

ITO/Alq₃(60nm)/Al의 유기 발광 소자에서 바이어스 전압과 주파수에 따른 전기적 특성

정동희¹, 오현석², 허성우³, 이원재⁴, 송민중⁵, 이준웅⁶, 김태원⁷
광운대학교¹, 홍익대학교², 경원전문대학³, 광주보건대학⁴

Voltage and frequency dependent electrical properties in organic light-emitting diodes of ITO/Alq₃/Al

Dong-Hoe Chung¹, Hyun-Seok Oh², Sung-Woo Hur³, Won-Jae Lee⁴, Min-Jong Song⁵,
Joon-Ung Lee⁶, Tae Wan Kim⁷
Kwangwoon University¹, Hongik University², Kyungwon College³, Kwangju Health College⁴

Abstract

Complex impedances with frequency and voltage variation were analyzed in ITO/Alq₃(60nm)/Al device structure. At low frequency, complex impedance is mostly expressed by resistive component, and at the high frequency by resistance and capacitive component. We have also evaluated resistance, capacitance and permittivity.

Key Words : organic light-emitting diodes, impedance, equivalent circuit.

1. 서 론

1963년 M. Poe등이 안트라센 단결정에서 유기 발광 현상을 관찰한 이후, 유기 발광 소자 분야의 많은 연구가 진행되었다. 특히 1987년 C. W. Tang과 VanSlyke가 저분자 Alq₃를 이용한 녹색 발광을 구현하였고[1], 1990년 캠브리지 대학교의 Friend 등이 고분자 PPV를 이용한 녹색 유기 발광을 구현하였다. 이러한 연구 발전과 함께 등가 회로 분석에 대한 연구의 필요성이 대두되었다[2]. Sudipto Roy 등은 유기물 층의 등가 회로를 저항 성분과 전기 용량 성분으로 해석하였고[3], J. Pospisil 등은 실험을 통하여 유기물 층은 주파수와 인가 전압에 따라서 합성 임피던스의 구성 성분이 달라진다는 것을 발표하였다[4]. 본 연구에서는 Alq₃의 유전율을 계산하여 보고, 유기물 층에 주파수와 인가 전압을 변화시켜서 합성 임피던스의 저항 성분과 전기 용량 성분에 대하여 논의하고자 한다[5].

2. 실험

본 실험에서 양극으로는 투명 전극의 Indium-Tin-Oxide(ITO)를 사용하였고, Al을 음극으로 사용하여 소자의 구조를 ITO/Alq₃(60nm)/Al로 하였다. 양극으로 사용한 ITO 기판은 표면 저항이 15 Ω/□이고 두께가 170 nm로 삼성 코닝사에서 제조하였다. 유기물 층으로 사용한 Alq₃ (tris (8-hydroxyquinolate) aluminum)는 TCI 사의 제품으로 분자량은 459.44이며 베이스 압력 5×10⁻⁶ torr의 진공도에서 열 증착하였다. 음극으로 사용한 Al도 베이스 압력 5×10⁻⁶ torr의 진공도에서 열 증착하였으며 두께는 150 nm이다. 소자의 발광 면적은 15mm²로 하였다. 또한, 두께의 확인과 굴절률의 측정은 PLASMOS ellipsometer을 이용하여 측정하였다.

소자의 전압-전류 특성은 Keithley 236 source-measure unit, 617 electrometer 그리고 Si-photo

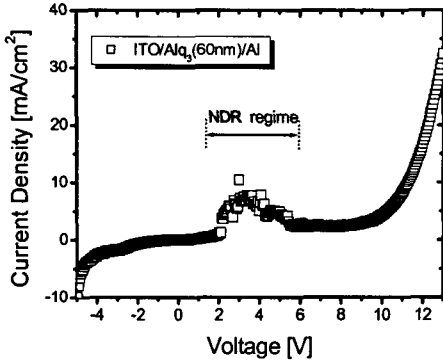


그림 1. ITO/Alq₃(60nm)/Al 소자 구조의 전압-전류 특성.

Fig. 1. Current Density-voltage of ITO/Alq₃(60nm)/Al device structure.

diode (Centronics Co. OSD100-5T)를 이용하여 측정하였고, 임피던스 분석은 Agilent 4294A, precision Impedance Analyzer를 이용하였다.

전압과 주파수에 따른 임피던스를 분석하였다. 주파수 의존성을 알아보기 위하여 주파수를 각각 100 Hz, 1 kHz, 10 kHz, 그리고 100 kHz로 고정하고, 전압의 측정 범위를 -5~+13 V까지 변화시키면서 측정하였다. 그리고 전압 의존성을 알아보기 위하여 바이어스 전압은 -4 V에서 12 V까지 인가하면서, 각각의 인가 전압에서 주파수를 40Hz ~ 100 MHz로 변화시키면서 측정하였고, 교류 진폭은 100 mV로 일정하게 유지하였다.

3. 결과 및 고찰

그림 1은 본 실험에서 사용한 ITO/Alq₃(60nm)/Al 소자 구조의 전압-전류 특성을 나타내고 있다. 전압-전류 특성은 전체적으로 다이오드 특성 곡선을 나타내고 있다. 그러나 전압 범위 2~6V 사이에서는 부성 저항 (NDR) 특성 곡선을 나타내고 있다. NDR 특성은 ITO와 Alq₃ 사이의 계면의 영향으로 판단된다. 이러한 특성은 Alq₃의 두께가 얇은 경우는 크게 나타나는 반면에 두께가 두꺼우면 영향이 적어진다.

유기 발광 소자의 유기물 층을 전기적으로 저항 성분 R_p 와 전기 용량 성분 C_p 가 결합된 병렬 등가 회로로 가정하고, 그림 2와 3은 ITO/Alq₃(60nm)

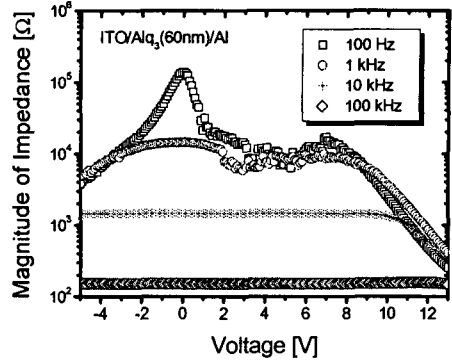


그림 2. ITO/Alq₃(60nm)/Al 소자 구조에서 주파수 변화에 따른 임피던스 크기.

Fig. 2. Magnitude of impedance with frequency variation in ITO/Alq₃(60nm)/Al device structure.

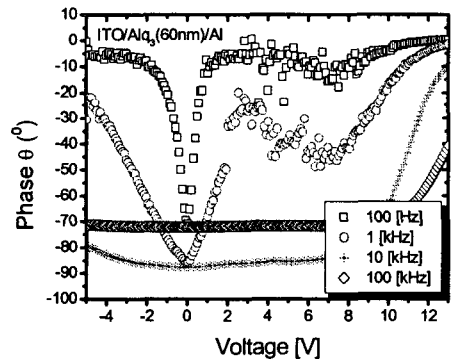


그림 3. ITO/Alq₃(60nm)/Al 소자 구조에서 주파수 변화에 따른 위상각 θ .

Fig. 3. Phase θ with frequency variation in ITO/Alq₃(60nm)/Al device structure.

/Al 소자에서의 합성 임피던스를 성분으로 나타낸 결과이다.

그림 2는 주파수 변화에 따른 임피던스 크기를 나타내고 있다. 주파수가 낮은 100 Hz의 비발광 영역(약 7V 이하)에서 임피던스의 크기는 136 k Ω ~10 k Ω 까지 변화한다. 100 Hz의 발광 영역에서는 약 255 Ω 까지 저항이 감소한다. 1 kHz의 비발광 영역에서는 14 k Ω 에서 7k Ω 까지 변화하고 발광 영역에서는 약 300 Ω 까지 감소한다. 10 kHz

에서는 비발광 영역에서 약 1.4 k Ω 로 일정하게 유지되다가 9.5V를 기준으로 감소하기 시작하여 300 Ω 까지 감소된다. 그러나 100 kHz에서는 모든 전압 범위에서 150 Ω 로 일정하게 유지된다.

그림 3에서는 주파수의 변화에 따른 위상각 θ 의 변화를 보여주고 있다. 100 Hz, 0 V에서 위상각은 약 -70° 이다. 그러나 전압이 $-2V$ 이하 또는 $+2V$ 이상에서는 점차적으로 위상각이 0° 로 접근한다. 따라서 0 V 부근의 전압에서는 C_p 의 영향으로 용량성의 특성이 나타나고 전압의 절대값이 증가하면 저항 R_p 의 특성이 나타난다. 1 kHz의 주파수가 되면 비발광 영역은 거의 C_p 의 특성을 갖으나 전압이 증가함에 따라서 위상각이 약 -45° 를 거쳐서 완전한 발광 영역이 되면 위상각이 0° 로써 저항 R_p 의 특성을 나타낸다. 그러나 10 kHz와 100 kHz에서의 비발광 영역에서는 전압 변화에 관계없이 위상각이 -85° 와 -70° 로써 일정한 C_p 의 특성을 나타낸다. 그러나 전압이 증가하여 발광 영역이 되면 위상각이 40° 부근으로 접근하여 R_p 의 성분이 커지고 C_p 의 영향이 점차 감소하는 것으로 보인다.

그림 2와 3의 합성 임피던스를 수식으로 정리하면 다음과 같다.

$$\frac{1}{Z} = \frac{1}{R_p} + \frac{1}{\frac{1}{j\omega C_p}} = \frac{1}{R_p} + j\omega C_p \quad (1)$$

여기서 R_p 와 C_p 를 그림 4와 5로 나타내었다. 식 (1)에서 임피던스의 크기 $|Z|$ 와 위상각 θ 을 구하면,

$$|Z| = \frac{R_p}{\sqrt{1+(\omega\tau)^2}} \quad (2)$$

$$\theta = -\tan^{-1}(\omega\tau) \quad (3)$$

여기서 $\tau = R_p C_p$ 이다. 식 (2)와 (3)를 이용하여 ITO/Alq₃(60nm)/Al 구조에 대하여 측정된 임피던스의 크기와 위상각이 그림 2와 3이다.

그림 4는 ITO/Alq₃(60nm)/Al 구조에서 Alq₃ 층의 등가 회로에 대한 R_p 성분을 나타내고 있다. 저주파 영역에서는 0 V에서 저항값이 약 430 k Ω 인 피크 값을 갖으며, 전압이 증가함에 따라서 저항은 작아진다. 저주파의 발광 영역에서는 약 280 k Ω 의 저항값을 갖는다. 주파수가 증가할수록 R_p 의 값이 작아져서 100 kHz의 비발광 영역에서는 모든 전압

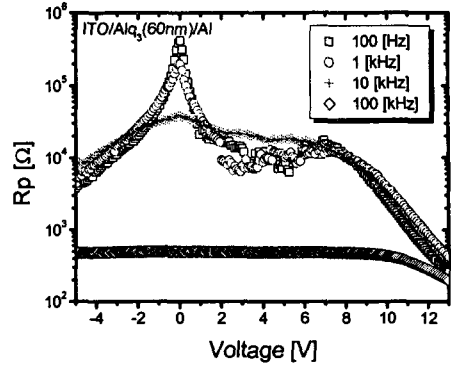


그림 4. 주파수 변화에 따른 저항 성분 R_p .
Fig. 4. Resist component R_p with frequency variation.

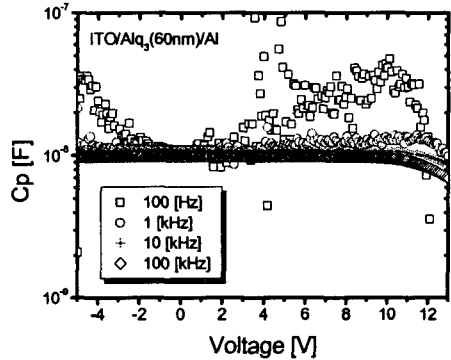


그림 5. 주파수 변화에 따른 전기 용량 C_p .
Fig. 5. Capacitance C_p with frequency variation.

범위에서 약 450 Ω 의 저항 성분을 나타낸다. 발광 영역에서는 저항 값이 더욱 작아져서 약 200 Ω 정도의 값을 갖는다.

그림 5는 ITO/Alq₃(60nm)/Al의 소자에서 등가 회로에 대한 C_p 성분을 나타내고 있다. 100 Hz에서는 전기 용량 C_p 성분보다 저항 성분 R_p 가 주된 성분이므로 전기 용량 C_p 성분이 불규칙하다. 그러나 1 kHz 이상의 고주파에서는 C_p 가 거의 일정하다. 본 실험에서 얻은 전기 용량은 $C_p \approx 9.8$ nF이며, 전기 용량은 다음의 수식으로 나타낼 수 있다.

$$C = \epsilon \frac{A}{d} \quad (4)$$

$$\epsilon = \epsilon_r \epsilon_0 \quad (5)$$

여기서, A 는 전극의 면적($15 \times 10^{-6} \text{ m}^2$), d 는 AlQ_3 의 두께(63.2 nm), ϵ_r 은 AlQ_3 의 유전 상수, ϵ_0 는 진공의 유전율이다. 식 (4)와 (5)를 이용하여 AlQ_3 의 유전 상수를 구하면 $\epsilon_r = 4.66$ 이고 굴절율 $n = 2.15$ 이다. 한편 비접촉 광학적 방법인 ellipsometer을 이용하여 측정된 굴절율은 1.69로써 비슷한 값을 얻었음을 알 수 있다.

한편, 유기물 층의 병렬 등가 회로는

$$\dot{Z} = Z' + jZ'' \quad (6)$$

$$Z' = \frac{R}{1 + (\omega\tau)^2}, \quad Z'' = -\frac{\omega\tau R}{1 + (\omega\tau)^2} \quad (7)$$

로 나타낼 수 있다. 여기서 Z' 와 Z'' 은 각각 실수부와 허수부 임피던스를 나타낸다.

그림 6은 식 (6)과 (7)로 표현되는 것으로써 그림 6(a)는 바이어스 전압(bias voltage)이 2 V일 때 주파수 변화에 따른 실수부와 허수부 임피던스를 나타내고 있으며, 그림 7(b)는 바이어스 전압이 12V 일때의 실수부와 허수부를 나타내고 있다. 그림 6(a)와 (b)에서 실수부의 곡선을 분석하여 보면, 유기물 내부에 순수한 배향 분극만이 존재하면 시물레이션의 선형 그래프와 일치하여야 한다. 그러나 유기물과 양극 또는 유기물과 음극 사이의 계면이 영향을 주기도 한다. 두께가 얇으면 계면 분극의 영향이 크고 두께가 두꺼우면 계면 분극의 영향이 상대적으로 적다. 실험하여 본 결과 AlQ_3 의 경우 약 100nm까지의 두께에서는 계면 분극의 영향을 측정할 수 있었으나 그 이상에서는 거의 측정되지 않았다. 그림 6(a)의 실수부에서 왼쪽의 데이터 포인트는 계면 분극의 영향이고 나머지 데이터 포인트는 배향 분극의 영향으로 판단된다. 한편 그림 6(a)와 (b)에서 허수부는 바이어스 전압에 따라서 최대값이 달라지게 되고 그 값은 실수부 절대값의 1/2이 된다. 바이어스 전압이 증가함에 따라서 Z' 와 Z'' 은 저항 성분이 작아져서 절대값이 작아진다. 그러나 Z'' 의 최대값을 갖는 주파수는 증가하게 된다. 따라서 바이어스 전압이 증가하면, 실수부와 허수부의 최대값이 작아지고 오른쪽으로 이동하게 된다.

그림 7은 인가 전압의 변화에 따른 $1/\tau$ 를 나타내고 있다. 인가 전압이 증가함에 따라서 $1/\tau$ 이 증가하게 된다. 4V 부근의 전압에서는 $1/\tau$ 의 값이

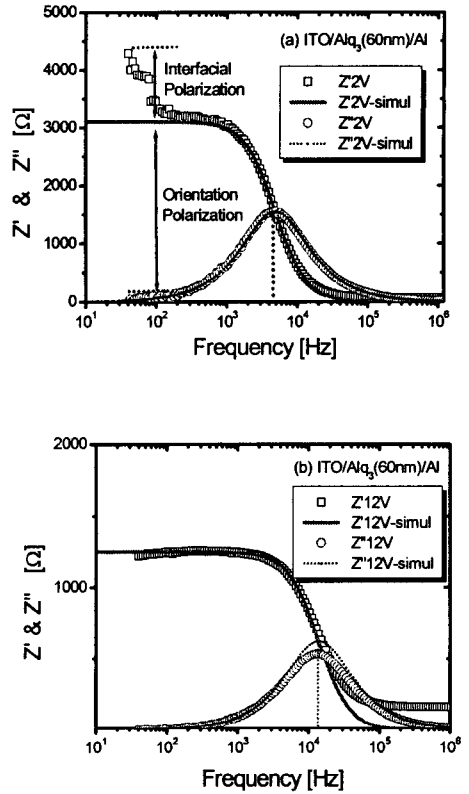


그림 6. 인가 전압에 따른 실수부와 허수부.
Fig. 6. Real part and imaginary part with applied voltage.

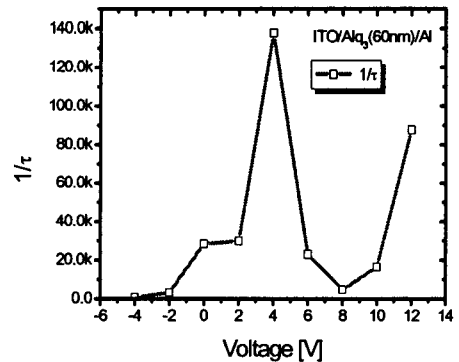


그림 7. 전압 변화에 따른 $1/\tau$.
Fig. 7. $1/\tau$ with voltage variation.

크게 증가한다. 이것은 ITO와 Alq₃ 사이의 계면의 영향으로 그림 1의 NDR 특성과 관련된 것으로 판단된다. 부성 저항 특성이 없는 영역에서는 $1/\tau$ 의 값은 바이어스 전압이 증가함에 따라서 오른쪽으로 이동하게 된다.

4. 결 론

ITO/Alq₃(60nm)/Al 구조 소자의 임피던스 분석을 통하여 등가 회로를 구성하여 보았다. 병렬 등가 회로에서 주파수 의존성을 보면, 100 Hz에서는 주로 저항 성분의 특성이 회로의 $I-V$ 특성을 결정짓는다. 그러나 주파수가 증가함에 따라서 전기 용량 성분이 주로 회로의 특성을 결정한다. 유기물의 계면 분극과 배향 분극이 두께와 합성 임피던스와의 관계를 알아보았다. 또한 전기적 방법과 광학적 방법을 이용하여 유전율을 비교하여 보았다. 그리고 바이어스 전압의 증가에 따라서 병렬 등가 회로의 임피던스가 감소하는 반면에 $1/\tau$ 가 오른쪽으로 증가함을 알 수 있었다.

감사의 글

이 논문은 2003년 산업자원부 지원 과제(고효율 고분자 EL 재료의 개발)에 의하여 수행되었으며, 이에 감사 드립니다.

참고 문헌

- [1] C. W. Tang and S. A. VanSlyke, "Organic Electroluminescent Diodes", Appl. Phys. Lett. Vol. 51, p. 913, 1987.
- [2] Dong-Hoe Chung, Sang-Keol Kim, Sung-Woo Hur, Kwang-Jip Kim, Min-Jong Song, Jin-Woong Hong, Joon-Ung Lee, Tae Wan Kim, "Voltage and frequency dependent electrical properties in organic light-emitting diodes of ITO/Alq₃/Al", Proceeding of 2003 Spring Symposium of KIEEME, p. 115, 2003.
- [3] Sudipto Roy, S. Kundu, S.K. Roy, Amlan J. Pal, "Impedance characteristics of layer-by-layer electrostatic self-assembled films of evans blue", Materials Chemistry and physics. Vol. 77. p. 784, 2002.
- [4] J. Pospisil, J. Honskus, J. Fahrnich, P. Hlidek, P. Toman, "Optical and electrical

properties of poly(p-phenylene vinylene) light emitting diodes", Journal of Luminescence, Vol. 72, p. 522, 1997.

- [5] Joon-Ung Lee, "Physical Electronic Engineering", Dongmyongsa, p.204, 1997.