

결정구조에 의한 $Ba(Mg_{1/3}Nb_{2/3})O_3 - La(Mg_{2/3}Nb_{1/3})O_3$ 고용체의 마이크로파 유전특성

백종후, 임은경, 이미재, 최병현, 남산*
요업기술원, 고려대학교*

Microwave Dielectric Characteristics of $Ba(Mg_{1/3}Nb_{2/3})O_3 - La(Mg_{2/3}Nb_{1/3})O_3$ Solid Solutions with Crystal Structure

Jong-Hoo Paik, Eun-Kyeong Lim, Mi-Jae Lee, Byung-Hyun Choi, and *Sahn Nahm
KICET, Korea Uni.*

Abstract

The microwave dielectric properties and their related structural characteristics in solid solutions of $(1-x) Ba(Mg_{1/3}Nb_{2/3})O_3 - x La(Mg_{2/3}Nb_{1/3})O_3$ (BLMN) have been investigated by measuring the dielectric constant(ϵ_r), Q value and temperature coefficient of resonant frequency(τ_f) and by observing the crystal structure using high resolution transmission electron microscopy (HRTEM).

Microwave dielectric properties showed characteristic features for specific composition. Dielectric constant(ϵ_r) showed maximum value at the composition which corresponds to the phase boundary between 1:2 ordered and 1:1 ordered structure. The increase in ϵ_r may be caused by the rattling of ions by incorporating smaller ions and the disordered structure. The variation of temperature coefficient of resonant frequency(τ_f) was investigated in terms of oxygen octahedra tilting.

Key Words : Dielectric resonator, microwave, Quality factor, Ordering, Oxygen Octahedra tilting

1. 서론

최근 이동, 위성통신등 통신시스템의 보급이 급격히 증가함에 따라 마이크로파 대역에서 사용이 가능한 마이크로파 유전체 재료에 대하여 많은 연구가 진행되어 왔다. [1-2] 일반적으로 마이크로파 유전체를 통신시스템에 사용하기 위해서는 유전율(ϵ_r), 품질계수($Q \times f_0$) 그리고 공진주파수 온도계수(τ_f)가 정확히 조절되어야 한다. 유전체내에서의 마이크로파의 파장은 유전율의 제곱근에 반비례하므로 부품의 소형화를 위해서는 유전율이 커야하고, 유전손실은 주파수에 비례하므로 고성능화를 위해서는 품질계수($Q \times f_0$)값이 높아야 하며, 통신기기는 공진 주파수가 온도변화에 따라 무관해야 하므로 유전체 재료의 공진 주파수 온도계수(τ_f)는 0에 가까운 값을 가져야만 한다.[3] 이와 같은

요구조건들을 만족하는 마이크로파 유전체 재료로는 A자리에 Ba^{2+} , Sr^{2+} 와 B자리에 Mg^{2+} , Zn^{2+} 등의 2가 이온과 Nb^{5+} , Ta^{5+} 등의 5가 이온이 1:2 비율로 존재하는 $A^{2+}(B^{2+}_{1/3}B^{5+}_{2/3})O_3$ 형태의 Ba, Sr계 복합 페로브스카이트 화합물이 알려져 있으며, 높은 품질계수를 갖기 때문에 많은 연구가 진행되고 있다.[4] 이들 물질에서는 구조변화가 마이크로파 유전특성에 많은 영향을 주는 것으로 알려져 있으며, 주로 이들 화합물들은 각 자리의 이온배열상태 즉 규칙화(ordering) 정도와 산소팔면체(oxygen octahedron)의 연결형태 등에 대한 연구가 이루어지고 있다.[5-6]

따라서 본 연구에서는 La계 복합 페로브스카이트 물질이면서 아직까지 잘 알려져 있지 않은 $La(Mg_{2/3}Nb_{1/3})O_3$ 을 합성하고, 또한 Ba계 복합 페로브스카이트 물질이면서 $La(Mg_{2/3}Nb_{1/3})O_3$ 과 B자

리 이온이 같은 $Ba(Mg_{1/3}Nb_{2/3})O_3$ 을 합성하여, $Ba(Mg_{1/3}Nb_{2/3})O_3 - La(Mg_{2/3}Nb_{1/3})O_3$ 복합 페로브스카이트 화합물을 만들어서, 이때 조성에 따른 결정구조와 마이크로파 유전특성 변화를 조사하고자 하였다.

2. 실험

본 연구에서 출발물질로 사용한 분말원료는 $BaCO_3$ (Aldrich, 99%), La_2O_3 (Aldrich, 99%), Nb_2O_5 (trinitech, 99.9%), MgO (Junsei, 99%)이며, 전자 저울을 사용하여 원료분말을 ± 0.1 mg의 오차 범위에서 정밀하게 평량하였다. 평량한 분말의 혼합은 MC-nylon jar에서 지르코니아 볼을 사용하여 습식으로 24시간 하였다. 혼합된 시료는 100-150°C에서 건조한 후, 1200-1300°C에서 4시간 하소하였다. 하소분말은 지르코니아 볼을 사용하여 습식으로 40시간을 분쇄하였다. PVA수용액을 첨가하여 섞은 후 80 mesh의 sieve로 조립화 (granulization)하였다. 충분히 건조시킨 후 이를 일축 성형하여 지름 11.3mm인 disc 시편을 만들었다. 성형시편들은 1300-1550°C의 온도범위에서 일정시간동안 소결하였다. 이때 승온속도는 분당 5°C로 하였다. 소결시편의 상 합성 및 규칙 - 불규칙 구조 등은 X선 회절기(Philips Model PW1800)로 분석하였으며, 투과전자현미경(philips CM20T/STEM, Hitachi H9000-NAR)을 사용하여 명시야상, 회절패턴, 격자이미지를 관찰하였다. 이때 사용가속전압은 300kV였다. 시편의 미세구조는 주사전자현미경(SEM- Akashi SR50)으로 분석하였다.

마이크로파 영역에서 유전특성은 Hakki-Coleman과 Courtney[7]에 의해 제시된 dielectric post resonator technique에 의해 측정되었으며, 측정모드는 TE_{011} 모드이다. 사용한 측정 기기는 Network Analyzer HP8510A이고, 시편들은 7-9GHz대역에서 공진 주파수를 얻을 수 있는 size로 연마하여 준비하였다. 공진주파수의 온도계수(τ_f)는 25°C에서 65°C의 온도영역에서 공진주파수를 측정하여 계산하였다.

3. 결과 및 고찰

그림1은 $(1-x)Ba(Mg_{1/3}Nb_{2/3})O_3 - xLa(Mg_{2/3}Nb_{1/3})O_3$

($0 \leq x \leq 1$)고용체에서의 X선 회절결과를 나타내었으며, 표1은 X선 회절결과와 고분해능 투과전자현미경(HRTEM)을 이용하여 분석한 BLMN 고용체의 결정구조를 나타내었다.[8] 기 분석된 BLMN 고용체의 결정구조를 토대로 이 구조에 대한 마이크로파 유전특성의 변화를 살펴보고자 한다.

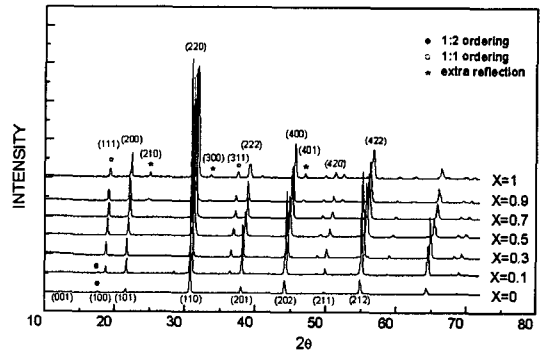


그림 1. 1450°C에서 4시간 소결한 $(1-x)Ba(Mg_{1/3}Nb_{2/3})O_3 - xLa(Mg_{2/3}Nb_{1/3})O_3$ X선 회절패턴

표 1 BLMN(x=0-1.0)의 결정구조

Comp.	Structure	1:2 Cation ordering (100)	1:1 Cation ordering (111)	Dis-order	Anti-phase tilting (311)	In-phase tilting (310/110)	Atomic displacement (210)
x=0	1:2 Ordered	○					
$0 < x \leq 0.075$	1:2+1:1 Ordered + Disordered	○	○	○			
$0.075 < x \leq 0.1$	1:2+1:1 Ordered	○	○				
$0.1 < x \leq 0.7$	1:1 Ordered cubic		○				
$0.7 < x \leq 1.0$	1:1 Ordered		○		○	○	○

표 2는 1450°C에서 4시간 소결한 $(1-x)Ba(Mg_{1/3}Nb_{2/3})O_3 - xLa(Mg_{2/3}Nb_{1/3})O_3$ ($0 \leq x \leq 1$) 조성에서의 상대밀도 값을 나타내었다. 1450°C의 소결 온도에서 비교적 짧은 소결시간(4시간)에서도 전체적으로 상대밀도 96% 이상의 양호한 시편을 얻을 수 있었다.

표 2. BLMN(x=0-1.0)의 상대밀도

x	0	0.1	0.3	0.5	0.7	0.9	1.0
상대밀도 (%)	98.3	97.6	96.5	97.3	96.6	96.4	96.6

그림 2 는 1450°C에서 4시간 소결한 $(1-x)$

$Ba(Mg_{1/3}Nb_{2/3})O_3 - x La(Mg_{2/3}Nb_{1/3})O_3$ ($0 \leq x \leq 1$)
에서의 마이크로파 유전특성 결과를 나타내었다.

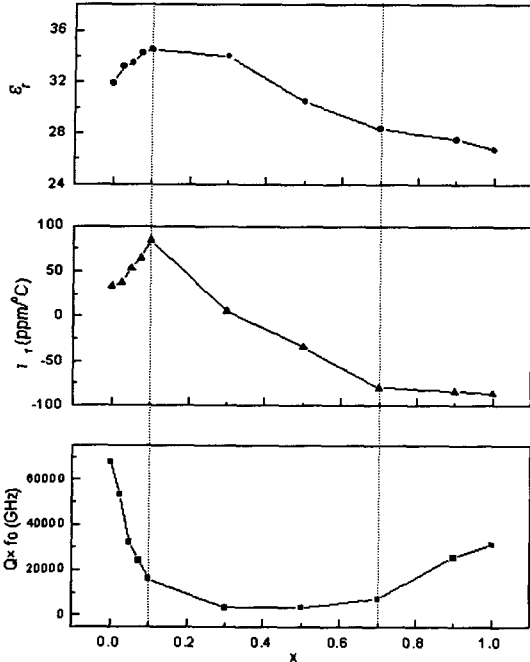


그림 2. (1-x)BMN-LMN의 마이크로파 유전 특성

유전율(ϵ_r)은 La 치환량(x)이 증가함에 따라 선형적으로 증가하는 경향을 보이다가, $x = 0.1$ 조성부근에서 34.8의 최대 값을 나타냈으며, 그 이상에서는 다시 선형적으로 감소하였다. 공진주파수 온도계수(τ_r)는 $x=0.3$ 조성부근에서 0으로 나타났다. 전체적으로 유전율의 변화와 거의 동일한 양상을 보이고 있으며, $x=0.1$ 조성부근에서 최대 값인 약 +80ppm/°C를 나타내었다. 그리고 $x = 0.1$ 부근에서 다시 치환량(x)을 증가시키면 $x=0.7$ 부근까지 급격하게 감소하다가, 그 이상에서는 감소 폭이 줄어드는 것을 볼 수 있다. 그러나 품질계수($Q \times f_0$)는 유전율과 공진주파수 온도계수의 변화와 다른 양상을 보이고 있는데, 치환량(x)이 증가함에 따라 급격히 감소하며 넓은 영역($x = 0.1 \sim 0.7$ 부근)에서 전체적으로 최소치를 보이다가 그 이상에서는 다시 증가하는 경향을 보이고 있다.

따라서 (1-x) $Ba(Mg_{1/3}Nb_{2/3})O_3 - x La(Mg_{2/3}Nb_{1/3})O_3$ 에서의 마이크로파 유전특성은 $x=0.1$ 조성부근과 $x=0.7$ 조성부근에서 크게 변하는 것을 알 수 있다. 이렇게 주목할 만한 변화를 보인 조성, 즉 $x=0.1$,

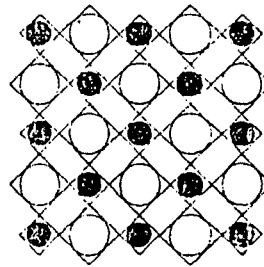
$x=0.7$ 조성부근은 앞에서 설명한 바와 같이 결정 구조가 바뀌는 조성과 거의 일치하는 것을 볼 수 있다. $x=0.1$ 조성부근은 육방정 구조(1:2 규칙화)에서 면심입방정 구조(1:1 규칙화)로 전이가 일어나는 조성이며, $x=0.7$ 조성부근은 면심입방정 구조(1:1 규칙화)에서 새로운 규칙구조로 변하는 전이 경계 점에 해당한다.

따라서 $Ba(Mg_{1/3}Nb_{2/3})O_3 - La(Mg_{2/3}Nb_{1/3})O_3$ 에서의 마이크로파 유전특성은 그 조성의 결정구조와 밀접한 관련이 있는 것으로 추정된다.

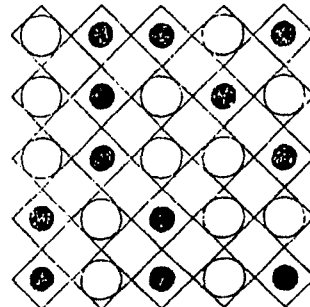
유전율의 변화에 대해서 고찰해 보고자 한다. 일반적으로 유전체에서의 유전율은 공간전하분극, 배향분극, 이온분극, 전자분극에 의해서 결정되지만 마이크로파 영역에서의 유전율은 이들 중에서 이온분극과 전자분극에 의해서 결정되며, 이런 분극은 그 물질의 결정구조와 밀접한 관련이 있는 것으로 알려져 있다.

그림 3은 복합 페로브스카이트의 규칙구조와 불규칙 구조의 격자면을 나타낸 것으로, 규칙구조에서는 그림 (a)과 같이 B자리 이온들이 각각의 이온반경에 맞는 큰 격자를 이루어 일정한 배열을 하기 때문에 이동할 공간(space)이 적다.

a) Ordered



b) Disordered



○ B_I ion
● B_{II} ion

그림 3. $A(B_I B_{II})O_3$ 페로브스카이트의 결정구조 모델

그러나 불규칙 구조에서는 그림 (b)과 같이 B자리 이온이 random(확률적으로 배열됨)하게 배열되어 있기 때문에 격자는 이온반경이 큰 B자리 이온의 크기에 의해 대부분 결정된다.

따라서 그림에서 나타난 바와 같이 불규칙구조에서 이온이 움직일 수 있는 공간(space)은 규칙구조에 비해서 크게 되며, (a),(b)구조상태에서 유전율을 측정하면, 이온 변위가 용이하고, 변위량도 큰 (b)의 경우, 즉 불규칙 구조가 더 큰 유전율을 가질 것으로 생각된다.[9] 그림 2의 결과에서 보면, $x=0.025$ 부근에서 유전율이 크게 증가하는데, 이것은 $x=0.025$ 조성에서 관찰된 불규칙 구조와 밀접한 관련이 있는 것으로 보여진다. 또한 Ikawa등은 $(Ba_{1-x}Ca_x)(Mg_{1/3}Ta_{2/3})O_3$ 복합 페로브스카이트에서 BMT에 Ca를 치환함으로써 결정구조가 변하는 조성까지($x=0.3$ 조성부근) 유전율이 증가하는 것을 관찰하였다.[10] 이들은 A 자리 이온의 크기에 의한 유전율의 변화를 고찰하였는데, $Ba(0.134nm)$ 이온반경이 작은 이온($Ca: 0.099 nm$)이 치환되면 이온이 움직일 수 있는 공간(space)이 상대적으로 커지기 때문에 유전율이 증가하는 것으로 설명하였다. 이러한 결과는 Ba이온에 이온반경이 작은 $La(0.114nm)$ 이온을 치환한 BMN-LMN 고용체에서도 La치환에 따라 이온이 움직일 수 있는 공간이 커짐으로서 유전율이 증가하는 것으로 예측할 수 있다. 또한 결정구조가 바뀌는 조성영역($x=0.1$ 부근)까지는 유전율이 증가하다가, 그 이상의 조성에서는 다시 일정하게 감소하는 경향을 보이고 있는데, 이것은 $x=0.1$ 조성이상에서는 1:1 입방정 구조를 가지기 때문에 그 자체구조가 가지는 유전율을 나타내는 것으로 보여진다.

공진주파수 온도계수(τ_f)는 $Ba(Mg_{1/3}Nb_{2/3})O_3$ 에서 +32 정도이며, $La(Mg_{2/3}Nb_{1/3})O_3$ 은 -86정도로 나타났다. BMN과 같이 Ba계 복합 페로브스카이트 물질의 대부분은 (+)의 공진주파수 온도계수(τ_f)를 나타낸다. 이것은 일반적으로 Ba계 복합 페로브스카이트 물질은 산소팔면체 tilting이 없는 구조를 가지고 있으면서, (-)의 유전율의 온도계수(τ_e)를 가지고 있기 때문이다. 또한 $La(Mg_{2/3}Nb_{1/3})O_3$ 가 (-)의 공진주파수 온도계수(τ_f)를 나타내는 것은 산소팔면체의 tilting에 의한 것으로 보여진다. 즉, 페로브스카이트 구조는 BO_6 팔면체의 결합에 의해 이루어지는데, 만약 산소팔면체에 tilting이

존재하는 경우는 외부의 열에너지가 tilting 정도를 변화시키는데 흡수되어 이온분극의 회복력(restoring force)에 기여하는 양이 작아지므로 유전율의 온도계수(τ_e)는 (+)의 값을 갖게 되어, 공진주파수 온도계수는 (-)의 값을 갖게 된다. 그러므로 $La(Mg_{2/3}Nb_{1/3})O_3$ 은 산소팔면체 tilting(in-phase tilting, anti-phase tilting)을 가지고 있으므로 (-)의 공진주파수 온도계수(τ_f)를 갖는 것으로 생각된다.

그림 2에서 공진주파수 온도계수는 유전율과 비슷한 경향을 보여주고 있는데, 결정구조가 바뀌는 조성부근($x=0.1$ 부근)에서 가장 높은 값을 갖는다. $x=0.1$ 조성부근에서 La 치환량을 증가시키면 $x=0.7$ 조성부근(결정구조가 변하는 조성)까지 급격하게 감소하다가, 그 이상에서는 감소 폭이 줄어들었다.

공진주파수 온도계수(τ_f)는 α (선팽창계수)와 유전율의 온도계수(τ_e)의 합으로 표현할 수 있으며, α 는 복합 페로브스카이트물질에서는 10ppm/°C 정도의 거의 일정한 값을 가지고 있다. 또한 유전율의 온도계수(τ_e)는 분극율의 온도계수($\partial a_m / \partial T$)v에 의해 영향을 받으며, 이런 분극율의 온도계수($\partial a_m / \partial T$)v는 주로 결정구조에 의해 영향을 받는다. Reaney등은 이런 결정구조와 온도계수와의 관계를 설명하기 위해서 Ba, Sr계의 복합 페로브스카이트에서 tolerance factor와 유전율의 온도계수 τ_e 와의 관계를 고찰하였으며, 그 결과를 보면 두개의 불연속점이 $t=0.985$ 와 $t=0.965$ 부근에서 나타났으며 이들 경계는 각각 anti-phase tilting과 in-phase tilting이 시작되는 경계점임을 제안하였으며, tolerance factor가 적은 값을 갖는 영역에서는 유전율의 온도계수, τ_e 는 (+)의 값을 나타내었다. 또한 anti-phase tilting이 시작되는 영역에서 기울기가 바뀌는 것을 알 수 있다. [11]

그림 4는 $(1-x) Ba(Mg_{1/3}Nb_{2/3})O_3 - x La(Mg_{2/3}Nb_{1/3})O_3$ 고용체에서 tolerance factor와 유전율의 온도계수, τ_e 와의 관계를 나타내었다.(그림에서 (BLMN0.1)는 위 조성에서 x 가 0.1인 조성을 나타냄)

여기서 유전율의 온도계수, τ_e 는 식에서 계산한 것이며, 이때 α (선팽창계수)는 10ppm/°C으로 하였다. 그림에서 보면 Reaney등의 연구결과와 거의 유사한 경향을 보여주고 있다.[11]

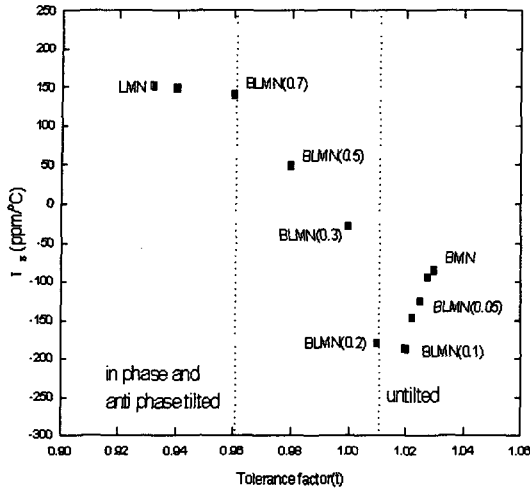


그림 4. BLMN의 유전율과 온도계수(τ_e)와 Tolerance factor(t)

특히 BLMN(0.1)과 BLMN(0.7) 조성에서 불연속적인 모습을 나타내고 있는데, 이것은 앞에서 설명한 $\text{Ba}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3 - \text{La}(\text{Mg}_{2/3}\text{Nb}_{1/3})\text{O}_3$ 에서 결정구조의 변화가 일어나는 조성과 일치한다. Nagai 등은 $(\text{Ba}_{1-x}\text{Sr}_x)(\text{Mg}_{1/3}\text{Ta}_{2/3})\text{O}_3$ (BSMT) 복합 페로브스카이트에서 조성에 따른 공진주파수 온도계수의 변화를 고찰하였다.[12] 고찰된 BSMT에서도 특정 조성($x=0.6$)에서 공진주파수 온도계수가 최대가 되었으며, 그 이후 다시 감소하는 경향을 나타내었는데 전체적인 경향은 본 연구에서의 결과와 일치하였다. 특히 Nagai 등은 조성에 따른 공진주파수 온도계수의 변화와 공진주파수의 온도계수가 특정 조성에서 최대를 나타나는 이유를 산소팔면체의 anti-phase tilting에 의해 나타나는 새로운 격자진동(lattice vibration)의 polar mode로 설명하였다.

한편 그림 2에서 품질계수는 공진주파수 온도계수와 유전율의 변화와 다른 양상을 보이고 있는데, 품질계수는 La의 치환량(x)이 증가함에 따라 급격히 감소하며 넓은 영역($x = 0.1 \sim 0.7$ 부근)에서 최소치를 보이다가 그 이상에서는 다시 증가하는 경향을 보이고 있다.

Ferreira 등은 마이크로파 유전체에서의 유전손실을 크게 내적 손실(intrinsic loss)과 외적 손실(extrinsic loss)로 구분하여 설명하였다.[13] 내적 손실은 주로 특정물질의 결정구조에서 예측할 수 있는 것으로 그 물질의 격자진동모드(lattice

vibration mode)의 비조화성(anharmonicity)에 의해 나타나는 것이며, 외적 손실은 격자 빈자리, 입계, 이차상등의 미세 구조 등에 의해 나타나는 손실이다.

BMN에 La를 약간만 치환하더라도($x=0.025$), 품질계수가 급격히 감소하는 것을 볼 수 있는데, 이것은 1:2 규칙구조가 부분적으로 불규칙 구조로 변하면서 앞에서 설명한 바와 같이 유전율이 상승하여, 이온의 평형 위치로부터 변위가 커지므로, 이에 수반되는 내부마찰에 의해 품질계수가 감소하는 것으로 생각된다. 또한 이 조성부근에서 새로이 발견된 여러 형태의 중간상과 규칙-불규칙 입계등에 의해서도 품질계수 감소에 영향을 준 것으로 보여진다. 이러한 급격한 감소는 여러 결정구조(1:1, 1:2 규칙구조와 intermediate상)가 혼합되어 있는 $x=0.1$ 부근 조성까지 계속해서 나타나고 있다. 그리고 면심입방($(\text{NH}_4)_3\text{FeF}_6$) 구조를 갖는 영역(x 가 0.1에서 0.7 조성까지)에서는 낮은 품질계수를 보이고 있는데, 이것은 면심입방 구조에서 진동모드(lattice vibration mode)의 비조화성(anharmonicity)에 의한 것으로 생각되며, 결정구조 자체에 의해 나타난 고유손실일 것으로 생각된다. 일반적으로 면심입방($(\text{NH}_4)_3\text{FeF}_6$) 구조를 가지는 물질은 전반적으로 낮은 품질계수를 보이는 것과 관련이 있는 것으로 생각된다. 또한 품질계수와 밀접한 관련이 있는 미세 조직과 밀도에 있어서도 각 조성에서 거의 유사한 특성을 확인할 수가 있었기 때문에 미세 조직의 영향은 없는 것으로 보인다. Youn 등은 BMT-LMT에서 유사한 결과를 나타내었는데, 면심입방($(\text{NH}_4)_3\text{FeF}_6$) 구조를 가지는 영역에서의 낮은 품질계수는 이 영역에서 관찰되는 원적외선 모드와 관련있는 것으로 설명하였다.[14]

이상에서 $(1-x) \text{Ba}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3 - x \text{La}(\text{Mg}_{2/3}\text{Nb}_{1/3})\text{O}_3$ 에서의 마이크로파 유전특성의 변화를 고찰하였다. 마이크로파 유전특성의 변화는 크게 두 point에서 큰 변화를 나타내었는데, 즉 유전율과 공진주파수 온도계수가 최대치를 가지며 $Q \times f$ 가 급격히 감소하는 point인 $x=0.1$ 조성부근과 품질계수가 다시 증가하며, 공진주파수 온도계수와 유전율의 감소 폭이 완만해 지는 point인 $x=0.7$ 조성부근에서 큰 변화를 나타내었다. $x=0.1$ 조성부근에서는 육방정 구조(1:2 규칙화)에서 면심입방정 구조(1:1 규칙화)로 전이가 일어나는 조성이며,

x=0.7 조성부근에서는 면심입방정 구조(1:1 규칙화)에서 1:1 규칙화구조로 전이가 일어나는 경계점에 해당한다.

4. 결론

(1-x) Ba(Mg_{1/3}Nb_{2/3})O₃ - x La(Mg_{2/3}Nb_{1/3})O₃에서의 마이크로파 유전특성은 x=0.1 조성부근과 x=0.7 조성부근에서 크게 변하였으며, 그 조성의 결정구조와 밀접한 연관이 있는 것으로 해석하였다. 유전율은 다양한 중간상과 불규칙구조에 의해 나타나는 rattling model 과 A자리 이온크기 변화로 설명하였으며, 공진주파수 온도계수는 tolerance factor와 유전율의 온도계수의 관계에서 산소팔면체 tilting으로 설명하였으며, 품질계수는 유전율의 변화와 격자진동모드의 비조화성으로 고찰하였다.

참고 문헌

- [1] K. Wakino, "Recent Development of Dielectric Resonator Materials and Filter in Japan," *Ferroelectrics* 91, 69, 1989.
- [2] 최지원, 하중윤, 안병국, 윤석진, 김현재, "결정구조와 이온 분극율에 따른 (Al, Mg, Ta)₂고용체의 마이크로파 유전상수 특성", 한국전기전자재료학회 논문지, 16권, 2호 p.108, 2003
- [3] T. Nagai and M. Sugiyama, "Contribution of Dielectrics Constant to Change in Temperature Coefficient of Resonant Frequency in (Ba_{1-x}Sr_x)(Mg_{1/3}Ta_{2/3})O₃ Compound," *Jap. J. Appl. Phys.*, Vol. 31, No. 9B, p. 3132, 1992.
- [4] K. Kageyama, "Crystal Structure and Microwave Dielectrics of Ba(Zn_{1/3}Ta_{2/3})O₃ - (Sr,Ba)(Ga_{1/2}Ta_{1/2})O₃," *J. Am. Ceram. Soc.*, Vol. 75, No. 7, p. 1767, 1992.
- [5] T. Nagai, M. Sugiyama, M. Sando and K.Nihara, "Structural Changes in Ba(Sr_{1/3}Ta_{2/3})O₃-Type Perovskite Compounds upon Tilting of Oxygen Octahedra," *Jpn. J. Appl. Phys.*, Vol. 36, No. 3A, p. 1146, 1997.
- [6] S. Y. Cho, K. S. Hong and S.J.Park, "Influence of ZnO Evaporation on Microwave Dielectric Properties of La(Zn_{1/2}Ti_{1/2})O₃," *Mater. Res. Bull.*, 32(6), 725 -735(1997).
- [7] B.W. Hakki and P.D. Coleman, "A Dielectric Resonator Method of Measuring Inductive Capacities in the Millimeter Range," *IRE Trans. Micro Theory Tech.*, MTT-8, 402(1960).
- [8] 백종후, 이미재, 최병현, 지미정, 임은경, 남산 "Ba(Mg_{1/3}Nb_{2/3})O₃ - La(Mg_{2/3}Nb_{1/3})O₃ 복합 페로브스카이트 화합물의 결정구조", 한국전기전자재료학회 논문지, 17권, 7호, 2004
- [9] K. Unicho and L.E. Cross, "Elastic Constant and Thermal Expansion of Cation Disordered Perovskites," *Jpn. J. Appl. Phys.*, 19(7), L398-L400(1980).
- [10] H. Ikawa, M. Touma and O. Fukunaga. "Change in Paelectric Properties of A-site Ion of Perovskite Oxide," *Electroceramics V*, vol 2, 41-44(1996).
- [11] E. L. Colla, I. M. Reaney and N. Setter, "Effect of Structural Change in Perovskite on Temperature Coefficient of the Rrelative Permittivity," *J. Appl. Phys.*, Vol. 74, No. 5, p. 3414, 1993
- [12] T. Nagai and M. Sugiyama, "Anomaly of Dielectrics Constant of (Ba_{1-x}Sr_x)(Mg_{1/3}Ta_{2/3})O₃ Solid Solution and its Relation to Structural Change," *Jap. J. Appl. Phys.*, 32(part1-9B), 4360(1993).
- [13] V. M. Ferreira and J. Petzelt, "Dielectric Spectroscopy of MgTiO₃-Based Ceramics," *J. Mater. Sci.*, 28, 5894(1993).
- [14] H. J. Youn, K. S. Hong, and H. Kim, "Coexistence of 1:2 and 1:1 Long Range Ordering Types in the La-Modified Ba(Mn_{0.33}Ta_{0.67})O₃ Ceramics," *J. Mater. Res.*, 12(3), 589(1996).