

빅데이터 구축을 위한 알루미나 테이프 캐스팅 공정 최적화

김동하¹, 김시연¹, 이주성², 여동훈¹ , 신호순¹, 윤상옥³

¹ 한국세라믹기술원 엔지니어링세라믹센터

² (주)보부하이테크 연구소

³ 강릉원주대학교 세라믹신소재공학과

Optimization of Alumina Tape Casting Process for Building Big Data

Dong Ha Kim¹, Shi Yeon Kim¹, Joo Sung Lee², Dong-Hun Yeo¹, Hyo-Soon Shin¹, and Sang-Ok Yoon³

¹ Engineering Ceramics Center, Korea Institute of Ceramic Engineering and Technology, Icheon 17303, Korea

² R & D Center, Boboo Hitech Co., Ltd., Yongin 16882, Korea

³ Department of Ceramic Engineering, Gangneung-Wonju National University, Gangneung 25457, Korea

(Received September 17, 2019; Revised September 19, 2019; Accepted September 23, 2019)

Abstract: For machine learning techniques, a large amount of high-quality material property data should be accumulated. In this study, several data for an alumina tape casting process were produced with the variables of slurry viscosity, gap size, and coating speed. The alumina tapes were manufactured in the range of 1,000~6,000 cps for slurry viscosity, 300~1,000 μm for gap size, and 0.5~2.0 m/min for coating speed. As a result, the lower the viscosity, coating speed, and gap size, the more pore-free tapes could be manufactured. The viscosity of the slurry limited the minimum thickness of the tape. Green sheets with high packing density were manufactured from the slurry of 100~6,000 cps slurry viscosity, coating speed of 0.5 m/min, and a 300~500 μm gap size.

Keywords: Big data, Al_2O_3 , Tape casting, Slurry viscosity, Coating speed, Gap size, Packing density

1. 서론

세라믹 소재는 현대 산업에서 나노 및 첨단 IT 기술의 핵심 소재로 각광받고 있다. 폴리머와 금속 소재가 주로 외형 위주의 구조물을 구성하는 것에 비해 세라믹 소재는 첨단 장치 및 부품의 핵심 기능을 발현하며, 친환경적이다 [1-5]. 알루미나는 절연체, 내화물, 히터 등 세라믹 전 영역에 걸쳐 가장 많이 적용되고 있다 [6-8].

세라믹 부품들은 초기 단순한 벌크부터 시작하여 현재는 후막과 박막 형태에 이르기까지 다양한 공정에 의해 제조되고 있다 [9-11]. 특히 세라믹 분말을 시트 형태로 성형하여 적층하는 적층 세라믹 공정은 기존의 벌크 공정에 비해 성형성이 우수하며, 박막 공정보다 비용이 저렴하면서 양산성이 우수한 이점이 있어 가장 널리 적용되고 있는 공정이다. 적층 세라믹 공정에서 가장 핵심인 테이프 캐스팅 공정 조건을 최적화하여 신제품 개발 및 양산성 확보를 위하여 분말의 조성, 입도, 비표면적, 분산성, 유기물 함량 등이 슬러리 및 테이프 제조공정에 미치는 영향에 관한 다양한 연구들이 활발하게 진행되어 왔다 [12-14].

분산성이 확보된 슬러리를 이용한 테이프 제조공정에서 테이프 두께에 영향을 미치는 인자는 탈포 시간에 따른 슬러리 점도 변화, 건조온도, 코팅속도 및 갭

✉ Dong-Hun Yeo; ydh7@kicet.re.kr

높이 등이 있다. 그러나 전술한 공정 변수들이 테이프 두께 변화에 미치는 영향에 관한 구체적인 실험적 보고는 충분히 이루어지지 않았다. 이는 실제 제품의 결함여부를 결정짓는 중요한 변수임에도 불구하고, 그동안 연구실과 산업계 현장에서 쌓아온 노하우 및 경험에만 의존하고 있는 실정이다.

한편, 최근 4차 산업혁명의 일환으로 산업계에서는 빅데이터 기반의 공정표준화를 통한 제품 개발기간 단축과 생산성을 획기적으로 개선하기 위한 제조 혁신 플랫폼 구축이 시도되고 있다. 이러한 플랫폼 구축에는 딥러닝, 머신러닝 등의 빅데이터 기반 인공지능 기술이 적용된다. 이 중 머신러닝은 문제 해결을 위하여 데이터를 분류하고 기계적인 학습 과정에서 경향성을 갖춘 데이터를 이용한 지도 학습(supervised learning)이 요구된다 [15]. 따라서 딥러닝, 머신러닝 등의 인공지능에서 유의미한 학습이 진행되기 위해서는 기본적으로 의미 있는 공정 데이터가 먼저 수집/입력되어야 한다. 특히, 적층 세라믹 공정에 적용하기 위해서는 가장 핵심인 테이프 제조과정 최적화를 위한 슬러리 점도, 코터 건조온도, 코팅속도, 성형 두께 등의 광범위한 변수들까지 고려하여 신뢰성 있는 양질의 데이터를 확보하는 과정이 필수적이다.

본 연구에서는 가장 널리 쓰이는 소재인 알루미늄을 이용한 테이프 제조과정에서, 기타 조건들을 고정시키고, 공정 변수인 코팅속도, 갭 높이 및 슬러리 점도를 각각 달리하여 테이프를 제조하였다. 제작된 테이프 두께 수축률, 충전 밀도 및 미세구조 등을 분석하여 공정 변수가 테이프의 결함에 미치는 영향에 대하여 고찰하였다.

2. 실험 방법

2.1 알루미늄 슬러리 및 테이프 제작

테이프 캐스팅 공정을 이용한 시편 제조 과정은 그림 1과 같으며, 본 실험에서 사용한 Al_2O_3 (LS-130, Nippon Light Metal Co., Ltd., Japan) 파우더 특성을 표 1에 나타내었다. 에탄올/톨루엔 혼합용매에 Al_2O_3 파우더와 분산제(BYK-111, BYK-chemie, Germany)를 넣고 볼밀을 이용하여 24시간 동안 1차 분산하였다.

24시간 동안 1차 분산이 완료된 슬러리에 바인더(Polyvinyl, BM-SZ, Sekisui, Japan)와 가소제(Dibutyl phthalate, Daejung Chemical and Metals Co. Ltd., Korea)를 첨가하여 22시간 동안 2차 혼합하였다. 이렇

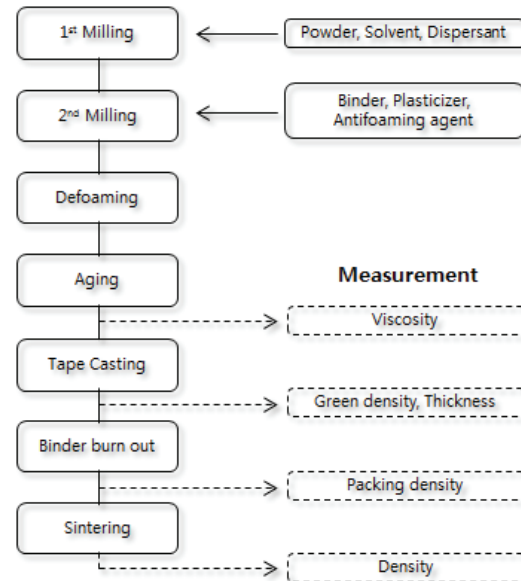


Fig. 1. The processing program of tape casting.

Table 1. Properties of Al_2O_3 powder (LS-130).

Classification	Properties
Manufacturer	Nippon Light Metal Co., Ltd. (Japan)
Product name	LS-130
Al_2O_3 (%)	99.9
Ave. particle size (μm)	2.2
BET specific surface area (m^2/g)	1.4
Fired density (g/cm^3)	3.78
Linear shrinkage (%)	16.7

게 얻어진 슬러리는 1 L씩 소분하여 10^{-3} Torr 진공도의 탈포기를 이용하여 슬러리 점도를 1,000, 3,300, 6,000 cps로 각각 조절한 후, 24시간 동안 저속으로 에이징 과정을 거쳐 슬러리를 제조하였다. 이렇게 제조된 슬러리를 코터장비(InnosyM, Korea)를 이용하여 0.5~2.0 m/min 속도로 테이프를 제조하였다. 제작된 시트를 3층씩 적층하여 직경 16 mm로 펀칭한 후, $600^\circ C$ 에서 24시간 동안 바인더를 제거하고, $1,640^\circ C$ 에서 3시간 소결하여 시편을 제작하였다.

2.2 측정 및 분석

완성된 슬러리는 점도계(DV-2+ Pro, Brookfield, USA)를 이용하여 점도를 측정하였다. 테이프를 제조한 후 두

께 측정기(MS-4G, Nikon, Japan)로 5 포인트 두께를 측정하여 평균값을 산정하였다. 또한 LED 패널 위에 테이프를 위치하고 저배율 이미지로 테이프 표면을 촬영하였다. 테이프를 3층으로 적층한 후, 직경 16 mm로 펀칭하여 그린밀도를 측정하였다. Binder burn-out 과정 후 탈지된 시편으로부터 충전 밀도를 측정하였으며, 소결한 시편은 아르키메데스법을 이용하여 밀도를 관찰하였다. 소결된 시편의 형상과 미세구조는 주사식 전자현미경(S-4300, Hitachi, Japan)을 이용하여 관찰하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1 점도에 따른 두께 수축률 및 충전 밀도

그림 2는 슬러리 건조과정을 나타낸 모식도이다. 초기 슬러리는 그림 2의 좌측과 같이 세라믹 파우더와 여러 종류의 바인더로 구성되어 있으며 건조과정에서 캐리어 필름의 수직방향으로 수축하며, 우측 테이프 형태로 성형된다. 이때 공정조건에 따른 테이프 두께는 다음과 같은 수식으로 계산할 수 있다 [16].

$$\delta_p = \frac{\alpha\beta\rho_s Q_v}{\rho_{tp} W U} \quad (1)$$

δ_p = Sheet thickness,

W = Casting width,

U = Casting velocity,

α = Constant for side flow,

β = Correction factor,

ρ_{tp} = Dry tape density,

ρ_s = Slurry density,

Q_v = Slurry volumetric flow rate
(integration of velocity, u)

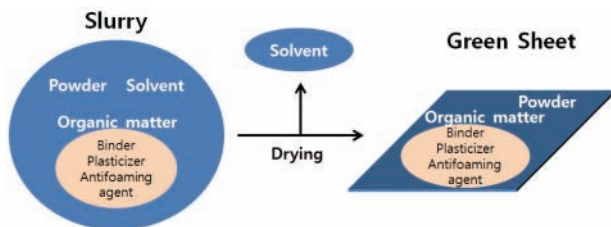


Fig. 2. Schematic diagram of tape casting process.

위의 식에서 테이프 두께는 코터의 코팅속도, 슬러리 밀도, 슬러리 체적 유량에 영향을 받으므로 본 실험에서는 이에 대응하는 각각의 변수 값으로 코터장비의 코팅속도, 슬러리 점도, 콤마의 갭 높이에 따른 테이프 특성을 살펴보았다.

그림 3은 슬러리 점도가 1,000, 3,300, 6,000 cps로 각각 다른 슬러리를 0.5 m/min 코팅속도로 갭 높이가 300~1,000 μm 범위에서 제조한 Al_2O_3 테이프 두께 수축률을 나타내었다. 슬러리 점도가 1,000 cps부터 6,000 cps로 증가함에 따라 설정한 갭 높이와 상관없이 두께 수축률이 감소하는 것을 알 수 있다. 점도 1,000 cps인 슬러리로 제조한 테이프 두께 수축률은 설정 갭 높이가 300 μm 에서 1,000 μm 로 상승함에 따라 65%에서 84%로 가장 크게 수축하였다. 갭 높이가 1,000 μm 인 경우는 슬러리 점도가 상대적으로 낮아 건조과정에서 테이프 가장자리 부분이 붕괴되어, 슬러리 높이가 1,000 μm 갭에 미치지 못하였기 때문에 수축률이 84%로 높게 측정되었다. 이러한 결과들은 머신 러닝 과정에서 경향성을 갖추지 못한 데이터를 입력할 경우, 결과값을 왜곡할 가능성을 보여준다. 슬러리 점도 3,300 cps인 경우는 설정 갭 높이가 300 μm 에서 1,000 μm 로 높아짐에 따른 두께 수축률은 58%에서 65%로 약 7%의 적은 변화폭을 나타내었다. 이는 본 연구에서 점도가 높은 슬러리를 얻기 위해 탈포 시간에 변화를 주었기 때문에, 슬러리 내 용매 함량이 감소했기 때문인 것으로 사료된다. 슬러리 점도가 6,000 cps인 경우는 57%에서 61%의 적은 수축률 변화폭을 보였다.

그림 4는 코팅속도를 0.5 m/min로 고정하고 제한한 테이프들의 충전 밀도를 나타내었다. 갭 높이를 300~700 μm 범위로 설정하고 점도 1,000~6,000 cps

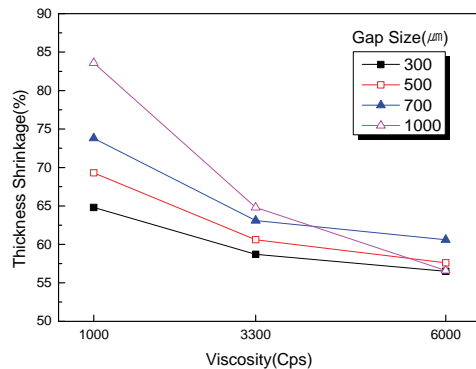


Fig. 3. Thickness shrinkage of tapes fabricated with 0.5 m/min coating speed at different gap & viscosity condition.

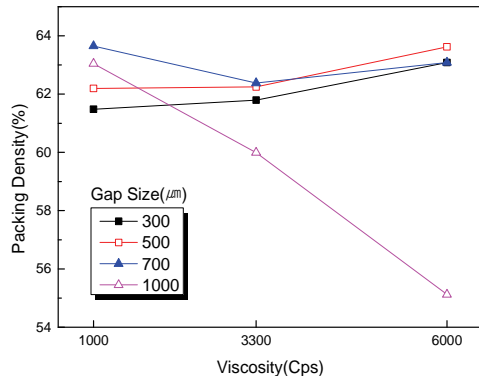


Fig. 4. Packing density of tapes at 0.5 m/min coating speed with various gap & viscosity.

인 슬러리로 제작된 테이프는 61.5~63.6% 우수한 충전 밀도를 나타내었으며, 육안 상으로도 기공이 관찰되지 않았다. 즉 기공이 발생하지 않고 충전 밀도가 60% 이상으로 나타난 것으로 보아, 슬러리 분산성이 우수한 것으로 사료된다. 설정 갭 높이를 1,000 μm, 점도 3,300, 6,000 cps인 슬러리로 제작한 테이프들은 그림 7(b), 7(c)와 같이 육안 상으로 관찰 가능한 크기의 기공이 발생하였다. 즉, 공정 변수인 설정 갭 높이가 700 μm 이상일 경우 기공이 발생할 가능성이 높으며, 이 경우 충전 밀도는 55% 이하로 급격하게 감소하였다. 슬러리 점도는 탈포시간에 의해 조절되었으며, 탈포시간 증가에 따른 슬러리 점도 증가가 기공 발생을 증가시키는 것에 대해서는 정량화된 데이터를 얻기 위한 측정 방법의 기준 설정과 추가 연구가 필요하다.

3.2 Gap에 따른 두께 수축률 및 충전 밀도

앞선 결과로부터 공정 변수인 갭 높이에 따라서 슬러리 점도와 상관없이 테이프에 결함이 발생하는 것을 확인하였다. 즉, 슬러리 조성 이외에 슬러리 점도 및 갭 높이가 테이프의 두께 변화 및 결함 발생에 영향을 미치는 중요한 변수임이 확인되었다. 따라서 이후 실험에서는 슬러리 점도를 1,000 cps로 고정시킨 조건에서 갭 높이를 300~1,000 μm 범위로 설정하고, 코팅 속도가 0.5~2.0 m/min 범위에서 테이프를 제조하였다. 그림 5는 전술한 조건에서 공정 변수에 따른 두께 수축률 변화를 나타내었다. 그림 5에서 갭을 300~700 μm 범위로 설정한 경우 모든 코팅속도 조건에서 갭 높이가 증가함에 따라 두께 수축률이 증가하였다. 하지만 갭 높이를 1,000 μm로 설정한 경우 0.5 m/min, 0.7

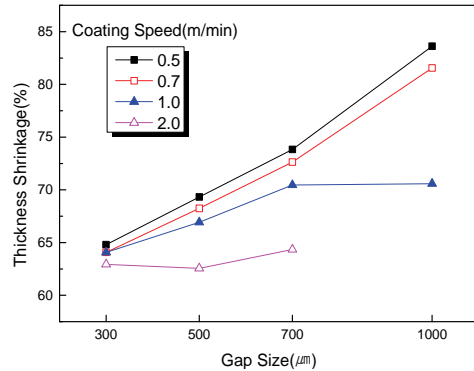


Fig. 5. Thickness shrinkage of tapes at 1,000 cps viscosity with various gap & coating speed.

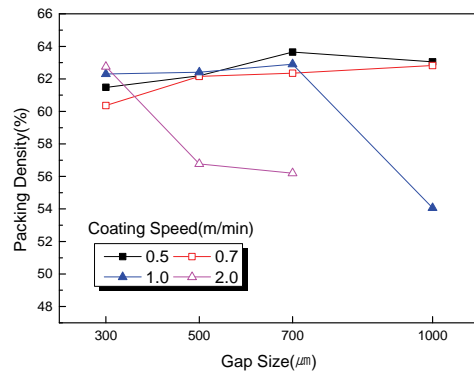


Fig. 6. Packing density of tapes at 1,000 cps viscosity with various gap & coating speed.

m/min 코팅속도에서 캐스팅한 테이프는 두께 수축률이 80% 이상으로 그림 3과 유사하게 테이프 두께가 크게 감소함을 알 수 있다. 경험적으로 분산성이 우수한 슬러리로 캐스팅한 테이프 두께 수축률이 50~70% 임을 고려할 때, 이는 갭 높이가 1,000 μm로 테이프를 제조하기에는 슬러리 점도가 너무 낮은 것을 의미한다. 하지만 1.0 m/min 코팅속도에서는 테이프 두께 수축률이 70%를 나타내었으며, 이는 해당 코팅속도 조건에서 테이프에 발생하는 결함에 의해 두께 편차를 유발하기 때문이다. 코팅속도 2.0 m/min에서는 건조가 너무 빠르게 진행되어 캐리어 필름에서 테이프가 분리되는 현상이 발생하였다. 코팅 속도가 빠를수록 갭-두께 수축률 그래프의 기울기가 감소하였으며, 이는 건조에 필요한 충분한 시간이 주어지지 않아 시트에 잔존하는 용매로 인하여 테이프가 두껍게 성형되었기 때문이다. 이 경우 충전 밀도 변화가 발생할 것을 유추해 볼 수 있다. 그림 6은 그림 5 시편들의 충전 밀도를 나타내

었다. 시편에 큰 기공이 잔존하는 코팅속도 1.0 m/min, 갭 높이 1,000 μm 인 조건과, 코팅속도 2.0 m/min, 갭 높이가 500 μm 이상인 조건을 제외한 모든 경우에서 그림 4와 마찬가지로 60.4~63.6%의 우수한 충전 밀도를 나타내었다. 이는 전술한 바와 같이 알루미늄 슬러리가 균일하게 분산된 것을 의미한다. 하지만 기공이 존재하는 코팅속도 1.0 m/min, 갭 높이 1,000 μm 에서는 충전 밀도 54.1%, 코팅속도 2.0 m/min에서 갭 높이가 500 μm 과 700 μm 인 경우 각각 56.8%, 56.2%의 낮은 충전 밀도를 나타내었다.

3.3 테이프 표면 및 소결체 미세구조

다양한 공정조건에서 제작한 테이프 표면 이미지를 그림 7에 나타내었다. 그림 7(a)는 0.5 m/min 코팅속도, 1,000 cps 점도, 갭 높이가 700 μm 조건에서 안정적으로 균일하게 제작된 테이프 이미지이다. 반면 그림 7(b)~(f)는 앞선 조건에서 기공이 존재하여 충전 밀도가 낮았던 테이프 표면을 나타낸 것으로, 각기 다른

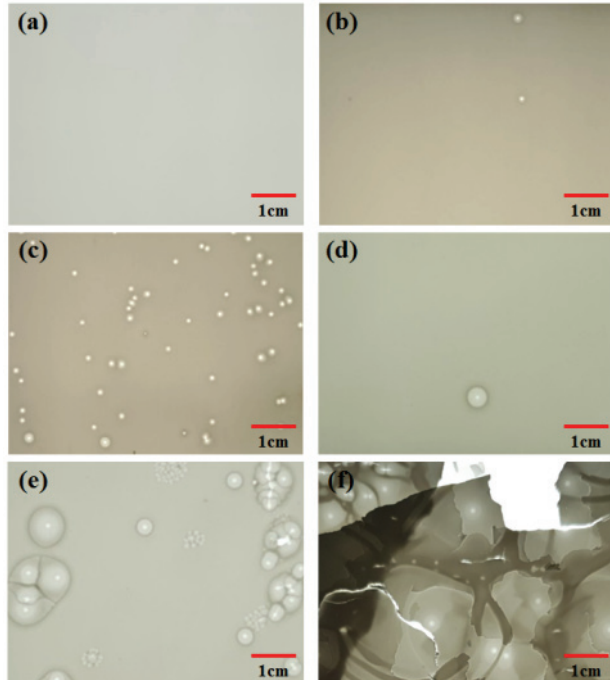


Fig. 7. The image of tapes with various conditions; (a) coating speed 0.5 m/min, viscosity 1,000 cps, gap 700 μm (b) coating speed 0.5 m/min, viscosity 3,300 cps, gap 1,000 μm (c) coating speed 0.5 m/min, viscosity 6,000 cps, gap 1,000 μm (d) coating speed 1.0 m/min, viscosity 1,000 cps, gap 1,000 μm (e) coating speed 2.0 m/min, viscosity 1,000 cps, gap 700 μm , and (f) coating speed 2.0 m/min, viscosity 1,000 cps, gap 1,000 μm .

크기의 기공들이 존재함을 확인할 수 있다. 그림 7(a), (b), (c)는 그림 3과 그림 4에서 코팅속도 0.5 m/min로 캐스팅한 테이프로, 슬러리의 점도가 3,300 cps에서 6,000 cps로 상승함에 따라 기공의 크기와 개수가 증가하는 것을 볼 수 있다. 이는 캐스팅 시 슬러리 점도가 높을수록 유동성이 떨어지고 표면장력이 증가하여 슬러리 내부에 기포가 trapping 되기 때문이다.

그림 7(d), (e)는 그림 5와 그림 6에서 점도 1,000 cps인 슬러리로 캐스팅한 시트 중 기공이 존재하는 테이프 표면 이미지이다. 코팅속도가 증가함에 따라 기공이 증가하는 것을 확인할 수 있다. 다량의 슬러리가 건조되기 전 빠른 속도로 코터 장비의 고온 건조존에 들어가면 급속하게 용매가 휘발되면서 기공 발생을 유발한다. 그리고 기공이 생성되는 조건에서 갭 높이를 상승시키면 슬러리 체적 유량이 증가하면서 내부에 trapping 되는 기체와 건조에 필요한 시간이 늘어나므로 기공이 증가하게 된다.

그림 8은 위와 같은 다양한 캐스팅 조건의 테이프를 1,640°C에서 열처리한 시편들의 미세구조이다. 그림 8(a)와 (b)에서 코팅 속도 0.5 m/min, 1,000 cps 점도, 갭 700 μm 조건에서 캐스팅한 후 소결 시편은 표

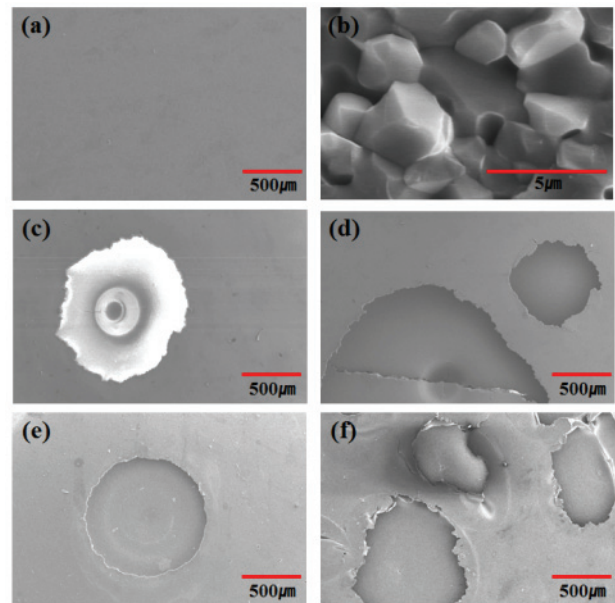


Fig. 8. The SEM image of sintered samples at 1,640°C (sintering condition) from various tape casting conditions; (a), (b) coating speed 0.5 m/min, viscosity 1,000 cps, gap 700 μm (c) coating speed 0.5 m/min, viscosity 3,300 cps, gap 1,000 μm (d) coating speed 0.5 m/min, viscosity 6,000 cps, gap 1,000 μm (e) coating speed 2.0 m/min, viscosity 1,000 cps, gap 500 μm , and (f) coating speed 2.0 m/min, viscosity 1,000 cps, gap 1,000 μm .

Table 2. Defect of tapes with various conditions.

Viscosity [Cps]	Coating speed [m/min]	Gap [μm]	Thickness [μm]	Thickness shrinkage [%]	Packing density [%]	Max. pore diameter [mm]	
1,000	0.5	300~700	105~183	64~74	61~64	-	
		1,000	163.8	83.6	63.0	0.30	
	0.7	300~500	107~159	64~68	60~62	-	
		700	191.6	72.6	62.4	0.47	
	1.0	1,000	184.4	81.6	62.8	0.42	
		300~500	107~165	64~67	62~63	-	
	2.0	700	206.8	70.5	62.9	1.29	
		1,000	294.2	70.6	54.1	5.64	
	3,300	0.5	300	111.2	62.9	62.8	-
			500	187.2	62.6	56.8	4.44
	6,000	0.5	700	249.6	64.3	56.2	12.69
			1,000	-	-	-	x
3,300	0.5	300~500	123~197	58~61	61~62	-	
		700	258.4	63.1	62.4	0.58	
		1,000	352.2	64.8	59.9	0.26	
6,000	0.5	300~500	130~212	56~58	63~64	-	
		700	275.6	60.6	63.1	0.54	
		1,000	433.8	56.6	55.1	3.44	

면에 기공이 없는 균일한 형상을 보이며, 수 μm 크기의 그레인들이 관찰되었으며, 소결밀도 값은 3.7 g/cm^3 을 나타내었다. 그림 8의 (c), (d), (e), (f)는 기공이 존재한 테이프 시편들을 소결한 후 관찰한 미세구조이다. 테이프에 잔존했던 대형 기공들이 소결 후에도 시편에 crater 형태의 결함으로 남아 있는 것을 볼 수 있다.

표 2는 위의 공정 변수들에 따른 시트 결함 여부를 정리하여 나타내었다. 그 결과, 슬러리 점도와 코팅 속도 그리고 갭 높이가 모두 낮을수록 기공이 없는 시트가 형성되었다. 하지만 슬러리 점도가 낮을수록 구현 가능한 테이프의 최종 두께에는 한계가 있었다. 공통적으로 0.5 m/min 코팅속도일 때 갭 높이가 300~500 μm 에서 가장 우수한 테이프를 제작할 수 있었다. 슬러리 점도 1,000 cps 경우에는 갭 300~700 μm 범위에서 약 64%, 점도 3,300 cps 경우에는 갭 300~500 μm 범위에서 약 61%, 그리고 점도 6,000 cps 경우에는 갭 300~500 μm 범위에서 약 64%의 높은 충전 밀도를 나타내었다.

4. 결론

Nippon Light Metal사 LS-130 상용 알루미늄 분말을 이용하여 슬러리 점도, 코팅속도, 갭 높이의 공정변

수들을 조절하여 기공이 없는 균일한 알루미늄 테이프를 제작하였다. 이를 통하여 균일하고 기포 없는 테이프를 구현할 수 있는 최적의 공정조건을 찾고자 하였다. 그 결과, 점도와 코팅속도 그리고 갭 높이가 모두 낮을수록 기공이 없는 시트가 형성되었다. 하지만 슬러리 점도가 낮을수록 구현 가능한 테이프의 최종 두께에는 한계가 있었다. 공통적으로 0.5 m/min 코팅 속도일 때 갭 높이가 300~500 μm 에서 가장 우수한 테이프를 제작할 수 있었다. 슬러리 점도 1,000 cps 경우에는 갭 300~700 μm 범위에서 약 64%, 점도 3,300 cps 경우에는 갭 300~500 μm 범위에서 약 61%, 그리고 점도 6,000 cps 경우에는 갭 300~500 μm 범위에서 약 64%의 높은 충전 밀도를 나타내었다.

ORCID

Dong-Hun Yeo

<https://orcid.org/0000-0002-6303-0368>

감사의 글

이 연구는 2019년도 산업통상자원부 및 산업기술평가관리원(KEIT) 연구비 지원에 관한 연구임(과제번호: 20003891).

REFERENCES

- [1] H. Kawazoe, M. Yasukawa, H. Hyodo, M. Kurita, H. Yanagi, and H. Hosono, *Nature*, **389**, 939 (1997). [DOI: <https://doi.org/10.1038/40087>]
- [2] H. Hosono, N. Kikuchi, N. Ueda, and H. Kawazoe, *J. Non-Cryst. Solids*, **198**, 165 (1996). [DOI: [https://doi.org/10.1016/0022-3093\(96\)80019-6](https://doi.org/10.1016/0022-3093(96)80019-6)]
- [3] K. Nomura, H. Ohta, K. Ueda, T. Kamiya, M. Hirano, and H. Hosono, *Science*, **300**, 1269 (2003). [DOI: <https://doi.org/10.1126/science.1083212>]
- [4] T. J. Jo, D. H. Yeo, H. S. Shin, Y. W. Hong, and Y. S. Cho, *Trans. Electr. Electron. Mater.*, **12**, 32 (2011). [DOI: <https://doi.org/10.4313/TEEM.2011.12.1.32>]
- [5] T. J. Jo and D. H. Yeo, *Trans. Electr. Electron. Mater.*, **13**, 23 (2012). [DOI: <https://doi.org/10.4313/TEEM.2012.13.1.23>]
- [6] D. R. Larson, J. A. Coppola, D.P.H. Hasselman, and R. C. Bradt, *J. Am. Ceram. Soc.*, **57**, 417 (1974). [DOI: <https://doi.org/10.1111/j.1151-2916.1974.tb11372.x>]
- [7] D. S. Smith, S. Fayette, S. Grandjean, C. Martin, R. Telle, and T. Tonnessen, *J. Am. Ceram. Soc.*, **86**, 105 (2003). [DOI: <https://doi.org/10.1111/j.1151-2916.2003.tb03285.x>]
- [8] K. Ueno, I. H. Inoue, H. Akoh, M. Kawasaki, Y. Tokura, and H. Takagi, *Appl. Phys. Lett.*, **83**, 1755 (2003). [DOI: <https://doi.org/10.1063/1.1605806>]
- [9] W. Cao and C. A. Randall, *J. Phys. Chem. Solids*, **57**, 1499 (1996). [DOI: [https://doi.org/10.1016/0022-3697\(96\)00019-4](https://doi.org/10.1016/0022-3697(96)00019-4)]
- [10] J. Akedo, *J. Am. Ceram. Soc.*, **89**, 1834 (2006). [DOI: <https://doi.org/10.1111/j.1551-2916.2006.01030.x>]
- [11] J. Musil and M. Jirout, *Surf. Coat. Technol.*, **201**, 5148 (2007). [DOI: <https://doi.org/10.1016/j.surfcoat.2006.07.020>]
- [12] K. R. Mikeska and W. R. Cannon, *Colloids Surf.*, **29**, 305 (1988). [DOI: [https://doi.org/10.1016/0166-6622\(88\)80125-2](https://doi.org/10.1016/0166-6622(88)80125-2)]
- [13] Y. Zeng, D. Jiang, and P. Greil, *J. Eur. Ceram. Soc.*, **20**, 1691 (2000). [DOI: [https://doi.org/10.1016/s0955-2219\(00\)00043-1](https://doi.org/10.1016/s0955-2219(00)00043-1)]
- [14] S. Y. Kim, D. H. Yeo, H. S. Shin, B. S. Kim, H. C. Kwon, and H. G. Yoon, *Ceram. Int.*, **45**, 17930 (2019). [DOI: <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2019.06.010>]
- [15] S. B. Kotsiantis, *Informatica*, **31**, 249 (2007).
- [16] A.I.Y. Tok, F.Y.C. Boey, and Y. C. Lam, *Mater. Sci. Eng., A*, **280**, 282 (2000). [DOI: [https://doi.org/10.1016/s0921-5093\(99\)00691-7](https://doi.org/10.1016/s0921-5093(99)00691-7)]