

롤투롤 공정의 인쇄 후 구간에서 변형률과 인쇄한 패턴의 전기 전도도와와의 관계에 대한 연구

A study on the Relation between Strain & Conductivity of the Printed Pattern in Post-Printing Section of Roll to Roll process

최재호, 이창우, 신기현*
(Jae-Ho Choi, Chang-Woo Lee, and Kee-Hyun Shin)

Abstract: A curing process in post-printing section of R2R process is required for an electrical property of the printed pattern when devices such as RFID, Solar cell are printed. PEN as well as heat-stabilized PET which is used as a plastic substrate would be deformed at high temperature due to change of its elastic modulus. And crack in the printed pattern, which is on the plastic substrate is occurred due to the deformation of the substrate. The occurrence of crack causes electrical resistance to increase and the quality of the device to deteriorate. In case of RFID antenna, the range of reading distance is shortened as the electrical resistance of the antenna is increased. Therefore, the deformation of the plastic substrate, which causes the occurrence of crack, should be minimized by setting up low operating tension in R2R process. In low tension, slippage between a moving substrate and a roller would be generated when the operating speed is increased. And scratch would be occurred when slippage is generated due to an air entrainment, which is related to the thickness of the air film. The thickness of the air film is increased when operating speed is increased as shown by simulation based on mathematical model. The occurrence of scratch in conductive pattern printed by roll to roll process is a critical damage because it causes degradation or failure of electrical property of it.

Keywords: Roll to Roll (R2R) process, operating tension, drying/curing section, electrical resistance, crack of R2R printed layer

I. 서론

기존의 인쇄 기술을 이용하여 OLED (Organic Light Emitting Diode), OTFT (Organic Thin Film Transistor), OSC (Organic Solar Cell), RFID (Radio Frequency Identification) 등의 전자 소자 (Electronic Device)를 제작하는 연구가 국내외적으로 이루어지고 있다. 인쇄 기술의 매력은 다층(multi-layer)으로 구성된 전자 소자를 인쇄 방법으로 제작 가능하다는 것이며, 기존의 실리콘 기반의 전자 소자 제작 기술과 비교하여 간단하며 비용 절감적인 기술이라고 할 수 있다[1].

롤투롤 공정(roll to roll process)은 유연한 기판(flexible substrate)을 사용하여 유연한 제품 생산이 가능하다는 것과 그라비아(gravure), 오프셋(offset), 플렉소(flexo)와 같은 인쇄 방법들의 적용을 통하여 전자 소자의 대량 생산이 가능하다는 장점을 갖고 있다[2].

전자 인쇄에 사용하는 상용화된 잉크는 금속 입자나 고분자 물질을 함유한 솔벤트(solvent) 기반의 전도성 잉크로서 최적의 전기 전도도를 보장하기 위해 그림 1과 같이 인쇄 후 150도의 온도에서 3분의 건조(drying) 및 경화(curing/annealing) 과정이 요구된다. 또한, 온도가 높을수록 요구되는 경화 시간은 줄어든다.

그림 2는 미국 Parelec사의 conductive silver particle 잉크의 경화 시간에 따른 비저항 자료로서 150도에서 경화하는 시

간에 따른 저항 값 변화를 보여준다. 경화시간이 증가함에 따라 비저항 값이 급격하게 감소하는 것을 확인할 수 있다. RFID의 안테나를 인쇄하는 경우, 인쇄된 패턴의 전기 저항이 낮을수록 넓은 지역의 인식거리(reading distance)를 확보할 수 있다. 따라서 150도에서 3분의 경화시간을 확보하는 것이

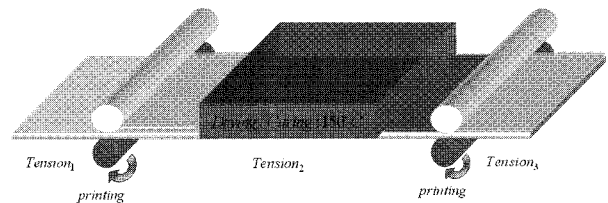


그림 1. R2R 공정에서 건조 및 경화 공정의 개략도.
Fig. 1. Schematic of drying/curing process in R2R.

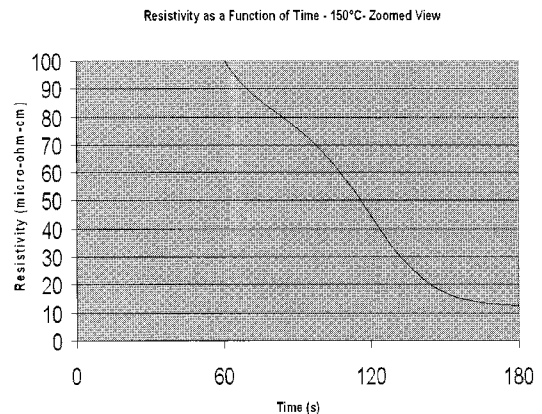


그림 2. 150도에서 경화 시간에 따른 패턴의 비저항.
Fig. 2. Resistivity of printed silver pattern according to time at 150°C.

* 책임저자(Corresponding Author)
논문접수: 2009. 5. 15., 채택확정: 2009. 6. 15.
최재호, 이창우, 신기현: 건국대학교 기계설계학과
(jaeho.choi@boschrexroth.co.kr/changwoo1220@gmail.com/khshin@konkuk.ac.kr)

※ 본 연구는 서울시 산학연 협력사업(10848)과 국제과학기술협력재단(K20701040597-07A0404-05110)에 의하여 연구되었으며, 이에 관계자분들께 감사드립니다.

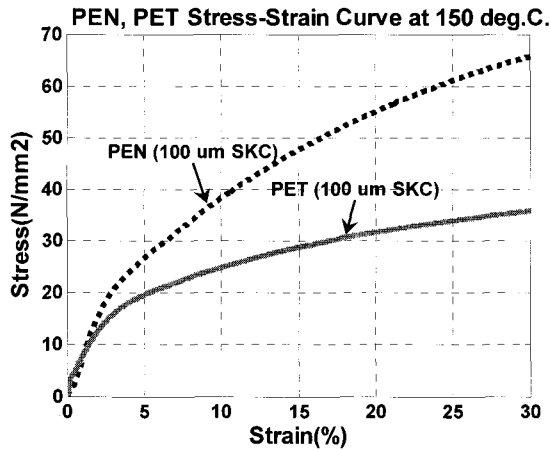


그림 3. 150도에서 열경화 PET와 PEN의 응력-변형률 곡선.
Fig. 3. Stress-strain curve of heat-stabilized PET & PEN at 150°C.

요구되는데, 위에서 언급한 바와 같이 PET는 열적 안정성이 떨어지기 때문에 PET보다 열적 안정성이 좋고, PEN (Polyethylene Naphthalate)보다는 가격 경쟁력이 월등한 열경화 PET가 선호된다.

그림 3은 150도에서 동일한 크기의 PEN과 열경화 PET의 응력-변형률 곡선을 보여주며, 이 때 PEN과 열경화 PET의 탄성계수는 각각 911 MPa, 524 MPa이다. 150도에서 PEN이 동일 힘에 대한 변형률이 작지만, SKC사의 경우 가격 차이가 5 배 이상 차이가 나기 때문에 본 연구에서는 열경화 PET를 선정하였다. 그러나 열경화 PET일지라도 전도성 잉크의 높은 경화 온도에서는 변형을 일으키게 된다. 또한, 롤투롤 공정의 인쇄 후 구간에서는 설정된 운전 장력(operating tension)에 따라 경화 온도에서의 변형보다 더욱 증가될 수 있다.

이러한 변형은 기관 위에 인쇄된 패턴에 크랙(crack)을 발생하고, 크랙으로 인하여 전도성 패턴의 전기적 특성(전기 전도도)이 저하된다.

OLED, OSC 등의 전자 소자에서 투명전극으로 사용되는 ITO coated PET인 경우, 면저항 100Ω/sq 샘플은 신장률 1.75 %에서 전기 저항의 급격한 증가를 보였고, 200Ω/sq 샘플은 신장률 2.25 %에서 급격한 증가를 보였다[3]. 이 때, 크랙이 발생하는 임계 변형률(critical-onset strain)은 전기 저항의 급격한 증가를 보이는 변형률로 결정된다.

따라서 본 연구는 RFID antenna와 같은 전자 인쇄(printed electronics)를 롤투롤 공정 기반으로 생산 시 인쇄 후 구간에서 인쇄된 패턴의 전기 전도도 확보를 위해 요구되는 고온의 경화 공정에서 플라스틱 기관의 열 변형으로 인해 발생할 수 있는 크랙을 최소화하기 위한 운전 장력 설정 및 장력 제어 범위에 관한 지침을 제시한다.

II. 운전장력 설정

1. 고장력 설정 시 문제

롤투롤 공정에서 운전 장력은 소재에 따라 경험적으로 설정하거나 10~25% rule에 따라 정한다[4].

본 연구에 사용하는 100μm두께 열경화 PET의 온도별 특성을 확인하기 위해 폭 20mm, 길이 100mm의 샘플을 인장 시험기(instron universal test machine)에서 고온 챔버를 이용하

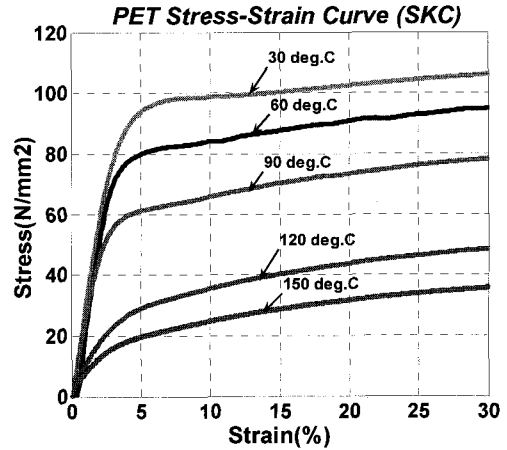


그림 4. 열경화 PET의 온도별 응력-변형률 곡선.
Fig. 4. Stress-strain curve of heat-stabilized PET at different temperature.

여 30, 60, 90, 120, 150도에서 각각 파단 시까지 일정한 신장률로 인장시켰다. 그 때, 온도별 응력-변형률 곡선은 그림 4와 같다.

그림 4를 통하여 온도가 증가함에 따라 탄성계수가 감소하여 동일한 힘이 작용할 때, 고온에서는 변형량이 상온에서 보다 훨씬 큼을 확인할 수 있다. 따라서 30도의 응력-변형률 곡선에서 10~25% rule에 따른 운전 장력 범위는 9.9 N/mm²~24.75 N/mm²으로서 이 때의 변형률은 모두 1% 미만이다. 그러나 150도일 때, 동일한 장력 범위에서 변형률은 1.42 %~9.85%으로 훨씬 큼을 알 수 있다.

표 1은 열경화 PET위에 silver ink로 인쇄한 패턴을 플라스틱 기관과 함께 신장함에 따른 패턴의 전기 저항의 변화를 나타낸다. 플라스틱 기관을 60 %까지 신장하면서 인쇄된 패턴의 면저항을 측정하였고, 표 1은 신장률 10%까지의 전기 저항값을 보여준다. 실험에 사용한 silver 잉크 점도는 150cp이고, 인쇄물의 셀 깊이는 20μm, 형상은 honey combination이다. 샘플의 폭은 3mm, 길이는 100mm이고, 전기 저항은 접촉저항의 효과를 최소화하기 위하여 4-point probe 방법으로 Agilent 34411A 6.5 digit multimeter를 사용하여 측정하였다.

신장률 60 %까지의 전기 저항은 역수인 전기 전도도로 변

표 1. 변형률에 따른 인쇄된 패턴의 전기 저항.

Table 1. Electrical resistance of printed pattern according to stain.

Strain (%)	Sheet Resistance(Ω/sq)		
	0	0.22	0.21
1	0.26	0.25	0.23
2	0.29	0.31	0.27
3	0.36	0.34	0.33
4	0.42	0.42	0.37
5	0.47	0.5	0.45
6	0.52	0.52	0.51
7	0.58	0.57	0.59
8	0.62	0.64	0.59
9	0.67	0.71	0.68
10	0.76	0.75	0.74

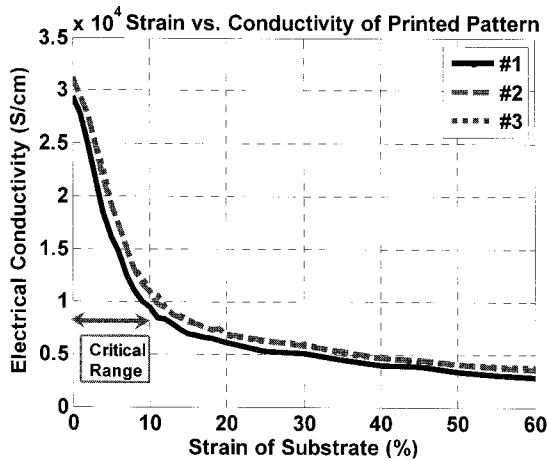


그림 5. 신장률에 따른 인쇄된 패턴의 전기 전도도.
Fig. 5. Electrical conductivity of printed pattern according to strain.

환하여 그림 5에 나타내었다. 이 때, 인쇄된 패턴의 평균 두께는 2 μm이다.

그림 5는 열경화 PET위에 인쇄한 silver 패턴을 경화시킨 후 기판의 신장률에 따른 silver 패턴의 전기 전도도 변화를 측정된 결과로서 플라스틱 기판의 신장률 10%까지 인쇄된 패턴의 전기 전도도가 급격히 감소함을 알 수 있다.

표 2는 그림 5의 플라스틱 기판 신장률 10%까지 인쇄된 패턴의 전기 전도도값을 보여준다. 기판의 신장률이 증가함에 따라 인쇄 패턴의 전기 전도도가 감소하는 것을 수치적으로 확인할 수 있다.

그림 6은 변형이 없는 인쇄된 silver 패턴의 표면을 주사전자현미경(scanning electron microscope)으로 1,000배 확대한 것이고, 그림 7은 60%신장시킨 후 silver 패턴 표면을 1,000배 확대한 것이다.

그림 6의 silver 표면에는 아무런 크랙이 보이지 않으나, 그림 7의 표면 전체에 크랙이 발생하였고, 15 μm이상의 크랙들도 존재한다. 이러한 크랙의 발생으로 인해 전기 저항이 증가되며, 전기 저항의 역수인 전기 전도도가 감소하게 된 이유이다. 따라서 롤투롤 공정의 인쇄 후 구간에서 인쇄된 패턴의 변형을 최소화하여 패턴에 크랙이 발생하는 것을 방지하고 전기 전도도를 최대로 유지하는 것이 최종 제품의 성능과 직결된다고 할 수 있다.

표 2. 신장률과 전기 전도도.
Table 2. Strain and electrical conductivity.

Strain (%)	Electrical Conductivity (S/cm)		
0	22727.27	23809.52	25000.00
1	19230.77	20000.00	21739.13
2	17241.38	16129.03	18518.52
3	13888.89	14705.88	15151.52
4	11904.76	11904.76	13513.51
5	10638.30	10000.00	11111.11
6	9615.38	9615.38	9803.92
7	8620.69	8771.93	8474.58
8	8064.52	7812.50	8474.58
9	7462.69	7042.25	7352.94
10	6578.95	6666.67	6756.76

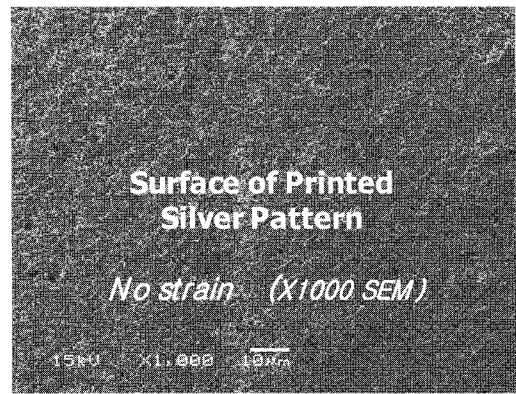


그림 6. 인쇄한 silver 패턴 표면.
Fig. 6. Surface of printed silver pattern.



그림 7. 신장률 60%일 때 silver 패턴 표면.
Fig. 7. Surface of printed silver pattern at 60% strain.

2. 고속 저장력 설정 시 문제

대량 생산을 목적으로 하는 롤투롤 공정에서는 높은 생산 속도가 요구된다. 그러나 높은 속도일 때, 이송하는 소재와 롤러 표면간 공기 유입이 많아져 마찰력이 감소하며, 이로 인해 미끄러짐이 발생할 수 있다. 이러한 미끄러짐 현상은 사행 현상 및 인쇄된 층에 스크래치를 유발 등의 문제를 발생시킨다. 미끄러짐 현상의 원인은 공기 유입이며, 이는 장력과 속도에 따라 변화된다. 또한, 이송되는 소재와 롤러 표면 간에 형성되는 공기층 두께와 연관되며, 발생하는 공기층 두께는 식 (1)을 통하여 예측할 수 있다[5-8].

$$H = 0.643R \left(\frac{6\eta U}{T} \right)^{\frac{2}{3}} - 2 \left(\frac{\alpha T}{U} \right) \quad (1)$$

PET는 공기 투과율이 없으므로 α = 0이다.

수식 1과 표 3의 조건으로 낮은 장력(100 N/m)과 높은 장력(600 N/m)에서 운전 속도가 증가함에 따라 이송 소재와 롤러 표면 간 생성되는 공기층 두께 변화 시뮬레이션(simulation)을 수행하였다.

그림 3은 20초부터 가속될 때, 생성되어 증가한 공기층과 50초부터 증가된 장력으로 인해 감소한 공기층 두께를 보여준다. 그러므로 속도 증가 시 발생할 수 있는 미끄러짐 현상 및 이로 인한 스크래치를 방지하기 위해서는 운전 장력의 증가가 요구된다.

표 3. 공기층 두께 수치해석 조건.

Table 3. Condition for numerical analysis of thickness of air film.

변수	값	설명
R	0.03438 m	롤러의 반경
η	$18.3 \times 10^{-6} \text{ N}\cdot\text{s}/\text{m}^2$	공기 점성계수
U	0 ~ 8 m/s	소재 이송속도와 롤러의 선속도의 합
T	100 ~ 600 N/m	운전 장력(단위 폭당 힘)
α	0	공기 투과율

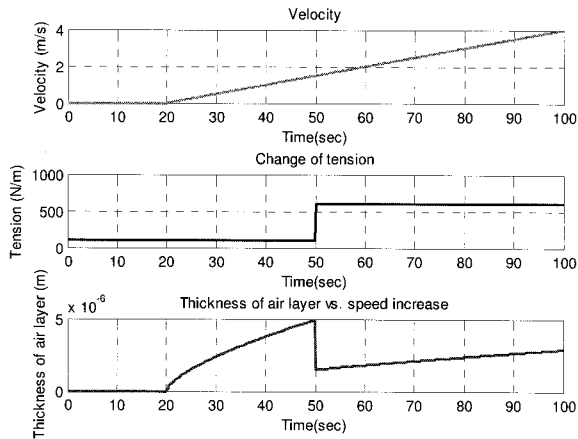


그림 8. 속도와 장력의 변화에 따른 공기층 두께 변화.

Fig. 8. Change of thickness of air film according to change of velocity and tension.

이를 위해 고온의 경화 공정에서 변형을 최소화하기 위하여 운전 장력을 낮게 설정하는 것이 요구된다.

III. 결론

RFID, Solar cell을 롤투를 공정기반으로 진도성 금속 잉크를 사용하여 인쇄 시, 인쇄된 패턴의 전기적 특성을 얻기 위해 고온의 건조 및 경화 공정이 요구된다. 그러나 이러한 고온의 공정으로 인해 플라스틱 기판이 변형되고 기판 위에 인쇄된 패턴도 변형되어 크랙이 발생하게 된다. 크랙의 발생은 인쇄된 층의 전기 저항을 증가시켜 RFID antenna의 경우, 인식거리(reading distance)가 줄어들게 된다. 따라서 롤투를 공정에서 운전 장력은 최대한 낮게 설정하여 경화 공정에서의 변형을 최소화하는 것이 요구된다.

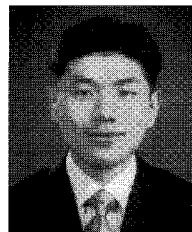
저장력에서 속도가 증가함에 따라 이송 기판과 롤러 표면 간 공기의 유입 증가로 공기층 두께가 증가함을 수치해석을 통해 확인하였다. 공기층 두께의 증가는 마찰력 저하와 이로 인한 미끄러짐(slippage)현상을 발생하며, 이러한 미끄러짐은 기판 위 인쇄된 패턴에 스크래치(scratch)를 발생한다. 스크래치는 인쇄 품질 저하에 큰 요소이기 때문에, 저장력에서 저속을 유지하면 크랙과 미끄러짐을 방지할 수 있다.

향후 저장력에서 미끄러짐을 방지하는 최대 운전 속도에 대한 연구를 수행하여 R2R기반 인쇄 시스템에 적용 가능한 지침을 제시하고자 한다.

참고문헌

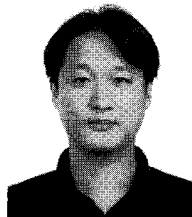
[1] J. R. Sheats, "Manufacturing and commercialization issues in organic electronics," *Journal of Materials Research*, vol. 19, no.

7, pp. 1974-1989, Jul. 2004.
 [2] C. W. Lee and K. H. Shin, "Strip tension control considering the temperature change in multi-span systems," *J. of mechanical science and technology*, vol. 19, no. 4, pp. 958-967, Apr. 2005.
 [3] K. A. Sierros, N. J. Morrisa, K. Ramjia, and D. R. Cairnsa, "Stress-corrosion cracking of indium tin oxide coated polyethylene terephthalate for flexible optoelectronic devices," *Thin solid films*, vol. 517, no. 8, pp. 2590-2595, Feb. 2009.
 [4] D. R. Roisum, *The Mechanics of Rollers*, Tappi press, 1996.
 [5] K. L. Knox and T. L. Sweeney, "Fluid effects associated with web handling," *Industrial Engineering Chemical Process Design Development*, vol. 10, no. 2, pp. 201-206, Apr. 1971.
 [6] K. S. Ducotey and J. K. Good, "The effect of web permeability and side leakage on the air film height between a roller and web," *Trans. ASME, J. Tribol.*, vol. 120, no. 3, pp. 559-565, Jul. 1998.
 [7] H. Hashimoto, "Air film thickness estimation in web handling Processes," *Trans. ASME, J. Tribol.*, vol. 121, no. 1, pp. 50-55, Jan. 1999.
 [8] K. S. Ducotey and J. K. Good, "Predicting traction in web handling," *Trans. ASME, J. Tribol.*, vol. 121, no. 3, pp. 618-624, Jul. 1999.



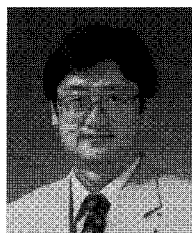
최재호

2006년 건국대학교 기계항공공학부졸업(공학사). 2009년 건국대학교 기계설계대학원 석사졸업. 2009년~현재 보쉬 텍스로스 코리아 근무. 관심분야는 열 변형 고려한 장력제어 및 레지스터 제어.



이창우

2001년 건국대학교 기계공학과 졸업(공학사). 2003년 건국대학교 기계설계학과 졸업(공학석사). 2008년 건국대학교 기계설계학과 졸업(공학박사). 2008년~2009년 건국대학교 유연디스플레이연속공정연구센터 박사후 연수과정. 2009년~현재 건국대학교 유연디스플레이연속공정연구센터 연구교수. 관심분야는 롤투를 인쇄 시스템 설계, 장력제어, 레지스터 제어, 비접촉 이송시스템 제어 및 설계.



신기현

1981년 서울대학교 기계공학과 졸업(공학사). 1983년 서울대학교 기계공학과 졸업(공학석사). 1991년 Oklahoma State University 기계공학과 졸업(공학박사). 1992년~현재 건국대학교 기계설계학과 교수. 건국대학교 유연디스플레이연속공정연구센터 연구소장. Tension Control (Tappi Press, 2000) 저술. 관심분야는 롤투를 인쇄시스템의 설계 및 공정제어, 실시간 분산 제어시스템, 장력제어, 사행 제어, 레지스터 제어, 롤투를 인쇄 시스템에서의 잉크전달 메커니즘.