EL 薄膜の作製と特性評価

中 西 洋 一 郎

静岡大学電子工学研究所 432 浜松市城北 3-5-1

(1996年5月18日受理)

Preparation and Characterization of Thin Films for EL Devices

Yoichiro NAKANISHI

Research Institute of Electronics, Shizuoka University
3-5-1 Johoku, Hamamatsu 432

(Received May 18, 1996)

薄膜EL素子は多層薄膜であることから、各層の膜質、各層間の界面状態にきわめて密接に関係している。ZnS: Mn薄膜EL素子では、ZnS: Mn薄膜の結晶性および配向性は蒸着時の基板温度に強く依存し、200°C付近の基板温度でZnS: Mnは[111]配向を示し、EL強度も最大を示した。基板温度の低下と共に配向性は低下し、EL強度も低下した。更に、絶縁層として Y_2O_3 を用いた場合、[111]配向ZnS薄膜の結晶性は基板となる Y_2O_3 薄膜が[111]配向でその結晶性が最も良いとき、ZnS薄膜の結晶性も最も良く、EL素子は最も優れた発光特性を示した。次に、界面の問題について紹介した。500°C前後の基板温度で発光層を Y_2O_3 /ITO上に蒸着し、アニールすると Y_2O_3 とITOの界面で完全に剥離する。これはITOのInが Y_2O_3 層へ拡散するためであり、ITO上に一旦 SiO_2 を蒸着することによってInの拡散が抑制され、剥離の発生が防止されることを示した。SrSは不安定な化合物であるため、薄膜では化学量論組成のずれや汚染不純物による欠陥が生じ易い。そのため、非放射再結合の割合が大きくなったり、Ce発光中心濃度の上限を低く押さえたりする。SrS: Ceを作製する際にZnSまたは Mn^{2+} を添加することにより、SrSの膜質が向上し、EL特性が大幅に改善されることが示された。

1. は じ め に

マルチメディア、バーチャルリアリティといったようなキーワードで代表される情報環境のめざましい進展は、マン・マシン・インタフェースとしての電子ディスプレイの側の発展も促している。現状ではいろいろな点で依然としてCRTが最も優れていると言わざるを得ないが、近年、様々なディスプレイの研究・開発が進められ、いくつかのディスプレイにおいてはインパクトのある成果ないし動向が報道された。例えば、GaN系青色LEDおよびレーザの成功、プラズマディスプレイの商品化、有機ELの目ざましい進展、電界放射型ディスプレイの動向などがあげられる。これに対して、本稿の薄膜ELは従来の高電界印加によって発光を示す無機のELを指している。この無機の薄膜EL（以下単に薄膜ELと記す）は全固体型で広視野角、高コントラスト、高速応答、低

消費電力等の特徴を有していることから、駆動電圧が高いという難点はあるものの、ZnS: Mnを発光層とする単色ディスプレイは既に広範囲に応用されている。現在はフルカラー化を目指して内外で精力的な研究が展開されている。

この薄膜ELは発光層母体材料中に導入された発光中心のホットエレクトロンによる励起で発光するバルクでの発光現象であるが、素子構造は電極薄膜、絶縁層薄膜、発光層薄膜から成る多層構造であることから、発光特性は発光層薄膜の膜質に依存することは勿論のこと、他の膜の膜質、各層間の界面状態等にも強く依存する。そこで本稿では絶縁層や電極を含めた薄膜の諸特性とEL特性との関係について評価法と関連付けて二、三紹介する。

2. EL用発光材料

2.1 単色用発光材料

単色用としては黄橙色の発光を示す ZnS: Mn である。1974年に高輝度・長寿命を示す ZnS: Mn 薄膜を発光層とする二重絶縁構造の薄膜ELが発表されて以来¹⁾, にわかにディスプレイへの応用としての薄膜ELが注目されるようになり, 多くの研究・開発の結果実用化されるに至った。何故 ZnS: Mn 薄膜ELが高輝度を示すかについてはすべて明らかにされたわけではないが, Mn^{2+} と母体の Zn^{2+} と価数が同じであり, かつイオン半径も比較的近い値であること (Zn^{2+} : 0.74 Å, Mn^{2+} : 0.80 Å) 等が考えられる。

2.2 カラー用発光材料

高輝度青色EL用材料が得られない段階では ZnS: Mn と緑色の ZnS: Tb を組み合わせた8色のマルチカラーELディスプレイが開発された。その後, まだ十分な輝度とは言えないが, 青色EL材料が開発され, フルカラーELディスプレイの開発に向けての研究が行われるようになり今日に至っている。Table 1に ZnS: Mn および赤, 緑, 青色用発光材料, それらの発光色並びに発光特性を示す。

最近, 優れた色純度 (CRT用の三原色の発光色を基準として評価される。定量的には, CIE色度座標といわれる二次元座標上の値で表される) を示し, 比較的高輝度を示す Ce 付活 $CaGa_2S_4$ や $SrGa_2S_4$ 薄膜ELが開発され, 赤色および緑色としてそれぞれ ZnS: Mn/フィルタおよび ZnS: Tb とを組み合わせてフルカラーディスプレイが試作されるようになり²⁾, 青色ELの更なる高性能化を目指して内外で精力的な研究が進められている。

一方, 青緑色の発光を示す SrS: Ce と ZnS: Mn とを積層することによって白色ELが得られることから, これと三原色のカラーフィルタとを併用したフルカラー化も進められている³⁾。

3. 発光層の構造特性と発光特性

Fig. 1に薄膜EL素子の基本構造を示す。この図からわかるように, ELは膜厚方向に印加された 10^6 V/cm 台の交流電界によって形成されるホットエレクトロンが発光中心を衝突励起することによって得られる。従って, 輝度・効率等のEL素子の性能は薄膜の構造特性に密接にかかわっていることが容易に予想される。ZnS: Mn 薄膜ELが優れた発光特性を示すということは上述のように ZnS と Mn との相性がよいということによるわけであるが, やはり, ZnS: Mn 薄膜の構造特性に強く依存する。薄膜ELは多結晶でも高輝度を示すというところに大きな特徴があるが, 膜厚方向に加速される電子の動きを利用しているので, 多結晶とはいえ, その結晶性が優れていなければならない。特に膜厚方向の結晶性即ち配向性と密接にかかわっている。ZnS 薄膜は閃亜鉛鉱型で [111] 配向し易い性質を有しており, 最も優れた結晶性と配向性は最適作製条件によって達成される。最も重要な作製条件は蒸着時の基板温度であることはよく知られ

Fig. 1 Cross sectional view of a thin-film EL device.

Table 1 Emission colors and properties of color EL materials.

EL 材料	発光色	CIE 色度座標		輝度 (cd/m ²)		発光効率 (lm/W)
		x	y	1k Hz	60 Hz	
ZnS:Mn	黄橙色	0.50	0.50	5000	200	2-4
ZnS:Sm,F	赤橙色	0.60	0.38	120	8	0.05
ZnS:Sm,Cl	赤 色	0.64	0.35	200	12	0.08
Cas:Eu	赤 色	0.68	0.31	200	12	0.05
ZnS:M/フィルタ	赤 色	0.65	0.35	1100	65	0.8
ZnS:Tb,F	緑 色	0.28	0.62	1500	100	0.5-1
ZnS:Mn/フィルタ	黄緑色	0.46	0.53	1300	50	—
CaS:Ce	緑 色	0.27	0.52	150	10	0.1
ZnS:Tm,F	青 色	0.11	0.09	10	< 1	0.01
SrS:Ce	青緑色	0.19	0.38	1500	90	0.85
SrS:Ce/フィルタ	青 色	0.10	0.19	300	18	0.1
CaGa ₂ S ₄ :Ce	青 色	0.15	0.19	—	10	—
SrGa ₂ S ₄ :Ce	青 色	0.15	0.10	—	—	—

Fig. 2 RHEED patterns of ZnS:Mn films deposited on (A) a $\text{Y}_2\text{O}_3/\text{ITO}$ and (B) a quartz glass substrates, and heat treated. Substrate temperature: (a) 220, (b) 200, (c) 180, (d) 140, (e) 60, and (f) 25°C.

ている⁴⁾。Fig. 2は絶縁層である Y_2O_3 薄膜または石英ガラス基板上に電子ビーム蒸着法により作製したZnS: Mn薄膜のRHEEDパターンの基板温度依存性を示す⁵⁾。 Y_2O_3 上では200°C、石英ガラス基板上では220°Cで[111]配向した状態となっているが、基板温度の低下とともに配向性、結晶性ともに低下していることがわかる。低い基板温度におけるRHEEDパターンは解析の結果、基板に対してある角度だけ傾いた2本の[111]軸を持つ二重

Fig. 3 Theoretical RHEED pattern corresponding to Fig. 2 (B)-(e). Closed and open circles indicate the positions showing strong intensity.

の繊維構造からなり、しかも、2本の[111]軸の角度が基板温度の低下とともに広がることを示すことがわかった。Fig. 3はFig. 2 (B)-(e)の場合の理論パターンを示す。2本の[111]軸の間の角度が約60°となるような2つの[111]配向した閃亜鉛鉱型構造のパターンを重ね合わせた構造となっていることがわかる。この場合、[311]軸があたかも基板に垂直となっているように見えるが、このことはX線回折によっても示された。即ち、Fig. 4は石英ガラス基板上に蒸着したZnS: Mn薄膜の(111)、(220)および(311)面からのX線回折強度の基板温度依存性を示す。200°Cでは強い(111)回折線のみが得られており、[111]配向していることがわかる(ただし、Fig. 2 (B)-(b)によれば、[111]軸は少し傾いている)。基板温度の低下に従って、(111)回折強度は低下し、60°Cおよび室温ではそれぞれ(311)および(220)回折線が認められる。これはFig. 3のところで説明したことによく対応している。RHEEDとX線回折の測定結果が一致したということは、上述の二重の繊維構造が膜全体に及んでいることを示している。

このような発光層の構造特性が発光特性にどのように関係しているかを示すために、Fig. 5にEL強度と印加電圧との関係(L - V 特性)の基板温度依存性を示す。図中、“as-depo”および“HT”はそれぞれ蒸着後の熱処理なしと真空中550°C、30分間の熱処理を示す。従って、この結果には熱処理の効果も示されているが、総体的には、200°C基板温度で作製した素子の輝度が最大で、かつ発光開始電圧が最も低くなっていることがわかる。この結果と前述の構造特性とを併せて考えると、少なくとも膜厚方向の結晶性が優れていることが、優れた発光特性を示すために不可欠であると結論付けられる。

ところで、ZnSは[111]配向を示す性質を持ってい

Fig. 4 X-ray diffraction peaks from (111), (220), and (311) planes of ZnS: Mn films deposited on a quartz substrates at substrate temperatures of (a) 200, (b) 140, (c) 60, and (d) 25°C.

Fig. 5 L-V characteristics of ZnS: Mn thin-film EL devices.

Fig. 6 FWHM of (222) and (400) peaks obtained for Y_2O_3 films as a function of substrate temperature during Y_2O_3 deposition.

ると述べたが、電子ビーム蒸着法やスパッタリング法等一般的な方法でEL素子の発光層を蒸着する場合、既に蒸着されている絶縁層が基板となる。よく用いられる絶縁層材料としては Ta_2O_5 、 SiN_x や Y_2O_3 等があげられる。 Ta_2O_5 および SiN_x 薄膜は通常アモルファスで Y_2O_3 は基板温度に応じて $[100]$ 、 $[111]$ または無配向を示す。アモルファス基板上に蒸着した場合には成長初期の結晶性が悪く、そのため輝度、効率も低いことが示されている^{4, 6)}。そこでこの領域のことをdead layerと呼ばれる。

また、 Y_2O_3 上に蒸着する場合、 $[111]$ 配向したZnS薄膜の結晶性従って発光特性が Y_2O_3 の結晶性、配向性に強く依存することも示されている⁷⁾。**Fig. 6**は Y_2O_3 蒸着の際の基板温度に対する Y_2O_3 薄膜の(222)および(400)回折線の半値幅の関係を示す。基板温度200°Cまでは $[111]$ 配向した膜で、基板温度が高くなるに従って、半値幅が減少しており、従って、結晶性が向上しているこ

Fig. 7 FWHM of the (111) peak obtained for ZnS: Tm films as a function of substrate temperature during Y_2O_3 deposition.

Fig. 8 Dependence of L - V characteristics of ZnS: Tm thin-film EL devices on substrate temperature during Y_2O_3 deposition.

とがわかる。300°C以上の基板温度では更に結晶性は向上するものの、(400) 回折線も現れ、配向性は低下する。Fig. 7はFig. 6に示された Y_2O_3 薄膜上に蒸着したZnS: Tm薄膜の(111) 回折線の半値幅の Y_2O_3 蒸着時の基板温度に対する依存性を示している。ZnS: Tm蒸着の際の基板温度はすべて200°Cである。この結果から、 Y_2O_3 薄膜が[111] 配向を示し、かつ結晶性が最もよい状態の時、[111] 配向したZnS薄膜の結晶性も最も優れていることがわかる。 Y_2O_3 とZnSとの間にこのような関係が示される理由の一つとして、格子の整合性が比較的良好ことが考えられる(格子定数、ZnS: 5.406 Å, Y_2O_3 : 10.60 Å。ただし、 Y_2O_3 の場合、その半分の位置にも格子点があり、結果としてミスフィットは約2%となる)。多結晶の場合でも格子の整合性が成長する薄膜に影響するののかについては検討課題であるが、上述の結果は少なくとも配向膜についてはある程度整合性も成長する薄膜の結晶性に影響を及ぼす因子の一つであることを示している。配向性が低下した Y_2O_3 上のZnS薄膜の結晶性が低下するのは、成長の初期にアモルファス上の場合と同様に、dead layerが形成されることによると考えられる。Fig. 8はFig. 6, Fig. 7の順に蒸着し、その上に再び Y_2O_3 を蒸着して形成したEL素子の L - V 特性の Y_2O_3 蒸着時の基板温度依存性を示す。ZnS: Tmは約475 nmに鋭いピークを持つ青色

発光を示すために、当初青色EL用材料として注目されたが、励起された電子の多くが800 nm付近の発光に転換されるため、高輝度が得られない。Fig. 8からわかるように、 Y_2O_3 蒸着の際の基板温度が200°C、すなわちZnS薄膜の結晶性が最も優れているとき、駆動電圧が最も低く、かつ最も急峻な輝度の立ち上がりを示すことが非常に明瞭な結果として得られている。

以上、発光層の結晶性・配向性と発光特性との関係を示した。ZnS薄膜の場合のように結晶性と配向性が一義的に対応している場合には、考察もある程度行いやすいが、SrS: Ceのように配向軸が基板温度によって変化し、結晶性を向上させるためには基板温度は高い方が望ましいが、無配向の傾向を示す⁸⁾。結晶性を優先させるべきか配向性を優先させるべきかについては議論を要するところである。

4. 界面状態と発光特性

前節では、発光層のバルクとしての構造特性と発光特性との関係について述べたが、薄膜EL素子は既に述べたように多層膜から成っており、発光層と絶縁層との界面に形成される界面準位に捕獲される電子が発光層の伝導帯中の一次電子として供給されるため、各層間の界面状態もEL素子の性能に影響を与えることが予想される。

絶縁層は酸化物が多く、発光層は硫化物が多いことから、これらが直接接した場合の、熱処理過程での界面状態の変化や各層の熱膨張係数の違いの影響等重要な要素が内在している。特に、アルカリ土類硫化物を発光層とする場合には、直接酸化物絶縁層と接すると界面で酸化反応が生じ、発光特性が著しく阻害されるため、通常はZnSがバッファ層としてこれらの間に挿入される⁹⁾。

ここでは、絶縁層とITO透明電極との間の問題について著者らが経験したことについて紹介したい¹⁰⁾。CaSやSrS等のアルカリ土類硫化物薄膜を発光層とするEL素子では、基板温度、熱処理温度ともに500~600°C程度を必要とする。このような比較的高い温度での作製過程では膜の剥離や膜中の亀裂といった現象が生じやすくなる。ITO上に Y_2O_3 を蒸着した後、基板温度500°CでCaS: Tm, F薄膜を電子ビーム蒸着法により作製し、膜の結晶性の改善と発光中心の形成の促進のために蒸着後同じ真空中で500°C、1時間の熱処理を行ったところ、ITOと Y_2O_3 との間でほとんど全面にわたって剥離が生じた。これに対して、ITO上に一旦 SiO_2 を蒸着し、その上に Y_2O_3 およびCaSを蒸着した場合には、熱処理を行っても剥離は全く生じない。この違いをはっきりさせるために、半分だけ SiO_2 を蒸着したITO基板上に Y_2O_3 およびCaSを蒸着し、熱処理を行った。得られた膜面の光学顕微鏡写真

Fig. 9 (a) Optical micrograph of a CaS film deposited on Y_2O_3 /ITO (left-handed region) and Y_2O_3 /SiO₂/ITO (right-handed region), (b) SEM micrograph and RHEED pattern of the right-handed region in (a).

を Fig. 9 (a) に示す。図中、左半分が SiO₂ の無い部分の上に、右半分が SiO₂ 上に蒸着した場合の膜面である。中央部の盛り上がりは、基板から剥離した CaS/Y₂O₃ が SiO₂ 上のそれにつながって残っている状態を示している。この図から、SiO₂ の効果が一目瞭然である。Fig. 9 (b) に後者の部分の膜の表面および断面の SEM 像および RHEED パターンを示す。この図から、SiO₂ 上に蒸着した場合には亀裂のないしかも平坦性のよい膜が得られていることがわかる。剥離後の基板表面の抵抗測定および AES 測定から、剥離は Y₂O₃ と ITO との間で生じていることがわかった。また、AES による深さ方向分布の測定を行ったところ、SiO₂ 層がない場合、熱処理により In が

Y₂O₃ 層中へかなり広がった分布となっているのに対して、SiO₂ 層を挿入した場合、熱処理を行っても In の拡散が殆ど認められないことが示された。従って、剥離の現象論的な原因としては ITO の In の Y₂O₃ 層への拡散であるということになる。また、これら二種類の試料について、それぞれの容量をインピーダンスアナライザを用いて測定したところ、SiO₂ 層がある場合には、100 Hz から 10 kHz の周波数範囲内ではほとんど一定の容量を示し、その値は計算値と概ね一致した。これに対して、SiO₂ 層がない場合には、100 Hz での容量から周波数が高くなるに従って単調に減少し、10 kHz では約 60% の値となった。容量が周波数によって変化することは極性を有する状態、この実験で考えられることはイオンが存在することを示している。すなわち、周波数を高くすると容量が減少するのは、イオンによる分極が印加電圧の極性の変化に追従できなくなるからである。以上のことから In の Y₂O₃ 層中への拡散とそれに伴って発生したと思われる何らかのイオンが剥離現象と関わっていると考えられるが、詳細は不明である。

5. SrS: Ce 薄膜の結晶性および発光特性の改善

第2節でも述べたように、薄膜 EL ディスプレイのフルカラー化へのアプローチの一つとして白色 EL のカラーフィルタによる三原色化がある。これは非常に高い輝度を示す ZnS: Mn の赤色部分と比較的高い輝度の SrS: Ce の青緑色を組み合わせることによって目的が一応達成され¹¹⁾、ディスプレイパネルとして商品化もされている。しかし、SrS: Ce の輝度は必ずしも十分ではなく、更なる向上が必要である。この輝度の向上を支配する要因は種々考えられるが、最も重要なものは SrS 薄膜の結晶性と Ce 発光中心の濃度である。発光中心の濃度の最適値を決定する要因として二つのことが考えられる。一つは、発光中心同士間の相互作用が生じることによる濃度消光であり、他の一つは、格子欠陥濃度である。発光中心材料を添加するということは母体中に格子欠陥を導入することに相当するわけであるが、その他にも種々の要因に基づく格子欠陥が存在しており、これらすべての欠陥によってホットエレクトロンの平均自由行程が短くなったり、非放射再結合遷移の確率が大きくなったりすることによる添加量の制限である。従って、濃度消光に基づく濃度の上限まで添加できるのが理想である。しかし、現実には様々な欠陥が存在する。特に、アルカリ土類硫化物は吸湿性があり、ZnS 系に比べると不安定な化合物で、また、Sr や Ca と S との蒸気圧の差が大きいため、薄膜中に S 空孔や O や OH 等の不純物に基づく欠陥が生じやすい。また、Ce³⁺ の導入に際しては電荷の中性条件を

Fig. 10 L-V characteristics of different SrS: Ce based EL devices.¹¹⁾

満たすために+1価または-3価のイオンを同時に添加する必要がある。それを行わなければ、Sr空孔が形成されることになる。従って、SrS: Ceの場合、現状ではCeの最適濃度が他の欠陥によって低く押さえられていると考えられる。そこで、SrS薄膜中の欠陥濃度を減少させることは、SrS: Ceの輝度を向上させるために極めて重要な課題であるということで、いろいろなことが試みられてきた。例えば、電子ビーム蒸着中にSを共蒸着することや蒸着後のSまたはAr-S中でのアニール^{12, 13)}等がある。Ar-S中のアニールにより dead layerの減少、[100]配向性の大幅な向上、従って輝度・効率の2倍以上の向上が達成されている¹¹⁾。また、最近注目されている性能向上のための方法として、SrSにZnSまたはMn²⁺を添加するという試みがある。Fig. 10はHüttlらによって報告された一例である¹⁴⁾。ZnSまたはMn添加の効果は顕著であることがわかるが、ZnSの蒸着は200~300°Cの基板温度、SrSは500°C前後の基板温度で蒸着される。この例のようなZnSを添加したSrSの蒸着はやはり500°C程度の基板温度で行われるので、作製された薄膜中にはZnはAESやEDS等による測定ではほとんど検出限界以下である。Mn²⁺の場合もその濃度が高くなるとCe³⁺からMn²⁺へのエネルギー移動が大きくなって発光効率はむしろ低下する。国内においてもこれまでにいくつかの研究発表がなされているが^{15, 16)}、ZnSやMn²⁺の結晶性や発光特性への寄与の仕方の詳細は未だ明らかにされていない。

6. お わ り に

以上、発光層薄膜の質や多層薄膜であることから不可避の界面状態等とEL素子の発光特性との関係について

述べてきたが、ここに紹介した例はごく一部であって、これまでに報告されている薄膜EL素子に関する論文はすべて界面の問題も含めた薄膜の状態に関係していると言っても過言ではない。そして、この分野の研究は究極の薄膜および素子作製法というものがあるとするれば、そこへの到達を目指して続けられるであろう。また、X線回折等によるマクロな分析のみならず、発光中心材料、不純物等のミクロな分析も含めた評価法の発展は、ELディスプレイの進展にとってもきわめて重要なことであることを記してこの稿を終えたい。

文 献

- 1) T. Inoguchi, M. Takeda, Y. Kakihara, Y. Nakata and M. Yoshida: Digest of Technical Papers, 1974 SID Int. Symposium (San Diego, CA, 1974) p. 84.
- 2) W.A. Barrow, R.C. Coover, E. Dickey, C.N. King, C. Laakso, S.S. Sun, R.T. Tuenge, R. Wentross and J. Kane: Digest of Technical Papers, 1993 SID Int. Symposium (Seattle, WA, 1993) p. 761.
- 3) 三上明義: 学振・光電相互変換第125委員会・EL分科会・第14回研究会資料(1995) p. 11.
- 4) H. Sasakura, H. Kobayashi, S. Tanaka, J. Mita, T. Tanaka and H. Nakayama: J. Appl. Phys. **52**, 6901 (1981).
- 5) Y. Nakanishi and G. Shimaoka: J. Vac. Sci. Technol. A **5**, 2092 (1987).
- 6) Y. Nakanishi, Y. Fukuda, Y. Hatanaka and G. Shimaoka: Appl. Surf. Sci. **48/49**, 297 (1991).
- 7) Y. Nakanishi, S. Mori, T. Nakamura, H. Tatsuoka, H. Kuwabara and Y. Hatanaka: Materials Chem. Phys. **43**, 292 (1996).
- 8) Y. Nakanishi, T. Ito, Y. Hatanaka and G. Shimaoka: Appl. Surf. Sci. **65/66**, 515 (1993).
- 9) S. Tanaka, H. Deguchi, Y. Mikami, M. Shiiki and H. Kobayashi: Proc. Soc. for Information Display **28**, 21 (1987).
- 10) 中西洋一郎, 鈴木佳子, 周 桂喜, 荻田正巳, 福田安生, 島岡五朗: 表面科学 **10**, 399 (1989).
- 11) M. Leppänen, G. Härkönen, A. Pakkala, E. Soininen and R. Törnqvist: Proc. 13th Int. Display Res. Conf. (Strasbourg, France, 1993) p. 229.
- 12) K. Onisawa, Y. Abe, T. Nakayama and M. Hanazono: Jpn. J. Appl. Phys. **30**, 314 (1991).
- 13) K. Ohmi, K. Fujimoto, S. Tanaka and H. Kobayashi: J. Appl. Phys. **78**, 428 (1995).
- 14) B. Hüttl, K.O. Velthaus, U. Troppenz and R.H. Mauch: Extended Abstract of 1st Int. Conf. on Sci. and Technol. of Display Phosphors (San Diego, CA, 1995) p. 71.
- 15) 川田 昌, 内池平樹: 電子情報通信学会技術研究報告 **95** (1996) p. 61.
- 16) 広瀬友二, 原田光徳, 大観光徳, 田中省作, 小林洋志: 第43回応用物理学関係連合講演会講演予稿集, 26p ZE8 (1996).