

전자소자 응용을 위한 공액 고분자의 전하 이동도 분석

Measurements of Charge Carrier Mobility of Conjugated Polymers for Electronic Device Application

박성민¹, 윤재훈^{1,2}, 손해정^{1,2} | Sungmin Park¹ · Jae Hoon Yun^{1,2} · Hae Jung Son^{1,2}

¹Photoelectronic Hybrid Research Center, Korea Institute of Science and Technology,

5, Hwarang-ro 14-gil, Seongbuk-gu, Seoul 02792, Korea

²Department of Nanomaterials Science and Engineering, University of Science and Technology (UST),

217, Gajeong-ro, Yuseong-gu, Daejeon 34113, Korea

E-mail: hjson@kist.re.kr

1. 서론

유기 공액 고분자는 용액 공정을 통해 낮은 가격으로 대면적 응용이 가능하다는 장점으로 유기발광소자(OLED), 유기태양전지(OPV), 유기박막트랜지스터(OTFT)등과 같은 다양한 전자소자에 사용되어 왔다. 이와 같은 전자 소자에서 공액 고분자의 높은 전하 이동도는 매우 중요하다.

유기 공액 고분자의 전하 이동도는 이방성(anisotropy)인 특징을 보임으로 기판과 수직한 방향으로의 전하 이동이 주가 되는 OLED, OPV소자와 기판과 평행한 방향으로의 전하 이동이 주가 되는 OTFT로 측정한 전하 이동도를 혼용하기에는 무리가 있다. 일반적으로 공액 고분자는 π 오비탈 방향의 전하 이동도가 다른 방향에 비해 높다고 알려져 있다.¹ 따라서, 그림 1에서 나타낸 바와 같이, 기판에 평행한 방향의 전하 이동도를 고려하는 OTFT의 경우, 모서리로 서있는(edge-on) 형태의 배향이 높은 전하 이동도를 보인다. 반면 기판에 수직한 방향의 전하 이동도를 고려하는 OLED 및 OPV에서는 엎어져있는(face-on) 형태의 배향이 높은 전하 이동도를 보일 수 있다.

OPV를 비롯한 샌드위치 형태의 소자는 기판에 수직한 방향의 전하 이동도가 소자의 성능과 깊은 연관성을 가지므로 이에 대한 분석이 필수적이다. 이 방향의 전하 이동도는 time-of-flight(TOF), charge extraction by linearly increasing voltage(CELIV), space-charge-limited-current(SCLC) 분석 등을 통해서 측정할 수 있다.

Author



박성민

2010 동의대학교 나노공학과 (학사)
2012 부산대학교 인지메카트로닉스
공학과 (석사)
2013-현재 고려대학교 화학과, KIST 학연
(박사과정)



윤재훈

2014 건국대학교 특성화학부 (학사)
2015-현재 UST 나노재료공학과
(석박통합과정)



손해정

2000 성균관대학교 화학과 (학사)
2002 KAIST 화학과 (석사)
2004 삼성종합기술원 연구원
2011 Department of Chemistry, The University of Chicago (박사)
2012 Department of Chemistry, The University of Chicago (Post-Doc.)
2012-현재 KIST 광전하이브리드 센터 선임연구원

2. 본론

2.1 OTFT를 이용한 전하 이동도 측정

OTFT는 소스(source), 드레인(drain), 게이트(gate) 3개의 전극과 전하 이동도를 측정하고자 하는 유기 공액 고분자 물질 층으로 구성되어 있다. 또한, 전도성 채널을 형성하는 유기 공액 고분자 층과 게이트 전극은 유전체 층에 의해 분리 되어 있다. OTFT는 유기 전계 효과 트랜지스터(organic field effect transistor, OFET)라고도 불리며 기존의 FET와 같은 동작 원리를 가진다. 게이트 전극에 양(+) 전압을 인가하면 유기 공액 고분자 층에 전자가, 음(-) 전압을 인가하면 정공이 모인 전하 층을 형성하고 이를 통해 소스와 드레인 전극 사이에 전하 이동이 가능해 진다.

전하 이동도를 측정하기 위해서는 게이트 전극 전압(V_G)을 일정하게 유지시키고 소스-드레인 전압(V_D)에 따른 소스 와 드레인 전극 사이에 흐르는 전류(I_D)를 측정한다. 이렇게

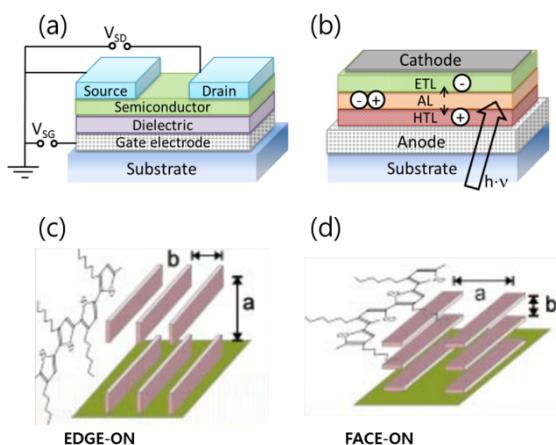


그림 1. (a) TFT 소자 구조의 예(bottom gate-top contact), (b) OPV 구조의 예(normal type), 고분자의 대표적인 배열의 예; (c) egde-on과 (d) face-on.

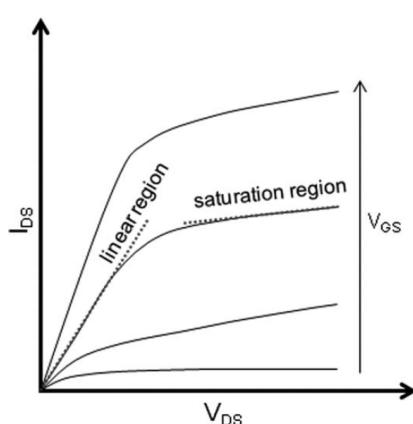


그림 2. OFET의 출력 특성 그래프의 예.³

측정된 출력 곡선은 그림 2와 같이 나타난다. 출력 곡선은 낮은 전압(V_D)에서 전류(I_D)가 선형적으로 변화하는 구간(linear region)을 보이며, 높은 전압에서 포화되는 구간(saturation region)을 보인다. 전하 이동도는 이 두 가지 구간에서 각각 측정할 수 있으며, 낮은 전압(V_D)인 선형 구간에서는 수식 (1)을 이용하여 계산할 수 있다.²

$$I_D = \frac{W\mu C_i}{L} (V_G - V_{Th}) V_D \quad V_D \ll (V_G - V_{Th}) \quad (1)$$

여기서 W 는 게이트 폭, L 은 채널 길이, C_i 는 유전체 층의 캐패시턴스, μ 는 전하 이동도, 그리고 V_{Th} 는 문턱전압이다. 위와 유사한 방법으로 포화 구간에서도 수식 (2)를 통하여 전하 이동도를 계산할 수 있다.²

$$I_D = \frac{W\mu C_i}{2L} (V_G - V_{Th})^2 \quad V_D > (V_G - V_{Th}) \quad (2)$$

OTFT는 전극 유리기판에 스판코팅으로 유기 반도체 층을 형성하는 OPV와 유사한 방법으로 제작이 가능하다. 따라서, 순수 공액 고분자뿐만 아니라 고분자:PCBM([6,6]-phenyl C₆₁ butyric acid methyl ester) 블렌드 필름에서도 전하 이동도 측정이 가능하다. Anthopoulos 그룹에서는 poly(3-hexylthiophene-2,5-diyl)(P3HT)와 PCBM 블렌드 필름을 열처리(thermal annealing)하면서 전하 이동도를 측정하였고, 상 분리를 통

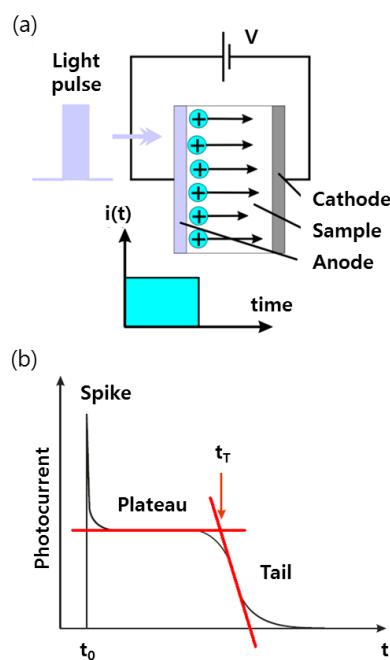


그림 3. (a) TOF법을 통한 모빌리티 측정, (b) TOF법을 통한 전하 수송 시간 분석.

한 모폴로지 변화를 간접적으로 밝힐 수 있었다.⁴ 하지만 앞에서 언급한 바와 같이 샌드위치 형태를 갖는 소자 특성에 적합한 이동도 분석을 위해서는 추가적인 분석이 필요하다.

2.2 TOF를 이용한 전하 이동도 측정

샌드위치 형태 소자에서 기판에 수직한 방향의 전하 이동도를 측정하는 가장 전통적인 방법에는 TOF법이 있다. TOF법은 두 전극 사이에 전하가 이동하는데 걸리는 시간을 통해 전하 이동도를 계산하는 방법이며 소자의 기본 구조는 그림 3a와 같이 한쪽 투명전극을 비롯한 두 전극 사이에 전하 이동도를 측정하고자 하는 유기 공액 고분자 물질이 있는 샌드위치 형태의 소자로 이루어진다. 위와 같이 제작된 소자는 펄스 레이저로 투명전극 내부 표면을 여기 시키고 반대쪽 전극에서 수집되는 전하를 통하여 측정된다. 불투명 전극에 양(+)의 전압을 인가해주면 전자가, 반대로 음(-)의 전압을 인가해주면 정공이 수집된다. 전하의 수집은 전류의 변화로 나타나며 두 전극 사이에 전하가 이동하는데 걸리는 시간 이후에는 그림 3b와 같이 전류의 감소가 발생한다. 전하 이동도(μ)는 아래와 같은 수식을 이용하여 계산할 수 있다.⁵

$$\mu = \frac{d^2}{t_T U} \quad (3)$$

위 식에서 d 는 박막 물질의 두께, t_T 는 측정된 전하 수송 시간, U 는 외부 전압이다.

S. A. Choulis 그룹에서는 TOF를 통하여 Poly[2-methoxy-5-(3',7'-dimethyloctyloxy)-1,4-phenylene-vinylene] (MDMO-PPV)의 정공 이동도를 $10^6 \text{ cm}^2 \text{V}^{-1} \text{s}^{-1}$ 수준으로 보고하였다. 이 연구에서는 TOF를 이용하여 순수한 MDMO-PPV의 정공 이동도 보다 PCBM과의 블렌드에 의해 비교적 분산된 고분자의 정공 이동도가 더 높은 것을 확인했다.⁶ 하지만, TOF법은 최소 1 μm 이상의 두꺼운 필름에 최적화되어있기 때문에 일반적으로 OPV의 광 흡수 층 두께가 100~300 nm 부근에서 가장 높은 효율을 보이는 것과 비교하면 몇 배 두꺼운 필름을 제작해야 하므로 실제 소자에 바로 적용하기에는 제한점이 있다.

2.3 CELIV를 이용한 전하 이동도 측정

CELIV 기술은 최근에 유기 반도체의 전하 수송 특성을 측정하는 방법으로 적용되고 있다. 소자 구조와 필요한 에너지 준위는 TOF와 유사하지만 TOF보다는 상대적으로 얇은 박막 시료에 대한 이동도 측정이 가능하다. 일반적으로 스펀 코팅을 통해서 적층된 수백 나노미터의 두께를 갖는 샘플도 CELIV로 측정이 가능하다. 또한, 에너지 장벽이 있는 구조에서 전하가 한 방향으로 주입될 때 평형상태에서의 전하 이

동도(mobility of equilibrium charge carriers)와 별크 전도도(bulk conductivity)를 측정 할 수 있는 장점이 있다. 그리고 빛에 의해서 생성된 전하 수송체가 상태밀도(density of state)에서 낮은 에너지로 이완되는 과정을 알 수 있기 때문에 시간에 따른 전하 수송체 이동도와 농도를 동시에 측정할 수 있다.⁷ 일반적으로 유기 공액 고분자를 기반으로 하는 별크 혼합 태양전지(bulk heterojunction solar cells, BHJSCs) 소자에서 전하의 추출은 전기장에 영향을 받은 표류(drift)에 의한 것뿐만 아니라 전극 근처에서의 확산(diffusion)에 의한 추출도 고려해야 한다.⁸

$$L = \mu \tau E \quad (4)$$

식 (4)는 전하 수송체의 이동거리를 나타낸 식이다. 여기서 L 은 전하 수송체가 이동한 거리, μ 는 전하 이동도, τ 는 전하의 수명, 그리고 E 는 전기장의 세기이다. CELIV 측정법은 전하 이동도와 수명과 같은 파라미터를 도출해낼 수 있고 태양전지 소자의 전하 추출을 이해하는데 유용하게 응용될 수 있다.

CELIV에서 사용되는 장비는 전압을 선형으로 증가시키는 삼각형모양의 전압 펄스(triangle voltage pulse)를 만들어낸다. 유기 반도체와 같이 도핑을 하지 않았을 때 전도도가 낮은 물질을 측정할 경우에는 전하를 발생시키기 위해서 광 펄스(pumping light pulse)를 사용한다. 이를 photo-CELIV 기술이라고 부르고 광 펄스에 의해서 전하가 발생되면 그 이후에 삼각형 전압에 의해서 전하를 추출한다. 그림 4에서는 가해진 전압 펄스와 전류 다이어그램을 보여주고 있다. 초기에

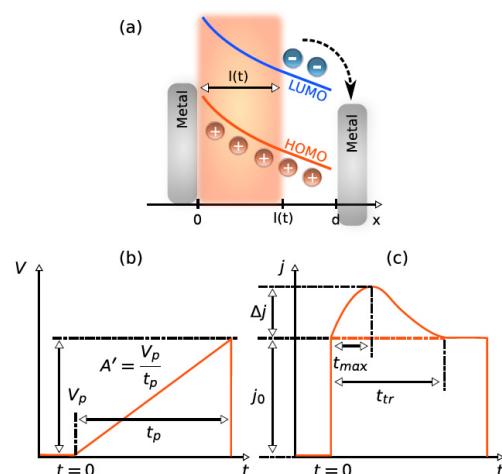


그림 4. (a) 임의의 시간에 전하가 추출되는 과정과 두 전극 사이에 위치하는 활성 층의 밴드 다이어그램을 나타냄. $0 \leq x \leq l(t)$ 는 모든 전자가 추출된 구간. (b) 인가 전압 그래프, 그리고 (c) 이에 따른 전류 그래프. 전압 펄스가 가해지면서 초기에 정전용량 변위 전류(capacitive displacement current: j_0)가 생성된 이후에 전하 수송에 의해서 생성되는 전도성 전류(Δj)가 나타나게 된다.⁹

광 펄스를 가해주면 어느 정도 딜레이 시간(t_{delay}) 이후에 삼각형 전압 펄스를 인가하게 된다. 이 전압펄스($A' = V_p/t_p$)가 샘플에 가해지면서 평형상태의 전하 수송체를 추출하게 되는데 빛에 의해 생성되어 재결합이 일어나지 않고 남아있는 전하 수송체를 추출하는 원리이다. 초기에는 RC 미분 회로 특성으로 인한 사각형 모양의 전류 계단(current step)인 j_0 가 보여진다. 그 이후에 필름에서 전하 수송에 의해서 생성되는 전도성 전류(J)로 인해서 전류가 증가한다. 가해진 전압 펄스의 증가에 의해서 전하 수송체 추출이 모두 이뤄질 때까지 전류가 증가하는데 인가 전압이 충분히 높고 전하 수송체의 주입이 없으면 전류는 정전용량 계단(capacitive step)까지 떨어진다.¹⁰

G. Dennler 그룹에서는 CELIV를 BHJSCs에 적용하여 실험적으로 전자 주계 고분자와 전자 받계 PCBM의 비율에 따른 전하 수송체 이동도와 전하 수명을 구했다.¹¹ 여기서 MDMO-PPV/PCBM 블렌드 시스템에서 PCBM 농도에 따라서 수송체 이동도와 수명이 어떻게 바뀌는지 연구했다. 그림 5에서 볼 수 있듯이 전하의 이동도는 PCBM 농도가 증가할수록 증가하지만 전하의 수명은 감소한다. PCBM이 없을 때 MDMO-PPV 고분자의 정공 이동도는 $3 \times 10^{-6} \text{ cm}^2 \text{V}^{-1} \text{s}^{-1}$ 이었지만 MDMO-PPV:PCBM 비율이 1:4인 활성 층(active layer)의 정공 이동도는 $3 \times 10^{-4} \text{ cm}^2 \text{V}^{-1} \text{s}^{-1}$ 로 100배 증가하는 것을 알 수 있다. 또한 전하 이동도와 수명의 곱($\mu\tau$)은 photo-CELIV로 측정할 수 있는데 300 K에서는 $4 \times 10^{-10} \text{ cm}^2/\text{V}$ 이다. 그림 5(inset)에서 PCBM의 농도가 바뀌어도 전하 이동도와 수명의 곱($\mu\tau$)은 일정하지만 전하 이동도와 수명은 변하는 것을 보아 Langevin형 재결합이 우세하다는 것을 알 수 있다.

2.4 SCLC를 이용한 전하 이동도 측정

SCLC를 이용한 전하 이동도 측정은 OTFT 소자 구조보다는 OPV 소자 구조와 유사한 조건에서 측정하는 방법이다. 현재까지 SCLC 방법은 공액 고분자뿐만 아니라 BHJSC 광활성 층에서 전하 이동도를 분석하는 방법으로 많이 사용되고 있다. 소자 구조는 그림 6a와 같이 얇은 유기 반도체 층(OPV에서는 광활성 층, active layer)이 양전극 사이에 위치한다.

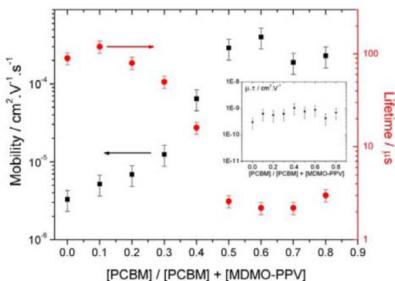


그림 5. MDMO-PPV:PCBM 블렌드 시스템에서 PCBM 농도에 따른 전하 수송체의 이동도와 수명 그래프. (inset) 이동도와 수명의 곱($\mu\tau$).¹¹

이러한 구조는 하나의 전하주입 접합(charge injection contact)과 주입차단 접합(injection-blocking contact)을 필요로 한다. 또한 SCLC에서 주입 장벽은 0.3 eV를 초과하면 안 된다는 이론적인 계산과 실험적인 결과가 존재한다.¹² 따라서, 정공을 효과적으로 주입하기 위해서는 ~50 nm 정도의 얇은 poly(ethylenedioxythiophene)/polystyrene-sulfonic acid(PEDOT:PSS) 박막을 정공주입 전극 위에 코팅을 하고 이후에 유기 반도체 층을 PEDOT:PSS 층 위에 코팅하게 된다.^{13,14} 평행한 전극 면 사이의 SCLC이론은 1940년도에 Mott와 Gurney가 처음으로 제시하면서 다수의 학자들에 의해서 정립되어왔다. Mott-Gurney 법칙에 따르면 트랩효과가 없는 상태에서 전류밀도는 수식 (5)와 같이 나타낼 수 있다.¹⁵

$$J = \frac{9}{8} \mu \epsilon \varepsilon_0 \frac{V^2}{d^3} \quad (5)$$

여기서 J 는 전류밀도, μ 는 자유 전하 이동도, ϵ 은 유기 반도체의 유전상수, ε_0 는 진공 유전율, $V = V_{\text{appl}} - V_{\text{bi}} - V_{\text{r}}$ 이며 V_{appl} 는 인가 전압, V_{bi} 는 두 전극의 일 힘수 차이(built-in-potential), 그리고 V_{r} 는 전극과 활성 층 사이의 저항으로 형성된 전압, d 는 유기 반도체 층의 두께이다. 여기서 확산 효과는 무시되고, 전하 이동도는 전기장과 독립적이라 가정한다.

전도대 영역(conduction band) 아래에 위치하는 단일 트랩의 에너지를 A라고 고려하면, 식 (5)에서 약간 수정된 형태로 다음과 같이 유도될 수 있다. 트랩의 비율이 너무 작지 않다면 총 자유 전하의 비율은 식 (6)과 같이 주어진다.

$$\frac{\rho_f}{\rho_f + \rho_t} = \theta_0 = \frac{N_c}{N_t} e^{-\frac{A}{kT}} \quad (6)$$

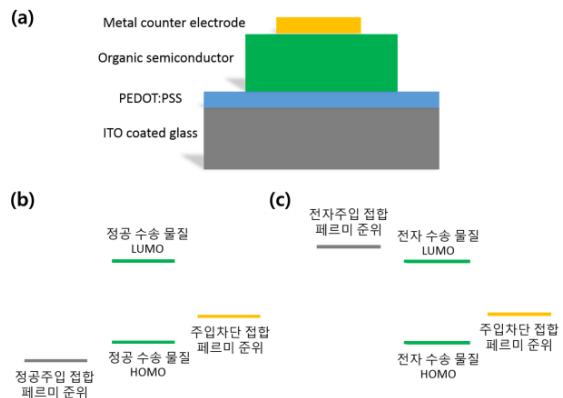


그림 6. (a) SCLC 이동도 측정 시 일반적인 소자 구조, (b) 정공 수송물질의 정공 이동도를 측정하기 위해 필요한 이상적인 에너지 준위, 그리고 (c) 전자 수송물질의 전자 이동도를 측정하기 위해 필요한 이상적인 에너지 준위.

ρ_f 와 ρ_t 는 각각 자유 전하와 트랩된 전하의 밀도를 나타내고, N_c 는 전도대 영역의 유효 상태밀도 (effective density of states)이고 N_t 는 트랩 밀도(trap density)이다. 그리고 전하의 확산에 의한 기여도를 무시하면 전류밀도는 식 (7)로 나타낼 수 있다.

$$J = \mu \rho_i E \quad (7)$$

푸아송 방정식(Poisson's equation)은 식 (8)의 형태이고,

$$\frac{dE}{dx} = \frac{\rho_f + \rho_t}{\epsilon \epsilon_0} \quad (8)$$

식 (6), (7), 그리고 (8)로부터 식 (9)를 도출 할 수 있다.

$$J = \mu \theta_0 \epsilon \epsilon_0 E \frac{dE}{dx} \quad (9)$$

따라서, 양변을 적분하여 식 (10)을 얻을 수 있다.

$$\frac{2Jx}{\mu \theta_0 \epsilon \epsilon_0} = E^2(x) - E^2(0) \quad (10)$$

주입 전극에서 $E(0)$ 가 0이라고 가정하면,

$$E(x) = \left(\frac{2Jx}{\mu \theta_0 \epsilon \epsilon_0} \right)^{1/2} \quad (11)$$

이 방정식을 적분하여 구하면 식 (12)와 같이 Mott-Gurney law 방정식 형태를 얻을 수 있고 식 (12)는 여러 물질을 적용 시켜 실험적으로 잘 정립 되었다.

$$J = \frac{9}{8} \mu \epsilon \epsilon_0 \frac{V^2}{d^3} \theta_0 \quad (12)$$

반면에, 이동도가 전기장에 의존하는 물질인 경우 위에 방정식은 식 (13)으로 변형되어 나타낼 수 있다.¹⁶

$$J = \frac{9}{8} \epsilon \epsilon_0 \mu_0 e^{0.89\gamma(\frac{v}{d})^{0.5}} \frac{V^2}{d^3} \quad (13)$$

μ_0 는 전기장이 0일 때의 전하 이동도, γ 는 활성 장(field activation factor)이며 온도에 따라서 변하는 값이다.

SCLC 측정법은 유기 공액 고분자와 PCBM을 포함하는

블렌드 필름에서 전극의 선택에 따라 전자 및 정공의 이동도를 분석할 수 있다는 장점 때문에 OPV의 광 활성 층의 전하 수송 능력을 측정하는데 널리 사용되어 왔다.

Blom 그룹에서는 SCLC를 이용하여 poly(*p*-phenylene vinylene)s (PPV) 유도체의 정공 이동도를 구했다. 전자 주개 (PPV 고분자)의 HOMO(highest occupied molecular orbital) 에너지 레벨을 고려하여 적절한 일 함수를 갖는 두 전극을 선택함으로써 블렌드 필름의 정공 이동도(μ_h)를 구하였다. 마찬가지로, 전자 받개(PCBM)의 LUMO(Lowest unoccupied molecular orbital) 에너지 레벨을 고려한 두 전극을 이용하여 전자 이동도(μ_e)를 구하였다(그림 7).¹⁷ 그리고 Yang 그룹에서는 SCLC를 이용하여 P3HT와 PCBM의 BHJSCs 광 활성 층에서 각 상(phase)의 성장속도에 따른 각 전하들의 이동도 변화를 분석하였다. 빠르게 성장한 활성 층의 μ_e 와 μ_h 가 각각 6.5×10^{-4} 와 $1.9 \times 10^{-5} \text{ cm}^2 \text{V}^{-1} \text{s}^{-1}$ 이었지만 활성 층을 느리게 성장시키면 $\mu_e = 2.6 \times 10^{-3} \text{ cm}^2 \text{V}^{-1} \text{s}^{-1}$, $\mu_h = 1.7 \times 10^{-3} \text{ cm}^2 \text{V}^{-1} \text{s}^{-1}$ 으로 백배 이상 활성 층의 이동도가 증가한다는 것을 보고하였다.¹⁸

3. 결론

유기 공액 고분자는 스핀코팅을 통하여 쉽게 적층할 수 있다는 장점 때문에 여러 응용 분야에 적용 하는 연구가 진행되고 있다. 공액 물질은 무기 반도체와 달리 전하 이동에 대

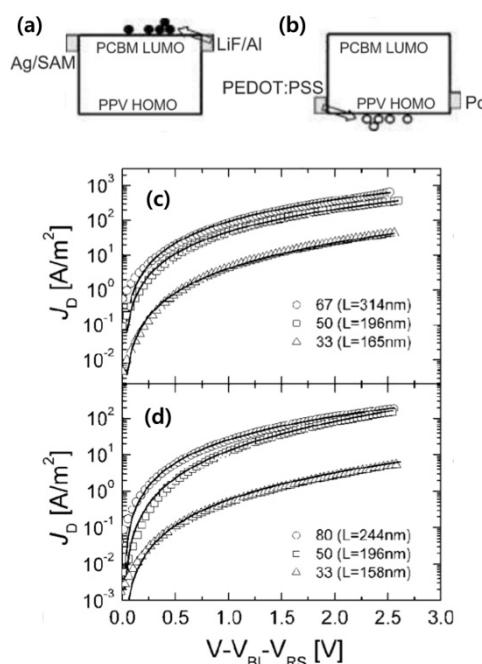


그림 7. PPV:PCBM 블렌드 필름에서 사용된 (a) 단일 전자소자(electron only device)와 (b) 단일 정공 소자(hole only device)에 사용된 전극의 에너지 준위 그리고 SCLC $J-V$ 로 구한 전자 이동도(c)와 정공 이동도(d).¹⁷

한 이방성 특징을 가짐으로써 응용 분야에 따라 다른 방법의 전하 이동도 측정 방법이 필요하다. 이 글에서 OTFT, TOF, CELIV 그리고 SCLC까지 여러 전하 이동도 측정에 대한 방법을 소개하였다. 공액 고분자를 이용한 응용 연구를 진행할 때 연구의 신뢰도를 높이기 위해서는 그에 맞는 전하 수송 능력 측정 방법을 선택 하는 것이 바람직할 것이다.

참고문헌

1. H. Sirringhaus, P. J. Brown, R. H. Friend, M. M. Nielsen, K. Bechgaard, B. M. W. Langeveld-Voss, A. J. H. Spiering, R. A. J. Janssen, E. W. Meijer, P. Herwig, and D. M. de Leeuw, *Nature*, **401**, 685 (1999).
2. L. Torsi, M. Magliulo, K. Manoli, and G. Palazzo, *Chem. Soc. Rev.*, **42**, 8612 (2013).
3. A. Kokil, K. Yang, and J. Kumar, *J. Polym. Sci. B Polym. Phys.*, **50**, 1130 (2012).
4. J. G. Labram, E. B. Domingo, N. Stingelin, D. D. C. Bradley, and T. D. Anthopoulos, *Adv. Func. Mater.*, **21**, 356 (2011).
5. A. Pivrikas, H. Neugebauer, and N. S. Sariciftci, *IEEE J. Sel. Topics Quantum Electron.*, **16**, 1746 (2010).
6. S. A. Choulis, J. Nelson, Y. Kim, D. Poplavskyy, T. Kreouzis, J. R. Durrant, and D. D. C. Bradley, *Appl. Phys. Lett.*, **83**, 3812 (2003).
7. K. Genevičius, R. Österbacka, G. Juška, K. Arlauskas, and H. Stubb, *Thin Solid Films*, **403**, 415 (2002).
8. P. Schilinsky, C. Waldauf, J. Hauch, and C. J. Brabec, *J. Appl. Phys.*, **95**, 2816 (2004).
9. J. Lorrmann, B. H. Badada, O. Inganäs, V. Dyakonov, and C. Deibel, *J. Appl. Phys.*, **108**, 113705 (2010).
10. A. Pivrikas, N. S. Sariciftci, G. Juška, and R. Österbacka, *Prog. Photovolt: Res. Appl.*, **15**, 677 (2007).
11. G. Dennler, A. J. Mozer, G. Juška, A. Pivrikas, R. Österbacka, D. A. Fuchsbaumer, and N.S. Sariciftci, *Org. Electron.*, **7**, 229 (2006).
12. G. G. Malliaras and J. C. Scott, *J. Appl. Phys.*, **85**, 7246 (1999).
13. S. W. Tsang, S. K. So, and J. B. Xu, *J. Appl. Phys.*, **99**, 013706 (2006).
14. M. Abkowitz, J. S. Facci, and M. Stolka, *Appl. Phys. Lett.*, **63**, 1892 (1993).
15. N. F. Mott and R. W. Gurney, *Electronic Processes in Ionic Crystals*, Clarendon Press, New York, 1940.
16. C. Tanase, P. W. M. Blom, and D. M. de Leeuw, *Phys. Rev. B*, **70**, 193202 (2004).
17. V. D. Mihailechi, L. J. A. Koster, P. W. M. Blom, C. Melzer, B. de Boer, J. K. J. van Duren, and R. A. J. Janssen, *Adv. Funct. Mater.*, **15**, 795 (2005).
18. V. Shrotriya, Y. Yao, G. Li, and Y. Yang, *Appl. Phys. Lett.*, **89**, 063505 (2006).