

## Effects of Surface Microstructure on Microwave Dielectric Properties of $ZrO_2$ -NiO added $Ba(Zn_{1/3}Ta_{2/3})O_3$ Ceramics

Sung Woo Kang<sup>\*,\*\*</sup>, Tae Heui Kim<sup>\*\*</sup>, Jooho Moon<sup>\*\*\*,†</sup>, Sung Youl Kim<sup>\*\*\*\*</sup>,  
Jun Young Park<sup>\*</sup>, Sun Hee Choi<sup>\*</sup>, and Joosun Kim<sup>\*†</sup>

<sup>\*</sup>Center for Energy Materials Research, Korea Institute of Science and Technology, Seoul 136-791, Korea

<sup>\*\*</sup>The Center of Green Materials Technology, School of Advanced Materials Engineering,  
Andong National University, Andong 760-749, Korea

<sup>\*\*\*</sup>School of Advanced Materials Science and Engineering, Yonsei University, Seoul 120-749, Korea

<sup>\*\*\*\*</sup>Expantech, Hwaseong 445-912, Korea

(Received August 12, 2008; Accepted September 25, 2008)

### ZrO<sub>2</sub>와 NiO가 첨가된 Ba(Zn<sub>1/3</sub>Ta<sub>2/3</sub>)O<sub>3</sub>에서 표면 미세조직이 고주파 유전특성에 미치는 영향

강성우<sup>\*,\*\*</sup> · 김태희<sup>\*\*</sup> · 문주호<sup>\*\*\*,†</sup> · 김성열<sup>\*\*\*\*</sup> · 박준영<sup>\*</sup> · 최선희<sup>\*</sup> · 김주선<sup>\*†</sup>

<sup>\*</sup>한국과학기술연구원 에너지재료연구단

<sup>\*\*</sup>안동대학교 신소재공학부 청정소재기술연구센터

<sup>\*\*\*</sup>연세대학교 신소재공학부

<sup>\*\*\*\*</sup>익스펜테크(주)

(2008년 8월 12일 접수 ; 2008년 9월 25일 승인)

#### ABSTRACT

High frequency dielectric ceramics have potential for applications in mobile and satellite communications systems at frequencies higher than 10 GHz. The  $Ba(Zn_{1/3}Ta_{2/3})O_3$  ceramics are known to have a high quality factor, a small temperature coefficient of the resonance frequency and a high dielectric constant. On the other hands, sintering at high temperature for extended time is required to obtain the ordered structure for high quality factor. In this study, the microwave dielectric properties of  $ZrO_2$  and NiO-added  $Ba(Zn_{1/3}Ta_{2/3})O_3$  ceramics prepared by solid-state reaction have been investigated. Adding  $ZrO_2$  and NiO could effectively promote the densification even the case of decreasing the sintering time. At the surface of samples, secondary phase of Ba-Ta compounds was formed possibly due to the evaporation of ZnO, however, the interior of the samples remained as pure  $Ba(Zn_{1/3}Ta_{2/3})O_3$ . The samples sintered at 1600°C for 2 h exhibited 1:2 ordering of Zn and Ta cations. Excellent microwave dielectric properties of  $Q \cdot f$  ( $> 96,000$  GHz) and  $\epsilon_r = 30$  has been obtained.

**Key words :**  $Ba(Zn_{1/3}Ta_{2/3})O_3$ , Microwave dielectrics, Order-disorder, Second phase,  $ZrO_2$ -NiO

#### 1. 서 론

최근 통신분야의 비약적인 발전에 따라 소형화, 디지털화, 고성능화된 부품의 수요가 급증하고 있으며, 그 중 통신용 세라믹 소자부품은 전체 시스템의 성능을 좌우하는 중요한

핵심으로 자리잡고 있다. 특히 통신용 유전체 세라믹은 무선전화, 위성방송 시스템, GPS(Global Positioning System)와 같은 이동통신기기의 공진기(dielectric resonator), 필터(Duplexer), 안테나, 증폭기, 기판 등에 응용되고 있다.<sup>1-5)</sup> 이러한 마이크로파 유전체 세라믹은 유전 및 온도특성이 우수하고 낮은 전압에서 구동할 수 있을 뿐만 아니라 경제적이여야 한다.<sup>6)</sup>

현재 사용되고 있는 고주파 유전체 조성으로는 (Zr, Sn)TiO<sub>4</sub> 이외에 A자리에 Ba<sup>2+</sup>와 Sr<sup>2+</sup>, B자리에 Mg<sup>2+</sup>와 Zn<sup>2+</sup> 등의 2가 이온과 Nb<sup>5+</sup>와 Ta<sup>5+</sup> 등의 5가 이온이 1:2 비율로 존재하는 A<sup>2+</sup>(B<sup>2+ 1/3</sup>B<sup>5+ 2/3</sup>)O<sub>3</sub> 형태의 복합 페롭스카이트 화합물이 대표적이며, 품질 계수(Q·f)가 높아 그 연구가 활발하다. 특히, 재료내 결정격자의 구조변화가 마

<sup>†</sup>Corresponding author : Joosun Kim

E-mail : joosun@kist.re.kr

Tel : +82-2-958-5528

Fax : +82-2-958-5529

<sup>‡</sup>Co-Corresponding author : Jooho Moon

E-mail : jmoon@yonsei.ac.kr

Tel : +82-2-2123-2855

Fax : +82-2-365-5882

**Table 1.** Densities of the ZrO<sub>2</sub> and NiO Added Ba(Zn<sub>1/3</sub>Ta<sub>2/3</sub>)O<sub>3</sub> Samples Sintered at 1600°C for 2 h

composition	1ZrO <sub>2</sub> +99Ba(Zn <sub>1/3</sub> Ta <sub>2/3</sub> )O <sub>3</sub>	1ZrO <sub>2</sub> +0.2NiO 98.8Ba(Zn <sub>1/3</sub> Ta <sub>2/3</sub> )O <sub>3</sub>	1ZrO <sub>2</sub> +0.2NiO 98.8Ba(Zn <sub>1/3</sub> Ta <sub>2/3</sub> )O <sub>3</sub> +6ZnO(excess)
Bulk density (g/cm <sup>3</sup> )	7.55	7.41	7.50
Relative density (%)	96	94	95
Porosity (%)	3.7	5.8	4.1

이크로파 유전특성에 많은 영향을 미치는 것으로 알려져 있어 이들 화합물들의 결정격자 내의 원자배열상태, 즉 규칙화 정도에 대한 연구가 많다. 페롭스카이트 화합물은 마이크로파 유전체 재료 중에서 가장 높은 Q값을 가지고 있어 10 GHz 대역의 주파수에서 이용되는 경우가 많다. 그 중 Ba(Zn<sub>1/3</sub>Ta<sub>2/3</sub>)O<sub>3</sub> (BZT)와 Ba(Mg<sub>1/3</sub>Ta<sub>2/3</sub>)O<sub>3</sub> (BMT)가 대표적이다.<sup>7-13)</sup>

BZT는 품질계수 120,000 이상, 비유전율( $\epsilon_r$ ) 29~30, 공진주파수의 온도계수(TCF)~0 ppm/°C의 우수한 마이크로파 유전특성을 가지고 있다.<sup>9)</sup> 그러나 Tamura 등<sup>14)</sup> 이 보고한 바와 같이 우수한 마이크로파 유전특성을 확보하기 위해서는 Zn와 Ta의 B자리 규칙화(ordering)가 필요하고 이를 위해 1600°C 이상의 고온에서 장시간 열처리해야 하는 것으로 알려져 있다.<sup>15)</sup> 이때 특정 물질의 휘발, 상분해 및 이차상 생성 때문에 표면을 가공하여 제거해야 하는데, 최근에는 이와 같은 제조비용을 절감하기 위해 소결온도를 낮추고 높은 유전상수 값을 유지할 수 있는 연구가 이루어지고 있다.

본 연구에서는 BZT를 고상으로 합성하여 소결한 후, 미세조직 및 결정 구조에 따른 고주파 유전특성의 변화를 고찰하였다. 특히 고온에서 단시간 소결하여 상합성을 완료하고 구조 안정화를 피하였으며, 이때 규칙-불규칙 전이 고주파 유전특성에 미치는 영향도 고찰하였다.

## 2. 실험 방법

출발물질로는 BaCO<sub>3</sub> (99.9%, Sakai, Japan), ZnO (99.5%, 한일아연, Korea), Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> (99.99%, Jiujiang, China)를 사용하였으며, 소결 조제로 ZrO<sub>2</sub> (99.8%, Tosoh, Japan)와 NiO (99.5%, Sumitomo, Japan)를 사용하였다. 원료와 첨가제를 물 비에 맞게 칭량한 후, YSZ ball:증류수:분말=5:1:1의 비율로 24 h ball milling하여 1차 혼합 및 분쇄한 후, 100°C에서 24 h 건조하였다. 건조된 분말은 1200°C에서 7 h 하소하여 Ba(Zn<sub>1/3</sub>Ta<sub>2/3</sub>)O<sub>3</sub> 분말을 합성하였으며, 동일한 방법으로 2차 분쇄한 후 건조하였다. 건조된 분말은 유발에서 곱게 분쇄한 후, 체가름하여 최종 BZT 분말을 얻었다. 분말은 디스크 형태의 mold를 사용하여 150 MPa의 압력으로 일축 가압 성형하였으며 1600°C에서 2 h 소결하였다.

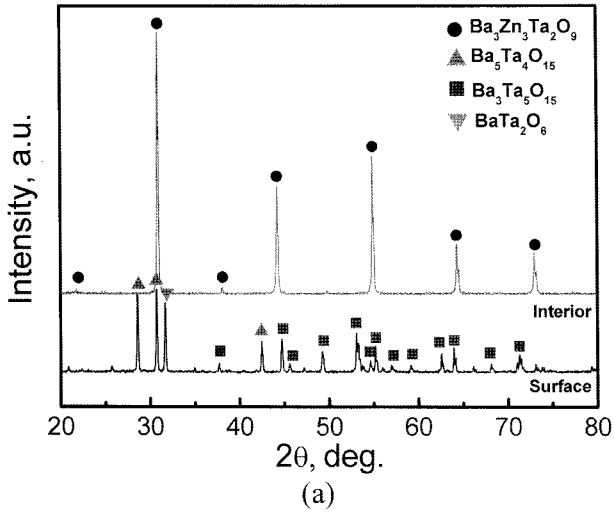
합성된 분말과 소결체의 결정구조 및 계면 2차상의 존

재 유무를 확인하기 위해 X선 회절분석(X-ray Diffractometer, PW3830, PANalytical, Netherlands, CuK $\alpha$ ,  $\lambda$ =1.5405)과 표면주사현미경 관찰(FEI XL-30 FEG, Philips, Netherlands)을 수행하였으며, 규칙-불규칙 전이 유무를 확인하기 위해 Raman 분석(T64000, Horiba, France)과 투과전자현미경 관찰(CM30, Philips, Netherlands)을 수행하였다. 소결체의 마이크로파 유전특성은 network analyzer (R3767ca, Advantest, Japan)을 이용하여 Hakki-Coleman법<sup>16)</sup>을 Courtney와 Kobayashi가 보정한 평행도체관법(post resonator method)으로 측정하였다. 품질계수는 TE<sub>018</sub> 모드가 정지할 때의 공진 주파수와 3 dB에서의 대역폭을 측정하여 구하였다.

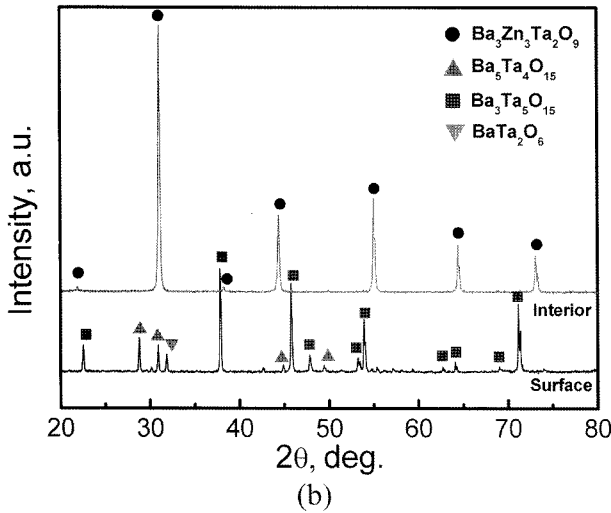
## 3. 결과 및 고찰

BZT 소결체의 첨가제 변화에 따른 밀도변화를 Table 1에 나타내었다. 모든 조성에서 94% 이상의 밀도를 나타내었으며 1600°C에서 2 h 열처리로 치밀화시킬 수 있음을 확인하였다. 그러나 완전 치밀화시킬 수 있는 열처리 조건은 확보할 수 없었으며 이는 소결중 ZnO의 휘발에 의한 것으로 추정하였다. ZnO 휘발의 영향을 확인하고자 ZrO<sub>2</sub>와 NiO가 첨가된 경우, 소결체의 무게감량으로부터 소결중 휘발되는 ZnO의 양을 계산하고 이를 과량으로 추가하는 실험을 수행하였다. 그 결과 과량의 ZnO를 첨가한 경우에도 뚜렷한 상대밀도의 증가를 관찰할 수 없었으며 위와 같은 방법으로 완전 치밀화된 BZT를 얻기는 어려웠다. 이와 같은 소결성의 저하는 고온에서 BZT 성형체 내의 ZnO가 표면으로부터 우선 휘발하여 미세조직이 다공질화되고 2차상이 생성되기 때문으로 판단된다.

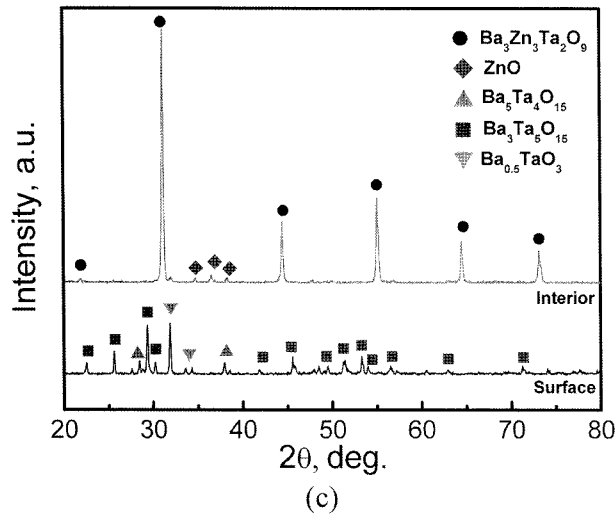
소결체 표면의 상분해 및 휘발의 영향을 평가하기 위해 소결체 내부와 외부를 구분하여 X선 회절분석한 결과를 Fig. 1에 나타내었다. 첨가제의 유무와 상관 없이 모든 시편의 내부에는 순수한 BZT 상이 존재함을 확인할 수 있었다. 반면, 소결체의 표면에는 BZT 상은 존재하지 않고 침상의 Ba<sub>5</sub>Ta<sub>4</sub>O<sub>15</sub>, Ba<sub>3</sub>Ta<sub>5</sub>O<sub>15</sub>, 그리고 BaTa<sub>2</sub>O<sub>6</sub>와 같은 2차상을 확인하였다. 또한 Fig. 2에 나타낸 소결체의 단면 미세조직에서와 같이 표면은 내부와 달리 다공성의 미세조직을 가지고 있었으며, ZnO의 휘발에 의해 생성된 기공으로 판단되었다. 이와 같은 2차상 생성영역은 표면으로부터 최대 100  $\mu$ m까지 존재하였는데, 시편의 내부로



(a)

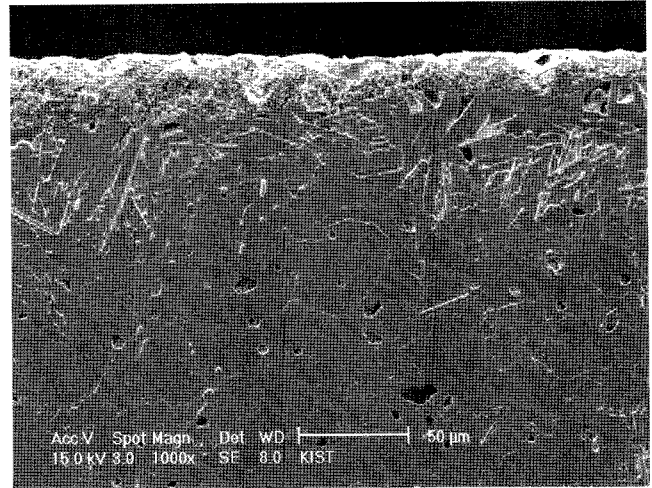


(b)

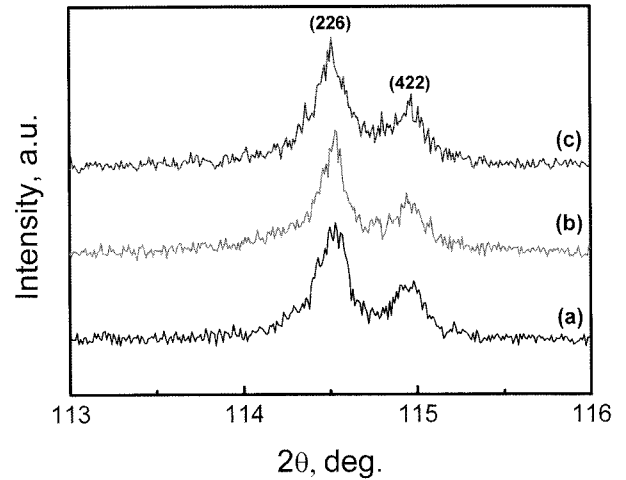


(c)

**Fig. 1.** X-ray diffraction patterns of the (a) 1 mol% ZrO<sub>2</sub> added, (b) 1 mol% ZrO<sub>2</sub>+0.2 mol% NiO added, and (c) 1 mol% ZrO<sub>2</sub>+0.2 mol% NiO and 6 mol% of excess ZnO added Ba(Zn<sub>1/3</sub>Ta<sub>2/3</sub>)O<sub>3</sub> samples sintered at 1600°C for 2 h.



**Fig. 2.** Microstructure of the 1 mol% ZrO<sub>2</sub>+0.2 mol% NiO added Ba(Zn<sub>1/3</sub>Ta<sub>2/3</sub>)O<sub>3</sub> samples sintered at 1600°C for 2 h.



**Fig. 3.** High angle X-ray diffraction patterns of the (a) 1 mol% ZrO<sub>2</sub> added, (b) 1 mol% ZrO<sub>2</sub>+0.2 mol% NiO added, and (c) 1 mol% ZrO<sub>2</sub>+0.2 mol% NiO and 6 mol% of excess ZnO added Ba(Zn<sub>1/3</sub>Ta<sub>2/3</sub>)O<sub>3</sub> samples sintered at 1600°C for 2 h.

들어갈수록 2차상이 사라지고 BZT의 함량이 증가함을 확인할 수 있었다. 특히, Fig. 1(c)와 같이 ZnO를 과량으로 첨가한 경우에는 표면의 상 분포는 동일하였으나, 내부에는 순수한 BZT상 외에 ZnO도 존재함을 알 수 있었다. 이는 BZT의 상분해를 억제하기 위해 과량으로 첨가한 ZnO는 시편의 내부에 남아 마이크로파 유전특성에 영향을 미칠 수 있음을 시사하는 것이다.

일반적으로 복합 페로스카이트 구조를 가지는 물질에서 일어나는 B자리 원자들의 규칙화 여부는 X선 회절분석을 통해 115° 부근의 (226)과 (422)면에 해당하는 피크의 분리로서 알 수 있다. 열처리 시간 및 온도가 증가함

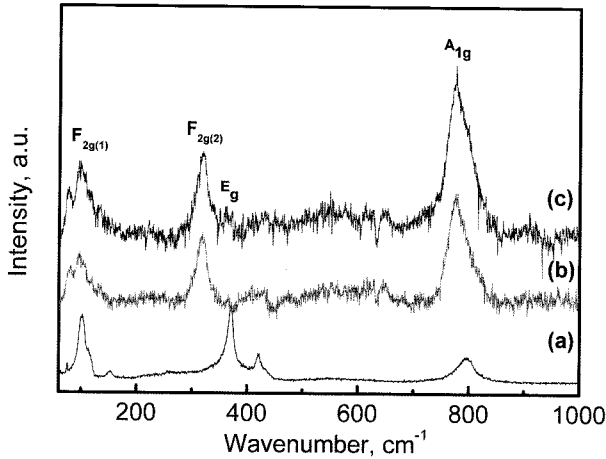


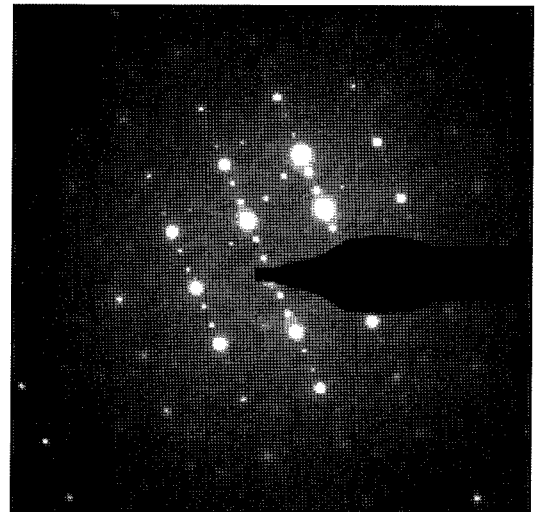
Fig. 4. Raman spectra of the (a) 1 mol%  $ZrO_2$  added, (b) 1 mol%  $ZrO_2$ +0.2 mol% NiO added, and (c) 1 mol%  $ZrO_2$ +0.2 mol% NiO and 6 mol% of excess ZnO added  $Ba(Zn_{1/3}Ta_{2/3})O_3$  samples sintered at  $1600^\circ C$  for 2 h.

에 따라 B자리 원자들의 규칙화가 증가하면 (422)면에 해당하는 피크의 회절 강도는 감소하고 (226)면에 해당하는 피크는 (422) 피크로부터 분리된다.<sup>12)</sup> BZT 소결체의 규칙화 정도를 확인하기 위하여 고각의 X선 회절분석을 수행한 결과를 Fig. 3에 나타내었다. 모든 경우에서 (226)과 (422)면에 해당하는 피크의 분리가 일어났으며, 이는 기존의 연구결과와<sup>15)</sup> 달리 단시간의 열처리 만으로도 치밀화뿐만 아니라 B자리 원자들의 규칙화도 가능함을 증명하는 결과이다. 이러한 결과는 Raman 분석을 통해서도 확인할 수 있다. 즉, Fig. 4에 나타낸 바와 같이  $ZrO_2$ 와 NiO를 첨가한 BZT 시편에서 B자리 규칙화에 의해 나타나는 4개의 피크를 관찰할 수 있었다. 첨가제는 BZT의 규칙화에 영향을 줄 수 있는데, Ni와 Zr이 첨가된 BZT는 Zr의 첨가량이 3 mol% 이상인 경우 1:2 규칙화에서 1:1 규칙화로 전이하고 미세조직도 나노 도메인화 한다고 알려져 있다. 이때, Raman 분석으로는 규칙화 여부를 확인하기 어렵다.<sup>17)</sup> 그러나 본 실험에 첨가한  $ZrO_2$ 의 양이 1:1 규칙화를 형성할 만큼 충분하지 않아 이러한 전이현상을 관찰할 수 없고 TEM 관찰에서도 나노 도메인을 확인할 수 없었던 것으로 보아 B자리 양이온의 1:2 규칙화에 의한 결과로 판단할 수 있다.

Fig. 5에  $1600^\circ C$ 에서 2 h 소결한 BZT 시편의 내부 미세조직과 전자 회절패턴을 나타내었다.  $ZrO_2$ , NiO가 첨가된



(a)



(b)

Fig. 5. TEM (a) micrographs and (b) electron diffraction pattern of the 1 mol%  $ZrO_2$ +0.2 mol% NiO added  $Ba(Zn_{1/3}Ta_{2/3})O_3$  samples sintered at  $1600^\circ C$  for 2 h.

시편의 경우 BZT 단일상의 다결정 미세조직이 잘 발달된 것을 확인할 수 있다. 입계 중에 T자형 입계가 존재하지 않고 삼중점에 액상의 흔적이 관찰되지 않은 것으로 보아 2차상은 존재하지 않는 것으로 판단되며 이는 시편 내부의 X회절 분석 결과와도 일치한다. 특히, Fig. 5(b)에

Table 2. Microwave Dielectric Properties of the  $ZrO_2$  and NiO Added  $Ba(Zn_{1/3}Ta_{2/3})O_3$  Samples Sintered at  $1600^\circ C$  for 2 h.

Sample	As sintered		Surface grinded	
	$Q_f$ (GHz)	$\epsilon_r$	$Q_f$ (GHz)	$\epsilon_r$
$1ZrO_2+99Ba(Zn_{1/3}Ta_{2/3})O_3$	65,528	29.7	98,898	29.9
$1ZrO_2+0.2NiO\ 98.8Ba(Zn_{1/3}Ta_{2/3})O_3$	88,781	30.2	96,967	29.9
$1ZrO_2+0.2NiO\ 98.8Ba(Zn_{1/3}Ta_{2/3})O_3+6ZnO(excess)$	7,067	32.9	5,765	33.1

나타낸 바와 같이 페롭스카이트 구조에서 규칙화를 나타내는 회절 패턴으로 페롭스카이트 구조 내의 B-site의 원자 Zn과 Ta의 1:2 규칙화에 의해 잉여의 회절점이 나타난 것을 확인할 수 있다.

Table 2에 첨가제가 다른 BZT를 1600°C에서 2h 소결한 후 품질계수와 유전상수를 측정하여 나타내었다. 이때 시편의 표면에 상분해에 의한 2차상이 존재한다는 것에 착안하여 표면층을 가공한 시편을 별도로 제작하여 마이크로파 유전특성에 미치는 표면층의 영향을 비교 평가하였다. ZrO<sub>2</sub>, NiO가 첨가된 시편의 경우, 가공 전에는 Q·f가 65,000 이상이었으며, 가공 후에는 이보다 높은 94,000 이상의 값을 나타내고 있다. 즉 가공 전보다 가공 후 Q·f가 증가한 것을 알 수 있고, 이로써 표면에 존재하는 가공과 침상의 2차상이 마이크로파 유전특성을 저하시키는 원인임을 확인하였다. 반면 ZnO를 과량으로 첨가한 경우 상대적으로 5,000~7,000 정도의 낮은 Q·f를 가졌는데, 입계 혹은 입계의 삼중점에 존재하는 ZnO가 마이크로파 유전특성을 저하시키는 요인으로 작용함을 알 수 있는 결과이다. 따라서 표면 2차상의 생성을 억제하기 위해 과량의 ZnO를 첨가하는 경우 2차상의 억제효과가 미미할 뿐만 아니라 BZT 소결체의 품질계수 또한 감소시키는 요인이 됨을 확인하였다. 첨가제를 달리한 모든 시편에서 유전상수는 29~33 정도였으며 높은 주파수 대역에서 우수한 유전특성을 보임을 알 수 있다. 앞의 품질계수와는 달리 유전상수의 경우에는 가공 전후의 물성 변화가 크지 않은 것으로 보아 표면 2차상의 생성이나 다공질화의 영향은 크지 않은 것으로 판단된다. 2차상인 Ba<sub>5</sub>Ta<sub>4</sub>O<sub>15</sub>의 유전상수가 28(@5.55 GHz)로 보고된 결과<sup>18)</sup>와도 일치한다. 한편, ZnO를 과량 첨가한 시편의 유전상수가 비교적 높았는데, 이는 입계 및 삼중점에 존재하는 ZnO의 영향으로 판단되며 이에 대한 구체적인 연구를 통해 Q·f 및 유전상수와 같은 물성향상이 가능한 새로운 조성의 개발이 가능할 것으로 예상된다.

#### 4. 결 론

10 GHz 대역의 마이크로파 유전체 소재인 Ba(Zn<sub>1/3</sub>Ta<sub>2/3</sub>)O<sub>3</sub>를 고상으로 합성하여 소결하고 미세조직 및 결정구조에 따른 고주파 유전특성의 변화를 관찰하였다. 소결조제로 ZrO<sub>2</sub>, NiO를 첨가하여 치밀화시켰으며 안정된 상합성 및 구조 안정화를 꾀하였다. 소결체 표면에는 ZnO의 휘발에 의한 Ba-Ta계열의 침모양 2차상이 관찰되었으며 내부에는 순수한 BZT 상이 존재하였다. BZT는 1600°C, 2h 소결하였음에도 불구하고 결정구조내 Zn과 Ta가 규칙화되었음을 확인하였다. 표면 2차상 생성 및 기공생성을 억제하기 위해 과량으로 첨가한 ZnO는 2차상 억제 및 치밀화에 효율적이지 않았으며 BZT의 마이크로파 대역 품질

계수를 저하시켰다. 소결체 표면의 2차상을 제거한 후 측정된 BZT의 품질계수 Q·f는 96,000 이상이었으며 이때의 유전상수는 30으로 매우 우수하였다.

#### Acknowledgment

본 연구는 에너지관리공단의 에너지자원 기술개발사업의 지원에 의해 이루어졌으며 이에 감사드립니다.

#### REFERENCES

1. H. Tamura, D. A. Sagala, and K. Wakino, "Lattice Vibrations of Ba(Zn<sub>1/3</sub>Ta<sub>2/3</sub>)O<sub>3</sub> Crystal with Ordered Perovskite Structure," *Jpn. J. Appl. Phys.*, **25** [6] 787-91 (1986).
2. W. Wersing, "Microwave Ceramics for Resonators and Filters," *Curr. Opin. Solid State Mater. Sci.*, **1** [5] 715-31 (1996).
3. R. J. Cava, "Dielectric Materials for Applications in Microwave Communications," *J. Mater. Chem.*, **11** 54-62 (2001).
4. N. Klein, M. Schuster, S. Vitusevich, M. Winter, and H.R. Yi, "Novel Dielectric Resonator Structures for Future Microwave Communication Systems," *J. Eur. Ceram. Soc.*, **21** [15] 2687-91 (2001).
5. A. A. Bokov and Z.-G. Ye, "Recent Progress in Relaxor Ferroelectrics with Perovskite Structure," *J. Mater. Sci.*, **41** [1] 31-52 (2006).
6. S. Janaswamy, G. S. Murthy, E. D. Dias, and V. R. K. Murthy, "Structure Analysis on the Ba<sub>3</sub>Mg(Ta<sub>1-x</sub>Nb<sub>x</sub>)<sub>2</sub>O<sub>9</sub> Ceramics: Coexistence of Order and Disorder," *Mater. Res. Bull.*, **43** [3, 4] 655-64 (2008).
7. K. H. Yoon, S. J. Yoo, W. S. Kim, J. B. Kim, and E. S. Kim, "Effect of BaO/WO<sub>3</sub> on the Microwave Loss Quality of Ba(Mg<sub>1/3</sub>Ta<sub>2/3</sub>)O<sub>3</sub>," *Jpn. J. Appl. Phys.*, **38** [9B] 5616-20 (1999).
8. T. Takahashi, "First-principles Investigation of the Phase Stability for Ba(B<sub>1/3</sub><sup>2+</sup>B<sub>2/3</sub><sup>5+</sup>)O<sub>3</sub> Microwave Dielectrics with the Complex Perovskite Structure," *Jpn. J. Appl. Phys.*, **39** [9B] 5637-41 (2000).
9. A. Ioachim, M. I. Toacsan, M. G. Banciu, L. Nedelcu, C. A. Dutu, M. Feder, C. Plapcianu, F. Lifei, and P. Nita, "Effect of the Sintering Temperature on the Ba(Zn<sub>1/3</sub>Ta<sub>2/3</sub>)O<sub>3</sub> Dielectric Properties," *J. Eur. Ceram. Soc.*, **27** [2-3] 1117-22 (2007).
10. C. J. Lee, G. Pezzotti, Shin H. Kang, Deug J. Kim, and Kug Sun Hong, "Quantitative Analysis of Lattice Distortion in Ba(Zn<sub>1/3</sub>Ta<sub>2/3</sub>)O<sub>3</sub> Microwave Dielectric Ceramics with Added B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Using Raman Spectroscopy," *J. Eur. Ceram. Soc.*, **26** [8] 1385-91 (2006).
11. S. Nomura, K. Yoyama, and K. Kaneta, "Ba(Mg<sub>1/3</sub>Ta<sub>2/3</sub>)O<sub>3</sub> Ceramics with Temperature Stable High Dielectric Constant and Low Microwave Loss," *Jpn. J. Appl. Phys.*, **21** [10] L624-26 (1982).
12. S. B. Desu, and H. M. O'Bryan, "Microwave Loss Quality of Ba(Zn<sub>1/3</sub>Ta<sub>2/3</sub>)O<sub>3</sub> Ceramics," *J. Am. Ceram. Soc.*, **68** [10] 546-51 (1985).

13. E. Koga, Y. Yamagishi, H. Moriwake, K. Kakimoto, and H. Ohsato, "Large Q Factor Variation within Dense, Highly Ordered Ba(Zn<sub>1/3</sub>Ta<sub>2/3</sub>)O<sub>3</sub> System," *J. Eur. Ceram. Soc.*, **26** [10-11] 1961-4 (2006).
14. H. Tamura, T. Konoike, Y. Sakabe, and K. Wakino, "Improved High-Q Dielectric Resonator with Complex Perovskite Structure," *J. Am. Ceram. Soc.*, **67** [4] C59-61 (1984).
15. S. Kawashima, M. Nishida, I. Ueda, and H. Ouchi, "Ba(Zn<sub>1/3</sub>Ta<sub>2/3</sub>)O<sub>3</sub> Ceramics with Low Dielectric Loss at Microwave Frequencies," *J. Am. Ceram. Soc.*, **66** [6] 421-23 (1983).
16. B. W. Hakki and P. D. Coleman, "A Dielectric Method of Measuring Inductive Capacities in the Millimeter Range," *IEEE Trans. Microwave Theory Tech.*, MTT-8 402-40 (1980).
17. Peter K. Davies and Jianzhu Tong, "Effect of Ordering-Induced Domain Boundaries on Low-Loss Ba(Zn<sub>1/3</sub>Ta<sub>2/3</sub>)O<sub>3</sub>-BaZrO<sub>3</sub> Perovskite Microwave Dielectrics," *J. Am. Ceram. Soc.*, **80** [7] 1727-40 (1997).
18. S. Kamba, J. Petzelt, E. Buixaderas, D. Haubrich, and P. Vanek, "High Frequency Dielectric Properties of A<sub>5</sub>B<sub>4</sub>O<sub>15</sub> Microwave Ceramics," *J. Appl. Phys.*, **89** [7] 3900-6 (2001).