

온도 변화에 따른 유기 전기 발광 소자의 전기적 특성

Temperature-dependent current-voltage characteristics of Organic Light-Emitting Diodes(OLEDs)

이호식, 정택균, 김상걸, 정동희, 장경욱, 이원재, 김태완, 이준웅, 강도열
(Ho-Sik Lee, Taek-Gyun Chung, Sang-Keol Kim, Dong-Hoe Jung, Kyung-Wook Jang,
Won-Jae Lee, Tae-Wan Kim, Joon-Ung Lee, Dou-Yol Kang)

Abstract

Temperature-dependent current-voltage characteristics of Organic Light-Emitting Diodes(OLEDs) were studied. The OLEDs were based on the molecular compounds, N,N'-diphenyl-N,N'-bis(3-methylphenyl)-1,1'-diphenyl-4,4'-diamine (TPD) as a hole transport and tris(8-hydroxyquinoline) aluminum(Alq₃) as an electron transport and emissive material. The current-voltage characteristics were measured in the temperature range of 10[K] and 300[K]. A conduction mechanism in OLEDs was interpreted in terms of tunneling and trap-filled limited current.

Key Words : OLEDs, Conduction mechanism

1. 서 론

반도체 소자의 발명으로 인하여 발전을 거듭한 현대 산업은 최근 초소형화, 고집적화에 노력을 집중하고 있으며, 또한 이를 위한 연구가 계속되고 있다. 이의 한가지 방법이 유기 분자 전자 소자의 개발이다. 따라서 유기 분자를 이용한 분자 소자의 제작과 제작한 분자 소자의 물성 평가는 매우 중요하다고 할 수 있다. 특히 유기 전기 발광 소자는 Tang과 VanSlyke¹⁾에 의해 연구가 시작되었으며, 현재 많은 종류의 유기 발광 소자를 이용하여 고효율의 소자를 얻고자 많은 연구자들이 연구를 하고 있다. 몇몇의 유기 발광 소자의 연구가 이러한 목적을 실현하기

위해서 진행되고 있다²⁾. 따라서 유기 발광 소자에서 발광 효율을 관측하기 위하여, 전하 이동과 특정 구조에서의 발광 메카니즘에 관하여 연구가 활발히 진행되고 있다. 특히 고분자 발광 소자에서, 고전계에서의 전압-전류 특성은 유기 층의 에너지띠에서 금속 전극으로부터 주입되는 전자와 정공의 터널 효과로 해석되고 있다. 반면에 공간 전하 효과는 저전계 영역에서 해석되는 것으로 알려져 있다³⁾. 따라서, 본 연구에서는 상온에서의 유기 발광 소자의 전류-전압 특성 및 극 저온에서의 전압-전류 특성을 통하여 절연체에서의 트랩 분포 특성을 연구하고자 한다. 또한 유기 발광 소자에서의 intrinsic 벌크 특성을 연구하고자 한다.

홍익대학교 전기제어공학과
(서울시 마포구 상수동 72-1,
Fax : 02-3142-0335
E-mail : ghslee@wow1.hongik.ac.kr)

2. 실험

2.1. 성막 물질

본 연구에서는 일반적으로 널리 알려진 물질인 N,N'-diphenyl-N,N'-bis(3-methylphenyl)-1,1'-diphenyl-4,4'-diamine(TPD)와 tris(8-hydroxyquinoline) aluminum(Alq₃)를 사용하였다. 여기서 TPD는 정공 수송 물질로 사용하였고, Alq₃는 전자 수송 물질로 사용하였다. 그림 1은 본 연구에 사용한 성막 물질의 구조를 나타내고 있다.

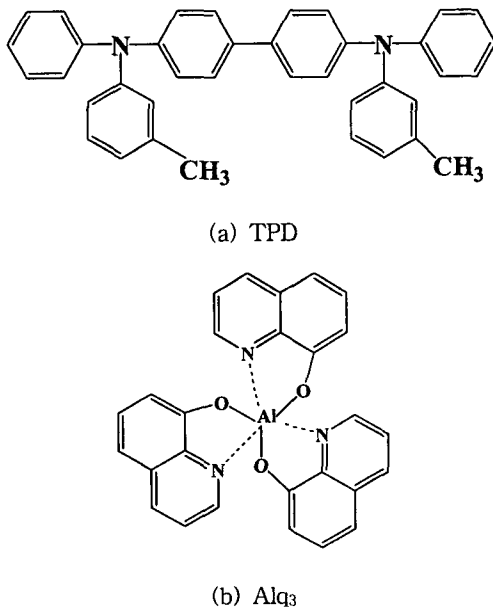


그림 1. 성막 물질의 분자 구조.

2.2. 소자 제작

유기 전기 발광 소자를 만들기 위하여 TPD와 Alq₃는 진공 증착법으로 제작되었다. 양전극으로는 ITO-glass(Samsung Corning Co.)를 사용하였고, 음전극으로는 Al을 사용하였다. 증착 속도는 유기물과 전극 모두 0.5Å/s의 속도로 증착하였다. ITO-glass pattern은 screen printer 기법을 사용하여 선 모양으로 하였으며, pattern된 ITO glass는 과산화수소수(H₂O₂) : 암모니아수 : 2차 증류수를 1:1:4의 부피 비율로 혼합하여 약 80℃에서 1시간 동안 끓인 후에 다시 2차 증류수로 약 1시간 동안 초음파 세척을 하여 사용하였다. 발광 면적은 15mm²이고 유기 발광 소자와 극저온 장치와의 연결은 동선(99.999%)으로 실버 페이스트로 접착 하였다. 소자

구조는 ITO/TPD/Alq₃/Al이며, 제작된 소자 구조는 그림 2에 나타내었다.

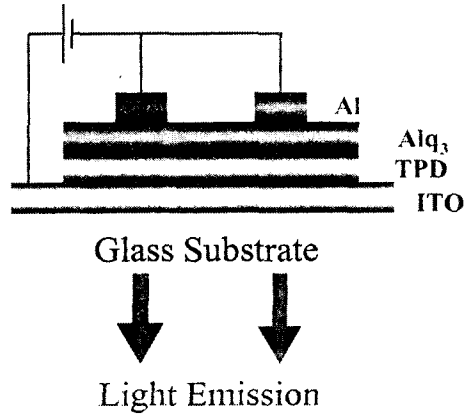
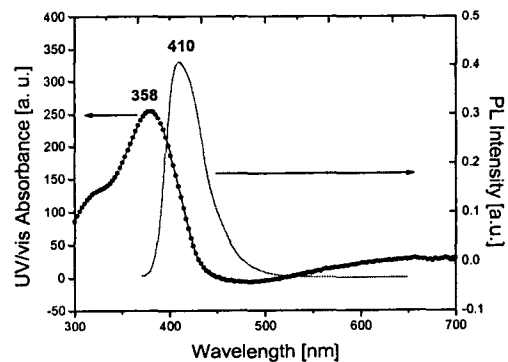


그림 2. 유기 발광 소자의 구조.

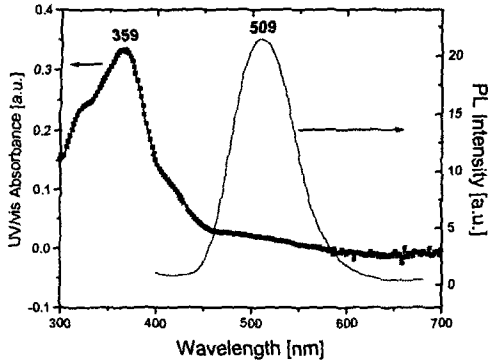
3. 결과 및 검토

3-1. 광학적 특성 측정

광학적 특성 측정으로는 본 연구에서 사용한 정공 수송 물질인 TPD와 발광 물질인 Alq₃의 UV/visible 흡광도와 PL 스펙트럼을 측정하였다. UV/visible 측정은 HP 8452A spectrophotometer를 사용하였고, PL 측정은 Perkin Elmer LS50B를 사용하였다. 그림 3(a)에서 보면 약 358nm에서 흡수 피크를 보이고 있으며, 약 410nm에서 발광 피크를 보이고 있다. 또한 그림 3(b)에서 보면 약 359nm에서 강한 흡수 피크를 보이고 있으며, 약 509nm에서 강한 발광 피크를 보이고 있다. 위의 결과로 본 연구에 사용한 소자는 녹색의 발광을 하고 있음을 알 수 있다.



(a) TPD



(b) AlQ₃

그림 3. UV/visible 흡광도와 PL 스펙트럼 측정.

3-2. 유기 발광 소자의 온도에 따른 전기적 특성 측정

그림 2의 구조로 제작한 발광 소자의 전압-전류 (I - V) 특성을 측정하였다. 전압-전류 특성 측정은 컴퓨터에 연결된 Keithley 236을 이용하여 SMU(source-measure-unit) 프로그램으로 측정을 하였다. 그림 4는 그림 2의 구조로 제작한 유기 발광 소자의 온도에 따른 전압-전류 특성 측정을 한 것이다. 측정 온도 범위는 10K~300K이며, 온도 조절은 Refrigerator를 사용하였으며, 모든 실험은 진공 상태에서 이루어졌다.

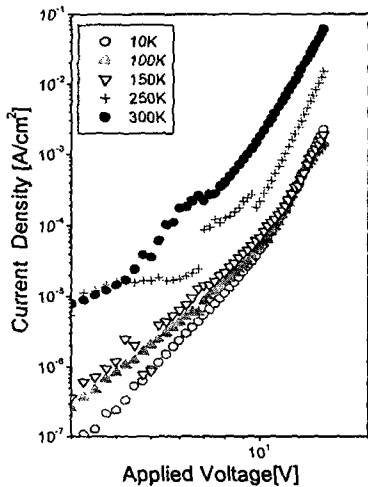


그림 4. 유기 발광 소자에서의 온도에 따른 전류-전압 특성.

그림에서 같은 인가 전압에서 온도가 증가할수록 전류가 증가하는 것을 볼 수 있다. 이러한 전류의 증가의 원인을 파악하고자 Fowler-Norheim 분석법을 이용하여 조사하였다.

Fowler-Nordheim tunneling 분석은 다음과 같은 식으로 표현할 수 있다.

$$J_{FN} = A J_0 \quad (1)$$

여기서 J_{FN} 은 전체 터널링 전류 밀도로 이 값은 전자들이 삼각형 형태의 퍼텐셜에너지 장벽을 투과할 확률로부터 구할 수 있는 J_0 와 산화-반도체 계면에서 일어나는 반사에 의한 양자 간섭 항 A 의 곱으로 표시된다.

식 (1)에서 J_0 는 다시 다음과 같이 표현할 수 있다.

$$J_0 = B F^2 \exp(-C/F) \quad (2)$$

여기서 F 는 막 내부의 전기장의 세기를 의미하며, B 와 C 는 다음과 같이 정의되는 상수이다.

$$B = \frac{e^3}{8\pi h} \left(\frac{1}{\Phi'_M} \right) \quad (3)$$

$$C = \frac{8\pi(2m)^{1/2}}{3eh} \left(\frac{m^*}{m} \right)^{1/2} \Phi'_M{}^{3/2} \quad (4)$$

이때 e , h 는 각각 전자 전하량과 플랑크 상수이고 m^*/m 는 전자의 유효 질량과 전자 질량의 비, Φ'_M 은 금속의 산화막에 대한 유효 일함수를 의미한다.

식 (1)에서 양자 간섭에 의한 전류 밀도 진동항 A 는

$$A = [Ai(-ax_1)^2 + \left(\frac{a}{k}\right)^2 Ai'(-ax_1)^2]^{-1} \quad (5)$$

로 표현될 수 있다. 식 (5)는 특정한 에너지를 가진 전자에 대하여 유도된 식이므로 실제 실험에서 측정된 전체 전류 밀도와 비교하려면 식 (5)에서 A 대신 \bar{A} 를 모든 터널링 전자의 에너지에 대하여 적분하여 얻은 평균값 \bar{A} 를 사용하여야 한다.

Fowler-Nordheim 터널링이 일어나는 지를 확인하기 위하여 일반적으로 식 (1)을 아래와 같이 표현하여 실험값과 비교한다.

$$\begin{aligned} \ln\left(\frac{J_{FN}}{F^2}\right) &= \ln \bar{A} + \ln\left(\frac{J_0}{F^2}\right) \\ &= \ln \bar{A} + \ln B - \frac{C}{F} \end{aligned} \quad (6)$$

여기서 $\ln \bar{A}$ 는 양자 간섭에 의한 전류 진동 항이고, $\ln B$ 는 단순한 상수항에 지나지 않는다. 위와 같은 Fowler-Nordheim 터널링 분석법에 의하여 그림 4의 전압-전류 특성을 다시 plotting하였다.

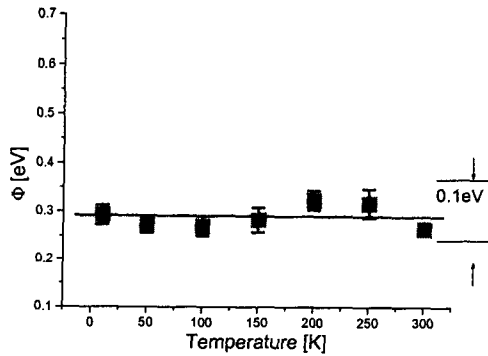


그림 5. 온도에 따른 Fowler-Nordheim에 의한 분석.

그림 5는 온도에 Fowler-Nordheim에 의한 분석을 보여준 그림이다. 그림에서 보면 온도가 증가하여도 전극에 대한 유기막의 일함수의 변화가 0.1eV이 하인 것으로 보아서 유기 발광 소자의 전자 전도는 Thermoionic 전도가 아닌 전계에 의한 전도로 확인할 수 있었다.

그림 6은 유기 전기 발광 소자에서의 intrinsic 벌크 특성을 측정하기 위하여 각 온도 별로 그림을 그린 것이다. 그림에서 보면 저온 영역에서는 트랩에 의한 영향이 나타나지 않고 있으며, 소자 온도가 100K 이상에서 트랩에 의한 특성이 보이고 있다. 100K 이상에서 보면 저전계 영역에서는 Ohmic한 특성을 보이고 있으며, 인가 전계가 상승을 하면서 트랩에 의한 전류 급증 영역을 보이고 있다. 인가 전계가 더욱 상승하면 탈트랩에 의한 절연체 특성을 보이고 있음을 알 수 있다. 전류가 일정 전계에서 급증하는 영역은 금지대 영역에서의 트랩의 존재에 의한

것으로 사료된다.

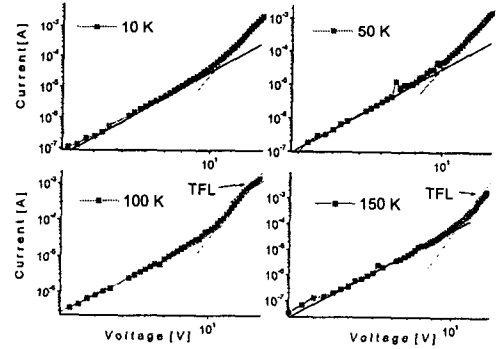


그림 6. 여러 온도에서의 전류-전압 특성.

4. 결론

본 연구에서는 녹색 발광을 하는 Alq₃를 발광층으로 하고 정공 수송 물질로 TPD를 사용하여 온도에 따른 전압-전류 특성 및 intrinsic 벌크 특성을 측정하였다. EL 소자의 온도에 따른 전류-전압 특성에서 온도가 증가할수록 같은 전압에서 전류가 많이 흐르는 것을 관측할 수 있었다. 또한 Fowler-Nordheim 터널링 분석법을 이용하여 분석한 결과 전계에 의한 전도 특성임을 확인할 수 있었다. 그리고, EL 소자의 intrinsic 벌크 특성을 조사한 결과 저온 영역에서는 나타나지 않고, 약 100K 이상에서 트랩에 의한 전류-전압 특성을 보이고 있음을 역시 확인할 수 있었다.

위와 같은 결과로부터 향후 연구 과제로는 소자의 안정성에 대한 보다 많고, 정확한 실험이 필요하다는 것을 확인할 수가 있었다.

참고 문헌

- [1] C. W. Tang and S. A. Vanslyke, *Appl. Phys. Lett.*, **51**, 913, 1987.
- [2] C. Adachi, T. Tsutsni and S. Saito, *Appl. Phys. Lett.*, **56**, 790, 1990.
- [3] M. A. Abkowiz, H. A. Mizex and J. S. Facci, *Appl. Phys. Lett.*, **66**, 1288, 1995.