

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 5 年 6 月 22 日現在

機関番号：13901

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2020～2022

課題番号：20H02025

研究課題名(和文) 高周波高密度電流が原子配列に与える「揺さぶり」を利用した自己原子再配列技術の創出

研究課題名(英文) Self-atomic rearrangement technique based on the "shaking" of high-density high-frequency currents

研究代表者

徳 悠葵 (TOKU, Yuhki)

名古屋大学・工学研究科・准教授

研究者番号：60750180

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,800,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では金属薄膜を対象に、高周波(100 kHz以上)の高密度電流が原子配列に及ぼす電子風力の周期的「揺さぶり」によって原子の再配列を実現した。また、原子再配列の学理解明のため、高分解能透過型電子顕微鏡によるその場観察を実施した。さらに、応用上重要な薄膜の品質を定量評価するため、電流印加前後における薄膜の機械特性・電気特性について調査を行った。目的達成のため、3カ年計画により次の3項目「1. 薄膜の結晶構造解析および材料特性評価」「2. 原子配列変化の動的挙動の可視化」「3. 高周波高密度電流と原子の力学的相互作用に関する理論モデルの構築」を研究目標として推進した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究は、高周波の高密度電流がなす電子風力によって金属薄膜の原子配列を制御する世界初の研究であり、熱処理に依らない原子の再配列技術として材料科学分野を拡張する学術的に極めて高い独創性・創造性を有している。さらに、いままで結晶構造の制御が熱処理や結晶成長のみによって実現されてきた現状を打破し、新たに電子風力を基盤とした原子再配列法を世界に先駆けて発信することができる。これは、熱処理に依らない原子の再配列現象として従来熱力学的に捉えられてきた材料科学を拡張し、物理化学や固体物理、物性物理などの広い学問分野にも大きな波及効果が期待できる。

研究成果の概要(英文)：In this study, we have achieved atomic rearrangement in metallic thin films by periodic "oscillations" of electron wind force induced by high-density currents at high frequencies (>100 kHz) on the atomic arrangement. In-situ observations using a high-resolution transmission electron microscope were also performed to elucidate the science behind the atomic rearrangement. In addition, to quantitatively evaluate the quality of thin films, which is important for applications, we investigated the mechanical and electrical properties of thin films before and after the application of electric current. To achieve the objectives, the following three research goals were pursued under the three-year plan: 1. crystal structure analysis and material characterization of thin films, 2. visualization of dynamic behavior of atomic arrangement changes, and 3. construction of a theoretical model for the mechanical interaction between high-density high-frequency current and atoms.

研究分野：材料力学

キーワード：薄膜 原子配列 ナノ材料 界面 電子風力 原子拡散 エレクトロマイグレーション

1. 研究開始当初の背景

金属薄膜は、電子デバイスの配線・機能性表面の創出・装飾品のメッキなど幅広く応用されており、現代社会において欠かせない基盤材料である。近年では、MEMS/NEMS 技術の発展に伴い、身の回りの電子デバイスの小型・高性能化が著しい。一方、小型化による配線中の電流密度および抵抗の増大が深刻になっている。一例としては、電気自動車の発展に伴いパワー半導体による使用電力が増大し、剥離や欠損が課題となっている。現状では、パワー半導体の性能は配線やはんだ付けが損傷しない程度に抑えられており、技術的なボトルネックとなっている。一般に薄膜は密着性に優れたスパッタ法などによって得られるが、機械特性や電気特性を左右する結晶性は熱処理に頼るところが大きく、品質向上に限界がある。そのため、根本的な膜質向上を実現する原子配列・結晶構造の制御技術が必要不可欠である。

2. 研究の目的

本研究は、高周波の高密度電流がなす革新的な電子風力の「揺さぶり」を利用し、薄膜内原子の再配列の実現を目的とする(図1)。これにより、熱処理に依らない薄膜の原子配列・結晶構造の制御を達成する。また、高周波高密度電流によって変化した原子配列・結晶構造と薄膜の機械的特性・電気的特性との関係を実験的に明らかにする。さらに、高周波高密度電流がなす原子の駆動現象のメカニズムを解明するため、電子と原子の相互作用に関する理論モデルを構築し、電子風力を基盤とした新たな原子配列・結晶構造制御法として学理構築を目指す。

3. 研究の方法

本研究では金属薄膜を対象に、高周波(100 kHz以上)の高密度電流が原子配列に及ぼす電子風力の周期的「揺さぶり」によって原子の再配列を実現する。また、原子再配列の学理解明のため、高分解能透過型電子顕微鏡(HRTEM)によるその場観察を実施する。さらに、応用上重要な薄膜の品質を定量評価するため、電流印加前後における薄膜の機械特性・電気特性について調査を行う。目的達成のため3カ年計画により次の3項目「1. 薄膜の結晶構造解析および材料特性評価」「2. 原子配列変化の動的挙動の可視化」「3. 高周波高密度電流と原子の力学的相互作用に関する理論モデルの構築」を研究目標として推進する。

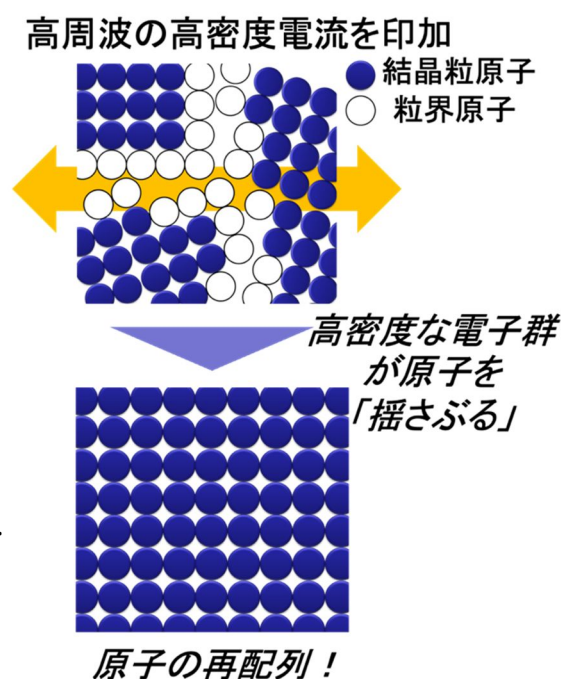


図1. 高周波高密度電流の「揺さぶり」による原子再配列の概念図

4. 研究成果

1. 薄膜の結晶構造解析および材料特性評価
- 1 - 1 電流印加前後における結晶構造変化の解析

各種電流条件によって変化した試料の結晶構造解析を X 線回折装置 (XRD) (図 2 (a)) および電子線後方散乱回折 (EBSD) を用いて分析した。特に周波数の変化によって生じた Au 薄膜の結晶面の割合変化や、結晶粒径の変化について調査した結果を図 2 に示す。図 2 (b) のように、印加周波数の増加に伴い、面心立方構造の最密結晶面 (111) が増加することがわかった。また、周波数の増加に伴い結晶粒の増大も確認された (図 2 (c))。

1 - 2 密着強度試験および電流条件の最適化

電流印加前後における金属薄膜には、原子の再配列に伴う機械特性変化が生じる。ここでは、薄膜の機械特性を定量的に評価するため、密着強度試験 (剥離試験・スクラッチ法) を実施した。また、異なる結晶構造や化学的性質を有する金属の場合、電流印加効果に差異が生じると予測される。そこで、安定金属の Au, Pt, 酸化しやすい Cu, 不動態を形成しやすい Al を実験対象として選定し、電流印加前後の機械特性を比較した。図 2 (d) は Au に関する実験結果の一例である。薄膜の密着強度は周波数の増加とともに大きくなることを確認した。これは、1-1 で調査した最密結晶面が基板に対して平行に整列したことと結晶粒の増大が貢献しているものと考えられる。また、電流印加条件 (周波数・電圧・電流密度・時間) の最適値を調査したところ、材料の種類によって最適な印加周波数が異なることがわかった。これらは対象材料の原子量・結合エネルギーに依存して変化するものと考えられる。

1 - 3 電気特性評価

結晶構造や結晶面によって原子間の距離が異なること、結晶粒の大きさの分布によって薄膜の電気抵抗が局所的に異なることを想定して、独自に開発したナノ分解能を有するマイクロ波原子間力顕微鏡を用いて導電率マッピングを実現した。また、本実験と併せて薄膜全体の導電性

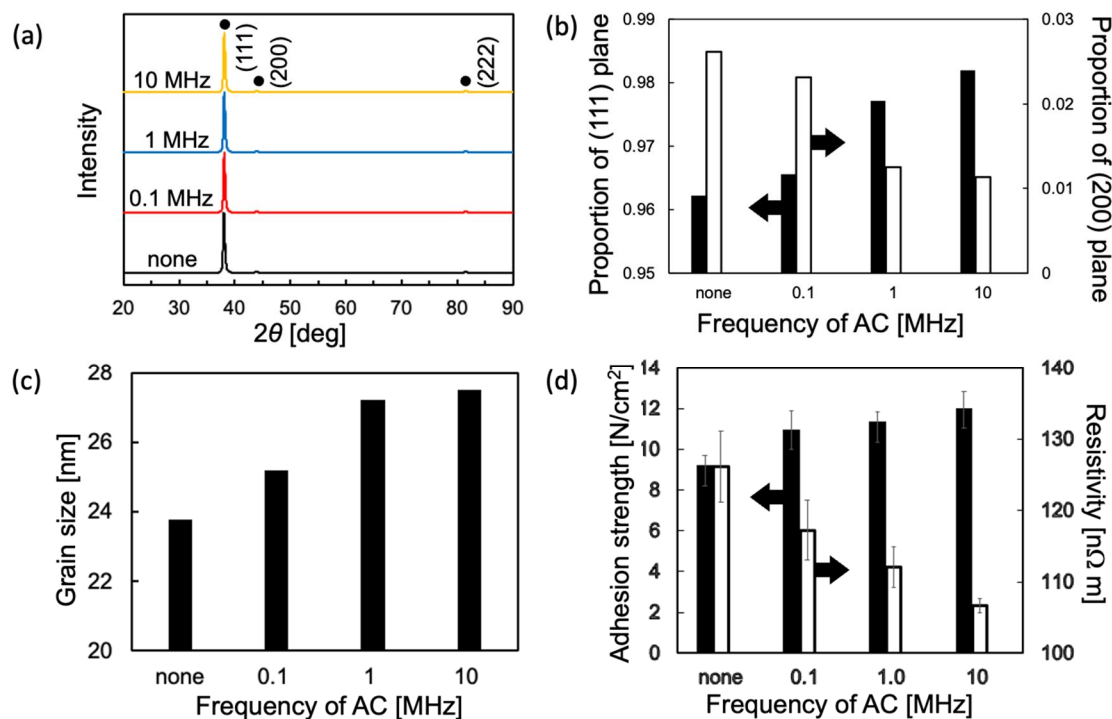


図 2 . 各周波数条件の電流印加前後における金 (Au) 薄膜の (a) X 線回折分析結果, (b) 主要結晶面の割合, (c) 結晶粒径の変化, (d) 密着強度・電気抵抗の変化

がどのように変化するか4端子法により調査した．例として Au 薄膜の電気抵抗変化を密着強度とともに図2 (d) に示している．電気抵抗も印加した周波数の増加に伴い低下していることが確認された．これは，電流の印加方向（薄膜の面内方向）に存在する結晶粒界が電子風力によって駆動され，電流経路から移動するよう薄膜内の原子が再配列したためであると考えられる．

2．原子配列変化の動的挙動の可視化

電流印加前後の XRD の結果では，結晶粒の増大，最密結晶面の増加が確認されている．ここでは，薄膜の表面近傍・中央・界面近傍の原子を対象を分け，HRTEM によるその場観察を実施し，電流印加時における原子配列変化・結晶構造変化の動的挙動の可視化を行った．図3に示すように，電流印加によって界面における原子配列が特に顕著に変化しており，成膜後の原子配列の乱れが高秩序に再配列されていることがわかる．一方，熱処理後における原子配列も整列しているように見えるが，電流印加後と比べると最密結晶面の割合が少なく，結晶格子間隔から比較的大きな残留応力の存在も示唆された．

3．高周波高密度電流と原子の力学的相互作用に関する理論モデルの構築

得られた実験結果をもとに，電子風力と原子配列の相互作用に関する理論モデルの構築を図った．これを元に，薄膜の格子定数・原子間力・電流密度・周波数のパラメータにより支配される原子配列のポテンシャルエネルギーに関する理論式の導出を図った．

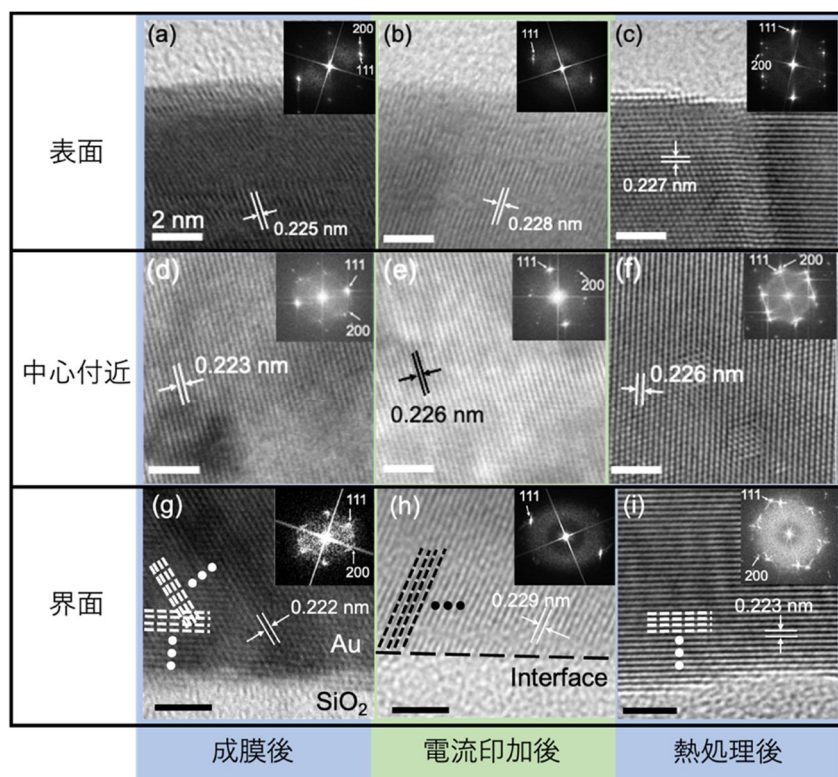


図3．Au 薄膜断面の透過型電子顕微鏡像．(a)，(d)，(g)成膜後（電流印加前），(b)，(e)，(h)電流印加後，(c)，(f)，(i)熱処理後の試料であり，それぞれ表面，中心付近，界面近傍の原子分解能観察の結果である．なお，それぞれの挿入図はFFT像である．スケールバーはすべて2 nm．

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計14件（うち査読付論文 14件 / うち国際共著 2件 / うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Zhao Minji, Kimura Yasuhiro, Toku Yuhki, Ju Yang	4. 巻 16
2. 論文標題 Quantitative measurement of local conductivity of SnO ₂ nanobelt field effect transistor utilizing microwave atomic force microscopy	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Applied Physics Express	6. 最初と最後の頁 016501 ~ 016501
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.35848/1882-0786/acaaf3	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 Jung Jaewoong, Yoon Sungmin, Gu Shaojie, Kimura Yasuhiro, Toku Yuhki, Ju Yang	4. 巻 150
2. 論文標題 Influence of a high-density pulsed electric current on the fatigue behaviour of prestrained aluminium alloys	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Engineering Failure Analysis	6. 最初と最後の頁 107230 ~ 107230
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.engfailanal.2023.107230	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 該当する
1. 著者名 Toku Yuhki, Kizawa Kurama, Kimura Yasuhiro, Ju Yang	4. 巻 1
2. 論文標題 Atom Rearrangement by Cyclic Electron "Shaking"	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Advanced Engineering Materials	6. 最初と最後の頁 1-7
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/adem.202300115	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -
1. 著者名 Yoon Sungmin, Gu Shaojie, Li Shaoli, Kimura Yasuhiro, Toku Yuhki, Ju Yang	4. 巻 284
2. 論文標題 Efficiency improvement of fatigue crack healing by multiple high-density pulsed electric currents: Application to austenitic stainless steel	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Engineering Fracture Mechanics	6. 最初と最後の頁 109235 ~ 109235
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.engfracmech.2023.109235	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 該当する

1. 著者名 Yoon Sungmin, Cui Yi, Kimura Yasuhiro, Gu Shaojie, Toku Yuhki, Ju Yang	4. 巻 156
2. 論文標題 Improvement of low-cycle fatigue life of austenitic stainless steel by multiple high-density pulsed electric currents	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 International Journal of Fatigue	6. 最初と最後の頁 106639 ~ 106639
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.ijfatigue.2021.106639	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 Gu Shaojie, Cui Yi, Yoon Sungmin, Wang Zizheng, Kimura Yasuhiro, Toku Yuhki, Ju Yang	4. 巻 197
2. 論文標題 Rapid anisotropy recovery in deformed FCC metals by high-density pulsed electric current treatment	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Vacuum	6. 最初と最後の頁 110855 ~ 110855
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.vacuum.2021.110855	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 Zhao Minji, Tong Bo, Kimura Yasuhiro, Toku Yuhki, Morita Yasuyuki, Ju Yang	4. 巻 118
2. 論文標題 Quantitative evaluation of local permittivity of semiconductor nanomaterials using microwave atomic force microscopy	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Applied Physics Letters	6. 最初と最後の頁 193103 ~ 193103
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0049619	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 YOON Sungmin, KIMURA Yasuhiro, TOKU Yuhki, JU Yang, PARK Soojeong, KIM Yunhae	4. 巻 8
2. 論文標題 Assessment of creep behavior using a damage-coupled model for martensitic stainless steel	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Mechanical Engineering Journal	6. 最初と最後の頁 21
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1299/mej.21-00178	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 Yoon Sungmin, Kimura Yasuhiro, Cui Yi, Toku Yuhki, Ju Yang	4. 巻 62
2. 論文標題 Evaluation of Electric Current-Induced Improvement of Fracture Characteristics in SUS316	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 MATERIALS TRANSACTIONS	6. 最初と最後の頁 748 ~ 755
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2320/matertrans.MT-M2020333	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 Cui Yi, Toku Yuhki, Ju Yang	4. 巻 32
2. 論文標題 Nanotwinning and tensile behavior in cold-welded high-entropy-alloy nanowires	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Nanotechnology	6. 最初と最後の頁 315716 ~ 315716
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1361-6528/abf7eb	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 Cui Yi, Toku Yuhki, Kimura Yasuhiro, Ju Yang	4. 巻 185
2. 論文標題 High-strain-rate void growth in high entropy alloys: Suppressed dislocation emission = suppressed void growth	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Scripta Materialia	6. 最初と最後の頁 12 ~ 18
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.scriptamat.2020.03.056	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 Cui Yi, Toku Yuhki, Kimura Yasuhiro, Ju Yang	4. 巻 187
2. 論文標題 True origin of the size effect in cold-welded metallic nanocrystals	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 International Journal of Mechanical Sciences	6. 最初と最後の頁 106102 ~ 106102
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.ijmecsci.2020.106102	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 Toku Yuhki, Togawa Yosuke, Morita Yasuyuki, Ju Yang	4. 巻 285
2. 論文標題 Preferential growth of specific crystal planes based on the dimension control of single crystal SnO ₂ nanobelts	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Materials Letters	6. 最初と最後の頁 129121 ~ 129121
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.matlet.2020.129121	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 Cui Yi, Toku Yuhki, Kimura Yasuhiro, Ju Yang	4. 巻 188
2. 論文標題 The deformation mechanism in cold-welded gold nanowires due to dislocation emission	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Computational Materials Science	6. 最初と最後の頁 110214 ~ 110214
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.commatsci.2020.110214	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20件 (うち招待講演 0件 / うち国際学会 2件)

1. 発表者名 菅沼 林太郎, 木村 康裕, 徳 悠葵, 巨 陽
2. 発表標題 化学気相堆積法による ZnO ナノベルトの結晶成長 制御に関する研究
3. 学会等名 日本機械学会M & M2022, 材料力学カンファレンス
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 磯井 宙, 木村 康裕, 徳 悠葵, 巨 陽
2. 発表標題 Ti-6Al-4V における電流印加による転位挙動の動的観察
3. 学会等名 日本機械学会M & M2022, 材料力学カンファレンス
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 白澤 拓磨, 木村 康裕, 徳 悠葵, 巨 陽
2. 発表標題 ナノスカイピング法を用いた相変化ナノワイヤの創製
3. 学会等名 日本機械学会M & M2022, 材料力学カンファレンス
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 立木 真太郎, 巨 陽, 徳 悠葵, 木村 康裕
2. 発表標題 Cu ₂₀ ナノ構造体への表面修飾による太陽光水分 解における耐久性の向上
3. 学会等名 日本機械学会M & M2022, 材料力学カンファレンス
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Mahmud Md Sultan, 木村 康裕, 徳 悠葵, 巨 陽
2. 発表標題 太陽光水分解のための応力誘起原子拡散法による高安定高密度 Fe ₂₀₃ ナノワイヤアレイの合成
3. 学会等名 日本機械学会M & M2022, 材料力学カンファレンス
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 高木 龍, 木村 康裕, 徳 悠葵, 巨 陽
2. 発表標題 Fe ₂₀₃ /Cu コアシェルナノワイヤ光電極を利用した 高効率太陽光水素変換デバイスの開発
3. 学会等名 日本機械学会M & M2022, 材料力学カンファレンス
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 堀田 一馬, 木村 康裕, 徳 悠葵, 巨 陽
2. 発表標題 高周波電流を利用した Ti-6Al-4V の機械的性質向上に関する研究
3. 学会等名 日本機械学会M & M2022, 材料力学カンファレンス
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 磯部 昂汰, 木村 康裕, 徳 悠葵, 巨 陽
2. 発表標題 機械的伸縮刺激を用いた hMSC-SCX の腱細胞への分化に関する研究
3. 学会等名 日本機械学会M & M2022, 材料力学カンファレンス
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 山田秀幸, 巨陽, 徳悠葵, 木村康裕
2. 発表標題 薄膜の結晶方位および下地材料が応力誘導ナノワイヤ成長に及ぼす影響
3. 学会等名 日本機械学会M & M2021, 材料力学カンファレンス
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 角田浩基, 巨陽, 徳悠葵, 木村康裕
2. 発表標題 コアシェル型DDS キャリアの薬剤担持量向上に関する研究
3. 学会等名 日本機械学会M & M2021, 材料力学カンファレンス
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 丸本裕貴, 巨陽, 徳悠葵, 木村康裕
2. 発表標題 高密度パルス電流による純チタン結晶組織への影響
3. 学会等名 日本機械学会M & M2021, 材料力学カンファレンス
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 彭彦鴻, 巨陽, 徳悠葵, 木村康裕
2. 発表標題 高周波電流による薄膜密着強度の向上に関する研究
3. 学会等名 日本機械学会M & M2021, 材料力学カンファレンス
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 安田和弘, 巨陽, 徳悠葵, 木村康裕
2. 発表標題 高周波電流を利用した金属薄膜内原子配列の高秩序化に関する研究
3. 学会等名 日本機械学会M & M2021, 材料力学カンファレンス
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 杉浦圭, 巨陽, 徳悠葵, 木村康裕
2. 発表標題 銅ナノワイヤ面ファスナー接合強度の向上
3. 学会等名 日本機械学会M & M2021, 材料力学カンファレンス
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Shaojie Gu, 巨陽, 徳悠葵, 木村康裕
2. 発表標題 高密度パルス電流による予ひずみを有するインコネル 718 の加工硬化の緩和
3. 学会等名 日本機械学会M&M2021, 材料力学カンファレンス
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Sungmin YOON, 巨陽, 徳悠葵, 木村康裕
2. 発表標題 Fatigue damage recovery of austenitic stainless steel by high-density pulsed electric current
3. 学会等名 日本金属学会, 2021年秋期 (第169回) 講演大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Yuta Ito, Yasuhiro Kimura, Yuhki Toku, Yang Ju
2. 発表標題 On Selective Fabrication of Metallic Micro/Nanomaterials in Electromigration-Based Injection System
3. 学会等名 ICNB2021 (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 安田和弘, 木村康裕, 徳悠葵, 巨陽
2. 発表標題 高周波高密度電流が銅薄膜の密着強度に及ぼす影響
3. 学会等名 2020年度日本機械学会年次大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 伊藤佑太, 木村康裕, 徳悠葵, 巨陽
2. 発表標題 エレクトロマイグレーションによる金属マイクロ・ナノワイヤ創製のための機構開発
3. 学会等名 2020年度日本機械学会年次大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Yuta Ito, Yasuhiro Kimura, Yuhki Toku, and Yang Ju
2. 発表標題 A System for the Fabrication of Metallic Micro/Nanowire Based on Electromigration
3. 学会等名 33rd International Microprocesses and Nanotechnology Conference (MNC2020) (国際学会)
4. 発表年 2020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	巨陽 (JU YANG) (60312609)	名古屋大学・工学研究科・教授 (13901)	

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