# 気相法による酸化亜鉛半導体薄膜の ステップフローホモエピタキシャル成長<sup>†</sup>

西中浩之\*藤田静雄\*\*

## Step-Flow Homoepitaxial Growth of Zinc Oxide Semiconductor Thin Films with A Vapor-Growth Method

by

## Hiroyuki Nishinaka\* and Shizuo Fujita\*\*

As a safe, simple, and low energy-consumption growth method of oxide semiconductors, we have developed a mist-chemical vapor deposition (CVD) technique. This technique has been applied to homoepitaxial growth of zinc oxide (ZnO) semiconductor thin films on ZnO bulk substrates. Step-flow growth has been achieved at the growth temperatures of 950~1000°C. The step height was 0.26nm, that is, one molecular-layer height, in the initial growth stage (20~50nm in ZnO epilayer thickness) and it is enhanced as 0.52nm, that is, two molecular-layers height, for the thicker (>200nm) films, due to coalescence of two terrace layers. Terrace shapes have been well interpreted in terms of the balance between incorporation and evaporation of adatoms at the terrace edges. The homoepitaxial ZnO layers exhibited good crystallinity comparable to that of substrates, but the inclusion of impurities, probably from the source materials due to their insufficient purity as semiconductor sources, remained as one of the most important problems to be overcome for future evolution of this unique growth technique.

Key words : Zinc oxide, Mist CVD, Homoepitaxy, Step-flow growth, Step-terrace structure

1 緒 言

新しい半導体材料の開発は、新しい半導体デバイスへの応用を通じて、わたしたちの豊かな暮らしを支えてくれる.Siに始まり、GaAs、InP、GaNといった新しい半導体材料が実用化されることで、超LSI、半導体レーザ、超高速トランジスタ、発光ダイオード等の実現につながってきたわけである。最近の地球環境保護に対する意識の高まりは、単に材料の機能だけでなく、資源の豊富さ、材料の安全性、製造にかかるエネルギーといった地球環境への負荷を考慮した材料開発を求めている。この動きに中で注目されているのが酸化物半導体である。

多くの元素が酸素と化合して酸化物を作り,酸化物は 元素にとって最も安定な形態であることが多い.また酸 化反応は比較的容易に起こる反応であり,不純物混入の 影響を避けることができる.酸化亜鉛,酸化錫,酸化イ ンジウム,酸化銅など半導体として適当な禁制帯幅を持 つ材料は多種存在する.これらの中で,とくに酸化亜鉛 (ZnO)に多くの関心が集まってきた.

ZnO は室温で 3.37eV という広い禁制帯幅を持ち,励 起子結合エネルギーが 60meV と大きいことから,紫外 領域での発光機能に強い関心が寄せられている.同時に, 低抵抗の透明導電膜として優れた特性を持ち,レアメタ ルであるインジウム (In) を含む透明導電膜酸化インジウ ム錫 (ITO) の代替材として注目を集めている. さらに透明のトランジスタとしてフラットパネルディスプレイの 駆動デバイスとしての機能が期待されている.

ZnO は多結晶、単結晶いずれの結晶形でもそれぞれに 特有の機能が応用できるという特徴がある.多結晶 ZnO は透明導電膜,薄膜トランジスタ等に利用される一方, 単結晶 ZnO は高効率の紫外発光・受光デバイス,高い 飽和電子移動度を利用した高速トランジスタ, バイオセ ンシングデバイス,スピントロニックデバイス等,新し い機能を持つデバイスの開拓につながるものと注目され ている.しかし、高品質のZnO単結晶の成長は容易では ない. その大きな要因の一つは,酸素の空孔が生じやす いということである.酸化反応は容易に起こる反応とは 言え、半導体として求められるほぼ完全な酸化には困難 が伴う.しかし, ZnO の単結晶基板が開発され,ホモエ ピタキシャル成長のもとで結晶成長を制御できることは, この材料の高品質化に大きな breakthrough をもたらし た. 今後, 詳細な物性制御や多層成長によりデバイス応 用が進むものと期待される.

一方,結晶成長技術の観点でみると,ZnOの成長はパ ルスレーザ堆積法 (PLD) や分子線成長法 (MBE) が先行 し,化合物半導体の生産技術として一般化している気相 法 (CVD)の進展は遅れをとっている.PLD や MBE で

<sup>†</sup> 原稿受理 平成 22 年 1 月 7 日 Received Jan. 7, 2010 © 2010 The Society of Materials Science, Japan

<sup>\*</sup> 京都大学大学院工学研究科電子工学専攻 〒615-8510 京都市西京区京都大学桂, Dept. Electronic Sci. and Eng., Kyoto Univ., Nishikyo-ku, Kyoto, 615-8510

<sup>\*\*</sup> 正 会 員 京都大学大学院工学研究科光・電子理工学教育研究センター 〒615-8520 京都市西京区京都大学桂, Photonics and Electronics Sci. and Eng. Center, Kyoto Univ., Nishikyo-ku, Kyoto, 615-8520

は 100cm<sup>2</sup>/Vs 以上の移動度を持つ ZnO 薄膜が実現して いる<sup>1)~5)</sup>が, CVD ではこのような薄膜を得ることが困 難である.われわれは,この問題の解決に向けて,III-V 族半導体で一般に用いられている有機金属気相成長法 (MOCVD)による ZnO 薄膜の高品質化に取り組んでき た.その結果,ZnO 基板上の高品質のホモエピタキシャ ル成長も可能となってきた.<sup>6),7</sup>しかし,ZnO の応用が着 目されるに至ったのが,優れた機能と同時に,「環境に優 しい酸化物半導体」が重要な動機であったことに遡れば, 危険で高価な有機金属を原料に用いる MOCVD の利用に は躊躇がある.また酸化反応が容易に生じる反応である がゆえに,有機金属が酸素源と前反応を起こしてしまう ため,酸化力の弱い原料を酸化源に使う必要がある.そ のため得られたZnO 薄膜に酸素空孔が生じやすくなると いうジレンマがある.

このような問題に対し、われわれは原料として有機金 属を用いるのではなく、安全な化合物を利用できる、ミ スト CVD 法による結晶成長に取り組んできた.<sup>80, 9)</sup>この 技術の詳細は以下で述べるが、高品質の単結晶薄膜の成 長にとってあまりに簡便であるという印象を与えがちで ある.しかし、対象が酸化物であるがゆえに不純物混入 の影響を受けにくく、また溶媒に含まれる酸素が十分な 酸素分圧を与え、酸素空孔の生成を抑えるのに寄与する. 実際、サファイア基板を用いたヘテロエピタキシャル成長 により、MOCVD 法と比べて比較的高い 90cm<sup>2</sup>/Vs 程度 の高い移動度を持つ ZnO 薄膜をこの技術で実現した.<sup>10)</sup>本 論文では、高品質 ZnO 薄膜の成長とデバイス応用で本 命といえる ZnO 基板上へのホモエピタキシャル成長にお いて、MOCVD では困難なステップフロー成長の実現と 高品質化に成功した結果に関して報告する.

## 2 実 験 方 法

### **2・1** ミスト CVD 技術

気相法による半導体の結晶成長は、原料に有機金属を 用いる MOCVD が一般的なものになっている. 高価で危 険な有機金属を用いる動機は、金属原料を気相で輸送す るためには蒸気圧の高い有機金属を使わざるを得ないと いう考えに根ざしてきた. また、これまでの半導体とい うと GaAs や GaN のように酸素が不純物となるため、極 微量の酸素の混入も避ける必要がある、という点も、酸 素を含まない有機金属原料を用いる理由でもあった. 同 時に、酸素の混入を避けるため、厳密なリークタイトの 反応系を必要とするため、有機金属の利用に対する高コ スト化に抵抗がなかったともいえる.

しかし,酸化物半導体の成長では,「酸素の混入を避ける」という考えが不要となる.むしろ酸素空孔の生成 を抑えるために十分な酸素分圧が必要となる.この点で, 従来の MOCVD とは全く異なった観点で,原料および成 長システムの構築が可能である.原料に関しては,酸素 を含んでも良いという観点で,求める元素を含む化学薬 品の水溶液を利用してもかまわない.ただ,このような 水溶液は蒸気圧が低いため,気相で供給するのは問題で ある.そこで,このような水溶液に超音波を印加して霧 状の微粒子(ミスト)を形成し、これをキャリアガスで 輸送することで求める元素を反応部に輸送できる、とい うのがミスト CVD 技術の基本的な考え方である.

周波数fの超音波により溶液を霧化して得られたミストの直径 d は経験的に以下の式で与えられることが知られている.<sup>11)</sup>

## $d = 0.34 (8\pi\sigma/\rho f^2)^{1/3} [cm]$

ここで、 $\sigma$ 、 $\rho$ はそれぞれ溶液の表面張力、密度を示す. 実験的には、f=3MHzにおいて $d=1.8\pm0.2\mu$ mという結果がある.<sup>12)</sup>このようにして形成されたミストは、空気中において重力と空気との摩擦力の釣り合いで浮遊する. Fig. 1 は水 (H<sub>2</sub>O)に対してミストの直径と空気中における沈降速度との関係を示したものである。上記の直径に対して沈降速度は 10<sup>-2</sup>cm/s 程度となり、ミストは実質的に定常的に浮遊する。したがって、キャリアガスにより輸送可能なわけである.

実験に用いた装置の概略を Fig. 2 に示す. 一般の気相 成長に用いられるのと同様の石英製反応炉を用いている. 基板はヒータにより最高 1000℃程度まで加熱可能である.

### 2・2 成長条件

成長には, 酢酸亜鉛水和物 (Zn(CH<sub>3</sub>COO)<sub>2</sub>·2H<sub>2</sub>O) を 原料に用いた. これを水:酢酸 = 3:2の溶媒に濃度 0.05mol/Lとなるように溶かし, 周波数 2.4MHz の超音 波により霧化させた. キャリアガスには酸素を用いた.

基板には東京電波(㈱製の c 面 Zn 極性 ZnO 単結晶を用 いた. ZnO 基板は,酸素雰囲気下 950℃以上の熱処理に より,表面が熱エッチされてステップ・テラス構造が現 れることが知られている.<sup>13)</sup>また ZnO セラミクス製の箱 内で熱処理を行うことできわめて平坦な表面が得られる という報告もある.<sup>14)</sup>ただ,実際の結晶成長プロセスを考 えると,成長直前に成長装置内で熱処理を行うことが望 ましいため,本研究では ZnO 基板を有機溶媒で洗浄した









後,そのまま成長装置内にセットし,原料供給前に成長 温度において熱処理を行った.これにより成長直前にス テップ・テラス構造が得られることは,別途原子間力顕 微鏡 (AFM) 観察により確認した.

## 3 実 験 結 果

## 3・1 成長初期の表面モフォロジー

まず成長初期の成長モードを制御するため、ZnOの膜 厚 20 ~ 50nm における表面モフォロジーを調べた. Fig.3 は成長前の基板表面の AFM 像, および成長温度 Tg = 950℃において成長した ZnO 薄膜表面の AFM 像と厚さ のプロファイルを示したものである.成長前の基板では、 Fig. 3 (a)のようにステップ・テラス構造が見られるもの のあまり明確ではない. しかし ZnO の成長を始めた直後 には, Fig. 3 (b)に示すように, 直線的なステップ・テラ ス構造が明確に見られた.厚さプロファイルによれば、 ステップの段差は 0.26nm であり、これはウルツ鉱型 ZnOのc軸長の半分, すなわち ZnO 一分子層の厚さに 相当する.また,成長前,成長後においてステップの方 向はいずれも [1010] 方向で一致し、テラス幅も変化し ていないことから、基板の情報を受け継いでステップフ ロー成長していることが分かる. Fig. 3 (c)は広い範囲の AFM 像である. 所々にステップバンチングした領域が見 られるが、概ね良好なステップフロー成長であるといえる. ZnO の結晶成長における2次元成長を含むステップフ



Fig. 3 Surface AFM images of (a) a ZnO substrate, and (b) (c) homoepitaxial ZnO layers (20~50nm in thickness) grown at 950°C. (d) Height profile along the white line shown in (b).

ロー成長に関しては,PLD や MBE で早い時期から報告 がある<sup>15),16)</sup>ものの,MOCVD では少ない.<sup>17),18)</sup>ミスト CVD 法という簡単で安全な技術においてこのようなス テップフロー成長が見られたことは,酸化物半導体の実 用的な応用に向けて価値が高いと言える.実験を行った 当時には,入手した ZnO 基板の表面状態が基板ごとに 若干異なる場合があったが,概ね再現性良く Fig.3 に示 すようなステップ・テラス構造が得られた.

#### 3・2 成長継続時の表面モフォロジー

ZnO の成長を継続し,厚さ 200~300nm になった時の 表面 AFM 像を Fig. 4 に示す.ここで,Fig. 4 (a), (b), (c), (d) はそれぞれ成長温度  $T_g = 900, 950, 975, 1000$  Cとした 場合のものである.成長温度  $T_g = 900$  Cでは,明らかな 核成長の様子を示している.成長温度  $T_g = 950$  Cの場合 には,先に示したように成長初期においてステップフロー 成長するものの,成長を継続すると Fig. 4 (b)のように大 きなテラス面上で 3 次元成長が生じているような様子が 見られる.また成長温度を  $T_g = 1000$  Cとした Fig. 4 (d) の場合,明確なステップ・テラス構造が見られるものの, 厚さプロファイルではステップの段差が 0.52nm と,成 長初期の 2 倍,すなわち ZnO 二分子層分になっているこ とが分かる.これは成長に伴うステップの前進速度が 1 層目と 2 層目とで異なり,2 層目のステップエッジへの 吸着が早くその前進速度が 1 層目に近づいたことを示唆



Fig. 4 (a)~(d) Surface AFM images of homoepitaxial ZnO layers (200~300nm in thickness) grown at different temperatures. (e) Height profile along the white line shown in (d).

するが、その原因は現在の実験結果からは明確にできない。いずれにせよ、成長継続時においても、*T*g = 1000℃においてはステップフロー成長が継続していると言える。

Fig. 4 において,成長温度 T<sub>g</sub> = 975℃と T<sub>g</sub> = 1000℃の 場合とについて表面モフォロジーを比較すると、いずれ もステップ・テラス構造が見られるものの、成長温度が  $T_g = 1000$ ℃の場合にはステップエッジが直線的であり、 T<sub>g</sub> = 975 ℃の場合にはステップエッジが顕著に蛇行して いることが見うけられる.また,成長温度が975℃の場 合には, Fig. 4 (c)に矢印で示したように, ところどころ に島状構造が見られ、完全なステップフロー成長にはなっ ていないことが分かる、この理由は、テラス表面をマイ グレーションしている原子 (アドアトム)のステップエッ ジへの取り込みとテラス表面からの再蒸発のバランスが 成長温度で異なることから説明できる. 一般にステップ エッジが蛇行している部分(キンク)では直線的な部分 に比べて未結合手の密度が高い. 成長温度が高い場合に は,直線的なステップの部分に取り込まれた原子の再蒸 発が進む一方、キンクの部分に取り込まれた原子は比較 的安定に存在し、この部分でステップが前進して行く、 このことから、成長が進むにつれてキンクの部分が少な くなり, 直線状のステップが多く存在するようになる. 他方成長温度が低い場合には,再蒸発よりも原子の取り 込まれが優先し、キンクが直線状に回復することなく成 長が進むものと考えられる. さらに成長温度が低い場合 には、テラス上で原子の拡散速度が遅いために、ステッ プ端に達することなくテラス上で島状成長する確率が増 し, Fig. 4 (c) で見られるような島状構造が形成されたも のと考えられる.

### 3・3 基板ミスカット角の効果

基板に大きなミスカット角があると、基板の単位体積 あたりのステップ数が増大し、アドアトムのステップエッ ジへの取り込み確率が増す.それによってステップフロー 成長がより促されると思われる.そこで、m軸 [1010] 方 向に 0.6°程度のミスカット角度を導入した ZnO 基板を用 い、その効果を調べた.Fig.5はこの基板上に成長した ZnO 薄膜(厚さ約 200nm)の表面 AFM 像である.成長 温度は 1000℃とした.島の形成がなくステップフロー成 長が優先し、またステップの段差は 0.26nm (ZnO 一分 子層の厚さ)であった.ミスカット角の小さい ZnO 基板を 用いた場合には、同程度の ZnO 膜厚において、ステップ



Fig. 5 Surface AFM image of a homoepitaxial ZnO layer (200nm in thickness) on a miscut (0.6°-off toward [1010] direction) ZnO substrate.

の段差は Fig. 4 (d) に示したように 0.52nm (ZnO 二分子 層の厚さ) であった. すなわち, ミスカット角の効果に より, ステップフロー成長が促進し, ステップバンチン グが抑えられたことを意味する.

ZnOのa面とm面を比較すると,m面の方が化学的に 安定なため,成長時にはm面で構成されるステップエッ ジが表面に出やすくなるという報告がある.<sup>19)</sup>これを考慮 すると,今回のm軸方向にミスカット角を持つ基板にお いては,ステップエッジの前進速度が層によってほとん ど変わらず,ステップバンチングを引き起こさずに一層 分のステップを保ちながら成長したと解釈できる.

### 3・4 ZnO 成長層の評価

Fig. 6は ZnO 基板およびその上に ZnO 薄膜が約 200nm ホモエピタキシャル成長した試料のX線回折ロッ キングカーブを比較したものである.基板から得られる 半値幅 18.4arcsec であり,他方ホモエピタキシャル ZnO 成長層を持つ試料からは半値幅 19.4arcsec とやや大きい 値が得られた.いずれも装置の限界に近く,またホモエ ピタキシャル ZnO 成長層が 200nm の場合には基板の影 響がX線回折結果に表れるために厳密な結晶性の議論は 困難である.しかし,ホモエピタキシャル成長の試料に おいて,ロッキングカーブの形状がほぼガウス型を示し ていることをあわせて考えると,ホモエピタキシャル ZnO 成長層が基板に比べて結晶性が大きく損なわれてい ることはないものと推察される.

成長温度を Tg = 900 ~ 1000℃に変化させて成長した



Fig. 6 X-ray  $\omega$ -scan rocking curves for (a) a ZnO substrate and (b) a ZnO homoepitaxial layer (200nm in thickness) on the ZnO substrate.



Fig. 7 Low temperature (5K) PL spectra of a ZnO substrates and of ZnO epilayers grown at different temperatures between 900 and 1000°C.

試料について、低温 (5K) でのフォトルミネセンス (PL) スペクトルを Fig. 7 に示す. 3.35 ~ 3.38eV 付近のバン ド端発光に注目すると、基板に比べ、成長温度  $T_g =$  900℃の試料でいくつかの異なるピークが見られる一方、 成長温度が高くなるとこれらのピークが分離されずにブ ロードになることが分かる. このように多数のピークが 現れる要因は ZnO 成長層に含まれる不純物に起因するの ではないかと考えられる. 成長温度の上昇によってピー クがブロードになったのは、不純物の混入の増加による ものと思われる. 成長温度  $T_g = 950$ ℃の試料では発光自 体が弱く、またピーク位置が他のものと異なっており、 未知の不純物が多量に混入した可能性を示唆するが、詳 細は不明である.

このような不純物の要因としては、まず成長に用いた 原料に含まれるものが考えられる.成長に用いた酢酸亜 鉛および酢酸の純度は99.9%と高いものではない.この ように半導体の成長に通常用いられている原料に比べて 低い純度のものを用いたのは、市販の薬品でさらに高純 度のものを得ることがまだ一般的でないためである.ま た、現時点では結晶成長のモードを制御することを主な 目的で実験を行ってきたため、結晶成長プロセスで混入 する不純物も考慮する必要がある.サファイア基板上の ヘテロエピタキシャル成長において MOCVD 法と比べて 比較的高い 90cm<sup>2</sup>/Vs 程度の移動度がミスト CVD 法で 得られたものの、キャリア密度は 10<sup>17</sup>cm<sup>-3</sup> 台であり,<sup>10</sup>酸 素空孔の影響を考慮しても不純物の寄与が大きいと予想 される.

今後,特性を含めて成長層の高純度化を図るためには, 二次イオン質量分析 (SIMS) 等をもとに不純物の同定を 図り,原料純度の向上,および結晶成長プロセスの改善 が必要であろう.しかし,MOCVD でそうであったよう に,半導体成長技術としてミスト CVD 法が拡がること を通じて原料の高純度化,結晶成長技術の高度化が進み, 結果として成長層の特性向上がもたらされてゆくものと 期待している.

#### 4 結 言

環境負荷が少なく,多様な機能が期待される半導体と して酸化物半導体に注目し,これを安全・省エネルギー の技術で成長させることを目指してミスト CVD 法の開 発を行った.酸化物半導体として現在大きな応用上の期 待が寄せられている ZnO 薄膜のホモエピタキシャル成長 にこの技術を適用し,気相法では困難であったステップ フロー成長を実現した.基板の結晶性を引き継ぐ優れた 結晶性を持つことが期待される一方,成長層に含まれる 不純物の問題が明確になった.今後原料の高純度化等の 改善が必要であり,それにより環境保護に貢献する半導 体材料・成長技術として将来の地球に優しい経済発展に 寄与して行けることを信に期待・希望するところである.

本研究の一部は,文部科学省知的クラスター創成事業 「京都環境ナノクラスター」のもとに行った.また文部科 学省グローバル COE プログラム「光・電子理工学の教 育研究拠点形成」の援助を受けた.

## 参考文献

- A. Ohtomo, K. Tamura, K. Saikusa, K. Takahashi, T. Makino, Y. Segawa, H. Koinuma and M. Kawasaki, "Single crystalline ZnO films grown on lattice-matched ScAlMgO<sub>4</sub> (0001) substrates", Applied Physics Letters, Vol.75, pp.2635-2637 (1999).
- 2) K. Nakahara, T. Tanabe, H. Takasu, P. Fons, K. Iwata, A. Yamada, K. Matsubara, R. Hunger and S. Niki, "Growth of undoped ZnO films with improved electrical properties by radical source molecular beam epitaxy", Japanese Journal of Applied Physics, Vol.40, No.1, pp.250-254 (2001).
- 3) X. Wang, Y. Tomita, O.-H. Roh, M. Ohsugi, S.-B. Che, Y. Ishitani and A. Yoshikawa, "Polarity control of ZnO films grown on nitrided c-sapphire by molecular-beam epitaxy", Applied Physics Letters, Vol.86, 011921 (1-3) (2005).
- 4) K. Koike, T. Komuro, F.-P. Yan, K. Ogata, S. Sasa, M. Inoue and M. Yano, "Molecular Beam Epitaxial Growth of Single-Crystalline ZnO Films on a-Plane Sapphire Substrates", Journal of The Society of Materials Science, Japan, Vol.52, No.12, pp.1414-1419 (2003).
- K. Hirano, M. Fujita, M. Sasajima, T. Kosaka and Y. Horikoshi, "ZnO epitaxial films grown by flux-modulated RF-MBE", Journal of Crystal Growth, Vols.301/302, pp.370-372 (2007).
- K. Ogata, T. Kawanishi, K. Sakurai, S.-W. Kim, K. Maejima. S. Fujita and S. Fujita, "Homoepitaxial growth of ZnO by metalorganic vapor phase epitaxy", Physica Status Solidi (b), Vol.229, No.2, pp.915-919 (2002).
- 7) T. Moriyama, S. Fujita and S. Fujita, "Characterization of bulk ZnO substrates and homoepitaxial growth", Journal of The Society of Materials Science, Japan, Vol.53, No.12, pp.1334-1339 (2004).
- 8) T. Kawaharamura, H. Nishinaka, K. Kametani, Y. Masuda, M. Tanigaki and S. Fujita, "Fabrication and properties of ZnO thin films prepared by micro channel mist method", Journal of The Society of Materials Science, Japan, Vol.55, No.2, pp.153-158 (2006).
- 9) T. Kawaharamura, H. Nishinaka and S. Fujita, "The effect of fine channel & collisional mixing on mist CVD method", Journal of The Society of Materials Science, Japan, Vol.57, No.5, pp.481-487 (2008).
- H. Nishinaka, Y. Kamada, N. Kameyama and S. Fujita, "Epitaxial ZnO thin films on a-plane sapphire substrates grown by ultrasonic spray-assisted mist chemical vapor deposition", Japanese Journal of Applied Physics, Vol.48, No.12, 121103 (1-5) (2009).
- R. J. Lang, "Ultrasonic Atomization of Liquids", Journal of Acoustic Society of America, Vol.34, pp.6-8 (1962).
- J. W. S. Rayleigh, "The Theory of Sound, Vol.2", p.344 (1945) Dover publications.
- 13) C. Neumann, S. Lautenschläger, S. Graubner, N. Volbers,

B. K. Meyer, J. Bläsing and A. Krost, "Surface preparation of single crystals for ZnO homoepitaxy", Materials Research Society Symposium Proceedings, Vol.957, 0957-K07-31 (2007).

- 14) A. Kobayashi, J. Ohta and H. Fujioka, "Characteristics of single crystal ZnO annealed in a ceramic ZnO box and its application for epitaxial growth of GaN", Japanese Journal of Applied Physics, Vol.45, No.7, pp.5724-5727 (2006).
- 15) K. Masuko, A. Ashida, T. Yoshimura and N. Fujimura, "Influence of antiferromagnetic exchange interaction on magnetic properties of ZnMnO thin films grown pseudomorphically on ZnO (0001) single-crystal substrates", Journal of Applied Physics, Vol.103, 043714 (1-4) (2008).
- H. Kato, M. Sano, K. Miyamoto and T. Yao, "Homoepitaxial growth of high-quality Zn-polar ZnO films by plasma-

assisted molecular beam epitaxy", Japanese Journal of Applied Physics, Vol.42, No.8B, pp.L1002-L1005 (2003).

- 17) S. Heinze, A. Krtschil, J. Bläsing, T. Hempel, P. Veit, A. Dadgar, J. Christen and A. Krost, "Homoepitaxial growth of ZnO by metalorganic vapor phase epitaxy in two-dimensional growth mode", Journal of Crystal Growth, Vol.308, pp.170-175 (2007).
- 18) T. Ive, T. Ben-Yaacova, C. G. Van de Walle, U. K. Mishraa, S. P. DenBaarsa and J. S. Speck, "Step-flow growth of ZnO (0001) on GaN (0001) by metalorganic chemical vapor epitaxy", Journal of Crystal Growth, Vol.310, pp.3407-3412 (2008).
- K. Nakahara, H. Yuji, K. Tamura, S. Akasaka, M. Kawasaki, A. Tsukazaki and A. Ohtomo, "ZnO-based Semiconductor devices", JP. 2007-329353A.