



&lt;연구논문&gt;

한국표면공학회지  
J. Kor. Inst. Surf. Eng.  
Vol. 47, No. 3, 2014.

<http://dx.doi.org/10.5695/JKISE.2014.47.3.099>

## SiN<sub>x</sub>와 금속막을 이용한 플렉시블 OLED 봉지 방법

이효선, 주성후\*

대전대학교 신소재공학과

### Encapsulation Method of Flexible OLED Using SiN<sub>x</sub> and Metal Film

Hyoee Sun Lee, Sung-Hoo Ju\*

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

(Received June 9, 2014 ; revised June 18, 2014 ; accepted June 26, 2014)

#### Abstract

The encapsulation method of flexible organic light emitting devices (OLEDs) was investigated for the structure of ITO / 2-TNATA / NPB / Alq<sub>3</sub> : Rubrene (1 vol.%) / Alq<sub>3</sub> / LiF / Al / Alq<sub>3</sub> / LiF / Al (OLED #1), on which SiN<sub>x</sub> thin film was deposited and metal film was attached to protect the damage of OLED from oxygen and moisture. The SiN<sub>x</sub> thin film was deposited by plasma enhanced chemical vapor deposition (PECVD) method using SiH<sub>4</sub> of 20 sccm and N<sub>2</sub> of 15~35 sccm as reactor gases. The optimum SiN<sub>x</sub> deposition condition was found to be 20 sccm SiH<sub>4</sub> and 20 sccm N<sub>2</sub> from the Ca test of the fabricated SiN<sub>x</sub> thin film. The life time of OLED #1, OLED #1 / SiN<sub>x</sub> 200 nm, OLED #1 / SiN<sub>x</sub> 400 nm and OLED #1 / SiN<sub>x</sub> 400 nm / metal film was 7, 12, 25, and 45 hours, respectively. In conclusion, it has been shown that the lifetime of OLEDs can be improved more than 6 times by SiN<sub>x</sub> film and a metal film encapsulation.

*Keywords:* OLED, Encapsulation, Flexible, SiN<sub>x</sub>, Metal film

## 1. 서 론

최근 스마트폰, 태블릿 PC의 수요가 급증하고 있어 디스플레이의 중요성이 날로 커져가고 있다. 그러나 현재의 디스플레이 소자들은 유리 기판을 사용하기 때문에 깨지기 쉽고, 변형이 불가능하다는 단점이 있다. 플렉시블 디스플레이는 평판 디스플레이를 뛰어넘는 차세대 디스플레이로서 휘거나, 구부리거나, 말아도 디스플레이의 특성이 변하지 않는 것이 특징이다. 또한, 플라스틱, 초박형 유리, 금속 호일 등을 기판으로 사용함으로써 초경량의 특징이 있다<sup>1,2)</sup>.

OLED (Organic light emitting diode)는 시야각이 넓고 대조비가 우수하여 시인성이 뛰어나다는 장점과 함께 간단한 공정으로 플렉시블 기판을 사용할 수 있어 플렉시블 디스플레이로 가장 적합한 기술

이다<sup>3,4)</sup>. 그러나 대기 중의 수분이나 산소에 의한 OLED의 열화를 방지하기 위한 일반적인 봉지 방법으로는 플렉시블 디스플레이에 적용할 수 없다. 따라서 박막을 이용한 봉지 연구 및 필름, 금속시트를 사용하여 소자를 외부로부터 물리적이거나 화학적인 요인에 의한 손상을 막아주는 봉지 기술이 필요하다<sup>5,6)</sup>.

본 논문에서는 플렉시블 OLED의 봉지 방법을 연구하기 위하여 Alq<sub>3</sub>에 Rubrene을 1 vol.% 도핑한 ITO / 2-TNATA / NPB / Alq<sub>3</sub>:Rubrene / Alq<sub>3</sub> / LiF / Al 구조의 OLED를 제작하였고, 소자의 봉지를 위하여 음극 Al 위에 유기박막 (Alq<sub>3</sub>), 무기박막 (LiF) 과 금속박막 (Al)을 열증착법 (Evaporation)으로 증착하고 SiN<sub>x</sub> 박막을 PECVD (Plasma Enhanced Chemical Vapor Deposition)로 증착한 후 금속 필름을 부착하였다. 제작된 소자는 전류-전압-발광휘도 (I-V-L)와 수명을 측정하였다.

\*Corresponding author. E-mail : sunhooju@daejin.ac.kr

## 2. 실험 방법

OLED는  $30 \Omega/\square$ 의 저항을 가지는 ITO(Indium Tin Oxide)가 증착된 PES (Polyether Sulfone) 기판을 사용하여 사진 식각과정에 의하여 양극전극의 패턴을 형성하고, 산소분위기에서  $5 \times 10^{-1}$  torr의 조건으로 플라즈마 처리를 하였다. 이후  $5 \times 10^{-7}$  torr 까지 배기한 후 유기물과 LiF, Al을 증착하였다.

그림 1은 유·무기 다층 보호막을 증착하고 금속판을 부착한 플렉시블 OLED의 구조를 나타낸 것이다. 플렉시블 OLED를 제작하기 위하여 ITO가 증착된 PES 기판을 사용하여 ITO/2-TNATA {4,4',4"-Tris(2-naphthylphenyl amino)}, 50 nm / NPB {N,N'-bis-(1-naphyl)-N,N'-diphenyl-1,1'-biphenyl-4,4'-diamine}, 30 nm / Alq<sub>3</sub> {Aluminum tris(8-hydroxyquinoline)} : Rubrene {(5,6,11,12)-Tetraphenyl-naphthacene}, 30 nm, 1 vol.% / Alq<sub>3</sub>, 30 nm / LiF, 0.7 nm / Al, 200 nm 구조의 OLED를 제작하고, 그 위에 보호층으로 Alq<sub>3</sub> (150 nm) / LiF (150 nm) / Al (600 nm) / SiN<sub>x</sub> (400 nm)를 증착하였다. SiN<sub>x</sub> 박막은 PECVD 방법으로 SiH<sub>4</sub>와 N<sub>2</sub> 가스를 사용하여 형성하였다. N<sub>2</sub> 가스의 유량을 변화시켜 형성한 SiN<sub>x</sub> 막의 특성을 측정하여

Metal Sheet
SiN <sub>x</sub> (400 nm)
Al (600 nm)
LiF (150 nm)
Alq <sub>3</sub> (150 nm)
Al (200 nm)
LiF (0.7 nm)
Alq <sub>3</sub> (30 nm)
Alq <sub>3</sub> :Rubrene (30 nm, 1 vol.%)
NPB (30 nm)
2-TNATA (50 nm)
ITO
PES

Fig. 1. Structure of flexible OLED encapsulated using SiN<sub>x</sub> and metal film.

최적 조건의 보호막인 SiN<sub>x</sub>를 형성하였다. 이후 금속 필름을 라미네이션 방법으로 부착하였다.

표 1은 제작한 플렉시블 OLED #1 ~ 4 소자의 봉지 구조에 대하여 나타낸 것이다.

OLED의 발광을 위하여 양극인 ITO에 (+) 전압을 인가하고 음극인 Al에 (-) 전압을 인가하는 전원 인가 장치로 Keithley의 2400 Source Meter를 사용하여 전압과 전류를 인가하였고, OLED에서 발광된 휘도는 Photo Research사의 PR-650을 사용하여 측정하였다. OLED의 수명은 JYS Co., Ltd의 OLED Life Time Tester를 사용하여 전원을 인가하고 변화하는 휘도를 측정하였다. 또한, 정확한 수명 특성을 비교하기 위하여 항온항습기를 사용하여 동일한 습도와 온도 조건에서 수명을 측정하였다. OLED Life Time Tester는 장착되는 소자의 초기 휘도를 상대적인 값으로 인식하고 시간에 따라서 변화하는 휘도를 %로 측정하기 때문에 기준이 되는 초기휘도를 1,000 cd/m<sup>2</sup>로 설정하였다.

## 3. 결과 및 고찰

그림 2는 SiN<sub>x</sub> 박막 형성 조건을 최적화하기 위하여 SiN<sub>x</sub> 박막 형성 조건으로 SiH<sub>4</sub>의 유량을 20 sccm으로 고정하고 N<sub>2</sub>의 유량을 15, 20, 25, 30, 35 sccm으로 증착한 SiN<sub>x</sub>의 구성 성분을 EDS (Energy Dispersive X-ray Spectroscopy)로 측정한 결과를 나타낸 것이다. N<sub>2</sub>의 유량을 15, 20, 25, 30, 35 sccm로 증가시킬 때 (Si+N) 원자에 대한 N 원자의 량이다. N<sub>2</sub>의 유량이 15 sccm이었을 때 SiN<sub>x</sub>에서 N이 차지하는 원자는 4 at.%를 나타내었으나, 20 sccm의 경우 6.3 at.%로 N의 함량이 급격히 증가하였고, 25 sccm의 경우 6.5 at.%, 30 sccm의 경우 7.1 at.%, 35 sccm의 경우 7.7 at.%로 N<sub>2</sub>의 유량이 증가함에 따라 SiN<sub>x</sub>에서 N이 차지하는 비율도 지속적으로 증가하는 것을 알 수 있었다.

그림 3은 SiN<sub>x</sub> 박막 증착 조건에 따른 투습도 특성을 조사하기 위하여 ITO 위에 열 증착방법으로 Ca (150 nm)과 전극으로 Al을 증착하고 그 위에 SiN<sub>x</sub> 박막을 150 nm 증착한 후 시간 경과에 따른

Table 1. Encapsulation structure of flexible OLEDs.

Sample	Encapsulation structure
OLED #1	OLED / Alq <sub>3</sub> (150 nm) / LiF (150 nm) / Al (600 nm)
OLED #2	OLED / Alq <sub>3</sub> (150 nm) / LiF (150 nm) / Al (600 nm) / SiN <sub>x</sub> (200 nm)
OLED #3	OLED / Alq <sub>3</sub> (150 nm) / LiF (150 nm) / Al (600 nm) / SiN <sub>x</sub> (400 nm)
OLED #4	OLED / Alq <sub>3</sub> (150 nm) / LiF (150 nm) / Al (600 nm) / SiN <sub>x</sub> (400 nm) / metal film

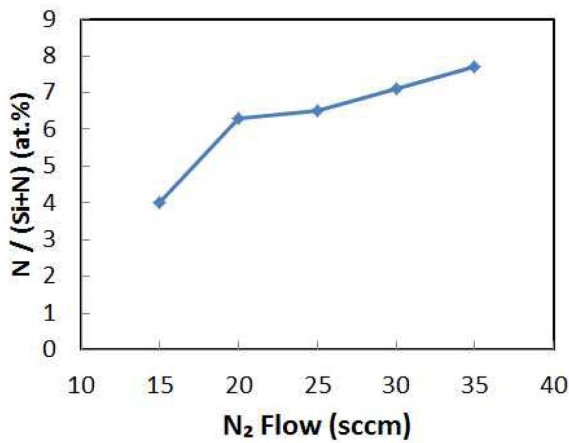


Fig. 2. Atomic percent of N/(Si+N) of the SiN<sub>x</sub> thin films with different N<sub>2</sub> flows.

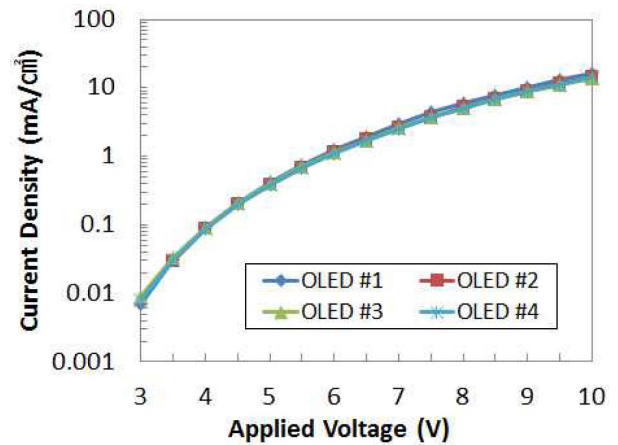


Fig. 4. Current density vs. applied voltage of OLEDs with different encapsulation methods.

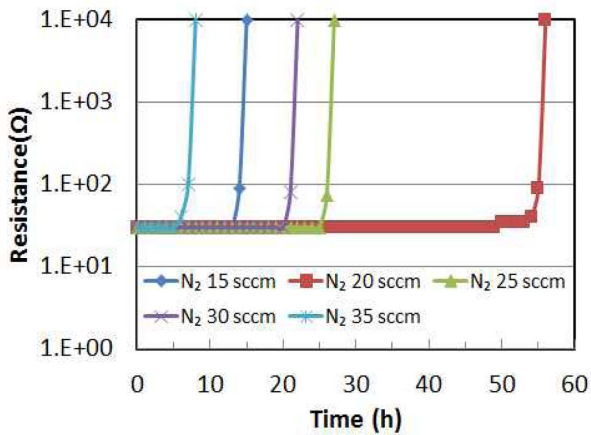


Fig. 3. Resistance of calcium vs. time of SiN<sub>x</sub> thin films with different N<sub>2</sub> flows.

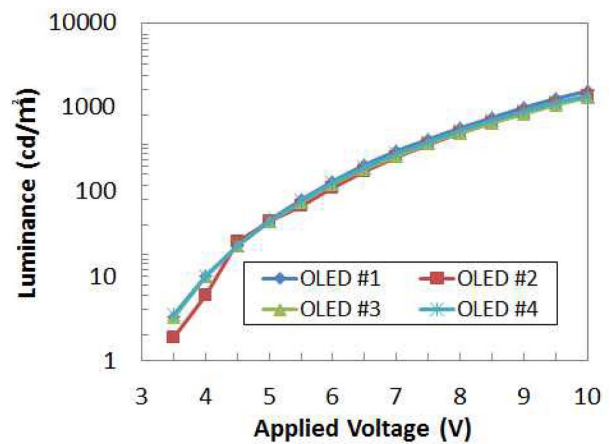


Fig. 5. Luminance vs. applied voltage of OLEDs with different encapsulation methods.

저항을 측정하는 것이다. SiN<sub>x</sub> 박막은 PECVD 방법으로 SiH<sub>4</sub>의 유량을 20 sccm으로 고정하고 N<sub>2</sub> 유량을 15, 20, 25, 30, 35 sccm으로 변화시켜 증착하였다. N<sub>2</sub>의 유량이 15 sccm인 경우 13시간, 20 sccm인 경우 54시간, 25 sccm인 경우 25시간, 30 sccm인 경우 20시간, 35 sccm인 경우 6시간이 경과한 후에 저항이 급격하게 증가하였다. 일정 시간이 경과한 후에 저항이 급격하게 증가하는 것은 Ca 위에 증착된 SiN<sub>x</sub> 박막을 통과한 산소나 수분이 전도체인 Ca과 결합함으로써 절연체인 CaO를 형성하게 되어 나타난 현상이다. 따라서 SiN<sub>x</sub> 박막 증착 조건으로 SiH<sub>4</sub> 20 sccm과 N<sub>2</sub> 20 sccm의 반응가스 비율에서 형성된 SiN<sub>x</sub>가 가장 치밀한 박막을 형성하게 되어 산소와 수분을 가장 잘 차단할 수 있는 결과를 나타내었다.

그림 4는 유무기 다층 박막을 적용한 플렉시블 OLED의 인가전압에 대한 전류밀도를 나타낸 것으로 인가전압이 증가함에 따라 전류밀도는 모든 경우에 급격하게 증가하는 경향을 나타내었다. Alq<sub>3</sub>

(150 nm) / LiF (150 nm) / Al (600 nm)의 보호막을 형성한 플렉시블 OLED (OLED #1)의 인가전압 6 V에서 전류밀도는 1.23 mA/cm<sup>2</sup>, Alq<sub>3</sub> (150 nm) / LiF (150 nm) / Al (600 nm) / SiN<sub>x</sub> (200 nm)의 보호막을 형성한 플렉시블 OLED (OLED #2)의 인가전압 6 V에서 전류밀도는 1.14 mA/cm<sup>2</sup>, Alq<sub>3</sub> (150 nm) / LiF (150 nm) / Al (600 nm) / SiN<sub>x</sub> (400 nm)의 보호막을 형성한 플렉시블 OLED (OLED #3)의 인가전압 6 V에서 전류밀도는 1.13 mA/cm<sup>2</sup>, Alq<sub>3</sub> (150 nm) / LiF (150 nm) / Al (600 nm) / SiN<sub>x</sub> (400 nm)의 보호막을 형성한 후 소자에서 발생하는 열을 외부로 방출할 수 있고, 소자의 유연성을 유지할 수 있으며, 봉지 특성이 우수한 금속 필름을 부착한 플렉시블 OLED (OLED #4)의 인가전압 6 V에서 전류밀도는 1.11 mA/cm<sup>2</sup>를 나타내었다. 인가전압에 대한 전류밀도에서 봉지방법에 따른 OLED #1~4는 오차범위 내의 유사한 결과를 나타내어 봉지방법에 따른 OLED 소자의 특성에는 영향이 없는 것으로 판단된다.

그림 5는 유무기 다층 박막을 적용한 플렉시블

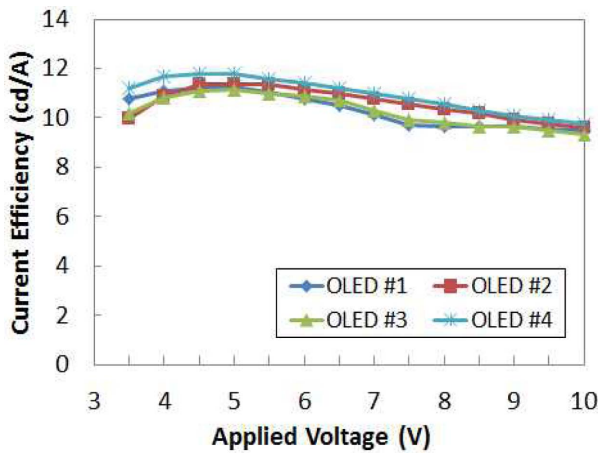


Fig. 6. Current efficiency vs. applied voltage of OLEDs with different encapsulation methods.

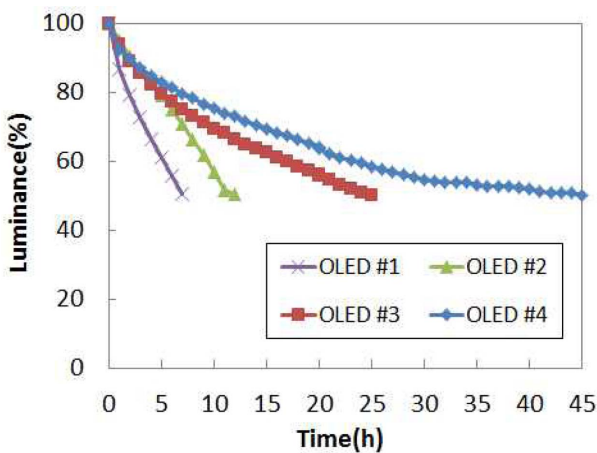


Fig. 7. Luminance vs. time of OLEDs with different encapsulation methods.

OLED의 인가전압에 대한 발광휘도를 나타낸 것으로 인가전압이 증가함에 따라 발광휘도는 모든 경우에 급격히 증가하는 경향을 나타내었다.  $\text{Alq}_3/\text{LiF}/\text{Al}$ 의 보호막을 형성한 플렉시블 OLED (OLED #1)의 인가전압 6V에서 발광휘도는  $133 \text{ cd/m}^2$ ,  $\text{Alq}_3/\text{LiF}/\text{Al}/\text{SiN}_x$  (200 nm)의 보호막을 형성한 플렉시블 OLED (OLED #2)의 인가전압 6V에서 발광휘도는  $110 \text{ cd/m}^2$ ,  $\text{Alq}_3/\text{LiF}/\text{Al}/\text{SiN}_x$  (400 nm)의 보호막을 형성한 플렉시블 OLED (OLED #3)의 인가전압 6V에서 발광휘도는  $123 \text{ cd/m}^2$ ,  $\text{Alq}_3/\text{LiF}/\text{Al}/\text{SiN}_x$  (400 nm)의 보호막을 형성한 후 금속 필름을 부착한 플렉시블 OLED (OLED #4)의 인가전압 6V에서 발광휘도는  $126 \text{ cd/m}^2$ 를 나타내었다.

그림 6은 유무기 다층 박막을 적용한 플렉시블 OLED의 인가전압에 대한 전류효율을 나타낸 것이다. 인가전압 6V에서의 전류효율을 보면 플렉시블 OLED에 기본 봉지 박막만 적용한 OLED #1의 경우  $10.8 \text{ cd/A}$ , 기본 봉지 박막에  $\text{SiN}_x$  박막을 200 nm

적층한 OLED #2는  $11.1 \text{ cd/A}$ , 기본 봉지 박막에  $\text{SiN}_x$  박막을 400 nm 적층한 OLED #3는  $10.9 \text{ cd/A}$ , 기본 봉지 박막에  $\text{SiN}_x$  박막을 400 nm 적층하고 금속시트를 부착시킨 OLED #4는  $11.4 \text{ cd/A}$ 를 나타내었다. 전류효율에서는 금속시트를 부착시킨 소자에서 가장 높은 효율을 나타내었다. 이는 금속시트에서의 광 반사로 인하여 효율 증가가 나타난 것으로 판단된다.

그림 7은 유무기 다층 박막을 적용한 플렉시블 OLED의 시간 경과에 따른 발광휘도의 변화를 나타낸 것으로 초기 휘도를  $1,000 \text{ cd/m}^2$ 로 설정하고 OLED Life Time Tester를 사용하여 시간에 따라 변화하는 휘도를 %로 측정하였다. 플렉시블 소자에 기본 봉지 박막을 적용한 OLED #1은 7시간이 경과한 후에 발광휘도가 50%까지 감소하였다. 플렉시블 OLED에 기본 봉지 박막을 성막하고  $\text{SiN}_x$ 를 200 nm 적층한 OLED #2는 12시간, 기본 봉지 박막 위에  $\text{SiN}_x$ 를 400 nm 적층한 OLED #3은 25시간, 기본 봉지 박막 위에  $\text{SiN}_x$ 를 400 nm 적층하고 그 위에 금속시트를 부착시킨 OLED #4는 45시간이 경과한 후에 발광휘도가 50%로 감소하였다. 이 결과에서  $\text{SiN}_x$ 를 400 nm 적층함으로써 소자의 수명을 3배 이상 향상시킬 수 있고, 또한 금속시트를 사용하면  $\text{SiN}_x$ 를 400 nm 적층한 소자보다도 약 2배 정도의 수명이 증가하여  $\text{SiN}_x$  박막과 금속시트의 부착에 의하여 유연성을 유지하고 수명이 6배 이상 향상된 OLED의 제작이 가능함을 확인할 수 있었다. 따라서 유무기 다층 봉지 박막과 금속시트가 플렉시블 OLED의 수명에 큰 영향을 주는 것을 알 수 있다.

## 4. 결 론

플렉시블 OLED의 수명 향상을 위하여 보호막으로 사용되는  $\text{SiN}_x$  박막을 PECVD 방법으로 제작하였다.  $\text{SiN}_x$  박막 형성 조건을 최적화하기 위하여  $\text{SiH}_4$ 의 유량을 20 sccm으로 고정하고  $\text{N}_2$ 의 유량을 15, 20, 25, 30, 35 sccm으로 변화시켜 제작한 박막에 대하여 Ca 테스트를 실시한 결과  $\text{SiH}_4$  20 sccm과  $\text{N}_2$  20 sccm에서 산소와 수분을 차단할 수 있는 최적의 특성을 나타내는 것을 확인하였다.

유무기 다층 박막을 적용한 플렉시블 OLED의 인가전압에 대한 전류밀도를 측정된 결과 봉지방법에 따른 OLED #1~4는 오차범위 내의 유사한 결과를 나타내어 봉지방법에 따른 OLED 특성의 영향은 없는 것으로 판단되었다. 인가전압에 대한 전류효율은 금속시트를 부착시킨 소자에서 가장 높은 효

율을 나타내었다. 이는 금속시트에서의 광 반사로 인하여 효율 증가가 나타난 것으로 판단된다.

유무기 다층 박막을 적용한 플렉시블 OLED의 시간 경과에 따른 발광휘도의 변화로 측정한 OLED의 반감 수명은 플렉시블 소자에 기본 봉지 박막을 적용한 OLED #1은 7시간, SiN<sub>x</sub>를 200 nm 적층한 OLED #2는 12시간, SiN<sub>x</sub>를 400 nm 적층한 OLED #3은 25시간, SiN<sub>x</sub>를 400 nm 적층하고 그 위에 금속시트를 부착시킨 OLED #4는 45시간을 나타내어 SiN<sub>x</sub>를 400 nm 적층함으로써 소자의 수명을 3배 이상 향상시킬 수 있고, 또한 금속시트를 부착하면 SiN<sub>x</sub>를 400 nm 적층한 소자보다도 약 2배 정도의 수명이 증가하여 SiN<sub>x</sub> 박막과 금속시트의 부착에 의하여 유연성을 유지하고 수명을 6배 이상 향상시킨

OLED의 제작이 가능함을 확인할 수 있었다.

## REFERENCES

1. P. L. Chang, C. C. Wu, H. J. Leu, *Displays*, 33 (2012) 68.
2. O. J. An, S. H. Ju, J. W. Yang, *Kor. Inst. Surf. Eng.*, 43 (2010) 272.
3. S. Ummartyotin, J. Juntaro, M. Sain, H. Manuspiya, *Industrial Crops and Products*, 35 (2012) 92.
4. H. H. Yu, S. J. Hwang, K. C. Hwang, *Optics Communications*, 248 (2005) 51.
5. A. R. Cho, E. H. Kim, S. Y. Park, L. S. Park, *Synthetic Metals*, 193 (2014) 77.
6. S. Y. Lim, J. H. Seo, S. H. Ju, *J. KIEEME*, 26 (2013) 539.