

# Вольт-амперные характеристики электролюминесцентных структур $Me/a-Si:H\langle Er \rangle/c-Si$ , изготовленных магнетронным распылением

© П.А. Иванов, О.И. Коньков, Е.И. Торуков

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук,  
194021 Санкт-Петербург, Россия

(Получена 29 октября 1999 г. Принята к печати 2 ноября 1999 г.)

Измерены и проанализированы вольт-амперные характеристики электролюминесцентных структур металл-(аморфный гидрогенизированный кремний, легированный эрбием)–(кристаллический кремний), изготовленных магнетронным распылением. Показано, что в широком диапазоне плотностей тока перенос носителей заряда в высокоомной пленке  $a-Si:H\langle Er \rangle$  (удельное сопротивление около 1 ГОм·см) осуществляется по механизму токов монополярной инжекции, ограниченных пространственным зарядом, при участии двух групп ловушек захвата. Из анализа вольт-амперных характеристик оценены параметры ловушек захвата: концентрация и энергия ионизации акцепторных центров ( $\sim 10^{19} \text{ см}^{-3}$  и 0.85–0.95 эВ соответственно), концентрация и энергия ионизации донорных центров ( $\sim 10^{19} \text{ см}^{-3}$  и 0.4 эВ соответственно). В свете полученных результатов обсуждается предлагаемый в литературе механизм возбуждения эрбиевой электролюминесценции в таком материале.

## 1. Введение

Обнадеживающие результаты исследований кристаллического кремния, легированного эрбием (в качестве материала для светодиодов на длину волны 1.54 мкм), стимулировали в последнее время исследования аморфного гидрогенизированного кремния, легированного эрбием ( $a-Si:H\langle Er \rangle$ ). В частности, в этом материале наблюдалась эффективная фотолюминесценция ионов эрбия [1], а недавно в структурах  $Me/a-Si:H\langle Er \rangle/c-Si$ , изготовленных магнетронным распылением, была также зарегистрирована и электролюминесценция при комнатной температуре [2]. Механизм возбуждения электролюминесценции в этих структурах, как считают авторы работы [3], обусловлен оже-процессом, в котором электроны из зоны проводимости аморфного кремния захватываются на оборванные кремниевые связи с передачей энергии в  $f$ -оболочку ионов эрбия. При этом процессом, поддерживающим электролюминесценцию в стационарном режиме, считается стимулированная полем многофононная туннельная эмиссия электронов, захваченных на оборванные связи (указанные процессы хорошо объяснили зависимость интенсивности эрбиевой электролюминесценции в структурах  $Me/a-Si:H\langle Er \rangle/c-Si$  от тока и температуры [3]).

Механизмы переноса носителей заряда в пленках  $a-Si:H\langle Er \rangle$  и влияние на прохождение тока контактов  $Me/a-Si:H\langle Er \rangle$  и гетероконтактов  $a-Si:H\langle Er \rangle/c-Si$  пока изучены недостаточно. В настоящей работе впервые проведены измерения и анализ вольт-амперных характеристик структур  $Al/a-Si:H\langle Er \rangle/c-Si$ , полученных магнетронным распылением, в широком диапазоне плотностей тока от  $10^{-7}$  до  $1 \text{ А/см}^2$ . Основанной целью исследования было выяснение механизмов электронного транспорта в пленках  $a-Si:H\langle Er \rangle$ .

## 2. Методика эксперимента

Исследованные структуры схематически показаны на рис. 1. Слой  $a-Si:H\langle Er \rangle$  толщиной около 1 мкм наносился на подложку  $c-Si$   $n$ -типа проводимости методом магнетронного распыления, активированного плазмохимическим разложением силана [4]. Эрбий вводился в процессе разложения с использованием для легирования металлического источника. В качестве контактов к  $a-Si:H\langle Er \rangle$  и к  $c-Si$  использовался термически напыленный алюминий (на пленку  $a-Si:H\langle Er \rangle$  напыление производилось через маску диаметром 1 мм).

Вольт-амперные характеристики измерялись на постоянном токе, в темноте. Полярность приложенного напряжения — ”минус” на металлическом электроде к  $a-Si:H\langle Er \rangle$  — соответствовала той, при которой в данных структурах наблюдалась эрбиевая электролюминесценция. Показанные далее вольт-амперные характеристики получены измерениями стационарных значений тока при заданных значениях напряжения на структуре.

## 3. Экспериментальные результаты и их анализ

Вольт-амперная характеристика (ВАХ) одной из исследованных электролюминесцирующих структур, измеренная при комнатной температуре, показана на рис. 2.

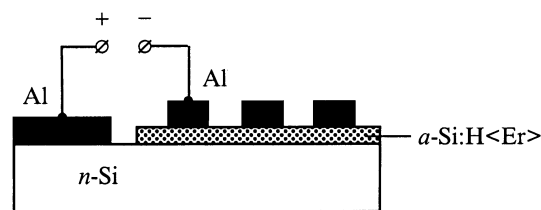
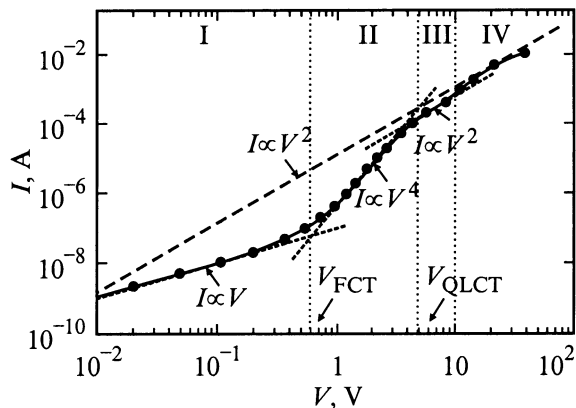
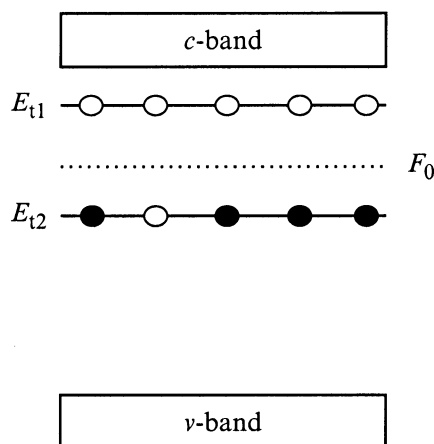


Рис. 1. Схематическое изображение исследованных структур  $Al/a-Si:H\langle Er \rangle/c-Si$ .



**Рис. 2.** Типичная вольт-амперная характеристика структур Al/a-Si:H(Er)/c-Si, обладающих эрбиевой электролюминесценцией. Температура измерений — комнатная. Участки характеристики: I — омический, II — полного заполнения ловушек (FCT), III — квадратичного заполнения ловушек (QLCT), IV — термополевая эмиссия с уровней ловушек.



**Рис. 3.** Схема энергетических уровней в запрещенной зоне аморфного кремния (при термодинамическом равновесии), используемая в модели токов, ограниченных пространственным зарядом.  $F_0$  — уровень Ферми.

Как видно, в двойном логарифмическом масштабе ВАХ состоит из нескольких отчетливо выраженных прямолинейных участков различной крутизны, которые могут быть аппроксимированы степенными зависимостями тока ( $I$ ) от напряжения ( $V$ ). На участке I ВАХ следует омическому закону, т.е.  $I \propto V$ . На участке II крутизна ВАХ увеличивается так, что  $I \propto V^4$ . Далее участок II сменяется более пологим и относительно коротким (в логарифмическом масштабе) участком III, который может быть охарактеризован квадратичной зависимостью тока от напряжения,  $I \propto V^2$ . Наконец, на участке IV крутизна ВАХ вновь увеличивается по сравнению с предыдущим участком.

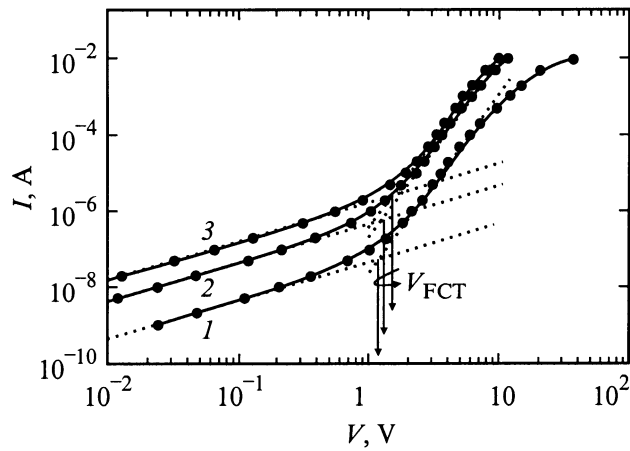
Подобные ВАХ характерны для токов, ограниченных пространственным зарядом (ТОПЗ), в изоляторах с

ловушками захвата носителей [5]. Особенности ВАХ исследованной нами структуры Me/a-Si:H(Er)/c-Si дают основания полагать, что a-Si:H(Er) представляет собой высокоомный материал  $n$ -типа проводимости с двумя группами ловушечных центров захвата, расположенных в верхней половине запрещенной зоны a-Si:H(Er). Схема расположения соответствующих энергетических уровней в запрещенной зоне аморфного кремния при термодинамическом равновесии показана на рис. 3; предполагается, что уровень Ферми  $F_0$  расположен между уровнями  $E_{t1}$  и  $E_{t2}$ , причем так, что нижний уровень почти полностью заполнен электронами, а верхний уровень почти полностью свободен от электронов. В рамках представлений о ТОПЗ качественные особенности измеренной ВАХ могут быть проинтерпретированы следующим образом.

В равновесии в пленке a-Si:H(Er) присутствует некоторое количество электронов проводимости, концентрация которых определяется положением уровня Ферми в запрещенной зоне аморфного кремния. В свою очередь положение уровня Ферми задается концентрациями и энергиями ионизации центров  $E_{t1}$  и  $E_{t2}$ .

При приложении к структуре небольшого напряжения электроны, инжектируемые в аморфный кремний из антизапорного алюминиевого контакта, захватываются ловушками  $E_{t2}$ . Проводимость пленки остается чисто омической благодаря присутствию равновесных электронов (участок I на ВАХ). По мере роста напряжения заполнение центров  $E_{t2}$  все более увеличивается (электронный квазиуровень Ферми все дальше отходит от уровня  $E_{t2}$  ближе к зоне проводимости); при этом также возрастает концентрация инжектированных свободных электронов в зоне проводимости. Как только последняя становится больше концентрации равновесных электронов, ток начинает круто возрастать с увеличением приложенного напряжения (участок II, который по терминологии теории ТОПЗ называется участком "полного заполнения ловушек" (ПЗЛ) — *fully completed traps*, FCT). Рост тока по закону  $I \propto V^4$  продолжается до тех пор, пока он не начинает ограничиваться захватом носителей на центры  $E_{t1}$  (при приближении электронного квазиуровня Ферми к уровню  $E_{t1}$ ). Далее ВАХ должна следовать квадратичному закону, до тех пор пока квазиуровень Ферми остается ниже уровня  $E_{t1}$  (участок III, который по терминологии ТОПЗ называется "ловушечным квадратичным законом" (ЛКЗ) — *quadratic law completed traps*, QLCT). Наконец, увеличение крутизны ВАХ при напряжениях свыше 10 В (электрическое поле в пленке больше  $10^5$  В/см) происходит, как мы считаем, за счет термополевой эмиссии электронов с уровней ловушек.

Некоторые дополнительные свидетельства в пользу схемы уровней, предложенной для интерпретации ТОПЗ, были получены после измерений ВАХ при температурах выше комнатной. Увеличение температуры должно было сопровождаться следующими изменениями ВАХ. Во-первых, удельное сопротивление аморфной пленки при повышении температуры должно уменьшаться.



**Рис. 4.** Вольт-амперные характеристики структуры  $Al/a-Si:H(Er)/c-Si$  при температурах  $T, K$ : 1 — 293, 2 — 343, 3 — 393.

Во-вторых, напряжение, соответствующее излому ВАХ между омическим участком и участком ПЗЛ, должно увеличиваться из-за смещения уровня Ферми при повышении температуры ближе к середине запрещенной зоны. В-третьих, закон ПЗЛ ( $I \propto V^4$ ) должен, по видимому, оставаться неизменным. В-четвертых, термополевая эмиссия должна активироваться, так что предшествующий ей участок ЛКЗ может оказаться менее выраженным. Как видно из рис. 4, на котором представлены ВАХ, измеренные при температурах от комнатной до  $120^\circ C$ , все ожидаемые изменения ВАХ нашли экспериментальное подтверждение.

Проведем далее полуколичественный анализ вольтамперных характеристик исследованных структур (на основе теории ТОПЗ [5]) для того, чтобы оценить значения ряда параметров аморфного кремния и ловушек захвата электронов.

### 3.1. Удельное сопротивление, концентрация и подвижность равновесных носителей $a-Si:H(Er)$

Удельное сопротивление пленки, вычисленное из омического участка ВАХ, при комнатной температуре составляет  $\rho = 8 \cdot 10^8 \text{ Ом} \cdot \text{см}$ . Согласно теории ТОПЗ, подвижность электронов в идеальном изоляторе (без ловушек и свободных носителей) можно определить из "безловушечного квадратичного закона" (БКЗ), который представляет собой ВАХ идеального изолятора:

$$J \approx \varepsilon \mu \frac{V^2}{L^3}, \quad (1)$$

где  $\varepsilon$  — статическая диэлектрическая проницаемость изолятора,  $\mu$  — подвижность электронов,  $L$  — толщина пленки изолятора (отметим, что в формулу (1) не входит концентрация носителей заряда). Этот же закон является предельной формой ВАХ неидеального изолятора при

достаточно высоких приложенных напряжениях, когда общее количество инжектированных электронов уже значительно превышает число первоначально незанятых электронных ловушек. Таким образом, нижний предел подвижности электронов в нашем случае можно оценить, построив линию  $I \propto V^2$ , которая является касательной к экспериментальной кривой ВАХ в области максимальных токов через структуру (см. рис. 2). Полагая для оценок  $\varepsilon = 8.85 \cdot 10^{-14} \text{ Ф/см}$  и  $L = 10^{-4} \text{ см}$ , получим, что  $\mu > 0.02 \text{ см}^2/(\text{В} \cdot \text{с})$ . Отметим, что наиболее прямым методом определения подвижности в высокоомных материалах являются импульсные измерения переходных ТОПЗ, однако применение этого метода в нашем случае довольно затруднительно из-за малой толщины пленки и, как следствие, малого времени пролета электронов через образец от катода к аноду. Верхним пределом подвижности в аморфном кремнии можно считать величину порядка  $1 \text{ см}^2/(\text{В} \cdot \text{с})$ . Таким образом, подвижность электронов проводимости в исследованных пленках при комнатной температуре лежит в интервале  $(0.02-1) \text{ см}^2/(\text{В} \cdot \text{с})$ . Используя эти значения, оценим концентрацию равновесных свободных электронов ( $n_0$ ) из формулы  $\rho = (qn_0\mu)^{-1}$ , где  $q$  — абсолютная величина заряда электрона. При комнатной температуре концентрация электронов составляет  $n_0 = 10^{10}-4 \cdot 10^{11} \text{ см}^{-3}$ .

### 3.2. Положение уровня Ферми в запрещенной зоне аморфного кремния в условиях равновесия

Положение уровня Ферми в запрещенной зоне ( $E_C - F_0$ ) можно определить (при известной величине концентрации свободных электронов в зоне проводимости) из выражения

$$n_0 = N_C \exp\left(-\frac{E_C - F_0}{kT}\right), \quad (2)$$

где  $N_C$  — эффективная плотность состояний в зоне проводимости,  $kT$  — тепловая энергия. Полагая для оценок  $N_C = 5 \cdot 10^{20} \text{ см}^{-3}$ , получим, что  $E_C - F_0 = 0.54-0.64 \text{ эВ}$ .

### 3.3. Энергии ионизации и концентрации ловушек

Согласно теории ТОПЗ, напряжение, при котором начинается участок полного заполнения ловушек с энергией  $E_{i2}$  ( $V_{FCT}$ ), связано с концентрацией первоначально незанятых электронами ловушек ( $p_{i02}$ ) соотношением

$$V_{FCT} = \frac{qp_{i02}L^2}{\varepsilon}. \quad (3)$$

При  $V_{FCT} = 0.6 \text{ В}$  (см. рис. 2) получим, что  $p_{i02} = 3 \cdot 10^{13} \text{ см}^{-3}$ . Отметим, что в исследуемых пленках  $p_{i02} \gg n_0$ .

На основании предыдущих исследований  $a-Si:H(Er)$  есть основания предполагать, что по своей природе

ловушки  $E_{i2}$  представляют собой глубокие акцепторы — оборванные кремниевые связи или  $D$ -центры [3]. Считается, что в аморфном гидрогенизированном кремнии концентрация  $D$ -центров ( $N_{i2}$ ) составляет порядка  $10^{19}$  см $^{-3}$ . Таким образом, как следует из расчета  $p_{i02}$ , в равновесии степень заполнения  $D$ -центров оказывается близкой к 1 (уровень Ферми расположен выше уровня  $D$ -центров). Энергетическое положение уровня  $E_{i2}$  можно определить (при известных величинах  $N_{i2}$  и  $F_0$ ) из соотношения

$$p_{i02} = \frac{N_{i2}}{1 + g_A \exp\left(\frac{F_0 - E_{i2}}{kT}\right)} \approx \frac{N_{i2}}{g_A} \exp\left(\frac{E_{i2} - F_0}{kT}\right), \quad (4)$$

где  $g_A$  — коэффициент спинового вырождения уровня  $E_{i2}$ . Полагая  $N_{i2} = 10^{19}$  см $^{-3}$  и  $g_A = 2$ , получим, что  $E_C - E_{i2} = 0.85 - 0.95$  эВ.

Далее, энергетическое положение уровня  $E_{i1}$  можно оценить исходя из того, что на участке, где начинается ЛКЗ, квазиуровень Ферми для электронов ( $F_{\text{FCT}}$ ) с точностью до  $kT$  совпадает с положением уровня  $E_{i1}$ , т.е.

$$E_C - E_{i1} \approx E_C - F_{\text{FCT}} = kT \ln \frac{N_C}{n_{\text{FCT}}}, \quad (5)$$

где  $n_{\text{FCT}}$  — концентрация свободных электронов, инжектированных в пленку при напряжении начала ЛКЗ ( $V_{\text{FCT}}$ ). Последнее связано с концентрацией  $n_{\text{FCT}}$  соотношением, аналогичным (3)

$$V_{\text{FCT}} = \frac{qn_{\text{FCT}}L^2}{\varepsilon}. \quad (6)$$

При  $V_{\text{FCT}} = 4$  В (см. рис. 2) получаем, что  $n_{\text{FCT}} = 2 \cdot 10^{14}$  см $^{-3}$ , а  $E_C - E_{i1} = 0.38$  эВ. Концентрацию центров с энергией  $E_{i1}$  ( $N_{i1}$ ) можно определить из уравнения электронейтральности в объеме для равновесных условий (если основания предполагать, что по своей природе ловушки  $E_{i1}$  представляют собой доноры типа комплексов эрбий-кислород [6]). При наличии донорных ( $E_{i1}$ ) и акцепторных ( $E_{i2}$ ) состояний уравнение электронейтральности для нашего случая может быть записано следующим образом:

$$n_0 + N_{i2}^- = N_{i1}^+, \quad (7)$$

где  $N_{i2}^-$  и  $N_{i1}^+$  — концентрации ионизованных акцепторов и доноров соответственно. Отметим, что в нашем случае  $N_{i2}^- \approx N_{i2}$  и  $n_0 \ll N_{i2}$ , так что формула (7) может быть переписана следующим образом:

$$N_{i2} = \frac{N_{i1}}{1 + g_D \exp\left(\frac{F_0 - E_{i1}}{kT}\right)}, \quad (8)$$

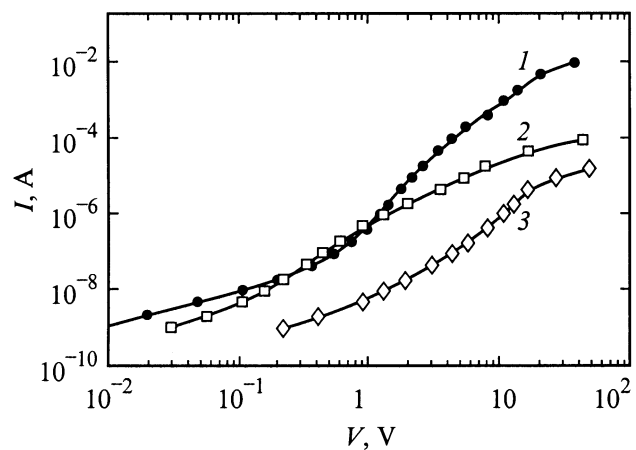
из которого можно непосредственно вычислить концентрацию доноров ( $N_{i1}$ ), поскольку величины  $F_0$ ,  $N_{i2}$  и  $E_{i1}$  уже заданы. Так как  $E_{i1} - F_0 \gg kT$ , то  $N_{i1} \approx N_{i2} \approx 10^{19}$  см $^{-3}$ . Этот результат проистекает из того, что  $F_0$  лежит между донорным и акцепторным уровнями, так что имеет место почти полная взаимная компенсация доноров и акцепторов, а концентрация свободных электронов в зоне проводимости пренебрежимо мала по сравнению с концентрациями ловушек.

## 4. Обсуждение результатов

Согласно модели [3], основным процессом, поддерживающим акт излучения в пленке  $a\text{-Si:H}\langle\text{Er}\rangle$ , является захват электрона из зоны проводимости на уровень незаполненного  $D$ -центра. Исходя из этого скорость излучательной рекомбинации должна быть пропорциональной произведению  $np_{i2}$ , где  $n$  — концентрация электронов в зоне проводимости,  $p_{i2}$  — концентрация незаполненных  $D$ -центров (ловушек с энергией  $E_{i2}$ ). Однако при прохождении тока по механизму ТОПЗ свободные инжектированные электроны *накапливаются* в пленке  $a\text{-Si:H}\langle\text{Er}\rangle$  именно по мере *заполнения*  $D$ -центров, т.е. увеличение концентрации электронов  $n$  сопровождается соответствующим уменьшением концентрации  $p_{i2}$ . Таким образом, для достижения эффективной люминесценции необходимо выполнить достаточно противоречивые требования. В этой ситуации становится понятной важная роль, которую играет термополевая эмиссия электронов: она обеспечивает освобождение  $D$ -центров для последующего захвата носителей заряда.

В свете таких представлений можно предполагать, что увеличению эффективности электролюминесценции должны способствовать: 1) регулирование концентрации  $D$ -центров, 2) регулирование положения уровня Ферми в аморфном кремнии (путем соответствующего легирования) таким образом, чтобы  $D$ -центры были заполнены электронами уже в равновесных условиях, 3) уменьшение толщины пленки  $a\text{-Si:H}\langle\text{Er}\rangle$ , что должно способствовать снижению напряжения, при котором начинается полевая эмиссия электронов, 4) регулирование концентраций ловушек по толщине пленки, так как в условиях протекания тока по механизму ТОПЗ электрическое поле в пленке распределено, вообще говоря, весьма неоднородно.

Для того чтобы несколько прояснить вопрос о плохой воспроизводимости свойств структур  $\text{Me}/a\text{-Si:H}\langle\text{Er}\rangle/c\text{-Si}$ ,



**Рис. 5.** Вольт-амперные характеристики излучающей (1) и не излучающих структур (2, 3)  $\text{Al}/a\text{-Si:H}\langle\text{Er}\rangle/c\text{-Si}$ . Температура измерений — комнатная.

представлялось интересным сравнить ВАХ люминесцирующих и нелюминесцирующих структур. Соответствующие ВАХ для нескольких образцов показаны на рис. 5. Как видно, ВАХ неизлучающих структур отличаются от ВАХ излучающих структур главным образом малыми величинами тока вплоть до полей порядка  $10^5$  В/см. Это означает, что вплоть до больших значений поля большая часть инжектированных в пленку носителей захватывается ловушками, а концентрация свободных электронов, инжектированных в пленку аморфного кремния, по-видимому, остается незначительной. Свидетельством в пользу этого является и то, что неизлучающие пленки, по-видимому, более высокоомные — уровень Ферми лежит глубже в запрещенной зоне, а начальное заполнение  $D$ -центров меньше, чем в излучающих пленках.

## 5. Заключение

По результатам исследований можно сделать вывод о том, что электролюминесцирующие пленки  $a-Si:H(Er)$ , изготовленные методом магнетронного распыления, представляют собой высокоомный материал  $n$ -типа проводимости, транспорт носителей (электронов) в котором осуществляется по механизму токов монополярной инжекции, ограниченных пространственным зарядом, при участии двух групп ловушек захвата (донорных примесных комплексов и акцепторных состояний, представляющих собой оборванные кремниевые связи). Для увеличения эффективности электролюминесценции эрбия в таком материале необходима оптимизация структур по таким параметрам, как подвижность носителей, концентрации легирующих доноров и оборванных кремниевых связей, толщина пленок, а также распределение примесей и оборванных связей по толщине пленок.

Авторы выражают особую признательность М.С. Бреслеру, О.Б. Гусеву, К.Д. Цэндину и другим сотрудникам ФТИ РАН за полезное обсуждение результатов работы. Работа поддержана грантом COPERNICUS № 977048-SIER.

## Список литературы

- [1] M.S. Bresler, O.B. Gusev, V.Kh. Kudoyarova, A.N. Kuznetsov, P.I. Pak, E.I. Terukov, I.N. Yassievich, B.P. Zakharchenya, W. Fuhs, A. Sturm. *Appl. Phys. Lett.*, **67**, 3599 (1995).
- [2] М.С. Бреслер, О.Б. Гусев, Б.П. Захарченя, В.Х. Кудоярова, А.Н. Кузнецов, Е.И. Теруков, В. Фус, И.Н. Ясиевич. *ФТТ*, **38**, 1189 (1996); O.B. Gusev, A.N. Kuznetsov, E.I. Terukov, M.S. Bresler, V.Kh. Kudoyarova, I.N. Yassievich, B.P. Zakharchenya, W. Fuhs. *Appl. Phys. Lett.*, **70**, 240 (1997).
- [3] О.В. Гусев, М.С. Бреслер, Б.П. Захарченя, А.Н. Кузнецов, П.Е. Пак, Е.И. Теруков, К.Д. Цэндин, И.Н. Ясиевич. *ФТТ*, **41**, 210 (1999).
- [4] V. Marakhonov, N. Rogachev, J. Ishkalov, J. Marakhonov, E. Terukov, V. Chelnokov. *Non-Cryst. Sol.*, **137–138**, 817 (1991).

- [5] М. Ламперт, П. Марк. *Инжекционные токи в твердых телах* (М., Мир, 1973).
- [6] В.Ф. Мастеров, Ф.С. Насрединов, П.П. Серегин, В.Х. Кудоярова, А.Н. Кузнецов, Е.И. Теруков. *Письма ЖТФ*, **22**, 25 (1996).

Редактор Т.А. Полянская

## Current-voltage characteristics of electroluminescent $Me/a-Si:H(Er)/c-Si$ structures prepared by magnetron sputtering

P.A. Ivanov, O.I. Kon'kov, E.I. Terukov

Ioffe Physicotechnical Institute,  
Russian Academy of Sciences,  
194021 St. Petersburg, Russia

**Abstract** Current-voltage characteristics of electroluminescent metal-(amorphous silicon doped by erbium)-(crystalline silicon) structures prepared by magnetron sputtering have been measured and analyzed. It is shown that the electron transport in a high resistivity  $a-Si:H(Er)$  film (the resistivity is about  $10^9 \Omega\text{cm}$ ) is governed by the unipolar carrier injection, so that space charge limited currents be controlled by two types of electron traps. Trap parameters are estimated from the analysis of current-voltage characteristics namely the densities and ionization energies of both acceptor- and donor-like centers ( $\sim 10^{19} \text{cm}^{-3}$  for both types of traps, 0.85–0.95 eV and 0.4 eV, respectively). In the light of results obtained, the mechanism suggested for electroluminescence in such a material is being discussed.