

LSMCD 공정으로 제조한 SBT 박막의 두께에 따른 강유전 특성

박주동 · 권용욱 · 연대중 · 오태성
홍익대학교 공과대학 금속·재료공학과
(1999년 2월 24일 접수)

Thickness effect on the ferroelectric properties of SBT thin films fabricated by LSMCD process

Joo Dong Park, Yongwook Kwon, Dae Joong Yeon and Tae Sung Oh

Department of Metallurgy and Materials Science, Hong Ik University, Seoul, Korea
(Received February 24, 1999)

요 약 - LSMCD (Liquid Source Misted Chemical Deposition) 공정으로 Pt/Ti/SiO₂/Si 기판상에 70~150 nm 두께의 SrBi_{2.4}Ta₂O₉ (SBT) 박막을 제조하여, 박막 두께에 따른 미세구조, 강유전 특성과 누설전류 특성을 분석하였다. 70~150 nm 두께 범위의 SBT 박막은 800°C에서 1시간 동안 산소분위기 열처리함으로써 모두 우선방향성이 없는 다결정 박막으로 결정화되었으며, 박막 두께에 무관하게 ~100 nm 크기의 결정립으로 이루어져 있었다. SBT 박막의 두께가 감소함에 따라 잔류분극 2P_r과 항전계 E_c가 증가하였으며, 70 nm 두께의 SBT 박막은 5V의 구동전압에서 17.8 μC/cm²의 잔류분극 2P_r과 74 kV/cm의 항전계 E_c를 나타내었다. LSMCD 공정으로 제조한 SBT 박막은 70~150 nm의 두께 범위에서 두께 감소에 따라 비유전율이 감소하는 크기 효과를 나타내었다. 125 nm 이상 두께의 SBT 박막은 5V의 인가전압까지 10⁻⁷ A/cm² 이하의 우수한 누설전류 특성을 나타내었다.

Abstract - SrBi_{2.4}Ta₂O₉ (SBT) thin films of 70~150 nm thickness were prepared on platinized silicon substrates by Liquid Source Misted Chemical Deposition (LSMCD) process, and their microstructure, ferroelectric and leakage current characteristics were investigated. By annealing at 800°C for 1 hour in oxygen ambient, SBT films were fully crystallized to the Bi layered perovskite structure without preferred orientation. The grain size of the LSMCD-derived SBT films was about 100 nm, and was not varied with the film thickness. 2P_r and E_c of the SBT films increased with decreasing the film thickness, and the 70 nm-thick SBT film exhibited 2P_r of 17.8 μC/cm² and E_c of 74 kV/cm at applied voltage of 5 V. Within the film thickness range of 70~150 nm, the relative dielectric permittivity of the LSMCD-derived SBT films decreased with decreasing the film thickness. Leakage current densities lower than 10⁻⁷ A/cm² at 5 V were observed in the SBT films thicker than 125 nm.

1. 서 론

강유전체 박막은 자발분극 특성과 함께 분극 반전에 의한 스위칭 특성을 나타내어 비휘발성 기억소자인 FRAM 소자의 개발이 가능하며, 최근 FRAM 소자의 내구성 및 신뢰성 향상을 위해 분극피로에 의한 특성 열화가 없는 SrBi₂Ta₂O₉ 강유전체 박막에 대한 연구가 활발히 진행되고 있다[1-7]. SrBi₂Ta₂O₉ 박막은 c축에 수직하게 비강유전성 (Bi₂O₂)²⁺ 층과 강유전성 (SrTa₂O₉)²⁻ 층

이 반복된 층상 페로브스카이트 구조를 가지며, 박막내 산소 공격자가 비강유전성 (Bi₂O₂)²⁺ 층에 포획되므로써 박막/전극 계면에서 산소 공격자의 발생이 억제되어 분극 피로가 발생하지 않는 것으로 보고되고 있다[1].

SrBi₂Ta₂O₉, BaSrTiO₃와 같은 복합산화물 박막의 제조 공정으로는 sol-gel[2], MOD[3], MOCVD[4], RF 마그네트론 스퍼터링[5], pulsed laser ablation[6], LSMCD (Liquid Source Misted Chemical Deposition)[7, 8] 등이 다양하게 연구되고 있다. 이중 sol-gel 공정과 MOD 공

정은 박막 두께의 불균일성 및 높은 기공률과 더불어 non-planar한 형상을 갖는 박막 제조가 어려우며, MOCVD와 스퍼터링 공정에서는 다성분계 기상 원료 및 고순도 타제조의 어려움이 가장 큰 문제점으로 지적되고 있다. 이에 따라 spin-on 공정과 MOCVD 공정의 문제점을 보완한 새로운 제조공정으로 LSMCD 공정이 제안되었다[7, 8]. LSMCD 공정은 sol-gel 또는 MOD 공정에서 사용되는 다성분계 액상 precursor를 초음파로 진동시켜 미세한 입자로 형성시킨 후, 불활성 가스를 이용하여 챔버 내로 운반하여 기판상에 성막시키는 방식이다. 따라서 LSMCD 공정에서는 MOCVD 등의 기상 증착시 문제가 되는 다성분계 precursor 제조의 어려움을 해결할 수 있다[7, 8]. 이와 동시에 LSMCD 공정에서는 sol-gel 및 MOD 방식에서 제한되었던 박막 두께의 균일성, 치밀한 미세구조 및 step coverage 향상을 이룰 수 있어 다성분계 박막의 제조에 효과적으로 적용될 수 있을 것으로 기대된다[7, 8]. LSMCD 공정으로 제조한 $\text{SrBi}_2\text{Ta}_2\text{O}_9$ 박막의 강유전 특성에 대한 보고는 매우 드문 실정이다[7].

강유전체 박막을 적용한 기억소자의 고집적화, 저전력화를 위해서는 강유전체 박막의 두께 감소가 요구되나, 일반적으로 강유전체 재료에서는 특성이 강유전체층의 두께에 의존하는 크기 효과가 발생한다[9, 10]. $\text{Pb}(\text{Zr}, \text{Ti})\text{O}_3$, PbTiO_3 및 BaTiO_3 와 같은 페로브스카이트 구조의 박막에서는 강유전 특성이 박막 두께나 결정립 크기에 따라 크게 변한다고 보고되고 있으나[11-13], SBT 박막에서는 이와 같은 연구가 거의 보고되고 있지 않다[14].

본 연구에서는 LSMCD 공정을 사용하여 Pt/Ti/SiO₂/Si 기판상에 70~150 nm 두께의 $\text{SrBi}_2\text{Ta}_2\text{O}_9$ (SBT) 강유전체 박막을 제조 후, 박막 두께에 따른 미세구조와 강유전 특성 및 누설전류 특성을 분석하였다.

2. 실험

$\text{SrBi}_2\text{Ta}_2\text{O}_9$ (SBT) 박막의 LSMCD 공정에 사용하기 위한 코팅용액의 출발물질로는 MOD 공정[3]에 사용되는 전구체 용액인 Sr, Bi, Ta-2-ethyl-hexanoate를 선택하였다. 박막의 열처리시 증기압이 높은 Bi 산화물의 휘발을 보상하기 위해 Bi 산화물의 함량을 20 mol% 과잉으로 첨가한 $\text{SrBi}_2\text{Ta}_2\text{O}_9$ 조성으로 Sr, Bi 및 Ta-2ethyl-hexanoate 전구체 용액을 혼합 후, butyl acetate로 희석

시켜 0.05 M 농도의 코팅용액을 제조하였다. 15×15 mm 크기의 Pt/Ti/SiO₂/Si 기판을 LSMCD 챔버에 장입하고, 챔버 내의 진공도를 3×10^{-5} torr로 유지하였다. 챔버 내로 질소 가스를 주입하여 진공도가 600~700 Torr에 도달시, 1.65 MHz의 초음파 진동자로 코팅용액을 진동시켜 발생시킨 액적을 Ar 가스를 이용하여 챔버 내로 유입하였다. 이때 기판을 1~3 rpm으로 회전시켜 액적이 기판에 고루 흡착되도록 하였다. 기판에 액적을 5분간 흡착시킨 후, 흡착된 박막내의 유기물 분해를 위해 할로젠 램프를 이용하여 150°C와 400°C에서 각각 5분간 건조하였다. 이와 같은 공정을 반복하여 산소분위기 열처리 후 SBT 박막의 최종 두께가 70~150 nm가 되도록 하였다.

LSMCD 공정으로 성막한 SBT 박막을 800°C에서 1시간 동안 산소분위기 열처리하였으며, 상부전극으로 200 nm 두께의 Pt dot (직경 200 μm)을 DC 마그네트론 스퍼터링으로 형성하였다. Stylus profiler를 이용하여 SBT 박막의 두께를 측정하였으며, X-선 회절 분석과 주사전자현미경을 이용하여 박막의 결정상과 미세구조를 관찰하였다. RT66A를 이용하여 SBT 박막의 강유전 특성을 분석하였으며, HP4194A와 pA meter로 C-V 특성과 I-V 특성을 분석하였다.

3. 결과 및 고찰

Fig. 1에 800°C에서 산소분위기 열처리한 SBT 박막의 두께에 따른 XRD 패턴을 나타내었다. LSMCD 공정으로 Pt/Ti/SiO₂/Si 기판 상에 제조한 SBT 박막은 800°C의 산소분위기 열처리에 의해 70~150 nm 두께 범위에서 모두 우선성장 방향이 없는 다결정 박막으로 결정화되었다. 이와 같이 LSMCD 공정으로 제조한 SBT 박막을 산소분위기 열처리시 우선성장 방향이 없는 다결정 박막으로 결정화되는 것은 MOD 공정으로 제조한 SBT 박막에서와 마찬가지로 Pt 하부전극의 우선방향성에 기인하는 것으로 판단된다[10, 15]. MOD 공정으로 Pt 하부전극 위에 성막한 SBT 박막은 산소분위기 열처리시 Pt 하부전극이 (001)로 배향되어 있는 경우에는 c축 우선방향성을 나타내나[15], Pt 하부전극이 (111)로 배향되어 있을 경우에는 우선성장 방향이 없는 다결정 박막으로 결정화되며[10, 15], Ti/SiO₂/Si 기판에 증착한 Pt 박막은 항상 (111) 우선방향성을 갖는다고 보고되고 있다[10]. LSMCD 뿐만 아니라 MOD 공정으로 제조한 SBT

박막에서도 열처리시 두께에 따른 결정화 거동에 대한 연구는 거의 보고된 바가 없으나, SBT와 동일한 층상

페로브스카이트 구조의 $\text{SrBi}_2\text{Nb}_2\text{O}_9$ 박막에서는 800°C에서 산소분위기 열처리 후 Raman 스펙트럼을 분석한 결과 100~400 nm의 박막 두께에서 동일한 결정화 거동을 나타낸다고 보고되었다[16].

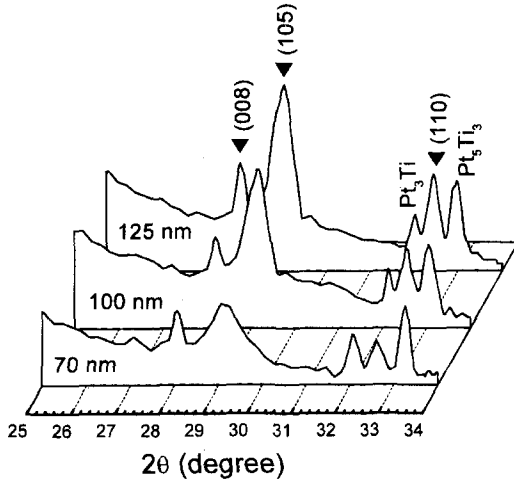


Fig. 1. XRD patterns of the LSMCD-derived SBT films after annealing at 800°C for 1 hour in oxygen atmosphere.

Fig. 2에 주사전자현미경으로 관찰한 SBT 박막의 두께에 따른 표면 미세구조를 나타내었다. LSMCD 공정으로 제조한 SBT 박막은 동일한 전구체 용액을 사용하여 MOD 공정으로 제조한 박막의 결정립 크기인 ~150 nm 보다 미세한 ~100 nm 크기의 결정립으로 이루어져 있었으며, 박막 두께에 따른 결정립 크기와 형상의 변화는 관찰할 수 없었다. 일반적으로 $\text{Pb}(\text{Zr},\text{Ti})\text{O}_3$, PbTiO_3 와 같은 페로브스카이트 구조의 강유전체 박막에서는 25~300 nm 두께 범위에서 두께 감소에 따라 결정립 크기가 직선적으로 감소한다고 보고되고 있다[9, 17]. 그러나, Zhu 등은 MOD 공정으로 제조한 층상 페로브스카이트 구조의 $\text{SrBi}_{2-x}\text{Ta}_2\text{O}_9\text{-Bi}_3\text{TiNbO}_9$ 고용체 박막에서 본 실험의 결과와 동일하게 결정립 크기가 80~250 nm 범위의 박막 두께에 무관하게 일정하다고 보고하였다[14]. 이에 대한 이유를 Zhu 등은 20×20 nm 크기의 등축정 형상

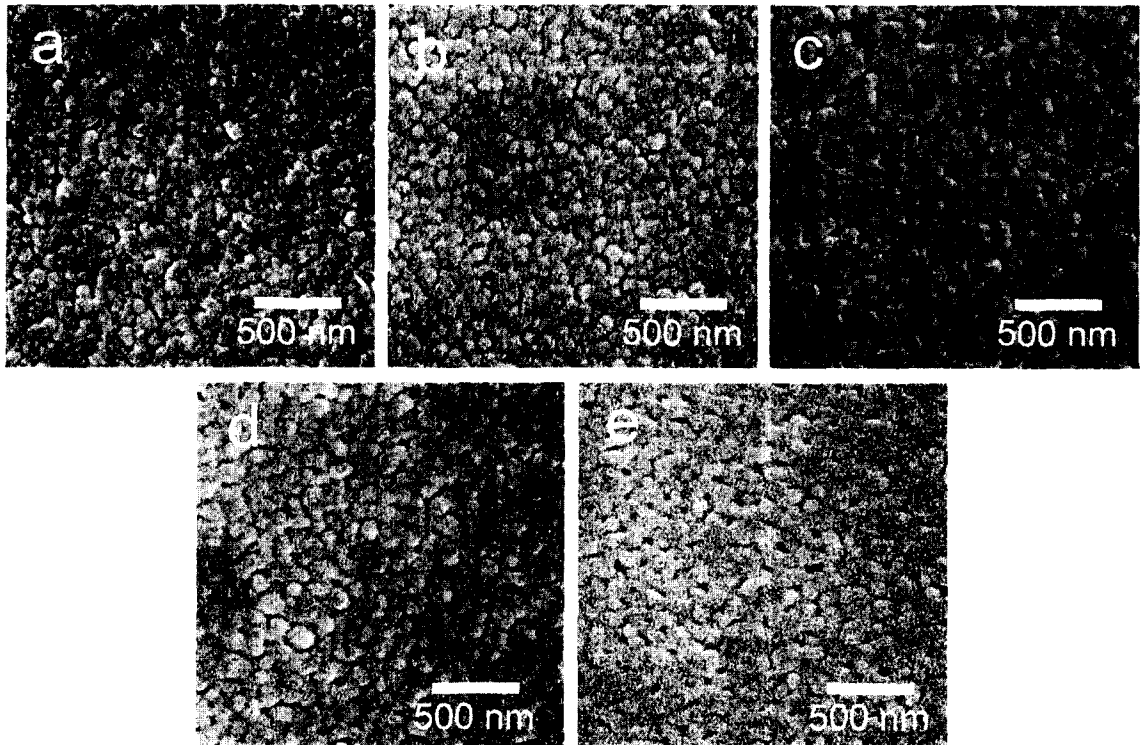


Fig. 2. SEM micrographs observed on the surface of the SBT films with thickness of (a) 70 nm, (b) 85 nm, (c) 100 nm, (d) 125 nm, and (e) 150 nm.

의 결정립과 200×60 nm 크기의 봉상 형태의 결정립으로 이루어진 미세구조 분석 결과를 이용하여 설명하였다[14]. 즉, ABO₃ 구조의 박막에서는 a축과 c축 사이의 격자상수 차이가 작아 등축정 형상의 결정립이 형성되어 결정립 크기가 박막 두께에 제한을 받으나, 층상 페로브스카이트 구조의 박막에서는 a축과 c축의 심한 격자상수 차이에 의해 이방성 결정성장이 발생하여 봉상 형태의 결정립이 형성되었으며 이방성 결정성장은 박막 두께에 제한을 받지 않는다고 설명하였다. 그러나, Fig. 2와 같이 LSMCD 공정으로 제조한 SBT 박막은 두께에 따른 결정립 크기의 변화를 나타내지 않았으나, Zhu 등이 SrBi_{2.4}Ta₂O₉-Bi₃TiNbO₆ 고용체 박막에서 보고한 이방성 결정성장이 관찰되지 않았다. 또한 층상 페로브스카이트 구조의 SBT 박막의 결정립 형상은 항상 이방성 결정성장이 발생하였다고 생각할 수 있는 봉상 형태를 갖는 것이 아니라, 제조공정과 조성에 따라 등축정 또는 봉상 형태를 갖는 것으로 보고되고 있다[4, 18]. 이와 같은 결과로부터, ABO₃ 구조의 PZT나 PbTiO₃ 박막과는 달리 층상 페로브스카이트 구조의 SBT 박막에서는 결정립 크기가 박막 두께에 무관하게 일정하나, 이에 대한 이유로는 Zhu 등[14]이 제안한 이방성 결정성장 뿐만 아니라 다른 기구도 작용하는 것으로 사료된다.

Fig. 3에 LSMCD 공정으로 제조한 SBT 박막의 분극 이력곡선을 나타내었다. 70~150 nm 범위의 전 두께 영역에서 모두 잘 발달된 분극이력곡선이 관찰되었으며,

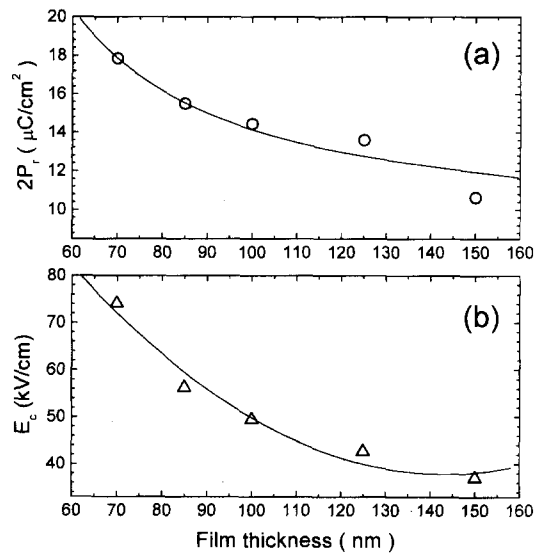


Fig. 4. (a) Remanent polarization 2P_r and (b) coercive field E_c of the LSMCD-derived SBT films as a function of the film thickness.

이들로부터 잔류분극 2P_r과 항전계 E_c의 박막 두께에 따른 변화를 Fig. 4에 나타내었다. 박막 두께가 감소함에 따라 2P_r과 E_c가 증가하여, 70 nm 두께의 SBT 박막은 17.8 μC/cm²의 2P_r과 74 kV/cm의 E_c를 나타내었다. 인가 전계에 따른 비유전율 ε_r의 변화를 나타낸 Fig. 5와 같이, 70~150 nm 두께의 SBT 박막에서 모두 최대 비유

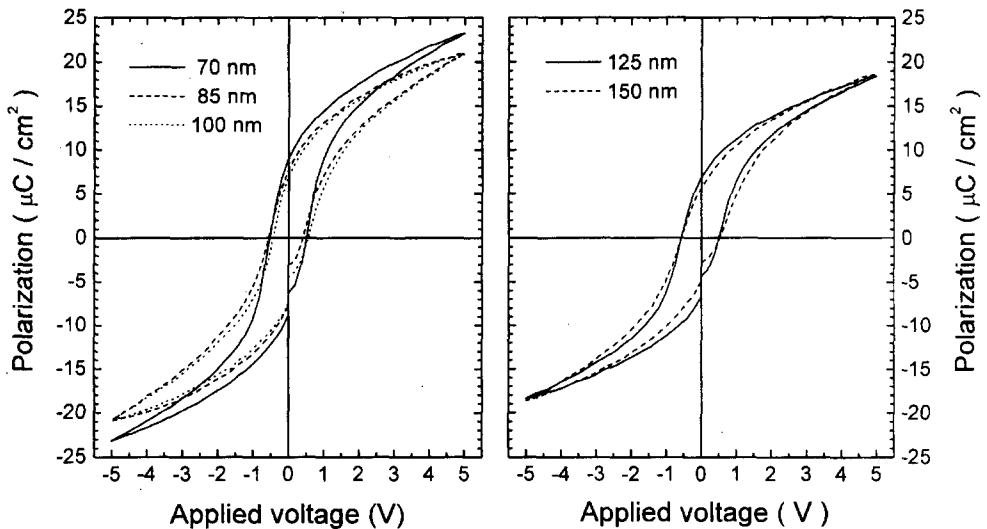


Fig. 3. Hysteresis curves of the LSMCD-derived SBT films with thickness of 70~150 nm at 5 V.

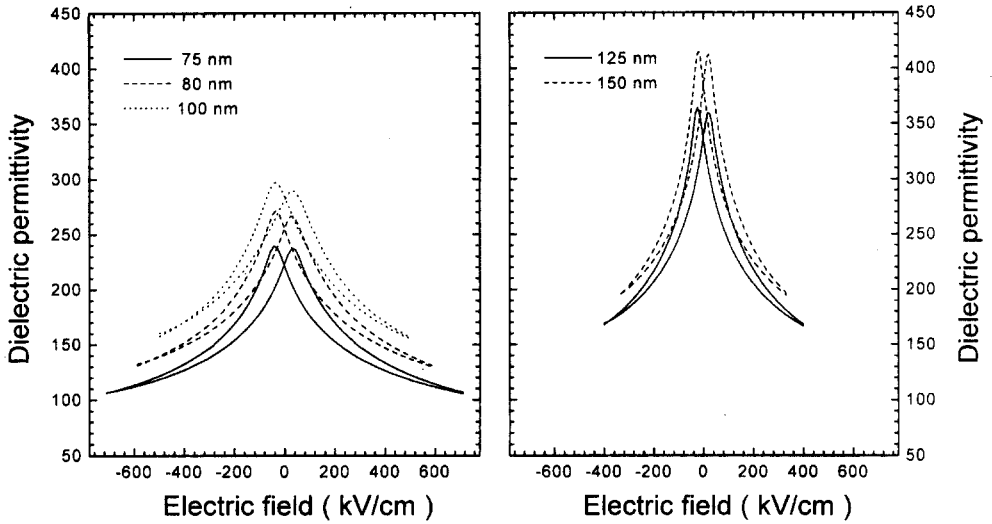


Fig. 5. Relative dielectric permittivity of the LSMCD-derived SBT films with thickness of 70~150 nm as a function of the applied electric field.

전율의 정확한 대칭을 관찰할 수 있어 SBT 박막과 상·하부 전극이 동일한 계면상태를 가진 Pt/SBT/Pt 캐패시터가 제조되었음을 확인할 수 있었다.

Fig. 6에 LSMCD 공정으로 제조한 SBT 박막의 두께에 따른 비유전율의 변화를 나타내었다. SBT 박막의 두께가 150 nm에서 70 nm로 감소함에 따라 비유전율이 385에서 224로 직선적으로 감소하였으며, 이는 $\text{Bi}_2\text{VO}_{5.5}$, $\text{Bi}_3\text{TiNbO}_6$ 및 $\text{Bi}_4\text{Ti}_3\text{O}_{12}$ 와 같은 층상 페로브스카이트 구조의 강유전체 박막에서 보고된 두께 감소에 따른 비유

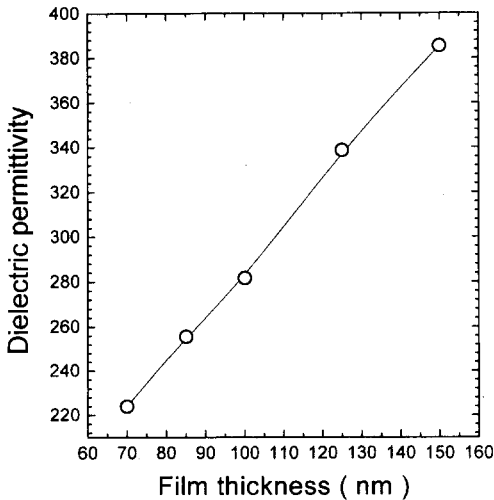


Fig. 6. Relative dielectric permittivity of the LSMCD-derived SBT films as a function of the film thickness.

전율의 저하 거동과 잘 일치하였다[19]. Pulsed laser ablation법으로 제조한 90~380 nm 두께의 SBT 박막에서는 비유전율이 270~300으로 박막 두께에 비교적 무관하다고 보고[6]되고 있으나, 200 nm 이하의 두께에서는 90 nm 두께의 박막에서 얻은 결과만 있으며 박막의 두께가 90 nm에서 200 nm로 증가시에는 비유전율이 270에서 300으로 증가하였다. 또한 본 연구팀의 추가실험 결과, 200~400 nm 두께 범위에서는 SBT 박막의 비유전율이 거의 변하지 않는 것을 확인되었다. 이와 같은 결과로부터, LSMCD 공정으로 제조한 SBT 박막은 70~150 nm의 두께 범위에서 박막 두께의 감소에 따라 비유전율이 감소하는 크기 효과를 나타낸다고 판단할 수 있다. Fig. 6와 같이, LSMCD 공정으로 제조한 SBT 박막에서는 두께 감소에 따른 비유전율의 저하 정도가 두께 감소 정도보다 작았다. 즉, t_1 과 t_2 를 각기 두꺼운 박막과 얇은 박막의 두께라 할 때 $[\epsilon_r(t_1)/\epsilon_r(t_2)-1] < (t_1/t_2-1)$ 관계가 성립하였다. RT66A를 사용하여 측정된 분극이력곡선에서 분극 값은 Pt/SBT/Pt 캐패시터의 단위면적당 축전되는 전하량 Q 이기 때문에, SBT 박막의 비유전율 ϵ_r 에 비례하고 두께에 반비례한다. 따라서, Fig. 4와 같이 SBT 박막의 두께가 감소함에 따라 잔류분극 $2P_r$ 이 증가하는 현상은 $[\epsilon_r(t_1)/\epsilon_r(t_2)-1] < (t_1/t_2-1)$ 관계를 이용하여 설명할 수 있다.

ABO_3 구조의 강유전체 박막에서 두께 감소에 의한 강유전 특성의 저하를 발생시키는 기구로는 기판과 박

막의 열팽창계수 차이에 기인한 잔류응력[11], 산화물 박막과 금속전극의 계면에 형성된 저유전율 층[12] 및 domain 전이[13] 등이 보고되고 있다. 이중 저유전율 계면층에 의한 열화 이론은 산화물 박막 내에 존재하는 산소 공격자가 계면으로 확산함에 따라 계면 부근에서 저유전율 층이 형성되어, 박막의 비유전율이 저하하는 것으로 보고되고 있다[6, 12]. 그러나, SBT 박막에서는 층상 페로브스카이트 구조내의 Bi_2O_3 층에 산소 공격자가 포획되어 계면으로의 확산이 방지됨으로써[1] 저유전율 계면층의 형성이 억제될 것으로 사료된다. 또한 강유전체의 특성을 결정짓는 강유전 domain 구조와 domain 벽의 이동도는 결정립 크기에 의존한다고 보고되고 있으나[13], Fig. 1과 같이 LSMCD 공정으로 제조한 SBT 박막은 70~150 nm 범위의 두께에서 동일한 크기의 결정립으로 이루어져 있어 모두 유사한 강유전 domain 거동을 나타낼 것으로 판단된다. 따라서 본 연구에서 LSMCD 공정으로 제조한 SBT 박막의 두께 감소에 따른 강유전 특성의 변화는 주로 박막과 Pt/Ti/SiO₂/Si 기판의 열팽창계수 차이에 의해 발생하는 잔류응력의 두께 의존성에 기인하는 것으로 판단되며, 이를 확인하기 위해 향후 stylus profiler를 이용하여 박막 표면의 곡률 반경을 측정하므로써[20] SBT 박막의 두께에 따른 잔류응력의 변화를 분석하고자 한다.

Fig. 7에 LSMCD 공정으로 제조된 SBT 박막의 두께

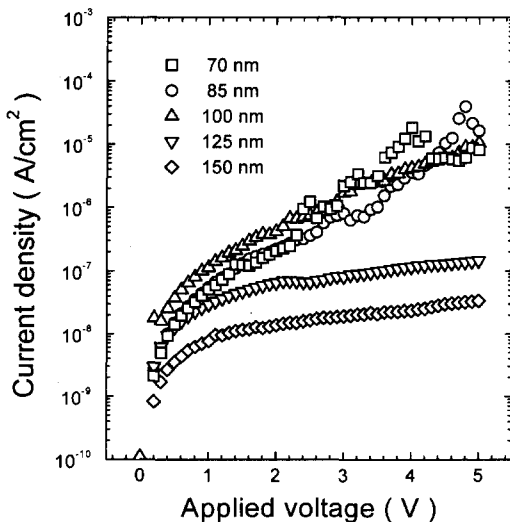


Fig. 7. Leakage current density of the LSMCD-derived SBT films with thickness of 70~150 nm as a function of the applied voltage.

에 따른 누설전류 특성을 나타내었다. 100 nm 이하 두께의 SBT 박막은 3V 이상의 인가전압에서 10⁻⁶ A/cm² 이상의 누설전류 밀도를 나타내었으나, 박막의 두께가 125 nm 이상일 경우에는 5V의 인가전압까지 10⁻⁷ A/cm² 이하의 우수한 누설전류 특성을 나타내었다.

4. 결 론

LSMCD 공정으로 제조한 70~150 nm 두께의 SBT 박막은 800°C에서의 산소 분위기 열처리에 의해 박막 두께에 무관하게 모두 우선방향성이 없는 다결정 박막으로 결정화되었다. LSMCD 공정으로 제조한 SBT 박막은 동일한 전구체 용액을 사용하여 MOD 공정으로 제조한 박막보다 미세한 ~100 nm의 결정립으로 이루어져 있었으며, 박막 두께에 따른 결정립 크기와 형상의 변화는 관찰할 수 없었다. LSMCD 공정으로 제조한 70~150 nm 두께의 SBT 박막은 모두 잘 발달된 분극이력곡선을 나타내었으며, 박막 두께가 감소함에 따라 잔류분극 2P_r과 항전계 E_c가 증가하여 70 nm 두께의 SBT 박막은 17.8 μC/cm²의 2P_r과 74 kV/cm의 E_c를 나타내었다. LSMCD 공정으로 제조한 SBT 박막은 70~150 nm의 두께 범위에서 박막 두께의 감소에 따라 비유전율이 감소하는 크기 효과를 나타내었으며, 이에 대한 원인으로서는 박막 두께에 따른 잔류응력의 변화가 가장 크게 작용하는 것으로 판단된다. LSMCD 공정으로 제조한 SBT 박막은 125 nm 이상의 두께에서 5V의 인가전압까지 10⁻⁷ A/cm² 이하의 우수한 누설전류 특성을 나타내었다.

감사의 글

본 연구는 한국과학재단의 핵심연구과제 (과제번호 : 981-0806-037-2) 지원에 의해 이루어졌으며, 이에 감사드립니다.

참고문헌

- [1] J. F. Scott and C. A. Araujo, *Science* **246**, 1400 (1990).
- [2] K. Watanabe, A. J. Hartman, R. N. Lamb, and J. F. Scott, *J. Appl. Phys.* **84**, 2170 (1998).
- [3] D. J. Yeon, J. D. Park, and T. S. Oh, *J. Kor. Phys. Soc.* **30**, S173 (1998).
- [4] Y. Zhu, S. B. Desu, T. Li, and S. Ramanathan, *J.*

- Mater. Res.* **12**, 783 (1997).
- [5] T. K. Song, J.-K. Lee, and H. J. Jung, *Appl. Phys. Lett.* **69**, 3839 (1996).
- [6] J. J. Lee, C. L. Thio, and S. B. Desu, *J. Appl. Phys.* **78**, 5073 (1995).
- [7] M. Huffman, *Integrated Ferroelectrics* **10**, 39 (1995).
- [8] L. D. McMillan, C. A. P. Araujo, and T. L. Roberts, US Patent 5,316,579 (1994).
- [9] D. M. Tahan, A. Safari, and L. C. Klein, *J. Am. Ceram. Soc.* **79**, 1594 (1996).
- [10] S. B. Desu, D. P. Vijay, X. Zhang, and B. He, *Appl. Phys. Lett.* **69**, 1719 (1996).
- [11] J. S. Zhu, X. M. Lu, P. Li, W. Jiang and Y. N. Wang, *Solid State Communications* **101**, 263 (1997).
- [12] J. F. M. Cillessen, M. W. J. Prins, and R. M. Wolf, *J. Appl. Phys.* **81**, 2777 (1997).
- [13] S. B. Ren, C. J. Lu, J. S. Liu, H. M. Shen, and Y. N. Wang, *Phys. Rev.* **B54**, 337 (1996).
- [14] J. Zhu, X. Zhang, Y. Zhu, and S. B. Desu, *J. Appl. Phys.* **83**, 1610 (1998).
- [15] J. S. Lee, H. H. Kim, H. J. Kwon, and Y. W. Jeong, *Appl. Phys. Lett.* **73**, 166 (1998).
- [16] W. Perez, E. Ching-Prado, A. Reynes-Figueroa, R. S. Katiyar, D. Ravichandran, and A. S. Bhalla, *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.* **493**, 237 (1998).
- [17] S. B. Desu, C. H. Peng, I. Kamnerdiana, and P. J. Schnele, *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.* **200**, 319 (1990).
- [18] T. Hayashi, T. Takahashi, and T. Hara, *Jpn. J. Appl. Phys.* **35**, 4952 (1996).
- [19] M. Hamada, H. Tabata, and T. Kawai, *Jpn. J. Appl. Phys.* **37**, 5174 (1998).
- [20] T. J. Garini and M. Harrington, *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.* **42**, 341 (1992).