

令和 2 年 6 月 17 日現在

機関番号：32678

研究種目：基盤研究(A) (一般)

研究期間：2017～2019

課題番号：17H01049

研究課題名(和文) ナノ材料の力学・熱伝達特性をその場観測する電子顕微鏡内MEMS実験系の構築

研究課題名(英文) Development of MEMS Experimental System for in-situ TEM Measurement of mechanical and Thermal Properties in Nano-scale

研究代表者

藤田 博之 (FUJITA, Hiroyuki)

東京都市大学・付置研究所・教授

研究者番号：90134642

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 33,800,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、ナノ物質に特異的な現象の解明を目指し、多様な刺激をナノ物体に与え、その電気・機械・熱的な特性の時間変化をTEMの可視化観測と並行して測定できる汎用の実験系を構築した。薄膜試料の破壊試験には数十 μN の力が必要であり、一般的なマイクロマシンでこの発生力を実現するのは難しい、このため透過型電子顕微鏡の磁場によるローレンツ力を利用して高い駆動力を発生するMEMSを開発した。これを用いて薄膜の破壊試験を透過型電子顕微鏡の内部で行った。さらに、ヒーターと熱センサーをMEMSに集積することで、透過型電子顕微鏡の内部でできる実験系を構築し、熱試験を遂行できた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

(1)機械試験：自動車、発電所のタービンなどの機械製品の性能や寿命はその材料の性質に強く依存している。今まで膨大な試行錯誤の中で経験的に良い材料を見つけてきたが、さらなる性能向上のためには原子がどのように材料の特性に寄与するか理解する必要があるため、本実験系は従来の機械製品のさらなる性能向上に必要な設計指針の提案による貢献が期待できる。

(2)熱試験：フォノン散乱や近接場輻射など、ナノスケールの熱伝導を効率的に活用する技術に注目が集まっている。ただナノスケールのギャップを見ながら熱伝達を計測できる実験系はないので、本実験系は熱エネルギーの有効活用に必要の評価手法としての貢献が期待できる

研究成果の概要(英文)：We integrated custom-designed sensors and actuators in order to perform in-situ TEM observation such as mechanical, electrical and thermal experiments. Several tens micro newton is required to break the thin film specimen, however a conventional micro machine cannot generate such a strong force. Therefore we have developed novel MEMS device which utilizes Lorentz force generating by TEM to make the strong force which is enough to break the specimen. The device enables us to break the specimen inside the TEM. Furthermore a heater and a thermal sensor were integrated to perform a heat transfer through nano-scaled specimen.

研究分野：MEMS

キーワード：MEMS TEM その場観察 機械試験

1.研究開始当初の背景

可視化装置の発展は科学の進歩に大きな貢献をする。例えば、近年の走査プローブ顕微鏡や電子顕微鏡の進歩は、ナノ科学技術の飛躍的な発展をもたらした。走査プローブ顕微鏡は試料表面を鋭いプローブでなぞり、その形状を原子分解能で可視化するばかりでなく、電子輸送特性、ファンデルワールス力、摩擦力の分布を明らかにする。また針先で原子、分子、表面ナノ構造の操作も可能である。しかし、可視化とナノ物体操作に同じ針先を使うため、両者は同時に行えない。

一方、透過電子顕微鏡（TEM）は試料中の原子配列の画像だけでなく、元素分布や磁場・電場分布を可視化できる。さらにナノ物体に何らかの刺激を与えてその応答を実時間で観測する「その場」TEM観測により、種々の現象の微視的レベルからの理解が可能となった。加熱時の相変態や触媒反応の動的な観察に始まり、TEM内でナノインデントや走査プローブ顕微鏡を用いて、ナノレベルの材料試験も行われた。しかしTEM試料室内は狭隘であり、複雑な機構を組み込んで長時間にわたって安定に動作させることは困難であった。さらにこれまでは、特定の刺激・応答を調べるために専用のTEMホルダーを購入する必要があり、観測可能な刺激と応答の組み合わせは未だ限られている。

問題1 (原子分解能観察と力の計測を同時に実現できない): 透過型電子顕微鏡の内部に原子間力顕微鏡など力を計測する装置を挿入できない。透過型電子顕微鏡はポールピースと呼ばれる2つの磁気レンズの間に試料を挿入するが、ポールピースの間隔は1~4mm程度しかないからである。厳密に言えば、5000万円ほどで1~4mmの間隔に入れられる圧電素子を組み込んだ試料ホルダーを購入できる。しかし圧電素子や力を計測する機構が大きくなってしまいうため1~4mmの間隔の内部で試料を傾斜できず、試料の原子構造を観察できないため、原子の動きと試料の破壊の機構を直接関連付けて考察できない問題がある。

問題2 (微小温度変化を測定できる系がない):

熱伝導特性を議論する上で一つの重要な情報は、試料の形状である。ナノスケールで試料の寸法を観測するには、原子分解能を持つ透過型電子顕微鏡の内部に熱伝導特性を計測できる実験系を組み込む必要がある。しかし、ナノギャップの熱コンダクタンスは極めて低いので高精度の計測系が必要であるのと、透過型電子顕微鏡の試料室の厚さは数mmしかないため、ナノギャップの熱伝導特性を計測できる実験系を透過型電子顕微鏡に組み込めなかった。このためナノギャップの間隔とギャップ間の熱伝達とを同時に計測できず、ギャップ間で発生する表面フォノンポラリトンの波長と熱伝達との関係や、ギャップ長の局所的変化や表面粗さなどの表面形状と表面フォノンポラリトンとの関係を直接関連づけて議論できないので、熱の起源である格子振動がどのような熱流体的振舞いをするか解釈できない問題がある。

2.研究の目的

目的1(透過型電子顕微鏡内部で2軸傾斜可能にする): 試料を破壊するために十分な発生力を駆動するための静電アクチュエータを集積したMEMSを作成することと、MEMSを透過型電子顕微鏡に入れて駆動しその場測定可能な試料ホルダーを作成する。さらに試料ホルダーに試料を透過型電子顕微鏡の内部で傾斜できる機構を組み込むことで、試料の結晶構造を観察しながら試料に力を印加できる実験系の構築が目的である。

目的2 (材料の破壊過程の解明): マイクロマシンに薄膜試料を乗せ、アクチュエータによって力を加えて試料を破壊する。破壊時の原子の動きを観察することが目的である。

目的3 (ナノスケールのギャップ間の熱伝達の観察): 対向面のギャップを変化させながら観察し、同時に温度測定を行うことで、ギャップの熱伝導特性の計測と熱輸送のギャップ依存性の獲得が目的である。

3.研究の方法

方法1 (試料ホルダーと制御系の作成): 透過型電子顕微鏡の試料ホルダーにマイクロマシンに電圧を印加できる機構だけでなく、ステッピングモーターとポテンショメータを組み込む。試料を傾斜するための駆動源と

して、ステッピングモーターを用いる。また、試料の傾斜角度を計測するためにポテンショメータを用いる。これらをArduinoというマイクロコンピュータで制御できるように回路系を自作する。

方法2 (マイクロマシンを開発): 研究が遂行される以前、破壊したい試料をマイクロマシンに設置し、マイクロマシンを透過型電子顕微鏡の内部に入れると、破壊試験を行う前に既に試料が壊れてしまう問題があった。そこで梁の剛性バネ定数・アクチュエータの大きさ・梁とアクチュエータの間隔といったマイクロマシンの寸法の最適化によって、透過型電子顕微鏡の内部で試料を破壊できるよう改善した。亀裂の進展や転位の移動時にかかる力の変化はサブnNオーダーの微量なので、カンチレバーの剛性バネ定数はできるだけ小さくできると良い。しかし、作成時にマイクロマシンを液体で洗浄する手順はどうしても省略できない。このため、剛性バネ定数が小さすぎると、洗浄時にカンチレバーが洗浄液の表面張力によって引きつけられ、静電アクチュエータに張り付いてしまう。このトレードオフの下で梁の太さと長さを最適化して、洗浄時に壊れない限界の梁の寸法を見つける。

方法3 (高精度な熱測定系の構築): ヒーターと熱センサーをマイクロマシンに集積し、透過型電子顕微鏡の内部で動かすことで、対向面間のギャップを観察・制御する。同時にヒーター・熱センサーでの温度変化を測定し、ギャップの熱コンダクタンスを算出する。熱コンダクタンスの面間隔依存性を分析し、ナノギャップにおける熱輸送機構を解明する。したがってヒーター・熱センサーにおける温度変化を高精度に測定できる熱測定系を構築する。

4.研究成果

(1) 高い発生力のマイクロマシンを作成: マクロマシンに平面コイル状の回路を集積し、その回路に電圧を印加できるように設計した。透過型電子顕微鏡の試料には磁場がかかっており、その磁場内で電流を流すことで梁を動かすアクチュエータを作成した。この電磁アクチュエータによって従来の静電アクチュエータより数十倍の力が出せた。この結果は、学術論文誌であるUltramicroscopyに採択された。

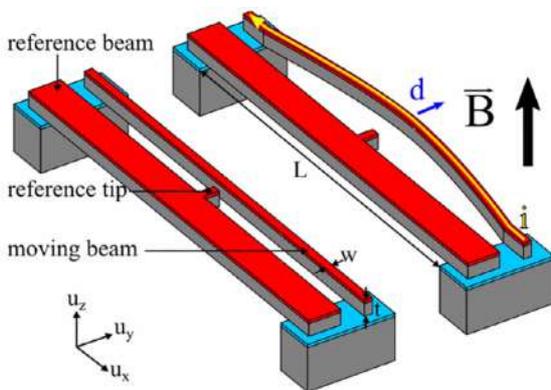


図.1 作成したアクチュエータの原理: 電流を流したときに働くローレンツ力を利用して梁を動かした

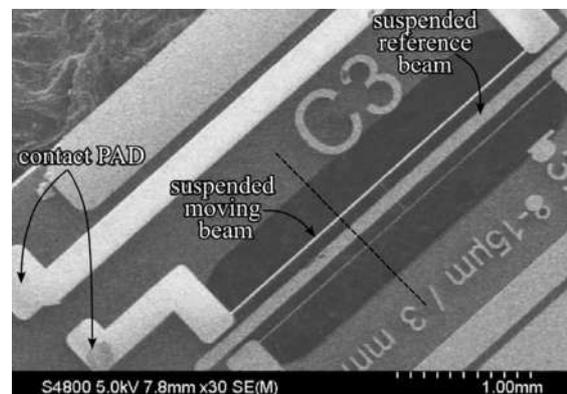


図.2 作成したMEMSデバイスのSEM像

(2) 薄膜の破壊試験: 新たに開発したマイクロマシンを用いて、高い発生力(30 μ N)を試料にかけられるようになった。今までは軟質金属を変形させることしかできなかったが、セラミックスであるSrTiO₃を変形させることに成功した。30 μ Nを加えた際にノッチ周辺に転位が発生し、この転位が動く様子をリアルタイムで観察できた。

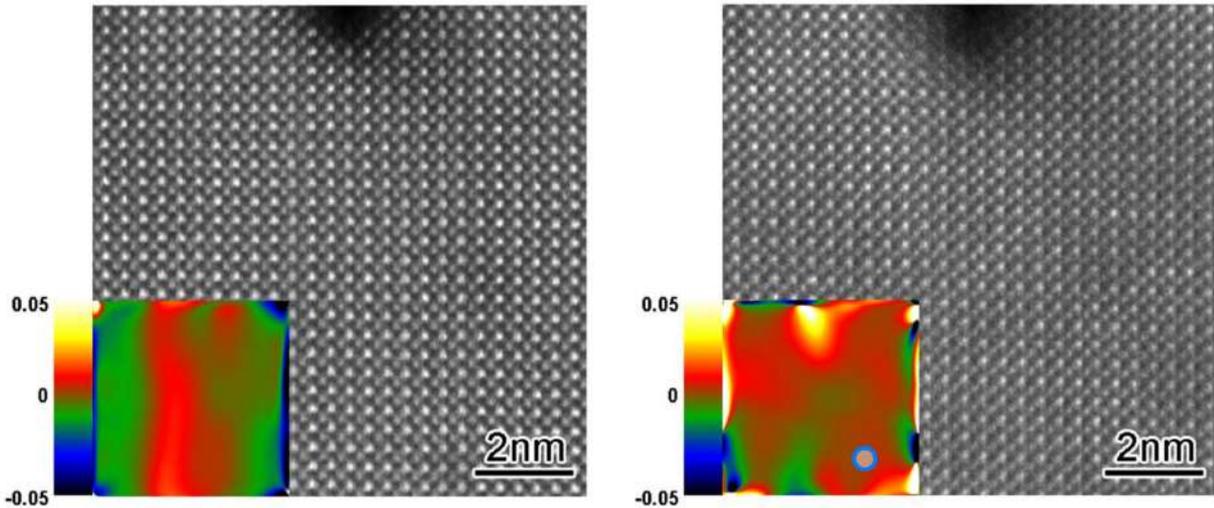


図.3 (左)破壊試験前の薄膜(SrTiO3)のTEM像。黒の部分はノッチ。(右)図の左右向方向に引き伸ばした際のTEM像。ノッチ周辺から個々の原子に応力がかかっている。個々の原子を明確に観察できる。

(3) 熱伝導試験:高精度熱測定系として、 3ω 法とホイートストンブリッジ法を組み合わせた測定系を組み立てた。電源やロックインアンプ、電流計などすべての機器について適正な設定値を決定し、入力電流・入力周波数・環境温度といった変数を自動的に変えるプログラムを構築した。この測定系を用いて、 SiO_2 バルクの熱電導率を測定し、他の測定方法により既に測定された熱伝導率の値 ($\sim 1.38 \text{ W/m.K}$) と比較することで、測定系の動作や熱伝導率の算出方法の妥当性を確認した (図.4)。本測定系で、 40 nK 以下の温度上昇を測定できる高精度な測定を実現した (図.5)。

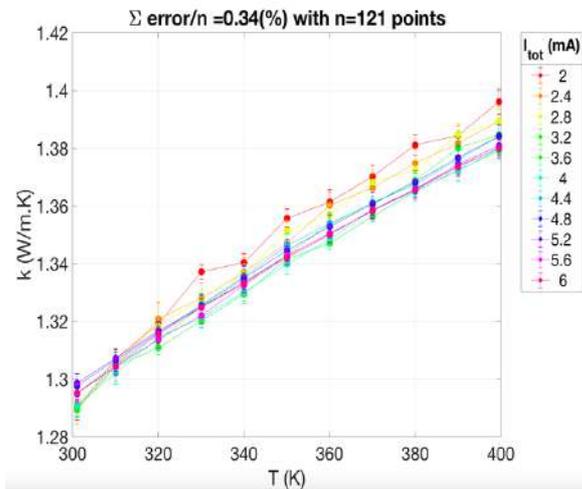


図.4 (a) SiO_2 のバルクの熱伝導率

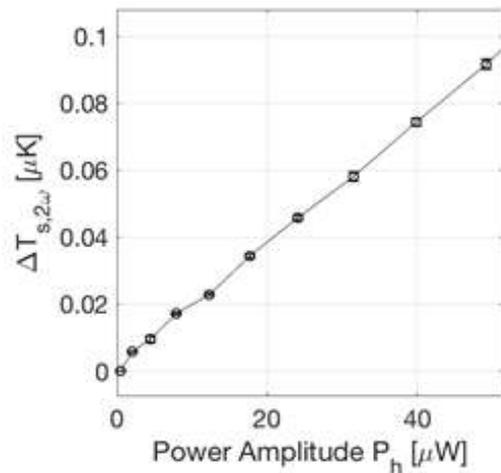


図.5 熱センサーで測定可能な最小の温度変化 $\Delta T_{s,2\omega}$ 。入力電力に対して、 $\Delta T_{s,2\omega} > 40 \text{ nK}$ まで線形に変化していることが確認できる。

当初の研究目的に加え、MEMSをTEM内で駆動するその場観測手法の展開として摩擦現象の解明を試みた。

(4) DLCの機械試験による摩耗粉の実時間観察：機械試験を行うために独自に開発したMEMSデバイスを用いて、硬質材料として知られるDLC(Diamond Like Carbon)の機械試験を行った。ここでいう機械試験は具体

的には、MEMSデバイスに集積した探針先端にDLCを成膜し、その探針同士を擦り付けることによってDLCの接点で何が起こるかをナノスケールで観察したという内容である。観察の結果、擦り付けによってDLC表面に直径十nmほどの摩耗粉がいくつも出現し、その摩耗粉が滑ったり転がったりしていることを直接観察できた。形状変化を透過型電子顕微鏡で観察するだけでなく、摩擦力をリアルタイムで計測することで、力の変化と表面構造の変化の関係も明らかにした。さらに、接触箇所を直接観察できる利点をいかして、接触箇所にかかる真応力も計算した。するとその真応力はGPaオーダーにものぼることが分かった。

摺動時の摩擦力が小さい原因として様々な可能性が考えられる。例えば、a)表面の硬さが低く、次々と摩耗粉を発生するため摩擦力が小さくなる可能性や、b)表面荒さが大きく、荒い表面形状によって接触面積が減って、摩擦力が小さくなる可能性や、c)酸素や水素などで表面の原子が終端され、化学的な活性が低いため摩擦力が低くなる可能性や、d)摩耗粉が接触面に発生し、接触面積を減ることで摩擦力が減少する可能性などがある。このため例え摺動後の摩耗量を観測しても、これら可能性から実際に接触箇所で起きている変形の様子を断定できないため、摩擦力の計測と摺動の前後で摩耗量を観察はしても、それだけで表面の評価として十分ではない。本研究で摺動による表面変化をリアルタイムで観測した結果、摩耗の発生や摩耗粉の転がりや滑りを確認でき、表面の評価手法として強力な実験系であることを実証した。詳細をWTC2018 Beijingにて発表し、学術論文誌であるNanotechnologyに採択された。

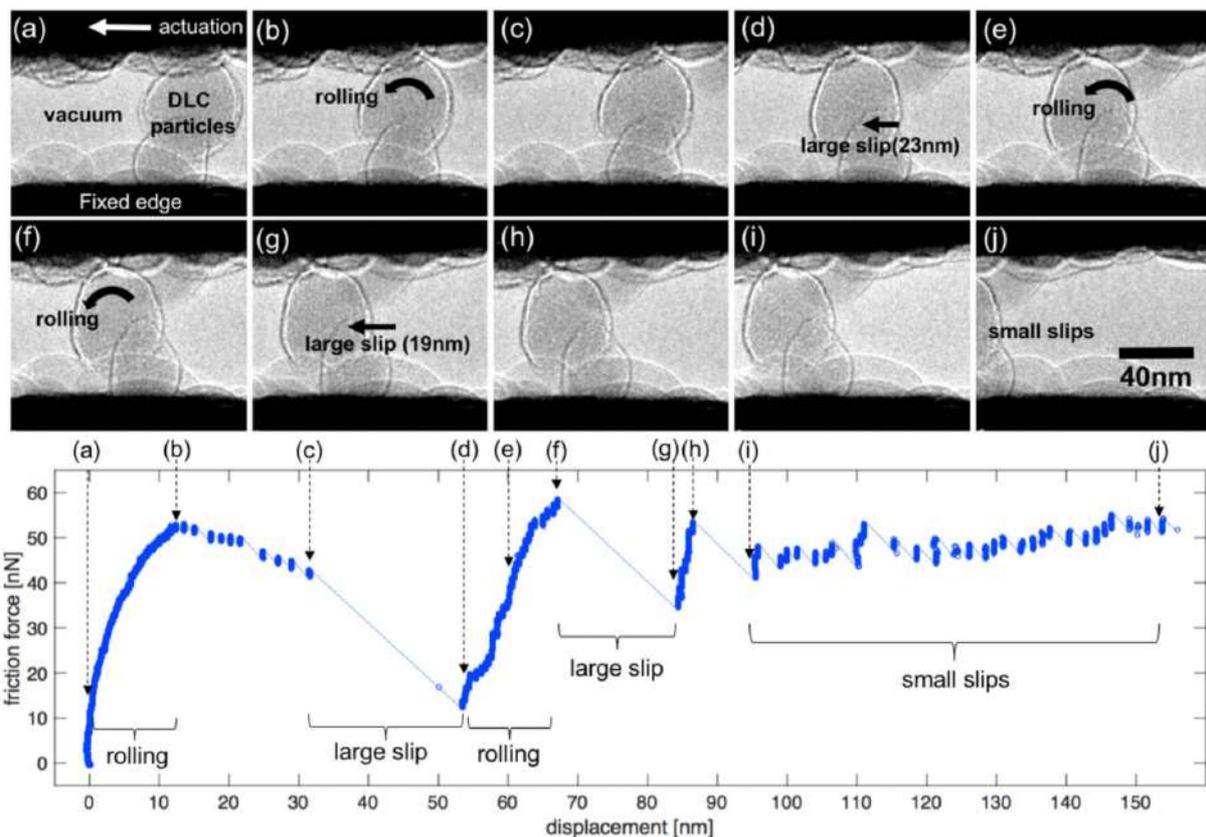


図.6 摺動によってDLC表面に摩耗粉が発生し、摩耗粉の滑りや転がりを透過型電子顕微鏡で観察した

以上のように、剛性バネ定数の小さいカンチレバーを集積したマイクロマシンを新たに設計し、カンチレバーが壊れないように製造手法を工夫することで、力を計測しながら試料の構造変化を透過型電子顕微鏡で観察できる実験系を開発した。さらに、試料の結晶構造を観察するために、2軸傾斜機構を組み込んだ透過型電子顕微鏡の試料ホルダーを作成した。構築した実験系を用いてSrTiO₃やAuやDLCの試験に成功した。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 3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 T. Sato, S. Nabeya, V. Menon, T. Ishida, R. Kometani, H. Fujita | 4. 巻 29 |
| 2. 論文標題 Real-time observation of slipping and rolling events in DLC wear nanoparticles | 5. 発行年 2018年 |
| 3. 雑誌名 Nanotechnology | 6. 最初と最後の頁 325707 |
| 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 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 M. Denoual, V. Menon, T. Sato, O. de Sagazan, A. W. Coleman, and H. Fujita | 4. 巻 30 |
| 2. 論文標題 Liquid cell with temperature control for in-situ TEM chemical studies | 5. 発行年 2018年 |
| 3. 雑誌名 Measurement Science and Technology | 6. 最初と最後の頁 17001 |
| 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 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 N. L. Dauter, M. Denoual, T. Sato, S. Tachikawa, L. Jalabert, H. Fujita | 4. 巻 197 |
| 2. 論文標題 Current driven magnetic actuation of a MEMS silicon beam in a transmission electron microscope | 5. 発行年 2019年 |
| 3. 雑誌名 Ultramicroscopy | 6. 最初と最後の頁 100-114 |
| 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 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 - |

〔学会発表〕 計4件（うち招待講演 2件 / うち国際学会 4件）

| |
|--|
| 1. 発表者名 Hiroyuki Fujita |
| 2. 発表標題 MEMS Energy Harvesters for IoT Sensing Nodes |
| 3. 学会等名 International Research Group NAMIS workshop（招待講演）（国際学会） |
| 4. 発表年 2017年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 T. Sato, M. Vivek, H. Fujita |
| 2. 発表標題 Real time TEM observation of metallic nano-asperity friction |
| 3. 学会等名 WTC2017 (国際学会) |
| 4. 発表年 2017年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 Hiroyuki Fujita |
| 2. 発表標題 FROM WOW TO WORK: CYCLES OF MEMS EVOLUTION |
| 3. 学会等名 IEEE International Conference on Micro Electro Mechanical Systems (MEMS ' 18) (招待講演) (国際学会) |
| 4. 発表年 2017年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 Matthieu Denoual, Vivek Menon, Takaaki Sato, Hiroyuki Fujita |
| 2. 発表標題 On-Chip Fluidic Actuation for TEM Liquid Cells |
| 3. 学会等名 TAS 2017 (21st International Conference on Miniaturized Systems for Chemistry and Life Sciences (国際学会)) |
| 4. 発表年 2017年 |

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

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 |
|-------|--|---------------------------------|----|
| 研究分担者 | 野村 政宏 (NOMURA Masahiro) (10466857) | 東京大学・生産技術研究所・准教授 (12601) | |