

적층형 압전소자의 내부전극과 세라믹 층간의 소성수축 정합 기술

글 _ 이재신, 정성규, 한형수, 정연학*, 정순중**
울산대학교 첨단소재공학부, *(주)삼전 기술연구소, **한국전기연구원 에너지변환소재연구센터

1. 서론

압전 및 전왜 재료를 이용한 액추에이터는 정밀한 미소변위 조절과 높은 발생력 등을 요구하는 광학 스테이지, 정밀 전자기기, 자동차 연료 분사장치, 반도체 공정 장비 등과 같은 산업분야에 널리 이용되고 있으며^{1,2)}, 특히 적층형 압전 세라믹 액추에이터(multilayer ceramic actuators, MLCA)는 기존의 전자식 액추에이터에 비해 빠른 응답속도, 뛰어난 정밀제어, 저소비 전력, 무소음과 같은 장점을 가짐으로써 정밀기계 및 전자기기 분야에서 광범위하게 연구되고 있다³⁾.

적층형 압전소자는 압전 세라믹 그린시트와 금속 분말을 이용한 후막 전극을 교대로 적층하여 동시에 소성하는 과정을 통하여 제작된다. 이러한 열처리 과정에서 ‘delamination’이라 불리는 층간 박리가 발생할 수 있다. 층간 박리의 주된 요인은 탈지공정 동안 유기첨가물을 포함하고 있는 금속전극의 축매반응과 동시소성 과정에서 내부전극과 세라믹 층간의 불충분한 부착력 때문이며,^{4,5)} 또한 열 수축 특성의 부정합으로 인하여 계면에서의 미세균열들의 발생 혹은 외부전극의 납땀과 냉각과정에서의 응력 발생 등에 기인하는 것으로 알려졌다. 일반적으로 이러한 열처리 과정에서 발생한 미세균열과 내부결함은 소성 불량률 일으키지 않더라도 제품 출하 후 사용 중에 MLCA의 성능저하와 피로 파괴의 주된 원인이 된다고 알려져 있다.^{6,9)}

따라서 본 기고문에서는 압전세라믹 적층소자의 전극

층과 세라믹 층간의 소성수축 정합성을 개선시키기 위한 다양한 연구 활동에 대해 살펴보고자 한다. 먼저 압전 소자 이외의 분야에서 이중소재 간의 소성 수축 정합성 개선을 위한 연구동향을 살펴보고, 본 연구진이 지난 수년간 압전 소자 분야에서 수행한 연구결과를 소개하고자 한다.

2. 본론

2.1. 적층형 유전체 소자에 있어서 층간 열정합성 개선 연구 동향

유전체 세라믹스 분야의 대표적인 적층소자는 LTCC (low-temperature co-fired ceramics)와 MLCC (multilayer ceramic capacitors)를 들 수 있다. 유전체 세라믹과 내부전극을 적층하여 동시 소성하는 과정에서 두 가지 소재의 열수축 부정합성으로 인한 문제를 해결하기 위해 다양한 노력들이 진행되어 왔다.

LTCC 분야에서 유전체와 후막 전극소재 혹은 다른 전기적 특성을 가진 세라믹 소재간의 열수축 정합성 개선을 위한 연구 보고들을 Table 1에 정리하여 나타내었다. 1998년 칭화대학의 Chang과 Jean⁴⁾은 LTCC에서 전극과 유전체 적층체에서의 동시소성 왜곡을 줄이기 위해 Ag 전극 페이스트에 LTCC 유전체 분말을 첨가하는 방법을 시도하여 큰 효과가 있음을 입증하였다. 또한 2003년 같은 대학의 Wang 등²⁾은 zinc titanate에 Co₂Z ferrite를 첨가하여 동시소성 정합성이 증가됨을 입증하였다.

2006년 KIST의 최영진 등¹³⁾은 저유전을 유전체 후막과 고유전을 유전체 후막 동시소성 수축정합성을 일치시키기 위하여 유전체 소재에 붕규화 유리를 첨가하여 큰 효과를 보였다. 2008년 대만 Cheng Kung 국립대의 Hsianga 등¹⁴⁾은 BaTiO₃ 기반의 LTCC 소재와 전극의 소성수축 정합성을 높이기 위하여 Ag 전극에 ZnO-B₂O₃-SiO₂ (ZBS) 유리를 첨가하여 좋은 효과를 보였다.

고유전을 강유전체를 후막전극과 교대로 적층하여 동시 소성하는 MLCC 분야에 있어서도 열수축 정합성 개선을 위한 다양한 연구들이 Table 2와 같이 진행되어 왔다. 주요 결과들을 간략히 살펴보면 먼저 1997년 중국 칭화대의 Jean 등¹⁵⁾은 Ni 내부전극을 사용한 BaTiO₃/Ni MLCC 제작에 있어서 소성온도 변화와, Ni 내부전극의 두께조절을 이용한 실험에서 동시 소성시 발생하는 camber 발생율을 저감시켜 MLCC의 유전율과 절연 내력을 향상시키고, 유전손실을 줄일 수 있음을 입증하였다.

2004년 일본 나고야대학의 Hirano 등¹⁶⁾은 Ni 전극 분말에 BaTiO₃을 sol-gel 방법으로 코팅하여 강유전체와의 동시 수축 정합성 향상효과를 확인하였고, 2006년 중국 칭화대의 Zhou 등²¹⁾은 MLCC의 유전특성과 신뢰성 향상을 위해 ZnTiO₃ 유전체에 Ag 금속 분말을 첨가하여 큰 효과를 보였다. 최근 창원대의 Jung 등²²⁾은 Ni 내부전극에 10~30 vol% BaTiO₃를 첨가하여 MLCC의 절연내력과 기계적 강도를 향상시켰고, 신뢰성과 경시효과 저항성도 향상됨을 보고하였다.

2.2. PZT계 압전 세라믹 적층 소자 분야에서 소성수축 부정합성 해결 기술

현재 상업적으로 이용되는 압전세라믹 액추에이터는 모두 PZT계 소재를 주성분으로 이용하고 있다. 이 경우 내부전극으로는 AgPd 합금이 주로 사용되고 있으며, 일부 저온 소성에 의해 제조되는 적층형 액추에이터는 가

Table 1. LTCC 분야에서 이종소재 간의 소성수축 부정합성 해결을 위한 연구 사례

연도	연구기관	이종소재		소성수축 정합성 개선방법	참고문헌
		소재 1	소재 2		
1998	중국 칭화대	LTCC green tape (A-6 tape)	Ag paste (Ag-188, Ag-229)	Ag 전극에 유전체 분말 첨가	4
2002	미국 펜실베이니아 주립대학	LTCC (DuPont 951, Heraeus CT2000, Ferro A6-S)	Ag paste	소성 속도와 각 층의 두께조절을 이용한 camber발생 최소화 및 최적화	10
2002	중국 칭화대	LTCC (BSG glass Al ₂ O ₃)	Ag/Cu paste	Ag/Cu 전극에 소결 촉진제(Glass, Metal powder)를 첨가	11
2003	중국 칭화대	Zinc Titanates (ZnTiO ₃ -TiO ₂)	Co ₂ Z ferrite	ZnTiO ₃ 에 Co ₂ Z ferrite 첨가	12
2006	대한민국 KIST	중간유전을 유전체 (ZnNb ₂ O ₆ -TiO ₂)	저유전을 유전체 (Al ₂ O ₃)	유전체 소재에 붕규화 유리를 첨가하여 소성 수축을 조정	13
2008	대만 청룽국립대	BaTiO ₃ -based LTCC	ZBS glass	BaTiO ₃ -based LTCC에 ZBS 유리 분말 첨가	14

Table 2. MLCC 유전체 소재와 내부전극의 소성수축 부정합성 해결을 위한 연구 사례

연도	연구기관	유전체 소재	전극소재	소성수축 정합성 개선방법	참고문헌
1997	중국 칭화대	BaTiO ₃	Ni electrode	소성온도와 Ni 내부전극 두께조절	15
2002	중국 칭화대	PMNZT	70Ag/30Pd electrode	70Ag/30Pd 내부전극에 Pb, BT 세라믹 분말을 첨가	16
2002	대만 Ceramic Ltd. Co.	BaTiO ₃	70Ag/30Pd electrode	70Ag/30Pd 내부전극에 BaTiO ₃ 분말을 첨가	17
2003	중국 서안대	PNNT ferroelectric	NZC ferrite	PNNT ferroelectric에 NCZ ferrite를 첨가	18
2004	일본 나고야대	BaTiO ₃	Ni electrode	Ni 전극분말에 BaTiO ₃ 코팅	19
2005	캐나다 Umicore Canada Inc.	Base Metal Electrode Multilayer Ceramic Capacitors (BME-MLCCs)	Ni electrode	Ni의 입자크기 조절과 Ni 내부전극에 BT세라믹 분말을 첨가	20
2006	중국 칭화대	ZnTiO ₃	Ag electrode	ZnTiO ₃ 에 Ag 금속 분말을 첨가	21
2008	대한민국 창원대	BaTiO ₃	Ni electrode	Ni 내부전극에 10~30 vol% BaTiO ₃ 첨가	22
2009	중국 서안대	ZMT ₃ dielectric	NZC ferrite	ZMT ₃ dielectric/NZC ferrite Sandwich 구조를 이용한 Zero-Shrinkage-Difference Technique	23

격이 싼 Ag를 내부전극으로 사용한다. PZT계 압전소재와 AgPd 합금의 동시소성에서 발생하는 소성 수축을 차이를 줄이기 위한 연구는 중국의 칭화대에서 많이 이루어졌다. 칭화대 Li 교수와 Gui 교수 팀에서는 AgPd 후막 전극에 BaTiO₃ 분말을 첨가하는 방법,²⁴⁾ PZT 분말을 첨가하는 방법,²⁵⁾ PbB₂O₄ 유리를 첨가하는 방법²⁶⁾ 등을 통하여 PZT계 압전소재와의 열수축 정합성 개선시키는데 있어서 큰 효과를 보았다. 그러나 실제 압전세라믹 액추에이터에 적용한 연구결과는 보고하지 않았다.

그 이후 서울대 김현이 교수 연구진²⁷⁾과 KIMS의 최중진 박사 등²⁸⁾은 Ag 전극에 30~50% PZN-PZT 분말을 첨가하여 제조한 복합소재를 내부전극으로 이용하여 PZN-PZT계 압전 세라믹 액추에이터 제조에 있어서 성공적으로 적용하였다. 그러나 이상의 선행 연구결과들에서는

압전 액추에이터의 내부전극 조성이 액추에이터의 물성이나 전기적 성질에 미치는 영향에 대해서는 체계적인 보고가 최근까지 없었다.

본 연구진에서는 이상과 같은 배경에서 내부전극의 조성이 압전 액추에이터의 특성에 미치는 영향을 최근 4년간 체계적으로 연구하였고,^{29,30)} 그 결과들을 간략히 소개하고자 한다. Fig. 1에 여러 가지 소재를 내부전극으로 이용하여 제작한 PMN-PZT 압전세라믹 액추에이터의 측면 사진을 나타내었다. 시편의 크기는 7mm×7mm×5mm이고, 90 층의 압전 세라믹 층과 60 층의 내부전극을 교대로 적층하여 제조하였으며, 시편의 상·하면에 15층의 dummy 층을 두어 구동부를 보호하도록 하였다. 내부전극 소재로 다음의 6가지 조성을 비교하여 보았다. 4가지의 Ag-x PMNZT (x = 0, 12, 36 and 60 vol%) 복합소재 전극과 95/5와 70/30 조성비를 가진 두 종류 AgPd 합금을 전극으로 사용하였다. Fig. 1에서 볼 수 있듯이 Ag-PMNZT 복합체는 925°C까지 열적으로 안정적이나, 950°C에서는 부분적이 용융현상이 발생되었다. 그러나 95/5 AgPd 합금 전극은 950°C까지 열적으로 안정함을 볼 수 있다. 용점이 더 높은 70/30 AgPd 내부전극을 이용한 적층 소자는 1000°C 이상의 고온에서 적층체의 치밀화가 진행되는 문제를 나타내었다.

Fig. 2에 MLCA의 단면 미세구조를 나타내었다. 많은 시료들에서 소성 중에 Fig. 2 (b)와 같이 층간 박리 현상이 발견되었으며, 49개의 시료로 이루어진 한 배치 내에서 소성 불량률이 발생하는 시료의 수를 산출하여 소성 불량률을 산출하였다. Fig. 3에 내부전극의 조성에 따른

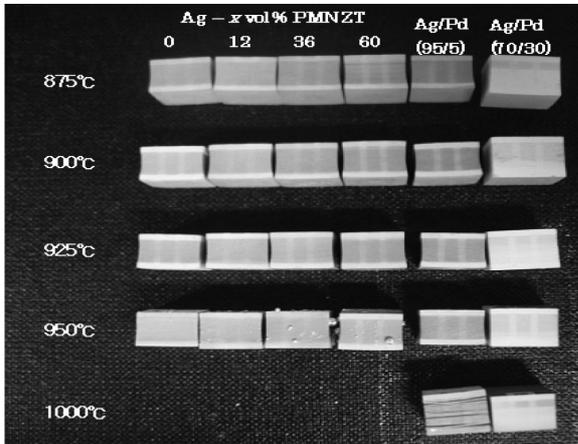


Fig. 1. 조성이 다른 6가지 내부전극 소재를 이용하여 여러 소결 온도에서 제조한 소결한 PMN-PZT MLCA의 측면 사진.

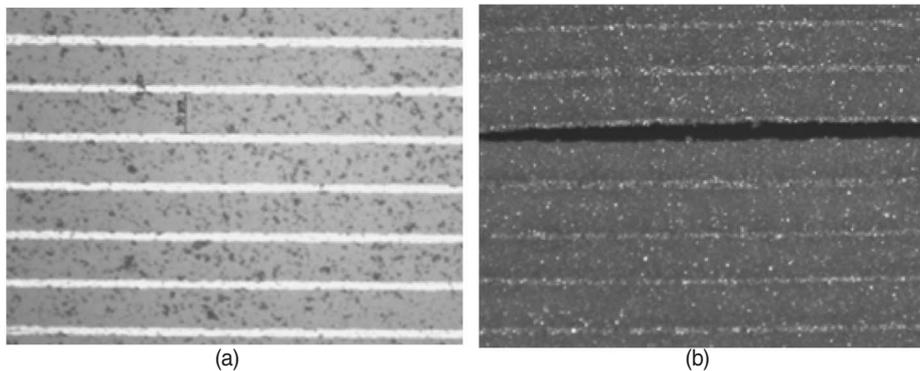


Fig. 2. MLCA의 단면 사진; (a) 층간 박리가 없는 경우, (b) delamination 발생 부위.

MLCA 시료의 소성불량률을 나타내었다. 순수한 Ag를 내부전극으로 이용한 경우에 소성불량률이 52 %에 이르렀으나, Ag 전극에 PMNZT 분말을 10 wt% 첨가한 경우에 소성불량률이 20% 이하로 현저히 낮아지는 것을 볼 수 있다. 그러나 PMNZT의 함량이 더 높아지면 소성 불량률이 다시 증가하는 문제가 발견되었다.

내부전극으로 사용된 Ag-PMNZT 복합소재가 소성수축 정합성에 미치는 영향을 알아보기 위하여 Ag 분말과 PMNZT 분말을 혼합하여 가압 성형체와 소결체를 제조하여 승온과 냉각 시 열수축 특성을 TMA (thermo-mechanical analyser)로 측정하였다. Fig. 4 (a)와 (b)는 각각 Ag-PMNZT 복합소재 성형체의 소성수축 곡선과 소결체의 냉각 수축곡선이다. 성형체를 가열하면 Ag와

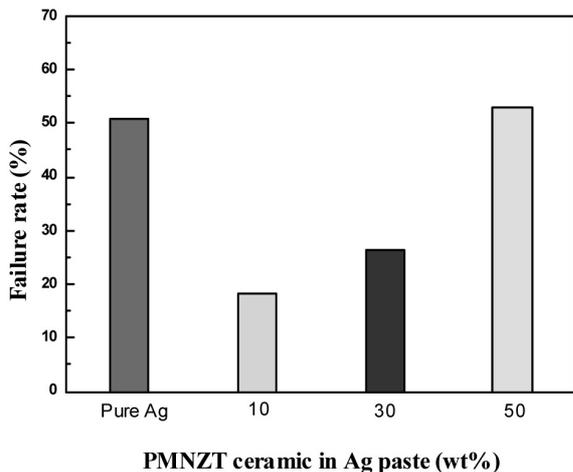
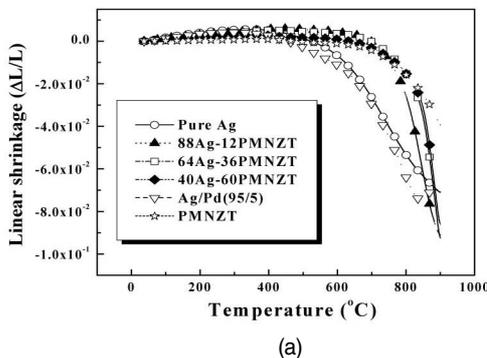


Fig. 3. Ag-PMNZT 복합소재 내부전극의 PMNZT 함량이 PMNZT MLCA 소성불량률에 미치는 영향.



AgPd (95/5) 합금의 경우 400~500°C에서 소성수축이 진행되기 시작하는 반면에, PMNZT 세라믹은 700°C에서 치밀화가 시작되는 것을 볼 수 있다. 더욱이, Fig. 4 (b)에서 볼 수 있듯이 소성 후 냉각과정에서도 Ag와 PMNZT 세라믹스는 수축률 면에서 큰 차이를 나타내는 것을 볼 수 있다. 그러나 Ag 전극에 PMNZT 세라믹을 첨가하면 소성수축 부정합과 냉각수축 부정합을 크게 줄일 수 있으며, 부정합도는 PMNZT의 함량이 증가함에 따라 감소함을 볼 수 있다.

Ag-PMNZT 복합소재 전극의 조성이 MLCA의 신뢰성에 미치는 영향을 살펴보기 위하여 내부전극 조성이 다른 MLCA의 장기 부하 신뢰성을 살펴보았다. 각 조성마다 10개의 MLCA를 2 kV/cm의 AC 전계를 인가하여 절연과파가 일어나는 전계 인가 횟수를 Weibull 식을 이용하여 통계 처리하여³⁰⁾ 반복 전계 인가에 따른 신뢰도를 구하여 Fig. 5에 나타내었다. MTTF (mean time to failure)는 신뢰도가 50%로 낮아지는 반복 전계 인가 횟수를 의미하며 순수한 Ag을 내부전극으로 이용한 PMNZT 액추에이터의 MTTF는 5.3×10^7 회였으나, PMNZT 분말을 12 vol% 첨가한 Ag 전극을 내부전극으로 사용한 MLCA의 MTTF는 2.1×10^8 회로 약 4배 정도 신뢰성이 향상되는 것을 볼 수 있다. 따라서 Ag-PZT 복합소재를 적층형 압전소자의 내부전극으로 사용하면 소성과정에서의 열수축 정합성을 개선시켜 소성불량률을 저감시키고 소자의 신뢰성도 크게 향상시킨다고 결론지을 수 있다.

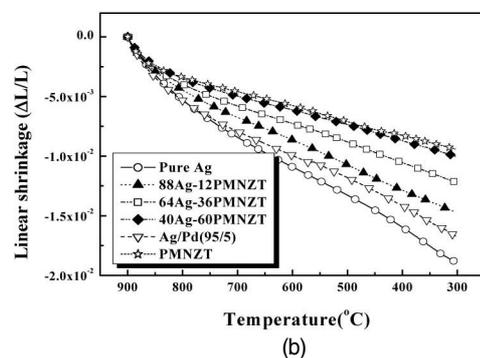


Fig. 4. Ag-PMNZT 복합소재의 열수축 특성; (a) 승온 시 소성수축, (b) 냉각 시 수축특성.

2.3. 무연 압전 세라믹 적층소자에서의 소성수축 정합성 향상 기술

최근 납을 함유된 전자부품에 대한 세계 각국의 규제가 강화되면서 압전소재 분야에서도 무연 압전소재에 대한 연구가 활발하게 진행되고 있다. 그러나 아직 PZT 계 압전세라믹 소재를 대체할 만한 무연 압전 세라믹 소재가 개발되지 않아서 무연 압전 세라믹 소재는 실용화되지 않고 연구 단계에 머물러 있다. 무연 압전세라믹 소재의 물성에 대한 연구는 활발하게 진행되었지만 무연 압전 세라믹 적층소자에 관한 보고는 별로 없는 편이다. 최

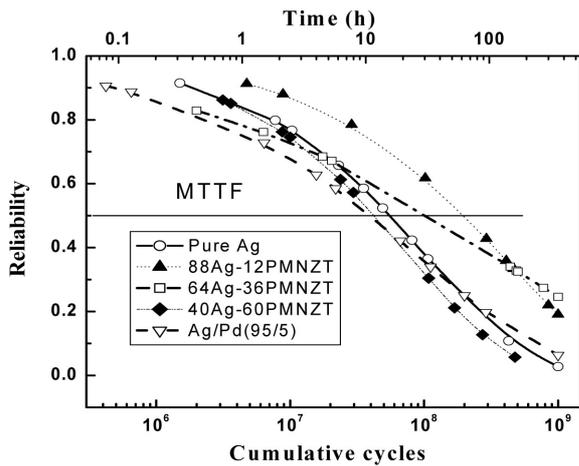


Fig. 5. 2 kV/mm의 교류전계를 반복적 인가함에 따른 PZT계 MLCA의 신뢰성 변화.

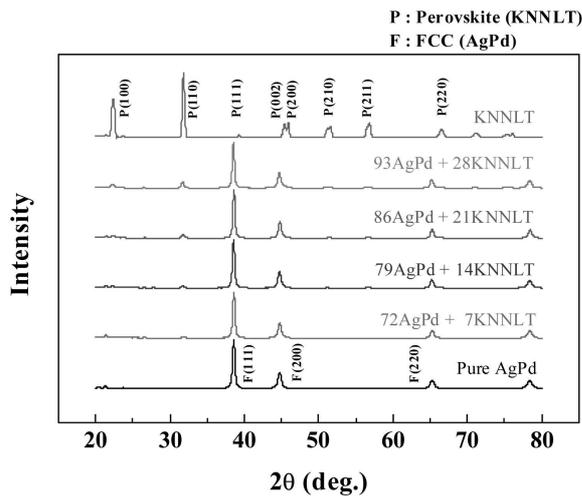


Fig. 6. KNNLT 함량 변화에 따른 AgPd-KNNLT 복합전극의 XRD 패턴.

근 일본의 Toyama 산업기술센터에서도 BT계 압전소재에 내부전극으로 Ni을 이용한 적층형 액추에이터를 보고하였고,^{31,32)} 또한 국내의 KERI는 KNNLT 압전소재에 내부전극으로 AgPd을 이용하여 제작한 적층형 액추에이터의 특성에 대해 보고하였다.^{33,34)}

이러한 배경에서 본 연구진은 무연 압전세라믹 액추에이터 개발을 위하여 전극과 압전소재의 열수축 정합성에 관하여 체계적으로 연구하고 있다. 본 기고문에서는 현재까지 진행된 연구결과를 간략히 소개하고자 한다.

AgPd(80/20) 분말과 0~28 vol% KNNLT (Li, Ta을 소량 도핑한 (K,Na)NbO₃) 무연 압전 세라믹 분말을 혼합하여 복합소재를 제작한 다음 1050°C에서 2시간 동안 소결하여 복합소재 덩어리를 제작하여 XRD 분석을 하여 그 결과를 Fig. 6에 나타내었다. 회절선을 확인한 결과 정방정 perovskite 구조의 KNN와 FCC 구조의 AgPd 금속 상만 존재하고 다른 중간 화합물은 나타나지 않았다. 따라서 KNNLT와 AgPd을 고온에서 동시 소성하여도 화학반응이 일어나지 않고 안정적인 계면을 형성할 것임을 예견할 수 있다.

AgPd-KNNLT 복합소재를 내부전극으로 사용하기 위해서는 절연성을 가진 KNNLT를 첨가하여도 도전성을 유지하여야 하므로 복합소재의 전기전도도를 살펴보았다. Fig. 7은 KNNLT를 첨가량의 변화에 따른 AgPd 전극의 전기비저항의 변화도이다. AgPd(80/20)의 전기비저항은 30 μΩ · cm이었으나, KNNLT를 첨가함에 따라

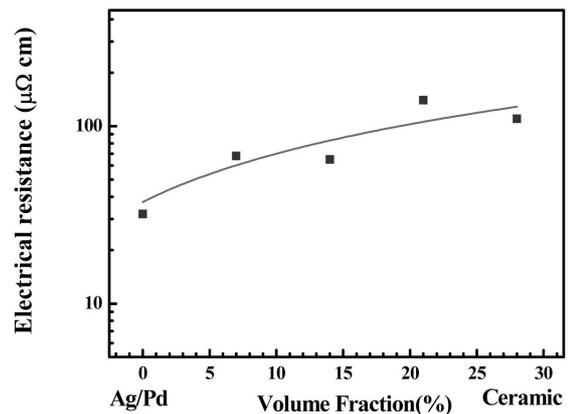


Fig. 7. KNNLT 함량 변화에 따른 AgPd-KNNLT 복합소재의 전기비저항의 변화.

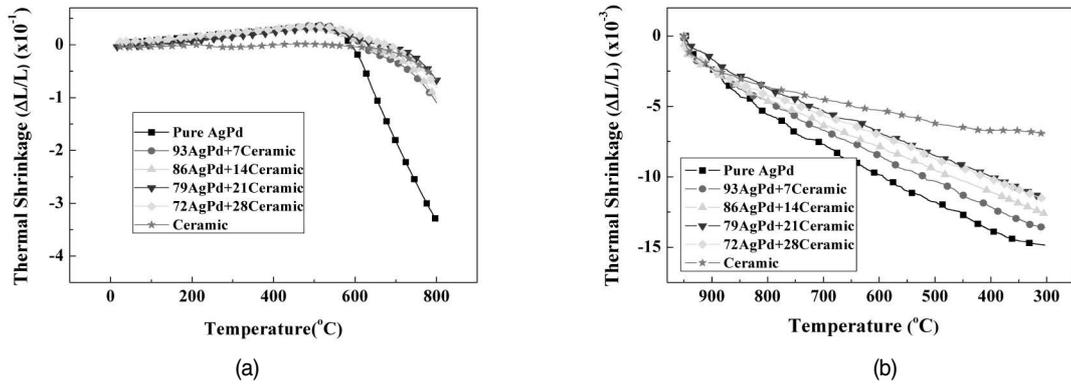


Fig. 8. AgPd-KNNLT 복합소재의 열수축 특성; (a) 승온 시 소성수축, (b) 냉각 시 수축특성.

전기비저항이 증가하여 약 28 vol% KNNLT를 첨가한 경우 전기비저항이 약 $100 \mu\Omega \cdot \text{cm}$ 으로 증가하였다. 그러나 이 값은 전기전도도 면에서 적층형 압전소자의 내부전극으로 사용하기에 충분한 값이라고 판단된다.

AgPd 내부전극과 KNNLT의 소성 과정에서의 열수축 정합성을 알아보기 위하여 AgPd-KNNLT 복합소재의 소성수축 특성과 냉각 시 열수축 특성을 TMA로 분석하여 Fig. 8에 나타내었다. Fig. 4에 나타내었던 PMNZT-Ag 복합소재의 열수축 특성과 유사하게 소성 및 냉각과정에서 AgPd과 KNNLT 세라믹스 두 가지 소재 간의 열수축 차이는 매우 큼을 알 수 있다. 냉각 시 측정된 열팽창계수는 AgPd의 경우 $2.1 \times 10^{-5}/^\circ\text{C}$ 이었으며, KNNLT의 경우 $7.1 \times 10^{-6}/^\circ\text{C}$ 로 나타났다. 그러나 AgPd에 KNNLT를 첨가하면 열팽창계수가 두 가지 소재의 중간 값으로 조정되었으며, 이에 따라 소성이나 냉각과정의 열수축 부정합

성이 크게 감소함을 역시 볼 수 있다.

이상과 같은 선행연구를 바탕으로 KNNLT-AgPd 복합소재를 내부전극으로 사용하여 KNNLT 적층세라믹 액추에이터를 제작하였다. Fig. 9는 내부전극으로 각각 AgPd와 AgPd-KNNLT (14 vol%)를 사용한 KNNLT 적층형 세라믹 액추에이터의 외관도이다. 압전 세라믹 시트 8층과 후막전극 7층을 교대로 적층하여 제조하였다. 소성 후 휨 정도를 Fig. 10과 같이 측정한 결과 AgPd를 내부전극으로 사용한 MLCA의 경우 1.3%였으나, AgPd에 KNNLT 분말을 첨가한 복합소재 전극을 이용한 MLCA의 경우에는 소성왜곡이 0.7%로 훨씬 적게 나타났다. 이러한 결과는 Fig. 8에서 보았듯이 소성 공정에서 승온 및 냉각 시 두 가지 이종소재의 열수축 부정합도가 감소하였기 때문이다.

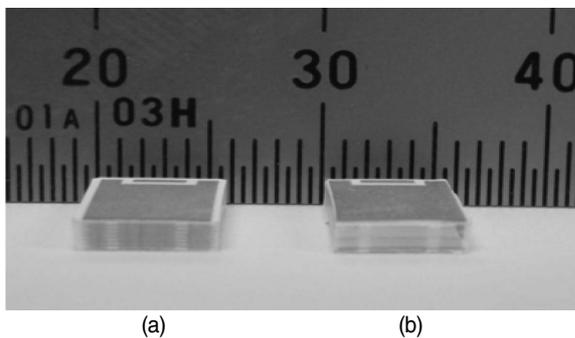
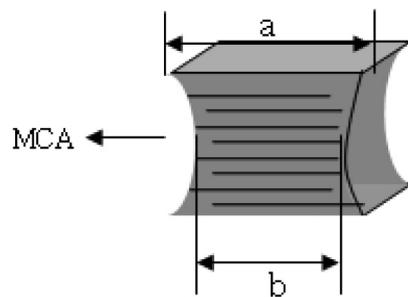


Fig. 9. 1000°C에서 4시간동안 소결한 KNN계 무연 MLCA의 외관 사진; (a) AgPd 내부전극, (b) AgPd-KNNLT (14 vol%) 내부전극.



$$\text{Camber Ratio}(\%) = \frac{(a-b)}{a} \times 100$$

Fig. 10. 소성왜곡 측정 모식도.

3. 결론

본 논문에서는 적층형 압전 세라믹 소자에 있어서 내부전극과 세라믹 소지의 소성수축 부정합성을 해결하는 방법에 대해 살펴보았다. 일반적으로 Ag나 AgPd과 같은 내부전극용 소재는 PZT계 압전 세라믹 소재나 KNN계 무연 압전 소재와 비교하여 높은 열팽창계수를 가지고, 소결과정에 있어서도 더 낮은 온도에서 치밀화가 진행됨을 TMA 분석을 통하여 확인할 수 있었다. 이러한 이종소재 간의 열수축 부정합성은 적층소자 제조시 높은 소성불량의 원인이 되었으며, 이러한 열수축 부정합에 기인한 소성불량은 내부전극에 세라믹을 첨가한 복합소재화로 크게 개선할 수 있음을 보였다. 특히 소성 중에 누적된 소성수축 부정합성은 소성불량으로 나타나지 않더라도 소자의 사용 중에 피로파괴의 원인으로 나타나게 됨을 PZT계 적층형 액추에이터의 반복 전계 인가 실험을 통한 신뢰성 연구로 확인할 수 있었다. 무연 압전 세라믹 액추에이터의 경우에도 AgPd 전극에 KNN계 압전 분말을 첨가함으로써 심각한 계면반응이 없이 소성 수축 정합성을 개선할 수 있었다.

감사의 글

본 연구는 지식경제부 소재원천기술개발사업의 연구비 지원으로 수행되었으며, 이에 감사드립니다.

참고문헌

1. K. Uchino and S. Takahashi, "Multilayer Ceramic Actuators", *Curr. Opin. Solid State Mater. Sci.*, **1** 698-705 (1996).
2. J. Prochard, C. R. Browen, and F. Lowrie, "Multilayer Actuators", *British Ceramic Transaction*, **100** 1-1009 (2001).
3. K. Uchino, "Piezoelectric Actuators 2006", *J. Electroceram.*, **20** 301-311 (2008).
4. C. R. Chang and J. H. Jean, "Effects of Silver-Paste Formulation on Camber Development during the Cofiring of a Silver-based, Low-Temperature-Cofired Ceramic Package", *J. Am. Ceram. Soc.*, **81** 2805-14 (1998).
5. T. Cheng and R. Raj, "Flaw Generation during Constrained Sintering of Metal-Ceramic and Metal-Glass Multilayer Film", *J. Am. Ceram. Soc.*, **72** 1649-55 (1989).
6. J. G. Pepin, W. Borland, P. O. Richard, and J. S. Young, "Electrode-Based Causes of Delamination in Multilayer Ceramic Capacitors", *J. Am. Ceram. Soc.*, **72** 2287-91 (1989).
7. A. Furuta and K. Uchino, "Dynamic Observation of Crack Propagation in Piezoelectric Multilayer Actuators", *J. Am. Ceram. Soc.*, **76** 1615-17 (1993).
8. C. Ru, "Electrode-Ceramic Interfacial Cracks in Piezoelectric Multilayer Materials", *J. Appl. Mech. Tech. Phys.*, **67** 255-61 (2000).
9. S. Y. Maeng, D. K. Lee, J. W. Choi, H. J. Kim, C. Y. Kang, S. Nahm, and S. J. Yoon, "Design and Fabrication of Multilayer Actuator Using Floating Electrode", *Mater. Chem. Phys.*, **90** 405-10 (2005).
10. A. Mohanram, G. L. Messing, D. J. Green, and C. A. Randall, "Prediction of Shrinkage and Deformation during LTCC Device Production", *Proc. Int. Microelectron. Packag. Soc.*, **4931** 772-77 (2002).
11. Y. Wang, G. Zhang, and J. Ma, "Research of LTCC/Cu, Ag Multilayer Substrate in Microelectronic Packaging", *Mat. Sci. Eng., B*, **94** 48-53 (2002).
12. M. Wang, J. Zhou, Z. Yue, L. Li, and Z. Gui, "Cofiring Behavior of ZnTiO₃/TiO₂ Dielectrics/Hexagonal Ferrite Composites for Multi-layer LC Filters", *Mat. Sci. Eng. B*, **99** 262-65 (2003).
13. Y. J. Choi, J. H. Park, W. J. Ko, I. S. Hwang, J. H. Park, and J. G. Park, "Co-Firing and Shrinkage Matching in Low and Middle Permittivity Dielectric Compositions for a Low-Temperature Co-Fired Ceramics System", *J. Am. Ceram. Soc.*, **89** [2] 562-67 (2006).
14. H. I. Hsiang, C. S. Hsi, C. C. Huang, and S. L. Fuc, "Sintering Behavior and Dielectric Properties of BaTiO₃ Ceramics with Glass Addition for Internal Capacitor of LTCC", *J. Alloys and Compd.*, **459** 307-10 (2008).
15. J. H. Jean and C. R. Chang, "Effect of Densification Mismatch on Camber Development during Cofiring of Nickel-Based Multilayer Ceramic Capacitors", *J. Am. Ceram. Soc.*, **80** [9] 2401-06 (1997).
16. R. Zuo, L. Li, Z. Gui, X. Hu, and C. Ji, "Effects of Additives on the Interfacial Microstructure of Cofired Electrode-Ceramic Multilayer Systems", *J. Am. Ceram.*

- Soc.*, **85** [4] 787-93 (2002).
17. R. C. Stephenson and J. W. Peng, "70%Ag30%Pd Coated BaTiO₃ Powder for Internal Electrode Applications", *Active and Passive Elec. Comp.*, **25** 155-59 (2002).
 18. G. Feng, Y. Zupai, H. Yudong, and T. Changsheng, "Cofiring Properties and Camber Development of Ferroelectric/Ferrite Multilayer Composites", *J. Mater. Sci.*, **38** 1523-28 (2003).
 19. T. Hatano, T. Yamaguchi, W. Sakamoto, T. Yogo, K. Kikuta, H. Yoshidab, N. Tanakab, and S. Hirano, "Synthesis and Characterization of BaTiO₃-Coated Ni Particles", *J. Eur. Ceram. Soc.*, **24** 507-10 (2004).
 20. D. Yuan, M. Ruscoe, M. Oehlers, H. Aminian, and B. Sutherland, "Shrinkage Characteristics of MLCC Electrode Nickel Powders", *CARTS*, 2005.
 21. C. Miao, M. Wang, Z. Yue, J. Zhou, and Q. Li, "Co-firing Behavior of ZnTiO₃ Dielectric Ceramics/Ag Composites for MLCCs", *Ceram. Int.*, **32** 471-74 (2006).
 22. J. H. Kang, D. Joo, H. M. Cha, Y. G. Jung, and U. Paik, "Shrinkage Behavior and Interfacial Diffusion in Ni-based Internal Electrodes with BaTiO₃ Additive", *Ceram. Int.*, **34** 1487-94 (2008).
 23. X. Liu, F. Gao and C. Tian, "Sandwich Layer Composite Prepared by a Novel Zero-Shrinkage-Difference Technology", *J. Alloys and Compd.*, online available (2009).
 24. R. Zuo, L. Li, and Z. Gui, "Effects of BaTiO₃ Additive on Densification Mechanism of Silver-Palladium Paste", *Mater. Chem. Phys.*, **74** 182-86 (2002).
 25. R. Zuo, L. Li, and Z. Gui, "Modified Cofiring Behaviors Between PMN-PNN-PZT Piezoelectric Ceramics and PZT-Doped 70Ag-30Pd Alloy Metallization", *Mater. Sci. Eng.*, **A326** 202-07 (2002).
 26. R. Zuo, L. Li, Z. Gui, X. Hu, and C. Ji, "Effects of Additives on the Interfacial Microstructure of Cofired Electrode-Ceramic Multilayer Systems", *J. Am. Ceram. Soc.*, **85** [4] 787-93 (2002).
 27. C. B. Yoon, Y. H. Koh, G. T. Park and H. E. Kim, "Multilayer Actuator Composed of PZN-PZT and PZN-PZT/Ag Fabricated by Co-Extrusion Process", *J. Am. Ceram. Soc.*, **88** 1625-27 (2005).
 28. J. J. Choi, J. H. Lee, B. D. Hahn, W. H. Yoon, and D. S. Park, "Co-firing of PZN-PZT/Ag Multilayer Actuator Prepared by Tape-Casting Method", *Mater. Res. Bull.*, **43** 483-90 (2008).
 29. M. S. Choi, S. H. Kim, Y. H. Kim, I. W. Kim, S. J. Jeong, J. S. Song, and J. S. Lee, "Application of Ag-Ceramic Composite Electrodes to Low Firing Piezoelectric Multilayer Ceramic Actuators", *J. Electroceram.*, **20** 225-29 (2008).
 30. J. S. Lee, M. S. Choi, H. S. Han, Y. M. Kong, S. J. Kim, I. W. Kim, M. S. Kim, and S. J. Jeong, "Effects of Internal Electrode Composition on the Reliability of Low-Firing PMN-PZT Multilayer Ceramic Actuators", *Sens. Actuators A*, **154** 97-102 (2009).
 31. F. Tomoaki, T. Kakuda, Y. Sakai, and M. Adachi, "Preparation of Lead-Free Multi-Layered Piezoelectric Actuator", *Key Eng. Mater.*, **320** 11-14 (2006).
 32. Y. Sakai, T. Futakuchi, and M. Adachi, "Preparation of Inkjet-Printed NiO Films for Ba(Ti,Zr)O₃ Based Ceramics and Application to Multilayer Ceramics with Ni Electrodes", *Jpn. J. Appl. Phys.*, **47** [9] 7630-34 (2008).
 33. M. S. Kim, S. J. Jeong, and J. S. Song, "Electromechanical Properties of NKN-5LT Multilayer Actuator", *Adv. Mater.*, **26-28** 263-66 (2007).
 34. M. S. Kim, S. Jeon, D. S. Lee, S. J. Jeong, and J. S. Song, "Lead-Free NKN-5LT Piezoelectric Materials for Multilayer Ceramic Actuator", *J. Electroceram.*, online available (2008).

●● 이재신



- 1982 서울대학교 요업공학과 학사
- 1986 KAIST 재료공학과 박사
- 1986-1993 ETRI 통신부품연구실 선임 연구원
- 1993-현재 울산대학교 첨단소재공학부 교수

●● 정성규



- 2008 울산대학교 첨단소재공학부 학사
- 2009 울산대학교 첨단소재공학부 석사과정 재학중

●● 한형수



- 2007 울산대학교 첨단소재공학부 학사
- 2009 울산대학교 첨단소재공학부 석사과정 제학중

●● 정연학



- 2004년 울산대 재료공학과 박사
- 2005년-2006년 KG케미컬 책임연구원
- 2006년-현재 (주)삼전 연구소장
- 2007년-현재 울산대 첨단소재공학부 겸임 교수

●● 정순종



- 2000 University of Washington 재료공학과 박사
- 2004 동경공업대학 방문연구원
- 1988-현재 한국전기연구원 책임연구원