

다결정 및 박막형 $Sr_2Nb_2O_7$ 의 입자배향과 전기적특성

논문
11-4-4

Grain Orientation and Electrical Properties of $Sr_2Nb_2O_7$ Ceramics and Thin Films

손창현*, 전상재*, 남효덕**, 이희영***

(Chang-Heon Son, Sang-Jae Jeon, Hyo-Duk Nam, Hee Young Lee)

Abstract

Polycrystalline $Sr_2Nb_2O_7$ ceramics with very high Curie temperature were sintered using the powder derived by the chemical coprecipitation method (CCP). The phase evolution and grain-orientation of sintered samples were examined by XRD, while sintering behavior, dielectric properties and polarization were studied by SEM and ferroelectric tester. Extremely high degree of grain-orientation was observed along the (0k0) direction, which resulted in anisotropic dielectric properties of the sintered samples, with the dielectric constant values approaching those for single crystal.

Thin film fabrication of $Sr_2Nb_2O_7$ in the pyroniobate family was also attempted on $SiO_2/Si(100)$, $Pt/SiO_2/Si(100)$, $Pt/Ti/SiO_2/Si(100)$ and $Pt/ZrO_2/SiO_2/Si(100)$ substrates, using metalorganic decomposition (MOD) process. Neodecanoate precursor solution was prepared by mixing strontium neodecanoate with niobium neodecanoate synthesized from niobium ethoxide. It was found that $Sr_2Nb_2O_7$ single phase appeared in XRD patterns for the samples annealed above $950^\circ C$. The effect of substrate type on film microstructure and dielectric properties was observed.

Key Words(중요용어) : Chemical coprecipitation method(화학적공침법), Metalorganic decomposition(금속유기물 증착법), Grain-orientation(입자배향), High Curie temperature piezoelectric material (고온용압전체)

1. 서 론

압전세라믹스의 수요가 증가함에 따라 다양한 압전/전액재료가 개발되고 있다. 그 중 연소가스 조정용 액츄에이터를 비롯한 특수용 압전체 응용분야에는 $1000^\circ C$ 이상의 온도에서도 정상적인 동작이 되어야 하기 때문에 이에 부착시키는 압전체 역시 대단히 높은 큐리온도가 요구되고 있다. 다행히 1950년대에 $Cd_2Nb_2O_3$ ¹⁾이 발견된 것이 계기가 되어

$Sr_2Ta_2O_7$ ²⁾, $Sr_2Nb_2O_7$ ³⁾, $La_2Ti_2O_7$ ⁴⁾ 등 많은 $A_2B_2O_7$ 형 화합물 재료에서 압전성이 발견되었고 그 중 $Sr_2Nb_2O_7$ 은 큐리온도가 $1342^\circ C$ 나 된다. $A_2B_2O_7$ 화합물은 개발 초기에서부터 최근까지 단결정으로 성장시켜왔으나 응용분야에 따라 박막형 혹은 벌크형 모두가 요구된다. 그러나 이들 $A_2B_2O_7$ 압전체를 다결정을 제조하거나 소형화가 가능한 박막화를 위한 시도는 극히 최근의 일이다^{5,6)}.

한편 박막형이던 벌크형이던 결정구조가 전기적 제특성에 지대한 영향을 미치고 있으며, 특히 결정립을 같은 방향으로 배향시킬 수 있다면 전기적특성도 향상시킬 수 있다. 이에 본연구에서는 높은 큐리온도를 가진 $Sr_2Nb_2O_7$ 을 개발함에 있어서 입자배향도를 높이는데 주안점을 두고 다음과 같은 두가지 실험을 수행하였다. 즉, 화학적공침법(chemical coprecipitation method)을 이용함으로써 미세하고

* : 영남대학교 대학원 전자공학과

** : 영남대학교 전기전자공학과

(경북 경산시 대동 214-1, Fax: 053-813-8230)

E-mail : hdnam@ynucc.yeungnam.ac.kr)

*** : 영남대학교 금속공학 및 재료공학부

1997년 11월 14일 접수, 1998년 1월 1일 심사완료

균일한 $Sr_2Nb_2O_7$ 분말을 합성할 수 있을 뿐만 아니라 이 분말을 사용하여 핫프레스 등의 특수한 방법을 이용하지 않고도 일축성 결정립을 가진 압전세라믹스를 제조하는 한편 금속유기물중착법(metal-organic decomposition : MOD)을 이용하여 박막형 $Sr_2Nb_2O_7$ 를 제조하고 입자배향의 가능성과 전기적 특특성도 아울러 조사하였다.

2. 실 험

2.1. 화학적공침법에 의한 $Sr_2Nb_2O_7$ 세라믹스의 입자배향

화학적공침법은 불순물의 혼입을 방지할 수 있고 선택할 수 있는 출발원료가 다양하여 제조과정에서의 조건도 여러 가지로 변경시킬 수 있을뿐만 아니라 균일하고 미세한 분말합성에 효과적인 바^{7,8)} 이 방법을 $Sr_2Nb_2O_7$ 분말합성에 처음으로 시도해 보았다. 우선 0.2M의 $NbCl_5$ 용액, 0.2M의 $SrCl_2$ 용액과 약 0.8M의 수산용액을 완전히 투명하도록 만들었다. 그리고 $NbCl_5$ 용액을 수산용액용기에 붓고 마그네틱 stirrer로 잘 분산시키면서 투명함을 확인한 후 다시 $SrCl_2$ 용액을 넣고 충분히 투명하도록 혼합 분산시켰다. 이렇게 얻어진 투명한 혼합용액에 암모니아를 떨어뜨리면서 교반시켜 침전이 일어나면 빛을 붓고 증류수로 세척하는 과정을 여러번 거쳤다. 얻어진 침전물을 100°C로 3시간 건조시킨 후 주어진 온도에서 하소시킴으로써 $Sr_2Nb_2O_7$ 분말을 얻을 수 있었다. 합성된 분말은 98 MPa의 압력으로 성형

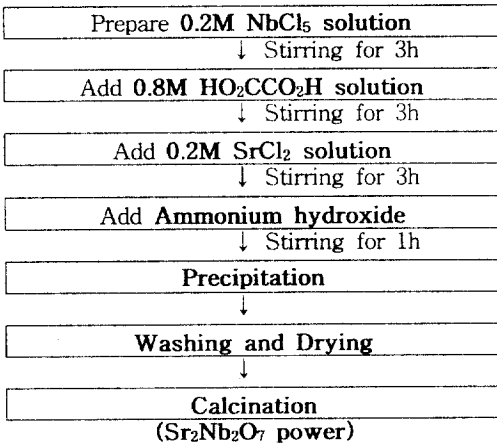


그림 1. 화학적공침법에 의한 $Sr_2Nb_2O_7$ 분말의 합성 과정.

Fig. 1. Schematic diagram of the preparation of $Sr_2Nb_2O_7$ powder by the chemical coprecipitation method.

하고 1200~1500°C의 온도범위에서 2시간 동안 소결하였다. Fig.1은 화학적공침법으로 $Sr_2Nb_2O_7$ 분말을 합성하는 과정을 나타낸 것이다.

2.2. 금속유기물중착법(MOD)에 의한 $Sr_2Nb_2O_7$ 박막의 제조

금속유기물중착법(MOD)으로 $Sr_2Nb_2O_7$ 박막을 제조하고자 우선 Sr-neodecanoate를 xylene에 녹여 Sr 전구체 용액을 만드는 한편 Nb-ethoxide와 neodecanoic acid를 반응시켜 Nb-neodecanoate를 얻은 후 이를 다시 xylene에 녹여 Nb 전구체 용액을 만들었다. Sr 및 Nb 두 전구체 용액을 섞어 약 140°C에서 1시간 동안 교반하여 xylene을 휘발시켜 0.2M의 $Sr_2Nb_2O_7$ 전구체 용액을 제조하였고 이를

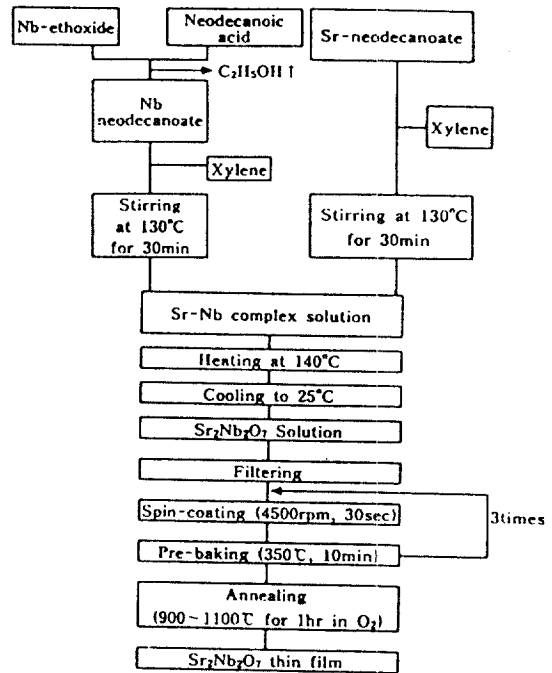


그림 2. $Sr_2Nb_2O_7$ 박막 제조를 위한 전구체 용액 준비 및 박막화 과정

Fig. 2. Flow chart for preparing $Sr_2Nb_2O_7$ precursor solution and thin film

0.2 μ m의 필터를 사용하여 정제하였다. 얻어진 $Sr_2Nb_2O_7$ 전구체 용액을 150°C에서 10분 정도 가열된 $SiO_2/Si(100)$, $Pt/SiO_2/Si(100)$, $Pt/Ti/SiO_2/Si(100)$, $Pt/ZrO_2/SiO_2/Si(100)$ 기판 위 spin-coater로

4500rpm에서 30초 증착시킨 후, 300℃ 정도의 hot plate에서 10분간 pre-baking하였다. 이 과정을 3회 반복한 후 800~1000℃의 산소분위기에서, 1시간 어닐링하여 4000Å 정도 두께의 Sr₂Nb₂O₇ 박막을 제조하였다. Fig. 2는 Sr₂Nb₂O₇ 전구체 용액을 만들고 Sr₂Nb₂O₇ 박막을 제조하는 과정을 나타내고 있다.

2.3. 특성 측정

각 조건에서 얻어진 벌크형 및 박막 시편에 대해 상분석을 행하였고 SEM 사진으로 미세구조를 조사하였다. 또 XRD의 상대적인 피크치로부터 Lontgering¹⁰⁾이 제안한 식(1)을 사용하여 결정체의 입자배향도(Grain Orientation)를 조사하였는데, 여기서 P는 입자배양된 시편의 $\sum I(0k0)$ 이고, P₀는 입자배향되지 않은 분말의 $\sum I(0k0)$ 이다.

$$f = (P - P_0) / (1 - P_0) \dots\dots\dots(1)$$

전기적 특성 측정을 위해 벌크형 시편은 금코팅 후 120℃의 실리콘 오일속에서 3kV/mm의 직류전압 하에서 30분간 분극처리하였다. 박막 시편은 이온증착기에서 상부 전극으로 Pt를 입혔으며, 하부전극형성을 위해 불산용액으로 박막의 일부분을 에칭하였다. 얻어진 시편에 대해 유전율, 누설전류, 유전손실 등을 측정하였다. 또 히스테리시스 측정기 RT66A로 박막에 대해 분극특성을 측정하였는데, 이 때 입력조건은 상부전극의 면적을 0.19mm²로, 인가전압은 ±10V ~ ±15V로 하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1. X선회절분석

화학적공침법(CCP)으로 합성한 Sr₂Nb₂O₇ 분말을 1500℃로 소결한 시편에 대한 XRD 패턴을 선행연구³⁾의 고상반응법(conventional method : CON)에 의한 결과와 함께 Fig.3에 나타내었는데, 전반적으로 (0k0) 피크치가 두드러지며 특히 (080)면의 피크치가 가장 크게 나타났다. 제조방법에 따른 X선회절 패턴을 비교해 보면 화학적공침법에서는 고상반응법에 비해 (0k0) 피크 강도가 현저하게 크게 나타나는 특이한 현상을 볼 수 있다. 이와같이 (0k0) 피크 강도가 다른 방법에 의한 것보다 특히 강하게 나타난 것은 화학적공침법의 경우 불순물의 혼입 없이 합성할 수 있고 분말 역시 미세하고 균

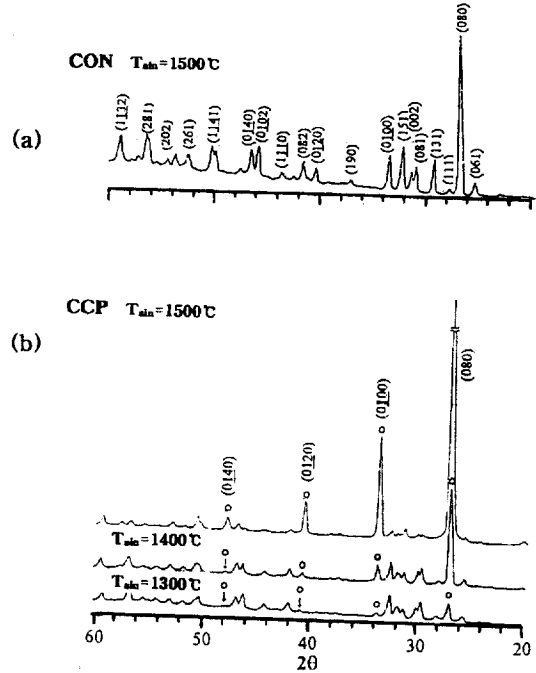


그림 3. 고상반응법 및 화학적공침법에 있어서 1,500℃에서 소결한 Sr₂Nb₂O₇ 세라믹스의 XRD 패턴.

Fig. 3. X-ray diffraction patterns of Sr₂Nb₂O₇ ceramics sintered at 1,500℃ by conventional method and chemical coprecipitation method.

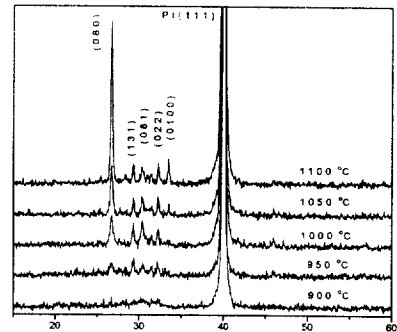


그림 4. Pt/ZrO₂/SiO₂/Si(100) 기판을 사용하고 어닐링 온도를 달리한 Sr₂Nb₂O₇ 박막의 XRD 패턴.

Fig. 4. X-ray diffraction pattern of Sr₂Nb₂O₇ thin films on the Pt/ZrO₂/SiO₂/Si(100) wafer annealed at various temperature.

일하여 소결이 한층 쉬워졌을 뿐만 아니라 입성장 용이축으로 결정립이 잘 배향되었기 때문으로 생각된다.

Fig.4는 Pt/ZrO₂/SiO₂/Si(100) 기판을 사용한 경우 Sr₂Nb₂O₇ 박막의 XRD 패턴의 예이다. 그림에서 900°C에서 결정이 성장하기 시작하여 열처리 온도가 높을수록 결정의 성장이 뚜렷하여 1100°C에서는 Sr₂Nb₂O₇ 단일상을 볼 수 있었다. 특이한 것은 (080) 및 (0100)과 같이 (0k0)면의 회절강도가 대단히 큰 것을 볼 수 있다. 이처럼 (0k0)방향으로 배향되는 것은 Sr₂Nb₂O₇ 단위포가 a=3.955Å, b=26.78Å, c=5.701Å로서 (0k0)방향으로 방향성을 가지고 있기 때문이라 생각된다. 이러한 결과는 졸겔법으로 Sr₂Nb₂O₇ 박막을 연구중인 Desu 등¹⁰⁾의 연구결과와 대체로 일치할 뿐만 아니라 Fig.3에서 볼 수 있는 바 화학적분석으로 제조한 다결정 Sr₂Nb₂O₇ 세라믹에서 나타난 일방향 입자배향과 일치하였다.

3.2. Sr₂Nb₂O₇ 박막의 미세구조

Fig.5의 (a)와 (b)는 각각 SiO₂/Si(100)와 Pt/SiO₂/Si(100) 기판에 코팅한 Sr₂Nb₂O₇ 박막을 900°C에서 1시간동안 열처리한 시편의 단면 SEM 사진이다.

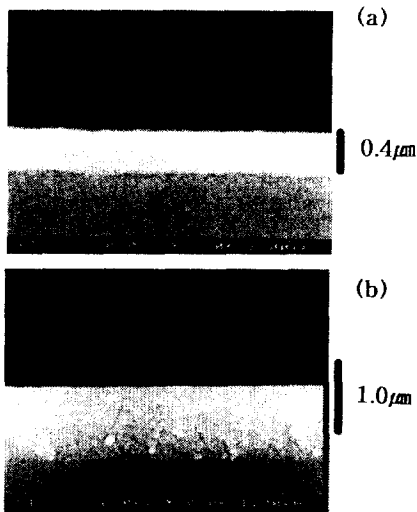


그림 5. SiO₂/Si(100) 및 Pt/SiO₂/Si(100) 기판을 사용하고 900°C에서 어닐링한 Sr₂Nb₂O₇ 박막 단면의 SEM 사진.

Fig. 5. SEM micrographs of Sr₂Nb₂O₇ thin films annealed at 900°C on the (a) SiO₂/Si(100) wafer and (b) Pt/SiO₂/Si(100) wafer.

두 종류의 기판 모두에서 박막이 균일하게 코팅되었음을 볼 수 있다. 다만 SiO₂/Si(100) 기판의 경우 그 두께가 약 1μm 정도로 상당히 두꺼웠으나 Pt/SiO₂/Si(100) 기판의 경우 박막의 두께가 약 0.4μm 정도였다. 이와 같이 기판의 종류에 따라 박막 두께가 다른 것은 SiO₂/Si wafer의 SiO₂와 Pt/SiO₂/Si wafer의 Pt 위에서 용액의 표면장력으로서 다르기 때문이라 생각된다.

Fig.6의 a)과 b)는 각각 SiO₂/Si(100)와 Pt/SiO₂/Si(100) 기판에 코팅한 Sr₂Nb₂O₇ 박막을 800~1000°C에서 열처리한 시편의 표면 SEM 사진이다. 그림에서 기판의 종류에 관계없이 800°C에서는 결정의 성장이 거의 이루어지지 않았다. 900°C에서 본격적인 성장이 이루어져 결정이 치밀하고 미세하게 성장되었으나 1000°C에서는 900°C의 경우보다 결정의 배향도는 높지만, 높은 온도로 인하여 결정이 커지는 결정성장이 일어남을 볼 수 있다.

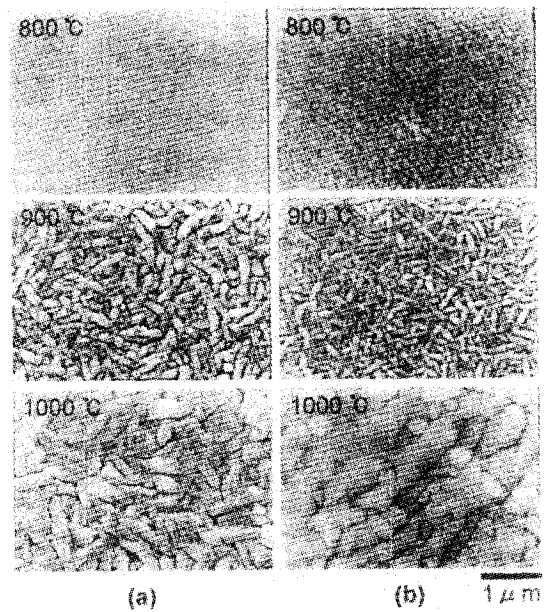


그림 6. SiO₂/Si(100) 및 Pt/SiO₂/Si(100) 기판을 사용하고 800~900°C에서 어닐링한 Sr₂Nb₂O₇ 박막 표면의 SEM 사진.

Fig. 6. SEM micrographs of Sr₂Nb₂O₇ thin films annealed at 800~1000°C on the (a) SiO₂/Si(100) wafer and (b) Pt/SiO₂/Si(100) wafer.

3.3. Sr₂Nb₂O₇ 소결체의 입자배향

Fig.7은 화학적분석법(CCP)과 고상반응법(CON)

에 의해 제조된 $Sr_2Nb_2O_7$ 시편에 대해 Lotegering¹⁰⁾이 제안한 (1)식에 의하여 구한 소결온도에 따른 입자배향도 f 를 나타낸 것이다. 그림에서 화학적공침법이 고상반응법에 비해 소결온도가 높아짐에 따른 입자배향도 증가가 현저하였고 그 입자배향도가 최고 $f = 0.94$ 에 이른다는 사실은 주목할 만하다. 이와 같이 $Sr_2Nb_2O_7$ 세라믹스를 화학적공침법으로

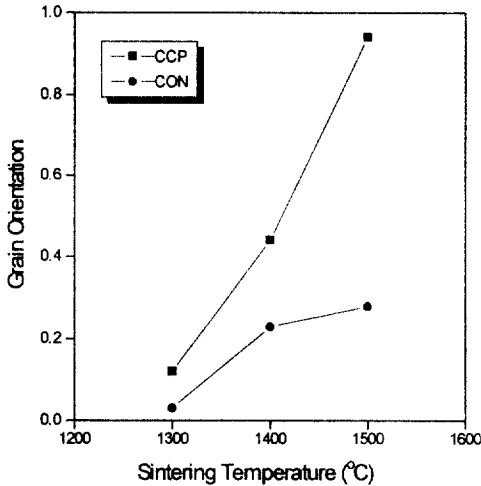


그림 7. 고상반응법 및 화학적공침법에 의해 제조된 $Sr_2Nb_2O_7$ 세라믹스의 입자배향도의 소결 온도 의존성.

Fig. 7. Grain-orientation dependence on sintering temperature of $Sr_2Nb_2O_7$ ceramics prepared by conventional method [CON] and chemical coprecipitation method [CCP].

제조할 경우 입자배향도가 아주 높기 때문에 절단 방법에 따라 전기적 특성의 이방성이 뚜렷하리라 예상할 수 있는데, 이에 관해서는 3.4절에서 다시 논의하고자 한다.

한편 본연구에서 화학적공침법을 이용함으로써 hot-press 법 등의 특수한 방법을 이용하지 않고도 일축성 결정립을 가진 압전세라믹스의 제조 가능성을 암시해 줄 뿐만 아니라 입자배향도를 0.94로 높일 수 있다는 사실은 Fukuhara 등¹²⁾이 고상반응법으로 제조된 $Sr_2Nb_2O_7$ 세라믹스를 hot-press법을 이용하여 소결밀도를 높였고 입자배향도도 향상시켰으나 입자배향도는 $f = 0.5$ 를 넘지 못한 결과에 비교해 볼 때도 특이할 만 하다.

3.4. 전기적 특성

3.4.1. $Sr_2Nb_2O_7$ 세라믹스의 전기적 이방성

이미 설명한 바와 같이 화학적공침법으로 제조된 세라믹스는 입자배향이 잘 된 일축성 압전세라믹스이기 때문에 절단방법에 따른 전기적 특성이 달라질 것으로 예상된다. 따라서 본 연구에서는 화학적공침법으로 입자배향시킨 $Sr_2Nb_2O_7$ 세라믹스를 Fig.8

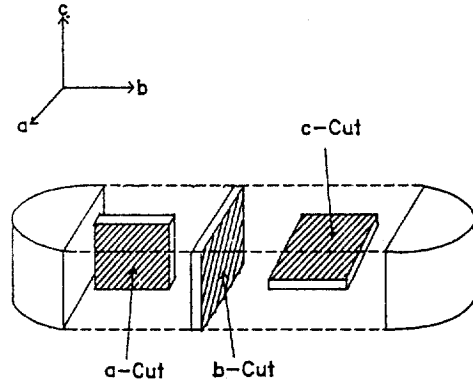


그림 8. 화학적공침법으로 입자배향시킨 $Sr_2Nb_2O_7$ 세라믹스의 절단방법.

Fig. 8. Cutting of grain oriented $Sr_2Nb_2O_7$ ceramics fabricated by chemical coprecipitation method.

과 같이 각 축에 따라 절단하였는데, 여기서 a-Cut, b-Cut 및 c-Cut는 각각 a축, b축 및 c축에 수직이 되게 절단한 시편을 나타낸다. 유전율의 경우 Nanamatsu³¹⁾가 제조한 단결정 $Sr_2Nb_2O_7$ 에서는 $\epsilon_a = 75$ 를 얻은 바 있고, 본연구에서의 고상반응법에서는 유전율이 59인데 비해 화학적공침법에서는 소결체의 절단방법에 따라 유전율이 현저히 다르게 나타났다. 즉, 유전율이 a-Cut인 경우 86, b-Cut인 경우 44, c-Cut인 경우 35로 그 이방성이 현저히 나타났다.

3.4.2. $Sr_2Nb_2O_7$ 박막의 전기적 특성

Fig. 9는 Pt/SiO₂/Si 기판 위에 입힌 $Sr_2Nb_2O_7$ 박막을 800~1000°C에서 열처리한 시편의 인가전압에 따른 누설전류밀도를 측정된 그림이다. 그림에서 전체적으로 볼 때 절연과피가 일어나지 않는 범위에서 3V 이상에서는 누설전류밀도가 거의 포화치에 달하며, 어닐링 온도가 높아질수록 누설전류밀도가 작아져 1000°C에서 어닐링한 시편의 경우 10⁻⁴A/cm²

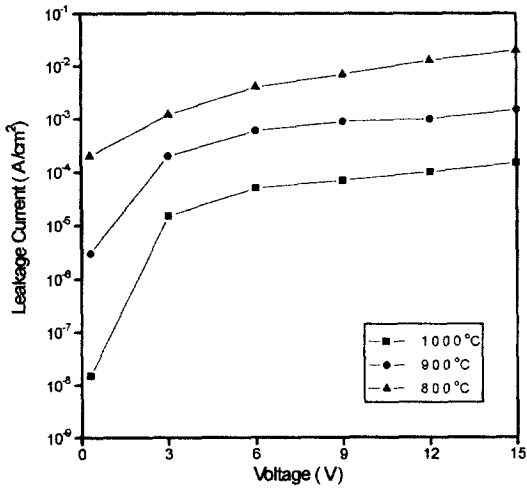


그림 9. Pt/SiO₂/Si(100) 기판을 사용하고 800°C ~ 1000°C에서 어닐링한 Sr₂Nb₂O₇ 박막의 누설전류의 전압 의존성.

Fig. 9. Voltage dependence on Leakage Current of Sr₂Nb₂O₇ thin films annealed at 800~1000°C on the Pt/SiO₂/Si(100) wafer.

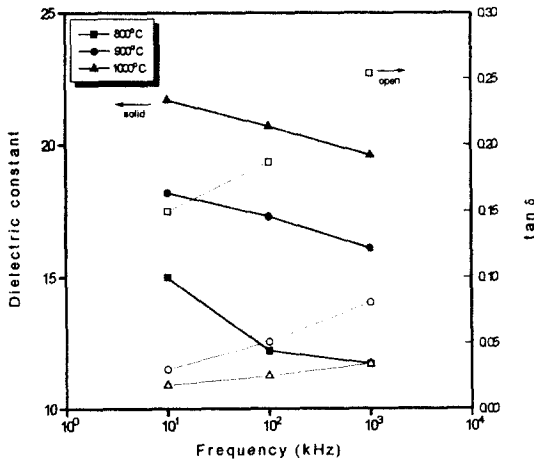


그림 10. Pt/SiO₂/Si(100) 기판을 사용하고 800°C ~ 1000°C에서 어닐링한 Sr₂Nb₂O₇ 박막의 유전율과 유전손실의 주파수 의존성.

Fig. 10. Frequency dependence on dielectric constant and dielectric loss of Sr₂Nb₂O₇ thin films annealed at 800°C~1000°C on the Pt/SiO₂/Si(100) wafer.

이하로 줄어들었다.

Pt/SiO₂/Si 기판 위에 입힌 Sr₂Nb₂O₇ 박막을 800~1000°C에서 열처리한 시편에 대하여 주파수와 어닐링온도에 따른 유전상수값과 유전손실을 측정하여 Fig.10에 나타내었다. 그림에서 유전율은 어닐링온도가 높아짐에 따라서 커지고 주파수가 증가함에 따라서 감소하였는데, 1000°C에서 열처리한 경우의 유전상수값은 100kHz의 상온에서 약 20.7로 나타났다. 한편 유전손실의 주파수 특성에서는 어닐링온도가 높아짐에 따라 유전손실은 감소하고 주파수가 증가함에 따라 유전손실은 증가함도 알 수 있었다. 또 Sr₂Nb₂O₇ 박막에 대한 분극특성도 조사하였는데, Pt/ZrO₂/SiO₂/Si(100) 기판을 사용하여 1000°C에서 어닐링한 경우 잔류분극(2P_r)값은 약 3.5 μC/cm² 정도, 항전계(E_c)값은 약 200 kV/cm로 다른 연구자들이 측정한 값과 대체로 일치하였다.¹¹⁾

4. 결 론

1300°C 이상의 높은 큐리온도를 가진 Sr₂Nb₂O₇ 다결정을 화학적공침법(CCP법)으로 제조하여 분말 특성, 소결특성 및 전기적특성을 조사하는 한편, 금속유기물증착법(MOD)으로 Sr₂Nb₂O₇ 박막을 제조하여 어닐링온도와 기판종류에 따른 박막특성, 전기적 특성 등을 조사하였는데, 그 결과는 다음과 같이 요약된다.

1. 화학적공침법으로 제조된 Sr₂Nb₂O₇ 세라믹스의 소결밀도는 이론밀도의 97%에 이를뿐만 아니라 그 입자배향도는 고상반응법에 비해 현저히 높아 그 값이 0.94에 이르렀다. 따라서 입자배향된 세라믹스는 절단방향에 따라 전기적 특성 역시 현저히 다른 이방성을 나타내어 a-cut인 경우 유전상수가 86으로 단결정에 비해 손색이 없었다.

2. 금속유기물증착법을 이용하여 단일상의 Sr₂Nb₂O₇ 박막을 제조할 수 있었는데, SiO₂/Si(100), Pt/SiO₂/Si(100), Pt/ZrO₂/SiO₂/Si 등 기판의 종류에 따라 결정방향이 서로 다르게 나타났고 단일상이 얻어지는 어닐링온도도 서로 달랐다. 또 SEM 사진에서는 침상결정을 볼 수 있었으나 다결정의 경우와 같은 입자배향은 뚜렷하지 않았다.

3. 박막의 경우 어닐링 온도가 높아짐에 따라 유전율이 증가하고 유전손실은 감소하여 1000°C에서 어닐링하고 100kHz에서 측정된 유전상수값과 유전손실은 각각 20.7과 0.025였으며, 누설전류밀도는

$10^{-8} \sim 10^{-4} \text{A/cm}^2$ 정도였다. 분극특성으로는 잔류분극 (2Pr)은 $3.5 \mu\text{C/cm}^2$ 로, 항전계 (E_c)는 200kV/cm 으로 나타났다.

감사의 글

본 연구는 1996년도 교육부 신소재 학술조성 연구비에 의해 수행된 것으로 당국에 감사를 드립니다.

참고 문헌

1. W. R. Cook Jr. and H. Jaffe, Phys. Rev., Vol. 88, pp. 1426, 1952.
2. N. Ishizawa, F. Marumo and S. Iwai, "Compounds with Perovskite-Type Slabs. IV. Ferroelectric Phase", Acta Cryst., Vol. B37, pp. 26~31, 1981.
3. S. Nanamatsu, M. Kimura, K. Doi and M. Takahashi, "Ferroelectric properties of $\text{Sr}_2\text{Nb}_2\text{O}_7$ Single Crystal," J. Phys. Soc. Japan, Vol. 30, pp. 300~301, 1971.
4. S. Nanamatsu, M. Kimura, K. Doi, S. Matsushita and Yamada, "A New Ferroelectric; $\text{La}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ ", Ferroelectrics, Vol. 8, pp. 511~513, 1974.
5. A. V. Prasadarao, U. Selvaraj, S. Komarneni and A. S. Bhalla, "Sol-Gel Synthesis of Strontium Pyroniobate", J. Am. Ceram. Soc., Vol. 75, pp. 2697~2701, 1992.
6. A. V. Prasadarao, U. Selvaraj, S. Komarneni and S. Comarneni, "Fabrication of Thin Films by Sol-Gel Processing", J. Mater. Res., Vol. 10, No.3, pp. 704~707, 1995.
7. K. S. Madiyashi, R. T. Dolloff, and J. S. Smith II, "Preparation of High-Purity Submicron Barium Titanate Powders", J. Am. Ceram. Soc., Vol. 52, pp. 523~526, 1969.
8. H. S. Potdar, P. Singh, S. B. Deshpande, P. D. Godbole and S. K. Data, "Low-temperature Synthesis of Ultrafine Barium Titanate (BaTiO_3) using Organometallic Barium and Titanate Precursors", Mat. Let., Vol.10, No.3, pp. 112~117, 1990.
9. I. H. Park, T. G. Kim and H. D. Nam, "Fabrication and Electrical Properties of High Tc $\text{A}_2\text{B}_2\text{O}_7$ Piezoelectric Ceramics Using the Powders Prepared by the Molten Salt Synthesis Method", J. of Korea Sensor Society, Vol.5, No.3, pp. 93, 1996.
10. E. F. Lotgering, "Topotactical Reaction with Ferrimagnetic Oxides Having Hexagonal Crystal Structures-1", Inorg. Nual. Chem., Vol. 9, pp. 113~123, 1959.
11. S.B. Desu et al., unpublished results.
12. M. Fukuhara, C. Y. Huang, A. S. Bhalla, R. E. Newnham, "Grain Orientation and Electrical Properties of $\text{Sr}_2\text{Nb}_2\text{O}_7$ Ceramics", J. Mat. Soc., vol. 26, pp. 61~66, 1991.