

令和 5 年 5 月 29 日現在

機関番号：11101

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2019～2022

課題番号：19K04084

研究課題名（和文）柔らかい電子回路に使う金属ナノ粒子配線の電流・応力下での損傷機構解明と強度評価

研究課題名（英文）Investigation of damage mechanism of metal nanoparticle interconnect used in flexible electronic circuits under electrical and mechanical loadings

研究代表者

笹川 和彦（SASAGAWA, Kazuhiko）

弘前大学・理工学研究科・教授

研究者番号：50250676

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,300,000円

研究成果の概要（和文）：電気的負荷と力学的負荷の作用するフレキシブル銀ナノ粒子電子配線において、金属凝集塊の形成とエレクトロマイグレーション（EM）による局所的な配線厚さの減少が複合的な損傷要因であり、EM損傷機構として、多孔質体であった配線内部構造が、通電に伴い結晶粒様の銀粒子の凝集体を形成し、その粒界に沿って原子が拡散することを世界で初めて示した。一般的な粒界拡散によるEM損傷は電流の負極側で生じるが、銀ナノ粒子配線においては陽極側で損傷が生じた。この現象を再現するためには、配線内における結晶粒サイズの不均一性を考慮した原子拡散モデルを構築することが必要であることがわかり、その数値モデル作成に逸早く取り組んだ。

研究成果の学術的意義や社会的意義

これまで明らかになっていないフレキシブル金属ナノ粒子インク配線の高密度電子流による損傷に焦点を絞り、特に実用環境で想定される電気負荷と応力負荷が重畳作用する複雑な損傷の初生および進展機序を世界に先駆け解明したものであり、学術的な意義を有する。さらに、損傷機構の解明にとどまらず、これまで成功をみていない金属ナノ粒子インク配線の強度評価へ歩を進めたことは、今後発展が望まれる柔らかい電子回路の信頼性を確保することに貢献し、これによるさらなる応用分野の拡大が見込まれ、その社会的意義は大きい。

研究成果の概要（英文）：The followings were shown for the first time in the world;

In the flexible silver nanoparticle lines under electrical and mechanical loadings, the local decrease in line's thickness by the formation of the metal particles aggregates on the line and electromigration, EM, was the complex damage factor, and as EM damage mechanism, the porous internal structure of the line changes, the aggregates of silver particles like a crystal grain were formed with electrical loading, and the metallic atoms diffused along the grain boundary by electromigration.

In general EM damage, the damage by the grain boundary diffusion occurred on the cathode side of the line, but the damage occurred on the anode side in the silver nanoparticles lines. Thus, it was revealed that it was necessary to build an atomic diffusion model in consideration of inhomogeneity of the crystal grain size in the line's internal structure to reproduce this phenomenon, and the theoretical model was immediately started to build.

研究分野：材料システム評価学

キーワード：金属ナノ粒子配線 エレクトロマイグレーション フレキシブル回路 信頼性

1. 研究開始当初の背景

ひとの肌や物体の曲面に貼りつけることのできるフレキシブルな電子回路が実用化されてきた。曲げ伸ばしのできるトランジスタや電子配線により、ウェアラブルな生体センサや折りたためる電子ペーパーディスプレイなどが開発されている。フレキシブルな電子回路は、柔らかいフィルム樹脂基材に金属ナノ粒子を分散したインクをインクジェットプリンタやスクリーン印刷技術により印刷した配線により構成される。金属ナノ粒子による配線は、多孔質な微視的構造を有しているため、柔軟性を有しながら導電性を安定して保持でき、今後の電子回路生産技術として大いに期待されている電子材料である。しかしながら、酸化による特性維持の困難さから導電性に優れる銅でなく銀が主に用いられていること、高密度電流と応力が複合的に作用したときの損傷機構が不明であることなど、その強度信頼性に対する課題が指摘されている。

シリコン基板集積回路(シリコン IC)は、金属などの導体とセラミックスなどの絶縁体の複合した材料システムともいえる。ナノテクがもたらす配線微細化による高密度電流は、ジュール発熱による高温環境に加え、金属配線中を流れる高密度な電子流による配線金属原子の拡散移動(エレクトロマイグレーション(EM): 図1)を誘起し、信頼性確保にとって重要な課題となっている。これまで、金属薄膜配線における金属原子の拡散径路と局所的な原子損失の機構が解明され、経験式や数値シミュレーション手法による寿命予測に基づいた信頼性確保の技術開発が行われてきた。金属ナノ粒子インク配線も今後シリコン IC 並みの微細化が進むと考えられ、近々に EM による信頼性問題に直面することは確実である。

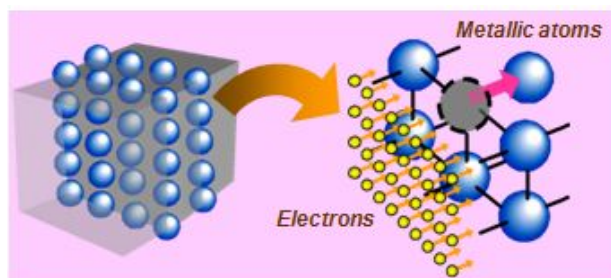


図1 エレクトロマイグレーション(EM)

インクジェット印刷で作製した金属ナノ粒子インク配線はシリコン IC で使う緻密な金属薄膜配線と異なり、多孔質の微視構造を有する。この多孔質構造を有する金属ナノ粒子配線に高密度電流が作用したとき、EM によって金属原子が拡散する径路はどこで、どのように局所的な原子損失が発生するのか、損傷機構の解明が待たれていた。特に実用環境で想定される曲げ応力負荷が高密度電流に重畳して作用する場合に、応力負荷がどのように EM 損傷機構に影響を及ぼすのか不明であった。

2. 研究の目的

本研究は当初4年計画で次の項目の研究を実施することとしていた。これにより、フレキシブル電子回路の配線に使われる金属ナノ粒子インク配線を対象に、高密度電流下で応力とエレクトロマイグレーション(EM)の基本因子が複合した損傷機構を解明する。さらに、明らかにした損傷機構を踏まえて配線寿命などの強度評価法の構築を図ることが本研究の目的である。

(1) 金属ナノ粒子配線の損傷機構解明

高密度電流負荷による損傷(EM)加速試験による検討(R1)

EMに加え応力負荷を重畳した加速試験による検討(R2)

(2) 強度評価法の構築

損傷数理モデルの定式化(R3)

数値シミュレーション・コードの開発(R4)

実験による有効性検証(R4)

3. 研究の方法

(1) 金属ナノ粒子配線の損傷機構解明

高密度電流負荷による損傷(EM)加速試験による検討

フィルム樹脂基材上にインクジェット法により銀ナノ粒子インクを印刷して配線試験片を作製する。試験部幅が数十、長さが百 μm 程度の直線形試験片に対し、高密度定電流を高温下で長時間印加し、配線両端の電位差を4端子法でモニターする。電位差増加は損傷蓄積による電気抵抗増加を反映したもので、これにより損傷の蓄積プロファイルを獲得する。また、電子顕微鏡やレーザ顕微鏡により断線前後の微視形態観察を行う。EMによる配線微視構造の変化を捉え、原子拡散径路の推定を行うとともに金属原子の局所損失の発生箇所とその成長機構を特定してEM損傷機構を解明する。

EMに加え応力負荷を重畳した加速試験による検討

項目(1)の試験片を、加熱できる半円柱形ブロックに接着し静的な曲げ応力を負荷した状態で、高密度電流を長時間印加して断線までの損傷蓄積プロファイルを獲得するとともに損

傷箇所の微視的構造変化の観察を行う。得られた結果をEMのみの(1) - の結果と比較することにより、応力負荷の影響を抽出して高密度電流と応力の複合負荷の下での損傷機構を明らかにする。項目(1)の対象として、主に銀ナノ粒子インクを扱うが、現在各社が開発中の銅ナノ粒子インクが広く商品化されれば、これも視野に入れた損傷機構の解明を行う。

(2) 強度評価法の構築

損傷数理モデルの定式化

電子流による金属原子拡散や応力勾配による拡散を考慮した原子の局所的損失を理論的に定式化することにより、配線の電流、温度、原子濃度を与えると、その箇所の単位時間、単位体積当たりの原子損失に対応した損傷パラメータ値を算出できる理論式の特定を図る。緻密な微視構造の金属薄膜配線と異なり、多孔質構造材料に特有な原子拡散径路および微視構造変化の数理モデルを新たに導入する。

数値シミュレーション・コードの開発

項目(2) - で特定した損傷支配パラメータ式を組み込み、配線内の原子濃度分布を形成する過程の数値シミュレーション・コードを開発する。2次元形状の配線(厚さを無視)を扱うこととし、配線内の電流、温度分布は有限要素法により得、この結果をパラメータ式に与えることにより各要素の原子濃度変化を繰り返し計算する。これにより、寿命と損傷箇所を定性的に予測可能な強度評価を実現する。

実験による有効性検証

種々の形状の配線に対して、複数の入力電流、使用温度の動作環境を設定して、シミュレーションにより損傷予測を行うとともに、同条件での破壊通電実験を行って、寿命と断線箇所の結果の比較から開発した強度評価法の有効性検証と改良を行う。

4. 研究成果

研究計画を発展的に見直し、最終年度(R4)前年度応募を行い、採択されたためR3年度までの研究成果をまとめる。

(1) 金属ナノ粒子配線の損傷機構解明

高密度電流負荷による損傷(エレクトロマイグレーション: EM)加速試験による検討

EMによる配線微視構造の変化を捉え、原子拡散径路の推定を行うとともに金属原子の局所損失の発生箇所とその成長機構を特定してEM損傷機構を解明することを目的に以下の研究を実施した。フィルム樹脂基材上にインクジェット法により銀ナノ粒子インクを印刷して配線試験片を作製した。試験部幅が50、長さが100マイクロmの直線形状試験片に対し、高密度定電流を高温下で長時間印加し、損傷の蓄積を反映する配線両端の電位差を4端子法でモニターした。また、断線までの微視構造観察を電子顕微鏡やレーザ顕微鏡により経時的に行った。

その結果、通電による局所的な配線厚さの減少箇所と金属凝集塊の形成の分布が電流密度の大きさによって異なっており、通電がもたらすジュール発熱による金属凝集塊の形成とEMによる局所的な配線厚さの減少が金属ナノ粒子インク配線の損傷要因であり、これらが複合して作用する損傷機構を有していることがわかった。また、電流密度や温度などの使用環境によって2つの損傷要因の優劣が変化することがわかった。なお、凝集塊形成後のEMによる凝集塊移動と分布の形成過程を初めて明らかにした。

高密度電流負荷による損傷(EM)に加え応力負荷を重畳した加速試験による検討

高密度電流のみを負荷する加速試験((1))に用いた銀ナノ粒子インクを印刷したフレキシブル配線試験片を用い、これを加熱できる半円柱形金属ブロックあるいは平板型金属ブロックに接着することにより、静的な曲げ応力を負荷した状態と負荷のない状態で、高密度電流を長時間印加して断線までの損傷蓄積プロファイルを獲得するとともに電子顕微鏡とレーザ顕微鏡による損傷箇所の微視的構造変化の観察を行った。

高密度電流のみの試験結果とさらに応力負荷を重畳したときの試験結果を比較したところ、同条件で作製した配線でも曲げ応力(引張)を負荷した場合には、損傷速度が速く、特に断線する前に出現する配線抵抗の不安定状態に至るまでの時間が短くなることがわかった。これにより、曲げによる配線全体への引張応力の負荷により、EMによる損傷機構において引張応力による原子拡散の易動度が増加し、EMが助長され寿命が短くなるものと考えられた。

さらに電子顕微鏡による観察結果から銀ナノ粒子配線のEM損傷機構として、多孔質体であった配線内部構造が、通電に伴い結晶粒様の銀粒子の凝集体を形成し、その粒界に沿って原子が拡散することを世界で初めて示すことができた。

(2) 強度評価法の構築

損傷数理モデルの定式化

電子流による金属原子拡散と応力負荷による拡散への影響を考慮した原子の局所的損失を理論的に定式化することにより、配線の電流、温度、原子濃度を与えると、その箇所の単位時間、単位体積当たりの原子損失に対応した損傷パラメータ値を算出できる理論式の検討を図った。

銀ナノ粒子配線のEM損傷機構に関し、銀ナノ粒子の凝集した結晶粒間の粒界拡散が支配的な拡散経路であることが実験的な検討から明らかになった。一般的なEMの粒界拡散による損

傷は電流の負極側で生じるが、銀ナノ粒子配線においては陽極側で損傷が生じた。そこで、この現象を再現するためには、配線内における結晶粒サイズの不均一性を考慮した原子拡散モデルを構築することが必要であることがわかり、その数理モデル作成に逸早く取り組んだ。

数値シミュレーション・コードの開発（R4計画）

銀の物性定数を用いた結晶粒界拡散のEM断線シミュレーションのコード開発に着手した。陽極側で断線する実現象を再現するための第一ステップとして、結晶粒の不均一性を考慮しない数値シミュレーションを作成した。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計5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 0件）

1. 著者名 Daiki Saito, Kazuhiko Sasagawa, Takeshi Moriwaki, Kazuhiro Fujisaki	4. 巻 144(4)
2. 論文標題 Damage Analysis in Ag Nanoparticle Interconnect Line Under High-Density Electric Current	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 ASME Journal of Electronic Packaging	6. 最初と最後の頁 041012.1-6
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1115/1.4053365	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 Ryota Horiuchi, Kazuhiko Sasagawa, Kazuhiro Fujisaki	4. 巻 -
2. 論文標題 Damage of Flexible Electronic Line Under Mechanical and Electrical Stress Loading	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Proc. of ASME InterPACK 2021	6. 最初と最後の頁 68902.1-4
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1115/IPACK2021-68902	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 Ryuji Takaya, Kazuhiko Sasagawa, Takeshi Moriwaki, Kazuhiro Fujisaki	4. 巻 118
2. 論文標題 Computational evaluation of optimal reservoir and sink lengths for threshold current density of electromigration damage considering void and hillock formation	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Microelectronics Reliability	6. 最初と最後の頁 114060 ~ 114060
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.microrel.2021.114060	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 Daiki Saito, Kazuhiko Sasagawa, Takeshi Moriwaki, Kazuhiro Fujisaki	4. 巻 142
2. 論文標題 Electromigration Damage of Flexible Electronic Lines Printed With Ag Nanoparticle Ink	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 ASME Journal of Electronic Packaging	6. 最初と最後の頁 031107.1-5
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1115/1.4046849	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 齊藤 大輝, 笹川 和彦, 森脇 健司, 藤崎 和弘	4. 巻 -
2. 論文標題 高密度電流下の銀ナノ粒子インク配線における凝集塊分布の観察	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 第29回マイクロエレクトロニクスシンポジウム論文集	6. 最初と最後の頁 139-142
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
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5件 (うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件)

1. 発表者名 大坪拓生, 笹川和彦, 森脇健司, 藤崎和弘
2. 発表標題 高密度電流によるグラフェンインク配線の損傷
3. 学会等名 日本実験力学会2021年度年次講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 鈴木雄, 笹川和彦, 森脇健司, 藤崎和弘
2. 発表標題 酸化インジウムスズ電子配線の高密度電流下における損傷機構の検討
3. 学会等名 日本機械学会M&M2021材料力学カンファレンス
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 工藤泰河, 笹川和彦, 藤崎和弘
2. 発表標題 高密度電流下フレキシブルAg配線の損傷に対する保護膜の影響
3. 学会等名 日本機械学会東北支部 第52回学生員卒業研究発表講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 大坪拓生, 笹川和彦, 森脇健司, 藤崎和弘
2. 発表標題 フレキシブル基板上に印刷した導電性インク配線の高密度電流負荷試験
3. 学会等名 日本機械学会東北学生会第51回学生員卒業研究発表講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 鈴木 雄, 森脇健司, 笹川和彦, 藤崎和弘
2. 発表標題 酸化インジウムスズ電子配線の高密度電流下における損傷評価
3. 学会等名 日本機械学会東北学生会第51回学生員卒業研究発表講演会
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計1件

1. 著者名 笹川和彦, 藤崎和弘 (分担執筆)	4. 発行年 2021年
2. 出版社 技術情報協会	5. 総ページ数 558
3. 書名 金属ナノ粒子、微粒子の合成、調整と最新応用技術	

〔産業財産権〕

〔その他〕

笹川・三浦研究室 http://www.mech.hirosaki-u.ac.jp/~sasagawa/labhp/index.html

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
---------	---------