

# Enhanced Device Performance via Interface Engineering in Polymer-based Optoelectronic Devices

Eui Dae JUNG · Myoung Hoon SONG\*

School of Materials Science and Engineering, Ulsan National Institute of Science and Technology, Ulsan 44919, Korea

Yun Seok NAM

MLCC Product Development 4 Group / Samsung Electro-Mechanics, Basun 46754, Korea

Bo Ram LEE<sup>†</sup>

Department of Physics, Pukyong National University, Busan 48513, Korea

(Received 01 July 2021 : revised 26 July 2021 : accepted 30 July 2021)

Achieving efficient electron transport is challenging owing to the large energy barrier between the conduction band of n-type metal oxide and the lowest unoccupied molecular orbital (LUMO) of the emissive layer in inverted polymer light-emitting diodes (PLEDs) or the active layer in inverted polymer solar cells (PSCs), which results in unbalanced charge transport, leading to low device efficiencies. Herein, we have demonstrated that the device performance could be enhanced in both PLEDs and PSCs by treating either the interface between the electron transport layer (ETL) and the emissive layer in PLEDs or the active layers with self-assembled dipole monolayer (SADM), ionic liquid molecules (ILM) and polar solvent (PS). The interface engineering results in a reduction of the energy barrier, which results in enhanced electron transport in both devices. Especially, optimized PLEDs and PSCs show an external quantum efficiency (EQE) of 1.38% and a power conversion efficiency (PCE) of 4.21%, which are enhanced by approximately 138- and 1.37-fold, respectively, compared to the reference devices.

Keywords: Polymer light-emitting diodes, Polymer solar cells, Interface engineering, Surface treatment

## 계면 조절을 통한 고분자 기반 광전자소자의 성능 향상

정의대 · 송명훈\*

울산과학기술원 신소재공학과, 울산 44919, 대한민국

남윤석

삼성전기 MLCC 제품개발4G, 부산 46754, 대한민국

이보람<sup>†</sup>

부경대학교 물리학과, 부산 48513, 대한민국

(2021년 7월 01일 받음, 2021년 7월 26일 수정본 받음, 2021년 7월 30일 게재 확정)



역구조의 고분자 광전자소자는 산화아연, 산화티타늄 등 n-타입 금속 산화물의 전도대와 발광소자에서 발광층 또는 태양전지에서 광활성층의 최저준위 비점유 분자궤도 사이에 존재하는 큰 에너지 장벽 때문에 전자 수송이 원활하게 이뤄지지 않아 불균형적인 전하 수송이 생기며 이는 결과적으로 낮은 소자 성능으로 이어진다. 따라서, 본 연구에서는 자기조립 쌍극자 분자, 이온성 액체 분자, 아민 기반의 극성 용매를 이용하여 전자수송층과 발광층 또는 광활성층 사이의 계면 조절을 통해 에너지 장벽을 낮춤으로써 효과적인 전자 수송을 유도하여 광전자 소자의 성능을 향상시켰다. 특히, 최적화 된 고분자 발광소자에서는 기준 소자보다 138배 향상된 1.35%의 외부양자효율을 보여주며, 고분자 태양전지에서는 기준 소자보다 1.37배 향상된 4.21%의 광 변환효율을 보여준다.

Keywords: 고분자 발광소자, 고분자 태양전지, 계면 조절, 표면 처리

## I. 서 론

지난 수십년 동안 고분자 발광소자 (polymer light-emitting diodes, PLEDs), 고분자 태양전지 (polymer solar cells, PSCs)와 같은 고분자 기반 광전자소자 (optoelectronic devices)는 저비용, 저온, 용액 공정 등 다양한 공정의 장점 뿐 아니라, 대면적화, 유연한 기계적 물성 등의 장점들로 인해 차세대 디스플레이와 친환경 에너지원의 후보로서 많은 연구가 활발하게 진행되었다. [1-6]

광전자소자가 상용화 되기 위해서는 높은 소자 효율 (device efficiency)과 우수한 소자 안정성 (device stability)이 뒷받침 되어야만 한다. 주로 많이 사용하는 p-i-n 구조 (conventional structure)의 광전자소자는 전극, 전하수송층, 발광소자의 발광층 (emissive layer) 또는 태양전지의 광활성층 (active layer) 사이에서 원활한 전하 수송을 통해 높은 소자 효율을 보여준다. 하지만 일반적인 고분자 발광소자 또는 태양전지에서는 정공수송층 (hole transport layer, HTL)으로 poly(3,4-ethylenedioxyethiophene):poly(styrenesulfonic acid) (PEDOT:PSS)와 같은 반응성 물질 (reactive material)을 주로 사용하는데 이는 하부 전극인 인듐 주석 산화물 (indium tin oxide, ITO)을 부식시키고, 발광층 또는 광활성층에 침투하여 소자의 안정성을 저하시킨다. [7,8] 또한 칼슘 (calcium, Ca), 바륨 (barium, Ba), 알루미늄 (aluminum, Al) 등과 같이 낮은 일함수 (work function)를 갖는 금속을 상부전극으로 사용하기 때문에 소자가 쉽게 산화되어 낮은 소자 안정성 초래한다는 연구들이 보고되었다. 따라서, PEDOT:PSS 대신 전기적, 광학적 특성이 우수한 금속 산화물을 전하수송층으로 사용하고, 수분과 산소에 안정한 높은 일함수를 갖는 금속을 상부전극으로 사용하는 역구조 (inverted structure, n-i-p) 형태의 광전자소자가 우수한 소자 안정성을 보인다는 연구가 많이 보고되었다. [9-12]

특히 정공수송층으로 주로 사용되는 산화몰리브덴 (molybdenum oxide, MoO<sub>3</sub>)은 고분자 발광층 또는 활성층의 최고준위 점유 분자궤도 (highest occupied molecular orbital level, HOMO)와 금 (gold, Au)과 은 (silver, Ag)과 같은 양극 (anode) 사이에 옴컨택 (ohmic contact)를 형성하여 효과적인 정공 수송을 제공한다. [15,16] 하지만 전자수송층 (electron transport layer, ETL)으로 주로 사용하는 산화아연 (zinc oxide, ZnO), 산화티타늄 (titanium oxide, TiO<sub>x</sub>) 등과 같은 n-타입 금속 산화물의 전도대 (conduction band)와 발광층 또는 광활성층의 최저준위 비점유 분자궤도 (lowest unoccupied molecular orbital, LUMO) 사이에 존재하는 큰 에너지 장벽 (energy barrier) 때문에 전자 수송이 원활하게 이뤄지지 않아 불균형적인 전하 수송이 생기며 이는 결과적으로 낮은 소자 성능으로 이어진다. [13-19] 따라서, 본 연구에서는 자기조립 쌍극자 분자 (self-assembled dipole monolayer, SADM), 이온성 액체 분자 (ionic liquid molecule, ILM), 아민 기반의 극성 용매 (polar solvent, PS)를 이용하여 전자수송층 (electron transport layer, ETL)과 발광층 또는 광활성층 사이의 계면 조절 (interface engineering)을 통해 에너지 장벽을 낮춤으로써 효과적인 전자 수송을 유도하여 광전자 소자의 성능을 향상시켰다. 뿐만 아니라, 자기조립 쌍극자 분자, 이온성 액체 분자, 극성 용매를 계면층 (interfacial layer)으로 사용하였을 때 나타나는 효과를 발광소자 및 태양전지에서 비교 분석을 하였다.

## II. 실험

고분자 발광소자를 제작하기 위해서 먼저 음극으로 사용되는 Indium tin oxide (ITO) 기판(15 Ω/sq, AMG)을 세제로 세척후 증류수, acetone, isopropanol에 넣고 각각 10분씩 초음파 세척을 하였다. 오븐에서 건조 후에 UV-ozone 처리를 30분간 진행한 후 전자수송층으로 ZnO를 형성하기 위

\*E-mail: mhson@unist.ac.kr

†E-mail: brlee@pknu.ac.kr

해 zinc acetate dihydrate를 같은 몰 비율의 ethanolamine과 함께 2-methoxyethanol에 0.75 M 농도로 녹인 용액을 3000 rpm으로 40초 동안 스핀코팅을 한 후에 400 °C에서 1시간동안 열처리를 하였다. 계면 처리시 SADM은 4-Methoxybenzoic acid (BA-OCH<sub>3</sub>, Sigma-Aldrich)를 7mM 농도로 ethanol에 녹여 3000 rpm으로 40초 동안 스핀코팅하였다. ILM은 1-benzyl-3-methylimidazolium chloride (benmim-Cl, Sigma-Aldrich)를 0.1 wt% 농도로 물에 녹여 5000 rpm으로 스핀코팅을 한 후에 120 °C에 10분간 열처리하였다. PS의 경우 ethanolamine을 2-methoxyethanol에 1:20의 부피 비율로 희석한 용액을 사용하였으며 70 °C의 온도의 용액을 3000 rpm으로 스핀코팅한 후 120 °C에 10분간 열처리하였다. 발광층으로 SPB-02T (Merck) 물질을 6.5 mg/ml 농도로 chlorobenzene에 녹여 2000 rpm으로 45초 동안 스핀코팅 하였다. 마지막으로 정공주입층 및 양극 전극을 형성하기 위해 10 nm의 산화몰리브덴 (MoO<sub>3</sub>, 태원과학)과 100 nm의 금을 열증착기를 이용하여 증착하였다.

고분자 태양전지 제작은 위의 고분자 발광소자 제작에서 발광층과 상부 금 전극을 제외하고 대부분 동일하였다. ZnO의 경우 0.5 M 농도의 zinc acetate dihydrate 용액을 사용하였다. 활성층으로 P3HT:PC60BM (무게비 10:8)을 P3HT에 대해 2 wt% 농도로 무수 chlorobenzene에 같이 녹였고 80 °C에 24시간동안 강력히 저어 용액을 준비하였다. 이를 0.2 m 소수성 PTFE 필터에 걸러 900 rpm으로 1분간 스핀코팅하고 150 °C에 10분간 열처리하였다. 마지막으로 정공주입층 및 양극 전극을 형성하기 위해 5 nm의 MoO<sub>3</sub>와 100 nm의 은을 열증착기를 이용하여 증착하였다.

고분자 발광소자의 특성 분석을 위해서 Keithley사, 2400 Source Measure Unit과 Konica Minolta사, CS-2000 분광방사휘도계를 연동하여 전류밀도-전압-휘도 ( $J-V-L$ ) 특성을 동시에 측정하였다. 램버시안 방출 프로파일 (Lambertian emission profile)을 가정하여 전계 발광 외부양자효율 (electroluminescent external quantum efficiency, EL-EQE)을 계산하였다. 고분자 태양전지의 특성 분석을 위해서 Peccell Technology사, PEC-L01 모의태양광원을 통한 AM 1.5G 100mW/cm<sup>2</sup> 환경에서 Ivium사, IviumStat 일정한 전위기를 통해 전류밀도-전압 ( $J-V$ ) 특성을 측정하였다. 소자 면적은 13.5 mm<sup>2</sup>였으며, 장치는 테스트 전에 에폭시와 유리로 봉지(encapsulation)하였다. 입사 광자 대 전자 변환 효율은 PV measurement사, QEX7을 통해 측정하였고 Impedance 측정은 Ivium사, IviumStat 일정한 전위기를 통해 측정하였다.

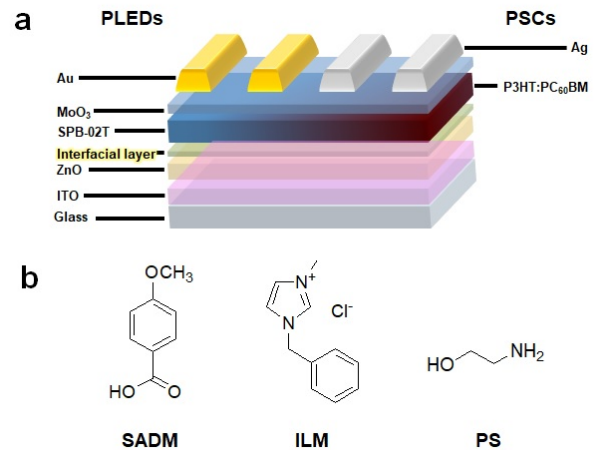


Fig. 1. (Color online) (a) Schematic of PLEDs and PSCs device structures, (b) the chemical structures of interfacial layers; SADM, ILM and PS.

### III. 결과 및 논의

본 실험에서 사용된 (a) 고분자 발광소자 (ITO / ZnO / interfacial layer / SPB-02T / MoO<sub>3</sub> / Au) 및 태양전지 (ITO / ZnO / interfacial layer / P3HT:PC60BM / MoO<sub>3</sub> / Ag) 구조와 (b) 계면층으로 사용된 자기조립 쌍극자 분자, 이온성 액체 분자, 극성 용매의 화학적 구조가 Fig. 1에 나타나 있다. ITO는 음극으로, ZnO는 전자수송층으로, SADM, ILM, PS는 각각 계면층 비교군으로, SPB-02T는 발광소자에서 발광층으로, P3HT:PC60BM는 태양전지에서 광활성층으로, MoO<sub>3</sub>는 정공수송층으로, Au와 Ag는 각각 발광소자와 태양전지에서 음극으로 사용하였다. 전자 공여 그룹 (electron-donating group)을 포함하는 음극 쌍극자 (negative dipoles)로 구성된 카르복실 산 (carboxylic acid) 기반 SADM (BA-OCH<sub>3</sub>)은 하이드록실 (hydroxyl) -OH 말단기를 갖는 금속 산화물과 잘 결합할 수 있는 분자구조이다. 이온성 액체 분자는 1-벤질-3-메틸이미다졸륨 (1-benzyl-3-methylimidazolium)의 양이온 (cationic)과 염화물 음이온 (anionic)으로 구성되어 있다. 아민 기반의 극성용매는 하이드록실 그룹과 아민 그룹이 말단기를 갖는 에탄올 아민 (ethanolamine, EA)을 2-메톡시에탄올 (2-methoxyethanol, 2-ME)에 희석시켜 사용하였다. 각 계면층들의 정확한 두께는 측정이 어렵지만 모두 5 nm 이하의 얇은 두께로 알려져 있고 본 실험에서는 계면층들 모두 비슷한 얇은 두께에서 계면층들간 비교를 하여 두께 차이에 따른 영향을 최소화하였다. [16–18]

Figure 2는 계면층 유무와 종류에 따라 변화한 고분자 발광소자의 소자 특성을 보여준다. 이는 (a) 전류 밀도 대 전압 ( $J-V$ ), (b) 휘도 대 전압 ( $L-V$ ), (c) 발광효율 대 전

압 ( $LE-V$ ), (d) 외부양자효율 대 전압 ( $EQE-V$ )를 포함하고 있다. 계면층이 없는 발광소자 (기준 소자, reference device)의 경우에는 계면층이 존재하는 발광소자에 비해 턴온 전압 (turn-on voltage)이 6.8 V로 가장 높았다. 이는 ZnO와 발광층 사이의 큰 에너지 장벽으로 인해 전자 주입이 어렵게 되어 정공과 전자의 불균형적인 전하 주입으로부터 기인한 것으로 여겨진다. 결과적으로 기준 발광소자에서는 재결합 (recombination)이 가장 높은 전압에서 일어나며 휘도가  $60 \text{ cd/m}^2$ , 외부양자효율이 0.01%로 가장 좋지 못한 소자효율을 보여주었다. 반면에 계면층을 도입한 발광소자들은 ZnO와 발광층 사이에 존재하는 에너지 장벽을 줄여줌으로써 기준 발광소자보다 전자 주입을 원활하게 하여 소자효율을 향상시킬 수 있었다. SADM을 이용한 발광소자는  $940 \text{ cd/m}^2$ 의 휘도, 0.05%의 외부양자효율을 보여주고, ILM을 이용한 발광소자는  $800 \text{ cd/m}^2$ 의 휘도, 0.12%의 외부양자효율을 보여주고, PS를 이용한 발광소자는  $2300 \text{ cd/m}^2$ 의 휘도, 1.38%의 외부양자효율을 보여주었다. 턴온전압은 SADM (6.4 V), ILM (4.1 V), PS (3.1 V) 순으로 나타났다. 발광소자 특성을 비교해 본 결과 ZnO와 발광층 사이의 에너지 장벽이 PS를 사용했을 때 가장 많이 줄어들었고, ILM을 사용했을 때가 그 다음, SADM을 사용했을 때가 가장 적게 줄어들었음을 예상할 수 있었다. 특히 PS를 사용했을 때는 용액공정으로 만들어진 ZnO 표면에 존재하는 표면 결함 (surface defect)를 크게 줄임으로써 누설전류 (leakage current)를 감소시켜 극적인 소자효율 향상을 이끌 수 있었다. 계면층을 도입 유무에 따른 발광소자 특성 결과를 정리한 표를 Table 1에서 볼 수 있다.

Figure 3은 계면층 유무와 종류에 따라 변화한 고분자 태양전지의 소자 특성을 보여준다. (a) 전류 밀도-전압 ( $J-V$ ) 특성과 (b)  $EQE$  특성을  $1000 \text{ W/m}^2$  AM 1.5G 조도 (illumination)에서 측정하였다. 계면층이 없는 태양전지 (기준 소자, reference device)의 경우에는 계면층이 존재하는 태양전지에 비해 단락전류 (short circuit current,  $J_{sc}$ ), 충전율 (fill factor, FF), 광변환효율 (PCE)가 크게 향상되었다. 이는 발광소자와 마찬가지로 ZnO와 광활성층 사이의 에너지 장벽이 줄어들어 효과적인 전자 수송이 가능해졌기 때문이라 판단된다. 기준 태양전지에서는 가장 낮은 단락전류 ( $8.67 \text{ mA/cm}^2$ ), 충전율 (0.62), 광변환효율 (3.06%)을 나타냈지만 계면층을 도입한 태양전지들은 이보다 우수한 소자 특성을 보였다. 이 중 SADM을 이용한 태양전지는  $10.26 \text{ mA/cm}^2$ 의 단락전류, 0.62의 충전율, 3.63%의 광변환효율을 보여주고, ILM을 이용한 태양전지는  $10.46 \text{ mA/cm}^2$ 의 단락전류, 0.63의 충전율, 3.76%의 광변환효율을 보여주고, PS를 이용한 태양전지는

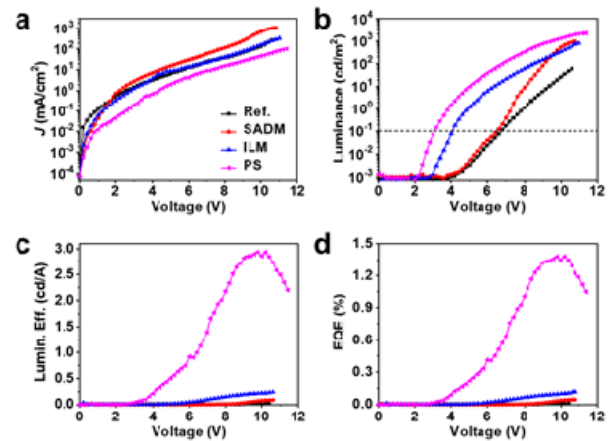


Fig. 2. (Color online) Device characterization of PLEDs with and without the interfacial layer; (a) current density versus applied voltage ( $J-V$ ) characteristics, (b) luminance versus applied voltage ( $L-V$ ), (c) luminous efficiency versus applied voltage ( $LE-V$ ) and (d) external quantum efficiency versus applied voltage ( $EQE-V$ ).

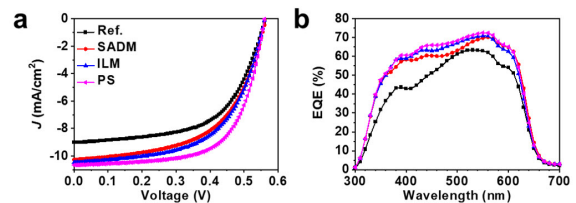


Fig. 3. (Color online) Device characterization of PSCs with and without the interfacial layer; (a)  $J-V$  characteristics (a) and EQE characteristic (b) under  $1000 \text{ W/m}^2$  AM 1.5G illumination.

$10.70 \text{ mA/cm}^2$ 의 단락전류, 0.69의 충전율, 4.21%의 광변환효율을 보여주었다. P3HT:PC60BM와 같은 벌크 이종접합 (bulk heterojunction)에서의 개방전압 (open circuit voltage,  $V_{oc}$ )은 P3HT와 같은 전자 주개인 도너 (donor)의 HOMO 레벨과 PC60BM과 같은 전자 받개인 억셉터 (acceptor)의 LUMO 레벨 사이의 차이값으로 결정되어지기 때문에 기준소자 및 SADM, ILM, PS를 이용한 태양전지 모두 0.57 V로 같았다. 태양전지 특성을 비교해 본 결과 PS를 사용했을 때 발광소자와 마찬가지로 가장 향상된 소자특성을 보였고, ILM을 사용했을 때가 그 다음, SADM을 사용했을 때가 가장 적게 향상 되었음을 알 수 있었다. 특히 PS를 사용했을 때는 단락전류와 충전율이 크게 향상되어 극적인 소자효율 향상을 이끌 수 있었다. 태양전지의 소자특성 결과를 정리한 표는 Table 2에서 볼 수 있다.

위에 나타난 결과를 분석해보면, 최적화 된 고분자 발광소자에서는 기준 소자보다 138배 향상된 외부양자효율을 보여주며, 고분자 태양전지에서는 기준 소자보다 1.37배 향상된 광 변환효율을 보여준다.

Table 1. Summary of PLEDs with and without interfacial layers.

Devices configuration	$L_{\max}$ [cd/m <sup>2</sup> ] @ bias	$LE_{\max}$ [cd/A] @ bias	$EQE_{\max}$ [%] @ bias	Turn-on Voltage [V] @ 0.1 cd/m <sup>2</sup>
Reference device	60 [10.6 V]	0.02 [10.4 V]	0.01 [10.4 V]	6.8
SADM	940 [10.8 V]	0.10 [10.6 V]	0.05 [10.8 V]	6.4
ILM	800 [11.0 V]	0.24 [10.6 V]	0.12 [10.8 V]	4.1
PS	2300 [11.8 V]	2.94 [9.8 V]	1.38 [9.8 V]	3.1

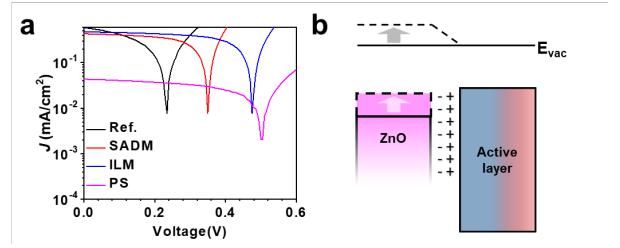
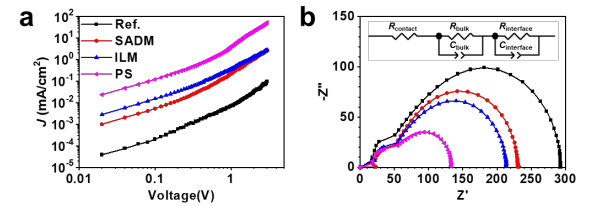
Full devices: ITO / ZnO / Interfacial layer / SPB-02T / MoO<sub>3</sub> / Au

Table 2. Summary of PLEDs with and without interfacial layers.

Devices configuration	$J_{sc}$ [mA/cm <sup>2</sup> ]	$V_{oc}$ [V]	FF	$\eta$ [%]	$J_{sc}$ (calc.) [mA/cm <sup>2</sup> ]
Reference device	8.67	0.57	0.62	3.06	8.81
SADM	10.26	0.57	0.62	3.63	10.25
ILM	10.46	0.57	0.63	3.76	10.41
PS	10.70	0.57	0.69	4.21	10.66

Full devices: ITO / ZnO / Interfacial layer / P3HT:PC<sub>60</sub>BM / MoO<sub>3</sub> / Ag

Figure 4(a)는 P3HT:PC60BM와 같은 벌크 이종접합이 아닌 P3HT를 도너로 ZnO를 어셉터로 사용하는 이중층 (bilayer) 형태의 태양전지 구조 (ITO / ZnO / interfacial layer / P3HT / MoO<sub>3</sub> / Ag)에서의 계면층 존재 유무에 따른 전류 밀도 특성을 보여준다. 이와 같은 구조는 ZnO의 전도대에 따라 개방전압이 달라지는 구조이기 때문에 ZnO 위에 존재하는 계면층 종류에 따라 ZnO와 발광층 또는 광활성층 사이 계면에 존재하는 에너지 장벽의 변화를 관찰할 수 있다. 계면층이 없는 기준 소자는 0.24 V, SADM을 이용한 태양전지는 0.35 V, ILM을 이용한 태양전지는 0.48 V를, PS를 이용한 태양전지는 0.50 V의 개방전압을 보여줬다. 이는 계면층을 사용하였을 때 계면층의 분자들이 음극 쌍극자 형태를 형성하기 때문에 ZnO의 전도대가 진공 레벨 (Vacuum level) 근처로 올라가 개방 전압의 증가를 초래한다. 특히 PS를 사용한 태양전지에서는 2배 이상 증가된 개방 전압을 보이며 이는 ZnO와 발광층 또는 광활성층 사이에 존재하는 에너지 장벽을 줄임으로써 균형적인 전하 수송을 통해 발광소자와 태양전지에서 소자효율을 향상시킨 근거로 여겨진다. Figure 4(b)는 계면층 유무에 따른 ZnO의 전도대의 변화를 플랫폼 조건에 대한 에너지 밴드 다이어그램으로 보여준다. 계면층들은 분자구조 (molecular structure)에 따라 스스로 친수성 (hydrophilicity) 부분은 ZnO 표면에 결합하려고 하고 소수성 (hydrophobicity) 부분은 고분자 표면에 결합하고자 하기 때문에 자연스럽게 쌍극자 모멘트 (dipole moment)가 형성된다. [13,16–19]

Fig. 4. (Color online) (a)  $J$ - $V$  characteristics of bilayer PSCs with and without the interfacial layers and (b) schematic energy diagrams for flat band conditions of ZnO / interfacial layer / active layer.Fig. 5. (Color online) (a) Electron-only devices characteristic of ITO / ZnO / interfacial layer / SPB-02T / LiF / Al and (b) electrical impedance measurements for P3HT:PC<sub>60</sub>BM PSCs with and without the interfacial layer. The plots are fitted by an equivalent circuit.

따라서, ZnO와 광활성층 사이에 계면층들은 분자구조의 전기음성도 (electronegativity) 차이에 따라 음극 쌍극자 모멘트를 형성함으로써 ZnO의 전도대를 진공 레벨 쪽으로 변화시킬 수 있음을 보여준다.

Figure 5(a)는 ZnO와 발광층 사이에 줄어든 에너지 장벽으로부터 얼마만큼 전자 수송이 효과적으로 향상되었는지 확인하기 위해 전자 주입만 가능한 소자 (electron-only device, ITO / ZnO / interfacial layer / SPB-02T / LiF / Al)를 제작하여 Mott-Gurney space-charge-limited current (SCLC) 방정식을 통하여 전자 이동도 (electron mobility)를 계산하였다.

$$J = \frac{9}{8} \mu_{\text{eff}} \epsilon_0 \epsilon_r \frac{V^2}{d^3} \quad (1)$$

$J$ 는 전류밀도,  $\mu_{\text{eff}}$ 는 유효 전하 운반자 이동도 (effective

Table 3. Summary of fitted parameters obtained from electrical impedance measurements for PSCs with and without interfacial layers.

Devices configuration	$R_{\text{contact}}$ [ $\Omega \cdot \text{cm}^2$ ]	$R_{\text{bulk}}$ [ $\Omega \cdot \text{cm}^2$ ]	$C_{\text{bulk}}$ [nF]	$R_{\text{interface}}$ [ $\Omega \cdot \text{cm}^2$ ]	$C_{\text{interface}}$ [nF]
Reference device	21.2	82.6	0.66	307.0	434
SADM	22.8	47.6	1.92	243.0	900
ILM	23.0	52.4	0.99	227.3	1580
PS	19.9	45.4	2.52	143.7	2880

Full devices: ITO / ZnO / Interfacial layer / P3HT:PC<sub>60</sub>BM / MoO<sub>3</sub> / Ag

charge carrier mobility),  $\epsilon_0$ 는 자유공간의 유전율 (permittivity of free space),  $\epsilon_r$ 은 매질의 상대적인 유전율 (relative permittivity of the medium),  $V$ 는 인가 전압,  $d$ 는 발광층의 두께이다. 계면층 유무에 따라 전자의 이동도를 계산한 결과, 기준 소자는  $1.75 \times 10^{-7} \text{ cm}^2/\text{V}\cdot\text{s}$ , SADM을 사용한 소자는  $5.56 \times 10^{-6} \text{ cm}^2/\text{V}\cdot\text{s}$ , ILM을 사용한 소자는  $8.83 \times 10^{-6} \text{ cm}^2/\text{V}\cdot\text{s}$ , PS를 사용한 소자는  $9.91 \times 10^{-5} \text{ cm}^2/\text{V}\cdot\text{s}$ 을 보였다. 이는 계면층을 사용하였을 때 전자 수송이 극적으로 향상됨을 증명한다. 결과적으로 발광소자나 태양전지에서 소자효율이 향상된 이유와 일치하며 본 연구팀이 제안한 결과와 일치한다. Figure 5(b)는 계면층 사용 유무에 따른 태양전지에서 임피던스를 통한 저항 분석을 보여준다. 계면층을 사용하였을 때 계면 저항값이 계면층을 사용하지 않았을 때와 비교하여 상대적으로 크게 감소하며 이는 단락전류의 증가와 충전율 향상에 영향을 준다. 특히 전자 이동도의 증가와 계면 저항의 감소는 발광소자와 태양전지에서 보여주는 소자효율 증가와 일맥상통한 결과를 보인다.

#### IV. 결론

본 연구에서는 SADM, ILM, PS와 같은 계면층을 전자 수송층인 ZnO와 발광층 또는 광활성층 사이에 도입하여 고분자 기반의 역구조 발광소자와 태양전지에서 전자의 수송을 원활하게 하고 계면 저항을 줄임으로써 소자 효율을 향상시켰다. 계면층은 분자구조의 형태에 따라 자발적으로 음극 쌍극자 모멘트를 형성함으로써 전자수송층인 ZnO의 전도대를 진공 레벨 방향으로 변화시켜 ZnO와 발광층 또는 광활성층 사이에 존재하는 큰 에너지 장벽 및 불일치를 감소시킬 수 있었다. 특히, PS 계면층을 사용해 최적화된 고분자 발광소자에서는 기준 소자 (0.01%) 보다 138배 향상된 1.38%의 외부양자효율과 대략 38배 향상된 2300  $\text{cd}/\text{m}^2$ 의 휘도를 보였으며, 고분자 태양전지에서는 기준

소자보다 대략 1.23배 향상된 단락전류, 1.11배 향상된 충전율과 함께 기준 소자 (3.06%) 보다 1.37배 향상된 4.21%의 광변환효율을 보였다. 따라서, 역구조 고분자 발광소자와 태양전지에서 전자수송층과 발광층 또는 광활성층 사이에서 발생하는 불균형적인 전하 수송을 해결하기 위해서 적절한 계면층 사용을 통해 계면 저항을 감소시키고 전자 수송 능력을 향상시키는 것이 소자 효율 향상에 중요함을 알 수 있으며 또한 SADM, ILM, PS와 같은 간단한 계면층 도입은 페로브스카이트 발광소자나 태양전지, 레이저 소자, 트랜지스터 등 다양한 소자에 적용이 가능할 것으로 보인다.

#### 감사의 글

본 논문은 부경대학교 자율창의기술연구비 (2019, BR Lee)에 의해 연구되었습니다.

#### REFERENCES

- [1] J. H. Burroughes *et al.*, *Nature* **347**, 539 (1990).
- [2] R. H. Friend *et al.*, *Nature* **397**, 121 (1999).
- [3] B. R. Lee *et al.*, *J. Mater. Chem.* **22**, 21481 (2012).
- [4] G. Yu *et al.*, *Science* **270**, 1789 (1995).
- [5] J. Y. Kim *et al.*, *Science* **317**, 222 (2007).
- [6] S.-J. Ko *et al.*, *Energy Environ. Sci.* **6**, 1949 (2013).
- [7] Y.-H. Kim, S.-H. Lee, J. Noh and S.-H. Han, *Thin Solid Films* **510**, 305 (2006).
- [8] B. R. Lee *et al.*, *ACS Nano* **6**, 2984 (2012).
- [9] K. Lee *et al.*, *Adv. Mater.* **19**, 2445 (2007).
- [10] B. R. Lee *et al.*, *Adv. Mater.* **27**, 3553 (2015).
- [11] K. Morii and M. Ishida, *Appl. Phys. Lett.* **89**, 183510 (2006).
- [12] D. Kabra *et al.*, *Adv. Mater.* **20**, 3447 (2008).
- [13] J. S. Park *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **96**, 243306 (2010).
- [14] J. S. Park *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **99**, 163305 (2011).
- [15] H. Choi *et al.*, *Adv. Mater.* **23**, 2759 (2011).
- [16] B. R. Lee *et al.*, *J. Mater. Chem.* **21**, 2051 (2011).
- [17] B. R. Lee *et al.*, *Nat. Commun.* **5**, 5840 (2014).
- [18] B. R. Lee *et al.*, *Adv. Mater.* **26**, 494 (2014).
- [19] Y.-H. Kim, *et al.*, *Adv. Funct. Mater.* **24**, 3808 (2014).