

# 롤투롤 슬롯 다이 코터를 이용한 간헐 코팅 공정 개발

정모세\*·김기은\*·나정필\*·박종운\*\*

\*\*한국기술교육대학교 전기·전자·통신공학부

## Development of Intermittent Coating Process Using Roll-to-roll Slot-die Coater

Mose Jung\*, Gieun Kim\*, Jeongpil Na\* and Jongwoon Park\*\*†

\*\*†School of Electrical, Electronic & Communication Engineering,  
Korea University of Technology and Education

### ABSTRACT

For the potential applications in large-area OLED lightings, hydrogen fuel cells, and secondary batteries, we have performed an intermittent coating of high-viscosity polydimethylsiloxane using roll-to-roll slot die coater. During intermittent coating, dead zones inevitably appear where the thickness of PDMS patch films becomes non-uniform, especially at the leading/trailing edge. To reduce it, we have coated the PDMS patches by varying the process parameters such as the installation angle of the slot die head, coating speed, and patch interval. It is observed that the PDMS solution flows down and thus the thickness profile is non-uniform for horizontal intermittent coating, whereas the PDMS solution remaining on the head lip causes an increase in the PDMS thickness at the leading/trailing edges for vertical intermittent coating when the coating velocity is low. As the coating speed increases, however, the dead zone is shown to be reduced. It is addressed that the overall dead zone (the dead zone at the leading edge + the dead zone at the trailing edge) is smaller with horizontal intermittent coating than with vertical intermittent coating.

**Key Words** : Intermittent coating, patch coating, slot-die coating, roll-to-roll, PDMS

### 1. 서 론

슬롯 다이 코팅 기술은 슬릿 노즐을 이용하여 기판 위에 균일하고 얇은 막을 형성하는데 널리 사용되는 코팅 기술이다[1]. 두께 제어가 용이한 전계량(pre-metered) 코팅 방식과 우수한 두께 정밀도를 가진다는 장점으로 인해 광학, 디스플레이, 이차 전지 사업 등에서 핵심 기술로 주목받고 있다[2], [3]. 특히 이차 전지 분야에서는 슬롯 다이 코팅을 롤투롤(Roll to Roll) 기술과 접목하여 생산성을 향상시켰으며, 최근에는 배터리의 제조 공정을 단순화하기 위해 음극재와 같은 전극을 패터닝하기 위한 연구가 활발

하게 진행되고 있다[4].

슬롯 다이 헤드를 이용한 패터닝 기술인 간헐 코팅(intermittent coating) 또는 패치 코팅(patch coating)은 연속적으로 움직이는 기판 위에 코팅 영역과 비코팅 영역을 주기적으로 형성하는 기술이다[5]. 간헐 코팅은 접착제, 제약 패치, 배터리 및 연료전지 멤브레인, 페로브스카이트 태양전지 등 다양한 분야에서 기판에 개별 패치를 코팅하거나 패터닝하고 있다[6]. 하지만 슬릿 노즐을 이용한 간헐 코팅 공정의 가장 큰 문제는 코팅막의 두께가 균일하지 않은 시작부(leading)와 종료부(trailing)의 데드존(dead zone) 발생이며, 데드존에 의해 소자는 면적 효율, 성능 저하 등을 겪게 된다[7]. 이를 해결하기 위해 코팅 용액을 공급하는 특수 바이패스 밸브를 개발하거나 내부 형상이 가변

†E-mail: pjwup@koreatech.ac.kr

적인 슬롯 다이 헤드를 사용하는 연구가 진행되었다[8]. 이러한 기술들은 코팅하는 사용자의 경험으로 최적화되었으며, 간헐 코팅 공정 메커니즘에 대해 이론적으로 명확히 설명된 기술은 없었다[8].

본 연구에서는 슬롯 다이 헤드와 롤투롤 코팅 기술을 이용하여 간헐 코팅 공정을 진행하였다. 헤드의 코팅 각도, 기판의 이동 속도, 용액 토출 제어 및 헤드 대기 시간 등의 공정 변수를 변화시키면서 코팅 막 가장자리(leading/trailing edge)의 형상을 분석하였으며 슬롯 다이 코팅을 이용한 간헐 코팅 공정에서 나타나는 현상들의 메커니즘을 설명함과 동시에 간헐 코팅 공정을 최적화하였다.

## 2. 실험 방법

본 연구에서는 간헐 코팅을 위한 코팅 용액으로 점도 4,800 cps를 갖는 polydimethylsiloxane (PDMS) (Sylgard 184, DOW)를 경화제와 10:1 비율로 혼합하였다. 실험에 사용된 롤투롤 슬롯 다이 코터(Closed loop type roll coater, YJCOATERS)는 Fig. 1(a)와 같이 크게 코팅 용액을 공급하기 위한 시린지 펌프, PET web film의 정전기를 제거하기

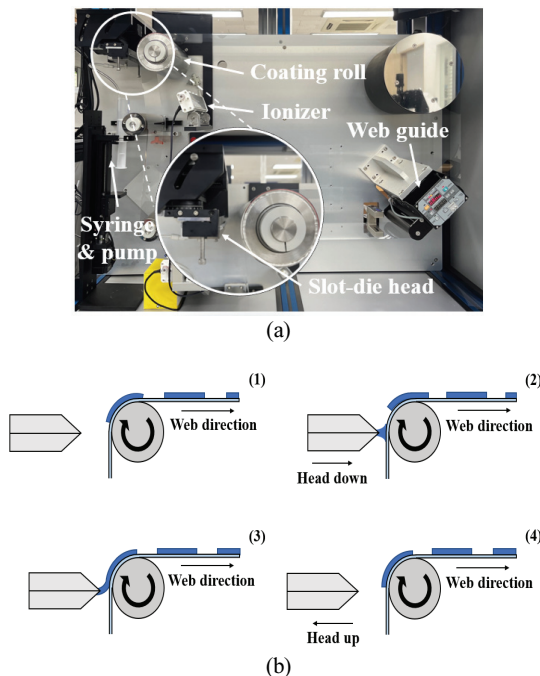
위한 이온라이저, web film의 좌우 위치 정렬을 위한 웹 가이드, 그리고 z-축 이동이 가능한 코팅부(슬롯 다이 헤드)로 구성되어 있다. 슬롯 다이 헤드의 경우 수평(0°) 또는 수직(90°) 방향으로 설치가 가능하며 슬롯 다이 헤드의 유효 코팅 폭과 사용된 shim의 두께는 각각 120 mm, 250  $\mu\text{m}$ 이다. 코팅 갭과 유량은 각각 70  $\mu\text{m}$ 와 5 ml/min으로 고정하였다. 슬롯 다이 헤드를 이용한 간헐 코팅 공정 시퀀스는 Fig. 1(b)와 같으며 먼저 슬롯 다이 헤드를 설정한 코팅 갭만큼 내려 패치 길이만큼 코팅을 진행한다. 이후 슬롯 다이 헤드를 들어올린 후 상단에서 대기 시간을 갖으며 이때 web film의 이동 속도(코팅 속도)에 무관하게 일정한 간격을 갖는 패턴을 형성하기 위해 대기 시간을 변화시킨다. 즉 코팅 속도가 빠를수록 대기 시간은 줄어든다. 각 패치의 코팅 길이는 45 mm로 고정하였으며 패치 코팅된 PDMS 박막은 열풍 건조기(ThermoStable SOF-W105, Daihan Scientific)를 이용하여 80 °C 에서 2시간 건조한 후 height gauge(ID-S112X2, Mitutoyo)를 이용하여 500  $\mu\text{m}$  간격으로 두께를 측정하였다. 코팅 속도와 헤드 거치 각도를 변화시키며 PDMS 패치 박막을 형성하고 패치 박막에 발생하는 테드존을 분석하였으며 패치 간격 조절을 통해 테드존을 최소화하는 공정을 도출하였다.

## 3. 결과 및 고찰

### 3.1 수평 간헐 코팅

먼저 슬롯 다이 헤드를 수평으로 설치한 후 Fig. 2(a)와 같이 27 mm 간격으로 45 mm의 패치 박막을 형성하였다. 형성된 패치 박막의 형상은 일반적으로 Fig. 2(b)와 같이 슬롯 다이 헤드가 내려와서 코팅이 시작되는 부분에는 두께가 불균일한 높이  $H_1$ , 폭  $W_1$  을 갖는 leading edge가 형성되고 이후 균일한 두께 ( $T_{avg}$ )를 갖는다. 그리고 코팅이 끝나서 슬롯 다이 헤드를 들어올리는 부분에서도 두께가 불균일한 높이  $H_2$ , 폭  $W_2$ 를 갖는 trailing edge가 형성된다. 여기서  $W_1$ 과  $W_2$ 가 패치 코팅의 테드존에 해당한다.

슬롯 다이 헤드의 각도가 수평인 조건에서 코팅 속도( $V$ )를 1 mm/sec에서 9 mm/sec로 2 mm/sec씩 변화시키며 간헐 코팅을 진행하였다. 코팅 속도 1 mm/sec에서는 Fig. 3(a)에서 볼 수 있듯이 코팅 막의 두께가 코팅 시작 지점에서 종료 지점으로 갈수록 점차 증가하는 것을 볼 수 있다. 이는 코팅 유량 5 ml/min에 비해 코팅 속도가 너무 느린 동시에 슬롯 다이 헤드가 수평으로 설치되어 있어 과도하게 토출된 용액이 수직으로 움직이는 web film에 도달하면서 중력에 의해 흘러내리기 때문에 발생하는 현상이다. 그리고 간헐 코팅이 계속 진행됨에 따라 비코팅 영역에서 코팅에 사용되지 않은 잔여 용액이 슬롯 다이 헤드들



**Fig. 1.** (a) Image of roll-to-roll slot die coater used for intermittent coating and (b) sequence of slot-die intermittent coating when the head is installed horizontally.

타고 흐르는 현상 또한 발생한다. 이는 헤드에 용액 recycling tray를 설치함으로써 해결 가능하다.

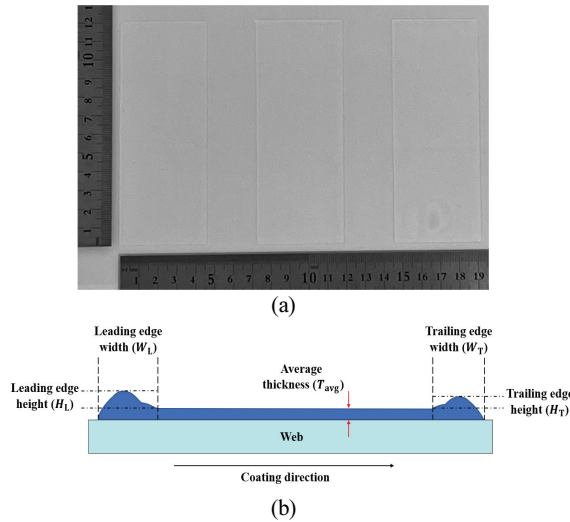


Fig. 2. (a) Images of PDMS patches with an equal interval coated on a web film and (b) schematic view of coated patch profiles (height ( $H_L$ ) and width ( $W_L$ ) of the leading edge, trailing edge height ( $H_T$ ) and width ( $W_T$ ), and average thickness ( $T_{avg}$ )).

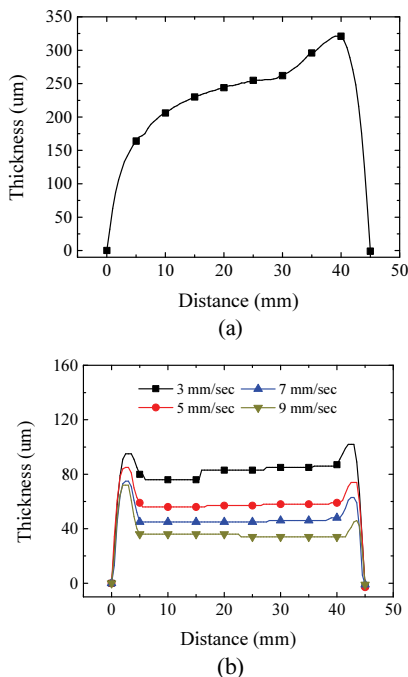


Fig. 3. Measured thickness profile of PDMS patches coated at a speed of (a) 1 mm/sec and (b) 3-9 mm/sec.

Table 1. Summary of measured  $T_{avg}$ ,  $H_L$ ,  $W_L$ ,  $H_T$  and  $W_T$  of PDMS patch films coated for different  $V$ .

$V$ (mm/sec)	$T_{avg}$ ( $\mu\text{m}$ )	$H_L$ ( $\mu\text{m}$ )	$W_L$ (mm)	$H_T$ ( $\mu\text{m}$ )	$W_T$ (mm)
3	82	13	6	20	5
5	57	28	5.5	17	4.5
7	46	29	5	17	4.5
9	35	37	5	12	3.5

코팅 속도 3 mm/sec부터는 Fig. 3(b)에서 볼 수 있듯이 패치 코팅이 시작되는 지점(leading edge)과 끝나는 지점(trailing edge)에서 두께가 균일하지 않고 솟아오르는 모습을 보이며 이는 곧 소자 제작에 사용할 수 없는 데드존으로 여겨진다. 각각의 속도에서 패치의 평균 두께( $T_{avg}$ ), leading edge의 높이( $H_L$ )와 폭( $W_L$ ), trailing edge의 높이( $H_T$ )와 폭( $W_T$ )을 분석하여 Table 1에 정리하였으며 코팅 속도가 3 mm/sec에서 9 mm/sec로 증가함에 따라  $W_L$ 와  $W_T$ 이 각각 6 mm, 5 mm에서 5 mm, 3.5 mm로 줄어들어 데드존 영역이 감소함을 알 수 있다. 이러한 edge 폭의 감소는 Eq. 1의 전단율(shear rate)을 통해 설명이 가능하다.

$$\gamma = \frac{V}{L} \tag{1}$$

Eq. 1에서  $\gamma$ 는 전단율,  $V$ 는 판 사이의 유체의 속도,  $L$ 은 두 판 사이의 거리를 의미한다. Eq. 1에서 보듯이 전단율은 판 사이 유체의 속도에 비례하며 판의 거리에는 반비례한다. 여기서 판의 거리와 유체의 속도는 각각 코팅 갭과 코팅 속도로 볼 수 있으며 코팅 갭은 고정이기 때문에 코팅 속도가 빨라질수록 전단율이 커지게 된다. 전단율이 커짐에 따라 슬롯 다이 헤드와 기판 사이에 형성된 매니스커스가 쉽게 끊어져 결과적으로 코팅 속도가 빠를수록  $W_L$ 와  $W_T$ 가 감소한다.  $T_{avg}$ 의 경우 속도가 3 mm/sec에서 9 mm/sec로 증가함에 따라 PDMS 패치 두께가 82  $\mu\text{m}$ 에서 35  $\mu\text{m}$ 로 감소한다. 하지만 edge를 제외할지라도 패치 박막 전체 영역에 걸쳐서 코팅 두께가 균일하지 않은 모습을 보인다. 이 또한 수평으로 설치된 슬롯 다이 헤드에 의해 기판에 전달된 코팅액이 중력에 의해 유동이 발생하였기 때문이며 이러한 불균일한 코팅 박막은 소자의 성능 저하로 이어질 수 있다.

데드존을 줄이기 위해서는 패치의 leading edge와 trailing edge 부분에 용액이 묻히는 것을 막아야한다. 시린지 펌프에 의한 용액 공급은 간헐 코팅이 진행되는 동안 계속되기 때문에 패치와 패치 사이의 간격을 형성하기 위한 비코팅 영역에서의 헤드의 대기 시간을 최소화해야 한다. 이를 위해 45 mm의 패치 코팅 이후 헤드를 빠르게 올렸

다 내림으로써 비코팅 영역에서의 대기 시간을 최소화하였다. 코팅 형상은 Fig. 4와 같으며 패치 간의 간격을 27 mm로 고정시킨 Fig. 3과 달리 패치 간의 간격이 좁은 것을 확인할 수 있다. 이 때 코팅된 패치의 결과를 Fig. 5와 Table 3에 정리하였다. 코팅 속도에 따른  $T_{avg}$ 와  $W_L$ ,  $W_T$  값은 비슷하게 형성되었지만  $H_L$ ,  $H_T$  값은 대체로 증가하였다. 이는 슬롯 다이 헤드의 각도를 통해 설명 가능하다. 헤드의 각도가 수평에서 비코팅 영역을 27 mm로 하였을 때는 해당 영역에서 토출되는 용액들은 중력에 의해 헤드를 타고 흘러내리게 되어 헤드립에는 적은 양만 남게 된다. 하지만 헤드의 대기 시간을 최소화하기 위해 헤드를 빠르게 올렸다 내리게 되면 비코팅 영역에서 토출되는 용액이 헤드를 타고 흘러내리기도 전에 다음 패치의 코팅 과정으로 진입하게 된다. 따라서 해당 용액들이 다음 코팅되는 패치에 영향을 미치게 되는 것이다. 하지만 데드존을 줄여서 사용 가능한 코팅 패치의 면적을 증가시키는 측면에서 본다면 데드존에서의 높이는 고려되지 않을 수 있다.

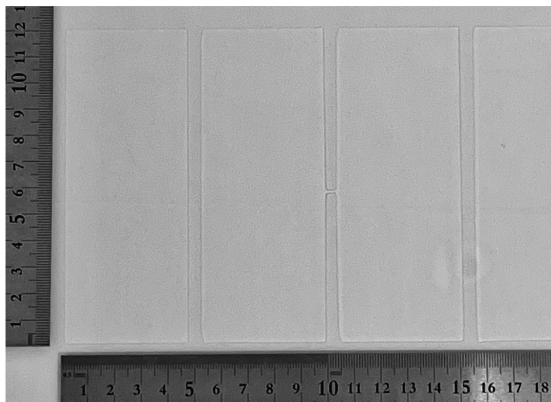


Fig. 4. Images of PDMS patches coated without latency when the slot die head is raised.

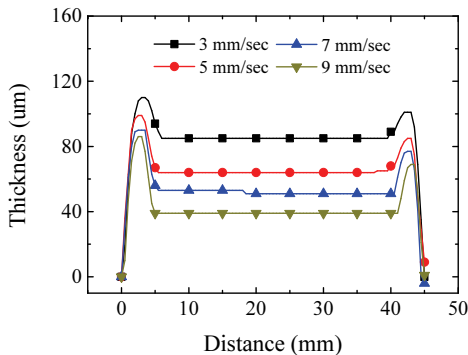


Fig. 5. Measured thickness profiles of PDMS patches coated without latency when the slot die head is raised.

Table 3. Summary of measured  $T_{avg}$ ,  $H_L$ ,  $W_L$ ,  $H_T$  and  $W_T$  of PDMS patch films coated without latency when the slot die head is raised.

$V$ (mm/sec)	$T_{avg}$ ( $\mu$ m)	$H_L$ ( $\mu$ m)	$W_L$ (mm)	$H_T$ ( $\mu$ m)	$W_T$ (mm)
3	85	25	6	16	5
5	64	35	5.5	21	4.5
7	52	38	5.5	25	4
9	39	47	5	30	3.5

### 3.2 수직 간헐 코팅

이번에는 슬롯 다이 헤드를 수직 방향으로 설치한 후 코팅 속도에 따른 간헐 코팅을 진행하였으며 코팅 결과를 Fig. 6와 Table 4에 정리하였다. Fig. 6에서 볼 수 있듯이 leading edge와 trailing edge를 제외한 코팅 영역이 헤드를 수평으로 설치한 Fig. 3에 비해 우수한 균일도를 보여준다.  $T_{avg}$ 는 코팅 속도가 3 mm/sec에서 9 mm/sec로 증가함에 따라 119  $\mu$ m에서 63  $\mu$ m로 감소하며 이는 헤드를 수평으로 설치했을 경우보다 증가된 값이다.  $W_L$ 과  $W_T$ 의 경우 코팅 속도 9 mm/sec에서 각각 8.5 mm와 6.5 mm의 값을 가지며 수평으로 설치한 헤드에 비해 약 3 mm 이상 증가했다. 또한  $H_L$ 와  $H_T$ 의 경우 코팅 속도 9 mm/sec에서 각각 121  $\mu$ m와 48  $\mu$ m로 수평 헤드에 비해 약 3배로 크게 증가하였다. 이는 헤드를 수평으로 장착하는 방식에서 보였던 코팅에 사용되지 않은 잔여 용액이 헤드 또는 기판을 타고 흘러들던 것과는 달리, 헤드가 수직으로 있을 경우 잔여 용액이 헤드립에 맺혀 다음 패치 박막의 시작 또는 끝 부분에서 뭉치기 때문이다.

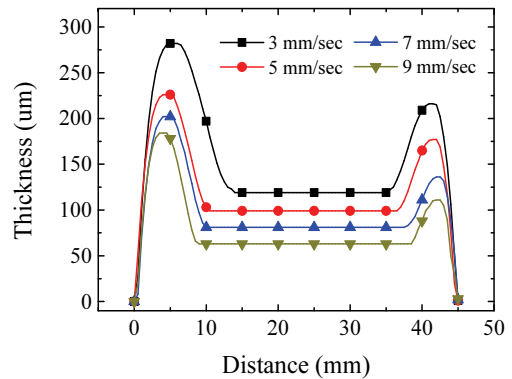
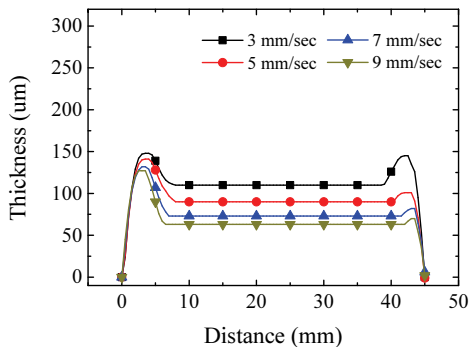


Fig. 6. Measured thickness profile of PDMS patches coated for different coating speeds when the head is installed vertically.

**Table 4.** Summary of measured  $T_{avg}$ ,  $H_L$ ,  $W_L$ ,  $H_T$  and  $W_T$  of PDMS patches coated for different  $V$ .

$V$ (mm/sec)	$T_{avg}$ ( $\mu\text{m}$ )	$H_L$ ( $\mu\text{m}$ )	$W_L$ (mm)	$H_T$ ( $\mu\text{m}$ )	$W_T$ (mm)
3	119	163	14	97	10
5	99	127	10.5	78	8.5
7	81	121	10	55	7.5
9	63	121	8.5	48	6.5

**Fig. 7.** Measured thickness profile of PDMS patches coated without latency when the head is raised.**Table 5.** Summary of measured  $T_{avg}$ ,  $H_L$ ,  $W_L$ ,  $H_T$  and  $W_T$  of PDMS patch films coated without latency when the head is raised.

$V$ (mm/sec)	$T_{avg}$ ( $\mu\text{m}$ )	$H_L$ ( $\mu\text{m}$ )	$W_L$ (mm)	$H_T$ ( $\mu\text{m}$ )	$W_T$ (mm)
3	110	38	8	35	6.5
5	90	51	8	11	5
7	73	59	7	9	3.5
9	63	64	6.5	7	3

데드존을 줄이기 위해 앞서서 진행한 실험과 마찬가지로 45 mm의 패치를 코팅한 후 헤드를 빠르게 올렸다 내림으로써 비코팅 영역에서의 대기 시간을 최소화하였으며 그 결과를 Fig. 7과 Table 5에 정리하였다. 코팅 속도에 따른  $T_{avg}$  값은 앞선 실험들과 비슷한 값을 유지하면서도  $W_L$ 와  $W_T$ 가 줄어들었으며, 특히  $W_T$ 의 경우 9 mm/sec에서 3 mm의 매우 좁은 폭을 가지는 것을 알 수 있다.  $H_L$  값의 경우 Table 4와 비교하여 코팅 속도에 따라 절반 또는 그 이하로 값이 크게 감소하여 묻치는 용액의 양이 확연히 감소했음을 알 수 있다. 하지만 여전히 평균 코팅 두께에

비해 수십  $\mu\text{m}$ 의 큰 차이가 나며 코팅 속도가 증가함에 따라  $H_L$  값이 줄어드는 앞선 실험과는 달리 Table 5에서는 코팅 속도가 증가함에 따라 오히려 그 값이 증가한다. 이는 비코팅 영역에서 헤드의 대기 시간을 줄이는 것만으로는 leading edge의 데드존을 줄이는 것에 한계가 있음을 의미한다.

## 4. 결 론

롤투롤 슬롯 다이 코터를 이용하여 수평 및 수직 간헐 코팅을 수행하였으며 두께가 균일하고 데드존이 좁은 PDMS 패치를 제작하였다. 코팅 속도 9 mm/s에서 수평 간헐 코팅의 경우 leading edge와 trailing edge에서의 데드존이 각각 5 mm, 3.5 mm로 감소한 반면, 수직 간헐 코팅을 할 경우 6.5 mm, 3 mm로 감소함을 확인하였다. 즉, 수직 간헐 코팅보다 수평 간헐 코팅을 할 경우 전체 데드존(leading edge의 데드존 + trailing edge의 데드존)이 더 줄어든다. 하지만, 수평 간헐 코팅시 코팅 속도가 너무 느리면 코팅 용액의 흘러내리는 현상이 발생하고, 수직 간헐 코팅시에는 헤드 립에 많은 양의 코팅액이 잔존함으로써 edge에서 코팅 두께 증가하는 현상이 나타났다.

## 감사의 글

이 논문은 2023년도 한국기술교육대학교 교수 교육연구진흥과제 지원에 의하여 연구되었으며 또한 본 과제(결과물)는 2023년도 교육부의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행된 지자체-대학 협력기반 지역혁신 사업의 결과입니다(2021RIS-004).

## 참고문헌

- X. Ding, J. Liu, and T. A. L. Harris, "A review of the operating limits in slot die coating processes," *AICHE J.*, vol. 62, no. 7, pp. 2508–2524, 2016, doi: 10.1002/aic.15268.
- Y.-R. Chang, C.-F. Lin, and T.-J. Liu, "Start-up of slot die coating," *Polym. Eng. Sci.*, vol. 49, no. 6, pp. 1158–1167, 2009, doi: 10.1002/pen.21360.
- G. Kim, J. Lee, D.-K. Shin, and J. Park, "Roll-to-Roll Fabrication of PEDOT:PSS Stripes Using Slot-Die Head With  $\mu$ -Tips for AMOLEDs," *IEEE Trans. Electron Devices*, vol. 66, no. 2, pp. 1041–1049, Feb. 2019, doi: 10.1109/TED.2018.2887213.
- S. Kim, J. Lee, M. Jo, and C. Lee, "Numerical Modeling of Ink Widening and Coating Gap in Roll-to-Roll

- Slot-Die Coating of Solid Oxide Fuel Cell Electrolytic Layer,” *Polymers*, vol. 12, no. 12, Art. no. 12, Dec. 2020, doi: 10.3390/polym12122927.
5. P. Tan, S. Diao, T. Huang, Z. Yang, H. Zhou, and Y. Zhang, “Mechanism and Control of the Trailing Edge in Intermittent Slot Die Coating,” *Ind. Eng. Chem. Res.*, vol. 59, no. 35, pp. 15758–15767, Sep. 2020, doi: 10.1021/acs.iecr.0c02743.
  6. D. Maza and M. S. Carvalho, “Trailing edge formation during slot coating of rectangular patches,” *J. Coat. Technol. Res.*, vol. 14, no. 5, pp. 1003–1013, Sep. 2017, doi: 10.1007/s11998-017-9962-1.
  7. I. de Vries *et al.*, “Recent Developments On Intermittent Coating”.
  8. M. Schmitt, R. Diehm, P. Scharfer, and W. Schabel, “An experimental and analytical study on intermittent slot die coating of viscoelastic battery slurries,” *J. Coat. Technol. Res.*, vol. 12, no. 5, pp. 927–938, Sep. 2015, doi: 10.1007/s11998-015-9717-9.
- 
- 접수일: 2023년 11월 7일, 심사일: 2023년 12월 5일,  
게재확정일: 2023년 12월 12일