

06;07;12

## Отрицательное дифференциальное сопротивление в тонкопленочных электролюминесцентных излучателях на основе сульфида цинка

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

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

(Поступило в Редакцию 15 мая 2000 г.)

Обнаружена возможность существования и определены условия возникновения отрицательного дифференциального сопротивления (ОДС) *S*- и *N*-типов в тонкопленочных электролюминесцентных излучателях на основе сульфида цинка, легированного марганцем. Показано, что при приложении отрицательной полуволны напряжения возбуждения к верхнему непрозрачному электроду наблюдается ОДС *S*-типа с участком падения тока, а при приложении к нижнему прозрачному электроду — ОДС *N*-типа. Появление ОДС обусловлено образованием объемных зарядов в прикатодной и прианодной областях слоя люминофора.

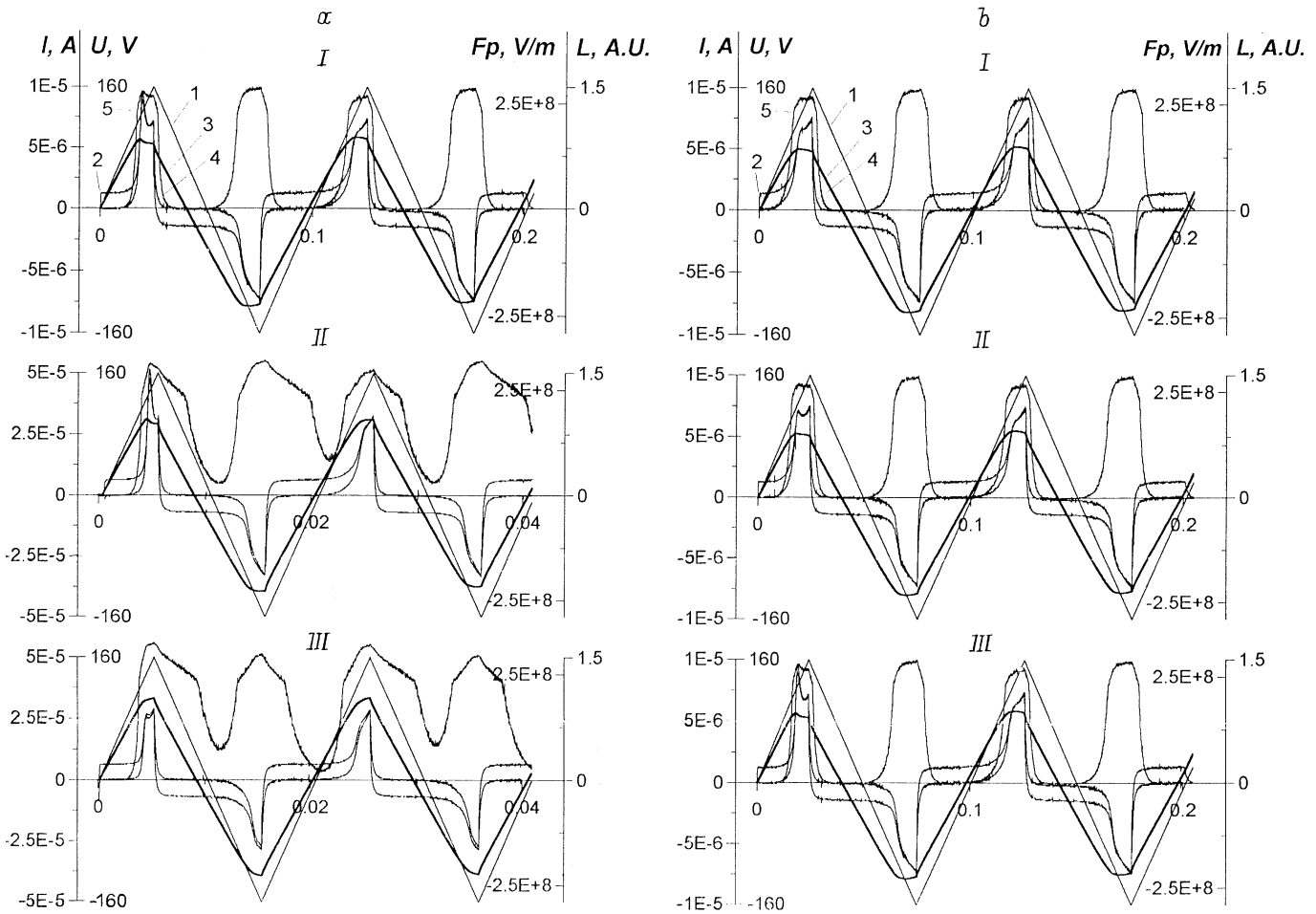
Одной из основных проблем, возникающих при изучении предпробойной электролюминесценции в тонкопленочных электролюминесцентных излучателях (ТП ЭЛИ) со структурой металл–диэлектрик–полупроводник (люминофор)–диэлектрик–металл (МДПДМ), являются отделение слоя люминофора от источника знакопеременного напряжения возбуждения диэлектрическими слоями и связанные с этим трудности в исследовании кинетики процессов генерации и переноса носителей заряда и их взаимодействия с центрами свечения и дефектами кристаллической решетки люминофора в сильном электрическом поле. При этом ряд экспериментальных работ свидетельствует о существенном влиянии на кинетику электролюминесценции объемного заряда в слое люминофора [1–5], который может в том числе приводить к появлению участка отрицательного дифференциального сопротивления (ОДС) *S*-типа на зависимости тока, протекающего через слой люминофора в режиме излучения ТП ЭЛИ, от среднего поля в этом слое [5]. В то же время данные работы [1] свидетельствуют в пользу существования в определенных условиях возбуждения люминофора участка ОДС *N*-типа на указанной зависимости, природа которого не выяснена.

В связи с этим задачей данной работы являются исследование условий возникновения и определение основных особенностей, характеризующих ОДС *S*- и *N*-типов в ТП ЭЛИ. Для решения данной задачи были выполнены экспериментальные исследования ТП ЭЛИ со структурой МДПДМ, где М — нижний прозрачный электрод на основе SnO<sub>2</sub> 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<sub>2</sub> × Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (13% mass) толщиной 0.15 μm. Слой люминофора наносили вакуумтермическим испарением в квазизамкнутом объеме с последующим отжигом при температуре 250°C в течение часа, непрозрачный

электрод — вакуумтермическим испарением, тонкопленочные диэлектрические слои получали электронно-лучевым испарением.

Экспериментально исследованы зависимости тока и мгновенной яркости свечения от времени при возбуждении ТП ЭЛИ знакопеременным напряжением треугольной формы, подаваемым с генератора Г6-34 с дополнительным усилением — формирователем и внешним генератором запуска Г5-89. Амплитуда импульсов составляла (160–170 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, 10, 50, 200, 500, 1000 Hz. Время между однократными запусками  $T_s$  изменялось в пределах 0.1–100 s. В непрерывном режиме возбуждения частота изменялась от 10 до 1000 Hz. Ток через ТП ЭЛИ измерялся с помощью включаемого последовательно с ТП ЭЛИ резистора сопротивлением 100 Ω–10 kΩ, падение напряжения на котором не превышало 1 V. Мгновенное значение яркости измерялось с помощью фотоэлектронного умножителя 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.

Как известно [5,6], в области напряжений возбуждения, не превышающих порогового значения, соответствующего началу свечения, ТП ЭЛИ может быть представлен в виде последовательного соединения конденсаторов, образованных двумя диэлектрическими слоями  $C_i$  и слоем люминофора  $C_p$ . После достижения порогового



**Рис. 1.** Зависимости  $V(t)$  (1),  $I_e(t)$  (2),  $F_p(t)$  (3),  $I_p(t)$  (4) и  $L(t)$  (5) для двух периодов напряжения возбуждения: *a* — при подаче отрицательной полуволны напряжения в первом полупериоде на верхний электрод,  $T_s = 100$  s и частоте напряжения возбуждения: *I* — 10, *II* — 50 Hz, *III* — при подаче положительной полуволны напряжения в первом полупериоде на верхний электрод,  $T_s = 50$  s и частоте напряжения возбуждения 50 Hz; *b* — при подаче отрицательной полуволны напряжения в первом полупериоде на верхний электрод, частоте напряжения возбуждения 50 Hz и периоде запуска  $T_s$ : *I* — 0.5, *II* — 5, *III* — 100 s.

напряжения в сильном электрическом поле начинаются туннельная эмиссия электронов с состояний на границе раздела люминофор–диэлектрик, их ускорение в электрическом поле, возбуждение центров свечения  $Mn^{2+}$  и ударная ионизация дефектов кристаллической решетки. В результате после порога через слой люминофора толщиной  $d_p$  протекает ток  $I_p(t)$ , включающий в себя ток смещения и ток проводимости, которые определяют кинетику процесса переноса носителей заряда, возбуждения центров свечения, образования объемных зарядов и перераспределения поля в слое.

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

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

Ток проводимости, протекающий через слой люминофора при напряжениях возбуждения выше порогового и отсутствии в нем объемного заряда, равен [1]

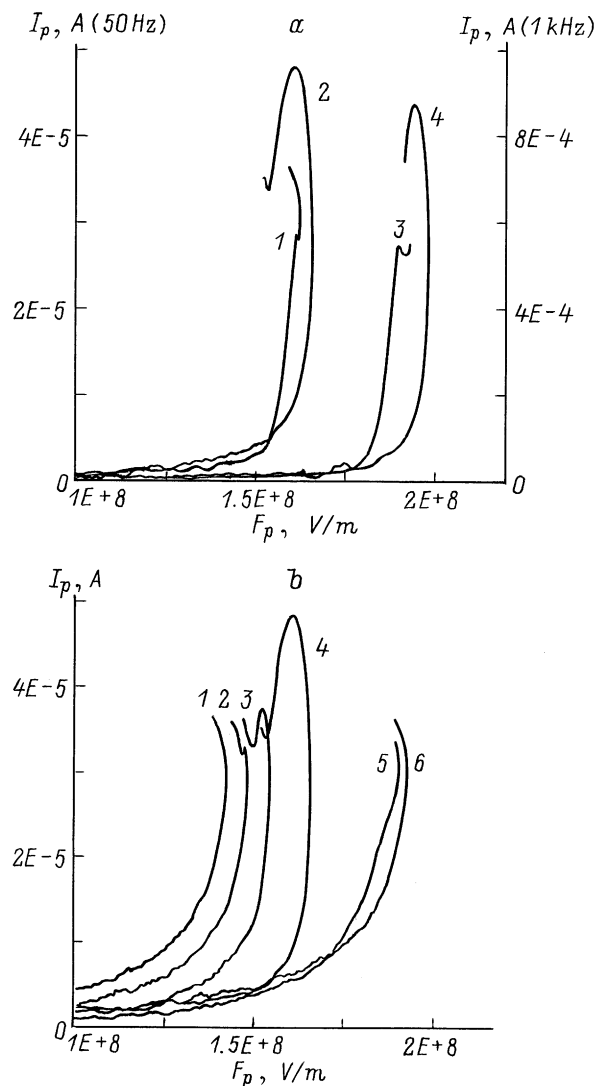
$$I_p(t) = I_e(t) \frac{C_i + C_p}{C_i} - C_p \frac{dV(t)}{dt}. \quad (2)$$

Однако из-за возникновения объемных зарядов в слое люминофора емкость  $C_p$  также зависит от времени (и соответственно напряжения), а ток  $I_p(t)$ , определенный в соответствии с (2), имеет реактивную составляющую и содержит, таким образом, информацию об образовании объемных зарядов в слое люминофора. В этом случае зависимость  $I_p(F_p)$ , определенная из формул (1), (2), будет характеризовать условный полупроводниковый прибор, включающий в себя слой люминофора с границами раздела люминофор–диэлектрик с исходными "геометрической" емкостью  $C_p$ , толщиной  $d_p$  и с напряжением на нем  $V_p(t) = F_p(t)d_p$ .

На рис. 1, *a, b* приведены типичные зависимости  $V$ ,  $I_e$ , мгновенной яркости  $L$  от времени для режима однократного запуска и зависимости  $F_p(t)$  и  $I_p(t)$ , рассчитанные по формулам (1), (2) с учетом падения напряжения на токосъемном резисторе при  $C_i = 986$  pF,  $C_p = 250$  pF. Значения  $C_e$  и  $C_p$  определялись исходя из измеренного значения суммарной емкости ТП ЭЛИ  $C_e = 200$  pF и геометрических размеров ТП ЭЛИ.

Полученные зависимости (рис. 1, *a, b*) характеризуются следующими особенностями для всех частот используемого напряжения возбуждения: наблюдается асимметрия зависимостей  $L(t)$ ,  $I_e(t)$ ,  $I_p(t)$ ,  $F_p(t)$  в зависимости от полярности напряжения возбуждения, что вызвано технологией изготовления ТП ЭЛИ и обуславливает разные распределения плотности поверхностных состояний на верхней и нижней границах раздела люминофор-диэлектрик [4,5] и дефектов структуры в слое люминофора; отсутствует постоянство поля  $F_p$  после начала свечения, что свидетельствует об образовании объемных зарядов в слое люминофора [1,6,7]; появляется дополнительный пик тока  $I_e$  и слабо отличающийся от него по амплитуде пик тока  $I_p$  в первом полупериоде напряжения возбуждения, амплитуда которых растет с увеличением периода запуска  $T_s$ , зависимость амплитуды этого пика для тока  $I_p$  от  $T_s$  аппроксимируется функцией вида  $[1 - \exp(-t/\tau)]$ , где  $\tau = (37 \pm 3)$  s для всех частот используемого напряжения возбуждения; дополнительному пику тока  $I_e$  (и  $I_p$ ) соответствует появление аналогичного пика на зависимости  $L(t)$ , что можно объяснить увеличением вероятности возбуждения центров свечения, пропорциональной плотности тока через слой люминофора [8]; имеются участки роста тока  $I_p(t)$  одновременно со спадом зависимости  $F_p(t)$  при приложении отрицательной полуволны напряжения возбуждения в первый полупериод к верхнему электроду, что свидетельствует о наличии области ОДС *S*-типа на зависимости  $I_p(F_p)$ , и участок спада тока  $I_p(t)$  с одновременным ростом поля  $F_p(t)$  при подаче положительной полуволны напряжения возбуждения в первый полупериод на верхний электрод, что характерно для ОДС *N*-типа.

Вид зависимостей  $I_p(F_p)$ , приведенных до достижения напряжением  $V(t)$  амплитудного значения  $V_m$  (рис. 2, *a, b*), полностью подтверждает вывод о наличии участков ОДС *S*- и *N*-типов. Особенностью зависимостей  $I_p(F_p)$  (рис. 2, *a, b*) при подаче отрицательной полуволны напряжения возбуждения в первом полупериоде на верхний электрод является помимо существования "плавного" участка ОДС *S*-типа наличие участка спада тока  $I_p$  при уменьшении поля  $F_p$ , появляющегося при  $T_s \geq (0.1-0.5)$  s и возрастающего с увеличением  $T_s$  (рис. 2, *b*). На низких частотах напряжения возбуждения (2, 10, 50 Hz) ток после участка спада вновь возрастает (рис. 2, *b*), а с увеличением частоты при том же значении  $V_m = 170$  V этот участок роста тока вначале уменьшается и затем исчезает совсем (рис. 2, *a*, кривая 4). При подаче на верхний электрод положительной полуволны напряжения возбуждения в первом полупериоде на зависимо-



**Рис. 2.** Зависимости  $I_p(F_p)$ : *a* — при подаче отрицательной полуволны напряжения возбуждения в первом полупериоде с периодом запуска  $T_s = 100$  s: 1, 3 — на нижний электрод; 2, 4 — на верхний электрод; частота напряжения возбуждения: 1, 2 — 50 Hz; 3, 4 — 1 kHz; *b* — при подаче отрицательной полуволны напряжения возбуждения частотой 50 Hz в первом полупериоде на верхний электрод при однократном запуске: 1 —  $T_s = 0.1$  s, 2 — 0.5 s, 3 — 5 s, 4 — 100 s; в непрерывном режиме возбуждения с частотой 50 Hz при подаче отрицательной полуволны напряжения: 5 — на нижний электрод, 6 — на верхний электрод.

сти  $I_p(F_p)$  наблюдается участок ОДС *N*-типа (рис. 2, *a*), величина которого также возрастает с увеличением  $T_s$  и частоты напряжения возбуждения. Этот участок затем переходит в область ОДС *S*-типа, которая исчезает при увеличении частоты. При этом увеличение  $F_p$  с ростом  $T_s$  обусловлено неучетом при расчете  $F_p$  поля остаточной поляризации. В непрерывном режиме возбуждения (рис. 2, *b*) на частотах напряжения возбуждения 10, 50 Hz на зависимости  $I_p(F_p)$  наблюдается только "плавный"

$S$ -участок, который при увеличении частоты до  $\sim 200$  Hz исчезает. При этом большие значения  $F_p$  по сравнению с режимом однократного запуска обусловлены использованием в качестве начального условия при расчете  $F_p$  равенства зарядов, протекающих через ТП ЭЛИ в разные полупериоды напряжения после установления квазистационарного режима возбуждения.

Полученные результаты можно объяснить следующим образом. Используемая технология получения люминофора приводит к появлению дефицита атомов цинка и избытков атомов серы у нижней границы раздела люминофор–диэлектрик и, наоборот, к избытку атомов цинка и дефицита атомов серы у верхней границы раздела, появлению соответствующих дефектов структуры (вакансии цинка, серы, цинк в междоузлии), различных комплексов и обусловленных ими мелких и глубоких донорных и акцепторных центров [3–5,7]. В сильном электрическом поле происходят ионизация и перезарядка этих центров с образованием областей объемных зарядов у анода и катода, причем поля этих объемных зарядов различным образом взаимодействуют с внешним полем при разных полярностях первого полупериода напряжения возбуждения. В частности, появление "плавного"  $S$ -участка на зависимости  $I_p(F_p)$  связано, вероятно, с ионизацией и перезарядкой глубоких донорных центров, обусловленных вакансиями цинка у нижней границы раздела [3,4]. Участок падения тока на зависимостях с областью ОДС  $S$ -типа и участок ОДС  $N$ -типа обусловлены, по-видимому, объемным зарядом вблизи верхнего электрода со временем жизни центров в возбужденном состоянии  $\sim 37$  s. Уточнение природы указанных центров и их параметров требует проведения дополнительных исследований.

## Список литературы

- [1] Singh V.P., Krishna S. // J. Appl. Phys. 1991. Vol. 70. N 3. P. 1811–1819.
- [2] Abu-Dayah A., Kobayashi S., Wager J.F. // Appl. Phys. Lett. 1993. Vol. 62. N 7. P. 744–746.
- [3] Abu-Dayah A., Wager J.F., Kobayashi S. // J. Appl. Phys. 1993. Vol. 74. N 9. P. 5575–5581.
- [4] Abu-Dayah A., Wager J.F. // J. Appl. Phys. 1994. Vol. 75. N 7. P. 3593–3598.
- [5] Neyts K.A., Corlatan D., De Visschere P. et al. // J. Appl. Phys. 1994. Vol. 75. N 10. P. 5339–5346.
- [6] Bringuier E. // J. Appl. Phys. 1989. Vol. 66. N 3. P. 1314–1325.
- [7] Bringuier E. // Phil. Mag. B. 1997. Vol. 75. N 2. P. 209–228.
- [8] Гурин Н.Т., Сабитов О.Ю. // ЖТФ. 1999. Т. 69. Вып. 5. С. 65–73.