

DOI: 10.3901/JME.2022.02.017

基于结构纳米薄膜的微纳连接技术研究进展^{*}

林路禅¹ 刘 磊² 邹贵生² 李铸国¹

(1. 上海交通大学材料科学与工程学院 上海 200240;

2. 清华大学机械工程系 北京 100084)

摘要: 随着结构系统及功能器件的小型化,微小空间下的异质材料高效集成互连成为了精密仪器系统设计与器件开发的迫切需求。为满足高质量、批量化以及绿色环保的微纳制造工艺要求,结合先进纳米薄膜制备工艺得到的非稳态或亚稳态的纳米尺度薄膜材料由于其特殊的尺度效应以及表/界面结构特征,在高精度异质材料互连领域正得到广泛的研究与应用。对不同体系(金属、半导体、氧化物)的结构纳米薄膜中各组元的反应活性或各相的热稳定性进行分析与阐述,并针对所设计的纳米薄膜结构在不同领域如航天、微电子中的异质材料互连中的应用进行综述。此外,由于纳米材料自身极高的反应活性,作为辅助钎料,其在硬质材料及热敏感材料的局域互连中也展现出巨大的应用前景。

关键词: 结构纳米薄膜; 微纳连接; 表/界面结构; 热稳定性; 反应活性

中图分类号: TG47

Research Progress of Structured Nano Thin-films Based Micro/Nanojoining Technologies

LIN Luchan¹ LIU Lei² ZOU Guisheng² LI Zhuguo¹

(1. School of Materials Science and Engineering, Shanghai Jiao Tong University, Shanghai 200240;

2. Department of Mechanical Engineering, Tsinghua University, Beijing 100084)

Abstract: With the increasing demand for the miniaturization of structural system and functional devices, high performance heterogeneous integration at small scale is becoming an urgent need for the precise instruments design and device development. In order to meet the requirements for high quality, mass production and green manufacturing in micro/nano fabrication process, unstable and metastable nanostructured thin films have been widely studied and used in advanced materials joining, due to their excellent size effect and surface/interface structures. The reaction activity of each component and phase stability within the nanostructured thin films of different combinations (e.g. metal, semiconductor, oxide) have been illustrated. It has shown that these designed nanostructured thin films have been widely used in the heterogenous materials integration in microelectronics and astronautics. Meanwhile, with the high reaction activity of nanofilm, nanostructured nanolayers as the brazing fillers, have also shown great potential in joining of hard materials and heat-sensitive materials.

Key words: nanostructured films; micro/nanojoining; surface/interface structure; thermal stability; reaction activity

0 前言

纳米材料特别是金属材料由于其极高的表面原子活性,在较低的温度下即可获得极高的原子迁移速率,从而在诸多先进材料成形加工制造领域具有

广泛的应用。近年来,利用纳米材料低温下高活性的特点,开发了以金属基纳米材料(纳米颗粒,纳米线等)为钎料的先进纳米连接技术。结合互连过程中的纳米材料熔点降低效应以及互连后形成金属材料整体,实现了低温连接高温服役,从而在硬脆材料、热敏感材料等的低损伤互连中展现极大的应用前景。开发基于纳米材料的高效纳米连接技术,将有助于推动纳米材料的进一步工程应用,同时满足仪

^{*} 国家重点研发计划资助项目(2017YFB1104900)。20210514 收到初稿,20211004 收到修改稿

器系统或器件小型化, 高密度集成的应用需求。

纳米连接指被连接材料包括母材、连接材料以及所形成的焊点在纳米尺度的连接技术, 将涉及纳米材料自身及其与其他材料的连接, 以及利用纳米结构材料作钎料的两种技术路径。同时结合纳米材料自身低熔点特征, 以金属(合金)纳米材料如纳米颗粒、纳米线与纳米板等作为钎焊材料的研究, 已经成功应用于先进微电子器件的封装以及高温叶片的焊接连接中。然而, 由于纳米颗粒材料自身的高活性以及某些金属材料的生物毒性, 给制备工艺及环境将带来了一定的挑战, 特别是基于化学合成法制备的金属(合金)纳米焊膏中, 用于稳定纳米材料的有机物包覆层不仅会提升焊接/连接温度, 同时会带来一定的环境污染。作为改进型的激光溅射沉积金属(合金)纳米涂层, 通过辅助加压的方式, 可实现相对低温下的有效互连。然而, 基于金属(合金)纳米焊膏的焊接/连接工艺中被连接对象主要集中于金属基材料, 而在更广泛的材料范围如陶瓷材料, 半导体材料等的连接中的研究相对较少。

纳米薄膜由于纳米级厚度以及制备过程中获得的高密度界面, 使得金属原子在相对较低的温度下即可获得极高的活性及扩散速率。然而基于纳米薄膜设计得到的结构纳米多层材料, 由于层间的相互制约使得结构处于亚稳态状态, 从而易于存储, 并且由于无有机物存在, 使得材料互连工艺绿色环保, 同时成熟的纳米薄膜制备工艺保障了结构纳米材料的高效设计与制造, 改善了常规连接方式以及基于纳米焊膏互连工艺的不足, 此外与半导体工艺的兼容性也使得纳米薄层在微电子器件的封装连接中极具潜力。通过对金属及氧化物纳米薄层及组合结构的制备及各相热稳定性进行分析, 对设计得到的反应型及非反应型多层结构在合金、陶瓷及玻璃材料的互连中的应用进行了综述。同时基于不同的应用场合与被连接材料体系, 对多层膜结构的设计准则进行简要分析, 以获得低温下快速扩散反应, 进而为结构纳米薄膜在航天、微电子等领域中精密仪器及结构的高质量互连提供参考。

1 纳米薄层的尺度效应

低维(零维、一维)金属纳米材料由于表面原子的高活性将获得熔点降低的特性。同样地, 纳米薄膜由于层厚上的纳米尺度, 其结构自身也将获得一定程度的低温高活性。由低维金属纳米材料的熔点表达式可知^[1]

$$\frac{T_{mn}}{T_{mb}} = 1 - 2(1-q) \left(\frac{3-\lambda}{3} \right) \frac{2P_s dX}{P_L + 2 \left(\frac{3-\lambda}{3} \right) P_s dX}$$

式中, T_{mn} 、 T_{mb} 分别为纳米材料与块体材料的熔点。 P_s 为晶面堆积因子, P_L 为晶格堆积因子, q 为表面积-体积配位数比, d 为原子间距, X 为特征尺寸的倒数(其中 $\lambda=0$ 为颗粒, $\lambda=1$ 为线, $\lambda=2$ 为薄膜)。由式(1)可知纳米材料的熔点将与材料特征尺寸成正相关, 即尺寸越小熔点越低。试验结果也显示当不同形态纳米材料的尺寸处于 5 nm 以下时, 材料熔点将发生急剧降低, 处于块体熔点的 80% 或以下^[2-3]。

此外, 根据不同几何形态纳米材料的结合能(Cohesive energy)状态可知, 相同特征尺寸下二维纳米薄膜的系统结合能变化最小^[4]。从而由系统结合能与熔点之间的正相关性可知, 二维金属薄膜相比于纳米颗粒及纳米线, 其熔点的降低效应将最弱(图 1^[3]), 进而在一定程度下纳米薄膜可保持相对稳定的状态。

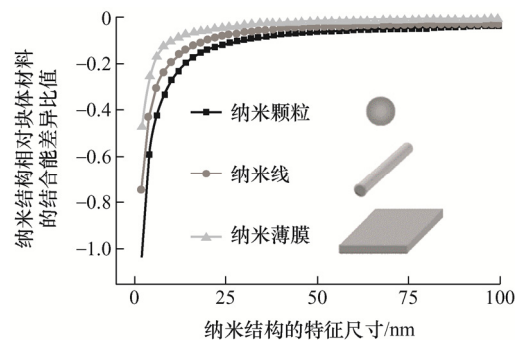


图 1 不同纳米材料的系统结合能变量随材料结构尺寸的变化曲线

通过组合不同材料的纳米薄膜以设计得到的多层薄膜结构中, 约束空间下的纳米材料由于高表面活性得到的熔点降低行为将由形成的异质界面所产生的尺寸效应替代。研究显示, 界面结构将极大地影响金属原子的迁移能力, 共格或半共格的界面结构由于形成的界面能处于较低的状态, 金属的移动将受到极大的限制, 相比之下熔点将呈现一定程度的升高。特别地, 当纳米薄膜尺度降低至 10 nm 及以下时, 界面因素将极大地提升材料的熔点, 从而产生过热现象。反之, 当界面为非共格或高缺陷状态时, 界面将处于较高的能量状态, 系统整体能量较高, 从而在较低的温度下材料即可发生界面熔融现象并获得较高的迁移速率^[5]。因而通过设计纳米多层结构界面并构筑缺陷状态, 将可获得类似于单层纳米材料的低温高活性, 如快速界面迁移等^[6]。

2 结构纳米薄膜微纳连接

随着材料特征结构尺寸的下降, 各种界面(晶界、相界、畴界)在材料中所占的比例越大, 这些界面会显著影响材料的系统能量状态进而改善结构力学与物理特性, 使纳米结构材料的物理性能相比于传统的块体材料获得巨大的改善, 而在多领域展现出广阔的应用前景^[7]。结合纳米薄膜的尺寸效应通过设计并修饰表面及界面结构, 将可针对性的获得相对低温下的材料原子快速迁移行为。根据材料的组合形式将可分为单层与多层薄膜, 其中多层薄膜结构根据选择材料之间的化学反应活性可进一步分为反应型与扩散型多层结构。

2.1 纳米薄膜表面活化连接

半导体工艺中针对不同的应用场合如微电子、微机电系统、光流体器件等均需要对晶圆级异质材料的高性能互连, 而对于应用背景的差异, 对互连技术通常要求低温、低/无压、快速, 同时得到的接头需要保持较高的机械强度与气密性, 甚至一定程度上需要保障结构的光/电学性能。以金属纳米薄膜作为互连介质同时辅以表面活化技术, 由于材料表面的高活性, 互连结合后形成较低能量的稳定界面结构, 在晶圆级别的异质材料互连中正得到重点研究, 特别是针对第三代半导体材料的高效异质互连技术^[8]。

MU 等^[9]开发利用金属纳米薄层的高表面原子活性, 薄层结合后间隙处的原子快速扩散而降低系统能量, 实现间隙的消除(图 2^[9])。通过在 SiC 晶圆表面沉积 15 nm 厚的 Ni 金属层, 同时辅以表面活化技术, 晶圆之间可在常温无压条件下实现高质量键合。同时, 由于接头处纳米级金属层的存在, 快速高温($\sim 1\,273\text{ K}$)退火后, 金属膜层结构会被破坏, 同时界面脆化而导致晶圆间脱离键合状态。从而纳米金属层在功率电子器件中晶圆键合与解键合领域具有重要应用。此外, 由于互连主要发生在沉积的纳米金属层之间, 对被连接基体(晶圆)的适用性较广, 从而根据互连对象针对性设计与基体界面兼容的金属纳米层将可在较大的材料选择范围内实现微纳异质互连^[10-12]。

除了金属纳米薄膜由于表面活化后可得到高表面原子活性而在较低的温度下实现晶圆级的异质材料互连外, 同样地, 以半导体或氧化物纳米薄膜为互连材料的异质材料集成互连同样能够实现^[13-16]。由于薄膜制备工艺得到的氧化物纳米多层多为多晶

甚至非晶结构, 薄膜结构具有较高的系统总能量, 从而在相对低温的状态下即可触发相转变及晶粒长大而实现氧化物纳米薄层之间的互连, 进而得到异质材料的有效连接。

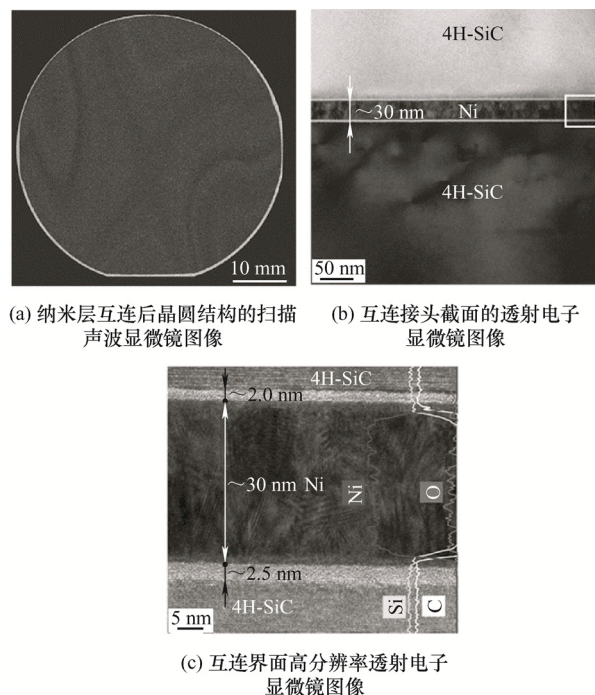


图 2 Ni 纳米金属层的 SiC 晶圆互连

HÖNLE 等^[17]通过磁控溅射的方式在硅晶圆表面沉积一层 15 nm 的非晶态氧化铟锡(ITO)薄膜, 并在氮气中 300 °C 下退火 1 h 实现了晶圆之间的有效互连(图 3^[17])。在退火作用下, ITO 薄膜由非晶向多晶结构转变, 使得晶粒沿着初始的粘接界面长大。与此同时, 沉积层与硅晶圆界面处也将发生相似的晶粒生长的过程, 即初始微小晶粒合并形成更大的晶粒结构。同时截面结构显示, 机械内应力引起的层间剥离现象将主要发生在 Si-ITO 界面处, 而不在实际形成的 ITO 粘接界面, 从而由纳米氧化物薄层实现的硅晶圆级互连将可得到相对稳定的 ITO-ITO 界面强度。

通过进一步设计与修饰氧化物纳米薄膜结构, 将可达到与金属纳米薄膜类似的室温下异质结构的有效互连^[18-20]。TAKEUCHI 等^[21]利用离子束溅射的方式在玻璃晶圆表面沉积一层 5 nm 厚的氧化铝薄膜, 并在室温下 637 kPa 压力作用 5 min 后实现了玻璃之间的高强度互连, 且得到优异的光透射性能(图 4^[21])。玻璃晶圆表面沉积得到的非晶形态的氧化铝薄膜将处于较高的能量状态, 同时采用 Ar 离子束辐照进行表面活化处理, 制造表面缺氧态的表面结构进一步提升系统能量,

从而在高缺陷态的氧化层接触后反应迅速发生, 粘接界面被消除, 系统能量降低进而得到强度优异的互连结构。由于互连过程中系统能量自发由高能量态向低能量状态转化, 从而整个互连过程将可在室温下进行。

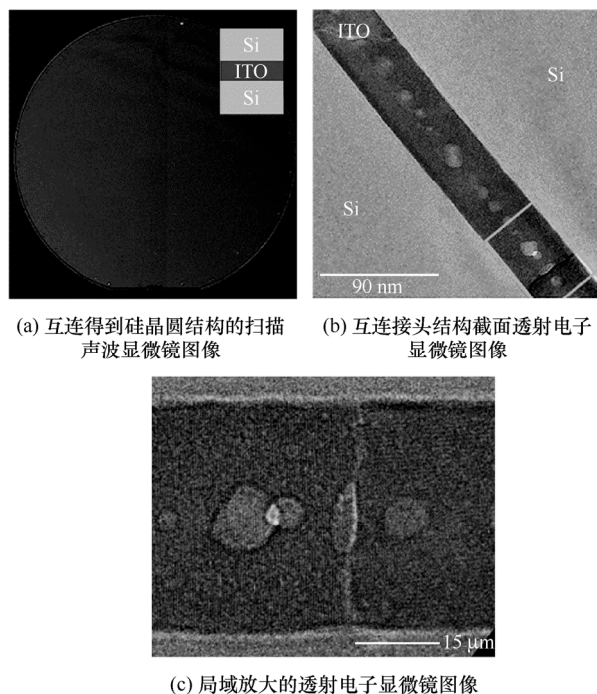


图 3 ITO 纳米薄膜的硅晶圆互连

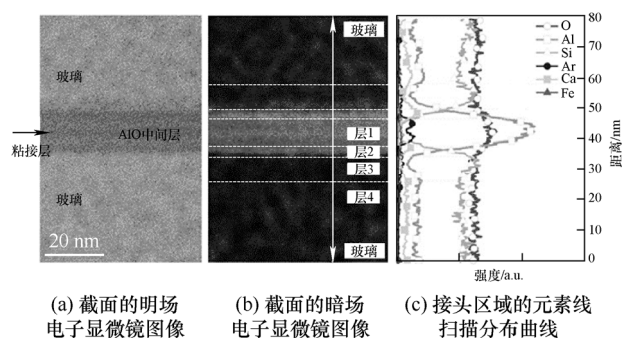


图 4 氧化铝纳米薄层用于玻璃晶圆的低温互连

根据以上研究可知, 通过在超高平整度的表面沉积单层纳米薄膜结构并辅以后续表面活化技术, 使薄膜表面原子获得极高活性或高的系统能量, 从而在互连结构实现物理接触后, 薄膜原子发生相互作用, 在低温/室温及低压/无压情况下, 系统自发地由高能量状态向低能量状态发展, 而在表面纳米薄膜之间将逐渐消除间隙进而实现高强度互连。反应将遵循能量最低原理, 从而沉积的纳米薄膜将可在广泛的材料体系中选择, 如金属, 半导体以及氧化物材料等, 广泛地适用于

不同种材料之间的微纳连接^[22]。

2.2 纳米多层膜自蔓延反应连接

自 1978 年金属薄膜的自蔓延反应发现以来, 以其反应放热为主要热源的材料互连技术得到了极大的关注与发展。自蔓延反应并不依赖于大气环境, 同时反应可在真空或者惰性气体中进行, 减少了对连接设备的依赖, 使其能够满足复杂环境中材料的互连需求。通常自蔓延反应可以由反应触发点传导到整个薄膜体系, 甚至有些体系中反应也能够绕过障碍物进行, 使得其在材料互连中具有较高的适应性^[23-24]。此外, 以自蔓延反应瞬间放热作为局域热源, 不仅可以直接用于材料互连^[25-27], 同时也可辅助钎料实现材料互连^[28-31], 从而可减小母材的热影响区, 对热敏感材料的低损伤互连具有极大优势, 同时可极大降低连接接头的残余应力, 改善较大热膨胀系数差异的材料互连接头状态, 进而有效提升接头性能^[24, 32]。

已知自蔓延反应的驱动力是原子结合能的降低, 为确保反应能够自传导, 自蔓延反应材料必须有放热特性, 并且有较高的绝热反应温度, 从而对于材料选择以及结构设计提出一定的要求。纳米结构多层膜的制备和自蔓延反应特性的研究从 20 世纪 90 年代开始发展, 最早观察到金属和非晶硅多层膜及双金属多层膜体系中的自蔓延现象, 当前较为成熟的双金属薄膜体系组合主要包括 Al-Ni, Al-Ti, Ni-Ti 等, 而金属-非金属薄膜体系则包括 Ti-B, Ti-C, Ti-Si 等^[33-37]。多层膜的结构特征如单层膜厚与周期数也将极大地影响反应发生序列以及所释放的能量^[38], 以 Al-Ni 系为例, 当单一组元层厚为 30 nm 时, 自蔓延反应发生中的相转换序列将为 $\text{Al} + \text{Ni} \rightarrow \text{Ni} + \text{NiAl}_3 \rightarrow \text{Ni} + \text{NiAl}_3 + \text{B2-NiAl} \rightarrow \text{B2-NiAl}$, 此时的温度区间将为 175~225 °C; 而当层厚为 140 nm 时, 其相转变序列将由于反应层材料的增多而变得复杂为 $\text{Al} + \text{Ni} \rightarrow \text{Al} + \text{Ni} + \text{NiAl}_3 \rightarrow \text{NiAl}_3 + \text{Ni}_2\text{Al}_3 \rightarrow \text{Ni} + \text{Ni}_2\text{Al}_3 + \text{B2-NiAl} \rightarrow \text{B2-NiAl}$, 进而获得更多的反应能量, 其工作的温度区间也升至 325~500 °C^[34, 39]。同时在二元金属多层体系中, 为实现其在材料连接领域的应用, 在反应过程中应尽量避免中间相的产生以减少能量的损耗, 并且多层结构中厚度的选择也应尽可能减少层间金属之间的混溶。

ZHANG 等^[40]利用 Al-Ni 微纳多层膜的自蔓延反应释放热量作为热源, 辅助 SAC305 钎料对成功实现了金刚石热沉与 LED 芯片铜组件的高导热连

接。研究表明, 双金属层中各厚度组合将极大地影响自蔓延反应放热, 同时也对稳定和控制互连工艺有着重要影响。图 5^[40]显示可通过设计组合双金属 Al-Ni 多层膜结构获得特定温度下的能量释放, 从而应用于不同场合下的材料互连。因此, 设计得到的 Al-Ni 多层结构自蔓延反应有效地促使了钎料在各界面处的反应, 并最终获得了接头质量优于现用银胶工艺得到的接头。

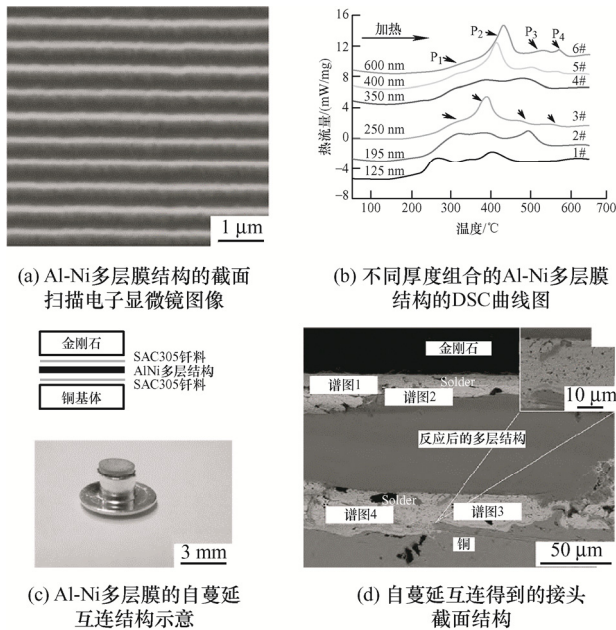


图 5 Al-Ni 纳米多层膜结构设计与自蔓延互连金刚石热沉与铜组件结构

MAJ 等^[25]研究利用 Al-Ni(V)多层膜结构反应释放热量实现 Ti6Al4V 构件的直接互连(图 6^[25])。通过电阻加热触发反应的发生, 多层膜结构由初始状态转化成平均晶粒尺寸小于 300 nm 的细晶 NiAl 相, 从而保证了连接区的高强度。在母材与形成的 NiAl 相将由一层 Ti₃Al 金属间化合物分隔开, 同时由于反应过程能量聚集且过程迅速, 互连得到的接头热影响区也较窄(小于 2 μm), 进而保证了整个互连结构的高强度。

除此之外, 通过调整材料选择与纳米薄层厚度以设计反应速率与能量释放, 纳米多层结构也可应用于微电子器件与微机电系统中小尺寸节点的半导体异质材料互连。BRAEUER 等^[26]利用磁控溅射的方式通过设计一定原子比例的 Al-Pd 多层膜结构, 成功实现了特征尺寸在 20 μm 的结构互连, 并在多材料体系如 Si-Si, Si-玻璃以及 Si-陶瓷结构互连中应用, 得到剪切强度达到 235 MPa 且气密性优异的接头。

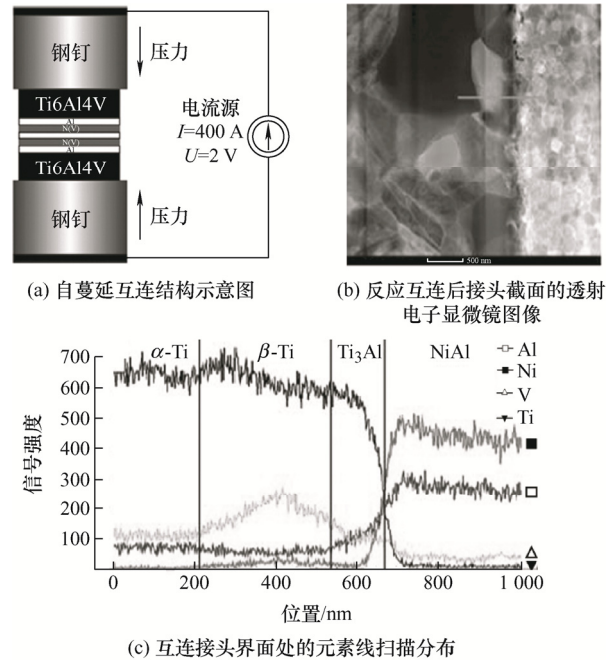
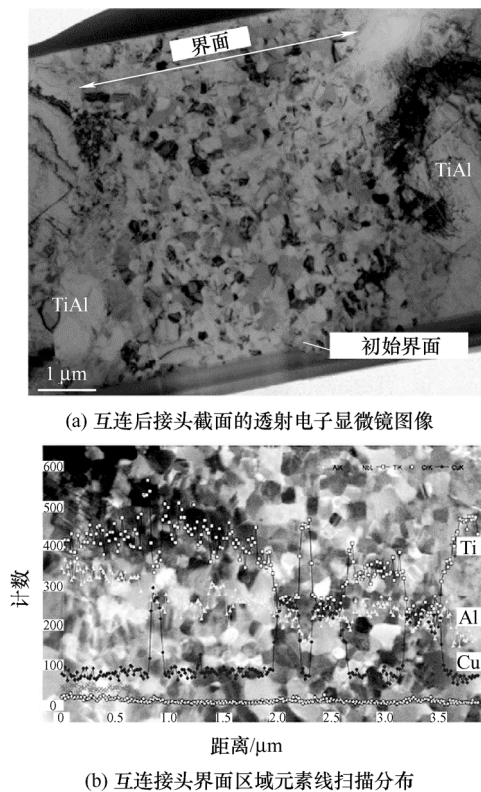


图 6 Al-Ni(V)多层膜结构自蔓延直接互连 Ti6Al4V 结构

2.3 纳米多层膜扩散连接

由于纳米多层膜的制备过程将产生大量的界面结构及晶格缺陷, 因而多层膜结构通常将处于相对高的能量状态(亚稳态), 而通过调整相应的工艺参数以改善纳米膜层间结构将可获得不同热稳定的纳米多层膜结构^[6]。对于具有较高界面迁移能力的亚稳态多层纳米膜, 其在受热情况下将会通过两相互扩散、层内脱离和界面结构变化等方式, 趋向达到低能量的稳定结构。同时由于多层膜结构中的纳米尺度效应, 以金属元素为主的扩散过程将得到极大地提升, 并且在相对低温的情况下亦可获得高的原子扩散速率, 从而在材料的低温异质连接中有着巨大的应用潜力^[41]。

值得一提的是, 反应型双金属纳米多层膜结构也可作为扩散互连钎料, 通过高温扩散的方式实现结构互连^[42]。DUARTE 等^[43]通过磁控溅射的方式在 γ -TiAl 合金表面沉积得到层厚为 4 nm 的交替 Ti-Al 多层结构, 并在高温(900 $^{\circ}\text{C}$)加压(50 MPa)的情况下获得了性能优异且无缺陷的有效接头(图 7^[43])。随着元素在层间的扩散形成了细小的晶粒结构, 从而优化了接头区的强度及内应力状态。同时研究显示, 多层结构中少量 Cu 或 Ag 的添加将有效提升 Ti-Al 多层间扩散互连效果, 且三元 TiCuAl 相的形成可增加界面的硬度, 因而在 γ -TiAl 合金的低温扩散互连中具有极大应用潜力。

图 7 Ti-Al 纳米多层膜辅助 γ -TiAl 合金的扩散互连

MOSZNER 等^[44]通过设计交替的纳米 Cu-W 多层结构作为互连钎料, 实现在 750 °C 相对低温下的 Mo 板直接连接(图 8^[44])。通过结构设计可有效调控多层膜结构中的内应力状态, 进而使 Cu 原子获得相对低温下的快速迁移行为, 随着时间的增长, 纳米多层结构中 Cu 将外向扩散形成分离的 Cu 层, 而残留的 Cu 及 W 框架将在压力作用下致密化, 从而在被连接材料之间由于 Cu 互连层的形成而获得有效的接头。此外, 多纳米层的形成将有效缓解热作用及相转变/形成后产生的内应力, 从而得到强度优异的接头。

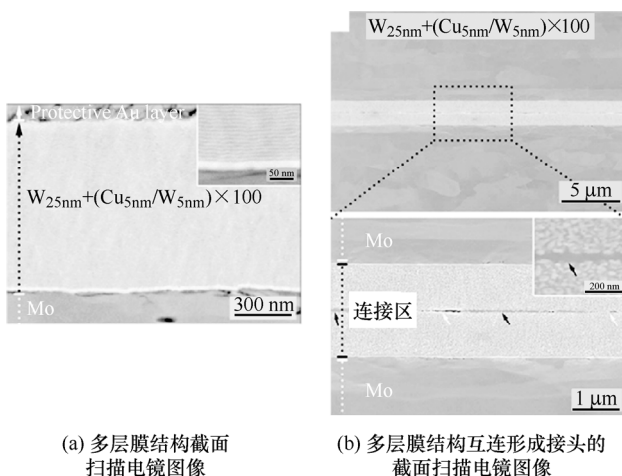


图 8 Cu-W 纳米多层膜结构设计互连应用

通过控制多层膜中金属的扩散速率并利用纳米结构的尺寸效应, 将可在相对低温下获得材料的高效互连。基于多层膜结构中界面控制的扩散行为特征, 通过设计金属-陶瓷组合的交替纳米多层结构, 使金属原子在约束空间中进行快速迁移, 从而可应用于低温微纳互连。LEHMERT 等^[45]通过设计铜基纳米多层金属-陶瓷薄膜结构(Cu-AlN), 成功地在 750 °C 明显低于铜块体熔点(1 083 °C)条件下实现了 Ti-6Al-4V 构件的互连成形(图 9^[45])。高温热保温过程中, 金属原子将在驱动力作用下向远离基板侧迁移, 而陶瓷纳米层将在压力与高温作用下发生坍塌并烧结致密化, 同时在基板界面处发生冶金反应强化界面结构, 并在两构件之间将形成互连的 Cu 层, 最终实现 Ti-6Al-4V 结构的有效连接。

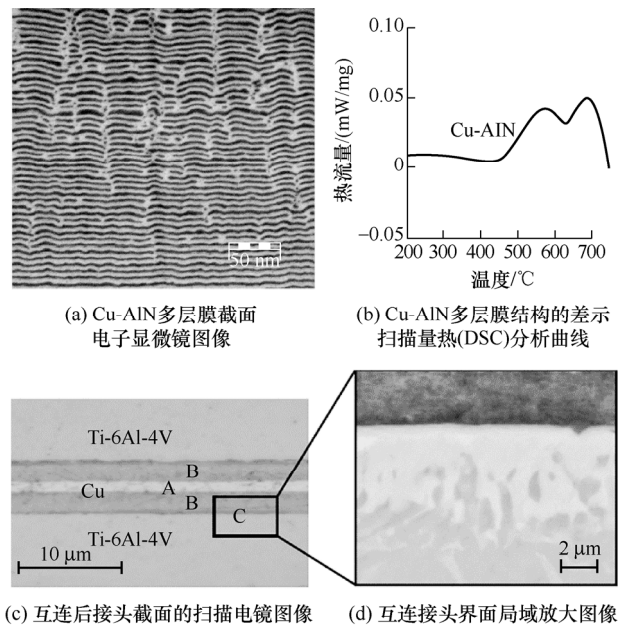


图 9 Cu-AlN 金属-陶瓷纳米多层膜结构的互连应用

研究显示, 纳米多层膜结构中金属原子的扩散速率将极大地影响互连过程, 而界面结构的稳定性将直接决定原子迁移过程中驱动力的大小。在异质(金属-金属, 金属-陶瓷)多层结构中, 异质共格孪晶界面能够提高多层膜的热稳定性, 在高温状态下, 晶粒的长大将主要由晶界扩散控制, 而低能量状态的共格或半共格界面能有效抑制晶界的迁移, 两者之间存在相互竞争的关系, 从而在多层膜结构中形成稳定的热沟槽角, 使系统达到热力学稳定状态, 阻止了晶粒的长大, 保持了结构的稳定, 进而提升了多层膜结构在材料互连过程中的温度。

纳米多层膜结构中存在的大量的晶界、相界、三叉点等缺陷结构, 一定程度下促使结构获得了较大的熔点降低现象, 而在约束空间下金属层中甚至

能获得低温下的界面熔融现象^[46]。已知通过添加微量合金元素或改善多层膜内结构的内应力状态, 将可进一步提升金属原子的迁移速率, 从而使结构纳米多层膜在微纳连接应用中适应更低温更快速的连接需求^[47-50]。

3 结论

结构纳米薄膜由于尺度效应及多晶/非晶结构特征将获得极高的原子反应活性及迁移能力, 从而由单层膜结构辅助的微纳连接技术在微电子与微机电系统中异质材料的集成互连中展现了极大的应用潜力。根据所互连材料(晶圆)的特征, 金属、半导体及氧化物纳米薄膜均可在后续表面活性技术的辅助下实现低温/室温及低压/无压互连。同时组合不同材质的纳米薄膜结构可得到反应型与非反应型多层膜结构体系, 由于系统能量与结构特征紧密相关, 从而可针对不同应用场合设计包括金属-金属及金属-陶瓷组合的纳米多层结构, 获得可控热输出或可控原子扩散的钎料结构, 进而适用于更为广阔的应用领域。

然而, 由于当前的纳米尺度薄膜多采用物理气相沉积的方式制备, 将在材料的生产效率上受到极大的限制, 且极大地增加成本。同时为保证沉积纳米薄膜结构的完整性, 对承载基板表面的平整度也提出了较高的要求。为进一步达到低温快速的微纳连接需求, 以结构纳米薄膜为互连材料的研究仍存在较多基础性问题亟待解决, 如: ① 纳米薄膜材料热稳定与互连应用所需材料尺度极限的关系; ② 反应型纳米多层膜结构中膜厚-能量释放-接头界面之间的关系; ③ 扩散型纳米多层膜结构中界面形式与内应力状态对低温互连接头形成的影响; ④ 低温连接高温应用可行性等。

综上, 基于结构纳米薄膜材料的微纳连接技术由于其在低温快速互连领域中的巨大应用潜力正得到广泛的关注与研究, 同时由于工艺绿色且与半导体工艺兼容, 而在诸多关键领域中构件的高精度互连成形制造中具有极大的应用前景。

参 考 文 献

- [1] SAFAE A, ATTARIAN SHANDIZ M, SANJABI S, et al. Modelling the size effect on the melting temperature of nanoparticles, nanowires and nanofilms[J]. *Journal of Physics: Condensed Matter*, 2007, 19(21): 216216.
- [2] SKRIPOV V P, KOVERDA V P, SKOKOV V N. Size effect on melting of small particles[J]. *Physica Status Solidi (a)*, 1981, 66(1): 109.
- [3] KRAUSCH G, DETZEL T, BIELEFELDT H, et al. Growth and melting behavior of thin In films on Ge(100)[J]. *Applied Physics A*, 1991, 53: 324-329.
- [4] LI X. Modelling the size- and shape-dependent cohesive energy of nanomaterials and its applications in heterogeneous systems[J]. *Nanotechnology*, 2014, 25(18): 185702.
- [5] LU K, JIN Z H. Melting and superheating of low-dimensional materials[J]. *Current Opinion in Solid State and Materials Science*, 2001, 5(1): 39-44.
- [6] SÁENZ-TREVIZO A, HODGE A. Nanomaterials by design: A review of nanoscale metallic multilayers[J]. *Nanotechnology*, 2020, 31(29): 292002.
- [7] 马玉洁. 纳米金属多层膜的热稳定性研究[D]. 南京: 南京大学, 2019.
MA Yujie. Study on the thermal stability of nanostructured metallic multilayers[D]. Nanjing: Nanjing University, 2019.
- [8] XU J, DU Y, TIAN Y, et al. Progress in wafer bonding technology towards MEMS, high-power electronics, optoelectronics, and optofluidics[J]. *International Journal of Optomechatronics*, 2020, 14(1): 94-118.
- [9] MU F, UOMOTO M, SHIMATSU T, et al. De-bondable SiC-SiC wafer bonding via an intermediate Ni nano-film[J]. *Applied Surface Science*, 2019, 465: 591-595.
- [10] SHIMATSU T, UOMOTO M. Atomic diffusion bonding of wafers with thin nanocrystalline metal films[J]. *Journal of Vacuum Science & Technology B*, 2010, 28(4): 706.
- [11] YONEZAWA G, TAKAHASHI Y, SATO Y, et al. Atomic diffusion bonding using oxide underlayers for optical applications[J]. *Japanese Journal of Applied Physics*, 2020, 59(SB): SBBC03.
- [12] MATSUMAE T, KURASHIMA Y, TAKAGI H. Surface activated bonding of Ti/Au and Ti/Pt/Au films after vacuum annealing for MEMS packaging[J]. *Microelectronic Engineering*, 2018, 197: 76-82.
- [13] TAKEUCHI K, FUJINO M, SUGA T. Room temperature temporary bonding of glass substrates based on SAB method using Si intermediate layer[J]. *IEEE Transactions on Components, Packaging and Manufacturing Technology*, 2017, 7(10): 1713-1720.
- [14] TAKEUCHI K, FUJINO M, MATSUMOTO Y, et al. Mechanism of bonding and debonding using surface

- activated bonding method with Si intermediate layer[J]. Japanese Journal of Applied Physics, 2018, 57(4S): 04FC11.
- [15] CHENG Z, MU F, YATES L, et al. Interfacial thermal conductance across room-temperature-bonded GaN/diamond interfaces for GaN-on-diamond devices[J]. ACS Applied Materials & Interfaces, 2020, 12(7): 8376-8384.
- [16] CHENG Z, MU F, YOU T, et al. Thermal transport across ion-cut monocrystalline beta-Ga₂O₃ thin films and bonded beta-Ga₂O₃-SiC interfaces[J]. ACS Applied Materials & Interfaces, 2020, 12(40): 44943-44951.
- [17] HÖNLE M, OBERHUMER P, HINGERL K, et al. Mechanism of indium tin oxide//indium tin oxide direct wafer bonding[J]. Thin Solid Films, 2020, 704: 137964.
- [18] SAHOO H, OTTAVIANO L, ZHENG Y, et al. Low temperature bonding of heterogeneous materials using Al₂O₃ as an intermediate layer[J]. Journal of Vacuum Science & Technology B, 2018, 36(1): 011202.
- [19] UTSUMI J, TAKIGAWA R. Surface activated bonding of aluminum oxide films at room temperature[J]. Scripta Materialia, 2021, 191: 215-218.
- [20] FAN J, TU L C, TAN C S. High-k Al₂O₃ material in low temperature wafer-level bonding for 3D integration application[J]. AIP Advances, 2014, 4(3): 031311.
- [21] TAKEUCHI K, MU F, MATSUMOTO Y, et al. Room temperature wafer bonding of glass using aluminum oxide intermediate layer[J]. Advanced Materials Interfaces, 2021, 8(5): 2001741.
- [22] LAGANÁ S, MIKKELSEN E K, MARIE R, et al. Direct bonding of ALD Al₂O₃ to silicon nitride thin films[J]. Microelectronic Engineering, 2014, 176: 71-74.
- [23] 马颖. 纳米多层膜高温自蔓延及反应辅助连接研究[D]. 北京: 北京工业大学, 2018.
- MA Ying. High-temperature self-propagating and reaction-assisted joining by reactive multilayer films[D]. Beijing: Beijing University of Technology, 2018.
- [24] 林铁松, 高丽娇, 何鹏, 等. 纳米结构多层膜自蔓延连接技术的研究及其应用[J]. 材料导报, 2011, 25(21): 8-12, 52.
- LIN Tiesong, GAO Lijiao, HE Peng, et al. Research and application of self-propagating joining technology in nanostructured multilayer foils[J]. Materials Reports, 2011, 25(21): 8-12, 52.
- [25] MAJ L, MARS K, MORGIEL J, et al. Reactive resistance welding of Ti6Al4V alloy with the use of Ni(V)/Al multilayers[J]. Physica Status Solidi (RRL), 2017, 11(2): 1600405.
- [26] BRAEUER J, GESSNER T. A hermetic and room-temperature wafer bonding technique based on integrated reactive multilayer systems[J]. Journal of Micromechanics Microengineering, 2014, 24(11): 115002.
- [27] YI Jianglong, ZHANG Yupeng, WANG Xinxin, et al. Characterization of Al/Ti nano multilayer as a jointing material at the interface between Cu and Al₂O₃[J]. Materials Transactions, 2016, 57(9): 1494-1497.
- [28] WANG J, BESNOIN E, DUCKHAM A, et al. Room-temperature soldering with nanostructured foils[J]. Applied Physics Letters, 2003, 83(19): 3987.
- [29] BOETTGE B, BRAEUER J, WIEMER M, et al. Fabrication and characterization of reactive nanoscale multilayer systems for low-temperature bonding in microsystem technology[J]. Journal of Micromechanics Microengineering, 2010, 20(6): 064018.
- [30] YI Jianglong, ZHANG Yupeng, HU Haichun, et al. Characterization of Al/Ni nanoscale multilayer used for transient-liquid-phase bonding of copper and Al₂O₃ ceramic[J]. Rare Metal Materials and Engineering, 2014, 43(11): 2593-2596.
- [31] BRIDGES D, ROULEAU C, GOSSER Z, et al. Self-powered fast brazing of Ti-6Al-4V using Ni/Al reactive multilayer films[J]. Applied Science, 2018, 8(6): 985.
- [32] 李红, 许保珍, 杨林派, 等. 反应性纳米多层膜的机理研究及其应用[J]. 焊接, 2019, 551(5): 7-12, 71.
- LI Hong, XU Baozhen, YANG Linpai, et al. Fundamental research and application of reactive nano-multilayers[J]. Welding & Joining, 2019, 551(5): 7-12, 71.
- [33] 李红, 许保珍, 侯金保, 等. 纳米多层膜及其在材料连接应用中的研究进展[J]. 航空制造技术, 2019, 62(12): 14-21.
- LI Hong, XU Baozhen, HOU Jinbao, et al. Research progress on nano-multilayer films and their applications in materials joining[J]. Aeronautical Manufacturing Technology, 2019, 62(12): 14-21.
- [34] NORO J, RAMOS A S, VIEIRA M T. Intermetallic phase formation in nanometric Ni/Al multilayer thin films[J]. Intermetallics, 2008, 16(9): 1061-1065.
- [35] CAVALEIRO A J, RAMOS A S, MARTINS R M S, et al. In situ phase evolution of Ni/Ti reactive multilayers[J]. Journal of Materials Engineering and Performance, 2014, 23(7): 2446-2449.
- [36] CAVALEIRO A J, RAMOS A S, BRAZ FERNANDES F

- M, et al. Follow-up structural evolution of Ni/Ti reactive nano and microlayers during diffusion bonding of NiTi to Ti6Al4V in a synchrotron beamline[J]. *Journal of Materials Processing Technology*, 2020, 275: 116354.
- [37] LEIFERT A, MONDIN G, DÖRFLER S, et al. Fabrication of nanoparticle-containing films and nano layers for alloying and joining[J]. *Advanced Engineering Materials*, 2014, 16(10): 1264-1269.
- [38] WANG J, BESNOIN E, KNIO O M, et al. Effects of physical properties of components on reactive nanolayer joining[J]. *Journal of Applied Physics*, 2005, 97(11): 114307.
- [39] RAMOS A S, CAVALEIRO A J, VIEIRA M T, et al. Thermal stability of nanoscale metallic multilayers[J]. *Thin Solid Films*, 2014, 571: 268-274.
- [40] ZHANG Yupeng, YI Jianglong, LUO Ziyi, et al. Structural view study on diamond and copper bonding with AlNi micro/nano multilayers[J]. *Rare Metal Materials and Engineering*, 2014, 43(11): 2597-2601.
- [41] 李红, 邢增程, HODÚLOVÁ E, 等. 退火处理工艺在纳米多层膜材料研究中的应用进展[J]. *材料导报*, 2020, 34(3): 99-105.
- LI Hong, XING Zengcheng, HODÚLOVÁ E, et al. Application progress of annealing process in the study of nano-multilayer films[J]. *Materials Reports*, 2020, 34(3): 99-105.
- [42] CAVALEIRO A J, RAMOS A S, FERNANDES F B, et al. Interaction between Ni/Ti nanomultilayers and bulk Ti-6Al-4V during heat treatment[J]. *Metals*, 2018, 8(11): 878.
- [43] DUARTE L I, VIANA F, RAMOS A S, et al. Diffusion bonding of gamma-TiAl using modified Ti/Al nanolayers[J]. *Journal of Alloy and Compounds*, 2012, 536: S424-S427.
- [44] MOSZNER F, CANCELLIERI C, BECKER C, et al. Nano-structured Cu/W brazing fillers for advanced joining applications[J]. *Journal of Materials Science and Engineering B*, 2016, 6(5): 226-230.
- [45] LEHMERT B, JANCZAK-RUSCH J, PIGOZZI G, et al. Copper-based nanostructured coatings for low-temperature brazing applications[J]. *Materials Transactions*, 2015, 56(7): 1015-1018.
- [46] KAPTAY G, JANCZAK-RUSCH J, JEURGENS L P H. Melting point depression and fast diffusion in nanostructured brazing fillers confined between barrier nanolayers[J]. *Journal of Materials Engineering and Performance*, 2016, 25(8): 3275-3284.
- [47] CHIODI M, CANCELLIERI C, MOSZNER F, et al. Massive Ag migration through metal/ceramic nanomultilayers: An interplay between temperature, stress-relaxation and oxygen-enhanced mass transport[J]. *Journal of Materials Chemistry C*, 2016, 4(22): 4927.
- [48] JANCZAK-RUSCH J, CHIODI M, CANCELLIERI C, et al. Structural evolution of Ag-Cu nano-alloys confined between AlN nano-layers upon fast heating[J]. *Physical Chemistry Chemical Physics*, 2015, 17(42): 28228.
- [49] CANCELLIERI C, KLYATSKINA E, CHIODI M, et al. The effect of interfacial Ge and RF-Bias on the microstructure and stress evolution upon annealing of Ag/AlN multilayers[J]. *Applied Science*, 2018, 8(12): 2403.
- [50] ARAULLO-PETERS V, CANCELLIERI C, CHIODI M, et al. Tailoring fast directional mass transport of nano-confined Ag-Cu alloys upon heating: Effect of the AlN barrier thickness[J]. *ACS Applied Materials & Interfaces*, 2019, 11(6): 6605-6614.

作者简介: 林路禅(通信作者), 男, 1989 年出生, 博士, 副教授。主要研究方向为超快激光微纳制造与微纳连接。
E-mail: luchan.lin@sjtu.edu.cn