

논문 19-9-14

Ba/Ag 투명 음극을 이용한 전면발광 OLEDs의 전기 및 광학적 특성

Electrical and Optical Properties of Top Emission OLEDs with Ba/Ag Transparent Cathodes

문대규^{1,a}, 이찬재², 한정인²
(Dae-Gyu Moon^{1,a}, Chan-Jae Lee², and Jeong-Inn Han²)

Abstract

We have fabricated top emission organic light emitting diodes with transparent Ba/Ag double layer cathodes deposited by using thermal evaporation method. The device structure was glass/Ni(200 nm)/2-TNATA(15 nm)/ α -NPD(15 nm)/Alq₃:C545T (1 %, 35 nm)/BCP(5 nm)/Ba(10 nm)/Ag(8 nm). The optical transmittance of the Ba(10 nm)/Ag(8 nm) layer was over 60 % in the visible wavelength region. The maximum efficiency of the device was 13.7 cd/A at 0.69 mA/cm² and the efficiency of over 10 cd/A was achieved at wide range of current densities and luminances.

Key Words : Organic light emitting diodes, Top emission, Transparent cathode, Ba/Ag

1. 서 론

OLED (Organic Light Emitting Diode)는 자체 발광 소자로서 별도의 광원이 필요 없고, 초고속 응답이 가능하며, 구동전압이 낮고, 광시야각 구현이 가능하여 차세대 디스플레이용 소자로서 각광 받고 있으며, 특히 능동구동 OLED는 고해상도, 대면적 디스플레이에 적합하여 관심이 집중되고 있다[1-4]. 능동구동 OLED를 위한 기판으로 유리기판, Si 웨이퍼 등이 이용되고 있다[5]. 유리기판을 이용하여 능동구동 OLED 디스플레이를 제작하기 위한 화소 구동소자로는 비정질 Si TFT (Thin Film Transistor) 혹은 다결정 Si TFT가 가장 널리 이용되고 있다. 비정질 Si TFT는 신뢰성이 좋지 않으며, 다결정 Si TFT는 균일도가 좋지 않기 때문에 이를 보상하기 위해 여러 개의 트랜지스터

를 사용하는 보상회로를 이용하여 화소 구동회로를 구현하고 있다[6,7]. 일반적인 배면발광 (bottom emission) OLED는 화소 구동회로가 차지하는 면적으로 인하여 개구율이 작아지기 때문에, OLED 내에서 생성된 빛을 유리기판의 반대 방향으로 향하게 하는 전면발광 (top emission) OLED가 제안되었다[8]. 또한 Si 웨이퍼와 같은 불투명한 기판을 이용하여 능동구동 OLED를 제작할 경우 기판의 반대 방향으로 빛을 향하게 하는 전면발광 OLED가 필수적으로 필요하다.

전면발광 OLED는 출광 방향이 TFT가 놓인 유리기판의 반대 방향이기 때문에 반사형 양극, 투명 음극 및 투명 봉지기술의 개발이 중요하다. 특히 투명 음극은 전면발광 OLED의 효율 및 수명을 결정하는데 있어서 중요한 역할을 하기 때문에 많은 연구가 진행되어 왔다[9-14]. 투명 음극은 OLED 내에서 생성된 빛을 투과시키기 위해 가시선 영역에서 광투과도가 좋아야 하고, 전자의 주입이 용이해야 하기 때문에 일함수가 작은 물질이 바람직하며, 전극으로서의 역할을 하기 위해 저항이 작아야 하는 특성이 요구된다. 투명전극에 대한 대부분의 연구는 일함수가 작은 얇은 박막의 반투과성 음극

1. 순천향대학교 신소재공학과
(충남 아산시 신창면 읍내리 646)
2. 전자부품연구원 디스플레이센터
a. Corresponding Author : dgmoon@sch.ac.kr
접수일자 : 2006. 7. 11
1차 심사 : 2006. 8. 11
심사완료 : 2006. 8. 22

을 스퍼터링에 의해 증착된 ITO, ZnO와 같은 투명전도성 산화막과 유기물 사이에 삽입하는 구조에 집중되어 왔다[9,11,14]. 하지만 얇은 박막 금속과 스퍼터링에 의한 투명전도성 산화막 구조의 전면발광 OLED는 스퍼터링시 유기 박막의 손상 및 금속 박막의 낮은 투과도 등으로 인하여 OLED의 효율 및 수명 특성이 저하되는 단점이 있다[9,14].

본 논문에서는 유기물에 손상을 주지 않는 진공 증착 방식을 이용하여, 광투과도가 좋으며, 전자의 주입 특성이 좋고, 전기저항이 작은 Ba/Ag 투명 음극을 이용하여 전면발광 OLED를 제작하였으며, 소자의 전기 및 광학적 특성을 조사하였다.

2. 실험

투명 음극으로 사용되는 Ba/Ag 금속 박막의 광투과도 및 전기저항을 조사하기 위하여 유리기판 위에 금속 박막을 진공 증착에 의해 증착하였다. 유리기판을 과산화수소수와 암모니아가 혼합된 세정액 및 아세톤으로 세정한 후, 바로 진공 증착기에 넣고 1.5×10^{-6} torr의 base pressure에서 2~3 Å/s의 증착속도로 Ba 층을 증착한 후 진공을 깨지 않고 같은 증착속도로 Ag 박막을 증착하였다. Ba 층의 두께는 10 nm로 고정시켰으며 Ag 층의 두께는 8, 10 nm로 변화시켰다. 또한 비교를 위하여 Ag 단일층을 10 nm 증착하였다. 증착된 금속 박막의 광투과도는 JASCO V-560 spectrophotometer로 측정하였으며, 면저항은 4-point probe를 사용하여 측정하였다.

투명 음극을 이용한 전면발광 OLED는 그림 1의 구조로 제작하였다. 유리기판을 세정한 후 두께 200 nm의 반사형 불투명 양극인 Ni 박막을 RF (radio frequency) 마그네트론 스퍼터링에 의해 증착하였다. Photolithography 공정에 의해 Ni 양극 패턴을 형성한 후 유기물 및 투명 음극 증착을 위해 진공증착기에 장착하였다. 정공주입층으로 4,4'-tris[2-naphthyl(phenyl)amino]triphenylamine (2-TNATA)을 15 nm 증착하였다. 정공수송층으로는 15 nm 두께의 4,4'-bis[N-(1-naphthyl)-N-phenyl-amino]biphenyl (α -NPD)을 증착하였다. 발광층으로는 tris-(8-hydroxyquinoline)aluminum (Alq₃)에 9-benzothiazol-2-yl-1,1,6,6-tetramethyl-2,3,5,6,7a,11a-hexahydro-1H,4H-11-oxa-3a-aza-benzo de anthracen-10-one (C545T)을 1 % 도핑하였으며, 발광층의 두께는 350 nm였다. 전자수송층으로 2,9-dimethyl-4,7 diphenyl-1,10-phenanthroline

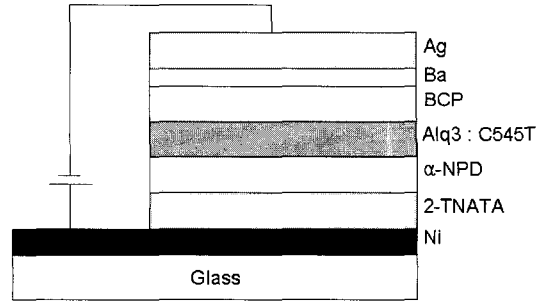


그림 1. 투명 음극을 이용한 전면발광 OLED의 소자 구조.

Fig. 1. The device structure of the top emission OLED with transparent cathode.

(BCP)을 5 nm 증착하였다. BCP는 정공억제층의 역할도 동시에 수행한다. 이후 투명 음극의 형성을 위해 10 nm의 Ba를 증착한 후 Ag 8 nm를 증착하였다. 유기물 층 및 투명 음극은 모두 진공 증착 방식에 의해 증착되었으며, 증착전의 base pressure는 1.5×10^{-6} torr였다. 유기물 층의 증착 속도는 1 Å/s로 유지시켰으며, 금속 전극의 증착 속도는 2~3 Å/s으로 유지시켰다. 제작된 소자는 공기에 노출시키지 않고, 질소 분위기의 글러브 박스에서 밀봉하여, 소자 측정 시 공기 중의 수분과 산소의 영향을 최소화하였다. 소자의 전류-전압-휘도 특성은 Keithley 2400 source/meter 및 휘도 보정된 포토다이오드를 이용하여 측정하였다. 소자의 EL (electroluminescence) 스펙트럼은 미놀타 CS1000 spectroradiometer로 측정하였다.

3. 결과 및 고찰

그림 2는 유리기판 위에 증착된 Ba(10 nm)/Ag (10 nm), Ba(10 nm)/Ag (8 nm) 이중층 및 Ag(10 nm) 단일층에 대하여 400~700 nm의 파장 영역에서 측정한 광투과도를 나타낸 것이다. 유리기판 위에 증착된 두께 10 nm의 Ag 단일층은 400 nm에서 66 %의 투과도를 나타내었으며 파장이 증가함에 따라 감소하여 540 nm에서 35 %의 투과도를 보였다. 540 nm 이상으로 파장이 증가함에 따라 다시 증가하여 700 nm의 파장에서 46 %의 투과도를 보였다. Ag 단일층을 사용하면 투과도가 낮으며 일함수가 약 4.3 eV로[15], 전자의 주입이 용이하지 않아 전면발광 OLED의 투명 음극으로 사용

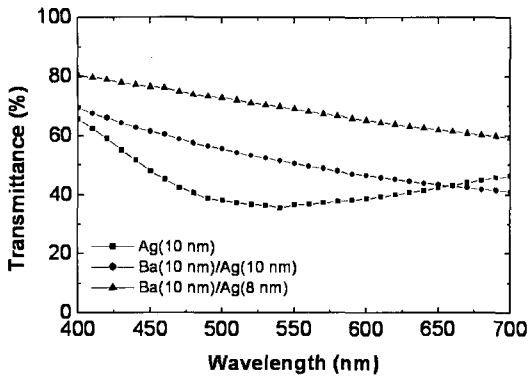


그림 2. Ba/Ag 및 Ag 층의 투과도 변화.
Fig. 2. Transmittance variation of the Ba/Ag and Ag layered cathodes.

하는 데는 한계가 있다. Ba/Ag 이중층 구조에서는 Ag 단일층에서 투과도가 좋지 않은 540 nm 영역에서의 투과도가 크게 향상되는 것을 볼 수 있다. Ba(10 nm)/Ag(10 nm) 이중층의 투과도는 400 nm에서 70 %를 나타내었으며 파장이 증가함에 따라 감소하여 700 nm에서는 41 %의 투과도를 보였다. Ba(10 nm)/Ag(8 nm) 이중층의 투과도는 400 nm에서 80 %였으며 700 nm에서 60 %를 나타내어, Ba/Ag 이중층은 Ag 단일층에 비해 두꺼움에도 불구하고 투과도가 크게 향상되었다. Ca/Ag 이중층의 경우에도 투과도가 증가하는 현상이 보고 되었으며[13] CaO의 형성에 의한 것으로 사료된다. Ba/Ag 또한 BaO의 형성에 의한 것으로 추정되나 자세한 원인은 조사중에 있다. Ba (10 nm)/Ag (10 nm) 이중층의 면저항은 9 Ω/□였으며, Ba (10 nm)/Ag (8 nm) 이중층의 면저항은 15 Ω/□로 두께가 150 nm인 ITO의 면저항과 유사하거나 이보다 낮아 전면발광 OLED의 음극으로 사용하기에 충분한 면저항을 보였다[15]. 또한 Ba는 일함수가 약 2.6 eV로[16], 일함수가 작아 음극으로 사용시 전자의 주입이 용이할 수 있다. 따라서 Ba/Ag 이중층은 가시광선 영역에서 광투과도가 좋고, 면저항이 낮으며, 유기물과 접촉하고 있는 Ba의 일함수가 작아 전면발광 OLED의 투명 음극으로 사용될 수 있다.

그림 3은 Ba/Ag 이중층을 투명 음극으로 사용하여 제작한 전면발광 OLED의 전압에 따른 전류 밀도 및 휘도 변화를 나타낸 것이다. 소자의 구조는 Ni/2-TNATA/α-NPD/Alq3:C545T/BCP/Ba(10 nm)/

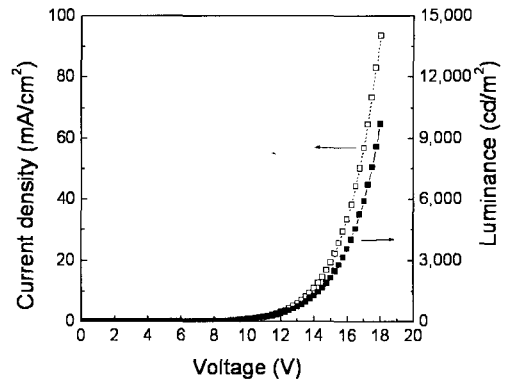


그림 3. Ba(10 nm)/Ag(8 nm)를 투명 음극으로 사용한 전면발광 OLED의 전압에 따른 전류 밀도 및 휘도 변화.

Fig. 3. Current density and luminance variation as a function of voltage in the top emission OLED with Ba(10 nm)/Ag (8 nm) transparent cathode.

Ag(8 nm)였다. 양극으로는 Ni를 사용하였으며, 녹색 형광 도판트인 C545T를 Alq3에 도핑하였다. 소자는 7 V에서 0.08 mA/cm²의 전류밀도 및 10 cd/m²의 휘도를 나타내었으며 10 V에서 0.83 mA/cm²의 전류밀도 및 113 cd/m²의 휘도를 나타내었다. 또한 18 V에서 93.6 mA/cm²의 전류밀도 및 9,700 cd/m²의 높은 휘도를 나타내었다. Ba/Ag 투명 음극을 사용한 전면 발광 OLED에서 전자의 주입은 일함수가 작은 Ba으로 인한 것이며, 전기 비저항이 작은 Ag 층은 주로 면저항을 낮춰주는 역할을 한다. Ba과 Ag의 전기비저항은 각각 33.2 x 10⁻⁶ 및 1.9 x 10⁻⁶ Ωcm 이다.

그림 4는 Ba/Ag 이중층의 투명 음극을 이용한 전면 발광 OLED의 전류밀도에 따른 휘도 및 효율 특성을 나타낸 것이다. 소자의 구조는 Glass/Ni(200 nm)/2-TNATA(15 nm)/α-NPD(15 nm)/Alq3:C545T (1 %, 35 nm)/BCP(5 nm)/Ba(10 nm)/Ag(8 nm)였다. 소자는 전류밀도가 9.5 mA/cm² 일 때 1,118 cd/m²의 휘도를 나타내었으며, 38.3 mA/cm² 일 때 4,038 cd/m²의 휘도를, 73.4 mA/cm² 일 때 7,546 cd/m²의 휘도를 나타내어 전류밀도가 증가함에 따라 휘도가 선형적으로 증가하였다. 또한 9.5 mA/cm² 일 때 11.7 cd/A의 효율을 나타내었으며, 38.3 mA/cm² 일 때 10.5 cd/A의 효율을, 73.4 mA/cm² 일 때 10.3 cd/A의 효율을 나타내어 전류 밀도에 따른 효율 변화는 크지 않았다. 소자의 최대

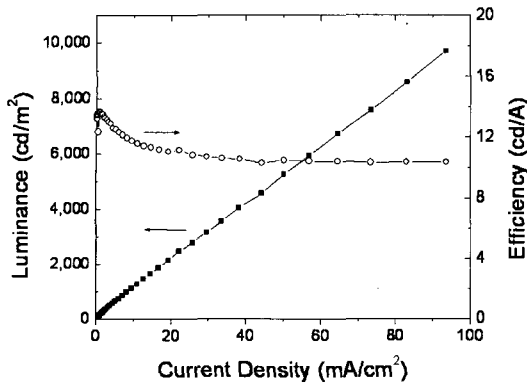


그림 4. Ba(10 nm)/Ag(8 nm)를 투명 음극으로 사용한 전면발광 OLED의 전류밀도에 따른 휘도 및 효율 변화.

Fig. 4. Luminance and efficiency variation as a function of current density in the top emission OLED with Ba(10 nm)/Ag (8 nm) transparent cathode.

효율은 0.69 mA/cm^2 에서 13.7 cd/A 이었으며, 이때의 휘도는 95.1 cd/m^2 이었다. C545T를 도판트로 사용한 녹색 배면발광 OLED의 효율을 $6\sim 9 \text{ cd/A}$ 로 보고되고 있는 반면[17], Ba/Ag를 투명 음극으로 사용하고 C545T를 형광 도판트로 사용한 전면발광 OLED는 넓은 전류밀도 및 휘도 범위에서 10 cd/A 이상의 높은 효율을 나타낸다.

그림 5는 Ba(10 nm)/Ag (8 nm) 투명 음극을 이용한 전면발광 OLED의 EL 스펙트럼을 나타낸 것이다. 525 nm 에서 강한 발광 피크가 관찰되었으며 CIE (Commission International de l'Eclairage) 색좌표 값은 (0.34, 0.61)로, 능동 구동 디스플레이를 위한 녹색 화소의 구현에 적합한 색좌표 범위 내에 있다

4. 결론

본 연구에서는 Ba/Ag 투명 음극을 이용하여 전면 발광 OLED를 제작하고, 소자의 전기 및 광학적 특성을 조사하였다. Ba/Ag 이중층은 Ag 단일층에 비해 우수한 광투과도를 나타내었다. Ba(10 nm)/Ag(8 nm) 이중층은 400 nm 에서 80 %, 700 nm 에서 60 %의 투과도를 나타내었으며 $15 \text{ } \Omega/\square$ 의 낮은 면저항을 나타내었다. 또한 Ba/Ag 이중층은 Ba의 낮은 일함수로 인하여 전면발광 OLED의

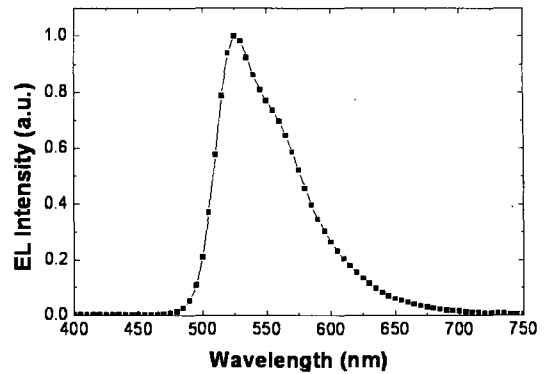


그림 5. Ba(10 nm)/Ag(8 nm) 투명 음극을 이용한 전면발광 OLED의 EL 스펙트럼.

Fig. 5. Normalized electroluminescence spectrum of the top emission OLED with Ba(10 nm)/Ag(8 nm) transparent cathode.

투명 전극으로 적합하였다. Ba/Ag 투명 음극을 이용한 전면발광 OLED는 10 V 에서 113 cd/m^2 , 18 V 에서 $9,700 \text{ cd/m}^2$ 의 휘도를 나타내었다. 또한 0.69 mA/cm^2 에서 13.7 cd/A 의 효율을 나타내었으며, 넓은 전류 밀도 및 휘도 범위에서 10 cd/A 이상의 효율을 나타내었다. 소자의 CIE 색좌표는 (0.34, 0.61)로 디스플레이에 있어서 녹색 화소의 구현에 적합하였다. Ba/Ag 투명 음극을 이용한 전면발광 OLED는 Ba/Ag의 높은 광투과도, 낮은 면저항, 효율적인 전자 주입으로 인하여 고휘도, 고효율의 구현이 가능하기 때문에 능동구동 OLED 디스플레이에 사용될 수 있을 것으로 판단된다.

참고 문헌

- [1] C. W. Tang and S. A. VanSlyke, "Organic electroluminescent diodes", Appl. Phys. Lett., Vol. 51, No. 12, p. 913, 1987.
- [2] C. W. Tang and S. A. VanSlyke, and C. H. Chen, "Electroluminescence of doped organic thin films", J. Appl. Phys., Vol. 85, No. 9, p. 3610, 1989.
- [3] 정동희, 김상길, 홍진웅, 이준웅, 김태완, "버퍼층과 음전극에 따른 유기 발광 소자의 전기적 특성과 발광 효율", 전기전자재료학회논문지, 16권, 5호, p. 409, 2003.
- [4] N. Ibaraki and M. Kobayashi, "Views on

- the present and future promise of OLED displays", *SID'06 Digest*, p. 1760, 2006.
- [5] W. E. Howard and O. F. Prache, "Micro-displays based upon organic light-emitting diodes", *IBM J. Res. & Dev.*, Vol. 45, No. 1, p. 115, 2001.
- [6] A. Nathan, A. Kumar, K. Sakariya, P. Servati, and A. Sazonov, "Amorphous silicon back-plane electronics for OLED displays", *IEEE J. Select. Topics Quantum Elect.*, Vol. 10, No. 1, p. 58, 2004.
- [7] T. Suzuki, "Flat panel displays for ubiquitous product applications and related impurity doping technologies", *J. Appl. Phys.*, Vol. 99, p. 111101, 2006.
- [8] T. Sasaoka, M. Sekiya, A. Yumoto, J. Yamada, T. Hirano, Y. Iwase, T. Yamada, T. Ishibashi, T. Mori, M. Asano, S. Tamura, and T. Urabe, "A 13.0-inch AM-OLED display with top-emitting structure and adaptive current mode programmed pixel circuit (TAC)", *SID'01 Digest*, p. 384, 2001.
- [9] G. Gu, V. Bulovic, P. E. Burrows, S. R. Forrest, and M. E. Thompson, "Transparent organic light emitting devices", *Appl. Phys. Lett.*, Vol. 68, No. 19, p. 2606, 1996.
- [10] G. Parthasarathy, C. Adachi, P. E. Burrows, and S. R. Forrest, "High-efficiency transparent organic light-emitting devices", *Appl. Phys. Lett.*, Vol. 76, No. 15, p. 2128, 2000.
- [11] P. E. Burrows, G. Gu, S. R. Forrest, E. P. Vicenzi, and T. X. Zhou, "Semitransparent cathodes for organic light emitting devices", *J. Appl. Phys.*, Vol. 87, No. 6, p. 3080, 2000.
- [12] L. S. Hung, C. W. Tang, M. G. Mason, P. Raychaudhuri, and J. Madathil, "Application of an ultrathin LiF/Al bilayer in organic surface-emitting diodes", *Appl. Phys. Lett.*, Vol. 78, No. 4, p. 544, 2001.
- [13] R. B. Pode, C. J. Lee, D. G. Moon, and J. I. Han, "Transparent conducting metal electrode for top emission organic light-emitting devices : Ca-Ag double layer", *Appl. Phys. Lett.*, Vol. 84, No. 23, p. 4604, 2004.
- [14] L. S. Hung, L. S. Liao, C. S. Lee, and S. T. Lee, "Sputter deposition of cathodes in organic light emitting diodes", *J. Appl. Phys.*, Vol. 86, No. 8, p. 4607, 1999.
- [15] S. M. Sze, "Physics of semiconductor devices", Wiley, p. 251, 1981.
- [16] 김두석, 장윤기, 권영수, "ITO의 표면처리와 음전극 변화에 따른 OLEDs의 특성연구", *전기전자재료학회논문지*, 18권, 12호, p. 1143, 2005.
- [17] H. Kanno, Y. Hamada, and H. T. Takahashi, "Development of OLED with high stability and luminance efficiency by co-doping methods for full color displays", *IEEE J. Select. Topics Quantum Elect.*, Vol. 10, No. 1, p. 30, 2004.