

롤투롤공정에 의한 미세패턴 프린팅/전사용 소재와 플렉시블 전자소자에의 응용

진 병 두 (한국과학기술연구원 재료연구본부 에너지재료연구단)

I. 서 론

효율적이고 빠르게 디스플레이/전자소자의 기능층을 인쇄할 수 있는 Inkjet 및 Roll Printer 등의 단위 장비 공정 기술과 소재가 개발되면, 이후 플렉시블 기판을 사용하여 보다 효율적이고 저가격의 디스플레이와 유연 전자회로 소자를 생산할 수 있는 공정기술이 web-based roll-to-roll(롤투롤)기술이다. IT용 소재에 Roll-to-Roll 공정이 적용된다는 것은, 기존 인쇄 매체를 대량으로 제작하던 방법을 디스플레이 제조 공정에 적용함으로써 process capability 측면에서의 혁신적 기술 진보가 가능하다는 것을 의미한다. 현재까지 산업적으로 중요한 디스플레이용 패턴 제조/공정기술은 크게 수십 마이크로미터 단위의 화소패턴, 서브마이크로-수 마이크로미터 단위의 구동소자 및 회로패턴(thin film transistor를 비롯한), 그리고 barrier/격벽, spacer, 광학적 반복단위 패턴 등 경우에 따라 수백나노미터 스케일의 반복구조가 필요한 경우 등으로 구분할 수 있다. 이 중 나노/마이크로 임프린팅을 제외한 롤투롤 프린팅 기술에 의해서는 현재 약 30 μ m 정도 해상도의 패턴의 구현까지 가능한데 이러한 패턴기술의 정밀도를 높이기 위해서는 롤투롤 프린팅 방식(gravure, offset, flexography등)에 적합하도록 상기의 디스플레이 및 (플렉시블) 전자부품용 소재를 개발하는 일이 매우 중요하다. 신규 화학소재의 개발 및 화학적/물리적 특성최적화, 유리 및 플라스틱 전자부품용 기판과의 상호작용 현상 조절 등이 이에 해당된다. 좀더 세부적으로 기술하면, 롤(roll)을 사용하는 방식의 프린터를 사용한 직접 프린팅 기술 이외에도 패턴이 기 형성되어 있는 필름이나 구조가 형상화 되어 있는 필름을 제조하여 롤투롤 공정으로 기판에 전사(lamination)하여 원하는 패턴을 형성하는 기술, 유기소자의 성능을 저하시키지 않으면서 필름 상에 패턴 및 봉지재를 형성하는 기술, 패턴의 전사정밀도 향상 기술 및 계면 접착 조절 기술 등이 핵심 원천기술로 분류될 수 있다.

현재의 평판디스플레이용 공정기술은 대부분 액정 디스플레이 분야를 중심으로 상업화를 전제로 한 원가절감을 위한

연구개발이 진행되고 있다. 대면적 기판에서의 비정질 실리콘 박막트랜지스터 제작기술, 칼라필터 어레이 형성기술 등이 대표적인 대상이며, 각각의 단계에서 생산원가 절감, 고효율화를 위해 리소그래피법을 프린팅 기술로 대체하려는 연구 개발 수요가 급증하고 있다. 이들 direct/indirect printing 기술은 sheet-type 디스플레이 패널의 원가절감 등 저가격/고효율화 효과 뿐만 아니라 플렉시블 기판에 인쇄형 소자를 제작하는 데 있어서 꼭 필요한 공정기술인 web based roll-to-roll 생산 방식과 융합될 경우 process capability 측면에서의 혁신적 기술 진보와 미래지향적 부가가치 창출이 가능하다. 현재 플렉시블 디스플레이 소자의 제작공정에서 printing 기술 부분이 갖는 중요성 및 핵심성은 매우 높으며, 유연기판에 구현할 수 있는 LCD, OLED를 위한 다양한 소재가 개발되고 있기 때문에 롤투롤 공정을 위한 핵심소재가 성공적으로 개발되면 디스플레이/인쇄 전자 부품소재 및 패널 제조 공정기술에 대한 국내 산업기술의 경쟁력은 더욱 강화될 것으로 보인다. 현재 추진되는 플렉시블 디스플레이, RFID, 태양전지 등 차세대 디스플레이 및 정보전자용 인쇄소자 제작을 위한 선도적 기술 개발을 위해서는 LCD용 printable component, 유기박막트랜지스터, 유기EL, 유기태양전지/센서 등의 유기/인쇄 전자소자 printing 기술과 이의 연속 생산기술인 Roll-to-Roll 공정기술에 가장 집중적인 투자가 이루어져야 할 것으로 전망된다.^[1]

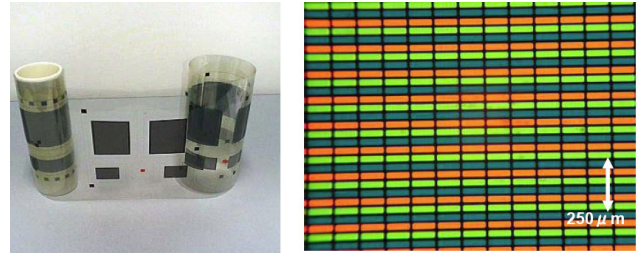
II. 롤투롤 공정에 의한 패턴인쇄 및 전사 기술 동향

평판(Flat panel) 디스플레이의 화소 구조 제조공정에서 roll to roll printing을 활용하기 위한 기술개발이 활발하며, 제조 공정상에 필요한 마이크로 패턴(pattern)을 기판에 형성시키거나, 연속적으로 박막을 기판상에 코팅하기 위한 소재 및 공정기술 등이 그 대상이 된다. RGB stripe의 컬러필터나 블랙 매트릭스 등을 마이크로 스케일의 stripe

기반 형상으로 패턴하거나, over-coating 층의 roll 방식 printer에 의한 형성, TFT 기판과 칼라필터 기판의 정확한 간격 유지를 위한 spacer층의 도포 등에 roll coating, roll printing, roll 방식 laminating을 적용하는 기술을 예로 들 수 있다. 또한 LCD 이외의 디스플레이, 즉 RGB 방식이나 white OLED 등에서의 화소구조 패턴 역시 최대 정밀도 $10\mu\text{m}$ 패턴폭 수준의 기능성 유기재료를 사용한 박막패턴을 필요로 하고, 유기박막 태양전지 등의 active layer coating 및 모듈 구조에서의 pattern printing 등도 유사한 패턴기술/박막코팅기술이 적용되므로 gravure, flexo printing 등의 기법에 적합한 유기전자소재의 개발 및 이의 roll to roll printing 기술로서 향후 플렉시블 전자 디스플레이 소자의 본격적인 제조기술 발전에 꼭 필요하다고 할 수 있다. 이러한 Roll 방식의 printer의 경우 공정상 용이하게 유연기판 상에 연속적으로 박막이나 RGB 패턴을 형성할 수 있다.^[2] 현재 개발/상용화 연구가 진행중인 Flexible display, RFID Tag, E-paper, 태양 전지 등의 Printed Electronics 제품을 그라비아, 플렉소, 스크린 등의 접착 인쇄 방식 또는 ESD 등의 비접착 인쇄 방식으로 저가, 대량 생산하기 위한 공정 및 장비기술의 개발로 기존 공정의 일부를 인쇄 방식으로 대체하여 생산원가를 절감하고 공정수를 줄이기 위한 소재, 공정 및 장비 기술이 산업적으로 가장 중요한 issue가 될 것이다.

1. 디스플레이 공정 적용기술

일본의 Toppan사 및 Dai Nippon Printing사 등 2개 회사가 세계 칼라 필터 시장의 60% 이상을 장악, Sumitomo Chemical, Toyo Ink, Toray, Sanyo, Kyocera, Nitto Paint, STI Technology, Micro 기술연구소 등이 후발주자로 참여하고 있다. 이중 Dai Nippon Printing사는 샤프의 LCD-TV 전용라인에 공급될 칼라필터 라인을 늘릴 예정이다. LCD용 컬러 필터의 제조에는 이미 잉크젯법이 활용되고 있다. FPD 시장에서는 치열한 가격 경쟁에 의해 비용 절감이 요구되고 있는데, 시장 규모가 크기 때문에 대형 투자가 필요하고 인쇄법, 잉크젯법 등 새로운 제조 기술의 연구개발이 필요하다. 잉크젯법에 의해 제작된 액정 디스플레이(LCD)의 컬러 필터, 배향막, 스페이서 등은 이미 실용화 단계에 있으며, 앞으로 롤투롤 프린팅에 더욱 적용이 용이한 gravure, flexo 등의 프린팅 방법에 의한 칼라필터 인쇄기법이 상용화되면 생산단가를 더욱 낮출수 있을 것이다. 2004년 이후 일본의 LCD panel maker의 연구조합인 Technology Research Association for Advanced Display Materials(TARDIM)에서는 롤투롤 프린팅방식의 칼라필터 및 백라이트 유닛을 발표하였다.^[3] 낮은 thermal expansion coefficient를 갖는, 새로운 이방성 광학필름을 사용한 200ppi급 color filter의 사진을 [그림 1]에 나타내었다. 일반적으로 LCD에 쓰이는 칼라필터의 두께가 0.5-0.7mm인데 반해 TARDIM에서 발표한 칼라필터의 두께는 0.12mm이며 7세대기판 ($1870\times 2200\text{mm}$)급의 glass



[그림 1] Multiple imposed 200ppi Color Filter on the flexible substrate^[4, 5]

기판을 사용하는 LCD 공정에 적용할 수 있다.^[4]

플렉시블 기판에의 롤투롤 공정을 대상으로 한 연구단계 뿐 아니라 유리기판에의 Color Filter용 R.G.B. 인쇄 분야에서도 Sharp 등 TFT-LCD Maker 및 Toppan, Mitsumura 등과 같은 Color Filter 전문 Maker를 중심으로 소형 Size에서는 상용화가 되었고 현재는 대형 Size용 장비 개발에 박차를 가하고 있음. 특히 Mitsubishi에서는 R.G.B. 및 Black Matrix를 동시에 인쇄하는 장비를 개발 완료하여 현장에 적용하고 있다. TFT-LCD용 Spacer 등을 Roll Printing 기술로 인쇄하는 연구도 활발히 진행되고 있으며, 현재 가장 상용화되어 양산에 적용되고 있는 분야는 배향막 인쇄 분야로 TFT-LCD를 제작하는 모든 Maker에서 적용하고 있다.

핀란드의 벤처기업인 Modilis Ltd.는 액정 패널이나 키패드의 백라이트용으로, 두께 $75\mu\text{m}$ 의 얇은 도광판을 제조하는 기술을 개발했다고 밝혔다. 플렉시블 기판 상에, 주기가 $1\mu\text{m}$ 정도, 높이가 수백 nm인 렌즈 형상을 만들어 놓은 금형을 압착하는 임프린트 기술을 사용하여, 도광판을 롤투롤 방식으로 형성하는 기술이다. 도광판을 사출 성형으로 제작하는 경우에 비해 도광판의 두께를 얇게 할 수 있을 뿐만 아니라, 렌즈 형상의 자유도가 높기 때문에 원하는 광학 특성을 확보하기 쉽다. 또한 롤투롤 공정으로 연속적인 도광판 제조가 가능하기 때문에 수율이 높다는 것이 특징이다. 두께 $75\mu\text{m}\sim 500\mu\text{m}$ 의 플렉시블 기판을 이용한다는 것을 전제로 하고 있다.

일본의 브릿지스톤은 독자적으로 개발한 전자분류체를 봉입하여 RGBW의 4색 컬러필터를 통해 4096색 컬러를 표시할 수 있는 컬러 전자종이를 개발하였다^[6]. FPD International 2007에서 전시함. [그림 2] (a). 전자분류(粉流)체라고 불리는 독자적인 재료를 이용하였고, 공기 중에서 입자를 이동시키는 방식이기 때문에, 응답 속도가 0.2ms로 매우 빠르다는 것이 특징이다. [그림 2] (b)에 보인 방식의 전자종이에서는, 필름 기판을 사용하기 때문에 롤투롤 방식의 연속 생산을 목표로 하고 있다. 2007년 전시한 패널은 연속 생산으로 제조되지는 않았지만, 현재 브릿지스톤의 기술 센터가 소재한 도쿄 코히라시의 센터 안에 장치를 반입하여 롤투롤 생산 체계를 구축하고 있다고 발표하고 있다.

Roll-to-roll printing을 이용(Gravure 방식)한 OLED 발광 소자의 제작은 2003년 3th ICED 학회에서 미국 아리조나대학의 Ghassan E. Jabbour교수에 의해 처음 보고되



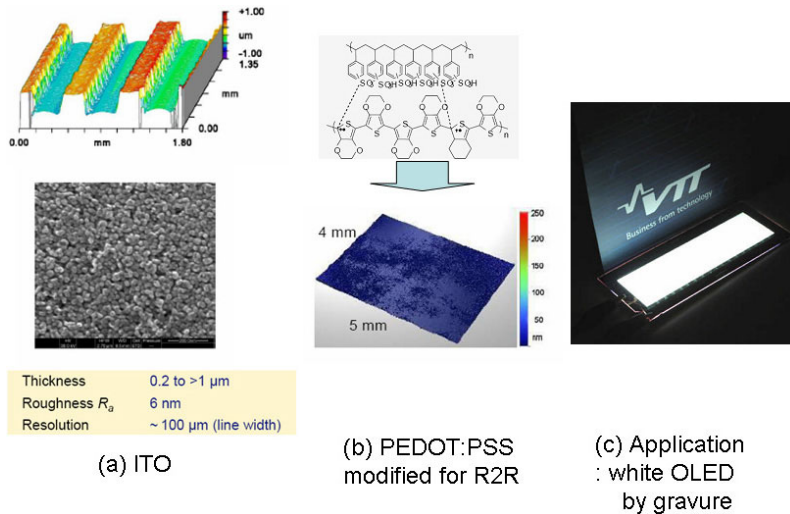
[그림 2] (a) 브릿지스톤이 개발한 세계 최대급 A3 사이즈의 풀컬러 전자종이 (b) 두께 0.29mm의 플렉시블 컬러 전자종이

있으며, 핀란드의 국립기술연구소인 VTT에서도 Gravure 방식에 의해 OLED 소자를 제작하는 연구를 수행하고 있다. 여기서 Gravure roll의 cell depth는 3.0-4.5 μ m 정도로서 깊이에 따라 코팅되는 유기막의 두께 및 소자의 특성이 크게 차이가 난다고 보고하고 있으며, 전극의 경우에도 aluminum particle를 사용한 잉크 printing을 시도하여 1.00 Ω /cm 정도의 특성을 얻었다. EU 지원의 Rolled project: VTT/CSEM/INM/UPM/Hansprint/Ciba specialty chemicals/PolyIC GmbH 등이 참여하여, 독일, 프

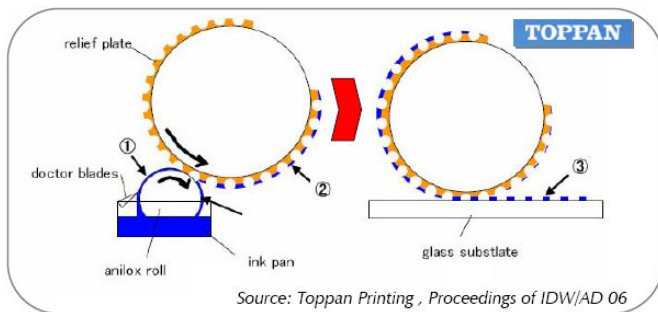
랑스 연구기관/업체들과의 공동연구를 수행하고 있다.

대일본인쇄(Dai Nippon Printing) 및 Toppan Printing에서는 roll printing에 의해 제작된 OLED panel을 발표하였다. 대일본인쇄의 경우 산소 및 수분투과도가 0.005 cc(g)/m²/day 이하인 polyester substrate/multilayer barrier film 기판을 사용하였고, 이 위에 transparent electrode를 sputtering 한 후 80nm의 PEDOT:PSS, 100nm의 발광 고분자, 10nm의 칼슘, 200nm의 silver 전극을 차례로 gravure coating/증착한 후 laminating film 방식의 봉지기술을 적용하였다.^[7] Toppan Printing에서 제작, 전시한 OLED([그림 4])는 70ppi resolution (>200 ppi 이상도 가능), 360mm pixel pitch, 4% 이내의 유기막 두께 편차 및 3% 이내의 휘도균일성을 보인다고 보고하였다.

롤투를 공정과 함께 적용되어 발표되지는 않았으나, 기술적으로 롤투를 공정에 가장 적용하기 용이한 공법은 Laser transfer patterning 방법^[8]으로, 3M과 삼성SDI에 의하여 LCD의 칼라 필터 전사법으로 개발되었으나, 현재 OLED의 대면적(4세대 이상)의 저분자 유기EL소자의 개발을 목적으로 칼라패턴 방법에 적용하기 위한 연구 개발이 활발히 이루어지고 있다 유기반도체 소자의 패턴공정에는 Du Pont,



[그림 3] Roll to roll, gravure printing 방식을 이용한 OLED 소자의 제작



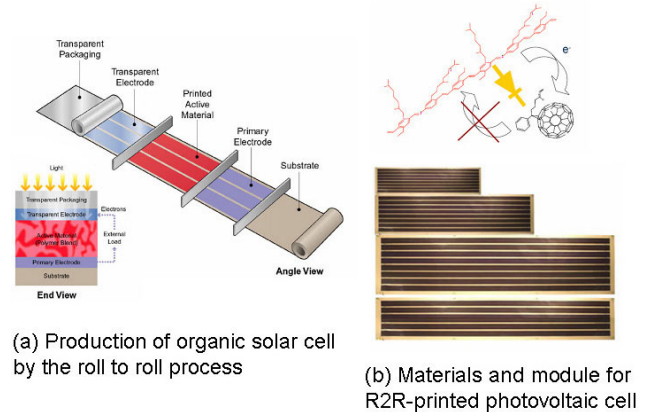
[그림 4] Roll printing 법에 의한 OLED pixel 형성법 및 prototype device

Sarnoff, Creo 등의 미국/캐나다 업계의 연구소를 중심으로 유기반도체소자의 활성층 물질과 gate, source, drain 전극용 conducting polymer를 laser pattern법으로 전사/프린팅하는 연구가 진행되고 있다. Donor 필름으로부터 기판의 pixel상으로 전사가 이루어지며, $5\mu\text{m}$ 의 pixel 해상도 및 250pixel에 해당되는 폭의 패턴 전사 구현이 발표되었는데,^[9] 이러한 고체-고체 전사(dry patterning)의 장점은 유기용제의 오염 없이 고해상도, 다층박막의 패턴이 가능하다는 장점이 있다. 고해상도의 전사 품질을 위해서는 전사물질의 기판, 필름, 물질간의 접착력 및 cohesion의 조절이 필요하다.

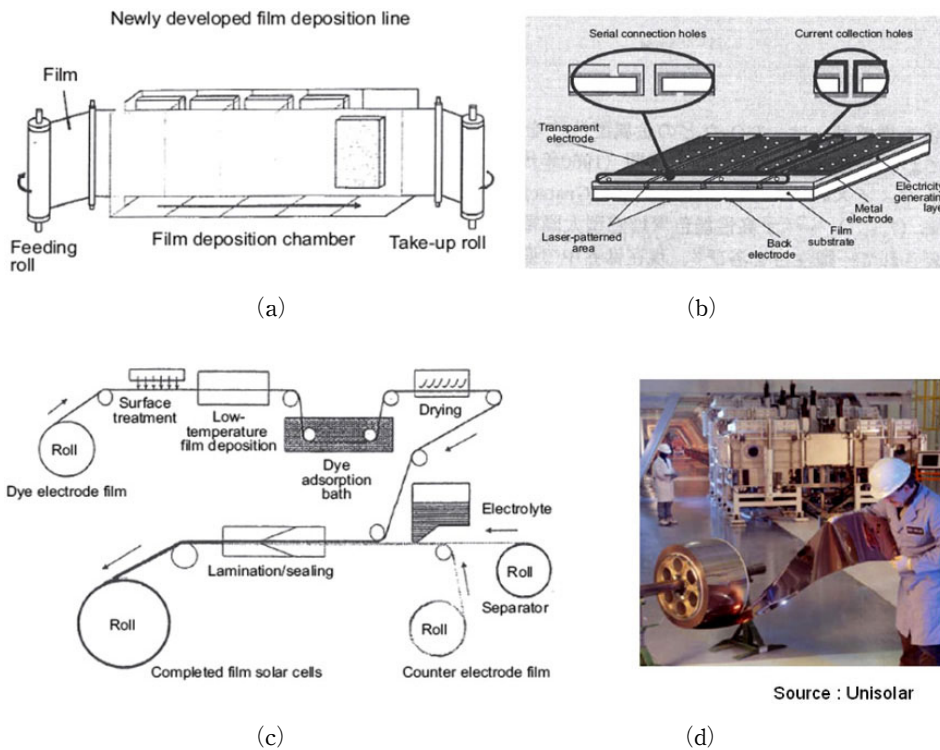
2. 플렉시블 태양전지 공정기술

플렉시블 기판을 이용한 유기태양전지(flexible organic photovoltaic device, [그림 5]) 연구는 미국/오스트리아 등에 기반을 둔 Konarka Technology사, 독일의 Siemens 사, U.C. 산타 바바라의 A. Heeger 교수 그룹, 네덜란드의 아인트호벤 대학 등에서 꾸준히 이루어지고 있으며, poly(3-hexylthiophene) (P3HT)/[6,6]-phenyl-C61-butyrac acid methyl ester(PCBM)의 donor/acceptor 고분자 블렌드를 사용한 유기태양전지의 경우 단위 소자인 spin-coating법으로 제작된 소자의 특성은 현재 앞서 언급한 선진국의 연구 그룹이 5%대를 상회하는 결과를 발표한 바 있다. 또한 롤투롤 공정에 의해 만들어진 thin film solar cell의 모듈을 전시하고 있으나 이의 효율, 생산단가 및 가시적

인 사업화 가능성 등은 아직 발표하지 않고 있다. 일본, 유럽 등에서 활발하게 연구개발 및 상용화 준비가 이루어지고 있는 염료감응형태양전지(Dye-sensitized solar cell) 및 비정질 실리콘 박막태양전지의 소자 제작기술에도 roll to roll process 기술 적용이 추진되고 있다.^[4] Plastic film 기반의 Series Connection through Aperture formed on Film(SCAF) 구조의 비정질 실리콘 박막태양전지와 flexible 염료감응 태양전지의 roll to roll 공정 개념도를 [그림 6]에 보였다.^[10-12]



[그림 5] Organic photovoltaic device의 roll to roll 공정 적용 및 roll to roll 박막태양전지 모듈



[그림 6] (a) 비정질 실리콘 박막태양전지의 Roll to roll 생산 시스템 (b) SCAF 구조기반의 실리콘 박막태양전지 (c) flexible 염료감응 태양전지의 roll to roll 공정 (d) unisolar사의 flexible, roll 실리콘 박막태양전지

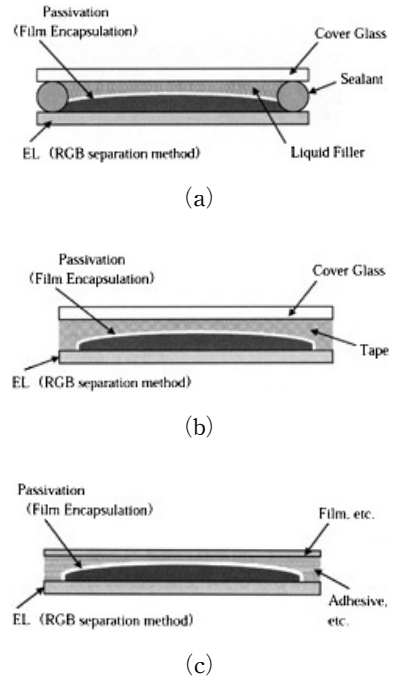
3. 장비기술 및 주요업체 개발현황

현재 장비 개발 및 상용화가 가장 활발히 진행되고 있는 곳은 일본으로 현재 일부 소형 Size에 대해서는 상용화가 이루어져 있음. 현재 소형 Size(370×470)에 대해서는 R.G.B. 뿐만 아니라 Black Matrix까지 동시 인쇄하는 장비를 개발 완료한 상태임. 일본의 Mitsubishi 중공업과 Mitsumura가 장비 제작에 대해 가장 앞서 있으며 현재 6세대 장비를 개발 완료하여 양산 적용을 위한 TEST 중이며 7세대 이상의 대형 Size 개발에 박차를 가하고 있다. 일본의 Mitsumura는 1, 2세대급 Size의 STN-LCD용 Color Filter를 Roll Printing 공법으로 양산하여 삼성 SDI 등에 공급하고 있으며, Toppan사는 Mitsumura와 2004년 대형 LCD C/F 제작을 위한 Roll Printer 장비를 공동 개발하기로 하였다. 최근 Sharp사는 Fuji Film과 공동으로 Roll Printer 방식을 도입하여 Film에 Color Filter용 R.G.B.를 인쇄하여 이를 Glass에 붙이는 공법을 신공장에 도입하기로 결정한 것으로 알려지고 있다.

독일의 MAN Roland는 세계적인 인쇄 장비 업체 중의 하나이며, 전통적인 플렉소, 스크린, 그라비아, 오프셋 인쇄 장비를 생산한다. 인쇄의 용지 공급도 sheet 방식과 Roll 방식을 모두 사용하고 있으며, 최근의 Printed Electronics 관련 장비 시장이 주목을 받음과 더불어 자사의 미래형 인쇄/패키징 개념도를 내놓고, 기능성 잉크를 사용한 RFID, Smart packaging 등의 Printed Electronics 소자의 패터닝에 대한 연구를 집중적으로 수행하고 있다. Fraunhofer IZM 연구소의 경우는 Printed Electronics 소자를 개발하는 선두그룹에 속한다. Roll-to-Roll Lithography 장비, Roll-to-Roll etch-rinse-cleansing 장비, Roll-to-Roll electro plating 장비, Roll-to-Roll 스크린 프린팅 장비 등을 개발하였으며, 이들의 중첩인쇄가 가능하도록 정밀 일관된 장비를 구현하였다.^[13] 현재는 국외의 다수 연구기관과 기업에서 Roll-to-Roll을 이용한 Flexible Display 생산 시스템에서 각 공정 별로 장비가 연구 개발 및 생산되고 있으며 주로 Roll-to-Roll 이송 시스템에서의 공정에 관한 많은 연구와 개발이 진행 중인 것으로 파악된다.

III. 롤투롤 공정 적합형 봉지재료 및 공정기술

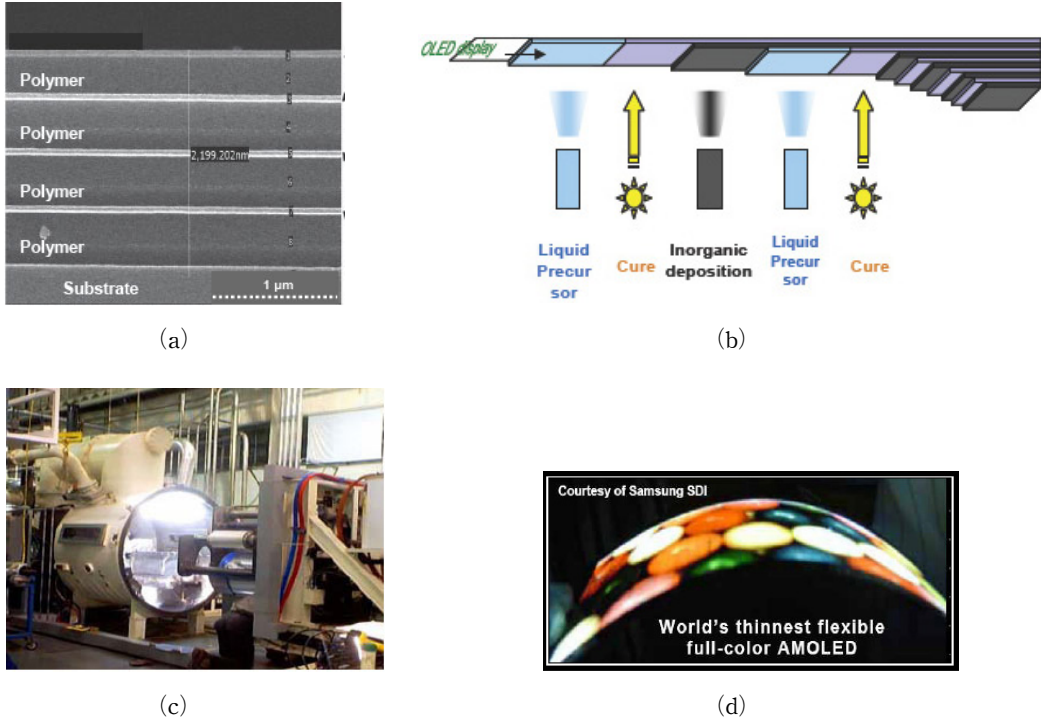
OLED에서의 일반적 봉지(Encapsulation)는 LCD, PDP, FED 등에 비해 봉지기판과 흡습제 투입 공간이 매우 얇은 독특한 구조이다. 롤투롤 연속 공정은 일반적으로 대용량의 web 기반 gravure 또는 flexo 등 인쇄공정 기술을 이용하여 박형필름에 여러 층의 보호필름을 형성하거나 접착하는 방식을 제공할 수 있는데, 이러한 연속 롤투롤 생산방식과 호환성을 유지하면서 OLED와 같은 완제품의 신뢰성을 높이기 위해서는 아래 [그림 7]에 표시된 바와 같은, 알려진 봉지 방식에서 응용하여 active device를 제작한 후 sheet by sheet 공정을 응용한 봉지 막 부착방식을 사용하거나 좀



[그림 7] 여러 가지 방식의 OLED 봉지 구조 (a) 전면발광의 경우 및 백색 발광에서 커버층에 컬러필터를 사용할 경우, 발광층을 증착(또는 프린트)한 후에 박막으로 봉지하여 댄을 형성한 후 그 안에 수지를 충전하는 구조 (b) 분별 도포에 의한 발광에서 커버층이 단순한 커버일 경우(전면발광과 배면발광 모두) 발광층을 증착(또는 프린트)한 후에 박막으로 봉지하고 그 위에 테이프가 붙은 커버 글라스를 접착한 구조 (c) 발광층을 증착(또는 프린트)한 후에 박막으로 봉지하고 그 위에 접착제가 붙은 커버 글라스를 접착한 구조이다. 이 구조에서는 박막 봉지가 완전하게 그 기능을 다할 것을 전제로 한다.^[14]

더 연속공정에 호환성이 있도록 하기 위해 역시 연속적인 Laminating 방식 또는 연속공정 호환 Deposition 방식을 활용하여 봉지막을 형성하는 기술이 필요하다.^[15]

플렉시블 디스플레이용 박막봉지 및 기판의 특성은 광투과 특성, 방지 특성, 가스 차단성, 화학적 특성, 기계적 특성 등이며 현재 일본 업체를 중심으로 기술 개발이 활발히 진행되고 있으며, 최근 다수 미국 업체를 비롯하여 유럽 업체들도 신제품을 개발하고 있다. 대표적으로 Sumitomo Backlight(일본, plastic LCD용), Southwall(미국, 저분자 필름분야), Toyo-Metallizing(일본), Nitto-Denko(일본, 투명전극용 필름), Oike(일본) 등이 있음. 최근 Vitex(미국), DuPont-Teijin(미국-일본 합자), Ferrania(이탈리아) 등의 업체가 봉지관련 필름 개발을 진행하고 있다. 고분자 필름재료로는 PC, PI, PES, PAR, PEN, PET, PEEK, PEI, COC 등이 개발되고 있는데, 고온 및 에칭공정에 견뎌야 하므로 내열성, 내화학성을 가져야하기 때문에 PAR, PES 등에 대한 개발이 집중적으로 이루어지고 있다. Teijin에서 개발하고 있는 PC 필름은 휴대전화 등 모바일 기기에 사용될 것으로 예상되며 내열성은 PAR이나 PES 등에 비해 낮으나 광학적 특성이 뛰어나 STN용 기판으로

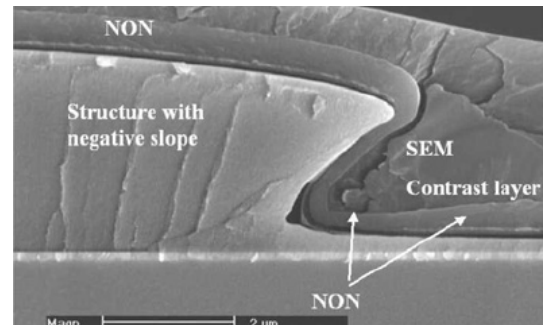


[그림 8] (a) Barix TM 단면구조 (b) 제조공정 (c) Web Coater Barrier Deposition System (d) Flexible OLED소자^[15]

사용가능하다. 이미 220°C 이상의 고내열성과 우수한 봉지 특성을 가진 PC 기판도 2005-06년에 선보였으며, 미국의 GE사 역시 고내열성의 PC필름을 개발하여 롤투롤 공정에 적용가능한 유연 디스플레이 기판으로 개발하는 연구를 진행하고 있다. 독일의 Fraunhofer 연구소 산하 Institut Silicatforschung (ISC)에서 개발한 silicone, organic, ceramic의 복합소재로 이루어진 ORMOCER(R)도 우수한 특성을 나타내는 것으로 알려져 있으며, 현재 다양한 응용분야에서 봉지코팅, scratch 방지코팅 등의 형태로 개발이 진행 중이다.

박막(Thin film) 봉지기술의 개발 동향으로는, 아직까지 롤투롤 기술에 의해 전사용 제품에 적용된 박막봉지 재료 및 공정이 완성되지는 않았지만 기본적으로 봉지재 형성에는 패턴기술이 크게 필요하지 않고 일정면적의 증착, printing, 전사/열처리 기술이 요구되므로 진공-상압 interface 기술이 완성되면 연속 공정화가 비교적 용이할 것으로 예상된다. 가장 많이 연구되는 방식은 Hybrid Multilayer 박막 봉지기술로서, Vitex System (미국)에서 수년간 개발하고 있으며 각국의 OLED 생산기업과 공동연구를 진행하고 있다. 유기막 precursor가 증착되면서 고분자 박막화/경화되고 무기막을 그 위에 sputtering 하며, 이를 2-3회 반복하여 우수한 barrier 특성을 갖는 복합층을 형성한다. [그림 8]에 단면구조/공정, 롤투롤 web sputtering 장치 및 박막 봉지로 시연한 OLED 소자를 보였다.^[15]

Inorganic film을 주로 사용한 봉지재료로는, 필립스에서 개발한 SiO/SiN의 alternating 박막구조 역시 우수한 투습률을 보임이 확인되었다(85도에서 1×10^{-6} g/day.m², 이하). PECVD 공정을 사용하여 SiN 박막을 도포하는 경우

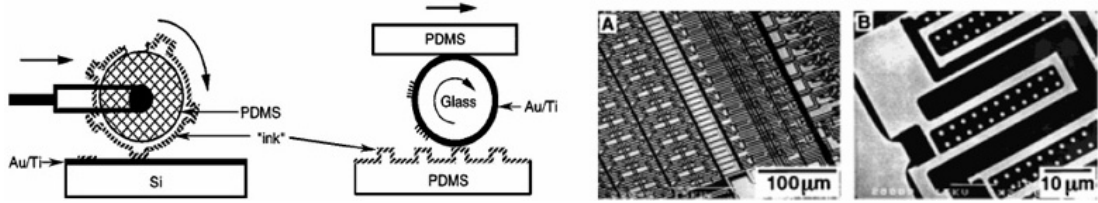


[그림 9] Step Coverage of NON on Structures with Undercuts^[16]

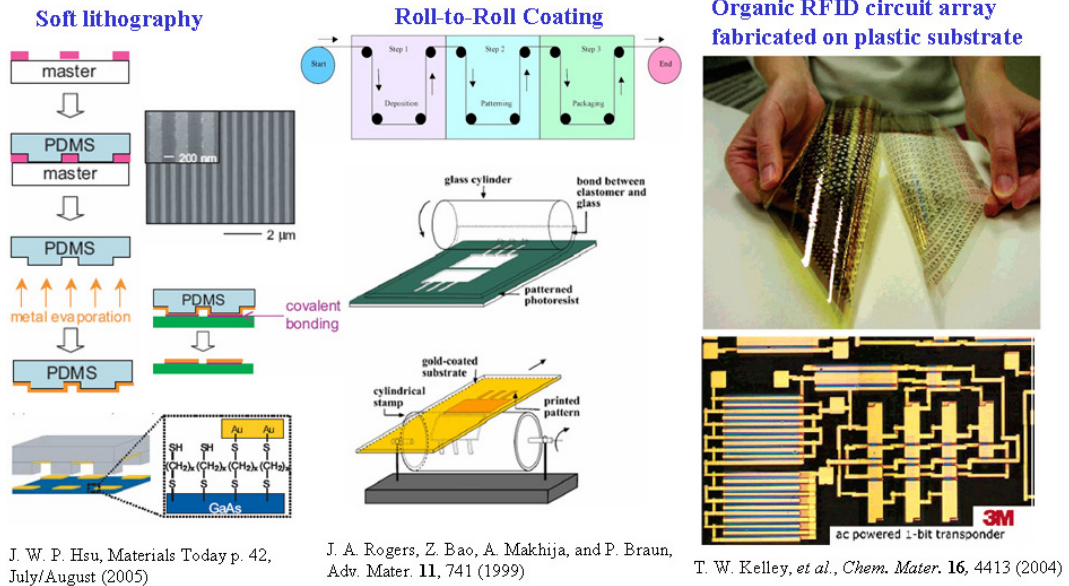
[그림 9]와 같은 backward slope를 갖는 구조물의 edge까지 cover가 가능하다고 발표되었다(“NON” 구조).^[16]

IV. 롤투롤 임프린팅을 이용한 패턴 제조기술

유비쿼터스 및 휴대용 디스플레이, e-paper 등의 제품군 개발에 있어서 이를 구성하는 요소기술로서 평면 또는 입체적인 나노/마이크로구조를 저가형으로 대량생산하는 기법의 개발은 필수적이다. 롤투롤 임프린팅 기법을 이용하여 광학적 효과를 나타낼 수 있는 서브마이크로미터 및 나노미터 수준의 입체적인 구조를 롤 소재로 저가형으로 구현하는 기술은 soft lithography와 롤투롤 연속공정의 융합기술로서 기존의 LCD의 광학필름 뿐 아니라, 최근 연구되어 지고 있는 3차원 입체형 LCD 개발 등에 필요한 마이크로렌즈 광학



[그림 10] PDMS 각인 몰드를 이용한 롤 코팅(Roll-to-Roll coating) 및 선택적 에칭을 통한 금속배선 형성의 개략도



J. W. P. Hsu, *Materials Today* p. 42, July/August (2005)

J. A. Rogers, Z. Bao, A. Makhija, and P. Braun, *Adv. Mater.* 11, 741 (1999)

T. W. Kelley, *et al.*, *Chem. Mater.* 16, 4413 (2004)

[그림 11] 소프트 리소그래피(soft lithography), 롤 코팅(Roll-to-Roll coating) 방법을 이용한 플렉시블 유기반도체 전자소자(flexible organic electronic devices) 제작의 예

필름, e-paper 격벽구조, flexible electronic에 필요한 표면처리/요철기법, 박막트랜지스터의 미세회로 등의 설계 및 생산에 필수적인 미래형 기술이라고 할 수 있다. 해외 선진사인 HP, 3M 등에서 롤투롤 기술을 이용하여 1 μ m급 해상도의 패턴을 기능성 기판에 구현하는 기술을 개발하고 있으며, 이의 원천/핵심특허를 보유하고 있다. 국내에서는 batch 방식으로 미세 영역에서의 나노패턴 구현에 대한 기술 수준은 높으나 경제적인 연속공정과 이에 적용 가능한 mold/pattern용 소재, 그리고 원천기술로서의 표면특성 제어기술 개발이 반드시 필요하다.

Harvard 대학의 Whitesides 교수가 발전시킨 soft lithography 기술은 기존의 반도체 산업의 광전사법(photolithography)과는 완전히 다른 새로운 개념의 전사법으로 무늬가 새겨진 PDMS 각인 몰드를 이용하여 알칸티올 및 고분자 등 다양한 종류의 물질을 ‘잉크’로 이용하여 기질 표면에 도장을 찍으면 잉크 물질이 원래의 무늬 모양으로 패터닝이 된다.^[17] 그리고 Bell Labs의 Julia W.P.Hsu 등은 Nano-transfer printing 방법을 이용하여 플렉시블 기판에 금속 배선 및 전극을 형성하는 기술을 발표하였다.^[18] ([그림 10])

이러한 롤형 몰드를 이용한 접촉식 패턴 전사 방법으로 최근 집중적으로 연구되는 그라비어 인쇄법과 임프린트 전사법의 경우 인쇄물질, 인쇄물질을 이송하는 몰드, 기판과의

계면이 적절하게 이루어져야 한다. 이러한 접촉식 방법은 비 접촉식 방법보다 훨씬 더 미세한 패턴의 전사가 가능하다는 장점을 가지고 있으나, PDMS의 기계적인 성질, PDMS 몰드의 패턴 구현력의 한계, 몰드의 재사용성 및 연속공정과의 호환성 등의 한계를 갖고 있다([그림 11]). 유기반도체/전자소자 뿐 아니라 최근 미국의 일리노이 주립대의 Rogers 교수팀은 낮은 접착력을 가지는 PDMS 고분자 물질을 이용하여 접촉식 인쇄법으로 수십 나노미터의 극 미세 패턴 전사를 성공하였고 나노와이어 반도체, 배선, gate 구조 등 3차원 구조의 고성능 나노 트랜지스터를 플라스틱 기판에 형성하였다.^[19]

V. 결 론

현재까지 보고되고 있는 많은 유기전자소자들이 진공증착 및 반도체 식각 공정을 일부 사용하고 있으나 향후 이들 신규 소자의 근본적인 장점을 부각시키기 위해서는 효율적인 프린팅 기반 패턴링 공정 개발이 필요하다. 최근 용액공정이 가능한 신소재, 고해상도 프린팅 공정의 발전 및 정밀한 위치 제어 기법과 다층 박막의 도포가 가능한 roll-to-roll 연속공정에 대한 연구개발이 활발히 추진되고 있어 유기박막

트랜지스터를 비롯한 다양한 프린팅 기반 유기 전자소자의 향후 기술 및 시장 진입 전망은 매우 밝을 것으로 예상된다. 향후 플렉시블화 및 저가격 공정개발 등의 경쟁력을 확보하기 위해서는 전자 소자용 기능성소재(LCD 화소구조용 소재, OLED/태양전지소재, 전극 및 회로용 소재 등)의 롤투를 프린팅을 위한 적합도 향상과 패턴의 정밀화 기술, 직접 및 간접 프린팅법과 전사, 임프린팅 방식에 의한 롤투를 코팅/패턴형성용 신소재의 개발, 절연성/가스차단성 보호층 소재의 롤투를 공정 적용, 전자 기능층 소재의 중첩/다층막 형성기술 등에 대한 기초부터 응용까지의 연구개발이 집중적으로 추진되어야 하겠다.

감사의 글

본 원고의 저자는 서울시 산학협력사업(10848)의 연구비 지원에 감사드립니다. 또한 본고의 많은 부분은 2008년도 소재원천기술개발사업 과제기획 제안서에서 요약/발췌되었기에, 제안서 작업에 참여하여 주신 기획위원들께 감사드립니다.

참고 문헌

- [1] 홍성화, 노현숙, 구영덕, “플렉시블 디스플레이시장 진입을 위한 응용 분야별 기술적 이슈”. KISTI 미래유망 사업화아이템 이슈분석 (2005).
- [2] 산업자원부, 부품소재 로드맵 (2006).
- [3] Eguchi T, New Color Filter Carried Out By A Roll-to-Roll Process, Proc Int Disp Workshops (2004).
- [4] Printing Technology for Flexible Substrate: Manufacturing technology for electronic devices utilizing the Roll-to-Roll process, Toray Research Center, Inc./InterLungua (2006).
- [5] A. Sonehara, T. Eguchi, A. Sugizaki, T. Takahashi, T. Ito, A. Kumano, Society for Information Display (SID2005) Digest, Boston, MA, p1573-1575 [6] Bridgestone, presented at FPD international 2007, Yokohama, Japan.
- [7] N. HIROYOSHI, M. SHIGERU, N. HIROFUMI, T. TOSHIHIKO, K. MASARU, K. KEN'ICHI, H. SHIN'ICHI, A. DAIGO, “OLEDs with gravure

printing method”, Papers of Technical Meeting on Electron Devices, IEE Japan (2006).

- [8] M. C. Suh, B. D. Chin, M.-H. Kim, T. M. Kang, S. T. Lee, *Adv. Mater.*, 15, 1254 (2003).
- [9] G. B. Blanchet, Y.-L. Loo, J. A. Rogers, F. Gao, C. R. Fincher, *Appl. Phys. Lett.*, 82, 463 (2003).
- [10] NEDO latest report-completely flexible film solar cells (2) <http://www.nedo.go.jp/>.
- [11] T. Kamoshita, Fuji Electric Joirnal, 76(7) 37 (2003).
- [12] T.Miyasaka, T.Murakami, Y.Kijitori, Chemical Industry, Oct 2004 Iss. 65.
- [13] K. Bock, “The role of organic electronics in functional hetero-system integration”, presentation at Organic Electronic Conference(OEC) 2007 Europe Frankfurt, Germany, September (2007).
- [14] 松本 好家, Monthly ‘DISPLAY’ September 2005, Techno Times of Japan.
- [15] R. J. Visser, (Vitex systems) presentation at Organic Electronic Conference (OEC) 2007 Europe Frankfurt, Germany, September (2007).
- [16] USDC Flexible Display Report, U.S. Display Consortium, Nov. 2004.
- [17] J. Christopher Lov *et. al*, Chem. Rev. 105, 1103 (2005).
- [18] J. W. P. Hsu, Materials Today, 7/8, 42 (2005).
- [19] J.-H. Ahn, H.-S. Kim, K.J. Lee, S. W. Jeon, S. J. Kang, Y. Sun, R. G. Nuzzo, J. A. Rogers, Science 314, 1754 (2006).

저자 소개



진 병 두 (Byung Doo Chin)

1994 : 연세대학교 화학공학과 학사,
2000 : 한국과학기술원 화학공학과 석/박사, 2000~2001 : University of Massachusetts at Amherst, Polymer Sci & Eng. Dept. Postdoc., 2001~2005 : 삼성 SDI 중앙연구소, 책임연구원, 2005~현재 : 한국과학기술연구원 재료연구본부, 선임연구원