한국정밀공학회지 제 30 권 6 호 pp. 578-583 June 2013 / 578
J. Korean Soc. Precis. Eng., Vol. 30, No. 6, pp. 578-583 http://dx.doi.org/10.7736/KSPE.2013.30.6.578
ISSN 1225-9071(Print), ISSN 2287-8769(Online)

◆ 특집 ◆ 인쇄전자 소자 제작을 위한 다양한 인쇄 공정 기술 개발

리버스 그라비아 옵셋 또는 그라비아 옵셋 프린팅을 이용한 조명용 OLED 소자 보조전극 형성 공정 연구

A Study on Processing of Auxiliary Electrodes for OLED Lighting Devices Using a Reverse Gravure-Offset or Gravure-Offset Printing

배성우 [1], 곽선우 [2], 김인영 [2], 노용영 [1,✉]
Sung Woo Bae[1], Sun Woo Kwak[2], In Young Kim[2], and Yong-Young Noh[1,✉]

1 동국대학교 융합에너지신소재공학과 (Department of Energy and Materials Engineering, Dongguk Univ.)
2 한국기계연구원 인쇄공정장비연구실 (Department of Printed Electronics, Korea Institute of Machinery & Materials, KIMM)
✉ Corresponding author: yynoh@dongguk.edu, Tel: +82-2-2260-4974

Manuscript received: 2013.4.10 / Revised: 2013.5.8 / Accepted: 2013.5.22

The lighting devices using organic light emitting diodes (OLEDs) are actively researched because of the various advantages such as high power efficiency and 2-dimensitonal lighting emitting. To commercialize those OLED lighting devices, the manufacturing cost must be downed to comparable price with conventional light sources. Here, we demonstrate a reverse gravure-offset or gravure off-set printed metal electrode for the auxiliary electrode for OLED lighting devices. For the fabricated OLED's auxiliary electrode, we used Ag nano-paste and printed metal grid structure with a line width and spacing of several ten and hundred micrometer by using gravure-offset printing. In the end the printing metal grid pattern are successfully achieved by optimization of various experimental conditions such as printing pressure, printing speed and printing delay time.

Key Words: Reverse gravure-offset printing (리버스 그라비아 옵셋 인쇄), Gravure-offset printing (그라비아 옵셋 인쇄), OLED (유기발광다이오드), Auxiliary electrode (보조전극), Ag nano paste (실버나노페이스트)

1. 서론

OLED (Organic Light Emitting Diodes)는 스스로 발광하는 유기 재료에 전기를 주입하여 전기 에너지를 빛으로 바꾸어주는 역할을 하는 소자로써, 자체발광, 고속응답, 고화질, 넓은 온도 범위 등 TV, 모니터, 휴대폰 등의 디스플레이로서 필요한 요소를 갖추고 있어 이를 적용하기 위한 다양한 연구 및 상용화가 활발히 이루어지고 있다.[1,2] 또한, OLED를 면광원 형태로 구현한다면 두께를 아주 얇게 할 수 있고, 특히 플렉서블 기판을 사용하여 구현한다면 다양한 모양의 조명기기에도 적용할 수 있어 기존 조명기기를 대체할 수 있고 새로운 형태의 조명시장을 창출할 수 있는 장점을 가지고 있다.

이러한 OLED 조명 소자는 면발광이 가능하고 높은 효율을 얻을 수 있어서 향후 기존 조명소자를 대체할 수 있을 것으로 기대된다. 다만 현재의 제조단가가 너무 높아서 사업화를 위해서는 제조단가를 낮추는 공정의 개발이 절실히 요구된다.

또한 대면적 OLED 조명소자의 경우, 투명전극(산화물계)의 높은 저항성 때문에 소자의 크기가 커질수록 캐리어 Crowding 현상으로 인해서 전류량의 불균일을 초래하고 이로 인해서 밝기 균일도가 급격히 감소하게 된다. 또한 이러한 전류의 불균형은 소자의 작동 시 국부적으로 높은 열 발생 현상을 유도하여 유기물질의 Degradation과 이로 인해 소자의 수명이 짧아지는 문제가 발생한다.

이를 해결하기 위해서 투명 전극 위에 금속전극을 이용하여 보조전극 층을 증착하고 미세 패턴하는 연구가 진행되고 있다. Park[3] 등은 150mm×150mm 크기의 백색 형광 OLED 조명을 제작하여 발광 균일도를 향상시키기 위해 Cr 보조전극을 사용하여 인가전류 200mA에서 발광균일도 90%, 500mA에서 85%를 달성한 결과를 보고하고 있다.

또한, 최근에는 OLED 조명 소자 제작 방법에 대해서도 많은 연구가 이루어 지고 있는데, 특히 기존의 증착 기술 대신 인쇄 공정 기술을 이용한 다양한 연구가 진행되고 있다. 이러한 인쇄공정 기술에의 적용은 저가격, 대량생산 측면에서 많은 공감대를 형성하고 있으며, 이러한 연구 개발을 위한 다양한 인쇄 공정 기술에 대한 연구가 활발히 진행되고 있다. 특히, 생산단가 절감 및 생산성 향상을 위한 웹 기반 roll-to-roll 방식이 크게 부각되고 있다.[4]

이러한 Roll-to-roll 방식을 이용한 프린팅 기술은 유연한 기판위에 공정이 가능하여 유연한 전자소자 제작 및 신문을 찍어내듯 인쇄가 가능하기 때문에 생산성 향상이라는 장점을 가지고 있다. 하지만 이러한 Roll-to-roll 방식의 프린팅 기술의 경우, 지금까지 구현 가능한 선폭은 20㎛ 정도로 알려져 왔으나, 최근 Kim[5]은 그라비어 옵셋 인쇄 기술을 이용해 Ag 나노 잉크를 전이시켜 인쇄하는 방식으로 세계 최고 수준의 7~8㎛ 선폭 인쇄를 성공한 사례를 발표하였다. 하지만 아직까지 반복적인 재현성이 부족하고 이를 이용한 소자 제작에 대한 결과는 보고된 바 없다.

따라서 본 논문에서는 기존의 증착 공정을 대신하여 저가격, 대량생산이 가능한 롤투롤 방식의 프린팅 기술을 이용, 미세 패턴의 구현에 제약이 따르지 않고 구현 가능한 선폭을 이용한 소자 제작에 대한 기초 실험을 위하여 OLED 보조전극 인쇄를 위한 연구를 Reverse Gravure-Offset 인쇄와 Gravure Offset인쇄가 동시에 가능한 복합 프린팅 장비를 이용하여 수행하였다.

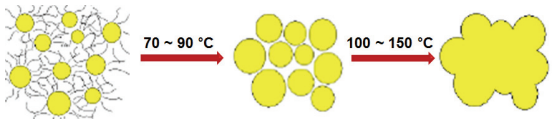


Fig. 1 Process of Ag nano paste and plasticity by dissolved organosolvent

2. 실험

2.1 잉크

본 논문에서 OLED 보조전극 형성을 위해 사용된 소재는 ANP사의 Ag paste를 이용하였다. Ag paste를 이용한 인쇄는Ag 나노 알갱이를 Fig. 1에서와 같이 유기 리간드에 화학적으로 결합시켜 유기용매에 응집되지 않게 잘 분산시켜나가는 것이 용액 인쇄과정의 중요한 과정이다. Ag 알갱이를 수십 나노미터 이하의 사이즈로 균일하게 분산시킨다면 그 표면적이 굉장히 넓어지게 되고 그에 따라 90℃ 이하의 온도에서도 화학적으로 결합된 유기 리간드가 분해되어 없어지게 된다. 최종적으로 필름으로 인쇄된 Ag 나노 알갱이들은 150℃ 이하의 굉장히 낮은 온도에서도 표면에너지를 낮추기 위해 서로 응결되어지는 것을 예상할 수 있다. 이러한 Ag 나노 알갱이들의 낮은 온도에서의 계면 반응성을 바탕으로 낮은 열적 안정성을 가지고 있는 유기 폴리머 필름에서의 공정을 통하여도 높은 전도도를 가지게 되는 금속 배선을 필름의 변형 없이 안정적으로 인쇄할 수 있는 장점을 가지고 있다.

2.2 기판

OLED 보조전극 형성 공정 연구를 위해 사용된 기판은ITO가 코팅된 상용 소다라임 유리기판을 기재로 사용하였다. ITO의 면 저항은 ~ 15Ω/sq, 일함수는 4.67eV, 밴드 갭은 3.3~4.3eV 였다. 이러한 ITO는 400~700nm의 가시광선 영역에서 높은 광투과성(80~90% 이상)을 보여 유기 박막 태양전지와 유기 발광 다이오드의 음극 전극으로 널리 사용된다. 기판 표면에 있는 불순물이나 유기물을 제거하기 위해 이소프로필알콜(isopropyl alcohol), 아세톤(acetone), 이소프로필알콜 순서로 초음파 세척기에서 각 15분간 기판 세정을 수행하였다. 세정 후 140℃ oven에서 24시간 건조하였으며, ITO가 코팅된 유리는 용액의 접촉을 용이하게 하기 위해 20분간 UV 플라즈마 표면 처리를 수행하였다.

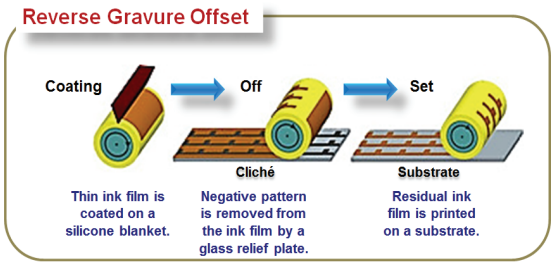


Fig. 2 Process of reverse gravure-offset printer

2.3 프린팅 공정

Ag 나노 알갱이들을 유기 용매에 잘 분산시킨 후 Reverse Gravure-offset 프린팅 장비를 이용하여 공정 연구를 수행하였다. 기본적인 용액 인쇄 공정에서는 사용되는 잉크의 점도와 농도 그리고 인쇄 속도 등의 변수들에 의해 기판 위에서의 인쇄가 얼마나 정밀하게, 원하는 모양으로 인쇄되는지를 결정하게 된다. 따라서 Ag 나노 알갱이 분산 용액의 적정 농도를 실험적으로 맞추어나가 인쇄 과정에서 적정 점도를 가지게 하여 점도가 너무 옅어서 잉크가 기판 위에 너무 퍼지거나 반대로 점도가 너무 높아 롤러에서 잘 떨어지지 않는 것을 방지하는 것이 중요하다고 할 수 있다. 따라서 본 연구에서는 이러한 인쇄 공정의 최적의 조건을 맞추어 나가기 위해 반복적인 공정 연구를 수행하였다.

또한, 이러한 인쇄공정의 가장 중요한 항목은 집적화된 소자 및 금속 배선을 만들어 소자의 크기를 최대한 줄이면서 소자의 성능을 유지하는 것이다. 이를 위하여는 일반적인 Gravure Offset 인쇄 공정을 가지고 이루는데 한계가 있다. 이에 반해 Reverse Gravure offset 인쇄 공정은 Fig. 2와 같이 빈 롤러에 용액을 먼저 전체적으로 도포한 후 이를 Cliché 라는 패턴에 압력을 가하면서 찍어내는 과정을 거치면 Cliché 에는 인쇄되어지지 않는 용액 필름의 나머지 부분이 떨어져 나가게 되고 Blanket roller에 남아있는 원하는 용액 필름이 폴리머 필름 위에 회전을 하면서 인쇄하게 된다.

이러한 공정의 다른 공정들과의 차별성은 인쇄 과정 중에 용액패턴이 마르는데 충분한 시간을 주게 되어 필름이 퍼지지 않고 양극 인쇄에서 보다 음극 인쇄를 하였을 때 처음 디자인된 선폭 및 모양을 거의 그대로 유지할 수 있다는 것이다. 그로 인해 포토리소그래피 공정을 거치지 않고도 기판 위에 미세 선폭을 가지는 금속 배선을 제작할 수 있게 된다. Fig. 3 및 Fig. 4는 본 연구에서 사용된 실제 Reverse Gravure-Offset 프린팅 장비 사진 및 장비를 이용한 전체 공정 사진을 나타내었다.

Fig. 3 Photography of Reverse Gravure-Offset printer

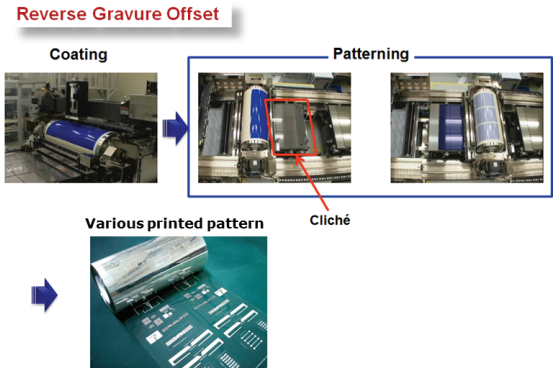


Fig. 4 Process of reverse gravure-offset printer

3. 결과

이와 같이 구성된 Reverse Gravure-Offset 인쇄공정 장비를 이용하여 최적의 인쇄조건 확립을 위한 기초 실험을 수행하였다. 인쇄조건 확립을 위해 잉크를 건져 올리는 off시 작용하는 힘과, off된 잉크를 기판에 전사 시 작용하는 set 힘 및 off후 set 되는 시간에 차이를 두어 시간에 따른 속도를 변수로 구현된 장비의 인쇄 공정 실험을 수행하였다. 실험에 적용된 최적 공정 도출 변수는 본 연구에 사용된 Reverse Gravure Offset 프린팅 장치와 유사한 Roll 또는 Plate type Gravure Offset 프린팅 장비에 대한 기본적인 공정 조건 확립에 주로 사용되는 변수로 정하였다. 이와 관련하여 Lee[6]등은 Plate to plate type Gravure Offset 프린팅 시스템 개발과 관련된 연구에서 음각 인쇄 패턴이 각인된 제판위에 실리콘 재질의 닥터 블레이드를 이용하여 잉크를

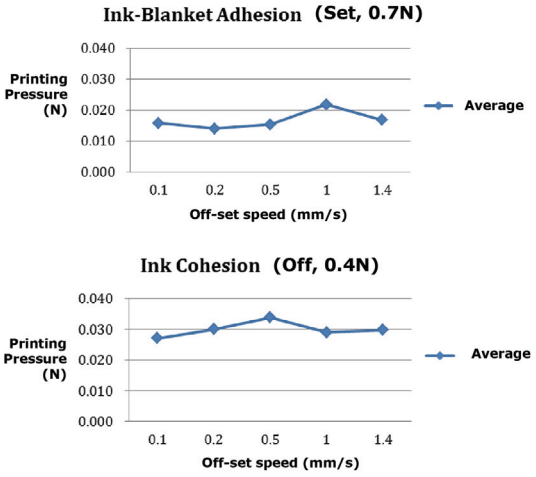
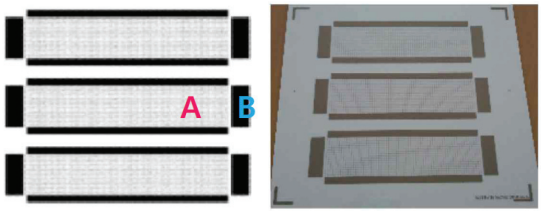


Fig. 5 The results of printing test for off-set force and speed

Table 1 Optimal printing process condition

Variable	Condition
Off force (N)	0.2, 0.4, 0.7, 1.1, 1.5
Set force (N)	0.2, 0.4, 0.7, 1.1, 1.5
Set time (mm/s)	0.1
Off-set speed (mm/s)	0.1, 0.2, 0.5, 1.0, 1.4

충진 후 블랑켓 롤을 이용하여 제판에 충진된 잉크를 전이시키고, 블랑켓 롤에 전이된 패턴을 인쇄하고자 하는 film 또는 glass기판 위에 전이시키는 프린팅 시스템 개발에 관련된 연구에서, 블랑켓 롤에 전이시키는 속도 및 압력과 블랑켓 롤에서 기판위에 전이되는 속도, 시간 및 압력 등을 변수로 하여 블랑켓 롤의 내구성, 변수에 따른 최적 인쇄 공정 조건을 확립한 연구를 보고한바 있다. 이러한 선행 연구를 참고하여 Table 1에 인쇄 공정을 위해 사용된 변수를 나타내었으며, 조건에 따른 반복 실험을 통해 본 연구 범위 안에서 최적의 공정 조건을 도출 할 수 있었다. 공정 변수 적용 실험은 하나의 변수를 제외한 나머지 변수를 고정하여 실험을 수행하였으며, 실험결과 속도가 빠를 수록, off-set 압력이 높을수록 Ink Cohesion 및 Ink Adhesion의 힘이 증가하는 것을 확인하였다. 각각의 변수에 대한 인쇄 힘 측정은 Trinometer를 통해 측정하였으며, 각각의 조건에 대해 20회의 실험을 행한 후의 산술 평균값을 구하였다. 이때 본 연구에 적용된 장비에서의 off 및 set되는 최적 압력은 각각 0.4N 및 0.7N, off-set speed는 1.0mm/s 임을 확인할 수 있었으며, 도출된 조건을 통해 Ag paste와 블랑켓 사이의 평균 압력이 0.02~0.03N일 때 최적의 인쇄 조건임을 확인할 수 있었고 인쇄 시 이러한 힘을 달성 시 100% 잉크 전이가 일어남을 확인할 수 있었다. Fig. 5에 실험 결과를 그래프로 나타내었다. 여기에서 Ink Cohesion은 Ink-Ink 간 사이의 힘을, Ink-Adhesion은 Ink-Blanket 사이의 힘을 의미한다.



(a) Printing pattern (b) Printing image

Fig. 6 Printing pattern and image for OLED auxiliary electrode

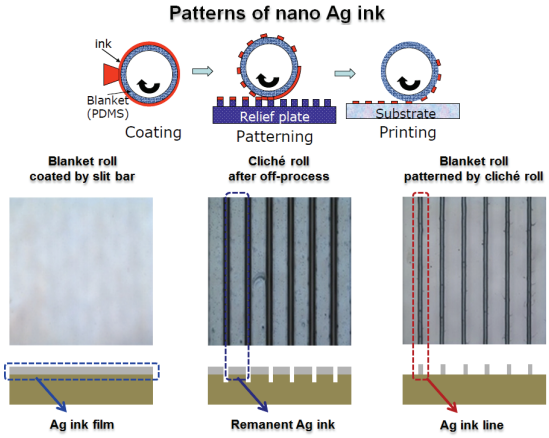


Fig. 7 Printing process of OLED auxiliary electrode by using the reverse gravure offset printing

Fig. 6(a)와 (b)및 Fig. 7은 이러한 공정 변수 적용 실험을 위해 사용된 패턴 도면과 인쇄 후 이미지 및 Reverse Gravure Offset 프린팅 시스템을 이용해 OLED보조전극을 형성하는 공정 프로세스 모식도를 나타내었다. Fig. 8은 최적 공정 인쇄 조건을 확립하는 과정에서 발행한 Fig. 6(a)의 A, B 부분에 대한 defects을 보여주고 있다. 전이된 패턴들의 형상이 번짐, 끊김 등의 현상이 발생하여 균일하게 인쇄되지 못한 것을 확인할 수 있다. 이러한 defects을 해결하고자 상기에서 언급한 최적 공정 조건

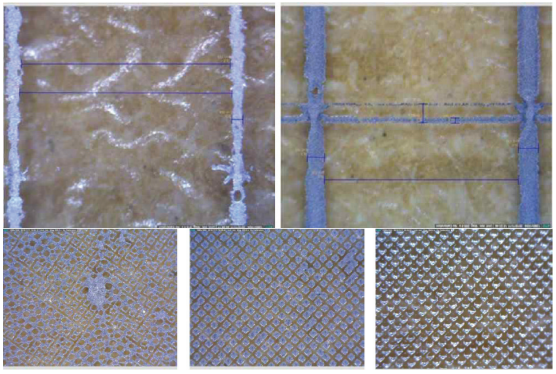


Fig. 8 Defects of printing test

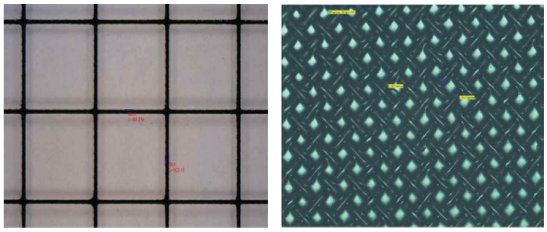


Fig. 9 The results of applied optimal process condition

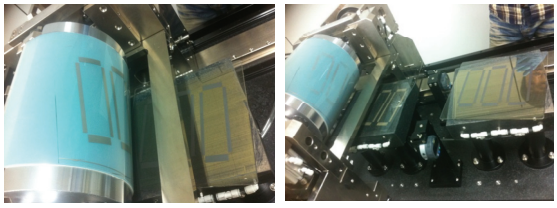


Fig. 10 Photography of printing process

도출 실험을 통해 Fig. 9와 같이 fine한 인쇄 결과를 얻을 수 있었으며, 이를 통해 본 연구 범위 내에서 OLED 보조전극 형성에 대한 최적 공정 조건을 도출 되었음을 확인 할 수 있었다.

실험을 통해 얻어진 최적 공정 조건을 바탕으로 본 연구의 최종 타깃인 OLED 조명소자용 보조전극 제작을 위해 잉크로는 나노신소재사의 Ag paste를 사용하였고, Cliché depth 는 3㎛, 습도는 45% 이하, 인쇄 면적은 200 x 200mm에서 공정연구를 수행하였으며, 앞서 기초 실험을 통해 얻어진 최적 공정 조건을 바탕으로 OLED 보조전극 제작 실험을 수행하였다.

Fig. 10에 최적 공정 조건에 따라 OLED 조명소자용 보조전극을 실제 인쇄하는 과정을 나타내었으며, Fig. 11에 최적 인쇄 공정을 통해 제작된

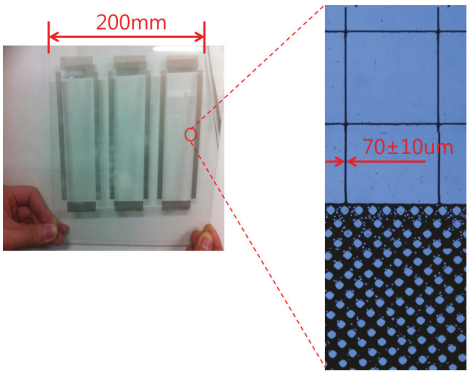


Fig. 11 Photography of OLED auxiliary electrode

OLED조명 소자용 보조전극의 형상을 보여주고 있다. 그림에서 보면 알 수 있듯이 설계된 형상대로 보조전극이 깨끗이 인쇄된 것을 볼 수 있다. 본 실험을 통해서 구현된 선폭은 70±10㎛이였고, 구현된 전극의 두께는 1㎛ 이하로 측정되었다.

4. 결과 및 토론

본 연구에서는 OLED 보조전극 형성을 위한 기초 공정 연구를 수행하였다. 사용된 잉크는 ANP사의 Ag paste를 이용하였고, 기존의 증착공정을 대체하고자 저가격, 대량 생산이 가능한 Reverse Gravure-Offset 인쇄 공정 장비를 활용하였으며, 본 연구 범위 내에서 다음과 같은 결론을 없을 수 있었다.

1) 다양한 공정연구를 통하여 본 논문에서 구현된 Reverse Gravure-Offset printing의 최적 공정 조건을 확립하였으며, Ag paste와 블랑켓 사이의 평균 압력이 0.02~0.03N일 때 100% 전이가 일어남을 확인할 수 있었다.

2) OLED 보조전극 형성 공정 실험을 통해 200x200mm 크기의 보조전극을 제작하였고, 선폭은 70±10㎛, 구현된 전극의 두께는 1㎛ 이하가 측정되었으며, 이를 OLED 보조 전극으로 활용 가능함을 확인하였다.

5. 향후 계획

구현된 OLED 보조전극을 활용하여 실제 OLED 소자를 제작하고 그 성능을 평가할 계획이며, 대량 생산이 가능한 추가적인 공정 연구를 수행할 계획이다.

후 기

본 논문은 지식경제부의 재원으로 연구개발특구의 지원을 받아 수행된 연구임 (2012년 특구기술사업화 지원사업).

참고문헌

1. Shinar, J., “Organic Light-Emitting Devices: A Survey,” AIP press, 2004.
2. Kalinowski, J., “Organic Light-Emitting Diodes: Principles, Processes,” Marcel Dekker, New York, 2005.
3. Park, J. W., Lee, J. W., Shin, D. C., Park, S. H., and Park, D. H., “Technical Development Trend in OLED Lighting,” The Optical Society of Korea Summer Meeting 2008, pp. 315-316, 2008.
4. Crawford, G. P., “Flexible Flat Panel Displays,” John Wiley & Sons, pp. 409-445, 2005.
5. http://news.mk.co.kr/newsRead.php?year=2011&no=461571.html
6. Lee, T. M., Noh, J. H., Kim, I. Y., Kim, D. S., and Chun, S. K., “Reliability of gravure offset printing under various printing conditions,” Journal of Applied Physics, Vol. 108, No. 10, Paper No. 102802, 2010.