

논문 16-4-1

FRAM 응용을 위한 건조온도에 따른 BLT 박막의 강유전 특성

Ferroelectric Properties of $\text{Bi}_{3.25}\text{La}_{0.75}\text{Ti}_3\text{O}_{12}$ Thin Films with Various Drying Temperature for FRAM Applications

김경태¹, 김동표¹, 김창일¹, 김태형², 강동희³, 심일운³

(Kyoung-Tae Kim¹, Dong-Pyo Kim¹, Chang-Il Kim¹, Tae-Hyung Kim², Dong-Hee Kang³, and Il-Wun Shim³)

Abstract

Ferroelectric lanthanum-substituted $\text{Bi}_4\text{Ti}_3\text{O}_{12}$ (BLT) thin films were fabricated by spin-coating onto a Pt/Ti/SiO₂/Si substrate by metalorganic decomposition technique. The grain size in BLT thin films were prepared with controlled by various drying process. The effect of grain size on the crystallization and ferroelectric properties were investigated by x-ray diffraction and field emission scanning electron microscope. The dependence of crystallization and electrical properties are related to the grain size in BLT thin films with different drying temperature. The remanent polarization of BLT thin film increases with the increasing grain size. The value of $2P_r$ and E_c of BLT thin film dried at 450°C were 25.9 $\mu\text{C}/\text{cm}^2$ and 85 kV/cm, respectively. The BLT thin film with larger grain size has better fatigue properties. The fatigue properties revealed that small grained film showed more degradation of switching charge than large grained films.

Key Words : BLT, FRAM, Grain size, Ferroelectric, MOD

1. 서 론

최근 전원의 공급이 없어도 테이터의 손상이 없는 비휘발성 메모리로서 FRAM (ferroelectric random access memories) 소자가 주목받고 있다. 비휘발성 소자는 비휘발성 특성, 빠른 동작속도, 저전압 동작 등의 장점으로 휴대용 정보통신기기, ID-card, 게임기, 가전제품 등의 다양한 용도로 이용이 가능하다. 이러한 FRAM 소자의 커뮤니티로부터 연구되어지고 있는 물질은 강유전 특성을 가

지고 있는 PZT, SBT, BLT 등의 유전 물질이다 [1-3]. 비휘발성 강유전 메모리 소자의 응용은 PZT계 강유전체 물질이 많이 연구 되어 왔다. 그러나 비휘발성 기억소자로 사용되기 위해서는 소자의 구동에 대한 논리상태 보존의 안정성이 요구된다. PZT 박막은 Pt 전극을 사용했을 경우, 제품의 수명과 관련된 분극 피로(fatigue), imprint, retention 등의 저하가 발생하는 문제점을 가지고 있다. 이런 문제점을 해결하기 위해 비스무스계 층상 페로브스카이트 (Bi-layer structured perovskite) 구조를 가지는 $\text{SrBi}_2\text{Ta}_2\text{O}_9$ (SBT), $\text{Bi}_4\text{Ti}_3\text{O}_{12}$ (BTO) 등의 물질에 대한 연구가 활발히 진행되어 왔다[4-7]. 최근에는 분극 피로가 적고, 비교적 낮은 공정온도 (650°C)에서도 박막 형성이 가능하며, SBT 박막 보다 큰 잔류 분극 값을 가지는 BTO의 Bi^{3+} 이온을 La^{3+} 이온으로 치환하는 BLT ($\text{Bi}_{3.25}\text{La}_{0.75}\text{Ti}_3\text{O}_{12}$) 박막에 대한 연구가 진행

* : 중앙대학교 전기전자공학부
(서울시 동작구 흑석1동 221)

Fax: 02-812-9651

Corresponding Author : cikim@cau.ac.kr

** : 여주대학 전기과

*** : 중앙대학교 화학과

2002년 9월 25일 접수, 2002년 10월 29일 1차 심사완료,
2003년 1월 20일 최종 심사완료

되고 있다[8].

최근 수년 동안 강유전체 물질의 결정립 크기에 따른 영향이 연구되어 왔으나, 대부분의 연구는 ABO_3 구조를 가지는 $\text{Pb}(\text{Zr},\text{Ti})\text{O}_3$ (PZT), $(\text{Ba},\text{Sr})\text{TiO}_3$ (BST), BaTiO_3 등에 집중적으로 연구되어지고 있다[9-11]. 강유전 박막의 결정립 크기는 하부 전극과 박막과의 계면, 스트레스, 결함, 도메인 구조의 전이 등에 의해 영향을 받는다고 알려져 왔다[12-15]. 본 연구는 $\text{Pt}/\text{Ti}/\text{SiO}_2/\text{Si}$ 기판 위에 다양한 건조 온도에 의해 결정립 크기가 다른 BLT 박막을 MOD 법으로서 제조하여 박막의 구조 및 강유전 특성 등을 관찰하여 FRAM 소자로의 응용 가능성을 연구하고자 한다.

2. 실험

BLT 용액을 합성하기 위해서 CSD (chemical solution deposition) 법의 일종인 MOD (metalorganic decomposition) 법을 이용하였다. 출발 원료로 bismuth(III)-acetate $[(\text{CH}_3\text{CO}_2)_3\text{Bi}]$, lanthanum-acetate hydrate $[(\text{CH}_3\text{CO}_2)_3\text{La} \cdot x\text{H}_2\text{O}]$, titanium iso-propoxide $[\text{Ti}[\text{OCH}(\text{CH}_3)_2]_4]$ 을 사용하였다. bismuth(III)-acetate와 lanthanum acetate의 용매로는 acetic acid, titanium iso-propoxide의 용매로는 ethylen glycol의 일종인 2-methoxyethanol을 사용하였다. 본 실험에서는 다른 첨가제나 촉매 없이 acetate를 용해시킬 수 있었다. 먼저, $\text{Bi}_{4-x}\text{La}_x\text{Ti}_3\text{O}_{12}$ [$x=0.75$] 조성식에 따라 평양을 하였으며, Bi-acetate를 10% 과잉 첨가하여 용액을 각각 제조하여 사용하였다. BLT 박막의 제조에 사용된 기판은 p형 (100) 실리콘 웨이퍼이며, 실리콘 웨이퍼 위에 Ti (50 nm)와 Pt (150 nm)를 스퍼터링법을 이용하여 같은 반응로 안에서 연속적으로 증착하여 제작하였다. BLT 용액을 스판 코팅법을 이용하여 3500 rpm의 회전속도로 30초 동안 코팅한 후, 박막 내에 존재하는 유기물을 제거하기 위해 hot plate를 이용하여 250~450°C에서 10분간 건조하였다. 10회 코팅 빛 건조된 BLT 박막은 박막의 치밀화와 결정화를 위해 전기로를 이용하여 급속 열처리(rapid firing) 방법으로 대기 압의 산소 분위기에서 650°C에서 1시간 동안 열처리하여 약 200 nm의 BLT 박막을 제작하였다. 강유전 특성 및 전기적 특성 분석을 위하여 열처리 공정을 거친 BLT 박막을 직경이 0.3 mm인 세도우 마스크를 이용하여 DC 스퍼터링 방법으로 백금을

증착하여 상부 전극으로 사용하였다. BLT 용액의 시차열 분석 및 열중량 분석(DTA/TGA)을 위하여 BLT 용액을 80°C로 유지된 오븐에서 건조 분말화 하여 측정하였다. 증착된 박막의 결정 구조를 확인하기 위하여 X-ray diffraction (XRD-Rigaku, RTP 300 RC)을 사용하였고, 건조 온도에 따른 BLT 박막의 표면 미세구조 및 박막 표면의 거칠기 및 굴곡 상태를 원자 탐침 현미경 (AFM)을 이용하여 관찰하였다. BLT 박막의 유전상수 및 유전 손실은 HP4192 impedance analyzer를 사용하였으며, 박막의 이력특성은 precision workstation (Radian Technologies, USA)을 사용하였다. 이력곡선은 각각의 박막을 1~10V 인가전압 하에서 관찰하였으며, 피로특성은 각각의 박막에 5V, 1.25×10^{10} bipolar 스위칭 펄스를 인가하여 측정하였다.

3. 결과 및 고찰

그림 1은 MOD 법으로 제조된 BLT 분말의 DTA/TGA 분석 결과를 나타낸 것이다. 열중량곡선에서 나타낸 바와 같이 건조된 BLT 분말의 총 질량 감소는 상온에서 780°C까지 총질량 손실은 약 26.8%의 중량감소를 나타내었다. 51.7°C 및 120.6°C 부근의 흡열 피크는 BLT 용액제조에 사용한 용매의 휘발에 의한 것으로 사료되며, 중량손실을 동반한 310.2°C 및 355.01°C 부근의 발열 피크는 잔류 유기물 등의 연소에 기인한 것으로 판단

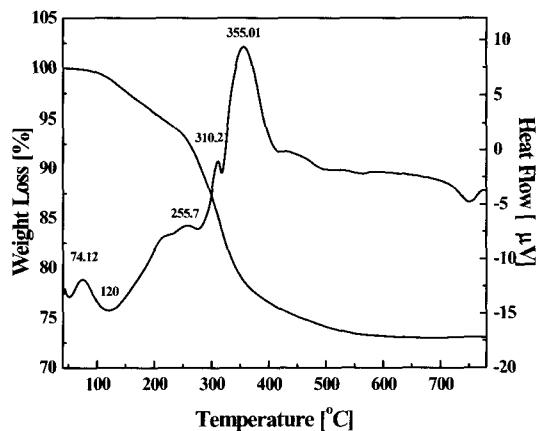


그림 1. BLT 박막의 DTA/TGA 곡선.

Fig. 1. DTA/TGA curves of BLT thin film.

된다[16]. 질량감소를 나타내지 않는 약 600°C 부근의 작은 발열 피크는 비정질상에서 페로브스카이트상으로의 상변환에 기인한 것으로 판단되며 [17], 760°C 부근의 흡열 피크는 다결정성 페로브스카이트상의 형성에 기인한 것이다. 따라서 본 실험에서는 용매 및 모든 유기물이 회발하는 250~450°C를 건조 온도로 선택하였으며, 상변환이 발생하는 550°C 이상의 온도인 650°C를 열처리 온도로 결정하였다.

그림 2은 650°C에서 1시간 열처리한 BLT 박막의 전조 온도에 따른 결정구조를 관찰하기 위한 XRD 분석 결과이며, BLT박막의 XRD 회절 패턴은 $\text{Bi}_4\text{Ti}_3\text{O}_{12}$ 의 표준 분말 회절 데이터를 이용하여 분석하였다. 제작된 모든 건조 온도에서 전형적인 Bi-층상 페로브스카이트 구조를 나타내었으며, 이차상이 없는 다결정 형태로 성장함을 알 수 있었다. 건조 온도가 증가함에 따라 피크의 회절 강도의 증가와 FWHM(full widths at half maximum)의 감소는 건조 온도가 증가함에 따라 각각의 박막의 결정성의 증가와 결정립 크기가 증가함을 예측할 수 있다[18].

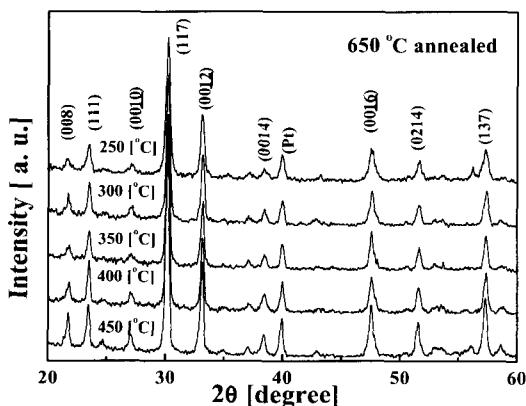


그림 2. 650°C에서 1시간 열처리한 건조 온도에 따른 BLT 박막의 X 선 회절 패턴.

Fig. 2. X-ray diffraction patterns of BLT thin films with drying temperature annealed at 650°C for 1h.

그림 3은 Pt/Ti/SiO₂/Si 기판위에 650°C에서 1시간 동안 열처리한 BLT 박막의 건조 온도에 따른 SEM 미세 표면 사진을 나타낸 것이다. 모든 박막에서 균열 및 기공이 없는 미세구조를 나타내었다.

건조 온도가 250°C인 박막에서는 과립상의 미세구조를 나타내었으며, 300°C 이상의 박막에서는 rod-like 형태의 결정립(미세구조)을 관찰할 수 있었으며, 건조온도가 증가함에 따라 박막의 평균 결정립의 크기가 증가하는 특성을 나타내었다. 그림 1의 열분석 데이터에서 고찰한 바와 같이, 건조 온도가 250°C인 경우에는 코팅된 강유전성 전구체의 완전한 건조가 이루어지지 않았기 때문에 수회 반복 코팅에 따른 박막 내에 유기물의 잔류 가능성 및 기공의 존재 가능성이 증가할 것으로 사료된다. 따라서 건조온도가 증가함에 따라 박막 내 잔류 유기물 및 기공의 감소에 의해 입자간의 접촉면적 증가에 따른 결정립의 성장이 일어나는 것으로 사료된다.

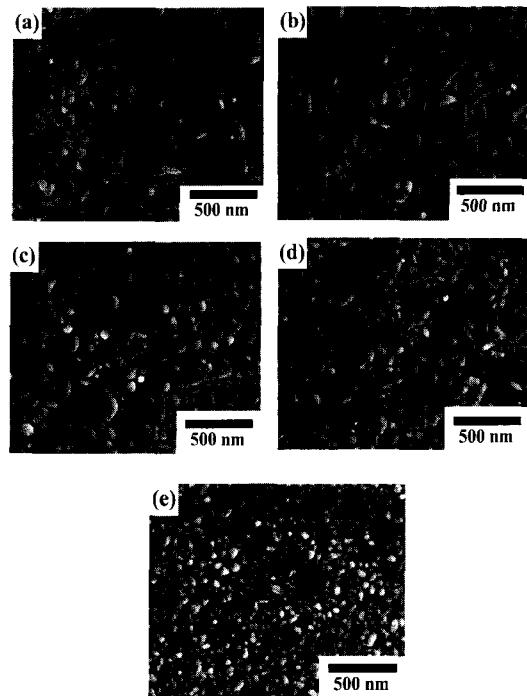


그림 3. 650°C에서 1시간 열처리한 건조 온도에 따른 (a) 450°C (b) 400°C (c) 350°C (d) 300°C (e) 250°C BLT 박막의 SEM 표면 사진.

Fig. 3. SEM image of surface of BLT thin films with drying temperature (a) 450°C (b) 400°C (c) 350°C (d) 300°C and (e) 250°C annealed at 650°C for 1h.

건조 온도에 따른 박막의 평균 표면 거칠기 (RMS; root mean square roughness)를 결정하기 위해 AFM을 사용하였다. 그림 4는 650°C에서 1시간 동안 열처리한 BLT 박막을 AFM에서 결정된 평균 표면 거칠기와 SEM 표면에서 관찰한 결정립 크기를 나타내었다. 건조 온도가 증가함에 따라 결정립 크기 및 평균 거칠기가 증가하는 것을 관찰할 수 있었다. 450°C에서 건조한 BLT 박막의 평균 결정립과 평균 거칠기는 각각 448.6 nm 와 4.2 nm 를 나타내었다.

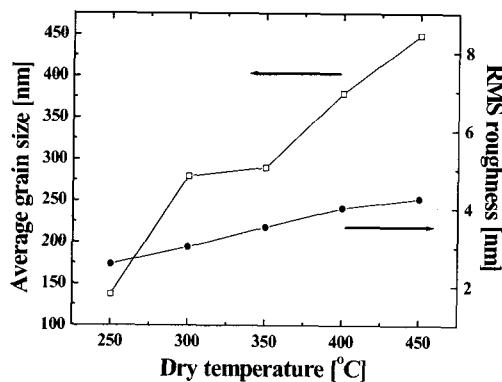


그림 4. 650°C에서 1시간 열처리한 건조 온도에 따른 BLT 박막의 평균 결정립 크기 및 평균 표면 거칠기.

Fig. 4. Average grain size and root mean square roughness of BLT thin films with drying temperature annealed at 650°C for 1h.

그림 5는 650°C에서 1시간 동안 열처리한 BLT 박막의 건조 온도에 따른 BLT 박막의 100 KHz에서 측정한 유전상수 및 유전손실을 나타내었다. 건조 온도가 증가함에 따라 유전상수 값이 증가하는 특성을 나타내었으며, 이는 미세구조 특성에서 고찰한 바와 같이 건조온도가 증가함에 따라 박막 내 유기물의 완전한 제거에 따른 기공의 감소와 고유전율의 결정립의 크기 증가 및 상대적으로 저유전율의 결정입계층의 감소에 따른 현상으로 사료된다. 유전손실 특성은 건조온도에 따른 의존성을 나타내지 않았으며, 모든 시편에서 0.03~0.04의 특성을 나타내었다. 450°C에서 건조한 BLT 박막의 유전상수 및 유전손실은 각각 357, 0.03의 양호한 특성을 나타내었다.

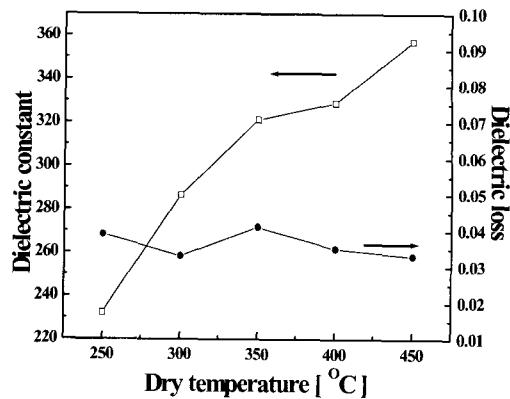


그림 5. 650°C에서 1시간 열처리한 건조 온도에 따른 BLT 박막의 유전상수 및 유전손실.

Fig. 5. Dielectric constant and dielectric loss of BLT thin films with drying temperature annealed at 650°C for 1h.

그림 6과 그림 7은 650°C에서 1시간 동안 열처리한 BLT 박막의 건조 온도에 따른 BLT 박막의 P-E 이력곡선 및 잔류분극(2Pr)과 항전계(Ec) 특성을 나타낸 것이며, 이력곡선을 측정하기 위해 1~10 V를 인가하여 측정하였다. 그림 6의 이력곡선에서 나타난 바와 같이 모든 시편에서 인가전압이 증가함에 따라 포화되는 양호한 특성을 나타내었으며, 건조온도가 증가함에 따라 점차 구형의 이력곡선을 나타내었다. 그림 7의 잔류분극과 항전계 특성은 인가 전압 10 V에서 측정하였으며, 박막의 건조 온도가 증가함에 따라 잔류분극은 증가하였으며, 항전계는 감소하는 특성을 나타내었다. 이는 건조온도가 증가함에 따라 고유전율 강유전성 결정립 크기의 증가와 소극전계를 야기시키는 미세기공의 감소 및 상유전성 결정 입계층의 감소에 기인한 특성으로 고찰된다[19]. 건조 온도가 450°C 인 BLT 박막의 잔류분극 (2Pr) 및 항전계 (Ec)값은 각각 25.9 $\mu\text{C}/\text{cm}^2$, 85 kV/cm 이었다.

피로(fatigue)란 강유전체에서 반복적인 분극 스위칭동안 잔류 분극량 혹은 스위칭 된 분극량의 감소를 나타내는 현상을 말한다. 이러한 분극량 감소는 메모리 소자로의 응용 시 수명에 영향을 주는 요소이다. 그림 8은 650°C에서 1시간 동안 열처리한 BLT 박막의 건조 온도에 따른 피로 특성을 나타내었다. 피로특성 측정은 BLT 박막에 5 V,

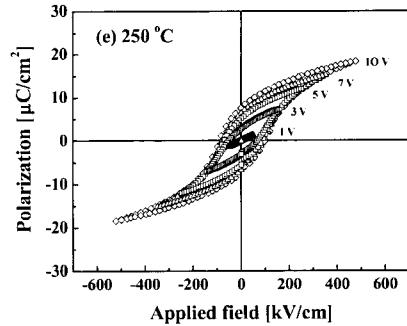
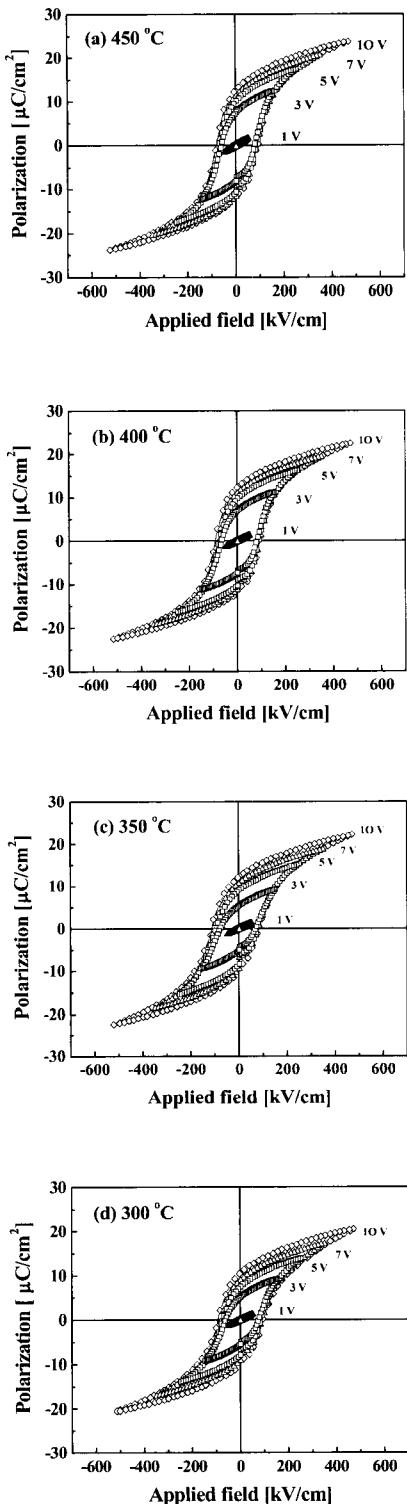


그림 6. 650°C에서 1시간 열처리한 건조 온도에 따른 BLT 박막의 P-E 이력곡선.

Fig. 6. P-E hysteresis of BLT thin films with drying temperature annealed at 650°C for 1h.

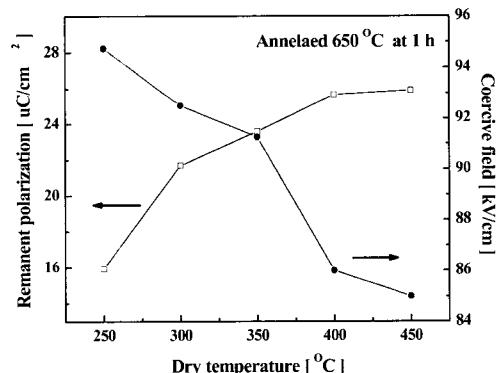


그림 7. 650°C에서 1시간 열처리한 건조 온도에 따른 BLT 박막의 잔류분극 및 항전계.

Fig. 7. Remanent polarization and coercive voltage of BLT thin films with drying temperature annealed at 650°C for 1h.

500 kHz의 bipolar 펄스파를 1.25×10^{10} 회까지 인가하여 분극 값의 변화를 조사하였다. 건조 온도가 증가함에 따라 분극 피로에 의한 분극량 감소 현상이 감소하였으며, 건조 온도가 400°C 이상인 BLT 박막의 1.25×10^{10} 회 축정 후, 초기 값의 0.98% 분극량 감소를 나타내었다. 그러나 건조 온도가 350°C 이하의 BLT 박막의 감소량은 4.9%의 분극량 감소를 나타내었다. 일반적으로 다결정성 세라믹의 결정입체층은 단결정성의 결정립과 달리 많은 dangling bonding과 포획준위를 포함하는 비

정질상으로 고려된다. 그림 2의 미세구조특성에서 고찰한 바와 같이, 건조온도가 낮은 박막의 경우에는 강유전성 결정립의 크기가 작고 상대적으로 비정질상 결정입계층의 체적비가 증가하게 된다. 따라서 건조온도가 낮은 박막의 경우, dangling bonding과 포획준위를 많이 포함한 결정입계층의 상대적 증가에 의해 bipolar pulse를 인가할 경우 포획준위에 있던 전하의 방출에 의해 피로현상이 증가하는 것으로 사료된다.

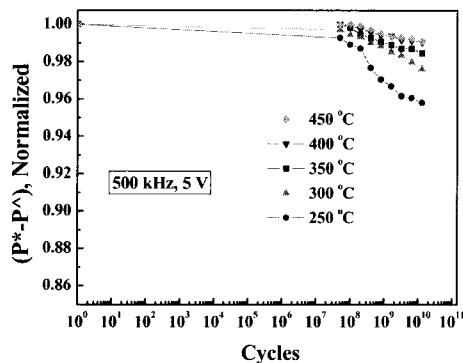


그림 8. 650°C에서 1시간 열처리한 건조 온도에 따른 BLT 박막의 피로특성.

Fig. 8. Fatigue properties of BLT thin films with drying temperature annealed at 650°C for 1h.

보관유지(retention) 특성은 강유전체 메모리에서 피로특성과 함께 문제가 되는 열화특성이다. 보관유지특성은 시간이 지남에 따라 분극량이 감소하는 특성이다. 보관유지특성의 측정은 '1' 또는 '0'을 써놓고 그 상태의 전하량을 읽어내는 것을 same state라고 하며, '1' 또는 '0'을 쓴 커패시터를 장시간 고온에 노출시킨 후, '1' 또는 '0'의 반대 부호를 쓰고 읽는 경우를 opposite state라고 한다. 이와 같이 읽기 신호와 쓰기신호의 지연 시간을 보관유지 시간이라 한다. 그림 9은 650°C에서 1시간 동안 열처리한 BLT 박막의 250°C와 450°C에서 건조한 BLT 박막의 보관유지특성을 80°C에서 측정한 결과를 나타내었다. 읽기와 쓰기의 5V와 2ms의 펄스 폭(pulse width) 신호를 인가하여 측정하였다. 450°C에서 건조한 BLT 박막은 3×10^4 후에 측정한 보관유지 특성은 감소현상을 보이지 않았지만, 250°C 건조한 BLT 박막은 15% 분극 감소 현상을 나타내었다. 이는 결정입계층의 상대적 증가에 의해 bipolar pulse를 인가할 경우 포획준위

에 있던 전하의 방출에 의해 분극량이 감소한 것으로 판단된다.

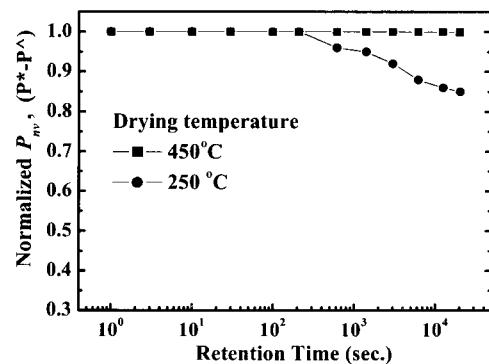


그림 9. 250°C와 450°C에서 건조한 650°C에서 1시간 열처리한 BLT 박막의 보관유지특성.

Fig. 9. Retention properties of BLT thin films with 250°C and 450°C drying temperature annealed at 650°C for 1h.

4. 결 론

BLT 박막은 건조 온도에 따라 결정립 크기가 증가하여, 강유전특성에 영향을 미치는 것을 확인하였다.

유전상수와 잔류분극 값은 건조 온도가 증가함에 따라 증가하였으며, 이는 건조온도가 증가함에 따라 박막 내 유기물의 완전한 제거에 따른 기공의 감소와 고유전율의 결정립의 크기 증가 및 상대적으로 저유전율의 결정입계층의 감소에 따른 현상으로 사료된다. 450°C에서 건조한 BLT 박막의 유전상수 및 유전손실 값은 각각 357, 0.03의 양호한 값을 나타내었으며, 잔류분극($2Pr$) 및 항전계(Ec) 값은 각각 $25.9 \mu\text{C}/\text{cm}^2$, $85 \text{kV}/\text{cm}$ 이었다.

BLT 박막에 ±5 V, 500 kHz의 bipolar 펄스파를 1.25×10^{10} 회까지 인가하여 피로특성을 측정한 결과, 450°C에서 건조한 BLT 박막의 분극량 감소는 0.98%의 우수한 특성을 나타내었으며, 450°C에서 건조한 BLT 박막의 보관유지특성을 80°C, 3×10^4 후에 측정한 특성은 분극량 감소현상을 보이지 않았다.

감사의 글

이 논문은 2002학년도 중앙대학교 학술연구비 지원에 의한 것이며 이에 감사 드립니다.

참고 문헌

- [1] J. F. Scott and C. A. Paz de Araujo, "Ferroelectric memories", *Science*, Vol. 246, p. 1400, 1989.
- [2] 김병호, 윤희성, 정병식, 신동석, "MOD 법에 의한 강유전성 $Sr_xBi_yTa_2O_{9+a}$ (SBT) 박막의 제조 및 후열처리 효과에 관한 연구", 전기전자재료학회 논문지, 11권, 3호, p. 229, 1998.
- [3] Di Wu, Aidong Li, and Tao Zhu "Ferroelectric properties of $Bi_{3.25}La_{0.75}Ti_3O_{12}$ thin films prepared by chemical solution deposition", *J. Appl. Phys.*, Vol. 88, p. 5941, 2001.
- [4] K. Amanuma, T. Hase, and Y. Miyasaka, "Preparation and ferroelectric properties of $SrBi_2Ta_2O_9$ thin films", *Appl. Phys. Lett.*, Vol. 66, p. 221, 1995.
- [5] 이재형, 문병무, 고중혁, 구상모, "PLD 기법에 의한 강유전체 SBT/YBCO/LaAlO₃ 헤테로박막의 제작 및 특성", 전기전자재료학회논문지, 12권, 2호, p. 165, 1999.
- [6] B. H. Park, S. J. Hyun, C. R. Moon, B. D. Choe, J. Lee, C. Y. Kim, W. Jo, and T. W. Noh, "Imprint failures and asymmetric electrical properties induced by thermal processes in epitaxial $Bi_4Ti_3O_{12}$ thin films", *J. Appl. Phys.*, Vol. 84, p. 4428, 1998.
- [7] 김태훈, 김병호, 송석표, "MOD 법으로 제조한 강유전성 SBT 박막에서 하부전극이 유전 및 전기적 특성에 미치는 영향", 전기전자재료학회 논문지, 13권, 8호, p. 694, 2000.
- [8] B. H. Park, B. S. Kang, S. D. Bu, T. W. Noh, J. Lee, and W. Jo, "Lanthanu-substituted bismuth titanate for use in nonvolatile memories", *Nature*, Vol. 401, p. 682, 1999.
- [9] F. Yan, P. Bao, H. L. W. Chan, C. L. Choy, and Y. Wang, "The grain size effect of $Pb(Zr_{0.3}Ti_{0.7})O_3$ thin films", *Thin Solid Films*, Vol. 406, p. 282, 2002.
- [10] W. Cao, and C. A. Randall, "The grain size and domain size relations in bulk ceramic ferroelectric materials", *J. Phys. Chem. and Solids*, Vol. 57 p. 1499, 1996.
- [11] M. P. McNeal, S. J. Jang, and R. E. Newnham, "The effect of grain and particle size on the microwave properties of barium titanate ($BaTiO_3$)", *J. Appl. Phys.*, Vol. 83, p. 3288, 1998.
- [12] E. S. Choi, S. G. Yoon, and W. J. Lee, "Improvements in electrical properties of hydrogen-treated $SrBi_2Ta_2O_9$ capacitors with chemical vapor deposited Pt top electrode", *Appl. Phys. Lett.*, Vol. 78, p. 2040, 2001.
- [13] R. S. Katiyar, J. F. Meng, and B. K. Rai, "Effect of grain size and Pb dopant on luminescence in $BaTiO_3$ ", *J. Vac. Sci. Technol.*, Vol. A 15, p. 2945, 1997.
- [14] L. Sagalowicz, F. Chu, P. D. Martin, and D. Damjanovic, "Microstructure, structural defects, and piezoelectric response of $Bi_4Ti_3O_{12}$ modified by Bi_3TiNbO_9 ", *J. Appl. Phys.*, Vol. 88, p. 7258, 2000.
- [15] C. H. Lin, B. M. Yen, H. C. Kuo, H. Chen, T. B. Wu, and G. E. Stillman, "Domain structure and electrical properties of highly textured $PbZrxTi_{1-x}O_3$ thin films grown on $LaNiO_3$ electrode-buffered Si by metalorganic chemical vapor deposition", *J. Mater. Res.*, Vol. 15 p. 115, 2000.
- [16] S. B. Majumder, M. Jain, A. Martinez, and R. S. Katiyar, "Sol-Gel derived grain oriented barium strontium titanate thin films for phase shifter application", *J. Appl. Phys.*, Vol. 90, p. 896, 2001.
- [17] Q. F. Zhou, H. L. W. Chan, and C. L. Choy, "Synthesis and properties of ferroelectric $SrBi_2Ta_2O_9$ ", *J. Non Cryst. Solid*, Vol. 254, p. 106, 1999.
- [18] M. W. Cole, P. C. Joshi, M. H. Ervin, M. C. Wood, and R. L. Pfeffer, "The influence of Mg doping on the materials properties of $Ba_{1-x}Sr_xTiO_3$ thin films for tunable device applications", *Thin Solid Films*, Vol. 374, p. 34, 2000.
- [19] 강기청, "세라믹 유전체 공학", 학현사, p. 518.