

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成30年 5月17日現在

機関番号：14301  
研究種目：特別推進研究  
研究期間：2013～2017  
課題番号：25000012  
研究課題名（和文） single digit ナノスケール場の破壊力学  
研究課題名（英文） Fracture mechanics in single digit nanometer scale  
研究代表者  
北村 隆行 (KITAMURA, Takayuki)  
京都大学・大学院工学研究科・教授  
研究者番号：20169882  
交付決定額（研究期間全体）：（直接経費）477,100,000円

研究成果の概要（和文）：

single digit ナノスケール（1 nm ～ 10 nm）の応力特異場を有する材料に対するその場観察破壊実験方法を開発し、シリコン単結晶の実験より特異場寸法 4 nm であっても破壊靱性値は不変であることを明らかにした。また、第一原理解析と実験が一致することを示すとともに、応力特異場が 2 nm 以下の場合に従来の破壊力学基準が破綻する（連続体破壊力学の適用下限）ことを明らかにした。

研究成果の概要（英文）：

We successfully develop a nanoscale experimental methodology for fracture test under the singular stress field of single digit nanometer with *in situ* electron-microscope observation. The experiments on cracking in a silicon single crystal clarify that the singular stress field of 4 nm still govern the fracture toughness. First-principle simulation confirms the result and, moreover, elucidates that the concept of conventional fracture mechanics breaks down at the singularity size of 2 nm (lower applicable limit).

研究分野：機械工学

キーワード：破壊力学 single digit ナノスケール 応力集中場  
き裂成長 連続体力学 離散性  
マルチフィジックス シリコン

### 1. 研究開始当初の背景

高度な機能を産み出すマイクロ・ナノ構造に関する工学発展は著しく、ナノスケールの精密な構造体が工業応用の対象となりつつある。それらの破壊現象の力学を解明することが、工学における重要学術課題のひとつである。

マクロ構造体の破壊現象は、多くの実験によりき裂先端近傍の応力やひずみの集中場（特異場）の強さに着目した破壊力学が有効であることが実証されている。一方、single digit ナノスケールの局所領域では原子レベルの離散性などによって従来の破壊の力学における基礎である連続体力学（応力等の概念）の適用性について疑義が生じる。すなわち、ナノ構造体中の不均一な力学場における破壊を支配する力学法則は未解明である。

### 2. 研究の目的

ナノ材料力学実験技術を深化させて、single digit ナノスケール（1 nm ~ 10 nm）の変形集中場を制御できる強度実験方法を開発する。また、き裂先端からの破壊現象を詳細に観測する。

上記の実験結果および原子スケール解析結果を総合して、局部ナノ破壊現象を支配する力学法則を解明する。とくに、応力等の連続体力学概念の適用可能性を明らかにする。

この実験方法を基に、多様な材料の複雑な局部ナノ破壊現象の解明に取り組む。例えば、異材界面は変形の不連続部であるため、ひずみが集中しやすい箇所である。複雑なひずみ集中場を考慮する必要があり、このような界面破壊の複雑性を解明する。

### 3. 研究の方法

ナノスケールにおける破壊の力学的評価実験の困難さは、(a) 試験片の製作とハンドリング、(b) 荷重・変位の計測と制御（そのための実験装置開発）、(c) 破壊の判定、の難しさにある。我々は、本研究の前段階において 10 nm ~ 1000 nm スケールの構造体に対して荷重と変位を精密に制御した破壊実験方法を確立し、その破壊法則を解明してきた。とくに、異材界面などの構造を意図的に配置した試験片による制御した応力・ひずみ集中場の創出（試験片設計・製作）、微小荷重や変位の制御・計測が可能で力学実験装置の開発、電子顕微鏡内その場観察実験による局所破壊の同定とメカニズム研究に大きな成果を挙げてきた。本研究では、これらの成果と経験を基盤として、各実験段階の精度を向上させて、single digit ナノスケールのひずみ集中場に関する精密な実験手法を開発した。

また、多様な材料の破壊特性を考慮して、治具等に工夫した実験方法を開発した。さらに、第一原理・分子動力学静力学・フェーズフィールド法・有限要素法を駆使して、ナノスケールの力学場を正確に解析した。

精密な実験と解析の比較によって、双方の高い信頼性を確認することができた。さらに、力学解析によって実験では直接観察できない応力場の状態を可視化できることなど、実験と解析の相互補完を積極的に利用した手法を用いた。

### 4. 研究成果

(1) ナノスケールの特異場を有するき裂試験片を設計し、その作製方法を確立した。また、微小試験片のハンドリング、試験片把持方法、微小負荷計測方法等の single digit ナノスケール場の力学実験における困難を克服した。それらを総合して、透過型および走査型電子顕微鏡内でその場観察を行いながら、き裂成長実験を行う手法を開発した。

(2) 形状・寸法を力学的にデザインしたシリコン・ナノ単結晶を加工後に真空高温熱処理を行って無損傷の試験体を作製した。また、single digit ナノスケールの応力特異場を有する制御したき裂の導入に成功した。これを用いて、走査型透過型電子顕微鏡 (STEM) 内におけるき裂成長挙動のその場観察も行うことができた。応力特異場の寸法が異なる複数の試験体を用いて同様の試験を実施し、特異場寸法 4 nm の大きさであっても破壊靱性値は不変であることを明らかにした (図 1)。これより、無欠陥の理想材料における理想破壊 (例：劈開破壊は単一原子面の分離) に対して single digit 領域まで連続体仮定に基づく破壊力学が適用可能であることを世界で初めて解明した (主な発表論文 (1))。

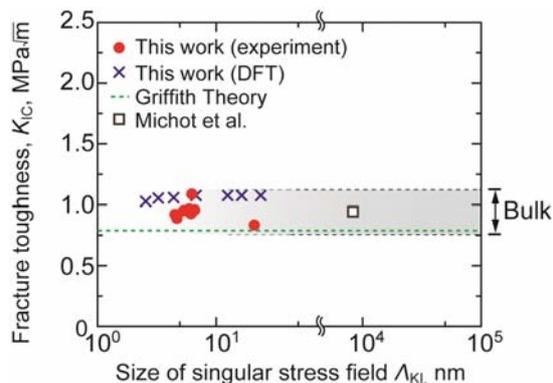


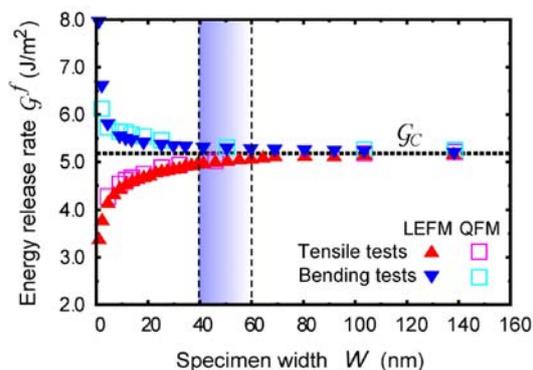
図 1 シリコン単結晶の破壊靱性の特異場寸法依存性

(3) 第一原理解析に基づいて破壊基準について検討し、(2)の実験結果と一致する結果を得た (図 1)。さらにき裂先端における応力特異場の大きさが小さい場合について解析を行い、2 nm 以下の場合には原子の離散性により連続体仮定に基づく破壊力学的基準が破綻することを明らかにした。すなわち、2 nm がこの場合の連続体破壊力学の適用下限である。新たに原子レベル破壊力学を開拓するため 2 nm 以下のき裂成長について検討し、

き裂先端の離散場と原子結合が切断される際のエネルギー収支を考慮した新しい一般破壊基準を提案した。連続体破壊力学基準の成否にかかわらず、提案基準によって統一的に破壊挙動を記述できることを示した（図2：主な発表論文(2)）。

また、提案した基準が特異場のない切欠きからの破壊（き裂発生）にも適用できるユニバーサルな基準であることも示した。

(a)



(b)

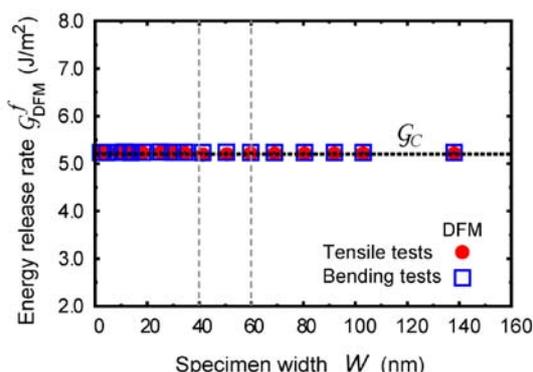


図2 特異場 2 nm 以下における連続体破壊力学の破綻(a)とそれ以下を含む提案力学量の妥当性(b)

(4) 特殊な治具を用いて、原子層 2 層のナノスケール・グラフェンの電子顕微鏡その場観察下のき裂進展実験に成功し、原子レベル薄膜の破壊力学実験法を確立した。グラフェンは大きな非線形変形を示すが、ナノスケールにおいてもその影響領域は比較的小さいことを示し、応力拡大係数によってその特異応力場が記述できることを指摘した。一方、実験より得られた本材料の破壊靱性は、単層グラフェンより大きな値を示した。この原因は、2 層それぞれのき裂伝ぱが非同期であり (Asynchronous cracking)、各層のき裂先端近傍の応力場の影響によって各々のき裂成長が干渉するためであると考えられる（図3；主な研究発表(3)）。

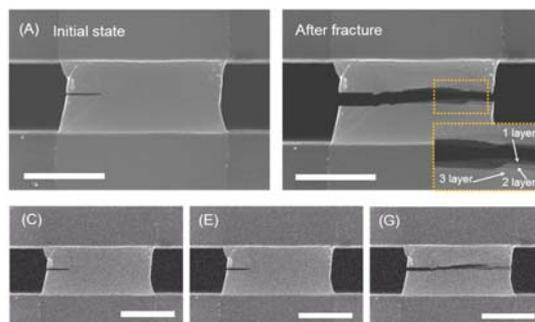


図3 グラフェンの非同期き裂成長

(5) 異材界面が表面と会合する界面端近傍では、変形の不連続性によって特異応力場が生じることがある。このナノスケール場による界面破壊現象を検討するため、銅と窒化シリコン界面端を有する片持ち梁試験片を設計・作製した。その際、特異場の寸法が試験片の高さに強く依存することを利用して、高さを調整することによって特異場の寸法を変えた試験片の実験に成功し（図4）、ナノスケール応力場の破壊臨界条件としての特異場強さの有効性を実証した。

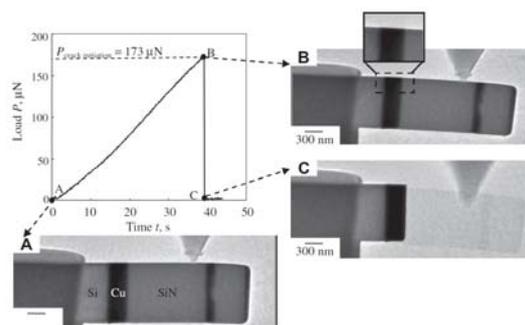


図4 異材界面端の特異応力場からの界面き裂進展に関するその場観察実験

(6) 強誘電材料であるチタン酸バリウム引張負荷実験を行った。また、フェーズフィールド法によるマルチフィジクス解析を行い、材料寸法がナノオーダーの場合には、表面の効果によって特有の縞状ナノドメイン構造を発現することを示した。実験において縞状ナノドメイン構造が生じることを確認した。さらに、高分解能透過型電子顕微鏡観察内で引張負荷試験を実施して、負荷ひずみによってナノドメイン構造が消失し、除荷によってナノドメインが再度現れるマルチフィジクス特性を明らかにした。

さらに、転位芯が自発的に作り出すナノレベルのひずみ集中場に着目し、刃状転位では渦状、らせん転位ではらせん状のナノスケール自発分極を生じることを解析により明らかにした（図5）。

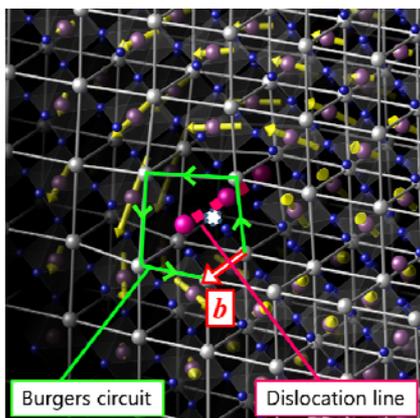


図5 らせん転位の作り出す自発分極の渦状パターン

(7) チタン酸ストロンチウム・ナノ単結晶試験体に刃状転位を制御して導入し、転位を起点とする原子レベルその場観察破壊試験に成功した。また、原子レベル解析を実施した。実験と解析はよく一致し、その結果より、転位からの破壊においても破壊力学の概念は有効であることを示した。これらの成果については、研究誌投稿への検討を進めている。

#### 5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 135 件)

- ① Takashi Sumigawa, Takahiro Shimada, Shuhei Tanaka, Hiroki Unno, Naoki Ozaki, Shinsaku Ashida and Takayuki Kitamura, Griffith Criterion for Nanoscale Stress Singularity in Brittle Silicon (peer-reviewed), ACS Nano, Vol. 11, No. 6, 2017, pp. 6271-6276.  
DOI: 10.1021/acsnano.7b02493
- ② Takahiro Shimada, Kenji Ouchi, Yuu Chihara and Takayuki Kitamura, Breakdown of Continuum Fracture Mechanics at the Nanoscale, Scientific Reports (peer-reviewed), Vol. 5, 2015, pp. 8596-1-6.  
DOI: 10.1038/srep08596
- ③ Bongkyun Jang, Byungwoon Kim, Jae-Hyun Kim, Hak-Joo Lee, Takashi Sumigawa, and Takayuki Kitamura, Asynchronous Cracking with Dissimilar Paths in Multilayer Graphene (peer-reviewed),

Nanoscale, Vol. 9, 2017, pp. 17325-17333.

DOI: 10.1039/C7NR04443G

[学会発表] (計 149 件)

- ① Takayuki Kitamura, Fracture Mechanics in Nanometer Scale (Invited), Annual Spring Division Conference 2018, Materials and Fracture Division, Korean Society for Mechanical Engineers, 2018.
- ② Takayuki Kitamura, Challenge to the Fracture Mechanics in Nanometer Scale (Invited (Plenary)), European Conference on Fracture 20, 2014.
- ③ Takayuki Kitamura, Mechanics of Nanometer Scale Fracture (Invited (Plenary)), Asian-Pacific Conference on Fracture and Strength (APCFS), 2014.

[図書] (計 2 件)

- ① Yoshitaka Umeno, Takahiro Shimada, Yusuke Kinoshita, Takayuki Kitamura, Springer Japan, Multiphysics in Nanostructures, 2017, 214 pages.
- ② Takayuki Kitamura, Takashi Sumigawa, Hiroyuki Hirakata, Takahiro Shimada, Pan Stanford Publishing, Fracture Nanomechanics 2nd edition, 2015, 323 pages.

[産業財産権]

○出願状況 (計 1 件)

名称: ナノオーダ構造体の製造方法および製造装置、並びにナノオーダ構造体を有する基板構造体

発明者: 谷江尚史、澄川貴志、北村隆行

権利者: 同上

種類: 特許

番号: 特願 2014-214096

出願年: 2014 年

国内外の別: 国内

[その他]

ホームページ等

<http://kitamura-lab2.p2.weblife.me/>

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

北村 隆行 (KITAMURA, Takayuki)  
京都大学・大学院工学研究科・教授  
研究者番号：20169882

### (2) 研究分担者

澄川貴志 (SUMIGAWA, Takashi)  
京都大学・大学院工学研究科・准教授  
研究者番号：80403989

平方寛之 (HIRAKATA, Hiroyuki)  
京都大学・大学院工学研究科・教授  
研究者番号：40362454

高橋可昌 (TAKAHASHI, Yoshimasa)  
関西大学・工学部・准教授  
研究者番号：20611122

嶋田隆広 (SHIMADA, Takahiro)  
京都大学・大学院工学研究科・准教授  
研究者番号：20534259