

Graduate School of Fundamental Science and Engineering
Waseda University

博士論文審査報告書
Doctoral Dissertation Review Report

論文題目
Dissertation Title

Highly-Stretchable and High-Performance Electronic Devices by Electronic
Component Mounting Using Liquid Metal

液体金属を用いた電子素子実装による高伸縮・高性能な電子デバイス

申請者
(Applicant Name)
Takashi SATO
佐藤 峻

Department of Materials Science Research on Micro and Nano Engineering

February, 2024

本論文では、伸縮基板上の金属配線に伸縮しない電子素子を実装する際の電氣的接続材として液体金属を用いるという新規なアプローチにより、低接触抵抗を実現する実装方法の要件の解明および液体金属と固体金属間の接触抵抗を評価する計測方法を考案することで、高伸縮・高性能な電子デバイスを実現した。

近年、曲げ・伸縮変形可能な電子デバイスの研究が盛んに行われており、絆創膏型の生体モニタリングデバイスなどを身体に貼付して用いるには高伸縮性や高性能が求められる。従来の伸縮電子デバイスの研究を分類すると、有機 LED (Light-Emitting Diode) や有機トランジスタなどの材料に伸縮耐性のある有機材料の電子素子を用いる手法と、無機 LED や MEMS (Micro-Electro-Mechanical Systems) センサなど硬く高性能な表面実装素子 (SMD, Surface Mount Device) を伸縮基板に組み込む手法がある。前者から導電率や移動度などの電氣的性質を向上させようとするアプローチは現在も多くの研究がなされているが、無機材料の金属や半導体の性能には及ばない。一方で本論文は、後者から伸縮耐性を向上させようとするアプローチを試みる研究である。一般的にデバイスの伸縮時に硬い電子素子周辺が破断するため、配線と電子素子間の電氣的接続材の電氣的・機械的特性が、伸縮電子デバイス全体の伸縮耐性へ与える影響を研究した。従来の変形能を有さない電子デバイスでは、主にハンダや導電性接着剤が電氣的接続材として用いられているが、伸縮電子デバイスに応用した場合、伸縮耐性を得ることができない。そこで本論文では、液体金属を電氣的接続材として用いることで、高伸縮耐性と低接触抵抗を得ることを目指した。Ga系液体金属は常温で液体であるため、従来主に高導電率や高伸縮性が着目されて伸縮配線や伸縮センサに用いられている。本論文で提案したように電氣的接続材として用いる場合、表面に酸化皮膜を形成しやすく多くの金属と合金化することから接触抵抗が高く不安定な懸念があるため、検討を行った。

本論文では、液体金属を用いた電子素子実装による高伸縮・高性能な電子デバイスを実現するため、液体金属実装の接触抵抗および伸縮耐性の評価を行った。論文の構成としては、第 1 章で研究の背景と目的を述べた。第 2 章では液体金属の接触抵抗低減の条件を調査し、液体金属実装の電氣的性能を評価した。第 3 章では、さらなる液体金属の接触抵抗要因の解明や低接触抵抗条件の探索のために、接触抵抗の高精度計測方法を提案した。第 4 章では、電氣的接続材や伸縮金属配線の伸縮耐性評価から、伸縮配線への電子素子実装部の伸縮耐性評価まで行い、さらにデバイス実証を行った。第 5 章では研究の結論を述べた。

第 2 章では、液体金属を電氣的接続材の低接触抵抗を得るため要件を明らかにするため、液体金属の酸化皮膜の物理的破壊や合金化に対する接触抵抗の評価を行った。本論文では、酸化皮膜の物理的破壊による接触抵抗低減および合金化の影響を評価するため、液体金属の固体金属電極への塗布方法を検討した。酸化皮膜の形成量が異なる実装方法として、様々な手法で比較を行った。特に酸化皮膜を十分に形成させた液体金属 (L) の上に固体金属 (S) を接触させる L-S method と、酸化皮膜の物理的破壊を狙って固体金属の配置後に液体金属を注入で接触させる S-L method、注入後に真空引き (V) を行う S-L-V method の 3 手法について、詳細に比較した。3 手法によってガリンスタンを銅電極に接触させ、接触抵抗の経時変化を計測した。まず、酸化皮膜の物理的破壊を狙った S-L method と S-L-V method において、接触直後の接触抵抗が酸化皮膜を十分に形成させた L-S method に比べて 1/10 に低

減することを明らかにし、従来の接続材で最も接触抵抗の低いハンダと比較して 1桁高い程度の接触抵抗を実現した。この結果から、液体金属の接触抵抗低減には注入や減圧、振動などによる酸化皮膜の物理的破壊が有効である可能性を得た。また、数か月間の時間経過により合金 (CuGa₂) が形成されると共に、接触抵抗が同オーダーへ低下して収束することを明らかにした。この結果から、電極表面の合金被膜や加熱による合金化促進など合金化を積極的に活用することで接触抵抗が低減可能であるという示唆が得られた。

第 3 章では、液体金属の接触抵抗計測方法として、電流密度分布を考慮した Transfer Length Method (TLM) による接触抵抗計測を提案した。従来の半導体-金属間の接触抵抗計測に主に用いられる TLM では、対象物 (半導体等) に対して金属電極のシート抵抗が無視できる一方で、液体金属の導電率は金属電極のシート抵抗と同程度である。そこで、対象物のシート抵抗の影響を評価するために、有限要素法による電流密度分布解析を行った。従来の TLM の構成では、印加電流は 2 次的に流れ、半導体等の高シート抵抗の対象物では全印加電流が接触界面を通過する一方で、液体金属等の低シート抵抗の対象物では印加電流の 1/10 以下しか界面を通過せず、従来の TLM の構成では接触抵抗が計測できないことを明らかにした。また、計測電極毎へ電流を印加する、改良した TLM の構成では、印加電流は 3 次的に流れ、シート抵抗比によらず全印加電流が界面を通過し、3 次元電流密度分布と計測される抵抗値を用いることで液体金属の接触抵抗が計測可能であることを明らかにした。さらに、改良した TLM の構成により、液体金属と金属の接触抵抗率 (単位接触面積当たりの接触抵抗) を計測した結果、0.115 mΩmm² (最小 : 0.030 mΩmm², 最大 : 0.185 mΩmm²) と計測された。提案した改良 TLM は対象物のシート抵抗によらず計測可能であるが、接続端子数が倍増したり電流密度が 3 次元分布の解析が必要となる。そのため、高シート抵抗の対象物は簡便さの観点から従来 TLM で計測すべきであるのに対し、液体金属等の低シート抵抗の対象物は改良 TLM で計測すべきであることが明らかとなった。

第 4 章では、液体金属実装のデバイスの伸縮耐性の実証を行った。まず配線の伸縮耐性と関係しない電氣的接続材のみの伸縮耐性評価を行った。電氣的接続材として、ハンダ、導電性接着剤および液体金属を用いて比較を行った。その結果、ハンダより柔軟であるにも関わらず導電性接着剤の方が低ひずみで素子と配線間が剥離して断線し、液体金属実装はハンダや導電性ペーストの破断ひずみの 12 倍以上の 400%ひずみまで電氣的接続を維持した。このことから、電氣的接続材の伸縮耐性には接続材の伸縮性だけでなく接続材と素子や配線との接合力も重要であり、液体金属は素子や配線から剥離せずに電氣的接続を維持したことから電氣的接続材として高い伸縮耐性を有することが明らかとなった。また、電氣的接続材が配線の伸縮耐性へ及ぼす影響を評価した。切り紙構造を有する伸縮銅配線上に電氣的接続材を用いて電子素子を実装した。その結果、ハンダ実装では配線単体の最大伸縮耐性の 0.1 倍で破断したことから、配線単体の伸縮耐性が高い場合でも、従来の硬い電氣的接続材を用いて素子実装すると伸縮耐性が大幅に低下することを明らかにした。これに対し、液体金属実装では剛性差が解消され、配線単体の最大伸縮耐性の 0.8 倍で破断した。このことから、液体金属実装は自身が電氣的接続材として伸縮するよりも、配線の伸縮耐性を引き出すことを得意とすることが明らかとなった。さらに、液体金属実装によるチップ LED アレイを作製し、人間の皮膚の最大伸縮量 (<70%)

を上回る 150%以上の伸縮性を実証した。

第 5 章では結論を述べた。本論文は、液体金属を金属配線と硬い電子素子間の電氣的接続材として用いるという新たな着眼の課題に対して、接触抵抗の新規な計測手法の構築による現象解明から、高い伸縮性と高い性能を兼ね備えた電子デバイスの構成法の提案まで行った。接触抵抗の評価では、液体金属と金属電極間の接触抵抗の低減には、液体金属表面の酸化膜の物理的破壊や合金化が有効であることを示した。また従来、半導体と金属配線間などの接触抵抗計測に用いられる TLM が、液体金属と金属配線間といった共に導電率の高い材料間の接触抵抗計測には適用できないことを示し、電流密度分布や電流印加箇所の考慮により計測可能とする新たな計測手法を構築した。また、伸縮耐性の評価では、単に液体金属が伸びるという利点だけでなく、液体金属実装によって伸縮配線の性能を引き出せることを明らかにした。このように、従来伸縮配線やセンサとして注目を集めていた液体金属が、「電氣的接続材」という異なる用途において電氣的・機械的に大きな利点を有することを示し、高伸縮かつ高性能な電子デバイスを実現した。

本論文で得られた知見は、今後広く伸縮電子デバイスの電氣的・機械的特性に関する学術研究へ貢献可能であるとともに、伸縮しない電子デバイスにおいても素子実装部の耐振動性や耐熱膨張性を向上可能など産業応用性も高い。よって本論文は博士（工学）の学位論文として価値あるものと認める。

2024 年 1 月

審査員

主査 早稲田大学教授 博士（情報理工学）東京大学 岩瀬 英治

早稲田大学教授 博士（工学）早稲田大学 鈴木 進補

早稲田大学教授 博士（工学）早稲田大学 細井 厚志

横浜国立大学准教授 博士（工学）慶應義塾大学 太田 裕貴
