

## 전기수력학 프린팅 시스템을 이용한 고점도 형광체의 정량 토출 연구

김수완<sup>1</sup> · 양영진<sup>1</sup> · 김현범<sup>1</sup> · 당현우<sup>2</sup> · 양봉수<sup>2</sup> · 최경현<sup>#</sup>

### A Study of High Viscosity Phosphor Dispensing for an Electrostatic Printing System

S. W. Kim, Y. J. Yang, H. W. Dang, B. S. Yang, H. B. Kim, K. H. Choi

#### Abstract

For chromaticity correction, it is necessary to dispense high viscosity phosphor slurry since it greatly affects the performance of white LEDs. However, it is quite difficult to dispense high viscosity fluorescent materials. In the current study, micro-discharge electrostatic printing has been used for dispensing various high viscosity phosphor slurries. We have achieved dispersions of up to 50  $\mu\text{g}$  using drop on demand (DOD) discharge experiments. The experiments were conducted with different combinations of process variables such as applied voltage, pneumatic pressure, and frequency.

**Key Words** : White LED, High-viscosity Phosphor Slurry, Electrohydrodynamics(EHD), Electrostatic, CIE

#### 1. 서 론

LED(Light Emitting Diode)는 반영구적 수명과 더불어 낮은 소비전력, 제품의 소형 경량화 가능이라는 다양한 장점으로 최근 많은 관심을 받고 있으며, 특히 백색 LED는 색 재현성 등의 성능 향상, 환경 및 에너지 측면에서 장점을 가지고 있어 기존의 형광등을 대체할 수 있는 차세대 백색 조명 광원으로 각광받고 있다.

백색 LED는 단파장의 LED칩과, 이 칩에서 나오는 빛을 흡수하여 장파장으로 변환시켜주는 형광체를 도포하여, LED칩에서 나온 빛과 형광체에 의해 나온 빛을 혼합하여 백색을 구현한다. 백색 LED 제작 공정은 단위공정, 인라인(in-line) 공정, 몰드공정으로 크게 나눌 수 있다. 이중 몰드 공정은 청색 LED 칩 위에 분말 형태의 황색형광체를 함유한 수지를 도포하는 공정으로 백색 LED 제작 공정 중 제

품 품질에 핵심이 되는 공정이다. 그러나 청색 LED 칩과 황색 형광체를 이용하여 얻는 백색광은 색좌표를 동일하게 양산하기가 어려운 단점이 있다. 형광체를 함유한 수지의 도포공정 중 분말인 형광물질이 균일하게 분포되지 않으면 LED 칩으로부터 방출되는 백색 광원이 균일한 색감이 표출되지 못할 수 있다. 이러한 단점들은 사용자에게 어지럼증을 유발할 수 있어 조명용 광원으로 사용불가능하며, 제품 불량률의 가장 큰 원인으로 작용한다[1~3].

백색 LED 제작단계에서 사용되는 형광체 슬러리는 2000cP이상의 고점도로 토출 불균일성으로 생기는 문제점을 해결하기 위해 백색 LED 제조업체에서는 소재, 공정, 장비기술 등에 대해서 다양한 연구가 진행되고 있다.

도포공정에 사용되는 대표적인 공정방식은 스프레이 펌프(spray pump) 방식, 피에조 펌프(piezo pump) 방식, 스크류 펌프(screw pump) 방식 등을 들 수 있다.

1. 제주대학교 메카트로닉스공학

2. 제주대학교 전자공학

# Department of Mechatronics Engineering, Jeju National Univ, E-mail : khchoi@jejunu.ac.kr

그러나 아직은 산업체에서 요구하는 토출 정밀도가 나오지 못하는 실정이다.

백색 LED 제작 시 현재 산업체에서 요구되는 토출량은 적용 분야에 따라 다양하지만, 토출 정밀도는  $\pm 3\%$  이내이다. 산업체에서 요구되는 토출 정밀도를 가지는 토출 공정 개발이 필요하고 토출량 정밀도를 벗어났을 경우 색좌표 보정을 위한 미세 정량 토출 기술이 필요하다. 색좌표 변화를 위해 요구되는 토출량은  $50\mu\text{g}$  이하로 색좌표 보정을 위해서는  $50\mu\text{g}$  이하의 미세 정량 토출 공정기술이 필요하다.

고점도 형광체 슬러리에 대한 정량 토출의 정밀도 문제를 해결하기 위해 전기수력학 (electrostatic printing system, EHD) 프린팅 기술이 제안되고 있다. 전기수력학 프린팅 기술은 정전기력을 가해 유체를 기관으로 잡아당기기 때문에 저점도 재료뿐만 아니라 고점도 재료에서도 미세 액적 토출이 가능한 장점을 가지고 있다. 또한 전기수력학 방식의 패터닝 헤드는 구조가 간단하여 제작이 용이하고 노즐 직경보다 상대적으로 작은 액적을 토출 할 수 있는 장점을 가지고 있다[4~8].

본 논문에서는 전기수력학 프린팅 시스템을 이용한 공정 실험을 통해 고점도 형광체 슬러리의 정량 토출 연구를 진행하였다. 고점도 형광체 슬러리에 대한 정밀 정량 토출 구현을 위해 산업체에서 주로 사용되는 다우코닝(dow coming)사의 실리콘 수지와 인테메티스(intematix)사의 형광체를 혼합한 형광체 슬러리를 사용하였으며 전압, 용액 공급 압력, 주파수 등의 공정 변수에 따른 토출 질량 분석을 통한 정밀 정량 토출 공정조건을 연구하였다.

## 2. 실험 방법

### 2.1 전기수력학 프린팅 메커니즘

전기수력학 프린팅 기술은 전기장과 유체 내의 유도된 전하와의 상호 작용을 통해 정전기력 방향으로 유체를 이동시켜 노즐 오리피스(Nozzle-orifice)를 통해 미세한 액적으로 토출 시킬 수 있는 기술이다[9]. 유체가 전기적인 힘을 받게 되면 정전 효과에 의해 유체 표면에 전하가 모이고 극성을 띠게 된다. 전하를 공급함에 따라 유체의 표면은 전하의 포화상태가 되고, 계속해서 전하를 공급하면 유체의 표면에서 유체가 분리된다[10]. 분리된 유체의 크기는

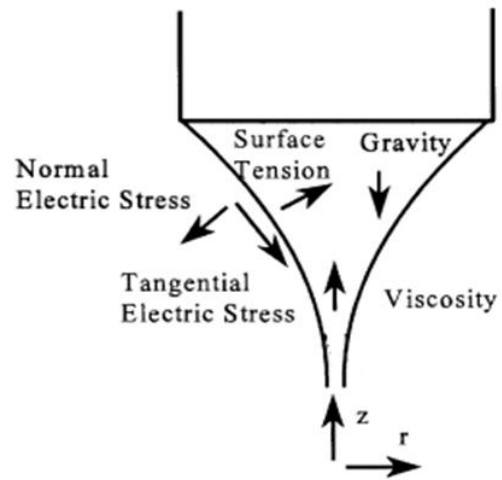


Fig. 1 The effect of forces in the nozzle for electrostatic printing

전하의 공급 정도에 따라 달라지며 전하의 공급 정도는 전압의 크기로 결정된다.

Fig. 1은 전기수력학 프린팅 공정의 토출 원리를 나타낸다. 일정한 유량으로 잉크 공급장치를 통해 공급된 잉크에 고전압을 인가하면 노즐 끝단에 메니스커스(meniscus)가 형성된다. 노즐에 형성되는 정전기력과 중력이 잉크의 점성 및 표면장력보다 커지면 메니스커스의 끝단에서 작은 액적이 토출된다[11]. 전기수력학 프린팅의 특징은 노즐 직경보다 작은 크기의 액적 토출이 가능하고, 잉크에 전기장을 인가하므로써 미세토출이 가능하다는 장점을 가진다[12].

### 2.2 전기수력학 프린팅 시스템

전기수력학 프린팅 시스템은 정전기력을 이용하여 다양한 재료를 정전기력 기반의 잉크젯 헤드를 통해 기관(substrate)위로 패터닝 하기 위한 공정 시스템이다. Fig. 2는 전기수력학 프린팅 시스템의 구성도를 나타낸다.

전기수력학 프린팅 시스템의 구성으로는 EHD 헤드(EHD head), 고전압 발생장치(high voltage amplifier), 시린지 펌프(syringe pump) 정밀 이송장치(precision motorized stage), 함수 발생기(function synthesizer), 공정 모니터링을 위한 초고속 카메라(high speed camera)와 광원(light Source) 그리고 모든 구성요소를 제어하는 통합 공정 제어 시스템(integrated control system)으로 구성된다. 공급압력 잉크공급장치의 공

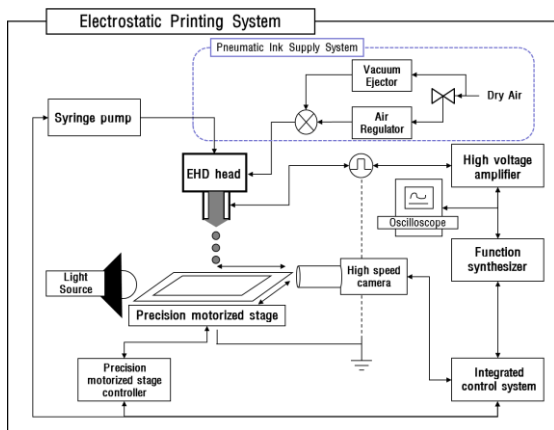


Fig. 2 Structure of electrostatic printing system

급압력 제어기는 필터를 통과시킨 드라이 에어를 차압 발생기(vacuum ejector)와 정압 레귤레이터(air regulator) 사이에서 솔레노이드 밸브를 통해 제어된다[8].

공급압력 잉크공급장치와 시린지 펌프는 전기수력학 패터닝 헤드 노즐 끝단의 초기 메니스커스를 제어하는 역할을 한다. 헤드에 잉크를 공급하는 방식은 시린지 펌프를 이용하는 것이 일반적이지만 시린지 펌프만으로는 잉크공급의 정밀 제어가 힘들어 균일한 메니스커스 형성이 어려운 문제점이 있다[11]. 이러한 시린지 펌프의 문제점을 개선하기 위해 제어 압력 정밀도  $\pm 0.1\text{kPa}$ 의 공급압력 잉크 공급 장치를 추가하여 형광체 슬러리의 메니스커스 형성 조건을 보다 정밀하게 조정할 수 있다.

### 2.3 실험조건 및 실험방법

전기수력학 프린팅의 토출 방식은 크게 연속분사(continuous jetting) 방식과 DOD(drop on demand)방식이 있으나, 형광체 슬러리 정량 토출 구현을 위해 필요 시에만 토출할 수 있는 DOD 방식을 적용하였다.

고점도 형광체 슬러리의 정량 토출을 위한 전기수력학 프린팅의 DOD 토출 공정에서는 일정한 주기를 가지는 토출 파형이 필요하다. 형광체 슬러리의 정량 토출 공정을 위해 토출 파형(waveform), 헤드와 기판 사이의 이격거리를 고정하고 기판은 표면처리를 하지 않은 유리기판을 사용하였다.

Table 1은 고점도 형광체 슬러리의 정량토출 실험에 필요한 공정 변수를 나타내고 있다. 노즐은  $410\mu\text{m}$ 사이즈의 메탈캐필러리(harvard, 22G)를 사용하

Table 1 Experiment parameters

Parameters	Value
Voltage range	3.2kV~4.0kV
Frequency	50Hz, 100 Hz
Ink flow rate	20ul/hr
Nozzle to substrate distance	500um
Pneumatic pressure	-0.5kPa~-0.1kPa

였고 형광체 수지는 다우코닝(dow corning)사의 OE-6630(A/B MIX 1:4)제품과 형광체 인테메틱스(intematix)사의 EY4453제품을 선정한 후 형광체 수지와 형광체를 95:5의 비율로 혼합하여 교반기에서 30분간 교반하였다.

전기수력학 프린팅 시스템을 기반으로 토출 방식, 토출 파형과 같은 일부 공정변수를 고정된 후, 인가 전압과 공급압력 그리고 주파수에 따른 각 100회씩 DOD 토출 실험을 진행하였다.

## 3. 실험결과 및 분석

본 공정실험은 고점도 형광체 슬러리에 대한 기존의 토출 기술에서의 정량 토출의 정밀도가 떨어지는 문제점을 해결하기 위해 전기수력학 프린팅 기술을 적용하여 유리기판 위에 정량 토출과 토출량 제어를 통한 선택적 토출 가능성을 확인함에 목적을 두고 있다.

고점도 형광체 슬러리의 정량 토출 공정에서 메니스커스 제어는 토출량에 직접적인 영향을 미친다. 본 논문에서는 공급압력 잉크공급장치를 통해 노즐에 공급되는 형광체 슬러리의 압력을 제어하여 초기 메니스커스를 제어하였다. 고점도 형광체 슬러리의 정량 토출 구현을 위해서 인가전압, 공급압력, 주파수의 3가지 공정변수를 설정하고 동일 조건에서 공정 후 분석 결과를 얻었다.

### 3.1 토출 파형에 따른 토출 균일성 확보

전기수력학 프린팅 기술의 DOD토출 공정에서 토출 전압 파형은 다양한 형태로 적용되어 왔다. 대부분의 연구는 사각파형(square waveform) 형태를 사용하였다. 사각파형에서의 변수는 인가전압, 펄스 폭 그리고 파형이 반복되는 주파수이다. 인가전압이 커

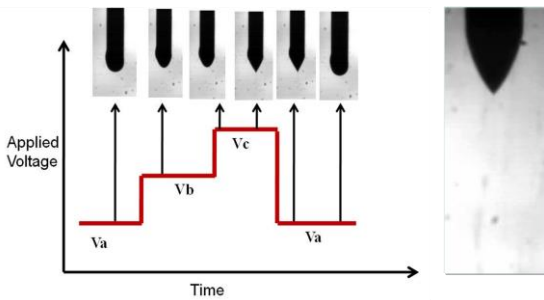


Fig. 3 Multi-step pulsed waveform

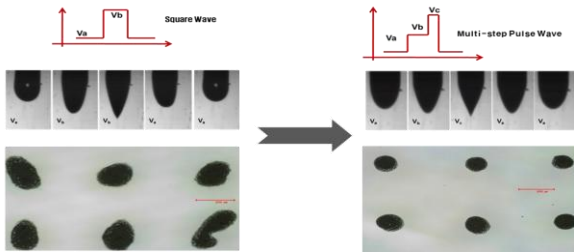


Fig. 4 Compared to the square wave and multi-step pulsed waveform

지면 토출 액적의 크기를 줄일 수 있으나, 바이어스 전압(bias voltage)과의 폭이 커져 위성액적(satellite)이 생기거나 액적이 무작위로 토출되는 문제가 발생한다[13].

위와 같은 문제를 해결하고 미세액적을 안정적으로 토출 시키기 위해 본 연구에서는 단계적으로 인가전압을 증가시켜 안정적인 메니스커스를 유지시키는 멀티스텝 펄스파형을 개발하였다. 개발한 멀티스텝 펄스파형의 형태와 각 스텝에서의 메니스커스 변화는 Fig. 3과 같다. 멀티스텝 펄스파형에서 Va는 기본 바이어스 전압, Vb는 중간 전압, Vc는 토출 전압으로 인가전압을 점차적으로 상승시킨다.

사각파형과 멀티스텝 펄스파형에 대한 비교 실험을 진행한 결과, Fig. 4와 같다. 사각파형에서는 바이어스 전압과 토출 전압으로만 구성되어 있어 순간적인 인가전압에 의해서 토출이 이뤄져, 위성액적 등 토출의 안정성이 떨어진다. 이에 반해, 멀티스텝 펄스파형은 단계적 인가전압 상승으로 고속 스위칭 시 슬루레이트가 거의 존재하지 않아 메니스커스 진동이 적어 안정적인 메니스커스를 형성하여 기존 사각파형에 비해 균일한 토출 결과를 보여준다.

3.2 공정변수 별 토출 실험 결과

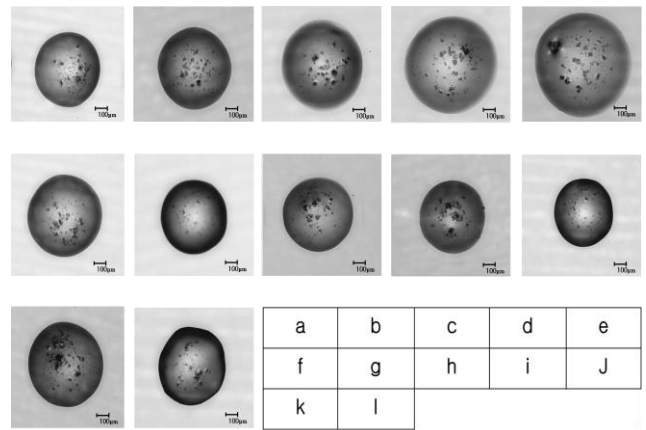


Fig. 5 Microscope images of DOD dot respective to applied pneumatic pressure, voltage and Frequency. (a) -0.5kPa/584 $\mu$ m, (b) -0.4kPa/612 $\mu$ m, (c) -0.3kPa/651 $\mu$ m, (d) -0.2kPa/728 $\mu$ m (e) -0.1kPa/781 $\mu$ m (f) 4.0kV/580 $\mu$ m, (g) 3.8kV/556 $\mu$ m, (h) 3.6kV/522 $\mu$ m (i) 3.4kV/498 $\mu$ m (j) 3.2kV/434 $\mu$ m, (k) 50Hz/587 $\mu$ m, (l) 100Hz/513 $\mu$ m

전기수력학 프린팅 기술을 통한 고점도 형광체 슬러리의 정량 토출 구현을 위해 인가전압, 공급압력, 주파수의 공정변수에 따른 토출 직경 제어 실험을 진행하였다. 실험결과에 대한 토출 직경은 전자현미경(dixi optics, model : BX51M, X5)을 이용하여 측정하였다.

고점도 형광체 슬러리의 정량 토출 공정 중 공급압력에 따른 DOD 토출 실험은 고정변수를 인가전압 3.5kV 주파수 50Hz, 노즐-기판간 이격거리 500 $\mu$ m로 설정하여 공급압력 -0.5kPa~-0.1kPa 범위에서 0.1kPa씩 증가시키면서 토출 실험을 진행하였다. 토출 직경의 측정결과는 Fig. 5의 (a)~(e)와 같이 나타난다. 공급압력 변화에 따른 토출 직경은 공급압력이 증가할수록 직경이 증가함을 확인하였다.

인가전압에 따른 DOD 토출 실험은 고정변수를 공급압력 -0.5kPa, 주파수 50Hz, 노즐-기판간 이격거리 500 $\mu$ m로 설정하여 인가전압 3.2kV~4.0kV 범위에서 0.2kV씩 증가시키면서 진행하였다. 인가전압 변화에 따른 토출 직경은 Fig. 5의 (f)~(j)와 같이 인가전압이 증가할수록 직경이 감소됨을 확인하였다.

주파수에 따른 DOD 토출 실험은 고정변수를 인가전압 3.5kV, 공급압력 -0.4kPa, 노즐-기판간 이격거리 500 $\mu$ m로 설정하여 주파수 50Hz, 100Hz 에서 토출 실험을 진행하였다. 주파수 변화에 따른 토출 직

경은 Fig. 5의 (k)~(l)와 같이 주파수 50Hz에서 100Hz로 증가함에 따라 직경이 감소됨을 확인하였다.

### 3.3 공정변수에 따른 토출 질량 분석

고점도 형광체 슬러리 DOD 토출 실험의 공정 조건 별 각 샘플을 오븐(scilab, SOF-50)에서 150℃로 2시간 소결(sintering)한 후 무작위로 10개의 도트를 선발하여 삼차원 나노형상 측정시스템(nano system, 3D nano profiling system)을 이용하여 결과형상을 측정 후 체적에 따른 토출 질량과 편차를 그래프로 나타내었다. 우선 전압 별 토출 질량을 점으로 표기하고, 각 전압 별 토출 질량의 편차는 바(bar) 형태로 표기하였다.

Fig. 6은 공급압력 조건에 따른 토출 도트의 질량 변화와 편차를 나타낸 것이다. 공급 압력별 평균 토출 질량은 각각 48ug(-0.1kPa), 44.5ug(-0.2kPa), 38.4ug(-0.3kPa), 33.3ug(-0.4kPa), 29.8ug(-0.5kPa)의 결과값을 얻었다. 공급 압력별 조건에서는 50ug이하의 정밀도 ±0.8% ~ 2%를 갖는 정량 토출이 가능하였다.

Fig. 7은 인가전압 조건에 따른 토출 도트의 질량 변화와 편차를 나타낸 것이다. 전압별 평균 토출 질량은 각각 30ug(3.2kV), 27ug(3.4kV), 24.2ug(3.6kV), 20.3ug(3.8kV), 16.1ug(4.0kV)의 결과를 얻었다. 인가 전압 조건에서 50ug이하의 정밀도 ±1.6%~2.8%를 갖는 정량 토출이 가능하였다.

Fig. 8은 주파수 조건에 따른 토출 도트의 질량 변화와 편차를 나타낸 것이다. 주파수별 평균 토출 질량은 각각 29.4ug(50Hz), 21.2ug(100Hz)의 결과값을 얻었다. 주파수 조건에서는 50ug이하의 정밀도 ±1.6%~2.6%를 갖는 정량 토출이 가능하였다.

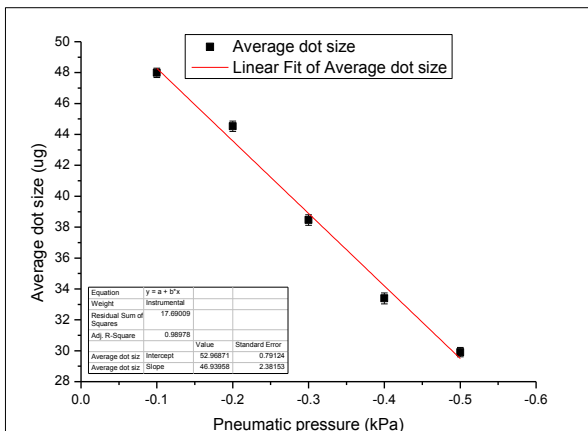


Fig. 6 Result of dot weight by pneumatic pressure

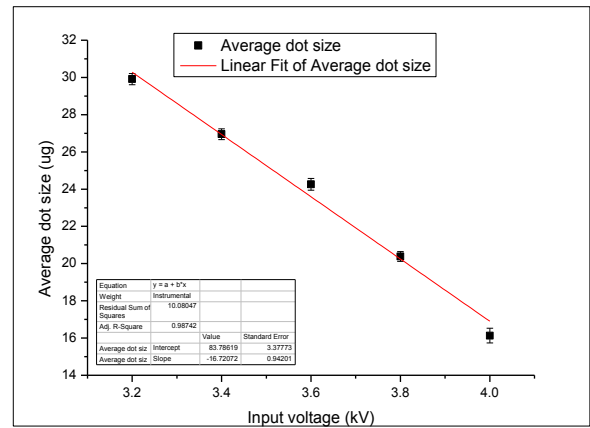


Fig. 7 Result of dot weight by input voltage

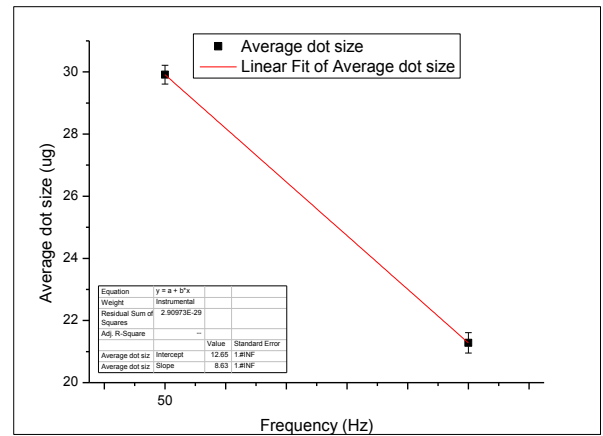


Fig. 8 Result of dot weight by frequency

## 4. 결론

본 연구에서는 기존 토출 방식이 갖는 정밀 정량 토출 구현의 어려움을 해결하고자 전기수력학 프린팅 시스템을 이용하여 백색LED의 색좌표 보정을 위한 50ug 이하의 미세 정량 토출 구현을 위한 연구를 실행하였다.

형광체 슬러리 정량 토출 공정 연구를 위해 정밀 유량 제어가 가능한 EHD 헤드를 설계 및 개발하고, 수치로써 다우코닝 사의 OE-6630을 사용하였다. 토출 방식으로는 DOD방식을 선정하였고, 안정적인 토출 및 균일성 확보를 위해 기존 사각파형을 보완한 멀티스텝 전압 펄스파를 개발하여 헤드에 인가되는 에너지와 토출 도트 질량 사이의 상관관계를 도출하였다. 실험결과 전압, 유량, 주파수의 조건에 따라 원하는 질량의 미세 정량 토출을 제어할 수 있었고, 50ug이하의 균일한 질량을 가지는 형광체 토출을

구현하였다.

본 연구에서는 조건 별 토출 질량에 따른 상관관계 분석을 통해 50ug이하의 안정적인 질량을 갖고 3%이하의 정밀도를 갖는 토출이 가능함을 확인하였고, 인가되는 에너지에 따라 필요한 용량의 토출 질량을 제어할 수 있어 미세 정량 토출 구현을 통하여 색좌표 보정에 적용할 수 있다.

본 연구를 바탕으로 고점도 형광체의 미세 정량 토출의 정밀도가 향상되면 LED 생산 비용이 절감되고, 기존 공정보다 고효율 백색 LED의 해상도 및 발광효율을 향상시켜 성능 향상에 도움이 될 것으로 예상된다.

## 후 기

본 논문은 지식경제 기술혁신사업(신성장동력장비 경쟁력강화사업)의 일환으로 수행중인 “백색 LED 구현을 위한 LED 칩/패키지 형광체 Conformal 코팅 장비 개발” 과제 연구비 지원으로 수행되었습니다.

## REFERENCES

- [1] S. C. Park, 2012, Ph.D. Luminous Efficiency of Phosphor-Converted White Light-Emitting Diodes, Kyungpook National University, Daegu, pp. 18~25.
- [2] S. J. Ha, J. S. Kim, M. W. Cho, J. M. Choi, 2013, Measurement System for Phosphor Dispensing Shape of LED Chip Package Using Machine Vision, J. Kor. Academia-Industrial cooperation Soc., Vol. 14, No. 5, pp. 2113~2120.
- [3] S. H. Kim, 2011, M. S. Screw Pump for Dispensing LED Phosphor Wear Characteristic, Inha University, Incheon, Korea, pp. 6~18.
- [4] D. Y. Lee, Y. S. Shin, S. E. Park, T. U. Yu, J. Hwang, 2007, Electrohydrodynamic Printing of Silver Nanoparticles by Using a Focused Nanocolloid Jet, Appl. Phys. Lett., Vol. 90, No. 8, pp. 90~92.
- [5] K. Hakiai, Y. Ishida, K. Matsuzaki, A. Baba, T. Asano, 2005, Electrostatic Droplet Ejection Using Planar Needle Inkjet Head, J. Jpn. Appl. Phys., Vol. 44, No. 7B, pp. 5781~5785.
- [6] G. Joffre, B. Prunet-Foch, S. Berthomme, M. Cloupeau, 1982, Deformation of Liquid Meniscus Under the Action of an Electric Field, J. Electron., Vol. 13, No. 2, pp. 151~165.
- [7] A. Jaworek, A. Krupa, 1999, Classification of the Modes of EHD Spraying, J. Aerosol Sci., Vol. 30, No. 7, pp. 873~893.
- [8] J. B. Kim, H. C. Kim, H. W. Dang, Y. Y. Jin., K. H. Choi, Y. H. Doh, 2014, Implementation of High Performance Micro Electrode Pattern Using High Viscosity Conductive Ink Patterning Technique, J. Korean. Soc. Precis. Eng., Vol. 31, No. 1, pp. 83~90.
- [9] S. Lee, D. Byun, S. J. Han, S. U. Son, Y. J. Kim, H. S. Ko, 2004, Proc. 2004 IEEE Int Symp. Conf. On MHS.(eds. H. Simpson, D. Robots), Nagoya Munic. Ind. Res. Int, Nagoya, Japan, pp. 249~254.
- [10] D. K. Kang, 2012, Experimental Study on Solar Cell Electrode via Electrohydrodynamic (EHD) Inkjet Printing, Master of Science, Korea University.
- [11] Y. J. Yang, J. B. Ko, H. W. Dang, H. C. Kim, K. H. Choi, K. H. Cho, 2012, Development of Pneumatic Ink Supply System for Electrostatic Head on Meniscus Control, J. Korean Soc. Precis. Eng., Vol. 29, No. 4, pp. 455~460.
- [12] J. B. Ko, 2010, Development of Electrostatic Inkjet Head for Printed Electronics, Major of Electronic Engineering, Master of Science, Jeju National University.