

평판 유리로 봉인된 유-무기 보호 박막을 갖는 OLED 봉지 방법

박민경¹, 주성후^{2,a}

¹ (주) 뉴옵틱스 신기술팀

² 대전대학교 신소재공학과

Encapsulation Method of OLED with Organic-inorganic Protective Thin Films Sealed with Flat Glass

Min-Kyung Park¹ and Sung-Hoo Ju^{2,a}

¹ New Technology, NEW OPTICS LTD., Yangju 482-872, Korea

² Department of Advanced Materials Science & Engineering, Daejin University, Pocheon 487-711, Korea

(Received April 3, 2012; Revised April 17, 2012; Accepted April 20, 2012)

Abstract: To study encapsulation method for large-area organic light emitting diodes (OLEDs), red emitting OLEDs were fabricated, on which Alq₃ as organic buffer layer and LiF and Al as inorganic protective layers were deposited to protect the damage of OLED by epoxy. And then the OLEDs were attached to flat glass by printing method using epoxy. The basic structure of OLED doped with rubrene of 1 vol.% as emitting layer is ITO(150 nm) / 2-TNATA(50 nm) / α -NPD(30 nm) / Alq₃:Rubrene(30 nm) / Alq₃(30 nm) / LiF(0.7 nm) / Al(100 nm). In case of depositing Alq₃, LiF and Al and then attaching of flat glass onto OLED, current density, luminance, efficiency and driving voltage were not changed and lifetime was increased according to thickness of Al as inorganic protective layers. The lifetime of OLED/Alq₃/LiF/Al₄/glass structure was 139 hours increased by 15.8 times more than bare OLED of 8.8 hours and 1.6 times more than edge sealed OLED of 54.5 hours.

Keywords: OLED, Encapsulation, Flat glass, Inorganic, Organic, Protective film

1. 서 론

OLED (organic light emitting diode)는 자발광, 높은 대조비, 넓은 시야각, 우수한 시인성, 빠른 응답속도, 경량, 박형 등 디스플레이에서 요구되는 많은 장점을 가지고 있음에도 불구하고 대기 중의 수분과 산소에 매우 민감하게 반응하여 수 시간 내에 성능이 저하된다 [1-4]. 따라서 긴 수명을 유지하기 위해서는 외부로부터 유입되는 산소나 수분의 침투를 방지하기 위한 봉지공정이 요구된다.

OLED 소자의 봉지를 위하여 가공된 금속이나 가

공된 유리 캡슐을 부착하는 방법이 주로 사용되어 우수한 봉지 특성을 나타내고 있으나 공정상의 어려움과 캡슐의 처짐에 의한 소자의 손상 등으로 대면적 소자에 적용하기 어렵다는 단점이 있다 [5]. OLED 소자의 봉지를 위한 새로운 방법으로 스퍼터링이나 CVD (chemical vapour deposition) 방법에 의한 무기 박막과 유기박막을 적층하는 방법에 의한 연구도 많이 이루어지고 있으나 임계 두께 하에서 10,000시간 이상의 수명을 보장하기 위한 투습율 (10^{-6} g/m²·day) 수준을 만족하지 못하고 있다 [6,7].

이러한 문제를 해결하기 위하여 가공되지 않은 평판 유리를 전면에 부착하는 봉지방법에 대한 연구 결과를 발표하였다 [1]. 그러나 LiF와 Al을 보호막으로

a. Corresponding author: sunghooju@daejin.ac.kr

형성하고 평판 유리를 부착한 경우 구동 전압이 상승하는 문제점이 남아 있어 이 문제를 해결하기 위한 연구가 필요하였다.

본 연구에서는 평판 유리의 부착에 의한 구동 전압 상승의 문제점을 해결하기 위하여 기본 소자로 적색 발광 OLED를 제작하고, 유기 완충층으로 Alq₃를 형성하고 무기보호막으로 LiF와 Al을 형성한 후 스크린 인쇄 방법에 의하여 에폭시 (epoxy)를 균일한 두께로 인쇄하여 유리판을 부착하는 방법에 의하여 봉지를 실현하였다. 제작된 OLED의 특성은 전압-전류-휘도의 측정과 수명 측정에 의하여 평가하였다.

2. 실험 방법

실험에 사용된 기관은 두께 150 nm, 면 저항 12 Ω/□, 표면 평탄도 10 Å의 특성을 갖는 ITO가 증착된 유리 기관을 사용하였다. ITO는 세정과 사진 식각과정을 거쳐 발광면을 형성하였다. 패턴 형성이 완료된 기관은 진공 용기에 장착하고, 산소 가스를 공급하여 진공도를 1.5×10^{-1} Torr로 유지하고 RF 발생장치를 이용하여 산소 플라즈마에 의한 표면 처리를 하였다.

증착 시 진공 챔버 내부의 진공도는 1.0×10^{-6} Torr 이하로 유지하였다.

OLED 소자는 ITO 위에 1.5 Å/sec의 증착율로 2-TNATA를 50 nm, α-NPD를 30 nm, Rubrene 1 vol.%를 첨가한 Alq₃를 30 nm, Alq₃를 30 nm 증착하였다. 적층된 유기물 위에 LiF를 0.5 Å/sec의 증착율로 7 Å와 Al을 1.5 Å/sec의 증착율로 100 nm 두께로 증착하여 제작하였다.

제작된 OLED 소자 위에 평판 유리를 부착하는 방법에 의한 봉지를 위하여 완충층으로 Alq₃를 150 nm 두께로 증착하고, 보호막으로 LiF 150 nm와 Al을 증착한 후 평판 유리위에 에폭시를 스크린 인쇄 방법에 의하여 도포한 후 압착방법에 의하여 OLED가 제작된 기관위에 평판 유리를 부착하여 제작한 소자의 구조를 그림 1에 나타내었다.

제작된 OLED 소자의 발광 특성을 측정하기 위하여 전원 인가 장치로 Keithley의 2400 Source Meter[®]을 사용하여 전압과 전류를 인가하였고, 소자에서 발광된 휘도는 spectrascan (Photo Research, PR-650)을 사용하여 측정하였다. 소자의 수명은 OLED Life Time Tester (JYS Co., Ltd)를 사용하여 전원을 인가하고 설정된 휘도의 변화를 측정하였다

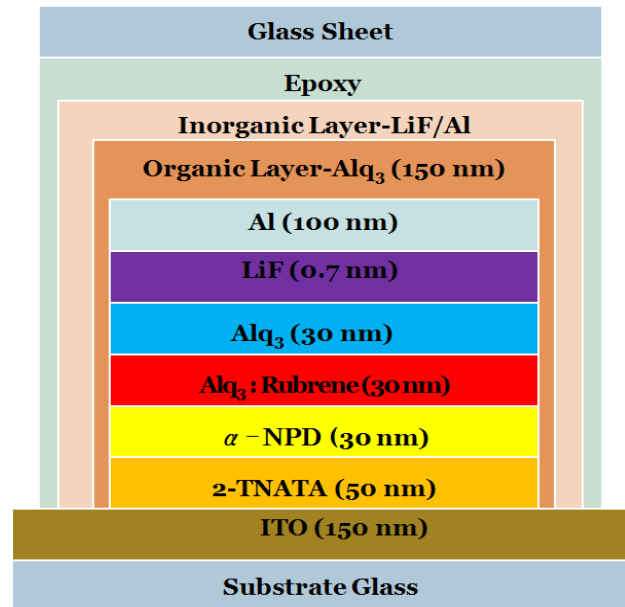


Fig. 1. Encapsulation structure of OLED with an organic-inorganic layer between OLED and glass sheet.

3. 결과 및 고찰

유리판을 봉지재로 적용하기 위하여 LiF/Al의 무기 보호막을 증착한 후 에폭시를 인쇄하여 부착하는 선행연구에서 UV 경화 시 에폭시에서 발생하는 방출 가스로부터 OLED 소자를 완벽하게 보호하지 못하여 구동전압이 상승하는 문제점이 있었다 [1]. 따라서 에폭시에서 발생하는 방출 가스로부터 소자를 보호하기 위하여 LiF/Al의 무기 보호막을 형성하기 전에 추가적으로 Alq₃를 적층하였다.

표 1은 ITO(150 nm) / 2-TNATA(50 nm) / α-NPD(30 nm) / Alq₃:Rubrene 1 vol.% (30 nm) / Alq₃(30 nm) / LiF(0.7 nm) / Al(100 nm)로 제작된 OLED#01 위에 유-무기 보호 박막을 형성하여 봉지한 OLED의 구조를 나타낸 것이다. OLED#41은 OLED#01 위에 Alq₃ 150 nm, LiF 150 nm, Al 300 nm를 증착한 OLED#01/Alq₃/LiF/Al_2 구조의 OLED이며, OLED#42는 OLED#01 위에 Alq₃ 150 nm, LiF 150 nm, Al 450 nm를 증착한 OLED#01/Alq₃/LiF/Al_3 구조의 OLED 이고, OLED#43은 OLED#01 위에 Alq₃ 150 nm, LiF 150 nm, Al 600 nm를 증착한 OLED#01/Alq₃/LiF/Al_4 구조의 OLED이다.

Table 1. OLEDs with encapsulation structure.

	Encapsulation Structure
OLED#01	ITO / 2-TNATA / α -NPD / Alq ₃ :Rubrene / Alq ₃ / LiF / Al
OLED#41	OLED#01/Alq ₃ /LiF/Al_2
OLED#42	OLED#01/Alq ₃ /LiF/Al_3
OLED#43	OLED#01/Alq ₃ /LiF/Al_4
OLED#51	OLED#41/epoxy/glass
OLED#52	OLED#42/epoxy/glass
OLED#53	OLED#43/epoxy/glass
OLED#73	OLED#43/edge sealed glass

OLED#51은 OLED#41 위에 에폭시를 이용하여 유리판을 부착한 OLED#41/epoxy/glass 구조를 가지고, OLED#52는 OLED#42 위에 에폭시를 이용하여 유리판을 부착한 OLED#42/epoxy/glass 구조를 가지며, OLED#53은 OLED#43 위에 에폭시를 이용하여 유리판을 부착한 OLED#43/epoxy/glass 구조를 가지도록 제작한 OLED 소자이다. OLED#73은 OLED#43 소자의 테두리 부분에만 Epoxy를 도포하여 유리판을 부착한 소자이다.

그림 2(a)는 Alq₃/LiF/Al을 보호막으로 적용한 OLED의 인가전압에 따른 전류밀도 특성을 보여주는 것이고, 그림 2(b)는 인가전압에 따른 발광휘도를 나타낸 것이다. 그림 2(a)의 인가전압에 따른 전류밀도는 급격히 증가하는 경향을 나타내었다. 발광휘도가 1,000 cd/m²일 때의 전류밀도 값을 살펴보면 기준소자인 OLED#01은 10.2 mA/cm²이고, OLED#41은 10.6 mA/cm², OLED#42는 10.5 mA/cm², OLED#43은 10.7 mA/cm²로 ± 5% 이내의 유사한 전류밀도 값을 나타내었다.

그림 2(b)의 인가전압에 따른 발광휘도 특성에서 OLED#01은 8.2 V, OLED#41은 7.8 V, OLED#42는 7.9 V, OLED#43은 7.7 V에서 1,000 cd/m²의 발광휘도 값을 나타내어 인가전압에 따른 발광휘도도 ± 5% 내에서의 유사한 특성을 나타내었다. 따라서 완충층으로 Alq₃를 증착한 후 LiF와 Al을 형성하는 과정에 의한 소자의 영향은 없는 것으로 확인되었다.

그림 3(a)는 Alq₃/LiF/Al으로 보호층을 형성하고 평판 유리위에 에폭시를 도포하여 부착한 OLED의 인가전압에 따른 전류밀도를 나타낸 것이고, 그림 3(b)는 인가전압에 따른 발광휘도를 나타낸 것이다.

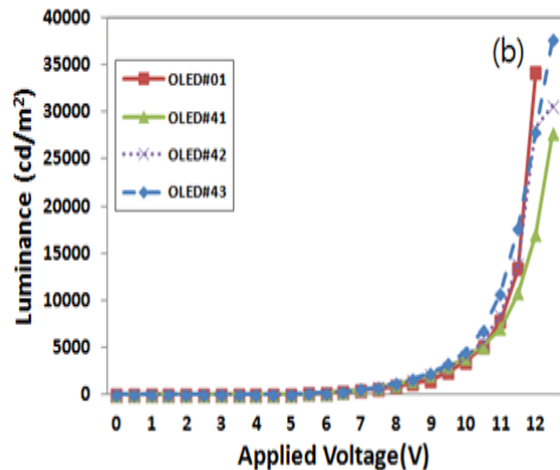
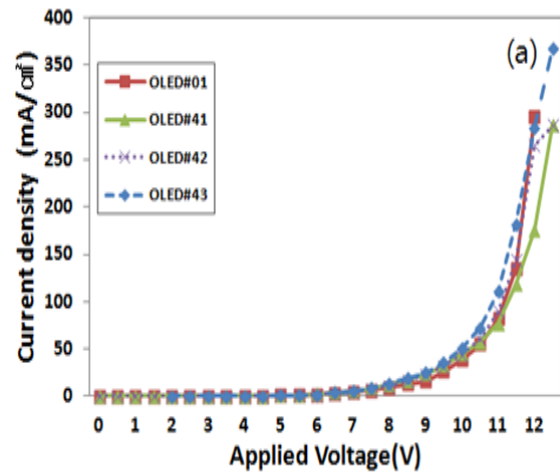


Fig. 2. Characteristics of OLEDs with Alq₃/LiF/Al buffer layers. (a) current density–applied voltage, (b) luminance–applied voltage.

그림 3(a)에서 1,000 cd/m²일 경우의 전류밀도는 OLED#51은 10.3 mA/cm², OLED#52는 10.8 mA/cm², OLED#53은 10.7 mA/cm²로 OLED#01 소자의 10.2 mA/cm²와 비교하여 그림 2(a)와 유사하게 ± 5% 이내의 편차를 보여 유리판 부착 과정에 의한 전류밀도의 변화는 없는 것을 알 수 있었다. 그림 3(b)의 인가전압에 따른 발광휘도는 그림 3(a)의 인가전압에 따른 전류밀도와 비슷한 경향을 보이며 인가전압의 증가에 따라 급격한 휘도의 증가를 나타내었다. 발광휘도 1,000 cd/m²에서의 인가전압은 OLED#51은 8.4 V,

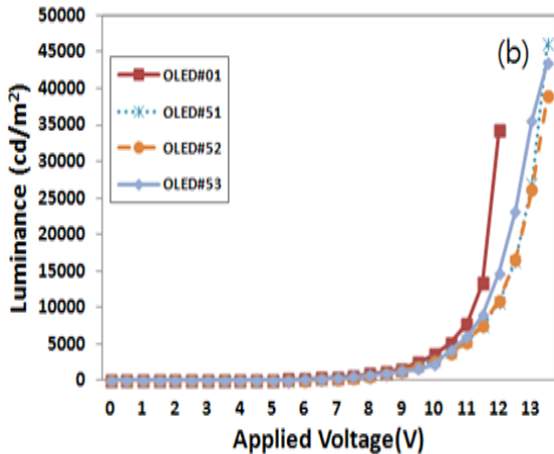
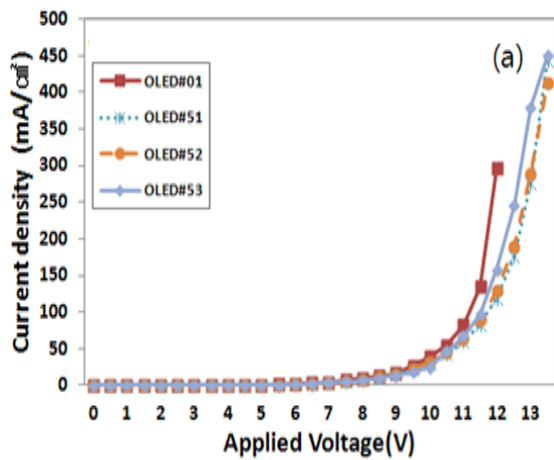


Fig. 3. Characteristics of OLEDs with glass sheet encapsulation on $\text{Alq}_3/\text{LiF}/\text{Al}$ buffer layers. (a) current density–applied voltage, (b) luminance– applied voltage.

OLED#52는 8.5 V를 보이며 OLED#53은 8.6 V로 OLED#01의 8.2 V와 비교하여 $\pm 5\%$ 이내의 변화임을 확인할 수 있었다. 따라서 OLED 소자위에 Alq_3 를 사용하여 완충층을 형성하고 LiF와 Al을 보호막으로 형성한 경우 에폭시를 사용하여 평판 유리를 부착하는 과정에서 에폭시에 의한 영향을 배제하고 평판 유리의 부착이 가능함을 확인할 수 있었다.

그림 4는 OLED 위에 가공하지 않은 평판 유리를 봉지재로 적용한 소자의 인가전압에 따른 전류발광효율을 나타낸 것으로 발광휘도가 $1,000 \text{ cd/m}^2$ 일 때의 전류 효율을 비교해 보면, OLED#51은 9.8 cd/A , OLED#52는 8.9 cd/A , OLED#53은 9.3 cd/A 로 OLED#01 소자의

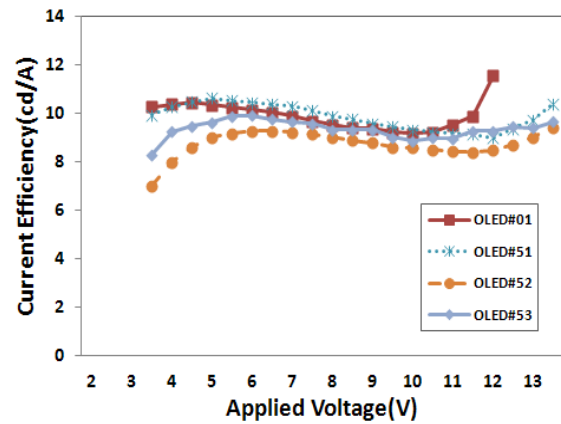


Fig. 4. Current efficiency–applied voltage characteristics of OLEDs with glass encapsulation on $\text{Alq}_3/\text{LiF}/\text{Al}$ buffer layers.

9.5 cd/A 와 비교하여 전류효율 특성 또한 $\pm 5\%$ 이내의 편차를 보이며 유사한 값을 나타내고 있음을 알 수 있었다.

그림 5는 보호막을 형성하지 않은 OLED#01과 $\text{Alq}_3/\text{LiF}/\text{Al}$ 의 보호막을 형성한 OLED#41~OLED#43, 보호막 위에 평판 유리를 부착한 OLED#51~OLED#53 및 OLED#43 소자의 테두리 부분만 에폭시를 도포하여 평판 유리를 부착한 OLED#73의 수명특성을 측정된 결과이다. OLED 소자의 수명은 소자의 초기 휘도를 100%로 한 상대적인 값으로 인식하고 시간에 따라 변화하는 휘도를 %로 측정하기 때문에 기준이 되는 초기휘도를 $1,000 \text{ cd/m}^2$ 로 설정한 후 항온 항습기를 사용하여 상대습도는 60%, 온도는 30°C 의 분위기에서 일정한 DC 전압을 공급하여 최초로 측정된 휘도가 50%가 되는 시간을 측정하였다. 보호막을 형성하지 않은 OLED#01 소자의 수명은 8.8시간이었으나 OLED#01/ $\text{Alq}_3/\text{LiF}/\text{Al}_2$ 구조의 OLED#41 소자 수명은 22.7시간, OLED#01/ $\text{Alq}_3/\text{LiF}/\text{Al}_3$ 구조의 OLED#42 소자 수명은 28.1시간 OLED#01/ $\text{Alq}_3/\text{LiF}/\text{Al}_4$ 구조의 OLED#43 소자 수명은 33.3시간을 나타내었다. 이 결과로부터 보호막의 형성에 의하여 소자의 수명은 급격히 증가하고, 또한 보호막으로 사용하는 Al의 두께가 300 nm로 부터 450 nm와 600 nm로 증가함에 따라 소자의 수명이 Al의 두께에 비례하여 3.2배로부터 3.8배까지 점차적으로 증가하고 있음을 알 수 있었다. 보호층 위에 가공하지 않은 평판 유리를 봉지재로 적용한 소자의 수명특성으로 OLED#41/epoxy/glass 구조

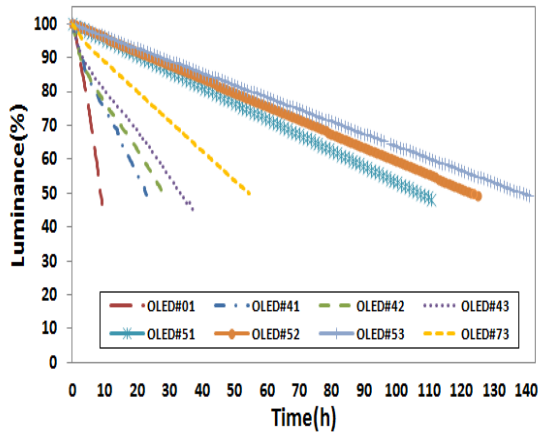


Fig. 5. Lifetime characteristics of OLEDs with glass encapsulation and edge sealing.

의 OLED#51 소자 수명은 92시간, OLED#42/epoxy/glass 구조의 OLED#52 소자 수명은 124시간, OLED#43/epoxy/glass 구조의 OLED#53 소자 수명은 139시간을 나타내었다. 평판 유리를 부착하지 않은 OLED#41~OLED#43 소자와 비교하여 4배 이상의 수명 증가로 평판유리의 부착에 의한 수명향상을 기대할 수 있었고, 평판유리를 부착하는 경우에도 OLED#41~OLED#43과 유사하게 평판 유리의 부착 전 보호막의 두께에 따라 소자의 수명이 점차적으로 증가하여 OLED#01 소자와 비교하여 10.5배에서 부터 15.8배까지 수명이 증가하는 현상을 나타내었다. 평판유리를 부착하는 방법에서도 보호막의 두께가 증가함에 따라 OLED 소자의 수명이 증가하는 경향으로부터 OLED 소자의 수명이 보호막의 특성에 크게 의존되는 것을 알 수 있었다. OLED#73은 OLED#43 소자의 테두리 부분에만 epoxy를 도포하여 부착한 것으로 소자의 수명은 54.5시간을 나타내었다. 테두리 부분에만 에폭시를 도포하여 평판 유리를 부착한 경우에는 평판 유리를 부착하지 않은 OLED#43 소자와 비교하여서는 약 1.6배 정도의 소자 수명이 증가하였으나 평판유리 전면 에 에폭시를 도포하여 부착한 OLED#53의 139시간과 비교하면 0.4배 정도로 수명이 짧은 것을 알 수 있었다. 이 결과로부터 평판 유리를 부착하는 방법에서 테두리만 에폭시로 도포하는 방법보다는 평판유리의 모든 면에 에폭시를 도포하여 부착하는 방법이 보다 우수한 특성을 가지고 있음을 알 수 있었다.

이상의 결과로부터 평판 유리를 부착하는 방법에

의한 OLED 소자의 봉지를 위하여 우수한 특성을 가지는 보호막의 형성이 필요하고, 유리판 전체를 부착하는 방법이 유리판의 테두리 부분만 부착하는 방법보다는 장수명을 확보할 수 있음을 알 수 있었다.

4. 결론

본 논문에서는 대면적 OLED에 적용 가능한 봉지 기술을 개발하기 위하여 가공하지 않은 유리를 이용하여 OLED의 봉지를 형성하였다. 기본소자로 Alq₃에 Rubrene를 1 vol.% 첨가한 적색 발광을 나타내는 ITO(150 nm) / 2-TNATA(50 nm) / α-NPD(30 nm) / Alq₃:Rubrene(30 nm) / Alq₃(30 nm) / LiF(0.7 nm) / Al(100 nm)의 구조를 적용하였다. 스크린 인쇄 방법을 이용하여 평판 유리 전면 에 에폭시를 인쇄하고 소자에 부착하여 외부의 수분과 산소의 침투를 차단하였다. 유리 부착에 의한 소자의 영향을 최소화하기 위하여 완충층으로 Alq₃를 150 nm 증착한 후 무기 보호막으로 150 nm의 LiF와 다층의 Al을 증착하여 소자의 발광특성을 유지하였다.

보호막을 형성하지 않은 OLED 소자의 수명은 8.8시간이었으나 Alq₃/LiF/Al 구조의 보호막을 형성한 OLED 소자의 수명은 22.7시간으로 부터 Al의 두께 증가에 따라 33.3시간까지 증가하였고, 보호층 위에 가공하지 않은 평판 유리를 봉지재로 적용한 소자의 수명은 92시간으로 부터 Al의 두께 증가에 따라 139시간까지 증가하여 보호막을 형성하지 않은 소자와 비교하여 15.8배까지 수명이 증가하였다. 또한 테두리만 에폭시로 도포하는 방법보다는 평판유리의 모든 면에 에폭시를 도포하여 부착하는 방법이 보다 우수한 특성을 가지고 있음을 알 수 있었다. 이상의 결과에서 평판 유리를 부착하는 방법에 의한 OLED 소자의 봉지를 위하여 우수한 특성을 가지는 보호막의 형성이 필요하고, 유리판 전체를 부착하는 방법이 유리판의 테두리 부분만 부착하는 방법보다는 장수명의 소자를 제작할 수 있었다.

감사의 글

이 논문은 2012학년도 대전대학교 학술연구비 지원에 의한 것임.

REFERENCES

- [1] M. K. Park, S. H. Ju, J. W. Yang, and K. K. Paek, *J. KIEEME*, **24**, 905 (2011).
- [2] B. G. Lim, J. H. Seo, K. K. Paek, and S. H. Ju, *J. KIEEME*, **24**, 486 (2011).
- [3] P. E. Burrows, V. Bulovic, S. R. Forrest, L. S. Sapochak, D. M. McCarty, and M. E. Thompson, *Appl. Phys. Lett.*, **65**, 2922 (1994).
- [4] M. Fujihira, L. M. Do, A. Koike, and E. M. Han, *Appl. Phys. Lett.*, **68**, 1787 (1996).
- [5] H. Kubota, S. Miyaguchi, S. Ishizuka, T. Wakimoto, J. Funaki, Y. Fukuda, T. Watanabe, H. Ochi, T. Sakamoto, T. Miyake, M. Tuschida, I. Ohshita, and T. Tohma, *J. Luminescence*, **87**, 56 (2000).
- [6] M. Vogt and R. Hauptman, *Surf. Coat. Technol.*, **74**, 676 (1995).
- [7] A. G. Erlat, B. M. Heny, J. J. Ingram, D. B. Moutain, A. McGuigan, R. P. Howson, C. R. M. Grovenor, G. A. D. Briggs, and Y. Tsukahara, *Thin Solid Films*, **388**, 78 (2001).