

유연 디스플레이용 무색 투명 폴리이미드 필름의 굽힘 잔류 변형률 평가

최민성*·박민석*·박한영*·오충석**

*† 금오공과대학교 기계시스템공학과

Evaluation of Residual Strains under Pure Bending Loading for Colorless and Optically Transparent Polyimide Film for Flexible Display

Min-Sung Choi*, Min-Seok Park*, Han-Yeong Park* and Chung-Seog Oh**†

*† Department of Mechanical System Engineering, Kumoh National Institute of Technology

ABSTRACT

The display industry is transitioning from traditional rigid products such as flat panel displays to flexible or wearable ones designed to be folded or rolled. Accordingly, colorless and optically transparent polyimide (CPI) films are one of the prime candidates to substitute traditional cover glass as a passivation layer to accommodate product flexibility. However, CPI films subjected to repetitive pure bending loads inevitably entail an accumulation of residual strain that can eventually cause wrinkles or delamination in the underlying component after a certain number of static and cyclic loading. The purpose of this study is to establish an experimental method to systematically evaluate the bending residual strain of CPI films. Films were monotonically and cyclically wrapped on mandrels of various diameters to ensure a constant strain in each. After unwrapping the wound CPI film, the residual radius of curvature remaining on the film was measured and converted into residual strain. The critical radius of curvature at which residual strain does not remain was about 5 mm, and the residual strain decreased in proportion to the log time. It is expected that flexible displays can be reliably designed using the data between the applied bending strain and the residual strain.

Key Words : Flexible display, Residual strain, Polyimide film, Pure bending loading

1. 서 론

디스플레이 업체들은 시장의 포화를 극복하고 제품 경쟁력을 확보하기 위해 화질 개선, 소비전력 저감, 제조원가 절감 및 디자인 혁신에 힘쓰고 있으며, 이들 가운데 신제품 개발과 기술 혁신의 여지가 큰 폼팩터(form factor) 변경을 통한 디자인 혁신에 주목하고 있다. 기존의 경직

된(rigid) 형태의 디스플레이들을 접거나(foldable), 말거나(rollable), 늘릴(stretchable) 수 있는 형태의 유연 디스플레이(flexible display)로 변경시켜 새로운 가치를 창출해내는 것이다[1,2]. 최근 접거나 돌돌 말 수 있는 형태의 디스플레이 개발이 활발하게 진행되고 있으나, 이에 수반하여 제품을 구성하는 부품, 특히 봉지 층(cover window), 의 신뢰성 문제가 대두되고 있다[3,4].

무색 투명한 폴리이미드(colorless and optically transparent polyimide, CPI) 필름[5-9]은 높은 광투과도, 열적 안정성 및 낮은 산소(습도) 투과율을 갖기 때문에 유연 디스플레이

†E-mail: ocs@kumoh.ac.kr

용 봉지 및 기판(substrate) 재료로 많이 사용되고 있으나 고분자 재료의 특성상 일정 크기 이상의 굽힘 변형 후 부하를 제거하더라도 변형이 잔존하는 잔류 변형률(residual strain)[10,11] 문제를 안고 있다. 이러한 잔류 변형률은 디스플레이 표면에 주름(wrinkles or creases)을 생성시켜 조도를 낮추고 표면 거칠기를 높이며, 반복 사용 시 봉지 층을 손상시킬 수도 있다. 이러한 이유로 각종 박막[12,13]이나 유연 전자 제품[14,15]의 굽힘 신뢰성이나 잔류 변형률 측정에 대한 결과가 있으나 CPI 필름 자체의 굽힘 잔류 변형률에 대한 체계적인 평가는 이루어지지 않고 있는 실정이다.

본 연구에서는 유연 디스플레이 봉지 층으로 많이 사용되고 있는 CPI 필름을 대상으로 정적(static) 및 반복(cyclic) 순수 굽힘 하중(pure bending load)을 인가한 후 필름에 잔존하는 잔류 변형률을 곡률반경(radius of curvature) 측정을 통해 평가할 수 있는 체계적인 방법을 제시하고자 한다.

2. 실험 방법

2.1 시험편

시험편은 공칭 두께 40 μm 인 (주요오룡의 CPI™ 필름을 사용해 제작하였으며, 실제 측정 두께(평균±표준편차)는 $42\pm 1 \mu\text{m}$ 이었다. 해당 CPI 필름의 규격서 상에 표시된 유리 전이온도는 300 °C, 선팅장계수는 30 ppm/°C, 광투과율은 89%이다.

먼저 CPI 필름을 Fig. 1과 같이 폭 15 mm, 길이 100 mm인 띠 형태로 자른 후 위치 B, C, D에 선을 그어 놓는다. 시험편 중간 부분에 표시한 C와 D 사이의 거리를 게이지 길이(gage length)로 정한다.

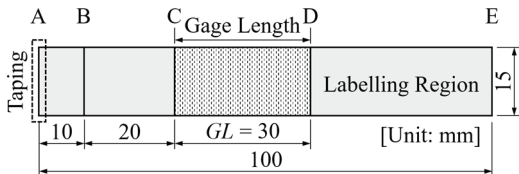


Fig. 1. Shape and dimension of CPI specimen.

2.2 정적 굽힘 시험

2.2.1 표준 굽힘 시험

코팅이나 페인트 층의 정적 굽힘 시험[16]에 사용되는 Fig. 2와 같은 표준 맨드릴 굽힘 시험기(CT-MT2, Coretech)를 사용해 CPI 필름에 정적 변형률을 인가한다. 시험기의 굽힘 각(bending angle)이 180°이므로 직경 2 mm인 맨드릴을

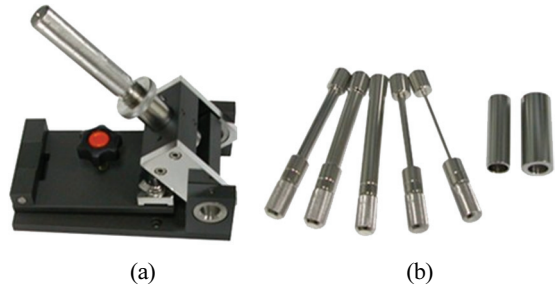


Fig. 2. (a) Static bending tester and (b) associated mandrels.

사용할 경우 굽힘 하중은 3.14 mm 길이의 필름에만 가해 지게 된다.

2.2.2 감김 시험

시험편의 게이지 길이 전체에 순수 굽힘 하중을 인가하기 위해 Fig. 2(b)에 나타난 직경 2, 3, 5, 6, 12 mm인 맨드릴(mandrels)에 CPI 필름 시험편의 한쪽 끝(Fig. 1의 A 부분)을 Fig. 3(a)와 같이 테이프로 고정시킨다. 시험편 전체를 끝까지 말아 Fig. 3(b)와 같은 상태로 만들어 일정 시간(10, 100, 1,000 min) 유지시킨 후 시험편을 풀어 시간 경과(10, 30, 100, 315, 1,000 min)에 따른 게이지 길이 부분의 곡률 변화를 측정한다.

2.3 반복 굽힘 시험

Figure 1의 시험편 양 단을 Fig. 4에 나타난 굽힘 시험기 [17]의 트랙에 고정시킨 후 직경 2.3, 3.5 mm인 롤러에 2 Hz

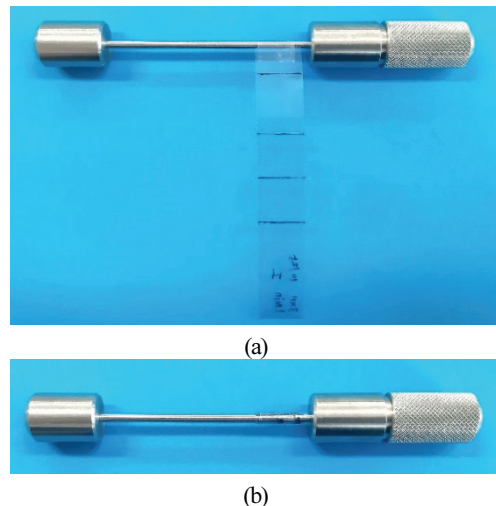


Fig. 3. (a) Fixing one end of the CPI film on a 3 mm diameter mandrel and (b) wrapping of entire film on the mandrel.

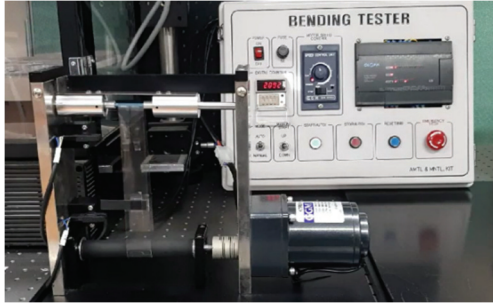


Fig. 4. Cyclic bending tester and 2 CPI film specimens.

의 주파수로 반복해 감고 풀어 반복 굽힘 시험을 수행한다. 지정된 반복 수(10^2 , 10^3 , 10^4 회)에 다다른 후 시험편을 떼어낸 직후 곡률을 측정해 잔류 변형률을 평가한다.

2.4 시험 종류별 시험편 수

측정 데이터에 대한 통계처리를 위해 동일 실험 조건에서 3개의 시험편을 반복 시험하였으며, 이를 Table 1에 정리하였다.

Table 1. Test matrix (number of specimens)

Test	Test Condition		Mandel Diameter [mm]				
			2	3	5	6	12
Static	Holding Time [min]	10	3	3	3	1	1
		100	3	3	3	1	1
	1,000	3	3	3	1	1	
Cyclic	2 Hz		3	3	-	-	-

2.5 굽힘 변형률 계산

2.5.1 작용 변형률 계산

원형 맨드렐을 이용해 시험편에 굽힘 하중을 가했을 때 발생하는 최대 인장 변형률(applied maximum tensile strain, ϵ)은 시험편 바깥쪽 표면에서 발생하며, Fig. 5(a)에 나타낸 바와 같이 맨드렐의 반경(ρ_m)과 필름의 두께(t_f)를 식 (1)에 대입해 계산한다. 이때 Fig. 1에서 A부터 C까지의 필름이 맨드렐에 감기면서 반경이 증가하므로 최종 변형률 계산 시 이를 보정한 보정 맨드렐 반경(compensated mandrel radius)을 사용한다.

$$\epsilon_i[\mu\epsilon] = \frac{t_f}{2\rho_m + t_f} \times 10^6 \quad (1)$$

2.5.2 잔류 변형률 계산

시험편에 발생하는 잔류 변형률(residual strain, ϵ_R)을 구하기 위해 시험 후 지정된 시간 경과 후 시험편의 게이지

길이에 대한 잔류 곡률반경 (residual radius of curvature, ρ_R)을 측정한다. 이때 곡률을 바로 측정하는 경우 오차가 커지기 때문에 Fig. 5(b)에서와 같이 게이지 길이 사이의 수평 거리(l)와 높이(h)를 측정한 뒤 식 (2)를 사용해 곡률반경을 계산한다. 최종적으로 잔류 변형률은 잔류 곡률반경 값을 식 (3)에 대입해 구한다.

$$\rho_R = \frac{h}{2} + \frac{l^2}{8h} \quad (2)$$

$$\epsilon_R[\mu\epsilon] = \frac{t_f}{2\rho_R} \times 10^6 \quad (3)$$

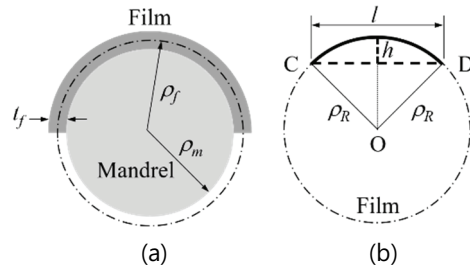


Fig. 5. Calculation of (a) applied and (b) residual strains.

3. 실험 결과 및 토론

3.1 정적 유지 시간에 따른 잔류 변형률

Figure 2에 나타낸 표준 굽힘 시험기를 사용해 CPI 필름에 굽힘 하중을 인가할 경우 굽힘 하중은 시험편의 일부 분(직경 2 mm 맨드렐의 경우 3.14 mm 길이)에만 가해져 하중을 제거했을 때 Fig. 6과 같은 형상이 되어 곡률반경을 측정하는데 오차가 크게 발생된다. 따라서 표준 시험기를 이용한 잔류 변형률 측정 방법을 CPI 필름에 적용하기 어렵다는 것을 알 수 있다. 따라서, 본 연구에서 CPI 필름의 정적 잔류 변형률은 감김 시험(wrapping test)만을 이용해 측정하였다.



Fig. 6. Schematic film shape after applying local strain with a standard bending tester.

시험편을 5 종류의 맨드렐에 감은 뒤 일정 시간(10, 100, 1,000 min) 유지시킨 후 풀었을 때의 잔류 곡률반경(radius of curvature) 측정 결과를 Fig. 7에 나타내었다. Table 1에 나타낸 바와 같이 맨드렐 직경이 6 mm와 12 mm인 경우 의미 있

는 곡률 변화가 관찰되지 않아 하나의 데이터만 참고적으로 나타내었다. 사용한 맨드릴 반경이 클수록, 정적 유지 시간(static hold time)이 짧을수록 잔류 곡률반경은 커짐을 알 수 있다.

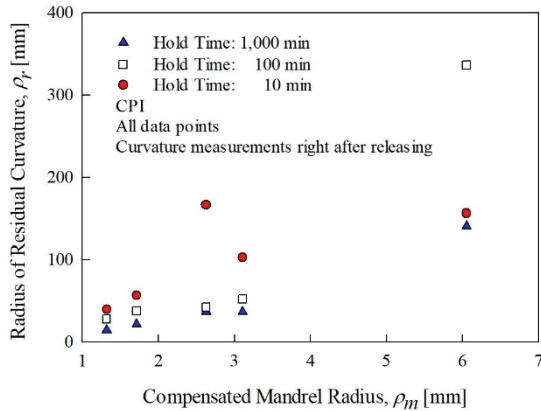


Fig. 7. Residual radius of curvature right after unwrapping.

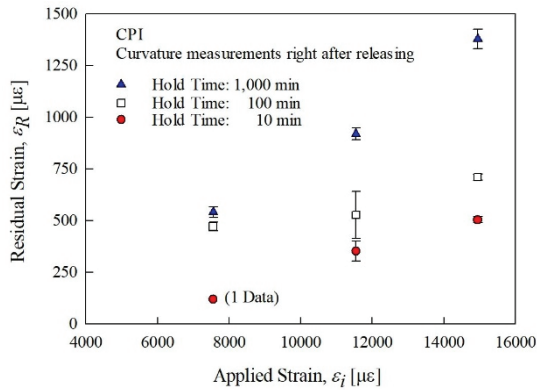


Fig. 8. Residual strain with applied strain and holding time.

Figure 7에 나타난 보정 곡률반경 값들(1.32, 1.71, 263 mm)과 잔류 곡률반경 값들을 식 (3)에 대입해 변형률로 환산한 결과를 Fig. 8에 나타내었다. 그래프에서 알 수 있듯이, 가해진 변형률(ϵ_i) 값이 클수록, 정적 유지 시간이 길수록 잔류 변형률(ϵ_R) 값이 증가함을 알 수 있다. 또한 정적 하중 상태에서 잔류 변형률이 남지 않을 수 있는 임계 굽힘 변형률 값은 약 4,000 $\mu\epsilon$ (곡률반경 약 5 mm) 정도임을 간접적으로 유추할 수 있다. 즉, 사용한 CPI 필름의 경우 직경 10 mm인 롤러에 오랫동안 감아 뒀다가 풀었을 때 직선 형태로 복원될 수 있음을 의미한다.

3.2 시간 경과에 따른 잔류 변형률 이완

고분자 재료의 경우 부하를 제거(unloading)한 다음 남은 잔류 변형률이 시간에 따라 감소하는 복원(recovery) 현상을 보이므로, 이를 관찰하기 위해 일정 시간 동안 감아 뒀던 필름을 풀어놓은 다음 시간 경과에 따른 곡률반경을 측정하였다. 한 가지 예로, 시험편을 직경 2 mm인 맨드릴($\epsilon_i = 14,944 \mu\epsilon$)에 감은 뒤 1,000 min 동안 유지시켰다가 풀어놓은 다음 시간 경과에 따른 시험편의 잔류 변형 변화를 관찰하여 Fig. 9에 나타내었다. 그림에서 알 수 있듯이 시간경과에 따라 잔류 곡률반경이 커지는(잔류 변형률이 줄어드는) 것을 알 수 있다.

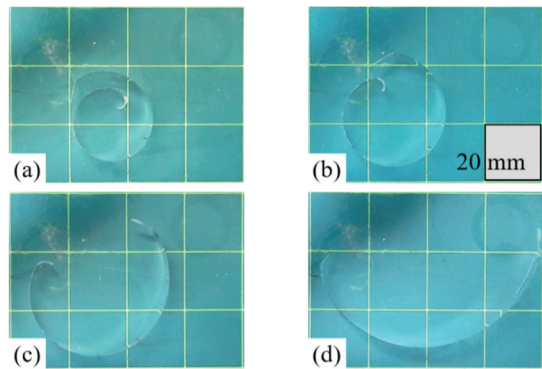


Fig. 9. Shape change of a CPI film specimen (a) 0 min, (b) 10 min, (c) 100 min, and (d) 1,000 min after unwrapping (mandrel diameter = 2 mm).

시험편을 직경 2 mm인 맨드릴($\epsilon_i = 14,944 \mu\epsilon$)에 감은 뒤 100 min과 1,000 min 동안 유지시켰다가 풀은 다음 시간 경과에 따른 시험편의 잔류 변형률 변화를 측정해 Fig. 10에 나타내었다. 변형률의 상대적인 변화를 관찰하기 위해 시

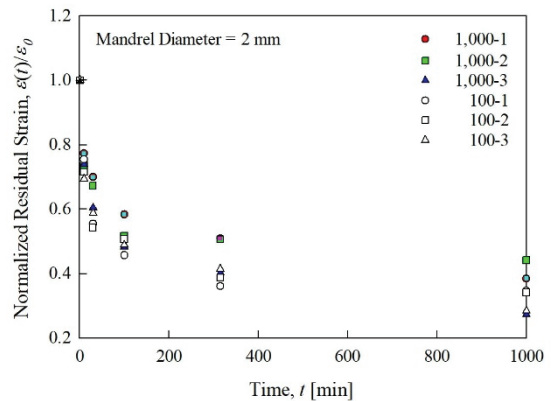


Fig. 10. Normalized residual strains as a function of time.

간에 따른 잔류 변형률 값들을 초기 잔류 변형률(ϵ_0) 로 정규화(normalized)하여 나타내었다. 시간 경과에 따라 잔류 변형률 값이 비선형적으로 감소함을 알 수 있다.

Figure 10의 시간 축에 대수 함수(log function)를 취해 Fig. 11에 다시 나타내었다. 그래프를 통해 알 수 있듯이 정규화된 잔류 변형률 변화는 유지 시간이나 경과 시간에 무관하게 식 (4)와 같이 하나의 직선으로 근사할 수 있음을 알 수 있다. 이 식을 이용해 시간에 따른 잔류 변형률 변화를 예측할 수 있다.

$$\frac{\epsilon(t)}{\epsilon_0} = 1 - 0.23 \times \log t \quad (4)$$

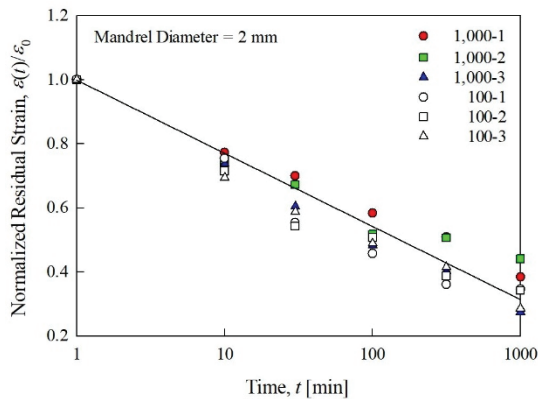


Fig. 11. Normalized residual strains as a function of log time.

3.3 반복 하중 인가 후 잔류 변형률

직경 2.3 mm의 롤러를 이용해 10,000회까지 반복 하중을 인가한 뒤 잔류 변형률을 관찰한 결과 유의미한 곡률 변화는 없었다.

4. 결 론

유연 디스플레이용 봉지층으로 많이 사용되는 CPI 필름에 정적 및 동적 굽힘 하중을 인가하였을 때 발생하는 잔류 변형률을 체계적으로 평가할 수 있는 절차를 개발하였다. 정적 하중 상태에서는 가해진 변형률과 유지 시간 증가에 따라 잔류 변형률이 증가하였으며, 잔류 변형률은 시간 경과에 따라 대수적으로 감소하였다. 시험에 사용한 CPI 필름에 잔류 변형률을 남기지 않는 임계 굽힘 변형률은 약 4,000 $\mu\epsilon$ 이었으며, 이는 곡률반경 5 mm에 해당한다. 본 연구 결과는 접거나 말 수 있는 유연 디스플레이를 신뢰성 있게 설계하는데 기초 데이터로 활용될 수 있을 것으로 기대된다.

감사의 글

이 연구는 2019년 국립대학 육성사업비로 지원되었음.

참고문헌

1. Koo, J.H., Kim, D.C., Shim, H.J., Kim, T.-H., Kim, D.-H., "Flexible and stretchable smart display: materials, fabrication, device design, and system integration", *Adv. Funct. Mater.*, 28, 1801834, (2018).
2. Kallmayer, C., Parekh, D.P., Jiang, T., Atluri, V., Erickson, K., Chan, B., *New Materials and Processes for Flexible Electronics*. Oct, 2021, https://eps.ieee.org/images/files/enews/Chan_Flexible_Electronics_May_2021.pdf (May, 2021).
3. Park, J.-S., Chae, H., Chung, H.K., Lee, S.I., "Thin film encapsulation for flexible AM-OLED: a review", *Semicond. Sci. Technol.* 26, 034001, (2011).
4. Jeong, E.G., Kwon, J.H., Kang, K.S., Jeong, S.Y., Choi, K.C., "A review of highly reliable flexible encapsulation technologies towards rollable and foldable OLEDs", *J. Inf. Displ.*, 21(1), pp. 19-32, (2020).
5. Tapaswi, P.K., Ha, C.-S., "Recent trends on transparent colorless polyimides with balanced thermal and optical properties: design and synthesis", *Macromol. Chem. Phys.*, 220, 1800313, (2019).
6. Yu, X.-H., Liu, J.-N., Wu, D.-Y., "Colorless PI structure design and evaluation for achieving low CTE target", *Mat. Today Comm.*, 21, 100562, (2019).
7. Yang, Z., Guo, H., Kang, C., Gao, L., "Synthesis and characterization of amide-bridged colorless polyimide films with low CTE and high optical performance for flexible OLED displays", *Polym. Chem.*, 12, pp. 5364–5376, (2021).
8. Yang, S.-Y. and Yuan, L.-L., "Advanced Polyimide Films", In S.-Y. Yang, Eds., *Advanced Polyimide Materials*, Elsevier: Chemical Industry Press, pp. 1-66, (2018).
9. Chang, C.-L., Zhu, W.-G., Lin, S.-H., "Flexible cover window with colorless polyimide hard coating thin film for foldable displays", *Int. Conf. on Disp. Techn.*, 52(S2), pp. 961-964, (2021).
10. Wisinger, C.E., Maynarda, L.A., Barone, J.R., "Bending, curling, and twisting in polymeric bilayers", *Soft Matter*, 15, pp. 4541-4547, (2019).
11. Shi, S., Li, Z., Tsai, P., Dong, L., Wang, D., Shi, Y., Du, S., Cai, P., Gao, M., Zheng, M., Wang, H., "Research on Commercial Foldable AMOLED and Relevant Technologies", *SID Symposium Digest of Technical Papers*, vol. 51, pp. 826-829, (2020).
12. Kim, J.-H., Lee, T.-I., Kim, T.-S., Paik, K.-W., "The effect of anisotropic conductive films adhesion on the

- bending reliability of chip-in-flex packages for wearable electronics applications”, *IEEE Trans. Comp., Pack & Manuf. Techn.*, 7(10), pp. 1583-1591, (2017).
13. Cuddalorepatta, G.K., Sim, G.-D., Li, H., Pantuso, D., Vlassak, J.J., “Residual stress-driven test technique for freestanding ultrathin films: Elastic behavior and residual strain”, *J. Mat. Res.*, 34(20), pp. 3474-3482, (2019).
 14. Khan, M.U.A., Raad, R., Tubbal, F., Theoharis, P.I., Liu, S., Foroughi, J., “Bending analysis of polymer-based flexible antennas for wearable, general IoT applications: A review”, *Polymers*, 13, 357, (2021).
 15. Saleh, R., Barth, M., Eberhardt, W., Zimmermann, A., “Bending setups for reliability investigation of flexible electronics”, *Micromachines*, 12, 78, (2021).
 16. ASTM D522 / D522M-17, Standard Test Methods for Mandrel Bend Test of Attached Organic Coatings, ASTM International, West Conshohocken, PA, 2017, www.astm.org
 17. Jeong, J.-H., Kim, J.-H., Oh, C.-S., “Quantitative evaluation of bending reliability for a flexible near-field communication tag”, *Microelectronics Rel.*, 75, pp. 121–126, (2017).
-
- 접수일: 2021년 10월 23일, 심사일: 2021년 12월 8일,
게재확정일: 2021년 12월 14일