

Cr₂O₃-MgO-Y₂O₃ 첨가에 따른 물라이트 세라믹스의 기계적 성질

임진현^{1,2}, 김시연¹, 여동훈^{1,a}, 신호순¹, 정대용²

¹ 한국세라믹기술원 엔지니어링세라믹센터

² 인하대학교 신소재공학과

Effect of Cr₂O₃-MgO-Y₂O₃ Addition on Mechanical Properties of Mullite Ceramics

Jin-Hyeon Lim^{1,2}, Shi Yeon Kim¹, Dong-Hun Yeo^{1,a}, Hyo-Soon Shin¹, and Dae-Yong Jeong²

¹ Engineering Ceramic Center, Korea Institute of Ceramic Engineering & Technology, Icheon 17303, Korea

² Department of Materials Science and Engineering, Inha University, Incheon 22212, Korea

(Received October 8, 2017; Revised October 13, 2017; Accepted October 13, 2017)

Abstract: Mullite (3Al₂O₃ · 2SiO₂) has emerged as a promising candidate for high-temperature structural materials due to its erosion resistance, chemical and thermal stabilities, relatively low thermal expansion coefficient, excellent thermal shock and creep resistances, and low dielectric constant. However, since the pure mullite sintering temperature is as high as 1,600~1,700°C, there is an increasing need for a sintering additive capable of improving the strength characteristics while lowering the sintering temperature. Herein we have tried to obtain the optimal sintering additive composition by adding MgO, Cr₂O₃, and Y₂O₃ to mullite, followed by sintering at 1,325~1,550°C for 2 h. With additives of 2 wt% of MgO, 2 wt% of Cr₂O₃, 4 wt% of Y₂O₃, A density of 3.23 g/cm³ was obtained for the sintered body at 1,350°C upon using 2 wt% MgO, 2 wt% Cr₂O₃, and 4 wt% Y₂O₃ as additives. The three-point flexural strength of that was 275 MPa and the coefficient of thermal expansion (CTE) was 4.15 ppm/°C.

Keywords: Mullite, MgO, Cr₂O₃, Y₂O₃, Mechanical properties

1. 서 론

물라이트는 실리카와 알루미나의 화합물로 3Al₂O₃ · 2SiO₂의 조성인 중간상이며, 고온에서도 안정적인 상으로 존재한다. 높은 용융온도(> 1,800°C), 내침식성, 화학 및 열 안정성, 낮은 열팽창계수(4.5 ppm/°C), 우수한 열충격성, 크리프 저항성 및 낮은 유전상수 등으로 인하여 고온 구조재료와 기판재료에 널리 사용되고 있다 [1-5]. 특히, 물라이트는 Si (3.2~3.9 ppm/°C)와 유사한 열팽창계수를 나타내어 반도체 검사 공정에서 수직형 프로브카드의 핵

심부품 및 세라믹 히터 등에 적용할 수 있는 소재로 주목 받고 있다. 그러나 순수 물라이트는 1,600~1,700°C의 비교적 고온에서 소결이 이루어지고 [4-8], 120~180 MPa의 기계적강도 특성을 나타내므로 이를 향상시킬 필요가 있다. 따라서 소결 온도를 낮추면서 Si와 유사한 열팽창계수와 강도 특성을 향상시킬 수 있는 소결 첨가제의 필요성이 높아지고 있다 [1,2,9].

물라이트의 소결 온도를 낮추기 위한 방법으로는 대표적으로 액상소결 방법이 적용되고 있다 [10,11]. 첨가제들은 그 종류와 함량에 따라서 결정 크기 및 소결 거동에 영향을 미치며 [10], 소결 과정에서 액상을 형성하고, 소결 구동력을 높임으로써 더 낮은 온도에서 치밀화를 유도하는 역할을 한다 [11].

물라이트의 액상소결을 위한 첨가제로는 Cr₂O₃ [12], MgO [8], Y₂O₃ [14] 등이 가장 효과적인 것으로

a. Corresponding author; ydh7@kicet.re.kr

알려져 있다. 물라이트에 MgO의 첨가는 물라이트 결정 성장을 촉진시키며, 2 wt% 이하를 첨가했을 때 물라이트 상에 고용되고, 그 이상부터 2차상을 형성하는 것으로 알려져 있다 [15]. Cr₂O₃는 물라이트에 MgO가 함유된 혼합물에서 2 wt%를 첨가할 경우, 물리적 및 기계적 특성이 향상되는 것으로 보고된 바 있다 [12,13]. Y₂O₃의 경우는 알루미늄 실리케이트의 점도 감소를 유도하며 물라이트화 반응을 향상하고, 큰 기공이 생성되는 다중 결정 접합부와 결정립계에 위치하여 치밀화를 촉진하는 것으로 알려져 있다 [15]. 그러나 물라이트에 Cr₂O₃, MgO, Y₂O₃를 동시에 첨가한 연구결과는 아직 미흡한 실정이다.

본 연구에서는 물라이트에 MgO, Cr₂O₃, Y₂O₃ 함량을 변화하면서 시편을 제작하여 1,325~1,550°C에서 2시간 소결하였다. 각 시편의 밀도와 결정구조 및 미세구조를 관찰하였으며, 곡강도와 열팽창계수를 측정하여 반도체 공정 부품 및 세라믹 히터의 적용 가능성을 고찰하였다.

2. 실험 방법

본 실험에서 사용된 상용 물라이트 분말(Kyoritsu, KM101, Japan)의 평균 입도(D₅₀)는 1.687 μm이며, 조성은 Al₂O₃와 SiO₂의 무게비가 72 : 28로, 물라이트 상만 존재하는 영역에 위치한다. Y₂O₃가 물라이트의 소결 밀도에 미치는 영향을 관찰하기 위하여 Y₂O₃ 1, 2, 4, 6 wt%를 각각 칭량하여 물라이트 분말과 24시간 혼합 분쇄하였다. 혼합된 분말을 100°C 오븐에서 24시간 건조한 후, 15ø Pellet형 시편으로 제작하였으며, 1,400~1,550°C 온도영역에서 산화분위기로 2시간 소결하였다. 그리고 물라이트에 MgO, Cr₂O₃, Y₂O₃를 혼합하여 첨가한 조성에서 Y₂O₃가 소결특성에 미치는 영향을 관찰하기 위하여 Cr₂O₃과 MgO는 2 wt%로 각각 고정된 후, Y₂O₃ 함량을 변화하였으며 1,325~1,550°C에서 동일한 조건으로 소결하였다. 물라이트 파우더의 입자 크기는 입도분석기(Masterizer S, Malvern, USA)를 사용하여 측정하였으며, 소결된 시편들은 아르키메데스법을 이용하여 소결 밀도를 측정하였다. 소결된 시편의 미세구조를 관찰하기 위해서 주사전자현미경(JSM 6700F, JEOL, Japan)을 사용하였으며, 소결체의 결정상변화 분석을 위해서는 X선 회절분석기(D/MAX2500, Mac Sci. Co. Ltd., Japan)를 이용하였다. 소결 시편의 강도특성 측정은 강도 측정기(R&B, MOR tester,

Korea)를 사용하여 3점 곡강도를 측정하였으며, 열팽창계수는 열팽창 측정계(Netzsch, Dilatometer 402C, Germany)를 사용하여 25~300°C 범위에서 측정하였다.

3. 결과 및 고찰

물라이트에 Y₂O₃를 1~6 wt% 첨가하여 1,400~1,550°C에서 2시간 소결한 시편의 소결 밀도를 그림 1에 나타내었다. Y₂O₃를 1 wt% 첨가한 시편은 1,400°C에서 소결 밀도가 2.36 g/cm³를 나타내어 충분히 치밀화가 이루어지지 않았으며, Y₂O₃를 2 wt% 첨가한 시편은 1,500°C 이상에서 3.12 g/cm³를 나타내었다. 물라이트에 Y₂O₃를 4 wt% 첨가한 시편은 1,500°C에서 3.16 g/cm³로 가장 높은 소결특성을 나타내었으며, Y₂O₃를 6 wt% 첨가한 경우는 1,400°C에서 3.16 g/cm³로 가장 높은 소결 밀도 특성을 나타낸 후 감소하였다. 물라이트에 Y₂O₃ 첨가량이 증가함에 따라 소결성이 향상되었으며, 물라이트 이론밀도인 3.2 g/cm³에 약 98% 이상의 충분한 상대밀도를 나타내었다.

그림 2는 물라이트에 Cr₂O₃, MgO를 각각 2 wt% 첨가한 후 Y₂O₃ 첨가량 변화에 따른 시편의 소결 밀도 변화를 나타내었다. 물라이트에 2 wt% Cr₂O₃, 2 wt% MgO를 첨가한 후 Y₂O₃를 1 wt%, 2 wt% 첨가한 경우에는 1,400°C와 1,450°C에서 각각 3.15 g/cm³와 3.17 g/cm³로 가장 높은 소결 밀도 특성을 나타내었으나, Y₂O₃를 4 wt% 첨가한 경우에는 1,350°C에서 3.23 g/cm³로 가장 높은 소결 밀도를 나타낸 후 1,450°C에서부터 소결 밀도

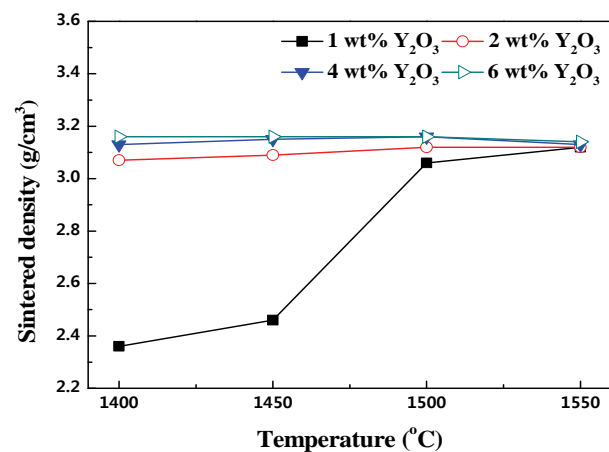


Fig. 1. Sintered density of mullite with 1~6 wt% Y₂O₃ at 1,400~1,550°C for 2 h.

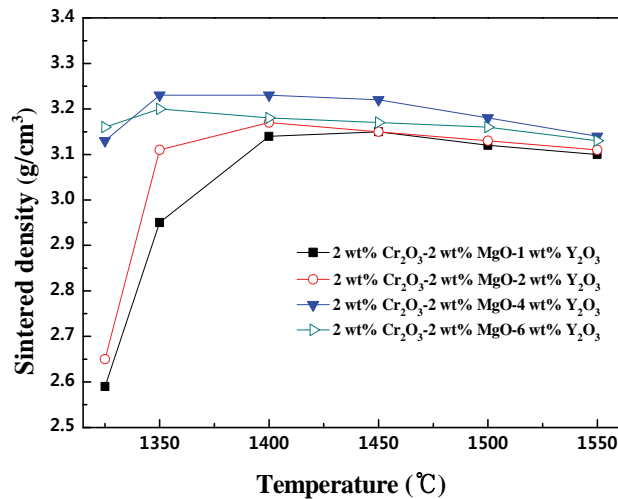


Fig. 2. Sintered density of mullite with 2 wt% Cr_2O_3 , 2 wt% MgO, 1~6 wt% Y_2O_3 at 1,350~1,550°C for 2 h.

가 감소하여 1,550°C에서 3.14 g/cm^3 를 나타내었다. Y_2O_3 를 6 wt% 첨가한 시편의 경우 1,350°C에서 3.20 g/cm^3 로 가장 높은 밀도값을 나타낸 후 1,400°C에서부터 밀도값이 감소하여 1,550°C에서 3.13 g/cm^3 를 나타내었다. Y_2O_3 첨가량이 증가할수록 소결 밀도가 증가하다가 Y_2O_3 를 6 wt% 첨가한 시편에서는 밀도가 감소하였으며, 이것은 치밀화와 그레인 성장과정에서 소결 온도에 따른 밀도의 일반적인 경향과 잘 일치한다.

가장 우수한 소결특성을 나타낸 물라이트에 2 wt% Cr_2O_3 , 2 wt% MgO, 4 wt% Y_2O_3 를 첨가한 시편의 소결 온도에 따른 XRD 패턴을 그림 3에 나타내었다. 소결 온도가 1,350°C에서 1,550°C로 높아질수록 물라이트 상 피크 강도는 증가하는 반면 $\text{Y}_2\text{Si}_2\text{O}_7$, Cristobalite 및 Al_2O_3 상 피크 강도는 상대적으로 감소함을 알 수 있다.

그림 4는 물라이트에 2 wt% Cr_2O_3 , 2 wt% MgO를 첨가한 후 Y_2O_3 첨가량을 1~6 wt%로 변화시켜 가며 1,350°C에서 소성한 시편의 XRD 결과를 나타내었다. 물라이트에 2 wt% Cr_2O_3 , 2 wt% MgO를 첨가한 후 Y_2O_3 첨가량이 증가함에 따라 Cristobalite 상 피크 강도는 증가하는 경향을 나타내었다. 한편 Y_2O_3 를 1 wt% 첨가한 시편에서는 $\text{Y}_2\text{Si}_2\text{O}_7$ 상이 관찰되지 않았으며, Y_2O_3 를 2 wt% 첨가한 시편에서 $\text{Y}_2\text{Si}_2\text{O}_7$ 상이 나타났으며 피크 강도는 매우 낮았다. 4 wt% Y_2O_3 를 첨가한 시편에서 $\text{Y}_2\text{Si}_2\text{O}_7$ 상 피크 강도가 증가하였으나, 6 wt% Y_2O_3 를 첨가한 시편에서는 4 wt% Y_2O_3 를 첨가한 시편보다 $\text{Y}_2\text{Si}_2\text{O}_7$ 상 피크 강도가 감소하였다. 물라이트 상은 $\text{Y}_2\text{Si}_2\text{O}_7$ 상이 생성되기 시작하는 2 wt%

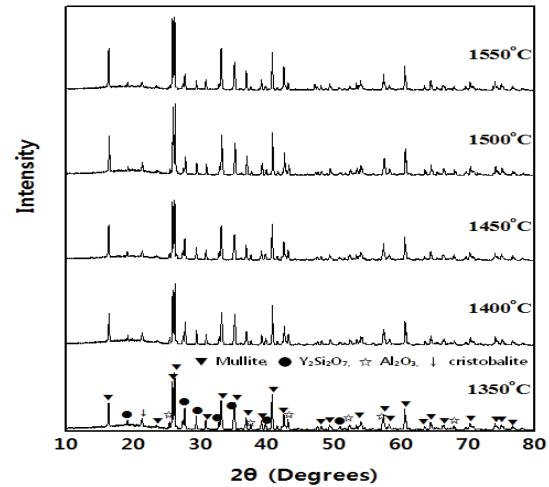


Fig. 3. XRD patterns of sintered mullite with 2 wt% Cr_2O_3 , 2 wt% MgO, 4 wt% Y_2O_3 at 1,350~1,550°C for 2 h.

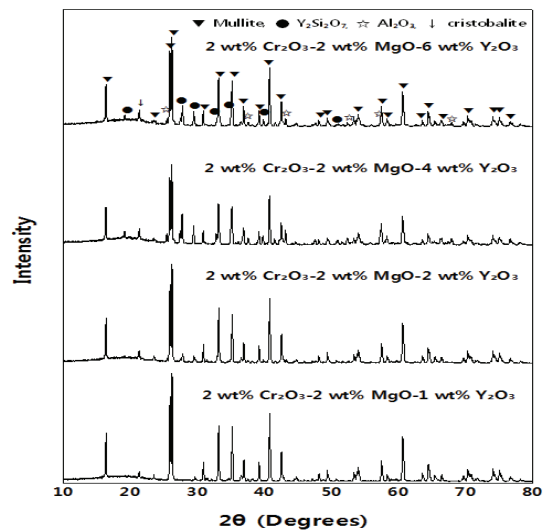


Fig. 4. XRD patterns of sintered mullite with 2 wt% Cr_2O_3 , 2 wt% MgO, 1~6 wt% Y_2O_3 at 1,350°C for 2 h.

Y_2O_3 를 첨가한 시편에서 강도가 감소하기 시작하여 4 wt% Y_2O_3 를 첨가한 시편에서는 피크 강도가 더욱 감소하는 경향을 나타내었으나, $\text{Y}_2\text{Si}_2\text{O}_7$ 상의 피크 강도가 감소한 6 wt% Y_2O_3 를 첨가한 시편에서는 다시 증가하는 경향을 나타내었다. 이러한 결과로부터 $\text{Y}_2\text{Si}_2\text{O}_7$ 상이 Si source 일부를 소비함으로써 물라이트 상이 상대적으로 감소하는 원인이 되는 것으로 생각할 수 있다. 또한, 잉여의 Al 이온이 Al_2O_3 상으로 이차상이 생성되고 특히, $\text{Y}_2\text{Si}_2\text{O}_7$ 상이 상대적으로 가장 많은 4

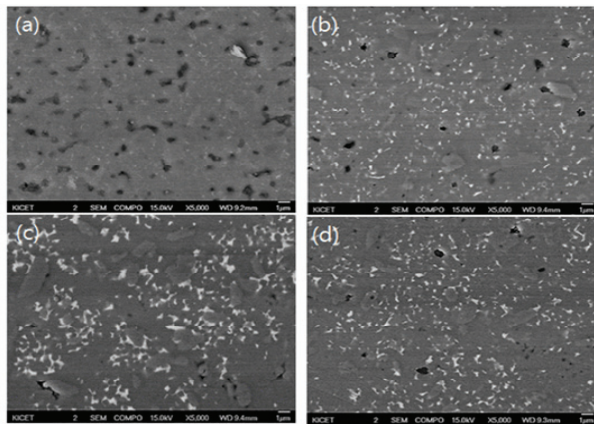
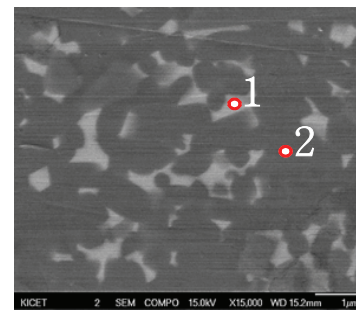


Fig. 5. SEM micrographs of sintered mullite with 2 wt% Cr₂O₃, 2 wt% MgO. (a) 1 wt% Y₂O₃, (b) 2 wt% Y₂O₃, (c) 4 wt% Y₂O₃, and (d) 6 wt% Y₂O₃ at 1,350°C.

wt% Y₂O₃ 첨가 조건에서 Al₂O₃ 상의 비율이 가장 높은 것이 이 같은 추정을 뒷받침한다.

물라이트에 2 wt% Cr₂O₃과 2 wt% MgO를 첨가한 후 Y₂O₃ 첨가량을 변화시켜 가며 1,350°C에서 소결한 후 폴리싱한 시편의 미세구조를 그림 5에 나타내었다. 물라이트에 2 wt% Cr₂O₃, 2 wt% MgO, 1 wt% Y₂O₃를 첨가한 시편의 미세구조를 나타낸 그림 5(a)에서는 다수의 기공이 관찰되어 치밀화가 이루어지지 않음을 알 수 있다. 그림 5(b)는 물라이트에 2 wt% Cr₂O₃, 2 wt% MgO, 2 wt% Y₂O₃를 첨가한 시편의 미세구조를 나타내었으며, 기공들이 관찰되고 있지만 어느 정도 치밀화가 이루어졌고, 흰색의 액상이 관찰되었다. 그림 5(c)는 물라이트에 2 wt% Cr₂O₃, 2 wt% MgO, 4 wt% Y₂O₃를 첨가한 시편이며, 미세구조가 가장 치밀하며 액상이 가장 크고 분포량도 가장 많음을 볼 수 있다. 그림 5(d)는 물라이트에 2 wt% Cr₂O₃, 2 wt% MgO, 6 wt% Y₂O₃를 첨가한 시편의 미세구조이며, 그림 5(c)보다 액상의 크기와 분포량이 감소하였다. 이러한 치밀화 정도와 액상의 존재는 그림 2의 소결 밀도와 그림 3의 결정구조 분석에서 액상의 존재와 잘 일치하였다. 액상의 성분 분석을 위하여 물라이트에 2 wt% Cr₂O₃, 2 wt% MgO, 4 wt% Y₂O₃를 첨가한 시편의 EDS 분석 결과를 그림 6에 나타내었다. 주상은 Al-Si-Mg가 주성분이며, 액상은 Al-Si-Mg-Y가 주성분임을 알 수 있다. 첨가한 성분 중에서 Cr은 물라이트 상 형성에 고용되어 검출되지 않은 것으로 사료된다.

그림 7은 물라이트에 2 wt% Cr₂O₃, 2 wt% MgO를 첨가한 후 Y₂O₃ 함량을 변화시켜 가며 1,350°C에서 소



EDS results (atomic%)					
No.	O	Mg	Al	Si	Y
Spectrum 1	73.60	0.51	9.79	8.25	5.35
Spectrum 2	71.25	0.96	19.05	6.66	

Fig. 6. EDS results of sintered mullites with 2 wt% Cr₂O₃, 2 wt% MgO, 1-6 wt% Y₂O₃ at 1,350°C for 2 h.

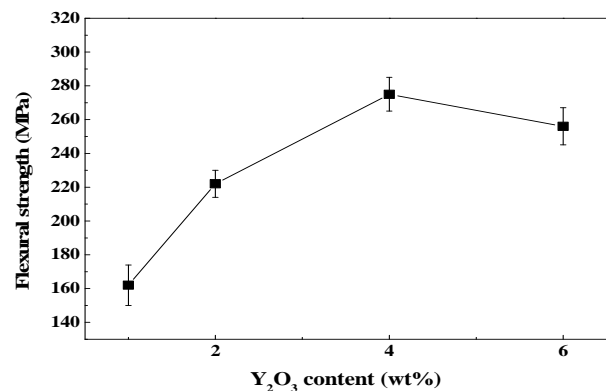
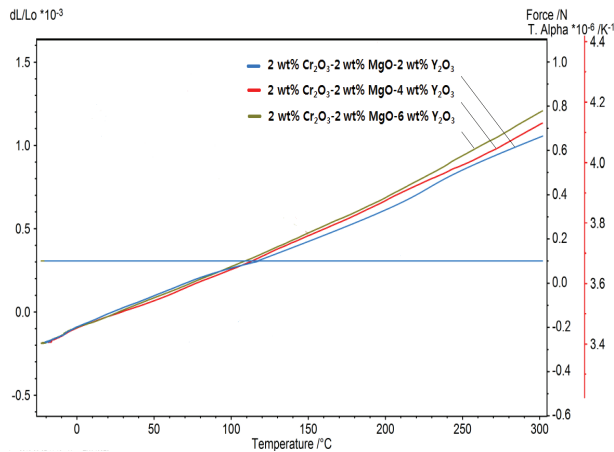


Fig. 7. Flexural strength of sintered mullite with 2 wt% Cr₂O₃, 2 wt% MgO, 1-6 wt% Y₂O₃ at 1350°C for 2 h.

결한 시편의 강도 특성을 나타내었다. 그림 2에서 1,350°C에서 Y₂O₃ 함량 증가에 따른 소결 밀도 경향과 일치하는 것을 알 수 있다. Y₂Si₂O₇ 상의 함량이 많은 조성일수록 강도값이 증가하였으며, Y₂Si₂O₇ 상과 Al₂O₃ 상이 가장 많은 물라이트에 2 wt% Cr₂O₃, 2 wt% MgO, 4 wt% Y₂O₃ 조성의 3점 곡강도가 물라이트의 강도 특성값인 180 Mpa보다 높은 275 Mpa로 가장 높게 나타났다. 이것은 Y₂Si₂O₇ 상의 증가가 강도 증가에 영향을 미쳤다고보다는 Al₂O₃의 증가가 강도 특성 향상에 큰 영향을 미친 것으로 생각할 수 있다. 그 이유는 LTCC 조성 등에서 이차상인 Al₂O₃ 상의 분율 증가가 강도의 증가에 영향을 준 사례는 이미 보고된 바 있기 때문이다 [16]. 물라이트에 Y₂O₃를 첨가한 경우 1,400°C에서 이론밀도 98%의 상대밀도를



		Coefficient of thermal expansion (ppm/°C)		
Content of additives		100°C	200°C	300°C
2 wt%	Cr ₂ O ₃ -2 wt% MgO-2 wt% Y ₂ O ₃	3.68	3.84	4.10
2 wt%	Cr ₂ O ₃ -2 wt% MgO-4 wt% Y ₂ O ₃	3.66	3.87	4.15
2 wt%	Cr ₂ O ₃ -2 wt% MgO-6 wt% Y ₂ O ₃	3.68	3.91	4.18

Fig. 8. Thermal expansion coefficient of sintered mullite with 2 wt% Cr₂O₃, 2 wt% MgO, 2~6 wt% Y₂O₃ at 1,350°C for 2 h.

나타내었으며, 이때 생성되는 Y₂Si₂O₇ 상의 3점 곡강도는 135 Mpa로 보고되었다 [17]. 반면 물라이트에 2 wt% Cr₂O₃, 2 wt% MgO, 4 wt% Y₂O₃를 첨가한 경우 소결 온도는 1,350°C로 낮출 수 있었으며, 3점 곡강도는 275 Mpa를 나타내었다.

물라이트에 2 wt% Cr₂O₃, 2 wt% MgO를 첨가한 후 Y₂O₃ 함량을 변화시켜가며 1,350°C에서 소결한 시편의 열팽창계수를 25~300°C 영역에서 측정된 결과를 그림 8에 나타내었다. 물라이트에 Y₂O₃ 첨가량이 증가함에 따라 열팽창계수 값은 증가하는 경향을 나타내었지만 증가폭은 크지 않았으며, 25~300°C에서 열팽창계수는 4.10~4.18 ppm/°C를 나타내었다.

이러한 결과로부터 Cr₂O₃, MgO, Y₂O₃ 첨가에 따른 열팽창계수 값은 크게 변화하지 않았으며 반도체 공정 및 세라믹 히터로 적용 가능한 것으로 사료된다.

4. 결론

물라이트 세라믹스의 소결 온도를 낮추기 위한 첨가제 조성 및 소결 온도에 따른 실험 결과 다음과 같은 결론을 얻을 수 있었다.

- 1) 물라이트에 Y₂O₃ 첨가량에 따른 소결 특성 실험 결과 Y₂O₃ 첨가량이 증가함에 따라 소결성이 증가하였으며 Y₂O₃를 6 wt% 첨가한 경우 1,400°C에서 3.16 g/cm³의 최대밀도 값을 나타내었다.
- 2) 물라이트에 2 wt% Cr₂O₃, 2 wt% MgO, 4 wt% Y₂O₃를 첨가한 경우 1,350°C에서 최대 밀도값 3.23 g/cm³을 나타내었으며, 3점 곡강도는 275 MPa를 나타내었다. 이때 25~300°C 온도 범위에서 열팽창계수는 4.15 ppm/°C를 나타내었다. Y₂O₃ 첨가에 의해 Y₂Si₂O₇ 상, Cristobalite 상, Al₂O₃ 상 및 액상이 증가하였다가 감소함으로써 물라이트 세라믹의 치밀화를 유도하여 밀도와 곡강도를 증가시키는 것으로 사료된다.

감사의 글

본 연구는 중소기업청/산업기술혁신사업(World Class 300 프로젝트 R&D)의 지원으로 수행되었음(과제번호: S2525575).

REFERENCES

- [1] I. A. Aksay, D. M. Dabbs, and M. Sarikaya, *J. Am. Ceram. Soc.*, **74**, 2343 (1991). [DOI: <https://doi.org/10.1111/j.1151-2916.1991.tb06768.x>]
- [2] M. D. Sacks, N. Bozkurt, and G. W. Scheffele, *J. Am. Ceram. Soc.*, **74**, 2428 (1991). [DOI: <https://doi.org/10.1111/j.1151-2916.1991.tb06780.x>]
- [3] R. Torrecillas, J. M. Calderón, J. S. Moya, M. J. Reece, C.K.L. Davies, C. Olagnon, and G. Fantozzi, *J. Eur. Ceram. Soc.*, **19**, 2519 (1999). [DOI: [https://doi.org/10.1016/S0955-2219\(99\)00116-8](https://doi.org/10.1016/S0955-2219(99)00116-8)]
- [4] M.G.M.U. Ismail, Z. Nakai, and S. Sōmiya, *J. Am. Ceram. Soc.*, **70**, C-7 (1987). [DOI: <https://doi.org/10.1111/j.1151-2916.1987.tb04857.x>]
- [5] S. Kanzaki, H. Tabata, T. Kumazawa, and S. Ohta, *J. Am. Ceram. Soc.*, **68**, C-6 (1985). [DOI: <https://doi.org/10.1111/j.1151-2916.1985.tb15252.x>]
- [6] B. S. Lim, K. I. Kang, Y. Y. So, S. Park, and B. H. Lee, *J. Korean Ceram. Soc.*, **36**, 82 (1999).
- [7] H. Schneider, J. Schreuer, and B. Hildmann, *J. Eur. Ceram. Soc.*, **28**, 329 (2008). [DOI: <https://doi.org/10.1016/j.jeurceramsoc.2007.03.017>]
- [8] M. I. Osendi and C. Baudín, *J. Eur. Ceram. Soc.*, **16**, 217

- (1996). [DOI: [https://doi.org/10.1016/0955-2219\(95\)00133-6](https://doi.org/10.1016/0955-2219(95)00133-6)]
- [9] C. B. Lim, D. H. Yeo, H. S. Shin, and Y. S. Cho, *J. Korean Ceram. Soc.*, **48**, 604 (2011). [DOI: <https://doi.org/10.4191/kcers.2011.48.6.604>]
- [10] L. Montanaro, J. M. Tulliani, C. Perrot, and A. Nergo, *J. Eur. Ceram. Soc.*, **17**, 1715 (1997). [DOI: [https://doi.org/10.1016/S0955-2219\(97\)00043-5](https://doi.org/10.1016/S0955-2219(97)00043-5)]
- [11] S. M. Rhim, S. M. Hong, H. J. Bak, and O. K. Kim, *J. Korean Ceram. Soc.*, **36**, 767 (1999).
- [12] M.F.M. Zawrah, *Br. Ceram. Trans.*, **102**, 114 (2003). [DOI: <https://doi.org/10.1179/096797803225004936>]
- [13] D. Levy, G. Artioli, A. Gualtieri, S. Quartieri, and M. Valle, *Mater. Res. Bull.*, **34**, 711 (1999). [DOI: [https://doi.org/10.1016/S0025-5408\(99\)00067-7](https://doi.org/10.1016/S0025-5408(99)00067-7)]
- [14] J. She, P. Mechnich, M. Schmücker, and H. Schneider, *J. Eur. Ceram. Soc.*, **22**, 323 (2002). [DOI: [https://doi.org/10.1016/S0955-2219\(01\)00288-6](https://doi.org/10.1016/S0955-2219(01)00288-6)]
- [15] M. Heraiz, A. Merrouche, and N. Saheb, *Adv. Appl. Ceram.*, **105**, 285 (2006). [DOI: <https://doi.org/10.1179/174367606X146676>]
- [16] S. I. Gu, H. S. Shin, Y. W. Hong, D. H. Yeo, J. H. Kim, and S. Nahm, *J. Korean Inst. Electr. Electron. Mater. Eng.*, **23**, 864 (2010). [DOI: <https://10.4313/JKEM.2010.23.11.864>]
- [17] Z. Sun, Y. Zhou, J. Wang, and M. Li, *J. Am. Ceram. Soc.*, **90**, 2535 (2007). [DOI: <https://10.1111/j.1551-2916.2007.01803.x>]