

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 5 月 30 日現在

機関番号：14401

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2015～2016

課題番号：15K13275

研究課題名(和文)原子間力顕微鏡を組み込んだ電子顕微鏡用ホルダーの開発とナノスケール摩擦現象の解明

研究課題名(英文) Study of friction phenomena on nanoscale using atomic force microscopy combined with electron microscopy

研究代表者

内藤 賀公(Naitoh, Yoshitaka)

大阪大学・工学研究科・助教

研究者番号：90362665

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)：本研究では、2物体(先鋭な物体と平坦な表面)間に働く相互作用力と接触領域の構造と変化をサブナノスケールで捕らえるため、電子顕微鏡内で駆動する原子間力顕微鏡(AFM)特殊ホルダーを開発した。また、本研究で開発した開発した2多周波数モードAFM法を用いて、2物体間に働く相互作用力をスカラー量としてではなく、ベクトル量として検出する技術を確立した。これらの技術を用いて、構造が明らかでない2物体間に生じる具体的な化学的相互作用力、凝着力、塑性変形等とそれらの関係を詳細に観測し、サブナノスケールで機械的な安定性を保った摩擦現象について知見を得ることができるようになった。

研究成果の概要(英文)：In order to investigate friction phenomena on nanoscale, atomic force microscopy (AFM) was combined with electron microscopy. The true and mirror images of the AFM cantilever tip apex (as a object) are appeared and overlapped with the reflection electron microscopy image of a sample surface (as another object). This technique enable us to detect the tip-surface force together with atomic-scale structure images of two objects around the gap. Using the developed bimodal atomic force microscopy, the tip-surface force components were first expressed as vectors, providing the vector distribution above the surface at the subatomic scale. The bimodal AFM approach will allow researchers to investigate the physical properties of materials in greater detail on the nanoscale, nanotechnology, and friction/lubrication systems.

研究分野：表面ナノ物性

キーワード：原子間力顕微鏡 電子顕微鏡 ナノコンタクト 摩擦

### 1. 研究開始当初の背景

ナノテクノロジーの発展と共に、マイクロからナノスケールでの材料加工が行われるようになり、ナノマシンの実用化が期待されている。しかし、物体サイズがナノスケールになるとその表面の効果が顕著になるため、摩擦の寄与が大きくなる。そのため、そのマシンは動かなかったり、稼働したとしても接触領域が変形したりする。従って、ナノスケールで働く物体の摩擦現象を評価し低減化を探ることは、ナノマシンを加工し制御をする上で必要不可欠である。

近年、摩擦現象をナノスケールで捕えようとするナノトライボロジーという学問が急速に発展してきており、ナノインデンテーションを用いた実験や摩擦力顕微鏡の力計測技術により様々な材料間に働く摩擦現象の研究が盛んに行われている。しかし、従来の摩擦力計測実験は2つのナノスケール物体の接触領域の構造変化(塑性変形)を伴う摩擦現象の評価であり、ナノスケールで、機械的な安定性が保たれる状況下で摩擦現象の議論はなされておらず、ナノスケール摩擦現象の根源的な理解に至っていない。

### 2. 研究の目的

本研究では、超高真空電子顕微鏡内で駆動する原子間力顕微鏡特殊ホルダーを開発し、原子間力顕微鏡探針(先鋭な物体1)と試料表面(平坦な物体2)とが接触したときのサブナノスケールの構造とそこに働く相互作用力(荷重力と摩擦力)を同時に観測する技術を世界で初めて提案することを目的とする。この技術を用いて探針-試料間の弾性的な接触状態から塑性変形を伴う状態までの相互作用力の変化とその構造を観測することで、ナノスケールで機械的な安定性を保った摩擦現象の解明と、低摩擦化のために必要な2物体の構造について知見を得ることを目的とする。

### 3. 研究の方法

(1) 本研究では、2物体(先鋭な物体と平坦な表面)間に働く相互作用力と接触領域の構造とその変化をサブナノスケールで捕らえるため、電子顕微鏡内で駆動する原子間力顕微鏡(AFM)特殊ホルダーを開発する。この電子顕微鏡用のホルダーには小型AFMユニット、試料加熱清浄化機構、応力印加機構を備え付ける。

(2) AFMは、カンチレバーと呼ばれるその先端に鋭い探針のついた片持ち梁を試料表面に近づけ、探針と試料間に働く相互作用力を検出することで表面の構造や物性(弾性、電荷情報、磁性)を原子スケールで画像化できる計測技術である。

これまでに申請者が開発した多周波数モードAFM法をさらに発展、応用することで、2物体間に働く相互作用力をスカラー量とし

てではなく、ベクトル量として検出する技術を確立する。具体的には、AFM力センサーのカンチレバー共振のたわみモードを用いるだけでなく、ねじれモードを使って同時に振動させることを試み、探針-試料間に働く近距離相互作用力の表面垂直成分と水平成分を同時取得できる新しい手法を開発する。

### 4. 研究成果

#### (1) 電子顕微鏡用AFMホルダーの作製

図1は本研究で作製した電子顕微鏡用原子間力顕微鏡ホルダーを用いてシリコン(Si(111)<sub>7x7</sub>)表面とタングステンコートしたシリコンカンチレバー探針との間隙を反射電子顕微鏡法で観測した電子顕微鏡写真を示す。Si(111)<sub>7x7</sub>表面の反射電子顕微鏡像上にカンチレバー探針の実像(true)と鏡像(mirror)が対向して撮像されている。

このホルダーを用いることで、2物体間の接触領域の構造を明らかにしながら、その間に働く相互作用力を取得できるようになった。

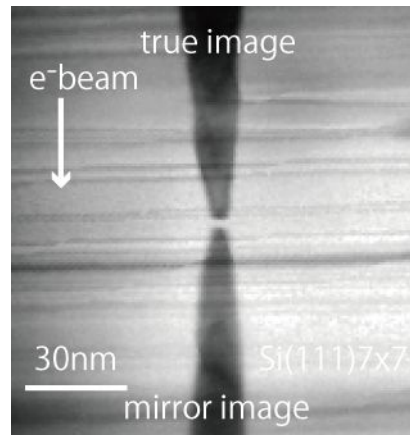


図1: AFM探針をSi(111)表面に近づけたときの反射電子顕微鏡像

#### (2) 2周波数モードAFMによる原子スケール表面弾性計測技術の開発

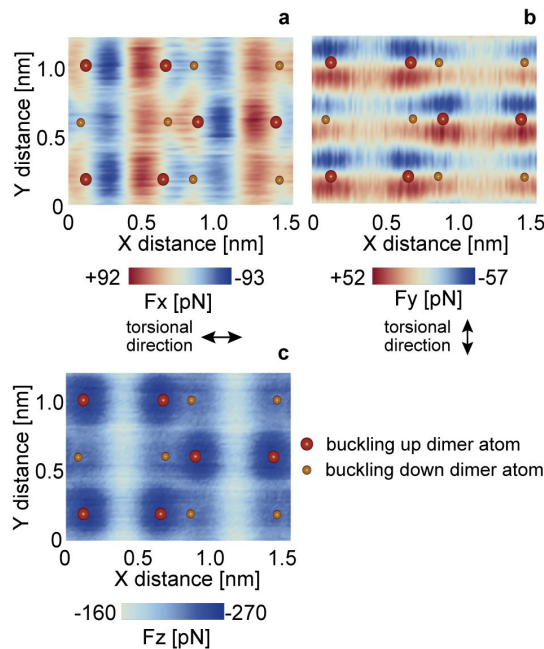
AFMにおいて、カンチレバー振動の2次のたわみモードとねじれモードの両モードで励振する技術、2周波数モードAFMを開発した。この手法によって、探針-試料間に働く近距離相互作用力の表面垂直成分:  $F_z$  (2次たわみモードから取得)と水平成分:  $F_x$  または  $F_y$  (ねじれモードから取得)の同時取得できるようになった。この手法によって原子スケールでベクトル場表示できるだけでなく、荷重力と摩擦力を同時測定する技術を確立した。

#### (3) 弾性接触における探針-表面間相互作用力の表面垂直・水平成分の観測

図2 a,b はゲルマニウム(Ge(001)-c(4x2))表面上にタングステン探針(先端は1個の原子で終端)を近づけたときに働く探針試料間の相互作用力の表面水平方向成分  $F_x$  および  $F_y$  マップである。 $F_x$ ,  $F_y$  マップは、それぞれ X

方向および Y 方向に沿って赤色および青色（正および負の値）を持つストライプ変調を持つ。Fx と Fy の値は表面原子上でゼロに近づくことがわかる。さらに表面原子の周りでは基本的に非対称な正および負の極値が現れており、表面原子の両側で力成分の符号が反転していることがわかる。また、力がゼロである領域は隣接する表面原子間にも観察される。これらは両側領域からの力場がこの付近で互いに打ち消し合うことを示している。したがって上記の結果より、力の平行成分は表面（XY 平面）に対し方向依存異方性を持つことが観測できた。

図 2 c は表面水平成分と同時測定された探針試料間の相互作用力の表面垂直成分 Fz マップである。負の強いスポットと弱いスポットが現れているのがバックリング上原子(Bu)サイトとバックリング下原子(Bd)サイトに現れていることがわかる。この時の Fz の大きさはダイマー原子の周りでは ~270pN であり、Fx と Fy の大きさ（~90pN と 50pN）より大きいことがわかった。



**図 2 : Ge(001)表面上の力成分(Fx, Fy, Fz) マップ**

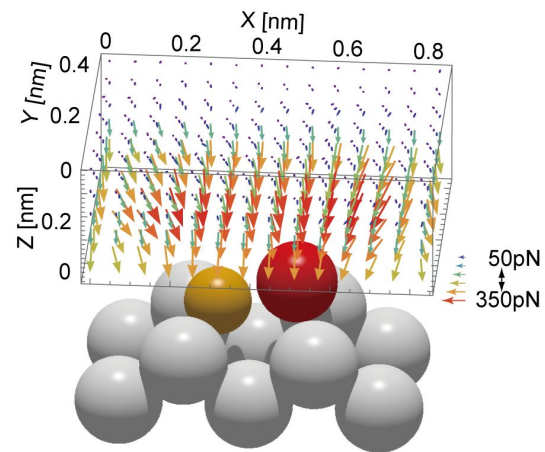
Ge(001)-c(4×2)表面(6個のダイマーを含む領域)上の X, Y, Z 方向力成分マッピング(a-c)と 2次元(X, Y 方向)力ベクトルマッピング(d)。探針 - 表面間距離は 528pm。赤玉と橙玉は表面上のバックリング上原子(Bu)と下原子(Bd)を示す。

(4)ゲルマニウム表面上で働く力の 3次元ベクトル場表示

図 3 は Ge(001)-c(4×2)表面上の 3次元力ベクトル(Fx, Fy, Fz)を XYZ 空間(1.6×1.2×0.4 nm<sup>3</sup>)上にマッピングしたものである。ほとんど全てのベクトルは最近接原子の方向を向いており、この領域では探針原子と表面原

子間で引力相互作用が働いていることがわかる。また、Bd 上に比べ Bu 上の力ベクトルの方が大きく、より強い相互作用が働いていることも伺える。その大きさは最大で 340pN ほどになる。これは Fx, Fy (50~100pN) に比べ Fz (~300pN)の方が 3D 力ベクトルの大きさに大きく寄与していると言える。

本結果は、固体表面の探針 - 試料間相互作用力を 3次元ベクトルで空間的にどのように分布しているかを世界で初めて計測したものである。特に表面水平方向の弾性相互作用力をサブ原子スケールで計測できたことは、個々の原子の化学反応の指向性、2物体間の原子スケール摩擦現象、ナノマシン創製などのために非常に重要な固体表面物性情報を明らかにした。計測技術としても学術的に有用な提案であり、多大な評価を受けている。本成果は著名な科学誌 *nature physics* 誌に掲載された。



**図 3 : Ge(001)表面上の 3次元力ベクトル分布**

全てのベクトルは最近接の表面原子(赤玉と橙玉)の方向を向き、探針と表面原子間で引力相互作用が働いていることがわかる。

(5) 以上まとめると、本研究において超高真空電子顕微鏡内で駆動する原子間力顕微鏡特殊ホルダーを開発した。原子間力顕微鏡探針と試料表面とが接触したときのサブナノスケールの構造とそこに働く相互作用力を同時に観測することに成功した。また、2周波数モード原子間力顕微鏡法を用いることで、探針と試料表面間に働く相互作用力の界面垂直成分と水平成分の両方を原子スケールで同時に取得することに成功した。

#### 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3件)

Yoshitaka Naitoh, Robert Turanský, Ján Brndiar, Yan Jun Li, Ivan Štich and Yasuhiro Sugawara, Sub-atomic-scale tip-surface force vector mapping above a Ge(001) dimer using

bimodal atomic force microscopy. Refereed, Nature Physics, 2017, Doi:10.1038/nphys4083

Huanfei Wen, Yanjun Li, Eiji Arima, Yoshitaka Naitoh, Yasuhiro Sugawara, Rui Xu, Zhihai Cheng, Investigation of tunneling current and local contact potential difference on the TiO<sub>2</sub>(110) surface by AFM/KPFM at 78 K. refereed, Nanotechnology Vol. 28, 105704 (6pp), 2017. Doi:10.1088/1361-6528/aa5aef

- ③ Lili Kou, Yanjun Li, Takeshi Kamijo, Yoshitaka Naitoh, Yasuhiro Sugawara, Investigation of the surface potential of TiO<sub>2</sub>(110) by frequency-modulation Kelvin probe force microscopy. Refereed, Nanotechnology Vol. 27, 505704 (7pp), 2016. Doi:10.1088/0957-4484/27/50/505704

[学会発表](計8件)

内藤賀公、李艶君、菅原康弘、多周波数モード原子間力顕微鏡による探針試料間弾性力ベクトルの3次元マッピング、トライボロジー会議、2016/10/12-14、朱鷺メッセ新潟

Yoshitaka Naitoh, Yan Jun Li, Yasuhiro Sugawara, Tip-surface potential derived from three force components using multi-frequency AFM, International conference on NC-AFM 2016 2016/7/25-29, Nottingham/UK.

- ③ Yoshitaka Naitoh, Yan Jun Li, Yasuhiro Sugawara, Spatial Elastic Property of Ge(001) Surface at Sub-Atomic Scale with Multi-Frequency Atomic Force Microscopy. Emerging Technologies 2016: Communications, Microsystems, Optoelectronics, Sensors. 2016/5/26-27, Montreal/Canada.

内藤賀公、李艶君、菅原康弘、多周波数モード原子間力顕微鏡による Ge(001)表面のサブ原子スケール弾性状態の研究、物理学会第71回年次大会、2016/3/19-22、東北学院大学/仙台市

- ⑤ Y. Naitoh, Y. J. Li, Y. Sugawara, 3D Force Vector Detection above Ge(001)-c(4x2) Surface at Atomic Scale with Multi-Frequency Atomic Force Microscopy. Kyoto Workshop on Recent Progress in Advanced Scanning Probe Techniques, 2016/3/10, Kyoto Univ. Kyoto.

Y. Naitoh, Y. J. Li, Y. Sugawara, Force vector mapping of tip-surface interaction visualized by multi-frequency AFM. International conference on NC-AFM 2015, 2015/7/7-11, Cassis/France

[その他]  
ホームページ等  
<http://nanophysics.ap.eng.osaka-u.ac.jp/>

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

内藤 賀公 (NAITOH Yoshitaka)  
大阪大学・大学院工学研究科・助教  
研究者番号：90362665