

Cavity Perturbation Method를 이용한 마이크로파 주파수대의 고온 유전특성 측정 연구

김동은 · 정진호 · 이성민 · 김형태*
요업기술원 기능소재팀

Measurement of High Temperature Dielectric Property at Microwave Frequency Using Cavity Perturbation Method

Dong Eun Kim, Jin-Ho Jung, Sung-Min Lee and Hyung-Tae Kim*

Advanced Key Material Lab, Korea Institute of Ceramic Engineering
and Technology, Seoul 153-801, Korea

(Received November 28, 2006; Accepted December 15, 2006)

Abstract High temperature dielectric constants of the various ceramic materials have been measured using cavity perturbation method. The measurements were applied to refractory, traditional and fine ceramic powder compacts from room temperature to 1200°C. Calibration constant in the equation suggested by Hutcheon *et al.*, was determined from the dielectric constants of reference specimen (teflon and alumina) at room temperature. From these results, informations on the refractory materials were obtained for the microwave kiln design and understanding of the microwave heating effects of ceramics have been improved.

Keywords : Microwave sintering, Cavity Perturbation method, Microwave dielectric constant

1. 서 론

최근 수십 년 동안 마이크로파의 복사에너지를 이용한 연구들이 다양하게 보고되어 오고 있다. 특히 물질의 가열에 있어서 마이크로파는 기존 에너지에 대한 대체 에너지원으로써 유기, 무기, 고분자 및 금속물질에 이르기까지 다양한 분야에서 많은 연구자들에게 관심을 불러일으키고 있다.

마이크로파 가열은 마이크로파 전력을 유전체에 흡수시켜 유전체 내부에서 자기발열시키는 방법으로, 신속소성, 선택가열, 내부가열 등, 종래의 외부가열방식으로는 불가능한 많은 특징을 가지고 있다. 이런 특징을 세라믹의 소결에 적용할 경우, 단시간 소결에 의한 에너지 절감¹⁾ 및 연소 생성물에 의한 환경부하경감 외에, 조직의 미세화에 의한 소결체의 품질향상²⁾, 신속소성에 의한 소결체의 치밀화 촉진³⁾, 재료의 유전손율

차를 이용한 선택가열에 의한 새로운 기능성 재료의 제조⁴⁾ 등, 기술적, 경제적 측면에서 새로운 방법으로 주목받고 있다. 따라서 상온에서 고온까지 소결체 및 단열 재료에 대한 유전특성에 대한 거동을 파악할 수 있다면, 마이크로파의 장점을 살릴 수 있는 소결을 능동적으로 행할 수 있다. 이때 마이크로파 킬른의 제작에 사용되는 내화물의 고온 유전 데이터도 필수적으로 요구된다.

상온에서 소결체의 유전특성을 측정하는 방법에는 공진기(cavity)법, 평판법(Hakki-Coleman method)⁵⁾, 도파관(waveguide)법⁶⁾, 전송선(transmission line)법⁷⁾ 등 다양한 방법 등이 제시되어 있다. 그러나 고온에서는 시험편의 온도 보존과 유전특성 측정이라는 두 가지 조건을 만족시키는데 어려움을 겪고 있다. 지금까지 보고된 고온에서 유전특성 측정방법으로는 일반적으로 내부에 시험편을 고정시키고 2개의 안테나로

*Corresponding Author : [Tel : +82-2-3282-2467; E-mail : htkim@kicet.re.kr]

부터 마이크로파를 평면파로 주사하여 반사파와 투과파를 측정하여 복소유전율을 측정하는 자유공간법 (Free-space method)⁸⁾, 시험편을 올려놓은 동축탐침이로 내부 중앙에 오도록 설치해서 반사파를 측정하는 동축탐침법 (Co-axial probe method)⁹⁾, 일반 로에서 원하는 온도까지 시험편을 가열하고 순간적으로 공진기 내부 중심에 떨어뜨려서 측정하는 고온 공진섭동법 (cavity perturbation method)¹⁰⁾이 있다. 자유공간법은 8 GHz 이하의 주파수대에서 유전특성을 측정할 경우, 상대적으로 시험편의 크기가 300 mm×300 mm 이상으로 증가되어야 하는 단점이 있고, 동축탐침법은 측정 주파수가 넓으나 시험편의 조도를 5 μm 이하로 준비하여 시험편과 동축탐침 사이에 공기층을 없애야 하고, 동축을 1000°C 이상 고온에서 유지할 수 없다는 단점이 있다. 하지만, 고온 공진섭동법은 측정 주파수영역이 5 GHz 이하에서만 실용적으로 가능하다는 단점이 있지만, 시험편 크기가 작고 준비가 용이하며 측정시간이 짧을 뿐만 아니라 측정값의 신뢰도를 좌우하는 보정 (calibration)이 용이하다는 장점이 있다.

본 연구에서는 가장 널리 사용되는 마이크로파 주파수인 2.45 GHz를 기준으로, 고온 공진섭동법을 이용하여 마이크로파 킬른에서 사용하는 내화 재료와 요도구 등 다양한 내화 소재뿐만 아니라, 마이크로파 소결의 대상이 되는 산업용 자기, 유리 그리고 전자 세라믹스의 고온 복소유전율을 1200°C까지 측정하고자 하였다. 이러한 연구를 통하여 마이크로파 킬른 설계에 필요한 내화물의 선택 기준을 제시하고 마이크로파 소결특성을 해석하는 기반을 확보하고자 하였다.

2. 실험 및 계산방법

2.1. TM mode cavity 제작

현재 마이크로파는 가정용이나 산업용으로 2.45 GHz의 주파수가 가장 일반적으로 사용되고 있다. 이에 본 실험에서는 2.45 GHz의 주파수에 초점을 맞추어 TM_{0n0} mode¹¹⁾의 실린더형태 cavity를 제작하였다. TM_{0n0} mode를 형성하는 cavity 내의 전기장과 자기장의 흐름을 모식적으로 그림 1에 나타내었다.

본 연구에서 자체적으로 설계, 제작한 고온 유전율 특성 측정 장치는 그림 2와 같이 2단 구조로 되어

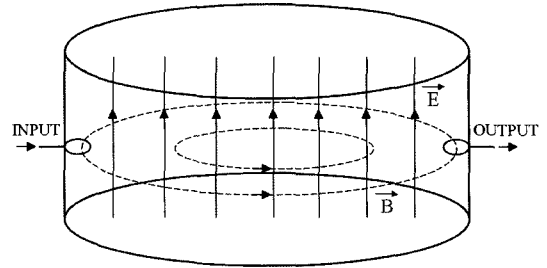


Fig. 1. Electric and magnetic field in TM_{0n0} mode.

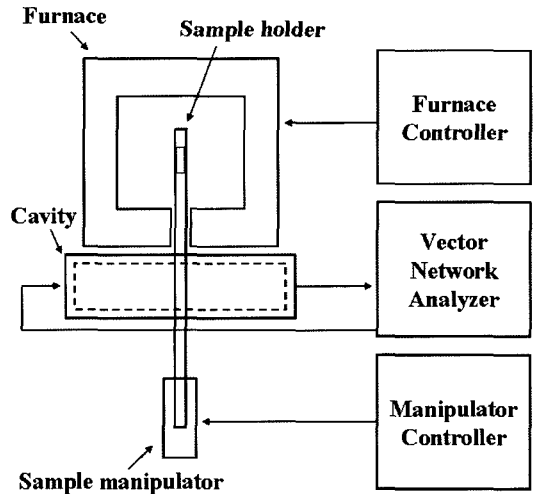


Fig. 2. TM_{0n0} cavity measurement system.

있다. 상단은 가열로(130 mm×90 mm×250 mm)로 최고 1500°C까지 승온할 수 있으며, 하단은 cavity (φ 580 mm×50 mm)로 300 MHz~3 GHz 주파수대의 유전율을 측정 가능하게 제작되었다. 가열로와 cavity의 중심에 직경 7 mm의 구멍을 뚫고 내경 4 mm의 quartz tube가 이 구멍을 관통하여 상하로 신속한 움직임이 가능하도록 하였다(그림 2).

2.2. Cavity 보정

Cavity 내의 TM_{0n0} mode를 해석하기 위한 전장, E의 분포는 식 (1)과 같이 나타낼 수 있다.¹²⁾

$$E = E_0 e^{i\omega t} \left[1 - \frac{1}{(1!)^2} \left(\frac{wr}{2c} \right)^2 + \frac{1}{(2!)^2} \left(\frac{wr}{2c} \right)^4 - \frac{1}{(3!)^2} \left(\frac{wr}{2c} \right)^6 + \dots \right] \quad (1)$$

여기서 w 는 주파수, r 는 실린더 cavity 중심으로부터의 거리, c 는 광속을 나타낸다. 이 식에서 $\frac{wr}{c}$ 을 x 로 하면, 식 (1)의 괄호 안은 0차 Bessel function이

된다.

$$J_0(x) = 1 - \frac{1}{(1!)^2} \left(\frac{x}{2}\right)^2 + \frac{1}{(2!)^2} \left(\frac{x}{2}\right)^4 - \frac{1}{(3!)^2} \left(\frac{x}{2}\right)^6 + \dots \quad (2)$$

금속과 전기장과의 경계조건을 고려하면 TM mode를 형성하는 조건은 r이 실린더의 반경 R이 될 때, 전기장의 크기, E가 0이 되는 조건, 즉 Bessel function이 0이 되는 조건에서 공진이 일어나게 된다. 이때의 주파수를 Bessel function이 0이 되는 x로부터 구할 수 있게 된다.

고주파에 무손실인 금속벽으로 구성된 cavity에서 샘플의 유무에 따른 공진주파수의 변화는 Altschuler¹³⁾에 의해서 식 (3)과 같은 이론식으로 보고된 바 있다.

$$\frac{w_2 - w_1^*}{w_1^*} = \frac{-\int_{V_s} ((\mu_2 - \mu_1^*)H_2 \cdot H_1^* + (\epsilon_2 - \epsilon_1^*)E_2 \cdot E_1^*) dv}{\int_{V_c} (\epsilon_1^* E_1^* \cdot E_2 + \mu_1^* H_1^* \cdot H_2) dv} \quad (3)$$

여기서 V_c 는 cavity의 부피를, 하첨자 1과 2는 각각 서로 다른 시험편을, w , ϵ , μ , E , H 는 각각 공진주파수, 유전상수, 투과율, 전기장, 자기장을, *는 복소수를 나타낸다.

식 (3)을 실제 분석기법으로 도입한 Hutcheon 등¹⁰⁾은 TM_{0n0} mode에서 시험편의 shape factor, F_{sh} 와 calibration factor, A 를 대입하여, 식 (3)을 식 (4)로 간결하게 표현하였다.

$$\frac{\Delta f}{f_0} + j \left(\frac{1}{2Q_2} - \frac{1}{2Q_1} \right) = \frac{-x_e}{(1+x_e F_{sh})} \cdot \frac{V_s}{V_c} \cdot A \quad (4)$$

여기서 f_0 와 Q_1 는 시험편없이 비어있는 홀더에 대한 공진 주파수와 Q값, Q_2 는 홀더 안에 시험편이 들어있을 때의 Q값, Δf 는 시험편의 유무에 따른 공진주파수의 변화, V_s 와 V_c 는 시험편과 cavity의 부피, x_e 는 복소유전자 화율인 실수부 x_e' 와 허수부 x_e'' 로 구성($x_e = x_e' - jx_e''$)되었다. 먼저 상온에서 Q와 공진주파수를 구하여, 상수

인 F_{sh} 와 A 를 정한다. 이후 온도의 변화에 따라 시험편 없이 비어있는 홀더에 대한 Q와 공진주파수를 구하고 이를 시험편이 있는 경우의 Q와 공진주파수와 함께 식 (4)에 대입하여 $x_e = x_e' - jx_e''$ 을 계산하고 이로부터 복소유전율 ϵ' 와 ϵ'' 을 구한다.

보정을 위한 표준시험편으로 상온에서 유전율대가 다른 3가지 물질, 테프론($\epsilon'=2.07$), 알루미늄($\epsilon'=9.97$), BNT($\text{BaNd}_2\text{Ti}_3\text{O}_{14}$, $\epsilon'=90$)를 사용하였다. 테프론과 알루미늄(99.5% 순도)는 다이아몬드 core-drill을 사용하여 $\phi 3.5 \text{ mm} \times 12 \text{ mm}$ 의 크기로 제작하였다. BNT 시험편을 1280°C에서 2시간 소결을 거쳐 동일한 크기로 제작하였다. 상온 유전율은 $\phi 10 \text{ mm} \times 5 \text{ mm}$ 의 크기로 동일한 조건에서 제작한 위의 3가지 표준시험편을 network analyzer(Agilent E8358A, U.S)를 사용하여 Hakki-Coleman법으로 측정하였다. 상온에서 서로 다른 2개 표준 시험편의 측정값을 근거로 공진섭동법의 보정상수, F_{sh} 와 A 를 계산하였다.

2.3. 측정시험편

마이크로파 킬른 내부에서 소결체와 함께 소성되는 내화재료, 요도구와 일반 세라믹 재료에 대해서 온도에 따른 유전율과 유전손실을 측정하였다. 내화재료는 4종으로, Thermal Ceramics사에서 생산되는 고온용 내화벽돌(JM-30), 유리섬유(Cerachem Blanket, white), 유리섬유(Pyro-Bloc C-Grade, green) 그리고 내화보드(Kaowool Board 1400)를 사용하였으며, 각각의 물리적 특성을 표 1에 나타내었다. 또한 킬른의 요도구로 사용되는 내화벽돌, 지지대, SiC판 그리고 Al_2O_3 판(영진세라믹(주))의 복소유전율을 측정하였다. 마지막으로 전통 세라믹과 파인 세라믹의 재료로 사용하는 백자소지, BNT(MBRT-90, Fuji Titanium Industry Co., Ltd, Japan), 적벽돌(공간세라믹), LAS계 유리($\text{Li}_2\text{O}-\text{Al}_2\text{O}_3-\text{SiO}_2$, INAX Co., Japan) 그리고 ZrO_2-MgO (3% MgO 함유)등 5종, 모두 합해서

Table 1. Characteristics of refractory materials

Physical Properties	내화벽돌 (JM30)	유리섬유 (Cerachem Blanket)	유리섬유 (Pyro-Bloc C-Grade)	내화보드 (Kaowool Board 1400)
Density (kg/m ³)	1041	128	192	260
Classification temp. rating (°C)		1426	1427	1430
Melting point (°C)		1760	1760	1760
Thermal Conductivity* (W/mK)	0.40~0.47	0.06~0.34	0.07~0.35	0.06~0.23

*내화보드만 1200°C까지, 나머지는 1100°C까지의 측정치값

총 13종에 대해서 고온 복소유전특성을 측정하였다. 모든 시편의 크기는 $\phi 3.5 \text{ mm} \times 12 \text{ mm}$ 인 원기둥 시편으로 가공하였고, 유리섬유인 2종의 시편은 시편 홀더에 맞게 충전 시켜서 측정하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1. Cavity의 공진 모드 확인 및 보정

금속 표면의 전기장의 접선 성분은 0이 되어야 한다는 금속과 전기장의 경계조건을 적용하면 주어진 cavity내의 TM mode 공진조건을 Bessel function의 해로부터 쉽게 유추할 수 있다. 즉 식 (2)에서의 r 을 cavity 반경 R 로 하였을 때 $J_0(x)=0$ 이 되는 x 로부터 공진주파수 예상치, f_{calc} 를 구할 수 있는데, 이를 실측한 공진주파수 f_{meas} 와 함께 표 2에 나타내었다. 두 값의 차이는 0.1% 이내로 매우 유사하였으며, 실제 cavity의 진원도와 가공정밀도를 고려하면 TM mode 가 예상과 일치하게 얻어졌다고 할 수 있다. 또한 타

Table 2. Resonance frequency of TM_{0n0} mode in the range of 300 MHz~3 GHz

Bessel function $J_0(x)=0$ 의 해	Calculated Frequency (MHz)	Measured Frequency (MHz)
2.4048	395.9	396.3
5.5201	908.7	908.9
8.6537	1424.5	1424.4
11.7915	1941.0	1941.8
14.9309	2457.8	2457.2
18.0711	2974.7	2974.3

공진모드와 달리 TM mode의 특성상, 시편이 cavity에 중앙에 삽입되면 공진주파수의 이동이 눈에 띄게 관찰된다. 이 특성을 이용하여도 TM mode의 공진주파수를 쉽게 구별할 수 있다. 예를 들면, 그림 3은 시험편 유무에 따라 quartz tube가 cavity내에 있을 때 공진주파수와 Q값의 변화를 보여주고 있다.

표준시편으로 알루미늄과 테프론을 사용하여 상온에서 cavity의 보정상수 F_{sh} 와 A 를 구하였다. 보정상수는 cavity내의 조건에 민감하게 변하므로 고온 유전을 측정시 매번 새롭게 측정하였다. 측정된 보정상수를 바탕으로 상온에서 1200°C까지 측정된 알루미늄(99.5% 순도)의 복소유전율을 그림 4에 나타내었다. 8~10 GHz 대의 주파수에서 상온에서부터 1200°C까지의 알루미늄(99%)의 유전율 값은 9.5~13로 보고¹⁴⁻¹⁶⁾된

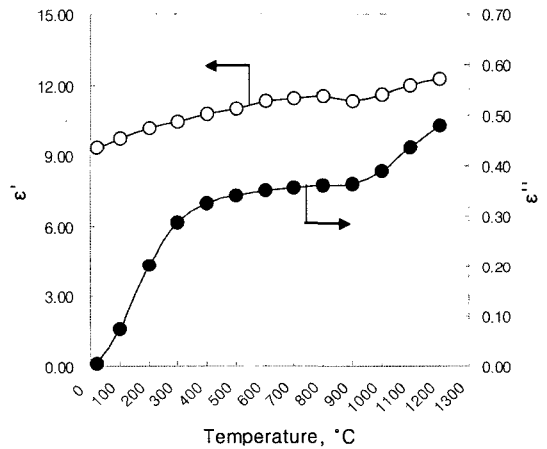


Fig. 4. Measured value of real(ϵ') and imaginary(ϵ'') parts of the complex dielectric constant of alumina.

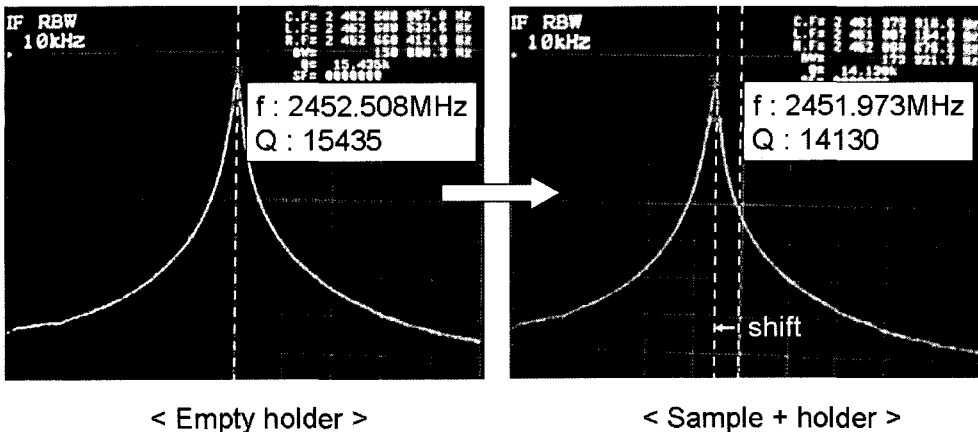


Fig. 3. Frequency shift with and without sample in quartz tube holder.

바가 있고, 본 연구의 실험값은 9.3~12.2로 매우 유사하였다. 하지만 유전손실은 주파수뿐만 아니라 측정 환경에 따라 민감하게 변화하는 factor로서, Arai 등¹⁶⁾의 측정값보다 낮게 나타났다.

3.2. 단일 재료 및 요도구의 고온 복소유전율

내화물이란 고온에서 쉽게 연화하거나 녹지 않고 견디는 비금속 무기재료로 높은 열은 물론 갑작스런 열의 변화에 견디야 하고 용적변화가 적고 기계적 강도 및 가스나 용융물 등과 반응하지 않는 특성을 지녀야 한다. 아울러 마이크로파 킬른 안에서는 고온에서도 장비를 보호해주며 시편의 원활한 소성을 위하여 마이크로파가 투과할 수 있을 정도의 저 유전 손실을 가져야 한다. 본 실험에서는 마이크로파 킬른 안에 설치 예정인 내화 재료로 다기공의 내화벽돌과 내화보드, 유리 섬유에 대하여 상온에서 1200°C까지 유전율과 유전손실을 측정하였다. 그림 5에서 알 수

있듯이 온도증가에 따라 내화재료의 유전율은 비교적 완만하게 상승하였다. 반면에 유전손실의 경우, 두 종류의 유리섬유는 상온에서 700°C까지 일정한 값을 갖다가 서서히 증가하였으나 그 변화는 미비하였다. 내화보드는 700°C에서부터 유전손실이 비교적 급격히 증가하였고, 내화벽돌의 경우에는 상온에서부터 전 영역에서 온도상승과 함께 유전손실이 크게 증가함을 알 수 있었다. 따라서 마이크로파 킬른의 내부 소재로서 내화벽돌이나 내화보드보다는 유리섬유가 좀 더 적합함을 알 수 있었다.

그림 6에서는 요도구들의 유전율과 유전 손실의 측정값을 나타내었다. 온도에 따른 유전율값은 1200°C 까지 전 온도범위에서 크게 변화하지 않았다. 하지만 SiC의 경우 상온에서부터 큰 유전 손실값을 보이고 있다. 이는 상온에서부터 SiC판이 마이크로파 에너지를 잘 흡수한다는 의미이고 그만큼 발열이 일어남을 알려준다. 따라서 SiC판의 경우 저온에서부터 마이크

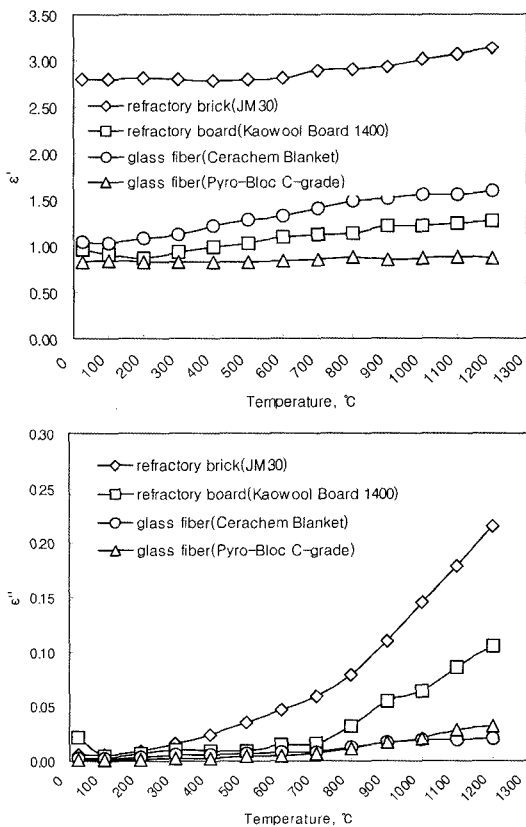


Fig. 5. Measured values of real(ϵ') and imaginary(ϵ'') parts of the complex dielectric constant of refractory materials.

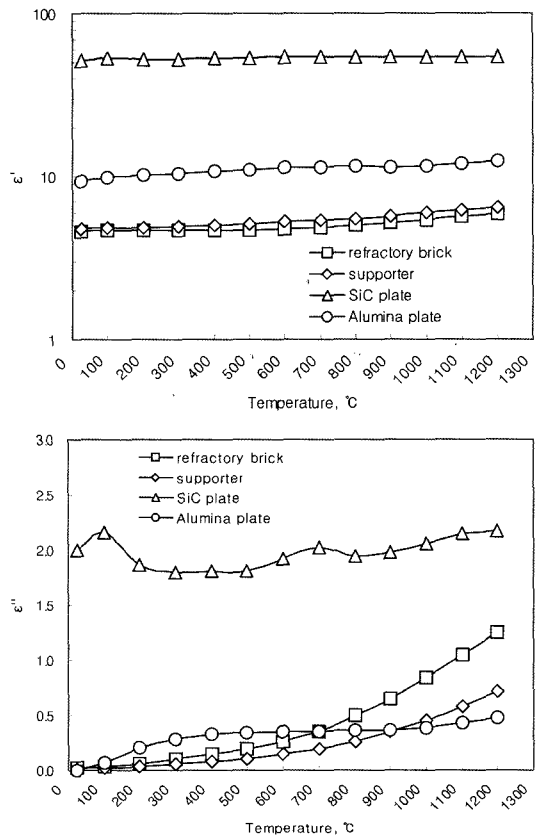


Fig. 6. Measured values of real(ϵ') and imaginary(ϵ'') parts of the complex dielectric constant of supports.

로파를 흡수하여 성형체를 가열시켜 줄 수 있는 susceptor로서의 역할이 가능하다는 것을 확인할 수 있었다. 한편 내화벽돌과 지지대는 온도가 올라갈수록 서서히 마이크로파를 흡수할 것으로 예상되었고 알루미늄판의 경우 400~500°C까지 유전손실이 증가하다가 그 이후부터는 일정하게 유지되었다.

3.3. 세라믹스 소결체의 고온 복소유전율

그림 7은 전통 세라믹과 파인 세라믹에서 흔히 사용되는 재료의 유전율과 유전손실 비교치를 보여준다. 미소결 백자 소지와 고유전율 재료인 BNT, 적벽돌, LAS계 유리, ZrO₂-MgO에 대하여 고온 복소유전율을 측정하였다. LAS계 유리의 경우 800~900°C 사이에서 결정화가 발생하는데 비정질상태의 유리보다 결정화가 일어나면서 유전율값이 낮아지기 시작하였다. 또한 미소결된 백자소지의 온도에 따른 복소유전율은 1000°C 이후에서부터 서서히 증가하기 시

작하였다. 이는 통상 1000°C 전후에서 시작되는 mullite 상의 생성, 1100°C 전후의 장석의 용융 등 소재 내부의 결정상의 변화가 유전율에 크게 영향을 준 것으로 판단할 수 있다. 유전손실은 적벽돌과 백자 소지에 비해서 BNT와 LAS계 유리, ZrO₂-MgO 시편의 경우 온도에 따라 급격한 증가를 보였다. BNT와 ZrO₂-MgO는 높은 유전손실을 가지는 재료로 알려져 있다. LAS계 유리는 온도가 증가함에 따라 잔류유리의 연화가 시작되면서 급격히 유전손실이 증가한 것으로 판단된다. 대부분의 세라믹 재료들의 유전손실은 온도상승에 따라 증가하나 그 정도는 소재의 종류에 따라 크게 차이가 났다. 이는 소재가 마이크로파에 노출되었을 때 다음 식에서와 같은 자체 발열량이 크게 다를 수 있다는 것을 뜻한다.

$$\text{Power dissipation} = 2\pi f \epsilon_0 \epsilon'' |E|^2 \quad (5)$$

온도에 따른 유전손실값의 변화는 주어진 전기장에서 핵심 상수값이고 따라서 마이크로파 소결이 가능하게 하는 조건을 제시한다. 즉 유전손실이 급격히 증가하는 온도 이상에서 마이크로파 소결이 가능하다고 판단된다.

4. 결 론

본 연구에서는 고온 유전율 특성 측정 장치를 제작하였고, 2.45 GHz 주파수를 기준으로 고온 공진섭동법을 이용하여 마이크로파 킬른에서 사용하는 내화 재료, 요도구와 일반 세라믹스의 고온 복소유전율을 1200°C까지 측정하였다. 300 MHz~3 GHz 범위에서 TM₀₁₀ mode를 계산하여 얻어진 주파수와 실험으로 얻어진 공진 주파수가 일치하는 것으로부터 제작된 고온 유전율 특성 측정 장치의 신뢰도를 확인하였다. 이 결과를 기반으로 표준시편을 이용하여 유전 특성 측정에 대한 온도변화에 따른 보정인자를 구하였고, 기존의 유전특성과 일치함을 확인하였다. 4종의 내화재료는 유전율과 유전손실이 일정한 값을 나타낸 반면에 4종의 요도구는 내화재료보다 높은 유전율과 유전손실을 나타내었다. 이 결과로부터 마이크로파 킬른 제작에 필요한 내화재료와 요도구를 선택할 수 있었다. 또한 전통 세라믹, 파인 세라믹 등 다양한 소재에 대하여 복소유전율을 측정하였고, 이를 바탕으로 마이크로파 소결기구 예측에 필요한 소

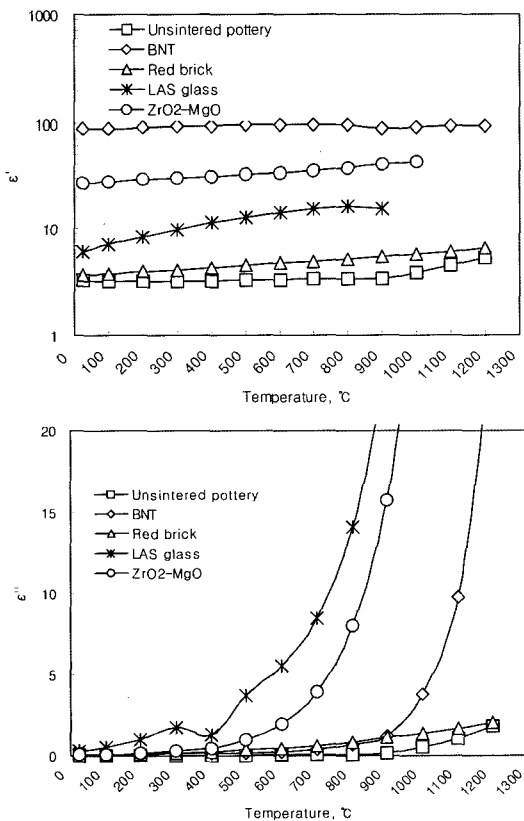


Fig. 7. Measured values of real(ϵ') and imaginary(ϵ'') parts of the complex dielectric constant of specimens.

재의 물성을 확인할 수 있었다.

참고문헌

1. T. Usami and T. Ochiai, FC Report **21** (2003) 257 (Japanese).
2. E. Breval, J. P. Cheng, D. K. Agrawal, P. Gigal, M. Dennis, R. Roy and A. J. Papworth: *Mat. Sci. Eng. A*, **391** (2005) 285.
3. J. W. Kim, S. C. Choi, J. C. Lee and J. H. Oh: *J. Kor. Ceram. Soc.*, **39** (2002) 669 (Korean).
4. E. J. Minay, A. R. Boccaccini, P. Veronesi, V. Cannillo and C. Leonelli: *J. Mater. Process. Tech.*, **155-156** (2004) 1749.
5. B. W. Hakki and P. D. Coleman: *IRE Trans.*, MTT-8 (1960) 402.
6. H. Ebara, T. Inoue and O. Hashimoto: *Sci. Tech. Adv. Mater.*, **7** (2006) 77.
7. I. Wu, S. Nishizawa and O. Hashimoto: *Sci. Tech. Adv. Mater.*, **7** (2006) 84.
8. V. V. Varadan, R. D. Hollinger, D. K. Ghodgaonkar and V. K. Varadan: *IEEE Trans. Instrum. Meas.*, **40** (1991) 842.
9. M. Arai, J. G. P. Binner, G. E. Carr and T. E. Cross: *Microwave Processing of Materials III*, R. L. Beatty, W. H. Sutton and M. F. Iskander(Ed.), Vol. 269, MRS Symp. Proceedings (1992) 611.
10. R. Hutcheon, M. de Jong and F. Adams: *J. Microwave Power EE.*, **27** (1992) 87.
11. A. Das and S. Das: *Microwave Engineering*, McGraw-Hill International Edition, Singapore (2001) 235.
12. R. P. Feynman, R. B. Leighton and M. Sands: *The Feynman Lectures on Physics*, Addison Wesley Publishing Co., Inc., Volume II, Reading, Massachusetts (1989) 23-2.
13. H. M. Altschuler: Chapter IX-Dielectric Constant, *Handbook of Microwave Measurements*, M. Sucher and J. Fox(Ed.), Polytechnic Press, Interscience Publishers, Vol. 2.
14. J. D. Walton, Jr.: *Inorganic Randoms in Random Engineering Handbook*, J. D. Walton, Jr.(Ed.), Marcel Dekker, Inc., New York (1970) 229.
15. S. J. Penn, N. M. Alford, A. Templeton, X. Wang, M. Xu, M. Reece and K. Schrapel: *J. Am. Ceram. Soc.*, **80** (1997) 1885.
16. M. Arai, J. G. P. Binner, A. L. Bowden, T. E. Cross, N. G. Evans, M. G. Hamlyn, R. Hutcheon, G. Morin and B. Smith: *Microwave : theory and application in materials processing*, D. E. Clark, J. R. Laia, W. R. Tinga(Ed.), Vol. 36, The American Ceramic Society, Ohio (1993) 539.