

SrTiO₃(001) 단결정 위에 제조된 SrBi₂(Ta,Nb)₂O₉ 박막의 미세구조

이 지 현

나노입자제어기술연구단, 서울대학교 정밀기계설계공동연구소
(2000년 8월 5일 접수)

Microstructure of SrBi₂(Ta,Nb)₂O₉ Thin Films on SrTiO₃(001) Single Crystal

Ji-Hyun Yi

National CRI Center for Nano Particle Control, Institute of Advanced Machinery and Design,
Seoul National University, Seoul, 151-742, Korea

(Received August 8, 2000)

초 록

SrTiO₃(001) 단결정 기판 위에 졸-겔 스펀코팅으로 SrBi₂(Ta,Nb)₂O₉ 박막을 도포하고 그 결정화 과정을 고온 X-선 회절분석 (HTXRD)으로 추적하면서 Pt(111)/Ti/SiO₂/Si 위에 성장한 박막과 비교하였다. SrTiO₃(001) 단결정 기판 위에 도포된 SrBi₂Nb₂O₉ 박막은 fluorite-like phase와 같은 transient phase를 거치지 않고 곧바로 순수한 SrBi₂Nb₂O₉ 상으로 결정화가 시작되었으며 결정화가 시작되는 온도인 ~540°C부터 c축 배향성장하였다. 또한 SrBi₂(Ta,Nb)₂O₉ 박막은 Ta/Nb 비에 관계없이 SrTiO₃(001) 위에서 모두 (00l)로 배향되었으며, 코팅 횟수가 늘어나 필름의 두께가 증가함에 따라 c축 배향성은 미세한 감소를 보였다. SrBi₂Nb₂O₉/SrTiO₃ 단면을 TEM으로 관찰한 결과 SrBi₂Nb₂O₉은 대체로 불규칙한 크기의 다결정체로 되어 있었으나 계면 부근에서는 [001]_{SBN}//[001]_{SrTiO3}, [110]_{SBN}//[100]_{SrTiO3}라는 결정학적 관계를 가지며 에피탁살 성장했음을 알 수 있었다.

ABSTRACT

SrBi₂(Ta,Nb)₂O₉ thin films were deposited by sol-gel process on single crystalline SrTiO₃(001) as well as Pt(111)/Ti/SiO₂/Si substrates and their crystallizations followed by temperature-programmed XRD. Crystallization of the pure SrBi₂Nb₂O₉ phase on SrTiO₃ began at about 540°C without transient phase such as fluorite-like phase. In addition, the normal orientation of the SrBi₂Nb₂O₉ thin films occurred at the very beginning of the crystallization process. SrBi₂(Ta,Nb)₂O₉ thin films showed (00l) orientation regardless of the Ta/Nb ratio, as XRD showed. The degree of the c-axis preferred orientation slightly decreased as the number of deposited coatings increased. The cross-sectional transmission electron micrograph revealed that SrBi₂Nb₂O₉ film was consisted of rather polycrystalline grains. Near the interface, however, the film was epitaxed on the substrate such as [001]_{SBN}//[001]_{SrTiO3}, [110]_{SBN}//[100]_{SrTiO3}.

Key words : SrBi₂(Ta,Nb)₂O₉, Oriented growth, Epitaxy

1. 서 론

SrBi₂Ta₂O₉ (SBT)와 SrBi₂Nb₂O₉ (SBN) 및 그 고용체 SrBi₂(Ta,Nb)₂O₉ (SBTN) 박막은 백금 전극과 함께 사용하여도 Pb(Zr,Ti)O₃에 비하여 우수한 피로특성을 나타내는 것으로 인해 이를 FRAM(Ferroelectric Random Access Memory) 등에 응용하려는 많은 연구가 진행되고 있다.¹⁾ SBT나 SBN은 그 일반식이 (Bi₂O₂)(A_{m-1}B_mO_{3m+1})로 표시되는 Aurivillius' phases에 속하며 layered bismuth oxides 등으로도 불리운다(여기서 A = Na⁺, K⁺, Sr²⁺, Ba²⁺, Y³⁺, Bi³⁺, U⁴⁺, etc, B = Fe³⁺, Cr³⁺, Ti⁴⁺, Nb⁵⁺, Ta⁵⁺, Mo⁶⁺, W⁶⁺, etc, m은 1에서 8사이의 정수).^{2,3)} Aurivillius' phases는 1개의 (Bi₂O₂)²⁺층과 m개의 perovskite-like 층[(A_{m-1}B_mO_{3m+1})²⁻]이 교대로 적층된 구조를 이루고 있다. 현재까지 알려진 약

70여 종의 Aurivillius's phases는 모두 사방정이지만 격자 상수 a₀와 b₀가 거의 같아 정방정으로 분류되기도 하며 이 경우 다음과 같은 식이 성립된다.^{4,6)}

$$a_0 \cong b_0 \cong \sqrt{2}a_T \cong 0.54 \text{ nm} \quad (1)$$

격자상수 c는 (Bi₂O₂)²⁺층 사이에 존재하는 perovskite-like 층의 개수 즉 m 값에 좌우되며 다음과 같은 식으로 나타낼 수 있다.

$$c/2 \cong (m+1)0.413 \text{ nm} \quad (2)$$

강유전체 결정들이 이방성을 가지지만 Aurivillius' phases의 경우 보다 심한 이방성을 띤다. 예를 들어 m 값이 3인

Bi₄Ti₃O₁₂는 분극 벡터가 *a-b* 면에 대하여 4.5° 정도 기울어져 있어 *a* (혹은 *b*) 축 방향으로 높은 자발분극 값을 갖는 반면 *c* 축 방향으로 ~0에 가까운 자발분극 값을 나타낸다.^{7,8)} 이러한 현상은 SBT나 SBN에서도 유사하게 나타난다.⁹⁾

SBT 혹은 SBN 박막을 일반적으로 쓰이는 Pt(111) 하부 전극 위에 성장시킬 경우 lattice mismatch로 인해 배향성이 없는 다결정 박막이 되어 자발분극 값이 낮아지게 되고 결과적으로 FRAM의 재료로 쓰이는데 어려움을 초래한다. 이 문제를 극복하기 위해 SBT 박막을 배향 성장시키고자 하는 많은 연구가 진행되고 있다. Aurivillius' phases의 구조를 정방정으로 볼 때 식 (1)과 같이 *a_T* 값이 입방정 혹은 정방정 perovskite 구조를 가지는 화합물의 격자상수 값 *a*와 유사한 사실을 이용하여 SrTiO₃(001) 단결정 기판 위에 SBN 혹은 SBT 박막을 *c* 축 배향 성장시킨 결과가 보고되었다.^{10,11)} 한편 3-6% 정도의 적절한 lattice mismatch를 갖는 LaAlO₃(100)이나 YSZ(200) 기판 위에 *a* 축 배향 성장된 SBT 박막도 보고된 바 있다.¹²⁾ 기존의 Pt(111)/Ti/SiO₂/Si 기판인 경우는 증착 방법이나 조건을 바꾸어 SBT를 *c* 축 혹은 *a* 축 배향 성장시킨 예가 보고되었다.^{13,14)}

하지만 배향 성장한 SBT 혹은 SBN 박막의 결정화 과정이나 미세구조에 대한 정보는 아직 부족하며 단결정 위에 성장한 경우 단결정 기판과 박막 사이의 계면에 대한 연구의 필요성이 높아지고 있다. 따라서 본 연구에서는 SrTiO₃(001) 단결정 기판 위에 졸-겔 스펀코팅으로 SrBi₂(Ta,Nb)₂O₉ 박막을 도포하고 그 결정화 과정을 고온 X-선 회절분석 (HTXRD)으로 추적하면서 Pt(111)/Ti/SiO₂/Si 위에 성장한 박막과 비교하였다. 또한 Ta/Nb의 비, 막의 두께가 배향성에 미치는 영향을 규명하였으며 고분해능 투과전자현미경 (HRTEM)으로 SBN-SrTiO₃ 계면을 연구하였다.

2. 실험방법

코팅용액을 합성하기 위하여 strontium 2-ethylhexanoate (Alfa, 99.7%)와 bismuth 2-ethylhexanoate (Alfa, 99.7%)를 120°C에서 2-ethylhexanoic acid (Alfa, 99%)에 녹이고 상온으로 냉각한 후에 absolut ethanol에 미리 용해된 niobium ethoxide (Aldrich, 99.95%) 혹은 tantalum ethoxide (Aldrich, 99.95%)를 섞어 안정된 용액을 얻었다. 전구체 용액 제조에 대한 보다 상세한 것은 참고문헌에 언급되어 있다.¹⁵⁾ SBT 및 SBN 박막은 Sulzer photoresist spinner를 사용하여 SrTiO₃ (10×10×1 mm) 기판 혹은 Pt/Ti/SiO₂/Si (10×10×1 mm) 기판 위에 도포되었다. 스펀코팅은 4000 rpm에서 30초 동안 이루어졌으며, 도포된 비정질막은 300°C에서 10분간 건조되었다. 건조된 비정질막은 필요에 따라 고온 전기로가 부착된 X-ray 회절분석기 속에서 20-800°C의 범위에서 열처리되거나, 일반 전기로에서 700°C로 1시

간 동안 열처리되었다.

박막의 열처리 온도에 따른 결정화 과정과 배향성을 분석하기 위하여 고온 전기로 (Anton Paar HTK10, Pt heating sample holder)와 Elphyse position detector (aperture: 14°)가 장착된 X-ray 회절분석기 (Siemens D5000, θ/θ , CuK α radiation)가 사용되었으며, 시편 가열 속도는 5°C/min, 스캔 간격은 0.029°, 스캔속도는 2°/min, 스캔범위는 10-70°(2 θ)로 고정하여 20-800°C 사이의 온도에서 측정되었다. TEM 시편은 먼저 적당한 두께로 연마한 후 이온 밀링하였고 Jeol 2010으로 200 kV의 가속전압 하에 관찰되었다.

3. 결과 및 고찰

Fig. 1은 SBN 전구체 용액을 Pt(111)/Ti/SiO₂/Si 기판 위에 1회 도포한 후 300°C에서 건조시킨 시편을 고온 XRD 분석기에서 800°C까지 가열하며 얻은 회절 패턴이다. 약 500-560°C 사이의 온도에서 최초의 피크가 관찰되는 것을 볼 때 이 온도 범위에서 결정화가 시작되었음을 알 수 있다. 하지만 피크의 위치로 보아 이 결정상은 Aurivillius' phases가 아니라 fluorite-like phase로 추정된다. M.A. Rodriguez 등은 졸-겔 법으로 Pt/Si 기판 위에 제조된 SBT 박막이 fluorite-like phase를 거쳐 perovskite-like phase로 결정화함을 밝혔다. 이러한 현상은 동일한 결정구조를 가지는 SBN 박막의 결정화 과정에서도 이미 확인된 것이다.^{15,16)} 온도가 더 상승함에 따라 700°C에서 이 transient phase는 모두 순수한 SBN 상으로 바뀌고 있다. (115), (200), (0010) 면들은 이 필름이 다결정으로 이루어져 있으며 배향성이 없음을 나타내고 있다. 700°C 보다 높은 온도에서는 주목할만한 변화가 관찰되지 않았다.

한편 동일한 SBN 박막을 SrTiO₃(001) 단결정 기판 위에 도포하여 HTXRD 분석을 실시한 결과가 Fig. 2에 나타나

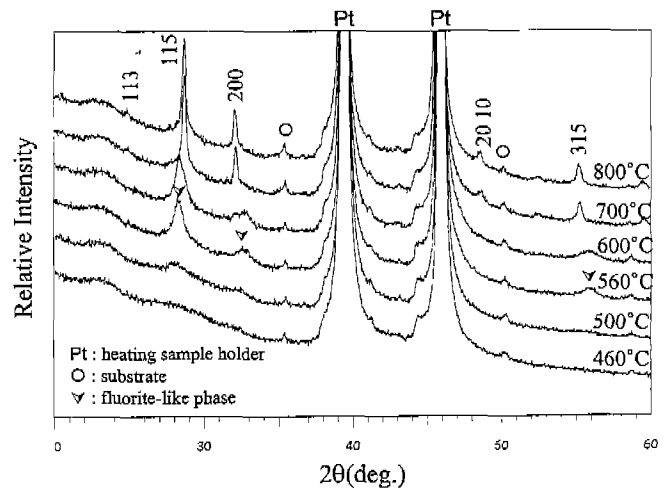


Fig. 1. High temperature XRD patterns of SrBi₂Nb₂O₉ thin film on Pt(111)/Ti/SiO₂/Si substrate.

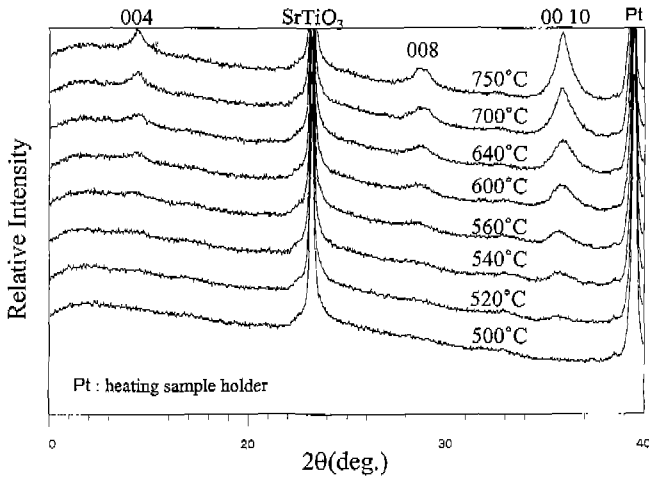


Fig. 2. High temperature XRD patterns of $\text{SrBi}_2\text{Nb}_2\text{O}_9$ thin film on $\text{SrTiO}_3(001)$ substrate.

있다. 최초의 결정상이 나타나는 온도는 약 520-540°C로 Pt/Ti/SiO₂/Si 기판 위에서의 경우와 유사하다. 하지만 transient phase인 fluorite-like phase를 거치지 않고 처음부터 곧 바로 순수한 SBN 상으로 결정화가 시작되었다. SrTiO_3 의 격자상수 $a(3.905 \text{ \AA})$ 가 SBN의 격자상수 $a_T(3.894 \text{ \AA})$ 와 매우 유사하여 lattice mismatch가 매우 작다(~0.3%)는 사실이 SBN 상의 핵형성에 기여하여 transient phase 없이 곧 바로 Aurivillius' phases로 결정화한 것으로 추정된다. 더욱이 결정화가 시작될 때부터 (004), (008), 및 (0010) 등 (00l) 면만 관찰되며 c축 배향 성장하고 있음을 알 수 있다. (0010) 면의 반가폭이 700°C까지 점차 줄어드는 사실은 고온으로 올라감에 따라 입자의 크기가 성장함을 말해준다.

Ta/Nb 비가 박막의 배향성장에 미치는 영향을 알아보기 위하여 $\text{SrBi}_2(\text{Ta}_x\text{Nb}_{1-x})_2\text{O}_9$ 에서 x 값을 각각 0.00, 0.25, 0.50, 0.75, 1.00으로 변화시키며 전구체 용액을 제조하고 $\text{SrTiO}_3(001)$ 단결정 기판 위에 각각 1 회 코팅한 후 700 °C에서 1 시간 동안 열처리하였고 이에 대한 XRD 분석 결과가 Fig. 3에 실려 있다. SBN 및 SBT를 포함한 모든 조성에서 (00l) 면들만 회절에 참여하고 있다. 즉 Ta/Nb 비에 관계없이 c축 배향성장이 일어났음을 알 수 있다. 격자상수 값을 계산하기 위하여 PeakFit¹⁷⁾를 사용하여 XRD 패턴을 pseudo-Voigt 함수로 fitting하고 최소자승법으로 계산한 결과 조성비 x에 따라 a_T 값이 3.897 Å(x=0.00), 3.898 Å(x=0.25), 3.901 Å(x=0.50), 3.906 Å(x=0.75), 3.916 Å(x=1.00)로 매우 완만하게 증가하였다. Ta/Nb 비에 무관하게 lattice mismatch가 0.3% 이하인 것을 고려할 때 조성비에 관계없이 c축 배향성장이 일어나는 사실은 어느 정도 예측할 수 있는 결과이다.

박막의 두께가 배향성장에 미치는 영향을 알아보기 위하여 2 가지 다른 제조공정으로 SBN 박막을 제조하였다. “제

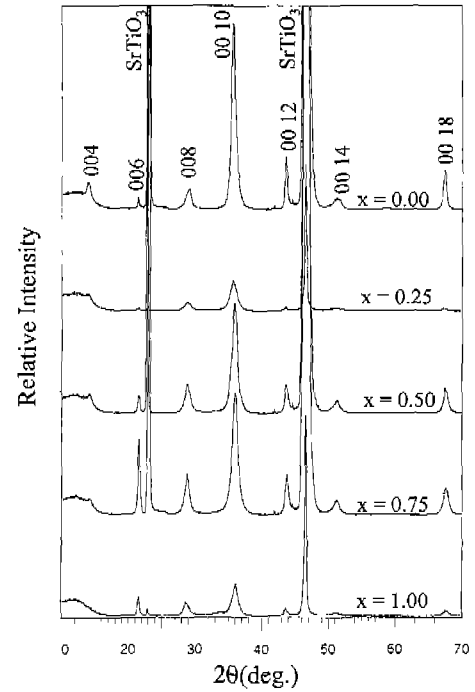


Fig. 3. XRD patterns of $\text{SrBi}_2(\text{Ta}_x\text{Nb}_{1-x})_2\text{O}_9$ thin film on $\text{SrTiO}_3(001)$ substrate.

조공정 I'에서는 스펀코팅 → 건조(300°C, 10분)를 필요한 만큼 1-5회 반복한 후 최종적으로 1회의 열처리(700°C, 1시간)를 시행하였다. “제조공정 II”에서는 스펀코팅 → 건조(300°C, 10분) → 열처리(700°C, 1시간)의 전체 공정을 1-5회 반복 실시하였다. 참고로 1회 코팅하여 700°C, 1시간 열처리한 SBN 박막의 두께는 투과전자현미경으로 단면을 관찰한 결과 ~40 nm로 추정되었다.

“제조공정 I'”을 사용하여 만들어진 SBN 박막에 대한 XRD 분석 결과가 Fig. 4에 주어졌다. 1회 코팅된 시편에서는 (00l) 면만 관찰되지만 2회 코팅된 시편부터 (005), (200) 및 (315) 면이 함께 회절에 참여하고 있으며 박막의 두께가 증가할수록 이 면들의 피크 강도가 증가하고 있다 (Fig. 4의 inset 참조). 5회 코팅된 시편에 대하여 Lotgering¹⁸⁾이 제안한 방법으로 회절에 참여한 전체 면들에 대한 (00l) 면의 분율을 구하였을 때 ~87%가 얻어졌다.

“제조공정 II”를 사용할 경우도 앞의 경우와 유사한 결과가 얻어진다(Fig. 5). 즉 2회 코팅된 시편부터 회절강도가 낮기는 하지만 (005), (200) 및 (315) 면들이 (00l) 면과 함께 관찰되며 박막의 두께가 증가할수록 이들 비(非) (00l) 면의 강도가 서서히 증가한다. 그러나 Fig. 5의 inset을 참조할 때 비 (00l) 면의 강도의 증가율이 “제조공정 I'”에 의한 경우보다 낮음을 알 수 있다. 5회 코팅된 시편에 대해 산출된 (00l) 면의 분율은 ~95%였다. 한 번 도포된 비정질 박막을 완전히 결정화시킨 후에 다음 코팅을 계속하는 “제조공정 II”가 배향성을 유지하는데 유리하였다.

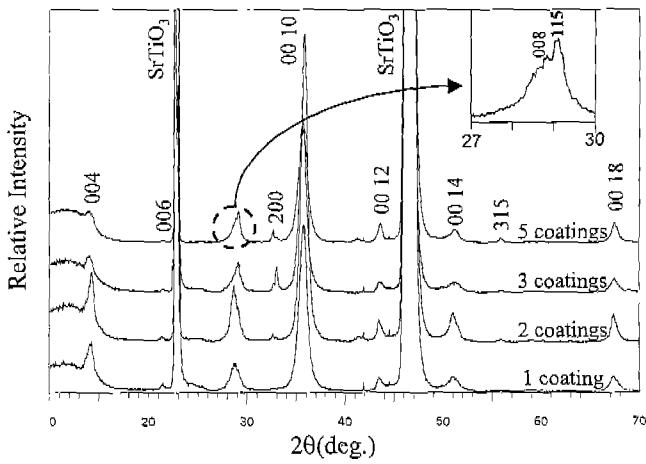


Fig. 4. XRD patterns versus the number of deposited coatings of SrBi₂Nb₂O₉ on SrTiO₃(001) prepared by "process I".

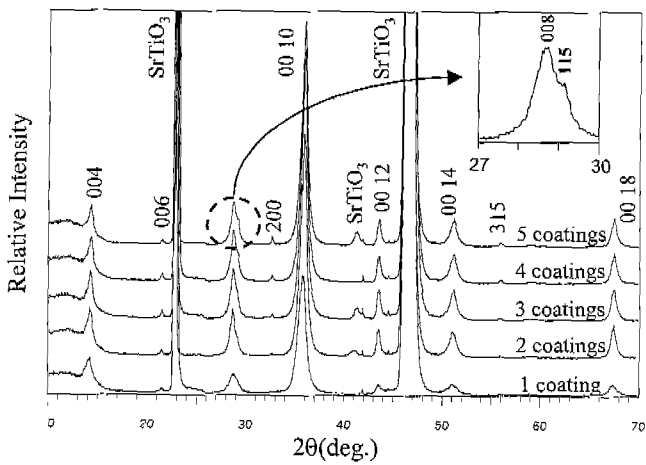


Fig. 5. XRD patterns versus the number of deposited coatings of SrBi₂Nb₂O₉ on SrTiO₃(001) prepared by "process II".

SBN 박막과 SrTiO₃ 단결정 기판 사이의 계면을 연구하기 위하여 "제조공정II"를 사용하여 2회 코팅과 열처리를 반복하여 시편을 제조하고 단면을 관찰하였다. SBN/SrTiO₃의 단면에 대한 TEM 사진이 Fig. 6(a)에 나타나 있다. 전체적으로 볼 때 박막은 다결정체에 가까우며 입자의 크기는 20-70 nm로 일정하지 않았다. 하지만 입자들은 대개 관찰에 가까운 구조로 발달되어 있다. A로 표시된 지역에서 관찰되고 있는 약 70 nm 정도의 비교적 큰 결정립에 대한 제한시야회절(SAD) 상이 Fig. 6(b)에 실려있다. 회절점을 분석한 결과 사방정 구조의 SrBi₂Nb₂O₉ 상임이 확인되었다. 그리고 기판에 대한 제한시야 회절상은 이 기판이 입방정 구조의 SrTiO₃(001)임을 확인하였다(Fig. 6(c)).

지역 A에서 SBN과 SrTiO₃ 사이의 계면에 대해 얻어진 고분해능 투과전자현미경 사진이 Fig. 7에 실려있다. 시편이 다소 두꺼워 사진의 해상도가 좋지 않지만 SBN과 SrTiO₃의 면들이 관찰되고 있으며 계면도 확인할 수 있다. SBN과

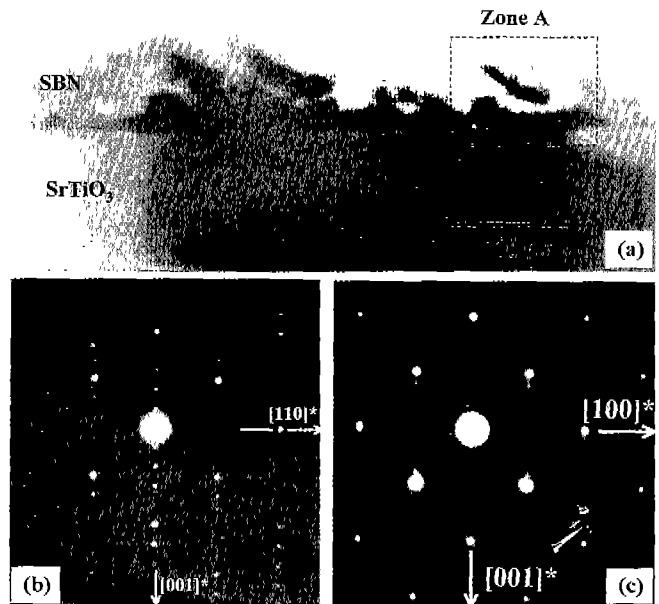


Fig. 6. Cross-sectional TEM micrograph of SrBi₂Nb₂O₉ thin film on SrTiO₃(001) substrate (a), with SAD pattern of the film (b) and the substrate (c).

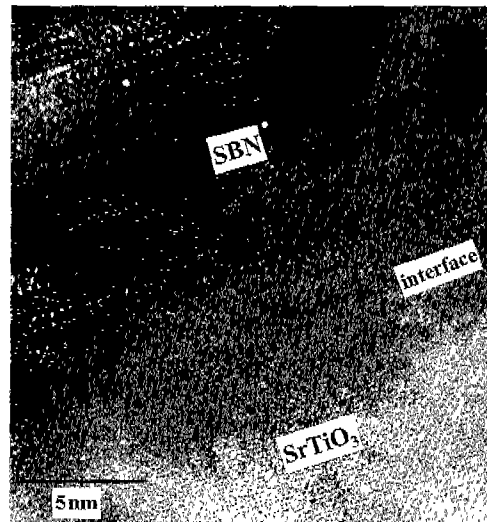


Fig. 7. High resolution TEM micrograph of SrBi₂Nb₂O₉-SrTiO₃ interface.

SrTiO₃이 결정학적으로 어떤 상관관계를 가지고 있는지를 알기 위해 SAD 패턴을 얻고자 했으나 이 지역의 넓이가 너무 좁아 불가능하였다. 이에 대한 대안으로 먼저 Fig. 7의 음화를 negatoscope 위에 장착된 CCD 카메라를 통해 디지털화(1024×1024)한 후 CRISP¹⁹⁾라는 프로그램을 통하여 Fourier 변환을 실시하였다. 이와 같은 계산을 통하여 얻어진 회절상이 Fig. 8(a)에 나타나 있다. 이 회절상은 Fig. 7 전체를 대상으로 계산된 것이므로 SBN에 의한 Bragg 점들과 SrTiO₃에 의한 Bragg 점들이 함께 나타나 있다.

한편 SrBi₂Nb₂O₉의 공간군을 사방정 A2₁am으로 보고

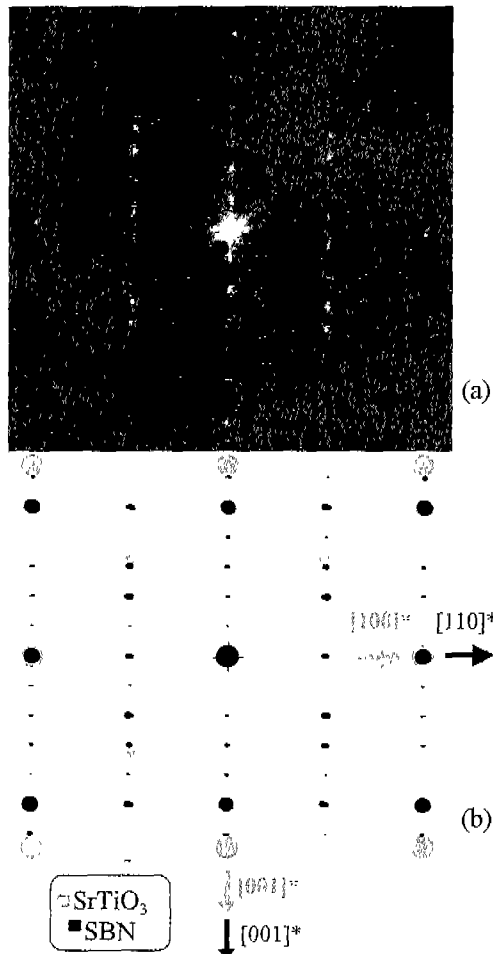


Fig. 8. Electron diffraction pattern obtained by a calculation of Fourier transformation of Fig. 7. (a), and calculated and superimposed reciprocal lattices of $\text{SrBi}_2\text{Nb}_2\text{O}_9$ and SrTiO_3 (b).

Ismunandar와 B.J. Kennedy에 의한 positional parameters에 기초하여 CaRIne 3.1²⁰⁾ 프로그램으로 geometric simulation을 실시하여 역격자 공간을 계산하였다.²¹⁾ 또한 SrTiO_3 는 입방정 $Pm3m$ 이므로 이에 대한 역격자 공간도 역시 동일한 방법으로 계산하였다. 그리고 이렇게 계산된 두 역격자 공간에 대해 projection 방향을 여러 조합으로 바꾸면서 서로 겹쳐보았다. 그 결과 이들 계산된 역격자면들의 관계가 $[001]_{\text{SBN}}^*/[001]_{\text{SrTiO}_3}^*$, $[110]_{\text{SBN}}^*/[100]_{\text{SrTiO}_3}^*$ 일 때 Fig. 8(b)는 Fig. 8(a)와 결정학적으로 일치하였다. 결과적으로 계면에서 SBN은 $[001]_{\text{SBN}}/[001]_{\text{SrTiO}_3}$, $[110]_{\text{SBN}}/[100]_{\text{SrTiO}_3}$ 라는 결정학적 관계를 가지며 SrTiO_3 기판 위에 에피탁살 성장해 있음을 알 수 있다. 이 결과는 grazing incidence XRD와 ϕ -scan을 사용한 기존의 연구와도 일치한다.²²⁾ 즉 SrTiO_3 와의 계면에서부터 한계 거리(여기서는 약 15-20 nm) 이내에 있는 SBN 결정립들은 에피탁살 성장하여 100%에 가깝게 c 축으로 배향되지만 계면에서의 거리가 더 멀어짐에 따라 c 축 배향에서 벗어나는 결정립의 숫자가 늘어난다고 할 수 있다.

4. 결 론

$\text{SrTiO}_3(001)$ 단결정 기판 위에 졸-겔 스펀코팅으로 도포된 $\text{SrBi}_2\text{Nb}_2\text{O}_9$ 박막은 $\text{Pt}(111)/\text{Ti}/\text{SiO}_2/\text{Si}$ 기판 위에서는 달리 transient phase를 거치지 않고 곧바로 순수한 SBN 상으로 결정화가 시작되었으며 결정화가 시작되는 온도인 $\sim 540^\circ\text{C}$ 부터 (00)로 배향되었다. $\text{SrBi}_2(\text{Ta},\text{Nb})_2\text{O}_9$ 박막은 Ta/Nb 비에 관계없이 $\text{SrTiO}_3(001)$ 위에서 모두 c 축 배향성장하였다. SBN/ SrTiO_3 단면을 TEM으로 관찰한 결과 SBN은 대체로 불규칙한 크기의 다결정체로 구성되어 있었으나 계면 부근에서는 $[001]_{\text{SBN}}/[001]_{\text{SrTiO}_3}$, $[110]_{\text{SBN}}/[100]_{\text{SrTiO}_3}$ 라는 결정학적 관계를 가지며 에피탁살 성장했음을 알 수 있었다.

감사의 글

본 연구에 도움을 준 프랑스 Limoges 대학교의 J. P. Mercurio 교수와 CNRS의 P. Thomas 박사에게 감사드립니다.

REFERENCES

1. C. A-Paz de Araujo, J. F. Scott, 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).
2. B. Aurivillius, "Mixed Bismuth Oxides with Layer Lattices, I. The Structure Type of $\text{CaNb}_2\text{Bi}_2\text{O}_9$," *Arkiv Kemi*, **1**, 463-480 (1949).
3. B. Aurivillius, "Mixed Bismuth Oxides with Layer Lattices, II. Structure of $\text{Bi}_4\text{Ti}_3\text{O}_{12}$," *Arkiv Kemi*, **1**, 499-512 (1949).
4. E. C. Subbarao, "A Family of Ferroelectric Bismuth Compounds," *J. Phys. Chem. Solids*, **23**, 665-676 (1962).
5. G. A. Smolenskii, V. A. Isupov and A. I. Agranovskaya, "Seignettelectrics of The Octahedral Type with a Layer Structure," *Fiz. Tverdogo Tela*, **3**, 895-901 (1961).
6. E. C. Subbarao, "Crystal Chemistry of Mixed Bismuth Oxides with Layer-type Structure," *J. Am. Ceram. Soc.*, **45**, 166-169 (1962).
7. S. E. Cummins and L. E. Cross, "Crystal Symmetry, Optical Properties and Ferroelectric Polarization of $\text{Bi}_4\text{Ti}_3\text{O}_{12}$ Single Crystals," *Appl. Phys. Lett.*, **10**, 14-16 (1967).
8. N. Maffei and S. B. Krupanidhi, "Excimer Laser-ablated Bismuth Titanate Thin-films," *Appl. Phys. Lett.*, **60**, 781-783 (1992).
9. S. B. Desu, Dilip P. Vijay, X. Zhang and B. He, "Oriented Growth of $\text{SrBi}_2\text{Ta}_2\text{O}_9$ Ferroelectric Thin Films," *Appl. Phys. Lett.*, **69**(12), 1719-1721 (1996).
10. J. H. Yi, P. Thomas, M. Manier and J. P. Mercurio, " $\text{SrBi}_2\text{Nb}_2\text{O}_9$ Ferroelectric Thin Films," *J. Phys. IV*, **8**(P9), 225-228 (1998).
11. K. Ishikawa, N. Nukaga and K. Funakubo, "Metalorganic Chemical Vapor Deposition of Epitaxial $\text{SrBi}_2\text{Ta}_2\text{O}_9$ Thin

- Films and Their Crystal Structure," *Jpn. J. Appl. Phys.* **2**, 38(3A), L258-L260 (1999).
12. J. H. Cho, S. H. Bang, J. Y. Son and Q. X. Jia, "Control of Epitaxial Growth for SrBi₂Ta₂O₉ Thin Films," *Appl. phys. Lett.*, **72**(6), 665-667 (1998).
 13. T. K. Song, J. K. Lee and H. J. Jung, "Structural and Ferroelectric Properties of The C-axis Oriented SrBi₂Ta₂O₉ Thin Films Deposited by The Radio-frequency Magnetron Sputtering," *Appl. phys. Lett.*, **69**(25), 3839-3841 (1996).
 14. C. Bae, J. K. Lee, S. H. Lee and H. J. Jung, "Effect of Sr Content on The Orientation Growth of SrBi₂Ta₂O₉ Thin Films," *J. Kor. Ceram. Soc.*, **35**(8), 819-826 (1998).
 15. J. H. Yi, "Sol-Gel Preparation, Characterization and Electrical Properties of SrBi₂(Nb,Ta)₂O₉ Ferroelectric Thin Films," Ph.D. Thesis, University of Limoges, France (1998).
 16. M. A. Rodriguez, T. J. Boyle, C. D. Buchheit, R. G. Tissot, C. A. Drewien, B. A. Hernandez and M. O. Eatough, "Phase Formation and Characterization of The SrBi₂Ta₂O₉ Layered-perovskite Ferroelectric," *Integrated Ferroelectrics*, **14**, 201-210 (1997).
 17. PeakFit™ 4.06, SPSS Inc., USA (1997).
 18. F. K. Lotgering, "Topotactical Reactions with Ferrimagnetic Oxides Having Hexagonal Crystal Structures I," *J. Inorg. Nucl. Chem.*, **9**, 113-123 (1959).
 19. S. Hovm ller, "CRISP-Crystallographic Image-processing on a Personal-computer," *Ultramicroscopy*, **41**, 121-135 (1992).
 20. CaRIne[©] Crystallography 3.1, C. Boudias and D. Monceau, Divergent S.A., France (1997).
 21. Ismunandar, B. J. Kennedy, Gunawan and Marsongkohadi, "Structure of ABi₂Ta₂O₉ (A = Sr, Ba): Refinement of Powder Neutron Diffraction Data," *J. Solid State Chem.*, **126**, 135-141 (1996).
 22. C. Legrand, J. H. Yi, P. Thomas, R. Guinebretiere and J. P. Mercurio, "Structural Characterization of Sol-Gel SrBi₂Nb₂O₉ Thin Film Deposited on (001) SrTiO₃ Single Crystal," *J. Euro. Ceram. Soc.*, **19**, 1379-1381 (1999).