

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 SnO₂ 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 ZrO₂ × Y₂O₃ (13% mass) толщиной 0.15 μm. Слой люминофора наносили вакуумтермическим испарением в квазизамкнутом объеме при температуре

подложки 250°C с последующим отжигом при температуре 250°C в течение часа, непрозрачный электрод — вакуумтермическим испарением, диэлектрические слои получали электронно-лучевым испарением.

Экспериментально исследованы зависимости мгновенной яркости свечения L и тока через ТП ЭЛИ I_e от времени t при возбуждении ТП ЭЛИ знакопеременным напряжением треугольной формы, подаваемым с генератора Г6-34 с дополнительным усилителем — формирователем и внешним генератором запуска Г5-89. Амплитуда импульсов составляла 160 V при коэффициенте нелинейности напряжения не более 2%. В режиме однократного запуска напряжение возбуждения представляло собой пачку импульсов из двух периодов напряжения треугольной формы, следующих с частотой 2, 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_λ — 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 η_{ext} , η_{int} , η_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 Δt

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

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 η_{int} для варианта +Al, что объясняется неравномерностью распределения ионов примеси 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

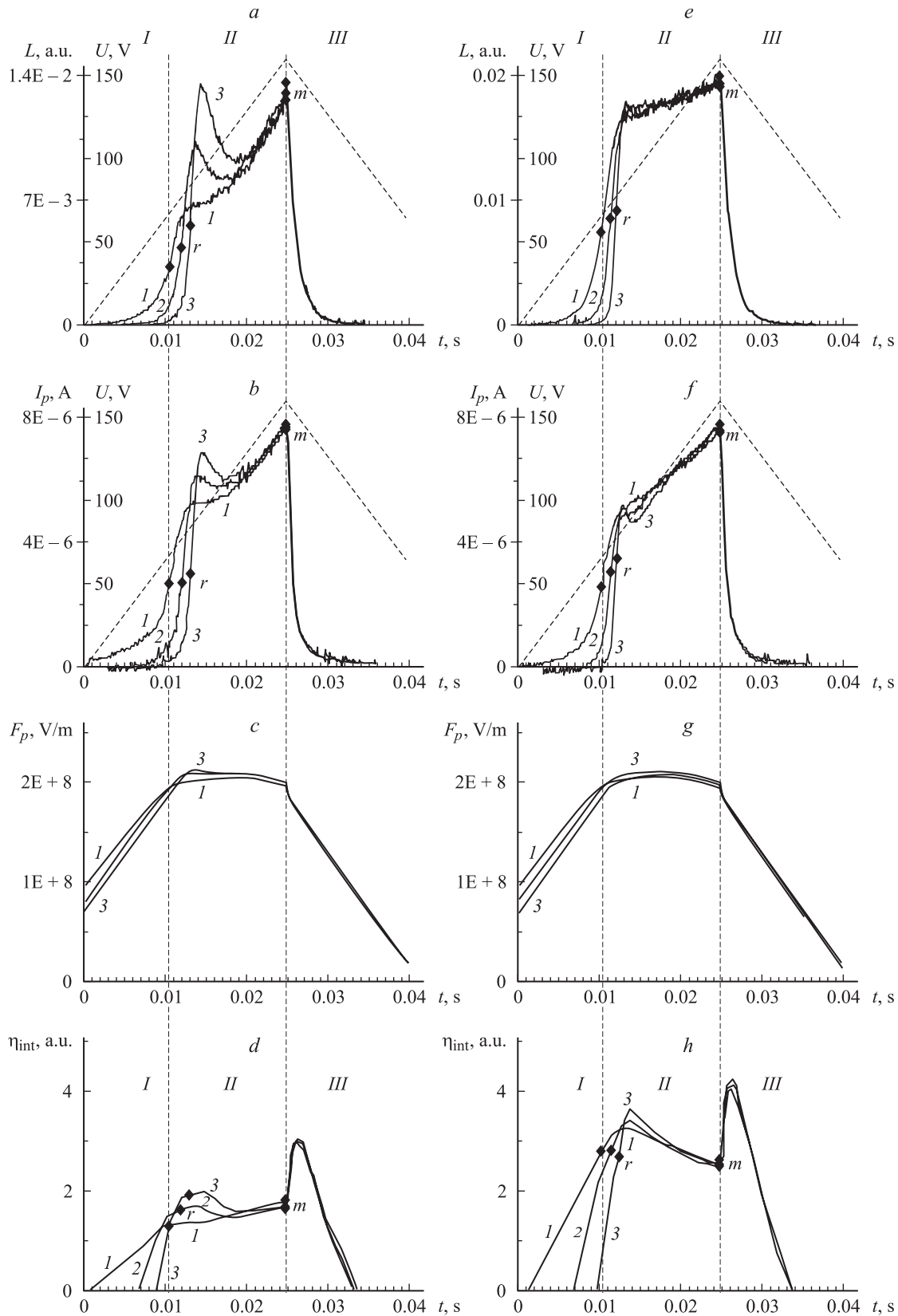


Рис. 1. Зависимости $L(t)$ (*a, e*), $I_p(t)$ (*b, f*), $F_p(t)$ (*c, g*), $\eta_{int}(t)$ (*d, h*) при частоте $f = 10$ Hz. *a-d* — вариант $-Al$; *e-h* — вариант $+Al$; *I* — непрерывный режим возбуждения; 2, 3 — режим возбуждения с однократным запуском с $T_s = 5$ (2), 100 s (3); *I* — участок быстрого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

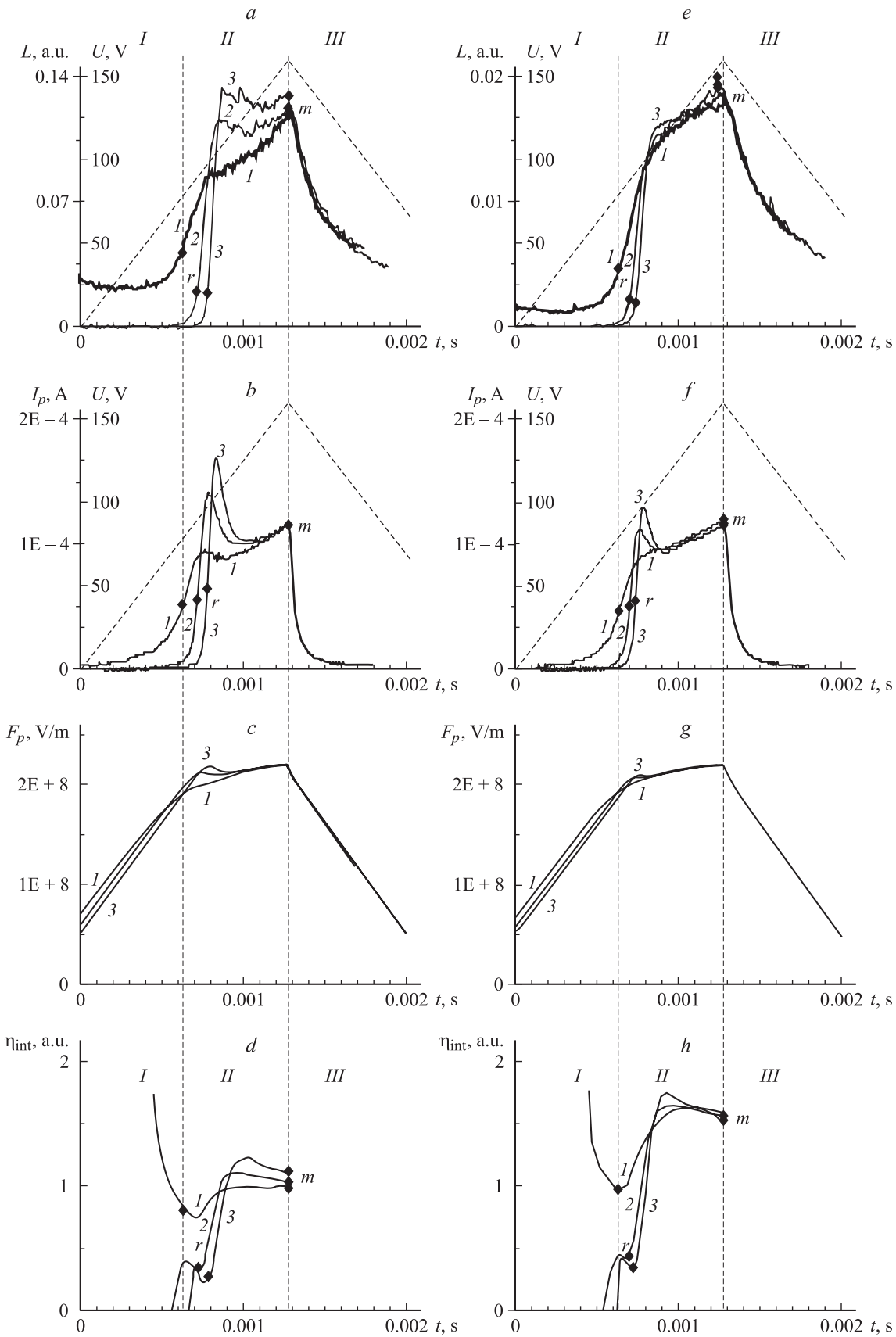


Рис. 2. То же, что на рис. 1, при частоте $f = 200$ Hz. Образец 1.

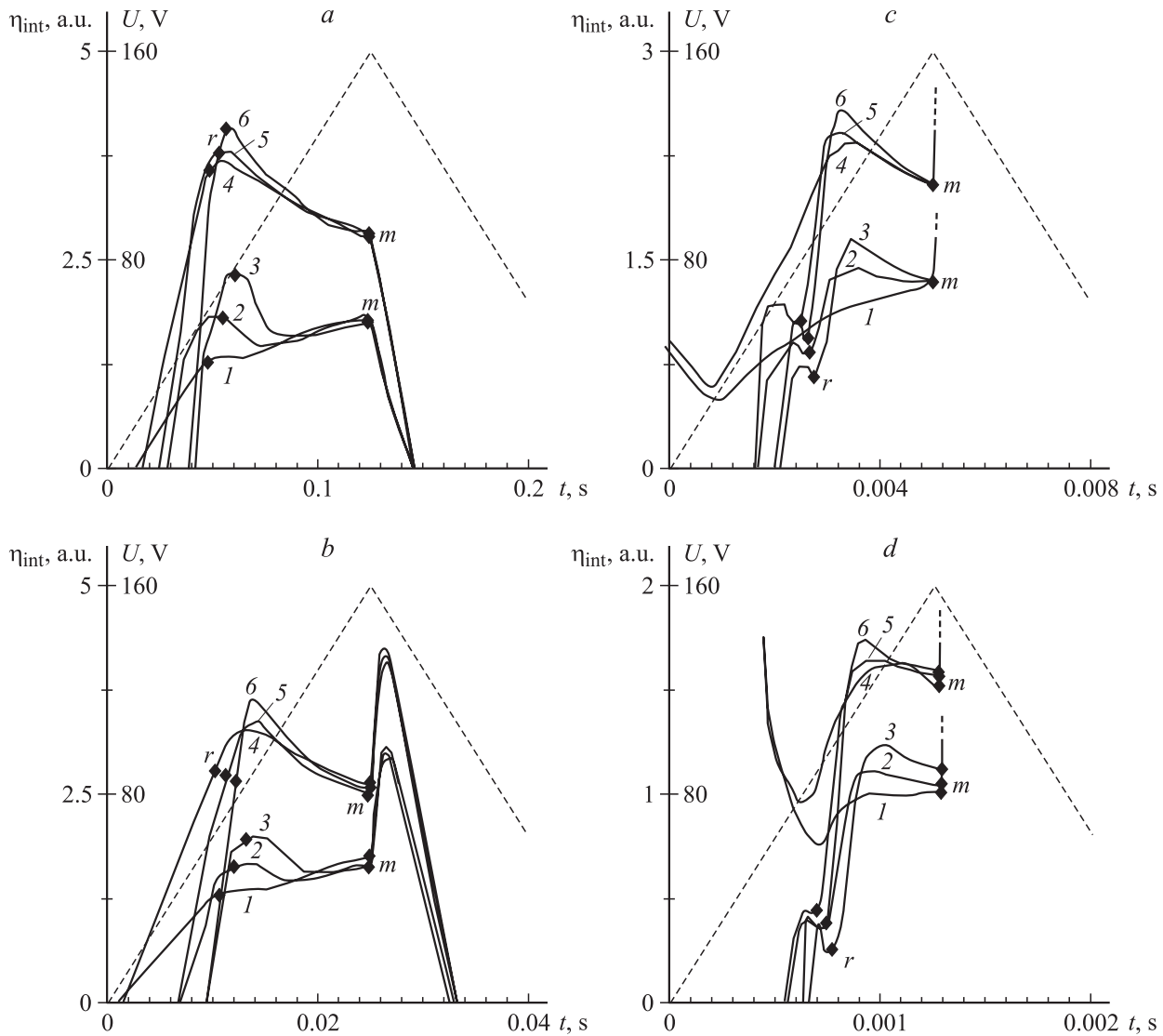


Рис. 3. Зависимости $\eta_{\text{int}}(t)$. Частота f , Hz: $a - 2$, $b - 10$, $c - 50$, $d - 200$; $1, 4$ — непрерывный режим возбуждения; $2, 3, 5, 6$ — режим возбуждения с однократным запуском с $T_s = 5$ ($2, 5$), 100 s ($3, 6$); $1-3$ — вариант $-Al$; $4-6$ — вариант $+Al$. Образец 1.

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 :

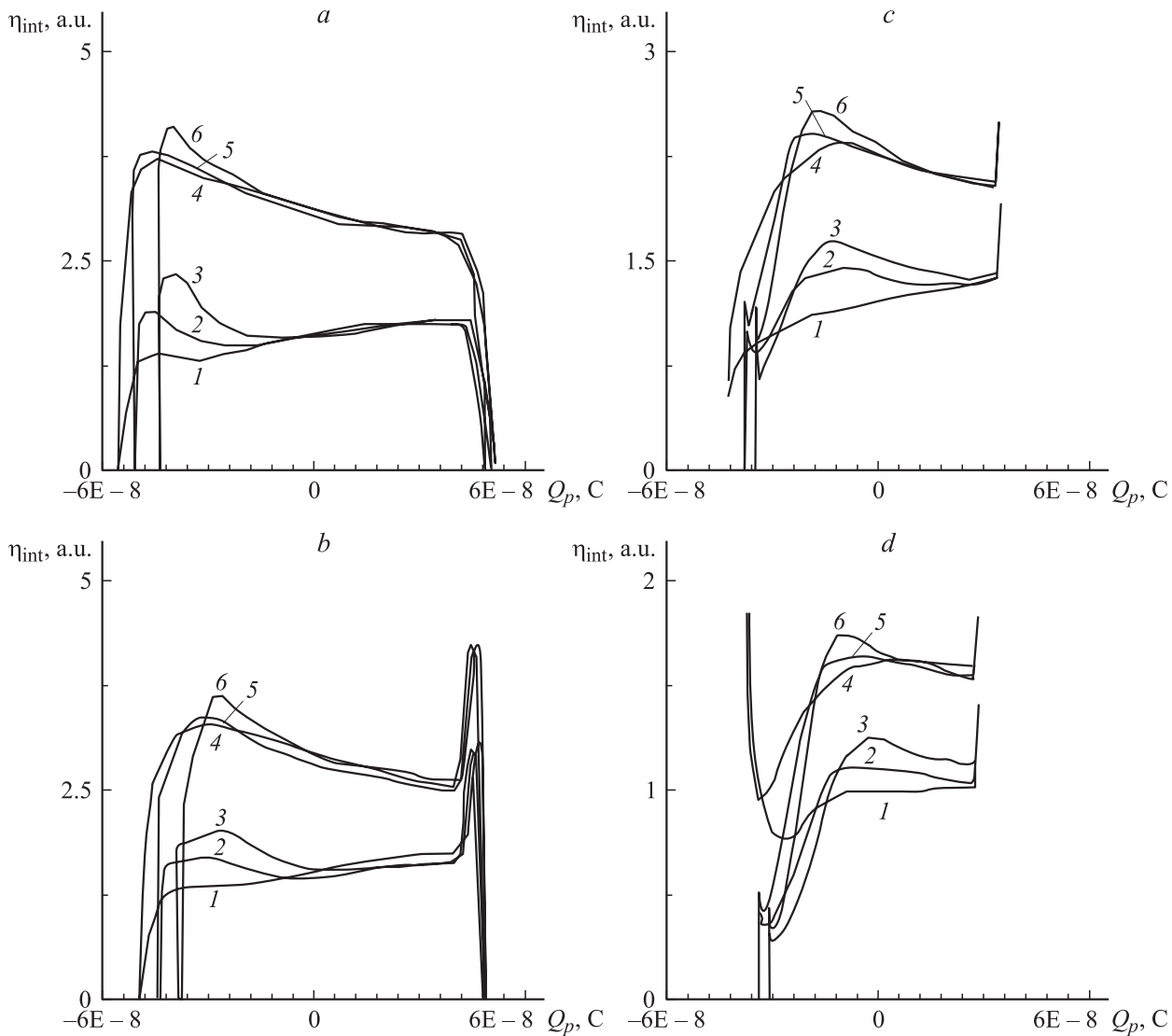


Рис. 4. Зависимости $\eta_{\text{int}}(Q_p)$. Частоты, режимы возбуждения и варианты те же, что и на рис. 3. Образец 1.

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 η_{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 η_{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-

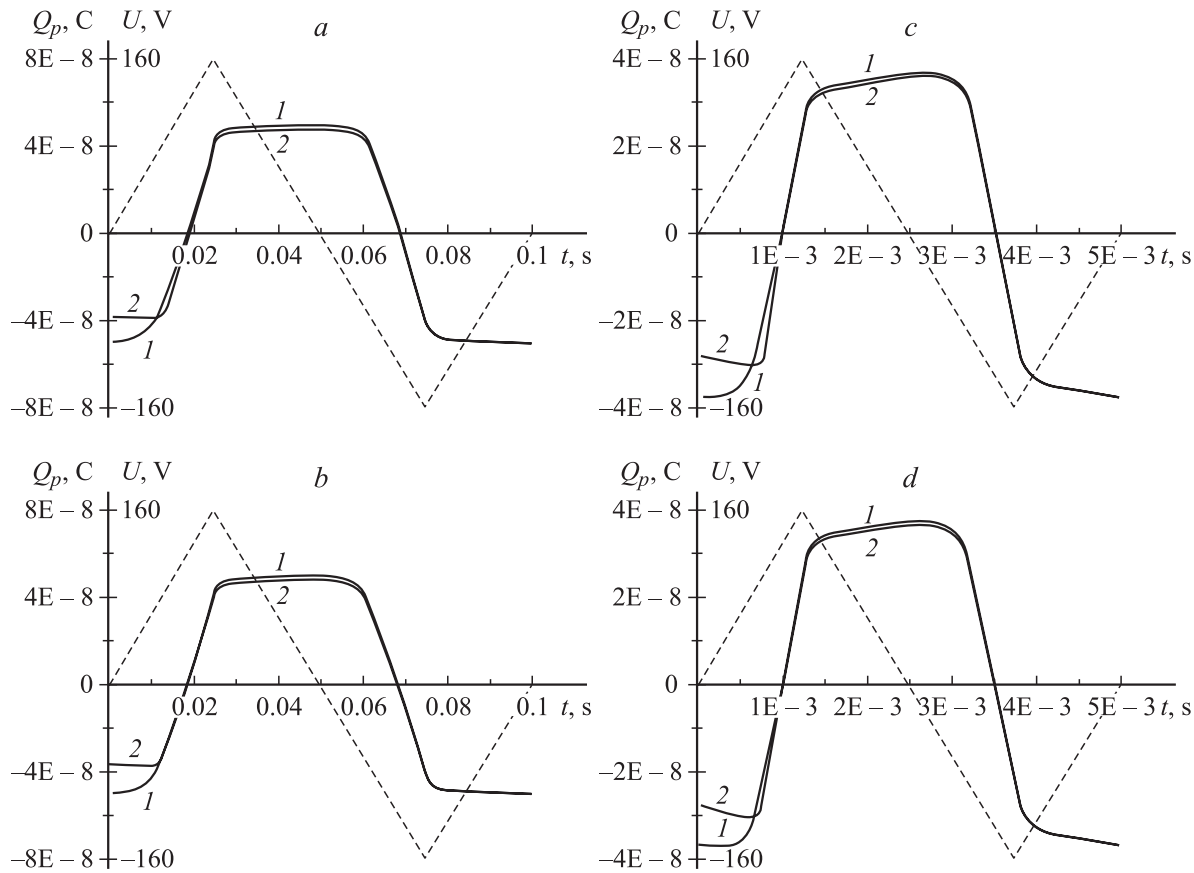


Рис. 5. Зависимости $Q_p(t)$. *a, b* — при частоте $f = 10 \text{ Hz}$; *c, d* — 200 Hz ; *a, c* — вариант $-Al$; *b, d* — вариант $+Al$; 1 — непрерывный режим возбуждения, 2 — режим возбуждения с однократным запуском с $T_s = 100 \text{ s}$. Образец 1.

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 $f \leq 10 \text{ Hz}$ 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 η_{int} и светотдачи η_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 η_{int} при V_m выше 125 V слабо зависит от V_m , достигая максимума при $V_m \approx 135 \text{ V}$. 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 $V_m \geq 125-130 \text{ V}$ (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 $f \geq 10 \text{ Hz}$ 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.

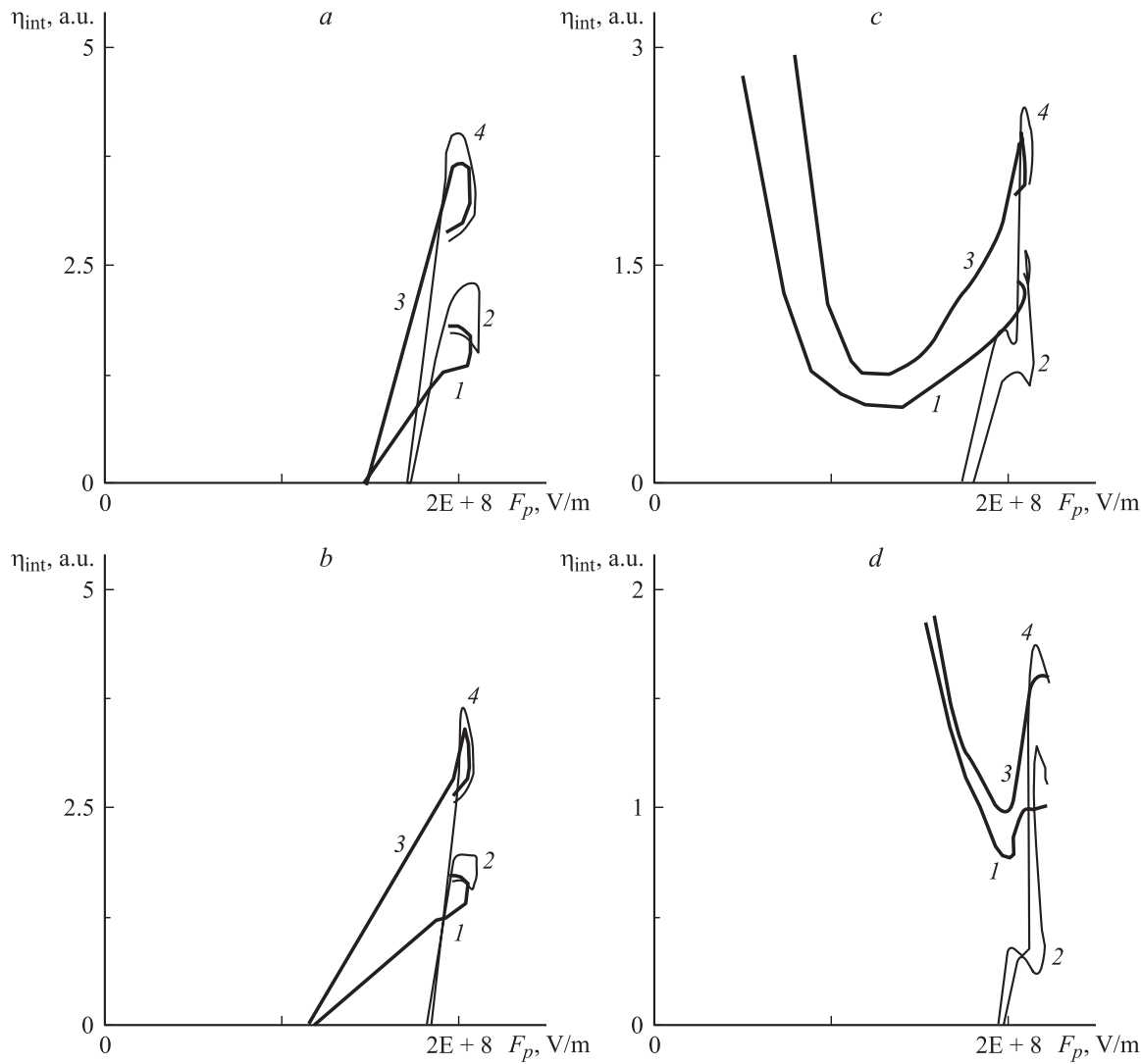


Рис. 6. Зависимости $\eta_{int}(F_p)$. Частоты те же, что и на рис. 3. 1, 3 — непрерывный режим возбуждения; 2, 4 — режим возбуждения с однократным запуском с $T_s = 100$ с; 1, 2 — вариант -Al; 3, 4 — вариант +Al. Образец 1.

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; σ — 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

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

τ^* — время жизни центров свечения в возбужденном состоянии; τ_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.

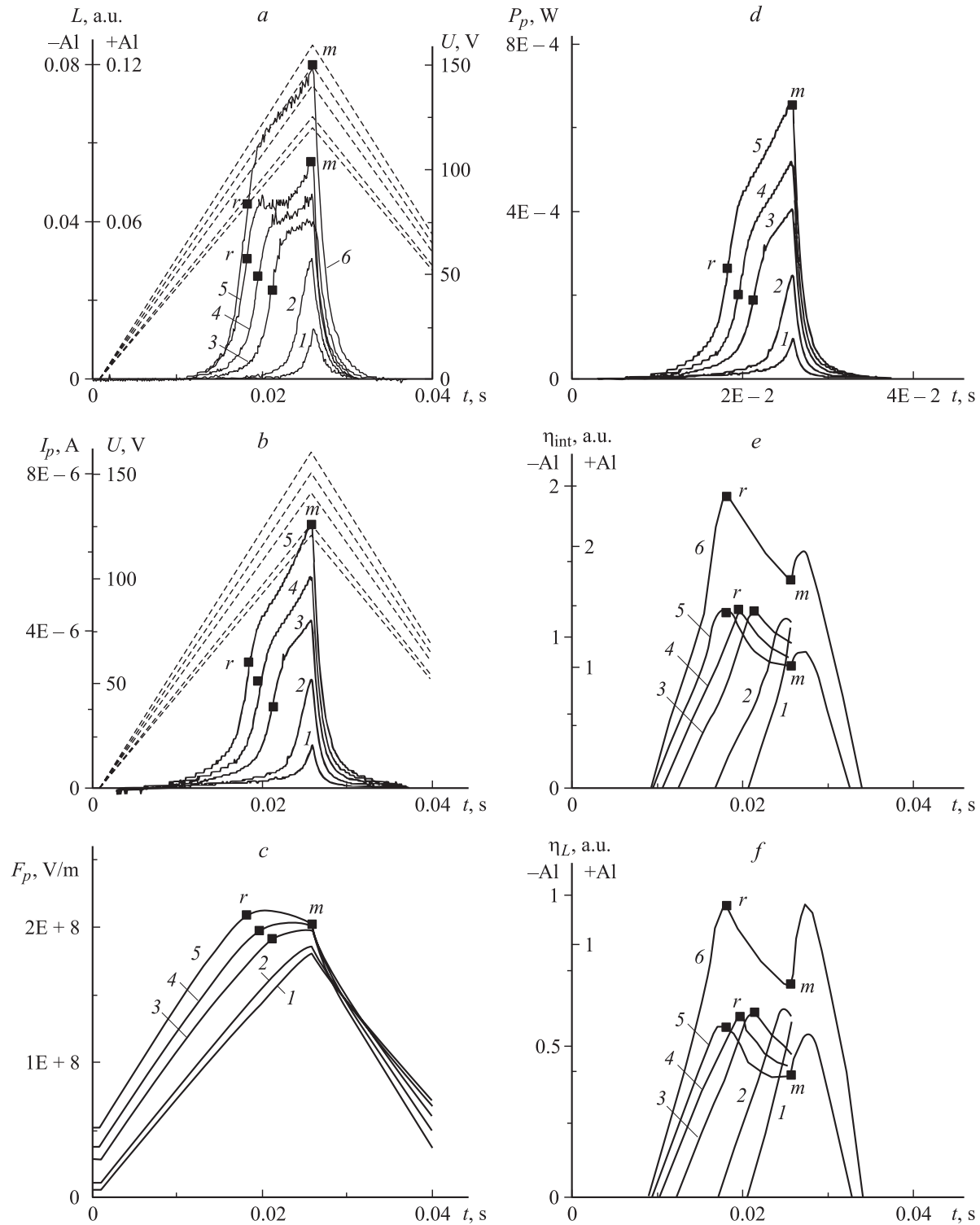


Рис. 7. Формирование зависимостей $\eta_{\text{int}}(t)$ и $\eta_L(t)$ при различных значениях V_m на частоте $f = 10$ Hz в режиме однократного запуска с $T_s = 1$ s. *a* — зависимость $L(t)$, *b* — $I_p(t)$, *c* — $F_p(t)$, *d* — $P_p(t)$, *e* — $\eta_{\text{int}}(t)$, *f* — $\eta_L(t)$. V_m , V: 1 — 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-

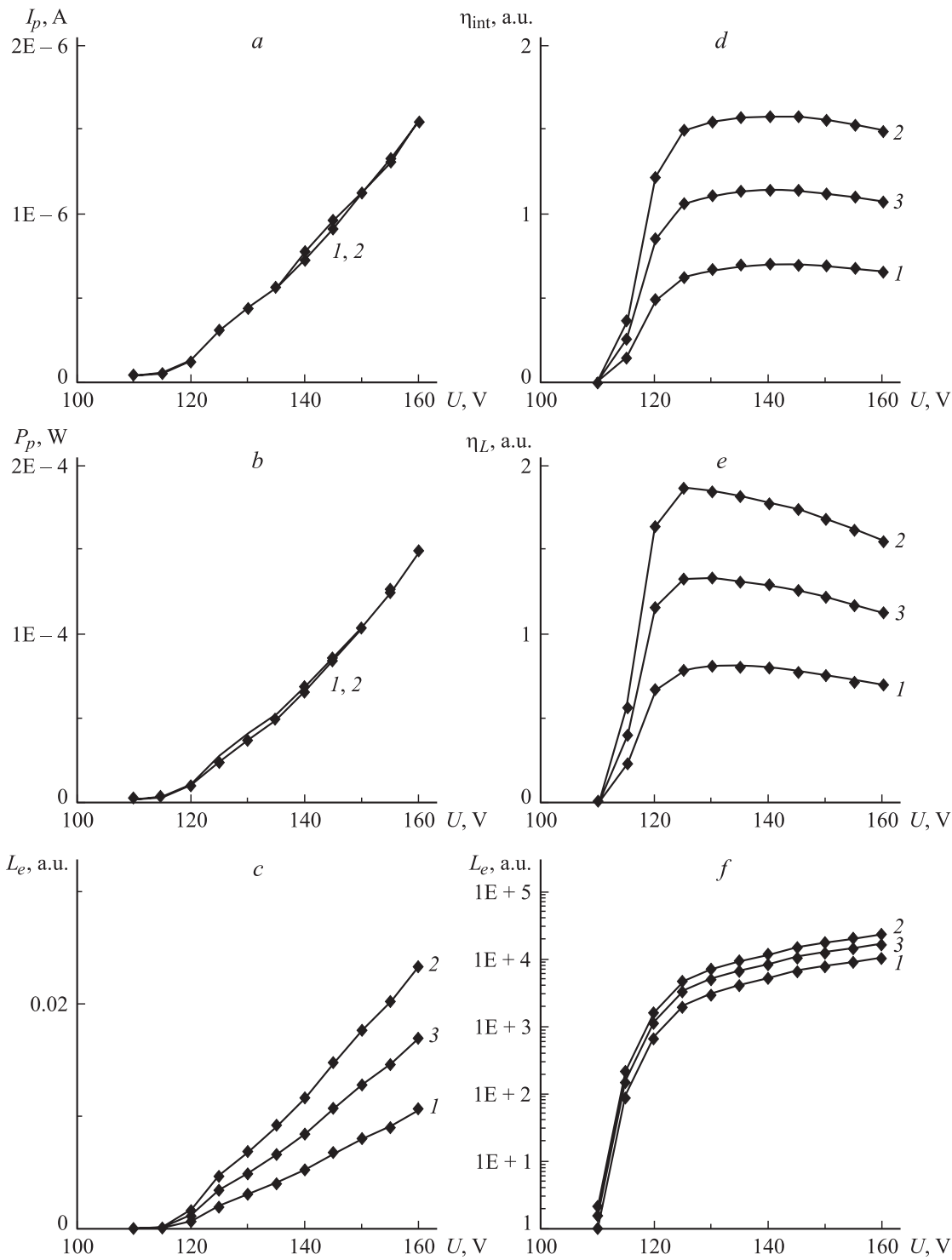


Рис. 8. Зависимости $I_{pe}(V_m)$ (a), $P_{pe}(V_m)$ (b), $L_e(V_m)$ (c), $\eta_{int}(V_m)$ (d), $\eta_L(V_m)$ (e) и $\lg L_e(V_m)$ (f): на частоте $f = 10$ Hz в режиме однократного запуска с $T_s = 1$ s. 1 — за полупериод напряжения для варианта $(-Al)$, 2 — для варианта $(+Al)$, 3 — среднее значение 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 $f = 50$ Hz и выше соседние волны яркости перекрываются, в результате чего на участке I релаксируют и центры свечения Mn^{2+} , возбужденные в предыдущем полупериоде напряжения $V(t)$, концентрация которых уменьшается, и центры 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 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 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 σ и независимости $\alpha(t)$ от $N^*(t)$ и τ^* 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 τ_4, τ_5 — постоянные спада тока $I_p(t)$, дает следующую зависимость $L(t)$:

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

где τ_1, τ_2, τ_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 $\tau^* = 1.4$ ms соотношение $\alpha(t) \ll 1/\tau^*$ выполняется в области $f < 200$ Hz. В самом деле, так как $\sigma \approx 2-4 \cdot 10^{-16}$ cm² [1,5], $S_e = 2$ mm², то на частоте $f = 50$ Hz при максимальных значениях тока $I_{pm} \approx 5 \cdot 10^{-5}$ A $\alpha(t)$ в соответствии с (12) равна $\alpha(t) \approx 5$ s⁻¹, а на частоте $f = 200$ Hz при $I_{pm} \approx 1.5 \cdot 10^{-4}$ A $\alpha(t) \approx 15$ s⁻¹. В то же время $1/\tau^* = 714$ 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 $\sim 10^8$ 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 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 $f < 2$ 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
τ_4 , ms	2.79	2.08	0.35	0.574	0.088	0.055	0.0199	0.0166
τ_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 τ_4 становятся соизмеримыми с τ^* [1]. На $f \geq 10$ Hz соизмеримыми с τ^* становятся и остальные τ (рис. 1, *a, b, e, f*), а при больших частотах f значения $\tau_1, \tau_2, \tau_3, \tau_4, \tau_5$ становятся меньше τ^* . 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 σ и P_r , а следовательно, и τ^* (9), (10), (11). При этом неизменность τ^* 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 τ_4, τ_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 τ_5 и времени жизни центров свечения τ^* 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 η_{int} и светоотдачи η_L от времени t и значений внутреннего квантового выхода η_{int} и светоотдачи η_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 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 η_{int} и η_L от времени, или область роста η_{int} и η_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 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 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] Поликристаллические 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.