

Si가 첨가된 ZNR의 유전특성에 관한 연구

남 훈 우 · 정 순 철

동해대학교 전기공학과

A Study on the Dielectric Characteristics of Si-Doped ZNR

Choon-Woo Nahm and Soon-Chul Jung

Department of Electrical Engineering, Donggeui University, Pusan 614-714

(1997년 8월 18일 받음, 1997년 9월 30일 최종수정본 받음.)

초 록 Si가 첨가된 ZNR의 절보기 유전상수, 절보기 비유전손율, 유전비저항의 주파수 특성을 여러 측정온도에서 조사하였다. 모든 ZNR에 대하여 유전분산현상 및 유전흡수현상이 뚜렷이 나타났으며, 비슷한 경향의 유전성질을 나타냈다. SiO₂ 첨가량이 증가함에 따라 절보기 유전상수, 피이크 절보기 비유전손율은 감소하였으며, 유전비저항은 증가하였다. 온도상승시 절보기 유전상수, 피이크 절보기 비유전손율은 증가하였으며, 흡수 피이크 주파수는 고주파측으로 이동하였다. SiO₂ 첨가량이 증가함에 따라 ZNR은 Cole-Cole원호에서 0.68~0.72 범위 내에서 증가하는 β 값을 가지며, 완화시간의 분포가 좁아지는 유전특성을 나타냈다.

Abstract Frequency characteristics of the apparent dielectric constant, apparent dielectric loss factor, and dielectric resistivity of Si-doped ZNR were investigated at various measurement temperatures. For all ZNR, dielectric dispersion and dielectric absorption phenomenon obviously appeared, and dielectric properties showed a similar tendency. Apparent dielectric constant and apparent dielectric loss factor peak decreased, and dielectric resistivity increased with increasing SiO₂ content. As measurement temperature increases, apparent dielectric constant and apparent dielectric loss factor peak increased, and absorption peak frequency shifted to the high frequency. As SiO₂ content increases, ZNR is characterized by the distribution of relaxation times which becomes narrower with increasing β in the range of 0.68~0.72 at Cole-Cole circular arc.

1. 서 론

ZNR(Zinc-Oxide Nonlinear Resistor)은 산화아연에 Bi₂O₃, CoO, MnO, Sb₂O₃, Cr₂O₃ 등과 같은 미량의 금속산화물을 첨가하여 소결시킨 다결정 반도체 세라믹 소자이다^{1~3)}. 소결시, 용융점이 825°C인 Bi₂O₃가 액상으로 되어 ZnO 결정입들 사이 즉, 입계로 편석하게 되고 첨가물이 부분적으로 입계로 확산한다. 이 때 입계에 전자적 결함준위인 계면상태가 고밀도로 존재하며, 그에 따른 입계 근처의 ZnO 결정입에 공핍층이 형성됨으로써 ZNR은 n형 반도체인 ZnO를 절연층인 입계의 Bi-rich intergranular 층 및 공핍층으로 둘러싸인 형태의 구조를 갖게 된다^{4~5)}. ZnO 결정입과 Bi-rich intergranular 층 사이의 계면상태로 인해 ZnO의 전도대가 밴드 벤딩(band bending)되어 intergranular 층을 중심으로 대칭적인 2중전위장벽이 형성된다. 대칭적인 전위장벽 때문에 ZNR은 back-to-back 제너 다이오드와 유사한, 극성에 관계없는 비오姆성 I-V 특성을 나타낸다^{6~8)}. ZNR은 높은 비직선성과 고에너지 흡수성을 갖고 있기 때문에 유도되지, 개폐되지, 정전기 등의 과도 이상전압으로부터 전기전자회로시스템의 반도체소자나 전자소자를 보호하는데 사용하는 중요한 전자부품이다^{7~9)}. ZNR의 전기적 특성은 입계의 전자결함상태에 의해서 제어

되는 것으로, 전자결함은 첨가물, 소결조건에 크게 영향을 받는다¹⁰⁾. 첨가물에 따른 ZNR의 전기적 특성이 지속적으로 연구되어 일부 첨가물의 역할이 밝혀졌지만^{5, 7, 11, 12)}, 많은 경우에 있어서 복합 불순물의 공동효과는 첨가물, 소결 조건에 따라 매우 복잡하고 상이하기 때문에 여전히 첨가물의 역할 규명이 연구과제로 남아있다^{13, 14)}. 특히 유전특성 부분에서의 첨가물 역할 규명이 미흡한 실정이다. 따라서 본 연구에서는 ZnO-Bi₂O₃-CoO-MnO계에 결정입 성장을 억제시켜 비리스터 전압을 증가시키고, 비직선성 및 누설전류를 개선시키는 것으로 알려진 SiO₂¹⁴⁾를 첨가시켜 SiO₂가 ZNR의 유전특성에 미치는 영향에 대해 고찰하였다.

2. 실험 방법

본 연구에 사용된 시료는 99.9% 순도로써 (98.5- χ) mol% ZnO+0.5mol% Bi₂O₃+0.5mol% CoO+0.5mol% MnO+ χ mol% SiO₂($\chi=0.5, 1.0, 2.0, 4.0$)과 같은 시료조성식에 따라 0.1mg의 오차범위까지 정확하게 평량하여 지르코니아 불과 아세톤이 든 폴리프로필렌 용기에 넣어 24시간 혼합, 분쇄하였다. 그 다음 비이커에 혼합된 슬러리를 부어 아세톤을 휘발시킨 후, 증발접시에 옮겨 100°C의 전기 오븐에서 24시간동안 건조하였다. 건조된 시료를 100mesh 체에 통과시킨 다음, 도가니에 넣어 240°C/h의 온도상승률

로 700°C에서 2시간 하소하였다. 하소된 분말을 시편 양만큼 마노유발로 재분쇄하여 100mesh 체에 통과시킨 후, 50MPa 압력 하에서 직경이 8mm, 두께가 2.0mm가 되게 성형하였다. 성형된 시편을 같은 조성의 분위기 분말의 도가니에 넣어 온도 승. 하강율을 240°C/h로 하여 1250°C에서 2시간 소결하였다. 소결된 시편을 1mm 두께로 연마한 다음, 실크스크린 기법으로 은전극을 도포하여 600°C에서 10분간 열처리하였다. 열처리가 완료된 시편의 양면에 리드선을 부착하여 유전특성을 조사하였다. C-V(Capacitance-Voltage) 특성은 각 ZNR의 동작전압까지 전압을 변화시켜 정전용량을 측정하였다. SiO₂ 첨가량에 따른 ZNR의 겉보기 유전상수, 겉보기 비유전손율의 주파수특성은 Precision RLC Meter(QuadTech 7600A)를 사용하여 253~363K 범위의 온도를 변화시켰을 때 10Hz~2MHz 범위에서 1Vrms ac 신호로 측정하였다.

3. 결과 및 고찰

그림 1은 SiO₂ 첨가량에 따른 ZNR시편의 미세구조를 나타낸 주사전자현미경 사진으로 0.5mol% SiO₂가 첨가된 ZNR시편의 경우에서 두 개의 상이 존재하며, 하나는 ZnO 결정입이고, 다른 하나는 입계 및 입계 교차점(nodal point)에 존재하는 Bi-rich intergranular상이다. 이것은

전형적인 ZNR시편의 조직상과 일치한다. SiO₂가 1.0mol% 이상 첨가된 ZNR시편에서 0.5mol% 첨가 때와는 달리 새로운 상이 생성되었음을 알 수 있다.

이것은 그림 2의 XRD 패턴으로부터 Zinc silicate(Zn₂SiO₄, SiO₄)상인 것으로 확인되었다. Zn₂SiO₄상은 SiO₂ 첨가량이 증가함에 따라 전 조직상에 넓게 분포하며, 특히 입계 교차점에는 Bi-rich intergranular 상보다 더 많이 존재함을 알 수 있다. SEM 사진으로부터 SiO₂의 첨가량이 증가함에 따라 평균 결정입크기가 감소함을 알 수 있고, 감소의 원인은 입계 및 입계 교차점에 Zn₂SiO₄의 존재에 의한 피닝(pin-ning) 효과로 결정입의 성장이 억제되기 때문인 것으로 생각된다.

그림 3은 ZNR의 C-V 특성을 나타낸 것으로 직류 바이어스를 증가시켜가면 정전용량이 선형적으로 감소함을 알 수 있다. 이러한 특성은 ZNR이 반도체-절연체-반도체 구조의 다접합 소자로서 입계 근처의 ZnO 결정입 내에 공핍층이 존재하며, 바이어스에 따라 공핍층이 변화함을 보여주는 것이다.

ZNR의 정전용량 C_{APP} 는

$$C_{APP} = \epsilon_0 \epsilon_{APP} S/D \quad (1)$$

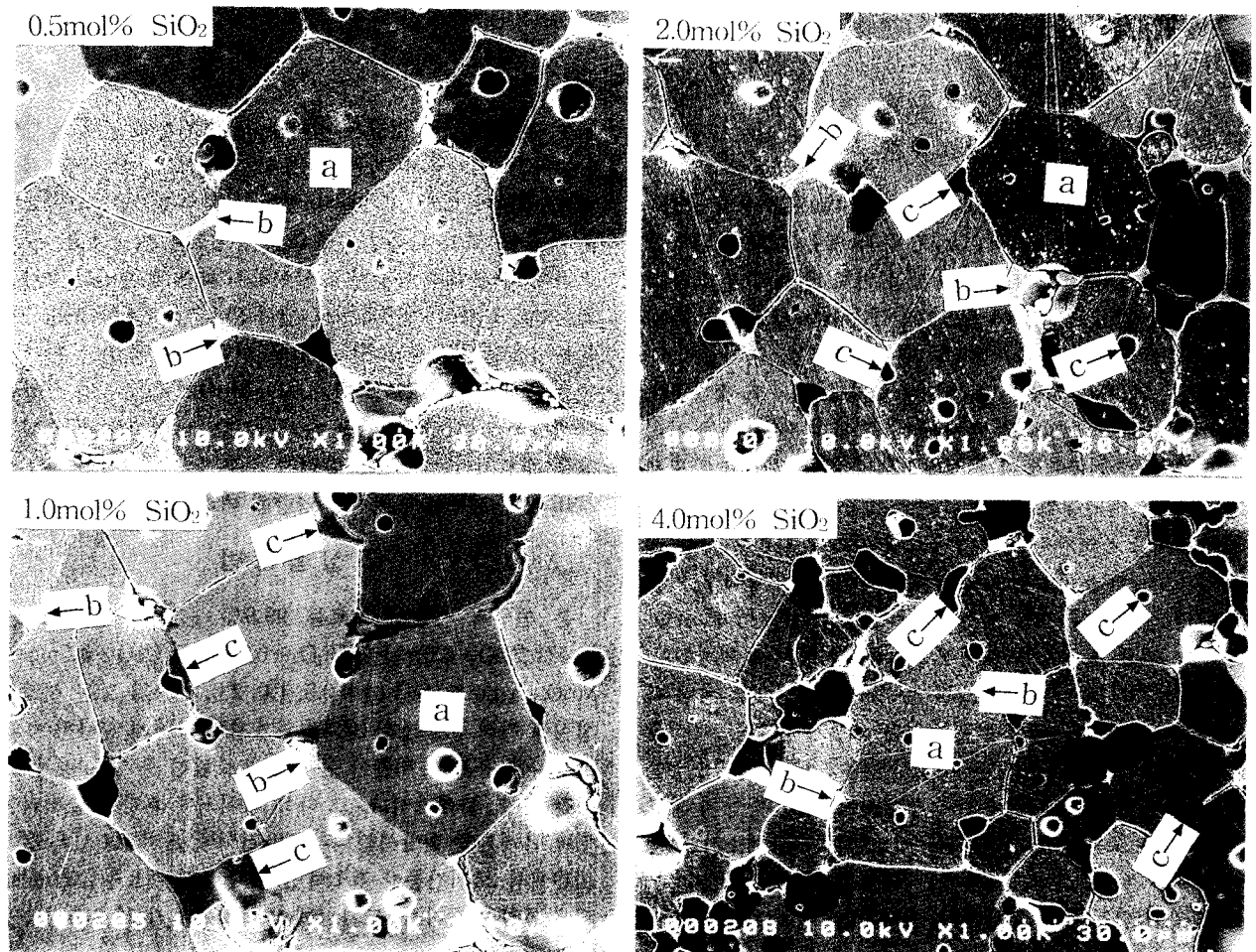


Fig. 1. SEM micrographs of ZNR samples with SiO₂ content, a : ZnO grain, b : Bi-rich layer, c : Zn₂SiO₄.

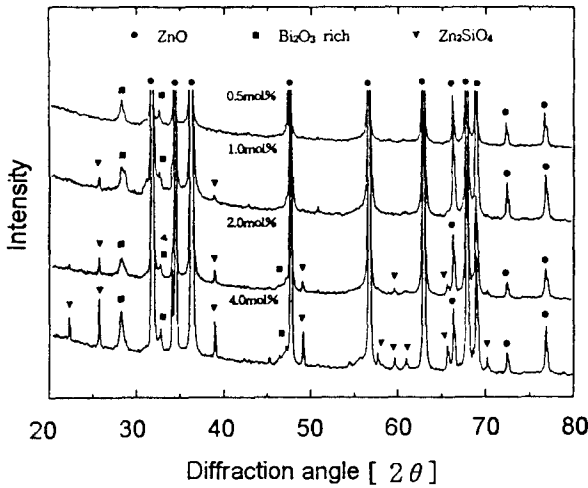


Fig. 2. XRD patterns of ZNR samples with SiO₂ content

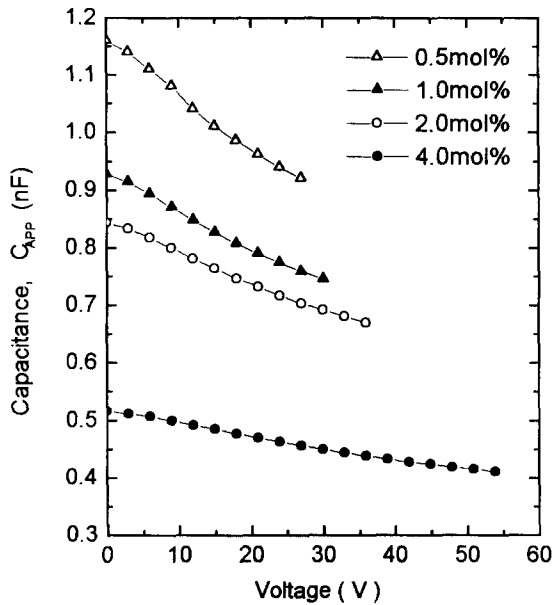


Fig. 3. C-V characteristics of ZNR with SiO₂ content at 298K

로 나타낼 수 있다. 여기서 ϵ_0 는 진공의 유전율, ϵ_{APP} '는 겉보기 유전상수(apparent dielectric constant), S는 전극면적, D는 시편두께이다. 공핍층은 ZnO 결정입 내에 형성되어 있으므로 실제 결정입 크기 d가 공핍층 두께 t보다 훨씬 크므로 전극 사이에 놓이는 절연성의 유전층 두께는 (t/d)D가 된다. 따라서 측정된 정전용량 C_{APP} 는

$$C_{APP} = \frac{\epsilon_0 \epsilon_r S}{(t/d)D} = \frac{\epsilon_0 (\epsilon_r d/t) S}{D} \quad (2)$$

가 되므로 C_{APP} '는 다음과 같이 나타내진다.

$$\epsilon_{APP}' = \epsilon_r (d/t) \quad (3)$$

여기서 ϵ_r 는 ZnO의 유전상수로 대략 8.5 정도이다. 식

(3)에서 알 수 있듯이 ϵ_{APP}' 는 ZnO의 ϵ_r 보다 상당히 큰 값으로 나타난다. 공핍층 두께가 직류 바이어스(dc bias) 증가에 따라 증가하기 때문에 ϵ_{APP}' 의 감소로 C_{APP} 가 감소하게 된다. SiO₂ 첨가량에 따라 C-V 특성의 기울기 및 0볼트일 때의 C값의 상이는 유전특성이 ZNR에 따라 달라진다는 것을 암시한다.

그림 4는 여러 측정온도에서 ZNR의 겉보기 유전상수 ϵ_{APP}' 와 겉보기 비유전손율(apparent dielectric loss factor) ϵ_{APP}'' 의 주파수 특성을 나타낸 것이다. 298K에서 ϵ_{APP}' 의 주파수 특성을 보면 모든 ZNR에 대해서 주파수가 증가할 때 ϵ_{APP}' 는 서서히 감소하다가 대략 50KHz 부근부터 급격히 감소하는 현상이 나타나고, SiO₂의 첨가량이 증가함에 따라 감소율이 둔화됨을 알 수 있다. 이와 같은 현상은 여러 측정온도에서 비슷한 경향으로 관측되었다. 유전율이 발생하는 것은 전계에 따라 정·부전하가 역방향으로 변위하는, 즉 전기쌍극자가 형성되기 때문인데 ϵ_{APP}' 가 주파수 증가에 따라 현저히 감소하는 것은 교류전계의 주파수에 추종할 수 있는 캐리어가 감소하는, 유전분산현상으로 볼 수 있다. 분산의 원인은 공간전하분극, 배향분극, 원자분극, 그리고 전자분극에 따라 나타나는 방법이 다르다. 나중에 언급하겠지만 ϵ_{APP}'' 가 유전율의 분산이 일어나는 주파수 영역에서 현저히 크게 되고, 주파수에 대해 산형의 변화를 나타내는 사실과 주파수 증가에 따라 공간전하분극에서 전자분극 순으로 소멸된다는 사실로부터 여러 온도에서 ϵ_{APP}'' 의 두번째 피이크에 해당하는 뚜렷한 유전분산은 배향분극에 기인하는 것으로 생각된다. 배향분극에 의한 분산은 쌍극자 분자의 회전시 분자간의 충돌 혹은 주위 분자로부터 상호작용으로 받는 점성저항에 기인하는데, 여러 측정온도의 분산주파수 영역에서 SiO₂ 첨가량에 따른 ϵ_{APP}' 의 분산율 둔화는 점성저항 증가에 의한 주파수 추종 캐리어 수의 감소율이 감소하기 때문으로 생각된다. SiO₂ 첨가량이 증가함에 따라 측정온도에 관계없이 측정 주파수 범위 내에서 ϵ_{APP}' 가 감소함을 볼 수 있고, 298K, 1KHz에서 7600~3200 범위로 감소한다. 이는 식 (3)에서 알 수 있는 바와 같이 ZnO 결정입 크기의 감소로부터 오는 결과이다.

주파수에 따른 ϵ_{APP}'' 를 살펴보면 모든 ZNR에 대해 유사한 곡선을 나타내고 있으며, 하나의 극소값과 극대값이 존재하는 유전흡수특성을 보이고 있다. 일반적으로 쌍극자는 주위 분자로부터의 영향 때문에 한 개의 물질상 내에서도 부분, 부분에 의한 완화시간, 즉 쌍극자 회전에 필요한 시간은 다른 것으로 완화시간은 어떤 분포를 나타내게 된다. ϵ_{APP}'' 는 유전체의 에너지 흡수의 크기를 직접 표시한 양으로서 유전분산이 일어나는 주파수 영역에서 유전흡수가 발생하게 되고, ϵ_{APP}'' 의 피이크는 완화과정이 어떤 것이든 간에 그 주기가 외부전계의 주기와 같을 때 생기며, 완화시간이 외부전계의 주기보다 늦거나, 빠를 때는 손실이 작다. SiO₂ 첨가량이 증가함에 따라 측정온도에 관계없이 모든 측정 주파수 범위 내에서 ϵ_{APP}'' 가 감소하며, 298K에서 ϵ_{APP}'' 의 피이크는 1400~460 범위로 크게 감소하고, 유전흡수의 피이크 주파수는 $3 \times 10^5 \sim 1.7 \times 10^6$ Hz 범위로 ϵ_{APP}''

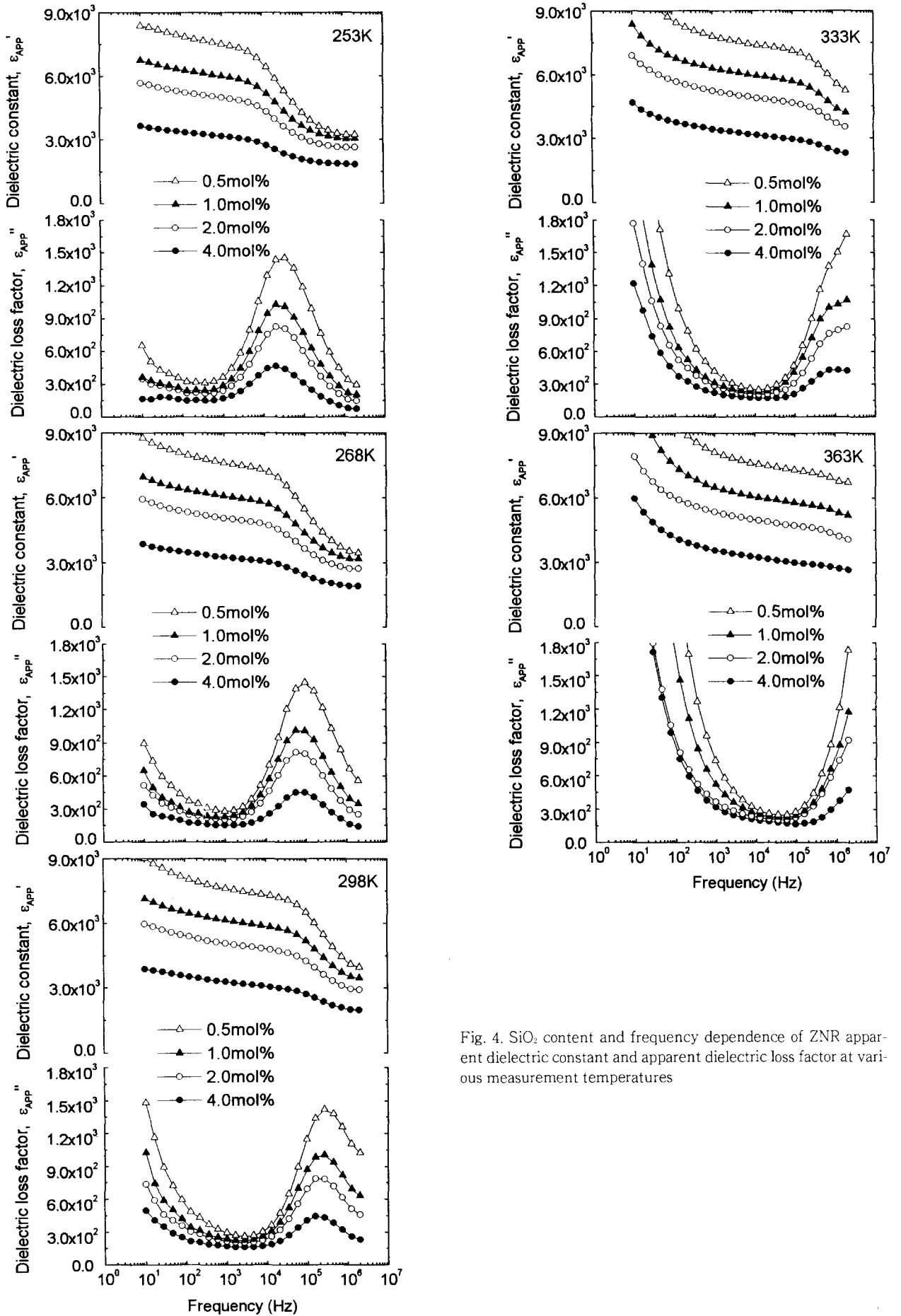


Fig. 4. SiO₂ content and frequency dependence of ZNR apparent dielectric constant and apparent dielectric loss factor at various measurement temperatures

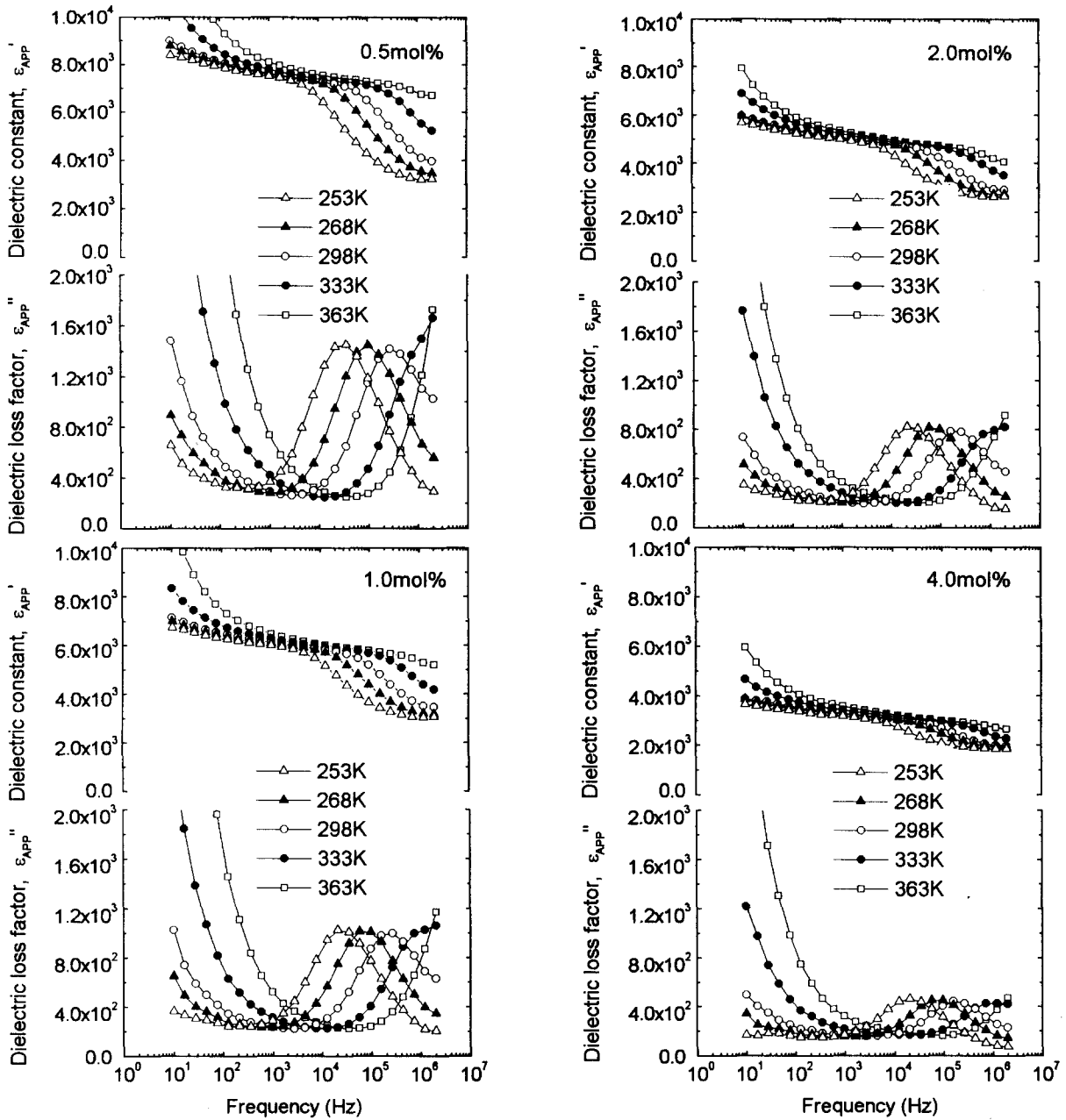


Fig. 5. Temperature and frequency dependence of ZNR apparent dielectric constant and apparent dielectric loss factor with SiO₂ content

의 피이크보다는 작게 감소하였다. SiO₂ 첨가량에 따른 ε_{APP}' 피이크 감소는 점성저항의 증가로 완화시간이 길어졌기 때문으로 판단된다. SiO₂ 첨가는 ε_{APP}'의 피이크 주파수보다 피이크에 더 큰 영향을 미침을 알 수 있다.

그림 5는 SiO₂ 첨가량에 따른 ZNR의 겔보기 유전상수와 겔보기 비유전손율의 주파수 특성의 온도 변화를 나타낸 것이다. SiO₂ 첨가량에 관계없이 전체적으로 온도가 증가할수록 ε_{APP}'가 증가하고, SiO₂ 첨가량이 증가할수록 ε_{APP}'의 주파수 및 온도 의존성이 약해지며, 또한 온도가 증가할수록 분산주파수 영역이 고주파측으로 이동함을 알 수 있다. 이와 같은 사실은 분극의 완화시간(τ)이

$$\tau = \tau_0(H/kT) \tag{4}$$

와 같은 온도특성을 가지고 있어, 고온이 될수록 분극을 일으키는데 적은 시간이 걸리기 때문에 ε_{APP}'가 온도 증가에 따라 증가하게 되며, ε_{APP}'의 SiO₂ 첨가량에 따른 주파수 및 온도의존성 약화는 점성저항의 증가에 기인하는 것으로 보인다. ε_{APP}' 피이크 주파수는 온도가 증가함에 따라 고주파측으로 이동함을 알 수 있는데, 이와 같은 사실은 피이크 주파수 (f_m)가

$$f_m = f_0 \exp(-H/kT) \tag{5}$$

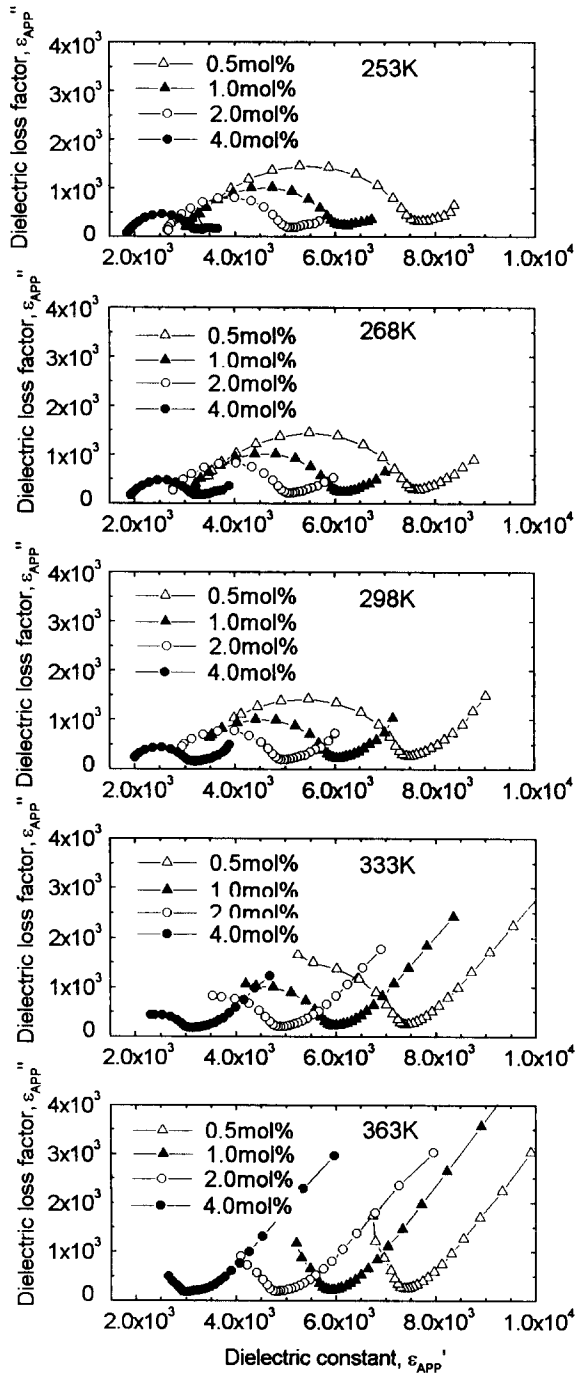


Fig. 6. Cole-Cole plot of ϵ_{APP}'' VS. ϵ_{APP}' for ZNR with SiO_2 content at various measurement temperatures

와 같은 온도특성을 가지고 있어, 고온이 될수록 캐리어의 추종 주파수가 증가하기 때문이다. ϵ_{APP}'' 피이크는 298K 를 기준으로 온도가 감소하거나 증가할 때 증가하는 경향을 나타내는데, 온도감소시 ϵ_{APP}'' 피이크의 약간의 증가현상은 점성저항에 의한 마찰열 손실이, 온도증가시 ϵ_{APP}'' 피이크의 증가는 오음성 저항에 의한 주울열 손실이 우세하게 작용하기 때문으로 사료된다.

그림 6은 여러 온도에서 SiO_2 첨가량에 따른 ZNR의 $\epsilon_{APP}'' \sim \epsilon_{APP}'$ 의 Cole-Cole 분포를 나타낸 것이다. 교번전계에서 복소 유전상수의 주파수 특성은 Debye 식으로 나타낼 수

있는데^{[10,16)],}

$$\epsilon_{APP}^* = \epsilon_{APP}' - j\epsilon_{APP}''$$

$$\epsilon_{\infty}' + \frac{\epsilon_s' - \epsilon_{\infty}'}{1 + j\omega\tau} \quad (6)$$

여기서 ϵ_s' 는 초저주파에서의 유전상수, ϵ_{∞}' 는 광학적 영역의 주파수에서의 유전상수이다. 실수부와 허수부로 나누어 쓰면

$$\epsilon_{APP}' = \epsilon_{\infty}' + \frac{\epsilon_s' - \epsilon_{\infty}'}{1 + \omega^2\tau^2}, \quad \epsilon_{APP}'' = \frac{(\epsilon_s' - \epsilon_{\infty}')\omega\tau}{1 + \omega^2\tau^2} \quad (7)$$

가 되고, $\omega\tau$ 를 소거하면 다음과 같이 된다.

$$\left(\epsilon_{APP}' - \frac{\epsilon_s' - \epsilon_{\infty}'}{\tau}\right)^2 - (\epsilon_{APP}'')^2 = \left(\frac{\epsilon_s' - \epsilon_{\infty}'}{\tau}\right)^2 \quad (8)$$

이 식은 $\epsilon_{APP}'' \sim \epsilon_{APP}'$ 평면상에서 반원(Debye 원)이 되지만, 대부분의 재료에 있어서 반원이 되지 않고 실험결과와 같은 원호가 된다. 그래서 식 (6)을 원호에 대응하는 식으로 변형시키면

$$\epsilon_{APP}^* = \epsilon_{\infty}' + \frac{\epsilon_s' - \epsilon_{\infty}'}{1 + (j\omega\tau)^\beta} \quad (9)$$

와 같이 쓸 수 있다. β 는 0~1 사이의 정수로 완화시간의 분포정도를 표시하는 양이다. $\beta=1$ 일 때는 완화시간이 단지 하나인 단일완화시간계로서 Debye 식과 일치한다. 그림 6에서 원호와 ϵ_{APP}'' 축과의 교차점과 ϵ_{APP}' 축 아래에 위치하는 원의 중심을 잇는 직선과의 부채꼴의 각을 $\beta\pi$ 로 두고 β 를 구하면 SiO_2 첨가량이 증가할수록 β 는 0.68~0.72 범위로 증가 추세를 보이고, 완화시간의 분포가 좁아지는 분포완화시간계의 유전특성을 나타낸다. 이와 같은 사실은 그림 4의 SiO_2 첨가량에 따른 유전흡수곡선의 폭이 좁아진다는 것과 일치한다.

그림 7은 SiO_2 첨가량에 따른 유전비저항의 온도 및 주파수의존성을 나타낸 것이다. 교번전계 인가시 ZNR 내의 전속밀도 D 변화에 따른 변위전류밀도 J는

$$J = \frac{dD}{dt} = j\omega D = j\omega\epsilon_{APP}^* E \quad (10)$$

$$\epsilon_{APP}^* = \epsilon_{APP}' - j\epsilon_{APP}'' \quad (11)$$

이므로

$$j = j\omega\epsilon_{APP}'' E + j\omega\epsilon_{APP}' E \quad (12)$$

가 된다.

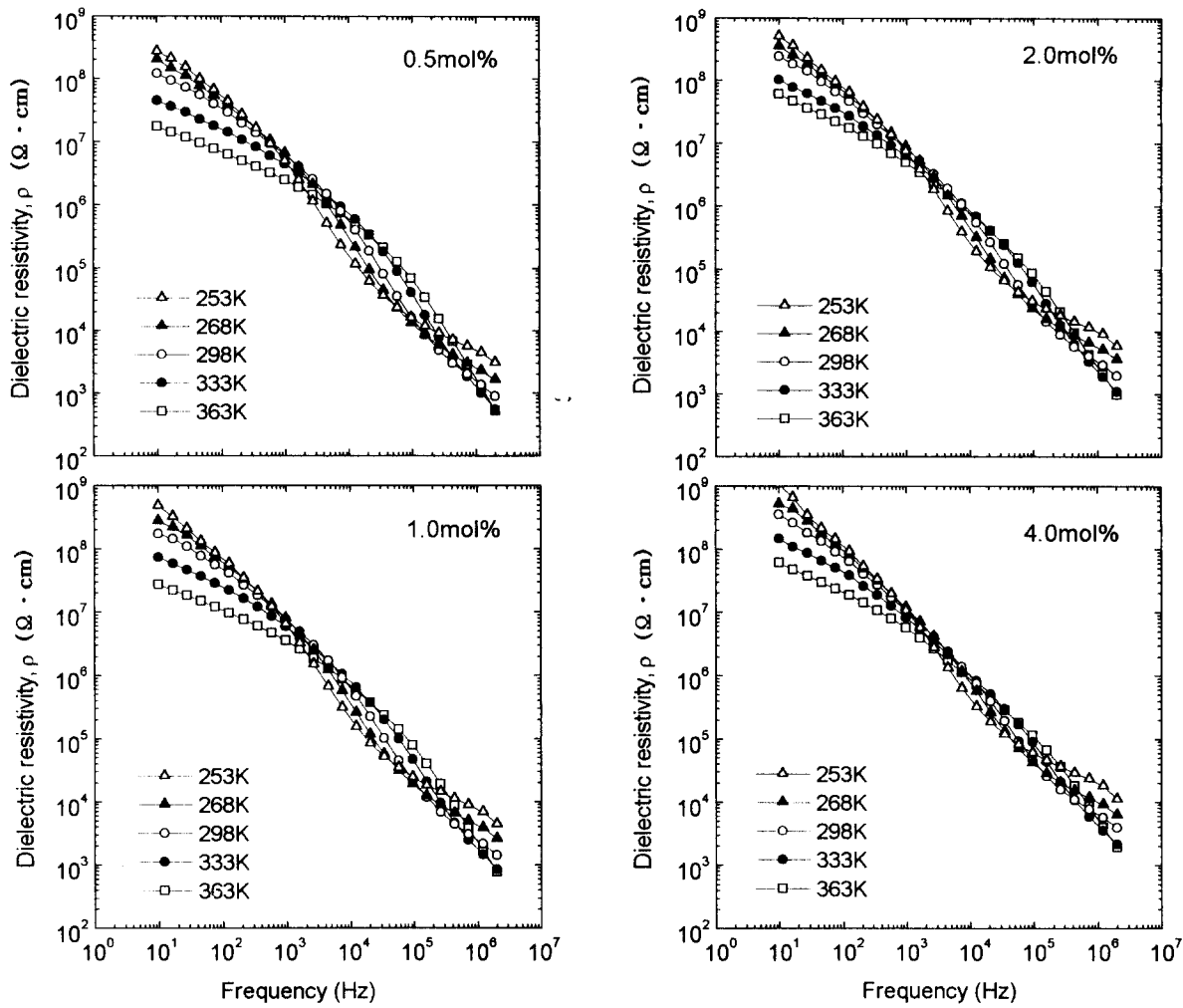


Fig. 7. Temperature and frequency dependence of ZNR dielectric resistivity with SiO₂ content

J의 실수부가 오음적 손실을 나타내는 성분이므로 유전 비저항 ρ는

$$\rho = \frac{1}{\sigma} = \frac{1}{\omega \epsilon_{NP}''} \quad (13)$$

로 주파수에 따라 감소됨을 알 수 있다. 임의의 온도 및 주파수에서 SiO₂ 첨가량이 증가함에 따라 ρ는 증가하고, 주파수 증가에 따라 감소하는 뚜렷한 SiO₂ 첨가량 및 주파수의 의존성 경향을 나타냈지만, 대략 350Hz 이하에서 온도 상승과 더불어 ρ가 감소하는 것을 제외하고는 어떠한 주파수에서도 ρ와 온도와의 관계가 분명하지 않다. SiO₂ 첨가량에 따른 ρ의 증가는 거시적으로 보면 도너 농도의 감소 및 결정립 크기의 감소로 3차원적으로 전기적 절연층 영역의 증가에 기인한 것으로 생각된다. ZNR은 입계효과를 이용한 소자로서 전기적 성질은 주로 intergranular 층과 ZnO 결정립 사이의 입계 부위의 전자적 결합과 관계가 있는 것으로 알려져 있지만, 구체적으로 어떠한 결합이 어떤 성질을 유발하는지는 불분명하다. SiO₂ 첨가량에 따른 유전분산, 유전흡수 및 유전비저항 특성은 입계의 전자적 결합 성질과 깊은 관계가 있는 것으로 보이며, 향후 지속적인 연구

가 이루어져야 할 것이다.

4. 결 론

SiO₂ 첨가량을 0.5, 1.0, 2.0, 4.0mol%로 변화시킨 ZNR을 제작하여 결보기 유전상수, 결보기 비유전손율, 유전비저항의 주파수 특성을 측정온도에 따라 조사한 결과 다음과 같은 결론을 얻었다.

- 1) SiO₂ 첨가량이 증가함에 따라 결보기 유전상수는 감소하였고, 유전분산이 상대적으로 보다 좁은 범위의 주파수에서 생겼으며, 약한 주파수 및 온도의 의존성을 나타냈다. 온도가 증가할수록 유전상수는 증가하였다.
- 2) 결보기 비유전손율은 측정 주파수 범위 내에서 하나의 극소점과 극대점을 가지는 비슷한 경향의 주파수 특성을 나타냈으며, SiO₂ 첨가량이 증가함에 따라 피크 비유전손율은 크게 감소하였으나, 피크 주파수는 조금 감소하여 SiO₂ 첨가량에 약하게 의존하였다.
- 3) 피크 비유전손율의 온도특성은 298K를 기준으로 온도가 감소할 때 미약하게 증가하고, 온도가 증가할 때 다소 증가하는 것으로 나타났으며, 저온에서는 점성저항에 의한 마찰열 손실이, 고온에서는 오음성 저항에 의한 주열열 손실이 우세하게 작용하는 것으로 판단된다.

4) SiO₂ 첨가량에 따라 Cole-Cole 원호의 β 는 0.68~0.72 범위로 증가추세를 보였고, 완화시간의 분포가 좁아지는 분포완화시간계의 유전특성을 나타냈다.

5) 유전비저항의 주파수 특성은 SiO₂ 첨가량에 관계없이 비슷한 경향을 나타냈으며, SiO₂ 첨가량이 증가함에 따라 증가하였다.

참 고 문 헌

1. M. Matsuoka, Jpn. J. Appl. Phys., 10(6), 736 (1971).
2. L. M. Levinson and H. R. Philipp, Ceram. Bull., 65 (4), 639(1986).
3. Y. S. Shim and J. F. Cordaro, J. Am. Ceram. Soc., 71(3)(1988).
4. L. M. Levinson and H. R. Philipp, Appl. Phys. Lett., 24(2), 183(1974).
5. K. Eda, J. Appl. Phys., 49(5), 2964(1978).
6. L. K. J. Vanadamme and J. C. Brugman, J. Appl. Phys., 51(8), 4240(1980).
7. 岡崎清, 電子セラミックスへの招待, pp. 187-194, 森北出版社, 日本, (1986).
8. ニューケラスシリーズ 編集委員会, 半導セラミックスとその應用, pp. 109-203, 學獻社, 日本, (1990).
9. L. M. Levinson and H. R. Philipp, IEEE Trans. parts, Hybrid and pack., PHP. 13(4), 328(1977).
10. B. -S. Chiou and M. -C. Chung, J. Am. Ceram. Soc., 75(12), 2363(1992).
11. T. Asokan, G. N. K. Iyengar, and G. R. Nagabhashana, J. Mat. Sci., 22, 2229(1987).
12. P. Palanisamg and T. Asokan, Am. Ceram. Soc. Bull., 67(10), 1635(1988).
13. 남춘우, 한국전기전자재료학회지, 9(6), 542(1996).
14. 남춘우, 정순철, 한국전기전자재료학회지, 10(7), 659 (1997).
15. 日野太郎, 電氣材料物性工學, pp. 103-177, 朝倉書店, 日本, (1995).
16. 中島達二 外 3人, 誘電體現象論, pp. 120-143, 電氣學會, 日本, (1993).