

솔 - 젤법을 이용한 Bismuth Layered Structure를
가진 강유전성 박막의 제조 및 특성평가에 관한 연구
(II. MOD법으로 제조한 강유전성 $Sr_{0.7}Bi_{2.3}(Ta_{1-x}Nb_x)_2O_9$
박막의 유전 특성)

논문
12-1-9

The Preparation and Characterization of Bismuth Layered
Ferroelectric Thin Films by Sol-Gel Process
(II. Dielectric Properties of Ferroelectric $Sr_{0.7}Bi_{2.3}(Ta_{1-x}Nb_x)_2O_9$
Thin Films Prepared by MOD Process)

최무용*, 송석표*, 정병직*, 김병호*

(Moo-Yong Choi, Seok-Pyo Song, Byong-Jik Jeong, Byong-Ho Kim)

Abstract

Ferroelectric $Sr_{0.7}Bi_{2.3}(Ta_{1-x}Nb_x)_2O_9$ ($x=0, 0.1, 0.2, 0.3$) thin films were deposited on Pt/SiO₂/Si substrate by MOD(Metalorganic Decomposition) process. Metal carboxylate and metal alkoxide were used as precursors, and 2-methoxyethanol, xylene as solvents. After spin coating, thin films were pre-annealed at 400°C, followed by RTA(Rapid Thermal Annealing) and final annealing at 800°C in oxygen atmosphere. These procedures were repeated three times to obtain thin films with the thickness of 2000Å. To enhance the nucleation and growth of layered-perovskite phase, thin films were rapid-thermally annealed above 720°C in oxygen atmosphere. As RTA temperature increased, fluorite phase was transformed to layered-perovskite phase. And the change of Nb contents affected dielectric / electrical properties and microstructure. The ferroelectric characteristics of $Sr_{0.7}Bi_{2.3}(Ta_{0.9}Nb_{0.1})_2O_9$ thin film were $Pr=8.67 \mu C/cm^2$, $Ec=62.4kV/cm$ and $I_L=1.4 \times 10^{-7} A/cm^2$ at the applied voltage of 5V, respectively.

Key Words (중요용어) : SBTN thin film(SBTN 박막), MOD process(MOD법), RTA(급속열처리), layered-perovskite phase(층상페로브스카이트상)

1. 서론

최근 정보화 사회로의 급속한 변화는 각종 휴대 정보 통신 기기 및 다양한 정보 기억 장치의 수요를 급성장시켰으며 특히 소형화 및 저전력화가 가

능한 소자를 요구하게 되었다. 저장된 정보가 전원 이 꺼져도 휘발되지 않는 FRAM(Ferroelectric Random Access Memory)는 최근 획기적인 반도체 기술과 박막 성장기술의 발전으로 점차 실현 가능성이 높아지고 있다. 강유전체 박막을 캐패시터로 사용하는 FRAM은 빠른 동작 속도와 저전압동작 등의 DRAM이 갖고 있는 장점을 갖고 있을 뿐만 아니라 비휘발성이라는 자기메모리의 장점을 모두 갖고 있기 때문에 현재 많은 연구가 진행되고 있다¹⁾.

FRAM의 캐패시터로 사용될 물질로 PZT와 SBT

* : 고려대학교 재료공학과
(서울시 성북구 안암동 5가 1, Fax: 02-921-9237
E-mail : mychoi@kucn.korea.ac.kr)
1998년 10월 1일 접수, 1998년 12월 7일 심사완료

가 현재 많이 연구가 되고 있는데 PZT의 경우에는 잔류분극값은 높으나 피로현상 및 누설전류밀도특성이 좋지 않은 것이 단점으로 지적²⁾되어 최근 bismuth oxide층이 산소팔면체 사이에 교대로 존재하는 SBT와 같은 layered-perovskite 물질이 새롭게 등장하였다. SBT의 잔류분극값은 약 $10 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ 정도로 PZT보다 훨씬 낮으나, 10^{12} 회 이상에서도 피로현상이 나타나지 않고 누설전류밀도도 $10^{-8}\text{A}/\text{cm}^2$ 정도로 아주 우수한 성질을 가지고 있다. 뿐만 아니라 낮은 전압에서도 잔류분극값이 포화되기 때문에 저전압에서 동작이 가능한 소자를 구현할 수 있다^{3,4)}.

SBT를 제조하는 방법으로 액상법인 MOD⁵⁾ 및 솔-젤법⁶⁾과 기상법인 스퍼터링법 및 화학기상증착법이 사용된다. MOD법은 다른 공정에 비해 조성의 조절이 용이하고 출발원료를 비교적 쉽게 다룰 수 있다는 장점이 있기 때문에 현재까지 가장 많이 사용되고 있다. 특히 SBT는 Sr과 Bi의 조성에 따라 전기적·유전적 성질이 많이 변하므로 최적의 조성을 찾는 것이 상당히 어렵기 때문에 MOD법을 이용하는 것이 좋다.

PZT에서 Pb의 휘발이 큰 문제점으로 지적된 것과 마찬가지로 SBT에서는 Bi의 휘발이 가장 큰 문제점으로 부각된다. Bi를 과잉으로 첨가하면 박막의 입계에 Bi가 금속상으로 존재할 수 있기 때문에 전기적 특성에 치명적인 영향을 미칠 수 있다고 알려져 있다⁷⁾.

본 연구에서는 이러한 문제점을 해결하기 위해 본 연구실의 연구결과⁸⁾와 I. Koiwa 등의 보고⁹⁾로부터 Sr과 Bi의 물비가 합해서 3이 되고 Bi함량의 변화가 거의 없는 조성을 선택했다. SBT는 비정질상에서 형식구조를 거쳐 층상 페로브스카이트구조로 전이되는데 높은 온도와 많은 시간을 필요로 함으로 상전이를 촉진시키기 위해 급속열처리 공정을 도입¹⁰⁾하였고 Ta의 일부를 Nb로 치환하여 잔류분극값을 향상시키고자 한다.

2. 실험 및 측정

2.1. SBTN 용액의 합성 및 박막의 제조

이전 논문⁸⁾에 보고된 800°C에서 최종열처리한 SBT박막에서의 Sr과 Bi첨가량에 따른 Bi의 조성분 석결과로부터 Bi의 첨가량이 2.2와 2.4 사이, Sr의 첨가량이 0.7에서 Bi의 조성이 가장 안정하다는 것을 알 수 있었다. 따라서 Bi의 휘발이 적게 일어나고 전기적·유전적 성질이 우수한 박막을 제조하기 위해 Sr과 Bi의 물비를 각각 0.7, 2.3으로 결정하였

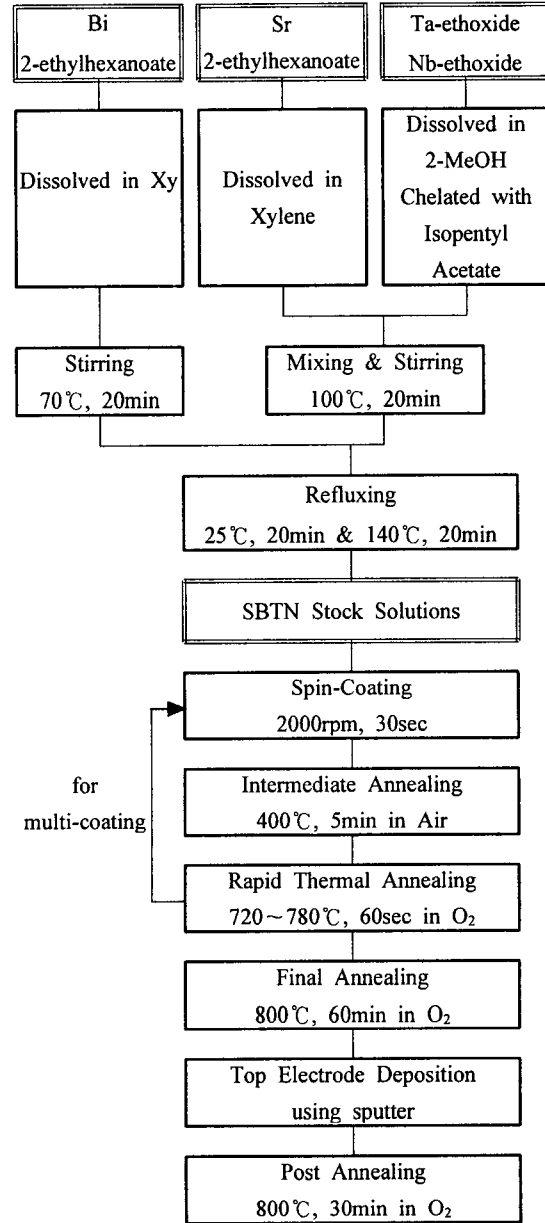


그림 1. $\text{Sr}_{0.7}\text{Bi}_{2.3}(\text{Ta}_{1-x}\text{Nb}_x)_2\text{O}_9$ ($x=0, 0.1, 0.2, 0.3$)용액과 박막을 제조하기 위한 실험 절차

Fig. 1. Experimental procedure for preparation of $\text{Sr}_{0.7}\text{Bi}_{2.3}(\text{Ta}_{1-x}\text{Nb}_x)_2\text{O}_9$ ($x=0, 0.1, 0.2, 0.3$) solutions and thin films.

고⁹⁾, Nb을 Ta에 대해 0~30%까지 치환하였다.

그림 1에 SBTN[$\text{Sr}_{0.7}\text{Bi}_{2.3}(\text{Ta}_{1-x}\text{Nb}_x)_2\text{O}_9$ ($x=0, 0.1, 0.2, 0.3$)] 용액과 박막을 제조하기 위한 흐름도를 나타

내었다. Sr과 Bi의 출발물질로 각각 carboxylate인 strontium 2-ethylhexanoate ($\text{Sr}[\text{OOCCH}(\text{C}_2\text{H}_5)\text{C}_4\text{H}_9]_2$)와 bismuth 2-ethylhexanoate ($\text{Bi}[\text{OOCCH}(\text{C}_2\text{H}_5)\text{C}_4\text{H}_9]_3$)를 사용하였고, Ta과 Nb의 출발물질로 tantalum ethoxide($\text{Ta}(\text{OC}_2\text{H}_5)_5$)와 niobium ethoxide($\text{Nb}(\text{OC}_2\text{H}_5)_5$)를 사용하였다. Carboxylate의 용매로는 xylene을 사용하였고 알콕사이드의 용매로 2-methoxyethanol을 사용하였으며 알콕사이드의 수분에 대한 안정화를 위하여 isopentyl acetate를 첨가하였다. 원하는 농도를 얻기 위하여 약 140°C에서 용매를 증발시켰다. 제조된 SBTN 용액의 최종 농도는 0.1M로 고정하였다.

Pt/SiO₂/Si 기판위에 스펀 코팅법을 이용해 2000rpm에서 30초간 코팅하였으며 유기물 탈리를 위해 400°C에서 중간열처리하였다⁸⁾. 박막의 상전이를 촉진하여 전기적·유전적 성질을 향상시키기 위해 720~780°C의 산소분위기에서 1분 동안 급속열처리하였다. 이러한 과정을 3회 반복하고 800°C의 산소분위기에서 1시간 동안 최종열처리하여 약 2000Å의 두께를 갖는 SBTN 박막을 제조하였다. SBTN 박막 위에 상부전극인 Pt를 스퍼터링법으로 증착한 후 전기적 성질의 회복을 위해 800°C의 산소분위기에서 30분간 후열처리하였다.

2. 2. SBTN 박막의 특성분석

제조된 SBTN 박막의 상전이 거동을 알아보기 위하여 XRD(Philips PW 1710) 분석을 하였으며, 유전적 성질을 측정하기 위하여 RT66A(Radiant Technologies, Inc.)로 이력곡선을 측정하였다. Pico-Amperemeter(HP 4140B)를 사용하여 0~20V의 인가전압 범위에서 누설전류밀도를 측정하였다. SEM(JEOL, JSM-6330F)을 사용하여 SBTN 박막의 미세구조를 관찰하였다. LCR meter(HP4263A)를 사용하여 상온에서 0.1~100kHz의 주파수 범위, V_{osc}는 50mV에서 박막의 정전용량 및 유전손실을 측정하였고 5°C/min의 승온속도, 100kHz의 주파수, V_{osc}는 50mV에서 박막의 정전용량을 측정함으로써 큐리 온도 변화를 관찰하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1 급속열처리 온도에 따른 SBT 박막의 상전이 거동

그림 2에 급속열처리 온도에 따른 최종열처리 전 SBT 박막의 XRD 결과를 나타내었다. 급속열처리 온도가 740°C까지는 형석구조가 대부분이지만 760°C 이상에서는 층상 페롭스카이트구조로 상전이 된

것을 알 수 있으며 780°C에서는 형석구조가 거의 발견되지 않았다. 780°C에서 급속열처리한 SBT 박막의 주피크인 (105), (110)피크강도가 c축배향 피크 강도 보다 큰 것으로 보아 우수한 잔류분극값을 나타낼 것이라고 생각된다.

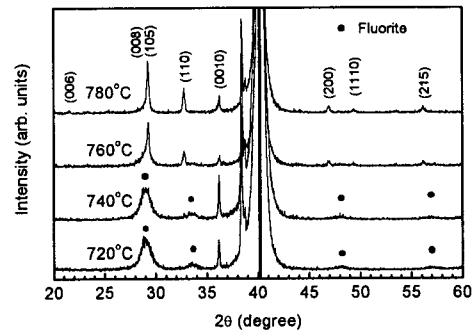


그림 2. 급속열처리 온도에 따른 최종열처리 전 Sr_{0.7}Bi_{2.3}Ta₂O₉ 박막의 XRD 결과

Fig. 2. XRD results of Sr_{0.7}Bi_{2.3}Ta₂O₉ thin films with various RTA temperatures before final annealing.

3.2 Nb치환에 따른 SBTN 박막의 강유전 특성 및 미세구조 변화

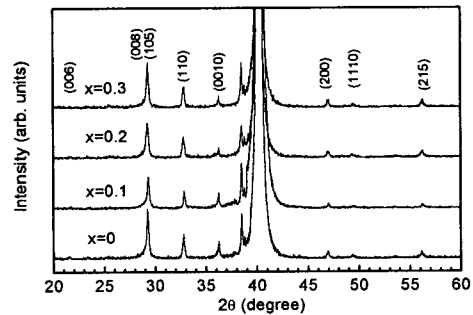


그림 3. Niobium 함량에 따른 800°C에서 1시간 최종열처리한 Sr_{0.7}Bi_{2.3}(Ta_{1-x}Nb_x)₂O₉ 박막의 XRD 결과

Fig. 3. XRD results of Sr_{0.7}Bi_{2.3}(Ta_{1-x}Nb_x)₂O₉ thin films with various niobium contents after final-annealing at 800°C for 1h.

그림 3에 Nb을 Ta에 대해 몰비로 0, 10, 20, 30%

치환하고 780℃에서 급속열처리, 800℃에서 1시간 최종열처리한 SBTN 박막의 XRD 결과를 나타내었다. Ta을 Nb로 치환하여도 박막의 배향성에는 거의 영향을 미치지 않았으며 형석상은 관찰되지 않았다. 이는 Nb이 5A족 원소로서 Ta과 같은 +5가의 산화상태와 0.68Å의 이온반경을 가져 SBT의 층상 페롭스카이트 구조나 격자상수의 변화 없이 치환되었기 때문이라고 생각된다.

형석상의 잔존 여부를 확인하기 위해서 그림 4에 780℃에서 급속열처리, 800℃에서 1시간 최종열처리를 하고 Pt상부전극을 증착한 후 800℃에서 30분 후열처리한 SBTN 박막의 Nb 함량에 따른 step mode XRD 결과를 나타내었다. Nb을 30% 치환한 박막의 경우 후열처리 과정에서 잔존하던 형석상이 층상 페롭스카이트상으로 전이하기보다는 박막특성에 악영향을 미치는 Bi₂Pt 화합물을 형성하는 반응에 관여한 것으로 판단된다.

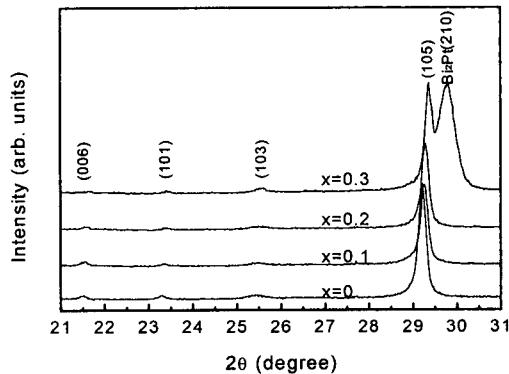


그림 4. Niobium 함량에 따른 800℃에서 1시간 최종열처리와 800℃에서 0.5시간 후열처리한 Sr_{0.7}Bi_{2.3}(Ta_{1-x}Nb_x)₂O₉ 박막의 XRD (step mode) 결과

Fig. 4. XRD(step mode)results of Sr_{0.7}Bi_{2.3}(Ta_{1-x}Nb_x)₂O₉ thin films with various niobium contents after final-annealing at 800℃ for 1h and post-annealing at 800℃ for 0.5h.

그림 5와 6에 780℃에서 급속열처리, 800℃에서 1시간 최종열처리를 하고 Pt상부전극을 증착한 후 800℃에서 30분 후열처리한 SBTN 박막의 Nb 함량 및 인가전압에 따른 이력특성을 나타내었다. Ta을 Nb로 치환함에 따라 잔류분극값은 Nb 함량이 10% 전후로 해서 증가 후 감소하였으며, 특히 Nb을 10%

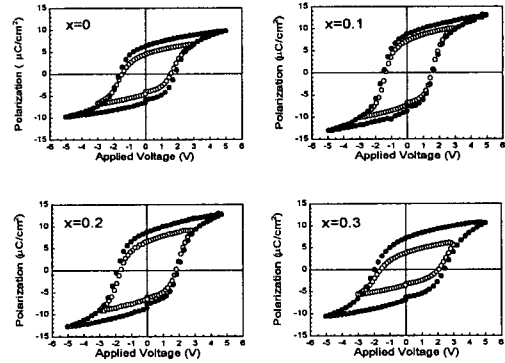


그림 5. Niobium 함량에 따른 800℃에서 1시간 최종열처리와 800℃에서 0.5시간 후열처리한 Sr_{0.7}Bi_{2.3}(Ta_{1-x}Nb_x)₂O₉ 박막의 이력특성 (○ 3Va, ● 5Va).

Fig. 5. Hysteresis loops of Sr_{0.7}Bi_{2.3}(Ta_{1-x}Nb_x)₂O₉ thin films with various niobium contents after final-annealing at 800℃ for 1h and post-annealing at 800℃ for 0.5h (○ 3Va, ● 5Va).

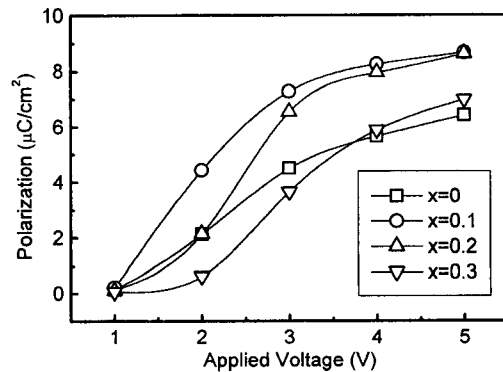


그림 6. Niobium 함량에 따른 800℃에서 1시간 최종열처리와 800℃에서 0.5시간 후열처리한 Sr_{0.7}Bi_{2.3}(Ta_{1-x}Nb_x)₂O₉ 박막의 인가전압에 대한 잔류분극값의 변화

Fig. 6. Remanent polarization vs. applied voltage of Sr_{0.7}Bi_{2.3}(Ta_{1-x}Nb_x)₂O₉ thin films with various niobium contents after final-annealing at 800℃ for 1h and post-annealing at 800℃ for 0.5h.

치환한 경우 최대 잔류분극값이 측정되었고 3V와 5V 인가전압 하에서 거의 같은 잔류분극값을 나타

내었으며 인가전압이 증가할수록 급격하게 포화되는 것을 관찰할 수 있었다. 항전계는 Nb함량이 증가할수록 비슷하거나 완만히 증가하는 경향을 보였다. 항전계의 증가는 SBT-SBN 고용체에 SBN의 분율이 증가되면서 미세구조가 변했기 때문으로 생각된다. 잔류분극값이 Nb을 10%이상 치환하였을 때 감소하는 경향을 보이는 것은 고용체 사이에 큐리 온도와 열처리 온도의 차이가 발생하여 결정립 성장이나 층상 페로스카이트 상형성 기구에 영향을 미친 것으로 판단된다¹¹⁾.

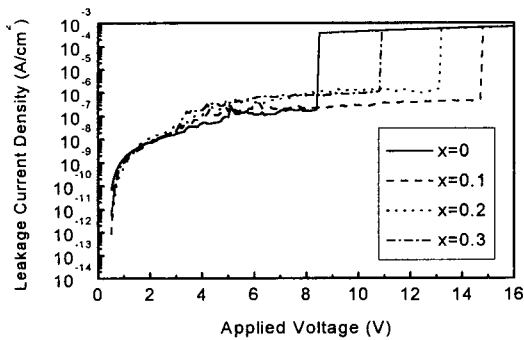


그림 7. Niobium 함량에 따른 800℃에서 1시간 최종열처리와 800℃에서 0.5시간 후열처리한 Sr_{0.7}Bi_{2.3}(Ta_{1-x}Nb_x)₂O₉ 박막의 누설전류밀도

Fig. 7. Leakage current density of Sr_{0.7}Bi_{2.3}(Ta_{1-x}Nb_x)₂O₉ thin films with various niobium contents after final-annealing at 800℃ for 1h and post-annealing at 800℃ for 0.5h.

그림 7에 780℃에서 급속열처리, 800℃에서 1시간 최종열처리를 하고 Pt상부전극을 증착한 후 800℃에서 30분 후열처리한 SBTN 박막의 Nb 함량에 따른 누설전류밀도를 나타내었다. 5V 인가전압하에서 SBT의 누설전류밀도는 약 10⁻⁸A/cm²이었고 Ta을 Nb로 치환함에 따라 누설전류밀도는 1 order 정도 증가하는 경향을 보였다.

그림 8에 780℃에서 급속열처리, 800℃에서 1시간 최종열처리한 SBTN 박막의 Nb 함량에 따른 미세구조 사진을 나타내었다. 2-ethylhexanoate를 출발물질로 하여 제조된 SBT 박막은 일반적으로 rod-like모양의 결정립을 가지는 미세구조를 나타낸다¹²⁾. Ta을 Nb으로 치환함에 따라 결정립의 크기는 증가하는 것으로 보이거나 Nb을 30% 치환한 경우 오히려 결정

립의 크기가 작아지고 층상 페로스카이트상으로 전이되지 않은 형석상이 일부 미세한 흰점으로 페로스카이트상 사이에 잔존⁷⁾하는 것이 관찰되었다. SBTN 박막의 Nb 함량에 따른 결정화도와 표면구조 변화가 이력특성 및 누설전류특성에 영향을 미친 것으로 판단된다.

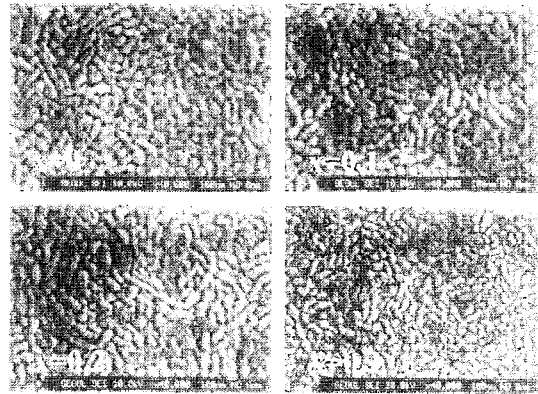


그림 8. Niobium 함량에 따른 800℃에서 1시간 최종열처리한 Sr_{0.7}Bi_{2.3}(Ta_{1-x}Nb_x)₂O₉ 박막의 미세구조 사진

Fig. 8. SEM Images of Sr_{0.7}Bi_{2.3}(Ta_{1-x}Nb_x)₂O₉ thin films with various niobium contents after final-annealing at 800℃ for 1h.

그림 9에 780℃에서 급속열처리, 800℃에서 1시간 최종열처리를 하고 Pt상부전극을 증착한 후 800℃에서 30분 후열처리한 SBTN 박막의 Nb 함량에 따른 비유전율과 유전손실의 주파수 의존성을 나타내었다. 주파수가 증가하면 유전손실이 증가하면서 비유전율은 감소하는 일반적인 경향을 나타냈다¹³⁾. 주파수 100kHz, V_{osc}는 50mV, 상온에서 측정된 SBTN 박막의 비유전율은 160~193, 유전손실은 0.0391~0.0489 정도의 값을 보였다.

그림 10에 780℃에서 급속열처리, 800℃에서 1시간 최종열처리를 하고 Pt상부전극을 증착한 후 800℃에서 30분 후열처리한 SBTN 박막의 Nb 함량에 따른 비유전율의 온도의존성을 나타내었다. Sr이 부족한 SBT는 화학양론적 조성을 가질 때보다 잔류분극과 큐리 온도가 증가하게 되는 경향¹⁴⁾이 있으며 Nb 함량이 증가할수록 박막의 비유전율과 큐리온도가 상승하였고 비유전율의 온도에 대한 민감성(곡선의 기울기)도 커졌다. 다만, Nb이 30%치환된 박막의 경우 잔존하는 형석상 때문에 정전용량이 작아졌다

고 생각된다.

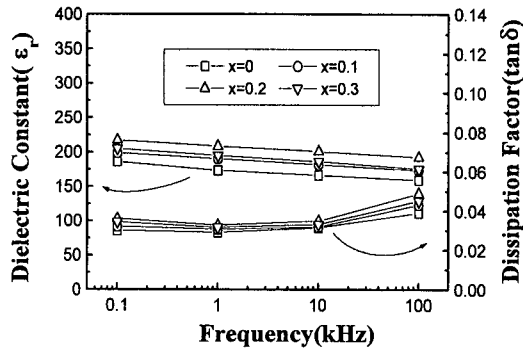


그림 9. Niobium 함량에 따른 800℃에서 1시간 최종열처리와 800℃에서 0.5시간 후열처리한 Sr_{0.7}Bi_{2.3}(Ta_{1-x}Nb_x)₂O₉ 박막의 비유전율과 유전손실의 주파수 의존성

Fig. 9. Frequency dependence of relative dielectric constant and dissipation factor of Sr_{0.7}Bi_{2.3}(Ta_{1-x}Nb_x)₂O₉ thin films with various niobium contents after final-annealing at 800℃ for 1h and post-annealing at 800℃ for 0.5h.

4. 결론

MOD법을 이용하여 Pt/SiO₂/Si기판에 스펀코팅하고 400℃ 중간열처리, 780℃ 급속열처리를 세 번 반복한 후 산소분위기에서 800℃, 1시간 동안 최종열처리하여 SBTN 박막을 제조하였다. 스퍼터링법으로 Pt상부전극을 증착한 후 800℃, 30분 동안 후열처리하여 제조된 SBTN 박막의 특성을 분석한 결과 다음과 같은 결론을 얻었다.

1. 급속열처리 온도를 720℃에서 780℃로 증가시킴으로써 박막에 형성된 seed layer가 fluorite상에서 layered perovskite상으로 전이되었다.
2. Nb함량이 증가할수록 잔류분극값은 Nb 함량이 10% 전후로 해서 증가 후 감소하였으며 항전계값과 누설전류밀도는 비슷하거나 완만히 증가하였고 큐리 온도도 높아졌다.
3. 가장 우수한 강유전 특성을 나타낸 Sr_{0.7}Bi_{2.3}(Ta_{0.9}Nb_{0.1})₂O₉ 박막은 5V 인가전압 (250kV/cm) 하에서 Pr, Ec와 I_L 값이 각각 8.67 μC/cm², 62.4kV/cm, 1.4 × 10⁻⁷A/cm²이었다.

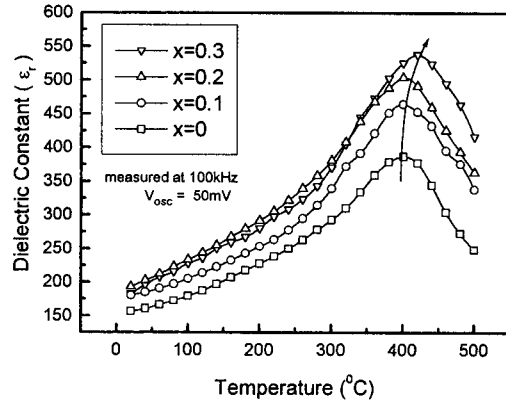


그림 10. Niobium 함량에 따른 800℃에서 1시간 최종열처리와 800℃에서 0.5시간 후열처리한 Sr_{0.7}Bi_{2.3}(Ta_{1-x}Nb_x)₂O₉ 박막의 비유전율의 온도 의존성

Fig. 10. Temperature dependence of relative dielectric constant of Sr_{0.7}Bi_{2.3}(Ta_{1-x}Nb_x)₂O₉ thin films with various niobium contents after final-annealing at 800℃ for 1h and post-annealing at 800℃ for 0.5h.

감사의 글

이 논문은 1997년 한국과학재단 특정기초연구분야 연구비 지원으로 이루어진 것으로 이에 감사드립니다. (과제번호: 97-0300-0601-3)

참고 문헌

1. Masayuki Suzuki, "Review on Future Ferroelectric Nonvolatile Memory : FeRAM—From the Point of View of Epitaxial Oxide Thin Films—", J. Cera. Soc. Jpn, Vol. 103, pp.1099-1111. 1995.
2. H. M. Duiker, P. D. Cuchiaro and L. D. McMillan, "Fatigue properties of ferroelectric PZT Thin Film and Their Characterization", Jpn. J. Appl. Phys., Vol. 68, pp.5783-5789, 1990.
3. C. A. Paz de Araujo, J. D. Cuchiaro, L. D. McMillan, M. C. Scott & J. F. Scott, " Fatigue - free ferroelectric capacitors with platinum electrodes", Nature. Vol. 34, pp.627~629, 1995.
4. Takashi Mihara, Hiroyaki Yoshimori, Hitoshi, Watanebe & Carlos A. Paz de Araujo. "

- Characteristic of Bismuth layered $\text{SrBi}_2\text{Ta}_2\text{O}_9$ thin-film capacitors and comparison with $\text{Pb}(\text{Zr}, \text{Ti})\text{O}_3$ ", *Jpn. J. Appl. Phys.* Vol. 34, pp.5233~5239, 1995.
5. B.A. Tuttle and R.W. Schwartz, "Solution Deposition of Ferroelectric Thin Films", *MRS Bulletin, Electroceramic Thin Films Part I*, pp.49-54, 1996.
 6. Yasuyuki Ito, Maho Ushikubo, Seiichi Yokoyama and Hironori Matsunaga, "New Low Temperature Processing of Sol-Gel $\text{SrBi}_2\text{Ta}_2\text{O}_9$ Thin Films", *Integrated Ferroelectrics*, Vol. 14, pp.123-131, 1997.
 7. C. D. Gutleben, "The Evaluation of $\text{SrBi}_2\text{Ta}_2\text{O}_9$ Films For Ferroelectric Memories", *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.*, Vol 433, pp.109-118, 1996.
 8. 정병직, 신동석, 윤희성, 김병호, "MOD법에 의한 강유전성 $\text{Sr}_x\text{Bi}_y\text{Ta}_2\text{O}_{9+a}$ (SBT)박막의 제조 및 후열처리 효과에 대한 연구", *전기전자재료학회논문지*, 10권 3호, pp.229-236, 1998.
 9. Ichiro Koiwa, Yukihiisa Okada, Juro Mita, Akira Hashimoto, and Yoshihiro Sawada, "Role of Excess Bi in $\text{SrBi}_2\text{Ta}_2\text{O}_9$ Thin Film Prepared Using Chemical Liquid Deposition and Sol-Gel Method", *Jpn. J. Appl. Phys.* Vol. 36, pp.5904~5907, 1997.
 10. Koji Wadanabe, Masahiro Tanaka, Nicolas Nagel, Kenji Katori, Masataka Sugiyama, Hisatoshi Yamoto, and Hajime Yagi, "Development of a New Annealing Process to allow New Top Electrode Materials for $\text{SrBi}_2\text{Ta}_2\text{O}_9$ Capacitors ", *Integrated Ferroelectrics*, Vol. 17, pp. 451-460, 1997.
 11. P. C. Joshi, S. O. Ryu, S. Tirumala, and S. B. Desu, " $(1-x)\text{SrBi}_2\text{Ta}_2\text{O}_9 - x\text{Bi}_3\text{Ti}(\text{Ta}_y\text{Nb}_{1-y})\text{O}_9$ Layered Structure Solid solutions for Ferroelectric Random Access Memory Devices ", *Ferroelectric Thin Films VI*, Vol. 493, pp.215-224, 1998.
 12. Tsutomu Atsuki, Nobuyuki Soyama, Tadashi Yonezawa and Katsumi Ogi, " Preparation of Bi-Based Ferroelectric Thin Films by Sol-Gel Method ", *Jpn. J. Appl. Phys.*, Vol. 34, pp.5096-5099, 1995.
 13. J.F. Scott et al., " A model of voltage-dependent dielectric losses for ferroelectric MMIC devices ", *Integrated Ferroelectrics*, Vol. 6, pp.189-203, 1995.
 14. T. Hase, T. Noguchi, K. Takemura and Y. Miyasaka, "Imprint Characteristics of $\text{SrBi}_2\text{Ta}_2\text{O}_9$ Thin Films with Modified Sr Composition," *Jpn. J. Appl. Phys.*, Vol. 37, pp. 5198-5202, 1998.