

논문

# 냉각주형식 연속주조장치에 의한 일방향응고 Cu 선재의 제조

조훈\*<sup>†</sup> · 조인성\*\*

\*한국생산기술연구원 신소재본부 나노소재팀

\*\*한국생산기술연구원 인천기술지원본부 사이버설계지원센터

## Unidirectionally Solidified Cu Rod Fabrication Using Continuous Casting Apparatus with Cooled Mold

Hoon Cho\*<sup>†</sup> and In-Sung Cho\*\*

\*Adv. Mater. Div., Korea Institute of Industrial Technology, Incheon, 406-840, Korea

\*\*Center for e-Design, Korea Institute of Industrial Technology, Incheon, 406-840, Korea

### Abstract

In order to manufacture copper ultra fine wire used for bonding wire in integrated circuit package, continuous casting process, which can produce high purity copper rod with small cross section, and wiredrawing process have to be optimized to prevent wire brakeage during entire manufacturing process of fine wire. The optimum condition for producing copper rod with mirror surface has to be established by investigation of the effects of several parameters such as withdrawal speed, superheat and rod diameter on grain morphology of the cast rod and on its drawing characteristics to fine wire. The purpose of this study is to propose the optimized process parameters in continuous casting process in order to produce cast rod without internal defects, and to predict microstructure orientation suitable for wire drawing process.

**Key words:** Cu rod, Continuous casting, Simulation, Cooled mold, Wire, Microstructure.

(Received September 17, 2009 ; Accepted October 1, 2009)

### 1. 서 론

전자기기 등의 집적회로에 이용되고 있는 bonding wire는 단선이 거의 없는 상태에서 초극세선으로 가공되어야 하고 고 급화, 소형화된 부품의 특성을 맞추어야 하는 특징을 갖는다. 현재까지 이와 같은 요구특성을 만족시키기 위하여 대부분의 bonding wire용 소재로 Au가 사용되어 오고 있었으나 Au bonding wire는 집적회로가 사용 온도 온도를 넘어 장시간 사용되는 경우 pad와의 접합부에서 금속간화합물이 생성되고 이로 인해 접합부의 박리가 일어나거나 전기저항이 급격히 증가 하는 등의 문제점들이 지적되고 있다[1-3]. 최근에는 bonding wire 소재를 Au에서 Cu로 대체하기 위한 연구가 진행 중인데, 이는 Cu가 Al pad 원자와의 원자반경 차이가 10%이상으로 Au에 비하여 크고 전기음성도의 차이가 작으므로 bonding wire 접합부에서의 고용 및 확산에 의하여 금속간화합물을 형성하지 않을 뿐만 아니라 Au에 비해 전기적인 특성이 우수하며 소재의 안정적인 수급 및 가격 면에서 매우 유리하다는 장 점을 갖고 있기 때문이다[4-8].

그러나 초극세선 신선공정의 원소재인 Cu 선재를 제조하기 위하여 적용되는 연속주조공정은 응고과정중에 발생하는 열응력

에 의하여 소재내부에 인장응력이 유발되어 균열이 발생하거나 주조시 기체반응에 의해 형성된 micro-porosity나, 중심부의 수 축공계, 비정상적인 응고조직, 비금속 개재물, 용탕온도 및 응 고속도등에 의해 선재 내·외부에 필연적으로 결함이 발생하게 되고 또한 주형벽면에서 핵생성한 결정으로부터 주형벽면에 수 직한 방향으로 결정이 성장하게 되어 연속주조방향에 수직으로 성장한 주상적 혹은 등축정 조직을 갖는 등 치명적인 문제점 을 나타내게 된다[9]. 선재에 존재하는 결함과 미세조직의 이방 성에 의해 신선가공중에 단선이 자주 발생하게 되어 원하는 직경의 초극세선을 제조하기도 힘들며 생산성이 매우 낮아지는 결과를 초래하여 bonding wire로의 적용에 많은 문제가 발생 하고 있는 실정이다[10].

더욱이 직경 25  $\mu\text{m}$ 이하의 초극세선으로 신선가공되기 위해 서는 결함이 억제되면서 결정의 성장방향이 신선방향과 평행하 게 제어된 선재를 연속주조할 수 있는 최적의 연속주조공정변 수의 도출이 선행되어야 하는데 선재의 내부결함을 제거하고 신선가공에 적합한 일방향응고 및 단결정 선재조직을 얻기 위 하여 주형을 용탕온도보다 높게 가열시켜 선재를 연속적으로 제조하는 가열주형식 연속주조법이 일부 사용되고 있으나 용탕 및 주형의 온도 제어 그리고 주조속도 및 냉각속도에 대한 정

<sup>†</sup>E-mail : hoony67@kitech.re.kr

밀한 제어가 필요하다는 문제점이 있다. 또한 대부분의 bonding wire 제조사들이 냉각주형식 연속주조장치를 이용하여 선재를 제조하고 있으므로 별도의 가열주형식 연속주조법을 적용하는 것은 추가적인 투자비를 필요로 하는 문제점이 있다.

본 연구에서는 냉각주형식 연속주조장치를 대상으로 연속주조 공정시 인출속도 변화에 따른 주형내 응고선단의 위치를 예측하고 제어함으로써 신선가공성이 우수한 일방향응고조직을 갖는 초극세선 선재를 제조하는 것을 목표로 하였다.

## 2. 실험 방법

### 2.1 연속주조 실험

본 연구에서는 수직식 연속주조장치를 이용하여 5N이상의 고순도 Cu를 도가니에 장입하여 용해시킨 후 하주방식에 의해 용탕이 주형하단부의 냉각장치를 통과하면서 응고되어 인출되도록 하였다.

내부에 냉각수 순환을 위한 channel이 설치된 냉각장치는 주형에 부착되어 있으며, 주형하단부에는 질소분사노즐을 설치하여 주형에서 인출된 선재의 표면산화를 방지하였다. 도가니 및 주형은 Ash 함량이 20ppm이하인 고순도 흑연을 사용하였으며 Cu를 기준으로 1회에 5 Kg을 용해할 수 있는 용량으로 제작하였다. Alumina 피복관에 삽입된 R-type의 열전대를 용탕에 침지하여 용탕온도를 측정하였으며 PID 제어에 의한 온도조절장치를 이용하여 용탕의 온도를 연속주조 과정동안 일정하게 유지되도록 하였다.

이 장치에 의해 10<sup>-4</sup>torr의 진공중에서 고순도(5N) Cu를 흑연도가니에서 용해한 후, 고순도 Ar 가스를 진공챔버내로 주입하여 1기압 하에서 연속주조를 행하였다. 연속주조 선재와 동일한 직경을 갖는 고순도 Cu starting bar를 주형하단부에 삽입하고 DC 모터에 의해 구동되는 인출기에 의해 수직으로 인출하면서 연속주조를 행하였다. 선재의 직경을 9 mm, 용탕온도를 1200°C로 일정하게 하면서 인출속도는 30, 50, 80, 100 mm/min으로 변화시키며 연속주조를 행하였다.

연속주조된 선재를 연속주조방향에 평행인 면(longitudinal-section)으로 절단한 후 미세연마를 행하고 30% HNO<sub>3</sub>용액으로 부식한 후 Nikon Ltd.의 SMZ-800 현미경을 이용하여 응고조직을 관찰하였으며 Oxford Instruments Ltd.의 EBSD장비를 이용하여 성장된 결정의 방위와 미세변위 분포를 측정하였다. EBSD 분석을 위한 시편준비는 longitudinal-section으로 절단된 시편을 가로 세로 5 mm, 두께 2 mm 절단한 후 시편 연마시에 발생하는 시편 표면에서의 변형을 최소화하기 위하여 H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub>와 증류수를 혼합한 용액을 이용하여 3.5 V, 10 mA의 조건으로 30초간 전해연마를 행하였으며 이때 cathode는 Cu를 이용하였다.

### 2.2 연속주조공정의 수치해석

연속주조공정의 최적화는 공정변수의 변화에 따른 주형내 응고선단의 위치 및 형상 그리고 주형내의 온도분포를 제어하는 것으로 가능하지만 연속주조 공정변수의 변화에 따른 응고과정 중의 열전달 및 유동의 복합적인 현상은 복잡한 상호작용을

통하여 선재의 건전성에 영향을 미치므로 실험적으로 각각의 공정변수를 이해하고 공정을 제어하기에는 많은 제약이 따른다. 따라서 본 연구에서는 소경봉 연속주조공정을 대상으로 수치해석을 수행하여 연속주조시의 열전달을 해석하고 응고현상을 이해함으로써 공정변수의 변화와 고액계면 진행 방향과의 관련성을 조사하였다.

연속주조에 사용되는 주형의 끝단으로부터 15 mm 간격으로 K-type의 열전대를 삽입하여 연속주조시 주형내의 온도분포를 측정하여 수치해석시 주형의 초기온도 선정 및 선재/주형간의 열전달계수 보정의 자료로 이용하였다. starting bar에 열전대를 삽입하여 용탕의 온도를 측정하였고 starting bar와 주형과의 상대적인 위치변화에 따른 선재의 온도변화를 측정하여 주형내에서의 응고선단(고/액 계면)의 위치를 정량적으로 산정하여 이를 수치해석에 의해 얻어진 응고선단의 위치와 비교함으로써 주형과 선재와의 열전달계수 등을 검증하였다.

연속주조공정의 수치해석에 사용된 Cu의 열물성치를 Table 1에 나타내었다. 밀도, 비열, 열전도도 및 점도는 각각 Cu가 액상인 경우와 고상인 경우 달리하여 해석을 수행하였으며 특히 비열 및 열전도도는 온도에 의존하는 물성치임을 고려하여 해석을 수행하였다.

주형과 냉각장치 계면에서의 열전달계수는 1.254 × 10<sup>-4</sup> W/m<sup>2</sup>K를 사용하였으며[11] 특히, 주형/선재계면에서의 열전달계수는 주형내의 온도측정결과를 이용하여 주형내를 이동하는 선재의 위치에 따라 열전달계수를 달리하여 해석에 사용하였다.

## 3. 실험 결과 및 고찰

냉각주형식 연속주조장치를 이용하여 균열, 기공, 중심부의 수축공 등의 결함이 극력 억제된 건전한 선재를 제조하기 위해서는 선재에서 주형으로의 열방출을 균일하게 유지해주어야 한다. 선재에서 주형으로의 균일한 열방출을 유도하기 위한 연속주조 공정조건 최적화는 선재의 직경, 연속주조온도 그리고 인출속도 변화에 따른 주형의 온도분포 및 응고선단의 위치를 파악하여야 할 필요가 있다[9].

Fig. 1에는 주형에 삽입된 열전대를 통하여 측정된 주형내의

Table 1. Thermo-physical properties of Cu used in this study

	state	Unit	value	Remarks
Density	Liquid	Kg/m <sup>3</sup>	8000	
	Solid		8320	
Specific Heat	Liquid	J/gK	0.495	
	Solid		0.470	○
Thermal conductivity	Liquid	W/mK	731	○
	Solid		331	○
Viscosity		PaS	4.54 × 10 <sup>-3</sup>	○
Thermal expansion		1/K	1.9 × 10 <sup>-4</sup>	
Latent Heat		J/Kg	2.04 × 10 <sup>5</sup>	
Heat transfer coefficient	mold/wire	W/m <sup>2</sup> K	2500-3000	
	mold/jacket		1.254 × 10 <sup>-4</sup>	

※ Remarks ○ : Value depends on temperature

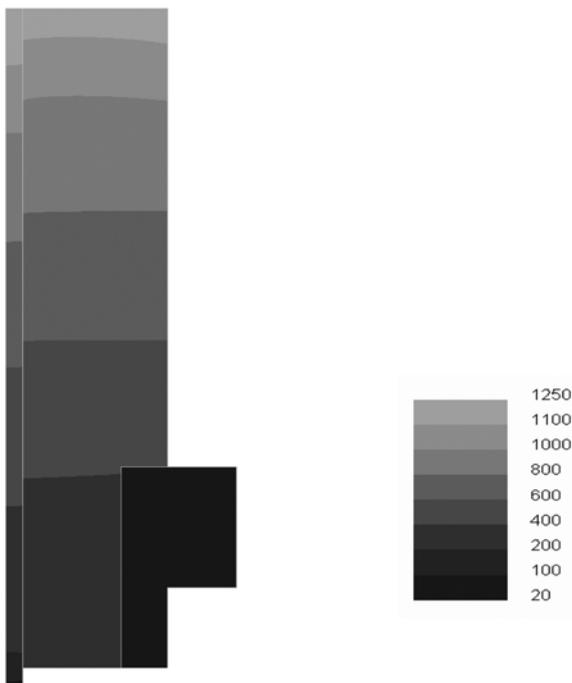


Fig. 1. Calculated temperature profile of mold at the initial stage.

온도분포 결과를 나타내고 있다. 주형내로 일정한 과열도를 지닌 용융금속이 유입되기 전에 이미 주형의 상부는 용탕에 의해 가열되고 하부는 냉각장치에 의해 냉각되므로 Fig. 1에서 보는 바와 같은 주형내 각지점에서의 온도차이가 발생한다. 따라서 대부분의 연구자가 수행했던 연속주조공정의 수치해석에서처럼 주형의 온도를 하나로 가정하고 해석하는 것은 바람직하지 않음을 알 수 있었다.

연속주조 온도 1200°C. 선재의 직경이 9 mm인 경우에 대하여 연속주조속도를 30, 50, 80 및 100 mm/min으로 변화시키면서 응고선단의 위치 및 응고선단의 형상의 해석결과를 Fig. 2에 나타내었다. 일반적으로 연속주조시 응고선단의 위치 및 형상은 선재의 응고조직을 좌우하는 요인 중의 하나이며 주조속도가 증가할수록 응고선단 형성지점은 용탕으로부터 멀어짐을 알 수 있다. 또한 냉각주형식 연속주조법에 의해 연속주조를 행하는 경우에는 주형 상부는 용탕에 의해 가열되고 주형하부는 냉각장치에 의해 냉각되는 특징을 가지므로 주형내에서는 온도구배가 발생한다. 연속주조속도가 30 mm/min인 경우, 응고선단이 형성되는 위치는 용탕으로부터 26 mm 떨어진 지점에서 형성됨을 알 수 있었는데 응고선단이 위치하는 지점에서의 주형의 온도는 starting bar의 온도보다 고온이고 열전도도가 우수한 고순도 Cu를 Starting bar로 사용하였기 때문에 선재/주형 계면에서의 열전달보다 선재/starting bar에서의 열유속이 월등히 클것으로 예상된다. 따라서 응고시에 방출되는 대부분의 열은 Starting bar를 통해 방출될 가능성이 더욱 높게 되고 열 방출 방향은 연속주조방향과 동일한 방향으로 일어나게 된다. 이와 같이 연속주조방향과 평행하게 형성된 열유속에 의해 Fig. 3(a)과 같은 일방향응고조직을 얻을 수 있었으며 이때 결정의 성장방향은 Fig. 4(a)와 같이 <100>방향이 결정성장의

우선방향임을 EBSD분석결과에 의해 확인하였다.

주형내로 유입된 용탕은 응고될 때 일반적으로 열방출이 가장 용이한 구역에서 핵이 생성되고 성장하여 결정을 생성하게 된다. 생성된 결정은 인접한 결정과 서로 경쟁성장을 하는데, 결정성장시의 성장속도에는 이방성이 존재하기 때문에 최대성장속도를 갖는 방향에 평행한 결정이 인접한 결정의 성장을 억제하며 우선적으로 성장을 한다. 결정의 성장중 우선방위가 열유속의 방향과 유사할수록 성장을 계속하고, 다른 결정은 경쟁 성장에 의해 도태되므로 주상정이 형성된다.

Fig. 2의 (b)에서 보는 바와 같이, 연속주조 속도가 50 mm/min인 경우에는 응고선단이 용탕으로부터 34 mm 떨어진 지점에서 형성됨을 알 수 있고 이는 연속주조 속도가 30 mm/min의 경우와 달리 응고선단이 주형과 접하는 곳에서의 주형의 온도가 상대적으로 낮으므로 열방출은 선재와 starting bar의 계면에서뿐만 아니라 주형과 선재의 계면에서도 발생할 수 있다. 따라서 Fig. 3(b)와 Fig. 4(b)에서 보는 바와 같이 연속주조방향과 평행하게 성장한 <100> 방위의 결정이외에 연속주조방향과 수직으로 성장한 <100> 방위의 결정이 관찰됨을 설명할 수 있으며 또한 서로 직각으로 성장하는 <100>방위들의 벡터 합에 의해 45°의 각도를 지닌 <110>방위의 결정이 성장하였다고 설명할 수 있다.

연속주조속도가 더욱 증가하여 100 mm/min인 경우에는 응고선단의 위치가 용탕으로부터 더욱 멀어져 주형내 50 mm 떨어진 지점에서 형성되고 이 지점에서는 주형과의 온도구배는 연속주조속도가 50 mm/min인 경우보다 더욱 증가하고 핵생성을 위한 과냉도가 충분하여 Fig. 3(d)와 Fig. 4(d)에서 보는 바와 같이 <100> 및 <110> 방위로 성장한 결정이외에 <111>방위로 성장한 결정이 관찰 되었으며 이를 EBSD분석에 의해 확인할 수 있었다.

이상의 측정결과를 종합하여 보면 주조속도가 30 mm/min인 경우에는 선재내의 결정의 성장방향은 주조방향과 평행하게 성장한 일방향응고 형태를 나타냈으며 결정은 <100>방향으로 우선 성장하였고 주조속도가 50 mm/min이상으로 증가하는 경우에는 일방향응고 형태의 결정성장이 억제되고 결정은 <100>이외에 <110> 및 <111> 방향으로 복합적으로 성장하였음을 알 수 있다.

Rappaz[12]는 연속주조시 응고조직의 방향성과 응고속도의 관계를 다음과 같이 제안하였다.

$$R = v \cos\theta / \cos\psi \tag{1}$$

여기서, R은 응고선단의 성장속도이며 v는 인출속도이고  $\theta$ 는 선재 중심선으로부터의 주상정 성장방향의 편차이고  $\psi$ 는 결정학적 성장방향과의 편차이다. 위 식에서 알 수 있듯이 인출속도의 증가가 반드시 성장속도의 증가를 의미하지 않음을 알 수 있다. 고액계면의 형상이나 위치 등의 변화에 의해 열방출 방향이 변화하므로 이에 따라 성장하는 결정의 성장방향도 선재의 중심선상과 일정한 각도 차이를 지니고 응고하게 되고 이러한 각도차이에 의해 인출속도의 증가는 반드시 응고속도의 증가를 동반하지 않음을 알 수 있다. Fig. 3(a)에서 보듯이 주조속도가 30 mm/min인 경우에는  $\theta$ 가 0에 가깝고  $\psi$ 도 0에



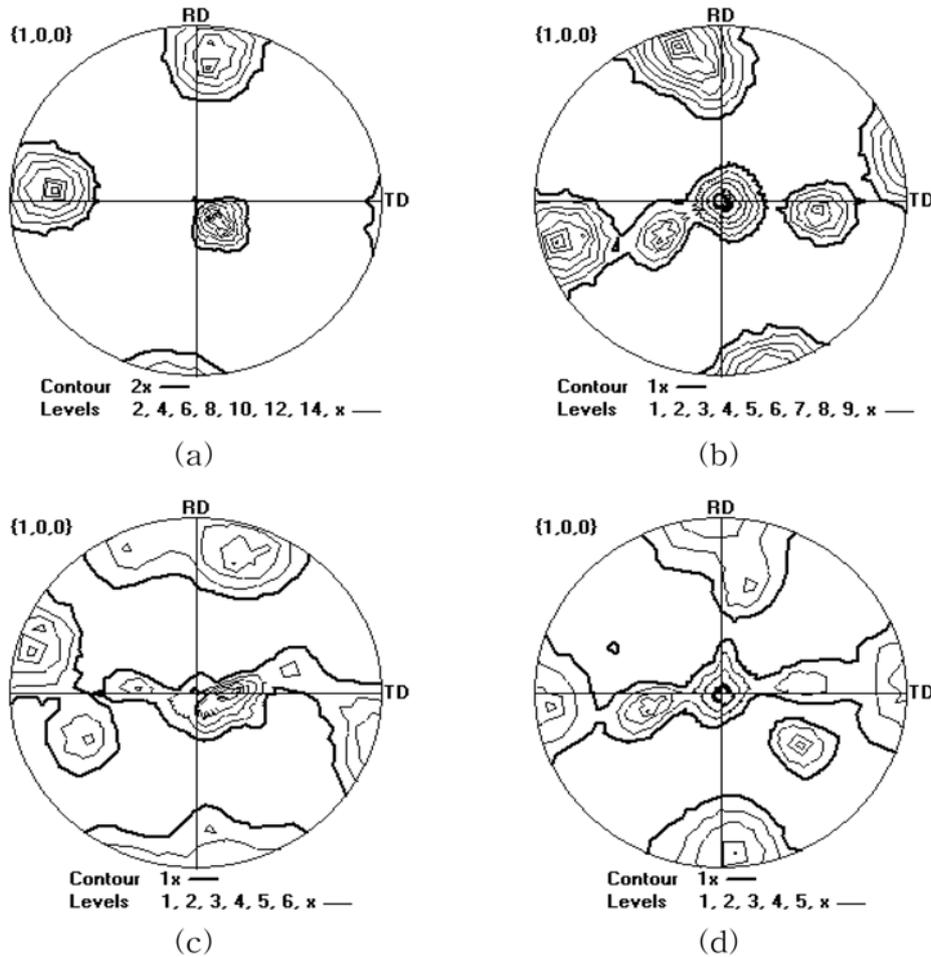


Fig. 4. Pole figure of the Cu rod with different withdrawal speed (diameter : 9 mm, casting temp. 1200°C). (a) 30 mm/min (b) 50 mm/min (c) 80 mm/min (d) 100 mm/min.

가까우므로 인출속도와 응고선단에서의 응고속도는 동일하게 된다. 그러나 주조속도가 100 mm/min으로 증가하는 경우에는 각 결정립의 평균  $\theta$ 와  $\psi$ 이 증가하므로 인출속도와 응고속도가 같지 않게 됨을 알 수 있다.

따라서 본 연구의 조건에서는 연속주조시 인출속도가 증가할수록 주형과 접촉하는 응고선단의 위치가 변화하고 이에따라 연속주조방향과 평행한 결정의 성장속도는 감소하는 반면 연속주조방향과 수직한 결정 성장속도가 증가하였음을 알 수 있었다.

연속주조속도의 증가는 선재내부의 응고조직의 방향성을 변화시킬뿐 아니라 선재의 표면과 내부의 온도 차이를 크게 하는 효과가 있음을 알 수 있었다. Fig. 5에는 연속주조 수치해석에 의해 얻어진 선재의 내부 및 외부 온도 측정결과를 연속주조속도가 30 mm/min인 경우와 100 mm/min인 경우를 비교하여 나타내었다. 연속주조의 속도의 증가에 의해 선재내부와 표면의 온도차이가 증가함을 알 수 있다. 이는 최종응고시간까지 소비되는 시간이 길어짐을 의미하는데 연속주조의 인출과정중에 선재중상부의 미응고부위로 인장응력이 과도하게 인가되어 균열이 발생할 가능성이 높게 된다. Sakamoto[5]는 연속주조속도가 증가할수록 고액 계면의 깊이가 증가하여 내부결함이 발생할 가능성이 증대되므로 고속의 연속주조속도를 적용하기 위해서는

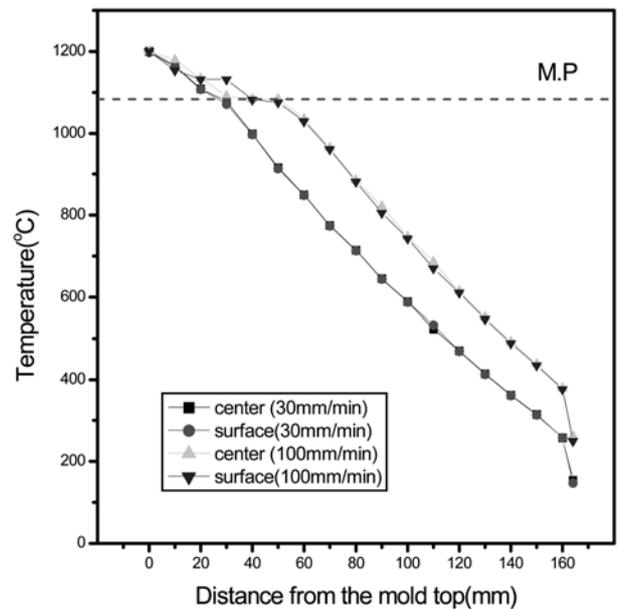


Fig. 5. Center and surface temperature difference along the length of the wire-rod at withdrawal speed of 30 and 100 mm/min, respectively.

냉각방식을 변경하여 고/액계면의 깊이를 낮추어야 한다고 지적하였다.

#### 4. 결 론

1) 연속주조공정을 대상으로 수행한 열전달 유한요소해석결과 주형내 응고선단의 위치 및 열유속의 방향성을 예측하기 위한 중요한 정보를 제공할 수 있었다. 수치해석 결과는 연속주조 실험결과와 일치하는 경향을 보였으며 직경 15 mm이하의 소경봉 연속주조에 대한 수치해석에도 thermal convection에 의한 유동의 영향을 반드시 고려하여야 함을 알았다.

2) 연속주조속도가 30 mm/min이하인 경우에는 주형내에서 응고선단이 형성되는 지점에서의 주형/선재 계면의 온도구배보다 선재/starting bar 계면의 온도구배가 더욱 크고 열방출이 연속주조방향과 평행한 방향으로 발생하였기 때문에 결정성장을 위한 핵생성이 주형 벽이 아닌 starting bar위에서 발생하였으며 열유속의 방향이 연속주조방향과 평행하므로 연속주조방향에 평행하게 성장한 일방향응고 미세조직을 나타내었다.

3) 연속주조시 인출속도가 30 mm/min인 경우에는 연속주조 인출속도와 응고선단의 성장속도가 동일하였으나 연속주조속도가 50 mm/min이상으로 증가하면 선재 중심선으로부터 30°이상의 각도차이를 보이며 성장하는 결정들이 관찰되어 응고선단에서의 응고속도와 인출속도의 차이가 발생하였다. 연속주조속도가 증가할수록 연속주조방향으로 성장하는 결정의 응고속도는 감소하는 반면 연속주조방향과 수직하게 성장하는 결정의 응고속도는 증가하였음을 알 수 있었다. 이는 응고선단의 형상 및 위치에 의한 열방출 방향의 변화에 의한 것으로 보인다.

4) 선재 중심과 표면의 온도 및 최종응고완료시간의 편차는 연속주조속도가 증가할수록 증가하였다. 따라서 선재 표면부와

내부의 온도편차를 최소화하고 표면산화를 억제하기 위한 최적의 공정조건은 연속주조속도의 정밀한 제어에 의하여 가장 효과적으로 달성될 수 있음을 해석결과를 통하여 알 수 있었다.

5) 본 연구에서 수행한 공정해석 및 미세조직 분석을 통해 냉각주형식 연속주조설비를 이용하여 Cu 본딩와이어용 rod를 제조하는 경우, 선재 내부와 표면부의 온도편차를 감소시키고 열유속의 방향이 연속주조방향과 평행하게 작용한 일방향응고조직을 얻고자 하는 경우에는 연속주조속도를 30 mm/min이하로 제어하여야 함을 제시하였다.

#### 참고문헌

- [1] A. Ohno : J. of Metals, 38 (1986) 14
- [2] K. Machida : Bulletin of Japanese Institute of Metals, 28 (1989) 1, 70
- [3] T. Sakamoto : Bulletin of Japanese Institute of Metals, 24 (1985) 6, 494
- [4] A. Sato, Y. Osawa and G. Aragane : J. of Japanese Institute of Metals, 2 (1990) 201
- [5] S. Sakamoto : Imono, 63 (1991) 7, 620
- [6] R. B. Mahapatra, J. K. Brimacombe, and I. V. Samarasekera : Metall. Trans. B. 22B (1991) 875
- [7] I. V. Samarasekera, D. L. Anderson, and J. K. Brimacombe : Metall. Trans. B. 13B (1982) 91
- [8] I. V. Samarasekera and J. K. Brimacombe : Metall. Trans. B. 13B (1982) 105
- [9] B. G. Thomas : Steelmaking Conf., Iron and Steel Society, Washington, DC, 74 (1991) 105
- [10] Y. J. Lee, H. H. Jo and M. H. Kim, J. of the Korean Ins. of Met. & Mater., 31 (1993) 906
- [11] T. Sakamoto, Y. Shikano, K. Yajima, Journal of the JCBRA, 40 (2001) 301
- [12] M. Rappaz, S.A. David, J.M. Vitek, L.A. Boatner: Metall. Trans. A, 21A (1990) 1767