

低压驱动薄膜电致发光激发效率 分布特性的实验研究

张家雨 叶永红 顾培夫 刘旭 唐晋发

(浙江大学现代光学仪器国家重点实验室, 杭州 310027)

摘 要 分析了利用探针层(probe-doped layer)实验方法来测量激发效率在电致发光器件的发光层中分布的机理, 并利用这种实验方法测量了激发效率在低压驱动薄膜电致发光器件的发光层中的分布特性和器件的激发特性。实验结果表明在这种低压驱动电致发光器件的发光层中激发效率是不均匀的, 其分布与器件被激发的程度有关。分析表明低压驱动电致发光的机理是由于发光层中电场强度的不均匀分布。

关键词 电致发光, 薄膜电致发光器件, 激发效率.

1 引 言

交流薄膜电致发光(AC-TEFL)显示器件具有亮度高、对比度好、视角大、工作温度范围宽、寿命长和效率高等特点, 在平板显示领域里具有相当重要的地位。但是该器件的驱动电压往往在 150 V 以上, 这给利用半导体集成电路来驱动器件带来了很大的困难, 影响了它的推广应用。因此设法降低其驱动电压是目前研究的一个主要方面^[1,2]。作者采用 $10^7 \Omega \cdot \text{cm}$ 数量级低电阻率的 $\text{Ta}_2\text{O}_5/\text{SiO}_2$ 、 $\text{Ta}_2\text{O}_5/\text{Al}_2\text{O}_3$ 复合介质层获得了低压驱动的 $\text{ZnS}:\text{Mn}$ 薄膜电致发光器件, 它的阈值电压在 40 V 以下。当驱动电压为 60 V、频率为 50 Hz 时, 发光效率在 4 lm/W 以上, 其发光亮度达到实用程度^[3]。

作者研究了发光层厚度、掺杂浓度、以及器件制备的工艺过程对发光亮度和发光效率的影响, 来优化这种低压驱动电致发光器件的结构和制备的工艺参数。为了进一步提高它的性能, 深入研究影响其发光效率的内在物理过程是非常必要的。探针层(probe-doped layer)方法是一种用来研究交流薄膜电致发光器件内在物理过程的有效实验方法^[4,5]。Benoit 等人利用此方法对常规交流薄膜电致发光器件进行了研究, 得到了一些十分有意义的结果。本文分析了利用探针层实验方法来测量激发效率在这种低压驱动电致发光器件的发光层中分布的原理, 并利用这种实验方法测量了激发效率的分布特性。

2 实验原理

发光层中各点的激发效率 η_{exc} 定义为

$$\eta_{exc} = N^* / Q_t \quad (1)$$

其中 Q_t 为穿越发光层的电荷面密度, N^* 为被测量处的被激发发光中心密度。 Q_t 可通过 Sawyer-Tower 电路测量器件的存储电荷量-电压变化曲线($Q-V$) 来标定^[6]。 $Q-V$ 闭合曲线所围的面积等于外加电压在一个变化周期中器件所消耗的能量(W)^[7], 因此在外加周期性脉冲电压作用下有

$$Q_t \propto W/V \quad (2)$$

其中 V 为脉冲电压的幅度。另一方面, 发光层中各点的 N^* 可通过探针层实验方法来标定。探针层实验方法的基本原理是: 制作一种特殊类型的电致发光器件, 发光层主要是由钝的基质材料组成, 一层相应的极薄膜掺杂基质材料(即探针层 probe-doped layer, 也就是一般意义上的发光层) 插入其中, N^* 可由在该处插入的探针层的发光亮度 B_0 来标定。这是因为如果掺杂浓度不高(对于掺杂 Mn^{2+} 应低于 0.8 mol%), 在外加周期性脉冲电压作用下有^[4,5]

$$N^* \propto dN^*/dt \propto B_0 \quad (3)$$

根据(1)式、(2)式和(3)式, 有

$$\eta_{exc} \propto VB_0/W \quad (4)$$

因为所研究的是激发效率在发光层中的分布特性, 而非其绝对数值, 只需在相同情况下记录并计算 VB_0/W 就足够了。

Benoit 等人利用存储电荷量 Q 乘以一个常数来标定 O_t ^[5]。这种方法有着很大的误差, 这是因为 Q 与 Q_t 之间存在复杂的关系, 而非线性关系。基于所研究的是激发效率在发光层中的分布特性, 而非其绝对数值, 因此本文作者用(2)式来标定 Q_t 。

3 实 验

本文采用掺杂 0.8 mol% / Mn^{2+} 来进行探针层实验, 所采用的三种不同结构如图 1 所示。

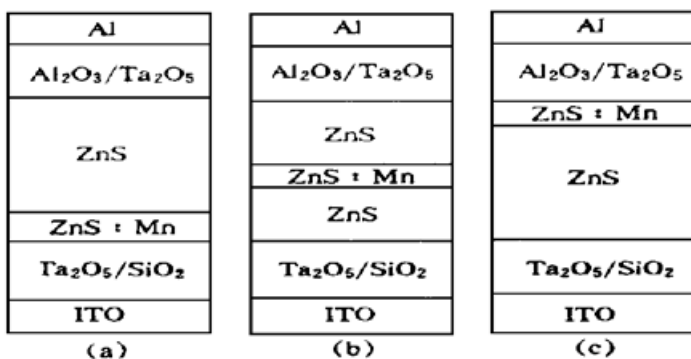


Fig. 1 The schematic structures of AC-TFEL samples for the probe-doped layer experiment

它们的 ZnS : Mn 探针层分别插入三个不同的位置, 其中结构 A 的探针层靠向 ITO 电极一侧的介质层/发光层界面, 结构 C 的靠向 Al 电极一侧的界面, 结构 B 处于中心位置。器件采用热蒸发方法制备, 器件的制备过程如下: 在涂覆氧化锡铟透明电极的玻璃基片上依次沉积 SiO_2 层(厚度 500 nm)、 Ta_2O_5 层(100 nm)、ZnS 和 ZnS : Mn 探针层(ZnS : Mn^{2+} 厚度为 100 nm, 纯 ZnS 的总厚度为 500 nm)、 Ta_2O_5 层(100

nm)、 Al_2O_3 (500 nm) 和 Al 电极, 形成夹层结构的交流薄膜电致发光器件。有关实验中 SiO_2 、 Ta_2O_5 、 Al_2O_3 和 ZnS : Mn 等薄膜的制备工艺过程已有报道^[3]。并且用相同的工艺条件制备出低压驱动交流薄膜电致发光器件(ZnS : Mn^{2+} 的厚度为 600 nm)。

为了避免 Mn^{2+} 离子的扩散以精确控制探针层的厚度和位置, Marelllo 等人不对 ZnS 和 ZnS : Mn 探针层进行高温退火处理^[4], 但是这样会带来负面效应, 在 ZnS : Mn 和 ZnS 中存在着高密度的缺陷, 不仅影响电子在其中的加速过程, 而且影响被激发发光中心的辐射过

程。Benoit 等人选择采用与实际制备交流薄膜电子发光显示器件工艺一致的退火处理, 以便获得的实验结果将能直接地反映器件的真实情况, 并且证实高温退火不会对探针层的厚度和位置带来显著的变化^[5]。因此作者选择在真空室中进行 350℃、1 小时的高温退火处理。所获得的实验结果也表明 Mn^{2+} 离子大部分仍停留在探针层中。

4 结果和讨论

这三种结构样品的激发效率随外加电压的变化特征曲线 $\eta_{exc}(V)$ 如图 2 所示, 其中图 2(a) 对应于 ITO 电极接外加脉冲电压负极, Al 电极接正极的情形, 而图 2(b) 正好相反。这三种结构样品在正反两种极性的外加电压激励下, 它们的激发效率都是先急剧增加, 然后很快趋向饱和。但探针层的位置不同, 它们的阈值电压 V_{th}^* 显著不同。 V_{th}^* 是指 $\eta_{exc}(V)$ 曲线与 V 轴的交点, 它对应于样品开始发光的外加电压值。从图 2(a) 和(b) 可以看出这种低压驱动电致发光器件发光层中的激发效率分布有如下特征: 激发效率在发光层中是不均匀的, 其分布与激励电压幅度有关。位于阳极界面附近、中间位置和阴极界面附近的探针层的阈值电压 V_{th}^* 依次增大。随着激励电压的增加, 它们的激发效率依次趋向饱和。

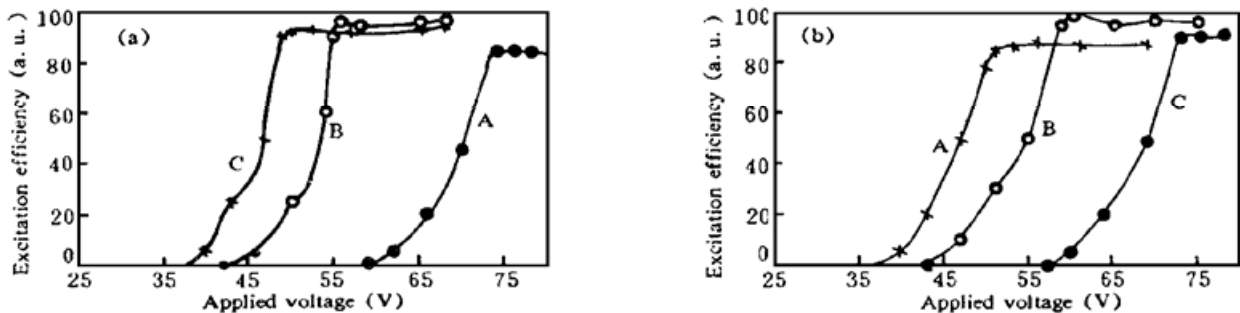


Fig. 2 The excitation efficiency η_{exc} vs applied voltage V characteristics of the AC-TFEL samples for the structures A, B and C, (a) for that the ITO electrode is the cathode, and (b) for that the ITO electrode is the anode

结构为 glass/ITO/SiO₂/Ta₂O₅/ZnS : Mn/Ta₂O₅/Al₂O₃/Al (其中 ZnS : Mn 的厚度为 600 nm) 器件的激发效率随外加电压的变化特征曲线 $\eta_{exc}(V)$ 如图 3 所示, 其中曲线 A 对应于 ITO 电极接外加脉冲电压负极、Al 电极接正极的情形, 而曲线 B 正好相反。这两种情形的激发效率变化特征类似, 当外加电压超过器件的阈值电压后, 其值由零缓慢地趋向饱和。器件的激发效率体现了两界面之间发光层各点激发的累积结果, 其特征很容易由针探层实验结果给予解释。当外加电压的值依次超过发光层各点的阈值电压 V_{th}^* (沿从阳极界面到阴极界面方向), 被激发的发光层厚度将随之增加, 器件的激发效率也随之增加。当整个发光层被激发后, 激发效率趋向饱和。

常规的交流薄膜电致发光器件(介质层的电阻率在 $10^9 \Omega \cdot \text{cm}$ 以上)的激发效率随外加电压的升高急剧增加, 然后很快趋向饱和。利用探针层方法, Marello 和 Benoit 等人对激发效率在其发光层中的分布进行了研究, 实验结果是激发效率在发光层中是不均匀的, 其低的值总是位于阳极界面附近^[4,5]。本文的实验结果与 Marello 和 Benoit 等人不同的原因在于所用样品的介质层电阻率有显著的差别。

对于掺杂浓度较低的情形, 是发光层中电场强度的不均匀分布导致了激发效率的不均匀

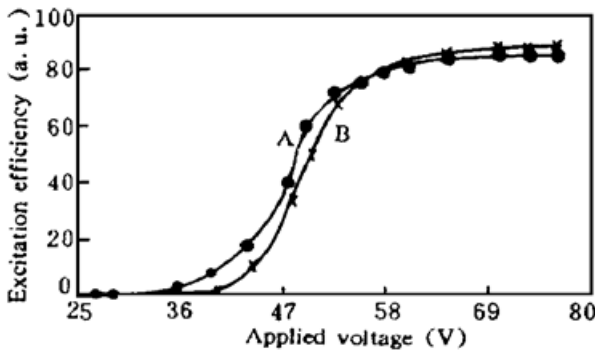


Fig. 3 The excitation efficiency η_{oi} vs applied voltage V characteristics of the AC-TFEL device, where curve A for that the ITO electrode is the cathode, and B for that the ITO electrode is the anode

分布^[4,5]。一般认为在发光层中只有当电场强度达到材料的击穿强度(对 ZnS 而言为 $1\sim 2\times 10^6$ V/cm)时,隧入其中的电子才能加速到足够的能量来激发发光中心^[7]。因此发光层中 V_{th}^* 从阳极到阴极依次增大这一事实说明:随着激励电压的增加,靠近阳极界面附近的那部分发光层的电场强度首先达到发光层材料的击穿强度并在其中产生发光现象。如果施加电压继续增大,发生击穿的那部分发光层将向阴极方向扩展,即参与发光的发光层厚度增大,发光亮度增强。随着外加交流电压极性反向,发光层的击穿发光部分将发生在另一侧。因此利用低电阻率复合介质层获得低压驱动电致发光的机理是由于发光层中电场强度的

的不均匀分布。

最后讨论一下退火处理对 Mn^{2+} 离子在样品发光层中分布的影响。从图 2(a) 和(b) 可以看出在较高电压激励下位于中间位置的探针层激发效率比界面附近的高。这可能是因为 ZnS 结晶质量不同和退火处理所导致的 Mn^{2+} 离子扩散造成的。但是样品中探针层所处的位置不同,实验结果毕竟还是有很大的差别,因此,认为在探针层中的 Mn^{2+} 离子经退火后大部分仍停留其中。图 3 的结果也间接地说明了这一点。假如退火处理导致 Mn^{2+} 离子大范围扩散,探针层实验中的激发效率应缓慢地趋向饱和。

结 论 采用 $10^7 \Omega \cdot \text{cm}$ 数量级低电阻率的 Ta_2O_5/SiO_2 、 Ta_2O_5/Al_2O_3 复合介质层获得了低压驱动的 ZnS:Mn 薄膜电致发光器件。分析了利用探针层实验方法来测量激发效率在电致发光器件发光层中分布的机理,并利用这种实验方法测量了激发效率在低压驱动电致发光器件发光层中的分布特性和器件的激发特性。实验结果表明在这种低压驱动电致发光器件的发光层中激发效率是不均匀的,其分布与器件被激发的程度有关。器件的激发效率随外加电压的变化缓慢地趋向饱和。进一步分析表明低压驱动电致发光的机理是由于发光层中电场强度的不均匀分布。本文的工作将为进一步提高这种低压驱动交流薄膜电致发光显示器件的性能提供了理论根据。

参 考 文 献

- [1] Junichi Ohwaki, Haruki Kozawaguchi, Bunjiro Tsujiyama, Green electroluminescence in low-voltage-driven metal-insulator-semiconductor structure devices. *Japan J. Appl. Phys.*, 1983, **22**(7): 1133~1136
- [2] Tadatsugu Minami, Toshihiro Miyata, Shinze Takata *et al.*, High-luminance green $Zn_2SiO_4:Mn$ thin film electroluminescent devices using an insulating $BaTiO_3$ ceramic sheet. *Japan J. Appl. Phys.*, 1991, **30**(1B): 1117~1119
- [3] 张家雨, 顾培夫, 刘旭等, 低压驱动薄膜电致发光特性及机理的研究. *光学学报*, 1996, **16**(4): 551~555
- [4] V. Marelllo, L. Samuelson, A. Onton *et al.*, Probe layer measurements of electroluminescence excitation in ac thin-film devices. *J. Appl. Phys.*, 1981, **52**(5): 3590~3599
- [5] J. Benoit, C. Barthou, P. Benalloul, Excitation efficiency in thin-film electroluminescent devices: Probe

layer measurements. *J. Appl. Phys.*, 1993, **73**(3) : 1435~ 1442

[6] C. B. Sawyer, C. H. Tower, Rochelle salt as a dielectric. *Physical Review*, 1930, **35**(2) : 229~ 235

[7] D. H. Smith, Modeling A. C., Thin-film electroluminescent device. *J. Lumin.*, 1981, **23**(1, 2) : 209~ 235

Experimental Study of Excitation Efficiency Distribution in Low-Voltage-Driven Thin Film Electroluminescent Devices

Zhang Jiayu Ye Yonghong Gu Peifu Liu Xu Tang Jingfa

(State Key Laboratory of Modern Optical Instrument, Zhejiang University, Hangzhou 310027)

(Received 9 November 1995; revised 6 March 1996)

Abstract In this paper, we analyze the mechanism of the probe-doped-layer measurement to study the excitation efficiency distribution across the phosphor in thin film electroluminescent devices. The characteristics of excitation efficiency and its distribution across the phosphor are measured in low-voltage-driven thin film electroluminescent devices fabricated in our laboratory. The experimental results prove that the excitation efficiency across the phosphor of the device is not homogeneous, and its variation depends on the applied voltage. We infer that the low-voltage-driven thin film electroluminescent mechanism is attributed to inhomogeneous distribution of electric field in the phosphor.

Key words electroluminescence, thin film electroluminescent device, excitation efficiency.