

## 그라비아 프린팅 공정에서 점탄성 잉크와 기판의 계면접착력 평가

유미림 · 안경현<sup>†</sup> · 이승종

서울대학교 화학생물공학부  
151-744 서울시 관악구 관악로 1  
(2014년 5월 31일 접수, 2014년 6월 21일 수정본 접수, 2014년 6월 26일 채택)

### Evaluating Interfacial Force between Viscoelastic Ink and Substrate in Gravure Printing Process

Milim Yu, Kyung Hyun Ahn<sup>†</sup> and Seung Jong Lee

School of Chemical and Biological Engineering, Institute of Chemical Process, Seoul National University,  
Gwanak-ro 1, Gwanak-gu, Seoul 151-744, Korea

(Received 31 May 2014; Received in revised form 21 June 2014; accepted 26 June 2014)

#### 요 약

그라비아 프린팅 공정에서 고해상도의 패턴을 인쇄하기 위해서는 잉크가 기판으로 전사되는 양을 높이는 것이 중요하다. 일반적으로 잉크와 기판의 친화도가 높을수록 더 많은 양의 잉크를 전사시킬 수 있다. 하지만, 실제 산업에서 쓰이는 점탄성 잉크와 다양한 기판의 친화도를 정확히 평가하는 방법은 아직 제시된 바 없다. 본 연구에서는 점탄성 잉크와 다양한 기판의 계면 친화도를 실용적으로 평가할 수 있는 방안을 제시하고자 한다.

**Abstract** – To produce patterns with high resolution in gravure printing, it is important to increase ink transfer ratio. The ink which has higher affinity with substrate can be transferred more from the roll to the substrate due to the good wettability between ink and substrate. However, it is difficult to evaluate the affinity between the substrate and the ink which is viscoelastic in nature. In this study, we suggest a practical method to evaluate the interfacial interaction between the ink and various substrates.

Key words: Gravure Printing, Ink Transfer Process, Interfacial Force, Ink Transfer Ratio

#### 1. 서 론

그라비아 프린팅 공정은 패턴이 새겨진 그라비아롤과 기판에 압력을 가하는 압력롤로 이루어져 있다(Fig. 1). 패턴이 새겨진 그라비아롤이 회전하면서 잉크 풀을 지나게 되며 잉크 풀에서 묻어난 과잉 잉크는 닥터블레이드를 통해 제거된다. 패턴에 있던 잉크가 압력롤의 압력을 받아서 기판과 닿게 되며 두 롤의 회전으로 잉크가 패턴에서 기판으로 전사된다. 기판에 전사된 패턴은 건조 과정을 거치게 된다.

산업의 발달로 인해 고 해상도의 패턴 인쇄 기술이 요구되면서 그라비아 프린팅 공정의 해상도를 높이기 위한 많은 노력이 있었으며, 이를 결정하는데 있어 중요한 역할을 하는 잉크의 전사 공정에 대해 많은 연구가 진행되어 왔다[1-5]. 잉크 전사 공정에서 잉크가 롤에서 기판으로 전사될 때 잉크가 기판과 롤의 양 쪽 표면에 접촉해 중

간에서 찢어지기 때문에 100% 기판으로 전사되지 않는다. 전사성을 높이기 위해서는 롤에 남는 잉크의 양을 줄이고 기판으로 전사되는 잉크의 양을 증가시키는 것이 중요하다. 잉크가 기판에 전사되는 과정에서 잉크와 기판의 계면 친화도는 매우 중요한 공정 변수이다.

패턴과 기판의 친화도를 테스트하는 대표적인 방법으로 필 테스트(peel test)와 택 테스트(tack test)가 존재한다[6-9]. 두 방법은 잉크를 건조시켜 고체필름 형태로 만든 후 이를 기판에 붙여 필름을 떼어내면서 로드셀에 걸리는 힘을 측정하는 원리이다. 그러나, 이 방법들은 고체 필름과 기판의 접착력을 통해 액상 잉크와 기판의 계면 친화도를 예측하는 것이기 때문에 잉크와 기판의 계면접착력이 정확하게 측정되었다고 할 수 없다. 일반적으로는 액체와 고체 사이의 친화도는 접촉각 측정을 통해 예측할 수 있다[10,11]. 그러나, 접촉각 측정 방법은 저점도 뉴턴 유체에 대해서 표면이 매우 균일한 기판의 경우를 전제하기 때문에 실제 산업에서 사용되는 점탄성 잉크와 다양한 기판의 표면에 적용하기에는 많은 한계를 가진다. 따라서, 본 연구에서는 실제 산업에서 쓰이는 점탄성 잉크와 다양한 종류의 기판에 적용할 수 있는 계면접착력 측정 방법을 제시하고자 한다. 또한, 측정된 계면접착력과 잉크 전사량의 상관 관계를 입증하고자 한다.

<sup>†</sup>To whom correspondence should be addressed.

E-mail: ahnnet@snu.ac.kr

<sup>‡</sup>이 논문은 서울대학교 김화용 교수님의 정년을 기념하여 투고되었습니다. This is an Open-Access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution Non-Commercial License (<http://creativecommons.org/licenses/by-nc/3.0>) which permits unrestricted non-commercial use, distribution, and reproduction in any medium, provided the original work is properly cited.

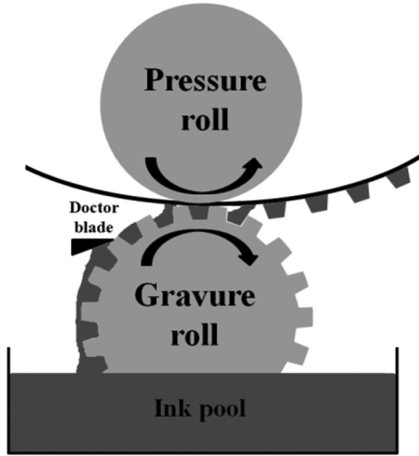


Fig. 1. Schematic of the gravure printing process.

### 2. 실험

잉크 전사 과정에서는 물에 새겨진 많은 패턴 속의 잉크가 기관으로 전사된다. 본 연구에서는 물에 새겨진 하나의 패턴에서 잉크가 기관으로 전사되는 과정을 두 평행한 원판을 이용하여 단순화시켰다(Fig. 2). 이를 위해 인장시험기(Universal Testing Machine) 장비를 개조하였다. 개조된 인장시험기는 위, 아래가 평행한 원판으로 이루어져 있으며, 위판을 일정한 속도로 올리면서, 로드셀에 가해진 힘을 측정할 수 있다. 실험은 두 평행 원판 사이에 잉크를 로딩한 후 2 mm/s의 일정한 속도로 수행하였다.

잉크로는 점탄성을 부여할 수 있도록 에틸셀룰로오즈(EC)를 디하이드로티피네올 아세테이트(DHTA)에 2~8 wt%로 용해시킨 EC 잉크와 폴리에틸렌옥사이드(PEO)를 증류수에 2~3 wt%로 용해시킨 PEO 잉크를 사용하였다. 기관과 잉크의 계면장력의 차이를 주기 위해서 위판은 스테인리스스틸과 폴리이미드 필름이 사용되었다. 아래 판의 재질은 스테인리스스틸을 사용함으로써 물과 잉크의 계면 친화도는 일정하게 유지하였다.

잉크의 점탄성을 평가하기 위한 유변물성 측정은 회전형 점도계(ARES, TA instruments)에 50 mm의 평행원판을 이용하여 수행하였다. 1~100 rad/s 범위의 각 진동수( $\omega$ )에 따른 저장탄성률( $G'$ )을 측정하였다. 실험은 변형에 따른 저장 탄성률( $G'$ )과 손실 탄성률( $G''$ )의 변화가 없는 선형 영역에서 측정함으로써 잉크가 안정적인 구조를 유지하는 상태에서 진행하였다.

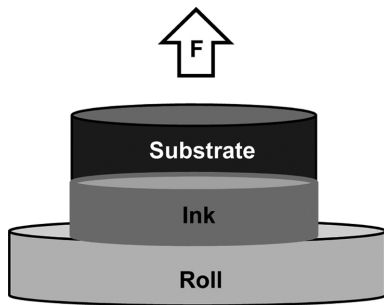
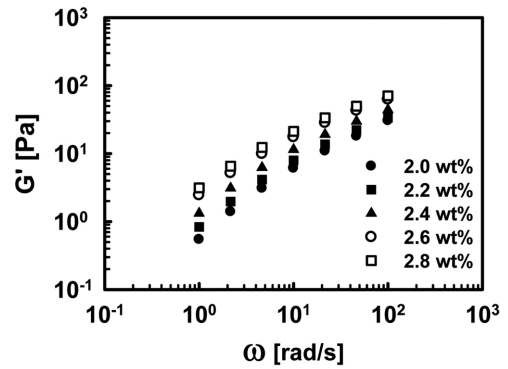


Fig. 2. Geometry of modified universal tensile machine for characterizing the interfacial force between ink and substrate.

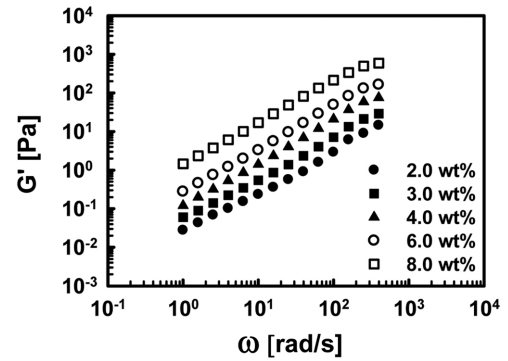
### 3. 결 과

Fig. 3에 잉크의 점탄성 측정 결과를 도시하였다. 다양한 점탄성 잉크를 사용하기 위해서 PEO 잉크는 2~3 wt%, EC 잉크는 2~8 wt% 범위의 농도 변화를 주었다. 이들 잉크들의 저장탄성률은 각 진동수( $\omega$ )에 따라 일정한 기울기로 증가하는 경향을 보였다. EC 잉크와 PEO 잉크 모두 농도가 증가함에 따라서  $G'$ 이 증가하는 것을 볼 수 있었으며 이는 탄성이 증가하는 것을 의미한다.

점탄성 잉크와 기관의 계면접착력은 두 평행원판에 잉크를 로딩한 후 위판을 일정한 속도로 올릴 때 위쪽 로드셀에 걸리는 응력으로 측정하였다. Fig. 4는 위판이 위로 올라가면서 변형률에 따른 응력의



(a) PEO solutions



(b) EC solutions

Fig. 3. Storage modulus of the viscoelastic fluids: (a) PEO solutions (b) EC solutions.

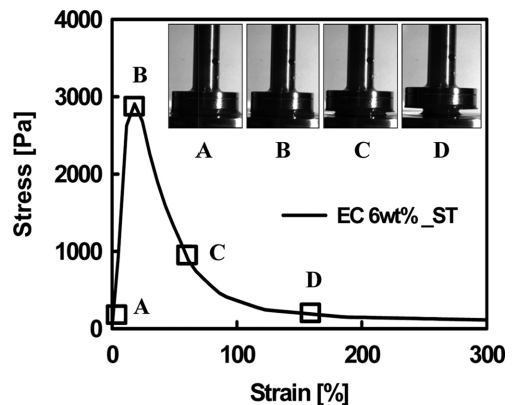


Fig. 4. Tensile stress as a function of strain for EC 6 wt% solution with an upper plate made of stainless steel.

변화와 각 위치에서의 변형 모습을 사진으로 보여주고 있다.

위 판이 위로 올라감에 응력은 초기에 크게 증가하면서 최대 응력을 가지고 그 후 빠르게 감소하여 일정한 값으로 수렴하는 결과를 보였다. 이와 같은 그래프 형태가 모든 실험에서 유사하게 나타났으며, 잉크와 기판이 변함에 따라 최대 응력의 차이를 보였다. 잉크 전사 실험 과정은 초고속 카메라로 관찰하였으며 캡처한 사진을 응력에 따라 나타내었다. A는 위 판이 움직이기 전에 잉크가 초기 로딩되어 있는 상태이므로 응력이 0이다. B는 최대 응력이 나타나는 시점으로써 위 판의 이동거리가 크지 않고 잉크가 위 판과 아래 판 전체와 접촉하고 있는 상태이다. 최대 응력 이후에는 위판이 올라감에 따라서 잉크가 위판과 아래판에 접촉하는 면적이 줄어들면서 응력이 점차적으로 떨어진다(C, D). 그러므로, 잉크와 기판의 계면이 가장 많이 접촉함으로써 계면접착력을 최대에 반영되는 값은 최대 응력을 알 수 있다.

인장시험기에 의해 측정된 최대 응력과 잉크와 기판 사이의 계면 성질의 관계를 규명하기 위해서 고체와 액체 사이의 계면친화도를 평가하는데 널리 사용되는 접촉각과 최대 응력과의 관계를 확인하고자 하였다. 접촉각 측정 가능한 샘플인 뉴턴 유체와 저 점도 PEO 용액에 대해서 세가지 다른 기판과의 접촉각을 측정하였다. 기판의 재질로는 스테인리스스틸 판, 아크릴 판과 알루미늄 판이 사용되었다. 스테인리스스틸 판은 ST, 아크릴 판은 AC, 알루미늄 판은 AI로 표기하였다. 최대 응력은 접촉각 측정에 사용된 기판을 인장시험기의 위판으로 두고 같은 용액을 두 평행 원판 사이에 로딩한 후 위판을 위쪽으로 당기면서 측정된 값을 사용하였다. 실험적으로 측정된 접촉각과 최대응력의 관계를 Fig. 5에 나타내었다.

액체와 고체의 계면 친화도가 높을수록 액체의 고체에 대한 젖음 성이 높기 때문에 접촉각이 작다. 그래프의 결과에서 접촉각이 작을수록 최대응력이 커지는 경향을 볼 수 있다. 두 관계를 통해 액체와 고체의 계면 친화도가 높을수록 최대응력이 크다는 것을 알 수 있으며, 측정된 최대응력이 액체와 고체의 계면접착력과 관계한다고 볼 수 있는 타당한 근거가 된다. 접촉각 측정은 사용할 수 있는 잉크 및 기판의 조건이 매우 까다롭고 잉크의 종류에 따라 그에 맞는 다양한 접촉각 측정 방식을 사용해야 하는 한계를 가진다. 특히, 실제 공정에서 사용되는 고 점도 점탄성 잉크와 다양한 기판에 대해서 기존의 접촉각 측정법으로는 정확한 데이터를 얻기 어렵기 때문에

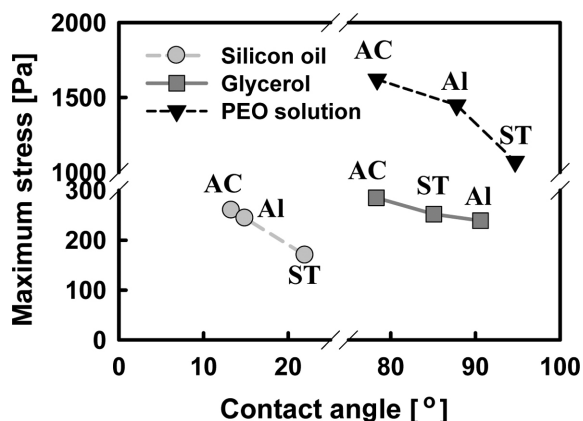
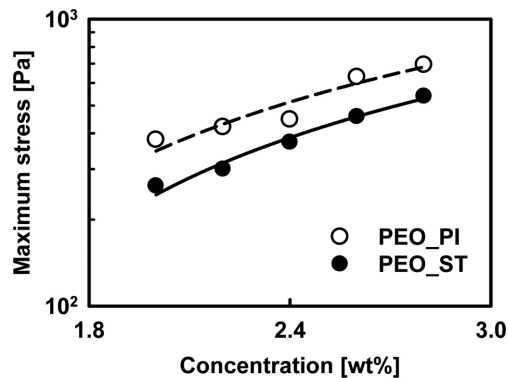
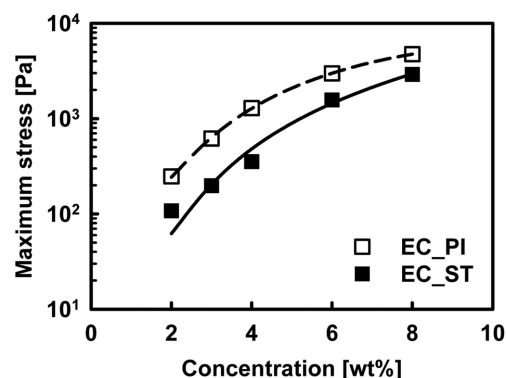


Fig. 5. The relationship between maximum stress and contact angle: AC, AI and ST represent acryl plate, aluminum plate and stainless steel plate, respectively.



(a) PEO solutions



(b) EC solutions

Fig. 6. Maximum stress as a function of concentration with difference upper plates: (a) PEO solutions (b) EC solutions.

최대응력을 통한 계면 접착력 평가 방법은 매우 실용적인 방법이다.

Fig. 6에 PEO와 EC 잉크의 농도에 따른 최대응력을 나타내었다. 그래프에는 “잉크의 종류 위 판의 종류”로 실험에 사용된 잉크와 위 판을 표기하였으며, 스테인리스스틸은 ST로 폴리이미드 필름은 PI로 표기하였다.

실험에서 아래 판은 스테인리스스틸로 재질을 고정하였고, 동일한 잉크에 대해 위 판의 재질을 스테인리스스틸과 폴리이미드 필름으로 변경함으로써 실험의 변수를 오직 위판과 잉크와의 계면 접착력으로 한정함으로써 최대응력이 계면접착력과 직접 관계하도록 설계하였다. 다양한 농도의 PEO와 EC 잉크에 대해서 각각 두 종류의 재질을 위판으로 하여 위판이 올라감에 따른 응력을 측정하였고, 각 실험에서 측정된 최대응력을 중축으로 나타내었다. 동일 농도의 잉크를 사용한 경우, PEO와 EC 잉크에서 위 판이 스테인리스스틸 일 때 보다 폴리이미드 필름 일 때 더 큰 최대응력이 측정되었다. 이를 통해 PEO와 스테인리스스틸의 계면접착력보다 PEO와 폴리이미드 필름의 계면접착력이 더 크다는 것을 알 수 있다. 동일한 원리로 EC와 스테인리스스틸의 계면접착력보다 EC와 폴리이미드의 계면 접착력이 더 크다는 것을 알 수 있다. 같은 위판을 사용한 경우에 PEO와 EC 잉크의 농도가 증가함에 따라 최대응력이 증가하는 것은 잉크의 내부응력 증가가 최대응력에 포함되기 때문이다.

측정된 계면접착력과 잉크가 기판에 전사되는 양의 관계를 알아 보기 위해서 잉크전사량을 측정하였다. 잉크 전사량의 정의는 초기 평행 원판 사이에 로딩된 잉크의 질량 대비 위 판에 전사된 잉크의 질량이다.

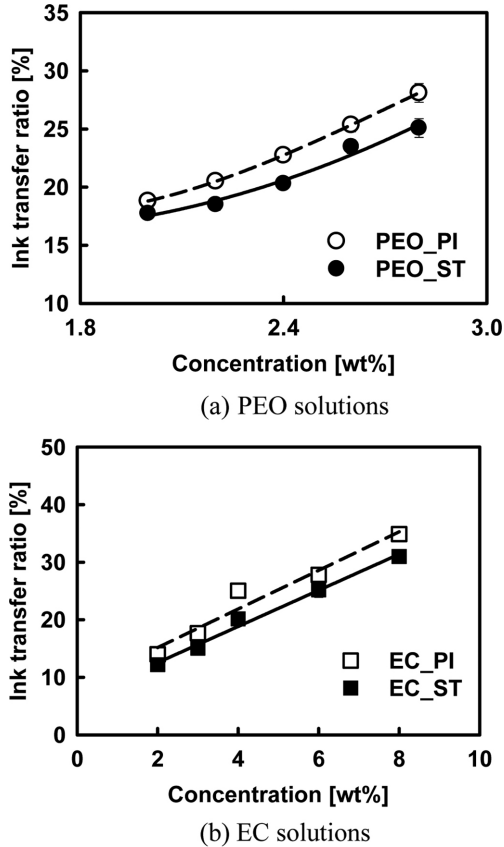


Fig. 7. Ink transfer ratio vs. concentration with different upper plates: (a) PEO solutions (b) EC solutions.

PEO와 EC 잉크가 동일 농도에서, 위 판이 스테인리스스틸에서 폴리이미드 필름으로 바뀌에 따라 잉크의 전사량이 증가하는 결과를 Fig. 7에 나타냈다. 위 판이 잉크와 친화도가 높을수록 위판에 잉크의 젖음성이 높아지기 때문에 더 많은 양의 잉크가 위 판으로 전사된다는 것은 일반적으로 알려져 있다. 본 실험에서 아래 판과 잉크를 동일하게 사용하고 위 판의 재질만 변경하였기 때문에, 그래프의 결과를 통해 폴리이미드 필름과 PEO 및 EC 잉크의 친화도가 스테인리스스틸과 PEO 및 EC 잉크의 친화도보다 좋다는 것을 알 수 있다. 이는 PEO 및 EC 잉크가 폴리이미드 필름과의 계면접착력이 스테인리스스틸과의 접착력보다 높은 결과와 일치한다.

최종적으로, 계면접착력과 잉크 전사량의 상관 관계를 명확히 규

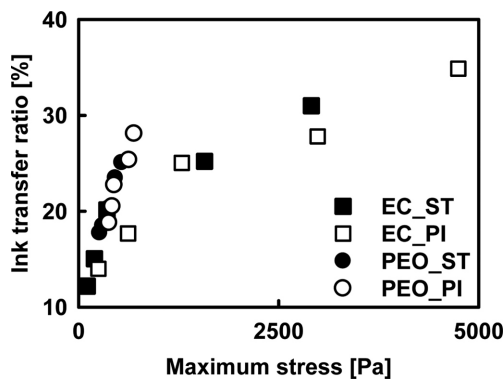


Fig. 8. Correlation between ink transfer ratio and maximum stress.

명하기 위해서 Fig. 8에 동일한 잉크에 대해 위 판이 스테인리스스틸일 때와 폴리이미드 필름일 때를 나누어 측정된 최대응력과 잉크 전사량 값을 나타내었다.

실험에는 다섯 개의 PEO 잉크(2.0, 2.2, 2.4, 2.6, 2.8 wt%)와 다섯 개의 EC 잉크(2, 3, 4, 6, 8 wt%)가 사용되었다. 하나의 실험에 대해서 아래 판과 잉크가 동일하게 사용되고 위판에만 변화를 주었기 때문에 최대응력은 계면접착력과 직접 비례한다. Fig. 8에서 계면접착력이 증가할수록 잉크의 전사량이 높아지는 것을 볼 수 있다. 이상의 결과를 통해 점탄성 잉크와 기관의 친화도를 개조된 인장시험기 실험을 통해 얻어지는 최대응력으로 평가한 계면접착력이 잉크 전사량을 평가하는 데에도 타당한 변수가 될 수 있음을 알 수 있다.

#### 4. 결 론

본 연구에서는 점탄성 잉크와 두 평행 원판으로 단순화한 잉크 전사 공정에서 위 판의 재질만을 변경함으로써, 발생하는 잉크와 기관 사이의 친화도를 평가할 수 있는 방법을 실험적으로 고찰하였다. 지금까지 잉크와 기관의 계면 친화도를 평가하기 위해서는 잉크를 건조한 고체필름과 기관을 이용하는 필 테스트 및 택 테스트를 수행하거나 저점도 뉴턴유체와 기관의 친화도를 알 수 있는 접촉각을 측정하여야 했다. 그러나 산업에서 널리 사용하는 잉크는 입자와 고분자가 포함되어 점탄성을 가지는 고농도 잉크가 대부분이기 때문에 실용적으로 적용 가능한 평가방법이 제시될 필요가 있다. 개조된 인장시험기로 측정된 최대응력은 계면접착력을 평가할 수 있음을 확인하였다. 기존에 잉크와 고체의 계면 친화도를 평가할 수 있는 접촉각 측정 결과와 최대응력과의 상관관계를 밝힘으로써 최대응력이 계면친화도를 잘 반영하는 파라미터임을 증명하였다. 또한 측정된 계면접착력과 잉크 전사량의 관계를 도출하였다. 잉크와 기관의 계면접착력이 높을수록 잉크가 기관으로 전사되는 양이 많음을 알 수 있었다. 그라비아 프린팅 공정에서 패턴의 해상도를 더 향상시키기 위해서는 위 판의 재질 뿐 아니라 잉크 및 아래 판의 재질 또한 변수로 하여 잉크 전사량과 더 밀접한 관계를 가지는 파라미터를 찾는 세밀한 연구가 추가적으로 필요할 것으로 판단된다.

#### 감 사

이 논문은 한국연구재단(No. 2013R1A2A2A07067387)의 지원으로 수행되었습니다.

#### References

- Deng, P. J., Fang, W. and Lu, J. D., "Study About Influencing of Printing Process on Gravure Printing Ink Transfer," *Appl. Mech. Mater.*, **469**, 301-304(2014).
- Lee, J. A., Rothstein, J. P. and Pasquali, M., "Computational Study of Viscoelastic Effects on Liquid Transfer During Gravure Printing," *J. Non-Newton. Fluid Mech.*, **199**, 1-11(2013).
- Lee, J., Kim, A., Cho, S. M. and Chae, H., "Solvent Effects on Gravure-printed Organic Layers of Nanoscale Thickness for Organic Solar Cells," *Korean J. Chem. Eng.*, **29**, 337-340(2012).
- Ghadiri, F., Ahmed, D. H., Sung, H. J. and Shirani, E., "Non-newto-

- nian Ink Transfer in Gravure-offset Printing;" *Int. J. Heat Fluid Flow*, **32**, 308-317(2011).
5. Sankaran, A. K. and Rothstein, J. P., "Effect of Viscoelasticity on Liquid Transfer During Gravure Printing;" *J. Non-Newton. Fluid Mech.*, **175-176**, 64-75(2012).
  6. Huh, S.-H., Kim, K.-D. and Kim, K.-S., "Evaluation of the Peel Strength in Cu/epoxy Thin Film Using a Novel Interfacial Cutting Method;" *Circuit World*, **40**, 71-78(2014).
  7. Solar, M., Qin, Z. and Buehler, M. J., "Molecular Mechanics and Performance of Crosslinked Amorphous Polymer Adhesives;" *J. Mater. Res.*, **29**, 1077-1085(2014).
  8. Sowa, D., Czech, Z. and Byczynski, L., "Peel Adhesion of Acrylic Pressure-sensitive Adhesives on Selected Substrates Versus Their Surface Energies;" *Int. J. Adhes. Adhes.*, **49**, 38-43(2014).
  9. Takahashi, K., Shimizu, M., Inaba, K., Kishimoto, K., Inao, Y. and Sugizaki, T., "Tack Performance of Pressure-sensitive Adhesive Tapes Under Tensile Loading;" *Int. J. Adhes. Adhes.*, **45**, 90-97(2013).
  10. Megias-Alguacil, D., Tervoort, E., Cattin, C. and Gauckler, L. J., "Contact Angle and Adsorption Behavior of Carboxylic Acids on  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Surfaces;" *J. Colloid Interface Sci.*, **353**, 512-518(2011).
  11. Sedev, R., "Surface Tension, Interfacial Tension and Contact Angles of Ionic Liquids;" *Curr. Opin. Interface Sci.*, **16**, 310-316(2011).