

## 수분 흡수로 인해 고분자 박막에서 발생하는 점탄성 응력 해석

이상순 · 장영철

한국기술교육대학교 메카트로닉스 공학부

### Viscoelastic Stress Analysis of Polymeric Thin Layer Under Moisture Absorption

Sang Soon Lee and Young Chul Chang

School of Mechatronics Engineering  
Korea University of Technology and Education

**초 록 :** 이 논문은 고분자 박막이 주변으로부터 수분을 흡수하게 될 때, 탄성 기판과 점탄성 박막의 계면 모서리에서 발생하는 응력 특이성을 다루고 있다. 계면에서 발생하는 응력을 조사하기 위해서 경계 요소법이 사용되고 있다. 주어진 점탄성 모델에 대해서 특이 차수가 수치적으로 계산된다. 이 논문에서 고려하고 있는 점탄성 모델에 대해서, 응력특이계수는 시간이 경과함에 따라 이완되고 있으나 특이 차수는 증가되고 있음을 보여준다.

**Abstract :** This paper deals with the stress singularity induced at the interface corner between the elastic substrate and the viscoelastic thin film as the polymeric film absorbs moisture from the ambient environment. The boundary element method is employed to investigate the behavior of interface stresses. The order of the singularity is obtained numerically for a given viscoelastic model. It is shown that the stress singularity factor is relaxed with time, while the order of the singularity increases with time for the viscoelastic model considered.

**Keywords:** Viscoelastic thin layer, moisture absorption, boundary element method, stress singularity factor the order of the singularity

### 1. 서 론

전자 산업에서 폴리이미드(polyimide)와 같은 고분자 박막이 절연층(dielectric insulating layer)의 기능을 요하는 분야에 매우 넓게 사용되고 있다. 기판(substrate)위에 입혀진 고분자 박막은 주변으로부터 수분을 흡수하는 성질이 있는데, 이러한 경우에 박막 내부에는 수분 흡수로 인한 변형이 발생하게 되고 나아가 잔류 수분응력이 존재하게 된다. 서로 다른 성질을 갖는 재료들이 결합되어 있는 구조물에 외력이 작용하게 되면 계면(interface)에는 복잡한 응력상태가 형성되고, 계면 모서리에는 특이 응력들이 존재한다는 것은 잘 알려져 있다<sup>1-4)</sup>. 이러한 특이 응력은 계면 모서리에서 결합

분리를 일으키거나 모서리 균열을 야기 시킬 수 있다. 응력 특이성의 정도는 결합 상태에 있는 두 재료의 물성의 차이에 따라 달라진다.

고분자 박막은 상온에서 탄성 거동 상태를 유지하게 되나, 주변의 습도가 높아져 수분 흡수가 상당량 있게 되면 점탄성 상태로 특성이 바뀌게 된다. 이때 박막은 시간 경과에 따라 기계 역학적 거동이 달라지는 현상을 나타낸다. 따라서 탄성 기판 위에 입혀져 있는 고분자 박막이 수분 흡수하게 될 때 나타나는 박리 현상을 이해하기 위해서는 점탄성 해석이 수행되어야 한다. 이 논문의 초점은, 점탄성 해석을 통해서 기판과 고분자 박막의 계면 모서리에서 나타나는 응력 특이성의 변화상태를 조사하는데 맞춰져 있다.

계면 응력의 점탄성 해석은 오래 전부터 활발히 진행되어 왔다. Weitsman<sup>5)</sup>은 에폭시 접착재가 주변으로부터 수분을 흡수하게 될 때 발생하는 계면 응력을 해석하였다. Delale과 Erdogan<sup>6)</sup>은 점탄성 재료로 결합된 램 조인트의 응력 분포의 해석을 시도하였다. 이들의 해석 결과에 의하면, 계면 응력들은 계면 모서리 부근에서 매우 커지고, 점탄성 영향으로 시간이 경과함에 따라 응력들의 재분포가 이루어 졌다. 그러나 이들이 계산 과정에서 사용한 가정들이 단순했기 때문에, 계면 모서리에서 나타나는 응력 특이성을 설명하는 특이 차수나 자유 모서리 응력확대계수에 대해서는 설명되지 못했다. 최근에 Lee<sup>7-10)</sup>는 횡방향 인장 변형률을 받고 있는 점탄성 재료의 계면 모서리에서 나타나는 응력 특이성을 경계요소법과 라플라스 변환, 그리고 벨린 변환을 결합하여 수치적으로 구하는 과정을 제시하였다.

이 논문에서는, 탄성 기판 위에 입혀져 있는 점탄성 박막에 수분이 흡수될 때 나타나는 계면응력 특이성을 조사하고 있다. 계면응력들의 분포에 대한 조사는 Lee와 Westmann<sup>11)</sup>이 발표한 경계요소법을 이용하여 수행되었다.

## 2. 특이차수 해석

점탄성 박막의 계면 모서리에 나타나는 특이 차수는 참고 문헌 7에서 설명한 방법을 확대 적용함으로써 얻을 수 있다. 기판은 선형 탄성체로 가정된다. Fig. 1은 점탄성 필름이 탄성 기판에 결합된 계면 모서리 부근을 보여 주고 있다. 그림에서 자유 표면(free surface)에는 아무런 표면력이 작용하고 있지 않고, 주변으로부터의 수분 침투가 박막에 작용하는 유일한 변화이다. 전자 패키지에서 사용하는 고분자 박막의 두께는 대체로 50 μm를 넘지 않는다. 이러한 박막에 외부의 수분이 침투했을 때 박막 내부에 나타나는 수분의 분포는 균일하다고 가정할 수 있다. 즉, 수분의 분포는  $m(x, t) = m(t)$ 로 가정한다. 또한, 박막과 주변사이의 수분 평형이 순식간에 이루어 진다고 가정한다. 즉,  $m(t) = m_{\infty}H(t)$ 이다. 여기서,  $m_{\infty}$ 는 주어진 주변의 상대 습도에서, 박막과 주변사이에 수분 평형이 이루어 졌을 때 박막이 흡수한 수분 양을 나타내고,  $H(t)$ 는 Heaviside 단위 계단함수를

가리킨다.

평면 변형률 상태에서, 특이 차수는 다음과 같은 응력 함수식으로부터 계산될 수 있다. 즉,

$$\nabla^4 \Phi(r, \theta; t) = 0 \quad (1)$$

또는, 위와 동등하게,

$$\nabla^4 \Phi(r, \theta; \xi) = 0 \quad (2)$$

식 (2)를 전개하는데 필요한 경계조건으로는,  $\theta = \pi/2$ 에서 수직 응력  $\sigma_{\theta\theta}$ 와 전단 응력  $\tau_{r\theta}$ 가 0이고,  $\theta = 0$ 에서 모든 변위 성분들이 0이다. 식 (2)에서  $\xi$ 는 환산 시간(reduced time)을 나타내는데, 다음과 같이 정의된다. 즉,

$$\xi = \xi(t) = \int_0^t \chi_m(m(\rho)) d\rho \quad (3)$$

식 (3)에서  $\chi_m$ 는 수분의 변화에 의존하는 이동 함수를 나타내는데, 실험에 의해 결정되는 재료의 물성이다. 일정한 수분변화  $\Delta mH(t)$ 에 대해서, 식 (3)의 환산 시간은 다음과 같이 쓸 수 있다.

$$\xi = \chi_m t \quad (4)$$

식 (2)는 환산 시간  $\xi$ 에 대한 라플라스 변환을 적용하여 다음과 같이 쓸 수 있다.

$$\nabla^4 \Phi^*(r, \theta; s) = 0 \quad (5)$$

식 (5)에서  $\Phi^*$ 는  $\Phi$ 의  $\xi$ 에 대한 라플라스 변환을 나타내고,  $s$ 는 변형 인자를 가리킨다.

참고문헌 3에 설명된 방법을 적용하면, 다음과 같은 특성 방정식이 구해진다.

$$\left[ (m_1(p) - m_2(p)) \cos^2\left(\frac{s\pi}{2}\right) - m_1(p)(s+1)^2 \right]^2 + m_3^2 \cos^2\left(\frac{s\pi}{2}\right) \sin^2\left(\frac{s\pi}{2}\right) - m_2^2(p)(s+1)^2 = 0 \quad (6)$$

식 (6)을 계산하면  $s$ 가 얻어진다. 식 (6)은 라플라스 변형 공간에서의 특성 방정식이므로, 시간

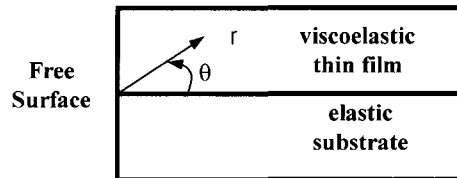


Fig. 1. Region near the interface corner between the elastic substrate and the viscoelastic thin film

공간으로 변환시켜야 한다. 이 논문에서는, 점탄성 모델에 대해서 다음과 같은 모델이 선택되었다.

$$K(\xi) = K_0$$

$$\mu(\xi) = g_0 + g_1 \exp(-\xi/t^*) \quad (7)$$

식 (7)에서,  $\mu(\xi)$  는 전단 이완계수를 나타내고,  $K(\xi)$  는 체적계수를 가리키며,  $g_0$  와  $g_1$ , 그리고  $K_0$  은 양수를 나타내며,  $t^*$  는 이완시간이다. 이 논문에서는, 박막의 점탄성 거동을 조사하기 위해서 다음과 같은 수치 값들이 가정 되었다. 실제적인 점탄성 물성을 적용한 해석은 향후 진행될 예정이다.

$$\begin{aligned} \mu(0) &= 1.0 \times 10^3 \text{ MPa} \\ \mu(\infty) &= 0.5 \times 10^3 \text{ MPa} \\ K_0 &= 2.0 \times 10^3 \text{ MPa} \\ t^* &= 10^2 \text{ min} \\ \chi_m &= 100 \end{aligned} \quad (8)$$

탄성 기판에 대해서는 다음과 같은 수치 값들이 사용되었다.

$$\begin{aligned} E &= 150 \text{ GPa} \\ \nu &= 0.3 \end{aligned} \quad (9)$$

Fig. 2는 실제 시간  $t$  영역에서의 특이 차수의 변화를 나타내고 있다. 점탄성 박막에 대한 특이 차수는 시간이 경과함에 따라 점차 커지다가 일정한 값에 수렴하고 있다. Fig. 2에 나타난 결과를 탄성

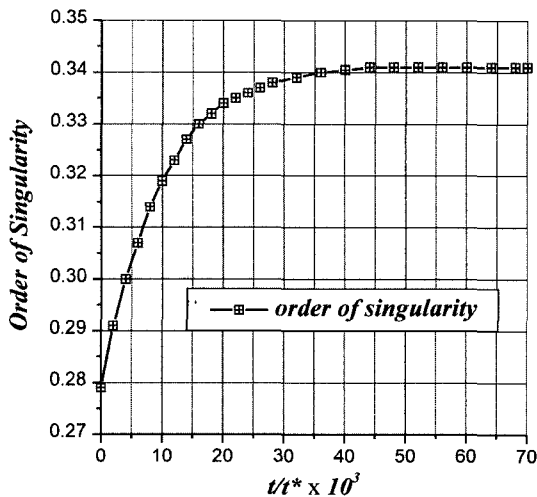


Fig. 2. Variation of the order of the singularity

박막과 비교하는 것은 흥미롭다. 전단계수가 각각  $\mu(0)$  와  $\mu(\infty)$  인 두 종류의 탄성 박막에 대한 특이 차수를 점탄성 박막의 결과와 비교하였다. 시간  $t = 0$  인 경우의 점탄성 박막의 특이 차수는 전단 계수  $\mu(0)$  인 탄성 박막의 특이 차수의 값과 일치하였다. 시간이 매우 많이 경과한 후, 점탄성 박막의 특이 차수는 전단 계수  $\mu(\infty)$  인 탄성 박막의 특이 차수의 값으로 수렴하였다. 점탄성 박막의 특이 차수는 두 경우의 탄성 박막에 대한 특이 차수 값들 사이에 있었다.

### 3. 경계요소법에 의한 해석

Fig. 3(a)는 탄성 기판 위에 입혀져 있는 점탄성 박막을 나타내는데, 박막에는 주변으로부터 수분 흡수가 발생하고 있다. 수분 변화이외의 다른 외부 하중은 없는 상태이며, 박막의 두께는  $h$ 이고 길이는  $2L$ 이다. 문제의 대칭성을 고려하여 박막 길이의 2분의 1만 모델링하면 된다. Fig. 3(b)는 박막에 나타나는 계면 응력 분포를 조사하기 위한 2차원 경계요소 모델을 나타낸다. 여기에서 박막은 평면 변형률 상태에 있다고 가정한다. 수치해석은  $L/h = 25$  에 대해서 수행한다.

수분 흡수 영향은 온도 변화 영향과 유사하다고 가정되었다. 따라서, 참고문헌 11에서와 같이, 박

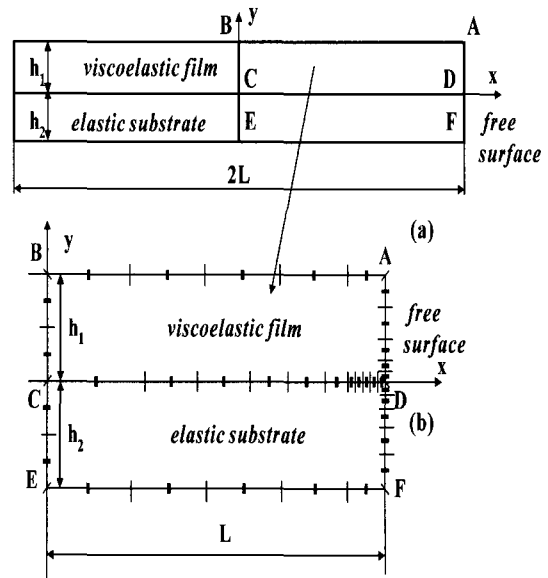


Fig. 3. Boundary Element Analysis Model

막내의 균일한 수분 변화  $\Delta mH(t)$  는  $\gamma(t)n_j$  에 해당하는 표면력(traction)의 증가와 동등한데,  $\gamma(t)$  는 다음과 같이 주어진다.

$$\gamma(t) = 3K\beta\Delta mH(t) \tag{10}$$

식 (10)에서,  $K$ 는 체적 계수를 나타내고,  $n_j$ 는 경계면 위에서 단위 바깥방향 법선의 성분들을 가리키며,  $\beta$ 는 박막의 수분 팽창계수를 나타낸다.

박막 내에서의 수분 변화가 균일한 경우에, 박막에 대한 경계적분 방정식은 실제 시간  $t$ 보다, 환산 시간  $\xi$ 에 대해서 기술하는 게 편리하다. 어떤 체력도 존재하지 않는다는 가정아래, 주어진 해석 모델에 대한 경계적분 방정식은 다음과 같이 주어진다<sup>9)</sup>.

점탄성 박막에 대해서,

$$\begin{aligned} & c_{ij}(\mathbf{y})u_j(\mathbf{y}, \xi) \\ & + \int_S [u_j(\mathbf{y}', \xi)T_{ij}(\mathbf{y}, \mathbf{y}'; 0+) \\ & \int_{0+}^{\xi} u_j(\mathbf{y}', \xi - \xi') \frac{\partial T_{ij}(\mathbf{y}, \mathbf{y}'; \xi')}{\partial \xi'} d' \xi'] dS(\mathbf{y}') \\ & = \int_S [t_j(\mathbf{y}', \xi)U_{ij}(\mathbf{y}, \mathbf{y}'; 0+) \\ & \int_{0+}^{\xi} u_j(\mathbf{y}', \xi - \xi') \frac{\partial U_{ij}(\mathbf{y}, \mathbf{y}'; \xi')}{\partial \xi'} d' \xi'] dS(\mathbf{y}') \\ & + \int_S [\gamma(\xi)n_j U_{ij}(\mathbf{y}, \mathbf{y}'; 0+) \\ & \int_{0+}^{\xi} \gamma(\xi - \xi')n_j \frac{\partial U_{ij}(\mathbf{y}, \mathbf{y}'; \xi')}{\partial \xi'} d' \xi'] dS(\mathbf{y}') \end{aligned} \tag{11}$$

탄성 기판에 대해서,

$$\begin{aligned} & c_{ij}(\mathbf{y})u_j(\mathbf{y}, \xi) \\ & + \int_S u_j(\mathbf{y}', \xi)T_{ij}(\mathbf{y}, \mathbf{y}') dS(\mathbf{y}') \\ & = \int_S t_j(\mathbf{y}', \xi)U_{ij}(\mathbf{y}, \mathbf{y}') dS(\mathbf{y}') + \\ & \int_S \gamma(\xi)n_j U_{ij}(\mathbf{y}, \mathbf{y}') dS(\mathbf{y}') \end{aligned} \tag{12}$$

식 (11)과 (12)에서,  $u_j$  와  $t_j$  는 각각 변위와 표면력 벡터를 나타내고,  $S$ 는 해석 모델의 경계면을 가리킨다.  $c_{ij}$  는 경계면의 기하학적 조건에 의해 결정되는 항이고,  $U_{ij}$  와  $T_{ij}$  는 기본해를 나타낸다. 식 (11)과 (12)는 수치적으로 처리될 수 있는데, 시간 적분에 대해서는 변형된 심프슨 공식을 사용하

고, 경계면에 대해서는 2차 선 요소를 사용하면 정확하고 효율적인 계산이 수행될 수 있다<sup>11)</sup>.

식 (12)에 외부 경계조건들을 적용하여 풀면, Fig. 3(b)의 해석 모델에 대한 경계면에서의 변위와 표면력 또는 응력들이 얻어진다. 얻어진 해를 실제 시간으로 전환하면 최종 해가 얻어진다. 수치 해석을 수행하는 과정에서, 식 (8)과 (9)로 주어진 값들 이외에, 다음의 수치 값들이 추가로 사용되었다. 즉

$$\begin{aligned} \Delta m &= 1\% \text{ (by weight)} \\ b &= 0.01/\text{wt}\% \end{aligned} \tag{13}$$

Fig. 3(b)는 23개의 2차 선 요소로 이루어진 경계요소 해석 모델이다. 큰 응력 구배가 나타나는 계면 모서리 근처에는 세밀한 요소들이 사용되었다. 계면 응력들이 구해지면 다음 식을 이용하여 계면 모서리에서의 응력특이계수를 구할 수 있다<sup>12)</sup>.

$$K_{ij} = \lim_{r \rightarrow 0} \left( \frac{r}{h} \right)^{1-\lambda} \sigma_{ij}(r, \theta; t) |_{\theta=0} \tag{14}$$

식 (14)는 응력단위를 갖는 양이다. Fig. 4는 응력특이계수가 시간의 경과에 따라 변화되는 모양을 보여주고 있다. Fig. 4에서 볼 때,  $K_{xx}$  와  $K_{xy}$  는 모두 시간이 경과함에 따라 절대 값들이 점차 작

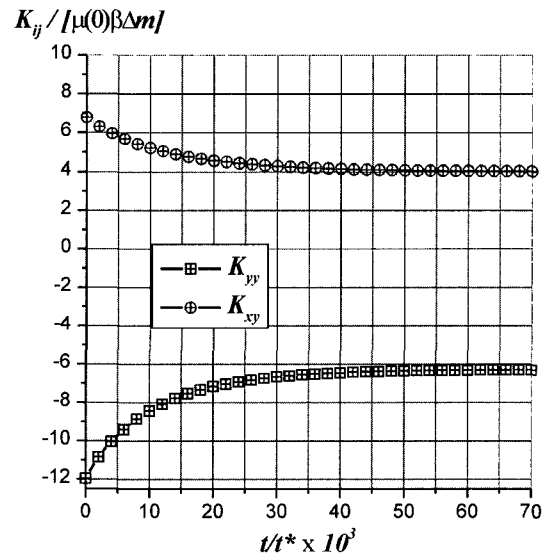


Fig. 4. Variation of stress singularity factors

이지다가 일정한 값으로 수렴하고 있다. 현재의 수치해석 결과에 따르면, 수분 흡수로 인한 박리 현상은 모서리에서 박리를 발생시키려는 전단 응력과 이를 억제하려는 압축응력과의 상대적인 크기에 영향을 받는다고 볼 수 있다. 그러나 현재의 해석 결과에 의해서는 두 응력의 상대적인 크기와 박리의 발생정도의 관계에 대해서는 정확한 예측이 가능하지 않다고 보여진다. Fig. 2와 Fig. 4를 비교해 볼 때, 응력특이계수는 시간의 경과에 따라 점차 이완되다가 일정한 값으로 수렴하는 반면, 특이 차수는 점차 증가되다가 일정한 값으로 수렴하고 있다. 이러한 특이 차수의 증가와 응력 특이계수의 이완 중 어느 부분이 실제 결합분리나 국부 항복에 더 큰 역할을 하는지를 알기 위해서는 실험적인 뒷받침이 요구된다고 보여진다.

#### 4. 결 론

기판 위에 입혀져 있는 얇은 점탄성 박막이 주변으로부터 수분을 흡수하게 될 때, 계면 모서리에 발생하는 응력 특이성이 조사되었다. 계면에 발생하는 응력해석은 시간 영역 경계요소법을 적용하여 수행되었는데, 계면 모서리에는 매우 큰 응력 구배가 나타났다. 이러한 특이 응력들은 박막의 길이나 두께에 비교해 비교적 작은 범위에 걸쳐 나타나고 있으며, 시간의 경과에 따라 이완되는 경향을 보여주고 있다. 특이 차수는 점탄성 박막의 물성이 변함에 따라 점차 증가하다가 일정한 값으로 수렴하였다. 경계요소법에 의해 얻어진 응력들과 특이 차수를 사용하여 계산된 응력특이계수는 초기 값에서 점차 이완되다가 일정한 값으로 수렴되는 현상을 보여 주었다.

수분 흡수로 인해 고분자 박막의 계면 모서리에 나타나는 응력 특이성은 피할 수 없는 현상으로, 수분 흡수가 많게 되거나, 계면 모서리 부근에서 결합 상태가 건전하지 않으면 외력이 작용하지 않는 상태에서도 모서리 균열이 발생하거나 결합 분리 현상이 나타날 수 있다. 해석 과정에서 점탄성 물성이 시간의 경과에 따라 변할 때, 특이 차수는 증가하고 응력특이계수는 이완되어 가는데, 이러한 두 현상중 어느 부분이 필름의 건전성에 더 큰 영향을 주는지를 확인할 수 있는 실험적인 검증이 요구된다고 판단된다.

#### 감사의 글

본 연구는 한국과학재단 목적기초연구(R05-2002-000-01268-0(2002))지원으로 수행되어진 것으로 이에 관계자 여러분께 감사드립니다.

#### 참고문헌

1. E.D. Reedy, Jr., "Intensity of the stress singularity at the interface corner between a bonded elastic and rigid layer," *Engineering Fracture Mechanics*, 36, 575 (1990).
2. M.Y. Tsai and J. Morton, "The stresses in a thermally loaded bimaterial interface," *Int. J. Solids and Structures*, 28, 1053 (1991).
3. D.B. Bogy, "Edge-bonded dissimilar orthogonal elastic wedges under normal and shear loading," *ASME J. Applied Mechanics*, 35, 460 (1968).
4. 송기남, "이종재료로 구성된 영역의 응력장 해석 개선방안 연구," *대한기계학회논문집 (A)*, 21(11), 1844 (1997).
5. Y. Weitsman, "Interfacial stresses in viscoelastic adhesive layers due to moisture sorption," *Int. J. Solids and Structures*, 15, 701 (1979).
6. F. Delale and F. Erdogan, "Viscoelastic analysis of adhesively bonded joints," *ASME J. Applied Mechanics*, 48, 33 1(1981).
7. S.S. Lee, "Boundary element analysis of the stress singularity at the interface corner of viscoelastic adhesive layers," *Int. J. Solids and Structures*, 35, 1385 (1998).
8. S.S. Lee, "Free edge stress singularity in a two dimensional unidirectional viscoelastic laminate model," *ASME J. Applied Mechanics*, 64, 408 (1997).
9. 이 상순, "전단 하중하의 반도체 칩 접착계면의 특이 응력 해석," *마이크로전자 및 패키징학회지*, 7(4), 31(2000).
10. 이 상순, "반도체 칩 접착계면의 모서리 균열에 대한 경계요소 해석," *마이크로전자 및 패키징학회지*, 8(3), 25 (2001).
11. S.S. Lee and R.A. Westmann, "Application of high-order quadrature rules to time domain boundary element analysis of viscoelasticity," *Int. J. Numerical Methods in Engineering*, 38, 607 (1995).
12. S.S. Wang and Choi, I., "Boundary layer effects in composite laminates, Part 2: Free edge stress solutions and basic characteristics," *ASME J. Applied Mechanics*, 49, 549 (1982).