

05;06;07;12

## Квантовый выход и светоотдача тонкопленочных электролюминесцентных излучателей 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 24 июня 2002 г.)

Представлены результаты экспериментального исследования процессов формирования зависимостей мгновенных значений внутреннего квантового выхода и светоотдачи тонкопленочных электролюминесцентных излучателей от времени, среднего поля в слое люминофора и заряда, протекающего через этот слой, а также формирования зависимостей внутреннего квантового выхода и светоотдачи от амплитуды напряжения возбуждения. Показано, что при увеличении частоты этого напряжения выше 10 Hz на участке роста яркости и тока через слой люминофора на зависимостях мгновенных значений квантового выхода и светоотдачи от времени появляется провал, а на участке спада яркости и тока — пик, обусловленные различием скоростей нарастания и спада яркости и тока.

Важнейшие параметры, характеризующие эффективность тонкопленочных (ТП) электролюминесцентных (ЭЛ) излучателей (ТП ЭЛИ), — внутренний и внешний квантовые выходы и светоотдача являются интегральными величинами. Это не позволяет детально рассмотреть физические процессы, определяющие их изменения при вариации различных условий возбуждения ТП ЭЛИ (формы, частоты и амплитуды приложенного напряжения возбуждения и др). Ранее нами рассмотрена кинетика электролюминесценции ТП ЭЛИ, включая кинетику мгновенного квантового выхода, в области частот напряжения возбуждения 0.1–2 Hz, когда соседние волны яркости свечения ТП ЭЛИ не перекрываются и основные характеристические времена, свойственные процессу электролюминесценции, имеют значения меньше четверти периода напряжения возбуждения [1]. Однако на практике рабочие частоты напряжения возбуждения составляют не менее 50 Hz.

В связи с этим целью работы является изучение процессов формирования зависимостей мгновенных значений внутреннего квантового выхода и светоотдачи ТП ЭЛИ от времени, от среднего поля в слое люминофора и заряда, протекающего через этот слой, а также формирования зависимостей внешнего и внутреннего квантовых выходов и светоотдачи от амплитуды напряжения возбуждения ТП ЭЛИ в области частот напряжения возбуждения 2–500 Hz.

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 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 услителем — 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, 10, 50, 200, 500 Hz. Время между однократными запусками  $T_s$  изменялось в пределах 1–100 s. В непрерывном режиме возбуждения частота напряжения составляла также 2, 10, 50, 200, 500 Hz. Ток  $I_e$  измерялся с помощью включаемого последовательно с ТП ЭЛИ резистора сопротивлением 0.1–10 kΩ, падение напряжения на котором не превышало 0.5% от амплитуды напряжения питания. 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 и 256 уровней квантования амплитуды. 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.

Зависимости от времени среднего поля в слое люминофора  $F_p(t)$ , тока  $I_p(t)$  и заряда  $Q_p(t)$ , протекающих через этот слой в активном режиме, определялись

аналогично [1,2] с использованием значений емкости слоев ТП ЭЛИ  $C_i = 986$  pF, исходной „геометрической“ емкости слоя люминофора  $C_p = 250$  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, измеренной с помощью измерителя иммитанса E7-14, и геометрических размеров ТП ЭЛИ.

Как известно, внешний квантовый выход ТП ЭЛИ определяется отношением количества фотонов, излученных ТП ЭЛИ, к количеству носителей заряда, прошедших через слой люминофора во время свечения ТП ЭЛИ, и в приближении монохроматичности излучения и равномерно излучающей в любом направлении поверхности ТП ЭЛИ равен [3]

$$\eta_{\text{ext}} = K_0 \eta_{\text{int}} = K_0 A \frac{L_e T}{Q_p} = K_0 A \frac{\int_0^T L(t) dt}{\int_0^T I_p(t) dt}, \quad (1)$$

где  $K_0$  — коэффициент вывода излучения из ТП ЭЛИ;  $A = (\pi S_e q) / (h\nu f_\lambda)$ ,  $S_e$  — площадь ТП ЭЛИ;  $q$  — заряд электрона;  $h\nu$  — энергия фотона;  $f_\lambda$  — видность излучения;  $L_e$  — средняя яркость свечения ТП ЭЛИ за период  $T$  напряжения возбуждения;

$$L_e = \frac{1}{T} \int_0^T L(t) dt;$$

$Q_p$  — заряд, протекший через ТП ЭЛИ в течение периода  $T$  во время формирования двух волн яркости.

Светоотдача ТП ЭЛИ определяется отношением светового потока, излученного ТП ЭЛИ  $\Phi_e = \pi S_e L_e$ , к активной мощности  $P_p$ , затраченной на его создание [3],

$$\eta_L = \frac{\pi L_e S_e}{P_p} = \frac{\pi S_e \int_0^T L(t) dt}{d_p \int_0^T I_p(t) F_p(t) dt}, \quad (2)$$

где  $d_p$  — толщина слоя люминофора,

$$P_p = \frac{d_p}{T} \int_0^T I_p(t) F_p(t) dt.$$

Как следует из (1), (2), значения  $\eta_{\text{ext}}$ ,  $\eta_{\text{int}}$ ,  $\eta_L$  действительно являются интегральными параметрами, по которым практически невозможно судить о физических процессах, протекающих при электролюминесценции ТП ЭЛИ. Гораздо более информативными являются мгновенные значения данных параметров  $\eta_{\text{ext}}(t)$ ,  $\eta_{\text{int}}(t)$ ,  $\eta_L(t)$ . Ранее нами аналитически определены зависимости  $\eta_{\text{ext}}(t)$  и  $\eta_{\text{int}}(t)$  для области ультранизких частот

0.1–2 Hz [1]. На более высоких частотах решение кинетического уравнения, связывающего изменение концентрации возбужденных центров свечения во времени и, следовательно, мгновенной яркости  $L(t)$  с током  $I_p(t)$  на всех участках волны яркости, может быть затруднено, в связи с чем для нахождения  $\eta_{\text{ext}}(t)$  и  $\eta_{\text{int}}(t)$  используем другой подход.

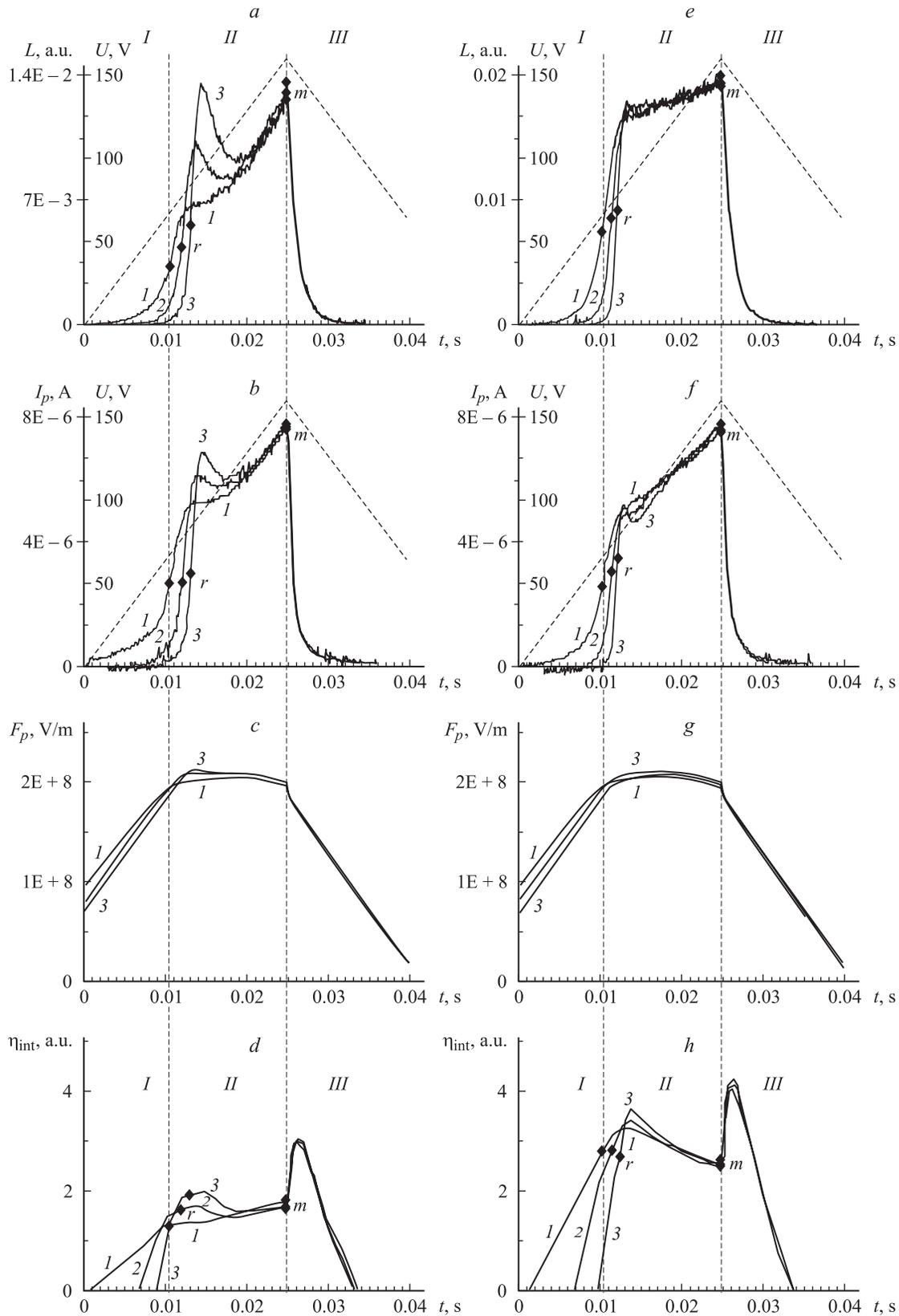
Определим в качестве мгновенного значения внутреннего квантового выхода в каждый момент времени  $t$  приращение количества фотонов, излученных в слое люминофора  $\Delta m(t)$ , к приращению количества носителей заряда, протекших через этот слой  $\Delta n(t)$ , за время  $\Delta t$

$$\eta_{\text{int}}(t) = \frac{\Delta m(t)}{\Delta n(t)} = \frac{[dm(t)/dt] \Delta t}{[dn(t)/dt] \Delta t} = A \frac{d \left[ \int_0^t L(t) dt \right] / dt}{d \left[ \int_0^T I_p(t) dt \right] / dt} = A \frac{L(t)}{I_p(t)}. \quad (3)$$

Аналогично мгновенное значение светоотдачи представляет собой в каждый момент времени  $t$  отношение приращения светового потока  $\Delta \Phi_e(t)$  к приращению мгновенной активной мощности  $\Delta P_p(t)$ , затраченной на его создание,

$$\eta_L(t) = \frac{\Delta \Phi_e(t)}{\Delta P_p(t)} = \frac{\pi S_e \Delta L_e(t)}{\Delta P_p(t)} = \pi S_e \frac{[dL_e(t)/dt] \Delta t}{[dP_p(t)/dt] \Delta t} = \pi S_e \frac{d \left[ \int_0^t L_e(t) dt \right] / dt}{d \left[ \int_0^t P_p(t) dt \right] / dt} = \frac{\pi S_e}{d_p} \cdot \frac{L(t)}{I_p(t) F_p(t)}. \quad (4)$$

На зависимостях  $\eta_{\text{int}}(t)$ , полученных с учетом (3) на основе экспериментальных зависимостей  $L(t)$  (рис. 1, *a, e*; 2, *a, e*),  $I_e(t)$ , а также расчетных зависимостей  $I_p(t)$  [1,2] для частот  $f = 10$  Hz (рис. 1, *b, f*) и  $f = 200$  Hz (рис. 2, *b, f*) можно выделить три участка, соответствующих аналогичным участкам зависимостей  $L(t)$ ,  $I_p(t)$ ,  $F_p(t)$  (рис. 1, 2): *I* — участок быстрого нарастания значений при небольшом превышении напряжением возбуждения  $V(t)$  порогового напряжения  $V_i$ ; *II* — участок более сложного изменения указанных зависимостей; *III* — участок, соответствующий спаду напряжения  $V(t)$ . При этом для разных частот  $f$  поведение зависимостей  $\eta_{\text{int}}(t)$  существенно отличается (рис. 3) и характеризуется следующими особенностями: асимметрией для вариантов +Al и –Al, соответствующей асимметрии зависимостей  $L(t)$ ,  $I_p(t)$ ,  $F_p(t)$  аналогично [1,2] с большими значениями  $\eta_{\text{int}}$  для варианта +Al, что объясняется неравномерностью распределения ионов примеси  $\text{Mn}^{2+}$  и непрерывным ростом значений  $\eta_{\text{int}}(t)$  для  $f = 2, 10$  Hz на участке *I* (рис. 3, *a, b*), где зависимость  $F_p(t)$  также близка к линейной (рис. 1, *c, g*); при переходе к режиму однократного



**Рис. 1.** Зависимости  $L(t)$  (*a, e*),  $I_p(t)$  (*b, f*),  $F_p(t)$  (*c, g*),  $\eta_{int}(t)$  (*d, h*) при частоте  $f = 10$  Hz. *a-d* — вариант  $-Al$ ; *e-h* — вариант  $+Al$ ; *I* — непрерывный режим возбуждения; 2, 3 — режим возбуждения с однократным запуском с  $T_s = 5$  (2), 100 s (3); *I* — участок быстрого роста зависимостей, *II* — средний участок, *III* — участок спада зависимостей. Штриховые линии — зависимость  $V(t)$  (на рис. 1–3, 5, 7). Образец 1.

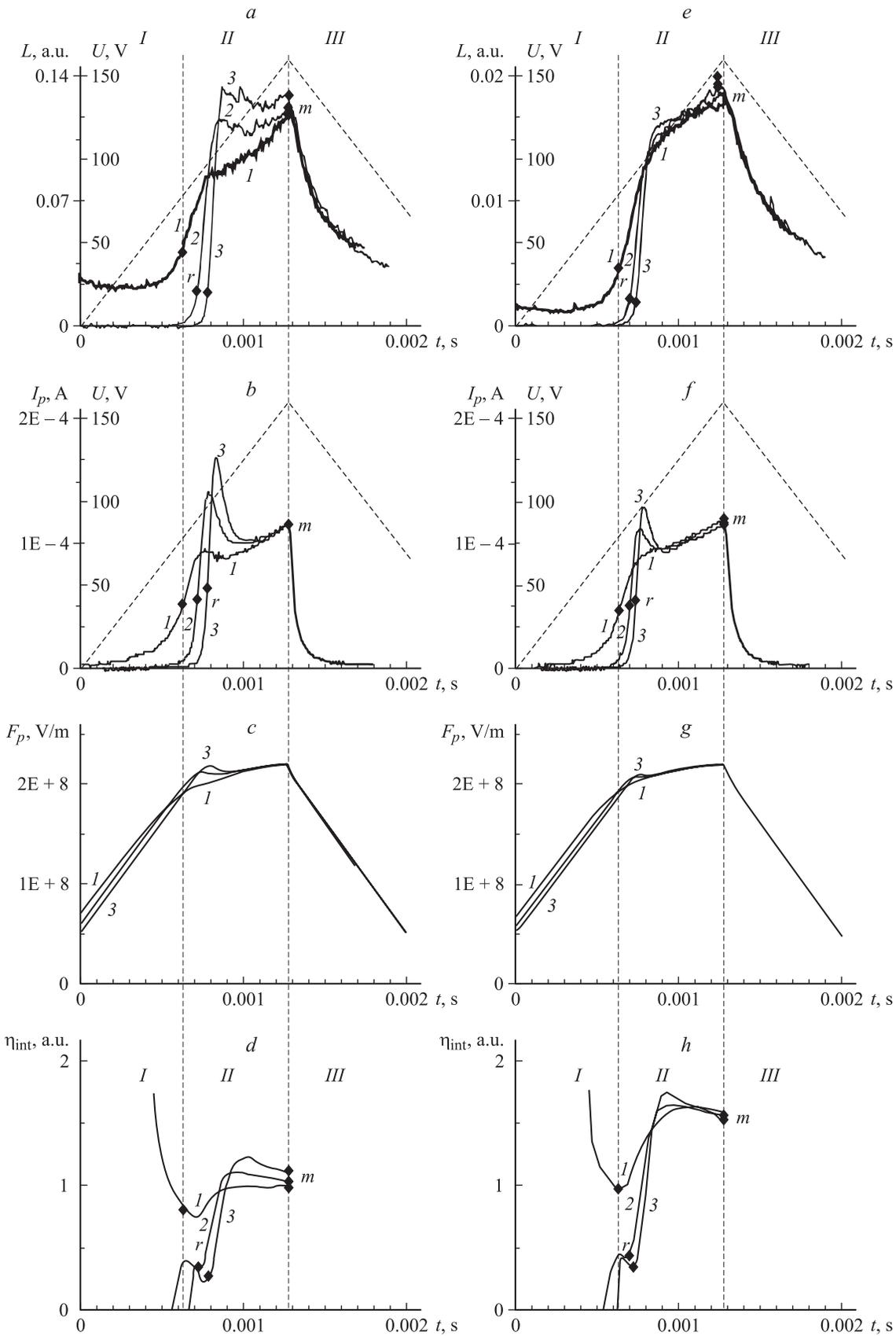
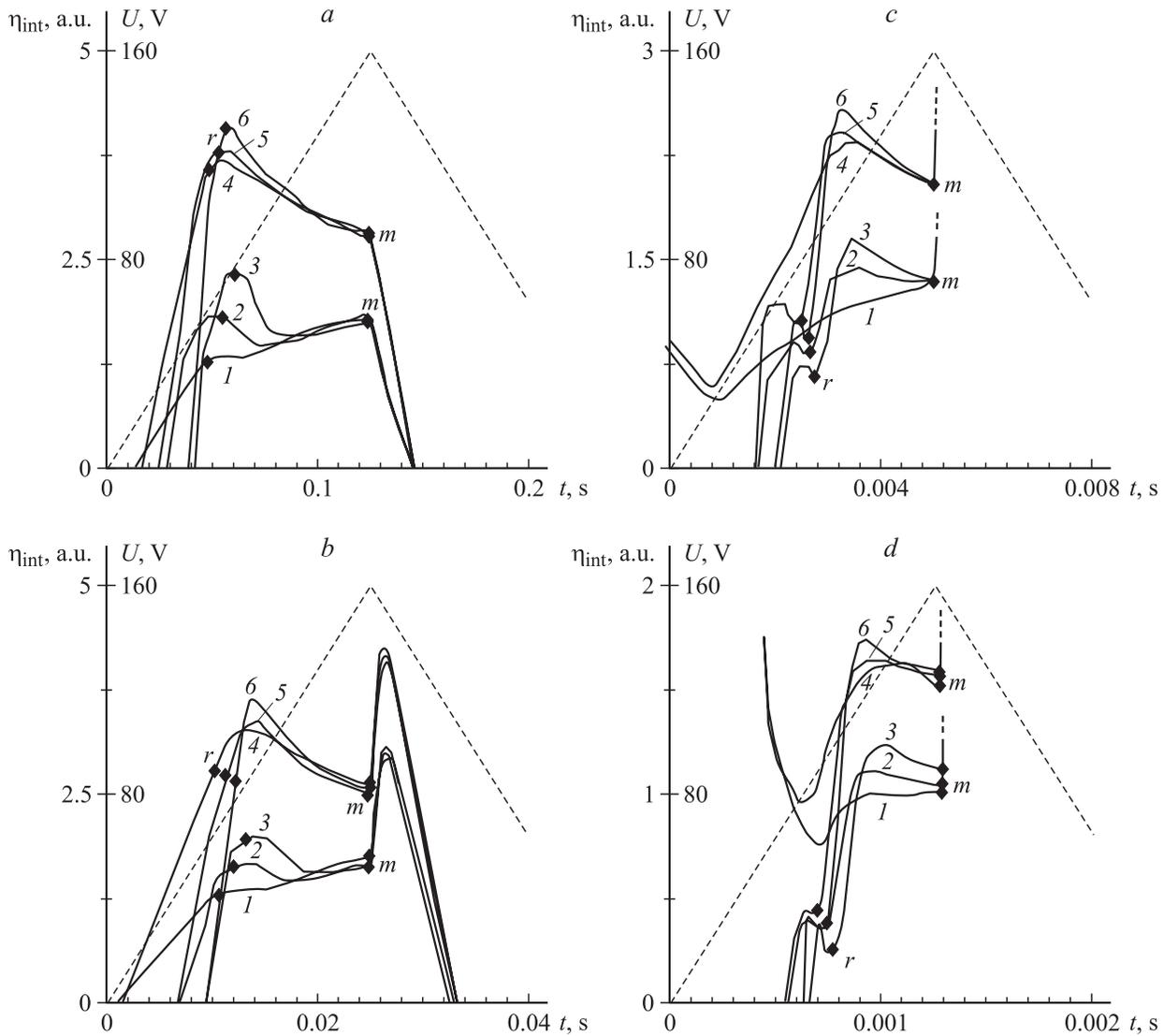


Рис. 2. То же, что на рис. 1, при частоте  $f = 200$  Hz. Образец 1.



**Рис. 3.** Зависимости  $\eta_{\text{int}}(t)$ . Частота  $f$ , Hz:  $a - 2$ ,  $b - 10$ ,  $c - 50$ ,  $d - 200$ ;  $1, 4$  — непрерывный режим возбуждения;  $2, 3, 5, 6$  — режим возбуждения с однократным запуском с  $T_s = 5$  ( $2, 5$ ),  $100$  s ( $3, 6$ );  $1-3$  — вариант  $-Al$ ;  $4-6$  — вариант  $+Al$ . Образец 1.

запуска и с увеличением периода этого запуска  $T_s$  происходит смещение во времени начала роста зависимости  $\eta_{\text{int}}(t)$  на участке  $I$  (рис. 3) в соответствии со смещением зависимостей  $L(t)$ ,  $I_p(t)$  (рис. 1, 2), что объясняется аналогично [1,2] увеличением порогового напряжения  $V_i$  из-за уменьшения остаточного поля  $F_p(t)$  в слое люминофора (рис. 1,  $c, g$ , 2,  $c, g$ ), обусловленного поляризационным зарядом, накопленным на состояниях границы раздела люминофор–диэлектрик, и объемными зарядами в этом слое, которые постепенно нейтрализуются по мере роста  $T_s$  [1,2]; в непрерывном режиме возбуждения на частотах  $f = 50$  Hz и выше волны яркости перекрываются между собой (рис. 2,  $a, e$ ), что приводит к перекрытию во времени на участке  $I$  зависимостей  $\eta_{\text{int}}(t)$  соседних полупериодов напряжения (рис. 2,  $d, h$ ; 3,  $c, d$ ); наличием провала на участке  $I$  зависимостей  $\eta_{\text{int}}(t)$  для частот 50 Hz и выше (рис. 3,  $c, d$ ), возрастающего при переходе от непрерывного режима возбуждения к

режиму с однократным запуском и с увеличением  $T_s$ ; различным поведением зависимости  $\eta_{\text{int}}(t)$  на участке  $II$  для вариантов  $+Al$  и  $-Al$  на частотах  $f = 2, 10$  и  $50$  Hz (рис. 3,  $a, b, c$ ), заключающимся в слабом росте зависимости  $\eta_{\text{int}}(t)$  для варианта  $-Al$  и спаде ее для варианта  $+Al$  при непрерывном возбуждении; на частоте  $f = 200$  Hz (рис. 3,  $d$ ) для варианта  $-Al$  зависимость  $\eta_{\text{int}}(t)$  при непрерывном режиме возбуждения на этом участке выходит на плато, а на более высоких частотах  $f$  становится также спадающей; появлением на участке  $II$  на частотах  $f = 2, 10, 50, 200$  Hz для варианта  $-Al$  пика на зависимости  $\eta_{\text{int}}(t)$  при возбуждении ТП ЭЛИ в режиме однократного запуска, который имелся при непрерывном режиме возбуждения для варианта  $+Al$  аналогично ранее полученным данным для  $f = 2$  Hz [1] (рис. 1,  $d, h$ ; 2,  $d, h$  и рис. 3) и увеличения этого пика с ростом  $T_s$  для вариантов  $+Al$ ; различным видом зависимостей  $\eta_{\text{int}}(t)$  на участке  $III$  для разных частот  $f$ :

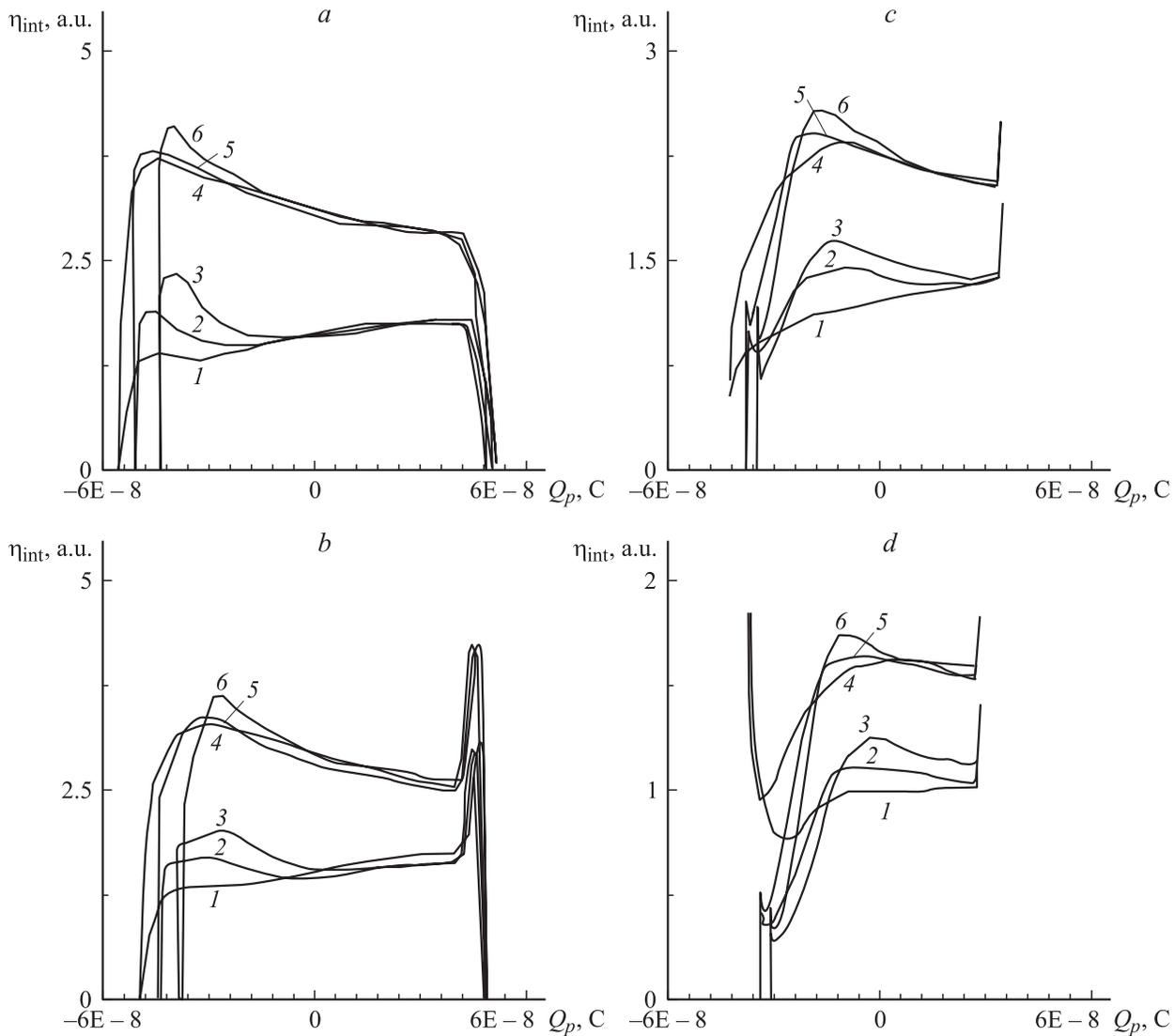


Рис. 4. Зависимости  $\eta_{\text{int}}(Q_p)$ . Частоты, режимы возбуждения и варианты те же, что и на рис. 3. Образец 1.

при  $f = 2 \text{ Hz}$  наблюдается спад  $\eta_{\text{int}}(t)$  (рис. 3, *a*), при  $f = 10 \text{ Hz}$  и выше на этом участке наблюдается дополнительный пик (рис. 1, *d, h*; 3, *b*), не показанный полностью при  $f = 50, 200 \text{ Hz}$  (рис. 2, *d, h*; 3, *c, d*) из-за его большой амплитуды и времени спада, выходящего за пределы рисунка, и объясняемый в соответствии с [1] более медленным спадом яркости  $L(t)$  по сравнению с током  $I_p(t)$  (рис. 2, *a, b, e, f*); уменьшением значений  $\eta_{\text{int}}(t)$  на участках *I*; *II* при тех же значениях  $V(t)$  с ростом частоты  $f$  для обоих вариантов  $\pm A1$  и  $-A1$  (рис. 3).

Зависимости  $\eta_{\text{int}}$  от заряда  $Q_p$  (рис. 4), протекшего через ТП ЭЛИ во время формирования волны яркости, аналогичны зависимостям  $\eta_{\text{int}}(t)$  (рис. 3). Это объясняется близкой к линейной зависимостью  $Q_p(t)$  на участках *I* и *II* и слабым изменением  $Q_p(t)$  на участке *III* (рис. 5).

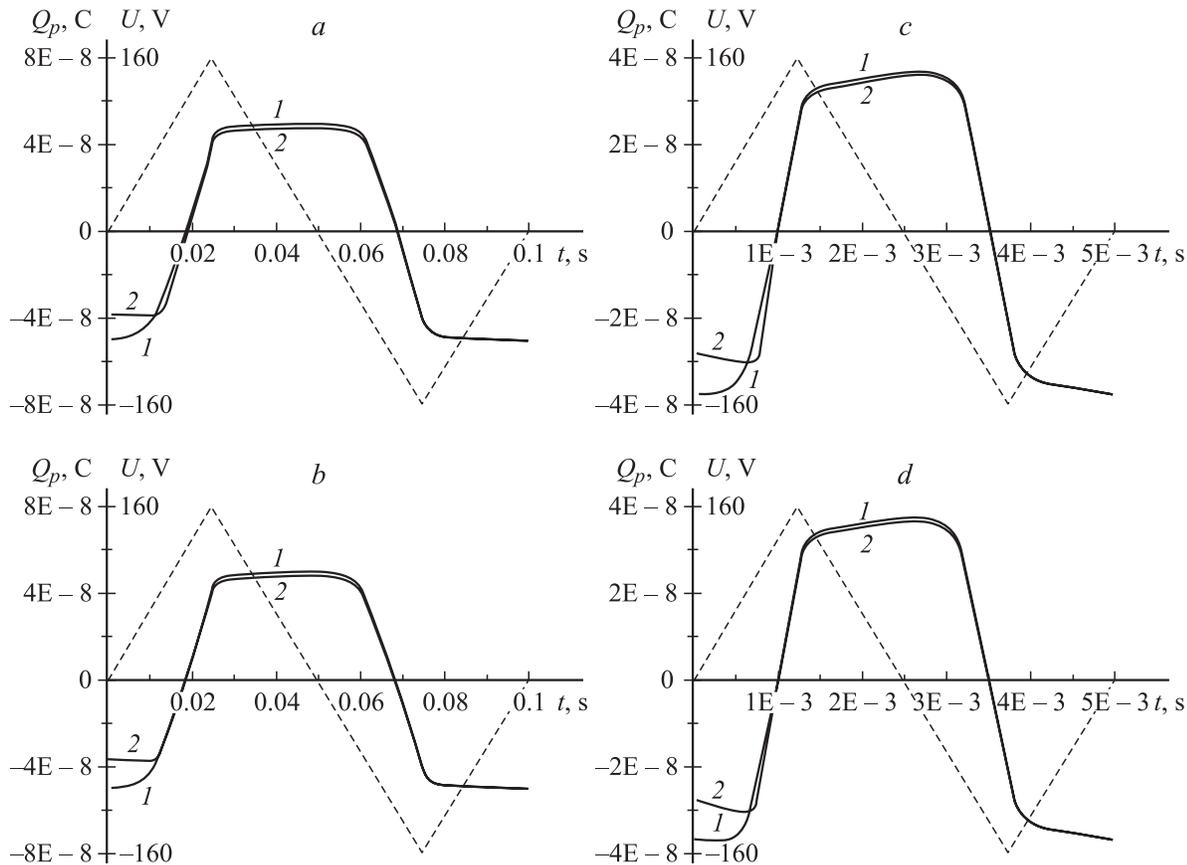
Зависимости  $\eta_{\text{int}}$  от среднего поля в слое люминофора  $F_p$  (рис. 6) на участке *I* близки к линейным на частотах  $f = 2, 10 \text{ Hz}$  и имеют провалы, ана-

логичные зависимостям  $\eta_{\text{int}}(t)$  и  $\eta_{\text{int}}(Q_p)$  при частотах  $f = 50 \text{ Hz}$  и выше, что объясняется практически линейной зависимостью  $F_p(t)$  на этом участке (рис. 1, *c, d*; 2, *c, d*). Однако на участке *II* зависимости  $\eta_{\text{int}}(F_p)$  носят сложный неоднозначный характер, который отражает различное поведение зависимостей  $F_p(t)$  на этом участке для вариантов  $\pm A1$  и разных частот  $f$  (рис. 1, *c, d*; 2, *c, d*), обусловленное образованием объемных зарядов в прианодной и прикатодной областях слоя люминофора [1,2].

Как следует из (3), (4), зависимость  $\eta_L(t)$  отличается от зависимости  $\eta_{\text{int}}(t)$  множителем  $F_p(t)$  в знаменателе. При этом мгновенная активная мощность  $P_p(t)$  с достаточной степенью точности может быть представлена в виде [3]

$$P_p(t) = I_p(t) F_p(t) d_p, \quad (5)$$

и с учетом линейного роста  $F_p(t)$  на участке *I* и относительно слабой зависимости  $F_p(t)$  на участке *II* (рис. 1, *c, g*; 2, *c, g*) зависимость  $P_p(t)$  по форме оказы-



**Рис. 5.** Зависимости  $Q_p(t)$ . *a, b* — при частоте  $f = 10$  Hz; *c, d* — 200 Hz; *a, c* — вариант  $-Al$ ; *b, d* — вариант  $+Al$ ; 1 — непрерывный режим возбуждения, 2 — режим возбуждения с однократным запуском с  $T_s = 100$  s. Образец 1.

вается близкой к зависимости  $I_p(t)$  (рис. 7, *b, d*). Поэтому зависимости  $\eta_{\text{int}}(t)$  и  $\eta_L(t)$  имеют похожий вид (рис. 7, *e, f*). Как следует из рис. 7, *e, f*, на частотах  $f \leq 10$  Hz значения  $\eta_{\text{int}}(t)$  и  $\eta_L(t)$  для образца 2 достигают максимума в точке  $r$ , соответствующей границе раздела „быстрого“ I и „медленного“ II участков нарастания зависимостей  $I_p(t)$  и  $L(t)$ , при переходе через которую скорость нарастания этих зависимостей уменьшается [1,2], независимо от дальнейшего увеличения амплитуды напряжения возбуждения  $V_m$ . Этот максимум на зависимости  $\eta_L(t)$  слабо уменьшается с увеличением  $V_m$  (рис. 7, *f*), что обусловлено возрастанием поля  $F_p(t)$  (рис. 7, *c*) в точке  $r$  при увеличении  $V_m$ .

Значения внутреннего квантового выхода  $\eta_{\text{int}}$  и светотдачи  $\eta_L$  в зависимостях  $\eta_{\text{int}}(V_m)$  и  $\eta_L(V_m)$ , определенные по формулам (1), (2) из данных рис. 7, также больше для варианта  $(+Al)$  по сравнению с вариантом  $(-Al)$  (рис. 8, *d, e*), что обусловлено разницей в значениях  $L_e$  (рис. 8, *c*), в то время как средние значения тока, протекающего за полпериода через слой люминофора,  $I_p$

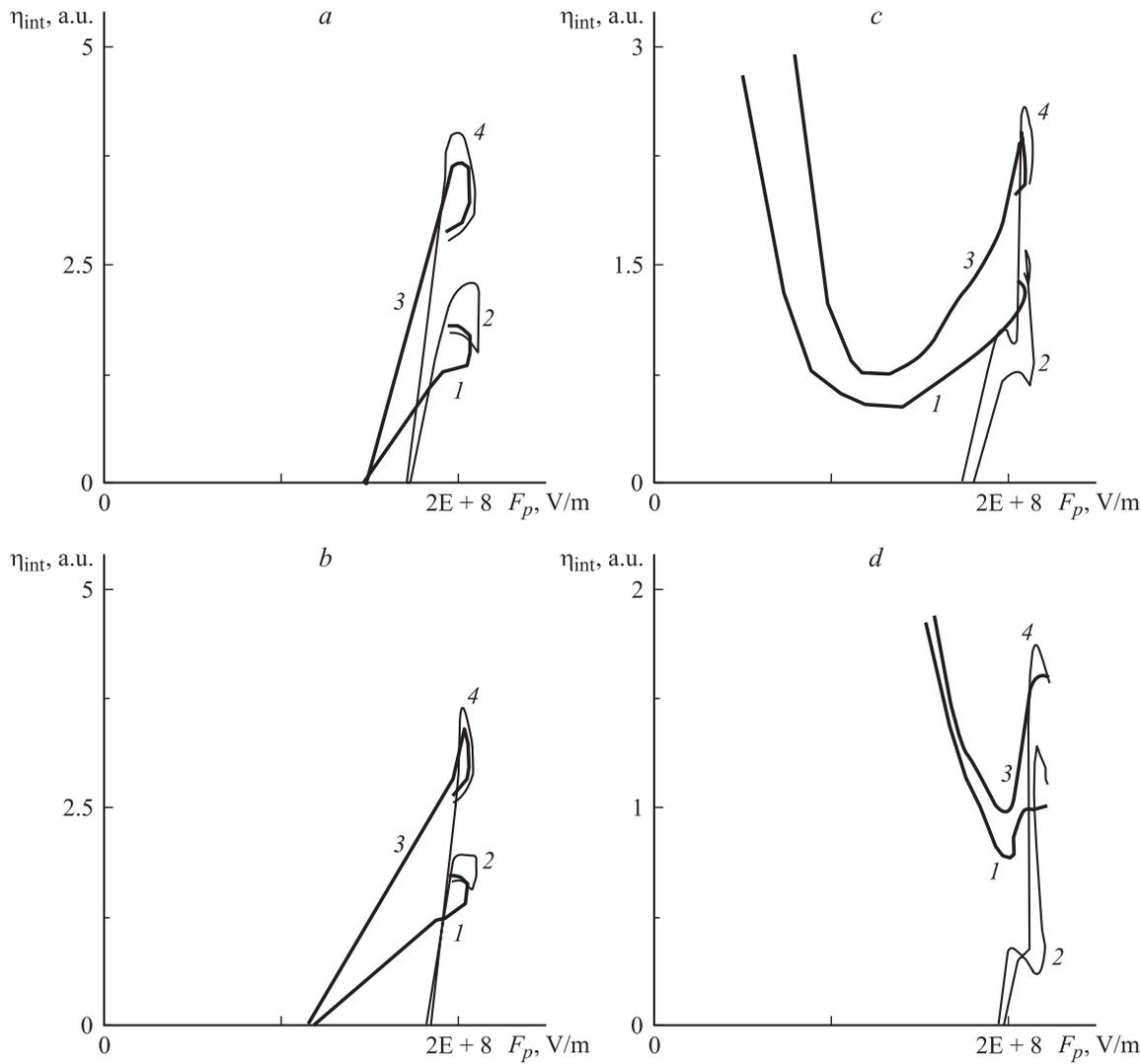
$$I_p = \frac{2}{T} \int_0^{T/2} I_p(t) dt \quad (6)$$

и мощности  $P_p$

$$P_p = \frac{2}{T} \int_0^{T/2} P_p(t) dt \quad (7)$$

для вариантов  $(+Al)$  и  $(-Al)$  в пределах погрешности измерений и расчетов совпадают (рис. 8, *a, b*). Вольт-яркостная характеристика ТП ЭЛИ  $L_e(V_m)$  имеет типичный вид с участком замедления роста  $L_e$  при увеличении  $V_m$  выше 125 V (рис. 8, *c*) или насыщения в полулогарифмическом масштабе [4] (рис. 8, *f*). На этом участке зависимости  $I_p(V_m)$  и  $P_p(V_m)$  имеют вид, подобный зависимости  $L_e(V_m)$  (рис. 8, *a, b, c*), в результате чего  $\eta_{\text{int}}$  при  $V_m$  выше 125 V слабо зависит от  $V_m$ , достигая максимума при  $V_m \approx 135$  V. Из-за возрастающего значения  $F_p$  с ростом  $V_m$  на участке II (рис. 7, *b*) зависимости  $\eta_L(V_m)$  имеют более четко выраженный спад при  $V_m \geq 125-130$  V (рис. 8, *e*). Эти зависимости  $\eta_{\text{int}}(V_m)$  и  $\eta_L(V_m)$  однако не позволяют определить физические механизмы, лежащие в основе кинетики электролюминесценции, в том числе и потому, что на частотах  $f \geq 10$  Hz участок спада яркости  $L(t)$  (рис. 1, *a, e*, 2, *a, e*) вносит существенный вклад в среднюю яркость.

Полученные результаты могут быть объяснены следующим образом.



**Рис. 6.** Зависимости  $\eta_{int}(F_p)$ . Частоты те же, что и на рис. 3. 1, 3 — непрерывный режим возбуждения; 2, 4 — режим возбуждения с однократным запуском с  $T_s = 100$  с; 1, 2 — вариант  $-Al$ ; 3, 4 — вариант  $+Al$ . Образец 1.

Поведение зависимостей  $\eta_{int}(t)$  на участках I и II можно объяснить аналогично [1,4]. Зависимость  $L(t)$  связана с  $\eta_{int}(t)$  и концентрацией возбужденных центров свечения  $N^*(t)$  формулой [5,6]

$$L(t) = \frac{K_0 h \nu f \lambda}{\pi} \frac{\eta_{int}(t) N^*(t) d_p(t)}{\tau^*}, \quad (8)$$

где

$$\eta_{int}(t) = N_1(t) \cdot P_r(t); \quad (9)$$

$N_1(t)$  — число центров свечения, возбуждаемых одним электроном, прошедшим слой люминофора;

$$N_1(t) = d_p(t) \sigma N(x, t); \quad (10)$$

$d_p(t)$  — эффективная толщина слоя люминофора, в пределах которой происходит ударное возбуждение центров свечения;  $\sigma$  — сечение ударного возбуждения центров свечения,  $N(x, t)$  — распределение концентрации невозбужденных центров свечения по толщине слоя люминофора;  $P_r(t)$  — вероятность излучательной релаксации

центров свечения

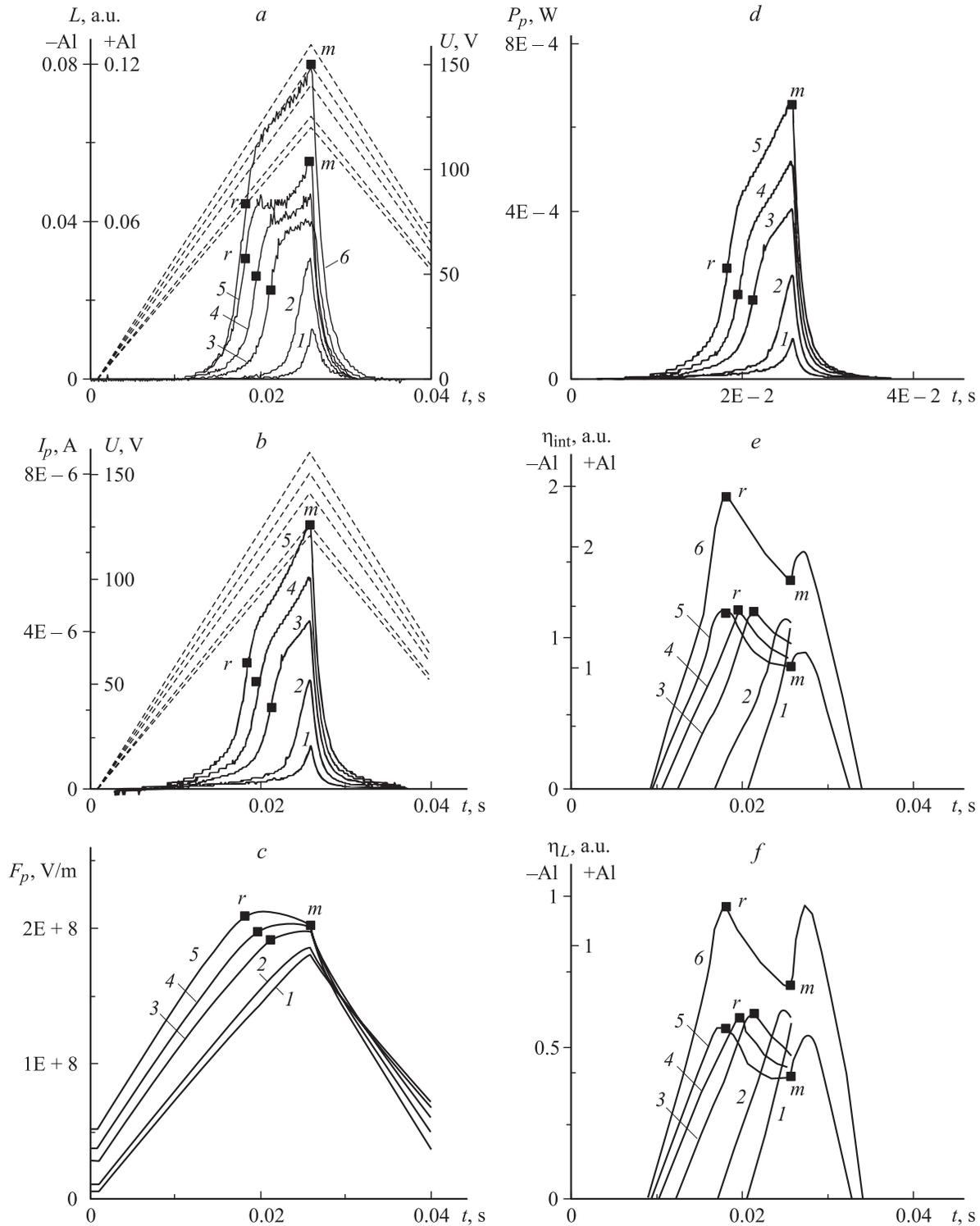
$$P_r(t) = \frac{\tau^*}{\tau_r}; \quad (11)$$

$\tau^*$  — время жизни центров свечения в возбужденном состоянии;  $\tau_r$  — постоянная времени релаксации возбужденных центров свечения, обусловленной излучательными переходами в основное состояние.

Концентрация возбужденных центров свечения  $N^*(t)$  пропорциональна вероятности возбуждения центров свечения в единицу времени  $\alpha(t)$ , которая в общем случае определяется выражением [4]

$$\alpha(t) = \sigma n(t) v(t) = \frac{\sigma I_p(t)}{q S_e}, \quad (12)$$

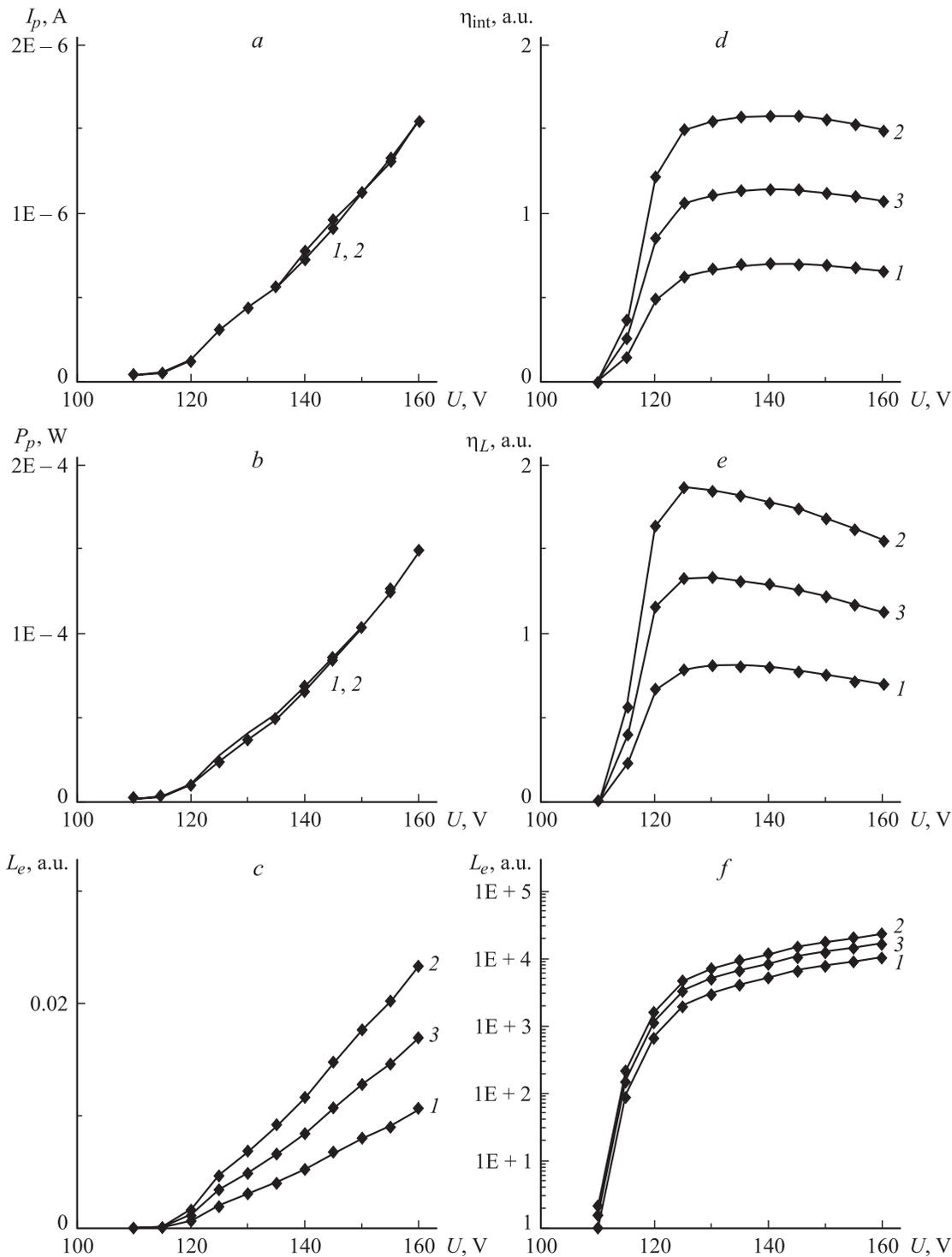
где  $n(t)$  и  $v(t)$  — концентрация и скорость свободных электронов, ускоренных до энергии возбуждения центров свечения.



**Рис. 7.** Формирование зависимостей  $\eta_{\text{int}}(t)$  и  $\eta_L(t)$  при различных значениях  $V_m$  на частоте  $f = 10$  Hz в режиме однократного запуска с  $T_s = 1$  s. *a* — зависимость  $L(t)$ , *b* —  $I_p(t)$ , *c* —  $F_p(t)$ , *d* —  $P_p(t)$ , *e* —  $\eta_{\text{int}}(t)$ , *f* —  $\eta_L(t)$ .  $V_m$ , V: 1 — 120; 2 — 125; 3 — 140; 4 — 150; 5, 6 — 160. 1–5 — вариант (–Al), 1–6 — вариант (+Al). Образец 2.

При этом быстрый рост  $\eta_{\text{int}}(t)$  на участке *I* для частот  $f = 2, 10$  Hz (рис. 1, *d, h*; 3, *a, b*) обусловлен ростом поля  $F_p(t)$  (рис. 1, *c, g*), энергии ускоренных электронов,  $\alpha(t)$  (12) и возрастом  $N_1(t)$  (10).

Появление провала на частотах  $f = 50$  Hz и выше на участке *I* зависимости  $\eta_{\text{int}}(t)$  (рис. 2, *d, h*, 3, *c, d*), а также на зависимостях  $\eta_{\text{int}}(Q_p)$  (рис. 4, *c, d*) и  $\eta_{\text{int}}(F_p)$  (рис. 6, *c, d*) обусловлено изменением соотношения ско-



**Рис. 8.** Зависимости  $I_{pe}(V_m)$  (a),  $P_{pe}(V_m)$  (b),  $L_e(V_m)$  (c),  $\eta_{int}(V_m)$  (d),  $\eta_L(V_m)$  (e) и  $\lg L_e(V_m)$  (f): на частоте  $f = 10$  Hz в режиме однократного запуска с  $T_s = 1$  s. 1 — за полупериод напряжения для варианта  $(-Al)$ , 2 — для варианта  $(+Al)$ , 3 — среднее значение за период напряжения возбуждения  $T$ . Образец 2.

ростей нарастания на этом участке яркости  $L(t)$  и тока  $I_p(t)$ . На частотах  $f = 2, 10$  Hz скорость нарастания яркости  $L(t)$  соответствует скорости нарастания тока  $I_p(t)$  аналогично ранее полученным результатам [1],  $\eta_{int}(t)$ , а также  $\eta_{int}(Q_p)$  и  $\eta_{int}(F_p)$  на участке 1 возрастают

(рис. 1, d, h, 3, a, b, 4, a, b, 6, a, b). На более высоких частотах на участке 1 скорость роста тока  $I_p(t)$  до точки  $r$  (рис. 2, b, f) превышает скорость роста яркости  $L(t)$  (рис. 2, a, e), в результате чего  $\eta_{int}(t)$  уменьшается, достигая минимума в точке  $r$  (рис. 2, d, h;

3, c, d). После прохождения точки  $r$  скорость роста тока  $I_p(t)$  уменьшается и  $\eta_{\text{int}}(t)$ , а также  $\eta_{\text{int}}(Q_p)$  и  $\eta_{\text{int}}(F_p)$  возрастают. В непрерывном режиме возбуждения на частотах  $f = 50 \text{ Hz}$  и выше соседние волны яркости перекрываются, в результате чего на участке  $I$  релаксируют и центры свечения  $\text{Mn}^{2+}$ , возбужденные в предыдущем полупериоде напряжения  $V(t)$ , концентрация которых уменьшается, и центры  $\text{Mn}^{2+}$ , возбуждаемые в текущем полупериоде напряжения  $V(t)$ , концентрация которых возрастает. Этот процесс также приводит к появлению минимума в зависимости  $\eta_{\text{int}}(t)$  (рис. 2, d, h; 3, c, d), который маскирует появление провала за счет изменения соотношения скоростей роста тока  $I_p(t)$  и яркости  $L(t)$ , в том числе и на зависимостях  $\eta_{\text{int}}(Q_p)$  и  $\eta_{\text{int}}(F_p)$  (рис. 4, c, d; 6, c, d).

На участке  $II$  процесс возбуждения ионов  $\text{Mn}^{2+}$  характеризуется относительно слабым изменением среднего поля  $F_p(t)$  (рис. 1, c, g; 2, c, g) и поведение зависимости  $\eta_{\text{int}}(t)$  определяется при условии постоянства  $P_r(t)$  и сохранении механизма прямого ударного возбуждения центров свечения в соответствии с (9), (10) эффективной толщиной  $d_p(t)$  и распределением концентрации центров свечения  $N(x, t)$ , которое, как указывалось, неравномерно — концентрация этих центров выше у верхнего электрода (Al). Изменение  $d_p(t)$  вызвано ионизацией и перезарядкой глубоких центров у анода и катода, сопровождающимися появлением полей объемных зарядов в этих областях [1,2,4]. Ионизация глубоких центров у анода приводит также к рассеянию энергии ускоренных электронов на этих центрах, что уменьшает значения  $n(t)$  и  $v(t)$ , а следовательно, и  $\alpha(t)$  [4]. В итоге формирование зависимости  $\eta_{\text{int}}(t)$  на участке  $II$  определяется уменьшением  $d_p(t)$  и  $\alpha(t)$ , а также изменением  $N(x, t)$ , которое зависит от исходного распределения концентрации ионов  $\text{Mn}^{2+}$  по толщине слоя люминофора  $N(x)$  и от изменения этой концентрации во времени  $N(x, t)$  из-за уменьшения толщины области ионизации центров свечения  $d_p(t)$  и ее смещения в сторону от анода. В итоге для варианта (+Al) все указанные факторы на участке  $II$  уменьшаются и зависимость  $\eta_{\text{int}}(t)$  во всех случаях на этом участке спадает (рис. 1, h; 2, h; 3). Для варианта (-Al) уменьшение  $d_p(t)$  и  $\alpha(t)$  может компенсироваться ростом  $N(x, t)$ , тогда  $\eta_{\text{int}}(t)$  может слабо возрастать (рис. 1, d; 3, a, b) для одних образцов ТП ЭЛИ или спадать для других образцов (рис. 7, e).

При возбуждении ТП ЭЛИ в режиме однократного запуска в паузе между импульсами напряжения происходят релаксация объемных зарядов и уменьшение полей этих зарядов в прианодной и прикатодной областях слоя люминофора [1,2], возрастающее с увеличением  $T_s$ . В результате при последующем запуске повышаются пороговое напряжение ТП ЭЛИ  $V_i$  и значение среднего поля в слое люминофора  $F_p(t)$ , в том числе и на участке  $II$  (рис. 1, 2). Это вызывает увеличение энергии ускоренных электронов, вероятности возбуждения центров свечения  $\alpha(t)$  в соответствии с (12) и появление и/или

увеличение пика на зависимости  $\eta_{\text{int}}(t)$  на участке  $II$  (рис. 1, d, h; 2, d, h; 3).

Уменьшение значений  $\eta_{\text{int}}(t)$  с ростом частоты  $f$  на участке  $II$  при одинаковых значениях  $V(t)$  объясняется следующим образом.

Как показано в [1], решение кинетического уравнения, определяющего скорость изменения концентрации возбужденных центров свечения

$$\frac{dN^*(t)}{dt} = \alpha(t) [N(t) - N^*(t)] - \frac{N^*(t)}{\tau^*} \quad (13)$$

на участке  $III$ , содержащее значение тока  $I_{pm}$  в точке  $m$  (рис. 1, b, f; 2, b, f) при условии постоянства  $\sigma$  и независимости  $\alpha(t)$  от  $N^*(t)$  и  $\tau^*$  от  $t$ , а также при  $\alpha(t) \ll 1/\tau^*$  с учетом (8), (12) и аппроксимации на этом участке зависимости  $I_p(t)$  выражением

$$I_p(t) = \frac{I_{pm}}{2} (e^{-t/\tau_4} + e^{-t/\tau_5}), \quad (14)$$

где  $\tau_4, \tau_5$  — постоянные спада тока  $I_p(t)$ , дает следующую зависимость  $L(t)$ :

$$L(t) = \frac{A\eta_{\text{int}}(t)N_1(t)}{qS_e} \left\{ \frac{I_{pm}}{2} \left( \frac{\tau_4}{\tau_4 - \tau^*} e^{-t/\tau_4} + \frac{\tau_5}{\tau_5 - \tau^*} e^{-t/\tau_5} \right) + \left[ I_{pr} \left( -\frac{\tau_2}{\tau_2 - \tau^*} e^{-t_m/\tau_2} + \frac{\tau_3}{\tau_3 - \tau^*} e^{t_m/\tau_3} + \frac{\tau_1}{\tau_1 + \tau^*} + \frac{\tau_2}{\tau_2 - \tau^*} - \frac{\tau_3}{\tau_3 + \tau^*} \right) - \frac{I_{pm}}{2} \left( \frac{\tau_4}{\tau_4 - \tau^*} + \frac{\tau_5}{\tau_5 - \tau^*} \right) \right] e^{-t/\tau^*} \right\}, \quad (15)$$

где  $\tau_1, \tau_2, \tau_3$  — постоянные времена нарастания тока  $I_p(t)$  на участке  $I$  до точки  $r$  и на участке  $II$  до и после изменения знака скорости нарастания тока соответственно;  $t_m$  — время, соответствующее значению  $V_m$ ;  $I_{pr}$  — значение тока  $I_p(t)$  в точке  $r$ .

При значении  $\tau^* = 1.4 \text{ ms}$  соотношение  $\alpha(t) \ll 1/\tau^*$  выполняется в области  $f < 200 \text{ Hz}$ . В самом деле, так как  $\sigma \approx 2-4 \cdot 10^{-16} \text{ cm}^2$  [1,5],  $S_e = 2 \text{ mm}^2$ , то на частоте  $f = 50 \text{ Hz}$  при максимальных значениях тока  $I_{pm} \approx 5 \cdot 10^{-5} \text{ A}$   $\alpha(t)$  в соответствии с (12) равна  $\alpha(t) \approx 5 \text{ s}^{-1}$ , а на частоте  $f = 200 \text{ Hz}$  при  $I_{pm} \approx 1.5 \cdot 10^{-4} \text{ A}$   $\alpha(t) \approx 15 \text{ s}^{-1}$ . В то же время  $1/\tau^* = 714 \text{ s}^{-1}$ .

Как следует из рис. 1, 2, спад тока  $I_p(t)$  практически до нуля происходит при уменьшении среднего поля  $F_p(t)$  до  $\sim 10^8 \text{ V/m}$ , примерно соответствующем пороговому полю начала свечения, т.е. в течение практически всего времени спада тока  $I_p(t)$  еще происходит ионизация центров свечения  $\text{Mn}^{2+}$ . Это подтверждает необходимость решения на участке спада  $III$  в указанной области частот  $f$  кинетического уравнения (11), в котором присутствует генерационный член  $\alpha(t)[N - N^*(t)]$  аналогично случаю ультрафиолетовых частот [1].

На частотах  $f < 2 \text{ Hz}$   $\tau_1, \tau_2, \tau_3, \tau_4, \tau_5 \gg \tau^*$  и зависимость  $L(t)$  повторяет зависимость  $I_p(t)$  [1]. Однако

$f$ , Hz	2		10		50		200	
Вариант	-Al	+Al	-Al	+Al	-Al	+Al	-Al	+Al
$\tau_4$ , ms	2.79	2.08	0.35	0.574	0.088	0.055	0.0199	0.0166
$\tau_5$ , ms	10.8	9.4	2.05	2.96	0.45	0.397	0.111	0.105
$B$ , а.у.	0.67	0.609	0.0877	0.25	0.143	0.0003	$7.95 \cdot 10^{-7}$	$5.35 \cdot 10^{-5}$
$C$ , а.у.	0.36	0.399	0.0103	0.0089	0.591	0.717	0.81	0.76
$D$ , а.у.	$3.26 \cdot 10^{-5}$	$4.15 \cdot 10^{-5}$	0.914	0.727	0.277	0.269	0.27	0.34

уже на  $f = 2$  Hz значения  $\tau_4$  становятся соизмеримыми с  $\tau^*$  [1]. На  $f \geq 10$  Hz соизмеримыми с  $\tau^*$  становятся и остальные  $\tau$  (рис. 1, *a, b, e, f*), а при больших частотах  $f$  значения  $\tau_1, \tau_2, \tau_3, \tau_4, \tau_5$  становятся меньше  $\tau^*$ . Это приводит к уменьшению предэкспоненциальных множителей в (15) и соответственно к замедлению темпов роста  $L(t)$  по сравнению с ростом  $I_p(t)$  при увеличении  $f$ . С физической точки зрения это означает, что релаксация возбужденных центров свечения  $Mn^{2+}$  происходит медленнее изменения тока  $I_p(t)$  и концентрация невозбужденных центров свечения  $[N - N^*(t)]$  в кинетическом уравнении (13) уменьшается при увеличении частоты  $f$ . Дополнительное уменьшение значений  $\eta_{int}(t)$  происходит на частотах  $f \geq 50$  Hz при непрерывном режиме возбуждения из-за перекрытия соседних волн яркости (рис. 2, *a, e*).

Одинаковое поведение зависимостей  $\eta_{int}(t)$  на участке II с ростом частоты  $f$  (рис. 3) для непрерывного режима возбуждения ТП ЭЛИ и режима возбуждения с однократным запуском и различными  $T_s$  подтверждает слабое влияние на этот процесс изменений с частотой  $d_p(t), N(x, t), F_p(t)$ . При этом изменение поля  $F_p(t)$  на участке II для различных частот также относительно слабое (рис. 1, *c, g, 2, c, g*).

Предлагаемые выше объяснения поведения зависимости  $\eta_{int}(t)$  на участке II, в том числе при разных  $V_m$  (рис. 1, 2, 3, 7), а также решение (15) уравнения (13) приведены исходя из условия сохранения механизма прямого ударного возбуждения одиночных центров  $Mn^{2+}$  и постоянства  $\sigma$  и  $P_r$ , а следовательно, и  $\tau^*$  (9), (10), (11). При этом неизменность  $\tau^*$  однозначно характеризует постоянство отношения излучательной и безызлучательной рекомбинации центров свечения [8], а также отсутствие других видов возбуждения и других типов центров свечения.

Полученные данные свидетельствуют в пользу справедливости использованных условий. Так, аппроксимация участков спада III зависимостей  $I_p(t)$  по формуле (14) с погрешностью не хуже 0.4% соответствует значениям тока  $I_p(t)$ , полученным из экспериментальной зависимости  $I_e(t)$ . Учитывая, что в зависимости  $L(t)$  (15) экспоненциальные множители изменяются на этом участке гораздо сильнее предэкспоненциальных, представим (15) в виде

$$L(t) \approx Be^{-t/\tau_4} + Ce^{-t/\tau_5} + De^{-t/\tau^*}, \quad (16)$$

где  $B, C, D$  — постоянные.

Аппроксимация экспериментальной зависимости  $L(t)$  на участке спада III с помощью формулы (16) в наиболее практически значимом диапазоне спада в две декады (в сто раз) на частотах  $f = 2, 10, 50$  Hz при  $\tau^* = 1.4$  ms дает согласование с погрешностью не более 0.1%. На частотах  $f \geq 200$  Hz согласование нарушается, что может быть связано, как указывалось выше, с некорректностью допущений, принятых при решении уравнения (13).

Как следует из таблицы, значения  $\tau_4, \tau_5$  быстро убывают с ростом  $f$  по близкой к обратно пропорциональной зависимости и могут характеризовать процессы захвата свободных носителей заряда на объемные и поверхностные центры при уменьшении среднего поля в слое люминофора примерно до порогового значения и ниже этого значения.

Зависимости коэффициентов  $B, C, D$  от частоты  $f$  указывают на возрастание с ростом  $f$  роли более медленных составляющей спада тока  $I_p(t)$  с  $\tau_5$  и времени жизни центров свечения  $\tau^*$  в спаде яркости  $L(t)$ .

Отсутствие изменений кривой спада яркости  $L(t)$  при разных  $V_m$  (рис. 7, *a, b*) также свидетельствует о неизменности параметров, характеризующих механизмы возбуждения, а также излучательной и безызлучательной релаксации центров свечения при существенно отличающихся уровнях возбуждения. Кривые спада яркости  $L(t)$  и тока  $I_p(t)$  не меняются также и при переходе от непрерывного режима возбуждения к режиму возбуждения с однократным запуском с разными  $T_s$  (рис. 1, *a, b, e, f; 2, a, b, e, f*), что дополнительно свидетельствует о слабом влиянии зарядового состояния дефектов структуры слоя люминофора на процесс возбуждения и релаксации центров свечения  $Mn^{2+}$ .

Следует отметить, что использование для аппроксимации спада яркости зависимости, содержащей произведение экспоненциальных сомножителей [9], не обеспечивает согласования с экспериментальной зависимостью  $L(t)$ , в том числе и в диапазоне частот  $f$ , где  $\tau^* \gg \tau_4, \tau_5$ . Это может свидетельствовать об отсутствии при использованной концентрации  $Mn^{2+}$  в слое люминофора концентрационного тушения электролюминесценции.

Таким образом, в результате исследования зависимости мгновенных значений внутреннего квантового выхода  $\eta_{int}$  и светоотдачи  $\eta_L$  от времени  $t$  и значений внутреннего квантового выхода  $\eta_{int}$  и светоотдачи  $\eta_L$  от амплитуды напряжения возбуждения  $V_m$  в совокупности

с другими электрическими и светотехническими характеристиками показано, что при частотах напряжения возбуждения  $f \leq 10$  Hz на участке быстрого роста яркости  $L(t)$  и тока, протекающего через слой люминофора  $I_p(t)$ , происходит быстрый рост мгновенных значений внутреннего квантового выхода  $\eta_{\text{int}}(t)$  и светотдачи  $\eta_L(t)$ , что обусловлено, по-видимому, возрастанием числа центров свечения, возбуждаемых одним электроном, прошедшим через слой люминофора, при увеличении среднего поля в слое люминофора. При увеличении частоты выше  $f > 10$  Hz на участке роста  $\eta_{\text{int}}(t)$  появляется провал, обусловленный увеличением скорости нарастания тока  $I_p(t)$  по сравнению со скоростью нарастания мгновенной яркости  $L(t)$ . Величина этого провала возрастает при переходе к режиму возбуждения с однократным запуском и с увеличением периода этого запуска  $T_s$ , что обусловлено дополнительным увеличением скорости нарастания тока  $I_p(t)$  из-за нейтрализации полей объемных зарядов в прианодной и прикатодной областях слоя люминофора в паузе между подачей импульсов напряжения возбуждения, сопровождаемой ростом порогового поля начала свечения. При дальнейшем более медленном росте тока  $I_p(t)$  и яркости  $L(t)$  поведение зависимостей  $\eta_{\text{int}}(t)$  и  $\eta_L(t)$  в непрерывном режиме возбуждения и в режиме возбуждения с однократным запуском определяется, по-видимому, уменьшением эффективной толщины слоя люминофора  $d_p(t)$ , в котором происходит ионизация центров свечения  $\text{Mn}^{2+}$ , и вероятности возбуждения этих центров в единицу времени  $\alpha(t)$ , а также исходным распределением концентрации центров свечения по толщине слоя люминофора и изменением ее во времени  $N(x, t)$  из-за уменьшения толщины области ионизации центров  $d_p(t)$  и смещения ее в сторону от анода. В итоге зависимости  $\eta_{\text{int}}(t)$  и  $\eta_L(t)$  на этом участке или могут достигать максимума, возрастающего с увеличением  $T_s$  в режиме возбуждения с однократным запуском, с последующим спадом, или в зависимости от частоты  $f$  могут иметь область „плато“ — независимости  $\eta_{\text{int}}$  и  $\eta_L$  от времени, или область роста  $\eta_{\text{int}}$  и  $\eta_L$  со временем.

Интегральные характеристики  $\eta_{\text{int}}(V_m)$  и  $\eta_L(V_m)$  не позволяют детально рассматривать физические процессы, ответственные за возбуждение электролюминесценции, поскольку с ростом частоты выше  $f \geq 10$  Hz в среднюю яркость, необходимую для их определения, существенный вклад вносит участок спада яркости, обусловленный релаксацией возбужденных центров свечения  $\text{Mn}^{2+}$ , который продолжается значительное время после прекращения спада тока, протекающего через слой люминофора, и маскирует процессы, происходящие при возбуждении центров свечения.

При использованной концентрации центров свечения в слое люминофора аналитическое решение кинетического уравнения, описывающего изменение концентрации возбужденных центров свечения во времени, позволяют достаточно точно описать форму кривой спада яркости  $L(t)$  на частотах  $f < 200$  Hz при разных уровнях возбуждения (значениях  $V_m$ ), используя аппроксимацию

спада тока  $I_p(t)$ , протекающего через слой люминофора, в виде суммы двух экспонент, и допущении простого механизма ударного возбуждения одиночных центров свечения  $\text{Mn}^{2+}$  с их последующей релаксацией без изменения вероятности излучательных переходов.

## Список литературы

- [1] Гурин Н.Т., Сабитов О.Ю., Шляпин А.В. // ЖТФ. 2002. Т. 72. Вып. 2. С. 74–83.
- [2] Гурин Н.Т., Сабитов О.Ю., Шляпин А.В. // ЖТФ. 2001. Т. 71. Вып. 8. С. 48–58.
- [3] Гурин Н.Т. // ЖТФ. 1996. Т. 66. Вып. 5. С. 77–85.
- [4] Гурин Н.Т., Шляпин А.В., Сабитов О.Ю. // Письма в ЖТФ. 2001. Т. 27. Вып. 22. С. 52–57.
- [5] Электролюминесцентные источники света / Под ред. И.К. Верещагина. М.: Энергоатомиздат, 1990. 168 с.
- [6] Гурин Н.Т., Сабитов О.Ю., Шляпин А.В., Юденков А.В. // Письма в ЖТФ. 2001. Т. 27. Вып. 4. С. 12–18.
- [7] Полукристаллические полупроводники. Физические свойства и применение / Под ред. Г. Харбеке. М.: Мир, 1989. 344 с.
- [8] Xian H., Benalloul P., Berthou C. et al. // Jap. J. Appl. Phys. 1994. Vol. 33. P. 5801–5806.
- [9] De Visschere P., Neyts K., Corlatan D. et al. // J. Luminescence. 1995. Vol. 65. P. 211–219.