

## 유기발광소자의 발광층 두께변화에 따른 임피던스 특성 분석

안준호, 이준웅, 정동희, 이성일, 송민중, 김태완  
광운대학교, 신천중학교, 충주대학교, 광주보건대, 홍익대학교

### Characteristics of impedance spectroscopy depending on thickness of emissive layer in Organic Light-Emitting Diodes

Joon Ho Ahn, Joon-Ung Lee, Dong-Hoe Chung, Sung-ill Lee, Min-Jong Song, and Tae Wan Kim  
Kwangwoon Univ., Sinchun Middle School, Chungju Univ., Kwangju Health Col., Hongik Univ.

#### Abstract

유기발광소자의 발광층의 두께에 따른 임피던스의 변화를 살펴보았다. 임피던스는 두께에 따라 저항의 변화에 따른 의존성을 보이며, 그에 따른 임피던스와 Cole-Cole 반원의 변화, 두께에 따른  $1/\tau$ 의 변화를 살펴보았다. 발광층의 두께는 각각 100, 200, 300 nm의 두께로 열증착하여 실험하였고, 소자의 구조는 ITO/Alq<sub>3</sub>/Al의 구조로 측정하였다.

유기발광소자의 발광층인 Alq<sub>3</sub>의 두께가 증가함에 따라 임피던스의 크기가 증가하고, 위상각의 크기는 100nm의 경우 0V에서 용량성을 보이다가 6~10V까지 부성저항특성을 나타낸 후 약 22V에서 저항성을 나타내고, 200과 300 nm의 경우 12V까지 용량성을 나타내다 이후 22V 근방에서 0°에 가까워지며 저항성을 나타내는 것을 알 수 있었다. 또한 두께에 따른 Cole-Cole 반원을 살펴보면 두께가 증가할수록 반원의 크기가 증가하는 것을 알 수 있으며, 이를 통해 간단한 등가회로를 예측할 수 있었다. 그리고 벌크내의 용량성(C<sub>p</sub>)을 측정하여 두께의 증가에 따라 C<sub>p</sub> 값이 감소하는 것을 알 수 있었다.

keyword : impedance, thickness, capacitance, Cole-Cole plot,

### 1. 서론

임피던스는 절연체에 바이어스 전압을 인가하고 주파수에 따른 전기적인 특성을 살펴보는 방법으로 오래된 역사를 가지고 있으며, 유기발광소자에 관한 임피던스 연구는 고분자를 중심으로 활성화되어 몇몇 연구 결과를 가지고 있다.

1995년 Nguyen[1]은 PPV를 이용한 주파수에 따른 용량 성분을 분석하였고, 그에 따른 컨던턴스, tanD 등을 분석하였다. 고주파수에서는 벌크 영역에서의 완화를 보이고, 저주파수에서는 전극과 계면 사이에서 완화현상을 보인다고 주장하였다. 또한 Cole-Cole 반원을 통해 각각 계면과 벌크내에 RC 병렬로 연결된 회로와 이것이 직렬로 연결된 등가 회로를 제시하였다. Harrison[2]은 PPV와

MEH-PPV의 용량성분을 분석하고, 쇼트키 다이오드 특성으로 해석하였다.

Li[3] 등은 LED(light-emitting diodes)와 LEC(light-emitting chemical-cell)의 비교를 통해 LED의 등가회로를 제시하면서 ITO의 저항 R<sub>0</sub>를 직렬로 연결한 RC 병렬 회로로 제시하였다. 또한 단층이지만 두 개의 Cole-Cole 반원으로 나타난 등가회로를 해석하고 작은 반원은 음전극 Al과 고분자가 계면에서 결합하여 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>의 얇은 층을 만든 것으로 해석하였다.

또 Jonda[4]는 논문에서 PVK 등의 고분자와 Alq<sub>3</sub>를 이용하여 각각 단층과 복층의 임피던스를 측정하고 Cole-Cole 반원의 분석을 통해 임피던스의 전압에 관한 의존성을 나타내고, 등가회로를 통해 전극과 유기물간의 접촉저항으로 해석하고, 각각 R<sub>0</sub>와 RC의 병렬 회로의 직렬 회로로 보았다.

또한 복층에서는 두 개의 Cole-Cole 반원을 나타내고 각각 접촉 저항과 병렬 회로의 고분자층, Alq<sub>3</sub>층의 직렬회로로 보았다.

그리고 Berleb[5]은 NPB와 Alq<sub>3</sub>의 복층 소자에서 Alq<sub>3</sub>의 두께를 변화시키면서 용량성을 측정하여, 전이전압 이상에서는 Alq<sub>3</sub>층만의 용량성을 보이고, 전이 전압 이하에서는 NPB와 Alq<sub>3</sub>층의 용량성이 나타남을 보였다.

## 2. 실험

본 실험에서는 투명전극으로 ITO (Indium - Tin-Oxide)를 사용하였고, Al을 음극으로 사용하여 소자의 구조를 ITO/Alq<sub>3</sub>/Al로 하였다. 여기서 발광층으로 사용된 Alq<sub>3</sub>의 두께를 각각 100, 200, 300 nm로 변화하여 임피던스를 측정하였다.

소자의 전압-전류 특성은 Keithley 236 source-measurement unit, 617 electrometer와 Si-photo diodes를 이용하여 측정하였고, 임피던스 분석은 Agilent 4294A, 두께의 확인과 굴절율의 측정은 PLASMOS ellipsometer와 Alpha step을 이용하여 측정하였다.

임피던스 분석은 두께의 변화에 따른 임피던스의 크기와 위상각, 그리고 Cole-Cole 반원을 통해 등가회로를 예측하고, 두께의 변화에 따른 용량성분의 변화를 살펴보았다.

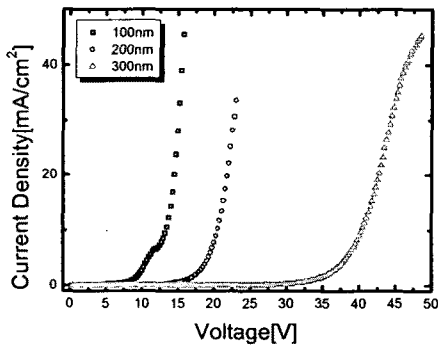


그림 1. 두께 변화에 따른 전압-전류

Fig. 1. Voltage-current density with varied thickness

## 3. 결과 및 고찰

그림 1은 두께 변화에 따른 전압-전류를 보여주고 있다. 두께는 ITO/Alq<sub>3</sub>/Al 중에서 Alq<sub>3</sub>의 두께를 각각 100 nm, 200 nm, 300 nm로 증착하여 실험하였고 각 두께별 일관성을 위해 전압은 -5 V에서 22 V까지 인가하였다. 그림 1에서 발광전압은 다른 유기발광소자의 특징과는 다른 매우 높은 발광전압을 보여주고 있으며, 두께의 변화에 따라 발광전압이 상승하는 것을 볼 수 있었다.

그림 2는 두께의 변화에 따른 임피던스의 크기를 보여주고 있다. 두께가 얇은 100 nm에서는 임피던스의 크기가 약 20 kΩ ~ 400 kΩ까지 변화하며 나타나고 있고, 약 5 V에서 부성특성이 나타나는 것을 볼 수 있었다. 또 200 nm에서는 약 800 kΩ이 나타났고, 10 V 부근에서 임피던스가 약 100 kΩ까지 감소하는 것을 볼 수 있었다. 또 300 nm에서는 약 800 kΩ으로 200 nm와 비슷하게 나타났고 10 V 부근에서 임피던스가 감소하는 모습을 보여주고 10 V 부근에서 400 kΩ까지 임피던스가 감소하고 있다. 이는 유기발광소자의 두께에 따른 의존성이 전압-전류 곡선에서 보는 것과 달리 200 nm 이상의 두께에서는 그 차이점이 크게 나타나지 않는다는 것을 알 수 있었고, 고전계 영역에서 두께에 따라 임피던스의 감소가 다르게 나타난다는 것을 알 수 있었다.

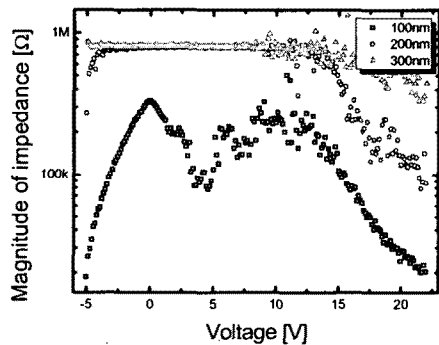


그림 2. 두께 변화에 따른 전압-임피던스의 크기

Fig. 2. Magnitude of impedance-voltage with varied thickness

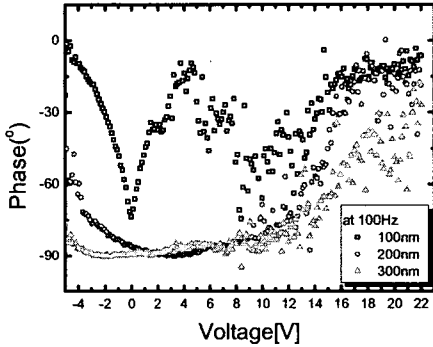


그림 3. 두께의 변화에 따른 전압-위상각  
Fig. 3. Phase-voltage with varied thickness

그림 4-18은 두께의 변화에 따른 전압-위상각의 변화를 보여주고 있다. 주파수의 변화에 따른 전압-위상각의 변화와 마찬가지로 0 V에서 -90°에 가까운 위상각을 보여주고, 인가전압이 높아질수록 0°에 가까워지는 것을 알 수 있었다. 또한 200 nm와 300 nm는 임피던스의 크기와 마찬가지로 비슷한 위상각을 가지고 있다는 것을 알 수 있었다.

또 100 nm에서는 4 V에서 10 V 사이에서 부성 특성이 나타나는 것을 볼 수 있었다. 이는 전압-전류 곡선에서는 볼 수 없었던 특징이며, 임피던스의 크기에서도 나타나지 않았던 현상으로 전극과 유기물 계면에서 전하가 축적되는 것을 보여주고 있다.

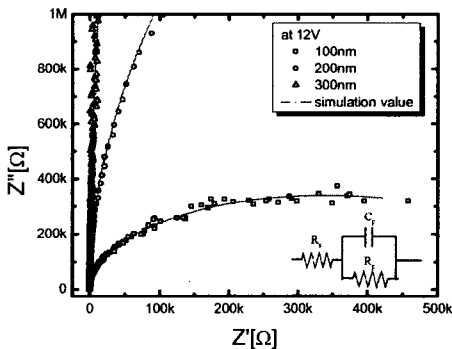


그림 4. 두께의 변화에 따른 Cole-Cole Plot  
Fig. 4. Cole-Cole Plot with varied thickness

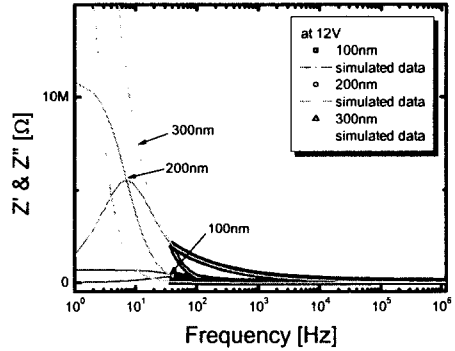


그림 5. 두께의 변화에 따른 주파수-실수부와 허수부 임피던스  
Fig. 5. Real and imaginary impedance-frequency with varied thickness

그림 4는 12 V에서 두께에 따른 Cole-Cole 반원을 보여주고 있다. 100 nm의 경우,  $2/R_p$  가 약 341 kΩ으로 나타났다. 주파수의 범위의 이하 (<40 Hz)까지 고려하면 반원에 가깝다고 예상할 수 있다. 또한 300 nm는 임피던스의 크기가 커서 거의 저항에 가까운 Cole-Cole 반원을 보여주고 있다.

그림 5는 12 V일 때, 두께의 변화에 따른 주파수와 실수부-허수부를 한 축으로 놓고 그린 그림이다. 실제 측정 데이터는 40 Hz부터 측정하였지만, 계산을 통해 더 낮은 주파수(1 Hz)까지 확장하여 도시하였다. 그림에도 나타나듯이 시뮬레이션에 의해 그려진 실수부-허수부의 Bode Plot은 측정치에 적용되어서도 아주 잘 부합되는 것을 볼 수 있었다.

또 실수부와 허수부가 만나는  $1/\tau$  또한 낮은 주파수에 나타나는 것을 볼 수 있었고, 두께에 따라  $1/\tau$  이 크게 감소하는 것을 볼 수 있었다. 또한  $1/\tau$  이 나타나는 점의 주파수도 두께가 두꺼워질수록 낮아지는 것을 볼 수 있었다. 100 nm일 때 약 40 Hz, 200 nm일 때 약 7 Hz이고 300 nm의 경우 < 1 Hz 이하에서 나타날 것으로 예상된다.

이는  $\frac{1}{\tau} = \frac{1}{R_p C_p}$  이므로 두께가 두꺼울수록  $R_p$ 가 커지고 높은 저항의 영향으로 커패시턴스

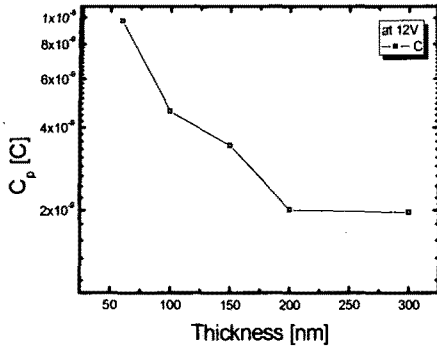


그림 6. 두께의 변화에 따른 용량성분  
Fig. 6. Capacitance with varied thickness

역시 커져 전체적으로  $\tau$  값이 커지기 때문으로 생각된다.

그림 6은 두께 변화에 따른 용량성분을 나타낸 그림이다. 60nm일 때  $9.76 \times 10^{-9} C$ , 100 nm일 때 약  $4.5 \times 10^{-9} C$ 로 나타났고, 200 및 300 nm는 각각  $2.0 \times 10^{-9}$ ,  $1.9 \times 10^{-9} C$ 로 측정되었다.

용량성분은  $C = \frac{\epsilon A}{d}$ 로 표현할 수 있는데, 수식에서처럼 두께  $d$ 가 커지면 전체적인 용량성분은 줄어들게 된다.

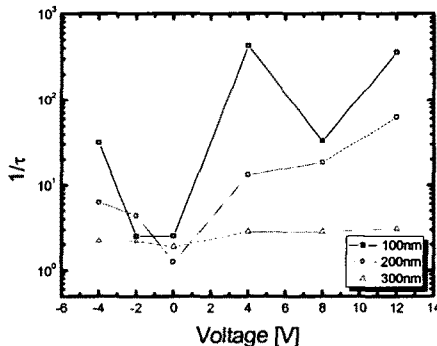


그림 7. 두께의 변화에 따른  $1/\tau$   
Fig. 7.  $1/\tau$  with varied thickness

그림 7은 두께의 변화에 따른  $1/\tau$ 을 나타내었다. 그림 2에서 전압-임피던스 크기에 대한 그림에서 보는 바와 같이  $1/\tau$ 도 비슷한 경향을 띠며 나타나는 것을 볼 수 있었다. 100 nm에서는 전압-전류 특성에서 나타나는 부성영역에서의 감소가 보이고 있다.

#### 4. 결론

본 연구에서 유기발광소자의 발광층으로 사용된  $Alq_3$ 의 두께에 따른 임피던스 특성을 살펴보았다. 두께가 증가할수록 임피던스가 증가하는 것을 알 수 있었고, 또 용량성분  $C = \frac{\epsilon A}{d}$ 이 두께의 증가에 따라 줄어든다는 것을 확인할 수 있었다.

#### 참고 문헌

- [1] T.P. Nguyen, V.H. Tran, "Dielectric properties of poly(phenylene-vinylene) thin films", Materials Sci. and Eng. B31, pp. 255-260, 1995.
- [2] M.G. Harrison, J. Grüner, G.C.W. Spencer, "Investigations of organic electroluminescent diodes by impedance spectroscopy, photo-impedance spectroscopy and modulated photovoltage spectroscopy", Synth. Metals Vol. 76, pp. 71-75, 1996.
- [3] Yongfang Li, Jun Gao, Gang Yu, Yong Cao, Alan J. Heeger, "ac impedance of polymer light-emitting electrochemical cells and light-emitting diodes: a comparative study", Chem. Phys. Lett. Vol. 287, pp. 83-88, 1998.
- [4] Christoph Jonda and Andrea B.R. Mayer, "Investigation of the Electronic Properties of Organic Light-Emitting Devices by Impedance Spectroscopy", Chem. Mater. Vol. 11, pp. 2429-2435, 1999.
- [5] S. Berleb, W. Brütting, G. Paasch, "Interfacial charges in organic hetero-layer light emitting diodes probed by capacitance-voltage measurements", Synth. Metals, Vol. 122, pp. 37-39, 2001.