

솔-젤법을 이용한 Bismuth Layered Structure를 가진 강유전성 박막의 제조 및 특성평가에 관한 연구

(I. 급속열처리와 후열처리온도가 MOD법에 의해 제조된 $Sr_{0.8}Bi_{2.4}Ta_2O_9$ 박막의
유전 및 전기적인 특성에 미치는 효과)

주진경 · 송석표 · 김병호
고려대학교 재료공학과
(1998년 7월 25일 접수)

The Preparation and Characterization of Bismuth Layered Ferroelectric Thin Films by Sol-Gel Process

(I. Effects of Rapid Thermal Annealing and Post Annealing Temperatures on Dielectric and
Electrical Properties of MOD Derived $Sr_{0.8}Bi_{2.4}Ta_2O_9$ Thin Films)

Jin-Kyung Joo, Seok-Pyo Song and Byong-Ho Kim

Dept. of Materials Sci. and Eng., Korea Univ.

(Received July 25, 1998)

요 약

강유전성 $Sr_{0.8}Bi_{2.4}Ta_2O_9$ 박막 제조용 코팅용액을 MOD(Metalorganic Decomposition)법으로 제조하였다. 급속 열처리온도의 변화에 따른 layered perovskite 상으로의 상전이를 XRD와 SEM을 사용하여 관찰하였다. 그 결과 layered perovskite 상이 740°C 이상의 온도에서 생성되는 것을 알 수 있었다. 박막의 완전한 layered perovskite 상으로의 결정화를 위하여 800°C의 산소분위기에서 1시간 동안 열처리 해주었다. 이렇게 제조된 박막은 상부전극 증착 후에 후열처리를 하지 않아도 우수한 P-V 특성을 나타내었다. 후열처리를 하지 않은 박막의 비대칭적인 항전 계값이 전극과 SBT 박막의 계면 특성차이에서 기인한다는 것을 누설전류밀도 측정으로 확인하였고 후열처리를 통하여 이를 극복할 수 있었다. 후열처리 온도 800°C, ± 3 V, ± 5 V에서 잔류분극값($2P_r$)은 각각 6.7, 9 $\mu\text{C}/\text{cm}^2$ 누설전류밀도는 각각 3.73×10^{-7} 및 1.32×10^{-6} A/cm²이었다. 한편 SBT 박막의 표면에 존재하는 bismuth의 결합형태를 XPS를 통해 분석하였다.

ABSTRACT

Ferroelectric $Sr_{0.8}Bi_{2.4}Ta_2O_9$ stock solutions were prepared by MOD(Metalorganic Decomposition) process. The phase transformation for the layered perovskite of the SBT thin films by changing RTA(Rapid Thermal Annealing) temperatures from 700°C to 780°C were observed using XRD and SEM. Layered perovskite phase began to appear above 740°C, and then SBT thin films were annealed at 800°C for 1hr for its complete crystallization. The specimens showed well shaped hysteresis curves without post annealing that carried out after deposition of Pt top electrode. The SBT thin films showed the asymmetric ferroelectric properties. It was confirmed that the properties were caused by interface effect to SBT and electrode by leakage current density measurement and asymmetric ferroelectric properties reduced by post annealing. At post annealing temperature of 800°C, remanant polarization values ($2P_r$) were 6.7, 9 $\mu\text{C}/\text{cm}^2$ and those of leakage current densities were 3.73×10^{-7} , 1.32×10^{-6} A/cm² at 3, 5 V, respectively. Also bismuth bonding types of SBT thin film surface were observed by XPS.

Key words : MOD, SBT, RTA, Post annealing, Layered perovskite, Fluorite

1. 서 론

미세전자공학 측면에서 넓은 범위의 적용 잠재력을 가진 강유전체 박막은 최근 주목할 만한 발전을 이루어 왔으며 이러한 강유전체 산화물 박막을 고집적 DRAM(High Density Dynamic Random Access Memory),¹⁾ 적외선 센서,²⁾ 낮은 작동 전압을 가지는 FRAM(Ferroelectric Random Access Memory)³⁾ 등에 응용하려는 연구도 함께 진행되어 왔다. FRAM의 캐패시터에 사용되는 물질로 Pb계열의 PZT가 높은 큐리 온도, 낮은 공정온도 그리고 높은 잔류분극적인 측면에서 주목을 받았으나⁴⁾ Pt를 전극으로 사용하면 약 10^8 read/write cycles 이후에 심각한 피로현상이 나타난다고 알려져 있다.^{5,6)} 산화물전극을 사용하여 피로특성을 향상시키려는 노력이 진행중이지만 집적도를 높이는 경우 구조가 복잡해져 공정의 적용에 한계가 있다는 단점이 있다. 따라서 최근에는 SBT(Strontium Bismuth Tantalate)와 같이 layered perovskite 구조를 가지는 물질에 대한 관심이 높아지고 있다. 이 물질은 bismuth oxide 층이 pseudo-perovskite 층 사이에 교대로 존재하는 구조로 bismuth oxide 층이 전자와 결합의 sink 역할을 하여 피로특성이 우수하다고 알려져 있다.⁷⁾ 또한 이 물질은 낮은 항전계값과 막두께에 따른 잔류분극값의 변화가 작기 때문에 고집적화에 유리하다는 장점을 가지고 있다. 그러나 이 물질은 layered perovskite 상으로의 상전이 온도가 약 800°C 정도로 높기 때문에 현재 반도체 공정에 적용하기에는 곤란하다는 단점이 있어 최근에는 상전이 온도를 낮추려는 연구가 진행중이다.^{8,9)}

본 연구에서는 솔-젤법과 같은 액상법인 MOD(Metalorganic Decomposition)법¹⁰⁾을 이용하여 SBT 박막용 용액을 합성하고 스핀 코팅법을 이용하여 SBT 박막을 제조하였다. SBT의 조성은 유전적 성질이 우수하게 나타나는 $\text{Sr}_{0.8}\text{Bi}_{2.4}\text{Ta}_2\text{O}_6$ 로 고정하였다. MOD법에 의해 제조된 SBT 박막은 치밀하지 못한 미세구조를 가져 상부전극 증착시에 SBT 박막대로 전극의 침투효과가 나타나므로 전극을 증착시킨 후에 열처리를 하여 전극의 재결정화를 시키지 않으면 전기적 특성이 매우 나쁘다고 알려져 있다.¹¹⁾ 따라서 급속열처리 공정을 도입하여 치밀한 미세구조를 갖는 박막을 제조하고자 하였다. 급속열처리 온도의 변화에 따른 SBT 박막의 유전 및 전기적 특성을 조사하였고 후열처리 온도의 변화에 따른 유전 및 전기적 특성도 관찰하였다.

2. 실험방법

2.1. 코팅 용액의 합성 및 SBT 박막의 제조

코팅용액을 합성하기 위해 strontium과 bismuth의 출발물질로 각각 carboxylate 계열의 화합물인 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 tantalum의 출발물질로 tantalum ethoxide($\text{Ta}(\text{OC}_2\text{H}_5)_5$)를 사용하였다. 수분에 민감한 tantalum ethoxide를 안정화시키고 또한 용매의 단순화를 위하여 2-ethylhexanoic acid를 용매로 사용하였다.

합성된 코팅용액은 각 금속의 side group이 같고 한가지의 용매를 가지는 코팅에 적합한 성질을 가졌다. 0.2 M의 농도를 가지는 코팅용액을 3000 rpm에서 40초 동안 스핀 코팅하면 1회에 약 1000 Å 정도의 두께를 가지므로 중간열처리와 급속열처리를 2회 반복한 후에 최종 열처리를 하여 약 2000 Å의 두께를 가지는 SBT 박막을 제조하였다.

Fig. 1은 열중량 및 시차주사열량 분석을 위한 SBT 젤분말 및 SBT 박막을 얻기 위한 흐름도이다. 기판은 Pt/SiO₂/Si를 사용하였고 Pt와 SiO₂의 접착성을 향상시키기 위해 400°C에서 열처리를 해주었다. Pt/SiO₂/Si 기판 위에 스핀코팅한 후에 TG/DSC분석(Setaram 17-1992) 결과를 토대로 400°C에서 중간열처리를 해주었다. Layered perovskite 상의 핵생성을 촉진시키기 위해 급속열처리를 하였다. 이 과정을 한번 더 반복한 후에 산소 분위기의 800°C에서 최종 열처리를 하였고 상부전극을 증착한 후에 후열처리를 통하여 SBT 박막을 제조하였다. 급속열처리와 후열처리 온도에 따라 XRD 분석(Philips, PW1825)을 하였다.

2.2. 박막의 미세구조 분석 및 유전 및 전기적 특성 분석

급속열처리온도에 따른 layered perovskite의 상전이 정도를 관찰하기 위해 급속열처리 온도에 따라 SEM(JEOL, JSM-6330F)을 이용하여 박막의 표면을 관찰하였다.

박막의 전기적인 특성을 분석하기 위하여 스퍼터로 상부전극인 Pt를 증착한 후에 후열처리를 하지 않은 시편과 후열처리 온도가 각각 400, 600, 800°C인 시편으로 나누어 박막의 미세구조 변화와 유전 및 전기적 특성을 관찰하였다. 후열처리를 하지 않은 시편은 급속열처리 온도를 변화시켜 측정을 하였고 후열처리를 한 시편은 급속열처리 온도를 780°C로 고정하였다. 박막의 이력곡선을 측정하기 위해 RT66A(Radiant Technologies, Inc)를 사용하였으며 0~10 V의 인가전압 범위에서 누설 전류밀도를 High voltage source measurement unit(Keithley, Keithley237)를 이용하여 측정하였다. 상부전극과 하부전극의 SBT 박막과의 계면특성차이를 관찰하기 위해 후열처리 온도의 변화에 따라 상부전극

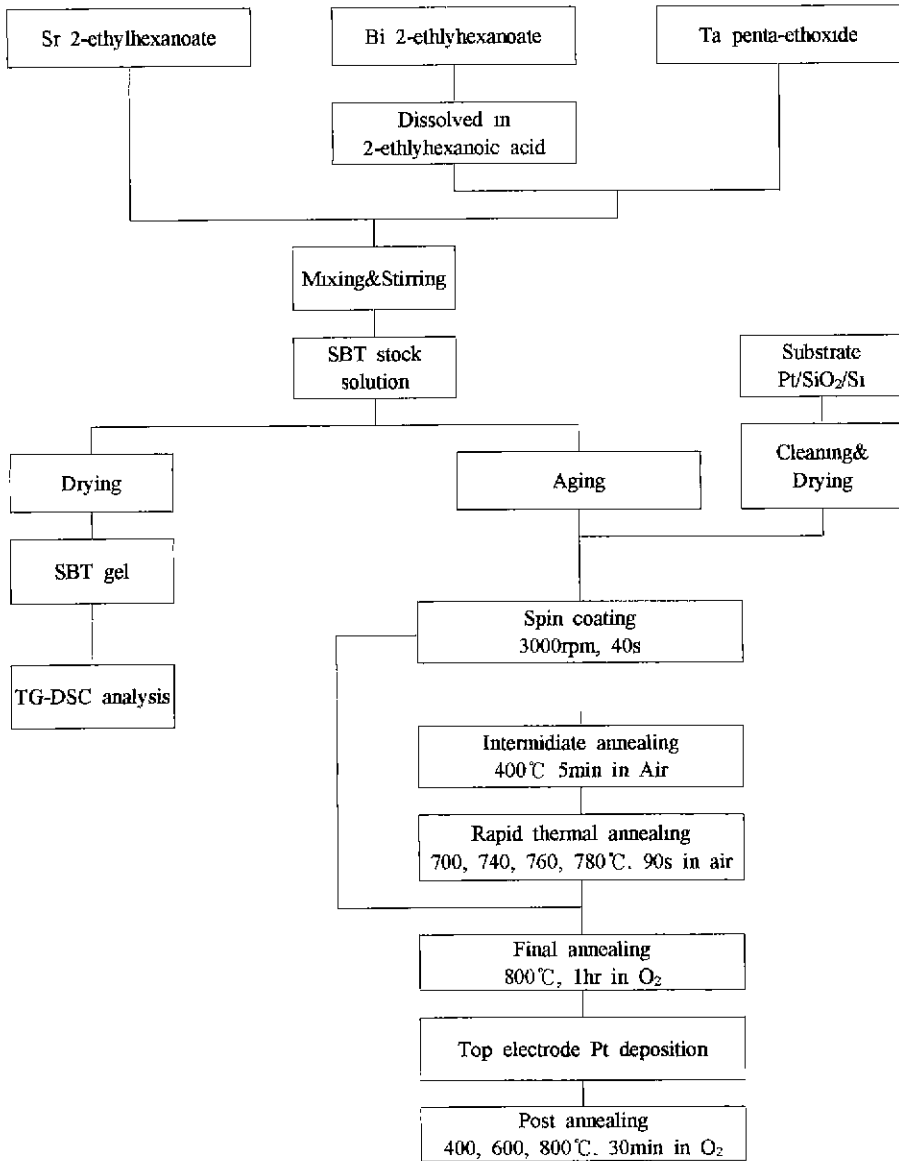


Fig. 1. Experimental procedure for preparation of SBT thin films.

에 각각 플러스, 마이너스 바이어스를 인가하여 측정하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1. SBT 박막의 XRD 분석

SBT 용액을 100°C의 oven에서 강제로 젤화 시켜 얻은 분말을 대기중에서 5°C/min의 승온속도로 열중량 및 시차주사열량 분석을 하였으며 그 결과를 Fig. 2에 나타내었다. 400°C 부근에서 거의 모든 유기물의 분해가 일

어난 것으로 보이며 이로부터 중간열처리 온도를 400°C로 결정하였다.

Fig. 3은 SBT 박막의 급속열처리 온도에 따른 XRD 분석 결과이다. 700°C에서 급속열처리한 박막에서는 대부분이 fluorite 상으로 존재하는 것으로 보이며¹²⁾ 740°C 이상의 온도에서 급속열처리한 박막에서는 그림에서 보는 바와 같이 (105) 피크의 왼쪽에 약간의 fluorite상이 잔존하는 것을 관찰할 수 있으며 또한 급속열처리 온도가 높아짐에 따라 layered perovskite 상이 생성되는 것을 관찰할 수 있었으나 fluorite 상이 잔존하

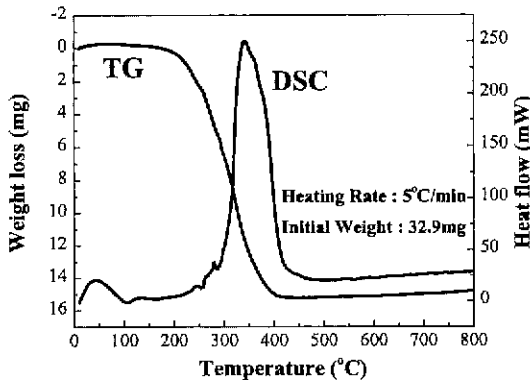


Fig. 2. TG-DSC curves of SBT gel powders.

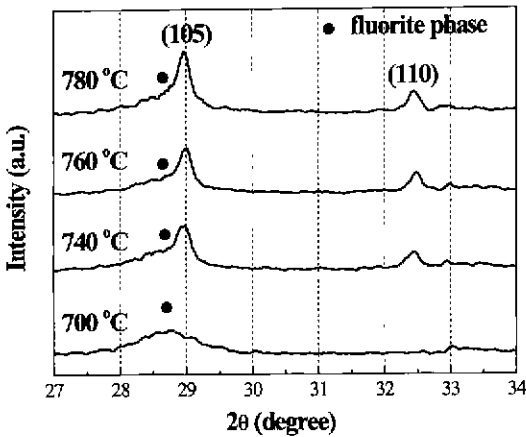


Fig. 3. XRD patterns of SBT thin films annealed at various RTA temperatures before final annealing at 800°C.

는 것으로 보아 완전한 layered perovskite 으로의 상전이는 이루어지지 않은 것으로 생각된다.

Fig. 4는 각각 다른 온도에서 급속열처리를 한 후 800°C의 산소분위기에서 1시간 열처리한 박막의 XRD 분석(step mode) 결과이다. 대부분 layered perovskite 으로 전이 된 것을 관찰할 수 있다. 급속열처리 온도가 700°C인 박막의 경우에는 잔존하는 fluorite상이 780°C보다 더 많이 관찰되며, (105)피크 오른쪽에 Bi₂Pt 피크도 관찰된다. Fluorite 상에서 layered perovskite 상으로 전이되기 위해서는 bismuth의 확산이 있어야 한다고 알려져 있는데¹³⁾ 이러한 확산과정에서 bismuth가 전극과 반응하여 Bi₂Pt를 생성시킨 것으로 생각된다.

3.2. 박막의 미세구조 관찰

Fig. 5는 급속열처리온도가 780°C인 SBT 박막의 미

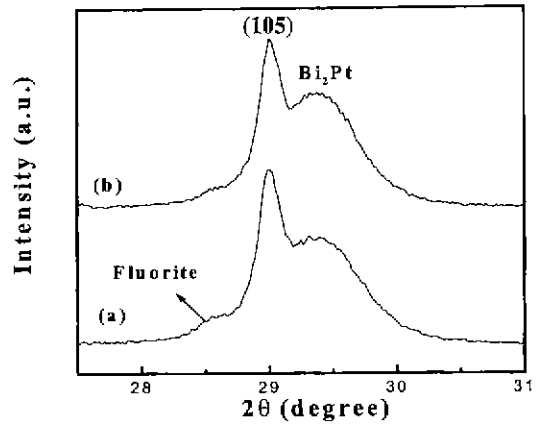


Fig. 4. XRD patterns of SBT thin films annealed at different RTA temperatures after final annealing at 800°C; (a) 700°C and (b) 780°C.

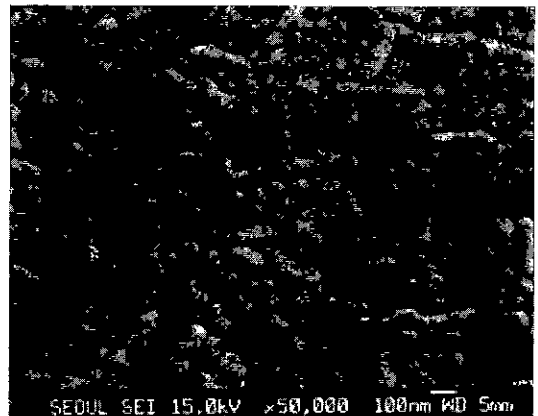


Fig. 5. Microstructure of SBT thin film annealed at RTA temperature 780°C after final annealing at 800°C.

세구조 사진이다. 사진으로부터 SBT 박막의 결정성장은 random한 방향으로 성장한 것을 알 수 있다.¹⁴⁾ 입경이 작은 것이(약 50 nm 이하) fluorite 상¹⁵⁾이라고 알려져 있으며 급속열처리온도가 780°C인 박막에서도 여전히 잔존하고 있음을 관찰 할 수 있다.

3.3. SBT 박막의 유전 및 전기적 특성 관찰

Fig. 6은 급속열처리 온도에 따른 SBT 박막의 P-V 곡선이다. 급속열처리 온도가 증가함에 따라 잔류분극값이 증가하는 것을 볼 수 있는데 이는 박막 내에 잔존하는 fluorite 상이 급속열처리 온도가 증가함에 따라 layered perovskite 상으로 전이하는 것에 따른 것이라고 생각된다. Fluorite 상이 현저하게 줄어드는 740°C 이상의 박막은 거의 비슷한 잔류분극값을 가지며 flu-

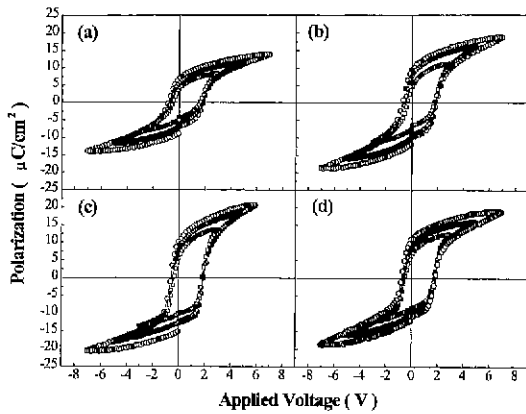


Fig. 6. P-V curves of SBT thin film annealed at various RTA temperatures after final annealing at 800°C; (a) 700°C, (b) 740°C (c) 760°C and (d) 780°C.

orite 상이 많은 700°C의 경우에는 다른 박막에 비해 작은 잔류분극값을 가지는 것을 알 수 있다. 주목할 점은 모든 박막의 항전계값이 비대칭적인 값을 가진다는 것인데 이는 SBT 박막과 상부, 하부전극간의 계면특성이 다르다는 것을 간접적으로 보여준다. 이는 급속열처리와 최종열처리 과정에서 휘발성이 강한 bismuth의 휘발에 의해 생성된 산소 공공이 SBT 박막의 표면에 더 많이 생성되어 SBT 박막과 상부, 하부전극간의 계면 특성 차이가 발생한 것으로 생각된다.

Fig. 7은 급속열처리 온도를 780°C로 고정하고 후열처리 온도를 달리하여 제조한 SBT 박막의 P-V 결과이다. 후열처리 온도가 증가함에 따라 박막의 잔류분극값이 감소하는 것을 관찰 할 수 있는데 이는 후열처리 온

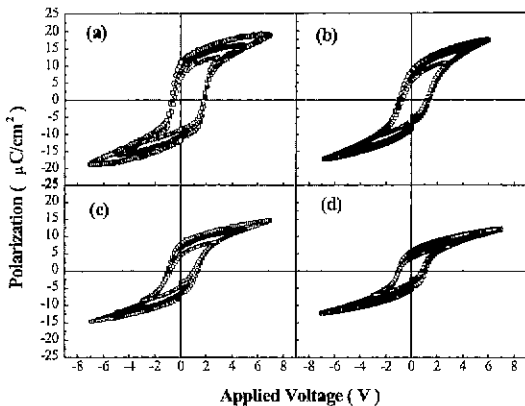


Fig. 7. P-V curves of SBT thin films annealed at various post-annealing temperatures; (a) No post annealing, (b) 400°C, (c) 600°C and (d) 800°C.

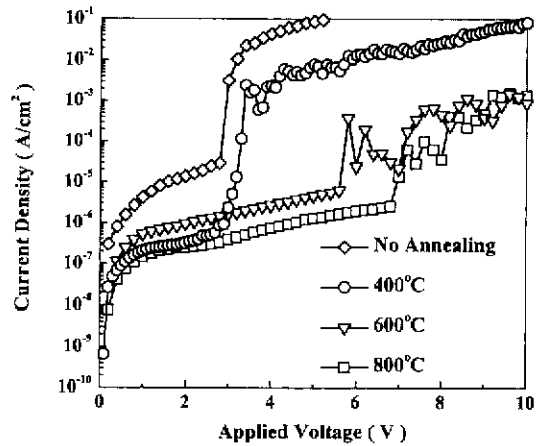


Fig. 8. Leakage current density characteristics of SBT thin films annealed at various post-annealing temperatures.

도가 증가함에 따라 bismuth가 Pt 쪽으로 확산 하여 Bi₂Pt를 형성하고 또한 bismuth의 휘발이 증가하여 박막내의 bismuth가 부족한 조성이 되어 잔류분극값이 감소하는 것으로 생각된다.^{11,12)} 또한 열처리 온도가 증가함에 따라 항전계값이 대칭이 되어가는 것을 관찰할 수 있다. 이 결과로부터 상부전극과 SBT 박막의 계면 특성이 열처리를 통해 향상됨으로써 SBT 박막과 하부전극의 계면특성과 거의 비슷해지고 있음을 알 수 있다.

Fig. 8은 급속열처리 온도를 780°C로 고정하고 시편의 후열처리 온도를 달리하여 제조한 SBT 박막의 누설전류 밀도 측정 결과이다. 후열처리 온도가 증가함에 따라 누설전류 밀도가 감소하는 것을 관찰할 수 있는데 이는 박막과 상부전극인 Pt의 계면특성이 향상되기 때문이라고 생각된다. 즉 산소분위기에서 후열처리 함으로써 SBT 박막표면의 산소공공을 채워주어 계면특성을 향상시킨 결과라고 생각된다.

Fig. 9은 급속열처리 온도를 780°C로 고정하고 후열처리 온도를 달리하여 제조한 SBT 박막의 상부전극과 하부전극간의 계면특성차이를 관찰하기 위한 누설전류 밀도 측정결과이다. 상부전극에 마이너스 바이어스를 인가해주어 상부전극과 SBT 박막의 계면을 관찰하였고 플러스 바이어스를 인가해주어 하부전극과 SBT 박막의 계면을 관찰하였다. 후열처리 온도가 증가함에 따라 하부전극과 SBT 박막, 상부전극과 SBT 박막간의 누설전류밀도가 감소하는 것을 볼 수 있다. 특히 상부전극과 SBT 박막간의 누설전류밀도가 두드러지게 감소하는 것을 관찰할 수 있다. 후열처리 온도가 600, 800°C인 경우에는 상부전극과 하부전극의 누설전류밀도값이 비슷지

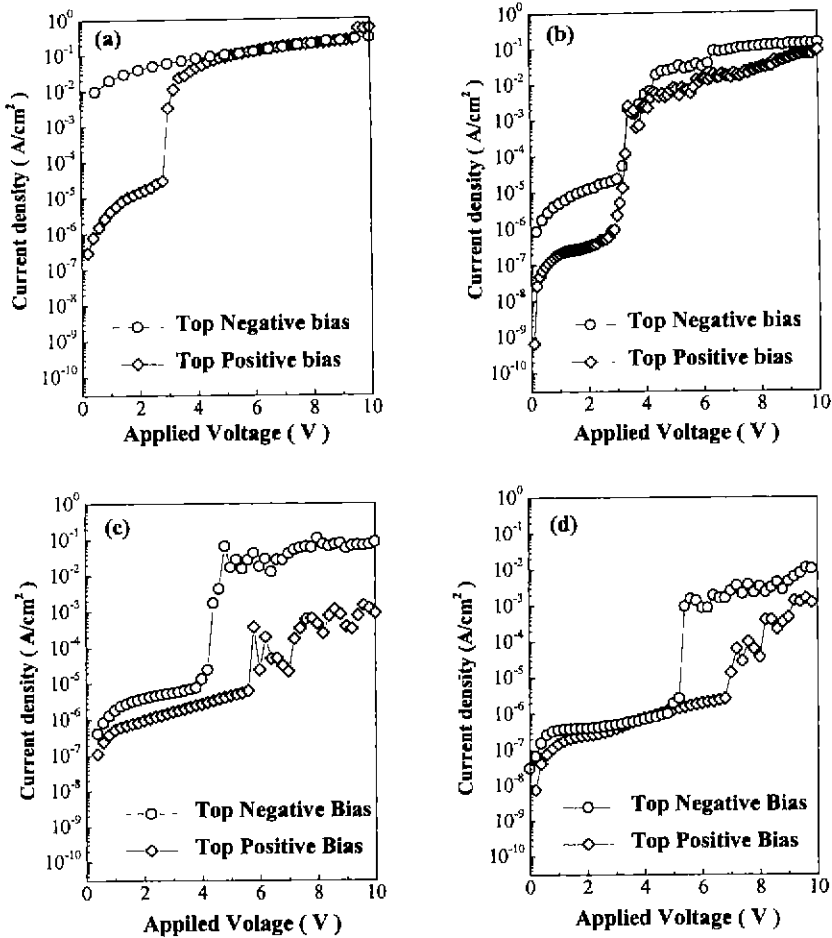


Fig. 9. Leakage current density characteristics of SBT thin films annealed at various post-annealing temperatures and the bias direction of top electrode; (a) No post annealing, (b) 400°C, (c) 600°C and (d) 800°C.

는 것을 알 수 있다.

3.4. Bismuth에 대한 SBT 박막 표면의 XPS 분석

Fig. 10은 박막표면에 존재하는 bismuth의 결합형태를 관찰하기 위한 XPS 분석 결과이다. 박막내에 Bi_2O_3 , Bi_2O_3 및 bismuth 금속이 함께 존재하고 있는 것을 알 수 있다. bismuth는 +3, +5의 전자가를 가지기 때문에 Bi_2O_3 가 화학량론적으로 맞는 화학구조이지만 SBT 박막에서는 bismuth 층이 $(\text{Bi}_2\text{O}_2)^{2+}$ 로 존재하여 전자들의 sink로 작용하기 때문에⁹⁾ 좋은 특성값을 나타내기 위해서는 Bi_2O_3 보다는 $(\text{Bi}_2\text{O}_2)^{2+}$ 의 형태로 존재하는 것이 유리하다. 또한 bismuth가 금속상으로 박막내부에 석출되어 입자계면이나 결합근처에 축적된다고 알려져 있는데¹⁴⁾ 분석결과 bismuth가 금속상으로 존재하고 있음을 알 수 있다.

요약회지

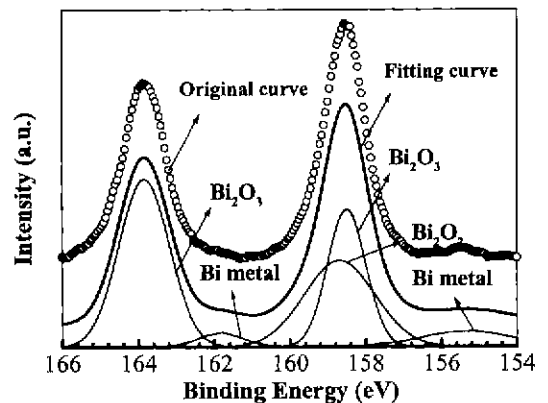


Fig. 10. XPS analysis of bismuth bonding types of the surface of SBT thin film.

4. 결 론

강유전성 $Sr_{0.8}Bi_{2.1}Ta_2O_9$ 박막용 용액을 MOD (Metalorganic Decomposition)법으로 합성하고 스피너를 이용하여 SBT 박막을 제조하였다. 400°C에서 유기물을 분해시키고 급속열처리, 산소분위기의 800°C 열처리, 상부전극을 증착한 후, 후열처리하여 SBT 박막을 제조하였으며 이 박막의 특성은 다음과 같다.

1. 급속열처리 온도가 700°C에서 740°C로 증가하면서 박막의 fluorite 상이 layered perovskite 상으로 전이하였고 그 이상으로 온도가 증가하면서 잔류하는 fluorite 상이 감소하는 것을 알 수 있었다.

2. 급속열처리를 통해 layered perovskite를 성장시킨 경우에 후열처리가 박막의 전기적 특성을 얻을 수가 있었는데 이는 layered perovskite의 seed layer를 성장 시킴으로써 박막의 필도를 증가시켜 상부전극 증착시에 발생한다고 알려졌는 Pt의 침투효과를 막은 결과이다. 급속열처리 온도가 증가함에 따라 P-V 곡선의 잔류분극값이 증가하는 것을 관찰할 수 있었다. 박막의 잔류분극값은 각각 3 V, 5 V에서 700°C의 경우 8.94 및 12.8 $\mu C/cm^2$, 780°C의 경우 14.8 및 19.9 $\mu C/cm^2$ 정도의 값을 가졌다.

3. 후열처리가 없이 얻은 전기적 특성은 누설전류밀도가 각각 3 V에서 2.93×10^{-6} (하부전극과 박막간의 경우)로 높았고 P-V 곡선의 항전계값이 비대칭성을 나타내었다.

4. 상부전극 증착 후에 후열처리를 해줌으로써 강유전성 특성을 대칭적으로 바꾸어 줄 수가 있었는데 이는 상부전극과 박막의 계면의 특성이 회복되는 증거라고 할 수 있으며 P-V, I-V 특성에서 모두 확인할 수 있었다. 600°C에서 후열처리했을 때 잔류분극은 3 V, 5 V하에서 각각 8.4 및 13 $\mu C/cm^2$ 누설전류밀도 값은 1.59×10^{-6} 및 4.43×10^{-6} A/cm², 800°C에서 6.7 및 9 $\mu C/cm^2$, 3.73×10^{-7} 및 1.32×10^{-6} A/cm²을 나타내었다.

5. 박막의 표면에는 Bi_2O_3 , Bi_2O_5 및 약간의 Bi 급속 등이 존재하는 것을 알 수 있었다.

감사의 글

본 연구는 1997년 한국과학기술연구원 학술연구 조성비 (97-0300-0601-3)에 의하여 수행된 것이며, 이에 감사를 드립니다.

REFERENCES

1. A. I. Kingon, S. K. Streiffer, C. Basceri and S. R. Summerfelt "High Permittivity Perovskite Thin Films

for Dynamic Random-Access Memories," *MRS Bulletin, Electroceramic Thin Films Part II*, 46-52 (1996).

2. R. Takayama, Y. Tomita, K. Iijima and I. Ueda, "Preparation and Characteristics of Pyroelectric Infrared Sensors made of c-axis Oriented La-modified $PbTiO_3$ Thin Films," *J. Appl. Phys.*, **61**, 411-415 (1987).

3. D. J. Taylor, R. E. Jones, Y. T. Lii, P. Zurcher, P. Y. Chu and S. J. Gillespie, "Integration Aspects and Electrical Properties of $SrBi_2Ta_2O_9$ for Non-Volatile Memory Applications," *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.*, **433**, 97-108 (1996).

4. Orlando Auciello, "A Critical Comparative review of PZT and SBT-Based Science and Technology for Non-Volatile Ferroelectric Memories," *Integrated Ferroelectrics*, **15**, 211-220 (1997).

5. H. M. Duiker, P. D. Cuchiaro and L. D. McMillan, "Fatigue properties of ferroelectric PZT Thin Film and Their Characterization," *Jpn. J. Appl. Phys.*, **68**, 5783-5789 (1990).

6. T. Mihara, H. Watanabe and C. A. Paz de Araujo, "Evaluation of imprint properties in Sol-Gel Ferroelectric $Pb(Zr,Ti)O_3$ Thin-Film Capacitors," *Jpn. J. Appl. Phys.*, **32**, 4168-4174 (1993).

7. C. A-Paz de Araujo, J. D. Cuchiaro, L. D. McMillan, M. C. Scott and J. F. Scott, "Fatigue-Free Ferroelectric Capacitors with Platinum Electrodes," *Nature*, **374**, 627-629 (1995).

8. Yasuyuki Ito, Maho Ushikubo, Seiichi Yokoyama and Hironori Matsunaga, "New Low Temperature Processing of Sol-Gel $SrBi_2Ta_2O_9$ Thin Films," *Integrated Ferroelectrics*, **14**, 123-131 (1997).

9. Yoshihiro Oishi, Yoshihinori Matsumuro and Masanori Okuyama, "Preparation and Basic Properties of $SrBi_2Ta_2O_9$ Films," *Jpn. J. Appl. Phys.*, **36**, 5896-5899 (1997).

10. B. A. Tuttle and R. W. Schwartz, "Solution Deposition of Ferroelectric Thin Films," *MRS Bulletin, Electroceramic Thin Films Part I*, 49-54 (1996).

11. Takehiro 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.*, **35**, 4900-4904 (1996).

12. Mark A. Rodriguez, Timothy J. Boyle, Catherine D. Buchheit, Ralph G. Tisot, Celeste A. Drewien, Bernadette A. Hernandez and Michael O. Eatough, "Phase Formation and Characterization of the $SrBi_2Ta_2O_9$ Layered-Perovskite Ferroelectric," *Integrated Ferroelectrics*, **14**, 201-210 (1997).

13. Ichiro Koiwa, Yukihisa Okada, Juro Mita, Akira Hashimura and Yoshihiro Sawada. "Role of Excess Bi in $SrBi_2Ta_2O_9$ Thin Film Prepared Using Chemical Liquid Deposition and Sol-Gel Method." *Jpn. J. Appl. Phys.*, **36**, 5904-5907 (1997).

14. Takashi Hayashi, Takuya Hara and Hiroshi Takahashi, "Preparation and Dielectric Properties of $\text{SrBi}_2\text{Ta}_2\text{O}_9$ Thin Films by Sol-Gel Method," *Jpn. J. Appl. Phys.*, **36**, 5900-5903 (1997).
15. C. D. Gutleben, "The Evaluation of $\text{SrBi}_2\text{Ta}_2\text{O}_9$ Films For Ferroelectric Memories," *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.*, **433**, 109-118 (1996).