

06:07

Кинетика электролюминесценции тонкопленочных излучателей на основе сульфида цинка на ультранизких частотах

© Н.Т. Гурин, А.В. Шляпин, О.Ю. Сабитов

Ульяновский государственный университет,
432700 Ульяновск, Россия
e-mail: soy@sv.uven.ru

(Поступило в Редакцию 13 марта 2001 г.)

Представлены результаты исследования кинетики мгновенной яркости свечения тонкопленочных электролюминесцентных структур, возбуждаемых знакопеременным напряжением треугольной формы частотой 0.1–2 Hz. Обнаружены два участка нарастания во времени мгновенной яркости и тока, "быстрый" и "медленный", которым соответствуют разные области на полевых, зарядовых зависимостях мгновенной яркости и на других электрофизических характеристиках. На основании решения кинетического уравнения получены зависимости мгновенной яркости и внутреннего квантового выхода от времени. Результаты объясняются образованием объемных зарядов в слое люминофора, сопровождающем уменьшением эффективной толщины этого слоя, и изменением механизма возбуждения центров свечения.

Одной из основных характеристик тонкопленочных электролюминесцентных излучателей (ТП ЭЛИ) является вольт-яркостная характеристика (ВЯХ), отражающая зависимость средней (кажущейся) яркости свечения от амплитуды знакопеременного напряжения возбуждения [1]. Средняя яркость при этом получается в результате усреднения по времени импульсов мгновенной яркости — так называемых волн яркости, вид которых зависит от формы напряжения возбуждения. При этом постоянная спада мгновенной яркости, определенная для разных форм напряжения возбуждения, дает значение времени жизни возбужденных центров свечения, в частности Mn^{2+} , которое составляет 1.3–1.5 ms в ZnS с малым содержанием Mn и уменьшается с ростом концентрации Mn [1,2]. Однако известные данные о форме ВЯХ не позволяют детально описать физические процессы, определяющие кинетику электролюминесценции в таких структурах, а также другие характеристики ТП ЭЛИ. Во многом это вызвано тем, что большинство исследований выполняются или на частотах напряжения возбуждения выше 50 Hz, когда соседние волны яркости перекрываются, или с использованием прямоугольных импульсов напряжения, или на синусоидальном напряжении возбуждения, что существенно затрудняет анализ физических процессов в ТП ЭЛИ. В то же время исследования на линейно нарастающем напряжении с частотой ниже 50 Hz, когда все характеристические времена, свойственные процессу электролюминесценции, имеют значения меньше четверти периода напряжения возбуждения, позволяют провести детальный анализ кинетики электролюминесценции ТП ЭЛИ [2].

Целью работы является изучение кинетики мгновенной яркости свечения ТП ЭЛИ при возбуждении линейно нарастающим напряжением низкой частоты во взаимосвязи с кинетикой тока, протекающего через слой люминофора, поля в этом слое, с полевыми, зарядовыми

зависимостями мгновенной яркости, а также вольт-амперными и вольт-зарядовыми характеристиками слоя люминофора.

Для решения данной задачи были выполнены экспериментальные исследования ТП ЭЛИ со структурой МДПДМ, где М — нижний прозрачный электрод на основе SnO_2 толщиной 0.2 μm , нанесенный на стеклянную подложку, и верхний непрозрачный тонкопленочный электрод на основе Al толщиной 0.15 μm , диаметром 1.5 mm; П — электролюминесцентный слой ZnS:Mn (0.5% mass.) толщиной 0.54 μm ; Д — диэлектрический слой $ZrO_2 \times Y_2O_3$ (13% mass.) толщиной 0.15 μm . Слой люминофора наносили вакуумтермическим испарением в квазизамкнутом объеме при температуре подложки 250°C с последующим отжигом при температуре 250°C в течение часа, непрозрачный электрод — вакуумтермическим испарением, диэлектрические слои получали электронно-лучевым испарением.

Экспериментально исследованы зависимости мгновенной яркости свечения L и тока через ТП ЭЛИ I_e от времени t при возбуждении ТП ЭЛИ знакопеременным напряжением треугольной формы, подаваемым с генератора Г6-34 с дополнительным усилителем — формирователем и внешним генератором запуска Г5-89. Амплитуда импульсов составляла 160 V при коэффициенте нелинейности напряжения не более 2%. В режиме однократного запуска напряжение возбуждения представляло собой пачку импульсов из двух периодов напряжения треугольной формы, следующих с частотой 2 Hz. Время между однократными запусками T_s изменялось в пределах 1–100 s. В непрерывном режиме возбуждения частота составляла 0.1, 0.2, 0.5 и 2 Hz. Ток I_e измерялся с помощью включаемого последовательно с ТП ЭЛИ резистора сопротивлением 100 Ω –10 k Ω , падение напряжения на котором не превышало 1 V. Мгновенное значение яркости измерялось с помощью фотоэлектрон-

ного множителя ФЭУ-84-3. Зависимости напряжения возбуждения, тока через ТП ЭЛИ и мгновенной яркости свечения от времени фиксировались с помощью двухканального запоминающего осциллографа С9-16, связанного через интерфейс с персональным компьютером, которые обеспечивали для каждого канала измерение и запоминание 2048 точек выбранного периода дискретизации с погрешностью не более 2%. Математическая и графическая обработка производилась с помощью прикладных программных пакетов Maple V Release4 Version 4.00b и GRAPHER Version 1.06. 2-D Graphing System.

При известном законе изменения напряжения возбуждения ТП ЭЛИ $V(t)$ и токе во внешней цепи $I_e(t)$ изменение среднего поля в слое люминофора $F_p(t)$ определится выражением [3]

$$F_p(t) = \frac{1}{d_p} \left[V(t) - \frac{1}{C_i} \int_0^t I_e(t) dt \right] + F_{pol}, \quad (1)$$

где d_p — толщина слоя люминофора; C_i — емкость конденсатора, образованного двумя диэлектрическими слоями ТП ЭЛИ.

Поле F_{pol} включает в себя F_{pi} , обусловленное поляризационным зарядом Q_{pi} , накопленным на состояниях границы раздела люминофор–диэлектрик, а также поле F_{ps} , обусловленное объемным зарядом в слое люминофора. В общем случае поле F_{ps} может иметь несколько составляющих, обусловленных различными объемными зарядами и различно направленными по отношению к полю F_{pi} . Поле F_{pol} спадает со временем в промежутке между двумя последовательными интервалами нахождения ТП ЭЛИ в активном режиме, сопровождающимися протеканием тока I_p через слой люминофора. Этот ток из-за возникновения объемных зарядов имеет реактивную составляющую и характеризует условный полупроводниковый прибор, включающий в себя слой люминофора с границами раздела люминофор–диэлектрик с исходными "геометрической" емкостью слоя люминофора C_p , толщиной d_p , с напряжением на нем $V_p(t) = F_p(t)d_p$ [3,4], и с учетом (1) равен

$$\begin{aligned} I_p(t) &= I_e(t) \frac{C_i + C_p}{C_i} - C_p \frac{dV(t)}{dt} \\ &= C_i \frac{dV(t)}{dt} - (C_i + C_p) d_p \frac{dF_p(t)}{dt}. \end{aligned} \quad (2)$$

Заряд, переносимый через слой люминофора при отсутствии потерь на рекомбинацию и захвата носителей на ловушки, равен заряду, накопленному в активном режиме на состояниях границы раздела Q_p и связан с зарядом, протекшим во внешней цепи Q_e [2,3],

$$Q_p(t) = \frac{C_i + C_p}{C_i} [Q_e(t) - C_e V(t)] + Q_{pol}, \quad (3)$$

где

$$Q_e(t) = \int_0^t I_e(t) dt \quad (4)$$

— заряд, протекающий во внешней цепи; Q_{pol} — остаточный поляризационный заряд.

При этом значения Q_{pol} и F_{pol} , а также истинное положение зависимостей $Q_p(t)$ и $F_p(t)$ относительно оси абсцисс определялись аналогично [3] с погрешностью $\pm 2\%$. Все расчетные зависимости были получены с использованием формул (1)–(4) при $C_i = 986$ pF, $C_p = 250$ pF с учетом падения напряжения на токосъемном резисторе, которое вычиталось из напряжения $V(t)$. Значения C_i и C_p определялись исходя из значения суммарной емкости ТП ЭЛИ $C_e = 200$ pF, измеренного с помощью измерителя иммитанса Е7-14, и геометрических размеров ТП ЭЛИ.

Полученные экспериментальные зависимости $L(t)$ и $I_e(t)$ (рис. 1), а также расчетные зависимости $I_p(t)$, $F_p(t)$, $L(Q_p)$, $I_p(F_p)$, $Q_p(F_p)$ (рис. 2) характеризуются следующими особенностями: 1) слабой асимметрией импульсов тока $I_p(t)$ в непрерывном режиме возбуждения при подаче положительной и отрицательной полярности напряжения на верхний электрод (варианты (+Al) и (-Al) соответственно) аналогично [3,4], уменьшающейся с ростом частоты f , и существенной асимметрией волн яркости $L(t)$, также уменьшающейся с увеличением частоты; амплитуда волны яркости выше в варианте (+Al) по сравнению с вариантом (-Al) примерно в 3.4 раза на частоте $f = 0.1$ Hz и в ~ 1.5 раз на $f = 2$ Hz (рис. 1); 2) появлением аналогично [3,4] в режиме однократного запуска в первом полупериоде в варианте (-Al) дополнительного пика тока I_p , амплитуда которого растет с увеличением T_s , и соответствующего ему пика мгновенной яркости L (рис. 2, a, e), что объясняется увеличением вероятности возбуждения центров свечения, пропорциональной плотности тока I_p [2,4]; 3) наличием двух четко выраженных участков нарастания зависимостей $L(t)$, $I_p(t)$, "быстрого" и "медленного" с границей раздела между ними, обозначенной точкой I , в которой скорость нарастания L и I_p меняет знак (рис. 2, a, e); 4) внешним подобием зависимостей $L(t)$ и $I_p(t)$ во всех случаях, кроме варианта (+Al), $f = 2$ Hz (рис. 2, a, e); 5) близостью точки I' начала существенного замедления нарастания L и I_p от времени (рис. 2, a, e) к точке начала появления S-образных участков на вольт-амперной характеристике (ВАХ) слоя люминофора $I_p(F_p)$ (рис. 2, d) [3–5], на зависимостях $L(F_p)$ (рис. 2, c) и $Q_p(F_p)$ (рис. 2, h); 6) близкой к линейной зависимости $L(I_p)$ на первом участке, за исключением начальной области, где эта зависимость сверхлинейна, и уменьшением крутизны наклона зависимости $L(I_p)$ (рис. 2, b) при переходе точки I и особенно точки I' ; 7) наличием также двух участков роста яркости L при увеличении заряда Q_p , "сильного" и "слабого" с границей между ними, определяемой точкой I (рис. 2, g) аналогично [2].

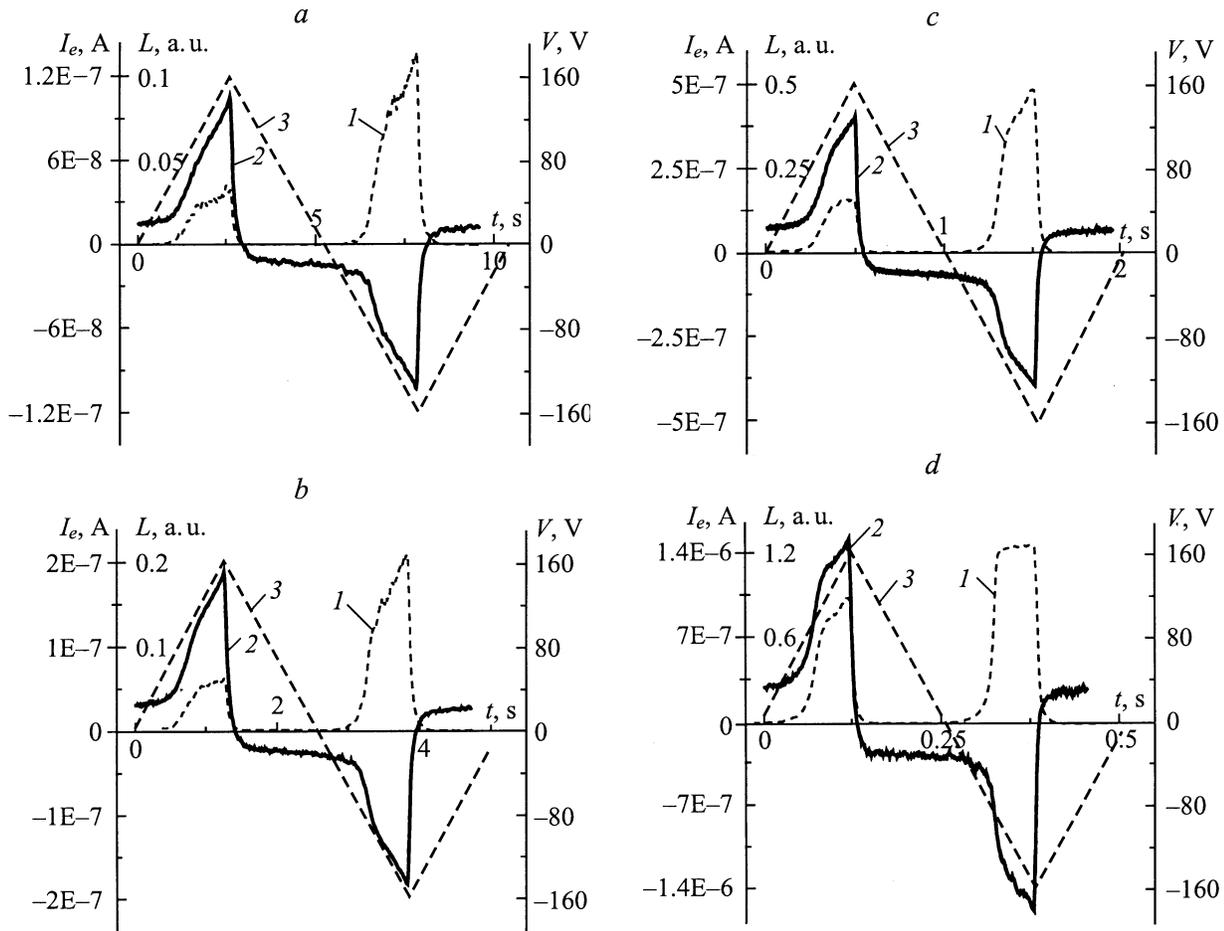


Рис. 1. Зависимости мгновенной яркости (1), тока (2) и напряжения возбуждения (3) от времени в непрерывном режиме возбуждения. Частота напряжения возбуждения f , Hz: a — 0.1, b — 0.2, c — 0.5, d — 2. Первый полупериод соответствует варианту ($-Al$).

Для объяснения полученных результатов рассмотрим кинетику процесса. Как известно [1,6], мгновенная яркость свечения ТП ЭЛИ $L(t)$ связана с концентрацией возбужденных центров свечения $N^*(t)$ формулой

$$L(t) = \frac{A\eta_{\text{int}}d_p N^*(t)}{\tau^*} = \frac{AN_1 P_r d_p N^*(t)}{\tau^*}, \quad (5)$$

где A — постоянная, определяемая в приближении монохроматичности излучения и диффузно-рассеивающей поверхности ТП ЭЛИ в виде $A = K_0 f_\lambda \cdot hv/\pi$; K_0 — коэффициент выхода излучения из ТП ЭЛИ; f_λ — видимость излучения; h — постоянная Планка; v — частота излучения; η_{int} — внутренний квантовый выход ТП ЭЛИ, равный $\eta_{\text{int}} = N_1 P_r$; N_1 — число центров свечения, возбуждаемых одним электроном, прошедшим через слой люминофора $N_1 = d_p \sigma N$ [1]; σ — сечение ударного возбуждения центров свечения; N — концентрация центров свечения; $P_r = \tau^*/\tau_r$ — вероятность излучательной релаксации центра свечения; τ^* — время жизни центра свечения в возбужденном состоянии; τ_r — постоянная времени релаксации возбужденных центров

свечения, обусловленной излучательными переходами в основное состояние.

При этом зависимость $N^*(t)$ в предположении прямого ударного возбуждения центров свечения определяется решением кинетического уравнения [6,7]

$$\frac{dN^*(t)}{dt} = \alpha(t)[N - N^*(t)] - \frac{N^*(t)}{\tau^*}, \quad (6)$$

где

$$\alpha(t) = \frac{\sigma I_p(t)}{qS_e} \quad (7)$$

— вероятность возбуждения центров свечения в единицу времени, S_e — площадь ТП ЭЛИ, q — заряд электрона.

При условии постоянства σ и независимости α от N^* и τ^* от t решением уравнения (6) является [8]

$$N^*(t) = e^{-\left[\int \alpha(t) dt + \frac{1}{\tau^*} \int dt\right]} \times \left[\int \alpha(t) N e^{\int \alpha(t) dt + \frac{1}{\tau^*} \int dt} dt + C \right], \quad (8)$$

где C — постоянная интегрирования.

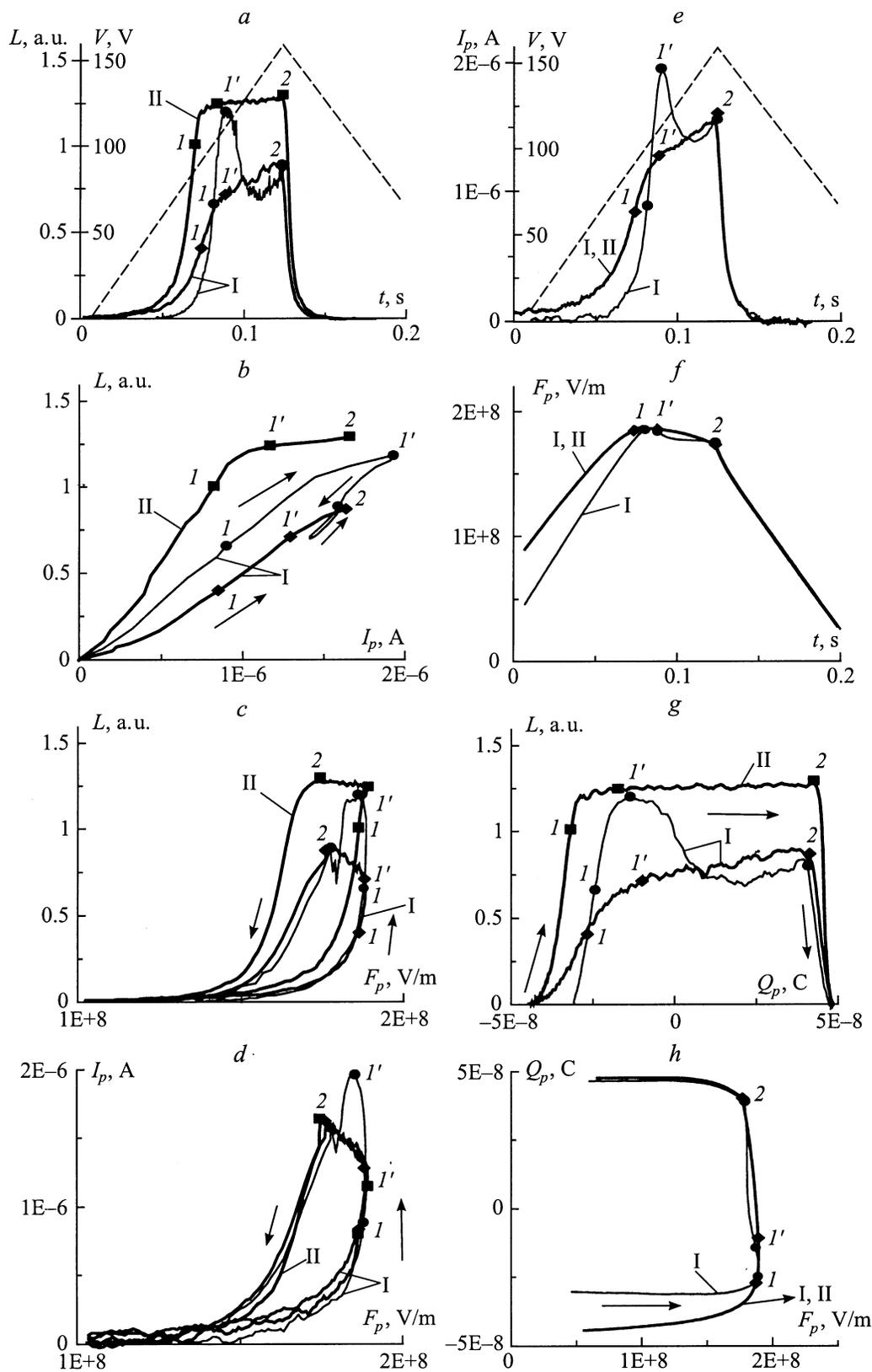


Рис. 2. Характеристики ТП ЭЛИ на частоте $f = 2$ Hz. Штриховые кривые $V(t)$, жирные кривые — непрерывный режим возбуждения, тонкие кривые — режим возбуждения с однократным запуском $T_s = 100$ s; I — вариант (-Al), II — вариант (+Al).

Так как максимальные значения α , соответствующие наибольшему в исследованном диапазоне частот значению тока $I_{p2} \approx 1.6 \cdot 10^{-6}$ А на частоте 2 Нз в точке 2 (рис. 2, е) и определенное по формуле (7) при $\sigma \approx 2 \cdot 10^{-16}$ см², $S_e = 2$ мм² [1,6], составляет $\alpha = 10^{-1}$ с⁻¹, а величина $\tau^* \approx 1.5 \cdot 10^{-3}$ с [2], $1/\tau^* \approx 667$ с⁻¹, то во всем исследуемом диапазоне частот выполняется соотношение $\alpha(t) \ll 1/\tau^*$. Учитывая, что при $t = 0$ $I_p(t) = 0$, $N^*(t) = 0$ постоянная интегрирования $C = 0$, а также выполняется соотношение (7), решение (8) уравнения (6) имеет вид

$$N^*(t) = \frac{\sigma N}{qS_e} e^{-t/\tau^*} \cdot \int I_p(t) e^{t/\tau^*} dt. \quad (9)$$

На первом "быстром" участке роста тока $I_p(t)$ (рис. 2, е) зависимость $I_p(t)$ в непрерывном режиме возбуждения аппроксимируется функцией вида

$$I_p(t) = I_{p1} e^{\frac{t-t_1}{\tau_1}}, \quad (10)$$

где τ_1 — постоянная нарастания тока $I_p(t)$; t_1 — момент времени, соответствующий точке 1.

При этом решение (9) приводится к виду

$$N^*(t) = \frac{\sigma N}{qS_e} \frac{\tau_1 \tau^*}{\tau_1 + \tau^*} I_{p1} e^{\frac{t-t_1}{\tau_1}} = \frac{\sigma N}{qS_e} \frac{\tau_1 \tau^*}{\tau_1 + \tau^*} I_{p1}(t) \quad (11)$$

и зависимость $L(t)$ с учетом (5) имеет вид

$$L(t) = \frac{Ad_p^2 \sigma^2 N^2 P_r}{qS_e} \frac{\tau_1}{\tau_1 + \tau^*} I_p(t) = \frac{A\eta_{\text{int}}^2}{qS_e P_r} \frac{\tau_1}{\tau_1 + \tau^*} I_p(t). \quad (12)$$

При $\tau_1 \gg \tau^*$

$$L(t) = \frac{A\eta_{\text{int}}^2}{qS_e P_r} I_p(t). \quad (13)$$

На втором "медленном" участке роста тока $I_p(t)$ (рис. 2, е) зависимость $I_p(t)$ в непрерывном режиме возбуждения можно аппроксимировать выражением

$$I_p(t) = I_{p1} (1 - e^{-t/\tau_2} + e^{t/\tau_3}), \quad (14)$$

где τ_2, τ_3 — постоянные нарастания тока до и после точки изменения знака скорости нарастания тока I_p на втором участке (рис. 2, е) соответственно.

В этом случае решение (8) уравнения (6) имеет вид

$$N^*(t) = \frac{\sigma N \tau^*}{qS_e} I_{p1} \left[1 - \frac{\tau_2}{\tau_2 - \tau^*} e^{-t/\tau_2} + \frac{\tau_3}{\tau_3 + \tau^*} e^{t/\tau_3} + \left(\frac{\tau_1}{\tau_1 + \tau^*} - 1 + \frac{\tau_2}{\tau_2 - \tau^*} - \frac{\tau_3}{\tau_3 + \tau^*} \right) e^{-t/\tau^*} \right] \quad (15)$$

и

$$L(t) = \frac{A\eta_{\text{int}}^2}{qS_e P_r} I_{p1} \left[1 - \frac{\tau_2}{\tau_2 - \tau^*} e^{-t/\tau_2} + \frac{\tau_3}{\tau_3 + \tau^*} e^{t/\tau_3} + \left(\frac{\tau_1}{\tau_1 + \tau^*} - 1 + \frac{\tau_2}{\tau_2 - \tau^*} - \frac{\tau_3}{\tau_3 + \tau^*} \right) e^{-t/\tau^*} \right]. \quad (16)$$

При $\tau_2 \gg \tau^*$ и $\tau_1 = \tau_3$, что, как далее будет показано, имеет место в указанном диапазоне частот напряжения возбуждения

$$L(t) = \frac{A\eta_{\text{int}}^2}{qS_e P_r} I_{p1} \left(1 - e^{-t/\tau_2} + \frac{\tau_3}{\tau_3 + \tau^*} e^{t/\tau_3} \right). \quad (17)$$

При $\tau_1, \tau_2, \tau_3 \gg \tau^*$

$$L(t) = \frac{A\eta_{\text{int}}^2}{qS_e P_r} I_p(t). \quad (18)$$

На участке спада зависимость $I_p(t)$ аппроксимируется выражением

$$I_p(t) = \frac{I_{p2}}{2} (e^{-t/\tau_4} + e^{-t/\tau_5}), \quad (19)$$

τ_4, τ_5 — постоянные спада тока $I_p(t)$.

Решение (8) уравнения (6) в этом случае имеет вид

$$N^*(t) = \frac{\sigma N \tau^*}{qS_e} \left\{ \frac{I_{p2}}{2} \left(\frac{\tau_4}{\tau_4 - \tau^*} e^{-t/\tau_4} + \frac{\tau_5}{\tau_5 - \tau^*} e^{-t/\tau_5} \right) + \left[I_{p1} \left(-\frac{\tau_2}{\tau_2 - \tau^*} e^{-t_2/\tau_2} + \frac{\tau_3}{\tau_3 + \tau^*} e^{t_2/\tau_3} + \frac{\tau_1}{\tau_1 + \tau^*} + \frac{\tau_2}{\tau_2 - \tau^*} - \frac{\tau_3}{\tau_3 + \tau^*} \right) - \frac{I_{p2}}{2} \left(\frac{\tau_4}{\tau_4 - \tau^*} + \frac{\tau_5}{\tau_5 - \tau^*} \right) \right] e^{-t/\tau^*} \right\}, \quad (20)$$

где t_2 — момент времени, соответствующий точке 2, $t_2 = 1/4f$, а зависимость $L(t)$ выглядит следующим образом:

$$L(t) = \frac{A\eta_{\text{int}}^2}{qS_e P_r} \left\{ \frac{I_{p2}}{2} \left(\frac{\tau_4}{\tau_4 - \tau^*} e^{-t/\tau_4} + \frac{\tau_5}{\tau_5 - \tau^*} e^{-t/\tau_5} \right) + \left[I_{p1} \left(-\frac{\tau_2}{\tau_2 - \tau^*} e^{-t_2/\tau_2} + \frac{\tau_3}{\tau_3 + \tau^*} e^{t_2/\tau_3} + \frac{\tau_1}{\tau_1 + \tau^*} + \frac{\tau_2}{\tau_2 - \tau^*} - \frac{\tau_3}{\tau_3 + \tau^*} \right) - \frac{I_{p2}}{2} \left(\frac{\tau_4}{\tau_4 - \tau^*} + \frac{\tau_5}{\tau_5 - \tau^*} \right) \right] e^{-t/\tau^*} \right\}. \quad (21)$$

При $\tau_2 \gg \tau^*$ и $\tau_1 = \tau_3$

$$L(t) = \frac{A\eta_{\text{int}}^2}{qS_e P_r} \left\{ \frac{I_{p2}}{2} \left(\frac{\tau_4}{\tau_4 - \tau^*} e^{-t/\tau_4} + \frac{\tau_5}{\tau_5 - \tau^*} e^{-t/\tau_5} \right) + \left[I_{p1} \left(1 - e^{-t_2/\tau_2} + \frac{\tau_3}{\tau_3 - \tau^*} e^{t_2/\tau_3} \right) - \frac{I_{p2}}{2} \left(\frac{\tau_4}{\tau_4 - \tau^*} + \frac{\tau_5}{\tau_5 - \tau^*} \right) \right] e^{-t/\tau^*} \right\}. \quad (22)$$

Если $\tau_3, \tau_4, \tau_5 \gg \tau^*$, то с учетом (14)

$$L(t) \approx \frac{A\eta_{\text{int}}^2}{qS_e P_r} \frac{I_{p2}}{2} (e^{-t/\tau_4} + e^{-t/\tau_5}) = \frac{A\eta_{\text{int}}^2}{qS_e P_r} I_{p2}(t). \quad (23)$$

f, Hz	Вариант	τ_1, ms	τ_2, ms	τ_3, ms	τ_4, ms	τ_5, ms
0.1	-Al	246	1440	230	44	220
	+Al	240	1420	220	62	236
0.2	-Al	127	580	155	29	88
	+Al	118	750	120	21	84
0.5	-Al	57	330	55	10	28
	+Al	47.5	320	45	4	24
2	-Al	14	93	11	3.3	9.1
	+Al	13.5	108	12	2.6	9.8

В таблице приведены значения постоянных времени, характеризующих кинетику процесса и определенных из экспериментальных и расчетных данных. При этом для варианта (+Al), $f = 2 \text{ Hz}$ значения τ_2 и τ_3 приведены для зависимости $I_p(t)$, а для зависимости $L(t)$ значение τ_2 составляет $\sim 2 \text{ ms}$, а $\tau_3 \approx 560 \text{ ms}$. В этом случае область спада начинается с дополнительного участка с постоянной спада τ порядка $10\text{--}40 \text{ ms}$, имеющего протяженность по времени $\sim 3 \text{ ms}$. Участок спада с близким значением $\tau \approx 14 \text{ ms}$ характерен и для более высоких частот напряжения возбуждения $f = 10, 50 \text{ Hz}$ [2], причем наблюдается он также при значениях $L \geq 1.1 \text{ a.u.}$

Из таблицы следует, что в пределах погрешности измерений, расчетов и аппроксимаций ($\pm 10\%$) постоянные времена τ_1 и τ_3 совпадают для всех частот, что может указывать на одинаковые физические процессы, ответственные за соответствующие участки зависимостей $I_p(t)$ и $L(t)$. При этом τ_1, τ_2 и τ_3 линейно уменьшаются с ростом частоты с близкими коэффициентами пропорциональности (рис. 3). Постоянные времена τ_4, τ_5 , по-видимому, характеризуют процессы захвата свободных носителей заряда на объемные и поверхностные центры. Анализ зависимостей $I_p(t)$ и частотных зависимостей $\tau_1, \tau_2, \tau_3, \tau_4, \tau_5$ требует проведения дополнительных исследований процесса переноса носителей заряда в слое люминофора.

В итоге полученные результаты можно объяснить следующим образом. Как следует из рис. 2, *b, 4*, для всех частот f зависимости $L(I_p)$ в пределах погрешности измерений имеют одинаковый наклон на первом участке, что соответствует формулам (12), (13). На втором участке для всех частот происходит уменьшение степени зависимости L от I_p , что указывает на уменьшение коэффициента пропорциональности в зависимостях $L(I_p)$ (17), (18) по сравнению с первым участком. При этом значения яркостей L_1, L_2 и токов I_{p1}, I_{p2} в точках 1 и 2 (рис. 2, *a, e*) линейно зависят от частоты f (рис. 5), что при относительно слабом изменении поля F_p с частотой f в исследуемом диапазоне частот (рис. 2, *b, d*) объясняется близкой к линейной зависимостью тока I_p от скорости нарастания напряжения (2) в этом случае.

В соответствии с выражениями (5), (13), (18) изменение наклона зависимостей $L(I_p)$ при переходе на второй участок (рис. 2, *b, 4*) может быть вызвано уменьшением сечения ударного возбуждения центров свечения σ , вероятности излучательных переходов центров свечения P_r или уменьшением эффективной толщины слоя люминофора d_p , в которой происходит ударное возбуждение центров свечения.

Вероятными причинами такого изменения σ или P_r могут быть а) изменение механизма возбуждения ионов Mn^{2+} от прямого ударного возбуждения к резонансному возбуждению с участием соседних атомов или дефектов решетки ZnS [9], что, по-видимому, маловероятно из-за низкого уровня возбуждения на ультраниз-

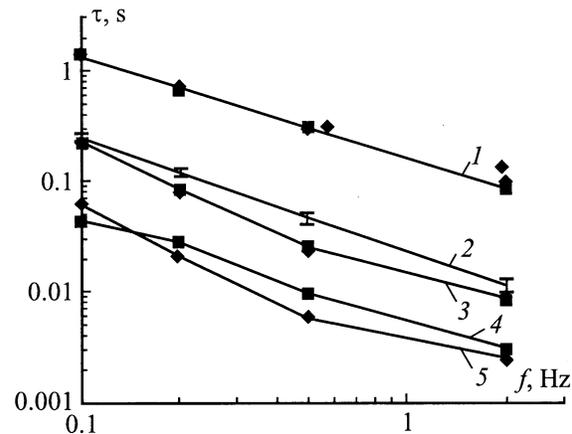


Рис. 3. Зависимости τ_{1-5} от частоты. 1 — τ_2 ; 2 — τ_1, τ_3 для вариантов (-Al), (+Al); 3 — τ_5 ; 4 — τ_4 (-Al); 5 — τ_4 , (+Al); 1, 3 — ■ — (+Al), ◆ — (-Al).

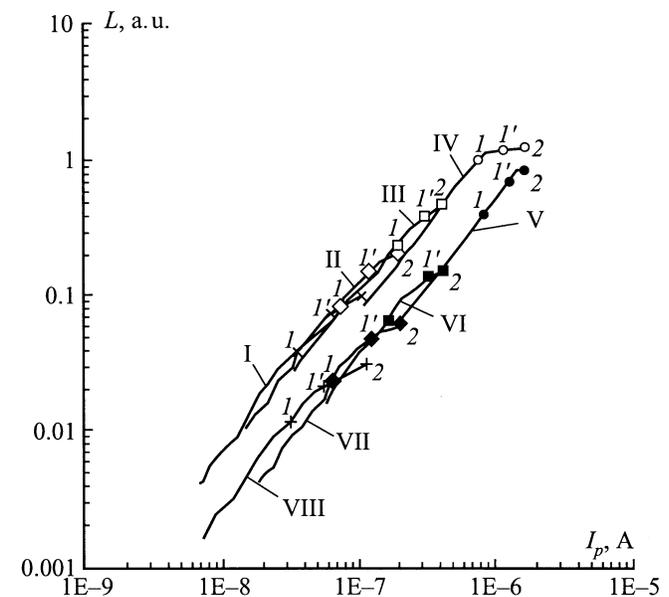


Рис. 4. Зависимости $L(I_p)$ при непрерывном режиме возбуждения f, Hz : I, VIII — 0.1, II, VII — 0.2, III, VI — 0.5; IV, V — 2; I-IV — (+Al), V-VIII — (-Al); ■ — (-Al), ◆ — (+Al).

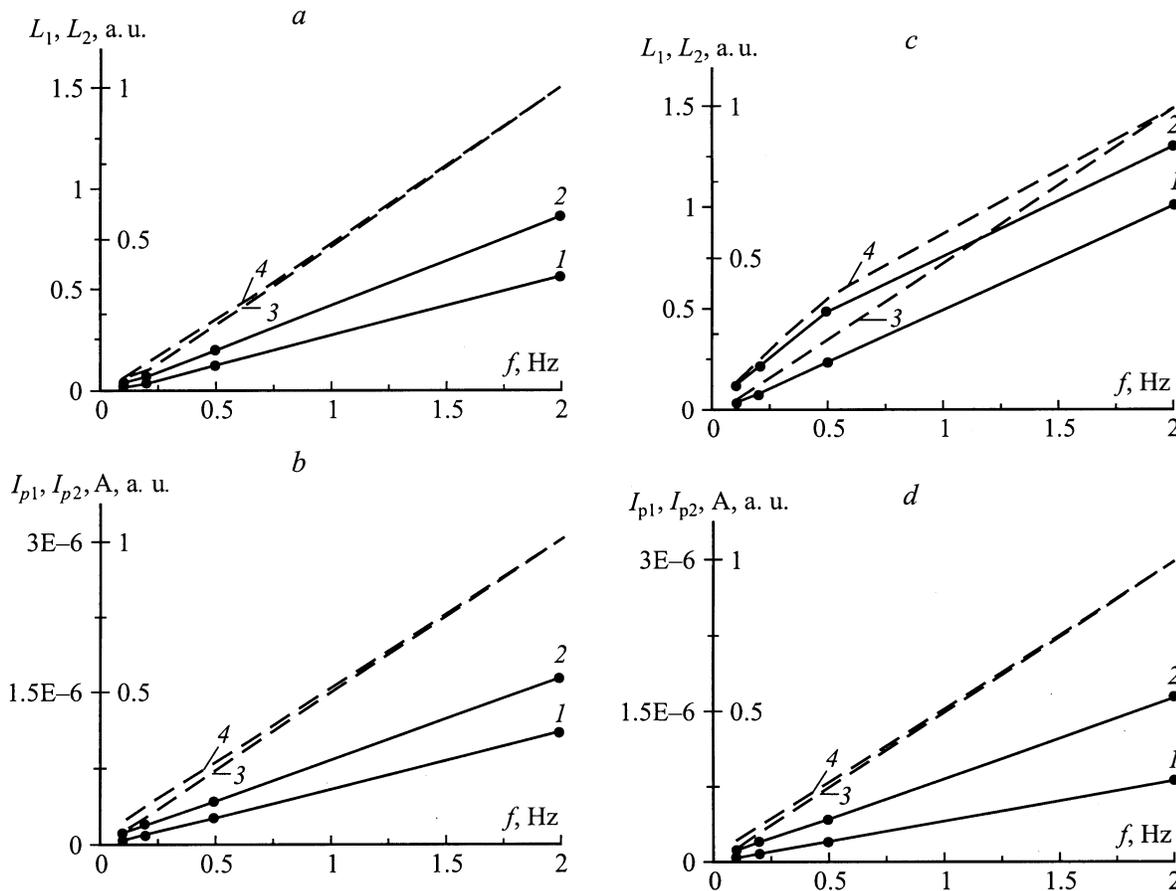


Рис. 5. Зависимости значений яркости L_1, L_2 (a, c) и тока I_{p1}, I_{p2} (b, d) от частоты f : 1 — L_1, I_{p1} ; 2 — L_2, I_{p2} ; 3, 4 — значения яркостей L_1, L_2 и токов I_{p1} (3), I_{p2} (4), нормированные относительно соответствующих значений при $f = 2$ Hz.

ких частотах для всех случаев, кроме варианта (+Al), $f = 2$ Hz; б) возбуждение наряду с одиночными комплексными центрами свечения, состоящих из ионов Mn^{2+} и дефектов решетки ZnS, например, вакансий серы [10], и имеющих другое сечение ударного возбуждения σ , значения времени релаксации τ^* и вероятности излучательной релаксации P_r . Однако указанные центры проявляются при повышенных концентрациях Mn (2.2 wt%), когда слой люминофора получен при температуре подложки 200°C без последующего отжига, причем спектры электролюминесценции при комнатной температуре не зависят от напряжения возбуждения [10].

Уменьшение эффективного значения d_p может быть связано с существованием объемных зарядов у анода и катода, оставшихся от предыдущего полупериода напряжения возбуждения, а также с возникновением и расширением областей объемного заряда при ионизации глубоких донорных центров у анода, сопровождающимся уменьшением поля у анода и приводящим к появлению участка отрицательного дифференциального сопротивления на ВАХ (рис. 2, d), и объемного заряда при ионизации глубоких акцепторных центров у катода в случае режима возбуждения с однократным запуском, сопровождающимся уменьшением поля и у

катода [3]. В результате вблизи анода энергии свободных электронов может быть недостаточно для ионизации центров свечения Mn^{2+} . Одинаковость значений τ_1 и τ_3 свидетельствует как раз в пользу того, что после начала ионизации глубоких донорных центров, возникновения и расширения поля образующегося объемного заряда у анода и уменьшения среднего поля в слое люминофора (рис. 2, f) первоначально на втором участке происходит ограничение роста тока туннельной эмиссии из катода, а затем с увеличением внешнего поля этот ток вновь начинает возрастать на втором участке с прежней постоянной времени ($\tau_1 = \tau_3$). При этом влияние остаточных объемных зарядов и их полей существенно уменьшается в режиме однократного запуска с $T_s = 100$ s (рис. 2, b) [3] и значения эффективной толщины d_p максимальны.

В то же время существенно более резкое уменьшение наклона зависимости $L(I_p)$ на втором участке для варианта (+Al), $f = 2$ Hz (рис. 2, b), происходящее при более высоких уровнях яркости L , примерно соответствующих аналогичным значениям яркости на более высоких частотах напряжения возбуждения $f = 10, 50$ Hz, может быть обусловлено уже резонансным взаимодействием возбужденных ионов Mn^{2+} и (или) этих ионов с соседними атомами и дефектами решетки ZnS [2].

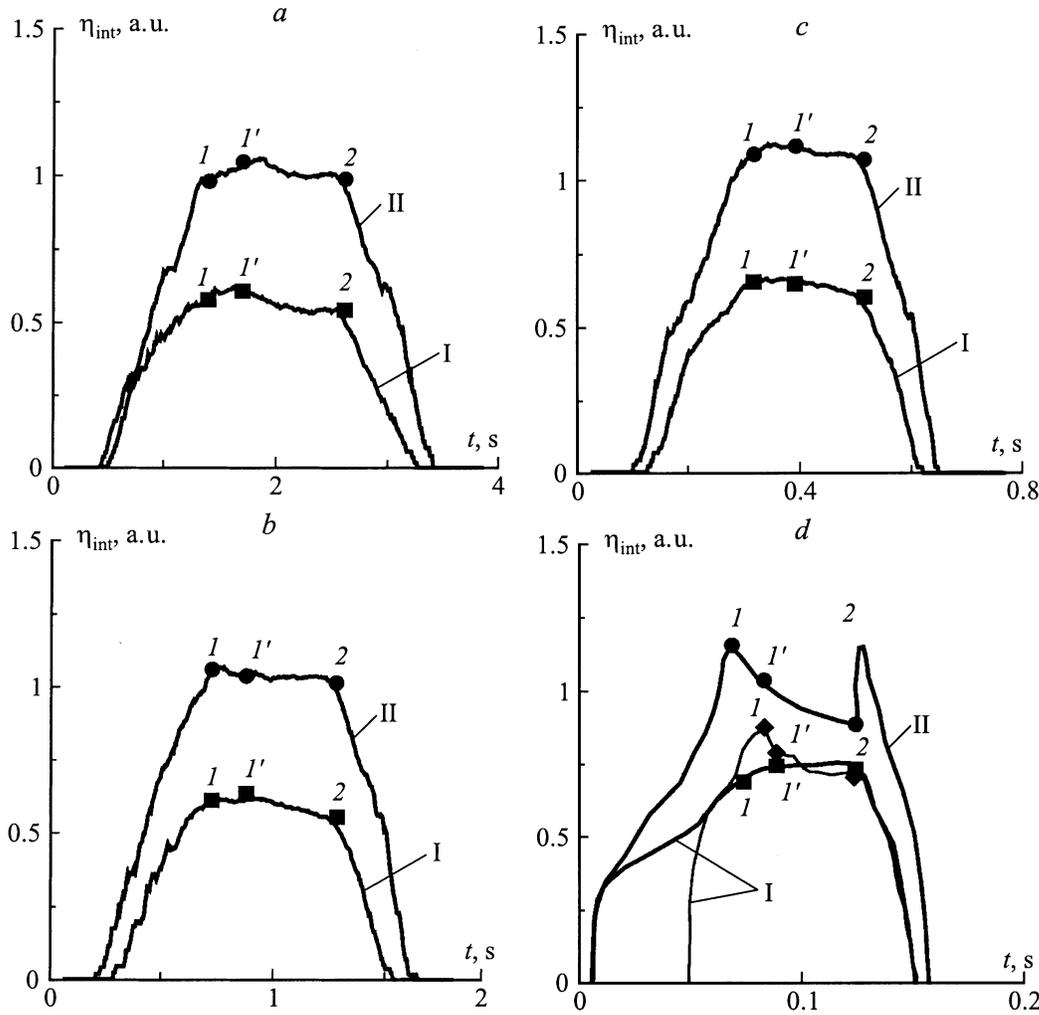


Рис. 6. Зависимость $\eta_{\text{int}}(t)$. f , Hz: a — 0.1, b — 0.2, c — 0.5, d — 2. Жирные кривые — непрерывный режим возбуждения, тонкие — режим возбуждения с однократным запуском. I — (-Al), II — (+Al).

Одинаковый наклон нормированных зависимостей L_1 , L_2 , I_{p1} , I_{p2} от f для всех случаев, кроме варианта (+Al), $f = 2$ Hz для зависимости $L(t)$, (рис. 5, a, b, c) подтверждает существование одинакового физического механизма, ответственного за рост тока I_p на первом участке и в конце второго участка (рис. 2, f) и справедливость применения для определения зависимости $L(t)$ упрощенных формул (13), (18) для указанных вариантов.

Увеличение крутизны наклона зависимостей $L(I_p)$ на первом участке в режиме возбуждения с однократным запуском и при уменьшении частоты f в непрерывном режиме возбуждения (рис. 2, $b, 4$) объясняется увеличением времени релаксации объемных зарядов у анода и катода, соответствующем уменьшению полей этих зарядов [3], возрастанием поля в объеме при практически том же среднем поле в слое люминофора F_p (рис. 2, c), приводящем к росту энергии ускоренных электронов и повышению эффективности ионизации — значения параметра N_1 . Этой же причиной можно объяснить

сверхлинейную область зависимости $L(I_p)$ в начале первого участка (рис. 2, b).

Выражения (5), (12), (13), (16)–(18), (21)–(23) позволяют определить мгновенные значения внутреннего квантового выхода η_{int} и внешнего квантового выхода $\eta_{\text{ext}} = K_0 \cdot \eta_{\text{int}}$, являющихся важнейшими параметрами ТП ЭЛИ. В частности, при использовании формул (5), (13), (18), (23) для всех участков зависимостей $L(t)$ и $I_p(t)$ мгновенные значения $\eta_{\text{int}}(t)$ равны

$$\eta_{\text{int}}(t) = \sqrt{\frac{qS_e}{A} \frac{L(t)}{I_p(t)}}. \quad (24)$$

Зависимости $\eta_{\text{int}}(t)$, полученные с учетом данных таблицы и формул (13), (16)–(18), (21)–(24) (рис. 6), характеризуются быстрым возрастанием $\eta_{\text{int}}(t)$ на первом участке зависимостей $L(t)$ и последующим относительно небольшим спадом $\eta_{\text{int}}(t)$ на втором участке после точки I' для частот $f = (0.1–0.5)$ Hz и слабым ростом η_{int} для варианта (-Al) и $f = 2$ Hz, причем однократный

режим запуска (рис. 6, *d*) характеризуется значительной величиной спада на втором участке, хотя абсолютные значения η_{int} в начале второго участка больше, чем для непрерывного режима возбуждения. С увеличением частоты f максимальные значения η_{int} слабо возрастают (рис. 6). Зависимость $\eta_{\text{int}}(t)$ для варианта +Al и $f = 2$ Hz (рис. 6, *d*) характеризуется быстрым спадом на втором участке и появлением дополнительного максимума на участке спада зависимостей $L(t)$, $I_p(t)$. Такое поведение зависимостей $\eta_{\text{int}}(t)$ можно объяснить следующим образом. Зависимость η_{int} от физических параметров слоя люминофора в общем виде можно представить в виде

$$\eta_{\text{int}}(t) = N_1(t)P_r(t) = \sigma(t)N(x, t)d_p(t)P_r(t), \quad (25)$$

где $N(x, t)$ — распределение центров свечения по толщине слоя люминофора.

При этом быстрый рост η_{int} на первом участке до точки 1 (рис. 6) обусловлен ростом среднего поля в слое люминофора $F_p(t)$ (рис. 2, *f*), энергии ускоренных электронов и возрастанием числа центров свечения, возбуждаемых одним электроном $N_1(t)$; в интервале от точки 1 до 1' η_{int} изменяется относительно слабо, так как процесс возбуждения ионов Mn^{2+} характеризуется относительным постоянством параметров при слабом изменении среднего поля в люминофоре $F_p(t)$ (рис. 2, *f*). При дальнейшем увеличении времени t в интервале от точки 1 до точки 2 спад зависимостей $\eta_{\text{int}}(t)$ в соответствии с (25) можно объяснить, как ранее указывалось, уменьшением эффективной толщины $d_p(t)$ из-за перераспределения поля в слое люминофора. Ввиду значительной релаксации объемных зарядов в паузе между импульсами напряжения в режиме возбуждения с однократным запуском при последующей ионизации глубоких центров происходит более сильное рассеяние энергии носителей тока на указанных центрах, что обуславливает более резкий спад η_{int} на втором участке (рис. 6, *d*). Появление дополнительного максимума на участке спада для варианта (+Al) $f = 2$ Hz (рис. 6, *d*) обусловлено более медленным спадом яркости $L(t)$ по сравнению с током $I_p(t)$ из-за наличия дополнительного участка спада зависимости $L(t)$ с τ порядка десятков миллисекунд, что, как указывалось выше, может быть связано с изменением характера возбуждения центров Mn^{2+} и соответствующего изменения параметров $N_1(t)$, $\sigma(t)$, $N(x, t)$, $P_r(t)$ в формуле (25). По этой же причине спад η_{int} на втором участке в этом случае более резкий по сравнению с тем же вариантом (+Al) на других частотах.

Асимметрия зависимостей $L(t)$ и $\eta_{\text{int}}(t)$ (рис. 1, 2, *a*, *b*) при различных полярностях напряжения возбуждения (варианты (-Al) и (+Al)) обусловлена неравномерным распределением центров Mn^{2+} по толщине слоя люминофора — концентрация этих центров выше у верхнего электрода, что и обуславливает более высокие значения $L(t)$ и $\eta_{\text{int}}(t)$ в варианте (+Al) [3, 4].

Следует отметить, что спад зависимостей $\eta_{\text{int}}(t)$ до нулевых значений (рис. 6) происходит при уменьшении практически до нуля соответствующих значений

тока $I_p(t)$ (рис. 2, *e*). При этом значения среднего поля в слое люминофора F_p , хотя и снижаются примерно до 10^8 V/m (рис. 2, *f*), но тем не менее обеспечивают поддержание процесса ионизации центров свечения Mn^{2+} . Это подтверждает необходимость решения на участке спада зависимости $L(t)$ полного кинетического уравнения (6), в котором присутствует генерационный член $\alpha(t)[N - N^*(t)]$.

Таким образом, в результате исследования кинетики мгновенной яркости свечения ТП ЭЛИ в совокупности с другими электрическими и светотехническими характеристиками показано, что на зависимостях мгновенной яркости и тока, протекающего через слой люминофора от времени, можно выделить два участка роста этих параметров: "быстрый" и "медленный", первый из которых характеризуется быстрым ростом тока и яркости, близкой к линейной зависимостью яркости от тока и сопровождается быстрым ростом внутреннего квантового выхода, что обусловлено, по-видимому, возрастанием числа центров свечения, возбуждаемых одним электроном, прошедшим через слой люминофора при увеличении среднего поля в слое люминофора. На втором участке происходят замедление скорости нарастания тока и яркости и уменьшение степени зависимости яркости от тока, сопровождаемое снижением внутреннего квантового выхода, что обусловлено, по-видимому, при относительно низких уровнях возбуждения (значениях тока I_p) изменением эффективной толщины слоя люминофора, в котором происходит ударное возбуждение центров свечения Mn^{2+} из-за ионизации глубоких донорных и акцепторных центров и образования полей объемных зарядов, которые вместе с остаточным полем объемных зарядов, образованных в предыдущем полупериоде напряжения возбуждения, уменьшают локальные электрические поля вблизи анода и катода. При повышении тока I_p выше определенного уровня, по-видимому, происходит переход от прямого ударного возбуждения центров Mn^{2+} к резонансному взаимодействию этих центров и(или) данных центров с соседними атомами или дефектами решетки сульфида цинка.

Список литературы

- [1] Электр люминесцентные источники света / Под ред. И.К. Верещагина. М.: Энергоатомиздат, 1990. 168 с.
- [2] Гурин Н.Т., Сабитов О.Ю., Шляпин А.В., Юденков А.В. // Письма в ЖТФ. 2001. Т. 27. Вып. 4. С. 12–18.
- [3] Гурин Н.Т., Сабитов О.Ю., Шляпин А.В. // ЖТФ. 2001. Т. 71. Вып. 8. С. 48–58.
- [4] Гурин Н.Т., Шляпин А.В., Сабитов О.Ю. // ЖТФ. 2001. Т. 27. Вып. 3. С. 72–75.
- [5] Гурин Н.Т., Шляпин А.В., Сабитов О.Ю. // Тр. Междунар. конф. "Оптика полупроводников". Ульяновск: изд-во УлГУ, 2000. С. 80–81.
- [6] Гурин Н.Т., Сабитов О.Ю. // ЖТФ. 1999. Т. 69. Вып. 5. С. 65–73.

- [7] *Vlasenko N.A., Korytko Yu.V., Pekar V.S.* // Phys. Stat. Sol. (a). 1984. Vol. 81. N 10. P. 661–667.
- [8] *Корн Г., Корн Т.* Справочник по математике для научных работников и инженеров. М.: Наука, 1974. 832 с.
- [9] *Жигальский А.А., Нефедцев Е.В., Троян П.Е.* // Изв. вузов. Физика. 1995. № 2. С. 37–41.
- [10] *Георгобиани А.Н., Грузинцев А.Н., Сю Сююнь, Лоу Зидонг* // Неорган. материалы. 1999. Т. 35. № 12. С. 1429–1434.