

폴리에스터 필름의 광투과도 향상에 대한 연구

김시민*** · 박수영**†

*코오롱인더스트리, **경북대학교 고분자공학과
(2012년 4월 24일 접수, 2012년 5월 5일 수정, 2012년 5월 7일 채택)

Study on the Improvement of Light Transmittance of Polyester Film

Si-Min Kim*** and Soo-Young Park**†

*212 Gongdan-dong, Gumi-si, Gyunggangbuk-do 730-030, Korea

**Department of Polymer Science, Kyungpook National University, #1370 Sangyuk-dong, Buk-gu, Daegu 702-701, Korea

(Received April 24, 2012; Revised May 5, 2012; Accepted May 7, 2012)

초록: 평판 디스플레이에 사용되는 PET 필름의 광학적 특성을 알아보기 위하여 필름 표면 굴절률, 필름 표면조도 및 필름 내부입자가 광투과율에 미치는 영향을 알아 보았다. 필름표면에 굴절률이 낮은 코팅층을 형성함에 따라 필름의 광투과율이 향상되었고, 최대의 광투과율을 가지는 코팅두께가 있음을 확인하였다. 표면 거칠기의 영향에 대해서는 표면조도를 나타내는 Ra를 입사 파장의 1/4 이하로 조절한 경우 광손실이 발생되지 않았다. 필름 내 무기입자는 입사된 광의 흡수 및 산란을 발생시켜 광손실을 증가시켰다.

Abstract: Poly(ethylene terephthalate) (PET) base films with high light transmittance have been used for the substrate of various functional films in the flat panel display. The effects of the reflective index of coated films, the roughness of the film surface and the content of inorganic silica particles on the light transmittance were studied in this article. Light transmittance was increased by coating a water soluble resin with a low reflective index at an optimum thickness. The roughness of the film did not affect light transmittance when the Ra of the film surface was less than a quarter of the wavelength of incident light. Inorganic silica particles decreased light transmittance due to their absorbance and scattering of the incident light.

Keywords: polyester film, light transmittance, refractive index, surface morphology, inorganic particle.

서 론

평판 디스플레이(flat panel display, FPD)의 부품 소재로서 PET 필름은 다양한 기능성 필름들의 기판 필름으로 사용되고 있다. FPD 시장의 지속적인 성장에 따라 이러한 기능성 필름들과 그 기판으로 사용되는 PET 필름 역시 수요가 확대되고 있다. FPD 중 액정 디스플레이(liquid crystal display, LCD)는 광원에서 조사된 빛을 다양한 기능성 필름을 통과시켜 균일한 편광화된 빛으로 바꾸고 이를 액정을 통과시켜 화면에 표시하는 디스플레이이다. 광원에서 출발한 빛은 다양한 기능성 필름을 통과하는 과정과 편광화 과정에서 발생하는 광손실로 인해 사람의 눈에 인식되는 광효율이 10% 이하로 낮아지게 된다. 이러한 낮은 광효율을 향상시키기 위하여 여러 방법이 제시되고 있다. 광원 자체의 밝기를 향상시

키는 방법으로는 광원을 cold cathode fluorescent lamp (CCFL)에서 light emitting diode(LED)로 변경하는 방법이 있으며 각종 기능성 필름에서의 광손실을 최소화 하는 방법들도 연구되고 있다.

FPD에 사용되는 기능성 필름들에는 백라이트 유니트에 사용되는 필름들과 편광판에 사용되는 필름으로 구분할 수 있다. 이 중 백라이트 유니트에 사용되는 기능성 필름은 광확산 필름, 프리즘 필름(prism film), 프리즘 보호 필름, 반사 필름 및 휘도 향상 필름으로 구성된다. 광확산 필름은 광원에서 조사된 빛의 밝기를 디스플레이 전면에 균일하게 분산시키는 기능을 하며, 프리즘 필름은 다양한 각도에서 입사된 빛을 디스플레이의 수직 방향으로 방출되도록 하는 기능을 한다. 또한 프리즘 보호필름은 삼각형 모양의 프리즘 코팅층을 외부의 물리적 자극으로부터 보호하는 기능을 하며, 반사필름은 화면의 반대방향으로 향하는 광원의 빛을 화면 방향으로 반사시켜 광의 효율을 향상시킨다. 휘도 향상 필름은 디스플레이에 사용된 기능성 필름의 계면에서 반사되

†To whom correspondence should be addressed.
E-mail: psy@knu.ac.kr

는 빛을 재반사시켜 광효율을 향상시킨다. LCD에 사용되는 다양한 기능성 필름들은 PET 필름을 기반으로 하여 제조되기 때문에 광학적으로 우수한 기능성 필름들을 제조하기 위해서는 광투과율이 우수한 PET 필름이 필수적으로 요구된다.

PET 필름은 투명도 및 기계적 강도가 우수하여 다양한 산업의 소재로서 활용되어 왔다.¹⁻³ 특히 PET 필름을 디스플레이용 소재로 사용하기 위해서는 PET 수지를 합성하는 단계에서부터 광학적 결함을 발생시킬 수 있는 미세한 불순물 제거가 필요할 뿐 아니라 필름 제조 단계에서는 물리적, 열적 특성 제어, 표면 처리를 통한 기능성 부여 및 광학특성 조절 등이 요구된다.^{4,6} Iwamori 등은 PET 필름의 표면에 굴절률이 낮은 fluorocarbon을 코팅하여 광투과율을 향상시키는 보고를 하였으나, fluorocarbon은 낮은 표면 에너지로 인해 이종 물질과의 접착력이 좋지 않아 코팅용 기판 소재로 적합하지 않았으며,⁷ KUM 등은 PET 필름 위에 실리카 입자를 첨가함으로써 표면조도를 높여 반사광을 감소시키는 보고를 하였으나, 과도한 표면 산란으로 인해 광투과도는 증가하지 않았다.⁸ 본 연구에서는 PET 필름의 표면에 수분산 고분자를 코팅하여 굴절률을 조절함으로써 광투과율을 향상시키고자 하였으며, 표면의 모폴로지 및 무기입자의 함량에 따른 광투과율 변화에 대하여 연구하였다.

실 험

원료. Poly(ethylene terephthalate) (PET, 코오롱인더스트리) 필름은 고유점도가 0.65인 PET 칩을 사용하여 제조하였다. 이 때 필름 내 입자의 함량은 무기 실리카 입자(Fuji Silysia, SY-310)를 10000 ppm을 함유한 입자 칩과 순수 PET 칩을 적절히 혼합하여 조절하였다. 코팅액은 PET 필름과 기능성 코팅층의 접착력이 우수한 폴리아크릴계(Dow Chemical사의 Primal 3208), 폴리우레탄계(Dai-Ichi KoGyo Seiyaku사의 Elaston H-3), 폴리에스터계(Goo Chemical사의 Z-687) 수분산 수지를 사용하였다. 표면 에너지가 낮은 PET 필름에 표면에너지가 높은 수분산 수지를 균일하게 코팅하기 위해 실리콘계 습윤제(Wetting Agent)인 Q2-5211(Dow Corning)를 사용하였다. Table 1은 사용된 수분산 코팅제 및 습윤제를 정리한 것이다.

시료 제조. PET 필름 제조: PET 필름은 압출기(Lab. Tech

Engineering Co., Ltd., LE25-30/CV)를 사용하여 냉각 드럼에서 무정형 필름을 성형한 후 이축 연신기(Toyoseki, B-272101600)에서 이축 연신하여 제조하였다. 사용한 칩은 진공 건조기에서 170 °C, 24시간 동안 건조하였고, 필름 내 무기 실리카 입자의 함량이 0, 50, 500 ppm이 되도록 입자 칩과 순수 PET 칩을 혼합하였다. 제조된 무정형 쉬트를 유리 전이온도 이상에서 예열한 후, 가로와 세로 방향으로 각각 3.5배 연신 및 열처리(230 °C, 30초)하여 이축 배향된 필름을 제조하였다. 입자의 영향을 배제한 표면조도가 광투과도에 미치는 영향을 알아보기 위하여 입자를 함유하지 않은 무정형 PET 쉬트를 아미노에칭법을 사용하여 표면을 식각한 후 동일한 방법으로 연신 및 열처리하여 이축 배향된 PET 필름을 제조하였다. 아미노 에칭법에서는 무정형 PET 필름표면을 monoethylamine 20 wt% 수용액에 70 °C에서 접촉시켜 접촉 시간을 달리하여 표면 조도를 조절하였다.

코팅 필름제조: 코팅액을 Bar 코터(RDS사)를 사용하여 PET 필름표면에 코팅하였다. 필름표면에 코팅된 용액 중량이 6.86 g/m²이 되도록 코팅 두께를 조절하였고, 건조 후의 약 10~150 nm 코팅 두께를 얻기 위해 코팅액 농도를 증류수를 사용하여 희석하였다. 희석된 코팅액은 습윤제(0.1 wt%)와 함께 약 10분간 교반하였다. 코팅된 필름은 120 °C 열풍 오븐에서 30초간 건조하였다.

측정. 입사광의 파장에 따른 필름의 굴절률은 prism coupler (Metricon, 2010/M)를 이용하여 측정하였고, 완전 건조한 필름의 밀도는 CCl₄(밀도 1.6 g/cm³)와 n-heptane(밀도 0.69 g/cm³)로 제조한 밀도구배관을 이용하여 측정하였다. 이 때 순수 코팅액의 굴절률은 코팅액을 필름형태로 몰드를 사용하여 필름 캐스팅한 후 굴절률을 측정하였다. 코팅액의 표면장력은 표면장력 측정기(SITA Messtechnik GmbH, SITA pro line t15)를 사용하여 측정하였다. 이 때 bubble 발생 속도(bubble life time)에 따라 액체의 표면장력을 측정하는 bubble pressure tensiometer 방법을 사용하여 동적 표면장력과 정적 표면 장력을 함께 측정하였다. PET 필름의 광투과율과 표면 반사율은 UV-Vis spectrophotometer(Varian, Cary 5000)를 사용하여 측정하였다, 입사빔은 필름 표면에 대하여 입사광의 각도가 90도가 되도록 조절하여 200~800 nm 영역에서 측정하였다. 제조된 필름의 표면 사진과 표면조도는 각각 DIC(Leitz Wetzlar GmbH, ORTHOPLAN)와 3차원 표면조도계(WYKO, NT2000)를 이용하여 측정하였다.

Table 1. Specifications of Coating Resins and Wetting Agent

	Coating resin			Wetting agent
Maker	Rohm & Haas	Dai-Ichi KoGyo Seiyak	Goo Chemical	Dow Corning
Grade	P3208	Elastron H3	Z687	Q2-5211
Types	Polyacrylate	Polyurethane	Polyester	Modified PDMS
Solid content(%)	44	20	25	80

결과 및 토론

원료의 성질. Figure 1은 bubble 생성 속도에 따른 표면 장력을 나타낸 그림이다. 모든 그래프가 약 2초 후에 일정한 값으로 수렴하였다. 습윤제를 첨가하지 않은 필름의 수렴된 표면 장력은 폴리에스터계, 폴리우레탄계, 폴리아크릴계의 경우 각각 58, 55, 51 dyne/cm로 측정되었고, 습윤제를 첨가한 필름의 수렴된 표면 장력은 폴리에스터계, 폴리우레탄계, 폴리아크릴계의 경우 각각 28, 30, 22 dyne/cm로 측정되었다. 약 50 dyne/cm 이상의 표면 장력이 습윤제를 0.1 wt% 첨가함에 따라 상당 수준 낮아져 순수 PET 필름의 표면 장력인 36 dyne/cm보다 작아짐을 확인할 수 있었다.

Figure 2는 가시광 영역의 파장에 대한 굴절률의 변화를 나타낸 것이다. 파장이 길어짐에 따라 모든 필름의 굴절률이 작아지는 것을 확인할 수 있었다. 550 nm에서 폴리아크릴계, 폴리우레탄계, 폴리에스터계의 순수 코팅제의 굴절률과 순수 PET 필름의 굴절률이 각각 1.467, 1.54, 1.605, 1.64로 측정되었다. Table 2는 순수 PET 필름과 코팅제의 굴절률과 밀도를 나타낸 것이다. 코팅제의 밀도가 높아짐에 따라 필름의 굴절률이 높아지는 것을 확인할 수 있었다. 따라서 코팅액의 굴절률은 코팅액의 밀도와 밀접한 관계가 있음을 알 수가 있다.

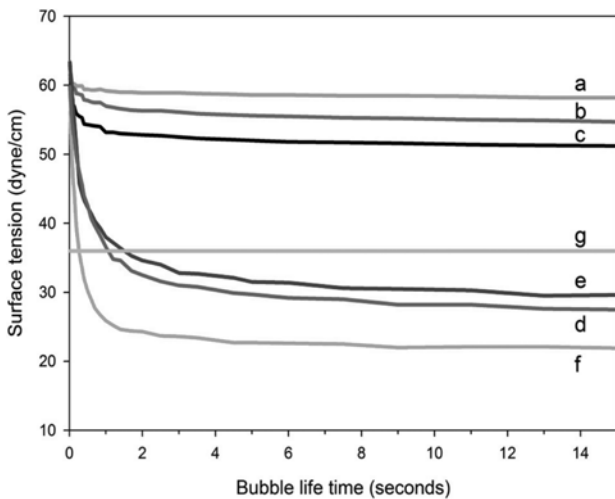


Figure 1. Surface tensions of (a, d) polyacrylate; (b, e) polyurethane; (c, f) polyester emulsions; (d, e, f) and (a, b, c) are with and without the wetting agent, respectively; (g) the surface tension of the pure PET film.

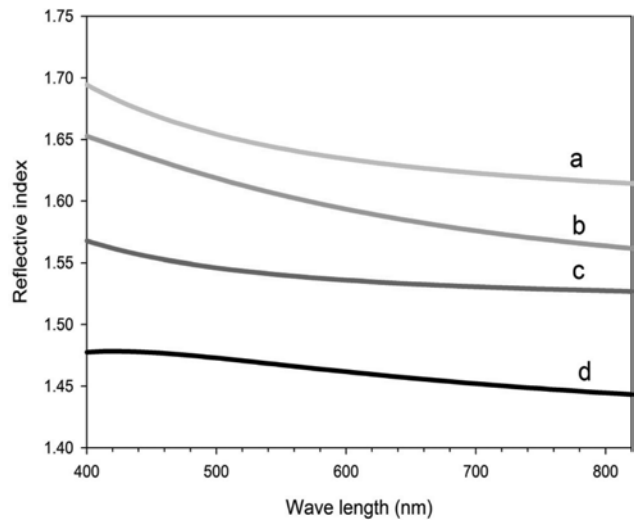


Figure 2. Refractive indices of (a) pure PET film and the coating layers of (b) polyester; (c) polyurethane; (d) polyacrylate.

굴절률의 영향. Figure 3은 서로 다른 굴절률을 가지는 두 층에서 빛의 반사과정을 나타낸 것이다. 이 때 코팅된 필름의 반사율(R)은 Fresnel의 광파동론에 의해 식 (1)과 같이 나타낼 수 있다. 식 (1)에서 $R, n_0, n_1, n_2, 2\delta$ 는 각각 반사율, 공기의 굴절률, 박막코팅층의 굴절률, 기재필름의 굴절률, 광경로차를 나타낸다.^{7,9} 투과율($1-R$)은 식 (1)에서와 같이 박막 코팅층의 굴절률(n_1)이 감소함에 따라 증가함을 알 수 있다.

$$R = 1 - \frac{1}{(n_0 + n_1)^2 (n_1 + n_2)^2 + 4n_0 n_1^2 n_2 + (n_0 - n_1)^2 \cos 2\delta} \quad (1)$$

최대 투과율을 가지는 필름 두께는 식 (1)에서 알 수가 있다. 식 (1)에서 두께와 관계되는 항은 식 (2)와 같이 표현되

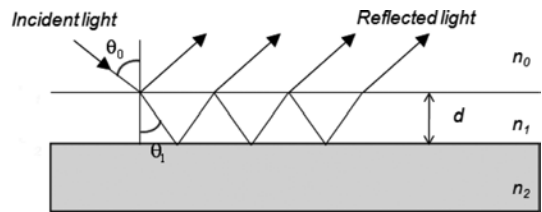


Figure 3. Light reflection between two layers with different refractive index; $R, n_0, n_1, n_2,$ and 2δ represent refractive indices of air, coating layer, and PET film, and phase difference of beam path, respectively.

Table 2. Densities and Reflective Indices of Pure PET Film and Coating Resins

Chemicals	Oriented poly(ethylene terephthalate)	Polyacrylate	Polyurethane	Polyester
Density	1.4	1.238	1.355	1.366
Refractive index(@550 nm)	1.64	1.467	1.54	1.605

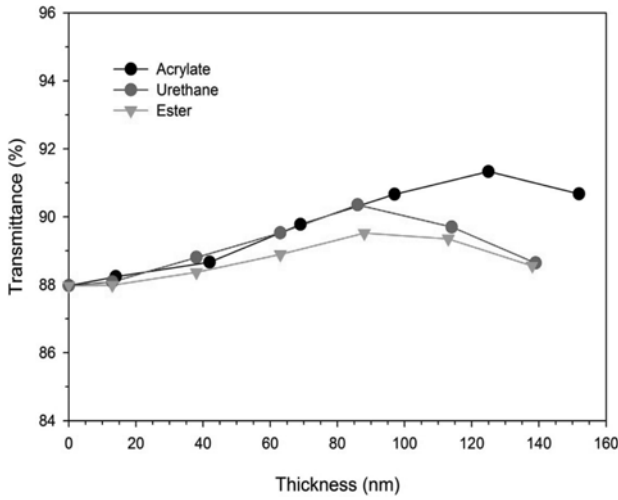


Figure 4. Transmittance of PET films coated with polyacrylate, polyurethane, and polyester as a function of coating thickness at 550 nm.

는 경로차(2δ)이다. 식 (2)에서 λ 및 d 는 각각 입사광의 파장 및 박막코팅층의 두께를 나타낸다. 식 (1)에서 반사율 R 이 최소(투과율이 최대)가 되기 위하여는 $\cos 2\delta = -1$, 즉 $2\delta = \pi$ 의 조건을 만족하여야 한다. 수직으로 입사된 광($\theta_1 = 0$)에 대해

서 투과율이 최대가 되는 두께는 식 (3)과 같이 나타낼 수 있다.¹⁰⁻¹²

$$2\delta_1 = \frac{4\pi}{\lambda} n_1 d \cos \theta_1 \quad (2)$$

$$d = \frac{\lambda}{4n_1 \cos \theta_1} \quad (3)$$

일반적으로 사람의 눈에 가장 잘 인지되는 파장인 $\lambda = 550$ nm에서 Table 1의 굴절률(n_1)을 기준으로 코팅면에 수직으로 조사할 때 광의 최대 투과율을 나타내는 코팅층의 두께를 계산하면 폴리아크릴계, 폴리우레탄계, 및 폴리에스터계에 대해서 각각 93.7, 89.3, 85.7 nm로 계산되었다. Figure 4는 550 nm의 파장에서 폴리아크릴계, 폴리우레탄계, 및 폴리에스터계에 대해서 투과율을 코팅두께별로 측정된 결과이다. 순수 PET 필름(thickness = 0 nm)의 광투과율은 일반적으로 알려진 바와 같이 88%이었으며, 코팅층에 대한 최대 광투과율은 폴리아크릴계, 폴리우레탄계, 폴리에스터계가 91.3, 90.3, 89.5%로 각각 측정되었다. 광투과율은 일정한 두께에서 최대값을 가짐을 알 수 있으며, 폴리아크릴계, 폴리우레탄계, 및 폴리에스터계에 대해서 각각 ~125, ~90, ~90 nm에서 최대 광투과율을 나타내었다. 이론적으로 계산한 값보다

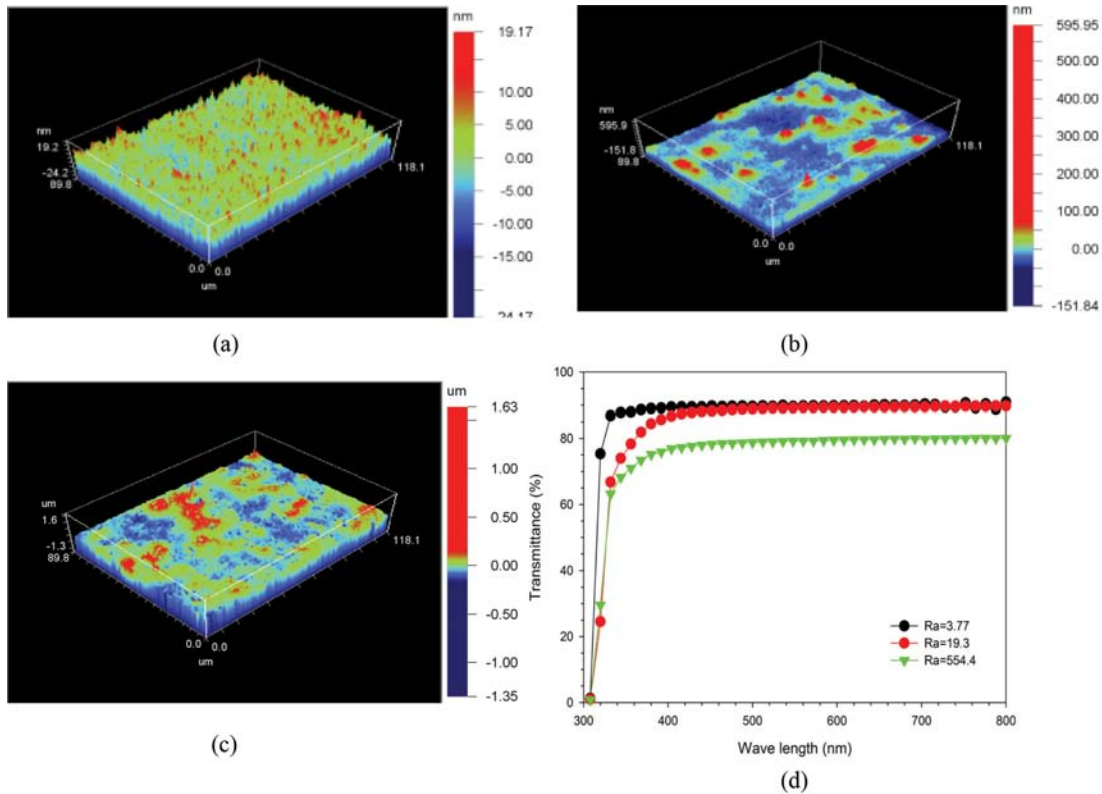


Figure 5. Surface images of PET films having Ra = (a) 3.7; (b) 19.3; (c) 544.3 nm; (d) their transmittances as a function of wavelength.

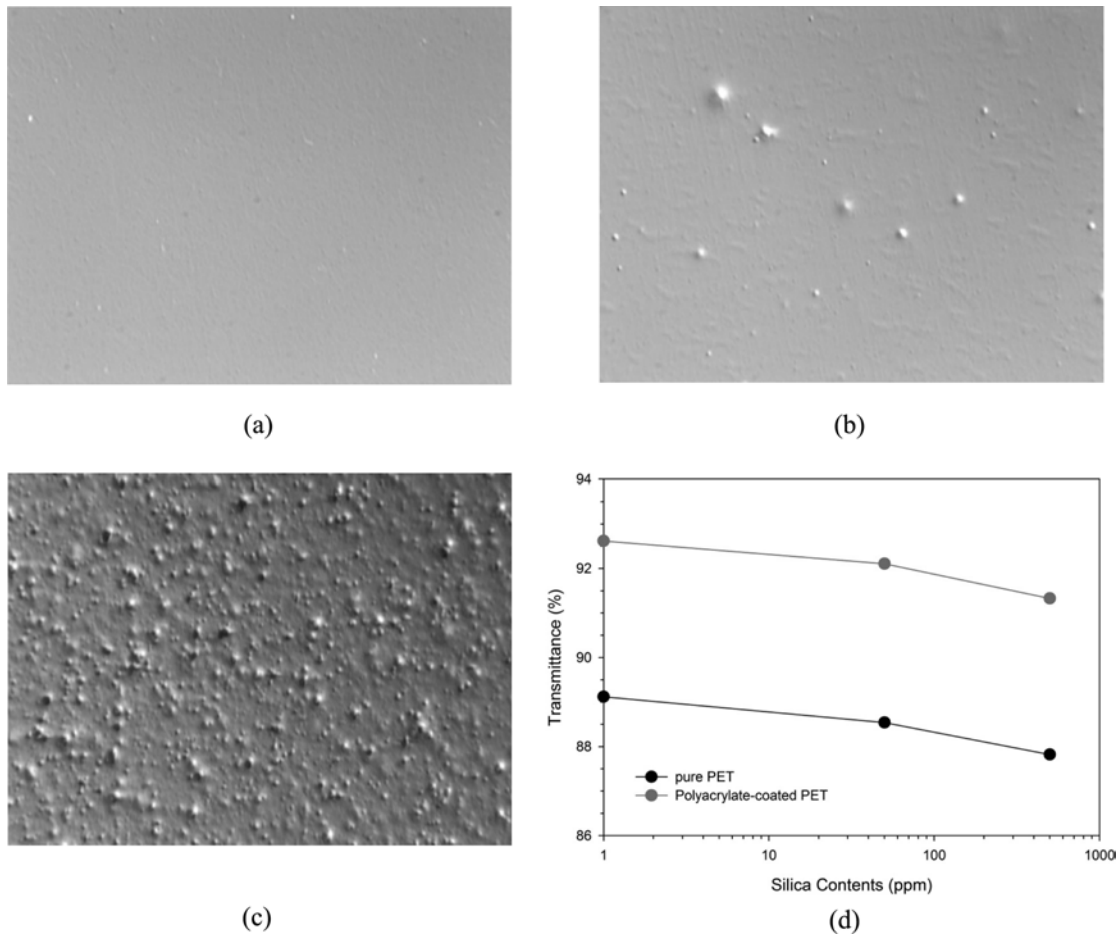


Figure 6. Surface images of PET films containing (a) 0; (b) 50; (c) 500 ppm silica particles; (d) transmittance of pure PET film and PET film coated with polyacrylate as a function of silica contents.

큰 값이 관찰되었으나 코팅 수지별 경향은 비슷하였다. 이는 코팅한 수지를 건조할 때 생기는 공극 등이 영향을 미친 것으로 생각된다.

표면조도의 영향. 필름의 표면조도가 광투과율에 미치는 영향을 알아보기 위하여 서로 다른 조도의 이축 배향된 필름을 사용하여 광투과율을 측정하였다. 무기입자에 의한 효과를 배제하기 위하여 무기입자가 포함되지 않은 무정형 PET 쉬트를 아미노 에칭을 실시한 후 연신 및 열처리하여 이축 배향된 PET 필름을 제조하였다. Figure 5는 표면조도 Ra가 3.77, 19.3, 544 nm인 경우의 표면 사진이다. 가시광선의 파장(400~800 nm) 범위의 빛이 산란되기 위해서는 Ra가 $\lambda/4$ (100 nm) 보다 클 때 발생한다고 알려져 있다. Figure 5(d)는 각 필름에 대해서 투과율을 측정된 결과이다. Ra가 100 nm 이하인 경우(a, b)는 90%의 투과율을 가졌으나 Ra가 544 nm인 경우(c)는 광투과율이 80% 대로 낮아짐을 알 수 있다. 따라서 매우 거친 표면을 가지는 필름은 표면 산란에 의한 광손실이 심각하게 발생하여 광투과도가 감소하는

것을 알 수 있었다.

무기입자의 영향. 연신된 PET 필름의 내부에 존재하는 무기입자는 필름의 표면조도를 증가시켜 Anti-Blocking성을 확보하여 필름을 롤 형태로 권취 시 용이하게 하지만 광학적 특성에서는 입사된 빛을 산란하거나 흡수하여 광투과도를 감소시킨다. Figure 6은 필름 내부 입자의 함량이 증가함에 따른 필름 표면 사진과 폴리아크릴게로 코팅한 PET 필름의 실리카 입자 양에 따른 광투과율을 나타낸 것이다. 입자의 양이 증가함에 따라 필름의 거칠기가 증가하고 광투과율은 감소하는 것을 알 수 있었다. Ra는 실리카 입자를 0, 50 및 500 ppm 첨가함에 따라 각각 3.77, 7.39, 19.05 nm로 측정되었다. 측정된 Ra는 가시광 파장(400~800 nm)의 1/4보다 작기 때문에 표면 산란 효과는 발생하지 않는 영역이었다. 따라서 실리카 입자 첨가에 의한 광투과율의 손실은 내부 입자에 의한 빛의 흡수 및 산란에 의해 발생하는 것임을 확인할 수 있었다. 하지만 광투과율은 500 ppm을 첨가했을 때 약 1%의 비교적 작은 감소를 나타내었다.

결 론

PET 필름의 코팅에 의한 굴절률 조절, 필름 표면조도, 필름 내부입자가 광투과율에 미치는 영향을 알아 보았다. 투과율을 높이기 위해서는 굴절률이 낮은 물질을 코팅하여야 하며, 최대의 광투과율을 가지는 코팅두께가 있음을 확인하였다. 표면 Ra를 입사파장의 1/4 이하로 조절한 경우 표면 산란이 발생하지 않아 광손실이 발생하지 않음을 확인하였다. 또한 필름 내 무기입자는 입사된 광의 흡수 및 산란을 발생시켜, 광손실이 증가하였다. 이상과 같은 결과들을 이용하여 FPD의 확산필름, 프리즘 필름, 프리즘 보호필름 등의 기관 소재로서 사용되는 PET 필름의 광투과율을 향상시켜 FPD의 휘도를 향상할 수 있었다.

감사의 글: 이 논문은 2012학년도 경북대학교 학술연구비 및 2012년도 정부(교육과학기술부)의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행된 연구임(No. 2011-0020264).

참 고 문 헌

1. T. Yamada, *Optimization and Troubleshooting of Processing and Stretching of Film*, Technical Information Institute, Tokyo, 2007.
2. K. Yuki, *Saturated Polyester Resin Handbook*, Nikkan Kokgyo Shinbun, Tokyo, 1989.
3. Y. Mitsuishi, *PET Film*, Technical Information Institute, Tokyo, 1990.
4. J. H. Kim, D. S. Lee, T. S. Park, J. A. Kim, and K. Y. Kim, *Polymer(Korea)*, **19**, 353 (1995).
5. S. S. Park, S. S. Lim, and D. G. Kim, *Polymer(Korea)*, **17**, 324 (1993).
6. S. S. Park, S. S. Lim, and D. G. Kim, *Polymer(Korea)*, **17**, 212 (1993).
7. S. Iwamori and K. Noda, *Mater. Lett.*, **66**, 349 (2012).
8. B. G. Kum, Y. C. Park, Y. J. Chang, J. Y. Jeon, and H. M. Jang, *Thin Solid Films*, **519**, 3778 (2011).
9. F. Ideo, *The Optical Films for Flat Panel Displays*, CMC Press, Tokyo, 2004.
10. R. Jurgens and M. Arendt, *Introduction to Classical and Modern Optics*, Prentice-Hall, New Jersey, 1995.
11. J. S. Yoon, *Basic Optics*, Dasung Press, Seoul, 2002.
12. E. Hecht, *Optics*, 4th edition, Addison Wesley Longman, Boston, 2002.