

06

Туннелирование электронов в тонкопленочных электролюминесцентных излучателях на основе ZnS:Mn

© Н.Т. Гурин, Д.В. Рябов, О.Ю. Сабитов, А.М. Афанасьев

Ульяновский государственный университет
E-mail: gurinnt@sv.ulsu.ru

Поступило в Редакцию 4 августа 2004 г.

Методом численного моделирования экспериментальных зависимостей тока и заряда, протекающего через слой люминофора, от времени для тонкопленочных электролюминесцентных излучателей на основе ZnS:Mn с помощью расчетной временной зависимости туннельного тока электронов с поверхностных состояний прикатодной границы раздела диэлектрик–полупроводник показано, что глубина уровней поверхностных состояний изменяется в процессе роста поля от ~ 0.6 до 1.3 eV, вероятность туннелирования от $10\text{--}15$ до $300\text{--}400$ s⁻¹, ширина потенциального барьера от ~ 9 до 5.7 nm.

Как известно, процесс люминесценции в тонкопленочных электролюминесцентных излучателях (ТП ЭЛИ) структуры металл–диэлектрик–полупроводник–диэлектрик–металл на основе ZnS:Mn обусловлен туннелированием носителей заряда с поверхностных состояний (ПС) прикатодной границы раздела диэлектрик–полупроводник в сильном электрическом поле, последующим лавинным размножением носителей из-за ударной ионизации собственных дефектов структуры и примесей с одновременным ударным возбуждением центров свечения Mn²⁺ [1]. Точное описание процесса туннелирования электронов с ПС и параметров потенциального барьера на указанной границе раздела до настоящего времени отсутствует. Известные результаты моделирования данного процесса [2,3], полученные без учета умножения электронов в слое люминофора и в предположении дискретного уровня ПС с энергией $E_t = 0.8$ eV ниже дна зоны проводимости ZnS:Mn, качественно согласуются с экспериментальными данными. В [4] также на основе моделирования зависимости скорости туннельной эмиссии от поля по-

казано, что ПС могут быть локализованы в области энергий 0.6–0.9 eV ниже дна зоны проводимости. Автором [5] также из качественного совпадения результатов моделирования с экспериментальными зависимостями тока и напряжения от времени, действующими в ТП ЭЛИ при возбуждении ТП ЭЛИ синусоидальным напряжением, определена глубина залегания ПС $E_t = 1.05$ eV с возможным разбросом от 0.9 до 1.2 eV. Авторами [6] при моделировании гистерезиса вольт-яркостной характеристики ТП ЭЛИ предполагалось равномерное распределение плотности ПС в диапазоне E_t от 0 до 2 eV с заполнением их до уровня Ферми в равновесном состоянии.

Целью работы является определение характеристик процесса туннелирования и параметров ПС на прикатодной границе раздела диэлектрик–полупроводник.

Для определения указанных характеристик и параметров используем зависимость тока, протекающего через слой люминофора, от времени $I_p(t)$. Как ранее нами было показано [7,8], начальный участок быстрого роста $I_p(t)$ при возбуждении ТП ЭЛИ линейно нарастающим напряжением является экспоненциальным. При этом зависимость среднего поля в слое люминофора от времени $F_p(t)$ на этом участке практически линейна (см. участок I на рисунке), что свидетельствует об отсутствии заметного объемного заряда в слое люминофора и однородном распределении поля в данном слое. С учетом значительного превышения падения напряжения на слое люминофора (–45–120 V) над величиной Eg/q , где Eg — ширина запрещенной зоны ZnS:Mn (3.7 eV), q — заряд электрона, такое же поле $F_p(t)$ действует в области потенциального барьера на прикатодной границе раздела диэлектрик–полупроводник.

При однородном поле в слое люминофора коэффициент ударной ионизации электронов в этом слое α_n может быть представлен в виде

$$\alpha_n = \frac{1}{n_p} \frac{\partial n_p}{\partial x} = \frac{1}{n_p} \frac{\Delta n_p}{\Delta x} = \frac{1}{n_p} \frac{n_p - n_{p0}}{d_p} = \frac{1}{d_p} \left(1 - \frac{1}{M}\right), \quad (1)$$

где n_{p0} и n_p — количество электронов, вошедших в область ударной ионизации и вышедших из этой области соответственно, d_p — толщина слоя люминофора, M — коэффициент умножения электронов, $M = n_p/n_{p0} = \text{const}$.

Тогда ток, входящий в область ударной ионизации, т.е. туннельный ток электронов с ПС прикатодной границы раздела диэлектрик–полу-

проводник, равен

$$I_{p0}(t) = \frac{I_p(t)}{M} = \frac{q}{M} \frac{\partial n_p(t)}{\partial t}. \quad (2)$$

С другой стороны, зависимость $I_{p0}(t)$ может быть найдена из кинетического уравнения, описывающего туннелирование электронов с ПС через потенциальный барьер в виде

$$I_{p0}(t) = W(t) \left[Q_{ss} - \frac{Q_p(t)}{M} \right], \quad (3)$$

где $W(t)$ — вероятность туннелирования электронов в единицу времени (скорость генерации) определим с помощью оправдавшей себя применительно к излучателям на основе ZnS [5,9] формулой

$$W(t) = \frac{qF_p(t)}{2\sqrt{2m^*E_t(t)}} \exp \left[\frac{4\sqrt{2m^*E_t^{3/2}(t)}}{3q\hbar F_p(t)} \right], \quad (4)$$

$Q_p(t) = \int_0^t I_p(t) dt$ — заряд, протекающий через слой люминофора,

Q_{ss} — количество запасенного заряда на ПС, m^* — эффективная масса электрона, $m^* = 0.34m_e$ для ZnS [9], m_e — масса покоя электрона, \hbar — постоянная Планка.

При этом ввиду однородного распределения поля $F_p(t)$ в слое люминофора на участке I образованием объемного заряда за счет ударной ионизации глубоких центров, обусловленных собственными дефектами структуры [11] и, следовательно, генерацией дополнительных носителей заряда, можно пренебречь, т.е. $M \simeq 1$.

В дальнейшем выражения (2)–(4) использовались при численном моделировании экспериментальных зависимостей $I_p(t)$ с одновременным использованием зависимостей $Q_p(t)$ и $F_p(t)$ для определения характеристик процесса туннелирования электронов $E_p(t)$, $W(t)$, а также ширины потенциального барьера $x_t(t)$ по формуле

$$x_t(t) = \frac{E_t(t)}{qF_p(t)}. \quad (5)$$

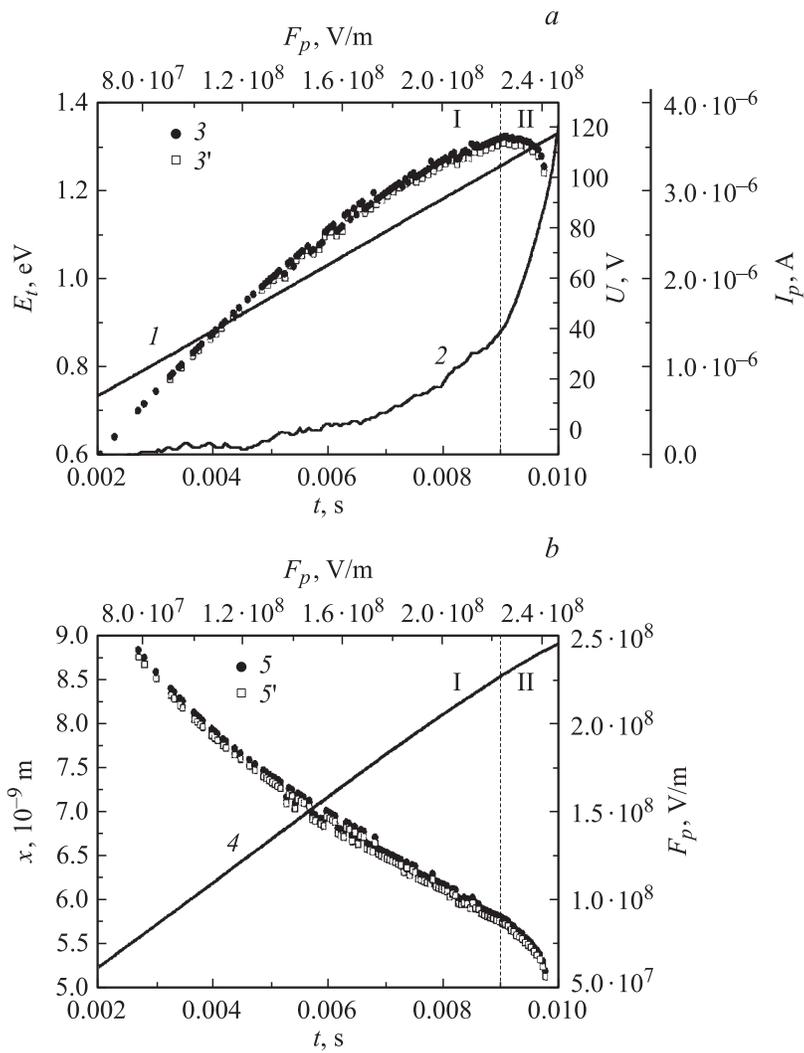
Экспериментальные зависимости были получены для ТП ЭЛИ, использованных в [10,11], со структурой МДПДМ, где М — нижний

прозрачный электрод на основе SnO_2 толщиной $0.2 \mu\text{m}$, нанесенный на стеклянную подложку, и верхний непрозрачный тонкопленочный электрод на основе Al толщиной $0.15 \mu\text{m}$, диаметром 1.5mm ; П — электролюминесцентный слой ZnS:Mn (0.5% mass.) толщиной $0.48 \mu\text{m}$; Д — диэлектрический слой $\text{ZrO}_2 \times \text{Y}_2\text{O}_3$ (13% mass.) толщиной $0.17 \mu\text{m}$. Слой люминофора наносили вакуум-термическим испарением в квазизамкнутом объеме при температуре подложки 250°C с последующим отжигом при температуре 250°C в течение часа, непрозрачный электрод — вакуум-термическим испарением, диэлектрические слои получали электронно-лучевым испарением.

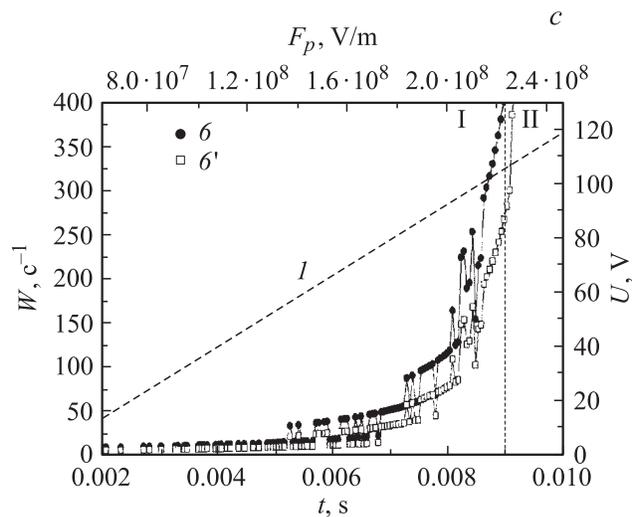
Исследования проводились при возбуждении ТП ЭЛИ знакопеременным напряжением треугольной формы в режиме однократного запуска, при котором напряжение возбуждения $U(t)$ представляло собой пачку импульсов из двух периодов напряжения треугольной формы, следующих с частотой 20Hz с подачей положительной или отрицательной полуволны напряжения в первом полупериоде на верхний электрод (варианты (+Al) и (-Al) соответственно). Время между однократными запусками составляло 100s . Ток $I_e(t)$, протекающий через ТП ЭЛИ, измерялся аналогично [7,8,10,12].

Зависимости среднего поля в слое люминофора $F_p(t)$, а также тока $I_p(t)$ и заряда $Q_p(t)$, протекающих через слой люминофора в режиме свечения ТП ЭЛИ, находились по методике, изложенной в [7,12], для первого полупериода напряжения $U(t)$ при значениях емкостей диэлектрических слоев 730pF , слоя люминофора 275pF , определенных с помощью измерителя иммитанса Е7-14 и известных геометрических размеров ТП ЭЛИ. Численное моделирование зависимостей $I_p(t)$ проводилось с учетом ранее определенных [11] для используемых образцов ТП ЭЛИ значений $Q_{ss} = 1.7-1.9 \cdot 10^{-8} \text{s}$ и при двух значениях коэффициентов умножения: $M = 1$ и $M = 1.5$ (величина, полученная в [11] при амплитудном значении напряжения $U(t) = 160 \text{V}$).

Из приведенных на рисунке зависимостей следует, что на начальном участке I быстрого экспоненциального роста тока $I_p(t)$, когда зависимость $F_p(t)$ практически линейна (до $t \sim 9 \text{ms}$), при возрастании t или $F_p(t)$ наблюдаются монотонный рост глубины залегания ПС $E_i(t)$ от ~ 0.6 до $\sim 1.3 \text{eV}$ (см. рисунок, а) (аналогичный вид имеет зависимость $E_i(t)$ для варианта (+Al)), уменьшение ширины потенциального барьера на прикатодной границе раздела диэлектрик-полупроводник $x_i(t)$ с ~ 9 до $\sim 5.7 \text{nm}$ для обоих вари-



Зависимости от времени: 1 — $U(t)$; 2 — $I_p(t)$; 3, 3' — $E_t(t)$; 4 — $F_p(t)$; 5, 5' — $x_t(t)$ для варианта (-Al); 6, 6' — $W(t)$; I — участок линейной зависимости $F_p(t)$, II — участок сублинейной зависимости $F_p(t)$; 3, 5 — $M = 1.5$, 3', 5' — $M = 1$; 6 — вариант (+Al), 6' — вариант (-Al).



Продолжение рисунка.

антов ($\pm A1$) (см. рисунок, *b*), а также рост вероятности туннелирования $W(t)$ от 10 до 300 s^{-1} для варианта ($-A1$) и от 15 до 400 s^{-1} для варианта ($+A1$) (см. рисунок, *c*). Эти результаты, с одной стороны, согласуются с упомянутыми выше данными [2–6], а с другой стороны, свидетельствуют о более сложном характере распределения уровней ПС по энергии по сравнению с моделью дискретного уровня и с моделью равномерного распределения ПС по энергии.

Полученные результаты демонстрируют также слабое влияние изменения значений коэффициента умножения M от 1 до 1.5 на зависимости $E_i(t)$, $x_i(t)$.

Следует отметить, что правомерность использования формулы (4) для определения $W(t)$ может свидетельствовать в пользу того, что на ПС электроны связаны с нейтральными центрами [9]. Полученные данные указывают также на то, что все уровни в запрещенной зоне ZnS:Mn , соответствующие собственным дефектам структуры и имеющие глубину залегания от дна зоны проводимости $\leq 1.3 \text{ eV}$, такие как Zn_i^0 (0.10–0.12 eV), Zn_i^+ (0.2 eV), Vs^0 (0.2–1.05 eV) [8] на участке I экспоненциального роста тока $I_p(t)$ могут быть опустошены за счет туннелирования электронов с них в зону проводимости ZnS:Mn .

Работа поддержана грантом президента РФ № НШ–1428.2003.8.

Список литературы

- [1] *Электролюминесцентные* источники света / Под ред. И.К. Верещагина. М.: Энергоатомиздат, 1990. 168 с.
- [2] *Bringuier E.* // J. Appl. Phys. 1989. V. 66. N 3. P. 1314–1325.
- [3] *Neyts K.A., De Visschere.* // J. Appl. Phys. 1990. V. 68. N 8. P. 4163–4171.
- [4] *Smith D.H.* // J. Luminescence. 1981. V. 23. N 1. P. 209–235.
- [5] *Васильченко В.П.* // ЖПС. 1996. Т. 63. В. 3. С. 461–465.
- [6] *Howard W.E., Sahni O., Alt M.* // J. Appl. Phys. 1982. V. 53. N 1. P. 639–647.
- [7] *Гурин Н.Т., Шляпин А.В., Сабитов О.Ю.* // ЖТФ. 2002. Т. 72. В. 2. С. 74–83.
- [8] *Гурин Н.Т., Шляпин А.В., Сабитов О.Ю.* // ЖТФ. 2003. Т. 73. В. 4. С. 100–112.
- [9] *Георгобиани А.Н., Пипинис П.А.* Туннельные явления в люминесценции полупроводников. М.: Мир, 1994. 224 с.
- [10] *Гурин Н.Т., Рябов Д.В.* // Письма в ЖТФ. 2004. Т. 30. В. 9. С. 89–95.
- [11] *Гурин Н.Т., Рябов Д.В.* // ЖТФ. 2005. Т. 75. В. 1. С. 45–54.
- [12] *Гурин Н.Т., Сабитов О.Ю., Шляпин А.В.* // ЖТФ. 2001. Т. 71. В. 8. С. 48–58.