

반응성 스퍼터링으로 제조한 Ta₂O₅/Al₂O₃ 다층박막의 유전특성

최재훈·오태성†

홍익대학교 공과대학 신소재공학과

Dielectric Characteristics of the Ta₂O₅/Al₂O₃ Multilayer Thin Films Processed by Reactive Sputtering

Jae Hoon Choi and Tae Sung Oh†

Dept. of Metall. Eng. & Mater. Sci., Hong Ik Univ., Seoul 121-791

(2001년 10월 15일 받음, 2001년 12월 5일 최종수정본 받음)

Abstract Dielectric properties and leakage current characteristics of 100 nm-thick Ta₂O₅/Al₂O₃ multilayer thin films, which were fabricated by reactive sputtering of Al₂O₃ and Ta₂O₅ successively on top of each other for total 9 layers, have been investigated with variation of the Al₂O₃ content (i.e., Ta₂O₅/Al₂O₃ thickness ratio). Ta₂O₅/Al₂O₃ films were amorphous regardless of the Al₂O₃ content. With increasing the Al₂O₃ content from 0% to 100%, refractive index of the Ta₂O₅/Al₂O₃ films decreased linearly from 2.03 to 1.56 and dielectric constant was lowered from 23.9 to 7.7. Variation of the dielectric constant with the Al₂O₃ content was in good agreement with the behavior that was obtained by assuming parallel capacitors of Al₂O₃ and Ta₂O₅. Leakage current characteristics of Ta₂O₅/Al₂O₃ multilayer films were superior to those of Ta₂O₅ and Al₂O₃ films. Ta₂O₅/Al₂O₃ films of 5% and 10% Al₂O₃ content exhibited excellent leakage current densities which were lower than 10⁻⁷A/cm² at 1 MV/cm.

Key words: Ta₂O₅, Al₂O₃, multilayer, dielectric properties, leakage current

1. 서 론

최근 반도체의 고집적화에 따라 기억소자내 캐패시터의 소형화가 급격히 진행됨에 따라, 소자의 작동에 필요한 정전용량의 유지를 위해 캐패시터의 면적을 넓히고 두께를 감소시키기 위한 연구가 진행되어져 왔다. 그러나, 기존의 캐패시터 재료인 SiO₂와 SiO₂/Si₃N₄로서는 그 한계가 들어나, 이를 대체할 수 있는 새로운 고유전율 재료에 대한 개발이 요구되고 있다.¹⁻⁶⁾ 또한, 고기능화, 고속화된 첨단 전자제품 및 소형화, 경량화된 휴대용 정보통신 제품을 구현하기 위한 방안으로 소자간의 배선길이를 효과적으로 단축시키며 실장밀도를 비약적으로 증가시키기 위해 다중칩 모듈 개발이 활발히 이루어지고 있다. 이에 대한 연구의 일환으로써 다중칩 모듈의 소형화, 고속화, 고집적화 및 저가격화를 위해 수동소자를 패키지 내에 내장하기 위한 내장형 수동소자용 박막 캐패시터 재료와 집적기술에 대한 연구가 진행되고 있다.⁷⁾

반도체 기억소자와 다중칩 모듈의 내장형 수동소자에 적용하기 위해 Ta₂O₅, Y₂O₃와 같은 단일금속 산화물^{1, 2, 6)}이나 SrTiO₃, (Ba,Sr)TiO₃, Pb(Zr,Ti)O₃, (Pb,La)(Zr,Ti)O₃ 등의 페로브스카이트계 재료³⁻⁵⁾에 대한 e-beam 증착²⁾, sol-gel³⁾, 반응성 스퍼터링^{1, 4)}, pulsed laser deposition^{6, 8)}, MOCVD^{5, 9, 10)}, PECVD¹¹⁾, atomic layer epitaxy¹²⁾ 등의

제조공정이 연구되고 있다. 그러나 이와 같은 재료들은 대부분 누설전류밀도가 높거나 집적도가 떨어지는 등의 문제점이 있으며 기존의 poly Si 전극과의 계면 안정성 및 공정의 재현성이 확립되지 않은 실정이다.^{13, 14)}

단일금속 산화물 중에서 Ta₂O₅ 박막은 열 안정성과 화학적 안정성이 우수하여 광소자, 고온용 저항, 센서, 태양전지 등에 사용되고 있으며, 유전상수가 비교적 높아 박막 캐패시터용 유전재료로 사용되고 있다.^{1, 6)} Al₂O₃ 박막은 화학적 안정성과 우수한 기계적 특성 및 가시광선 영역에서의 우수한 광학적 특성을 지니고 있어, 내마모 코팅, 확산 방지막 및 반도체 소자의 절연막으로 널리 연구되어 왔다. 또한 알칼리 이온과 같은 불순물에 대한 투과도가 매우 낮고 방사선 내성이 우수하며 손실계수가 낮고 열전도도가 우수하기 때문에 Al₂O₃ 박막을 기억소자의 캐패시터에 적용하기 위한 연구가 진행되고 있으나, Ta₂O₅나 페로브스카이트계 박막에 비해 유전상수가 낮다는 문제점이 있다.^{3, 9, 15)}

본 연구에서는 고집적 기억소자와 다중칩 모듈의 내장형 캐패시터용 유전박막을 개발하기 위한 연구의 일환으로써 DC 반응성 스퍼터링법을 이용하여 Ta₂O₅ 박막과 Al₂O₃ 박막을 교대로 전체 9층을 적층하여 100 nm 두께의 Ta₂O₅/Al₂O₃ 다층박막을 제작 후, Al₂O₃ 함량(Ta₂O₅/Al₂O₃ 두께비)에 따른 유전특성 및 누설전류특성을 분석하였다.

† E-mail: ohts@hongik.ac.kr

2. 실험 방법

Ta₂O₅/Al₂O₃ 다층박막의 반응성 스퍼터링에는 순도 99.99%의 Ta 금속타겟과 Al 금속타겟을 사용하였으며, 기판으로는 Pt(200nm)/Ti(50nm)/SiO₂(300nm)/Si(100)와 p-Si(100)을 사용하였다. 크기 15mm×15mm의 기판을 스퍼터 챔버에 장입한 후, 기판 표면에 흡착된 불순물과 수분을 제거하기 위하여 100 W의 RF 전압을 인가하여 Ar⁺ 이온으로 기판 표면을 5분간 bombardment 하였다. 또한 증착전 타겟 표면에 형성된 산화물 층과 불순물을 제거하기 위해 타겟 표면을 Ar⁺ 이온으로 pre-sputtering 하였다.

기판의 bombardment와 타겟의 pre-sputtering을 완료 후 Al₂O₃ 박막과 Ta₂O₅ 박막을 순차적으로 반복하며 스퍼터 증착하여 Fig. 1과 같은 Ta₂O₅/Al₂O₃ 다층박막을 제작하였다. 이를 위한 예비실험으로서 스퍼터링 가스내 O₂ 함량을 변화시키면서 Ta₂O₅ 박막과 Al₂O₃ 박막을 증착하여 유전특성을 측정함으로써 각 박막에 대한 스퍼터링 가스내 O₂ 함량의 최적 조건을 결정하였다. 챔버내 진공도가 5×10⁻⁶ torr에 도달시 mass flow controller를 사용하여 스퍼터링 가스 (Ar+O₂) 내 O₂ 함량을 50%로 고정하면서 Ar과 O₂ 가스를 챔버 내로 유입하며 상온에서 기판 위에 Al₂O₃ 박막을 성막 후, Al₂O₃ 박막 상에 스퍼터링 가스내 O₂ 함량 75%의 조건으로 Ta₂O₅ 박막을 증착하였다. 이와 같은 과정을 반복하여 Al₂O₃ 함량 (Ta₂O₅/Al₂O₃ 두께비)를 변화시키면서 전체 9층의 다층박막 시편을 제작하였으며, Al₂O₃ 함량에 무관하게 Ta₂O₅/Al₂O₃ 다층박막 시편의 전체 두께는 100nm로 유지하였다. 다층박막의 스퍼터 증착시 전체 스퍼터링 가스의 유입량은 20 sccm으로 고정하였으며, 펌핑 속도를 조절하여 작업압력을 7×10⁻³ torr로 유지하며 고정 전류의 방식으로 스퍼터링 하였다.

스퍼터 증착된 다층박막의 두께는 stylus profiler와 ellipsometer를 이용하여 측정하였으며, ellipsometer를 사용하여 굴절계수를 측정하였다. X-선 회절분석으로 박막의 결정상을 분석하였고, AES (Auger electron spectroscopy)를 이용하여 다층박막의 조성을 분석하였다. FESEM (Field emission scanning electron microscopy)을 사용하여 박막의 미세구조를 관찰하였다. Pt 및 Si 기판에 성막한 Ta₂O₅/Al₂O₃ 다층 박막에 상부전극으로서 200nm 두께의 Al dot (직경 300μm)을 DC 마그네트론 스퍼터링으로

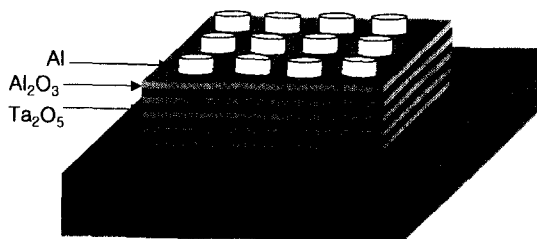


Fig. 1. Schematic illustration of Ta₂O₅/Al₂O₃ films.

형성 후, HP 4194A를 이용하여 Ta₂O₅/Al₂O₃ 다층박막의 유전특성과 C-V 특성을 측정하였으며, HP 4140B로 누설전류 특성을 분석하였다.

3. 결과 및 고찰

스퍼터링 가스내 O₂ 함량을 변화시키면서 상온에서 100 nm 두께로 스퍼터 증착한 Ta₂O₅ 박막과 Al₂O₃ 박막에 대해 1 MHz에서 측정된 유전상수와 손실계수를 Fig. 2에 나타내었다. 이 결과에서 보는 바와 같이, Ta₂O₅ 박막은 스퍼터링 가스내 O₂ 함량이 75%인 조건에서 유전상수 29.56, 손실계수 0.013의 최적 유전특성을 나타내었으며, Al₂O₃ 박막은 스퍼터링 가스내 O₂ 함량 50%의 조건에서 유전상수 7.71, 손실계수 0.009의 최적 유전특성을 나타내었다. Shibata¹⁾와 Alexandrov¹⁶⁾ 등은 각기 반응성 스퍼터링으로 제조한 Ta₂O₅ 박막과 TiO₂ 박막에 대해, 최적의 유전상수를 나타내는 스퍼터링 가스내 O₂ 함량이 존재하며 이는 O₂ 함량에 따른 박막의 결정상 변화에 기인한다고 보고하였다. 그러나 본 연구에서는 상온에서 스퍼터링 가스내 O₂ 함량을 각기 40%-75%와 25%-75% 범위에서 변화시키며 스퍼터 증착한 Ta₂O₅ 및 Al₂O₃ 박막은 X-선회절 분석 결과 모두 비정질임을 확인할 수 있었다. 따라서 반응성 스퍼터링법으로 상온에서 증착한 Ta₂O₅ 박막과 Al₂O₃ 박막이

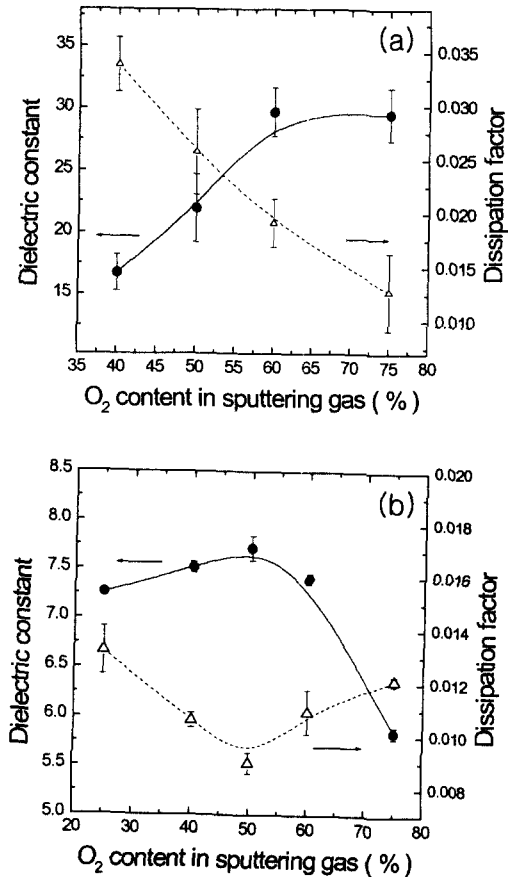


Fig. 2. Dielectric constant and loss tangent of (a) Ta₂O₅ and (b) Al₂O₃ films measured at 1 MHz as a function of the O₂ content in the sputtering gas.

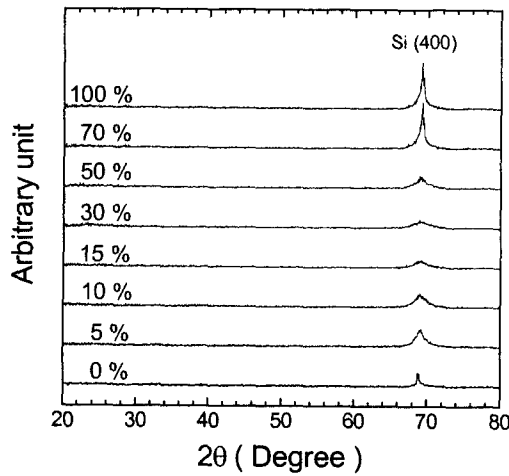


Fig. 3. XRD patterns of the Ta₂O₅/Al₂O₃ films as a function of the Al₂O₃ content.

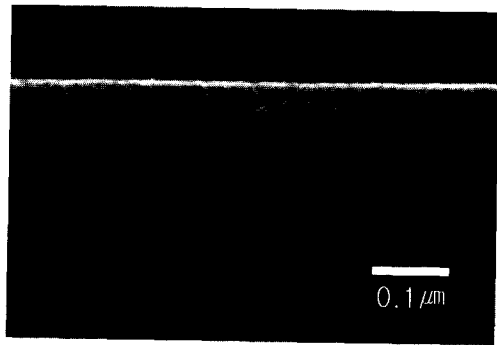


Fig. 4. Cross-sectional FESEM image of Ta₂O₅/Al₂O₃ film of 50% Al₂O₃ on Si substrate.

각기 스퍼터링 가스내 O₂ 함량 75% 및 50%의 조건에서 최적의 유전특성을 나타내는 것은 박막의 결정상 변화에 기인한다기보다는 각기 이와 같은 조건에서 성장한 Ta₂O₅ 박막과 Al₂O₃ 박막의 조성이 화학양론비에 가장 근접하였기 때문으로 추론할 수 있다.

각기 최적의 유전특성을 나타내는 스퍼터링 가스내 O₂ 함량의 조건으로 Si 기판에 Al₂O₃와 Ta₂O₅를 순차적으로 증착하여 형성한 Ta₂O₅/Al₂O₃ 다층박막의 XRD 분석결과를 Fig. 3에 나타내었다. Al₂O₃ 함량을 0%에서 100% 변화시키며 상온에서 반응성 스퍼터링으로 증착된 100nm 두께의 Ta₂O₅/Al₂O₃ 다층박막은 각 단일박막과 마찬가지로 비정질임을 확인할 수 있었다. 반응성 스퍼터링으로 상온에서 단일금속 산화물 박막을 증착시 기판 종류에 무관하게 비정질 박막으로 성장된다고 보고되는 것¹⁷⁾과 같이, 상온에서 Pt 기판에 증착한 Ta₂O₅/Al₂O₃ 다층박막의 경우에도 비정질 박막으로 성장되었다.

Al₂O₃ 함량이 50%, 즉 Ta₂O₅와 Al₂O₃ 박막의 두께비가 1 : 1인 Ta₂O₅/Al₂O₃ 다층박막의 단면 FESEM 미세구조를 Fig. 4에 나타내었으며, Fig. 5에는 Auger depth profile을 나타내었다. Ta₂O₅와 Al₂O₃ 각 층의 두께가 각기 약 10 nm이기 때문에 Fig. 4와 같이 FESEM으로 관찰한 단

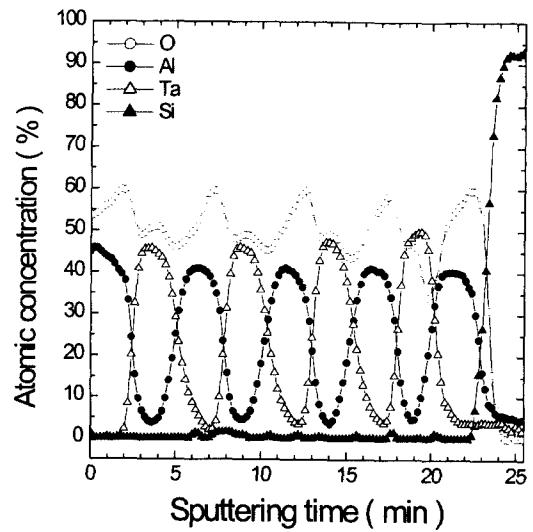


Fig. 5. Auger depth profile of Ta₂O₅/Al₂O₃ film of 50% Al₂O₃ on Si substrate.

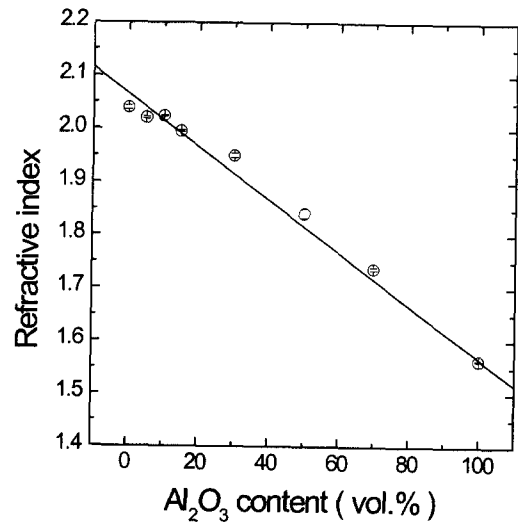


Fig. 6. Refractive index of Ta₂O₅/Al₂O₃ films as a function of the Al₂O₃ content.

면 미세구조에서는 박막의 다층구조를 관찰할 수 없었다. 그러나, Fig. 5에 나타낸 Auger depth profile로부터 50% Al₂O₃ 함량의 Ta₂O₅/Al₂O₃ 박막에서는 Ta₂O₅와 Al₂O₃ 박막의 두께비가 거의 1 : 1로 유지된 다층구조가 형성되었음을 관찰할 수 있었다. 이로부터 상온에서 다층구조로 증착한 Ta₂O₅/Al₂O₃ 박막에서는 스퍼터링시 발생하는 이온 플라즈마에 의한 Ta와 Al 이온들의 혼합 효과를 제외하고는 (Ta,Al)-산화물을 형성할 정도로 상호확산이 발생하지 못하는 것을 알 수 있었다.

Fig. 6에 Al₂O₃ 함량에 따른 Ta₂O₅/Al₂O₃ 다층박막의 굴절계수를 나타내었다. 결정질 Al₂O₃ 박막은 1.65~1.75 범위의 굴절계수를 나타내며 비정질 Al₂O₃ 박막은 1.3~1.65 범위의 굴절계수를 나타낸다고 보고^{2,8,10,18,19)}되고 있으며, 비정질 Ta₂O₅ 박막은 2.05의 굴절계수를 나타낸다고 보고되었다.^{2,7)} 본 연구에서도 반응성 스퍼터링으로 상온에서 증착한 비정질 Ta₂O₅ 박막과 Al₂O₃ 박막은 Fig. 6에서

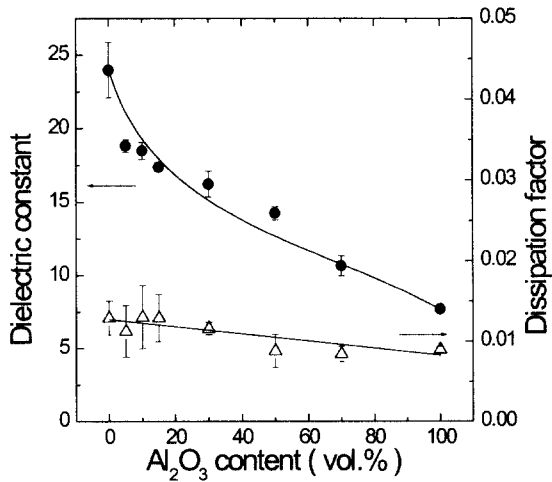


Fig. 7. Dielectric constant and loss tangent of Ta₂O₅/Al₂O₃ films measured at 1 MHz as a function of the Al₂O₃ content.

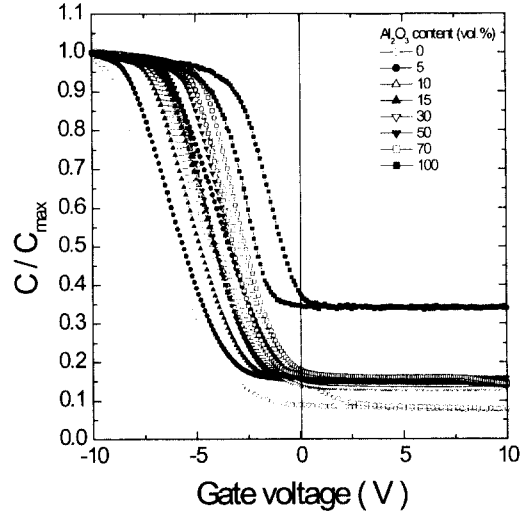


Fig. 9. C-V curves measured for MIS structure of Ta₂O₅/Al₂O₃ films.

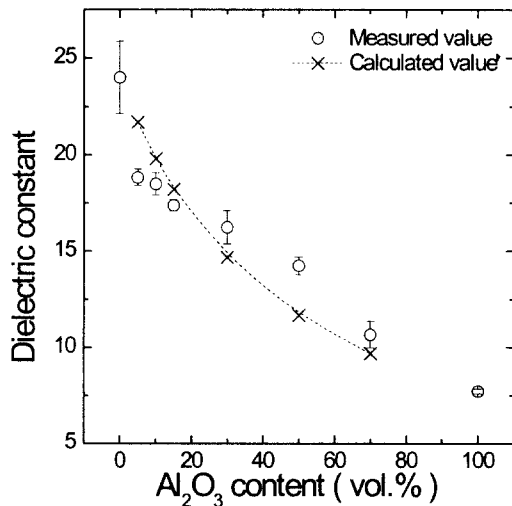


Fig. 8. Comparison of the measured dielectric constant of Ta₂O₅/Al₂O₃ films with the estimated values.

와 같이 각기 2.03 및 1.56의 굴절계수를 나타내었다. Ta₂O₅/Al₂O₃ 다층박막에서는 굴절계수가 낮은 Al₂O₃ 함량이 증가함에 따라 다층박막의 굴절계수가 2.03에 1.56으로 거의 직선적으로 감소하였다.

Fig. 7에 1 MHz에서 측정된 Ta₂O₅/Al₂O₃ 다층박막의 유전상수와 손실계수를 Al₂O₃ 함량의 함수로 나타내었다. Ta₂O₅ 박막은 23.9의 유전상수를 나타내었으며, Al₂O₃ 함량이 증가함에 따라 Ta₂O₅/Al₂O₃ 다층박막의 유전상수가 감소하여 Al₂O₃ 단일박막은 7.7의 유전상수를 나타내었다. 손실계수의 경우에도 Al₂O₃ 함량 증가에 따라 매우 적은 정도로 감소하였다. Fig. 5의 Auger depth profile과 같이 Ta₂O₅/Al₂O₃ 다층박막은 Ta₂O₅와 Al₂O₃이 순차적으로 적층된 병렬 캐패시터 구조로 되어 있으며, 이와 같은 경우 Ta₂O₅/Al₂O₃ 다층박막의 이론적 유전상수는 식 1에 나타낸 혼합법칙²⁰⁾을 따르게 된다.

$$\frac{1}{k_{total}} = \frac{v_{Ta_2O_5}}{k_{Ta_2O_5}} + \frac{v_{Al_2O_3}}{k_{Al_2O_3}} \quad (1)$$

식 1에서 k 는 유전상수이고, v 는 부피분율이다. Ta₂O₅와 Al₂O₃의 부피분율과 유전상수를 식 1에 대입하여 Al₂O₃ 함량에 따른 Ta₂O₅/Al₂O₃ 다층박막의 이론적 유전상수를 구하였으며, 이를 실제 측정값과 비교하여 Fig. 8에 나타내었다. 병렬 캐패시터 구조를 가정하고 구한 Ta₂O₅/Al₂O₃ 다층박막의 이론적 유전상수와 실제 측정값이 잘 일치하였으며, 이로부터 상온에서 스퍼터 증착한 Ta₂O₅/Al₂O₃ 다층박막에서는 이를 구성하는 Ta₂O₅와 Al₂O₃ 각 층들이 상호확산이 거의 없이 각기 단일박막의 특성을 유지하고 있다고 사료된다.

Ta₂O₅/Al₂O₃ 다층박막을 Si 기판에 스퍼터 증착하여 형성한 MIS (metal insulator semiconductor) 구조에 대해 Al₂O₃ 함량에 따른 C-V 곡선을 측정하였으며, 그 결과를 Fig. 9에 나타내었다. Fig. 9에서와 같이 Al₂O₃ 함량에 무관하게 Ta₂O₅/Al₂O₃ 다층박막의 C-V 곡선에서 축적영역과 공핍영역 및 반전영역의 구분을 확연히 관찰할 수 있었다. 또한 모든 Ta₂O₅/Al₂O₃ 다층박막에서 flatband 전압의 이동 (ΔV_{FB})의 이동과 반시계 방향의 이력현상이 관찰되었는데, 이는 스퍼터링 방식으로 제조한 절연체 박막을 MIS 구조에 적용시 절연체/반도체 계면의 방사 손상에 의해 다수의 산화물 포획전하와 이동전하가 발생하데 기인하는 것으로 보고되고 있다.²¹⁾ Ta₂O₅/Al₂O₃ 다층박막의 C-V 곡선의 축적 영역에서 측정된 최대 캐패시턴스(C_{max})를 Fig. 10에 표시하였는데, Al₂O₃ 함량에 따른 최대 캐패시턴스의 변화는 Fig. 7에 나타낸 Pt 기판상에 제조한 다층박막의 유전상수의 변화와 유사한 거동을 나타내었다.

Al₂O₃ 함량에 따른 Ta₂O₅/Al₂O₃ 다층박막의 누설전류밀도를 1 MV/cm에서 측정하였으며, 그 결과를 Fig. 11에 나타내었다. Al₂O₃ 박막에 비해 Ta₂O₅ 박막이 보다 낮은 누설전류밀도를 나타내었으나 이 두 박막 모두 10⁻⁶A/cm² 이상의 누설전류밀도를 나타내었다. 그러나 Ta₂O₅/Al₂O₃로 다층박막화 함으로써 단일박막보다 누설전류밀도를 감소시킬 수 있었으며, 특히, 5%와 10% Al₂O₃ 함량의 다층

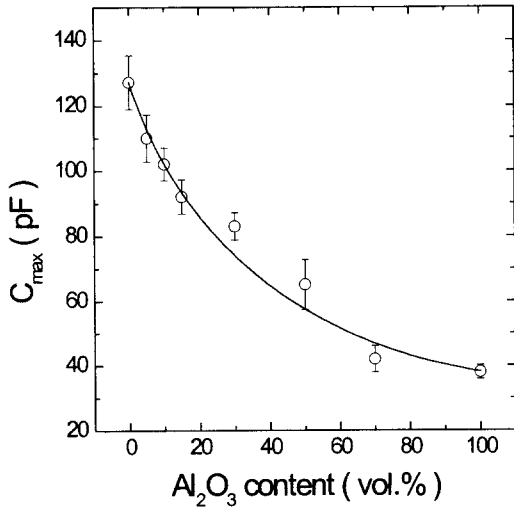


Fig. 10. Maximum capacitance (C_{max}) measured on C-V curves of Ta₂O₅/Al₂O₃ films as a function of the Al₂O₃ content.

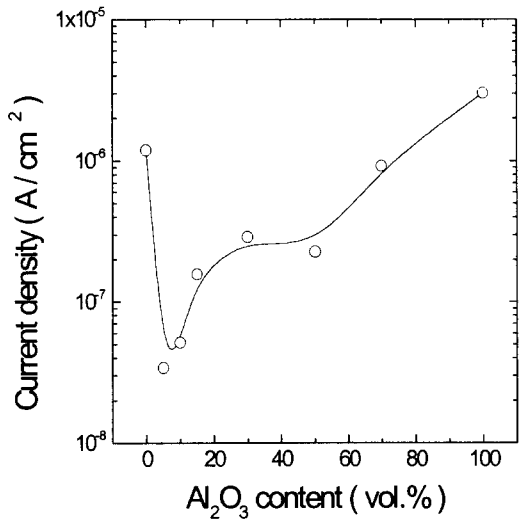


Fig. 11. Leakage current density of Ta₂O₅/Al₂O₃ films measured at 1MV/cm.

박막의 경우에는 10^{-7} A/cm² 이하의 우수한 누설전류 특성을 나타내었으며 Al₂O₃ 함량이 증가함에 따라 누설전류밀도도 증가하는 경향을 나타내었다. Ta₂O₅/Al₂O₃ 다층박막이 Ta₂O₅ 및 Al₂O₃ 단일박막에 비해 더 낮은 누설전류밀도를 나타내는 것은 단일 산화막보다 다층형태의 캐패시터에서 절연파괴전압이 증가된다는 보고²²⁾와 마찬가지로 Ta₂O₅/Al₂O₃ 계면저항의 증가에 기인하는 것으로 판단된다.

4. 결 론

1) 상온에서 DC 반응성 스퍼터링으로 100nm로 두께로 증착한 Ta₂O₅ 박막은 스퍼터링 가스내 O₂ 함량 75%의 조건에서 유전상수 29.56, 손실계수 0.013의 최적특성을 나타내었으며, Al₂O₃ 박막은 스퍼터링 가스내 O₂ 함량 50%의 조건에서 증착시 유전상수 7.71, 손실계수 0.009의 최적특성을 나타내었다.

2) 상온에서 반응성 스퍼터링으로 증착한 Ta₂O₅/Al₂O₃

다층박막은 모두 비정질 박막으로 성장하였으며, Ta₂O₅/Al₂O₃ 다층박막의 굴절계수는 Al₂O₃ 함량이 0%에서 100%로 증가함에 따라 2.03에 1.06으로 거의 직선적으로 감소하였다.

3) Al₂O₃ 함량이 증가할수록 Ta₂O₅/Al₂O₃ 다층박막의 유전상수가 감소하였으나, 손실계수는 거의 변화하지 않았다. Al₂O₃ 함량이 다른 Ta₂O₅/Al₂O₃ 다층박막의 유전상수의 변화는 Al₂O₃와 Ta₂O₅ 박막의 병렬 다층 캐패시터를 가정하고 구한 이론적 캐패시턴스 값과 거의 유사한 거동을 나타내었다.

4) Ta₂O₅/Al₂O₃ 다층박막의 MIS 구조에서 측정된 C-V 곡선은 Al₂O₃ 함량에 무관하게 측정영역과 공핍영역 및 반전영역을 나타내었다. C-V 곡선의 측정 영역에서 측정된 최대 캐패시턴스 (C_{max})의 Al₂O₃ 함량에 따른 변화는 Pt 기판상에 제조한 다층박막의 유전상수와 유사한 거동을 나타내었다.

5) Ta₂O₅/Al₂O₃ 다층박막은 Ta₂O₅ 및 Al₂O₃ 박막에 비해 낮은 누설전류밀도를 나타내었다. 특히 5%와 10% Al₂O₃ 함량의 다층박막의 경우 10^{-7} A/cm² 이하의 우수한 누설전류특성을 나타내었으며, Al₂O₃ 함량이 증가하면서 누설전류밀도가 증가하였다.

감사의 글

본 연구는 전자패키지 재료연구센터(Center for Electronic Packaging Materials)의 지원에 의해 이루어졌으며, 이에 감사드립니다.

참 고 문 헌

1. S. Shibata, Thin Solid Films, **227**, 1 (1996).
2. V. Mikhaelashvili, Y. Betzer, I. Prudnikov, M. Orenstein, D. Ritter, and G. Eisenstein, J. Appl. Phys., **84**, 6747 (1998).
3. S.H. Kim, C.E. Kim, and Y.J. Oh, Thin Solid Films, **305**, 321 (1997).
4. T. Yasumoto, N. Yanase, K. Abe and T. Kawakubo, Jpn. J. Appl. Phys., **39**, 5369 (2000).
5. S. Hazumi, T. Asano, M. Hattori and H. Nakashima, Jpn. J. Appl. Phys., **34**, 5086 (1995).
6. J.Y. Zhang and I.W. Boyd, Appl. Phys., A **70**, 657 (2000).
7. S.D. Cho and K.W. Paik, Mater. Sci. Eng., B **67**, 108 (1999).
8. J. Gottmann and E.W. Kreutz, Surf. Coat. Technol., **116**, 1189 (1999).
9. V.A.C. Haanappel, D.v.d. Vendel, H.S.C. Metselaar, H.D. van Corbach, T. Fransen and P.J. Gellings, Thin Solid Films, **254**, 153 (1995).
10. V.A.C. Haanappel, H.D. van Corbach, T. Fransen and P. J. Gellings, Surf. Coat. Technol., **72**, 13 (1995).
11. F. Chiu, J. Wang, J.Y. Lee and S.C. Wu, J. Appl. Phys.,

- 81, 6911 (1997).
12. M. Ritala, H. Saloniemi, M. Leskelä, T. Prohaska, G. Friedbacher and M. Grasserbauer, *Thin Solid Films*, **286**, 54 (1996).
 13. C. Isobe and M. Saitoh, *Appl. Phys. Lett.*, **56**, 907 (1990)
 14. J.Y. Kim, *Bull. Kor. Ceram. Soc.*, **11**, 138 (1996).
 15. Z. Jin, H.S. Kwok, and M. Wong, *IEEE Electron Device Lett.*, **19**, 502 (1998).
 16. P. Alexandrov, J. Koprinarove, and D. Todorov, *Vacuum*, **47**, 1333 (1996).
 17. K. Koski, J. Hölsä, and P. Juliet, *Thin Solid Films*, **339**, 240 (1999).
 18. J.M. Schneider, W.D. Sproul, R.W.J. Chia, M.S. Wong, and A. Matthews, *Surf. Coat. Technol.*, **96**, 262 (1997).
 19. P.V. Patil, D.M. Bendale, R.K. Puri, and V. Puri, *Thin Solid Films*, **288**, 120 (1996).
 20. W.D. Kingery, H.K. Browen and D.R. Uhlmann, *Introduction to Ceramics*, 2nd ed., p. 947, Wiley, U.S.A., (1976).
 21. S. Wolf and R.N. Tauber, *Silicon Processing for the VLSI Era Vol. 1*, p. 220, Lattice Press, U.S.A., (1986).
 22. B. G rard Segda, M. Jacquet, C. Caopera, G. Baud and J. Pierre Besse, *Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res.*, B **170**, 105 (2000).