

ZnS 완충층을 사용한 SrS : Ce, Cl 박막 EL 소자의 효율

임영민 · 최광호 · 장보현

인하대학교 응용물리학과, 중앙대학교 물리학과

(1991년 6월 19일 접수)

ZnS 완충층이 SrS : Ce, Cl 박막 EL cell의 발광휘도 및 효율에 미치는 영향을 조사하였다. ZnS 완충층을 사용한 cell과 사용하지 않은 cell의 구동전압은 각각 210V, 220V 이상이고 주파수 범위는 500 Hz~20 kHz로 하였다. 측정범위 내에서 휘도는 주파수와 이동전하밀도의 곱에 비례하고, 한편 이동전하밀도는 주파수에 무관하고 구동전압에 비례한다. 결과적으로 발광효율은 주파수와 구동전압에 무관하다. 완충층을 사용하므로서 활성층의 발광특성을 향상시킬 수 있으며, 발광효율은 완충층 유무에 따라 각각 0.12 lm/W, 0.06 lm/W이다.

I. 서 론

최근 청색 electroluminescence(EL) 소자의 실용화를 위해 SrS : Ce, Cl EL 소자가 유망시 되고 있으나,^[1-3] 아직 실용화 되기에는 휘도 및 효율의 개선이 필요하다. 일반적으로 SrS : Ce, Cl EL 소자의 휘도는 주파수와 이동전하밀도의 곱에 비례하며^[4] 발광효율은 활성층의 특성에 좌우된다. 활성층의 특성을 향상시키는 방법의 하나로 ZnS 완충층(buffer layer)를 사용하는 방법이 연구되고 있다.^[3]

본 연구에서는 SrS : Ce, Cl 박막 EL cell을 전자선 가열법으로 제작하여 주파수, 이동전하밀도 및 결정성이 발광효율에 미치는 영향을 조사하였다. EL cell의 구동전원으로는 정현파 교류전압을 이용하였고, 구동주파수는 500 Hz~20 kHz범위이다. 활성층에서의 이동전하밀도는 Sawyer-Tower 회로를 사용하여 측정하였다. 또한 ZnS를 완충층으로 삽입한 SrS : Ce, Cl EL cell의 발광특성을 조사하여 ZnS 완충층이 발광에 미치는 영향을 조사하였다.

II. 실험

EL cell은 앞서 발표된 바와 같이^[5] 전자선 가열증착법으로 제작하였다. 증착기판은 ITO($10\Omega/\square$) 막이 입혀진 $2.0\text{ cm} \times 2.5\text{ cm}$ 크기의 Corning 7059 glass이다. EL cell은 ZnS 완충층 유무에 따라 두 가지 구조로 제작하

였으며, 그림 1은 제작된 EL cell의 구조를 그린 것이다.

EL cell에서 이동전하밀도, 휘도 및 효율을 500 Hz~20 kHz 범위에서 측정하였다. 절대휘도의 측정은 Tecktronix사 J16 digital photometer로 하였으며, 여기서 사용된 광센서는 J6503 probe이다.

그림 2(a)는 EL cell의 등가회로이며 활성층에서의 이동전하밀도는 그림 2(b)와 같은 Sawyer-Tower 회로를 사용하였다. 여기에 사용한 sense capacitor(C_s)는 $1.05\ \mu\text{F}$ 였으며, 여기서 얻은 인가전압 V 에 따른 EL cell의 축적전하량 Q 의 관계도형으로부터 $\Delta Q'$, C_1 , C_2 를 측정하였다. 실제로 이동전하밀도는 Q - V diagram에서 ΔQ 이지만 모서리에서의 정확한 측정이 곤란하므로 $\Delta Q'$ 를 측정하여 다음과 같은 관계로 결정하였다.^[4]

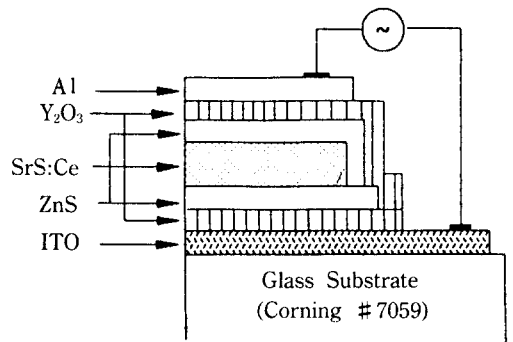


그림 1. Schematic structure of a SrS : Ce, Cl EL device.

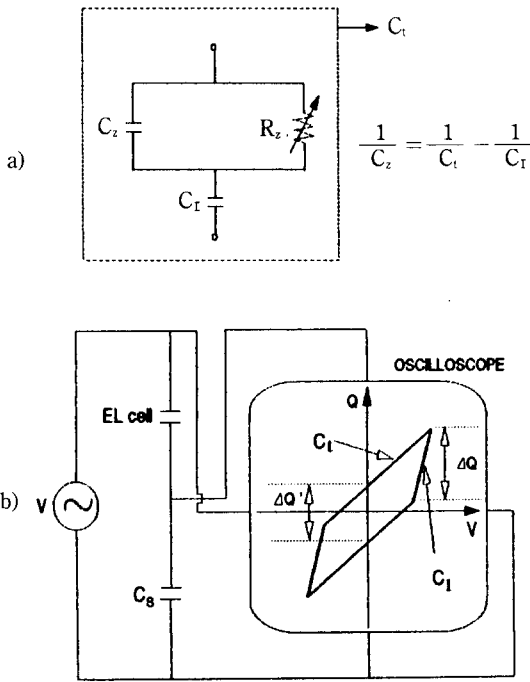


그림 2. Q-V diagram for SrS : Ce, Cl EL cell; a) equivalent circuit of EL cell, b) Sawyer-Tower circuit.

$$\Delta Q = \Delta Q' \times a = \Delta Q' \times \frac{C_1 + C_2}{C_1}$$

C_1 : insulating layer capacitance density
 C_2 : active layer capacitance density

입력전력밀도 P_m 은 단위 면적당 EL cell에 입력되는 energy로서 인가전압 V 에 따른 EL cell의 활성층 계면에 축적된 전하량 Q 를 oscilloscope로 관찰하여 이 때 그려지는 폐곡선 내의 면적으로 결정할 수 있다. 이 때 $Q-V$ 관계도형을 평형사변형으로 가정하면 다음 관계로 P_m 은 결정된다.^[4]

$$P_m = 2 \times f \times V_m \times \Delta Q' \tag{2}$$

III. 실험결과 및 논의

그림 3은 SrS : Ce, Cl EL cell의 발광 spectrum이며, 이 때 인가 전압은 230V, 5 kHz로 하였다. 발광 spectrum은 청색 영역인 488 nm와 녹색 영역인 520 nm에

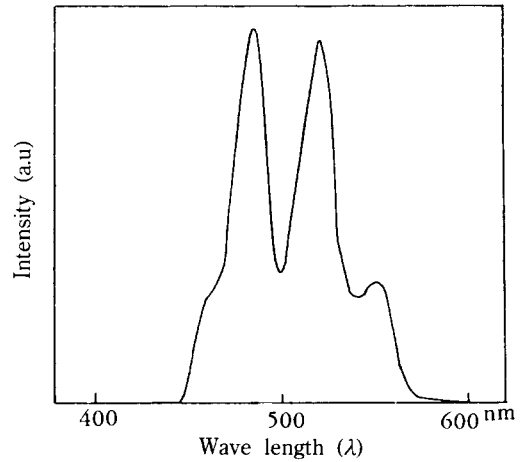


그림 3. Emission spectrum of SrS : Ce, Cl thin-film EL device.

peak를 갖고 있다. 이 발광은 SrS 결정에 주입된 Ce이 형성한 국소화된 발광중심(localized luminescence center)에 의한 발광으로서 Ce^{3+} 이온의 $5d(^2T_{2g}) \rightarrow 4f(^2F_{7/2})$ 전이와 $5d(^2T_{2g}) \rightarrow 4f(^2F_{5/2})$ 전이(transition)에 의한 것으로 알려져 있다.^[8] SrS 결정 내에 Sr^{2+} 와 Ce^{3+} 가 대치되어 주입되고 Cl^{-} 이온이 격자간 원자로 들어가 Ce^{3+} 가 발광중심을 형성하는 것으로 해석된다.

EL cell에서의 발광휘도는 활성층의 특성과 활성층 내의 이동전하밀도 및 주파수에 의하여 정해진다. 활성층의 특성은 활성층의 결정성, 발광중심의 농도와 분포, 공간전하 등에 의하여 정해진다.

Sawyer-Tower 회로를 이용하여 SrS : Ce, Cl EL cell의 각 층의 전기용량밀도를 측정한 결과를 표 1에 정리하였다. ZnS 완충층을 사용하면 ZnS와 Y_2O_3 의 유전상수의 차이로 SrS : Ce, Cl EL cell의 전기용량이 변한다.

그림 4는 전압의 변화에 따른 휘도를 그린 것이다. 휘도는 문턱전압 V_h 이상에서 급격히 증가하고 있다. 여기서 V_h 는 휘도가 1 cd/m^2 이 되는 전압으로 하였으며 ZnS 완충층을 사용할 경우 160V, ZnS 완충층을 사용하지 않을 경우 150V이다. ZnS 완충층을 사용하므로서 최대휘도가 4배 정도 증가되고 있다.

그림 5는 이동전하밀도의 변화에 따른 발광휘도를 그린 것이다. SrS : Ce, Cl EL cell의 발광휘도는 이동전하밀도가 $0.35 \mu\text{C/cm}^2$ 이하에서는 EL cell이 비선형을 이루지만, 이상에서 1차 비례하며 이 영역의 최저 전압이 ZnS 완충층을 사용한 경우 210V, 사용하지 않은 경우

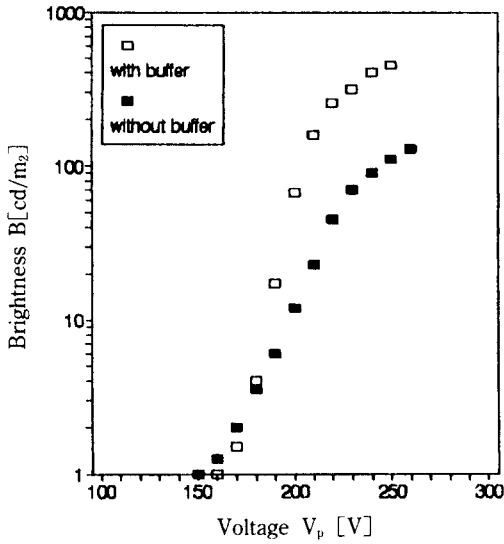


그림 4. B-V characteristics for 5 kHz.

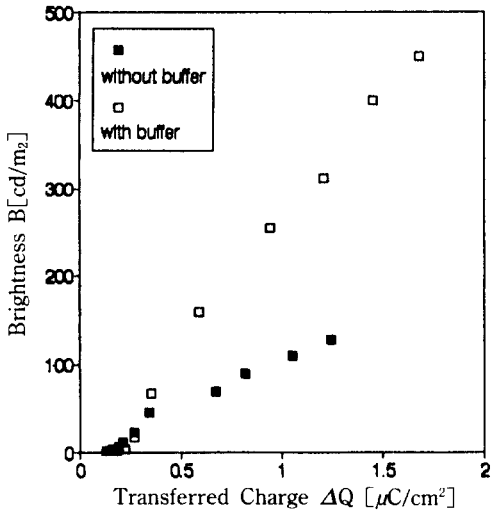


그림 5. B-ΔQ characteristics for 5 kHz.

220V이다. ZnS 완충층을 사용하지 않으므로 이동전하밀도에 따른 발광휘도의 증가율이 증가되었다. 본 연구에서는 EL cell의 발광이 이동전하밀도에 비례하는 영역에서 제반특성을 논의하였다.

그림 6은 peak 전압을 230V로 일정하게 유지시키고 주파수를 변화시켰을 때의 이동전하밀도와 휘도의 변화를 그린 것이다. 그림 6(a)에서 이동전하밀도는 500 Hz~20 kHz 범위에서 주파수에 관계없이 일정한 값을

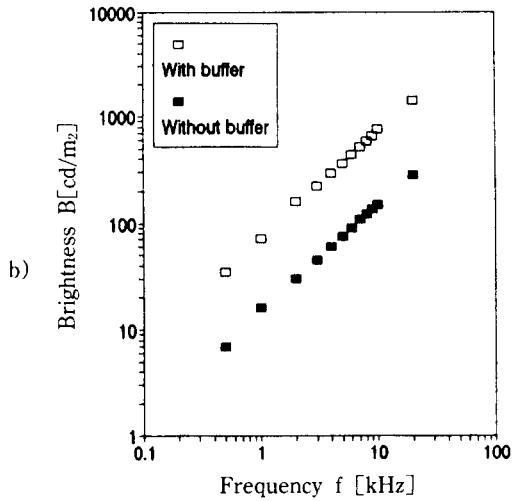
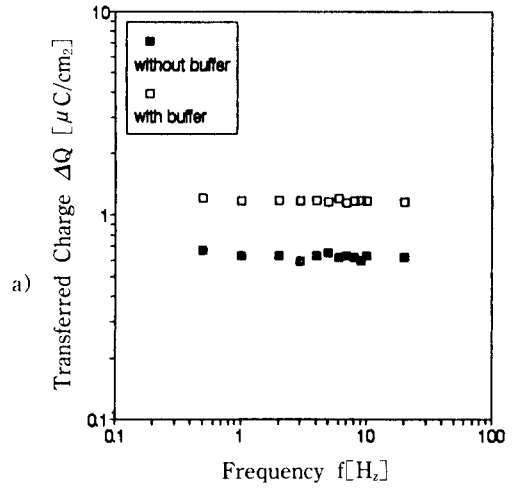


그림 6. Frequency characteristics for SrS : Ce, Cl EL cell; a) ΔQ-f, b) B-f (All values are measured at 230V).

가지며 ZnS 완충층을 사용한 경우 1.21 μC/cm², ZnS 완충층을 사용하지 않은 경우는 0.67 μC/cm²이다. 즉 활성층 내에서 발광에 기여하는 이동전하밀도는 주파수 변화에 관계없이 일정하다.

그림 6(b)에서 휘도는 주파수에 따라 일정하게 증가함을 볼 수 있다. 이 측정 결과로부터 휘도와 주파수와의 관계를 표시하면

$$L = Af^{0.95} \quad (3)$$

가 된다. 여기서 f는 주파수를 나타내며, ZnS 완충층

유무에 따라 A 의 값은 각각 0.17 및 0.028이었다.

주파수 증가에 따라 휘도가 증가되는 것은 활성층 내에 주입된 일정량의 이동전하밀도가 활성층 내부에서 왕복하면서 발광중심을 여기시키는 횟수가 증가되는 까닭으로 볼 수 있다.

SrS : Ce, Cl EL cell의 휘도는 주파수를 20 kHz까지 증가시켜도 선형으로 증가되고 있다. 이것은 ZnS : Mn EL cell의 경우와는 구별된다. ZnS : Mn EL cell의 decay time τ 는 1.2 ms이므로 인가주파수가 750 Hz까지는 주파수의 증가에 따라 발광휘도는 선형으로 증가되나 그 이상의 주파수에서는 점차 포화현상이 나타나는 것으로 알려져 있다.^[4] 본 실험의 주파수 영역에서는 SrS : Ce, Cl EL cell에서 포화되는 현상을 볼 수 없었던 것은 decay time이 4 μ s 정도로^[6] 대단히 짧기 때문이며 125 kHz 정도 이하의 주파수에서는 포화현상은 일어나지 않을 것이다.

결국 SrS : Ce, Cl EL cell에서 휘도는 주파수에 비례하고 이동전하밀도에 비례하므로 휘도는 다음과 같은 관계로 표시된다.^[4]

$$B = k \times f \times \Delta Q \quad (4)$$

여기서 k 는 결정성, 발광중심의 밀도와 분포, 공간전하 등에 의하여 결정되는 활성층의 특성상수이다. 따라서 EL cell에서 활성층의 특성을 향상시키고 이동전하밀도를 증가시키면 발광휘도는 증가될 것이다.

그림 5에서 ZnS 완충층을 사용한 것과 사용하지 않은 EL cell에서 얻은 k 값은 각각 5.5, 2.2이다. ZnS 완충층을 사용하므로써 휘도가 2.5배 정도 증가되고 있음은 결정성의 향상으로 인한 것으로 해석된다.

일반적으로 Y_2O_3 증착막은 거의 비정질에 가까운 미립자로 되어 있는 반면, Y_2O_3 층 위에 증착된 ZnS 증착막은 비교적 크게 성장된 다결정 박막으로 된다.^[5] 따라서 이 ZnS막 위에 증착된 SrS막의 결정입자는 Y_2O_3 막 위에 증착되었을 때 보다 크게 성장될 것이다. 이들 성장된 결정 내에 효과적인 Ce의 주입이 용이하며 이로 인한 발광중심의 형성이 증가되었을 것으로 생각된다.

그림 7은 인가전압의 증가에 따라 이동전하밀도의 변화를 보인 것이다. ZnS 완충층 유무에 따라 각각 210V, 220V 이상에서 이동전하밀도는 전압증가에 따라 급격히 증가하며 ZnS 완충층을 사용한 경우 더욱 크게 증가됐다.

EL cell에 전압이 인가되면 활성층과 절연층 계면에 포획되어 있던 전자가 활성층 내로 주입되어 이동전하가 된다.^[7] 인가전압이 증가하면 계면의 더욱 깊은 준위에 포획되어 있던 전자도 방출되어 활성층에 주입될 수 있어

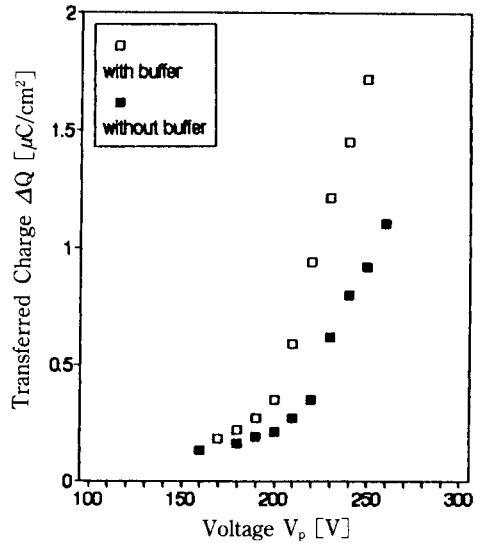


그림 7. ΔQ - V characteristics for 5 kHz.

이동전하밀도는 증가된다. ZnS 완충층을 사용한 EL cell에서 전압의 증가에 따른 이동전하밀도의 증가율이 ZnS 완충층을 사용하지 않은 경우 보다 큰 것은 이중 계면효과^[5]로 형광층에 주입된 자유전자 밀도가 증가될 수 있기 때문이라 볼 수 있다. 그림 7에서 SrS : Ce, Cl EL cell의 이동전하밀도는 ZnS 완충층을 사용하므로써 그 증가율이 1.8배 증가되고 있다.

결국 ZnS 완충층을 사용하므로써 SrS 활성층의 결정성이 향상되고 효과적인 Ce의 주입으로 발광중심이 증가되고 이동전하밀도 역시 증가되어 발광휘도가 4배 정도 증가된 것으로 해석된다.

그림 8은 전압 변화에 따른 발광효율을 그린 것이다. 발광효율은 ZnS 완충층 유무에 따라 각각 210V, 220V에서 최대값을 가지며, 그 이상 전압이 증가하여도 거의 변하지 않았다. 또한 ZnS 완충층을 사용하므로써 발광효율은 2배 정도 증가된다.

그림 9는 EL cell에 인가된 전압을 230V로 고정시키고 주파수를 변화시켰을 때 주파수 증가에 따른 발광효율 특성이다. 발광효율은 주파수에 따라 변하지 않았다.

EL cell의 발광효율 η 는 입력전력과 발광의 비로 정의될 수 있으며 다음과 같이 표현된다.^[4]

$$\eta = \frac{\pi \times B}{P_{in}} = \frac{\pi \times B}{2 \times f \times V_{th} \times \Delta Q'} \quad (5)$$

여기서 B [cd/m²]는 단위 입체각당 휘도이므로 luminous emittance L [lm/m²]은 $L = \pi B$ 이다. 식 (4)를 (5)에 적

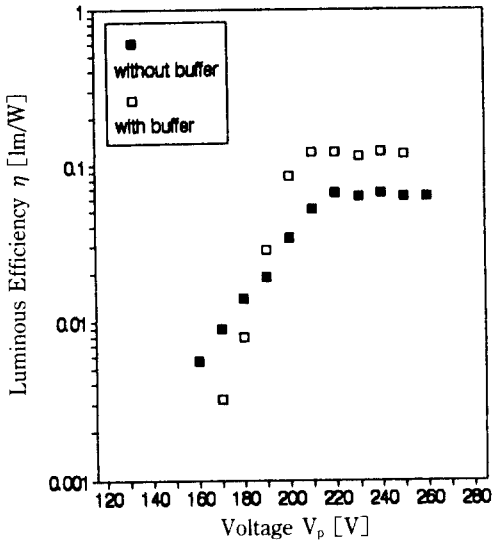


그림 8. η - f characteristics for 230V.

용하면

$$\eta = \frac{\pi \times k \times a}{2 \times V_{th}} \quad (6)$$

으로 된다. 여기서 a 는 C_1 , C_2 를 측정된 표 1에서 계산되었다. 식 (6)에서 SrS : Ce, Cl EL cell의 발광효율은 k , a , V_{th} 만으로 결정된다. 이들 k , a , V_{th} 는 cell에 의하여 결정되는 상수이므로 η 는 일정한 값을 갖는다. 그림 8에서 SrS : Ce, Cl EL cell의 발광효율이 구동전압(ZnS 완충층이 있는 cell은 210V, 없는 cell은 220V) 이상에서 전압변화에 관계없이 거의 일정하며 주파수 변화에도 무관한 것은 앞의 결과로 설명될 수 있다.

EL cell에 ZnS를 완충층으로 사용하면 활성층의 특성, 유전상수 및 문턱전압이 변화하므로 이로 인하여 효율이 변화될 것이다. 본 실험의 결과 ZnS를 완충층으로 사용함으로써 k 와 V_{th} 가 각각 2.5배, 1.07배 증가하고 a 가 1.19배 감소되므로 발광효율은 2배 증가되었고, ZnS 완충층 유무에 따라 각각 0.12 lm/W, 0.06 lm/W이다.

Table 1. Capacitance density characteristics of SrS : Ce, Cl thin films; #1 : without ZnS buffer layer, #2 : with ZnS buffer layer

Sample	V_{th} [V]	C_1 [nF/cm ²]	C_2 [nF/cm ²]	$(C_1+C_2)/C_1$
#1	150	6.2	13.1	1.19
#2	165	5.6	14.5	1.07

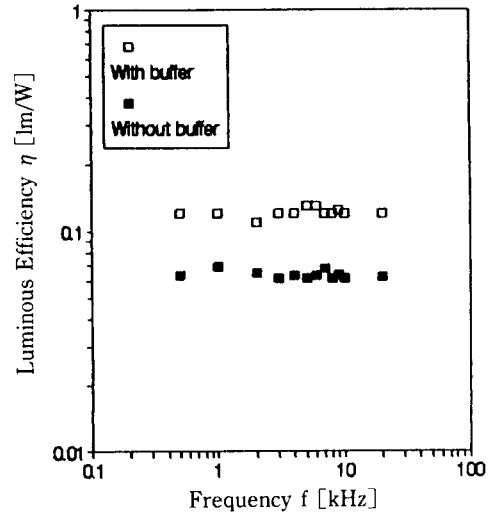


Fig. 9. η - f characteristics for 230 V.

Table 2. Electrical and optical characteristics for SrS : Ce, Cl thin films; #1 : without ZnS buffer layer, #2 : with ZnS buffer layer (All values are measured at 230V, 5 kHz).

	B [cd/m ²]	η_{max} [lm/W]	P_{in} [W/cm ²]	ΔQ [μC/cm ²]	k
#1	70	0.06	0.35	0.67	2.2
#2	312	0.12	0.85	1.21	5.5

표 2는 SrS : Ce, Cl EL cell의 ZnS 완충층 유무에 따른 결정성과 EL 특성이다.

IV. 결 론

ZnS 완충층 유무에 따른 SrS : Ce, Cl EL cell의 발광특성을 조사한 결과 다음과 같은 결론을 얻었다.

휘도는 주파수와 이동전하밀도의 곱에 비례하여 증가한다. ZnS 완충층을 사용함으로써 활성층의 발광특성이 향상되고 이동전하밀도의 증가로 최대휘도가 약 4배로 증가한다.

구동전압은 ZnS 완충층 유무에 따라 각각 210V, 220V 이상이고, 이동전하밀도는 주파수에는 무관하고 전압에 비례한다.

발광효율은 전압과 주파수에 관계없이 거의 일정하며 ZnS 완충층을 사용함으로써 2배 증가하며, 그 값은 완충층 유무에 따라 각각 0.12 lm/W, 0.06 lm/W이었다.

참 고 문 헌

- [1] H. Ohnishi, and T. Okuda, SID 89 digest 317 (1989).
- [2] W. A. Barrow, R. E. Coovert, and C. N. King, SID 84 digest, 249 (1984).
- [3] Y. Tamura, J. Ohwaki, H. Kozawaguchi, and B. Tsujiyama, Jpn. J. Appl. Phys., **25**, L105 (1986).
- [4] Y. A. Ono, H. Kawakami, M. Fuyama, and K. Onisawa, Jpn. J. Appl. Phys., **26**, 1482 (1987).
- [5] Y. M. Im, G. H. Choi, D. J. Chung, S. G. Lee, C. D. Song, B. H. Chang, to be published (1991).
- [6] S. Okamoto, E. Nakazawa, and Y. Tsuchiya, Proc. 4th Intern. Workshop on Electroluminescence (Springer, Hiedelberg, 1989). pp.195.
- [7] D. H. Smith, J. Lumin., **23**, 209 (1981).
- [8] H. Yoshiyama, S. H. Sohn, S. Tanaka, and H. Kobayashi, Proc. 4th Intern. Workshop on Electroluminescence (Springer, Hiedelberg, 1989) p. 48.

Luminous Efficiency of SrS:Ce, Cl EL Device with ZnS Buffer Layer

Young-Min Im, Gwang-Ho Choi and Bo-Hyun Chang

Department of Applied Physics, Inha University #253, Yonghyeon-Dong, Nam-Ku, Incheon 402-751, Korea

Department of Physics, Chung-Ang University #221, Heukseok-Dong, Donjak-Ku, Seoul 156-756. Korea

(Received: June 19, 1991)

The effect of ZnS buffer layer on the brightness and luminous efficiency of SrS : Ce, Cl thin film EL device is investigated. The driving voltage is 210V for the cell with ZnS buffer layer, but 220V without ZnS buffer layer. The frequency range is 500 Hz-20 kHz. The brightness is proportional to the product of the frequency and the transferred charge density within measured range. The luminous efficiency is independent on the frequency and/or driving voltage. By using the ZnS buffer layer, the luminescence characteristics of active layer is improved. The experimental data shows 0.12 lm/W of the luminous efficiency for the device with ZnS buffer layer, but 0.06 lm/W without ZnS buffer layer.