

# Релаксация параметров тонкопленочных электролюминесцентных структур на основе ZnS:Mn при выключении

© Н.Т. Гурин<sup>¶</sup>, О.Ю. Сабитов

Ульяновский государственный университет,  
432700 Ульяновск, Россия

(Получена 16 июля 2007 г. Принята к печати 30 октября 2007 г.)

Результаты экспериментального исследования процесса спада тока, протекающего через тонкопленочную электролюминесцентную МДПДМ структуру, свидетельствуют о бимолекулярном процессе захвата электронов на поверхностные состояния анодной границы раздела. Предложена двухстадийная модель процесса, на первой стадии которой происходит ударный оже-захват горячих электронов. На второй стадии при смене направления поля дырки валентной зоны, генерированные за счет туннельной эмиссии с глубоких центров, дрейфуют к этой границе, где рекомбинируют с электронами наиболее глубоких заполненных поверхностных состояний. Определены время жизни электронов, скорость поверхностного захвата и сечение захвата электронов, их зависимости от параметров напряжения возбуждения, а также объяснено поведение зависимости мгновенного внутреннего квантового выхода от времени на участке спада.

PACS: 73.40.Gk, 73.40.Qv, 78.60.Fi

## 1. Введение

Как известно, процесс люминесценции тонкопленочных электролюминесцентных излучателей (ТП ЭЛИ), представляющих собой структуру металл–диэлектрик–полупроводник–диэлектрик–металл (МДПДМ), на основе ZnS:Mn, обусловлен туннелированием носителей заряда с поверхностных состояний (ПС) катодной границы раздела диэлектрик–полупроводник в сильном электрическом поле, последующим ударным возбуждением центров свечения Mn<sup>2+</sup> и лавинным размножением носителей из-за ударной ионизации собственных дефектов структуры и примесей [1–4].

При линейно изменяющемся напряжении возбуждения (треугольной, трапецеидальной формы) после достижения максимума приложенного напряжения наблюдается спад тока  $I_p(t)$ , протекающего через слой люминофора [1–4], аппроксимируемый суммой двух экспонент [3,4], а также спад среднего поля в этом слое  $F_p(t)$ , вызывающий сначала уменьшение, а затем и прекращение туннельного тока с ПС катодной границы раздела диэлектрик–полупроводник, а следовательно, и тока  $I_p(t)$ . При этом в качестве процесса, протекающего на участке спада, ранее предполагался захват носителей заряда на ПС и объемные центры [3]. Однако время пролета электронов через слой ( $\sim 5 \cdot 10^{-12}$  с) много меньше характеристических времен спада ( $\sim 10^{-3}$ – $10^{-5}$  с) [5], все электроны для масштаба времен захвата практически мгновенно оказываются у анодной границы, и захват носителей происходит именно на ПС анодной границы, а не в объеме. Кроме того, форма спада тока  $I_e(t)$ , протекающего через ТП ЭЛИ, не зависит от режима возбуждения (непрерывный или импульсный с паузой между импульсами напряжения возбуждения, во время которого происходит нейтрализация объемных зарядов в слое люминофора), а также от наличия засветки ТП

ЭЛИ в активном режиме его работы в разных спектральных областях [3–6]. В то же время ТП ЭЛИ представляет собой емкостной элемент, в котором ток  $I_p(t)$  определяется не только характеристиками потенциального барьера на катодной границе диэлектрик–полупроводник, но и режимом возбуждения ТП ЭЛИ (частота, скорости нарастания и спада импульсов напряжения возбуждения  $U(t)$ ). Выполненные в [5] исследования позволили определить изменение глубины уровней ПС катодной границы, с которых осуществляется туннелирование электронов, во время работы ТП ЭЛИ. Однако процессы захвата электронов на ПС анодной границы раздела при выключении ТП ЭЛИ практически не изучены.

В связи с этим целью работы является изучение механизмов релаксации тока  $I_p(t)$ , поля  $F_p(t)$  и проводимости слоя люминофора  $\sigma(t)$  при выключении ТП ЭЛИ, определение параметров захвата электронов на ПС анодной границы раздела люминофор–диэлектрик, а также изменения мгновенного внутреннего квантового выхода  $\eta_{\text{int}}(t)$  при выключении ТП ЭЛИ.

## 2. Теоретический анализ

Процесс переноса носителей заряда (электронов) в ТП ЭЛИ характеризуется следующими особенностями.

— Имеется высокая плотность заполненных ПС на границах раздела диэлектрик–люминофор, достигающая  $5 \cdot 10^{12}$ – $5 \cdot 10^{14}$  см<sup>-2</sup> [1,6].

— Распределение глубины залегания ПС, с которых осуществляется туннелирование электронов, зависит от режима возбуждения ТП ЭЛИ (импульсный с паузой между пачками импульсов или непрерывный), от амплитуды, полярности импульсов напряжения возбуждения и расположено при первом включении ТП ЭЛИ в области от 0.7–0.9 до 1.35–1.63 эВ от дна зоны проводимости [5,7,8]; в непрерывном режиме возбуждения и в

<sup>¶</sup> E-mail: gurinnt@sv.ulsu.ru

третьем полупериоде импульсного напряжения возбуждения минимальная глубина залегания таких ПС для одного образца ТП ЭЛИ составляет 0,1, 0,37, 0,67 эВ при амплитуде импульсов напряжения  $U_m = 120, 140$  и 160 В соответственно, а для другого образца 0,05 эВ при  $U_m = 160$  В [5].

— Квазистационарный (непрерывный) режим работы ТП ЭЛИ предполагает, что после первого и последующих нечетных циклов работы на бывшей катодной границе остаются положительно заряженные ПС, а на бывшей анодной границе — ПС, захватившие электроны, протуннелировавшие с катодной границы раздела и размножившиеся за счет ударной ионизации собственных дефектов структуры [5]. После второго и последующих четных циклов работы происходит обратный процесс генерации электронов с бывшей анодной границы, их умножение в слое люминофора, захват на ПС бывшей катодной границы раздела и восстановление зарядового состояния этих ПС.

— Отсутствуют какие-либо данные об излучательных процессах, характеризующих захват электронов на ПС, что однозначно свидетельствует о каскадном процессе захвата с постепенным переходом электронов на более глубокие ПС и с испусканием фононов в системе ПС, имеющей протяженное по энергии распределение уровней захвата (по крайней мере с  $\sim 0,1$  до  $\sim 1,6$  эВ) [5,8], при котором параметры процесса захвата определяются первой стадией процесса, т.е. захватом на наименее глубокие уровни ПС.

— После заполнения ПС при выключении ТП ЭЛИ их опустошение (заполнение) до равновесного состояния и полная нейтрализация ТП ЭЛИ с деполяризацией диэлектрических слоев происходит за несколько часов [1,9].

— В условиях размножения протуннелировавших электронов за счет ударной ионизации собственных дефектов структуры слоя люминофора в сильном электрическом поле,  $> 0,5 \cdot 10^6$  В/см, распределение свободных электронов по энергии в ZnS является горячим со средней энергией  $\sim 1,5$  эВ [10] и резко спадающим при энергиях  $\sim 2,64-2,82$  эВ [11]; максимальное поле при этом достигает  $(2-3) \cdot 10^6$  В/см [8].

— Захват носителей заряда на ПС протекает в условиях очень высокого уровня возбуждения, когда концентрация неравновесных электронов в зоне проводимости ( $10^{16}-10^{17}$  см $^{-3}$ ) существенно выше равновесной концентрации электронов, составляющей для ZnS  $\sim 4,5 \cdot 10^6$  см $^{-3}$  при удельном сопротивлении  $\sim 10^{10}$  Ом·см, подвижности электронов 140 см $^2$ /В·с.

— Ток, протекающий через слой люминофора,  $I_p(t)$  является продуктом действия цепи обратной связи „туннельный ток  $\rightarrow$  ударная ионизация глубоких центров и умножение электронов  $\rightarrow$  объемные заряды в прикатодной и прианодной областях слоя люминофора  $\rightarrow$  поля объемных зарядов  $\rightarrow$  итоговое поле в прикатодной области слоя люминофора  $\rightarrow$  вероятность туннелирования  $\rightarrow$  туннельный ток“ и зависит от распределения

собственных дефектов структуры по толщине слоя люминофора [5].

С учетом указанных особенностей рассмотрим процесс релаксации тока  $I_p(t)$ , поля  $F_p(t)$ , проводимости  $\sigma(t)$ , мгновенного внутреннего квантового выхода  $\eta_{\text{int}}(t)$ , а также параметры захвата электронов на ПС.

Емкостный характер сопротивления ТП ЭЛИ указывает на то, что ток  $I_e(t)$ , протекающий через ТП ЭЛИ и измеряемый в эксперименте, может изменяться мгновенно, и именно его изменение определяет изменение других параметров: среднего поля в слое люминофора  $F_p(t)$ , емкости слоя люминофора  $C_p(t)$ , проводимости этого слоя  $\sigma(t)$ .

Поскольку ток  $I_p(t)$  связан с током  $I_e(t)$  формулой [2]

$$I_p(t) = I_e(t) \frac{C_i + C_p}{C_i} - C_p \frac{dU(t)}{dt}, \quad (1)$$

то при линейно изменяющемся напряжении возбуждения (треугольной или трапецидальной формы) все особенности изменения тока  $I_p(t)$  во времени  $t$  повторяют изменения тока  $I_e(t)$ . В частности, после достижения амплитудного значения симметричного знакопеременного напряжения возбуждения  $U(t_m) = U_m$  при  $t = t_m = T/4$  форма напряжения треугольной формы на участке спада описывается функцией (при переносе начала отсчета времени  $t = 0$  в момент  $t_m$ )

$$U(t) = U_m - \frac{4U_m t}{T}, \quad (2)$$

где  $T$  — период напряжения возбуждения, и

$$I_p(t) = I_e(t) \frac{C_i + C_p}{C_i} - \frac{4U_m C_p}{T}. \quad (3)$$

Для трапецидального напряжения на вершине трапеции

$$U(t) = U_m = \text{const} \quad (4)$$

и

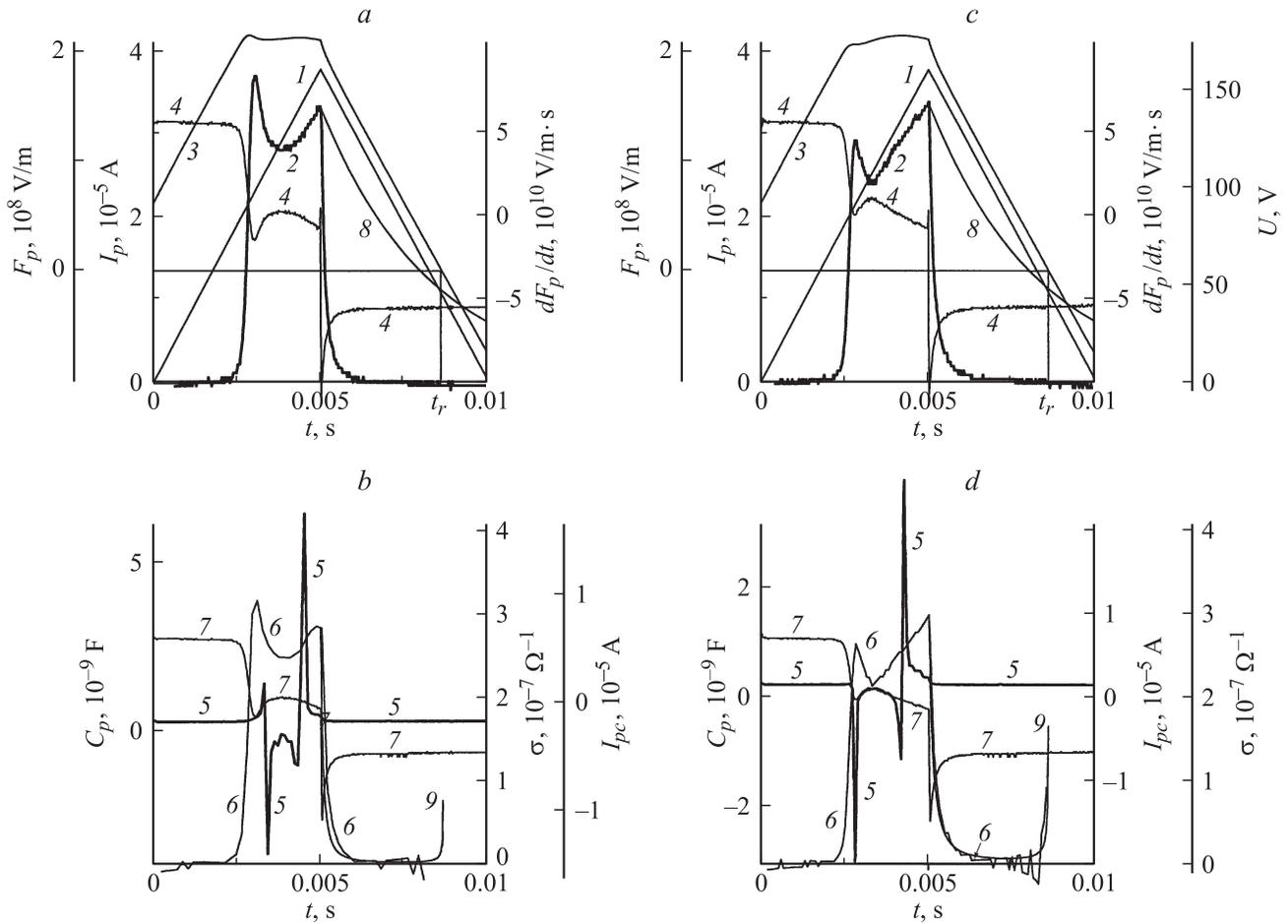
$$I_p(t) = I_e(t) \frac{C_i + C_p}{C_i}. \quad (5)$$

Связь тока  $I_p(t)$  со скоростью изменения напряжения  $U(t)$  и поля  $F_p(t)$  определяется выражением [5]

$$I_p(t) = C_i \frac{dU(t)}{dt} - (C_i + C_p) d_p \frac{dF_p(t)}{dt}, \quad (6)$$

где  $d_p$  — толщина слоя люминофора.

Так как в процессе ударной ионизации в слое люминофора происходит образование объемных зарядов [2-5], это приводит к изменению емкости слоя люминофора  $C_p(t)$ . Изменение тока  $I_p(t)$  и поля  $F_p(t)$  приводит также к изменению проводимости этого слоя  $\sigma(t)$ . При выключении ТП ЭЛИ спад тока  $I_p(t)$  может быть вызван чисто схемным эффектом перезарядки емкостей диэлектрических слоев  $C_i$  и емкости  $C_p(t)$  в структуре ТП ЭЛИ с изменяющейся проводимостью слоя люминофора  $\sigma(t)$ .



**Рис. 1.** Зависимости  $U(t)$  (1),  $I_p(t)$  (2),  $F_p(t)$  (3),  $dF_p(t)/dt$  (4),  $C_p(t)$  (5),  $\sigma(t)$  (6),  $I_{pc}(t)$  (7), рассчитанная по формуле (10) зависимость спада  $I_p(t)$  (8), рассчитанная по формуле (28) зависимость  $\sigma(t)$  (9).  $a, b$  — вариант +Al;  $c, d$  — вариант -Al.  $f = 50$  Гц, 1-й полупериод напряжения возбуждения;  $T_s = 100$  с. Образец 1.

Для проверки предположения о том, что спад тока  $I_p(t)$  и последующий спад поля  $F_p(t)$  не вызваны чисто схемным эффектом перезарядки емкостей диэлектрических слоев  $C_i$  и слоя люминофора  $C_p(t)$  в эквивалентной схеме ТП ЭЛИ, состоящей из последовательно соединенных емкостей  $C_i$  и емкости  $C_p(t)$ , параллельно с которой подключено изменяющееся во времени сопротивление  $R(t)$  (проводимость  $\sigma(t)$ ) слоя люминофора, были определены характеристики  $C_p(t)$ ,  $R(t)$ ,  $\sigma(t)$  на участке спада треугольного напряжения из экспериментально измеренного тока  $I_e(t)$ , протекающего через ТП ЭЛИ, и рассчитанного по методике [1–5] тока  $I_p(t)$ :

$$C_p(t) = \frac{I_{pc}(t)}{d_p dF_p/dt} = \frac{I_e(t) - I_p(t)}{d_p dF_p/dt}, \quad (7)$$

где  $I_{pc}(t)$  — емкостная составляющая тока, протекающего через слой люминофора,

$$\sigma(t) = \frac{I_p(t)}{d_p F_p(t)}, \quad R(t) = \frac{1}{\sigma(t)}. \quad (8)$$

При этом среднее поле в слое люминофора  $F_p(t)$  определялось по известной формуле [3,9]

$$F_p(t) = -\frac{1}{d_p(C_p + C_i)} \left[ C_i U(t) - \int_0^t I_p(t) dt \right] + F_{pol}, \quad (9)$$

где  $F_{pol}$  — результирующее поле в слое люминофора, обусловленное поляризационным зарядом, накопленным на ПС после предыдущего включения ТП ЭЛИ, и объемными зарядами в слое люминофора (знак „минус“ указывает на направление поля  $F_p(t)$ ). При первом включении ТП ЭЛИ  $F_{pol} = 0$ .

Как следует из рис. 1, зависимости  $I_p(t)$  и  $F_p(t)$  на участке спада изменяются во времени с близкой скоростью, что обуславливает очень быстрое для данного масштаба времени (практически скачкообразное) уменьшение емкости  $C_p(t)$  в момент начала спада при дальнейшем постоянстве величины  $C_p$ . Первоначальное уменьшение проводимости  $\sigma(t)$  (рис. 1,  $b, d$ ) на этом участке происходит также со скоростью, близкой к скоростям изменения  $I_p(t)$  и  $F_p(t)$  в соответствии с (8).

В конце участка спада тока  $I_p(t)$  и поля  $F_p(t)$  проводимость  $\sigma(t)$  начинает возрастать, так как спад тока  $I_p(t)$  происходит медленнее спада поля  $F_p(t)$  на этом участке. При этом на основе анализа эквивалентной схемы ТП ЭЛИ получена расчетная зависимость участка спада тока  $I_p(t)$

$$I_p(t) = I_{pm} \exp[-t/\tau_C(t)], \quad (10)$$

где  $I_{pm} = I_p(t_m)$ , с изменяющейся во времени постоянной экспоненциального спада  $\tau_C(t) = R(t)[C_i + C_p(t)]$ , существенно (примерно на порядок) превышающей характеристические времена экспериментальной характеристики (рис. 1, а, с). Это свидетельствует о том, что спад тока  $I_p(t)$  обусловлен более быстрыми физическими процессами захвата носителей на ПС анодной границы раздела люминофор–диэлектрик, аналогично более быстрым процессам туннелирования электронов с ПС катодной границы раздела и ударной ионизации собственных дефектов структуры слоя люминофора [5,8].

При этом несоответствие характера спада тока  $I_p(t)$  простому экспоненциальному закону с фиксированной постоянной времени спада [3,4] указывает на немонотонный (нелинейный) характер процесса захвата электронов на ПС.

Рассмотрение процессов рекомбинации или захвата носителей заряда на поверхности полупроводника при наличии непрерывно распределенных по энергии ПС является сложной задачей [12,13]. Дополнительную трудность создает необходимость учета разогрева электронной подсистемы в условиях сильного поля и высокого уровня возбуждения при знакопеременном напряжении возбуждения ТП ЭЛИ с МДПДМ структурой, две границы раздела полупроводник–диэлектрик которой поочередно выполняют разные функции — источника электронов и резервуара для захвата электронов. В соответствии с этим предлагается следующая двухстадийная модель ударного захвата электронов на ПС и последующей их рекомбинации.

На первой стадии, протекающей на участке спада напряжения  $U(t)$  после достижения времени  $t_m$ , реализуются условия для осуществления первой стадии ожерекрекомбинации через ПС, когда энергия свободного электрона идет на возбуждение электрона, находящегося на заполненном уровне ПС, с переводом его в возбужденное состояние на свободный более мелкий уровень ПС. Поскольку основная часть горячих электронов на анодной границе раздела может иметь энергию 1–2 эВ, этой энергии недостаточно для ударной межзонной рекомбинации с переводом электрона из валентной зоны на незаполненные ПС с энергией < 0.6–1.6 эВ с учетом того, что ширина запрещенной зоны ZnS составляет 3.7 эВ, но достаточно для возбуждения электронов с заполненных ПС глубиной > 1–2 эВ на незаполненные уровни ПС и с захватом горячего электрона на ПС. Возбужденный электрон после этого теряет энергию по обычному каскадному механизму и занимает наиболее

глубокие незаполненные уровни. Некоторая доля наиболее высокоэнергетичных горячих электронов с энергией до 2.8 эВ способна вызвать генерацию свободных электронов за счет ударной ионизации с заполненных ПС, которые, однако, отличаются от электронов, генерированных за счет туннелирования и последующей ударной ионизации собственных дефектов структуры слоя люминофора, тем, что они возбуждаются в тонком приповерхностном слое, где отсутствуют условия для их разогрева. Поэтому эти электроны уменьшают среднюю энергию электронной подсистемы у анодной границы и участвуют в ударном захвате на ПС, аналогично описанному выше процессу. Небольшая доля свободных электронов у анодной границы с энергией, близкой к энергии равновесных электронов, может захватываться на незаполненные ПС по каскадному механизму, особенно на конечном участке спада при приближении их концентрации в зоне проводимости к равновесной [12]. Таким образом осуществляется захват всех свободных электронов, оказавшихся на анодной границе раздела. Поскольку ПС катодной границы раздела в исходном состоянии являются, по-видимому, нейтральными центрами [5], при туннелировании электронов эти ПС оказываются заряженными положительно. При смене полярности напряжения возбуждения и следующем включении ТП ЭЛИ заряженные ПС уже на анодной границе раздела захватывают электроны. Если бы все генерированные за счет туннелирования и ударной ионизации электроны захватывались на ПС без последующей рекомбинации, то при полностью симметричной структуре ТП ЭЛИ и при одинаковых зависимостях от времени коэффициента умножения электронов  $M(t)$  в каждом последующем цикле работы ТП ЭЛИ происходило бы увеличение степени заполнения ПС на обеих границах раздела люминофор–диэлектрик. В самом деле, если при первом включении ТП ЭЛИ и некотором усредненном значении  $M$  ( $M \geq 1$ ) коэффициента умножения  $M(t)$  заполнение ПС на катодной границе уменьшается на количество туннелированных электронов  $n_{p0}$ , а на анодной границе увеличивается на  $Mn_{p0}$ , то во втором цикле работы на бывшей анодной границе заполнение ПС возрастает по сравнению с исходным на  $n_{p0}(M - 1)$  при том же количестве туннелированных электронов  $n_{p0}$ . На такое же количество  $n_{p0}(M - 1)$  возрастает и заполнение ПС на бывшей катодной границе по сравнению с исходным. При сохранении значения  $M$  и  $n_{p0}$  в следующих циклах работы ТП ЭЛИ после четвертого цикла заполнение ПС на обеих границах составляло бы  $2n_{p0}(M - 1)$ , после шестого цикла  $3n_{p0}(M - 1)$  и т.д. Понятно, что такой процесс невозможен прежде всего по причине истощения источника электронов, полученных за счет ударной ионизации собственных дефектов слоя люминофора, и уменьшения коэффициента умножения  $M$ . Это прямо подтверждается экспериментальными зависимостями  $M(t)$ , полученными после паузы различной длительности, в течение которой происходит нейтрализация положительного заряда ионизированных собствен-

ных дефектов структуры и восстановление источника дополнительных свободных электронов [14].

Поэтому на второй стадии процесса происходит рекомбинация части электронов, расположенных на наиболее глубоких заполненных уровнях ПС, с неосновными носителями — дырками валентной зоны. Дырки могут генерироваться, в частности, за счет туннельной эмиссии с глубоких уровней [9,15], обусловленных вакансиями серы  $V_S^{2+}$ , имеющими энергию  $\sim 1.3$  эВ, и вакансиями цинка  $V_{Zn}^-$  с энергией  $0.5-0.6$  эВ выше потолка валентной зоны [16,17], прежде всего в высокополевой прикатодной области. В рассматриваемом цикле работы ТП ЭЛИ (полупериоде напряжения  $U(t)$ ), в том числе на участке спада, свободные дырки перемещаются под действием поля  $F_p(t)$  к катодной границе раздела, что исключает их участие в рекомбинации у анодной границы. Однако после завершения спада тока  $I_p(t)$  при смене направления поля  $F_p(t)$  в момент времени  $t_r$  (рис. 1, а, с, кривые 3) еще до смены полярности напряжения  $U(t)$  дырки перемещаются к анодной границе и принимают участие в частичной рекомбинации с захваченными на ПС электронами. После смены полярности напряжения  $U(t)$  в следующем полупериоде концентрация дырок у бывшей анодной границы возрастает за счет туннельной эмиссии в прилегающей высокополевой, ставшей уже прикатодной области слоя люминофора, что увеличивает скорость рекомбинации. Эта туннельная эмиссия дырок одновременно осуществляет нейтрализацию сформированного в этой области в предыдущем цикле положительного объемного заряда, что уточняет предложенную ранее [17] модель работы ТП ЭЛИ. Таким образом, процессы захвата электронов на ПС и их последующей рекомбинации разнесены во времени. При окончательном выключении ТП ЭЛИ большая часть дырок рекомбинирует у катодной границы, оставляя у анодной границы положительный объемный заряд, нейтрализация которого осуществляется в течение  $\gtrsim 100$  с [9].

Описанные выше процессы приводят к тому, что в квазистационарном (непрерывном) режиме возбуждения ТП ЭЛИ наступает равновесие между числом электронов, генерированных за счет туннелирования с ПС катодной границы, и числом захваченных на ПС анодной границы электронов, когда умножение туннелированных электронов компенсируется упомянутой выше рекомбинацией захваченных на ПС анодной границы электронов с дырками валентной зоны. При этом через несколько полупериодов напряжения возбуждения  $U(t)$  в таком режиме заполняется примерно один и тот же спектр уровней ПС, общее характеристическое время релаксации процесса соответствует времени установления квазиравновесного заполнения центров захвата [12], а количество дырок, участвующих в рекомбинации, равно  $n_{p0}(M-1)$ , т.е. соответствует количеству ионизованных в процессе ударной ионизации собственных дефектов структуры слоя люминофора (вакансий серы  $V_S^+$ , цинка  $V_{Zn}^{2-}$ ),  $\sim (1.6-2) \cdot 10^{10}$  при концентрации  $(6.2-7.7) \cdot 10^{16} \text{ см}^{-3}$  [17], площади ТП

ЭЛИ  $S_e = 1.77 \text{ мм}^2$  и толщине слоя объемного заряда  $0.15 \text{ мкм}$  [8]; время жизни дырок можно оценить величиной, соответствующей половине периода  $T/2$  напряжения возбуждения  $U(t)$ . Тогда при высоком уровне возбуждения и ударном оже-захвате на непрерывно распределенные по энергии ПС, аналогично случаю с дискретными центрами [13], механизм захвата может быть описан бимолекулярным процессом, и изменение концентрации свободных электронов  $n(t)$  на участке спада в общем случае может быть представлено в виде

$$\frac{dn(t)}{dt} = G(t) - \beta n^2(t), \quad (11)$$

где  $G(t)$  — скорость генерации электронов за счет процессов туннелирования и ударной ионизации (в том числе ПС),  $\beta$  — коэффициент захвата электронов, определяемый числом носителей заряда, захватываемых в единице объема в единицу времени.

Высокополевые процессы генерации электронов являются практически безынерционными и протекают определенное время после начала спада тока  $I_p(t)$  и поля  $F_p(t)$ . Однако, как ранее показано и как следует из рис. 1, а, с, на этом отрезке времени происходит наиболее резкое уменьшение поля  $F_p(t)$ , что приводит к быстрому уменьшению генерационных процессов.

Тогда, пренебрегая генерацией на участке спада, уравнение (11) можно записать в виде

$$\frac{dn(t)}{dt} \approx -\beta n^2(t). \quad (12)$$

Решением уравнения (12) является

$$n(t) = \frac{n_m}{1 + n_m \beta t}, \quad (13)$$

где  $n_m = n(t_m)$  — концентрация свободных электронов в момент, соответствующий началу спада  $t = t_m$ . В зависимости (13) и далее за начало отсчета  $t = 0$  берем момент начала спада  $t_m$ .

Поскольку коэффициент  $\beta$  отвечает процессам захвата в объеме, для характеристики захвата на ПС необходимо использовать скорость (коэффициент по терминологии [13,18]) поверхностного захвата  $S$ , определяемую количеством носителей заряда в единице объема, захватываемых на единице поверхности в единицу времени.

Тогда, учитывая связь между  $\beta$  и  $S$  в виде

$$\beta = SS_e \quad (14)$$

и используя (12), (14), можем записать уравнение, описывающее спад тока  $I_p(t)$ , следующим образом:

$$I_p(t) = qd_p S_e^2 S n^2(t) = \frac{qd_p S_e^2 S n_m^2}{[1 + n_m S S_e t]^2}, \quad (15)$$

где  $q$  — заряд электрона.

При  $I_{pm} = qd_p S_e^2 S n_m^2$

$$n_m = \frac{1}{S_e} \sqrt{\frac{I_{pm}}{qd_p S}}, \quad (16)$$

$$I_p(t) = \frac{I_{pm}}{[1 + \sqrt{I_{pm} S / qd_p t}]^2}. \quad (17)$$

Линеаризация зависимости (17) в координатах

$$\sqrt{\frac{I_{pm}}{I_p(t)}} - 1 = \sqrt{\frac{I_{pm} S}{qd_p}} t \quad (18)$$

позволяет определить величину  $S$  из экспериментальных характеристик  $I_p(t)$ :

$$S = \frac{k^2 qd_p}{I_{pm}}, \quad (19)$$

где  $k$  — тангенс угла наклона зависимости (18),

$$k = \sqrt{\frac{I_{pm} S}{qd_p}}. \quad (20)$$

Учитывая, что скорость захвата электронов определяется мгновенным временем жизни  $\tau(t)$  и избыточной концентрацией свободных электронов  $\Delta n(t) = n(t) - n_0$ , где  $n_0$  — концентрация равновесных электронов в зоне проводимости, при  $n(t) \gg n_0$  из

$$SS_e n^2(t) = \frac{\Delta n(t)}{\tau(t)} \quad (21)$$

с учетом (15), (19) получаем

$$\tau(t) = \frac{1}{SS_e n(t)} = \sqrt{\frac{qd_p}{SI_p(t)}}. \quad (22)$$

Из (20), (22) следует, что в момент начала спада тангенс угла наклона зависимости (17)  $k$  связан с мгновенным временем жизни электронов в начальный момент спада  $\tau_m$ ,

$$k = 1/\tau(t_m) = 1/\tau_m, \quad (23)$$

и характеризует вероятность захвата электронов в единицу времени на ПС в начальный момент спада.

Если  $\sigma_n$  — сечение захвата электронов ловушками ПС при средней скорости дрейфа электронов (или тепловой скорости для равновесных и близких к ним по энергии электронов)  $v_n$  и концентрации  $n(t)$ , то время  $\tau(t)$  жизни определяется в виде [18]

$$\tau(t) = \frac{1}{v_n \sigma_n n(t)}. \quad (24)$$

При известной скорости дрейфа  $v_n$  сечение захвата  $\sigma_n$  равно

$$\sigma_n = \frac{1}{v_n \tau(t) n(t)} = \frac{SS_e}{v_n}. \quad (25)$$

Таким образом из экспериментальных зависимостей  $I_p(t)$  можно определить  $S$ ,  $\sigma_n$ ,  $\tau(t)$ .

Используя (2), (9), (17), (23), выражение для определения  $F_p(t)$  при первом включении ТП ЭЛИ на участке линейно спадающей части импульса напряжения возбуждения треугольной формы можно представить в виде

$$F_p(t) = F_{pm} - \frac{t}{d_p(C_i + C_p)} \left( \frac{4C_i V_m}{T} + \frac{I_{pm}}{1 + t/\tau_m} \right), \quad (26)$$

где  $F_{pm}$  — значение среднего поля в слое люминофора в момент начала спада  $t_m$ .

Для вершины трапецеидального импульса напряжения возбуждения, когда длительность вершины больше полного времени спада тока  $I_p(t)$  и поля  $F_p(t)$ , выражение  $F_p(t)$  имеет вид

$$F_p(t) = F_{pm} - \frac{I_{pm} t}{d_p(C_i + C_p)} \frac{t}{1 + t/\tau_m}. \quad (27)$$

С учетом (8), (17), (26) изменение проводимости слоя люминофора на участке спада для напряжения возбуждения треугольной формы описывается выражением

$$\sigma(t) = \frac{I_{pm}}{d_p(1 + t/\tau_m)^2 \left[ F_{pm} - \frac{t}{d_p(C_i + C_p)} \left( \frac{4C_i V_m}{T} + \frac{I_{pm}}{1 + t/\tau_m} \right) \right]}. \quad (28)$$

Аналогично на вершине импульса напряжения трапецеидальной формы проводимость определяется как

$$\sigma(t) = \frac{I_{pm}}{d_p(1 + t/\tau_m)^2 \left[ F_{pm} - \frac{I_{pm}}{d_p(C_i + C_p)} \frac{t}{(1 + t/\tau_m)} \right]}. \quad (29)$$

Одним из важнейших показателей эффективности светоизлучающих элементов, в том числе ТП ЭЛИ переменного тока, является внутренний квантовый выход  $\eta_{\text{int}}$ , который, однако, является интегральной величиной, что существенно затрудняет определение влияния на его величину физических процессов, протекающих во время работы ТП ЭЛИ. Для учета такого влияния ранее [4] было введено понятие мгновенного внутреннего квантового выхода  $\eta_{\text{int}}(t)$ , определяемого отношением мгновенной яркости свечения ТП ЭЛИ  $L(t)$  к току, протекающему через слой люминофора  $I_p(t)$ :

$$\eta_{\text{int}}(t) = A \frac{L(t)}{I_p(t)}, \quad (30)$$

где  $A = \pi S_e q / k_0 h \nu f_\lambda$ ,  $k_0$  — коэффициент вывода излучения из ТП ЭЛИ,  $h \nu$  — энергия фотона,  $f_\lambda$  — видность излучения.

Зависимость  $\eta_{\text{int}}(t)$  позволяет определить ряд важнейших параметров и характеристик ТП ЭЛИ [14] и обнаруживает различное поведение при изменении частоты напряжения возбуждения  $f$ , в частности резкий рост значений  $\eta_{\text{int}}(t)$  на участке спада зависимостей  $L(t)$  и  $I_p(t)$  при возбуждении ТП ЭЛИ напряжением  $U(t)$  определенной частоты [4], что обусловлено более медленным спадом проводимости  $L(t)$  по сравнению с  $I_p(t)$  [14].

В общем случае зависимость  $\eta_{\text{int}}(t)$  можно разделить на два участка: I — участок нарастания и последующего изменения яркости  $L(t)$  и тока  $I_p(t)$  при увеличении напряжения возбуждения  $U(t)$  до амплитудного значения  $U_m$ , II — участок спада зависимостей  $L(t)$  и  $I_p(t)$  после достижения напряжения  $U_m$  (рис. 5). Как показали результаты экспериментальных исследований [4], спад яркости  $L(t)$  используемых образцов ТП ЭЛИ при частотах напряжения возбуждения  $f \lesssim 200$  Гц на участке II можно представить в первом приближении экспонентой

$$L(t) = L_m e^{-t/\tau'}, \quad (31)$$

где  $\tau'$  — постоянная спада, уменьшающаяся с частотой  $f$ .

Тогда с учетом (17), (23), (30) на участке II спада выражение для  $\eta_{\text{int}}(t)$  принимает вид

$$\eta_{\text{int}}(t) = A \frac{L_m}{I_{pm}} \exp(-t/\tau') (1 + t/\tau_m)^2. \quad (32)$$

Зависимость (32) имеет немонотонный характер, и максимум ее определяется из условия

$$\begin{aligned} \frac{d\eta_{\text{int}}(t)}{dt} &= A \frac{L_m}{I_{pm}\tau'} \exp(-t/\tau') \\ &\times \left[ 2\tau'/\tau_m - 1 + (2/\tau_m)(\tau'/\tau_m - 1)t - t^2/\tau_m^2 \right] = 0. \quad (33) \end{aligned}$$

Решением уравнения (33) является значение времени  $t_1$ , отсчитываемое от момента начала спада тока  $I_p(t)$ , соответствующее максимуму зависимости  $\eta_{\text{int}}(t)$ :

$$t_1 = 2\tau' - \tau_m. \quad (34)$$

Из (33), (34) следует, что при  $\tau_m \geq 2\tau'$  максимум на зависимости  $\eta_{\text{int}}(t)$  отсутствует и эта зависимость характеризуется спадом, а при  $\tau_m < 2\tau'$  максимум определяется  $\tau'$ , и при  $\tau'$ , большем интервала времени между началом спада и моментом изменения направления поля  $F_p(t)$   $t_r$  (рис. 1, а, с), максимум не будет достигнут, а будет наблюдаться монотонный рост  $\eta_{\text{int}}(t)$ .

Таким образом, используя выражения (16)–(20), (22), (24)–(34), можно найти параметры  $n_m$ ,  $S$ ,  $\sigma_n$ ,  $\tau_m$  и получить расчетные характеристики  $I_p(t)$ ,  $F_p(t)$ ,  $\sigma(t)$ ,  $\eta_{\text{int}}(t)$ , определяющие процесс ударного захвата электронов на ПС анодной границы раздела люминофор–диэлектрик и изменение мгновенного внутреннего квантового выхода при выключении ТП ЭЛИ.

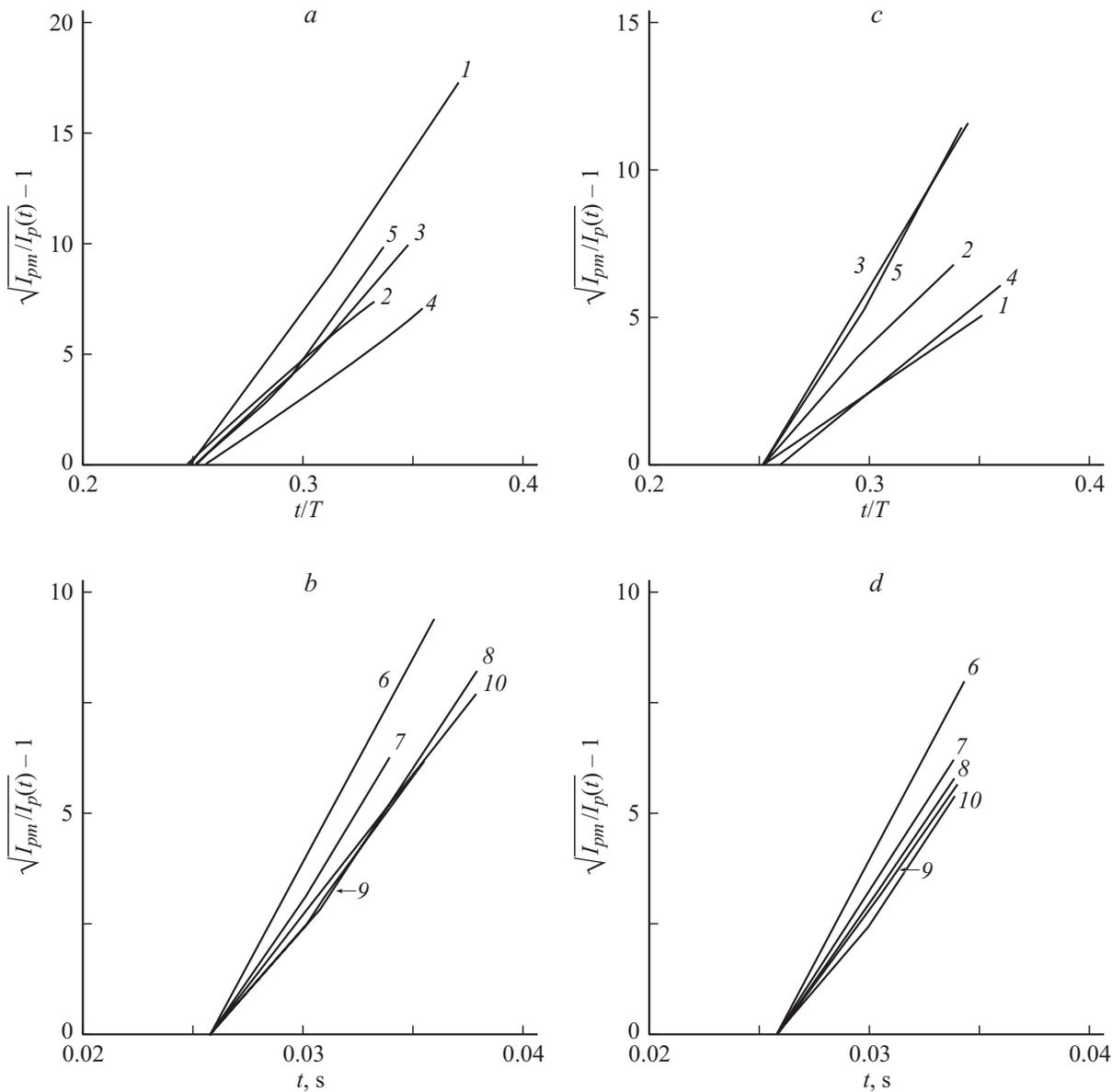
### 3. Методика эксперимента

Экспериментальные исследования были выполнены на двух сериях образцов ТП ЭЛИ, аналогичных использованным в [14] и отличающихся режимами обработки, со структурой МДПДМ: М — нижний прозрачный электрод на основе  $\text{SnO}_2$  толщиной 0.2 мкм, нанесенный

на стеклянную подложку, и верхний непрозрачный тонкопленочный электрод на основе Al толщиной 0.15 мкм диаметром 1.5 мм<sup>2</sup>; П — электролюминесцентный слой ZnS:Mn (массовая концентрация Mn 0.5%) толщиной 0.54 мкм; Д — диэлектрический слой  $\text{ZrO}_2 \times \text{Y}_2\text{O}_3$  (массовая концентрация  $\text{Y}_2\text{O}_3$  13%) толщиной 0.15 мкм. Слой люминофора наносили вакуумным термическим испарением в квазизамкнутом объеме при температуре подложки 250°C с последующим отжигом в вакууме при температуре 250°C в течение 1 ч, непрозрачный электрод — вакуумным термическим испарением, диэлектрические слои получали электронно-лучевым испарением.

Экспериментально были исследованы зависимости мгновенной яркости свечения  $L(t)$  и тока через ТП ЭЛИ  $I_e(t)$  при возбуждении знакопеременным напряжением треугольной формы, подаваемым с генератора Г6-34 с дополнительным усилителем — формирователем и внешним генератором запуска Г5-89 в режиме однократного запуска, когда напряжение возбуждения представляло собой пачку импульсов из двух периодов треугольной формы, следующих с частотой  $f = 2, 10, 50, 500$  Гц и в непрерывном режиме при тех же частотах  $f$ . Период однократного запуска составлял  $T_s = 0.5, 1, 100$  с при изменении амплитуды  $U_m$  от 110 до 160 В и с подачей положительного или отрицательного напряжения в первом полупериоде на верхний электрод (варианты +Al и -Al соответственно). Ток  $I_e(t)$  измерялся с помощью включаемого последовательно с ТП ЭЛИ резистора с сопротивлением 100 Ом–10 кОм, падение напряжения на котором не превышало 0.5% от амплитуды напряжения питания. Мгновенное значение яркости измерялось с помощью фотоэлектронного умножителя ФЭУ-84-3 при калибровке шкалы яркости по измеренному яркомером-люксметром ЯРМ-3 значению средней яркости свечения ТП ЭЛИ. Зависимости  $U(t)$ ,  $I_e(t)$  и  $L(t)$  регистрировались 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 и 256 уровней квантования амплитуды. Математическая и графическая обработка производилась с помощью прикладных программных пакетов Maple 8.00 и GRAPHER Version 1.06 2-D Graphing System.

Зависимости от времени среднего поля в слое люминофора  $F_p(t)$ , тока  $I_p(t)$  и заряда  $Q_p(t)$ , протекающих через этой слой в активном режиме, определялись аналогичным [3,9] образом с использованием значений емкости слоев ТП ЭЛИ  $C_i = 986$  пФ, исходной „геометрической“ емкости слоя люминофора  $C_p = 250$  пФ с учетом падения напряжения на токосъемном резисторе, которое вычиталось из напряжения  $U(t)$ . Значения  $C_i$  и  $C_p$  определялись исходя из значения суммарной емкости ТП ЭЛИ  $C_e = 200$  пФ, измеренного с помощью измерителя иммитанса Е7-14, и геометрических размеров ТП ЭЛИ.



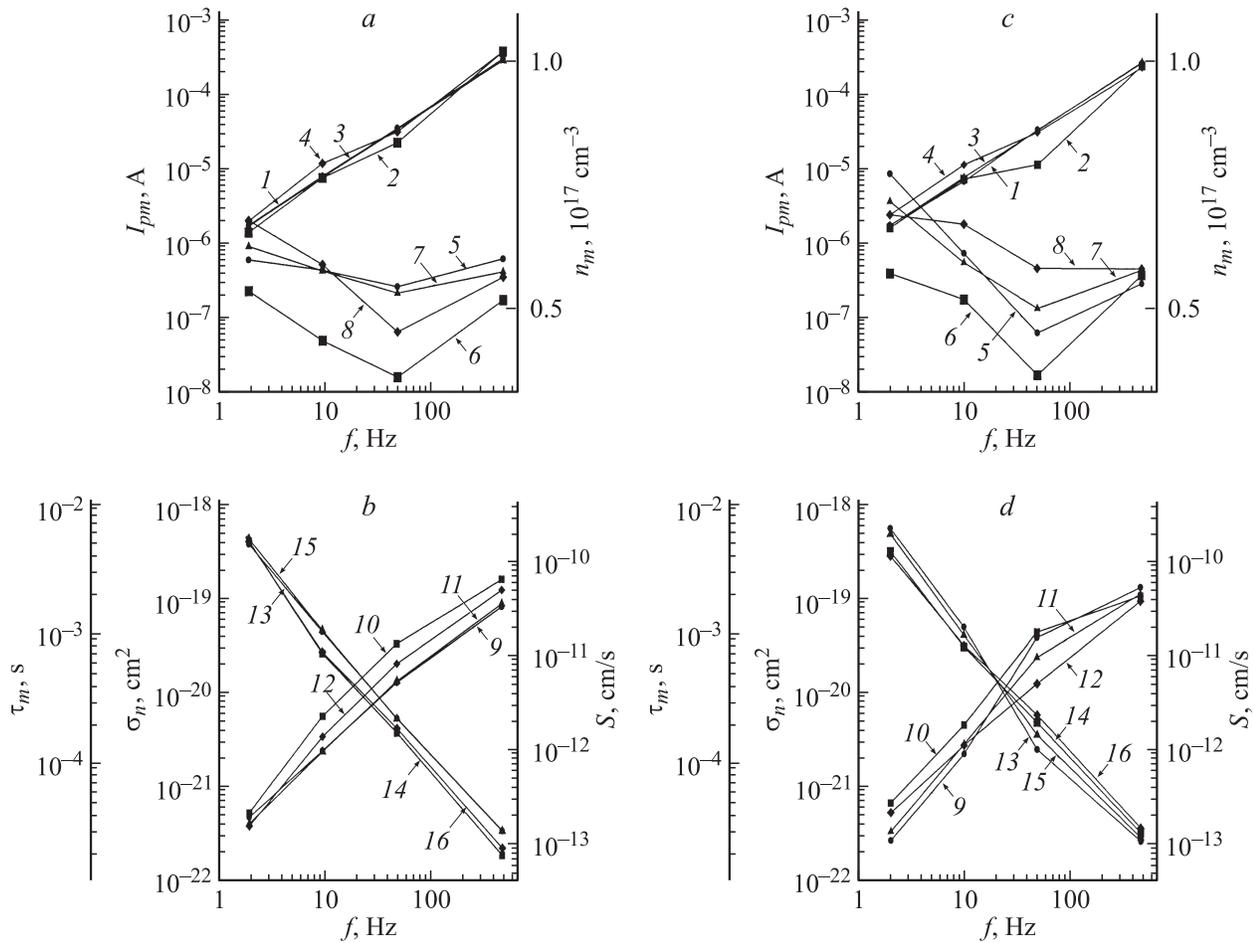
**Рис. 2.** Зависимости  $\sqrt{I_{pm}/I_p(t)} - 1$  от  $t/T$  для образца 1 при разных частотах (*a, c*) и от  $t$  для образца 2 при разных амплитудах импульса напряжения  $U_m$  (*b, d*). *a, c*:  $f = 2$  (1), 10 (2), 50 (3), 500 Гц (4) (импульсный режим возбуждения с периодом запуска 100 с) и 50 Гц (5) (непрерывный режим возбуждения); *b, d*:  $U_m = 110$  (6), 120 (7), 140 (8), 150 (9), 160 В (10); первый полупериод возбуждения,  $T_s = 100$  с.

#### 4. Результаты

На рис. 1 показаны зависимости тока  $I_{pc}(t)$  (кривая 7) и  $dF_p(t)/dt$  (кривая 4), позволяющие в соответствии с (7) определить изменение во времени емкости слоя люминофора  $C_p(t)$  (кривая 5). Из рис. 1 следует, что до включения ТП ЭЛИ и с момента начала спада  $t = t_m$  зависимости  $I_{pc}(t)$  и  $dF_p/dt$  имеют одинаковый вид, что приводит к постоянству значения емкости  $C_p$  на указанных участках, равного величине геометрической емкости слоя люминофора  $C_p = 250$  пФ. Во включенном состоянии ТП ЭЛИ до  $t = t_m$  из-за образования объемных зарядов в слое люминофора изменения тока  $I_{pc}(t)$

определяют изменения  $dF_p(t)/dt$ , что обуславливает появление скачкообразных изменений емкости  $C_p(t)$ . Рассчитанные по формуле (28) изменения проводимости  $\sigma(t)$  на участке спада (рис. 1, *b, d*, кривые 9) при использовании зависимостей  $I_p(t)$  (15) и  $F_p(t)$  (20), определенных на основе значений  $S, n_m$ , полученных в результате аппроксимации экспериментальной зависимости  $I_p(t)$  по формулам (15), (19), в пределах погрешностей измерений и расчетов практически совпадают с экспериментальными зависимостями  $\sigma(t)$  (рис. 1, *b, d*, кривые 6).

Для совмещения на рис. 2, *a, c* экспериментальных зависимостей (18), полученных на разных частотах  $f$  с



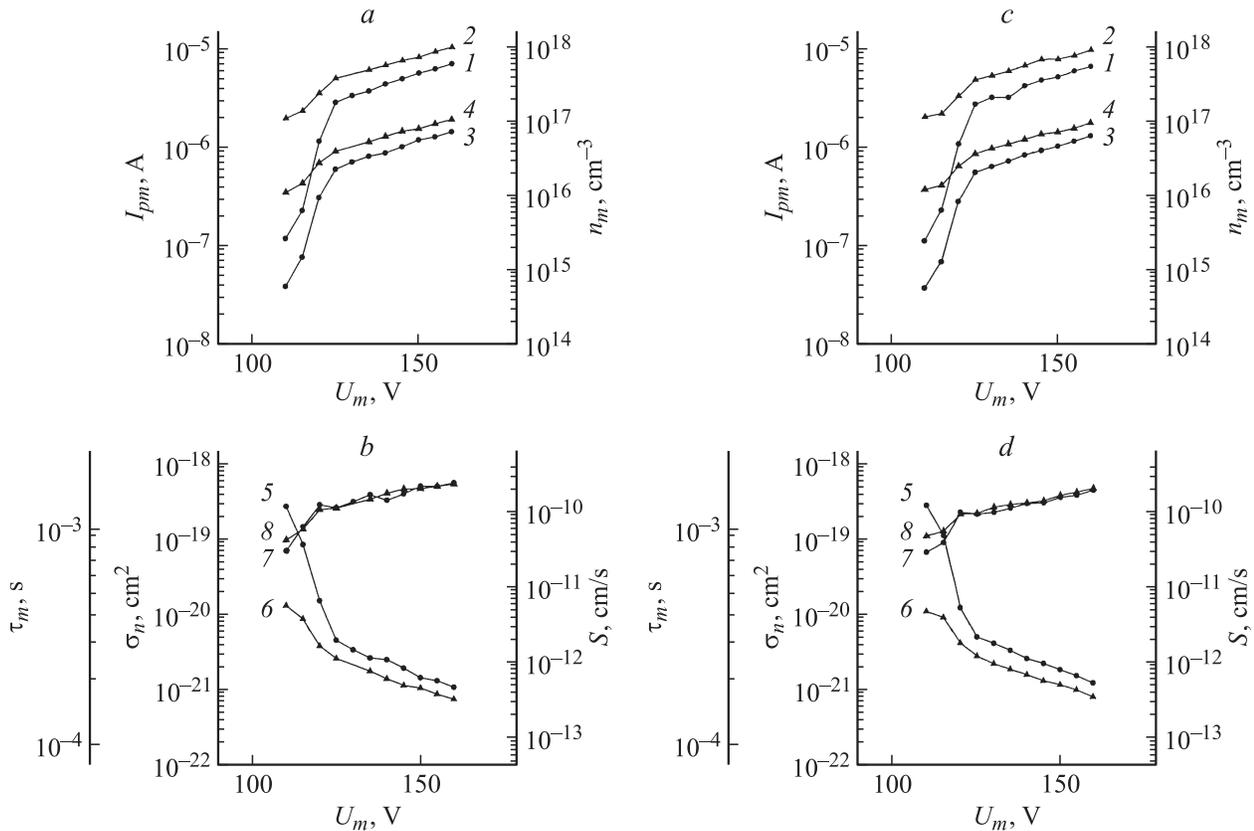
**Рис. 3.** Зависимости от частоты  $I_{pm}$  (1–4),  $n_m$  (5–8),  $\sigma_n$  и  $S$  (9–12),  $\tau_m$  (13–16). (1, 5, 9, 13) — первый, (2, 6, 10, 14) — второй, (3, 7, 11, 15) — третий, (4, 8, 12, 16) — четвертый полупериод импульса напряжения возбуждения:  $a, b$  — вариант +Al;  $c, d$  — вариант –Al; образец 1.

периодом следования импульсов напряжения  $T$ , по оси абсцисс отложено отношение  $t/T$ . При этом для определения  $S$  выражение (19) следует домножить на  $1/T^2$ . Как следует из рис. 2, экспериментальные зависимости  $I_p(t)$  в пределах погрешности измерений линеаризуются в выбранных координатах для разных частот следования и амплитуд импульсов напряжения возбуждения  $U(t)$ , что подтверждает справедливость бимолекулярной модели процесса захвата электронов на ПС. Исключение составляет небольшой нелинейный участок на начальном отрезке времени вблизи момента начала спада тока  $I_p(t)$ , составляющем не более  $3 \cdot 10^{-3}T$  и обусловленный, по видимому, влиянием генерации электронов, не учитываемым в (12).

Следует отметить, что диапазон исследуемого участка спада тока  $I_p(t)$ , на котором эта зависимость спрямляется в координатах рис. 2, при  $\sqrt{I_{pm}/I_p(t)} - 1 = 12$  составляет  $I_{pm}/I_p(t) = 169$ , а при  $\sqrt{I_{pm}/I_p(t)} - 1 = 5$  составляет  $I_{pm}/I_p(t) = 36$ , т.е. линейный характер указанной зависимости наблюдается при уменьшении тока  $I_p(t)$  в 36–169 раз. При дальнейшем уменьшении то-

ка  $I_p(t)$  его величина становится соизмеримой с уровнем шумов и погрешность измерения существенно возрастает. При этом переход к непрерывному режиму возбуждения слабо влияет на наклон указанных зависимостей (рис. 2,  $a, c$ , кривые 3, 5). Сдвиг зависимости (18) для частоты  $f = 500$  Гц (рис. 2,  $a, c$ , кривая 4) по оси  $t/T$  относительно остальных зависимостей обусловлен возрастанием с частотой  $f$  порогового поля в слое люминофора, соответствующего началу заметного роста тока  $I_p(t)$  и началу свечения ТП ЭЛИ [9]. Уменьшение периода запуска пачки импульсов напряжения возбуждения  $T_s$  от 100 до 0.5 с в пределах погрешности измерений и расчетов не влияют на значения  $n_m, \tau_m, S, \sigma_n$ , полученные в первом и втором полупериодах напряжения  $U(t)$ , что свидетельствует об отсутствии влияния нейтрализации положительного объемного заряда в слое люминофора до включения ТП ЭЛИ на указанные параметры захвата и подтверждает ответственность процессов захвата электронов на ПС на участке спада тока  $I_p(t)$ .

Ток  $I_{pm}$  возрастает с частотой  $f$  по зависимости, близкой к линейной, для первых четырех полупериодов



**Рис. 4.** Зависимости от амплитуды импульса напряжения возбуждения  $U_m$  величин  $I_{pm}$  (1, 2),  $n_m$  (3, 4) (a, c),  $\sigma_n$  и  $S$  (5, 6),  $\tau_m$  (7, 8) (b, d); (1, 3, 5, 7) — первый, (2, 4, 6, 8) — третий полупериод импульса напряжения возбуждения. a, b — вариант +Al; c, d — вариант -Al; образец 2.

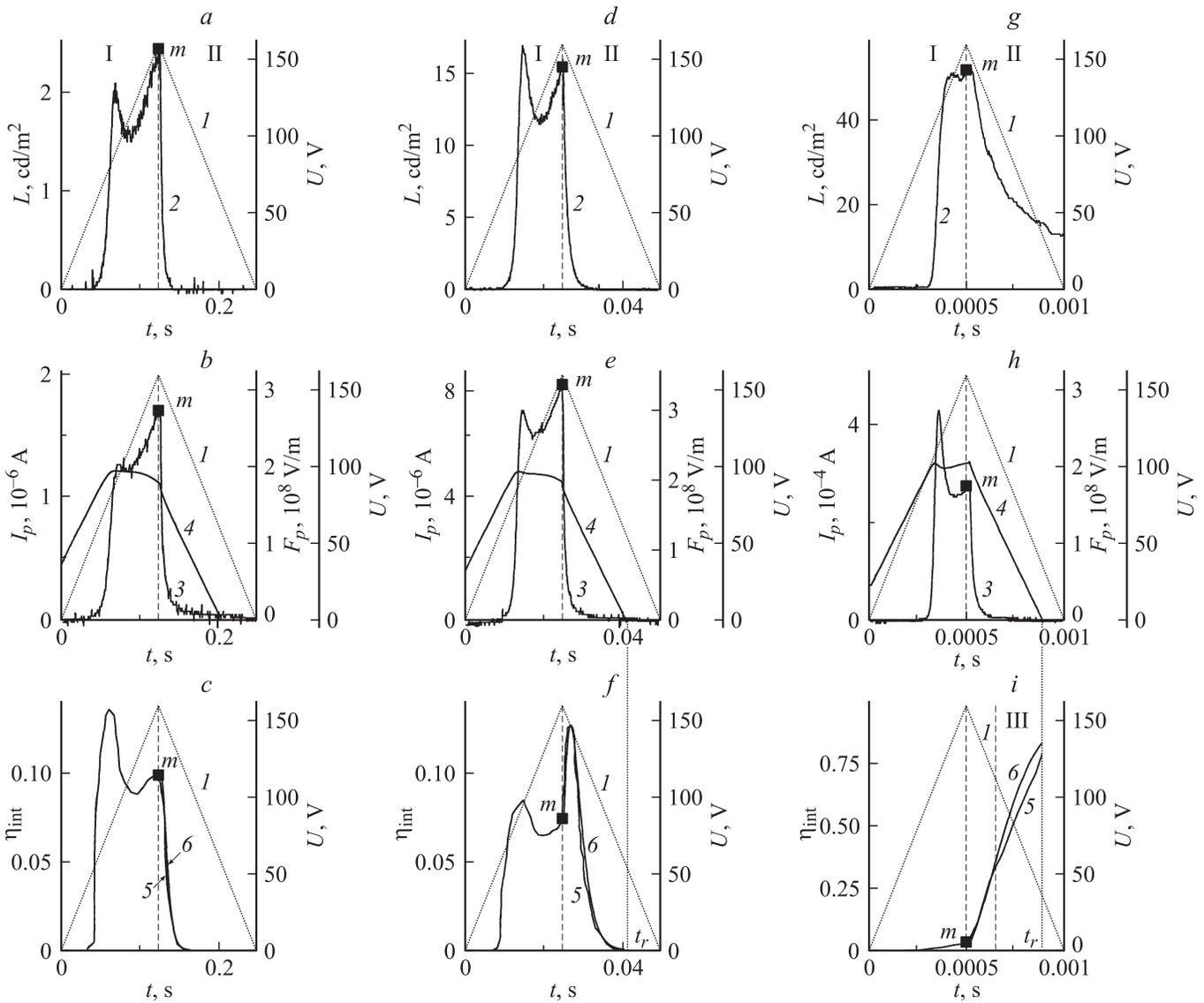
напряжения  $U(t)$  при возбуждении ТП ЭЛИ пачками импульсов (рис. 3, a, c) с близкими значениями  $I_{pm}$  во всех полупериодах.

Изменения концентрации электронов в момент начала спада  $n_m$  от частоты  $f$  для всех полупериодов напряжения  $U(t)$  и вариантов  $\pm Al$  находятся в пределах  $(1.5-7.4) \cdot 10^{16} \text{ см}^{-3}$ , а  $n_m(f)$  (рис. 3, a, c, кривые 5-8) сначала убывает до  $f = 50 \text{ Гц}$ , а затем возрастает для всех четырех полупериодов напряжения возбуждения пачкой импульсов  $U(t)$ , причем наиболее резкий минимум  $n_m(f)$  наблюдается во втором полупериоде напряжения  $U(t)$ . Поскольку  $n_m$  находится расчетным путем в соответствии с (16), вид зависимостей  $n_m(f)$  определяется  $\sqrt{I_p(f)/S(f)}$ , т.е. различным видом частотных зависимостей  $I_{pm}(f)$  и  $S(f)$  (рис. 2, кривые 1-4 и 9-12).

Время жизни электронов  $\tau_m$  при  $t = t_m$  в соответствии с (22) определяется выражением  $1/\sqrt{I_{pm}(f)/S(f)}$ , слабо зависит от режима возбуждения (импульсный, непрерывный), вариантов  $\pm Al$  и уменьшается при увеличении частоты  $f$  с 2 до 500 Гц от  $\tau_m = (4-6) \cdot 10^{-3}$  до  $(2-3) \cdot 10^{-5} \text{ с}$  (рис. 3, b, d), что обусловлено ростом значений  $S$  и  $I_{pm}$  с частотой  $f$ . При этом величина  $1/\tau_m$ , отражающая вероятность захвата электронов за 1 с в момент начала спада тока  $I_p(t)$ , для всех частот  $f$  и вариантов  $\pm Al$  оказывается в 20-30 раз больше вероят-

ности туннелирования  $W(t)$  электронов с ПС катодной границы раздела диэлектрик-люминофор, полученной на тех же образцах ТП ЭЛИ в момент времени  $t_m$  [8]. С учетом максимального значения коэффициента умножения электронов в слое люминофора  $M(t)$ , не превышающего 1.5, и быстрого уменьшения  $W(t)$  и  $M(t)$  с уменьшением поля  $F_p(t)$  на участке спада тока  $I_p(t)$  использование уравнения (4) для описания процесса захвата электронов на ПС является вполне обоснованным.

Скорость поверхностного захвата  $S$  и сечение захвата электронов  $\sigma_n$  на ПС в соответствии с (25) характеризуются одинаковыми зависимостями от частоты  $f$  и возрастают при увеличении частоты  $f$  с 2 до 500 Гц соответственно от  $(1.2-2.9) \cdot 10^{-13}$  до  $(3.5-6.7) \cdot 10^{-11} \text{ см}^2/\text{с}$  и от  $(3.4-6.8) \cdot 10^{-22}$  до  $(8.2-15.9) \cdot 10^{-20} \text{ см}^2$  (рис. 3, b, d), что может быть связано с возрастанием скорости спада поля  $F_p(t)$  и уменьшением времени, необходимого для изменения направления этого поля на участке спада (рис. 1, a, c). В результате этого увеличивается число дырок валентной зоны, принимающих участие в рекомбинации с электронами заполненных ПС, что приводит к уменьшению степени заполнения ПС перед очередным включением ТП ЭЛИ с ростом частоты  $f$ . Значения  $S$  и  $\sigma_n$  возрастают во втором полупериоде по сравне-



**Рис. 5.** Зависимости  $U(t)$  (1),  $L(t)$  (2),  $I_p(t)$  (3),  $F_p(t)$  (4),  $\eta_{\text{int}}(t)$  (5), рассчитанные по формуле (32) зависимости  $\eta_{\text{int}}(t)$  для частот  $f$ , Гц;  $a, b, c$  — 2;  $d, e, f$  — 10;  $g, h, i$  — 500. Вариант —А1, образец 1. Точкой  $m$  отмечены значения параметров в максимуме напряжения.

нию с первым полупериодом импульсного напряжения возбуждения, что объясняется уменьшенным заполнением ПС анодной границы раздела из-за туннельной эмиссии электронов с нее в предыдущем цикле работы ТП ЭЛИ. В третьем и четвертом полупериодах значения  $S$  и  $\sigma_n$  приближаются к величинам, полученным при непрерывном режиме возбуждения, что соответствует приближению работы ТП ЭЛИ к квазистационарному режиму.

Следует отметить, что полученные значения  $\sigma_n$  согласуются с оценками [12] эффективного сечения захвата ( $10^{-22}$  см<sup>2</sup>) на ПС при безызлучательном процессе.

При увеличении амплитуды импульсов напряжения возбуждения  $U_m$  от 110 до 160 В на частоте  $f = 10$  Гц ( $T_s = 1$  с) наклон зависимостей  $\sqrt{I_{pm}/I_p(t)} - 1$  от  $t$  уменьшается (рис. 2,  $b, d$ ), ток  $I_{pm}$ , концентрация

электронов  $n_m$  и время жизни электронов  $\tau_m$  возрастают (рис. 4):  $I_{pm} \approx 1.15 \cdot 10^{-7} \rightarrow \sim 6.8 \cdot 10^{-6}$  А в первом полупериоде напряжения  $U(t)$  и  $\sim 2 \cdot 10^{-6} \rightarrow \sim 10^{-5}$  А в третьем полупериоде;  $n_m \approx 6 \cdot 10^{14} \rightarrow \sim 7 \cdot 10^{16}$  см<sup>-3</sup> в первом полупериоде напряжения  $U(t)$  и  $1.3 \cdot 10^{16} \rightarrow \sim 10^{17}$  см<sup>-3</sup> в третьем полупериоде;  $\tau_m \approx (8-10) \cdot 10^{-4} \rightarrow 1.6 \cdot 10^{-3}$  с. Скорость поверхностного захвата  $S$  и сечение захвата  $\sigma_n$  (рис. 4,  $b, d$ , кривые 5, 6) спадают с ростом  $U_m$  от 110 до 160 В:  $S \approx 1.2 \cdot 10^{-10} \rightarrow 5 \cdot 10^{-13}$  см/с,  $\sigma_n = (1-2) \cdot 10^{-19} \rightarrow (0.7-1.3) \cdot 10^{-21}$  см<sup>2</sup> в первом полупериоде напряжения  $U(t)$ ;  $S \approx 4.6 \cdot 10^{-12} \rightarrow \sim 3.5 \cdot 10^{-13}$  см/с,  $\sigma_n \approx 1.1 \cdot 10^{-20} \rightarrow 8 \cdot 10^{-22}$  см<sup>2</sup> в третьем полупериоде напряжения  $U(t)$ . При этом на всех указанных зависимостях начальный участок при изменении  $U_m$  от 110 до 120–125 В характеризуется более сильными

изменениями  $I_{pm}$ ,  $n_m$ ,  $\tau_m$ ,  $S$  и  $\sigma_n$ . Этот начальный участок обусловлен, по-видимому, практическим отсутствием ударной ионизации собственных дефектов структуры слоя люминофора (вакансии цинка  $V_{Zn}^{2-}$ , серы  $V_S^+$ ) в прианодной области слоя люминофора и обусловленного этим процессом образования положительного объемного заряда в этой области [4,8,14]. При этом меньшая неравновесная концентрация электронов  $n_m$  и пониженная средняя энергия из-за меньшей величины поля  $F_p(t_m)$  [4] обуславливают более высокие значения скорости захвата  $S$  и сечения захвата  $\sigma_n$ , а также меньшее время жизни  $\tau_m$ . С возрастанием  $U_m$ , тока  $I_{pm}$ , концентрации  $n_m$  и средней энергии свободных электронов, вызванным ростом поля  $F_p(t_m)$  [14], происходит рост времени жизни  $\tau_m$  (рис. 4, *b, d*, кривые 7, 8), уменьшение вероятности ударного захвата электронов на ПС  $1/\tau_m$  по механизму оже-захвата [12], скорости захвата  $S$  и сечения захвата  $\sigma_n$  (рис. 4, *b, d*, кривые 5, 6). Уменьшение значений  $S(U_m)$  и  $\sigma_n(U_m)$  при переходе к третьему полупериоду напряжения  $U(t)$  (рис. 4, *b, d*) обусловлено ростом значений  $n_m(t)$  из-за туннелирования электронов с менее глубоких ПС [5] в условиях, когда эти электроны не успели занять более глубокие незаполненные ПС в каскаде переходов с испусканием фононов. При этом скорость роста тока  $I_{pm}(U_m)$ , концентрации  $n_m(U_m)$  с увеличением  $U_m > 120-125$  В замедляется из-за образования положительного объемного заряда в прианодной области слоя люминофора и уменьшения скорости роста поля  $F_p(U_m)$  [4].

Следует отметить, что построенные нами в координатах  $\sqrt{I_{pm}/I_p(t)} - 1$  от  $t$  по данным [2] зависимости участка спада тока  $I_p(t)$ , полученные при напряжении возбуждения трапециoidalной формы с длительностями фронта и спада 500 мкс, вершины 80 мкс, частотой следования  $f = 50$  Гц, также линеаризуются. При этом значения параметров захвата на ПС составляют  $n_m \approx 3.3 \cdot 10^{16}$  см<sup>3</sup>,  $\tau_m \approx 5.3 \cdot 10^{-5}$  с,  $S \approx 7.2 \cdot 10^{-12}$  см/с,  $\sigma_n \approx 7.6 \cdot 10^{-20}$  см<sup>2</sup>, что близко к полученным нами величинам с учетом того, что скорость спада соответствует частоте  $f = 500$  Гц используемого напряжения  $U(t)$  треугольной формы и подтверждает справедливость предлагаемой модели процесса захвата электронов на ПС в ТП ЭЛИ.

Зависимости тока  $I_p(t)$  на участке спада проверялись также на возможность их линеаризации в координатах  $[I_{pm}/I_p(t)]^{2/3} - 1$  от  $t$ , справедливой для кубической зависимости тока  $I_p(t)$  от концентрации  $n(t)$ , характерной для ударной рекомбинации при высоком уровне возбуждения [18]. Однако эти зависимости в указанных координатах носят сверхлинейный характер, что не подтверждает существование такого механизма рекомбинации.

Справедливость описания участка спада тока  $I_p(t)$  формулой (15) и зависимости мгновенного внутреннего квантового выхода  $\eta_{int}(t)$  (32) на этом участке полностью подтверждается практическим совпадением экспериментальных и расчетных зависимостей  $\eta_{int}(t)$  (рис. 5, *c, f, i*).

В полном соответствии с анализом поведения этих зависимостей от соотношения  $\tau'$  и  $\tau_m$  (34), т.е. от частоты  $f$ , имеем следующее: на частоте  $f = 2$  Гц  $\tau' = 3.2$  мс,  $\tau_m = 6.58$  мс, т.е.  $\tau_m > 2\tau'$ , и зависимость  $\eta_{int}(t)$  характеризуется спадом (рис. 5, *c*); на частоте  $f = 10$  Гц  $\tau' = 1.5$  мс,  $\tau_m = 1.12$  мс,  $\tau_m < 2\tau' < T/4$ , наблюдается максимум в расчетный момент времени  $t_1 = 2\tau' - \tau_m$  (рис. 5, *f*); на частоте  $f = 500$  Гц  $\tau' = 0.3$  мс,  $\tau_m = 0.029$  мс,  $t_r = 0.38$  мс,  $\tau' > t_r$ , наблюдается монотонный рост  $\eta_{int}(t)$  (рис. 5, *i*) до  $\sim 25\eta_{int}(t_m)$ . Как указывалось, физически этот рост обусловлен более медленной излучательной релаксацией центров свечения  $Mn^{2+}$  по сравнению со спадом тока  $I_p(t)$  при увеличении скорости спада напряжения  $U(t)$  (частоты  $f$  напряжения  $U(t)$  треугольной формы). Значительное возрастание  $\eta_{int}(t)$  на участке спада на частотах  $f > 10$  Гц существенно увеличивает интегральный внутренний квантовый выход, определяемый площадью под кривой  $\eta_{int}(t)$ , усредненной по полупериоду  $T/2$  напряжения  $U(t)$ .

## 5. Заключение

Таким образом, в результате рассмотрения экспериментальных зависимостей тока через ТП ЭЛИ  $I_e(t)$ , тока через слой люминофора  $I_p(t)$  и среднего поля в слое люминофора  $F_p(t)$  на участке спада напряжения возбуждения  $U(t)$  треугольной формы в различных режимах возбуждения (пачками импульсов, непрерывном) при частоте  $f$ , изменяющейся от 2 до 500 Гц и амплитуде 110–160 В, показано, что спад тока  $I_p(t)$  не является следствием перезарядки емкостей диэлектрических и люминесцентного слоев, а характеризуется квадратичным законом при уменьшении его значений до 36–169 раз относительно величины тока в момент начала спада.

Для объяснения полученных результатов предложена двухстадийная модель ударного оже-захвата горячих электронов зоны проводимости на непрерывно распределенные по энергии ПС с последующей их частичной рекомбинацией в квазистационарном режиме работы ТП ЭЛИ. Первая стадия процесса — ударный захват горячих электронов на ПС анодной границы люминофор–диэлектрик — осуществляется преимущественно с переводом электронов с заполненных ПС на менее глубокие по энергии незаполненные ПС и в меньшей степени с генерацией в зону проводимости электронов, имеющих меньшую энергию и понижающих температуру электронной подсистемы. Возбужденные на незаполненные ПС электроны теряют энергию по каскадному механизму с испусканием фононов, заполняя постепенно более глубокие незаполненные ПС. Небольшая часть электронов зоны проводимости с энергией, близкой к равновесной, захватывается на ПС непосредственно по каскадному механизму. На второй стадии процесса при смене направления поля  $F_p(t)$  в

слое люминофора еще до смены полярности напряжения возбуждения  $U(t)$  дырки валентной зоны, генерированные за счет туннельной эмиссии с глубоких центров, обусловленных вакансиями серы  $V_S^{2+}$  и цинка  $V_{Zn}^-$  (1.3 и (0.5–0.6) эВ выше потолка валентной зоны соответственно), дрейфуют под действием этого поля к указанной границе раздела, где рекомбинируют с электронами наиболее глубоких заполненных ПС. Этот процесс продолжается при смене полярности напряжения  $U(t)$  в следующем цикле работы ТП ЭЛИ, уравновешивая процесс умножения туннелированных с ПС электронов в слое люминофора в квазистационарном режиме работы ТП ЭЛИ. При этом процессы захвата и рекомбинации разнесены во времени полем в слое люминофора  $F_p(t)$ , а ударный оже-захват электронов на непрерывно распределенные по энергии ПС анодной границы раздела может быть описан в рамках бимолекулярного (квадратичного) процесса. Туннельная эмиссия дырок при этом одновременно осуществляет нейтрализацию положительного объемного заряда, обусловленного ударной ионизацией собственных дефектов структуры слоя люминофора (вакансий  $V_S^{2+}$  и цинка  $V_{Zn}^-$ ) и сформированного в предыдущем цикле работы ТП ЭЛИ. Количество дырок, участвующих в рекомбинации, примерно равно количеству ионизованных дефектов структуры.

В соответствии с данной моделью на основе анализа экспериментальных зависимостей  $I_p(t)$  определены основные параметры ударного захвата электронов на ПС: время жизни электронов в момент начала спада  $\tau_m$ , скорость поверхностного захвата  $S$  и сечение захвата электронов  $\sigma_n$ . С ростом частоты  $f$  напряжения  $U(t)$  с 2 до 500 Гц время жизни  $\tau_m$  убывает с  $(4-6) \cdot 10^{-3}$  до  $(2-3) \cdot 10^{-5}$  с, скорость поверхностного захвата  $S$  возрастает с  $(1.4-2.9) \cdot 10^{-13}$  до  $(3.5-6.7) \cdot 10^{-11}$  см/с, сечение захвата  $\sigma_n$  возрастает с  $(2.7-6.8) \cdot 10^{-22}$  до  $(0.8-1.6) \cdot 10^{-19}$  см<sup>2</sup>, что объясняется увеличением доли дырок валентной зоны, участвующих в рекомбинации, приводящим к росту числа незаполненных ПС. При увеличении амплитуды напряжения возбуждения  $U_m$  от 110 В (начало свечения ТП ЭЛИ) до 160 В на частоте  $f = 10$  Гц время жизни  $\tau_m$  слабо возрастает с  $\sim (0.8-1) \cdot 10^{-3}$  до  $(1.5-1.6) \cdot 10^{-3}$  с, скорость поверхностного захвата  $S$  и сечение захвата  $\sigma_n$  уменьшаются: в первом полупериоде напряжения  $U(t)$   $S \approx 1.2 \cdot 10^{-10} \rightarrow 5 \cdot 10^{-13}$  см/с,  $\sigma_n = (2-10) \cdot 10^{-19} \rightarrow (1.1-1.3) \cdot 10^{-21}$  см<sup>2</sup>; в третьем полупериоде напряжения  $U(t)$   $S = (4.5-4.8) \cdot 10^{-12} \rightarrow (3.2-3.6) \cdot 10^{-13}$  см/с,  $\sigma_n \approx 1.1 \cdot 10^{-20} \rightarrow (7.6-8.4) \cdot 10^{-22}$  см<sup>2</sup>. Это объясняется увеличением с ростом  $U_m$  концентрации электронов в момент начала спада, увеличением их средней энергии за счет увеличения среднего поля  $F_p(t)$  и уменьшением вследствие этого вероятности ударного захвата на заполненные ПС. Изменения  $S$  и  $\sigma_n$  в третьем полупериоде напряжения  $U(t)$  характеризуют процесс установления квазистационарного режима работы ТП ЭЛИ.

На основе полученного аналитического выражения для спада тока  $I_p(t)$  дано объяснение наблюдавшемуся ранее нами существенному возрастанию мгновенного внутреннего квантового выхода  $\eta_{int}$  при определенных частотах напряжения возбуждения треугольной формы за счет более медленной излучательной релаксации центров свечения  $Mn^{2+}$  по сравнению со спадом тока  $I_p(t)$ . Полученные расчетные зависимости  $\eta_{int}(t)$  на участке спада согласуются с экспериментальными и свидетельствуют о возможности возрастания  $\eta_{int}(t)$  в десятки раз на частотах  $f > 10$  Гц, что существенно увеличивает интегральный внутренний квантовый выход и указывает на возможность оптимизации режима возбуждения ТП ЭЛИ для получения максимальных значений квантового выхода путем изменения параметров участка спада напряжения возбуждения.

Полученные результаты могут быть использованы для анализа работы ТП ЭЛИ со структурой МДПДМ с люминесцентными слоями на основе других люминофоров, а также при разработке новых типов пленочных электролюминесцентных излучателей, в том числе на основе наноразмерных слоев.

## Список литературы

- [1] E. Bringuier. J. Appl. Phys., **66** (3), 1314 (1989).
- [2] V.P. Singh, S. Krishna, D.C. Morton. J. Appl. Phys., **70** (3), 1811 (1991).
- [3] Н.Т. Гурин, А.В. Шляпин, О.Ю. Сабитов. ЖТФ, **72** (2), 74 (2002).
- [4] Н.Т. Гурин, А.В. Шляпин, О.Ю. Сабитов. ЖТФ, **73** (4), 100 (2003).
- [5] Н.Т. Гурин, А.М. Афанасьев, О.Ю. Сабитов, Д.В. Рябов, ФТП, **40** (8), 949 (2006).
- [6] K.A. Neyts, P. De Visschere. J. Appl. Phys., **68** (8), 4163 (1990).
- [7] J.C. Hitt, P.D. Keir, J.F. Wager, S.S. Sun. J. Appl. Phys., **83** (2), 1141 (1998).
- [8] Н.Т. Гурин, О.Ю. Сабитов, А.М. Афанасьев. ФТП, **41** (10), 1168 (2007).
- [9] Н.Т. Гурин, О.Ю. Сабитов, А.В. Шляпин. ЖТФ, **71** (8), 48 (2001).
- [10] E. Bringuier. Phil. Mag. B, **75** (2), 209 (1997).
- [11] P.D. Keir, C. Maddix, V.A. Baukol, J.F. Wager, B.L. Clark, D.A. Keszler. J. Appl. Phys., **86** (12), 6810 (1999).
- [12] А.В. Ржанов. *Электронные процессы на поверхности полупроводников* (М., Наука, 1971).
- [13] В.А. Зуев, А.В. Саченко, К.Б. Толпыго. *Неравновесные процессы в полупроводниковых приборах* (М., Сов. радио, 1977).
- [14] Н.Т. Гурин, О.Ю. Сабитов. ЖТФ, **76** (8), 50 (2006).
- [15] K.A. Neyts, D. Corlatan, P. De Visschere, J. Van der Bossche. J. Appl. Phys., **75** (10), 5339 (1994).
- [16] Н.Т. Гурин, А.В. Шляпин, О.Ю. Сабитов, Д.В. Рябов. ЖТФ, **73** (4), 90 (2003).
- [17] Н.Т. Гурин, Д.В. Рябов. ЖТФ, **75** (1), 45 (2005).
- [18] С.М. Рывкин. *Фотоэлектрические явления в полупроводниках* (М., Гос. изд-во физ.-мат. лит., 1963).

Редактор Л.В. Шаронова

## Relaxation of parameters of thin-film electroluminescent structures on the base of ZnS : Mn when switched off

*N.T. Gurin, O.Yu. Sabitov*

Ul'yanovsk State University,  
432970 Ul'yanovsk, Russia

**Abstract** The results of the experimental study of the current decrease process in a thin-films electroluminescent MISIM structure indicate the bimolecular process of electron capture on anode interface states. A two-stage model of the process is offered, on the first stage of which there occurs impact Auger-capture of hot electrons. On the second stage with the change of the electric field direction holes of the valence band, generated due to tunnel emission from deep centres, drift to the interface, where they recombine with electrons of the deepest filled surface states. The following parameters are determined: the lifetimes of electrons, the rate and the cross-section of electron capture, their dependences on parameters of excitation voltage; also the behaviour of the time dependence of instant internal quantum efficiency at the area of decrease is explained.