


## 압전 스피커 응용을 위한 PSN-PZT계 세라믹스의 미세구조 분석 및 전기적 특성 평가

김성진<sup>1</sup>, 권순용<sup>2</sup> 

<sup>1</sup> (주)제닉슨

<sup>2</sup> 한국교통대학교 신소재공학과

### Microstructures and Electrical Properties of PSN-PZT Ceramics for Piezoelectric Speaker

Sung-Jin Kim<sup>1</sup> and Soon-Yong Kweon<sup>2</sup>

<sup>1</sup> ZENIXON Co., LTD., Chungju 27469, Korea

<sup>2</sup> Department of Materials Science and Engineering, Korea National University of Transportation, Chungju 27469, Korea

(Received November 21, 2018; Revised December 6, 2018; Accepted December 6, 2018)

**Abstract:** Pb(Sb<sub>0.5</sub>Nb<sub>0.5</sub>)<sub>x</sub>(Zr<sub>0.51</sub>Ti<sub>0.49</sub>)<sub>1-x</sub>O<sub>3</sub> (abbreviation: PSN-PZT) ceramics were synthesized, using conventional bulk ceramic processing technology, with various PSN doping contents. The maximum density of PSN-PZT was 97% of the theoretical density in the samples sintered at 1,250°C. The maximum values of the piezoelectric properties achieved using the conventional processes were:  $k_p$  of 0.625,  $d_{33}$  of 531 pC/N, and  $g_{33}$  of 33 mV · m/N. Finally, we fabricated a piezo-speaker with the optimized PSN-PZT ceramics. The SPL of the speaker was measured at a distance of 1 m, with a driving voltage of 40 V<sub>rms</sub> in the frequency range of ~300 Hz to 9 kHz. The measured SPL<sub>max</sub> was at a very high level (95 dB), which was superior in quality in comparison with those of other commercial products.

**Keywords:** PSN-PZT, Piezoelectric properties, Microstructure, Piezo-speaker, Speaker pressure level

### 1. 서론

최근 자동차, 평면 TV 및 휴대용 전자기기 등에서 스피커의 경박단소화 및 고성능이 크게 부각되면서 대기업에서부터 중소기업에 이르기까지 얇은 두께를 갖는 고성능 스피커의 개발에 박차를 가하고 있다 [1-3]. 압전 세라믹을 이용하여 음압을 변조하는 압전 스피커는 기존의 마그네틱 스피커와는 차별되는 형태를 가진다 [1]. 기존의 마그네틱 스피커는 혼, 보이스 코일, 자석 등으로 구성되어 스피커의 두께를 감소시키는 데는

한계가 크다. 하지만 압전체를 이용하는 압전 스피커는 압전체 단독으로 얇게 제작하여 소리를 낼 수도 있고, 다른 매체에 진동을 전달하고 그 매체가 혼의 역할을 하여 음을 증폭시키는 것도 가능하기 때문에 고성능의 박형 스피커를 제작하기에 용이한 장점이 있어 최근에 주목을 받고 있다 [1-3].

압전 세라믹스는 진동, 변형, 압력 등의 기계적 에너지를 전기적 에너지로 혹은 전기적 에너지를 기계적 에너지로 변환시키는 소자로서 압전스피커의 핵심 소재이다 [4,5]. 현재 압전체 중에서 상업적으로 가장 많이 사용되는 것은 PbZr<sub>x</sub>Ti<sub>1-x</sub>O<sub>3</sub> (이하 PZT라 함) 조성을 기본으로 하고 있다 [6]. PZT에 다양한 물질들을 첨가하여 우수한 특성의 압전체를 개발하여 여러 전자소자들을 제작하고 있다 [7,8]. 압전체를 이용하여 스피커를 제작하는 경우에는 적당한 기계적 품질계수(Q<sub>m</sub>)를

✉ Soon-Yong Kweon; sykweon@ut.ac.kr

가지면서 우수한 전기기계결합계수( $K_p$ ) 및 낮은 비유전율( $\epsilon_r$ ) 특성을 나타내는 소재가 유리하다 [4,5].

따라서 본 연구에서는 우수한 압전 특성을 갖는 Pb( $\text{Sb}_{0.5}\text{Nb}_{0.5}$ ) $_x$ ( $\text{Zr}_{0.51}\text{Ti}_{0.49}$ ) $_{1-x}\text{O}_3$  (이하 PSN-PZT라 함) 3 성분 압전세라믹 조성을 선행 연구들의 조사를 통하여 설계하였다 [9-11]. 그 다음 조성의 최적화를 위하여 Pb( $\text{Sb}_{0.5}\text{Nb}_{0.5}$ ) $\text{O}_3$  (이하 PSN이라 함) 조성(x)을 변화시키면서 비유전율, 전기기계결합계수 및 기계적 품질계수 등의 전기적 특성을 평가하였다. 또한 최적화된 PSN-PZT 세라믹 조성을 이용하여 압전 스피커를 제작하여 상업적 이용 가능성도 평가하였다.

## 2. 실험 방법

일반적으로 PZT계 세라믹에서는 상경계 영역(morphotropic phase boundary, MPB)에서 가장 우수한 전기적 특성을 보인다 [6]. 따라서 본 연구에서도 상경계 영역에서 Pb( $\text{Sb}_{0.5}\text{Nb}_{0.5}$ ) $_x$ ( $\text{Zr}_{0.51}\text{Ti}_{0.49}$ ) $_{1-x}\text{O}_3$  조성을 설계하였고, PSN 조성(x)을 0.02~0.08 범위에서 변화시키면서 실험하였다.

설계된 조성의 세라믹스의 특성을 평가하기 위해서 일반적인 세라믹 분말의 소결 공정을 적용하여 시편을 제작하였다. 먼저 조성에 따라서 원료 분말을 0.01 g 까지 칭량하고, 알코올 용액에 원료 분말과 지르코니아 물을 함께 넣은 다음 24시간 동안 혼합, 분쇄한 후 건조하였다. 그 다음 혼합 분말을 알루미늄 도가니에 넣고 800°C에서 2시간 하소 공정을 진행하였다. 하소한 분말은 24시간 동안 다시 혼합, 분쇄 후 건조하여 최종 PSN-PZT 분말을 얻었다. 최종 분말에 PVB (0.1 wt%)를 첨가한 다음 직경 15 mm의 원판(disk) 형태로 1,000 kgf/cm<sup>2</sup> 압력을 가하여 성형한 후, 1,250°C에서 2시간 동안 소결 공정을 수행하였다. 소결 공정이 완료된 시편의 미세구조를 관찰하기 위해 주사전자현미경(SEM)을 이용하였으며, X-선 회절기(XRD)를 이용하여 결정구조를 분석하였다.

전기적 특성을 평가하기 위하여 1 mm 두께로 연마한 시편에 은 페이스트(silver paste)를 도포하고 650°C에서 20분 동안 열처리하여 전극을 형성한 후, 120°C의 실리콘유(silicone oil) 내에서 3.5 kV/mm의 전계를 가해 40분간 분극처리(poling) 하였다. 제작된 시편의 압전전하상수(piezoelectric charge constant)는 압전전하상수 측정기( $d_{33}$ -meter: APC-8000)를 이용하여 측정하였다. 비유전율( $\epsilon_r$ ), 전기기계결합계수( $k_p$ ) 및 기

계적 품질계수( $Q_m$ ) 등은 임피던스 분석기(impedance/gain phase analyzer: HP4194A)를 이용하여 측정하고, 공진-반공진법을 이용하여 계산하였다 [12,13].

이상의 실험을 통해서 최적화된 조성으로 압전 스피커용 압전체를 제작하였다. 압전체는 25 mm × 25 mm 사각형 형태이고, 두께는 0.2 mm로 제작되었다. 이러한 압전체를 금속판(brass, 두께 0.2 mm)의 양면에 접착제를 이용하여 부착하였다 (바이몰프형: bi-morph type). 내부가 무향장치로 채워진 실험 공간(chamber) 내에 압전 스피커를 고정하고, 음압을 측정하기 위한 마이크로폰(B&K 4135)을 압전 스피커로부터 1 m 되는 위치에 고정하였다. 압전 스피커를 구동하기 위한 유효 입력전압은 40 V<sub>rms</sub>를 인가하였고, 입력주파수 범위는 300 Hz ~ 9 kHz로 설정하여 구동하였다.

## 3. 결과 및 고찰

PZT 기반의 압전체는 페로브스카이트 결정구조(perovskite structure)를 갖는데, Zr/Ti 조성비가 50/50 근처에서 상경계 영역(morphotropic phase boundary, MPB)을 보인다 [Ti가 많은 쪽의 정방정상(tetragonal phase)과 Zr이 많은 쪽의 능면정상(rhombohedral phase)]. 첨가물질이 없는 PZT에서의 상경계 영역은 Zr/Ti = 53/47 조성비에서 나타나고 이 상경계 영역에서 가장 높은 압전 특성을 보인다 [6]. PZT에 새로운 물질을 첨가하면 보통 Ti가 좀 더 많은 쪽으로 상경계 영역이 이동한다. 따라서 본 연구에서는 PSN을 첨가하기 때문에 Zr/Ti 조성비를 51/49로 설계하였다. 그림 1은 결정구조 해석을 위하여, PSN 첨가량 변화에 따른 PSN-PZT 세라믹의 X-선 회절 패

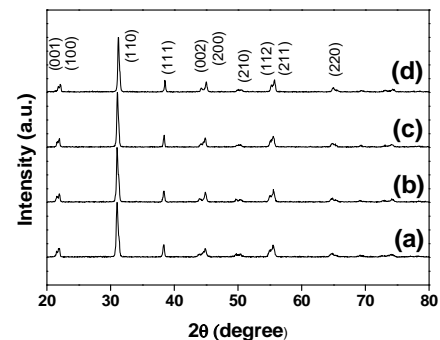
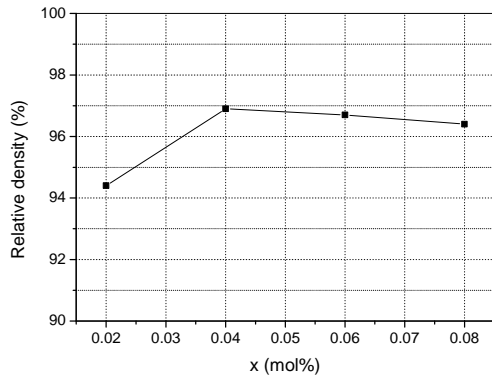


Fig. 1. X-ray diffraction patterns of PSN-PZT ceramics at various PSN amounts of x (mole ratio): (a) 0.02, (b) 0.04, (c) 0.06, and (d) 0.08.

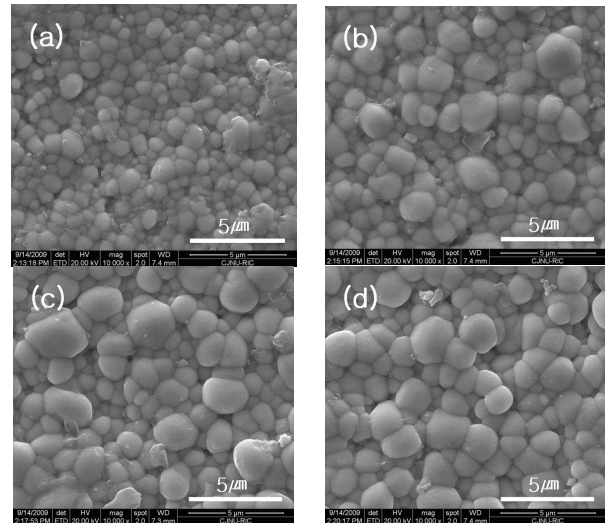


**Fig. 2.** Sintering density of PSN-PZT ceramics as a function of PSN composition.

턴의 변화를 분석한 결과이다. 모든 시편에서 이차상이 없는 순수한 페로브스카이트 구조를 나타냈다. 또한 45도 근처의 (002)/(200) 회절선의 분리가 명확한 것으로부터 정방정 상이 주된 상임을 알 수 있다. 능면정 상이 주된 상이 되면 결정구조에서 세 방향으로의 격자상수가 같기 때문에 45도 근처의 회절선이 하나로 나타나게 된다. 따라서 본 조성은 정확한 MPB 영역에서 약간 Ti 쪽으로 벗어나 있다고 판단된다.

PSN-PZT 세라믹의 PSN 조성이 0.08인 경우의 XRD 회절 도형에서 (X-선원: Cu K $\alpha$  선,  $\lambda = 1.54 \text{ \AA}$ ), 회절각(2 $\theta$ ) 43도와 46도 사이를 정밀 측정해 보면, (002)면의 회절선 (2 $\theta$ )은 44.3도이고, (200)면의 회절선은 44.8도로 측정되었다. 이러한 실험 결과로부터 격자상수와 이론 밀도를 계산할 수 있는데, 계산한 PSN-PZT의 이론 밀도는 약  $8.1 \text{ g/cm}^3$ 이었고, 정방정도(tetragonality:  $T = c/a$ )는 약 1.012 ( $c = 4.0902 \text{ \AA}$ ,  $a = 4.0462 \text{ \AA}$ )로 계산되었다. 다른 조성의 회절선에서도 (002)/(200) 면의 회절선 위치가 거의 변화가 없어서 상대밀도를 계산하는데 같은 이론 밀도 값을 적용하여 계산하였다.

그림 2는 PSN-PZT 소결체에서 PSN 첨가량의 변화에 따른 소결 밀도의 변화를 보여주고 있다. 소결 밀도는 아르키메데스(Archimedes)법 (ASTM C373-71)을 적용하여 측정하였다 [14]. 그림 1(a)의 XRD 회절 실험 결과로부터 계산한 이론 밀도 값인  $8.1 \text{ g/cm}^3$ 을 적용하여, 측정 밀도 값을 상대 밀도로 전환하여 나타내었다. PSN 조성이 0.04 이상인 경우에서 PSN-PZT 소결체들의 상대 밀도는 96% 이상의 우수한 값을 보였다.  $x = 0.04$ 일 때 상대밀도가 약 97% (측정 밀도:  $7.85 \text{ g/cm}^3$ )로 가장 우수한 값을 나타내었고, 그 이상



**Fig. 3.** SEM images of PSN-PZT ceramics at various PSN compositions of x: (a) 0.02, (b) 0.04, (c) 0.06, and (d) 0.08.

의 PSN 첨가 시에는 다소 밀도가 감소하는 경향을 보였다. 이러한 감소는 첨가물질의 양이 많아짐에 따라 소결체 내에 양이온 공공(metal vacancy) 등의 더 많은 결함이 생성되기 때문이라고 판단된다. PSN의  $\text{Sb}^{5+}$ 와  $\text{Nb}^{5+}$ 는 PZT의  $\text{Ti}^{4+}$ 와  $\text{Zr}^{4+}$  이온 자리를 치환하게 되는데, Sb 및 Nb는 Ti나 Zr에 비하여 가전자 수가 하나 더 많기 때문에 재료 내의 전기적 중성 조건을 만족시키기 위해서 Pb 공공을 형성하게 된다. 즉, 더 많은 PSN 첨가되면 더 많은 양이온 공공이 형성하게 되고, 이는 밀도 감소에 직접적인 영향을 미치는 것으로 판단된다 [6].

그림 3은 소결 후에 PSN-PZT 세라믹의 표면에서 관찰한 주사전자현미경 (SEM) 사진이다. 모든 시편에서 기공들은 거의 관찰되지 않는 양호한 소결체를 형성함을 볼 수 있다. 파단한 후의 단면을 관찰한 결과에서도 내부에 뚜렷한 닫힌 기공(closed pore)들은 관찰되지 않았다. 또한 그림에서 볼 수 있듯이, PSN 첨가량이 증가함에 따라서 입자(grain)들의 크기는 점점 증가하였는데, 이러한 결과로부터 PSN은 PZT계의 세라믹스에서 입자 성장을 촉진함을 알 수 있다. 일반적으로 입자 크기가 증가하면 압전 특성이 이에 비례하여 증가하는 경향을 보인다 [6]. PSN의 조성이 0.08인 경우에서 입자 크기가 가장 큰데, 이때의 입경은 대략  $\varnothing 1.5 \mu\text{m}$  정도의 크기를 보이고 있다.

그림 4는 PSN-PZT 세라믹 소결체에서 PSN 첨가량의 변화에 따른 전기기계결합계수( $k_p$ ) 및 기계적 품질

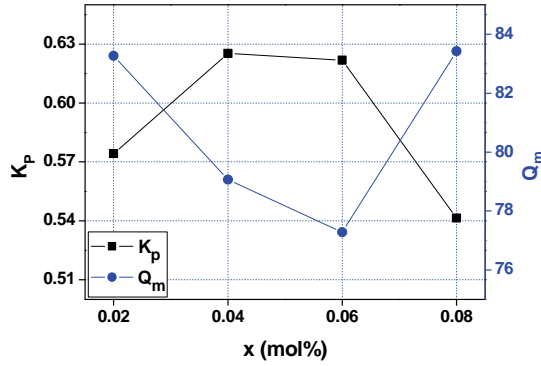


Fig. 4. Dependence of electromechanical coupling factor ( $k_p$ ) and mechanical quality factor ( $Q_m$ ) on PSN composition in PSN-PZT ceramics.

계수( $Q_m$ )의 변화를 보여주고 있다. 각각의 값들은 임피던스 분석기(HP4194A)로 측정한 임피던스 스펙트럼 데이터를 이용하여 공진-반공진법을 적용하여 다음 식을 이용하여 계산한 것이다 [12,13]. 여기에서  $f_r$ 은 1차 공진 주파수,  $f_a$ 는 1차 반공진 주파수,  $Z$ 는 임피던스 값,  $C_f$ 는 압전체의 정전용량 값을 나타낸다.

$$\frac{1}{k_p^2} = 0.395 \frac{f_r}{f_a - f_r} + 0.574 \quad (1)$$

$$\frac{1}{Q_m} = 2\pi f_r |Z| C_f \left( 1 - \left( \frac{f_r}{f_a} \right)^2 \right) \quad (2)$$

PSN의 조성이 0.06까지 증가하면 전기기계결합계수는 증가하고 기계적 품질계수는 감소하는 경향을 보인다. PZT 기반의 압전체에서  $Zr^{4+}$  및  $Ti^{4+}$  대신에  $Sb^{5+}$ 와  $Nb^{5+}$  양이온으로 치환하면 재료 내의 전기적 중성 조건을 만족시키기 위하여 Pb 공공(vacancy)이 형성되는 것이 일반적인 이론이다 [6]. 이렇게 금속 공공이 형성되면 재료 내의 원자들의 움직임이 점 결함(point defect)이 없을 때와 비교하면 더 쉬워지게 된다. 이러한 현상 때문에 이를 소프트 도핑(soft doping)이라 칭한다. PZT에 소프트 도핑을 하면, 전기기계결합계수( $k_p$ ) 및 비유전율( $\epsilon_r$ ) 값은 증가하게 되고, 기계적 품질계수( $Q_m$ ) 및 항전계( $E_c$ ) 값은 감소하게 된다. 그림 4의 실험 결과로부터 PZT계 세라믹에서 PSN의 첨가는 소프트 도핑(soft doping) 특성을 보임을 확인할 수 있다. 이러한 실험 결과로부터 소결체 내에는 Pb 공공이 주로 형성됨을 유추할 수 있다.

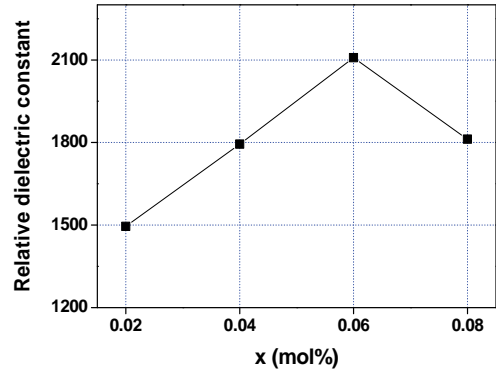


Fig. 5. Variation of relative dielectric constant ( $\epsilon_r$ ) with different doping amounts of PSN in PSN-PZT ceramics.

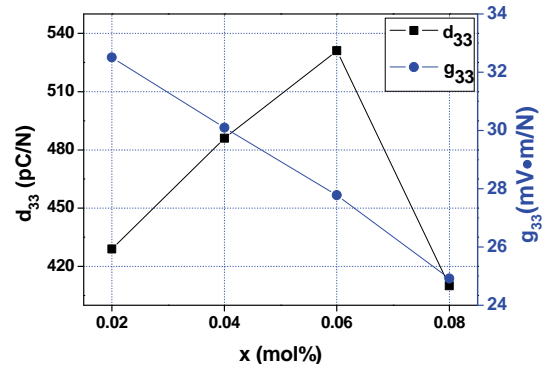


Fig. 6. Effects of PSN composition on piezoelectric charge constant ( $d_{33}$ ) and piezoelectric voltage constant ( $g_{33}$ ) in PSN-PZT ceramics.

압전 스피커의 진동판에 적용하기 위해서는 전기기계결합계수가 가능한 큰 값을 갖는 것이 유리하다. PSN의 첨가량이 0.04일 때에 가장 높은 전기기계결합계수 값을 보이는데, 이때 값은 약 62.5%로 우수한 특성을 보였다. PSN 조성이 0.04인 경우의 기계적 품질계수 값은 약 79 정도로 상당히 낮은 값을 보이고 있다. 이러한 문제점을 해결하기 위해서는 위 PSN-PZT 조성에  $MnO_2$  등의 하드너(hardener)를 소량 첨가하여 추가 실험을 진행할 필요가 있다 [6,10].

그림 5는 몰비(x)에 따른 비유전율( $\epsilon_r$ )의 변화를 보여주고 있다.  $x = 0.06$ 일 때 2,108로 최대값을 나타내었으며 이후 감소하는 경향을 보였다. 압전 스피커 응용을 위해서는 유전율이 낮은 것이 유리한 것으로 알려져 있다 [5]. 따라서 PSN 조성이 낮을수록 유리할 것으로 판단된다. 그림 6은 몰비(x)에 따른 압전전하상수( $d_{33}$ )와 압전전압상수( $g_{33}$ )의 변화를 보여주고 있다.

압전전하상수는 압전전하상수 측정기를 이용하여 측정하였고, 압전전압계수( $g_{33}$ )는 다음과 같은 식으로 계산하였다 [5].

$$g_{33} = d_{33}/(\epsilon_0 \cdot \epsilon_r) \quad (3)$$

여기에서  $\epsilon_0$ 는 진공에서의 유전율이고  $\epsilon_r$ 은 그림 5에 나타난 비유전율이다. 압전전하상수는  $x = 0.06$ 일 때 531 pC/N로 가장 높은 값을 나타내었으며, 전 조성에 걸쳐 410~531으로 높은 값을 보이고 있다. 하지만 압전전압상수는  $x = 0.02$ 일 때 33 mV·m/N으로 최대값을 나타내었다. 이는 식 (3)에서 보듯이 비유전율이  $x = 0.02$ 일 때 가장 낮기 때문임을 알 수 있다.

압전 스피커 제작을 위해서는 우수한 압전 특성을 갖는 압전체의 개발이 가장 중요하다 [1-3]. 우수한 압전체는 전기기계결합계수, 기계적 품질계수, 압전전압상수 등의 압전 특성이 높아야 한다 [4,5]. 이상의 논의들을 종합적으로 검토한 결과, PSN이 0.04 첨가된 조성을 적용하여 스피커를 제작하였다. 두께가 0.2 mm인 사각형의 압전 스피커용 압전체(25 mm × 25 mm)를 두께 0.2 mm의 황동판의 양면에 부착하여 바이모프형 스피커를 제작하였다 (총 두께: 0.6 mm). 제작된 압전 스피커의 음압은 마이크로폰을 이용하여 무향실 내에서 측정하였다. 압전 스피커와 마이크로폰 사이의 거리는 1 m로 고정하였고, 압전 스피커 구동전압은 40 V<sub>rms</sub>를 인가하였다. 추가적인 진동매체의 적용에 따른 음압의 변화를 확인하기 위하여 제작된 사각형의 바이모프형 압전체를 아크릴 판(10 cm × 10 cm × 1 mm)에 부착하여 음압 특성을 평가하였다.

추가적인 진동매체(아크릴 판) 유무에 따른 음압의 변화를 측정한 실험 결과를 그림 7에 보여주고 있다. 그래프에서 사각형 기호가 압전체를 아크릴 판에 부착한 것에서 얻은 실험 결과이고, 채워진 원이 바이모프형 압전체 스피커만 구동하였을 때의 음압이다. 아크릴 판에 압전체를 부착한 경우, 압전체만의 음압에 비하여 월등히 향상된 음압 특성을 나타내는 것을 알 수 있었다. 약 3 kHz 주파수에서의 최대음압(SPL<sub>max</sub>)은 약 95 dB 정도로 매우 우수한 특성을 보였다. 특히 저주파수 영역인 300 Hz에서 5 kHz까지의 범위에서는 진동매체 유무에 따른 현격한 차이를 보이고 있으며, 이는 압전 스피커의 단점으로 지적되었던 저주파 구동이 가능함을 보여주고 있다. 기존의 압전 스피커의 음압이 1 kHz 이하에서는 거의 음압이 나오지 않고, 최대 음압이 80 dB를 넘지 못하는 것을 감안하면 진동매체의

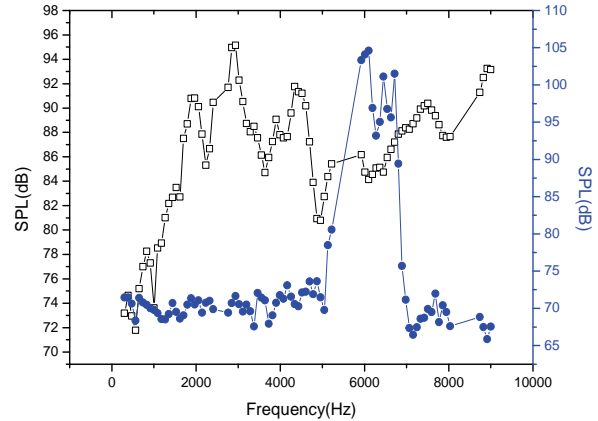


Fig. 7. The SPL of the piezoelectric speaker measured without (closed circle) and with (open square) an additional vibration media.

효과가 상당히 큰 것으로 확인되었다 [1,5]. 인간의 가청 주파수는 20 Hz ~ 20 kHz이다. 그림 7의 실험 결과는 300 Hz에서 9 kHz까지의 실험 결과를 보여주고 있다. 일반적인 압전 스피커에서 9~20 kHz 범위에서의 음압 감소는 크지 않다 [5]. 다만 그림 7의 결과를 보면, 1 kHz 이하의 저주파 영역에서의 급격한 음압 감소는 추후 실험을 통하여 해결해야 할 연구 과제이다. 그럼에도 이상의 우수한 스피커 음압 특성은 상용 제품으로 적용 가능성이 충분함을 확인할 수 있었다.

#### 4. 결론

본 연구에서는 압전 스피커 응용을 위한 PSN-PZT 계 세라믹스에서 PSN 첨가량을 변화시켜 조성 최적화 실험을 수행하였다. 시편의 상대 소결 밀도는  $x = 0.04$ 일 때 97%로 최대값을 나타내었다. 전기기계결합계수( $k_p$ )는  $x = 0.04$ 일 때 0.625로 최대값을 나타내었다. 압전전하상수( $d_{33}$ )는  $x = 0.06$ 일 때 531 pC/N로 가장 높은 값을 나타내었으며, 압전전압상수( $g_{33}$ )는  $x = 0.02$ 일 때 33 mV·m/N으로 최대값을 나타내었다. 최적화된 PSN-PZT 압전체를 이용하여 바이모프형 압전 스피커를 제작하였다. 구동전압을 40 V<sub>rms</sub>로 하고, 1m 거리에서 압전 스피커의 음압을 평가한 결과 최대 음압이 3 kHz 주파수에서 95 dB로 평가되었다.

#### ORCID

Soon-Yong Kweon

<https://orcid.org/0000-0002-2712-7154>

## REFERENCES

- [1] S. J. Kim, *Electr. Electron. Mater.* **19**, 13 (2006).
- [2] S. H. Lee, *Electr. Electron. Mater.* **19**, 24 (2006).
- [3] S. K. Kim, *Electr. Electron. Mater.* **19**, 33 (2006).
- [4] S. H. Lee, K. W. Seo, K. P. Ryu, and S. Y. Kweon, *J. Korean Inst. Electr. Electron. Mater. Eng.*, **19**, 531 (2006). [DOI: <https://doi.org/10.4313/jkem.2006.19.6.531>]
- [5] Y. H. Son, S. J. Kim, Y. M. kim, J. S. Jeong, S. L. Ryu, and S. Y. Kweon, *J. Korean Inst. Electr. Electron. Mater. Eng.*, **19**, 966 (2006). [DOI: <https://doi.org/10.4313/jkem.2006.19.10.966>]
- [6] Y. Xu, *Ferroelectric Materials and Their Application* (Elsevier Science, Amsterdam, 1991) p. 104.
- [7] M. S. Yoon, I. Mahmud, and S. C. Ur, *Ceram. Int.*, **39**, 8581 (2013). [DOI: <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2013.04.031>]
- [8] Y. H. Na, M. S. Lee, J. S. Yun, Y. W. Hong, J. H. Paik, J. H. Cho, J. W. Lee, and Y. H. Jeong, *J. Korean Inst. Electr. Electron. Mater. Eng.*, **31**, 462 (2018). [DOI: <https://doi.org/10.4313/JKEM.2018.31.7.462>]
- [9] J. H. Yoo, W. H. Woo, D. O. Oh, Y. H. Jeong, K. H. Chung, and S. L. Lyu, *J. Korean Inst. Electr. Electron. Mater. Eng.*, **16**, 1195 (2003). [DOI: <https://doi.org/10.4313/jkem.2003.16.12s.1195>]
- [10] J. W. Choi, K. H. Song, H. J. Kim, S. J. Yoon, and K. S. Yoo, *J. Sens. Sci. Technol.*, **16**, 120 (2007). [DOI: <https://doi.org/10.5369/jsst.2007.16.2.120>]
- [11] J. B. Choi, K. H. Song, H. J. Kim, S. I. Hwang, and K. S. Yoo, *J. Sens. Sci. Technol.*, **17**, 127 (2008). [DOI: <https://doi.org/10.5369/jsst.2008.17.2.127>]
- [12] IRE Standard Committee, *Proc. IRE Standards on Piezoelectric Crystals: Determination of the Elastic, Piezoelectric, and Dielectric Constants-The Electromechanical Coupling Factor*, 1958 (IEEE, 1958) p. 764.
- [13] IRE Standard Committee, *Proc. IRE Standards on Piezoelectric Crystals: Measurements of Piezoelectric Ceramics, 1961* (IEEE, 1961) p. 1161.
- [14] Standard Test Method for Water Absorption, Bulk Density, Apparent Porosity, and Apparent Specific Gravity for Fired White Ware Products, ASTM C373-72, 1972.