Journal of the Korean Institute of Electrical and Electronic Material Engineers, Vol. 15, No. 4, p. 332, April 2002.

15-4-7

프랙탈 이론을 이용한 발광소자 발광특성 분석

Analysis of Electroluminescent Device Using Fractal Theory

조재철*, 박계춘**, 홍경진***
(Jae-Cheol Cho*, Gye-Choon Park**, and Kyung-Jin Hong***)

Abstract

The applicability of models based on fractal geometry to characterize the surface of the EL devices was investigated. Insulating layer and phosphor layer of EL devices were deposited on ITO glass using e-beam method. The images of phosphor layer by scanning electron microscope(SEM) were transformed to binary coded data. The relations between fractal geometry and electrical characteristics of EL devices were investigated. When the fractal dimension of CaS:EuF_3 EL device was 1.82 and its grain boundary area was 19%, the brightness of CaS:EuF_3 EL device was 261 cd/m^2.

Key Words : Electroluminescent device, CaS:Eu, Binary code, Grain density, Fractal, Fractal dimension, Grain boundary area

1. 서 론

소자 표면의 구조 특성을 분석하기 위하여 소자 표면을 전자현미경(SEM) 사진으로 출력한 후, 입자(grain)의 크기와 입계(grain boundary) 특성을 고찰하는 방법이 많이 이용되고 있다. 그러나, SEM 사진으로 출력된 소자의 표면을 일반적으로 많이 이용하는 스케일법으로 입자 크기와 입계를 분석하는 경우, 측정자의 실수에 의한 큰 오차가 발생할 수도 있다[1]. 이와 같은 문제점을 보완하기 위해서는 입자와 입계의 특성을 정량적으로 분석하고, 소자의 구조적 분석에 신뢰성을 부여할 필요성이 있다.

* : 초당대학교 전자공학과
(전남 무안군 무안읍 성남리
Fax : 061-453-3944
E-mail : jccho@chodang.ac.kr)
** : 목포대학교 전기공학과
*** : 광주대학교 컴퓨터전자통신공학부
2001년 9월 29일 접수, 2001년 10월 25일 2차 심사 완료
2001년 12월 11일 2차 심사 완료, 2002년 1월 3일 최종 심사 완료

프랙탈(fractal) 이론은 1975년 Mandelbrot에 의해 자기 상사성(self-similarity)을 이용하여 지형의 고찰에 이용되었다.[2,3] 프랙탈의 응용은 부호화하고자 하는 입력영상을 고정크기 또는 가변 크기의 블럭으로 분할한 후, 분할된 영상에서 가장 유사한 블럭을 찾아 블럭 영역을 원래의 영상과 가장 잘 근사화시키는 축소 매핑 함수를 찾는 것이다.

반복적 축소 매핑을 이용하는 프랙탈 부호기는 1988년 Barnsley에 의해 제안되었으며, 1989년 Jacquin에 의해 프랙탈 방법을 영상에 적용하는 최초의 연구가 시도되었다. 또한, 1990년 Monro, 1991년 Oien, 1992년 Fisher 등은 반복적 축소 매핑에 의해 블럭 영역을 분할할 경우, 많은 시간이 소요되는 단점을 개선하려는 방향으로 연구를 시도하였다.

현재, 국내에서 프랙탈 이론은 디지털 영상처리 분야에서 정지된 화상의 화소 분석과 압축에 관하여 프랙탈 부호화의 연구가 진행되고 있다[4]. 프랙탈과 다른 소자와의 분석에 관련하여 일부 논문이 발표되고 있으나[5-7,11], 전계발광소자의 발광특성을 프랙탈과 연관시켜 분석한 연구 결과는 아직 발표가 되지 않고 있다.

따라서, 본 연구에서는 전계발광소자의 표면 SEM 사진을 2진화(binary code)의 디지털 영상 정보로 변환시킨 후, 프랙탈 이론으로 프랙탈 차원 및 grain boundary 분석을 통하여 발광소자의 발광특성과의 관계를 검토하고자 한다.

2. 정량화 해석 방법

2.1 프랙탈 차원

프랙탈은 '쪼개진' 이란 뜻으로 라틴어의 'fractus'에서 유래되었으며, 여러 개의 다른 크기로 쪼개진 유사한 형태를 갖는 특성이 있다. 미세한 구조를 갖는 물질은 확대하더라도 그때마다 일정한 형태를 나타내는 자기 상사성(self similarity)을 갖는 프랙탈 모형을 갖고 있다. 즉, 미세 구조는 전체적인 모양을 일정한 형태로 변환시키면서, 전체의 모습과 닮은 부분들로 구성되어 있기 때문에 프랙탈을 표현하기 위해서는 일정한 규칙을 찾아내어 모델링하는 방법을 제시할 필요가 있다.[2,3]

그림 1은 프랙탈 이론을 설명하기 위한 Koch 곡선이다. (a)는 일정 길이를 가진 직선이며, (b)는 이 직선을 3등분해서 가운데 선분을 제거하고, 여기에 이것과 똑같은 길이를 가진 두 개의 선분으로 대치한 그림으로서 직선을 1/3등분하여 4개의 선분으로 만든 그림이며, (c)는 (b)의 반복을 다시 한번 시행한 그림이고, (d)는 이를 무한히 실시한 그림으로 이를 Koch 곡선이라 한다.

Koch 곡선의 일부분을 확대하면 일정한 모양의 패턴이 반복적으로 생성되고, 반복적인 작업 후에도 작업전의 패턴이 남아있는 자기 상사성 (self similarity)이 있다. 그러므로, 복잡한 형태에서 공통적인 형태를 추출해 내면 차원 표현이 가능하게 되고, 이것을 프랙탈 차원으로 나타내어 복잡한 형태를 정량적으로 표현할 수 있게 된다. 그림 1(a)에서 전체를 $1/a$로 축소할 때, 축소된 선분의 수가 b라 하면 $b=a^D$가 된다.[3] 여기서, 자기 상사성 차원(프랙탈 차원)은 $D=\frac{\log b}{\log a}$ 이다. 그림 1에서 직선을 1/3로 축소할 때, 축소된 선분의 수는 4이므로 자기 상사성 차원은 약 1.2618 정도의 값을 가지게 되는데, 경험적으로 점은 0차원, 직선은 1차원, 면은 2차원, 공간은 3차원이라고 알고 있는 정수 차원과는 다르게 나타난다. 이와 같이 직선의 차원은 1 이지만, 점점 축소화되어 그림 1(d)와 같이 되면 차원은 정수가 아닌 값을 갖게 되고, 면을 채우게 되므로 프랙탈 차원 값은 1보다 크고 2보다 작은 값을 가지게 된다. 프랙탈 차원을 구하는 방법으로는 스케일 변환법, 회전반경법, 상관함수법 및 커버법 등이 있다[2,3].

D차원의 공간 내에 있는 패턴의 주변거리 r과, 패턴을 D차원의 입방체로 덮을 때, 필요한 입방체의 최소 수를 $N(r)$이라면 $N(r)\propto r^{-D}$이 된다. 여기서, D가 프랙탈 차원이다. 그러므로, 프랙탈 차원 D는 다음과 같이 표현된다.

$$D=-\frac{\log N(r)}{\log r}$$

그림 1에서 길이가 r인 선분의 총수를 $N(r)$이라 하면 $N(1/3)=4$이다. 즉, 길이가 1/3으로 축소될 때 축소된 선분의 수는 4 개임을 의미한다. 길이를 점점 축소화하여 매핑시키면 $N((1/3)^2)=4^2$, $\cdots$, $N((1/3)^n)=4^n$의 식이 성립된다. 이는 $b=a^D$와 $(1/3)^{-C}=4$이 일치하며, $C=\log_3 4$로서 프랙탈 차원 D와 같은 값을 갖게 된다. 실제로 고체의 표면은 75[%] 이상이 수[Å]~수백[Å] 정도의 크기인 cluster 구조로 구성되어 있는데, 이는 고체 표면이 프랙탈로 구성되어 있음을 의미한다[3]. 직경을 알고 있는 구형상의 분자를 물체의 표면에 증착시켜 분자의 mol 수를 측정하여 $N(r)$이라고 한다. 크기가 다른 분자들을 패턴 길이를 변경시켜 반복해서 $N(r)$을 측정하고, 패턴의 주변 거리 r과의 관계

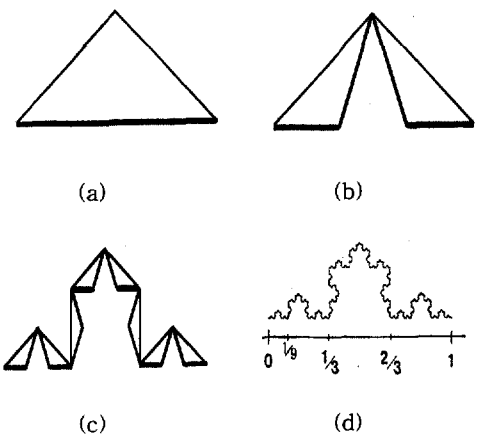


그림 1. Koch 곡선.
Fig. 1. Koch Curve.

를 나타내면 $N(r) \propto r^{-D}$의 관계식이 성립하게 된다.

2.2 영상신호처리

영상신호를 처리하기 위하여 표본화와 양자화시킨 이진화(binary code) 이미지는 그레이 영상의 경계값(threshold)을 이용하여 흑(0)과 백(1)의 두가지 색으로 나타내었다. 경계값 처리는 입력 영상의 각 화소에 대해서 명도가 있는 일정값 이상의 경우에 대응하는 출력 영상의 화소값을 1로 하고, 그 이외의 경우를 0으로 하였다.

경계값 처리식은 다음과 같다.

$$g(x,y) = \begin{cases} 1 & f(x,y) \geq t \\ 0 & f(x,y) < t \end{cases}$$

$f(x,y)$, $g(x,y)$는 각각 영상처리 전후의 (x,y)에 있는 화소의 농담(brightness)치이며, t는 경계값을 나타낸다. 각 영상의 명암값 정보를 얻는 방법으로는 히스토그램(histrogram)을 이용하여 경계값을 구하였다.

영상처리에서 윤곽(edge)은 물체의 외각을 나타내는 선으로 정의된다. 영상의 많은 부분들은 대상물의 윤곽을 선으로 표현하기 때문에 윤곽선은 중요하다. 1차 미분에 의한 영상 처리 윤곽은 농담치가 급격히 변하는 부분이기 때문에 함수의 변화값을 취하는 미분 연산이 윤곽선의 추출에 사용된다. 좌표 (x,y)의 경우, 농담 분포를 나타낸 1차 미분값은 크기와 방향을 가진 벡터량 $G(x,y)=(fx,fy)$로서 표현된다. 여기서, fx는 x 방향의 미분, fy는 y 방향의 미분을 나타낸다.

1차 미분(gradient)의 연산자는 수평방향과 수직방향으로 하였다. 수평방향의 미분은 어느 한 점 $f(x,y)$을 기준으로 할 때, x 좌표는 같고, y 좌표만 중심 화소의 상하에 해당하는 화소들의 차이값으로 구하였다. 수직방향의 미분은 어느 한 점 $f(x,y)$을 기준으로 할 때, y 좌표는 같고, x 좌표만 중심 화소의 상하에 해당하는 화소들의 차이값으로 구하였다.

2차 미분은 1차 미분을 다시 한번 하여 윤곽의 강도만 (방향은 구하지 않음)을 검출하였다. 이상적인윤곽의 검출기는 윤곽의 중심에 위치한 임의의 윤곽만을 검출할 수 있어야 하므로 2차 미분의 장점은 검출된 윤곽의 윤곽선들이 폐곡선을 이룬다는 것이다. 그러므로, 2차 미분은 입자의 형상을 구할 수 있다. 얻어진 이미지를 2진화하여 블록의 정의역을 패턴거리 r과 입방체의 수 $N(r)$로 정량화 하였다. 정량화된 데이터는 최소 자승 오차법에 의해 오차를 최소화하여 프랙탈 차원을 구하였다.

그림 2는 소자 표면의 이미지를 프랙탈 차원으로 정량화하기 위한 흐름도이다.

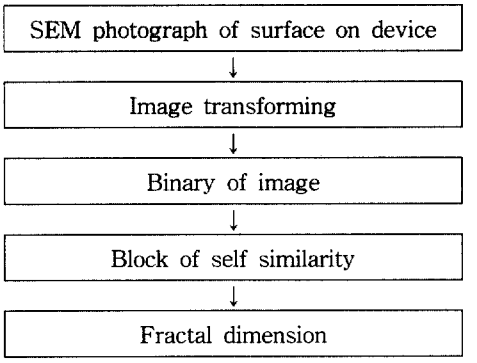


그림 2. 프랙탈 차원을 구하기 위한 흐름도.
Fig. 2. Flow chart for fractal dimension.

3. 실험 및 방법

프랙탈 수학에 의한 시료 표면의 구조를 정량적으로 분석하기 위하여 CaS:Eu 전계발광소자를 제작하였다. 기판 전극으로는 ITO(Corning 7059, 13 Ω/□)를 사용하였고, 형광층의 모재료는 CaS(Cerac사, 4N, 미국) 분말을 사용하였으며, 발광중심으로 $EuCl_3$(Cerac사, 3N, 미국), EuF_3(Cerac사, 3N, 미국), EuS(Cerac사, 3N, 미국) 분말을 각각 0.6 mol% 혼합한 후, 200 kg/cm^{2}의 압력으로 성형하여 펠렛을 제작하고, 이를 전자빔 증착기(e-beam evaporator)로 증착하여 발광층을 형성하였다. 이때, 기판온도는 550℃로 하였고, 증착두께는 8,000 Å으로 하였다. 제작된 발광소자는 이중 절연구조를 가지며, 형광층을 감싸는 절연층은 Y_2O_3(Cerac, 4N, 미국)를 사용하였으며, 증착시 기판온도는 150℃, 증착두께는 3,000 Å으로 형광층을 증착할 때와 똑같이 전자빔 증착기 내에서 증착을 하였다. 증착시 초기 진공도는 2×10^{-6} Torr로 유지하였으며, 형광층 증착시 S vacancy를 보충하기 위하여 S co-evaporation을 하였다. 소자의 하부 전극으로는 Al을 저항가열로 3,000 Å 형성하여 전계발광소자를 제작하였다.

제작된 소자의 결정성을 알아보기 위하여 X-ray 회절분석(D/Max-1200, Rigaku, 일본)을 하였으며,

발광특성을 분석하기 위하여 EL 스펙트럼을 측정하였다. 또한 전자현미경(JSM-5400, JEOL, 일본)으로 형광층 표면을 측정하고, 이렇게 측정한 형광체의 SEM 사진을 비트맵 이미지로 변환시키고, bmp 이미지로 변환된 영상은 히스토그램으로 명암 값을 추출하였다. 추출된 명암 값에 의해 영상신호를 이진화하여 1차 미분과 2차 미분하였다. 미분과 필터링에 의하여 윤곽선과 잡음 처리를 하고, 입자와 grain boundary의 특성을 분석하였다.

4. 결과 및 고찰

형광체는 그림 3에 나타낸 바와 같이 모두 31° 부근에서 (200), 45° 부근에서 (220), 56° 부근에서 (222) 피크를 보이는 cubic 구조로 형성되었다.

제작된 전계발광소자의 EL spectrum을 그림 4에 나타내었다. EL spectrum은 모두 640~650 nm의 파장을 가지는 적색발광을 나타내고 있으며, 일반적으로 CaS에 발광중심으로 EuS를 첨가할 경우, Eu^{+2}는 Ca^{+2}와 치환되고, Eu^{+2}에 의한 650 nm 부근의 발광을 일으키지만, CaS에 발광중심으로 $EuCl_3$나 EuF_3를 첨가할 경우 Eu^{+2}와 Eu^{+3}가 공존하게 되고, Eu^{+3}가 존재하기 위해서는 Cl^-나 F^-이온이 전하보상을 하기 위하여 격자내에 존재하여야 한다. 이 경우 발광스펙트럼은 Eu^{+3}에 의한 610 nm 부근의 발광이 같이 나타난다. 그러나, 500℃가 넘는 기판온도에서는 Cl^-이온과 F^-이온이 격자내에 존재하지 못하고, 형광층으로부터 쉽게 이탈되어 Eu^{+2}에 의한 발광만이 나타난다.[8,9]

소자의 발광휘도(L)-전압(V)특성을 나타낸 그림 5를 보면, CaS:EuF_3가 90 V, CaS:$EuCl_3$가 120 V, CaS:EuS가 130 V의 threshold voltage를 나타내고 있다. 이러한 전계발광소자의 발광특성을 정리하여 표 1에 나타내었다.

이러한 발광특성을 프랙탈 이론을 적용하여 분석하기 위하여 CaS:$EuCl_3$, CaS:EuF_3, CaS:EuS 발광소자의 전자 현미경 사진을 256×256 화소(pixel)의

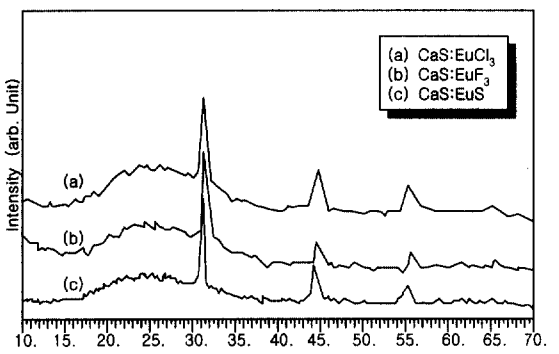


그림 3. 형광층의 x선 회절분석 결과.

Fig. 3. XRD patterns of phosphor layer.

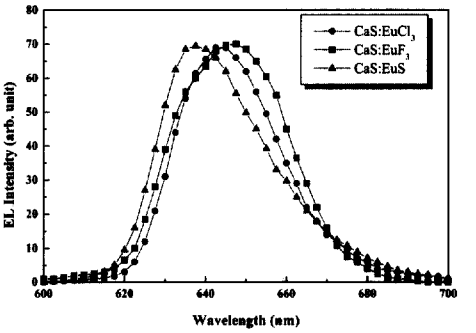


그림 4. CaS:Eu 전계발광소자의 EL 스펙트럼.

Fig. 4. EL spectra of CaS:Eu EL device.

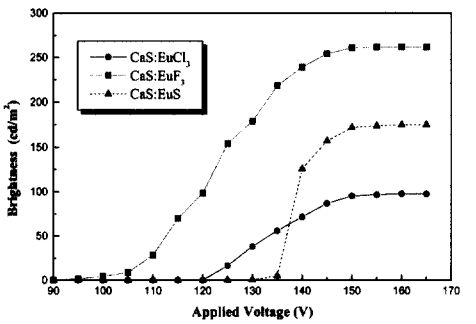


그림 5. EL 소자의 발광휘도(L)-전압(V)관계.

Fig. 5. Relation brightness(L) with voltage(V) of EL device.

표 1. 전계발광소자의 특성.

Table 1. Properties of EL cells.

properties / samples	threshold voltage(V)	brightness at 3 ㎑ (cd/m^2)
CaS:$EuCl_3$	120	98
CaS:EuF_3	90	261
CaS:EuS	130	175

비트맵 이미지로 변환하고, 2진화 코드로 처리하여 그 결과를 각각 그림 6, 7, 8에 나타내었다.

각각의 그림에서 (a)에 나타난 사진은 전자현미경 사진을 비트맵 이미지로 변환한 것이고, (b)에 나타난 그림은 이를 2진화 코드로 변환한 결과로서, 이들의 데이터로부터 제작된 소자의 프랙탈 차원을 구할 수 있으며, 이를 그림 9에 나타내었다.

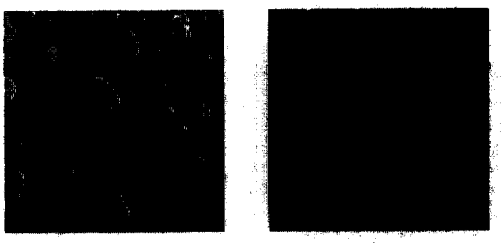
$CaS:EuCl_3$는 차원이 1.74이며, $CaS:EuF_3$는 차원이 1.82, CaS:EuS는 차원이 1.79를 나타내고 있다.

일반적으로 CaS를 모재료로 하는 전계발광소자에 있어서 형광층을 증착시, 기판온도를 높게 함으로서 형광층의 결정성이 좋아지고, 이로 인해 발광휘도 또한 증가를 가져오는 것으로 보고되고 있다[10]. 즉, 발광특성이 향상되기 위해서는 형광층의 상태가 균일하게 증착되어 있어야 하며, 이를 프랙탈과 연관지어 생각할 때 프랙탈 차원이 2에 가깝다는 것은 형광층의 증착상태가 매우 균일하다는 것을 의미한다. 따라서, 발광소자의 발광휘도가 높아질 것으로 예상할 수 있다[6].

그림으로부터 $CaS:EuF_3$의 프랙탈 차원이 1.82로 가장 높게 나타나고 있으며, 이로서 $CaS:EuF_3$ 소자의 차원이 높아 형광층의 증착상태가 양호하다. 따라서 발광휘도 또한 가장 높음을 알 수 있다.

256×256 화소의 bmp 이미지를 2진화 코드로 처리하여, 각각의 화소에 대응하는 입자의 boundary 개수를 세어 전체 화소에 대한 비를 백분율로 표시한 grain boundary area를 그림 10에 나타내었다.

Grain boundary area 역시 $CaS:EuF_3$가 19%로 가장 높게 나타나고 있으며, $CaS:EuCl_3$와 CaS:EuS는 각각 16%와 18%를 나타내고 있다.

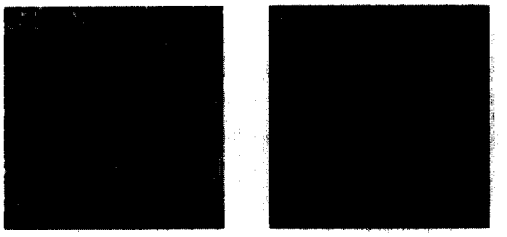


(a) (b)

그림 6. $CaS:EuCl_3$ 소자의 bmp 이미지(a)와 2진화 영상 데이터(b).

Fig. 6. Bmp image(a) and binary coded image data(b) of $CaS:EuCl_3$ device.

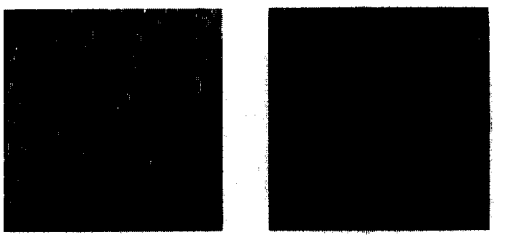
일반적으로 비정질 재료라고 하면 grain boundary area의 값은 0[%]에 가까운 값이 될 것이다. 그러나, 재료가 다결정 상태로 가면서 각각의



(a) (b)

그림 7. $CaS:EuF_3$ 소자의 bmp 이미지(a)와 2진화 영상데이터(b).

Fig. 7. Bmp image(a) and binary coded image data(b) of $CaS:EuF_3$ device.



(a) (b)

그림 8. CaS:EuS 소자의 bmp 이미지(a)와 2진화 영상데이터(b).

Fig. 8. Bmp image(a) and binary coded image data(b) of CaS:EuS device.

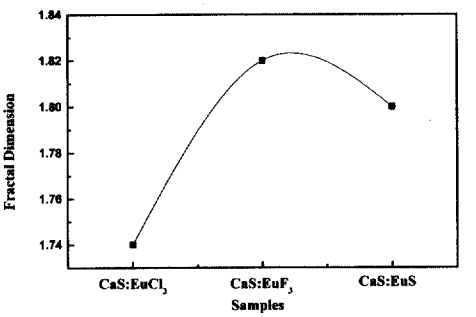


그림 9. EL 소자의 프랙탈 차원.

Fig. 9. Fractal dimension of EL device.

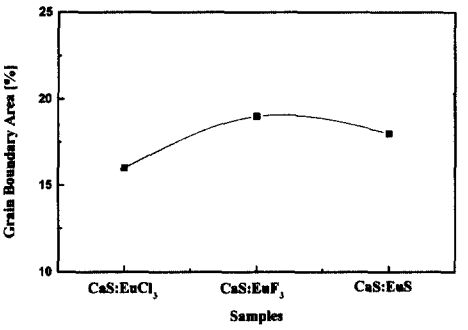


그림 10. EL 소자의 grain boundary area.

Fig. 10. Grain boundary area of EL device.

화소에 대응하는 입자의 경계가 존재하므로 grain boundary area의 값은 증가할 것이다. 따라서, 이러한 성질을 이용하면 정성적으로 박막의 표면 상태를 규명할 수 있을 것으로 보인다.

이상의 고찰로부터 본 실험에서 사용한 세 가지 종류의 발광소자 중 CaS:EuF_3 소자가 threshold voltage나 발광 휘도 모두 다른 소자보다 우수한 것으로 나타났으며, 이는 프랙탈 이론과 비교할 때 이 소자의 프랙탈 차원 및 grain boundary area가 높게 나타나기 때문이라고 할 수 있다.

5. 결 론

본 연구에서는 CaS:Eu 전계발광소자를 제작하고, 소자 표면 SEM 사진을 디지털 영상 정보로 변환시킨 후, 프랙탈 이론을 이용하여 형광체 표면에서 프랙탈 차원 및 입자 밀도 분석을 통하여 발광 특성과의 관계를 살펴본 결과, 제작된 EL 소자의 EL 스펙트럼은 640~650 nm의 적색 발광피크를 가짐을 알 수 있었다. 프랙탈 이론과 관련지었을 때, 프랙탈 차원이 1.82, grain boundary area가 19%를 나타낸 CaS:EuF_3 EL 소자의 휘도가 261 cd/m^2, threshold voltage가 90 V로 가장 좋아 프랙탈 차원 및 grain boundary area가 높을 수록 발광특성의 향상이 이루어질 수 있음을 알 수 있었다.

6. 참고 문헌

[1] E. Olsson, G. Dunlop, and R. Osterlund, "Development of functional microstructure during sintering of a ZnO varistor material", J. Am. Ceram. Soc., Vol. 76, No. 1, p. 65, 1993.

[2] 高安秀樹, 高安美佐子, フラクタルって何だろう, ダイヤモンド社, p. 25, 1990.

[3] 高安秀樹, フラクタル, 朝倉書店, p. 20, 1986.

[4] 이문호, 염재훈, 영상신호처리, 대영사, p. 33, 1998.

[5] 홍경진, 김창원, 조재철, "프랙탈을 이용한 소자 표면의 고찰", 전기전자재료학회 2001춘계학술대회(센서・박막재료)논문집, p. 47, 2001.

[6] W. Zahn and A. Zosch, "Fractal dimension of thin film surfaces obtained by Fourier spectral analysis", Surface and Interface Analysis, Vol. 25, p. 488, 1997.

[7] 오수홍, 홍경진, 이진, 이준웅, 김태성, "프랙탈을 이용한 ZnO 바리스터 표면구조 및 전기적 특성", 전기전자재료학회논문지, Vol. 13, No. 10, p. 834, 2000.

[8] N. Yamashita, S. Fukumoto, S. Ibuki, and H. Ohnishi, "Photoluminescence of Eu+2 and Eu+3 centers in CaS:Eu,Na phosphors", Jpn. J. Appl. Phys., Vol. 32(7), Part I, p. 3135, 1993.

[9] S. Fukumoto, Y. Hayashi, S. Ibuki, K. Abe, and H. Ohnishi, "Photoluminescece of Eu+3 centers in CaS:Eu phosphors", Jpn. J. Appl. Phys., Vol. 32(6A), Part II, p. L791, 1993.

[10] Y. Ono, M Fuyama, K. Onisawa, K. Tamura, and M. Ando, "White-light emitting thin film electroluminescent devices with stacked SrS:Ce/CaS:Eu active layers", J. Appl. Phys., Vol. 66(11), p. 5564, 1989.

[11] 김태성, 이진, 임장섭, 김덕근, 오수홍, 민용기, "프랙탈을 이용한 전기트리의 패턴분석", 전기전자재료학회 1999춘계학술대회논문집, p. 712, 1999.