

Bi_{0.5}Na_{0.5}TiO₃-BiFeO₃-SrTiO₃ 삼성분계 무연 압전 세라믹스의 강유전체-완화형 강유전체 상전이 거동

이상섭, 이창헌, 즈엉 짱 안, 웬 호앙 티엔 코이, 한형수, 이재신 

울산대학교 첨단소재공학부

Ferroelectric to Relaxor Transition Behavior in Lead-Free Ternary
(Bi_{0.5}Na_{0.5})TiO₃-BiFeO₃-SrTiO₃ Piezoceramics

Sang Sub Lee, Chang-Heon Lee, Trang An Duong, Hoang Thien Khoi Nguyen,
Hyoung-Su Han, and Jae-Shin Lee

School of Material Science and Engineering, University of Ulsan, Ulsan 44610, Korea

(Received November 19, 2020; Revised December 8, 2020; Accepted December 9, 2020)

Abstract: This study investigated the structural, dielectric, ferroelectric, and strain properties of (0.98-x)Bi_{1/2}Na_{1/2}TiO₃-0.02BiFeO₃-xSrTiO₃ (BNT-BF-100xST, x = 0.20, 0.22, 0.24, 0.26, and 0.28). All samples were successfully synthesized using the conventional solid-state reaction method and sintered at 1,175°C for 2 h. The average grain size of the BNT-BF-100x ceramics decreased with increasing ST content. Furthermore, we observed that the ferroelectric-relaxor transition temperature (T_{F-R}) decreased with increasing ST content, which eventually vanished in the BNT-BF-24ST ceramics. The results indicated that a ferroelectric to relaxor phase transition could be induced by ST modification. Consequently, a large electromechanical strain of 633 pm/V at 4 kV/mm was observed for the BNT-BF-26ST ceramics. These results imply that our materials have the competitive advantage of larger strain under lower operating field conditions compared with other BNT-based lead-free piezoelectric ceramics. We expect that BNT-BF-ST lead-free piezoelectric ceramics are promising candidates as a novel ternary BNT-based system and can find potential applications in actuators.

Keywords: Piezoelectric, Lead-free, Relaxor, Ferroelectric

1. 서론

압전 현상은 전기 에너지와 기계 에너지 간의 상호 변환하는 물리적 현상으로, 액추에이터, 변환기, 초음파 모터 등과 같이 기계 및 전기 신호 간의 연결이 필

요한 모든 응용 분야에 이용된다. 현재 주로 사용되는 압전 소재는 납이 함유된 Pb(Zr,Ti)O₃ (PZT) 세라믹스로 인체에 유해할 뿐만 아니라 환경적인 문제를 일으키는 것으로 알려져 있다. 이에 대응하여 납 기반의 세라믹스 소재를 대체하기 위해 많은 연구가 진행되어 왔다 [1,2]. 현재까지 알려진 다양한 무연 압전 소재 중에서 (Bi_{0.5}Na_{0.5})TiO₃ (BNT) 기반의 소재는 초기 압전현상으로써 인가된 전계에 의해 에르고딕 완화형 강유전상과 강유전상 사이의 가역적인 상전이에 의해 우수한 전기-기계적 변형 특성을 가지는 무연 압전 소재로 납을 함유하는 압전 세라믹스를 대체할 수 있는 유

✉ Jae-Shin Lee; jslee@ulsan.ac.kr

Copyright ©2021 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.

망한 물질로 주목받고 있다 [3-9]. 그러나 높은 변형 특성이 나타나기 위해서는 6 kV/mm 이상의 높은 인가 전계가 필요하며, 이는 일반적인 PZT 세라믹스에서 최대 분극 변형률에 도달하는 데 인가되는 전계를 기준으로 두 배 이상이므로 실제 응용 분야에 사용하기 위해서는 반드시 해결해야 하는 중요한 문제 중 하나다 [10,11]. 따라서 저전계에서 높은 변형률을 얻는 방안이 필요하다. 이러한 문제를 해결하기 위해 주목되는 물질로는 $(\text{Bi}_{1/2}\text{Na}_{1/2})\text{TiO}_3$ - SrTiO_3 (BNT-ST)가 있다. 기존에 보고된 내용에 따르면 비에르그딕 완화형 강유전상인 BNT 세라믹스에 ST를 변성시키면 에르그딕 완화형 강유전상으로의 상전이가 유도되고 이로 인하여 잔류 분극이 감소함과 동시에 전계유기변형 특성이 크게 향상되었다 [10]. 또한, Duong 등의 연구보고에 따르면 ST 함량이 증가함에 따라 입자 평균 크기는 감소하며, ST를 26 mol% 변성시키면 4 kV/mm의 비교적 낮은 전계에서 0.25%의 높은 최대 변형률(S_{\max})과 620 pm/V의 정규화 변형률(d_{33}^*)을 보고하였다 [12]. 그리고 Acosta 등의 연구 결과에 따르면 BNT 세라믹스에 ST를 25 mol% 변성하게 되면 4 kV/mm의 낮은 전계에서 약 0.3%의 높은 변형률을 얻을 수 있으며, 이러한 결과는 코어-셸 구조에서 기인한다고 보고하였다 [13].

BiFeO_3 (BF)를 첨가한 BNT 세라믹스의 상전이에 의한 거대변형 특성은 보고되지 않았다. 그러나 Ichiro 등의 연구보고에 따르면 BNT 세라믹스의 결정계는 능면체지만 BF 함량이 증가할수록 격자 상수는 선형적으로 증가하였으며, BF의 함량이 0~20 mol%로 증가할수록 단극성 유기 변형률은 0.12~0.16%로 증가하였고 5 mol%에서 183 pm/V의 정규화 변형률(d_{33}^*)의 최댓값이 나타나는 등의 변형 특성의 변화가 나타났다 [14,15].

따라서 본 연구에서는 무연 압전 세라믹스의 압전 및 변형 특성을 향상시킬 수 있는 효과를 이용하여 BNT 기반의 삼성분계 세라믹스($0.98-x\text{Bi}_{1/2}\text{Na}_{1/2}\text{TiO}_3-0.02\text{BiFeO}_3-x\text{SrTiO}_3$ (BNT-2BF-100xST, $x=0.20\sim0.28$) 합성을 시도하였다. 이에 따라 BNT-2BT-100xST의 세라믹스의 미세구조와 압전 및 변형 특성을 관찰하였다.

2. 실험 방법

본 실험에서는 $(0.98-x)\text{Bi}_{1/2}\text{Na}_{1/2}\text{TiO}_3-0.02\text{BiFeO}_3-x\text{SrTiO}_3$ (BNT-2BF-100xST, $x=0, 0.20, 0.22, 0.24, 0.26, 0.28$) 조성을 갖는 시편을 얻기 위하여 순도

99% 이상의 분말로 소수점 넷째 자리까지 평량을 진행하였으며, 사용된 분말은 Bi_2O_3 , Na_2CO_3 , TiO_2 , SrCO_3 , Fe_2O_3 (high purity chemical, Japan)이다. 평량한 원료 분말들을 혼합 및 분쇄를 위해 용매 99.5%의 에탄올과 ZrO_2 볼 3 mm (ϕ)와 5mm (ϕ)를 사용하여 볼밀링을 진행하였다. 회전속도 400 rpm이며 48 시간 동안 혼합하였다. 혼합과정을 거친 슬러리는 건조기에서 24시간 건조하였다. 건조된 분말을 뚜껑을 덮은 알루미늄 도가니를 사용하여 승온 속도는 $5^\circ\text{C}/\text{min}$ 으로 850°C 의 온도에서 2시간 하소하였다. 하소된 분말은 유발과 유봉을 이용하여 10 wt%의 polyvinylalcohol (PVA)을 첨가하여 혼합분말을 제조하였다. 혼합 분말을 분쇄 후, 150 μm 의 체를 이용하여 입도를 균일하게 하여 성형용 분말을 준비하였다. 10 mm의 mold를 이용하여 2 ton의 하중으로 성형하였다. 성형체는 일반 전기로 소결로를 이용하여 550°C 에서 2시간 유지하여 PVA binder를 제거하였으며, 이후 $5^\circ\text{C}/\text{min}$ 로 $1,175^\circ\text{C}$ 까지 승온시킨 후 2시간 소결하였다. 소결된 시편의 밀도(아르키메데스 법)와 수축률을 측정하여 소결성을 판단하였으며, 식 (1)과 (2)를 이용하여 계산하였다.

$$\rho = w_1 / (w_1 - w_2) \cdot \rho' \quad (1)$$

[W_1 은 시편의 건조 시 무게(g), W_2 는 포수시료의 수중무게, ρ' 는 물의 밀도(g/cm^3)]

$$d = (D_1 - D_2) / D_1 \cdot 100 (\%) \quad (2)$$

[D_1 은 소결 전 시편의 지름 (mm), D_2 는 소결 후 시편의 지름]

전기적 특성을 측정하기 위해 silver paste를 1 mm 두께의 disk 시편 양면에 screen printing 공법으로 도포하고 700°C 에서 30분 동안 열처리하였다. 유전손실($\tan\delta$)과 정전용량(C_p)을 측정하였으며, 정전용량은 아래 식 (3)을 이용하여 유전율(ϵ_r)을 계산하였다.

$$\epsilon_r = (t \cdot C_p) / (\pi \cdot (d/2)^2 \cdot \epsilon_0) \quad (3)$$

[t 는 시편의 두께, C_p 는 정전용량, d 는 시편의 직경, $\epsilon_0 = 8.854 \times 10^{-12}$ (F/m) 진공 유전율]

온도 변화에 따른 유전율을 측정하였으며, 상온에서

실리콘 오일이 담긴 비커 내에서 4 kV/mm에서 30분간 분극하였다. 분극된 시편의 d_{33} (piezoelectric constant)를 측정하였다. 평균 입자 크기를 계산하기 위해서 직선 교차법(linear intercept method)을 이용하였다. 결정구조는 X-선 회절분석기(XRD RAD III, Rigaku, Japan)를 이용하여 분석하였다. 그리고 미세구조는 전계방출형 주사전자현미경(FE-SEM, JEOL, JSM-650FF, Japan)으로 분석하였다. 온도 및 주파수 변화에 따른 유전율은 LCR meter (E4980AL, KEYSIGHT)와 high temperature electronic prober system (LABSYS HTEP-8000, NEXTRON)를 이용하여 온도 변화(25~400°C)에 따른 정전용량을 1, 10, 100 kHz에서 측정하였다.

3. 결과 및 고찰

ST 함량 변화에 따른 소결된 샘플의 선형 수축률 및 상대밀도 변화를 그림 1에 나타내었다. 모든 조성에서 시편들은 15~17%로 적정 선형 수축률 범위 안의 값을 가지며, 97% 이상의 높은 상대 밀도 값을 나타내었다. 이를 통해 1,175°C에서 2시간 동안 유지하는 것이 ST 함량의 변화와 관계없이 적정 소결 조건임을 나타낸다.

ST 함량에 따른 시편의 표면을 FE-SEM을 이용하여 관찰한 결과를 그림 2에 나타내었다. 많은 기공이나 이차상으로 보이는 조직은 관찰되지 않았다. 이에 따라 소결된 시편은 소결이 잘 진행된 것으로 확인하

였다. 가장 큰 평균 입자 크기는 BNT-2BF-20ST 세라믹스의 경우 6.4 μm 였으며, 가장 작은 평균 입자 크기는 BNT-2BF-28ST 세라믹스에서 약 3.0 μm 로 관찰되었다. 평균 입자 크기는 ST 함량이 증가할수록 감소하는 경향이 나타났다. 이는 이전에 보고된 연구결과와 잘 일치한다 [17].

그림 3은 상온에서 BNT-2BF-100xST 세라믹스의 XRD 패턴을 나타내었다. 이를 통해 제작된 모든 시편은 이차상을 가지지 않는 단일상의 페로브스카이트 구조를 가지는 물질임을 확인하였다. 그림 3(b)와 (c)에서 BNT-2BF-100xST 세라믹스는 (111)면과 (200)면이 나타나는 39.5~41.5°와 46.2~47°의 범위에서 $K\alpha_2$ 피크를 제외하고 피크 분할이 관찰되지 않는 것으로 보아 입방정상을 가지는 것으로 확인되었다. 그리고 ST 함량이 증가할수록 (111)면과 (200)면에서 나타나는 피크

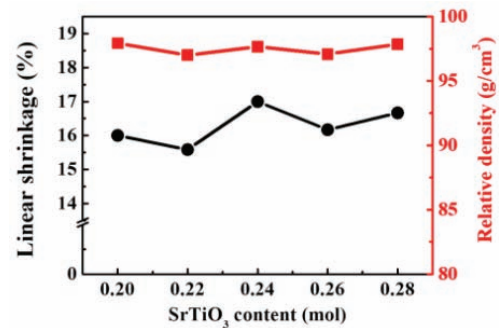


Fig. 1. Linear shrinkage and relative density of BNT-2BF-100xST ceramics as a function of ST content.

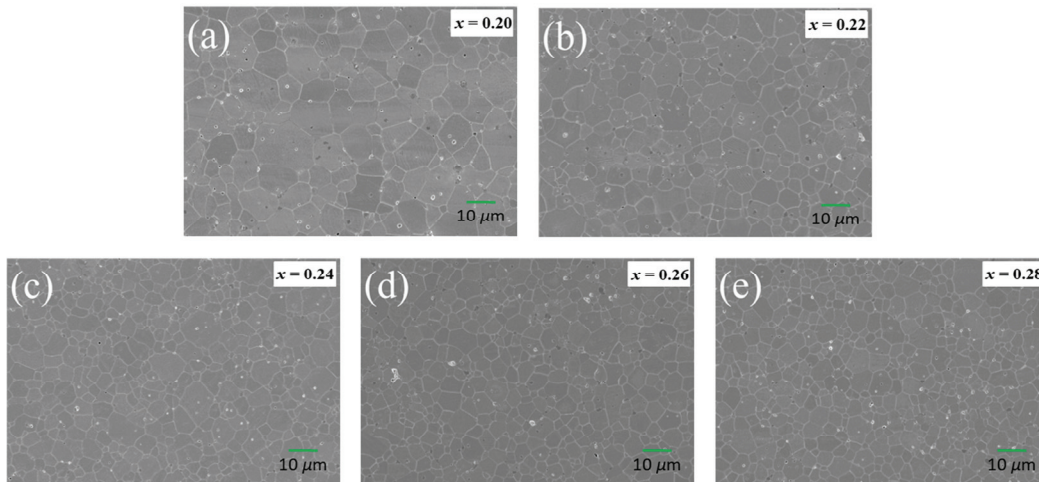


Fig. 2. Polished and thermally etched surface images of BNT-2BF-100xST ceramics as a function of ST content.

가 낮은 각도로 이동하는 것은 격자 상수가 증가했다는 것을 보여준다. 이는 Watanabe 등의 연구 보고와 같이 Sr^{2+} (1.32 Å)의 이온 반경이 BNT-BF의 A 자리 평균 이온 반경(Bi^{3+} : 1.17 Å, Na^{1+} : 1.16 Å, Fe^{3+} : 1.26 Å)보다 더 크기 때문이다 [16]. 이러한 결과는 ST 변성이 BNT 세라믹스의 결정학적 상전이 거동에는 영향을 미치지 않는다는 것을 의미한다.

BNT-2BF-100xST 세라믹스의 분극 전 후의 온도에 따른 유전 특성을 그림 4에 나타내었다. 모든 조성의 시편에서 온도와 주파수 변화에 따른 주파수 분산이 관찰되었다. 이러한 현상으로부터 BNT-2BF-100xST

세라믹스는 완화형 강유전상으로 분류할 수 있다. 최대 유전율이 나타나는 온도(temperature of maximum dielectric constant, T_m)는 ST 함량이 증가할수록 감소하였으며, BNT-2BF-20ST 세라믹스의 경우 252°C였고 BNT-2BF-28ST 세라믹스에서 196°C까지 감소하였다.

강유전체-완화형 강유전체 상전이 온도(ferroelectrics-relaxor transition temperature, T_{F-R})는 ST 함량이 증가할수록 낮아져 BNT-2BF-20ST 세라믹스의 경우 37°C였으며 ST를 22 mol%까지 변성시켰을 때 28°C로 감소하였고 ST를 24 mol% 이상 변성시키면 T_{F-R} 이 상온보다 낮아 더 이상 관찰되지 않았다. 이러한 결과는 강유전상(또는 비에르고딕 완화형 강유전상)에서 완화형 강유전상(또는 에르고딕 완화형 강유전상)으로의 상전이가 ST 변성에 따라 유도되었음을 의미한다 [17-19].

그림 5는 BNT-2BF-100xST 세라믹스의 분극 이력($P-E$) 곡선 및 양극성(bipolar) 변형($S-E$) 곡선을 나타내었다. BNT-2BF-20ST와 BNT-2BF-22ST 세라믹스에서 전형적인 강유전상 모양인 사각형의 분극 형태와 분역 회전(domain switching)에 의해 나타나는 나비모양의 변형 곡선이 관찰되었다. 이는 상온의 비에르고딕 완화형 강유전상에서 나타나는 현상이며, 전기장이 가해지면 비가역적으로 강유전상으로 전환되어 나타나는 현상으로 설명할 수 있다 [19,20]. ST 함량이 증가할수록 최대 분극(P_{max}), 잔류 분극(P_r), 항전계(E_c) 값이 감소하면서 초기 압전효과에서 나타나는 이중 이력

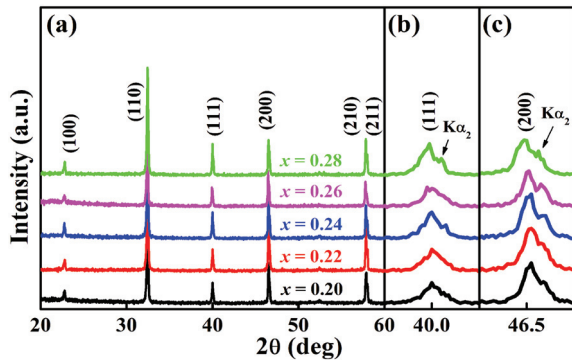


Fig. 3. X-ray diffraction patterns of BNT-2BF-100xST ceramics as a function of ST content. (a) 20–60°, (b) 39.5–41.5°, and (c) 46.2–47°.

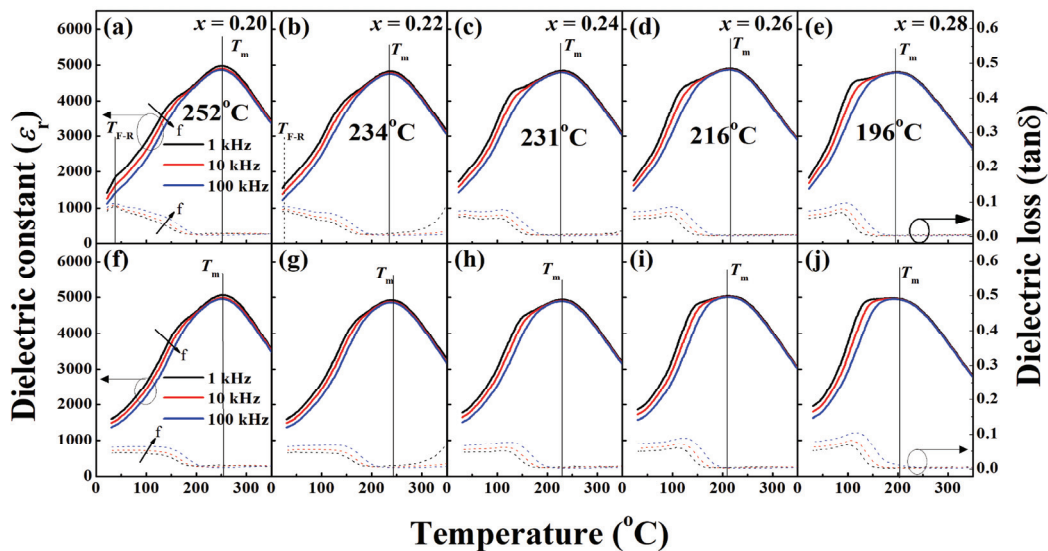


Fig. 4. Temperature dependence of dielectric constant (ϵ_r) and loss tangent for BNT-2BF-100xST ceramics as a function of ST content.

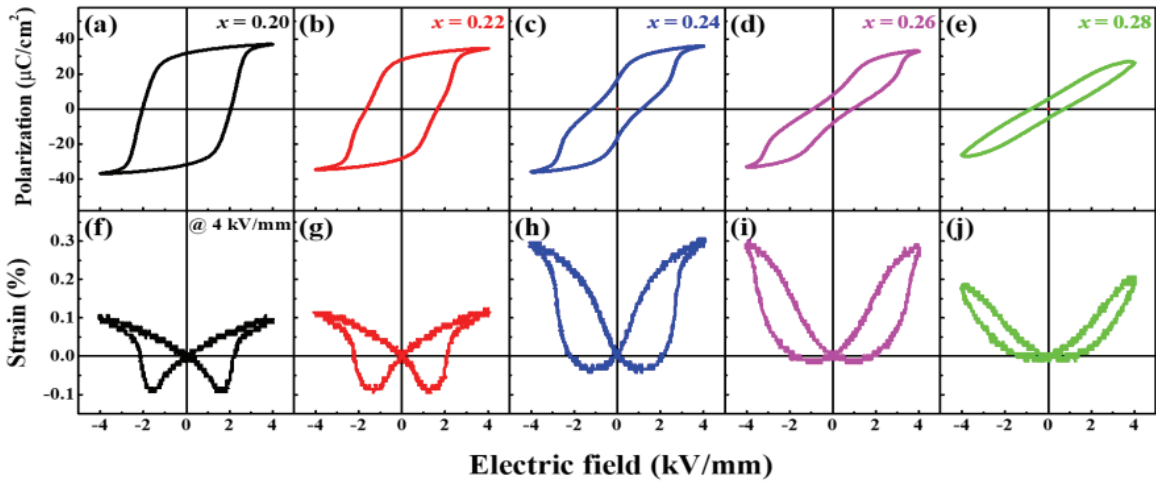


Fig. 5. Polarization (top) and bipolar strain (bottom) curves for BNT-2BF-100xST ceramics as a function of ST content.

곡선이 관찰되었다 [21]. 그리고 ST 함량이 가장 높은 BNT-2BF-28ST 세라믹스에서 전형적인 상유전상을 나타내며 비극성 모양을 나타내었다. BNT-2BF-24ST 세라믹스에서 최대 변형률(S_{max})이 크게 증가하고 음의 변형률(S_{neg})이 완만하고 작게 나타나는 거대 변형 특성이 관찰되었으며, S_{neg} 이 점차적으로 감소하여 BNT-2BF-28ST 세라믹스에서는 거의 사라지는 경향을 보였다.

ST의 함량 변화에 따른 전기적 특성 변화를 더 잘 비교하기 위해 S_{max} 및 S_{neg} 과 P_{max} , P_r , E_c 값을 그림 6에 비교하여 나타내었다. S_{max} 값은 BNT-2BF-20ST 세라믹스에서 BNT-2BF-24ST 세라믹스로 ST 함량이 증가함에 따라 증가하였지만, BNT-2BF-28ST 세라믹스에서 감소하였으며, BNT-2BF-24ST 세라믹스에서 0.30%로 최댓값에 도달했다. 강유전체 특성은 BNT-2BF-22ST 세라믹스에서 28.8 $\mu\text{C}/\text{cm}^2$ 와 1.3 kV/mm로 가장 큰 P_r 과 E_c 값을 나타냈다. ST 함량이 증가할수록 P_{max} , P_r 및 E_c 모두 감소하다가 BNT-2BF-28ST 세라믹스에서 5.2 $\mu\text{C}/\text{cm}^2$, 0.5 kV/mm로 가장 낮은 P_r 과 E_c 값을 얻었다. 이러한 현상은 ST 함량이 증가할수록 전계 인가에 의해 비가역적 상전이에 의해 유도되는 강유전상 형성을 억제하는 것이며, 다시 말해서 에르고딕 완화형 강유전상이 안정화되기 때문에 나타나는 현상을 의미한다 [22,23]. 앞서 설명한 바와 같이 ST 함량이 22 mol%와 24 mol%일 때, 전형적인 강유전곡선이 나타났으며, 양극성 전계유기 변형률 곡선에서 나비모양의 특성 곡선이 나타났다. BNT-BF-26ST에서 P_r 과 E_c 가 급격히 감소하였으며, P_{max} 또한 증가하다 점차 감소하였다. P_r 과 E_c 가 급격하게 감소하는 영역은

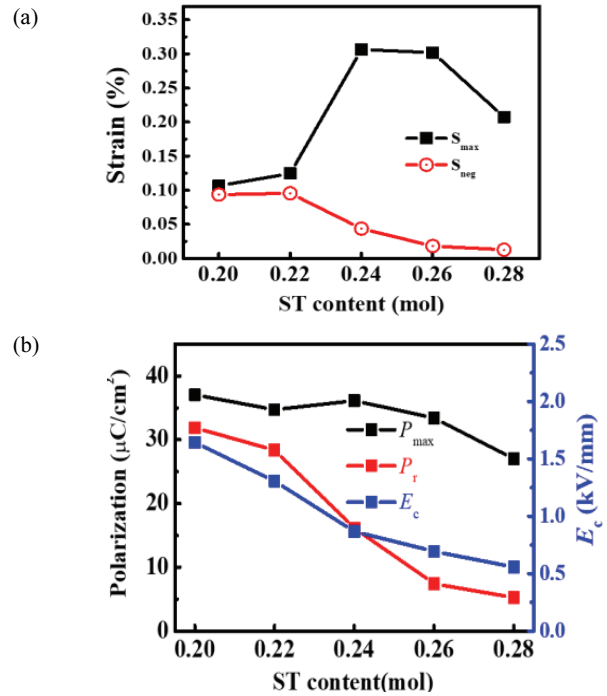


Fig. 6. Variation of (a) S_{max} and S_{neg} and (b) P_{max} , P_r and E_c for BNT-2BF-100xST ceramics as a function of ST content.

양극성 전계유기 변형률 곡선에서 거대변형이 발생하는 영역과 일치한다.

그림 7에 단극성(unipolar) 변형 곡선과 정규화 변형률(d_{33}^*)과 압전 상수(d_{33}) 값을 나타내었다. BNT-2BF-20ST와 BNT-2BF-22ST 세라믹스에서 전형적인 강유전상의 선형 단극 변형 특성이 나타났다. ST 함량이 더

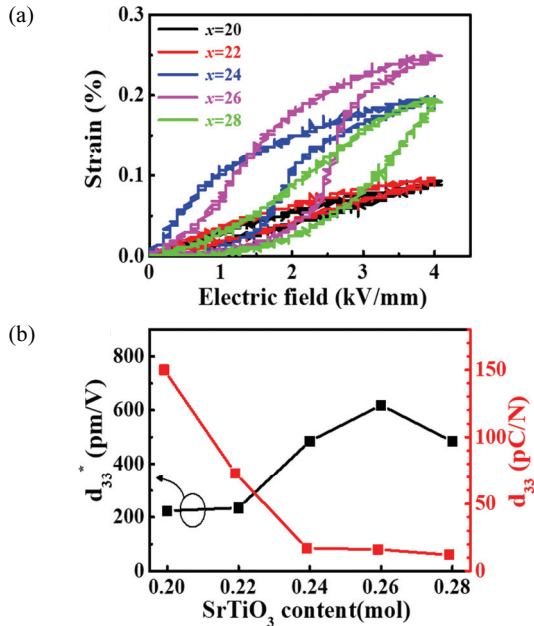


Fig. 7. (a) Unipolar strain curves and (b) Variation of d_{33}^* (S_{\max}/E_{\max}) and d_{33} of BNT-2BF-100xST ceramics as a function of ST content.

속 증가할수록 전계유기 변형 특성 증가하였고 BNT-2BF-24ST 세라믹스에서 변형률이 급격히 증가한 다음 BNT-BF-28ST 세라믹스에서 감소하는 경향을 나타내었다. BNT-2BF-26ST 세라믹스에서 0.25%의 가장 높은 S_{\max} 값이 나타났다. 이러한 변형특성의 변화는 ST 변성에 의해 BNT-2BF 세라믹스가 강유전상에서 완화형 강유전상으로 상전이 가 유도된다는 것을 의미한다. d_{33} 의 경우 BNT-2BF-20ST 세라믹스에서 150 pC/N 값이 측정된 이후 ST 함량이 증가할수록 크게 감소하였다. d_{33}^* 값은 BNT-2BF-26ST 세라믹스에서 633 pm/V로 가장 높게 측정되었다. 이는 ST 첨가에 따라 강유전상보다 예르고딕 완화형 강유전상이 안정화 되었다는 것을 의미하며, 양극성 전계 유기 변형률 그래프에서 S_{neg} 이 감소하는 경향과 일치한다.

4. 결론

본 연구에서는 BNT-2BF-100xST의 삼성분계 무연 압전 세라믹스를 제조하여 ST 변성에 따른 압전 및 변형 특성을 살펴보았다. ST 함량이 증가할수록 평균 입자 크기는 감소하였고 T_{F-R} 을 더 낮은 온도로 이동하였다. 또한, ST 변성에 의해 예르고딕 완화형 강유

전상이 안정화되어 잔류 분극, 항전계장, 음극 변형률 값이 감소하였으며, BNT-2BF-26ST 세라믹스에서 0.25%의 거대 전계유기 변형 특성과 633 pm/V의 d_{33}^* 값으로 가장 우수한 특성이 나타났다. 이러한 결과로부터 본 연구에서 합성한 BNT-BF-ST 삼성분계 세라믹스는 향후 실용화 측면에서 유망한 소재가 될 것으로 기대한다.

ORCID

Jae-Shin Lee

<https://orcid.org/0000-0001-9907-2650>

감사의 글

이 성과는 정부(교육부, 과학기술정보통신부)의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행된 것임(과제번호: 2016R1D1A3B01008169, 과제번호: 2020R1C1C1007375).

REFERENCES

- [1] J. Rödel and J. F. Li, *MRS Bull.*, **43**, 576 (2018). [DOI: <https://doi.org/10.1557/mrs.2018.181>]
- [2] A. J. Bell and O. Deubzer, *MRS Bull.*, **43**, 581 (2018). [DOI: <https://doi.org/10.1557/mrs.2018.154>]
- [3] W. Jo, R. Dittmer, M. Acosta, J. Zang, C. Groh, E. Sapper, K. Wang, and J. Rödel, *J. Electroceram.*, **29**, 71 (2012). [DOI: <https://doi.org/10.1007/s10832-012-9742-3>]
- [4] H. S. Han, W. Jo, J. K. Kang, C. W. Ahn, I. W. Kim, K. K. Ahn, and J. S. Lee, *J. Appl. Phys.*, **113**, 154102 (2013). [DOI: <https://doi.org/10.1063/1.4801893>]
- [5] G. H. Jeong, S. S. Lee, C. W. Ahn, H. S. Han, and J. S. Lee, *J. Korean Inst. Electr. Electron. Mater. Eng.*, **33**, 337 (2020). [DOI: <https://doi.org/10.4313/JKEM.2020.33.5.337>]
- [6] H. S. Han, T. A. Duong, C. W. Ahn, W. Jo, and J. S. Lee, *Ceramist*, **23**, 89 (2020). [DOI: <https://doi.org/10.31613/ceramist.2020.23.1.06>]
- [7] S. H. Kim, S. H. Lee, H. S. Han, and J. S. Lee, *J. Korean Inst. Electr. Electron. Mater. Eng.*, **32**, 35 (2019). [DOI: <https://doi.org/10.4313/JKEM.2019.32.1.35>]
- [8] J. K. Kang, T. H. Dinh, C. H. Lee, H. S. Han, J. S. Lee, and V.D.N. Tran, *Trans. Electr. Electron. Mater.*, **18**, 1 (2017). [DOI: <https://doi.org/10.4313/TEEM.2017.18.1.1>]
- [9] T. H. Dinh, J. K. Kang, H.T.K. Nguyen, T. A. Duong, J. S. Lee, V.D.N. Tran, and K. N. Pham, *J. Korean Phys. Soc.*, **68**, 1439 (2016). [DOI: <https://doi.org/10.3938/jkps.68.1439>]

- [10] G. Wang, Y. H. Hong, H.T.K. Nguyen, B. W. Kim, C. W. Ahn, H. S. Han, and J. S. Lee, *Sens. Actuators, A*, **293**, 1 (2019). [DOI: <https://doi.org/10.1016/j.sna.2019.04.016>]
- [11] H. S. Han, I. K. Hong, Y. M. Kong, J. S. Lee, and W. Jo, *J. Korean Ceram. Soc.*, **53**, 145 (2016). [DOI: <https://doi.org/10.4191/kcers.2016.53.2.145>]
- [12] T. A. Duong, H. S. Han, Y. H. Hong, Y. S. Park, H.T.K. Nguyen, T. H. Dinh, and J. S. Lee, *J. Electroceram.*, **41**, 73 (2018). [DOI: <https://doi.org/10.1007/s10832-018-0161-y>]
- [13] M. Acosta, L. A. Schmitt, L. Molina-Luna, M. C. Scherrer, M. Brilz, K. G. Webber, M. Deluca, H. J. Kleebe, J. Rödel, and W. Donner, *J. Am. Ceram. Soc.*, **98**, 3405 (2015). [DOI: <https://doi.org/10.1111/jace.13853>]
- [14] V. Dorcet, P. Marchet, and G. Trolliard, *J. Eur. Ceram. Soc.*, **27**, 4371 (2007). [DOI: <https://doi.org/10.1016/j.jeurceramsoc.2007.02.173>]
- [15] I. Fujii, Y. Ito, T. Suzuki, and T. Wada, *J. Mater. Res.*, **31**, 28 (2015). [DOI: <https://doi.org/10.1557/jmr.2015.315>]
- [16] Y. Watanabe, Y. Hiruma, H. Nagata, and T. Takenaka, *Ceram. Int.*, **34**, 761 (2008). [DOI: <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2007.09.023>]
- [17] H. He, X. Lu, M. Li, Y. Wang, Z. Li, Z. Lu, and L. Lu, *J. Mater. Chem. C*, **8**, 2411 (2020). [DOI: <https://doi.org/10.1039/C9TC04864B>]
- [18] A. R. Paterson, H. Nagata, X. Tan, J. E. Daniels, M. Hinterstein, R. Ranjan, P. B. Groszewicz, W. Jo, and J. L. Jones, *MRS Bull.*, **43**, 600 (2018). [DOI: <https://doi.org/10.1557/mrs.2018.156>]
- [19] C. W. Ahn, C. H. Hong, B. Y. Choi, H. P. Kim, H. S. Han, Y. Hwang, W. Jo, K. Wang, J. F. Li, J. S. Lee, and I. W. Kim, *J. Korean Phys. Soc.*, **68**, 1481 (2016). [DOI: <https://doi.org/10.3938/jkps.68.1481>]
- [20] N. Kumar, X. Shi, and M. Hoffman, *J. Eur. Ceram. Soc.*, **40**, 2323 (2020). [DOI: <https://doi.org/10.1016/j.jeurceramsoc.2020.01.066>]
- [21] H. P. Kim, C. W. Ahn, Y. Hwang, H. Y. Lee, and W. Jo, *J. Korean Ceram. Soc.*, **54**, 86 (2017). [DOI: <https://doi.org/10.4191/kcers.2017.54.2.12>]
- [22] K. Wang, A. Hussain, W. Jo, and J. Rödel, *J. Am. Ceram. Soc.*, **95**, 2241 (2012). [DOI: <https://doi.org/10.1111/j.1551-2916.2012.05162.x>]
- [23] F. Li, J. Li, J. Zhai, B. Shen, S. Li, M. Zhou, K. Zhao, and H. Zeng, *J. Appl. Phys.*, **124**, 164108 (2018). [DOI: <https://doi.org/10.1063/1.5050826>]