Au を用いた熱圧着マイクロ接合技術*

—サブミクロン Au 粒子を用いた Au 接合技術および Au バンプと接着剤のハイブリッド接合技術—

Thermo-compression Micro Bonding Technology Using Au
—Bonding Technologies with Sub-micron Au Particles and Au-adhesive Hybrid Bonding—

水野 潤** 佐久間克幸*** 仁村将次**** 若井史博† 庄子習一††

Jun MIZUNO, Katsuyuki SAKUMA, Masatsugu NIMURA, Fumihiko WAKAI and Shuichi SHOJI

Key words Au, sub-micron Au particle, underfill, hybrid bonding, lock-and-key, thermo-compression bonding

1. 緒 言

昨今の高機能電子デバイスは、半導体の微細化によって急速な発達を成し遂げてきたが、高度情報化社会は電子デバイスのさらなる小型化、多機能化、高性能化を求めている。これらの要求を満たすために半導体チップの I/O 数の増加、端子ピッチの微細化が加速する中、これらに対応した多種多様な接合技術の開発が行われている。われわれはそれらの接合技術の一つである金 (Au) を用いた熱圧着接合技術に注目した。本稿では、われわれが開発したサブミクロン Au 粒子を用いた接合技術と Au バンプを用いた Au-接着剤のハイブリッド接合技術に関して解説する。

2. サブミクロン Au 粒子を用いた接合技術

従来、電子デバイスの電気接続の工程では、高温での金属-金属接合が必要になるが、異なる熱膨張率の基板を接合する際に、温度変化に伴い材料の膨張・収縮が発生し、その歪が接合信頼性に影響する。このため応力を低減する目的で低温接合技術が重要視されている。サブミクロン金属粒子は物質質量比表面積が大きく、低温加熱によって粒子間で金属接合を起こす。このため、バルク金属本来の融点と比較して低い温度で焼結が可能になる¹⁾²⁾。一度、加熱してバルク金属になれば、再溶融するためにはバルク金属本来の融点まで加熱する必要があるため、耐熱温度は高温になるという特徴がある。そこでわれわれは、従来のはんだ接合で主に使用される Sn よりも柔らかく、また、他の金属と比較して導電性が高く腐食にくい特長をもつ Au に着目し、Au のサブミクロン金属粒子を用いた低温接合技術を開発した。Au の融点は 1337 K であるが、サブミクロン Au 粒子の場合は、Au 表面の拡散エネルギーによ

る焼結作用を利用することによって、従来技術では困難であった 200℃ 以下の Au 接合が可能となる。またサブミクロン金属粒子を用いることで接合表面の微細な凹凸を吸収し、優れた高信頼性の電気接合が可能となる。

2.1 サブミクロン Au 粒子

塩化金水溶液および還元剤を攪拌し、粉末を得る湿式還元法により、純度 99.95 wt% のサブミクロン Au 粒子を作製する。この方法によって得られた粒径分布 0.2~0.5 μm の Au 粒子を図 1 に示す。サブミクロン Au 粒子は 200℃ 以下でも焼結を行い、Au 粒子の粒径が小さいほど焼結温度が低くなる。

2.2 サブミクロン Au 粒子のパターン形成/パターン転写/接合プロセス

図 2 にサブミクロン Au 粒子の微細パターン作製プロセスを示す。500 μm 厚の両面研磨したガラスウエーハを支持基板として用いる。50 nm 厚の Ti をスパッタでガラス支持基板上に堆積し、その後フォトリソグラフィで、接合部分になる箇所をパターン開口し、全面にサブミクロン Au 粒子スラリーを塗布する。Au 粒子スラリーは有機溶媒にサブミクロン Au 粒子を分散させたものである。溶媒を除

図 1 サブミクロン Au 粒子の FE-SEM 観察写真¹⁾

*原稿受付 平成 25 年 5 月 16 日

**早稲田大学 (東京都新宿区早稲田鶴巻町 513)

***米国 IBM Corporation (2070 Route 52, Hopewell Junction, NY, 12533, USA)

****早稲田大学 (現、東レエンジニアリング(株)) (滋賀県大津市大江 1-4-45)

†東京工業大学 (神奈川県横浜市緑区長津田町 4259)

††早稲田大学 (東京都新宿区大久保 3-4-1)

図2 サブミクロン Au 粒子の微細パターン作製プロセス

図3 サブミクロン Au 粒子を用いたパターン転写プロセス

去した後、レジスト上面の Au 粒子を取り除き、Au 粒子を固定化するために焼結しレジストを除去する。

図3にサブミクロン Au 粒子を用いたパターン転写プロセスを示す³⁾。ガラスウエーハ上に形成したサブミクロン Au 粒子の微細パターンを常温大気中でデバイスウエーハ上のパッドパターンと位置合わせし、その後接触させる。デバイスウエーハ上には、パターン転写する場所にあらかじめ 50 nm Ti/50 nm Pt/200 nm Au をスパッタで堆積させておく。その後、大気中で加熱・加圧 (150°C, 5~30 MPa) を行い 10 分間保持する。最後にガラス基板を剥離することによって転写プロセスが完了する。パターン転写プロセスを用いれば、従来の成膜プロセスを行わずにデバイスウエーハ上にサブミクロン Au 粒子のパターンを形成できる。このため、成膜に必要な製造装置・プロセスが不要になり、実装を簡略化し低コスト化が可能になる。

接合実験には、パターン転写で使用した基板と同じ Ti/Pt/Au を堆積したダミーデバイスウエーハを用意した。まず接合表面の有機物を除去するために、接合前にプラズマ処理 (アルゴンプラズマ, 1000 W, 90 秒間) を行う。その後、真空中 (<100 Pa) でサブミクロン Au 粒子を接

図4 Au バンプの応力歪曲線: (a) サブミクロン Au 粒子 (b) 電解めっき Au

図5 サブミクロン Au 粒子焼結時の SEM 観察写真

合する。接合条件は、荷重 50 MPa, 接合温度 ~200°C, 接合時間 30 分間である。加熱・荷重を加えることにより、サブミクロン金属粒子同士が結合し空隙が消滅してバルク金属の状態になる。

2.3 実験結果と考察

サブミクロン Au 粒子の圧縮変形挙動を理解するために、サブミクロン Au 粒子と電解めっきで作製した Au バンプの応力歪の比較を行った⁴⁾。図4に 60 μm 幅形状のサブミクロン Au 粒子と 100 μm² 形状の電解めっきで作製した Au バンプの応力歪曲線を示す。サブミクロン Au 粒子は、60 MPa に対して 4 μm 程度変形しているが、Au バンプの場合は約 1 μm 変形している様子が分かる。また、図4(a)に示すように、40 MPa 程度までは非線形で応力歪が変形するが、40 MPa 以上になると線形で応力歪が変化することから、サブミクロン Au 粒子の圧縮変形挙動は二段階に分けられることを確認した。非線形領域ではサブミクロン Au 粒子の構造再配列によって変形が発生していると考えられる。以上の結果は、サブミクロン Au 粒子が電解めっきで作製した Au バンプよりも効果的に接合バンプ表面の凹凸を吸収できることを示唆している。

図5にサブミクロン Au 粒子を焼結させたときの SEM 観察写真を示す。使用したサブミクロン Au 粒子の粒子径は 0.05~0.2 μm である。無加圧の状態でも 100°C で焼結が開始している様子が分かる。また、温度が高くなるにつれて Au 粒子同士の結合が進展していく様子が分かる。

図6にサブミクロン Au 粒子を 200°C, 100 MPa で接合した後の断面 SEM 観察写真を示す。上下のシリコン基板

図 6 サブミクロン Au 粒子接合後の断面 SEM 観察写真（接合条件：200℃，100 MPa，30 min）

上には，Au/Pt/Ti が堆積している．基板間にはサブミクロン Au 粒子が存在し，焼結・接合後に金属粒子の形状が変形している様子が確認できる．これは，加圧・加熱の工程を経て，緻密化し空隙が消滅するとともに Au のバルク金属化が進行したと考えられる．

3. Au バンプと接着剤のハイブリッド接合技術

電子デバイスを物理的電氣的に接続するために，バンプの接合技術は欠かすことができない．特に高機能デバイスを実現する上で不可欠な LSI の三次元集積化技術^{(5)~(7)}では，チップ間の入出力端子数を増やすためにバンプサイズとピッチのさらなる微細化が必要になる．腐食防止，応力緩和の目的でチップ間・バンプ間を封止するために使われる絶縁材料の液状硬化性樹脂（アンダーフィル）は，従来は毛細管現象を利用した樹脂充填工法が用いられる．しかし，バンプサイズとピッチが微細化すると，樹脂を注入する隙間が狭くなるため，樹脂充填に長時間を要したり，基板の表面状態によってはアンダーフィルボイドが発生する問題点が指摘されている．このため，問題を解決する多様な方法^{(8)~(9)}が提案されているが，昨今ハイブリッド接合技術が特に注目されている．ハイブリッド接合は，異種材料を同時に接合する技術であるが，われわれは，接合時に金属バンプと接着剤を同時に対向基板に接合する技術を開発している^{(10)~(12)}．本研究では，バンプ頭出し技術として接着剤の熱加圧と酸素プラズマ照射を組み合わせたプロセスを利用して試料を作製し，Au と接着剤のハイブリッド接合を評価した．

3.1 Au-接着剤ハイブリッド接合のためのバンプ作製/接合プロセス

Au バンプの周囲のみに接着性を保つ未硬化接着剤を形成するプロセスを開発した．図 7 にその作製プロセスを示す．

1. Au バンプ付き Si チップ上に接着剤をスピコートし，ベーク（Step1.100℃，2 分間，Step2.150℃，2 分間）する．接着剤を硬化させないために，接着剤の溶剤のみを蒸発させる．

図 7 Au-接着剤ハイブリッド接合のためのバンプ作製プロセス（未硬化接着剤側）

図 8 Au-接着剤ハイブリッド接合のためのバンプ作製プロセス（段差構造あり接着剤側）

2. 接着剤を塗布した試料と加圧用に使用する Si 基板の間にフッ素樹脂フィルムを挟み，真空下，150℃，80 N の条件で熱加圧を行う．フッ素樹脂フィルムは離型シートとして使用され，熱加圧により Au バンプ上の接着剤は薄く潰される．
3. 大気，常温の条件でフッ素樹脂フィルムを離型する．
4. 薄く潰された Au バンプ表面の接着剤を酸素プラズマでエッチングして，Au バンプの頭出しを行う．

チップ側に形成した未硬化接着剤は酸素プラズマ照射によって Au バンプ表面よりも低くなるため，基板側にはその段差を補う樹脂構造を作製する．図 8 にその作製プロセスを示す．

1. 接着剤を Au バンプ付き Si チップ上にスピコートし，ベーク（Step1.100℃，2 分間，Step2.150℃，2 分間）する．
2. フォトレジストを接着剤に塗布してパターン開口するために，有機溶剤耐性をもたせる目的で接着剤を硬化させる．250℃，1 時間の条件でベークする．
3. フォトリソグラフィーでバンプ上部を開口するパタ

図9 Au バンプと接着剤のハイブリッド接合プロセス

表1 Au-接着剤ハイブリッド接合プロセス条件

	Step 1	Step 2	Step 3
Head temperature	30°C	150°C	250°C
Stage Temperature	30°C	150°C	250°C
Bonding atmosphere	Ambient air		
Contact load	100 N (2.78 MPa)		
Loading time	5 sec	300 sec	500 sec

ーンをフォトレジストで形成する。

4. バンプを覆っている接着剤をエッチングするために、 O_2/CHF_3 プラズマ照射（8 分間）する。
5. 有機溶剤でレジストを除去する。
6. 膜厚を調整するために、酸素プラズマで基板全面の接着剤のエッチングを行う。

ハイブリッド接合は、上下の Au バンプをわずかに潰し、かつ未硬化接着剤が流動することを利用して、Au バンプと接着剤の接合を同時に行う。図9に Au バンプと接着剤のハイブリッド接合プロセスを示す。また、表1にハイブリッド接合の接合条件を示す。Au バンプと接着剤のハイブリッド接合は、フリップチップボンダーを用いて大気下で接合した。フラックスを必要とせず、また超音波接合を必要としないことが特徴として挙げられる。以下にハイブリッド接合のプロセスを示す。

1. 常温で 100 N の荷重で Au バンプを接触させる。
2. 100 N の荷重をかけた状態で、フリップチップボンダーのヘッドとステージの両方を 150°C に昇温する。これにより、チップ側に形成されている未硬化接着剤が溶融し、基板側の硬化樹脂と接着する。
3. フリップチップボンダーのヘッドとステージの両方を 250°C に昇温して 500 秒保持する。これにより、Au-Au の接合と接着剤の硬化を同時に行う。
4. 接着剤を完全に硬化させるために、試料をホットプレート上に移してベーク（荷重なし、250°C、1 時間）を行う。

3.2 Au-接着剤ハイブリッド接合結果と考察

バンプ頭出し技術を用いて、試作した Au バンプと接着剤の SEM 観察結果を図10に示す。図10(a) から Au バンプの周囲は、未硬化接着剤で満たされていることが観察できる。触針式段差計でチップ上の Au バンプ表面と樹脂表面の段差を計測した結果、約 $1.2\mu m$ 程度であった。また、図10(b)に、バンプ周囲のみ樹脂を除いた構造を有する Au バンプと接着剤の SEM 観察写真を示す。バンプ

図10 Au バンプと接着剤の SEM 観察写真：(a) Au バンプと未硬化接着剤、(b) Au バンプと段差構造あり接着剤

図11 Au-接着剤ハイブリッド接合した試料の電気抵抗測定結果

図12 Au-接着剤ハイブリッド接合後の断面 SEM 観察写真

よりも半径が $5\mu m$ 大きい円形状に樹脂をエッチングしてあり、バンプ周囲の接着剤は Ni/Cu/Ti の配線表面まで取り除かれている様子が分かる。接合過程で、接着剤よりも Au が先に接触するように、Au バンプが接着剤よりも 800 nm 高くなる段差を有する構造になっている。拡大 SEM 観察写真からは、Au バンプ表面に有意な接着剤の残渣は確認できなかった。

図11にハイブリッド接合した試料の電気抵抗測定結果を示す。ここで示す抵抗値はバンプを連結する Ni/Cu/Ti

配線抵抗とバンプの全ての抵抗値を含む。四端子法を用いて抵抗値の測定を行った。抵抗値の実測値は $154.8\ \Omega$ (計算値は $148.4\ \Omega$) であり、試料に用意した 900 バンプ全てにおいて良好な電氣的接続を確認した。図 12 に Au バンプと接着剤の断面 SEM 観察写真を示す。接着剤同士の接合界面にはボイドが存在しておらず、良好な接合を確認した。また Au 接合界面に微細なボイドを確認したが、断面を観察する上ではバンプ幅の 50% 以上が Au-Au で接続していることを確認した。

4. 結 言

本論文では、サブミクロン Au 粒子を用いた接合技術と Au-接着剤ハイブリッド接合技術を中心とする Au の熱圧着マイクロ接合技術を紹介した。粒径分布 $0.2\sim 0.5\ \mu\text{m}$ の Au 粒子を用いたパターン形成を行い、サブマイクロン Au 粒子のパターン転写法を開発した。電氣的物理的な接続を可能にする Au の 200°C 以下の低温接合に成功した。また、チップ間の微細バンプ接合と微細な隙間を樹脂封止するために、バンプと接着剤を同時に接合するハイブリッド接合技術を開発した。直径 $10\ \mu\text{m}$ の微細 Au バンプを試作し、ハイブリッド接合の評価および電氣的信頼性評価を行い、ハイブリッド接合技術の有用性を見いだした。

謝 辞

本研究は、早稲田大学グローバル COE プログラム「アンビエント SoC 教育研究の国際拠点」(文部科学省研究拠点形成費補助金)の支援により行われた。本研究を遂行するにあたり、ズース・マイクロテック(株)石田博之様、早稲田大学 伊藤慎氏に特にご尽力いただきました。本論文で紹介した一部サンプルの試作および評価に関して、ズース・マイクロテック(株)、田中貴金属工業(株)にご協力いただきました。ここに謝意を表します。

参 考 文 献

- 1) T. Ogashiwa, T. Shibutani, M. Miyairi, et al.: Low-Temperature Bonding Technique Using Sub-Micron Au Particles, Journal of Japan Institute of Electronics Packaging, **10**, 7 (2007) 560.
- 2) H. Ishida, T. Yazaki, et al.: Low-Temperature Wafer Bonding for MEMS Hermetic Packaging Using Sub-micron Au Particles, ICEP, (2010).
- 3) H. Ishida, T. Ogashiwa, Y. Kanehira, et al.: Low-Temperature, Surface-Compliant Wafer Bonding Using Sub-Micron Gold Particles for Wafer-Level MEMS Packaging, ECTC (2012).
- 4) 伊藤慎, 水野潤, 他: サブミクロン金粒子を用いた MEMS パッケージング用低温接合技術の開発, Mate, (2013).
- 5) M. Koyanagi, K. Sakuma, et al.: Future System-on-Silicon LSI Chips, IEEE Micro, **18**, 4 (1998) 17.
- 6) K. Sakuma, P.S. Andry, J.U. Knickerbocker, et al.: 3D Chip-Stacking Technology with Through-Silicon Vias and Low-

Volume Lead-Free Interconnections, IBM J. Res. & Dev., **52**, 6 (2008) 611.

- 7) 佐久間克幸: 三次元集積化技術の開発動向, 電気学会論文誌 E, **131**, 1 (2011) 19.
- 8) K. Sakuma, et al.: Development of Vacuum Underfill Technology for a 3D Chip Stack, Journal of Micromechanics and Micro engineering, **21** (2011) 035024.
- 9) J. Nah, et al.: Development of Wafer Level Underfill Materials and Assembly Processes for Fine Pitch Pb-free Solder Flip Chip Packaging, ECTC (2011) 479.
- 10) 水野潤, 佐久間克幸, 宇波奈保子, 仁村将次, 庄子習一: シリコンチップの新接合技術, スマートプロセス学会誌, **1**, 3 (2012) 120.
- 11) M. Nimura, J. Mizuno, K. Sakuma and S. Shoji: Solder/Adhesive Bonding Using Simple Planarization Technique for 3D Integration, ECTC (2011).
- 12) M. Nimura, A. Shigetou, K. Sakuma, et al.: Hybrid Au-Underfill Resin Bonding with Lock-and-Key Structure, ECTC (2012).

水野 潤

東北大学・博士(工学)取得。早稲田大学ナノ理工学研究機構准教授。3次元 MEMS を用いたエレクトロニクス実装技術、有機エレクトロニクスおよび複合ナノインプリントの開発。有機エレクトロニクス材料研究会理事、ナノインプリント研究会委員、ICEP 論文委員、IEEE CPMT 委員。

佐久間克幸

1998 東北大学工学部機械知能卒。2000 同大学院修士課程修了。2010 早稲田大学大学院博士課程修了。2000 日本アイ・ビー・エム(株)東京基礎研究所入社。2006 IBM T.J. Watson 研究所研究員。現在、米国 IBM Corporation に所属し、3D LSI の研究開発に従事。応用物理学会、IEEE シニア会員。博士(工学)。

仁村将次

2011 早稲田大学基幹理工学部電子光システム学科卒。2013 同大学院先進理工学研究科ナノ理工学専攻修士課程修了。現在、東レエンジニアリング(株)に所属。

若井史博

1980 年京都大学大学院理学研究科修士課程修了。1988 年工学博士。セラミックスの高温力学物性、超塑性、焼結プロセスに関する研究。

庄子習一

1984 年東北大学大学院博士後期課程修了。工学博士。各種材料を用いた Micro Electro Mechanical Systems: MEMS およびナノテクノロジーの研究およびその情報通信・化学・バイオ・医療・環境応用を目的としたマイクロシステムの開発。