

질화알루미늄과 금속간 계면접합에 관한 연구: 계면반응과 미세구조 형성이 접합체 강도에 미치는 영향

박성계 · 김지순
울산대학교 재료공학과

Joining of AlN Ceramics to Metals: Effect of Reactions and Microstructural Developments in the Bonded Interface on the Joint Strength

Sung-Gye Park and Ji-Soon Kim

Department of Materials Science and Engineering, University of Ulsan,
P. O. Box 18, Ulsan 680-749, Korea

(Received July 28, 1997)

ABSTRACT Joining of AlN ceramics to W and Cu by active-metal brazing method was tried with use of (Ag-Cu)-Ti alloy as insert-metal. Joints were produced under various conditions of temperature, holding time and Ti-content in (Ag-Cu) alloy. Reaction and microstructural development in bonded interface were investigated through observation and analysis by SEM/EDS, EPMA and XRD. Joint strengths were measured by shear test. Bonded interface consists of two layers: an insert-metal layer of eutectic Ag- and Cu-rich phases and a reaction layer of TiN. Thickness of reaction layer increases with bonding temperature, holding time and Ti-content of insert-metal. It was confirmed that the growth of reaction layer is a diffusion-controlled process. Activation energy for this process was 260 KJ/mol which is lower than that for N diffusion in TiN. Maximum shear strength of 108 MPa and 72 MPa were obtained for AlN/W and AlN/Cu joints, respectively. Relationship between processing variables, joint strength and thickness of reaction layer was also explained.

1. 서 론

최근 새로운 반도체용 기판재료로서 주목을 받고 있는 질화알루미늄(AlN)은, 현재 기판재료로 사용되고 있는 알루미늄나 세라믹스와 비교하여 손색이 없는 절연특성과 우수한 기계적 물성을 갖고 있으며, 특히 열전도도(140~260 W/m · K)가 일반 세라믹스 재료에 비해 월등히 높아 방열특성이 우수하다. 또한, 열팽창계수가 알루미늄나 세라믹스의 60% 정도로서 열충격저항성이 높고, 실리콘의 열팽창계수(단결정 ~3.74 × 10⁻⁶/K)와 유사하여 기판재료로서 갖추어야 할 우수한 열적 물성을 나타내고 있다¹⁻⁴⁾. 그러나, AlN을 고 열전도성 기판재료로서 실용화하기 위해서는, 기존의 알루미늄나 기판재료에서와 마찬가지로, 리드프레임, 금속베이스 등과 같은 주변 금속재료와의 접합

이 불가피하며, 특히 신뢰성과 재현성이 보장될 수 있는 접합기술의 개발이 선결되어야 할 문제로 지적되고 있다.

세라믹스/금속간 접합을 위해 사용되고 있는 방법으로는 확산접합법, 메탈라이징법, 활성금속브레이징법 등을 들 수 있다. 확산접합법의 경우에는 접합계면에서 이상적인 원자결합을 이룰 수 있다는 장점에도 불구하고, 피접합 모재면의 정밀한 평활화와 고진공, 높은 접촉압력이 전제되어야 하기 때문에 고가의 장비와 기술을 요한다는 단점이 있다. 흔히 Mo-Mn 메탈라이징법으로 알려져 있는 메탈라이징법은, 세라믹스의 표면을 일부 금속화하고 접합 과정 중에 액상을 형성케 함으로써 세라믹스/금속간 접합에서 중요한 물성인 기밀성과 강도를 보장할 수 있다는 장점을 갖고 있어 현재 가장 널리 실용화되어 있으나, 그 공정

이 매우 복잡한 것이 단점으로 지적되고 있다. 반면에, 활성금속브레이징법은 Ti 또는 Zr, Hf 등의 활성금속을 함유하고 있는 삽입금속을 사용하고, 접합온도에서 액상을 형성케 하여 삽입금속 내 활성금속 성분이 세라믹스 표면과 반응하여 메탈라이징 효과를 나타내므로 별도의 복잡한 메탈라이징 처리와 피접합면의 정밀 가공, 고압의 접촉압력 등이 없이도 양호한 접합체를 얻을 수 있는 방법으로 알려져 있다^{4,11)}.

따라서 본 연구에서는 고열전도성 AlN 세라믹스와 반도체 기관의 heat-sink재로 사용되고 있는 W 및 Cu 금속간의 활성금속브레이징 접합을 시도하여 접합 공정 조건과 접합체 강도간의 관계를 조사하고자 하였다. 삽입재로는 Ag-Cu 공정합금에 Ti를 첨가한 삽입금속을 사용하였으며, 접합온도와 유지시간, 삽입금속의 Ti 함유량 등을 공정변수로 접합체를 제조하여, 이들 변수들이 접합계면에서의 반응과 미세구조의 형성, 접합체의 기계적 물성에 미치는 영향에 대하여 조사하였다.

2. 실험방법

본 실험에 사용된 세라믹스와 금속모재는 Ytria가 소결조제로 첨가된 표면조도 0.3 μm Ra의 상압소결 AlN(일본 Tokuyama사)과, 각각 순도가 99.99%인 텅스텐 및 무산동이었다. 이때 모재의 크기와 형태는 모두 직경 10 mm × 두께 5 mm의 디스크형이었다. 접합에 사용된 삽입금속은 Ag-28 wt% Cu 공정합금에 전체조성의 1~3 wt%가 되도록 Ti를 첨가하여 Ar 분위기 중에서 1차 아크 용해한 후, 고주파 진공유도로서 재 용해하여 10 mm 직경의 봉상으로 주조하였다. 주조된 삽입금속봉은 절단 후 최종 두께가 200 μm가 되도록 하여 #1200 연마지로 연마하였다.

접합은 모재와 삽입금속을 아세톤 내에서 초음파 세척하고 건조한 후, 양 모재사이에 삽입금속을 삽입하여 샌드위치 형태로 진공가압전기로 내에서 행하였다. 이때 진공도는 6×10^{-5} torr이었으며, 승온 및 냉각속도는 10°C/min, 접합온도와 유지시간은 850°C, 900°C, 950°C와 1, 5, 15 min으로 변화를 주었다.

접합계면의 관찰은 접합면에 수직으로 접합체를 절단한 후, 절단면을 600~1200번 연마지를 사용하여 연마하고, 0.05 μm Alumina 현탁액으로 최종 연마한 후, 부식을 시키지 않고 광학현미경 및 SEM을 사용

하여 관찰하였다. 이때 접합부의 결함과 접합층 내의 생성상 및 성분 원소의 분포 변화, 그리고 계면반응층의 성장거동을 조사하기 위해 SEM-EDS, EPMA-WDS로 점분석과 선분석 및 XRD에 의한 상분석을 행하였다. 이때 상동정을 위한 시편은 접합계면층에 인접한 모재 및 삽입금속 부분을 접합계면층과 평행하게 절단한 후, 질산으로 삽입금속층을 용해시켜 제거하는 방법으로 준비하였다.

접합계면의 반응층 두께 측정은 접합계면의 중앙부를 중심으로 계면에 평행한 방향으로 총 300 μm의 길이에 대하여 SEM으로 4000배의 배율로 촬영하여 인화된 사진에 대해 2 μm 간격으로 선을 그어 측정하여 평균값을 취하였다.

접합체의 강도는 전단강도 시험방법으로 측정하였으며, 이를 위한 전단강도 치구는 ASTM D2293-69의 Double-Shear-Test를 보정, Single Shear Test 형태로 설계, 제작하여 인장시험기(Shimadzu AG-250KNE)로 cross-head speed 1 mm/min으로 측정하였다.

3. 결 과

3.1. 접합부 관찰 및 분석

Fig. 1은 (Ag-Cu)-2 wt% Ti 삽입금속을 사용하여 900°C에서 5분간 유지하여 접합시킨 AlN/W 접합체와 AlN/Cu 접합체의 접합부 단면을 SEM으로 관찰한 결과로서, AlN과 금속층 접합부 모두에서 균열이나 박리, void 등이 없는 양호한 접합이 이루어졌음을 알 수 있다. 특히, AlN/W 접합체의 경우와 AlN/Cu 접합체의 삽입금속이 잔류하고 있는 접합부의 형상이 다르게 나타나 있는데, 이는 후자의 경우 접합과정에서 (Ag-Cu)-Ti 삽입재가 액상을 형성하면서 모재인 Cu가 삽입재 내로 용해해 들어왔기 때문이다.

접합부의 원소분포와 AlN 측에서의 반응층 생성 여부를 확인하기 위해 Fig. 1에서의 AlN/W 접합체의 접합부에 EDS 분석을 행한 결과(Fig. 2), 삽입금속층에서는 Ag-rich(표시 a)와 Cu-rich(표시 b)의 공정조직을 확인하였으며, AlN 계면 측에서 주로 Ti로 구성된 층(표시 c, d)이 미세하게 형성되어 있음을 확인하였다. 이와 같은 Ti-rich 층의 형성은 Fig. 3에서 보는 바와 같이, AlN/Cu 접합체에서도 확인되었다. Fig. 4는 Ti-rich 층에 대한 X선 상동정 결과를 나타낸 것으로서, TiN과 AlN상을 확인할 수 있어 삽입금속 내에

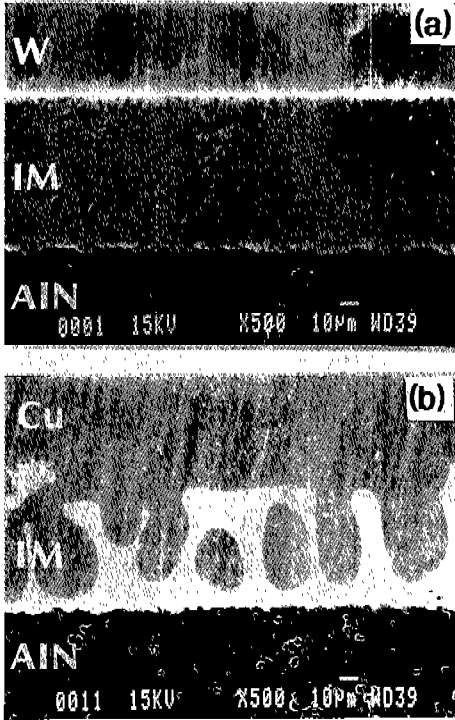


Fig. 1. SEM micrographs of (a) AlN/W and (b) AlN/Cu joints produced at 900 °C for 5 min with use of (Ag-Cu)-2 wt%Ti alloy.

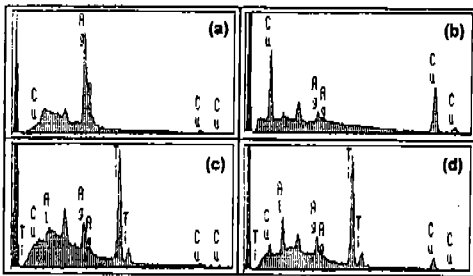
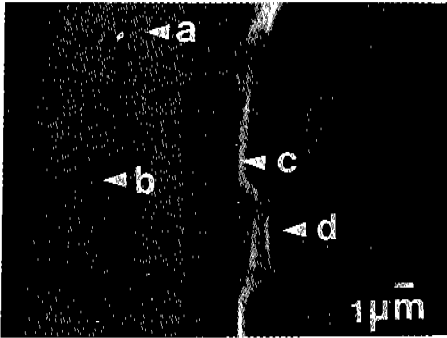


Fig. 2. SEM/EDS analysis data for the bonded interface of AlN/W joint produced at 900 °C for 5 min with use of (Ag-Cu)-2 wt%Ti alloy.

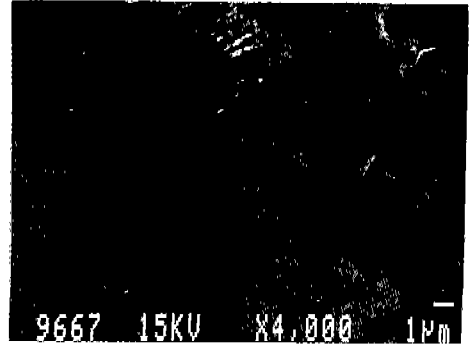


Fig. 3. SEM micrograph of AlN/Cu joint produced at 950 °C for 5 min with use of (Ag-Cu)-2 wt%Ti brazing alloy.

포함되었던 Ti이 접합 과정 중에 AlN 세라믹스와 반응하여 새로운 TiN 층을 형성하였음을 알 수 있다.

3.2. 접합변수에 따른 계면반응층의 성장

Fig. 5(a)는 (Ag-Cu)-2wt% Ti 삼입재를 사용하여 유지시간을 5분으로 고정하고 접합온도를 변화시켜 접합한 AlN/W 접합체의 TiN 계면반응층의 두께를 측정하여 나타낸 결과로서, 온도 증가에 따라 계면반응층의 두께가 증가함을 알 수 있다. 또한, 900 °C로 접합온도를 일정하게 유지하고 접합시간을 변화시킨 경우(Fig. 5(b)), 계면반응층의 두께가 유지시간에 따라 포물선에 가까운 형태로 증가하는 경향을 나타내고 있다. 계면반응층 두께에 미치는 Ti 첨가원소의 영향은 Fig. 5(c)에서 보는 바와 같이, Ti 첨가량이 증가함에 따라 반응층 두께가 증가하는 것을 확인할 수 있다. 이와 같은 접합변수에 따른 계면반응층의 두께

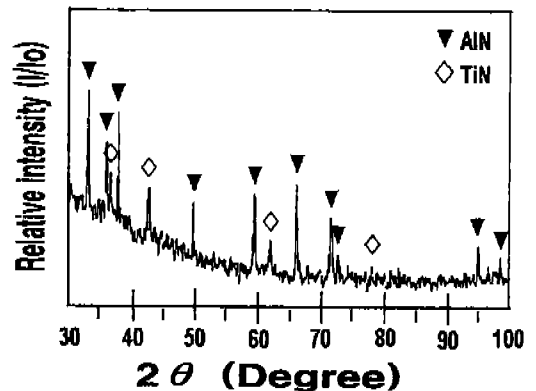


Fig. 4. XRD pattern for the Ti-rich phase formed in AlN/insert-metal interface.

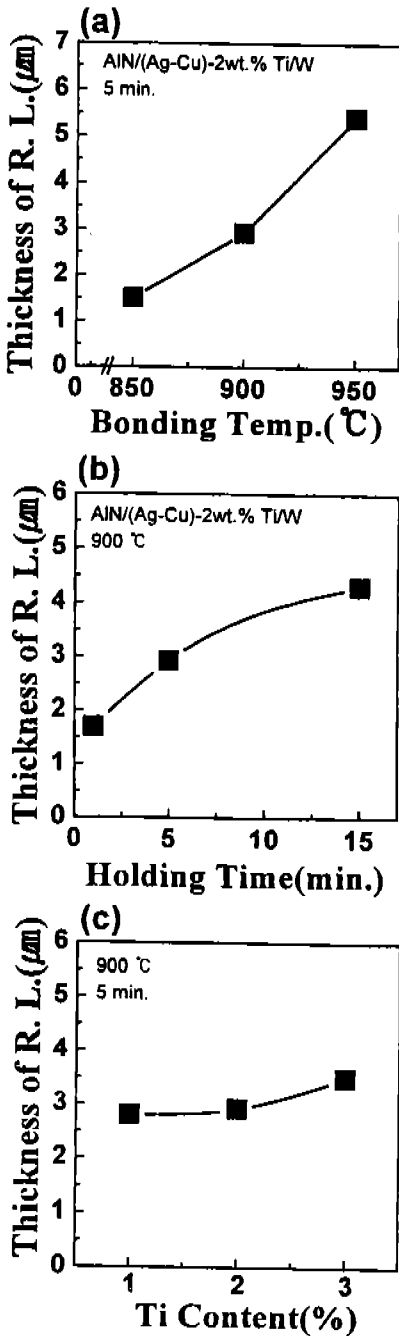


Fig. 5. Change in thickness of reaction layer of AlN/W joint with (a) bonding temperature, (b) holding time and (c) Ti-content.

변화는 AlN/Cu 접합체의 경우에도 유사한 경향을 보여, Fig. 6(a)에 나타난 바와 같이, 접합온도에서의 유지시간을 일정하게 하였을 때, 삽입금속 내 Ti 함유

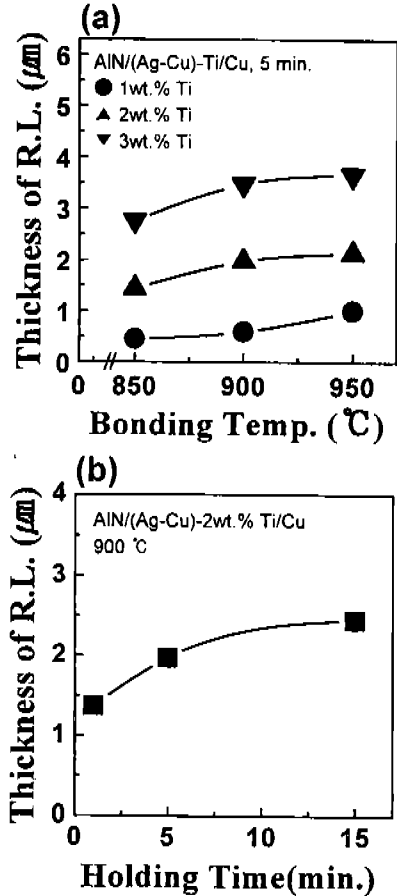


Fig. 6. Change in thickness of reaction layer of AlN/Cu joint with (a) bonding temperature and (b) holding time.

량에 상관없이 접합온도가 증가함에 따라 반응층 두께도 증가하고 있으며, 접합온도와 유지시간을 일정하게 하였을 때에는 Ti 함유량 증가와 함께 반응층 두께도 증가함을 알 수 있다.

3.3. 접합강도에 미치는 접합변수와 계면반응층 두께의 영향

Fig. 7(a)~(c)는 접합변수에 따른 AlN/W 접합체의 접합강도를 나타낸 것이다. 그림에서 보는 바와 같이, 삽입금속의 조성과 접합온도에서의 유지시간을 각각 2 wt% Ti와 5분으로 고정하고, 접합온도를 850°C에서 900°C, 950°C로 변화시켜 준 경우(Fig. 7(a)), 900°C의 접합온도에서 108 MPa의 최대 접합강도를 얻었으며, 900°C로 접합온도를 일정하게 하고, 유지시간을 1분과 5분, 15분으로 변화시킨 경우(Fig. 7(b)),

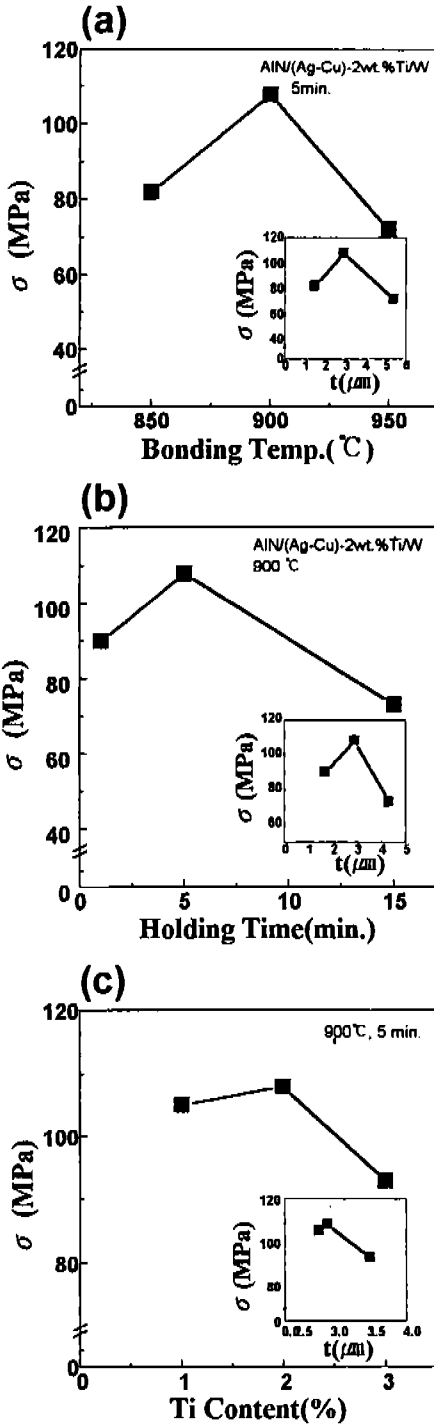


Fig. 7. Change in joint strength of AlN/W joint with (a) bonding temperature, (b) holding time and (c) Ti-content. (Small graph in each diagram shows the thickness of reaction layer of the corresponding samples.)

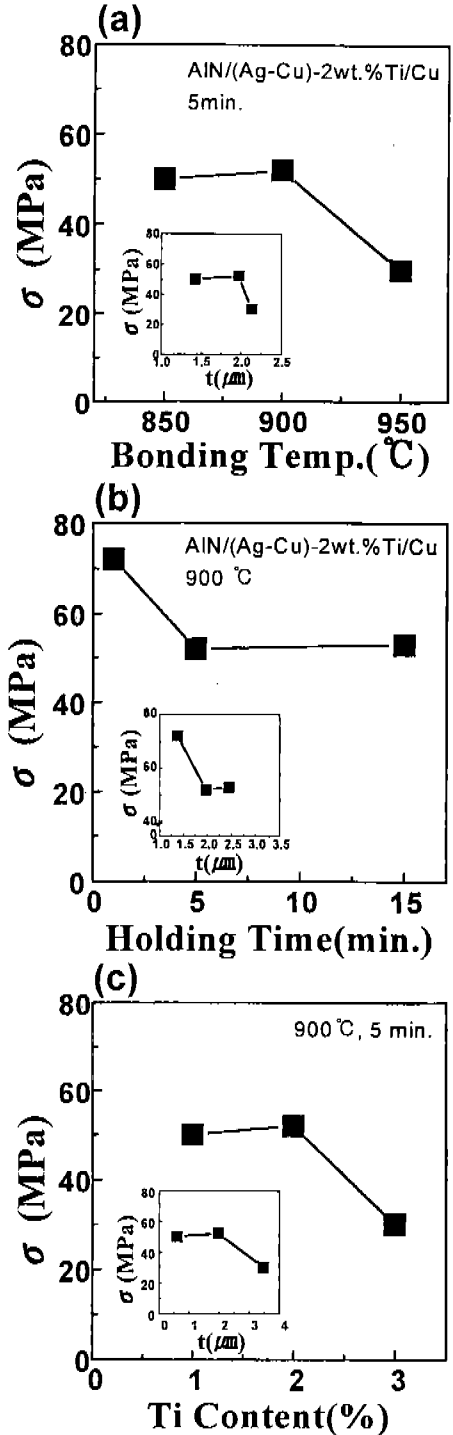


Fig. 8. Change in joint strength of AlN/Cu joint with (a) bonding temperature, (b) holding time and (c) Ti-content. (Small graph in each diagram shows the thickness of reaction layer of the corresponding samples.)

각각 90 MPa, 108 MPa, 73 MPa의 접합강도를 보여 5분의 유지시간에서 최대 접합강도를 나타내었다. 삽입금속 내 Ti 함유량에 따른 접합강도는 Fig. 7(c)에서 보는 바와 같이, 1 wt% Ti에서 105 MPa, 2 wt% Ti에서 108 MPa의 접합강도를 나타내었으며, 조성을 3 wt% 이상으로 증가시킬 경우 93 MPa로 오히려 접합체의 강도가 저하되는 것을 알 수 있다. 이들 결과로부터 AlN/W 접합의 경우에는(900°C/2 wt% Ti/5분)의 조건에서 최대 108 MPa의 접합강도를 얻을 수 있었다.

Fig. 8은 AlN/Cu접합체의 접합강도를 접합변수에 따라 나타낸 것으로, 대체로 AlN/W 접합체에서와 유사한 양상을 보이고 있으나, 강도값이 28~72 MPa로서 전자에 비해 전체적으로 상당히 낮은 접합강도를 보이고 있으며, (900°C/2 wt% Ti/1분)의 접합조건에서 최대 72 MPa의 접합강도를 얻을 수 있었다. AlN/W 접합체와 비교하여 이와 같이 낮은 접합강도값을 보이는 이유는, AlN과 Cu간의 열팽창계수 차이가 전자에 비해 약 10배 가량이 되어 접합 후 냉각하는 과정에서 큰 잔류응력이 접합체에 형성되었기 때문으로 판단된다.

Fig. 7과 8의 내부에 나타난 작은 그림들은 AlN 세라믹스 측 계면에 형성된 계면반응층 두께를 SEM으로 관찰하여 해당 접합강도와 대비하여 나타낸 것으로서, 접합강도와 반응층 두께간에 연관성이 있음을 시사하고 있다. 즉, 반응이 시작되는 초기 단계에 계면 전체에 걸쳐 반응층이 형성되는 과정에서는 접합강도가 증가되고 있으나, 온도와 시간, 조성 등의 증가에 따라 반응층이 과도하게 성장하게 될 경우 접합강도가 오히려 감소되는 것으로 나타나, 높은 접합강도값을 갖는 접합체의 제조를 위해 반응층 두께를 조절할 필요가 있음을 알 수 있다. 그림에서 보는 바와 같이, AlN/W 접합체의 경우에는 반응층 두께 3 μm에서 최대 강도값을 나타내었으며, AlN/Cu접합체의 경우, 1.3~2 μm 두께에서 높은 강도값을 얻을 수 있었다.

4. 고 찰

접합부 계면반응

Ti를 비롯한 활성금속을 포함하고 있는 삽입재를 사용한 브레이징 접합 과정 중 세라믹스 측 계면에서

일어나는 삽입금속 내 활성금속과 모재 세라믹스간 반응에 관하여는 이미 많은 연구자들로부터 보고되고 있다. AlN 세라믹스에 대한 Ag-Cu-Ti계 삽입금속의 젖음성 거동에 대한 연구에서 Tomsia 등은,¹⁰⁾ AlN 세라믹스 계면에 인접하여 형성된 반응층은 $TiN_{0.7}$ 이며, 잔류 삽입금속층에서는 Ti이 검출되지 않아 삽입금속내의 Ti이 모두 AlN 세라믹스 측 계면에 편석되었을 것으로 추론하였다. Beyers 등은¹²⁾ Ti-Al-N 상태도에 의거하여 TiN과 $TiAl_3$ 상의 형성을 예상하였으며, Norton 등은,¹³⁾ TiH_2 필름과 AlN간 반응에서 Ti_2N 과 Ti_3Al 이 형성되었다고 보고하였다. Yasumoto 등은,¹⁴⁾ AlN 세라믹스 표면을 RF-sputtering 방법으로 Ti으로 코팅한 후 830°C에서 열처리한 경우, AlN과 인접한 계면에 $TiAl_3$ 층과 TiN층의 순서로 반응층이 형성되었으며, 이때 가능한 반응식으로서 ($3AlN+4Ti=TiAl_3+3TiN$)의 반응식을 제시하였다. 본 연구에서와 유사하게, Ag-Cu 공정합금에 Ti을 전체 조성의 3 wt%가 되도록 첨가한 삽입재를 이용한 AlN간 동종접합을 행한 Okamura 등의 연구¹⁵⁾에서는 AlN 세라믹스 계면에 인접하여 TiN이 형성되고, 삽입금속과 TiN층 사이에 $CuTi$, Cu_2Ti , $CuTi_2$, $AlCu$ 등 다양한 금속간화합물이 형성되었다고 보고하였다. Nakao 등도¹⁶⁾ Cu-22 wt% Ti 합금을 이용한 AlN/Cu 접합시 AlN 세라믹스 계면에 TiN층이 형성되고, 이에 인접하여 Cu_4Ti 층이 형성되었다고 보고하면서 TiN 형성에 대한 가능한 반응식으로서, $AlN(s)+Ti(l-sol)=TiN(s)+Al(s)$ 의 식을 제안하였다. 여기서 s와 l은 각각 고상과 액상을 의미하며, l-sol은 용융 삽입금속 내에 혼합되어 있는 액상을 의미한다.

위에서 살펴본 연구 결과들이 조금씩 차이가 있기는 하나, 대부분의 연구 결과에서 공통적으로 확인되고 있는 사실은 AlN 세라믹스 계면에 인접하여 $TiN_{0.7}$, Ti_2N , TiN 등 Ti-N 화합물이 형성된다는 점이며, 본 연구에서도 TiN이 형성되는 것을 확인한 바 있다. 이상의 연구 보고들을 종합하여 제시할 수 있는 TiN 형성 기구로서, ① 삽입금속이 접합온도에서 액상을 형성하고, ② 삽입금속 내 Ti이 AlN 계면으로 이동하여 편석되며, ③ 편석된 Ti에 의한 AlN의 환원과 해리된 N이 Ti과 결합하여 TiN을 형성하는 단계를 거치는 것으로 정리할 수 있다. 이러한 과정을 반응식으로 표현하고 각각의 자유에너지 변화를 나타내면 다음과 같다.¹⁷⁾

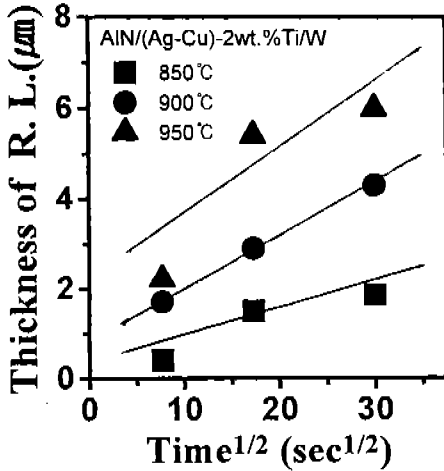
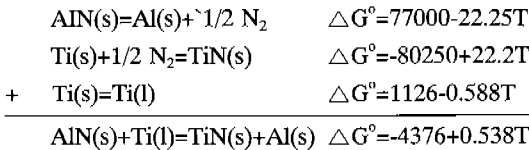


Fig. 9. Reaction between thickness of reaction layer and square root of holding time.



여기서 (s)는 고상상태, (l)은 액상상태를 의미하며, 접합온도 850°C의 경우를 이 식에 대입하면, 자유에너지변화는 -15.8 kJ/mol로서 음의 값을 가지므로 TiN의 생성이 가능함을 알 수 있다.

위에서 설명한 반응층 생성기구는 AlN 세라믹스 계면으로의 Ti 이동, TiN 층을 통과하는 Al과 N, Ti 등 반응에 참여하는 원소들의 확산이 개재되어 있으므로, 반응 자체가 확산율속 과정이 될 것이라는 것을 시사하고 있는데, 실제로 본 연구에서도 일정 접합온도에서 유지시간을 증가시켜 주었을 때, 반응층 두께의 증가가 포물선 형태로 나타나 이러한 예상을 뒷받침하고 있다. Fig. 9는 Fig. 5(b)의 결과를 유지시간 t의 제곱근에 대한 반응층 두께로 변환하여 나타낸 것으로서, 명확한 직선 관계를 얻을 수 있어 계면 반응층의 성장이 확산율속 과정임을 확인할 수 있다. 여기서 액상 삽입금속내 Ti의 AlN 계면으로의 이동속도는 고상 TiN 내에서의 Ti 및 N, Al의 확산속도에 비해 매우 빠르다고 보면, 전체 반응속도를 결정하는 과정은 고상 TiN 내에서의 Ti 및 N, Al의 확산계수에 따라 판단할 수 있다. 그러나, 조사된 바로는 TiN 내에서의 Ti 및 Al의 확산 데이터는 알려진 바가

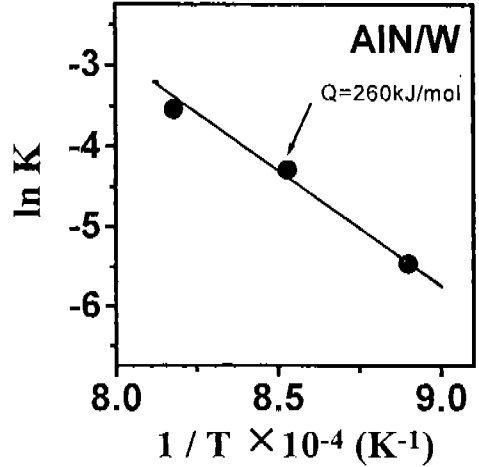


Fig. 10. Arrhenius plot of $\ln k$ against the reciprocal of bonding temperature.

없으며, 가장 빠른 확산속도를 나타낼 것으로 예상되는 N 확산을 위한 활성화에너지값은 1173-1843 K의 온도범위에서 218 kJ/mol인 것으로 조사되었다¹⁸⁾. 실제로 이 값은 Fig. 9에 제시한 결과를 반응속도 상수와 온도에 대한 Arrhenius 관계로 변환하여 나타낸 Fig. 10의 기울기로부터 구한 활성화에너지값 260 kJ/mol보다 작은 값이며, 이러한 결과로부터 TiN 형성의 율속은 분명히 N만에 의한 것이 아니며, 삽입금속내 확산금속의 확산일 가능성이 큰 것으로 추론할 수 있다.

AlN 계면의 반응층 성장이 확산율속 과정이라는 결론으로부터, 앞서 3.2절에서 언급한 접합변수(접합온도, 유지시간, 삽입재내 Ti 함유량)에 따른 계면 반응층 두께의 변화를 다음과 같이 설명할 수 있다. 즉, 접합온도가 증가할 경우 확산계수가 증가하게 되므로, 계면반응의 속도가 빨라지고, 따라서 계면반응층의 두께도 온도에 따라 증가하게 되며, 삽입금속내 Ti 함유량이 증가할 경우 AlN 세라믹스 계면에 편석되는 Ti의 양이 많아짐에 따라 반응층을 경계로 Ti의 농도구배가 커지게 되며, 아울러 반응에 필요한 Ti의 공급이 용이하여 반응층 두께가 증가하는 것으로 설명할 수 있다. 다만 Fig. 9의 t=0에서의 반응층 두께가 0이 아닌 것은 이미 승온과정에서 부터 일부 계면반응이 일어날 수 있기 때문으로 생각되며, 접합 계면부에 대한 XRD와 EDS 결과에서 해리된 Al의 존재를 명확히 확인할 수 없었는데, 이는 해리된 Al의

양이 매우 적어서 EDS와 XRD 상에 검출되지 않았거나 TiN 층에 고용되었을 수도 있기 때문으로 추측된다¹⁹⁾.

4.2. 계면반응과 접합강도와의 관계

3.3.절에서 접합변수에 따라 접합강도가 달라지게 되어 최적의 접합조건이 존재한다는 사실과, 접합조건에 따라 계면반응층의 두께가 변화한다는 결과는 접합강도와 계면반응층 두께간에 상관성이 있음을 시사하고 있다.

실제로 Ti를 함유한 삽입재를 사용한 활성금속브레이징 접합시 접합강도와 계면반응층두께간의 상관성에 관해 Si₃N₄와 SiC 등에 대해서는 이미 일부 보고된 바가 있으나, AlN에 대한 보고는 아직 알려진 바가 없는 것으로 조사되었다. 여기서 AlN과 같이 질화물계 세라믹스인 Si₃N₄에 대한 관련 연구 결과들을 살펴보면, Nakao 등²⁰⁾은 Si₃N₄/Mo 접합체를 제조하여 반응층 두께에 따른 인장강도 변화를 조사한 결과, 적정 반응층 두께를 초과할 경우 반응층 내부에 균열 등의 결함이 발생되어 강도 저하가 야기된다고 보고하였다. 또, 이우천 등²¹⁾은 Ag-Cu-Ti계 삽입금속을 사용하여 Si₃N₄/304 스테인레스강을 접합한 경우, 계면반응층의 형성 단계를 세라믹스측 계면에서의 반응생성물의 불연속적인 핵생성 단계와 핵성장에서의 불연속 반응층의 연결 단계, 반응층의 성장 단계 등으로 나누어, 두 번째 단계가 이루어지는 두께로 접합할 경우 높은 접합강도를 얻을 수 있다고 보고하였다. Nakahasi 등²²⁾은 Ag-Cu-Ti과 Cu-Ti 합금을 사용한 Si₃N₄/Mo 및 AlN/Mo 접합에 관한 연구에서, AlN/Mo의 경우 AlN 계면에 형성되는 TiN 층의 삽입금속층 표면을 조사하여 매우 미세한 요철을 이루고 있음을 확인하고, 삽입금속과 TiN 요철층간의 기계적 결합(mechanical anchoring) 효과가 접합체 강도를 좌우하며, 반응층 형성 초기에는 반응층 두께 증가와 함께 강도가 증가되나, 일정 두께 이상이 되면 더 이상의 강도 증가는 일어나지 않는 것으로 보고하였다. 아울러, 비록 권위 있는 학술지에 보고된 내용인지의 여부를 확인하지는 못하였으나, 최근 일본의 연구팀에 의해 수행된 Ag-Cu-Ti 삽입금속을 이용한 활성금속브레이징 질화규소 접합체의 단면에 대한 HRTEM 관찰 결과²³⁾, 질화규소 계면에 인접하여 형성된 질화티탄이 수 nm 폭의 복잡한 요철로 질화규

소와 직접 맞물려 있음이 보고되어 삽입금속층과의 기계적 anchor 효과 뿐 아니라 세라믹스 모재와의 anchor 효과도 확인되었다.

이상의 연구 결과들로부터 반응층 두께가 접합체 강도에 영향을 미치게 되는 원인 또는 인자들을 정리하면, 반응층의 과도한 성장으로 인한 반응층 내부의 결함 형성, 반응층의 계면에서의 연속성, 반응층 표면 요철에 의한 anchor 효과 등으로 요약할 수 있다. 본 연구에서는 Fig. 7-8에 나타난 바와 같이, 낮은 접합온도와 짧은 유지시간, 낮은 Ti량에서는 반응층 두께가 얇았으며, 아울러 접합강도도 낮은 값을 보였는데, 이는 위와 같은 접합조건에서는 AlN 계면에서의 반응생성물 핵생성이 계면 전체에 걸쳐 연속적으로 일어나기가 용이치 않으며, 핵생성 후 확산율속 과정에 의한 반응층 성장 속도도 낮기 때문일 것으로 생각된다. 반대로 접합온도와 유지시간이 최적 조건(본 연구에서는 각각 900℃와 5분)을 넘어서게 되면, 반응층의 과도한 성장으로 앞서 문헌 조사 결과에서 살펴본 바와 같은²⁰⁻²³⁾ 반응층내 결함 형성, anchor 효과의 감소 등에 의해 강도가 저하하는 것으로 추측된다.

위에서 기술한 내용은 계면반응층과 접합강도에 주안점을 두었으므로 실제적으로 세라믹스/금속간 접합체의 강도에 영향을 주는 가장 주요한 인자에 대한 언급이 빠져 있는데, 이는 접합후 냉각 과정에서 양 모재간 열팽창계수 차이에 따른 잔류응력이다. 공유결합이 강한 질화물계 세라믹스는 일반적으로 산화물계 세라믹스보다 열팽창계수가 낮은 것이 보통이므로 잔류응력의 완화 문제는 반드시 선결되어야 할 문제이다. 그러나, 본 연구에서 조사한 AlN/W 접합체의 경우에는 두 모재의 1000℃에서의 열팽창계수가 $5.64 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ (AlN)와 $4.6 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ (W)로 크게 차이가 나지 않으므로, 접합강도에 미치는 잔류응력의 영향은 크지 않을 것으로 판단되며, 따라서 계면반응층 두께와 접합강도간의 해석에도 큰 오류를 야기하지는 않았을 것으로 판단된다. AlN/W 접합체의 경우 접합강도에 미치는 잔류응력의 영향이 크지 않았을 것으로 판단할 수 있는 실험 과정에서의 간접적 근거로서는, 접합강도 측정시 측정 강도값의 편차가 낮은 수준으로 균일하였던 사실과도 부합되고 있다. 그러나, AlN/Cu 접합체의 경우에는 열팽창계수 차이가 크기 때문에($5.64 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ 와 $20.3 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$) 열응력 영향을 무시할 수 없을 것으로 판단되며, AlN/W의

경우에 비해 최대 접합강도를 나타내는 계면반응층 두께가 일정한 값을 보이지 않은 이유가 될 수 있을 것으로 생각된다.

5. 결 론

AlN 세라믹스와 W 및 Cu 금속과의 활성금속브레이징을 Ag-Cu-Ti계 삼입금속을 사용하여 시행한 후, 얻어진 접합체의 접합부 미세구조를 관찰·분석하고, 접합체의 강도를 측정한 결과 다음과 같은 결론을 얻었다.

1. 접합부는 Ag와 Cu의 공정상으로 구성되어 있는 삼입금속층과 AlN 계면 층이 형성되어 있는 TiN 반응층으로 구성되었다. 계면반응층의 두께는 접합온도, 유지시간 및 삼입금속내 Ti의 함유량 증가에 따라 증가하였으며, 반응층의 성장은 확산율속 과정임을 확인하고 활성화에너지를 구한 결과 260 kJ/mol을 얻었다.

2. AlN/W 접합체의 경우 (900℃/2 wt% Ti/5분)의 접합조건에서 108 MPa의 최대 접합강도를 보인 반면, AlN/Cu 접합체의 경우에는 (900℃/2 wt% Ti/1분)의 접합조건에서 최대 72 MPa의 접합강도를 얻을 수 있었다.

3. 계면반응층의 두께와 접합강도간에는 상관성이 있는 것으로 확인되었으며, AlN/W 접합체의 경우 3 μm의 반응층 두께에서, AlN/Cu의 경우 1.3~2 μm 범위에서 최대 접합강도를 나타내었다.

후 기

본 연구는 1994/95년도 교육부 신소재 분야 학술 연구조성비 지원에 의한 연구결과와 일부이며 연구비 지원에 감사드립니다.

참 고 문 헌

1. 杉本: 工業材料, **36** (1988) 26.
2. F. Miyashiro, N. Iwase, A. Tsuge, F. Ueno, and M.

- Nakahash: IEEE Trans. Comp., Hybrids, Manuf., Tech., **13** (1990) 313.
3. K. Komeya: 粉と工業, **24** (1992) 47.
4. 日本電子材料工業會: 電子回路用 高機能セラミック基板, (社)日本電子材料工業會, 東京, 日本工業出版 (1994) 281.
5. 山本, 高見澤: 工業材料, **36** (1988) 40.
6. K. Iyogi, K. Koiwa, T. Yasumoto, T. Matsu-ura, M. Endo, and N. Iwase: Proc. of Japan Int'l Electronics Manufacturing Technology Symp., (1993) 192.
7. C. M. E. Vanthoor, and A. Tomsia: NTIS No. 90-21178/HDM (1989).
8. T. Ariga and T. Kuzumaki: 日本金屬學會會報, **31** (1992) 283.
9. J. A. Pask: Ceramic Bull., **66** (1987) 1587.
10. A. P. Tomsia and R. E. Loehman: Mat. Manuf. Processes., **9** (1994) 547.
11. M. G. Norton, J. M. Kajda and B. C. H. Steele: J. Mater. Res., **5** (1990) 2172.
12. R. Beyers: Journal of Vacuum Sci. and Tech., **B2** (1984) 781.
13. M. G. Norton: Journal of Mater. Science, **10** (1990) 2172.
14. T. Yasumoto, K. Yamakawa, N. Iwase and N. Shinosawa: Journal of the Ceramic Society of Japan, **101** (1993) 969.
15. H. Okamura, H. Shinohara and T. Funamoto and T. Shida: 日本溶接學會論文集, **9** (1991) 494.
16. Y. Nakao, K. Nishimoto, K. Saida, K. Murabe and Y. Fukaya: 日本溶接學會論文集, **12** (1994) 155.
17. O. Kubachewski and C. B. Alock: Metallurgical Thermochemistry(5th edition), Pergamon Press, Oxford (1979) 449.
18. W. W. Smeltzer and J. G. Desmasion: Nitrogen Ceramics(Edited by F. L. Riley), Noordhoof, (1977) 219.
19. Y. Aono, Y. Fukuzawa, Y. Andoh, Y. Kato, H. Yamaki, K. Iwafuchi, T. Muroga, N. Yashida and E. Kuramoto: MRS Int'l. Meeting on Adv. Materials, **8** (1989) 245.
20. Y. Nakao, K. Nishimoto and K. Saida: Trans. of the Japan Welding Soc., **20** (1989) 332.
21. 李忠天, 姜春植: J. of the Korean Inst. of Mct. & Mater., **30** (1992) 664.
22. M. Nakahashi, M. Shirokane and H. Takeda: 日本金屬學會誌, **53** (1989) 1153.
23. 월간 세라믹스사: 월간세라믹스 97년 3월호, (1997) 120.