

# 유기발광다이오드의 외부 광추출층을 위한 롤투롤 마이크로컨택 방식으로 인쇄된 마이크로렌즈 어레이 Roll-to-roll microcontact-printed microlens array for light extraction film of organic light-emitting diodes

화수빈\*, 성백상\*, 이재현\*, 이종희\*, 김민회\*

Subin Hwa\*, Baeksang Sung\*, Jae-Hyun Lee\*, Jonghee Lee\*, Min-Hoi Kim\*

## Abstract

We demonstrated roll-to-roll microcontact printed (mCP) microlens array (MLA) to enhance the light extraction of organic light emitting diodes (OLEDs). The commercially provided microlens array is used as a template for polydimethylsiloxane (PDMS) roll stamp. The fluorinated film is formed on the PDMS roll stamp from fluorinated ink with low boiling point and printed onto the bottom side of the organic light emitting diode without high pressure and high thermal treatment. With optimized concentration of ink, the pattern which is almost identical to that of the template MLA was successfully printed. Due to the structure and low optical absorbance of microcontact printed MLA, the external quantum efficiency of OLED was improved by about 18%.

## 요약

본 연구에서는 유기 발광 다이오드(OLED)의 광추출 향상을 위한 롤투롤 마이크로컨택(mCP)방식으로 인쇄된 마이크로렌즈 어레이(MLA)를 제시하였다. 상업적으로 사용되는 마이크로렌즈 어레이를 템플레이트로 사용하여 polydimethylpolysiloxane(PDMS)를 롤스탬프로 제작하였다. 낮은 끓는 점을 가지는 불소화 잉크로부터 PDMS 롤스탬프에 고분자 박막을 형성하고 이를 OLED의 하부면에 고압·고온 처리 없이 인쇄하였다. 최적화된 농도를 찾아서 템플레이트로 사용된 MLA와 거의 동일한 모양의 패턴을 성공적으로 인쇄하였다. 마이크로컨택 방식으로 인쇄된 MLA의 구조와 소재의 낮은 흡수도로 인해서 OLED의 외부양자효율이 18% 향상되었다.

*Key words : Microlens array, light extraction, roll-to-roll, Microcontact printing, Organic Light-emitting diodes*

---

\* Dept. of Creative Convergence Engineering, Hanbat National University

★ Corresponding authors

E-mail : mhkim8@hanbat.ac.kr,

jonghee.lee@hanbat.ac.kr, Tel : +82-42-821-1973

※ Acknowledgment

This paper was supported by the Basic Science Research program through the National Research Foundation of Korea (NRF) funded by the Ministry of Education (2018R1A6A1A03026005) and by Korea Institute for Advancement of Technology (KIAT) grant funded by the Korea Government (MOTIE) (P0012744, HRD program for industrial innovation).

Manuscript received May. 12, 2022; revised May. 30, 2022; accepted Jun. 7, 2022.

This is an Open-Access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution Non-Commercial License(<http://creativecommons.org/licenses/by-nc/3.0>) which permits unrestricted non-commercial use, distribution, and reproduction in any medium, provided the original work is properly cited.

## I. 서론

OLED는 우수한 색 재현 성능, 빠른 반응속도, 저전력 구동과 같은 다양한 장점을 가져서 디스플레이와 조명 분야에 적용되고 있다[1]. OLED는 단일향과 삼중향 여 기자가 모두 발광에 참여할 수 있는 인광 재료를 사용하여 내부 양자 효율을 100 %에 가깝게 구현할 수 있다. 하지만 OLED에서 발광된 빛은 외부로 나오지 못하고 내부에서 소멸되는 비율이 높아서 외부양자효율은 약 20~25% 정도밖에 되지 않는다[2]. 이는 배면 발광 OLED에서 빛이 외부로 나갈 때 ITO, 유리기판을 순서대로 지나서 외부 공기로 나가는데 각각의 굴절률이 ITO는 1.8, 유리 기판은 1.45, 공기는 1이다[3]. 따라서 ITO와 유리 기판 사이, 유리 기판과 공기 사이에 큰 굴절률 차이가 발생하고 이로 인하여 전반사가 발생해서 빛이 외부로 빠져나가지 못하고 소자 내에 갇히게 되어 외부양자효율이 낮아지게 된다[4]. 이를 해결하기 위해서 OLED 소자에 갇힌 빛을 외부로 추출하는 다양한 광추출기술이 개발되어왔고, 크게 내부 광추출 기술과 외부 광추출 기술로 구분된다. 내부 광추출 기술은 OLED 내부에 광추출층을 삽입한 것으로 효율을 2~3배까지 향상시킬 수 있지만 내부 광추출층의 표면이 굴곡지고 거칠게 되면서 OLED의 전기적 안정성을 떨어뜨려 수명을 단축시키며 대량 생산 적용 또한 어렵다는 단점이 있다[5-6]. 이와 대조적으로 외부 광추출 기술은 OLED 외부에 광추출층을 부착하는 것으로 OLED의 내부 성능 자체에는 영향을 주지 않고 광효율을 향상시킬 수 있다. 외부 광추출 기술로는 외부에 광추출층을 부착하지 않고 기판을 불규칙한 나노 요철 구조로 제작하여 광효율을 향상시키는 방법이 있다[7]. 다른 방법으로 micro-lens array(MLA)를 OLED 외부에 부착하는 방법이 있는데 구조적으로 빛의 입사각을 임계각 이하로 줄여서 광추출을 증가시켜서 전반사로 인해 갇히는 빛의 양을 줄여주는 효과를 통해서 외부양자효율을 효과적으로 향상시킨다[8]. 기존 MLA 제작 방식으로는 진공에서 마스크를 통해 기판을 금속 산화물에 노출시키는 방법인 Ion diffusion, photoresist의 표면장력으로 만들어진 작은 렌즈 모양의 photoresist reflow 방법 등이 존재한다. 이렇게 만들어진 MLA는 'dips'가 생기거나 편차가 존재하는 문제가 발생하기도 한다[9]. 이와 같은 외부 광추출 기술은 상대적으로 복잡하고 비싼 공정인 plasma etching[10], photolithography[11], 진공 증착[12]을 사용하고 OLED 위에 바로 제작하는 것이 어려워져 추가적인 부착 공정이 필요하다는 단점이

존재한다.

본 연구에서는 롤투롤 마이크로컨택 방식으로 마이크로렌즈 어레이를 인쇄하여 OLED의 성능을 향상시켰다. 플라스틱으로 제작된 마이크로렌즈 어레이를 템플레이트로 이용하여서 polydimethylsiloxane(PDMS) 롤스탬프를 제작하였다. 이를 사용하여 마이크로컨택 방식으로 OLED의 유리 기판에 광추출 필름을 고온·고압 처리 없이 인쇄하였다[13]. 이러한 방식으로 인쇄된 외부 광추출 필름은 OLED 자체의 내부 성능에 영향을 주지 않고 단순하고 빠르게 공정이 진행되고 다양한 형태의 템플레이트에도 적용가능한 장점이 있다. 제작된 광추출 필름은 템플레이트의 패턴과 유사하게 인쇄되어 OLED의 외부양자효율을 약 18 % 향상시켰다.

## II. 본론

### 1. PDMS 몰드 및 R2R $\mu$ CP을 이용한 광효율 향상 필름 제작

PDMS 몰드 제작을 위해 Silicone elastomer base (SYLGARD™ 184 Silicone Elastomer Base, (주)다우하이텍)와 Silicon elastomer curing agent(SYLGARD™ 184 Silicone Elastomer curing agent, (주)다우하이텍)

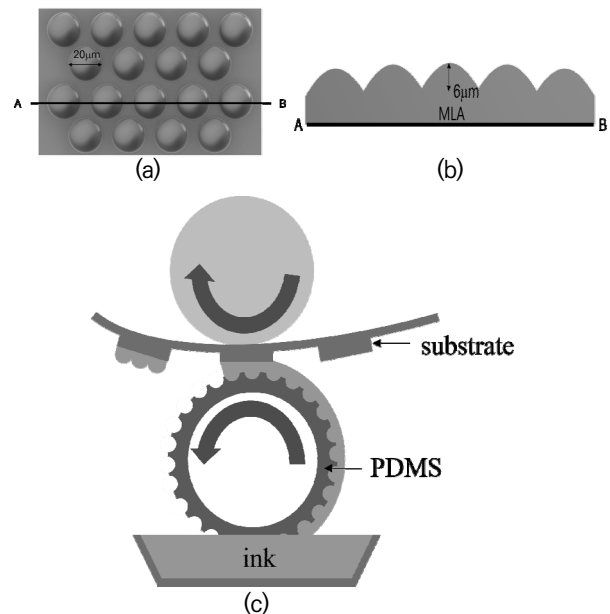


Fig. 1. (a) Optical microscopic image of commercially provided MLA film, (b) crosssectional schematic view between AB, and (c) schematic of roll-to-roll microcontact printing process.

그림 1. (a) 상업적으로 사용되는 MLA필름의 광학현미경 이미지와 (b) AB축을 따라가는 단면도의 도해, (c) 롤투롤 마이크로컨택 인쇄 공정의 도해

를 10:1의 비율로 섞고 기포를 제거한다. 템플레이트로 사용된 MLA는 그림 1 (a)-(b) 와 같이 지름이 20  $\mu\text{m}$ 이고 높이가 6  $\mu\text{m}$ 인 반구와 유사한 형태의 패턴이 반복된다. 제작된 MLA에 PDMS를 도포한 후 10시간 이상 70°C에서 가열하여 굳힌다. 이를 통해 얻은 PDMS를 롤스탬프로 사용하고 굴절률이 1.39인 불소화 고분자 용액 (KEM-1700, 케미스)을 잉크로 사용하여 그림 1 (c)와 같이 Micro-contact Printing( $\mu\text{CP}$ ) 방식으로 광효율 향상 필름을 기판 하부에 인쇄하였다.  $\mu\text{CP}$  방식은 롤스탬프에 낮은 비등점을 갖는 잉크 용매를 사용하여, 잉크가 빠르게 롤스탬프 위에서 고체화되어 고분자 필름이 형성된다[14]. 이 방식은 롤스탬프와 그 위에 잉크로부터 형성된 고분자 박막 사이의 약한 접착력으로 인해서 고분자 박막이 기판으로 용이하게 전사되고 광학적, 화학적으로도 안정한 공정 방법으로 마이크로미터 단위의 패턴을 인쇄할 수 있다.

## 2. OLED 소자 제작

150 nm 두께의 ITO가 패턴 된 유리 기판을 acetone 을 이용하여 초음파 세척을 진행하였고, isopropyl alcohol 내에서 20분간 세척을 진행하고 건조시켰다. 그 후 진공 열증착기를 사용하여 기판에 Al(100 nm)/1,3-bis[3,5-di(pyridin-3-yl)phenyl]benzene(50 nm)/2,6-bis(3-(carbazol-9-yl)phenyl)pyridine (26DCzPPy)(30 nm)/ 1,1-Bis(di-4-tolylamino)phenyl cyclohexane(60 nm)/ITO(150 nm)로 증착하였다.  $10^{-7}$  torr의 고진공 상태에서 1 Å/s의 속도로 각 유기물 반도체가 증착되고, 금속 전극은 2 Å/s의 속도로 증착되었다. 제작된 OLED는 질소대기에서 UV 레진을 이용하여 봉지 되어 공기와의 접촉을 차단하였다. 전류밀도-전압 특성과 전계발광 특성은 각각 Keithley 2400와 PR 650 (SpectraScan)을 사용하여 측정하였다.

## 3. 잉크 농도에 따른 MLA 필름 전사 공정 최적화

광추출 필름 전사에 사용되는 잉크의 흡광도가 높다면 빛이 외부로 방출되지 못하고 잉크에 흡수되어 광추출 효율이 낮아질 수 있다. 따라서 고분자 불소화 잉크(12 wt%)로 제작된 4.5  $\mu\text{m}$ 의 패턴이 없는 평평한 필름의 가시광선영역 흡광도를 그림 2 (a)와 같이 측정하였다. 12 wt% KEM-1700으로 제작된 박막은  $22.5 \text{ cm}^{-1}$ 의 흡수계수를 가지며 가시광선 전 영역에서 0.015 미만의 낮은 흡광도를 가져서 광추출필름으로 적합함을 확인하였다. MLA구조를 가진 광효율 향상 필름의 전광선 투과

율 (Tt), 평행 투과율 (Tp), 확산 투과율 (Td)을 UV-Vis spectrophotometer(PerkinElmer)로 그림 2 (b)와 같이 측정해본 결과 빛이 필름을 투과한 총량(Tt)이 가시광선 영역에서 약 90 %의 높은 값을 가지고, Td는 60 % 정도로 MLA를 적용했을 때의 일반적인 수준으로 측정되었다.

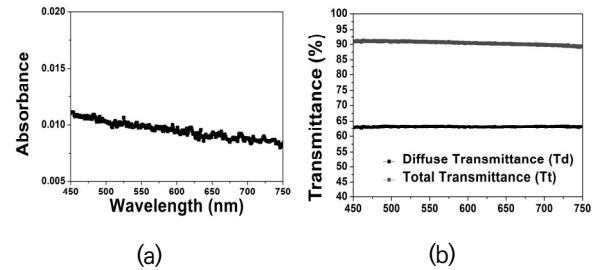


Fig. 2. (a) Absorbance of 4.5 mm thickness ink, (b) Total transmittance, Diffuse transmittance of mCP MLA film.

그림 2. (a) 4.5  $\mu\text{m}$  두께 잉크로 제작한 평면 필름의 흡광도, (b) MLA구조를 가진 광효율 향상 필름의 총 투과율, 확산 투과율

필름을 인쇄에 적합한 잉크의 농도를 찾기 위해서 다양한 농도 조건에서 최적화 실험을 진행하였다. 유리 기판에 mCP 방식으로 2 wt%, 4 wt%, 6 wt%, 12 wt% 농도의 고분자 불소화 잉크를 사용하여 인쇄하였다. 그림 3 (a)-(d)는 mCP를 통해서 인쇄된 패턴의 광학 현미경 사진으로, 2 wt%의 경우에는 그림 3 (a)에서 보이는 것과 같이 패턴이 희미하게 전사되었다. 이에 비해서 농도가 높을수록 그림 3 (b)-(d)에서 보이는 것처럼 패턴이 점점 더 명확하게 인쇄됨을 확인할 수 있다. 이는 잉크의 농도가 낮을 때 인쇄된 불소화 고분자 필름의 두께가 얇아서 그림 3 (e)와 같이 롤스탬프의 오목한 부분을 충분히 채우지 못하기 때문이다. 따라서 인쇄시 PDMS의 오목한 부분이 기판에 닿지 못하게 되고 이로 인하여 반구 형태로 광추출 필름이 인쇄되지 않는다. 반면에 농도가 높은 잉크를 사용할 경우, 그림 3 (f)와 같이 롤스탬프의 오목한 부분을 잉크가 충분히 채울 수 있다. 그러므로 인쇄시 PDMS의 오목한 부분에 채워진 잉크와 기판이 맞닿게 되고 스탬프와 잉크의 약한 접착력으로 인하여 기판에 반구형태의 광추출필름이 인쇄된다. 따라서 고농도의 고분자 불소화 잉크를 사용한 경우에 MLA 형태와 가장 가까운 필름을 형성하여서 OLED 소자에 적용해서 광추출 효율이 향상될 것으로 예상된다.

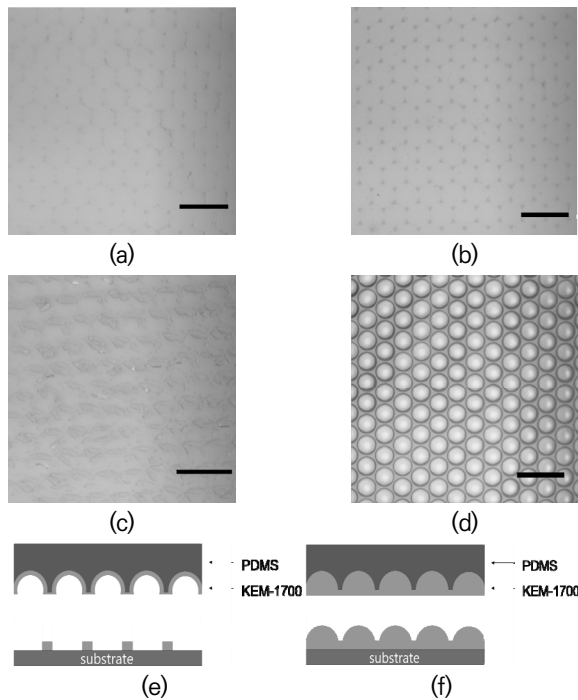


Fig. 3. Optical microscopic images of printed patterns corresponding to concentration of (a) 2 wt%, (b) 4 wt%, (c) 6 wt%, and (d) 12wt%. Schematics of film formation on stamp and transferred pattern with (e) low and (f) high concentration. The scale bar is 50  $\mu$ m.

그림 3. 잉크 농도에 따른 인쇄된 패턴의 광학 현미경 사진 (a) 2 wt%, (b) 4 wt%, (c) 6 wt%, (d) 12 wt%. (e) 저농도와 (f) 고농도 잉크 사용시 박막형성과 패턴 전사에 관한 도해. 스케일바는 50  $\mu$ m를 나타낸다.

4. 광효율 향상 필름 적용 OLED 소자의 성능 분석

광효율 향상 필름 적용으로 인한 광추출 성능 향상을 확인하기 위하여 제작한 필름을 부착한 OLED소자와 부착하지 않은 OLED소자의 Current density-Voltage (J-V), Voltage-Luminance (V-L)을 측정하였다. 제작된 OLED의 구조는 그림 4 (a)와 같다. 그림 4 (b)의 J-V 측정 결과로부터 각 소자들의 전류밀도가 거의 일치하는 것을 알 수 있다. 즉 광추출 필름의 부착으로 인한 소자의 성능 저하는 없음이 확인되었다. 이에 비해 그림 4 (c) V-L 측정 결과의 경우 9.5 V에서 필름을 부착하지 않은 소자의 휘도는 515.4  $\text{cd}/\text{m}^2$ 이고, 필름을 부착한 소자의 휘도는 663.6  $\text{cd}/\text{m}^2$ 로 차이가 발생하였다. 이는 필름을 부착한 소자의 휘도 상승이 소자의 전기적 성능의 향상으로 인한 차이가 아닌 인쇄된 광추출 필름으로 인한 광학적 특성의 향상에 의한 것이라고 할 수 있다. 그림 4 (d)의 외부양자효율 측정 결과를 통해 7.5 V에서 기준 소자 대비 외부양자효율이 약 18.03 % 가량

높아진 것을 확인할 수 있다. 이는 광효율 향상 필름으로 인하여 내부 빛의 입사각을 임계각 이하로 줄여서 보다 많이 빛이 외부로 빠져나올 수 있게 만들었기 때문이다. 전류효율은 9.5V에서 18.21 % 향상되었고 이는 동일한 전류에서 기준 소자보다 필름을 적용한 소자에서 높은 휘도가 측정되었기 때문이다.

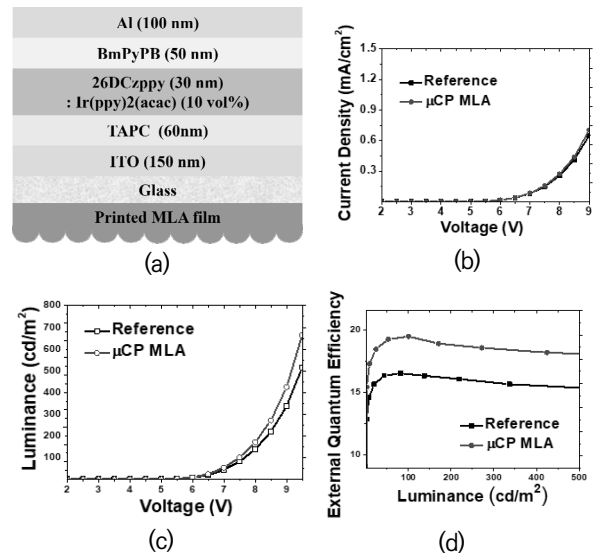


Fig. 4. (a) OLED device structure, (b) Current density-voltage characteristics, (c) luminance-voltage characteristics, and (d) external quantum efficiency (EQE) - luminance characteristics.

그림 4. (a) 제작한 OLED 소자와 이에 대한 (b) 전류밀도-전압 특성, (c) 휘도-전압 특성 (d) 외부양자효율 특성 비교

III. 결론

본 연구는 저가의 롤투롤 마이크로컨택 공정을 이용하여 대량생산이 가능한 광효율 향상 필름을 인쇄하여 제작하였다. 상업적으로 사용되는 MLA의 형상을 딴 PDMS를 롤스택프로 사용하여 OLED 소자 기판에 불소화 고분자를 롤투롤 마이크로컨택 방식으로 인쇄하였다. 특히 고압·고온 처리 없이 MLA가 제작되어서 OLED 소자의 전기적 성능의 손상이 없고 MLA를 통해 외부양자효율 및 전류효율이 약 18% 향상되었다. 개발된 광추출 MLA 형성 방법은 다양한 크기와 형태의 템플레이트에도 적용이 가능하며, 본 연구에서는 상용화된 크기의 MLA(지름 20  $\mu$ m, 높이 6  $\mu$ m)를 사용했으나 이보다 높은 종횡비를 가지는 MLA를 사용할 경우 더 좋은 광추출 성능이 나올 것으로 예상된다. 고난이도의 추가 공정 없이 저온·저압의 롤투롤 마이크로컨택 공정만으로 쉽게 OLED의 효율을 높일 수 있어 플렉서블한 플라스틱 기판에도 충분

히 적용 가능할 것으로 예상되며 유연 OLED를 비롯한 다양한 광소자에 응용될 수 있을 것으로 예상된다.

## References

- [1] Sun, Yiru, and Stephen R. Forrest, "Enhanced light out-coupling of organic light-emitting devices using embedded low-index grids," *Nature photonics*, vol.2, no.8, pp.483-487, 2008. DOI: 10.1038/nphoton.2008.132
- [2] Chihaya Adachi, Marc A. Baldo, Mark E. Thompson, and Stephen R. Forrest, "Nearly 100% internal phosphorescence efficiency in an organic light-emitting device," *Journal of Applied Physics*, vol.9, no.10, pp.5048-5051, 2001. DOI: 10.1063/1.1409582
- [3] G. Gu, D. Z. Garbuzov, P. E. Burrows, S. Venkatesh, S. R. Forrest, and M. E. Thompson, "High-external-quantum-efficiency organic light-emitting devices," *Optics letters*, vol.22, no.6, pp. 5048-5051, 1997. DOI: 10.1364/OL.22.000396
- [4] Saxena, Kanchan, V. K. Jain, and Dalip Singh Mehta, "A review on the light extraction techniques in organic electroluminescent devices," *Optical Materials*, vol.32, no.1, pp.221-233, 2009. DOI: 10.1016/j.optmat.2009.07.014
- [5] Yidenekachew J. Donie, Dominik Theobald, Somayeh Moghadamzadeh, Adrian Mertens, Ihtezaz M. Hossain, Ulrich W. Paetzold, Uli Lemmer, and Guillaume Gomard, "Planarized and compact light scattering layers based on disordered titania nanopillars for light extraction in organic light emitting diodes," *Advanced Optical Materials*, vol.9, no.14, pp.2001610, 2021. DOI: 10.1002/adom.202001610
- [6] Jooyoung Lee, Yun Young Kwon, Eun-Ho Choi, JeongWoo Park, Hong Yoon, and Hyunbin Kim, "Enhancement of light-extraction efficiency of organic light-emitting diodes using silica nanoparticles embedded in TiO<sub>2</sub> matrices," *Optics express*, vol.22, no.103, pp. A705-A714, 2014. DOI: 10.1364/OE.22.00A705
- [7] Junhong Zhou, Na Ai, Lei Wang, Hua Zheng, Chan Luo, Zhixiong Jiang, Shufu Yu, Yong Cao and Jian Wang, J, "Roughening the white OLED substrate's surface through sandblasting to improve the external quantum efficiency," *Organic Electronics*, vol.12, no.4, pp.648-653, 2011. DOI: 10.1016/j.orgel.2011.01.018
- [8] Möller, S., and S. R. Forrest, "Improved light out-coupling in organic light emitting diodes employing ordered microlens arrays," *Journal of Applied Physics*, vol.91, no.5, pp.3324-3327, 2002. DOI: 10.1063/1.1435422
- [9] O'Neill, Feidhlim T., and John T. Sheridan, "Photoresist reflow method of microlens production Part I: Background and experiments," *Optik*, vol.113, no.9, pp.391-404, 2002. DOI: 10.1078/0030-4026-00186
- [10] Severi, Marco, and Patrick Louis Mottier, "Etching selectivity control during resist pattern transfer into silica for the fabrication of microlenses with reduced spherical aberrations," *Optical Engineering*, vol.38, no.1, pp.146-150, 1999. DOI: 10.1117/1.602069
- [11] Wu, Ming-Hsien, and George M. Whitesides, "Fabrication of two-dimensional arrays of microlenses and their applications in photolithography," *Journal of micromechanics and microengineering*, vol.12, no.6, pp.747, 2002. DOI: 10.1088/0960-1317/12/6/305
- [12] Jin-Wook Shin, Doo-Hee Cho, Jaehyun Moon, Chul Woong Joo, Seung Koo Park, Jonghee Lee, Jun-Han Han, Nam Sung Cho, Joohyun Hwang, Jin Woo Huh, Hye Yong Chu, Jeong-Ik Lee, "Random nano-structures as light extraction functionals for organic light-emitting diode applications," *Organic Electronics*, vol.15, no.1, pp.196-202, 2014. DOI: 10.1016/j.orgel.2013.11.007
- [13] K. M. Yu, S.-H. Lee, J.-R. Kim, E.-K. Noh and M.-H. Ki, "Chemically Compatible Micro-Contact Printing for Fabrication of Oxide Thin-film Transistor," *Korean Society for Precision Engineering*, pp.12, 2019. DOI: 10.1116/1.4929984
- [14] Greiner, Horst, "Light extraction from organic

light emitting diode substrates: simulation and experiment," *Japanese Journal of Applied Physics*, vol.46, no.7R, pp.4125, 2007.

## BIOGRAPHY

### Subin Hwa (Member)



2019~present : BS-MS integrated degree course of Creative convergence Engineering, Hanbat Nat'l Univ.

### BaekSang Sung (Member)



2013~2020 : BS degree course of Creative convergence Engineering, Hanbat Nat'l Univ.  
2020~2022 : MS degree in Creative convergence Hanbat Nat'l Univ.  
2022~present : Ph.D degree in Creative convergence Hanbat Nat'l Univ

### Jae-Hyun Lee (Member)



2011 : PhD degree in Material Science and Eng., Seoul Nat'l Univ.  
2011~2012 : Post Doc. Researcher, IAPP, TU Dresden (Germany).  
2012~present : Professor, Hanbat Nat'l Univ.

### Jonghee Lee (Member)



2002, 2004, and 2007 : BS, MS, and PhD. degree in Chemistry, Korea Advanced Institute of Science and Technology (KAIST), Korea.  
2007~2010 : Member of Engineering Staff, Electronics and Telecommunication Research Institute (ETRI), Korea  
2010~2012 : Post Doc. Researcher, IAPP, Technical Univ. of Dresden, Germany.  
2012~2018 : Senior Member of Engineering Staff, Researcher, ETRI, Korea  
2018~present: Associate Professor, Hanbat Nat'l Univ.

### Min-Hoi Kim (Member)



2013 : Ph.D degree in Electrical and Computer Engineering, Seoul National University, Korea  
2013~present : Professor, Hanbat Nat'l Univ.