

令和 5 年 6 月 30 日現在

機関番号：14301

研究種目：挑戦的研究（萌芽）

研究期間：2020～2022

課題番号：20K20963

研究課題名（和文）集団転位構造制御設計基盤の構築とナノマルチフィジックスネットワークの創出

研究課題名（英文）Construction of design platform for controlling collective dislocation structure and creation of nano-scale multi-physics network

研究代表者

澄川 貴志（Sumigawa, Takashi）

京都大学・エネルギー科学研究科・教授

研究者番号：80403989

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 4,900,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、材料への繰り返し負荷によって、マイクロサイズ材料内に生じる特有の転位構造の発現メカニズムを明らかにし、転位を利用したマルチフィジックスを創出することを目的とした。模擬材料を用いてマイクロサイズの試験片を作製し、繰り返し負荷実験を行った結果、試験片中央部にはバルクと同様の転位構造が形成される一方、表面から約1 μ mの範囲には表面からの鏡像力の影響を受けた構造を生じていた。この力学的作用を利用することで、材料内に同じ振幅で転位壁を形成することに成功した。また、常誘電体単結晶試験片にマイクロサイズの応力集中源を設けて繰り返し負荷を行った後には、局所的な強誘電性が発現していることを示した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究では、材料表面の力学的作用と繰り返し負荷を利用して微細材料中に特有の転位構造を形成させることに成功し、原子レベルの欠陥の構造や配置を材料中で制御できる可能性を示した。また、繰り返し負荷を受けた常誘電体材料中の局所に強誘電性を生み出せることを示した。本成果は、欠陥を利用することで現象を生み出す新しい学術分野創成の一翼を担うものであるとともに、これまで不可能とされてきた強誘電体微細化デバイスの実現可能性を示すものであり、社会および産業界へのインパクトは大きい。

研究成果の概要（英文）：The purpose of this study is to clarify the formation mechanism of specific dislocation structures in micro-sized materials under cyclic loading, and to create peculiar multi-physics phenomena using dislocations. The results of cyclic loading experiments on a micro-sized specimen showed that a dislocation structure similar to that of the bulk was formed in the central part of the specimen, while a structure influenced by the image force from the surfaces was generated in the region of approximately 1 μ m from the surfaces. By utilizing this mechanical effect, we succeeded in creating a dislocation wall in the material. In addition, a paraelectric single-crystal specimen with a micro-sized stress concentration source was prepared and subjected to cyclic loading. The results showed that localized ferroelectricity appeared in the specimen.

研究分野：微小材料力学、微小材料強度学

キーワード：ナノ・マイクロ 転位 自己組織化 ネットワーク マルチフィジックス

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

転位が有するナノレベルのひずみ集中場によって、原子~ナノスケールの強誘電性が発現する(マルチフィジックス)ことがシミュレーションによって報告されていた。強誘電材料は多様な特性を有しており、次世代メモリ等への適用が期待されていたが、高集積化のためにナノサイズにまで微細化すると表面効果によって強誘電性が弱まることが問題となっていた。転位が有するマルチフィジックス特性を利用できれば、将来的には強誘電体デバイスの高集積化を実現できる可能性があるが、材料中の転位を任意の場所に配置し構造化する技術自体が存在せず、ボトルネックとなっていた。

転位が作り出す構造の代表として、材料が繰り返し負荷を受けることによって生じる自己組織化構造が挙げられる。この現象では、外場からの繰り返し力、個々の転位が有する弾性ひずみ場に起因した転位間での相互作用、および、転位の対消滅などによって転位構造が形成される。しかし、数ミクロン程度の転位構造に作用する外場からの力はほぼ均一となることに加え、転位間の力学的相互作用や対消滅現象は転位同士の固有のものであることから、造り出される転位構造は限定され、その自由度は限られている。

一方、研究代表者のグループではこれまでに、マイクロサイズ材料に一軸方向の繰り返し負荷を与える技術を確立し、その内部では特有の転位構造が発現することを見出している。これは、マイクロ材料では、表面や界面の影響が大きく作用することが原因であると考えられる。すなわち、微細な材料においては、表面や界面の力学的な影響を設計することで、その内部に形成される転位構造を制御し、それに伴うマルチフィジックスを創成できる可能性がある。しかし、これまでにそのような視点からの研究は行われてこなかった。

2. 研究の目的

本研究では、繰り返し負荷に起因して生じるマイクロ材料中の転位構造の形成の力学を検討するとともに、常誘電体材料に繰り返し負荷を与えて転位に起因した局所的な強誘電性を発現させることを目的とした。

3. 研究の方法

転位構造の制御に関する検討を行う模擬材料として、ニッケル(Ni)を選択した。面心立方金属であるNiは、すべり系の数が少ないことに加えて、本研究で採用した集束イオンビーム(FIB: Focused ion beam)による試験片の薄片化手法では、透過型電子顕微鏡(TEM: Transmission electron microscope)を用いた転位の観察が容易なためである。Ni多結晶板(99.999%)に対して、真空環境下(ベース圧力: 10^{-8} Pa)で熱処理(800℃, 24h)を行った後、電子線後方散乱回折(EBSD: Electron back-scattering diffraction)解析によって表面の粒界形状および結晶方位を特定した。所望の結晶方位を有する結晶粒中から、FIBを用いてマイクロサイズの試験片を作製した。本試験片は、土台部、ゲージ部およびつかみ部からなるドッグボーン形状を有し、正方形断面を持つ試験片ゲージ部の一辺の幅は5 μm である。FIBによって導入された加工層を除去するために、試験片にはアルゴン(Ar)イオンミリング処理を施した。図1(a)は、作製した試験片の走査型電子顕微鏡像を示す。また、図1(b)は、試験片のステレオグラフを示す。図中では、SchmidとBoasの表記法に従ってすべり面をA~D、および、すべり方向を1~6で表してある。本試験片は、B4のすべり系が活動する単一すべり方位に配向されている。疲労試験は、独自開発の引張圧縮繰り返し負荷試験装置を用い、電界放出型走査型電子顕微鏡(FE-SEM: Field emission-scanning electron microscope)内で実施した。試験片には、定変位振幅のもと、3500回の繰り返し負荷を与えた。試験片に与える変位振幅は、マクロ材における疲労き裂発生限界よりも低い応力振幅となるよう調整した。

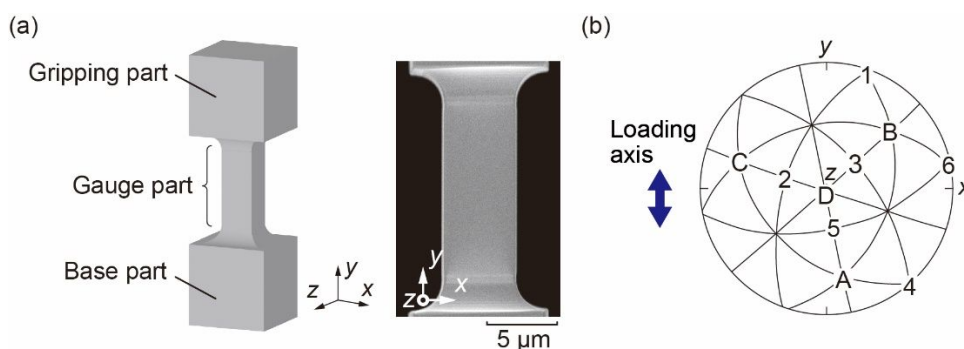


図1 (a)Ni 単結晶マイクロ試験片, (b)ステレオグラフ.

4. 研究成果

試験片は、初期の数十サイクルで加工硬化を示し、その後は応力振幅約 40 MPa で飽和した。試験後の試験片には、主すべり系のすべりによる塑性変形が生じており、表面にはうねりを生じていたが、き裂の発生は見受けられなかった。試験後の試験片に対し、FIB を用いて約 200 μm の厚さまで薄片化を行い、Ar イオンミリングによる表面処理を施したのち、TEM による内部観察を実施した。観察の結果、試験片内部は、数百 nm サイズの高転位密度領域と、その間の低転位密度領域が存在した。 $g \cdot b$ 解析の結果、高転位密度領域は、主すべり方向にバーガース・ベクトルを有する刃状転位の集まりによって構成されたベインであることがわかった。また、低転位密度領域にはらせん転位が存在した。この構造は、同じ応力振幅を与えたバルク Ni に形成されるものと同じ（ベイン（高転位密度領域）+ チャンネル（低転位密度領域））であった。一方、表面から約 1 μm の領域では、ベインは観察されなかった（図 2(a)）。これは、この薄片化試料では、左右の表面に対して主すべり系のバーガース・ベクトルが対向しており、表面からの鏡像力によって刃状転位は表面に引き寄せられ、さらに射出されやすいため、表面近傍ではベインの形成ができなかったことが原因であると考えられる。そこで、同じ結晶方位を有し、表面から 1 μm の影響領域が全体を占める幅 2 μm の試験片を用意し、同様の応力振幅となる条件下で繰り返し変形試験を実施した。試験後の観察では、試験片中にベインは存在せず、試験片中央部に幅約 100nm の転位の壁構造が形成されていた（図 2(b)）。このように、表面を利用することによって、内部の転位構造を制御できることが明らかになった。さらに、結晶方位を多重すべり方向に配置することで、表面の極近傍にベイン構造を形成させることにも成功した。

Ni 単結晶試験片を用いた実験によって、材料内部に生じる転位構造は、数マイクロサイズの範囲に現象を閉じ込めることで、その境界の影響を強く受けることがわかった。そこで、広い温度領域にわたって安定な常誘電体であるチタン酸ストロンチウム (SrTiO_3) 単結晶板（長さ 40 mm \times 幅 3 mm \times 厚さ 0.5 mm）を用意し、マイクロビッカースを用いて板の中央部にマイクロサイズの圧痕を応力集中源として導入した。圧痕から FIB を用いて薄片サンプルを採取し、TEM を用いた観察を行った結果、内部には転位が生じていた（図 2(a)）。すなわち、本材料はセラミックであるにもかかわらず常温で塑性変形する。本試験片に対して、四点曲げによる繰り返し負荷を 500 サイクル与えた後、圧電応答顕微鏡を用いて圧痕部周辺の分極測定を実施した結果、局所で強誘電性が生じていることがわかった（図 2(b)）。

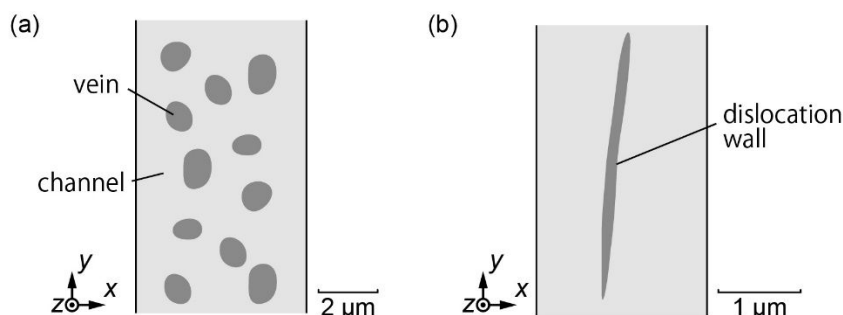


図 2 繰り返し変形後の試験片内部構造の模式図：(a) 5 μm 試験片，(b) 2 μm 試験片。

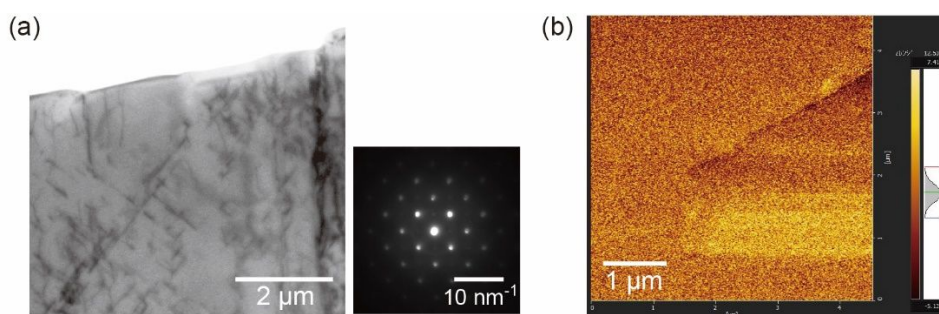


図 3 (a) チタン酸ストロンチウム単結晶の圧痕部の TEM 像，(b) 圧電応答顕微鏡測定結果。

<引用文献>

- T. Shimada, T. Xu, Y. Araki, J. Wang, T. Kitamura, Multiferroic Dislocations in Ferroelectric PbTiO_3 , Nano Letters, Vol.17(4), 2017, 2674-2680.
- T. Sumigawa, S. Uegaki, T. Yukishita, S. Arai, Y. Takahashi, and T. Kitamura, FE-SEM in situ observation of damage evolution in tension-compression fatigue of micro-sized single-crystal copper, Materials Science and Engineering A, Vol.764, 2019, 138218.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計10件（うち査読付論文 10件／うち国際共著 6件／うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Yizhi Zhuo, Zhijie Xia, Yuan Qi, Takashi Sumigawa, Jianyang Wu, Petr Sestak, Yinan Lu, Verner Hakonsen, Tong Li, Feng Wang, Wei Chen, Senbo Xiao, Rong Long, Takayuki Kitamura, Liangbin Li, Jianying He and Zhiliang Zhang	4. 巻 -
2. 論文標題 Simultaneously Toughening and Stiffening Elastomers with Strong Eightfold Hydrogen Bonding	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Advanced Materials	6. 最初と最後の頁 2008523
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/adma.202008523	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 Wufan Chen, Xiaoyuan Wang, Yabin Yan, Takashi Sumigawa, Takayuki Kitamura, Miaolin Feng, Fu-Zhen Xuan	4. 巻 90
2. 論文標題 Bending stress relaxation of microscale single-crystal copper at room temperature: An in situ SEM study	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 European Journal of Mechanics - A/Solids	6. 最初と最後の頁 104377 ~ 104377
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.euromechsol.2021.104377	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 Pengfei Jia, Kai Huang, Takashi Sumigawa, Takahiro Shimada, Licheng Guo, Takayuki Kitamura	4. 巻 234-235
2. 論文標題 A unified atomic energy release rate criterion for nonlinear brittle fracture in graphene nanoribbons	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 International Journal of Solids and Structures	6. 最初と最後の頁 111260
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.ijsolstr.2021.111260	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 Takashi Sumigawa, Takahiro Shimada, Kai Huang, Yuki Mizuno, Yohei Hagiwara, Naoki Ozaki, and Takayuki Kitamura	4. 巻 22
2. 論文標題 Ultrascale brittle fracture initiated from a dislocation in SrTiO ₃	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Nano letters	6. 最初と最後の頁 2077-2084
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.nanolett.2c00005	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 Yabin Yan, Takashi Sumigawa, Xiaoyuan Wang, Wufan Chen, Fuzhen Xuan, Takayuki Kitamura	4. 巻 71
2. 論文標題 Fatigue curve of microscale single-crystal copper: An in situ SEM tension-compression study	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 International Journal of Mechanical Sciences	6. 最初と最後の頁 105361
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.ijmecsci.2019.105361	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 日笠 健, 澄川 貴志, 田中 秀平, 金子 遼太, 北村 隆行	4. 巻 86
2. 論文標題 飛び移り微視構造メタマテリアルの切欠き感受性	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 飛び移り微視構造メタマテリアルの切欠き感受性	6. 最初と最後の頁 19-00398
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1299/transjsme.19-00398	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 Takashi Sumigawa, Ken Hikasa, Akihiro Kusunose, Hiroki Unno, Kairi Masuda, Takahiro Shimada, and Takayuki Kitamura	4. 巻 4
2. 論文標題 In-Situ TEM Observation of Nanodomain Mechanics in Barium Titanate under External Loads	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review Materials	6. 最初と最後の頁 54415
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevMaterials.4.054415	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 Yabin Yan, Wufan Chen, Takashi Sumigawa, Xiaoyuan Wang, Takayuki Kitamura, Fuzhen Xuan	4. 巻 60
2. 論文標題 A Quantitative In Situ SEM Bending Method for Stress Relaxation of Microscale Materials at Room Temperature	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Experimental Mechanics	6. 最初と最後の頁 937 ~ 947
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1007/s11340-020-00611-7	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 Kai Huang, Takashi Sumigawa, Takahiro Shimada, Shuhei Tanaka, Youhei Hagiwara, Licheng Guo, Takayuki Kitamura	4. 巻 206
2. 論文標題 An experimental study on atomic-level unified criterion for brittle fracture	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 International Journal of Solids and Structures	6. 最初と最後の頁 1~8
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.ijsolstr.2020.08.006	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 Kai Huang, Takashi Sumigawa, Takayuki Kitamura	4. 巻 806
2. 論文標題 Experimental evaluation of loading mode effect on plasticity of microscale single-crystal copper	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Materials Science and Engineering: A	6. 最初と最後の頁 140822 ~ 140822
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.msea.2021.140822	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16件 (うち招待講演 6件 / うち国際学会 2件)

1. 発表者名 Takashi Sumigawa
2. 発表標題 Fatigue of Micro-sized Single Crystal Copper under Tension-compression Cyclic Loading
3. 学会等名 Materials Research Meeting 2021 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 澄川貴志
2. 発表標題 微小スケール金属の疲労実験と組織観察
3. 学会等名 日本金属学会研究会No.82 "微小領域の力学特性評価とマルチスケールモデリング" (招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Takashi Sumigawa
2. 発表標題 Fatigue of Micro-sized metals
3. 学会等名 5th International Conference on Structural Integrity and Durability (ICSID 2021) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 澄川貴志
2. 発表標題 マイクロスケールの金属の疲労
3. 学会等名 第10回RC287「新時代の電子デバイスと電子機器における信頼性設計評価と熱設計に関する研究分科会」(招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 角田純平
2. 発表標題 面外方向にV-V dimer構造を有するV02単結晶ナノ薄膜のモット転移に及ぼす面内単軸ひずみの影響
3. 学会等名 日本材料学会 第7回材料WEEK
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 小川博己
2. 発表標題 マイクロ銅単結晶の疲労に及ぼす異材界面の影響
3. 学会等名 日本材料学会 第7回材料WEEK
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 高田 聡志
2. 発表標題 [0 0 1] 多重すべり方位を有するマイクロ銅単結晶の引張圧縮疲労損傷過程のその場観察
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 大村知輝
2. 発表標題 設計可能な引張剛性を有するメタマテリアルの開発
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 角田純平
2. 発表標題 TiO ₂ (001)基板上VO ₂ 単結晶ナノ薄膜のモット転移に及ぼす面内単軸ひずみの影響
3. 学会等名 第6回マルチスケール材料力学シンポジウム
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 飛世昂大
2. 発表標題 引張圧縮繰返し負荷を受けるマイクロNi単結晶の疲労挙動とその寸法依存性
3. 学会等名 第6回マルチスケール材料力学シンポジウム
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 澄川貴志
2. 発表標題 ナノ・マイクロ材料の力学特性評価実験
3. 学会等名 日本材料学会 第69期第1回マルチスケール材料力学部門委員会（招待講演）
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 澄川貴志
2. 発表標題 マイクロ金属の引張圧縮疲労特性
3. 学会等名 溶接学会 第131回マイクロ接合研究委員会（招待講演）
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 川勝信貴
2. 発表標題 引張圧縮繰返し負荷を受けるマイクロNi単結晶の疲労挙動とその寸法依存性
3. 学会等名 日本機械学会 関西支部第96期定時総会講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 河村啓
2. 発表標題 V02ナノ薄膜におけるモット転位温度の面内単軸ひずみ負荷応答
3. 学会等名 日本機械学会 関西支部第96期定時総会講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 高田 聡志
2. 発表標題 [001]多重すべり方位を有するマイクロ銅単結晶の引張圧縮疲労挙動
3. 学会等名 日本材料学会 第6回材料WEEK
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 大村 知輝
2. 発表標題 円孔欠陥を有する飛び移り座屈構造メカニカルメタマテリアルの力学応答
3. 学会等名 日本材料学会 第6回材料WEEK
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

京都大学大学院 エネルギー科学研究科 エネルギー変換科学専攻 エネルギー材料設計研究室
<http://www.force.energy.kyoto-u.ac.jp/>

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	嶋田 隆広 (Shimada Takahiro) (20534259)	京都大学・工学研究科・教授 (14301)	

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			
中国	ハルビン工業大学	浙江大学	華東理工大学	他2機関
ノルウェー	ノルウェー科学技術大学			