白光LED用铝/氧化铝复合陶瓷基板 铝表面层形貌及光学特性

费 盟 傅仁利 张鹏飞 杨 扬 蔡君德 冯翔宇

南京航空航天大学材料科学与技术学院,江苏南京 210016

Aluminum Surface Morphologies and Optical Properties of Al/Al₂O₃ Composite Ceramic Substrate for White LEDs

Fei Meng Fu Renli Zhang Pengfei Yang Yang Cai Junde Feng Xiangyu ¹College of Materials Science and Technology, Nanjing University of Aeronautics and Astronautics,

Nanjing, Jiangsu 210016, China

Abstract The bonding of aluminum film with coated copper alumina substrate is realized by brazing technology. The new type Al/Al_2O_3 composite ceramic substrate with high thermal conductivity is successfully prepared. Mechanical polishing, chemical polishing and electrolytic polishing methods are carried out for aluminum film polishing on the surface of composite substrate. Research results show that all of these polishing methods can improve the aluminum film surface roughness and enhance the reflective rate of aluminum film. Moreover, the sample processed by chemical and electrolytic polishing method has the lowest surface roughness and highest reflective rate compared with other polishing methods.

 $\label{eq:keywords} {\bf materials; soldering bonding; Al/Al_2O_3 composite substrate; three dimensional morphology; roughness; reflective rate$

OCIS codes 160.2750; 120.6660; 030.5770; 180.6900

1 引 言

发光二极管(LED)作为新一代固体照明光源^[1],相较于传统光源其在体积、功耗以及性能上有突出优势,因而近年来得到了长足的发展^[2-3]。从LED光源实现商业化应用以来,LED光效已提升数十倍^[4],目前商用 LED的光效已可以稳定实现130 lm/W^[5]。随着LED封装密度的提高和功率增大,伴随而来的是LED灯具工 作温度的升高,直接造成LED灯具使用过程中光效和寿命的降低^[6]。为减少温度对LED光源光效以及寿命 的影响,采用高导热的封装基板是解决这一关键问题的途径之一。金属敷接陶瓷基板同时具备陶瓷基板可

作者简介:费 盟(1993—),男,硕士研究生,主要从事陶瓷基板金属化及其封装技术方面的研究。

E-mail:FM19931130@163.com

导师简介:傅仁利(1966—),男,博士,教授,主要从事微电子封装基板与封装技术,白光LED荧光发光材料及LED灯封装 技术,功率电子器件封装基板及封装工艺方面的研究。E-mail:renlifu@nuaa.edu.cn

收稿日期: 2015-06-19; 收到修改稿日期: 2015-08-27

基金项目: 江苏高校优势学科建设工程

靠的电绝缘性、低的介电常数和介电损耗和金属的优良导电性与导热性,是大功率LED模块电路理想的封装材料^[7]。

传统的金属敷接陶瓷基板主要是敷铜陶瓷基板^[8],其制备方法有钼锰法、薄膜法、直接敷铜法(DBC)、厚膜法等^[9]。然而敷铜陶瓷基板虽然具有较高的导热性能,但是表面金属化层反射率较低,从而影响了灯具整体光效。因此,提高该厚膜敷铜陶瓷基板的光学性能是提升基板综合性能的重要环节。

为提高厚膜敷铜陶瓷基板光学性能,可引入一种高反射率的金属以提高 LED 封装结构的光效,目前高反 射率铝基板已在 LED 封装结构中得到广泛使用¹⁰⁹。然而,由于铝基板绝缘耐压性能无法满足高压芯片封装要 求,且铝的热膨胀系数高达 2.38×10⁻⁵ m/K,约为 Si 的 10 倍¹⁰¹,易在封装芯片工作时产生较大的热应力而导致脱 焊失效。若采用钎焊连接敷铜陶瓷基板与铝箔,不仅可保持铝基板高反射率和导热性好的优点,亦可解决铝 基板耐压和热膨胀失配等问题,具有潜在的应用前景¹¹²。然而,铝与陶瓷基板复合过程中,铝基板表面的光洁 度受到工艺过程的影响,粗糙度增加导致反光率下降,需要对铝/氧化铝复合陶瓷基板的铝层进行抛光处理,以 提高其光学性能。纯铝抛光的相关研究已经有很多报道,洪九德等人在 H₃PO4、H₃SO4、HNO3基础液中添加了有 机酸类或有机醇类,进行无铬酸电解抛光工艺的实验,取得了不亚于含铬酸电解抛光液的效果¹¹³。卢名益等¹¹⁴⁻¹⁵同样在 H₃PO4-H₃SO4中加入醇类添加剂和少量蒸馏水等亦得到了较好的抛光效果。然而,上述研究报道的是 纯铝的抛光处理,对于铝/氧化铝复合基板,其由金属铝层、氧化铝陶瓷层和钎焊结合层构成。因此,在电解抛 光过程中铝/氧化铝复合基板各个组成部分的反应过程及铝层的抛光过程,需要进一步研究确定。本文采用钎 焊技术连接氧化铝陶瓷与铝制得复合陶瓷基板,设计实验比较其与传统导热膏连接的导热性能差异。采用机 械抛光、化学抛光以及电解抛光等抛光工艺对铝/氧化铝复合陶瓷基板的表面铝箔进行抛光处理。利用金相显 微镜、扫描电子显微镜和表面轮廓仪,对抛光后铝箔的表面形貌、铝箔表面的浮凸状态进行分析研究,并采用 可见光反射率测试仪对抛光后铝/氧化铝复合基板的光学性能进行了研究和分析。

2 铝/氧化铝复合陶瓷基板的制备及抛光处理

采用钎焊方法制备铝/氧化铝复合陶瓷基板,钎料采用日本千住新原金属有限公司产M705-GRN360-K2-V无铅钎料,具体钎焊工艺过程如图1所示:



图1 铝/氧化铝复合陶瓷基板制备工艺过程

Fig.1 Preparation process of aluminum/alumina composite ceramic substrate

钎焊前需对敷铜陶瓷基板和铝箔进行可焊性处理,镀镍处理是改善材料表面可焊性有效的方法¹⁶。采用化学镀对敷铜陶瓷基板和铝箔进行表面镀镍处理,镀液组成如表1所示。

表1 化学镀镍镀液组成	
-------------	--

Composition	Parameters		
H ₃ BO ₃	5 g/L		
NiSO4•6H2O	40 g/L		
$NaH_2PO_4 \cdot H_2O$	30 g/L		
$K_4P_2O_7$	10 g/L		
$C_6H_5Na_3O_7 \cdot 2H_2O$	30 g/L		
$\rm NH_4Cl$	30 g/L		
$C_6H_{15}NO_3$	12 mL/L		

Table 1	Compositio	n of electroles	s nickel	plating	bath
---------	------------	-----------------	----------	---------	------

镀液温度为60℃,施镀时间为20min。镀镍完成后对样品进行超声清洗去除表面附着物,在敷铜陶瓷 基板和铝箔两个连接表面涂敷无铅钎料并压实,涂敷无铅钎料的样品置于真空炉中(VBF-1200X,合肥科晶 有限公司)进行真空钎焊,钎焊温度为250℃,钎焊时间为30min。

铝/氧化铝复合陶瓷基板分别采用机械抛光、化学抛光、电解抛光和复合抛光(化学抛光加电解抛光)的方

式对复合基板的铝层进行抛光。机械抛光采用自动抛光机(PG-1,申佑达,上海),1.5 µm的氧化铝粉作为抛 光剂,转速为250 r/min,抛光时间6h。化学抛光采用的抛光液组成为H₃PO₄(*ρ*=1.7 g/cm³)70 mL, H₂SO₄(*ρ*=1.84 g/cm³)25 ml,HNO₃(*ρ*=1.4~1.5 g/cm³)5 ml,具体步骤为除油→水洗→化学抛光→后处理,抛光液 理温度95℃,抛光时间2 min。电解抛光具体步骤为除油→水洗→电解抛光→后处理,抛光液组成为: H₃PO₄(*ρ*=1.7 g/cm³)60 mL,H₂SO₄(*ρ*=1.84 g/cm³)40 mL,甘油1 mL,抛光温度60℃,抛光时间150 s,电流密度 20 A/dm²,电压10 V,为防止焊接界面层与抛光液反应,实验中复合基板均采用环氧树脂封闭保护。复合抛 光处理中化学抛光和电解抛光工艺过程与上述两者相同。采用金相显微镜(UD-300M,华齐泰精密仪器有 限公司)和扫描电子显微镜(SEM,SU8010,日立公司,日本)观察抛光处理后试样的显微形貌。采用表面轮廓 仪(ST400, NANOVEA公司,美国)观察处理后试样的微观表面形貌并采用三维(3D)图形分析软件(SPIP)分析 抛光处理后试样的表面轮廓和粗糙度。最后采用紫外-可见分光光度计(UV3600,日本岛津)测试不同抛光 处理试样表面反光率。

3 新型铝/氧化铝复合陶瓷基板导热性能

本文制备的新型铝/氧化铝复合陶瓷基板采用了钎焊技术,相较于电子行业广泛采用传统导热膏连接, 降低了界面的热阻,为定量测试其导热性能,本文参照业内常用的测试方法设计了如下图所示的测试装置 来对比钎焊连接与导热膏连接两种结构导热性能^[17]。



图2 导热性能测试示意图

Fig.2 Diagram of measurement for temperature difference in packaging structure

图中复合基板分别钎焊连接与导热膏连接,如图所示,在热电阻丝加热后热量自下向上传递,由于采用 钎焊与导热膏两种方式的连接层不同,其热阻必然不同,最后在平衡状态下θ₂和θ₁的温度差不同。测试结果 如图2所示。



图3 钎焊连接和导热膏连接的封装结构的温差图

Fig.3 Temperature difference graph of packaging structures with soldering join and thermal glue join

从中可以看出在整个测试过程中导热膏连接的封装结构温差始终大于钎焊连接的封装结构温差,可以 看出钎焊连接的导热性能优于导热膏连接。

4 铝/氧化铝复合基板抛光处理后铝层表面形貌及轮廓

图 4 为金相显微镜下复合基板表面铝箔的表面显微形貌。未处理的样品表面存在大量划痕、凹坑以及 机械加工留下的条纹,如图 4(a)所示;经化学抛光后的样品,表面划痕与条纹均消失但表面出现细小的黑色

光学学报

斑点,而且由于化学抛光液中强酸的作用,铝箔表面被过度腐蚀而呈现出零星分布的凹坑,如图4(b)所示;电 解抛光的样品相较于化学抛光,其表面更加平整且表面黑色斑点大幅减少,如图4(c)所示;先化学抛光后再 进行电解抛光的样品相较单一处理方法获得的表面,其表面更加平整均匀,表面细小的黑色斑点几乎消失, 如图4(d)所示。



图 4 复合基板表面铝层在不同抛光方式下的显微形貌。(a) 原始组织; (b) 化学抛光; (c) 电解抛光; (d) 化学-电解复合抛光 Fig.4 Micromophologies of aluminium layer on composite ceramic substrate by different polishing technology. (a) Original structure; (b) chemical polishing; (c) electrolytic polishing; (d) chemical electrolytic compound polishing

金相显微镜可观察肉眼无法分辨的微小划痕以及凹坑,但金相显微镜放大倍数低,景深小,无法获得更为立体和细微的表面形貌,为了得到更多有关试样表面形貌的信息,采用SEM对试样表面进行进一步观察与分析。

图 5 为复合陶瓷基板在不同抛光条件下的表面 SEM 微观形貌结果。可见经机械抛光处理的试样,表面存在铝与抛光剂高速摩擦而产生的的裂纹,其长度约为 2 μm,宽度约 0.5 μm,如图 5(a)所示;经化学抛光处理的试样表面没有裂纹出现,但由于腐蚀程度不均匀造成铝层表面质量较差,如图 5(b)所示;经电解抛光的试样表面出现多孔阵列结构,孔径约为 100 nm,这是由于在电解抛光伊始,铝箔表面不够平整,从而在表面能较高的地方率先发生氧化反应,从而形成一层多孔阳极氧化铝膜,如图 5(c)所示;图 5(d)为试样先经过化学抛光再进行电解抛光得到的铝箔表面形貌,可看到其表面呈密集分布的颗粒状且完全均匀地分布于整个表面,相比于电解抛光表面,其表面完全没有多孔结构、平整性也更好,其原因是由于经过化学抛光处理后是 铝箔表面平整性大大提高,再进行电解抛光处理时,整个表面的氧化反应非常均匀,表面难以形成多孔结构。



图 5 复合陶瓷基板表面铝箔不同抛光条件下的表面 SEM 照片. (a) 机械抛光; (b) 化学抛光; (c) 电解抛光; (d) 化学-电解复合抛光 Fig.5 SEM images of aluminum layer on composite ceramic substrate by different polishing technology. (a) Mechanical polishing; (b) chemical polishing; (c) electrolytic polishing; (d) chemical electrolytic compound polishing

图 6 为 4 种样品表面轮廓测试结果,每个样品选取长为 1.17 mm,宽为 937 μm 的长方形区域,对该区域 进行扫描获得三维表面形貌。经机械抛光处理的试样表面存在密集的针状凸起,图 6(a)所示;化学抛光的试 样的表面质量有所改观但针状凸起数量仍然很大,如图 6(b)所示;经电解抛光的试样表面平滑度大大提高, 针状凸起的数量明显减少,如图 6(c)所示;图 6(d)是试样先经过化学抛光再进行电解抛光得到的三维表面形 貌,其表面针状突起数量与经电解抛光的试样差距不大,但观察图中两者 Y 轴可以发现复合抛光处理试样中 针状凸起高度要小于电解抛光试样表面针状突起,说明复合抛光试样的表面平整度更好。

为进一步分析4种抛光工艺条件下复合基板表面铝层的形貌的差异,尝试从图6表面三维轮廓中定量 分析铝层表面粗糙度的差异。沿图6中蓝线设定位置获取截面的二维粗糙度数据,设该截面上最高点与最 低点的差值为"极差"*R*,再记录与截面平均高度相差超过0.5 µm的"驼峰状"波峰与波谷的数量(即前文所述 的针状凸起)记为"齿数"*N*。将4组数据绘制如图4所示的柱状图。



图 6 复合陶瓷基板表面铝箔不同抛光条件下的表面三维形貌。(a) 机械抛光; (b) 化学抛光; (c) 电解抛光; (d) 化学-电解复合抛光 Fig.6 3D morphology images of aluminium layer on composite ceramic substrate by different polishing technology. (a) Mechanical polishing; (b) chemical polishing; (c) electrolytic polishing; (d) chemical electrolytic compound polishing



图 7 不同抛光方式的样品表面极差与齿数柱状图

Fig.7 Quantity of humps and range of aluminum layer on composite ceramic substrate by different polishing technology

处理结果如图 7 所示,例如机械抛光样品(a)中的极差 R=5.5 μm, N≥50(突起数量太多因而无法准确统计数量);化学抛光样品(b)中极差 R=1.5 μm, N=10,电解抛光的样品(c)极差 R=3.5 μm, N=3,先化学抛光在电解抛光的样品(d)的极差 R=1.75 μm, N=4。可见经机械抛光的样品极差很大且齿数很多,化学抛光可以有效地降低极差但齿数仍较多,电解抛光极大地减少了齿数但极差略高,先化学抛光再电解抛光结合了化学抛光和电解抛光的优点,其样品极差低且齿数很少。

造成上述现象的原因是不同抛光方式的原理不同,机械抛光过程中抛光轮高速旋转使金属表面与抛光轮 摩擦产生高温从而提高金属表面塑性,借助于磨料的切削作用,磨去了金属表面微观的凸起部分,但是这种磨 削不能去除尺寸小于抛光粉的突起,所以才会出现图7(a)所示的密集"锯齿"状凸起,凸起的高度大约为2μm, 与机械抛光所用的抛光粉尺寸一致。而化学抛光是将铝片浸入三酸抛光液中,其中硝酸的作用是氧化剂,使 整个金属铝表面上生成一层均匀分布的氧化铝膜,氧化铝薄膜与抛光液中的硫酸与磷酸发生反应从而溶解, 根据电化学原理,凸起的部分为高电位区从而溶解较快而凹陷的部分为低电位区溶解慢,这个速度差使得工 件表面趋于平整。电解抛光的机理为粘膜理论,抛光过程中在阳极表面形成了一种具有高电阻率的粘性薄膜, 这种粘膜在微观凸起处的厚度比凹陷处的厚度小,电流密度较高,溶解较快,而凹陷处的电流密度较低,溶解 速度较慢,这样经过一段时间凸凹位置的不断转换逐渐达到平整。在实际抛光过程中,电解抛光反应速率远远小于化学抛光的反应速率,因此电解抛光去除表面"锯齿"状凸起的效果更好,如图7(c)所示。

5 铝/氧化铝复合基板铝层表面抛光处理后的光学性能

复合陶瓷基板表面铝箔进行抛光处理,其用于 LED 封装基板的光学性能可以采用可见光反光率进行衡量,文中为更直观地表现各种抛光效果的优劣,采用相对反光率(即将每组反光率值减去机械抛光的反光率) 来表征4种不同抛光方式的效果。



图 8 不同抛光方式样品的相对反光率

Fig.8 Relative reflective rate of aluminum layer on composite ceramic substrate by different polishing technology

图 8 所示为 4 种不同抛光处理复合基板铝层表面相对反光率测试结果,测试反光率波长范围为可见光 波长范围(400~800 nm),纵坐标则为反光率差值,机械抛光的反光率设为 0。由图 8 可知在整个可见光范围 (400~800 nm)内电解抛光反光率要优于化学抛光,但其在蓝光区(波长 600 nm 以下)部分反光率比较低,甚至 还低于机械抛光的铝表面,其原因是电解抛光后表面产生的阳极氧化铝薄膜对蓝光吸收率较高所致^[18-19]。 化学抛光样品在 400 nm 与 550 nm 处有两个反射率峰值,但其反光率却是 4 种抛光方式中最低的。复合抛光 处理样品在大于 475 nm 的波长范围,其反光率在所有样品中是最高的,且反光率曲线没有出现类似化学抛 光与电解抛光样品反光率的波动。

对比4种抛光方法,复合抛光的工艺在4种方式中效果最好,并且其在可见光波长范围内反光率曲线适合LED光源用封装基板。

6 结 论

对敷铜陶瓷基板和铝片进行化学镀镍处理提升两者的可焊性从而完成基板与铝片的钎焊结合。分别 采用机械抛光,化学抛光以及电解抛光等抛光方式对复合陶瓷基板进行抛光处理。通过金相显微镜与SEM 发现不同抛光方式均可以提高铝片表面光洁度但提高的程度不同,同时分析三维表面形貌测试照片,定量 表征了不同抛光工艺的效果差异。反光率测试说明先化学后电解复合抛光的效果要好于单独地化学抛光 与电解抛光,采用复合抛光处理的复合陶瓷基板为白光LED光源封装基板的最佳选择。

参考文献

- 1 Su Yongdao. LED Packaging Technology[M]. Shanghai: Shanghai Jiao Tong University Press, 2010: 2-7. 苏永道. LED 封装技术[M]. 上海:上海交通大学出版社, 2010: 2-7.
- 2 Fu X Y, Liu X J, Wu Y, *et al.*. Research and analysis of the design development and perspective technology for LED lighting products [C]. Proceedings of the 10th of IEEE International Conference, Computer-Aided Industrial Design & Conceptual Design, CAID & CD. New York, USA , 2009: 1330-1334.

3 Xu Daisheng, Chen Xiao, Zhu Xiang, *et al.*. A dimming lighting source based on cold and warm white LEDs[J]. Acta Optica Sinica, 2014, 34 (1): 0123004

徐代升,陈 晓,朱 翔,等.基于冷暖白光 LED 的可调色温可调光照明光源[J].光学学报, 2014, 34(1): 0123004

- 4 Mehmeat A, Anant S. Environmental and economical impact of LED lighting systems and effect of thermal management[J]. International Journal of Energy Research, 2010, 34(13): 1195-1204.
- 5 Lim S R, Kang D, Ogunseitan O A, *et al.*. Potential environmental impacts from the metals in incandescent, compact fluorescent lamp (CFL), and light-emitting diode (LED) bulbs[J]. Environmental science & technology, 2012, 47(2): 1040-1047.
- 6 Tian Lixin, Wen Shangsheng, Yao Rihui, *et al.*. Research on the heat-release performance of high power LED using slotted plate[J]. Acta Optica Sinica, 2014, 34(11): 1123002.

田立新,文尚胜,姚日晖,等.基于开缝基板的大功率LED散热性能研究[J].光学学报,2014,34(11):1123002.

- 7 Guan Chun, He Feng. Effect of MCPCB structure on thermal performance of LED[J]. Light & Lighting, 2005, 29(3): 52-53. 管 春,何 丰. MCPCB 结构对 LED 发热的影响[J]. 灯与照明, 2005, 29(3): 52-53.
- 8 Fang Jun, Hua Gang, Fu Renli, *et al.*. Structure and substrate for high power white LED package[J]. Semiconductor Technology, 2013, 24(3): 1–3.

方 军,花 刚,傅仁利,等.大功率白光 LED 封装结构和封装基板[J].半导体技术, 2013, 24(3): 1-3.

9 Zhang Pengfei, Fu Renli, Qian fei, *et al.*. Effect of electroless copper plating on copper film of thick film ceramic substrate coated copper [J]. Electronic Components and Materials, 2013, 24(3): 1–3.

张鹏飞,傅仁利,钱 斐,等.化学镀铜对厚膜敷铜陶瓷基板敷铜层的影响[J].电子元件与材料,2014,24(3):1-3.

- 10 He H, Fu R L, Han Y, *et al.*. A new method for preparation of direct bonding copper substrate on Al₂O₃[J]. Materials Letters, 2007, 61 (19): 4131-4133.
- 11 Tong C X. Advanced Materials for Thermal Management of Electronic Packaging[M]. Germany: Springer, 2011: 40.
- 12 Ugo L, Henk Z, Sybrand Z, et al.. Increasing the reliability of solid state lighting systems via self-healing approaches: a review[J]. Microelectronics Reliability, 2012, 52(1): 71-89.
- 13 Guo R, Zhu S F, Wu Z X. Preparation and performance study of electroless Ni-P-Phosphor composite plating[J]. Surface Technology, 2014, 43(4): 74-77.
- 14 Zhong Jianhua, Zhang Juguo. Study of acid-fog-free chemical polishing technology for aluminum[J]. Materials Protection, 2006, 39(4): 1-5.

钟建华,张聚国.铝材无黄烟化学抛光剂的研制[J].材料保护,2006,39(4):1-5

15 Chen Zuqiu. The status in quo of development in chemical polishing technology for aluminum products in china[J].Surface Technology, 1999, (6): 1-2.

陈祖秋.我国铝制品化学抛光工艺开发现状[J].表面技术, 1999, (6): 1-2.

- 16 Jia Wei, Xuan Tianpeng. Application of electroless Ni in microelectronic filed[J]. Rare Metals Letters, 2007, 26(3): 1-6. 贾 韦, 宣天鹏. 化学镀镍在微电子领域的应用及发展前景[J].稀有金属快报, 2007, 26(3): 1-6.
- 17 Tian Lixin, Wen Shangsheng, Huang Weiming, et al.. Study on the heat sink structure and heat transfer effect of liquid cooling system for high power LEDs[J]. Acta Optica Sinica, 2015, 35(3): 0323003.

田立新, 文尚胜, 黄伟明, 等. 大功率 LED 液冷热沉结构与换热效果研究[J]. 光学学报, 2015, 35(3): 0323003.

18 Wu Yucheng, Ma Jie, Ye Min, et al.. Preparation and optical property of porous anodic alumina template[J]. Journal of Functional Materials and Devices, 2005, 11(4): 440-444.

吴玉程,马 杰,叶 敏,等.多孔阳极氧化铝模板的制备及其光学特性研究[J].功能材料与器件学报,2005,11(4):440-444.

- 19 Gao Fen, Feng Yi. Determination of optical constant for porous anodic alumina film based on the envelope method[J]. Optical Technique, 2007, 33(4): 609-612.
 - 高 芬, 冯 异. 基于包络线法的多孔阳极氧化铝薄膜光学常数的计算[J]. 光学技术, 2007, 33(4): 609-612.

栏目编辑:张浩佳