

Czochralski법을 이용한 금속 단결정의 성장과 구조적, 전기적 성질에 관한 연구

박정훈^a · 차수영^a · 박상언^b · 김성규^c · 조채룡^d · 박혁규^{a,e} · 김형찬^f · 정명화^f · 정세영^{d,*}

^a부산대학교 물리학과, ^b주식회사 엠씨랩, ^c부산대학교 유전체물성연구소,
^d부산대학교 나노과학 기술대학, ^e한국 기초과학지원 연구원 부산센터,
^f한국 기초과학지원 연구원 부설 핵융합연구센터

The Fabrication of the Single Crystal Wire from Cu Single Crystal Grown by the Czochralski Method and its Physical Properties

Jeung Hun Park^a, Su Young Cha^a, Sang Eon Park^b, Sung Kyu Kim^c, Chae Ryong Cho^d,
Hyuk K. Pak^{a,e}, Hyung Chan Kim^f, Myung Hwa Jeong^f and Se-Young Jeong^{d,*}

^aDepartment of Physics, Pusan National University, Busan 609-735, Korea

^bMCLab. Co. Ltd., Pusan National University, Busan 609-735, Korea

^cResearch Center for Dielectric and Advanced Matter Physics (RCDAMP),
Pusan National University, Busan 609-735, Korea

^dCollege of Nano Science and Technology, Pusan National University, Busan 609-735, Korea

^eBusan Center, Korea Basic Science Institute, Busan 609-735, Korea

^fKorea Basic Science Institute(KBSI), Daejeon, Korea

Abstract

It is well known that the general metals have a lot of grain boundaries. The grain boundaries play a negative role to increase the resistivity and to decrease the conductivity. The small resistivity and the large conductivity have been a goal of the material scientists, and no signal noise, perfect signal transfer, and the realization of the real sound are the dream of electronic engineers and audio manias. Generally, oxygen free copper (OFC) and Ohno continuous casting (OCC) copper cables have been used for the purpose of the precise signal transfer and low noise. However they still include a lot of grain boundaries. In our study, we have grown the single crystal by the Czochralski method and succeeded to produce single crystal wires from the crystal in the dimension of 0.5×0.5×2500 mm. The produced wire still possesses very good single crystal properties. We observed the structure of the wire, and measured the resistance and impedance. Glow Discharge Spectrometer (GDS) was used for analyzing the compositions of copper single crystals and commercial copper. Current-Voltage curve, resistance, total harmonic distortion and speaker frequency response were measured for comparing electrical and acoustic properties of two samples.

1. 서 론

구리 (Copper, Cu)는 천연의 금속으로서도 산출되고, 제련법도 비교적 간단하기 때문에 오래전부터 이용되어 왔다. 현대 산업사회에서 구리는 열 및 전기전도도가 은에 이어 2번째로 큰 물질이기 때문에 전자산업의 핵심재료로 사용되어 지고 있

다. 저항값이 낮기 때문에 순도 높은 구리는 극저온 재료로 사용되며, 코팅재료 (Cu-Ni), 형상기억 합금 재료 (Cu-Zn, Cu-Zn-Al, Cu-Zn-Mn), 탄성재료 (Cu-Zn, Cu-Ni-Zn) 등의 전기적, 기계적, 내부식성, 열전도, 내마모성 등의 복합적인 특징에 매우 유용하다.¹⁻⁵⁾

일반적인 구리의 물리, 화학적 특성을 살펴보면

녹는점은 1084°C, 끓는점은 2527°C, 밀도는 8.92 g/cm³, 저항은 1.67×10^{-8} Ohm-m(293 K)이다.^{6,8)} 화학적인 성질로 구리는 공기중에서 열을 가하면 쉽게 산화되어 CuO, Cu₂O 등의 산화구리를 형성한다. 구조적인 성질로 Cu 단결정은 입방정계(cubic)으로 면심입방(face-centered cubic, fcc)구조를 가지고 공간군은 Fm $\bar{3}$ m이고, 격자상수는 $a=3.6149$ Å이다.⁹⁾

일반적으로 금속 단결정을 육성시키는 방법으로는 Czochralski법, Bridgeman법, zone melting법 등이 있다.¹⁰⁾ 이중에서도 Czochralski법은 물질을 용융시킨후 종자결정을 표면에 접촉시킨 후 서서히 위로 끌어올리며 단결정을 성장시키는 방법으로 용융점이 높고, 정밀산업에 이용되는 고순도 결정을 만들수 있다는 장점을 가진다.

본 실험에서는 99.99% (4N)의 구리 시편을 사용하여 Czochralski법으로 성장한 단결정 구리와 일반 구리의 물성을 비교하였다. 구조적인 특징을 알아보기 위해 GDS (glow discharge spectrometer)로 결정 성분의 함량비를 확인하고, X선 회절 분석법(X-ray diffractometer, XRD)을 이용하여 구리 결정의 결정성을 시험하였다. 전자현미경(scanning electron microscope, SEM)을 이용하여 격자의 규칙성 및 표면의 상태를 확인하였다. 전기적인 성

질을 비교하기 위해서 전류-전압, 저항, 임피던스 측정을 실시하였다. 선재로 가공된 구리의 음향학적 성질 비교를 위하여 조화 주파수 왜곡(total harmonic distortion, THD), 공칭 임피던스 스피커 응답 특성 시험(speaker frequency response test)을 실시하였다.

2. 실험 방법

구리를 비롯한 금속 단결정의 육성을 위해서는 일반 대기 중이 아닌 진공 혹은 불활성 기체분위기에서 단결정 육성이 이루어져야 한다. 대부분의 금속은 표면이 산화되려는 경향이 있으며 특히 고온이나 용융상태에서 특히 산소와의 반응이 쉽게 이루어진다. 따라서 본 실험은 시료의 산화를 최소화시키기 위해 불활성 기체분위기에서 Czochralski법을 활용하여 순수한 구리 단결정을 육성하였다.

금속 단결정은 고온에서 급격한 산화 반응이 최소가 되도록 분위기 용기(chamber) 내를 10^{-3} Torr의 진공을 만들고 고순도 아르곤을 대기압보다 조금 높은 압력으로 채워 외부의 공기가 용기내로 유입되는 것을 차단한 후 승온을 시작한다. 외부의 고주파 발생장치를 사용하여 용기내에 유도 코일에 고주파를 가하고 도가니를 가열한다. 그러

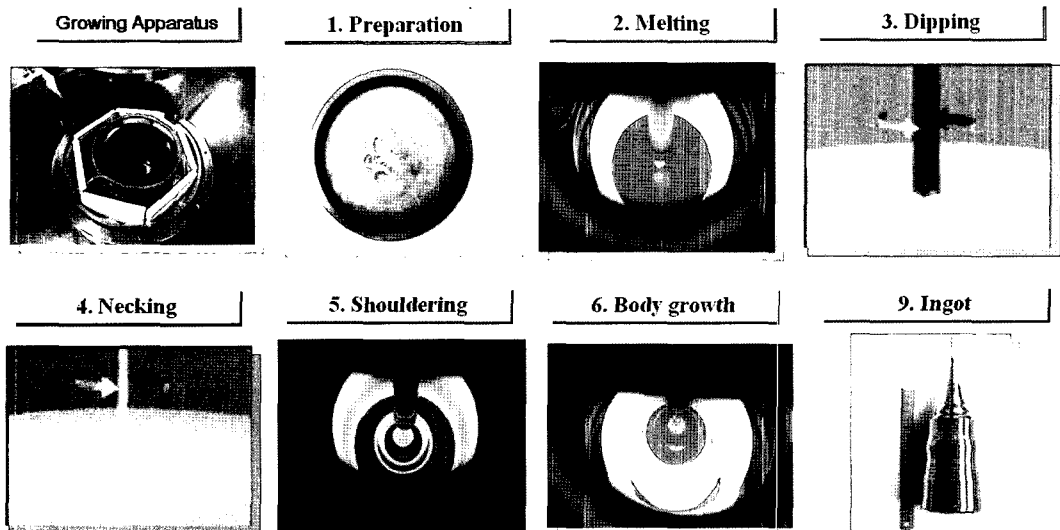


Fig. 1. Czochralski법을 이용한 구리 단결정의 성장과정.

면 탄소도가니와 출발시료인 구리 분말이 발열하게 된다. 이 경우 열전대는 발열하는 탄소 도가니 바닥에 접하고 있으며 온도 조절기를 통하여 일정한 승온율에 따라 조절된다. 구리의 녹는점은 1084.5°C로 이 온도에 접근하면 부분별로 서서히 구리가 녹게 된다. 이때 고체상태와 액체상태에서의 전도도 차이로 인해 이 부근에서의 온도는 심한 요동현상이 발생하기 때문에 결정성장을 위한 안정화 시간이 요구된다. 충분히 온도가 안정되면 구리 종자 결정을 용액 면에 천천히 근접시켜 시간당 5~6 mm/hrs.의 속도로 천천히 상승시키면서 분당 15회의 속도로 회전하도록 하였다.

Fig. 1은 Czochralski법을 이용한 구리 단결정의 성장과정을 나타낸 것이다. 종자결정에서 인상장치를 통하여 일정크기 이상으로 성장시킨후 상온에서 천천히 생각시켜 순수한 구리 단결정을 얻을 수 있었다. 성장되는 단결정의 크기는 도가니의 내부 직경에 따라서 틀리지만 60 mm × 60 mm × 120 mm이상의 단결정을 얻을 수 있었다(Fig. 2).

사용한 원료 시약의 순도는 99.99%의 구리 분말(Sigma Co. Ltd.)을 사용하는데 시약속의 불순물과 용기내에 잔존하는 불순물들은 용액의 부유물로 나타난다. 이러한 부유물들은 시료내에 존재하는 미량의 불순물과 용기 내의 미세한 불순물 등 때문인데 용액의 윗면에 얇은 막을 형성한다. 용융상태에서 온도가 안정된 상태를 지나면 이러한 부유물들은 용액 아래의 도가니 바닥면으로 침전하게 되고 용액은 맑고 투명한 상태가 된다.

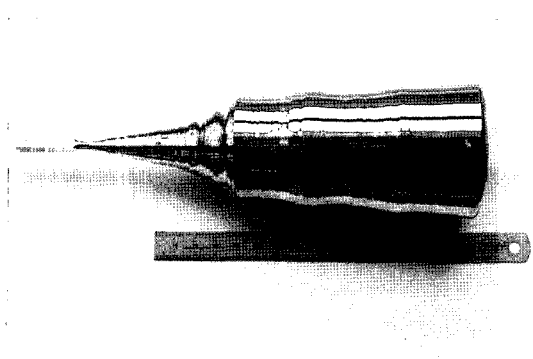


Fig. 2. Czochralski법을 이용하여 성장시킨 고순도 구리 단결정.

또한 단결정으로 육성되는 부분은 불순물들이 배제되기 때문에 일반적으로 용액의 순도보다 많이 개선된다.

Czochralski법으로 성장된 시료와 일반 구리(LS Cable, Korea)와 성분을 비교분석하기 위하여 GDS 장치를 사용하였다. GDS는 크게 글로우 방전부(glow discharging cell)과 polychromator부분으로 나눈다. 글로우 방전부는 플라즈마를 발생시키는 부분으로써 몸체부분, 일정한 가스의 유량 유지부분, 시료 지지부분으로 나눌 수 있다. Polychromator는 플라즈마 발생시에 나오는 복합관을 분석하는 다중채널 분광기로 동시에 여러 성분을 측정한다. 측정시 measurement type은 bulk analysis measurement를 사용하였다.

육성된 단결정 시료를 결정성의 손상없이 가공을 통해 단결정 와이어 형태로 제작하였다. 완성된 단결정 와이어의 배향 방향을 확인하기 위하여 XRD(GDX-1193A Rigaku사) 장치를 사용하여 X-ray회절 실험을 하였다. 측정시 scan speed는 분당 2 deg.로 측정하였으며, 측정범위는 40 deg.~120 deg.범위에서 0.02 deg. 간격으로 실시하였다. Tube의 출력은 40 kV × 30 mA이었으며 Cu target의 파장은 1.54 Å인 K α 선을 사용하였다. 또한 일반 구리와 단결정 구리 와이어의 가공후 결정의 규칙성을 조사하기 위하여 SEM(Hitachi S-4200, Japan)을 사용하여 표면 관측을 통해 etch pit pattern을 확인하였다.

구리 선재의 전류-전압 특성은 high voltage source measurement Unit(Keithley 237, Keithley, USA)를 이용하여 측정하였다. 먼저 Ohmic contact을 만들기 위하여 silver paste를 이용하여 전극의 접촉저항을 최소화하도록 하였다. 측정 장비의 인가 전압은 ± 1.5 V의 영역에서 실시하였고 전류를 측정하기 전까지의 대기시간은 1초, 전압을 가한후 전류를 측정하기까지의 지연 시간은 100 ms, 전압의 측정 간격은 0.005 V 간격으로 하였다.

음향신호 전달 특성을 알아보기 위해서 단결정 구리를 결정성의 손상없이 0.5 mm × 0.5 mm × 2500 mm의 선재 형태로 가공하여 단결정 와이어 시편을 제작하였다. 조화파 왜곡 (THD), 스피커 주파수 응답 특성 측정을 주성대학교 스피커 & 음향

기술혁신센터 (Speaker & Audio Technology Innovation Center, SATIC)의 무향실 (anechoic chamber, KSC 6027)에서 단결정 와이어와 무산소동 (oxygen free cable, LS Cable) 와이어에 대해서 비교실험을 하였다. 무향실은 벽면으로 부터 소리의 반사가 없는 공간으로서, 스피커 (음원)에서 나온 소리가 사람의 귀에 직접적으로 전달되는 소리만을 청취할 수 있는 자유음장 공간을 의미한다. 무향실의 실험 조건은 차단주파수는 63 Hz 이하이며, 암소음 레벨은 20 dB, 크기는 5 m(D)×5 m(W)×5 m(H)이다. 실험에 사용된 기기는 Audio Analyzer (B&K 2012), Power Amplifier (B&K 2716C), Condensed Microphone (B&K 4191)와 음향스피커를 사용하였다. 측정시 시료와 마이크와의 거리는 0.5 m로 하였고 정격입력은 1.0 W로 하였다. 또한 온도는 21.7°C 습도는 38%였다.

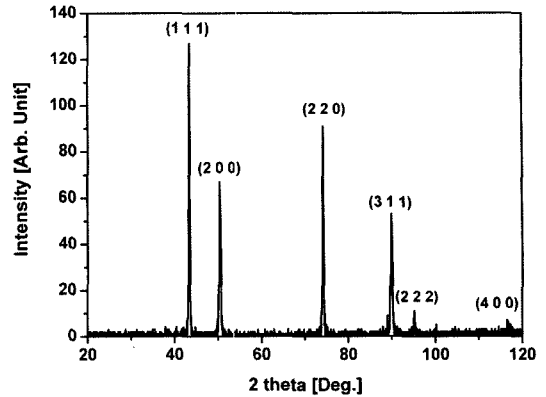
3. 실험 결과 및 고찰

탄소 도가니가 쉽게 분말을 발생시키는 경향이 있어 성장한 단결정에 불순물로 침투하여 작용할 가능성에 대해서 GDS를 이용하여 측정하였지만 탄소원자는 단결정 내에서 측정되지 않았으며 성장된 단결정 구리 시료의 순도는 99.99% 이상으로 양호하였다(Table 1).

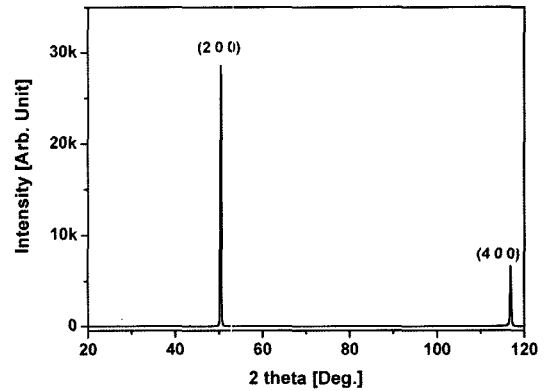
Fig. 3은 와이어 형태로 가공된 일반구리 (poly crystal Cu wire)와 단결정 구리 (single crystal Cu wire)의 XRD 측정 결과이다. Fig. 3(a)의 결과와

Table 1. 단결정 구리와 일반 구리의 GDS 측정결과

Element	Single Cu (Weight %)	Poly Cu (Weight %)
Cu	99.99	99.92
Ag	0.001313	0.00623
Al	0.000393	0.000426
Cr	0.000653	0.000536
Fe	0.002758	0.002752
Mg	0.000605	0.000659
Ni	0.000271	0.01378
P	0	0.00505
Pb	0.00082	0.00794
Sb	0.00011	0.0023
Sn	0	0.03049
Zn	0	0.0026



(a) Poly Crystal Cu Wire

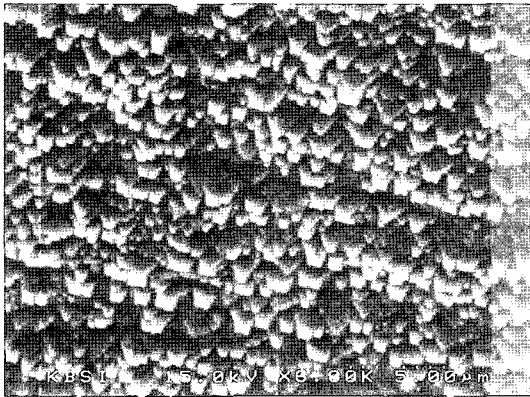


(b) Single Crystal Cu Wire

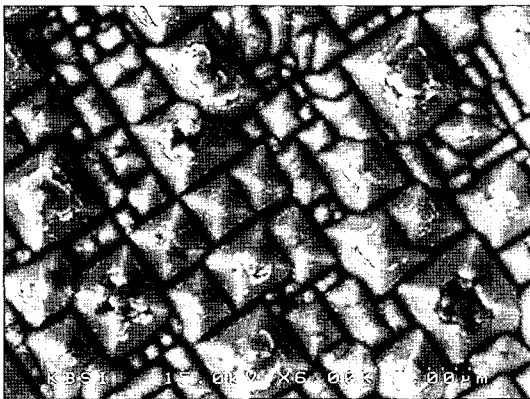
Fig. 3. (a) 일반 구리 와이어와 (b) 단결정 구리 와이어의 XRD 측정 결과.

같이 일반 구리 와이어는 (111), (200), (220), (311), (222), (400)에서 X-ray peak이 측정된 반면에 Fig. 3(b)의 단결정 구리 와이어는 (200)과 (400)방향에서 peak가 나타나므로 면의 방향이 (100)임을 알 수 있다. 따라서 단결정 구리 와이어는 결정성의 손상없이 선재 형태로 잘 가공되었음을 확인할 수 있고 벌크 형태의 단결정 구리와 비슷한 물리적 성질을 가질 것이라고 추측할 수 있다.

Fig. 4는 일반 구리 와이어와 단결정 구리 와이어에 대한 전자현미경(SEM)을 이용하여 etch pit을 관찰한 결과이다. 일반 구리 와이어와 단결정 구리 와이어에 대한 etch pit pattern을 관찰하기 위하여 1 μm 알루미나 (Al₂O₃)를 이용하여 mechanical polishing을 하였다. 그 다음에 시료를 50%의 HNO₃



(a) Poly Crystal Cu Wire



(b) Single Crystal Cu Wire

Fig. 4. 선제형태로 가공된 (a) 일반구리와 (b) 단결정 구리의 전자현미경 (SEM) etch pit pattern 사진.

수용액에서 60초 동안 etching한 후, 3차 증류수와 알콜로 초음파 세척을 여러번 실시하였다. 일반 구리 와이어는 Fig. 4(a)와 같이 규칙적인 etch pit pattern이 나타나지 않지만 단결정 구리 와이어는 Fig. 4(b)에서 XRD 측정 결과와 비교해서 규칙적인 사각형 탑 형태의 etch pit pattern을 가짐을 확인할 수 있다. 따라서 단결정 구리 와이어는 (100)면으로 잘 배향되었음을 알 수 있다.

단결정 케이블에서 주파수에 따른 임피던스의 변화는 저항 (R)과 리액턴스(X) 값의 기여로 나눌 수 있다. 여기서 저항은 파워를 열로써 소비시키는 역할을 하지만, 특히 리액턴스 구성 성분 중 인덕턴스는 자기장 안에 에너지를 저장하며 파워를 소비하지는 않는다. 그리고 저장된 에너지가

다시 회로의 내부 에너지로 돌아오기도 한다. 스피커에서 복소수 형태의 임피던스 (Z)는 실수부에 해당하는 저항 (R) 성분과 허수부에 해당하는 리액턴스 (X) 성분으로 나누어지며, 아래와 같이 쓸 수 있다.

$$Z=(R^2+X^2)^{1/2}$$

임피던스 곡선에서 임피던스가 최대가 되는 지점에서의 리액턴스가 0이 된다. 공명주파수에서 인덕티브 리액턴스와 캐패시티브 리액턴스의 크기가 같은 반면에 방향이 서로 정반대이기 때문에, 이 때의 임피던스가 순수한 저항 성분만으로 이루어진다. 그리고 임피던스가 최고점을 지나서 최소가 될 경우의 임피던스도 순수한 저항성분으로만 가지게 된다. 이 때의 저항은 DC저항값과 매우 유사해지게 된다. 이들 두점을 제외하고는 임피던스가 저항성분으로 구성되는데, 리액턴스 성분은 인덕티브 성분(전압상승 전류)과 캐패시티브 성분(전압하강 전류)으로 다시 나누어지게 된다. 전체 리액턴스에서 이들 각각의 비중은 주파수에 따라서 달라진다.¹¹⁾

Fig. 5는 주파수 변화에 따른 저항 값의 변화를 측정한 결과이다. 실험에서 측정한 주파수의 영역은 10²~10⁶ Hz이며 각각 일반 구리 와이어와 단결정 구리 와이어에 대해서 비교 실험을 하였다. 이 주파수 구간에서 평균 저항 값은 일반 구리 와이어의 경우 0.15565 ± 0.00186 Ω이며 단결정 구리

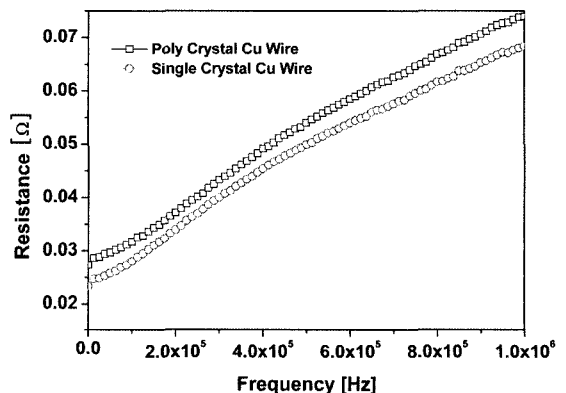


Fig. 5. 일반 구리 와이어와 단결정 구리 와이어의 주파수 변화에 따른 AC 저항 (AC Resistance) 측정결과.

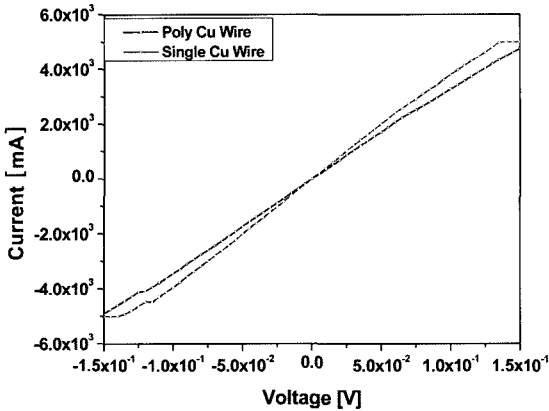


Fig. 6. 일반 구리 와이어와 단결정 구리 와이어의 전류-전압(Current-Voltage)측정 결과.

와이어의 경우 $0.14401 \pm 0.00172 \Omega$ 이다. 일반 구리 와이어에 비해서 단결정 구리 와이어가 약 8.08% 정도 작은 저항 값을 가진다.

Fig. 6은 일반 구리 와이어와 단결정 구리 와이어의 전기적 성질을 비교하기 위해서 전압 변화에 따른 전류를 측정한 결과이다. 전압이 0.085 V인 경우에 대해서 각각의 전류 값을 살펴보면 일반 구리 와이어가 2.9564 A, 단결정 구리 와이어가 3.4401 A이다. 일반 구리 와이어의 경우 저항값은 0.02875Ω 이며, 단결정 구리 와이어의 저항값은 0.02471Ω 으로 측정되었다. 단결정 구리 와이어가 일반 구리 와이어에 약 8%~14% 정도 낮은 전기 저항값을 보여 주었다. 실험에서 둘다 동일한 차원을 가지는 구리 선재를 사용하였고 동일한 상태에서 샘플을 제작하였다. 이것으로 살펴볼 때 단결정 구리 와이어가 일반 구리 와이어에 비해 전기 전도성이 우수함을 알 수가 있다. 단결정 구리 와이어가 전기전도도가 뛰어난 이유는 결합 밀도가 낮기 때문에 전자의 평균자유행로가 일반 구리 와이어에 비해 큰 값을 가지며 이로 인해서 전자가 grain boundary에 의한 산란이 거의 없는 것으로 생각할 수 있다. 일반적으로 grain boundary가 증가하거나 배열이 불규칙할 수록 전기적 성질이 나빠지는 것은 잘 알려져 있는 사실이다. 전자현미경과 XRD 측정 결과에서도 알 수 있듯이 단결정 구리 와이어는 일반 구리 와이어에 비해 etch pit pattern이 균일하고 결정성이 우수하다는 사실을

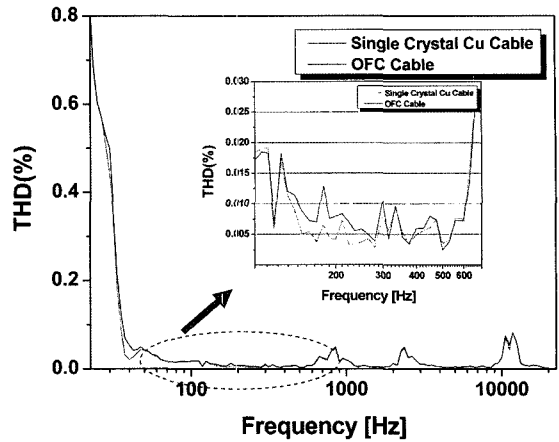
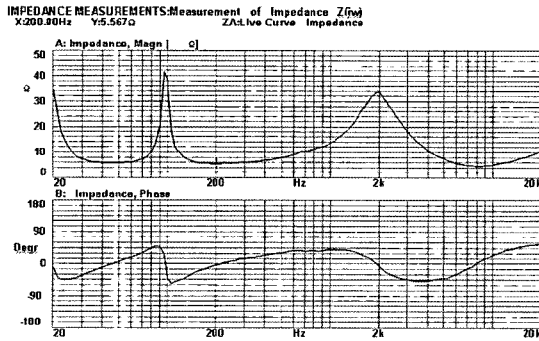


Fig. 7. 가청 주파수 영역에서 일반 구리 케이블과 단결정 구리 케이블의 조화파 왜곡 실험결과.

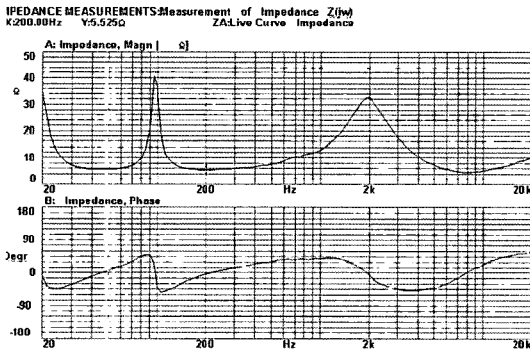
통해서 전기전도성 또한 우수하다고 말할 수 있다.

Fig. 7은 가청주파수 영역(20 Hz~20 kHz)에서 조화파 왜곡 실험의 측정 결과이다. 실제로 제작 가능한 단결정 구리 케이블의 길이는 최대 2.5 m이지만 실험에서는 전체 오디오 시스템을 구성하는 선재중에서 1m만을 단결정 케이블로 대체한 경우와 일반적으로 많이 사용되는 무산소동 (oxygen free copper) 케이블 사용한 경우를 무향실에서 비교 실험하였다. 조화파 왜곡 실험은 입력한 주파수와 측정된 주파수의 차이값의 비로 설명할 수 있다. 일반적으로 주파수 왜곡의 비율이 낮을 수록 선재의 특성이 우수한 경향을 지닌다. 단결정 구리 케이블은 실험결과로부터 무산소동 케이블에 비해 전체영역에서 낮은 조화파 왜곡 값을 가지며 특히 가청주파수 대역에서 저음(1 kHz) 이하의 음 전달 능력이 우수함을 알 수가 있다. 50 m의 단결정 구리 케이블을 이용해서 실험 시스템을 제작할 경우 훨씬 더 낮은 조화파 왜곡 값을 가질 것이라 예상된다.

Fig. 8은 가청 주파수 영역에서 무산소동 케이블과 단결정 구리 케이블의 공칭 임피던스 측정으로 부터 얻은 결과이다. 무산소 구리 케이블의 경우 5.567Ω 이, 단결정 구리 케이블의 경우는 5.525Ω 이 측정되었다. 음향학에서 공칭임피던스의 0.1% 차이는 오디오 시스템에서 대단히 큰 값이다. 이는 단결정 구리 케이블을 이용하여 음향



(a) Oxygen Free Cu Wire



(b) Single Crystal Cu Wire

Fig. 8. (a) 무산소동 케이블과 (b) 단결정 구리 케이블의 공칭 임피던스 측정 결과.

시스템을 구축하여도 음향 신호 및 전기 신호의 전달 능력이 일반적으로 널리 사용되는 무산소동 케이블보다도 더 우수하다는 것을 증명한다.

Fig. 9는 일반 오디오 스피커를 이용해서 스피커의 주파수 응답 특성을 측정한 결과이다. 조화와 왜곡 실험과 동일한 장치구성으로 무향실에서 실험을 실시하였다. 전체 오디오 시스템을 구성하는 50m의 선 중에서 1m를 단결정으로 대체하여 측정한 결과이다. 동일한 주파수 영역에서 높은 소리의 세기(dB)를 가질수록 선재의 신호 전달 성능이 우수함을 나타낸다. 비록 케이블 길이의 1/50을 단결정 케이블로 대체한 결과이지만 저음 영역과 고음 영역에서 평균적으로 0.5 dB 이상 스피커의 주파수 응답 특성이 향상되었다. 특히 중저음 영역에서 무산소동 케이블과 단결정 구리 케이블의 차이가 크게 나타나는 것을 삽입된 그

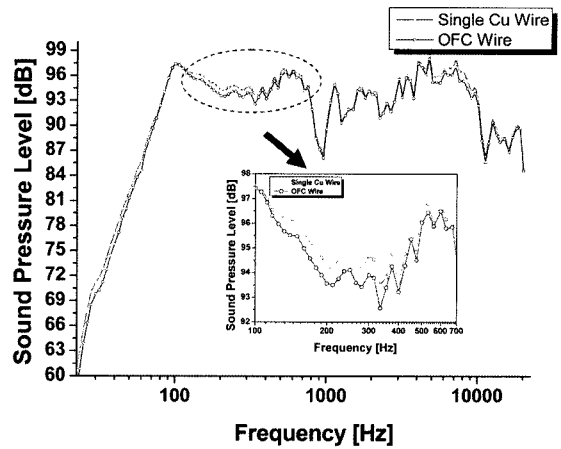


Fig. 9. 무산소 동 케이블과 단결정 구리 케이블의 스피커 주파수 응답 특성 측정 결과.

래프를 통해서 확인할 수 있다. 이것은 단결정 케이블을 통하여 음향이나 전기 신호를 전달하는 것이 무산소 구리 케이블을 통과해서 전달하는 것보다 손실이 적다는 것을 의미한다. 이는 단결정 구리선이 가지는 우수한 결정성에 의해서 나타난 결과라고 생각할 수 있다. 지금까지의 구조적, 전기적 음향적 실험 결과로부터 오디오 시스템 전체를 단결정 구리 케이블로 대체할 경우 상당한 음질의 향상을 기대할 수 있다.

4. 결 론

본 연구를 위해서 시편은 Czochralski 방법을 이용하여 구리 단결정으로 성장하였다. 또한 성장된 단결정은 결정성의 손상없이 와이어 형태로 가공되었다. 단결정 와이어의 구조적 성질을 GDS, XRD, 전자현미경 측정을 통하여 일반 구리 와이어, 무산소동 케이블과 각각 비교하였다. 또한 전기적 성질을 알아보기 위하여 주파수 변화에 따른 저항값의 변화와, 전압의 변화에 따른 전류의 변화를 측정하였다. 음향학적 성질을 알아보기 위하여 무향실에서 조화와 왜곡 실험, 공칭 임피던스 측정 실험, 스피커 응답 특성 실험을 실시하였다. 일반 구리 와이어와 단결정 구리 와이어의 구조적, 전기적, 음향학적 성질을 비교한 결과 일반 구리에 비해서 전기저항은 평균 10% 이상 작았으

며, 구조적으로는 결정성의 변화가 없음을 확인하였다. 특히 음향학 실험을 통하여 가청 주파수 대역 뿐만 아니라 고주파 영역에서도 무산소 구리로 만든 오디오 케이블에 비해서 안정적으로 음향신호를 전달하는 것을 확인할 수 있었다.

감사의 글

본 연구는 교육인적자원부, 산업자원부, 노동부의 출연금으로 수행한 산학협력중심대학 육성사업의 연구결과입니다.

참고문헌

- 1) Glibin, V. P., Kuzenetsov, B. V. and Vorobyova, T. N., *J. Alloys Compd.*, **386**, 139-143 (2005).
- 2) Pelegrina, J. L. and Ahlers, M., *Scripta Mater.*, **50**, 213-218 (2004).
- 3) Wang, Q. Z., Han, F. S., Wu, J. and Hao, G. L., *Mater. Sci. Eng. A*, **408**, 247-254 (2005).
- 4) Orgéas, L., Vivet, A., Favier, D., LExcellent, C. and Liu, Y., *Scripta Mater.*, **51**, 297-302 (2004).
- 5) Nagarjuna, S., Srinivas, M. and Sharma, K. K., *Acta Mater.*, **48**, 1807-1813 (2000).
- 6) Kaye, G. W. C. and Laby, T. H. in Tables of physical and chemical constants (15th ed.), Longman, London, UK (1993).
- 7) James, A. M. and Lord, M. P. in Macmillan's Chemical and Physical Data, Macmillan, London, UK (1992).
- 8) Dean, J. A. (ed.) in Lange's Handbook of Chemistry (14th ed.), McGraw-Hill, New York, USA (1992).
- 9) Swanson, T., *Natl. Bur. Stand. (U.S.), Circ.*, **539(I)**, 15 (1953).
- 10) Hurler, D. T. J. (ed.) in Handbook of Crystal Growth (1st ed.), North-Holland, New York, USA (1993).
- 11) Jonscher, A. K., in Universal relaxation law, Chelsea Dielectrics press, London, U.K. (1996).