

Bi 함량에 따른 $\text{SrBi}_{2x}\text{Ta}_2\text{O}_9$ 박막의 전기적 특성

연대중 · 권용욱 · 박주동 · 오태성

홍익대학교 공과대학 금속 · 재료공학과
(1999년 2월 24일 접수)

Electrical properties of $\text{SrBi}_{2x}\text{Ta}_2\text{O}_9$ thin films with Bi content

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

Department of Metallurgy and Materials Science, Hong Ik University, Seoul, Korea

(Received February 24, 1999)

요약 – MOD 공정으로 $\text{SrBi}_{2x}\text{Ta}_2\text{O}_9$ (SBT) 박막을 제조하여 Bi/Ta 몰비 x 에 따른 강유전 특성과 누설전류 특성을 분석하였다. Bi/Ta 몰비가 증가함에 따라 SBT 박막의 결정립 크기가 증가하였으며, $x = 0.8\sim1.2$ 조성의 박막은 등축정으로 이루어져 있었으나 $x = 1.4$ 및 $x = 1.6$ 조성의 박막에서는 침상 형태의 결정립이 관찰되었다. SBT 박막은 Bi/Ta 몰비 $x = 1.2$ 조성에서 최적의 강유전 특성을 나타내었으며, 이때 5 V의 인가전압에서 측정한 잔류분극 2P_r과 항전계 E_c는 각각 $9.79 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ 와 $24.2 \text{kV}/\text{cm}$ 이었다. Bi/Ta 몰비가 증가함에 따라 SBT 박막의 누설전류밀도가 증가하였다. 후속열처리에 의해 $x = 1.2$ 조성 박막의 2P_r과 E_c가 각각 $11.3 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ 과 $39.6 \text{kV}/\text{cm}$ 로 증가하였다. Bi/Ta 몰비가 증가함에 따라 후속열처리에 따른 누설전류밀도의 감소 정도가 현격히 증가하여, 후속열처리 전과는 달리 $x = 1.6$ 조성에서 가장 낮은 누설전류밀도를 나타내었다.

Abstract – $\text{SrBi}_{2x}\text{Ta}_2\text{O}_9$ (SBT) thin films were prepared on platinized silicon substrates by MOD process, and their ferroelectric and leakage current characteristics were investigated. The grain size of the MOD-derived SBT films increased with increasing the Bi/Ta mole ratio. Although the SBT films with x of $0.8\sim1.2$ were composed of the equiaxed grains, the elongated grains were also observed for the SBT films with x of 1.4 and 1.6. The SBT film with x of 1.2 exhibited the optimum ferroelectric properties of $2P_r : 9.79 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ and $E_c : 24.2 \text{kV}/\text{cm}$ at applied voltage of 5 V. The leakage current density of the SBT films increased with increasing the Bi/Ta mole ratio. With post annealing process, $2P_r$ and E_c of the SBT film with x of 1.2 increased $11.3 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ and $39.6 \text{kV}/\text{cm}$, respectively. Decrement of the leakage current density by post annealing process increased remarkably with increasing the Bi/Ta mole ratio, and the SBT film with $x = 1.6$ exhibited the lowest leakage current density after post annealing process.

1. 서 론

강유전체 박막은 자발분극과 스위칭 특성을 지니고 있어 비휘발성 기억소자인 FRAM에 응용하기 위한 연구가 활발히 진행중에 있다[1]. FRAM에 사용하기 위한 박막 재료로는 잔류분극 값이 크고 사용온도 범위가 넓은 PZT 박막이 가장 많이 연구되었으나, PZT 박막에서는 분극피로가 발생하여 FRAM 소자의 실용화에 가장 큰 문제점으로 작용하고 있다[2]. 이에 따라 최근 분극 피로에 의한 특성열화가 없는 새로운 강유전체 박막으로서 층상 페로브스카이트 구조를 갖는 $\text{SrBi}_2\text{Ta}_2\text{O}_9$ 박막

에 관한 연구가 sol-gel[3, 4], MOD (metalorganic decomposition)[2, 5], MOCVD[6], RF 마그네트론 스퍼터링[7], pulse laser ablation[8], LSMCD(Liquid Source Misted Chemical Deposition) 등의 제조공정을 사용하여 활발히 진행되고 있다. MOD 또는 sol-gel법으로 제조한 $\text{SrBi}_2\text{Ta}_2\text{O}_9$ 박막의 최적 결정화 온도는 800°C 로 보고되고 있다. 그러나, 이와 같이 높은 온도에서 열처리시 $\text{SrBi}_2\text{Ta}_2\text{O}_9$ 박막내 Bi 산화물의 휘발이 발생하여 강유전 특성이 저하하기 때문에, $\text{SrBi}_2\text{Ta}_2\text{O}_9$ 박막의 강유전 특성의 최적화를 위해서는 전구체 용액 내에 Bi 산화물을 화학양론적 조성보다 과잉으로 첨가하여야 한다.

본 연구에서는 MOD 공정으로 $\text{SrBi}_x\text{Ta}_2\text{O}_9$ (SBT) 박막을 제조하여 Bi/Ta 몰비 x ($0.8 \leq x \leq 1.6$)에 따른 강유전 특성과 누설전류 특성을 분석하였으며, Pt 상부전극 증착후 후속열처리에 따른 SBT 박막의 강유전 특성과 누설전류 특성의 변화거동을 분석하였다.

2. 실험 방법

Sr-2-ethylhexanoate, Bi-2-ethylhexanoate 및 Ta-2-ethylhexanoate 전구체를 butyl-acetate로 희석 후, magnetic stirrer를 이용하여 $\text{SrBi}_x\text{Ta}_2\text{O}_9$ ($0.8 \leq x \leq 1.6$) 조성으로 혼합하여 0.05 M 농도의 MOD 코팅용액을 제조하였다. 코팅용액을 Pt/Ti/SiO₂/Si 기판 위에 적하시킨 다음 용액이 기판에 완전히 wetting될 수 있도록 30초간 유지시킨 후, 3000 rpm으로 30초간 스플로팅하였다. 스플로팅된 박막을 공기 중에서 hot plate를 이용하여 400°C에서 10분 동안 전조시켰으며, 산소분위기 열처리 후 최종 박막의 두께가 400 nm가 되도록 이와 같은 과정을 반복하였다. MOD 공정으로 성막한 박막을 산소분위기 중에서 800°C의 온도로 1시간 유지하여 열처리 후, 상부전극으로 200 nm 두께의 Pt dot (직경 : 200 μm)을 DC 마그네트론 스퍼터링으로 형성하였다.

Stylus profiler와 주사현미경을 이용한 박막의 단면 관찰로 SBT 박막의 두께를 측정하였으며, 주사전자현미경을 이용하여 박막의 표면 미세구조를 관찰하였다. 여각 X-선 회절분석기를 사용하여 입사각을 5°로 유지하면서 SBT 박막의 결정상을 분석하였다. RT66A를 이용하여 SBT 박막의 분극이력곡선을 측정하였으며, 이 결과로부터 잔류분극 2P_y과 항전계 E_c를 분석하였다. HP 4145B를 사용하여 SBT 박막의 누설전류밀도를 측정하였다. 후속열처리가 SBT 박막의 전기적 특성에 미치는 영향을 분석하기 위해, Pt 상부전극을 증착한 SBT 박막을 산소분위기에서 800°C로 10분 동안 열처리 후 강유전 특성과 누설전류밀도를 측정하였다.

3. 결과 및 고찰

Fig. 1에 산소 분위기에서 800°C로 열처리한 SBT 박막의 Bi/Ta 몰비 x 에 따른 X-선 회절패턴을 나타내었다. MOD 공정으로 제조한 Bi/Ta 몰비 $x = 0.8 \sim 1.6$ 범위의 SBT 박막은 모두 다결정 박막으로 결정화되었으며, 이는 Pt 하부전극의 우선배향 방향에 기인한다[8, 9].

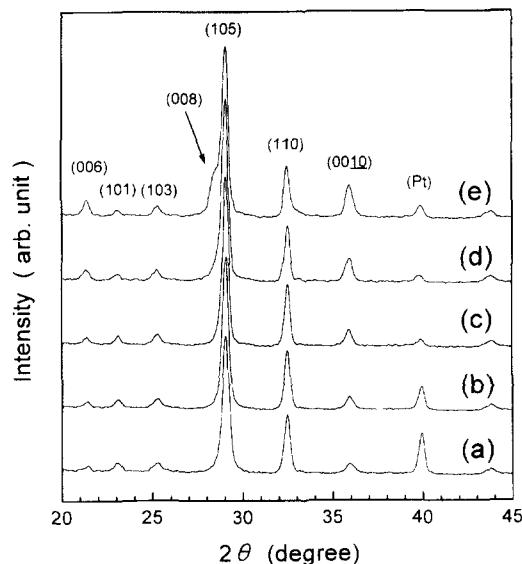


Fig. 1. XRD patterns of the SBT films annealed at 800°C for 1 hour with the Bi/Ta mole ratio x of (a) 0.8, (b) 1.0, (c) 1.2, (d) 1.4, and (e) 1.6.

MOD 공정으로 성막한 SBT 박막은 산소분위기 열처리 시 Pt 하부전극이 (001)로 배향되어 있는 경우에는 c축 우선방향성을 나타내나[9], Pt 하부전극이 (111)로 배향되어 있을 경우에는 Pt (111)면과 SBT 박막의 저지수면들 사이의 격자 불일치에 의해 우선방향성이 거의 없는 다결정 박막으로 결정화되며[8, 9] Ti/SiO₂/Si 기판에 증착한 Pt 박막은 항상 (111)로 우선배향된다[8].

Fig. 1과 같이, Bi가 가장 과잉으로 첨가된 $x = 1.6$ 조성의 SBT 박막에서는 (008)면의 2θ 값에 해당하는 위치에서 다른 조성의 박막에서는 관찰되지 않던 회절피크가 비교적 강하게 나타나는 것이 관찰되었다. MOD법이나 sol-gel 공정으로 성막한 SBT 박막을 800°C에서 열처리시 과잉 Bi의 첨가량이 증가할수록 SBT 결정에 고용되지 않은 Bi가 Pt 하부전극과 반응하여 Bi₂Pt 또는 BiPt를 형성하거나[5], Bi₂O₃와 같은 산화물이나 금속성 Bi의 형태로 결정립의 삼중점이나 결정립계에 남아있을 수 있다[2, 10-12]. Bi₂Pt와 BiPt 및 Bi₂O₃ 산화물의 X-선 회절이 발생하는 각도가 SBT 박막의 (008) 회절각도와 거의 동일하여[2, 10, 13] 서로 겹치기 때문에, Bi/Ta 몰비 $x = 1.6$ 조성의 박막에서 관찰된 회절피크가 이중 어느 것에 기인하는지를 밝히는 것은 매우 어렵다. 그러나, 이 회절피크가 Bi/Ta 몰비 x 가 1.4 이하인 박막에서는 관찰되지 않고 $x = 1.6$ 조성의 박막에서만 비교적 강

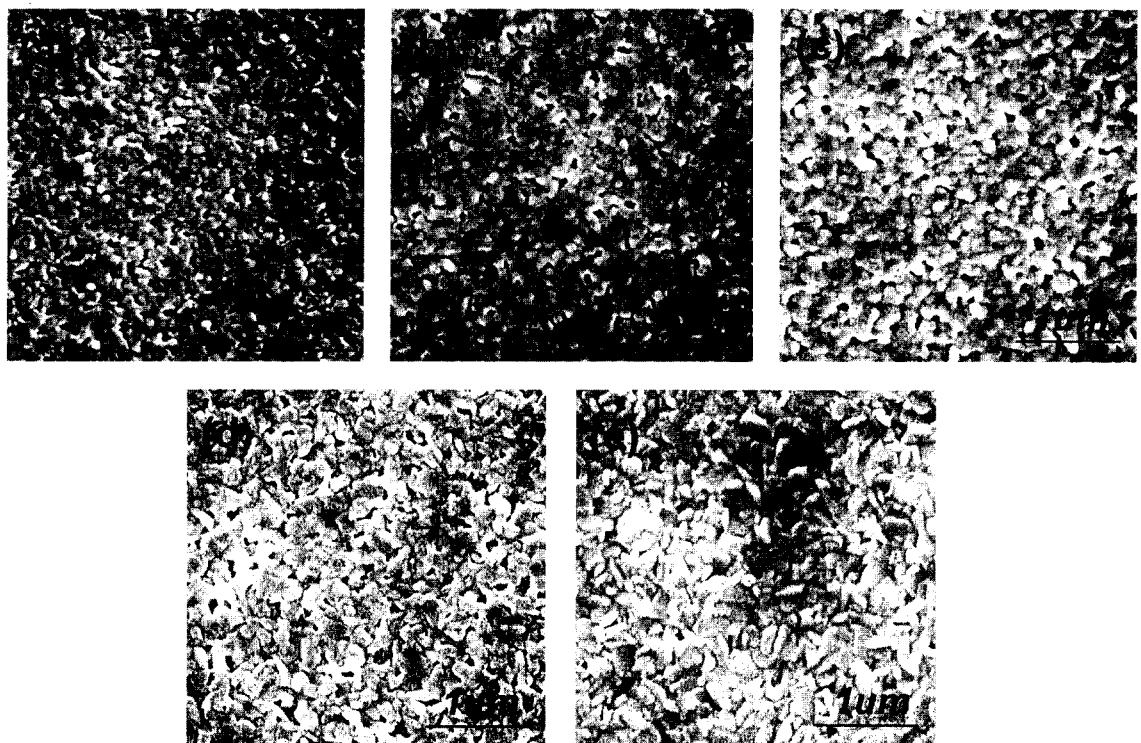


Fig. 2. SEM micrographs observed on the surface of the SBT films with the Bi/Ta mole ratio x of (a) 0.8, (b) 1.0, (c) 1.2, (d) 1.4, and (e) 1.6.

하게 나타나는 것으로 미루어, SBT (008)면의 회절피크라기 보다는 Bi 산화물이거나 Bi와 Pt간의 반응 생성물에 기인한 회절피크로 판단된다.

주사전자현미경으로 관찰한 SBT 박막의 표면 미세구조를 Fig. 2에 나타내었다. Bi/Ta 몰비 x 가 0.8~1.6 범위에서 증가함에 따라 SBT 박막의 결정립 크기가 증가하였으며, 이는 SBT 박막의 산소분위기 열처리시 과잉 Bi에 의해 fluorite 구조에서 층상 페로브스카이트 구조로 SBT의 결정화가 조장되는데 기인하는 것[12]으로 판단된다. SBT 박막의 결정립 형상이 과잉 Bi 첨가량에 따라 변한다는 Chen 등의 보고[10]와 같이, 본 연구에서 MOD법으로 제조한 SBT 박막의 결정립 형상도 Bi/Ta 몰비에 따라 변하여 $x = 0.8\sim 1.2$ 조성의 박막은 등축정으로 이루어져 있었으나 $x = 1.4$ 및 $x = 1.6$ 조성의 박막, 특히 $x = 1.6$ 조성의 박막에서는 침상 형태의 결정립이 관찰되었다.

5 V의 인가전압에서 측정한 SBT 박막의 Bi/Ta 몰비에 따른 분극이력곡선을 Fig. 3에 나타내었다. Bi/Ta 몰비 $x = 0.8$ 로 Bi가 심하게 결핍된 SBT 박막은 상유전성

에 가까운 분극이력 특성을 나타내었으나, Bi 함량이 $x = 1.2$ 까지 증가함에 따라 잔류분극과 항전계 및 분극이력곡선의 포화 특성을 나타내는 잔류분극과 포화분극의 비 (P_r/P_s)가 증가하여 강유전 특성이 향상되는 것을 알 수 있다. 그러나, Bi/Ta 몰비 $x > 1.2$ 인 SBT 박막에서는 과잉 Bi 첨가량이 증가함에 따라 강유전 특성이 저하되는 것이 관찰되었다.

Fig. 3의 분극이력곡선에서 측정한 SBT 박막의 Bi/Ta 몰비에 따른 잔류분극 $2P_r$ 과 항전계 E_c 의 변화를 Fig. 4에 나타내었다. Bi/Ta 몰비가 증가함에 따라 $2P_r$ 과 E_c 가 증가하여 $x = 1.2$ 조성에서 최대값을 나타낸 후, 그 이상의 Bi/Ta 몰비에서는 감소하는 경향을 나타내었다. Fig. 4와 같이, MOD 공정으로 제조한 SBT 박막은 $x = 1.2$ 인 $\text{SrBi}_{2.4}\text{Ta}_2\text{O}_9$ 조성에서 최적의 강유전 특성을 나타내었으며, 이때 $2P_r$ 과 E_c 는 각기 $9.79 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ 와 $24.2 \text{kV}/\text{cm}$ 이었다. Watanabe 등[2]과 Chen 등[10]도 MOD법으로 제조한 SBT 박막에서 Bi/Ta 몰비에 따른 잔류분극 $2P_r$ 과 항전계 E_c 의 변화거동에 대한 연구 결과, Fig. 4와 유사하게 Bi/Ta 몰비 $x = 1.2\sim 1.3$ 범위로 Bi가 과잉으로

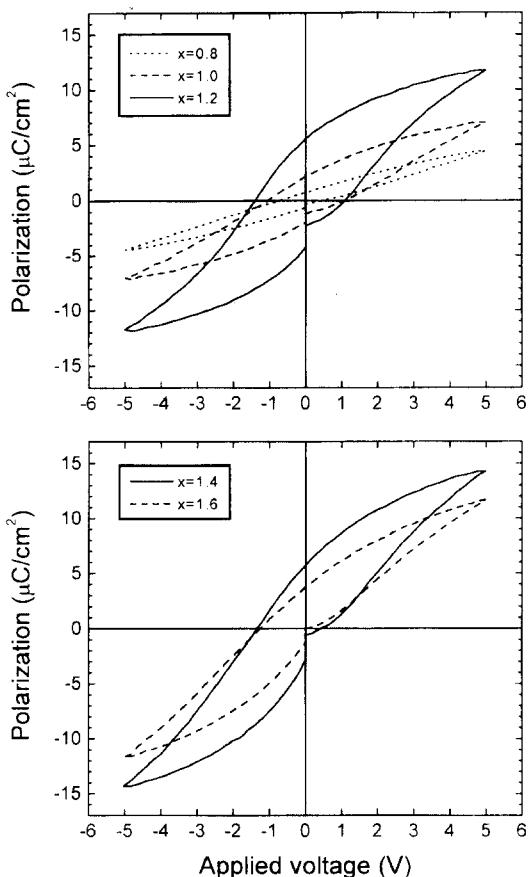


Fig. 3. Hysteresis loop of the SBT films with the Bi/Ta mole ratio x of 0.8~1.6 at applied voltage of 5 V.

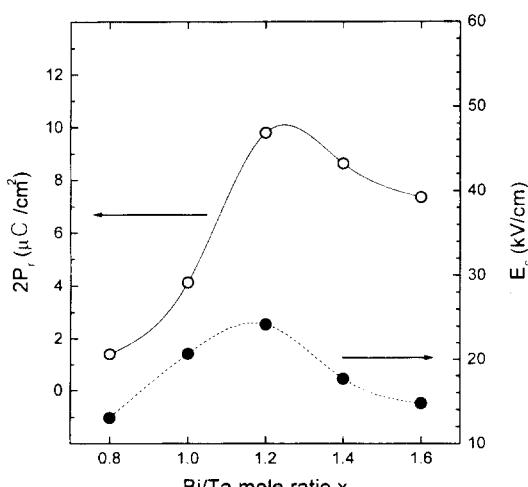


Fig. 4. Remanent polarization $2P_r$ and coercive field E_c of the SBT films as a function of the Bi/Ta mole ratio.

첨가된 조성의 박막에서 2P_r과 E_c의 최대값을 나타낸다고 보고하였다. 임계 크기보다 작은 결정립으로 이루어진 SBT 박막은 강유전성을 나타내지 않으며 Bi 함량이 증가함에 따라 SBT 박막의 결정립 크기가 증가하는 결과를 이용하여, Chen 등[10]은 과잉 Bi 첨가량 증가에 따른 잔류분극 2Pr이 증가하는 이유를 결정립 크기 효과로 설명하고 있다. 본 연구에서도 Fig. 2와 같이 Bi 함량이 증가함에 따라 SBT 박막의 결정립 크기가 증가하였으며, 이로부터 Bi/Ta 몰비 $x = 0.8\sim1.2$ 범위의 조성에서 Bi/Ta 몰비에 따른 2P_r과 E_c의 증가는 결정립 크기의 증가에 기인한다고 사료된다.

Bi/Ta 몰비 x 가 1.2 이상인 조성에서도 Fig. 2와 같이 Bi 함량이 증가함에 따라 결정립 크기가 증가하는 경향을 나타내었으나 $0.8 \leq x \leq 1.2$ 조성 범위와는 달리 2P_r과 E_c가 감소하였으며, 이는 SBT 박막의 c축 배향 정도의 변화에 기인한다고 판단된다. SrBi_xTa₂O₉은 $(\text{Bi}_2\text{O}_3)^{2+}$ (SrTa_2O_7)²⁻과 같은 구조식으로 나타낼 수 있으며, c축 방향으로 비강유전성 (Bi_2O_3) 층과 강유전성 페로브스카이트 (SrTa_2O_7) 층이 반복된 구조로 이루어져 있다. 이와 같은 구조에서 강유전성은 페로브스카이트 층내의 O-Ta-O 결합에 기인하기 때문에 O-Ta-O 결합을 함유하고 있는 면, 즉 c축에 수직한 면에서 자발분극이 발생하나, c축 방향으로는 분극이 거의 발생하지 않는다[14]. 따라서, SBT 박막의 c축 배향 정도가 증가하면 잔류분극 값과 항전계가 감소하게 된다. 본 연구에서는 Fig. 1의 XRD 패턴에서 c축에 수직한 면중 회절피크의 세기가 가장 강한 (0010) 피크와 (015) 주피크의 회절강도비로부터 Eq. 1을 사용하여 SBT 박막의 c축 배향 정도를 분석하였다. Eq. 1에서 $[I_{(0010)}/I_{(015)}]_F$ 는 SBT 박막에서 측정한 (0010)과 (015) 피크의 회절강도비이며, $[I_{(0010)}/I_{(015)}]_P$ 는 SBT 분말에서 보고[15]된 회절강도비이다.

$$\text{Degree of c-axis orientation} = \frac{[I_{(0010)}/I_{(015)}]_F}{[I_{(0010)}/I_{(015)}]_P} - 1 \quad (1)$$

Fig. 5와 같이, Bi/Ta 몰비 x 가 증가할수록 SBT 박막의 c축 배향 정도가 증가하였다. 따라서, MOD 공정으로 제조한 SBT 박막의 강유전 특성에는 결정립 크기 효과와 c축 배향 정도의 변화가 복합적으로 작용하기 때문에, Bi/Ta 몰비에 따라 Fig. 4와 같은 변화 거동을 나타내는 것으로 판단된다. Bi/Ta 몰비 x 가 증가함에 따라 결정립 크기가 증가하여 잔류분극 값이 증가하나, 이와

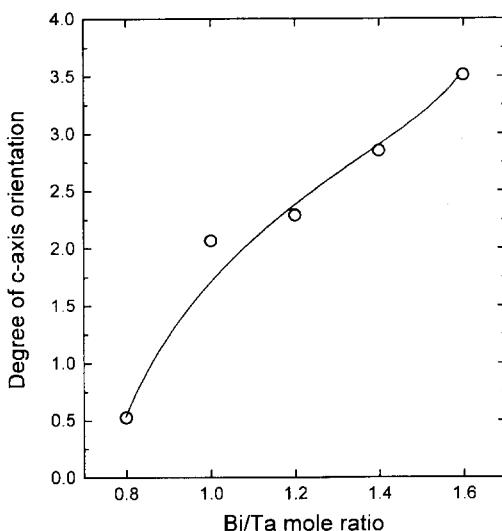


Fig. 5. Degree of the c-axis orientation of the SBT films as a function of the Bi/Ta mole ratio.

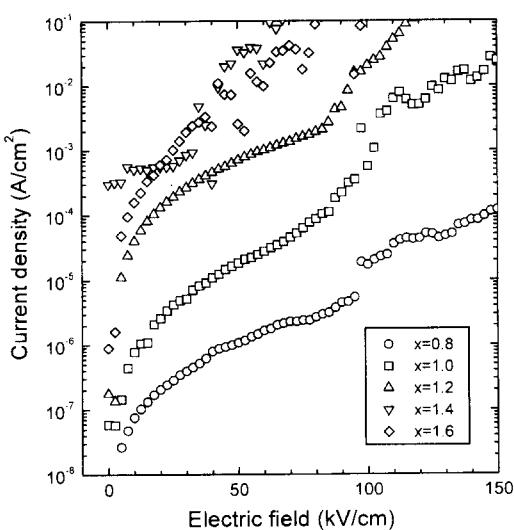


Fig. 6. Leakage current density of the SBT films with the Bi/Ta mole ratio of 0.8~1.6.

동시에 c축 방향으로의 배향 정도가 증가하기 때문에 $x=1.2$ 조성에서 잔류분극의 최대값, 즉 최적 강유전 특성을 나타낸 후 잔류분극의 저하가 발생하는 것으로 사료된다.

Bi/Ta 몰비에 따른 SBT 박막의 누설전류밀도를 Fig. 6에 나타내었다. Bi/Ta 몰비가 증가함에 따라 SBT 박막의 누설전류 밀도가 증가하였으며, 이는 SBT 박막의 결정립 크기 증가에 따른 SBT/Pt 계면 거칠기의 증가에

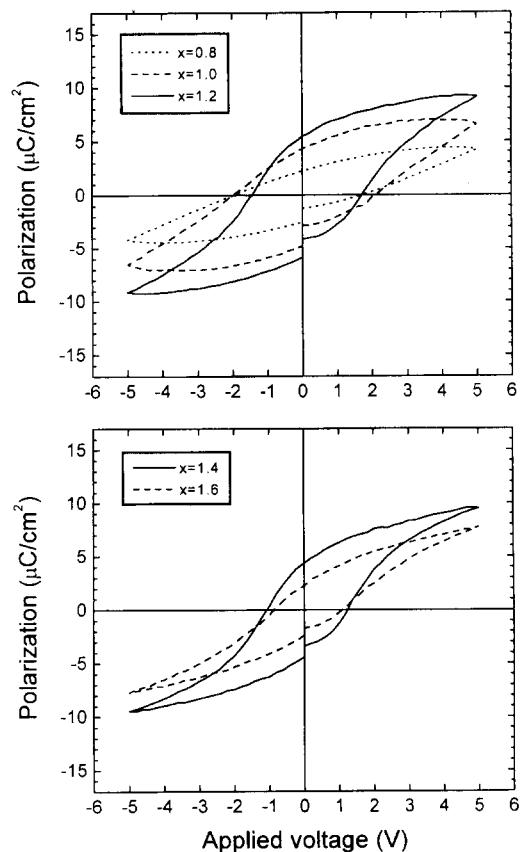


Fig. 7. Hysteresis loop of the SBT films at applied voltage of 5 V after post annealing process.

기인하거나[2] SBT 결정에 고용되지 않은 Bi에 의해 결정립의 삼중점이나 결정립계에 전기전도도가 높은 Bi 산화물이나 금속성 Bi가 형성되는데 기인하는 것[10-12]으로 판단된다. 본 연구에서 MOD 공정으로 제조한 SBT 박막에서도 Fig. 2와 같이 Bi/Ta 몰비가 증가함에 따라 결정립 크기가 증가하였으며, Fig. 1과 같이 $x=1.6$ 조성의 박막에서는 Bi 산화물에 기인한 것으로 생각할 수 있는 X선 회절피크가 관찰되었다.

화학양론적 조성보다 Bi를 과잉으로 첨가한 SBT 박막은 Bi 결핍 조성의 박막에 비해 우수한 강유전 특성을 나타내었으며 $x=1.2$ 조성에서 최적의 강유전 특성을 나타내었으나, Bi 결핍 조성의 박막에 비해 누설전류밀도가 증가하였다. Bi를 과잉으로 첨가한 SBT 박막의 누설전류 특성을 향상시키기 위해 Pt 상부전극을 증착한 Pt/SBT/Pt 구조의 시편을 산소분위기에서 800°C 로 10분간 후속열처리하여 강유전 특성과 누설전류 특성을 분

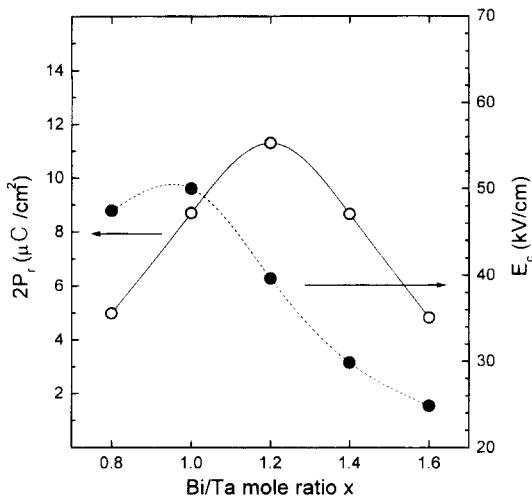


Fig. 8. Remanent polarization $2P_r$ and coercive field E_c of the SBT films after post annealing process.

석하였다. Fig. 7에 후속열처리 후 5 V의 인가전압에서 측정한 SBT 박막의 분극이력곡선을 나타내었으며, 이들로부터 분석한 Bi/Ta 몰비에 따른 잔류분극 $2P_r$ 과 항전계 E_c 의 변화를 Fig. 8에 나타내었다. 후속열처리 전·후의 분극이력곡선인 Fig. 3과 Fig. 7의 비교에서와 같이, 후속열처리에 의해 SBT 박막의 강유전 특성이 Bi/Ta 몰비 $x = 0.8 \sim 1.6$ 조성 범위에서 전체적으로 향상되었으며, 특히 $x = 1.2$ 및 $x = 1.4$ 조성의 박막에서는 P_r / P_s 비로 나타낼 수 있는 분극이력곡선의 squareness 특성

이 크게 향상되었다. Fig. 4과 Fig. 8의 비교에서와 같이, 후속열처리에 의해 SBT 박막의 잔류분극 $2P_r$ 과 항전계 E_c 가 증가하였으며, 후속열처리 후에도 $x = 1.2$ 조성에서 $2P_r : 11.3 \mu\text{C}/\text{cm}^2$, $E_c : 39.6 \text{kV}/\text{cm}$ 의 최적 강유전 특성을 나타내었다.

Fig. 9과 같이, 후속열처리에 따른 SBT 박막의 누설전류밀도의 변화거동은 Bi/Ta 몰비 $x = 1.0$ 조성을 기준으로 정반대의 경향을 나타내었다. Bi/Ta 몰비가 1.0 이하로 Bi가 결핍한 조성의 박막에서는 후속열처리에 의해 누설전류밀도가 증가하였으나, 과잉 Bi가 첨가된 $x \geq 1.2$ 조성에서는 후속열처리에 의해 누설전류밀도가 저하하였다. 또한, 과잉 Bi 첨가량이 증가함에 따라 후속열처리에 따른 누설전류밀도의 감소 정도가 현격히 증가하여, 후속열처리 전과는 달리 $x = 1.6$ 조성에서 가장 낮은 누설전류밀도를 나타내었다.

4. 결 롤

MOD 공정으로 제조한 Bi/Ta 몰비 $x = 0.8 \sim 1.6$ 범위의 SBT 박막은 800°C에서의 산소 분위기 열처리에 의해 모두 다결정 박막으로 결정화되었다. Bi/Ta 몰비 x 가 증가함에 따라 SBT 박막의 결정립 크기가 증가하였으며, $x = 0.8 \sim 1.2$ 조성의 박막은 등축정으로 이루어져 있었으나 $x = 1.4$ 및 $x = 1.6$ 조성의 박막에서는 침상 형태의 결정립이 관찰되었다. Bi/Ta 몰비가 증가함에 따라 SBT 박막의 잔류분극과 항전계가 증가하여 $x = 1.2$ 조성에서 최대값을 나타낸 후 저하하였으며, 이와 같은 강유전 특성의 변화 거동은 결정립 크기와 c 축 배향 정도의 변화에 기인하는 것으로 판단된다. SBT 박막은 Bi/Ta 몰비 $x = 1.2$ 조성에서 최적 강유전 특성을 나타내었으며, 이 때 5 V의 인가전압에서 측정한 잔류분극 $2P_r$ 과 항전계 E_c 는 각각 $9.79 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ 와 $24.2 \text{kV}/\text{cm}$ 이었다. Bi/Ta 몰비가 증가함에 따라 SBT 박막의 누설전류밀도가 증가하였다.

후속열처리에 의해 SBT 박막의 잔류분극 $2P_r$ 과 항전계 E_c 가 증가하였으며, $x = 1.2$ 및 $x = 1.4$ 조성의 박막에서는 분극이력곡선의 squareness 특성이 크게 향상되었다. 후속열처리 후에도 $x = 1.2$ 조성에서 최적 강유전 특성을 나타내었으며, 이 때 잔류분극 $2P_r$ 과 항전계 E_c 는 각각 $11.3 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ 과 $39.6 \text{kV}/\text{cm}$ 이었다. Bi/Ta 몰비가 증가함에 따라 후속열처리에 따른 누설전류밀도의 감소 정도가 현격히 증가하여, 후속열처리 전과는 달리 $x =$

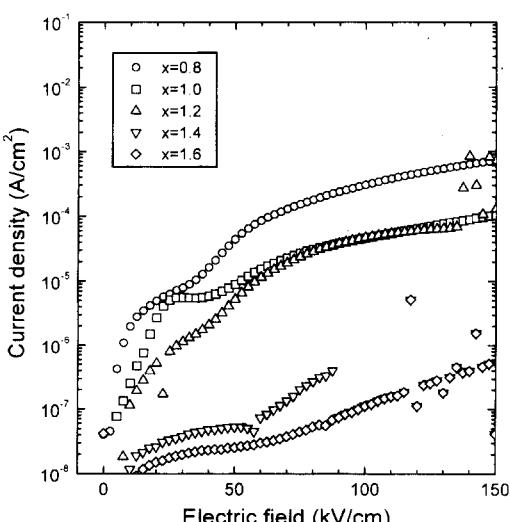


Fig. 9. Leakage current density of the SBT films after post annealing process.

1.6 조성에서 가장 낮은 누설전류밀도를 나타내었다.

감사의 글

본 연구는 1997년 교육부 기초기술연구소 지원 (과제 번호 : BSRI-97-2428)에 의해 수행되었으며, 이에 감사드립니다.

참고문헌

- [1] Hidemi Takasu, *Integrated Ferroelectrics* **14**, 1 (1997).
- [2] H. Watanabe, T. Mihara, H. Yoshimori, and C. A. Araujo, *Jpn. J. Appl. Phys.* **34**, 5240 (1995).
- [3] Y. Ito, M. Ushikubo, S. Yokoyama, H. Matsunaga, T. Atsuki, T. Yonezawa, and K. Ogi, *Jpn. J. Appl. Phys.* **35**, 4925 (1996).
- [4] K. Watanabe, A. J. Hartman, R. N. Lamb, and J. F. Scott, *J. Appl. Phys.* **84**, 2170 (1998).
- [5] T. Atsuki, N. Soyama, T. Yonezawa, and K. Ogi, *Jpn. J. Appl. Phys.* **34**, 5096 (1995).
- [6] T. Li, Y. Zhu, S. D. Desu, C.-H. Peng, M. Nagata, *Appl. Phys. Lett.* **68**, 616 (1996).
- [7] T. K. Song, J.-K. Lee, and H. J. Jung, *Appl. Phys. Lett.* **69**, 3839 (1996).
- [8] S. B. Desu, D. P. Vijay, X. Zhang, and B. He, *Appl. Phys. Lett.* **69**, 1719 (1996).
- [9] J. S. Lee, H. H. Kim, H. J. Kwon, and Y. W. Jeong, *Appl. Phys. Lett.* **73**, 166 (1998).
- [10] T. Chen, T. Li, X. Zhang, and S. B. Desu, *J. Mater. Res.* **12**, 1569 (1997).
- [11] I. Koiwa, K. Tani, J. Mita, and T. Iwabuchi, *Jpn. J. Appl. Phys.* **37**, 192 (1998).
- [12] I. Koiwa, Y. Okada, J. Mita, A. Hashimoto, and Y. Sawada, *Jpn. J. Appl. Phys.* **36**, 5904 (1997).
- [13] JCPDS card # 290240 and 220515.
- [14] K. Amanuma, T. Hase, and Y. Miyasaka, *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.* **361**, 21 (1995).
- [15] J. S. Lee, H. H. Kim, H. J. Kwon, and Y. W. Jeong, *Appl. Phys. Lett.* **73**(2), 166 (1998).