

졸-겔법에 의해 제작된 적외선 센서용 (Pb,La)TiO₃ 강유전체 박막의 특성

서광종 · 장호정 · 장지근
단국대학교 전자공학과

Properties of (Pb,La)TiO₃ Ferroelectric Thin Films by Sol-Gel Method for the Infrared Sensors

Kwang Jong Suh, Ho Jung Chang and Gee Keun Chang
Department of Electronics Engineering, Dankook University, 330-714

(1999년 1월 12일 받음, 1999년 3월 24일 최종수정본 받음)

초 록 Pt/SiO₂/Si의 기판위에 (Pb,La)TiO₃(PLT) 박막을 졸-겔 방법으로 제작하여 La 첨가량 및 후속열처리 온도에 따른 결정학적, 전기적 특성을 조사하였다. 600°C 이상의 온도에서 열처리된 PLT 박막 시료의 경우 La 도핑량에 관계없이 전형적인 perovskite 결정구조를 보여 주었다. La 이 전혀 첨가되지 않은 PbTiO₃(PT) 시료에 10 mole% La를 첨가할 경우(PLT-10 시료) c축 배향도는 약 63%에서 26%로 크게 감소하였다. PLT-10 박막시료의 깊이에 따른 AES 분석결과 박막내의 각 성분원소들이 비교적 균일하게 분포되어 있고 하부전극(Pt)과 PLT 박막층 사이에는 상호반응없이 비교적 안정된 막을 형성하고 있음을 알 수 있었다. 650°C에서 열처리된 PLT-10 박막의 유전상수(ϵ)와 유전정접($\tan \delta$)은 약 193과 0.02의 값을 나타내었다. 후속열처리 온도를 600°C에서 700°C로 증가함에 따라 잔류분극(2Pr,Pr₊-Pr₋)은 약 4 μ C/cm²에서 약 16 μ C/cm²로 크게 증가하였으며 잔류분극값의 증가는 후속열처리에 의해 결정성이 개선되었기 때문이라 판단된다. 30°C 온도부근에서 초전계수(γ)는 약 4.0nC/cm²·°C의 값을 나타내었다.

Abstract (Pb,La)TiO₃(PLT) thin films were prepared on Pt/SiO₂/Si substrates by the sol-gel method and investigated the crystalline and electrical properties according to La concentration and post-annealing temperatures. The PLT films annealed at above 600°C were exhibited the typical perovskite structures regardless of La contents. When the PbTiO₃(PT) films were doped with La concentration up to 10mol%(PLT-10), the degree of c-axis orientation was greatly decreased from 63% to 26%. From AES depth profiles for the PLT-10 samples, no remarkable inter-reaction between PLT film and lower Pt electrode was found. The remanent polarization(2Pr,Pr₊-Pr₋) were increased from 4 μ C/cm² to 16 μ C/cm² as the annealing temperature increased from 600°C to 700°C. This result may be ascribed to the improvement of crystallinity by the high temperature post-annealing. The dielectric constant(ϵ) and tangent loss($\tan \delta$) of the PLT-10 films annealed at 650°C were about 193 and 0.02, respectively with the pyroelectric coefficient(γ) of around 4.0nC/cm²·°C at 30°C.

1. 서 론

Pb계 강유전체 박막은 페로브스카이트(perovskite) 결정 구조를 갖으며 비교적 큰 유전상수와 전계에 의한 분극량(P-E)의 이력현상에 의한 가역 자발분극으로 스윕 특성, 압전 및 초전특성이 우수하여 반도체 메모리용 커패시터, 비휘발성 메모리소자 및 압력센서, 적외선센서 등에 응용이 크게 기대되고 있다.^{1~4)}

이 중에서도 초전(pyroelectric) 현상을 이용한 적외선 센서(Infrared sensors)는 초전재료의 표면에 적외선이 입사되면 흡수된 열에 의해 온도변화를 일으켜서 이로부터 발생하는 표면전하량을 전압 또는 초전전류로서 검출하는 것이 기본원리이며, 상온 부근의 물체의 온도 및 열 검출용으로 응용될 수 있다. 이와같은 초전재료는 MOCVD(Metalorganic Chemical Vapor Deposition),^{5~7)} RF 마그네트론 Sputtering,^{8~11)} laser ablation,^{12,13)} 졸-겔(Sol-Gel)^{14,15)} 등의 방법으로 적절한 기판위에 물리적, 화학적

방법으로 증착하게 된다. 특히 박막 형성 기술의 진보로 초전박막 성장중에 유전체의 결정구조를 분극방향인 c축으로 배향되도록 epitaxial 성장¹⁶⁾시킴으로써 별도의 분극처리 없이도 전기적 특성을 크게 향상시킬 수 있어서 초전센서로 응용시 고감도화, 고응답성 및 소형화를 도모할 수 있을 것으로 기대되고 있다. 지금까지 PbTiO₃계 초전재료를 중심으로 초전특성의 향상을 위한 연구가 국내외에서 다수 진행되어 왔으나 아직까지 개선할점이 많이 남아 있다.^{17~19)} 특히 Si 기판상에 졸-겔법으로 증착된 초전박막의 물성연구는 초보적 연구수준에 머물러 있다.

본 논문에서는 적외선 초전센서용(Pb,La)TiO₃ 박막을 졸-겔 방법으로 제작하여 La 첨가량 및 후속열처리 온도에 따른 결정학적, 전기적 특성(초전계수, I-V 특성, 분극율 등)을 조사하였다.

2. 실험 방법

본 실험에서는 기관종류로서 저가이면서 구동 FET와 집

적화가 가능한 Si(100) 기판을 사용하였다. 낮은 전기저항과 높은 열화학적 안정성을 가진 Pt 금속을 하부전극으로 선택하여 SiO₂/Si 기판위에 DC 스퍼터링(sputtering) 방법으로 약 250nm 두께로 증착하였다. 준비된 Pt/SiO₂/Si 하부기판 구조위에 PLT 졸-겔 precursor 용액을 스핀도포 (spin coating) 방법으로 도포하여 PLT 박막을 형성하였다. PLT 졸-겔 용액의 제조는 출발물질로서 Lead Acetate, Titanium isopropoxide와 Lantanium isopropoxide 시약을 0~20 mol% 범위로 비이커에 따로 넣고 10 ml의 2-Methoxyethanol 용액에 혼합후 가열, 교반하여 졸-겔 precursor 용액을 제조하였다. 이때 Lantanium isopropoxide 시약의 첨가량을 달리하여 5mol% (PLT-5), 10mol% (PLT-10) 및 20mol% (PLT-20)의 PLT 졸겔 용액과 La이 전혀 첨가되지 않은 PbTiO₃(PT)의 모두 4종류의 용액을 준비하였다. PLT 졸-겔 용액 도포시 스핀장치의 회전수는 2500rpm으로 고정하였고 30초간 회전시켰다. 도포가 끝난 박막시료는 hot plate에서 약 300 °C 온도로 용매를 제거하면서 건조하여 as-coated PLT 박막을 제작하였다.

Pt/SiO₂/Si 하부기판 구조위에 증착된 PLT 박막시료에 대해 결정화를 위해 RTA (rapid thermal annealing) 장치를 사용하여 600 °C, 650 °C 및 700 °C의 온도에서 1분간 산소분위기(압력 : 약 10⁻¹ atm)에서 후속열처리를 수행하였다.

열처리가 완료된 박막시료는 전기적 특성을 측정하기 위해 진공열증착(vacuum thermal evaporator) 법으로 metal shadow mask를 사용하여 약 0.2mm 직경을 갖는 Al 상부전극을 증착하여 금속-강유전체 (PLT)-금속 (MFM) 구조의 박막 캐패시터를 제작하였다.

증착된 PLT 박막의 후속열처리 과정에 따른 결정상의 변화를 알아보기위해 X선 회절(X-ray diffraction, XRD) 시험을 실시하였다. 주사전자현미경 (Scanning Electron Microscopy, SEM) 분석을 통해 박막의 표면과 단면형상을 관찰하였고 단면사진을 통해 박막두께 및 상호 반응층을 조사하였다. 또한 AFM (Atomic Force Microscopy) 분석을 통해 각 열처리 온도에서의 표면거칠기를 확인하였다. 박막 깊이에 따른 원소의 분포를 알아보기 위해 AES (Auger Electron Spectroscopy) 분석을 실시하였다. Semiconductor parameter analyzer (HP 4145B)를 사용하여 PLT 박막의 전류-전압 (I-V) 특성을 측정하였으며 Impedance analyzer (HP 4280/4192A)를 이용하여 상온에서 주파수에 따른 비유전상수 (ϵ') 및 유전정접 ($\tan \delta$)을 측정하였다. 또한 Sawyer-Tower 회로를 구성하여 잔류분극을 (Pr)을 조사하였다. 초전계수 (γ)는 온도를 변화시키면서 Byer-Roundy법으로 Electrometer (Keithley 617)를 이용하여 초전전류를 측정하였다.

그림 1은 제작된 PLT 박막시료의 단면구조도를 보여주고 있다.

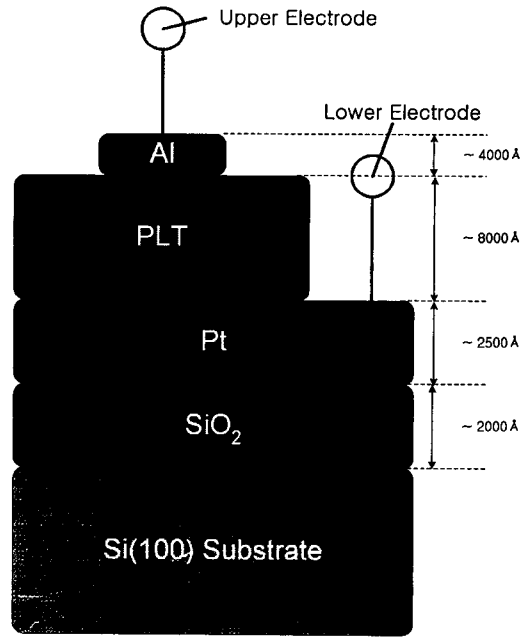


Fig. 1. Schematic drawing of PLT thin film structure.

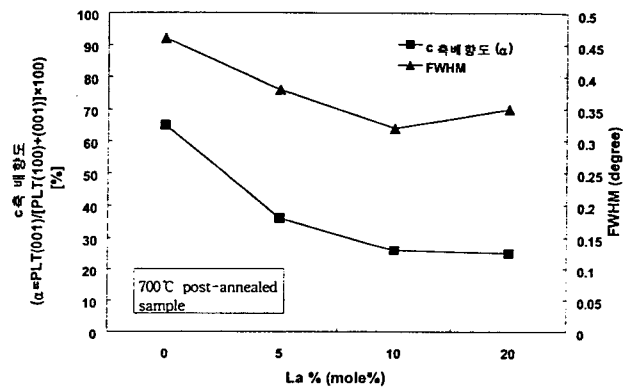


Fig. 2. Degree of c-axis orientation and FWHM values of PLT thin films annealed at 700°C as a function of La contents.

3. 결과 및 고찰

후속열처리 온도 및 La 첨가량에 따른 PLT 박막의 결정상 변화와 c축 배향도를 조사하기 위해 X-선 회절분석을 실시하였다.

그림 2에 700 °C에서 1분간 후속열처리된 PLT 박막시료의 La 첨가량에 따른 c축 배향도 α 값과 FWHM 값의 변화를 보여주고 있다. 모든 시료에서 강유전체 물질에서 나타나는 전형적인 perovskite 결정구조를 보여주었으며 La이 전혀 첨가되지 않은 PbTiO₃(PT) 시료의 경우 c축 배향도 α ($\alpha = \text{PLT}(001)/\text{PLT}(100) + \text{PLT}(001)$ 으로 정의하였음)가 약 65%로 비교적 커다란 값을 나타내었다. 그러나 결정상의 피크강도가 작으며 PLT(101) 주피크의 FWHM (full width at half maximum) 값이 0.46을 나타내어 박막의 결정성이 좋지 않은 결과를 나타내었다. PT 박막시료에 La를 5mol% 첨가한 (PLT-5) 경우 c축 배향

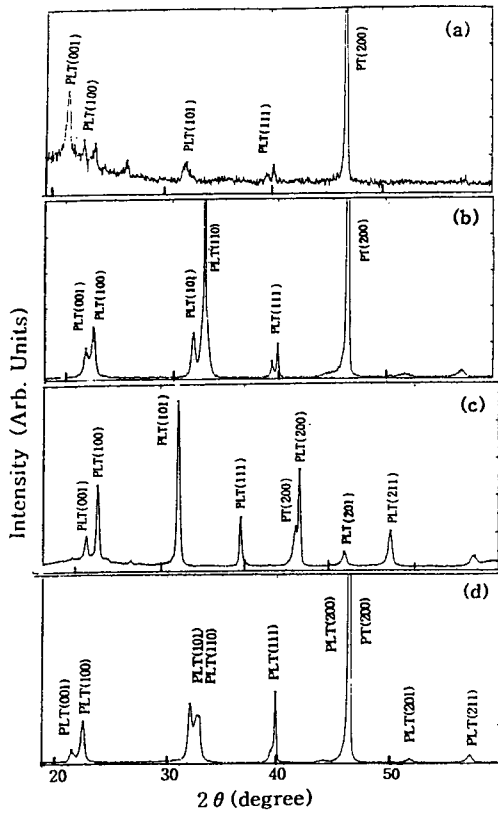


Fig. 3. X-ray diffraction patterns of (a) PT film, (b) PLT-5, (c) PLT-10 and (d) PLT-20 thin films which were annealed at 700°C.

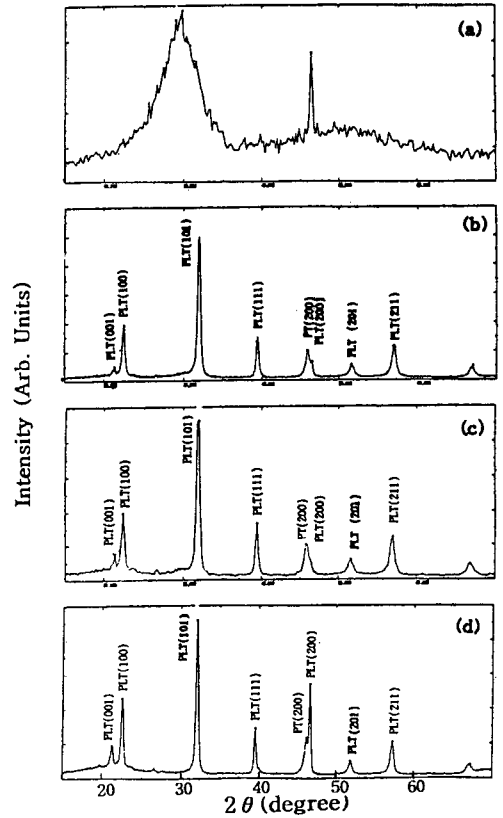


Fig. 4. X-ray diffraction patterns of the (a) as-coated PLT-10 films and annealed at (b) 600°C, (c) 650°C and (d) 700°C on Pt/SiO₂/Si substrates.

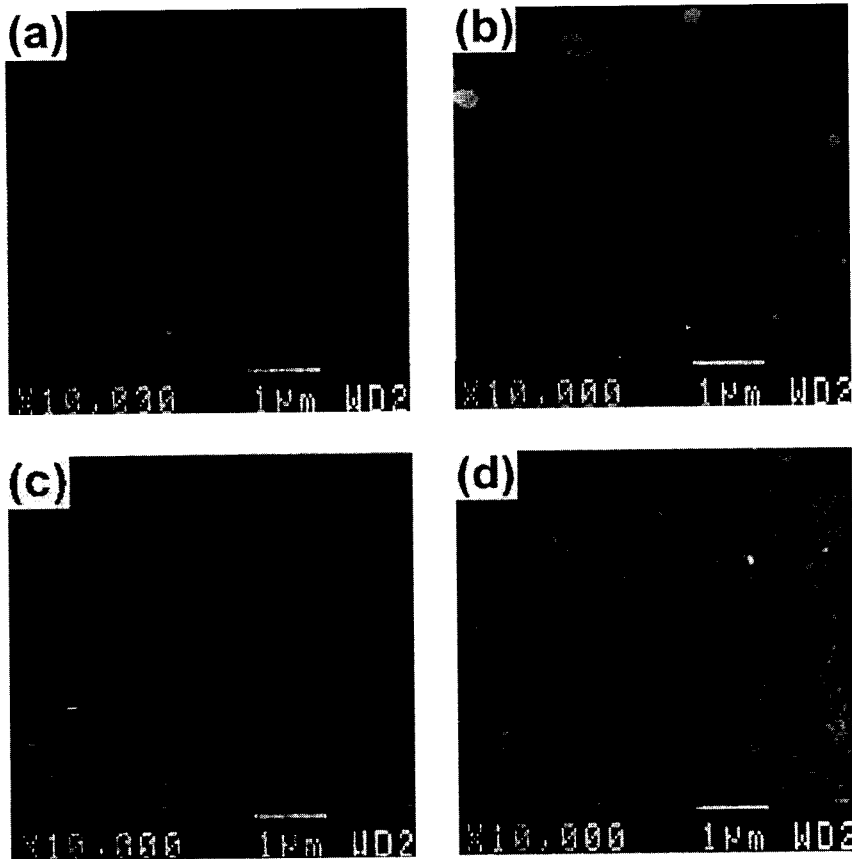


Fig. 5. SEM micrographs of (a) as-coated PLT-10 films and annealed at (b) 600°C, (c) 650°C and (d) 700°C on Pt/SiO₂/Si substrates.

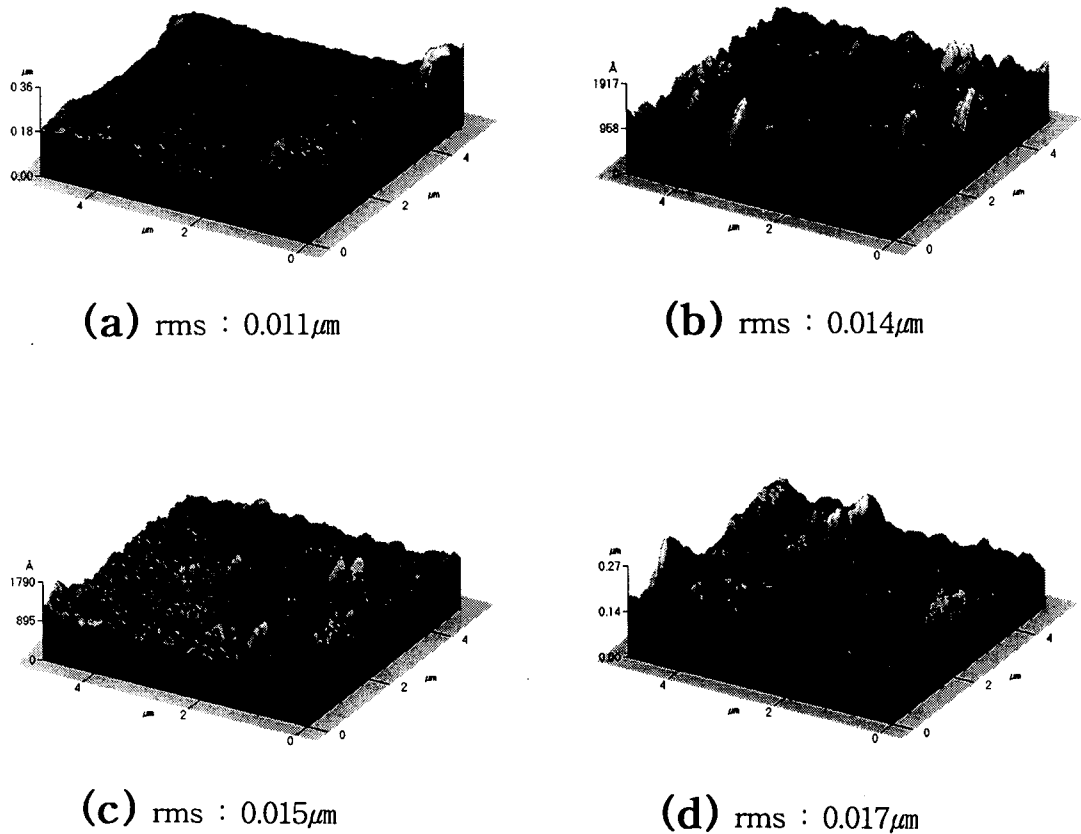


Fig. 6. Atomic force microscopy of (a) as-coated PLT-10 films and annealed at (b) 600°C, (c) 650°C and (d) 700°C on Pt/SiO₂/Si substrates.

도는 36%로 크게 감소하였으며 La 첨가량을 20mol% (PLT-20)까지 더욱 증가한 경우 c축 배향도는 약 25%로 감소하여 La 첨가량이 증가함에 따라 c축 배향도는 감소하는 경향을 보여주었다. 이러한 결과는 J. J. Shyu²⁰⁾ 등이 PbTiO₃에 La를 도핑할 경우 0~0.1 mole의 첨가범위에서 La 도핑량의 증가와 함께 결정의 c축 배향도가 감소하고 대신 a축으로 크게 배향성장 한다는 보고와 유사한 결과를 나타내었다. La이 첨가된 PLT 시료에 대한 FWHM 값의 경우 La 첨가량에 관계없이 0.32~0.38로 뚜렷한 변화를 발견할 수 없었다. La 첨가량에 따른 c축 배향도를 보여주는 XRD 분석결과를 그림 3에 나타내었다.

그림 4는 Pt/SiO₂/Si 기판구조위에 증착된 박막과 이를 600°C, 650°C 및 700°C 온도에서 후속열처리한 PLT-10 (10mole% La 첨가) 박막의 XRD 분석결과이다. 증착된 PLT 시료는 거의 결정화되지 않은 비정질에 가까운 결정구조를 보였으며 열처리 온도가 600°C 이상에서 안정된 perovskite 결정상이 얻어졌다. 또한 후속열처리 온도가 600°C에서 700°C로 증가할 경우 FWHM 값은 0.48에서 0.32로 작아져서 결정성이 개선되는 효과를 가져왔음을 알 수 있었다.

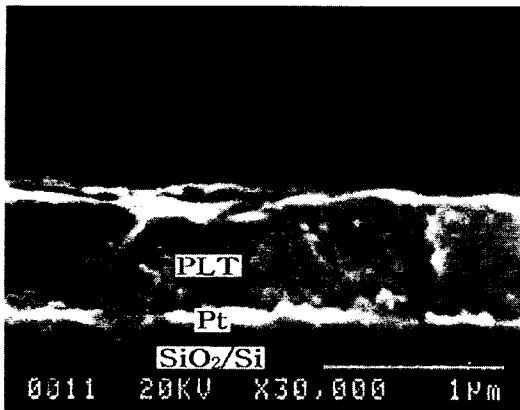
XRD 분석결과로부터 본 연구에서는 결정특성이 가장 양호하며 c축 배향도가 작음으로 포화되는 PLT-10 박막시료에 대해 표면형상 및 전기적 특성을 조사, 분석하였

다.

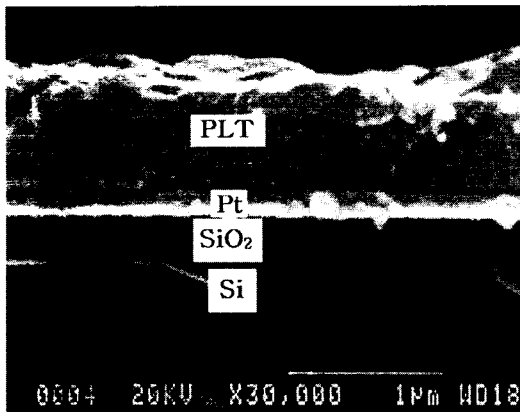
그림 5는 Pt/SiO₂/Si 기판위에 증착된 박막과 600°C, 650°C 및 700°C의 온도에서 후속 열처리한 PLT-10 박막 시료의 표면 SEM 사진을 보여주고 있다. SEM 분석결과 증착된 PLT-10 박막시료는 비교적 매끈한 표면형상을 나타내었으나 열처리 온도가 600°C에서 700°C로 증가함에 따라 결정립 (grains)의 평균크기가 약 2배 가량 커지는 경향을 나타내었다. 일반적으로 강유전체 박막의 표면형상은 결정 성장온도와 하부전극의 표면상태등에 크게 영향을 받는 것으로 알려지고 있으며 결정 성장온도가 증가함에 따라 결정립의 크기는 증가하게 된다.

그림 6은 Pt/SiO₂/Si 기판위에 증착된 박막과 600°C, 650°C 및 700°C의 온도에서 후속열처리한 PLT-10 박막 시료의 AFM 분석결과이다. 증착된 박막시료의 경우 거칠기를 나타내는 root-mean-squared (rms) roughness, R_{RMS} 값이 0.011를 나타내어 비교적 표면 거칠기가 양호한 형상을 보여 주었으나, 열처리 온도가 600°C에서 700°C로 증가함에 따라 rms 값이 0.014에서 0.017로 증가하여 약간 거칠은 표면형상을 나타내었다.

그림 7은 Pt/SiO₂/Si 기판위에 증착된 박막과 650°C에서 후속 열처리한 PLT-10 박막시료의 단면 SEM 사진을 보여주고 있다. Pt 전극과 PLT 박막사이에 뚜렷한 계면반응이 없는 비교적 평활한 계면형상을 나타내었다. 단면형상



(a)



(b)

Fig. 7. Sectional SEM micrographs of the (a) as-coated and (b) annealed PLT-10 films at 650°C.

관찰결과 PLT 박막 두께는 약 8000 Å 그리고 Pt 하부전극 두께는 약 2000 Å 을 나타내었다.

제작된 PLT 박막의 깊이에 따른 성분 분포를 알아보기 위해 AES 분석을 실시하였다. 그림 8은 Pt/SiO₂/Si 기판 위에 형성된 as-coated PLT-10 박막과 650°C 에서 후속 열처리된 박막시료에 대한 AES depth profile을 보여주고 있다. AES 분석을 통해 PLT 박막내의 각 성분원소들이 비교적 균일하게 분포되어 있고 하부전극(Pt)와 PLT 박막층 사이에는 상호반응없이 비교적 안정된 막을 형성하고 있음을 알 수 있다.

그림 9에서는 Pt/SiO₂/Si 기판위에 650°C에서 후속 열처리된 PLT-10 시편에 대하여 주파수에 따른 비유전상수(ϵ)와 유전정접($\tan \delta$) 값의 변화를 나타내었다. 비유전상수와 유전정접값은 1kHz 주파수에서 약 193와 0.02의 값을 각각 얻었다. 주파수가 0.1kHz에서 1MHz로 증가할 경우 유전상수값은 약 200에서 185로 다소 감소하였다. 이러한 주파수에 따른 유전상수의 감소는 주파수 분산(frequency dispersion) 효과²¹⁾에 기인하며 박막 유전체의 경우 10⁵Hz 정도의 주파수에서 일어나고, 이는 전극과 입계(grain boundary) 등과 관련된 series resistance에 그 원

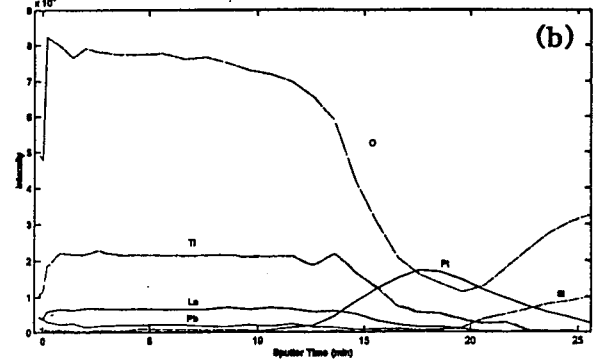
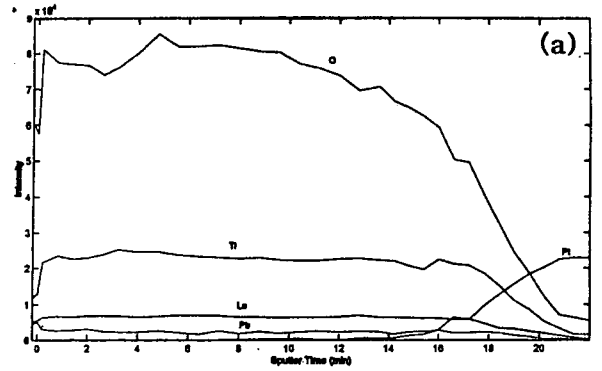


Fig. 8. AES depth profiles of the (a) as-coated and (b) annealed PLT-10 film at 650°C.

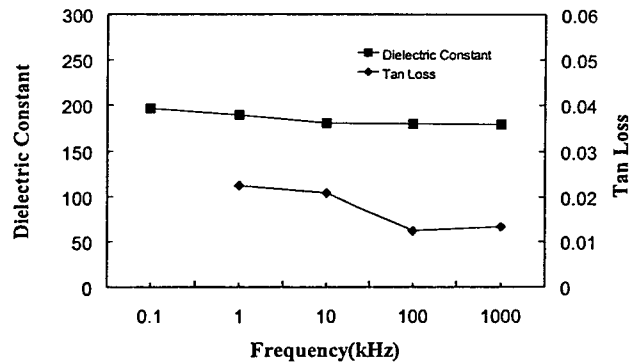


Fig. 9. Dielectric constant(ϵ) and tangent loss($\tan \delta$) of the PLT-10 films annealed at 650°C.

인이 있는 것으로 알려져 있다.

그림 10은 Pt/SiO₂/Si 기판위에 600°C, 650°C 및 700°C 온도에서 후속열처리한 PLT-10 시편의 P-E 이력곡선을 보여주고 있다. 모든 시료에서 강유전체에서 보여지는 이력특성을 나타내었으며 600°C에서 열처리한 시편의 경우 잔류분극 ($2Pr = Pr^+ - Pr^-$) 값이 약 4 $\mu\text{C}/\text{cm}^2$ 를 나타내었다. 열처리 온도를 650°C에서 700°C로 증가함에 따라 잔류분극은 약 7 $\mu\text{C}/\text{cm}^2$ 에서 약 16 $\mu\text{C}/\text{cm}^2$ 로 크게 증가하였다. 이와 같이 후속열처리 온도가 증가할수록 잔류분극값이 증가한 것은 그림 4의 XRD 분석결과로 부터 알 수 있듯이 후속열처리에 의해 결정성이 개선되었기 때문이라 사료된다.

Pt/SiO₂/Si 기판위에 증착된 박막을 600°C, 650°C, 및 700°C 온도로 후속열처리한 PLT-10 박막시료의 온도변

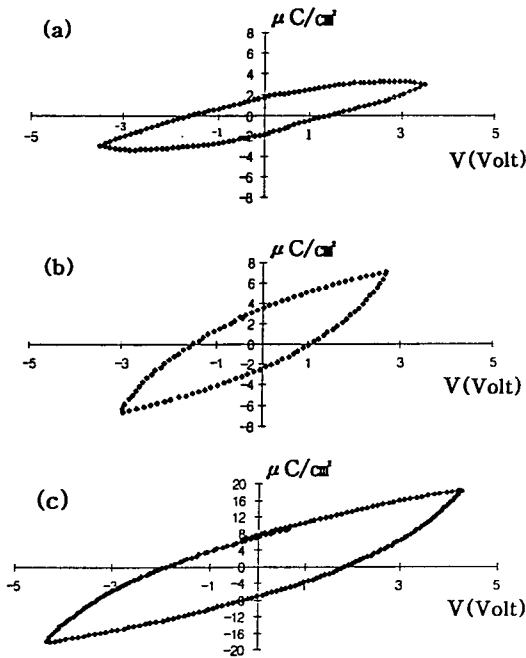


Fig. 10. P-E hysteresis loops of the PLT-10 films annealed at (a) 600°C, (b) 650°C and (c) 700°C on Pt/SiO₂/Si substrates.

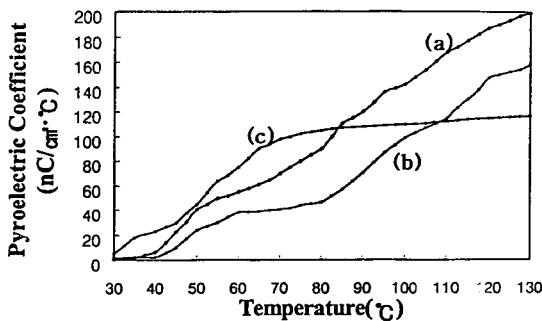


Fig. 11. Pyroelectric coefficient(γ) of the PLT-10 films annealed at (a) 600°C, (b) 650°C and (c) 700°C on Pt/SiO₂/Si substrates.

화에 따른 초전계수, γ 를 그림 11에 나타내었다. 초전계수는 $\gamma = dPs/dT$ 의 식으로 표현되며 온도변화(ΔT)에 따른 자발분극의 변화율(ΔPs)로 정의되고 있다. 600°C에서 열처리된 시편의 경우 30°C 온도 부근에서 약 0.5nC/cm²·°C의 값을 나타내었으나 700°C에서 열처리된 시편의 경우 약 4nC/cm²·°C 값을 얻을 수 있었다. 본 실험에서 얻어진 초전계수값은 RF 스퍼터링에 의해 MgO(100) 단결정 기판 위에 형성된 동일조성의 PLT 박막²²⁾에 비해 약 1/10의 작은 초전계수의 값을 나타내었다. 초전형 박막재료에 있어서 큰 초전계수를 얻기 위해서는 분극축으로 배향된 결정구조로 성장되어야 한다. 이러한 결정성장 과정에 대해 아직까지 구체적으로 밝혀진 바는 없으나 C. Ye 등²³⁾은 초전박막과 기판 사이에서 기계적, 열적 결합(coupling)효과에 기인하는 것으로 설명하고 있다. 본 연구에서 얻어진 초전계수값이 MgO 단결정기판(격자정수: 4.2Å)에 비해 작게 나타난 것에 대해 현재로서 그 원인을 확실하게 밝히기는

어려우나 하나의 가능성으로서 Si기판(격자정수: 5.43Å)과 PLT 박막(격자정수: 약 4.0Å)의 격자정수의 부정합(mismatch)에 의해 자발분극인 c축 방향으로 우선 배향(preferred orientation)된 결정구조를 갖지 못한데 따른 결과라 판단된다.

후속열처리된 PLT-10 박막의 5V 인가전압에서 흐르는 전류는 열처리 온도에 관계없이 약 3.2μA/cm²(소자면적 3.14×10⁻⁴cm²) 정도로 비교적 양호한 누설전류 특성을 나타내었다.

4. 결 론

졸-겔법으로 Pt/SiO₂/Si의 하부기판구조위에 증착된 PT(La이 첨가되지 않은 시료), PLT-5(5 mole% La 첨가), PLT-10(10 mole% La 첨가) 및 PLT-20(20 mole% La 첨가) 박막을 RTA로 후속 열처리(열처리 온도 및 시간: 600°C~700°C, 1분)한 후 결정학적, 전기적 특성을 조사한 결과 다음과 같은 결론을 얻었다.

1) 700°C로 열처리된 PLT/Pt/SiO₂/Si 박막 시료에 대한 XRD 분석결과 La 도핑량에 관계없이 전형적인 perovskite 결정구조를 보여주고 있으며, La를 20 mole% 까지 첨가함으로써 c축 배향도는 크게 감소하였다.

2) 증착된 박막시료의 표면형상은 비교적 매끈하였으나 후속열처리 온도가 700°C로 증가함에 따라 결정립(grains)의 평균크기가 약 2배 가량 커지는 경향을 나타내었다.

3) 깊이에 따른 AES 분석결과 박막내의 각 성분원소들이 비교적 균일하게 분포되어 있고 하부전극(Pt)과 PLT 박막층 사이에는 상호반응없이 비교적 안정된 막을 형성하고 있었다.

4) 650°C에서 열처리된 PLT-10 시편의 1kHz에서 유전상수(ϵ)와 유전정접($\tan \delta$) 값은 193과 0.02를 각각 나타내었다.

5) P-E 이력곡선 측정결과 600°C에서 후속열처리한 PLT-10 시편의 경우 잔류분극을 2Pr(Pr⁺-Pr⁻) 값이 약 4μC/cm²를 나타내었다. 열처리 온도를 700°C로 증가함에 따라 잔류분극은 약 4배 가량 크게 증가하였으며 잔류분극값의 증가는 후속열처리에 의해 결정성이 개선되었기 때문이라 판단된다. 700°C에서 열처리된 시편의 경우 상온 부근에서 초전계수(γ)는 약 4.0nC/cm²·°C의 값을 나타내었다.

감사의 글

본 연구는 1997년도 교육부 학술연구조성비(신소재 분야)에 의하여 연구되었음

참 고 문 헌

1. J. F. Scott, C. A. Paz de Araujo, H. Yoshimori, M. Azuma, T. Ueda and G. Kano, *Ferroelectrics*, **133**, 47 (1992).
2. K. Shibata, S. Nakano, Y. Kuwano, *Electronics Ce-*

- ramic, **25**, pp.56 (1991).
3. 김영해역, 센서 인터페이스 No.1, 온도·습도센서 활용편, 기전연구소, pp.238, (1993).
 4. R. Takayama, Y. Tomita, K. Iijima and I. Ueda, J. Appl. Phys. **63**, 5868 (1987).
 5. M. Okada, H. Watanabe, M. Murakami, A. Nishiwaki and K. Tomita, 일본 세라믹 협회 학술논문지, **96**(6), 687 (1988).
 6. Y. Gao, G. R. Bai, K. L. Merkle, Y. Shi, H. L. M. Chang, Z. Shen and D. J. Lam, J. Mat. Res., **8**(1), 145 (1993).
 7. G. R. Bai, H. L. M. Chang, H. K. Kim, C. M. Foster and D. J. Lam, Appl. Phys. Lett., **61**(4), 408 (1992).
 8. T. Ogawa, A. Senda and T. Kasanami, Jpn. J. Appl. Phys., **30**, 2145 (1991).
 9. M. Korne, K. Amikawa, H. Nakayama and M. Onoda, 일본 세라믹 협회 학술논문지, **98**(11), 1231 (1990).
 10. H. Maiwa, N. Ichinose and K. Okazaki, Jpn. J. Appl. Phys., **33**(9B), 5240 (1994)
 11. W. Wang, Z. Chen, M. Adachi and A. Kawabata, Integrated Ferroelectrics, **12**, 251 (1996).
 12. M. Ogasawara, M. Shimizu and T. Shiozaki, Jpn. J. Appl. Phys., **31**(9B), 2971 (1992).
 13. H. Kidoh, T. Ogawa, H. Yashima, A. Morimoto and T. Shimizu, Jpn. J. Appl. Phys., **31**(9B), 2856 (1992).
 14. E. Tokumitsu, N. Tanisake and H. Ishiwara, Jpn. J. Appl. Phys., **33**(9B), 5201 (1994).
 15. K. Amanuma, T. Hase and Y. M. Yasaka, Jpn. J. Appl. Phys. **33**(9B), 5211 (1994).
 16. K. Iijima, Y. Tomida, R. Takeyama and I. Ueda, J. Appl. Phys. **60**, 361 (1986).
 17. D. L. Polla, C. Ye, P. Schillar, T. Tamagawa, W. P. Robbins, D. Glumac and C. C. Hiswes, Mater. Res. Soc. Symp. Proc., **243**, 55 (1992).
 18. K. K. Deb, K. W. Bennett, P. S. Brody and B. M. Melnick, Integrated Ferroelectrics, **6**, 253 (1995).
 19. P. C. Vanbuskirk, J. Roeder, S. Bilodeau, S. Pombrik and H. Beratan, Integrated Ferroelectrics, **6**, 141 (1995).
 20. J. J. Shyu and K. L. Mo, Jpn. J. Appl. Phys., **34**(10), 5683 (1995).
 21. M. Sayer, A. Mansingh and A. K. Arora, Integrated Ferroelectrics, **1**, 129 (1992).
 22. G. K. Chang, M. Y. Kim, S. Y. Yi and H. J. Chang, Korean J. Mater. Res. **6**(8), 825 (1996).
 23. C. Ye, T. Tamagawa, P. Schiller and D. Polla, Sensors and Actuators A, **35**, 77 (1992).