

ЭЛЕКТРОЛЮМИНЕСЦЕНЦИЯ В $p-i-n$ -СТРУКТУРАХ НА ОСНОВЕ $a-Si_{1-x}C_x:H$

Жерздев А. В., Карпов В. Г., Певцов А. Б., Пилатов А. Г.,
Феокистов Н. А.

Представлены экспериментальные данные по электролюминесценции в видимой области спектра в $p-i-n$ -структуре на основе $a-Si_{1-x}C_x:H$. Исследовано влияние на спектр излучения туннельно-прозрачных диэлектрических прослоек между собственным и легированными слоями. Интерпретация экспериментальных данных основана на представлениях об энергетической диффузии носителей по хвостам плотности состояний.

Светоизлучающие приборы на основе тонких пленок аморфных гидрированных полупроводников — одно из интересных приложений этого класса материалов, связанное с перспективой создания цветных индикаторных панелей большой площади. Однако опубликованы лишь отдельные сообщения на эту тему [1–3]. Ее развитие сдерживается технологическими трудностями создания аморфных электролюминесцентных структур, обеспечивающих высокий уровень излучательной рекомбинации инжектируемых носителей в видимом диапазоне длин волн.

Излучательная рекомбинация осуществляется главным образом в i -слое структуры, куда носители инжектируются из легированных p - и n -слоев под действием приложенного электрического поля. В [2–3] было показано, что при введении туннельно-прозрачных диэлектрических прослоек (ТПДП) между легированными и собственным слоями эффективность излучения возрастает, а его спектр смещается в коротковолновую область.

В настоящей работе представлены результаты по влиянию ТПДП на спектры электролюминесценции $p-i-n$ -структур на основе аморфного $a-Si_{1-x}C_x:H$ типа структуры, изображенной на рис. 1. Слой прозрачного проводящего диэлектрика (ITO) толщиной $\sim 100 \text{ \AA}$ наносился на кварцевую подложку площадью $30 \times 24 \text{ мм}$ методом магнетронного распыления. Отдельные слои $p-i-n$ -структуры наносились методом ВЧ разложения смеси газов CH_4 и SiH_4 в плазме тлеющего разряда. Толщины слоев, указанные на рис. 1, измерялись с помощью лазерной интерферометрии непосредственно в процессе роста. Для легирования использовались добавки ($0.1 \div 1\%$) в основную смесь фосфина PH_3 (n -слой) и диборана B_2H_6 (p -слой). Весь процесс получения $p-i-n$ -структур происходил в многокамерной установке в едином цикле без выноса на воздух между промежуточными операциями [4]. В качестве верхних металлических контактов использовались Ti-электроды, напыленные магнетронным распылением через маску, содержащую 50 отверстий площадью 3 мм^2 каждое. В результате получалась матрица электролюминесцентных ячеек, каждая из которых исследовалась в отдельности.

Варьирование соотношения

$$K = \frac{[CH_4]}{[CH_4] + [SiH_4]}$$

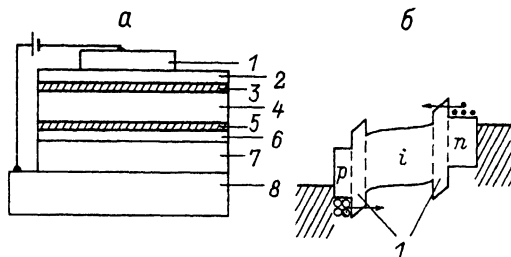


Рис. 1. Светоизлучающая структура на основе $\alpha\text{-Si}_{1-x}\text{C}_x\text{:H}$.

a — принципиальное изображение структуры: 1 — металлический электрод; 2 — *p*-слой $\alpha\text{-Si}_{1-x}\text{C}_x\text{:H}$, толщина слоя — $d = 300 \text{ \AA}$, $E_g^{\text{opt}} = 2 \text{ эВ}$; 3, 5 — ТПДП слой $\alpha\text{-Si}_{1-x}\text{C}_x\text{:H}$, $d = (40-60) \text{ \AA}$, $E_g^{\text{opt}} = 2 \text{ эВ}$; 4 — *i*-слой $\alpha\text{-Si}_{1-x}\text{C}_x\text{:H}$, $d = 500 \text{ \AA}$, $E_g^{\text{opt}} = 2.57 \text{ эВ}$; 6 — *n*-слой $\alpha\text{-Si}_{1-x}\text{C}_x\text{:H}$, $d = 150 \text{ \AA}$, $E_g^{\text{opt}} = 2 \text{ эВ}$; 7 — прозрачный проводящий электрод (ITO), $d = 1000 \text{ \AA}$; 8 — кварцевая подложка. *b* — энергетическая диаграмма светоизлучающей структуры при прямом смещении; 1 — ТПДП слой.

от 0.2 до 0.98 позволяло получать пленки с шириной оптической щели E_g^{opt} от 2 до 3.5 эВ. При выборе конкретных значений мы руководствовались следующими соображениями. С ростом содержания углерода в пленках $\alpha\text{-Si}_{1-x}\text{C}_x\text{:H}$ их полупроводниковые свойства ухудшаются. Легированные слои с $E_g^{\text{opt}} > 2 \text{ эВ}$ практически перестают быть инжектирующими. Увеличение же $E_g^{\text{opt}} > 2.6 \text{ эВ}$ делает пленки изоляторами, не обеспечивающими токоперенос. Поэтому мы выбрали $E_g^{\text{opt}} \approx 2 \text{ эВ}$ ($K = 0.2$) для *p*- и *n*-слоев, $E_g^{\text{opt}} \approx 2.57 \text{ эВ}$ ($K = 0.67$) для *i*-слоя, $E_g^{\text{opt}} = 3 \div 3.5 \text{ эВ}$ ($K = 0.90 \div 0.98$) для ТПДП.

Спектры электролюминесценции наблюдались при комнатной температуре и приложенном прямом смещении до 25 В (при больших смещениях наступал пробой). Регистрация излучения велась с помощью оптической установки КСВУ-23. Приемником служил ФЭУ-100. В качестве примера на рис. 2 показаны спектры излучения для структур с разными значениями E_g^{opt} ТПДП при одинаковом токе через структуры 15 mA/cm^2 . Видно, что при увеличении E_g^{opt} ТПДП от 3.0 до 3.5 эВ и сохранении тока неизменным спектр заметно сдвигается в коротковолновую область. Кроме того, увеличение тока в структуре подавляет коротковолновую часть спектра. Значение яркости для лучших образцов составляло $\sim 0.5 \text{ кд/м}^2$ при токе $\sim 250 \text{ mA/cm}^2$. В то же время яркости различных элементов одной матрицы были неодинаковы, различались, как правило, в пределах одного порядка величины.

Отметим, что в структурах без ТПДП свечение наблюдалось лишь в инфракрасной области и было столь слабым, что не удалось записать его спектр.

Приступая к обсуждению полученных результатов, заметим прежде всего, что в структурах без ТПДП при прямом смещении носители заряда из легированных слоев наиболее вероятно инжектируются в локализованные состояния *i*-слоя. Такой

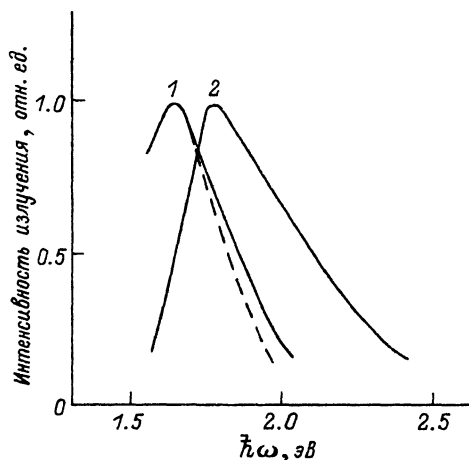


Рис. 2. Спектры электролюминесценции двух структур на основе $\alpha\text{-Si}_{1-x}\text{C}_x\text{:H}$ с различными ТПДП при одинаковом токе 15 mA/cm^2 (сплошные линии); штриховая кривая соответствует току 60 mA/cm^2 .

1 — ТПДП с $E_g^{\text{opt}} = 3.0 \text{ эВ}$; $K = \text{CH}_4/(\text{CH}_4 + \text{SiH}_4) = 90\%$;
2 — ТПДП с $E_g^{\text{opt}} = 3.5 \text{ эВ}$; $K = \text{CH}_4/(\text{CH}_4 + \text{SiH}_4) = 98\%$.

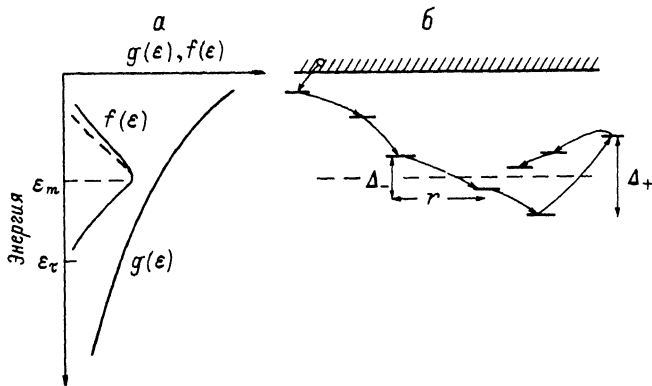


Рис. 3. Функция распределения и диффузия носителей в энергетическом пространстве.

a — хвост плотности состояний $g(\epsilon)$ и функция распределения $f(\epsilon)$ носителей по энергиям за счет энергетической диффузии. ϵ_m , ϵ_r — транспортная и рекомбинационная энергия соответственно (см. формулы (3), (4)); штриховая линия — изменение $f(\epsilon)$ при слабом увеличении электрического поля. b — понижение энергии носителя при переходах между локализованными состояниями с параметрами переходов Δ - и Δ_+ вниз и вверх по энергиям на расстояние r .

способ инжекции обладает сравнительно малой эффективностью, поскольку подвижность носителей в локализованных состояниях мала. Кроме того, при инжекции непосредственно в локализованные состояния электроны и дырки разделены по энергии на величину, заметно меньшую E_g^{opt} , соответствующую инфракрасным фотонам. В результате может иметь место лишь сравнительно слабое и длинноволновое излучение, как это и наблюдалось.

При наличии ТПДП почти все приложенное напряжение падает на них. При этом энергии туннельно инжектируемых электронов и дырок оказываются заметно выше соответствующих краев щели подвижности в i -слое: идет инжекция в распространенные состояния i -слоя. Однако за характерное время τ_r ($> 10^{-8}$ с) до излучательной рекомбинации инжектированные носители заряда понижают свою энергию и попадают в локализованные состояния хвостов зон (времена энергетической релаксации $\tau_0 \sim 10^{-12}$ [5]), поэтому высвечиваются фотоны с энергиями $\hbar\omega$ меньше E_g^{opt} .

Наблюдаемая колоколообразная форма спектра излучения предопределена экспоненциальным спадом плотности состояний хвостов зон в глубь щели подвижности типа $g(\epsilon) = g_0 \exp(-\epsilon/\epsilon_0)$ (рис. 3). При малых ϵ вблизи краев щели $g(\epsilon)$ велика, потому малó характерное время прыжков носителей между локализованными состояниями. В каждом прыжке носитель меняет свою энергию на малую величину $\Delta(\epsilon) \ll \epsilon$. При этом распределение носителей по энергии $f(\epsilon)$ устанавливается за счет энергетической диффузии, а процессы рекомбинации несущественны. Использование диффузионного приближения [6] позволяет записать

$$f(\epsilon) = f_0(\epsilon) \left[\frac{f(0)}{f_0(0)} - G \int_0^\epsilon \frac{d\epsilon}{B(\epsilon) f_0(\epsilon)} \right], \quad (1)$$

где G — скорость генерации неравновесных носителей (в $\text{см}^{-3} \cdot \text{с}^{-1}$), $f_0 \sim g(\epsilon) e^{\epsilon/T}$ — равновесная функция распределения. Коэффициент диффузии по энергии

$$B(\epsilon) = \nu \Delta^2 \exp \left\{ -\frac{2r(\epsilon)}{a} \right\}, \quad r(\epsilon) = [g(\epsilon) \Delta]^{-1/3}, \quad (2)$$

где $\nu(\epsilon)$ — длина прыжка, a — радиус локализации на центре, $\nu \sim 10^{13} \text{ с}^{-1}$ — частотный фактор. Подынтегральное выражение в (1) имеет резкий минимум около энергии

$$\epsilon_m = 3\epsilon_0 \ln \left[\frac{3}{2} \frac{\epsilon_0}{T} (g_0 a^3 \Delta)^{1/3} \right]. \quad (3)$$

При $\epsilon < \epsilon_m$ функция $f(\epsilon)$ растет с ростом ϵ подобно $f_0(\epsilon)$. Физически это означает, что инжектированные носители быстро проходят область малых ϵ , накапливаясь на глубоких уровнях, где их диффузия затруднена. Такое поведение $f(\epsilon)$ отвечает коротковолновому крылу спектра излучения. При $\epsilon > \epsilon_m$ резкий рост интеграла в (1) приводит к убыванию $f(\epsilon)$ с ростом ϵ . Физически это обусловлено неэффективностью прыжков по энергии вниз в области резко убывающей плотности состояний $g(\epsilon)$. Спад $f(\epsilon)$ с ростом ϵ можно соотнести с длинноволновым крылом спектра излучения. Максимуму спектра отвечает энергия ϵ_m (рис. 3).

Приведенный анализ формы $f(\epsilon)$ не учитывал процессов электрон-дырочной рекомбинации. Это справедливо, пока характерные времена диффузии $\tau_B \sim \epsilon^2/B(\epsilon)$ меньше времен рекомбинации $\tau = \min\{\tau_r, \tau_{nr}\}$, где τ_{nr} относится к безызлучательным процессам. В частности, если $\tau_B(\epsilon_m) \ll \tau$, носители в существенной области спектра рекомбинируют со скоростью, пропорциональной $f(\epsilon)/\tau$. В результате функция распределения $f(\epsilon)$ сохраняет свой функциональный вид, меняя только нормировку.

В противном случае $\tau_B(\epsilon_m) \gg \tau$ существенную роль играет энергия

$$\epsilon_\tau = 3\epsilon_0 \ln \left[\frac{1}{2} (g_0 a^3 \Delta)^{1/2} \ln(\nu\tau) \right], \quad (4)$$

для которой $\epsilon^2/B(\epsilon) = \tau$. Функция распределения следует закону (1) только при $\epsilon < \epsilon_\tau$, а при $\epsilon > \epsilon_\tau$ она затухает с ростом ϵ благодаря рекомбинации.

Заметим, что выражения (3) и (4) для характерных энергий $\epsilon_m, \epsilon_\tau$ фактически совпадают с выражениями для транспортной и рекомбинационной энергий, полученными в [7] другими методами (без рассмотрения энергетической диффузии). В [7] анализировался режим рекомбинации, в котором электроны и дырки рождаются в одном акте. Экспериментальная же ситуация, реализуемая в нашей работе, отвечает независимой генерации электронов и дырок.

Имея в виду типичные для аморфных полупроводников времена $\tau \gg 10^{-8} \text{ с}$ [8], можно ожидать, что $\epsilon_\tau > \epsilon_m$ (рис. 3). В этом случае вид $f(\epsilon)$ определяется в основном энергетической диффузией и максимум спектра излучения сдвинут относительно E_g^{opt} на энергию

$$E_g^{\text{opt}} - \hbar\omega_m = \epsilon_m^{(e)} + \epsilon_m^{(h)},$$

где индексы e и h относятся к электронам и дыркам. Полагая $e_m^{(e)} \approx e_m^{(h)}$ и взяв для оценки типичные значения $g_0 \sim 10^{21} \text{ эВ}^{-1} \cdot \text{см}^{-3}$, $a = 10^{-7} \text{ см}$, $\Delta \sim \epsilon_0 \sim 0.1 \text{ эВ}$, найдем $E_g^{\text{opt}} - \hbar\omega_m \approx 7 \epsilon_0 \approx 0.7 \text{ эВ}$. Эта оценка качественно согласуется с наблюдаемой величиной.

Наш подход позволяет качественно понять влияние на спектр электрического поля в i -слое ($\mathcal{E} \sim 100 \text{ кВ/см}$). Оно, во-первых, может обуславливать эффективный разогрев электронной системы, уменьшая ϵ_m и сдвигая спектр излучения в коротковолновую область. Во-вторых, поле обедняет равновесную заселенность $f_0(\epsilon)$ сравнительно мелких локализованных состояний за счет их полевой ионизации. При этом в согласии с (1) уменьшается величина $f(\epsilon)$ и подавляется коротковолновое крыло спектра. В-третьих, излучательная рекомбинация электрон-дырочной пары с плечом R при наличии поля \mathcal{E} обеспечивает высвечивание фотона с

энергией на $\delta h\nu \approx e\mathcal{E}R$, меньшей, чем в отсутствие поля. Это должно сдвигать спектр излучения в длинноволновую область.

В случае актуальных здесь высоких $T \approx 300$ К разогрев электронной системы, по-видимому, не существен, поскольку, как показано в [7], он может иметь место лишь при $T < e\mathcal{E}a/2$. Эффект же полевого обеднения $f(\epsilon)$ и подавления коротковолнового крыла соответствует экспериментальным результатам рис. 2. Третий из отмеченных полевых эффектов — длинноволновый сдвиг спектра — проявляется, по нашему мнению, в различии между спектрами излучения структур с различными ТПДП. Мы имеем в виду, в частности, влияние электрического поля, создаваемого заряженными поверхностными состояниями на границе i -слоя с ТПДП. Концентрация этих состояний растет с увеличением различия составов i -слоя и ТПДП. Можно ожидать, что при изменении концентрации K при изготовлении ТПДП в 5 раз (от $k = 0.02$ до $K = 0.1$), отвечающем данным рис. 2, плотность поверхностных состояний σ меняется на величину порядка себя самой. Задавшись типичным значением $\sigma \sim 10^{12}$ см $^{-2}$ [9], можно оценить создаваемое ими поле $\mathcal{E} = 4\pi e\sigma/x \sim 100$ кВ/см (x — диэлектрическая постоянная). Для оценки сдвига спектра, созданного таким полем, заметим, что условие эффективного излучения имеет вид $R \approx r(\epsilon_m)$ [при $R > r(\epsilon_m)$ электрон и дырка с подавляющей вероятностью разойдутся без рекомбинации]. Из (2), (3) следует, что $r(\epsilon_m) \approx \frac{3}{2} \frac{\epsilon_0}{aT}$. В результате

$\delta h\nu \approx \frac{3\epsilon_0}{2T} e\mathcal{E}a$. Используемые выше значения $\mathcal{E} = 100$ кВ/см, $a = 10^{-7}$ см, $\epsilon_0/T = 3$ дают $\delta h\nu \approx 0.1$ эВ. Эта величина согласуется с данными рис. 2.

В случае же изменения внешнего напряжения на малую величину $\sim 10\%$ сдвиг $\delta h\nu \sim 0.01$ эВ не заметен и единственным полевым эффектом остается отмечавшееся подавление коротковолнового плеча спектра.

В заключение отметим, что наблюдаемый разброс яркостей отдельных элементов матрицы подтверждает в целом механизм полевой туннельной инжекции через ТПДП. В рамках этого механизма экспоненциально важны незначительные статистические флуктуации состава ТПДП, i -слоя и плотности поверхностных состояний, приводящие к флуктуациям электрического поля в ТПДП. Несмотря на свою малость, статистические флуктуации электрического поля экспоненциально меняют туннельную прозрачность ТПДП, а значит, и инжекционный ток.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- [1] Kruangam D., Toyama T., Hattori Y., Deguchi M., Okamoto H., Hamakawa Y. // J. Non-Cryst. Sol. 1987. V. 97-98. P. 293—295.
- [2] Kruangam D., Deguchi M., Toyama T., Okamoto H., Hamakawa Y. // IEEE Trans. Electron. Dev. 1988. V. 35. N 7. P. 957—965.
- [3] Paasche S. M., Toyama T., Okamoto H., Hamakawa Y. // IEEE Trans. Electron. Dev. 1989. V. 36. N 12. P. 2895—2902.
- [4] Феокистов Н. А., Коркин И. В., Певцов А. Б., Пилатов А. Г. // Матер. Межд. конф. «Некристаллические полупроводники-89». Ужгород, 1989. Ч. III. С. 233—235.
- [5] Shklovskii B. I., Fritzsche H., Baranovskii S. D. // Phys. Rev. Lett. 1989. V. 62. N 25. P. 2989—2993.
- [6] Лифшиц Е. М., Питаевский Л. Г. Физическая кинетика (Теоретическая физика. Т. 10). М., 1979. 527 с.
- [7] Shklovskii B. I., Levin E. I., Fritzsche H., Baranovskii S. // Advances in Disordered Semiconductors. V. 3. «Transport, Correlation and Structural Defects» / Ed. by H. Fritzsche. Singapore—London—Hong Kong, 1990. P. 161—211.
- [8] Street R. A. // Adv. Phys. 1981. V. 30. P. 593—675.
- [9] Зи С. Физика полупроводниковых приборов. М., 1984. 655 с.