

## 저분자 화합물을 이용한 유기 전계발광소자의 제작과 특성 연구

### Preparation and Properties of Organic Electroluminescent Devices Using Low Molecule Compounds

노준서 · 조중연 · 유정희\* · 장영철\*\* · 장호정

단국대학교 전자 · 컴퓨터공학과, \*한국전자통신연구원, \*\*한국기술교육대학교 메카트로닉스공학부

Jun Seo Rho, Jung Yohn Cho, Chong-Hee Yu\*, Young-Chul Chang\*\* and Ho-Jung Chang

Department of Electronic Engineering and Computer Science, Dankook University,  
Chonan-shi Chungnam, 330-714, Korea

\*Electronics and Telecommunication Research Institute, Daejeon 205-350, Korea

\*\*School of Mechatronics Engineering, Korea University of Technology and Education  
Byungchun-myon, 330-860, Korea

**초 록 :** 본 연구에서는 ITO (indium tin oxide)/glass 투명기판 위에 다층구조의 OLED (organic electroluminescent devices) 소자를 진공 열증착법으로 제작하였다. 발광층 재료로서 Alq<sub>3</sub> (tris-(8-hydroxyquinoline)aluminum) 물질을 사용하였고, 정공수송층으로는 TPD (triphenyl-diamine) 및  $\alpha$ -NPD 를 사용하였다. 정공주입층 재료로서 CuPc (Copper phthalocyanine)를 사용하였다. 또한 QD2 (quinacridone2) 물질을 Alq<sub>3</sub> 발광층내에 약 10 Å 두께로 증착하여 발광효율 향상을 시도하였다. 제작된 모든 소자의 발광개시전압은 약 7 V 이었으며, 정공수송층으로 TPD 물질대신에 열적안정성이 우수한  $\alpha$ -NPD를 사용한 경우 휘도값과 발광효율이 개선되었다. Alq<sub>3</sub> 발광층 사이에 QD2 물질을 적층한 소자에서 발광효율은 1.55 lm/W 값을 나타내어 Alq<sub>3</sub> 발광층만을 사용한 경우에 비해 약 8배 발광효율이 향상되었다.

**Abstract :** The multi-layered OLEDs(organic electroluminescent devices) were prepared on the patterned ITO (indium tin oxide)/glass substrates by the vacuum thermal evaporation method. The Alq<sub>3</sub> (tris-(8-hydroxyquinoline)aluminum) low molecule compound was used as the light emission layer. TPD (triphenyl-diamine) and  $\alpha$ -NPD were used as the hole transport layer. CuPc (Copper phthalocyanine) was also used as the hole injection layers. In addition, QD2 (quinacridone2) organic material with 10 Å thickness was deposited in the Alq<sub>3</sub> emission layer to improve the luminance efficiency. The threshold voltage was about 7V for all devices. The luminance and efficiency of devices was improved by substitution the  $\alpha$ -NPD for TPD as the hole as the hole transport layer. The luminance efficiency of the OLED sample with QD2 thin film in the Alq<sub>3</sub> emission layer was found to be 1.55 lm/W, which is about 8 times larger value compared to the sample without QD2 thin layer.

**Keywords:** Organic electroluminescent devices, Low molecule compounds, Alq<sub>3</sub>, Luminance efficiency, QD2(Quinacridone2)

## 1. 서 론

21C에 들어서 정보화 사회로의 움직임이 더욱 활발해 지고 있으며 이에 부응하기 위한 주변장치의 개발이 요구되고 있다. 정보 디스플레이 (Information Display) 장치는 기존의 CRT(Cathod Ray

Tube) 디스플레이에서 평판 디스플레이으로 수요가 크게 증가되는 추세에 있다. 이들 정보 디스플레이의 종류에는 근래에 상용화면에서 가장 앞서가는 수광형 소자인 액정 디스플레이(Liquid Crystal Display, LCD)가 대표적이다. 그러나 수광형태 디스플레이의 근본적인 단점인 낮은 응답속도, 저

효율과 시야각 등의 문제점 때문에 이를 극복할 수 있는 차세대 평판 디스플레이 소자의 개발이 필요하게 되었다<sup>1,4)</sup>. 특히 유기 전계발광소자 (Organic Electroluminescent Device, OLED)는 LCD와 같은 수광형태의 소자에 비해 응답속도가 빠르고, 소비 전력이 작으며 저전압에서 휘도가 뛰어나다는 이점을 가지고 있다. 최근에 들어 보다 효율적인 다층구조의 박막을 제작하여 OLED 소자의 성능 및 신뢰성 개선에 대한 많은 연구가 이루어지고 있다. 또한 새로운 유기 발광재료와 도펀트 (dopant)를 이용하여 최적의 유기 전계발광소자를 개발하기 위한 연구도 활발하게 진행되고 있다.<sup>5-10)</sup>

본 연구에서는 Al/Alq<sub>3</sub>/TPD/CuPc/ITO 구조, Al/Alq<sub>3</sub>/α-NPD/CuPc/ITO 구조, 그리고 Al/Alq<sub>3</sub>+QD2/α-NPD/CuPc/ITO 구조로 된 세 종류의 다층 박막 유기 전계발광소자를 제작하고 전기·광학적 특성을 조사, 비교하였다.

## 2. 실험방법

유기 전계발광소자의 제작을 위해 발광층 재료로서 Alq<sub>3</sub> (tris-(8-hydroxyquinoline)aluminum) 를 사용하였고, 정공수송층 재료로서는 TPD (triphenyl-diamine)와 α-NPD를 사용하였다. 또한 정공주입층 재료로서 CuPc (copper phthalocyanine) 물질을 발광원료 물질로서 사용하였다. 각각의 재료는 진공 열증착 (vacuum thermal evaporator) 장비로 ITO/glass 투명기판 위에 증착하였다. 사용한 투명기판의 저항은 약 10 Ω/□이었으며 전극으로 사

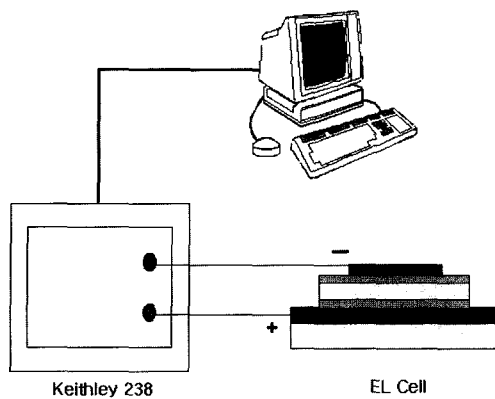
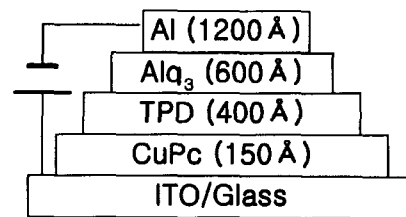


Fig. 1. Current-Voltage Measurement system of the OLED devices.

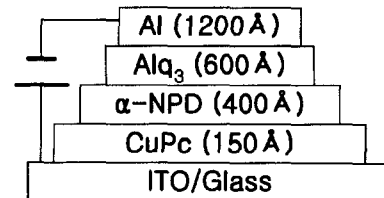
용되는 부분을 제외한 나머지 부분은 식각하여 패터닝 하였다. 기판의 식각처리는 HCl과 H<sub>2</sub>O를 1:10으로 혼합한 희석용액 내에 ITO/glass 기판을 넣고 약 30초간 침적하였다.

유기 박막은 진공실내의 세라믹 보트에 유기 발광시료를 넣고 진공도가 10<sup>-8</sup> torr에 도달한 후 전류를 인가하여 세라믹 보트를 가열하여 형성하였다. 전계 발광특성은 Keithley 238 장치와 spectroradiometer (CS1000, Minolta사)를 이용하여 전압인가시 발생하는 빛의 파장 및 휘도특성을 측정하였다. 또한 전류-전압 (I-V) 특성은 Keithley 238을 이용한 2 단자법에 의해 측정하였다.

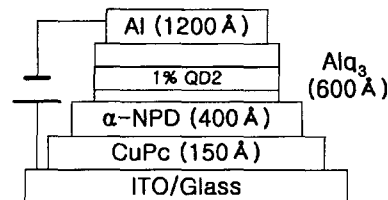
그림 1은 소자의 전기적 특성을 확인하기 위한 전류-전압 측정 시스템을 보여주고 있으며 그림 2는 본 연구에서 제작한 3종류의 유기 전계발광소자의 단면 구조도를 보여주고 있다. TPD와 α-NPD 유기물층의 두께는 약 400 Å으로, Alq<sub>3</sub>는 약 600 Å 두께로 증착하였다. Alq<sub>3</sub> 사이 (발광층의 약 260 Å 두께 지점)의 QD2 (quinacridone2) 물질



(a) Al/Alq<sub>3</sub>/TPD/CuPc/ITO structure



(b) Al/Alq<sub>3</sub>/α-NPD/CuPc/ITO structure



(c) Al/Alq<sub>3</sub>+QD2/α-NPD/CuPc/ITO structure

Fig. 2. Cross sectional structures of the various OLED devices.

을 약 10 Å 두께로 도핑층으로 증착하였으며 CuPc 정공 주입층은 약 150 Å 두께로 적층하였다. 상부전극은 Al을 사용하여 약 1200 Å 두께로 증착하였다.

소자에 대한 발광효율  $\eta$ 의 계산은 실험에서 얻어진 전류밀도, 전압 및 휘도값을 아래 식에 대입하여 계산된 값으로 정의하였다.

$$\eta = \pi \cdot L / J \cdot V$$

여기서 L (휘도, cd/m<sup>2</sup>), J (전류밀도, A/m<sup>2</sup>), V (인가전압, V)를 각각 나타내었다.

### 3. 결과 및 고찰

#### 3.1 Al/Alq<sub>3</sub>/TPD/CuPc/ITO 구조의 소자

Al/Alq<sub>3</sub>/TPD/CuPc/ITO (이하 소자 "A"라 부름) 적층구조를 갖는 유기 전계발광소자에 대해 광학

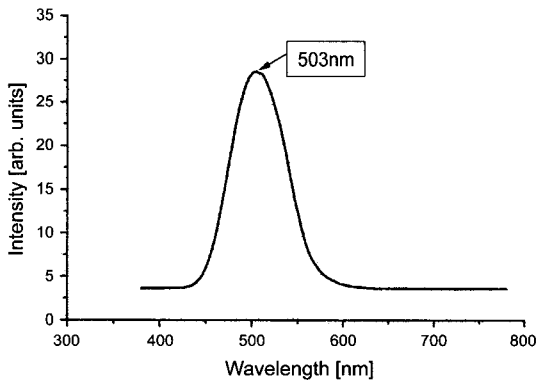


Fig. 3. Emission spectrum of the Al/Alq<sub>3</sub>/TPD/CuPc/ITO devices.

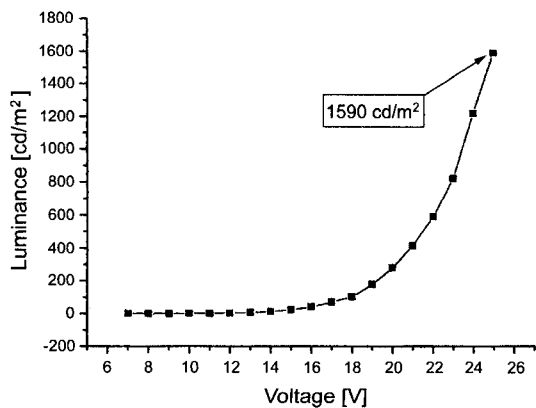


Fig. 4. Luminance-Voltage curve of the Al/Alq<sub>3</sub>/TPD/CuPc/ITO devices.

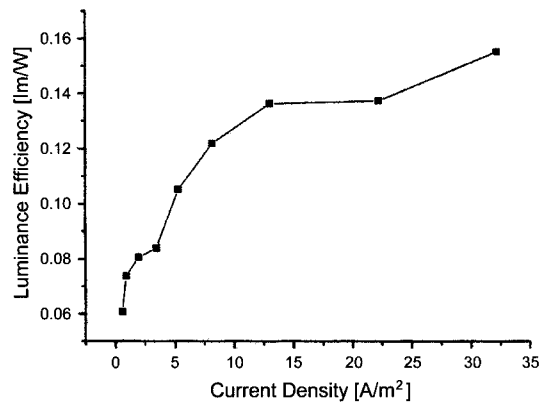


Fig. 5. Luminance Efficiency-Current density curve of the Al/Alq<sub>3</sub>/TPD/CuPc/ITO devices.

적 특성을 조사하였다.

그림 3은 소자 A 구조로 제작된 OLED 시료의 발광 스펙트럼을 나타낸 그래프이다. 발광 스펙트럼의 최대 피크값은 약 503 nm로 녹색 발광을 나타내었다.

그림 4는 제작된 OLED소자의 인가전압에 따른 휘도특성 (luminance-voltage)을 보여주고 있다. 소자 A의 문턱전압은 약 7 V 이었으며 최대 휘도는 25 V의 전압을 인가할 때 1590 cd/m<sup>2</sup>의 값을 나타내었다.

그림 5는 소자 A에 대해 전류밀도변화에 따른 발광효율 특성을 나타낸 그래프이다. 0~15 V의 인가전압 범위에서 발광효율을 측정된 결과 32.2 A/m<sup>2</sup>의 전류밀도에서 최대 0.16 lm/W의 발광효율을 얻을 수 있었다.

#### 3.2 Al/Alq<sub>3</sub>/α-NPD/CuPc/ITO 구조의 소자

그림 6은 Al/Alq<sub>3</sub>/α-NPD/CuPc/ITO (이하 소자 "B"라 부름) 구조로 제작된 OLED 소자의 발광 스펙트럼 곡선을 보여주고 있으며 인가전압에 따른 소자의 휘도 특성은 그림 7에 나타내었다. 발광 스펙트럼의 최대값은 512 nm로 녹색의 발광을 나타내었다. 25 V 전압인가시 최대 휘도는 약 1610 cd/m<sup>2</sup>의 값을 나타내었다.

그림 8에서는 제작된 소자 B 시료의 전류밀도에 따른 발광효율 특성을 보여주고 있다. 최대 발광효율은 전류밀도 약 10.0 A/m<sup>2</sup>에서 약 0.21 lm/W로 측정되었다. 소자 B의 휘도 특성과 발광효율 특성이 소자 A 시료에 비해 다소 개선되었으며, 이

는 소자 B 시료의 경우 정공수송층 재료를 TPD 대신에 유리전이온도(Tg)가 높은  $\alpha$ -NPD의 사용

함으로써 소자의 열적안정성이 개선되었기 때문이라 판단된다.

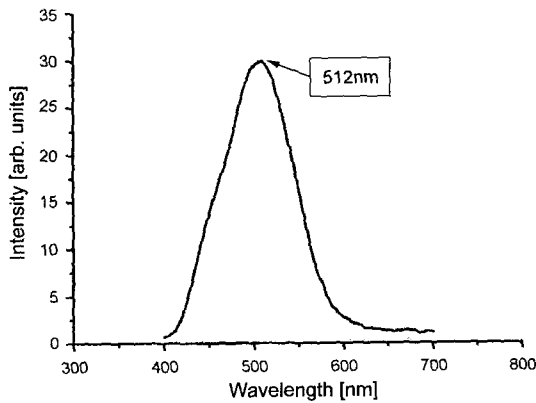


Fig. 6. Emission spectrum of the Al/Alq<sub>3</sub>/α-NPD/CuPc/ITO devices.

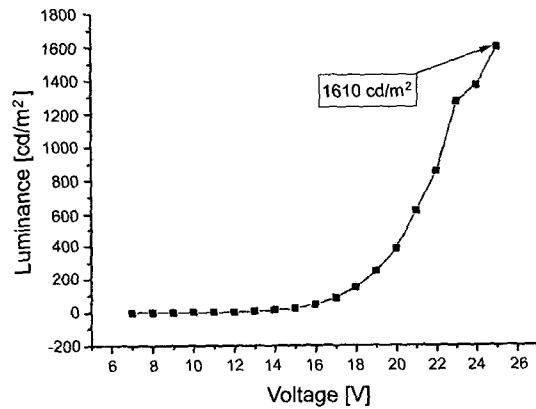


Fig. 7. Luminance-Voltage curve of the Al/Alq<sub>3</sub>/α-NPD/CuPc/ITO devices.

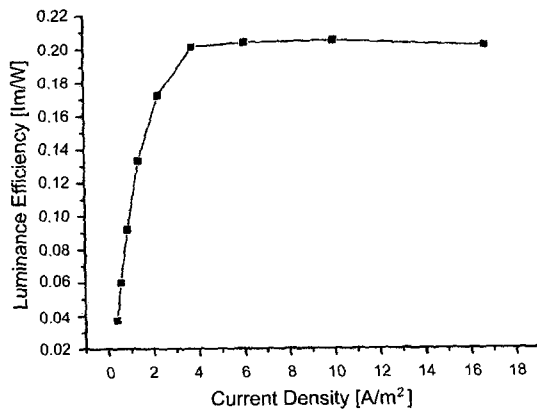


Fig. 8. Luminance Efficiency-Current density curve of the Al/Alq<sub>3</sub>/α-NPD/CuPc/ITO devices.

### 3.3 Al/Alq<sub>3</sub>+QD2/α-NPD/CuPc/ITO 구조의 소자

그림 9는 발광층의 약 260 Å 위치에 QD2 물질을 적층한 Al/Alq<sub>3</sub>+QD2/α-NPD/CuPc/ITO (이하 소자 “C”라 부름) 구조를 가지는 OLED 소자의 발광스펙트럼을 보여주고 있다. 발광스펙트럼의 최대 피크값은 524 nm로서 녹색의 발광을 나타내었다. 또한 소자C 시료에서의 발광파장이 다른 두 종류의 소자에 비해 장파장으로 변화되는 경향을 나타내었다. 이는 Alq<sub>3</sub> 발광층에 QD2 물질층을 적층함으로써 발광층의 에너지 밴드크기가 감소하기 때문이다. 실제로 Alq<sub>3</sub>와 QD2 물질 자체의 에너지밴드갭 분석결과 발광층의 밴드갭이 변화됨

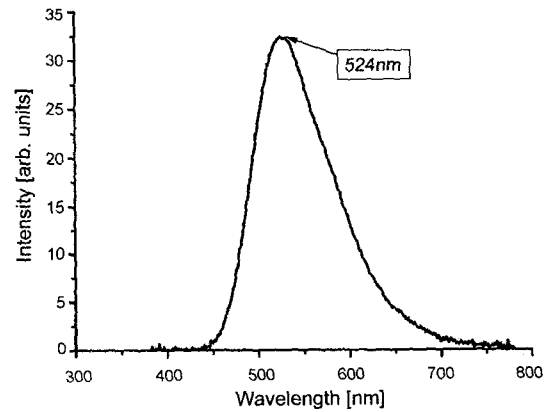


Fig. 9. Emission spectrum of the Al/Alq<sub>3</sub>+QD2/α-NPD/CuPc/ITO devices.

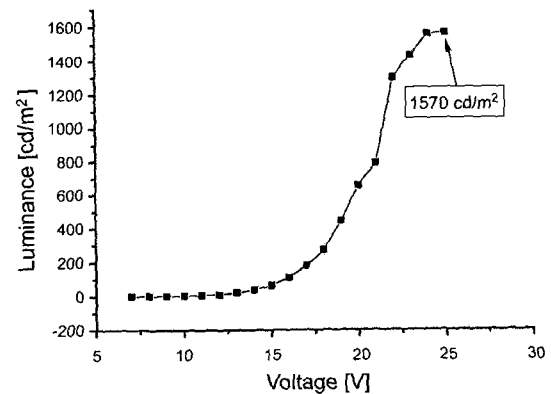


Fig. 10. Luminance-Voltage curve of the Al/Alq<sub>3</sub>+QD2/α-NPD/CuPc/ITO devices.

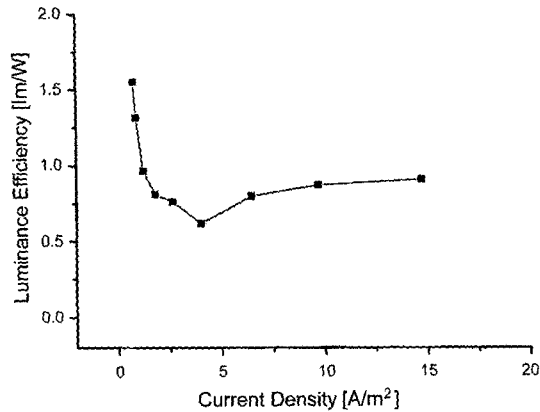


Fig. 11. Luminance Efficiency-Voltage curve of the Al/Alq<sub>3</sub>+QD2/ $\alpha$ -NPD/CuPc/ITO devices.

을 확인 할 수 있었다.

그림 10은 소자 C 시료에 대한 전압인가에 따른 휘도 특성을 보여주고 있다. 25V의 전압을 인가할 때 최대 휘도인 1570 cd/m<sup>2</sup>의 값을 나타내어 소자 B 시료와 유사한 휘도값을 나타내었다.

그림 11에서는 소자 C 시료에 대한 전류밀도에 따른 발광효율을 나타내었다. 최대 발광효율은 전류밀도가 약 0.7 A/m<sup>2</sup> 조건에서 약 1.55 lm/W의 값을 나타내었다. 결국 발광효율면에서 소자 C 시료의 경우가 다른 시료들에 비해 약 8배 이상의 특성개선을 가져왔다. 이러한 결과는 QD2 물질을 아주 얇게 형성함으로써 양자 효율이 높은 QD2 층이 Alq<sub>3</sub> 발광층에 더욱 효율적으로 에너지를 전달하여 발광층의 전자-정공쌍인 여기자 (exciton)의 재결합 효율이 개선되었기 때문으로 판단된다<sup>11)</sup>. 또한 발광층 재료만을 사용한 경우보다 발광층 재료와 dopant 재료를 혼용하는 것이 self-packing 현상으로 인한 특성 저하를 막을 수 있다는 실험적 증명이며, 동시증착법이 아닌 doping층을 독립적으로 생성하는 방법도 발광효율의 개선 효과를 나타낼 수 있음을 알 수 있었다.

#### 4. 결 론

진공 열증착법에 의해 Al/Alq<sub>3</sub>/TPD/CuPc/ITO 구조, Al/Alq<sub>3</sub>/ $\alpha$ -NPD/CuPc/ITO 구조, 그리고 Al/Alq<sub>3</sub>+QD2/ $\alpha$ -NPD/CuPc/ITO 구조로 된 세 종류의 유기 전계발광소자 (OLED)를 제작하고 전기, 광학적 특성을 측정된 결과 다음과 같은 결론을 얻었다.

1. 제작된 OLED 소자의 발광스펙트럼은 503~524 nm 범위의 방출파장을 갖는 녹색 발광을 나타내었다.

2. 제작된 소자의 최대 휘도는 Al/Alq<sub>3</sub>/ $\alpha$ -NPD/CuPc/ITO 구조의 경우에서 25 V에서 1610 cd/m<sup>2</sup>의 값을 나타내었으며 열적안정성이 양호한 정공수송층의 사용으로 소자의 휘도 및 발광효율 특성의 개선을 가져왔다.

3. 발광효율은 Alq<sub>3</sub> 발광층 사이에 QD2 물질을 삽입한 Al/Alq<sub>3</sub>+QD2/ $\alpha$ -NPD/CuPc/ITO 구조의 소자에서 약 1.55 lm/W의 최대 발광효율을 나타내었다.

#### 감사의 글

이 논문은 2002년도 산·학·연 공동기술개발 지역컨소시엄 사업에 의해 연구되었으며, 이에 감사드립니다.

#### 참고문헌

1. 강원호, 조태환, 장호정, Electronic Display, 성안당, (1998).
2. Y. A. Ono, Electroluminescent Display, World Scientific, 153 (1995).
3. D. Wauters, D. Poleman, R. L. Van Meirhaeghe, F. cardon, J. Luminescence, 120 (2000).
4. B. K. Ju and Y. C. Kim, J. Microelectronics & Packaging Soc., 7(3), 27 (2000).
5. S. Miyata, H. Singh Nalwa, Organic Electroluminescent Materials and Device, Gordon and Breach Publishers, 459 (1997).
6. W. E. Tiku, G. C. Smith, IEEE. Trans. (1977).
7. R. N. Marks, D. D. C. Bradley, R. W. Jackson, P. L. Burn, A. B. Holmes, Electroluminescent emission in organic diodes, Synth. Met. (1993).
8. Y. Negoro, H. Uchiike, T. Miyoshi, J. Hori, Y. Aso, T. Otsubo, A. Kashiara, Characteristics of Red Emissive Organic Thin Film, Euro Display '96, (1996).
9. B. K. Ju, S. J. Lee, J. S. Park, Y. H. Lee, D. R. Jeon, M. H. Oh, J. Microelectronics & Packaging Soc. 6(1), 65 (1999).
10. J. S. Rho and H. J. chang, J. Microelectronics & Packaging Soc., 9(1), 9 (1999).
11. 김영규, "유기 전기발광 재료 및 소자," 한국정보디스플레이학회지, 2(2), 28 (2001).