

졸-겔법에 의한 $(Yb_xY_{1-x})MnO_3$ 강유전체 박막제조

강승구[†] · 이기호

경기대학교 첨단산업공학부 신소재공학전공
(2004년 1월 7일 접수; 2004년 2월 19일 승인)

Preparation of Ferroelectric $(Yb_xY_{1-x})MnO_3$ Thin Film by Sol-Gel Method

Seunggu Kang[†] and Giho Lee

Materials Engineering, Kyonggi University, Kyonggi-Do 442-760, Korea
(Received January 7, 2004; Accepted February 19, 2004)

초 록

Y-acetate, Yb-acetate와 Mn-acetate를 출발물질로 사용하여 sol-gel 법으로 강유전성 $(Yb_xY_{1-x})MnO_3$ 박막을 제조하였다. Acetylaceton을 촉매로 사용하고 Reflux 법을 이용하여 안정한 $(Yb_xY_{1-x})MnO_3$ 전구체 용액을 얻었으며, 박막은 스핀 코팅 방법으로 Si(100) 기판 위에 제조하였다. 열처리 온도, 코팅용액의 $Rw(H_2O/alkoxide \text{ mol ratio})$ 변화 등을 실험변수로 하여 박막의 결정상 변화를 연구하였다. X-선 회절분석 결과 $YbMnO_3$ 의 결정상을 얻기 위한 최저 열처리온도는 $750^\circ C$ 이었으며, 최적 열처리 조건은 $800^\circ C$ 였다. Rw 를 1~6 범위 내에서 조절하여 첨가한 결과, $Rw=1$ 의 조건에서 c-축 배향이 잘 발달된 hexagonal $YbMnO_3$ 단일 결정상을 얻었다. Si(100)기판 위에 제조된 $(Yb_xY_{1-x})MnO_3$ 박막은 $x=0$ 또는 1인 경우 잔류 분극(Pr)값이 약 200 nC/cm^2 을 나타내었으나 $0 < x < 1$ 범위인 경우 Pr 값이 200 이하로 나타났다.

ABSTRACT

The ferroelectric $(Yb_xY_{1-x})MnO_3$ thin films were fabricated by sol-gel method using Y-acetate, Yb-acetate, and Mn-acetate as raw materials. The stable $(Yb_xY_{1-x})MnO_3$ precursor solution (sol) was prepared through the reflux process with acetylaceton as a catalyst and coated on Si(100) substrate by spin coating. The heat treatment temperature and, $Rw (H_2O/alkoxide \text{ mol ratio})$ dependence on crystallinity of thin films were studied. The lowest temperature for obtaining $YbMnO_3$ phase and the optimum heat-treatment conditions were proved as at $750^\circ C$ and $800^\circ C$, respectively. The hexagonal $YbMnO_3$ with c-axis preferred orientation could be obtained at $Rw=1$ condition. The remanent polarization for the thin films of $x=0$ or 1 was about 200 nC/cm^2 while, for the specimens of $0 < x < 1$, were $50\sim 100 \text{ nC/cm}^2$.

Key words : FRAM, Sol-gel, Ferroelectric, $ReMnO_3$, Thin film

1. 서 론

강유전체 박막을 비휘발성 메모리 소자에 응용한 연구는 Bertaut¹⁾와 Moll²⁾에 의해서 처음으로 시도되었다. 비휘발성 메모리 소자 중에 FRAM(Ferroelectric Random Access Memory)은 분극과 전기장과의 관계에서 나타나는 hysteresis 특성을 이용한 소자이므로 read/write cycle 횟수의 증가에 따라 분극값이 감소되는 피로 현상을 최대한 억제시켜야 하며, 동작전압을 더욱 낮추기 위해서는 coercive field가 낮은 강유전체 박막의 개발이 요구된다.³⁾

현재 연구되고 있는 FRAM의 강유전체 박막인 $Pb(Zr, Ti)O_3$, $SrBi_2Ta_2O_9$, $(Ba, Sr)TiO_3$ 등은 강유전체 구성 원소

들과 Si 기판간에 상호확산이 일어나 유전율이 낮은 SiO_2 산화층이 계면에 쉽게 형성되므로 인가전압의 분극화에 효과적으로 사용되지 못하는 문제점이 있다.^{4,6)}

강유전성을 나타내는 $ReMnO_3(Re: \text{Rare earth})$ 박막은 단일 분극축(0001)을 가지며, 성분원소의 무게가 무겁고 산화가 어려울 뿐 아니라 Bi, Pb 등 휘발성 원소를 포함하지 않는 장점을 지니고 있다.^{4,5)} 또한 $ReMnO_3$ 의 희토류 원소는 강력한 환원제로써 Si 층의 native oxide의 생성억제와 제거에도 기여할 것으로 기대되어 Si 기판상에 직접 제조할 수 있기 때문에 비휘발성 메모리 소자로서의 가능성이 매우 높다고 할 수 있다. 지금까지 $ReMnO_3$ 중의 $YMnO_3$ 박막에 관해서는 많은 연구가 수행^{8-10,14-16)}되었으나, $YbMnO_3$ 를 박막으로 제조하여 MFS-FET(Metal Ferroelectric Semiconductor-Field Effect Transistor) 구조를 갖는 FRAM에 응용할 정도로 만족할만한 특성치가 보고된 것은 없다.

[†]Corresponding author : Seunggu Kang
E-mail : sgkang@kyonggi.ac.kr
Tel : +82-31-249-9767 Fax : +82-31-249-9775

따라서, 본 연구에서는 sol-gel법을 이용하여 박막 및 분말 형태의 $(Yb_xY_{1-x})MnO_3$ 을 제조하였다. 특히 Pt가 코팅된 Si 기판을 사용하지 않고, 직접 Si(100)기판 위에 형성하였으며, sol 용액도 reflux 방법을 사용하여 급속-acetate로부터 직접 제조하였다. Rw ratio, 열처리 조건에 따른 $(Yb_xY_{1-x})MnO_3$ 결정화 거동을 X-선 회절분석을 통하여 규명하였다. 또한, 제조된 박막의 미세구조 변화를 SEM을 통하여 관찰하였고 기판의 전기적 특성은 P-E 이력곡선 측정을 통하여 조사하였다.

2. 실험방법

본 실험에서는 코팅용액의 제조, 기판의 세척, 기판에의 코팅 및 건조, 그리고 열처리의 과정을 거친 뒤 박막의 물성을 측정, 분석하는 순서로 진행하였다.

$YbMnO_3$, $(Yb_xY_{1-x})MnO_3$ 합성하기 위하여 전구체 용액의 출발물질로서 $Yb(CH_3CO_2)_3 \cdot 4H_2O$ [ytterbium acetate tetrahydrate, 99.9%, Aldrich Co.], $Y(CH_3CO_2)_3 \cdot H_2O$ [yttrium acetate tetrahydrate, 99.9%, Aldrich Co.]와 $Mn(CH_3CO_2)_2 \cdot 4H_2O$ [manganese(II) acetate tetrahydrate, 99.99%, Aldrich Co.]를 사용하였다. 이러한 출발물질의 부차수를 제거하기 위하여 $100^\circ C$ 에서 5 h 열처리를 행하였다. 용매는 Methanol [CH_3OH , 99.9%, Aldrich Co.]을 사용하였으며, Ytterbium acetate tetrahydrate의 경우 Acetylacetonone [$CH_3COCH_2COCH_3$, 99+%, Aldrich Co.]을 촉매로 첨가하여 acetate를 용해시킬 수 있었다.

용액의 제조는 $Yb(CH_3CO_2)_3$, $Y(CH_3CO_2)_3$, $Mn(CH_3CO_2)_2$ 및 methanol을 동시에 첨가하여 $68^\circ C$ 에서 2 h 동안 refluxing을 실시하였다. 남아있는 유기물을 제거하기 위하여 진공감압 하에서 distillation을 실시하고 다시 $68^\circ C$ 에서 5 h 동안 refluxing함으로써 맑고 투명한 용액을 제조하였다. 이렇게 제조된 용액의 가수분해를 위해 첨가되는 물은 급격한 가수분해를 방지하기 위해, 용매로 쓰인 메탄올을 사용하여 물이 메탄올내에서 0.1 M 농도가 되도록 희석시킨 후, 물 첨가 후 24시간 숙성시킨 후 코팅용액으로 사용하였다. 이때, 가수분해를 위해서 첨가되는 물의 양이 박막의 물성에 미치는 영향을 조사하기 위하여 H_2O 와 alkoxide의 몰비 즉, $Rw(H_2O/alkoxide \text{ mol ratio})$ 를 1~6 범위 내에서 조절하여 첨가하였다.

$YbMnO_3$ 박막을 제조하기 위한 기판은 MFS (Metal Ferroelectric Semiconductor) 구조를 형성하기 위하여 Si(100) wafer를 사용하였다. 본 실험에서는 코팅 전에 기판을 초음파세척기를 사용하여 아세톤, 증류수, 에탄올에 각 20 분씩 세척하였다.

박막은 spin coating 기기(K-359 S-1, Kyowariken Co.)를 사용하여 형성하였다. 박막의 두께는 코팅용액의 농도 및 스핀속도에 의해서 조절될 수 있다. 본 실험에서는 용

액의 농도를 0.1 M로 고정된 후 3000 rpm에서 30 sec 유지시켜 박막을 제조하였다. 중간 열처리는 코팅된 박막이 최종 열처리 과정에서 급속한 열분해와 유기물의 휘발에 의한 균열을 최소화하고, 또한 1회 코팅 시 박막에 잔존하는 유기물 및 코팅 후 유기용매를 연소시켜 제거하는 공정이다. 본 실험에서 코팅된 박막의 중간 열처리 조건은 건조 겔 분말의 시차 열분석, 열중량 분석 등의 결과를 참조하였으며, $320^\circ C/2 \text{ min}$ 중간 열처리를 행하였다.

제조된 박막 열처리 시 급속열처리(rapid firing) 방법^{8,9)}을 선택하였는데, 이는 열처리 로를 원하는 온도로 유지시킨 후 건조된 박막을 직접 집어 넣고 일정한 시간동안 유지시킨 후 즉시 로에서 꺼내는 방법이다. 이러한 급열처리 방법을 이용하여 air 분위기의 튜브로(air flow rate = 30 cc/min)에서 $800^\circ C/1 \text{ h}$ 행하였다. 최적 열처리 조건을 찾기 위해서 열처리 온도는 $650\text{--}850^\circ C$, 열처리 유지시간은 60 min 고정하였다.

$(Yb_xY_{1-x})MnO_3$ 겔분말은 전구체 용액을 $80^\circ C$ 로 유지된 오븐에서 겔화시킴으로서 제조하였다. 이렇게 제조된 겔분말은 상온에서 $1000^\circ C$ 까지 공기 분위기(air flow rate = 30 cc/min)에서 $5^\circ C/\text{min}$ 승온속도로 시차열 분석 및 열중량 분석(TG/DTA, SDT 2906, TA Instruments Co.)을 하였다.

합성된 박막의 결정학적 특성을 알아보기 위하여 X-선 회절분석기(PW 3020, Philips Co.)를 사용하였다. 측정조건으로서는 Cu $K\alpha$ 선을 사용하였고, 가속전압 및 전류가 각각 40 kV 및 40 mA, 주사속도는 $0.05^\circ/\text{sec}$, 주사범위 $2\theta = 10\text{--}60^\circ$ 이었다.

제조된 박막의 표면상태 및 단면의 미세구조를 관찰하기 위해 주사전자현미경(S-4200, S-4300 Hitachi Co.)을 사용하였다. 시편은 8 mA의 이온전류가 흐르는 IB-2 ion coater속에서 5 min 유지시켜서 백금 코팅을 한 후, 15 kV의 가속 전압으로 가속시킨 전자를 시편에 조사하여 발생하는 2차 전자를 이용하여 상을 얻었다.

제조된 박막의 전기적 특성을 측정하기 위하여 시편에 상부전극을 증착하였다. 이때, 상부전극은 직경 0.2 mm의 원형 dot를 가진 shadow mask를 이용하여 gold를 sputtering을 통하여 증착하였다. Si 기판에서 제조된 박막은 MFS 구조를 형성하였다. P-V 이력곡선은 Precision Pro(Radiant Co.)를 이용해서 분석하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1. 열처리 조건

$YbMnO_3$ sol로부터 얻어진 gel 분말의 열적 특성을 관찰 하고, 중간 열처리 온도를 결정하기 위하여 TG/DTA 분석을 하여 그 결과를 Fig. 1에 나타내었다. $320^\circ C$ 부근에서 분말의 무게감량이 급격히 발생하였고 이에 따른 흡

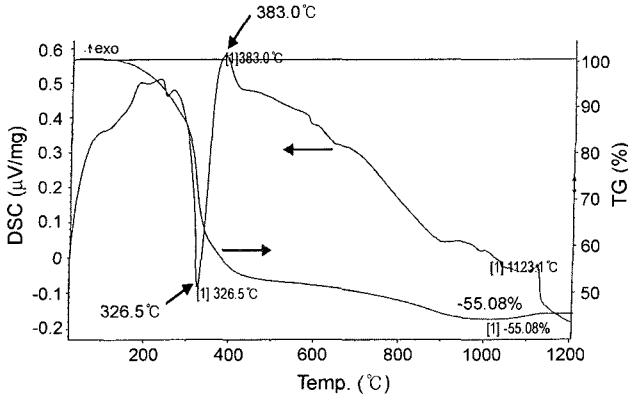


Fig. 1. TG/DTA curves of YbMnO₃ gel powders (Heating rate : 5°C/min in air).

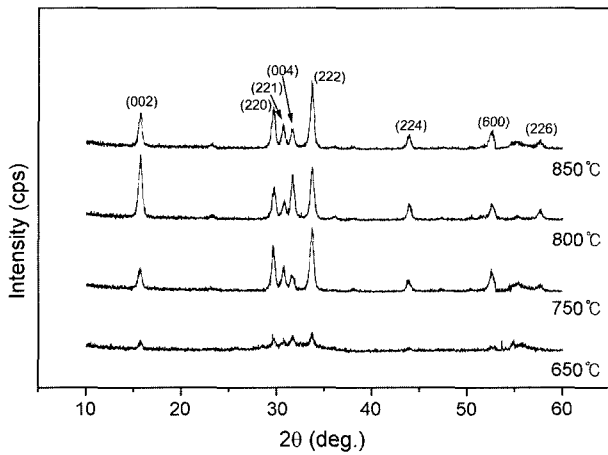


Fig. 2. XRD peaks of YbMnO₃ thin film fabricated on Si(100) showing temperature for an hour dependence of preferred orientation.

열피크를 관찰할 수 있다. YbMnO₃ gel의 1000°C까지의 일어나서 최종 무게감량은 55.1%였다. 이 결과로부터 유기물을 연소시키고 박막을 견고하게 하기 위한 중간 열처리 온도를 320°C, 2분간으로 결정하였다.

강유전체에서는 결정이 c-축으로 배향이 잘될 경우가 잔류 분극값이 높아지는 것이 일반적이다.^{11,13-15)} YbMnO₃ 전구체 용액을 Si(100)기판에 코팅한 후, 650~850°C 사이의 온도에서 60 min 급열처리를 한 후 결정상을 관찰하였다(Fig. 2). 이때, YbMnO₃ 전구체 용액의 R_w=1이었으며, 코팅횟수는 10회로 고정하였다. 기초실험의 결과로 10회가 최적이었는 데 이보다 적은 코팅횟수의 시편은 XRD 분석결과로 충분한 결정성장을 이루지 못한 것으로 나타났다. 코팅 횟수가 증가할수록 시편 막의 두께가 증가되면서 결정화도가 함께 증가하였는데, 그 원인의 하나로써 Si 기판과 박막 사이의 격자 부적합(lattice mismatch)을 지적할 수 있다. 즉 박막의 두께가 얇을 경우에는 기판-격자간 부적합도가 높아 결정화도가 낮지만 박막의 두께가

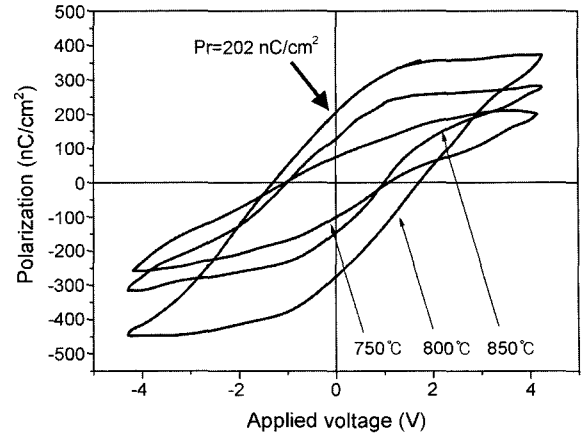


Fig. 3. P-E hysteresis loop of YbMnO₃ thin film fabricated on Si(100) and heat-treated for 1 h.

두꺼울 경우에는 부적합도 영향이 감소되어 막의 결정화도가 증가되는 것으로 보고되어 있다.¹⁷⁾

Fig. 2에서 열처리 온도가 650°C일 경우에는 결정피크가 충분히 나타나지 않는 것으로 보아 비정질 내에 극소량의 결정질이 성장하는 과정에 있음을 알 수 있으며, 750°C 이상으로 열처리하면 결정상이 형성된다. 750°C에서는 (222)면이 주 피크로 성장되었으나, 800°C에서는 (002)면이 주 피크로 성장을 하면서 c-축(002, 004면)의 배향성이 가장 좋음을 볼 수 있다. 열처리 온도가 850°C로 올라가면서 (222)면이 주 피크로 성장하여 상대적으로 (002)면 피크가 감소된다. 따라서, 본 실험에서 박막의 최적 열처리 조건은 800°C로 정하였다.

Fig. 3은 급속열처리 온도 변화에 따른 YbMnO₃ 박막의 P-E 이력곡선 측정 결과이다. Fig. 2에서 보인 XRD 관찰결과와 비교해 보면, c-축 배향성이 가장 좋은 시편이 가장 높은 Pr값을 나타냄을 볼 수 있다. 이때 Pr값은 약 200 nC/cm²의 값을 나타낸다. 750와 850°C로 열처리된 시편의 경우 각각 80, 135 nC/cm²의 Pr값을 갖는다.

3.2. 수화조건(R_w)에 따른 특성

가수분해를 위해서 첨가되는 물의 양이 YbMnO₃ 박막의 결정상 형성에 미치는 영향을 관찰하기 위하여 YbMnO₃ 전구체 용액의 R_w(H₂O/Alkoxide molar ratio)를 1~6 사이에서 조절하였다. 이렇게 제조된 YbMnO₃ 박막을 800°C/1 h 열처리하여 측정된 XRD 결과를 Fig. 4에 나타내었다. Si(100)기판의 경우 R_w가 증가함에 따라 (222)면의 강도가 증가 하면서 상대적으로 (002)면의 강도가 감소하는 것을 볼 수 있다. R_w=1일 때는 (002)면이 주 피크로 성장하는 반면, R_w=3, 6인 경우는 (002)면과 (222)면과 거의 비슷한 강도는 나타내고 있다.

Fig. 5에 R_w비 변화에 따른 YbMnO₃ 박막의 P-V 이력곡선 특성을 나타내었다. R_w=1, 3, 6인 경우 각각 220,

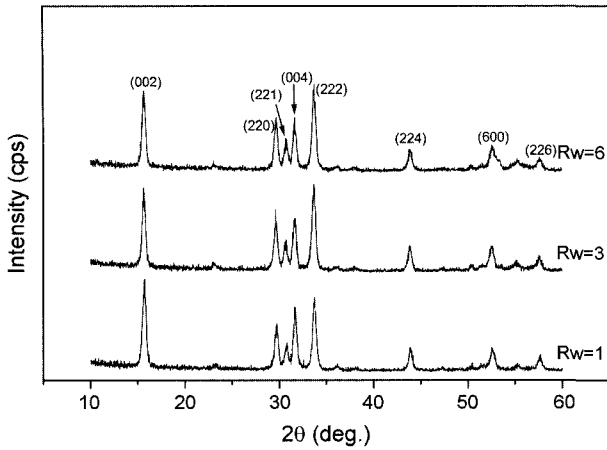


Fig. 4. Dependence of hydrolysis conditions upon preferred orientation of $YbMnO_3$ thin film annealed at $800^\circ C$ for 1 h.

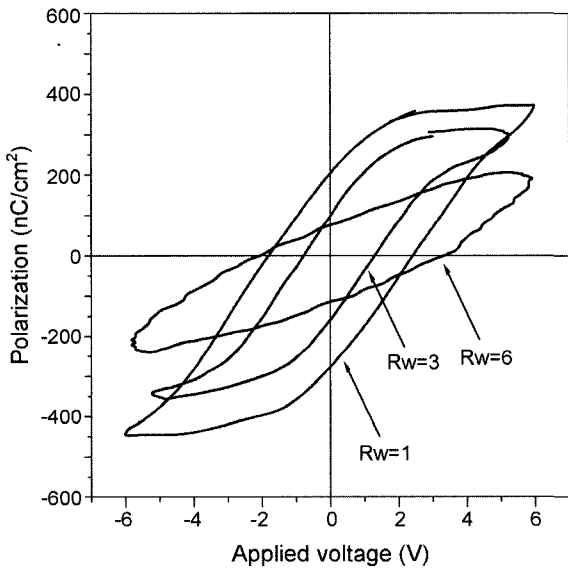


Fig. 5. P-E hysteresis loop and dielectric property of $YbMnO_3$ thin film annealed at $800^\circ C$ for 1 h.

105, 76 nC/cm^2 의 Pr값을 나타내었다. X-선 회절분석 결과에서 나타났듯이 c-축 배향성이 좋은 경우가 Pr값이 높게 나타남을 볼 수 있다. Rw가 1에서 3으로 증가할 때 Pr값이 거의 1/2로 감소함을 볼 수 있다.

Rw를 변화시킨 $YbMnO_3$ 박막의 미세구조를 전자현미경으로 관측하여 Fig. 6에 나타내었다. Rw가 증가함에 따라 기공의 크기가 커짐을 볼 수 있다. 이는 Rw가 1 이상일 때 가수분해 및 축합반응에 참여하지 못하는 과량의 H_2O 가 열처리 공정에서 기공으로 작용하는 것으로 보여진다. Fig. 6으로부터 Rw가 6인 시편은 상유전성임을 알 수 있다.

3.3. Yb의 치환율 (x값) 영향

$YbMnO_3$ 내 Y자리의 Yb 치환율 변화에 따른 결정상을

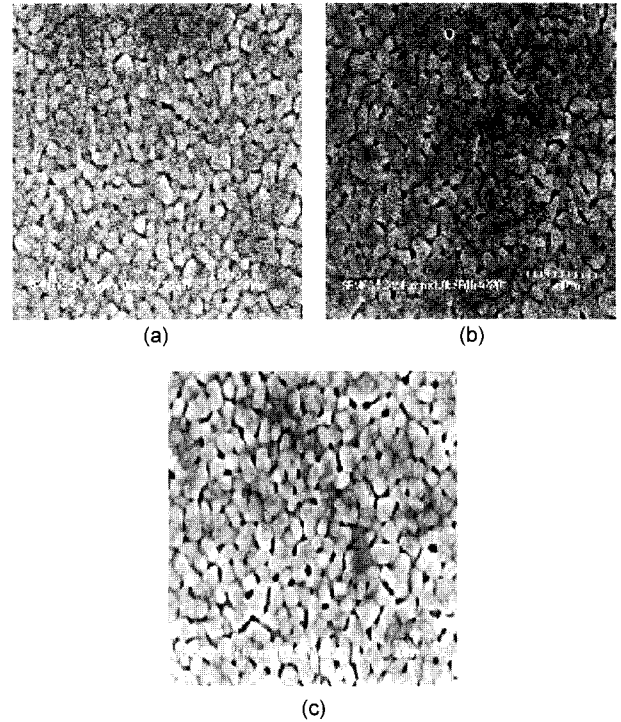


Fig. 6. SEM morphologies of $YbMnO_3$ thin film annealed at $800^\circ C$ for 1 h by hydrolysis conditions with Rw: (a) 1, (b) 3, and (c) 6.

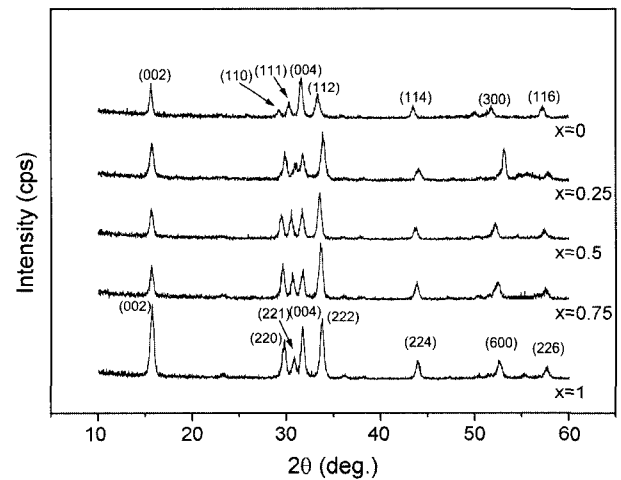


Fig. 7. XRD pattern of $(Yb_xY_{1-x})MnO_3$ thin film annealed at $800^\circ C$ for 1 h.

XRD로 관측하여 Fig. 7에 나타내었다. 이때, $(Yb_xY_{1-x})MnO_3$ 전구체 용액의 $Rw=1$, 열처리 온도 $800^\circ C$ 그리고 치환량 X는 0.25 단위로 변화시켰다.

$X=1$, 즉 $YbMnO_3$ 의 (002)면이 월등함을 볼 수 있으며, $X=0.25\sim 0.75$ 사이인 시편들에서 (004) 및 (002)면이 감소되어 있어 $X=0$ 시편에 비해 c-축 배향성이 좋다고 볼 수 없다. $X=0(YMnO_3)$ 와 $X=1(YbMnO_3)$ 을 비교해 보면 두 경우 모두 c-축 배향성이 우수함을 알 수 있다. $X=0$ 인

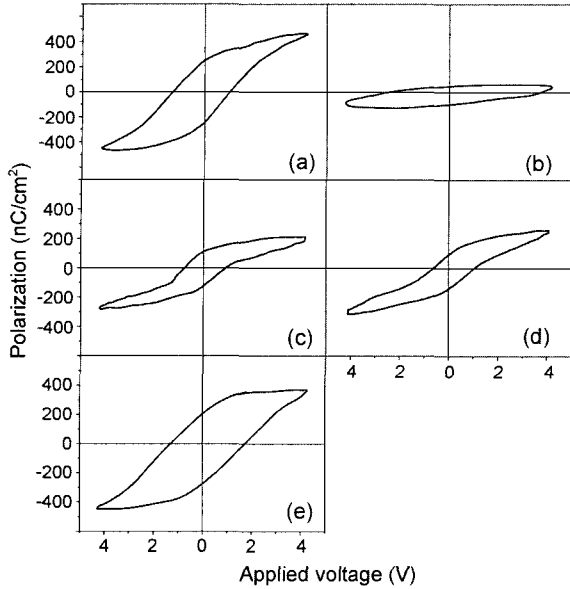


Fig. 8. Hysteresis loop of $(Yb_xY_{1-x})MnO_3$ thin films annealed at $800^\circ C$ for 1 h with $Rw = 1$. (a) $X=0$, (b) $X=0.25$, (c) $X=0.5$, (d) $X=0.75$, and (e) $X=1$.

경우에 (002)면 피크가 높진 않지만, (004)면 피크가 매우 잘 발달되어있으며, $X=1$ 인 경우 (002)면은 잘 발달되어있으나, (004)면은 (222)면보다 intensity가 낮다. 이러한 결정상 관측 결과는 Fig. 8의 전기적 특성과 연결지어 설명된다. $X=0$ 과 $X=1$ 시편의 hysteresis loop 크기와 현상이 비슷하다. 그러나 c축 배향이 좋지 않았던 $X=0.25\sim 0.75$ 시편들은 loop의 크기가 작다. 이로부터 Y 자리에 Yb가 치환된 시편은 단일결정상인 $YbMnO_3$ 또는 $YMnO_3$ 에 비해 강유전성이 떨어진다고 결론지을 수 있다.

일반적으로 원자반경이 다른 물질을 치환하였을 경우 XRD 피크가 이동되는 현상을 볼 수 있으나, 본 실험의 XRD(Fig. 7)결과에서는 Yb(ytterbium)의 원자반경(175 pm)과 Y(yttrium)의 원자반경(180 pm)의 차이가 거의 근소하여, 피크의 이동을 관찰하기가 힘들었다. 일반적으로 유전체에 교류전기장을 인가하면 전장의 방향에 따라 유전분극의 방향이 바뀌며 주파수가 증가하면 유전분극이 전기장의 방향에 따라가지 못하여 정전용량이 감소하고 유전손실이 발생한다. Fig. 9는 전구체 용액의 Rw 를 잔류분극 값이 가장 우수하였던 1로 고정시키고 $800^\circ C$ 에서 1 h 열처리한 $YbMnO_3$ 박막의 주파수(frequency) 변화($1\sim 10^4$ kHz)에 따른 유전상수와 유전손실계수($\tan \delta$)특성을 나타내었다. 유전상수는 주파수 변화에 따라 측정된 정전용량(capacitance)의 값을 이용하여 계산하였다. $1\sim 10^3$ kHz 범위 내에서 인가주파수가 증가함에 따라, 유전상수는 감소하고 유전손실은 증가하였다. 100 kHz에서 박막의 유전상수와 유전손실은 각각 13과 0.1이었다. 이러한 경향은 일반적으로 주파수가 증가할수록 강유전체의 유전상수는 감

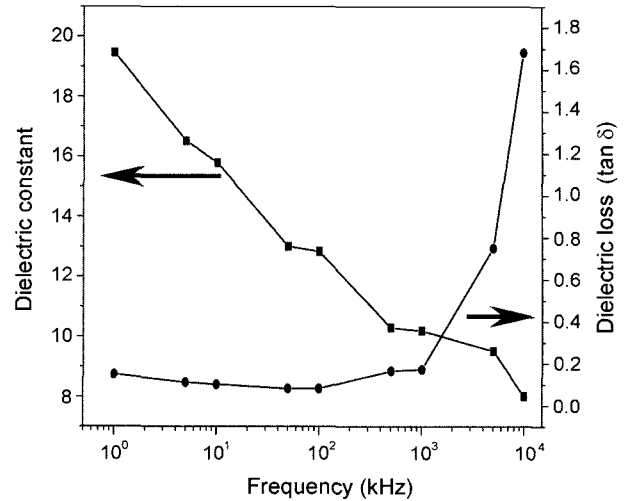


Fig. 9. Dielectric property of $YbMnO_3$ thin film annealed at $800^\circ C$ for 1 h.

소하고 유전 손실은 증가하는 유전분산(dielectric dispersion) 특성과 일치한다.¹²⁾

4. 결 론

1. Yb, Y, Mn acetate를 이용한 reflux법으로 Yb, Y, Mn alkoxide를 합성하고, 이들로부터 sol-gel법으로 $YbMnO_3$ 및 $(Yb_xY_{1-x})MnO_3$ 박막을 제조하였다. 결정상을 형성할 수 있는 최소 열처리온도는 $750^\circ C$ 였으며, $800^\circ C$ 에서 P-E 특성이 강유전체의 특성인 포화를 이루었다.
2. Si(100) 기판에서 제조된 $YbMnO_3$ 박막의 경우, $Rw = 1\sim 6$ 범위 내에서, Rw 가 낮을수록 $YbMnO_3$ 의 c축 배향성이 향상되었다. $Rw=1$ 인 경우 Pr값은 약 200 nC/cm^2 인데 반해, $Rw=6$ 인 경우에는 Pr값은 76 nC/cm^2 이었다.
3. Si(100)기판위에 $YbMnO_3$ 박막을 $Rw=1$, $800^\circ C$ 조건으로 제조한 결과, c축의 배향성이 우수한 Hexagonal- $YbMnO_3$ 결정상을 얻을 수 있었다.
4. $YMnO_3$ 의 Y 자리에 Yb를 치환한 $(Yb_xY_{1-x})MnO_3$ 박막의 경우 $X=0.25\sim 0.75$ 인 시편은 $X=0(YMnO_3)$ 또는 $X=1(YbMnO_3)$ 시편에 비하여 c축 배향성과 강유전 특성이 저하되었다

감사의 글

본 연구는 2003학년도 경기대학교 학술연구비(일반연구 과제)지원에 의하여 수행되었음.

REFERENCES

1. E. F. Bertaut, F. Forrat, and P. H. Fang, *Compt. Rend.*, **256**

- 1958 (1963).
2. J. L. Moll and Y. Tarui, *IEEE Trans. Electron Devices.*, **ED-10** 333-39 (1963).
 3. J. H. Choi, S. S. Lee, and H. G. Kim, "Fabrication Techniques and Applications of Ferroelectric Thin Film," *J. Kor. of Electrical and Electronic Mater. Eng.*, **7** [5] 430-36 (1994).
 4. F. Norifumi, I. Tadashi, Y. Takeshi, and I. Taichiro, "Epitaxially Grown $YMnO_3$ Film : New Candidate for Non-volatile Memory Devices," *Appl. Phys. Lett.*, **69** [7] 1011-13 (1996).
 5. T. Yoshimura, N. Fujimura, N. Aoki, K. Hokayama, S. Tsukui, K. Kawabata, and T. Ito, "Fabrication of $YMnO_3$ Thin Films on Si Substrates by a Pulsed Laser Deposition Method," *Jpn. J. Appl. Phys.*, **36** [9B] 5921-24 (1997).
 6. I. Shogo, S. Shigeto, T. Eisuke, and I. Hiroshi, "Epitaxial Growth of Ferroelectric $YMnO_3$ Thin Films on Si(111) Substrates by Molecular Beam Epitaxy(*in Jpn.*)," *J. Appl. Phys.*, **37** 6497-501 (1998).
 7. Y. Takahashi and T. Matsuoka, "Dip-Coating of PT, PZ, and PZT Films Using an Alkoxide-Diethanolamine Method," *J. Mat. Sci.*, **25** 3960-64 (1990).
 8. C. C. Hsueh and M. L. Meacartney, "Microstructural Development and Dielectirical Properties of Sol-Gel Prepared Lead Zirconate-Titanate Thin Films," *J. Mater. Res.*, **6** [10] 2208-17 (1991).
 9. L. F. Fransis, Y. J. Oh, and D. A. Payne, "Sol-Gel Processing and Properties of Lead Magnesium Niobate Powders and Thin Layers," *J. Mat. Sci.*, **25** 5007-13 (1990).
 10. H. N. Lee, Y. T. Kim, and S. H. Choh, "Comparison of Memory Effect between $YMnO_3$ and $SrBi_2Ti_2O_9$ Ferroelectric Thin Films Deposited on Si Substrates," *Appl. Phys. Lett.*, **76** [8] 1066-68 (2000).
 11. H. N. Lee, Y. T. Kim, and Y. K. Park, "Memory Window of C-axis Oriented Ferroelectric $YMnO_3$ Thin Films," *Appl. Phys. Lett.*, **74** [25] 3887-89 (1998).
 12. M. Barsoum, "Fundamental of Ceramics," *McGraw-Hill*, 526-43 (1997).
 13. W. C. Yi, J. S. Choe, C. R. Moon, S. I. Kwun, and J. G. Yoon, "Ferroelectric Characterization of Highly (0001)-oriented $YMnO_3$ Thin Films Grown by Chemical Solution Deposition," *Appl. Phys. Lett.*, **73** [7] 903-05 (1998).
 14. Y. Takeshi, F. Norifumi, and I. Taichiro, "Ferroelectrics Properties of c-Oriented $YMnO_3$ Films Deposited on Si Substrates," *Appl. Phys. Lett.*, **73** [3] 414-16 (1998).
 15. Y. Takeshi, F. Norifumi, A. Nobuaki, H. Kouzo, T. Shigeki, K. Keisuke, and I. Taichiro, "Fabrication of $YMnO_3$ Thin Films on Si Substrates by a Pulsed Laser Deposition Method," *Jpn. J. Appl. Phys.*, **36** 5921-24 (1997).
 16. H. Kitahata, K. Tadanaga, T. Minami, N. Fujimura, and T. Ito, "Lowering the Crystallization Temperature of $YMnO_3$ Thin Films by the Sol-Gel Method Using an Yttrium Alkoxide," *Jpn. J. Appl. Phys.*, **38** L5448-51 (1999).
 17. S. B. Desu, C. H. Peng, and P. J. Schuele, "Size Effects in Sputtered PZT Thin Films," *MRS Spring Meeting*, San Francisco, California, **Y** (1990).