

Softener 및 Hardener 동시 첨가가 PZT 압전세라믹에 미치는 영향

이연종* · 김윤해* · 이병우*

*한국해양대학교 조선기자재공학부

Effects of Softener and Hardener Co-doping on Properties of PZT Piezoelectric Ceramics

Eon Jong Lee*, Yun Hae Kim* and Byeong Woo Lee*

*Department of Marine Equipment Engineering, Korea Maritime University, Busan, Korea

KEY WORDS: PZT ceramic PZT 세라믹, Piezoelectrics 압전체, Co-doping 동시 도우핑, Dopants 도우핀즈

ABSTRACT: The effects of co-doping with complex dopants of softeners, La^{+3} and/or Nb^{+5} , and a hardener, Fe^{+3} , on the microstructural and piezoelectric properties of PZT ceramics with a composition of a rhombohedral-tetragonal morphotropic phase boundary, $PbZr_{0.53}Ti_{0.47}O_3$, were investigated. Unlike single-element doping, the complex doping of both the softener and hardener ions led to various compensation effects for the piezoelectric properties of the PZT ceramics. For 0.5 wt.% La_2O_3 softener and/or 0.5 wt.% Nb_2O_5 doped compositions, there were apparent hardener doping (compensation) effects for an addition of over 1.0 wt.% Fe_2O_3 . For the La_2O_3 and/or Nb_2O_5 doped composition, the co-dopant Fe_2O_3 addition led to lower k_p and ϵ_r , and increased Q_m values. The prepared PZT ceramics modified with complex soft dopants, La^{+3} and Nb^{+5} , as well as a hard dopant, Fe^{+3} , showed that the piezoelectric properties were stable with the compositional variations, which made it possible to establish piezoelectric performances with higher reliability and reproducibility. The most improved piezoelectric properties of enhanced Q_m with ϵ_r remaining higher k_p , were obtained in the PZT composition complexly doped with La^{+3} and Fe^{+3} . From the results obtained in this study, the properties of compositionally modified PZT ceramics can also be tailored over a wider range by changing the dopant compositions to meet the specific requirements for underwater or other applications.

1. 서 론

최근 수중에서 음향을 이용한 통신이나 어군 또는 잠수함 탐지 등을 위한 소나(SONAR, Sound navigation and ranging) 등에 관한 관심이 높아지고 있으며, 보다 효율이 뛰어난 수중음향 소재를 개발하기 위한 노력이 진행 중이다. 이러한 수중 음향학적 응용을 위한 압전 액츄에이터(Actuator) 혹은 센서(Sensor)로는 PZT($PbZr_xTi_{1-x}O_3$)계 세라믹이 가장 널리 응용되고 있다. PZT는 ABO_3 (A: Pb, B: Ti 및 Zr) perovskite 형태의 구조를 가지며, PZT 조성중에서도 특히 능면정-정방정 상경계(Rhombohedral-tetragonal morphotropic phase boundary, MPB($x \sim 0.53$)) 조성이 가장 압전물성이 좋아 널리 이용되고 있다(Jaffe et al., 1977; Xu, 1991). MPB-PZT의 경우 전기↔기계적 에너지 변환계수인 전기-기계적 결합계수(K_p)가 0.48 정도이며, 기계적품질계수(Q_m)는 100 정도로 비교적 낮아 다양한 조성을 첨가하여 물성을 증진시키기 위한 노력이 진행되어 왔다. 이러한 첨가물의 종류로는 PZT 구성원소보다 원자가가 높은 양이온인 A^{+2} 및 B^{+4} 자리를 차지하여 전기적 물성을 연(Soft)화 시키는 첨가물인 Nb^{+5} (B-site), Ta^{+5} (B), Sb^{+5} (B), La^{+3} (A-site), Bi^{+3} (A)들이 있고, 원자가가 낮은 양이온인 A^{+2} 및 B^{+4} 자리를 차지하여 물성을 경(Hard)

화 시키는 첨가물인 Fe^{+3} (B), Sc^{+3} (B), Na^{+1} (A), K^{+1} (A) 등이 있다. 연화 첨가물의 효과로는 Pb의 공공을 유도하고 전자의 Donor 역할을 해 PZT 고유의 정공(Hole)을 보상(Compensation)하여 전기저항이 증가되며, 강유전체 도메인의 움직임을 쉽게 하여 높은 비유전율(ϵ_r) 및 전기-기계적 결합계수를 유도하고, 높은 유전손실과 낮은 기계적품질계수를 만든다(Haertling, 1986; Kulcar, 1959; Dai et al., 1995). 이에 비해 경화 첨가물은 산소 공공을 유도하여 내부 공간전하를 형성시켜 도메인의 움직임을 제한하기 때문에 낮은 유전율 및 전기-기계적 결합계수가 유도되고, 낮은 유전손실과 높은 기계적 품질계수, 낮은 비유전율과 낮은 비저항 및 높은 항전계를 갖는 압전체가 만들어진다(Miclea et al., 2005; Takahashi, 1971; Weston et al., 1969).

수중에서 전기적 신호를 음향신호로 바꾸는 또는 음향신호를 전기적 신호로 변환시키기 위한 액츄에이터 및 센서로는 높은 전기-기계적 결합계수와 역시 높은 기계적품질계수를 가질 것이 요구되며 물과의 임피던스 정합을 위해 비교적 낮은 비유전율을 값을 가져야 한다. 따라서 높은 K_p , 낮은 Q_m 및 높은 ϵ_r 을 유도하는 연화 첨가제나 낮은 K_p , 높은 Q_m 및 낮은 ϵ_r 을 만드는 경화 첨가제만으로는 원하는 물성을 얻기 어렵게 된다. 따라서 두 가지 첨가제를 동시에 첨가하는 복합 도우핑(Complex

교신저자 이병우: 부산시 영도구 동삼동 1번지, 051-410-4356, bwlee@hhu.ac.kr

본 과제(결과물)는 교육과학기술부의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행된 광역경제권 선도산업 인재양성 사업의 연구결과입니다.

doping)이 필요하며 이러한 복합 도우핑에 대한 연구를 통해 원하는 용도에 적합한 압전체를 설계할 수 있을 것이다.

본 연구에서는 PZT의 물성을 연화 시키는 La와 Nb, 경화하는 Fe를 동시에 첨가하여 PZT 압전세라믹의 상(Phase) 및 미세구조변화와, 이에 따른 전기적 물성조절에 대한 연구를 수행하였다. PZT계 소재는 오랜 연구를 통해 많은 조성이 개발되어 왔으나 대부분의 연구들이 단일 첨가제에 따른 전기적인 물성 변화 또는 기계적인 강도변화 등에 대한 연구들이었다. PZT에 여러 원소들을 동시에 첨가하여 첨가제 조성이 물성에 미치는 영향들에 대한 연구들도 일부 수행되어 왔으나(Rai and Sharma, 2004; Rukmini et al., 1998; Zhang et al., 2004), 본 과제와 같이 각기 다른 효과를 가지는 연화제(Softener)와 경화제(Hardener)를 동시에 첨가함으로써, 상호 보상효과를 이용하여 PZT의 물성을 개선하려는 체계적인 연구는 찾아보기 힘들었다. 따라서 동시에 첨가된 각각의 조성들에 따른 상 및 미세구조의 형성과 PZT의 전기적 물성에 미치는 역할에 대한 연구는 조성 조절을 통한 PZT 압전체의 전기적 물성조절을 가능하게 해 수 중용 압전소자 연구개발에 필수적이라 할 수 있다.

2. 실험방법

2.1 PZT압전체의 제조

실험에 사용된 원료로는 PbO(99.5%, Junsei Chemical), TiO₂ (99%, Yakuri pure chemical), ZrO₂(99.5%, Katayame chemical), La₂O₃(99.98%, Fluka), Nb₂O₅(99.9%, Riedel-dehaen) 및 Fe₂O₃ (99%, Junsei chemical)를 사용하였다. 원하는 조성에 맞추어 볼 밀(Ball mill)을 이용해 12시간 이상 혼합한 후 800°C에서 2시간 하소 하여 PZT 단일상 분말을 합성하였다. 본 연구에 사용된 조성의 조성식을 Table 1에 나타내었다. 하소된 분말은 다시 Ball mill을 사용하여 12시간 동안 분쇄한 후, 200Kg/cm²의 압력으로 지름 14mm, 두께 1.2~1.5mm 크기의 원판형 시편으로 성형하였다. 성형체는, PbO의 휘발을 보상하기 위해 PbZrO₃ 분위기 분말을 사용한, 이중 도가니법(Double crucible method)을 사용하여 1150°C에서 2시간 동안 열처리하여 소결하였다.

소결된 시편은 전기적 특성을 측정하기 위해 #1500, #2000의 연마지를 이용하여 표면을 평활하게 한 후 Silk screen 법을 이용하여 은 전극(D-63405 Hamau)를 성형체 양면에 도포하였으며, 600°C에서 2시간 소성하여 전극을 소부하였다. 압전물성을 부여하기 위하여 120°C 실리콘오일 중에서 두께방향으로 mm

당 2kV의 직류 전계를 30분간 인가하여 분극처리 하였다. 모든 물성은 경시변화(Aging)를 고려하여 분극처리 후 24시간 후에 측정하였다.

2.2 물성 측정

이렇게 제조된 PZT계 압전체 분말과 소결체의 결정상에 대해 XRD(Rigaku사 Dmax2500)를 이용하여 20~60° 범위에서 4°/min의 Scan speed로 Cu-Kα(λ=1.5405 Å)를 이용하여 분석하였으며, 표면 미세구조 분석을 위해 연마된 샘플을 다시 950°C에서 열적-에칭(Thermal etching)한 후 SEM(Jeol JSM-5410)으로 관찰하였다. 센서 효율의 척도인 유전 및 압전물성은 Impedance analyser(Hioki 3532-50)를 이용하여 측정하였다.

유전 및 압전특성평가는 다음의 식 (1)~(3)을 통해 계산하였다. 분극방향과 수직인 방향으로 진동하는 경방향 진동모드(Planar mode)에서 전기↔기계 에너지 변환효율을 나타내는 전기기계 결합계수(K_p)는

$$K_p = \sqrt{\frac{\Delta f}{0.395f_r + 0.574\Delta f}} \quad (1)$$

로부터 구한다. f_r 은 공진주파수이며 $\Delta f(f_a - f_r)$ 는 반공진-공진 주파수 차이(kHz)이다.

전기기계 변환과정에서 에너지 손실에 대한 척도인 기계적품질계수(Q_m: Mechanical quality factor)는

$$Q_m = [2\pi f_r Z_r C \left(\frac{f_a^2 - f_r^2}{f_a^2} \right)]^{-1} \quad (2)$$

로부터 구한다.

Z_r은 공진저항이며, f_a는 반공진주파수 C는 1kHz에서의 정전용량(Capacitance: F)이다.

또한 비유전률(ε_r: Relative dielectric constant)은

$$\epsilon_r = C \times \frac{t}{\epsilon_0 A} \quad (3)$$

으로부터 구한다. A는 단면적, t는 두께, ε₀는 진공의 유전상수이다.

3. 결과 및 고찰

3.1 Co-doping된 PZT의 상 및 미세구조

MPB 조성의 PZT에 대한 X-선 회절 결과를 Fig. 1에 나타내었다. 전형적인 Perovskite PZT 단일상 구조를 잘 보여주고 있으며 정방정(Tetragonal)과 능면정(Rhombohedral)의 상 경계인 MPB의 특징이 2θ=43~46° 사이에 잘 나타나 있다. 즉 정방정인 T(002)T(200) 사이에 능면정 R(200)이 동시에 존재하고 있음을 보인다. MPB-PZT에 연화제인 La₂O₃와 Nb₂O₅와 경화제인 Fe₂O₃를 첨가한 후 소결한 PZT의 상변화를 알아보기 위한 XRD 분석결과를 Fig. 2에 나타내었다. 역시 2θ=43~46° 사이의 정방정과 능면정의 Peak들을 분석하여 상의 공존여부를 관찰하

Table 1 Nomenclature of the samples prepared in this study

Sample	Composition
xL-wF	PZT* + x weight% La ₂ O ₃ + w weight% Fe ₂ O ₃
yN-wF	PZT* + y weight% Nb ₂ O ₅ + w weight% Fe ₂ O ₃
xL-yN	PZT* + x weight% La ₂ O ₃ + y weight% Nb ₂ O ₅
xL-yN-wF	PZT* + x weight% La ₂ O ₃ + y weight% Nb ₂ O ₅ + z weight% Fe ₂ O ₃

*PZT: PbZr_{0.53}Ti_{0.47}O₃, x, y, z: 0.01-0.5

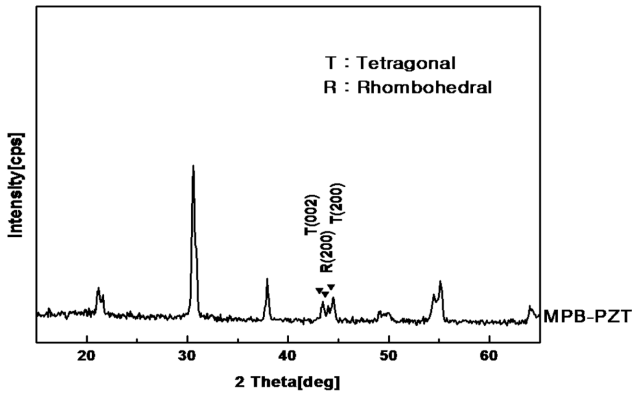


Fig. 1 XRD patterns of the typical MPB-PZT phase having composition of $PbZr_{0.53}Ti_{0.47}O_3$

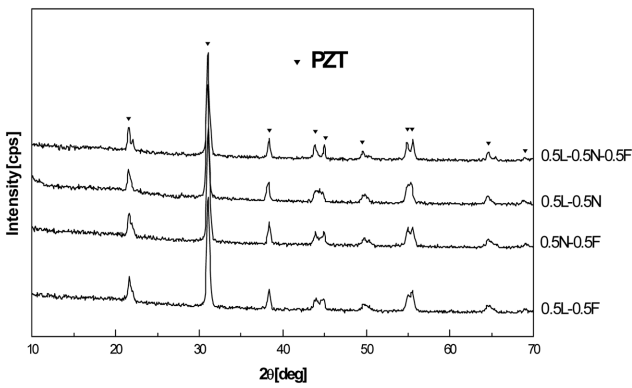


Fig. 2 XRD patterns of PZT ceramics modified with both the softeners (La_2O_3 and/or Nb_2O_5) and hardener (Fe_2O_3)

었다. 연화제들만 첨가한 0.5L-0.5N 조성의 경우 $2\theta = 43\sim 46^\circ$ 사이가 단일 peak 처럼 보이며, 이는 정방정의 Tetragonality(c/a)가 감소되어 (002)와 (200) Peak간의 사이가 가까워지고 정방정과 능면정 peak의 2θ 값이 매우 근접하게 되어 단일 Peak으로 여겨지는 것으로 설명할 수 있다. 이에 반해 경화제인 Fe_2O_3 를

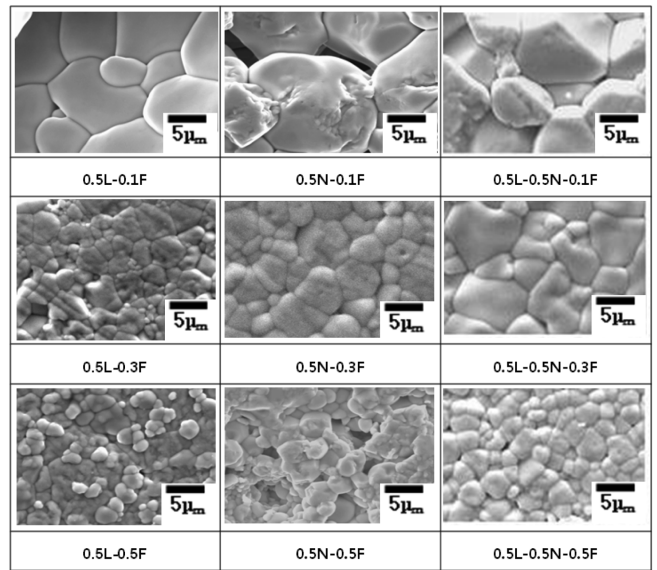


Fig. 3 SEM micrographs of PZT ceramics modified with both the softeners (La_2O_3 and/or Nb_2O_5) and hardener (Fe_2O_3)

첨가한 경우 능면정보다 정방정이 우세하게 되며 Fig. 2의 Fe_2O_3 를 첨가한 모든 조성에서 $2\theta = 43\sim 46^\circ$ 사이에 정방정 peak들이 보이는 결과가 이를 잘 보여주고 있다.

연화제인 La_2O_3 및 Nb_2O_5 에 동시에 첨가된 경화제인 Fe_2O_3 가 PZT 미세구조에 미치는 영향을 알아보기 위하여 La_2O_3 와 Nb_2O_5 의 양을 각각 0.5wt%로 고정하고 Fe_2O_3 의 양을 0.1wt%, 0.3wt%, 0.5wt%로 증가하면서 얻어진 소결체의 미세구조를 Fig. 3에 나타내었다. Fe_2O_3 의 양이 증가할수록 입경이 작아지는 경향을 보이고 이렇게 Fe_2O_3 의 첨가에 따라 입경이 감소하는 이유는 Fe_2O_3 는 첨가량 증가에 따라 등방성의 능면정보다 정방정상이 유도되어 결정격자의 이방성(c/a)이 증가됨으로써 격자내부의 변형력이 증가됨으로써 결정립의 성장이 억제되기 때문으로 여겨진다. 이러한 Fe_2O_3 의 첨가에 따른 입경의 감소는 도메인 이동을 방해하는 Pinning point로 작용할 수 있어 유전

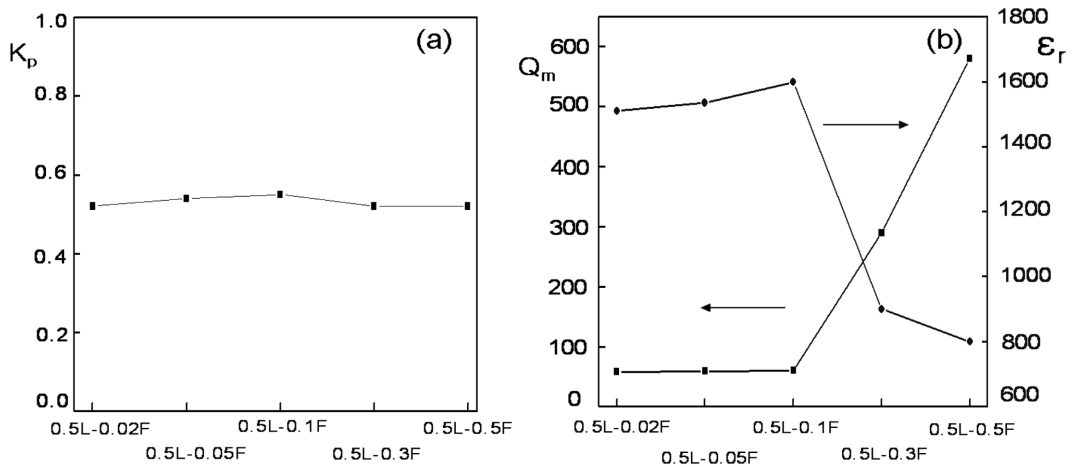


Fig. 4 Piezoelectric properties of PZT ceramics modified with both the softener, La_2O_3 , and hardener, Fe_2O_3 : (a) K_p , and (b) Q_m and ϵ_r

율을 낮추고 기계적품질계수를 높이는 요인으로 작용할 수 있을 것이다.

3.2 Co-doping된 PZT의 압전물성

연화제인 La₂O₃를 0.5wt%로 고정하고 경화제인 Fe₂O₃를 0.02~0.5wt%로 첨가한 세라믹스의 압전 특성을 Fig. 4에 나타내었다. 경화제인 Fe₂O₃를 0.1wt% 이하로 첨가하더라도 K_p와 ε_r값은 거의 변화하지 않고 있다. 이는 La³⁺와 Fe³⁺의 동시 첨가에 따른 효과로, 즉 Fe³⁺의 첨가로 인한 K_p의 감소 등 물성 저하가 상대적으로 과량 첨가된 연화제인 La³⁺에 의해 보상되어지는 결과로 여겨진다. 0.1wt% 이상의 Fe₂O₃ 첨가는 물성을 변화시켜 K_p는 거의 변하지 않고 있으나 Q_m은 급격히 증가함을 보였고 ε_r은 급격히 감소하였다. Fe₂O₃ 첨가는 작은 입경을 유도하고, A-site에 치환된 La³⁺와 동일한 원자격을 가지는 Fe³⁺가 B-site에

치환됨으로써 La³⁺로 인해 생성된 양이온(Pb²⁺) 결핍을 Fe³⁺ 첨가로 인한 음이온(O²⁻) 결핍에 의해 보상됨으로써 전기적 중성 조건이 만족되기 때문에 K_p와 Q_m이 우수한 것으로 여겨진다.

Nb₂O₅를 0.5wt%로 고정하고 경화제인 Fe₂O₃를 0.02~0.5wt%로 첨가한 세라믹스의 압전 특성을 Fig. 5에 나타내었다. 역시 연화제인 Nb₂O₅에 동시 첨가된 Fe₂O₃도, La₂O₃와 동시에 첨가된 경우와 비슷한 경향을 보이고 있으나, La₂O₃와 동시에 첨가된 경우와 다르게 0.1wt% 이상의 Fe₂O₃ 첨가는 물성의 저하가 상당히 발생하고 있다. 즉 Fe₂O₃의 양이 증가함에 따라 K_p는 상당히 감소하며 ε_r의 소폭 감소와 약간의 Q_m 증가를 가져온다. 이는 동시에 첨가된 Nb₂O₅와 Fe₂O₃가 PZT에서 동일한 B-site를 차지함으로써 전하보상에 의해 원래 B-site(Zr⁴⁺ 및 Ti⁴⁺)와 같은 +4가가 형성되어 첨가제를 전혀 첨가하지 않은 것과 같은 효과를 유도하여 K_p와 ε_r을 모두 감소시키는 억제제로 작용했기 때문이라 생각된다.

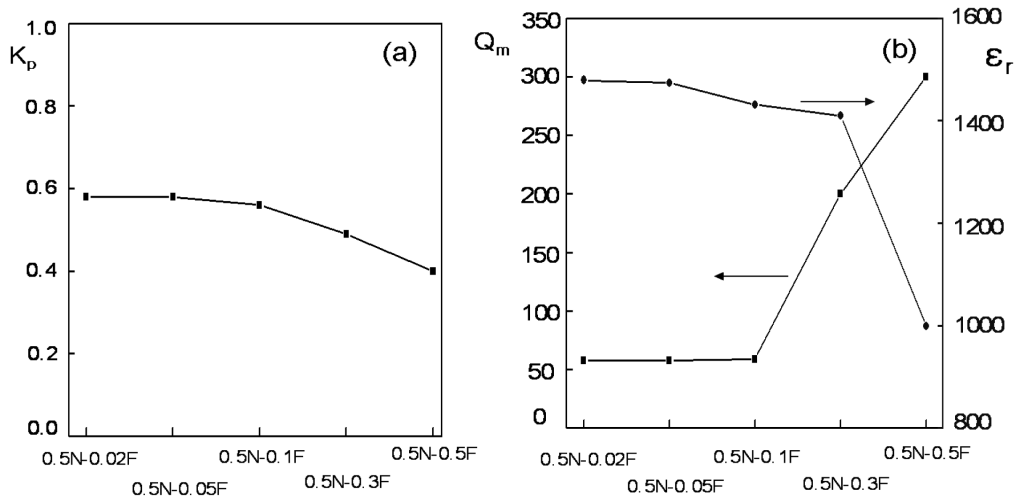


Fig. 5 Piezoelectric properties of PZT ceramics modified with both the softener, Nb₂O₅, and hardener, Fe₂O₃: (a) K_p, and (b) Q_m and ε_r

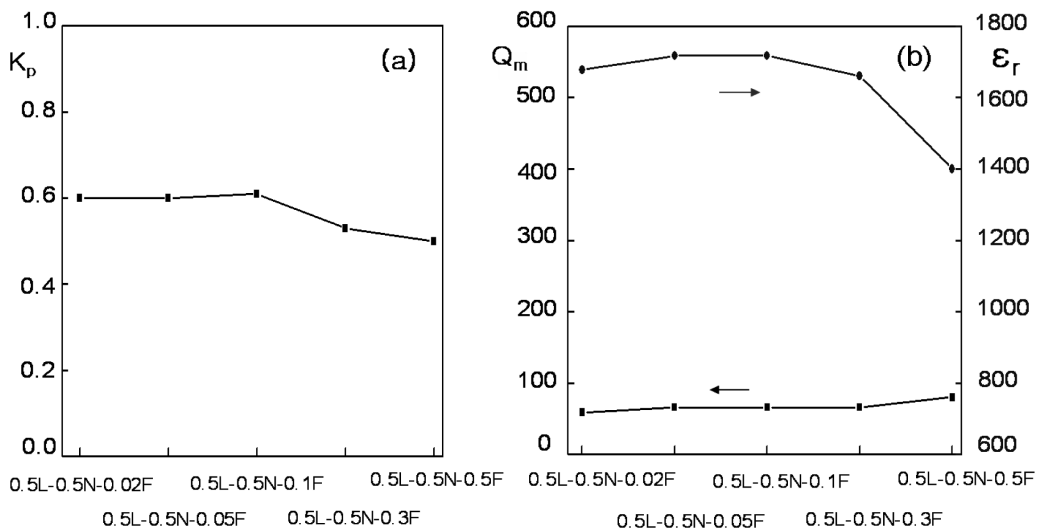


Fig. 6 Piezoelectric properties of PZT ceramics modified with both the softeners, La₂O₃ and Nb₂O₅, and hardener, Fe₂O₃: (a) K_p, and (b) Q_m and ε_r

Fig. 6에 연화제인 La_2O_3 와 Nb_2O_5 를 동시에 첨가하고 그 양을 0.5wt%로 고정한 후 경화제인 Fe_2O_3 를 0.02~0.5wt%로 첨가한 세라믹스의 압전 특성을 나타내었다. 앞서의 결과들에서와 같이 0.1wt% 이하의 Fe_2O_3 첨가는 K_p 와 ϵ_r 값에 거의 영향을 못 미치고 있음을 보인다. 0.1wt% 이상의 Fe_2O_3 첨가는 물성을 변화시켜 La^{3+} 와 Fe^{3+} 의 동시 첨가 때와 같이 K_p 는 거의 변하지 않고 있으나 Q_m 은 증가하고 ϵ_r 은 감소하였다. 하지만 그 변화의 폭이 이전 결과에서 보다 훨씬 작게 나타난다. 이는 La^{3+} , Nb^{5+} 및 Fe^{3+} 의 동시 첨가에 따른 복합 보상효과로 생각된다. 즉 경화제 Fe^{3+} 의 첨가 효과가 B 자리를 동시에 차지한 연화제의 하나인 Nb^{5+} 에 의해 보상되어지고 나머지 하나의 연화제 즉 La^{3+} 에 의한 물성이 발현됨으로써 Fe^{3+} 를 첨가하지 않았을 때의 물성과 거의 비슷하게 유지되는 결과로 여겨진다. 따라서 La^{3+} 와 Nb^{5+} 가 동시 첨가된 조성의 경우 경화제 Fe^{3+} 는 물론 기타 불순물의 영향을 적게 받게 되어 재현성이 우수해져 순도가 낮은 원료를 사용할 경우에도 K_p 와 ϵ_r 이 높은 Soft적인 물성을 가지는 PZT 압전체의 제조가 가능하게 될 수 있음을 보여주고 있다.

수중에서의 응용을 위한 압전체는 높은 K_p , 높은 Q_m 및 낮은 ϵ_r 특성을 가져야 하며, 본 연구를 통해 이에 가장 적합한 조성이 0.5 이상의 높은 K_p 값을 유지하면서 600 이상의 비교적 높은 Q_m 및 1000 이하의 낮은 ϵ_r 특성을 보이는, 연화제인 0.5wt%- La_2O_3 와 경화제인 Fe_2O_3 가 0.1wt% 이상 첨가된 PZT 조성임을 알 수 있었다. 또한 연화제와 경화제 복합 첨가에 따른 물성보상 효과에 대한 연구를 통해 서로 다른 유전 및 압전 물성이 요구되는 여러 응용에 필요한 PZT의 물성 조절이 가능할 수 있음을 알 수 있었다.

5. 결 론

본 연구에서는 수중액튜에이터나 센서로 사용 되는 PZT의 압전 및 유전물성 제어를 위하여 $\text{Pb}(\text{Zr}_{0.53}\text{Ti}_{0.47})$ 을 기본 조성으로 하고 연화제인 La_2O_3 와 Nb_2O_5 및 경화제인 Fe_2O_3 첨가제를 변수로 하여 다음과 같은 결과를 얻을 수 있었다.

(1) 연화제(La_2O_3 와 Nb_2O_5)에 함께 첨가된 경화제 Fe_2O_3 의 양이 증가할수록 결정격자의 이방성이 증가되며 입경의 감소를 가져왔다. 입경의 감소는 도메인 이동을 방해하여 유전율을 낮추고 기계적품질계수를 높이는 요인이 될 수 있었다.

(2) 연화제인 La_2O_3 와 Nb_2O_5 에 물성조절을 위해 함께 첨가한 경화제인 Fe_2O_3 의 최소 첨가량은 0.1wt%임을 알 수 있었으며 0.1wt% 이하의 Fe_2O_3 첨가까지는 거의 변하지 않던 K_p 및 ϵ_r 값이 Fe_2O_3 의 증가에 따라 감소하며, Q_m 은 증가하는 경향을 보였다.

(3) La^{3+} , Nb^{5+} 및 Fe^{3+} 들을 동시 첨가한 경우 복합 보상효과가 발생하여 경화제 Fe^{3+} 는 물론 기타 불순물의 영향을 적게 받게 됨으로써 재현성이 우수한 PZT 압전체의 제조가 가능하게 된다.

(4) 단일 첨가와 달리 연화제인 La_2O_3 와 경화제인 Fe_2O_3 를 함께 첨가한 경우 K_p 와 Q_m 이 우수하며 수중사용에 적합한 낮은 ϵ_r 값을 가지는 압전체가 얻어졌다. 이는 A-site에 치환된 La^{3+} 와 같은 원자기를 가지는 Fe^{3+} 가 B-site에 치환됨으로써 구조적 전기적 보상효과가 발생하기 때문으로 해석된다.

(5) 이러한 연화제 및 경화제들의 동시첨가에 따른 여러 가지 보상 효과에 대한 연구를 통해, 수중사용 가능한 우수한 압전체 조성은 물론 다양한 물성을 가지는 압전체를 설계할 수 있는 기초적이며 핵심이 되는 연구결과들을 얻을 수 있었다.

참 고 문 헌

- Dai, X., Xu, Z. and Viehland, D. (1995). "Long-time Relaxation from Relaxor to Normal Ferroelectric States in $\text{Pb}_{0.91}\text{La}_{0.06}(\text{Zr}_{0.65}\text{Ti}_{0.35})\text{O}_3$ ", J. Am. Ceram. Soc., Vol 79, No 7, pp 1957-1960.
- Jaffe, B., Cook, W.R. and Jaffe, H. (1977). Piezoelectric Ceramics, Academic Press, London.
- Kulcsar, F. (1959). "Electromechanical Properties of Lead Titanate Zirconate Ceramics with Lead Partially Replaced by Calcium or Strontium", J. Am. Ceram. Soc., Vol 42, No 1, pp 49-51.
- Haertling, G.H. (1986). Ceramic Materials for Electronics, Marcel Dekker INC., New York.
- Miclea, C., Tanasoiu, C., Miclea, C.F., Amarande, L., Gheorghiu, A. and Sima, F.N. (2005). "Effect of Iron and Nickel Substitution on the Piezoelectric Properties of PZT Type Ceramics", J. Euro. Ceram. Soc., Vol 25, No 12, pp 2397-2400.
- Rai, R. and Sharma, S. (2004). "Structural and Dielectric Properties of (La, Bi) Modified PZT Ceramics", Solid State Commun., Vol 129, pp 305-309.
- Rukmini, H.R., Choudhary, R.N.P. and Rao, V.V. (1998). "Effect of Doping Pairs (La, Na) on Structural and Electrical Properties of PZT Ceramics", Mater. Chem. Phys., Vol 55, pp 108-114.
- Takahashi, M. (1971). "Electrical Resistivity of Lead Zirconate Titanate Ceramics Containing Impurities", Jpn. J. Appl. Phys., Vol 10, pp 643-651.
- Weston, T.B., Webster, A.H. and McNamara, V.M. (1969). "Lead Zirconate-lead Titanate Piezoelectric Ceramics with Iron Oxide Additives", J. Am. Ceram. Soc., Vol 52, No 5, pp 253-257.
- Xu, Y. (1991). Ferroelectric Materials and Their Applications, Elsevier Science, New York.
- Zhang, R.F., Zhang, H.P., Ma, J., Chen, Y.Z. and Zhang, T.S. (2004). "Effect of Y and Nb Codoping on the Microstructure and Electrical Properties of Lead Zirconate Titanate Ceramics", Solid State Ionics, Vol 166, pp 219-223.

2010년 10월 21일 원고 접수

2010년 11월 8일 심사 완료

2010년 12월 17일 게재 확정