

## 유기 발광 소자의 바이어스 전압에 따른 유전 특성

### Dielectric Properties depending on Bias Voltage in Organic Light-emitting Diodes

오용철<sup>1,a</sup>, 이준웅<sup>1</sup>  
(Yong-Cheul Oh<sup>1,a</sup> and Joon-Ung Lee<sup>1</sup>)

#### Abstract

We have investigated dielectric properties depending on bias voltage in organic light-emitting diodes using 8-hydroxyquinoline aluminum (Alq<sub>3</sub>) as an electron transport and emissive material. We analyzed the dielectric properties of organic light-emitting diodes using impedance of characteristics. Impedance characteristics was measured complex impedance  $Z$  and phase  $\theta$  in the frequency range of 40 Hz to 10<sup>8</sup> Hz. We obtained complex electrical conductivity, dielectric constant, and loss tangent ( $\tan\delta$ ) of the device at room temperature. From these analyses, we are able to interpret a conduction mechanism and dielectric properties contributed by an interfacial and orientational polarization.

**Key Words** : Organic light-emitting diodes, Alq<sub>3</sub>, Dielectric loss tangent ( $\tan\delta$ ), Polarization

#### 1. 서론

유전체란 어떤 물체에 정전계를 인가하였을 때 유전 분극 현상이 일어나는 물질을 말한다. 이러한 유전분극현상은 유전체 내의 분극특성과 전기전도 특성을 보여주는데, 분극 특성은 유전체 내의 고유한 분자구조에 따른 주파수 특성을 보여주게 되고, 이는 전기 전도 특성에 중요한 영향을 끼치게 된다[1,2].

단분자 유전체를 이용한 유기 발광 소자는 1987년 Tang[3] 등에 의해 개발된 이래 많은 연구자들의 연구가 이루어져 현재 실용화되었지만, 아직 다른 디스플레이 소자와의 특별한 비교 우위를 점하고 있지는 못한 상황이다. 이는 소자의 안정성과 수명, 전도 메커니즘 등이 명확하게 규명되지 못한 결과라 여겨진다.

따라서 따라 유기 발광 소자의 기초 물성 및 전기전도 메커니즘에 대한 연구의 필요성이 대두되었고, 임피던스 분석을 통해 유기발광 소자의 전기전도 특성과 주파수, 전압, 온도, 두께 의존성을 살펴볼 수 있었다[4,5].

임피던스는 유전체에 바이어스 전압을 인가하고 주파수에 따른 전기적인 특성을 살펴보는 방법으로 오래된 역사를 가지고 있으며[6], 유기 발광 소자에 관한 임피던스 연구는 고분자를 중심으로 활성화되어 몇몇 연구 결과를 가지고 있다[7,8].

임피던스 분석 결과는 어떤 시스템의 전기적인 특성 해석에 기초적인 정보를 제공하는데, 본 연구에서는 ITO/Alq<sub>3</sub>/Al 구조에서 대표적인 녹색 발광 유기물인 Alq<sub>3</sub>의 바이어스 전압에 따른 전기 전도도와 유전 특성을 고찰하였다.

#### 1. 광운대학교 전기공학과

(서울시 노원구 월계동 72-1)

a. Corresponding Author : ycoh00@kw.ac.kr

접수일자 : 2005. 9. 23

1차 심사 : 2005. 10. 4

심사완료 : 2005. 10. 7

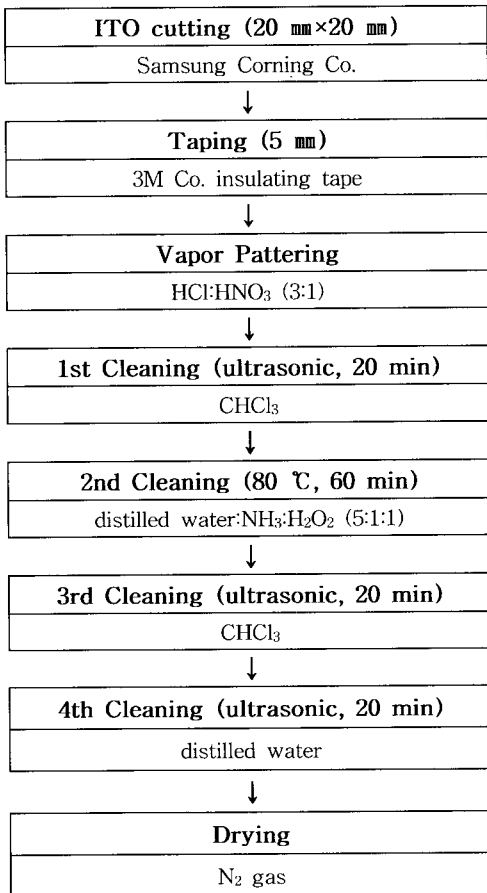
#### 2. 실험

##### 2.1 소자제작

유기 발광 소자의 유전 특성을 연구하기 위하여 ITO(170 nm)/Alq<sub>3</sub>(150 nm)/Al(150 nm)의 구조로 소

표 1. ITO 제작 과정.

Table 1. Manufacturing process of ITO.



자를 제작하였다. 양극으로 사용된 ITO 기판은 표면 저항이 15 Ω/□로 염산과 질산을 이용하여 표 1에서와 같은 과정으로 patterning하였다.

Patterning 과정은 초기 이물질 제거가 유전 특성에 미치는 영향이 매우 크기 때문에 중요한 과정이라 할 수 있다.

Alq<sub>3</sub>는 TCI사의 제품으로 베이스 압력 5×10<sup>-6</sup> torr의 진공도에서 ITO 위에 열 증착시켰다. Al은 베이스 압력 5×10<sup>-6</sup> torr의 진공도에서 너비 3 mm로 Alq<sub>3</sub>위에 열 증착하여 음극으로 사용하였다. 발광 면적은 ITO 너비(5 mm)와 음극 너비(3 mm)의 곱으로 15 mm<sup>2</sup>이다.

### 2.2 측정

제작된 소자의 유전 특성 측정을 위하여 소자의 상부 및 하부의 전극에 도전성 접착제인 silver

paste로 지름이 0.25 mm인 도선을 연결하였다. 연결된 시편은 6시간 이상 진공 보관하였으며 이 후 CTI-CRYOGENICS(Model 22)를 이용하여 약 10<sup>-2</sup> torr 진공에서 Agilent 4294A Precision Impedance Analyzer를 연결하여 유기 발광 소자의 주파수에 따른 임피던스를 각각 0 V, 4 V, 12 V 그리고 18 V의 바이어스 전압에서 40 Hz ~ 10<sup>8</sup> Hz까지 변화 하면서 Z와 θ을 측정하였다. 이로부터 전기 전도도와 유전율 및 유전정접(Loss Tangent)을 계산을 통하여 얻었다.

본 연구에서 두께 측정은 1 nm에서 수 μm까지 두께를 측정할 수 있는 PLASMOS Ellipsometer를 사용하였다.

광원 (light source)으로는 He/Ne 레이저를 사용하고 파장은 632.8 nm이다.

### 3. 결과 및 고찰

그림 1은 0 V, 4 V, 12 V 그리고 18 V의 바이어스 전압 변화에 따라 주파수에서 비교한 전기 전도도를 보인 것으로 저주파 영역에서 소자 제작 시 전극으로 사용한 ITO 및 Al과 유기 발광 소자의 접촉에서 생기는 계면의 영향에 따른 것으로 전기 전도도가 주파수 증가에 대해 작은 상승을 보인다. 그러나 고주파 영역에서는 무극성 분자 (nonpolar molecule)들이 정전계의 영향에 의해서 전기 방향으로 배향하게 되는 배향 분극에 의해서 높은 전기 전도도를 보인다. 이후에 다시 전도도가 서서히 증가하는 것은 유전 분산에 의한 진행으로 사료된다.

따라서 주파수와 바이어스 전압에 따른 전기 전도도는 10<sup>4</sup> Hz 이하에서는 약간의 차이를 보이나 10<sup>4</sup> Hz ~ 10<sup>6</sup> Hz 범위에서는 바이어스 전압과 무관하게 비례적으로 증가함을 확인하였으며, 10<sup>6</sup> Hz 이상에서는 유전 완화가 나타남을 알 수 있었다.

$$Z = R + jX \quad (1)$$

식 (1)은 임피던스를 직교좌표로 표시한 것으로 이를 이용하여 전기 전도도의 실수부는 식 (2)와 같이 표시 할 수 있다.

$$\sigma' \propto \frac{1}{R_p} \quad (2)$$

식 (2)에서 R<sub>p</sub>는 그림 2의 병렬 저항 성분으로

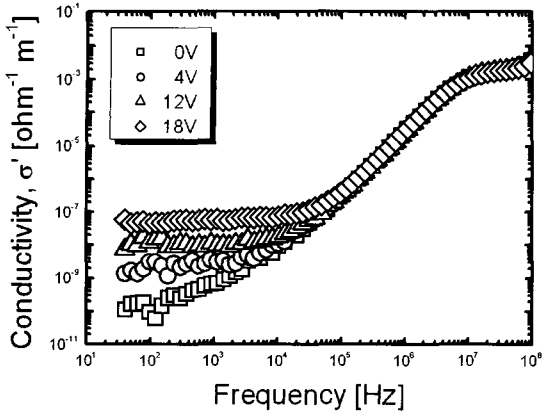


그림 1. ITO/Alq<sub>3</sub>(150 nm)/Al 소자의 바이어스 전압에 따른 실수부 전기 전도도.  
 Fig. 1. Real part of electrical conductivity of ITO/Alq<sub>3</sub>(150 nm)/Al devices with a varied bias voltage.

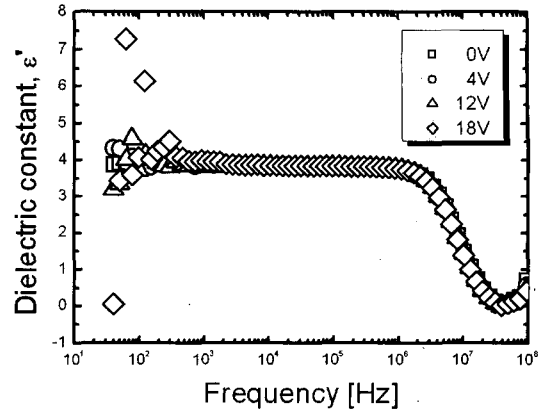


그림 3. ITO/Alq<sub>3</sub>(150 nm)/Al 소자의 바이어스 전압에 따른 실수부 유전상수.  
 Fig. 3. Real part dielectric constant ITO/Alq<sub>3</sub>(150 nm)/Al with a varied bias voltage.

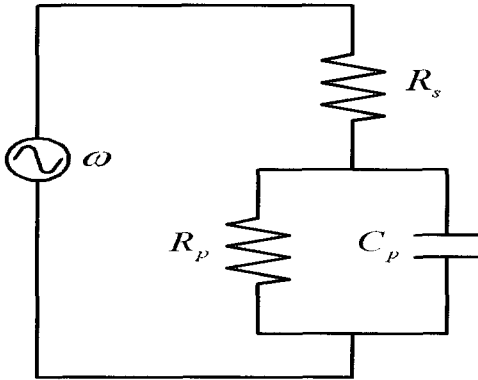


그림 2. ITO/Alq<sub>3</sub>(150 nm)/Al 소자의 동가 회로.  
 Fig. 2. Equivalent circuit of ITO/Alq<sub>3</sub>(150 nm)/Al device.

주파수가 증가함에 따라 저항 성분이 감소함을 예상 할 수 있는데 이것은 바이어스 전압의 영향에서 벌어지는 10<sup>4</sup> Hz 이상에서 전기 전도도가 상승함으로 저항에 반비례함을 그림 1에서 관찰 할 수 있었다.

그림 3은 0 V, 4 V, 12 V 그리고 18 V의 바이어스 전압 변화에 따라 주파수에서 비교한 유전 상수를 보인 것으로 전계에 의한 분극이 일어나는 정도를 나타내어 준다.

$$\epsilon' \propto C_p \quad (3)$$

식 (3)은 유전 상수의 실수부를 나타낸 것으로 병렬 콘덴서에 비례한다는 것을 보이는 것으로 그림 3에서 10<sup>6</sup> Hz 이상의 주파수에서 실수부 유전 상수의 급격한 감소가 유전 분극이 일어나는 정도가 감소하는 형태로 보인다.

10<sup>2</sup> Hz 이하의 영역에서 주파수가 낮아짐에 따라 유전 상수가 증가 하는 현상은 전극과 물질의 접촉에 의한 계면 분극의 영향에서 분산하는 과정이 배향 분극에 더해져 있는 것을 예측할 수 있다.

10<sup>2</sup> Hz ~ 10<sup>6</sup> Hz 영역에서는 유전율이 4.12 ~ 3.84로 나타났으며 주파수 증가에 따라 거의 일정한 현상을 확인할 수 있었다. 이것은 계면 분극이 사라지고 배향 분극에 의해서 나타나는 유전상수를 알 수 있었다.

10<sup>6</sup> Hz 이상의 주파수에서는 급격히 감소하여 유전 상수가 0.06까지 감소하였다. 이것은 주파수가 상승할수록 전계에 의한 분극이 일어나는 정도가 감소한다는 것을 유전 상수가 보이는 것으로 주파수가 감소할수록 각종의 분극이 더해져 유전율이 증가하게 된다.

100 Hz 이하의 주파수 범위에서 계면 분극의 현상이 나타나는 것으로 사료되며, 100 Hz ~ 10<sup>7</sup> Hz의 범위에서는 배향 분극이 나타남을 확인할 수 있었다.

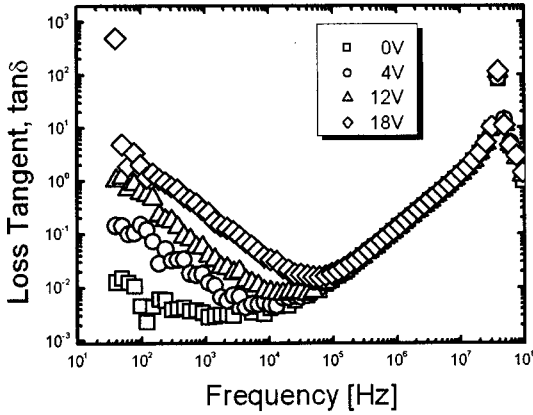


그림 4. ITO/Alq<sub>3</sub>(150 nm)/Al 소자의 바이어스 전압에 따른 유전 정접( $\tan\delta$ ).  
 Fig. 4. Loss tangent( $\tan\delta$ ) ITO/Alq<sub>3</sub>(150 nm)/Al with a varied bias voltage.

유전 정접 ( $\tan\delta$ )은 유전분극에 의한 손실로 쌍극자가 전계의 변화에 따라 진동하기 때문에 발생하는 것이다.

손실전류는 충전전류성분 및 손실전류성분으로 나누어진다.

충전전류성분은 벡터적으로 종축에 손실전류성분은 횡축에 크기를 표시하면 합 벡터의 횡축과의 이루는 각 델타( $\delta$ )를 유전손각 (Dielectric loss angle)이라고 이것의 탄젠트 델타 ( $\tan\delta$ )를 유전 정접(Dielectric loss tangent)라고 한다.

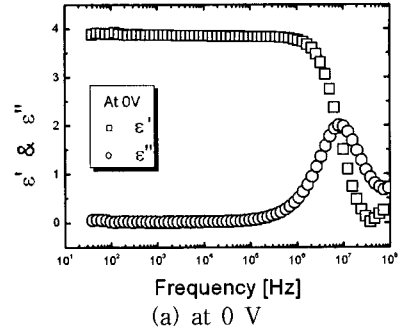
일반적으로 유전 정접 ( $\tan\delta$ )은 식 (4)과 같이 유전율 ( $\epsilon'$ )과 유전손율 ( $\epsilon''$ )의 비로 정의된다.

$$\tan\delta = \frac{\epsilon''}{\epsilon'} \quad (4)$$

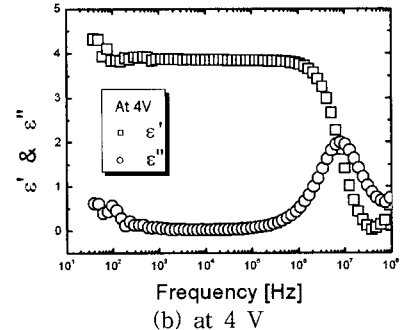
그림 4는 0 V, 4 V, 12 V 그리고 18 V의 바이어스 전압과 주파수에 따른 유전 정접 (Loss tangent)을 나타낸 것으로 저주파 영역에서는 바이어스 전압이 작을수록 peak가 낮고 바이어스 전압이 증가 할수록 peak가 증가됨을 알 수 있었다.

그러나  $10^4$  Hz ~  $10^7$  Hz 범위에서는 바이어스 전압에 관계없이 일정한 경향을 나타내었고,  $10^7$  Hz 이상에서는 유전완화 현상을 확인할 수 있었다.

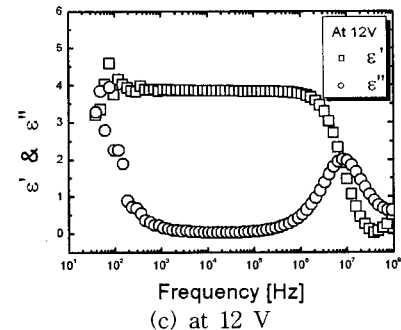
그림 5는 바이어스 전압에 따른 유전상수와 유전손실을 주파수 변화에 따라 도시한 것이다. 바이어스 전압이 높아질수록 저주파 영역에서 유전 손



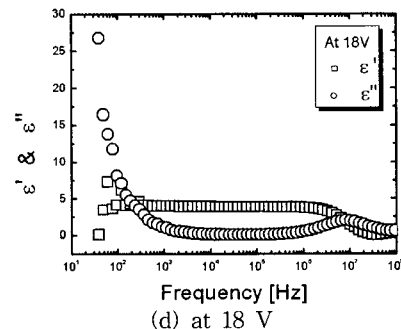
(a) at 0 V



(b) at 4 V



(c) at 12 V



(d) at 18 V

그림 5. ITO/Alq<sub>3</sub>(150 nm)/Al 소자의 바이어스 전압에 따른 실수부와 허수부 유전율.

Fig. 5. Real and imaginary part dielectric permittivity of ITO/Alq<sub>3</sub>(150 nm)/Al device with a varied bias voltage.

실이 큰 peak를 보인다. 이것은 유전 분산과 관계된 것으로 보인다. 따라서 바이어스 전압이 클수록 유전 흡수가 커지게 되어 상대적으로 유전율이 감소되는 현상을 함께 보이고 있다.

그러나 비 발광 전압인 4 V에서는 유전 손실 곡선에서 보이는 유전 흡수에도 불구하고 유전상수가 상승하는 것이 보이는데, 이것은 발광을 위한 동작 전압에 이르지 못했기 때문인 것으로 사료된다.

비유전율 곡선은 주파수가  $10^3$  Hz 이상에서는 바이어스 전압의 영향을 받지 않는 것으로 보인다.

#### 4. 결론

본 논문은 유기 발광 소자의 바이어스 전압과 주파수변화에 따른 전기 전도도와 유전 특성을 연구한 결과는 다음과 같다.

1. 주파수와 바이어스 전압에 따른 전기 전도도는  $10^4$  Hz 이하의 영역에서는 약간의 차이를 보이나  $10^4$  Hz ~  $10^6$  Hz 영역에서는 바이어스 전압과 무관하게 비례적으로 증가함을 확인하였으며,  $10^6$  Hz 이상에서는 유전 분산이 나타남을 알 수 있었다.
2. 100 Hz 이하의 주파수 범위에서 계면 분극의 현상이 나타나는 것으로 사료되며, 100 Hz ~  $10^7$  Hz 의 범위에서는 배향분극이 나타남을 확인할 수 있었다.
3. 바이어스 전압과 주파수 증가에 따른 유전율은  $10^6$  Hz 이상에서 유전완화 현상이 나타남을 알 수 있었다.
4. Alq<sub>3</sub>를 이용한 유기 발광 소자의 허수부의 유전율 상수의 peak는 바이어스 전압에 따른 영향을 받지 않는 것이 관찰되었다.

#### 참고 문헌

- [1] 電氣學會通信教育會, “誘電體現象論”, 7版, 日本電氣學會, p. 120, 1980.
- [2] 이준웅, 김용주, 이원재, 박용필, “전기전자 및 정보통신 재료공학”, 동일출판사, p. 90, 2002.
- [3] C. W. Tang and S. A. VanSlyke, “Organic electroluminescent diodes”, Appl. Phys. Lett., Vol. 51, No. 12, p. 913, 1987.
- [4] D.-H. Chung and J.-U. Lee, “Electrical conduction mechanism in ITO/Alq<sub>3</sub>/Al organic light-emitting diodes”, Trans. EEM, Vol. 5, No. 1, p. 24, 2004.
- [5] D.-G. Lee and J.-U. Lee, “Dynamic response of organic light-emitting diodes in ITO/Alq<sub>3</sub>/Al structure”, Trans. EEM, Vol. 6, No. 3, p. 115, 2005.
- [6] F. T. Reis, D. Mencaraglia, S. Ould Saad, I. Seguy, M. Oukachmih, P. Jolinat, and P. Destruel, “Electrical characterization of ITO/CuPc/Al diodes using temperature dependent capacitance spectroscopy and I-V measurements”, J. Non-Crystalline Solids, Vol. 338-340, p. 599, 2004.
- [7] E. Barsoukov and J. Ross Macdonald, “Impedance Spectroscopy-theory, Experiment, and Applications”, 2nd Eds, Wiley Interscience, p. 8, 2005.
- [8] C. Jonda and Andrea B. R. Mayer, “Investigation of the electronic properties of organic light-emitting devices by impedance spectroscopy”, Chem. Mater., Vol. 11, p. 2429, 1999.