

유기 발광 소자에서 정공 주입 버퍼층의 효과

Effects of Hole-Injection Buffer Layer in Organic Light-Emitting Diodes

정동회*, 김상걸**, 오현석*, 홍진웅*, 이준웅***, 김영식**, 김태완**

(Dong-Hoe Chung*, Sang-Keol Kim**, Hyun-Seok Oh*, Jin-Woong Hong*, Joon-Ung Lee***,
Young-Sik Kim**, and Tae Wan Kim**)

Abstract

Current-voltage-luminance characteristics of organic light-emitting diodes (OLEDs) were measured in the temperature range of 10 K~300 K. Indium-tin-oxide (ITO) was used as an anode and aluminum as a cathode in the device. Organic of N,N'-diphenyl-N,N'-di(m-tolyl)-benzidine (TPD) was used for a hole transporting material, and tris (8-hydroxyquinolino) aluminum (Alq₃) for an electron transporting material and emissive material. And copper phthalocyanine (CuPc), poly(3,4-ethylenedioxythiophene):poly(styrenesulfonate) (PEDOT:PSS), and poly(N-vinylcarbazole) (PVK) were used for hole-injection buffer layers. From the analysis of electroluminescence (EL) and photoluminescence (PL) spectra of the Alq₃, the EL spectrum is more greenish than that of PL. And the temperature-dependent current-voltage characteristics were analyzed in the double and multilayer structure of OLEDs. Electrical conduction mechanism was explained in the region of high-electric and low-electric field. Temperature-dependent luminous efficiency and operating voltage were analyzed from the current-voltage-luminance characteristics of the OLEDs.

Key Words : Organic light-emitting diodes, Buffer layer, Current-voltage characteristics, Luminous efficiency, RGB color spectrum.

1. 서론

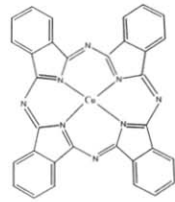
고화질 TV와 위성 방송 그리고 3차원 영상 처리 기술의 발달로 디스플레이 소자에 대한 특별한 연구가 요구되고 있다. 현재 많은 디스플레이 소자가 연구되고 있는데, 그 중에서 유기 발광 소자는 기존에 사용되고 있는 CRT, PDP, LCD, FED 등을 대체할 수 있는 미래의 소자로 유력시되고 있다[1].

유기 발광 소자는 1960년대 이후로 많은 연구가 진행되어 오고 있다. 1987년에 Tang과 VanSlyke가 저분자인 N,N'-diphenyl-N,N'-di(m-tolyl)-benzidine (TPD)와 tris (8-hydroxyquinolino) aluminum (Alq₃)를 이용하여 낮은 전압에서 녹색 발광을 처음으로 얻었으며[2], 1990년에는 캠브리지 대학교의 Friend가 poly(phenylenevinylene) (PPV)를 이용하여 고분자 녹색 발광을 처음으로 얻었다. 가장 적합한 디스플레이 소자는 천연색 구현, 낮은 동작 전압, 긴 수명, 안정적인 동작 파라미터, 고휘도, 높은 효율, 그리고 낮은 가격 등이 요구된다[3,4]. 이러한 요소를 만족시키기 위해서는 유기 발광 소자에서 전기적으로 중요한 요소인 전하 주입, 수송 및 발광에 대한 명확한 규명이 필요하게 되었고 이들을 제어하기 위한 전기 전도 모형에 대한 연구의 필요성이 증대되고 있다[5-7].

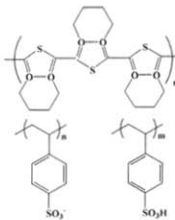
* : 광운대학교 전기공학과
(서울시 노원구 월계동 447-1,
Fax: 02-978-4327
Corresponding Author : donghoe3go@hanmail.net)
** : 홍익대학교 기초과학과
*** : 한국전기전자재료학회
2003년 3월 25일 접수, 2003년 4월16일 1차 심사완료,
2003년 5월 15일 최종 심사완료

유기 발광 소자의 단층 구조와 다른 구조를 비교하여 보면, 다층 구조는 quenching 현상을 감소시키고, 전하 운반자의 평형을 증가시켜 정공과 전자의 재결합 확률을 증가시킨다[8-10]. 다층 구조의 가장 큰 장점은 주입층, 수송층, 그리고 발광층을 각각 분리하여 효율을 증가시킬 수 있다는 점이다. 다층 구조의 장점을 갖는 소자를 제작하기 위하여 정공 주입 버퍼층의 대표적 물질인 세 가지 유기물(즉, CuPc, PEDOT:PSS, PVK)을 이용하여 다층 구조로 제작하였다. CuPc는 유기 발광 소자에서 전기적 안정성과 수명이 향상되는 것으로 알려져 있다. PEDOT:PSS는 전도 특성이 좋고 이를 이용하여 소자를 제작하면 효율이 향상되며 동작 전압이 낮아지는 효과가 있다. 그리고 PVK는 여러 분야에서 많이 사용되고 있는 물질로서, 이를 이용한 유기 발광 소자는 양자 효율이 향상되는 것으로 보고되고 있다[11].

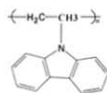
본 연구에서는 기본 소자와 버퍼층을 사용한 각각의 소자에 대하여 전도 메카니즘, 에너지 장벽, 동작 전압 그리고 발광 효율을 비교 분석하였다.



(a) CuPc



(b) PEDOT:PSS



(c) PVK

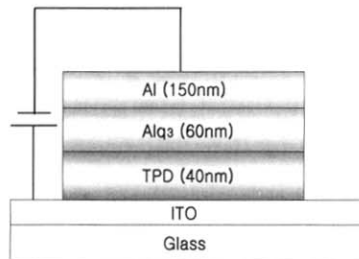
그림 1. 버퍼층으로 사용한 유기물질들의 분자 구조.
Fig. 1. Molecular structures of organic materials used as a buffer layer.

2. 실험

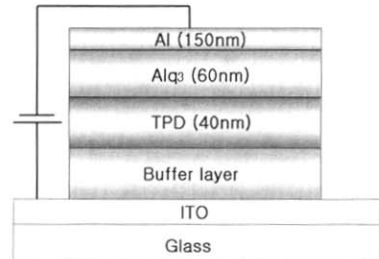
본 실험에서는 인듐-주석-산화물(Indium-Tin-Oxide : ITO)을 양극으로 사용하고 Al을 음극으로 각각 사용하였다. 기본 구조를 이층 구조인 ITO/TPD/Alq₃/Al으로 하였고, 다층 구조는 기본 구조에 버퍼층을 사용하여 ITO/Buffer/TPD/Alq₃/Al 소자 구조로 제작하였다. 버퍼층 물질은 CuPc, PEDOT:PSS, PVK를 사용하였고, 소자 구조는 다음과 같이 4 종류로 하였다.

- ① ITO/TPD(40nm)/Alq₃(60nm)/Al(150nm)
- ② ITO/CuPc(35nm)/TPD/Alq₃/Al
- ③ ITO/PEDOT:PSS(35nm)/TPD/Alq₃/Al
- ④ ITO/PVK(9nm)/TPD/Alq₃/Al

그림 1은 버퍼층으로 사용한 물질의 분자 구조이며, 그림 2는 본 연구에 사용한 소자의 구조를 나타내고 있다. 양극인 ITO에서 TPD 또는 버퍼층으로 정공이 주입되고 음극 Al으로부터 Alq₃로 전자가 주입된다. 주입된 정공과 전자는 발광층인 Alq₃에서 재결합을 하면서 발광하게 된다.



(a) ITO/TPD/Alq₃/Al



(b) ITO/buffer/TPD/Alq₃/Al

그림 2. 유기 발광 소자의 구조.

Fig. 2. Device structures of organic light-emitting diodes.

ITO 기판은 표면 저항이 $15 \Omega/\square$ 이고 두께가 170 nm로 삼성 코닝사에서 제조하였다. ITO 기판은 3M 사의 절연 테이프를 너비 5 mm로 테이핑 처리하고 염산과 질산을 각각 3:1의 부피 비로 혼합한 증기를 이용하여 patterning하였다. Patterning된 ITO는 클로로포름으로 20분간 초음파 세척을 하고, 증류수와 과산화수소 그리고 암모니아를 각각 5:1:1의 부피의 비로 혼합한 용액 속에서 80 °C로 60분간 가열하였으며, 다시 클로로포름과 증류수로 각각 20분씩 초음파 세척한 후, 질소 가스를 이용하여 건조하였다. TPD와 Alq₃는 TCI사의 제품으로 베이스 압력 5×10^{-6} torr의 진공도에서 0.7 Å/s의 비율로 ITO 위에 열 증착시켰으며, 두께는 각각 40 nm와 60 nm이다. 두께의 확인은 PLASMOS ellipsometer을 이용하여 측정하였다. 버퍼층으로 사용한 CuPc도 베이스 압력 5×10^{-6} torr에서 35 nm로 열 증착하였으며, PEDOT:PSS와 PVK(0.1wt%) 용액은 headway research 사의 photo-resist spinner(Model 1-EC101DT-R485)를 이용하여 6000 rpm에서 각각 60초간 스핀 코팅하였다. PEDOT:PSS의 두께는 35 nm이고 PVK(0.1wt%)의 두께는 약 9 nm이다. 음극으로 사용한 Al도 베이스 압력 5×10^{-6} torr의 진공도에서 두께 150 nm, 너비 3 mm로 열 증착하였다. Al은 10 nm까지의 두께는 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 곱으로써 15 mm²의 크기를 갖는다.

CTI-CRYOGENICS(Model 22)를 이용하여 유기 발광 소자의 온도를 10 K에서 300 K까지 변화시켜가면서 전기적 특성을 측정하였다. 전류-전압-회도 특성은 Keithley 236 source-measure unit, 617 electrometer 그리고 Si-photodiode (Centronics Co. OSD100-5T)를 이용하여 약 10^{-2} torr 진공하에서 측정하였다. 그리고 자외선/가시광선 흡광도(UV/visible absorption)와 전기 발광(EL) 특성은 HP 8452A Spectrophotometer와 Perkin Elmer LS 50B(Xenon flash tube)를 이용하여 측정하였다.

그림 3은 본 실험에서 사용한 유기물의 에너지 준위를 나타내고 있다. 기본 구조인 ITO/TPD/Alq₃/Al 구조에서 양극인 ITO로부터 TPD의 Highest Occupied Molecular Orbital (HOMO) 준위로 정공을 주입하기 위한 정공 주입 에너지 장벽(ϕ_h)은 0.7 eV이고 음극인 Al에서 Alq₃의

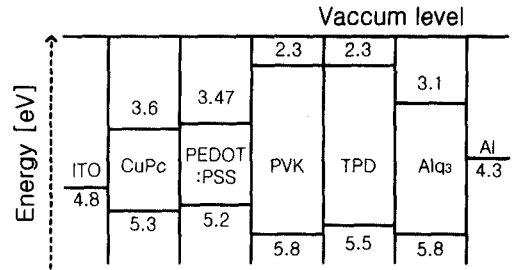


그림 3. 유기물의 에너지 준위.
Fig. 3. Energy level diagram of organic material.

Lowest Unoccupied Molecular Orbital (LUMO) 준위로 전자를 주입하기 위한 전자 주입 에너지 장벽(ϕ_e)은 1.2 eV이다. ITO/TPD/Alq₃/Al 구조에서 ITO로부터 유기물로 주입되는 정공 주입을 위한 에너지 장벽 높이를 변화시키기 위하여 서로 다른 HOMO 에너지 준위를 갖는 유기물을 이용하여 버퍼층을 구성하였다. ITO와 CuPc 사이의 정공 주입 에너지 장벽은 0.5 eV이고 ITO와 PEDOT:PSS 사이의 정공 주입 에너지 장벽은 0.4 eV이다. 따라서 CuPc와 PEDOT:PSS를 버퍼층으로 사용하는 경우, 정공 주입을 위한 에너지 장벽이 낮아지게 되는 반면에, ITO와 PVK의 경우는 정공 주입을 위한 에너지 장벽의 높이가 1.0 eV로써 기본 구조 소자의 경우보다 오히려 높아진다.

3. 결과 및 고찰

3.1 소자의 발광 스펙트럼

유기 발광 소자가 단색파를 방출할 때, 광자 하나의 에너지는

$$E = h\nu = h\frac{c}{\lambda} \quad (1)$$

이다. 여기서 h 는 플랑크 상수, ν 는 진동수, λ 는 파장, 그리고 c 는 빛의 속력이다. 그러나, 실제 소자에서 나오는 발광 스펙트럼은 연속 스펙트럼 분포를 갖는다. 파장 λ 에 의존하는 색상 분포 $L(\lambda)$ 를 고려할 때, 눈에서 감지하는 색상을 X (적색), Y (녹색), 그리고 Z (청색)로 정의할 수 있으며 다음과 같이 나타낼 수 있다.

$$X = C \int_{-\infty}^{\infty} R(\lambda)L(\lambda)d\lambda \quad (2)$$

$$Y = C \int_{-\infty}^{\infty} G(\lambda)L(\lambda)d\lambda \quad (3)$$

$$Z = C \int_{-\infty}^{\infty} B(\lambda)L(\lambda)d\lambda \quad (4)$$

여기서 C 는 눈의 전체 휘도 응답으로 정의되는 상수이며, X , Y , 그리고 Z 는 적색, 녹색, 그리고 청색의 세 가지 기본 색상에 관한 상수이다. 그리고 $R(\lambda)$, $G(\lambda)$, $B(\lambda)$ 는 그림 4(b)에서와 같이 사람의 눈에서 감지하는 적색, 녹색 그리고 청색 성분의 스펙트럼이다[12]. 따라서 눈에서 감지하는 전체 휘도는 다음과 같이 나타낼 수 있다.

$$L = X + Y + Z \quad (5)$$

또한 이들 X , Y , Z 각각에 대하여 색상의 비율로 일반화하면,

$$x = \frac{X}{L} = \frac{X}{X+Y+Z} \quad (6)$$

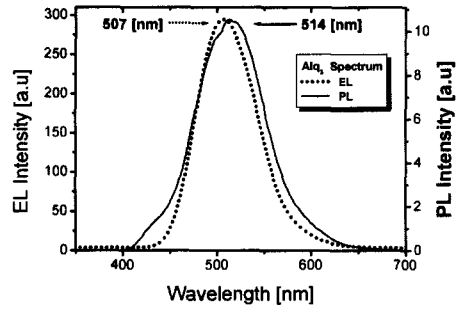
$$y = \frac{Y}{L} = \frac{Y}{X+Y+Z} \quad (7)$$

$$z = \frac{Z}{L} = \frac{Z}{X+Y+Z} \quad (8)$$

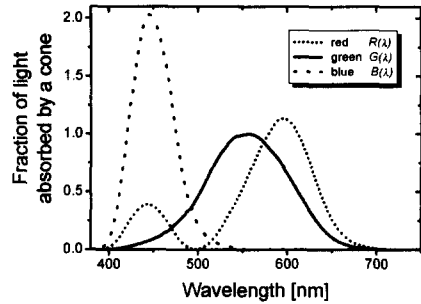
여기서 x , y , z 는 적색, 녹색 그리고 청색의 구성 성분에 대한 비율이다.

그림 4는 본 실험에서 발광층으로 사용한 Alq₃의 EL과 PL RGB 색상 스펙트럼 분석을 나타내고 있다. 그림 4(a)는 Alq₃의 EL과 PL 스펙트럼, (b) 사람의 눈에서 감지하는 RGB 스펙트럼, (c)는 Alq₃의 EL과 PL RGB 색좌표를 나타내고 있다. 그림 4(c)에서 EL의 CIE 색좌표는 $x=0.2067$, $y=0.5253$ 이고 PL의 색좌표는 $x=0.2301$, $y=0.4865$ 를 나타낸다. 그림 4(a) ~ (c) 분석을 통하여 상대적으로 EL이 PL보다 녹색 성분을 약 3.9% 더 많이 포함하고 있음을 알 수 있다. 이러한 EL과 PL의 스펙트럼 차이는 발광 메커니즘의 차이로 생각된다. EL은 소자가 고전계하에 있게 되며, 양극으로부터 정공이 주입되고 음극으로부터 전자가 주입된다. 주입된 정공과 전자는 발광층에서 재결합을 하면서 발광하게 된다. 이때 방출하는 빛의 파장이 EL 스펙트럼이다. 반면에 PL은 소자에 전계가 인가되지 않은 상태 하에서 외부로부터 빛이 조사된다. 소자에 조사된 빛은 분자를 들뜨게 하고 singlet 들뜬 상태의 전자와 정공이 결합하고 이들

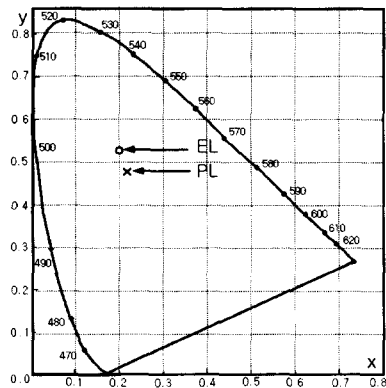
이 재결합하여 소멸되는 과정에서 그 에너지 차이에 해당되는 빛이 방출되게 된다. 따라서 PL과 EL은 발광 메커니즘의 차이에 의하여 약간의 스펙트럼 차이가 생기게 되는 것으로 생각된다.



(a) Alq₃의 EL과 PL 스펙트럼



(b) 사람의 눈에서 감지하는 RGB 스펙트럼



(c) Alq₃의 EL과 PL RGB 색좌표

그림 4. Alq₃의 EL과 PL RGB 색상 스펙트럼 분석.

Fig. 4. EL and PL RGB color spectrum analysis of Alq₃.

3.2 소자의 전기 전도 특성

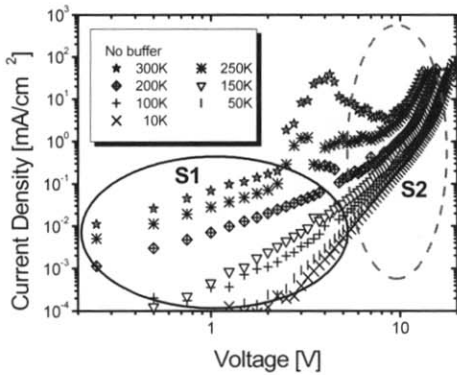
그림 5는 4 종류의 소자에 대한 전압-전류 특성을 보여주고 있다. 그림 5에서 전압-전류 특성을 분석하면 그래프의 기울기가 작은 S1 영역과 S2 영역으로 나누어짐을 알 수 있다. S1 영역은 저전계 영역이고 S2 영역은 고전계 영역이다. 한편 S1과 S2 사이, 즉 4~8 V의 범위에서 부성 저항 특성 영역이 있다. 부성 저항 영역에서는 전류의 흐름이 비교적 많으나 발광에는 거의 기여하지 못하고 있다. 이는 여러 발광 소자에서 이미 관찰된 바 있으며, ITO와 유기물 계면에서 산소에 의한 영향으로 판단된다[13].

S1의 저전계 영역에서 매우 낮은 전계가 인가되

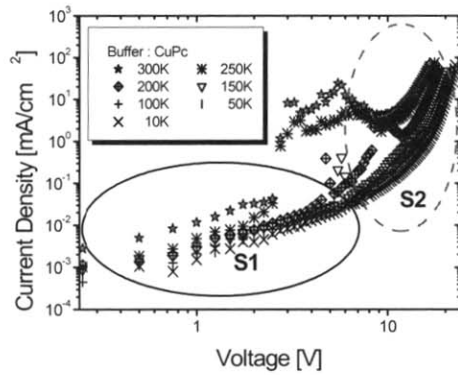
면, 주입되는 전하 운반자보다 주어진 온도에서 열적으로 발생한 전하 운반자에 의한 효과가 지배적이다. 이때, 전류 밀도는 옴의 법칙에 의하여 다음과 같다. 즉,

$$J_{Ohm} = en_0\mu \frac{V}{d} \quad (9)$$

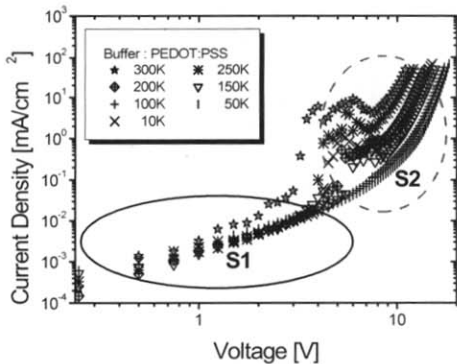
이다. 여기서 e 는 전하 운반자의 전하량, n_0 는 열적으로 발생한 전하 운반자 밀도, μ 는 전하 운반자의 이동도이다. 식 (9)가 성립하는 영역은 매우 낮은 전계 영역이므로 그림 5의 S1 영역의 저전계에서 관측된다.



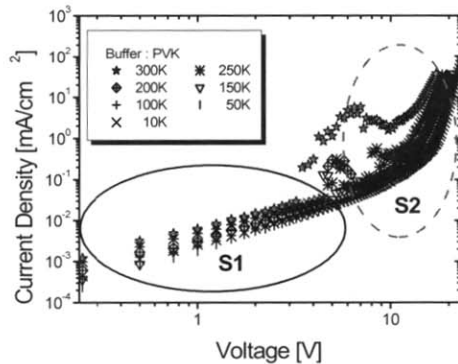
(a) ITO/TPD/Alq₃/Al



(b) ITO/CuPc/TPD/Alq₃/Al



(c) ITO/PEDOT:PSS/TPD/Alq₃/Al



(d) ITO/PVK/TPD/Alq₃/Al

그림 5. 각 소자 구조에 따른 전압-전류 특성.

Fig. 5. Current-Voltage characteristics with different device structure.

S1 영역 중 음 영역 이상에서 인가 전계를 증가 시키에 따라서 유기물 층에 주입되는 전하 운반자의 수가 증가하게 된다. 유기물 층 내에서의 전체 전류 밀도를 J_{intra} 이라 하고, 전극으로부터 주입되는 전류 밀도를 $J_{injection}$ 이라고 하면, 주입 전류가 유기물 층 내에서의 전체 전류보다 큰 경우가 (즉, $J_{intra} < J_{injection}$) 생기게 된다. 따라서 유기물의 LUMO로 주입되는 전하는 공간 전하를 형성하고 전류는 공간 전하 층에 의하여 제한을 받게 된다. 이와 같이 공간 전하 제한 전류(Space Charge Limited Current : SCLC)가 지배적인 경우, 유기물 층 내에 트랩이 없으면 전압과 전류의 관계식은 다음과 같다.

$$J_{SCLC} = \frac{9}{8} \epsilon \mu \frac{V^2}{d^3} \quad (10)$$

여기서, ϵ 은 유기물의 유전율, μ 는 전하 운반자의 이동도, V 는 인가 전압, d 는 유기물의 두께이다. 만약 유기물 층에 트랩이 존재하고 이들 트랩이 채워지지 않았다고 가정하면, 주입 전하가 트랩에 포획됨으로써 전류는 감소하게 된다. 따라서 식 (10)은 다음과 같이 쓸 수 있다[5].

$$J_{SCLC} = \frac{9}{8} \epsilon \theta \mu \frac{V^2}{d^3} \quad (11)$$

식 (10)과 (11)을 Mott와 Gurney 방정식이라고 부른다. 여기에서

$$\theta = \frac{n}{n + n_t} \quad \text{또는} \quad \theta = \frac{p}{p + p_t} \quad (12)$$

으로 각각 전자 및 정공에 대한 비를 나타낸 것이다 (n 은 자유 전자의 밀도, n_t 는 트랩된 전자의 밀도, p 는 자유 정공의 밀도, 그리고 p_t 는 트랩된 정공의 밀도이다).

그림 5의 S2 고전계 영역은 온도 범위에 따라서 터널링 전도 모형과 호핑 전도 모형으로 설명이 가능하다. 그림 5의 고전계 영역(S2)에서 온도의 영향을 받는 호핑 전도 메커니즘에 대한 전압과 전류의 관계는 다음과 같이 설명할 수 있다[6,7].

$$J \propto \frac{V^{m+1}}{d^{2m+1}} \quad (13)$$

$$E_t = kT_t = k \frac{\partial m}{\partial T^{-1}} \quad (14)$$

여기서, E_t 는 특성 에너지, k 는 볼츠만 상수, 그리고 T 는 절대온도이다.

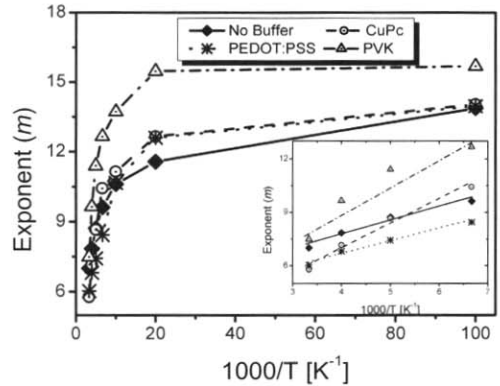


그림 6. 온도 변화에 따른 지수 m .

Fig. 6. Exponent m with temperature variation.

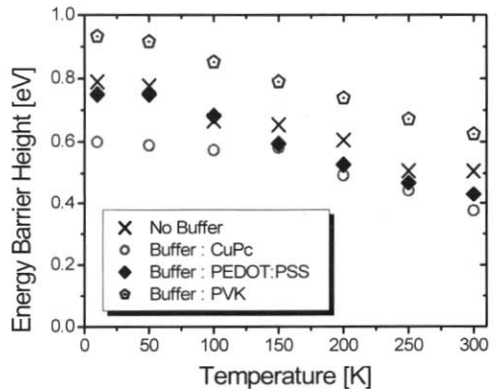


그림 7. Fowler-Nordheim 터널링 모델을 적용하여 얻은 온도 변화에 따른 에너지 장벽.

Fig. 7. Energy barrier height with temperature variation obtained from the Fowler-Nordheim tunneling model.

그림 5의 S2 영역에서 식 (14)를 이용하여 온도 변화에 따른 지수 m 을 구하여 그림 6에 나타내었다. 그림 6의 내부 그림에서와 같이 300 K에서 150 K까지의 영역에서는 지수 m 이 $1/T$ 에 비례함을 알 수 있고, 150 K에서 10 K까지는 비례 관계가 성립하지 않음을 알 수 있다. 따라서 300 K에서 150 K까지는 호핑 모형이 주된 전도 메카니즘이고, 150 K에서 10 K까지는 m 이 온도 변화에 거의 무관하므로 터널링 모형이 주된 전도 메카니즘임을 알 수 있다.

한편, 터널링 전도 메카니즘은 전계와 에너지 장벽에 의존하고 온도와 무관한 특성을 갖는다. 터널링

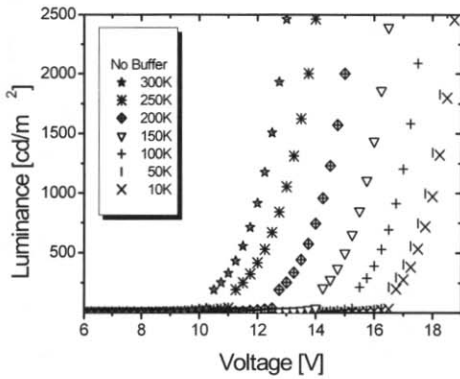
전도 메카니즘은 Fowler-Nordheim 이론을 이용하여 설명할 수 있다.

$$J = AE^2 \exp\left(\frac{-K}{E}\right) \quad (15)$$

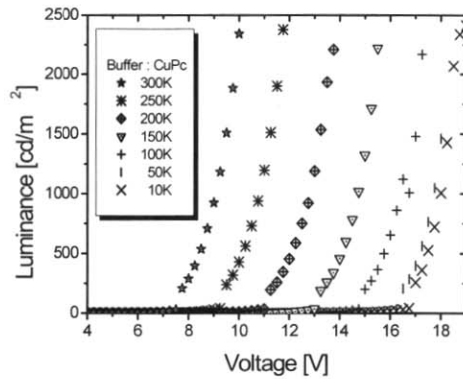
$$K = C(\varphi_0 - D\sqrt{E}) \quad (16)$$

$$C = \frac{8\pi\sqrt{2m^*}}{3qh} \quad (17)$$

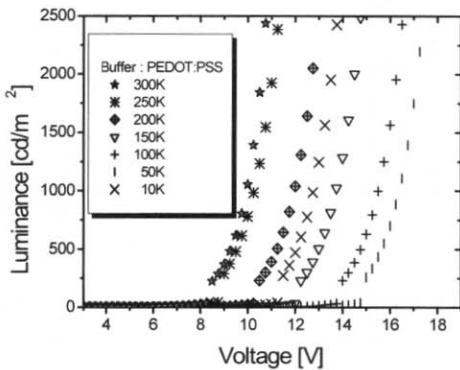
$$D = q\sqrt{\frac{q}{4\pi\epsilon}} \quad (18)$$



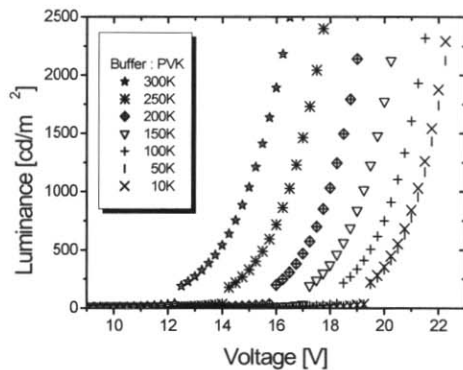
(a) ITO/TPD/Alq₃/Al



(b) ITO/CuPc/TPD/Alq₃/Al



(c) ITO/PEDOT:PSS/TPD/Alq₃/Al



(d) ITO/PVK/TPD/Alq₃/Al

그림 8. 버퍼층을 사용한 소자 구조에서의 다른 전압-휘도 특성.

Fig. 8. Current-luminance characteristics of the devices with different buffer layer.

여기서, ϕ_0 는 전계가 0일 때 에너지 장벽의 높이, q 는 전하량, h 는 플랑크 상수, 그리고 m^* 는 유기물 층에서의 정공 또는 전자의 유효 질량, ϵ 은 유기물의 유전율이다. 식 (15)와 (18)를 이용하여 정공 또는 전자의 터널링에 대한 유효 에너지 장벽의 높이를 얻을 수 있다.

그림 7은 온도 변화에 따른 에너지 장벽의 높이를 나타낸다. 그림 7에서 약 10 K 부근에서는 온도의 영향이 거의 없는 순수한 터널링 장벽 높이라고 할 수 있다. 10 K에서 버퍼층이 없는 ITO/TPD/Alq₃/Al 구조 소자의 터널링 장벽의 높이는 약 0.79 eV이다. 버퍼층으로 CuPc를 사용한 ITO/CuPc/TPD/Alq₃/Al과 PEDOT:PSS를 사용한 ITO/PEDOT:PSS/TPD/Alq₃/Al 소자 구조에서는 각각, 0.59 eV와 0.75 eV이다. 그러나 PVK를 버퍼층으로 사용한 ITO/PVK/TPD/Alq₃/Al 구조에서는 0.93 eV로써 전하 주입 에너지 장벽의 높이가 가장 높은 것으로 분석되었다. 300 K 부근에서는 온도의 영향으로 10 K에서보다 에너지 주입 장벽이 상당히 낮아졌음을 알 수 있다. 300 K에서 전하 주입의 에너지 장벽을 분석한 결과, ITO/TPD/Alq₃/Al 구조에서는 0.51 eV, 버퍼층으로 CuPc를 사용한 구조 소자에서는 0.37 eV, PEDOT:PSS를 이용한 소자 구조는 0.43 eV, 그리고 PVK를 버퍼층으로 사용한 소자에서는 0.62 eV로 분석되었다. 10 K에서 얻은 전하 주입 에너지 장벽은 그림 3의 유기물 에너지 준위로 보아서 정공 주입의 에너지 장벽으로 추론할 수 있다.

3.3 휘도 특성

그림 8은 각각의 소자 구조에서 온도 변화에 따른 전압-휘도 특성을 나타내고 있다. 버퍼층이 없는 ITO/TPD/Alq₃/Al 구조 소자의 전압-휘도 곡선과 버퍼층을 사용한 각각의 구조 소자에 대하여 비교하여 보면, 정공 주입을 위한 에너지 장벽이 낮아지는 CuPc와 PEDOT:PSS을 버퍼층으로 사용한 경우에는 모든 온도에서 동작 전압이 감소하였다. 반면에 정공 주입의 에너지 장벽이 기본 소자보다 높아지는 PVK의 경우에는 모든 온도에서 오히려 동작 전압이 높아진다. 따라서 그림 8로부터 버퍼층의 에너지 장벽 높이가 동작 전압에 크게 영향을 미침을 알 수 있다. 또한 온도가 감소함에 따라서 발광은 되고 있으나 유기 반도체의 특성으로 인하여 동작 전압이 높아짐을 알 수 있다. 한편, 디스플레이 응용에서는 발광 효율(luminous

efficiency)이 유용한 측정 방법이다. 발광 효율은 $\eta = \pi L / JV$ 로 주어지며, 단위는 lm/W이다. 여기서 L 은 휘도이며 단위는 cd/m², J 는 전류 밀도이며 단위는 A/m², 그리고 V 는 전압을 각각 나타낸다. 디스플레이의 응용 가능성을 알아보기 위하여 그림 8의 전압-휘도 특성을 이용하여 300 cd/m²에서의 발광 효율을 온도에 따라서 그림 9에 나타내었다.

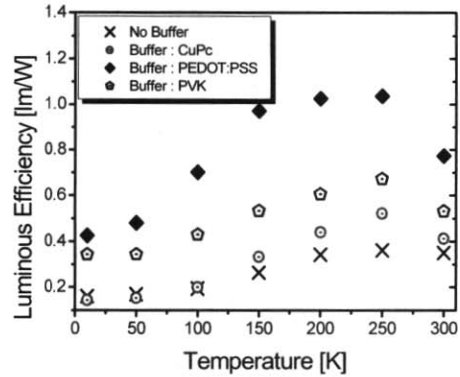


그림 9. ITO/Buffer/TPD/Alq₃/Al 구조에서 300 cd/m²일 때의 온도에 따른 발광 효율.

Fig. 9. Temperature dependent luminous efficiency in ITO/Buffer/TPD/Alq₃/Al structure at 300 cd/m².

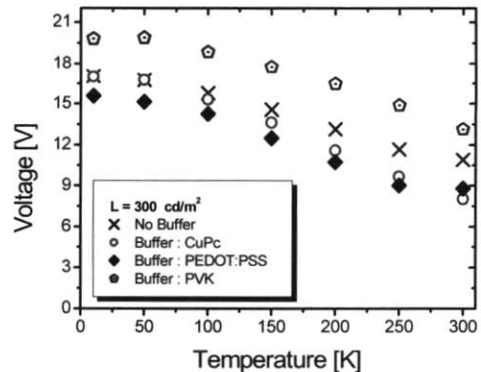


그림 10. 300 cd/m²에서 온도 변화에 따른 전압 특성.

Fig. 10. Voltage-temperature characteristics at 300 cd/m².

그림 9로부터, 버퍼층을 사용한 다층 구조 소자가 기본 소자로 사용한 이층 소자 구조보다 발광 효율이 모두 증가함을 알 수 있었다. 300 K에서 ITO/TPD/Alq₃/Al의 기본 소자를 기준으로, CuPc를 버퍼층으로 사용한 경우가 기본 소자보다 약 17%, PEDOT:PSS의 경우 약 120%, 그리고 PVK인 경우 약 52%의 발광 효율이 향상되었다. 한편, 온도가 변함에 따라서 효율이 250 K 부근에서 최대가 됨을 알 수 있다. 이는 온도에 따라서 소자를 구성하는 유기물들의 저항 변화가 서로 다르기 때문으로 생각된다. 즉, 일정 전압을 소자에 인가하였을 때 각 유기물 사이에 걸리는 전압 강하가 온도에 따라 변하기 때문으로 판단된다.

그림 10은 각각의 소자 구조에서 나오는 휘도가 300 cd/m²일 때 온도 변화에 따른 전압이다. 기본 소자와 비교하여 버퍼층으로 CuPc나 PEDOT:PSS를 이용한 소자 구조에서 동작 전압이 매우 낮아짐을 알 수 있다. 그러나 PVK를 이용한 경우에는 양자 효율이 향상된다고 할지라도 동작 전압이 높은 단점이 있다.

4. 결 론

버퍼층을 이용한 유기 발광 소자를 분석하여 본 결과, 유기물의 전도 현상을 전압-전류 특성에 따라서 저전계 영역과 고전계 영역으로 분류하였다. 저전계 영역은 다시 옴 영역과 공간 전하 제한 전류(SCLC) 영역으로 분류할 수 있으며, 고전계 영역은 온도의 영향에 따라서 호핑 전도 모형과 터널링 전도 모형으로 설명할 수 있다[14]. 본 논문에서는 이론과 실험 결과를 이용하여 상온에서부터 150 K까지를 호핑 전도 모형으로, 그리고 150 K 이하를 터널링 전도 모형으로 분석하였고, 온도의 변화에 따른 전하 주입 에너지 장벽의 높이를 구하였다. 또한 소자의 구조에 따라서 전압-휘도 특성으로부터 동작 전압과 발광 효율을 분석하였다. 기본 구조인 이층 구조보다 버퍼층을 이용한 다층 구조가 발광 효율이 훨씬 우수하였다. 그러나 동작 전압은 버퍼층으로 CuPc와 PEDOT:PSS를 이용한 소자의 경우는 매우 낮아지나 PVK의 경우는 오히려 증가하는 결과를 얻었다. 본 실험에서 발광 효율과 동작 전압을 고려하면, 최적의 소자 조건은 ITO/PEDOT:PSS/TPD/Alq₃/Al임을 알 수 있었다.

감사의 글

본 연구는 학술진흥재단의 중점 연구소 지원 과제에 의하여 수행되었으며, 이에 감사 드립니다 (KRF-2001-005-D22001).

참고 문헌

- [1] 정동희, 김상걸, 정택균, 김태완, 이준웅, "유기 발광 소자에서의 전기 전도 기구", 전기전자재료학회지, 15권, 1호, p. 7, 2001.
- [2] C. W. Tang and S. A. VanSlyke, "Organic electroluminescent diodes", Appl. Phys. Lett., Vol. 51, p. 913, 1987.
- [3] Ananth Dodabalapur, "Organic light emitting diodes", Solid State Communications Vol. 102, p. 259, 1997.
- [4] N. C. Greenham and R. H. Friend, "Semiconductor device physics of conjugated polymer", Solid State Physics (Ed.s H. Ehrenreich and F. Spaepen) Vol. 49, p. 1, 1995.
- [5] Ma Dongge and I. A. Hummelgen, "Charge carrier mobility in electroluminescent alternating block copolymers", J. Appl. Phys., Vol. 86, No. 6, p. 3181, 1999.
- [6] I. D. Parker, "Carrier tunneling and device characteristics in polymer light-emitting diodes", J. Appl. Phys., Vol. 75, No. 3, p. 1658, 1994.
- [7] J. W. Jeon, G. W. Kang, and C. H. Lee, "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.
- [8] Yakovlev, Yu. O., Zolin, and V. F., "Principles of material selection for thin-film organic light-emitting diodes", Synthetic Metals, Vol. 91, p. 205, 1997.
- [9] S. K. Kim, D. H. Chung, T. G. Chung, H. S. Lee, K. U. Jang, M. G. Choi, J. W. Hong, J. U. Lee, and T. W. Kim, "Efficiency improvement of OLEDs with a variation of cathodes", Proceeding of the KIEEME Annual Summer Conference 2002, Vol. 3, No. 2, p. 1038, 2002.

- [10] D. H. Chung, S. K. Kim, T. G. Chung, H. S. Oh, W. J. Lee, J. W. Hong, J. U. Lee, and T. W. Kim, "Conduction mechanism in organic light-emitting diodes in ITO/PEDOT:PSS/TPD/Alq₃/LiAl structure", Proceeding of the KIEEME Annual Summer Conference 2002, Vol. 3, No. 1, p. 198, 2002.
- [11] Sang-Keol Kim, "Efficiency Improvement and Electrical Properties of Organic Light-Emitting Diodes", Ph.D. Thesis, p. 42, 2002.
- [12] Arthur R. Weeks, and Jr., "Fundamentals of Electronic Image Processing", IEEE, p. 228, 1998.
- [13] J. Laubender, L. Chkoda, M. Sokolowski, and E. Umbach, "The influence of oxygen and air on the characteristics of organic light-emitting devices studied by in vacuo measurements", Synthetic Metals, 111-112, p. 373, 2000.
- [14] Dong-Hoe Chung, Sang-Keol Kim, Hyun Seok Oh, Jin-Woong Hong, Jun-Ung Lee, and Tae Wan Kim, "Temperature-dependent Electrical Properties in organic light-emitting diodes of ITO/Buffer layer/TPD/Alq₃/Al structure", Proceeding of the KIEEME Annual Autumn Conference 2002, Vol. 15, p. 534, 2002.