

## 레이저 웰딩 기술을 이용한 ECL용 유리 기판 접합에 대한 고찰

(Investigation of Glass Substrate Sealing for ECL Application using Laser Welding Technology)

성열문\*

(Youl-Moon Sung)

### Abstract

In this work, we reported fabrication of sealing the glass substrate using laser treatment at low temperature for electrochemical luminescence (ECL) cell. The laser treatment at temperature is using laser diode. The glass substrate sealing by laser treatment tested at 3-10W, 2-5 mm/s for build and tested. The sealing laser treatment method will allow associate coordination between the two glass substrate was enclosed. The effect of laser treatment to sealing the glass substrate was found to have cracks and air gap at best thickness of about 550-600 im for condition 3 W, 3 mm/s. The surface of sealing was roughness which was not influent to electrodes It can reduce the cracks, crevices and air gaps as well, improves the performance viscosity in butter bus bar electrodes. Therefore, it is more effective viscosity between two FTO glasses substrate.

Key Words : Electrochemi-luminescence, Fluorine-doped tin oxide glass, Glass frit, Laser sealing, Laser welding

### 1. 서 론

최근 발광소자(Luminescence Cells)나 태양전지(Solar Cells)의 제조 분야에서 유리 기판을 저온환경 하에서 접합(Sealing)하고 부착시키는 공정기술에 대한 필요성이 점차 증대되고 있다. 특히 유연 디스플레이(Flexible Display)기구나 유기 태양전지(Organic Solar Cells), 염료 감응형 태양전지(Dye-Sensitized

Solar Cells)의 제조에서는 유기물 기반의 재료 사용량이 점차 늘어남에 따라 유리 기판의 새로운 접합 기술에 대한 연구가 진행되고 있다. 그동안 각광을 받아온 접합공정 방법으로 프릿(Frit)을 이용한 방식이 있으며[1-2], 이 방식은 종래의 금속 솔더[3]를 이용한 방식에 비해 오염 및 부식에 의한 영향이 적고, 에폭시[4]를 이용한 접합공정에 비해서도 밀봉성능이 우수한 장점이 있어서 유리의 접합공정에 다양하게 적용되어 왔다. 하지만 공정 상 400~500°C의 고온에서 수십 분간 유지하여 접합이 완성되며, 접합 후 진공유지나 기계적 특성은 양호하나 공정시간이 길고 상기의 유기물 기반 소자에는 적용이 곤란한

\* Main author : Professor, Kyungsung Univ., Dept. of Electrical Engineering  
Tel : 051-663-4777, Fax : 051-624-5980  
E-mail : ymsung@ks.ac.kr  
Received : 2015. 4. 27.  
Accepted : 2015. 12. 1.

문제점이 있다[5]. 이러한 문제점을 해결하기 위해 레이저를 사용하여 유리 프린트를 단시간에 국부적으로 가열하는 레이저 접합기술에 대해 많은 연구가 진행되고 있다[6]. 특히 저온공정이 요구되는 전기화학발광(Electrochemi-Luminescence; ECL)셀의 제작에 있어서[7-10], 레이저를 이용한 유리전극의 접합기술을 활용하면, 높은 열처리 과정이 필요 없기 때문에 소자내의 유기물 손상을 줄일 수 있고 제조가 간편하다는 장점이 기대된다.

본 연구에서는 저온 접합공정이 요구되는 ECL 셀의 제작에 있어서, 레이저를 이용한 유리전극의 접합을 시도하여, 유리 전극의 열적, 물성적 특성을 조사하고, 이를 기반으로 제작된 ECL 셀의 전기화학발광 특성에 대해 고찰하여, 레이저 접합의 최적 공정 조건을 확립하고자 한다.

## 2. 실험방법

유리 프린트 실링에 사용되는 레이저 가열 장치는 유리 기판에 영향을 미치지 않으면서 프린트만을 선택적으로 가열할 수 있어야 한다. 실험에 사용된 레이저는 출력 5~15W, 레이저 빔 조사속도 10mm/s, 파장 808nm의 Diode Laser 시스템 (Pearl PKS, 고려반도체 시스템)을 사용하였다. 레이저를 사용한 접합실험의 변수로는 레이저의 출력, 빔 조사 속도를 비롯하여, 빔의 형태, 렌즈와 샘플 간의 거리, 샘플의 온도 등을 가변처리 할 수 있다. 실험에 사용될 유리 전극은 ECL 소자의 광전극(Photo-anode)에 사용되고 있는 FTO glass 기판이며, 레이저 접합을 위해 기판 가장자리에 유리 프린트 페이스트를 스크린 프린터로써 인쇄하였다. 그림 1은 레이저 실링에 의해 유리모재에 프린트를 도포하기 위한 샘플 적용 모식도이다. 80×80mm로 절단한 유리모재에 70×70mm의 크기로 프린트를 4 방향으로 도포한다. 프린트의 선폭은 약 1mm이며, 사용된 FTO 유리는 300℃에서 열팽창 계수  $3.5 \times 10^{-6} \text{m}^2/\text{C}$ 를 유지하며 높은 광투과율 및 열적 안정성으로 인하여 ECL소자, 염료감응 태양전지 및 유기 태양전용 유리 전극으로 폭넓게 사용되고 있다. 유리 프린트는  $\text{PbO}(70\%):\text{ZnO}(10\%):\text{B}_2\text{O}_3(10\%):\text{SiO}_2(5\%):\text{ZrO}_2(5\%)$

로 구성되며 (주)Sealtech사 제품이다. 또한, 접합온도 450℃, 전이온도 320℃ 및 열 팽창계수  $8.9 \times 10^{-6} \text{m}^2/\text{C}$ 의 특성을 보유하고 있다. 레이저 접합과정을 간단히 설명하면 먼저 유리 프린트를 스크린 인쇄한 상판 유리와 하판 유리를 겹친 후 레이저를 조사한다. 기판상단에서 레이저를 조사하여 녹은 유리 프린트가 중력에 의해 하판유리에 떨어져 접합되는 방식이다.

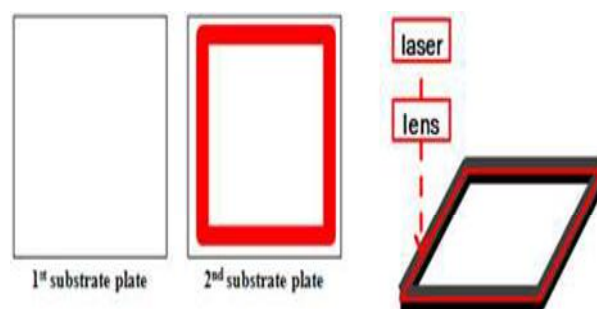


Fig. 1. Laser sealing diagram

## 3. 실험결과 및 고찰

### 3.1 소성 방식에 의한 유리 접합

레이저 웰딩에 의한 유리 기판 접합 실험에 앞서 종래의 열처리 방식에 의한 유리 기판 용접실험을 진행하였다. 그림 2는 유리 프린트 도포 후 전기로에 450℃에서 90분간 소성을 통해 유리 기판을 접합하여 얻어진 샘플을 나타낸다. 실험에 사용된 유리 기판은 소다라임 유리(Soda-lime glass)와 FTO glass를 각각 사용하였으며, 접합 여부는 두께 및 기밀성 테스트를 통해 확인하였다. 먼저 두께 확인의 경우, 접합하기 전 각각의 유리기판의 두께를 측정 후 소성 접합한 후 전체의 두께를 측정하여 그 차를 구함으로써 접합 프린트의 두께를 구하였다. 접합 프린트 층은 소다라임 유리의 경우 약 160μm, FTO 유리에서는 190 μm의 두께를 각각 나타내었다. 유리기판 소재의 따라 접합 프린트 층의 두께가 달라지는 원인에 대해서는 좀 더 추가적인 실험을 통해 확인할 필요가 있지만, 대체로 접합 프린트 면이 균일한 두께 층을 형성하는 것으로 나타났다.

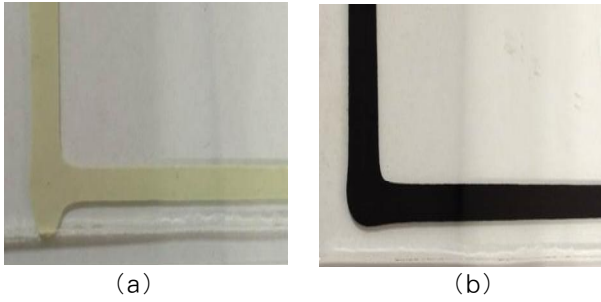


Fig. 2. Samples obtained from sealing experiments  
(a) Soda-lime glass sealing  
(b) FTO glass sealing

그림 3은 접합된 유리 기판을 잉크용액에 48시간 담그는 실험을 통해 기밀성을 테스트한 결과를 나타낸다. 샘플 모두 48시간 경과 후에도 유리 기판 내부로 잉크가 스며들지 않고 기밀성이 유지됨을 확인할 수 있었다. 이상의 결과로부터 본 실험에서 사용하는 유리 프린트는 유리 기판 접합용으로써 적합하여 레이저 접합 실험에서도 양호한 성과를 얻을 수 있을 것으로 기대되었다.

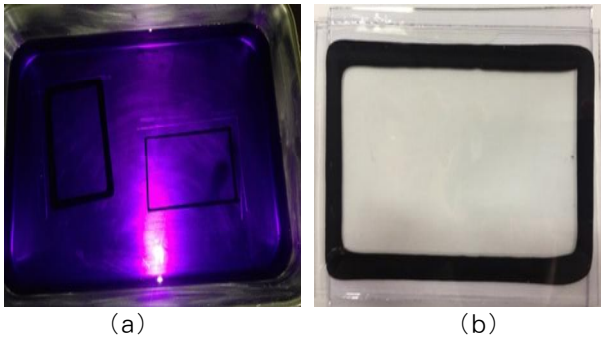


Fig. 3. Airtight test of sealed glass substrate  
(a) Ink immersion test (b) After 48 hours immersion

### 3.2 레이저 웰딩에 의한 유리 접합

그림 4에 레이저 웰딩을 이용한 유리기판 접합 결과를 나타내었다. 레이저 웰딩 조건은 파장 808nm의 레이저 광을 출력 5W, 레이저 빔 조사 이동속도 10mm/s로 하였으며, 기판 유리는 FTO 유리를 사용하였다. 레이저 웰딩 시 유리 프린트의 용융과 함께 유

리면의 접합을 관찰할 수 있었다. 레이저 웰딩 방식의 경우 유리 접합의 성공여부를 판단하는 중요한 평가 지표로서 프린트의 벗겨짐, 응력, 크랙, 젖음성, 가공 온도 및 실링특성을 들 수 있다. 그림 4(a)에서 알 수 있듯이, 레이저가 조사되어 레이저 웰딩이 진행된 영역과 그렇지 않은 영역을 구분할 수 있다. 대체로 레이저 웰딩 처리 전의 유리 프린트 층의 두께와 폭은 각각 300~400 $\mu$ m 및 500~800 $\mu$ m였고, 웰딩 처리를 하게 되면 크릿 층의 두께는 100 $\mu$ m이하로 되고, 폭은 1,000~1,500 $\mu$ m로 증가하였다. 그림에서는 1,370 $\mu$ m로써 약 2.6배 증가하였다. 그림 4(b)에서 알 수 있듯이, 레이저 웰딩이 진행되었다하더라도, 일부 접합이 되지 않은 부분이 생기는데 이것은 크릿 층의 두께가 균일하지 않고 그 차이로 인해 공극이 발생되었기 때문인 것으로 판단된다. 그리고 웰딩이 진행된 영역 주위로 기판 유리에 크랙(crack)이 발생하였는데, 이것은 유리 크릿과 기판 유리가 너무 치밀하게 결합함으로써 크릿 층의 유동성이 결여되었기 때문인 것으로 보인다. 즉, 유리 크릿 층의 가소높이 및 유동성 고려한 최적의 가소조건을 확보할 필요가 있음을 알 수 있었다. 따라서 레이저 광의 출력과 조사속도를 현재의 5W, 10mm/s에서 3W, 5mm/s로 각각 낮추어 추가 실험을 진행하였다.

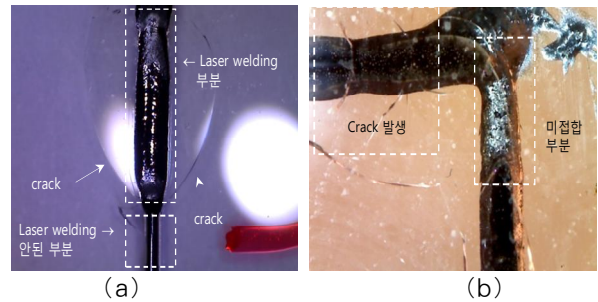


Fig. 4. Glass sealing by laser welding (wavelength 808nm, output 5W, light exposure velocity 10mm/s)

유리 크릿 층의 가소조건을 최적화하기 위한 방안으로써 레이저 광의 출력을 3W, 빔 조사 이동속도를 5mm/s로 하여 유리접합 실험을 진행하였고, 그 결과를 그림 5에 나타내었다. 빔 조사 이동속도와 유리 크

릿 도포량의 조절을 통해 유리 프리트 층의 두께를 대폭 줄여 25~30 $\mu\text{m}$ 가 되도록 하였고, 선폭은 500~600 $\mu\text{m}$ 를 유지하였다. 그림 5에서 알 수 있듯이, 레이저 광의 출력과 이동속도를 낮추어 웰딩 처리한 샘플이 그림 4의 조건(광 출력 5W, 이동속도 10mm/s)에 비해 양호한 접합특성을 얻을 수 있었다. 하지만 접합이 잘 이루어진 영역과 그렇지 못한 영역이 있었고, 접합이 불량한 영역 주위로 기포가 발생되어 있는 것 또한 확인할 수 있었다. 즉 유리 프리트와 상판 유리와의 균일한 접합면이 형성되어야 필요가 있다. 이를 위해서는 유리 프리트의 열 특성을 고려하여 도포 조건을 최적화할 필요가 있다. 따라서 레이저 광의 출력과 조사속도를 현재의 3W, 5mm/s에서 3W, 3mm/s로 낮추어 추가 실험을 진행하였다.

그림 6은 레이저 광의 출력을 3W, 빔 조사 이동속도를 3mm/s로 하여 유리접합 실험을 진행한 결과를 나타낸다. 레이저 웰딩 처리전 유리 프리트 층의 두께는 20 $\mu\text{m}$ 로 도포하였고, 선폭은 450~500 $\mu\text{m}$ 를 유지하였다. 그림 6에서 알 수 있듯이, 레이저 웰딩 처리 후 두께와 선폭은 각각 16.6 $\mu\text{m}$ 와 617 $\mu\text{m}$ 이며, 일부 미세한 기포와 물결무늬가 확인되었지만, 크랙이 거의 발생하지 않았고 전반적으로 양호한 접합특성을 얻을 수 있었다. 물결무늬는 유리 프리트의 미세한 두께차로 인해 발생하는 것으로 판단되며, 이것은 보다 정밀한 도포방법을 확보함으로써 해결될 수 있을 것으로 기대된다.



Fig. 5. Observation of glass welding section laser welded

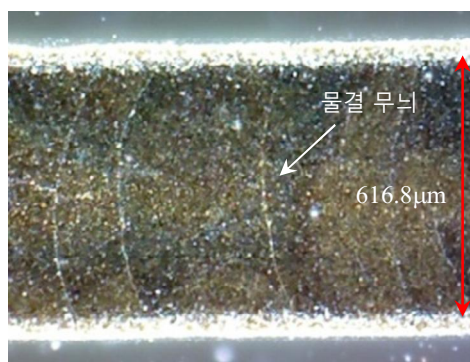


Fig. 6. Glass sealing by laser welding(wavelength 808nm, output 3W, light exposure velocity 3mm/s)

#### 4. 결 론

본 연구에서는 저온 접합공정이 요구되는 ECL 셀의 제작에 있어서, 레이저 웰딩 기술을 활용한 FTO 유리 전극의 접합의 최적 조건을 구하고자 하였다. 실험을 통해 얻어진 결과를 요약하면 다음과 같다.

- 1) 레이저 광의 파장 808nm, 출력 5W 그리고 조사 이동속도를 10mm/s로 하였을 때, 일부 접합불량이 발생하는 것은 유리 크릿 층의 두께차로 인한 공극발생이 주요 원인으로 생각되며, 웰딩이 진행된 영역 주위로 발생한 크랙(crack)은 크릿 층의 유동성 결여에 따른 것으로 보인다.
- 2) 레이저 광의 파장 808nm, 출력 3W 그리고 조사 이동속도를 5mm/s로 하였을 때, 접합불량 영역 주위로 기포가 발생되었으며, 이것은 유리 프리트와 상판 유리와의 균일한 접합면이 형성되어야 필요가 있다.
- 3) 레이저 광의 파장 808nm, 출력 3W 그리고 조사 이동속도를 3mm/s로 하였을 때, 일부 미세한 기포와 물결무늬가 확인되었지만, 크랙이 발생하지 않았고 양호한 접합특성을 얻을 수 있었다. 물결무늬는 유리 프리트의 미세한 두께차로 인해 발생하는 것으로 판단되며, 이것은 향후 보다 정밀한 도포방법을 확보함으로써 해결될 수 있을 것으로 기대된다.



감사의 글

본 연구는 교육과학기술부와 한국연구재단의 지역혁신인력 양성사업으로 수행된 연구결과임. 본 연구는 중소기업청에서 지원하는 2015년도 산학연협력기술개발사업(기업부설연구소신규설치)(No.2014529)의 연구수행으로 인한 결과물임을 밝힙니다. 본 연구에 있어서 (주)정관의 송재은 소장, 윤덕기 박사님의 협력과 조언에 감사드립니다.

References

- [1] R.K. Brow, D.R. Tallant, "Structural design of sealing glasses", Journal of Non-Crystalline Solids Vol. 222, pp.396-406, 1997.
- [2] M. Brochu, B. D. Gauntt, R. Shah, G. Miyake, R. E. Lehman, "Comparison between barium and strontium glass composites for sealing SOFCs", Journal of the European Ceramic Society Vol. 26, pp.3307-3313, 2006.
- [3] R. L. Dietz, "Optical fiber sealing with solder glass", in proceedings of SPIE Vol. 5578, Bellingham, USA, pp.642-651, 2004.
- [4] H. S. Daniel, D. R. Moore, V.J. Tekippe, "Glass soldering improves photonic component packaging", in Laser Focus World, 1994.
- [5] P. E. Burrows, G. L. Graff, M. E. Gross, P. M. Martin, M. Hall, E. Mast, C. Bonham, W. Bennett, L. Michalski, M. Weaver, J. J. Brown, D. Fogarty, L. S. Sapochak, "Gas permeation and lifetime tests on polymer-based barrier coatings", in proceedings of SPIE Vol.4105, pp.75-83, 2000.
- [6] Cedric Chaminade, Alexander Olowinsky, Heidrun Kind, "Laser-based glass soldering for MEMS packaging," in proceedings of ICALEO, LIA, pp.143-148 (2007)
- [7] H. M. Kwon, D.W. Han, D.J. Kwak, Y.M. Sung, Current Applied Physics Vol. 10 S172, 2010.
- [8] Min.-Woo. Park, Seon.-Hee. Park, Dong.-Joo. Kwak, Youl.-Moon. Sung, Journal of Nanoscience and Nanotechnology Vol. 12, p.3309, 2012.
- [9] Woo.-Jin. Choi, Dong.-Joo. Kwak, Cha.-Soo. Park, Youl.-Moon. Sung, Journal of Nanoscience and Nanotechnology, Vol. 12, p.3394, 2012.
- [10] Min-Gi Choi, Youl-Moon Sung, "Preparation of double layer porous films of Titanium/Titanium oxide for photoelectrochemical cells application," Optical Materials, Vol. 36, pp.1430-1435, 2014.

저자소개



성열문 (成烈汶)

1966년 11월 2일생. 1992년 부산대학교 전기공학과 졸업. 1994년 동대학교 대학원 졸업(석사). 1996년 8월 동대학교 대학원 졸업(박사). 1998년 7월 일본 Kyushu 대학 Post-doc. 연구원. 1999년 7월 동대학 조수. 2000년 2월 일본 Miyazaki 대학 전기전자공학과 조교수. 2006년 3월~현재 경성대학교 전기전자공학부 교수. 2011년 9월~2012년 8월 미국 UW-Madison 방문교수.

Tel : 051-663-4777

Fax : 051-624-5980

E-mail : ymsung@ks.ac.kr