◆ 특집 ◆ 차세대 기능성 유연필름 제조기술

그라비아 오프셋을 이용한 메탈 그리드 메쉬 필름 제작 기법

Fabrication Method of Metal Grid Mesh Film Using the Gravure Offset Printing

김정수¹, 김동수^{2,✉}
Jung Su Kim¹ and Dong Soo Kim^{2,✉}

¹ 주식회사 펄스 인쇄전자연구팀 (Printed Electronics Research Team, PEMS Co., LTD.)

² 한밭대학교 글로벌융합학부 (School of Global Convergence Studies, Hanbat National University)

✉ Corresponding author: kds671@hanbat.ac.kr, Tel: +82-42-821-1734

Manuscript received: 2014.9.11 / Revised: 2014.10.16 / Accepted: 2014.10.16

Previously fabricated electronic devices were used for vacuum manufacturing processes such as conventional semiconductor manufacturing. However, they are difficult to apply to continuous processes such as roll-to-roll printing, which results in very high device manufacturing and processing costs. Therefore, many developers have been interested in applying continuous processes to contact printing or noncontact printing technologies and they proposed various continuous printing techniques instead of conventional batch coating. In this paper, we proposed improved gravure offset printing process as one of the contact printing technique. We used etching pattern geometry with soft core blanket roll for printing of ultra fine line below the 10um. Using this technique we obtained flexible metal grid mesh film as transparent conductive film.

Key Words: Printed Electronics (인쇄전자), Gravure Offset Printing (그라비아 오프셋 인쇄), Transparent Conductive Film (투명 전극 필름), Ultra Fine Printing (초미세 인쇄), Roll to Roll (롤투롤)

기호설명

$\Omega/$ = Ohms per Square.

cps = Unit of Viscosity of Fluidic Materials.

Shore= Scales of Hardness in the Soft Materials

1. 서론

최근 유연 전자소자에 대한 많은 연구가 진행되고 있으며 이러한 유연 터치 스크린 패널, LCD

(Liquid Crystal Display)용 블랙 매트릭스, 유기 박막 트랜지스터(Organic Thin Film Transistor), 유연 디스플레이(Flexible Display), RFID(Radio Frequency Identification) 태그, 유기박막 태양전지, E-paper 등의 제작 공정에서 기존의 고가의 노광 공정, 성막 공정, 에칭 공정 등을 대체하여 전도성, 절연성, 반도체성 등의 인쇄잉크와 고정밀 인쇄기를 사용하여 제조하는 것을 인쇄전자(printed electronics)라고 한다. 그림 1은 인쇄전자의 개념을 나타낸다.^{1,2}

Table 1은 인쇄 전자 기술에서 적용되는 대표적

Fig. 1 Concept of printed electronics

Table 1 Convention printed electronics process

Conventional Printing Method	
Contact Printing Method	Non-Contact Printing Method
Gravure	Ink-Jet
Flexo	Spray
Gravure Offset	Air Knife
Screen	Metal-Jet

인공정 기술을 나타낸다. 일반적인 인쇄 기술은 접촉식 인쇄와 비접촉식 인쇄 기술로 분류가 가능하며 각각의 인쇄 공정은 패터닝 및 코팅 기술로도 활용이 가능하다. 접촉식 인쇄는 대표적으로 그라비어(Gravure), 플렉소(Flexo), 그라비어 오프셋(Gravure Offset), 스크린(Screen)등의 기법이 있으며, 비 접촉식 인쇄는 대표적으로 잉크젯(Ink-Jet), 스프레이(Spray), 슬롯다이(Slot-die), 메탈젯(Metal-Jet) 등의 기법이 있다. 이러한 각 공정기술은 다양한 공정의 해상도와 박막 두께 혹은 적용 재료에 따라서 각 인쇄 전자 소자에 적합한 공정 기술로 적용이 가능하다. 접촉식 인쇄 기술로 대표되는 그라비어, 플렉소, 그라비어 오프셋 인쇄 기술은 기본적으로 패턴이 각인된 롤에 잉킹(inking, 잉크를 홈에 채우거나 바르는 과정)을 한 후에 잉크를 패턴형태로기판(유리, 필름, 종이 등)에 전이 시켜 인쇄를 하는 공정 기술이다. 본 논문에서는 이러한 접촉식인쇄 기법중의 하나인 그라비어 오프셋 인쇄 기술을기반으로 10 μ m 이하의 초미세 선폭 구현과 그에대한 응용 기술로 메탈 그리드 메쉬 기판의 투명전극 필름에 대한 연구를 수행 하였다.

2. 그라비어 오프셋을 활용한 초미세 선폭 구현 기술

2.1 접촉식 인쇄 기술의 한계

그라비어 인쇄는 오목한 패턴에 잉크를 채운 후 이를 기판에 전이시키는 공정이며 플렉소는 반

Fig. 2 Characteristic of contact printing technology

Fig. 3 Resolution of various printing technology

대로 볼록한 패턴에 잉크를 바르고 이를 기판에 전이시키는 공정 기술이다.^{2,3} 그라비어 오프셋 인쇄 기술은 이 두 가지를 조합하여 오목한 패턴으로부터 잉크를 중간 블랑켓 롤에 전이를 시키고 블랑켓 롤에 전이된 잉크 패턴을 최종 기판으로 전이시키는 공정 기술이다.^{2,3} 각 공정기술의 특징은 그림 2에 표현되었다. 그 특징은 인쇄 속도, 잉크의 점도, 인쇄의 해상도 등에서 차이가 있다. 이들의 특징을 크게 비교하면 그라비어 인쇄 기술은 대량 생산이 가능한 고속 인쇄 기술이며 일반적인범위 내에서 우수한 패터닝 선폭의 구현이 가능하며 플렉소 인쇄 기술은 오목 인쇄 기술 기반으로인쇄 패턴의 높이를 아주 얇게 구현 할 수 있는 반면 그라비어에 비해서는 인쇄의 해상도가 떨어지는 단점이 있다. 그라비어 오프셋 인쇄의 경우 아주 높은 인쇄 선폭의 해상도와 질 높은 인쇄 패턴의 표면 구현이 가능한 장점이 있는 반면 구성이복잡하고 잉크의 물성에 인쇄 품질이 영향을 많이미치는 단점을 가지고 있다. 스크린 인쇄 기술은스크린 메쉬와 유제막으로 구성된 제판 위에 스크래버로 잉크를 도포하고 이를 스퀴지로 밀어서 패턴을 인

Table 2 Characteristic of printed electronics patterning

Printing Method	Viscosity (cps)	Thickness (μm)	Feature size(μm)	Through put(m^2/s)
Gravure	10 ~ 20	<0.1~8	75	3~60
Flexo	50 ~ 500	0.04~2.5	80	3~60
Gravure Offset	5000 ~ 10000	0.5 ~ 2	20~50	3~30
Screen	500 ~ 50000	0.015 ~ 100	20~100	2~3
Ink Jet	1 ~ 40	0.05~20	20~50	0.01~0.5

쇄하는 기법이다. 스크린 인쇄 기법은 아주 손쉽게 패턴의 구현이 가능하지만 인쇄 패턴의 표면이 제판 메쉬(mesh)로 인해 좋지 못하며 해상도가 약 $50\mu\text{m}$ 이상으로 낮다는 단점이 있다.

그림 3은 패턴링 인쇄 기술에서의 다양한 인쇄 기술의 해상도에 따른 특징을 나타낸다. 여기서 표현된 인쇄 기술은 연속 생산이 가능한 다양한 패턴링 기술에 대한 것이며 현재 연속공정 기술에 적용이 가능한 인쇄 기술로는 그라비어 옵셋 기반이 $20\mu\text{m}$ 이상의 패턴링이 가능하다. $10\mu\text{m}$ 이하의 연속적인 공정 측면에서는 기존의 전자인쇄 기술로는 정밀도를 내기가 어려워 롤투롤 포토리소그래피(photo lithography)나 레이저 제거(laser ablation) 기법이 사용 되어지고 있으나, 생산적인 측면에서는 낮은 공정 속도를 가지고 있다. 따라서 인쇄 기술을 활용한 $10\mu\text{m}$ 이하의 패턴링 기술의 연구 개발이 핵심이 되고 있다. $10\mu\text{m}$ 이하의 인쇄 패턴링 기술은 보다 다양한 적용 분야로의 확대가 가능함과 동시에 인쇄 전자 기술이 가진 현재의 한계를 극복 할 수 있는 기준이 된다. Table 2는 인쇄 공정 기술의 대표적인 패턴링 공정 기술의 특징을 나타낸 것이며 재료의 점도 특성, 패턴링 높이 및 패턴링 선포 그리고 각 공정의 생산성과 중첩인쇄에 따른 정밀도를 정리하였으며 잉크젯을 제외하고는 대다수의 인쇄 공정 패턴링 기술은 높은 생산성을 보일 수가 있고 접착식 인쇄의 경우 잉크와 기판, 그리고 패턴링 롤 간의 잉크 전이에 의해 구현 되므로 각각의 공정에 대해 서로 다른 잉크의 점도 및 물성 특성을 나타낸다.⁴ 인쇄 전자 기술에서 이러한 다양한 접착식 인쇄 기술의 특징은 적용 가능한 응용소재 제작 공정 기술에 대한 적용에 있어 많은 제약 조건이 따르며특히나 갈수록 집적화 되고 있는 전극 인쇄에 대해서는 $10\mu\text{m}$ 이하 급의 인쇄 기술은 필수적이라고 볼 수 있다. 따라서 본 연구에서는 그라비어 옵셋기술을 이용

Fig. 4 Geometry of etching roll pattern

하여 $10\mu\text{m}$ 이하 선포를 패턴링하고 이를 활용하여 메탈 메쉬 전극 패턴을 형성하였다.

2.2 초미세 선포 구현을 위한 그라비어 옵셋 공정 기술 개발

초미세 선포 구현을 위한 그라비어 옵셋 공정 기술은 3가지 특징을 가지고 있다. 첫 번째는 기존 그라비어 옵셋에 적용되는 패턴 롤의 에칭(Etching) 패턴 형상의 특징을 활용하는 방법이다. 일반적으로 패턴롤은 에칭 기법을 통해 패턴 형상을 구현하며 이러한 에칭 기법은 이상적인 패턴 형상이 아닌 속이 좁은 형상의 패턴롤로 구현이 된다. 즉 이러한 형상 패턴은 실제 인쇄 선포 구현에 있어서 기존 그라비어 옵셋 선포 구현의 한계와 관계된다. 앞서 그라비어 옵셋 기술의 한계 선포인 $20\mu\text{m}$ 수준의 패턴롤을 제작한다고 가정할 때 그림 4와 같이 이상적인 패턴 형상이 아닌 표면은 $20\mu\text{m}$ 이며 속은 그보다 좁은 대략 $7\sim 8\mu\text{m}$ 수준의 패턴 형상을 가지게 된다. 이러한 형상 패턴롤의 형상 구조는 잉크를 표면에 묻혀 바르고 블랭킷 롤이 패턴롤 깊숙히 잉크를 밀고간 후에 이를 전이 시키면 실제 패턴 형상 내부의 좁은 형상 패턴의 미세 선포 구현이 가능하다. 두 번째 기술 요소는 블랭킷 롤의 재질이다. 본 연구의 인쇄 기법이 기존 그라비어 옵셋 인쇄와는 달리 속이 좁은 패턴 내부의 형상을 블랭킷 표면으로 전이시키기 위해 블랭킷 롤의 경도가 보다 소프트하게 구성되어야 한다. 그림 5와 같이 기존 블랭킷 롤은 내부가 메탈 계열의 하드롤로 구성이 되며 외부는 소프트한 블랭킷 시트로 구성되나 본 연구에서는 보다 깊은 패턴을 전이시키기 위해 이중 구조를 가지는 블랭킷 롤을 채택하였다. 블랭킷 시트 표면의 경도 보다 더욱 소프트한 재질의 경도를 가지는 고무롤을 내부 코어로 두어 블랭킷

Fig. 5 Double soft core blanket roll schematic

물의 변형이 최대화 되도록 유도하고 이러한 높은 변형을 통해 패턴물 내부의 좁은 형상을 전이 시키기 위함이다. 그리고 세 번째 기술 구성 요소는 잉크의 물성이다. 일반적인 그리비어 오프셋 잉크는 고점도의 스크린 인쇄 잉크와 중점도의 그라비어 인쇄 잉크의 중간 수준의 점도 특성을 가진다. 하지만 초미세 선폭 구현을 위한 공정 기술 개발에서 중,저 점도 잉크의 경우 좁은 내부 형상의 잉크 형태를 전이 시키기에는 어려운 특성을 나타낸다. 따라서 본 연구에서는 기존 그라비어 오프셋 잉크에 비해 점도가 높은 스크린 인쇄에 적용되는 수준의 고점도의 나노 입자 크기의 잉크를 이용하였다.

3. 메탈 그리드 메쉬 투명 전극 제작 실험

3.1 그라비어 오프셋 인쇄 잉크 실험

이중 코어 블랭킷은 외부는 약 60(shore) 경도의 탄성중합체 시트와 내부는 약 20경도의 실리콘 러버 블랭킷 재질이 사용되었다. 실버 그리드 메쉬를 형성 하기 위해 사용된 잉크는 ANP사의 실버나노 페이스트가 사용되었으며 본 연구를 위해 특별히 튜닝된 잉크를 사용하였다. 본 연구에 적용된 실버 나노 잉크를 선정하기 위해 국내외의 여러 나노 입자의 실버 잉크를 테스트 하였고 그 증가장 인쇄성이 좋으며 미세 선폭이 구현 가능한 잉크를 선정하였다. 더불어 선정된 실버 나노잉크를 보다 본 인쇄 공정에 적합하게 하기 위해 몇가지 첨가 재료를 튜닝하여 구현 하였으며 그로 인

Nano Ag paste (ANP)

	Eagle 2000	Eagle XG	PET
DGS	X	X	X
ABC-W	X	X	X
ANP			
NPK-W	X	△	△
I-010	△	△	△
I-020	△	△	△

Ag paste for gravure offset printing

ANP nano Ag paste (screen) - high silver contents(70~80%)
 α -Terpineol - Viscosity control
 Isopropylalcohol (IPA) - Drying control
 Dispersing agent - offset control

Fig. 6 Result of gravure offset printing in various ink

Fig. 7 Result of ultra fine pattern printing on the glass

해 10 μ m 이하의 미세 패턴 형성이 가능하였다. 그림 6는 국내 다양한 회사의 실버 잉크에 대한 인쇄성 실험 결과를 나타낸다. 잉크 테스트는 Eagle-XG, Eagle 2000의 유리 기판과 PET필름(SKC)의 유연 기판에 모두 적합한 잉크가 선정 되었으며 점도는 약 13000cps의 고점도 잉크가 사용되었다.

3.2 유리 기판에서의 인쇄 실험

유리 기판에서의 인쇄 실험은 20 μ m의 동일한 패턴에서 선 간격을 400, 500, 600, 700 μ m로 변경하여 인쇄를 반복적으로 수행하였으며 총 20회의 연속 인쇄 실험을 수행하였다. 그림 7은 인쇄 실험 결과를 나타내며 그 결과 총 20회의 연속 인쇄에도 반복적으로 6~8 μ m 수준의 초미세 선폭을균일

Table 3 Transparency of metal grid mesh with glass

Pattern Spacing	Glass transparency (%)	Printed metal grid mesh (%)
400 μ m	94 ~ 95	89 ~ 90
500 μ m	94 ~ 95	89 ~ 90
600 μ m	94 ~ 95	90 ~ 91
700 μ m	94 ~ 95	90 ~ 92

하게 얻을 수 있었다. 이와 같은 실험 결과는 고점도 잉크와 에칭에 따른 패턴을 형상 그리고 이중 코어 블랭킷 구조를 통해 10 μ m 이하의 미세선폭 인쇄가 가능함을 의미하며 이를 활용한 메탈 메쉬 기반의 투명 전극 패턴의 형성이 가능하다는 것을 알 수 있다. Table 3은 글라스 기반의 메탈 그리드 메쉬 패턴의 실험 결과에 따른 투명전극 패턴으로서의 투과도 측정 결과를 나타낸다. 투과도 측정 결과 유리 기반의 기본 투과율은 94~95%로 동일하게 측정 되었으며 그 위에 그라비어 읍셋으로 인쇄된 메탈 메쉬를 포함한 투명전극의 투과도는 선 간격에 따라 다르게 측정되었으며 89~92%로 나타났으며 400 μ m에서 최대 6%, 700 μ m에서 최하 3% 정도의 투과율이 감소하였다.

3.3 필름 기반에서의 인쇄 실험

본 연구에서는 유연소자에 대응하기 위한 대체 전극 형성을 위해 롤투롤 기반의 유연 필름 기반에서 그라비어 읍셋을 기술을 이용하여 앞선 유리 기반과 동일한 인쇄 실험을 수행하였다. 그림 8은 롤투롤 기반의 연속 생산을 위한 롤투롤 그라비어 읍셋 인쇄 시스템을 나타내며 비전을 통해 실시간으로 메탈 메쉬 전극 패턴의 인쇄 결과를 확인 가능하도록 구성하였다. 필름은 폭 200mm의 PET 필름을 사용하였으며 건조는 UV, 열풍을 건조 구간을 이용하여 메탈 메쉬 인쇄 후 연속적인 건조가 이루어지도록 구성되었다. 그림 9는 최종적으로 롤투롤 시스템을 이용하여 인쇄된 메탈 메쉬 필름의 인쇄 결과를 나타낸다. 7.24 μ m의 선폭을 가지는 초미세 선폭 메탈 그리드 메쉬 필름이 제작 되었으며 인쇄된 패턴의 높이는 811nm높이를 가지는 것으로 측정되었다. 인쇄 실험 결과 롤투롤 연속 인쇄 시스템을 이용한 본 연구 공정 기술의 적용이 가능하며 그간 한계 기술로 예측되었던 연속 인라인 10 μ m 이하의 연속 초미세 선폭구현 기술이 가능함으로서 향후 양산 기술로써의 확대가 가능 기술임이 증명되었다.

Fig. 8 Roll to roll gravure offset printing system

Fig. 9 Result of gravure offset printing on PET film

3.4 메탈 그리드 메쉬 기반의 투명 전극 필름 제작

그림 10은 제작된 메탈 그리드 메쉬 기반의 필름위에 전도성 고분자(PH1000)을 코팅하여 투명전극 분야의 적용 분야로 메탈 그리드 메쉬 필름의 특성을 평가 하였다. 메탈 그리드 메쉬 필름은 실버 전극의 높은 전도 특성을 가지는 반면 선과 선 사이의 면에 대해서는 전기 전도도를 가질 수 없기 때문에 본 실험과 같은 전도성 고분자, 카본

Fig. 10 Metal grid mesh transparency conductive film

나노튜브등과 같은 기존의 높은 저항을 가지는 대체전극과의 복합 기술로 적용이 가능하다. 그 결과 그라비어 읍셋을 이용한 초미세 선폭 7.11 μm 와 500 μm 의 선간격을 가지며 높이는 501nm로 측정되었다. 따라서 전도성 고분자의 박막 코팅 두께가 약 300 nm 정도 코팅이 이루어졌음을 알 수 있으며 이때의 투명전극의 면저항은 9.65 $\Omega/$ 로 아주 우수한 전기 전도 특성을 가지는 메탈 그리드 메쉬, 전도성 고분자의 복합 투명 전극 필름이 제작되었다.

4. 결론

본 연구는 인쇄 전자 기술이 가진 미세 선폭 인쇄에 대한 그 한계와 이를 극복하기 위해서 패턴롤의 형상, 블랭킷 롤의 구조 및 특성 변화, 잉크의 고점도 특성을 이용하여 약 7 μm 급의 그라비어 읍셋 공정의 메탈 그리드 메쉬 필름을 제작하였다. 유리 기판과 필름 기판에서 메탈 그리드 메쉬 패턴을 형성 하였으며 최종적으로 롤투롤 기반에서 전도성 코팅을 더불어 수행하여 약 9.65 $\Omega/$ 를 가지는 고성능의 메탈 그리드 메쉬 투명전극 필름을 제작 하였다. 본 연구를 통해 기존의 그라비어 읍셋 인쇄 기술의 한계를 극복하고 향후 미세 선폭 인쇄에서 보다 다양한 응용분야로 확대되어 나가는 기술로서 그 기초 기술로 활용 되길 기대한다.

후 기

This research was supported by the international collaborative R&D program of KIAT (No. 1415134409).

REFERENCES

1. Harrop, P., "Introduction to Printed Electronics," IDTechEx, 2010.
2. Holland, G., Harrop, P., and Das, R., "Encyclopedia of Printed Electronics," IDTechEx, 2008.
3. Das, R. and Harrop, P., "Printed, Organic & Flexible Electronics Forecasts, Players & Opportunities 2011-2012," IDTechEx, 2011.
4. Yu, J.-S. "A Study of Transparent Conductive Film for Organic Solar Cells Fabricated by Printing Process," Ph.D. Thesis, Department of Materials Science and Engineering, Chungnam National University, 2013.
5. de Gennes, P. G., "Wetting: Statics and Dynamics," Reviews of Modern Physics, Vol. 57, No. 3, pp. 827-863, 1985.
6. Young, T., "An Essay on the Cohesion of Fluids," Philosophical Transactions of the Royal Society of London, Vol. 95, pp. 65-87, 1805.
7. Dupre, A., "Theorie Mecanique de la Chaleur," Gauthier-Villars, pp. 367-370, 1869.