

令和 3 年 6 月 24 日現在

機関番号：17102

研究種目：挑戦的研究（萌芽）

研究期間：2018～2020

課題番号：18K18863

研究課題名（和文）異種材料光集積化に向けた大気開放・局所活性化雰囲気における常温接合の実現

研究課題名（英文）Room temperature bonding in air for heterogeneous optical integration

研究代表者

多喜川 良（Takigawa, Ryo）

九州大学・システム情報科学研究所・准教授

研究者番号：80706846

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 4,800,000 円

研究成果の概要（和文）：極薄の金属薄膜を大気開放下で表面活性化可能な手法を検討し、活性金属密着層を介した大気常温接合の可能性について検討した。大気開放・局所活性化雰囲気における接合機構を作製し、接合実験を行った。金属薄膜の表面活性化と接合メカニズム把握に向けて多くの知見の取得に成功するとともに、条件によっては光学応用で重要な酸化材料の大気常温（ないし低温）接合が可能であることも分かった。本研究により、将来の簡便な大気中常温接合プロセスの実現に向けた基礎データ取得に繋がった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本成果は、真空・大気下における金属薄膜の表面活性化状態と接合メカニズム把握に繋がり学術的な価値は高い。また、大規模な真空引き装置を必要としない将来の簡便な大気中プロセス実現に寄与する可能性があり産業的にも価値があると考えられる。

研究成果の概要（英文）：In this study, room temperature bonding of metal ultra-thin films in air is investigated for heterogeneous optical microsystem. Surface activation process of metal ultra-thin film in air is proposed. Based on acquired knowledge, room temperature bonding of oxide materials in air using Au ultra-thin film is demonstrated. These results show the potentials for fabricating future low-cost bonding machines.

研究分野：実装・集積

キーワード：大気低温接合

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

次世代の光マイクロシステムの実現には、優れた機能を有する光素子を異種材料プラットフォーム上へハイブリッド集積することが有効なアプローチとなる。この光素子のハイブリッド集積化の分野では、従来のはんだや接着剤を利用しない新しい低温固相接合技術の開発が求められている。接合温度の低温化に向けて開発が進む半導体等の直接接合法ではあるが、実用化レベルの接合強度を確保するには通常数百度以上のアニール処理を要する。このため、熱膨張係数が大きく異なる材料同士の接合(LiNbO₃/Si, LiTaO₃/Si など)では大きな残留応力やクラックの発生要因となる。また、耐熱性の低い材料の接合では劣化の要因となるため、加熱プロセスを必要としない固相接合技術への期待は大きい。この解として、表面活性化常温接合法が提案されている。これは、アルゴン高速原子ビームやイオンビーム照射等を利用した物理的なスパッタエッチングにより接合表面に付着する有機汚染層及び自然酸化膜を除去した後、材料固有の清浄表面同士を接触させ低温で強固な接合を達成する手法である。これまで酸化物材料には適用困難と言われてきたが、金属などの密着層を介することで常温でも接合可能であることも分かってきている。しかし、接合面の酸化や汚染層再付着を回避するため一連の活性化・接合プロセスは、一般に超高真空中下で行われる。本接合法は、加熱処理を伴わないことは大きな利点であるが、真空引きを必要とするためコストの面で課題があり大気常温接合技術への発展が望まれる。

本研究では、スパッタリング等により形成した金属極薄膜を大気下で表面活性化可能な手法を検討し、これを密着層とした将来の簡便な大気常温接合技術の開発に向けた基礎的なデータの取得を目指す。

2. 研究の目的

極薄の金属薄膜を大気開放下で表面活性化可能な手法を検討し、活性金属密着層を介した大気常温接合の可能性を調査する。特に光学応用で重要な酸化物材料を中心に大気下で金属薄膜を介した常温(ないし低温)接合技術開発に向けた基礎的なデータ取得を目的とする。さらに、その他の大気低温接合手法についても探索する。従来の超高真空装置が必要な大規模プロセスから解放され、将来の簡便な大気中プロセス実現に寄与するものとする。

3. 研究の方法

簡便な大気中プロセスで常温接合を行うために、大気開放・局所活性化雰囲気での活性化・接合プロセスを行うための機構の設計を行う。これは、大気圧プラズマ照射(Ar, H₂, N ガス)により、作り出される活性化雰囲気内で一連の接合プロセスを行うものである。その他、酸素プラズマ照射や紫外線洗浄などの活性化手法についても検討する。光学応用として重要な酸化物材料同士等の大気常温接合に向け、接合性に優れる極薄な金属薄膜形成条件を調査し、接合特性について考察する。また、接合面への効率良い親水基付与・アニール手法を考慮した大気低温接合手法も併せて検討し、従来困難とされてきた異種材料接合への適用性を調査する。

4. 研究成果

まず、超高真空中で金属中間層を介し酸化物ウエハの常温接合を行った。金属中間層(Fe, Cr, Ni 等)の厚さが1nm程度と極薄であっても常温で接合可能であることが分かった。LiNbO₃とSiO₂接合の場合、界面の接合強度をブレード試験で評価したところ約1 J/m²と強固な接合強度が得られた。接

合界面近傍の元素分析を行ったところ、このレベルの極薄密着層であれば、下地の影響も接合強度に影響を与えることも分かってきた。次に、各種金属を光学材料として重要なウエハ(LiNbO₃, LiTaO₃, Al₂O₃, SiO₂など)にスパッタリング装置等で金属極薄膜を形成した後、水素添加アルゴンガス等を利用し大気圧プラズマ照射により作り出される活性化雰囲気内で接合を行った。なお、これまでの先行研究から常温・無加圧でも接合可能な大きな条件の一つは平滑な表面粗さ(RMS: <0.5 nm)であり、保有するスパッタリング装置等でこれを満たす形成条件を導出し、各接合実験用サンプルとして利用した。有機物除去のみならず水素添加による各種金属表面の還元効果を期待し大気下接合を行ったが、常温では強固な接合強度は得られなかった。今後は、諸条件(加圧機構等を含め)の見直しを行う必要がある。ただし、酸化しづらいAu薄膜ではこの大気圧プラズマ照射による表面活性化が有効性であることが示された。一方、Au薄膜の接合に酸素プラズマ照射による活性化を行ったところ、接合に効果的ではなかった。これは、付着している有機物除去には有効である反面、Au薄膜表面が酸化してしまい接合を阻害することが要因だと考えられる。これは、酸素ガスを添加した大気圧プラズマ照射を利用した場合も同様な傾向になると推測される。次に、紫外線照射を利用した大気中表面活性化プロセスも検討した。有機物除去には有効であったが、接合強度の十分な向上は見られなかったことからこちらもAu酸化の影響が考えられる。また蒸着膜からなるAuマイクロポンプを利用すれば、塑性変形の効果から接合強度が向上することも分かってきた。

ガラス等の酸化物ウエハに、Au薄膜を形成し、その後即座に常温接合も試みた。ウエハと金薄膜の密着性向上のためTiを介している。Au薄膜の表面粗さは、0.5 nm程度である。ピンセットで2枚の4インチウエハを押しつけ中心部の一か所まで接合が達成すると接合領域が徐々に広がっていくことが分かった。動画を撮り、この広がる様子を観察したところ、約30秒後にはウエハ1/4程度の面積に接合が広がり、約3分後には、ウエハ大部分で密着・接合が達成された。図1にその接合された様子を示す。大気下での接合のためパーティクルの影響は避けられず、これを上手く避けながら接合領域が広がっていくことも分かった。ウエハ端部では、Au薄膜のスパッタリング前後のハンドリングの問題で密着・接合が達成できていないものと考えられる。接合強度の測定のためブレード試験を行ったところ、ブレード挿入時にウエハが割れてしまった。これは、界面での強度が金の表面エネルギーである約1.4 J/m²を超えていることを示し、実用化に向けた目安となる1 J/m²を大幅に超えた極めて強固な接合が達成されていることを示唆している。この結果は、薄膜形成した直後であれば、大気下でもAu薄膜表面は活性化された状態が維持されること分かる。今後は、AFMによる膜の表面粗さのみならず、薄膜の膜質やウエハの反り等が接合特性に及ぼす影響や活性化寿命を延ばすための適切な活性化手法についてより詳細に検討していく予定である。

その他、化合物半導体とカーボン系材料を大気下で接合する手法として、ウエットプロセスも併用し効率よく親水基を接合界面に付与することで低温接合(アニール温度: 250度程度)に成功した。接合界面を透過型電子顕微鏡で観察した結果、ボイドなく原子レベルの密着も確認できた。

以上、コロナの影響もあり一部実験が十分に進まなかったが、将来の簡便な大気常温接合技術の開発に向けた有意義な基礎的なデータを取得することができた。得られた成果を社会に還元するため、学術論文誌(オープンアクセス誌を含む)への投稿や国内外での学会発表についても、引き続き行っていく予定である。

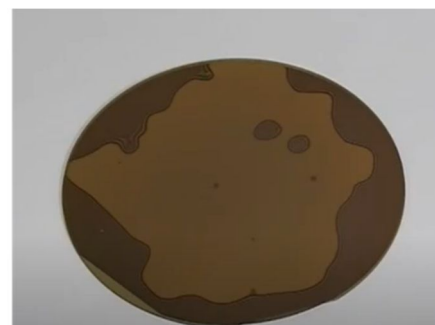


図1 大気下で常温接合された
4インチウエハ

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 4件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 Matsumae Takashi, Takigawa Ryo, Kurashima Yuichi, Takagi Hideki, Higurashi Eiji	4. 巻 11
2. 論文標題 Low-temperature direct bonding of InP and diamond substrates under atmospheric conditions	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁 1-7
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41598-021-90634-4	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -
1. 著者名 Takigawa Ryo, Higurashi Eiji, Asano Tanemasa	4. 巻 58
2. 論文標題 Ultrathin adhesive layer between LiNbO3 and SiO2 for bonded LN01 waveguide applications	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 SJJE06
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7567/1347-4065/ab24b6	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Ryo Takigawa, Toru Tomimatsu, Eiji Higurashi, Tanemasa Asano	4. 巻 10
2. 論文標題 Residual Stress in Lithium Niobate Film Layer of LN01/Si Hybrid Wafer Fabricated Using Low-Temperature Bonding Method	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Micromachine	6. 最初と最後の頁 136-136
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3390/mi10020136	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -
1. 著者名 Ryo Takigawa, Eiji Higurashi and Tanemasa Asano	4. 巻 86
2. 論文標題 Surface Activated Bonding of LiNbO3 and GaN at Room Temperature	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 ECS transactions	6. 最初と最後の頁 207-213
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1149/08605.0207ecst	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計4件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 3件）

1. 発表者名 Ryo Takigawa, Haruichi Kanaya
2. 発表標題 Surface activation of Au films using vacuum ultraviolet irradiation for low-temperature bonding in air
3. 学会等名 The 8th Internatinal Conference on BioSensors, BioMedical Devices, Bio MEMS/NEMS & Applications 2019 (Bio4Apps2019) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 多喜川良、日暮栄治、浅野種正
2. 発表標題 接合中間層がLN01光導波路特性に及ぼす影響調査
3. 学会等名 エレクトロニクス実装学会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Ryo Takigawa, Eiji Higurashi and Tanemasa Asano
2. 発表標題 Room-temperature wafer bonding of LiNbO3 and SiO2 using sub-nanometer Fe films
3. 学会等名 23rd Microoptics Conference (MOC2018) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Ryo Takigawa, Eiji Higurashi and Tanemasa Asano
2. 発表標題 Surface Activated Bonding of LiNbO3 and GaN at Room Temperature
3. 学会等名 ECS meeting (国際学会)
4. 発表年 2018年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
--	---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------