

동시 스퍼터링법에 의한 $\text{Pb}(\text{Fe}_{0.5}, \text{Nb}_{0.5})\text{O}_3$ 박막의 제조 및 특성 평가에 대한 연구

이상욱 · 신동석 · 최인훈

고려대학교 재료공학과
(1996년 9월 19일 접수)

A study on the fabrication of $\text{Pb}(\text{Fe}_{0.5}, \text{Nb}_{0.5})\text{O}_3$ thin films by a Co-sputtering technique and their characteristics properties

Sang-Uk Lee, Dong-Suk Shin and In-Hoon Choi

Department of Materials Science, Korea University

(Received September 19, 1996)

요 약 - RF magnetron co-sputtering법으로 PFN[$\text{Pb}(\text{Fe}_{0.5}\text{Nb}_{0.5})\text{O}_3$] 박막을 제조한 후 급속 열처리(rapid thermal annealing, RTA)하여 XRD(x-ray diffractometer)를 통한 박막의 상변태 및 전기적 특성에 대하여 연구하였다. SiO_2/Si , ITO/glass, 및 Pt/Ti/ SiO_2/Si 기판에 PFN 박막을 증착시켰다. 기판의 변화에 따른 증착된 PFN 박막의 조성변화는 관찰할 수 없었다. ITO/glass 기판을 사용한 경우와 SiO_2/Si 기판을 사용하여 증착시킨 PFN 박막의 결정구조를 분석한 결과 ITO/glass 기판에 증착한 시편이 perovskite 상으로의 결정화가 더욱 우세하였다. 이는 SiO_2 기판의 경우 Pb의 확산에 의해 결정화가 잘 되지 못하기 때문이다. Pt/Ti/ SiO_2/Si 기판 위에 증착시킨 PFN 박막의 경우 perovskite 상과 pyrochlore 상이 공존하였다. Perovskite 상으로의 상변태에 대한 중요한 변수로는 열처리 온도와 Pb의 함량인 것이 확인되었으며, Pb의 함량이 화학양론적 조성비에 비해 5-10%정도 과량일수록 perovskite 상으로의 상변태 온도가 낮아지고 상전이 정도가 향상되는 것으로 나타났으며, 급속 열처리 후 XRD를 이용한 결정성 분석결과를 통해 결정한 perovskite 상으로의 상전이 최저온도는 500°C 였다. $\text{Pb}/(\text{Fe}+\text{Nb})$ 의 조성비가 1.17인 경우의 박막을 질소 분위기 하에서 600°C 로 30초간 급속열처리 하였을 때 낮은 누설 전류 값과 1 kHz에서 88의 유전 상수 값, $2.0 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ 의 잔류 분극 값과 144 kV/cm의 항전계 값을 얻었다.

Abstract - $\text{Pb}(\text{Fe}_{0.5}\text{Nb}_{0.5})\text{O}_3$ (PFN) thin films were prepared by rf magnetron co-sputtering method on SiO_2/Si , ITO/glass, and Pt/Ti/ SiO_2/Si substrates and post-annealed at the N_2 atmosphere by RTA(rapid thermal annealing). The degree of crystallinity of PFN films was identified on various substrates. Electrical properties of PFN films was characterized for Pt/PFN/Pt/Ti/ SiO_2/Si structure. The composition of PFN films was estimated by EPMA (electron probe micro analysis). PFN films would be crystallized better to perovskite phase on ITO/glass substrate than SiO_2/Si substrate. This may be induced by the deformation of Pb deficient pyrochlore phase due to Pb diffusion into SiO_2/Si substrate. PFN films on Pt/Ti/ SiO_2/Si substrate was crystallized into perovskite and a little pyrochlore phase because of Pb diffusion into Pt/Ti/ SiO_2/Si substrate. PFN films with 5-10% Pb excess were crystallized to perovskite phase from 500°C temperature. In summary, we show that Pb composition and annealing temperature were critically influenced on crystallinity to perovskite phase. When PFN film with 17% Pb excess was annealed at 600°C at the N_2 atmosphere for 30 seconds by RTA, leakage current and dielectric constant were respectively 6.3×10^{-8} A/cm at 300 kV/cm and 88. Its remnant polarization and coercive field were $2.0 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ and 144 kV/cm, respectively.

1. 서 론

최근 강유전체(ferroelectric)의 다양한 응용성 때문에 강유전체 물질을 박막화하려는 연구가 활발히 진행되고 있다. 특히 PZT[Pb(Zr, Ti)O₃], PLZT[(Pb, La)(Zr, Ti)O₃], BST[(Ba, Sr)TiO₃] 등을 이용한 압전성(piezoelectric)을 이용한 압전소자, 고유전율을 이용한 DRAM(dynamic random access memory)의 캐패시터(capacitor), 강유전성(ferroelectric)을 이용한 비휘발성 기억 소자(nonvolatile random access memories) 등 다양한 분야의 박막소자에 관한 연구가 진행되었다. 그러나 아직까지 PFN[Pb(Fe, Nb)O₃]에 대한 박막의 제조 및 특성 분석에 대한 연구는 거의 이루어지지 않고 있다. PFN의 경우 과상(bulk)에서 20000정도의 큰 유전 상수 값을 갖고 있기 때문에 DRAM의 캐패시터로서의 응용이 기대 된다[1,2,3,4]. 박막의 제조방법으로 sputtering[5,6,7], sol-gel[8], MOCVD (metal organic chemical vapor deposition)[9], laser ablation 등이 있다. PFN의 큰 유전상수 값을 이용한 DRAM의 capacitor로서의 응용을 위해 본 연구를 수행하였다. PbO 타겟과 FeNbO₄ 타겟을 직접 제작하였으며, rf magnetron co-sputtering에 의해 다양한 기판 위에 PFN 박막을 증착하였으며 급속 열처리한 후 XRD(x-ray diffractometer)를 이용하여 결정구조를 분석하였다. 저온에서 증착한 PFN 박막은 비정질상이며 고유전율 및 강유전성을 갖기 위한 결정구조인 perovskite 상으로의 상변태를 위해서 급속열처리(rapid thermal annealing) 방식으로 후 열처리하였다. 증착된 박막의 유전 특성과 전기적 특성을 조사하였다.

2. 실험 방법

본 연구에서는 rf magnetron co-sputtering 장비를 사용하였고, 직접 제작한 2-inch 직경, 3 mm 두께의 PbO (3N)와 FeNbO₄(3N) 세라믹 타겟을 장착하여 동시 스퍼터링에 의하여 PFN 박막을 제작하였다. 박막의 증착을 위해 SiO₂(2000 Å)/Si, ITO(2000 Å)/glass, 및 Pt(1500 Å)/Ti/SiO₂/Si 기판을 사용하였다. 증착전 기판은 trichloroethylene, acetone, methanol로 각각 5분씩 초음파 세척을 한 후 질소로 건조하였다. 기본 진공도는 1×10^{-5} Torr로 하였으며 증착 압력은 2.5×10^{-2} Torr로 하였다. 스퍼터링 가스는 박막이 완전히 산화 될 수 있도록 아르곤과 산소를 1:1로 혼합하여 사용하였다. 성장된

PFN 박막의 누설 전류 방지를 위해 입자 크기를 작게 할 수 있도록 기판에 열을 가하지 않은 저온(75°C)에서 박막을 증착시켰다[5]. 박막의 균질성을 위해 기판을 분당 6회의 속도로 회전시켰다. 기판과 타겟간의 거리는 플라즈마(plasma)에 의한 기판의 손상과 박막의 성장률을 고려하여 10 cm로 결정하였다[5]. 열처리과정에서의 Pb의 휘발을 고려하여 박막의 조성이 화학양분식 조성비(Pb:Fe:Nb=2:1:1)에 비하여 Pb가 5-10%정도 많게 되도록 PbO와 FeNbO₄ 타겟에 걸리는 파워를 결정하였다. PFN 박막의 조성 분석은 EPMA(electron probe micro analysis, JOEL, model JXA-8600SX) 장비를 사용하였다. 증착초기의 비정질상에서 결정질상으로 결정화하기 위해 열처리를 하였으며 급속열처리를 채택하였다. 열처리는 질소 분위기 하에서 400°C에서 700°C까지 시행하였다. 일반적으로 강유전체 박막 열처리시 산소 분위기에서 열처리한다. 그러나 질소 분위기에서 열처리할 경우 누설전류가 높아지는 단점이 있으나 결정화가 더 빠르고 낮은 온도에서 이루어진다고 보고되었기 때문이다[10]. 박막의 결정성 분석을 위해 XRD(Rigaku, model No. D/Max-2A)를 이용하였다($\lambda=1.5414 \text{ \AA}$, 30 kV, 15 mA, $2\theta=20^\circ\text{-}60^\circ$). 박막의 증착율과 표면분석을 위하여 SEM(scanning electron microscope, Hitachi, model S-800)을 각각 이용하였다. 박막의 전기적 특성의 측정을 위해 0.5 mm 직경의 Pt dot를 thermal evaporation법에 의해 증착하였으며, P-E 측정은 RT66A로 하였고, 유전율은 HP 4263 LCR meter를 사용하여 측정하였고, I-V 특성은 HP4140B pA meter를 이용하였다.

3. 결과 및 분석

3.1 PFN 타겟의 제조 및 박막 특성

Fig. 1은 타겟의 제조 공정을 나타낸 것이다. PbO(3N, 평균입도 3 μm) 파우더를 4000 kgf/cm²의 압력을 가한 후 700°C에서 2시간 동안 열처리하여 타겟을 제조하였다. 타겟이 화합물일 경우 스퍼터링 되는 각각의 원소의 양은 화합물의 조성비와 똑같이 스퍼터링 되기 때문에 Fe₂O₃(3N, 평균 입도 2 μm)와 Nb₂O₅(3N, 평균 입도 3 μm)의 파우더를 몰비가 1:1이 되도록 혼합하여 24시간 동안 알루미늄 불로 밀링하였다. 충분히 혼합된 파우더를 4000 kgf/cm²의 압력을 가한 후 1050°C에서 2시간 소결하여 제조하였다. 제조된 PbO와 FeNbO₄ 타겟의 겉보기 밀도는 각각 9.1 g/cm³, 2.6 g/cm³였다. Fe와 Nb의

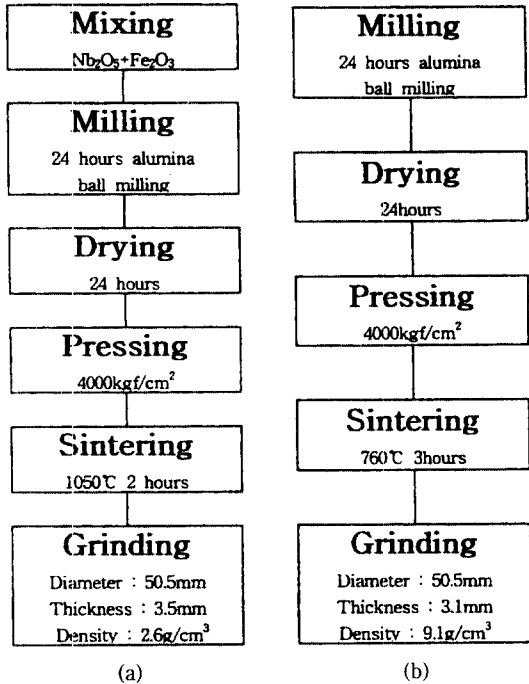


Fig. 1. Process of preparing ceramic targets (a) FeNbO₄ (b) PbO.

조성비는 제조한 타겟과 동일한 조성인 1:1임을 EPMA 분석을 통해 확인하였다. 박막에서 Pb의 함량을 나타내기 위해 Pb/(Fe+Nb)의 값을 다음과 같이 정의하였다.

$$K = \frac{Pb}{(Fe+Nb)} \quad (1)$$

K의 값이 1보다 작으면 화학양론적인 조성비에 비해 Pb의 함량이 적은 것이고, 1과 같으면 Pb의 함량이 같은 것이고, 1보다 크면 Pb의 함량이 많은 것이다. FeNbO₄ 타겟의 파워를 60 W로 일정하게 하고 PbO 타겟의 파워를 19-22 W로 변화 시키면서 박막을 증착하였다. 급속열처리시 Pb의 휘발을 고려하여 EPMA 분석결과 PbO 타겟의 파워가 22 W인 경우 K값인 1.15에서 1.2인 것을 확인하였다. 이는 후열처리시 Pb의 휘발을 고려할 때 적합한 수준이다. SiO₂/Si, ITO/glass, Pt/Ti/SiO₂/Si 기판 위에서 PbO 타겟의 파워에 따른 K의 값의 변화를 Fig. 2에 나타내었다. SiO₂/Si 기판 위에 증착시킨 박막의 경우 PbO 타겟의 파워가 19, 20, 22 W일 때 K값은 각각 0.88, 1.01, 1.21였다. ITO/glass 기판과 Pt/Ti/SiO₂/Si 기판 위에 증착시킨 박막의 경우 PbO 타겟의 파워가 19, 20, 22 W 일 때 K의 값은 각각 0.85, 1.03, 1.12와 각

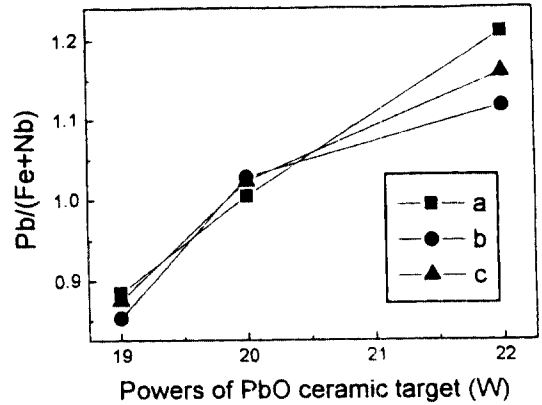


Fig. 2. The composition ratio of Pb/(Fe+Nb) of PFN thin films deposited on various substrates with different powers of PbO ceramic target (a) SiO₂/Si (b) ITO/glass (c) Pt/Ti/SiO₂/Si (FeNbO₄: 60 W, Deposition time: 4 hours).

각 0.88, 1.02, 1.16였다. 위 실험 결과를 통하여 기판 종류의 변화에 따른 PFN 박막의 조성의 변화는 거의 관찰되지 않았다.

박막의 증착을 측정을 위하여 SEM을 이용하였다. PbO 타겟의 파워를 20 W, FeNbO₄ 타겟의 파워를 60 W로 고정하여 2시간에서 4시간까지 변화시켜가면서 박막을 증착시켰다. Fig. 3은 4시간 증착시킨 PFN 박막의 단면 사진을 나타내었고 증착 시간과 박막의 두께는 Fig. 4에 나타내었다. 2, 3, 4시간 증착시킨 박막의 두께는 100, 160, 240 nm로 박막의 평균 증착율은 58 nm/

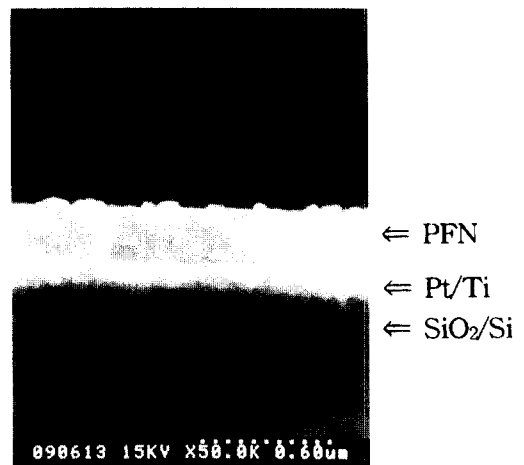


Fig. 3. The cross sectional SEM photograph of PFN thin film deposited on Pt/Ti/SiO₂/Si substrate for 4 hours (thickness: 240 nm, K=1.023).

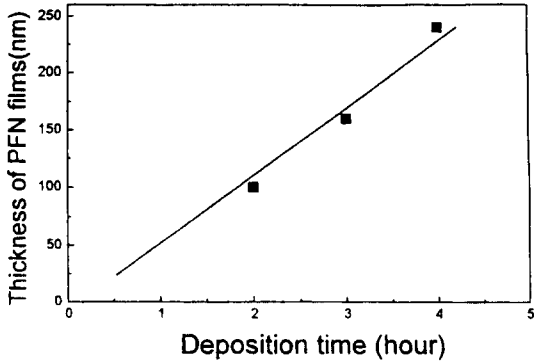


Fig. 4. The thickness of PFN thin films with deposition time measured by SEM photograph.

hour였다.

3.2 열처리 및 기판에 따른 박막의 결정성 분석

400, 450, 500, 600, 700°C 질소 분위기 하에서 30초간 급속열처리 한 후 XRD를 이용하여 결정구조에 대해 분석하였다. Perovskite 상과 pyrochlore 상의 주피크의 강도를 이용한 상대적인 perovskite 상의 분율을 다음과 같은 식으로 계산하였다.

$$A = \frac{I_{\max}(\text{pero})}{I_{\max}(\text{pero}) + I_{\max}(\text{pyro})} \times 100 \quad (2)$$

A: The percentage fraction of perovskite phase

$I_{\max}(\text{pero})$: peak intensity of perovskite (110)

$I_{\max}(\text{pyro})$: peak intensity of pyrochlore (222)

SiO₂/Si 기판 위에 PbO 타겟의 파워에 변화를 주어 Pb의 함량을 변화시켜 증착한 PFN 박막을 급속 열처리 하였다. 이 실험의 XRD 분석 결과는 Fig. 5에 나타내었다. PbO 타겟의 파워를 19 W(K=0.88)로 하여 증착시킨 시편을 각각 500, 600, 700°C에서 30초간 급속 열처리 하였다. 500°C에서는 열처리전과 똑같은 비정질상으로 결정화가 일어나지 않았으며, 600°C에서는 47% perovskite 상과 53% pyrochlore상이 공존하는 구조로 결정화 되었으며, 700°C에서는 강유전상인 perovskite 상이 29%로 600°C 열처리시보다 줄어들었다. 이것은 고온에서 열처리시 Pb의 증발에 의해 Pb가 부족한 pyrochlore 상의 증가인 것으로 생각되어진다. PbO의 파워가 20 W(K=1.01)인 경우 시편을 각각 500, 600, 700°C에서 30초간 급속열처리 하였다. 앞에서의 Pb가 부족한 시편의 경우와는 달리 500°C 열처리부터 결정화가 일어나 강유전상인 perovskite 상이 88%였다. 600°C 열처리에서는 Pb가 부족한 pyrochlore 상이 증가하여 perovskite 상이 75%로 감소하였다. 700°C 열처리의 경우에서도 perovskite 상이 68%로 감소한 것을 알 수 있다. PbO 타겟의 파워가 22 W(K=1.21)인 시편을 500, 600, 700°C에서 30초간 급속열처리를 하였을 때 모든 열처리 온도에서 100% perovskite 상만이 존재하였다. 위의 결과들을 통해 Pb의 함량이 10%정도 많은 경우 결정화 온도가 낮아지고, perovskite 상으로의 결정화가 pyrochlore 상으로의 결정화보다 더욱 우세하다는 것을 확인하였다.

PbO 타겟의 파워를 각각 19, 20, 22 W로 변화 시켜 ITO/glass 기판 위에 증착시킨 박막의 경우는 400,

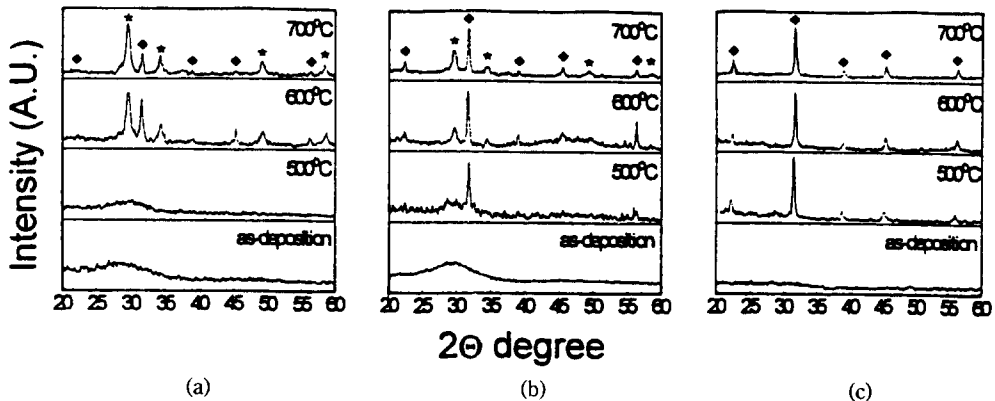


Fig. 5. The XRD patterns of PFN thin films deposited on SiO₂/Si substrate for 4 hours annealed by RTA for 30 seconds with various temperatures in N₂ atmosphere. (a) K=0.88 (b) K=1.01 (c) K=1.21 [K=Pb/(Fe+Nb), ◆ Perovskite ★ Pyrochlore].

450°C 두 온도를 첨가하여 perovskite 상으로의 결정화가 일어나는 온도를 알기 위한 실험을 하였다. 400, 450°C 열처리한 시편은 증착직후의 상과 동일한 비정질 상인 것이 확인되었다. PbO 타겟의 파워가 20 W(K=1.03)로 증착한 시편을 500, 600, 700°C에서의 열처리한 경우 SiO_2 기판 위에 증착시킨 박막과 다른 상변태 거동을 보였다. 이 실험의 XRD 분석 결과는 Fig. 6에 나타났다. Pb의 함량이 많은 경우와 적은 경우에서의 결정성은 SiO_2 기판 위에서와 동일하였다. 그러나

PbO 타겟의 파워가 20 W(K \approx 1)인 경우 SiO_2/Si 기판에서는 600, 700°C 열처리에서는 pyrochlore 상과 perovskite 상이 공존하였으나 ITO/glass 기판 위에서는 perovskite 상만이 존재하였다. 위 결과를 통해 볼 때 비정질 상인 SiO_2/Si 기판 위에서보다는 결정질 상인 ITO/glass 기판 위에서 PFN 박막의 결정성이 더 좋은 것을 확인할 수 있었다. 황 철성, 김 현준에 의하면 PZT 박막의 경우 Si 기판으로 Pb의 확산이 pyrochlore 상의 형성 원인인 것으로 보고한 바 있다[11]. PFN 박막의 경우도 SiO_2/Si

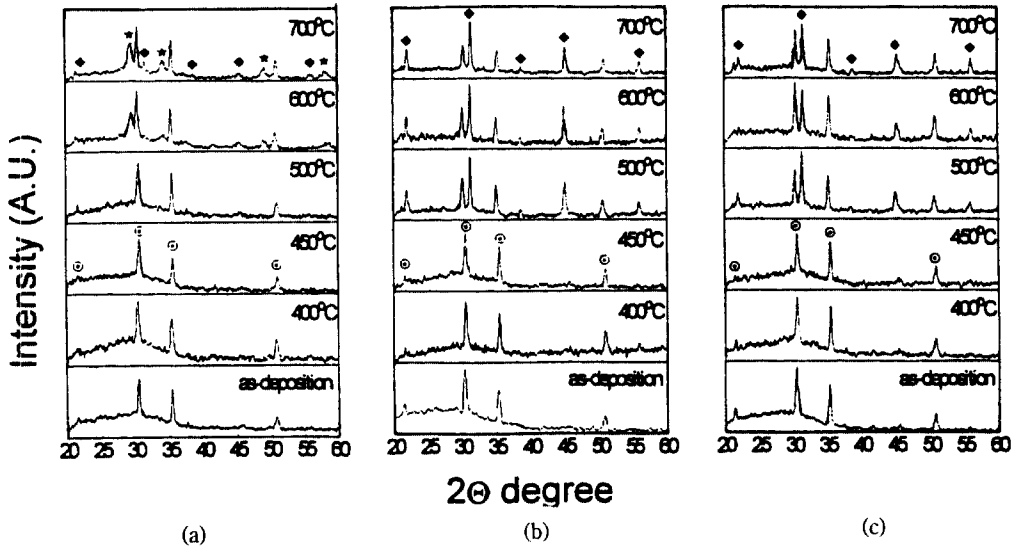


Fig. 6. The XRD patterns of PFN thin films deposited on ITO/glass substrate for 4 hours annealed by RTA for 30 seconds with various temperatures in N_2 atmosphere. (a) K=0.85 (b) K=1.03 (c) K=1.12 [$K=Pb/(Fe+Nb)$], ◆ Perovskite ★ Pyrochlore ⊙ ITO].

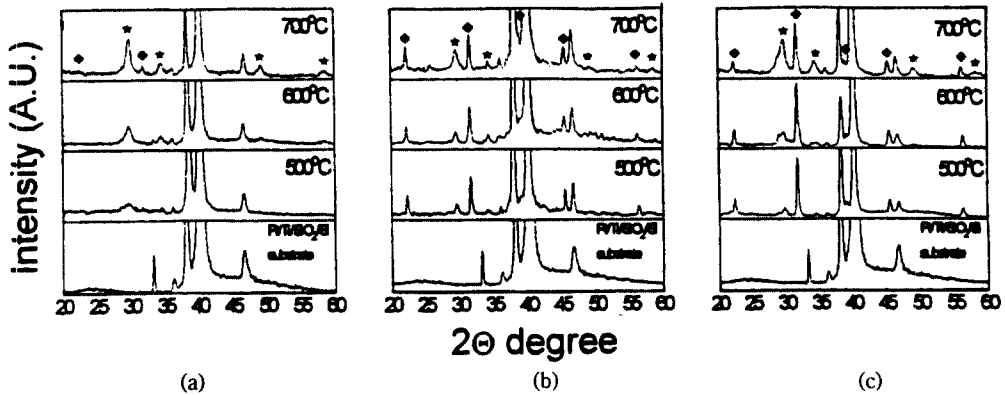


Fig. 7. The XRD patterns of PFN thin films deposited on Pt/Ti/ SiO_2/Si substrate for 4 hours annealed by RTA for 30 seconds with various temperatures in N_2 atmosphere. (a) K=0.88 (b) K=1.02 (c) K=1.16 [$K=Pb/(Fe+Nb)$], ◆ Perovskite ★ Pyrochlore].

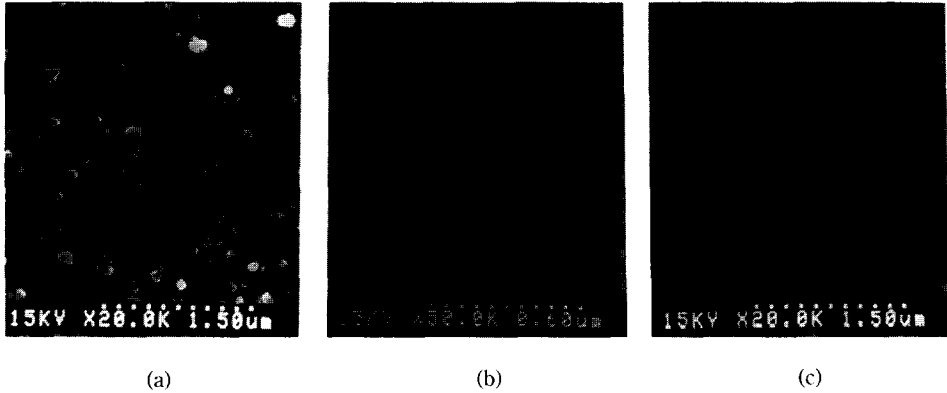


Fig. 8. The surface morphology of PFN films deposited on Pt/Ti/SiO₂/Si substrate for 4 hours with various RTA temperatures for 30 seconds (K=1.02) (a) as-deposited (b) annealed at 600°C (c) annealed at 700°C.

기관을 사용한 경우 Pb가 20% 과량인 경우를 제외하면 pyrochlore 상이 상대적으로 많은 것으로 나타났다. 이와반면 ITO/glass 기관의 경우 상대적으로 작은 pyrochlore 상이 존재하였다. 이는 보고된 바와 같이 Pb의 확산에 의한 영향 때문인 것으로 생각되어 진다.

Pt/Ti/SiO₂/Si 기관 위에서 PbO 타겟의 파워를 19, 20, 22 W에서 증착시킨 박막을 500, 600, 700°C에서 급속 열처리하였다. XRD 분석 결과는 Fig. 7에 나타내었다. K=0.88일 때 500°C 열처리에서는 거의 결정화가 일어나지 않았다. 600, 700°C 열처리 경우 pyrochlore 상만이 우세한 결정화가 확인되었다. K=1.02일 경우 500°C 열처리에서 78%의 perovskite 상과 22%의 pyrochlore 상이 공존하였다. 600, 700°C 열처리에서는 perovskite 상의 비율이 각각 75, 64%로 감소하였는데 이는 Pb 휘발에 의한 pyrochlore 상이 성장하였기 때문이다. K=1.16일 경우 500, 600, 700°C 열처리에서 각각 perovskite 상의 비율이 88, 84, 61%로 감소하였다. Pt/Ti/SiO₂/Si 기관 위에서도 역시 Pb의 함량이 15% 과량인 경우에 perovskite 상으로의 상전이가 우세하였다. 그러나 SiO₂/Si와 ITO/glass 기관의 경우와는 달리 100% perovskite 상을 얻지 못하였다. PFN 박막은 Pt/Ti/SiO₂/Si 기관 위에서의 perovskite 상으로의 결정화가 완전히 일어나지 않는다는 것을 확인 할 수 있었다. Fig. 8에 Pt/Ti/SiO₂/Si 기관 위에 증착시킨 시편의 열처리 전과 후의 SEM사진을 나타내었다. Fig. 8에서 미세 크랙이 관찰되는데 이는 급속열처리시 열팽창 계수의 차이에 의한 Pt 하부전극에서 형성된 hillock에 의한 것으로 생각된다.

3.3 전기적 특성 분석

이러 특성 분석 결과 500, 600°C 열처리에서 잔류 분극 값과 항전계는 각각 0.6, 2.0 μC/cm²과 135, 142 kV/

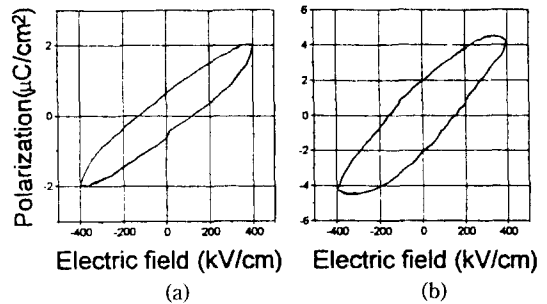


Fig. 9. Hysteresis loops of PFN (250 nm) thin films annealed for 30 seconds in N₂ atmosphere at (a) 500°C (b) 600°C [Pb/(Fe+Nb)=1.17].

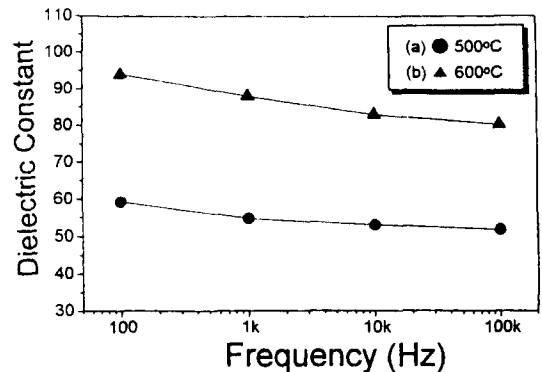


Fig. 10. Dielectric constants of PFN (250 nm) thin films annealed for 30 seconds in N₂ atmosphere at (a) 500°C (b) 600°C [Pb/(Fe+Nb)=1.17].

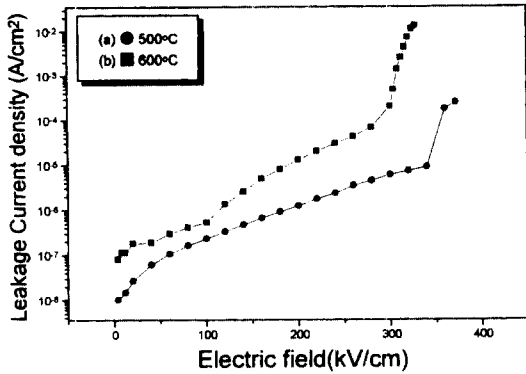


Fig. 11. Leakage current density of PFN (250 nm) thin films annealed for 30 seconds in N₂ atmosphere at (a) 500°C (b) 600°C [Pb/(Fe+Nb)=1.17].

cm 었다. Fig. 9에 PFN 박막의 이력 곡선을 나타내었다. 박막의 유전 특성은 Fig. 10에 나타내었고, I-V 특성은 Fig. 11에 나타내었다. 500°C로 열처리 한 박막의 경우 1 kHz의 주파수에서 55의 유전 상수 값을 가지며 600°C에서 열처리 한 박막의 경우 88을 가졌다. 열처리 온도의 증가에 따라 유전 상수 값이 증가하였으며, 측정 주파수가 증가함에 따라 유전 상수 값이 감소하였다. PFN 박막의 절연 파괴의 전계는 500°C 열처리시 340 kV/cm였으며, 600°C 열처리시는 300 kV/cm였다. 누설 전류 밀도는 열처리 온도가 500°C에서 600°C로 증가함에 따라 300 kV/cm의 전계에서 6.3×10^{-6} A/cm²에서 2.1×10^{-4} A/cm²로 증가하였다.

4. 결 론

RF magnetron co-sputtering을 이용하여 PFN 박막을 SiO₂/Si, ITO/glass, Pt/Ti/SiO₂/Si의 다양한 기판 위에 제조하였다. 증착된 박막을 급속열처리한 후 XRD를 이용하여 박막의 상변태에 대하여 연구하였다. 기판 종류의 변화에 따른 박막의 조성 변화는 거의 없었다. 강유전성을 나타내는 perovskite 상으로의 상변태는 최저 500°C 부터 시작되고 Pb의 함량이 10%정도 과량인 경우 가장 좋은 결정성을 보였다. SiO₂/Si 기판보다 ITO/glass 기판이 결정성이 우수한 PFN 박막을 얻을 수 있었으며 SiO₂/Si 기판의 경우 ITO/glass 기판에 비해 상대적으로 pyrochlore 상이 많이 형성되었다. 이는 Pb가 SiO₂/Si 기판으로 확산이 잘 일어나기 때문에 Pb 결핍상인 pyroch-

lore 상이 형성된 것으로 생각된다. Pt/Ti/SiO₂/Si 기판 위에 증착시킨 박막은 완전한 perovskite 상으로의 결정화가 일어나지 않았다. Pb/(Fe+Nb)의 값이 1.17인 Pb 과량인 박막을 600°C에서 30초간 질소 분위기 하에서 급속열처리 하였을 때 1 kHz 주파수에서 88의 유전 상수 값을 가졌다. 열처리 온도가 500°C에서 600°C로 증가함에 따라 300 kV/cm의 인가 전계에 따른 누설 전류밀도는 6.3×10^{-6} A/cm²에서 2.1×10^{-4} A/cm²로 증가하였다.

감사의 글

본 연구는 1995년도 한국 학술진흥재단의 대학 부설 연구소 연구과제 연구비에 의하여 수행되었으며, 아울러 이에 감사를 드립니다.

참고문헌

1. J. Kang, T. Yoko and S. Sakka, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **30**(9B), 2182-2185 (1991).
2. N. Ichinose and N. Kato, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **33**(9B), 5423-5426 (1994).
3. K. Okuwada, S. Nakamura, M. Imai and K. Kakuno, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **29**(6), 1153-1156 (1990).
4. 유재율, 솔-젤법에 의한 강유전성 PFN 박막의 제조 및 특성 평가, 고려대학교 대학원 석사학위논문, (1995).
5. Rointan F. Bunshah, *Handbook of Deposition Technologies for films and coatings*, 2nd ed., pp. 249-319, Noyes Pub., New Jersey, U.S.A. (1994).
6. K. Wasa and S. Hayakawa, *Handbook of Sputter Deposition Technology*, pp. 81-123, Noyes Pub., New Jersey, U.S.A. (1992).
7. Stephen M. Rosznagel, Jerome J. Cuomo and William D. Westwood, *Handbook of Plasma Processing Technology*, pp. 160-259, Noyes Pub., New Jersey, U.S.A. (1990).
8. C. Jeffrey Brinker and George W. Scherer, *Sol-Gel Science*, Academic Press, San Diego, U.S.A. (1990).
9. M.L. Hitchman and K.F. Jensen, *Chemical Vapor Deposition*, Academic Press, San Diego, U.S.A. (1993).
10. Vinay Chikarmane, Chandra Sudhama, Jiyoung Kim, Jack Lee, and Al Tasch, and Steve Novak, *J. Vac. Sci. Technol.* **A10**(4), 1562-1568 (1992)
11. C.S. Hwang and H. J. Kim, *J. Am. Ceram. Soc.*, **78**(2), 329-336 (1995).