

## 고진공 화학증착법으로 증착된 비정질 실리콘 박막의 저온 고상결정화에 관한 연구

이상도 · 김형준

홍익대학교 금속·재료공학과  
(1995년 3월 6일 접수)

### Low Temperature Solid Phase Crystallization of Amorphous Silicon Films Deposited by High-Vacuum-Chemical Vapor Deposition

Sang-Do Lee and Hyoung-June Kim

Department of Metallurgy and Materials Science, Hong Ik University  
(Received March 6, 1995)

**요 약** - LCD용 다결정 실리콘 TFT의 제조에 요구되는 고품위의 다결정 실리콘 박막을 600°C 미만의 저온 공정으로 제조하는 기술로 비정질 박막의 고상 결정화(solid phase crystallization)가 유망하다. 본 연구에서는 고진공 화학증착기를 이용하여 증착된 비정질 실리콘 막의 고상 결정화 거동에 대해 연구하였다. 고상 결정화 속도 및 결정화 후의 결정성(결정립 크기 및 결함 밀도)은 화학증착시의 증착가스의 종류( $\text{SiH}_4$  혹은  $\text{Si}_2\text{H}_6$ ), 공정 압력, 증착 온도 등에 민감한 영향을 받으며,  $\text{Si}_2\text{H}_6$  가스의 사용, 증착 압력의 증가, 증착 온도의 감소는 최종 결정립의 크기를 현저히 증가시킨다. 또한 증착전의 기초 진공도를 높임으로써 반응기 잔류 가스에 의한 산소나 탄소 등의 막내 유입이 감소되어 결정화 속도가 증가하고 결정성이 향상되었다.

**Abstract** - Solid Phase Crystallization(SPC) of amorphous silicon films is important as a technology for obtaining device-quality polycrystalline silicon films required for LCD poly-Si TFTs through low temperature processes (<600°C). In this study, characteristics of SPC of silicon films deposited by high-vacuum CVD system were investigated. The rates of SPC and resulting crystallinity(grain size or defect density) after SPC were affected by gas species( $\text{SiH}_4$  vs.  $\text{Si}_2\text{H}_6$ ), deposition pressure, deposition temperature. Use of  $\text{Si}_2\text{H}_6$  gas, increase of pressure, lowering of deposition temperature greatly increase the final grain size after SPC. Also, lowered base pressure before deposition increases the SPC rates as well as crystallinity, probably through lowering the incorporation of residual impurities(O, C) into silicon films.

## 1. 서 론

액정표시소자(Liquid Crystal Display, LCD)에 사용되는 다결정 실리콘 박막트랜지스터(Thin Film Transistor, TFT)는 비정질 실리콘 TFT에 비해 고해상력, 낮은 구동전압, 주변회로의 집적화의 잇점 때문에 많은 연구가 진행되고 있다[1-3]. 다결정 실리콘 박막트랜지스터가 LCD의 셀 및 구동회로에 사용되기 위해서는 적합한 트랜지스터 구동능력을 실

현하기 위한 고품위의 결정성(결정립 구조 및 결함 밀도)을 갖는 다결정 실리콘 박막의 제조가 선행되어야 한다. 또한 저렴한 생산비를 위해 유리기판을 사용하여야 하며, 이를 위해 다결정 실리콘 막의 제조공정은 600°C 미만으로 제한되어야 한다.

600°C 미만의 저온 공정에서 우수한 결정성을 갖는 다결정 실리콘막을 구현하기 위해서 고상결정화(Solid Phase Crystallization, SPC)[4-6], 레이저 어닐링[7, 8] 등이 연구되고 있다. 고상 결정화는 비정질 실리콘

콘막의 저온 증착 후 결정화 열처리를 통하여 조대한 결정립의 다결정 막을 얻는 방법으로 공정이 단순하고, 재현성이 우수하여 양산 공정으로 유리할 것으로 사료된다. 그러나 고상 결정화는 결정화 열처리 온도가  $600^{\circ}\text{C}$  근처로 하부 유리기판의 허용온도에 근접하며, 장시간의 열처리 시간으로 공정 속도가 늦다는 단점이 있어, 이의 개선을 위한 활발한 연구가 진행되고 있다.

고상 결정화는 비정질 기지내의 결정핵 생성 및 성장에 의해 일어나며, 이러한 핵생성 및 성장의 속도는 비정질 실리콘의 증착가스 종류 및 증착 조건, 막내의 불순물 유입, 결정화 열처리 조건 등에 영향을 받는 것으로 보고되고 있다. 최근, 일반적으로 사용되는  $\text{SiH}_4$  가스 대신  $\text{Si}_2\text{H}_6$  가스를 사용하여 수  $\mu\text{m}$  정도의 조대한 결정립을 얻을 수 있는 것으로 보고되었다[9, 10]. 또한 고상 결정화 거동은 비정질 실리콘 증착 시의 증착온도에 영향을 받는 것으로 알려져 있다. 고상 결정화는 이러한 공정 변수 외에도 증착시 유입되는 산소, 탄소 등의 불순물도 영향을 받을 것으로 사료된다. 일반적으로 화학 증착시 증착기 내에 잔류하는 상당한 양의 산소, 탄소 등이 실리콘 막내에 들어가는 것으로 알려져 있으며, 이러한 불순물들은 고상 결정화의 속도 및 거동에 영향을 미칠 것으로 사료된다. 이온 주입에 의한 산소 및 탄소 주입의 실험 결과, 산소 및 탄소는 결정/비정질 실리콘 계면의 이동속도를 현저히 감소시키는 것으로 보고되고 있다[11].

본 연구에서는 진공도가  $10^{-7}$  Torr인 고진공 화학 증착기를 이용하여  $\text{SiH}_4$ 와  $\text{Si}_2\text{H}_6$  가스를 이용하여 광범위한 공정 영역에서 증착된 비정질 실리콘 막의 고상 결정화 거동을 조사하였다. 또한 불순물의 유입이 고상 결정화와 결정성에 미치는 영향을 조사하였다.

## 2. 실험방법

본 실험에서 사용된 화학증착기(그림 1)는 고진공을 유지하며, 외부로부터 차단 및 불순물의 오염을 최소화하기 위하여 반응실(reaction chamber) 및 예비실(load lock)로 구분되어 있다. 반응실은 터보 분자 펌프를 이용하여  $10^{-7}$  Torr 이상의 진공도를 유지할 수 있으며, 반응기의 가스 압력은 가스 주입 유량과 트

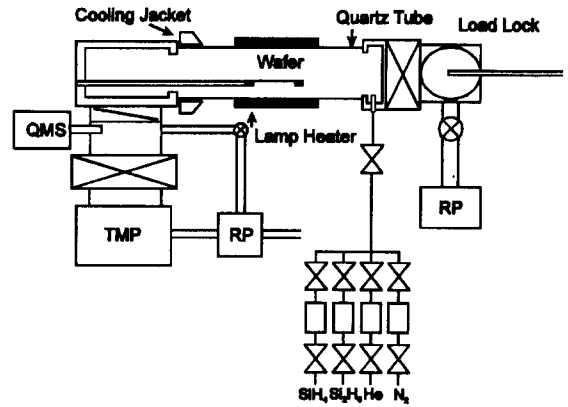


Fig. 1. Schematic diagram of High Vacuum Chemical Vapor Deposition system.

로를 밸브에 의해 조절된다. 반응기의 기초 진공도는 이온 게이지와 컨벡트론 게이지에 의해 측정되고 공정 중의 가스압은 capacitance manometer에 의해 측정되었다.

이상과 같은 화학증착기를 이용하여  $1000 \text{ \AA}$  두께의 실리콘막을  $1000 \text{ \AA}$ 의  $\text{SiO}_2$ 의 산화층이 있는  $<100>$  p형 실리콘 웨이퍼 위에 RCA 표면 세척 후 증착하였다. 증착가스는 He에 희석된  $\text{SiH}_4$ (99.9999%)와  $\text{Si}_2\text{H}_6$ (99.99%) 가스를 사용하였다. 기초 진공도에 따른 비정질 막의 결정화 거동의 변화를 관찰하기 위해 증착 전의 기초 진공도를 변화시켰다. 증착 전의 반응기 내의 진공도는 트로틀 밸브가 완전히 열렸을 때  $1 \times 10^{-7}$  Torr이나 증착시의 공정압력을 조절하기 위해 트로틀 밸브가 조절되는 상태에서의 진공도는 대략  $10^{-5}$  Torr로 측정되었으며, 이를 기초 진공도로 표기하였다. 기초 진공도는 터보/로터리 펌프의 작동시  $10^{-5}$  Torr, 로터리 펌프만의 작동시  $10^{-3}$  Torr였다. 증착 압력과 증착온도는 각각  $0.1 \sim 0.5$  Torr,  $430 \sim 650^{\circ}\text{C}$ 의 영역에서 행해졌다.

증착된 비정질 실리콘막은 할로겐 램프를 이용한 열처리로를 이용하여 질소 분위기 하에서  $540 \sim 600^{\circ}\text{C}$ 에서 결정화 열처리하였다. 비정질 실리콘막의 결정화 거동 및 결정화 완료 후의 결정성은 XRD 및 TEM을 이용하여 조사하였다.

## 3. 실험결과 및 고찰

### 3.1 비정질 실리콘막의 증착

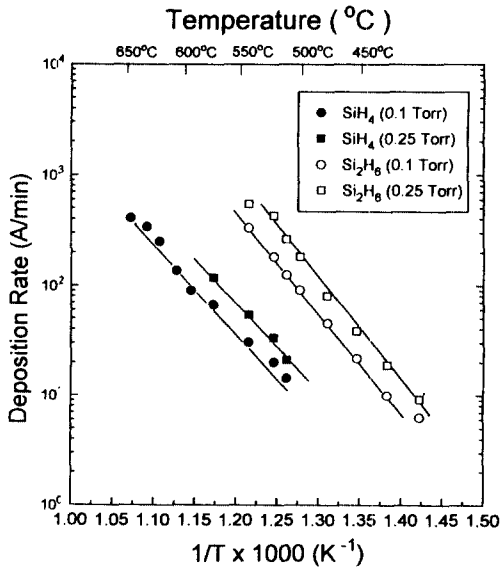


Fig. 2. Deposition rate as a function of reciprocal temperature.

그림 2에 SiH<sub>4</sub>와 Si<sub>2</sub>H<sub>6</sub>의 증착 가스에 대하여 증착 온도의 변화에 따른 증착 속도를 나타내었다. 그림에서 보는 바와 같이 두 가스는 유사한 활성화 에너지를 가지고 있으나 Si<sub>2</sub>H<sub>6</sub> 가스는 SiH<sub>4</sub>에 비해 10배 정도의 높은 증착 속도를 갖는다. 본 실험에 사용된 증착 조건 하에서는 두 가스 모두 36~37 Kcal/mol의 유사한 활성화 에너지 값을 보이고 있으며, 이는 보고된 활성화 에너지[9, 12]와 일치한다.

그림 3에서 보는 바와 같이 증착 속도는 증착 압력이 증가할수록 비례적으로 증가하였다. 조사된 증착 온도 영역에서, 증착된 실리콘막의 결정도를 XRD를 이용하여 조사하였다. 증착온도가 낮아짐에 따라 증착된 실리콘막은 다결정→비정질/결정질 혼재→비정질 순으로 변화된다. 이러한 천이 증착온도는 공정 압력, 가스의 종류, 기초 진공도에 따라 변하는 것으로 관찰되었으며, 대략 520°C 미만의 증착 온도에서는 모든 조건에서 비정질 막으로 증착되었다.

### 3.2 비정질 실리콘의 고상 결정화

증착된 비정질 실리콘의 고상 결정화 거동 및 결정립 구조를 XRD와 TEM을 이용하여 조사하였다. 증착된 비정질막의 고상 성장에 의한 x-선 회절의 변화 추이는 모든 증착 조건에 대해 비슷하였으며 그의

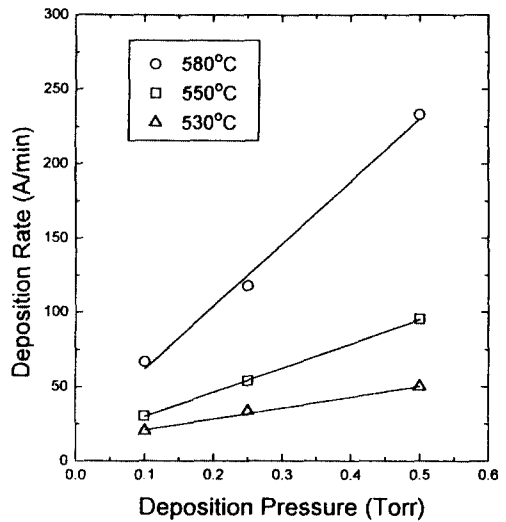


Fig. 3. Deposition rate plotted against deposition pressure.

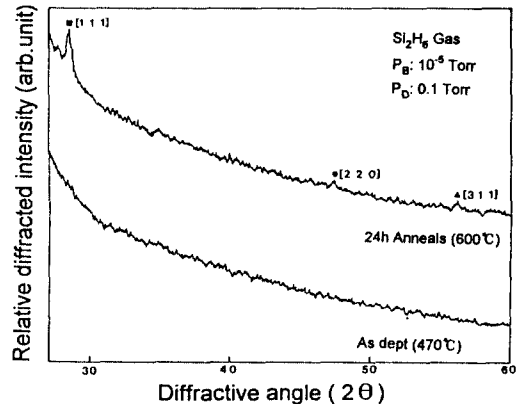


Fig. 4. XRD patterns for as-deposited amorphous and crystallized Si films.

대표적 예를 그림 4에 나타내었다. 고상 결정화 열처리 후(111), (220) 및 (311) 결정 피크가 관찰되었으나, 상대적으로 강한(111) 집합 조직을 나타내며 이는 보고된 결과와 일치한다[9]. 본 연구에서는 고상 결정화 거동 및 결정화 완료 후의 결정립 구조를 XRD를 이용하여 준 정량화하기 위해 동일한 크기의 시편과 XRD조건에서 얻어진(111) 피크의 강도와 TEM으로 측정된 결정립 크기의 상관 관계를 조사하였다. 이때의 결정립 크기는 타원형이므로 결정립 크기를 얻기 위해 다음과 같은 식을 사용하였으며, a, b는 각각

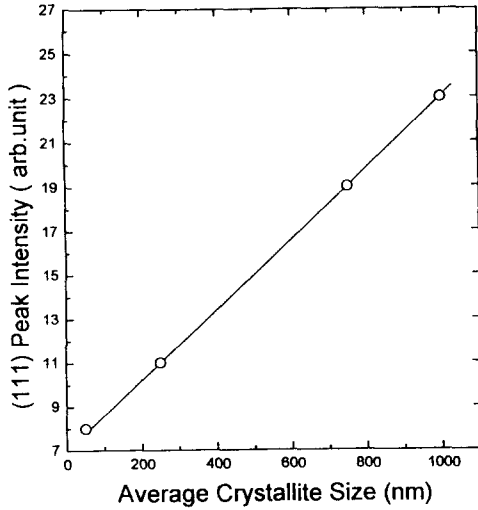


Fig. 5. Relationship between the average grain size and (111) X-ray peak intensity (crystalline volume) for annealed films.

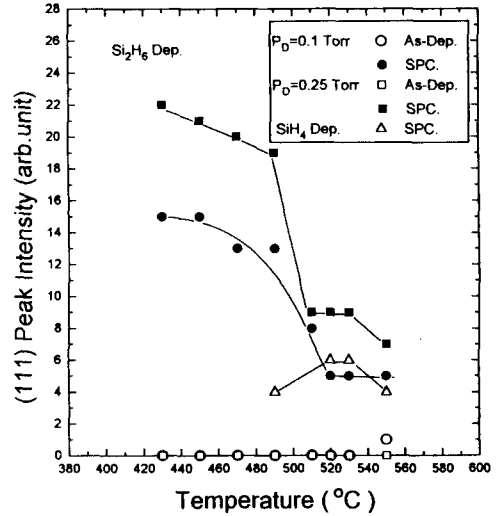


Fig. 6. (111) peak intensities before and after crystallization for films deposited at various temperatures using SiH<sub>4</sub> and Si<sub>2</sub>H<sub>6</sub> gas.

결정립의 장축 및 단축의 길이이다[15].

$$g = (\pi ab) / 2$$

그림 5는 고상 결정화 후의 (111) 피크 강도와 동일한 시편에 대한 TEM으로 조사된 결정립 크기를 나타낸 것이다. 그림에서 보는 바와 같이 다양한 실험 조건에서 완전 결정화 후의 (111) 피크의 강도와 결정립 크기는 비례하는 것으로 조사되었다.

### 3.3 증착 조건에 따른 비정질 실리콘의 고상 결정화

그림 6은 증착된 실리콘막의 증착 후와 결정화 열처리 후의 XRD의(111) 피크 강도를 가스의 종류, 증착 온도, 압력에 따라 나타낸 것이다. 우선 SiH<sub>4</sub>와 Si<sub>2</sub>H<sub>6</sub>를 사용한 두 경우 모두에서 550°C 미만의 증착 온도에서는 비정질 실리콘 XRD 결과를 얻었으며 이를 (111) 강도 영으로 표시하였다. 고상 결정화 후의 (111) 강

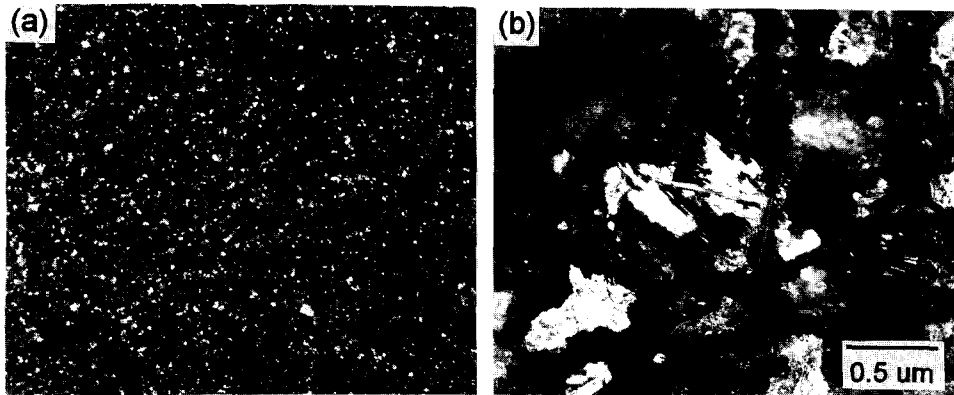


Fig. 7. Solid phase crystallization size for deposition. (SiH<sub>4</sub>, Si<sub>2</sub>H<sub>6</sub>)  
 (a) SiH<sub>4</sub> Gas, P<sub>D</sub>=0.5 Torr, T<sub>S</sub>=530°C, T<sub>A</sub>=600°C  
 (b) Si<sub>2</sub>H<sub>6</sub> Gas, P<sub>D</sub>=0.25 Torr, T<sub>S</sub>=430°C, T<sub>A</sub>=600°C

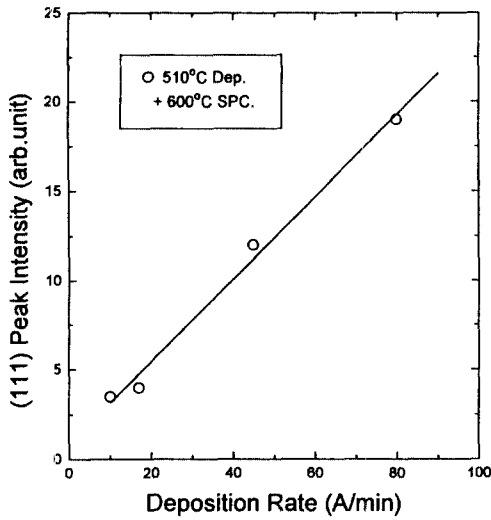


Fig. 8. (111) peak intensity after crystallization plotted vs. deposition rate.

도는  $\text{Si}_2\text{H}_6$  증착의 경우  $\text{SiH}_4$  증착에 비해 현저히 증가하였다. 또한  $\text{Si}_2\text{H}_6$ 의 결과에서 보는 바와 같이 동일한 증착 온도에서 증착 압력이 증가함에 따라 (111) 강도는 증가하였다. 앞에서 언급하였듯이 (111) 강도의 증가는 결정화된 다결정 실리콘 막의 결정립 크기의 증가를 의미한다. 그림 7은  $\text{SiH}_4$ ,  $\text{Si}_2\text{H}_6$  증착에 대해 최대의 (111) 강도를 보이는 증착 조건에서 고상 결정화 후의 결정립 구조를 나타낸 암시야상 TEM 사진이다.  $\text{SiH}_4$ 의 경우 대략  $300 \text{ \AA}$  정도의 미세한 결정립 크기를 보이나  $\text{Si}_2\text{H}_6$ 의 경우  $1 \mu\text{m}$  정도의 조대한 결정립 크기를 갖는다.  $\text{Si}_2\text{H}_6$  가스의 사용, 증착 압력의 증가에 따른 고상 결정화 후의 결정립 크기의 증가는 이에 따른 증착 속도의 증가에 기인한 것으로 사료된다. 그림 8은  $\text{SiH}_4$ 와  $\text{Si}_2\text{H}_6$ 의 증착에 대해 증착 속도에 대한 고상 결정화 후의 (111) 강도이다. 그림에서 보는 바와 같이 (111) 강도, 즉 결정립 크기는

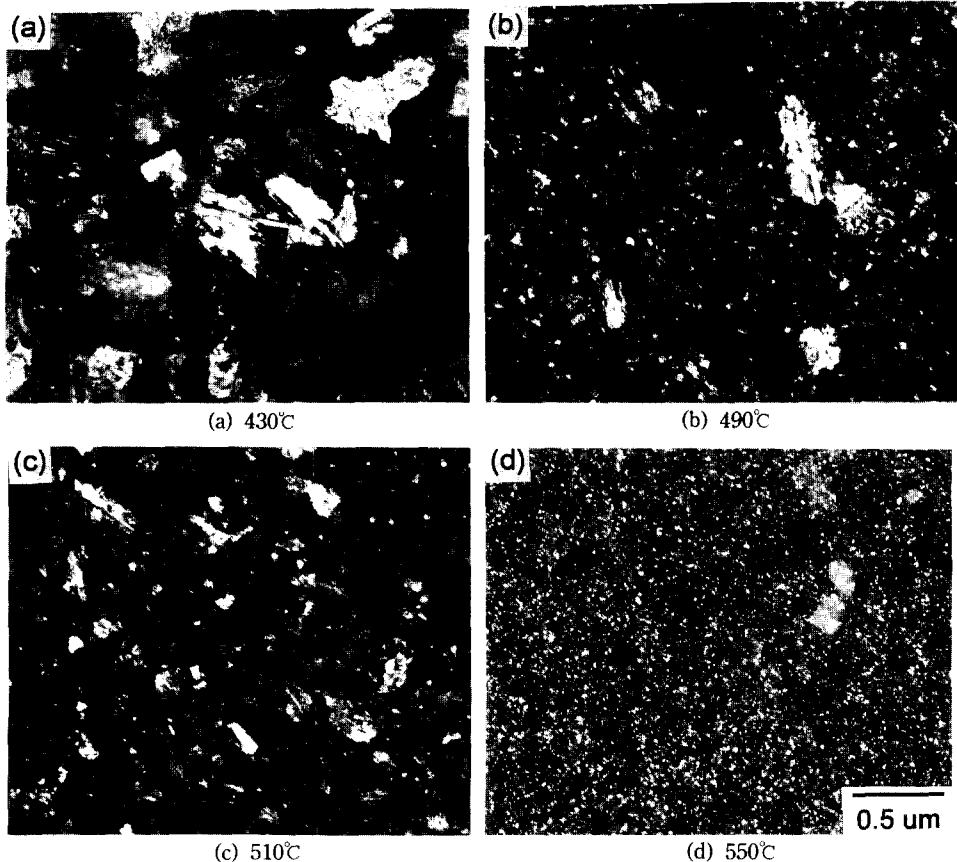


Fig. 9. TEM micrographs showing the solid phase crystallization for various deposition temperatures. ( $\text{Si}_2\text{H}_6$  Gas,  $P_D=0.25$  Torr, 24h  $600^\circ\text{C}$  annealing)

증착 가스의 종류에 관계없이 증착 속도에 비례함을 알 수 있다.

그림 6에서 보는 바와 같이 (111) 강도는 증착 온도에 큰 영향을 받는다.  $\text{SiH}_4$  증착의 경우에는  $520^\circ\text{C}$ 의 증착 온도에서 최고치를 보이나,  $\text{Si}_2\text{H}_6$  증착시  $500^\circ\text{C}$  이하의 온도에서 (111) 피크의 강도가 큰 폭으로 증가하며 증착 온도의 감소에 따라  $430^\circ\text{C}$  까지 (111)강도는 계속하여 증가함을 볼 수 있다. 그림 9는 증착 온도에 따른 고상 결정화 후의 결정립 구조를 관찰한 암시야상 TEM 사진이다. 증착 온도의 감소에 따라 결정립 크기는 현저히 증가하며 이는 XRD 결과와 일치한다.

증착 온도의 변화에 따른 고상 결정화 후의 결정립 크기의 변화는,  $\text{SiH}_4$ 와  $\text{Si}_2\text{H}_6$  증착의 경우 각각  $550^\circ\text{C}$ 와  $480^\circ\text{C}$ 의 증착 온도에서 최대의 결정립 크기를 보이며, 이 이하의 온도에서는 증착 온도가 감소함에 따라 결정립 크기는 감소하는 것으로 보고된 Nakazawa[9]와 Voutsas[13] 등의 결과와 일치하지 않는다. 본 실험에서는  $\text{Si}_2\text{H}_6$ 의 경우,  $430^\circ\text{C}$ 의 증착 온도까지 결정립 크기는 계속적으로 증가함을 알 수 있다. 앞서 발표된 논문에서 본 연구자[10]는 Nakazawa와 Voutsas이 보고한  $480^\circ\text{C}$  이하에서의 결정립 크기 감소는 증착 속도의 감소로 인한 O, C 등의 불순물 유입의 영향으로 추론하였다. 따라서 이러한 결과의 차이는, 본 실험에서 사용된 기초 진공도( $10^{-5}$  Torr)가 Nakazawa와 Voutsas가 사용한 일반 LPCVD의 기초 진공도( $10^{-3}$  Torr)보다 높고, 따라서 증착 속도의 저하로 인한 막내의 불순물 유입량이 적어지는데 기인한 것으로 사료된다. 실리콘 막내의 O 함유량이 증가할수록 핵생성의 속도가 증가되고 성장은 저하되어 최종 결정립 크기는 감소하는 것으로 생각된다.  $\text{SiH}_4$ 의 경우도  $520^\circ\text{C}$ 의 증착 온도에서 최대치를 보이지만 보고된  $550^\circ\text{C}$  보다는 낮다. 증착 온도에 따른 고상결정화 거동의 변화를 심도 있게 관찰하기 위해 그림 10에 XRD의 (111)강도를 열처리 시간의 로그 함수로 나타내었다. 그림에서 보는 바와 같이  $600^\circ\text{C}$ 의 결정화 온도에서 고상 결정화는 빠른 속도로 완료됨을 알 수 있다. 이러한 결과는 이제 까지 보고된 결정화 속도 ( $600^\circ\text{C}$ 에서 수 시간)에 비해 현저히 높다. 이러한 빠른 결정화 속도는 본 실험에서 사용한 고속 램프 히터의 열처리 방식과 높은 기초 진공도에 의한 불순물 농도의 감소에 기인한 것으로 보인다. 본 연구에 따르면

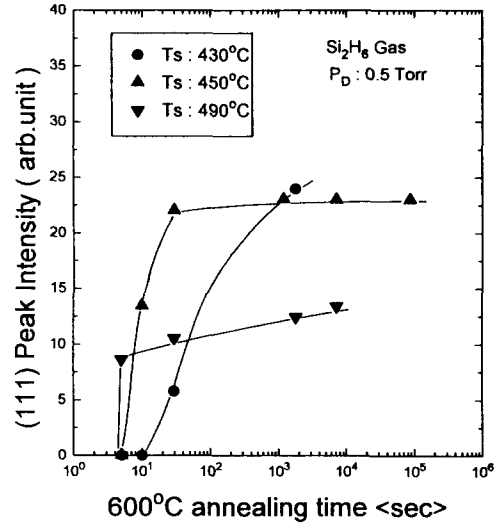


Fig. 10. (111) X-ray peak intensity vs.  $600^\circ\text{C}$  annealing time.

( $\text{Si}_2\text{H}_6$  Gas,  $P_D=0.5$  Torr,  $T_s=430, 450, 490^\circ\text{C}$ )

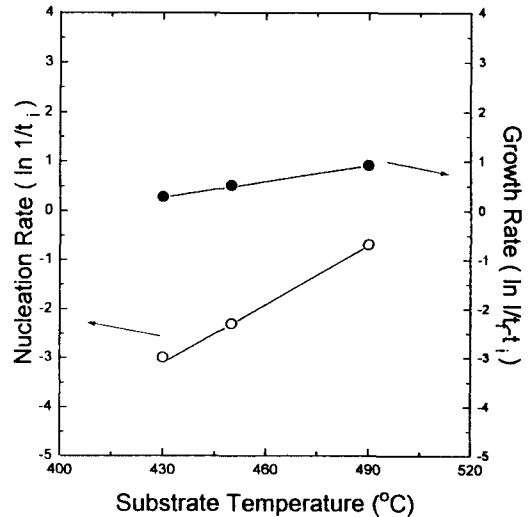


Fig. 11. Substrate temperature dependence of the nucleation rate and grain growth rate.

결정화 속도는 열처리 상승속도, 불순물 농도, 열처리 방법(저항 열처리 대 램프 열처리)에 영향을 받는 것으로 나타났으며 이에 대한 자세한 연구가 진행 중에 있다. 그림에서 보는 바와 같이 증착 온도가 감소할수록 결정화의 잠복 시간( $t_1$ )과 결정화 진행 시간, 즉 완료 시간-시작시간( $t_2-t_1$ )은 증가하였다. 상대적인 핵

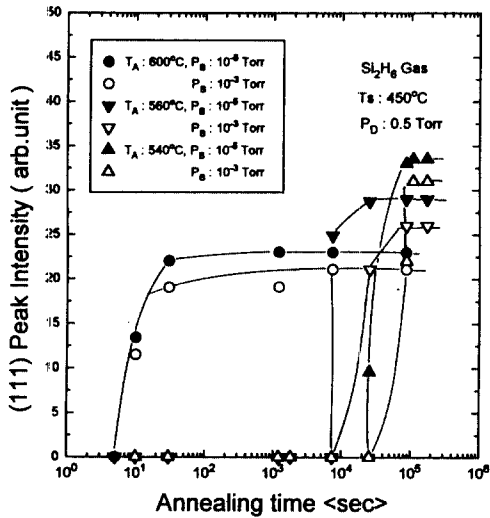


Fig. 12. (111) peak intensity vs. annealing time at 540, 560, 600°C. (Si<sub>2</sub>H<sub>6</sub> Gas, T<sub>s</sub>=450°C, P<sub>D</sub>=0.5 Torr, P<sub>B</sub>=10<sup>-3</sup>, 10<sup>-5</sup> Torr)

생성 속도는  $\ln 1/t$ , 결정성장 속도는  $\ln 1/(t-t_0)$ 로 부터 계산될 수 있다(그림 11). 그림에서 보는 바와 같이 증착 온도의 감소에 따라 핵 생성 및 성장 속도는 동시에 감소하나, 그 감소 정도는 핵생성이 큰 것으로 나타났다. 따라서 증착 온도의 감소에 따른 결정립 크기의 증가는 핵생성 속도의 감소로 인한 생성 핵 밀도의 감소에 기인한 것으로 생각할 수 있으며, 이러한 결과는 최근의 보고와 일치한다[9].

기초 진공도에 따른 고상 결정화 거동의 변화를 조사하기 위해 기초 진공도  $P_B=10^{-3}, 10^{-5}$  Torr, 열처리 온도  $T_A=540, 560, 600^\circ\text{C}$ 에 대해 열처리 시간에 따른 XRD (111)강도의 변화를 조사하였다(그림 12). 기초진공도가  $10^{-3}$ 에서  $10^{-5}$  Torr로 높아짐에 따라 잠복 시간은 감소하였으며 결정화 완료 시간도 감소하였다. 이와 같은 기초 진공도에 따른 결정화 속도의 증가는 열처리 온도가 낮을수록 그 효과가 크게 나타남을 알 수 있다. 기초 진공도의 증가에 따른 잠복 시간의 감소는 유입된 O, C의 불순물의 농도 감소로 인하여 핵생성의 속도가 증가하는 것으로 해석할 수 있다. 비정질 실리콘 내의 O, C 등은 결정핵/비정질 기지의 계면 에너지를 증가시켜 핵 생성의 활성화 에너지를 증가시키는 것으로 보고되고 있다[11]. 기초 진공도의 증가에 따른 핵생성 속도의 증가는 결정 핵

밀도의 증가로 최종 결정립 크기의 감소를 가져오나 본 실험에서는 최종 결정립 크기는 오히려 증가하는 것으로 나타났다. 이는 결정핵 성장 속도의 증가로 해석될 수 있다. 즉, 불순물의 농도가 감소함에 따라 핵성장 속도가 증가하며, 이에 따른 최종 결정립 크기의 증가 효과는 핵생성 속도의 증가에 의한 최종 결정립 크기의 감소 효과보다 큰 것으로 생각되어진다. 실리콘 내의 O, C은 결정/비정질 계면의 이동 속도를 현저히 저하시키는 것으로 보고되고 있다[11].

고상 결정화 완료 후의 (111) 강도 혹은 결정립 크기는 열처리 온도가 낮아짐에 따라 증가하며 이는 보고된 결과와 일치하였다[14]. 이는 핵 생성의 활성화 에너지가 성장의 활성화 에너지보다 크고, 따라서 온도 감소에 의한 핵 생성 빈도의 감소와 이로 인한 결정립 크기의 증가 효과가 우세하기 때문인 것으로 설명되었다.

기초 진공도의 증가에 따른 결정화 속도의 증가와 다결정 실리콘 막의 결정성 증가는 다결정 실리콘 TFT의 응용에 중요한 의미를 준다. 즉, 기초 진공도 혹은 막 내의 불순물 유입을 제어함으로써 공정 온도를  $600^\circ\text{C}$  보다 현저히 낮은 온도( $500^\circ\text{C} \sim 550^\circ\text{C}$ )까지 낮출 수 있으며, 결정화 공정 시간은 4배 이상 단축될 수 있다. 또한 결정화 후의 결정성은 향상되므로 TFT의 구동 능력을 개선할 수 있을 것으로 사료된다. 이러한 고진공 화학증착기를 이용하여 만들어진 다결정 실리콘 TFT의 구동 특성을 조사하고 있다.

#### 4. 결 론

본 논문에서는 고진공 화학 증착기를 이용하여 증착된 비정질 실리콘 막의 고상 결정화 거동을 증착 가스의 종류, 증착 압력 및 온도, 기초 진공도 등의 증착 조건을 변화시키며 조사하였으며 다음과 같은 결과를 얻었다.

1. 증착 속도는 증착 압력과 온도에 대해 선형적으로 증가하며, Si<sub>2</sub>H<sub>6</sub>에 의한 증착 속도는 SiH<sub>4</sub>에 비해 10배 정도 높다.
2. 고상 결정화 후의 다결정 막은 강한 (111) 집합 조직을 나타낸다.
3. 고상 결정화된 다결정막의 결정립의 크기와 결정성은 비정질막의 증착온도, 가스의 종류, 증착속도에 민감하게 영향을 받는다. 즉, SiH<sub>4</sub> 대신 Si<sub>2</sub>H<sub>6</sub>를 사

용할수록, 증착 온도가 내려갈수록, 증착 속도가 클수록 고상 결정화 후의 최종 결정립 크기는 커진다.

4. 비정질막 증착시의 기초 진공도가 높을수록 결정화 속도는 커지고 최종 결정립 크기는 증가한다. 본 실험 조건에서 560°C 의 낮은 열처리 온도에서 5시간의 빠른 열처리 시간만에 Si<sub>2</sub>H<sub>6</sub>로 입혀진 비정질막은 완전 결정화가 일어난다.

### 감사의 글

본 연구는 과학재단의 우수연구센터인 서울대학교 신소재 박막가공 및 결정성장 연구센터의 연구비 지원과 교내 연구비 지원으로 수행되었습니다.

### 참고문헌

1. A. Mimura, N. Konishi, K. Ono, J-I Ohwada, Y. Hosokawa, Y. A. Ono, T. Suzuki, K. Miyata, and H. Kawakami, *IEEE Trans. Electron Devices*, **ED-36**, 351 (1989).
2. M. Matsumura and O. Sugiura, Extended Abstracts of 1992 conf. SSDM, 46 (1992).
3. H. Oshima and S. Morozumi, Extended Abstracts of 1991 conf. SSDM, 577 (1991).
4. T. Ayoma, G. Kawachi, N. Konish, T. Suzuki, Y. Okajima, and K. Miyata, *J. Electrochem. Soc.*, **136**, 1169 (1989).
5. P. A. Breddels, H. Kanoh, O. Sugiura, and M. Matsumura, *Japan. J. Appl. Phys.* **30**, 233 (1991).
6. T. W. Little, K. Takahara, J. Koike, T. Nakazawa, I. Yudasaka, and H. Oshima, Extended Abstracts of 1991 SSDM, 644 (1991).
7. T. Hashizume, S. Inoue, T. Inami, T. Nakazawa, I. Yudasaka, and H. Ohshima, Extended Abstracts of 1991 SSDM, 638 (1991).
8. T. Noguchi, H. Tsukamoto, T. Suzuki, and H. Masuya, Extended Abstracts of 1991 SSDM, 620 (1991).
9. K. Nakazawa, *J. Appl. Phys.* **69**, 1703 (1991).
10. C. H. Hong, C. Y. Park, and H. -J. Kim, *J. Appl. Phys.* **71**, 5427 (1992).
11. E. F. Kennedy, L. Csepregi, and J. W. Mayer, *J. Appl. Phys.* **48**, 4241 (1977).
12. G. Harkete, L. Krausbauer, E. F. Streigmeier, A. E. Wildmer, H. F. Kappert, and G. Neugebauer, *J. Electrochem. Soc.* **131**, 675 (1984).
13. A. T. Voutsas and M. K. Hatalis, *J. Electrochem. Soc.* **140**, 871 (1993).
14. R. B. Iverson and R. Reif, *J. Appl. Phys.* **62**, 1675 (1987).
15. Miltiadis, K.Hatalis, and David, W.Greve, *J. Appl. Phys.* **63**, 2260 (1988).