

고분자 블렌드를 이용한 EL 소자의 임피던스 특성

Impedance Properties of Electroluminescent Device Containing Blended Polymer Single-Layer

김주승*, 서부완*, 구할본*, 이경섭**
(Ju-Seung Kim*, Bu-Wan Seo*, Hal-Bon Gu*, Kyung-Sub Lee**)

Abstract

We fabricated organic electroluminescent (EL) devices with single layer of poly(3-dodecylthiophene) (P3DoDT) blended with different amounts of poly(N-vinylcarbazole) (PVK) as a emitting layer. The molar ratio between P3DoDT and PVK changed with 1:0, 2:1 and 1:1. To improve the external quantum efficiency of EL devices, we applied insulating layer, LiF layer, between polymer emitting layer and Al electrode. All of the devices emit orange-red light and it's can be explained that the energy transfer occurs from PVK to P3DoDT. In the voltage-current and voltage-brightness characteristics of devices applied LiF layer, current and brightness increased with increasing applied voltage. The brightness of the device have a molar ratio 1:1 with LiF layer was about 10 times larger than that of the device without PVK at 6V. Electrical impedance properties of ITO/emitting layer/LiF/Al devices were investigated. In the Cole-Cole plots of impedance data, one semicircle was observed. Therefore, the equivalent circuit for the devices can be designed as a single parallel resistor and capacitor network with series resistor.

Key Words(중요용어) : Organic electroluminescent device(유기 전계발광소자), Polymer blend(고분자 블렌드), Brightness(휘도), Energy transfer(에너지 전달 현상)

1. 서 론

유기 EL(electroluminescent)소자는 제작 공정이 간단하고 시야각이 넓어서 기존의 디스플레이를 대체할 수 있는 평판형 디스플레이 소자로 기대되고 있으며, 최근 새로운 발광 물질들이 개발되어 실용화가 기대되고 있다. 그러나 유기 EL 소자는 효율이 우수한 발광재료의 개발 및 소자수명의 개선 등의 몇 가지 문제점이 해결되어야 한다.[1] 특히, 소자의 구조적인 측면에서 효율개선에 대한 연구는 발광재료의 발광효율 개선과 더불어 광범위하게 연구되고 있다. 다층구조의 소자는 전극으로부터의 홀의 주입과 수송, 전자의 주입과 수송 기능을 각각의 다른

층에서 분담하게 하여 낮은 인가전압에서 필요한 주입전류를 얻을 수 있어 소자의 효율을 향상시킬 수 있다. 그러나 이러한 다층 구조의 소자는 많은 증착원을 필요로 하여 제작 공정이 복잡하고 각 공정을 조절하기가 쉽지 않다는 문제점이 있다. 한편, 가장 간단한 구조인 단층형 소자의 발광층에 고분자 블렌드를 사용하여 EL소자의 효율을 향상시키는 연구도 보고되고 있다.[2]

임피던스 특성은 유기재료나 소자의 전기적 특성을 연구하는데 중요한 방법으로 사용되어져 왔다. EL 소자의 임피던스 측정은 캐리어 이동이나 캐리어 주입 메카니즘 등의 광범위한 전기적 특성을 알려준다. EL 소자에 대한 임피던스 연구는 poly[2-methoxy-5-(2'-ethyl-hexyloxy)-1,4-phenylenevinylene] [MEH-PPV]를 발광층으로 사용한 단층소자에 대해 Compbell 등이 최초로 행하였다.[3] 또한 S. H. Kim등은 MEH-PPV와 sodium sulfonated polystyrene

* : 전남대학교 전기공학과
(광주시 북구 용봉동 300, Fax: 062-530-1749
E-mail : lightfinder@hosanna.net)
** : 동신대학교 전기전자공학과

[SSPS]로 구성된 이층 구조의 소자에 대한 임피던스 특성을 연구하여, 전하이동에 관한 메카니즘을 보고하였다.[4] 그러나 현재까지 고분자에 색소분자들이 도핑된 혼합발광층이나 블렌드 발광층을 가진 EL 소자에 대한 임피던스 특성은 보고되지 않고 있다.

따라서, 본 실험에서 우리는 적색 발광재료인 P3DoDT에 전자수송 물질인 PVK를 1:0, 2:1, 1:1의 몰비로 블렌드하여 소자를 제작하였다. 소자의 광학적, 전기적 특성을 연구하고 소자의 임피던스 특성을 연구하여 등가회로를 구현하였다.

2. 실험

그림 1에 본 실험에서 사용한 PVK와 P3DoDT의 분자구조를 나타낸다. PVK (TCI co.)는 고분자 블렌드의 모재료로 많이 사용되고 있으며, 구입하여 정제없이 사용하였다. P3DoDT는 $FeCl_3$ 를 산화제로 사용하여 5 °C에서 24시간 반응시켜 합성하였다. 발광층으로 사용한 고분자 블렌드는 PVK : P3DoDT의 몰비가 각각 1:0(A 소자), 2:1(B 소자), 1:1(C 소자)로 되도록 혼합하여, 스펀코팅 하였으며 박막의 두께는 약 40 nm로 하였다. 소자의 상부전극은 1×10^{-6} Torr의 진공도에서 LiF와 Al을 열증착 하여 사용하였다. Al 전극의 두께는 약 200 nm, LiF의 두께는 약 5 nm로 하였다. 제작한 소자의 발광 면적은 5 mm²였다.

발광소자의 전기적 특성을 알아보기 위하여 전압-전류 측정장치(Keithely2400)와 와트미터(Newport 1830-c)를 구성하여 상온, 공기중에서 전압-전류-발광강도를 측정하였다. 또한 전압원(Keithely230)과 복사계(Princeton instrument)를 이용하여 소자의 EL 스펙트럼을 측정하였다.

소자의 교류 임피던스는 임피던스 스펙트럼 분석기(IM6 ZAHNER)를 이용하여 주파수를 100 Hz에서 2 MHz까지 가변하고, 전압을 0~3 V 까지 인가하면

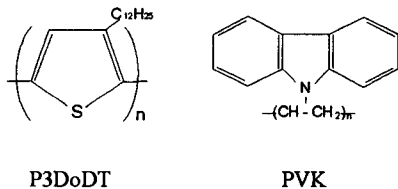


그림 1. 고분자 발광재료의 분자 구조.

Fig. 1. Molecular structures of polymer materials.

서 아르곤가스가 채워진 드라이 박스에서 측정하였다.

3. 결과 및 고찰

그림 2는 PVK와 P3DoDT의 PL 스펙트럼과 제작한 A, B, C 소자의 EL 스펙트럼을 나타낸다. PVK는 청색영역인 410 nm부근에서 최대 발광피크를 나타내고, P3DoDT는 적색 발광영역인 650 nm에서 최대 발광피크가 나타난다. 제작된 모든 소자의 EL 스펙트럼은 650 nm에서 최대 발광피크를 나타냈으며 발광색은 적색이었다. 이것은 소자의 발광이 P3DoDT에서 일어난다는 것을 의미하는 것으로 블렌드 발광층에서 에너지 전달현상이 발생한 것을 알 수 있다.[5]

그림 3은 ITO/블렌드 발광층/LiF/Al 소자의 전압-전류 특성과 전압-휘도 특성을 나타낸다. 소자의 turn on 전압은 A, B, C 소자 모두 3 V 부근이었으며, 전압이 증가함에 따라 지수함수적으로 전류가 증가하였다. 전압-휘도 특성에서는 소자의 초기 발광이 3 V에서 나타났으며, 소자가 turn on됨과 동시에 발광이 나타나는 것을 알 수 있다. 이것은 상부전극에 사용한 LiF 절연층이 Al의 밴드를 구부리는 효과를 가져와 일함수를 작게 하고 결과적으로 전자주입에 필요한 에너지 장벽이 낮아져서 소자에 주입되는 캐리어(전자와 정공)가 균형을 이루기 때문으로 생각된다.

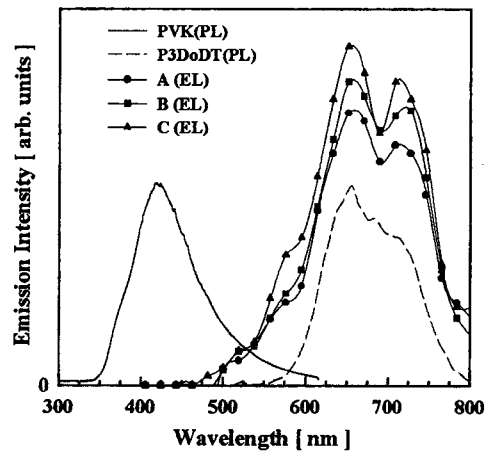
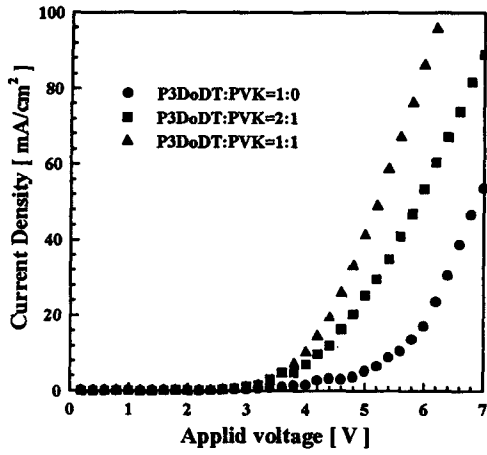
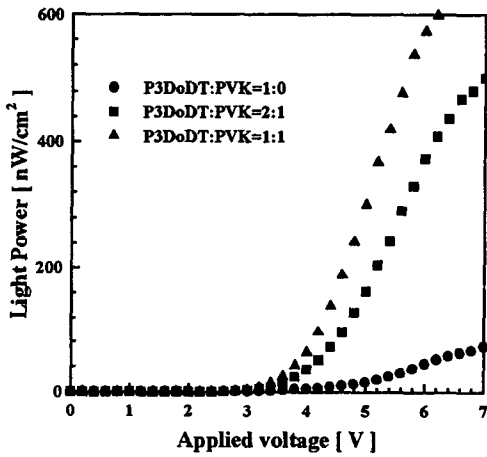


그림 2. 발광재료의 PL 스펙트럼과 소자의 EL 스펙트럼.

Fig. 2. PL spectrum of polymer material and EL spectrum of various devices.



(a)



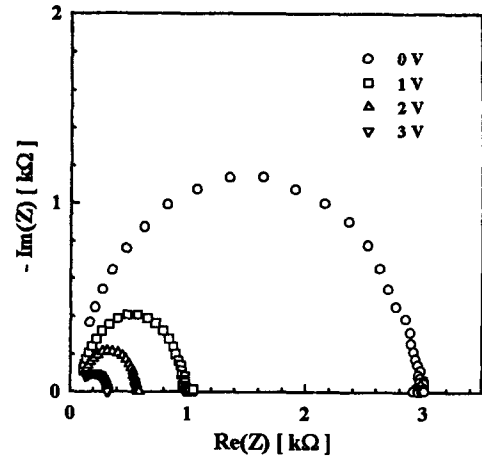
(b)

그림 3. ITO/발광층/LiF/Al 소자의 전압-전류 (a), 전류-휘도 특성 (b).

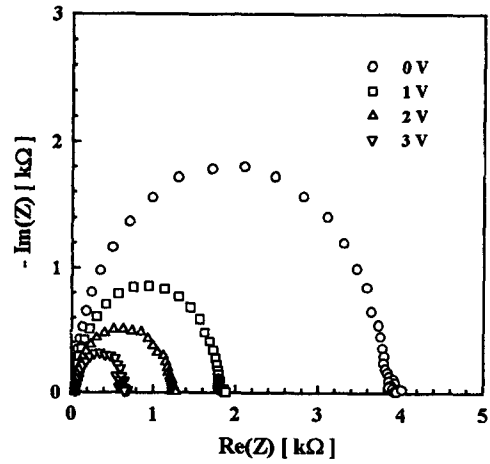
Fig. 3. Voltage-current (a) and voltage-brightness characteristics (b) of ITO/blended emitting layer/LiF/Al devices.

다. 소자의 발광강도는 6 V 부근에서 포화되는 현상이 나타나는데, 이것은 P3DoDT의 낮은 양자효율과 캐리어의 비발광 복사의 증가, 재결합하지 못하고 소멸하는 엑시톤이 증가하기 때문으로 생각된다.[6] A, B, C 소자의 휘도는 6V에서 각각 60, 400, 600 nW/cm²로 나타났다.

그림 4는 A와 C 소자의 임피던스 특성을 나타낸다. 그림에서 보듯이 임피던스 데이터는 하나의 반원을 포함하고 있다. 이것은 S. H. Kim 등 보고한



(a)



(b)

그림 4. ITO/PVK : P3DoDT=1:0/LiF/Al (a), ITO/ PVK :P3DoDT=1:1/LiF/Al (b) 소자의 임피던스 특성.

Fig. 4. Impedance characteristics of ITO/PVK :P3DoDT=1:0/LiF/Al (a), ITO/PVK:P3DoDT =1:1/ LiF/Al (b).

ITO/MEH-PPV/Al 구조의 단층형 소자에서 나타난 것과 같은 형태이며, 소자의 구조가 이층일 경우에는 두 개의 반원을 나타내게 된다.[4] 본 실험에서 발광층과 Al 전극사이에 적용한 LiF 절연층은 소자의 임피던스 특성에 영향을 미치고 있지 않음을 보여준다. LiF로 인한 계면의 캐패시턴스가 전혀 존재하지 않거나 무시할 정도로 작다는 결론을 얻을 수 있다. 제작한 소자에서 LiF 절연층에 의한 임피던스의

영향이 없는 것은 아직 정확한 이유는 알 수 없으나, 절연층의 두께가 얇고 LiF가 Al의 밴드 밴딩을 일으키는 것으로 미루어 Al 전극과의 상호 작용에 의해 경계면의 캐패시턴스가 감소하는 것으로 생각된다. 따라서 제작한 소자의 등가회로는 저항과 캐패시턴스가 병렬로 연결된 회로에 직렬로 저항이 연결되어 있는 형태로 구성할 수 있다.

그림 4의 임피던스 데이터의 반원중 실수부의 고주파 영역에 해당하는 값은 캐패시턴스 성분에 직렬로 연결되어 있는 저항 성분이다. 이 값은 소자에 정공주입을 위한 접촉부분인 ITO/발광층 부분에서의 접촉저항 성분으로 생각되며, 두 소자 모두에서 60 Ω정도로 일정하게 나타났다. 또한, 실수부 저주파 영역의 최대값은 직렬 저항성분과 저항과 캐패시턴스가 병렬로 연결된 회로의 전체저항을 나타낸다. 임피던스는 PVK가 블렌드된 ITO/PVK:P3DoDT=1:1/LiF/Al 소자에서 더 크게 나타났으며, 이는 고분자의 혼합에 의한 캐패시터의 증가에 의한 것으로 생각된다.

4. 결 론

이 연구에서 우리는 P3DoDT와 PVK 블렌드를 발광층으로 이용한 소자를 제작하여, 광학적, 전기적 특성 및 임피던스 특성을 연구하였다. 제작한 소자는 비교적 낮은 전압인 3 V에서 turn on 하였으며 블렌드 발광층 내부에서 에너지 전달 현상을 관찰할 수 있었다. PVK가 포함된 소자에는 포함되지 않은 소자보다 6V에서 10배의 발광강도 향상을 보였다. 또한 소자의 임피던스 특성에서, 제작한 소자는 저항과 캐패시턴스가 병렬로 연결된 소자에 직렬로 저항이 연결되어 있는 형태로 등가회로화 할 수 있었다. 또한 소자의 효율 개선을 위해 삽입한 LiF 절연층은 소자의 임피던스 특성에 영향을 미치지 않는 것을 알 수 있었다.

참고 문헌

- [1] A. J. Heeger, "Light Emission from Semiconductor Polymers : Light-Emitting Diodes, Light-Emitting Electrochemical Cells, Lasers and White Light for Future", *Solid State Comm.*, vol.107, no.11, pp.673-679, 1998.
- [2] G. Wang, C. Yuan, H. Wu and Yu Wei, "Influence of Doped Poly(N-vinylcarbazole) on Poly(3-octylthiophene) Electroluminescence", *Jpn. J. Appl. Phys.*, vol.34, pp.L182-184, 1995.
- [3] I. H. Campbell, D. L. Smith, and J. P. Ferraris, "Electrical impedance measurement of polymer light-emitting diodes", *Appl. Phys. Lett.*, vol.66, no.22, pp.3030-3032, 1995.
- [4] S. H. Kim, K. H. Choi, H. M. Lee, D. H. Hwang, L. M. D, H. Y. Chu, and T. H. Z, "Impedance spectroscopy of single- and double-layer polymer light-emitting diode", *J. Appl. Phys.*, vol.87, no.2, pp.882-888, 2000.
- [5] 김주승, 서부완, 구합분, "PVK/P3DoDT 블렌드를 발광층으로 사용한 EL 소자의 발광효율 향상에 관한 연구", 한국전기전자재료학회 춘계학술대회, pp.96-99, 2000.
- [6] S. A. Chen, K. R. Chuang, C. I. Chao, and H.T. Lee, "White-light emission from electroluminescence diode with polyaniline as the emitting layer", *Synthetic Metals*, Vol.82, pp.207-210, 1996.