

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 4 月 27 日現在

機関番号：31302

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2014～2016

課題番号：26820001

研究課題名（和文）電気的破壊挙動の解明に基づく高信頼の金属ナノワイヤ透明導電膜の創製

研究課題名（英文）Fabrication of Reliable Metallic Nanowire Transparent Conductive Film with Clarification of Electrical Breakdown

研究代表者

李 淵 (Li, Yuan)

東北学院大学・工学部・准教授

研究者番号：50625001

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,000,000円

研究成果の概要（和文）：高信頼性を有する金属ナノワイヤ透明導電膜を開発するために、その電気的破壊挙動を解明した。具体的にはまず金属ナノワイヤメッシュを取り扱い、数値解析により通電条件下の温度分布を調査し、熱的・電気的境界条件が電気的破壊挙動に与える影響を解明した。次に作製した金属微細ワイヤ単体と異なるワイヤメッシュを用いて、通電実験を行い、その電気的破壊挙動ならびに雰囲気環境がもたらす影響を明らかにした。これより金属ナノワイヤ透明導電膜における信頼性の向上指針を見出して、太陽電池をはじめ次世代光電デバイスの発展に資する成果を得た。

研究成果の概要（英文）：To develop highly reliable metallic nanowire transparent conductive film, its behavior of electrical breakdown was clarified. Firstly, by using numerical analysis on temperature distribution of the metallic nanowire mesh under current stressing, the effect of boundary conditions on the electrical breakdown was clarified. Then, several fabricated metallic thin wires and wire meshes were employed to perform a series of current-stressing experiments, in which the effect of hot and humid environment was also clarified. Such results provide guidance to improve the reliability of metallic nanowire transparent conductive film, and therefore contribute the development of next-generational optoelectronics.

研究分野：工学

キーワード：機械材料・材料力学 金属ナノワイヤ透明導電膜 溶断挙動 雰囲気環境

1. 研究開始当初の背景

透明導電膜は、可視光域での透明性と導電性という通常相反する性質を併せ持ち薄膜であり、太陽電池やタッチパネル等光電デバイスに欠かせないものである。近年、透明導電膜の主役として実用されている酸化インジウムスズ (ITO) は、原料である In の資源枯渇が懸念される上に機械強度が弱いため、代替材料の開発が盛んである。その中で、金属ナノワイヤ透明導電膜 (透明基板上に規則的もしくはランダムに交叉して配置された複数の金属ナノワイヤからなるワイヤメッシュ) は導電性・透明性・柔軟性を持つため、注目が集まっている。

しかし通常動作下において薄膜全体に電流が流れる ITO 透明導電膜に対して、金属ナノワイヤ透明導電膜では、ワイヤ自体が電流通路を担う。ここにナノワイヤの断面積は小さいため、透明導電膜全体に微小な電流を流しても、膨大な電流密度が生じる。そこで金属ナノワイヤにおけるジュール発熱が増加し、温度が上昇し、ワイヤ自体が溶断しやすくなり、光電デバイスの劣化もしくは故障につながる。

しかし現状は金属ナノワイヤ透明導電膜の高性能化を目指す創製手法の開発が行われている一方、電氣的破壊に係る信頼性確保の研究は未開拓である。そこで本研究は高信頼性を有する金属ナノワイヤ透明導電膜の開発を図るために、その電氣的破壊挙動を解明することを目的とする。

2. 研究の目的

本研究は金属ナノワイヤ透明導電膜の信頼性を向上するために、金属ナノワイヤメッシュを対象とし、その電氣的破壊挙動を解明することを目的とする。まず高度解析プログラムを開発し、ジュール熱による温度分布を可視化し、電氣的破壊挙動を予測する。次に開発したプログラムにより破壊挙動に影響を及ぼす諸因子を解明する。さらに作製した金属微細ワイヤ単体とワイヤメッシュを用いて、通電実験を行い、その破壊挙動ならびに雰囲気環境が及ぼす影響を調査する。これより金属ナノワイヤ透明導電膜の信頼性を向上する指針を見出し、次世代光電デバイスの発展に資する。

3年継続により、(1) 金属微細ワイヤメッシュにおける溶断挙動の高度解析、(2) 金属微細ワイヤの電氣的・熱的特性評価と電氣的破壊挙動の解明、(3) 金属微細ワイヤメッシュにおける電氣的破壊挙動の解明および雰囲気環境の影響、(4) 金属微細ワイヤメッシュ溶断電流の推定手法の提案、なる4項目の研究を推進する。

3. 研究の方法

まず金属微細ワイヤメッシュを対象として電気-熱連成解析モデルを作成し、数値解析プログラムを開発し、ジュール熱による温度分布を監視することにより、その電氣的破壊挙動ならびに影響因子を調査した。次に異なる金属微細ワイヤ単体とワイヤメッシュを作製し、構成した通電装置を用いて、通電実験を行うことにより、金属微細ワイヤメッシュにおける電氣的破壊挙動ならびに雰囲気環境が及ぼす影響を調査した。

4. 研究成果

(1) 金属微細ワイヤメッシュにおける溶断挙動の高度解析

金属微細ワイヤメッシュを取扱い、電気-熱連成解析モデルを作成し、図1に示す流れ図の通りに解析プログラムを開発して、ジュ

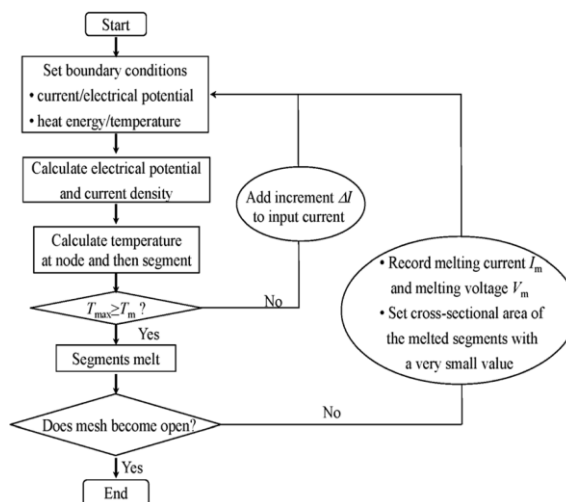


図1 プログラムのフローチャート

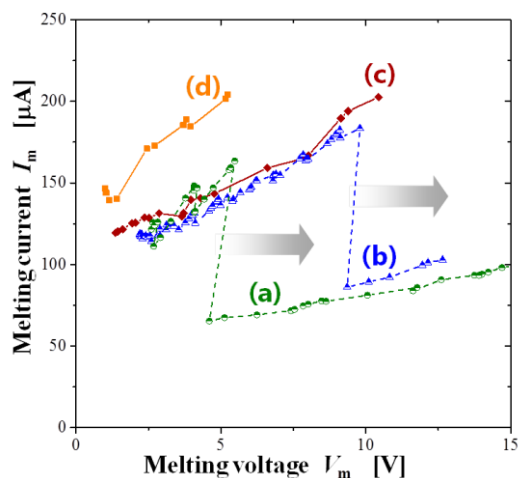


図2 電氣的境界条件が溶断挙動に与える影響

- (a) 対称点電流 (b) 非対称点電流
- (c) 部分的な面電流 (d) 全体的な面電流

ール熱による温度分布を監視することにより、ワイヤメッシュにおける溶断挙動を解明する高度解析手法を構築した。これに基づき、電氣的・熱的境界条件が金属微細ワイヤメッシュの電氣的溶断挙動に与える影響を解明した。

具体的には、まず電氣的境界条件の違いが溶断電流—溶断電圧の関係に与える影響を解明した。図2に示すように上記違いが溶断挙動の安定性/不安定性に影響し、点電流より面電流を入力する境界条件が溶断に対して高い抵抗力を持つことを示し、高信頼性に貢献することがわかった。

次に異なる熱的境界条件において、金属微細ワイヤメッシュにおける最高温度の発生位置が点状から線状に変化し、図3に示す異なる溶断挙動をとることが判明した。

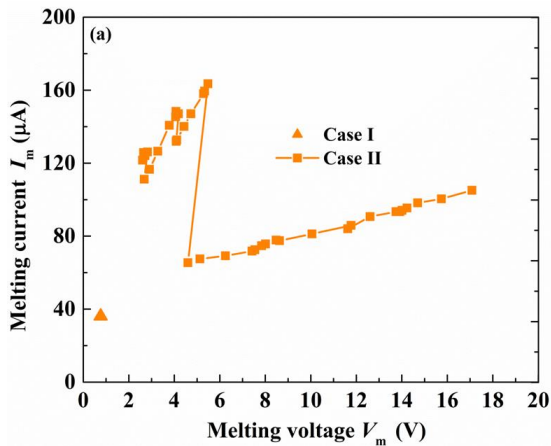


図3 熱的境界条件が溶断挙動に与える影響

(2) 金属微細ワイヤの電氣的・熱的特性評価と電氣的破壊挙動の解明

まず直流電源、電流・電圧測定装置、通電用プローブ、熱電対等を組み合わせた通電実験装置を構成して、異なる長さや厚さを持つ銀微細ワイヤを用いて、基板温度と印加電流を変えて通電実験を実施し、得られた電流と電圧の関係により、銀微細ワイヤの電氣的・熱的特性を明らかにした。これより評価した銀微細ワイヤの室温における電氣抵抗率と温度係数、熱伝導率、基板との接触熱伝達係数はその長さや厚さに依存せずほぼ一定の値を示すことがわかった。

次に上記の銀微細ワイヤを用いて、高温高湿環境に異なる時間さらしてから同様に電氣的・熱的特性を評価して、雰囲気環境が及ぼす影響を解明した。図4に示すように、高温高湿環境にさらすことにより、室温における電氣抵抗率および温度係数はほぼ変化しないが、基板への熱伝達係数は顕著に減少することを明らかにした。これは雰囲気環境が

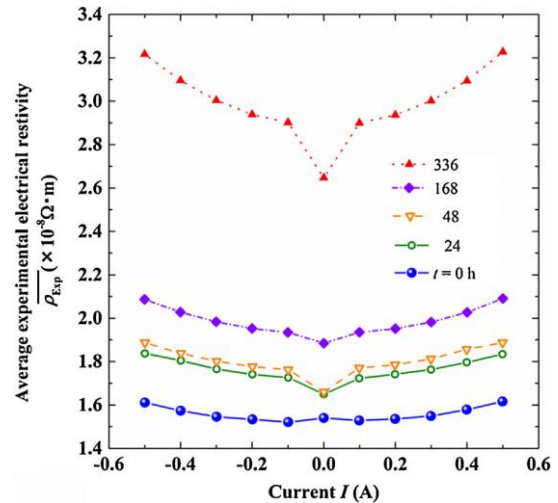


図4 雰囲気環境が銀微細ワイヤ単体における電氣抵抗率の電流依存性に与える影響 (Reprinted with permission from (2). Copyright (2016), Elsevier)

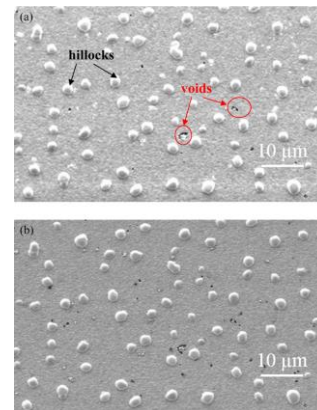


図5 高温高湿環境に異なる時間さらした銀微細ワイヤの表面形態

(a) $t=24$ h (b) 48h

(Reprinted with permission from (2).

Copyright (2016), Elsevier)

誘起した空洞の大量生成(図5参照)により電氣抵抗率の増加と基板への熱伝達の減少が発生し、電流印加時のジュール発熱温度上昇の増加を引き起こしたためであると考えられる。

さらに上記で求めた銀微細ワイヤ単体の電氣的・熱的特性を用いて、電熱解析により通電下の銀微細ワイヤにおける温度分布の電流依存性を解明し、ジュール熱による電氣的溶断が生じるときの電流、すなわち溶断電流を予測した。また試作した銀微細ワイヤを用いて通電実験を実施し、その溶断挙動を調査した。これよりすべてのワイヤが長手方向の中央付近で溶断し、また判明した溶断電流は予測結果とほぼ一致することを確認した。

(3) 金属微細ワイヤメッシュにおける電氣的破壊挙動の解明および雰囲気環境の影響

まず異なる電流経路となる複数パターンを設計し、メッシュ端における節点と電極パッドとの異なる重なり数を持つ銀微細ワイヤメッシュを試作して、通電実験を行い、その破壊挙動を調査した。その結果、電極部での重なり数の増加により溶断挙動が変化し、電極パッド周辺の電流集中による溶断から均一電流分布の実現によるメッシュ内部中央付近での一様な溶断に変わることを見出した。また重なり数が増加すると共に、銀微細ワイヤメッシュにおいて溶断電流が上昇することを明らかにした。

次に一定の重なり数を持つ銀微細ワイヤメッシュを用いて、高温高湿環境に異なる時間さらして加速実験を行い、通電実験を実施した。溶断電流を測定するとともに、メッシュの表面変化を観察することにより、高温高湿環境がワイヤメッシュの溶断挙動に与える影響を調査した。これより、高温高湿環境にさらすことで、溶断電流が減少することがわかった。これはワイヤ単体と同様に、雰囲気環境による電氣抵抗率の増加と基板への熱伝達の減少が発生し、電流印加時のジュール発熱温度上昇の増加を引き起こしたためであると考えられる。

(4) 金属微細ワイヤメッシュ溶断電流の推定手法の提案

銀微細ワイヤ単体と種々の形状を持つワイヤメッシュを用いて、通電条件下の挙動を調査し比較した。まず多数の横方向ワイヤが並列に並んだメッシュ（以下、並列メッシュと呼ぶ）において、溶断電流と並列メッシュにおけるワイヤの本数に線形的な相関関係があることがわかった。これより横方向ワイヤ単体の溶断電流に並ぶワイヤの本数を掛けることで並列メッシュ全体の溶断電流を推定できると考えられる。次に並列ワイヤメッシュと同様のサイズを持つ標準ワイヤメッシュにおいて、後者の溶断電流が大きいことがわかった。これより並列ワイヤメッシュの溶断電流を用いて、標準ワイヤメッシュの溶断電流を過小評価でき、その安全使用が確保できると考えられる。これらの結果は、高信頼な金属微細ワイヤメッシュの開発に向けた有益な知見であると考えられる。

5. 主な発表論文等

（研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線）

〔雑誌論文〕（計2件）

(1) Y. Li, H.-T. Lee, M. Saka, Influence of local

thermal dissipation on electromigration in an Al thin-film line, *Microelectronics Reliability*, 65 (2016) 178-183

doi: 10.1016/j.microrel.2016.08.002

- (2) Y. Li, K. Noguchi, M. Saka, Influence of a hot and humid environment on thermal transport across the interface between a Ag thin-film line and a substrate, *Applied Surface Science*, 368 (2016), 267-271
doi:10.1016/j.apsusc.2016.01.040

〔学会発表〕（計7件）

- (1) Y. Li, M. Saka, Numerical study on electrical failure of a metallic nanowire mesh, EMN meeting on Transparent Electrodes, Dec. 5-9, 2016, Orlando, Florida USA
- (2) 野口恭平、李淵、坂真澄、銀微細ワイヤメッシュにおける電氣的挙動の解明に関する研究、第23回機械材料・材料加工技術講演会（M&P2015）、2015年11月15日、広島大学（東広島市）
- (3) 野口恭平、李淵、坂真澄、雰囲気環境が銀微細ワイヤの電氣的特性に与える影響、日本機械学会東北学生会第45回学生卒業研究発表講演会、2015年3月10日、八戸工業高等専門学校（八戸市）
- (4) 佐々木崇紘、李淵、坂真澄、Ag微細線の電氣的・熱的特性評価に関する研究、第21回「エレクトロニクスにおけるマイクロ接合・実装技術」シンポジウム、2015年2月3日、パシフィコ横浜会議センター（横浜市）
- (5) Y. Li, K. Tsuchiya, M. Saka, Influence of thermal boundary conditions on melting behavior of an Ag nanowire mesh induced by Joule heating, APCFS/SIF-2014 International Congress, 2014年12月9-12日、University of Sydney, Australia, Sydney
- (6) 土屋薫、李淵、坂真澄、銀ナノワイヤメッシュの溶断挙動に与える電氣的境界条件の影響、日本機械学会東北支部第50期秋季講演会、2014年9月5日、東北学院大学（多賀城市）
- (7) 土屋薫、李淵、坂真澄、銀ナノワイヤメッシュの電氣的溶断への腐食の影響、日本機械学会M&M2014カンファレンス、2014年7月19～21日、福島大学（福島市）

6. 研究組織

(1) 研究代表者

李 淵 (LI YUAN)

東北学院大学・工学部・准教授

研究者番号：50625001