

GaN/Sapphire(0001) 기판위에 증착한 epitaxial Ni(111) 박막의 산화 과정

서선희* · 강현철**†

*한국전기연구원, **조선대학교 신소재공학과

Oxidation Process of Epitaxial Ni(111) Thin Films Deposited on GaN/Sapphire(0001) Substrates

S. H. Seo*, Hyon Chol Kang**†

*Korea Electrotechnology Research Institute, Changwon 641-120, Korea

**Department of Advanced Materials Engineering, Chosun University, Gwangju 501-759, Korea

Abstract This paper reports the oxidation mechanism of epitaxial Ni thin films grown on GaN/sapphire(0001) substrates, investigated by real-time x-ray diffraction and scanning electron microscopy. At the initial stage of oxidation process, a thin NiO layer with a thickness of ~ 50 Å was formed on top of the Ni films. The growth of such NiO layer was saturated and then served as a passive oxide layer for the further oxidation process. For the second oxidation stage, host Ni atoms diffused out to the surfaces of initially formed NiO layer through the defects running vertically to form NiO grains, while the sites that were occupied by host Ni, became voids. The crystallographic properties of resultant NiO films, such as grain size and mosaic distribution, rely highly on the oxidation temperatures.

(Received October 21, 2009; Accepted October 27, 2009)

Key words: Ni, oxidation, in-situ x-ray diffraction, epitaxy, passive layer

1. 서 론

Ni은 대표적인 3d 전이금속으로서, 전기적, 자기적 특성이 우수하여 물질의 미세 구조 및 전자구조에 대한 다양한 연구가 이루어지고 있다[1, 2]. 특히 Ni 박막과 NiO 박막은 자체로 우수한 자기적 특성을 나타내기 때문에 진보된 data storage 소자나 전자 소자에 응용된다[3]. 또한 Cu, Pd, V 등 이종(heterogeneous)의 물질과 다층 박막을 형성하여 고주파(\sim GHz) 소자나 마이크로센서를 제작하는데 매우 중요한 역할을 하고 있다[4-6].

Ni의 다른 응용 분야로는 고온 안정성을 활용한 부식 방지를 위한 표면 피막의 형성이다[7-9]. Ni은 상대적으로 저온($\sim 300^\circ\text{C}$)에서 산화(oxidation)되어 안정한 부동태(passive 혹은 protective) 표면 피막(surface oxide layer)을 형성하는데 고온에서 형성된 NiO 박막(thin film)은 원자적 치밀도가 우수하

여 모재 원자의 확산을 억제하거나 전자의 tunneling 현상을 일으키기 위한 활성화 에너지를 증가시켜 추가적인 부식을 방지하는 역할을 한다. 현재까지 이용된 Ni의 산화과정에 대한 연구는 상용화된 다결정 Ni를 polishing한 후 산화시켜 제조한 NiO 표면 피막의 물성을 분석하는 것이 주류였다[10]. 최근에 와서 spray법이나 전기화학 증착기법을 이용하여 Ni 후막을 제조한 후, 고온에서의 산화과정을 규명하기 위한 노력이 경주되기 시작하였다[11, 12].

본 논문은 원자적으로 깨끗이 정렬된 GaN/sapphire 기판 위에 e-beam evaporation 방법을 이용하여 증착한 epitaxial Ni 박막의 고온 산화과정을 실시간 X선 회절 기법을 이용하여 규명하였다. E-beam evaporation으로 증착된 Ni 박막은 매우 우수한 표면 거칠기와 잘 정렬된 계면 특성을 갖기 때문에 기존에 수행하지 못했던 원자적 스케일의 산화 거동을 규명할 수 있을 뿐만 아니라 실시간으로 산

†E-mail : kanghc@chosun.ac.kr

화과정을 분석하기 때문에 기존의 ex-situ 분석 기법을 한계를 극복할 수 있다.

2. 실험 방법

Ni과 sapphire(0001) 기판과는 격자 불일치(lattice mismatch)가 크기 때문에 먼저 금속유기화학증착법(MOCVD)을 이용하여 GaN 박막을 2 μm 두께로 증착하였다. GaN 박막은 hexagonal wurtzite 구조를 갖는데, 통상적으로 sapphire(0001) 기판위에 (0002) 결정면으로 성장한다. Ni 박막을 증착하기 앞서 GaN/sapphire 기판을 buffered oxide etch solution을 이용하여 세척하였다. 이러한 세척과정을 거쳐 GaN 표면의 산화물(native oxide)이나 불순물을 제거할 수 있다. Ni 박막은 e-beam evaporation 증착법으로 상온에서 증착하였다. 박막의 두께는 약 463 \AA 이다. 증착한 Ni 박막은 GaN/sapphire 기판과 방향성을 가지는 epitaxial 박막으로 성장하였다[13]. 수직방향의 방향관계는 Ni<111>//GaN<0001>//sapphire<0001>이다. 수평방향의 방향관계는 Ni<110> // GaN<1120> // sapphire<1010> 와 Ni<121> // GaN<1010> // sapphire<1120>이다.

Ni 박막의 산화과정에서 일어나는 구조적 변화를 실시간으로 분석하기 위하여 방사광 X선 회절 실험을 포항가속기연구소 5C2 광주과학기술원 전용 빔라인에서 수행하였다. 입사되는 X선의 에너지는 double-bounce Si(111) 단색광변환기를 이용하여 9 keV(파장 = 1.378 \AA)로 선택하였다. Ni 박막은 특수 제작된 heater에 고정된 후 heater를 X선 회절기 위에 장착하였다. 시편의 온도는 상온에서 급격하게 원하는 온도로(380, 495, 560, 605 $^{\circ}\text{C}$) 상승한 후 유지하였다. Ni 박막의 산화를 위해 공기를 주입하였으며, 산화되는 동안 Ni(111) Bragg peak의 변화를 실시간으로 측정하였다. 아울러 새로이 형성된 NiO(111) Bragg peak도 관찰하였다. 또한 NiO 박막의 epitaxial 방향성을 조사하기 위하여 in-plane NiO(111) Bragg peak를 측정하였다. 실시간 X선 회절 실험 종료 후 상온으로 서서히 냉각한 시편은 Scanning Electron Microscopy (SEM) 분석을 통하여 표면 형상 및 단면 형상을 촬영하였다.

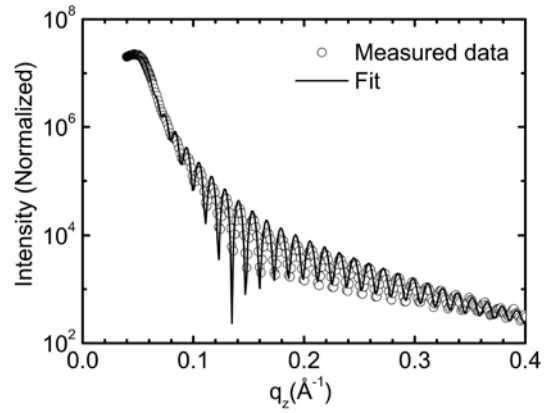


Fig. 1. X-ray reflectivity curve of as-grown Ni/GaN/sapphire thin film. The simulation result was also displayed by the line. The film thickness can be obtained from the period of modulation using the relation, $d = 2\pi / \Delta q_z$.

3. 실험결과 및 고찰

3.1 Ni 박막의 산화 기구

E-beam evaporation 방법으로 증착한 Ni 박막의 표면 및 계면의 물성을 규명하기 위하여 측정된 X선 반사율(reflectivity) 곡선을 Fig. 1에 나타내었다. 통상적으로 X선은 빛의 특성을 가지므로 매질에 의하여 굴절되고 반사된다. 이때 반사된 X선의 강도 분포를 입사된 X선의 입사각에 대하여 측정하면 Fig. 1과 같은 그래프를 측정하게 된다. 박막의 수직 방향으로 X선의 momentum transfer q_z 가 0.05 \AA^{-1} 까지는, X선 반사율은 거의 일정한 값을 유지하고 이후 지수함수 형태로 감소한다. 즉 전반사(total external reflection)가 일어나는 구간이고 경계부분이 바로 임계각(critical angle)이다. 임계각은 물질의 굴절률과 관계가 있으므로 Ni 박막의 밀도를 측정할 수 있다. 또한 지수함수 형태로 감소하는 영역에서는, Ni 박막의 표면과 Ni/GaN 계면에서 반사되는 X선이 서로 간섭현상을 일으켜서 간섭무늬를 나타내는데, 이때 간섭무늬의 주기(Δq_z)는 두께의 함수이다. ($d = 2\pi / \Delta q_z$) 측정된 두께는 약 463 \AA 이다. X선 반사율 이론은 Born approximation을 이용하여 다음과 같이 표현할 수 있다[14, 15].

$$I = \frac{I_0 A}{q_z^2} [\rho_1^2 \exp\{-q_z^2 \sigma_1^2\} + (\rho_1 - \rho_2)^2 \exp\{-q_z^2 \sigma_1^2\} +$$

$$2 \cos(q_z d) \rho_1 (\rho_1 - \rho_2) \exp \left\{ -q_z \frac{\sigma_1^2 + \sigma_2^2}{2} \right\}$$

여기에서, I 는 Ni/GaN/sapphire 박막으로부터 반사된 X-선의 세기, I_0 는 입사된 초기 X-선의 세기, A 는 실험적 요인에 기인하는 상수, q_z 는 표면에 수직 방향으로의 X-선 momentum transfer로서 파장의 역수의 단위를 갖는다. $\rho_1(\rho_2)$ 는 Ni(GaN)의 원자 밀도, $\sigma_1(\sigma_2)$ 는 Ni 표면(Ni/GaN 계면)의 거칠기, 그리고 d 는 박막의 두께이다. 이 모델을 이용하여 측정된 data를 fitting한 결과를 Fig. 1에 실선으로 나타내었다. 측정값과 이론값이 잘 일치함을 알 수 있다. Fitting으로부터 얻은 $\sigma_1(\sigma_2)$ 는 각각 $14.8 \text{ \AA} \pm 0.6 \text{ \AA}$ ($3.6 \text{ \AA} \pm 0.4 \text{ \AA}$)이다. 계면은 원자 스케일로 잘 정렬되어 있고, Ni 박막의 표면은 표면거칠기가 증가하였지만 충분히 잘 정렬되어 있음을 알 수 있다.

Ni 박막은 산소 분위기에서 열처리하면 표면에서부터 산화되기 시작한다. Fig. 2는 380°C , 495°C , 560°C , 605°C 에서 Ni 박막의 산화과정동안 실시간으로 측정된 Ni(111) Bragg peak의 변화를 나타낸다. Bragg peak 주변의 잘 정렬된 간섭무늬(interference fringes)는 박막의 표면과 계면에서 회절된 X-선의 간섭 현상에 의한 것이다. 즉 Ni 박막은 표면수직방향으로 (111) 결정면으로 원자적으로 잘 정렬되어 있고, GaN, sapphire와 표면 방향으로 결정학적 방향성이 일치하는 epitaxial 박막으로 성장하였다(epitaxial 방향관계는 in-plane Ni(111) Bragg peak를 측정하여 유추하였고, 여기에서 data는 보이지 않음.) 측정된 Ni 박막의 두께는 온도에 상관없이 약 410 \AA 으로서 X-선 반사율로부터 얻은 463 \AA 보다 작은 값을 나타내었다. 이는 산화과정의 초기과정에서 생긴 얇은 NiO 표면 피막의 두께가 약 50 \AA 정도 된다는 것을 의미한다.

통상적으로 금속의 산화는 모재인 금속 이온이 산소와 결합하여 산화되면서 표면 산화피막의 두께가 점차적으로 증가하는 것으로 설명할 수 있다[16,17]. 그러나 본 연구에서 수행한 Ni 박막의 산화과정은 이와는 다르다. Fig. 2에서 보인 Ni(111) Bragg peak의 간섭무늬의 주기는 시간이 지나도 변하지 않는 반면, X-선 Bragg peak의 강도는 점차 감소한다. X-선 강도의 감소는 산화과정이 진행됨을 의미

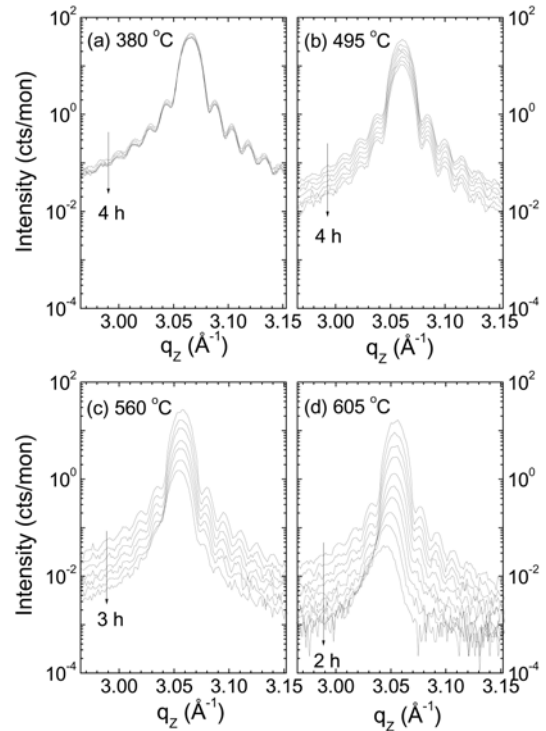


Fig. 2. *In-situ* x-ray diffraction profiles around Ni(111) Bragg peak. The Ni thin films were oxidized at (a) 380°C , (b) 495°C , (c) 560°C , (d) 605°C . The period of interference fringes was preserved during the entire oxidation process, while the peak intensity was decreased gradually.

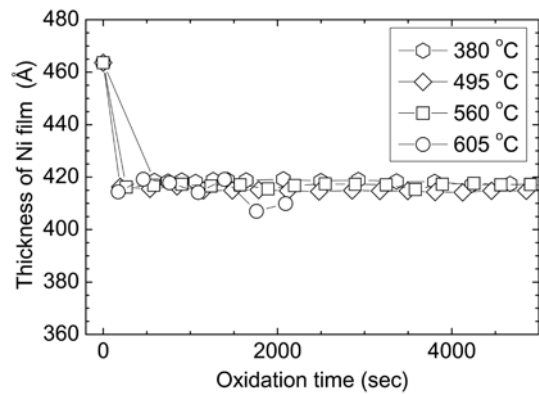


Fig. 3. Variations of the thickness of host Ni film as a function of the oxidation time.

하고, 간섭무늬의 주기가 일정한 것은 모재인 Ni 박막의 두께가 유지됨을 의미한다. 각 온도구간에서 산화과정동안의 시간에 따른 Ni 박막의 두께 변화를 Fig. 3에 나타내었다. 산화과정 시간 및 온도에 관계

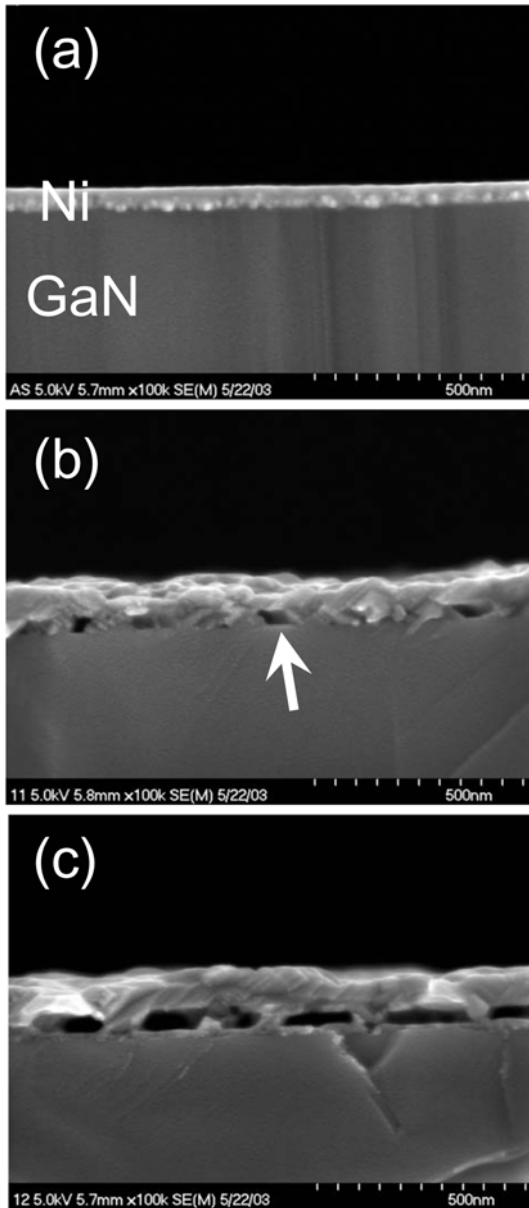


Fig. 4. Cross-sectional SEM images of (a) as-grown Ni film, (b) oxidized sample at 495°C for 4 hr, (c) oxidized sample at 605°C for 2 hr. Voids indicated by an arrow were observed clearly.

없이 Ni 박막의 두께는 거의 410 Å로 일정하게 유지된다. 즉 초기에 생성된 표면의 NiO 박막이 추가적으로 산화물을 형성하면서 모재인 Ni 방향으로 성장하지 못하게 됨을 나타낸다. 이는 초기 표면에 형성된 NiO 박막은 부동태 피막(passive 혹은 protective

layer)임을 나타낸다[17]. 다시 말하면 초기에 생성된 NiO 박막을 통한 Ni 이온과 산소 원자와의 결합은 이 단계에서는 더 이상 불가능하다는 것이다.

초기단계 이후의 산화과정을 규명하기 위하여 Fig. 4에 나타낸 바와 같이 SEM 단면 사진을 촬영하였다. Fig. 4(a)는 산화과정 전의 Ni 박막의 단면 사진이다. Ni/GaN 계면이 잘 정렬되어 있으며 뚜렷하다. Fig. 4(b)는 495°C에서 4시간 동안 산화 과정을 끝낸 후의 SEM 단면 사진이다. Ni/GaN 계면 근처에 회살표로 표시한 것과 같은 다수의 void가 형성되어 있으며, void의 높이는 초기 Ni 박막의 두께와 유사한 40 nm 정도이고 폭은 약 100 nm 정도이다. Void는 연속적이지 않고 군데군데 존재한다. 또 다른 특징 중의 하나는, 초기에 생성된 NiO 표면 피막 위에 이후에 생성된 NiO가 덮여져 있는 형상이다. 이로 인하여 NiO 박막의 두께가 약 120 nm로 증가하였다. Fig. 4(c)는 605°C에서 2시간 동안 산화 과정을 거친 후 촬영한 SEM 단면 사진이다. Void의 높이는 거의 변화가 없는 반면, 수평방향으로의 폭이 증가하였으며, 원래 Ni 박막이 있던 위치의 대부분이 void로 변화하였다. Void와 void의 연결은 아직 산화되지 않은 Ni(혹은 표면으로 빠져나가지 못한 NiO)이 채우고 있는 형태이다. 또한 Ni/GaN 경계면에 매우 얇은(약 12 nm) 계면층이 존재하는데, 이는 대만연구진에 의해 보고된 것처럼 NiO-GaN 화합물일 가능성이 매우 높다[18]. NiO 박막의 두께는 더 증가하여 약 150 nm 정도이다.

Fig. 2에 나타낸 실시간 X선 회절 결과를 살펴보면, 380°C의 산화과정에서는 초기에 형성된 NiO 부동태 피막에 의해 산화과정이 거의 포화상태에 다다른 것처럼 보인다. 즉 NiO(111) Bragg peak의 강도가 감소하는 경향이 굉장히 느리다. 이에 반하여 495°C 이상에서 산화시킨 시편에서는 NiO(111) Bragg peak의 강도가 감소하는 경향이 상대적으로 빠르다는 것을 알 수 있다. 다시 말하면, NiO의 부동태 피막으로서의 역할은 약 400°C를 기준으로 현저하게 달라진다는 것을 나타낸다. 모재인 Ni 원자가 NiO 표면까지 확산할 수 있는 충분한 에너지를 얻어서 국부적산화가 촉진되면 NiO 부동태 피막은 더 이상 산화를 방지하지 못한다.

지금까지 실시간 X선 회절 실험과 SEM 단면 사

진 촬영을 통하여 규명한 Ni 박막의 산화과정을 요약하면 다음과 같이 설명할 수 있다. 산화과정 초기에는 약 50 Å 두께의 NiO 표면 피막이 생성되고 이는 더 이상의 산화과정을 방해하는 부동태 피막으로 작용하게 된다. 이후의 산화과정은 Ni 박막의 증착과정에서 표면의 수직방향으로 형성된 결정입계 (grain boundary), 기공(pore), 전위(dislocation) 등의 결함영역을 통하여 모재인 Ni의 원자가 NiO 부동태 피막의 표면으로 확산한 후 산소와 결합하여 NiO를 생성하면서 산화가 진행된다(국부적 산화과정). 이때 Ni이 빠져나간 자리는 void가 형성된다. 아울러 600°C 이상의 고온 산화과정에서는 Ni/GaN 경계면에 NiO-GaN 계면층이 생성된다. 한 가지 덧붙이자면 NiO(200) Bragg peak는 관찰되지 않았다. 이는 NiO 박막이 GaN 및 sapphire에 대하여 epitaxial 방향관계를 가지기 때문이다.

3.2 NiO 박막의 구조적 특성

Ni 박막의 산화과정에 의하여 생성된 NiO 박막의 구조적 특성을 분석하기 위하여 먼저 SEM 사진 촬

영을 통한 표면 형상을 관찰하였다. Fig. 5에서 나타난 바와 같이 표면 형상은 산화과정 온도에 따라 매우 다르게 나타난다. Fig. 5(a)는 380°C에서 4시간동안 산화된 시편의 SEM 사진이다. 표면 굴곡이 두드러지게 나타나고 있으며 지렁이모양처럼 결정립들이 휘어져 있다. 비교를 위하여 Ni 박막의 SEM 표면사진을 첨부하였다. 매우 단조로운 표면형상을 나타낸다. 아주 작은 크기의 pore가 관찰되는데 이는 e-beam evaporation으로 증착한 금속 박막의 고유한 특징 중의 하나이다. 이러한 pore는 앞서 설명한 국부적 산화과정의 통로로 작용한다. 산화 온도를 증가시키면 표면에 불규칙하게 생성되어 있던 NiO 결정립들이 점점 더 커지고 표면 높이 방향으로 굴곡이 더 심해진다. 최종적으로 Fig. 5(d)에 나타나 있는 사진과 같이 삼각형의 결정립들이 매우 뚜렷하게 관찰된다. NiO 박막은 GaN/sapphire 기판과 결정학적 방향성을 가지기 때문에 삼각형 NiO 결정립은 한쪽 방향으로 정렬되어 있고, 이때 삼각형 모서리의 결정방향은 [100] 방향이다.

NiO 박막의 결정성을 규명하기 위하여 NiO(111)

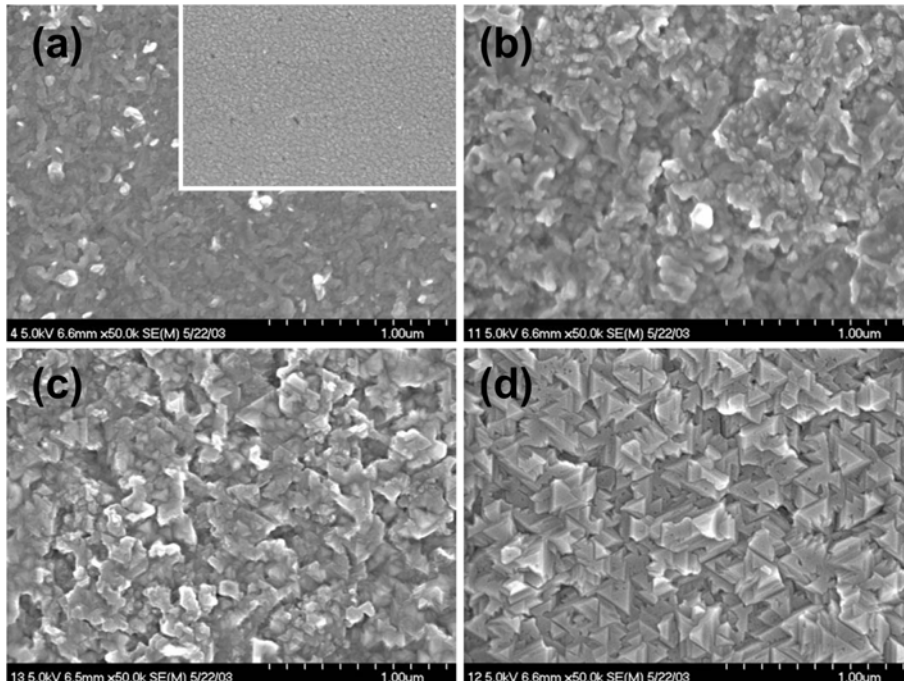


Fig. 5. Top-view SEM images of oxidized samples at (a) 380°C, (b) 495°C, (c) 560°C, (d) 605°C. Inset of (a) shows the SEM image of as-grown Ni film wherein many nano-meter sized pores that provide the route for the diffusion of Ni atoms in the later stage of oxidation, were observed.

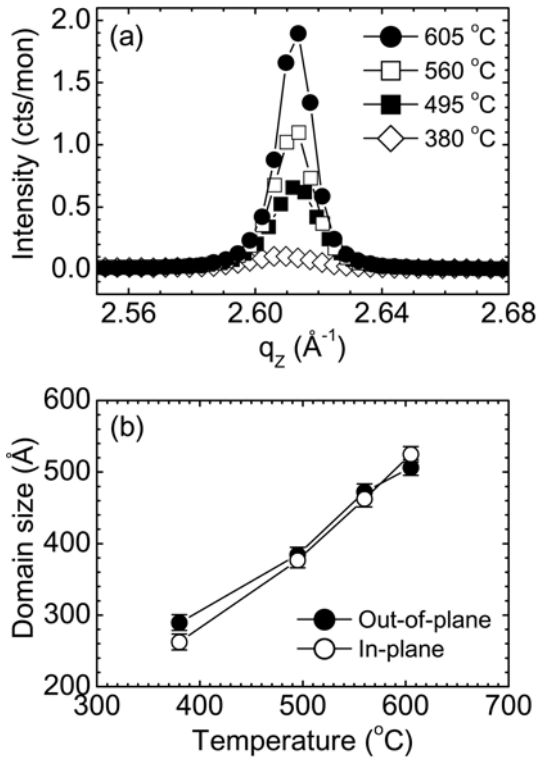


Fig. 6. (a) NiO(111) Bragg peaks measured at room temperature. (b) Out-of-plane and in-plane domain size of NiO thin film. The domain size was estimated using the Scherrer's equation.

Bragg peak를 측정하였다. Fig. 6(a)는 각 온도별로 산화과정을 거친 시편의 NiO(111) Bragg peak를 나타내었다. 산화 온도가 증가함에 따라 Bragg peak의 강도가 증가하고 반치폭(FWHM, Full Width at Half Maximum)은 작아진다. Scherrer's 방정식에 따르면, 반치폭은 NiO 결정립의 크기와 관계가 있으므로 측정된 NiO(111) Bragg peak를 Gaussian 형태로 모델링하여 반치폭을 구하였다. Scherrer's 방정식은 다음과 같이 나타낼 수 있다[19].

$$B = \frac{0.94 \times \lambda}{FWHM \times \cos\theta}$$

여기에서 B 는 NiO 박막의 평균 결정립 크기이고, λ 는 사용된 X-선 광원의 파장이다. 또한 $FWHM$ 은 NiO(111) Bragg peak의 반치폭이고, θ 는 Bragg 회절각이다. Scherrer's 방정식을 이용하여 획득한 결정립의 크기를 Fig. 6(b)에 나타내었다. 사실 NiO

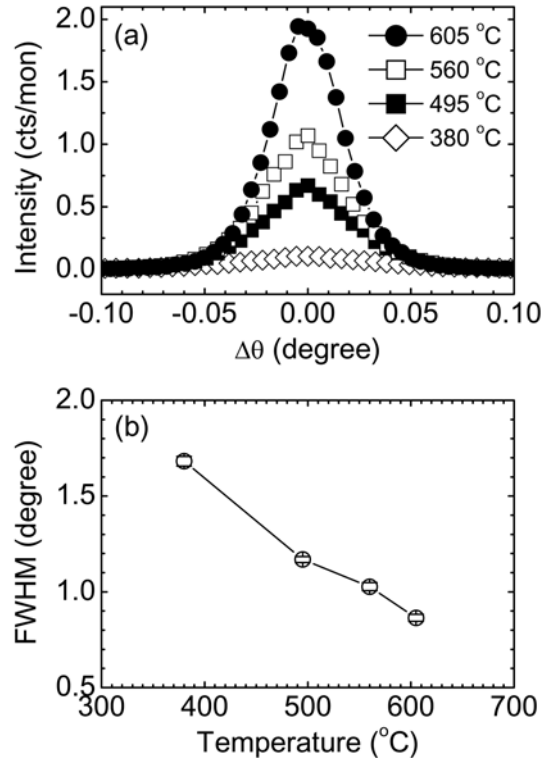


Fig. 7. (a) θ -rocking curves measured across the NiO(111) Bragg peak. (b) FWHM of θ -rocking curves as a function of the oxidation temperature.

박막은 GaN/sapphire 기판과 결정학적 방향성을 가지므로(epitaxial 박막이므로) in-plane NiO(111) Bragg peak로부터 획득한 수평방향으로의 결정립 크기도 함께 나타내었다. NiO 결정립의 크기는 산화 온도 변화에 따라, 표면에 수직방향(out-of-plane)으로 260 \AA 에서 520 \AA 으로 증가하고, 표면에 평행방향(in-plane)으로 290 \AA 에서 505 \AA 으로 증가한다. 이는 산화 온도가 증가하면 Fig. 4의 SEM 단면사진에서 확인하였듯이 NiO 박막의 두께가 증가하게 되어 결정립크기도 증가하기 때문이다. Figure 5의 SEM 표면사진에서 보인바와 같이 in-plane 방향으로의 NiO 결정립 크기도 산화 온도 증가와 함께 증가하는 경향을 나타내는데, 이는 X-선 회절 결과와도 일치한다.

마지막으로 NiO 박막의 결정성을 알아보기 위하여 NiO(111) Bragg peak에서 측정된 θ -rocking 곡선을 Fig. 7(a) 나타내었다. Fig. 7(b)는 θ -rocking 곡선을 Gaussian 형태로 모델링하여 획득한 반치폭

값이다. 380°C의 저온에서 산화된 NiO 박막은 반치 폭이 1.7°로서 mosaic 분포가 크다. 즉 결정립들의 뒤틀림이 크기 때문에 결정립계의 각도도 크고 결정성이 좋지 않다. 산화과정의 온도가 증가할 수록 반치폭이 작아지고 결국 605°C에서 산화된 NiO 박막의 경우에는 약 0.86°이다. 고온에서 산화시키면 초기에 생성된 작은 크기의 NiO 결정립들이 산화과정 중에 재결정이 일어나서 결정립의 크기도 증가할 뿐만 아니라 결정성도 향상됨을 의미한다.

NiO 박막의 온도에 따른 산화과정은 고온에서 더욱 활발히 일어나고 결정성도 많이 향상됨을 알 수 있었다. 이는 상대적으로 저온에서 형성된 NiO 박막은 앞서 설명한 비와 같이 pore를 다수 함유하고 있는 non-stoichiometric NiOx 형태이다. 고온에서는 점차적으로 stoichiometric NiO가 형성될 것으로 예측된다. NiO 박막의 정확한 조성 비율을 규명하기 위해서 추가적으로 XPS, SIMS 등의 화학조성 분석이 필요하다.

4. 결 론

본 논문에서는 실시간 방사광 X선 회절 실험 및 SEM 측정을 통하여 GaN/sapphire(0001) 기판위에 증착한 epitaxial Ni 박막의 산화과정에 대하여 규명하였다. 초기의 산화과정에서는 Ni 박막 표면에 잘 정렬된 NiO 표면 피막이 생성되는데, 이때 생성된 NiO는 이후의 산화과정을 방해하는 passive 층으로 역할을 한다. 따라서 두 번째 단계의 산화과정은 국부적 산화, 즉 모재인 Ni이 초기에 생성된 NiO 표면으로 확산하여 산소와 결합하는 형태로 진행되는 데, 이때 Ni이 빠져나온 자리는 void로 남는다. Ni의 산화과정에 의해 생성된 NiO 박막은 산화 온도가 증가함에 따라 결정립의 크기가 증가하고 결정성도 향상된다. 또한 NiO는 GaN/sapphire와 결정학적 방향성이 일치하는 epitaxial 박막이다.

참고문헌

1. T. Isobe, R. A. Weeks and R. A. Zuhr : Solid State Communications, **105** (1998) 469.
2. H. Tokoro, S. Fujii, S. Muto, and S. Nasu : J. Appl. Phys. **99** (2006) 08Q512.
3. I. Wilke, Y. Oppliger, W. Herrmann and F. K. Kneubühl : Appl. Phys. **A 58** (1994) 329.
4. I. Kazeminezhad and W. Schwarzacher : Journal of Solid State Electrochemistry **8** (2004) 187.
5. M. Chen, P. C. Searson, and C. L. Chien : J. Appl. Phys. **93** (2003) 8253.
6. K. Benkirane, R. Elkabil, M. Lassri, M. Abid, H. Lassri, A. Hamdoun and R. Krishnan : Journal of Alloys and Compounds **388** (2005) 186.
7. P. H. Holloway and J. B. Hudson : Surface Sci. **43** (1974) 123.
8. R. S. Saiki, A. P. Kaduwela, J. Osterwalder, and C. S. Fadley : Phys. Rev. **B 40** (1989) 1586.
9. E. Kopatzki and R. J. Behm : Phys. Rev. Lett. **74** (1995) 1399.
10. S. H. Kim, J. H. Chung, Y. T. Kim, J. Han, S. P. Yoon, S.-W. Nam, T.-H. Lim and H.-I. Lee : Catalysis Today **146** (2009) 96.
11. Y. Zhang, X. Peng, and F. Wang : Materials Lett. **58** (2004) 1134.
12. C. Scheck, P. Evans, R. Schad, G. Zangari, J. R. Williams, and T. F. Issacs-Smith : J. Phys. **D 14** (2002) 12329.
13. H. C. Kang, S. H. Seo, H. W. Jang, D. H. Kim, and D. Y. Noh : Appl. Phys. Lett. **83** (2003) 2139.
14. L. G. Parratt : Phys. Rev. **95** (1954) 359.
15. S. K. Sinha : Phys. Rev. **B 38** (1988) 2297.
16. H. C. Kang, S. H. Seo, J. W. Kim, and D. Y. Noh : Appl. Phys. Lett. **80** (2002) 1364.
17. N. Cabrera and N. F. Mott : Rep. Prog. Phys. **12** (1949) 163.
18. J.-K. Ho, C.-S. Jong, C. C. Chiu, C.-N. Huang, K.-K. Shih, L.-C. Chen, F.-R. Chen, and J.-J. Kai : J. Appl. Phys. **86** (1999) 4491.
19. B. E. Warren, *X-ray Diffraction* (Addison-Wesley Pub. Co, 1969) p. 253.