

멀티 플립칩 본딩용 비전도성 접착제(NCP)의 열전도도에 미치는 미세 알루미나 필러의 첨가 영향

정다훈^{1,2} · 임다은^{1,3} · 이소정¹ · 고용호¹ · 김준기^{1,2,†}

¹한국생산기술연구원 용접접합그룹/마이크로조이닝센터

²과학기술연합대학원대학교 희소소재 및 반도체패키징공학과

³국립안동대학교 재료공학과

Effect of Fine Alumina Filler Addition on the Thermal Conductivity of Non-conductive Paste (NCP) for Multi Flip Chip Bonding

Da-Hoon Jung^{1,2}, Da-Eun Lim^{1,3}, So-Jeong Lee¹, Yong-Ho Ko¹, and Jun-Ki Kim^{1,2,†}

¹Welding & Joining R&D Group/Micro-Joining Center, Korea Institute of Industrial Technology (KITECH),
156, Gaetbeol-ro, Yeonsu-gu, Incheon 21999, Korea

²School of Critical Materials and Semiconductor Packaging Engineering, KUST, 217, Gajeong-ro, Yuseong-gu, Daejeon 34113, Korea

³School of Materials Science & Engineering, Andong National University, 1375, Gyeongdong-ro, Andong-si,
Gyeongsangbuk-do 36729, Korea

(Received December 8, 2016; Corrected May 19, 2017; Accepted May 21, 2017)

초 록: 실리콘 칩을 적층하는 3D 멀티 플립칩 패키지의 경우 방열문제가 대두됨에 따라 접착 접합부의 열전도도 향상이 요구되고 있다. 본 연구에서는 플립칩 본딩용 비전도성 접착제(NCP)에 있어서 알루미나 필러의 첨가가 NCP의 물성 및 열전도도에 미치는 영향을 조사하였다. 알루미나 필러는 미세피치 플립칩 접속을 위해 평균입도 400 nm의 미세분말을 사용하였다. 알루미나 필러 함량이 0~60 wt%까지 증가함에 따라 60 wt% 첨가 시 0.654 W/mK에 도달하였다. 이는 동일 첨가량 실리카의 0.501 W/mK보다는 높은 열전도도이지만, 동일 함량의 조대한 알루미나 분말을 첨가한 경우에 비해서는 낮은 열전도도로, 미세 플립칩 본딩을 위해 입도가 미세한 분말을 첨가하는 것은 열전도도에 있어서는 불리한 효과로 작용함을 알 수 있었다. NCP의 점도는 40 wt% 이상에서 급격히 증가하는 현상을 나타내었는데, 이는 미세 입도에 따른 필러 간 상호작용의 증가에 기인하는 것으로, 미세피치 플립칩 본딩을 위해 열전도도가 우수한 미세 알루미나 분말을 사용하기 위해서는 낮은 점도를 유지하면서 필러 첨가량을 증가시킬 수 있는 분산방안이 필요한 것으로 판단되었다.

Abstract: As the heat dissipation problem is increased in 3D multi flip chip packages, an improvement of thermal conductivity in bonding interfaces is required. In this study, the effect of alumina filler addition was investigated in non-conductive paste(NCP). The fine alumina filler having average particles size of 400 nm for the fine pitch interconnection was used. As the alumina filler content was increased from 0 to 60 wt%, the thermal conductivity of the cured product was increased up to 0.654 W/mK at 60 wt%. It was higher value than 0.501 W/mK which was reported for the same amount of silica. It was also found out that the addition of fine sized alumina filler resulted in the smaller decrease in thermal conductivity than the larger sized particles. The viscosity of NCP with alumina addition was increased sharply at the level of 40 wt%. It was due to the increase of the interaction between the filler particles according to the finer particle size. In order to achieve the appropriate viscosity and excellent thermal conductivity with fine alumina fillers, the highly efficient dispersion process was considered to be important.

Keywords: Multi chip package, Flip chip bonding, Non-conductive paste, Epoxy adhesive, Inorganic filler, Alumina, Thermal conductivity

[†]Corresponding author
E-mail: jkim@kitech.re.kr

© 2017, The Korean Microelectronics and Packaging Society

This is an Open-Access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution Non-Commercial License(<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.

1. 서 론

모바일 정보통신분야에서 사용되는 전자기기는 초소형화, 고집적화에 따라 칩의 접속피치(pitch)가 미세화되고 있으며,^{1,2,3)} 최근에서는 칩을 2.5D 또는 3D로 적층하는 멀티 플립칩 패키지(Multi Flip Chip Package)에 대한 요구가 증가하고 있다. 2.5D 패키지는 실리콘 인터포저(Interposer) 위의 실리콘 칩을 접속하는 것이고 3D 패키지는 실리콘 칩 위에 실리콘 칩을 접속하는 것을 의미한다.⁴⁾

칩스택 3D 패키지(Chip Stack 3D Package)를 개발하는데 있어서 가장 문제되는 것 중의 하나는 열방출 특성이다. 칩에서 발생된 열은 소자의 오작동, 기관 열화 등을 발생시키므로 외부로 신속히 방출되어야 한다. 칩스택 플립칩 패키지의 경우 상부 칩에서 발생된 열이 하부 칩으로 전달되는 통로는 범프(Bump) 접속부와 범프 주위의 접착부이기 때문에 플립칩 본딩에 사용되는 접착제의 열전도성은 매우 중요한 이슈가 되고 있다.^{5,6)}

칩스택 패키지의 접합부 보강을 위한 접착제로는 언더필(Underfill)의 경우 도포가 어렵기 때문에 사용이 곤란하여 선도포 후 본딩(Bonding)을 하는 NCP(Non Conductive Paste)가 사용되고 있다.⁷⁾ 이러한 NCP는 에폭시계 접착제로 열팽창계수를 낮추고, 모듈러스(Modulus)를 증가시키기 위해 일반적으로 구상 용융실리카를 무기필러(Inorganic Filler)로 함유하고 있다.⁸⁾

NCP를 구성하는 에폭시 레진(Epoxy Resin)은 고분자 물질로 열전도도가 약 0.2~0.3 W/mK이며, 순수 실리카(Silica)의 열전도도는 약 1.5 W/mK이다. 3 μm 이상인 구상 실리카 필러를 60 wt% 첨가한 경우 0.5 W/mK 수준의 열전도도를 얻은 것으로 보고되어 있다.⁹⁾ 특히 NCP의 경우 미세피치 적용을 위해 미세 실리카를 첨가해야 하는데 이 경우 첨가량이 더욱 제한되기 때문에 실리카 필러만으로 칩스택 플립칩에 필요한 열전도도를 달성할 수 없는 상황이다.

한편 실리카보다 열전도성이 우수한 필러로는 알루미

나(Al_2O_3), 질화붕소(BN), 질화알루미늄(AlN) 등이 알려져 있다.¹⁰⁾ 이중 알루미나는 실리카에 비해 열팽창계수는 높고 질화붕소, 질화알루미늄 등에 비해 열전도도는 낮지만 비교적 저렴하고, 상온에서 강도와 탄성률이 크며 화학적으로 안정하여 고온에서도 이러한 성질들이 유지되는 장점이 있다.¹¹⁾ 에폭시 접착제에 70 wt% 정도의 알루미나를 첨가하여 3.1 W/mK의 높은 열전도도를 얻은 에폭시 조성물이 보고된 바 있으나 이는 입도 10 μm의 조대한 알루미나 첨가의 경우로 미세입도가 요구되는 NCP에는 사용이 적합하지 않다.¹²⁾

본 연구에서는 멀티 플립칩 본딩을 위한 NCP 포뮬레이션(Formulation)을 위해 400 nm의 미세입도 알루미나 필러가 접착제 및 경화물의 물성과 열전도도에 미치는 영향을 조사하였다.

2. 실험 방법

2.1. NCP 제조

NCP 제조에 사용된 에폭시 레진, 경화제, 촉매제, 커플링제, 필러의 종류와 주요 물성을 Table 1에 나타내었다. 에폭시 레진으로는 국도화학의 에폭시 당량(EEW, equivalent epoxy weight) 165 g/eq인 비스페놀 A 타입 레진을 사용하였다.

경화제는 산무수물계(anhydride)로 Aldrich사의 분자량 168 g/mol인 MHHPA(methyl hexahydrophthalic anhydride)를 사용하였고, 촉매제로는 이미다졸계인 Shikoku사 2E4MZ를 사용하였다.

필러로는 Denka사의 평균직경 400 nm인 구상의 알루미나를 사용하였으며, 분말의 SEM(Scanning Electron Microscope) 이미지를 Fig. 1에 나타내었다.

원료성분의 혼합은 대화테크사의 진공 공자전 믹서를 사용하여 공전 400 rpm, 자전 250 rpm으로 1분 동안 교반 후 진공에서 공전 400 rpm, 자전 250 rpm으로 10분 동안 교반하며 탈포하였다.

Table 1. Chemical properties of epoxy adhesive ingredients

Ingredient	Chemical name	Abbreviation	Molar mass (g/mol)	Chemical structure	Form
Resin	Diglycidyl Ether of Bisphenol A	DGEBA	165		liquid
Hardener	Hexahydro-4- methylphthalic anhydride	MHHPA	168		liquid
Catalyst	2-Ethyl-4-methyl imidazole	2E4MZ	110		solid
Coupling agent	3-Glycidoxypropyl trimethoxysilane	Silane	236		liquid
Filler	Alumina ASFP-30	Alumina	-	-	solid

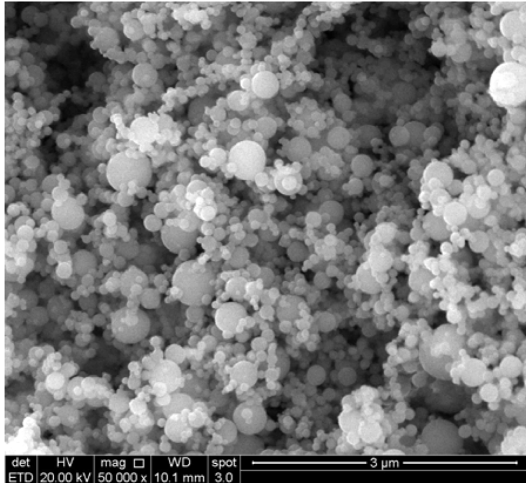


Fig. 1. SEM image of fine alumina particles.

제조된 NCP 샘플의 조성을 Table 2에 나타내었다. 경화제는 레진의 에폭시 당량(equivalent epoxy weight, EEW)을 고려하여 레진의 0.9 mol에 해당하는 만큼인 91.6 phr을 첨가하였다. 촉매제로는 2E4MZ를 0.3 phr 첨가하였고, 커플링제는 0.05 phr을 첨가하였다. 알루미나 필러는 0 wt%에서 60 wt%까지 10 wt%씩 증가시켰다. 알루미나 필러를 첨가함에 따라 필러 간의 결합력을 위해 커플링제를 필러의 1 wt%만큼 더 첨가하였다.

2.2. NCP 점도 측정

미세 알루미나 필러 첨가에 따른 NCP 점도변화는 TA사의 AR-2000 레오미터를 사용하여 측정하였다. 측정온도는 25°C였으며, 회전속도 0.5 rpm과 5 rpm에서 1분간 2초마다 샘플링하여 30회 측정 후 평균으로 점도를 계산하였다.

2.3. 열전도도 측정

NCP 포물레이션에 따른 경화물의 열전도도를 평가하기 위해 온도 25°C에서 Fig. 2(a)에 나타난 C-THERM사의 TCi모델로 열전도도를 분석하였다. Fig. 2(b)와 같이 NCP 경화 샘플을 plate 위에 놓고, (c)처럼 plate위에 코일

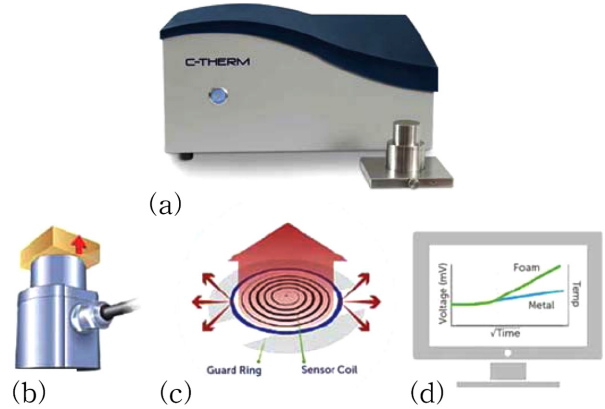


Fig. 2. Principles of thermal conductivity measurement system.

이 있어 전압을 주는 것과 동시에 열이 발생되어 센서로 측정을 하는 방식이다. 측정 후에 (d)처럼 온도 변화를 통하여 열전도도를 나타낼 수 있다.

시편 제조는 NCP를 사각 틀에 담은 후 온도 60°C 온장고에서 1시간동안 점도를 저하시킨 후 진공에서 탈가스 처리를 하였다. 그 다음 80°C 오븐에서 15시간 동안 서서히 경화를 시킨 후 표면을 편평하게 연마하였다.

2.4. 열팽창계수(CTE) 측정

NCP는 기본적으로 칩과 기판사이에 위치하여 칩과 기판의 열팽창계수 mismatch를 완화시키고, 칩과 기판이 연결된 전기적 통로인 범프를 보호하는 역할을 한다. 그렇기 때문에 NCP자체의 열전도도뿐만 아니라 열팽창 계수도 중요하다. TA Instruments사의 Q-400 모델을 사용하여 온도범위 30~250°C, 승온속도 10°C/min로 실험을 진행하였다. 열팽창계수 측정을 위한 샘플은 직경 7 mm이고 두께 약 1 mm로 제작하였다. 온도 변화에 따라 NCP 샘플이 팽창하는 Z방향을 감지하여 측정하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1. NCP 제조특성

알루미나 필러 함량 0~60 wt%에 대하여 레오미터의 회

Table 2. Formulations of non-conductive paste samples (phr : part per hundred resin in weight)

Sample	DGEBA	MHHPA	2E4MZ	Silane	Alumina
# 1	100	91.6	0.3	0.05 + 1 wt% of filler	0 wt%
# 2	100	91.6	0.3	0.05 + 1 wt% of filler	10 wt%
# 3	100	91.6	0.3	0.05 + 1 wt% of filler	20 wt%
# 4	100	91.6	0.3	0.05 + 1 wt% of filler	30 wt%
# 5	100	91.6	0.3	0.05 + 1 wt% of filler	40 wt%
# 6	100	91.6	0.3	0.05 + 1 wt% of filler	50 wt%
# 7	100	91.6	0.3	0.05 + 1 wt% of filler	60 wt%

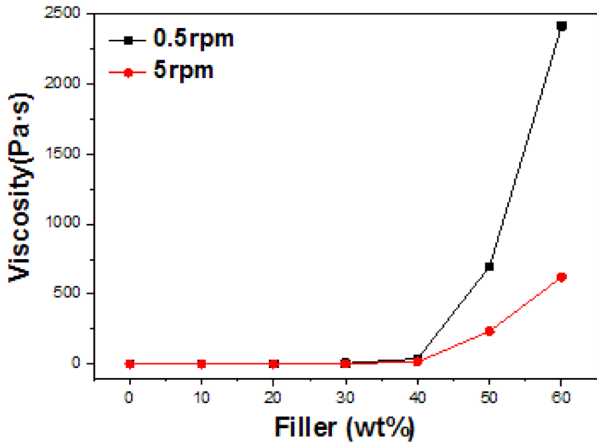


Fig. 3. Viscosity of NCP with the addition of fine alumina filler.

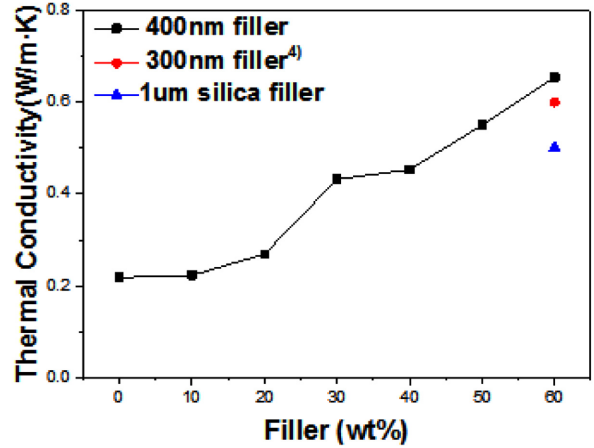


Fig. 5. Thermal conductivity of NCP with the addition of fine alumina filler.

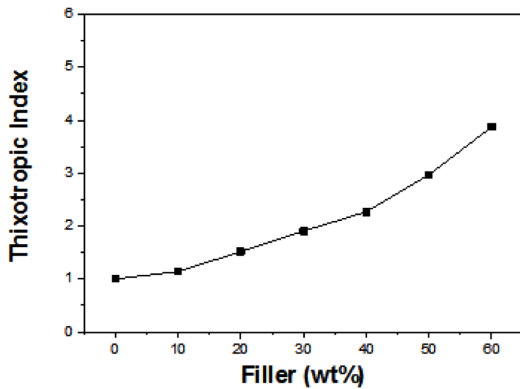


Fig. 4. Thixotropic index of NCP with the addition of fine alumina filler.

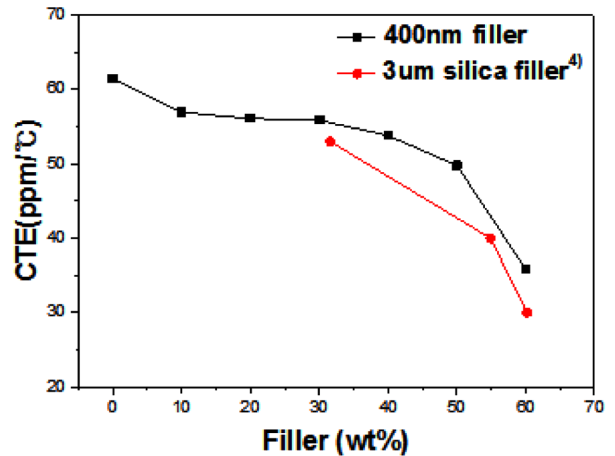


Fig. 6. CTE of NCP with the addition of fine alumina filler.

전속도 0.5 rpm과 5 rpm로 측정된 점도와 이로부터 계산한 척소비를 각각 Fig. 3과 4에 나타내었다. 알루미나 필러의 함량 40 wt%까지는 점도가 0.5 rpm 일 때 40 Pa·s이고, 5 rpm 일 때 18 Pa·s 이하로 유지되었으나, 50 wt% 이상에서는 점도가 급격히 증가하는 경향을 볼 수 있다. 필러 표면적 증가에 따라 레진과의 마찰이 증가하기 때문에 필러 첨가에 따라 점도가 증가하며, 50 wt% 이상에서는 레진보다 필러의 무게가 더 크기 시작하여 상대적으로 필러 표면적의 급격한 증가 때문으로 알려져 있다.

NCP의 척소비는 Fig. 4와 같이 알루미나 첨가에 따라 직선적으로 증가하는 것을 볼 수 있다. 이는 입자간의 상호작용에 영향을 받는 점도의 경우와 달리 입자와 레진간의 상호작용에 의한 것이며, 입자 첨가량에 따른 레진과 접촉면적의 증가에 따라 서서히 증가한 것으로 생각된다.

3.2. 열전도도

알루미나 필러 첨가량 0~60 wt%에 대하여 경화물의 열

전도도 측정결과를 Fig. 5에 나타내었다. 알루미나 필러가 없는 경우에는 0.218 W/mK로 고분자의 열전도도인 0.2~0.3 W/mK 수준임을 알 수 있다. 10 wt% 첨가량에서는 열전도도의 변화가 거의 없었으나 20 wt% 이후부터는 직선적으로 증가하여 60 wt%에서 0.654 W/mK의 열전도도를 나타내었다.

알루미나 필러와의 비교를 위해 평균직경 1 μm인 실리카 필러를 60 wt% 첨가한 NCP를 동일한 과정으로 제조한 경우 열전도도는 0.5 W/mK로 측정되었는데, 이는 알루미나 필러가 동일함량 실리카에 비해 130 % 정도 우수한 열전도도를 갖는다는 것을 나타내는 결과로, 무기필러 첨가에 따른 열전도도 증가효과는 필러 자체의 열전도도 이외에 NCP 내에서 분산에 의한 영향이 크다는 것을 의미한다.

한편 본 연구에서 사용된 400 nm 입도보다 큰 10 μm 입도의 알루미나 입자를 70 wt% 첨가한 경우에는 열전도

도가 3.2 W/mK에 이르는 것으로 보고된 바가 있으며,¹²⁾ 입도가 보다 작은 300 nm 입도 알루미늄 60 wt%의 경우에는 열전도도가 0.6 W/mK로 보고된 바가 있다.⁵⁾ 이러한 결과는 알루미늄 입자의 크기가 작아질수록 열전도도 증가효과가 감소하는 것을 의미한다. 입자 크기의 감소는 단위 면적당 입자 간의 콘택(contact) 확률을 감소시켜 전기전도도를 저하시키므로 열전도도 기구를 둔화시킨다.

따라서 NCP에 미세 알루미늄 필러의 첨가는 볼륨 증가에 따른 열전도도 증가 효과는 적고 표면적 증가에 따른 점도 증가효과가 크기 때문에, NCP의 점도를 적정 수준으로 유지하면서 열전도도를 가능한 높이기 위해서는 미세 알루미늄 필러의 첨가량을 증가시키기 보다는 입도 분포를 조절하는 것이 효과적인 방안이 될 수 있을 것으로 생각된다.

3.3. 열팽창 계수

알루미늄 필러 함량에 따른 열팽창 계수 α_1 을 Fig. 6에 나타내었다. 알루미늄 필러를 첨가하지 않은 경우 61.5 ppm/°C이었으며, 30 wt% 이상부터 열팽창계수가 감소하기 시작하여 60 wt%일 때 35.9 ppm/°C의 열팽창계수를 나타내었다. 이는 Yu 등에 의해 보고된⁵⁾ 동일함량 3 μ m 실리카 필러 첨가시 열팽창계수 30 ppm/°C에 비해 큰 값으로, 알루미늄 필러는 실리카에 비해 열팽창계수가 크기 때문에 무기필러 첨가에 따른 열팽창계수 감소효과가 적은 것으로 생각된다.

4. 결 론

멀티 플립칩 본딩을 위한 NCP 포물레이션에서 400 nm 단일 입도 미세 알루미늄의 첨가는 입자간 상호작용에 의해 점도를 급격히 상승시켰다. 특히 50 wt% 이상에서는 입자의 표면적의 증가와 레진에 비하여 미세 입자의 상대적 무게 증가로 인해 점도 증가가 큰 것으로 판단되었다. 또한 미세 입자는 조대 입자에 비해 함량 증가에 따른 열전도도 증가효과가 감소하는 것으로 나타났다. 그러한 이유로 미세 입자의 사용함에 있어서 NCP의 적정 점도 유지와 열전도도 향상을 함께 고려해야하는 것으로 판단된다. 열팽창계수 측면에서는 3 μ m 입도의 실리카에 비해 감소효과가 더 작은 것으로 나타났다. 이는 알루미늄 필러를 사용한 NCP가 기존 실리카 필러를 이용한 NCP에 비하여 플립칩 패키지에 적용되었을 때 방열특성 개선에 효과를 보일 수 있지만 열팽창계수 감소효과가 작은 것으로 인해 패키지의 열적기계적 신뢰성을 감소시킬 가능성도 있을 것으로 생각된다. 또한 미세 무기필러를 사용함에 있어서 적정 점도 유지와 열전도도 향상을 위해서는 미세 무기필러의 입도분포를 조절하는 것이 효과

적일 것으로 판단된다.

감사의 글

본 연구는 산업통산자원부의 연구지원(과제번호: 10052973)에 의해 수행되었으며 이에 감사드립니다.

References

1. L. K. The, E. Anto, C. C. Wong, S. G. Mhaisalkar, E. H. Wong, P. S. Teo, and Z. Chen, "Development and Reliability of Non-conductive Adhesive Flip-chip Packages", *Thin Solid Films*, 462, 446 (2004).
2. P. S. Ho, G. Wang, M. Ding, J. -H. Zhao, and X. Dai, "Reliability Issues for Flip-chip Packages", *Microelectron. Reliability*, 44, 719 (2004).
3. S. M. Chung, and Y. H. Kim, "Improvement of Reliability of COG Bonding Using in, Sn Bumps and NCA", *J. Microelectron. Packag. Soc.*, 13(2), 21 (2006).
4. S. W. R. Lee, R. Hon, S. X. D. Zhang, and C. K. Wong, "3D Stacked Flip Chip Packaging with Through Silicon Vias and Copper Plating or Conductive Adhesive Filling", *Electronic Components and Technology Conference*, 796 (2005).
5. W. S. Lee, and J. Yu, "Comparative Study of Thermally Conductive Fillers in Underfill for The Electronic Components", *Diamond & Related Materials*, 14, 1647 (2005).
6. J. -R Choi and S. -J Park, "A Study on Thermal Conductivity and Fracture Toughness of Alumina Nanofibers and Powders-filled Epoxy Matrix Composites(in Korean)", *Polymer (Korea)*, 37(1), 47 (2012).
7. B. I. Noh, J. B. Lee, S. H. Won, and S. B. Jung, "Characteristics of Reliability for Flip Chip Package with Non-conductive paste", *J. Microelectron. Packag. Soc.*, 14(4), 9 (2007).
8. K. W. Jang, W. S. Kwon, M. J. Yim, and K. W. Paik, "Effects of Silica Filler and Diluent on Material Properties of Non-Conductive Pastes and Thermal Cycling Reliability of Flip Chip Assembly", *J. Microelectron. Packag. Soc.*, 10(3) (2003).
9. W. S. Lee, I. Y. Han, J. Yu, S. J. Kim, and K. Y. Byun, "Thermal Characterization of Thermally Conductive Underfill for A Flip-chip Package Using Novel Temperature Sensing Technique", *Thermochimica Acta*, 455, 148 (2007).
10. H. Li, K. I. Jacob, and C. P. Wong, "An Improvement of Thermal Conductivity of Underfill Materials for Flip-Chip Packages", *IEEE Transactions on Advanced Packaging*, 26(1), 25 (2003).
11. Y. S. Choi, H. W. Lee, J. H. Lee, Y. L. Park, and C. E. Kim, "The Preparation of Alumina Fiber by Sol-gel Method: (II) Properties of Fiber Spun by TEA Complexed sol(in Korean)", *Journal of the Korean Ceramic Society*, 32(9), 995 (1995).
12. Y. Hwang, J. Kim, and W. Cho, "Thermal Conductivity of Thermally Conductive Ceramic Composites and Silicon Carbide/Epoxy Composites through Wetting Process(in Korean)", *Polymer(Korea)*, 38(6), 782 (2014).