

令和 3 年 6 月 1 日現在

機関番号：12102

研究種目：挑戦的研究（萌芽）

研究期間：2018～2020

課題番号：18K18799

研究課題名（和文）単原子先鋭化金属針が拓く極限微小摩擦と接触型ナノ機械素子の研究

研究課題名（英文）Study on ultimate fine friction and contact-type nanomechanical devices using single-atom sharpened metallic probes

研究代表者

木塚 徳志（KIZUKA, TOKUJI）

筑波大学・数理工学系・教授

研究者番号：10234303

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,900,000円

研究成果の概要（和文）：その場透過型電子顕微鏡法を基盤手法として、単原子先鋭化極限微小針を作製する方法を確立して、強固な微小針を創製した。様々な微小針を、他の微小針、基板、材料表面と接触させて、微小領域の凝着・摩擦を起こし、その原子挙動をその場で観察して機構を解明した。この微小凝着・摩擦を軽減・回避する条件を見出し、ナノメートルサイズの接触型機械素子を実現する道を切り拓いた。単原子先鋭化金属針が拓く極限微小摩擦とナノメートルサイズの接触型機械素子の研究に関して掲げられた本研究の目的が達成され、摩擦とナノメートルサイズ機械素子に関わる研究・開発に対して、大きな貢献がなされた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

ナノメートルサイズの接触型機械素子の実現と進歩は、ナノメートル領域の凝着や摩擦、さらにその結果生じる磨耗をいかに抑制できるかにかかっている。そのためには、これらの過程と機構の解明が必要になる。本研究では、本研究代表者が開発した最先端構造解析法を用いて、このナノメートル領域の凝着、摩擦および磨耗の様相を解明した。本研究の成果は、接触型ナノ機械素子を開発するために必要な数ナノメートルよりも狭い接触領域で生じる凝着や摩擦の研究を開拓し、関連する技術を発展させ、社会に貢献した。

研究成果の概要（英文）：Based on in situ transmission electron microscopy, the methodology to produce single-atom sharpened probes was established and substantial strong probes were created. Various single-atom sharpened probes were brought into contact with other probes, substrates, and material surfaces to cause ultimate fine adhesion and friction so that the atomic motion was in situ observed directly and the mechanism was elucidated. The conditions to reduce the mechanical effects of such adhesion and friction were investigated, leading to the production and application of nanometer-sized contact-type nanomechanical devices. The aims for the present study on ultimate fine friction and contact-type nanomechanical devices using single-atom sharpened metallic probes were achieved and the substantial contribution to study and development on the fundamentals of friction and nanometer-sized nanomechanical devices was made.

研究分野：材料力学、生産工学、設計工学およびその関連分野

キーワード：摩擦 探針 凝着 摩擦 電子顕微鏡 その場観察 原子直視観察 機械素子

## 1．研究開始当初の背景

本研究に取りかかったときに開発されていた微小機械素子は、マイクロ・ナノ電気機械システム（Micro, Nano Electro Mechanical Systems）に代表されるように、マイクロメートル、もしくはナノメートル領域まで微細化されはじめていた。こうした微小素子のほとんどは、非接触式の機械駆動を利用したものであった。一方、接触型の微小機械素子の運動を把握することは難しく、微小機械素子の研究・開発は、非接触型素子を利用する範囲に留まっていた。

## 2．研究の目的

ナノメートルサイズの接触型機械素子の実現と進歩は、ナノメートル領域の凝着や摩擦、さらにその結果生じる磨耗をいかに抑制できるかにかかっている。そのためには、これらの過程と機構の解明が必要になる。しかし、本研究以外のいかなる最先端構造解析法をもってしても、このナノメートル領域の凝着、摩擦および磨耗の様相を把握することはできない。これはナノメートルサイズの接触型機械素子の試作例はあるが、安定動作するものがなく、さらにその動作中に生じる凝着・摩擦過程を観察する手法がないためである。本研究の目的は、まず、(1) 申請者が発見した単原子先鋭化極限微小針を作製する方法を確立して、より強固な微小針を創製すること、(2) 様々な微小針を、他の微小針、基板、材料表面と接触させて、微小領域の凝着・摩擦を起こし、その原子挙動をその場で観察して機構を解明すること、そして、(3) この微小凝着・摩擦を軽減・回避する条件を見出し、接触型ナノ機械素子を実現する道を切り拓くことである。

## 3．研究の方法

この研究では、本研究代表者がこれまで独自に開発してきた原子直視型その場観察法をもとにした手法を用いた。この手法により、最も「強固」で先鋭化した微小針を創製する各種条件、つまり、素材の組成、機械加工の歪み速度と応力、印加電圧の種類と大きさ等を実験的に調べ、単原子先鋭化微小針の作製技術を調べた。針先が細ければ細いほど機械的な耐久性は下がるために、針先が「強固」という条件は必須である。針先を単原子幅に先鋭化できても、それが脆弱では使い物にはならない。このため、本研究では、高融点純金属・合金、炭素、シリカなどの高硬度材料を微小針の素材に選択した。

この研究手法では、微小針創製時の構造変化を原子配列レベルで「その場」で観察することができ、同時にその機械的性質（機械的変形・破断強度、靱性、高電圧や高熱に対する耐久性）を材料力学的に導出できる。つまり、本研究では、微小針の原子を観ながら、操作（作製）し、機械的特性を評価できる、原子先鋭化微小針の研究を可能にする唯一の手法である。微小針作製法の開発と凝着・摩擦過程の具体的な調査内容は以下の通りである。

### (1) 単原子先鋭化探針の作製

各種金属・合金の薄板の端を機械的に鋭角に削って、その先端を加速電圧数キロボルトの不活性元素イオンを照射し、原子単位で研磨して、先端厚さと幅が数ナノメートルのナノチップを作製した。また、原子間力顕微鏡に用いる半導体のナノメートルチップを用意した。これらのナノメートルチップを高分解能観察電子顕微鏡に挿入し、そこで、ナノメートルチップと対向基板、もしくは、2つのナノメートルチップ同士を接触させて、ナノメートルサイズの接点を作製した。これを引き離して接点幅を小さくした後、破断させて、ナノメートルサイズ、もしくは原子サイズまで先鋭化した微小針を作製した。この過程では、場合によって、パルス電圧を印加して接点を融解した。この微小針作製の過程を、原子レベルの空間分解能で、その場で透過型電子顕微鏡観察し、ナノメートルチップの操作と微小針作製を制御した。観察された透過型電子顕微鏡像を、

電子顕微鏡用 CCD カメラで撮影し、動画で記録した。

## (2) 単原子微小針同士の凝着・摩擦

微小領域凝着と摩擦の極限は、単原子先端同士の間の接触・変形・破断であり、この過程を調べた。

## (3) ナノメートル歯車が噛み合うときの摩擦

電子顕微鏡内部に微小針を挿入し、微小針を歯車の歯に見立て、歯車の回転で歯が対向する歯車と噛み合うときの歯の間で生じる微小摩擦を想定し、その原子挙動をその場観察した。この過程は、金属針間の摩擦では、ナノメートル接点の剪断や粒界すべりとなる。

## (4) 材料表面と微小針間摩擦の原子挙動観察

一般的な材料表面に微小針を接触させて、摩擦の素過程となる押し込み、引っ張り、剪断を行い、そのときに生じる原子挙動を原子直視法によって観察した。また、半導体微小針の表面上に潤滑材となる炭素やシリカを被覆させ、摩擦時の潤滑効果を調べた。

これらの観察では、微小針と摩擦を起こす対象との間に作用する摩擦力、垂直抗力、剪断応力などの力を実験で測定し、微小摩擦固有の法則や歪み - 応力関係を材料力学的に解析した。また、これらの2体間に直流、交流、パルス波など種々の電流を流し、各条件下における摩擦挙動への影響を調べた。以上の手順で、微小領域摩擦の原子挙動と機構および摩擦の法則を明らかにして、摩擦を軽減・回避する条件を見出した。

## 4. 研究成果

### (1) 単原子先鋭化微小針の作製

各種の高融点・高硬度の金属と合金について、単原子先鋭化微小針の作製を試みた。モリブデンを素材に選択したとき、モリブデンのナノチップ同士の接触で形成されるナノメートル接点の幅は、10~30 nm 程度であった。実験では、観察された格子像や回折図形から、接点の結晶構造は、体心立方構造であることがわかった。また、撮影された格子像を高速フーリエ変換し、接点領域の単結晶、多結晶、非晶質構造を同定した。モリブデン接点の場合、機械的な接触と引っ張り破断によって微小針が形成された。この微小針の方位は、単結晶状にそろっていた。ただし、この過程で作製された微小針の曲率半径は、3~5 nm 程度であった。この曲率半径は、市販されている原子間力顕微鏡用の探針などに比較すれば、十分に小さいものであるが、本研究で狙っていた微小針先端の細さほどではなかった。次に、ナノメートル接点を引っ張りながら、この接点にパルス波を印加していくと、ナノ接点幅は徐々に細くなり、最終的に接点は破断した。このときに破断先端は先鋭化され、単原子先鋭化微小針が形成された。この微小針の先端収束角は小さくなり、パルス波印加の効果が顕著に現れた。単原子が突出しているため、一般的な微小針の曲率半径は、原子の半径となった。微小針の先端ではなく、側面の形状を円弧で近似されて求められた。(これは、針先端の曲率半径の定義とは異なる半径であることを注記する。) また、この単原子先鋭化微小針の組織は、直径数ナノメートルの結晶粒で構成される多結晶であった。こうした微細結晶粒組織には、転位が入りにくく、その硬度は極めて高いと考えられた。したがって、本研究で期待された、極限まで先鋭化した微小針を作製することができた。

### (2) 単原子微小針同士の凝着・摩擦

合金や格子面がすべりやすい純金属について、ナノチップ同士を機械的に接触させ、その後で引っ張り変形して微小針を作製した。これらの合金や金属では、パルス通電をしない状態で、接点幅が減少していった。この結果、最終的に、幅が数原子分、もしくは単原子分の幅しかない微小接点が形成された。これを破断させると、単原子が最先端に突出した微小針となった。この微小針の先端収束角は、微小針を囲っている安定面間の面角に等しかった。この単原子先端鋭化微小針は、ナノメートル接点の破断によって形成されたため、その形成直後では、微小針同士が対向する状態になった。これらを接触させて凝着させ、引き離し、もしくは、剪断させて、その過程を原子分解能で観察することができた。つまり、ナノメートル領域・原子領域の凝着と摩擦を考える上で、最小単位の素過程になり、摩擦時に、真実接触領域が破断や磨耗するときの最終段階にも相当する、凝着と摩擦の極限である単原子先端同士間の接触・変形・破断の原子過程を直接明らかにすることができた。本研究で目的として掲げた、単原子先端鋭化微小針の凝着と摩擦の最も基礎的な過程の解明が達成された。

特に、微小接点の破断直前に、幅が数原子分、もしくは単原子分の幅で、数原子分以上の長さに伸びた特徴的な構造が現れた。従来、このような原子幅の細線構造は、金などの貴金属の一部でしか観察されていなかったが、本研究で、前述の合金や高融点純金属においても形成されることが示された。こうした原子幅の細線構造強度は、原子間結合を引き離すときの強度に相当し、転位すべりを基にした粗大粒多結晶のような一般材料の強度よりも数桁大きい。したがって、摩擦時には、多くの材料で、真実接触領域が破断や磨耗するときの最終段階に、こうした数原子幅の強固な境界が形成され、摩擦力や凝着力が増加すると考えられた。

### (3) ナノメートル歯車が噛み合うときの摩擦

純金属のナノメートル微小針同士を接触させて剪断し、もしくは、一方の微小針表面にそってすべらせて摩擦を起こした。2つの微小針の硬度が大きく違うときや、凝着が起きにくいとき、例えば、炭素とシリコン酸化物などのときには、摩擦は比較的小さく、表面の単原子層、もしくは数原子層が影響する程度であった。これに対して、金属同士、例えば、金と金するときなどは、強い凝着が起き、摩擦も大きくなった。このときには、単結晶領域に双晶が形成され、それがずれるなど、一般に、粒界すべりといわれる現象が起きることがわかった。この研究では、特に、高温でも同じ現象が起きることが判明し、摩擦によって接触領域が高温になるときや、高温の摺動部の挙動を原子レベルで初めてとらえることができた。

### (4) 摩擦の原子挙動観察

自然酸化物で被覆されたシリコン基板、非晶質炭素で被覆されたシリコン基板、および、炭素原子6員環構造基板に、微小針を接触させて、摩擦を起こし、そのときに生じる原子挙動を、その場で原子直視観察した。微小針先端が摩擦の方向に変位するときの微小針の弾性定数を有限要素法を用いて見積もった。摩擦時の微小針先端の変位を直接観察して、この弾性定数と変位から、ごく微小領域で発生する摩擦力を、実験的に求めることができた。また、接触面積を電子顕微鏡像から見積もり、摩擦力をこの接触面積で除して剪断応力を求めた。摩擦領域にかかる力、垂直抗力を、光てこ方を用いて、この方向の微小針がついているカンチレバーの弾性定数と微小針変位量の積から算出した。摩擦力をこの垂直抗力で除して、摩擦係数を算出した。微小針の移動距離を観察像から求め、それを移動時間で除して微小針の移動速度を算出した。すなわち、この観察では、微小針が基板上をすべって摩擦が起きるときの構造ダイナミクスが原子レベルの空間分解能でわかり、それに対応して、垂直抗力、摩擦力、接触面積、摩擦応力(剪断応力)

摩擦係数、および、微小針の移動速度を求めることができた。ここまで詳細な情報が得られる摩擦実験は本研究だけであり、これは摩擦研究における本研究の大きな成果となった。

以上の成果から、(1) 研究代表者が発見した単原子先鋭化極限微小針を作製する方法を確立して、強固な微小針を創製すること、(2) 様々な微小針を、他の微小針、基板、材料表面と接触させて、微小領域の凝着・摩擦を起こし、その原子挙動をその場で観察して機構を解明すること、そして、(3) この微小凝着・摩擦を軽減・回避する条件を見出し、接触型ナノ機械素子を実現する道を切り拓くこと、本研究で掲げられた全ての目的が達成され、摩擦とナノ機械素子に関わる研究に対して、当初の予想以上の貢献がなされた。

本研究は、研究代表者の主催する研究室に配属された音田光一氏、中西真之氏、中村大輝氏、落合祐介氏をはじめとする筑波大学学生、大学院修士課程大学院生とともに実施された。また、日本工業大学の福田めぐみ氏には、摩擦力測定に協力していただいた。こうした方々との本研究の成果は、別項に記載した原著論文と学術会議で発表された他、筑波大学学生、大学院院生個々の卒業論文と修士論文にもまとめられた。本報告の一部は、関係諸氏から承諾を得て、こうした文献や発表を参考にし、また引用して記載している。ここに関係諸氏に深く謝意を表す次第である。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1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 Masayuki Nakanishi and Tokushi Kizuka	4. 巻 58
2. 論文標題 Production of single-atom-sharpened molybdenum tips via pulse wave conduction under tensile forces	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Jpn. J. Appl. Phys.	6. 最初と最後の頁 38007
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.7567/1347-4065/ab00a7	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7件（うち招待講演 0件/うち国際学会 2件）

1. 発表者名 落合祐介、小尾拓野、靄岡侑生、木塚徳志
2. 発表標題 その場電子顕微鏡法によるPtIr原子ワイヤーの元素分析
3. 学会等名 日本金属学会春期第166回講演大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Yusuke Ochiai, Takuya Obi, Yuuki Tsuruoka, and Tokushi Kizuka
2. 発表標題 Structure and conductance of atomic-sized PtIr wires studied by in situ transmission electron microscopy
3. 学会等名 The 32nd International Microprocesses and Nanotechnology Conference, International Conference Center Hiroshima, Hiroshima, Japan, 2019, 10, 30 (Poster presentation)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Manabu Tezura and Tokushi Kizuka
2. 発表標題 Structure and Electrical Properties of Graphene Nanoribbons Studied by in Situ Transmission Electron Microscopy
3. 学会等名 32nd International Microprocesses and Nanotechnology Conference (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 落合祐介、小尾拓野、靄岡侑生、木塚徳志
2. 発表標題 パルス通電による PtIr 単原子プローブ作製のその場電子顕微鏡法観察
3. 学会等名 日本表面真空学会学術大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 落合祐介、小尾拓野、靄岡侑生、木塚徳志
2. 発表標題 その場電子顕微鏡法によるPtIr 単原子先鋭化チップ形成過程の観察
3. 学会等名 日本金属学会秋期第165回講演大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Manabu Tezura and Tokushi Kizuka
2. 発表標題 Structure and electrical properties of interfaces between a carbon nanocapsule and metal electrodes studied by in situ transmission electron microscopy
3. 学会等名 The 2018 Materials Research Society Fall Meeting and Exhibit, Hynes Convention Center, Boston, USA (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 中村大輝、福田めぐみ、木塚徳志
2. 発表標題 その場電子顕微鏡法によるカーボンナノチューブ表面の摩擦観察
3. 学会等名 第79回応用物理学会秋季学術講演会、名古屋国際会議場
4. 発表年 2018年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

筑波大学数理物質系物質工学域木塚研究室ホームページ  
[http://www.ims.tsukuba.ac.jp/~kizuka\\_lab/index.html](http://www.ims.tsukuba.ac.jp/~kizuka_lab/index.html)

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
--	---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------