

유기 발광 소자의 전기 전도 기구 연구

정동희¹, 김상걸², 정 준³, 장경욱⁴, 홍진웅⁵, 이준웅⁶, 김태완⁷
광운대학교¹, 홍익대학교², 경원전문대학³, 한국전기전자재료학회^{4~7}

Study on electric conduction mechanism of organic light-emitting diodes

Dong-Hoe Chung¹, Sang-Keol Kim², Joon Jeong³, Kyung-Uk Jang⁴,
Jin-Woong Hong⁵, Joon-Ung Lee⁶, Tae Wan Kim⁷
Kwangwoon University¹, Hongik University², Kyungwon College³, KIEEME^{4~7}

Abstract

We made use of Alq₃ which is the representative light-emitting material. Electric conduction mechanism and luminance characteristics were analyzed in this paper. We have also measured current density-thickness-voltage characteristics with thickness variation from 60 to 400 nm. We analyzed the low electric and the high electric field in theoretically. Also, maximum luminous efficiency is the thickness 200 nm of Alq₃ in luminous-thickness characteristics.

Key Words : organic light-emitting diodes, conduction mechanism, luminous efficiency, thickness.

1. 서 론

M. Pope 등이 1963년에, 단결정 antracen의 유기 발광 현상을 보고한 이후로 많은 연구가 진행되어 오고 있다. 1987년에 Tang과 VanSlyke가 저분자인 N,N'-diphenyl-N,N'-di(m-tolyl)-benzidine (TPD)와 tris(8-hydroxyquinolinato) aluminum (Alq₃)를 이용하여 낮은 전압에서 녹색 발광을 처음으로 얻었고, 1990년에는 캠브리지 대학교의 Friend가 고분자인 poly(phenylenevinylene) (PPV)를 이용하여 녹색 발광을 처음으로 얻었다[1].

이러한 유기 발광 소자는 미래의 디스플레이 장치로써 유력시되고 있다. 특히 미래의 주거와 사무 공간에 대한 구입비와 유지비가 증가하면서 실내 공간을 더욱 효과적으로 운영할 필요성이 대두되고 있다. 따라서 미래의 디스플레이 장치는 얇고 가벼우며, 고화질이면서도 실내공간을 적게 차지하는 대화면의 디스플레이 장치가 요구되고 있다. 이러한 조건을 만족시킬 수 있는 디스플레이 소자 중의 하나가 유기 발광 소자이다. 이러한 디스플레이 소자의 보다 효과적인 이용을 위하여 유기 발광 소자의 전도 현상을 규명하는 것이 중요하게 되었다. 유기 발광 소자의 전도 현상은 I. D.

Parker 등이 MEH-PPV의 두께 변화와 음극 물질에 따른 전도 현상에 대하여 소개하였고, C. H. Lee 등은 Poly (p-phenylene)의 두께 변화에 대한 전도 현상을 설명하였다[2~4].

현재 유기 발광 소자의 발광층과 전자 주입층으로 많이 사용되고 있는 물질로써 Alq₃가 있다. 따라서 본 연구에서는 Alq₃의 두께 변화에 대한 휘도와 발광 효율 및 전도 현상을 알아보았다[5].

2. 실험

유기 발광 소자의 발광층인 Alq₃의 전도 현상을 연구하기 위하여 소자의 구조를 ITO/Alq₃/Al 구조로 제작하였다. 그림 1(a)는 Alq₃의 분자 구조이고 (b)는 소자의 구조를 나타내고 있다. ITO/Alq₃/Al 구조에서 Alq₃의 두께를 각각 60, 80, 100, 200, 300, 400 nm까지 변화하면서 전류-전압-휘도 특성을 분석하여 전도 특성과 발광 특성을 분석하였다.

양극으로 사용된 ITO (Indium-Tin-Oxide) 기판은 삼성 코닝사에서 제조한 것으로 표면 저항이 15 Ω/□이고 두께가 170 nm이다. ITO 기판의 patterning은 3M 사의 절연 테이프를 너비 5 mm로 테이핑 처리하고 염산과 질산을 각각 3:1의 부

피 비로 혼합한 증기를 이용하여 patterning하였다. Patterning된 ITO는 클로로포름으로 20분간 초음파 세척을 하였다. 그리고, 중류수와 과산화수소 그리고 암모니아를 각각 5:1:1의 부피의 비로 혼합한 용액 속에서 80 °C로 60분간 가열하였으며, 다시 클로로포름과 중류수로 각각 20분씩 초음파 세척한 후, 질소 가스를 이용하여 건조하였다. 본 연구에서 사용한 유기물 Alq₃는 TCI사의 제품으로 베이스 압력 5×10^{-6} torr의 진공도에서 0.7 Å/s의 비율로 ITO 위에 열 증착시켰다.

음극으로 사용한 Al도 베이스 압력 5×10^{-6} torr의 진공도에서 두께 150 nm, 너비 3 mm로 열 증착하였다. Al은 두께가 10 nm까지 0.5 Å/s의 비율로 열 증착하였고, 10 nm~150 nm의 두께는 10 Å/s의 비율로 열 증착하였다. 발광 면적은 ITO 너비(5 mm)와 음극 너비(3 mm)의 합으로써 15 mm²의 크기를 갖는다.

전류-전압-휘도 특성은 Keithley 236 source-measure unit, 617 electrometer와 Si-photodiode (Centronics co. OSD100-5T)를 이용하여 대기 중에서 측정하였다.

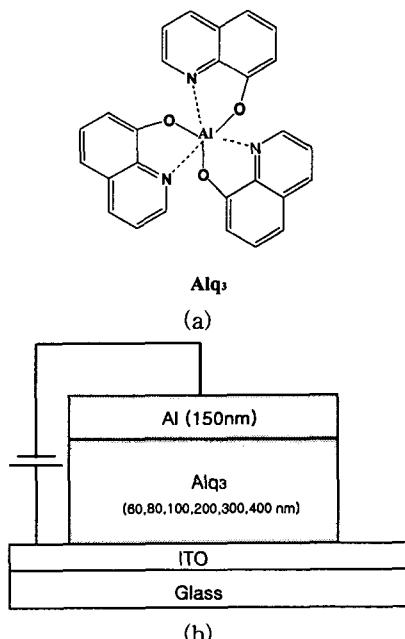


그림 1. (a) Alq₃의 분자 구조 (b) ITO/Alq₃/Al 구조.

Fig. 1. (a) Molecular structure of Alq₃
(b) ITO/Alq₃/Al device structure.

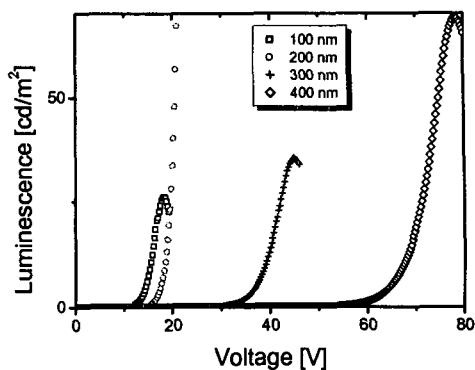


그림 2. 두께 변화에 따른 전압-휘도 특성.

Fig. 2. Luminescence-voltage with thickness variation.

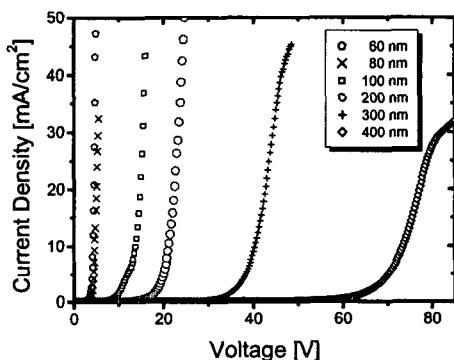


그림 3. ITO/Alq₃/Al 구조에서 두께의 변화에 따른 전압-전류 특성.

Fig. 3. Current density-voltage characteristics with thickness variation in ITO/Alq₃/Al device structure.

3. 결과 및 고찰

그림 2는 그림 1(b)의 구조에서 Alq₃의 두께 변화에 따른 전압-휘도 특성을 나타내고 있으며, 그림 3은 Alq₃의 두께 변화에 따른 전압-전류 특성 곡선을 나타내고 있다.

그림 1(b)의 ITO/Alq₃/Al 소자 구조에 매우 낮은 전압이 인가되며 주입되는 케리어보다 열적으로 발생된 케리어가 지배적이라고 할 수 있다. 이 때, 유기물 Alq₃ 양단의 전류 밀도는 옴(ohm) 법칙에 의하여 다음과 같다. 즉,

$$J_{Ohm} = en_0\mu \frac{V}{d} \quad (1)$$

이다. 여기서 e 는 전하량, n_0 는 열적으로 발생된 진성 케리어 밀도, μ 는 케리어의 이동도, V 는 인가 전압, d 는 유기물의 두께이다.

반면에 인가 전압을 증가시킴에 전극에서 Alq₃의 전도대로 주입되는 전하는 공간 전하(space charge)를 형성하고 전류는 공간 전하 층에 의하여 제한된다. 이를 공간 전하 제한 전류(space charge limited current : SCLC)라고 하다. SCLC 영역에서 Alq₃ 층에 트랩이 없다고 가정하면, 전압과 전류의 관계식은 다음과 같다.

$$J_{SCLC} = \frac{9}{8} \varepsilon \mu \frac{V^2}{d^3} \quad (2)$$

만약 트랩이 존재하고 트랩이 채워지지 않았다고 가정하면, 전자가 트랩에 포획됨으로써 전류는 감소하게 된다. 따라서 식 (2)는 다음과 같이 바꿀 수 있다.

$$J_{SCLC} = \frac{9}{8} \varepsilon \theta \mu \frac{V^2}{d^3} \quad (3)$$

가 된다. 식 (2)와 (3)을 Mott와 Gurney 방정식이라고 부른다. 여기서

$$\theta = \frac{n}{n + n_t} \quad \text{또는} \quad \theta = \frac{p}{p + p_t} \quad (4)$$

으로 각각 전자 및 정공에 대한 비를 나타낸 것이다. 여기서, n 은 자유 전자의 밀도, n_t 는 트랩된 전자의 밀도, p 는 자유 정공의 밀도, 그리고 p_t 는 트랩된 정공의 밀도이다. Kusano 등이 터널링을 연구하기 이전에는 주로, 공간 전하 제한 전류(SCLC)로 운반자에 대한 연구를 하였다.

공간 전하 제한 전류가 지배적인 영역에서 일정 전압에 대하여 식 (2)와 (3)은 다음과 같이 정의할 수 있다. 즉,

$$\log \left(\frac{J_{SCLC} \cdot d}{V} \right) \propto 2 \quad (5)$$

그림 4는 그림 3에서 공간 전하 제한 전류(SCLC)가 흐르는 영역, 즉 인가 전압이 3.5 V로 일정한 경우에 대하여 전류-두께-전압 (current-thickness-voltage) 특성을 나타내고 있다. 식 (4)에서 알 수 있듯이 이론적인 기울기 값은 2이고, 실험적으로 분석한 값은 2.07로써 이론적 계산값과 거의 일치함을 알 수 있다.

비결정형 물질은 single discrete 에너지 준위로 설명되지 못한다. 이 경우, 트랩 밀도는 다음 식과 같이 금지대 폭 내의 에너지 E 에서 지수 함수 분포 형태로 나타난다.

$$h(E) = \frac{N_t}{E_c} \exp \left(-\frac{E}{E_c} \right) \quad (6)$$

여기서, N_t 는 트랩 중심 밀도이고 E_c 는 특성 에너지이다. 식 (6)에서, 전류 밀도는 다음과 같다.

$$J \propto \frac{V^{m+1}}{d^{2m+1}} \quad (7)$$

식 (7)이 성립하는 영역은 인가 전계가 고전계인 영역으로 발광 현상을 일으킨다. 이 영역은 전자의 터널링 또는 호평 모형으로 해석되며, 일반적으로 $m \geq 6$ 인 값을 나타낸다. 만일 m 값이 충분히 크다고 가정하면, 식 (14)는 $\log V / \log d = 2$ 를 만족하게 된다.

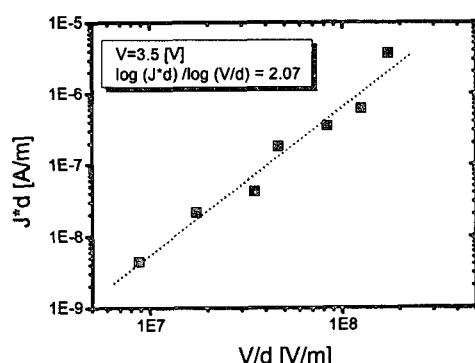


그림 4. 전류-두께-전압 특성.

Fig. 4. Current-thickness-voltage characteristics.

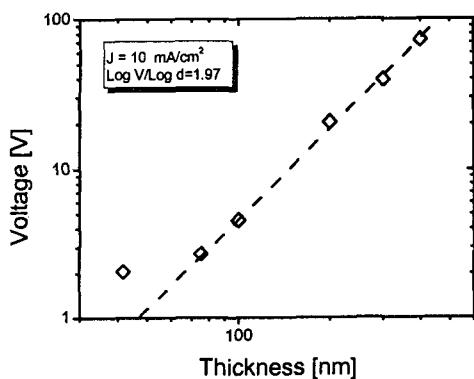


그림 5. 발광 영역에서의 두께-전압($d-V$) 특성

Fig. 5. Thickness-voltage characteristics of light-emitting regime.

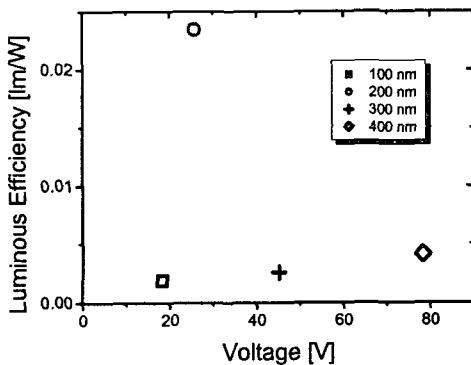


그림 6. 두께 변화에 따른 발광 효율 특성.

Fig. 6. Luminous efficiency characteristics with thickness variation.

그림 5는 고전계가 인가되는 발광 영역에서의 두께-전압($d-V$) 특성이다. 실험적으로 분석한 값은 1.97로 이론값 2와 거의 일치한다.

그림 6은 서로 다른 두께에서 발광 효율을 나타내고 있다. 두께 변화에 따른 최대 효율은 200 nm의 두께에서 0.02343 lm/W으로 측정되었고, 200 nm 이외의 두께에서는 효율이 감소하는 것을 알 수 있었다.

4. 결 론

ITO/Alq₃/Al 소자 구조에서 Alq₃의 두께 변화에 따른 휘도 특성과 전도 특성을 분석하였다. 발광

휘도를 보면, 200 nm에서 최대 휘도와 최대 발광 효율을 나타낸다는 것을 실험을 통하여 알 수 있었다. 전도 특성은 저전계 영역인 공간 전하 제한 전류(SCLC) 영역과 발광 영역인 고전계 영역으로 분류하였다. SCLC 영역에서는 식 (5)에 의하여 $\log(J*d)/\log(V/d) \approx 2$ 의 관계가 성립한다. 한편, 발광 현상을 일으키는 고전계 영역에서는 $\log V/\log d \approx 2$ 를 만족하게 된다.

감사의 글

이 논문은 2002년 산업자원부 지원 과제(고효율 고분자 EL 재료의 개발)에 의하여 수행되었으며, 이에 감사 드립니다.

참고 문헌

- [1] C. W. Tang, S. A. VanSlyke, Organic Electro luminescent Diodes , *Appl. Phys. Lett.* Vol. 51, p. 913, 1987.
- [2] I. D. Parker, "Carrier tunneling and device characteristics in polymer light-emitting diodes", *J. Appl. Phys.*, Vol. 75, No. 3, p. 1658, 1994.
- [3] Ma Dongge and I.A. Hummelgen, Charge carrier mobility in electroluminescent alternating block copolymers , *J. Appl. Phys.*, Vol. 86, No. 6, p. 3181, 1999.
- [4] J. W. Jeon, G. W. Kang, C. H. Lee, W. J. Song and C. Seoul, Charge Carrier Tunneling in the Light-Emitting Diodes of Poly (p-phenylene) Thin Films , *Journal of The Korean Physical Society*, Vol. 36, No. 6, p. 346, 2000.
- [5] Sang-Keol Kim, Efficiency Improvement and Electrical Properties of Organic Light-Emitting Diodes , Ph.D. Thesis, p. 35, 2002.