

Micro LED 제작을 위한 Color Filter용 잉크젯 공정 적색, 녹색 형광체 잉크 연구

김보중¹, 유시홍¹, 양호실¹, 문영부², 윤창번¹ 

¹ 한국공학대학교 신소재공학과

² (주) 유제이엘

Fabrication of Red and Green Phosphor Ink for the Micro LED Color Filter Using Ink-Jet Process

Bo Joong Kim¹, Si Hong Ryu¹, Hyo Sil Yang¹, Young Boo Moon², and Chang-Bun Yoon¹

¹ Department of Advanced Materials Engineering, Tech University of Korea, Siheung 15073, Korea

² UJL, Siheung 15101, Korea

(Received June 24, 2023; Revised July 16, 2023; Accepted July 24, 2023)

Abstract: In this paper, in order to apply the CF (color filter) type of the micro light emitting device (Micro LED) display method, a study on the manufacturing process of red and green phosphor inks for the inkjet process was conducted. The blue light-emitting KSF and LuAG phosphors were respectively used to control the phosphor particle size to about 1 μ m, and a phosphor ink was prepared by synthesizing with a low-viscosity solution (IPA/Eg). A chemical dispersion method was applied to selectively control the dispersion characteristics in the manufacture of phosphor inks, and in particular, phosphor inks with a dispersant applied a dispersant secured stable dispersion characteristic compared to phosphor inks without a dispersion process. Therefore, it seems possible to manufacture CF for Micro LED through an inkjet process capable of controlling the dispersion characteristics of phosphor ink.

Keywords: Micro LED, Color filter, Inkjet, Phosphor, KSF, LuAG

1. 서론

마이크로 LED를 이용한 디스플레이 기술은 red (R), green (G), blue (B) 픽셀 전체가 LED chip으로 구성되어, 디스플레이에 요구되는 높은 명암비의 구현, 넓은 색 재현율, 뛰어난 에너지 효율 및 번인 현상이 잘 나타나지 않기

때문에 차세대 디스플레이로 평가받고 있다 [1-3]. 그러나 현재 가장 널리 사용되고 있는 마이크로 LED 디스플레이 제조 방법은 각각의 R, G, B LED chip을 전사하여 만드는 방식인데 이 과정에서 LED chip의 크기가 10~100 μ m로 전사에 많은 시간과 비용이 소요되어 제품 가격이 증가함에 따라 상용화에 어려움을 겪고 있다 [4-7]. Micro LED의 전사 시간을 단축하기 위해 스탬프의 접착력으로 전사하는 elastomer stamp 방식, 롤러를 사용하는 roll-to-roll 방식 등이 연구되고 있다 [8-11]. 하지만 짧은 시간에 대량의 LED chip을 전사하기 위해 사용되는 스탬프, 롤 등 매개체를 이용하는 방식들은 매개체의 재활용 가능성과 접

✉ Chang-Bun Yoon; cbyoon@tukorea.ac.kr

Copyright ©2023 KIEEME. All rights reserved.
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.

착력 유지 등의 문제점을 가지고 있어 blue LED chip만 전사 후 R, G 형광체를 인쇄해 제작한 CF (color filter)를 적용하여 서브 픽셀을 구현해 제조 공정 단순화시켜 제조 비용을 절감하고 상용화 가능성을 높이는 연구를 진행하고 있다 [12,13]. 잉크젯 공정으로 형광체를 인쇄해 제작한 CF 적용 마이크로 LED 디스플레이 제조는 복잡한 전사 공정을 거치지 않아 제조 공정을 더욱 단순화하고 저비용의 생산을 통하여 더 현실적인 마이크로 LED 디스플레이의 상용화 가능성을 높일 수 있을 것으로 판단된다 [14,15].

본 논문에서는 잉크젯 프린팅용 형광체 잉크를 제조하기 위해 자외선 발광 형광체인 red potassium fluorosilicate (KSF)와 green lutetium aluminium garnet (LuAG)을 선택하였고, 잉크젯용 형광체는 노즐 분사에 최적화된 크기로 제어하였다. 저점도 분산 용액인 isopropyl alcohol (IPA)/ethylene glycol (Eg)를 혼합시켜 잉크 용액을 제조하였고, Eg의 함량 변화에 따라 점도 조절 및 분산 특성을 평가하였다. 그리고 합성된 형광체 잉크에 화학적 분산 방법인 분산제 polyvinylpyrrolidone (PVP)의 함량 변화와 나노 분산 시스템을 적용하여 분산 특성을 평가하였다.

2. 실험 방법

본 연구에서는 잉크젯 프린트의 인쇄 가능 점도 약 15 cP와 20 μm 노즐 크기를 고려하여 형광체 잉크 제조 공정을 수행하였다. 공침법으로 제조된 약 1, 19 μm 크기의 KSF 형광체(UJL, KR)를 사용하였고, 약 19 μm 크기의 LuAG 형광체(UJL, KR)를 분쇄하여 약 1 μm 크기의 형광체를 준비하였다. 분쇄 방법은 3, 5 mm 지르코니아 볼, 에탄올을 이용해 planetary mill (PULVERISETTE 7PL, Fritsch, DE)로 700 rpm에서 10분 동안 습식 분쇄하였고, 건조로 80°C에서 24시간 동안 건조하였다. 슬러리의 분산성을 향상시키기 위해서 고압의 나노디스펜서 (NLM100, Ilshinautoclave, KR)를 사용하여 고압(500 bar)에서 슬러리를 분산시켰다.

KSF, LuAG 형광체 입자 분석은 주사전자현미경(Nova Nano SEM 450, Elecmi, ES), 입도 분석기(Bettersizer S3, Bettersize, CA)를 사용하였고, 광학 특성은 형광 광도계(FS-2, Scinco, KR), mini-spectrometers (C10083CA, Hamamatsu, JP)로 측정하였다. 형광체 잉크의 분산 특성 평가는 분광광도계(Mega-800, Scinco, KR)로 평가하였다.

잉크젯 용액 제조공정 흐름도를 그림 1에 간략하게 나타내었다. 주 용매인 isopropyl alcohol (Daejung

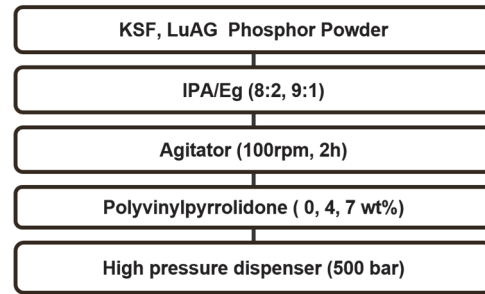


Fig. 1. IPA/Eg-based red and green phosphor ink manufacturing process.

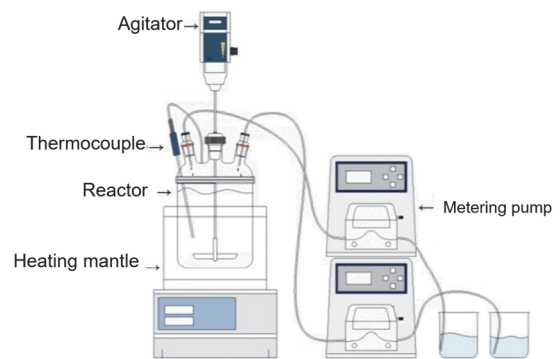


Fig. 2. Schematic diagram of ink mixing equipment.

Chemicals & Metals, KR)과 ethylene glycol (Daejung Chemicals & Metals, KR)을 질량 비율로 8:2, 9:1을 균일하게 혼합하였고, IPA/Eg 용액과 각각의 KSF, LuAG 형광체를 6시간 혼합하여 잉크젯용 형광체를 제조하였다 [16]. 그림 2는 혼합 장비 모식도를 나타내며, 화학적 분산 방법인 PVP 4~7 wt%를 IPA/Eg + KSF, LuAG 형광체 잉크에 투입하였다.

TEST를 위해 제작된 CF는 α-terpineol (TCI, JP)과 ethyl cellulose (Sigma-Aldrich, US)를 9:1 비율로 혼합하여 바인더를 제작하였고, 이를 screen printer기를 이용해 사파이어 글라스 위에 5×5 mm 크기로 2층 인쇄하여 분리된 공간을 확보하였고, LED용 dispensing 기구를 이용해서 0.02 ml를 정량 토출하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1 형광체 입자에 따른 광특성 결과

잉크젯 프린트의 노즐 크기를 고려해 노즐의 막힘을 최

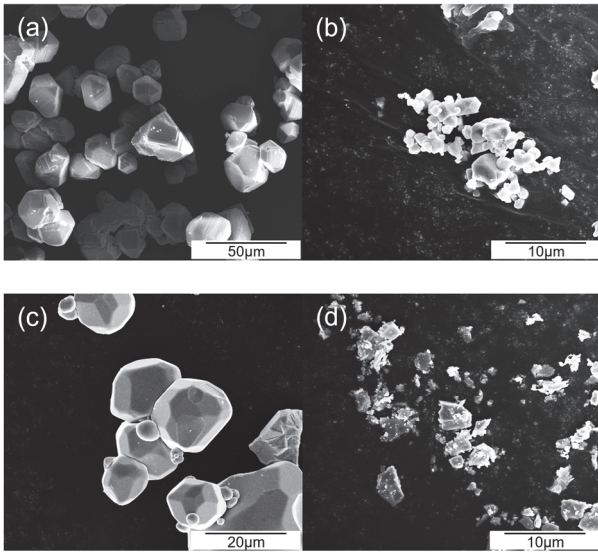


Fig. 3. SEM images of phosphors before and after particle control (a) KSF 19 μm , (b) KSF 1 μm , (c) LuAG 19 μm , and (d) LuAG.

소화하기 위해 약 1 μm 크기의 형광체를 사용하였다. 그림 3(a)는 입자 제어 전 약 19 μm 크기의 KSF 형광체, 그림 3(b)는 입자 크기가 제어된 약 1 μm KSF 형광체, 그림 3(c)는 입자 제어 전 약 19 μm 크기의 LuAG 형광체, 3(d)는 입자 크기가 제어된 약 1 μm LuAG 형광체의 SEM 이미지를 나타낸다. 공침법으로 제조된 KSF 형광체와 분쇄 공정을 통해 입자 제어된 LuAG 형광체 입자를 입도 분석기로 확인 결과 KFS 형광체는 약 19 μm 와 1 μm 임을 확인했고, LuAG의 경우 약 19 μm 에서 입자 제어를 통해 1 μm 까지 분쇄된 걸 확인했다.

그림 4(a)는 입자 크기가 다른 KSF 형광체의 PL 스펙트럼을 나타낸다. 주파장 613 nm, 635 nm, 650 nm에서 나타났으며 입자 크기에 따른 주파장의 변화는 없었다. 그림 4(b)는 19 μm , 1 μm 크기를 가지는 LuAG 형광체의 PL 스펙트럼을 나타낸다. 주파장 525 nm에서 나타났고, 입자 제어(약 1 μm)할수록 짧은 주파장 512 nm로 이동하면서 PL intensity가 감소하는데 이는 입자가 작아짐에 따라 입자 간 재흡수가 감소하였기 때문에 단파장으로 이동한 것으로 생각된다.

3.2 용매의 비율에 따른 형광체 잉크 분산 효과

그림 5는 IPA/Eg를 정량 펌프를 사용하여 9:1 및 8:2 비율로 균일하게 투입하고, 교반기를 이용해 혼합하여 합성된 적색 형광체 잉크의 시간에 따른 투과율 변화를 보여주며 Haze 특성이 유지된다는 것은 상대적으로 분산이 잘된 것으로 보인다. Haze 특성은 광투과율 측정기를 활용하여 아래 방정식으로 계산하였다.

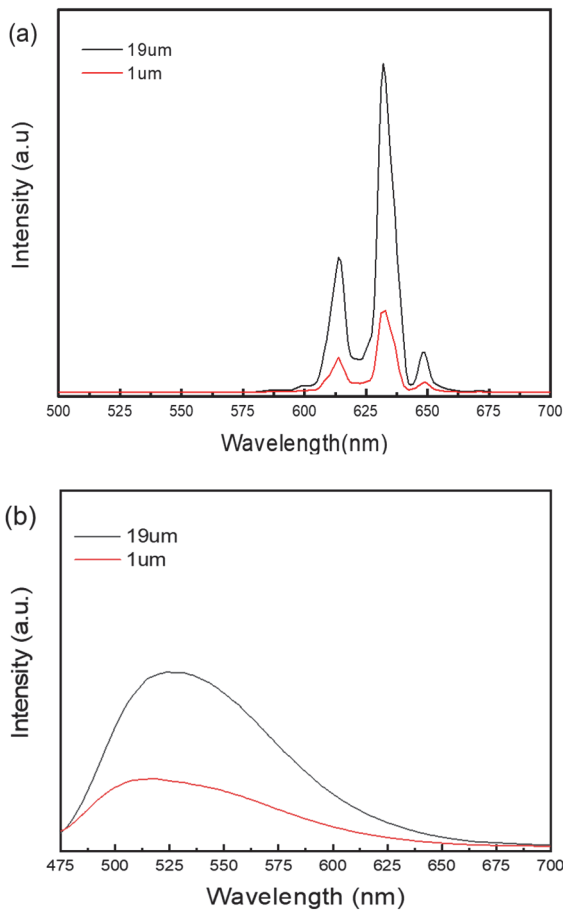


Fig. 4. PL intensity of particle controlled red and green phosphors (a) KSF phosphors and (b) LuAG phosphors.

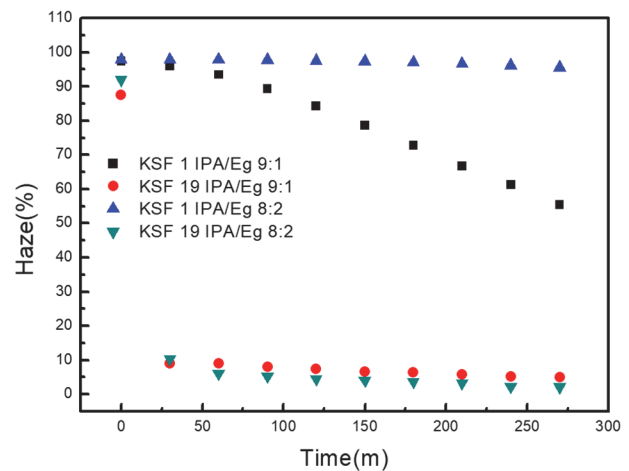


Fig. 5. Dispersion characteristics of red phosphor ink according to IPA/Eg ratio.

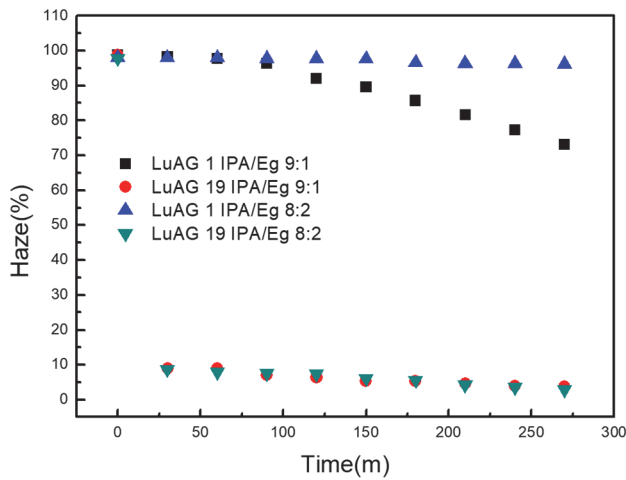


Fig. 6. Dispersion characteristics of green phosphor ink according to IPA/Eg ratio.

$$\text{Haze (\%)} = 100\% - \text{Transmittance (\%)} \quad (1)$$

9:1 비율로 제조된 KSF 형광체 잉크에서는 1 μm와 19 μm 크기의 KSF 형광체 모두 잉크 제조 후 30분이 경과하면 분산 특성이 저하되지만 8:2 비율의 형광체 잉크는 19 μm 크기의 형광체에 대한 분산 효과가 없지만, 1 μm 크기의 형광체는 4시간 이상 분산 특성을 유지했다.

그림 6은 IPA/Eg 비율에 따른 LuAG 형광체 잉크의 분산 특성을 나타내며, IPA/Eg를 9:1 비율로 혼합된 용매에 LuAG 형광체를 분산시켜 만든 녹색 형광체 잉크의 투과율 측정결과 19 μm LuAG 형광체는 잉크 제조 30분, 1 μm 형광체는 1시간이 지나면 분산 효과가 낮아지는 걸 확인할 수 있다. 반면 IPA/Eg 비율이 8:2인 형광체 잉크에서는 Eg의 함량을 증가시켰음에도 불구하고 19 μm 크기의 형광체에는 분산 효과 변화가 없었지만, 1 μm 크기의 형광체는 잉크 제조 후 4시간 이상 분산 효과를 유지했다.

그림 7은 IPA/Eg 8:2 비율로 제조한 KSF 형광체 잉크에 화학적 분산제인 PVP 함량에 따른 KSF 형광체 잉크의 투과율을 비교한 그래프이다. 그림 7(a) PVP 첨가하지 않은 KSF 형광체 잉크보다 PVP를 첨가한 잉크의 분산특성이 100분 이후에도 변화 없이 안정적인 분산특성을 나타냈었고, PVP의 함량 4 wt% 이상은 분산 특성 향상에 효과가 낮은 것으로 판단되었다. 특히 PVP의 함량 4 wt%에서는 PL intensity가 감소하지 않지만 7 wt%에서는 PL intensity가 감소하는데 이는 바인더 첨가에 따른 굴절률 차이로 인해 산란 효과가 증가하여 투과율이 감소한 걸로 보인다.

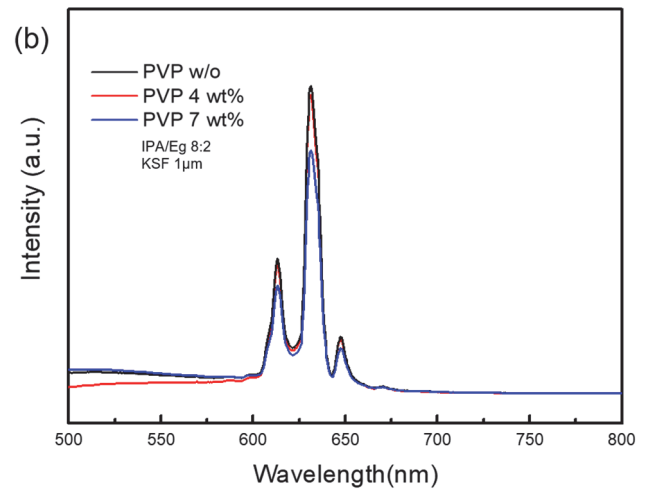
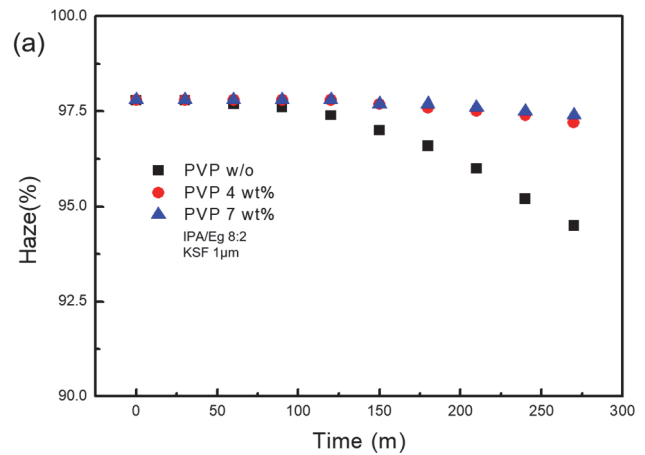


Fig. 7. (a) Dispersion characteristics of KSF phosphor inks according to PVP content and (b) PL intensity of KSF phosphor inks.

그림 8은 LuAG 형광체에 IPA와 Eg를 8:2 비율로 혼합 후 PVP 첨가해 투과율을 측정한 그래프이다. 그림 8(a)에서 PVP를 첨가하지 않은 LuAG 형광체 잉크는 초기에서 130분부터 투과율이 높아지기 시작하지만, PVP가 첨가된 형광체 잉크는 안정적인 분산 상태를 보인다. KSF 형광체 잉크와 마찬가지로 PVP 4 wt% 함량 이상의 형광체 잉크의 분산 효과가 낮고, PVP 첨가량이 증가할수록 PL intensity가 낮아짐을 확인하였다.

그림 9는 IPA/Eg 8:2 용액 기반 형광체 잉크에 PVP를 첨가한 후, 고압 나노 분산기를 사용 후 투과율 측정 결과를 나타낸다. 고압 나노 분산 적용은 형광체 잉크에 PVP 0.5 wt%를 첨가 후 500 bar 조건에서 수행하였다. 그림 9(a)는 KSF 형광체 잉크에 고압 나노 분산기를 적용했을

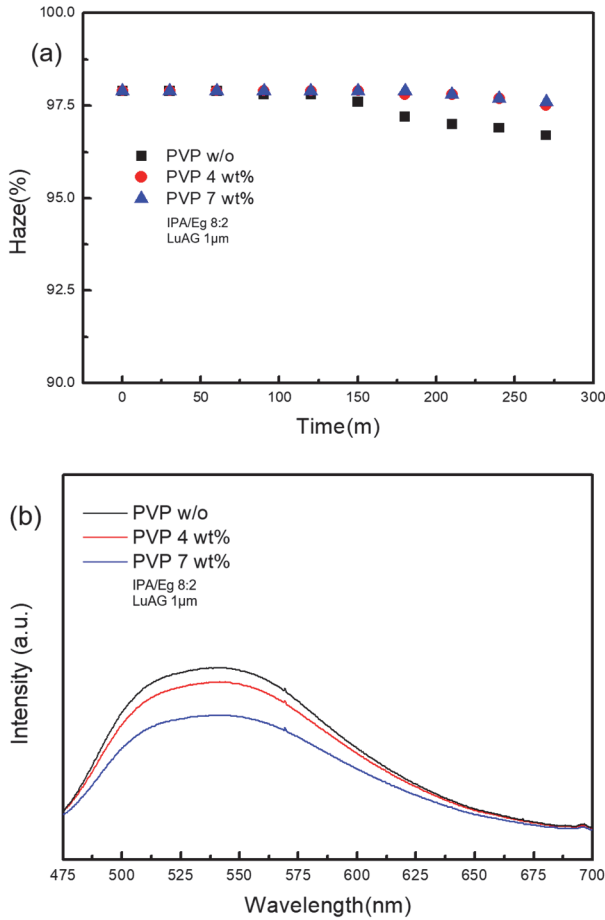


Fig. 8. (a) Dispersion characteristics of LuAG phosphor ink and (b) PL intensity of LuAG phosphor ink.

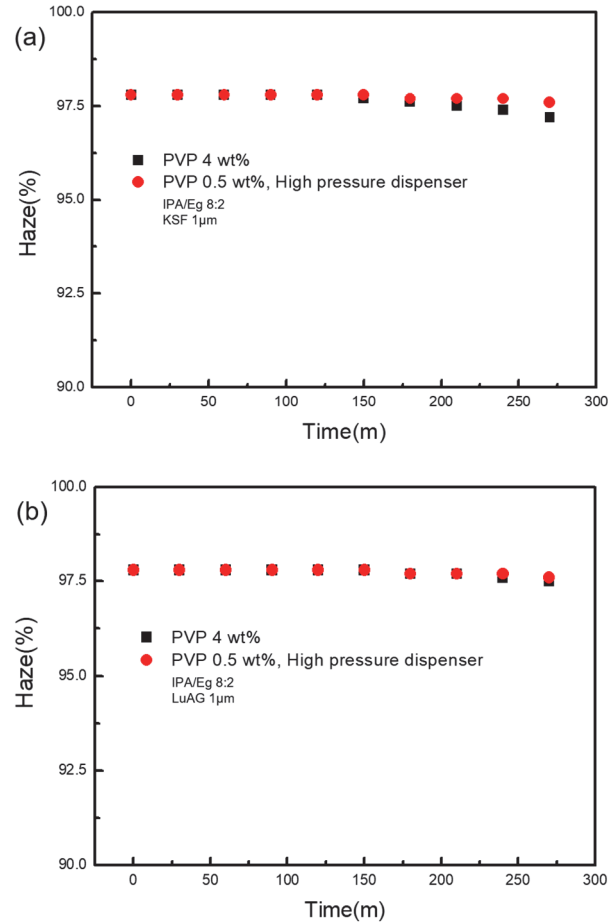


Fig. 9. Dispersion characteristics of phosphor inks according to PVP content (a) KSF phosphor and (b) LuAG phosphor.

때의 분산 특성을 나타낸다. 나노 분산의 적용은 소량의 PVP 0.5 wt%에서도 높은 분산 특성을 나타냈으며, 나노 분산기를 적용하지 않은 PVP 4 wt%를 첨가했을 때와 유사한 분산 효과를 확인할 수 있어 고압 나노 분산기가 형광체 분산에 효과적임을 알 수 있었다. 그림 9(b)는 고압 나노 분산을 적용한 LuAG 형광체 잉크의 분산 특성을 나타낸다. KSF 형광체와 같이 나노 분산기를 적용할 경우 소량의 PVP 0.5 wt%에도 높은 분산 특성을 나타내며 PVP 4 wt%를 첨가했을 때와 같은 분산 효과를 확인할 수 있다.

그림 10(a)는 분산제와 나노 분산 분산 시스템에 적용하여 제작된 고분산 적색 및 녹색 잉크에 390 nm 파장으로 조사한 사진이다. 1 μm 크기의 KSF, LuAG 형광체를 적용하여 제조한 형광체 잉크는 최소 2시간 이상 형광체와 용매에 안정적인 분산 상태를 유지하였다. 그림 10(b)는 적색, 녹색 형광체 잉크를 분산하여 TEST CF 후 390 nm 파장의 UV 램프를 조사한 사진이며, TEST CF 위의 분리된

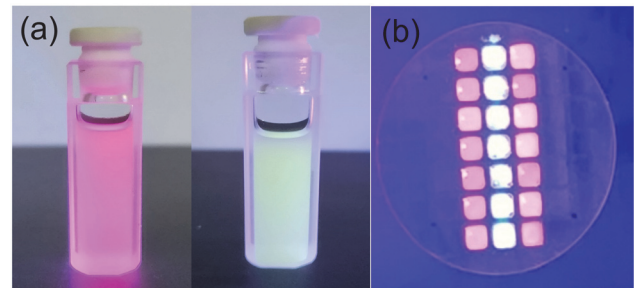


Fig. 10. Red and green phosphor image after irradiation with 390 nm wavelength (a) highly dispersed red and green phosphor ink and (b) phosphor ink sprayed on TEST CF substrates.

공간에 분산된 형광체 잉크가 퍼짐 없이 분리된 공간에서 모양을 유지하였고, IPA/Eg 용매를 사용해 제조한 형광체 잉크는 공정에 적합할 것으로 예상된다.

4. 결론

본 논문에서는 Micro LED CF에 사용할 적색, 녹색 형광체 잉크 제조 공정 최적화 연구를 진행하였다. 잉크젯용 형광체를 제조하기 위하여 KSF, LuAG 형광체를 1 μm 로 제어하였고, 저점도 용액 IPA/Eg 혼합하여 잉크젯용 형광체 합성을 하였다. 또한, 형광체 잉크의 분산 특성을 향상하기 위해 형광체 잉크에 화학적 분산 방법인 분산제 PVP의 함량 변화와 나노 분산 시스템을 적용하여 분산 특성을 평가하였다. 형광체 입자의 크기가 작을수록 PL 특성은 낮아졌고, IPA/Eg 용액 기반의 형광체 잉크의 Eg 비율이 증가 시 점도는 높아지고, 분산 특성이 개선되었다. 형광체 잉크의 분산 특성 제어를 위해 화학적 분산 방법인 PVP를 첨가하였으며, KSF, LuAG 형광체 잉크에 PVP를 첨가했을 때는 분산 특성 개선 효과를 나타냈다. PVP가 4 wt% 이상 첨가 시, 분산특성 및 PL intensity가 낮아지는 결과를 나타냈다. 또한 물리적인 분산 방법인 고압 나노 분산법을 적용하였고, 형광체 잉크의 PVP 0.5 wt%에서도 분산 특성 개선 효과를 보였다. 본 논문은 micro LED 컬러 구현 방식의 CF (color filter)를 잉크젯 공정을 적용하기 위하여 현실 구현 가능한 안정적 분산특성을 갖는 적색, 녹색 형광체 잉크를 제작하였다.

ORCID

Chang-Bun Yoon

<https://orcid.org/0000-0002-9640-0804>

감사의 글

This work was supported by the Technology development Program (S3276978) funded by the Ministry of SMEs and Startups (MSS, Korea).

REFERENCES

- [1] T. Wu, C. W. Sher, Y. Lin, C. F. Lee, S. Liang, Y. Lu, S. W. Huang Chen, W. Guo, H. C. Kuo, and Z. Chen, *Appl. Sci.*, **8**, 1557 (2018).
doi: <https://doi.org/10.3390/app8091557>
- [2] H. Jiang and J. Lin, *III-Vs Rev.*, **14**, 32 (2001).
doi: [https://doi.org/10.1016/s0961-1290\(01\)80261-1](https://doi.org/10.1016/s0961-1290(01)80261-1)
- [3] R. A. Mair, K. C. Zeng, J. Y. Lin, H. X. Jiang, B. Zhang, L. Dai, H. Tang, A. Botchkarev, W. Kim, and H. Morkoç, *Appl. Phys. Lett.*, **71**, 2898 (1997).
doi: <https://doi.org/10.1063/1.120209>
- [4] T. Granlund, T. Nyberg, L. Stolz Roman, M. Svensson, and O. Inganäs, *Adv. Mater.*, **12**, 269 (2000).
doi: [https://doi.org/10.1002/\(SICI\)1521-4095\(200002\)12:4<269::AID-ADMA269>3.0.CO;2-5](https://doi.org/10.1002/(SICI)1521-4095(200002)12:4<269::AID-ADMA269>3.0.CO;2-5)
- [5] Y. Wu, J. Ma, P. Su, L. Zhang, and B. Xia, *Nanomaterials*, **10**, 2482 (2020).
doi: <https://doi.org/10.3390/nano10122482>
- [6] B. Corbett, R. Loi, W. Zhou, D. Liu, and Z. Ma, *Prog. Quantum Electron.*, **52**, 1 (2017).
doi: <https://doi.org/10.1016/j.pquantelec.2017.01.001>
- [7] V. W. Lee, N. Twu, and I. Kymissis, *Inf. Disp.*, **32**, 16 (2016).
doi: <https://doi.org/10.1002/j.2637-496X.2016.tb00949.x>
- [8] L. Zhang, F. Ou, W. C. Chong, Y. Chen, and Q. Li, *J. Soc. Inf. Disp.*, **26**, 137 (2018).
doi: <https://doi.org/10.1002/jsid.649>
- [9] R. S. Cok, M. Meitl, R. Rotzoll, G. Melnik, A. Fecioru, A. J. Trindade, B. Raymond, S. Bonafede, D. Gomez, T. Moore, C. Prevatte, E. Radauscher, S. Goodwin, P. Hines, and C. A. Bower, *J. Soc. Inf. Disp.*, **25**, 589 (2017).
doi: <https://doi.org/10.1002/jsid.610>
- [10] K. Ding, V. Avrutin, N. Izyumskaya, Ü. Özgür, and H. Morkoç, *Appl. Sci.*, **9**, 1206 (2019).
doi: <https://doi.org/10.3390/app9061206>
- [11] P. J. Parbrook, B. Corbett, J. Han, T. Y. Seong, and H. Amano, *Laser Photonics Rev.*, **15**, 2000133 (2021).
doi: <https://doi.org/10.1002/lpor.202000133>
- [12] F. Gou, E. L. Hsiang, G. Tan, Y. F. Lan, C. Y. Tsai, and S. T. Wu, *J. Soc. Inf. Disp.*, **27**, 199 (2019).
doi: <https://doi.org/10.1002/jsid.764>
- [13] B. Zhao, Q. Wang, D. Li, H. Yang, X. Bai, S. Li, P. Liu, and X. Sun, *Micromachines*, **13**, 595 (2022).
doi: <https://doi.org/10.3390/mi13040595>
- [14] B. R. Hyun, C. W. Sher, Y. W. Chang, Y. Lin, Z. Liu, and H. C. Kuo, *J. Phys. Chem. Lett.*, **12**, 6946 (2021).
doi: <https://doi.org/10.1021/acs.jpcclett.1c00321>
- [15] Y. J. Cha and J. S. Kwak, *J. Korean Inst. Electr. Electron. Mater. Eng.*, **34**, 8 (2021).
doi: <https://doi.org/10.4313/JKEM.2021.34.1.8>
- [16] C. T. Kosolia, E. G. Tsatsaroni, and N. F. Nikolaidis, *Color. Technol.*, **127**, 357 (2011).
doi: <https://doi.org/10.1111/j.1478-4408.2011.00334.x>