



미세액적의 표면에너지 제어를 통한 박막 제조 공정에 대한 연구

서영호¹, 손기현*²

A NUMERICAL STUDY ON A THIN FILM MANUFACTURING PROCESS USING THE CONTROL OF SURFACE ENERGY OF A MICRODROPLET

Y. Suh¹ and G. Son*²

Numerical simulation is performed for microdroplet deposition on a pre-patterned micro-structure. The level-set method for tracking the liquid-gas interface is extended to treat the immersed (or irregular-shaped) solid surface. The no-slip condition at the fluid-solid interface as well as the matching conditions at the liquid-gas interface is accurately imposed by incorporating the ghost fluid approach based on a sharp-interface representation. The method is further extended to treat the contact angle condition at an immersed solid surface. The present computation of a patterning process using microdroplet ejection demonstrates that the multiphase characteristics between the liquid-gas-solid phases can be used to improve the patterning accuracy.

Key Words : 미세액적분사(Microdroplet Ejection), 박막 제조 공정(Thin-film manufacturing process), Level set 방법(Level set method), 자기정렬기법(Self-Alignment technique)

1. 서 론

미세 액적을 이용한 패터닝 기술은 잉크젯과 같은 미세노즐로 피코 리터 단위의 잉크를 분사하는 매우 유용한 비접촉식 기술로 분사된 액적은 기판위에 충돌하여 미세 구조물을 채우게 되고 건조과정을 거쳐 박막의 패턴을 형성하게 된다. 이러한 패터닝 기술은 기존 패터닝 공정의 기반은 리포그래피 방식보다 공정이 단순하며 재료 소모율이 적어 제조원가를 낮출 수 있는 장점이 있다. 이러한 장점으로 인하여 잉크젯을 이용한 패터닝 기술은 액정디스플레이(LCD)의 컬러 필터를 비롯하여 DNA 마이크로어레이, 유기 TFT 장치, 마이크로 전자기판 그리고 마이크로 렌즈 제작 등 많은 분야에서 응용되고 있다[1,2]. 잉크젯 프린팅을 이용한 패터닝 공정에 가장 중요한 것은 정확한 위치에 정확한 폭과 두께의 패턴을 만드는 것이다. 하지만 기존의 잉크젯 패터닝 기술에서는 Fig. 1(a)와 같이 잉크젯 노즐 위치 제어 및 잉크젯 장비의 이동에

따른 분사 오차 등으로 패터닝 오차를 가지게 되며 결과적으로 Fig. 1(b)와 같이 원하지 않는 패턴이 형성되게 된다. 패턴 오차를 극복하고 정교한 패터닝 공정을 구현하기 위해서는 벽면 충돌에 의한 미세액적의 변형과 분열 및 액적과 홈 또는 미세구조물과의 상호작용 등의 매우 짧고 작은 크기에서 일어나는 복잡한 현상에 대한 이해가 필수적이다.

최근 DNA 칩 등의 제조 공정에서 패터닝 오차를 극복하고 정밀도를 높이는 방법으로 미세액적의 자기정렬(Self alignment) 기법이 제시되고 있다[3]. 자기정렬 기법이란 기판의 표면에너지 차이를 이용하여 액적을 원하는 위치로 이동시키는 방법이다. Fig. 2와 같이 액적이 안착되는 표면을 친수성으로 하고 나머지를 소수성으로 처리하면 액적이 소수성 표면에 떨어지더라도 표면장력의 특성에 의해 친수성 표면으로 이동하는 원리를 이용한 것이다.

본 연구에서는 미세구조물이 있는 벽면에서 미세액적의 충돌현상을 해석할 수 있는 수치기법을 개발하였다. 상경계면을 추적하는 방법으로 표면장력을 효과적으로 계산할 수 있는 LS(Level Set) 방법을 바탕으로 상경계면의 조건을 보다 정확하게 적용할 수 있는 sharp-interface 모델링 기법[4,5]과 격자점과 일치하지 않는 미세구조물 형상을 고려하는 수치기법을

1 서강대학교 기계공학과

2 정희원, 서강대학교 기계공학과

* Corresponding author, E-mail: gihun@sogang.ac.kr

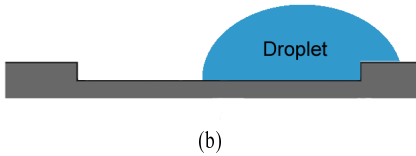
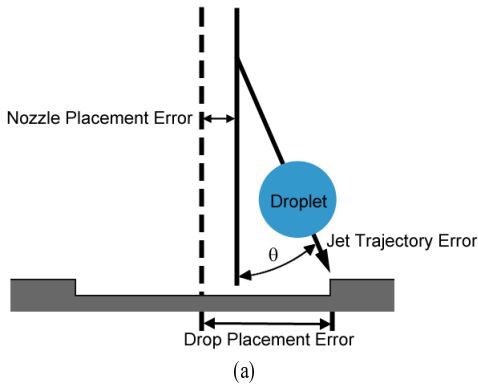


Fig. 1 Schematic diagram of inkjet patterning process: (a) droplet placement error and (b) undesired droplet deposition

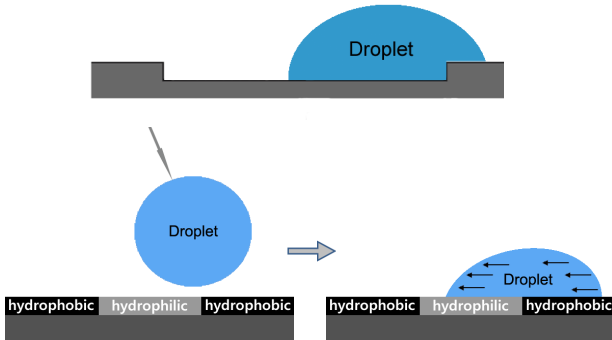


Fig. 2 Schematic of self aligned droplet motion

결합하였다. 이를 이용하여 액적의 속도 그리고 액적과 기판 및 미세구조물의 접촉각 변화에 따른 박막 패턴 형성과정을 해석하였다 또한, 기판의 표면에너지 변화를 통하여 박막 제조 공정에서 정밀도 향상을 위한 자기정렬 기법의 적용 가능성을 분석하는 연구를 수행하였다.

2. 수치해석방법

본 연구에서 사용된 수치해석 방법은 Son과 Dhir[6]의

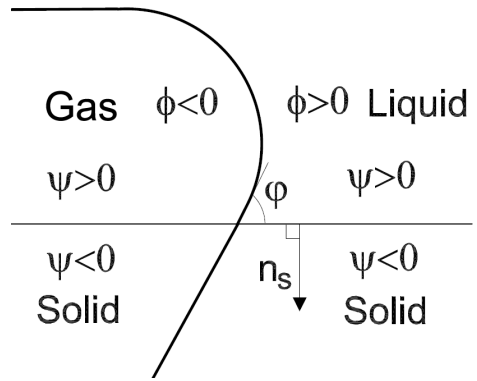


Fig. 3 Extension of LS function into a solid region

sharp-interface 구현을 위한 LS 방법을 기반으로 하였다. 기체-액체의 상경계면은 기상에서 음의 값, 액상에서 양의 값을 가지는 거리함수로 정의된 LS 함수에 의해 계산된다. 기상, 액상 영역 모두에 적용될 수 있는 운동량 및 질량 보존식과 LS 함수 ϕ 를 지배하는 방정식은 다음과 같이 표현된다.

$$\nabla \cdot \mathbf{u} = 0 \tag{1}$$

$$\rho \frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t} = -\nabla p + \nabla \cdot \mu \nabla \mathbf{u} + \mathbf{f} \tag{2}$$

$$\frac{\partial \phi}{\partial t} = -\mathbf{u} \cdot \nabla \phi \tag{3}$$

여기서,

$$\begin{aligned} \mathbf{f} &= -\rho \mathbf{u} \cdot \nabla \mathbf{u} + \rho \mathbf{g} - \sigma \kappa \nabla H_\phi + \nabla \cdot \mu (\nabla \mathbf{u})^T \\ H_\phi &= 1 \quad \text{if } \phi > 0 \\ &= 0 \quad \text{if } \phi \leq 0 \\ \kappa &= \nabla \cdot \nabla \phi / |\nabla \phi| \\ \rho &= \rho_g (1 - F_\phi) + \rho_l F_\phi \\ \mu^{-1} &= \mu_g^{-1} (1 - F_\phi) + \mu_l^{-1} F_\phi \end{aligned}$$

위의 식에서 α_ϕ 액상-기상을 구분하는 불연속적인 계단 함수이며, 상경계면의 곡률(κ)은 거리 함수로 정의된 연속적인 LS함수로부터 계산된다. 또한 밀도 및 점도의 계산에 사용된 F_ϕ 는 효과적인 물성치 계산을 위하여 다음과 같이 도입하였다.

$$\begin{aligned} F_\phi &= 1 \quad \text{if } H_\phi(\phi_A) = H_\phi(\phi_B) = 1 \\ &= 0 \quad \text{if } H_\phi(\phi_A) = H_\phi(\phi_B) = 0 \\ &= \frac{\max(\phi_A, \phi_B)}{\max(\phi_A, \phi_B) - \min(\phi_A, \phi_B)} \quad \text{otherwise} \end{aligned}$$

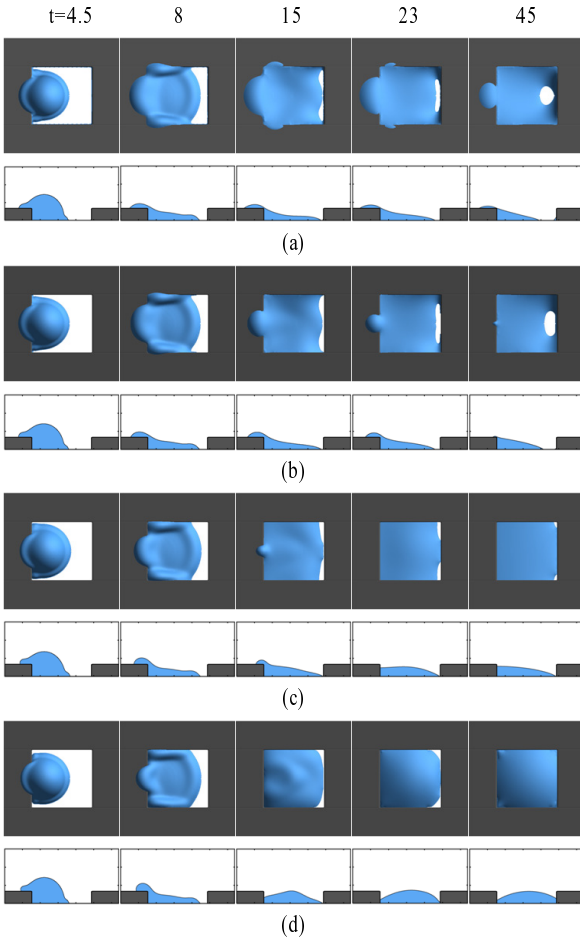


Fig. 4 Effect of contact angle of cavity wall on droplet motion with droplet placement error for $D=30$: (a) $\varphi_w = 30^\circ$, (b) $\varphi_w = 60^\circ$, (c) $\varphi_w = 90^\circ$ and (d) $\varphi_w = 120^\circ$.

여기서 하점자 A, B는 F의 계산 지점에 근접한 두 격자점을 나타낸다.

상경계면($\phi = 0$)은 식 (3)에 의해 결정되지만, α_ϕ 와 κ 를 정확하게 계산하기 위해서는 LS 함수를 거리함수($|\nabla\phi|=1$)가 되도록 식 (4)를 사용하여 보정하는 것이 바람직하다.

$$\frac{\partial\phi}{\partial\tau} = S(1-|\nabla\phi|) \tag{4}$$

여기서,

$$S = 0 \quad \text{if } |\phi| \leq h/2 \tag{5}$$

$$= \frac{\phi_0}{\sqrt{\phi_0^2 + h^2}} \quad \text{otherwise}$$

h 는 격자 간격이며, τ 는 식 (4)의 우변이 상경계면 주위에서 0이 될 때까지 계산하는 반복단계를 의미한다.

또한 격자점과 일치하지 않는 불규칙한 고체면을 고려하기 위하여 Fig. 3에 표시된 것처럼 고체영역에서는 음의 값, 유체영역에서 양의 값을 갖는 또 다른 거리함수 ψ 를 도입하였다. 또한 액상-고상을 구분하는 H_ψ 를 도입하였으며 유체영역에서 정의된 식 (1-2)는 다음과 같이 고체를 포함하는 전체영역으로 확장될 수 있다.

$$\rho \frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t} = -H_\psi \nabla p + \nabla \cdot \frac{\mu}{F_\psi} \nabla \mathbf{u} + H_\psi \mathbf{f} \quad \text{if } \psi > 0$$

$$\mathbf{u} = 0 \quad \text{if } \psi \leq 0$$

고체영역에서의 접촉각 조건을 고려하기 위하여 LS 이류 방정식은 다음과 같이 수정하였다.

$$\frac{\partial \phi}{\partial t} = -\mathbf{u} \cdot \nabla \phi \quad \text{if } \psi > 0$$

$$\mathbf{n}_s \cdot \nabla \phi = \cos \varphi \quad \text{if } \psi = 0$$

여기서 \mathbf{n}_s 는 고체영역으로 향하는 단위벡터이며 $-\nabla\psi/|\nabla\psi|$ 로 얻을 수 있다.

3. 계산 결과 및 검토

잉크젯을 이용한 박막 패터닝 공정에서 발생하는 액적분사 오차를 줄이는 방안으로, 본 연구에서는 미세구조물의 표면에 너지, 즉 접촉각을 변화시켜 패터닝 오차를 극복하는 자기정렬 기법의 가능성에 대해 살펴보았다. 수치 해석에 사용된 액적의 물성치는 $\rho_l = 1020 \text{ kg/m}^3$, $\mu_l = 1.31 \times 10^{-3} \text{ Pa} \cdot \text{s}$, $\sigma = 0.045 \text{ N/m}$ 이며, 모든 계산에서 $l_0 = 1 \mu\text{m}$ 와 $t_0 = 1 \mu\text{s}$ 를 대표 값으로 하여 지배방정식을 무차원화 하였다.

Fig. 4는 중심으로부터 15의 거리만큼 이동된 곳에 액적을 충돌시켰을 경우 구조물 또는 측벽의 접촉각이 액적 거동에 미치는 영향에 대해 해석한 결과이다. 분사된 액적의 직경은 30이며 분사속도는 $8l_0/t_0$ 이다. 접촉각이 30°, 60°인 Figs. 4(a), 4(b)의 경우, 분사된 액적은 분사오차로 인하여 측벽을 이루는 구조물에 먼저 충돌하게 되며 충돌 후 기판과 구조물 모두에서 넓게 퍼지게 된다. 액적의 많은 부분은 홈을 채우지만 구조물이 접촉각이 작은 친수성 표면이기 때문에 수축과정에서 일부분이 구조물 위에 그대로 남아 있는 것을 볼 수 있다. 또한 시간이 지남에 따라 가운데 홈을 채운 액막이 얇아져서 $t = 23$ 이후에는 바닥면이 보이는 공동이 생기게 되는 것을 관찰할 수가 있다. $\varphi_w = 90^\circ$ 인 경우 구조물 위에 충돌한 액

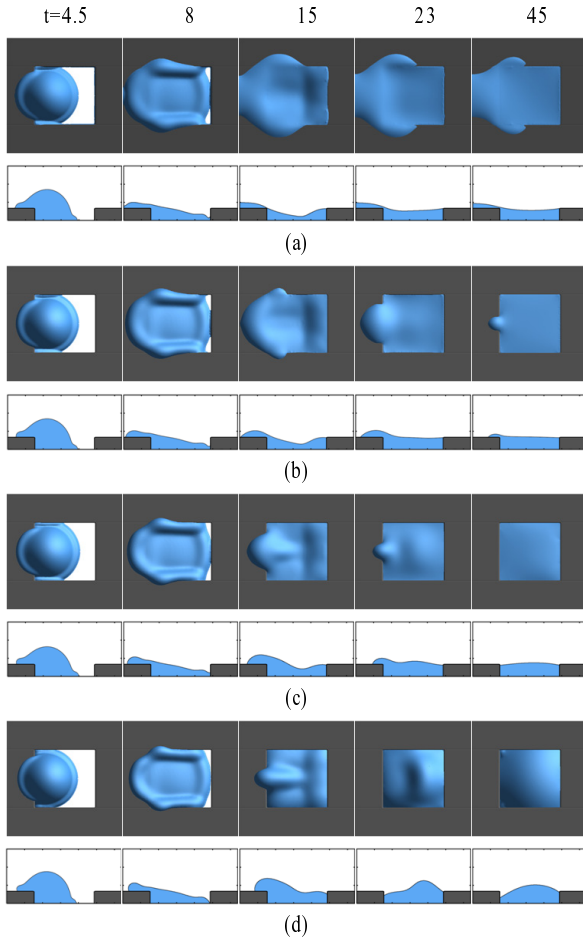


Fig. 5 Effect of contact angle of cavity wall on droplet motion with droplet placement error for $D=36$: (a) $\varphi_w = 30^\circ$, (b) $\varphi_w = 60^\circ$, (c) $\varphi_w = 90^\circ$ and (d) $\varphi_w = 120^\circ$

적은 구조물위에서 잘 퍼지지 않게 되고 충돌관성에 의하여 구조물 안으로 모두 이동하는 것을 볼 수가 있다. 하지만 액적은 충돌한 벽면에서 접촉각을 만족시키기 위하여 벽면에 붙어있게 되어 반대편 벽면 방향으로 이동이 제한된다. 결국은 Fig. 4(c)에서 보는 것과 같이 액적이 충돌한 부분의 반대편 바닥면에 충전되지 못한 부분이 발생한다. 미세구조물의 접촉각이 $\varphi_w = 120^\circ$ 인 경우 대부분의 액적이 구조물 안으로 채워지는 것을 볼 수가 있다. 또한 이 경우도 액적은 충돌한 벽면에서 접촉각을 만족시키기 위하여 벽면에 붙어있게 되지만 접촉각이 크기 때문에 벽면과의 상경계면과의 접점이 $\varphi_w = 90^\circ$ 보다 아래로 내려오게 된다. 결과적으로 반대편 벽면으로 이동되는 액적의 양이 증가되어 상대적으로 평탄한 패턴을 형성하게 됨을 볼 수가 있다. 이 결과로부터 홈의 충전량보다 체적이 작은 액적을 분사할 때 분사 오차가 있으면,

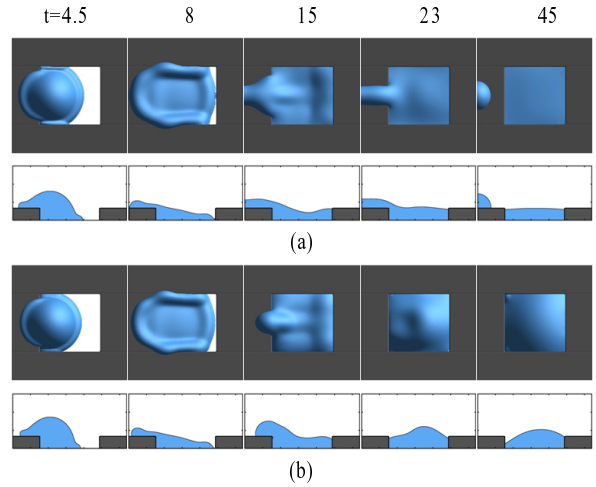


Fig. 6 Effect of contact angle of cavity wall on droplet motion with droplet placement errors : (a) $\varphi_w = 90^\circ$ and (b) $\varphi_w = 120^\circ$

벽면의 접촉각이 90° 이하일 경우에는 홈을 완전히 채우지 못하고 비어있는 부분이 발생하게 된다. 그러나 벽면의 접촉각을 120° 로 증가시키면 패턴의 평탄도 측면에서는 완벽하지는 않지만 홈을 빈곳 없이 채울 수 있음을 볼 수 있다.

Fig. 5는 액적의 직경이 36으로 액적의 부피가 구조물에 의한 홈의 부피와 같을 경우, 액적의 충돌 거동을 해석한 결과이다. $\varphi_w = 30^\circ$ 인 경우 충돌 후 액적의 일부분이 구조물 위에 그대로 남아 있는 것을 볼 수 있다. 액적의 부피가 증가되었기 때문에 바닥면에 채워지지 않고 비어있는 부분이 생기는 현상을 발생하지 않았다. 접촉각이 60° 인 경우 또한 충돌한 액적의 일부분이 작은 양이지만 구조물 위에 남아 있는 것을 볼 수가 있다. 그러나 벽면의 접촉각을 90° 로 증가시키는 경우 충돌한 액적은 구조물 위에서 잘 퍼지지 않게 되고 구조물에 의한 홈 안으로 모두 들어오는 것을 볼 수가 있으며 결과적으로 평탄도 측면에서 우수한 패턴을 형성하게 된다. $\varphi_w = 120^\circ$ 의 경우에도 구조물 위로 잘 퍼지지 않기 때문에 충돌한 액적 모두 홈 안쪽으로 들어오게 되는 것을 볼 수가 있지만, 홈 안으로 들어온 액적은 벽면과의 접촉각을 유지하기 위하여 Fig. 5(d)와 같이 가운데가 볼록한 액막을 형성하게 되는 것을 볼 수가 있다. Fig. 5로부터 홈의 부피와 액적의 양이 비슷한 경우 벽면의 접촉각이 90° 이상인 경우 분사 오차를 극복할 수 있음을 확인하였다. 그러나 벽면 접촉각이 90° 일 경우 평탄도가 우수한 액막을 형성하게 되지만 그 이상일 경우 가운데가 볼록한 액막을 하기 때문에 액막의 평탄도 확보를 벽면의 접촉각을 90° 로 유지하는 것이 바람직하다.

Fig. 6은 직경이 36인 액적을 중심으로부터 17만큼 떨어진 곳에 액적을 충돌시킨 경우 액적의 충돌 및 충전 현상을 관

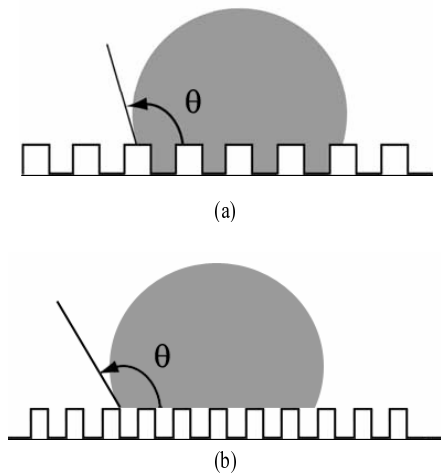


Fig. 7 Drop on a textured surface: (a) Wenzel state and (b) Cassie state

찰한 결과이다. $\varphi_w = 90^\circ$ 인 경우 Fig. 6(c) 보다 분사오차가 더 크기 때문에 액적은 충돌 후 벽면위로 더 많이 퍼지게 되고 결과적으로 액적의 일부분이 벽면위에 남는 현상이 생기는 것을 볼 수가 있다. 반면 벽면의 접촉각을 120° 로 증가시켰을 경우 액적은 충돌 후 벽면 위에서 많이 퍼지지 않게 되어 결과적으로 홈 안으로 모두 들어오게 되는 것을 볼 수가 있다. 이 결과로부터 분사오차가 다소 큰 경우 벽면의 접촉각을 증가시키면 분사오차를 어느 정도 극복할 수 있지만 액막의 평탄도 확보에는 어려움이 있다. 따라서 평탄한 액막 형성을 위해서는 분사오차가 15이하가 되도록 하는 것이 바람직하다.

표면에너지를 변화시키는데 가장 많이 사용되는 방법은 서로 다른 물질로 코팅을 하는 것으로 기관에 서로 다른 접촉각을 갖는 표면을 생성한다. 최근에 Fig. 7과 같은 소수성의 미세 돌기 형상의 구조물을 표면에 설치함으로써 표면에너지를 변화시키는 기법에 대한 연구가 진행되고 있다. 액적의 특성과 구조물의 크기 및 형상에 따라 Fig. 7(a)와 같이 액적이 미세 구조물 사이로 스며들거나(Wenzel 상태) Fig. 7(b)와 같이 액적이 구조물 위로만 있게 되는데(Cassie 상태), 액적은 Wenzel 상태에서 친수성 표면에서의 거동을 보이며 Cassie 상태의 경우 소수성 표면에서의 거동을 보인다. 최근 미세 돌기형 구조물의 간격을 조정함으로써 표면에너지 변화를 통하여 액적의 거동을 제어하여 패터닝 공정에서 오차를 개선하는 연구가 진행되고 있다[7,8]. Fig. 8은 오른쪽으로 갈수록 미세 구조물의 폭을 점점 줄어뜨리게 하여 구조물간의 간격을 넓게 만든 기관 위에 액적을 충돌시켰을 경우 액적의 거동을 나타낸 것이다. 계산에 사용된 액적의 반경은 15×10^2 이며 충돌

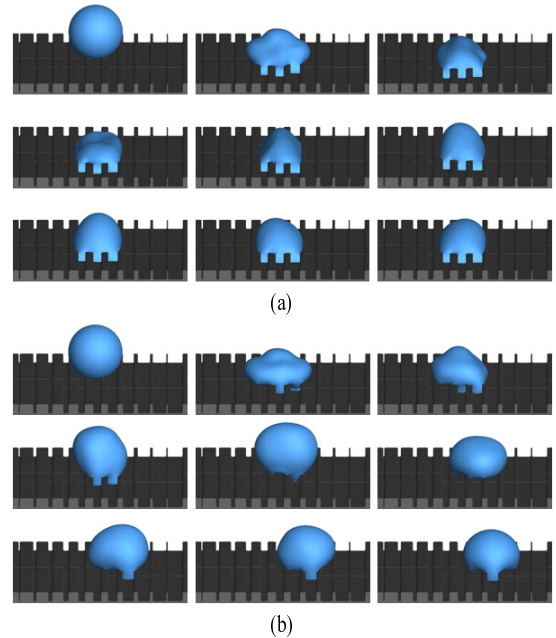


Fig. 8 Effect of contact angle drop motion on the textured surface : (a) $\varphi_w = 60^\circ$ and (b) $\varphi_w = 120^\circ$.

속도는 $0.2l_o/t_o$ 이다. Fig. 8(a)은 기관 및 구조물의 접촉각을 60° 로 하였을 경우 액적의 충돌 계산한 결과이다. 분사된 액적은 구조물위에 충돌하게 되며, 이때 구조물은 접촉각이 작은 친수성 표면이기 때문에 구조물간의 간격과 상관없이 액적은 구조물 사이로 스며들게 되어 이동하지 않고 제자리에서 진동하는 것을 볼 수가 있다. 그러나 Fig. 8(b)와 같이 구조물의 접촉각이 120° 로 증가시킬 경우 액적은 구조물위에 충돌 후 충돌 관성에 의하여 퍼지게 되는데 이때 구조물의 간격이 넓은 부분에서는 접촉각에 의한 표면장력의 효과 보다 충돌에 의한 관성 및 체적력의 증가로 인하여 액적의 구조물 사이로 스며들게 된다. 하지만 구조물의 간격이 좁은 부분에서는 상대적으로 접촉각에 의한 표면장력 효과로 인하여 액적은 스며들지 않게 되는 것을 볼 수가 있다. 시간이 지남에 따라 퍼진 액적은 점성 및 표면장력의 영향으로 다시 모이게 되는데, 이때 구조물 사이로 스며들지 않은 부분은 쉽게 움직일 수 있는 반면 구조물 사이로 스며든 부분은 쉽게 움직일 수 없게 되어, 결과적으로 액적은 오른쪽으로 이동하게 되는 것을 볼 수가 있다.

5. 결론

본 연구에서는 Level Set 방법을 바탕으로 액상과 기상뿐만 아니라 불규칙한 형상의 고체를 해석할 수 있는 수치기법을



개발하여 미세액적을 이용한 박막 패터닝 공정에 대한 수치적 연구를 수행하였다. 해석 결과로부터 잉크젯을 이용한 박막 패터닝 공정에서 미세구조물의 접촉각을 변화시킴으로 패터닝 오차를 개선할 수 있음을 확인할 수 있었다. 계산 결과로부터 액적의 체적이 홈의 체적 보다 작은 경우 미세구조물의 접촉각을 120°로 할 때 잉크젯의 분사오차를 개선할 수 있음을 확인하였다. 반면 액적의 체적이 홈의 체적과 비슷하면 벽면의 접촉각을 90°에서 분사오차를 개선할 수 있음을 확인하였다. 또한 소수성의 미세 구조물을 표면에 설치함으로써 충돌면의 표면에너지 변화를 이용하여 액적의 거동을 변화시킬 수 있음을 볼 수 있었다.

참고문헌

- [1] 1998, Percin, G., Lundgren, T.S. and Khuri-Yakub, B.T., "Controlled Ink-jet Printing and Deposition of Organic Polymers and Solid Particles," *Appl. Phys. Lett.*, Vol.73, pp.2375-2377.
- [2] 2002, Chen. C.T., "Micro-fabrication of Color Filter for Liquid Crystal Display by Inkjet-based Method," *Proc. SPIE.*, Vol.4928, pp.77-84.
- [3] 2004, Yu, C., Lin, M., Hu, Y., Fu, T. and Chou, H., "Self-Alignment Optical Detection System for Droplet Based Biochemical Reactions," *Proceeding of IEEE Sensors 2004 Conference*, Vienna, Austria, pp.1206-1209.
- [4] 1999, Fedkiw, R.P., Aslam, T., Merriman, B. and Osher, S., "A Non-oscillatory Eulerian approach to Interfaces in Multimaterial Flows (the Ghost Fluid Method)," *J. Comput. Phys.*, Vol.152, pp.457-492.
- [5] 2007, Sussman, M., Smith, K.M., Hussaini, M.Y., Ohta, M. and Zhi-Wei, R., "A Sharp Interface Method for Incompressible Two-phase Flows," *J. Comput. Phys.*, Vol.221, pp.469-505.
- [6] 2007, Son, G. and Dhir. V.K., "A Level Set Method for Analysis of Film Boiling on an Immersed Solid Surface," *Numer. Heat Transfer B*, Vol.52, pp.153-177.
- [7] 2006, Shastry, A., Case, M.J. and Böhringer, K.F., "Directing Droplets Using Microstructured Surfaces," *Lanmuir*, Vol.22, pp.6161-6167.
- [8] 2007, Mermoud, G., Fakhfouri, V., Martinoli, A. and Brugger, J., "Towards Smart Substrates for Controlling Micrometric Droplet Motion," *FNANO07*, p. SWIS-CONF-2007-007.