

ME 소자의 저주파 등가회로 모델링

정수태^{1,a}, 류지구

¹ 부경대학교 전자공학과

Electric Circuits Modeling of Magnetolectric Bulk Composites in Low Frequency

Su-Tae Chung^{1,a} and Ji-Goo Ryu¹

¹ Department of Electronic Engineering, Pukyong National University, Busan 608-747, Korea

(Received June 20, 2013; Revised June 24, 2013; Accepted June 24, 2013)

Abstract: Magnetolectric(ME) bulk composites with $PZT-PNN-PZN/Fe_2O_4$ were prepared by using a conventional ceramic methods and investigated on the ME voltage vs frequency of ac magnetic fields. We made the electric equivalent circuits by using the Maxwell-Wagner model and simulated the frequency dependence of ME voltage in low frequency region. ME devices were described by a series of two equivalent circuits of piezoelectric and magnetic, which have the relaxation time τ due to the interaction between ME device and load resistor. Equivalent circuit of piezoelectric material is independent of frequency. However ferrite magnetic materials have Debye absorption and dipolar dispersion, whose equivalent circuit is a function of frequency. Therefore we suggest the resistance in the equivalent circuit is proportion to $(1+\omega^2\tau^2)$ and the capacitance is in inverse proportion to $(1+\omega^2\tau^2)$ in the magnetic materials.

Keywords: Magnetolectric, Equivalent circuits, Maxwell-Wagner model, Debye absorption

1. 서 론

ME (magnetolectric) 소자는 자기-전기적 효과를 가지는 소자이다. ME소자에 자계가 가해지면 자성물질의 결정이 변형을 일으키는 자기왜형 현상이 나타나고, 이 응력이 압전물질의 결정 변화를 일으켜서 전기분극이 ME소자의 전극에 유도된다. 이러한 ME

현상은 제조공정이 단순하고 가장 간단한 구조이면서 기전력이 발생하기 때문에 외부에 별도의 전원이 필요 없으므로 ME 메모리, 센서, 스위치, 도파관의 검출기, 액츄에이터 등 그 응용범위가 다양하다 [1-5].

ME소자에 발생하는 기전력 (출력전압)은 교류자계의 주파수에 의존성이 크고, 출력전압의 최대치는 저주파영역과 고주파영역에서 각각 나타난다 [6,7]. 즉 고주파 영역에서는 압전체의 공진주파수에 해당하는 것으로 그 크기 및 형상에 따라 다르나 보통 수백 kHz이며, ME소자의 기계적 공진에 의한 것으로 공진 시에는 소자의 임피던스가 최소이므로 전류가 최대가 되어 소자의 양단에 나타나는 출력전압은 최대가 된다. 이것은 압전체의 전기적 특성과 거의 일치하게

a. Corresponding author; chungst@pknu.ac.kr

된다. 그러므로 고주파 영역에서의 ME소자의 전기적 등가회로는 바로 압전체의 등가회로와 비슷하게 고려해도 된다. 그러나 저주파영역에서는 수백 Hz이므로 압전체의 공진 특성이 일어나지 않기 때문에 출력전압의 주파수의존성(산과 같은 형태로 나타남)은 고주파에서의 경우와는 차이가 있다. ME소자가 저주파영역에서 출력전압이 나타나는 이유는 ME소자의 정성적 해석에 매우 중요하다고 생각된다. ME소자의 출력전압의 주파수의존성에서 최대전압을 나타내는 주파수 이상에서 출력전압의 감소는 자성체의 도전율이나 압전체의 누설전류로 인하여 출력전압이 감소한다고 설명하고 있다 [8]. 그러나 본 저자는 이러한 설명은 명확하지 않고, 또 출력전압의 주파수 의존성에 대한 자세한 논의를 한 보고는 접하지 못하였다.

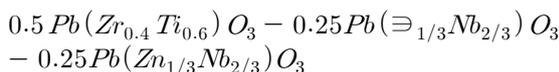
본 실험에서는 저주파 영역에서 ME소자의 출력전압의 주파수의존성을 규명하기 위하여 전기적인 등가회로를 제시하고자 한다. 일반적으로 벌크형 ME소자는 압전체와 자성체가 혼합되어 있으므로 1) 압전체의 유전 특성과 등가회로, 2) 자성체의 유전 특성과 등가회로를 각각 논의를 한 후에 3) ME소자의 유전 특성을 논의하고 그 등가회로를 Maxwell Wagner two layer 모델 [9]로 제시하였다. 그리고 ME소자의 출력전압 주파수의존성을 측정하고, 제시한 등가회로의 시뮬레이션 결과와 비교 분석하였다.

2. 실험 방법

2.1 ME 소자 제작과 측정

압전물질과 자성물질로 구성되는 ME소자는 비교적 간단하고 비용이 적게 들며, 조성의 선택성이 우수한 것으로 알려진 일반적인 세라믹 공정으로 만들었다.

압전물질(PE)은



의 조성으로 하였고, 자성물질(PM)은 $(Ni_{0.9}Zn_{0.1})Fe_2O_4$ 조성으로 하였으며 모두 시약급으로 사용하였다. 각각 제조한 PE와 PM을 실험에 적합한 조성으로 습식 혼합하고 건조하였다. 이 분말을 지름 15mm의 성형틀에 넣고 $1,000 \text{ kg/cm}^2$ 의 압력으로 성형하여 $1,200^\circ\text{C}$ 에서 2시간 소결하였다. 시료를 각각 직경 12.8 mm, 두께 1 mm로 연마하여 양면에 은 전극을 입혔

다. 유전특성은 LCZ meter (HP 4192A)을 사용하였다. 그리고 ME소자용 시편 ($3 \text{ mm} \times 7 \text{ mm} \times 1 \text{ mm}$)은 100°C 의 실리콘 유속에 담그고, 30 kV/cm 의 전계로 20분간 분극 처리하였다. 자세한 제조공정은 본 저자의 문헌에 있다 [10].

ME효과를 측정하기 위하여 직류자계와 교류자계를 각각 발생시킬 수 있도록 동심형 구조의 솔레노이드를 만들고, ME소자와 자속계를 코일의 중앙에 놓았다. ME소자에 전압을 유기시키기 위하여 교류자계가 필요하므로 교류자계의 진폭은 1 Oe 이고 주파수는 $10 \text{ Hz} \sim 10 \text{ kHz}$ 를 인가하였다. 교류자계를 일정하게 유지하고 교류자계와 동일한 방향으로 직류자계를 변화시키면서 lock-in amplifier (SRS, SR830)로 ME전압을 측정하였다 [11].

2.2 ME 소자의 등가회로

1) 압전체의 등가회로

그림 1은 압전체의 정전용량 및 유전손실의 주파수의존성을 나타낸 것이다. 주파수가 매우 낮은 영역부터 높은 영역까지 정전용량과 유전손실의 값이 거의 비슷한 값을 보였다. 이러한 결과는 정전용량이나 유전손실이 주파수에 의존성이 거의 없으며, 저항성분이 매우 커서 손실이 매우 작은 유전체임을 알 수 있다. 그러므로 그림 4와 같은 등가회로로 표시되며 C_d 는 압전체의 정전용량이고 R_d 는 압전체의 저항이다.

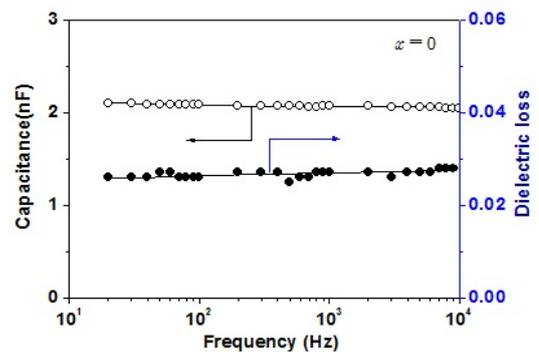


Fig. 1. Frequency response of capacitance and dielectric loss on piezoelectric ceramics.

2) 페라이트 자성체의 등가회로

그림 3은 자성체의 정전용량 및 유전손실의 주파수의존성을 나타낸 것이다. 주파수가 낮은 경우는 정전용량이 매우 크음을 보이다가 주파수가 증가하면 그 값

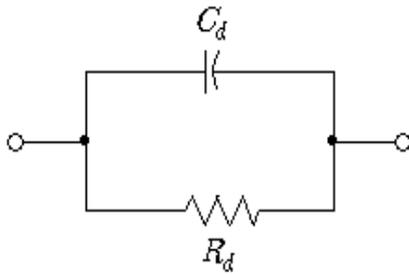


Fig. 2. RC equivalent circuit of piezoelectric ceramics.

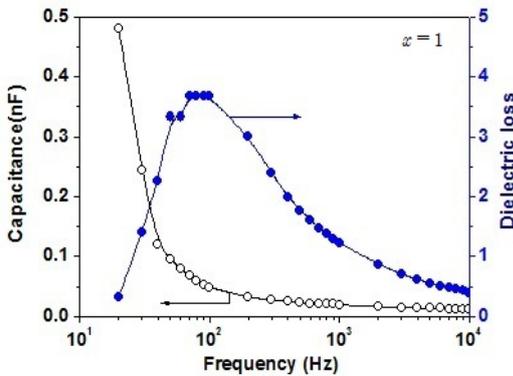


Fig. 3. Frequency response of capacitance and dielectric loss on ferrite magnetic ceramics.

은 급격히 감소하였다. 그리고 유전손실은 주파수가 증가함에 따라서 비교적 빠르게 증가하다가 100 Hz 부근에서 최댓값을 나타내었고, 그 이상의 주파수에서는 빠르게 감소하였다. 분극현상은 4가지의 메카니즘으로 나뉜다. 그 중에 전자분극, 원자분극 및 PZT 압전체와 같은 쌍극자 분극은 입자 내의 구속전하의 변위나 배열에 기인하는 것으로 고주파 범위 이하에서 주파수의 의존성이 적다. 그러나 공간전하분극은 입자경계에서 공간전하의 축적 또는 표면전하의 이동 등에 기인하므로 정전용량 및 유전손실이 낮은 주파수 (수 kHz 이하)에서 그 변화가 매우 크다 [12]. 페라이트 자성체 (본 실험에서 사용한 PM의 물질들을 일반적으로 말함)는 비교적 낮은 임의의 주파수 (보통 수백 Hz)에서 스핀넬구조상의 철이온이 2가에서 3가 또는 그 역 변환에 의한 전자의 치환현상이나 호핑현상으로 인하여 전도성이 증가하기 때문에 공간전하분극에 해당하므로 그림과 같은 유전특성이 나타난다 [13]. 따라서 자성체의 등가회로는 그림 4와 같이

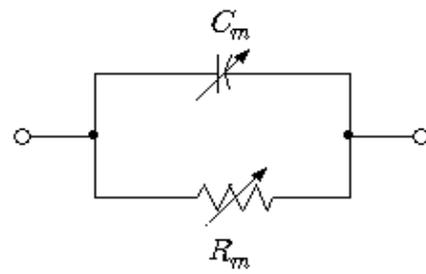


Fig. 4. RC equivalent circuit of ferrite magnetic ceramics.

주파수 의존성을 갖는 등가회로로 나타낼 수 있다.

3) 압전체/자성체 복합구조의 등가회로

그림 5는 압전체/자성체의 정전용량 및 유전손실의 주파수 의존성을 나타낸 것이다. 정전용량은 낮은 주파수에서는 큰 값을 보였으나 주파수가 증가함에 따라서 급격히 감소하였고, 주파수가 10 kHz 부근에서는 매우 낮은 값을 가졌다. 그리고 유전손실은 약 1 kHz 부근에서 큰 값을 가지고 그 이상의 주파수에서는 감소함을 보였다. 이것은 낮은 주파수에서 입자경계에 발생하는 공간전하분극으로 주로 자성체의 영향이고, 높은 주파수에서는 입자 내에 생기는 쌍극자분극으로 압전체의 영향이다. 이러한 유전특성은 등가회로 해석에 매우 중요한 점을 시사한다. 즉 등가회로에서 주파수가 증가하면 자성체의 영향이 없고 압전체의 물리적 특성에 의존성이 있음을 의미한다. 그림에서 유전손실의 크기는 순수한 페라이트 보다는 작음을 보였다. 이것은 전술한 압전체와 페라이트 자성체가 혼합되어 있으므로 페라이트 주위에 고저항을 가지는 압전체가 존재하여 누설전류가 감소하였기 때문이다 [4,14]. 한편 벌크형 ME소자에서 큰 반원과 작은 반원이 존재하는 Cole-Cole 선도로부터 압전체와 자성체의 등가회로가 직렬로 연결되어있음을 보고하였다 [15]. 이러한 등가회로의 표시 방법은 Catalan [16], Zhou [17] 등도 동일하게 표시하고 있다. 따라서 압전체 /자성체의 복합구조에 대한 등가회로는 그림 6과 같이 압전체와 자성체의 등가회로가 직렬로 연결된 것으로 표기된다. 그러나 본 저자는 이러한 표시와 다르게 자성체 성분에 해당하는 저항은 물론 정전용량도 주파수의 함수인 것을 고려하여 가변적으로 표시하였고, 이러한 차이점은 시뮬레이션의 결과에서 비교 설명하겠다.

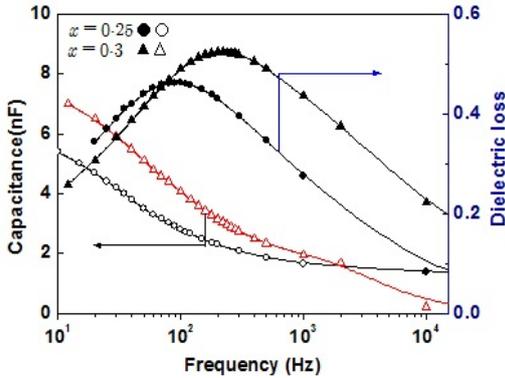


Fig. 5. Frequency response of capacitance and dielectric loss on ME bulk composite.

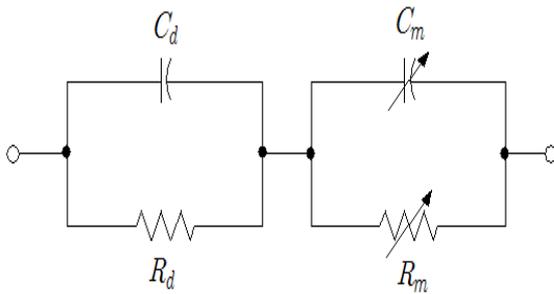


Fig. 6. RC equivalent circuit of ME bulk composite.

3. 실험 방법

3.1 ME소자의 출력전압의 주파수 의존성

그림 7은 여러 가지 부하저항에 있어서 ME 소자의 자계구동주파수에 대한 출력전압을 나타낸 것이다. ME소자의 부하저항을 100 MΩ을 하였을 때 자계구동주파수가 10 Hz부터 서서히 증가시키면 출력전압은 서서히 증가하다가 약 100 Hz에서 2.5 mV의 전압이 나타나고 그 이상의 주파수에서는 서서히 감소함을 보였다. 이와 같은 곡선의 형태는 다른 연구자의 결과와 비슷하였다 [6,8]. 그리고 부하저항을 변화시켜보니 부하저항이 감소할수록 최대출력전압은 낮아지고 출력전압의 최대치가 되는 구동주파수는 점점 높은 주파수로 이동되었다. 이러한 결과는 전기회

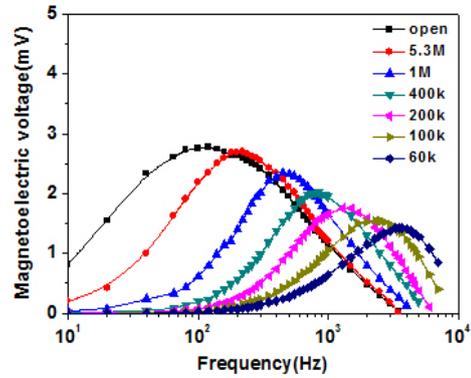


Fig. 7. Frequency dependence of ME voltage under various load resistor ($H_{dc} = 780$ Oe, $H_{ac} = 1$ Oe).

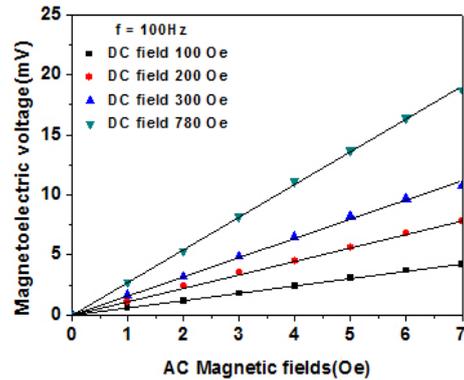


Fig. 8. ME voltage as a function of ac magnetic field H_{ac} for various dc bias field H_{dc} .

로의 해석에서 매우 중요한 점을 시사한다.

ME전압의 최대피어커는 부하저항에 소비되는 최대전력을 의미한다. 최대전력이 공급되기 위해서는 전원의 임피던스와 같은 경우에만 가능하고 이것을 임피던스 매칭이라 한다. 본 실험의 ME소자는 정전용량 (압전체)과 저항 (자성체)로 구성되어 있다. 그러나 높은 전계로 분극처리를 한 소자이므로 주로 정전용량의 성분이라고 하면 ME소자의 임피던스 $X_c = 1/2\pi f C$ 이다. 그러므로 임피던스 매칭이 되기 위해서는 다음 식과 같다.

$$\frac{1}{2\pi f C} = R_l \tag{1}$$

여기서 C 는 ME소자 자체의 정전용량이고, 부하저항에 관계없이 거의 일정한 값을 가진다고 가정한다. 따라서 최대 전력이 나타나는 주파수 f 는 식 (2)로 주어진다.

$$f = \frac{1}{2\pi CR_L} \quad (2)$$

그러므로 부하저항이 감소함에 따라서 최대전력이 나타나는 피이커가 높은 주파수 쪽으로 이동함을 알 수 있다. 이러한 결과는 전기회로의 시정수가 ME소자 내부의 임피던스와 부하저항과의 상호관계가 있음을 제시한다. 그리고 부하저항이 감소함에 따라서 ME전압의 피이커가 감소하는 이유는 ME소자 내부에 존재하는 자성체의 저항 때문에 전압강하가 발생하기 때문이다. 이러한 결과는 ME소자의 내부 등가 회로에서 전원에 직렬로 ME소자의 임피던스가 연결되어야 함을 제시한다.

그림 8은 ME소자의 인가 교류자계 H_{ac} 의 크기에 따라서 ME기전력을 나타낸 것이다. 교류자계의 증가에 대하여 일정한 비율로 기전력이 증가됨은 ME소자에서 전압을 발생시키는 압전체의 출력전압은 H_{ac} 가 일정하면 압전체의 전압도 일정함을 의미한다. 그러므로 등가회로에서 전원은 일정하게 둘 수 있다.

3.2 ME소자의 등가회로해석과 시뮬레이션

3.2.1 ME소자의 등가회로 해석

ME소자는 전압이 발생하는 능동소자이다. 그러므로 등가회로는 전압원(또는 전류원)과 R (저항), L (인덕턴스), C (정전용량) 등의 회로정수로 구성된다. 이때 등가회로 해석을 위한 세 가지의 관점이 3절에서 논의되었다. 1) 전압원은 압전체에 의해서 발생하는 전압으로 크기가 일정하고, 교류자계의 주파수에 따라서 변화하므로 주파수의 함수이다. 2) 소자내부의 임피던스는 전압원과 직렬로 연결된다. 3) 부하 임피던스와 전원 임피던스가 상호 관계하므로 회로의 시정수를 고려할 때 주의해야 한다. 이상의 결과를 유의하여 ME소자의 등가회로 해석은 Maxwell-Wagner two layer condenser model을 적용시켜 생각한다.

그림 9는 부하저항 R_L 을 갖는 등가회로를 나타낸 것이다.

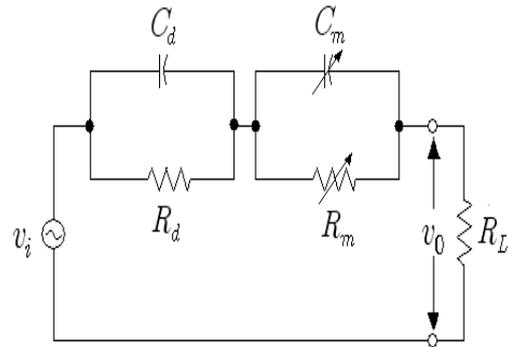


Fig. 9. Equivalent circuits of ME bulk composite.

전압원은 교류자계에 의한 압전체에 유기되는 전압으로 일정한 크기 E_0 와 교류자계의 주파수 f 를 갖는 교류전원 $v_i = E_0 \exp(-j\omega t)$ 로 가정하고, $\omega = 2\pi f$ 이다. Y_d 는 압전체 성분의 어드미턴스로 정전용량 C_d 와 저항 R_d 로 구성되어 있고, Y_m 은 자성체 성분의 어드미턴스로 정전용량 C_m 과 저항 R_m 로 구성되며, 부하저항은 R_L 이다. 여기서 Y_d 와 Y_m 은 각각 다음과 같다.

$$Y_d = \frac{1}{R_d} + j\omega C_d = \frac{1 + j\omega C_d R_d}{R_d} \quad (3)$$

$$Y_m = \frac{1}{R_m} + j\omega C_m = \frac{1 + j\omega C_m R_m}{R_m} \quad (4)$$

Y_d 와 Y_m 의 합성 어드미턴스 Y 는 다음과 같다.

$$Y = \frac{1}{1/Y_d + 1/Y_m + R_L} = \frac{(1 + j\omega\tau_d)(1 + j\omega\tau_m)}{(R_d + R_m + R_L)(1 + j\omega\tau)} \quad (5)$$

여기서 RC 회로의 시정수는 다음과 같다

$$\tau_d = R_d C_d \quad (6)$$

$$\tau_m = R_m C_m \quad (7)$$

$$\tau = \frac{\tau_d(R_m + R_L) + \tau_m(R_d + R_L)}{R_d + R_m + R_L} \quad (8)$$

식 (8)은 완화시간 τ 가 부하저항 R_L 의 의존성이 있음을 상기해야 한다. 이것은 그림 9에서 최대전압을 나타내는 주파수가 부하저항의 의존성이 관측되었기 때문이다.

부하저항에 흐르는 전류 $i = Y \times v_i$ 이므로, 부하저항에 나타나는 출력전압은 다음과 같다.

$$v_0 = i \times R_l = Y \times v_i \times R_l \quad (9)$$

3.3 시뮬레이션

주파수에 대한 출력전압을 시뮬레이션하기 위하여 상수의 값들을 먼저 정해야 한다. 그림 9에서 얻은 결과와 비슷한 형태를 얻기 위해서 시편의 크기는 $3 \text{ mm} \times 7 \text{ mm} \times 1 \text{ mm}$ 로 하고 압전체와 자성체의 비율을 체적비로 8/2로 하였다. 일반적으로 PZT계열의 압전체는 비유전율 ϵ_r 이 1,500~3,000, 도전을 σ 가 $10^{-7} - 10^{-9} \text{ S/m}$ 이다. 그리고 NiZn 페라이트는 ϵ_r 이 20-40이고, σ 가 $10^{-2} - 10^{-6} \text{ S/m}$ 이다 [18]. 따라서 본 저자는 압전체에서는 $\epsilon_r = 2,000$, $\sigma = 1 \times 10^{-8} \text{ S/m}$, 그리고 자성체에서는 $\epsilon_r = 30$, $\sigma = 2 \times 10^{-4} \text{ S/m}$ 로 하여 계산된 값들은 $C_d = 500 \text{ pF}$, $R_d = 4 \text{ G}\Omega$, $C_m = 30 \text{ pF}$, $R_m = 50 \text{ k}\Omega$ 이고, $E_0 = 3 \text{ mV}$, $R_l = 100 \text{ k}\Omega, 1 \text{ M}\Omega, 10 \text{ M}\Omega$ 으로 각각 가정하였다.

그림 10은 자성체의 저항 R_m 및 정전용량 C_m 의 값이 주파수의 변화에 대하여 일정하다고 가정하여 ME소자의 출력전압을 시뮬레이션한 것이다. 그림에서 주파수가 100 Hz 이상에서 전압은 거의 일정하였다가 10 kHz 이상에서는 오히려 전원전압보다 증가하였다. 이러한 결과는 ME소자에서 출력전압의 주파수 의존성을 나타낸 그림 7의 결과와는 다르다. 그림 7을 분석해 보면 1) ME소자의 출력전압은 100 Hz에서 최대값을 갖고 그 이상의 주파수에서는 감소하는 것, 2) 최대전압을 나타내는 주파수를 중심으로 서로 대칭적인 관계를 나타내는 것이다. 이것은 등가회로에서 ME소자의 자성체가 주파수의 함수를 가져야 한다는 것이 명백하다. 즉 임의의 주파수 이상에서 출력전압이 감소하기 위해서는 자성체의 내부 임피던스가 최대가 되어야 한다. $\text{NiZnFe}_2\text{O}_4$ 페라이트 [18]는 임의의 주파수 (수백 Hz) 이상에서 도전율이 급격히 감소한 것은 저항의 급격한 증가를 의미하고, 비유전율 역시 도전율의 곡선과 비슷하게 감소하는 것은 정전용량과 저항은 서로 상대적인 관계가 있다. 또한 교류전계가 인가된 유전체의 쌍극자 배열은 주파수에 의존성이 나타난다 [19]. 즉 Debye 흡수와 쌍극자 분산곡선에서 분산이 일어나는 완화시간을 중심으로 좌우 대칭적인 분산곡선이 나타나며 이때 규격

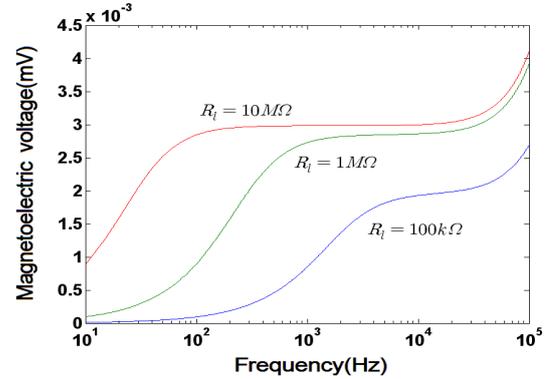


Fig. 10. Simulation plot of ME voltage vs frequency (R_m, C_m ; constant).

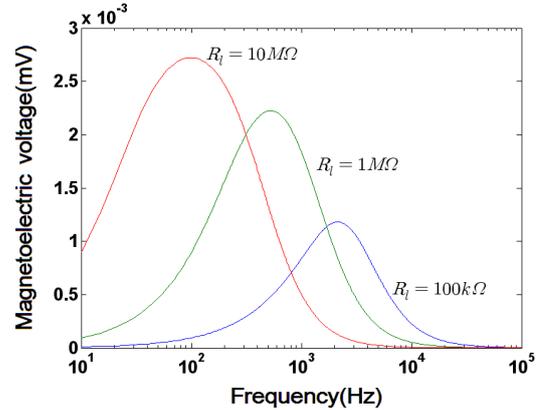


Fig. 11. Complete simulation plot of ME voltage vs frequency (R_m, C_m ; variable).

화시킨 유전체의 전화율과 도전율의 곡선은 거울 상과 같음을 나타낸다고 하였다 (참고문헌 [19] 그림 20.4 참조). 이때 전화율 곡선을 유도해 보면 $1/(1 + \omega^2 \tau^2)$ 임을 알 수 있다. 그러므로 자성체는 Debye 흡수와 쌍극자의 분산현상이 존재하므로 등가회로에서 정전용량과 저항요소는 다음과 같이 생각된다.

$$C_m = \frac{C_{m0}}{1 + \omega^2 \tau^2} \quad (10)$$

$$R_m = R_{m0} (1 + \omega^2 \tau^2) \quad (11)$$

그림 11은 자성체의 정전용량 및 저항을 식 (10), (11)와 같이 주파수의 함수로 적용하고 ME소자의 출력전압을 시뮬레이션한 것이다. 그 결과 그림 7과 같

이 거의 유사한 ME 소자의 출력전압을 얻을 수 있었다. 즉 ME전압이 주파수의 의존성이 있고 대칭적이며, 부하저항의 감소에 대하여 ME전압이 비례적으로 감소하고 최대 ME전압의 주파수가 증가함을 보였다.

4. 결론

본 실험에서는 압전체 분말과 자성체 분말을 혼합한 ME소자를 만들고, 교류자계 구동주파수에 대한 소자의 출력전압을 측정하였다. 그리고 Maxwell-Wagner 모델을 기초로 한 ME소자의 저주파 영역에서 등가회로를 구성하여 출력전압의 주파수 의존성을 시뮬레이션하였다. 그 결과 ME소자는 압전체와 자성체의 등가회로가 서로 직렬로 되어 있고, 두 물질 상호 간에 유전완화 현상에 의한 완화시간 τ 가 존재하고, 이 완화시간은 소자의 부하저항에 따라 변함을 알 수 있다. 그리고 압전체는 유전분산이 없으므로 등가회로에서 저항이나 정전용량이 주파수에 의존성이 없으나, 자성체는 Debye 흡수와 쌍극자의 분산현상이 존재하므로 저항이나 정전용량이 주파수의 함수이다. 즉 자성체의 등가저항 성분은 $(1 + \omega^2\tau^2)$ 에 비례하고, 등가정전용량 성분은 $(1 + \omega^2\tau^2)$ 에 반비례함을 제시하였다.

감사의 글

이 논문은 부경대학교 자율창의학술연구비 (2013년: 0520)에 의하여 연구되었음.

REFERENCES

- [1] R. Grossinger, Giap V. Duong, and R. Sato-Turtelli, *J. Magn. Magn. Mater.*, **320**, 1972 (2008).
- [2] S. N. Babu, K. Srinivas, S. V. Suryanarayana, and T. Bhimasankaram, *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **41**, 165407 (2008).
- [3] C. M. Kanamadi, S. R. Kulkarni, B. K. Chougule, J. H. Jeong, B. C. Choi, and Y. S. Kang, *J. Mater. Sci: Mater Electron*, **20**, 632 (2009).
- [4] R. Sun, B. Fang, X. Dong, and J. Liu, *J. Mater. Sci.*, **44**, 5515 (2009).
- [5] J. H. Ryu, S. Priya, K. Uchino, and H. E. Kim, *J. Electroceram.*, **8**, 107 (2002).
- [6] V. M. Petrov, M. I. Bichurin, G. Srinivasan, J. Zhai, and D. Viehland, *Solid State Communication*, **142**, 515 (2007).
- [7] V. M. Laletin, V. M. Petrov, D. S. Tuskov, and G. Srinivasan, *Tech. Phys. Lett.*, **34**, 83 (2008).
- [8] Y. K. Fetisov, A. A. Bush, K. E. Kamentsev, A. Y. Ostashchenko, and G. Srinivasan, *IEEE Sensor Journal*, **6**, 935 (2006).
- [9] A. V. Hippel, *Dielectric and Waves* (Artech House Boston-London, 1995) p. 228.
- [10] Y. K. Park, S. M. Son, J. G. Ryu, and S. T. Chung, *J. KIEEME*, **23**, 869 (2010).
- [11] G. V. Duong, R. Groessinger, M. Schoenhart, and D. Bueno-Basques, *J. Magn. Magn. Mater.*, **316**, 390 (2004).
- [12] N. Singh, A. Agarwal, and S. Sanghi, *Curr. Appl. Phys.*, **11**, 783 (2011).
- [13] D. Ravinder and K. Latha, *Mater. Lett.*, **41**, 247 (1999).
- [14] M. V. Ramanaa, N. R. Reddt, G. Sreenivasulu, K. V. S. Kumar, B. S. Murty, and V.R.K. Murthy, *Curr. Appl. Phys.*, **9**, 1134 (2009).
- [15] Y. J. Li, *Solid State Communication*, **137**, 120 (2006).
- [16] G. Catalan, *Appl. Phys. Lett.*, **88**, 102902 (2006).
- [17] J. Zhou, Z. Qiu, and P. Liu, *Mater. Res. Bull.*, **43**, 3514 (2008).
- [18] A. J. Moulson and J. M. Herbert, *Electroceramics, Materials-Properties-Applications* (Chapman and Hall, London-Newyork, 1990) p. 400.
- [19] A. Chelkowski, *Dielectric Physics* (Elsevier Scientific Publishing Company, Amsterdam-Oxford-New York, 1980) p. 97.