

## Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>첨가에 따른 (Na,K,Li)(Nb,Sb,Ta)O<sub>3</sub>계 세라믹스의 압전 및 유전 특성

이광민<sup>1</sup>, 신상훈<sup>1</sup>, 류주현<sup>1,a</sup>

<sup>1</sup> 세명대학교 전기공학과

### Piezoelectric and Dielectric Properties of (Na,K,Li)(Nb,Sb,Ta)O<sub>3</sub> Ceramics as a Function of Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Addition

Gwang-Min Lee<sup>1</sup>, Sang-Hoon Shin<sup>1</sup>, and Ju-Hyun Yoo<sup>1,a</sup>

<sup>1</sup> Department of Electrical Engineering, Semyung University, Jecheon 390-711, Korea

(Received July 28, 2014; Revised August 8, 2014; Accepted August 13, 2014)

**Abstract:** In this paper, in order to develop outstanding Pb-free composition ceramics, the Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> doped (Na<sub>0.525</sub>K<sub>0.443</sub>Li<sub>0.037</sub>)(Nb<sub>0.883</sub>Sb<sub>0.08</sub>Ta<sub>0.037</sub>)O<sub>3</sub> + 0.3 wt% Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub> + x wt% Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (x = 0~1.0 wt%)(abbreviated as NKL-NST) lead-free piezoelectric ceramics have been synthesized using the ordinary solid state reaction method. The effect of Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-doping on their microstructure and electrical properties were investigated. XRD diffraction pattern studies confirm that Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> completely diffused into the NKL-NST lattice to form a new stable solid solution with Fe<sup>3+</sup> entering the Nb<sup>5+</sup>, Sb<sup>5+</sup> and Ta<sup>5+</sup> of B-site. And, phase structure of all the ceramics exhibited pure perovskite phase and no secondary phase was found in the ceramics. The ceramics doped with 0.6 wt% Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> have the optimum values of piezoelectric constant(d<sub>33</sub>), planar piezoelectric coupling coefficient(k<sub>p</sub>) and mechanical quality factor(Q<sub>m</sub>): d<sub>33</sub>= 233 [pC/N], k<sub>p</sub>= 0.44, Q<sub>m</sub>= 95. These results indicate that the (Na<sub>0.525</sub>K<sub>0.443</sub>Li<sub>0.037</sub>)(Nb<sub>0.883</sub>Sb<sub>0.08</sub>Ta<sub>0.037</sub>)O<sub>3</sub> + 0.3 wt% Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub> + 0.6 wt% Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ceramic is a promising candidate for lead-free piezoelectric ceramics.

**Keywords:** Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, NKN, Lead-free piezoelectric ceramics

#### 1. 서 론

현재, 모든 전자제품들의 급속한 발전으로 인해, 압전 세라믹 기술에도 많은 영향을 미쳐왔다. 이에 맞춰, 세라믹 기술의 급속한 발전과 압전체를 이용한 압전 디바이스의 개발에도 많은 관심과 주목을 받아

왔다. 과거부터 주로 사용해왔던, 주된 재료인 Perovskite 구조를 갖는 Pb(Zr,Ti)O<sub>3</sub> (abbreviated as PZT) 계 세라믹스는 정방정상 (tetragonal phases)과 능면체상 (rhombohedral phase)의 상경계 영역 (MPB) 부근에서 높은 큐리온도 (360°C)와 좋은 압전 특성을 보인다. 이들의 우수한 압전 특성 및 유전 특성들 때문에, 센서 및 액추에이터 그리고 트랜스듀서와 같은 다양한 분야에서 응용되고 있다 [1-4]. 하지만, PZT 계 압전세라믹 조성의 60% 이상이 납 (PbO)으로 구성되어 있다. 일반적으로 PZT계의 조성온도가 1,200°C 이상이기 때문에 PbO가 있는 물질은 1,000°C 이상의

a. Corresponding author: juhyun57@semyung.ac.kr

Copyright ©2014 KIEEME. All rights reserved.  
 This is an Open-Access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution Non-Commercial License (<http://creativecommons.org/licenses/by-nc/3.0/>) which permits unrestricted non-commercial use, distribution, and reproduction in any medium, provided the original work is properly cited.

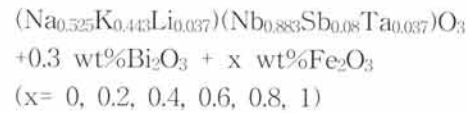
온도 부근에서 급격한 휘발 특성을 보인다. 휘발에 따른 손실과 조성의 변화로 인하여 압전 및 유전 특성이 감소할 뿐만 아니라, 환경오염을 유발시키며, 인체에 치명적인 중독문제로 야기시킨다 [5-8]. PbO의 휘발문제점들 때문에 세계적으로 PbO의 사용량을 점차적으로 규제하는 추세이다 [9]. 그러므로 PZT계 압전세라믹스를 대체하기 위하여, PbO가 포함되지 않은 친환경적이면서 PZT계 압전세라믹스의 우수한 특성과 비교할 만한 특성을 갖는 무연 압전세라믹스의 조성 개발이 시급하며, 많은 연구가 이루어지고 있다 [10,11]. 무연 압전 세라믹스들 중에 2004년 Satio 등에 의해 보고된 (K,Na)NbO<sub>3</sub> (NKN)계 세라믹스가 우수한 압전 특성  $d_{33}=416$  [pC/N]과 높은 큐리온도 ( $T_C=46$  °C)을 가지므로, PZT계 세라믹스의 대체자로 주목을 받고 있다 [12-14]. 그러나 높은 온도에서의 소결 과정 중에 K와 Na의 alkaline 전자들의 휘발과 높은 조해성 때문에 치밀화된 세라믹스를 얻기가 어렵다 [15]. 이러한 문제를 해결하기 위해서, hot pressing, SPS (spark plasma sintering) 등과 같은 다양한 기술들을 사용하여 고밀도 압전세라믹스를 제조하고 있다. 하지만 이 또한, 높은 비용문제로 인해 상업적 측면으로 볼 때에는 경쟁력이 떨어지며, 대량생산에도 적합하지 않다 [16]. 그러므로 다른 방법으로 NKN계 재료에 저융점을 갖는 첨가물들인 Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, ZnO, Mn O<sub>2</sub>, CuO 등을 [17,18] 첨가하여 저온에서 액상형성을 유도함으로써 치밀화를 촉진시키는 방법 또는, LiTaO<sub>3</sub> [19], LiSbO<sub>3</sub> [20], BiFeO<sub>3</sub> [21]와 같은 복합 산화물을 첨가하여 새로운 고용체를 형성함으로써 소결성의 향상과 밀도를 치밀화시키려는 연구들이 진행중에 있다.

이전의 논문에서 Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub>가 0.3 wt%에서 우수한 압전 특성을 얻은 조성을 기본 조성으로 채택하였으며 [22], 본 연구에서는 이전의 보고된 논문보다 우수한 압전특성을 갖는 압전세라믹스의 조성을 개발하기 위하여 (Na<sub>0.525</sub>K<sub>0.443</sub>Li<sub>0.037</sub>)(Nb<sub>0.883</sub>Sb<sub>0.08</sub>Ta<sub>0.037</sub>)O<sub>3</sub> + 0.3 wt%Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 기본 조성에 저융점을 갖는 소결조제인 Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>를 첨가하여 저온에서 액상 소결을 유도하며 소결온도를 저온으로 낮추고, Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 첨가량에 변화를 주어 그에 따른 유전 및 압전 특성을 조사하고자 한다.

## 2. 실험 방법

본 실험에서는 다음의 조성식을 이용하여 일반적인

산화물 혼합법으로 시편을 제조하였다.



99%이상의 순도를 가지는 원료를 10<sup>-4</sup> g까지 칭량하였고, 분산매를 아세톤으로 하여 24시간 동안 3 φ zirconia ball을 사용하여 혼합·분쇄하였다. 혼합·분쇄된 시료는 850°C에서 5시간 하소하였다. 하소된 시료에 첨가제 Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub>와 Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>를 첨가하여 2차 혼합·분쇄 후 건조하였다. 건조된 시료에 PVA수용액을 5 wt% 첨가하고 직경 17 φ의 몰더로 15 MPa의 압력을 가하여 성형하였다. 성형된 시편은 1,060°C에서 3시간 소결하였다. 소결된 시편은 1 mm의 두께로 연마하고, Ag전극을 스크린 프린트법으로 도포한 뒤, 600°C에서 10분 간 열처리하였다. 상온의 실리콘유 속에서 3 kV/mm 직류전계를 인가하여 30분 동안 분극하였다. 분극된 시편은 impedance analyzer (Agilent 4294)를 이용하여 공진·반공진 주파수 및 impedance 특성을 측정하였고, LCR meter (Instek LCR-819)를 이용하여 1 kHz의 주파수로 유전 특성을 측정하였다. 시편의 압전 및 유전 특성은 IEEE의 규정에 따라 공진·반공진법을 이용하여 계산하였다.

## 3. 결과 및 고찰

그림 1(a)는 Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>의 첨가량에 따른 XRD 회절 패턴을 나타내고 있다. 그림에서 보듯이, XRD 회절 패턴 분석 결과는 모든 시편은 전형적인 순수한 Perovskite 구조를 보이며, 이차상 (secondary phase)은 관찰되지 않았다. 그림 1(b)는 44°에서 48°까지 확대한 XRD 회절 패턴을 나타내고 있다. FeO<sub>3</sub>가 첨가되지 않은 0 wt% 시편에서는 1차 상전이 온도가 상온부근에 존재하여 상온에서 사방정계상 (orthorhombic phase)과 정방정계상 (tetragonal phase)이 공존하는 구간인 MPB (morphotropic phase boundary)상으로 사료된다. Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>의 첨가량을 증가할수록 0.2 wt%에서 1.0 wt%까지의 시편에서는 (202)/(020) 분리된 피크 상을 나타낸다. 또한, 모든 시편은 (202)/(020) 피크를 보이는 사방정계상 (orthorhombic phase)으로 사료된다. 이러한 이유는 Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>가 B-site로 치환되어 들어가므로 결정격자 내에 침투하여 격자상수가 변하여 상이 바뀐 것으로 사료된다.

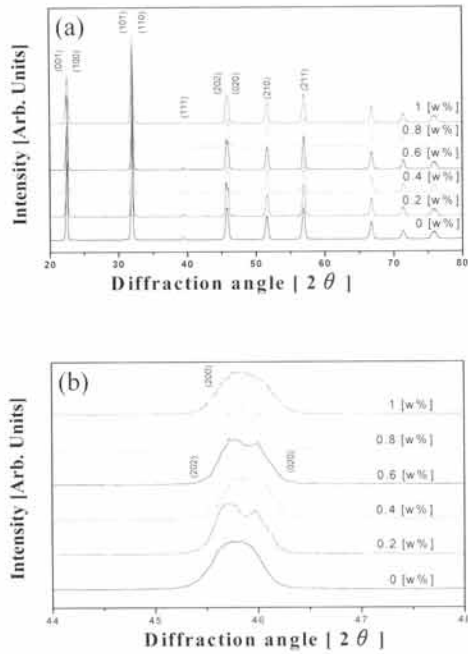


Fig. 1. X-ray diffraction patterns(XRD) of specimens as a function of the amount of Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> addition.

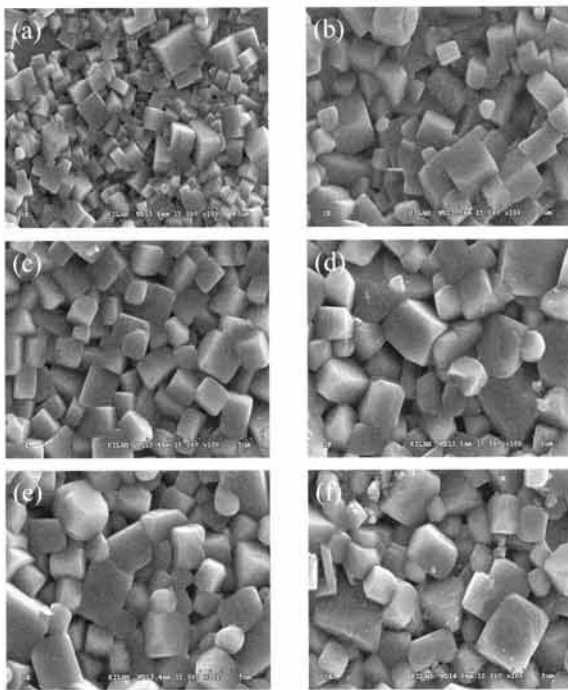


Fig. 2. The scanning electron microscopy(SEM) of specimens as a function of the amount of Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> addition. (a) 0 wt%, (b) 0.2 wt%, (c) 0.4 wt%, (d) 0.6 wt%, (e) 0.8 wt%, and (f) 1.0 wt%.

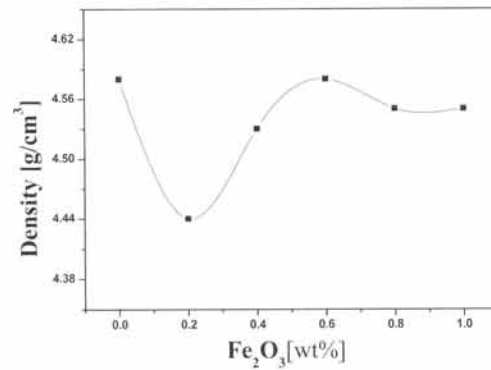


Fig. 3. Density of specimens as a function of the amount of Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> addition.

그리고 1차 상전이온도가 상온 부근에서 Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>의 첨가량의 증가에 따라 온도가 높아짐으로써 상의 변화가 된 것으로 사료된다.

그림 2는 Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 첨가량의 변화에 따른 제작된 시편의 미세구조를 주사전자현미경으로 조사하여 나타낸 것이다. Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>의 첨가량 증가에 따라 입자는 점차 성장하는 특성을 보이다가 감소하는 특성 경향을 나타낸다. Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>의 첨가량을 증가시킬수록 평균 입자의 사이즈는 1.5 μm, 2.14 μm, 2.29 μm, 3.66 μm, 2.67 μm, 2.64 μm로 각각 나타났으며, 그림 2(d)에서 보듯이, Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>가 x= 0.6 wt% 첨가된 시편에서 최댓값 3.66 μm를 나타내었으며, 미세구조가 치밀화된 모습을 관찰할 수 있다. 이러한 결과는 소결조제로 첨가한 저융점을 갖는 Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(817℃)와 Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(730℃)가 소결 과정 중에 액상을 형성한다. 형성된 액상들이 액상소결을 유도하여, 소결성의 개선으로 기공이 줄어들면서 치밀화되었고, 입자성장에 미치는 것으로 사료된다. 0.6 wt% 이상 첨가 시에 감소하는 원인은 Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>의 과잉첨가로 인하여 과다하게 형성된 액상들이 입자경계에 편석되어 입자성장에 영향을 미쳐 입자의 성장을 억제하였기 때문으로 사료된다.

그림 3은 Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 첨가량의 변화에 따른 제작된 시편의 밀도를 나타낸 것이다. Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>의 첨가량이 증가함에 따라 입자의 성장으로 인해 기공이 감소하여 밀도가 증가하는 경향을 보였다. Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>가 0.6 wt% 첨가된 시편에서 4.58 [g/cm<sup>3</sup>]로 최댓값을 나타내었다. 이는 그림 2에서 설명하였듯이, Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>의 첨가가 소결 과정 중에 액상이 형성되어 소결성을 향상시켰기 때문에 밀

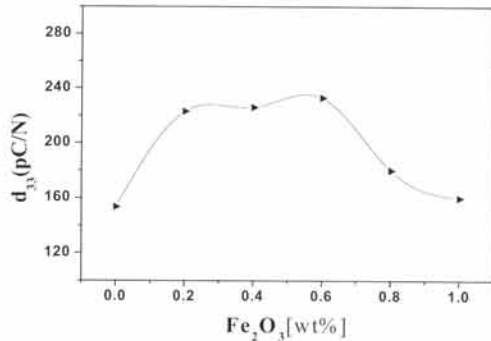


Fig. 4. Piezoelectric constant( $d_{33}$ ) of specimens as a function of the amount of  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  addition.

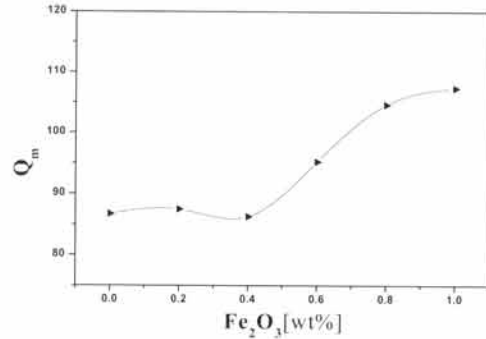


Fig. 6. mechanical quality factor( $Q_m$ ) of specimens as a function of the amount of  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  addition.

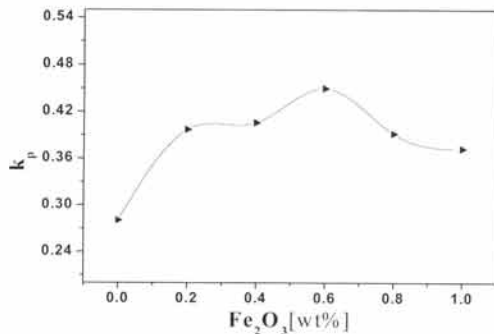


Fig. 5. Electromechanical coupling factor( $k_p$ ) of specimens as a function of the amount of  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  addition.

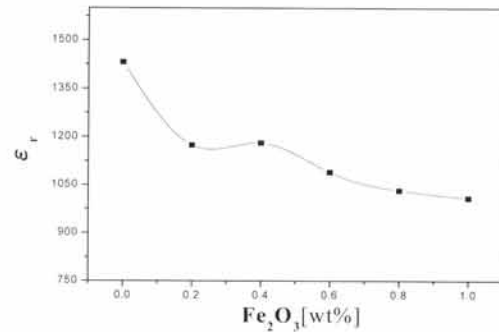


Fig. 7. Dielectric constant( $\epsilon_r$ ) of specimens as a function of the amount of  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  addition.

도가 증가한 것으로 사료되며, 0.6 wt% 이상 첨가 시에는  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ 의 과잉 첨가로 고용한계에 따른 입계의 편석으로 인해 입자생장이 감소하였기 때문에 밀도가 감소한 것으로 사료된다.

그림 4는  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  첨가량의 변화에 따른 압전상수( $d_{33}$ )를 나타낸 것이다.  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  첨가량의 변화에 따라  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ 를 증가할수록 압전상수는 증가하였다가 감소하는 경향을 나타냈다. 압전상수는 전기기계결합계수의 특성과 비슷한 경향을 나타내었다.  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ 를 0.6 wt% 첨가하여 제작된 시편에서 233 [pC/N]의 최댓값을 나타내었다. 이러한 결과는  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  첨가된 시편에서는 입자가 성장하는데, 일반적으로 입자가 클수록 도메인 스위칭이 용이해져 분극효율이 높아지므로 압전상수가 증가하는 것으로 사료되며, 그리고 그림 2의 미세구조와 그림 3의 밀도에서 설명한 것과 같다.

그림 5는  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  첨가량의 변화에 따른 전기기계결

합계수 ( $k_p$ )를 나타낸 것이다. 압전상수와 마찬가지로 전기기계결합계수는  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  첨가량의 증가에 따라 특성이 증가하였다가 감소하는 경향을 나타낸다. 0.6 wt% 첨가된 시편에서 0.44의 최댓값을 나타내었다. 이러한 결과는 액상소결에 따른 효과로 입자의 성장을 이끌어 특성이 증가하였다. 또한,  $\text{Bi}_2\text{O}_3$ 가 도너(donor) 불순물로 작용한 것으로 사료되며, 소프트너 효과(softener)를 보임으로써 분극 효율의 증대로 압전상수( $d_{33}$ )와 비슷한 경향으로 전기기계결합계수( $k_p$ ) 또한 증가한 것으로 사료된다. 그리고  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ 가 과잉으로 첨가되면서, 소결성이 감소하여 최적의 소결온도에서 벗어나 특성의 감소에 영향을 미친 것으로 사료된다.

그림 6은  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  첨가량의 변화에 따른 기계적 품질계수( $Q_m$ )을 나타낸 것이다.  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ 의 첨가량이 증가할수록 기계적 품질계수( $Q_m$ )는 증가하는 경향을 나타내

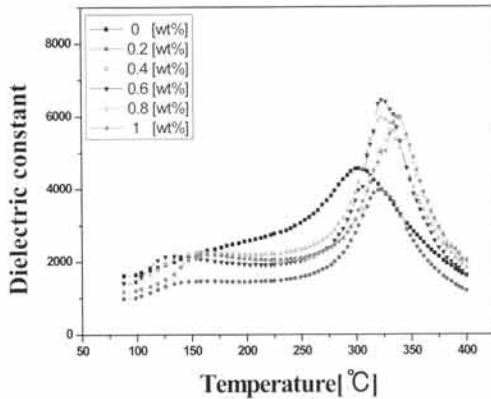


Fig. 8. Temperature dependence of Dielectric constant of specimens as a function of the amount of Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> addition.

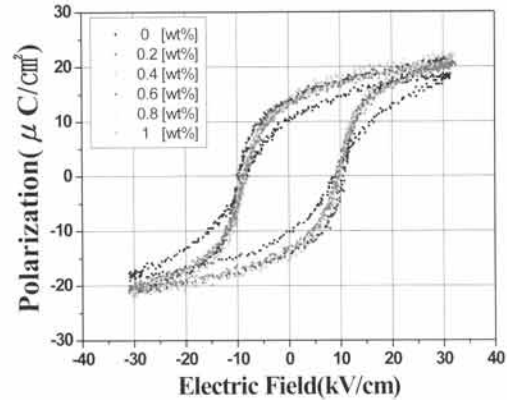


Fig. 9. P-E hysteresis loops of specimens as a function of the amount of Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> addition.

고 있다. 이러한 결과는 Fe<sup>3+</sup> (0.64 Å) 이온이 B-site 의 Nb<sup>5+</sup> (0.69 Å), Sb<sup>5+</sup> (0.62 Å) 그리고 Ta<sup>5+</sup> (0.68 Å) 이온자리에 치환되어 억셉터로서 생성된 산소공공들의 효과로 도메인 벽의 이동을 억제하여, 기계적 품질계수(Q<sub>m</sub>)가 증가하는 경향을 나타내는 것으로 사료된다.

그림 7은 Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 첨가량의 변화에 따른 유전상수 (ε<sub>r</sub>)를 나타낸 것이다. Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>가 첨가되지 않은 0 wt% 시편에서 1431의 최대값을 나타냈으며, Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>의 첨가량 증가시킬수록 유전상수는 감소하는 경향을 나타내었다. 이러한 결과는 1차 상전이온도 (T<sub>0-T</sub>)가 Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>를 첨가함에 따라 첨가되지 않은 시편의 1차 상전이온도보다 높은 쪽으로 이동하였기 때문에 유전상수가 감소하는 것으로 사료된다.

그림 8은 Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>의 첨가량 변화에 따른 제작된 시편의 유전상수 온도 의존성을 나타낸 것이다. Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>가 첨가되지 않은 0 wt% 시편의 1차 상전이온도 (T<sub>0-T</sub>)가 상온 부근에 위치하는 것으로 사료되며, Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>가 첨가됨에 따라 1차 상전이온도 (T<sub>0-T</sub>)는 130°C에서 170°C 사이에 존재하는 것으로 보인다. 큐리온도 (T<sub>C</sub>)는 0 wt%일 때, 300°C 부근에서 나타났으며, Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 첨가량의 증가에 따라 큐리온도 (T<sub>C</sub>)는 340°C 부근까지 이동하는 것을 볼 수 있다. 이는 Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>의 첨가가 Fe<sup>3+</sup> 이온이 이온 반경이 비슷한 Nb<sup>5+</sup>와 Sb<sup>5+</sup>에 치환이 잘 되었다는 결과로 해석되며, 조성 영역의 격자 안에서 뒤틀림을 유도하여 상전이 거동에 영향을 미친 것이라고 사료된다.

그림 9는 Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>의 첨가량 변화에 따른 시편을 60Hz에서 측정된 히스테리시스 루프 (P-E hysteresis loop)를 나타낸 것이다. 그림에서 보듯이, Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 첨가되지 않은 0 wt%의 시편에서는 제대로 포화되지 않은 히스테리시스 루프가 나타났다. Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 첨가량의 증가에 따라 잔류분극 (P<sub>r</sub>)과 항전계 (E<sub>c</sub>) 증가하였다가 감소하는 경향을 나타내었으며, 0.6 wt% 첨가된 시편에서 잔류분극 (P<sub>r</sub>)과 항전계 (E<sub>c</sub>)는 14.16 μC/cm<sup>2</sup>, 10.65 kV/cm로 최대값을 각각 나타냈다. Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>가 억셉트 효과로서 항전계가 증가하는 효과를 가지고 있으므로, 특성이 증가한 것으로 사료된다.

표 1은 Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 첨가량에 따른 시편의 물성값을 종합적으로 정리하여 나타낸 것이다.

Table 1. The physical properties of specimens as a function of the amount of Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> addition.

x	Density [g/cm <sup>3</sup> ]	kp	Dielectric Constant	d <sub>33</sub> [pC/N]	d <sub>31</sub> [pC/N]	Q <sub>m</sub>	E <sub>c</sub> [kV/cm]	Pr [μC/cm <sup>2</sup> ]	T <sub>c</sub> [°C]
0	4.589	0.28	1431	153	59	86	9.15	10.77	302
0.2	4.446	0.39	1174	223	88	87	9.45	13.76	323
0.4	4.534	0.40	1180	226	116	86	9.52	14.93	323
0.6	4.582	0.44	1090	233	92	95	10.65	14.16	323
0.8	4.557	0.39	1033	180	72	104	9.67	13.70	337
1	4.556	0.37	1008	160	61	107	9.37	13.50	340

#### 4. 결론

본 연구에서는 우수한 압전 특성을 갖는 무연 압전 세라믹스의 개발하기 위해  $(\text{Na}_{0.525}\text{K}_{0.443}\text{Li}_{0.037})(\text{Nb}_{0.883}\text{Sb}_{0.08}\text{Ta}_{0.037})\text{O}_3 + 0.3 \text{ wt}\% \text{Bi}_2\text{O}_3 + x \text{ wt}\% \text{Fe}_2\text{O}_3$  조성에  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ 를 첨가하여 첨가량의 변화에 따른 NKL-NSTO<sub>3</sub> 세라믹스의 미세구조, 상구조, 그리고 압전 및 유전특성에 미치는 영향에 대하여 조사한 결과 다음과 같은 결과를 얻었다.

1.  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ 가 첨가되지 않은 시편의 XRD 회절 패턴에서 1차상전이 온도가 상온 부근에 위치함으로 MPB 상으로 사료되고  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ 의 첨가에 따라 0.2 wt%에서 1.0 wt%까지는 (202)/(020) 피크를 보이는 사방정계 (Orthorhombic Phase)을 나타내었다.

2.  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  첨가량의 증가에 따라 밀집한 미세구조를 얻었으며, 0.6 wt% 첨가된 시편에서의 평균 입자의 사이즈는 3.66  $\mu\text{m}$ 의 최댓값을 얻었다. 첨가제들이 소결 과정 중에 액상을 형성함으로써 액상소결로 인해 입자성장에 영향을 미친 것으로 사료된다.

3.  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ 가 첨가되지 않은 0 wt% 시편의 1차 상전이온도는 상온 부근에 위치하고,  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ 의 첨가에 따라 1차 상전이온도는 높은 온도 쪽으로 이동하였으며, 큐리온도 또한 첨가량의 증가에 따라 340°C 부근까지 이동하였다.

4.  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ 가 0.6 wt% 첨가된 조성에서 압전상수 ( $d_{33}$ ), 전기기계결합계수 ( $k_p$ ), 기계적품질계수 ( $Q_m$ ), 유전상수, ( $\epsilon_r$ ) 그리고 잔류분극 ( $P_r$ )과 항전계 ( $E_c$ )는 233 [pC/N], 0.44, 95, 1,090, 14.16  $\mu\text{C}/\text{cm}^2$ , 10.65 kV/cm 로 최적의 값을 나타내었다.

#### REFERENCES

- [1] F. Azough, M. Wegrzyn, R. Freer, S. Sharma, and D. Hall, *J. Eur. Ceram. Soc.*, 31, 569 (2011).
- [2] R. Zuo, Z. Xu, and L. Li, *J. Phys. Chem. Solids*, 69, 1728 (2008).
- [3] L. Chen, H. Fan, M. Zhang, C. Yang, and X. Chen, *J. Alloys Compd.*, 492, 313 (2010).
- [4] C. Zhang, Z. Chen, W. J. Ji, L. Wang, Y. B. Chen, S. H. Yao, S. T. Zhang, and Y. F. Chen, *J. Alloys Compd.*, 509, 2425 (2011).
- [5] B. H. Seo and J. H. Yoo, *J. KIEEME*, 23, 617 (2010).
- [6] R. Zuo, C. Ye, and X. Fang, *J. Phys. Chem. Solids*, 69, 230 (2008).
- [7] Y. S. Kim, J. H. Yoo, J. I. Hong, and J. Y. Lee, *J. KIEEME*, 26, 806 (2013).
- [8] R. Zuo, Z. Xu, and L. Li, *J. Phys. Chem. Solids*, 69, 1728 (2008).
- [9] T. Takenaka and H. Nagata, *J. Eur. Ceram. Soc.*, 25, 2693 (2005).
- [10] Y. Zhao, Y. Zhao, R. Huang, R. Liu, and H. Zhou, *Mater. Lett.*, 75, 146 (2012).
- [11] X. Chao, Z. Yang, Z. Li, and Y. Li, *J. Alloys Compd.*, 518, 1 (2012).
- [12] Y. Saito, H. Takao, T. Tani, T. Nonoama, K. Takatori, T. Homma, T. Nagaya, and M. Nakamura, *Nature*, 432, 84 (2004).
- [13] H. Wang, J. Wu, X. Cheng, D. Xiao, and J. Zhu, *J. Alloys Compd.*, 585, 748 (2014).
- [14] J. J. Zhou, J. F. Li, L. Q. Cheng, K. Wang, X. W. Zhang, and Q. M. Wang, *J. Eur. Ceram. Soc.*, 32, 3575 (2012).
- [15] J. Du, Z. Xu, B. Deng, R. Chu, X. Yi, L. Zheng, and Y. Li, *Ceram. Int.*, 40, 4319 (2014).
- [16] J. Liu, J. Zhu, X. Li, M. Wang, X. Zhu, J. Zhu, and D. Xiao, *Mater. Lett.*, 65, 948 (2011).
- [17] Y. Guo, K. I. Kakimoto, and H. Ohsato, *Mater. Lett.*, 59, 241 (2005).
- [18] D. Lin, K. W. Kwok, K. H. Lam, and H.L.W. Chan, *J. Appl. Phys.*, 101, 074111 (2007).
- [19] S. X. Huo, S. L. Yuan, Y. Qiu, Z. Z. Ma, and C. H. Wang, *Mater. Lett.*, 68, 8 (2012).
- [20] J. R. Noh and J. H. Yoo, *J. Electroceram.*, 29, 144 (2012).