

Graduate School of Fundamental Science and Engineering  
Waseda University

# 博士論文概要

## Doctoral Thesis Synopsis

論文題目

Thesis Theme

Electrical and Mechanical Design Principle of  
Self-Healing Metal Interconnect and  
Its Application for Flexible Device

自己修復型金属配線の電氣的・機械的  
設計原理とフレキシブルデバイスへの応用

申請者  
(Applicant Name)

Tomoya KOSHI

古志 知也

Department of Applied Mechanics, Research on Micro and Nano Mechanics

November, 2018

本研究では、金属ナノ粒子の誘電泳動を用いて生じた断線を自ら修復する自己修復型金属配線において、自己修復型金属配線をフレキシブルデバイスへ応用するための電氣的・機械的設計原理を解明すること、およびその実証を行うことを目的とする。

近年、絆創膏型の生体情報モニタリングデバイスといった、曲げたり伸ばしたりできる薄いシート状のデバイスである、フレキシブルデバイスの研究が盛んに行われている。フレキシブルデバイスにとって、伸縮耐性は特に重要な性質であり、この伸縮耐性を実現する従来研究の手法としては、センサなどの機能部や電気配線を含めたデバイス全体に微細なしわ構造を形成しアコーディオンのように伸縮させる手法や、硬い機能部を導電性エラストマ配線や波形状金属配線といった伸縮可能な電気配線で接続する手法が提案されている。しかしながら、前者の手法については、微細なしわ構造を形成するために機能部に薄膜の有機半導体などを用いており、デバイス本来としての性能が現状では低いといえる。また、後者の手法については、導電性エラストマ配線は波形状金属配線と比較して導電性が低く、波形状金属配線は繰り返しや過度な伸縮変形によってき裂が生じ、断線しやすいという問題がそれぞれある。そこで本研究では、上記の波形状金属配線に断線の自己修復機能を付与した自己修復型金属配線を用いることで、伸縮耐性と性能を兼ね備えたフレキシブルデバイスを実現しようと考えた。断線の自己修復には、金属ナノ粒子の誘電泳動を用いることとした。金属配線を金属ナノ粒子分散液で覆った構造において、配線に電圧を印加すると、断線箇所、すなわちき裂にのみ発生する電界によって、き裂付近の粒子に誘電泳動力が生じ、粒子がき裂にトラップされ、トラップされた粒子がき裂を架橋することで、断線した配線が電氣的に修復される。これにより、配線に電圧を印加するだけで、き裂の位置を知らずとも、き裂のみを選択的に修復することができる。また、繰り返しの伸縮変形によって修復箇所でも再び断線が生じてても、電圧を印加さえすれば粒子が再びトラップされるため、何回でも繰り返して修復することができる。

本研究では、自己修復型金属配線をフレキシブルデバイスに応用するため、配線に印加する電圧と電流を決定するための電氣的設計原理、および配線の剛性を決定するための機械的設計原理を解明した。論文の構成としては、第1章で研究の背景と目的を述べ、第2章と第3章で電氣的・機械的設計原理の解明をそれぞれ行った。第4章では、第2章と第3章で得た成果をもとに、自己修復型金属配線を用いたフレキシブルデバイスの実証を行い、第5章では研究の結論を述べた。

第2章では、電氣的設計原理の解明として、金属ナノ粒子の誘電泳動における粒子架橋構造形成条件の解明を行った。従来研究においては、この金属ナノ粒子の誘電泳動を用いて、粒子を電極間の微小なギャップに架橋させてその電氣的特性を計測することに着目しており、粒子架橋構造が形成される条件自体の議論は十分になされていなかった。また、粒子を架橋させる距離は数十 nm から数  $\mu\text{m}$  程度の場合が多く、特に架橋距離が 10  $\mu\text{m}$  以上のような場合における粒子架橋構

造の形成条件は明らかではなかった．これは，金属配線に生じるき裂の幅としては十分にありうる架橋距離である．そこで本研究では，この条件を明らかにし，架橋距離が  $10\ \mu\text{m}$  以上の場合でも粒子の架橋構造を形成させるとともに，この場合における架橋構造の電気抵抗や架橋時間を実際に計測することとした．まず，粒子がき裂にトラップされる条件を理論的に解析したところ，粒子とき裂の表面間において働く合力は主にファンデルワールス力，静電反発力，誘電泳動力などで構成されており，この合力が引力になる電圧を印加した場合に粒子がき裂にトラップされることが考えられた．また，トラップされた粒子がき裂を架橋する条件について理論的に解析したところ，粒子がき裂を架橋した瞬間に流れる電流によって各粒子で生じるジュール熱が，粒子から溶媒への放熱量よりも小さくなる場合に，粒子の架橋構造が形成されることが考えられた．各粒子で生じるジュール熱は粒子の抵抗値と電流値の 2 乗の積で表すことができ，抵抗値は粒子の粒径によって決定されるため，電流がしきい値を持つと考えられる．したがって，断線が生じた配線に一定以上の電圧を印加し，かつ架橋直後の電流が一定以下になる条件であれば，架橋距離が  $10\ \mu\text{m}$  以上の場合においても，粒子の架橋構造が形成されることが考えられた．この解析結果を検証するため，幅が  $10\ \mu\text{m}$  の人工的なき裂を有するガラス基板上の金配線を製作し，これを直径  $150\ \text{nm}$  の金ナノ粒子分散液で覆い，き裂に生じる電圧と架橋直後の電流をそれぞれ変化させて，き裂に架橋構造が形成されるかの観察を行った．その結果，電圧が  $6.1\ \text{V}_{\text{rms}}$  以上かつ電流が  $15\ \text{mA}_{\text{rms}}$  の条件でのみ粒子の架橋構造が形成されることを確認した．また，上記で得られた結果をもとに，粒子架橋構造の最大電流と電気抵抗，架橋時間に関する計測を行った．その結果，最大電流はき裂の幅が増加すると一定の値に収束すること，電気抵抗はき裂幅に比例しかつ架橋時の電流が増加すると低下すること，および架橋時間はき裂幅が増加すると長くなりかつき裂における電圧が増加すると短くなることをそれぞれ明らかにした．

第 3 章では，機械的設計原理の解明として，伸縮基板に埋め込まれた金属配線におけるき裂発生形態を決める要因の解明を行った．従来研究においては，フレキシブルデバイスに用いられる金属配線に関して，幅が数百  $\text{nm}$  から数  $\mu\text{m}$  程度の小さなき裂が複数生じたり，幅が数十  $\mu\text{m}$  から数百  $\mu\text{m}$  程度の大きな単数のき裂が生じたりすることが報告されており，それぞれのき裂発生形態における金属配線の抵抗計測が行われていた．これらの研究は，それぞれのき裂発生形態における計測に着目しており，き裂発生形態を決める要因自体は明らかではなかった．金属ナノ粒子の誘電泳動を用いた自己修復型金属配線において，き裂の幅や個数は重要なパラメータとなる．金属配線に小さい複数のき裂が生じる形態においては，修復時の印加電圧が大きくなったり，配線における電位が不定になったりするために，き裂を修復することが難しいといえる．一方，大きな単数のき裂が生じる形態においては，修復時の印加電圧が比較的小さくなるため，小さな複数のき裂が生じる形態よりも修復しやすいといえる．そこで本研究では，このき裂発

生形態を決める要因を明らかにし、き裂発生形態を設計可能にするとともに、大きな単数のき裂が生じる形態における断線時伸び率やき裂の幅を実際に計測することとした。まず、き裂発生形態を決める要因について理論的解析を行った。微細なき裂が生じた金属配線が伸縮基板に埋め込まれた構造を考え、これを引っ張ったときの力のつり合いを計算したところ、き裂発生形態が配線と基板の伸び剛性の比によって決定されることが考えられた。基板の伸び剛性が比較的大きい場合は小さな複数のき裂が生じる複数き裂発生形態に、配線の伸び剛性が比較的大きい場合は、大きな単数のき裂が生じる単数き裂成長形態をとることがそれぞれ考えられた。この具体的な伸び剛性の比の値を従来研究において調査したところ、比の値が約 0.1 以下では複数き裂発生形態が、比の値が約 1.0 以上では単数き裂成長形態をとることが示唆された。この解析結果を検証するため、ポリウレタン基板に埋め込まれた厚さが異なる銅配線を製作し、それを引っ張ることで、生じるき裂の観察を行った。この銅配線において、伸び剛性の比は 0.03 から 0.78 で変化させた。その結果、比の値が 0.35 以上になると、き裂発生形態が単数き裂成長形態に変化することを確認した。また、上記で得られた結果をもとに、単数き裂成長形態の波形状金属配線に関する計測を行った。その結果、断線時伸び率は配線が厚くなると増加しかつ基板が厚くなると低下すること、および断線時伸び率とき裂の幅がほぼ比例関係にあることをそれぞれ明らかにした。

第 4 章では、第 2 章と第 3 章で得られた成果をもとに、自己修復型金属配線を用いたフレキシブルデバイスの実証を行った。まず、配線単体における断線の自己修復の検証、および繰り返し伸縮変形下における断線時伸び率と修復後抵抗、修復時間の変化といった修復特性の評価を行った。自己修復型金属配線の機械的設計に関しては、配線と基板の伸び剛性の比が 1.9 になるようにし、配線に生じるき裂が単数き裂成長形態になるように設計した。また、電気的設計においては、断線時にき裂に生じる印加電圧が  $20 V_{rms}$ 、架橋直後の電流が  $3 mA_{rms}$  になる回路を接続し、幅が数十  $\mu m$  のき裂でも修復が生じるように設計した。自己修復型金属配線を引っ張ったときの抵抗変化を計測したところ、断線後に抵抗値の減少および断線箇所における粒子の架橋構造の形成を確認した。これにより、引っ張り変形によって生じた断線の自己修復に成功した。また、同様の計測を繰り返すことで、繰り返し伸縮変形下における修復特性の評価を行い、断線時伸び率は低下すること、修復後抵抗は増加すること、修復時間はランダムに増減することをそれぞれ明らかにした。最後に、自己修復型金属配線と表面実装型 LED で構成されたフレキシブルデバイスを製作し、その評価を行った。このデバイスにおいては、LED の点灯と断線の自己修復における電力の消費が電源の切り替え無しで行われる設計とした。デバイスを引っ張りつつ電力を印加したところ、実際に電源の切り替え無しでの LED の点灯と断線の自己修復に成功した。これにより、電気的・機械的設計原理をそれぞれ解明することで、自己修復型金属配線を用いたフレキシブルデバイスを実現した。

## 早稲田大学 博士（工学） 学位申請 研究業績書

氏名 古志 知也 印

(2018年 11月 現在)

種 類 別	題名、 発表・発行掲載誌名、 発表・発行年月、 連名者（申請者含む）
学術論文	<p>(○は博士論文の中核を担う主業績であることを示す.)</p> <p>[1] ○<b>Tomoya Koshi</b>, Eiji Iwase, “Crack-Configuration Analysis of Metal Conductive Track Embedded in Stretchable Elastomer,” <i>Micromachines</i>, vol. 9, issue 3, 130 (12 pages), 15 March, 2018.</p> <p>[2] ○<b>Tomoya Koshi</b>, Yuta Nakajima, Eiji Iwase, “Voltage and Current Conditions for Nanoparticle Chain Formation using Dielectrophoresis,” <i>Micro &amp; Nano Letters</i>, vol. 12, issue 8, pp. 532 – 535, August, 2017.</p> <p>[3] <b>古志 知也</b>, 岩瀬 英治, “金属ナノ粒子の電界トラップを用いた自己修復型金属配線の粒径依存性,” <i>日本機械学会論文集</i>, vol. 82, no. 834, 15-00470 (10 pages), February 25, 2016.</p> <p>[4] <b>Tomoya Koshi</b>, Eiji Iwase, “Self-Healing Metal Wire using Electric Field Trapping of Metal Nanoparticles,” <i>Japanese Journal of Applied Physics</i>, vol. 54, no. 6S1, 06FP03 (6 pages), April 21, 2015.</p>
解説論文	<p>[5] ○<b>古志 知也</b>, 岩瀬 英治, “伸縮性電気配線および自己修復機能を有する金属配線,” <i>接着の技術</i>, vol. 37, no. 2, pp.21-25, 2017.</p> <p>[6] ○<b>古志 知也</b>, 岩瀬 英治, “自己修復型金属配線と伸縮デバイス応用,” <i>応用物理</i>, vol. 86, no. 12, pp. 1061-1064, 2017.</p>
学会発表 (国際)	<p>[7] Makoto Kashiwagi, <b>Tomoya Koshi</b>, Eiji Iwase, “High Performance Flexible Thermoelectric Device included Rigid Material,” <i>Proceedings of the 32th IEEE International Conference on Micro Electro Mechanical Systems (MEMS2019)</i>, Coex, Seoul, Korea, January 27-31, 2019. (掲載決定)</p> <p>[8] ○<b>Tomoya Koshi</b>, Eiji Iwase, “Stretchable Electronic Device with Repeat Self-Healing Ability of Metal Wire,” <i>Proceedings of the 30th IEEE International Conference on Micro Electro Mechanical Systems (MEMS2017)</i>, pp. 262-265, Las Vegas, Nevada, USA, January 22-26, 2017.</p> <p>[9] ○<b>Tomoya Koshi</b>, Eiji Iwase, “Voltage and Current Condition on Self-Healing Metal Wire,” <i>Proceedings of the International Symposium on Micro-Nano Science and Technology 2016 (MNST2016)</i>, SuP2-B-3, Tokyo, Japan, December 16-18, 2016.</p> <p>[10] Yuta Nakajima, <b>Tomoya Koshi</b>, Eiji Iwase, “Healing Process Behavior on Electric Field Trapping of Gold Nanoparticles,” <i>Proceedings of the International Symposium on Micro-Nano Science and Technology 2016 (MNST2016)</i>, SaP-2, Tokyo, Japan, December 16-18, 2016.</p> <p>[11] <b>Tomoya Koshi</b>, Eiji Iwase, “Self-healing Metal Wire using an Electric Field Trapping of Gold Nanoparticles for Flexible Devices,” <i>Proceedings of the 28th IEEE International Conference on Micro Electro Mechanical Systems (MEMS2015)</i>, pp. 81-84, Estoril, Portugal, January 18-22, 2015.</p> <p>[12] <b>Tomoya Koshi</b>, Eiji Iwase, “Design and Fabrication of a Self-Healing Metal Wire using an Electric Field Trapping of Gold Nanoparticles,” <i>Proceedings of the 27th International Microprocesses and Nanotechnology Conference (MNC2014)</i>, 6C-4-3, Fukuoka, Japan, November 4-7, 2014.</p>

## 早稲田大学 博士（工学） 学位申請 研究業績書

種 類 別	題名、 発表・発行掲載誌名、 発表・発行年月、 連名者（申請者含む）
学会発表 (国内)	<p>[13] 佐藤 峻, <b>古志 知也</b>, 岩瀬 英治, “粘着弾性体による押し付け圧力を利用した非加熱型電子部品実装手法の提案,” 日本機械学会 第9回マイクロ・ナノ工学シンポジウム, 30am4-PN-58, 札幌, 北海道, October 30-November 1, 2018.</p> <p>[14] ○<b>古志 知也</b>, 岩瀬 英治, “繰り返し伸縮変形下における自己修復型金属配線の修復特性の評価,” 日本機械学会 第9回マイクロ・ナノ工学シンポジウム, 30am3-PN-59, 札幌, 北海道, October 30-November 1, 2018</p> <p>[15] <b>古志 知也</b>, 福家 加奈, 柏木 誠, 岩瀬 英治, “波形状金属配線と無機熱電素子を用いた伸縮性熱発電デバイス,” 日本機械学会 第9回マイクロ・ナノ工学シンポジウム, 30am3-PN-15, 札幌, 北海道, October 30-November 1, 2018.</p> <p>[16] ○<b>古志 知也</b>, “自己修復型金属配線を用いた伸縮電子デバイス,” エレクトロニクス実装学会 関西支部 関西ワークショップ2018, 26, 吹田, 大阪府, July 12-13, 2018.</p> <p>[17] 黄 平, <b>古志 知也</b>, 岩瀬 英治, “金属ナノ粒子の電界トラップにおける電解質濃度による粒子流れの影響,” 平成30年 電気学会E部門 総合研究会, MSS-18-22, 奈良, 奈良, July 12-13, 2018.</p> <p>[18] 武鎗 彰良, <b>古志 知也</b>, 岩瀬 英治, “電界トラップによる金ナノ粒子の架橋構造における架橋形態の分類,” 日本機械学会 ロボティクス・メカトロニクス講演会, 1P2-L08, 北九州, 福岡, June 2-5, 2018.</p> <p>[19] 長村 透, <b>古志 知也</b>, 岩瀬 英治, “高電圧条件下における誘電泳動力を用いたナノ粒子鎖形成,” 日本機械学会 関東支部第24期総会・講演会, OS0304, 調布, 東京, March 17-18, 2018.</p> <p>[20] 石井 智之, <b>古志 知也</b>, 岩瀬 英治, “伸縮基板の剛性と波状金属配線の形状による配線の伸縮性の設計と評価,” 日本機械学会 第8回マイクロ・ナノ工学シンポジウム, 01am2-PN-61, 広島, 広島, October 31- November 2, 2017.</p> <p>[21] ○<b>古志 知也</b>, Löher Thomas, 岩瀬 英治, “伸縮基板上の波形状金属配線に生じるき裂の観察,” 日本機械学会 第8回マイクロ・ナノ工学シンポジウム, 31am3-PN-5, 広島, 広島, October 31- November 2, 2017.</p> <p>[22] 石井 智之, 朴 致済, <b>古志 知也</b>, 岩瀬 英治, “伸縮電子デバイスのための金属部と基材部の剛性比を用いた伸縮耐性の向上,” 日本機械学会 ロボティクス・メカトロニクス講演会, 1P2-K10, 郡山, 福島, May 10-13, 2017.</p> <p>[23] 黒木 雄也, <b>古志 知也</b>, 岩瀬 英治, “伸縮基板上の金属配線におけるき裂の発生形態,” 日本機械学会 関東学生会 第56回学生員卒業研究発表講演会, 1315, 葛飾, 東京, March 16, 2017.</p> <p>[24] 朴 致済, 石井 智之, <b>古志 知也</b>, 岩瀬 英治, “金属配線と伸縮基板の剛性比を用いた伸縮耐性の設計,” 日本機械学会 関東学生会 第56回学生員卒業研究発表講演会, 1312, 葛飾, 東京, March 16, 2017.</p> <p>[25] 細谷 航平, <b>古志 知也</b>, 岩瀬 英治, “金属ナノ粒子の電界トラップを用いた配線修復における周波数依存性,” 日本機械学会 関東学生会 第56回学生員卒業研究発表講演会, 1309, 葛飾, 東京, March 16, 2017.</p>

## 早稲田大学 博士（工学） 学位申請 研究業績書

種 類 別	題名、 発表・発行掲載誌名、 発表・発行年月、 連名者（申請者含む）
	<p>[26] 井筒 栄佑, <b>古志 知也</b>, 岩瀬 英治, “銅ナノ粒子の電界トラップを用いた金属配線の自己修復,” 日本機械学会 関東学生会 第 55 回学生員卒業研究発表講演会, 1017, 目黒, 東京, March 10, 2016.</p> <p>[27] <b>古志 知也</b>, 中島 雄太, 岩瀬 英治, “金属ナノ粒子の誘電泳動を用いた自己修復型金属配線における修復過程の直接観察,” 化学とマイクロ・ナノシステム学会 第 32 回研究会, 1P11, 北九州, 福岡, November 26-27, 2015.</p> <p>[28] <b>古志 知也</b>, 岩瀬 英治, “伸縮変形で生じた配線き裂の自己修復,” 日本機械学会 第 7 回マイクロ・ナノ工学シンポジウム, 29pm1-F-3, 新潟, 新潟, October 28-30, 2015.</p> <p>[29] 中島 雄太, <b>古志 知也</b>, 岩瀬 英治, “金属ナノ粒子の電界トラップ中の粒子挙動解析,” 日本機械学会 第 7 回マイクロ・ナノ工学シンポジウム, 28am2-E-5, 新潟, 新潟, October 28-30, 2015.</p> <p>[30] 辛島 龍彦, <b>古志 知也</b>, 岩瀬 英治, “電解めっきを利用した自己修復機能を有する金属配線,” 日本機械学会 関東学生会 第 54 回学生員卒業研究発表講演会, 1101, 横浜, 神奈川, March 20, 2015.</p> <p>[31] <b>古志 知也</b>, 岩瀬 英治, “金ナノ粒子の電界トラップを用いた自己修復配線における粒径依存性,” 日本機械学会 第 6 回マイクロ・ナノ工学シンポジウム, 21pm1-A3, 松江, 島根, October 20-22, 2014.</p> <p>[32] <b>古志 知也</b>, 岩瀬 英治, “金ナノ粒子の電界トラップを用いた自己修復型伸縮配線,” 日本機械学会 関東学生会 第 53 回学生員卒業研究発表講演会, 606, 小金井, 東京, March 14, 2014.</p>
分担執筆	<p>[33] 岩瀬 英治, <b>古志 知也</b>, “自己修復型金属配線の開発とウェアラブル機器への応用可能性,” ウェアラブルデバイスの小型、薄型化と伸縮、柔軟性の向上技術, pp. 146-154 (第 2 章 第 6 節), 技術情報協会, December 25, 2015.</p>
特許	<p>[34] 岩瀬 英治, <b>古志 知也</b>, “自己修復型配線及び伸縮デバイス,” 特願 2014-032182 (2014.2.21), 再公表 WO2015/125944 (2015.8.27).</p> <p>[35] Eiji Iwase, <b>Tomoya Koshi</b>, “Self-Repairing Wiring and Stretchable Device,” 国際出願番号 PCT/JP2015/054888 (2015.2.21), 国際公開番号 WO2015/125944 (2015.8.27).</p>