

졸겔법으로 제조한 $\text{La}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ 박막의 결정화 및 강유전 특성 연구

논문
12-7-9

Crystallization and Ferroelectric Properties of $\text{La}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ Thin Films Prepared by the Sol-Gel Process

장승우*, 우동찬*, 정우식**, 이희영*

(Seung Woo Jang*, Dong Chan Woo*, Woo Sik Jung**, Hee Young Lee*)

Abstract

Ferroelectric $\text{La}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ (LTO) thin films were prepared by the modified sol-gel process. Acetylacetonone(AcAc) was used as chelating agent, and D.I. water and nitric acid were added to the stock solution to control the amount of hydrolysis and condensation reaction. The solution was spin coated onto Pt/Ti/SiO₂/Si(100) and Pt/ZrO₂/SiO₂/Si(100) substrates. After multiple coating followed by baking treatment, the cast films were heat-treated for decomposition of residual organics, densification and crystallization. The role of acetylacetonone to stabilize Ti isopropoxide by partially substituting OPi ligand with AcAc was confirmed by FT-NMR spectroscopy analysis. The formation of B site-rich impurity phase ($\text{La}_2\text{Ti}_4\text{O}_{21}$) in heat-treated LTO thin films were attributable either to the intermediate formation or to the La loss which may occur as the result of possible reaction with substrate. Further study is needed to clarify this point. Dielectric and electrical properties were measured and the results were compared with those for MOD-derived $\text{La}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ (LTO) thin film study by our group.

Key Words(중요용어) : Ferroelectric, Thin film, Chelating agent, Acetylacetonone(AcAc), $\text{La}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$, Sol-gel process, Spin-coating

1. 서 론

최근 강유전체 박막은 정밀한 박막제조 방법의 개발, 관련된 재료과학에 대한 폭넓은 이해의 증진, 반도체메모리 집적회로에의 적용가능성 등으로 비교적 짧은 시간에 커다란 발전을 이루고 있는 연구분야이다¹⁻³⁾. 이러한 강유전체 박막은 비휘발성기억소자인 FeRAM, 주기억장치로 널리 사용되고 있는 DRAM에의 응용 뿐 아니라, 압전성을 이용한 micro-sensor, micro-actuator 등의 MEMS 소자, 초전특성을 이용한 적외선센서, 광학특성을 이용한 광스위치, 공간광변조기 등 그 응용 범위에 있어 전자산업에 미

치는 파급 효과가 대단히 크다⁴⁻³⁾.

본 논문에서는 $\text{A}_2\text{B}_2\text{O}_7$ 형 강유전체 중에서도 큐리온도가 1500℃ 근방인 $\text{La}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ 을 박막으로 제조하고 유전 및 전기적 특성에 대한 최근 연구결과를 보고하고자 한다. $\text{La}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ 는 용점이 1790℃이며, 실온에서 monoclinic 구조(공간군 : $P2_1$)나 orthorhombic 구조(공간군 : $Pbn2_1$)로 결정화하는 것으로 알려져 있다⁴⁻⁶⁾. 같은 결정구조를 갖는 대표적인 물질의 이름을 따서 pyroniobate 족으로 불리며, 강유전특성을 상실하는 큐리온도가 약 1500℃로 PZT, SBT와 같은 다른 강유전체에 비하여 매우 높아서 고온 압전센서 및 액추에이터로도 개발되고 있는 재료이다. 강유전특성은 단위포내에 존재하는 TiO_6 팔면체로 인하여 생기며, 분극방향은 (010) 방향이고, 실온에서 유전상수 값은 대략 40 정도로 알려져 있다⁴⁻⁶⁾. $\text{La}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$, $\text{Sr}_2\text{Nb}_2\text{O}_7$ ⁷⁻⁸⁾, YMnO_3 ⁹⁾과 같은 강유전체에 대한 박막연구가 관심을 끄는 이유는, 기존의 PZT, SBT계 박막이 가지고 있는 두가지 문제점에 기인한다. 첫째는, 성분원소인 Pb, Bi의

* : 영남대학교 재료금속공학부

** : 영남대학교 응용화학공학부

(경상북도 경산시 대동 214-1, Fax : 053-811-4133 E-mail : hyulee@yucc.yeungnam.ac.kr)

1999년 2월 25일 접수, 1999년 6월 14일 심사완료

일부가 소자 가공공정 중에 휘발하기 쉬운 점이다. 이로 인하여, 대부분의 반도체메이커가 PZT, SBT계 박막을 기존 반도체소자에 직접하는 것을 꺼리고 있다. 둘째 문제는, PZT, SBT계 강유전체박막은 Si기판과 반응하여 SiO₂와 같은 저유전율의 산화막을 형성하기 때문에 Si 위에 직접 올리는 것이 어렵다는 점이다. 이로 인하여, 완충층의 사용이 불가피하며, 강유전체와 반응성이 적은 Pt, IrO₂, RuO₂와 같은 전극이나 고유전율의 산화막을 사용하여야 한다. 결과적으로 소자의 구조가 복잡해지며, 제조공정도 따라서 까다로워진다고 할 수 있다. 높은 유전상수의 강유전체 박막을 Si위에 직접 올리는 것이 가능하다면, 메모리 셀을 구성하는 storage capacitor가 간단한 MFS 구조로 되므로 1Mb DRAM 이하에서 주로 채용되던 Planar 구조를 사용할 수 있어서 적층형 핀이나 크라운과 같은 복잡한 3차원구조를 사용하지 않고도 Gbit scale DRAM을 실현하거나, 한개의 FET를 이용한 비휘발성메모리소자가 구현될 수 있을 것이다⁹⁾. 그러나, 대부분의 강유전체 박막이 산화물이므로 산화분위기에서 열처리를 하여야 하며, 이로 인하여 강유전체 박막과 Si 사이에 얇은 SiO₂층이 필연적으로 생기게된다. SiO₂의 유전상수가 3~5로 대단히 작으므로, 강유전체의 유전상수가 아무리 높더라도, 전체 정전용량은 SiO₂층에 의하여 결정되며 결과적으로 유전상수가 큰 강유전체를 사용한 효과가 나타나지 않는다. 이 모든 문제의 근본 원인이 산화분위기에서의 열처리이기 때문에, 산화물이 아닌 불화물 강유전체 박막에 대한 연구도 이루어지고 있다¹⁰⁾.

La₂Ti₂O₇, YMnO₃과 같은 강유전체는 유전상수는 비록 작으나, 희토류이온의 산소이온에 대한 친화력이 커서, MFS(metal-ferroelectric-semiconductor) 구조를 시도한다 하여도, 충분히 낮은 온도에서 열처리할 경우 Si과의 계면에 생기는 SiO₂층을 상대적으로 무시할 수 있을 정도인 수십Å 이하로 줄일 수 있을 것으로 기대된다⁹⁾. 이와 같은 측면에서도, 이 재료에 대한 충분한 연구가 필요하다고 할 수 있다. 그러나, 현재까지 졸겔법으로 제조한 La₂Ti₂O₇ 박막에 관해서 지금까지 Si(100) 기판 위에 결정화 거동에 대해서는 보고된 바가 있으나, 전기, 유전 및 분극 특성에 관해서는 연구가 이루어지지 않았다¹¹⁾. 따라서 본 논문에서는 졸겔법을 이용하여 La₂Ti₂O₇ 박막을 제조하고, 출발원료, 기판, 공정 변수 등이 박막의 조성, 결정화, 전기, 유전 및 분극 특성에 미치는 영향을 고찰하고자 하였다. 이렇게 얻은 결과는 본 연구진에 의하여 이미 연구 보고된

MOD-derived La₂Ti₂O₇ 박막에 대한 결과와 비교하여 두 방법의 차이점을 고려하여 결과를 해석하고자 하였다¹²⁾. 특히 중점적으로 연구된 부분은 졸겔법에 있어 기존의 박막 연구에서 정량적으로 다루지 않았던 전구체 용액 제조과정에서의 화학적 변화인 용액의 안정화를 위해 사용한 착화제에 따른 착화제의 역할 및 착체의 형성 여부를 분석하였다.

2. 실험 방법

스핀코팅법으로 박막을 제조하기 위하여 졸겔법을 이용하여 전구체용액을 제조하였다. 출발원료로는 졸겔법에서 일반적으로 사용하고 있는 금속알콕사이드(metal alkoxide)를 사용하였다. La 원으로는 Lanthanum 2-methoxyethoxide [La(OCH₂CH₂CH₃)₃, Alfa Product]와 Ti 원으로는 Titanium isopropoxide [Ti(OCH(CH₃)₂)₄, Aldrich Chemical]를 사용하였다. 먼저 Titanium isopropoxide의 급격한 가수분해 반응을 제어하기 위한 착화제로는 β-diketone계열의 착화제인 Acetylacetonone(AcAc) [CH₃COCH₂COCH₃, Aldrich Chemical]을 용액 속의 Ti 1 mol당 2 mol을 첨가한 후 착화반응이 충분히 일어나도록 실온에서 2시간 동안 교반하여 반응하였다. 여기에 Lanthanum 2-methoxyethoxide를 천천히 떨어뜨리며 혼합한 후 전체 용액의 가수분해와 반응속도를 조절하기 위해 증류수(D.I. water)와 진한 질산(61wt%)을 첨가하여 상온에서 24시간 동안 반응시켰다. 이렇게 얻어진 최종 전구체 용액의 안정화를 조사하기 위해 첨가한 AcAc의 역할을 규명하기 위하여, FT-NMR 분광기(Bruker, Model DPX-300)를 이용하여 Ti(OPrⁱ)₄에 AcAc를 첨가하기 전과 후의 화학적 변화를 분석하였고, Pt(100nm)/ZrO₂(20nm)/SiO₂/Si(100), Pt(270nm)/Ti(30nm)/SiO₂/Si(100)기판위에 0.2μm 필터를 장착한 주사기로 스펀코팅기(SCS Corp.)를 사용하여 4000 rpm에서 30초간 코팅한 뒤, 선행연구에서의 TG-DTA 측정 결과로부터 얻은 결과를 바탕으로 baking을 160℃와 400℃에서 2단계로 실시하였다. 원하는 박막의 두께를 얻고자 baking 과정을 10회 반복한 뒤 800~1100℃범위의 온도에서 산소분위기에서 1시간 동안 최종 열처리하였으며, 결정상의 생성 여부를 관찰하기 위해 X-선 회절분석기[Rigaku, 30kv, 30mA]를 이용하여 15°~50°의 2θ 값 범위에서 회절분석을 행하였다. 열처리 온도에 따른 미세구조의 변화와 기판의 안정성 등을 살펴보기 위해

FE-SEM[Hitachi, Model S-4100]을 사용하여 표면과 단면조직을 관찰하였고, 고온 열처리시에 야기될 수 있는 Pt 하부전극의 거칠기를 관찰하기 위해 LTO 박막을 코팅하지 않은 기판을 열처리 전과 열처리 후로 나누어 표면을 관찰하였다.

박막의 전기 및 분극특성의 측정은 dc magnetron sputter로 shadow mask를 사용하여 백금 상부전극을 지름 0.16mm의 원형으로 증착한 뒤 강유전체 시험기[Radiant, Model RT66A]를 사용하여 P-E hysteresis를 측정하였고, Electrometer[Keithley, Model 617]로 누설전류 특성을, 임피던스분석기[Hewlett-Packard, Model HP4192A]를 사용하여 유전특성을 측정하였다.

신행연구결과와 비교하기 위한 목적으로 MOD (metainorganic decomposition)법으로도 같은 공정조건을 이용하여 LTO 박막을 제조하였으며, 졸겔법으로 제조한 시편과 마찬가지로 방법으로 박막의 여러가지 물성을 측정하였다.

3. 결과 및 토의

3.1 전구체 용액의 화학적 분석

일반적인 착화제의 역할은 전이금속 알콕사이드의 알콕시기를 가수분해에 안정한 알콕시기로 치환하여 가수분해 반응이 일어날 수 있는 자리수를 감소시킴으로써 반응성을 제어하는 것으로 알려져 있다. 이러한 착화제의 종류로 사용되는 것은 alkanolamine계열의 diethanolamine(DEA), triethanolamine(TEA) 등과 본 실험에서 사용한 acetylacetone이 있다. 본 실험에서 사용한 acetylacetone(AcAc) [$\text{CH}_3\text{COCH}_2\text{COCH}_3$]은 β -diketone 계열의 착화제로 미량의 산이나 염기의 존재 하에서 쉽게 keto형과 enol형으로 전환하는데 이러한 상호전환을 tautomerism(Fig. 1)이라 한다¹³⁾.

본 실험에서는 특히 이러한 착화제로 사용된 AcAc가 어떤 화학반응으로 출발물질 중에 하나인 Ti-isopropoxide와 반응하여 전구체 용액의 안정화에 기여하는지를 조사하기 위해 FT-NMR 분광기를 이용하여 CD_2Cl_2 (dichloromethane)에서 Ti-isopropoxide의 스펙트럼을 조사한 후 과량의 AcAc의 첨가 후, 흡수 스펙트럼의 변화를 측정하였다.

Fig. 2에 나타난 결과는 AcAc와 같은 β -diketone 화합물은 enol, keto 형태의 구조이성질체를 가지고 있음을 나타내고 있으며, 과량으로 첨가한

AcAc에 의해 생긴 1.0, 4.0 ppm 부근에서 나타나는 배위되지 않은 free PriOH peak는 AcAc가 다음과 같은 치환반응을 통하여 $\text{Ti}(\text{OPr})_4$ 를 안정화시킨 것임을 보여준다. 이러한 결과는 비슷한 용액에 대하여, 다른 문헌에서 조사한 결과와 일치하는 것이다¹⁴⁾.

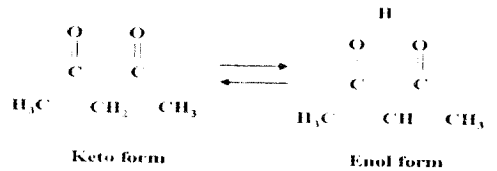
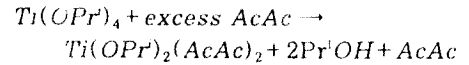


그림 1. 아세틸아세톤의 케토 및 엔올형태의 상호 전환

Fig. 1. Keto-enol tautomerism of acetylacetone

3.2 조성 및 미세구조 분석

Fig. 3에 졸겔법에 의하여 800℃~1000℃ 범위의 온도에서 Pt/ZrO₂/SiO₂/Si(100), Pt/Ti/SiO₂/Si(100)기판을 사용하여 열처리한 시편의 XRD패턴을 나타내었다. 먼저 Fig. 3(a)는 Pt/ZrO₂/SiO₂/Si(100)기판을 사용하여 졸겔법으로 제조한 박막에 대한 것인데, 같은 기판을 사용하여 1000℃에서 결정화가 일어나는 MOD법의 경우와 비교해 훨씬 낮은 온도인 800℃부터 결정화가 일어남을 알 수 있다¹²⁾. Fig. 3(b)는 Pt/Ti/SiO₂/Si(100)기판을 사용하여 열처리한 시편의 XRD패턴을 나타내었는데, 이 경우에도 마찬가지로 1000℃에서 결정화가 일어나는 MOD법에 비해 La₄Ti₉O₂₄ 이차상의 생성 없이 900℃부터 결정화가 일어남을 알 수 있었다. 이러한 결과는 MOD법에 비해 분자량이 작고 반응하기 쉬운 금속 알콕사이드를 출발물질로 하여 이용한 것과 부분적인 가수분해를 통하여 생성된 일차원적 선형구조에 기인한 것으로 판단된다.

졸겔법 및 MOD법, 두 경우에 공통적으로 이차상 La₄Ti₉O₂₄이 생김을 알 수 있는데, 이는 La₂Ti₂O₇이 생기는 과도 단계이거나, 열처리공정 중에 기판과의 선택적인 반응 등으로 발생한 La 손실의 영향 때문인 것으로 보인다. 이 문제를 분명히 하기 위해서는

Pt/Ti/SiO₂/Si(100)기판의 표면의 변화를 나타내었는데 열처리 후의 경우 열처리 전과 달리 많은 hillock의 발생을 볼 수 있는데 이는 뒷부분에서 논의하게 될 전기적 특성에 좋지 않은 결과를 초래한 것으로 보인다. Fig. 4(c), (d)는 졸겔법으로 Pt/Ti/SiO₂/Si(100)의 기판 위에 800, 1000℃에서 열처리한 것을 나타내었다. 단면의 미세구조가 비교적 균일하며 등방성 결정립으로 이루어진 것을 알 수 있으며, 1000℃에서 발생하는 큰 pore의 발생은 Fig. 4(b)의 경우에서 볼 수 있듯이 hillock 및 void의 생성으로 인한 것으로 보인다. Fig. 4(e), (f)는 졸겔법으로 제조한 박막시편에 대한 표면 및 단면 사진인데 Lanthanum 2-methoxyethoxide의 낮은 용해도로 인한 전체 전구체 용액의 낮은 몰농도의 영향으로 10회의 multi-coating 및 baking에도 약 2000Å 정도의 단면의 두께를 가짐을 알 수 있다.

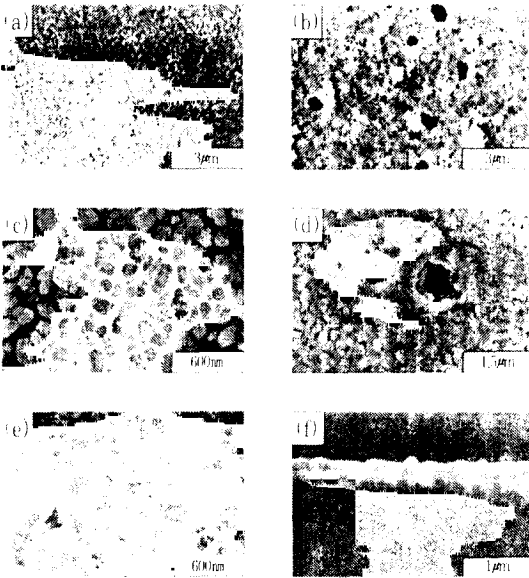


그림 4. 열처리 후 LTO박막의 미세구조사진
 Fig. 4. SEM micrographs of (a), (b) Pt/Ti/SiO₂/Si(100) wafer before and after heat-treat at 1000℃ for 1 hour, (c), (d) LTO/Pt/Ti/SiO₂/Si(100) at 800℃ and 1000℃, (e) LTO/Pt/ZrO₂/SiO₂/Si(100) at 800℃, and (f) its cross section at 900℃

3.3 전기적 특성

3.3.1 누설전류

Fig. 5에 $\text{La}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ 박막 커패시터의 누설전류 특성을 Pt/Ti/SiO₂/Si(100) 기판을 사용하여 900℃에서 열처리한 시편에 대하여 측정된 결과를 나타내었다. 누설전류는 10⁻⁶~10⁻⁵ A/cm²로 나타났는데, MOD법으로 Pt/ZrO₂/SiO₂/Si(100)기판을 사용하여 1000℃에서 열처리한 박막커패시터에 비하여 다소 높게 나타났다¹²⁾.

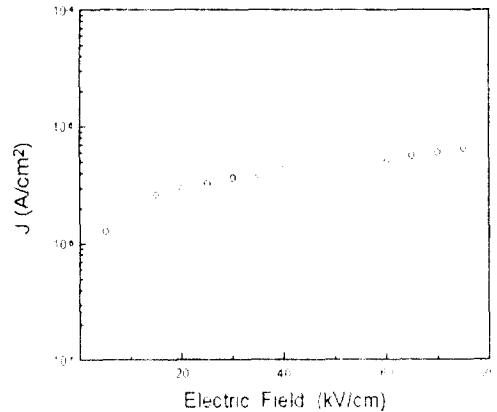


그림 5. 900℃, 산소 분위기에서 1시간 열처리한 Pt/LTO/Pt/Ti/SiO₂/Si(100)박막 커패시터의 누설전류 특성

Fig. 5. Leakage current characteristics for Pt/LTO/Pt/Ti/SiO₂/Si(100) thin film capacitor annealed at 900℃ for 1 hour in oxygen.

3.3.2 분극 및 유전특성

주파수 변화에 따른 비유전율과 유전손실(tanδ)의 변화를 900℃, 산소분위기에서 1시간 열처리한 Pt/LTO/Pt/Ti/SiO₂/Si(100) 박막커패시터에 대하여 Fig. 6과 Fig. 7에 나타내었다. 측정결과 비유전율(ε_r)은 측정주파수 범위에서 11 정도의 값을 나타내었는데, $\text{La}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ 세라믹에 대해 보고된 비유전율값인 47(@ 1MHz)에 비하여 낮은 값으로, 박막의 미세구조가 벌크 세라믹과는 달리 미세한 결정립으로 이루어진 것 뿐 만 아니라 미세구조가 치밀하지 못한 것에 기인하는 것으로 보인다¹³⁾. Fig. 7에는 Fig. 6의 시편에 대한 유전손실 값을 나타내었는데 유전손실(tanδ)가 약 0.05 이하의 값을 나타내었다. Fig.

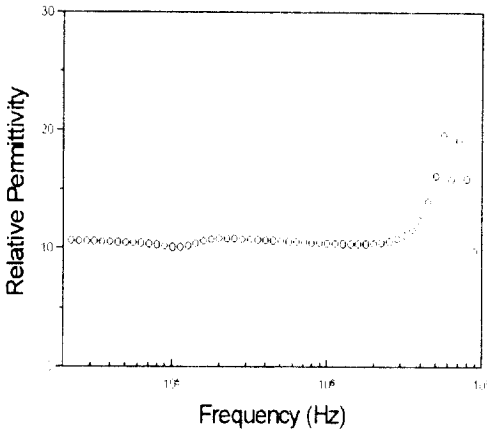


그림 6. 900°C, 산소 분위기에서 1시간 열처리한 Pt/LTO/Pt/Ti/SiO₂/Si(100) 박막 커패시터의 유전 특성

Fig. 6. Relative Permittivity versus frequency characteristics for Pt/LTO/Pt/Ti/SiO₂/Si(100) thin film capacitor annealed at 900°C for 1 hour in oxygen.

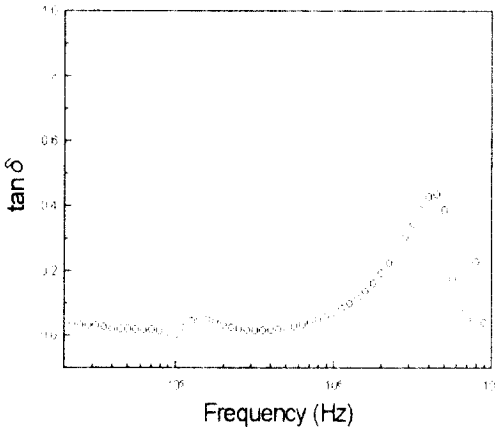


그림 7. 900°C, 산소 분위기에서 1시간 열처리한 Pt/LTO/Pt/Ti/SiO₂/Si(100) 박막 커패시터의 유전 손실 특성

Fig. 7. Dissipation factor versus frequency characteristics for Pt/LTO/Pt/Ti/SiO₂/Si(100) thin film capacitor annealed at 900°C for 1 hour in oxygen.

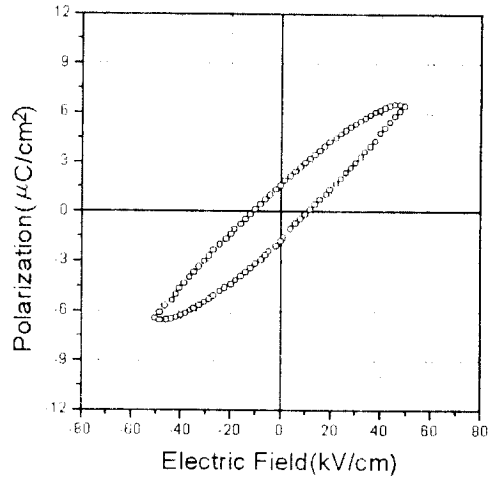


그림 8. 900°C, 산소 분위기에서 1시간 열처리한 Pt/LTO/Pt/Ti/SiO₂/Si(100) 박막 커패시터의 이력곡선

Fig. 8. Hysteresis characteristics for Pt/LTO/Pt/Ti/SiO₂/Si(100) thin film capacitor annealed at 900°C for 1 hour in oxygen.

8에 같은 시편에 대한 P-E 특성을 나타내었다. 50kV/cm를 가하였을때, 잔류분극(2P_r) 값은 약 3μC/cm² 정도이고, 항전계(E_c)값은 약 15kV/cm 값을 얻을 수 있었다.

4. 결 론

졸겔법을 이용하여 La₂Ti₂O₇ 박막을 제조하였다. 착화제로 사용된 AcAc의 역할을 FT-NMR 분광분석을 통하여, AcAc의 일부가 Ti(OPr)₄을 Ti(OPr)₂(AcAc)₂으로 치환반응 함으로써 박막코팅용 전구체용액의 안정화를 유도함을 알 수 있었다. 1000°C 이상의 고온 열처리를 거친 박막 시편에 대한 XRD분석에서는 이차상인 La₄Ti₉O₂₇이 검출되었는데 이는 La₂Ti₂O₇이 생기는 과도 단계이거나, 열처리공정 중에 발생한 La 손실의 영향 때문인 것으로 보인다. La₂Ti₂O₇과 이차상인 La₄Ti₉O₂₇의 결정구조가 서로 비슷하여 SEM사진으로는 이차상의 식별은 어려웠다. 미세구조 분석을 통하여 본 연구에서 사용한 기판인 Pt/ZrO₂/SiO₂/Si(100), Pt/Ti/SiO₂/Si(100)기판의 경우 800°C 이상의 고온 열처리 후 hillock과 기공(void)이 생기기 때문에 열처리 온도가 증가할수록, 시편의 전기적 특성에 좋

지 않은 결과를 초래한 것을 알 수 있었다. 누설전류는 $10^{-6} \sim 10^{-5} \text{A/cm}^2$ 범위의 값을 나타내었다. 비유전율(ϵ_r)은 11 정도의 낮은 값을 나타내었고, 유전손실($\tan\delta$)은 1MHz의 이하의 측정 주파수에서 약 0.05 이하의 값을 나타내었다. 측정된 P-E 이력곡선으로부터 50kV/cm 를 가하였을 때 잔류분극($2P_r$) 값은 $3 \mu\text{C/cm}^2$ 정도이고, 항전계(E_c) 값은 약 15kV/cm 의 값을 얻었다.

감사의 글

“이 논문은 1997년도 교육부 신소재 공모과제 연구비에 의하여 연구되었으며, 이에 감사드립니다”.

참고 문헌

1. M. Sayer *et al.*, “Integrated Piezoelectric and Pyroelectric Devices from Thin Film Ferroelectrics”, *Ferroelectrics Thin Films I, Mat. Res. Soc. Sym. Proc.*, Mat. Res. Soc., pp. 39-48, 1991.
2. O. Auciello and R. Ramesh, “Laser-Ablation Deposition and Characterization of Ferroelectric Capacitors for Nonvolatile Memories”, *Electroceramic Thin Films Part I, MRS Bulletin*, pp. 31-36, June, 1996.
3. J. F. Scott *et al.*, “Structure and Device Characteristics of $\text{SrBi}_2\text{Ta}_2\text{O}_9$ -Based Nonvolatile Random-Access Memories”, *Electroceramic Thin Films Part I : Device Applications, MRS Bulletin*, pp. 33-39, July, 1996.
4. S. Nanamatsu *et al.*, “A New Ferroelectric $\text{La}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ ”, *Ferroelectrics*, Vol. 8, 511-513, 1974.
5. P. A. Fuierer and R. E. Newnham, “ $\text{La}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ Ceramics”, *J. Am. Ceram. Soc.*, 74[11], 2876-81, 1991.

6. A. V. Prasadarao *et al.*, “Sol-gel synthesis of $\text{Lu}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ ”, *J. Mat. Res.*, 7[10], 2859-63, 1992.
7. C. H. Son *et al.*, “Microstructure and Dielectric Properties of $\text{Sr}_2\text{Nb}_2\text{O}_7$ Thin Films by Metalorganic Decomposition”, *J. Kor. Phys. Soc.*, 32, S1434-S1437, 1998.
8. Y. Fujimori *et al.*, “Application of $\text{Sr}_2\text{Nb}_2\text{O}_7$ Family Ferroelectric Films for Ferroelectric Memory Field Effect Transistor”, *Jap. J. Appl. Phys.*, 37, 5207-5210, 1998.
9. N. Fujimura *et al.*, “Epitaxially grown YMnO_3 film : New candidate for non-volatile memory device”, *Appl. Phys. Lett.*, 69[7], 1011-13, 1996.
10. K. Nashimoto, H. Moriyama and E. Osakabe, “Control of Crystallinity in Sol-Gel Derived Epitaxial LiNbO_3 Thin Films on Sapphire”, *Jpn. J. Appl. Phys.* 35, Part I, No. 9, pp. 4936-4940, 1996.
11. A. V. Prasadarao *et al.*, “Fabrication of $\text{La}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ Thin Films by Sol-Gel Technique”, *Ferroelectrics Letters*, Vol. 14, pp. 65-72, 1992.
12. S. J. Jeon *et al.*, “Crystallization and Dielectric Properties of Lanthanum Titanate Thin Films by Metalorganic Decomposition”, *J. Korean. Phys. Soc.*, 32, S1657-S1659, 1998.
13. C. I. Brinker and G. W. Scherer, *Sol-Gel Science*, Academic Press, pp. 54-57, 1990.
14. J. March, *Advanced Organic Chemistry*, John Wiley & Sons, 3rd edition, 1985.
15. Y. J. Zhong *et al.*, “The Effect of $\text{La}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ Second Phase on the Microstructure and Dielectric Properties of LaTiO_3 Ceramics”, *J. European Ceram. Soc.*, 15, pp. 255-263, 1995.