

데스크탑 규모의 간결한 롤투롤 나노임프린팅 기반 나노패턴 연속가공 시스템 개발

이정수^{†,*}, 이지훈^{†,*}, 남승범^{*}, 조성일^{*}, 조용수^{*}, 고민석^{*}, 이승조^{*}, 오동교^{*}, 김정대^{*}, 이재혁^{*}, 옥종걸^{*,#}

^{*}서울과학기술대학교 기계·자동차공학과

Development of a Compact Desktop-sized Roll-to-roll Nanoimprinting System for Continuous Nanopatterning

Jeongsoo Lee^{†,*}, Jihun Lee^{†,*}, Seungbum Nam^{*}, Sungil Cho^{*}, Yongsu Jo^{*}, Minseok Go^{*}, Seungjo Lee^{*}, Dong Kyo Oh^{*}, Jeong Dae Kim^{*}, Jae Hyuk Lee^{*}, and Jong G. Ok^{*,#}

^{*}Department of Mechanical and Automotive Engineering, Seoul National University of Science and Technology, Seoul 01811, Korea, [†]These authors equally contributed to this work.

(Received 28 December 2016; received in revised form 9 January 2017; accepted 23 January 2017)

ABSTRACT

We have developed a compact desktop-sized nanopatterning system driven by the Roll-to-Roll (R2R) nanoimprinting (NIL) principle. The system realizes the continuous and high-speed stamping of various nanoscale patterns on a large-area flexible substrate without resorting to ponderous and complicated instruments. We first lay out the process principle based on continuous NIL on a UV-curable resin layer using a flexible nanopatterned mold. We then create conceptual and specific designs for the system by focusing on two key processes, imprinting and UV curing, which are performed in a continuous R2R fashion. We build a system with essential components and optimized modules for imprinting, UV curing, and R2R conveying to enable simple but effective nanopatterning within the desktop volume. Finally, we demonstrate several nanopatterning results such as nanolines and nanodots, which are obtained by operating the built desktop R2R NIL system on transparent and flexible substrates. Our system may be further utilized in the scalable fabrication of diverse flexible nanopatterns for many functional applications in optics, photonics, sensors, and energy harvesters.

Key Words : Nanopatterning(나노패터닝), Nanomanufacturing(나노생산), Continuous Process(연속공정), Roll-to-Roll(롤투롤), Mechanical Machining(기계가공)

1. 서 론

나노스케일의 구조를 포함하는 패턴, 즉 나노패

턴(nanopattern)은 빛이나 소리와의 상호 작용이나 불가시성, 넓은 표면적 등 벌크 구조와는 다른 독특한 구조적 기능적 특성으로 다양한 광학 및 전자 소자, 센서 및 액츄에이터 등에 널리 응용되고 있다^[1,2]. 이러한 나노패턴 성형을 위해 포토(photo) 또는 전자빔(e-beam) 리소그래피(lithography)나 레이저 간섭(laser interferometry) 등의 광학적 패터닝 방법

Corresponding Author : jgok@seoultech.ac.kr

Tel: +82-2-970-9012, Fax: +82-2-979-7032

외에, 근래 들어 공정 원리가 보다 간결하고 저렴하며 광학회절한계(diffraction limit) 이하의 초미세 패턴 성형도 가능한 나노임프린팅(nanoimprint lithography; NIL)과 같은 기계적 가공 방법이 널리 활용되고 있다³⁻⁵⁾. NIL은 본질적으로 몰드(mold)와 기판을 접촉시킨 상태에서 열이나 UV 등을 가하여 몰드의 형상을 기판 쪽으로 찍어내는 스탬핑(stamping) 공정으로서, 그러나 도장을 찍는 듯한 1:1 스탬핑 방식으로는 점증하는 나노패턴의 수요에 가공 면적이나 속도, 생산 단가 등의 면에서 충분한 대응이 어려울 수 있다.

이에 따라, 최근에는 몰드를 유연한 형태로 제작한 후 이를 롤(roll)에 감아 기판 상에 굴리면서 연속적으로 스탬핑을 수행하는 Roll-to-Roll (R2R) NIL 공정이 개발되어, NIL 기반 나노패터닝의 생산성과 면적 확장성을 높이기 위한 핵심 기술로서 주목받고 있다⁶⁻⁸⁾. R2R NIL은 스탬핑이 짧은 시간 내로 연속적으로 이루어져야 하는 롤 공정 원리 상, 통상적으로 열 성형보다는 UV 경화성 레진(resin)을 기판에 도포한 후 몰드가 이를 스탬핑하면서 동시에 UV를 조사하여 경화시키는 방식으로 진행된다. 즉, UV 경화성 레진 박막에 나노패턴을 프린팅하는 것과 유사한 개념으로, 최적의 R2R NIL을 위해서는 몰드가 함유한 나노패턴의 크기 및 형상, 레진의 점성 및 경화 특성, 롤링 속도, UV 파장 및 세기 등 주요 공정 변수들 간의 상관 관계 연구가 필수적이다^{17,9)}.

이러한 기초 연구를 위해 항상 상용 롤 프린팅 머신이나 롤 코터(coater) 등과 같이 대규모로 수많은 제어 및 센싱 유닛을 수반하는 복잡하고 고가의 시스템을 도입하는 것은 무리가 따를 수 있다. 이에 따라 본 연구에서는 지나치게 복잡하지 않되 R2R NIL의 핵심 공정 원리를 반영하여 상기한 공정 변수들의 컨트롤이 가능한 컴팩트한 데스크탑(desktop) R2R NIL 스테이션의 설계 및 구축 과정을 전개한다. 이어서, 구축된 시스템을 실제 운용하며 적절한 공정 변수의 컨트롤을 통해 나노스케일의 주기를 갖는 라인(line) 및 닷(dot) 등 다양한 형상의 유연 나노패턴을 제작하는 결과를 제시함으로써 본 시스템의 기초 성능을 검증한다. 나아가, 몰드 형상의 정확한 복제 및 균일도 향상 등의 추가

적인 성능 개선 방향 및 유연전자, 광학, 센서, 에너지 등 다양한 기능성 소자에의 응용 방안에 대하여 고찰한다.

2. 데스크탑 롤투롤 임프린팅 시스템의 설계 및 구축

2.1 공정 원리 및 개념 설계

Fig. 1은 R2R NIL, 또는 평평한 기판을 위한 Roll-to-Plate (R2P) NIL 공정의 개념 원리를 모식적으로 나타낸다. 유연한 몰드를 롤에 감고 UV 경화성 레진을 도포한 기판과 접촉시켜 적절한 가압 상태를 유지하며 롤링을 수행한다. 몰드와 기판이 분리되는 부분에 UV를 조사하여 레진에 임프린팅된 패턴을 경화하여 완성한다. 이러한 R2R/R2P NIL의 공정 원리의 핵심을 간결하게 반영하기 위해, 본 연구에서는 크게 임프린팅(imprinting) 및 UV 경화(curing)의 두 가지 프로세스로 구분하여 각 프로세스를 진행하는 모듈을 제작하고, 프로세스가 연속적으로 진행되도록 R2R 이송장치를 통해 두 모듈 사이를 연결할 수 있다.

임프린팅 모듈은 스탬핑을 실행하는 몰드 롤과 이를 밑에서 받치는 백업(backup) 롤 및 기판 이송

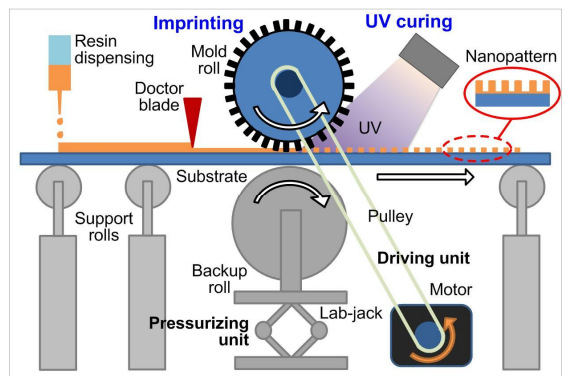


Fig. 1 Conceptual scheme of a Roll-to-Roll nanoimprinting. The two main processes, imprinting and UV curing, along with the other necessary processes including the resin coating and motorized rolling are also marked

을 뒷받침하는 서포트(support) 롤들로 구성하였으며, 나노패턴의 품질 향상을 위해서 적절한 압력을 가하는 가압 유닛(pressurizing unit)이 필요하며 가압력을 계측 및 제어하기에 용이한 설계가 요구된다. 특히 50-100 nm 급의 고해상도 NIL에서는 롤의 변형으로 인한 기관의 변형이 나노패턴의 품질 저하에 치명적으로 작용할 수 있으므로 롤의 변형에 대한 고려가 중요하다. 또한 기관의 이송은 임프린팅 롤과 기관의 접촉힘에 의한 마찰력을 이용하여 임프린팅 롤의 회전을 통해 구현할 수 있다.

UV 경화 모듈은 임프린팅 모듈에서 나노패턴이 광감응성 레진에 전사된 직후에 365 nm 파장의 자외선을 조사하여 레진을 경화시키는 역할을 하며 이 때 레진이 잘 경화될 수 있도록 UV의 출력 강도와 기관의 이송 속도를 적절히 조절할 수 있다. 경화 속도가 빠를수록 이송 속도가 빨라질 수 있으므로 UV의 출력 강도가 높아질수록 생산성이 좋아지게 된다. 하지만 지나치게 높은 출력의 UV는 기관 필름의 변형 및 안전 문제를 야기할 수도 있으므로 적절한 수준의 유지가 필요하며, 이와 연관된 누광 방지 설계 또한 중요한 요소가 된다.

이와 같은 임프린팅 및 UV 경화 모듈을 결합한 R2R NIL 스테이션은 임프린팅 모듈에서 레진이 도포된 기관에 나노패턴을 스탬핑한 후 UV 경화 모듈을 통과하며 경화시키는 핵심 작업들이 모두 R2R 공정 기반으로 이루어지므로 대면적 나노패턴의 연속적인 제작이 가능하다. 이러한 R2R NIL 방식의 나노패터닝은 기존의 리소그래피, 박막 증착, 식각 등 많은 단계의 일괄 공정을 거쳐야 하는 방식에 비해 공정 절차가 간결하고 속도가 빠르며 필요한 설비가 간소하므로 저비용 고효율의 높은 생산성을 갖는 대면적 나노패터닝을 구현할 수 있다.

2.2 롤투를 임프린팅 시스템 구체 설계

Fig. 2는 상기한 개념 설계를 토대로 CAD를 이용하여 보다 구체화한 R2R NIL 시스템 설계 도면을 나타낸다. 먼저 임프린팅 모듈에서는 몰드 롤과 그 바로 하단부에서 대응하여 몰드-기관의 가압 접촉을 뒷받침하는 백업(backup) 롤 모두 양단 지지 방식을 적용함으로써 롤의 축방향으로 고른 가압 하중이 작용되면서 자중에 의한 롤의 변형을 최소화

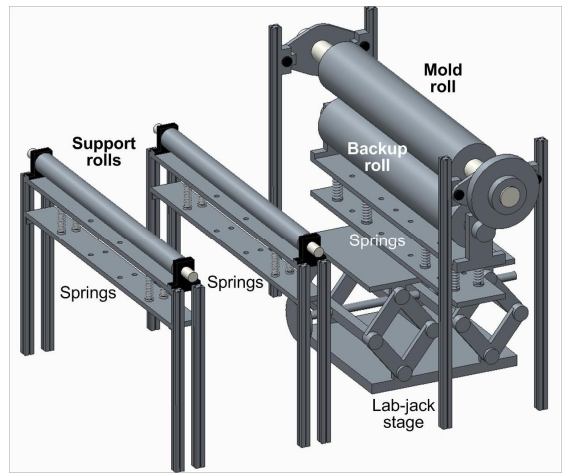


Fig. 2 3D CAD drawing of an imprinting module; the mold roll and backup roll are responsible for pressurized imprinting, while the support rolls help secure uniform and continuous substrate feeding.

화하도록 설계하였다. 가압 유닛에는 스프링과 랩잭(lab-jack) 타입 수직 이송 스테이지를 병용하여 패턴 형상 및 사용 레진에 따라 조정이 요구되는 가압력 범위 컨트롤이 용이하도록 하였으며, 동시에 가압력으로 인해 발생할 수 있는 기관의 변형을 최소화할 수 있도록 설계하였다. 또한 알루미늄 플레이트와 가이드 핀을 활용하여 계측 및 제어 모듈의 연계 탑재에도 용이하도록 설계하였다.

기관의 R2R 이송을 담당하는 서포트 롤들에도 스프링을 부착하여 기관의 재질 및 상태에 따른 높낮이의 불균형을 최대한 보정하면서 전체적으로 고른 이송이 이루어질 수 있도록 하였으며, 무엇보다도 이러한 스프링 지지 방식 적용을 통해 가압력의 변화에 따라 달라질 수 있는 임프린팅-백업 롤의 접촉 높이 변화에 대응할 수 있도록 하였다. 서포트 롤들은 가압부 입력 단에 2개, 출력 단에 1개를 배치하였다.

2.3 제작 구축

상기와 같이 설계된 R2R NIL 시스템을 실제로 제작 구축한 결과를 Fig. 3에 나타내었다. 본 시스템은 전체적으로 데스크탑 규모(가로 × 세로 × 높

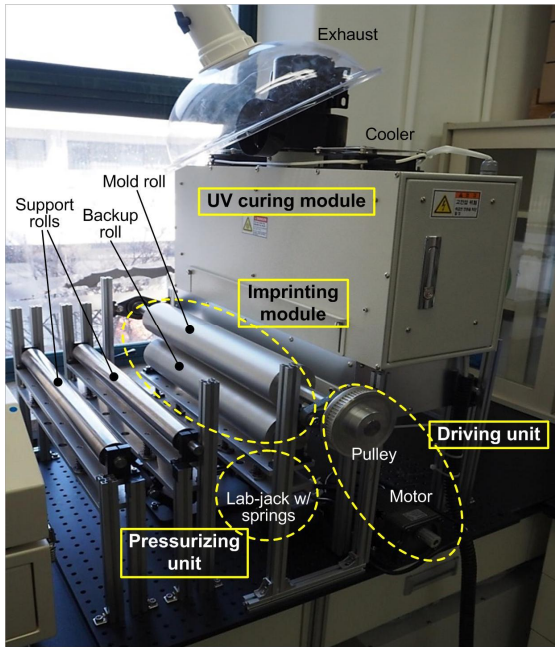


Fig. 3 Completed prototype of a desktop-volume Roll-to-Roll nanoimprinting system where the essential modules and units are marked.

이 = 75 × 75 × 80 cm)의 간결한 구조로서, 롤 공정 기반으로 다양한 나노패턴을 경질 및 연질 기관 상 넓은 면적에 연속적으로 성형할 수 있도록 구현하였다. 스프링과 랩잭을 병용하여 넓은 범위의 가압력에 대응 가능하고, 높낮이 조절을 통한 UV 파워조절을 통해 컴팩트한 장비 내에서 실험이 용이하게 진행될 수 있도록 설계 구축하였다. 최대 400 mm 폭의 기관에 균일한 임프린팅 및 UV 경화가 가능하도록 길이 500 mm의 롤들을 사용하였다.

Fig. 4는 R2R NIL 시스템 내 가압 및 이송 유닛 (driving unit)의 세부 구성도(Figs. 4a and 4b) 및 구축 탑재된 UV 모듈의 광량 특성 그래프(Fig. 4c)를 나타낸다. 가압 유닛(Fig. 4a)은 랩잭 스테이지 및 8개의 스프링을 사용하여 가압력을 제어하도록 제작하였으며 최대 가압력은 160 N 정도로서, 필요에 따라 스프링의 용이한 교체를 통해 그 이상의 가압력을 적용할 수도 있도록 구축하였다.

R2R 이송 구현을 위한 이송 유닛(Fig. 4b)에는 임프린팅 롤의 회전 구동을 위하여 25 W 출력의

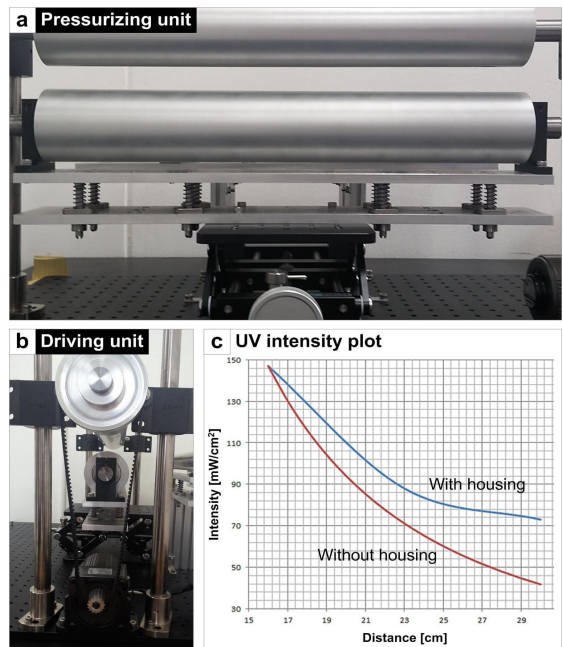


Fig. 4 Detailed views of (a) the pressurizing unit and (b) driving unit. (c) UV intensity values versus distance measured without (red) and with (blue) the housing.

DC 모터(M8RA25GB4DU, Panasonic)를 사용하였으며, 풀리(pulley)와 타이밍벨트(timing belt)를 이용하여 미끄럼 없는 정속 구동을 구현하였다. 또한, 모터에 감속 기어(M8GA150M, Panasonic)를 결합하여 가압 상태에서도 충분히 구동할 수 있는 토크(~80 kg·cm)를 발생시킬 수 있도록 하였으며, 모터 자체의 속도 제어 및 풀리와 타이밍벨트의 교환을 통한 기어비 변경으로 임프린팅 속도의 제어가 가능하도록 제작하였다. 이를 통해 최대 0.75 m/min 속도의 연속적 R2R 이송 임프린팅이 가능한 시스템을 구축하였다.

한편 UV 경화 모듈은 원하는 경화 속도 및 폭을 만족하기 위해 최대 약 200 mW/cm²의 광량 강도 및 500 mm의 유효 발광장폭을 갖는 메탈할라이드 (metal halide) UV 램프(최대 4 kW 출력)를 선정하여 쿨링(cooling) 및 배기, 누광 감지 및 안전 차단 기능이 포함된 하우징(housing) 내에 탑재하였으며, 이를 전원 출력 및 조사 시간을 조절할 수 있는 콘

트롤러와 연동하여 전체 시스템에 결합하였다. 또한 하우징 내 반사경 장착을 통해 거리 증가에 따른 광량 손실을 줄임으로써(Fig. 4c) 보다 효율적인 공정 수행을 가능케 하였으며, 하우징 내에서 UV 램프의 높낮이를 조절할 수 있도록 하여 광량의 제어가 보다 용이하도록 하였다.

3. 데스크탑 롤투롤 임프린팅 시스템 운용을 통한 나노패턴 제작

이와 같이 구축된 데스크탑 롤투롤 임프린팅 시스템을 적절한 가압 및 롤링, 경화 조건 하에 운용하여 실제 나노패턴을 제작한 사례를 Fig. 5에 나타내었다. 먼저 PDMS(polydimethylsiloxane)를 이용하여 유연 몰드(Fig. 5a, 5c)를 제작하여 임프린팅 롤에 감는다. 이 때, 롤 전체를 감을 수 있도록 필요에 따라 작은 조각 크기의 마스터 몰드를 타일링하여 이어붙일 수 있다^[10,11]. 투명한 UV 경화성 레진(311RM; Minute Tech)을 도포한 유연한 투명 폴리머(PET; polyethylene terephthalate) 기판을 R2R 이송하면서(이송 속도 0.5 m/min) 유연몰드와 가압 접촉시키며(접촉힘 50~100 N) 연속적인 스탬핑을 수행한 직후, UV 경화 모듈을 거치면서(광량 강도 100 mW/cm²) 나노패턴을 완성한다(Fig. 5b, 5d). 700 nm 주기의 1차원 나노라인(Fig. 5a-b) 및 500 nm 크기의 2차원 나노닷(Fig. 5c-d) 등 다양한 형상의 나노패턴을 고속으로 제작할 수 있으며, 롤링을 통해 원하는 만큼의 넓은 면적에 연속적으로 스탬핑할 수 있다.

이러한 성공적인 기초 실험 결과를 토대로, 현재 전체 면적에 걸쳐(특히 가장자리 부분까지) 몰드 형상을 정확히 반영하는 균일한 패턴 성형의 완성도를 높이는 연구가 심화 후속 주제로서 추진되고 있다. 이와 같은 대면적용 투명 유연 나노패턴 구조는 유연 편광 패널^[12], 유연 투명전극^[13], 유연 메타구조 소자^[8], 유연 바이오센서^[14,15] 등 다양한 유연 기능성 소자에 활용할 수 있으며, 이외에도 유연 태양전지, 에너지하베스팅(energy harvesting) 소자, 칼라필터(color filter) 등 보다 폭넓은 분야에의 응용 방안이 탐구 중에 있다.

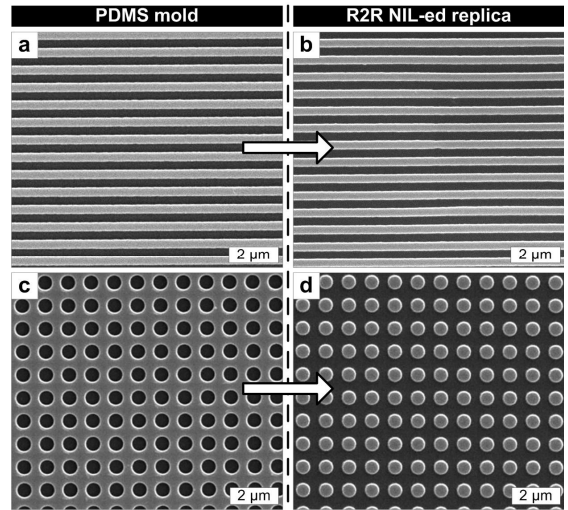


Fig. 5 Exemplification of the nanopattern stamping by operating the built Roll-to-Roll nanoimprinting system: (a-b) 700 nm-period nanolines and (c-d) 500 nm-period nanodots. (a) and (c) show the used flexible molds, and (b) and (d) show the Roll-to-Roll-imprinted replica patterns.

4. 결론

본 연구에서는 대규모 설비를 배제한 간결한 데스크탑 규모의 R2R NIL 기반 연속 나노패터닝 시스템의 공정 원리 확립 및 설계 과정을 제시하고, 이를 토대로 구축된 시스템의 운용을 통한 투명 유연 나노패턴의 제작 결과를 보였다. 롤링 공정 기반으로 임프린팅과 UV 경화를 연속적으로 수행하는 공정 개념을 토대로, 가압 임프린팅, UV 경화, 롤링 이송 등 핵심 모듈 및 유닛들의 구체 설계 과정을 거쳐 실제로 제작 구축한 시스템을 운용하여 1차원 나노라인 및 2차원 나노닷 등 몇 가지 대표적인 형상의 나노패턴을 성공적으로 성형한 결과를 제시하였다. 나아가, 보다 정교한 유연 스탬프의 제작을 비롯해 임프린팅 및 UV 경화 조건의 정밀 컨트롤 등을 통해 더욱 미세하고 균일한 나노패턴의 제작이 가능할 것으로 기대된다. 이러한 투명 유연 나노패턴은 편광, 전도, 구조색

발현, 플라즈모닉(plasmonic) 센싱 등 특유의 다양한 기능들을 구현할 수 있어, 광학, 전자, 디스플레이, 센서 및 계측 등 여러 분야에 걸쳐 폭넓은 응용이 가능할 것이다.

후 기

이 연구는 서울과학기술대학교 교내연구비의 지원으로 수행되었습니다.

REFERENCES

1. Seo, J. H., Park, J. H., Kim, S.-I., Park, B. J., Ma, Z. Choi, J. and Ju, B. K., "Nanopatterning by Laser Interference Lithography: Applications to Optical Devices", *J. Nanosci. Nanotech.*, Vol. 14, No. 2, pp. 1521-1532, 2014.
2. Ok, J. G., Shin, Y. J., Park, H. J. and L. J. Guo, "A step toward next-generation nanoimprint lithography: extending productivity and applicability", *Appl. Phys. A*, Vol. 121, No. 2, pp. 343-356, 2015.
3. Guo, L. J., "Nanoimprint Lithography: Methods and Material Requirements", *Adv. Mater.*, Vol. 19, No. 4, pp. 495-513, 2007.
4. Sreenivasan, S. V., Nanoscale manufacturing enabled by imprint lithography, *MRS Bulletin*, Vol. 33, No. 9, pp. 854-863, 2008.
5. Ok, J. G., Ahn, S. H., Kwak, M. K. and Guo, L. J., "Continuous and high-throughput nanopatterning methodologies based on mechanical deformation", *J. Mater. Chem. C*, Vol. 1, No. 46, pp. 7681-7691, 2013.
6. Ahn, S. H. and Guo, L. J., "High-Speed Roll-to-Roll Nanoimprint Lithography on Flexible Plastic Substrates", *Adv. Mater.*, Vol. 20, pp. 2044-2049, 2008.
7. Ahn, S. H. and Guo, L. J., "Large-Area Roll-to-Roll and Roll-to-Plate Nanoimprint Lithography: A Step toward High-Throughput Application of Continuous Nanoimprinting", *ACS Nano*, Vol. 3, No. 8, pp. 2304-2310, 2009.
8. Ok, J. G., Youn, H. S., Kwak, M. K., Lee, K.-T., Shin, Y. J., Greenwald, A., Liu, Y. and Guo, L. J., "Continuous and scalable fabrication of flexible metamaterial films via Roll-to-Roll nanoimprint process for broadband plasmonic infrared filters", *Appl. Phys. Lett.*, Vol. 101, No. 22, pp. 223102, 2012.
9. Lee, C. W., Kim, N. S. and Kim, C. W., "Statistical Analysis for Thickness and Surface Roughness of Printed Pattern in Roll-to-Roll Printed Electronics System", *Korean Soc. Mech. Eng. A*, Vol. 37, No. 3, pp. 287-294, 2013.
10. Kwak, M. K., Ok, J. G., Lee, S. H. and Guo, L. J., "Visually Tolerable Tiling (VTT) for making large-area flexible patterned surface", *Mater. Horizons*, Vol. 2, No. 1, pp. 86-90, 2015.
11. Lee, J. H. and Kwak, M. K., "A study on the application of the visually tolerable tiling method to roll type lithography equipment", *Proc. Kor. Soc. Manuf. Proc. Eng. Autumn Conference 2016*, pp. 175-176, 2016.
12. Shin, Y. J., Pina-Hernandez, C., Wu, Y.-K., Ok, J. G. and Guo, L. J., "Facile route of flexible wire grid polarizer fabrication by angled evaporations of aluminum on two sidewalls of an imprinted nanograting", *Nanotechnology*, Vol. 23, No. 34, pp. 344018, 2012.
13. Ok, J. G.*, Kwak, M. K.*, Huard, C. M., Youn, H. S. and Guo, L. J. (*equal contributions), "Photo Roll Lithography (PRL) for continuous and scalable patterning with application in flexible electronics", *Adv. Mater.*, Vol. 25, No. 45, pp. 6554-6561, 2013.
14. Ko, J. B., Kim, H. C., Yang, Y. J., Kim. H. B., Yang, S. W., Oh, S. H., Doh, Y. H. and Choi, K. H., "Implementation of Biosensor Pattern Using Micro Patterning Technique", *J. Kor. Soc. Manuf. Proc. Eng.*, Vol. 15, No. 6, pp. 122-128, 2016.
15. Wi, J.-S., Lee, S., Lee, S. H., Oh, D. K., Lee, K.-T., Park, I., Kwak, M. K. and Ok, J. G., "Facile three-dimensional nanoarchitecturing of double-bent gold strips on Roll-to-Roll nanoimprinted transparent nanogratings for flexible and scalable plasmonic sensors", *Nanoscale*, Vol. 9, No. 4, pp. 1398-1402, 2017.