소결하여 준비하였다. 이 PZTN 조성은 T. Yamamoto[18]에 의하여 연구되었고,  $Pb(Zr_{0.53}Ti_{0.47})O_3$ 에 첨가된  $0.5\%[wt. \text{ }]$  몰비의  $Nb_2O_5$ 는 PZT 입자의 성장을 억제하고 전기저항을 증가시키는 것으로 알려져 있다.  $Zr^{4+}$ 와  $Ti^{4+}$ 를 대체하는  $Nb^{5+}$ 의 도핑은 PZT의 구조를 부드럽게 하여 도메인 벽의 움직임을 크게 하여 유전특성과 압전특성을 향상시킨다.

PS 클래스는 액상공정(조성 2)과 액상천이공정(조성 3)을 위하여 준비하였다. PS 클래스는  $91.8[wt. \text{ } \%]$ 의  $PbO$ 와  $8.2[wt. \text{ } \%]$ 의  $SiO_2$ 로써, 그림 1에 화살표로 표시되어 있다. PS 클래스 조성은  $PbO-SiO_2$  계에서 가장 낮은 용융온도

\* 正會員 : 又石大 半導體電氣自動車工學部 專任講師

接受日字 : 2001年 9月 4日

最終完了 : 2001年 10月 15日

(714[°C])를 갖으면서, 큰 PbO 함량을 갖기 때문에 선택되었다.

조성 2는 28.6[wt. %]의 PS 클래스와 71.4[wt. %]의 하소된 PZTN으로 구성되어 있다. 소결온도가 PS 클래스의 용융온도 이상으로 올라가면, PS 클래스가 용융되어 액상공정에 의하여 PZTN의 소결을 돋는다.

조성 3은 조성 2에 첨가되는 PS 클래스의 일부를 결정첨가물( $TiO_2$ ,  $ZrO_2$ ,  $Nb_2O_5$ )로 대체하여 만들었다. 조성 3의 PZTN 중량비는 조성 2와 같도록 유지하였고, 첨가된 결정들이 PS 클래스의 PbO와 반응하여 추가적인 PZTN이 생성되도록 한 액상천이공정을 위한 것이다. 조성 3의 PZTN 체적비는 조성 2에 비하여 작다. 따라서 만일 결정첨가물이 PbO와 반응하지 않는다면, 조성 3의 유전특성 및 압전특성은 조성 2보다 낮을 것이다.

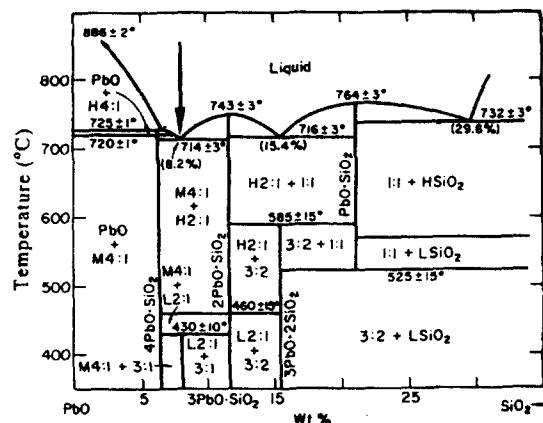


그림 1.  $PbO-SiO_2$  다이어그램(화살표는 PS 클래스 조성)

Fig. 1.  $PbO-SiO_2$  phase diagram(PS glass composition indicated by the arrow)[19]

## 2.2 실험방법

실험에 사용된  $Pb_3O_4$ (99%),  $TiO_2$ (99.9%),  $ZrO_2$ (99%),  $Nb_2O_5$ (99.9%)는 미국의 Aldrich사에서 그리고  $SiO_2$ (99.5%)는 Johnson Matthey사에서 구입해 사용하였다.

산화물은 폴리에틸렌 용기에서 직경 9.5[mm] 원통형 지르코늄 볼 4개와 증류수를 넣고 6시간 동안 혼합하였다. 혼합체를 건조하고 900[°C]에서 6시간 동안 뚜껑이 있는 알루미나 용기에서 하소하여 PZTN을 만들었다.

PS 클래스를 만들기 위한 산화물도 위와 같은 방법으로 혼합하였다. 혼합체는 뚜껑이 있는 10[%] 로듐(rhodium)이 함유된 백금도가니에 넣고 900[°C]의 전기로에 직접 넣어 20분 동안 용융시켰다. 용융체를 클래스로 만들기 위하여 트윈롤러를 사용하여 굽냉해 클래스 리본 만들었다. 클래스 리본을 폴리에틸렌 용기에 증류수와 지르코늄 볼을 넣고 24시간 동안 분쇄하여 325 mesh를 통과시켜 45[ $\mu m$ ]의 PS 클래스 분말을 만들었다.

실험은 그림 2의 실험절차를 따라 수행하였다. PZTN, PS 클래스 그리고 결정첨가물을 바인더인 폴리에틸렌 글리콜(PEG; 8000 Flake NF, Union Carbide, 2 wt. [%])과 혼합하여

건조하였다. 분말을 직경 10[mm], 두께 1~2[mm]의 디스크로 성형하고, 분당 2[°C]씩 500[°C]까지 상승시켜, 이 온도에서 1시간 동안 유지하여 바인더를 제거하였다. 디스크 형태의 샘플을 뚜껑이 있는 알루미늄 도가니내의 백금판 위에 놓았다. 전기로 내를 PbO 분위기로 유지하기 위하여 5 [wt. %] PbO가 추가된 PbO-ZrO<sub>2</sub> 분말 혼합체를 도가니 안에 별도로 넣은 다음 분당 10[°C]의 승온속도로 900, 1,000, 1,100, 1,200[°C]에서 소결하였다.

분극은 실리콘 오일(Dow Corning 200 Fluid, product # 63,148,629)을 100[°C]와 30[°C]로 유지시킨 용기에서 각각 5분씩 직류전압을 인가해 수행하였다. 조성 1은 낮은 절연파괴 전압을 갖고 있기 때문에 인가전계를 25[kV/cm]로 하였으며, 상대적으로 높은 절연파괴 전압을 가진 조성 2와 3은 55[kV/cm]의 전계를 인가하였다.

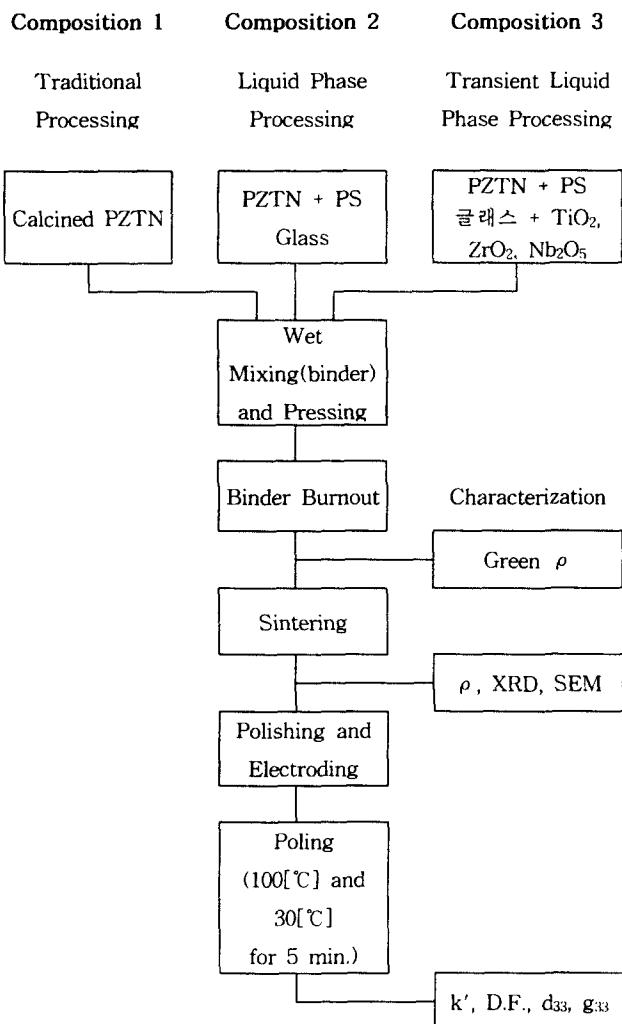


그림 2. 전통적인 공정, 액상공정, 액상천이공정의 실험 절차도

Fig. 2. Flow chart of the experimental procedure used to prepare and characterize the traditional, liquid phase, transitional liquid phase processes

### 3. 분석 및 고찰

준비된 시료의 밀도, 정성적 X-선 회절 분석, 정량적 분석, 미세구조분석, 전기적 특성 등을 평가하여, 전통적인 공정, 액상공정, 액상천이공정을 평가하고 결과에 대하여 고찰하였다.

#### 3.1 PZTN과 PS 글래스

##### 3.1.1 PZTN

900[°C]에서 6시간 동안 하소시켜 페로보스카이트 결정이 형성되도록 하였다. 그림 3에는 하소된 PZTN의 X-선 회절 패턴을 나타내고 있다. PZTN의 X-선 회절 패턴은 3방정과 정방정 결정의 피크가 모두 나타나 있다. 이것은 3방정과 정방정 결정이 함께 존재하는 것을 의미한다.

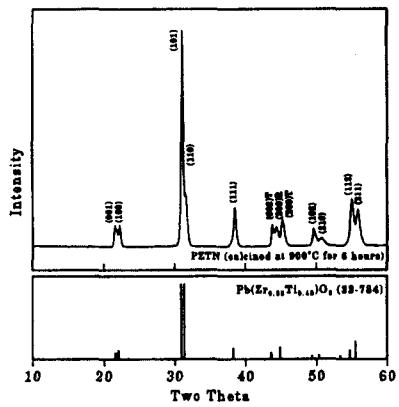


그림 3. 900[°C] 6시간 동안 하소된 PZTN의 X선 회절 패턴  
Fig. 3. The x-ray diffraction pattern of pervoskite PZTN phase calcined at 900[°C] for six hours.

##### 3.1.2 PS 글래스

PS 용융체를 롤러로 냉각한 리본과 이 리본을 분쇄한 분말의 X-선 회절 패턴은 그림 4와 같다. X-선 회절 패턴에서 와 같이 PS는 대부분 비정질상이고, 결정을 의미하는 피크가 관찰되었으나, 비정질상의 피크에 묻혀 있음으로 보아 단지 극소량의 결정이 생성된 것으로 판단된다. 따라서 대부분이 비정질상인 PS를 PS 글래스로 간주하였다.

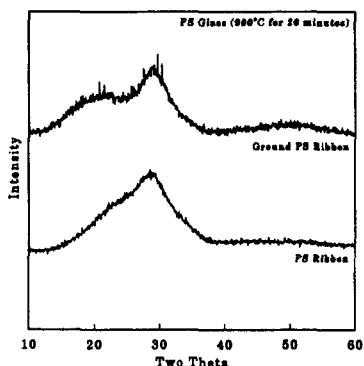


그림 4. PS 리본과 분말의 X선 회절 패턴

Fig. 4. X-ray diffraction patterns of the PS ribbon and ground PS ribbon

### 3.2 정성적 분석

#### 3.2.1 조성 1

1,100[°C]에서 소결된 조성 1의 X-선 회절 패턴은 그림 5와 같다. 조성 1의 X-선 회절 패턴은 JCPDS 카드 33-784와 일치함을 알 수 있다. 하소된 PZTN에서는 3방정과 정방정 결정이 함께 존재하였지만, 소결됨에 따라 3방정이 정방정 결정으로 바뀜을 알 수 있다.

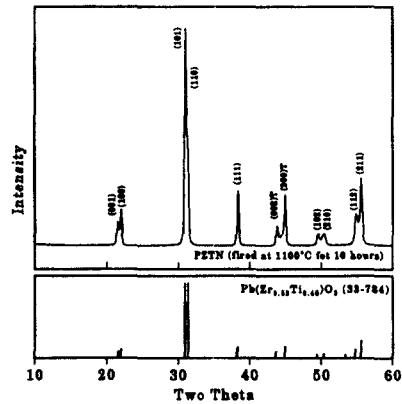


그림 5. 1,100[°C]에서 10시간 동안 소결된 조성 1의 X선 회절 패턴

Fig. 5. X-ray diffraction pattern of composition 1 fired at 1,100[°C] for ten hours

#### 3.2.2 조성 2

소결조건에 따른 조성 2의 X-선 회절 패턴을 그림 6에 나타냈다. 주요 상인 PZT의 밀러지수를 팔호 안에 표시하였고, Pb<sub>4</sub>SiO<sub>6</sub>, Pb<sub>2</sub>SiO<sub>4</sub> 상도 나타났다. Pb<sub>4</sub>SiO<sub>6</sub> 상은 PS 글래스에서 직접 결정화가 된 것으로 판단된다. 왜냐하면 PS 글래스의 용융온도는 714[°C]로써, 소결온도 500[°C]에서는 용융되지 않기 때문이다. 소결온도를 PS 글래스의 용융온도 이상으로 증가시키면, PS 글래스가 액상으로 되어 PZTN의 밀도를 증가시킨다. 냉각되면서 액상인 PS가 Pb<sub>2</sub>SiO<sub>4</sub> 상으로 결정화되었다.

그림 7은 조성 2의 (200) 피크를 자세히 관찰한 것이다. 그림에서와 같이 3방정과 정방정 결정의 피크가 함께 존재하는 것을 알 수 있다. 정방정 피크에 비하여 3방정 결정의 피크가 크게 나타났다. 이것은 상경계에서 3방정계 영역에 가깝다는 것을 의미한다.

#### 3.2.3 조성 3

그림 8에는 조성 3의 X-선 회절 패턴을 나타냈다. 주요 상은 역시 PZT 상이다. 500[°C]에서 바인더를 태운 후의 X-선 회절 패턴에서는 조성 3에 첨가된 산화물(TiO<sub>2</sub>, ZrO<sub>2</sub>)과 Pb<sub>4</sub>SiO<sub>6</sub> 상이 관찰되었다. 소결온도를 900[°C] 이상으로 하면 조성 2에서와 같이 PS 글래스가 액상으로 되고, 냉각시에 Pb<sub>2</sub>SiO<sub>4</sub> 상으로 결정화되었다. 첨가된 산화물 중에서 TiO<sub>2</sub>는 900[°C] 이상에서 모두 사라졌다. ZrO<sub>2</sub>는 900[°C]에서는 작은 피크가 관찰되었으나, 1,000[°C] 이상에서는 나타나지 않았다. 따라서 1,000[°C] 이상으로 소결하면 대부분의 TiO<sub>2</sub>, ZrO<sub>2</sub>, Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub>가 PbO와 반응하여 PZTN을 생성되므로서, 매우 적은

양의  $\text{Pb}_2\text{SiO}_4$  상만 남는 것으로 나타났다.

그림 9는 조성 3의 (200) 피크를 자세히 관찰한 것이다. 3 방정과 정방정 결정이 동시에 존재하지만 조성 2에 비하여 3 방정 결정의 피크가 작아졌음을 알 수 있다. 따라서 조성 3은 조성 2보다 조성 1의 X-선 회절 패턴에 유사하다는 것을 알 수 있다.

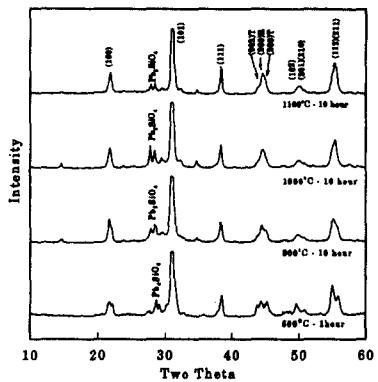


그림 6. 소결온도 변화에 따른 조성 2의 X-선 회절 패턴

Fig. 6. X-ray diffraction patterns of composition 2 as a function of sintering temperature

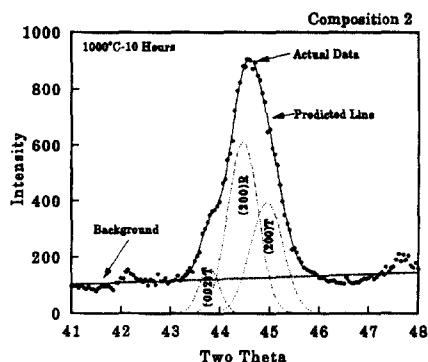


그림 7. 조성 2의 (200) 피크 분석

Fig. 7. Computer fitting of (200) peaks of the composition 2

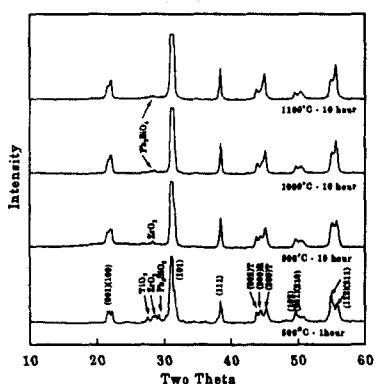


그림 8. 소결온도에 따른 조성 3의 X-선 회절 패턴

Fig. 8. X-ray diffraction patterns of composition 3 as a function of sintering temperature

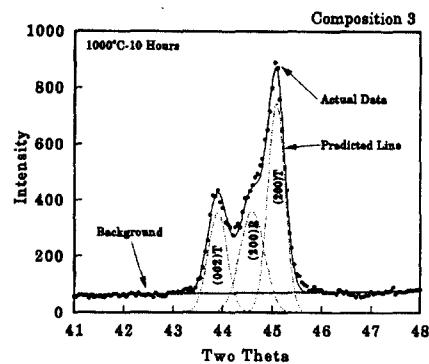


그림 9. 조성 3의 (200) 피크 분석

Fig. 9. Computer fitting of (200) peaks of the composition 3

### 3.3 결정 첨가물이 결정화에 미치는 영향

그림 10에는 조성 2와 조성 3의 X-선 회절 패턴을 PZT의 (111) 피크와 상대비교 하였다. 조성 3은 조성 2에 비하여  $\text{Pb}_2\text{SiO}_4$  상의 피크가 매우 작음을 알 수 있다. 또한 앞에서 설명하였던 것과 같이 PZT는 3방정에서 정방정으로 변화되었음을 알 수 있다. 이것은  $\text{TiO}_2$ ,  $\text{ZrO}_2$ ,  $\text{Nb}_2\text{O}_5$ 가 용융된 PS 클래스의  $\text{PbO}$ 와 반응하였기 때문인 것으로 판단된다.

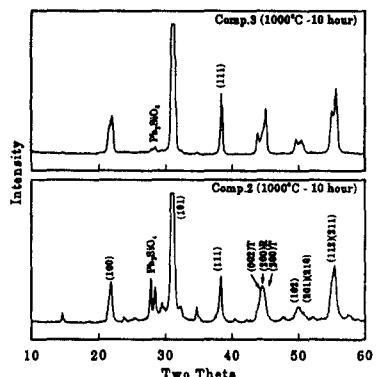


그림 10. 1,000[°C]에서 10시간 동안 소결된 조성 2와 3의 소수상에 관한 X-선 회절 패턴

Fig. 10. X-ray diffraction patterns of the minor phase of compositions 2 and 3 sintered at 1,000[°C] for 10 hours

### 3.4 정량적 분석

조성 2와 조성 3의 PZTN 함량을 Matrix-flushing 방법에 의하여 분석하였다[20]. 표 2는 조성 2와 3에 포함되어 있는 PZTN의 중량비를 나타냈다. PZTN의 중량비는 소결온도를 1,000[°C]에서 1,100[°C]로 증가시켰어도 거의 변화가 없는 것으로 나타났다. 이것은 온도를 증가시켜도 PZTN이 더 이상 증가될 수 없기 때문이다. 조성 2의 PZTN 중량비는 약 80[%], 조성 3은 약 90[%]로 나타났다. 표 1에서와 같이 초기의 PZTN의 중량비는 조성 2와 조성 3이 같고 심지어 체적비로 계산하였을 경우에는 조성 2가 오히려 많다. 그렇지만 정량분석 결과에 의하면 조성 3의 PZTN이 10[%] 이상

높은 것으로 나타났다. 이것은 결정 첨가물인  $TiO_2$ ,  $ZrO_2$ ,  $Nb_2O_5$ 가  $PbO$ 와 반응하여 새로운 PZTN을 형성하였기 때문임을 증명하고 있다.

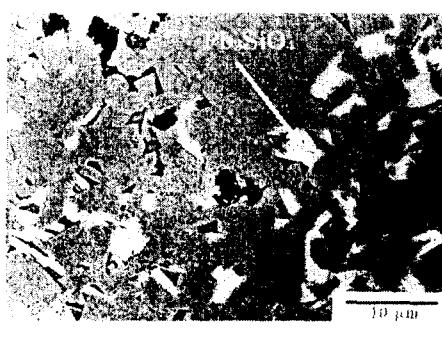
표 2. Matrix-flushing 방법에 의한 PZTN의 중량비

Table 2. Weight percentage of PZTN determined by the Matrix-flushing method

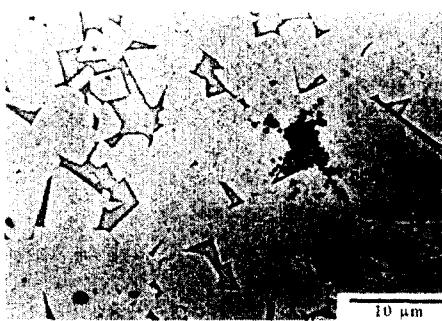
Weight Composition	Weight % of PZTN	
	1,000°C for 10 hours	1,100°C for 10 hours
Composition 2	80.2	78.4
Composition 3	91.3	90.7

### 3.5 미세구조 분석

그림 11은 1,100[°C]에서 소결된 조성 2와 3의 미세구조이다. 연마되고 삭각된 표면을 백 스캐터링 이미지로 분석한 결과 조성 2는 밝은 부분이 상당히 나타나고 있지만 조성 3에서는 거의 관찰되지 않았다. 여기서 조성 2에 포함된 밝은 부분은  $Pb_2SiO_4$  결정으로 확인되었다. 이것은 앞의 X-선 회절 분석에서 나타난 것과 같이 조성 2는  $Pb_2SiO_4$  결정 피크가 크게 관찰되었고 조성 3은 매우 적게 관찰된 결과와 일치하고 있다. 페로브스카이트 결정은 회색으로 나타나고 있으며 연마된 단면에는 입자의 형태가 3방정과 정방정 결정이 관찰되고 있다.



(b) Composition 2



(b) Composition 3

그림 11. 조성 2와 3의 백 스캐터링 이미지

Fig. 11. Back scattered image analyses of compositions 2 and 3

### 3.6 유전특성과 압전특성

이론적 밀도에 가까운 조성 1, 2, 3의 유전특성과 압전특성을 표 3에 나타냈다. 조성 1보다 300[°C] 낮은 900[°C]에서 소결된 조성 2의 유전상수는 조성 1의 약 30[%] 정도로 낮아졌고, 압전계수는 약 10[%]로 감소되었다.

조성 3에서는 액상천이공정을 위하여 첨가된 결정 첨가물로 인하여 소결온도를 1,000[°C] 이하로 낮추기는 어려웠다. 1,000[°C]에서 소결된 조성 3의 유전상수와 압전계수는 조성 2에 비하여 압전  $d_{33}$  계수는 3배,  $g_{33}$  전압계수는 약 2배가 증가되었다. 조성 1과 비교하면 200[°C] 낮은 온도에서 소결한 조성 3의  $g_{33}$  값은 PZTN의 약 80%를 나타내고 있다.

앞의 2.1절에서 설명하였던 바와 같이 조성 3에 첨가된 PZTN의 체적비는 오히려 조성 2에 비하여 작다. 따라서 조성 3의 유전특성 및 압전특성이 조성 2보다 낮아야 되지만 실제로는 조성 3의 유전특성 및 압전특성이 우수하였다. 이것은 조성 3에 압전특성을 가진 PZTN의 함량비가 많아야 가능하고, 정량분석 결과도 조성 3의 PZTN 함량이 큰 것으로 측정되었다. 따라서 이 논문에서 제시한 것과 같이 PS 글래스의  $PbO$ 와 산화 첨가물인  $TiO_2$ ,  $ZrO_2$ ,  $Nb_2O_5$ 가 결합하여 추가로 PZTN이 형성되는 액상천이공정이 진행됨을 의미한다.

### 표 3. 조성 1, 2, 3의 유전 및 압전 특성

Table 3. Dielectric and piezoelectric properties of compositions 1, 2, 3

Comp. and Firing Temp.(°C)	Comp. 1	Comp. 2		Comp. 3		
	Dielectric or Piezo. properties	1,200	900	1,000	1,100	1,000
Dielectric Constant(1 kHz)						
Before Poling	1,013	364	393	459	610	620
After Poling	1,537	358	402	490	658	699
Dissipation Factor(1 kHz)						
Before Poling(%)	1.6	2.0	2.2	2.2	2.1	2.0
After Poling(%)	1.4	1.9	2.1	2.2	1.7	1.9
Piezoelectric Coefficient						
$d_{33}(x 10^{-12} C/N)$	393	36	42	62	135	141
$g_{33}(x 10^{-3} Vm/N)$	29	11	12	14	23	23

### 4. 결 론

이 논문은 PZT계의 소결온도를 낮추기 위한 방법으로 액상천이공정을 제시하였고, 전통적인 제조방식과 액상공정을 비교함으로써, 액상천이공정의 유용성을 확인하였다.

전통적인 방식으로 제작된 PZTN을 1,200[°C]에서 소결하였을 경우에 이론적 밀도에 근접하였다. PZTN에 PS 글래스를 넣는 액상공정을 이용하면 소결온도를 낮출 수 있으나 유전특성 및 압전특성이 크게 저하되었다. 따라서 PZTN에 PS 글래스와 결정 첨가물을 동시에 넣는 액상천이공정을 활용하면 소결온도는 액상공정보다 약간 상승되지만 유전특성 및 압전특성은 액상공정보다 크게 증가하는 것으로 나타났다. 액상천이공정에서 전기적 특성이 향상되는 이유는 결정 첨가물인  $TiO_2$ ,  $ZrO_2$ ,  $Nb_2O_5$ 가 PS 글래스의  $PbO$ 와 반응하여 추

가적인 PZTN을 생성하였기 때문으로 판단된다. PZTN이 추가로 생성된 것은 Matrix-flushing 방법에 의한 정량분석 결과, X-선 회절 패턴, 미세구조 등으로 확인하였다.

이 연구에서 제시한 액상천이공정은 전통적인 공정에 비하여 소결온도를 낮추면서, 액상공정에 비하여 전기적 특성을 향상시키는 것으로 확인되었다. 따라서 액상천이공정은 소결온도를 낮추면서 전기적 특성을 어느 정도 유지하고 있기 때문에 전자재료 응용분야에 확대 적용될 수 있으리라 판단된다.

### 감사의 글

이 논문은 우석대학교 교내학술연구비 지원에 의하여 연구된 결과입니다.

### 참 고 문 현

- [1] Boen Hwang, Chan Young Kim, Michael J. Haun, "Densification, Crystallization, and Electrical Properties of Lead Zirconate Titanate Glass-Ceramics," IEEE Transactions on Ultrasonics, Ferroelectrics, and Frequency Control, Vol. 47, No. 4 July 2000.
- [2] S. Takahashi, "Sintering Pb(Zr,Ti)O<sub>3</sub> Ceramics at Low Temperature", Jpn. J. Appl. Phys., Vol. 19, No.4, pp 771-772, 1980.
- [3] L. Longts, D. Weiti, C. Jinghe, G. Zhilun, and Z. Xiaowen, "Lead Zirconate Titanate Ceramics and Monolithic Piezoelectric Transformer of Low firing Temperature", Ferroelectrics, Vol-101, pp. 193-200, 1990.
- [4] D. E. Wittmer and R. C. Buchanan, "Low -Temperature Densification of Lead Zirconate Titanate with Vanadium Pentoxide Additive", J. Am. Ceram. Soc., 64[8], pp. 485-490, 1981.
- [5] G. Zhilun, L. Longtu, G. Suhua, and Z. Xiaowen, "Low-Temperature Sintering of Lead-Based Piezoelectric Ceramics", J. Am. Ceram. Soc., 70[3], pp. 486-492, 1989.
- [6] G. Zhilun, L. Longtu, L. Hongqing, and Z. Xiaowen, "Low Temperature Sintering of Lead Magnesium Nickel Niobate Zirconate Titanate (PMN-PNN-PZT) Piezoelectric Ceramic with high Performances", Ferroelectrics, Vol-101, pp. 93-99, 1990.
- [7] D. Dong, M. Xinog, K. Murakami, and S. Kaneko, "Lowing of Sintering Temperature of Pb(Zr,Ti)O<sub>3</sub> Ceramics by the Addition of BiFeO<sub>3</sub> and Ba(Cu<sub>0.5</sub>W<sub>0.5</sub>)O<sub>3</sub>", Ferroelectrics 145, pp.125-133, 1993.
- [8] M.J.Haun, B.Houng, C.Y.Kim, and Y.D.Kim, "Piezo electric Lead Zirconate Titanate Glass-Ceramics," Proceedings of the Seventh US-Japan Seminar on Dielectric and Piezoelectric Ceramics, Tsukuba, Japan, Nov. 14-17, pp.161-164 (1995).
- [9] M.J.Haun, C.Y.Kim, R.E.Chinn, D.B.Price, M.W. Krutyholowa, and N.W.Chen, "Transient Glass Phase Processing of Alkaline-Earth Aluminosilicate Phases," The Ceramic Microstructures '96, University of California, Berkeley, California, June 24-27 (1996).
- [10] W. K. Park and M. Tamane, "Glass-Ceramics of the System Pb(Zr<sub>0.5</sub>Ti<sub>0.5</sub>)O<sub>3</sub>-GeO<sub>2</sub>", Glastech. Ber., 62, pp. 187-189, 1989.
- [11] R. J. Brandmayr and S. DiVita, "Method of Processing Ferroelectric Devitrifiable Glass Ceramics", U.S. Patent No. 3,862,829, Jan. 28, 1975.
- [12] B. Hong and M. J. Haun, "Lead Titanate and Lead Zirconate Titanate Piezoelectric Glass-Ceramics", Ferroelctrics, 154, pp. 107-112, 1994.
- [13] K. D. Budd, S. K. Dey and D. A. Payne, "Sol-gel Processing of PbTiO<sub>3</sub>, PbZrO<sub>3</sub>, PZT, and PLZT thin films", British Ceramic Proceedings, 36, pp. 107-121, 1985.
- [14] W. H. Gemmill, "Sol-gel Drived PZT with Additions of Silica and Lead Silicate", M. S. Thesis, Colorado School of Mines, Golden Colorado, 1996.
- [15] N. D. Patel and P. S. Nicholson, "Comparison of Piezoelectric Properties of Hot-Pressed and Sintered PZT", Am. Ceram. Soc. Bull., 65 [5] pp783-787, 1986.
- [16] P. G. Lucuta, F. Constantinescu, and D. Barb, "Structural Dependence on Sintering Temperature of Lead Zirconate Titanate Solid Solutions", J. Am. Ceram. Soc., 68[10], pp. 533-537, 1985.
- [17] R. B. Atkin, R. L. Holman, and R. M. Fulrath, "Substitution of Bi and Nb Ions in Lead Zirconate Titanate", J. Am. Ceram. Soc., 54[2], pp 113-115, 1971.
- [18] T. Yamamoto, "Optimum Preparation Methods for Piezoelectric Ceramics and Their Evaluation", Ceramic Bulletin, Vol. 71, No. 6, pp. 978-985, 1992.
- [19] Ernest M. Levin and Howard F. McMurdie, "Phase Diagrams for Ceramists", 1975 Supplement, Complied at the National Bureau of Standards, The American Ceramic Society, INC. Figure 4353, 1975.
- [20] F. H. Chung, "Quantitative Interpretation of X-ray Diffraction Patterns of Mixtures. I. Matrix-Flushing Method for Quantitative Multicomponent Analysis", J. Appl. Cryst., 7, PP. 519-525, 1974.

### 저 자 소 개



김 찬 영 (金 燦 泳)

1962년 9월 6일 생. 1989년 인하대 공대 전 기공학과 졸업. 1994년 미국 Colorado School of Mines 재료공학 졸업(석사). 1997년 동 대학원 재료공학 졸업(공박). 1997년-2001년 한전 전력연구원 선임연구원. 2001.3~현재 : 우석대 반도체전기자동차공학부 전임강사  
Tel : 063-290-1695  
E-mail : kimcy@woosuk.ac.kr