

유기발광 소자에서 유기층의 두께 및 증착속도 변화에 따른 전기적 특성

Electrical Characteristics on the Variation of Thickness and Deposition Rate in Organic Layer of OLEDs

이영환¹, 김원종¹, 양재훈¹, 신종열², 김태완³, 홍진웅^{1,a}

(Young-Hwan Lee¹, Weon-Jong Kim¹, Jae-Hoon Yang¹, Jong-Yeol Shin², Tae-Wan Kim³, and Jin-Woong Hong^{1,a})

Abstract

OLEDs(Organic Light Emitting Diodes) are attractive as alternative display components because of their relative merits of being self-emitting, having large intrinsic viewing angle and fast switching speed. But because of their relatively short history of development, much remains to be studied in terms of their basic device physics and design, manufacturing techniques, stability and so on. We investigated electrical properties of N, N-diphenyl-N, N bis (3-methyphenyl)-1,1'-biphenyl-4,4'-diamine (TPD) and tris-8-hydroxyquinoline aluminum(Alq₃) when their thicknesses were changed variedly from 3:7 to 5:5 of their thickness ratios. And we also studied properties of OLED depend on their deposition rate between 0.05~0.2 nm/s.

Key Words : OLED, Hole transport layer, Emission layer, Deposition rate, Luminance

1. 서론

유기발광 소자는 1987년에 C. W Tang 박사 등이 고성능인 적층형 유기발광 소자를 보고한 이후 현재까지 차세대 디스플레이의 중심으로서 많은 연구가 진행되어오고 있다[1-3]. 유기발광 소자의 특성은 1963년 Pope에 의한 안트라센(anthracene) 단결정(single crystal)의 발광 연구를 통해 처음으로 알려지게 되었다[4,5]. 그러나 이 연구에서는 단결정의 두께가 수 μm 에서 수 mm 로 발광을 위해서는 100 V 정도의 큰 전압이 필요했고 소자의 전력 변환 효율은 0.1 % 이하이고 외부 양자 효율은 약 5 % 이하를 나타내었다. 그 후에 1980년대에 이르

러 C. W Tang 박사 등의 연구로 인해 다층구조를 연구하기 시작하면서 급속한 발전이 시작되었다. 유기발광 소자는 ITO(Indium Tin Oxide)를 양극으로 Al이나 Mg, Ag 같은 일함수가 낮은 금속을 음극으로 사용하고 그 사이에 유기물을 삽입한 구조로 되어있다[6]. 발광 메커니즘은 양극과 음극으로부터 전자와 정공이 발광층으로 주입되고 이들이 여기상태를 거쳐 다시 재결합 하는 것에 의해 발광되는 것이다[1]. 유기발광 소자의 메커니즘에서 정공의 이동속도가 전자의 이동속도보다 빠르기 때문에 발광층으로 전자와 정공의 주입이 원활히 이루어지도록 각각의 유기물과 금속의 일함수를 완만한 계단형으로 만들어준다.

유기발광 소자는 소비전력이 낮고 두께가 얇고 가볍고 시야각이 넓고 응답 속도가 빠르고 온도 의존성이 작아 각 분야에서 활발한 연구가 진행되고 있으나, 유기물의 두께 및 증착속도에 대한 연구는 미흡한 실정이다[7]. 이에 본 논문에서는 효율적인 특성을 얻기 위하여 발광층과 정공 수송층의 두께를 다양하게 변화시킴으로서 전자와 정공

1. 광운대학교 전기공학과
(서울시 노원구 월계동 447-1)
2. 삼육대학교 자동차과
3. 홍익대학교 물리학과
a. Corresponding Author : ealab@daisy.kw.ac.kr
접수일자 : 2005. 9. 13
1차 심사 : 2006. 2. 6
심사완료 : 2006. 2. 27

의 이동에 적절한 두께를 확인하여 이를 바탕으로 유기물의 증착속도를 변화시켜서 이에 따른 전기적 특성과 광학적 특성을 살펴보았다[8].

2. 시료 및 실험

2.1 시료

본 실험에서 양(+)극으로는 S사의 ~15 Ω/□의 표면 저항과 170 nm 두께의 ITO 기판을 염산과 질산을 3:1의 비율로 혼합하여 active area를 제외한 부분을 식각하여 사용하였다. 그 후 ITO를 클로로포름으로 세척한 후 과산화수소, 암모니아, 증류수를 1:1:5의 비율로 섞은 용액 속에 기판을 넣고 70~80 °C의 온도에서 1시간 가열하고 다시 클로로포름, 메틸알코올, 증류수의 순서로 약 50 °C의 온도에서 20분 동안 초음파세척을 하여 ITO에 부착된 기름기 및 이물질을 제거하였다. 그 후 ITO를 건조하여 사용하였다. Al을 증착시키기 위해 사용되는 텅스텐 보트는 실험 전에 아세톤과 알코올을 1:1의 비율로 섞은 용액에 50 °C의 온도에서 20분간 초음파 세척하여 건조한 후 사용하였다. 실험에 사용한 유기물 TPD와 Alq₃는 T사의 제품을 사용하였다.

2.2 시료

유기발광 소자의 전기적 특성을 조사하기 위하여 그림 1과 같은 소자를 준비하였고 이 때 TPD와 Alq₃의 두께는 각각 30 nm:70 nm, 40 nm:60 nm, 50 nm:50 nm로 소자를 제작하였다[9,10]. 유기물은 먼저 Alq₃의 증착속도가 0.15 nm/s일 때 우수한 특성을 나타낸다는 보고에[11] 따라 Alq₃의 증착속도를 0.15 nm/s로 고정하고 TPD의 증착 속

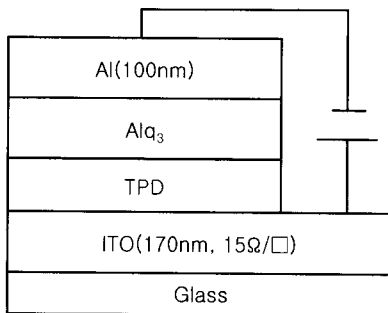


그림 1. OLED 소자의 구조.
Fig. 1. Structure of OLEDs device.

도를 약 0.05~0.20 nm/s으로 0.05 nm/s 씩 증가시켜 실험하였고, Al은 0.1~1.0 nm/s의 속도로 각각 5×10^{-6} Torr 이하의 진공도에서 시료를 제작하였다. 이 때 유기물의 두께는 두께 변화에 따른 실험을 토대로 TPD와 Alq₃의 두께를 40 nm:60 nm하여 소자를 제작하였다.

제작된 소자는 source measure unit으로는 Keithley 236을 사용하였으며 Keithley 617 electrometer로 휘도 및 전류를 측정하였다. 그리고 전압, 전류 등은 기기 제어 프로그램인 Test Point로 측정하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1 유기층 두께변화에 따른 특성

유기층 두께 변화에 따른 전류밀도를 조사하기 위하여 TPD와 Alq₃의 두께에 따른 전류 밀도를 측정된 결과를 그림 2에 나타냈다. 여기서 T와 A는 각각 TPD와 Alq₃를 표시한 것이며, 소자별로 약간의 차이는 있었으나 인가전압의 증가에 따라 4 V 부근에서 전류밀도가 급격히 증가하였다. 계속적으로 전압이 증가하면 전자와 정공이 만나 재결합을 하면서 발광할 때 전류는 다시 감소하게 되고, 그후 전압의 증가에 따라 전류는 다시 상승하여 최대값을 나타내다가 10 V 이후에서 소자는 손상이 된다. TPD와 Alq₃의 두께가 40 nm:60 nm일 때 가장 높은 전류밀도가 나타남을 확인할 수 있었다. 이 때 전류밀도와 전압 특성 $J-V$ 는 Fowler-Nordheim 터널링 이론에 적용하여 이해할 수 있다[12,13]. 전극으로부터의 터널링 이론은 전계 E 와 전위장벽높이 Φ 의 작용으로 식 (1)과 같이 표현할 수 있다.

$$J \propto E^2 \exp[-8\pi(2m^*)^{1/2}\Phi^{3/2}(3qhE)^{-1}] \quad (1)$$

여기서 m^* 는 전자와 정공의 효율적인 질량, Φ 는 전위장벽높이, E 는 전계($E = V/d$ 에서 V 는 인가전압 d 는 박막의 두께)이다. 즉, 유기물의 두께가 일정하다고 하면 전류밀도 J 는 인가전압인 V 에 의존한다.

그림 3은 소자의 휘도 특성을 나타낸 것으로 그림에서와 같이 휘도는 전압이 증가함에 따라 서서히 증가하다가 5 V에서부터 빠르게 증가하였으며 9 V 부근에서 최대값을 나타낸 후 급격히 감소하였다. 각각의 시료 중에서 TPD와 Alq₃ 두께가 40 nm:60 nm일 때 가장 높은 휘도를 나타냈다.

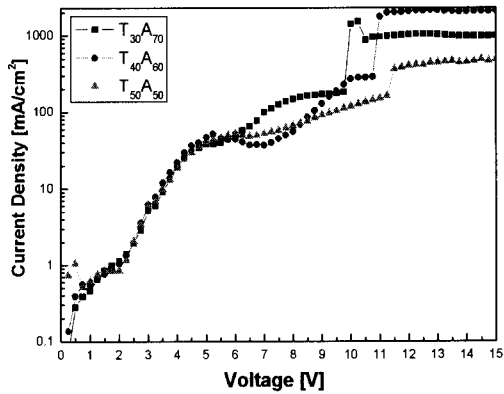


그림 2. TPD와 Alq₃의 두께 변화에 따른 전류밀도 특성.
 Fig. 2. Current density characteristics with the variation of TPD and Alq₃ thickness.

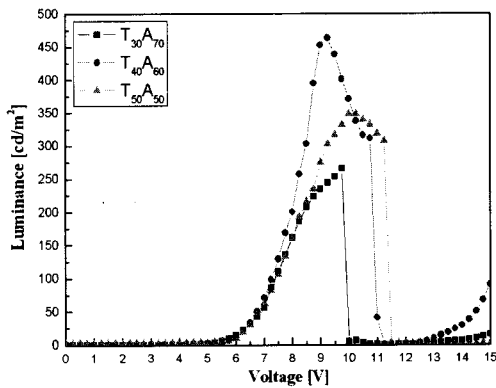


그림 3. TPD와 Alq₃의 두께 변화에 따른 휘도 특성.
 Fig. 3. Luminance characteristics with the variation of TPD and Alq₃ thickness.

유기발광 소자에서의 효과적인 주입 장벽은 양극의 페르미 준위와 정공 수송층의 HOMO (Highest Occupied Molecular Orbital) 준위의 차이로 이는 식 (2)로 간단하게 설명될 수 있다.

$$t_c \approx \frac{\Delta E}{qF_a} \quad (2)$$

여기서 ΔE 는 정공 수송층과 발광층의 HOMO 준위의 차이를 나타내고 F_a 는 전계의 세기, q 는 기본 전하, t_c 는 주입 장벽을 나타낸다. 위의 식에

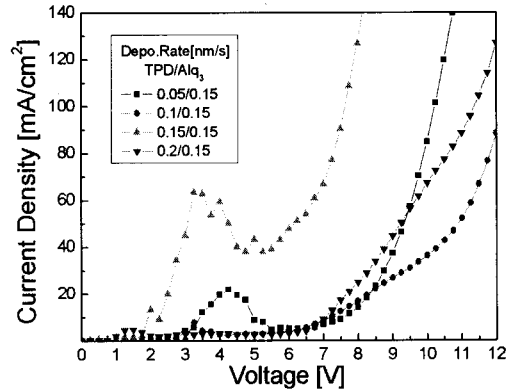


그림 4. TPD와 Alq₃의 증착속도 변화에 따른 전류밀도 특성.
 Fig. 4. Current density characteristics with the variation of TPD and Alq₃ deposition rate.

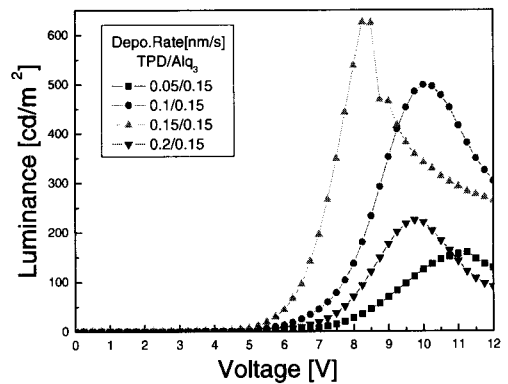


그림 5. TPD와 Alq₃의 증착속도 변화에 따른 휘도 특성.
 Fig. 5. Luminance characteristics with the variation of TPD and Alq₃ deposition rate.

서 알 수 있듯이 효율적인 주입 장벽은 전계의 세기에 반비례하고 HOMO 준위 차이에 비례하기 때문에 사료된다[8]. 따라서 두께 비율이 40 nm: 60 nm일 때 우수한 특성이 나타나는 현상은 재결합에 필요한 정공의 주입이 원활하게 조절되어 발광층에서 전자와 정공의 재결합의 비율을 상승시켜서 여기자의 생성을 증가시키기 때문으로 생각된다.

3.2 유기층 증착 속도 변화에 따른 특성

유기층의 증착속도 변화에 따른 전류밀도를 조사

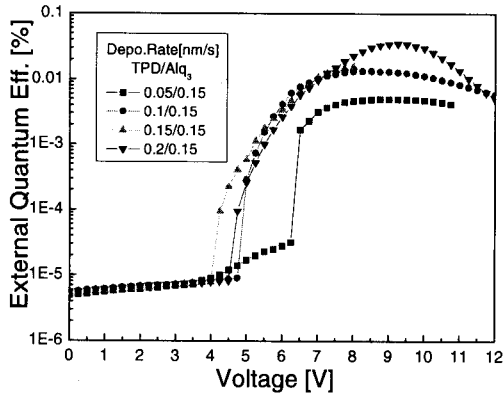


그림 6. TPD와 Alq₃의 증착속도 변화에 따른 외부양자효율 특성.

Fig. 6. External quantum efficiency characteristics with the variation of TPD and Alq₃ deposition rate.

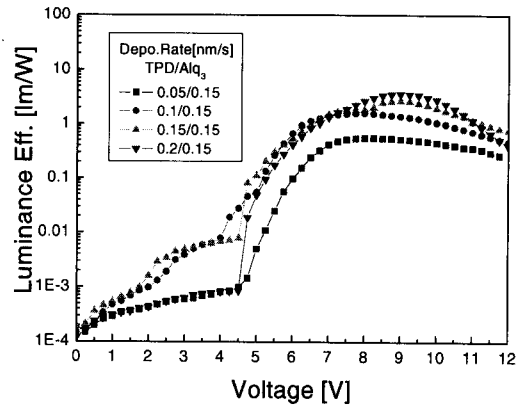


그림 7. TPD와 Alq₃의 증착속도 변화에 따른 발광효율 특성.

Fig. 7. Luminous efficiency characteristics with the variation of TPD and Alq₃ deposition rate.

하기 위해 Alq₃의 증착속도는 0.15 nm/s로 일정하게 하고, TPD의 증착속도를 변화시킨 결과를 그림 4에 나타내었다. 약 2 V에서부터 전류밀도가 증가하다가 다시 감소하였으며, 6 V 이후에서 매우 크게 증가하였다. 또한, 같은 전압에서는 TPD와 Alq₃의 증착속도가 각각 0.15 nm/s일 때 전류밀도가 가장 큰 값을 가짐을 알 수 있었다.

그림 5에 나타난 것은 TPD와 Alq₃의 증착속도에 따른 휘도 특성으로 0 V에서 6 V 부근 까지는 미세하게 상승하다가 6 V 이후에서부터 급격히 증가하여 발광이 시작됨을 확인할 수 있었다. 그리고 TPD와 Alq₃의 증착속도가 각각 0.15 nm/s일 때 같은 전압 조건에서의 휘도 특성은 8.25 V에서 다른 소자에 비해 높은, 625 cd/m²를 얻어 우수한 특성을 가짐을 알 수 있었다.

그림 6과 그림 7에는 TPD와 Alq₃의 증착속도에 따른 외부 양자 효율과 발광 효율을 나타내었는데 발광효율은 식 (3)과 같이 구할 수 있다.

$$\eta = \frac{\pi B}{JV} \quad [\text{lm/W}] \quad (3)$$

여기서 B 는 발광면에서 수직으로 나오는 빛의 휘도 [cd/m²], J 는 전류 밀도 [A/m²], V 는 전압 [V]를 나타낸다. 따라서 발광 효율은 휘도에 비례하고 전압 및 전류밀도에 반비례하기 때문에 인가 전압이 증가함에 따라 발광이 시작되는 부분에서

증가하기 시작하여 최대치를 나타내다가 9 V 부근에서부터 감소하게 된다. 이것은 전압의 증가에 따라 휘도는 크게 증가하지 않는 반면에 전압은 선형적으로 증가하게 되어 결국 전압 증가에 따른 효율은 감소하게 되는 것이다.

그림 6과 그림 7에서 각 소자별 특성을 살펴보면 전압이 증가함에 따라 효율은 서서히 증가하다가 4 V에서 6 V 부근에서 급격히 증가하였으며, 약 9 V 이상에서는 효율이 감소하기 시작하였다.

전자 이동도는 정공 이동도에 비해 전계의 증가에 따라 급격히 증가하는데 높은 전류 밀도에서는 전자들의 대부분이 재결합을 하기 전에 활성영역을 넘어버린다. 이러한 이유로 일정 전압 이상에서 전류밀도의 증가에 따라 발광 효율이 감소하는 것이다. TPD의 증착속도와 Alq₃의 증착속도가 각각 0.15 nm/s일 때 다른 소자에 비해 높은 효율을 갖는다는 것을 알 수 있었다.

4. 결론

유기 발광 소자의 정공 수송층과 발광층의 두께와 증착 속도를 변화시켜 전기적 특성 및 광학적 특성을 연구한 결과 다음과 같은 결론을 얻었다.

(1) 두께 변화에 따른 전류밀도 특성은 TPD와 Alq₃의 두께가 40 nm:60 nm일 때 가장 높은 값을 나타냈으며, 휘도도 TPD와 Alq₃의 두께가 각각 40

nm:60 nm일 때 가장 우수한 특성을 가진다는 것을 확인하였다.

(2) TPD와 Alq₃의 증착 속도 변화에 따른 전류 밀도의 특성은 TPD와 Alq₃의 증착 속도가 각각 0.15 nm/s일 때 가장 높은 값을 나타냄을 확인하였고, 휘도 특성에서도 증착 속도가 0.15 nm/s일 때 우수함을 확인하였다.

(3) TPD와 Alq₃의 증착 속도 변화에 따른 외부 양자 효율 특성과 발광 효율 특성도 증착 속도가 각각 0.15 nm/s일 때 가장 우수한 특성이 나타남을 확인하였다.

참고 문헌

- [1] C. W. Tang and S. A. VanSlyke, "Organic electroluminescent diodes", Appl. Phys. Lett., Vol. 51, p. 913, 1987.
- [2] S. K. Kim, D. H. Chung, H. S. Lee, H. N. Cho, J. W. Park, J. W. Hong, and T. W. Kim, "Temperature dependent electrical properties in ITO/TPD/Alq₃/Al organic light-emitting diodes", Synthetic Metals, Vol. 137, p. 1041, 2003.
- [3] W. J. Kim, Y. H. Lee, J. H. Yang, T. Y. Kim, T. W. Kim, and J. W. Hong, "Electrical characteristics and luminous efficiency of OLEDs depending on hole injection layer", ME&D-16, p. 85, 2005.
- [4] C. W. Tang, "An overview of organic electroluminescent materials and devices", SDI 96 DIGEST, 1996.
- [5] Y. Hamada, T. Sano, H. Fujii, Y. Nishio, H. Takahashi, and K. Shibata "Organic light-emitting diode using 3- or 5-hydroxyflavone-metal complexes", Appl. Phys. Lett., Vol. 71, No. 23, p. 3338, 1997.
- [6] V. Savvate'ev, J. Friedl, and L. Zou, "Efficiency peaks in the transient electro-luminescence of multilayer organic light-emitting devices", Appl. Phys. Lett., Vol. 76, p. 2170, 2000.
- [7] S. K. Kim, J. W. Hong, and T. W. Kim, "Current voltage characteristics of organic light emitting diodes with a variation of temperature", Trans. KIEE., Vol. 51-C-7, 2002.
- [8] C. Qiu, H. Chen, and M. Wong, "Dependence of the current and power efficiencies of organic light-emitting diode on the thickness of the constituent organic layers", IEEE T Electron Dev., Vol. 48, No. 9, p. 2131, 2001.
- [9] J. R. Barker, "Non-equilibrium quantum transport in finite device structures in the presence of non-self-averaged atomistic impurity scattering", Semicond. Sci. Tech., Vol. 19, No. 4, p. S56, 2004.
- [10] H. Mu, H. Shen, and D. Klotzkin, "Dependence of film morphology on deposition rate in ITO/TPD/Alq₃/Al organic luminescent diodes", Solid State Electron., Vol. 48, No. 10-11, p. 2085, 2004.
- [11] C. B. Lee, A. Uddin, X. Hu, and T. G. Anderson, "Study of Alq₃ thermal evaporation rate effects on the OLED", Mat. Sci. Eng. B, Vol. 112, No. 1, p. 14, 2004.
- [12] I. D. Parker, "Device characteristics in polymer light-emitting diodes", J. Appl. Phys., 75, p. 1656, 1994.
- [13] Y. Qiu and D. Q. Zhang, "Dependence of the performance of the organic electro-luminescent devices upon the deposition rate of organic thin films", Synth. Metals. 110, p. 241, 2000.