

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 24 日現在

機関番号：12601

研究種目：基盤研究(A)

研究期間：2011～2013

課題番号：23246125

研究課題名(和文) 大気中常温接合の新手法

研究課題名(英文) New Method for Room Temperature Bonding at Ambient Gas

研究代表者

須賀 唯知 (Suga, Tadatomo)

東京大学・工学(系)研究科(研究院)・教授

研究者番号：40175401

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 36,600,000円、(間接経費) 10,980,000円

研究成果の概要(和文)：本研究は、我国が先行する常温接合を世界に先駆けて実用化・量産化に結びつけるための新しい視点として、大気中での常温接合を実現することを目的としている。

そのため、従来の常温接合の基礎技術を体系化し、Arイオン衝撃とSiのナノ密着層の組み合わせ、原子拡散接合、大気圧プラズマ照射、水素ラジカル処理などの新しいプロセス、およびその複合プロセスを提案した。

またこの過程で、当初予定していなかったSi-Feナノ密着層を適用することで、ポリマーとガラスや、SiCなどの接合が可能であることが判明した。これらの結果を応用し、光マイクロシステムの集積化やデバイス封止技術へ適用可能であることを示した。

研究成果の概要(英文)：This research aims to establish a method for room temperature bonding in ambient gas as a new approach to industrial and volume production for devices using the surface activated bonding method which has been developed in advance in Japan.

For this purpose, the fundamental knowledge for bonding and its mechanism was accumulated and compiled systematically. Based on those research results, new processes including Ar-ion bombardment, Si-nano adhesion layer, atom diffusion bonding, air-plasma treatment, hydrogen radical treatment, and their combined processes were proposed to demonstrate the feasibility of the method for room temperature bonding. During the research also a new finding was done that shows the possibility of bonding polymers, glasses, and SiC using Si-Fe nano-adhesion layer, which was not planned in the original research proposal. Finally it has been shown that the proposed process can be applied successfully to integrating optical microsystems and sealing micro-devices.

研究分野：工学

科研費の分科・細目：材料工学 材料加工・処理

キーワード：接合 実装 集積化 常温接合 表面活性化

1. 研究開始当初の背景

表面活性化による常温接合は、金属や半導体、セラミックスの表面の酸化物や吸着層をイオン衝撃によって除去し、活性な状態にしたまま相互に接触させることで、加熱することなく接合を行う手法である。近年金属クラッド材が実用化され、Si と圧電単結晶ウエハの常温接合により SAW フィルタデバイスが量産化となるなど、主に MEMS パッケージでの実用化が加速している。一方、いわゆる Si ウエハ接合の分野はこれとは全く異なる、酸素プラズマの照射と親水性を使う接合が通常であるが、常温で強度は小さく、常温での接合強度という観点からは、前者の表面活性化による常温接合手法が原理的にも抜きん出ている。それにも関わらず、実用化のレベルという観点では、従来のウエハ接合の手法が大きく進んでおり、装置メーカーも完全に欧米系の 2 社に独占されている状況にある。その大きな理由は、研究に超高真空という特殊な環境が必要であったこと、それが故に限定的な用途しかなかったことにあると思われる。しかし、常温接合のニーズの高まりとともに、従来型ウエハ接合の量産で先行している欧米系や、先端製造技術の確保のために多額の研究開発費を投入している中国・東南アジア勢が、すでに常温接合に興味を示しており、これらに対抗するには、再度、この常温接合技術の見直しと新たな視点の導入による技術の体系化が必須であった。

2. 研究の目的

上記の背景のもと、本研究では、我が国が先行する常温接合において、世界に先駆けて実用化・量産化に結びつけていくための新しい視点として、超高真空によらない大気中常温接合を実現することを目的とした。そのために、従来の常温接合の基盤技術を体系化し、Ar イオン衝撃を主体にした表面活性化に加え、金属や Si の数原子層極薄膜形成プロセス、大気圧プラズマ照射、水素ラジカル照射などの新しいプロセス、およびそれらを組み合わせたシーケンシャルな複合プロセスを提案し、光マイクロシステムのパッケージ、フォトニクスデバイスの開発等を通じてその可能性を検証した。

3. 研究の方法

(1)表面活性化の基礎検討

Ar-FAB による表面活性化と Si-Fe ナノ層の組み合わせにより半導体系、SiC 系の接合を試みる。その過程で、この手法が Polymer-ガラス系や Polymer の接合に適用できることが明らかになったことから、小径対応常温大気中接合装置の試作を行い、封止プロセスについても最適な条件を探り、接合実験を通して、新しい接合プロセスの接合メカニズムと信頼性に関する基礎的な知見を得る。

(2)ナノ密着層による原子拡散接合

、様々な酸化物生成能と原子自己拡散係数を有する金属 (Fe, Al, Cu, Si, Ti, Ag, Au) をナノ密着層として選択し、これらの薄膜を 2~4 インチのウエハ (石英, Si) 上にマグネトロンスパッタ法で形成した。その後、これらナノ密着層を用いたウエハの室温接合性能を、成膜と同一真空中、不活性ガス中、ならびに、成膜後に大気に取り出した後に接合を実施し、接合雰囲気と接合性能の関係を検討した。

(3) Ar プラズマ、大気圧プラズマ、水素ラジカル処理

GaN 異種材料集積光デバイスを実現するために、Au を用いた常温オーミックコンタクト層の形成方法を検討し、これらオーミック電極を大気中で表面活性化接合する集積技術を検討した。また、アルゴンガスを用いた高周波プラズマに加えて、各種大気圧プラズマを用いた Au-Au 表面活性化接合技術を開発し、半導体光素子のダイボンディングおよびマイクロシステムの気密封止プロセスへの適用可能性を調査した。

さらに、水素ラジカル処理したはんだ表面の再酸化抑制効果に着目し、Au 膜との低温凝固相接合技術の実現可能性を検討した。最終的に、これらの結果を適用して光マイクロシステムの集積化やオプティカルデバイスの封止の検証を行った。

4. 研究成果

(1)表面活性化の基礎検討

まず、提案するプロセスのシーケンシャルの組み合わせに対し、対象材料を変化させ、大気中接合の可能性を検討した。特に、Si、ガラスを対象とした水プラズマ接合、およびナノ密着層接合を検証し、その有効性を確認した。上記に対するフッ素添加プラズマ接合の検証を行い、その有効性を確認した。

さらに新たな展開が期待できると認められた Polymer-ガラス系を対象材料として加え、大気中常温接合の可能性をナノ密着層の組み合わせにより検証した。また小径対応常温接合装置の試作を行い、シーケンシャルプロセスのパラメータの影響の検討、プロセスパラメータの最適化をおこなった。

さらに本研究で提案された Si-Fe ナノ密着層を適用することで、高分子フィルムの接合を実現した。また、SiC-SiC の常温接合が可能であり、接合が 1000°C の高温まで安定であることを明らかにした。

(2)ナノ密着層による原子拡散接合

1)原子拡散接合における真空中及び不活性ガス中の接合

真空中及び不活性ガス中の接合では、いずれの薄膜も室温で接合することができた。一例として、図 1 に Ar ガス中で Ti 膜を用いて接合した Si ウエハの断面 TEM 像を示す。Ar 中の接合でも、真空中と同様に Ti/Ti 界面が生じている。解析の結果、原子自己拡散係数が大きな Al, Cu, Ti, Ag, Au では、真空中

および不活性ガス中（0.1～1 気圧）における室温接合で、薄膜間の接合界面が消失した。ただし、不活性ガスの純度が低下すると、Al, Ti 等の氧化物生成能が高い材料ほど、接合界面にアモルファス状の層が形成され接合強度が低下し、大気中では、Ag, Au 薄膜を除き、接合できなかった。

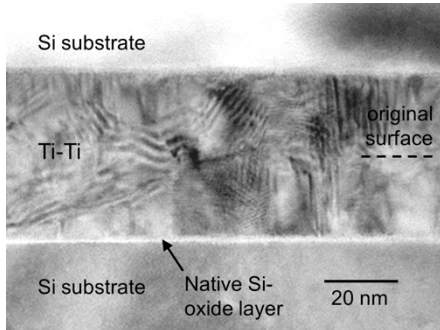


図 1. Ar ガス中で Ti 膜(片側 20 nm)を用いて接合した Si ウエハの断面 TEM 像。

2) Au, Ag 膜を用いた大気中の接合性能

氧化物生成自由エネルギーが正である Au 膜をナノ密着層に用いて、水晶ウエハの大気中接合を行ない、接合に用いる Au 膜厚（3, 7, 20 nm）と大気暴露時間等が接合に与える影響を検討した。図 2 には、Au 膜(20 nm)成膜後に大気中を取り出し、1 週間経過後に接合した石英ウエハの断面 TEM 像を示す。Au/Au 界面では室温で再結晶が生じ、Au の表面エネルギーを超える大きな接合強度でウエハを接合できることが明らかとなった。

一方、Au よりも安価で熱伝導性が高いものの室温で僅かに氧化物形成能を有する Ag 膜（膜厚 20 nm）を用いたウエハ接合では、接合時に約 0.5 MPa 以上に加圧することで Au 膜を用いた場合と同等の大きな接合強度が得られた。ただし、接合に用いた Ag 膜の構造が不均質であり、場所により、図 3 に示すように接合界面の所々に数十ナノレベルの空隙が形成されること、ならびに、大気暴露時間の増加や接合膜厚の低下により接合性能が低下することを解明した。

このような Au 膜, Ag 膜をナノ密着層として接合する技術を用いて、放熱用金属バルク材料とデバイスが形成されたウエハの接合について検討した。その結果、図 4 に示すように、接合時に 10 MPa 程度に加圧することで、Al 等の鏡面研磨金属と石英, Si 等のウエハを室温で接合することに成功した。



図 2. Au 膜 (20 nm) 成膜後に大気中に取り出し、1 週間経過後に接合した石英ウエハの断面 TEM 像。



図 3. Ag 膜 (20 nm) を用いて大気中で接合した石英ウエハの断面 TEM 像。

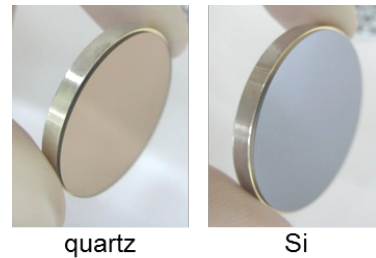


図 4. Au 膜 (50 nm) を用いて鏡面研磨アルミと大気中接合した石英および Si の各ウエハの写真

(3) Ar プラズマ, 大気圧プラズマ, 水素ラジカル処理

1) ノンアロイ金属オーミックコンタクト層を用いた GaN の Si 基板上への低温接合

n-GaN 表面 (Si ドープ, $2 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$) をアルゴン高速原子ビーム (Ar FAB) で前処理し、引き続き Cr および Au をスパッタリングすることにより、常温 Cr/Au オーミックコンタクト層を n-GaN 上に形成することに成功した (図 5)。高温アロイ処理を行わないため、電極表面は平滑 (rms 表面粗さ: 1.8 nm) であり、Ar 高周波プラズマを用いた Au-Au 表面活性化接合技術を適用することにより Si 基板上にオーミックコンタクト層を有する GaN チップを低温集積 (150°C) することに成功した。

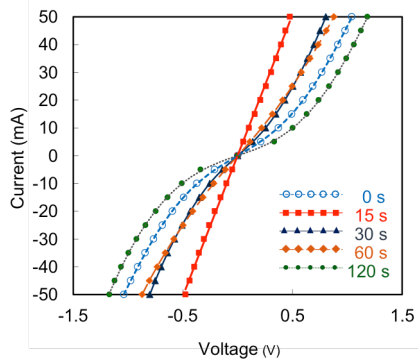


図 5. Ar 高速原子ビームで前処理した n-GaN 表面に形成した Cr/Au 電極の I-V 特性.

2) Ar 高周波プラズマで活性化した Au 膜の気密封止プロセスへの応用

Au 高周波プラズマを用いた Au-Au 表面化接合技術の気密封止プロセス (大気圧雰囲気) への適用可能性を明らかにした. 荷重 300 MPa, 接合温度 150°C の接合条件では, MIL-STD-883 の基準値 (リークレート $5.0 \times 10^{-9} \text{ Pa} \cdot \text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$) 以下のリークレートが可能であることを示した. ガラス基板, Si キャビティ基板を積層した低温気密封止パッケージング技術を提案した.

3) 大気圧プラズマを用いた Au-Au 低温接合

半導体レーザーチップなどの光素子の低温接合技術を実現するために, 大気圧プラズマを用いた Au-Au 表面化接合技術 (大気雰囲気) を開発した. コイニングにより平滑 ($R_a: 3.0 \text{ nm}$ 以下) で厚い ($10 \text{ }\mu\text{m}$ 以上) Au バンプを形成し (図 6), Ar+H₂ 大気圧プラズマや N₂ 大気圧プラズマにより活性化を行うことで, 低温 (常温~150°C) で光応用に十分な接合強度 (MIL-STD-883 の基準値以上) が得られることを実証した. また, Ar+H₂ 大気圧プラズマを用いた場合, 従来の Ar 高周波プラズマに比べて表面処理効果が長時間にわたって

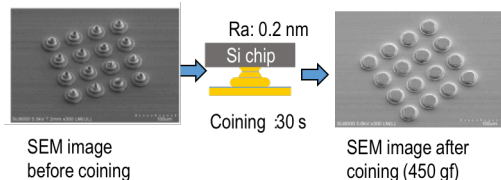


図 6. Au スタッドバンプをコイニングして形成した Au バンプ.

持続し, プラズマ照射後大気中に 10 時間暴露しても強固な接合が可能であることがわかった.

4) 水素ラジカル処理した SnAgCu はんだのフラックスレス低温固相接合技術

水素ラジカル処理した Sn_{3.0}Ag_{0.5}Cu はんだを用いて, Au 膜とのフラックスレス低温固相接合を行った. 170°C 以上の温度で安定した

接合が可能で, 接合温度 170°C, 荷重 150 MPa, 接合時間 10 分以上の条件では, 30 MPa 以上の接合強度が得られた. エネルギー分散型 X 線分析装置による分析結果から, ガラス基板側に形成した Sn_{3.0}Ag_{0.5}Cu パターンと Si 基板側の Au 膜 (厚さ 500 nm) が拡散し, Au-Sn 系の金属間化合物層が生成されていることがわかった. また, 接合温度 170°C, 荷重 150 MPa, 接合時間 30 分以上の接合条件では, リーク率が $1 \times 10^{-9} \text{ Pa} \cdot \text{m}^3 / \text{s}$ を下回る気密封止が可能であることを明らかにした.

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 39 件)

- ① R. Kondou, T. Suga, Si nanoadhesion layer for enhanced SiO₂-SiN wafer bonding, Scripta Materialia, vol. 65, (2011) 320-322
- ② C. Wang and T. Suga, Room Temperature Direct Bonding Using Fluorine Containing Plasma Activation, Journal of The Electrochemical Society, vol. 158 (2011) 525-529
- ③ 島津 武仁, 魚本 幸, 原子拡散接合法を用いたウエハの室温接合とデバイス応用, 精密工学会誌(解説), vol. 79, 710-713 (2013).
- ④ 今 一恵, 魚本 幸, 島津武仁, Au 薄膜を用いた大気中のウエハ室温接合における大気暴露時間と接合性能, エレクトロニクス実装学会誌, vol. 17 (2014) in press.
- ⑤ E. Higurashi, T. Fukunaga, and T. Suga, IEEE Journal of Quantum Electronics, 査読有, vol. 48, no. 2, pp. 182-186, February (2012)
- ⑥ S. Yamamoto, E. Higurashi, T. Suga, and R. Sawada, J. Micromech. Microeng., 査読有, vol. 22, no. 5, 055026 (2012)

[学会発表] (計 59 件)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

須賀 唯知 (SUGA, Tadatomo)
 東京大学・工学系研究科・教授
 研究者番号: 40175401

(2) 研究分担者

島津 武仁 (SHIMATSU, Takehito)
 東北大学・学際科学フロンティア研究所・教授
 研究者番号: 50206182

日暮 栄治 (HIGURASHI, Eiji)
 東京大学・先端科学技術研究センター・准教授
 研究者番号: 60372405