

소결조제가 (1-x)CaTiO₃-xLa(Zn_{1/2}Ti_{1/2})O₃계의 소결 및 마이크로파 유전특성에 미치는 영향

김진석 · 윤철호 · 최주현 · 이경태 · 신종윤 · 박현수 · 문중하
전남대학교 무기재료공학과

Effects of Sintering Additives on the Microwave Dielectric and Sintering Characteristics of (1-x)CaTiO₃-xLa(Zn_{1/2}Ti_{1/2})O₃

Jin Seok Kim, Cheol Ho Yoon, Joo Hyun Choi, Jong Yoon Shin, Hyun Soo Park and Jong Ha Moon

Dept of Inorg. Mater. Sci. and Eng., Chonnam Nat'l Univ., Kwangju 500-757

(1997년 6월 23일 받음, 1997년 8월 21일 최종수정본 받음.)

초 록 (1-x)CaTiO₃-xLa(Zn_{1/2}Ti_{1/2})O₃의 마이크로파 유전특성을 조사하였다. x가 증가함에 따라 비유전율과 공진주파수의 온도계수는 감소하였으며, Q · f₀는 증가하였다. 그 결과 x=0.5인 (Ca_{0.5}La_{0.5})(Ti_{0.75}Zn_{0.25})O₃의 조성에서 ε_r=51, Q · f₀=38,000 (at 7 GHz), τ_f=+5ppm/°C의 유전특성이 나타났다. (Ca_{0.5}La_{0.5})(Ti_{0.75}Zn_{0.25})O₃ 조성의 소결온도를 저하시키기 위하여 Bi₂O₃를 주조성으로한 소결조제를 첨가하여 소결 및 유전특성을 조사하였다. 1wt% 0.76Bi₂O₃-0.24NiO가 첨가된 경우 소결온도는 150°C 낮아졌으며, 비유전율(ε_r), 공진주파수의 온도계수(τ_f), Q · f₀가 각각 50, +5ppm/°C, 35,000인 마이크로파 유전특성이 얻어졌다. 또한 3wt%의 0.76Bi₂O₃-0.24NiO가 첨가된 경우 소결온도는 200°C 저하되었고, 비유전율(ε_r)과 공진주파수의 온도계수(τ_f)는 변하지 않았으나, Q · f₀ 값이 38,000에서 25,000으로 저하되었다.

Abstract The microwave dielectric properties of (1-x)CaTiO₃-xLa(Zn_{1/2}Ti_{1/2})O₃, and the effect of the liquid compositions on its microwave dielectric and sintering properties was investigated. As x increased the relative dielectric constant and temperature coefficient of resonant frequency decreased, whereas Q · f₀ increased. As a result, (Ca_{0.5}La_{0.5})(Ti_{0.75}Zn_{0.25})O₃ having ε_r=51, Q · f₀=38,000 (at 7 GHz), τ_f=+5ppm/°C was developed. The sintering additives which have Bi₂O₃ as a major composition was added to (Ca_{0.5}La_{0.5})(Ti_{0.75}Zn_{0.25})O₃ in order to decrease its sintering temperature. When 1wt% of 0.76Bi₂O₃-0.24NiO was added to (Ca_{0.5}La_{0.5})(Ti_{0.75}Zn_{0.25})O₃, the decrease of sintering temperature was 150°C, and the relative dielectric constant(ε_r), temperature coefficient of resonant frequency(τ_f) and Q · f₀ were 50, +5ppm/°C and 35,000, respectively. On the other hand, when 3wt% of 0.76Bi₂O₃-0.24NiO was added to (Ca_{0.5}La_{0.5})(Ti_{0.75}Zn_{0.25})O₃, the decrease of sintering temperature was 200°C, and the relative dielectric constant(ε_r), temperature coefficient of resonant frequency(τ_f) were not degraded, but Q · f₀ was decreased from 38,000 to 25,000.

Key words : (1-x)CaTiO₃-xLaAlO₃ system, Microwave dielectric properties, Annealing atmosphere, Additives, Relative dielectric constant, Temperature coefficient of resonant frequency, Q · f₀.

1. 서 론

마이크로파를 이용하는 위성방송 및 이동 통신 시스템의 보급이 확대됨에 따라 대역통과 필터(band pass filter), 대역저지 필터(band stop filter) 그리고 유전체 공진기(dielectric resonator)와 같은 마이크로파 대역에서 동작하는 유전체 소자의 중요성이 급격히 부각되고 있다.

지금까지 개발된 마이크로파 유전체는 티탄산 화합물계^{1, 2)}, Ba-Ti 계³⁾, Ba-Ln-Ti 계^{4, 5)}, 그리고 복합 페로브스카이트계 등이 있다. 복합 페로브스카이트형 화합물은 유전율은 비교적 낮으나 고주파수에서 높은 Q 값을 가짐으로 인해 많은 연구가 이루어지고 있으며, 그 대표적인 화합물로는 Ba(Zn_{1/3}Ta_{2/3})O₃^{6, 7)}, Ba(Zn_{1/3}Nb_{2/3})O₃⁸⁾, 그리고 Ba(Mg_{1/3}Ta_{2/3})O₃^{9~11)} 등이 있다.

일반적으로 복합 페로브스카이트형 마이크로파 유전체는 무부하 Q값은 높으나 비유전율이 낮고 소결온도가 높다. 복합 페로브스카이트형 유전체의 마이크로파 유전특성을 향상시키기 위해서는 A-자리 또는 B-자리 원소를 치환하거나 장시간 열처리(annealing)하여 규칙성(ordering)을 증가시킨다^{12, 13)}. 한편 소결온도를 저하시키기 위해서는 용점이 낮은 저온 소결조성을 첨가하여 액상소결을 유도한다.

본 연구에서는 복합페로브스카이트 구조를 가지며 유전율이 34, 공진주파수의 온도계수가 -57ppm/°C, 그리고 Q · f₀가 62,860인 La(Zn_{1/2}Ti_{1/2})O₃¹⁴⁾에 유전율이 170, 공진주파수의 온도계수가 800ppm/°C, 그리고 Q · f₀가 2,000인 CaTiO₃¹⁴⁾를 첨가하여 중간 정도의 유전율(ε_r=30-50)과 무부하 Q(Q · f₀=30,000-50,000)를 갖는 새로운 마이크로파 유전체를 개발하고자 한다. 또한 소결온도를 저

하시키기 위하여 용점이 낮은 Bi_2O_3 를 주조성으로한 소결 조제를 첨가하여 소결 및 유전특성을 조사하고자 한다.

2. 실험 방법

본 실험에서는 산화물을 출발원료로하여 고상반응법에 의해 시편을 제작하였다. 순도 99% 이상의 CaCO_3 , La_2O_3 , TiO_2 , 그리고 ZnO 를 $(1-x)\text{CaTiO}_3-x\text{La}(\text{Zn}_{1/2}\text{Ti}_{1/2})\text{O}_3$ ($x=0.3, 0.4, 0.5, 0.6, 0.7, 0.8$)의 조성식에 따라 칭량한 후, 알코올과 ZrO_2 분을 사용하여 12시간 동안 혼합하였다. 오븐에서 100°C 로 완전히 건조시킨 후, 1200°C 에서 3시간 동안 하소하였다. 하소된 분말을 24시간 동안 2차 분쇄한 후 100°C 오븐에서 12시간 동안 건조시켰다. 분말을 직경이 12mm인 원통형 금형을 이용하여 가성형한 후 자체제작한 CIP(cold isostatic press)를 이용하여 $500\text{kg}/\text{cm}^2$ 으로 성형하였다. 성형된 시편을 상자로를 이용하여 1550°C 에서 2시간 동안 공기중에서 소결하였으며, 승온속도와 냉각속도는 $5^\circ\text{C}/\text{min}$ 이었다.

$(1-x)\text{CaTiO}_3-x\text{La}(\text{Zn}_{1/2}\text{Ti}_{1/2})\text{O}_3$ 의 소결온도를 저하시키기 위하여 용점이 낮은 Bi_2O_3 를 주조성으로한 소결조제를 첨가하여 소결온도에 따른 소결특성과 마이크로파 유전특성을 조사하였다. Bi_2O_3 가 주조성인 각각의 소결 첨가제를 용점보다 약 80°C 낮은 온도에서 하소한 후, 1200°C 에서 3시간 하소된 $(1-x)\text{CaTiO}_3-x\text{La}(\text{Zn}_{1/2}\text{Ti}_{1/2})\text{O}_3$ 과 12시간 동안 혼합하였다. 혼합된 분말을 소결조제를 함유하지 않은 시편과 동일한 조건으로 하소, 성형, 소결하였다. 다만 이때 소결온도는 $1200\sim 1400^\circ\text{C}$ 이었다.

소결된 시편의 양면을 SiC 연마지(#1000)로 연마한 후 비이커에서 3시간 동안 끓였다. 시편들을 상온으로 냉각시킨 후 KSL 3114에 의거하여 겔보기 밀도를 측정하였다.

마이크로파 유전특성을 측정하기 위하여 소결된 시편들의 높이/직경의 비가 0.4~0.5가 되도록 표면을 연마하였다. 준비된 시편을 두 평행 도체판 사이에 넣고 Network Analyzer(HP 8720C)를 사용하여 Hakki-Coleman방법¹⁶⁾으로 TE011 공진주파수와 삽입손실 그리고 3 dB에서의 대역폭(bandwidth)을 측정하여 유전체의 품질계수(Q)와 비유전율(ϵ_r)을 계산하였다. 공진주파수의 온도계수(τ_f)는 25°C 와 80°C 에서 공진주파수를 측정하여 다음 식(1)에 의해 계산하였다.

$$\tau_f = \frac{f_{80} - f_{25}}{f_{25}(80 - 25)} \times 10^6 (\text{ppm}/^\circ\text{C}) \quad (1)$$

3. 결과 및 고찰

Fig. 1은 소결온도에 따른 $(1-x)\text{CaTiO}_3-x\text{La}(\text{Zn}_{1/2}\text{Ti}_{1/2})\text{O}_3$ 의 겔보기 밀도이다. Fig. 1의 (a), (b), (c)는 각각 $x=0.3, 0.5, 0.8$ 을 나타낸다. 모든 조성에서 소결온도가 증가함에 따라 밀도는 최대값에 도달한 후 감소한다. 또한, x 가 증가함에 따라 밀도가 극대치에 도달하는 온도가 감소하는 반면, 밀도감소의 정도가 심해진다. 밀도가 극대치에 도달한 후 감소하는 이유는 과소결때문이며, x 가 증가함에

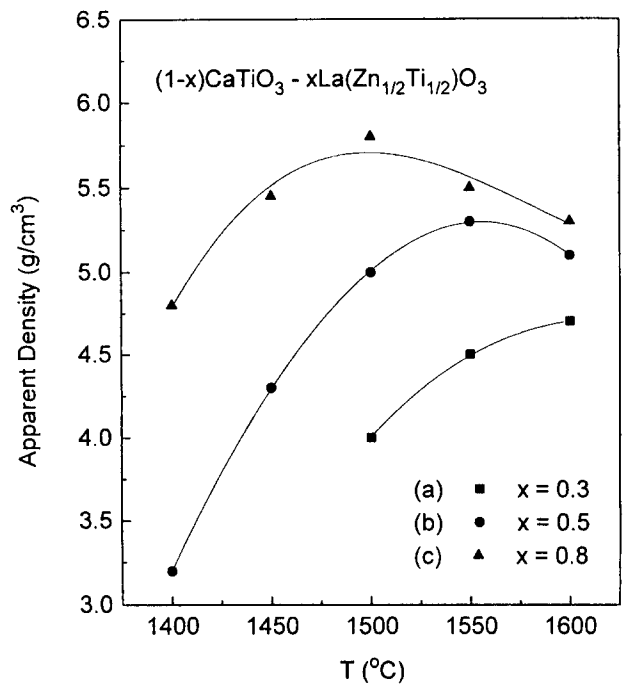


Fig. 1. The relative theoretical density of $(1-x)\text{CaTiO}_3-x\text{La}(\text{Zn}_{1/2}\text{Ti}_{1/2})\text{O}_3$ as a function of x ; (a) 0.3, (b) 0.5, (c) 0.8.

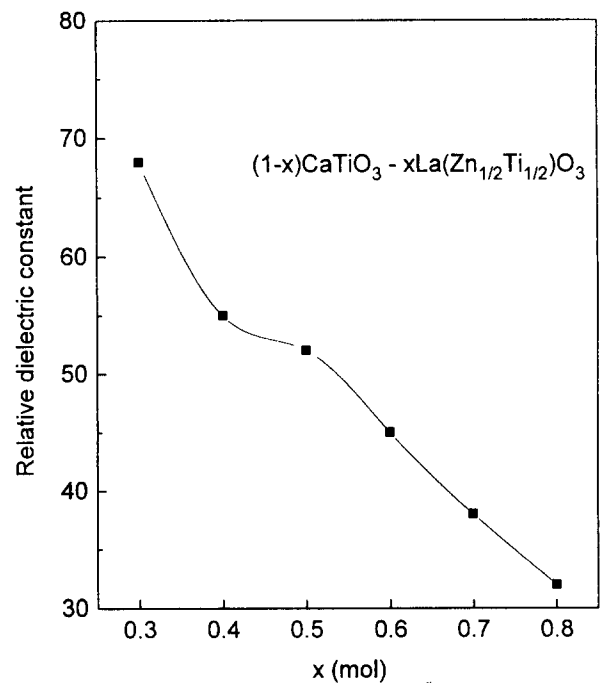


Fig. 2. The relative dielectric constant (ϵ_r) of $(1-x)\text{CaTiO}_3-x\text{La}(\text{Zn}_{1/2}\text{Ti}_{1/2})\text{O}_3$ sintered at 1550°C for 2hrs as a function of x .

따라 감소의 정도가 큰 이유는 $\text{La}(\text{Zn}_{1/2}\text{Ti}_{1/2})\text{O}_3$ 함량이 증가함에 따라 Zn 휘발의 양이 많아지기 때문으로 사료된다.

Fig. 2는 1550°C 에서 2시간 동안 소결된 $(1-x)\text{CaTiO}_3-x\text{La}(\text{Zn}_{1/2}\text{Ti}_{1/2})\text{O}_3$ 의 비유전율이다. CaTiO_3 는 $\epsilon_r=170$, $Q \cdot f_0=2,000$ (at 1GHz), $\tau_f=+800\text{ppm}/^\circ\text{C}$ 의 유전특성을 가지며, $\text{La}(\text{Zn}_{1/2}\text{Ti}_{1/2})\text{O}_3$ 는 $\epsilon_r=34$, $Q \cdot f_0=62,860$ (at 7GHz), $\tau_f=-57\text{ppm}/^\circ\text{C}$ 의 유전특성을 갖는다. 위의 두 재

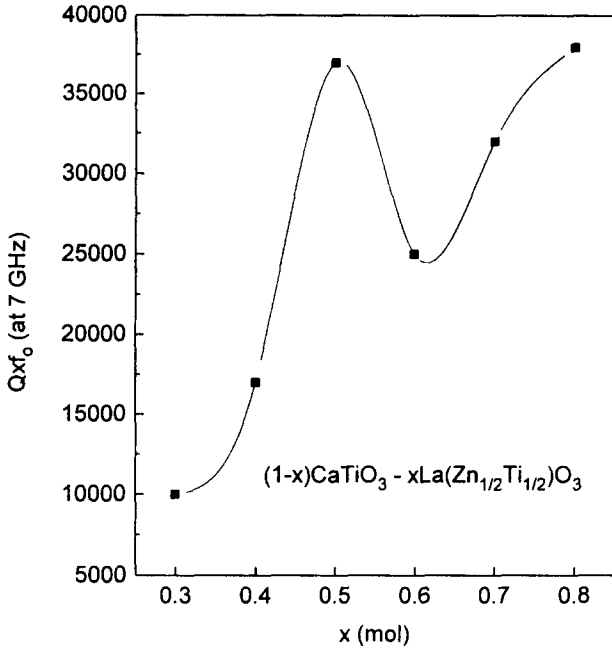


Fig. 3. The $Q \cdot f_0$ of $(1-x)\text{CaTiO}_3-x\text{La}(\text{Zn}_{1/2}\text{Ti}_{1/2})\text{O}_3$ sintered at 1550°C for 2hrs as a function of x .

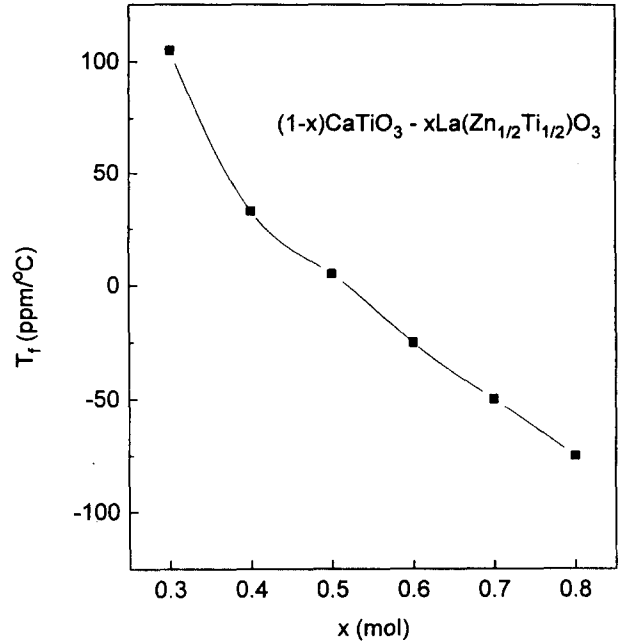


Fig. 4. The temperature coefficient of resonant frequency (τ_1) of $(1-x)\text{CaTiO}_3-x\text{La}(\text{Zn}_{1/2}\text{Ti}_{1/2})\text{O}_3$ sintered at 1550°C for 2hrs as a function of x .

Table 1. The eutectic temperature of sintering additives

Low melting composition	Eutectic temperature	Calcination temperature
0.895Bi ₂ O ₃ -0.105Li ₂ O	690°C	620°C
0.76Bi ₂ O ₃ -0.24ZnO	750°C	690°C
0.76Bi ₂ O ₃ -0.24ZiO	810°C	750°C
0.8Bi ₂ O ₃ -0.2MgO	785°C	720°C

료를 복합화하여 새로운 유전체 조성인 (1-x)CaTiO₃-xLa(Zn_{1/2}Ti_{1/2})O₃을 합성할 경우 Fig. 2에서 볼 수 있는 바와 같이 x가 0.3에서 0.8까지 변함에 따라 유전율은 68에서 36으로 선형적으로 감소한다.

Fig. 3은 1550 °C에서 2시간 동안 소결된 (1-x)CaTiO₃-xLa(Zn_{1/2}Ti_{1/2})O₃의 Q · f₀이다. x가 증가함에 따라 Q · f₀는 0 ≤ x ≤ 0.5 영역에서 급격히 증가하여 x=0.5에서 38,000의 높은 값이 나타난다. x=0.6에서 Q · f₀는 감소한 후, x가 증가함에 따라 다시 증가한다.

Fig. 4는 1550 °C에서 2시간 동안 소결된 (1-x)CaTiO₃-xLa(Zn_{1/2}Ti_{1/2})O₃의 공진주파수의 온도계수(τ₁)이다. x가 0.3에서 0.8까지 변함에 따라 τ₁는 +100ppm/°C에서 -75ppm/°C로 선형적으로 감소한다. τ₁가 영인 조성은 x=0.5 부근이며, Q · f₀가 가장 높은 x=0.5 조성에서 τ₁=+5ppm/°C이었다.

위의 결과로부터 0.5CaTiO₃-0.5La(Zn_{1/2}Ti_{1/2})O₃ 조성에서 ε_r=51, Q · f₀=38,000, τ₁=5ppm/°C인 우수한 마이크로 유전특성이 나타났다.

그러나 위의 결과에서 볼 수 있는 바와 같이 (1-x)CaTiO₃-xLa(Zn_{1/2}Ti_{1/2})O₃는 중간정도의 유전율과 높은

Q · f₀를 갖는 물질로 공진기로서 응용 가능성이 높으나, 소결온도가 1550 °C 이상이다. 따라서 용점이 낮은 Bi₂O₃를 주조성으로한 소결 첨가제(Table 1)를 사용하여 액상소결을 유도함으로써 소결온도를 저하시키고자 하였다.

Fig. 5는 마이크로파 유전특성이 가장 좋은 x=0.5인 (Ca_{0.5}La_{0.5})(Ti_{0.75}Zn_{0.25})O₃에 0.76Bi₂O₃-0.24NiO, 0.76Bi₂O₃-0.24ZnO, 0.895Bi₂O₃-0.105Li₂O, 0.8Bi₂O₃-0.2MgO 조성의 소결조제를 3wt% 첨가하여 1200-1400 °C에서 3시간 동안 소결한 시편의 밀도를 나타낸다. (Ca_{0.5}La_{0.5})(Ti_{0.75}Zn_{0.25})O₃에 소결조제가 첨가된 경우 모든 조성에서 소결온도가 증가함에 따라 밀도는 최대값에 도달한 후 감소한다. 이때에 밀도가 최대값에 도달하는 온도는 0.76Bi₂O₃-0.24NiO, 0.76Bi₂O₃-0.24ZnO, 0.895Bi₂O₃-0.105Li₂O, 0.8Bi₂O₃-0.2MgO가 첨가된 경우 각각 1250, 1300, 1300, 1350 °C이다. 결과적으로 (Ca_{0.5}La_{0.5})(Ti_{0.75}Zn_{0.25})O₃에 3wt%의 0.76Bi₂O₃-0.24NiO가 첨가된 경우 소결온도는 1550 °C에서 1250 °C로 가장 크게 감소하였다.

Fig. 6은 1, 3, 5wt% 소결조제가 첨가된 (Ca_{0.5}La_{0.5})(Ti_{0.75}Zn_{0.25})O₃를 1300 °C에서 3시간 동안 소결한 시편의 겉보기 밀도를 나타낸다. 1wt%의 0.76Bi₂O₃-0.24NiO, 0.

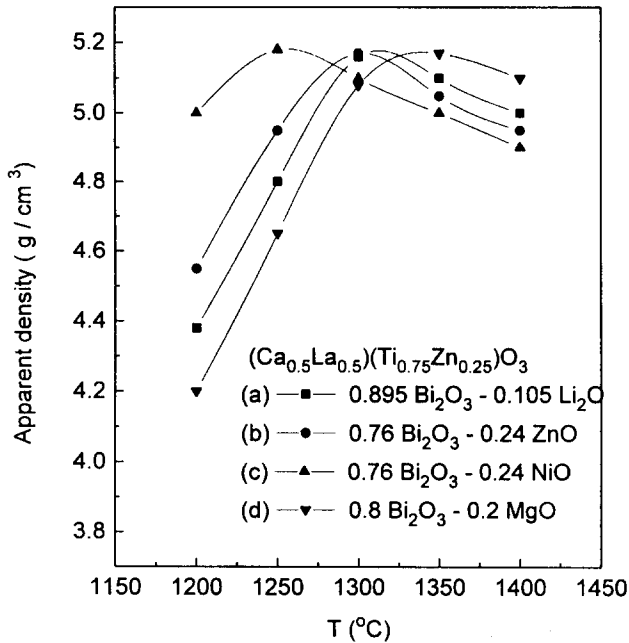


Fig. 5. The apparent density of $(Ca_{0.5}La_{0.5})(Ti_{0.75}Zn_{0.25})O_3$ as a function of sintering temperature.

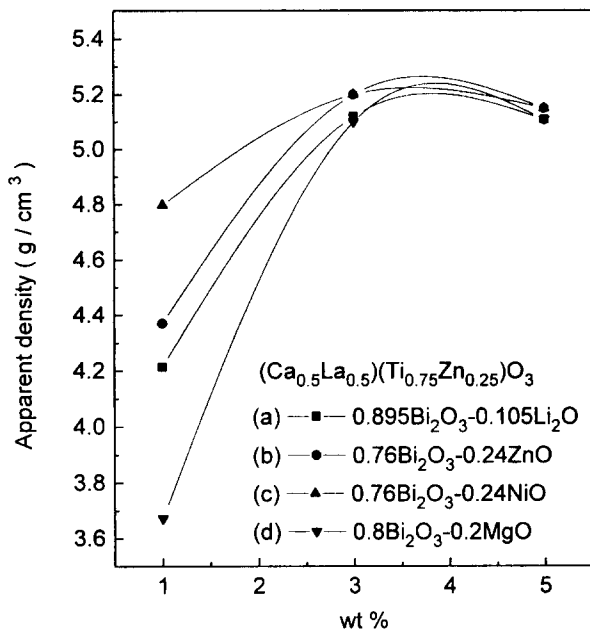


Fig. 6. The apparent density of $(Ca_{0.5}La_{0.5})(Ti_{0.75}Zn_{0.25})O_3$ as a function of the amount of additives.

0.76Bi₂O₃-0.24ZnO, 0.895Bi₂O₃-0.105Li₂O, 0.8Bi₂O₃-0.2MgO가 첨가된 소결시편의 겉보기 밀도는 각각 4.8, 4.38, 4.21, 3.68g/cm³으로써 0.76Bi₂O₃-0.24NiO가 첨가된 경우 가장 높다. 3wt%의 소결조제가 첨가된 경우 5.1~5.2g/cm³ 정도의 소결밀도가 얻어지며, 5wt%가 첨가된 경우 액상조성의 휘발의 영향으로 소결밀도는 감소하는 경향을 보인다. 여기에서 소결밀도가 가장 높은 $(Ca_{0.5}La_{0.5})(Ti_{0.75}Zn_{0.25})O_3 + 1wt\%$ 0.76Bi₂O₃-0.24NiO의 조성을 1350°C

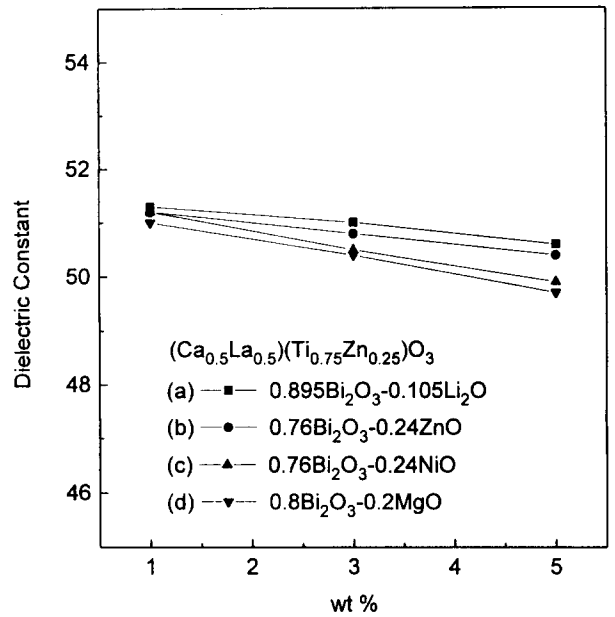


Fig. 7. The relative dielectric constant (ϵ_r) of $(Ca_{0.5}La_{0.5})(Ti_{0.75}Zn_{0.25})O_3$ as a function of the amount additives.

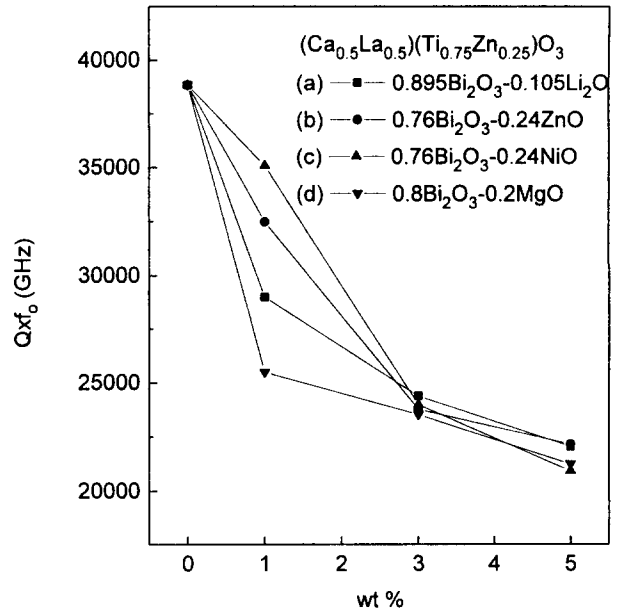


Fig. 8. The $Q \cdot f_0$ of $(Ca_{0.5}La_{0.5})(Ti_{0.75}Zn_{0.25})O_3$ as a function of the amount of additives.

에서 3시간 소결할 경우 상대이론밀도의 96%가 얻어졌다.

Fig. 7은 소결 첨가제의 양에 따라 1350°C에서 3시간 동안 소결된 $(Ca_{0.5}La_{0.5})(Ti_{0.75}Zn_{0.25})O_3$ 의 비유전율이다. 1550°C에서 소결된 순수한 $(Ca_{0.5}La_{0.5})(Ti_{0.75}Zn_{0.25})O_3$ 의 비유전율은 51 정도이며, 여기에 소결조제가 첨가될 경우 소결조제의 종류에 무관하게 비유전율은 감소하는 경향을 보이나, 그 감소량은 1이내의 값으로써 무시할 수 있을 정도로 작다.

Fig. 8은 소결 첨가제의 양에 따른 $(Ca_{0.5}La_{0.5})(Ti_{0.75}Zn_{0.25})$

O₃의 Q · f₀이다. 여기에서 첨가제의 양이 1wt% 이하인 시편은 1550℃에서 소결되었으며, 3wt% 이상인 시편은 1350℃에서 소결되었다. 1550℃에서 소결된 순수한 (Ca_{0.5}La_{0.5})(Ti_{0.75}Zn_{0.25})O₃의 Q · f₀는 38,000이다. 0.895Bi₂O₃-0.105Li₂O, 0.8Bi₂O₃-0.2MgO의 경우 소결조제의 양이 1wt% 이하일 때 Q · f₀는 급격히 감소하는 반면, 0.76Bi₂O₃-0.24NiO와 0.76Bi₂O₃-0.24ZnO의 경우에는 0~3wt% 영역에서 선형적으로 감소한다. 따라서 Q · f₀는 비유전율과는 다르게 소결조제의 종류에 따라 큰 차이를 보인다. (Ca_{0.5}La_{0.5})(Ti_{0.75}Zn_{0.25})O₃에 소결조제가 첨가된 경우 0.76Bi₂O₃-0.24NiO, 0.76Bi₂O₃-0.24ZnO, 0.895Bi₂O₃-0.105Li₂O, 0.8Bi₂O₃-0.2MgO 순으로 Q · f₀ 값이 더 급격히 감소하나 그 이상 첨가될 경우 감소폭이 줄어들어 소결조제의 양이 3wt%일 경우 소결조제의 종류에 상관없이 Q · f₀ 값은 25,000 정도이다. 특히, (Ca_{0.5}La_{0.5})(Ti_{0.75}Zn_{0.25})O₃에 소결조제가 1wt% 0.76Bi₂O₃-0.24NiO가 첨가된 경우 Q · f₀ 값은 35,000으로써 매우 높은 값을 나타낸다.

한편, 공진주파수의 온도계수(τ_f)는 비유전율과 마찬가지로 소결조제의 종류에 상관없이 거의 변하지 않았다. 결과적으로 (Ca_{0.5}La_{0.5})(Ti_{0.75}Zn_{0.25})O₃에 0.76Bi₂O₃-0.24NiO가 1wt% 첨가된 경우 소결온도가 1350℃로 소결온도는 200℃ 저하되며, 비유전율(ε_r), 공진주파수의 온도계수(τ_f), Q · f₀가 각각 50, +5ppm/℃, 35,000인 마이크로파 유전특성이 얻어졌다. 또한 3wt%의 0.76Bi₂O₃-0.24NiO가 첨가된 경우 소결온도는 1250℃로써 300℃ 저하되나, Q · f₀ 값도 38,000에서 25,000으로 급격히 저하되었다.

4. 결 론

(1-x)CaTiO₃-xLa(Zn_{1/2}Ti_{1/2})O₃의 마이크로파 유전특성과 소결 첨가제가 (Ca_{0.5}La_{0.5})(Ti_{0.75}Zn_{0.25})O₃의 소결거동 및 마이크로파 유전특성에 미치는 영향을 조사한 결과 다음과 같은 결론을 얻었다.

(1) (1-x)CaTiO₃-xLa(Zn_{1/2}Ti_{1/2})O₃의 마이크로파 유전특성을 조사한 결과 x=0.5인 (Ca_{0.5}La_{0.5})(Ti_{0.75}Zn_{0.25})O₃의 조성에서 ε_r=51, Q · f₀=38,000(at 7 GHz), τ_f=+5ppm/℃의 유전특성이 나타났다.

(2) x=0.5인 (Ca_{0.5}La_{0.5})(Ti_{0.75}Zn_{0.25})O₃에 1wt% 0.76Bi₂O₃-0.24NiO가 첨가된 경우 소결온도는 200℃ 낮아졌으며, 비유전율(ε_r), 공진주파수의 온도계수(τ_f), Q · f₀가 각각 50, +5ppm/℃, 35,000인 마이크로파 유전특성이 얻어졌다. 또한 3wt%의 0.76Bi₂O₃-0.24NiO가 첨가된 경우 소결온도는 200℃ 저하되었고, 비유전율(ε_r)과 공진주파수의 온도계수(τ_f)는 변하지 않았으나, Q · f₀ 값이 38,000에서 25,000으로 저하되었다.

감사의 글

이 논문은 1995년도 전남대학교 학술연구비에 의하여 얻

구되었습니다. 이에 감사를 드립니다.

참 고 문 헌

1. Junichi Takahashi, Keisuke Kageyama and Kouhei Kodaira, "Microwave Dielectric Properties of Lanthanide Titanate Ceramics," Jpn. J. Appl. Phys., 32 (9B), 4327 (1993).
2. Junichi Takahashi, Keisuke Kageyama and Takashi Hayashi, "Dielectric Properties of Double-Oxide Ceramics in the System Ln₂O₃-TiO₂ (Ln=La, Nd and Sm) Lanthanide Titanate Ceramics," Jpn. J. Appl. Phys., 30(9B), 2354 (1993).
3. J. K. Plourde, D. F. Linn H. M. O'Bryan, J. Thomson, "Ba₂Ti₉O₂₀ as a Microwave Dielectric Resonator," J. Am. Ceram. Soc., 58 (9), 418 (1975).
4. K. Wakino, K. Minai and H. Tamura, "Microwave Characteristics of (Zr,Sn)TiO₄ and BaO-PbO-Nd₂O₃-TiO₂ Dielectric Resonators," J. Am. Ceram. Soc., 67 (4), 278-281 (1984).
5. Koichi Fukada, Itsuhiro Fujii, Yasuo Cho and Ikuo Awai, "Influence of Rare Earth Ions on BaO-TiO₂-Rare Earth Oxide Ceramics for Microwave Applications," Jpn. J. Appl. Phys., 32, 1712-15 (1993).
6. S. Kawasima, M. Nishi, I. Ueda and H. Ouchi, "Ba(Zn_{1/3}Ta_{2/3})O₃ Ceramics with Low Dielectric Loss at Microwave Frequencies," J. Am. Ceram. Soc., 66 (6), 421 (1983).
7. S. B. Desu and H. M. O'Bryan, "Microwave Loss Quality of Ba(Zn_{1/3}Ta_{2/3})O₃ Ceramics," 68 (10), 546-51 (1985).
8. M. Onoda, J. Kuwata, K. Kaneta, K. Toyama and S. Nomura, "Ba(Zn_{1/3}Ta_{2/3})O₃-Sr(Zn_{1/3}Nb_{2/3})O₃ Solid Solution Ceramics with Temperature-Stable High Dielectric Constant and Low Microwave Loss," Jpn. J. Appl. Phys., 21 (12), 1707 (1982).
9. S. Nomura, K. Toyama and K. Kaneta, "Ba(Mg_{1/3}Ta_{2/3})O₃ Ceramics with Temperature-stable High Dielectric Constant and Low Microwave loss," Jpn. J. Appl. Phys., 21(10), L624 (1982).
10. Djuniadi A. Sagala and Shigeji Koyasu, "Infrared Reflection of Ba(Mg_{1/3}Ta_{2/3})O₃ Ceramics," J. Am. Ceram. Soc., 76 (10), 2433-36 (1993).
11. Oliver Renoult and Jean-Pierre Bolt, "Sol-Gel Processing and Microwave Characteristics of Ba(Mg_{1/3}Ta_{2/3})O₃ Dielectrics," J. Am. Ceram. Soc., 75 (12), 3337-40 (1992).

12. S. Nomura, "Ceramics for Microwave Dielectric Properties," *Ferroelectrics*, 49, 61-70 (1983).
13. K. Kageyama, "Crystal Structure and Microwave Dielectric Properties of $\text{Ba}(\text{Zn}_{1/3}\text{Ta}_{2/3})\text{O}_3$ - $(\text{Sr},\text{Ba})(\text{Ga}_{1/2}\text{Ta}_{1/2})\text{O}_3$ Ceramics," *J. Am. Ceram. Soc.*, 75 (7), 1767-71 (1992).
14. 여동훈, 문종하, 윤석진, 김현재, " $\text{La}(\text{Zn}_{1/2}\text{Ti}_{1/2})\text{O}_3$ 계와 $\text{La}(\text{Zn}_{1/2}\text{Ti}_{1/2})\text{O}_3$ - CaTiO_3 계의 마이크로파 유전 특성", *대한 전기학회*, 45[5], 683-688 (1996).
15. Y. Kobayashi and S. Tanaka, Tech. Rept. CPM 7233, Inst. Electron. & Commun. Eng. Jpn., (1972).