

스퍼터링 증착된 Y-Ba-Cu-O계 박막의 열처리 전 조성이 열처리 후 박막의 초전도특성 및 미세구조에 미치는 영향

조해석* · 김형준

서울대학교 무기재료공학과

Effects of composition of preannealed Y-Ba-Cu-O thin films deposited by sputtering
on the superconducting properties and microstructure of post-annealed thin films

Hae Seok Cho, Hyeong Joon Kim

Dept. of Inorg. Mat. Eng., Seoul National University, Seoul 151-742

요 약 YBa₂Cu₃O_{7-δ} 단일 타겟를 사용하여 R. F. 마그네트론 스퍼터링법으로 MgO(100), Si(100)기판 위에 박막을 증착한 후, 880°C의 산소 분위기에서 1시간 동안 열처리를 하였다. 열처리 전 박막의 미세한 조성변화에 의해서도 열처리 후 박막의 미세구조 및 전기적 특성은 크게 변화했다. MgO(100)기판의 표면에 성장되는 입자들은 선택 배향적으로 성장하려는 경향을 가지므로 가늘고 길쭉한 입자 형상을 띠는 반면에 이들 입자위에 성장되는 다른 입자들은 결정 성장 방향의 선호도가 없으므로 둥근 모양의 입자형상을 가진다. 열처리 전 박막의 조성이 1-2-3을 벗어나면 증착 후 열처리할 때 액상이 형성되며, 액상의 양이 많을수록 선택 배향적 성장이 용이해져 texture를 쉽게 이룬다. 그러나 이러한 액상은 냉각 시에 초전도입자의 입계에 이차상으로 형성되기 때문에 초전도 박막의 전기적 특성, 특히 임계온도를 저하시킨다. 또한 T_{c, zero}는 T_{c, on}에 비해서 입계에 형성되는 이차상의 영향을 더 크게 받는다.

YBCO films deposited on MgO(100) and Si(100) by rf-magnetron sputtering using stoichiometric single target were annealed under oxygen atmosphere at 880°C for 1 hr. The microstructure and superconducting properties of YBCO thin films depended on the composition of pre-annealed thin films. Basal plane-superconducting particles grown on MgO(100) substrate had small and rod-like shape due to preferred orientation, while superconducting film grown on the basal plane-superconducting particles showed round-shape particles. If pre-annealed thin film had nonstoichiometric composition, liquid phase was formed during the heat treatment, which made it easy for particles to grow in the preferred orientation and thus to form textured structure. But the thin films with the textured structure did not show good superconducting properties, especially T_c, since the liquid phase transformed into second phase in the grain boundary during the cooling. The effect of the second phase on T_{c, zero} was greater than that on T_{c, on}.

1. 서 론

YBa₂Cu₃O_{7-δ}고온 초전도체는 단결정, 박막, 선재 등 여러 응용 분야로 활발히 연구되고 있다. 이들 고온 초전도체의 실질적인 응용면에서 가장 큰 문제점들은 첫째로는 임계전류밀도가 낮다는 것이고, 둘째로는 기계적 강도가 낮고 인성이 적어 선재 제작이 어렵다는 것이며, 셋째로는 수분 등의 침해를 쉽게 받아서 안정성이 떨어진다는 것이다. 따라서 이러한 문제점의 해결은 고온 초전도체의 실질적 응용에 있어서 필수적이며 이들 문제점들의 영향을 가장 적게 받는 분야가 바로

박막 형태로의 응용이다.

고온 초전도체의 박막은 기계적 강도와 인성의 영향을 적게 받을 뿐만 아니라 임계전류밀도를 극대화시킬 수 있기 때문에 Josephson 소자, SQUID 소자, 3단자 초전도 트랜지스터 및 IC의 전도체로서 응용되어질 수 있다. Josephson 소자와 SQUID 소자는 이미 몇몇 연구자들에 의해 실험적으로 제작 보고되었는데^{1), 2)}, 만일 이들 소자가 개발된다면 현재 정보전달속도가 가장 빠른 GaAs 소자에 비해 정보전달시간이 100배 이상으로 짧고, 발열이 아주 적은 초고속 컴퓨터를 만들 수 있을 뿐만 아니라 현재 사용되고 있는 대

형 컴퓨터의 부피도 가정용 컴퓨터의 크기나 그 이하로 줄일 수 있다. 그리고 IC의 전도체로의 응용도 반도체 산업에 큰 영향을 끼칠 것으로 기대되므로 이에 관한 많은 연구가 절실히 요구되고 있다.

고온 초전도체 박막제조는 증발법(evaporation)^{3, 4)} 화학증착법(CVD)⁵⁾, 분자선증착법(MBE)⁶⁾, 스퍼터링⁷⁻¹⁰⁾ 등의 여러가지 방법에 의해 가능하는데, 그 중에서도 원료를 쉽게 구할 수 있고 공정 자체가 손쉬운 스퍼터링법이 가장 널리 이용되고 있다.

$YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ 고온 초전도체와 같은 다성분계 화합물을 스퍼터링법에 의해 박막을 제조할 경우 당면하는 최대의 문제점은 균일하고 원하는 조성을 가진 박막을 얻기가 힘들다는 것이다. 박막의 조성이 $Y : Ba : Cu = 1 : 2 : 3$ 를 만족하지 못할 경우는 이차상이 형성되어 초전도 특성을 저하시킨다. 본 연구에서는 열처리 전 박막의 미세한 조성변화가 열처리 후 박막의 초전도 특성 및 미세구조에 미치는 영향을 살펴봄으로써 열처리 시의 미세구조 형성과정을 규명하고자 한다.

2. 실험 방법

본 연구에서 사용된 스퍼터링 장비는 자체 제작한 upward type의 rf-magnetron 스퍼터링 장치였다. 스퍼터링을 위한 타겟으로는 일반적인 세라믹 제조법에 의해 만들어진 직경 5cm 원판형태의 $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ 를 사용하였으며 전기적, 열적 전도성을 좋게 하기 위해서 silver paste를 이용하여 타겟 호울더에 붙였다. 기판으로는 $1cm \times 0.7cm$ 크기의 단결정 Si(100), MgO(100), 다결정 YSZ를 사용하였으며 이들을 $6\mu m$ 및 $1\mu m$ diamond paste를 이용해 잘 polishing한 후 불산, 아세톤, 알코올로 각각 5분씩 초음파 세척하여 사용하였다.

스퍼터링 시에는 자동압력조절장치를 이용하여 일정한 압력을 유지하였으며 성장되는 박막의 조성을 균일하게 하기 위하여 기판 호울더를 1rpm으로 회전시켰다. 기판을 외부에서 가열하지는 않았지만 플라즈마 이온들의 충돌에 의해 기판이 $70^\circ C \sim 100^\circ C$ 로 가열되었다.

증착된 박막은 $880^\circ C$ 에서 1시간 열처리하였으며, 열처리과정 중에는 산소를 계속적으로 200SCCM 흘려 주었으나 $800^\circ C$ 이상의 고온영역에서는 산소의 흐름에 의해서 박막을 이루는 물

질들의 증발이 촉진되는 것을 방지하기 위해서 산소를 흘려주지 않았다. 열처리 전 박막의 두께는 박막의 일부분을 염산으로 에칭하여 계단을 만든 후 Tencor사의 α -step 200 장비를 이용하여 측정하였으며, 열처리 전 박막의 조성은 EPMA (Electron Probe Micro Analyzer, JEOL Super Probe 733)를 이용하여 분석하였다. 열처리 전 박막은 Y, Ba, Cu 각각의 원자상태나 이들이 결합한 분자형태로 이루어진 비정질상태이므로 초전도결정분말을 표준시료로 사용하지 않고 경면연마된 각 성분의 고순도 금속을 표준시료로 사용하였다. 그리고 열처리 후 박막의 구조분석은 RIGAKU사의 X-Ray diffractometer를 이용하여 분석하였으며 박막표면의 미세구조는 SEM(JEOL 35)을 이용하여 관찰하였다. 그리고 열처리 후 박막의 온도-저항 특성은 dc 4-point probe로 측정하였으며 전극으로는 인듐을 사용하였다.

3. 결과 및 고찰

열처리를 하지 않은 모든 박막들은 비정질이었고 상온에서의 저항이 수 M Ω 이상이였다. 이러한 비정질 박막을 산소 분위기에서 $880^\circ C$ 혹은 $900^\circ C$, 1시간 열처리를 하면 상온에서의 저항이 수 Ω -수백 Ω 인 초전도 박막이 얻어지며 박막의 조성 및 두께에 따라 상온에서의 저항값이 변했다. 박막의 조성이 $Y : Ba : Cu = 1 : 2 : 3$ 에 가까울수록 박막의 두께가 두꺼울수록 낮은 상온 저항값을 가지는 박막을 얻을 수 있었다.

Fig. 1은 열처리전 조성이 거의 같은 박막의 두께 및 온도에 따른 표현 형상 변화를 보이는 SEM 사진인데 (a)는 두께 $0.7\mu m$ 박막을 $880^\circ C$ 에서 1시간, (b)는 $1.3\mu m$ 박막을 $880^\circ C$ 에서 1시간 그리고 (c)는 $2.3\mu m$ 박막을 $900^\circ C$ 에서 1시간 열처리한 것이다. 사진 (a)는 박막의 두께가 매우 얇기 때문에 기판 표면에 성장된 입자들의 형상과 그 입자들 위에 성장된 다른 입자들의 형상을 함께 보이며 사진 (b)는 사진 (a)에 비하여 두꺼운 박막이므로 기판 표면에 성장된 입자들이 그 위에 성장된 다른 입자들에 의해 대부분 가려진 형상을 보인다. 그리고 사진 (c)는 (a), (b)보다 두꺼운 박막이고 열처리 온도도 높으므로 기판 표면에 성장된 입자들의 형상이 보이지 않을 뿐만 아니라 평균 입자크기도 (a), (b)에 비하여 크다. 기판 표면에 성장된 입자들은 대체로 작고 길쭉한 모양을 가지며 서로 연결되어 texture구조를

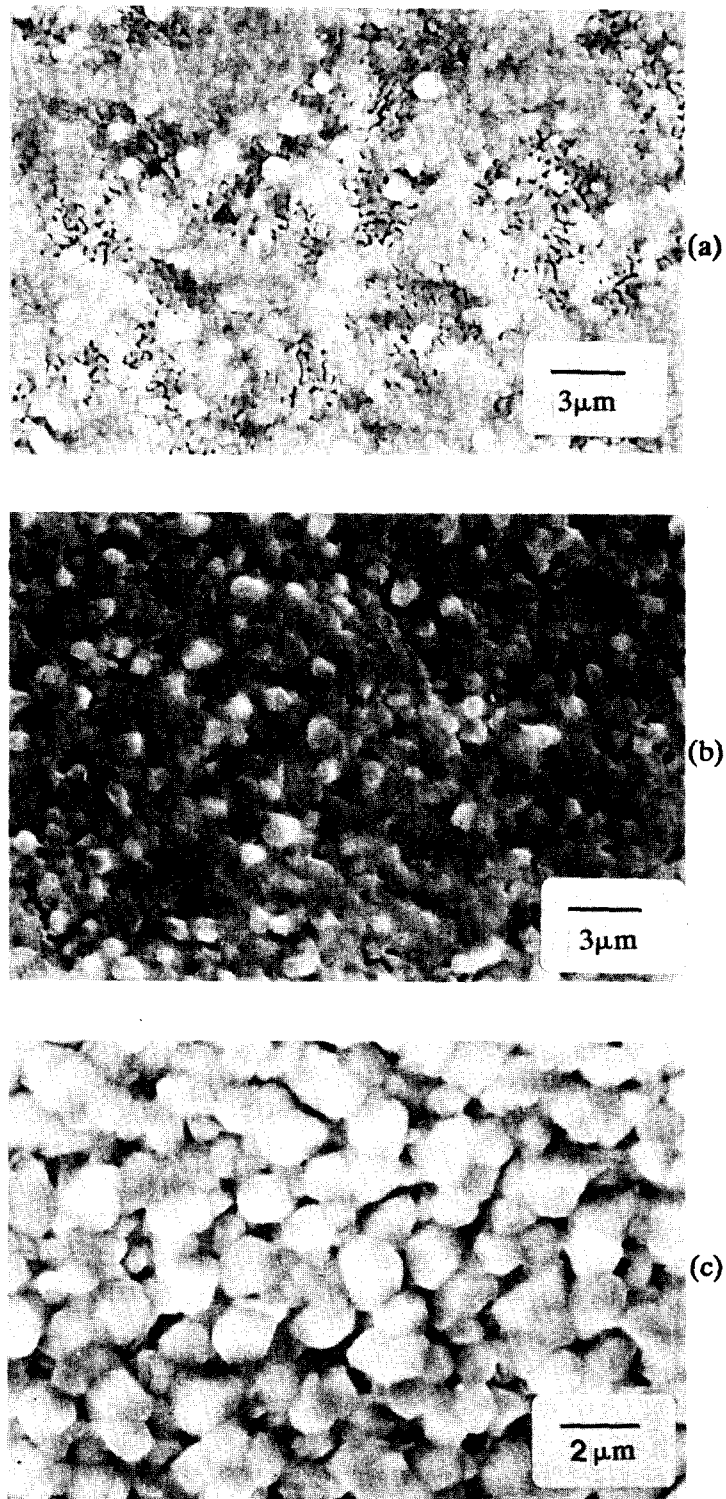


Fig. 1. Surface microstructure of YBaCuO thin films with different thicknesses deposited on MgO(100) and annealed at 880°C for 1h in O₂ : (a) 0.7 μm, (b) 1.3 μm and (c) 2.3 μm, annealed at 900°C.

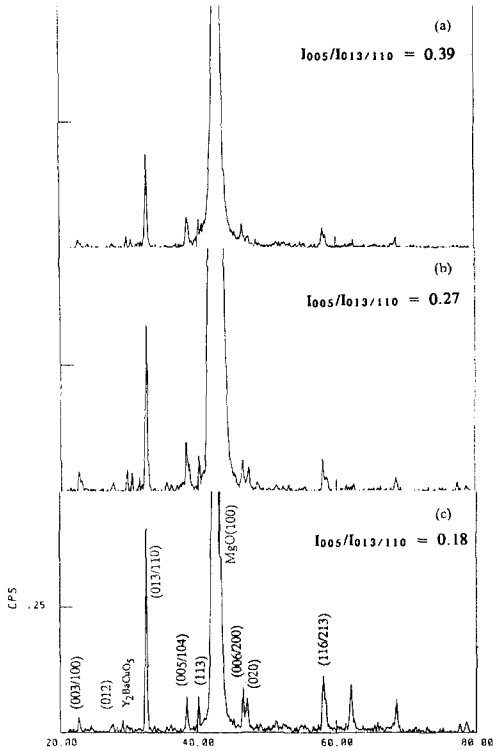


Fig. 2. XRD patterns for YBaCuO thin films with different thicknesses deposited on MgO(100) and annealed at 880°C for 1h in O₂: (a) 0.7 μm, (b) 1.3 μm and (c) 2.3 μm, annealed at 900°C.

이루는 반면에 기판 표면에 성장된 입자 위에 자라난 입자들은 둥근 형태를 가진다. 이들 박막들을 X-선 회절분석하면 Fig. 2와 같은 결과를 얻을 수 있다. 그림에 표시한 바와 같이 박막이 두꺼울수록 bulk 초전도체에서 가장 강하게 나타나는 2θ가 32.8°인 (013) 혹은 (110)면의 peak에 대한 (005)면의 peak의 상대 크기인 I₀₀₅/I_{013/110} 값이 감소함을 보인다.

이러한 현상들은 기판 표면에 성장된 입자들은 에너지적으로 안정되기 위하여 기판인 MgO(100) 표면에 초전도체 결정의 a-b plane이 자라게 하려는 경향을 가지지만, 이들 입자 위에 자라는 다른 입자들은 선택적인 결정성장 방향을 가지지 못함을 추측하게 한다. 뒤(Fig. 4, 5, 7)에서도 언급되었듯이 Fig. 1에 제시된 박막들과 같이 열처리 전 박막의 조성이 1-2-3를 벗어나면 열처리과정에서 액상이 형성되어 기판 표면에 성장하는 입자들은 에너지적으로 안정한 선택 배향적인 성장방향을 가지고 자랄 가능성이 커진다. 만일 이러한 조

건 아래서 in-situ로 박막이 성장된다면 기판 표면에서부터 위로 점차적으로 입자성장이 진행되므로 기판의 영향을 계속적으로 받을 수 있어 박막 전체가 epitaxial growth를 할 가능성이 클 것이다. 그러나 증착 후에 열처리를 하는 경우에는 박막전체가 거의 동시에 결정화될 것으로 생각되므로 기판 표면에서 성장하는 입자들은 기판의 영향과 액상의 도움으로 방향성을 가지고 자랄 가능성이 크지만, 기판 표면으로부터 멀리 떨어진 곳에서 성장하는 입자들은 기판의 영향을 받지 못하므로 결정 성장방향의 무질서도가 더 클 것이다. 따라서 박막이 두꺼워짐에 따라 I₀₀₅/I_{013/110}이 감소하는 것은 박막이 두꺼워질수록 선택적 결정성장 방향을 가지는 입자들의 상대량이 줄어들기 때문임을 알 수 있다.

Fig. 3은 열처리 전 박막의 조성변화에 따르는 열처리 후 박막의 초전도특성 변화를 보이는 것으로 박막의 조성이 1 : 2 : 3에 가까울수록 우수한 초전도특성을 나타낼 수 있다. 대부분의 박막은 온도가 상온에서 저온으로 내려감에 따라 저항이 증가하는 반도체적인 거동(semiconductor behavior)을 보이며 T_{c, on}은 80K 정도로 거의 같은 값을 가지지만 T_{c, zero}는 조성의 변화에 민감한 반응을 보인다.

이와 같이 초전도체 박막이 90K 근방에서 T_{c, zero} 특성을 보이는 bulk 초전도체와 다른 특성을 가지는 원인은 박막의 조성이 정확히 1-2-3를 만족하지 못하기 때문이다. 열처리 전 박막의 조성이 1-2-3를 만족하지 못하면 열처리할 때 초전도 임계

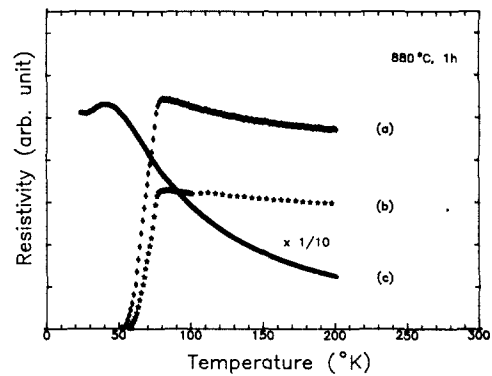


Fig. 3. Temperature dependence of electrical resistivity of YBaCuO thin films with different Y : Ba : Cu mole ratios deposited on MgO(100) and annealed at 880°C for 1h in O₂: (a) 1:2.38:3.62, (b) 1:2.24:3.40, and (c) 1:1.47:2.83.

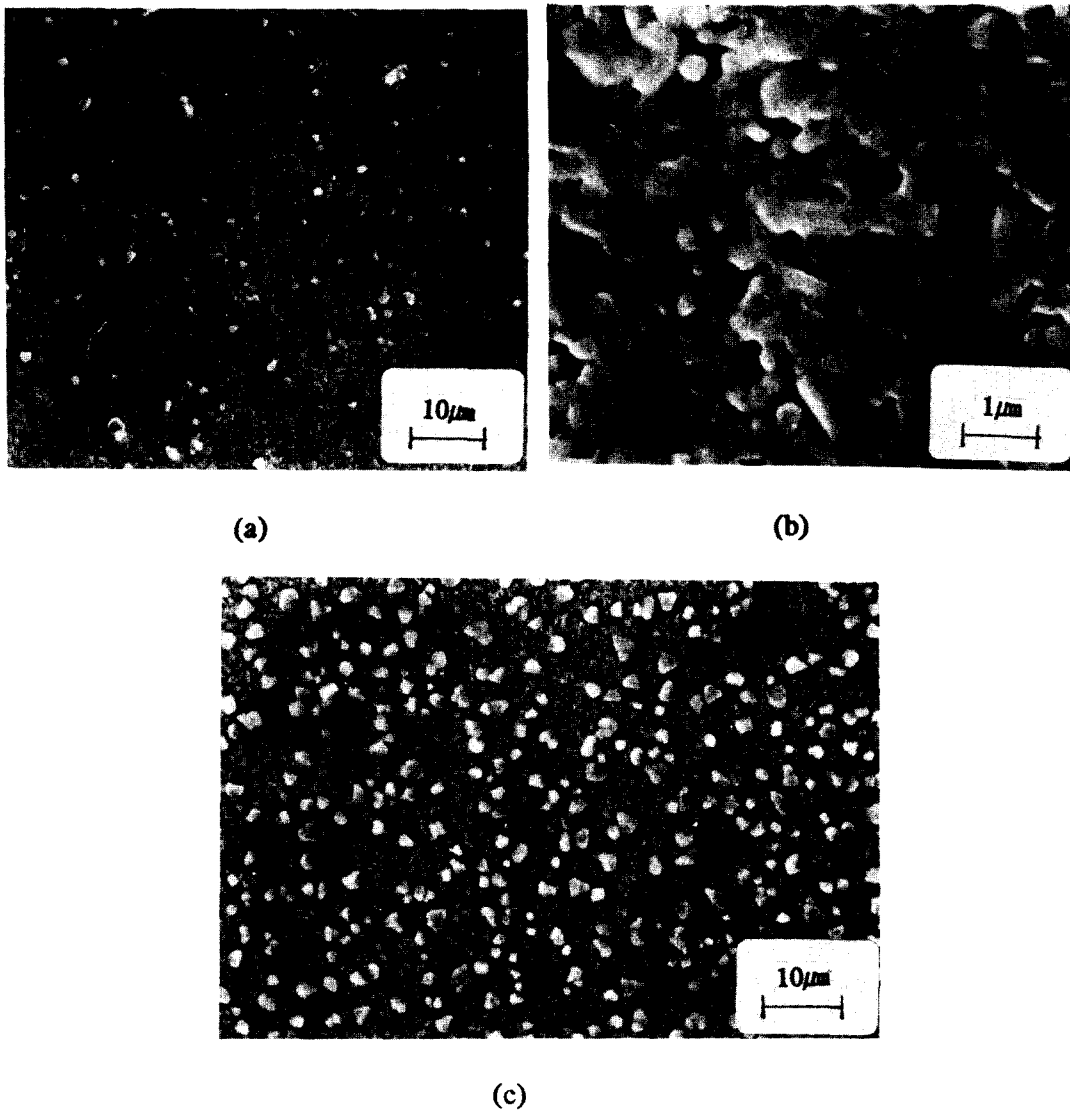


Fig. 4. Surface microstructure of YBaCuO thin films with the same thickness $1.5\mu\text{m}$ but different Y:Ba:Cu mole ratios deposited on MgO(100) and annealed at 880°C for 1h in O_2

(a) the same ratio as that in Fig.3(a), 1:2.24:3.62,

(b) magnified micrograph of (a), and (c) the same ratio as that in Fig.3(b), 1:2.24:3.40

및 입내에 이차상을 형성하는데, 특히 열처리 도
중에 형성된 액상은 냉각시에 Y_2BaCuO_5 , BaCuO_2 ,
 CuO 와 같은 이차상으로 입계에 형성되기 쉽다.
초전도입자들은 이러한 입계에 형성된 이차상으
로 인해 초전도 weak-link를 이루게 되므로¹¹⁾
bulk초전도체의 경우보다 낮은 $T_{c, on}$ 값을 가지고
전이온도폭(ΔT_c)도 넓어지는 것이다. 박막의 조
성이 약간씩 변하더라도 $T_{c, on}$ 이 거의 일정한 것

은 $T_{c, on}$ 이 각각의 초전도입자들에 의해서 지배되
기 때문이며 같은 조성변화에도 $T_{c, zero}$ 가 더 큰
변화를 보이는 것은 $T_{c, zero}$ 가 초전도입자들 사이
의 이차상에 의해 형성된 Josephson array에 의해
서 지배되기 때문이다¹²⁾.

Fig. 4는 Fig. 3 (a)와 (b)박막의 표면 형상 사
진이고, Fig. 5는 이들의 X-선 회절분석 결과이
다. Fig. 4 (a)는 Fig. 3 (a)박막의 저배율 표면 형

상 사진이고 Fig. 4 (b)는 이를 고배율로 관찰한 것인데 Fig. 3(b)박막의 표면 형상 사진인 Fig. 4 (c)와는 다른 표면 양상을 보인다. Fig. 4(b)는 Fig. 1 (a)에서 관찰된 것과 같이 입자들이 기판 표면에 선택 배향적으로 자란 양상을 보이지만 Fig. 4 (c)는 이러한 양상을 보이지 않고 Fig. 4 (a)에 비해서 입자밀도가 더 높은 표면 형상을

선택 배향적으로 자란 양상을 보인다. 그러나 이러한 액상들은 냉각시에 초전도 입자의 입계에서 이차상을 형성하게 되므로 초전도 전이영역 폭이 커지고 $T_{c, zero}$ 가 낮아진다는 것이다. 반면에 Fig. 3. (b)박막은 조성이 1-2-3에 비교적 가깝기 때문에 액상의 형성이 덜 되어 기판 표면에 성장된 입자들조차도 선택 배향적으로 자랄만한 kinetics를 보장받지 못하고 냉각시에 형성되는 이차상의 영향도 적게 받는 것으로 사료된다.

그러나 Fig. 3 (b)박막 조차도 $T_{c, on}$ 이 80K, $T_{c, zero}$ 가 60K정도로서 우수한 저온 저항 특성을 보이지 않는데, 이는 Fig. 5 (b)에서도 나타나는 바와 같이 Y_2BaCuO_5 , $BaCuO_2$, CuO 등과 같은 액상으로부터 기인된 이차상이 초전도 입자들의 입계에 형성되거나 독립된 입자들로서 박막상에 존재하여 박막의 전기적 특성에 크게 영향을 미치기 때문이며 입계에 존재하는 이차상의 양이 초전도 입자에 비하여 매우 적은 양이라 하더라도 전기적 특성에는 결정적인 영향을 미치기 때문인 것으로 추측된다.

Fig. 6 (a)는 열처리전 박막의 Y : Ba : Cu 비가 1 : 1.5 : 2.8인 박막을 880°C에서 1시간 열처리한 후 관찰한 표면 형상 사진이고 Fig. 6 (b)는 이를 확대한 사진인데, 앞서 제시한 그림들 보다 texture구조의 형성이 훨씬 잘 되었음을 볼 수 있다. Fig. 7은 이 박막의 X선 회절분석 결과인데 $I_{005}/I_{13/110}$ 가 2.67로서 (005)면 방향으로 결정들이 탁월하게 배열되어 있음을 알 수 있다. 하지만 이 박막의 저온저항 특성은 Fig. 3 (c)에서 보는 바와 같이 $T_{c, on}$ 이 42K이며 온도가 내려감에 따라 약간 감소했다가 다시 증가하는 좋지 않은 경향을 보인다. 이러한 현상들은 이 박막의 조성이 앞서 제시된 박막들보다도 1-2-3로부터 더 크게 벗어나기 때문에 일어나는 현상으로 사료된다. 따라서 이와 같은 사실들로 미루어 볼때 박막의 T_c 에 영향을 미치는 가장 중요한 인자는 박막의 조성이며, 박막의 texture구조도 박막 조성의 영향을 크게 받음을 알 수 있다. 앞서 설명한 바와 같이 증착후 열처리를 한 박막의 texture구조는 주로 액상의 형성에 기인하며 액상의 양이 많을수록 texture구조의 형성이 잘 된다. Fig. 6(c), (d)는 YSZ 다결정위에 증착된 열처리전 조성이 1 : 2.1 : 2.6인 박막의 표면 형상의 일부분인데 MgO단결정위에 성장된 Fig. 6 (a), (b)박막들보다 texture구조 형성이 더 잘 되어 있다. 사진에서 보이는 형

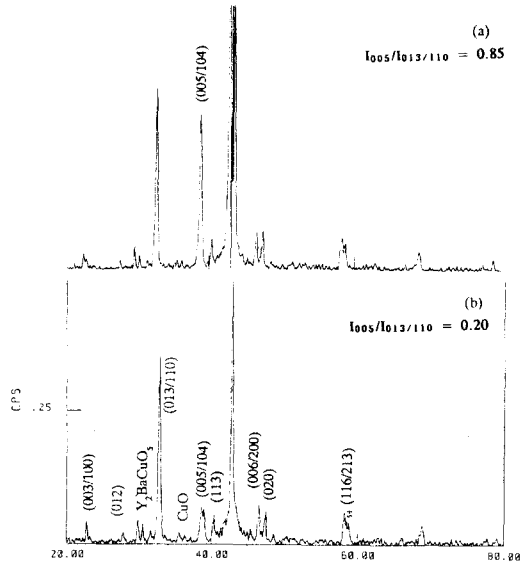


Fig. 5. XRD patterns for YBaCuO thin films with different Y:Ba:Cu mole ratios deposited on MgO (100) and annealed at 880°C for 1h in O₂ : (a) 1:2.38:3.62, (b) 1:2.24:3.40.

가짐을 알 수 있다. 이와 같은 현상은 Fig. 5의 X-선 회절분석 결과에서도 잘 보여주고 있다. Fig. 5 (a)는 $I_{005}/I_{13/110}=0.85$ 로서 선택 배향적으로 성장된 입자들이 상당량 존재함을 보이고, Fig. 5 (b)는 Fig. 3 (b)박막이 이와 같은 현상을 거의 나타내지 않음을 보여준다. Fig. 3 (a)와 Fig. 3 (b)는 박막의 두께가 1.5 μ m정도로서 비슷하기 때문에 이러한 차이점이 발생하는 것은 Fig. 1에서와 같이 두께 차이에 기인된 것이 아니라 두 박막의 조성의 차이에서 기인된 것이라고 생각된다. 즉 Fig. 3 (a)박막은 Fig. 3 (b)박막에 비해서 1-2-3조성으로부터 더 크게 벗어나기 때문에 열처리과정(880°C)에서 $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ 이 아닌 다른 이차상의 액상이 형성될 가능성이 더 크고, 입자들은 이러한 액상의 도움으로 기판 표면에서 에너지면에서 안정한 자리를 찾아가기가 더 용이해지므로

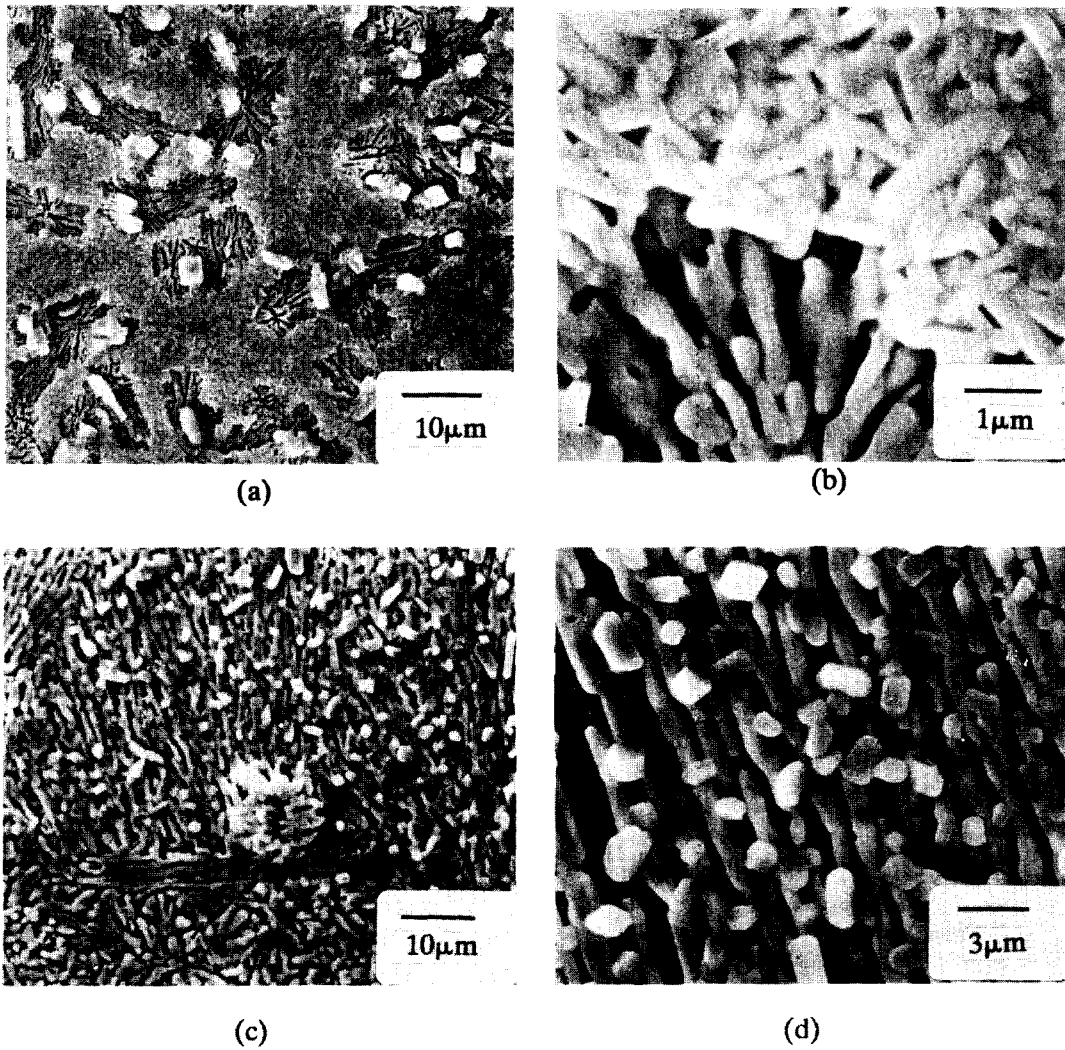


Fig. 6. Texture microstructures of YBaCuO thin films (a) deposited on MgO(100) and annealed at 880°C for 1h, and (c) deposited on YSZ polycrystal and annealed at 900°C for 1h. (b) and (d) are the magnified micrographs of (a) and (c), respectively.

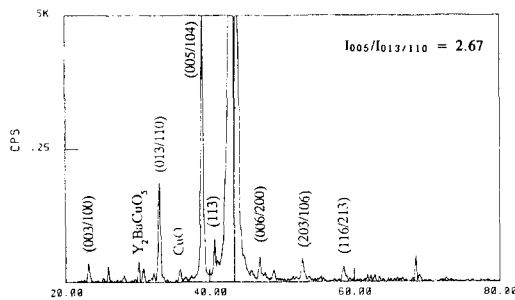


Fig. 7. XRD pattern of YBaCuO thin film in Fig. 6 (a) and (b) showing highly preferred orientation of (005) plane

상은 박막시편의 전체적인 형상이 아니고 일부분만의 형상이므로 일반적인 경향성을 찾기는 어렵지만 다결정 기판의 경우도 부분적인 액상 형성으로 인해서 texture구조를 형성할 수 있음은 잘 알 수 있다. 이러한 texture구조의 형성은 T_c 의 증가에는 별 도움을 주지 못하지만 임계전류밀도 (J_c)의 증가에는 큰 영향을 끼친다고 보고되었다¹³⁾.

4. 결론

본 연구에서는 열처리된 박막의 조성 변화가 초전도체 박막의 전기적 특성 및 미세구조에 미

치는 영향에 대해서 고찰하였다. MgO(100)기판의 표면에 성장되는 입자들은 선택 배향적으로 성장하려는 경향을 가지므로 가늘고 길쭉한 입자 형상을 띠는 반면에 이들 입자 위에 성장되는 다른 입자들은 결정 성장방향의 선호도가 없으므로 등근 모양의 입자 형상을 가진다. 열처리전 박막의 조성이 1-2-3을 벗어나면 증착 후 열처리에 액상이 형성되며, 액상의 양이 많을수록 선택 배향적 성장이 용이해져 texture를 쉽게 이루지만 이러한 액상은 냉각시에 초전도 입자의 입계에 이차상으로 형성되기 때문에 초전도 박막의 전기적 특성, 특히 임계 온도를 저하시킨다. T_c 은 T_{c0} 에 비해서 입계에 형성되는 이차상의 영향을 더 크게 받는다.

참 고 문 헌

1. M. J. Ferrari, M. Johnson, C. F. Wellstood, J. Clarke, P. A. Rosenthal, R. H. Hammond, and M. R. Beasley, *Appl. Phys. Lett.*, **53** 695 (1988).
2. U. Kawabe, H. Hasegawa, T. Nishino, Y. Ito, K. Miyauchi, K. Takagi and F. Nagata, *Proc. Mat. Res. Soc.*, **EA-11**, 253 (1988).
3. R. B. Laibowitz, R. H. Koch, P. Chaudhari and R. J. Gambino, *Phys. Rev.*, **B1 35**, 8821(1987).
4. M. Naito, R. H. Hammond, B. Oh, M. R. Hahn, J. W. P. Hsu, P. Rosenthal, A. F. Marshall, M. R. Beasley, T. H. Geballe and A. Kapitulnik, *J. Mater. Res.*, **2 (6)**, 713(1987).
5. A. D. Berry, D. K. Gaskill, R. T. Holm, E. J. Cukauskas, R. Kaplan and R. L. Henry, *Appl. Phys. Lett.*, **52**, 1743(1988).
6. J. Kwo, M. Hong, R. M. Fleming, A. F. Hebard, M. L. Mandich, A. M. DeSantolo, B. A. Davidson, P. Marsh, and N. D. Hobbins, *Appl. Phys. Lett.*, **52**, 1625(1988).
7. Y. Enomoto, T. Murakami, M. Suzuki and K. Moriwaki, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **26**, L1248 (1987).
8. R. L. Sandstrom, W. J. Gallagher, T. R. Dinger, R. H. Koch, R. B. Laibowitz, A. W. Kleinsasser, R. J. Gambino, B. Bumble and M. F. Chisholm, *Appl. Phys. Lett.*, **53**, 444(1988).
9. M. Muroi, T. Matsui, Y. Koinuma, Y. Okomura, K. Tsuchi, M. Nagano, and K. Mukae, *J. Mat. Res.*, **4**, 781(1989).
10. T. Kisu, Y. Ariyoshi, K. Enpuku, K. Yoshida, M. Takeo, and K. Yomafuji, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **28**, L1385(1989).
11. R. L. Perterson and J. W. Ekin, *Phys. Rev.*, **B37**, 9848(1988).
12. S. I. Shah, C. R. Fincher, M. W. Duch, D. A. Beames, K. M. Unruch, and C. P. Swann, *Thin Solid Films*, **166**, 171(1988).
13. C. W. Yuan, B. R. Zhao, Y. Z. Zhang, Y. Y. Zhao, Y. Lu, H. S. Wang, Y. H. Shi, J. Gao, and L. Li, *J. Appl. Phys.*, **64(8)**, 4091(1988).