



Near-Unity Excitation and Radiative Efficiencies in Electroluminescence Without External Carrier Injection

arXiv (프리프린트) · arxiv:2608.11677v1

1. 한 줄 요약

외부 전하 주입 없이 전계 여기만으로 동작하는 비주입형 전계발광(NI-EL) 소자에서, 발광층과 공간적으로 분리된 한 쌍의 "상태 풍부(state-abundant) 전하 저장층"과 비단조 구배 쉘(nonmonotonically graded shell) 양자점을 결합해 여기 효율(η_{exc})을 거의 100%까지, 고전계 복사 효율(η_{rad})을 90% 이상까지 끌어올린 연구이다. 그 결과 RGB 전 색상에서 저전압 구동(적색 3.7 V_{rms} 점등)과 초고휘도(녹색 291,628 nits), 302.6 lm/W의 전력 효율, 45.4%에 달하는 외부 EL 효율을 동시에 달성했다. 이는 NI-EL이 기존 주입형 AC-EL은 물론 DC-LED(QLED/OLED)와도 경쟁 가능한 수준임을 처음으로 입증한 결과다.

2. 연구 배경

1920년 Gudden-Pohl 이래 발전한 전계발광 기술 중 NI-EL(용량성 결합형)은 유전 손실이 낮고 회로 통합이 단순하며 신뢰성이 우수해 1990년대까지 연구·상용 시장을 주도했으나, 낮은 휘도와 과도한 구동 전압 때문에 DC 구동 LED에 밀려났다. 근본적 원인은 두 가지로, 첫째는 유전 장벽 사이 계면 트랩에서의 터널링·쇼트키 방출에 의존하는 전하 생성 방식 때문에 여기 효율이 통상 20% 미만에 머문다는 점이다. 둘째는 ZnS 계열 불순물 활성 형광체 외에 적합한 발광체가 부족하고, 유기물·QD·페로브스카이트 같은 엑시톤형 발광체를 도입하면 1 MV/cm를 넘는 동작 전계에서 엑시톤 해리·소광으로 복사 재결합 효율이 급감한다는 점이다. 실제로 기존 NI-EL의 최고 성능은 60 V_{rms}에서 수천 nits 수준에 그쳤다. 본 연구는 이 두 가지 병목을 동시에 해소하는 것을 목표로 한다.

3. 핵심 기여

첫째, 발광체로부터 공간적으로 분리된 n형(n-doped SnO 나노결정)·p형(p-doped poly-TPD) 이중 전하 저장층을 PMA 고일함수 계면층 기반 터널링 이중접합으로 결합하는 새로운 동작 패러다임을 제시해, 전하 생성량을 20배 이상 증대시키고 η_{exc} 를 86~94%(거의 unity)로 끌어올렸다. 둘째, 비단조 구배 쉘 QD를 설계해 전자·정공 파동함수를 안정화, 1.5 MV/cm 고전계에서 복사 효율을 RGB 각각 7.5·7.7·8.2배 향상시켰다. 셋째, 이 둘을 결합한 RGB NI-EL에서 저 점등전압·초고휘도·고효율을 동시 구현하고, 세계 최초의 QD 기반 청색 NI-EL을 보고했다. 넷째, $j(t)$ - $v(t)$ 위상각($>88\sim89^\circ$), 100 ns 미만 응답, 주파수 의존 $\eta_{exc}(f)$ 분해($\eta_{EL} = \eta_{exc} \cdot \eta_{rad} \cdot \eta_{out}$) 등을 통해 메커니즘·성능 인과관계를 정량적으로 규명했다.

4. 재료·소자 구조

소자는 전극/HfO 유전 장벽/전하 저장층/PMA 계면층/무도핑 HTL 또는 ETL/QD 발광층 순의 대칭적 적층 구조로, 대부분 용액 공정으로 제작되었다(발광면적 4 mm²). n형 저장층은 n-도핑 SnO 나노결정, p형 저장층은 p-도핑 poly-TPD이며, 각 저장층은 깊은 LUMO를 갖는 PMA를 통해 언도핑 수송층과 터널링 이중접합을 형성하고, HfO 장벽이 전극으로부터의 외부 전하 주입을 차단한다. 양의 반주기에서는 HTL의 원자가 전자가 이중접합을 넘어 n형 저장층 LUMO로 터널링하며 HTL 내에 정공을 생성하고, 음의 반주기에 되돌아가는 방식으로 전하가 발광체에 직접 접해 생성된다. 발광체는 비단조 구배 쉘 구조의 RGB QD(무전계 PLQY 92~96%)이며, 비교군으로 통상 구배 쉘 QD를 사용했다. 대조 구조 A(기존 QD + PMA만), B(A + 이중 저장층), 목표 구조 C(B + 신규 QD), 그리고 반구형 렌즈를 부착한 C+lens를 비교했다. 구동은 150 kHz 정현파 AC를 기준으로 하고 주파수 의존성을 함께 평가했다.

5. 주요 성능 수치

- 점등 전압(1 nit): 적색 3.7 V_{rms} / 녹색 3.9 V_{rms} / 청색 5.3 V_{rms} (기존 최저치의 약 1/2)

- 최대 휘도(구조 C): 적색 48,006 nits(30 V_{rms}), 녹색 >206,000 nits, 청색 51,435 nits
- 최대 휘도(C + 반구 렌즈, 배율 1.50/1.41/1.45): 72,009 / 291,628 / 74,581 nits
- 전력 효율(C): 적색 28.3→40.3 lm/W, 녹색 162.2(150 kHz)→214.6 lm/W(30 kHz), 청색 32.3 lm/W
- 전력 효율(C + 렌즈): 60.4 / 302.6 / 46.9 lm/W (R/G/B)
- 외부 EL 효율 η_{EL} : 24.8 / 32.4 / 29.6% → 렌즈 부착 시 37.1 / 45.4 / 42.6%
- 여기 효율 η_{exc} 피크: 적색 86.3%, 녹색 94.0%, 청색 92.6% (구조 A 대비 20배 이상)
- 고전계 복사 효율 η_{rad} (녹색): 0.6 MV/cm 93.6%, 1.5 MV/cm 78.1% (대조군 66.5%, 10.1%) → RGB 7.5/7.7/8.2배 향상
- 전기적 특성: $j(t)$ - $v(t)$ 위상각 >89.3°(적, 10 kHz), 88.4°(녹, 100 kHz), 응답 시간 <100 ns
- 청색 QD 안정성: 동일 초기 10,000 nits 조건에서 PL 저하 15.6%(NI-EL) vs 40%(DC-QLED)
- 구조별 기여: 저장층 도입 시 휘도 약 40배↑·문턱전압 약 37%↓, 신규 QD 추가 시 EL 약 2.5배↑·문턱 15% 추가 감소, $e(t)$ 진폭 누적 70~120배 증가

6. 기존 기술과의 비교

기존 NI-EL 벤치마크 대비 점등 전압·휘도·전력 효율 모든 항목에서 압도적 우위를 보여, 적색 휘도 9.6배, 녹색 41.4배(전체 9.6~103.6배 범위), 적색 전력 효율 40.3배, 녹색 21.5배 향상을 기록했다. 주입형 AC 구동 EL과 비교해도 휘도 2.8(R)/11.3(G)/24.9(B)배, 전력 효율 3.9/4.2/15.1배 우수해, 내부에서 생성되는 전하의 양과 속도가 옴 접촉 전극을 통한 외부 주입을 능가할 수 있음을 시사한다. 나아가 QD·유기 기반 DC-LED와 비교해도 구동 전압과 휘도 면에서 경쟁 가능하며, 녹색의 302.6 lm/W는 보고된 QD·유기 DC-LED 전력 효율을 상회한다. 응답 속도 역시 기존 AC/DC 소자의 수 μ s~ms 대비 100 ns 미만으로 수십~수천 배 빠르고, 여기 효율은 종래 ZnS 고전계 여기(<20%) 및 최근 NI-EL(<20%)을 넘어 최고급 DC-LED(>90%)에 필적한다.

7. 산업 적용 가능성

100 ns 미만의 초고속 응답과 높은 펄스 휘도(수만~29만 nits)는 가시광 통신(LiFi), 고속 광원 변조, ToF/센싱, 스트로보·펄스 조명 등 시간 분해가 중요한 응용에 직접적으로 유리하다. 외부 전하 주입이 없어 전극 열화 요인이 제거되고 AC 구동이 전하 디트래핑을 촉진해 청색 QD의 수명 병목을 완화한다는 점은, 청색 QLED 안정성 문제로 고전 중인 QD 디스플레이·조명 분야에 실질적 대안이 될 수 있다. 유전 손실이 극히 작고(위상각 ~89°) 회로 통합이 단순해 AC 전원 직결형 광원이나 대면적 패널 구동에도 유리하며, 대부분 용액 공정으로 제작되어 원가·대면적 확장성이 있다. 다만 150 kHz 수준의 고주파 AC 드라이버가 필요하다는 점은 구동 IC 설계 측면의 전제 조건이다.

8. 한계와 남은 과제

측정 주파수 상한이 전원 장치 한계로 150 kHz에 묶여 있어 최적 주파수($\approx$ 30 kHz 부근 피크)와 그 이상 영역의 완전한 특성 규명이 남아 있고, 휘도는 시간 평균 값이므로 듀티비·펄스 구동 특성이 응용 조건에 따라 재평가되어야 한다. 발광 면적이 4 mm²로 소면적이며, 대면적화 시 저장층·유전층 균일성, RC 지연, 고주파 구동 손실이 성능을 제한할 가능성이 있다. 소자 수명(휘도 반감 수명, LT95 등)은 QD 층의 PL 열화 비교만 제시되었을 뿐 장시간 신뢰성·에이징 데이터가 부족하다. 또한 HfO₂·SnO₂·poly-TPD·PMA 다층의 공정 재현성, 고전압 반복 스트레스 하 유전 파괴 마진, 그리고 능동매트릭스 구동 호환성(AC 화소 구동 회로) 등은 상용화 전 검증이 필요하다.

9. 연관 논문

Perumal, Lssem & Leo, "Ultra-bright alternating current organic electroluminescence" (Org. Electron. 2012) 및 "Novel approach for AC-driven organic light-emitting devices" (Adv. Funct. Mater. 2012)는 본 논문이 직접 성능 비교 기준으로 삼은 NI-EL 대표 벤치마크다. Zhao et al., "High brightness electroluminescence of non-carrier-injection QLEDs" (Adv. Mater. Interfaces 2024)는 QD 기반 NI-EL의 종전 최고 휘도·최저 문턱 전압 기록으로 본 연구의 직접 비교 대상이다. Wang, Yuan & Chen, "Household alternating current electricity plug-and-play QLEDs" (Nat. Commun. 2024)는 교신전자 그룹의 선행 AC 구동 QD 소자 연구로 본 연구의 계보를

형성한다. QD 재료 측면에서는 Shen et al. (Nat. Photon. 2019)의 고휘도·고효율 QD 구조 설계와 Chen et al., "Blue LEDs based on colloidal QDs with reduced surface-bulk coupling" (Nat. Commun. 2023)이 비단조 구배 셀 설계의 배경 문헌이며, Rowland et al. (Nano Lett. 2015)은 전계에 의한 QD PL 소광 거동의 기준 데이터를 제공한다.

10. 선정 이유

"외부 전하 주입 없는 EL은 어둡고 고전압"이라는 30년 이상 굳어진 통념을 정량적으로 뒤집은 논문으로, OLED/QLED 업계가 주입형 구동에 집중해 온 전제를 재검토하게 만든다. 여기 효율이라는 NI-EL 고유의 핵심 지표를 $\eta_{EL} = \eta_{exc} \cdot \eta_{rad} \cdot \eta_{out}$ 로 분해해 20배 개선을 직접 증명한 방법론은, 재료 개선과 소자 구조 개선의 기여도를 분리 평가하는 모범적 분석이다. 특히 청색 QD의 열화가 DC 구동 대비 절반 이하라는 결과는 QD 디스플레이 최대 난제인 청색 수명 문제에 대한 구조적 우회로를 제시한다는 점에서 산업적 파급력이 크다. 302.6 lm/W, 45.4% 외부 EL 효율, 100 ns 이하 응답이라는 수치 조합은 조명·통신·센싱을 아우르는 새로운 소자 카테고리의 가능성을 보여준다.

11. 키워드 태그

비주입형 전계발광(NI-EL), AC 구동 전계발광, 전하 저장층(charge reservoir), 터널링 이중접합, 비단조 구배 셀 양자점, 여기 효율(η_{exc}), 고전계 복사 효율, 청색 QD 안정성