

BaTiO₃ 첨가에 따른 Bi_{1/2}Na_{1/2}TiO₃-SrTiO₃ 무연 압전 세라믹스의 전기적 특성 및 상전이 거동 연구

강유빈¹, 박재영¹, 무클리사 아이샤 데비타¹, 즈엉 짱 안¹, 안창원²,

김병우³, 한형수¹, 이재신¹ 

¹ 울산대학교 첨단소재공학부

² 울산대학교 물리학과 및 에너지 하베스트-스토리지 연구센터

³ 울산대학교 전기전자컴퓨터공학과

Electrical Properties and Phase Transition Behavior of Lead-Free BaTiO₃-Modified Bi_{1/2}Na_{1/2}TiO₃-SrTiO₃ Piezoelectric Ceramics

Yubin Kang¹, Jae Young Park¹, Mukhlilishah Aisyah Devita¹, Trang An Duong¹,
Chang Won Ahn², Byeong Woo Kim³, Hyoung-Su Han¹, and Jae-Shin Lee¹

¹ School of Materials Science and Engineering, University of Ulsan, Ulsan 44610, Korea

² Department of Physics and Energy Harvest Storage Research Center (EHSRC), University of Ulsan, Ulsan 44610, Korea

³ Department of Electrical Engineering, University of Ulsan, Ulsan 44610, Korea

(Received July 12, 2022; Revised July 28, 2022; Accepted July 29, 2022)

Abstract: We investigated the microstructure, crystal structure, dielectric, and electromechanical strain properties of lead-free BaTiO₃ (BT)-modified (Bi_{1/2}Na_{1/2})TiO₃-SrTiO₃ (BNT-ST) piezoelectric ceramics. Samples were prepared by a conventional ceramic processing route. Temperature dependent dielectric properties confirmed that a phase transition from a nonergodic relaxor to an ergodic relaxor was induced when the BT concentration reached 1.5 mol%, interestingly, where the average grain size reached a maximum value of 4.5 μm. At the same time, enhanced electromechanical strain ($S_{max}/E_{max} = 600$ pm/V) was obtained. It is suggested that the induced ferroelectric-relaxor phase transition by the BT modification is responsible for the enhancement of electromechanical strain in 1.5 mol% BT-modified BNT-ST ceramics.

Keywords: Lead titanate, Ferroelectricity/ferroelectric oxides, Piezoelectricity/piezoelectric oxides, Goldschmidt tolerance factor

압전 소재는 전기적 에너지를 기계적 에너지로, 또는 그 반대로 기계적 에너지를 전기적 에너지로 변환할 수 있는 특성을 가지는 재료로 통신기기, 의료기기, 자동차 등 다

양한 산업에 활용되고 있다 [1-5]. 현재 상업적으로 주로 사용되고 있는 압전 세라믹스는 Pb(Zr, Ti)O₃(PZT)계 물질을 기본으로 한 페로브스카이트 구조의 강유전체 화합물이며, 그 이유는 다른 재료와 비교하여 압전 및 유전특성이 뛰어나기 때문이다. 그러나 PZT계 물질들은 제조과정 중 납의 휘발이 인체에 치명적인 중독 문제와 환경오염을 유발시킬 수 있기 때문에 친환경적인 무연 압전 소재로 대체할 필요가 있다 [6-10].

✉ Jae-Shin Lee; jslee@ulsan.ac.kr

Copyright ©2022 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.

무연 압전 세라믹스는 $(\text{Bi}_{1/2}\text{Na}_{1/2})\text{TiO}_3$ (BNT)계, $\text{K}_{0.5}\text{Na}_{0.5}\text{NbO}_3$ (KNN)계, BiFeO_3 - BaTiO_3 (BF-BT)계 및 BaTiO_3 (BT)기반 $(\text{Ba}, \text{Ca})\text{TiO}_3$ - $\text{Ba}(\text{Zr}, \text{Ti})\text{O}_3$ (BCT-BZT)계 등으로 대략 네 가지로 구분할 수 있다 [11,12]. 그 중 $(\text{Bi}_{1/2}\text{Na}_{1/2})\text{TiO}_3$ (BNT)는 페로브스카이트형 구조를 가지며 비교적 높은 압전특성과 잔류 분극(P_r) 특성을 가지고 있어서 납 기반의 압전 세라믹스를 대체할 수 있는 대표적인 물질 중 하나로 여겨지고 있다 [13]. 다만, PZT계 압전 세라믹스는 2 kV/mm 미만의 낮은 전계에서 대략 500 pm/V 이상의 뛰어난 정규변형률 특성($S_{\text{max}}/E_{\text{max}}$)을 얻을 수 있는 것에 비하여 BNT계 무연 압전 세라믹스의 경우 PZT계 압전 세라믹스와 유사한 특성을 얻기 위하여 요구되는 전계가 6 kV/mm 이상이 필요하다는 단점이 있다 [14].

이러한 문제를 해결하기 위하여 BNT계 세라믹스의 A-site와 B-site의 이온들의 함량을 적절하게 조절하거나 불순물 도핑에 의해 항전계를 낮추고 작동전계를 낮추는 연구가 활발히 진행중이다 [15-18]. 특히, Krauss 교수에 의해 개발된 $\text{Bi}_{1/2}\text{Na}_{1/2}\text{TiO}_3$ - SrTiO_3 (BNST) 세라믹스는 6 kV/mm의 전계에서 0.29%의 높은 최대 변형률을 나타낸다고 최초로 보고되었다 [19]. 또한, 이상섭 등의 연구에 의하면 $0.76\text{Bi}_{1/2}\text{Na}_{1/2}\text{TiO}_3$ - 0.02BiAlO_3 - 0.22SrTiO_3 (BNT-2BA-22ST) 세라믹스는 비교적 낮은 4 kV/mm 전계에서도 592 pm/V의 $S_{\text{max}}/E_{\text{max}}$ 값을 얻을 수 있고, 홍영환 등의 연구 결과에 의하면 $0.76\text{Bi}_{1/2}\text{Na}_{1/2}\text{TiO}_3$ - 0.22SrTiO_3 - 0.02LiNbO_3 (BNST-2LN) 세라믹스는 616 pm/V(4 kV/mm 전계에서의 높은 $S_{\text{max}}/E_{\text{max}}$ 특성을 보인다 [20,21]. 또한 $(1-x)(\text{K}_{0.5}\text{Na}_{0.5})_{0.95}\text{Li}_{0.05}\text{NbO}_3$ - $x\text{Bi}_{0.5}(\text{K}_{0.15}\text{Na}_{0.85})_{0.5}\text{TiO}_3$ ($1-x$)KNLN- x BKNT) 세라믹스에서 $x = 0.01$ 일 때, 4 kV/mm 전계에서 0.14%의 S_{max} 값을 나타내었고 [23], $0.715\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5}\text{TiO}_3$ - 0.065BaTiO_3 - 0.22SrTiO_3 (BNBST0.22) 세라믹스는 4 kV/mm 전계에서 0.2%의 S_{max} 값을 나타내었다 [24]. 또한 $\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5}\text{TiO}_3$ - 0.01CaTiO_3 - 0.28SrTiO_3 (BNT-CT-28ST) 세라믹스는 4 kV/mm 전계에서 S_{max} 값이 0.25%를 나타내고 [25], $0.765\text{Bi}_{1/2}\text{Na}_{1/2}\text{TiO}_3$ - 0.01KTaO_3 - 0.225SrTiO_3 (BNT-KT-22.5ST) 세라믹스의 경우 3 kV/mm 전계를 인가하면 S_{max} 값이 0.235%에 도달하였다 [26]. 이러한 보고들을 고려하면 BNT-ST- ABO_3 의 삼성분계 세라믹스의 상경계 영역에서 거대변형이 일어나므로 우수한 압전성을 기대할 수 있다고 판단된다. 이러한 연구들을 통해 A-site에 들어갈 Sr의 함량비와 불순물 또는 제3의 ABO_3 화합물 첨가를 통해 BNT계 무연 압전 세라믹스의 작동 전계를 낮추고 변형률 특성 향상을 기대할 수 있다.

따라서, 본 연구에서는 $\text{Bi}_{1/2}\text{Na}_{1/2}\text{TiO}_3$ - SrTiO_3 (BNT-

ST) 세라믹스에 BaTiO_3 (BT)를 제 3의 성분으로 선택하여 시료를 제작하였고 BT 첨가에 따른 미세구조 및 상전이 거동을 살펴보고 그에 따른 전기 기계적 변형 특성 변화를 조사하였다.

순도가 99% 이상인 Bi_2O_3 , Na_2CO_3 , SrCO_3 , BaCO_3 와 TiO_2 (high purity chemical, Japan) 분말을 출발원료로 이용하였다. 본 연구에서는 조성이 $(0.78-x)\text{Bi}_{1/2}\text{Na}_{1/2}\text{TiO}_3$ - 0.22SrTiO_3 - $x\text{BaTiO}_3$ (BNST22-100xBT)인 시료들을 제작하였고, 티탄산바륨의 함량인 x 가 0, 0.01, 0.015, 0.02인 네 가지 조성 배치를 평량하였다. 평량한 원료 분말과 ZrO_2 볼과 99.5%의 순도를 가진 에탄올을 1 : 3 : 4의 비율로 혼합하여 24시간 동안 볼밀링을 진행하였다. 분말의 혼합 및 분쇄에 사용된 ZrO_2 볼의 직경은 3 mm(Φ)와 5 mm(Φ)였고, 통의 회전속도는 400 rpm이었다. 혼합과정을 거쳐 만들어진 슬러리는 100°C로 유지한 건조기에서 24시간 동안 건조하였다. 건조된 분말은 850°C에서 2시간 동안 하소한 뒤 다시 2차 볼밀링과 건조를 하였다. 하소한 분말에 결합제로 PVA (polyvinylalcohol)를 첨가하여 혼합한 다음에 200 MPa의 하중을 인가하여 동전 모양으로 성형하였다. 성형한 시편을 1,175°C에서 2시간 동안 소결하였다. 소결한 시편의 밀도와 수축율을 측정하여 소결성을 확인하였다. 전기적 특성을 측정하기 위해 시료의 두께가 1 mm가 되도록 시편의 양면을 연마한 다음에 silver paste를 양면에 바르고 전기로에서 열처리하였다. 임피던스분석기(Impedance/Gain Analyzer, HP 4194A, Hewlett Packard, USA)를 이용하여 유전손실($\tan\delta$)과 정전용량(C_p)을 측정하고, 아래 식을 이용하여 유전율(ϵ_r)을 계산하였다.

$$\epsilon_r = (t \cdot C_p) / (\pi \cdot (d/2)^2 \cdot \epsilon_0) \quad (1)$$

[t : 시편의 두께, C_p : 정전용량, d : 시편의 직경,

$\epsilon_0 = 8.854 \times 10^{-12}$ (F/m) 진공 유전율]

모든 시편을 4 kV/mm의 전계 하에서 20분간 분극 처리를 한 다음에 전기적 특성을 측정하였다. X선 회절분석기(X-ray diffractometry, RAD III, Rigaku, Japan)를 이용하여 결정구조를 분석하였고, 전계방출형 주사전자현미경(field emission scanning electron microscopy, JSM-650FF, JEOL, Japan)으로 미세구조를 관찰하였다. 전자현미경 사진을 바탕으로 직선 교차법(linear intercept method)을 이용하여 평균 입자 크기를 계산하였다. 양극성 변형율과 단극성 변형율은 신호 발생기(function generator, AFG310, Tektronix, USA)와 고전압 증폭기(high voltage

function generator, model 615-3, Trek, USA), 선형 가변 변위 변환기(linear variable displacement transducer, LVDT, model M921565A709, Mitutoyo, Japan)와 오실리스코프(Oscilloscope, TDS 3014, Tektronix, USA)를 이용하여 측정하였다. LCR 미터(LCR meter, E4980AL, KEYSIGHT, USA)와 고온전자탐침 시스템(high temperature electronic prober system, HTEP-8000, NEXTRON, Republic of Korea)을 이용하여 유전특성의 온도 및 주파수의 의존성을 측정하였다.

BNST22-100xBT 세라믹스를 1,175°C에서 2시간 동안 소결한 후 선형 수축률 및 상대유전율을 측정하여 그림 1에 나타내었다. 모든 시료들의 수축률이 약 15%로 측정되었으며 이는 기존 보고된 자료와 같이 적정 수축률인 14~16% 범위 안의 값임을 확인할 수 있다 [20-22]. 상대 밀도 또한 모든 조성에서 97% 이상의 값을 나타내었으며, 이는 BT 함량에 관계없이 모든 시료가 소결이 잘 진행되었음을 나타낸다.

BT를 0, 1, 1.5 mol%와 2 mol%를 첨가하여 제조한 BNST22-100xBT 세라믹스의 미세구조를 그림 2에 나타내었다. BT 첨가량이 0 mol%와 1 mol%의 경우, 평균 입도는 약 3.8 μm 로 비슷하였고 1.5 mol%를 첨가한 경우 약 4.5 μm 로 가장 큰 평균 입도를 얻을 수 있었다. 2 mol%의 BT를 첨가한 시료의 경우 약 2.4 μm 로 가장 작은 평균 입도를 얻었다. 이를 통해 BT 함량이 1.5 mol%일 때 평균 입자 크기가 가장 크게 나타나고 이후 다시 감소하는 경향을 확인할 수 있다. 또한 모든 시편의 미세구조에서 기공이나 이차상은 관찰되지 않았다.

BT 첨가량 변화에 따른 BNST22-100xBT 세라믹스의 X-선 회절 실험 결과를 그림 3에 나타내었다. 전 시료에 걸쳐 이차상이 존재하지 않는 단일상의 페로브스카이트 구조가 관찰되었으며, (111)와 (200) 주 피크와 $K\alpha_2$ 피크를 제외하고는 추가적인 피크가 관찰되지 않는 것으로 보아 BNST22-100xBT 세라믹스는 의사 입방정상을 가지는 것을 확인할 수 있다. 이러한 결과는 BT 함량이 증가하여도 결정학적 구조의 변화가 없음을 의미한다. (200)면을 더 자세하게 비교하기 위하여 그림 3(a)의 2θ 에서 45.5~47.5° 범위를 확대하여 그 결과를 그림 3(b)에 나타내었다. 이 경우 주 피크가 BT 함량이 증가함에 따라 2θ 가 감소하는 방향 즉, 왼쪽으로 조금씩 이동하는 경향을 관찰할 수 있다. 이러한 피크의 낮은 각도로 이동은 브래그의 법칙(Bragg's law)에 의거하여 격자 상수가 커진다는 의미이다. 이러한 변화는 첨가한 Ba^{2+} 의 이온반경(1.35 Å)이 모조성인 BNST

22-100xBT 세라믹스의 미세구조를 그림 2에 나타내었다. BT 첨가량이 0 mol%와 1 mol%의 경우, 평균 입도는 약 3.8 μm 로 비슷하였고 1.5 mol%를 첨가한 경우 약 4.5 μm 로 가장 큰 평균 입도를 얻을 수 있었다. 2 mol%의 BT를 첨가한 시료의 경우 약 2.4 μm 로 가장 작은 평균 입도를 얻었다. 이를 통해 BT 함량이 1.5 mol%일 때 평균 입자 크기가 가장 크게 나타나고 이후 다시 감소하는 경향을 확인할 수 있다. 또한 모든 시편의 미세구조에서 기공이나 이차상은 관찰되지 않았다.

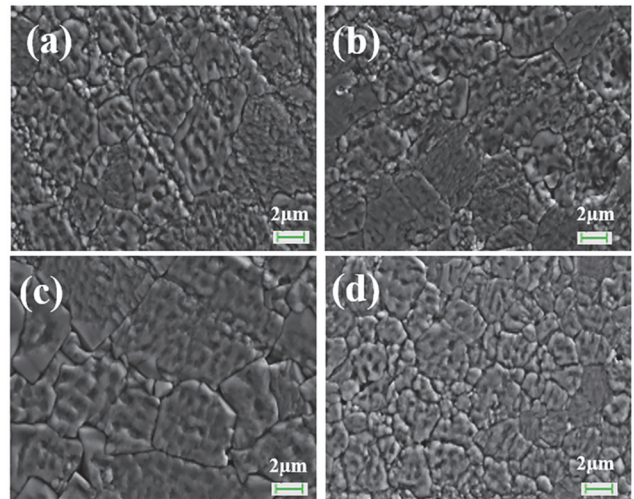


Fig. 2. Microstructures of BNST22-100xBT ceramics as a function of BT content, (a) $x = 0$, (b) $x = 0.01$, (c) $x = 0.015$, and (d) $x = 0.02$.

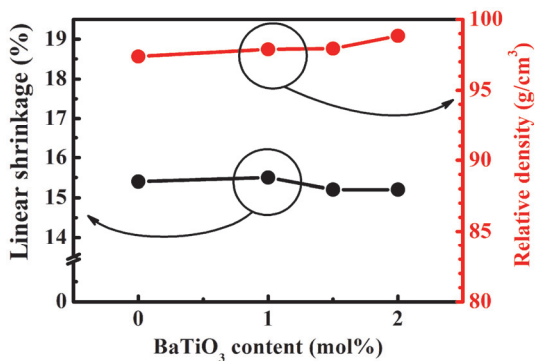


Fig. 1. Linear shrinkage and relative density values for BNST22-100xBT ceramics as a function of BT content after sintering at 1,175°C for 2 hours.

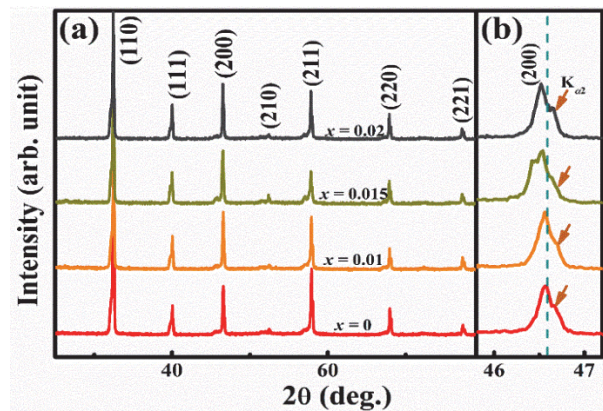


Fig. 3. X-ray diffraction patterns of BNST22-100xBT ceramics as a function of BT content, (a) 25~80° and (b) 46~47°.

세라믹스의 A-site 원소의 이온반경(Bi^{3+} , Sr^{2+} 와 Na^{+} 의 이온반경은 각각 1.03 Å, 1.18 Å과 1.02 Å)보다 크다는 사실과 잘 부합하는 결과이다.

BT 첨가량 변화에 따른 BNST22-100xBT 세라믹스 유전특성의 온도 및 주파수 의존성을 그림 4에 나타내었다. 분극한 시료의 유전 및 유전손실 결과에서 강유전체-완화형 강유전체 상전이 온도(T_{F-R})에 해당하는 비 연속성을 나타내는 피크가 BT 함량이 0 mol% 인 시료는 68°C에서 관찰되고 1 mol% 인 시료는 40°C에서 관찰되었다. BT 함량이 증가할수록 상온보다 낮아져 T_{F-R} 이 더 이상 관찰되지 않았다. BT 함량이 증가할수록 상온 유전율과 최대 유전율 온도(temperature for maximum dielectric constant; T_m)에서의 유전율 값이 증가하다가 BT 함량이 1.5 mol% 일 때, 가장 높은 유전율 값을 얻을 수 있었고, BT 함량이 더 높아지면 작아지는 것을 확인할 수 있다. 또한 온도 변화에 따른 유전손실의 경우 BT 함량이 0과 1 mol% 시료에서 측정 온도가 약 200°C 이상이면 유전손실이 급격하게 증가하는 경향을 확인할 수 있다. 이는 산소 공공에 의한 고온 전기전도도 증가로 제안할 수 있으나 향후 상세한 분석을 통해 명확히 할 예정이다. BT 함량을 더욱 증가시키면 증가한 고온 유전손실 거동이 안정화되는 것을 확인할 수 있다. 이러한 결과들로부터 강유전상에서 완화형 강유전상으로의 상전이가 BT 변성에 의해 유도되었음을 확인할 수 있다. 이러한 상전이의 원인은 본 연구에서 사용한 모조성인 BNT-ST 세라믹스의 A자리 이온들의 이온반경(Bi^{3+} , Sr^{2+} 와 Na^{+} 의 이온반경은 각각 1.03 Å, 1.18 Å과 1.02 Å)에 비해서 첨가한 BT의 A자리 이온, 즉 Ba^{2+} 의 이온반경(1.35 Å)이 상대적으로 크기 때문에 BNT-ST 세라믹스 내의 장거리 정렬된 강유전분역(long-range ordered ferroelectric

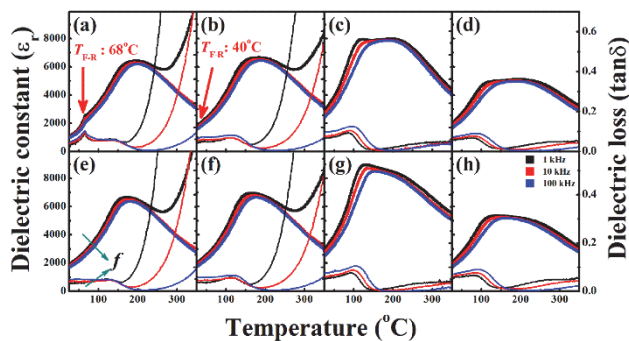


Fig. 4. Temperature and frequency dependence of the poled (top) and unpoled (bottom) dielectric properties for BNST22-100xBT ceramics as a function of BT content (a) and (e) $x = 0$, (b) and (f) $x = 0.01$, (c) and (g) $x = 0.015$, (d) and (h) $x = 0.02$, respectively. All samples were poled under an electric field of 4 kV/mm for 20 min.

domain)이 무질서(disordered)해지거나 단거리 정렬된 강유전분역(short-range ordered ferroelectric domain)으로 나뉘어 지게 됨으로 BT 첨가량이 증가할수록 강유전상에서 완화형 강유전상으로 상전이가 유도된다고 제안할 수 있다 [27,28].

BNST22-100xBT 세라믹스에 4 kV/mm의 전계를 인가하여 측정된 양극성 변형률(bipolar strain) 특성을 그림 5에 나타내었다. 0 mol%의 BT를 첨가한 시료의 경우, 나비 모양에 가까운 변형 곡선이 나타났으며 이는 전형적인 강유전성 물질에서 관찰되는 결과이다 [20,21,24].

이 시료의 최대변형률(S_{max})은 약 0.03%였고 BT 첨가량이 증가함에 따라 BNST22-1.5BT 세라믹스에서 약 0.19%까지 증가하는 것을 확인할 수 있다. 그 후 BT 첨가량을 더욱 증가시키면 BNST22-2BT 세라믹스에서 약 0.14%까지 감소하였다. 음의변형률(S_{neg})의 경우에는 순수 BNST22 세라믹스는 약 0.03%를 나타내었으며, 1 mol%의 BT가 첨가된 시료에서 약 0.04%로 가장 높게 증가하였다가 BT 함량이 증가할수록 감소하는 경향을 가진다. 이러한 결과들과 앞서 살펴본 유전특성의 온도 및 주파수 의존성 특성으로부터 BT 첨가에 의해 강유전체-완화형 강유전체 상전이가 유도되고 1.5 mol%의 BT 첨가시 강유전체-완화형 강유전체 상경계에 해당하여 가장 높은 변형률 특성을 얻을 수 있다. 의사 입방정상 기반 순수 BNT-ST 세라믹스는 완화형 강유전체 물질로서 외부 전기장을 인가하기 전에는 전형적인 완화형 강유전체(상세하게는 비에르고딕 릴렉서) 특성을 나타내지만 항전계 이상으로 충분한 외부 전계 인가시 비가역 상전이를 통해 강유전상으로 상전이가 유도되고 전형적인 강유전체 특성인 나비 모양의 양극성 변형률 특성이 나타나게 되고 BT를 첨가하게 되면 비에르고딕 릴렉서인 BNT-ST 세라믹스가 완화형 강유전체(상세하게는 에르고딕 릴렉서)로 상전이가 유도되고, 이 에르고딕 릴렉서에 외부 전기장을 인가하게 되면 가역적 상전이를 통해 양극성 변형률의 경우 큰 이력과 함께 거대 변형률 특성이 나타나게 된다고 알려져 있다 [11,20,24].

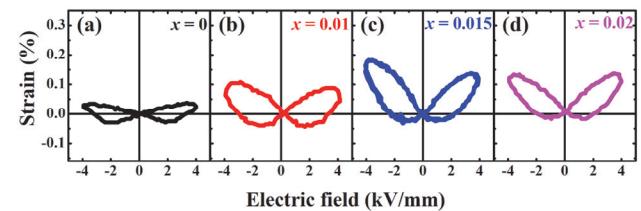


Fig. 5. Bi-polar strain curves (at 4 kV/mm) of BNST22-100xBT ceramics as a function of BT content, (a) $x = 0$, (b) $x = 0.01$, (c) $x = 0.015$, and (d) $x = 0.02$.

BNST22-100xBT 세라믹스의 단극성 변형률(unipolar strain) 특성을 그림 6에 나타내었다. 순수 BNST22 세라믹스의 경우, 전형적인 강유전상으로 인가되는 전기장에 대하여 탄성한계 내에서 선형의 단극 변형 특성이 나타났다 [29]. 양극성 변형률 특성과 마찬가지로 BT 함량이 증가할수록 강유전체-완화형 강유전체 상전이 현상에 의해 S_{max} 이 증가하다가 BNST22-1.5BT 세라믹스에서 S_{max} 을 얻을 수 있었다. 이후 BT 첨가량을 증가시키면 감소하였다.

본 연구에서는 합성한 소재의 성능을 평가하기 위하여 정규화 변형률(S_{max}/E_{max}) 특성을 조성별로 비교하여 그림 7에 나타내었다. 양극 및 단극 변형률 특성에서 확인한 바와 같이 BT 첨가량이 증가할수록 S_{max}/E_{max} 이 증가하다가 1.5 mol%의 BT를 함유한 시료에서 인가전압 4 kV/mm를 기준으로 약 600 pm/V로 가장 높은 값을 얻었다. 이러한 결과는 서론부분에서 언급하였듯이 기존 BNT계 무연 압전 세라믹스의 주요 문제점 중 하나인 요구되는 높은 작동전계(~ 6 kV/mm)를 4 kV/mm 수준으로 저감 시키면서도 높은 변형률 특성을 얻을 수 있었으며, 향후 다양한

응용분야에 주요하게 기여할 것을 기대한다.

본 연구에서는 BNST22-100xBT 무연 압전 세라믹스의 BT 첨가에 의한 상전이 거동 및 전기적 특성 변화에 대한 연구를 수행하였다. BT 첨가량 변화에 따른 유전특성의 온도 및 주파수 의존성 특성과 양극성 전계유기 변형률 특성을 통하여 BNST22 세라믹스의 강유전-완화형 강유전상 상전이는 1.5 mol%의 BT를 첨가하였을 때 유도되는 것을 확인하였다. 그 결과 BNST22-1.5BT 세라믹스에서 가장 높은 약 600 pm/V의 S_{max}/E_{max} 값을 얻을 수 있었으며 이러한 결과는 향후 무연 압전 세라믹스를 이용한 다양한 응용분야에 기여할 수 있을 것으로 기대한다.

ORCID

Jae-Shin Lee

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

감사의 글

본 연구는 한국수력원자력(주)과 울산광역시의 2021년도 지원으로 수행되었으며, 이에 감사드립니다.

REFERENCES

- [1] Y. H. Jo, KISITI (2002). [<https://scienceon.kisti.re.kr/commons/util/originalView.do?dbt=TRKO&cn=TRKO201000015680>]
- [2] J. K. Hong, J. S. Lee, H. I. Chee, M. S. Yoon, S. H. Jeong, K. J. Lim, *J. Korean Inst. Electr. Electron. Mater. Eng.*, **14**, 455 (2001).
- [3] S. W. Kim, Y. J. Jeong, and H. C. Lee, *J. Powder Mater.*, **25**, 487 (2018). [DOI: <https://doi.org/10.4150/KPML.2018.25.6.487>]
- [4] S. T. Bae, S. H. Lee, J. Y. Sug, C. H. Kim, and G. Sa-Gong, *J. Korean Inst. Electr. Electron. Mater. Eng.*, **22**, 405 (2009). [DOI: <https://doi.org/10.4313/JKEM.2009.22.5.405>]
- [5] J. H. Yoo and S. J. Kang, *Trans. Electr. Electron. Mater.*, **21**, 630 (2020). [DOI: <https://doi.org/10.1007/s42341-020-00247-3>]
- [6] 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>]
- [7] S. W. Kim, *M. S. Thesis*, p. 1-61, Hanyang University, Seoul (2019).
- [8] M. R. Kim, S. J. Yoon, and J. W. Choi, *J. Sens. Sci. Technol.*, **19**, 155 (2010). [DOI: <https://doi.org/10.5369/JSST.2010.19.2.155>]
- [9] T. G. Lee and S. Nahm, *Trans. Electr. Electron. Mater.*, **20**, 385 (2019). [DOI: <https://doi.org/10.1007/s42341-019-00134-6>]
- [10] S. J. Cho, J. H. Yoo, and Y. H. Jeong, *Trans. Electr. Electron.*

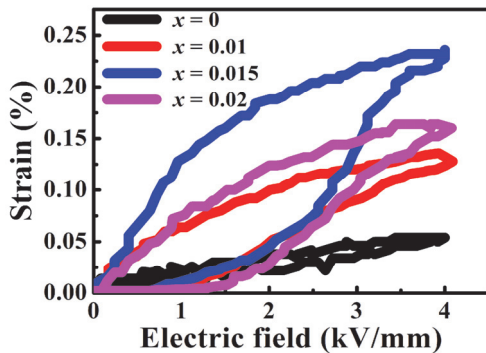


Fig. 6. Uni-polar strain curves (at 4 kV/mm) of BNST22-100xBT ceramics as a function of BT content.

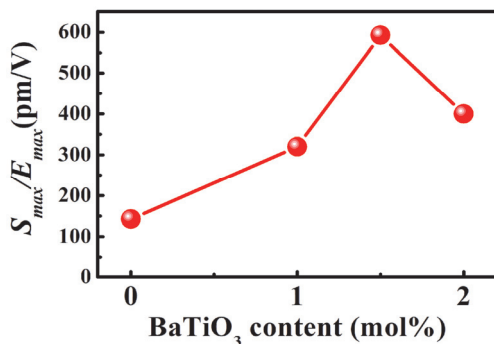


Fig. 7. Normalized strain (S_{max}/E_{max}) properties of BNST22-100xBT ceramics as a function of BT content.

- Mater.*, **20**, 328 (2019). [DOI: <https://doi.org/10.1007/s42341-019-00115-9>]
- [11] 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>]
- [12] S. H. Shin and J. H. Yoo, *Trans. Electr. Electron. Mater.*, **15**, 226 (2014). [DOI: <https://doi.org/10.4313/TEEM.2014.15.4.226>]
- [13] M. Y. Lee, S. L. Ryu, J. H. Yoo, K. H. Chung, Y. H. Jeong, J. I. Hong, and H. S. Yoon, *J. Korean Inst. Electr. Electron. Mater. Eng.*, **17**, 1056 (2004). [DOI: <https://doi.org/10.4313/JKEM.2004.17.10.1056>]
- [14] A. Ayrikyan, O. Prach, N. H. Khansur, S. Keller, S. Yasui, M. Itoh, O. Sakata, K. Durst, and K. G. Webber, *Acta Mater.*, **148**, 432 (2018). [DOI: <https://doi.org/10.1016/j.actamat.2018.02.014>]
- [15] S. Halder, S. Bhuyan, and R.N.P. Choudhary, *Trans. Electr. Electron. Mater.*, **20**, 24 (2019). [DOI: <https://doi.org/10.1007/s42341-018-0076-y>]
- [16] J. S. Park, K. T. Lee, J. -H. Cho, Y. H. Jeong, J. H. Paik, and J. S. Yun, *J. Korean Ceram. Soc.*, **51**, 527 (2014). [DOI: <https://doi.org/10.4191/kcers.2014.51.6.527>]
- [17] Y. S. Heo, W. -S. Lee, and S. G. Lee, *Proc. the Korean Institute of Electrical and Electronic Material Engineers Conference (KIEEME, Korea, 2001)* p. 402.
- [18] W. Ma, Y. Zhu, M. A. Marwat, P. Fan, B. Xie, D. Salamon, Z. G. Ye, and H. Zhang, *J. Mater. Chem. C*, **7**, 281 (2019). [DOI: <https://doi.org/10.1039/C8TC04447C>]
- [19] S. H. Lee, *M. S. Thesis*, p. 1-97, University of Ulsan, Ulsan (2020).
- [20] S. S. Lee, C. H. Lee, T. A. Duong, D. H. Kim, B. W. Kim, H. S. Han, and J. S. Lee, *Korean J. Mater. Res.*, **31**, 562 (2021). [DOI: <https://doi.org/10.3740/MRSK.2021.31.10.562>]
- [21] Y. H. Hong, H. S. Han, G. H. Jeong, Y. S. Park, T. H. Dinh, C. W. Ahn, and J. S. Lee, *Ceram. Int.*, **44**, 21138 (2018). [DOI: <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2018.08.156>]
- [22] J. K. Kang, D. J. Heo, V. Q. Nguyen, H. S. Han, J. S. Lee, and K. K. Ahn, *J. Korean Phys. Soc.*, **61**, 899 (2012). [DOI: <https://doi.org/10.3938/jkps.61.899>]
- [23] L. Chen, H. Fan, M. Zhang, C. Yang, and X. Chen, *J. Alloys. Compd.*, **492**, 313 (2010). [DOI: <https://doi.org/10.1016/j.jallcom.2009.11.084>]
- [24] F. Wang, M. Xu, Y. Tang, T. Wang, W. Shi, and C. M. Leung, *J. Am. Ceram. Soc.*, **95**, 1955 (2012). [DOI: <https://doi.org/10.1111/j.1551-2916.2012.05119.x>]
- [25] H.T.K. Nguyen, T. A. Duong, F. Erkinov, H. W. Kang, B. W. Kim, C. W. Ahn, H. S. Han, and J. S. Lee, *J. Korean Ceram. Soc.*, **57**, 570 (2020). [DOI: <https://doi.org/10.1007/s43207-020-00051-y>]
- [26] 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. Phys.*, **293**, 1 (2019). [DOI: <https://doi.org/10.1016/j.sna.2019.04.016>]
- [27] J. U. Rahman, A. Hussain, A. Maqbool, G. H. Ryu, T. K. Song, W. J. Kim, and M. H. Kim, *J. Alloys Compd.*, **593**, 97 (2014). [DOI: <https://doi.org/10.1016/j.jallcom.2014.01.031>]
- [28] H.T.K. Nguyen, T. A. Duong, S. S. Lee, C. W. Ahn, H. S. Han, and J. S. Lee, *J. Mater. Res.*, **36**, 1048 (2021). [DOI: <https://doi.org/10.1557/s43578-020-00080-7>]
- [29] B. Jaffe, W. R. Cook, Jr., and H. Jaffe, *Piezoelectric Ceramics* (Academic Press, New York, 1971). [DOI: <https://doi.org/10.1016/B978-0-12-379550-2.X5001-7>]