

MgTiO₃ 산화물 박막의 성장 및 전기적 특성 연구

강신총 · 임왕규 · 안순홍* · 노용한* · 이재찬

성균관대학교 재료공학과, *전기 · 전자 및 컴퓨터공학부
(2000년 3월 3일 접수)

Growth and electrical properties of MgTiO₃ thin films

Shinchung Kang, Wangkyu Lim, Soonhong Ahn,* Younghan Roh,* and Jaichan Lee

Department of Materials Engineering

*School of Electrical and Computer Engineering Sung Kyun Kwan University, Suwon, 440-746, Korea

(Received March 3, 2000)

요 약 - 광소자와 마이크로파 유전체 소자 및 절연 산화막으로의 응용을 위한 MgTiO₃ 박막을 펄스레이저 증착법을 이용하여 다양한 기판 위에서 증착하였다. 사파이어 기판에(c-plane Sapphire) 성장된 MgTiO₃ 박막은 에피택셜 성장(epitaxial growth)이 되었으며, SiO₂/Si 및 Pt/Ti/SiO₂/Si(platinized silicon)기판 위에 성장된 MgTiO₃ 박막의 경우, 기판과 관계없이 c축 방향으로 배향(oriented)되었다. 사파이어 기판 위에 증착된 MgTiO₃ 박막은 가시영역에서 투명하였으며, 약 290 nm 파장을 갖는 영역에서 급격한 흡수단을 보였다. 사파이어 기판 위에 성장된 박막의 AFM(Atomic Force Microscopy) 분석결과 약 0.87 nm rms roughness 값을 갖는 매우 평탄한 표면상태를 갖고 있음을 확인하였다. MIM(Pt/MgTiO₃/Pt) 구조의 캐패시터를 형성시켜 MgTiO₃ 박막의 유전특성(dielectric properties)을 관찰하였는데, 펄스레이저 증착법으로 성장된 MgTiO₃ 박막의 유전율(relative dielectric constant)은 약 24.5였으며, 1 MHz에서 약 1.5%의 유전손실(dielectric loss) 값을 보였다. 또한 이때 MgTiO₃ 박막은 낮은 유전분산을 보였다.

Abstract - MgTiO₃ thin films have been grown on various substrates by pulsed laser deposition (PLD) to investigate the application for microwave dielectrics and optical devices. Epitaxial MgTiO₃ thin films were obtained on sapphire (c-plane Al₂O₃). MgTiO₃ thin films deposited on SiO₂/Si and platinized silicon (Pt/Ti/SiO₂/Si) substrates were highly oriented. MgTiO₃ thin films grown on sapphire were transparent in the visible and had a sharp absorption edge about 290 nm. These MgTiO₃ thin films had extremely fine feature of surface morphology, i.e., rms roughness of 0.87 nm, which was examined by AFM. We have investigated the dielectric properties of the MgTiO₃ thin films in MIM(Pt/MgTiO₃/Pt) capacitors. Dielectric constant and loss of MgTiO₃ thin films deposited by PLD were about 24 and 1.5% at 1 MHz, respectively. These MgTiO₃ thin films also exhibited little dielectric dispersion.

1. 서 론

최근에 전자소자 및 광집적소자(Integrated optic device)와 마이크로파 소자 등 다양한 응용분야를 갖고 있는 다성분계 유전체 산화물 박막에 대한 관심이 증가하고 이것에 대한 연구가 집중적으로 이루어지고 있다 [1]. 이것은 다성분계 유전체 산화물이 박막으로 형성되었을 때 갖는 다양한 성질-가우전성, 압전성, 전기 광학적 성질, 거대 자기 저항성 등 다양한 특징을 나타내어 광범위한 응용이 가능하기 때문이다. 이러한 다성분계 산화물 박막의 성장/증착에 사용되는 여러 공정

중 유용한 방법이 PVD(Physical vapor deposition)의 일종인 PLD(Pulsed laser deposition)법으로, PLD는 증착과 동시에 열처리가 가능한 in-situ 공정이며 빠른 증착 속도와 타겟의 조성과 동일한 조성을, 증착하고자 하는 기판 위에 손쉽게 증착할 수 있는 장점이 있다 [2].

최근의 급격한 정보통신의 발전과 더불어 무선이동통신의 수요가 급증하고, 정보교환이 증가하면서 마이크로파 영역이 본격적으로 사용되기 시작하였다. 마이크로파 이용이 본격화되면서 마이크로파의 안정적인 사용을 가능하게 하는 유전체, 즉, 마이크로파 영역에서 비교적 높은 유전상수와 낮은 유전손실, 그리고 높은 열적 안

정성을 갖는 유전체 물질이 요구되고 있다 [1, 3, 4]. 또한 마이크로파 소자의 크기가 감소하면서 다른 소자와 집적화가 가능한 박막으로써의 유전체 물질이 필요하게 되었다. 그러나, 지금까지 마이크로파 영역에 사용된 물질은 발진기(oscillator)나 필터(filter)등으로 사용된 유전 손실이 적은 벌크(bulk)형태의 세라믹스를 이용한 수동 소자였다 [1, 3]. 마이크로파 유전체로 사용되는 대부분의 재료들은 온도에 안정한 유전특성(temperature stable dielectric properties)과 유전율(ϵ_r)이 20~90의 범위에 있으며, 품질계수(Quality factor: $Q = 1/\tan\delta$)가 5,000~400,000의 범위를 만족시키는데, 위 조건들 중에서 중요한 것은 공진 주파수(resonant frequency)의 대역폭(band width)과 안정성(broadness and stability)에 영향을 미치는 품질계수이다 [1, 3, 4].

한편, 유전체 박막의 또다른 응용분야인 광통신용 소자의 경우, 유전체 박막이 소자에 채용되어, 광스위칭(optical switching)과 변조(modulation), 결합(coupling) 등 다양한 특성을 제공할 수 있을 뿐 아니라, 박막 형성 기술은 소자의 집적화도 가능하게 하여, 집적화된 소자의 소형화, 경량화에도 많은 발전 가능성을 제시하고 있다 [5, 6]. 유전체 박막을 광소자로 응용하기 위해서는 평탄한 표면구조와 좋은 특성을 갖는 박막의 구현이 중요한 문제로 대두되고 있다. 기존에 광소자 응용을 위해 널리 연구되어 왔던 LiNbO_3 박막($a = 5.149 \text{ \AA}$)의 문제점은 기판으로 사용되는 사파이어(Al_2O_3 , $a = 4.758 \text{ \AA}$)위에서 박막의 에피택셜 성장이 잘 이루어졌지만, 박막과 기판의 격자 불일치(lattice mismatch)가 상대적으로 커서(약 7.5%) 격자 산란에 의한 광 손실이나, 결정립계에 의한 표면굴곡(grainboundary grooving) 등에 의한 손실이 큰 것이었다 [6]. 하지만, 본 연구팀에서 앞서 발표하였듯이, MgTiO_3 박막을 사파이어 기판 위에 LiNbO_3 성장을 위한 완충층(buffer layer)이나 보호막(cladding layer)으로 사용할 경우, 격자불일치 현상을 줄여서 산란에 의한 광손실을 줄일 수 있으며, 매우 평탄한 표면을 갖는 박막을 구현할 수 있어서, 표면과 산란에 의한 손실 역시 감소시킬 수 있다 [5, 6].

본 실험에서 특성을 관찰한 MgTiO_3 (geikielite)는 일머나이트(ilmenite)구조로 $R\bar{3}$ 의 공간군(space group)을 갖는 물질로 벌크 형태로 존재할 때, 약 17-18 정도의 유전율과 20,000(at 8GHz) 정도의 품질계수와 $-45 \text{ ppm/}^\circ\text{C}$ 정도의 비교적 안정한 온도계수를 갖고 있는

것으로 보고되어 있다 [7-11]. 기존의 세라믹스 MgTiO_3 는 마이크로파 공진기 재료나 온도보상용 캐패시터 및 고주파용 유전체, 보호막 염료 등으로 응용되어 왔다 [9, 10]. 그러나, 지금까지는 벌크 형태로 사용되어서 개별소자들의 집적화가 어려웠으며 집적화된 소자의 소형화에도 문제점이 있었다. 또한, 기존에 사용되던 세라믹스 제조 공정에서는 약 1200°C 이상의 높은 소결온도에서 세라믹스의 구조가 형성되었는데 [3, 8, 9], 박막으로 성장시킬 때에는 낮은 온도에서 MgTiO_3 구조의 형성이 가능하여(사파이어 기판의 경우, 약 550°C 부터, Pt 기판의 경우 600°C 부터 구조형성이 가능) 이후 진행될 집적화공정(monolithic process)에 적용될 수 있게 된다 [6]. 본 연구에서는 PLD를 이용하여 MgTiO_3 를 박막으로 증착시켜 이러한 제한을 해결하고자 하며, 사파이어 기판(c-plane $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$)과 Pt/Ti/SiO₂/Si 기판 위에 각각 증착된 MgTiO_3 박막의 광학적, 전기적 성질에 대한 내용을 보고한다.

2. 실험방법

펄스레이저 증착법(Pulsed Laser Deposition-KrF excimer 248 nm-이하 PLD)을 이용하여 MgTiO_3 박막을 사파이어 기판(c-plane Al_2O_3), n형 실리콘(SiO_2/Si) 및 Pt/Ti/SiO₂/Si(platinized silicon) 기판 위에 성장시켰다.

기판은 TCE, 아세톤, 메탄올로 5분씩 초음파 세척을 한 후, 질소로 빠르게 말려 은(Ag paste)으로 기판에 부착시켰다. $10^\circ\text{C}/\text{min}$ 의 속도로 기판 온도를 증가시켰으며, 박막 증착 전에 터보펌프를 이용하여 증착챔버를 약 1.0×10^{-6} Torr 정도로 바닥 진공상태(base pressure)를 유지시킨 후, 산소를 주입시켜 알맞은 증착 분위기를 형성시켰다. 박막 성장에 사용된 MgTiO_3 타겟은 소결된 1 in 직경과 0.25 in 두께를 갖는 세라믹스를 이용하였다. PLD를 이용하여 박막을 증착시킬 때 박막에 형성될 수 있는 입자(particulate)를 최소화하기 위해 세라믹스 타겟의 상대밀도가 약 95%이상의 치밀한 구조를 갖는 것을 사용하였으며, 타겟에 입사된 레이저 에너지밀도(energy fluence)는 약 $2 \text{ J}/\text{cm}^2$ 로 고정시켰다. MgTiO_3 박막 증착시 산소 분압은 200 mTorr였으며, 기판 온도는 $450\sim 750^\circ\text{C}$ 로 변화시키면서 MgTiO_3 박막의 성장을 관찰하였다. 박막을 증착시킬 때 기판온도를 정확히 측정하기 위해 기판을 부착시키는 히터표면에

열전대(k-type thermocouple)을 고정시켜, 기판온도를 측정하였다. 박막 증착 후에는 200 Torr 산소분위기(O₂ ambient)에서 상온까지 10°C/min의 속도로 냉각시켰다.

증착된 박막의 결정구조와 에피택셜 성장을 확인하기 위해 Cu-K α 파장의($\lambda = 1.5409 \text{ \AA}$) XRD(θ -2 θ scan) 방법을 사용하였고, SEM과 AFM을 이용하여 표면미세 구조를 관찰하였다. 또한, 사파이어 기판 위에 성장된 박막의 광학적 특성을 관찰하기 위해 spectrophotometer(Scinco S-2100)을 이용하여 광투과율(optical transmittance)을 조사하였다.

MgTiO₃ 박막의 유전특성은 SiO₂/Si 기판 위에 스퍼터링 방법(DC magnetron sputtering)으로 상온(room temperature)에서 Ti를 300 Å 증착 시킨 후, 기판온도를 350°C로 올려 Pt를 1700 Å 증착시킨 Pt/Ti/SiO₂/Si 기판에 MgTiO₃ 박막을 성장시켜 관찰하였다. 성장된 MgTiO₃ 박막 위에 photo-lithography를 이용하여, 상부전극 Pt를 스퍼터링 방법으로 약 1000 Å 증착한 후 lift-off 방법으로 전극 패턴을 형성 하였다. 이렇게 형성된 각각 다른 크기를 갖는 MIM 구조(metal-insulator-metal structure)의 캐패시터(capacitor)를 이용하여, LCR 측정기(HP 4194A Impedance Analyzer)를 통해 유전특성을 관찰하였다.

3. 실험결과 및 고찰

그림 1은 사파이어 기판(c-plane Sapphire substrates)에 증착된 MgTiO₃ 박막의 XRD 결과이다. PLD 방법에

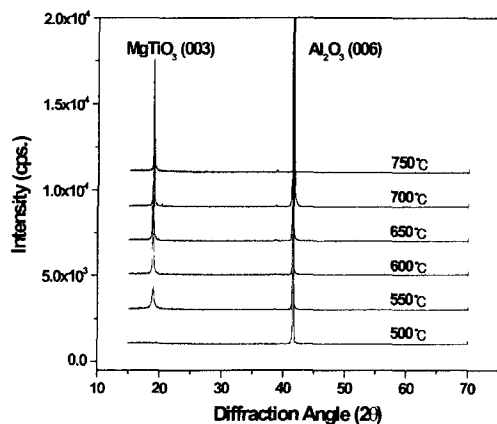


그림 1. X-ray diffraction pattern of MgTiO₃ thin films on c-plane sapphire with various substrate temperature.

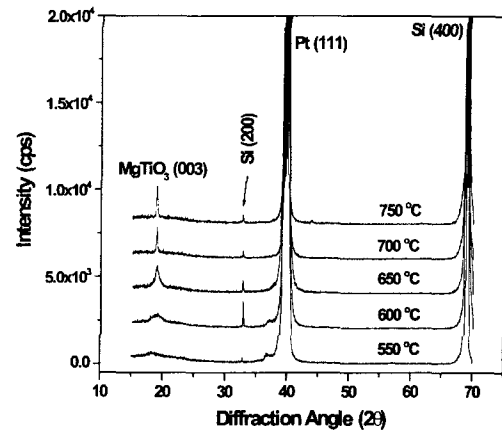


그림 2. X-ray diffraction pattern of MgTiO₃ thin films on Pt/Ti/SiO₂/Si with various substrate temperature.

을 통해 c-plane 사파이어 기판에서 성장된 MgTiO₃ 박막은 550°C 미만의 온도에서는 결정구조의 형성을 관찰할 수 없었으나, 550°C 이상부터 c축 방향으로 배향 되면서 에피택셜 성장되는 것을 관찰할 수 있었다.

MIM 구조를 위한 Pt/Ti/SiO₂/Si 기판 위에 성장된 박막의 결정구조를 그림 2에 나타내었다. 그림 1의 사파이어 기판과는 달리 약 650°C 이상의 온도에서 MgTiO₃ (003) 회절면을 관찰할 수 있었고, 그 이후의 온도에서 강하게 c축(c-axis oriented)으로 성장하는 것을 확인하였다. MgTiO₃ 박막이 사파이어 기판 위에서 일어나는 구조가 형성되는 온도가 Pt 위보다 낮은 것은, 사용되는 기판이 산화물인 것과 MgTiO₃와 사파이어 모두 같은 결정계(rhombohedral)에 속하며, 격자 부정합의 정도가 작기 때문인 것으로 생각된다. 반면 Pt 위에 MgTiO₃의 성장은 정방정 결정구조(cubic structure)인 Pt 위에 능면체 결정구조(rhombohedral)인 MgTiO₃가 성장하기 위해 보다 높은 성장 온도가 필요한 것으로 생각된다. 또한, 사파이어 위에 에피택셜 성장된 MgTiO₃와는 달리, Pt 위에 성장된 MgTiO₃ 박막은 (111)방향으로 성장된 Pt 전극 위에서 c축으로 우선 배향을 하였다.

한편, 에피택셜 성장된 MgTiO₃ 박막의 표면상태(surface morphology)를 관찰하는 것이 중요하다. 왜냐하면, 에피택셜 성장된 박막 위에 다층구조로 성장되는 박막의 성장거동과 성장된 박막의 표면이나 계면 부근에서의 산란(light scattering)에 에피택셜 성장된 박막의 표면상태가 매우 중요한 영향을 미치기 때문이다 [5, 6]. 그

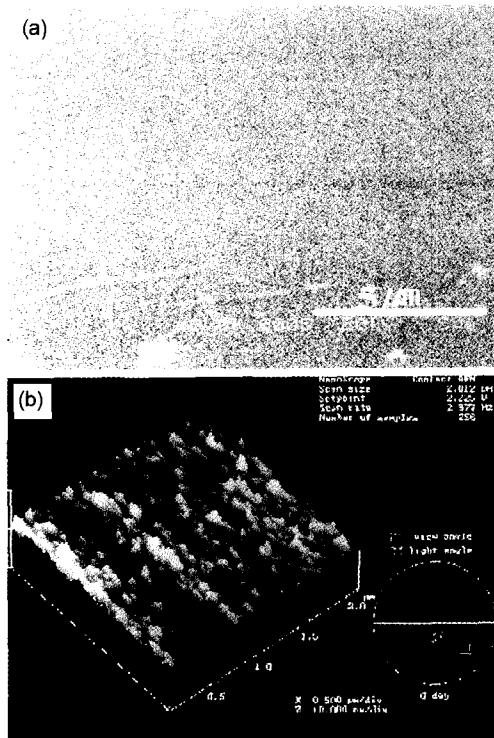


그림 3. Surface morphology of $MgTiO_3$ thin film deposited on the c-plane sapphire at $750^\circ C$ (a) SEM microscopic photograph, (b) AFM image.

그림 3-(a)의 SEM 결과에서 볼 수 있는 것처럼 $750^\circ C$ 에서 사파이어 기판 위에 증착된 $MgTiO_3$ 박막의 표면 상태는 매우 균질한 것을 확인할 수 있다. 또한, 그림 3-(b)의 AFM 측정결과에서 보여지듯이, $750^\circ C$ 에서 c-plane 사파이어 기판 위에 에피텍셜 성장된 $MgTiO_3$ 박막의 rms roughness는 약 0.87 nm 정도로 매우 평탄한 표면구조를 갖고 있는 것을 알 수 있다. 박막이 기판과 작은 격자 불일치 값을 갖고 있으면, 결정립계에 의한 표면굴곡현상(grainboundary grooving)의 감소로 인하여 평탄한 표면 상태(smooth surface morphology)를 갖는 것으로 보고되어 있다 [6, 12]. 평탄한 표면상태를 갖는 것은 표면에 의한 광산란 및 손실을 줄이기 위해 매우 중요하다. $MgTiO_3$ 박막을 마이크로파 유전체 외에 광학적으로 평면 도파회로(PLC), 광전자집적소자(OEIC)등에 필요한 cladding layer나 완충층(buffer layer)등으로 응용하기 위한 $MgTiO_3$ 박막의 솔젤법에 의한 성장과 광학특성은 발표되었으며 [5, 6], PLD로 성장된 $MgTiO_3$ 박막에 대해서도 솔젤법으로 제조된 박

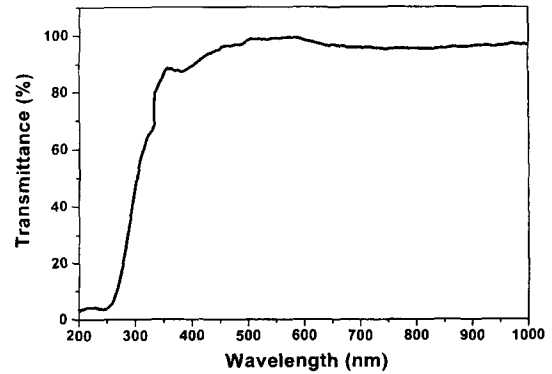


그림 4. Optical transmittance profile of $MgTiO_3$ thin film deposited on the c-plane sapphire at $750^\circ C$.

막과 유사하게 매우 평탄한 표면을 얻을 수 있었다. 그림 4는 $750^\circ C$ 에서 증착된 $MgTiO_3$ 박막에 대해 200~1100 nm의 파장 대역에서 측정한 광투과율(optical transmittance) 결과이다. c-plane 사파이어 기판에서 성장된 $MgTiO_3$ 박막은 약 290 nm에서 급격한 자외선 흡수단(UV absorption edge)를 보이고 있으며, 약 400 nm 파장대역 이상부터 90% 이상의 광투과율을 보이고 있어, PLD로 성장된 $MgTiO_3$ 박막이 결합이 거의 없으며 높은 광투과 특성을 갖고 성장되었음을 알 수 있다 [6, 13].

증착된 박막의 유전특성을 관찰하기 위해 Pt/ $MgTiO_3$ /Pt 구조의 MIM(금속-절연체-금속) 구조의 캐패시터를 형성하였는데, 측정에 사용된 $MgTiO_3$ 박막의 두께는 약 2,500 Å이었다. 그림 5는 Pt 기판 위에 증착된 $MgTiO_3$ 박막의 표면 미세구조인데, 전체적으로 균일한 표면구조를 갖는 박막이 형성된 것을 관찰할 수 있지만, 사파이어 기판의(그림 3) 표면 미세구조 보다는 더 거친 표면상태인 것을 확인할 수 있었다. 이것은 사파이어 기판 위에서 성장되는 $MgTiO_3$ 박막이 에피텍셜 성장되었음에 반해, Pt 전극 위에 성장된 $MgTiO_3$ 박막은 우선배향 되었지만, 다결정 상태로 되어 있기 때문에 거친 표면상태를 가질 것으로 생각된다. 더욱이 $350^\circ C$ 로 sputter된 Pt 박막이 $MgTiO_3$ 박막 성장시 재결정이 될 것으로 생각되기 때문에 $MgTiO_3$ 의 박막 표면은 거칠어 질 것으로 생각된다.

그림 6은 $MgTiO_3$ 박막의 유전율과 유전손실을 나타낸다. $MgTiO_3$ 박막은 저주파 영역(~수 십 KHz)에서 주파수 증가에 따라 유전율의 감소를 보인다. 이는 $MgTiO_3$ 박막 내의 공간전하에 의한 것이며, 이러한 공

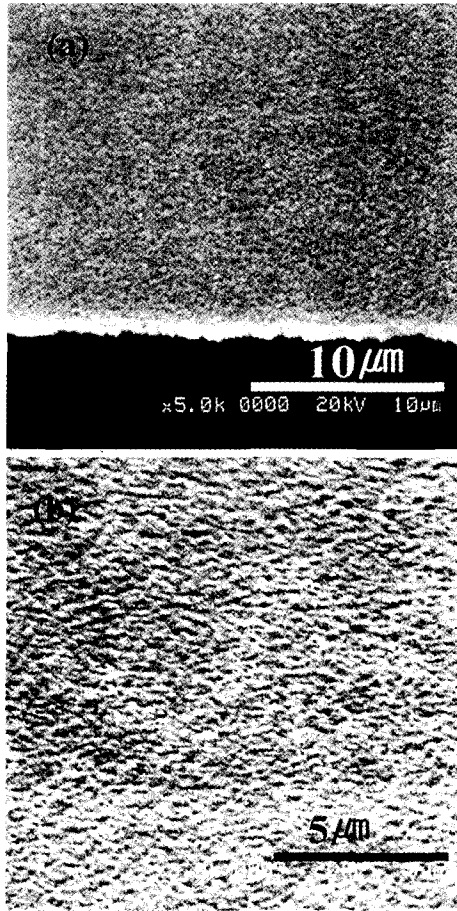


그림 5. SEM micrographs of MgTiO₃ thin film deposited on the Pt/Ti/SiO₂/Si at 750°C, (a) side view, (b) top view.

간 전하에 의한 완화현상이 이루어진 이후의 주파수 영역에서는 주파수 변화에 따라 유전율의 변화가 없는 주파수에 대한 안정성을 보여준다. 얻어진 MgTiO₃ 박막의 유전손실은 벌크 MgTiO₃ 박막의 유전손실값(4.5×10^{-5} at 8 GHz)보다 높으며 이는 벌크 세라믹스를 박막화 하였을 때 일반적으로 나타나는 현상이다. 이에 대한 원인으로서는 박막 내에 존재할 수 있는 구조적인 불규칙성(structural disorder)이나 공공(vacancy), 불순물(impurities)등이 고려된다 [8]. 하지만, 박막의 유전손실값이 상대적으로 증가했다라도, MgTiO₃ 박막은 주파수에 따른 유전율의 변화(dielectric dispersion)가 매우 적은 것을 그림 6과 그림 7로부터 확인할 수 있다. 그리고, 그림 6과 그림 7에서 알 수 있듯이 측정 주파수가 증가하면 유전율의 변화(dielectric dispersion)가

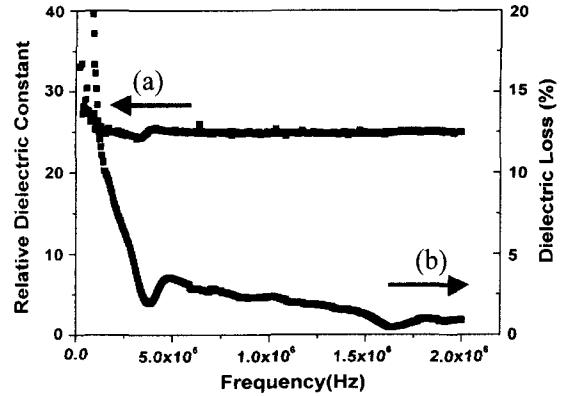


그림 6. Dielectric properties of MgTiO₃ thin film deposited on the Pt/Ti/SiO₂/Si at 750°C, (a) relative dielectric constant and (b) dielectric loss (tanδ) with various frequency.

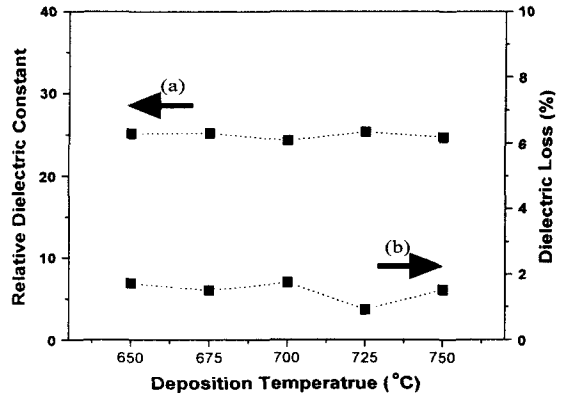


그림 7. Dielectric properties of MgTiO₃ thin film deposited on the Pt/Ti/SiO₂/Si, (a) relative dielectric constant and (b) dielectric loss (tanδ) with various frequency.

매우 적으며, 그림 7로부터 박막의 결정구조가 형성된 후의 온도인 650°C 이상부터는 박막의 증착온도에 관계없이 안정한 유전율값과 유전 손실값을 갖는 것을 알 수 있다. 휘발성이 강한 Pb를 포함한 PZT계열 페로브스카이트(perovskite) 산화물에서 성장 온도가 높으면 PZT 박막 내 Pb의 손실을 가져와 페로브스카이트 성장이 저해되는 것이 알려져 있다 [14, 15]. 더욱이 Pb보다 휘발성이 강한 Mg를 포함한 PbTiO₃-Pb(Mg_{1/3}Nb_{2/3})O₃ 박막의 성장에서도 박막 내 Pb 양보다 Mg의 양이 페로브스카이트 구조 형성에 더욱 중요하다는 것이 보고되어 있다 [16]. Mg는 Pb보다 본 실험에 사용되는 성장 온도(500~750°C)에서 휘발성이 강하다 [16, 17]. 따라서, MgTiO₃ 박막의 성장에 박막 내에 존재하는 Mg의 양

은 성장온도가 증가함에 따라, Mg의 높은 휘발성으로 인해 감소될 것으로 예상되나, 성장온도에 따른 유전손실의 변화는 없는 것으로 보아, MgTiO₃ 박막이 벌크 상태보다 상대적으로 큰 유전손실값을 갖는 것은 공공, 불순물등에 의한 영향보다는 구조적인 불규칙에 따른 것 이란 것을 의미하는 것이다. 이 구조적 불규칙은 박막과 전극계면(electrode interface) 사이의 격자 불일치나 박막의 표면 상태에 기인한 것으로 사료된다 [6, 8].

한편 PLD로 증착하여 박막을 형성할 때 일어날 수 있는 Mg성분의 휘발에 의한 화학양론 불일치에 대한 연구가 보고되고 있는데 [16, 17], 이러한 화학양론불일치(non-stoichiometry)에 의한 영향과 실제 고주파 영역에서 보이는 유전특성 변화에 대한 연구 등은 현재 진행중이다.

4. 결 론

본 연구는 MgTiO₃ 박막의 마이크로파 소자 및 광소자로의 응용 가능성을 사파이어 기판과 Pt 기판에 대해 연구 하였다. 광소자로 응용하기 위해 c-plane 사파이어 기판 위에 증착시킨 MgTiO₃ 박막은 에피택셜 성장을 하였으며, 매우 미세한 표면구조와 평활도(surface roughness)를 갖추고 성장하였다. 또한 사파이어 기판상에 증착된 MgTiO₃ 박막은 가시광선영역에서 투명하였고, 약 290 nm 파장대에서 급격한 자외선 흡수단을 나타내고 있다. 마이크로 소자로의 응용을 관찰하기 위해, Pt/MgTiO₃/Pt 구조의 MIM 캐패시터를 형성하였는데, 이때 박막은 c축 방향으로 배향하였고, 표면 구조 역시 미세하였다. 750°C에서 증착된 MgTiO₃ 박막의 유전율과 유전손실은 약 1.8 MHz에서 24.5와 1.5% 정도의 값을 나타내었다. 벌크 세라믹스의 값보다 큰 이유는, 박막의 구조적인 불규칙성으로 인한 것으로 판단된다. 결국, 사파이어 기판에 증착된 MgTiO₃ 박막은 에피택셜 성장을 하였으며, 평탄한 표면 미세구조와 높은 투과율로 인하여 광소자로의 응용이 가능할 것으로 판단된다. 또한 Pt 기판 위에 증착된 MgTiO₃ 박막은 낮은 공정온도와 좋은 유전특성으로 인하여 고주파용 박막

캐패시터로 사용될 수 있을 것이다.

감사의 글

본 연구는 한국학술진흥재단 신소재 연구사업(1998-07-E00171)에 의해 수행되었으며, 이에 감사 드립니다.

참고문헌

- [1] K. Wakino, *Ferroelectrics*, **91**, 69 (1989).
- [2] O. Auciello and R. Ramesh, *MRS Bulletin* **21**, 31 (1996).
- [3] V. M. Ferreira, F. Azough and R. Freer, J. L. Baptista, J. Mater. Res. Vol. **12**, 3293 (1997).
- [4] S. B. Desu and H. M. O'Bryan, *J. Am. Ceram. Soc.* **68**, 546 (1985).
- [5] C. W. Choi, Y. U. Kwon and J. Lee, *J. Kor. Phys. Soc.* **32**, 1417 (1998).
- [6] J. Lee and C. W. Choi, *Jpn. J. Appl. Phys.* **38**, 3651 (1999).
- [7] *Handbook of Chemistry and Physics*, CRC Press, New York (1995) 76th ed.
- [8] V. M. Ferreira, J. L. Baptista, S. Kamba and J. Petzelt, *J. Mater. Sci.* **28**, 5894 (1993).
- [9] V. M. Ferreira, J. L. Baptista, *J. Am. Ceram. Soc.* **79**, 1697 (1996).
- [10] M. P. Baur-Pena, M. J. Martinez-Lope and Garcia-Claud, *J. Mater. Sci.* **26**, 4341 (1991).
- [11] Y. Jiang, R. Guo and A. S. Bhalla, *J. Phys. Chem. Solids* **59**, 611 (1998).
- [12] D. K. Fork, F. Armani-Leplingard, J. J. Kingston and G. B. Anderson, *Mater. Res. Soc. Symp. Proc.* **392**, 89 (1995).
- [13] J. Zeng, H. Wang, S. Song, Q. Zhang, J. Cheng, S. Shang, M. Wang, Z. Wang and C. Lin, *J. Crystal Growth* **178**, 355 (1997).
- [14] S. S. Chang, M. Nishioka, R. M. Fulrath and J. A. Pask, *Am. Ceram. Soc. Bull.* **60**, 484 (1991).
- [15] J. Lee, A. Safari, and R. L. Pfeffer, *Appl. Phys. Lett.* **61**, 1643 (1992).
- [16] C. Tantigate, J. Lee and A. Safari, *Appl. Phys. Lett.* **66**, 1611 (1995).
- [17] Richard E. Honig, *RCA Rev.* **23**, 567 (1962).