

# RF スパッタリングによる ZnO 薄膜の作製

清水秀己\* 岩田 航<sup>1</sup>

\*技術教育講座

## Formation of Zinc Oxide Films by RF Sputtering

Hideki SHIMIZU\* and Wataru IWATA<sup>1</sup>

\*Department of Technology, Aichi University of Education, Kariya, Aichi 448-8542 Japan

### 1 はじめに

酸化亜鉛 (ZnO) は亜鉛華または亜鉛白とも言い、天然に紅亜鉛鉱として産出する。結晶は六方晶系でウルツ鉱型構造である。格子定数  $a = 3.2426 \text{ \AA}$ ,  $c = 5.1948 \text{ \AA}$  で、原子間距離 Zn-O は  $1.95 \sim 1.98 \text{ \AA}$  である。融点は  $1800^\circ\text{C}$  (加圧下) で、昇華点は  $1720^\circ\text{C}$  (常圧下) である。比重は  $5.47$  (無定形),  $5.78$  (結晶) である。約  $300^\circ\text{C}$  に熱すると黄色となるが、冷やすと白色に復する。白色顔料として重要で、化粧品、医薬、触媒などとしても用いられる。水には殆ど溶けず、溶解度は  $0.42\text{mg}/100\text{g}$  ( $18^\circ\text{C}$ ) である。希酸および濃アルカリには溶解する両性酸化物である。太陽光により燐光を発生し、陰極線、陽極線などでは緑色、紫色などの発光をするなどの一般的な物性がある<sup>1)</sup>。

酸化亜鉛 (ZnO) は、これまでも表面弾性波素子、焦電素子、圧電素子、ガスセンサー、透明導電膜、バリスター、等の応用に用いられてきた優れた機能を有する材料である。酸化物材料の薄膜成長技術の向上にともなって高品質な単結晶薄膜の成長が可能になり、ZnO 薄膜による新しい応用分野が拓けつつある。

ZnO は禁制帯幅  $3.3 \sim 3.4\text{eV}$  を有する直接遷移型の半導体で、青色から紫外域の光電子デバイス材料として有望である。禁制帯がほぼ同じである GaN に比べて、励起子結合エネルギーが格段に大きく (ZnO:  $60\text{meV}$ , GaN:  $21\text{meV}$ , ZnSe:  $20\text{meV}$ )、室温においても高効率な励起子発光過程を利用した単色性に優れた発光デバイスが実現可能である。II 族の Zn を Mn に置き換えた  $\text{Zn}_{1-x}\text{Mg}_x\text{O}$  や Zn を Cd で置き換えた  $\text{Zn}_{1-x}\text{Cd}_x\text{O}$  で禁制帯幅の変化や強い室温青色発光の報告もある<sup>2,3)</sup>。このようにバンドギャップエンジニアリング技術を駆使すれば ZnO 系材料を用いて、紫外域から可視域、赤外域までの幅広い波長範囲をカバーすることが

できる。さらに、ZnO は低温成長かつ低抵抗薄膜作製が可能という利点を有しており、光デバイス以外にも薄膜トランジスタ (TFT) や透明導電薄膜等の応用でも期待されている。

近年透明導電酸化材料の重要性は、大面積フラットパネルディスプレイ (FPD) や太陽電池などの多くの応用のために増大している。不純物添加の  $\text{In}_2\text{O}_3$ ,  $\text{SnO}_2$ ,  $\text{CdO}$ ,  $\text{ZnO}$  のような透明導電酸化材料薄膜が広く研究されている。インジウム添加の  $\text{In}_2\text{O}_3$  は優れた透明導電薄膜特性を有しているが、カドミウムの毒性により実用的でない。錫添加の  $\text{In}_2\text{O}_3$  (Indium Tin Oxide; ITO) は FPD や太陽電池の応用に広く用いられている。しかし、インジウムはレアメタルで高価な材料である。もし、ITO 薄膜の利用の増大が続くならば、インジウム源の枯渇が問題になってくると考えられている。一方、ZnO は無害で安価な材料である。透明導電酸化材料としての ZnO の電氣的・光学的特性は過去20年で改善され、今や ITO と匹敵するほどになってきた。

透明導電性 ZnO 薄膜の作製方法は、スパッタリング法、スプレー熱分解法、化学気相分解堆積法 (CVD)、ゾルーゲル法、分子線エピタキシャル法 (MBE)、パルスレーザー堆積法 (PLD) 等がある。スプレー法あるいはゾルーゲル法は、堆積直後の ZnO の再結晶化に  $500^\circ\text{C}$  近くのプロセス温度が必要になる。そのような高温は低融点基板に損傷を与える結果になる。特に熱的に敏感な基板に対しては、低温作製プロセスが要求される。例えば、軽いプラスチック FPD や太陽電池を実現するためのプラスチック基板に対しての許容プロセス温度は  $150^\circ\text{C}$  以下である。

現在、PLD<sup>4)</sup> は基板や膜に損傷を与えない透明導電性 ZnO 薄膜製作に期待されているが、大面積化等実用化にはまだまだ多くの課題が山積している。

一方、スパッタリング法は、多くの導電酸化材料薄膜作製技術として最も広く利用されている。しかし、スパッタリング中の高エネルギースパッタリング粒子

1 愛知教育大学大学院学生 (Student, Aichi University of Education)

が、基板ならびに成長薄膜に損傷を与える。その結果、高品質な透明導電性 ZnO 薄膜が得られないと考えられている。しかしながら、最近、高エネルギー粒子による基板および薄膜の損傷に注意しながらマグネトロンスパッタリングで高品質な透明導電性 ZnO 薄膜を作製した報告<sup>6)</sup>もあり、比較的簡単にかつ低温で大面積の透明導電性 ZnO が作製できる可能性もある。

そこで、著者らは通常の高周波スパッタリング装置を用いて、スパッタリング法の重要な作製パラメータである作製時ガス圧力を装置の可能な範囲で変化し、ZnO 薄膜を作製し、その結晶構造ならびに電気的・光学的特性を求め、検討を加えたので報告する。

## 2. 実験方法

### 2-1 試料作成

今回 ZnO 薄膜を作製するために用いた高周波スパッタリング装置 (ULVAC 社製 型式 SB1104) 概略を Fig. 1 に示す。システム構成は、ガス供給系 (ガスポンプ、減圧弁、バルブ、パーシライン、ガス流量制御装置)、プラズマ発生系 (真空容器、プラズマ電極、高周波電源、整合装置)、真空排気系 (真空計、バリアブルリークバルブ、ロータリーポンプ、ディフュージョンポンプ) から成り立っている。ガス供給系の詳細を Fig. 2 に示す。スパッタリングガスであるアルゴンガスを導入する場合はアルゴンポンプより流量計を通し

て直接スパッタリングチェンバーに導入する。スパッタリングガスであるアルゴンガスに酸素を混合して反応性スパッタリングを行う場合は、予め混合タンク (Mixture Tank) により所定の濃度に混合しておき、流量計を通してスパッタリングチェンバーに導入する。尚、反応性スパッタリングの場合は、アルゴンベース10%のアルゴン-酸素混合ガス (Ar-O) を用いた。

通常のスパッタリングの場合 (ASP) は、純度99.999%の多結晶 ZnO (直径100mm φ, 厚さ3mm) ディスクをスパッタリングターゲットとして用い、純アルゴン (Ar) でスパッタリングした。一方、反応性スパッタリングの場合 (AOSP) は、純度99.999%の多結晶 Zn (直径100mm φ, 厚さ3mm) ディスクをスパッタリングターゲットとして用い、アルゴンベース10%のアルゴン-酸素混合ガス (Ar-O) でスパッタリング及び反応をおこなった。

Si (100) 基板 (18mm×18mm) とガラス基板 (21mm×36mm) を超音波洗浄器を使用しアセトンで10分間洗浄を行っ

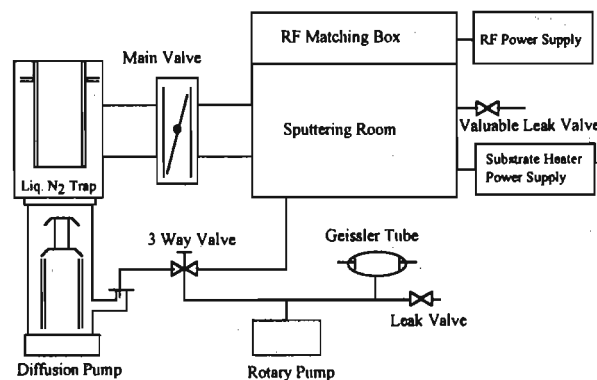


Fig. 1 Schematic diagram of RF - Sputtering system.

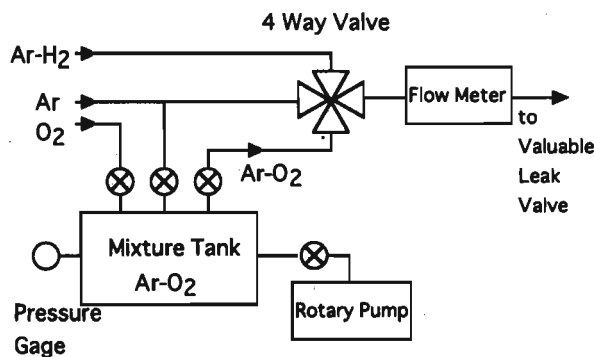


Fig. 2 Schematic diagram of gas flow system.

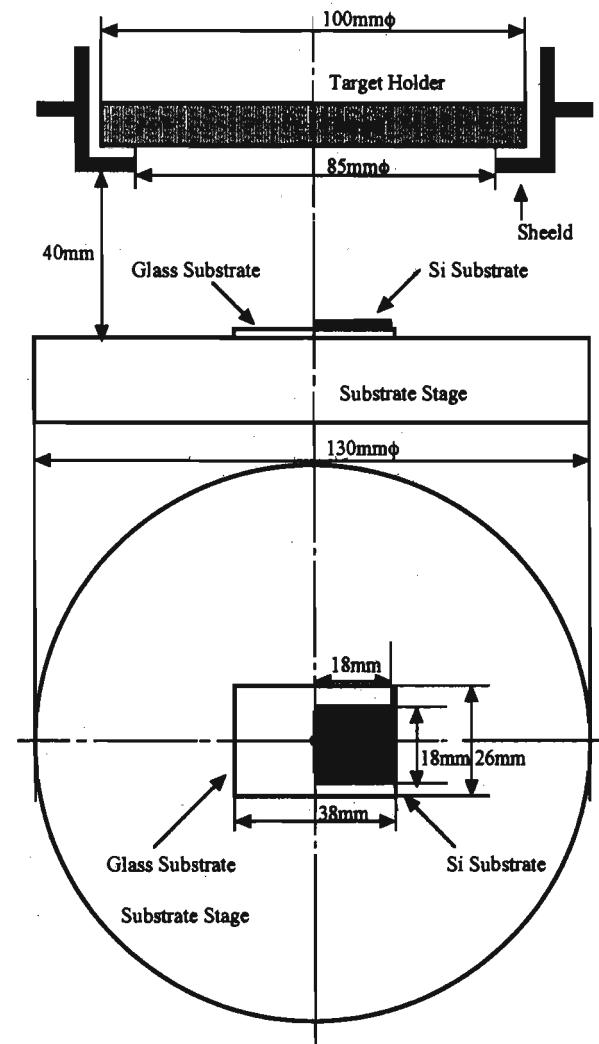


Fig. 3 schematic diagram of the internal parts of the sputtering system.

た後、直ちにチェンバー内の基板ステージに設置する。Fig. 3に示すようにSi基板はガラス基板の上部に設置し、シャッターにて基板を覆う。その後、ディフュージョンポンプで $5 \times 10^{-6}$  Torrまで真空にし、また同時に基板温度を所定の温度にまで昇温しておく。次に、ガスを100sccm程度導入し、メインバルブで所定のスパッタリング圧力に調整する。その後、高周波電力を投入し、マッチングボックスにより所定の電力に調整し、シャッターを開きスパッタリングを開始する。同図に示してあるようにターゲットと基板ステージの距離は40mmである。また、ターゲット以外のホルダー等によるスパッタリングを避けるためにシールドが設けられている。このシールドの開口直径は85mmである。

今回、高周波投入電力を100W一定とし、スパッタリング時ガス圧力を4mTorrから100mTorrまで変化させてZnO薄膜を作製した。基板温度は100°C, 200°C, 300°C, スパッタリング時間は10分, 20分, 30分と設定した。

## 2-2 偏光解析

試料に光を照射したとき、反射した際の光の偏光状態の変化を測定し、試料の光学定数や膜厚を求める方法を偏光解析法と呼ぶ。その偏光状態の変化を測定する装置がエリプソメータである。自動エリプソメータ(日本分光社製, MEL-30)を使用した。偏光解析ならびにエリプソメータに関する詳細は過去の報告に示してある<sup>6,7,8)</sup>。

光源として、波長分光測定のためのキセノンランプとHe-Neレーザが装備されている。光源には波長632.8nmのHe-Neレーザを用い、照射ビーム径1mm, 入射角を45°に設定した。試料を測定する際は、5mm×5mmの範囲で25ポイントのマッピング測定を行った。

偏光解析のための試料は、光学定数の詳細が明確になっている基板材料上に作製することが一般的である。特に今回の試料のように、全く光学定数が推定できない試料に対しては、偏光解析の未知数をできるだけ減らすために、既知の光学定数をもったシリコン基板を用いた。

## 2-3 光吸収特性

発光分光分析装置(大塚電子株式会社製, MCPD-110)と光源として放射波長220nm~2000nmを有する75Wキセノンランプ(浜松ホトニクス社製)を用いてZnO薄膜の光吸収特性を測定した。試料が堆積していないスライドガラスにキセノンランプ光を照射し、その透過光をオプティカルファイバに通して発光分光分析装置に取込む。次に、ZnO薄膜を堆積したスライドガラスに同様にキセノンランプ光を照射し、その透過光を発光分光分析装置に取込み、その2つの透過光の

強度比から以下の式を用いて、光吸収係数を算出した。

一般的に、入射光強度 $I_1$ の光が吸収係数 $\alpha$ の媒質中を距離 $x$ 移動したときの光強度 $I_T$ は以下の式で与えられる<sup>9)</sup>。

$$I_T = I_1 e^{-\alpha x} \quad (1)$$

この式を用いるとスライドガラスの透過光強度は

$$I_g = I_1 e^{-\alpha_g x_g} \quad (2)$$

ZnO薄膜を堆積したスライドガラスの透過光強度は

$$I_T = I_1 e^{-(\alpha_g x_g + \alpha_c x_c)} \quad (3)$$

(2)式と(3)式より、

$$\ln I_T - \ln I_g = -\alpha_c x_c \quad (4)$$

これより、ZnO薄膜の吸収係数を求めることができる。ここで、 $I_g$ はスライドガラスを透過した光の強度、 $I_1$ は測定物表面に入射する光の強度、 $I_T$ はZnOを堆積したスライドガラスを透過した光の強度をそれぞれ示す。また $\alpha_g$ ,  $\alpha_c$ はスライドガラスとZnOの吸収係数、 $x_g$ ,  $x_c$ はスライドガラスとZnOの厚さをそれぞれ表す。尚、試料の膜厚は、偏光解析より求めた値を用いた。

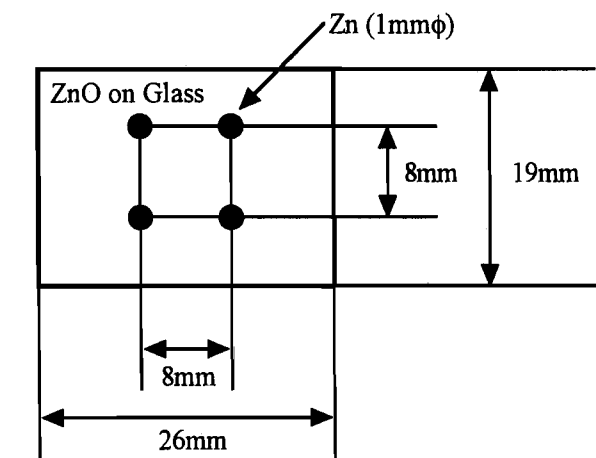
## 2-4 反射電子線回折法ならびX線回折法

反射電子線回折法(Reflection Electron Diffraction; RED)は、電子顕微鏡の電子銃からの平行性のよい電子線を100 $\mu$ m~1 $\mu$ mに絞って試料に1~2°の角度で入射し、表面で回折した電子線を蛍光スクリーンに投影して回折像を観察するものである。高速電子であるが、電子線を試料表面すれすれに入射させるため、電子線の垂直なエネルギー成分は極めて小さく、表面の数原子層のみが回折に寄与し、表面に極めて敏感である。X線回折法では感度がないような薄膜の結晶構造解析には有効な方法である。Si基板上に堆積されたZnO薄膜試料の中央部分約5mm×5mmにカットしたものをREDの試料とした。加速電圧160kVでの回折像をフィルムに投影し、そのフィルムを写真現像することにより回折像を観察した。

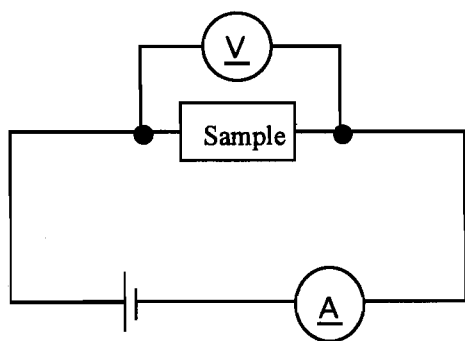
X線回折法(X-Ray Diffraction; XRD)は結晶構造解析では最も一般的な方法である。主にバルク試料に有効な結晶構造解析手段であるが、薄膜試料に対してはバルク試料と比較するためには1 $\mu$ m以上の厚さが必要といわれている。しかし、今回使用したX線回折装置(理学電機社製ATX-G)は入射X線強度も強くかつ高感度であるため、1 $\mu$ m以下の薄膜にも感度をもつ。X線波長 $\lambda$ は、1.54056Å(CuK $\alpha$ 1:ターゲット電圧50kV, ターゲット電流300mA)で、 $2\theta$ - $\omega$ モードで測定した。Si基板上に堆積されたZnO薄膜試料をXRDの試料とした。

## 2-5 van der Pauw法による抵抗率の測定

今回使用した抵抗率の測定方法は、van der Pauw



(a)



(b)

Fig. 4 Schematic diagram of sample (a) and circuit (b) using der Pauw method.

法といい、厚さが一様な板状で不純物分布が均一であれば、4個のオーミック電極をもうけて、抵抗率を測定することができる便利な方法である。この方法は小さな試料でも測定が可能で、電極間の距離等の幾何学的な測定が不要で、しかも幾何学配置による誤差を生じないなどの利点がある。Fig. 4に抵抗率測定に用いた試料の幾何学的な電極形状と測定回路を示す。ガラス基板上に堆積されたZnO薄膜上にZnを図に示すようにスパッタリングにより堆積し、オーミック電極とした。Zn電極とCuリード線を銀ペーストで接続した。

### 3 実験結果および検討

#### 3-1 膜厚

Si上のZnO薄膜をエリプソメータにより測定し、その結果をZnO薄膜と表面層(表面粗さ:ZnOとボイドの混合層)の2層構造を仮定し、シュミレーションを行った。ZnOの屈折率 $n$ は2.0で消衰係数 $k$ は0では理論曲線上と測定結果はフィティングした。基板温度300℃、堆積時間30分におけるスパッタリングガス圧力に対する堆積膜厚結果をFig.5に示す。Arスパッタリング(ASP)もAr-Oスパッタリング(AOSP)もともにスパッタリングガス圧力の上昇とともに堆積速度は増加し、10mTorr~数十mTorrで極大を

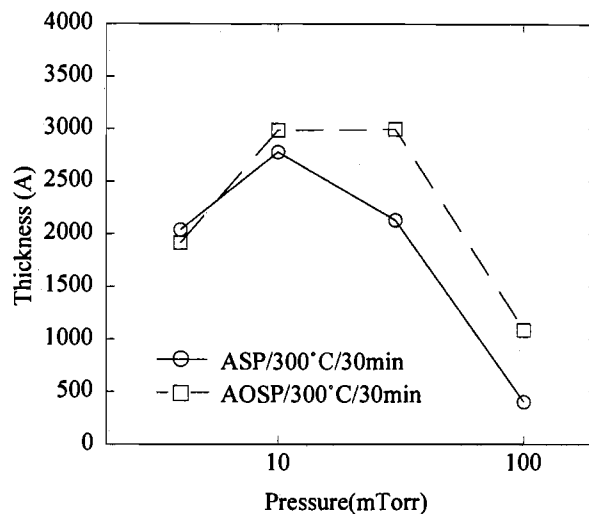


Fig. 5 Film thickness evaluated by ellipsometry as a function of the sputtering gas pressure. Films were deposited at the substrate temperature of 300℃ and for the deposition time of 30 min.

示し、100mTorrで低下する。ASPの堆積速度がAOSPより若干高いが、低圧力では殆ど差はない。

#### 3-2 反射電子回折

ASPならびにAOSPにおける基板温度300℃、堆積時間30分におけるスパッタリングガス圧力に対するSi基板上に堆積したZnO薄膜の反射電子線回折像(RED)をFig.6, Fig.7にそれぞれ示す。尚、スパッタリングガス圧力4mTorrにおける異なる基板温度におけるREDパターンも同時に示す。

ASPにおいて、スパッタリングガス圧力の低下とともにREDパターンは多結晶を示すデバイシェラーリングパターンから単結晶を示すスポットパターンに変化している。さらに詳細にパターンを観察すると、100mTorrではシャープなリングで、200mTorrではリングに切れ目が若干出現し、(002)面に対応する位置に幅をもったパターンを示し、10mTorr以下では、スポットパターンであるが(002)、(004)面に対応するスポットの強度が他の面に対応するスポットより強くc軸配向が強いことを示している。このことより、スパッタリングガス圧力の低下と共にc軸配向性が強くなることを示している。基板温度に対するREDパターンの変化は、200℃、300℃で共にスポットパターンで変化なく、100℃でディフューズなスポットとリングが混在したパターンになる。

AOSPにおいては、スパッタリングガス圧力の低下とともにASPと同様な変化に見えるが、リングは比較的にブロードでスポットもリング状に流れ、単結晶を示すようなスポットパターンではない。4mTorrではかえってリングパターンになる。配向性に関してはスパッタリングガス圧力の低下と共に強くなるが、むしろ

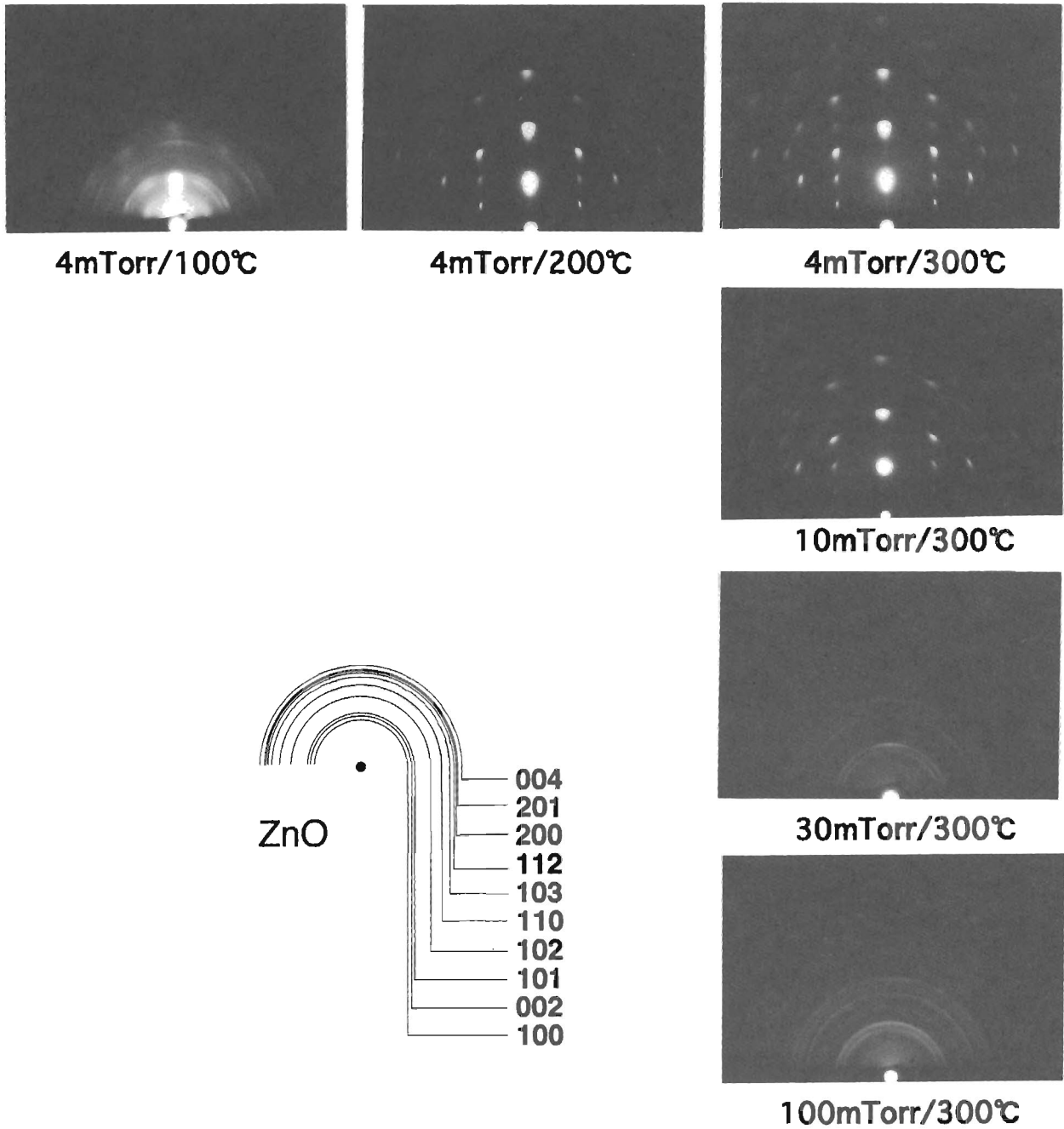


Fig. 6 Reflection electron diffraction patterns (RED) of the films deposited by ASP as a function of the sputtering pressure and the substrate temperature.

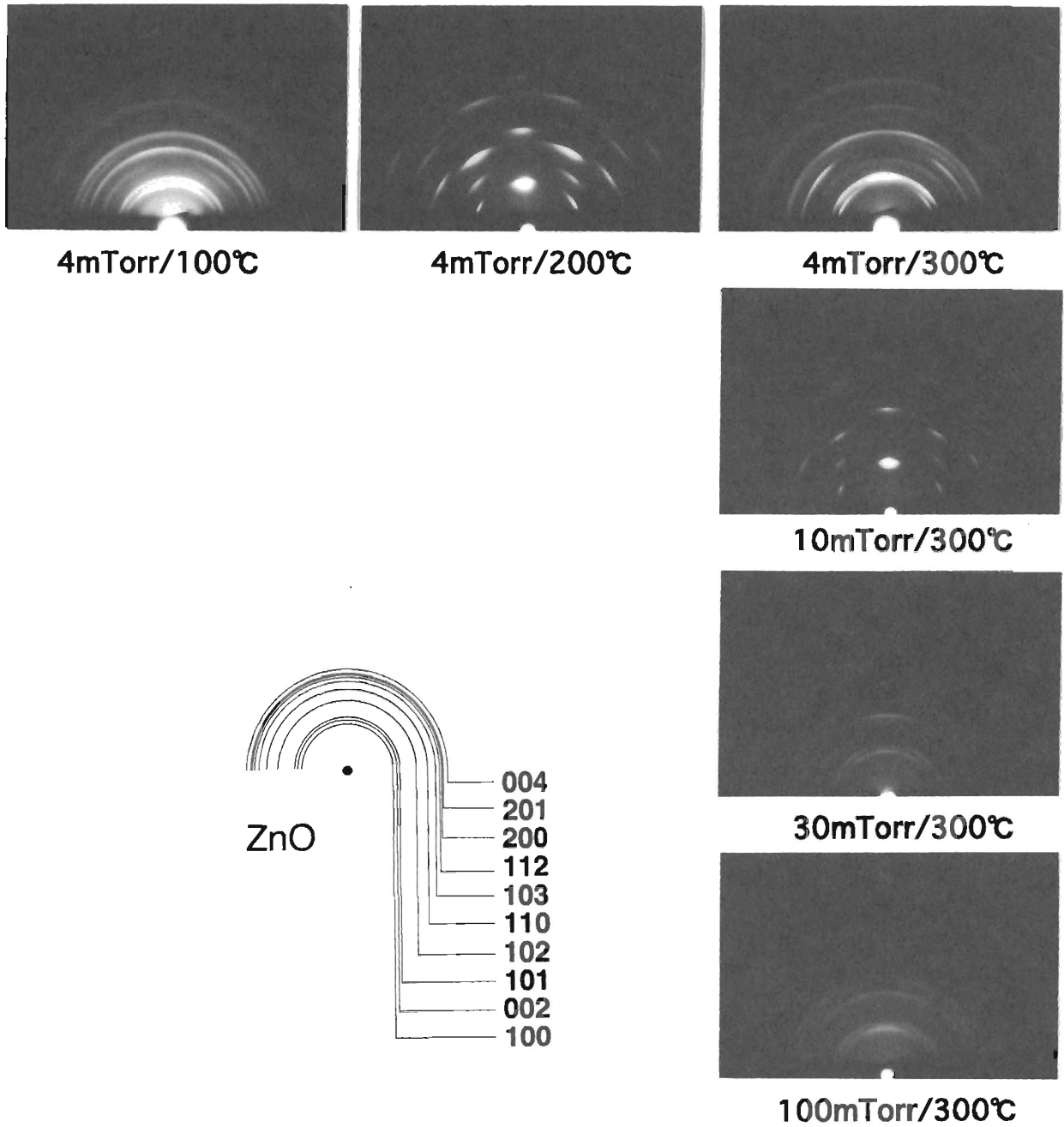
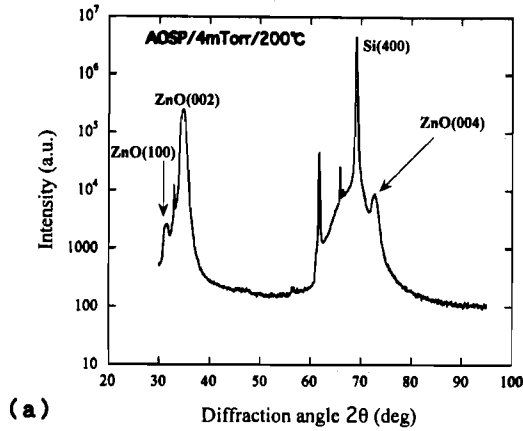
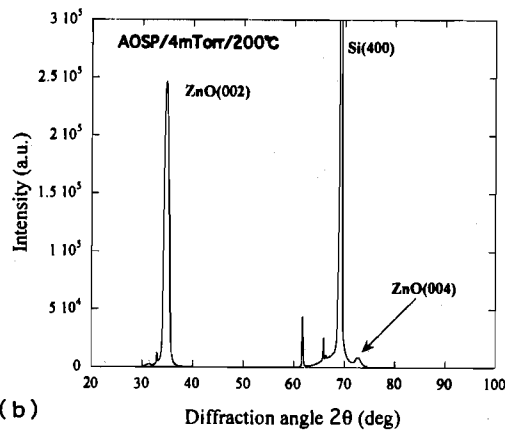


Fig.7 Reflection electron diffraction (RED) patterns of the films deposited by AOSP as a function of the sputtering pressure and the substrate temperature



(a)



(b)

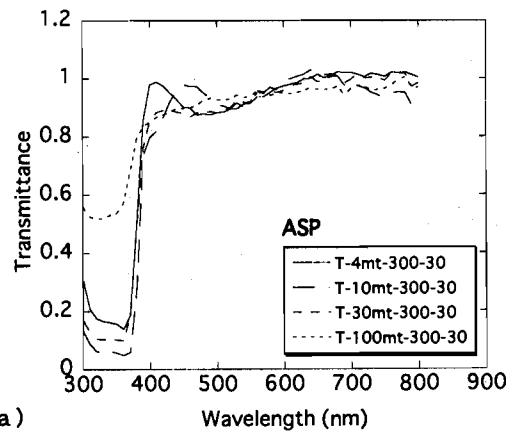
Fig. 8 X-ray diffraction (XRD) pattern of the film deposited by AOSP at the sputtering gas pressure of 4 mTorr and the substrate temperature of 200°C. Intensity is presented by log (a) and linear (b) scale.

4mTorr では配向性が弱くなる傾向を示す。基板温度に対するREDパターンの変化は、200°Cで最も強い配向性を示し、300°Cではその配向性が弱い。

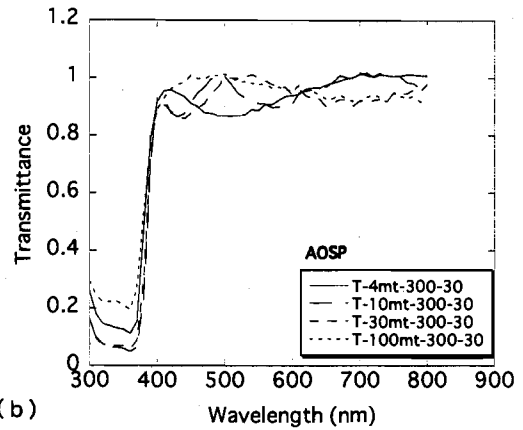
結晶性はASPのほうがAOSPより良く、共にc軸配向性を強く示す傾向がある。基板温度に対してはAOSPのほうがASPより強く影響を受け、基板温度の上昇は配向性を緩和する傾向があるようにも思われる。

### 3-3 X線回折

AOSPにおいて比較的結晶性が良好であったスパッタリングガス圧力4mTorr、基板温度200°CでSi基板上に作製されたZnO薄膜(膜厚:2261Å)のX線回折パターンをFig. 8に示す。モードは $2\theta-\omega$ で、30°から95°の範囲で測定した。(a)図は全ての回折信号を見るために縦軸を対数表示にしてある。回折角69.1°で鋭く最高の強度を示しているのは、Si(400)面からの回折ピークでSi基板からの回折ピークである。また他の鋭い回折ピークは全てSi基板からの回折ピークである。Si基板からの回折ピークよりはブロードなピーク



(a)



(b)

Fig. 9 Transmittance spectrum of the films deposited at the substrate temperature of 300°C by ASP (a) and AOSP (b) as a function of the sputtering gas pressure.

が回折角31.5°, 34.6°, 72.6°で観測される。これらの回折ピークはZnO(100), ZnO(002), ZnO(004)からの回折ピークに対応する。ZnOからの回折ピークを詳細に見るために、ZnOの最強ピークを基準に縦軸を線形表示にしたのが(b)図である。Si基板からの鋭い回折ピークを無視すれば、ZnO(002)面からの回折強度がかなり強く現れている。すなわち、反射電子回折でも述べたようにc軸配向が強いZnO薄膜であることが明らかである。また、ZnOに関して、2000Å程度の薄膜においてもかなり回折強度もあり、X線回折は有効な結晶構造解析手段となることも十分示唆された。

### 3-4 透過特性

基板温度300°C、堆積時間30分におけるスパッタリングガス圧力に対するガラス基板上に堆積したZnO薄膜の波長300nmから800nmまでの透過特性をFig. 9に示す。尚、試料の膜厚はFig. 5に示した値に対応する。(a)図はASP(b)図はAOSPを示す。ASPならびにAOSP共に波長400nm以上の可視領域で90%以上の透過率を有していることが示される。また、この領域において試料間の差を見出すことは干渉のため困難で

ある。波長300nmから400nmの紫外領域においては試料間の差が現れているように見えるが、試料間の膜厚の差がそのまま現れている。特に、ASPの100mTorrで作製された試料は500Å程度と薄いために他とかけ離れた特性に見える。ただし、波長380nmから400nmにかけての立ち上がり領域では、他に比べて相当緩やかな立ち上りを示している。また、干渉の影響を考慮しても可視領域での透過率は他に比べて低いように思われる。ZnOは直接遷移半導体であり、吸収係数( $\alpha$ )と光エネルギー( $h\nu$ )との間に $(\alpha h\nu)^2 = A(h\nu - E_g)^{1/2}$ の関係がある。ただし、 $E_g$ は光学的バンドギャップ、 $A$ は定数である。この関係を用いて、光学的バンドギャップを導出すると、3.25~3.3(eV)の範囲の値を示した。

### 3-5 抵抗率

最後に van der Pauw 法により求めた抵抗率を Table 1 に示す。ASP ならびに AOSP ともにスパッタリングガス圧力の低下と共に抵抗率が高くなる傾向が見られる。大雑把に結晶構造の変化と比較すると、結晶性が良くなるとc軸配向性が強くなると抵抗率が高くなる傾向があると考えられる。例外としてASPのスパッタリングガス圧力が10mTorr 基板温度300°Cで作製された膜は、結晶性も良くc軸配向性が強いのに比較的抵抗率が低い場合もある。今回求めた抵抗率は報告されている抵抗率より高い値を示しており今後さらなる検討が必要である。

**Table 1** Resistivity of the films deposited by ASP and AOSP as a function of the sputtering gas pressure and the substrate temperature. An arrow shows that it is impossible to measure in this electric circuit because of the higher resistivity.

$\Omega\text{cm}$			
ASP	100°C	200°C	300°C
4 mTorr	↑	↑	↑
10 mTorr	↑	↑	128
30 mTorr	116	105	138
100 mTorr	12	20	9
$\Omega\text{cm}$			
AOSP	100°C	200°C	300°C
4m Torr	↑	↑	221
10m Torr	↑	↑	↑
30m Torr	256	176	185
100m Torr	50	52	94

## 4 ま と め

ZnOは光電子デバイス材料として、また薄膜トランジスタや透明導電性薄膜の応用にも期待され、近年多

くの研究者により多くの方法でZnO薄膜の作製に関する研究が行われてきた。

比較的簡単でかつ完全に低温で大面積薄膜の作製可能な高周波スパッタリング法により、ZnO薄膜の作製を試みた。特に、スパッタリングにとって重要なスパッタリングガス圧力の作製薄膜の諸特性に与える影響を検討した結果、

- (1) ZnO薄膜の堆積速度は、ASPもAOSPも同様に、スパッタリングガス圧力の低下とともに増大し、数mTorrから数10mTorrで極大を示し、その後低下する。
- (2) 反射電子線回折とX線回折の結果からASPもAOSPも同様に、スパッタリングガス圧力の低下とともに、結晶性が良くなりかつc軸配向性が強くなる傾向を示した。
- (3) ASPで作製されたZnO薄膜もAOSPで作製されたZnO薄膜も同様に、可視領域で95%以上の透過率を示した。吸収スペクトルから求めた光学的バンドギャップは3.25(eV)~3.3(eV)の値を示した。
- (4) ZnO薄膜の抵抗率は、スパッタリングガス圧力の低下とともに増大する傾向を示した。この傾向は、スパッタリングガス圧力に対する結晶構造の変化と対応しており、c軸配向性が強くなると抵抗が高くなる傾向があると考えられる。

以上のような結果を得た。しかし、結晶構造と透過特性(吸収特性)との関連の詳細を吸収端近傍の測定精度を高めて議論する必要がある。また、抵抗率に関しては、一般に報告されているノンドープZnOの抵抗率より数桁高く、van der Pauw法の方法も含めて検討する必要がある。

当研究室においては、ZnO薄膜に関する研究は途についたばかりで、ASPの場合は比較的低温でかなり結晶性の良いZnO薄膜が得られた。また、反応性スパッタリングであるAOSPの場合、ASPに近い程度の結晶性を示した。今回は事始めということで理由なく10%の酸素濃度を採用したが、今後AOSPに関しては、この酸素濃度に対する影響も調べる必要がある。

## 謝 辞

X線回折は大同工業大学のX線回折装置(理学電機社製ATX-G)を使用させていただきましたことに感謝します。さらにX線回折データに関して多くのご指導を頂きました同大学教授・坂 貢氏に深く感謝します。また、この研究の初期の実験に協力して下さいた本学卒業生・本泉俊則氏(現:知立市立竜北中学校)に深く感謝します。

## 参 考 文 献

- 1) 玉虫文一編集:岩波理化学辞典・第3版 p.508. (1973)



- 2) A. Okamoto et al. :Appl. Phys. Lett. **72**, 2466 (1998)
- 3) K. Sakurai et al. : Jpn. J. Appl. Phys. **39**, L1146 (2000)
- 4) K. Matsubara et al. : Thin Solid Films **422** (2002) 176-179
- 5) Dengyuan Song et al. : Thin Solid Films **422**. (2002) 180-185
- 6) 清水秀己, 村瀬圭二 : 愛知教育大学研究報告, 第45輯, pp. 31-37, (1996)
- 7) 清水秀己 : 愛知教育大学研究報告, 第51輯, pp. 45-52, (2002)
- 8) 清水秀己, 伊貝 明 : 愛知教育大学研究報告, 第52輯, pp. 41-49, (2002)

(平成15年9月11日受理)