

자유회전쌍극자 모델과 현상론적 이론에 의한 비선형분극의 비교연구

이상욱*, 여희창*, 박상호**, 강대하*
 * 부경대학교, **울산기술대학교

A study on comparison with nonlinear polarizations by the free-rotational dipole model and the phenomenological response theory

Sang-Uk Lee*, Hee-Chang Yeo*, Sang-Ho Park**, Dae-Ha Kang*
 * Pukyong National University, **Ulsan Polytechnic College

Abstract - In this study linear and nonlinear formula were deduced clearly in cases of the free rotational dipole theory and the phenomenological response theory and practical usefulness of formula by these two theories was discussed

$$\frac{1}{D} \cdot \frac{\partial f}{\partial t} = \frac{1}{\sin \theta} \cdot \frac{\partial}{\partial \theta} \cdot [\sin \theta (\frac{\partial f}{\partial \theta} + \frac{\mu E}{kT} \cdot f \cdot \sin \theta)] \quad (1)$$

단, D : 확산계수
 θ : 쌍극자능률 μ와 인가전계 E 사이각
 kT : 열에너지

1. 서 론

유전분극은 유전체내의 쌍극자가 자유로이 회전할 수 있는 경우에도 고전계에서 포화하는 경향이 있어 비선형성을 나타낸다. 이러한 비선형 유전성에 관한 연구는 분자간 및 분자내에 있어서 쌍극자간의 상호작용과 유전체의 구조에 관한 유익한 정보를 제공하므로 오래 전부터 액체 유전체를 대상으로 진행되어 왔다[1, 2]. 선형 분야에서의 유전완화 스펙트럼은 여러종류의 고체 물질에 대하여 폭 넓게 진행되어 왔으며[3, 4], 최근들어 이 방법은 비선형 분야로 확장되어 고분자 및 액정에 응용되기에 이르렀다. 비선형완화 스펙트럼은 물질에 있어서 완화 모드에 미치는 인가전계의 고차적 효과를 탐구할 수 있으며, 이것은 각각의 완화 모드에 관련된 쌍극자 운동의 미시적 환경에 관한 자세한 정보를 제공한다. 이러한 비선형 유전특성은 고분자의 구조 및 동특성에 관한 정보를 얻기 위한 방법으로 실험적 연구가 진행되어 왔다[5~7]. 이와 같은 비선형 유전특성에 관한 실험 결과는 대부분 Nakada[8]에 의해 제안된 현상론적 응답이론을 이용하여 분석되어 왔다. 이 이론에 의하면 완화계의 다중시점의 자극(예:인가전계)과 비선형 후효과 함수의 상승적분의 합으로 표현할 수 있다. 그러나 이 현상론적 이론은 고차 후효과함수의 가정을 위한 확실한 근거가 없다는 결점이 있다. Kimura[9]등과 Malecki[10]에 의한 자유회전쌍극자 모델에 근거를 둔 비선형 이론은 용액내 분자 자체로서의 회전운동 뿐만 아니라 고분자의 축색운동 및 무정형 상태의 고분자에 대한 배향분극을 대상으로 하고 있으며, 현상론적 이론에 대하여 비판적이다. 그러나 현상론적 이론식은 많은 실험 결과와 좋은 일치를 나타내고 있음은 주지의 사실이다.

본 논문에서는 자유회전쌍극자 모델에 의한 비선형 유전이론과 현상론적 이론을 재 정립하고 그 결과식의 비교를 통해 그 유사성을 밝히고자 한다.

2. 자유회전쌍극자 모델에 의한 유전분극과 현상론적 응답이론에 의한 유전분극

비선형 유전효과(NDE:nonlinear dielectric effect)는 전계강도에 대한 전기분극 P의 비선형 의존성에 그 근거를 두고 있다. 실험적으로 NDE는 보통 D·C 또는 A·C의 강외부전계 E에 의해 발생하는 유전율의 매우 작은 변화로서 관측된다. 전계가 자유롭게 회전할 수 있는 쌍극자에 인가될 때 그 쌍극자의 배향분포함수 $f=f(x, \theta)$ Smoluchowski의 확산방정식에 의해 식(1)과 같이 표현할 수 있다.

우변 괄호안의 첫항은 전기적 구동력에 대응하며 제 2항은 열적 동요에 기인하는 확산력에 대응한다. $x = \cos \theta$ 치환하여 정리하면 식(1)은 식(2)와 같이 된다.

$$\frac{\partial f}{\partial t} = (1-x^2) \frac{\partial^2 f}{\partial x^2} - [\frac{\mu E}{kT}(1-x^2) + 2x] \frac{\partial f}{\partial x} + \frac{2\mu E}{kT} \cdot x \cdot f \quad (2)$$

식(2)의 해는 식(3)과 같은 Legendre 다항식의 급수로 가정할 수 있다.

$$f(t, x) = \sum_{p=1}^{\infty} A_p(t) \cdot U_p(x) \quad (3)$$

한편 배향분포함수의 전계방향 평균값은 식(4)로 주어진다.

$$\langle Z^p \rangle = \frac{\int_{-1}^1 f(t, x) x^p dx}{\int_{-1}^1 f(t, x) dx} \quad (4)$$

또한 $\langle Z^p \rangle$ 는 $\frac{\mu E}{kT}$ 의 함수로서 $\frac{\mu E}{kT}$ 의 멱급수로 표현할 수 있다. 따라서 $\langle Z^p \rangle_n$ 을 $\frac{\mu E}{kT}$ 의 n승 항이라 하면 $\langle Z^p \rangle$ 는 식(5)과 같이 쓸 수 있다.

$$\langle Z^p \rangle = \langle Z^p \rangle_1 + \langle Z^p \rangle_2 + \langle Z^p \rangle_3 + \dots \quad (5)$$

따라서 식(3)~(5)에 의하여 식(2)를 풀면 식(6)~(8)과 같이 된다.

$$\langle Z^1 \rangle_1 = \frac{2}{3} \frac{D\mu}{kT} \int_0^{\infty} e^{-2Dt_1} E(t-t_1) dt_1 \quad (6)$$

$$\langle Z^2 \rangle_2 = \frac{8}{15} (\frac{D\mu}{kT})^2 \int_0^{\infty} \int_0^{\infty} e^{-2Dt_1} e^{-6Dt_2} \cdot E(t-t_1) E(t-t_2) dt_1 dt_2 \quad (7)$$

$$\langle Z^1 \rangle_3 = -\frac{8}{15} (\frac{D\mu}{kT})^3 \int_0^{\infty} \int_0^{\infty} \int_0^{\infty} e^{-2Dt_1} e^{-6Dt_2} e^{-2Dt_3} \cdot E(t-t_1) E(t-t_2) E(t-t_3) dt_1 dt_2 dt_3 \quad (8)$$

한편 배향분극 P(t)는 $\langle Z^1 \rangle$ 에 대하여 식(9)로 주어진다.

$$P(t) = N \mu \langle Z^1 \rangle = P_1(t) + P_2(t) + P_3(t) + \dots \quad (9)$$

단, $P_n(t) : E^n(t)$ 에 비례하는 분극성분

식(9)의 우수항은 물질의 이방성을 무시하면 나타나지 않는다. 전체 $E = E_0 \cos \omega t$ 고려하면 $P_1(t)$ 및 $P_3(t)$ 는 다음식으로 쓸 수 있다.

$$P_1(t) = R_e [P_1^*(\omega) \cdot e^{j\omega t}] \quad (10)$$

$$P_3(t) = R_e [P_{31}^*(\omega) \cdot e^{j\omega t} + P_{33}^*(\omega) \cdot e^{3\omega t}] \quad (11)$$

여기서 $P_1^*(\omega)$, $P_{31}^*(\omega)$ 및 $P_{33}^*(\omega)$ 는 분극의 척도를 나타내는 값으로서 $P_1^*(\omega)$ 은 전체의 크기 E_0 에 비례하는 선형요소이며 $P_{31}^*(\omega)$ 과 $P_{33}^*(\omega)$ 는 E_0^3 에 비례하는 비선형요소이다. 따라서 식(6), (8) 및 식(9)~(11)의 관계로부터 $P_1^*(\omega)$, $P_{31}^*(\omega)$ 및 $P_{33}^*(\omega)$ 를 구하고 완화시간 $\tau = \frac{1}{2D}$ 을 대입하여 정리하면 다음식을 얻을 수 있다.

$$P_1^*(\omega) = \frac{N\mu^2}{3kT} \frac{E_0}{1+j\omega\tau} = \frac{\Delta\epsilon_1}{1+j\omega\tau} E_0 \quad (12)$$

단, $\Delta\epsilon_1 = \frac{N\mu^2}{3kT}$: 선형 유전완화강도

$$P_{31}^*(\omega) = -\frac{N\mu^4}{45k^3T^3} \frac{\frac{3}{4}(1+j\frac{1}{9}\omega\tau)E_0^3}{(1+j\omega\tau)^2(1-j\omega\tau)(1+j\frac{2}{3}\omega\tau)}$$

$$= \frac{\frac{3}{4}\Delta\epsilon_3(1+j\frac{1}{9}\omega\tau)E_0^3}{(1+j\omega\tau)^2(1-j\omega\tau)(1+j\frac{2}{3}\omega\tau)} \quad (13)$$

단, $\Delta\epsilon_3 = -\frac{N\mu^4}{45k^3T^3}$: 비선형 유전완화강도

$$P_{33}^*(\omega) = -\frac{N\mu^4}{45k^3T^3} \frac{\frac{1}{4}E_0^3}{(1+j\omega\tau)(1+j3\omega\tau)(1+j\frac{2}{3}\omega\tau)}$$

$$= \frac{\frac{1}{4}\Delta\epsilon_3 E_0^3}{(1+j\omega\tau)(1+j3\omega\tau)(1+j\frac{2}{3}\omega\tau)} \quad (14)$$

한편 Nakada[8]에 의한 현상론적 응답이론에 의하면 시간에 의존하는 계의 비선형 응답은 Boltzmann의 중첩의 원리를 확장 적용한 다중 상승적분의 합으로 주어진다. 즉 분극 $P(t)$ 는 t 보다 t_1, t_2, t_3, \dots , 만큼 앞선 시점에서 인가된 전기장에 의한 효과의 중첩으로 주어진다.

$$P(t) = \int_0^\infty J_1(t_1) E(t-t_1) dt_1$$

$$+ \int_0^\infty \int_0^\infty J_2(t_1, t_2) E(t-t_1) E(t-t_2) dt_1 dt_2$$

$$+ \int_0^\infty \int_0^\infty \int_0^\infty J_3(t_1, t_2, t_3) E(t-t_1)$$

$$\cdot E(t-t_2) E(t-t_3) dt_1 dt_2 dt_3 + \dots \quad (15)$$

여기서 $J_n(t, t_1, t_2, \dots, t_n)$ 시점 t 의 응답에 대하여 시점 t_1, t_2, \dots, t_n 의 각 인가전계로부터 동시에 기여하는 후효과함수로서 식(16)과 같이 가정한 것이다.

$$J_n(t_1, t_2, \dots, t_n) = \frac{\Delta\epsilon_n}{\tau_n^n} \cdot \exp\left(-\frac{t_1}{\tau_n}\right) \cdot \exp\left(-\frac{t_2}{\tau_n}\right) \cdot \dots \cdot \exp\left(-\frac{t_n}{\tau_n}\right) \quad (16)$$

식(15)로부터 분극의 선형성분 및 비선형성분은 식(17) 및 (18)로 된다.

$$P_1(t) = \int_0^\infty \frac{\Delta\epsilon_1}{\tau_1} e^{-\frac{t}{\tau_1}} E(t-t_1) dt_1 \quad (17)$$

$$P_3(t) = \int_0^\infty \int_0^\infty \int_0^\infty \frac{\Delta\epsilon_3}{\tau_3} e^{-\frac{t}{\tau_3}} e^{-\frac{t_1}{\tau_3}} e^{-\frac{t_2}{\tau_3}} e^{-\frac{t_3}{\tau_3}}$$

$$\cdot E(t-t_1)E(t-t_2)E(t-t_3) dt_1 dt_2 dt_3 \quad (18)$$

식(17) 및 (18)에 전체 $E = E_0 \cos \omega t$ 대입하여 풀고 정리하면 $P_1^*(\omega)$, $P_{31}^*(\omega)$ 및 $P_{33}^*(\omega)$ 는 식(19)~(21)로 주어진다.

$$P_1^*(\omega) = \frac{\Delta\epsilon_1 E_0}{1+j\omega\tau_1} \quad (19)$$

$$P_{31}^*(\omega) = \frac{\frac{3}{4}\Delta\epsilon_3 E_0^3}{(1+j\omega\tau_3)^2(1-j\omega\tau_3)} \quad (20)$$

$$P_{33}^*(\omega) = \frac{\frac{1}{4}\Delta\epsilon_3 E_0^3}{(1+j\omega\tau_3)^3} \quad (21)$$

3. 자유회전쌍극자 모델과 현상론적 이론에 의한 비선형 유전 분극의 비교

선형 분극요소 $P_1^*(\omega)$ 는 두 이론에 의한 결과가 일치하고 있다. 그러나 비선형 분극요소 $P_{31}^*(\omega)$ 및 $P_{33}^*(\omega)$ 는 두 이론에 의한 식이 형태면에서 다르다. 이와 같은 사실은 현상론에서 가정한 후효과함수가 자유회전 쌍극자 모델에 적합하지 않음을 의미한다. 이러한 후효과함수를 검토하기 위하여 자유회전쌍극자 모델에 의한 분극 성분 $P_3(t)$ 를 식(8) 및 식(9)로부터 다시 정리하면 식(22)로 된다.

$$P_3(t) = -\frac{8}{15} \frac{N\mu^4}{\tau^3 k^3 T^3} \int_0^\infty \int_0^\infty \int_0^\infty e^{-\frac{t}{\tau}} e^{-\frac{t_1}{\tau}} e^{-\frac{t_2}{\tau}} e^{-\frac{t_3}{\tau}}$$

$$\cdot E(t-t_1)E(t-t_2)E(t-t_3) dt_1 dt_2 dt_3 \quad (22)$$

따라서 현상론적 이론에 의한 $P_3(t)$ 에 관한 식(18)과 비교함으로써 자유회전쌍극자 모델을 위한 후효과함수를 다음식으로 도출할 수 있다.

$$J_3(t_1, t_2, t_3) = -\frac{8N\mu^4}{15\tau^3 k^3 T^3} e^{-\frac{t}{\tau}} e^{-\frac{t_1}{\tau}} e^{-\frac{t_2}{\tau}} e^{-\frac{t_3}{\tau}} \quad (23)$$

이 식(23)을 현상론적 이론에서 가정한 후효과함수 식(16)과 비교할 때 다른 부분은 거의 동일하나 시간변수에 차이가 있음을 발견할 수 있다. 즉 현상론적 이론에서의 시간변수는 t_1, t_2, t_3 의 계수가 동일한 값을 취하고 있으나 자유회전쌍극자 모델에서는 동일한 값이 아니다. 따라서 비선형 분극요소 $P_{31}^*(\omega)$ 및 $P_{33}^*(\omega)$ 에 있어서 두 이론의 경우가 다른 후효과함수의 차이에서 비롯됨을 알 수 있다.

식(10)으로 주어지는 자유회전쌍극자 모델의 선형 분극성분 $P_1(t)$ 는 Debye형의 완화 방정식을 나타낸다. 한편 E_0^3 에 비례하는 비선형 분극성분 $P_3(t)$ 는 식(11)과 같이 ω 와 3ω 를 갖는 두 개의 항으로 되어 있다. 이들 두 항이 분극에 기여하는 값은 식(13) 및 식(14)에서 알 수 있는 바와 같이 -값을 나타낸다. 현상론적 이론에서는 선형 분극성분 $P_1(t)$ 는 자유회전쌍극자 모델의 경우와 같으나 비선형 분극성분 $P_3(t)$ 에 있어서 그 기여분의 부호는 명확하지 않다. 그 원인은 후효과함수의 가정이 확실한 근거를 바탕으로 취해진 것이 아니기 때문이다.

그림1~그림3은 두 이론의 경우에 대하여 선형분극요소 $P_1^*(\omega)$ 및 비선형분극요소 $P_{31}^*(\omega)$, $P_{33}^*(\omega)$ 의 완화스펙트럼을 도시한 것이다. 이들 그림에서 알 수 있는 바

같이 $P_{31}^*(\omega)$ 및 $P_{33}^*(\omega)$ 에 있어서 Peak의 약간의 차이와 Peak의 위치가 다름을 알 수 있다.

그림4 및 그림5는 각각 현상론적 이론의 $P_{31}^*(\omega)$ 와 $P_{33}^*(\omega)$ 를 자유회전쌍극자 모델의 경우에 curve fitting한 결과를 나타낸다. 이 결과에 의하면 완화시간은 $\tau_3 = 1.489$ 로 나타났다. 이것은 자유회전쌍극자 모델 비선형 분극의 완화시간이 선형분극의 완화시간보다 크음을 의미한다. 그러나 현상론적 이론에서는 비선형 분극의 완화시간을 확정하지 않은점이 다른 점이다. 이 그림에서 알 수 있는 바와 같이 실수부 및 허수부에 있어서 그 Peak 크기의 약간의 차이와 완화시간의 차이 이외에는 동일한 윤곽을 보이고 있다. 이와 같은 사실은 현상론적 이론에 의한 분석이 타당성이 있음을 말해준다. 또한 실제의 측정 데이터[7]에 대하여도 현상론적 이론식이 잘 일치하고 있음은 부정할 수 없는 사실이다. 한편 분극은 이방성을 무시할 경우 전체 $E = E_0 \cos \omega t$ 에 대하여 식(24)로 표현할 수 있다.

$$P(t) = \sum_{n=1}^{\infty} [P_n' \cos(n\omega t) + P_n'' \sin(n\omega t)] \\ = \epsilon_1 E(t) + \epsilon_3 E^3(t) + \dots \quad (24)$$

여기서 ϵ_n 은 n 고조파 유전율로서 식(25)로 정의된다.

$$\epsilon_n = \epsilon_n' + j\epsilon_n'' \quad (25)$$

식(24)를 전개하여 P_n' 및 P_n'' 를 구하면 식(26)~(29)를 얻을 수 있다.

$$P_1' = \epsilon_1' E_0 + \frac{3}{4} \epsilon_3' E_0^3 + \frac{10}{16} \epsilon_5' E_0^5 + \dots \quad (26)$$

$$P_1'' = \epsilon_1'' E_0 + \frac{3}{4} \epsilon_3'' E_0^3 + \frac{10}{16} \epsilon_5'' E_0^5 + \dots \quad (27)$$

$$P_3' = \frac{1}{4} \epsilon_3' E_0^3 + \frac{5}{16} \epsilon_5' E_0^5 + \frac{21}{64} \epsilon_7' E_0^7 + \dots \quad (28)$$

$$P_3'' = \frac{1}{4} \epsilon_3'' E_0^3 + \frac{5}{16} \epsilon_5'' E_0^5 + \frac{21}{64} \epsilon_7'' E_0^7 + \dots \quad (29)$$

유전율을 실제적으로 결정하기 위하여는 분극 $P(t)$ 를 측정하고 푸리에 변환을 통하여 P_n' 및 P_n'' 를 구한다. 선형 유전율 ϵ_1 은 $\epsilon_1 \gg \epsilon_3$ 이므로 E_0 에 대한 P_1 의 기울기로서 결정할 수 있으며, 비선형 유전율 ϵ_3 은 $\epsilon_3 \gg \epsilon_5$ 이므로 E_0^3 에 대한 P_3 의 기울기로서 결정할 수 있다. 한편 식(12) $P_1^*(\omega)$ 의 실수부 및 허수부는 식(26) 및 식(27)의 제1항에 대응하며, 식(13) $P_{31}^*(\omega)$ 의 실수부 및 허수부는 각각 식(26) 및 식(27)의 제2항에 대응한다. 또한 식(14) $P_{33}^*(\omega)$ 의 실수부 및 허수부는 각각 식(28) 및 식(29)의 제1항에 대응한다. 따라서 $P_{31}^*(\omega)$ 요소는 기본파 성분 P_1 에 포함되어 있으며 실제적으로 $\epsilon_1 \gg \epsilon_3$ 이므로 $P_{31}^*(\omega)$ 요소로서는 비선형 유전율 ϵ_3 을 결정할 수 없다. 그러므로 $P_{33}^*(\omega)$ 요소에 의해서만 ϵ_3 을 결정할 수 있으며 $P_{33}^*(\omega)$ 의 식을 실제 데이터에 fitting 함으로써 유전완화강도 $\Delta\epsilon_1$, $\Delta\epsilon_3$ 및 완화시간 τ_1 , τ_3 등의 파라미터를 결정할 수 있다. 따라서 실제 데이터의 분석에 이용되는 비선형 분극분석은 $P_{33}^*(\omega)$ 에 의해서만 가능하다.

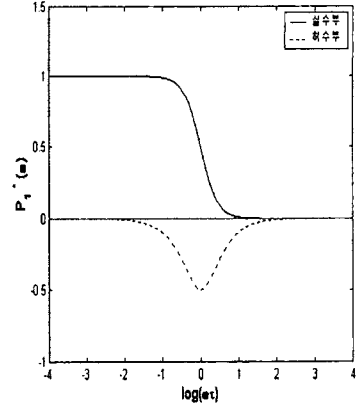


Fig. 1 Frequency spectra profile of the linear polarization component $P_1^*(\omega)$ by the free-rotational dipole model.

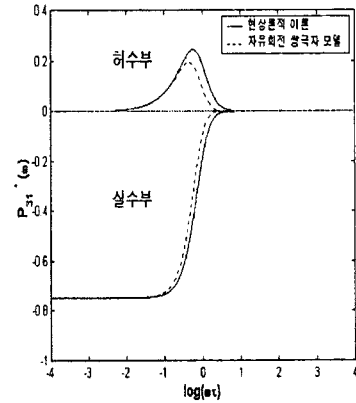


Fig. 2 Frequency spectra profile of the nonlinear polarization component $P_{31}^*(\omega)$ by the free-rotational dipole model and the phenomenological response theory(before curve-fitting)

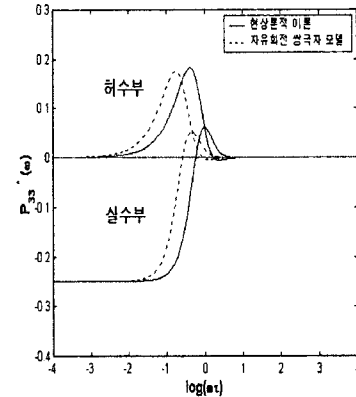


Fig. 3 Frequency spectra profile of the nonlinear polarization component $P_{33}^*(\omega)$ by the free-rotational dipole model and the phenomenological response theory(before curve-fitting)

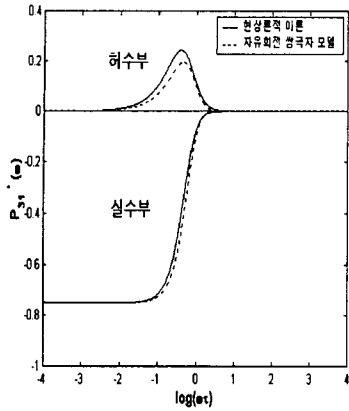


Fig. 4 Frequency spectra profile of the nonlinear polarization component $P_{31}^*(\omega)$ by the free-rotational dipole model and the phenomenological response theory(after curve-fitting)

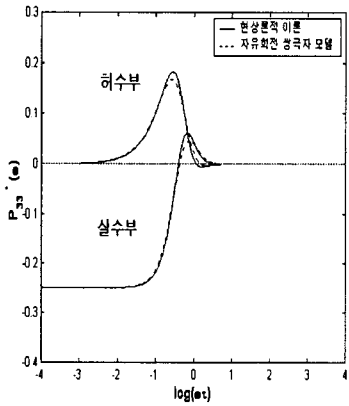


Fig. 5 Frequency spectra profile of the nonlinear polarization component $P_{33}^*(\omega)$ by the free-rotational dipole model and the phenomenological response theory(after curve-fitting)

4. 결 론

본 연구에서는 자유회전쌍극자 모델과 현상론적 응답이론에 의한 비선형 유전분극의 관련식을 명확한 도출과정을 통해 재정립하고 두 이론의 결과식에 대한 비교검토를 행함으로써 실제 데이터에 대한 유용성 여부를 검토하였다. 이 비교 검토 결과는 다음과 같다.

1. 선형 유전분극 요소 $P_1^*(\omega)$ 는 두 이론의 경우가 일치한다.
2. 비선형 유전분극 요소 $P_{31}^*(\omega)$ 및 $P_{33}^*(\omega)$ 는 두 이론의 경우, 관계식은 형태면에서 다르나 그 주파수 스펙트럼은 거의 동일한 윤곽을 나타낸다. 그러나 두 이론에 있어서 $P_{31}^*(\omega)$ 및 $P_{33}^*(\omega)$ 의 peak의 크기와 완화시간에 약간의 차이를 나타낸다. 이러한 차이는 현상론적 응답이론의 후효과함수에 대한 가정이 확실한 근거를 바탕으로 이루어진 것이 아니기 때문이다.

3. 실험 데이터 분석에 필요한 파라미터 $\Delta\epsilon_3$, τ_3 등은 $P_{33}^*(\omega)$ 에 의하여 결정할 수 있다.
4. 실제 데이터에 대하여 이론식을 적용할 경우 완화시간폭을 결정하는 파라미터 β_n 의 도입이 필요하며, 이 경우 자유회전쌍극자 모델에서는 매우 복잡할 것으로 생각되나 현상론적 응답이론에서는 β_n 의 도입이 용이하다. 또한, 현상론적 이론에서는 비선형 유전완화시간 τ_3 를 선형 유전완화시간 τ_1 에 종속시키지 않음으로써 실제 데이터에 쉽게 fitting 시킬 수 있는 장점을 가진다.

(참 고 문 헌)

- [1] A. Piekara, "Über den Kopelungszustand von Molekülen in Flüssigkeiten", Acta. Phys., Vol. 6, pp. 130-143, 1937
- [2] A. D. Buckingham, "Theory of the Dielectric Constant at High Field Strengths", J. Chem. Phys. Vol. 25, No.3, pp.428-434, 1956
- [3] H. Frölich: Theory of Dielectrics, Clarendon Press, Oxford, 1958
- [4] A. R. Blythe, : Electrical Properties of Polymers, Cambridge University Press, Cambridge, 1979.
- [5] A. T. Findikoglu et al, "Pulse shaping using nonlinear dielectric Sr TiO₃", Appl. Phys. Lett., Vol. 74, No. 12, pp.1770-1772, 5, 1999
- [6] A. L. Tagantsev and A. E. Glazounov, "Does freezing in Pb Mg_{1/3} Nb_{2/3} O₃ relaxer manifest itself in nonlinear dielectric susceptibility?", Appl. Phys. Lett., Vol.74, No.13, pp. 1910-1912, 5, 1999
- [7] T. Furukawa et al, "Large Dielectric Relaxations in an Alternate Copolymer of Vinylidene cyanide and Vinyl Acetate.", J. J. Appl Phys., Vol. 25, No. 8, pp.1178-1182, 1986.
- [8] O. Nakada, "Theory of Non-linear Responses", J. Phys. Soc. Jpn., 15, pp. 2280-2288, December, 1960.
- [9] Yasuyuki Kimura and Reinsuke Hayakawa, "Nonlinear Dielectric Relaxation Spectra Calculated with a Free Rotation Model of Dipole Moment.", Jpn. J. Appl. Phys., Vol. 31, pp. 3387-3391, 1992.
- [10] J. Malecki, "The relaxation of the nonlinear dielectric effect", J. Molecular Structure, 436-437, pp. 595-604, 1997.