

## LSMCD 공정으로 제조한 SBT 박막의 Sr/Ta 몰비에 따른 강유전 특성

박주동 · 김지웅 · 오태성

홍익대학교 공과대학 금속·재료공학과  
(2000년 3월 3일 접수)

### Effect of Sr/Ta mole ratio on the ferroelectric properties of SBT thin films fabricated by LSMCD process

Joo Dong Park, Ji Woong Kim, and Tae Sung Oh

Department of Metallurgical Engineering and Materials Science, Hong Ik University, Seoul 121-791, Korea  
(Received March 3, 2000)

**요 약** - LSMCD (Liquid Source Misted Chemical Deposition) 공정으로 Sr/Ta 몰비 0.35~0.65 조성범위에서 150 nm 두께의  $Sr_xBi_{2.4}Ta_2O_9$  (SBT) 박막을 제조하여, Sr/Ta 몰비에 따른 결정상과 미세구조, 강유전 특성 및 누설전류 특성을 분석하였다. LSMCD 공정으로 제조한 SBT 박막은 Sr/Ta 몰비 0.425의 조성에서 최적의 강유전 특성을 나타내어  $\pm 5$  V의 구동전압 인가시  $15.01 \mu C/cm^2$ 의 잔류분극  $2P_r$ 과 41 kV/cm의 항전계  $E_c$ 를 나타내었다. LSMCD 공정으로 제조한 Sr/Ta 몰비 0.35~0.5 범위의 SBT 박막은 100 kV/cm의 전기장 하에서  $10^{-5} A/cm^2$  미만의 낮은 누설전류 밀도를 나타내었으며,  $\pm 5$ V의 구동전압 인가시  $10^{10}$ 회의 스위칭 후에도 잔류분극 감소가 1% 미만인 우수한 분극피로 특성을 나타내었다.

**Abstract** -  $Sr_xBi_{2.4}Ta_2O_9$  (SBT) thin films of 150 nm thickness were prepared using LSMCD (Liquid Source Misted Chemical Deposition) process with variation of the Sr/Ta mole ratio of 0.35~0.65, and their crystalline phase, microstructure, ferroelectric properties and leakage current characteristics were investigated. Ferroelectric characteristics of the LSMCD-derived SBT films were optimized at the Sr/Ta mole ratio of 0.425. The remanent polarization ( $2P_r$ ) and coercive field ( $E_c$ ) of the SBT film with the Sr/Ta mole ratio of 0.425 were measured as  $15.01 \mu C/cm^2$  and 41 kV/cm at an applied voltage of  $\pm 5$  V, respectively. LSMCD-derived SBT films with the Sr/Ta mole ratio of 0.35~0.5 exhibited leakage current densities lower than  $10^{-5} A/cm^2$  at an applied field of 100 kV/cm, and excellent fatigue-free characteristics of the remanent polarization decrement less than 1% after  $10^{10}$  switching cycles at  $\pm 5$  V.

## 1. 서 론

강유전체 박막은 자발분극과 스위칭 특성을 지니고 있어 비휘발성 기억소자인 FRAM에 응용하기 위한 연구가 활발히 진행중에 있다. FRAM은 DRAM과 비교하여 기록된 정보가 지워지지 않는 비휘발성이고 방사선 내성이 우수하며, EEPROM에 비해 구동전압이 낮고 액세스 시간이 빠른 장점을 지니고 있어 가장 이상적인 기억소자로 생각할 수 있다. 최근 FRAM의 내구성 및 신뢰성 향상을 위해 분극피로에 의한 특성 열화가 없는  $SrBi_2Ta_2O_9$  (SBT)계 강유전체 박막에 대한 연구가 다양하게 이루어지고 있다 [1-8]. SBT 박막은 c

축에 수직하게 비강유전성  $(Bi_2O_2)^{2+}$  층과 강유전성  $(SrTa_2O_7)^{2-}$  층이 반복된 층상 페로브스카이트 구조를 가지고 있다. 따라서 분극피로의 주요 원인으로 판단되는 산소 공격자가 비강유전성  $(Bi_2O_2)^{2+}$  층에 포획되므로써 박막/전극 계면에서 산소 공격자의 발생이 억제되어 분극 피로가 발생하지 않는 것으로 보고되고 있어 [1], FRAM 소자의 상용화를 구현할 재료로 각광받고 있다.

SBT 박막의 강유전 특성은 조성에 크게 의존하는 것으로 보고되고 있다. 일례로 MOD 공정이나 sol-gel 공정으로 제조한 SBT 박막의 결정화를 위해서는 800 °C의 산소분위기 열처리가 요구되나, 이와 같은 열처리

공정 중에 증기압이 높은 Bi 산화물의 휘발이 발생하여 강유전 특성이 저하하기 때문에 SBT 박막의 강유전 특성을 최적화하기 위해서는 코팅용액 내에 Bi 산화물을 화학양론적 조성보다 20 mol% 정도 과잉으로 첨가하여야 한다 [2, 3]. 또한 SBT 박막의 잔류분극 및 항전계 등의 강유전 특성은 박막내 Sr의 함량에 민감하게 의존하는 것으로 보고되고 있다 [9-12].

SBT를 비롯한 복합산화물 박막의 제조공정으로는 sol-gel [2], MOD (metalorganic decomposition) [3], MOCVD [4], RF 마그네트론 스퍼터링 [5], pulsed laser ablation [6] 등이 다양하게 연구되고 있다. 이중 sol-gel 공정과 MOD 공정은 박막 두께의 불균일성 및 높은 기공률과 더불어 non-planar한 형상을 갖는 박막의 제조가 어려우며, MOCVD와 스퍼터링 공정에서는 다성분계 기상 원료 및 고순도 타겟 제조의 어려움이 가장 큰 문제점으로 지적되고 있다. 이에 따라 spin-on 공정과 MOCVD 공정의 문제점을 보완한 새로운 제조 공정으로서 LSMCD(Liquid Source Misted Chemical Deposition) 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 조성 조절이 용이한 단일 액상원료를 사용함으로써 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 기대되나 [7, 8], LSMCD 공정으로 제조한 SBT 박막의 강유전 특성에 대한 보고는 매우 드문 실정이다[7].

본 연구에서는 LSMCD 공정을 사용하여 Pt/Ti/SiO<sub>2</sub>/Si 기판상에 150 nm 두께의 Sr<sub>x</sub>Bi<sub>2.4</sub>Ta<sub>2</sub>O<sub>9</sub> (SBT) 강유전체 박막을 Sr/Ta 몰비를 0.35~0.65의 범위에서 변화시키며 제조 후, Sr 함량에 따른 SBT 박막의 미세구조와 강유전 특성 및 누설전류 특성을 분석하였다.

## 2. 실험

SBT 박막의 LSMCD 공정에 사용하기 위한 코팅용액의 출발물질로는 MOD 공정 [3]에 사용되는 전구체

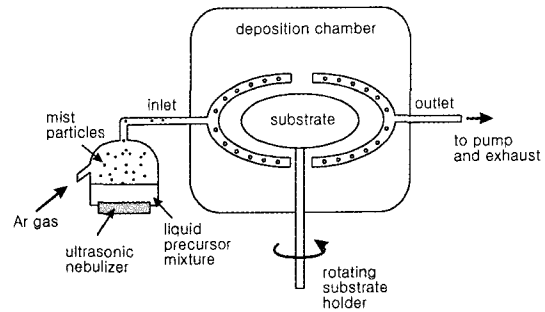


Fig. 1. Schematic diagram of the LSMCD system.

용액인 Sr, Bi, Ta-2-ethyl-hexanoate를 선택하였다. SBT 박막의 열처리시 증기압이 높은 Bi 산화물의 휘발을 보상하기 위해 Bi 산화물의 함량을 20 mol% 과잉으로 첨가하여 Sr, Bi 및 Ta-2ethyl-hexanoate 전구체 용액을  $x:1.2:2$  ( $0.7 \leq x \leq 1.3$ )의 조성으로 혼합 후, butyl acetate로 희석시켜 0.05 M 농도의 SrBi<sub>2.4</sub>Ta<sub>2</sub>O<sub>9</sub> (SBT) 코팅용액을 제조하였다.

그림 1에 본 연구에서 사용한 LSMCD 장비의 개략도를 나타내었다. 15×15 mm 크기의 Pt(200 nm)/Ti(50 nm)/SiO<sub>2</sub>(100 nm)/Si 기판을 LSMCD 챔버에 장입하고, 챔버 내의 진공도를  $3 \times 10^{-5}$  torr로 유지하였다. 챔버 내로 질소 가스를 주입하여 진공도가 상압에 가까운 600~700 torr에 도달시, 1.65 MHz의 초음파 진동자로 코팅용액을 진동하여 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 할로겐 램프를 이용하여 150 °C와 400 °C에서 각각 10분간 건조하였다. 이와 같은 공정을 3회 반복하여 산소분위기 열처리 후 SBT 박막의 최종 두께가 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, X선 회절 분석과 주사전자현미경을 이용하여 박막의 결정상과 미세구조를 관찰하였다. RT66A를 이용하여 SBT 박막의 강유전 특성을 분석하였으며, HP 4194A와 HP 4140B로 유전상수 및 누설전류 특성을 각각 분석하였다.

### 3. 결과 및 고찰

그림 2에 800 °C에서 산소분위기 열처리한 SBT 박막의 Sr/Ta 몰비에 따른 XRD 패턴을 나타내었다. 일

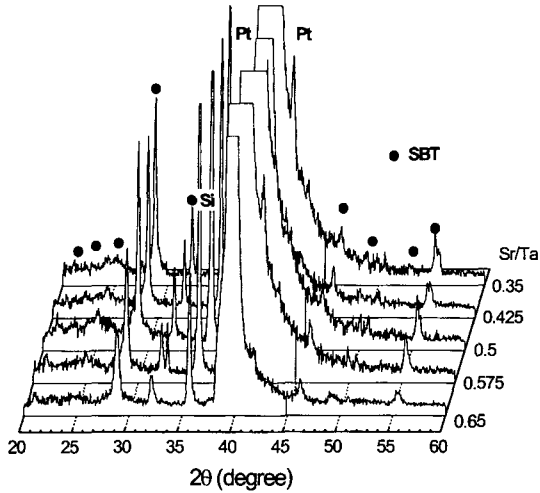


Fig. 2. XRD patterns of the LSMCD-derived SBT films with various Sr/Ta mole ratio after annealing at 800 °C for 1 hour in oxygen atmosphere.

반적으로 Sr 결핍 조성의 SBT 박막에서는 Bi 이온이 Sr 자리로 치환하여 층상 페로브스카이트 구조를 유지한다는 보고 [9, 10]와 같이, 화학양론적 조성 및 Sr 결핍 조성인 Sr/Ta 몰비 0.35~0.5 조성의 SBT 박막은 잘 발달된 층상 페로브스카이트 구조로 결정화되었음을 관찰할 수 있다. 반면에, Sr/Ta 몰비 0.575 이상의 Sr 과잉 조성에서는 Sr/Ta 몰비의 증가에 따라 SBT 박막의 주피크인 (115) 피크의 강도가 감소하였으며, 피크 broadening이 발생하였다.

코팅용액내 Sr/Ta 몰비 0.35~0.5의 조성 범위에서 LSMCD 공정으로 Pt/Ti/SiO<sub>2</sub>/Si 기판 상에 제조한 SBT 박막은 800 °C의 산소분위기 열처리에 의해 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 [12, 13]. MOD 공정으로 Pt 하부전극 위에 성막한 SBT 박막은 산소분위기 열처리시 Pt 하부전극이 (001)로 배향되어 있는 경우에는 c축 우

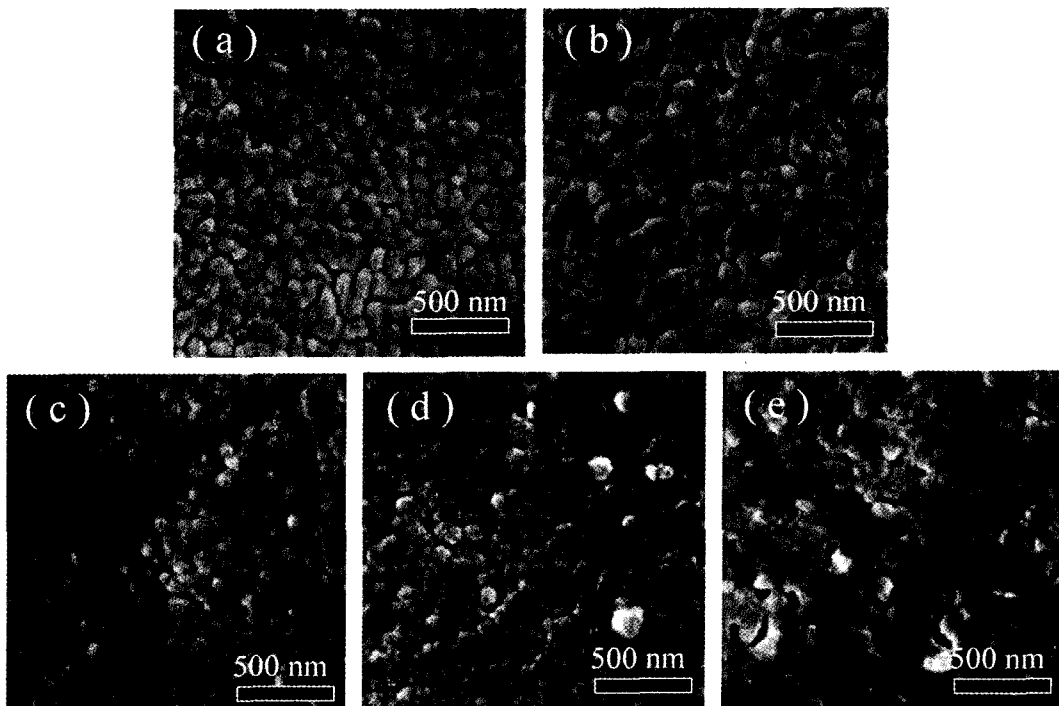


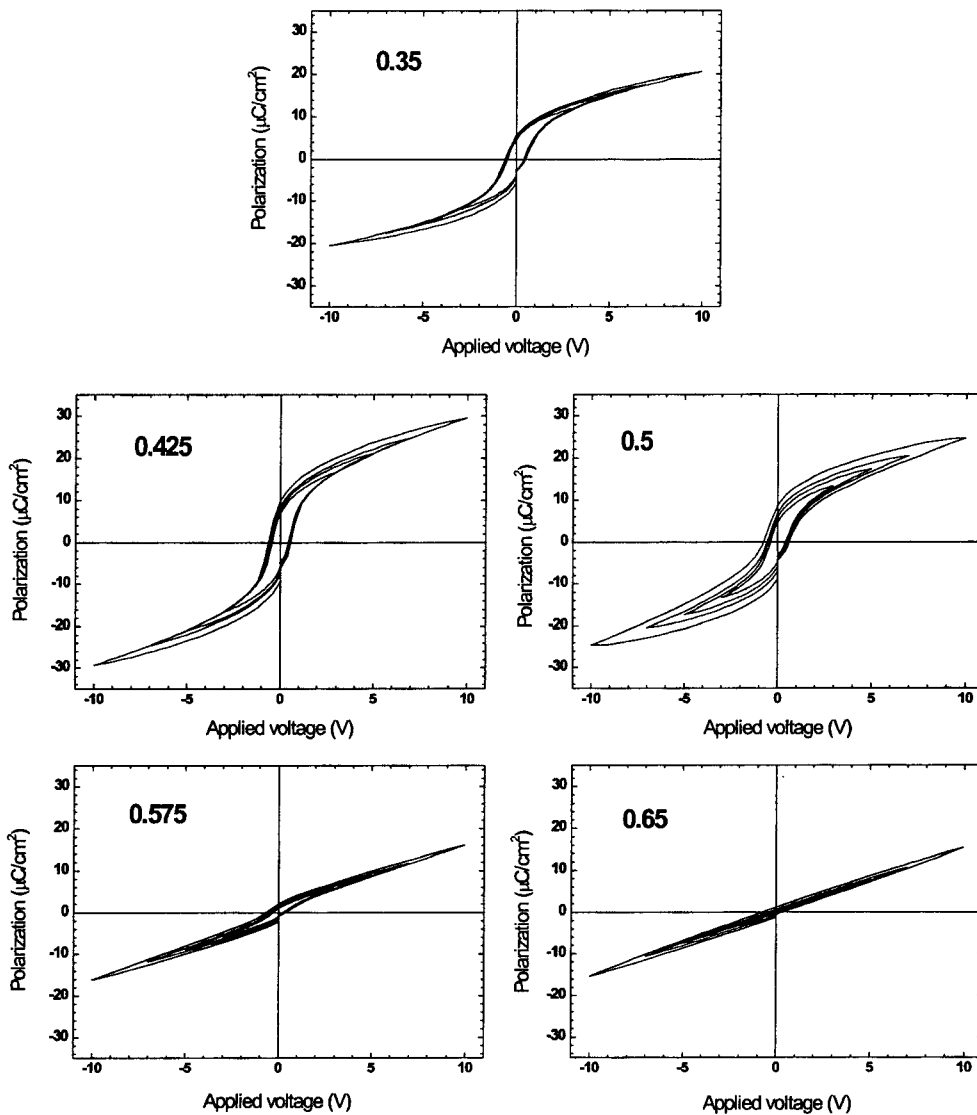
Fig. 3. SEM micrographs observed on the surface of the SBT films with Sr/Ta mole ratio of (a) 0.35, (b) 0.425, (c) 0.5, (d) 0.575, and (e) 0.65.

**Table 1.** Composition (Sr/Bi/Ta mole ratio) and ferroelectric characteristics of the LSMCD-derived  $Sr_xBi_{2.4}Ta_2O_9$  films (measured at  $\pm 5$  V)

Sr/Bi/Ta mole ratio of precursor solution	Sr/Bi/Ta mole ratio of the film	$2P_r$ ( $\mu C/cm^2$ )	$E_c$ (kV/cm)
0.70/2.40/2.00	0.79/1.98/2.00	9.74	40
0.85/2.40/2.00	0.88/2.12/2.00	15.01	41
1.00/2.40/2.00	1.04/2.17/2.00	11.69	39
1.15/2.40/2.00	1.18/2.08/2.00	2.47	28
1.30/2.40/2.00	1.32/2.11/2.00	0.55	14

선방향성을 나타내나 [13], Pt 하부전극이 (111)로 배향되어 있을 경우에는 우선성장 방향이 없는 다결정 박막으로 결정화되며 [12, 13], Ti/SiO<sub>2</sub>/Si 기판에 증착한 Pt 박막은 항상 (111) 우선방향성을 갖는다고 보고되고 있다 [12].

그림 3에 주사전자 현미경을 이용하여 관찰한 SBT 박막의 산소분위기 열처리후 표면 미세구조를 나타내었다. Sr/Ta 몰비 0.35 및 0.425 조성의 SBT 박막에서는 타원형의 결정립이 관찰되었으나, Sr/Ta 몰비 0.5



**Fig. 4.** Hysteresis curves of the LSMCD-derived SBT films with various Sr/Ta mole ratio.

이상의 박막은 등축정으로 이루어져 있었으며 Sr/Ta 몰비가 증가함에 따라 결정립 크기가 증가하였다. EDS를 이용하여 측정한 SBT 박막의 조성을 표 1에 나타내었다. 800 °C에서 1시간 동안의 산소분위기 열처리 공정에 의해 SBT 박막내 Bi의 휘발이 발생하여 코팅용액의 조성보다 Bi 함량이 낮은 박막이 형성되었으나, SBT 박막의 Sr/Ta 몰비는 코팅용액과 상당히 근접함을 확인할 수 있었다. 표 1에는 구동전압  $\pm 5$  V를 인가하며 측정한 SBT 박막의 잔류분극 ( $2P_r$ )과 항전계 ( $E_c$ )를 함께 나타내었다.

그림 4에 Sr/Ta 몰비에 따른 SBT 박막의 분극이력곡선을 나타내었다. Sr/Ta 몰비 0.35~0.5 범위의 SBT 박막에서는 구동전압  $\pm 10$  V까지 잘 발달된 분극이력곡선이 관찰되었으나, Sr이 과잉으로 첨가된 조성의 SBT 박막에서는 낮은 잔류분극과 항전계를 갖는 분극이력곡선이 관찰되었으며 과잉 Sr 함량이 증가할수록 강유전성이 저하하였다. 그림 5에 LSMCD 공정으로 제조한 SBT 박막의 구동전압  $\pm 5$  V에서 측정한  $2P_r$ 과  $E_c$ 를 Sr/Ta 몰비에 따라 나타내었다. 그림 5와 표 1에 나타

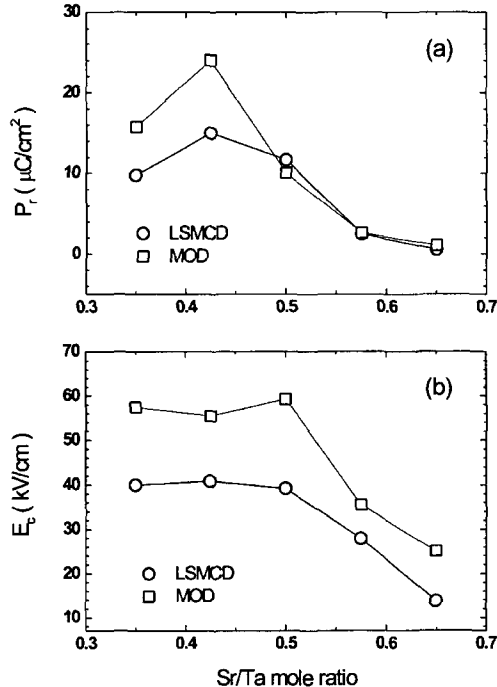


Fig. 5. (a) Remanent polarization ( $2P_r$ ) and (b) coercive field ( $E_c$ ) of the LSMCD and MOD-derived SBT films as a function of the Sr/Ta mole ratio.

난 바와 같이 Sr 결핍 조성에서는 Sr/Ta 몰비가 증가함에 따라 잔류분극  $2P_r$ 이 증가하여 Sr/Ta 몰비 0.425의 박막에서  $15.01 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ 의 최대값을 나타낸 후, 감소하는 경향을 나타내었다. 이와 같은 Sr/Ta 몰비에 따른 SBT 박막의 잔류분극  $2P_r$ 의 변화거동은 기존의 연구 [11, 12]와 매우 유사한 결과로서, Shimakawa 등 [9]은 Sr 결핍조성의 SBT 박막에서는 Sr 공결자 및 Sr 자리를 치환하는 Bi 이온에 의해 TaO6 Octahedra의 격자변형이 유발되어 a-b 면의 면적이 증가하여 자발분극이 증가한다고 보고하였다 [9]. Sr이 화학양론적 조성보다 과잉으로 첨가된 Sr/Ta 몰비 0.575 및 0.65의 SBT 박막에서 관찰된 강유전성의 저하에 따른 낮은 잔류분극과 항전계는 그림 2와 같이 Sr/Ta 몰비의 증가에 따라 층상 페로브스카이트 구조로의 결정화 정도가 감소하는데 기인하는 것으로 판단된다. LSMCD 공정과 동일한 코팅용액을 사용하여 MOD 공정으로 제조한 200 nm 두께의 SBT 박막에서도 Sr/Ta 몰비에 따른 잔류분극과 항전계의 변화가 LSMCD 공정으로 제조한 SBT 박막과 유사한 경향을 나타내었으며, 이를 그림 5에 비교하였다.

LSMCD 공정으로 제조한 SBT 박막의 비유전율( $\epsilon_r$ )과 손실계수( $\tan\delta$ )를 1 MHz에서 측정하였으며, 그 결과를 그림 6에 나타내었다. 그림 4에 나타낸 Sr/Ta 몰비에 따른 잔류분극의 변화거동과 동일하게, Sr 결핍조성에서 Sr/Ta 몰비가 증가함에 따라 비유전율이 증가하여 Sr/Ta 몰비 0.425의 박막에서 최대값을 나타낸 후, 감

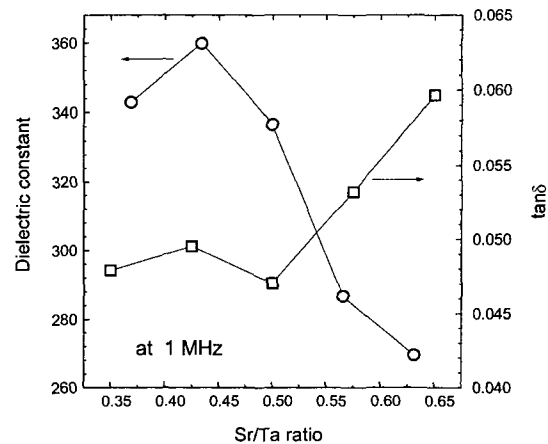


Fig. 6. Dielectric constant ( $\epsilon_r$ ) and dissipation factor ( $\tan\delta$ ) of the LSMCD-derived SBT films as a function of the Sr/Ta mole ratio.

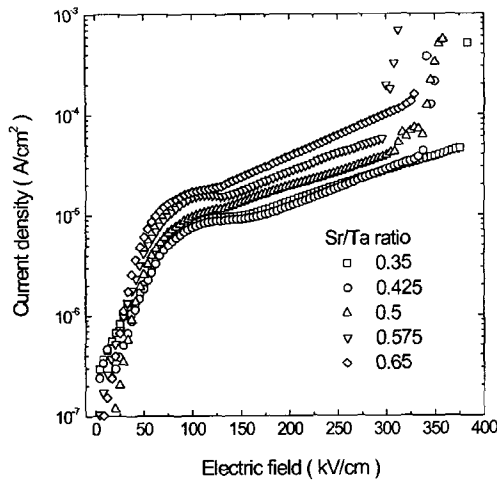


Fig. 7. Leakage current density of the LSMCD-derived SBT films with various Sr/Ta mole ratio as a function of the applied field.

소하는 경향을 나타내었다. Sr/Ta 몰비 0.425의 SBT 박막은 1 MHz에서 360의 비유전율과 0.05의 손실계수를 나타내었다.

그림 7에 LSMCD 공정으로 제조한 SBT 박막의 인가 전기장에 따른 누설전류 특성을 나타내었다. Sr/Ta 몰비의 증가에 따라 누설전류 밀도가 증가하여, Sr/Ta 몰비 0.65의 SBT 박막은 200 kV/cm의 전기장 하에서  $3.84 \times 10^{-4}$ 의 높은 누설전류 밀도를 나타내었으며 330 kV/cm에서 절연파괴가 발생하였다. Sr/Ta 몰비 증가에 따른 SBT 박막의 누설전류 밀도의 증가는 SBT 박막의 결정립 크기 증가에 따른 SBT/Pt 계면 거칠기의 증가에 기인하거나 [14] SBT 결정에 고용되지 않은 Bi에 의해 결정립의 삼중점이나 결정립계에 전기전도도가 높은 Bi 산화물이나 금속성 Bi가 형성되는데 기인하는 것 [15-17]으로 판단된다. 그림 3에서 확인할 수 있듯이 Sr/Ta 몰비 0.5 이상의 SBT 박막에서는 Sr/Ta 몰비가 증가할수록 결정립 크기가 증가하였다. 본 연구에서 LSMCD 공정으로 제조한 박막은 표 1과 같이 화학양론적 조성보다 Bi를 과잉으로 함유하고 있었다. 이와 같은 경우 Sr 결정조성의 박막에서는 과잉 Bi가 Sr 빈 자리를 치환하게 되나 Sr 함량이 증가할수록 과잉 Bi가 Sr 빈 자리를 치환하는 것이 어려워지기 때문에, Sr 과잉조성에서는 SBT 결정에 고용되지 못한 Bi에 의해 결정립의 삼중점이나 결정립계에 Bi 산화물이나 금속성 Bi가 형성될 수 있을 것으로 판단된다.

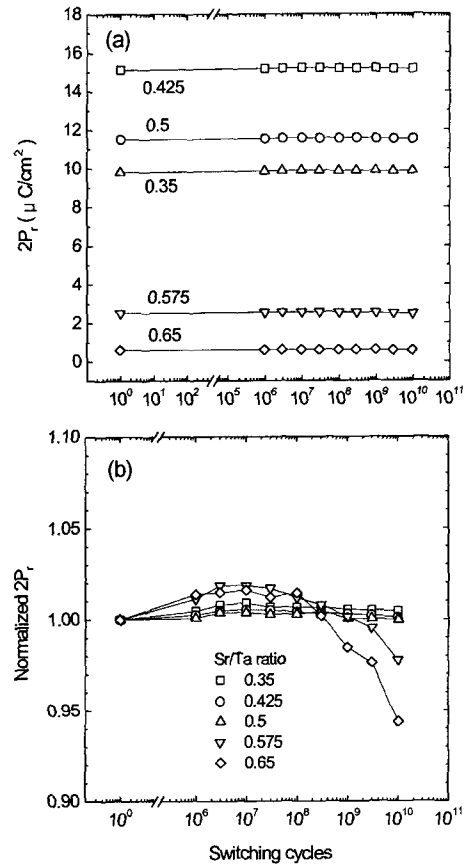


Fig. 8. (a)  $2P_r$  and (b) normalized  $2P_r$  of the LSMCD-derived SBT films with various Sr/Ta mole ratio as a function of the switching cycle.

$\pm 5$  V의 구동전압을 인가하며 측정한 SBT 박막의 스위칭 주파수에 따른 잔류분극  $2P_r$ 을 그림 8(a)에 나타내었으며, 이를 초기 잔류분극값으로 표준화한 것을 그림 8(b)에 나타내었다. Sr/Ta 몰비 0.35~0.5의 SBT 박막에서는  $10^{10}$ 의 스위칭 회수까지 1% 미만의 우수한 분극피로 특성이 관찰되었으나, Sr이 과잉으로 첨가된 Sr/Ta 몰비 0.575 이상의 SBT 박막에서는  $10^8$ 의 스위칭 회수부터 분극피로가 발생하여  $10^{10}$ 의 스위칭 후에는 약 6%의 잔류분극 감소가 관찰되었다. SBT 박막의 우수한 분극피로 특성은 결정격자의 c축에 수직하게 반복된  $(Bi_2O_2)^{2+}$  층에 박막내 산소 공격자가 포획됨으로써 박막/전극 계면에서 산소 공격자의 축적이 억제되는데 기인하는 것으로 보고되고 있다 [1]. 따라서 그림 2의 XRD 분석 결과에서 확인한 바와 같이 Sr이 과잉으로 첨가된 Sr/Ta 몰비 0.575 이상의 SBT 박막

에서는 층상 페로브스카이트 구조의 미약한 발달에 기 인하여 분극피로 특성이 열화된 것으로 판단된다.

#### 4. 결 론

LSMCD 공정으로 Sr/Ta 몰비를 0.35~0.65 범위에서 변화시키며 150 nm 두께의  $Sr_xBi_{2.4}Ta_2O_9$  (SBT) 박막을 Pt/Ti/SiO<sub>2</sub>/Si 기판상에 제조하였다. 800 °C에서 1 시간 동안의 산소분위기 열처리에 의해 Sr/Ta 몰비 0.35~0.5의 조성범위에서 SBT 박막은 모두 우선방향성이 없는 층상 페로브스카이트 구조의 다결정 박막으로 결정화되었으며, Sr이 과잉으로 첨가된 Sr/Ta>0.5의 조성에서는 결정화 정도가 저하하였다. Sr 결핍조성의 SBT 박막은 타원형 결정립으로 이루어져 있었으나, Sr/Ta 몰비 0.5의 조성의 박막은 등축정으로 이루어져 있었으며 Sr/Ta 몰비의 증가에 따라 결정립 크기가 증가하였다.

LSMCD 공정으로 제조한 SBT 박막은 Sr/Ta 몰비 0.425의 조성에서 최적의 강유전 특성을 나타내어  $\pm 5$  V의 구동전압 인가시  $15.01 \mu C/cm^2$ 의 잔류분극  $2P_r$ 과 41 kV/cm의 항전계  $E_c$ 를 나타내었다. LSMCD 공정으로 제조한 Sr/Ta 몰비 0.35~0.5 범위의 SBT 박막은 100 kV/cm의 전기장에서  $10^{-5} A/cm^2$  미만의 낮은 누설 전류 밀도를 나타내었으며,  $\pm 5$  V의 구동전압 인가시  $10^{10}$ 회의 스위칭 후에도 잔류분극 감소가 1% 미만인 우수한 분극피로 특성을 나타내었다.

#### 감사의 글

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

드립니다.

#### 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] Y. Shimakawa, Y. Kubo, N. Nakagawa, T. Kamiyama, H. Asano and F. Izumi, *Appl. Phys. Lett.* **74**, 1904 (1999).
- [10] K. Miura and M. Tanaka, *Jpn. J. Appl. Phys.* **37**, 2554 (1998).
- [11] K. Watanabe, M. Tanaka, E. Sumitomo, K. Katori, H. Yagi, and J. F. Scott, *Appl. Phys. Lett.* **73**, 126 (1998).
- [12] S. B. Desu, D. P. Vijay, X. Zhang, and B. He, *Appl. Phys. Lett.* **69**, 1719 (1996).
- [13] J. S. Lee, H. H. Kim, H. J. Kwon, and Y. W. Jeong, *Appl. Phys. Lett.* **73**, 166 (1998).
- [14] H. Watanabe, T. Mihara, H. Yoshimori, and C. A. P. Araujo, *Jpn. J. Appl. Phys.* **34**, 5240 (1995).
- [15] T. Chen, T. Li, X. Zhang, and S. B. Desu, *J. Mater. Res.* **12**, 1569 (1997).
- [16] I. Koiwa, K. Tani, J. Mita, and T. Iwabuchi, *Jpn. J. Appl. Phys.* **37**, 192 (1998).
- [17] I. Koiwa, Y. Okada, J. Mita, A. Hashimoto, and Y. Sawada, *Jpn. J. Appl. Phys.* **36**, 5904 (1997).