

롤투롤 공정을 통한 유기조명 및 디스플레이 생산기술 개발 현황

<https://doi.org/10.5757/vacmac.4.2.24>

정은, 김성진, 조성민

Production Technology Status of Organic Lighting & Display via Roll-to-Roll Process

Eun Jung, Sung-Jin Kim, Sung Min Cho

Organic light-emitting diodes (OLEDs) have already been commercialized for the mobile-phone display, TV, and lighting panels. Even though the OLED display for the mobile phones is now considered as the main stream display for the application, the OLED TV and lighting panels are having difficulty in their market due to their high prices despite the better performance to the competitors. In recent years, roll-to-roll production of the OLED has begun to be examined, and this method is opening a way to solve the high price problem. In this article, we introduce several important processes for roll-to-roll production of OLED and explain the development status to date.

1. 유기조명 및 디스플레이 개발동향 및 이슈

유기발광소자 (Organic Light-Emitting Diode; OLED)는 1900년대 중반에 고체유기소재로부터의 발광이 최초로 발견된 이후, 상업 기술적으로는 1987년 Kodak사에서 효율과 안정성이 개선된 녹색 OLED를 개발하면서 본격적으로 발전이 이루어져 왔다 [1]. 유기소재로는 저분자 뿐만이 아니라 고분자 물질도 OLED의 소재

로 활용이 될 수 있으나, 상업적으로는 현재 저분자 유기소재가 주로 사용되고 있다. 유기조명이나 디스플레이로 활용되는 OLED는 모두 저분자 유기소재를 사용하는 진공공정을 통해 생산되고 있으나 최근에 들어 생산비를 낮추기 위한 방안으로 용액공정을 활용하고자 하는 시도가 이루어지고 있다. 그러나 아직까지는 용액공정 및 소재의 기술적인 한계로 인해 유기조명이나 디스플레이의 대량 생산기술 개발은 진공공정에 초점이 맞추어져 있다.

유기디스플레이는 현재 휴대 전화기의 디스플레이로 활용되는 소형의 경우에는 기존의 액정디스플레이와의 경쟁에서 우위를 점하기 시작하는 단계로까지 발전하였으며 TV용 대형 디스플레이의 경우에도 점차 경쟁력을 확보해가고 있다. OLED가 주로 유기물로 만들어지기 때문에 유연성을 가질 수 있다는 장점을 활용하여 접거나 말 수 있는 foldable 혹은 rollable 디스플레이가 한창 개발 중에 있으며 수 년 내로 이러한 유기디스플레이가 차세대 디스플레이의 주류가 될 것으로 예상된다. 유기조명은 백색이나 혹은 여러 가지 색상의 대면적 OLED를 이용하여 현재의 형광등이나 LED 조명을 대체하기 위한 기술로 개발이 진행되고 있으며 유기디스플레이와 마찬가지로 OLED가 얇고 유연성을 가지는 장점을 활용하여 기존 조명과 경쟁을 시작하고 있다.

그러나 유기조명과 디스플레이가 기존의 조명 및 디스

〈저자 약력〉

- 정은 박사는 2017년 성균관대학교에서 OLED의 롤투롤 공정기술개발로 공학박사학위를 받았으며, 성균관대학교에서 박사후연구원으로 연구를 수행하고 있다. OLED 기술 관련 다수의 논문 및 특허가 있으며, 학회 논문상 등 다수의 수상경력이 있다. (silverlayo@skku.edu)
- 김성진 저자는 ㈜삼성디스플레이의 수석연구원으로서 OLED의 증착기 개발을 담당하고 있으며 현재 성균관대학교에서 박사논문 주제로서 OLED 디스플레이를 위한 롤투롤 백플레인 개발연구를 수행하고 있다. (sungjikim@skku.edu)
- 조성민 교수는 1992년 University of Florida에서 박사학위를 받았으며 1994년 이후 성균관대학교 화학공학부에서 교수로 재직 중이다. 다수의 국내 및 해외 기업과 OLED 관련 공동연구를 진행 중이며 특히 OLED 조명 및 디스플레이의 롤투롤 생산기술의 개발을 위해 노력하고 있다. (sungmcho@skku.edu)

플레이에 비해 가볍고 얇으며 유연성이 있다는 큰 장점이 있기는 하지만 동시에 반드시 해결해야만 하는 단점도 가지고 있는 것이 사실이다. 가장 시급하게 해결이 되어야 할 단점은 청색발광 소재의 낮은 효율과 OLED의 높은 생산가격 문제이다. OLED를 위한 장파장의 발광 소재의 경우에는 고효율 장수명의 인광소재가 개발되어 있으나 청색과 같은 단파장의 발광 소재의 경우에는 아직 기술개발 수준이 미진한 상황이다. 따라서 현재까지는 낮은 효율의 청색소재를 활용해야만 하기 때문에 유기조명과 디스플레이의 효율 및 수명을 높이는데 일부 제약이 존재하기는 하지만 여러 기업들에서 이 문제의 기술적인 해결을 위해 노력하고 있다. OLED의 높은 생산가격 문제는 생산량의 증가를 통해 생산 단가를 낮추는 방향으로 일부 해결이 이루어질 것으로 판단되지만, 디스플레이보다 특히 조명의 경우에는 낮은 가격의 기존 조명과 경쟁을 하기 위해서 가격 경쟁력의 확보가 시급하기 때문에 OLED 생산기술의 저가화를 위한 노력을 병행하는 것이 매우 중요하다.

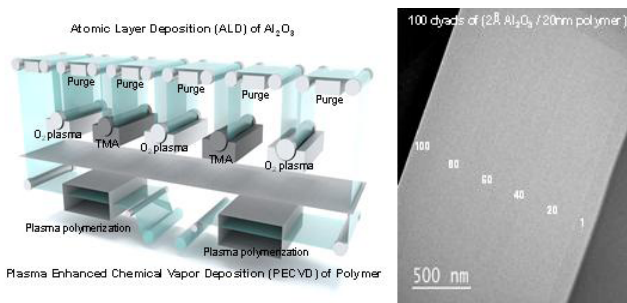
따라서 본 기고에서는 유연한 OLED의 장점을 활용하여 유기조명 및 디스플레이의 생산가격을 획기적으로 낮출 수 있는 방안의 하나로써 진공 혹은 용액 롤투롤 공정을 활용하는 유연한 OLED의 연속생산 기술에 관한 소개를 하고자 한다. 유연한 유기조명과 디스플레이의 롤투롤 생산을 위한 요소기술로서는 (1) 수분투과방지막 (배리어) 증착기술, (2) 투명전극 기술, (3) 박막트랜지스터 백플레인 (backplane) 형성기술, 및 (4) OLED 증착기술 등을 들 수 있다. 나열된 모든 요소기술은 롤투롤 공정이 가능해야만 OLED 조명 및 디스플레이의 롤투롤 연속생산이

가능하다. 현재까지는 각 요소기술 들이 개별적으로 여러 연구기관이나 기업 등에서 연구개발이 이루어지고 있으나 아직 통합적인 요소기술 들의 연결을 위한 노력은 미진한 상태이다. 그러나 대면적을 필요로 하는 OLED 응용기술의 경우에는 롤투롤 공정이 향후 반드시 필요한 기술이 될 것으로 판단되며 이를 위해 진공 및 플라즈마 기술이 핵심적인 기초기술이 될 것으로 기대된다.

2. 수분투과방지막 (배리어) 롤투롤 증착기술

OLED는 수분이나 산소에 취약하기 때문에 장수명의 확보를 위하여 배리어를 활용하여 외부의 수분과 산소를 차단하는 것이 필수적이다. PET와 같은 플라스틱 기판 표면에 배리어를 형성하기 위해서 일반적으로 활용되는 방법은 알루미늄산화물 (Al_2O_3)이나 혹은 실리콘질화물 (Si_3N_4) 등과 같은 무기물 박막과 유기고분자 박막을 여러 층으로 적층하는 방법이다. 무기물 박막은 플라즈마 화학 기상증착법이나 원자층성장법과 같은 진공증착법을 주로 활용하며 유기물박막은 플라즈마 기상증착법이나 혹은 용액인쇄법 등을 사용한다. 유무기 적층구조를 활용하는 이유는 무기층이 수분의 침투를 효과적으로 방지하고 유기층은 무기층이 휘어지더라도 균열이 생기지 않도록 무기층의 유연성을 보장하는 역할을 하도록 하기 위해서이다. 이와 동시에 여러 층의 유무기 적층구조의 경우에 무기층에 존재할 수 있는 균열(crack)을 통한 수분의 침투 경로가 매우 길어지기 때문에 수분침투로 인한 OLED의 성능저하를 최소화할 수 있기 때문에 더욱 유리하다.

이러한 유무기 다층 배리어를 롤투롤 공정으로 증착하기 위해서는 플라스틱 기판에 영향을 주지 않을 정도의 저온에서 무기층의 증착이 가능해야 하기 때문에 낮은 온도에서도 무기층의 성막이 가능한 플라즈마 기상증착법이나 원자층성장법이 유리하다. 이때 유기층의 증착도 무기층과 다층으로 연속하여 증착하여야 하기 때문에 무기층의 증착과 유사한 플라즈마 진공증착법을 활용하는 것이 유리하다. 수분투과방지특성을 높이기 위해서는 유무기 층의 개수를 높일수록 유리하며 유연성을 향상시키기 위해서는 무기층의 두께를 얇게 유지하는 것이 유리하다 [2-7]. 본 저자의 연구실에서는 그림 1에 보인 바와 같은 장치를 활용하여 무기층인 Al_2O_3 은 원자층성장법으로 그리고 유기층은 n-hexane이나 hexamethyldisiloxane



[Fig. 1] Schematic illustration (left) of the roll-to-roll deposition of multilayer organic-inorganic moisture barrier (right) film on PET substrate using atomic layer deposition (ALD) and plasma-enhanced chemical vapor deposition (PECVD) of Polymer.

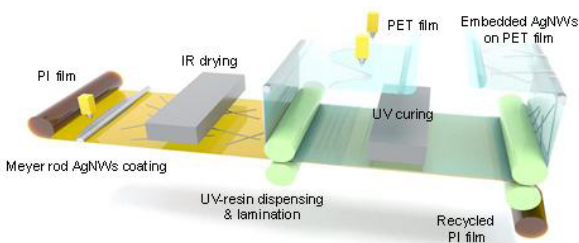
(HMDSO) 등과 같은 유기단분자 원료를 플라즈마 상에서 라디칼중합을 통해 얻음으로써 유기기 다층배리어를 롤투롤로 연속하여 진공증착하고 있다. 그림 1에 보인 바와 같이 Al₂O₃의 두께는 1 nm 이하로 가능한 한 얇게 유지함으로써 유연성을 극대화 할 수 있으며 층의 개수를 늘림으로써 수분투과방지특성을 향상시킬 수 있다.

3. 투명전극 롤투롤 형성기술

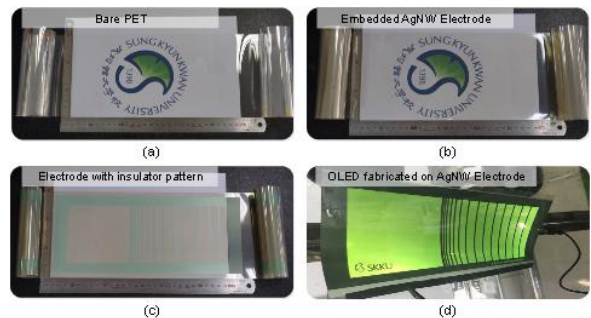
플라스틱 기판 표면에 투명전극을 형성하기 위해서는 유리 기판 상에 사용하는 일반적인 투명전극처럼 ITO (Indium Tin Oxide)를 사용하거나 혹은 그래핀 (graphene), 투명전도성고분자, 금속그리드, 은나노와이어 (silver nanowire, AgNW) 등의 소재를 사용할 수 있다. ITO 투명전극은 전극특성 및 안정성은 이미 확보되어 있으나 유연성이 낮기 때문에 매우 유연한 OLED의 전극으로서의 활용이 불가능하다. 그래핀은 최근에 많은 연구가 이루어지고 있지만 상업적인 용도의 전극소재로는 아직 활용이 어려운 상황이며 투명전도성고분자는 그 자체로는 전기저항이 높아서 금속그리드와 동시에 사용해야 한다는 단점이 있다. 반면에 은나노와이어는 소재 측면에서 상업적으로 큰 발전을 이루고 있으며 터치 스크린, 유연 태양전지, 유연 OLED 용 투명전극으로의 개발이 기업을 중심으로 활발히 진행되고 있다. 은나노와이어를 광소자용 투명전극으로 활용하기 위해서는 전극의 표면거칠기를 수 나노미터 이하로 낮추어야 하며 대면적 활용을 위해서는 투명도는 85% 이상, 저항은 5 ohm/square 이하로 낮추어야 한다. 전 세계적으로 여러 연구자들에 의해 많은 개발연구가 진행되고 있으며 가장 보편적인 방법으로 은나노와이어를 투명한 고분자에 매립하여 표면 일부만 노출되도록 함으로써 표면이 전도성을 가지면서도

거칠기를 낮추는 방향으로 개발이 진행되고 있다. 그 한 가지 예로서 본 저자의 연구실에서는 그림 2에 보인 바와 같은 방법으로 은나노와이어 투명전극을 플라스틱 기판 상에 형성하고 있다 [8]. 먼저 은나노와이어를 폴리이미드 롤필름 기판에 Meyer rod를 사용하여 코팅을 하고 건조시킨 후에 이 필름과 UV 경화 레진이 코팅된 PET 필름을 접합함과 동시에 UV 경화를 수행하고 바로 두 필름을 박리를 하면 표면에너지의 차이에 의해 은나노와이어가 레진에 매립된 투명전극 층은 폴리이미드 필름에서 PET 필름으로 이송되게 된다. 이 모든 공정은 롤투롤 공정으로 연속적으로 이루어지며 후속 공정을 위해 은나노와이어 투명전극의 표면을 보호해야만 할 경우에는 박리과정이 후속공정 바로 전에 진행되도록 할 수 있기 때문에 유리하다.

일반적으로 은나노와이어 투명전극에 관련한 여러 논문에서 보고되고 있는 기술수준은 플라스틱 기판 상에서 투명도 85%, 저항 5 ohm/square 수준으로 유리 기판 상의 ITO 투명전극 수준 이상을 이미 달성하고 있다. 이러한 은나노와이어 투명전극은 터치스크린 용 투명전극으로 당장 활용이 가능한 수준으로 개발이 되어 있으며 향후 대면적, 저저항의 유연성 투명전극을 필요로 하는 응용을 위해서는 가장 유망한 기술이 될 것으로 예상된다. 그림 3b에 보인 바와 같이 앞서 설명한 롤투롤 공정으로 형성한 은나노와이어 투명전극의 투명도는 PET 기판과 비교하여 큰 차이가 없으며 대면적 저항 균일도도 95% 이상으로 매우 높은 편이다. 이러한 투명전극 상에 절연체 패턴을 인쇄하고 OLED를 증착하면 그림 3d에 보인 바와 같은 대면적 OLED의 롤투롤 제작이 가능하다.



[Fig. 2] Schematic illustration of the roll-to-roll fabrication process for the embedded AgNW transparent electrode on PET film.

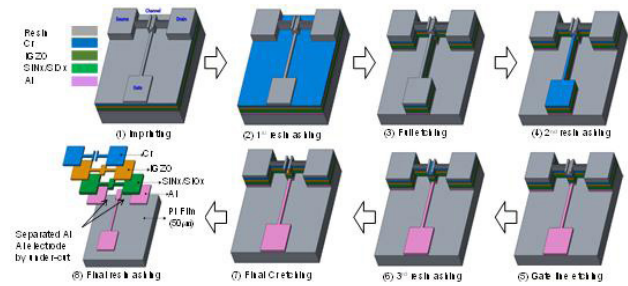


[Fig. 3] Photographic images: (a) bare PET, (b) embedded AgNW on PET, (c) insulator-patterned AgNW on PET, and (d) OLED on the embedded AgNW/PET.

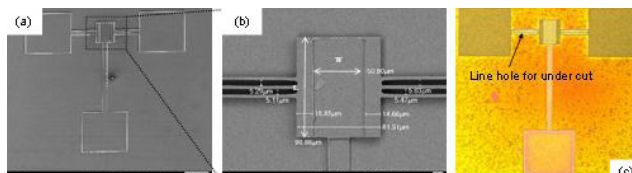
4. 박막트랜지스터 백플레인 (backplane) 롤투를 형성 기술

OLED 디스플레이를 구동하기 위해서는 박막트랜지스터 (thin film transistor, TFT) 백플레인을 원하는 디스플레이의 해상도로 구현해야한다. 이때 유연성이 있는 기판 상에 롤투를 공정을 사용하여 백플레인 공정을 진행하기 위해서 반드시 고려해야할 사항은 첫 째 플라스틱 기판을 사용하기 때문에 저온에서 공정이 가능하고 우수한 전하이동 특성을 가지는 반도체 소재를 활용해야 하며, 둘 째 디스플레이의 높은 해상도를 구현하기 위해서 박막트랜지스터 채널 형성 시 높은 정렬도 (alignment)의 확보가 가능한 기술이 필요하다. 현재 기술수준으로는 저온공정으로 높은 전하이동도는 얻기는 어려운 상황이지만 가장 가능성이 높은 소재는 IGZO (Indium Gallium Zinc Oxide)와 같은 금속산화물 반도체라고 할 수 있다. 기존의 유리 기판을 사용하는 박막트랜지스터 제조공정은 고온 공정이 가능하기 때문에 폴리실리콘과 같은 높은 전하이동도를 가지는 반도체를 사용할 수 있으며, 포토리소그래피 공정을 통해 높은 정렬도를 얻을 수 있기 때문에 고해상도의 백플레인 제작이 가능하였다. 그러나 플라스틱 기판을 사용하여 롤투를 공정으로 동일 공정을 수행하기 위해서는 고온 공정이 불가능하며, 여러 번의 포토리소그래피, 증착, 그리고 식각 공정을 반복해야 하기 때문에 고해상도 패턴을 정확히 정렬하기 어려우며 매번 기판 롤을 풀었다 감았다를 반복해야 하는 어려움이 있다.

이러한 롤투를 백플레인 공정의 어려움을 극복하기 위해 2009년부터 Hewlett Packard 연구소에서 SAIL (Self-Aligned Imprint Lithography) 공정이 연구된



[Fig. 4] Thin film transistor manufacturing process using imprint lithography



[Fig. 5] SEM images of master template with W/L=100/50 μm on the wafer (a) $\times 140$, (b) $\times 550$, and (c) thin film transistor fabricated by dry etching.

바 있다 [9,10]. SAIL 공정은 정밀을 요하는 패턴이 이미 self-aligned 되어 있기 때문에 후속공정에서 정렬의 문제가 전혀 없으며 모든 공정이 연속적으로 진행되기 때문에 기판 롤을 풀거나 감을 필요가 없다는 장점이 있기 때문에 롤투를 공정에 가장 적합하다. 그림 4에 보인 바와 같이 먼저 트랜지스터에 필요한 전극, 유전체, 그리고 반도체 박막 등을 플라스틱 기판 상에 순차적으로 전면 증착한 후 그 상부에 여러 개의 패턴이 겹쳐진 3차원 고분자 마스크를 imprint mold를 통해 얻는다. 이후에 3차원 마스크를 플라즈마 ashing을 사용하여 서서히 제거하게 되면 여러 가지 다른 패턴의 마스크를 순서대로 구현해 낼 수 있다. 열린 마스크 패턴을 통해 하부의 노출된 물질을 건식 식각 혹은 습식 식각을 사용하여 선택적으로 제거하면서 최종적으로 박막트랜지스터를 롤투를 공정으로 완성할 수 있다.

아래 그림 5a는 단일 트랜지스터 구현을 위해 imprint된 3차원 마스크 패턴이며 그림 5b는 트랜지스터 채널부의 확대 사진이다. 3차원 마스크는 3층으로 구성되어 세 가지의 패턴이 쌓여 있으며 각각의 패턴은 3차원 마스크를 일정 두께 만큼 ashing 함으로써 노출 시킬 수 있다. 트랜지스터 소재인 금속, 반도체, 및 유전체 박막은 Cl_2 , CF_4 , BCl_3 등의 식각 기체를 사용하여 플라즈마를 이용한 반응성이온식각 공정을 통해 선택적으로 제거할 수 있으며 최종적으로 구현된 트랜지스터의 형상을 그림 5c에 나타내었다.

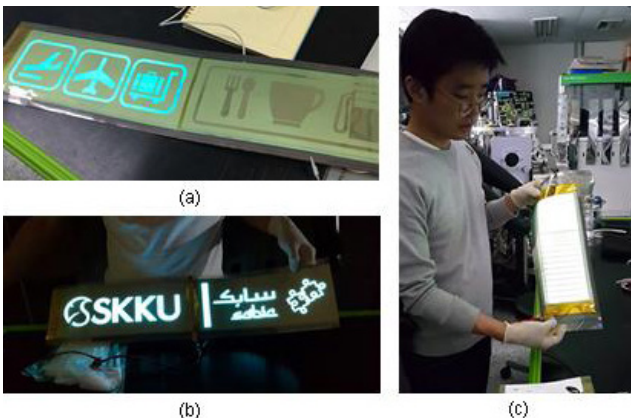
5. OLED 롤투를 진공 증착 기술

배리어, 투명전극, 그리고 백플레인 등이 플라스틱 기판 롤 상에 구비되면 최종적으로 상부에 OLED를 증착하여 유기조명이나 디스플레이를 구현할 수 있다. OLED의 롤투를 진공 증착은 독일의 Fraunhofer 연구소, 일본



[Fig. 6] Photograph of a roll-to-roll OLED deposition equipment.

의 Konica Minolta 사 및 CEREBa 연구소 등에서 연구 개발이 진행되고 있다. OLED 롤투롤 진공증착의 장점은 유연성이 있는 유기조명이나 디스플레이를 저가 및 높은 생산성으로 구현할 수 있다는 점이다. 기존의 유리 기반의 디스플레이 생산 시설은 생산성 확보를 위해 점차 세대가 증가하여 현재는 10세대를 넘어서면서 공정설비의 규모도 매우 크기 때문에 설비 투자비용도 비약적으로 증가하고 있다. 롤투롤 진공증착의 경우에는 플라스틱 기판 롤 폭만 넓히는 것으로 대형 디스플레이의 생산이 가능하기 때문에 고 생산성을 확보하기 유리하다. 그림 6의 사진은 본 저자의 연구실에 설치되어 있는 롤투롤 OLED 진공증착기이며 폭 150 mm의 PET 기판을 사용하고 있다. 진공증착이 완료된 OLED 패널은 glove box로 이동되어 여기에서 배리어 필름을 먼접합함으로써 봉지가 완료된 OLED 패널의 연속생산이 가능하다.



[Fig. 7] Photographs of (a) blue-emitting OLED signage, (b) white-emitting signage, and (c) white OLED on PET.

6. 맺음말

본 기고에서는 롤투롤 공정을 통해 유기조명 및 디스플레이를 구현하기 위한 방안과 기술개발 현황을 소개하였다. 전 세계적으로 배리어, 투명전극, 그리고 박막트랜지스터 백플레인 기술이 여러 기업 및 연구소에서 경쟁적으로 개발되고 있다. 특히 이러한 요소기술 들을 롤투롤 공정으로 적용하기 위한 노력은 최근에 들어 각광을 받고 있다. 기술한 바와 같이 배리어, 투명전극 및 절연패턴 등이 구비된 플라스틱 기판 롤 상에 롤투롤 공정으로 OLED를 전면 진공증착하면 그림 7에 보인 바와 같은 여러 색상의 OLED signage, 조명 등을 쉽게 생산할 수 있다. 아직까지는 모든 기술이 확보되어 있지는 않지만 롤투롤 공정을 활용하여 박막트랜지스터 백플레인의 제작이 가능해지면 고해상도의 유연성 OLED 디스플레이도 높은 생산성으로 생산이 가능해 질 수 있기 때문에 OLED를 위한 롤투롤 생산 공정연구는 향후 매우 중요한 기술이 될 것으로 예상된다.

References

- [1] C. W. Tang and S. A. Van Slyke, *Appl. Phys. Lett.* **51**, 913 (1987).
- [2] S.-W. Seo, E. Jung, H. Chae, and S. M. Cho, *Org. Electron.* **13**, 2436 (2012).
- [3] S.-W. Seo, H. Chae, S. J. Seo, H. K. Chung, and S. M. Cho, *Appl. Phys. Lett.* **102**, 161908 (2013).
- [4] S.-W. Seo, E. Jung, S. J. Seo, H. Chae, H. K. Chung, and S. M. Cho, *J. Appl. Phys.* **114**, 143505 (2013).
- [5] S.-W. Seo, E. Jung, H. Chae, S. J. Seo, H. K. Chung, and S. M. Cho, *Thin Solid Films* **550**, 742 (2014).
- [6] S. H. Lim, S.-W. Seo, H. Lee, H. Chae, and S. M. Cho, *Korean J. Chem. Eng.* **33**(6), 1971 (2016).
- [7] S. H. Lim, S.-W. Seo, E. Jung, H. Chae, and S. M. Cho, *Korean J. Chem. Eng.* **33**(3), 1070 (2016).
- [8] E. Jung, C. Kim, M. Kim, H. Chae, J. H. Cho, and S. M. Cho, *Org. Electron.* **41**, 190 (2017).
- [9] H.-J. Kim, M. Almanza-Workman, B. Garcia, O. Kwon, F. Jeffrey, S. Braymen, J. Hauschildt, K. Junge, D. Larson, D. Stieler, A. Chaiken, B. Cobene, R. Elder, W. Jackson, M. Jam, A. Jeans, H. Luo, P. Mei, C. Perlov, and C. Taussig, *J. Soc. Inf. Disp.* **17**, 963 (2009).
- [10] A. Jeans, M. Almanza-Workman, R. Cobene, R. Elder, R. Garcia, R. F. Gomez-Pancorbo, W. Jackson, M. Jam, H.-J. Kim, O. Kwon, H. Luo, J. Maltabes, P. Mei, C. Perlov, M. Smith, and C. Taussig, *Proc. SPIE* 7637, 763719 (2010).