

Kurşunsuz Sodyum Bizmut Titanat (NBT) Esaslı Seramiklerin Yapısal, Dielektrik Özellikleri ve Empedans Spektroskopisi Analizleri

Yağız ÖZEREN¹, Ayşe BERKSOY-YAVUZ^{1,2}, Sedat ALKOY^{1,2}, Ebru MENŞUR ALKOY^{2,3}

¹Gebze Yüksek Teknoloji Enstitüsü, Malzeme Bilimi ve Mühendisliği, Bölümü, Kocaeli.

²ENS Piezoaygıtlar Ltd., Kocaeli.

³Maltepe Üniversitesi, Mühendislik ve Doğa Bilimleri Fakültesi, İstanbul.

e-posta:aberksoy@gyte.edu.tr, yozeren@gyte.edu.tr, sedal@gyte.edu.tr, ebrualkoy@maltepe.edu.tr

Geliş Tarihi: 22.10.2012; Kabul Tarihi: 11.11.2013

Özet

Kurşunsuz sistemler arasında yer alan sodyum bizmut titanat [(Na_{0,5}Bi_{0,5})TiO₃; (NBT)] esaslı seramikler önemli piezoelektrik özelliklere sahiptirler. Ancak, katkısız NBT seramiklerin yüksek iyonik iletkenliğe ve oda sıcaklığında yüksek kalıntı polarizasyona sahip olmaları nedeniyle kutuplanmaları zordur. Bu nedenle günümüzde ikili (Na_{0,5}Bi_{0,5})TiO₃.BaTiO₃ ve üçlü (Na_{0,5}Bi_{0,5})TiO₃.BaTiO₃.(K_{0,5}Na_{0,5})NbO₃ seramik sistemleri (Pb,Zr)TiO₃ alternatif sistemler olarak geliştirilmeye çalışılmaktadır. Bu çalışmada, katkısız NBT seramiklerin yanı sıra 0,94(Na_{0,5}Bi_{0,5})TiO₃.0,06BaTiO₃ (NBT-BT) ve 0,92(Na_{0,5}Bi_{0,5})TiO₃.0,06BaTiO₃.0,02(K_{0,5}Na_{0,5})NbO₃ (NBT-BT-KNN) seramiklerin yapısal ve dielektrik özellikleri detaylı olarak araştırılmıştır. X-ışınları analizlerinden tüm seramiklerin herhangi bir ikincil faz içermeden perovskit yapıda kristalleştiği gözlemlenmiştir. Söz konusu sistemlerin elektriksel davranışları empedans spektroskopisi yöntemi kullanılarak 100 Hz' den 10 MHz'e kadar frekansın bir fonksiyonu olarak ortaya konulmuştur. NBT, NBT-BT ve NBT-BT-KNN seramiklerin göreceli yoğunlukları sırasıyla % 94, % 98 ve %96'dır. Dielektrik sabitinin en yüksek olduğu sıcaklık (T_m) NBT, NBT-BT ve NBT-BT-KNN seramiklerde sırasıyla 328°C, 300°C ve 287 °C olarak ölçülmüştür. Yapılan katkılar ile T_m daha düşük sıcaklıklara ötelenmiştir. NBT seramiklerin oda sıcaklığındaki dielektrik sabitleri 646 iken, NBT-BT ve NBT-BT-KNN seramiklerin dielektrik sabitleri sırasıyla 1451 ve 1487'dir.

Anahtar kelimeler

Piezoelektrikler;
Kurşunsuz; NBT;
Empedans
Spektroskopisi.

Structural and Dielectric Properties of Lead-Free Sodium Bismuth Titanate (NBT) Ceramics and Their Impedance Spectroscopy Analyses

Abstract

Among lead-free based piezoelectric ceramics with perovskite structure, sodium bismuth titanate based ceramics [(Na_{0,5}Bi_{0,5})TiO₃; (NBT)] have very important piezoelectric properties. However, the polling process of unmodified NBT ceramics is very difficult due to exhibiting high ionic conductivity and large coercive field at room temperature. Therefore, nowadays binary 0,94(Na_{0,5}Bi_{0,5})TiO₃.0,06BaTiO₃ and ternary (Na_{0,5}Bi_{0,5})TiO₃.BaTiO₃.(K_{0,5}Na_{0,5})NbO₃ systems have been developed to alternative (Pb,Zr)TiO₃ ceramics. In this study, the structural and dielectric properties of unmodified NBT ceramics as well as (Na_{0,5}Bi_{0,5})TiO₃.BaTiO₃ (NBT-BT) and 0,92(Na_{0,5}Bi_{0,5})TiO₃.0,06BaTiO₃.0,02(K_{0,5}Na_{0,5})NbO₃ (NBT-BT-KNN) ceramics were investigated in detail. All ceramics were crystallized perovskite structure without any secondary phase which to be observed from X-ray analyzed. The electrical behavior of all ceramics was exhibited with an impedance spectroscopy as a function of frequency from 100 Hz up to 10 MHz. The relative density of NBT, NBT-BT and NBT-BT-KNN ceramics were 94%, 98% and 96%, respectively. The highest dielectric constant of measured temperatures (T_m) in NBT, NBT-BT and NBT-BT-KNN NBT, NBT-BT and NBT-BT-KNN ceramics were 328°C, 300°C and 287°C, respectively. T_m point was shifted to the lower temperatures with modification. The dielectric constants of NBT, NBT-BT and NBT-BT-KNN NBT were 646, 1451 and 1487 at room temperature, respectively.

Key words

Piezoelectrics; Lead-free; NBT; Impedance Spectroscopy

© Afyon Kocatepe Üniversitesi

1. Giriş

Son yıllarda, kurşun esaslı ferroelektrik kurşun zirkonat titanat (Pb(Zr_{1-x}Ti_x)O₃ or PZT) üstün piezoelektrik performansı ve düşük üretim

maliyetleri sebebiyle elektronik ve mikroelektronik piyasasını etkisi altına almıştır. Ancak, kurşun oksit (PbO) zehirlidir ve sinterleme sırasında uçucu hale gelir, bu sebeple insan sağlığını ve çevreyi tehdit etmektedir. Bu sebeplerden dolayı, kurşun esaslı

seramiklerin kullanımı alternatif kurşunsuz sistemler geliştirildiği zaman kısıtlanacaktır (Heartling, 1999; Maeder et al., 2004; Shrout et al., 2007; Shrout et al., 2007, Saito et al., 2004). Son zamanlarda alkali niyobat bazlı malzemeler, katkılı bizmut titanat, Bi tabakalı malzemeler, BaTiO₃ esaslı malzemeler, tungsten bronz tipi malzemeler ve langasit tipi malzemeler ile yeni kurşunsuz sistemler geliştirilmesi için büyük çaba harcanmaktadır (Saito et al. 2004; Yılmaz et al., 2003; Shao et al., 2003; Sakata et al. 1978; Alkoy and Dursun, 2012 (a); Alkoy and Dursun, 2012(b); Pisarevsky et al., 1998; Zhang et al., 2008). Bu sistemlerin arasında bulunan perovskit tipi sodyum bizmut titanat ((Na_{0,5},Bi_{0,5})TiO₃-NBT) ferroelektrik ve piroelektrik uygulamalarda yaygın bir biçimde kullanılmaktadır (Yılmaz et al., 2003; Zhang et al., 2008; Zhang et al., 2008).

NBT seramikler iki çeşit faz dönüşümü gösterir. Bunlar, 200°C-350°C arasında ortorombik fazdan tetragonal faza geçiş ve 520°C-540°C arasında tetragonal fazdan paraelektrik yüksek sıcaklık kübik faza geçiştir (Lin et al., 2003; Schimit et al., 2011; Suchanicz et al., 2003; Li et al. 2005). NBT seramikler aynı zamanda yüksek kalıcı polarizasyona ($P_r \sim 38 \mu\text{C}/\text{cm}^2$) ve büyük zorlayıcı elektrik alana ($E_c \sim 7,3 \text{ kV}/\text{mm}$) sahiptirler (Yılmaz et al., 2003). Ancak katkısız NBT seramiklerin yüksek iyonik iletkenlik ve oda sıcaklığında büyük zorlayıcı alana sahip olmasından dolayı kutuplanması zordur. Bu sebeple katkısız NBT seramiklerin cihaz uygulamaları çok sınırlıdır (Schimit et al., 2011; Zhou et al., 2008; Lin et al., 2009). İkili NBT-BT ve üçlü NBT-BT-KNN sistemleri morfofotofik faz sınırlarında (MFS) üstün piezoelektrik özellikler gösterdikleri için PZT'nin yerini tutabilecek alternatifler olarak düşünülmektedir (Yılmaz et al., 2003; Zhang et al., 2008; Suchanicz et al., 2003; Zhou et al., 2008; Lee et al., 2009; Schimit et al., 2011).

Bu çalışmada katkısız (Na_{0,5},Bi_{0,5})TiO₃, ikili (1-x)(Na_{0,5},Bi_{0,5})TiO₃.xBaTiO₃ (x=0,06) ve üçlü (1-x-y)(Na_{0,5},Bi_{0,5})TiO₃.xBaTiO₃-y(K_{0,5},Na_{0,5})NbO₃ (x=0,06, y=0,02) sistemler geleneksel katı hal sentezi ile üretilmiştir. Çalışmanın amacı yoğun NBT

ve diğer ikili ve üçlü NBT sistemlerinin mikroyapısal özelliklerinin yanı sıra dielektrik özelliklerini incelemektir. Ayrıca elektriksel özellikleri empedans spektroskopisi yöntemi kullanılarak detaylı olarak incelenmiştir.

2. Materyal ve Metot

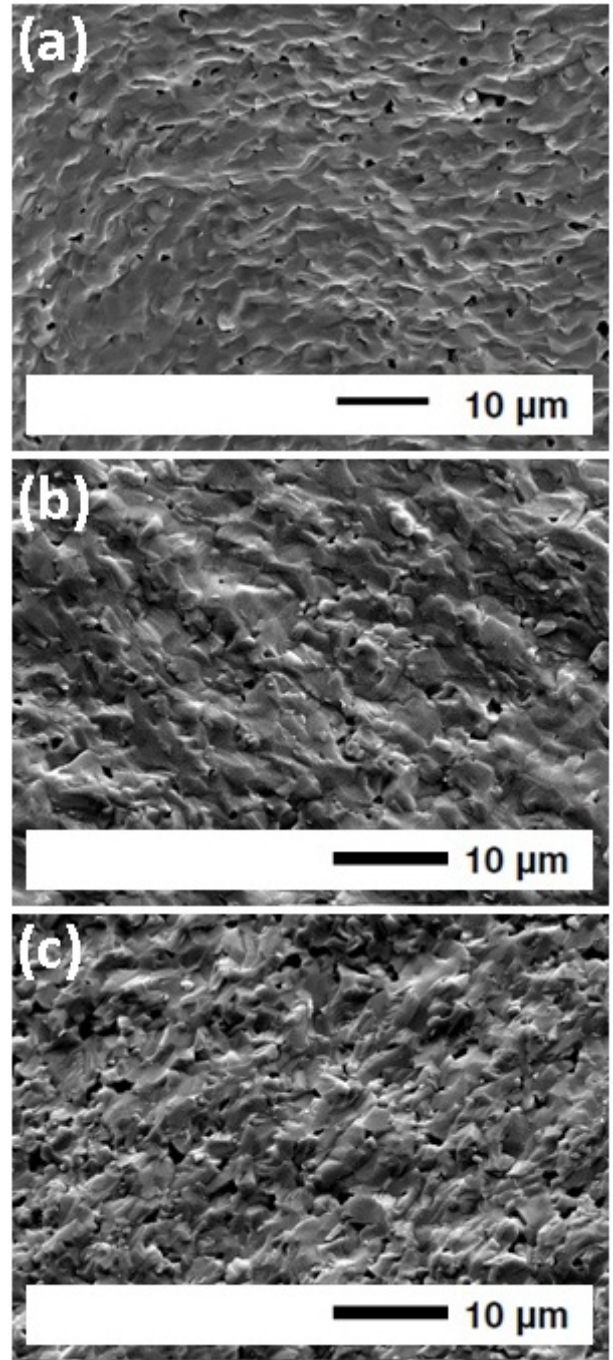
(Na_{0,5},Bi_{0,5})TiO₃ (NBT), (1-x)(Na_{0,5},Bi_{0,5})TiO₃.xBaTiO₃ (x=0,06) (NBT-BT) ve (1-x-y) (Na_{0,5},Bi_{0,5})TiO₃.xBaTiO₃-y(K_{0,5},Na_{0,5})NbO₃ (x=0,06, y=0,02) (NBT-BT-KNN) tozları geleneksel katı hal sentezleme tekniği ile hazırlanmıştır. Başlangıç tozları olarak kullanılan Bi₂O₃ (%99, Alfa Aesar), Na₂CO₃ (%98 Alfa Aesar), K₂CO₃ (%99, Alfa Aesar), BaCO₃ (%99, Merck), TiO₂ (Rutile-99,5%, Alfa Aesar), Nb₂O₅ (%99,5, Alfa Aesar) stokiometrik oranlarda etanol ortamında karıştırılmıştır. Karışımlar kurutulduktan sonra NBT, NBT-BT ve NBT-BT-KNN tozları sırasıyla 900°C'de 2 saat, 2 saat ve 3 saat kalsinasyon işlemi uygulanmıştır. Kalsine edilen tozlar topaklanmayı engellemek amacıyla 24 saat bilyalı değirmende öğütülmüştür. Tozlara polimer esaslı bağlayıcı eklendikten tablet haline getirilmiştir. Katkısız NBT ve NBT-BT örnekler sırasıyla 1120°C ve 1150°C'de 2 saat sinterlenmiştir. NBT-BT-KNN örnekler ise 1115°C 4 saat süre ile sinterlenmiştir. Sinterlenen tabletlerin yoğunlukları Arşimet tekniği kullanılarak ölçülmüştür. Örneklerin yüzeylerinin paralel olması elektriksel ölçümler için önemli bir parametre olduğundan her iki yüzey SiC zımpara ile parlatılmıştır. Sinterlenen örneklerin faz yapıları X-ışınları kırınımı metodu (XRD) (Bruker D8 Advanced, Bruker AXS GmbH, Germany) ile analiz edilmiştir. Kırık yüzeyden alınan mikroyapısal özellikler taramalı elektron mikroskobu (SEM) (Philips XL30 FEI Co., USA) ile incelenmiştir. Elektriksel ölçümleri için gümüş- paladyum (Ag-Pd) elektrot örneklerin her iki paralel yüzeyine uygulanmış ve 850°C sıcaklıkta 30 dakika ısıl işlem ile elektrotun yüzeye tutunması sağlanmıştır. Dielektrik katsayısı (K) ve dielektrik kayıplar, indüktans-kapasitans-direnç (LCR) ölçüm aleti (LCR) (Hioki, E.E. Co. Japan) ile ölçülmüştür. Elektriksel özellikler frekansın bir fonksiyonu olarak 100 Hz-10 MHz aralığında ve 573K-798K sıcaklık aralığında empedans analizör (4194A, Agilent, USA) kullanılarak ölçülmüştür.

3. Bulgular ve Tartışma

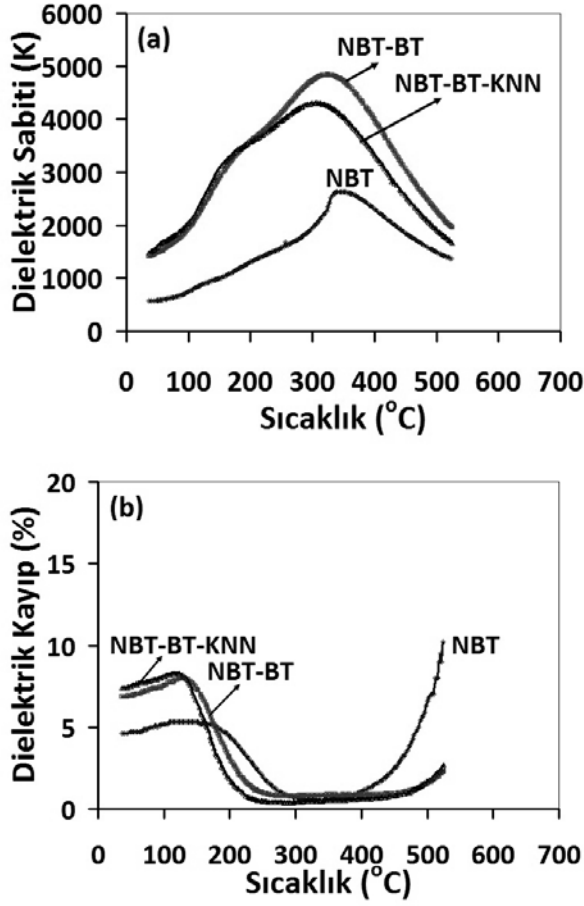
3.1 Yapısal ve Dielektrik Özellikler

Şekil 1’de NBT, NBT-BT ve NBT-BT-KNN seramiklerin kırık yüzeyden alınmış olan mikroyapı görüntülerine yer verilmiştir. NBT seramiklerdeki gözeneklerin yapılan katkı ile olarak azaldığı gözlenmiştir. NBT, NBT-BT ve NBT-BT-KNN seramiklerin yoğunlukları sırasıyla % 94, %96 ve % 98’dir. Yapılan katkı ile yoğunlukta belirgin olarak artış meydana gelmiştir.

Şekil 2(a)’da NBT, NBT-BT ve NBT-BT-KNN seramiklerin sıcaklığa bağlı dielektrik sabiti (K) ölçümlerinin 100 kHz frekans değerindeki kıyaslamalı gösterimlerine yer verilmiştir. Ölçümler 25°C-525°C aralığında 2°C/dk çıkış hızı ile alınmıştır. Şekillerden de açıkça görüldüğü gibi bütün 25°C-525°C sıcaklık aralığında iki pik noktası içermektedir. Katkısız NBT seramiklerde rombohedral-tetragonal faz dönüşümü 230°C’den başlamaktadır. NBT seramiklerde düşük sıcaklıklarda ferroelektrik (FE)-antiferroelektrik (AFE) faz dönüşümü meydana gelmekte ve depolarizasyon sıcaklığı (T_d) olarak adlandırılmaktadır. T_d sıcaklığı ölçüm frekansına bağlıdır. Maksimum sıcaklık değeri (T_m) yüksek sıcaklık fazına işaret etmekte ve ölçüm frekansından bağımsızdır. NBT, NBT-BT ve NBT-BT-KNN seramiklerin T_m sıcaklıkları sırasıyla 328°C, 300°C ve 287°C olarak ölçülmüştür. Alınan ölçümlerde maksimum dielektrik sabiti (K_{max}) sırasıyla 2772, 4805 ve 4309 olarak ölçülmüştür. Yapılan katkı ile T_m sıcaklığı daha düşük sıcaklık değerlerine ötelenmiştir. Örneklerin sıcaklığa bağlı olarak ölçülen 100 kHz frekanstaki dielektrik kayıpları Şekil 2(b)’de verilmiştir. NBT, NBT-BT, NBT-BT-KNN seramiklerin oda sıcaklığındaki dielektrik kayıpları sırasıyla % 4,6 % 6,8 ve % 7,4 olarak ölçülmüştür. Ancak artan sıcaklık ile birlikte NBT-BT ve NBT-BT-KNN seramiklerin dielektrik kayıpları belirgin olarak azalmıştır. NBT, NBT-BT ve NBT-BT-KNN seramiklerin 525°C sıcaklıktaki dielektrik kayıpları sırasıyla % 10,2, % 2,3 ve % 2,7 olarak ölçülmüştür.



Şekil 1. (a) NBT, (b) NBT-BT ve (c) NBT-BT-KNN seramiklerin SEM görüntüleri.



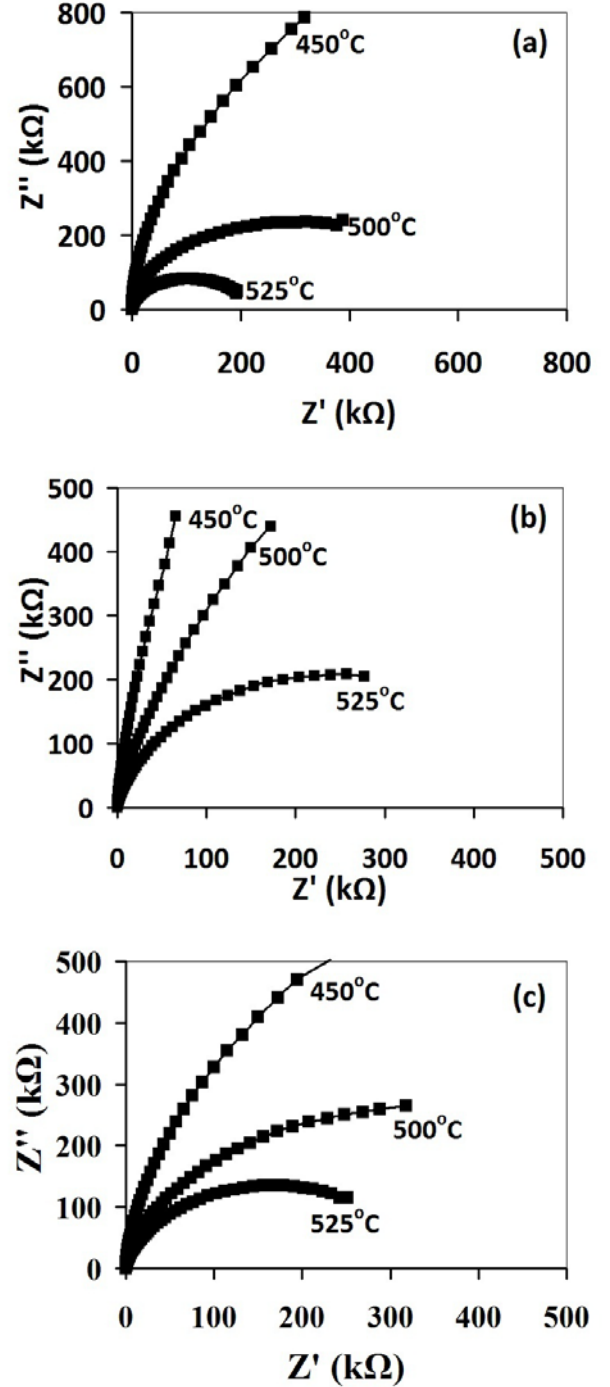
Şekil 2. NBT, NBT-BT, NBT-BT-KNN seramiklerin 100 kHz frekansta (a) sıcaklığa bağlı dielektrik sabitleri (b) sıcaklığa bağlı dielektrik kayıpları.

3.2 Empedans Spektroskopisi

Empedans spektroskopisi malzemelerin geniş bir frekans aralığında, tane ve tane sınırı etkisini belirlemede kullanılan deneysel bir yöntemdir. Gerçek (Z') ve sanal (Z'') empedans ölçümleri frekansın bir fonksiyonu olarak 450°C-525°C sıcaklıkları arasında ölçülmüştür. Cole-Cole eğrileri (Nyquist diyagram) Z' ve Z'' ölçümlerine bağlı olarak çizilmektedir. Cole-Cole eğrilerinde genellikle iki yay şeklinde eğri gözlenmektedir. İlk eğri tane eğrisi olarak adlandırılırken ikinci eğri ise tane sınırı etkisi olarak adlandırılmaktadır (Moulson and Herbert 2003; Nobre and Lanfredi, 2003).

Şekil 3'te NBT, NBT-BT ve NBT-BT-KNN seramiklerin 450°C-525°C sıcaklık değerlerindeki Cole-Cole eğrilerine yer verilmiştir. NBT, NBT-BT ve NBT-BT-KNN seramiklerinde tek bir yarım daire şeklindeki eğrinin varlığı gözlenmiştir. Yani ölçülen frekans

aralıklarında tane etkisi daha baskın haldedir. Artan Örneklerin bulk (R_b) ve tane sınırı (R_{gb}) dirençleri yarım daire şeklindeki yayın Cole-Cole eğrilerinde gerçek empedans (Z') eksenine ile kesişmesi ile belirlenmektedir (Moulson and Herbert, 2003). Ancak NBT, NBT-BT ve NBT-BT-KNN seramiklerde sadece tane etkisi baskın oluşu için R_{gb} değerleri belirlenememiştir. Sıcaklık ile 525°C'de eğriler yarım daire şeklini almaya başlamıştır.



Şekil 3. (a) NBT, (b) NBT-BT ve (c) NBT-BT-KNN seramiklerin artan sıcaklığa bağlı olarak Cole-Cole eğrileri.

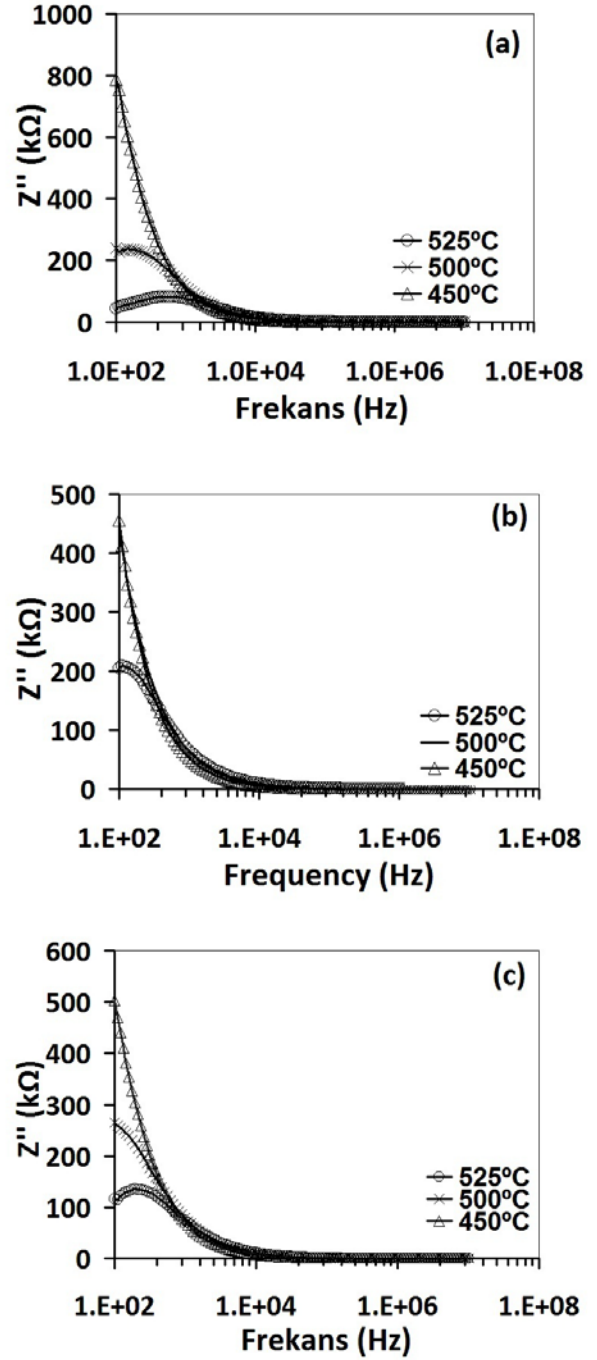
Şekil 4'te NBT, NBT-BT ve NBT-BT-KNN seramiklerin Z'' değerleri frekansın bir fonksiyonu olarak 450°C-525°C'de gösterilmektedir. Artan sıcaklık Z'' değerleri azalmaya başlamıştır. Bu azalma yüksek sıcaklıkta AC iletkenliğin artmasından kaynaklanmaktadır (Menşur Alkoy and Berksoy-Yavuz, 2012). Katkısız NBT seramiklerde 525°C'de Z'' değerinin azalması belirgin olarak gözlenmektedir. Elde edilen bu sonuç NBT seramiklerin yüksek sıcaklıktaki dielektrik kayıp değerleri ile doğrulanabilir. Özellikle yüksek sıcaklıktaki Z'' eğrilerinde gözlenen düzenli olarak artıktan sonra azalma gevşemeye (relaxation) işaret etmekte ve Debye davranışından sapma meydana gelmektedir. Artan sıcaklık ile NBT seramiklerin gevşeme frekansı daha yüksek değerlere frekans değerlerine ölçülmüştür. NBT, NBT-BT ve NBT-BT-KNN seramiklerde gevşeme süreleri (τ_z) Z'' -f grafiğindeki maksimum f değerleri ile ($2\pi f_{\max} \tau_z = 1$) hesaplanmıştır. Tablo 1'de NBT, NBT-BT ve NBT-BT-KNN seramiklerin gevşeme süreleri, bulk resistans (R_b), C_b değerleri verilmiştir.

Tablo 1. NBT, NBT-BT ve NBT-BT-KNN seramiklerin: 525°C sıcaklıktaki Bulk direnci (R_b), bulk kapasitans (C_b), gevşeme frekansı (f_0) ve gevşeme süreleri.

Örnek Adı	T (°C)	f_{\max} (Hz)	τ_r (s)	R_b (k Ω)	C_b (F)
NBT	525	673	$2,366 \times 10^{-4}$	193	191×10^{-12}
NBT-BT	525	100	$1,59 \times 10^{-3}$	209	462×10^{-12}
NBT-BT-KNN	525	236	$6,747 \times 10^{-4}$	251	328×10^{-12}

4. Genel Sonuçlar

Bu çalışmada, NBT, NBT-BT ve NBT-BT-KNN seramikleri geleneksel katıhal kalsinasyon yöntemi ile üretilmiştir. Yapılan katkılar ile NBT seramiklerin yoğunlaşma davranışı ve dielektrik özellikleri detaylı olarak incelenmiştir. Empedans spektroskopisi frekansın bir fonksiyonu olarak 450°C-525°C sıcaklık aralığında incelenmiştir. Ölçülen frekans aralığında NBT, NBT-BT ve NBT-BT-KNN seramiklerde tane sınırı etkisi gözlenmemiştir.



Şekil 4. (a) NBT, (b) NBT-BT ve (c) NBT-BT-KNN seramiklerin frekansın bir fonksiyonu olarak Z'' eğrileri.

Teşekkür

Bu çalışma TÜBİTAK tarafından 110M627 nolu proje kapsamında ve Gebze Yüksek Teknoloji Enstitüsü tarafından BAP-2009-A-19 no'lu proje kapsamında desteklenmiştir.

Kaynaklar

- Alkoy S., Dursun, S., 2012. Processing and Properties of Textured Potassium Strontium Niobate ($\text{KSr}_2\text{Nb}_5\text{O}_{15}$) Ceramic Fibers – Texture Development. *J. Am. Ceram. Soc.*, **95**[3], 937-945.
- Heartling, G.H., 1999. Ferroelectric Ceramics: History and Technology. *J. Am. Ceram. Soc.*, **82**, 797-818 [4].
- Lee, W.C., Huang, C.Y., Tsao, L.K., Wu, Y.C., 2009. Chemical composition and tolerance factor at the morphotropic phase boundary in $(\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5})\text{TiO}_3$ -based piezoelectric ceramics. *J. Eur. Ceram. Soc.*, **29**, 1443-1448.
- Li, Y., Chen, W., Zhou, J., Xu, Q., Gu, X., Lia, R., 2005. Impedance spectroscopy and dielectric properties of $\text{Na}_{0.5}\text{Bi}_{0.5}\text{TiO}_3$ - NaNbO_3 ceramics. *Physica B*, **365**, 76-81.
- Lin, Y., Zhao S., Cai, N., Wu J., Zhou, X., Nan, C.W., 2003. Effects of doping Eu_2O_3 on the phase transformation and piezoelectric properties of $\text{Na}_{0.5}\text{Bi}_{0.5}\text{TiO}_3$ -based ceramics. *Material. Sci. and Eng. B*, **99**, 449-452.
- Maeder, M.D., Damjanovic, D., Setter, N., 2004. Lead Free Piezoelectric Materials. *J. Electroceram.*, **13**, 385-392.
- Menşur Alkoy, E., Yavuz, A.B., 2012. Electrical properties and impedance spectroscopy of pure and copper oxide added potassium sodium niobate ceramics. *IEEE Transactions on Ultrasonics, Ferroelectrics and Frequency Control*, **59 (10)**, 1121-1128.
- Moulson, A.J., and Herbert, J.M., 2003, Electroceramic: Materials Properties and Applications, *John Wiley and Sons Inc.*, 85-89.
- Pisarevsky, Y.V., Senyushenkov, P.A., Mill, B.V., Moisseeva, N.A., 1998. Elastic, Piezoelectric, Dielectric Properties of $\text{La}_3\text{Ga}_{5.5}\text{Ta}_{0.5}\text{O}_{14}$ Single Crystals. *IEEE International Frequency Control Symposium*, 742-747.
- Saito, Y., Takao, H., Tani, T., Nonoyama, T., Takatori, K., Homma, T., Nagaya, T., Nakamura, M., 2004. Lead-free piezoceramics. *Nature*, **432**, 84-87.
- Sakata, K., Takenaka, T., Takai, H., Shoji, K., 1978. Hot-forged ferroelectric ceramics of some bismuth compounds with layer structure. *Ferroelectrics*, **22**, 825-826.
- Schmitt, L.A., Kling, J., Hinterstein, M., Hoelzel, M., Jo, W., Kleebe, H.J., Fuess, H., 2011. Structural investigations on lead-free $\text{Bi}_{1/2}\text{Na}_{1/2}\text{TiO}_3$ -based Piezoceramics. *J. Mater Sci*, **46**, 4343-4376.
- Shao, S., Zhang, J., Zhang, Z., Zheng, P., Zhao, M., Li, J., Wang, C., 2008. High piezoelectric properties and domain configuration in BaTiO_3 ceramics obtained through the solid-state reaction route. *J. Phys D: Appl. Phys.* **41**, 125408.
- Shrout, T.R., Zhang, S.J., 2007. Lead-free piezoelectric ceramics: Alternatives for PZT? *J. Electroceram.*, **19**, 111-124.
- Suchanicz, J., Kusz, J., Böhm, H., Duda, H., Mercurio, J.P., Konieczny, K., 2003. Structural and dielectric properties of $(\text{Na}_{0.5}\text{Bi}_{0.5})_{0.70}\text{Ba}_{0.30}\text{TiO}_3$ ceramics. *J. Eur. Ceram. Soc.*, **23**, 1559-1564.
- Yılmaz, H., Mckinstry, S.T., Messing, G.L., (2003). (Reactive) Templated Grain Growth of Textured Sodium Bismuth Titanate ($\text{Na}_{1/2}\text{Bi}_{1/2}\text{TiO}_3$ - BaTiO_3) Ceramics—II Dielectric and Piezoelectric Properties. *Journal of Electroceramics*, **11**, 217-226.
- Zhang, S., Kounga, A.B., Aulbach, E., Jo, W., Granzow, T., Ehrenberg, H., Rödel, J., 2008 Lead-free piezoceramics with giant strain in the system $\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5}\text{TiO}_3$ - BaTiO_3 - $\text{K}_{0.5}\text{Na}_{0.5}\text{NbO}_3$. II. Temperature dependent properties. *J. Appl. Phys.*, **103**, 0.3410817.
- Zhou, J., Peng, W.W., Zhang, D., Yang, X.Y., Chen, W., 2008. Polarization properties of $\text{Na}_{1/2}\text{Bi}_{1/2}\text{TiO}_3$ system: First-principles calculation and experiment. *Computational Material Science*, **44**, 67-71.