

報 文

ECR マイクロ波プラズマ中の Al の陽極酸化

北九州職業訓練短期大学校電子科 松 村 幸 輝

Anodization of Al in ECR Microwave-Discharged
Oxygen Plasma

Koki Matsumura

要 約 本論文は、電子サイクロトロン共鳴条件を備えたマイクロ波プラズマ中で Al 薄膜を陽極酸化した場合の酸化条件による酸化電流効率の変化とそれに影響する因子、および酸化膜の成長を左右する原子状酸素の生成について検討した結果を述べたものである。先ず、酸化電流効率はマイクロ波入力電力の大きさ、プラズマ生成部からの距離、酸素ガス圧によって変化することを示した。そして、原子状酸素の生成機構を簡単なモデルと近似に基づいて検討し、電子とイオンがプラズマ中での両極性拡散の過程で解離再結合によって消失する際に、多量の原子状酸素が生成される可能性があることを示唆した。また、試料表面に供給される原子状酸素が酸化膜の成長を律速するとして概算した必要最小限のプラズマ中の原子状酸素密度は、酸素ガス圧や試料の位置などの変化に対して最大値を示した。これは、原子状酸素の生成が電子密度や酸素分子密度あるいは電子エネルギーなどの条件に複雑に依存することを示唆するものである。

I まえがき

プラズマ陽極酸化は、酸素プラズマを用いたドライプロセスの低温酸化法であるので、集積回路の製造工程における酸化膜の生成や各種材料の表面改質などにおいて有用な技術と考えられている。この酸化法は、陽極あるいは管壁などの基準電位に対して酸化しようとする試料に外部からバイアス電位を掛けることによって酸化膜中のイオン種の伝導を強め、酸化膜の成長速度を高めるとともに、酸化膜の厚さの制限が容易で、適当なマスクを用いることによって選択的に酸化膜を形成できるという利点がある。

プラズマ陽極酸化に用いられるプラズマの生成法として、直流放電法⁽¹⁾、高周波放電法⁽²⁾、マイクロ波放電法⁽³⁾などがある。最近では、プラズマ酸化に限らず、良質の薄膜を得ることを目的として、電子サイクロトロン共鳴（ECR）条件を備えた磁場を用いたマイクロ波放電プラズマがプラズマプロセスに広く応用されるようになってきた。この放電方式は、磁場によってプラズマが絞れるので、プラズマとチャンバー内壁の接触が抑えら

れ、不純物の生成膜への混入を防ぐことができるなどの利点を有する。したがってこの放電方式は、MOSFET のゲート絶縁物など、特に不純物に敏感な部分を構成する酸化物の作成法として、プラズマ酸化に既に応用されている⁽⁴⁾。しかし、プラズマ酸化は、試料に外部から電位を掛けないで電気的にフローティングの状態で酸化する方法で、一般にこの酸化法とは区別されるプラズマ陽極酸化にこの放電方式が応用された例は少ない。したがって、この放電方式によるプラズマ陽極酸化の酸化特性や酸化機構は明かにされていない。

また、プラズマ陽極酸化における酸化機構に関しては、プラズマ特有の複雑さのため、未だ解明されていない部分が多い。酸化膜の成長については、当初、プラズマ中で生成された負酸素イオンが酸化反応に直接関与すると考えられた⁽⁵⁾が、その後、酸化反応に寄与する大部分の負酸素イオンは、試料表面で生成されると示唆された^{(6), (7)}。筆者はこれに関するモデルを仮定し、試料表面に吸着した原子状酸素に電子が付着することによって負酸素イオンが生成されることを定量的に示した⁽⁸⁾。しかし、酸化反応において重要な役割を果たす原子状酸素

の生成過程については、プラズマ物理学の立場から基本的な検討が種々されているものの、これに示される酸素分子の解離機構だけではプラズマ中での複雑な酸化反応を理解するには未だ不十分である。したがって、プラズマ中での酸化反応において原子状酸素の生成過程の詳細を明かにすることは、物性的および工業的見地からも必要であると考えられる。

本論文において、先ず、電子サイクロトロン共鳴条件を備えた磁界中で生成したマイクロ波プラズマ中で Al 薄膜を陽極酸化した場合の酸化条件による酸化電流効率の変化を示し、プラズマパラメータの変化から酸化電流効率に関与する要因を調べた結果について述べる。次に、プラズマ中での原子状酸素の生成過程について簡単なモデルと近似を用いて検討し、原子状酸素の生成が荷電粒子の両極性拡散の途中で起こる解離再結合に基づくことを示唆した。

II 実験装置と方法

図1は本実験に使用したECRマイクロ波プラズマ陽極酸化装置の概略図である。導波管を通ってアルミナのマイクロ波入射窓からSUS304製チャンバーに導かれたマイクロ波(2.45 GHz)と磁場の相互作用によって、主に電磁石の中心部でプラズマが発生する。電磁石の中心部分での磁束密度は、2.45 GHzのマイクロ波との相互作用によって電子サイクロトロン共鳴が生じる875 Gsに設定される。この条件下で発生したプラズマは、磁場を印加しない場合では通常の直流やマイクロ波の電力の供給だけでは放電しない高真空の領域から、磁場が

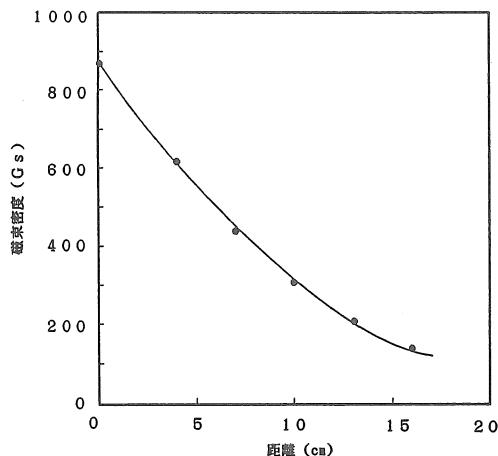


図2. プラズマ生成部からの距離と磁束密度の関係。

なくとも放電する低真空領域まで安定した状態を示した。磁場を作用させた場合に、チャンバーの中心に沿って測定した磁束密度をプラズマ生成部の中心からの距離の関数として図2に示す。

酸化に当たっては、先ずチャンバー内を油拡散ポンプで 1×10^{-3} Pa 程度まで排気した後、酸素ガスを導入し、常に排気しながら所定の圧力になるように調節した。プラズマの生成および酸化の条件は、マイクロ波入力電力の大きさ、プラズマ生成部から試料までの距離、および酸素ガス圧とした。

酸化する試料にはガラス基板に高周波マグネットロൺスパッタリングで生成したアルミニウム薄膜を用いた。酸化する部分は10mm×10mmの正方形の形状とした。ま

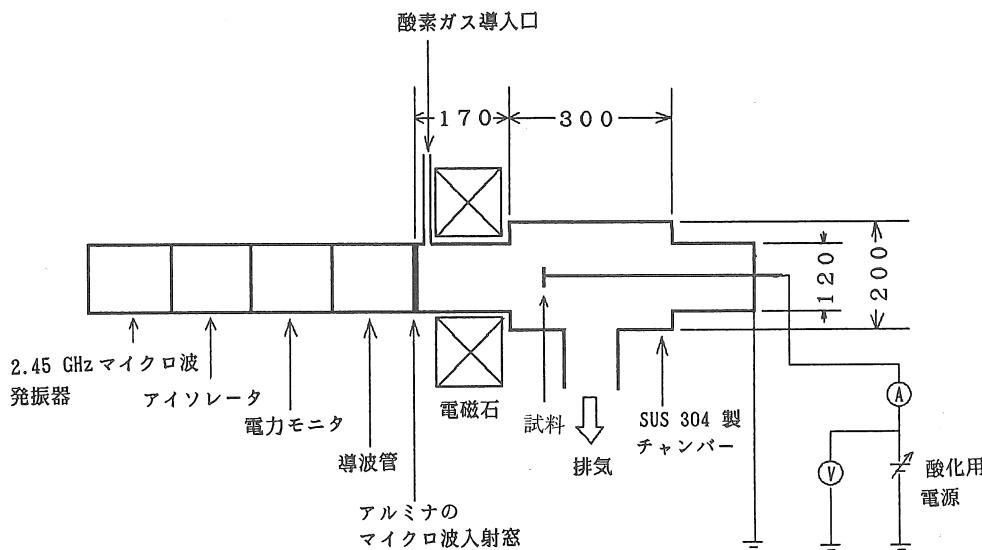


図1. ECRマイクロ波プラズマ陽極酸化装置。
(寸法の単位は mm)

た酸化は、酸化膜の成長速度が容易に観測することができる定電流法で行なった。この場合の酸化電流の値は、試料の表面電位がプラズマ空間電位と等しくなるときの電流値に設定した。これは、筆者らが先に報告したように、酸化電流効率が最大となること⁽⁹⁾、および試料近傍の荷電粒子がプラズマ中とほぼ同様な振舞いをするので電子やイオンの役割を把握することが容易であること⁽⁸⁾に因る。この値は、酸化直前に試料に2~3秒間ランプ電圧を印加することによって測定したラングミュアープローブ特性から見い出した。また、プラズマパラメータはこの特性から算出した。なお、試料に捕集される電子数が磁場の影響を極力受けないように、試料面は磁力線と垂直になるように配置した。本来、プラズマの測定はプラズマを擾乱しないようにすることが重要であるが、プラズマプロセスでは挿入された試料によって既に擾乱されているプラズマを用いることになるので、その擾乱されたプラズマの状態を正確に知る必要がある。したがってここでは、酸化時のプラズマの状態を知るために、酸化直前に試料を用いてプローブした。

また、磁場中での電子密度の測定は飽和電子電流の代わりに、通常、磁場に影響されない飽和イオン電流を用いることが多い。これは、エネルギーの小さい電子ほど磁場の影響を受けやすいので、磁場が強まると飽和電子電流が減少して正確な飽和電子電流の値を測定できないためである。しかしここでは、酸化反応に関わるプラズマの状態を知るために、試料に捕集される電子電流をそのまま用いている。したがって、実際にプラズマ中の電子密度はこの方法で得られた値よりも若干大きい値となっている。電子温度については、プローブの電子電流特性の高エネルギー領域の傾きを用いて求めるので、磁場の影響は少ないものと考えられる。

III 実験結果と考察

1. マイクロ波入力電力による変化

図3はECRマイクロ波プラズマ陽極酸化の場合の酸化電圧一時間特性の一例を示す。なお、この場合の条件は、酸素ガス圧を20 Pa、プラズマ生成部の中心からの距離を10 cm、マイクロ波の入射電力をそれぞれ(A)250W、(B)400W、(C)550W、(D)700W、酸化電流を(A)0.29mA、(B)0.7mA、(C)0.6mA、(D)0.75mAとした。これらの特性は、筆者が以前報告した直流放電プラズマ中の陽極酸化の場合⁽¹⁰⁾とほぼ同様な酸化電圧の時間変化を示している。図4はそれぞれの場合の酸化初期における酸化電流効率とマイクロ波入力電力の関係を

示す。これより、この実験におけるマイクロ波入力電力の範囲内では、酸化電流効率は変化しないことがわかる。この場合の電子密度と電子温度の変化を図5に示す。電子密度および電子温度ともに400 Wまでは入力電力の増加に伴って増加するが、それ以上ではあまり大きな増

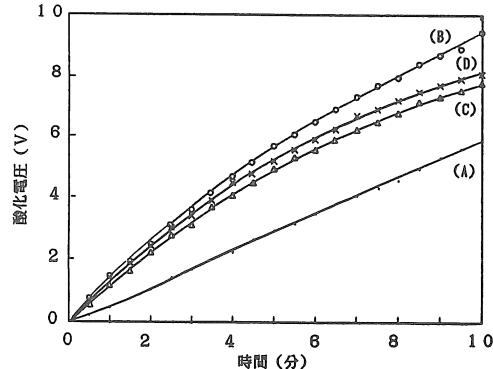


図3. 酸化電圧一時間特性

マイクロ波入力電力および酸化電流はそれぞれ、(A)250W, 0.29mA, (B)400W, 0.7mA, (C)550W, 0.6mA, (D)700W, 0.75mA.

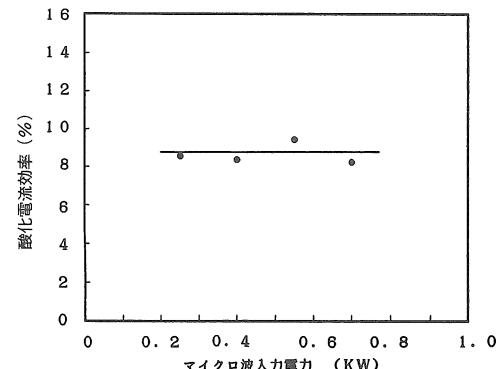


図4. 酸化電流効率とマイクロ波入力電力の関係.

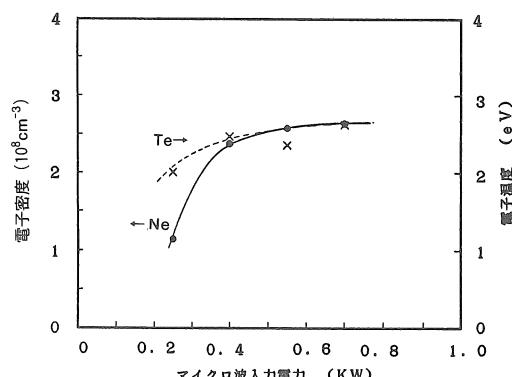


図5. マイクロ波入力電力による電子密度と電子温度の変化.

加はない。ここで、低電力によるプラズマでは飽和電子電流が小さいため酸化電流は小さいが、酸化電流効率は他のものとほぼ等しく、酸化電流効率と電子密度そのもののとの直接の相関はないものと思われる。

2. プラズマ発生部からの距離による変化

図6は、プラズマ生成部の中心部から試料までの距離を変えて酸化した場合の酸化初期における酸化電流効率の変化を示す。なお、酸素ガス圧は、9.3 Pa（実線で示す）、および26.7 Pa（破線で示す）とした。同図において、プラズマ生成部の中心から約13 cm離れた位置で最も高い酸化電流効率が得られることが示されている。図7は、この場合の電子密度と電子温度の変化を示す。

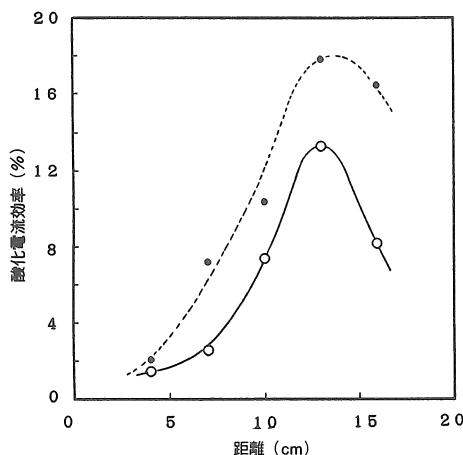


図6. プラズマ生成部からの距離による酸化電流効率の変化 実線は9.3 Pa、波線は26.7 Paの酸素ガス圧の場合。

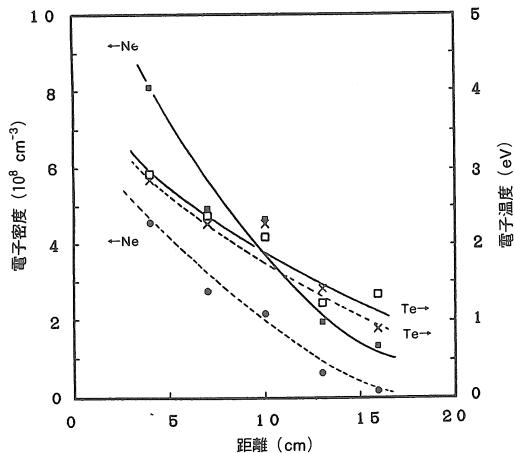


図7. プラズマ生成部からの距離による電子密度と電子温度の変化 実線は9.3 Pa、波線は26.7 Paの酸素ガス圧の場合。

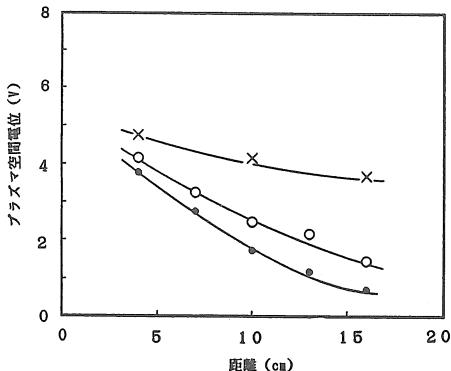


図8. プラズマ生成部からの距離によるプラズマ空間電位の変化
×は1.3 Pa、○は9.3 Pa、●は26.7 Paの酸素ガス圧の場合。

電子密度および電子温度とともに、プラズマ生成部から離れるにしたがって低減しており、また、酸素ガス圧が高いほど小さくなっている。図8は管壁電位を基準としたプラズマ空間電位の距離による変化を示したものである。プラズマ空間電位はプラズマ生成部から離れるにしたがって低下し、また気圧が高い程その減少率は大きく、したがって電界強度は大きくなる。例えば、電界強度は、プラズマ生成部から10 cmの位置において、気圧が1.3Paで0.09 V/cm、9.3 Paで0.19 V/cm、27 Paで0.27V/cmと計算される。これは移動度の大きい電子がイオンよりも速く拡散することによる。

3. 酸素ガス圧による変化

図9の特性はそれぞれ、酸素ガス圧を 1.3×10^{-1} Pa～ 5.2×10^1 Paとして生成したプラズマ中で、試料をプラズマ生成部の中心から(A)4 cm、(B)10 cm、および(C)16 cm離して陽極酸化した場合の酸化初期の酸化電流効率の酸素ガス圧依存性を示す。なお、マイクロ波の入射電力は550 W一定とした。同図において酸化電流効率は、

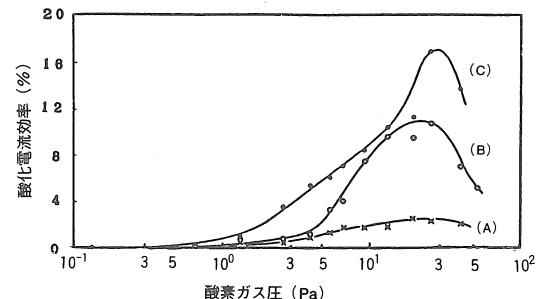


図9. 酸化初期における酸化電流効率の酸素ガス圧依存性
プラズマ生成部から試料までの距離はそれぞれ、(A) 4cm, (B) 10cm, (C) 16cm。

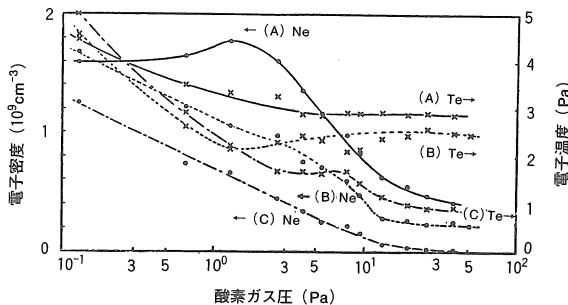


図10. 電子密度および電子温度の酸素ガス圧依
 プラズマ生成部から試料までの距離はそれぞれ、
 (A) 4cm, (B) 10cm, (C) 16cm.

高真空側では酸素ガス圧の増加に伴って急増し、酸素ガス圧が20 Pa～27Paで最大となった後、酸素ガス圧の増加に伴って減少する傾向を示している。この結果は、高真空領域での酸化電流効率は極めて低く、この領域での酸化活性種の生成が行なわれにくいことを示唆している。

図10は上の各酸化条件のときのプラズマの電子密度および電子温度の値を示す。電子温度は、高真空側では、いずれの特性においても高く、ほぼ同程度の値を示す。酸素ガス圧が高くなると電子温度は、いずれも低下する傾向があるが、プラズマ生成部から離れるほどその傾向は強く、より低い値を示す。また、(A)では4 Pa以上で、(B)では1.3 Pa以上で、ほぼ一定の電子温度を示すが、(C)では漸減する傾向にある。一方、電子密度も同様に、いずれも高真空側においては高いが、酸素ガス圧が高くなるにしたがって(B)および(C)では一様に低下し、(A)では2.7 Paまではほぼ一定で、それ以上の酸素ガス圧になると減少する。また、上述した結果と同様に、電子密度もプラズマ生成部から離れるほど低くなる。

酸化電流効率の変化において酸素ガス圧やプラズマ生成部からの距離に最適条件が存在することから、試料表面に吸着した分子状酸素の電子による解離付着によって負酸素イオンが生成される⁽¹¹⁾と考えるよりもむしろ、プラズマ中の電子衝突による分子状酸素の解離によって原子状酸素が発生し、これが試料表面に吸着して負酸素イオンとなって酸化に寄与するものと考えられる。そして、その酸化活性種の生成がプラズマが拡散していく過程で行なわれ、そのため電子による分子状酸素の解離に適度の酸素分子密度と電子エネルギーが必要であることが示唆される。また、放電方式が同じ直流放電であっても、放電電極や試料の位置などの幾何学的寸法が異なることによって酸化電流効率は大きく変化する。例えば、同軸型放電電極で構成されるプラズマ生成部から

試料台を離した構造を持った装置による酸化電流効率は、平行平板放電電極によって形成される陽光柱内に試料台を配置した場合のものよりも大きい値を示す⁽⁸⁾。これは、プラズマ生成部で生成された荷電粒子が試料の位置まで拡散する間に原子状酸素が生成されることを示唆しており、上の結果を支持するものである。この場合、電子密度や電子温度などのプラズマパラメータはこれを解析する上で重要な鍵を握るものと思われる。

4. 原子状酸素の生成

ここでは、酸化膜の成長に密接に関与する原子状酸素の生成について述べる。

先ず、図10に示される結果から、(A)の位置から(C)の位置まで電子が拡散する過程で電子密度が減少する割合を、(A)の位置での電子密度を基準にして気圧ごとに計算すると、0.13 Paで0.27、1.3 Paで0.65、13.3 Paで0.91、40 Paで0.98となる。つまり、気圧が高くなるにしたがって、同一距離における電子密度の減少率が増加する。この範囲では、磁界によって磁界に垂直方向への電子の拡散が抑えられるので近似的には磁界方向への広がりについて考慮すればよいことになる。したがって、上のことは、この実験装置での電子などのプラズマ粒子の消失が、管壁での表面再結合による拡散をともなった空間再結合によることを示唆している。すなわち、拡散の過程にあって、電子が中性分子と衝突を繰り返すことによって電子温度が下がり、イオンと再結合しやすくなるのである。このことは、気圧が高いほど、また電子温度が低いほど空間再結合が起こりやすいという実験結果⁽¹²⁾によって支持されるところである。

この現象を解析するために簡単なモデルを仮定して、プラズマ中における荷電粒子が拡散によって定常的に流れている場合の電子密度分布を計算した。荷電粒子の両極性方程式において、ドリフトの項を無視して得られる拡散方程式を次に示す。

$$\frac{\partial N_e}{\partial t} = G - \frac{N_e}{\tau_n} + D^* \frac{\partial^2 N_e}{\partial x^2} \quad (1)$$

ただし、 N_e は電子密度、 t は時間、 G は電離などで生成される電子の生成速度、 τ_n は電子の寿命、 D^* は両極性拡散係数、 x はプラズマ生成部からの距離である。ここで、試料近傍の電子のラーマ半径は、プラズマ生成部でのそれに比較して大きいが、この実験の範囲で最大でも、気圧が0.13Pa、位置が(C)の場合で、0.062cmであるので、プラズマ閉じこめの効果があるものと考える。したがって、拡散は一次元と考えることができる。また、こ

の領域においても電離による電子の生成がおこなわれることも考えられるが、その量はプラズマ生成部に比較してはるかに少なく、無視できるので $G=0$ とおく。かつ、定常状態であるので左辺の項は 0 となる。したがって、式(1)は次のようになる。

$$D^* \frac{d^2 N_e}{dx^2} - \frac{N_e}{\tau_n} = 0 \quad (2)$$

この微分方程式の解を、境界条件を $x=0$ で $N_e=N_e(0)$ 、 $x=\infty$ で $N_e=0$ として求めると、電子密度分布は次式で与えられる。

$$N_e = N_e(0) \exp\left(-\frac{x}{L_n}\right) \quad (3)$$

ここで、 $L_n = (D^* \tau_n)^{1/2}$ は電子の拡散距離である。実験結果と比較するために、図7に示されたプラズマ生成部からの距離による電子密度の変化を片対数グラフにリプロットしたものを図11に示す。同図において、両特性とも良い直線性を示していること、しかも距離が 0 cm のときの電子密度の値 $N_e(0)$ は約 $1.8 \times 10^9 \text{ cm}^{-3}$ で一致することなどから、上で示した荷電粒子が拡散する過程で空間再結合が生じることが定性的に説明される。なお、拡散距離は、気圧が 9.3 Pa のときで 6.2 cm、26.7 Pa で

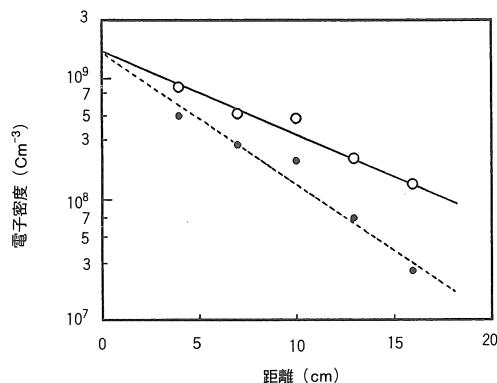


図11. プラズマ生成部からの距離による電子密度の変化
実線は 9.3 Pa、波線は 26.7 Pa の酸素ガス圧の場合。

3.8 cm と計算され、このチャンバーの寸法のオーダーである。このことは、気圧およびプラズマ生成部からの距離によって再結合の割合が変化することを示唆する。さらに、図10に示す値から同様にして L_n の値を計算した結果を合わせて、図12に示す。同図から、拡散距離は、20 Pa の気圧以下においては気圧の $1/2$ 乗に反比例して減少するが、それ以上の気圧範囲においてはほぼ一定の値となる傾向をもつ。

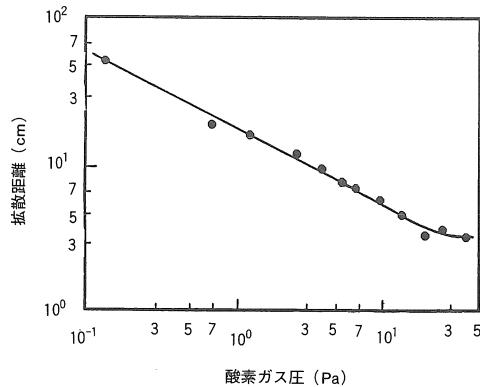


図12. 酸素ガス圧による拡散距離の変化

次に、酸素プラズマの場合では電子とイオンの再結合は、



で示される解離再結合が主になることが明かにされている⁽¹³⁾。ただし、 O^* は励起状態の原子を表わす。これは、拡散途中で電子が空間再結合によって消失する過程で多量の原子状酸素が生成されることを示唆するものである。すなわち、解離再結合の過程で、電子が O_2^+ を衝突解離することによって原子状酸素を生成するだけではなく、主に、



の反応に基づいて⁽¹⁴⁾、 O_2^+ よりはるかに多量に存在する電気的に中性の酸素分子を衝突解離して原子状酸素を生成するからである。このことは次のように考えられる。先ず、電子と酸素分子の衝突断面積 Q_{eg} はこの電子温度の範囲内での実測値および計算値とともに、 $7 \times 10^{-16} \text{ cm}^2$ 程度⁽¹⁵⁾ となり、電子と O_2^+ の衝突断面積 Q_{ei} は約 $5 \times 10^{-13} \text{ cm}^2$ と計算される。また、電離度、すなわち酸素分子密度 N_g に対する電子密度 N_e の割合は実験結果より、プラズマ生成部から 10 cm の位置で、気圧が 0.13 Pa、1.3 Pa、13 Pa でそれぞれ、 5×10^{-5} 、 3×10^{-6} 、 8×10^{-8} となる。これらの値から、電子と酸素分子の衝突数 ν_{eg} と電子とイオンの衝突数 ν_{ei} の比は、 $\nu_{eg}/\nu_{ei} = (N_g/N_e)(Q_{eg}/Q_{ei})$ の式を用いて、それぞれ約 2.8×10^1 、 4.7×10^2 、 1.8×10^4 と計算される。この結果は、電子と O_2^+ の衝突頻度よりも電子と酸素分子の衝突頻度の方がはるかに大きい値であることを示す。ここで、上で求めた衝突断面積はそれぞれの場合の解離衝突断面積ではないが、解離衝突断面積の比も衝突断面積の比とほぼ同じオーダーの値となる⁽¹⁴⁾と考えられるので、生成される原子状酸素密度の比は衝突数の比に近い値になる。これは、分

子状酸素が電子との衝突によって原子状酸素に解離する場合、分子状酸素が中性分子あるいはイオンのいずれであってもそれらの励起状態が同じであるなら、解離は両者において同程度の確率で起こることによる。これらのことから、電子と O_2^+ が盛んに再結合する条件下で電子衝突による酸素分子の解離が頻繁に起こると考えられるのである。

以上のことから考慮すれば、距離によって酸化電流効率が変化するのは、再結合における拡散距離がプラズマ生成部からの最適距離に必ずしも一致しないまでも、ほぼ拡散距離の程度で原子状酸素が多く生成されることによると理解できる。一方、気圧による酸化電流効率の変化は次のように考えられる。低気圧から 26.7 Pa 程度の気圧までの範囲では、気圧の増大にともなって、電子の衝突による分子状酸素の解離によって生成される電子 1 個当たりの原子状酸素の密度が増加するので、酸化電流効率が増加する。このことは上述したことから容易に理解できるが、それ以上の気圧範囲では、むしろ酸化電流効率は減少する傾向がある。これについては、拡散距離が短いほど生成される原子状酸素が高密度になるとすると、拡散距離がこの気圧以上ではほぼ一定となるため、原子状酸素の生成速度が減少することが考えられる。また、平均自由行程が拡散距離に比較して極端に短くなるため、電子がエネルギーを得ることができず、電子および気体の温度がともに下がり、中性分子との衝突解離の確率が減少することも考えられる。実際、熱電対で測定した試料台部分の温度は気圧の増大にともなって急減する。例えば、6.7 Pa で約 150°C であるが、26.7 Pa 以上では室温程度 (50°C) となる。

ここで、酸化膜の成長が原子状酸素の試料表面への供給に基づくと考えて、図 6 あるいは 9 に示されるような酸化電流効率になるための必要最小限のプラズマ中の原子状酸素密度を概算した結果を図 13 と図 14 に示す。この計算は、プラズマから供給される原子状酸素が試料表面に吸着した後、電子付着によって負イオンになるという機構に基づいて導いた式⁽⁸⁾を用いた。ただし、酸化電流効率が低いときにはこの式は試料表面に到達する原子状酸素と電子の比に近似的に等しいので、この比を用いて図 6 と 7、および図 9 と 10 の結果からそれぞれ概算した。図 13 において両特性とともに、プラズマ生成部の中心部からの距離が 10 cm で原子状酸素密度は最大となる。また、図 14 においては、いずれの特性も 4 Pa~10 Pa の酸素ガス圧範囲で原子状酸素の密度は最大となり、また、その密度は (B) の場合において最も大きい値を示す。

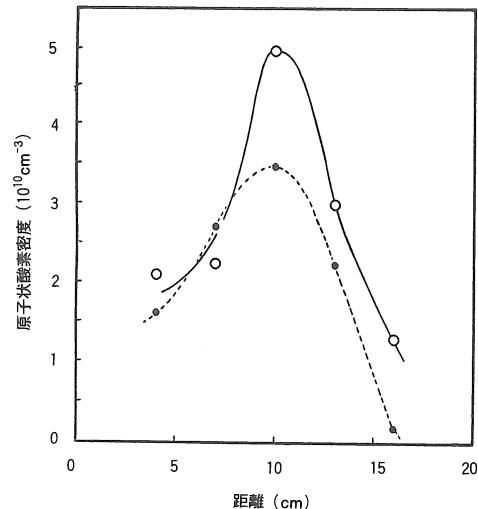


図13. プラズマ生成部からの距離による原子状酸素密度の変化 実線は 9.3 Pa, 波線は 26.7 Pa の酸素ガス圧の場合。

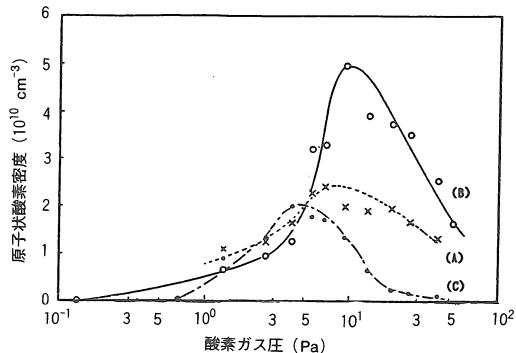


図14. 酸素ガス圧による原子状酸素密度の変化 プラズマ生成部から試料までの距離はそれぞれ、(A) 4cm, (B) 10cm, (C) 16cm.

これらの結果は、原子状酸素の生成に、電子と分子状酸素の衝突に適度の電子エネルギーに加えて、さらに適度の電子および酸素分子の密度が必要であることを示唆している。

IV. 結 論

電子サイクロトロン共鳴条件のマイクロ波プラズマ中で Al 薄膜を陽極酸化した場合の酸化条件による酸化電流効率の変化およびプラズマパラメータの変化を調べ、酸化に重要な役割を果たす原子状酸素の生成について検討した。先ず、酸化電流効率は、マイクロ波入力電力の大きさ、プラズマ生成部からの距離、および酸素ガス圧によって変化することが示された。そして、プラズマ中

での原子状酸素の生成機構を簡単なモデルと近似を用いて検討した。その結果、電子とイオンが両極性拡散の過程で解離再結合による消失の際に、多量の原子状酸素が生成される可能性があることを示唆した。また、試料表面に供給される原子状酸素が酸化膜の成長を律速するとして、酸化に必要最小限のプラズマ中の原子状酸素密度を算出した。原子状酸素密度は、それら酸素ガス圧や試料の位置などの変化に対して最大値を示した。

参考文献

- (1) T. A. Jennings, W. McNeil and R. E. Solomon, J. Electrochem. Soc. **114**, 1134(1967).
- (2) N. Haneji, F. Arai, K. Osada, and T. Sugano, IEEE Trans. Electron Device **ED-32**, 100(1985).
- (3) J. Kraitchman, J. Appl. Phys. **38**, 4323(1967).
- (4) S. Kimura, E. Murakami, K. Miyake, T. Warabisako, H. Sunami, and T. Tokuyama, J. Electrochem. Soc. **132**, 1460 (1985).
- (5) M. A. Copeland and R. Pappu, Appl. Phys. Lett. **19**, 199 (1971).
- (6) G. Olive, D. L. Pulfrey, and L. Young, Thin Solid Films, **12**, 427 (1972).
- (7) J. F. O' Hanlon and M. Sampogna, J. Vac. Sci. Technol. **10**, 450(1973).
- (8) K. Matsumura, J. Appl. Phys. **65**, No.3(1989).
- (9) K. Ando and K. Matsumura, Thin Solid Films, **52**, 153 (1978).
- (10) K. Matsumura, J. Appl. Phys. **64**, 2642(1988).
- (11) R. P. H. Chang and A. K. Sinha, Appl. Phys. Lett. **29**, 56 (1976).
- (12) M. A. Biondi and S. C. Brown, Phys. Rev. **75**, 1700 (1945).
- (13) M. A. Biondi and S. C. Brown, Phys. Rev. **76**, 1967 (1949).
- (14) M. Capitelli and M. Dilonardo, J. Chem. Phys. **3**, 95 (1978).
- (15) L. Gould and S. C. Brown, Phys. Rev. **95**, 897(1954).