

固溶体 PFN-PMW의 유전특성에 관한 연구

論 文

A Study on the Dielectric Characteristics in Pseudobinary PFN-PMW Solid Solution

33~8~4

李文鎬*
(Moon-Ho Lee)

Abstract

The dielectric behavior in pseudobinary $(1-x) \text{Pb}(\text{Fe}_{1/2} \text{Nb}_{1/2}) \text{O}_3 \cdot x \text{Pb}(\text{Mg}_{1/2} \text{W}_{1/2}) \text{O}_3$ solid solution system has been investigated. Specimens were prepared by the conventional mixed-oxide technique, calcined at 850°C for 2 hours, sintered at $810\text{-}1080^\circ\text{C}$ for 1 hour under O_2 atmosphere. From the dependences of the dielectric constants upon frequency and temperature, the relaxator and DPT (diffuse phase transition) behavior have been observed for the composition range of $0.2 \leq x \leq 0.88$. The degree of DPT increases with increasing x for $x \leq 0.5$, reaches the maximum at $x=0.5$, and then decreases with increasing x for $x \geq 0.5$.

1. 서론

높은 대칭성을 가진 고온의 상유전상 (paraelectric phase : PE 相)으로 부터 온도가 낮아짐에 따라 큐리 (Curie) 온도 T_c 에서 상변화가 일어나, 낮은 대칭성을 가진 강유전상 (ferroelectric phase ; FE 相) 이나 반강 유전상 (antiferroelectric phase ; AFE 相)으로 변하게 된다. 이러한 상변화는 상전시에 자발분극의 연속성에 따라, 자발분극이 연속적으로 변화는 제 2차 상전이와 불연속적으로 변화는 제 1차 상전리로 나뉘어진다.^{1),2)}

99°C 이하에서 강유전성을 나타내며, 고온에서 상유전성을 가지는 $\text{Pb}(\text{Fe}_{1/2} \text{Nb}_{1/2}) \text{O}_3$ 화합물은 티탄산바륨과 같은 perovskite 구조를 하고 있으며, ABO_3 구조에서 B-site 이온들인 $\text{Fe}^{3+}, \text{Nb}^{5+}$ 들은 서로 불규칙하게 배열되어 있다.³⁾⁻⁵⁾ 또한 큐리 온도가 38°C 이며, 저온에서 반강유전성을, 고온에서 상유전성을 나타내는 $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/2} \text{W}_{1/2}) \text{O}_3$ 화합물은 B-site 이온인 $\text{Mg}^{2+}, \text{W}^{6+}$ 이온들이 규칙적으로 배열하여 마치 NaCl 과 같은 구조를 하고 있다.^{5),6)} $\text{PFN}[\text{Pb}(\text{Fe}_{1/2} \text{Nb}_{1/2}) \text{O}_3$ 화합물] 과

$\text{PMW}[\text{Pb}(\text{Mg}_{1/2} \text{W}_{1/2}) \text{O}_3$ 화합물] 는 격자상수의 차이가 아주 작으며, 모두 perovskite 구조를 하고 있기 때문에, 두 화합물은 조성의 전구간을 통하여 완전한 고용체를 이루는 것으로 알려져 있다.⁵⁾

이상과 같이 저온상이 서로 다르며, 제 1차 상전이를 하는 것으로 알려진 두 화합물로 부터 고용체를 만들어, 고용체의 상전이 양상을 고찰하고자 하는 것이 본 연구의 목적이다. 따라서 본 연구에서는 일반적인 고상반응으로 $(1-x) \text{PFN} - x \text{PMW}$ 고용체를 만들었으며, 고용체의 온도 변화에 따른 유전특성의 변화를 측정하여 고용체의 상전이 양상을 규명하고자 하였다.

2. 실험방법

본 연구에서 사용된 모든 시편들은 일반적인 고상반응에 의하여 제조되었다.⁷⁾ 원료 분말들은 PbO (순도 99.5%), Fe_2O_3 (순도 99.5%), Nb_2O_5 (순도 99.99%), MgO (순도 99.99%), WO_3 (순도 99.99%) 등이며, 이 분말들을 150°C 에서 24시간 동안 건조시킨 후 평량하였다. 평량된 분말은 $(1-x) \text{Pb}(\text{Fe}_{1/2} \text{Nb}_{1/2}) \text{O}_3 - x \text{Pb}(\text{Mg}_{1/2} \text{W}_{1/2}) \text{O}_3$ 의 형태가 되도록 하였으며, wet ball milling 방법으로 24시간 동안 혼합시켰다. 혼합된 분말을 $80 \sim$

*正 會 員 : 嶺南大 工大 金屬工學科 助教授
接受日字 : 1984年 3月 13日

120 °C 에서 12 시간 동안 건조시킨 후, 850 °C 에서 2 시간 동안 하소 시켰다. 하소 (煨燒) 된 분말을 12 시간 동안 재분쇄하여 잘 건조시킨 후에, 7000 psi 의 압력으로 직경 13 mm ϕ , 두께 2 ~ 3 mm 인 disc 형태로 성형시켰다. 성형된 green compact 들은 산소분위기 하에서 1 시간 동안 소결되었으며, 이때 소결온도는 810 °C 에서 30 °C 씩의 등간격으로 1080 °C 까지 변화되었고, 소결시의 승온 및 냉각속도는 약 500 °C / hour 로 하였다. 소결중에 시편과 시편을 담은 용기 사이의 반응을 방지하기 위해서 백금도가니가 사용되었다.

소결된 시편은 diamond wafering saw 와 연마지를 사용하여 최종 두께가 0.5 ~ 0.6 mm 가 되도록 한 후, 600 °C 정도에서 1 시간동안 소둔시켜 내부 에너지를 제거한 후에 측정용 시편으로 사용하였다. 시편의 앞면에 screen printing 방법으로 Ag-paste (Dupont # 7095) 를 칠한 후에 590 °C 에서 5분동안 소성하여 은전극을 부착시켰다.

전극이 부착된 시편의 유전상수와 유전손실은 capacitance bridge (General Radio 716-C) 를 사용하여 측정하였으며, 1, 10, 20, 50 kHz 의 주파수를 가진 10 Vp-p/cm 의 정현파 전압을 인가하였다. 유전특성의 온도에 따른 변화를 측정하기 위하여 시편의 온도는 분당 0.5 °C 씩 승온되었으며, 시편의 온도는 copper-constantan 열전대와 digital multi-meter (Hewlett-Packard 3465 B) 를 사용하여 ± 0.5 °C 의 정확도로 측정되었다.

3. 결과 및 고찰

3.1 소결 밀도

일반적으로 고상소결에서는 하소분말의 입도, 소결온도, 소결시간 등에 의하여 소결체의 미세조직과 소결밀도가 좌우된다. 하소분말의 입도는 하소온도와 시간 및 재분쇄의 조건에 따라 변하므로 하소 및 재분쇄의 조건이 동일하도록 하였다. 소결시에 소결온도는 하소분말의 화학적 조성에 따라 변하기 때문에 810 °C 부터 30 °C 의 간격으로 1080 °C 까지 변화시켰으며, 소결시간은 모두 1 시간으로 일정하게 두었다. 이와 같은 방법으로 만들어진 소결체의 소결밀도는 그림 1 에 나타나 있다.

가장 높은 밀도를 나타내는 소결온도는 x 가 증가함에 따라 낮아졌는데, 이는 최저 소결온도가 낮은 PMW 의 첨가량이 증가함에 따라 소결능 (sinterability) 이 증가하기 때문인 것으로 생각된다. $x \leq$

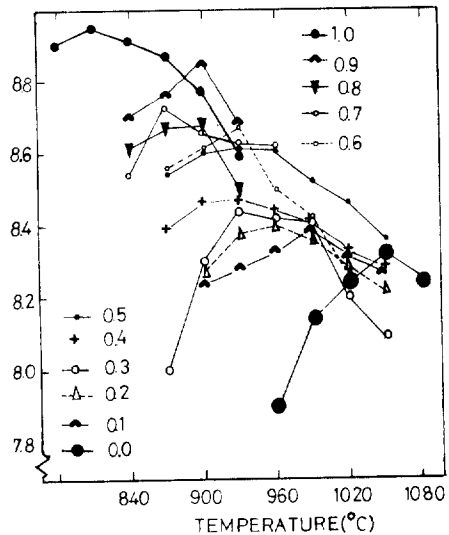


그림 1. 고용체 $(1-x)\text{Pb}(\text{Fe}\frac{1}{2}\text{Nb}\frac{1}{2})\text{O}_3 - x\text{Pb}(\text{Mg}\frac{1}{2}\text{W}\frac{1}{2})\text{O}_3$ 에 대한 소결 온도에 따른 소결밀도의 변화.

Fig. 1. Sintered density variations as a function of the sintering temperature for $(1-x)\text{Pb}(\text{Fe}\frac{1}{2}\text{Nb}\frac{1}{2})\text{O}_3 - x\text{Pb}(\text{Mg}\frac{1}{2}\text{W}\frac{1}{2})\text{O}_3$ solid solution.

0.4 일때는 900 °C 이하에서 소결된 시편은 소결이 불충분하게 이루어졌기 때문에 개기공 (open pore) 이 형성되었는데 비하여, $x \geq 0.6$ 일때는 990 °C 이상에서 용점이 낮은 PbO 의 휘발로 인하여 개기공이 형성되었다. 이상과 같이 개기공이 형성된 시편은 특성측정용으로는 부적당한 것으로 판단된다.

동일한 조성을 가진 시편의 경우에 소결온도가 높아짐에 따라 미세조직의 입자 (grain) 크기는 증가하였으며, 같은 소결온도라 할지라도 조성 x 가 증가함에 따라 입자의 크기는 감소하였다.

소결체의 물리적 특성은 미세조직의 입자크기에 의해서도 영향을 받기 때문에 조성간의 물리적 특성을 비교하기 위해서는 입자의 크기가 비슷한 시편을 취해야 될 것으로 생각된다. 따라서 개기공을 포함하지 않으며, 소결밀도가 가장 높고, 990 °C 에서 1 시간 동안 소결된 $x = 0.0$ 의 입자크기와 거의 비슷한 크기를 갖는 시편의 조성과 소결온도를 나타내면 표 1 과 같이 된다. 조성이 $x = 0.0$, $x = 1.0$ 일때를 제외하고는 각 온도들은 최고 소결밀도를 나타내는 온도와 거의 비슷하며, x 가 증가함에 따라 각 온도들은 감소하는 경향을 보여주고있다. 온도변화에 따른 유전특성 측정은 표 1 에 나타나있는 시편들에 대해

표 1. 산소 분위기 중에서 1 시간 동안 소결된 고 용체 $(1-x)\text{Pb}(\text{Fe}\frac{1}{2}\text{Nb}\frac{1}{2})\text{O}_3-x\text{Pb}(\text{Mg}\frac{1}{2}\text{W}\frac{1}{2})\text{O}_3$ 의 최적 소결 온도.

Table 1. Optimum sintering temperatures in $(1-x)\text{Pb}(\text{Fe}\frac{1}{2}\text{Nb}\frac{1}{2})\text{O}_3-x\text{Pb}(\text{Mg}\frac{1}{2}\text{W}\frac{1}{2})\text{O}_3$ solid solution, sintered for 1 hour under O_2 atmosphere.

composition(x)	temperature(°C)
0.0 - 0.1	990
0.2	960
0.3 - 0.6	930
0.7 - 0.8	900
0.9	870
1.0	840

서 주로 이루어졌다.

3.2 유전특성

유전체의 유전상수와 유전손실계수는 중요한 물리 량중의 하나이며, 이들의 온도 특성으로부터 상전이 온도인 큐리 온도와 상전이 양상이 밝혀질 수 있다.

외부에서 가해주는 압력 (pressure), 전장 (electric field), 측정주파수와 같은 외부조건이 변하거나, 결정내의 내부결함이나 입자크기와 같은 고유특성이 변하면 유전율이 변하며, 열처리 (heat treatment) 와 같은 시편의 열적이력에 의해서도 유전율은 변할 수 있다. 이와 같은 이유로 인하여 유전율의 측정은 거의 동일한 조건하에서 이루어질 수 있도록 하였다. 전극이 부착된 시편을 150°C에서 1시간 동안 열처리를 시켜 상온으로 냉각시킨 후 약 50시간이 경과한 뒤에 특성측정이 이루어졌다.

3.2.1 유전율의 주파수 특성

유전체의 유전율은 주파수에 따라 일반적으로 감소한다. 본 연구에서 사용된 정현파의 주파수는 1~50 kHz 이므로, 주로 Maxwell - Wagner 효과에 의한 계면완화 (interfacial relaxation) 에 의하여 주파수가 증가함에 따라 유전율이 감소 할 것이다.⁸⁾ 그러나 유전상수의 실수부 (K') 의 온도에 따른 변화에서 K' 가 최고로 나타나는 온도 T_a 는 주파수가 변함에 따라 변화지 않게 될 것이다.

그림 2는 $x=0.1$ 에 대한 온도변화에 따른 유전상수의 주파수 특성을 나타낸 것이다. 일정한 온도에서 측정주파수가 증가함에 따라 유전상수가 감소하고, T_a 는 주파수에 따라 변하지 않음을 보여준다.

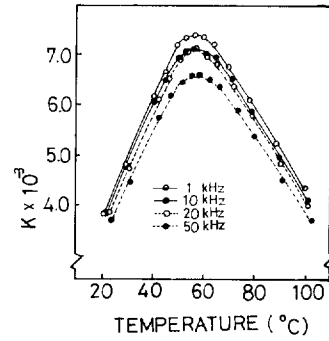


그림 2. $0.9\text{Pb}(\text{Fe}\frac{1}{2}\text{Nb}\frac{1}{2})\text{O}_3-0.1\text{Pb}(\text{Mg}\frac{1}{2}\text{W}\frac{1}{2})\text{O}_3$ 의 온도에 따른 유전상수의 변화.

Fig. 2. Temperature dependence of the dielectric constant for $0.9\text{Pb}(\text{Fe}\frac{1}{2}\text{Nb}\frac{1}{2})\text{O}_3-0.1\text{Pb}(\text{Mg}\frac{1}{2}\text{W}\frac{1}{2})\text{O}_3$.

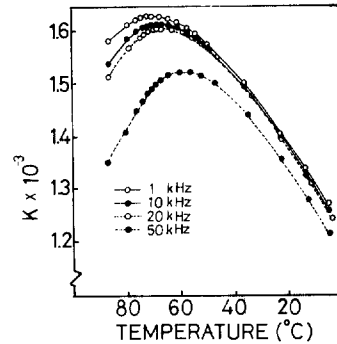


그림 3. $0.5\text{Pb}(\text{Fe}\frac{1}{2}\text{Nb}\frac{1}{2})\text{O}_3-0.5\text{Pb}(\text{Mg}\frac{1}{2}\text{W}\frac{1}{2})\text{O}_3$ 의 온도에 따른 유전상수의 변화.

Fig. 3. Temperature dependence of the dielectric constant for $0.5\text{Pb}(\text{Fe}\frac{1}{2}\text{Nb}\frac{1}{2})\text{O}_3-0.5\text{Pb}(\text{Mg}\frac{1}{2}\text{W}\frac{1}{2})\text{O}_3$.

이와같은 완화현상을 나타내는 조성은 $x \leq 0.1$ 과 $x \geq 0.9$ 로 나타났다.

그림 3은 $x=0.5$ 에 대한 유전상수의 주파수 특성을 나타낸 것인데, 주파수가 증가함에 따라 유전상수가 감소하였을 뿐만 아니라, 온도 T_a 도 높은 온도로 이동하고 있다. 즉 'relaxator' 현상을 나타내는데, 이러한 현상은 $0.2 \leq x \leq 0.88$ 조성에서 관찰되었다. $x \leq 0.55$ 의 조성은 저온에서 강유전상을, $x \geq 0.60$ 의 조성은 저온에서 반강유전상을 각각 나타내므로⁵⁾, relaxator 현상은 상전이가 $\text{FE} \rightarrow \text{PE}$ 뿐만 아니라 $\text{AFE} \rightarrow \text{PE}$ 에서도 나타난다는 것을 알 수 있다.

3.2.2 유전손실 ($\tan \delta, D$) 의 온도특성

유전체에서 상변화가 일어나면 유전 손실에도 그 영향을 미친다. 따라서 온도에 따른 유전손실의 변화로부터 상전이 양상은 다소 밝혀질 수 있다. 교류 전계에서의 Maxwell equation

$$\nabla \times \vec{H} = \vec{j} + j\omega \epsilon \vec{E} = [(\sigma + j\omega \epsilon'') + j\omega \epsilon'] \vec{E}$$

으로부터 유전율의 실질적인 허수부는 $(\epsilon'' + \sigma/\omega)$ 가 된다. 본 연구에서 사용된 시편의 경우에는 10 kHz 에서 측정 한 ϵ'' 가 σ/ω 에 비하여 아주 크기 때문에 $(\epsilon'' \gg \sigma/\omega)^{5)}$, 실질적인 허수부는 ϵ'' 와 거의 같은 값이 된다. 따라서 유전손실계수 D는

$$D = [(\sigma + j\omega \epsilon'')/\omega \epsilon'] \approx (\epsilon''/\epsilon') = (K''/K'), \epsilon' = K' \epsilon_0$$

$\epsilon'' = K'' \epsilon_0$; ϵ_0 는 진공의 유전율

가 되므로, K'' 는 K' 와 D로부터 직접 구해질 수 있다. 그림 4~7은 $x = 1.00, 0.0, 0.50, 0.88$ 일 때 10kHz에서 측정 한 K', K'', D 등의 온도에 따른 변화를 각각 나타낸 것이다.

순수한 $Pb(Mg_{1/2}W_{1/2})O_3$ 화합물 즉 $x=1.00$ 일때의 유전특성을 나타낸 그림 4로 부터 K' 와 K'' 의 온도의존성이 거의 비슷한 것을 알 수 있다. K' 와 K'' 는 상전이 온도 부근에서 최고값을 나타내며, K' 와 K'' 의 최고값을 나타내는 온도와 D의 최고값을 나타내는 온도와 D의 최소값을 나타내는 온도는 서로 일치하고 있다. 그런데 그림 5에 나타났는 순수한 $Pb(Fe_{1/2}Nb_{1/2})O_3$ 에 대한 결과는 그림 4와 다소 다른 경향을 보여주고있다. 즉 상전이 온도 부근에서 K' 는 최고값을 나타내는 반면에 K'' 는 D와 같이 최소값을 나타내고 있다. 상전이 온도 부근에서 K'' 가 최소값을 나타내는 현상은 다른 물질에서도 나타나는 것으로 보고된 바 있으며⁹⁾, relaxati-

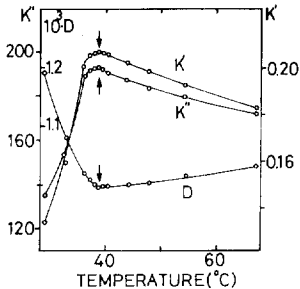


그림 4. 10 kHz에서 측정 한 pb(Mg $\frac{1}{2}$ W $\frac{1}{2}$)O $_3$ 에 대한 K', K'', D 의 온도의존성.

Fig. 4. Temperature dependences of K', K'' and D for pb(Mg $\frac{1}{2}$ W $\frac{1}{2}$)O $_3$, measured at 10 kHz.

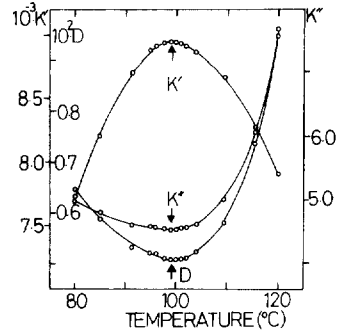


그림 5. 10 kHz에서 측정 한 Pb(Fe $\frac{1}{2}$ Nb $\frac{1}{2}$)O $_3$ 에 대한 K', K'', D 의 온도의존성.

Fig. 5. Temperature dependence of K', K'' and D for Pb(Fe $\frac{1}{2}$ Nb $\frac{1}{2}$)O $_3$, measured at 10 kHz.

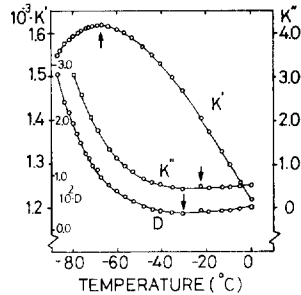


그림 6. 10 kHz에서 측정 한 0.5Pb(Fe $\frac{1}{2}$ Nb $\frac{1}{2}$)O $_3$ -0.5Pb(Mg $\frac{1}{2}$ W $\frac{1}{2}$)O $_3$ 에 대한 K', K'', D 의 온도의존성.

Fig. 6. Temperature dependence of K', K'' and D for 0.5Pb(Fe $\frac{1}{2}$ Nb $\frac{1}{2}$)O $_3$ -0.5Pb(Mg $\frac{1}{2}$ W $\frac{1}{2}$)O $_3$, measured at 10 kHz.

on 을 도입하여 설명하고자 시도 되었으나, 아직 자세히 규명되지는 않았다.¹⁰⁾ 그러나 그림 5에서도 K_{max} 의 온도와 K'' 나 D의 최소값을 나타내는 온도는 서로 일치하고 있다. 이상과 같이 K', K'', D 들의 극값을 나타내는 온도들이 서로 일치하는 조성구간은 $x \leq 0.1$ 또는 $x \geq 0.90$ 이며, 이 조성에서는 비교적 예리한 상전이 현상을 나타낸다.

그림 6과 그림 7은 relaxator 현상을 나타내는 조성인 $x = 0.50$ 과 $x = 0.88$ 에 대하여 측정 한 결과를 도시한 것인데, 두 경우 모두 온도가 증가함에 따라 K' 는 증가하여 상전이 온도 부근에서 최고값을 가진다. 반면에 D와 K'' 는 상전이 온도 부근에서 최고값을 나타내고 있다. 또한 그림 4~5와는 달리 K' ,

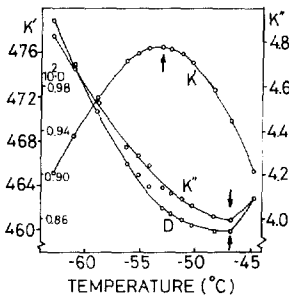


그림 7. 10kHz에서 측정한 $0.12\text{Pb}(\text{Fe}_{1/2}\text{Nb}_{1/2})\text{O}_3 - 0.88\text{Pb}(\text{Mg}_{1/2}\text{W}_{1/2})\text{O}_3$ 에 대한 K', K'', D 의 온도의존성

Fig. 7. Temperature dependence of K', K'' and D for $0.12\text{Pb}(\text{Fe}_{1/2}\text{Nb}_{1/2})\text{O}_3 - 0.88\text{Pb}(\text{Mg}_{1/2}\text{W}_{1/2})\text{O}_3$, measured at 10 kHz.

K'', D 의 극값을 나타내는 온도가 서로 일치하지 않음을 알 수 있다. 본 연구자의 선행된 연구결과에 의하면 조성이 $x \leq 0.1, x \geq 0.90$ 일때는 예리한 상전이를 나타내며, $0.2 \leq x \leq 0.88$ 에서는 DPT (diffuse phase transition) 현상을 나타내는 것으로 밝혀졌다.^{5,7)} 따라서 relaxator 현상과 K', K'', D 의 극값을 나타내는 온도가 서로 일치하지 않을 경우에는 DPT 현상을 나타낸다는 것을 알 수 있다.

DPT 현상을 나타내는 유전체의 특성은 다음과 같다.¹¹⁾

- ① $K' (T_c)$ peak broadening,
- ② $T > T_c$ 에서 잔류분극 (Pr) 존재,
- ③ 여러가지 물리량 변화로부터 구한 상전이 온도들의 불일치,
- ④ $T > T_c$ 에서 Curie - Weiss 법칙을 만족하지 않음.

이러한 DPT 현상은 상전이 온도 부근에서 조성이나 자발분극 (또는 결정구조)이 fluctuate 하기 때문에 일어나는 것으로 알려졌다.¹²⁾ 즉 거시적으로는 조성이 균일할지라도 미시적으로 조성이 불균일하여 조성이 균일한 미소영역 (microregion)이 존재하거나, 상전이 온도 부근에서 고온상과 저온상의 열역학적 포텐셜의 차이가 작기 때문에 열에 의한 fluctuation이 일어날 수 있다. 따라서 fluctuation이 심하게 일어나면 DPT 현상의 정도가 아주 심하게 될 것이다. 그림 8은 K' 와 K'' 의 극값을 나타내는 온도 (T_a 와 T_b)의 차이 ($\Delta T = T_b - T_a$)를 조성 (x)의 변화로 나타낸 것이다. 조성이 $x \leq 0.1, x \geq 0.90$ 일때는 $\Delta T = 0$ 이며, $0.2 \leq x$

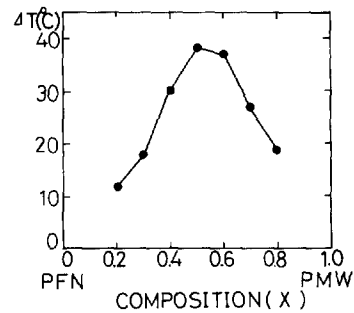


그림 8. 고용체 $(1-x)\text{Pb}(\text{Fe}_{1/2}\text{Nb}_{1/2})\text{O}_3 - x\text{Pb}(\text{Mg}_{1/2}\text{W}_{1/2})\text{O}_3$ 에서 조성 (x)에 따른 ΔT 의 변화. $\Delta T = T_b - T_a$;

T_a : K' 의 최고 온도, T_b : K'' 의 최고 온도.

Fig. 8. ΔT vs. composition (x) for $(1-x)\text{Pb}(\text{Fe}_{1/2}\text{Nb}_{1/2})\text{O}_3 - x\text{Pb}(\text{Mg}_{1/2}\text{W}_{1/2})\text{O}_3$ solid solution. $\Delta T = T_b - T_a$;

T_a : K' -maximum temperature, T_b : K'' -minimum temperature.

≤ 0.88 일때는 DPT 현상이 나타나며 T_b 가 T_a 보다 큰 것을 알 수 있다. 또한 x 가 증가함에 따라 ΔT 가 증가하며, $x = 0.5$ 일때 최고를 나타낸 후 다시 감소한다. 따라서 $x = 0.5$ 일때 DPT 현상이 가장 심하게 일어나는 것을 알 수 있다.

4. 결론

$(1-x)\text{Pb}(\text{Fe}_{1/2}\text{Nb}_{1/2})\text{O}_3 - x\text{Pb}(\text{Mg}_{1/2}\text{W}_{1/2})\text{O}_3$ 고용체에서 조성이 $x \leq 0.1, x \geq 0.90$ 일때 예리한 상전이를 나타내며, 주파수가 증가함에 따라 유전상수가 감소한다. $0.2 \leq x \leq 0.88$ 일때는 주파수가 증가함에 따라 유전상수는 감소하며, 유전상수의 최고값을 나타내는 온도가 증가하는 relaxator 현상을 나타낸다. 또한 $0.2 \leq x \leq 0.88$ 일때 K', K'', D 의 극값을 나타내는 온도들이 서로 일치하지 않는 DPT 현상을 나타내며, DPT의 정도는 $x = 0.5$ 일때 가장 심하다.

참고 문헌

- 1) R. Blinc and Zeks, Soft modes in ferroelectrics and antiferroelectrics, Am. Elsevier Pub. Co. Inc., New York, 1974.
- 2) B. Jaffe, W. R. Cook, Jr and H. Jaffe, Piezoelectric Ceramics, Academic Press, Lon-

- don, 1971.
- 3) A. I. Agranovskaya et al., Zh. Tekh. Fiz., 28, 2152(1958).
 - 4) D. Berlincourt, SC-4443(RR), Sandia Corp., Tech. Rept., US Dept. Commerce, Washington, D. C. 20025(1960).
 - 5) M. H. Lee and W. K. Choo, J. Appl. Phys. 52(9)5767(1981).
 - 6) A. I. Zaslavskii and M. F. Bryzhina, Sov. Phys. -Cryst. 7(5)577(1963).
 - 7) W. K. Choo and M. H. Lee, J. Appl. Phys. 53(11)7355(1982).
 - 8) R. Coelho, Physics of Dielectrics for the Engineer, Elsevier Sci. Pub. Co., Amsterdam, 1979.
 - 9) A. H. Meitzler and H. M. O Bryan, Jr., Proc. IEEE, 61(7)959(1973).
 - 10) G. A. Smolensky et al., Sov. Phys. -Solid State, 2(11)2584(1961).
 - 11) C. G. F. Stenger and A. J. Burggraaff, J. Phys. Chem. Solid, 41, 25(1980)
 - 12) G. A. Smolensky, J. Phys. Soc. Jpn. 28(suppl) 26(1970).