

롤투롤 그라비아 방식의 인쇄 전극 저항 최소화를 위한 실험계획법 적용 인쇄 공정 조건 최적화

이상윤^a, 김철^a, 김충환^{a*}

Optimization of Printing Conditions Using Design Experiments for Minimization of Resistances of Electrodes in Roll-to-roll Gravure Printing Process

Sang Yoon Lee^a, Cheol Kim^a, Chung Hwan Kim^{a*}

^a Department of Mechanical & Metallurgical Engineering Education, Chungnam National University,
99, Daehak-ro, Yuseong-gu, Daejeon 34134, Korea

ARTICLE INFO

Article history:

Received	10	July	2017
Revised	2	August	2017
Accepted	3	August	2017

Keywords:

Roll-to-roll
Gravure printing
Design of experiments
Printing condition
Low resistance
Spread ratio

ABSTRACT

The resistance of printed patterns for electrodes fabricated using printing technology should be minimized. This parameter depends on the pattern width and thickness; however, from the viewpoint of printability, the printed patterns should be printed at the designed width. The resistance of the printed patterns as well as printability is affected by various printing conditions. In this paper, the printing condition is optimized to minimize the resistance of electrodes printed by the roll-to-roll gravure method. This is done by considering the spread ratio of pattern width as a parameter of printability using design experiments. The drying temperature, dryer fan speed, and printing speed are selected as effective factors for the experiment objective. The optimized conditions are obtained and reproducibility test using these demonstrates that the optimized conditions can produce low-resistance electrodes for printability of the pattern width.

1. 서론

1.1 연구배경

전자소자를 롤투롤 인쇄전자 기술로 생산할 경우, 롤투롤 연속 인쇄 시스템의 공정기술^[1]에 따라서 전자소자의 회로품질이 좌우될 수 있다. 이러한 회로 품질에는 패턴 자체의 형상과 관련된 패턴의 선폭, 높이, 표면 조도^[2] 및 전기적 특성인 저항 등 여러 항목이 있다. 이 중에서 전기 저항 값은 건조 조건 설정에 따라서 큰 차이를 보인다^[3]. 그리고 인쇄 패턴의 물리적 형상인 선폭, 높이도 인쇄 조건 설정에 따라 저항 값에 차이를 주는데, 패턴의 선폭 및 높이의

변화 현상이 잉크의 점도에 영향을 받는다^[4]. 패턴의 품질, 즉 인쇄성에 따라 인쇄된 전자소자의 품질이 좌우되기 때문에, 인쇄 공정에서의 건조 조건을 포함한 인쇄 조건 설정이 중요하며, 인쇄 공정의 조건 최적화와 관련된 연구가 있다^[5-7].

건조 공정에서의 주요 변인은 온도와 시간으로, 온도를 올리면, 건조 속도가 빨라지지만, PET 모재필름이 수축 등으로 인해 손상 가능성이 커지며, 온도가 낮을 경우 건조 시간을 길게 가져가야 하므로, 생산성이 떨어지게 된다. 대량생산과 인쇄성을 고려한 목표 사이에서 적당한 이송시간을 기준으로 온도를 설정해야 하는 조건 설정의 어려움이 있다. 본 연구에서는 인쇄 전극의 저항뿐만 아니

* Corresponding author. Tel.: +82-42-821-8584

Fax: +82-42-821-8732

E-mail address: mech@cnu.ac.kr (Chung Hwan Kim).

라, 인쇄성의 하나의 요소로서 Fig. 1에서 표현된 인쇄 번짐률 (spread ratio) 항목도 고려하고자 한다. 번짐률의 경우, 조밀한 회로 설계 및 요구 전류에 맞는 전자소자 선정 시 고려해야하는 인쇄성 관련항목이다. 설계 선평 대비 인쇄 선평이 100 %를 넘어설 경우 조밀한 회로배치에서 인접한 회로 패턴과 의도하지 않은 중첩이 발생하므로, 제품 불량을 발생시키고, 반대로 인쇄 선평이 설계 선평 대비 100% 이하로 인쇄 될 경우, 전극의 저항이 높아져 전자소자 성능 구현에 문제가 발생할 수 있다.

따라서 설계 선평의 100%에 최대한 근접하게 인쇄 될 수 있도록 실험 요인의 수준을 최적화 할 필요가 있다. 이에 따라, 본 연구는 건조 온도, 열풍기 풍속, 인쇄 속도, 및 재료물성인 잉크 점도 요인을 선정 후, 설계 선평에 100% 근접하여 인쇄하면서 저항 최소화 목적을 달성하기 위한 최적 인쇄 조건을 찾아내는 연구를 수행하였다.

1.2 요인배치 설계법을 활용한 실험계획

본 연구에서는 실험계획법 중에 요인배치 설계법^[8]을 활용하여 실험계획 및 분석을 실시한다. 요인배치 설계 실험계획법은 반응최적화도구(response optimizer)를 활용해서 다중 목적의 최적 조건을 도출할 수 있는 장점이 있다.

1.3 롤투롤 그라비아어 연속 인쇄 공정 시스템

실험 방법은 다음과 같다. 우선 실험 조건을 결정한 다음, 실험 조건에 해당되는 장치 제어 변수를 설정하는데, 건조 온도, 열풍기 풍속, 인쇄 속도 등의 실험 조건 및 기타 설정 값을 실험 조건의 수준 값에 도달하게 한다. 인쇄 매체인 PET 필름이 감겨있는 풀림롤을 구동시켜서 인쇄를 시작한다. 이후 Fig. 2의 연속 인쇄 공정시스템 특성상 자동으로 PET 필름이 인쇄-건조를 거쳐 감김 롤까지 자동으로 연속 진행된다. 인쇄 재료인 전도성 은 잉크는 (주파리의 'PG-007 silver nano ink'를 사용하였고, 잉크 점도 5,000 cP 및 3,000 cP의 두 종류를 주문하여 사용하였다. 필름 웹 소재는 100 μm 두께의 SKC PET 필름이다.

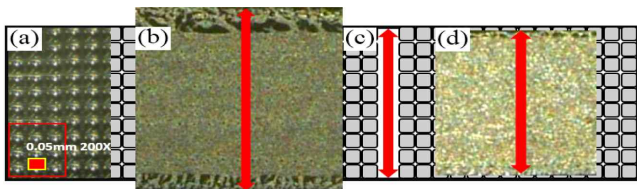


Fig. 1 Spread ratio with widths of printed pattern to designed pattern: (a) Pattern cell microscopy image, (b) Widths of printed pattern over designed widths, (c) Widths of designed pattern, (d) Widths of printed pattern under designed widths

2. 전극 저항 최소화목적의 최적 인쇄 조건 도출실험

2.1 예비 실험을 통한 인쇄 요인 및 수준 선정

본 실험에 앞서, 건조 조건 수준 선정을 위한 예비 실험에서는 온도 및 풍속의 2개 요인을 선택하여, 그 수준 값은 PET의 열적특성을 고려해서 온도 요인은 120, 160 °C로 2개 수준을 설정하였다. 열풍기 풍속은 열풍기에서 설정 가능한 팬의 회전 주파수를 사용하였고, 실험시스템에서 설정한 온도 값이 지속적으로 유지될 수 있는 최대값인 40 Hz를 기준으로, 10, 40 Hz의 2개 수준을 정하였다. 그리고 번짐률에 영향을 준다고 파악된 효과 요인으로 인쇄 속도와 잉크 점도의 2개 요인을 선택해서 예비 실험을 실시하였다. 인쇄 속도의 경우 잉크의 전이성에 영향을 줄 뿐만 아니라, 건조 시간과도 영향이 있기 때문에 빠른 속도로 인쇄할 경우 충분한 건조가 이루어지지 않는다. 따라서 건조 시간을 고려하여 최대 인쇄 속도를 30 mm/s로 설정하고, 5, 10, 20, 30 mm/s의 4개 수준 값을 정하였다. 점도의 경우 점도가 너무 낮을 때는 인쇄 매체에 정착된 잉크가 흘러내리고, 점도가 너무 높을 경우 인쇄 패턴 롤의 셀에서 잉크의 전이가 불완전한 현상을 고려하여, 점도의 양극단을 제외한 5,000, 30,000 cP의 2개 수준 값을 정하였다. 수준 값 설정

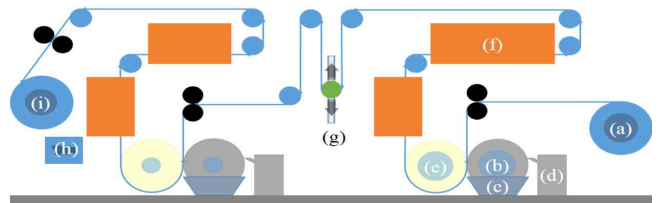


Fig. 2 Schematic diagram of roll-to-roll gravure printing system: (a) Unwinder roll, (b) Printing roll, (c) Ink container, (d) Doctor blade, (e) Impression roll, (f) Drying oven, (g) Active dancer, (h) Line camera, (i) Rewinder roll

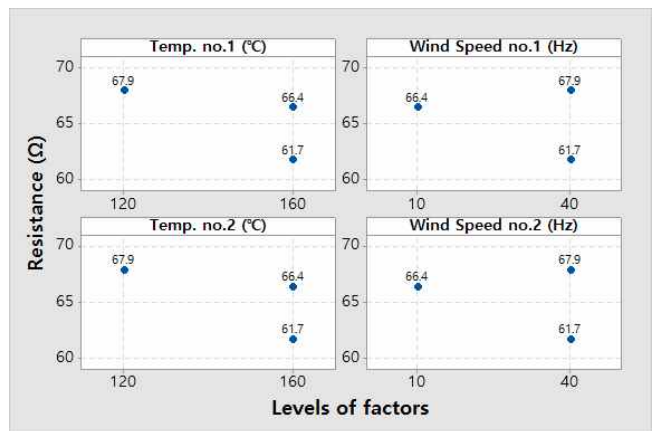


Fig. 3 Scatterplot of resistance vs. drying temperature & wind speed in pretest

후 실시한 결과를 Fig. 3의 산점도로 확인해보면, 온도, 풍속 수준 별 저항 결과 값의 차이를 볼 수 있다. 건조 구간을 1도와 2도로 나눠서 운용하는 실험장치 특성상 결과표시를 no.1,2로 구분하였다. 번짐률의 경우에는 인쇄 선속도 4개와 점도 2개의 복합수준 배치 후 실시한 결과 값을 Fig. 4에 표시하였다. 선속도의 양극단 수준 값 대 번짐률 결과 값, 점도의 2개 수준 값 대 번짐률의 차이를 구별 할 수 있고, 이점을 참고하여 최적 조건 수립을 위한 본 실험의 요인 별 수준 값을 Table 1과 같이 결정하였다.

2.2 인쇄 조건 별 본 실험 및 결과측정

Table 1의 데이터를 이용하여 요인배치 설계법으로 Table 2의 본 실험 조건을 도출하였다.

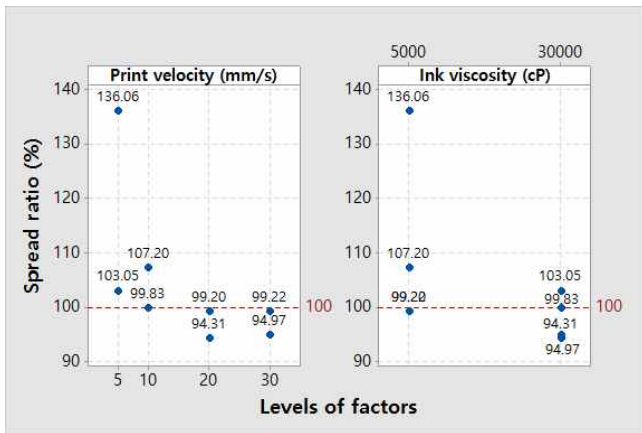


Fig. 4 Scatterplot of spread ratio vs. print velocity & ink viscosity in pretest

Table 1 Factors and levels decided for main experiment

Factors Levels	Drying Temp. (°C)	Fan speed (Hz)	Printing speed (mm/s)	Ink viscosity (cP)
1	130	10	5	5000
2	160	40	30	30000

Table 2 Combinations of factors & levels in printing condition

Run Order	Drying Temp. (°C)	Fan speed (Hz)	Printing speed (mm/s)	Ink viscosity (cP)
1	130	10	5	5000
2	130	40	30	5000
3	130	10	30	30000
4	130	40	5	30000
5	160	40	30	30000
6	160	10	5	30000
7	160	10	30	5000
8	160	40	5	5000

Fig. 5에 보이는 인쇄 롤 1회전에 해당하는 인쇄 패턴 형상 중 점선 사각형안의 선이 측정 대상 패턴이다. 패턴 선폭은 500 μm, 길이는 80 mm이다. 인쇄 롤을 6회전 시켜서 조건 별 6개 패턴의 저항 및 번짐률 결과 값을 취하여, 8개 조건 48개의 데이터를 취합하였다. 실험 조건 별 저항 결과 값 분포는 Fig. 6에서 보듯이 조건 별로 평균이 분산되어 있고, 저항 값의 표준편차 범위도 조건 1번(C1)의 3.475 Ω을 제외하고, 0.16~1.45 Ω 값을 보인다.

C1의 경우, 건조 온도, 열풍기 풍속, 인쇄 속도, 잉크 점도 모두

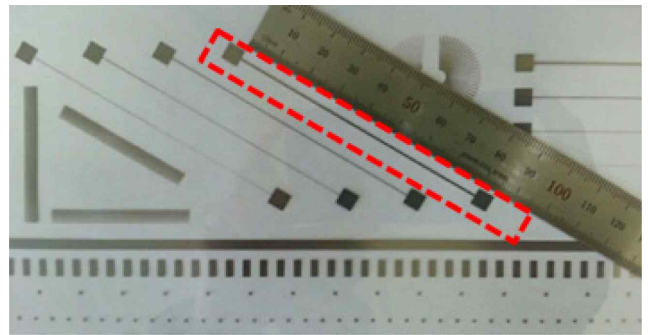


Fig. 5 Printed patterns on the PET substrate

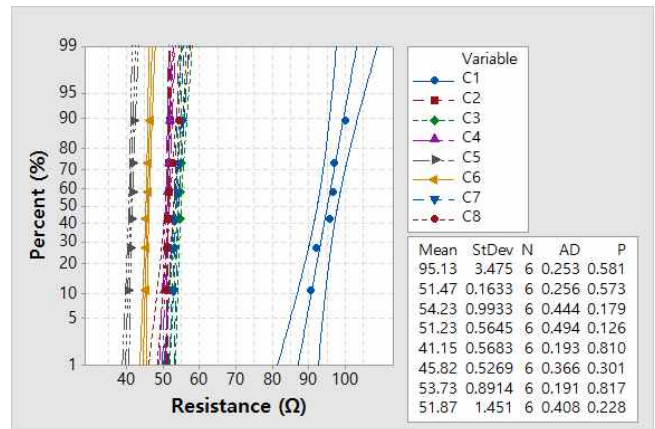


Fig. 6 Resistance probability of each printing condition

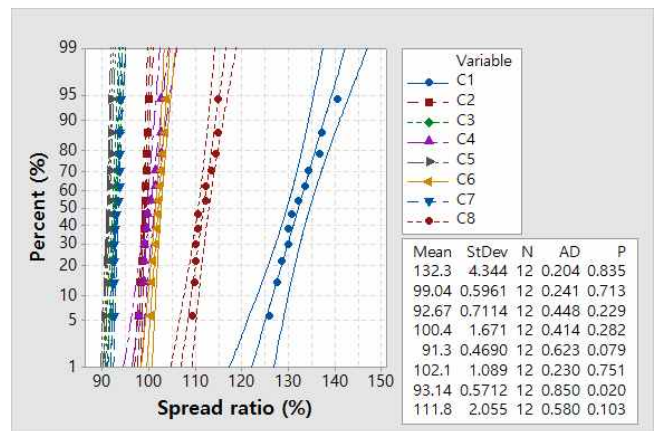


Fig. 7 Spread ratio probability of each printing condition

낮은 수준인 130°C, 10 Hz, 5 mm/s, 5,000 cP이므로, 낮은 점도의 잉크가 느린 인쇄 속도에서 전이 및 건조가 불완전하여 발생된 결과로 추정된다.

그리고 모든 조건에서 95% 신뢰성 기준 P-값 0.05 이상으로 저항 결과 값이 모형직선에 따르고 있다. 번짐률 항목의 경우에도

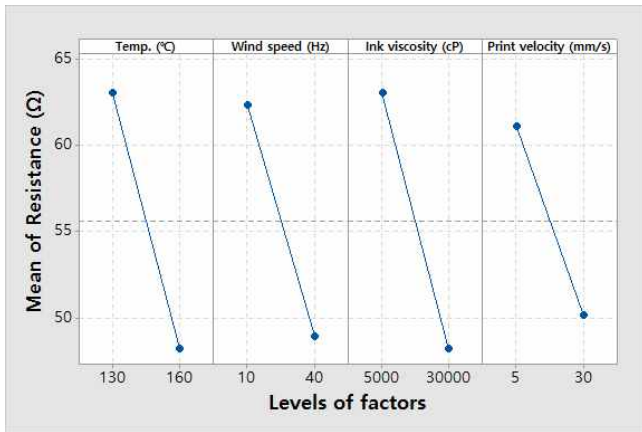


Fig. 8 Main effect plot for resistance on the effect of factors

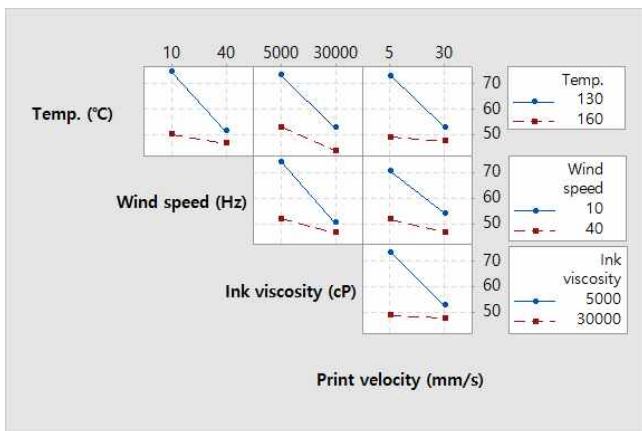


Fig. 9 Interaction plot for resistance on the effect of factors

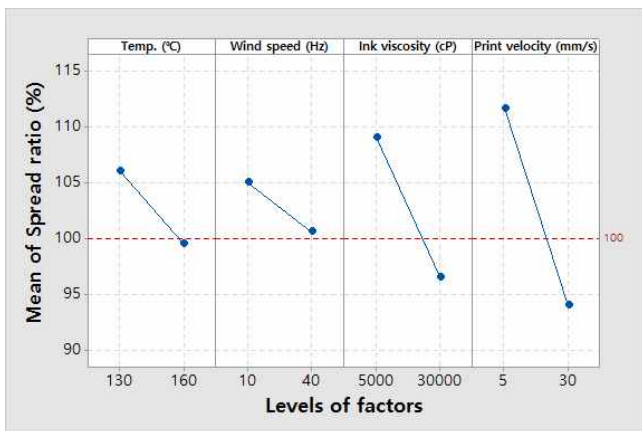


Fig. 10 Main effect plot for spread ratio on the effect of factors

Fig. 7에서 보듯이 조건 별로 평균 값이 분산되어 있고, 표준편차도 조건 1번(C1)의 4.34% 값을 제외하고, 0.46~2.05% 값을 유지하고 있다. 조건 7번(C7)을 제외한 모든 조건에서 95% 신뢰성 기준 P-값 0.05 이상으로 모형직선에 따른다.

2.3 인쇄 패턴 저항 최소화 가능한 최적 조건 수준 도출

본 실험 결과에 대한 효과도 Fig. 8-11에서 보면, 건조 온도, 열풍기 풍속, 인쇄 속도, 점도 요인은 각각 160°C, 40 Hz, 30 mm/s, 30,000 cP로 갈수록 저항 값이 최소화되고, 요인 간 상호작용은 없다. 번짐률 100%에 근접하는 수준은 160°C, 40 Hz, 20 mm/s, 25,000 cP 정도로 확인되며, 요인 간 상호작용은 미미하게 나타난다. 일반적으로, 인쇄 속도가 느리면 건조 시간이 길어져 전극 저항이 낮을 것으로 예상할 수 있다.

하지만, 이 실험에서는 높은 인쇄 속도에서 낮은 저항이 관찰되었다. 이는, 인쇄 속도는 유체인 잉크 전이성에 큰 영향을 주는 요소이므로, 이 실험의 경우 높은 인쇄 속도에서 잉크 전이성이 높아

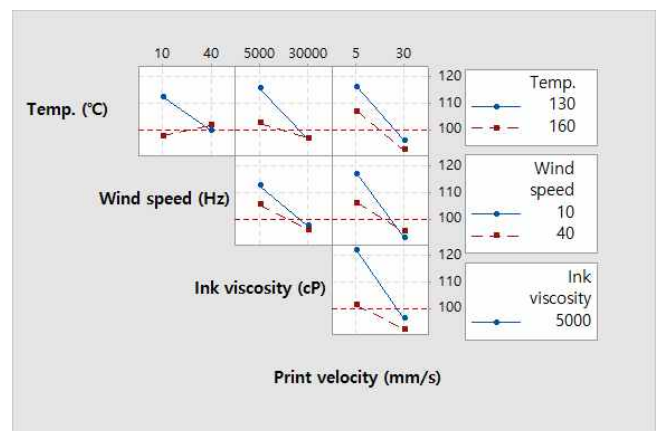


Fig. 11 Interaction plot for spread ratio on the effect of factors

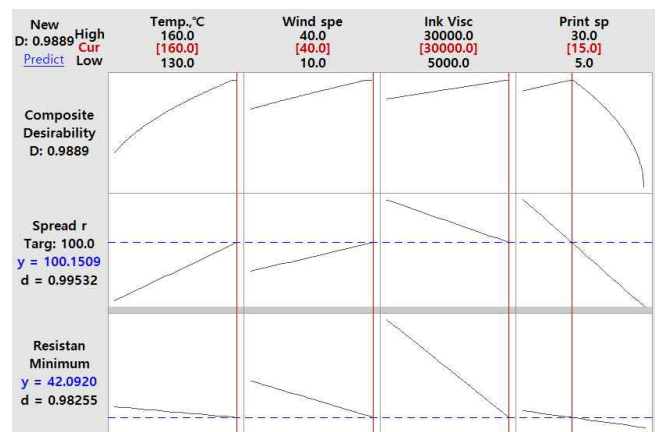


Fig. 12 Multiple response optimization of printing factors affecting to resistance and spread ratio

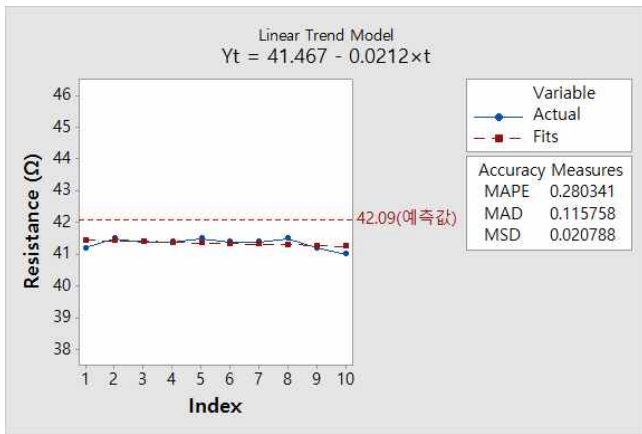


Fig. 13 Trend analysis plot for resistance in the optimized condition

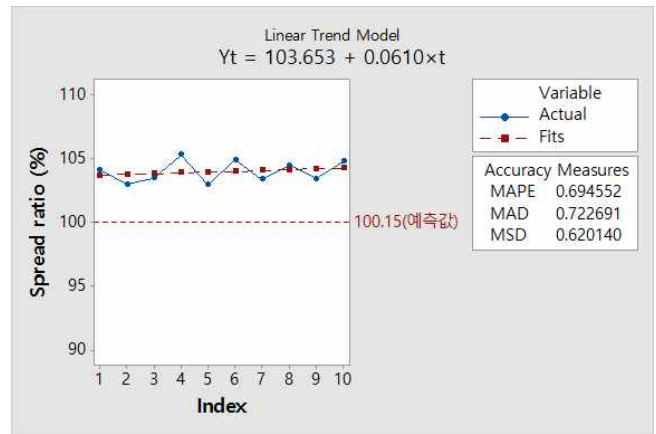


Fig. 15 Trend analysis plot for spread ratio in the optimized condition

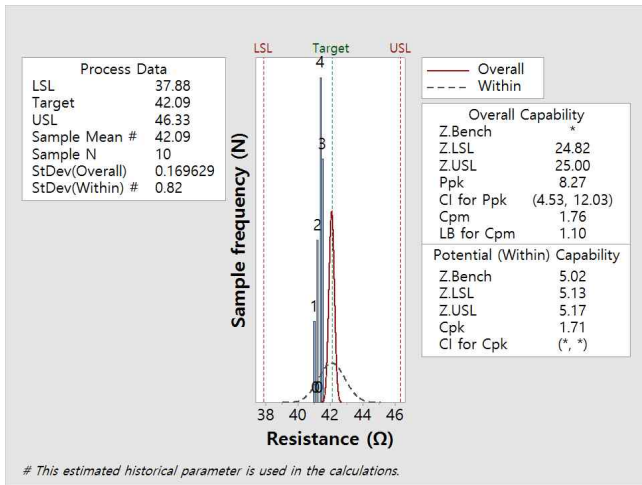


Fig. 14 Process capability of resistance

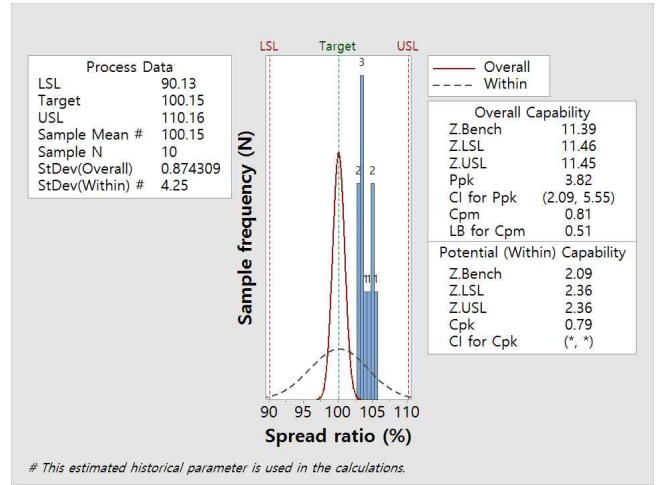


Fig. 16 Process capability of spread ratio

저항이 최소화 된 것으로 보여 진다.

Fig. 12에서 보듯이, 번짐률 100%에 우선적으로 근접하게 맞추었고(100.15%), 저항 최소화를 위한 개별 요인의 수준을 설정하였다. 이에 따라, 온도는 160°C, 풍속은 40 Hz, 인쇄 속도는 15 mm/s, 잉크 점도는 30,000 cP로 결정하였다. 이렇게 설정한 조건으로 인쇄 실험을 할 경우 저항은 42.09 Ω이 나올 것으로 예측된다.

2.4 최적 조건 적용한 인쇄 실험 및 예측 결과값 검증

저항결과 예측 값이 실제 값과 맞는지 검증하기 위해, 재현 실험을 1회 실시하였다. 총 10개의 저항 값 및 번짐률을 획득한 후, Fig. 13의 저항 추세선 결과를 보면, 기울기 절대값은 0.02, 예측 값에서 실제 값이 벗어날 확률(MAPE)은 0.28%, 평균절대 편차(MAD)는 0.11 Ω으로 나온다.

다음으로는 본 연구시스템으로 제조할 때, 불량률 예측의 공정신뢰성을 파악하고자, Fig. 14와 같이 저항에 대한 공정능력(process

capability)분석을 실시하였다. 허용오차 범위는 최적 조건의 저항 예측 결과 값(42.09 Ω) 대비 하한(LSL)은 -10%인 37.88 Ω, 상한(USL)은 +10%인 46.33 Ω으로 설정하였고, 비교대상을 위해 과거표본 평균 값을 입력하는 목표 값(target)에는 최적 조건 예측 결과 값과 동일하게 설정하였다. 그 결과, 최적 조건으로 인쇄패턴을 제조할 경우, Ppk 8.27로 안정된 결과물 제조가 가능(>1.33)하다고 분석된다.

번짐률의 추세선 경향을 Fig. 15에서 살펴보면, 기울기 절대 값은 0.06, MAPE는 0.69%, MAD는 0.72%를 보인다. 상기 분석을 통해서 결과 값이 일정한 범위내 분포하는 샘플 대표성이 있다고 판단하였다.

3. 결론

본 연구는 특정 규모의 롤투를 연속 인쇄 시스템에서의 인쇄 패턴이 최소 저항 값 및 100% 번짐률을 획득하는 최적 인쇄 조건

설정을 위한 연구로써, 예비 실험을 통해 요인 및 수준을 정하였다. 이후, 최적 조건 설정 데이터 확보를 위한 본 실험을 실시하여 산출된 최적 조건으로 결과 예측 값 확인을 위한 재현 실험을 하였다.

본 실험에서는 요인배치 설계 실험계획법을 활용해서 실험 회수를 줄여서 실험계획 및 결과분석을 했으며, 번짐률도 100%로 맞추면서 인쇄 패턴 회로의 저항 값을 최소화시키는 건조 온도 160°C, 열풍기 풍속 40 Hz, 인쇄 속도 15 mm/s, 잉크 점도 30,000 cP의 최적 인쇄 조건을 획득하였다.

산출된 최적 조건으로 예측 실험을 실시 후 획득한 결과 값은 저항 및 번짐률의 공정능력지수 각각 8.27, 3.82로, 향후 원하는 저항 값 및 번짐률의 패턴을 본 연구에서 획득한 데이터 기반의 반응최적화도구를 활용하여 본 연구시스템으로 실험 제조할 경우에 안정된 제조가능성이 있음을 확인하였다.

후 기

이 연구는 2016 충남대학교 학술연구비에 의해 지원되었음.

References

- [1] Park, J. C., Jeon, S. W., Nam, K. S., Kim, C. H., 2013, Variable PID Gain Control of Winder Tension of Roll-to-Roll Printing System using Estimation of Winder-Roll Radius, J. of the KSMTE, 22:04 755-760.
- [2] Sung, D., de la Fuente Vornbrock, A., Subramanian, V., 2010, Scaling and Optimization of Gravure-printed Silver Nanoparticle Lines for Printed Electronics, IEEE Trans. Compon. Packag. Technol., 33:1 105-114.
- [3] Nie, X., Wang, H., Zou, J., 2012, Inkjet Printing of Silver Citrate Conductive Ink on PET Substrate, Appl. Surf. Sci., 261, 554-560.
- [4] Kim, C. J., Nogi, M., Saganuma, K., 2011, Effect of ink viscosity on electrical resistivity of narrow printed silver lines, IEEE NANO 2011 conference, 197-200.
- [5] Ahn, B. J., Han, K. J., Ko, S. L., 2010, Influence of Micro Pattern Geometry and Printing and Curing Conditions in Gravure Printing on Printing Performance when using Conductive Ink, Trans. Korean Soc. Mech. Eng. A, 34:3 263-271.
- [6] Dearden, A. L., Smith, P. J., Shin, D. Y., Reis, N., Derby, B., O'Brien, P., 2005, A Low Curing Temperature Silver Ink for Use in Ink-jet Printing and Subsequent Production of Conductive Tracks, Macromol. Rapid Comm., 26:4 315-318.
- [7] Perelaer, J., de Laat, A. W. M., Hendriks, C. E., Schubert, U. S., 2008, Inkjet-printed Silver Tracks: Low Temperature Curing and Thermal Stability Investigation, J. Mater. Chem., 18:27 3209.
- [8] Rhee, B. O., Tae, J. S., Choi, J. H., 2009, Injection Mold Cooling Circuit Optimization by Back-propagation Algorithm, J. of the KSMTE, 18:04 430-435.