

# 스마트 페인트 센서용 $0.77(\text{Bi}_{1/2}\text{Na}_{1/2})\text{TiO}_3-0.23\text{SrTiO}_3$ (BNST23)/PVDF-TrFE 복합소재 제조 및 전기적 특성에 관한 연구

형성재<sup>1</sup>, 강은서<sup>1</sup>, 강유빈<sup>1</sup>, 김채령<sup>1</sup>, 안창원<sup>2</sup>, 김병우<sup>3</sup>, 이재신<sup>1</sup>, 한형수<sup>1</sup> 

<sup>1</sup> 울산대학교 첨단소재공학부

<sup>2</sup> 울산대학교 물리학과 에너지하베스트-스토리지 연구센터

<sup>3</sup> 울산대학교 전기공학부

## Electrical Properties of $0.77(\text{Bi}_{1/2}\text{Na}_{1/2})\text{TiO}_3-0.23\text{SrTiO}_3$ (BNST23)/PVDF-TrFE Composites

Sung Jae Hyoung<sup>1</sup>, Eun Seo Kang<sup>1</sup>, Yubin Kang<sup>1</sup>, Chae Ryeong Kim<sup>1</sup>, Chang Won Ahn<sup>2</sup>,  
Byeong Woo Kim<sup>3</sup>, Jae-Shin Lee<sup>1</sup>, and Hyoung-Su Han<sup>1</sup>

<sup>1</sup> School of Materials Science and Engineering, University of Ulsan, Ulsan 44610, Korea

<sup>2</sup> Department of Physics and EHSRC, University of Ulsan, Ulsan 44610, Korea

<sup>3</sup> Department of Electrical Engineering, University of Ulsan, Ulsan 44610, Korea

(Received May 13, 2024; Revised May 20, 2024; Accepted May 21, 2024)

**Abstract:** Piezoelectric ceramics play an important role in various electronic applications. However, traditional ceramics are difficult to be used in some complicated structures, due to their low flexibility and high brittleness. To solve this problem, this study prepared and investigated ceramic/polymer composites that can utilize a good flexibility of polymers. Polyvinylidene fluoride-trifluoroethylene (PVDF-TrFE) and  $0.77(\text{Bi}_{1/2}\text{Na}_{1/2})\text{TiO}_3-0.23\text{SrTiO}_3$  (BNST23) ceramics were selected to fabricate the composites. Ceramic/polymer composites were prepared using various volume fractions of BNST23 ceramics. The distribution of piezoceramic particles in BNST23/PVDF-TrFE composites was investigated using optical microscopy (OM) and scanning electron microscopy (SEM). The dielectric and piezoelectric properties of the composites were significantly influenced by the volume fraction of the piezoelectric ceramics. As a result, the highest piezoelectric constant ( $d_{33}$ ) of 56 pC/N was obtained in a composites with 70% volume fraction of BNST23 ceramics. Accordingly, it is expected that BNST23/PVDF-TrFE composites can be applied to various sensor applications.

**Keywords:** Piezoelectrics, Lead-free, Paint sensors, Composites

건축물, 교량, 발전소 등 고정형 구조물의 붕괴나 항공기, 선박 등 수송 기계에서 결함에 의해 발생하는 사고는 대형 인명사고로 이어질 가능성이 높기 때문에 붕괴 또는 파손을 사전에 인지하여 예방하는 것이 가장 바람직하다.

✉ Hyoung-Su Han; [hsejs@ulsan.ac.kr](mailto:hsejs@ulsan.ac.kr)

Copyright ©2024 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.

대부분의 대형 구조물의 붕괴나 파괴는 오랜 시간에 걸쳐 피로 파괴의 형태로 진행되기 때문에 진동(vibration), 충격(impact), 음향 방출(acoustic emission) 시험 등을 이용하여 파괴 징조를 조기에 검출할 수 있으며, 이러한 기술을 실시간 구조물 안전 진단(structural health monitoring, SHM)이라고 한다. 실시간 구조물 안전 진단 기술을 실현하기 위해서는 반드시 이상 징후를 검지할 수 있는 센서가 필수적으로 사용되어야 하며, 기계적 에너지(진동 또는

충격)를 전기적 신호로 변환할 수 있는 압전 기반 센서가 외부 전원의 공급 없이 작동할 수 있으므로 실시간 구조물 안전 진단 기술 연구에 많이 활용되고 있다 [1-4].  $\text{Pb}(\text{Zr}, \text{Ti})\text{O}_3$  (PZT)계 압전 세라믹스는 페로브스카이트 구조의 강유전체이며, 압전 특성이 뛰어나 압전센서에 널리 사용되고 있다. 그러나 PZT계 압전 세라믹스는 제조 공정 상 휘발되는 납(Pb)이 인체 및 환경에 유해하기 때문에 이를 대체하기 위하여 무연 압전 세라믹스에 대한 연구가 활발히 진행되어 왔다 [5-10]. 무연 압전 세라믹스로 가장 보편적인 물질은 비스무스(bismuth)계 압전 세라믹스이며, 높은 강유전성과 준수한 압전특성으로 PZT계 압전 세라믹스를 대체할 수 있는 후보 물질로 연구되고 있다. 그중에서도 Krauss 등에 의해 최초로 보고된  $(\text{Bi}_{1/2}\text{Na}_{1/2})\text{TiO}_3$ - $\text{SrTiO}_3$  (BNST)계 무연 세라믹스는 순수 BNT 세라믹스의 단점인 높은 항전계과 유전손실을 감소시키고 압전 및 변형률 특성을 향상시켰다 [11]. 특히, 모조성 대비 물분율로 23%의 ST를 함유하고 있는  $0.77(\text{Bi}_{1/2}\text{Na}_{1/2})\text{TiO}_3$ - $0.23\text{SrTiO}_3$  (BNST23) 세라믹스는 강유전-완화형 강유전 상전이 온도( $T_{F-R}$ )가 약  $50^\circ\text{C}$ 에 형성되어 있고 상온 압전상수( $d_{33}$ )가 약  $150\text{ pC/N}$ 으로 준수하여 고온이 아닌 상온 영역에서 활용할 수 있는 소자에 응용 가능성이 높다 [12]. 하지만 전통적인 세라믹스는 일반적으로 높은 취성과 낮은 유연성을 나타내기 때문에 굴곡이 있거나 복잡한 형상을 가진 구조체에는 센서로 올바르게 설치 및 사용이 어렵다는 단점이 있다 [13-15]. 이러한 세라믹스의 문제점을 해결하기 위하여 세라믹/고분자 복합소재가 고안되었다. 일반적으로 고분자는 금속과 세라믹에 비해 강하지는 않지만, 작은 비중과 우수한 유연성을 가진다. 이러한 고분자의 특성과 압전 세라믹스의 압전성을 동시에 발현할 수 있는 세라믹/고분자 복합소재는 기존의 압전 센서로 적용이 불가능한 굴곡진 구조체 및 복잡한 구조체에 적용 가능한 좋은 후보라고 할 수 있다 [16-18]. 현재까지 연구되고 있는 압전 세라믹/고분자 복합소재는 대부분 에폭시(epoxy), 폴리우레탄(polyurethane, PU), 폴리에스터(polyester), 폴리염화비닐(polyvinyl chloride, PVC) 등을 기반으로 하고 있으며 [14,19-21]. 최근에는 압전 특성이 있는 polyvinylidene fluoride (PVDF,  $d_{33}=20\sim 33\text{ pC/N}$ )를 고분자 기지로 활용한 복합소재도 보고되고 있다 [22,23]. 특히, 압전 고분자를 모재로 활용하게 되면 일반 고분자를 활용한 복합소재보다 향상된 압전 특성을 기대할 수 있다. 일례로 Nhuapeng 등의 연구에 의하면 PZT/PVDF ( $d_{33}=33\text{ pC/N}$ ) 복합소재가 PZT/Polyester ( $d_{33}=29\text{ pC/N}$ ), PZT/PVC ( $d_{33}=29\text{ pC/N}$ ), PZT/PU ( $d_{33}=28\text{ pC/N}$ )보다 높은 압전 특성을 나타낼 수 있다는 것

을 보고하였다 [24]. 또한, Babu 등의 연구에서 PZT/PA 복합소재는 약  $28\text{ pC/N}$ 의 압전상수를 나타내는 반면에 모재를 PVDF로 선택하게 되면 압전상수가  $48\text{ pC/N}$ 로 향상되는 것이 입증되었다 [25]. 특히 Sundar 등의 연구에 의하면  $\text{BaTiO}_3$  (BT)/Epoxy는 BT 함량이 부피비로 60%에서 약  $0.45\text{ pC/N}$ 의 압전상수를 나타내었으며 [26], 동일한 압전 물질에 PVDF를 활용한 복합소재는 압전상수가  $28\text{ pC/N}$ 로 향상되는 사례도 Zhou 등에 의해 보고되었다 [27]. 조사한 연구들을 고려하면 압전 고분자인 PVDF를 세라믹/고분자 복합소재 제작에 활용하게 되면 보다 높은 압전 특성을 가지는 복합소재를 제작할 수 있다는 것을 확인할 수 있다.

이러한 배경으로 본 연구에서는 압전상수( $d_{33}=24\sim 28\text{ pC/N}$ ), 유전율( $\epsilon_r=12$ ), 큐리온도( $T_c=104^\circ\text{C}$ )의 값을 갖는 polyvinylidene fluoride-trifluoroethylene (PVDF-TrFE)를 고분자 모재로 선택했으며 [23], BNST23 압전 세라믹스를 부피비 0, 30, 50, 70, 100%로 변화를 주어 BNST23/PVDF-TrFE 복합소재를 제작하였고, 구조적 특성, 미세구조 관찰 및 전기적 특성을 분석을 통하여 센서로서 응용 가능성을 평가하였다. 그 결과, BNST23 세라믹스를 부피비로 70%를 혼합한 BNST23/PVDF-TrFE 복합소재에서 가장 높은  $56\text{ pC/N}$ 의 압전 특성을 얻었다. 이러한 결과는 향후 구조물 안전 진단(SHM) 기술의 진동, 충격, 음향 방출 특성을 평가할 수 있는 센서로 활용을 기대한다.

본 연구에서는  $0.77(\text{Bi}_{1/2}\text{Na}_{1/2})\text{TiO}_3$ - $0.23\text{SrTiO}_3$  (BNST23) 압전 세라믹 분말을 전통적인 세라믹 합성법인 고상반응법으로 합성하였다. 원료 물질인  $\text{Bi}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Na}_2\text{O}_3$ ,  $\text{SrCO}_3$  그리고  $\text{TiO}_2$  (고순도 코리아, 99% 이상)을 화학량론적 비율에 맞게 칭량한 후, 직경이 3 mm와 5 mm인 지르코니아 볼, 에탄올과 함께 24시간 볼밀링하여 혼합하였다. 혼합된 분말을  $100^\circ\text{C}$ 의 오븐에서 24시간 동안 건조한 후, 분당  $5^\circ\text{C}$ 의 승온 속도로  $850^\circ\text{C}$ 에서 2시간 동안 하소하였다. 합성된 분말을 24시간 동안 볼밀링하여 분쇄하였고  $100^\circ\text{C}$ 의 오븐에서 24시간 동안 건조하였다. 건조한 분말은 중량비 10%의 PVA (polyvinyl alcohol)를 결합제로 사용하여 혼합 후, 10 mm의 지름을 가지는 원판형 틀을 이용하여 1축 압축 성형한 후  $1,175^\circ\text{C}$ 의 온도로 2시간 동안 소결하였다. 소결된 시편을 분쇄 및 분급하여 평균 입자 크기가 약  $67\text{ }\mu\text{m}$ 인 분말을 확보하여 복합소재 제작을 준비하였다. PVDF-TrFE 용액을 제조하기 위해 PVDF-TrFE (F2330-020G, PolyK Technologies) 분말과 아세톤을  $50^\circ\text{C}$  온도에서 1시간 동안 교반하여 중량비 25%의 PVDF-TrFE 용액을 준비하였다. 소결한 BNST23 세라믹 분말을 각 부피 분율대로 PVDF-TrFE 용액에 첨가한 다음  $50^\circ\text{C}$ 의 온도에

서 1시간 동안 교반하여 혼합한 후, 탈포를 위하여 혼합 용액을 1시간 동안 초음파 처리하였다. 탈포한 혼합 용액을 상온에서 1시간 동안 다시 교반하여 안정화시켰다. 제조한 BNST23/PVDF-TrFE 혼합 용액을 직경이 25 mm인 원형 실리콘 몰드에 넣은 후, 상온에서 24시간 동안 양생하여 복합소재 시료를 제작하였다. BNST23/PVDF-TrFE 복합소재의 미세구조 및 결정구조는 전계방출형 주사전자 현미경(FE-SEM, JEOL, JSM-659FF, JAPAN) 및 X-선 회절분석기(XRD, RAD III, Rigaku, JAPAN)를 이용하여 분석하였다. BNST23/PVDF-TrFE 복합소재의 전기적 특성을 측정하기 위해 제작한 복합소재를 20~30 mm<sup>2</sup> 크기로 가공하여 준비하였으며, 양면을 균질하게 연마하여 0.3~0.6 mm 두께로 가공 후, 양면에 상온 은(silver) 전극을 스크린 인쇄 공법으로 도포하여 전극을 형성시켰다. BNST23/PVDF-TrFE 복합소재를 실리콘 오일에 넣고 1~3 kV/mm의 전기장으로 30분 동안 분극(poling) 처리하였다. BNST23/PVDF-TrFE 복합소재의 유전 특성을 확인하기 위해 LCR meter (HP4192A, Yokogawa-Hewlett Packard LTD, Japan)를 이용하여 정전용량(C<sub>p</sub>) 및 유전손실(tanδ)을 측정 후, 식 (1)을 이용하여 상대유전율(ε<sub>r</sub>)을 평가하였다.

$$\epsilon_r = (C_p \times t) / (A \times \epsilon_0) \quad (1)$$

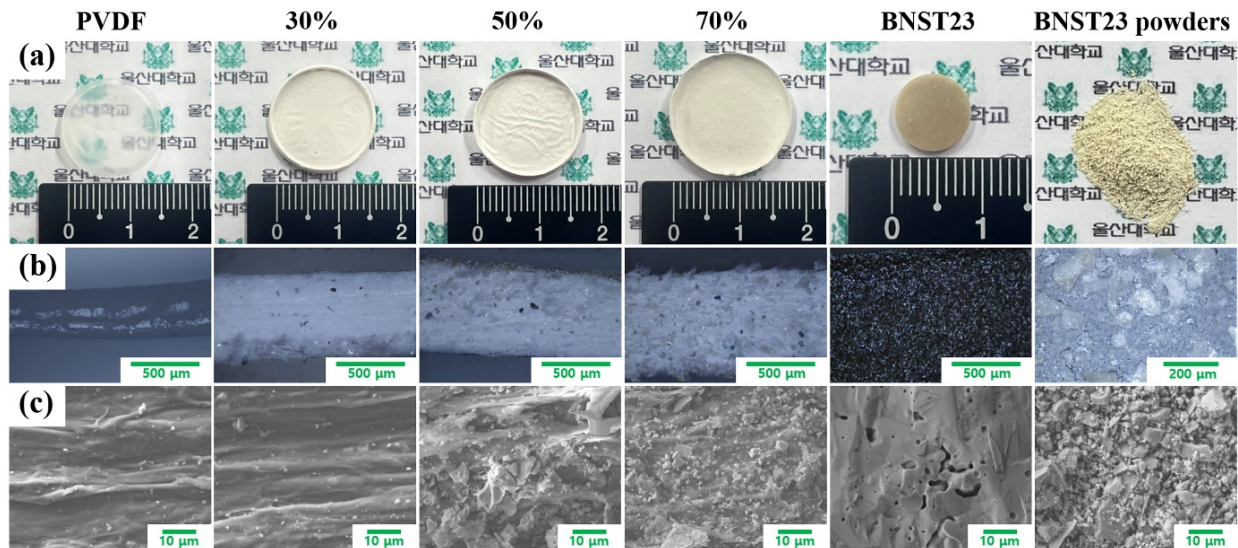
C<sub>p</sub>: 정전용량, t: 시편 두께(mm), A: 시편의 단면적(mm<sup>2</sup>), ε<sub>0</sub>: 진공유전율[8.854×10<sup>-12</sup> (F/m)]

BNST23/PVDF-TrFE 복합소재의 압전 특성은 d<sub>33</sub> meter (Model ZJ-6B, IACAS, China)로 측정하였다.

본 연구에서 제작한 BNST23 세라믹스 함량 변화에 따른 BNST23/PVDF-TrFE 복합소재의 시료 사진, 시료 파단면, 사용한 세라믹스 분말에 대한 광학 현미경과 FE-SEM 분석 결과를 그림 1에 각각 나타내었다. 분쇄한 압전 세라믹스는 불규칙적인 모양을 나타내고 있으며, 첨가한 세라믹스 함량이 증가함에 따라 관찰되는 세라믹 분말 빈도가 증가하였다. 또한, 분석한 범위 내에서 전반적으로 압전 세라믹 분말이 고분자 기지에 고르게 분포하고 있다. 이러한 결과들로부터, BNST23 세라믹스 함량 변화에 따른 BNST23/PVDF-TrFE 복합소재가 잘 제작되었다는 것을 확인할 수 있다.

BNST23 세라믹 분말의 부피 분율 변화에 따른 BNST23/PVDF-TrFE 복합소재의 X선 회절 분석 결과를 그림 2에 나타내었으며, 단일 PVDF-TrFE 고분자와 BNST23 세라믹스의 분석 결과를 BNST23/PVDF-TrFE 복합소재의 결과와 비교하였다. 세라믹스 함량이 증가함에 따라 BNST23/PVDF-TrFE 복합소재의 페로브스카이트 구조에 해당하는 피크의 세기가 증가하는 것을 확인할 수 있었다. PVDF-TrFE 고분자와 BNST23 세라믹스에 대항하는 피크만 일관되게 확인되어 2차상이 형성되지 않았으며, 이는 복합소재 제조과정 중에 발생할 수 있는 화학적 반응과 구조적 변화는 발생하지 않았음을 확인할 수 있다.

BNST23 분말의 부피 함량 변화에 따른 BNST23/PVDF-TrFE 복합소재의 유전 상수 및 유전 손실 결과를



**Fig. 1.** (a) Prepared samples, (b) optical microscopy (OM), and (c) FE-SEM images of fractured morphologies for BNST23/PVDF-TrFE composites as a function of ceramic content.

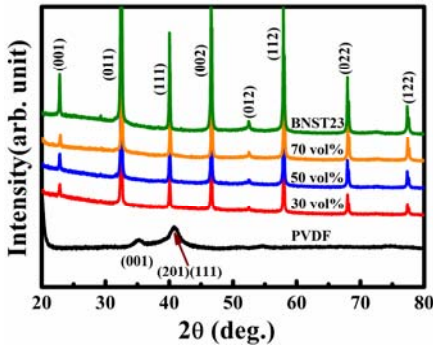


Fig. 2. X-ray diffraction patterns of BNST23/PVDF-TrFE composites as a function of ceramic content.

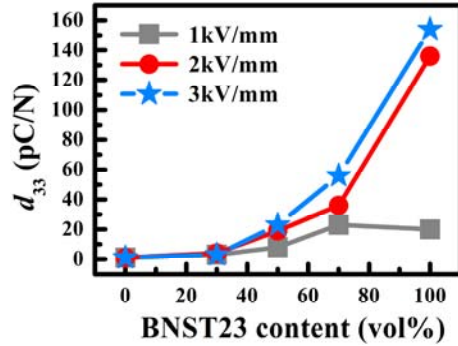


Fig. 4. Variation of piezoelectric constant ( $d_{33}$ ) for BNST23/PVDF-TrFE composites as a function of ceramic content.

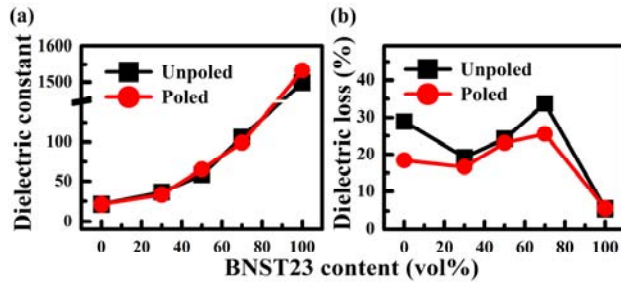


Fig. 3. Dielectric properties for BNST23/PVDF-TrFE composites as a function of ceramic content, (a) dielectric constant ( $\epsilon_r$ ) and (b) dielectric loss ( $\tan\delta$ ).

그림 3에 나타내었다. 복합소재의 분극 전과 후의 유전 상수는 비슷한 수치를 나타내었다. BNST23/PVDF-TrFE 복합소재의 유전율은 BNST23 분말의 함량이 증가함에 따라 증가하는 경향이 나타났다. 복합소재의 유전 상수 및 유전 손실은 복합소재에 포함된 두 성분의 계면 간의 연결성, 혼합비, 형상 및 여러 종류의 인자에 의해 영향을 받는다. 높은 혼합비는 세라믹 입자 간의 연결성을 증가시키며, 이에 따라 복합소재의 유전 상수가 증가한다고 알려져 있다 [14,28,29].

본 연구에서 제조한 BNST23/PVDF-TrFE 복합소재의 압전상수( $d_{33}$ )를 측정하여 그림 4에 비교하였다. BNST23/PVDF-TrFE 복합소재의 압전상수를 평가하기 위해 각 시료에 1~3 kV/mm의 전기장을 인가하여 분극 처리하였다. 3 kV/mm의 전기장에서 분극 처리한 BNST23 세라믹스의 압전상수는 150 pC/N 값으로 측정되었으며, BNST23/PVDF-TrFE 복합소재에서 가장 높은 압전상수는 BNST23 세라믹스의 부피비가 70%인 복합소재에서,

56 pC/N 값이 측정되었다. 분극 처리 시 인가한 전기장의 세기가 커질수록 BNST23/PVDF-TrFE 복합소재의 압전상수도 증가하는 것을 알 수 있다. 또한, 높은 전기장에서 BNST23 세라믹스의 함량이 증가할수록 BNST23/PVDF-TrFE 복합소재의 압전상수 값이 증가하였다. 이러한 결과는 복합소재 내의 세라믹 부피 분율이 증가할수록 복합소재에서 압전 세라믹이 조밀한 구조를 가지게 되며, 이는 그림 1(b), (c)의 미세 구조의 결과와 잘 일치한다. 이러한 결과는 세라믹 함량이 증가할수록 압전 특성에 기여하는 단위 면적당 입자의 수가 증가와 입자와 입자 간의 연결성이 향상되었기 때문이라고 판단할 수 있다 [14,28,29].

본 연구에서 제작한 BNST23/PVDF-TrFE 복합소재의 전기적 특성을 기존에 보고된 다른 문헌의 결과와 비교하여 표 1에 나타내었다. 비교한 결과를 살펴보면 PVDF를 고분자 물질로 활용하여 제작한 복합소재가 다른 고분자를 사용한 복합소재의 결과보다 압전 특성이 더 우수하다는 것을 확인할 수 있다. 또한 전반적으로 압전 세라믹스로 PZT를 활용하여 제작한 복합소재가 무연 압전 세라믹스 기반 복합소재보다 뛰어난 특성을 나타내었으며, PZT/PVDF 복합소재에서 가장 높은 48 pC/N의 압전상수가 보고되었다. 무연 압전 세라믹스를 활용하여 제조한 복합소재의 경우 대부분 30~40 pC/N 정도의 압전상수가 보고되었으며, 흥미롭게도 본 연구에서 제조한 BNST23/PVDF-TrFE 복합소재의 압전상수는 56 pC/N으로 가장 높은 특성을 얻었다. 이러한 원인은 추후 추가적인 실험 및 분석을 통하여 체계적인 규명이 필요하며, 이를 통하여 향후 유연성이 요구되는 압전 기반 센서 분야에 응용될 수 있음을 기대한다.

**Table 1.** Comparison of electrical properties between BNST23/PVDF-TrFE composites (this study) and literatures.

Materials	Volume fraction (%)	Poling field (kV/mm)	$d_{33}$ (pC/N)	$\epsilon_r$	$\tan\delta$ (%)	Ref.
BNST23/PVDF-TrFE	70	3	56	99	25	This work
PZT5A4 <sup>1</sup> /PVDF	67	-	48	152	-	[25]
BaTiO <sub>3</sub> (BT)/PVDF	60	3	28	168	2.1	[27]
(K <sub>0.44</sub> Na <sub>0.52</sub> Li <sub>0.04</sub> )(Nb <sub>0.86</sub> Ta <sub>0.1</sub> Sb <sub>0.04</sub> )O <sub>3</sub> (KNNLST)/PVDF	80	5	35	165	5	[30]
0.2Pb(Mg <sub>1/3</sub> Nb <sub>2/3</sub> )O <sub>3</sub> -0.8Pb(Zr <sub>0.475</sub> Ti <sub>0.525</sub> )O <sub>3</sub> (PMN-PZT)/Epoxy	80	5	38	110	2.5	[14]
Bi <sub>0.5</sub> Na <sub>0.5</sub> TiO <sub>3</sub> (BNT)/Epoxy	53	3	13	336	98	[20]
(K <sub>0.47</sub> Na <sub>0.51</sub> Li <sub>0.02</sub> )(Nb <sub>0.8</sub> Ta <sub>0.2</sub> )O <sub>3</sub> (KNLNT)/Epoxy	85	5	39	130	6	[14]
PZT <sup>2</sup> /Polyester	65	-	29	88	35.3	[24]
PZT <sup>3</sup> /PVC	60	-	29	134	23	[24]
PZT <sup>4</sup> /PU	70	-	28±5	45±5	4	[24]
PZT5A4 <sup>1</sup> /PA	50	6	28	68	-	[25]
PZT5A4 <sup>1</sup> /PDMS	50	12	25	-	-	[31]

<sup>1</sup>PZT5A4 (Morgan Electro Ceramics, Ruabon UK)

<sup>2</sup>PZT5A4 (Product 40/30, Advanced Ceramic Limited, Stafford, U.K.)

<sup>3</sup>PZT (PZT PC 5H, Morgan Matroc, Unilator Division, Vauxhall Industrial Estate, Wrexham, Clwyd, UK)

<sup>4</sup>PZT (501A-Ultrasonic Powders, Inc.)

**ORCID**

Hyoung-Su Han

<https://orcid.org/0000-0002-7423-2862>

**감사의 글**

본 연구는 한국수력원자력(주)과 지방자치단체(울산광역시)의 지원으로 수행된 연구임 (2023).

**REFERENCES**

[1] X. Cheng, S. Huang, J. Chang, and Z. Li, *J. Appl. Phys.*, **101**, 094110 (2007).  
doi: <https://doi.org/10.1063/1.2730559>

[2] Z. Li, D. Zhang, and K. Wu, *J. Am. Ceram. Soc.*, **85**, 305 (2002).  
doi: <https://doi.org/10.1111/j.1151-2916.2002.tb00089.x>

[3] J. K. Hong, J. S. Lee, H. I. Chee, M. S. Yoon, S. H. Jeong, and K. J. Lim, *J. Korean Inst. Electr. Electron. Mater. Eng.*, **14**, 455 (2001).  
<https://www.koreascience.or.kr/article/JAKO200111920775007.pdf>

[4] H. S. Han, T. A. Duong, C. W. Ahn, B. W. Kim, and J. S. Lee, *J. Korean Inst. Electr. Electron. Mater. Eng.*, **36**, 433 (2023).  
doi: <https://doi.org/10.4313/JKEM.2023.36.5.2>

[5] S. H. Lee, S. P. Nam, S. G. Lee, and Y. H. Lee, *J. Korean Inst. Electr. Electron. Mater. Eng.*, **23**, 771 (2010).  
doi: <https://doi.org/10.4313/JKEM.2010.23.10.771>

[6] T. G. Lee and S. Nahm, *Trans. Electr. Electron. Mater.*, **20**, 385 (2019).  
doi: <https://doi.org/10.1007/s42341-019-00134-6>

[7] S. Cho, J. H. Yoo, and Y. H. Jeong, *Trans. Electr. Electron. Mater.*, **20**, 328 (2019).  
doi: <https://doi.org/10.1007/s42341-019-00115-9>

[8] H. Wei, H. Wang, Y. Xia, D. Cui, Y. Shi, M. Dong, C. Liu, T. Ding, J. Zhang, Y. Ma, N. Wang, Z. Wang, Y. Sun, R. Wei, and Z. Guo, *J. Mater. Chem. C*, **6**, 12446 (2018).  
doi: <https://doi.org/10.1039/c8tc04515a>

[9] J. Wu, *J. Appl. Phys.*, **127**, 190901 (2020).  
doi: <https://doi.org/10.1063/5.0006261>

[10] P. K. Panda, B. Sahoo, T. S. Thejas, and M. Krishna, *J. Electron. Mater.*, **51**, 938 (2022).  
doi: <https://doi.org/10.1007/s11664-021-09346-0>

[11] W. Krauss, D. Schütz, F. A. Mautner, A. Feteira, and K. Reichmann, *J. Eur. Ceram. Soc.*, **30**, 1827 (2010).  
doi: <https://doi.org/10.1016/j.jeurceramsoc.2010.02.001>

- [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. Arbatti, X. Shan, and Z. Y. Cheng, *Adv. Mater.*, **19**, 1369 (2007).  
doi: <https://doi.org/10.1002/adma.200601996>
- [14] C. H. Yoon, D. T. Le, D. J. Heo, K. K. Ahn, and J. S. Lee, *J. Korean Inst. Electr. Electron. Mater. Eng.*, **25**, 420 (2012).  
doi: <https://doi.org/10.4313/JKEM.2012.25.6.420>
- [15] R. Gregorio Jr., M. Cestari, and F. E. Bernardino, *J. Mater. Sci.*, **31**, 2925 (1996).  
doi: <https://doi.org/10.1007/BF00356003>
- [16] P. Gowdhaman, K. Antonyraj, and V. Annamalai, *Int. J. Adv. Sci. Res.*, **1**, 322 (2015).  
doi: <https://doi.org/10.7439/IJASR.V1I8.2511>
- [17] M. Shoorangiz, Z. Sherafat, and E. Bagherzadeh, *Ceram. Int.*, **48**, 15180 (2022).  
doi: <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2022.02.047>
- [18] V. Jella, S. Ippili, J. H. Eom, J. Choi, and S. G. Yoon, *Nano Energy*, **53**, 46 (2018).  
doi: <https://doi.org/10.1016/j.nanoen.2018.08.033>
- [19] D. B. Deutz, N. T. Mascarenhas, S. van der Zwaag, and W. A. Groen, *J. Am. Ceram. Soc.*, **100**, 1108 (2017).  
doi: <https://doi.org/10.1111/jace.14698>
- [20] T. Sareein, W. Thamjaree, W. Nhuapeng, and T. Tunkasiri, *Adv. Mat. Res.*, **55**, 141 (2008).  
doi: <https://doi.org/10.4028/www.scientific.net/AMR.55-57.141>
- [21] F. Li and R. Zuo, *J. Mater. Sci.: Mater. Electron.*, **25**, 2730 (2014).  
doi: <https://doi.org/10.1007/s10854-014-1936-9>
- [22] L. Lu, W. Ding, J. Liu, and B. Yang, *Nano Energy*, **78**, 105251 (2020).  
doi: <https://doi.org/10.1016/j.nanoen.2020.105251>
- [23] K. S. Ramadan, D. Sameoto, and S. Evoy, *Smart Mater. Struct.*, **23**, 033001 (2014).  
doi: <https://doi.org/10.1088/0964-1726/23/3/033001>
- [24] W. Nhuapeng and T. Tunkasiri, *J. Am. Ceram. Soc.*, **85**, 700 (2002).  
doi: <https://doi.org/10.1111/j.1151-2916.2002.tb00154.x>
- [25] I. Babu, D. A. van den Ende, and G. de With, *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **43**, 425402 (2010).  
doi: <https://doi.org/10.1088/0022-3727/43/42/425402>
- [26] U. Sundar, Z. Lao, and K. Cook-Chennault, *Polymers*, **11**, 2123 (2019).  
doi: <https://doi.org/10.3390/polym11122123>
- [27] B. Zhou, R. Li, J. Cai, J. Xu, Z. Zhao, and J. Pei, *Mater. Res. Express*, **5**, 095510 (2018).  
doi: <https://doi.org/10.1088/2053-1591/aad8a4>
- [28] D. T. Le, N. B. Do, D. U. Kim, I. Hong, I. W. Kim, and J. S. Lee, *Ceram. Int.*, **38**, S259 (2012).  
doi: <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2011.04.096>
- [29] G. Zhang and M. S. Wu, *Int. J. Eng. Sci.*, **48**, 37 (2010).  
doi: <https://doi.org/10.1016/j.ijengsci.2009.06.006>
- [30] J. H. Seol, J. S. Lee, H. N. Ji, Y. P. Ok, G. P. Kong, K. S. Kim, C. Y. Kim, and W. P. Tai, *Ceram. Int.*, **38**, S263 (2012).  
doi: <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2011.04.097>
- [31] I. Babu and G. de With, *Compos. Sci. Technol.*, **91**, 91 (2014).  
doi: <https://doi.org/10.1016/j.compscitech.2013.11.027>