

SBT 벌크 세라믹스 특성에 관한 연구

마석범, 이훈구
웅인송담대 전기설비과

A study on characteristics of SBT bulk ceramics

Suk-Bum Mah, Hoon-Goo Lee
Yong-In Songdam College

Abstract - 본 연구에서는 $SrBi_xTa_2O_9$ 세라믹스에서 Bi 몰비 변화에 대한 x를 2.4, 2.6, 2.8, 3.0, 3.2로 변화시키면서 소결 온도도 변화하여 각각에 대한 구조 및 전기적 특성을 조사하였다. Bi 부족과 이상과잉에 따라 이상의 결정구조를 보였으며 소결온도가 높아질수록 Bi 휘발이 많아져 정방성이 떨어졌다. Sr/Bi/Ta = 1/2.8/2 조성에서 가장 큰 정방성과 그레인 크기를 나타내었으며 그 조성에서 1000[°C]로 소결한 시료에서 유전율 132를 보였고 1050[°C]로 소결한 시료에서 잔류분극 1.134[$\mu C/cm$]을 나타내었다.

1. 서 론

강유전체 메모리(FRAM)는 강유전체 박막의 고속 분극 반전과 그 잔류분극을 이용한 고속 Read/Write가 가능한 불휘발성 메모리이다. 또한 저소비 전력, 고집적성, Read/Write 가능회수의 비약적인 향상으로 기존 메모리의 교체뿐 아니라 새로운 분야에서의 시장 개척이 기대된다(1). 또한, 강유전체 메모리가 각광을 받아 실용화 연구가 급속히 진전된 배경에는 강유전체의 성막, 재료기술 발전이 있었다. 강유전체의 성막 기술 중에서 최근에 각광을 받게된 박막 형성 방법 중에서 물리적 증착법인 PLD(Pulsed Laser Deposition)는 20여년 전부터 박막증착에 사용되어 왔으나, 최근에 고온 초전도체, 강유전체 및 세라믹 박막 등이 성공적으로 증착됨으로써 다성분계 박막 증착의 우수한 공정으로 인정받게 되었다(2).

강유전체 메모리용 재료로 지금까지는 Pb계의 박막을 사용하여 왔으나, Pb계의 주 문제점인 피로(fatigue) 현상의 해결이 관건이다. 이에 1992년 미국의 Symetrix 사는 피로 특성이 우수한 $SrBi_2Ta_2O_9$ 이라는 새로운 재료를 개발하여 전세계적인 주목을 받기 시작하였고 1995년부터 피로특성이 우수한 $SrBi_2Ta_2O_9$ 를 이용하여 데이터 인출/기록 10^{12} 회 이상의 교체 기록 수명을 발표하였으며 최근에는 10^{14} 회에 성공을 기록하였다. $SrBi_2Ta_2O_9$ 는 Bi 층상 구조로서 피로 특성이 우수하며 낮은 항전계, 저 유전율을 갖는다. $SrBi_2Ta_2O_9$ 에 대한 최근의 연구에서는 Bi의 과잉 첨가량에 따른 조성비와 소성 조건이 자발 분극 등 강유전체 특성과 유전 특성에 크게 영향을 미친다고 알려졌다. 특히 화학양론적인 조성비에 대한 잔류분극(P_r)이 그레인의 크기와 공공의 존재에 크게 의존하는 것으로 밝혀졌다. PLD 타겟(target)용 세라믹스 $SrBi_2Ta_2O_9$ 계법에서 과잉 첨가된 Bi가 소결도중 휘발되는 Bi성분의 손실을 보상하여 Bi결핍상의 석출을 억제하고 액상 소결하여 치밀화를 촉진시키고 강유전체의 중요한 특성인 잔류분극의 크기와 유전특성을 향상시키는 역할을 하는 것으로 알려져 있다(3).

따라서 본 연구에서는 박막 형성 방법 중에서 우수한 기법인 PLD기법으로 박막 형성을 위한 적당한 타겟 제조를 목표로 하여, Bi의 과잉 첨가량에 따른 조성비의 변화가 박막 형성 전에 타겟의 벌크(bulk)적인 유전특

성과 이력곡선 등 전기적 및 구조적 특성 그리고 시편의 소결특성에 미치는 영향을 고찰하여 이에 따라 화학양론적으로 적당한 조성비와 소성온도를 알아보고, PLD용 타겟으로의 사용 가능성을 검토하고자 한다.

2. 본 론

2.1 벌크 세라믹스 제작 및 측정

본 실험에서는 Bi 층상 구조의 강유전체인 $SrBi_xTa_2O_9$ 계 세라믹스를 선택하여 산화물 혼합법(Mixed Oxide Method)으로 원료 분말을 합성한 후 Bi 첨가량의 조절과 소성온도를 변화시켜 시편을 제작하였으며, 제조된 시편의 잔류분극과 항전계 등 전기적, 구조적 특성을 조사하였다. 또한 적정 조성비와 소성온도로 PLD용 타겟을 제작하여, PLD기법으로 박막을 증착한 후 박막의 구조적, 전기적 특성을 조사하였다. 시편의 제조를 위해 선택한 조성은 다음과 같으며 실험의 변수로 Bi의 몰비와 소성온도를 선택하였다.

$SrBi_xTa_2O_9$ (Sr/Bi/Ta=1/x/2, x=2.4, 2.6, 2.8, 3, 3.2)

시편의 조성에 따른 시료의 정확한 mol%를 구하기 위해 전자 천평을 사용하여 10^{-3} [g] 까지 평량하여 Bi의 몰비를 변화시켜, 지르코니아 불밀에서 아세톤을 혼합매체로 24시간 동안 혼합 분쇄 한다. 분쇄 후 오븐속에서 24시간 유지시켜 건조하였다. 건조가 완료된 시료는 알루미늄 도가니에 넣어 900[°C]에서 2시간 동안 하소하였다. 하소가 끝난 시료는 다시 지르코니아 불밀로 20시간 동안 재분쇄하고 5wt%의 PVA 수용액을 시료 무게의 5[%]첨가하여, 고르게 섞은 후 직경 13[mm] 몰드로 1[ton/cm²]의 압력으로 가하여 성형하였고, 성형 시편의 성형조제를 600[°C]에서 1시간 동안 열처리하여 완전 제거한 후, 공기중에서 이중 알루미늄 도가니에 넣어 Bi 분위기속에서 승화강 온도를 300[°C/h]로 하여 소성온도별로 3시간 동안 유지하여 소성하였다. 소성이 끝난 시편들은 연마제를 이용하여 1[mm] 두께로 연마하고 초음파 세척을 하여 건조한 후, 듀폰사 실버 페이스트 #7095를 도포하여 600[°C]에서 10분간 열처리하여 전극을 형성하였다. 그 다음 24시간이 경과한 다음 시편의 제특성을 측정하였다. 또한 벌크 세라믹스의 타겟으로의 응용 가능성을 확인하기 위하여 적정 조성비로 PLD용 타겟을 제작하고 박막을 제조하였다.

$SrBi_xTa_2O_9$ 계 세라믹스의 조성비와 소성온도에 따른 결정 구조와 격자 상수의 변화를 조사하기 위해 XRD(X-Ray diffraction)를 이용하여 분석하였다. 사용된 X선 회절기는 Philips사의 PM 1825 X-Ray Generator였고, $\lambda = 1.542\text{\AA}$ 인 $CuK\alpha$ 선을 사용하여 회절각 $2\theta \sim 60^\circ$ 사이에서 조사하였다. 조성에 따른 미세구조를 관찰하기 위해 표면이 연마된 시편을 10% HCL용액에 HF가 첨가된 에칭 용액내에서 화학적 에칭을 한 후 광학 현미경으로 관찰하였다. 또한 제작된 시편의 원소들의 조성비를 조사하기 위해 시편을 JEOL JEC-530 Carbon Coater로 carbon 코팅한 후

JOEL JSM-6340F Field Emission Scanning Electron Microscope으로 EDS(Energy Dispersive Spectroscopy)분석을 하였다.

일반적으로 강유전체는 조성을 이루는 원소의 양과 종류에 따라 상전이 온도가 변하며, 상전이 온도에서 유전상수의 최고값을 가지는 전형적인 현상을 나타내므로, 온도 변화에 따른 유전상수를 측정하여 상전이 온도를 밝힐 수 있다. 그러므로 강유전체가 상유전체로 전이하는 상전이 온도를 찾기 위해 온도에 따른 유전상수의 변화를 측정하였다. 유전상수의 온도의존성은 Impedance Analyzer(HP4192A)를 사용하여 100[kHz]에서 정전용량을 측정하여 환산하였다. 또한, RT66A를 이용하여 시편의 P-E 이력 곡선을 관찰하여, 잔류분극과 항전계를 측정하였다.

2.2 구조특성

그림 1은 소성 온도 1000°C에서 3시간 동안 소결한 것으로 Bi 몰비의 증가에 따른 X선 회절 모양을 나타낸 것이다. $SrBi_xTa_2O_9$ 는 다결정질의 구조로서, (115)면의 피크가 주 피크인데, 모든 조성에서 뚜렷한 (115)면의 피크를 나타내고 있어서, 결정화가 잘되었고 다결정질의 상(polycrystalline phase)으로 구성되었다는 것을 보여 주고 있다[4]. Sr/Bi/Ta 조성비 1/2.8/2에서 Bi를 더 첨가함에 따라 pyrochlore상이 점점 증가하여 Sr/Bi/Ta 조성비 1/3.2/2에서 최고 피크를 나타내고 있다. 또한 조성비 1/2.4/2에서도 pyrochlore상이 크게 나타난 것으로 보아 페로브스카이트 상의 조성비와 비교하여 Bi의 부족과 이량 과잉이 pyrochlore상을 생성토록 한 것 같다. X선 회절 분석 결과 Bi 몰비를 증가시킬 때 결정구조의 정방성(tetragonality)은 증가하다가 Sr/Bi/Ta 조성비 1/2.8/2에서 4.5348로 최대치를 갖고 그 이상 증가시에는 감소하였다. 이것으로 보아 Bi 40 mol%가 과잉첨가에 따른 고용 한계라고 생각된다. 또한 pyrochlore상 피크의 성장 경향과 비교하여도 일치하며, Bi 과잉 첨가시 격자 상수의 변화는 SBT의 조성비의 변화가 격자상수(crystal lattice)에 영향을 미친다는 보고와도 일치한다[5].

그림 2는 Sr/Bi/Ta 조성비 1/2.8/2의 소성 온도 변화에 따른 X선 회절 모양이다. 소성 온도에 대한 각 면의 피크에 대한 변화는 거의 없으나 결정구조의 정방성이 소성 온도가 높아질수록 감소했다. 이는 휘발성이 심한 Bi가 높은 소성 온도에서 휘발이 많이 되었기 때문인 것으로 보인다.

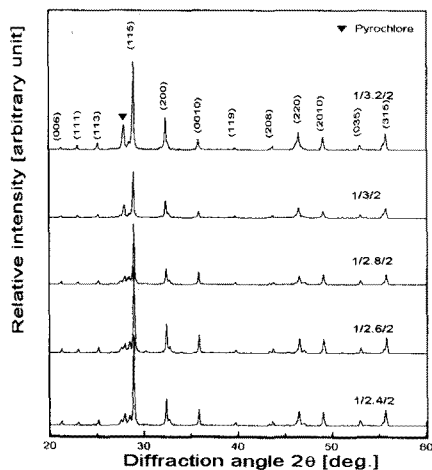


그림 1 Bi 몰비의 변화에 따른 X선의 회절 모양
Fig. 1 XRD Patterns with excess Bi amount

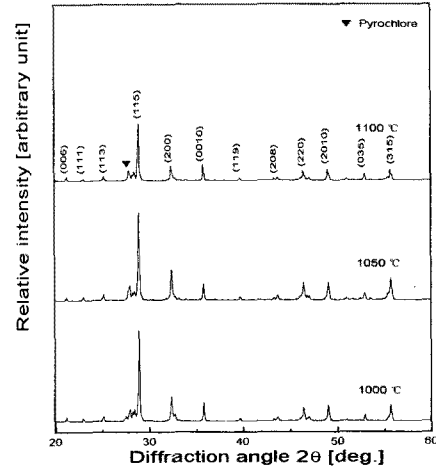


그림 2 소성 온도에 따른 X선 회절 모양
Fig. 2 XRD Patterns according to the sintering temperature

그림 3은 Bi 첨가량과 소성 온도에 따른 미세구조의 변화를 보기 위해 주사전자 현미경(SEM)으로 촬영한 결과를 나타낸 것으로, 길쭉한 주상 구조와 막대기 모양 구조의 그래인을 가짐을 알 수 있다. 그림에서 Bi 몰비 증가로 인해 1/2.8/2 조성까지는 그래인의 크기가 증가하다가 그 이상 몰비의 증가시에는 감소하는 것으로 나타났다. 40 mol%이하의 Bi 첨가로 인해서는 소결 도중 형성된 액상이 그래인의 성장을 도와준 것으로 볼 수 있으며, 40 mol%이상의 Bi 첨가시에는 고용한계를 넘는 Bi가 그래인의 경계에 편석되어 그래인의 성장을 억제하는 것으로 생각된다.

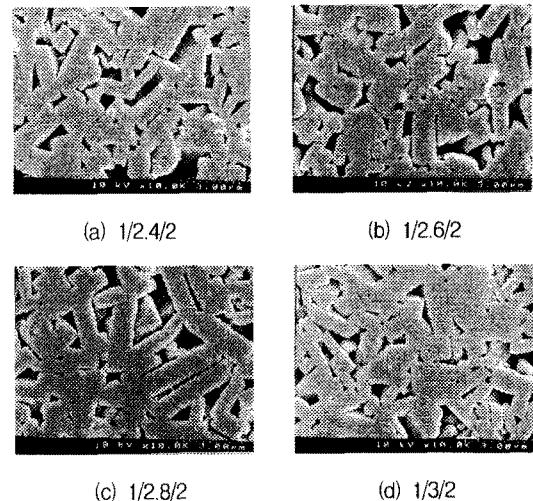


그림 3 Bi 몰비의 변화에 따른 미세구조의 변화(소성 온도 1000°C)
Fig. 3 Microscopic structures with excess Bi amount

표 1은 1/2.6/2와 1/2.8/2 조성의 시편에 대한 EDS(Energy Dispersive Spectroscopy)분석 결과이다. 두 시편의 소성 조건은 1100°C, 3시간이다. 1/2.6/2 조성의 Bi 휘발량은 4.48[%]이고 1/2.8/2 조성의 Bi 휘발량은 6.69[%]로서 둘 다 Bi 휘발된 비율이 높으며 1/2.8/2 조성의 Bi 휘발 비율이 더 높았다. 또한 두 조성이 10 mol%의 Bi 첨가량의 차이로 만들었으나 제조된 시편의 Bi 비율의 차이는 0.7[%]정도로 차이가 적었다. 이것으로 보아 SBT 세라믹스의 제조에서는 Bi의 휘발이 심하며 특히 고온에서 그 정도

가 심하다는 것을 알 수 있었다.

표 1 1/x/2 조성으로 제작된 시편의 EDS 분석
Table 1 EDS analysis of 1/x/2 specimens

	1/2.8/2 specimen		1/2.6/2 specimen	
	starting atomic%	atomic% of specimen	starting atomic%	atomic% of specimen
Sr	17.86	20.37	17.24	20.17
Ta	35.71	35.28	34.48	34.78
Bi	46.43	44.35	48.28	45.05

2.3 유전특성

그림 4는 Bi가 첨가된 시편에 대한 온도에 따른 유전상수의 변화이다. 온도가 상승함에 따라 유전율이 완만하게 상승하다가 상전이 온도(T_c) 부근에서 급격히 상승하고, 그 이상의 온도에서는 감소하는 Curie-Weiss 법칙을 따르는 강유전체 특성을 나타내고 있다. $Sr_2Ta_2O_7$ 의 상전이 온도는 $-80^\circ C$ 이고, Bi가 결합된 $SrBi_2Ta_2O_9$ 의 상전이 온도는 벌크에서는 $335^\circ C$ 로 알려져 있는데, Bi와의 결합이 상전이 온도를 높이는 역할을 하였다고 볼 수 있다[6]. 그림에서 알 수 있듯이 Bi가 첨가됨에 따라 상전이 온도가 고온으로 이동하는 것을 볼 수가 있다. 또한 상전이 온도에서의 유전상수는 1/2.8/2 조성에서 제일 높게 나타났다.

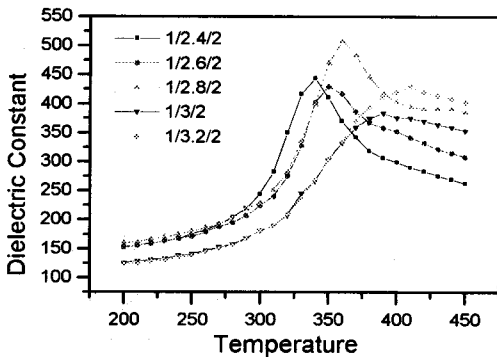


그림 4 Bi 몰비의 변화에 따른 유전상수의 온도 의존성
Fig. 4 Temperature dependence of dielectric constant with excess Bi amount

그림 5는 제조된 시편의 상온에서의 유전상수로 각 소성온도 모두 Bi 조성비가 2.8일 때 최대값을 가지며 소성온도가 낮을수록 큰 값을 갖는 것을 알 수 있다. 이것으로 보아 Bi 몰비 2.8미만에서는 Bi 부족으로 인한 결핍으로, 2.8을 초과해서는 과잉 Bi로 인한 이상의 형성으로 치밀화가 적절히 진행되지 못하여 유전특성이 저하되는 것으로 판단된다. 또한 유전상수의 경향이 그레인 크기의 변화 경향과 일치하는데 이것으로 보아 Bi 20~40 mol% 첨가시 그레인 크기가 증가하고 그레인 경계 volume이 감소하면서, 이에 따라 큰 유전율의 그레인은 그레인 경계 내에 존재하는 낮은 유전율의 2차상(impurities, excess Bi)의 영향을 덜 받게 되어 그레인 크기의 증가에 따라 유전상수의 증가가 일어난다고 사료된다. 40 mol%를 초과하여 Bi를 첨가할 때에는 그레인의 크기가 감소함에 따라 유전상수도 감소하였다. 그리고 낮은 온도에서 휘발되는 Bi로 인해 소성온도가 높아 질수록 Bi의 휘발이 심화되는데, 따라서 소성온도가 높아짐에 따라 Bi의 결핍으로 유전상수가 저하되는 것 같다[7].

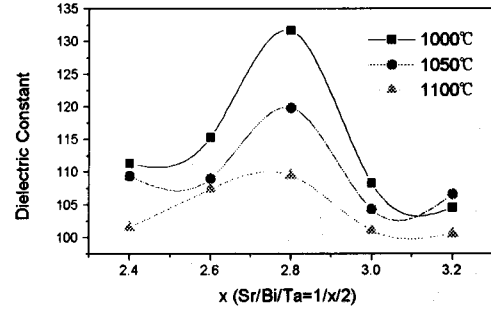


그림 5 유전상수의 변화
Fig. 5 Variations of dielectric constant at room temperature

그림 6은 유전상수의 온도의존성과 마찬가지로 전형적인 강유전체의 특성인 이력곡선(hysteresis)를 측정 한 것으로, Bi 몰비 2.6에서 점점 이력곡선의 모양을 갖추어 가다가 몰비 2.8에서 뚜렷히 이력곡선의 모양을 갖게 되며 Bi 몰비가 3과 3.2로 증가하면서 이력곡선의 전형성이 감소하는 경향을 보이고 있다. 이로써 Sr/Bi/Ta의 조성비가 1/2.8/2일 때 화학양론적으로 양호하여 뚜렷한 강유전체 특성이 나타나는 것을 알 수 있다. 잔류분극은 모든 소성온도에서 조성비 1/2.8/2에서 최고치를 이루고 있는데, 이것으로 보아 Bi 몰비가 2.8일 때 화학양론적으로 적당한 조성비를 이루며, 이는 유전상수의 특성과 유사하며 그레인 크기의 변화 경향과도 유사하다.

그림 7은 1/2.8/2 조성의 시편을 소성온도 1000, 1050, 1100[$^\circ C$] 세 단계로 나누어 소결한 것에 대한 이력곡선으로 1050[$^\circ C$]에서 가장 큰 값의 잔류분극을, 1100[$^\circ C$]에서 가장 큰 항전계를 갖는 것을 알 수 있다. 이로써 1/2.8/2 조성은 소성온도를 달리해도 뚜렷한 강유전체 이력특성을 나타내는 것을 알 수 있다. 1050[$^\circ C$]에서 $1.134 [\mu C/cm^2]$ 라는 최대치를 가지는데, 이것은 1050[$^\circ C$]에서 치밀하게 소결되면서 적절히 이루어진 그레인의 성장이 그 이유라고 생각된다. 항전계도 마찬가지로 Bi 몰비 2.8 부근에서 최대 피크치를 가지며, 소성온도가 올라 가면서 증가하는 경향을 보이고 있다. 최대 항전계는 조성비 1/2.8/2와 1100[$^\circ C$]에서 $17.89 [kV/cm]$ 이다.

2.4 박막특성

각 벌크 시편의 여러 특성을 검토한 결과, 여러 조성 중 특성이 우수한 Sr/Bi/Ta=1/2.8/2 조성을 택하여 소성 조건 1000[$^\circ C$], 3시간으로 타겟을 제작하여, PLD(Pulsed Laser Deposition)기법으로 박막을 형

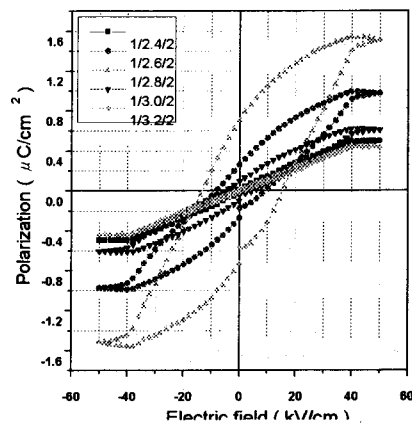


그림 6 Bi 몰비의 변화에 따른 이력 곡선
Fig. 6 Hysteresis loop with excess Bi amount

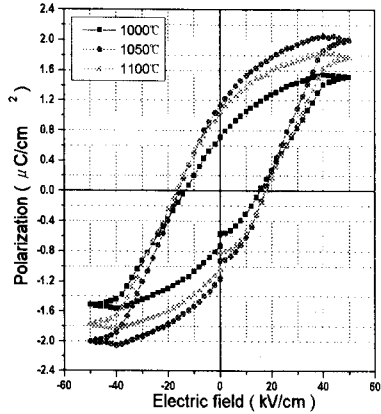


그림 7 소성온도에 따른 이력곡선
Fig. 7 Hysteresis loop according to the sintering temperature

성한 후 벌크와의 구조적, 전기적 특성을 비교하기 위해 XRD(X-Ray diffraction)분석과 이력곡선을 조사하여 벌크 상의 특성이 박막 증착 후 어떻게 변화하는지를 고찰하였다. 먼저, 유전상수를 비교해 보면 벌크상에서는 131.63인데 반해, 박막의 유전상수는 225.89로서 벌크보다 증가하였다. 그림 8은 1/2.8/2 조성의 벌크 타겟으로 제작한 박막의 이력 곡선이다. 그림 8와 비교하면 두 시편 모두 양호한 강유전체 특성을 보이고 있는데, 잔류분극은 비슷하나 항전계는 박막이 더 큰 것으로 나타났다. 이것으로 보아 1/2.8/2조성의 박막이 벌크상의 전기적 특성을 그대로 나타내며 앞으로 박막 증착에 대한 연구가 더 진행된다면 더 우수한 강유전 특성을 보일 수 있다고 조사되었다.

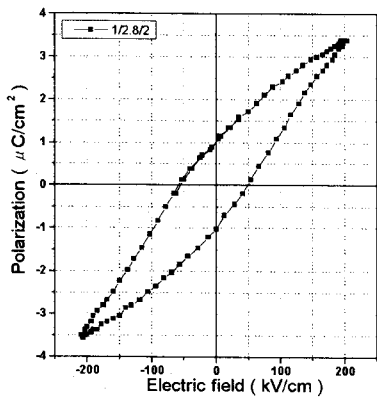


그림 8 1/2.8/2 박막의 이력곡선
Fig. 8 Hysteresis loop of 1/2.8/2 film

3. 결 론

본 연구에서는 $\text{SrBi}_x\text{Ta}_2\text{O}_9$ 계 세라믹스에 대하여 Bi 몰비를 달리하여 Sr/Bi/Ta의 조성비를 1/2.4/2, 1/2.6/2, 1/2.8/2, 1/3/2, 1/3.2/2로 변화시키고, 소성온도를 달리하여 그에 따른 전기적, 구조적 특성을 조사하고 최종적으로 강유전적 특성이 우수한 조성을 선택하여 타겟을 제작하고 PLD(Pulsed laser deposition)기법으로 박막을 증착하여 강유전 박막제조용 타겟으로의 가능성을 조사하였다.

$\text{SrBi}_x\text{Ta}_2\text{O}_9$ 계 세라믹스에서 Bi 몰비가 증가함에 따라 결정구조는 정방성이 증가하다가 1/2.8/2조성에서 최대치 4.5348를 갖고 다시 감소하였고, 소성온도를 증가시키면 정방성이 감소하였다. $\text{SrBi}_x\text{Ta}_2\text{O}_9$ 계 세라믹스에서 Bi 몰비 변화에 따른 그레인 크기를 측정

한 결과 조성비 1/2.8/2에서 그레인의 크기가 가장 크며 그 조성에서 잔류분극과 유전상수와 같은 유전특성이 가장 좋았다.

EDS(Energy Dispersive Spectroscopy)분석 결과, 1100(°C)로 소성한 1/2.8/2조성에서 Bi 휘발량은 6.69[%]로서 Bi의 휘발이 크게 일어났으며 높은 소성 온도에서 휘발정도가 심한 것을 알 수 있었다.

Bi 몰비의 변화에 대한 유전상수의 변화는 그레인의 크기 및 결정 구조의 정방성의 경향성과 유사하며 상온에서의 유전상수는 소결온도 1000(°C)인 시편에서 대체로 큰 값을 나타냈으며, 그 소결온도에서 Bi 몰비가 2.8일 때 131.63이라는 최대 유전상수를 얻었다.

이력곡선(hysteresis)은 1/2.8/2 조성에서 강유전성이 가장 뚜렷히 나타났으며, 그 조성에서 소성온도 1050(°C)일 때 잔류분극이 1.134[$\mu\text{C}/\text{cm}^2$]로서 가장 높았고, 이는 미세구조의 경향성과도 유사하다. 항전계는 1/2.8/2 조성과 소성온도 1100(°C)에서 17.89[kV/cm]라는 최대값을 가졌다.

1/2.8/2 조성의 박막과 벌크를 비교해 본 결과 유전상수는 벌크가 131.63이고 박막이 225.89로서 박막이 높게 나왔고 이력곡선의 비교는 잔류분극은 비슷하나 항전계는 박막이 더 큰 것으로 조사되었다.

위의 결과로부터 $\text{SrBi}_x\text{Ta}_2\text{O}_9$ 계 세라믹스에 대해 Bi 몰비를 달리하여 조성비를 변화시켜 본 결과 1/2.8/2 조성에서 강유전 특성이 가장 우수한 것으로 나왔으며 특히 그 조성에서 소성온도 1050(°C)에서 잔류 분극의 크기가 가장 큰 것으로 나타났다. 이로써 1/2.8/2조성으로 1050(°C)에서 소결한 SBT 세라믹스가 FRAM용 박막 증착을 위한 PLD용 타겟으로 적당한 것으로 조사되었다.

[참 고 문 헌]

- [1] T.Mihara et al, "Characteristics of Bismuth layered $\text{SrBi}_2\text{Ta}_2\text{O}_9$ thin film capacitors comparison with $\text{Pb}(\text{Zr},\text{Ti})\text{O}_3$ ", Jpn.J.Appl.Phys, Vol.34, No.9B, pp.5233-5239, 1995
- [2] 이상렬, "펄스 레이저 증착법의 원리와 응용" 전기학회지 제45권, p.17,1996
- [3] Takchiro Noguchi, Takashi Hase and Yoichi Miyasaka, "Analysis of the Dependence of Ferroelectric Properties of Strontium Bismuth Tantalate(SBT) Thin Films on the Composition and Process Temperature", Jpn. J. Appl. Phys. Vol.35, 1996
- [4] Yasuyuki Ito, Maho Ushikubo, Seiichi Yokoyama, Hironori Matsunaga, Tsutomu Atsuki, Tadashi Yonezawa and Katsumi Ogi "New Low Temperature Processing of Sol-Gel $\text{SrBi}_2\text{Ta}_2\text{O}_9$ Thin Films" Jpn. J. Appl. Phys. Vol.35, pp.4925-4929, 1996
- [5] Takehiro noguchi, Takashi Hase, and Yoichi Miyasaka "Temperature Dependence of Ferroelectric Properties of $\text{SrBi}_2\text{Ta}_2\text{O}_9$ Thin Films" Integrated Ferroelectrics, Vol.17, pp.57-65, 1997
- [6] B.Jaffe, W.R.Cook,Jr., and H.Jaffe, Piezoelectric Ceramic, Academic Press, New York, pp.224-229, 1971
- [7] Koji Watanabe, Masachiro Tanaka, Nicolas Nagel, Kenji Katori, Masataka Sugiyama, Hisayoshi 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