

진공 증착 투명 OLED 투과도 및 발광 특성 개선을 위한 Mesh 전극 연구

김영우* · 전용민** · 조의식*** · 권상직***†

*가천대학교 반도체공학과, **가천대학교 의공학과, ***†가천대학교 전자공학과

A Study on Vacuum-deposited Transparent OLED to Improve Its Transmittance and Luminescence Characteristics with a Mesh Electrode

Young Woo Kim*, Yongmin Jeon**, Eou-Sik Cho*** and Sang Jik Kwon***†

*Department of Semiconductor Engineering, Gachon University,

**Department of Medical Biomedical Engineering, Gachon University,

***†Department of Electronics Engineering, Gachon University

ABSTRACT

With the growing field and growing interest in transparent organic light-emitting diodes (TOLED) in the industry, various attempts are being made to improve the transmittance and performance of TOLED. TOLEDs are expected to be used in next-generation displays such as mixture reality (MR) displays, displayable windows, televisions, etc. This study presents a mesh TOLED with better transmittance and luminescence characteristics than existing TOLEDs through an in-situ vacuum deposition method that does not require additional processes such as photolithography and etching. In this study the mesh TOLED's cathode consists of Mg: Ag 1:9 electrode. Mesh patterns are interconnected with a 6 nm layer of interlayer. We approached transmittance improvement up to 30% at 555 nm at the cathode electrode with similar current injection character, also we improved lamination characteristics up to 23% at 7 V driving condition.

Key Words : Transparent Organic Light-Emitting Diode (TOLED), Mg:Ag, Mesh Pattern, Transmittance

1. 서 론

유기 발광 다이오드 (OLED)는 산업 분야에서 다양한 발광 소자들을 대체하여 주류 디스플레이 발광 소재 산업으로서 두각을 나타내고 있다. 이때 OLED는 그 특성이 증착되는 마스크에 따라 형태를 자유롭게 변환할 수 있으며, 증착되는 기판에 따라 유연하고, 늘어날 수 있게 제작이 가능하다[1]. 또한, 그 특성 중 자체적으로 발광하는

특성으로 인해 투명한 전극을 활용하여 증착할 시 투명한 transparent OLED (TOLED)를 제작할 수 있다. 이러한 TOLED는 앞선 특성들과 더불어 디스플레이 창문, mixture reality (MR), virtual reality (VR) 분야에서 활용되기 적합하다. 최근 연구 동향에 따르면 TOLED들은 전극의 구성을 바꿔가며 투과도를 조정한다. 12 nm 수준의 매우 얇은 금속 전극을 통해 투과도를 확보하고, 그 반대편에는 일반적인 투명전극인 indium tin oxide (ITO), indium zinc oxide (IZO), 그래핀, aluminum zinc oxide (AZO) 등을 증착하여 투과도를 향상시킨다. 이뿐만 아니라, Ag nano-wire, dielectric/metal/dielectric

†E-mail: Sjkwon@gachon.ac.kr

(DMD) 구조를 활용하여 투과도를 늘리는 기술들 또한 여러 가지 문헌들에 소개되어 있다[2-4].

일반적인 투명전극인 ITO, IZO 그리고 AZO는 주로 스퍼터링 공정을 통해 증착이 된다. 스퍼터링 공정은 플라즈마를 활용하여 기판에 물질을 증착하기에, 유기물이 증착된 기판에는 유기물에 critical 한 damage를 입히기 때문에 각각의 양쪽 전극으로 활용하기에는 좋지 못하다. 하지만 이런 ITO전극을 양측에 증착하여 보고된 연구도 있다[5]. 따라서, 본 연구에서는 앞선 기술들 중 ITO를 활용하여 bottom 전극을 구성하여 투과도를 확보하였고, 더불어 일반적인 투명전극과 얇은 금속 박막을 통해 TOLED를 구현하였다.

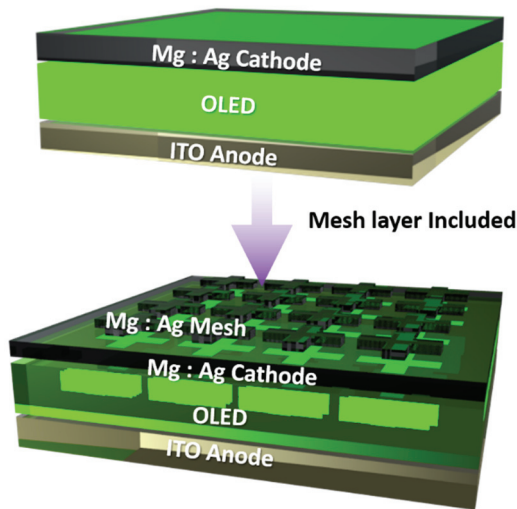


Fig. 1. Schematic illustration of enhancement in TOLED to mesh TOLED.

Fig. 1에서 TOLED의 투과도를 올리기 위해 포토리소그래피, 에칭등의 추가 공정이 필요 없는 mesh 전극을 활용한 OLED를 구현하는 그림을 추상적으로 나타내었다. 이때, OLED 제작 공정 중 포토리소그래피 및 에칭등의 과정은 유기물을 수분 및 산소 공간에 노출시켜 소자의 특성을 저해할 수 있지만, 본 실험에서 제시하는 mesh 전극을 활용한 OLED는 진공이 깨지지 않고 (break) in-situ 증착공정이 가능하다는 장점이 있다. 이때, 제작된 TOLED는 발광 형태가 전면에서 발광하기도 하지만 mesh pattern이 증착된 위치에서 더욱 강한 발광 특성이 나타난다. 이러한 특성은, mesh 전극의 계면으로 cathode에서 흐르는 전류가 current crowding effect로 인하여 mesh 전극 방면에 집중되어 전극이 있는 계면에서 유기물 층으로 강한 전자주입

이 이루어지기 때문이다[6-8].

본 연구에서는 기존의 얇은 금속 박막(12 nm Mg:Ag 박막) 이용한 TOLED보다 555 nm 영역에서 최대 30% 증가된 전극의 투과도와 7 V의 driving voltage에서 최대 23% 증가된 발광특성을 나타내었다.

2. 실험 방법

ITO가 증착 돼있는 Soda Lime Glass 기판을 이용하여 실험을 진행하였다. 이때 ITO는 소자의 anode 전극으로써 활용되었다. 기판을 클리닝 하기 위해 초음파 세척 (Ultra-Sonication) 과정을 각각 아세톤 (Acetone) 10분, IPA (Isopropyl Alcohol) 10분, 탈이온수 (Deionized Water) 10분씩 순차적으로 진행을 한다. 이때, 각 용액을 통한 초음파 세척이 진행될 때마다 탈 이온수로 기판을 헹구었고, 질소를 (N₂) 이용해 기판의 잔여 탈 이온수를 제거하였다. 이후 hot plate 250°C로 설정하여 기판을 30분간 열처리를 하여 잔존 수분을 모두 제거하였다. 최종적으로 ITO의 일함수 개선을 위해 UV-ozone 전 처리 장비를 이용하여 UV-Treatment를 10분간 진행하였다.

장비는 셀코스 사의 유기발광 다이오드 열 증착장비를 (OLED Evaporator) 사용하였다. 이는 열 증착 (Thermal Evaporation) 방식을 이용하며, OLED에 사용되는 유기물과 금속 물질들을 증발시켜 증착한다. 실험 진행 중 진공을 풀지 않고 in-situ 공정으로 증착을 진행하였다. 앞서 세척된 기판들은 유기물 챔버에서 (Organic Chamber) 기판상의 ITO 위에 hole transfer later (HTL)인 N, N'-Di-[(1-naphthyl)-N, N'-diphenyl]-1, 1'-biphenyl-4, 4'diamine (NPB)를 1.0 Å/s으로 40 nm를 증착하였다. 이후 emission layer (EML)이며, electron transfer layer (ETL)인 tris-(8-hydroxyquinoline) aluminum (Alq3) 1.0 Å/s로 50 nm 증착하였고, 그 위에 electron injection layer EIL)인 lithium fluoride (LiF)를 0.1 Å/s로 0.5 nm 증착하였다. 최종적으로 TOLED 구현을 위해 cathode층을 Mg:Ag를 1:9의 비율로 1.0 Å/s의 속도로 증착하여 소자를 완성하였다. 이때, 일반적인 TOLED는 Mg:Ag 전극을 12 nm 두께로 증착하였고, mesh TOLED는 6 nm의 기초 Mg:Ag interlayer와 12 nm 두께의 Mg:Ag mesh layer를 증착하였다. 이 모든 과정은 각각의 소자가 진공을 깨지 않고 공정을 진행하는 In-situ로 증착되었다.

증착된 소자는 봉지공정을 (Encapsulation) 질소 분위기로 유지되는 글러브 박스 (Globe box) 내에서 연속적으로 진행하였다. 이는 산소와 수분에 취약한 유기물[9]을 보호하기 위함이다. Encapsulation은 실란트를 (sealant) 별도의 encapsulation Glass위에 도포한 후 소자 위에 올린 뒤 UV 조사를 통해 경화시켜 glass encapsulation을 진행하였다. 이후 소자의 발광특성을 확인하기 위해 맥사이언스 사의 M6100 장

비를 통해 특성을 측정하였다. 이때 사용된 source meter는 Keithley사의 2601a가 활용되었으며, spectrometer는 Minolta사의 CS-2000이 사용되었다.

3. 실험 결과

3.1 TOLED 와 mesh TOLED 의 전극 특성

TOLED를 제작하기에 앞서 전극 자체의 특성을 분석하고자 하였다. 12 nm의 두께를 가진 Mg:Ag 전극과 6 nm의 interlayer와 더불어 12 nm의 mesh 구조가 포함된 전극의 투과도 특성과 전류 주입 특성을 확인하였다. 이때, 앞선 선행연구의 결과에 따라 최적의 performance를 나타내는 Mg:Ag전극의 비율을 1:9로 설계하여 실험을 진행하였다 [10].

제작된 전극의 투과도는 유리기판 위에 바로 증착된 Mg:Ag 전극의 투과도를 평가하였다. Fig. 2는 측정된 전극의 투과도를 나타낸다. 이때 가시광선 영역인 380 nm 부터 780 nm 영역의 투과도만을 확인하였다.

각각의 전극의 최대 투과도는 380 nm의 영역에서 가장 높은 투과도 특성을 나타내었는데, 이는 각각 12 nm Mg:Ag에서 55.09%, 6 nm + 12 nm mesh 전극에서는 68.65%를 기록하였다. 또한, green 영역의 발광 피크인 555 nm의 파장에서 각각의 투과도는 34.77%, 45.02%로 측정되어 약 30%의 투과도 개선이 이루어졌음을 확인하였다.

이때 투과도의 개선이 이루어진 이유로, mesh 전극이 patterning된 6 nm + 12 nm의 영역에서도 빛이 투과하며, mesh 전극이 패터닝 되지않은 6 nm interlayer의 위치에서 더욱 많은 빛이 투과되기 때문이다.

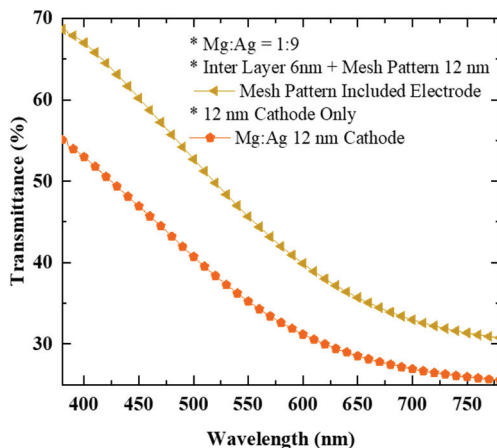


Fig. 2. Spectral transmittance characteristics of 12 nm Mg:Ag cathode and mesh Mg:Ag cathode.

소자의 투과도가 높아지더라도, 면저항이 높아질 경우 소자의 동일 전압에서의 발광 특성은 나빠질 수 있다. 그림 3은 소자의 전류 주입 특성을 확인하기 위해 ITO와 제작된 전극 간의 전류 밀도 특성을 측정하였다. 주로 전극의 전류 주입 특성은 면 저항으로 측정하게 되는데, mesh가 올라간 전극의 특성상 모든 mesh 끼리 연결이 되지 않고 기초층인 Mg:Ag 6 nm interlayer로 연결되어 있기 때문에 면저항이 제대로 측정되지 못하였다. 따라서 J-V특성을 통해 mesh 전극과 일반 cathode 12 nm 전극 간의 전류 주입 특성을 판단하였다.

각 전극은 거의 비슷한 전류 주입 특성을 나타낸다. 전극에 5 V까지의 전압을 인가했을 때 각각 12 nm Mg:Ag는 977.29 mA/cm², mesh Mg:Ag는 973.19 mA/cm²로 거의 차이가 나타나지 않았다. 소자의 최대 driving voltage인 7 V의 조건에서는 각각 1482.00 mA/cm², 1356 mA/cm²으로 근소한 차이가 나타나긴 하였지만, 전류 주입 특성은 각기의 소자가 크게 다르지 않다는 것을 확인할 수 있다.

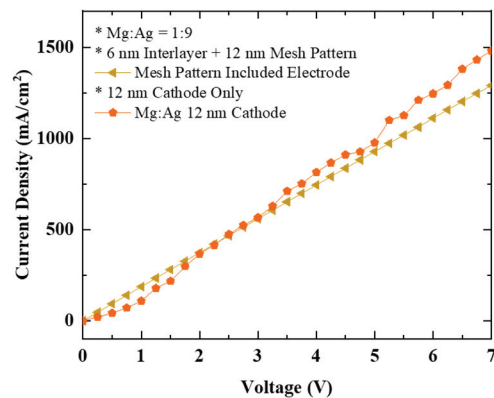


Fig. 3. J-V characteristic graph for comparing current injection character of electrodes.

3.2 TOLED 와 mesh TOLED 의 특성 분석

그림 4는 유기물과 전극이 모두 증착되어 제작된 TOLED와 mesh TOLED의 J-V곡선을 나타낸다. 각각의 소자는 cathode층의 구성만 다르게 증착된 소자이다. 소자에 주입된 전류의 그래프는 앞선 전극 평가와 같이 서로 크게 다르지 않게 나타났는데, 오히려 mesh 전극이 있는 소자가 동일전압에서 더욱 전류가 잘 주입되었다.

각각의 소자는 소자에 불이 들어오는 시점인 3 V의 조건에서 TOLED 0.23 mA/cm², mesh TOLED 0.31 mA/cm²으로 mesh OLED에서 더욱 높은 전류 주입 특성이 나타났다. 또한 최대 전압인 7 V에서는 전류 밀도가 각각 TOLED 274.52 mA/cm², mesh TOLED 333.38 mA/cm²로 약 21%가량

mesh OLED에서 개선되었다.

소자에 주입되는 전류가 개선된 이유로는 양 극단의 전극 사이에 유기물 층이 형성되어 발광 다이오드로써 작동하는데, 이때 앞선 설명과 같이 mesh 전극의 위치에서 current crowding effect가 발생하여 mesh 전극의 계면에 강한 전기장이 생겨 전자들이 더욱 활발히 흐를 수 있기 때문이다[6-8].

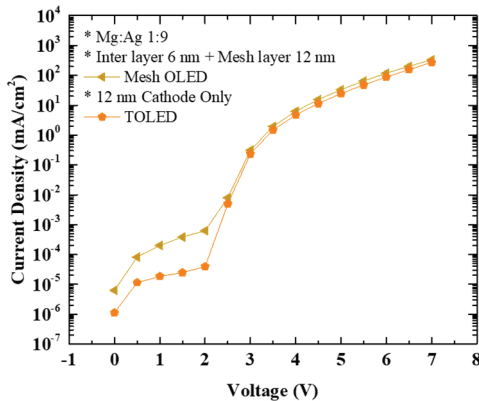


Fig. 4. J-V characteristic of TOLED and mesh TOLED.

또한, 완성된 소자의 투과도는 다음 그림 5와 같이 나타난다. TOLED에 비해 mesh OLED는 450 nm 영역을 제외하고 모든 파장의 영역에서 그 투과도가 우월하다. 또한, 555 nm 파장의 영역에서는 mesh TOLED의 최대 투과도가 83.03%로 TOLED 소자인 72.05%보다 투과도 특성이 15% 개선됨을 확인할 수 있다. 또한, 적색광 영역인 630 nm 이후의 영역에서도 투과도가 크게 개선되어 제작된 소자가 전체적으로 투명하게 나타난다.

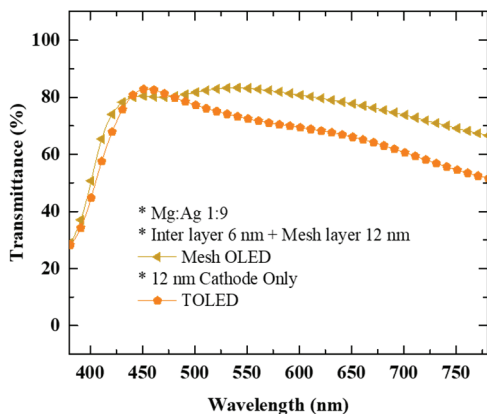


Fig. 5. Spectral transmittance characteristic of TOLED and mesh TOLED.

그림 6은 각 소자의 발광특성을 나타낸다. 그림 4에서 소자에서 전류 주입이 더욱 잘되는 만큼 소자의 발광 특성이 기존의 TOLED에 비해 개선되었음을 확인할 수 있다. 이때 전체적인 평균으로 소자의 발광 특성이 20%가량 개선되었다. 또한, 최대 밝기인 7 V의 driving voltage에서 각각의 소자는 TOLED 5216.70 Cd/m², mesh TOLED 6391.98 Cd/m²으로 소자의 최대 발광 특성이 약 23% 증가하였다.

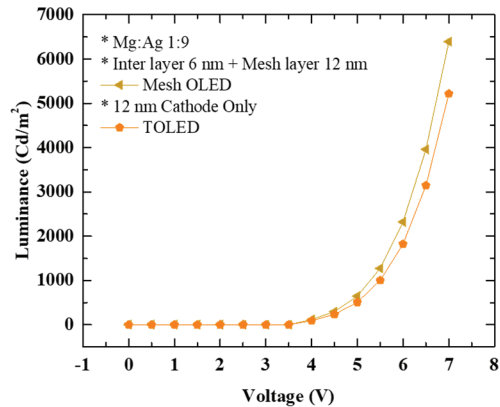


Fig. 6. Luminance vs voltage graph of TOLED and mesh TOLED.

4. 결 론

본 실험에서는 TOLED의 투과도와 발광 특성을 개선하기 위한 새로운 방식의 접근을 시도하였다. Mesh 형태의 pattern을 가진 전극을 매우 얇은 cathode용 전극에 추가 증착하여 별도의 에칭과 포토 리소그래피등의 공정을 하지 않는 간단한 방법의 개선법을 소개하였다. 이때, 투명 유기발광 소자의 발광 특성을 최대 23%까지 개선시키며 투과도 또한 전체적으로 약 16% 개선하였다. 또한 전류를 특정 부분으로 집중적으로 입력하는 메커니즘을 확인하여 OLED 소자에서의 전극 전류 주입 특성 또한 21%가량 개선하였다.

본 논문을 통해 소개된 mesh TOLED 소자는 새로운 방식의 투명 유기 발광 다이오드 소자로 투명 디스플레이 산업 시장에서 탁월한 역할을 할 것으로 기대된다.

감사의 글

본 성과는 정부(과학기술정보통신부)의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행된 연구임(No. NRF-2022R1A2C1003076).

참고문헌

1. Y. Jeon, H.-R. Choi, J. H. Kwon, S. Choi, K. M. Nam, K.-C. Park and K. C. Choi, "Sandwich-structure transferable free-form OLEDs for wearable and disposable skin wound photomedicine," *Light: Science & Applications*, vol. 8, no. 1, pp. 114, 2019.
2. J. Tae Lim, H. Lee, H. Cho, B.-H. Kwon, N. Sung Cho, B. Kuk Lee, J. Park, J. Kim, J.-H. Han, J.-H. Yang, B.-G. Yu, C.-S. Hwang, S. Chu Lim and J.-I. Lee, "Flexion bonding transfer of multilayered graphene as a top electrode in transparent organic light-emitting diodes," *Scientific Reports*, vol. 5, no. 1, pp. 17748, 2015.
3. M. Zhang, S. Höfle, J. Czolk, A. Mertens and A. Colsmann, "All-solution processed transparent organic light emitting diodes," *Nanoscale*, vol. 7, no. 47, pp. 20009-20014, 2015.
4. K. S. Yook, S. O. Jeon, C. W. Joo and J. Y. Lee, "Transparent organic light emitting diodes using a multilayer oxide as a low resistance transparent cathode," *Applied Physics Letters*, vol. 93, no. 1, 2008.
5. H. Chae, Y. Park, Y. Jo, Y. Jeon, H. J. Lee, S. Yoo and K. C. Choi, "Blue Transparent OLEDs with High Stability and Transmittance for Modulating Sleep Disorders," *Advanced Materials Interfaces*, vol. 10, no. 11, pp. 2202443, 2023.
6. H. L. Hortensius, E. F. C. Driessen, T. M. Klapwijk, K. Berggren and J. R. Clem, "Critical-current reduction in thin superconducting wires due to current crowding," *Applied Physics Letters*, vol. 100, no. 18, 2012.
7. A. V. Zinovchuk, O. Y. Malyutenko, V. K. Malyutenko, A. D. Podoltsev and A. A. Vilisov, "The effect of current crowding on the heat and light pattern in high-power AlGaAs light emitting diodes," *Journal of Applied Physics*, vol. 104, no. 3, 2008.
8. I. Y. Evstratov, V. F. Mymrin, S. Y. Karpov and Y. N. Makarov, "Current crowding effects on blue LED operation," *physica status solidi c*, vol. 3, no. 6, pp. 1645-1648, 2006.
9. J. Greener, K. C. Ng, K. M. Vaeth and T. M. Smith, "Moisture permeability through multilayered barrier films as applied to flexible OLED display," *Journal of Applied Polymer Science*, vol. 106, no. 5, pp. 3534-3542, 2007.
10. D. Lee, E.-S. Cho, Y. Jeon and S. J. Kwon, "Characterization of the material and electrical properties depending on the Mg:Ag ratio as a cathode for TEOLED," *Materials Chemistry and Physics*, vol. 303, pp. 127742, 2023.

접수일: 2024년 5월 31일, 심사일: 2024년 6월 12일,
 게재확정일: 2024년 6월 21일