

金属薄膜を用いた原子拡散接合の開発

島津 武仁* 魚本 幸**

1. はじめに

ウエハの直接接合は、種々の電子デバイス、パワー用デバイス、光学デバイス、MEMS (Micro Electro Mechanical Systems) 等を作成する上で重要な技術である。古くから知られたウエハの直接接合は、鏡面研磨された清浄なウエハを、ファンデルワールス力により相互に接合するものであるが⁽¹⁾、十分な接合力を得るためには、接合後に熱処理あるいは外部電圧の印加が必要である⁽²⁾。そのため、この方法は、熱に弱い機能性薄膜や電子素子等を表面に形成したウエハ、熱膨張係数が大きく異なるウエハ等を接合するためには適していない。

ここで、非常に清浄な金属表面を触れ合わせると界面で金属結合が生じることは昔から知られている⁽³⁾⁻⁽⁶⁾。「表面活性化法」は、金属表面を持つウエハや Si ウエハ等を室温で接合する有用な方法である⁽⁷⁾⁽⁸⁾。この方法では、超高真空中で、接合するウエハ表面を FAB (Fast Atom Beam) ガン等によるイオン照射で清浄化・活性化した後で、活性面を互いに接合する。これにより、熱に弱い機能性薄膜を形成したウエハや、熱膨張係数の著しく異なるウエハ等を、室温で接合することが可能である。

一方、接合する2つのウエハの表面にスパッタ法等で微結晶金属薄膜を形成し、引き続き同一真空中で、その薄膜を相互に接触させてウエハを接合する方法は、室温でウエハを接合するもう一つの手法である⁽⁹⁾⁻⁽¹¹⁾。本手法では、金属薄膜の粒界や表面における原子拡散を利用することで、大きな圧力を印加することなく室温でウエハを接合することができることから、我々は原子拡散接合法と呼んでいる。金属薄膜を形成するプロセス上の煩雑さはあるものの、他の接合方法では接合が難しい Ta や W 等の高融点金属膜を用いてウエハを接合することも可能であり、また、接合するウエハの材質を選ばない。

これまでの実験⁽¹¹⁾から、原子拡散接合法で接合した金属

薄膜の構造は、原子拡散係数と結晶構造に密接な関係があることが明らかとなっている⁽¹¹⁾。金属の原子拡散は、固体(結晶)内に比べ、粒界や表面において桁違いに大きく、微結晶金属膜の表面近傍で、原子拡散の活性化エネルギーと表面エネルギーが同程度の大きさになることから、室温での接合が可能になっているものと推察している。この接合では、片側 0.2 nm (1 原子層相当)の膜厚を用いた場合でも、ウエハを強固に接合することが可能であるため、接合後のウエハ間を、電子やスピンを抵抗なく行き来させることも可能である。また、接合に用いる金属薄膜を、電極や反射膜等の機能性薄膜の一部として用いることも可能である。さらに、材料の異なる金属薄膜を相互に接合することも可能である。

本報告では、典型的な例を示しながら、接合に用いる金属薄膜の種類と接合後の構造ならびに原子拡散係数との関係を述べる。また、接合膜厚の低減の実験結果を例に、電子デバイス作成への応用について議論する。後半では、貴金属系の薄膜を用いて、薄膜形成後にウエハを大気中に取り出した後で接合した場合の接合条件と膜の構造について、酸化物の形成自由エネルギーを考慮に入れて議論した結果についても紹介したい。

2. 実験方法

薄膜は、超高真空の真空性能を有する dc マグネトロンスパッタ装置で行った。成膜室の到達真空度は 2×10^{-6} Pa 程度である。プロセスに用いた Ar ガスには純化器を用いており、その不純物濃度は真空チャンバーへのガス導入位置で数 ppb 程度である。

スパッタ装置を用いて、接合する2つのウエハ上に薄膜を形成し、引き続き、同一真空中で薄膜表面を互いに重ねることで接合を行った。接合には、図1に模式的に示したような治具を用いた。二つのホルダ上にウエハをそれぞれ固定し、薄膜の成膜後に、片側のホルダを回転させて他方のホルダ上に重ね合わせる構造となっている。ウエハを押し付ける

* 東北大学准教授；電気通信研究所(〒980-8577 仙台市青葉区片平 2-1-1)

** 東北大学研究員；電気通信研究所

Atomic Diffusion Bonding with Thin Nanocrystalline Metal Films; Takehito Shimatsu* and Miyuki Uomoto** (Research Institute of Electrical Communication, Tohoku University, Sendai)

Keywords: room temperature wafer bonding, atomic diffusion coefficient, nanocrystalline metal films, surface energy, recrystallization

2010年8月6日受理

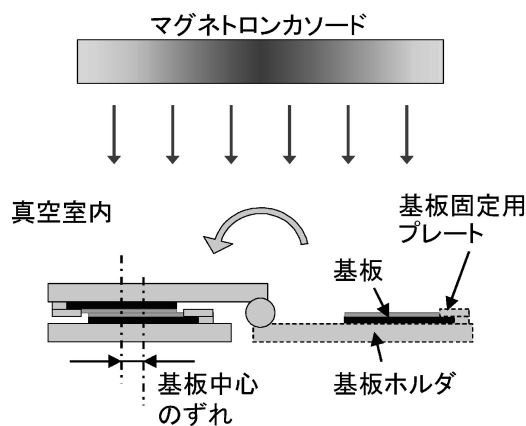


図1 接合プロセスの概略図.

力は、数 kPa の弱い力である。本稿では、標準的な鏡面研磨を施した 2 インチあるいは 1 インチの、Si ウエハ、SiO₂ ウエハ、あるいは水晶ウエハを用いた結果を示した。本実験では、図 1 に示すように、ホルダにウエハの片隅を簡便的に固定する方法を採用しているため、二つのウエハは、中心を少しずらして接合した。

実験には、Al, Au, Ag, Cu, Si, Co, Ni, Pd, Pt, Ti, Ru, Fe, Cr, Mo, Ta, 及び W の合計 16 種の単金属を接合に用いた。同一金属薄膜を用いた接合では、2 つのウエハ上に同時に成膜を行ったが、異種金属の接合では、ウエハ毎に、それぞれ薄膜を成膜した。標準的な薄膜の膜厚は 20 nm とした。成膜中ならびに接合時のいずれにおいても、ウエハの加熱は行っていない。一部の実験では、Ta あるいは Cr 膜を下地膜として成膜している。この下地膜は、薄膜の結晶配向の制御の目的⁽¹²⁾と、接合に供する薄膜のウエハへの付着強度を増加させる目的で用いている。薄膜の構造解析は、主に、接合膜断面を透過電子顕微鏡 (TEM) で観察することで行った。

3. 接合膜の種類と接合後の構造

(1) 拡散係数が大きな薄膜 (fcc 等の最密結晶構造)

これまでの実験から、同種薄膜の組合せでは、いずれの薄膜を用いた場合でも、室温でウエハ全体にわたって接合することが出来ている⁽¹¹⁾。

図 2 には、原子の自己拡散係数が比較的大きな材料である Ti-Ti, Al-Al, Au-Au, Ag-Ag, Cu-Cu, 及び、Pt-Pt の接合膜の断面の TEM 写真を示した。いずれも片側 20 nm の薄膜を接合に用いており、Ti-Ti 接合膜を除き、Ta 下地層 (5 nm) を用いている。これらは、最密充填の結晶構造を有しており (Ti は hcp, それ以外は fcc)、X 線回折解析の結果、いずれの接合前の薄膜も、原子最密面が膜面に並行に配向していることを確認している。図中には、室温 (300 K) における原子の固体中の自己拡散係数 D を次式により計算で求めた値も示してあり、図中では、左上から自己拡散係数が大きな材料の順に並べてある。

$$D = D_0 \exp(-Q/RT) \quad (1)$$

ここで、 D_0 は周波数因子、 Q は活性化エネルギー、 R はガ

ス定数、 T は絶対温度であり、 D_0 及び Q の値には文献値⁽¹³⁾を用いている。

Pt を除く全ての材料において、接合前の薄膜界面は消失していることがわかる。これは、薄膜表面が互いに接触した際に、原子の再配列が生じるためであると考えられ、特に、 D の大きな Ti, Al 等において顕著であった⁽¹¹⁾。

この内、片側の膜厚を 50 nm まで増加させて接合した Al-Al の断面 TEM 像を図 3 に示した。片側のウエハの Ta 下地層表面から他方の Ta 下地層につながる結晶粒が多数確認できるが、一部の結晶粒は膜厚方向の途中で粒界が形成されているなど、複雑な構造をしている。これは、接合前の薄膜が、最密面が膜面に並行に配向した多結晶膜であり、粒子毎に膜面内方向の結晶方位や原子面配列の順 (abcabc...あるいは acbacb...) が異なるため、接合時に薄膜表面が互いに接触した際に、再結晶が広範囲に進行する結晶粒と、短範囲の再結晶に留まる結晶粒が存在するためであると推察される。

また、図 2 (d) の Ag-Ag 膜では、連続した斜めの特徴的な組織が観察されている。図 4 には、図 2 (d) の Ag-Ag 膜接合界面近傍の高分解能な断面 TEM 写真を示した。図中の 3 つの矢印は {111} 面に沿っている。斜めに走る境界で原子配列が折り返した双晶構造を有しており、接合により原子の再配列が生じていることを裏付けている。

一方、Pt-Pt 接合膜では接合界面が明確であり、これは、図 2 に示した他の材料に比較して D の値が小さいことと良く対応している。ただし、膜接合界面近傍の高分解能 TEM 観察の結果、接合面に空隙は観察されず、原子レベルで薄膜は接合されていることを確認している⁽¹¹⁾。

(2) 拡散係数が小さな薄膜 (主に bcc 系材料)

上述した fcc 系の材料に比較して、bcc 系の材料と Ru 等の hcp 系材料の一部は原子の自己拡散係数が小さく、明瞭な接合界面を有していた。

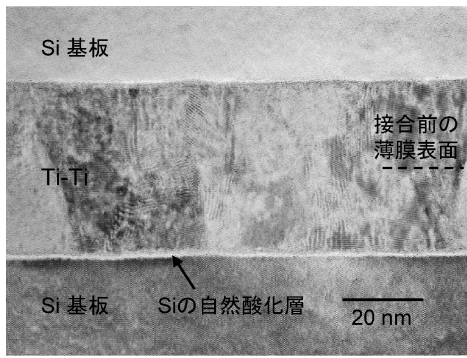
図 5 には、Fe-Fe, Cr-Cr, Ru-Ru, 及び、Ta-Ta 接合膜の断面 TEM 像を示した。いずれも膜厚は片側 20 nm であり、Fe-Fe 及び Ru-Ru 接合膜では、Ta 下地層 (5 nm) を用いている。図中には、図 2 と同様に計算で求めた D 値を示したが、Ru については D_0 及び Q 値が文献に見当たらないため、他の材料と同様に、 D 値が融点に比例するとして見積もった概算値を示している。

いずれの薄膜においても明瞭な接合界面が観察されており、この内、bcc の材料である Fe-Fe, Cr-Cr, 及び Ta-Ta 膜では、接合面がアモルファス構造になっている。 D 値が比較的大きな Fe-Fe 及び Cr-Cr 膜では、比較的厚いアモルファス層が接合界面に存在しているが、 D 値が小さな Ta-Ta 膜では接合界面のアモルファス層の厚みが非常に薄く、ところどころ消失している。

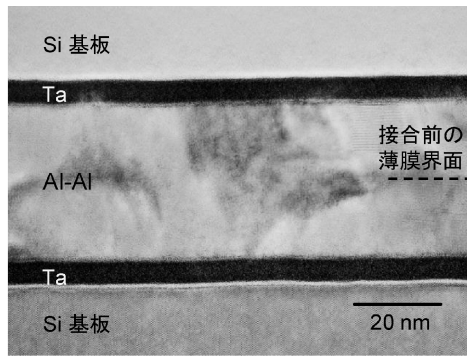
4. 接合メカニズムの推定と接合力

(1) 接合メカニズムの推定

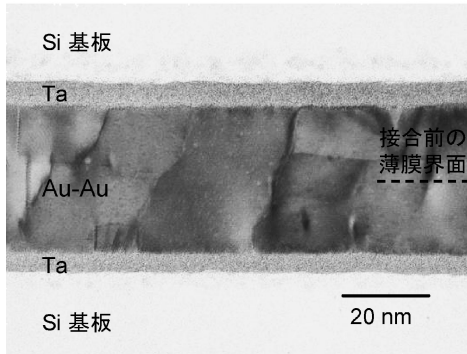
ここで、上述した D の値は、原子の固体中 (粒子内) の自己拡散係数を示しているが、粒界における原子拡散の活性化



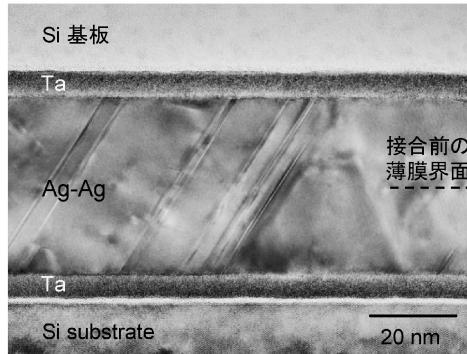
(a) Ti-Ti ($D=3.4 \times 10^{-25} \text{ m}^2/\text{s}$)



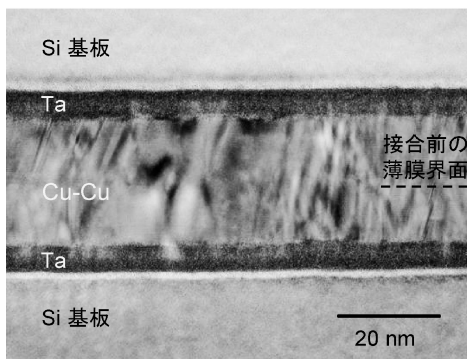
(b) Al-Al ($D=3.2 \times 10^{-29} \text{ m}^2/\text{s}$)



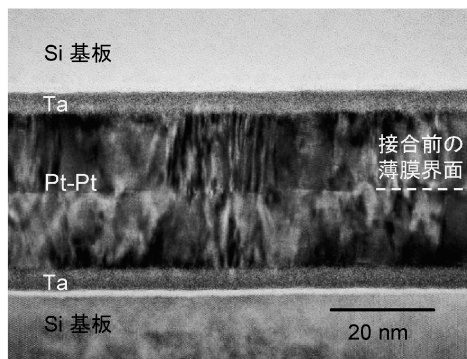
(c) Au-Au ($D=1.6 \times 10^{-36} \text{ m}^2/\text{s}$)



(d) Ag-Ag ($D=8.3 \times 10^{-38} \text{ m}^2/\text{s}$)



(e) Cu-Cu ($D=1.4 \times 10^{-41} \text{ m}^2/\text{s}$)



(f) Pt-Pt ($D=8.7 \times 10^{-54} \text{ m}^2/\text{s}$)

図2 Ti-Ti, Al-Al, Au-Au, Ag-Ag, Cu-Cu, 及び, Pt-Pt 接合膜の断面 TEM 像. いずれも Si ウエハ上に形成した薄膜を接合したもので, 膜厚は片側 20 nm である. Ti-Ti 接合膜を除き, Ta 下地層(5 nm)を用いている.

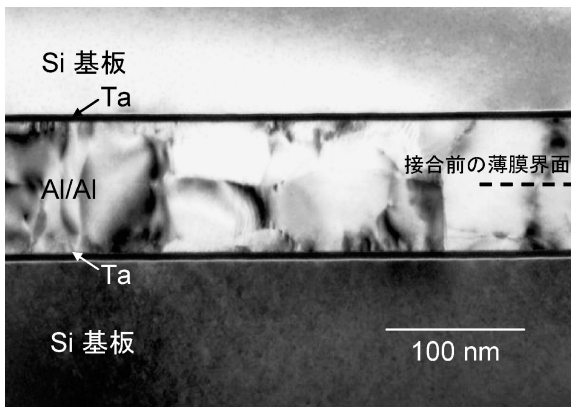


図3 Al(50 nm)-Al(50 nm)接合膜の断面 TEM 写真.

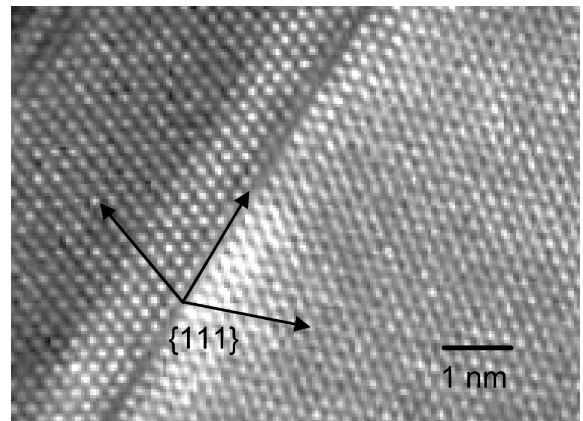


図4 図2(d)に示した Ag-Ag 接合膜の, 接合界面近傍の高分解能断面 TEM 写真.

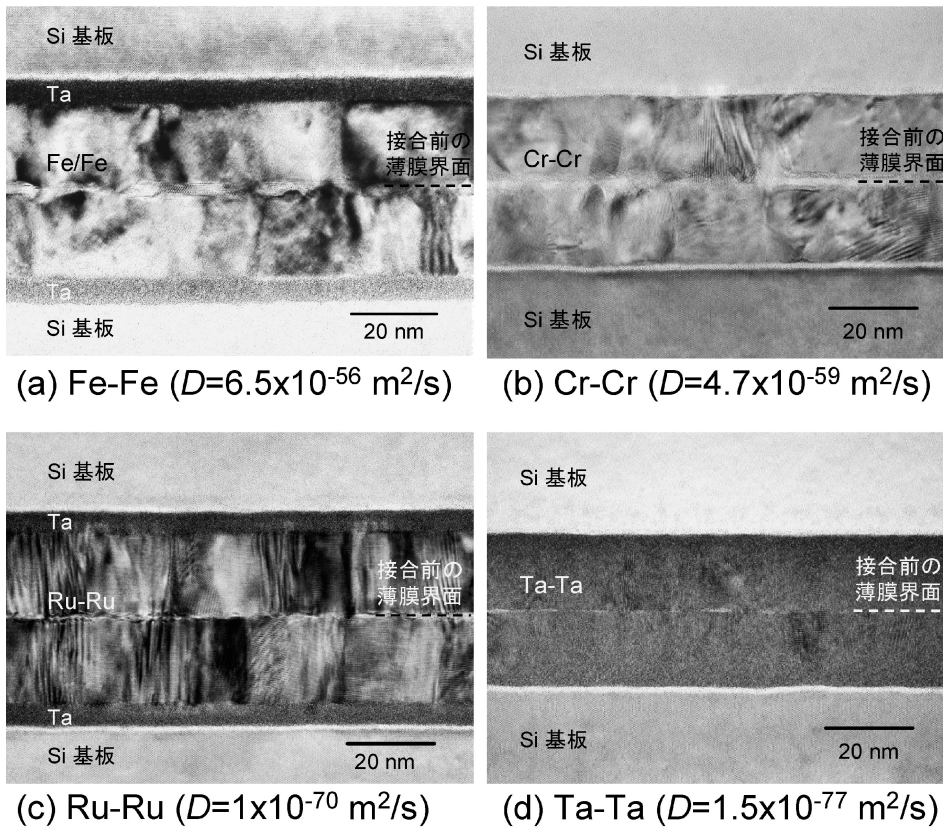


図5 Fe-Fe, Cr-Cr, Ru-Ru, 及び, Ta-Ta 接合膜の断面 TEM 像. いずれも Si ウエハ上に形成した薄膜を接合したもので, 膜厚は片側 20 nm である. Fe-Fe 及び Ru-Ru 接合膜では, Ta 下地層(5 nm)を用いている.

エネルギーは粒子(結晶)内の 2/3 から 1/2 程度であることが知られており, 粒界における拡散係数は, 固体中に比べて 10~20桁大きな値を有している. また, 例えば, 10 nm の結晶粒で構成された薄膜では, 結晶の体積に対する粒界(結晶表面)の面積の比率は, 4 インチの単結晶ウエハと比較すると 7桁小さいことになる. 即ち, 本接合技術では, 粒径 10~20 nm の多結晶薄膜を用いていることが, 室温において原子拡散を促進し, 接合において重要な役割を果していると考えられる.

一方, 金属は大きな表面エネルギーを有し, 金属が互いに接触すると表面を消失させて系全体のエネルギーを低く抑えようとするため, これが接合の駆動力になると考えられる. これは, 序論に述べた表面活性化法も同様である. しかし, そのためには接触した界面近傍で互いの原子が拡散する必要がある. 非常に粗い計算であるが, 批判を覚悟の上, これらのエネルギーを比較してみた. 表 1 には, 一例として, Al, Cu, Pt, Ta の結晶粒界の活性化エネルギー Q^{gb} が, 固体中の Q の半分であると仮定し, その数値を示した. 表には, これらの物質の室温における表面エネルギー E_s の値⁽¹⁴⁾, ならびに, E_s を表層 0.2 nm (約 1 原子層) 当たり換算した数値 $E_s(0.2)$ の値を記した. Q^{gb} の値は, $E_s(0.2)$ の値と同程度であり, 薄膜の微結晶構造が界面における室温の原子拡散を促進させ, 表面エネルギーを消失させている(接合させている)可能性を示している.

図 6 には, W (20 nm)-W (20 nm) 接合膜の断面 TEM 写真

を示した. W の D 値は $7 \times 10^{-110} \text{ m}^2/\text{s}$ であり, 一般的に用いられる単金属の中では最も小さいが, W-W 接合界面に空隙は全く観察されず, 実験に用いた 2 インチウエハ全体にわたって接合できていた. ここで, W 薄膜は平滑な表面を持つが, 図中点線で丸く囲った領域を見ると, 粒界に入り込むように原子が拡散して接合されている. このことは, 上述した結晶粒界における原子拡散の推論を裏付けている. 一方, D 値が小さな W においても接合が可能であることから, 一般的に用いられる金属であれば, 合金も含め, ほぼ全ての金属薄膜を用いて接合することが可能であると考えられる.

図 7 には, 膜厚 20 nm のアモルファス Si 膜(a-Si 膜)の接合サンプルの断面 TEM 写真を示した. 明瞭な空隙は無いものの, ところどころ接合界面が残存している. この点は, 図 5(d)に示した Ta-Ta 接合膜の接合界面の様子と良く似ており, a-Si 原子の拡散が顕著ではないことを示している. a-Si は一種の非平衡状態であり, 自己拡散係数は, 成膜手法や熱処理条件等によっても大きく変わるため詳細な議論が難しいが, アモルファス膜は連続的な構造であり, 原子が拡散しやすい粒界のような構造を有していないことも, 接合界面における原子拡散が顕著ではない一つの要因であるものと推察される. a-Si 膜の接合メカニズムについては, 今後の更なる検討が必要である.

一方, 異種金属膜を接合に用いた場合も, 原理的には接合が可能である. 図 8 には, 一例として, Ta (20 nm)-Cu (20 nm) 接合膜の断面 TEM 写真を示した. Cu 膜と Ta 膜の接

表1 Al, Cu, Pt, Ta の, 結晶粒界の活性化エネルギー Q^{gb} と, 室温における表面エネルギー $E_s^{(14)}$, ならびに, E_s を表層 0.2 nm (約 1 原子層) 当たりに換算した数値 $E_s(0.2)$.

物質名	$Q^{gb} (= Q/2)$ (kJ/mol)	E_s (J/m ²)	$E_s(0.2)$ (kJ/mol)
Al	71	1.09	63
Cu	105	1.93	68
Pt	139	2.69	123
Ta	207	3.02	164

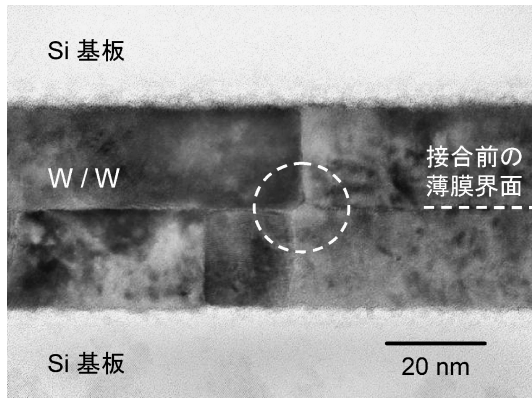


図6 W(20 nm)-W(20 nm)接合膜の断面 TEM 写真.

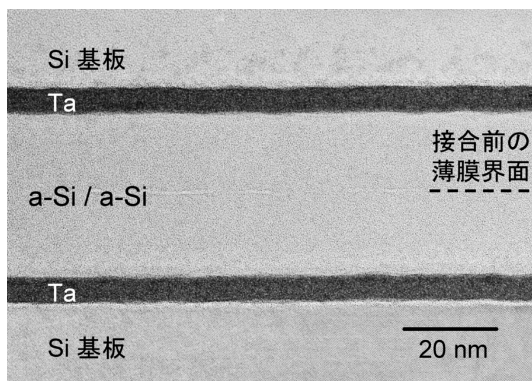


図7 a-Si(20 nm)-a-Si(20 nm)接合膜の断面 TEM 写真. Ta 下地層(5 nm)を用いている.

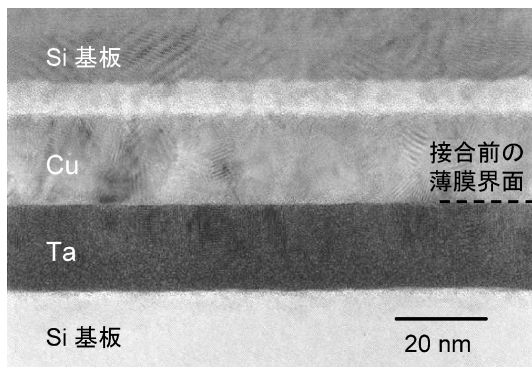


図8 Ta(20 nm)-Cu(20 nm)接合膜の断面 TEM 写真.

合界面が, 空隙無く, 接合されていることがわかる. (Cu 膜と Si ウエハの間に形成されている白い領域は, Cu 膜を形成する直前の Si ウエハの表面処理の影響で形成された層であり, ここでの議論には重要ではない.)

(2) 接合力

このように接合界面は金属結合を有しているため接合力は極めて大きく, 接合するウエハ間の接合強度は, 薄膜のウエハへの密着力で決定される. 例えば, 自然酸化膜の付いた Si ウエハ上に形成した Cu, Al, Ag 等の薄膜は, 比較的容易に剥離できてしまう場合が多い.

薄膜のウエハ(接合部材)への付着力は, 水素でウエハ表面を終端するようなウエットプロセスや真空中でのドライプロセスにより, ウエハ表面の自然酸化層やガス吸着層を除去することで高めることができる. また, もう一つの簡便的な方法は, Ta, Cr, W 等の下地層を用いる方法である. 例えば, 自然酸化膜の付いた Si ウエハを, Al-Al 膜や Cu-Cu 膜で接合する場合, 僅か 0.2 nm の Ta 下地膜を用いることで, 25 MPa を超える接合強度を得ることができる⁽¹¹⁾. この接合強度は引張り試験により得られた値であるが, ウエハを試験用の治具に固定する接着剤が先に剥離してしまったため, Ta 膜とウエハ間の実際の接合強度は上述の数値よりさらに大きい.

5. 接合に必要な膜厚

接合技術の応用に際しては, 接合に必要な膜厚の下限を知ることが重要である. 図9には, 片側 0.2 nm の厚みの Ti 膜を用いて接合した 2 インチ水晶ウエハの写真を示す. 膜厚 0.2 nm は, 約 1 原子層相当の厚みに対応するが, そのように薄い膜厚においてもウエハ全面にわたり接合されている. 引張り試験の結果, 接合力は 33 MPa を超えており, ウエハを引張り試験用の治具に固定する接着剤が先に剥離した. Ti 膜のみならず, Cu, Al, Cr, Ta, a-Si 膜等でも, 約 1 原子層相当の膜厚があれば接合できることを確認しており, ほぼ全ての材料薄膜において可能であると考えられる.

このように接合膜が薄くても接合できることは, 電子デバイスへの応用上, 様々な利点を有する. 例えば, 図9に見るように, 光がほとんど減衰せずにウエハを透過することができる. 種々の結晶方位の水晶ウエハを重ねて作成される光学部品では, 一般にウエハの接合に有機系接着材が用いられているが, 有機系接着材は紫外域ならびに遠赤外域における光の透過を大きく減衰させてしまう上, 経時変化により光学特性が劣化する. 薄い金属膜を用いたウエハ接合により, 透過する波長域を広げ, 水晶ウエハの持つ広帯域の光透過特性を活かすことが可能となると共に, 長期間に渡り安定な特性を維持することが可能となる. また, 電子やスピンの固体中の平均自由行程は数十 nm 程度であるが, それよりもずっと薄い金属膜でウエハを接合することで, 電子やスピンをウエハ間で, 抵抗無く行き来させることも可能である. さらに, 膜厚が 1 nm 以下の薄膜は, 実際には島状構造になっており面内方向の電気抵抗が非常に高い. したがって, キヤビティ

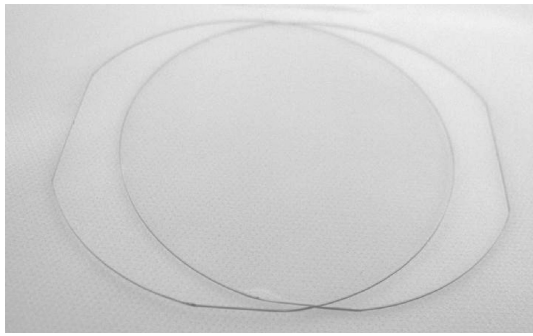


図9 Ti(0.2 nm)-Ti(0.2 nm)で接合した2インチ水晶ウエハ.

内に電氣的・機械的な素子を有するようなウエハの接合(真空封止等)においても、素子の電氣的な特性に影響を与えずに、接合することが可能であると考えられる⁽¹⁵⁾。

6. 薄膜表面の清浄度と接合

これまでの、薄膜の成膜後、同一真空中で直ちに二つの薄膜表面を接触させて接合を行った結果について述べて来た。しかし、実際の接合プロセスでは、ウエハのアライメント等、成膜と接合の間に時間が要する場合が多く、その間の薄膜表面の汚染による影響が心配となる。薄膜表面の汚染は真空の質に依存し、理想的な超高真空であれば、成膜と接合の間に長い時間が経過しても問題にはならない。実際、例えばTaは原子の自己拡散係数が非常に小さく表面が酸化し易いが、Ta膜の成膜後にArガスを止めた真空中に3分間保持した後で接合した場合でも、Ta-Ta薄膜の断面TEM像に違いは全く見られていない⁽¹¹⁾。このような表面汚染の影響は、保持する真空の質だけでなく、薄膜の拡散係数、結晶系の違いや化学的な安定性にも依存する。さらに、応用の目的により、接合界面に十分な接合強度があれば良い場合や、酸化による影響が僅かでも存在すると問題になる場合等、問題とする“汚染の影響の度合い”も様々であり、個別に議論していく必要がある。

一方、工業的な観点から見ると、薄膜の形成後、接合を大気圧で実施したい場合も数多くある。その中でも、酸素や水分や存在する空気中での接合は、表面酸化の影響を受けるため、接合にとって厳しい条件の一つである。そこで、酸化の影響が少ない貴金属系の材料を用いた空気中接合の結果⁽¹⁵⁾の一例を下記にご紹介したい。

図10は、Au薄膜を成膜後に真空チャンバーから取り出して、クリーンルームの空気中(気温20°C、湿度50%、クリーン度クラス100)に1時間放置した後で接合したAu(20 nm)-Au(20 nm)接合膜の断面TEM像を示す。接合は、真空中と同様に、数kPaの弱い力で、無加熱で実施している。成膜と同一真空中で引き続き接合を行った場合(図2(c))と比較すると、界面の拡散の度合いは小さいものの、空気中に1時間放置した後でも接合界面において原子の拡散が生じていることがわかる。このような空気中の接合はAg膜を用いた場合も可能であるが、大気中に保持できる時間はAu膜に比

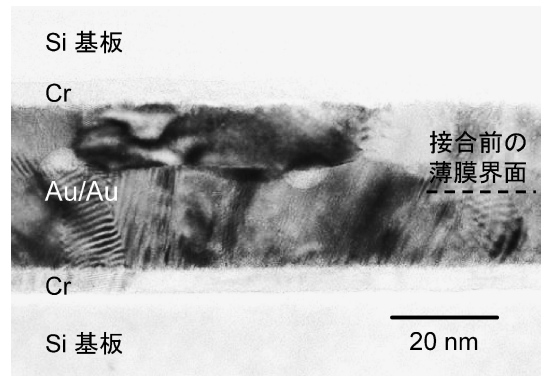


図10 Au薄膜を真空チャンバーから取り出して空気中に1時間放置した後で、大気中で接合したAu(20 nm)-Au(20 nm)接合膜の断面TEM像。

較して短い。

一方、Pt(20 nm)膜やPd(20 nm)膜を用いた場合には、空気中に数分程度放置して接合を行うと、接合強度が弱く、ウエハを手で剥離すると接合界面で剥離する。しかし、ウエハを重ね合わせた後で、ホットプレート上にウエハを置いて昇温すると、Pt(20 nm)膜の場合で200°C、Pd(20 nm)膜の場合で160°Cの温度で、それぞれ、十分な強度で接合することが可能である。Cu(20 nm)膜を用いた場合には、同様に100°Cで加熱することで強固な接合が得られるが、接合界面にCu₂Oの形成が観察された⁽¹⁵⁾。

このような、大気中の接合における接合条件と接合膜の構造は、 D の大きさと酸化物の生成自由エネルギー⁽¹⁶⁾に強い相関が見られる。表2には、Au, Ag, Cu, Pd及びPt膜における、室温の拡散係数 D 及び酸化物の生成自由エネルギー ΔG の値を示した。表中には、接合を確認した接合時の加熱温度 T_{air} と、その際の接合界面の構造についても示してある。

Auは、Au₂O₃を形成する可能性があるものの、室温では ΔG は正であると考えられ酸化物を形成しない。また、 D 値も比較的大きいため、空気中に比較的長時間放置しても、室温で大きな力を印加することなく原子を拡散させ接合することが可能であると考えられる。Agの場合には、Au同様に D 値が比較的大きいが、 ΔG が負であるため、空気中に放置すると表面の酸化が進行し、接合できなくなると考えられる。一方、Ptは、Au同様に室温における ΔG が正であり酸化物を形成しないが、 D 値が比較的小さい。そのため、薄膜表面へのH₂OやO₂の吸着層の影響で室温における接合が難しいが、200°Cに加熱することで接合できているものと推察される。PdやCuの D 値はPtに比べて小さいため、Ptよりも低い加熱温度で接合できるが、 ΔG が負でAgよりもさらに小さいため、酸化の影響を受け易い。

このように、一部の貴金属薄膜を用いた場合には、空気中の接合も可能である。表2に記した以外の金属は、 ΔG がCuよりも小さく酸化の影響を受け易いため、空気中の接合はさらに難しくなる。ただし、大気圧であっても不活性ガス等を用いることで、酸化やガス吸着の影響を大きく抑制でき

表2 Au, Ag, Cu, Pd 及び Pt 膜における, 室温の拡散係数 D 及び酸化物の生成自由エネルギー ΔG の値. 表中には, 接合を確認した接合時の加熱温度 T_{air} と, その際の接合界面の構造についても示してある.

物質名	$D(\text{m}^2/\text{s}, 300 \text{ K})$	酸化物モルあたりの ΔG (kJ, 300 K), (酸化物名)	$T_{\text{air}}(^\circ\text{C})$	接合界面の構造
Au	2×10^{-36}	($0 < \Delta G$) (Au_2O_3)	室温	拡散
Ag	8×10^{-38}	-10.7 (Ag_2O)	室温	—
Cu	1×10^{-41}	-145 (Cu_2O)	100	Cu_2O が界面に生成
Pd	1×10^{-51}	-82.2 (PdO)	160	—
Pt	9×10^{-54}	($0 < \Delta G$) (PtO_2)	200	明瞭な拡散は観察されず

るため, 接合までの保持時間や接合に必要な加熱温度の低減が可能である他, より広い種類の材料薄膜を用いた接合が可能であると考えられる.

7. ま と め

これまで述べてきたように, 微結晶薄膜を用いた原子拡散接合法は, 室温でウエハを接合する有用な手法である. 実験結果から, 接合膜の構造は, 原子の拡散係数と密接な関係があり, 結晶粒界における大きな拡散速度が, 室温における接合を可能にしているものと推察される. 一般的に用いられるあらゆる金属膜を用いた接合が可能であると考えられ, 1 原子層相当の膜厚があればウエハを強固に接合することが可能である. 一方, 酸化物を形成し難い貴金属系の薄膜を用いた場合には, 大気圧における接合も可能であり, このことは, 接合プロセスの利便性を高める上でも重要である.

接合条件と薄膜の構造の関係は, 上述してきた原子拡散係数や酸化物生成自由エネルギーだけでなく, 化学的・物理的な他の材料特性にも関係すると考えられるため, 今後, 更なる検討が必要であるが, 本接合技術が, 将来の電子デバイスや MEMS 等を作成する新しい接合技術として用いられることを期待している.

合成水晶ウエハを用いた接合実験の成果は, 京セラキッセイ株式会社との共同研究の成果として得られたものである. また, 接合装置の試作にあたっては, ムサシノエンジニアリング株式会社の協力を得た.

日頃より貴重なディスカッションを賜っている東北大学多元物質科学研究所の北上修教授に, 紙面をお借りし深く感謝の意を表す.

文 献

- (1) Q.-Y. Tong and U. Gösele: *Mater. Chem. Phys.*, **37**(1994), 101-127.
- (2) T. Abe, T. Takei, A. Uchiyama, K. Yoshizawa and Y. Nakazato: *Jpn. J. Appl. Phys., Part 2*, **29**(1990), L2311-2314.
- (3) D. H. Buckley: *Surface Effects in Adhesion, Friction, Wear and*

Lubrication, Elsevier, New York (1981), p. 245.

- (4) M. D. Pashley and D. Tabor: *Wear*, **100**(1984), 7-31.
- (5) K. Li, J. Sun, L. Liu and Z. Qi: *phys. status solidi B*, **164**(1991), 387-394.
- (6) A. Amiri-Hezaveh and R. W. B. Alluffi: *Rev. Sci. Instrum.*, **64**(1993), 2983-2992.
- (7) T. Suga, Y. Takahashi, H. Takagi, B. Gibbesch and G. Elssner: *Acta Metall. Mater.*, **40**(1992), s133-s137.
- (8) H. Takagi, K. Kikuchi, R. Maeda, T. R. Chung and T. Suga: *Appl. Phys. Lett.*, **68**(1996), 2222-2224.
- (9) T. Shimatsu, R. H. Mollema, D. Monsma, E. G. Keim and J. C. Lodder: *J. Vac. Sci. Technol. A*, **16**(1998), 2125-2131.
- (10) R. Jansen: *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **36**(2003), R289-R308.
- (11) T. Shimatsu and M. Uomoto: *J. Vac. Sci. Technol., B*, **28**(2010), 706-714.
- (12) O. Kitakami, S. Okamoto and Y. Shimada: *J. Appl. Phys.*, **79**(1996), 6880-6883.
- (13) The Japan Institute of Metals, *Metal Data Book*, Maruzen, Japan (1993), p. 20.
- (14) L. Z. Mezey and J. Giber: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **21**(1982), 1569-1571.
- (15) T. Shimatsu and M. Uomoto: The 218th Electrochemical Society Fall Meeting, E11 -Semiconductor Wafer Bonding (Eleventh International Symposium on Semiconductor Wafer Bonding: Science, Technology and Applications), Las Vegas, Nevada, October (2010).
- (16) E. A. Brandes and G. B. Brook: *Smithells Metals Reference Book*, 7th Edition, Butterworth-Heinemann, Oxford (1992) Table 8.8e.

★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★

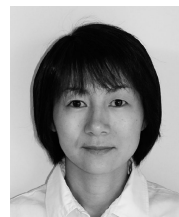
島津武仁

1988年 東北大学大学院修士課程修了
1995年 トゥエンテ大学(オランダ)研究員
1998年 東北大学電気通信研究所助手
2002年4月- 現職
専門分野: 磁性薄膜, スパッタリング成膜プロセス(工博)
◎高磁気異方性薄膜等の磁性薄膜の物性とメモリ・ストレージへの応用研究に従事. これらの薄膜形成技術と材料物性の知見を活かしながら原子拡散接合法についても研究を進めている.

★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★



島津武仁



魚本 幸