

가스반응법으로 제작된 Al-ALN 복합재의 제 2상 분율과 기공에 따른 열팽창계수 예측

윤주일*.#

*한성대학교 기계시스템공학과

Prediction of Thermal Expansion Coefficients using the Second Phase Fraction and Void of Al-ALN Composites Manufactured by Gas Reaction Method

Juil Yoon*.#

*Department of Mechanical System Engineering, Hansung UNIV.

(Received 22 February 2019; received in revised form 1 March 2019; accepted 9 March 2019)

ABSTRACT

The advent of highly integrated, high-power electronics requires low a coefficient of thermal expansion performance to prevent delamination between the heat dissipation material and substrate. This paper reports a preliminary study on the manufacturing technology of gas reaction control composite material, focusing on the prediction of the thermal expansion coefficients of Al-ALN composite materials. We obtained numerical equivalent property values by using finite element analysis and compared the values with theoretical formulas. Al-ALN should become the optimal composite material when the proportion of the reinforcing phase is approximately 0.45.

Key Words : Al-ALN Composite(Al-ALN복합재), Thermal Expansion(열팽창), CTE(열팽창계수), Finite Element Method(유한요소법), Gas Reaction Control(가스제어반응)

1. 서 론

최근의 전자기기는 경량화, 박형화, 소형화, 다기능화가 추구하고 있으며, 이러한 추세는 LED 산업에서도 마찬가지로 적용되고 있다¹⁻²⁾. 기존의 백색광을 대체하기 위해서는 고집적, 고효율의 LED 제품에 대한 연구가 필수적이다. LED의 경우 다른 전자기와 마찬가지로 고효율화 됨에 따라 열에너지 손실이 증가하게 되며 총에너지의 약

85%가 열에너지의 형태로 손실되고 있다. 고온의 방출 열로 인해 접합부의 온도가 계속 증가함으로써 LED 반도체의 수명저하를 일으킨다. 평균적으로 오작동이 일어나는 시간은 소자 작동 온도와 상관성이 있으며, 작동 온도가 10℃ 상승할 때 수명은 2배 감소하는 것으로 알려져 있다. 이를 막기 위해서 고효율 LED의 경우 고방열 기판을 사용하고 있으며, 이에 따라 고방열 소재에 대한 수요가 급격하게 증가하고 있다.

이러한 LED 방열 문제 해결 방안으로 진행되고 있는 연구로는 우수한 열전도성 방열 설계 개발과

Corresponding Author : juiyoon@hansung.ac.kr

Tel: +82-02-760-8008, Fax: +82-02-760-4329

Copyright © The Korean Society of Manufacturing Process Engineers. This is an Open-Access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution-Noncommercial 3.0 License (CC BY-NC 3.0 <http://creativecommons.org/licenses/by-nc/3.0/>) which permits unrestricted non-commercial use, distribution, and reproduction in any medium, provided the original work is properly cited.

소재 개발로 구성된다. 방열 설계 연구방향으로는 우수한 열전도성의 TIM 개발, 히트파이프 또는 강제 대류방식 설계 또는 열전도성이 우수한 방열소재 개발 등이 국내외에서 진행되고 있다^{3,4)}. 하지만 LED 방열과 관련된 연구는 우수한 열전도성을 지닌 방열소재를 사용하여 히트싱크 형상과 배열을 효율적으로 설계하여 방열특성을 높이는 연구에 한정되고 있다. 다른 한편으로는 방열 재료자체의 개발을 통한 방열문제 해결이 진행되고 있다.

전기제품군의 방열 재료로는 탄소재료나 세라믹 소재 같은 고열전도성 필러 소재와 고분자 소재가 혼합된 복합 소재가 주류를 이룬다. 열전도성 고분자는 기존 고분자 재료의 장점인 용이한 가공성, 저비용, 경량화, 제품형태의 다양성 등을 그대로 유지하면서 금속과 세라믹 재료의 특성을 부여할 수 있다. 또한 복합 소재를 사용하는 이유는 고열전도성 무기 필러 소재가 열전도성이 우수하나 접착력이 없고 고분자 소재는 접착력은 우수하나 열전도성은 낮기 때문이다.

일반적으로 LED 방열소재는 열전도도가 높은 재료인 알루미늄, 구리, 은과 같은 금속이 주로 사용되고 있다. 그 중 알루미늄은 경량설계가 가능하고 낮은 온도에 의한 가공공정의 우수성 때문에 더욱 널리 사용되고 있다. 하지만 알루미늄 방열판(Heat Sink)은 InP, GaN와 같은 LED 소자에 비해 열팽창계수가 5배 이상 크기 때문에 작동온도가 상승함에 따라 LED 소자와의 접촉면에서 발생하는 열응력에 의한 부품 수명 단축되는 단점이 있다. 이러한 이유로 최근 들어 이와 같은 단점을 보완하고자 알루미늄 기지에 SiC, TiN 등과 같은 세라믹 입자를 섞어 재료의 열팽창계수를 줄인 금속기지 복합재를 이용해 방열소재를 만들기 위한 연구가 활발히 진행되었다^{5,6)}. 대표적으로 Al기지 SiC 복합재의 경우 SiC의 분율을 50% 이상으로 늘려 열팽창계수를 사파이어 기판의 열팽창계수만큼 감소시켰다는 보고가 있다. 하지만 Hou의 연구에 따르면 고온에서 SiC 입자가 분해됨으로써 Al-SiC 접합계면에 금속간 화합물이 형성되거나 이중 원소가 석출되기 때문에 계면의 취성이 증가하고 재료의 열전도도가 급격히 감소하는 단점을 지니고

있다.

이러한 선행 연구에 기초하여 본 연구는 새로운 복합재 제조기술인 가스반응 제어 복합소재 제조 기술을 적용하여 Al-AIN 복합재를 제조할 시 2상인 AIN의 분율에 따른 열팽창계수를 예측하여 제조공정변수 기초자료 구축하는 것이다. 2장에서는 가스반응 제어 복합소재 제조 기술에 대한 간략한 소개를 하였고 3장에서는 금속 복합소재의 유효 열팽창 계수의 이론식과 유한요소해석에 대하여 소개하였다. 4장에서는 강화상의 분율에 따른 Al-AIN 복합재의 열팽창계수에 대한 연구를 수행하였다. 또한 복합재 내의 기공분율에 의한 열팽창계수에 미치는 효과가 어느 정도인지에 대하여 연구를 수행하였다. 가스반응 제어 복합소재 제조시 발생하는 기공은 최종 제품의 유효열팽창계수에 미치는 영향이 유의미하다는 사실을 확인하였다. 최종적으로 등가 물성치 예측을 통하여 최적 분율의 값을 도출하였으며 이를 통하여 복합소재 개발의 공정설계 변수로 활용할 수 있을 것으로 기대한다.

2. 가스반응 제어 복합소재 제조 기술

복합소재란 두 종류 이상의 소재를 이용하여 소재의 원래의 상을 유지하면서 서로의 특성을 상호 보완하여 원래의 소재보다 우수한 성능을 갖도록 한 재료를 말한다. 이러한 복합소재 제조기술은 일반적으로 모재와 강화상 (또는 제 2상)을 각각 독립적으로 제조하여 공정 중에 물리적으로 혼합하는 방식으로 이루어진다. 이러한 방식은 불완전한 계면(Interface), 복잡한 공정, 경제적 문제 등이 단점이 될 수 있다. 이러한 복합소재 제조 기술의 본질적인 문제를 해결하기 위하여 본 연구단에서는 가스 반응 중에 모재(Al)에서 강화상(AIN)이 자발 반응을 통하여 생성되도록 함으로써 공정의 단순화와 계면의 불균질성 등을 극복하고자 하였다. 구체적으로 가스반응 제어 복합소재 제조 기술이란 Mg 촉매를 포함하는 Al 용탕에 N₂ Gas를 주입하는 직접 질화법에 의해 AIN을 제조하여 Al-AIN 복합재를 제조하는 방식을 말한다.

AIN은 SiC와 유사한 열팽창계수를 가지면서도

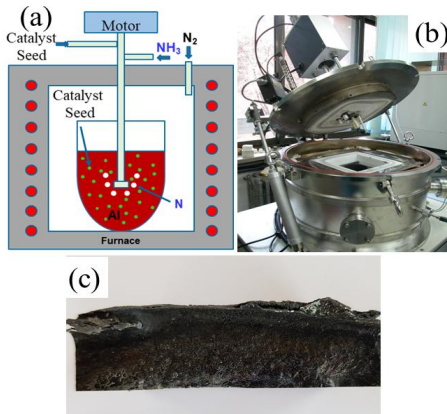


Fig. 1 (a) The schematic drawing of mechanism of melting machine, (b) Melting machine for high temperature and pressure casting (c) Photos of as-cast samples of Al-ALN composites

고온에서 알루미늄과의 반응성이 거의 없는 고열전도 세라믹 물질이다. 특히나 고온에서 Al 용탕과 질소 가스반응을 통한 AlN의 형성이 열역학적으로 안정한 자발반응으로 알려져 있다⁷⁾. 용탕 Al에서 AlN을 합성하기 위한 공정조건으로, 온도는 800 ~ 1200°C, N₂ 가스압력은 2 기압(atm)을 사용한다. 이와 같은 실험조건을 제공하기 위해 Fig. 1에서 제시된 주조 반응기를 사용하여 압력을 제어하였다.

이 주조반응기는 공급가스와 배출가스의 차이를 조절하여 N₂ 압력을 제어한다. 또한, 챔버 내부에 코일을 이용한 전자기유도에 의한 온도 구배를 형성시켜 Al 기지 내의 AlN의 농도 구배가 용이할 수 있도록 하였다. 이 주조반응기의 최고 온도는 1500°C이며, 최대 N₂ 가스 압력은 3 기압(atm)까지 적용할 수 있다. 특히나 AlN 반응을 결정하는 핵심적인 공정 변수들은 온도, 촉매의 조성, 반응시간, 그리고 질소의 분압이다. 이러한 공정 변수에 의하여 Al-ALN 복합재내의 강화상인 AlN복합재의 분율이 결정된다.

3. 이론 모델 및 수치해석 모델

Table 1 Explicit expressions of coefficients of thermal expansion for the composite

	Theoretical Model
Voigt Model	$\alpha_{eff} = \frac{fE_f\alpha_f + (1-f)E_m\alpha_m}{E_f\alpha_f + E_m\alpha_m}$
Reuss Model	$\alpha_{eff} = fE_f\alpha_f + (1-f)E_m\alpha_m$
Turner Model	$\alpha_{eff} = \frac{fB_f\alpha_f + (1-f)B_m\alpha_m}{B_f\alpha_f + B_m\alpha_m}$

3.1 이론모델 - 유효 열팽창 계수

복합재의 유효 열팽창 계수 예측에 대한 다양한 연구 중 대표적으로 혼합물 모델(Mixture Rules)에 기초를 둔 Voigt 모델과 Reuss 모델이 있다.⁸⁾ 이 모델은 균일 변형을 또는 응력 가정 하에 유도되었으며, 일축 섬유강화 복합재의 예측에 적합하다. 이방성 혼합물에 적합한 모델로는 이질적인 소재 간의 경계에서의 기계적 작용을 고려한 Turner 모델과 유효 탄성계수값을 이용한 Levin 모델이 존재한다.^{9,10)} 그 외에도 N개의 복합물질의 혼합을 고려한 Budiansky 모델을 들 수 있다.

본 연구에서는 Voigt 모델, Reuss 모델, Turner 모델을 수치해석 모델의 비교모델(Table 1)로 사용하여 수치해석 모델과 이론 모델의 비교 검토를 수행하였다. 여기서 f 는 복합재에서 모재에 대한 강화상의 부피 분율이다. 예를들어 $f = 1$ 면 강화상으로만 이루어진 복합재이며, $f = 0$ 의 경우는 모재로만 구성된 복합재의 경우가 된다. 또한 E_f 은 강화상(AlN)의 탄성계수이고, E_m 은 모재(Al)의 탄성계수이다. 마찬가지로 a_f 은 강화상의 열팽창계수이고, a_m 은 모재의 열팽창계수이다. B_f , B_m 은 각각 강화상과 모재의 체적 탄성계수이다.

3.2 수치해석 모델

본 연구에서는 원형 강화상이 포함된 복합재의 유닛셀(Unit Cell)에 대한 유효 열팽창계수를 구하기 위한 열-기계적 연성해석을 수행하였다. 사용된 하중 조건은 해석모델의 전 영역에 걸쳐 단위 온도구배를 발생시키고 이에 대한 변위를 측정하는

방식이다. 이때 선형 열팽창계수 (Coefficient of Thermal Expansion: C.T.E.)는 다음식으로 표현된다.

$$\alpha_{ij} = \frac{\Delta \epsilon_{ij}}{\Delta T} \quad (1)$$

경계조건으로는 Fig. 2에서와 같이 좌우, 상하면에 대하여 주기적 경계조건(Periodic Boundary Condition: PBC)을 부여 하였다. 가스반응제어에 의하여 제조될 Al과 AlN의 기본 물성값은 Table 2에 정리하였다. 또한 유한요소 해석은 원형 강화상 가정과 그리고 강화상과 모재사이의 접촉이 완벽하다는 가정, 기공(void)이 없다는 가정 하에 일차적으로 수행되었다.

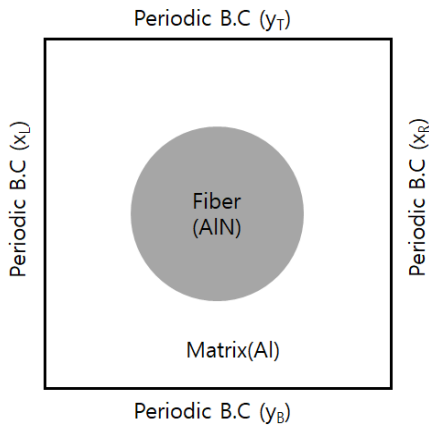


Fig. 2 FEM Modeling of Al-AlN Composites

Table 2 Material Property for FEM analysis

	Property	Value
Al	Young's Modulus: E_m (GPa)	69
	Poisson's Ratio: ν_m	0.33
	Thermal Conductivity: K_m (W/m·k)	230
	CTE (ppm/K): α_m	24
ALN	Young's Modulus: E_f (GPa)	320
	Poisson's Ratio: ν_f	0.25
	Thermal Conductivity: K_f (W/m·k)	180
	CTE (ppm/K): α_f	5

4. 해석결과 및 고찰

4.1 FEM해석모델과 이론해의 비교

우선적으로 FEM해석모델과 이론모델의 비교를 통하여 해석모델의 유효성을 검증하였다. 강화상과 모재의 열팽창계수비(a_f/a_m)가 0.145, 0.208, 0.3, 0.4, 0.5, 0.7, 0.85, 1인 경우에 대하여 복합재의 유효열팽창 계수를 유한요소해석을 통하여 구하였다. Fig. 3에서 같이, 모재의 열팽창계수가 강화상의 열팽창계수보다 큰 경우($a_f/a_m < 1$) 유효열전달계수(a_{eff}/a_m)는 1보다 작은 값을 나타냈다. 당연한 결과지만 유효열팽창계수를 감소시키고자 할 때, 강화상의 열팽창계수와 모재의 열팽창계수의 차이가 클 때 더욱 효과적이다.

해석결과를 이론 모델과 비교하여 보면 본 복합재의 해석결과는 Voigt 모델과 가깝게 나왔다. 참고로 이방성 성질을 고려한 Turner 모델의 경우 본 해석과 상당한 차이를 보였다. 또한 특별한 경우로 모재와 강화상의 열팽창계수가 같은 경우 ($a_f/a_m=1$)는 FEM 해석결과와 Voigt 모델결과와 Reuss 모델결과는 일치하였다. 실제로 본연구의 타겟이 되는 Al-AlN의 경우 강화재와 모재의 열팽창계수 비율(a_f/a_m)이 0.208 경우로 유한요소해석모델에 의하여 구하여진 정규화된 유효열전달 계수 (a_{eff}/a_m)값은 이론모델식의 유효범위 내에 존재함을 확인 할 수 있다.

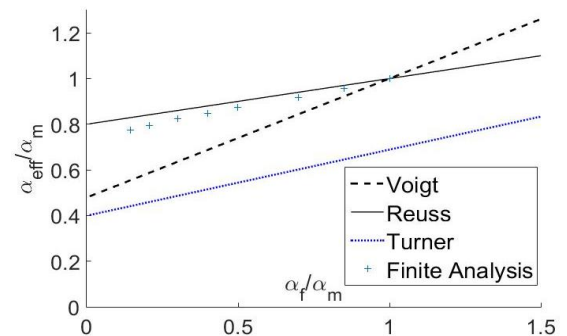


Fig. 3 Comparison between Effective coefficient of thermal expansion by calculated by FEM Modeling and those by various theoretical modeling

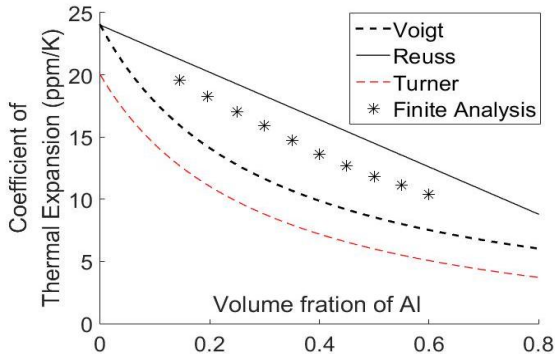


Fig. 4 Comparison between Coefficient of thermal expansion calculated by FEM Modeling and those by various theoretical modeling ($E_f/E_m=4.64$)

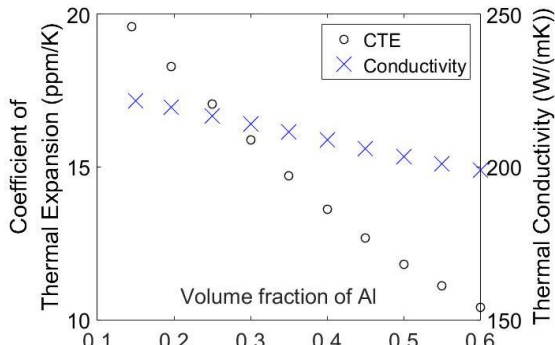


Fig. 5 Coefficient of thermal expansion and Thermal conductivity v.s. fraction ratio of AlN in Al/AlN Composite

가스반응 복합소재 제조에서 공정변수의 변화에 따라 강화상의 분율, 분산정도 등이 조절된다. 강화상의 분율 비율에 따른 유효 열팽창계수의 효과를 분석하기 위하여 Al-ALN 복합재의 경우 ($a_{Al}=24\text{ppm/K}$, $a_{AlN}=5\text{ppm/K}$)에 대하여 분율별 해석을 수행하였고 이를 이론모델과 비교하여 Fig. 4에 도시하였다.

강화상인 AlN의 분율이 증가함에 따라 가스 반응 복합재의 열팽창계수가 비교적 선형적으로 감소하고 있다. 이는 AlN의 열팽창계수가 Al에 비하여 작기 때문이다. 실제로 AlN을 강화상으로 본 과제에서 선택한 이유는 AlN의 작은 팽창계수

(C.T.E) 때문이다. LED 방열소재로 사용하기 위하여 개발되는 Al-ALN 복합재가 열팽창계수와 비교적 높은 열팽창 계수를 가지려면 가능한 높은 분율의 AlN이 유리하다. 반면에 본 저자의 기존 논문^[7]에서 연구한 열전달계수 측면에서는 AlN의 비율이 증가할수록 열전도 성능이 저하되기 때문에 분율에 따른 열팽창계수와 열전도계수에 대한 분석이 필요하며 이를 Fig. 5에 도시하였다.

결과적으로 본 연구과제의 목표인 복합재의 열전달계수가 200W/mk 이상을 유지하면서 최소의 CTE값을 얻기 위해서는 AlN 강화상의 부피 분율 f 은 0.45정도로 제조하는 경우가 적당하다. 이 경우의 열팽창계수는 대략 12.5ppm/K 이다. Fig. 5를 보면 AlN의 분율에 따라 열전도계수의 감소폭이 열팽창계수의 감소폭보다 적음을 확인할 수 있다. 따라서 열전달계수의 손해를 조금 더 감수하고 더 낮은 열팽창계수(예를 들어 11ppm/K)의 제조도 충분히 가능함을 확인할 수 있다.

4.2 제조과정의 기공 분율에 의한 효과

대부분의 이론모델과 해석모델의 경우 제조시의 기공(Void)과 같은 결함이 전혀 없다고 가정하고 유효열팽창계수를 예측한다. 하지만 실제 제조시 공정조건에 따라 기공의 발생은 어느 정도 감수해야 한다. 따라서 실제 제조될 Al-ALN 복합재의 유효열팽창 계수에 이러한 기공 분율에 의한 효과가 미치는 영향을 분석하기 위하여 기공 분율이 전혀 없는 경우, 그리고 기공 분율이 0.8%, 4.9%인 경우에 대하여 각각 유효 열팽창 계수 값의 변화를 분석하였다.

세 가지 경우에 대하여 강화상과 모재의 탄성계수비의 증가에 따라 모두 유효열팽창계수는 감소함을 Fig. 6에서 확인할 수 있다. 실제 제조될 Al-ALN 복합재의 경우 강화상과 모재의 탄성계수비(E_f/E_m)는 4.63이며, 이 경우의 유효열팽창계수비(a_{eff}/a_m)는 기공분율에 따라 각각 0.772(Void 0%), 0.778(Void 0.8%), 0.783(Void 4.9%)이다. 즉 기공이 전혀 없는 경우에 대하여 기공 4.9%의 경우 대략 열팽창계수가 14%정도 증가함을 확인할 수 있다. 따라서 실제로 Fig. 5에서 분석한 바와 같이 AlN 분율 0.45인 경우 기공(4.9%)이 존재하게 되면 열

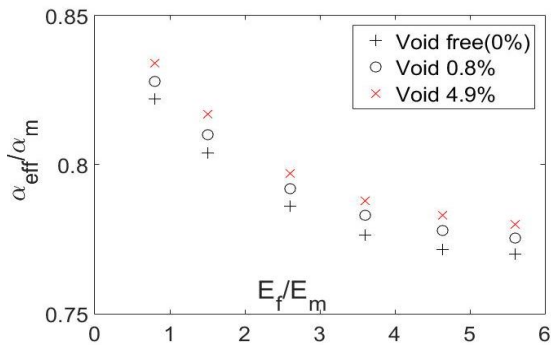


Fig. 6 Thermal expansion coefficient vs ratio of Elastic modulus: (a) Void free (0%), (b) Void 0.8%, (c) Void 4.9%

팽창계수는 14.2ppm/K의 복합재로 판단된다. 따라서 기공의 분율에 따라 Al-AIN 복합재의 물성변화가 유의미하게 발생하므로 제조공정시 기공 분율을 1~2% 미만으로 유지하는 것이 필요할 것으로 판단된다.

5. 결론

질화반응에 기반을 둔 가스반응제어 복합재 제조 기술에 의하여 제조된 Al-AIN 복합재의 열팽창 특성에 대한 연구를 수행하였고 다음과 같은 결론을 도출하였다.

1. LED 방열소재로서 사용하기 위하여 일반적으로 제시되는 200W/m² 이상의 열전도계수를 얻으면서 소의 열팽창계수를 얻기 위해서는 AlN 분율 0.45정도이다. 이 경우 Al-AIN 복합재의 열팽창계수는 약 12.5ppm/K 정도로 개발목표인 15ppm/K 이하를 충족한다.
2. AlN 분율 증가에 의한 열팽창계수의 감소폭이 열전도계수 감소폭보다 크기 때문에 열전도계수의 감소를 감내하고도 더 낮은 열팽창계수의 복합재를 개발하고자 한다면 AlN 분율을 조금 더 증가시키는 제조공정도 가능할 것으로 판단된다.
3. 가스 반응시 발생하는 기공에 의한 효과는 기공 분율 4.9% 시 약 14% 정도의 열팽창계수 증가로 이어진다. 따라서 제조 공정시 기공분율을

1~2% 정도로 유지할 필요가 있을 것으로 판단된다.

4. 가스반응제어로 LED 방열소재를 개발시 반응 시간을 제어하여 질화반응을 조절함으로써 AlN 강화상의 분율을 조절할 수 있으며 이를 통해서 복합재의 열-기계적 특성인 열팽창계수와 열전도계수를 조절할 수 있다.

후 기

“이 논문은 한성대학교 연구비 지원과제로 연구 되었음.”

REFERENCES

1. Krames, M. R., Shchekin, O. B., Mueller-Mach, R., Mueller, G. O., Zhou, L., Harbers, G., Craford, M. G., “Status and Future of High-Power Light-Emitting Diodes for Solid-State Lighting”. J. Disp. Tech., Vol. 3, pp. 160-175, 2007.
2. “LED Lighting Technology Lessons from the USA,” Report of a global watch mission March 2006.
3. Kim, D. U., Chung, H. S., Jeong, H. M., Yi, C. S., “An Experimental Study on the Temperature Distribution according to the Heat Sink Height of 30W LED floodlight”, Journal of the Korean Society of Manufacturing Process Engineers, Vol. 16, pp. 150-156, 2017.
4. Cho, Y. T., Lee, C. H., “Performance Evaluation of Heat Radiant for 50W LED by the CNT Thermal Interface Material”, Journal of the Korean Society of Manufacturing Process Engineers, Vol. 6, pp. 23-29, 2014.
5. Zweben, C., “Advances in composite materials for thermal management in electronic packaging”, Journal of the Minerals, Metals and Materials Society, Vol. 50, pp. 47-51, 1998
6. Hou, Q., Mutharasan, R., Koczak, M., “Feasibility of aluminium nitride formation in aluminum

- alloys”, *Materials Science and Engineering A*, Vol. 195, pp. 121-129, 1995
7. Yoon, J., “Prediction Thermo-mechanical Characteristics due to 2nd Phase Fraction of Al-AlN Composite for LED Heat Sink using FEM”, *Journal of the Korean Society of Manufacturing Process Engineers*, Vol. 17, No. 5, pp. 137-142, 2018.
 8. Ruess, A., “Micromechanical Analysis of Thermal Expansion Coefficients”, *Modeling and Numerical Simulation of Material Science*, Vol. 4, pp. 104-118, 2014.
 9. Turner, P. S., “Thermal Expansion Stresses in Reinforced Plastics”, *Journal of Research of the National Bureau of Standards*, Vol. 37, pp. 239-250, 1946.
 10. Levin, V. M., “Thermal Expansion Coefficient of Heterogeneous Materials”, *Mechanics of Solids*, Vol. 2, pp. 58-61, 1967.