

## WO<sub>3</sub>를 첨가한 SrTiO<sub>3</sub> 세라믹스의 전기적성질에 관한 연구

### Study on the electrical properties of WO<sub>3</sub>-doped SrTiO<sub>3</sub> ceramics

유인규\* · 김효태 · 변재동 · 김윤호\*\*

고려대학교 재료공학과

\*\* 한국과학기술연구원 세라믹스부

In-Kyu You\*, Hyo-Tae Kim, Jae-Dong Byun, Yoon-Ho Kim\*\*

Dept. of Materials Science & Engineering, Korea University

\*\*Division of Ceramics, KIST

#### ABSTRACT

The effect of WO<sub>3</sub> addition and sintering condition on the electrical properties of SrTiO<sub>3</sub> ceramic have been investigated. Resistivity and capacitance of grains and grain boundaries were obtained by applying impedance spectroscopy.

From the result it could be concluded that the temperature dependance of capacitance of WO<sub>3</sub> doped specimens were influenced directly by the variation of grain boundary capacitance. It was also found that the dispersion frequency increased as the degree of reduction of the specimen increased. The dispersion frequency characteristics showed discernably that the resistivity of the specimen varied with WO<sub>3</sub> content. The dielectric properties were influenced directly by the reduction of the specimens. The dielectric constant of grain boundaries of BL capacitor could be obtained by Cole-Cole plot and was influenced by the amount of WO<sub>3</sub> added.

#### 1. 서 론

Ceramic의 capacitor로 이용된 것은 1900년 대 초기에 독일에서 Steatite가 개발된 것으로 시작하여 1920년 대 초기에 와서는 유전율이 100이상인 Rutile이 개발되었다. 1940년 대 중반 유전율이 Rutile에 비해 10배 이상 큰 새로운 종류의 BaTiO<sub>3</sub> 강유전재료가 발견되었다. 그러나 BaTiO<sub>3</sub>는 높은 유전율에 비해 유전손실이 큰 단점을 가지고 있다. 이러한 이유로 유전율은 낮지만 유전손실이 작고 온도와 전압에 대해 보다 안정한 성질을 가지는 SrTiO<sub>3</sub>에 대한 관심이 높아지게 되었다.<sup>1,6)</sup>

일반적으로 결정립과 결정립계로 구성된 미세구조를 갖는 다결정 유전체는 Brick-Wall model에 의해 표현될 수 있다.<sup>7)</sup> 이 모델에서  $\rho_2 \gg \rho_1$ 일 때( $\rho_1$ 는 결정립의 비저항,  $\rho_2$ 는 결정립계의 비저항), 결정립과 결정립계는 series mixing으로 표현될 수 있다. Brick-Wall model에 의해

BL(boundary layer) capacitor는 낮은 저항의 결정립과 높은 저항의 결정립계가 직렬회로가 되고 둘 사이에 계면분극이 일어나 비유전율이 크게 되는 capacitor이다. 이런 이유로 BL capacitor에 대한 많은 연구는 결정립의 저항을 낮추고 결정립계의 저항을 증가시키는 방향으로 진행되어왔다. BaTiO<sub>3</sub>와 SrTiO<sub>3</sub>의 저항을 줄이는 방법에는 환원제를 첨가하여 valence doping을 시키는 방법과 환원분위기에서 소성하는 방법이 있다. 또한 결정립계의 저항을 증가시키는 방법에는 결정립계에 metal vacancie를 확산시켜서 절연층을 형성시키는 방법과 절연층을 결정립계에 직접 침투시키는 방법등이 있다.

Waku<sup>8)</sup>는 BaTiO<sub>3</sub>를 반도체화하기위해 Dy<sub>2</sub>O<sub>3</sub>를 첨가하고 N<sub>2</sub>가스분위기에서 소성하였다. 또한 열계를 절연시키기위해 CuO와 Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub>를 확산시키는 방법을 처음으로 사용하였다. SrTiO<sub>3</sub>는 BaTiO<sub>3</sub>에 비하여 Hall mobility가 10배 정도 높기 때문에<sup>9,10)</sup> BaTiO<sub>3</sub>보다 SrTiO<sub>3</sub>를 사용하면 입자내부의 전기전도도를 증가시킬 수 있고 유전손실을 줄일 수 있으며 capacitance dispersion 주파수를 높은 주파수영역으로 옮길 수 있다. Waku<sup>11)</sup>는 이 점에 착안하여 BaTiO<sub>3</sub>에 Sr를 첨가함으로써 전기전도도를 증가시킬 수 있었고 유전손실을 줄일 수 있었다. Yamaji<sup>12)</sup>는 (Ba,Sr<sub>x</sub>)TiO<sub>3</sub> solid solution BL dielectrics에서 x=0.04일 때 최대전도도를 가지며 유전율이 10,000-20,000 정도되는 BL capacitor를 제조하였다. 그는 이 실험에서 SrTiO<sub>3</sub>를 기본물질로 하는 capacitor가 BaTiO<sub>3</sub>보다 결정립의 저항이 낮고, dispersion 주파수가 증가하며 온도 의존성이 양호함을 보여주고 있다.

지금까지 살펴본 바와 같이 BL capacitor는 결정립과 결정립계로 구성되는 미세구조와 전도도는 전체 유전성질과 매우 밀접한 관계를 가지고 있음을 알 수 있었다. 본 논문에서는 SrTiO<sub>3</sub>를 반도체화하기위해 donor로 WO<sub>3</sub>를 첨가하고 CO/CO<sub>2</sub> 환원가스분위기에서 소성하고자 한다. 결정립성장을 촉진시키고자 WO<sub>3</sub>-TiO<sub>2</sub>와 SrO-TiO<sub>2</sub>의 공정점(eutectic point)을 이용하여 액상소결을 시키고자 한다. 소성된 시편의 미세조직

을 SEM을 통해 확인하고 유전특성과의 관계를 조사하고자 한다. 또한 소성된 시편의 결정립과 입계가 전기적성질에 미치는 영향을 Impedance Spectroscopy (IS)를 사용하여 조사하고 시편의 상온전도도가 유전특성에 미치는 영향에 대해서 연구하고자 한다. 이를 기초로 전기적 성질과 미세구조와의 관계를 설명하고 최적의 유전특성을 갖는 GBL capacitor를 제조하는 방법을 찾고자 한다.

## 2. SrTiO<sub>3</sub> 세라믹스의 복소 임피던스

SrTiO<sub>3</sub> 세라믹스는 소결에 의해 제조된 다결정체로써 내부구조적으로 결정립, 입계와 입계에 존재하는 절연층(insulating layer) 및 기공(pore)들에 의해 구성되며 이들 각각은 독특한 특성을 갖고 전체적인 특성 변화에 영향을 미친다.<sup>(13)</sup> 특히 반도체 세라믹스의 경우 전자의 밀도가 높은 결정립들 사이의 입계에 전위장벽층(potential barrier layer)이 형성되며 입계의 형성상태를 조절함으로써 세라믹스 특유의 독특한 기능들을 발휘시킬 수 있기 때문에 최근의 연구는 입계현상이 주 관심사가 되었다.

이러한 입계현상에 대한 연구는 전자현미경(SEM 및 TEM)을 이용하여 성분 및 구조를 해석하는 화학적인 방법과 전기적인 방법으로 크게 구분되어진다. 그러나 화학적인 방법은 전기적인 현상을 설명하는 무수적인 결과 밖에 될 수 없으며, 전기적인 방법 또한 복잡한 세라믹스 구조 특성 때문에 부분적인 적용만이 이루어지고 있는 실정이다. 최근에는 복소 임피던스 측정을 통해 결정립과 결정립계면의 전기적 성질을 분리시키는 방법이 시도되고 있다.

세라믹스유전체의 미세구조를 그림 1(a)과 같이 블록모델로 나타낼 수 있으며 이 블록모델에 의한 등가회로는 그림 1(b)와 같다.<sup>(14)</sup> 결정립이 도체인 경우에는 결정립의 정전용량이 매우 작기 때문에 이를 무시할 수 있으므로 그림 1(c)와 같다. 여기서 임피던스는 무시하고 점속저항을 줄이기 위해 ohmic 전극을 사용한다. 이 때 시편전체의 복소 임피던스는 다음과 같이 나타낼 수 있다.

$$Z = \frac{R_g}{1 + j\omega C_g R_g} + \frac{R_{gb}}{1 + j\omega C_{gb} R_{gb}} + \frac{R_e}{1 + j\omega C_e R_e} \quad (1)$$

식 (1)을 복소평면에 그리면 그림 2와 같이 결정립, 결정립계면과 전극저항에 의한 세 개의 반원이 나타날 수 있다. 일반적으로 전극에 의한 반원은 이완시수가 매우 크기 때문에 낮은 주파수영역에서 나타나므로 전극에 의한 반원을 관측하기는 힘들다. 따라서 보통 결정립과 결정립계면에 의한 두 개의 반원을 측정할 수 있다. 대개는 입계면의 이완시수가 결정립보다는 크기 때문에 낮은 주파수에서 이완된 반원은 입계면에 의한 것이고 높은 주파수에서 이완되는 반원은 결정립에 의한 것이다. 본 실험에서는 복소임피던스 측정주파수범위를 100Hz ~ 15MHz까지하여 측정하였다.

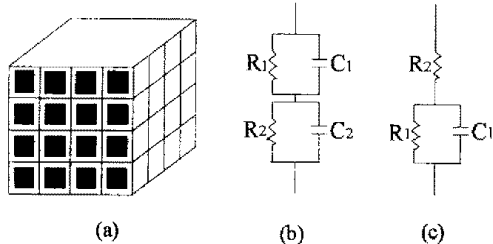


Fig. 1. Schematic representation of (a) block model of BL capacitor microstructure, (b) and (c) corresponding equivalent circuits for insulating and conducting grains.

R<sub>1</sub>: resistance of the grain boundary layer  
R<sub>2</sub>: resistance of the grain  
C<sub>1</sub>: capacitance of the grain boundary layer  
C<sub>2</sub>: capacitance of the grain

## 3. 실험방법

### 3.1. 시편준비

본 실험에서 사용한 분말원료의 종류와 순도와 제조사는 다음 표 1과 같다.

표1. 분말원료의 특성

Reagent	Purity(%)	Manufacturer
SrCO <sub>3</sub>	> 99.0	Fuji Co.
TiO <sub>2</sub>	> 99.0	Ferro Co.
WO <sub>3</sub>	> 99.9	Fluka Co.
PbO	> 99.9	Junsei Co.
Bi <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	> 99.9	Riedel Co.
B <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	> 99.0	Junsei Co.

SrCO<sub>3</sub>와 TiO<sub>2</sub>를 1:1 mol 비로 하여 전자저울을 사용하여 ±0.1mg의 오차범위까지 정밀하게 평량하였다. 평량한 분말의 혼합 및 분쇄는 불순물유입을 억제하기 위해 MC-Nylon Jar에서 Urethane Ball을 사용하여 습식으로 milling하였다. 혼합 및 분쇄된 시료를 100-150°C에서 24시간 건조한 후, 300°C/hr의 승온률로 alumina 도가니에 담아 1100°C에서 4시간 하소하였다. 하소한 SrTiO<sub>3</sub>와 WO<sub>3</sub>를 Sr(Ti<sub>1-x</sub>W<sub>x</sub>)O<sub>3</sub> + xTi 조성 중, X가 0.0015 < X < 0.05가 되게 전자저울로 다시 평량하였다. 이 조합 조성물을 MC-Nylon Mortar에서 24시간 습식으로 혼합 및 분쇄하였다. 분쇄된 시료를 충분히 건조한 후 유압 Press를 사용하여 1200kg/cm<sup>2</sup>의 성형압으로 직경 12mm 두께 1mm내외의 시편을 성형하였다. 성형된 시편을 CO와 CO<sub>2</sub>의 혼합가스를 mass flow meter로 조절하여 산소분압을 변화시키면서 1410°C-1470°C에서 4시간 소성하였다. 이 때 산소분압은 ZrO<sub>2</sub> 산소센서를 사용하여 측정하였다.

### 3.2. 전기적특성측정

주파수특성은 전극의 산화를 방지하기 위해 N<sub>2</sub>가스를 흘리면서 Impedance/Gain--Phase Analyzer(Hewlett Packard 4194A)를 이용하여 측정하였다. 측정주파수구간은 100Hz-15MHz까지 측정 가능하였다. 각 조건에서 소성한 시편에 In-Ga전극을 발라 점속저항을 줄인 후, Electrometer(Keithley 617)와 High Resistance Meter(HP 4339A)를 사용하여 dc 0.3V에서 2 point probe 방법으로 저항을 측정하여 전도도를 환산하였다. 또한 유전특성을 측정하기 위하여 소성한 시편에 PbO-Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>를 무게비로 50:45:5로 하여 만든 절연물을 1200°C, 2시간 동안 열처리하여 확산시켰다. 이렇게 절연물을 확산시킨 시편에 은전극을 800°C, 10분동안 열처리하여 전극을 입혀서 LCR meter(HP 4194A)를 사용하여 1KHz, 1Vrms의 측정신호로써 정전용량 및 유전손실계수(tanδ)를 측정하였다. 절연저항은 High Resistance Meter(HP 4339A)를 사용하여 25V dc하에서 측정하였다. 여기서 정전용량(C)으로부터 겉보기유전율(Apparent permittivity)을 다음과 같이 구하였다.

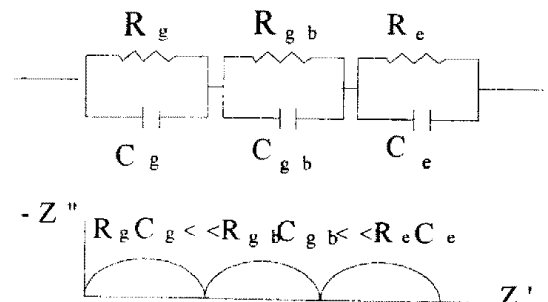


Fig.2. Generic equivalent circuit of a dielectrics and semi-circle in complex plane.

$$K_a = \frac{C \cdot t}{\epsilon_0 \cdot A}$$

- t : 유전체의 두께
- $\epsilon_0$  : 진공의 유전상수 (8.854x10<sup>-12</sup> farad/m)
- A : 전극면적(m<sup>2</sup>)

#### 4. 결과 및 고찰

##### 4.1. 낮은 산소분압(Po<sub>2</sub>=10<sup>-13</sup>atm)에서 소성한 시편의 임피던스특성

그림 3은 WO<sub>3</sub>를 첨가한 SrTiO<sub>3</sub>를 산소분압 10<sup>-13</sup>atm, 1460°C에서 소성한 시편에 대해 복합임피던스의 실부분(real part of complex impedance)의 주파수의존성을 나타낸 그림이다. 저주파수대에서는 WO<sub>3</sub>의 양이 증가함에 따라 임피던스값이 감소하다가 WO<sub>3</sub>가 1.5mol%첨가될 때 부터 다시 증가하는 경향을 보여주고 있다. 이러한 임피던스값의 변화는 시편의 저항이 비교적 큰 조성(0.15와 5.0 mol%)의 경우에는 저항이 비교적 작은 조성(0.3와 1.5 mol%)의 경우에 비하여 공진주파수(resonance frequency)가 작은 값을 보이고 있는데서 확실히 알 수 있다.<sup>14)</sup> 이는 임계의 저항(R<sub>gb</sub>)이 전체 임피던스에 영향을 미치고 있음을 말해 주고 있다. 한편, 그림 4는 그림 3으로부터 결정립과 임계의 저항 및 정전용량의 변화를 계산하여 WO<sub>3</sub>첨가량에 따라 나타낸 그림이다. 이 결과에서 WO<sub>3</sub>양에 따른 결정립 저항은 거의 변화가 없었다. 반면 WO<sub>3</sub>양에 따른 임계저항(R<sub>gb</sub>)은 감소하다가 다시 증가하고 임계의 정전용량은 증가하다가 감소하는 경향을 보이고 있다.

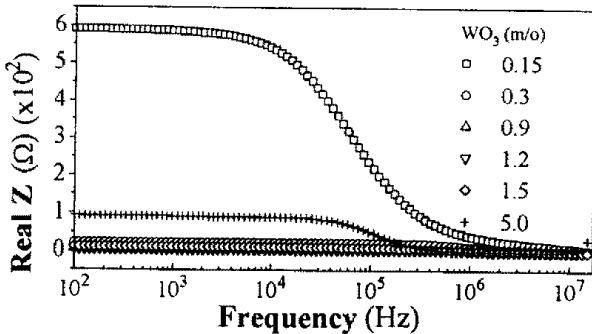


Fig. 3. Frequency characteristics of real impedance of WO<sub>3</sub>-doped SrTiO<sub>3</sub> sintered in Po<sub>2</sub>=10<sup>-13</sup>atm, 1460°C

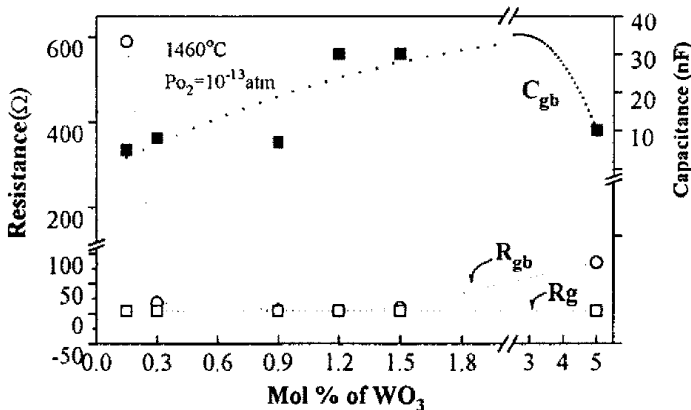


Fig. 4. Resistance and capacitance of WO<sub>3</sub>-doped SrTiO<sub>3</sub> measured at resonance freq.(f<sub>0</sub>) (The specimens were sintered at 1460°C in Po<sub>2</sub>=10<sup>-13</sup>atm)

그림 5는 WO<sub>3</sub>를 5.0mol% 첨가한 SrTiO<sub>3</sub>의 온도에 따른 저항과 정전용량의 관계를 나타낸 그림이다. 임계의 저항은 온도에 따라 감소하고 임계의 정전용량의 값은 조금씩 증가하고 있는 경향을 보이고 있다. 이는 H.D.Park<sup>11)</sup>의 결과와 비슷하였다.

반면 그림 6은 WO<sub>3</sub>를 0.3 mol%첨가하고 1460°C의 대기 중에서 소성한 시편을 1200°C에서 2시간 동안 2차 열처리를 통해 유리질(PbO-Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)를 확산시킨 GBI. capacitor의 complex impedance를 측정 한 것이다. 유리질을 확산시키기 전의 시편과는 다르게 100Hz 이하의 낮은 주파수대에서 dispersion frequency가 형성되고 있다. 이는 임계에 확산시킨 높은 저항의 유리질에 의한 영향으로 dispersion주파수가 낮은 주파수지역으로 이동하였음을 보여준다.

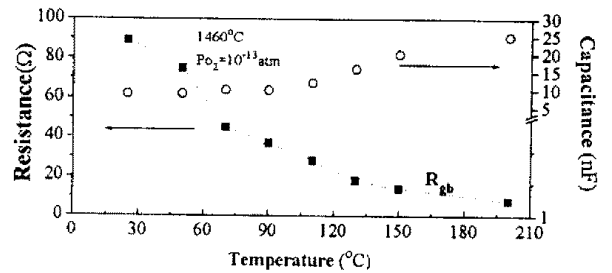


Fig. 5. Temperature characteristics of resistance and capacitance of 5.0 mol% WO<sub>3</sub>-doped SrTiO<sub>3</sub> measured at resonance freq.(f<sub>0</sub>) (The specimens were sintered at 1460°C in Po<sub>2</sub>=10<sup>-13</sup>atm)

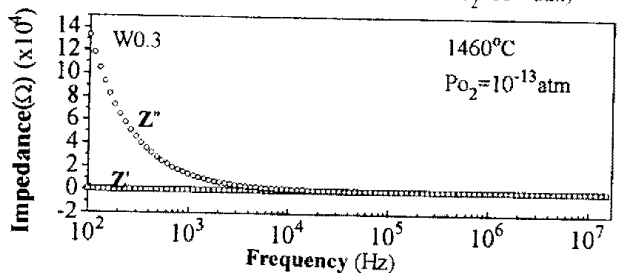


Fig. 6. Frequency characteristics of complex impedance of 0.3 mol% WO<sub>3</sub>-doped SrTiO<sub>3</sub> after diffusion treatment.

##### 4.2. 높은 산소분압(Po<sub>2</sub>=0.21atm)에서 소성한 시편의 임피던스특성

그림 7은 WO<sub>3</sub>가 첨가된 SrTiO<sub>3</sub>의 복소유전율을 cole-cole plot으로 나타낸 것이다. WO<sub>3</sub>가 0.9mol%이상 첨가되었을 때 결정립계에 결정립과는 다른 물질이 형성되었음을 보여준다. 그림 7(A), (B)와 (C)에서 주파수변화에 따라 반원(semicircle)이 두 개 그려져 있는데 저주파지역의 반원이 새로 형성된 임계의 물질이고 고주파지역의 반원은 결정립을 나타낸다.

그림 8은 SrTiO<sub>3</sub>에 WO<sub>3</sub>가 1.2 mol% 들어가고 1470°C와 대기 중에서 소성한 시편의 복소유전율을 온도변화에 따라 cole-cole plot한 것이다. 그림에서 고주파지역의 결정립계를 나타내는 반원은 온도에 따라 거의 변화가 없으나 저주파지역의 결정립계를 나타내는 반원은 온도가 증가함에 따라 반경이 커지고 있다. 이러한 결과에서 결정립의 유전율은 온도에 따라 거의 변화가 없으나 결정립계의 유전율은 온도에 따라 변화하고 있음을 알 수 있었다.

그림 9는 WO<sub>3</sub>가 1.2 mol%와 2.0mol% 첨가된 SrTiO<sub>3</sub>의 열적 이완활성화에너지(relaxation activation energy)를 나타낸 그림이다. 유전손실이 가장 클때(K<sup>\*</sup><sub>max</sub>)의 평균완화시간(mean relaxation time) τ를 ωτ = 1에 의해 결정하였다. WO<sub>3</sub>를 첨가한 SrTiO<sub>3</sub>가 열적 활성화 작용(thermally activated process)을 한다면, 일반적으로 활성화에너지는 다음과 같은 식으로 나타낼 수 있다.

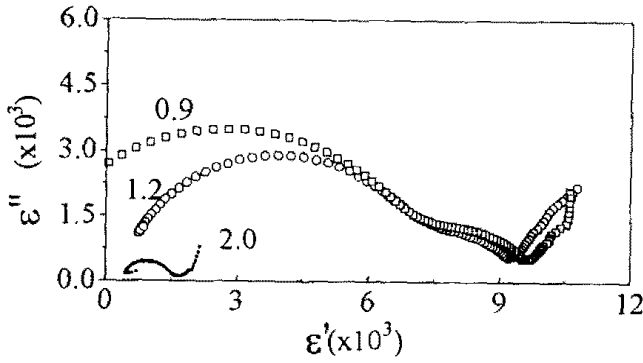


Fig. 7. Cole-Cole plot of complex permittivity of  $\text{WO}_3$ -doped  $\text{SrTiO}_3$  sintered in air,  $1470^\circ\text{C}$ . (measured at  $70^\circ\text{C}$ )

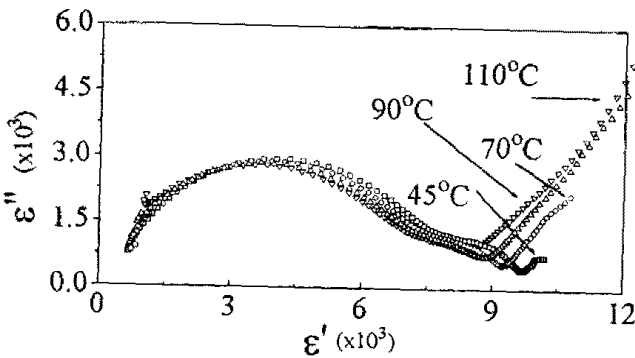


Fig. 8. Cole-Cole plot of complex permittivity of 1.2 m/o  $\text{WO}_3$ -doped  $\text{SrTiO}_3$  sintered at  $1470^\circ\text{C}$  in air according to measuring temperature.

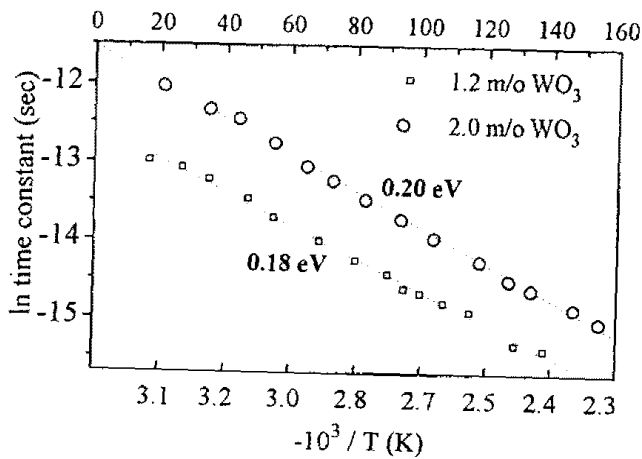


Fig. 9. Arrhenius plot of relaxation time of 1.2 and 2.0 m/o  $\text{WO}_3$ -doped  $\text{SrTiO}_3$  sintered in air.

$$\tau = \tau_0 \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) \quad (2)$$

이에서  $E$ 는 평균활성화에너지(mean activation energy),  $\tau_0$ 는  $T \rightarrow \infty$  일 때의 완화시간,  $k$ 는 Boltzman 상수이다.

이완시상수는 보통 RC 곱에 의해 정의되는데 결정립의 정전용량은 본 실험의 측정온도영역에서는 크게 변화하지 않기 때문에 이완시상수의 지수적 온도 의존성은 C보다는 R에 의한 것으로 볼 수 있다. 따라서 저항에 있어서의 활성화에너지의 이완활성화에너지는 일반적으로 거의 같다고 볼 수 있다.

Cho<sup>15)</sup>는 1.4at%의  $\text{Nb}_2\text{O}_5$ 가 첨가된  $\text{SrTiO}_3$ 의 이완활성화에너지 (relaxation activation energy)를 0.54eV라고 하였다. 또한 Nb를 0.8과 1.2 at%씩 첨가한  $\text{SrTiO}_3$ 의 이완활성화에너지가 0.58eV와 0.57eV로 Nb의 양에 따라 활성화에너지가 거의 변하지 않았다.  $\text{SrTiO}_3$ 에 W를 치환한 본 실험에서  $\text{WO}_3$ 가 1.2mol%첨가된 시편의 이완활성화에너지는 0.18 eV였고  $\text{WO}_3$ 가 2.0mol%첨가된 시편의 이완활성화에너지는 약 0.20 eV였다. 이를 통해 W이 Nb에 비해  $\text{SrTiO}_3$ 의 이완활성화에너지를 상당히 낮추고 있음을 알 수 있다.

#### 4.3. $\text{WO}_3$ 와 소성조건에 따른 유전특성

그림 10은  $1470^\circ\text{C}$ 에서 산소분압별로 소성한 시편의 유전특성을  $\text{WO}_3$ 첨가량에 따라 나타낸 것이다. 겉보기유전율(Apparent permittivity)은  $\text{WO}_3$ 를 0.3mol% 첨가하고 낮은 산소분압대인  $\text{Po}_2=10^{-10}, 10^{-11}$ 와  $10^{-13}\text{atm}$ 일 때 55,000-64,000정도의 높은 값을 가졌다. 이에 반해 높은 산소분압 ( $\text{Po}_2=10^{-6}\text{atm}$ )에서 소성한 시편의 겉보기 유전율은 25,000정도였다. 그림 11은  $\text{WO}_3$ 를 0.6mol% 첨가하고  $1460^\circ\text{C}$ 와 산소분압  $10^{-13}\text{atm}$ 에서 소성한 GBBL capacitor의 정전용량의 주파수특성이다. 정전용량이 dispersion되는 주파수는 측정온도에 상관없이 같은 주파수에서 일어나고 있었고 정전용량은 측정온도가 올라갈 수록 약간씩 감소하는 경향을 나타내었다. 이는 온도에 따라 결정립계의 정전용량이 변하고 있기 때문이다.

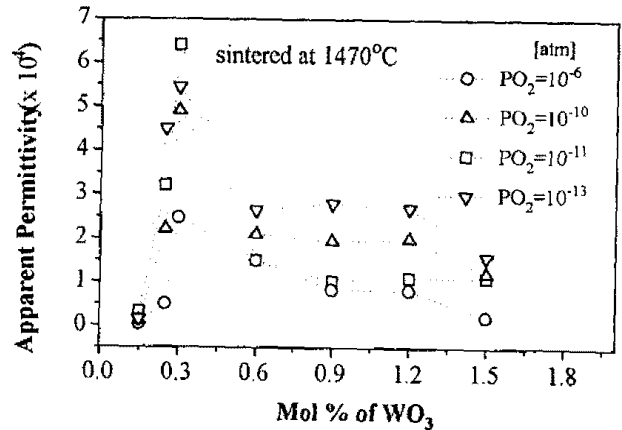


Fig. 10. Dependence of apparent permittivity of GBBL-capacitor on the amount of  $\text{WO}_3$  added and sintering atmospheres.

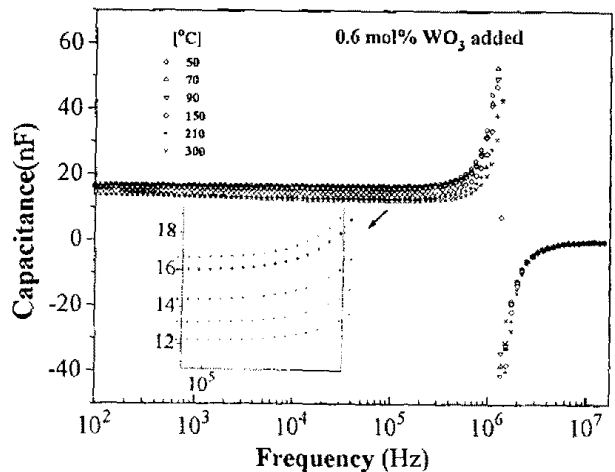


Fig. 11. Frequency characteristics of capacitance of GBBL capacitor. (The specimen was sintered at  $1460^\circ\text{C}$  in  $\text{Po}_2=10^{-13}\text{atm}$ )

## 5. 결 론

WO<sub>3</sub>를 첨가한 SrTiO<sub>3</sub>의 전기적특성에 대해 연구한 결과 다음과 같은 결론을 얻었다.

1. 전극과 유전체 표면의 3.0 mol% WO<sub>3</sub>가 첨가된 SrTiO<sub>3</sub>의 미세구조를 관찰할 수 있었다.
2. WO<sub>3</sub>가 첨가된 SrTiO<sub>3</sub>의 복합임피던스를 측정한 결과 시편 내부에 존재하는 계면의 상태에 따라 주파수 의존성이 변함을 알 수 있었고 결정립과 입계의 저항과 정전용량을 계산할 수 있었다.
3. 1.2와 2.0 mol% WO<sub>3</sub>를 첨가한 SrTiO<sub>3</sub>의 relaxation activation energy는 약 0.2eV 정도의 값을 가졌으며 이는 Nb를 첨가한 SrTiO<sub>3</sub>에 비해 훨씬 작은 값이었다.
4. 결정립계의 유전율을 Cole-Cole Plot으로 확인할 수 있었고 조성에 따라 입계의 유전율이 변화하고 있음을 관찰할 수 있었다.
5. WO<sub>3</sub>가 0.3 mol%첨가되고 10<sup>-11</sup>atm~10<sup>-13</sup>atm의 산소분압에서 소성된 GBBL capacitor의 결보기유전율(Ka)은 약 60,000이고 tanδ는 1% 이하였으며 전연저항은 10<sup>9</sup> Ωcm이상의 특성을 보였다

## REFERENCES

1. G. Goodman, "Capacitors Based on Ceramic Grain Boundary Barrier Layers A Riview," pp215-31 in *Advances in Ceramics vol.1*, ed. by L. M. Levinson and D.C.Hill, American Ceramic Society, Westerville, OH, 1981.
2. N. Yamaoka and T. Matsui, "Properties of SrTiO<sub>3</sub>-Based Boundary layer Capacitors," pp 232-41 *ibid*.
3. H. D. Park and D. A. Payne, "Characterization of Internal Boundary layer Capacitors," pp 242-53 *ibid*.
4. R. Wernicke, "Formation of Second-Phase Layers in SrTiO<sub>3</sub> Boundary layer Capacitors," pp 261-71 *ibid*.
5. R. Mauczok and R. Wernicke, "Ceramic Boundary-layer Capacitors," *Philips Tech. Rev.*, 41 [11/12] 338 (1983/84).
6. N. Yamaoka, "SrTiO<sub>3</sub> Based Boundary-layer Capacitors," *Am. Ceram. Soc. Bull.*, 65 [8] 1149(1986).
7. D. A. Payne and L. E. Cross, "Microstructure-property relations for dielectric ceramics: I mixing of isotropic homogeneous linear dielectrics", *Ceramic Microstructures '76*, pp584 ed. by R. M. Fulrath and J. A. Pask (1976).
8. S.Waku., "Studies on the Boundary layer ceramiccapacitor," *Rev. Electro. Comm. Lab.*, 15 [9-10], 689-715(1967).
9. H. P. R. Frederikse et. al., "Electronic Transport in Strontium Titanate," *Physical Review*, 134[2A] A442(1964).
10. H. P. R. Frederikse and W. R. Hosler, "Hall Mobility in SrTiO<sub>3</sub>," *Physical Review*, 161[3](1968).
11. S. Waku et al., *Rev. Electro. Commun. Lab.*, 18 [9-10] 681-693(1970).
12. S. Waku and Yamaji, "Studies on SrTiO<sub>3</sub> Boundary Layer Dielectrics," *Rev. Electrical Comm. Lab.*, 20 [7-8] (1972).
13. L. M. Levinson, *Advances in Ceramics Vol.1*, The American Ceramic Soc.,Columbus, OH (1981)
14. Janusz Nowotny, "Electronic Ceramics Materials" pp115 *Trans Tech Pub.* 1992.

15. Sung-Gwi Cho, "Microstructure and electrical properties of undoped and Nb-doped SrTiO<sub>3</sub>," *Ph. D. thesis University of Alfred* 1987.