誘電体セラミックスの損失機構に関する考察

Study on Dielectric Loss of Microwave Dielectric Ceramic

島田 武司* Takeshi Shimada

マイクロ波における材料のQf積の値が350 THz以上を示すBa (Mg_{1/3}Ta_{2/3})O₃セラミックスが2000年に日立金属(株)で開発された。この材料におけるマイクロ波吸収(誘電損失)のメカニズムを理解するため,誘電損失の温度依存性を測定し、2フォノンプロセスモデルを用いてマイクロ波吸収の支配因子を特定した。サンプルは通常の固相反応法により製作し,酸素雰囲気中1,803~1,953 Kで焼結した。誘電特性はHakki & Colemann法とキャビティー法を用い20~300 Kの範囲で温度測定した。その結果200~300 Kでは2フォノンプロセスモデルに従うマイクロ波吸収を,また200 K以下では40 K近傍に極大値を持つピークを観測した。この誘電損失のピークは、考察の結果,マイクロ波における局所的な材料の分極によって生じると推察された。

Ba $(Mg_{1/3}Ta_{2/3})$ O₃ ceramic with extremely high Qf value (over 350 THz) at microwave frequency was developed. It is of great interest to understand the mechanism of the microwave absorption in such a practical material. In the present study, temperature dependence of the dielectric loss of Ba $(Mg_{1/3}Ta_{2/3})$ O₃ was measured and the mechanism of microwave absorption was discussed using a two-phonon difference process model. Ba $(Mg_{1/3}Ta_{2/3})$ O₃ samples were prepared by conventional solid state reaction. They were then sintered under an oxygen atmosphere in the temperature range of 1,803 to 1,953 K. Dielectric properties were measured by the Hakki & Colemann and the resonant cavity methods in the temperature range of 20 to 300 K at the microwave frequency. Dielectric loss of the Ba $(Mg_{1/3}Ta_{2/3})$ O₃ at the microwave frequency increases with temperature between 200 and 300 K in general agreement with the theory of intrinsic dielectric loss derived from the two-phonon difference process model. However, below 200 K, the dielectric loss showed a distinctive behavior with a loss peak at 40 K. It is inferred that the loss peak of the Ba $(Mg_{1/3}Ta_{2/3})$ O₃ at the microwave frequency is caused by the microwave-induced local polarization.

●Key Word:マイクロ波誘電体,誘電損失,フォノン

R&D Stage: Research

1. 緒 言

誘電体材料として利用される物質は結晶構造によって大 きくふたつに分類される。ひとつは高周波用途の材料に用 いられる物質で、その結晶構造が中心対称である常誘電体 と、圧電体や焦電体などの材料に用いられる物質で構造が 中心対称でないもの、すなわち強誘電体である。これらの 誘電体の主組織はイオン結晶であるため、物質を構成する イオンの振動が材料の誘電特性を決定する。図1に示すよ うに格子振動の程度すなわち比誘電率は周波数に対して分 散を持つことが知られているが¹⁾、常誘電体では物質全体 で電気双極子モーメントがキャンセルされるため、イオン の格子振動だけが誘電特性に寄与する。一方、強誘電体は 電気双極子モーメントを有するため,比較的低周波数領域 でデバイ型分散²⁾の寄与が誘電率発現の重要な要因になっ ている。マイクロ波・ミリ波はこのデバイ型分散(配向分 極)と格子振動(イオン分極)の中間あるいはデバイ型分 散の近傍周波数領域にあり,この領域においては強誘電体 の誘電損失が大きく,強誘電体は高周波用材料に適さない というのが一般的な考え方である。したがって高周波材料 に利用される誘電体は常誘電体で,その格子振動の解析を 行えば材料特性の理論値を評価できるものと考えられる。

実用的な高周波用誘電体材料は超伝導フィルターなど一 部の部材を除けばセラミックスであるが、その損失を考え る場合、多結晶独特の効果を考慮しなければならない。す なわち式(1)に示すように高周波誘電体セラミックスの



図1 配向分極から電子分極が分散を示す周波数の誘電率 Fig. 1 Permittivity of material in frequency range between orientation and electronic polarizations

誘電損失 $(tan \delta)$ には物質が本来有する損失 (内的要因) とセラミックスであることに起因する損失 (外的要因) とがあり、これらを分割して解析する必要がある。

$$\tan \delta = \tan \delta_{in} + \tan \delta_{ex} \tag{1}$$

ここで, $tan \delta_{in}$ は損失の内的要因からなる項, $tan \delta_{ex}$ は損失の外的要因からなる項であり,後者の例としては格子欠陥,不純物,結晶粒径,電気伝導度,応力などが挙 げられる。一般的には誘電損失の内的要因に比べ外的要因の方が10倍以上大きいので,誘電体セラミックスの損失の 内的要因を評価することが難しく,その研究は単結晶を用いて2,3例が報告されているにすぎない³⁾⁴⁾。

上述のような背景の中,日立金属は準ミリ波帯の基地局 フィルターに用いられているBa (Mg_{1/3}Ta_{2/3})O₃系の誘電 体セラミックスにおいて誘電損失の外的要因を小さく抑 え,内的要因を評価するに十分な低損失のセラミックスを 開発することに成功した⁵⁾。本報告は,高周波誘電体材料 の誘電損失の内的要因が格子振動すなわちフォノンの挙動 にあると考え,上述の低損失セラミックスを用いてそのメ カニズムの正当性について実験的に検討,考察した。

2. 実験方法

試料は一般的な固相反応法によって作製した。使用した 粉末素原料は純度99.9 %以上のMgO, Ta₂O₅, 99.7 %以 上のBaCO₃で, これらは秤量前に乾燥器で完全乾燥し, Ba (Mg_{1/3}Ta_{2/3}) O₃の化学量論組成からのずれを少なくし た。秤量した原料の所定量を,ボールミルを用いて純水中 で10 h混合した。混合粉は乾燥した後,大気中1,573 Kで 4 h仮焼し, Ba (Mg_{1/3}Ta_{2/3}) O₃ 仮焼粉を得た。仮焼粉 は再度ボールミルで約1 μ mの平均粒径となるように粉砕 混合され、PVAをバインダーとして添加し顆粒化したあ と、一軸成形機を用いて直径12 mmの円柱に成形した。 このとき成形圧力は120 MPaとした。得られた成形体 は酸素雰囲気中1,803~1,953 Kで5~120 h焼結し、Ba (Mg_{1/3}Ta_{2/3}) O₃の焼結体を得た。

焼結体は共振モードが縮退しない直径10 mm,高さ5 mm の寸法に加工し,Hakki & Colemann法にてTE₀₁₁モード で約9 GHzにおける室温の誘電率とQf値(誘電損失の逆 数Qと周波数fの積)を測定した。ここにQf値は,狭い周 波数範囲であれば一定値とみなせるので,材料の誘電損失 を比較する場合に多用される指標である。本報告では誘電 損失($tan \delta$)およびQf値で材料の損失特性を示す。さ らに10~300 Kの範囲で6.5 GHzにおける誘電率および誘 電損失の温度依存性を,TE_{01 δ}モード共振を用いた誘電体 共振器法により測定・算出した。また結晶構造を粉末X線 回折装置(JEOL8200)で同定し,格子振動の振動パラ メータを遠赤外分光器(Bruker IFS66V/S)とラマン分 光器(Ramanar U-1000 II)で測定,算出した。

3. 実験結果

3.1 低誘電損失材の焼結条件と特性

セラミックスの誘電損失には結晶粒内の格子配列秩序が 大きく影響することが知られている⁶⁾。1,893 Kで5 hと 50 hとで焼結したBa ($Mg_{1/3}Ta_{2/3}$) O₃における結晶粒 内のTEM像(**図2**)によれば、5 hで焼結した材料の結 晶粒内にはツインバウンダリー(双晶界面)や転位層など 格子配列秩序の崩れた部分が、50 h焼結の材料には高い格 子配列の長距離秩序性が観察されている。**図3**には誘電 特性の焼結時間依存性を示すが、焼結時間にともなって比 誘電率,Qf値ともに大となり,50 h以上の長時間焼結で ほぽ一定となっている。これは焼結時間が長くなるにつれ 結晶粒内の格子配列の長距離秩序性が進んだ結果であると 考えられる。また,図4に誘電特性の焼結温度依存性を示 す。これらの試料の焼結時間はいずれも50 hである。図に よれば焼結温度が1,800 K以上において誘電率はほぽ一定 であるが,Qf値は特徴的な変化を示す。すなわち1,893 K



Sintered for 5 h at 1,893 K



Sintered for 50 h at 1,893 K

- 図2 焼結時間による結晶粒内の格子秩序の違い(双晶界面を白矢 印で示す)
- Fig. 2 Comparison of TEM images of inner grains sintered for 5 and 50 h at 1,893 K (arrows show the twin boundary in a crystal grain)



 図 3 Ba (Mg_{1/3}Ta_{2/3}) O₃セラミックスにおける誘電特性の焼結時間 依存性





図 4 Ba (Mg_{1/3}Ta_{2/3}) O₃ セラミックスにおける誘電特性の焼結温度 依存性

Fig. 4 Sintering temperature dependence of dielectric properties of Ba(Mg_{1/3}Ta_{2/3})O_3

までQf値はほぼ単調増,それ以上では単調減,すなわち この温度で最大値となる。Qf値の低下は誘電損失の増加 を意味しており,Ba $(Mg_{1/3}Ta_{2/3})O_3 \circ B$ サイト構成 イオンである Mg^{2+} と Ta^{5+} の秩序 – 無秩序相転移が1,893 K付近で起こり始めることを示唆している。

以上の結果より損失の内的要因を最小限に抑える焼結条件として,温度1,893 K,時間50 hとし,この条件で以降の検討用の基準材料を作製することとした。

3.2 格子振動モードの測定

得られた材料の格子振動モードを決定するために Ba (Mg_{1/3}Ta_{2/3})O₃の遠赤外反射率を測定した。**図5** に得られた反射率スペクトルを示す。赤外線はイオンの非 対称格子振動と相互作用し、その応答から複素誘電率ス ペクトルの実数部と虚数部に分解できる⁷⁾。式(2)にほ ぼ垂直に試料へ入射された遠赤外線の反射率(R)と複素 誘電率の関係を示す。また式(3)にFPSQモデル(Four-Parameter Semi-Quantum model)⁸⁾で記述された複素誘 電率の周波数分散を示す。

$$R = \left| \frac{\sqrt{\varepsilon(\omega)} - 1}{\sqrt{\varepsilon(\omega)} + 1} \right| \tag{2}$$

$$\varepsilon(\omega) = \varepsilon_{\infty} \prod_{j=1}^{n} \frac{\omega_{jLO}^{2} - \omega^{2} + i\omega\gamma_{jLO}}{\omega_{jTO}^{2} - \omega^{2} + i\omega\gamma_{jTO}}$$
(3)

ここで ε は複素誘電率, ε_{∞} は120 THz以上の高周波 比誘電率, ω は角周波数, γ はダンピング定数, 添え 字LOは縦波光学振動モード, 添え字 TOは横波光学振動 モード, *i* は虚数根である。また, Ba (Mg_{1/3}Ta_{2/3})O₃ 結晶における対称配置を示す結晶点群は D_{3d}^3 であり, 因子 群解析を行うことによって次式の既約表現(格子振動を基 準振動に分解し, 重複なく表したもの)を得ることができる。



図 5 Ba (Mg_{1/3}Ta_{2/3}) O₃ セラミックスにおける遠赤外反射率 Fig. 5 Far-infrared reflectivity of Ba(Mg_{1/3}Ta_{2/3})O₃

$$\Gamma = 2A_{1u} + 8A_{2u} + 4A_{1g} + A_{2g} + 10E_u + 5E_g \tag{4}$$

ここで、Γは波数空間すなわちブリュアンゾーンの中 心、Aは一次元の既約表現、Eは二次元の既約表現であ り、uは非対称振動、gは対称振動を表す。式(4)から 赤外活性モードは16モード(7A_{2u}+9E_u)存在することが わかるため、式(3)におけるnすなわち検出される格子振 動の数は16ということになる。

式(2)(3)を用いて、反射スペクトルの測定値にフィッ ティング(合わせ込み)した計算結果を、図5に示すが、 よく一致していることがわかる。このフィッティングにあ たっては j 番目の縦波、横波振動周波数とダンピング定数 をパラメータとして計算を進めた。表1にフィッティング により決定した振動パラメータを示す。マイクロ波・ミリ 波領域の誘電特性には高い周波数の格子振動はほとんど影 響しないことがわかっているので、本研究においてはj=1 からj=5までを考慮することにした。

3.3 低温領域における誘電損失

図6に20Kから室温までの温度範囲におけるBa (Mg_{1/3}Ta_{2/3})O₃の誘電損失を示す。図に示されているよ 表1 Ba (Mg_{1/3}Ta_{2/3}) O₃の遠赤外反射率から計算された振動パラ メータ

lable	1	Vibration parameter	calculated	from	far-infrared	reflectivity
of	Ba	(Mg _{1/3} Ta _{2/3})O ₃				

				(THz)
Mode(;)	ω_{jTO}	ω_{jLO}	γjτο	γjLO
1	1.70	1.70	0.28	0.29
2	4.19	4.41	0.09	0.08
3	4.52	4.59	0.17	0.16
4	6.54	6.54	0.55	0.88
5	7.07	8.11	1.60	0.42
6	8.23	9.24	0.26	0.33
7	9.38	11.13	0.37	3.21
8	10.70	10.70	3.68	2.01
9	10.91	12.34	1.95	0.09
10	12.35	12.82	0.09	0.27
11	12.92	13.55	0.38	0.21
12	13.88	13.88	0.40	0.17
13	15.71	15.71	0.68	2.33
14	16.57	16.93	1.71	0.60
15	18.28	19.15	2.97	2.79
16	18.86	21.68	1.02	1.27

うに誘電損失は200 Kから室温までは単調に増加するが, 20~200 Kの範囲で高い誘電損失を示し,約40 Kでピー ク値を取ることがわかった。すなわちこの変化は温度に対 する単調増加項とピーク項の2種類の変化から成っており, 損失の内的要因はこれら2項によって記述されるものと考え られる。本研究が対象としているBa (Mg_{1/3}Ta_{2/3}) O₃は室 温付近で低い誘電損失を有するが,これは損失のピーク項 が低い温度域にあるためと説明できる。次節ではこのふた つの損失項が何に起因しているかを明らかにし,マイクロ 波・ミリ波領域における誘電損失の内的要因について考察 する。





4. 考察

低損失Ba (Mg_{1/3}Ta_{2/3}) O₃セラミックスは室温,9 GHz 付近で,比誘電率24.5,誘電損失25×10⁻⁶程度の誘電特 性を示すことが知られている⁹⁾。**図7**に遠赤外反射率の フィッティングによって得られた格子振動モードの誘電率 スペクトルを示す。ここではマイクロ波・ミリ波領域にお いて強い影響を与えると考えられる5つの低周波モードに ついて示している。**図7**から明らかなように,格子振動か ら推測した比誘電率スペクトルをマイクロ波・ミリ波領域 まで外挿すると9 GHzでの測定値にほぼ一致している。こ のことから,マイクロ波・ミリ波領域の比誘電率はイオン の格子振動が大きく寄与していることがわかる。

一方,誘電損失は図8に示すように,格子振動から得ら れた外挿スペクトルとテラヘルツ分光器から得られた測定 値を比較すると,格子振動からの外挿値の方が明らかに 低く,マイクロ波・ミリ波領域の損失が単純なイオンの格 子振動によってもたらされるものではないことを示してい る。図9に,横軸に波数ベクトル,縦軸に周波数(∞エネ ルギー)をとった場合の一般的な誘電分散を示す。格子振 動には音響モード(TA)と光学モード(TO)があるた



図7 格子振動パラメータから計算したBa (Mg_{1/3}Ta_{2/3}) O₃の誘電率 スペクトル





図 8 Ba (Mg_{1/3}Ta_{2/3}) O₃における低周波領域誘電損失スペクトルの 測定値と計算値

Fig. 8 Comparison between measured and calculated values of low-frequency-band dielectric loss of Ba(Mg_{1/3}Ta_{2/3})O₃

め、最も低いエネルギーの光学横波振動モードと最も高い エネルギーの音響横波振動モードを考えた場合、分散は 図のように2本の曲線で表せる。音響振動モードのエネル ギーは分散曲線の原点(Γ点)で零になるため、図のよう な単調増加の曲線で表わされる。前述した遠赤外反射率か ら得られる格子振動モードは図9の原点(Γ点)における 格子振動であり、静止している結晶格子にエネルギーを与 え、ひとつの格子振動を誘起する現象に等しい。別の言い 方をするとひとつのフォトン(光子)がひとつのフォノン

(音子)を生成するプロセス(1フォノン過程)ということ もできる。図の縦軸にはBa (Mg_{1/3}Ta_{2/3}) O₃の格子振動 エネルギーを記載したが、最も低いエネルギーのフォノン の生成に対してさえ1.6 THzのフォトンエネルギーが必 要になることがわかる。つまりたかだか100 GHzのエネル ギーを有するマイクロ波・ミリ波では1フォノン過程によ る光学フォノンの生成は起こらないということを意味して いる。そこで、誘電体材料におけるマイクロ波・ミリ波の 吸収を解析するため、本研究では2フォノン過程、熱振動、 すなわち非調和振動による音響フォノンが光学フォノンに 励起される過程を導入し、損失の解析を行った。一般的に 1フォノン過程では運動量保存則によってΓ点近傍の波数 (q/qmax) におけるプロセスしか許されないが、2フォノン 過程を適用することによって、q/qmaxが0から1までの領 域すべてにおいて光の吸収が可能になる。図9から明らか なように音響フォノンと光学フォノンの最もエネルギー 差 (ω_c) が小さいところは $q/q_{max} = 1$, つまり波数空間 で表されるブリュアンゾーンのゾーンバウンダリー (ZB) である。しかもZBでは音響フォノンの状態密度が高く、 遷移の大部分を占めることになる。しかし、ZBにおいて でさえ、通常は2つのフォノンのエネルギー差が0.5 THz 以上あるためマイクロ波・ミリ波の吸収は起こらないよう に思える。しかし、Sparksらの研究¹⁰⁾によると、フォノ ンの分散曲線は熱に対して幅を持っており、この幅を導入 することによってマイクロ波・ミリ波の吸収が可能になる。 そこで低周波数領域で比較的分解能が高いラマン散乱を用 い、フォノン分散曲線の幅を測定した。図10に測定した A1g+Egモードのラマン散乱ピーク幅の温度依存性を示 す。散乱ピークは温度とともに放物線的に減少しているか ら、Tの2次関数としてまとめたところ式(5)のような半 値幅の温度依存性を得た。







図10 Ba (Mg_{1/3}Ta_{2/3}) O₃におけるラマン散乱の温度依存性 Fig. 10 Temperature dependence of Raman scattering of A_{1g}+Eg mode in Ba(Mg_{1/3}Ta_{2/3})O₃

$$\gamma_{p}(THz) = 6.0 \times 10^{-7} \times T^{2} + 6.0 \times 10^{-5} \times T + 5.532 \times 10^{-2}$$
 (5)

ここで y_Pは分散曲線の線幅,*T*は絶対温度である。

フォノンはボーズ・アインシュタイン分布則に従うため, ZBにおけるフォノンの熱分布が式(6)に従うものとした。

$$n(\omega_m) = \frac{1}{(h\nu_1/k_B T - 1)}$$
(6)

ここでnはフォノンの状態密度、 ω_m は光学フォノンの ZBにおける周波数、 k_B はボルツマン定数、hはプランク定 数、 ν_1 は振動数である。Alfordらは2フォノン過程に関 し、式(7)を用いて誘電損失を導き出している¹¹⁾。

$$\tan \delta \cong \frac{\Gamma_1}{\omega_m(\omega_m + \omega)(\omega_{1TO} - \omega_c)} \frac{\hbar \omega}{k_B T} n(\omega_m) [n(\omega_m) + 1] \left[\tan^{-1} \frac{\omega_{1TO} - \omega}{\gamma_p} \tan^{-1} \frac{\omega_c - \omega}{\gamma_p} \right]$$
(7)

$$\Gamma_1 = \frac{\varepsilon (0) - \varepsilon_{\infty}}{\varepsilon (0)} \frac{2h \phi_3^2}{3M_r M_< M_> \omega_{1TO}^2}$$
(8)

ここで \hbar は $h/2\pi$ で表されるプランク定数, ε (0) は低周 波数域の比誘電率, ϕ_3 は格子エネルギーの3次項, M_r は 換算質量, $M_{<}$, $M_{>}$ はイオンの質量(<, > はそれぞれイオ ンの重さの大小を表す)である。Ba ($Mg_{1/3}Ta_{2/3}$) O₃の単 結晶は2008年秋現在, 作製の報告がなく, ZBにおける諸 定数に対してはいくらかの仮定を導入する必要がある。ま ず ω_m は $\omega_m \approx \omega_{1TO}$ とし, また ϕ_3 と ω_c はフィッティング パラメータとした。これらの条件のもと, 式(7)を用い て計算した6.5 GHz における誘電損失の温度依存性を測 定値とあわせて図**11**に示す。フィッティングによって



図11 Ba (Mg_{1/3}Ta_{2/3}) O₃の誘電損失の計算値と実測値の比較 Fig. 11 Temperature dependence of dielectric loss of Ba (Mg_{1/3}Ta_{2/3})O₃ calculated using two-phonon difference process

得られた格子エネルギーの3次項はSagalaらが計算した Ba (Zn_{1/3}Ta_{2/3}) O₃についての値に近い値となった¹²⁾。ま た,BZにおける横波音響フォノンと横波光学フォノンの エネルギー差は約420 GHzと計算された。図11に示され ているように室温近くでは測定値と計算値が近い値とな り,低温側では誘電損失のピーク項のために100倍以上高 い損失値を示している。筆者はこのピーク項がデバイ型の 分散に起因していると考え¹³⁾,式(9) に示す配向分極に よる損失式によってピーク項のフィッティングを試みた。

$$\tan\delta\left(\omega,T\right) = \frac{\varepsilon^{"}}{\varepsilon^{'}} = \frac{\left(\varepsilon_{s} - \varepsilon_{\infty}\right)\omega\,\tau}{\varepsilon_{s} + \varepsilon_{\infty}\,\omega^{2}\,\tau^{2}} \tag{9}$$



図12 Ba (Mg_{1/3}Ta_{2/3}) O₃におけるデバイ型誘電損失の計算値と実 験値の比較

Fig. 12 Comparison of Debye type dielectric loss between measurement and calculated values in Ba (Mg_{1/3}Ta_{2/3})O_3

ここで ε_sは静電比誘電率, τ は分極の緩和時間である。 図12に抽出したピーク項と計算値を比較して示す。図よ り明らかなとおり,デバイ型の分散によって測定値が精度 よく計算できている。表2にこの計算によって得られた配 向分極の特性パラメータを示すが,分極の程度は小さく, また緩和時間も速くマイクロ波・ミリ波帯の周波数に追従 していることが示された。イオン分極は結晶構造によって 一義的に決まるため,この配向分極の原因でないことは明 らかである。そこで上述の速い緩和時間から推測すると, 200 K以下の低温域で見られるBa (Mg_{1/3}Ta_{2/3})O₃の配向 分極は局所的な格子欠陥あるいは電子の偏在などに起因し ているものと考えられ,その解明は今後の課題に残すが, この技術を他の材料系に適用することによってその材料が 有する損失のポテンシャルを評価することが可能であり, 低損失な新材料開発に有効な技術になると考える。

表 2 40 Kで極大を示す誘電損失ピーク項から計算された Ba (Mg_{1/3}Ta_{2/3}) O₃の配向分極パラメータ

Table 2 Polarization parameter obtained from peak term of dielectric loss of Ba(Mg_{1/3}Ta_{2/3})O_3

Material	ε _s	ε∞	τ	ω
Waterial			(ps)	(GHz)
$Ba(Mg_{1/3}Ta_{2/3})O_3$	24.51	24.50	20.00	6.50

5. 結 言

Ba (Mg_{1/3}Ta_{2/3}) O₃を用い,高周波で利用される誘電体の損失機構について考察して以下の知見を得た。

誘電損失の温度依存性を測定し,得られたデータを解析 した結果,室温における誘電体材料のマイクロ波・ミリ波 帯での誘電損失は2フォノン過程によるマイクロ波・ミリ 波の吸収が直接の原因であると考えられる。また,特殊な ケースとして局所的で緩和が速い配向分極が存在する場合 にはデバイモデルに従う誘電損失が現れる。Ba (Mg_{1/3}Ta_{2/3})O₃の場合には40 K程度の低温でその損失成 分が顕現するが,室温付近で使用する場合にはほとんど問 題にはならない。ただしどのイオンが配向分極の原因にな っているかは今後の課題であり,その低減によってさらな る低損失化が可能であると考えられる。

引用文献

- I. Bunget and M. Popescu: Materials Science Monographs 19, Physics of solid dielectrics (1984) p.246.
 Ibid. p.305
- 3) T. Shimada, Ken-ichi Kakimoto, and H. Ohsato: J. Eur. Ceram. Soc., 25 (2005) 2901.
- N. McN. Alford, J. Breeze, X. Wang, S. J. Penn, S. Dalla, S. J. Webb, N. Ljepojevic, and X. Aupi: J. Eur. Ceram. Soc., 21 (2001) 2605.
- 5) N. Ichinose and T. Shimada: J. Eur. Ceram. Soc., 26 (2006) 1755.
- Mei-Hui Liang, Chen-Ti Hu, Hsiu-Fung Cheng, I-Nan Lin, and John Steeds: J. Eur. Ceram. Soc. 21 (2001) 2759.
- 7) 島田, 角岡: セラミックス 39 [8] (2004) 595.
- F. Gervais and B. Piriou: J. phys. C Solid State Phys., 7 (1974) 2374.
- 9) T. Shimada: J. Eur. Ceram. Soc., 24 (2004) 1799.
- 10) M. Sparks, D. F. King, and D. L. Mills: Phys. Rev. B, 26 (1982) 6987.
- X. Aupi, J. Breeze, N. Ljepojevic, L. J. Dunne, N. Malde, A-K. Axelsson, and N. McN. Alford: J. Appl. Phys. 95 (2004) 2639.
- D. A. Sagala and S. Nambu: J. Phys. Soc. Jpn, 61 (1992) 1791.
- 13) I. Bunget and M. Popescu: Materials Science Monographs 19, Physics of solid dielectrics (1984) p.284.



島田 武司 Takeshi Shimada 日立金属株式会社 先端エレクトロニクス研究所 博士(工学)