

혼합 하중하에서의 고분자/거친금속 계면의 파손경로

이호영 · 김성룡^{*†}

서울대학교 기계항공공학부
충주대학교 고분자공학과

Failure Paths of Polymer/Roughened Metal Interfaces under Mixed-Mode Loading

Ho-Young Lee and Sung-Ryong Kim^{*†}

School of Mechanical and Aerospace Engineering, Seoul National University, Seoul, 151-741 Korea
Department of Polymer Science and Engineering, Chunju National University, Chungju, 380-702 Korea

(2004년 1월 7일 받음, 2004년 5월 1일 최종수정본 받음)

Abstract Copper-based leadframe sheets were oxidized in two kinds of hot alkaline solutions to form brown-oxide or black-oxide layer on the surface. The oxide coated leadframe sheets were molded with epoxy molding compound (EMC). After post mold curing, the oxide-coated EMC-leadframe joints were machined to form sandwiched Brazil-nut (SBN) specimens. The SBN specimens were used to measure the fracture toughness of the EMC/leadframe interfaces under mixed-mode (mode I + mode II) loading conditions. Fracture surfaces were analyzed by various equipment to investigate failure path. The results revealed that the failure paths were strongly dependent on the oxide type. In case of brown oxide, hackle-type failure was observed and failure path lay near the EMC/CuO interface with a little inclining to CuO at all case. On the other hand, in case of black oxide, quite different failure path was observed with respect to the distance from the tip of pre-crack and phase angle. Different failures occurred with oxide type is presumed to be due to the difference in microstructure of the oxides.

Key words polymer/metal interface failure, fracture toughness, epoxy molding compound, copper oxide

1. 서 론

표면실장형(surface mounting type) 박형 플라스틱 패키지(thin plastic package)는 세라믹 패키지(ceramic package)에 비하여 제조비용이 저렴할 뿐 아니라 전자기기의 소형화, 경량화 요구를 수용할 수 있어 널리 사용되고 있다. 그러나 패키지를 인쇄회로기판(PCB: Printed Circuit Board)에 실장하기 위하여 솔더 리플로우(solder reflow)를 거치는 동안 종종 팝콘 크랙킹 현상(popcorn cracking phenomena)을 일으켜 문제가 된다.¹⁾ 팝콘 균열(popcorn crack)은 원인이 되는 초기 균열(pre-crack)이 형성되는 위치에 따라 크게 세 가지 형태(type)로 나눌 수 있다.²⁾ (Fig. 1). 다이패드(die pad)와 EMC 사이의 박리(delamination)에 의해서 초기 균열이 형성되고, 이렇게 형성된 초기 균열이 진전하여 팝콘 균열을 형성하는 type I과, 실리콘 칩(Si chip)과 다이패드를 접착시켜주는 다이접착제(die bond adhesive)와 다이패드와의 박리에 의해서 초기 균열이 형성되고, 이렇게 형성된 초기 균열이 진전하여 팝콘 균열을 형성하는 type II, 그리고 다이 패

드와 EMC사이의 박리에 의해서 초기 균열이 형성되고, 이렇게 형성된 초기 균열이 진전하여 팝콘 균열을 형성하는 type III가 그것이다.³⁾ 이 중에서 type I 팝콘 균열은 발생빈도가 비교적 높다고 알려져 있고, 리드프레임(die pad)과 EMC 사이의 접착력 증대가 type I 팝콘 균열의 발생을 억제하기 위한 하나의 해결책으로 간주되고 있다.⁴⁾

본 연구에서는 다이패드(die pad)로 사용되는 리드프레임과 EMC 사이의 접착불량에 기인하여 발생하는 type I 팝콘 크랙킹 현상의 발생 빈도를 줄이고자 EMC로 몰딩(molding)하기 전에 구리계 리드프레임의 표면에 갈색산화물(brown oxide) 및 흑색산화물(black oxide)을 형성시켰으며, 산화물의 형성이 접착력에 미치는 영향을 살펴보기 위하여 파괴 역학적 개념을 가지고 SBN (Sandwiched Brazil-Nut) 시편을 제작하여 리드프레임/EMC 계면의 접착력을 계면 파괴인성치(interfacial fracture toughness)로 측정하였다. 접착력 측정 후 여러 가지 분석장비를 이용하여 파면을 분석, 파손경로(failure path)를 규명하였다.

구리를 뜨거운 알칼리 용액에서 화학적으로 산화시키면 표면에 바늘 모양의 산화물 층이 형성되며, 이러한 산화물들은 고분자와 기계적으로 고착하여 접착하기 때문

^{*}E-Mail : srkim@chungju.ac.kr

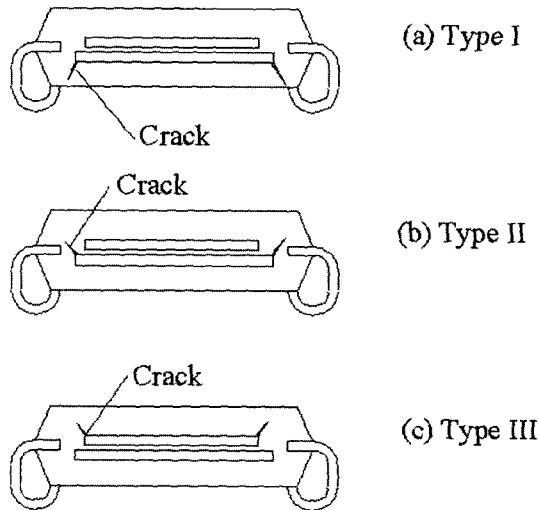


Fig. 1. Three types of popcorn cracks.

에 접착력이 증가하는 것으로 알려져 있다.⁵⁾

2. 실험 방법

구리재 리드프레임(상품명: EFTEC-64T, 조성: Cu-0.3Cr-0.25Sn-0.2Zn)을 표면세척하고 자연산화물(native oxide)층을 제거한 후 뜨거운 알칼리 용액에 담궈 표면에 갈색산화물 및 흑색산화물을 형성시켰다.⁶⁾ 표면에 산화물이 형성된 리드프레임은 압축성형시스템(compression molding system)을 이용하여 EMC로 몰딩한 후 기계적 가공을 통하여 SBN (Sandwiched Brazil-Nut) 시편을 제작하였다.⁷⁾ 이들 시편은 샌드위치 시편(sandwiched specimen)이라 불리는데, 그 이유는 벌크 EMC 사이에 얇은 리드프레임이 존재하여 마치 샌드위치 구조를 하고 있기 때문이다. 이때 리드프레임은 EMC에 비하여 상대적으로 매우 얇아야 하는데, 그 이유는 계면파괴역학적 관점에서 정의된 샌드위치 시편이 되려면 사이 층(본 연구에서는 리드프레임)이 바깥층(본 연구에서는 EMC)에 비하여 대략 100분의 1 이하로 매우 얇아야 한다.⁸⁾ 이럴 경우 중간층의 역할은 무시할 수 있기 때문에 샌드위치 시편은 마치 중간층은 없고 바깥층만으로 이루어져 있는 균질한 시편(homogeneous specimen)으로 해석이 가능하다.⁸⁾ 여기서 균질한 시편으로 해석이 가능하다는 의미는 시편 내에 존재하는 균열의 에너지방출률(energy release rate)과 외부하중(external loading)의 관계를 규정하는데 있어서 중간층의 존재는 무시되고 오로지 바깥층의 물성만을 고려하여 해석해도 문제가 없다는 의미이다. 본 연구에서 사용된 시편의 형상을 Fig. 2에 나타내었다. 초기 균열(pre-crack)은 사무용품의 하나인 수정테이프(correction tape)를 사용하여 형성하였다. 수정테이프는 두께가 얇고 접착력이 불량하기 때문에 원하는 모양의 초기균열을 형성시키기에 매우 유리하다.

계면파괴인성치(interfacial fracture toughness)는 시편이

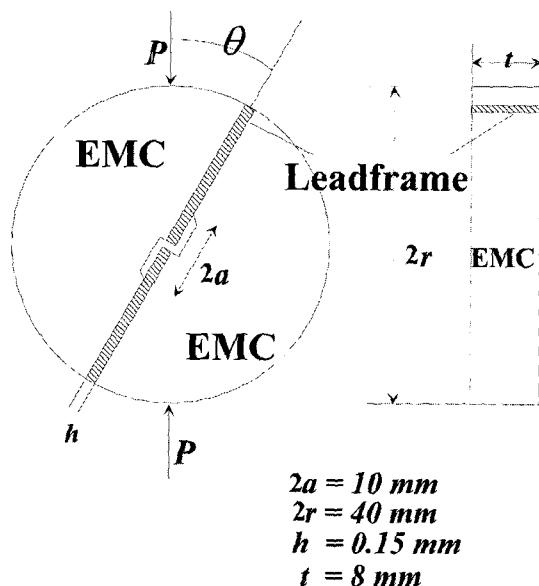


Fig. 2. Schematic diagram of SBN (Sandwiched Brazil-Nut) specimen.

파괴되기 직전까지 탄성변형거동을 한다고 가정할 경우 임계 에너지 방출률(critical energy release rate)과 같게 된다. 따라서, 시편에 대한 에너지 방출률 식에 하중-변위 곡선으로부터 얻은 임계하중(critical load) 값을 구하여 임계에너지 방출률을 구하면 계면파괴인성치를 구할 수 있다. 본 연구에서 사용된 시편들의 경우, 샌드위치 시편이기 때문에 리드프레임의 존재는 무시할 수 있고, 바깥층으로 사용된 EMC의 경우 열경화성 수지이기 때문에 취성(brittleness)이 강하여 파괴되기 직전까지 탄성변형거동을 보인다고 가정하였다.

일반적으로 계면 파괴 인성치는 위상각의 절대값이 증가함에 따라 증가하는데, 그 이유에 대해서는 균열선단에서 mode II 성분이 증가함에 따라 소성영역 및 균열면의 접촉영역이 증가하기 때문이라는 주장⁹⁾과 균열면의 거칠기 영향이 증가하여 균열면의 마찰력이 증가하기 때문이라는 주장¹⁰⁾이 있다. 아직까지 균열선단에서의 재료거동이 정확히 알려져 있지 않기 때문에 위상각에 따른 계면 파괴 인성치의 예측은 불가능하고, 오로지 실험에 의해서만 그 값을 알 수 있을 뿐이다.

계면파괴인성치 측정 후에는 SEM (Scanning Electron Microscopy, 모델: Hitachi S2380N), 소각(glancing-angle) XRD (X-Ray Diffractometry, 모델: Rigaku, D/max-rc (12 kW)), AES (Auger Electron Spectroscopy, 모델: SAM 4300)를 이용한 표면분석을 통하여 파손경로를 규명하였다. 정확한 정보를 얻기 위해서는 반드시 표면오염의 영향이 제거된 후에 AES 분석이 수행되어야 한다. 이를 위하여, 시편을 AES 분석 챔버에 잠입시킨 후 본격적인 AES 분석을 실시하기 바로 직전에 2분 동안 알곤(Ar) 스퍼터링으로 표면을 깨끗이 해 주었다. 알곤 스퍼터링 후 진공을 깨지 않고 곧바로 AES 분석을 수행함으로써 알곤 스퍼터링 후 다시 표면이 오염되지 않

도록 하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1 갈색산화물

갈색산화물이 입혀진 리드프레임/EMC 계면의 파괴인성치를 SBN 시편을 이용하여 위상각(phase angle)의 함수로 측정한 후, 표면분석을 통하여 파손경로를 규명하였다. 위상각에 따른 계면파괴인성치는 Fig. 3에 나타내었다.

3.1.1 SEM 분석

SBN 시험 후에 얻어진 파면들을 SEM으로 관찰하였다. SEM 사진은 네 개의 위상각($\Psi = -45^\circ, 29^\circ, 60^\circ, 84^\circ$)에 대하여 초기 균열(pre-crack)에서 가까운 곳(near crack-tip region)과 멀 곳(far crack-tip region)으로 구분되어 얻어졌으며, 저배율과 고배율로 관찰되었다. Figs. 4 ~7은 위상각 -45° 와 84° 에 대하여 초기 균열에서 멀 곳(far crack-tip region)에 대한 SEM 사진들이다. 위상각 및 초기 균열로부터의 거리에 관계없이 거의 비슷한 사진들이 얻어졌기 때문에 대표적인 사진만을 선정하여 나타내었다.

NCR (near crack-tip region)과 FCR (far crack-tip region) 모두에서 작고 미세하며 약간은 기울어져 있는 균열들(oblique micro-cracks)이 발견되었는데, 이들은 huckle이라고 불리운다.¹¹⁾ 전반적으로 NCR보다는 FCR에서 작지만 상대적으로 많은 수의 huckle들이 형성된 것을 알 수 있다. Hackle은 전단성분이 존재하는 조건에서 파손이 일어날 경우 형성되는 것으로 알려져 있다.¹²⁾ Hackle들이 초기 균열선단과 거의 평행하게 어떤 걸을 이루고 있다는 것을 SEM 사진들로부터 알 수 있다. Hackle들이 형성되는 이유는 CuO 결정이 바늘 모양을 하고 있고, 또한 압축성형(compression molding)의 결과로 인하여 EMC 내에는 펄연적으로 많은 수의 작은 기포(void)

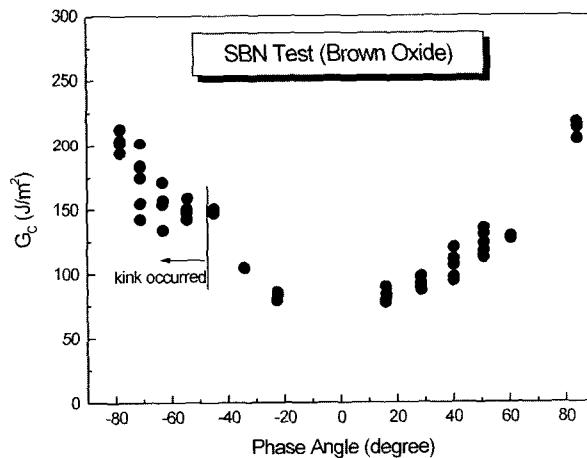
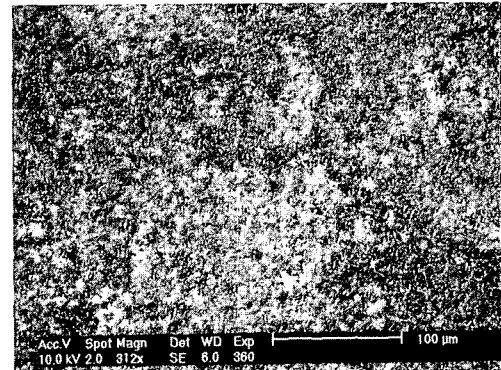
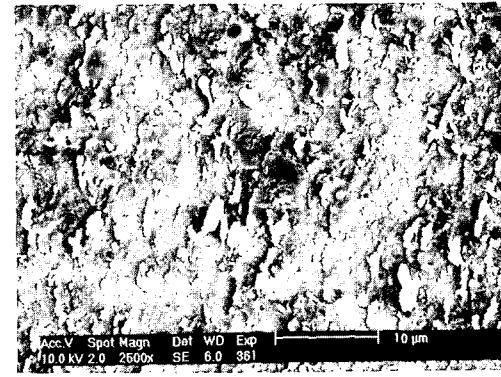


Fig. 3. Fracture toughness of brown-oxide-coated copper-based leadframe/EMC interface measured by using SBN (Sandwiched Brazil-Nut) specimens.

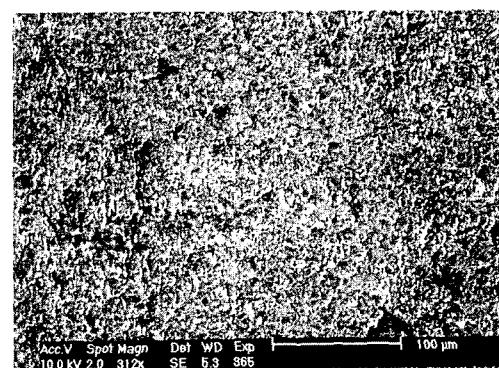


(a)

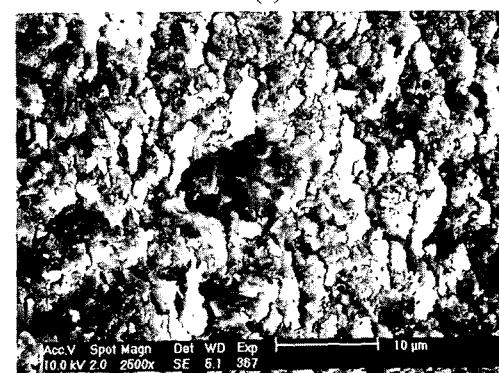


(b)

Fig. 4. Far crack-tip region of the leadframe side of which phase angle is 84° . (a) low-magnification, and (b) high-magnification.

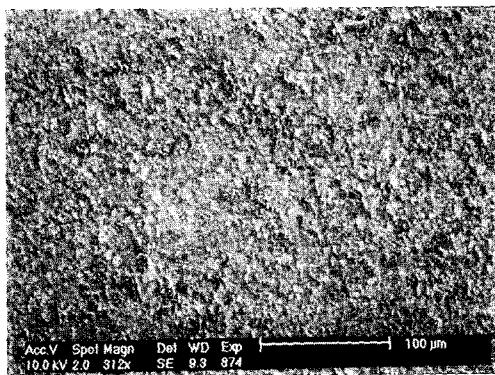


(a)

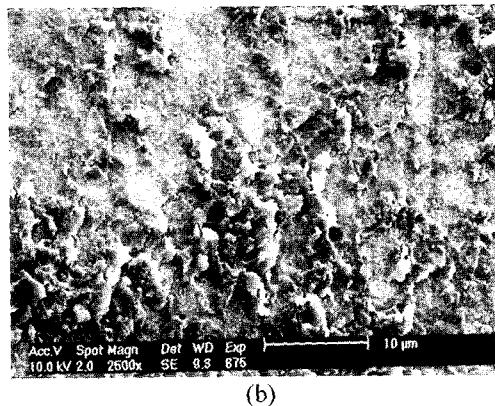


(b)

Fig. 5. Far crack-tip region of the EMC side of which phase angle is 84° . (a) low-magnification, and (b) high-magnification.

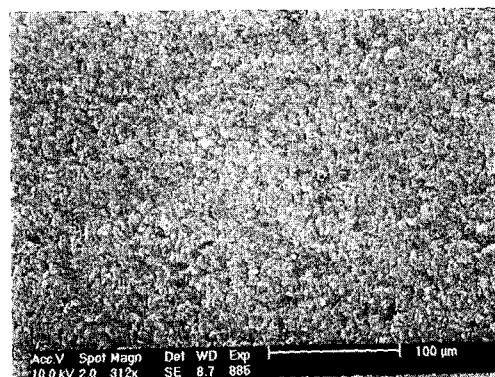


(a)

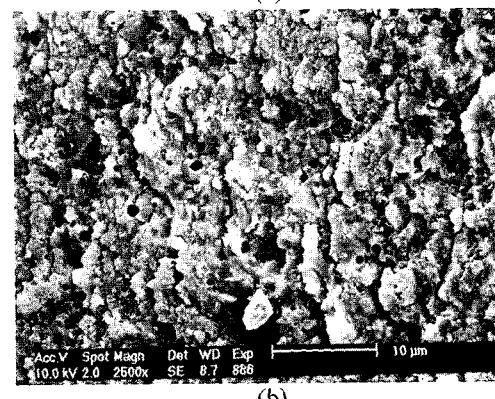


(b)

Fig. 6. Far crack-tip region of the leadframe side of which phase angle is -45° . (a) low-magnification, and (b) high-magnification.

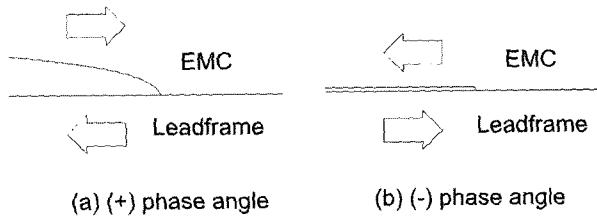


(a)



(b)

Fig. 7. Far crack-tip region of the EMC side of which phase angle is -45° . (a) low-magnification, and (c) high-magnification.



(a) (+) phase angle

(b) (-) phase angle

Fig. 8. Sign convention of the phase angle.

들이 존재하여 EMC/CuO계면에는 근본적으로 많은 수의 흠집(flaw)이 있게 되는데, 이러한 흠집들 하나하나가 계면파괴가 일어날 때 각각의 초기 가지균열(pre-branch-crack)의 역할을 하기 때문으로 생각된다.¹³⁾

위상각과 초기 균열로부터의 거리에 관계없이 전반적으로 비슷한 파면을 보였다. 물론 $\Psi = -45^\circ$ 의 경우에는 위상각의 부호가 음(-)이기 때문에 위상각의 부호가 양(+)인 다른 시편들과는 달리 hickle들이 반대 방향으로 결을 이루고 있다는 것을 알 수 있다. 참고로, Fig. 8에 보인 방식과 같이 위상각의 부호를 정했기 때문에 계면 균열은 양의 위상각에서는 리드프레임 내부로 칭크(kink)되어 진행하려는 경향을 가지게 되며, 반대로 음의 위상각에서는 EMC 칭크되어 진행하려는 경향을 가지게 된다. 이러한 계면균열의 진행 경향은 곧바로 hickle들이 이루고 있는 결의 방향에 반영되어 나타나게 된다. Figs. 4~7에 나타낸 SEM 사진 모두에서 초기 균열은 사진의 원편에 y-축과 평행하게 존재한다. 그렇기 때문에, SEM 사진상에서, 리드프레임쪽 파면에서와 EMC쪽 파면에서 hickle들이 결을 이루고 있는 방향이 서로 반대일 수밖에 없다.

3.1.2 XRD 분석

SBN 실험 후에 리드프레임쪽 파면과 EMC쪽 파면의 NCR과 FCR에 대하여 소각 X-ray 회절분석(XRD)을 하였고, 그 결과를 Fig. 9에 나타내었다. Fig. 9에서 알 수 있듯이 리드프레임쪽과 EMC쪽 모두에서 위상각에 따라 거의 변화가 없으며, 초기 균열로부터의 거리에 따라서도 거의 변화가 없다는 것을 알 수 있다. 구리산화물에 관련된 X-ray 피크(peak)는 리드프레임쪽에서만 발견되었고 EMC쪽에서는 발견되지 않았는데, 이는 접착하기 전에 원래 리드프레임쪽에 있던 구리산화물들이 EMC쪽으로 이동하지 않았다는 것을 의미하며, 따라서 EMC/CuO/리드프레임 구조에서 파손은 EMC/CuO 계면 근처에서 일어났다는 것으로 해석될 수 있다.

3.1.3 AES 분석

좀 더 정확한 정보를 얻기 위하여 리드프레임쪽 파면 하나를 선택하여 AES (Auger Electron Spectroscopy) 분석을 하였다. Fig. 10에 나타낸 분석 결과에 의하면 표면에는 탄소(C)와 산소(O) 그리고 구리(Cu)가 함께 검출되었다. 표면오염의 영향을 제거한 후에도 탄소가 검출되었다는 것은 EMC내의 에폭시(epoxy)가 리드프레임 표면에 잔존한다고 해석될 수 있다. 산소의 검출로 부터는

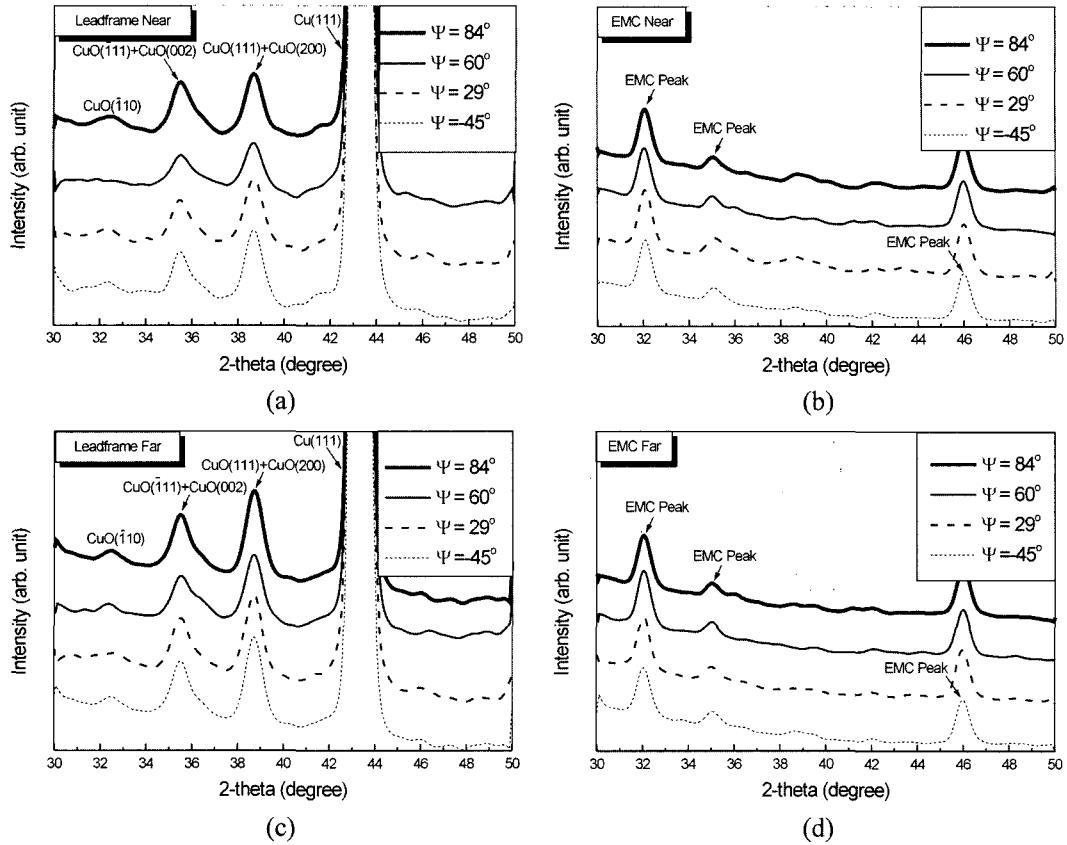


Fig. 9. Glancing-angle XRD out of the fracture surfaces of the SBN tested specimen (brown oxide). (a) leadframe near, (b) EMC near, (c) leadframe far, and (d) EMC far.

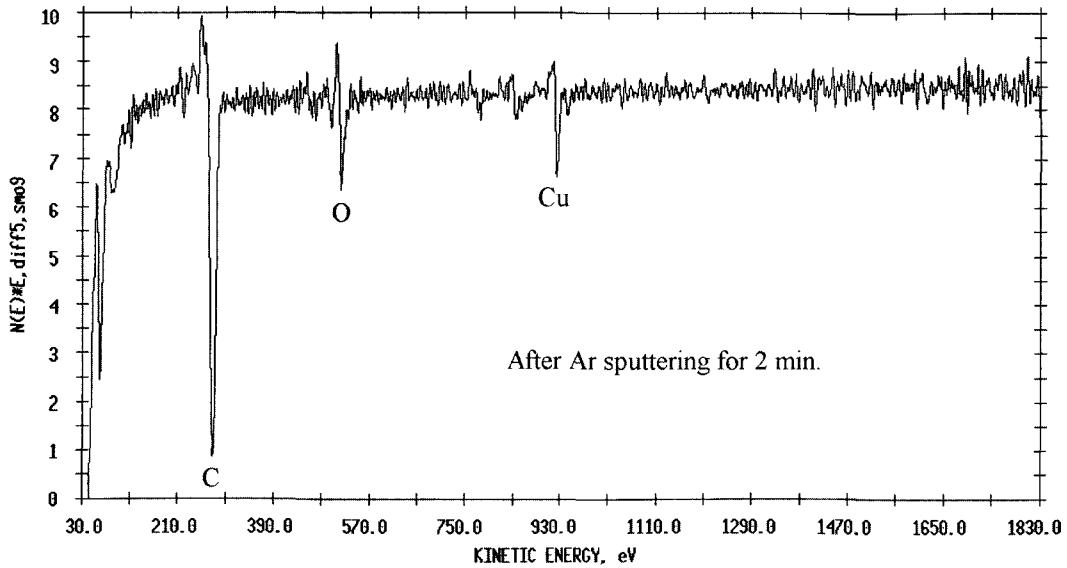


Fig. 10. Auger spectra of a leadframe side after SBN test (brown oxide).

특별히 얻을 정보가 없는데, 그 이유는 에폭시와 구리산화물(CuO) 모두에 산소가 함유되어 있기 때문에 검출된 산소가 에폭시 함유되어 있는 산소일 수도 있고 구리산화물에 함유되어 있는 산소일 수도 있기 때문이다. 반면 구리의 검출은 큰 의미를 갖는다. 에폭시가 잔존하는 리

드프레임 파면에서 검출된 구리는 산화물의 구조와 파면의 미세구조를 근거로 CuO에 함유되어 있는 구리로 단정지어도 큰 무리는 없어 보인다. 만일 리드프레임 파면에서 검출된 구리가 CuO에 함유된 구리가 맞는다면, 3.1.2 절에서 XRD 분석결과를 근거로 파손경로가 EMC/

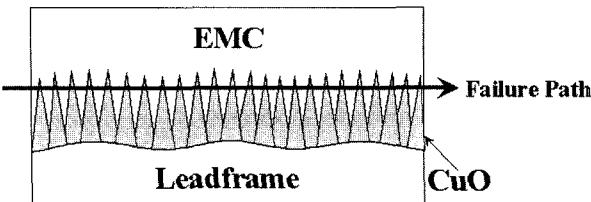


Fig. 11. Schematic illustration of failure path of the SBN-tested specimens (brown oxide).

CuO 계면 근처 어디엔가 있다고 내린 잡정적인 결론을 좀더 확실히 해 준다. 즉, 파손경로가 CuO쪽으로 약간 치우친 EMC/CuO 계면이라고 좀더 확실히 말할 수 있다. SEM, XRD, AES 분석을 통하여 얻은 정보만으로도 파손경로를 어느 정도 정확히 파악할 수 있었기 때문에 더 이상의 표면 분석은 실시하지 아니하였다. SBN 시편의 파손경로를 Fig. 11에 나타내었다.

3.2 흑색산화물

흑색산화물이 입혀진 EMC/리드프레임 계면의 파괴인성을 SBN 시편을 이용하여 위상각(phase angle)의 함수로 측정한 후, 표면분석을 통하여 파손경로를 규명하였다.¹⁴⁾

흑색산화물 파손은 갈색산화물에 비하여 복잡한 경향을 보였다. 즉, 위상각에 따라 다른 파면이 관찰되었으며, 같은 시편 내에서도 균열에서 가까운 부분(NCR)과 균열에서 먼 부분(FCR)의 파괴양상이 확인히 달랐다. 이는 SBN 시험의 특성상 동적 파괴 효과(dynamic fracture effect)를 유발하기 때문인 것으로 생각된다.

리드프레임쪽과 EMC쪽 파면 모두에 밝은 지역과 어두운 지역이 관찰되었다. 밝은 지역은 초기 균열에서 가까운 곳에 집중적으로 존재하였고, 위상각이 감소하면서 점차 감소하다가 위상각이 음의 부호로 바뀌면서 완전히 소멸되었다. SEM, EDS, AES 및 XRD 결과를 종합해 볼 때, 밝은 지역은 Cu₂O 내부에서 파손가 일어난 곳으로 생각되며, 어두운 지역은 EMC/CuO 계면 부근에서 파손이 일어난 곳으로 생각된다. 위상각에 따라 밝은 부분의 면적분율이 변하는 이유는, 위상각이 변하면서 mode II 성분의 크기가 변하기 때문으로 생각된다. 즉, 위상각이 감소함에 따라 mode II 성분이 감소하면서 균열이 리드프레임쪽으로 칭크되려는 경향이 감소하고, 이에 따라 밝은 부분의 면적분율도 감소하는 것으로 생각된다.

4. 결 론

갈색산화물과 흑색산화물이 입혀진 EMC/리드프레임 계

면의 파괴인성치(interfacial fracture toughness)를 SBN (Sandwiched Brazil-Nut) 시편을 이용하여 혼합모드 (mixed mode: mode I + mode II) 하중 조건에서 측정하였고, 파면을 분석하여 파손경로를 규명한 결과 다음과 같은 결론을 얻었다.

1. 갈색산화물의 경우, 파면에는 위상각 및 초기 균열의 선단으로부터의 거리에 관계없이 무수히 많은 hackle들이 관찰되었으며, 이로부터 깃털형 파손(hackle type failure)이 일어났다는 것을 알 수 있었다.
2. SEM, 소각 XRD 및 AES 분석결과를 근거로 갈색산화물의 파손경로는 CuO쪽으로 약간 치우친 EMC/CuO 계면으로 추정된다.
3. 흑색산화물의 경우에는 초기균열의 선단(tip)으로부터의 거리 및 위상각에 따라 상이한 파손이 일어났음이 확인되었는데, 이는 동적 파괴 효과(dynamic fracture effect)에 기인하는 것으로 생각된다.
4. 갈색산화물과 흑색산화물이 확연히 구별되는 파괴경로를 보인 이유는 산화물의 미세구조 차이 때문으로 생각된다.

감사의 글

이 논문의 일부는 2003학년도 충주대학교 학술연구조성비에 의하여 연구되었으며 이에 감사드립니다.

참 고 문 헌

1. A. A. Gallo and R. Munamarty, IEEE Trans. Reliab., **44**(3), 362 (1995).
2. H. Lee and Y. Y. Earmme, IEEE CPMT, **19**(2), 168 (1996).
3. S. Omi, K. Fujita, T. Tsuda and T. Maeda, IEEE CHMT, **14**(4), 818 (1991).
4. H. Y. Lee, Mater. Eng. A, **311**(1-2), 217 (2001).
5. C. Kembell, Adhesion, D. D. Eley, p.19, Oxford University Press, London, (1961).
6. B. J. Love and P. F. Packham, J. Adhesion, 40, 139 (1993).
7. H. Y. Lee and Y. Jin, Kor. J. Mater. Res., **9**(10), 992 (1999).
8. Z. Suo and J. W. Hutchinson, Eng. A, **107**, 135 (1989).
9. V. Tvergaard and J. W. Hutchinson, J. Mech. Phys. Solids, **41**, 1119 (1993).
10. A. G. Evans and J. W. Hutchinson, Acta Metall., **37**, 909 (1989).
11. D. Stevanovic, S. Kalyanasundaram, A. Lowe and P.-Y. B. Jar, Compo. Sci. Tech., **63**(13), 1949 (2003).
12. F. Roudet, Y. Desplanques and S. Degallaix, Int. J. Fatigue, **24**(2-4), 327 (2002).
13. M.-Y. He, A. Bartlett and A. G. Evans, J. Am. Ceram. Soc., **74**, 767 (1991).
14. H. Y. Lee and Y. Jin, Kor. J. Mater. Res., **10**(8), 551 (2000).