

原子サイズの機械加工とその可視化

Atomistic mechanical processing and its direct visualization

研究代表者

名古屋大学難処理人工物研究センター 講師 木塚徳志
Res. CWE, Nagoya Univ. Tokushi Kizuka

The processes of atomistic mechanical processing were performed and directly observed *in situ* by time-resolved high-resolution transmission electron microscopy at spatial resolution of 0.1 nm and time resolution of 1/60 s.

Nanometer-sized tips of gold and silicon approached, and were contacted, bonded, deformed and fractured inside a 200 kV electron microscope using a piezo-driving. Contact boundaries of a few atomic columns width in gold, silicon/silicon-oxide/silicon tunnel junctions, and quantum dots of silicon/gold-cluster/silicon were produced. A few layers near the surfaces and contact-boundaries were responsible for the bonding and separation processes. Atomic scale contact or non-contact type surface-scanning similar to that in scanning probe microscopy was performed by the same method. The mechanical removal of one atomic layer was also demonstrated. New kinds of atomic scale mechanical tests, such as friction test, compressing, tensile and shear deformation tests were proposed.

1. 研究目的

物体間に力が働くと、接近、接触、変形、破断が生じる。また、これらの素過程が複合し、接合、摩擦、摩耗として現れる。このような力学現象が日常の生活、材料科学、物理学に密接に関連していることは、良く知られている。その理解は、視点を細かくしていくほど、難しくなり、現象の顕微鏡観察が不可欠になってくる。最近では、特に原子スケールの視点からみたこのような力学現象が、先端科学でも注目されている。走査プローブ顕微鏡の探針-表面間の相互作用や、量子化された電気伝導特性を示す原子サイズの点接触の構造変化などがその例である。

本研究では原子レベルの変形や切削などの機械加工、または接合が可能なピエゾ駆動方式の特殊電子顕微鏡試料ホルダーを開発した。この試料ホルダーと原子直視観察法を組み合わせ、原子サイズの機械加工や接合などの原子運動過程を実空間で直接

明らかにした。

2. 研究経過

図1は著者が開発したピエゾ素子駆動方式の電子顕微鏡サイドエントリー型試料ホルダーと動的観察システムの模式図である(1-2)。可動側試料支持台は、微小変位用の円筒状ピエゾ素子と粗動変位用のモーターに接続している。モーターによって、可動側試料をx方向に最大±1mm変位できる。この粗動機構は、引張り変形試料ホルダーの変形方式と同じである。x方向の微小変位を、ピエゾ素子のこの方向に沿った均一な伸縮によって調節できる。ピエゾ素子駆動によるx方向の最大変位量は、1.2mmである。電圧に対する変位量は、28mV印可時に0.16nmである。このホルダーの変位分解能は、最小変位量によって示される。現在、著者が使用しているピエゾ駆動電源の最小電圧ステップは、0.5mVであるから、その最小変位量は、0.003nm程度になる。yおよびz方向の微小変位は、ピエゾ素子

の片側の伸縮によって調節される。y 方向の最大変位量は、11.4nm である。電圧に対する変位量は、3.5mV 印可時に、0.22nm である。最小変位量は、0.5mV 印可時の 0.03nm 程度になる。電子線入射方向と平行な z 方向の最大変位量と最小変位量は、y 方向のそれと同様である。ピエゾ駆動電源の電圧ステップを細かくすれば、変位分解能は、さらに改善されるが、現在、それはすでに観察の空間分解能の 1/50~1/5 になっている。最小間隔で変位させても、それを直接確認することはできない。現在の空間分解能程度で観察する限り、変位の精度は十分といえる。またピエゾ素子によって±100nm 変位させた後の履歴による移動量は、x、y 方向それぞれ 1.3nm、2.5nm である。原子レベルの接合や変形を繰り返すときに、履歴は全く問題にならない。

次に紹介する観察例では、多結晶の金線を試料として用いている。2つの試料の先端をそのまま、もしくはアルゴンイオン照射によって研磨して、それらが向かい合うようにピエゾ素子試料ホルダーの可動側、および固定側試料支持台に固定する。この試料ホルダーを 200kV の高分解能透過電子顕微鏡に入れ、ピエゾ素子を駆動して、図 1 のような力学現象を起こす。その過程をその場で高分解能観察する。

3. 研究成果

力学現象の観察例

図 2 は、ナノメートルサイズの 2 つの金先端を常温で接触-破断させたときの過程を、連続的に観察した高分解能像である(3)。接触前、試料ホルダーの移動側と固定側の試料台に固定した 2 つの金線の先端は、1~2nm 幅に尖鋭化している(図 2(a))。ピエゾ素子を駆動して、移動側試料の位置を 3 軸方向に原子スケールで制御しながら、移動側試料を固定側試料に接近させる。この場合、先端が初めて接触するのは、単純な位置移動によってではない。接触の寸前に

表面原子拡散や原子放出により、まず 1~2 原子幅の接触境界が形成される。その後、境界の幅は 3 原子間隔に増加する(図 2(b))。移動側試料を、さらに固定側試料の方向へ変位させると、接触境界近傍で格子すべりが生じ、接触領域の幅はさらに増加する(図 2(c))。次に逆方向に、移動側試料を変位させると、その方向にすべり変形する(図 2(d))。このとき、2つの結晶の相対位置は、図 2(b)のときとほぼ同じであるが、その幅は、図 2(b)のときに比べ増加している。つまり、変形によって、原子が境界近傍に集積している。変形中にネック成長が生じたことになる。このことは、明らかに 2 つの金が常温においても接触によって結晶学的に接合することを示している。移動側試料を、さらに引張り側に変位させると、境界は{111}にそってすべり変形し、その後、構造安定化が生じる。先端の方位関係によっては、すべり変形の他にも、双晶形成が現れる。すべり変形、双晶形成と構造安定化が繰り返されて、最終的に数原子幅の細長い接合境界(くびれ)が形成される(図 2(e))。これが、走査トンネル顕微鏡で、探針を試料表面に接触させ、引き上げた際に観察される糸状接合部である。幅が狭いために、電圧を印可すると、整数、もしくは分数の量子コンダクタンスを示す。移動側試料をさらに引張ると、このくびれの幅は、1 原子間隔ずつ減少していき、最後に破断する。破断後、くびれを構成していた原子は両側の結晶表面に拡散し、くびれは消失する(図 2(f))。消滅後の先端は、この接触-破断過程の前に比べると、数原子程度伸びている。走査トンネル顕微鏡などで、ナノチップを試料表面に接触させて量子ドットを作製するときには、この伸張を利用している。以上のように清浄表面をもつ結晶同士の接触では強固な境界が形成され、くびれが現れる。また、このように、常温での清浄表面をもつ金の接触と破断には、表面と境界近傍の数原子層だけが関与

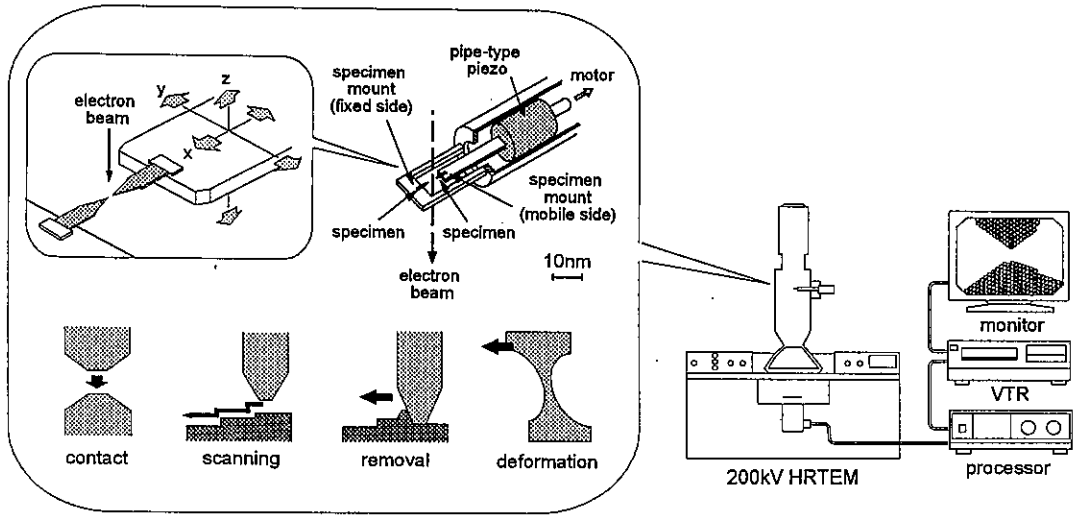


図1：ピエゾ素子駆動方式の電子顕微鏡サイドエントリー型接触・変形試料ホルダーと動的電子顕微鏡観察システムの模式図。

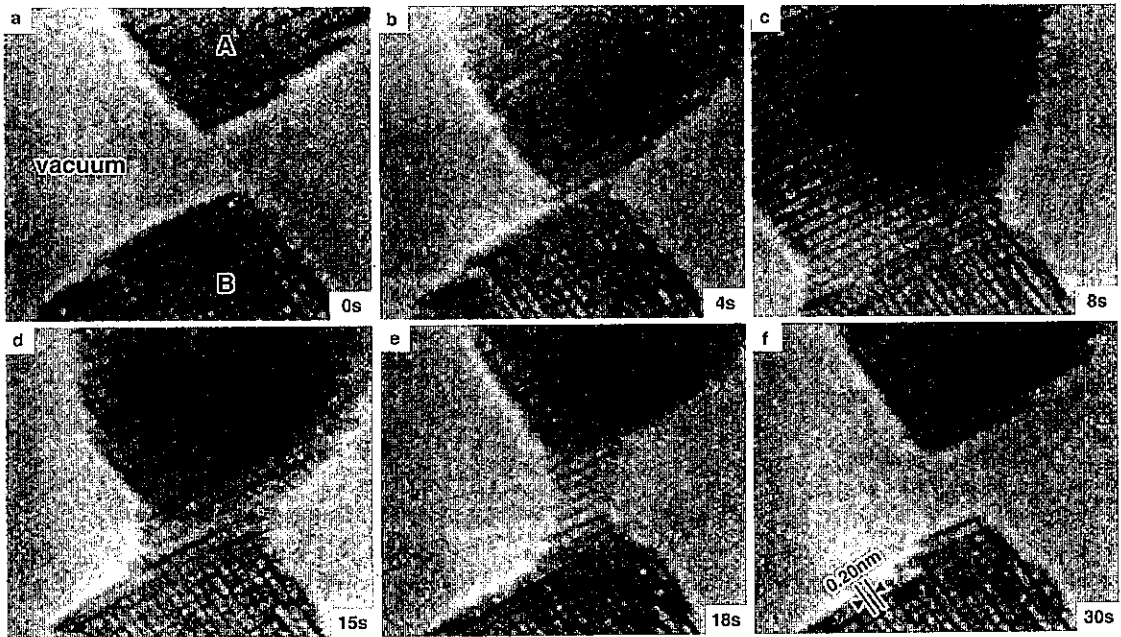


図2：金先端の接近、接触、接合、変形および破断過程の高分解能観察像。

する。

ここでは、金の接触の例だけを紹介したが、この他、非接触型の表面走査、接触型の表面走査（摩擦）、表面原子操作、単結晶変形、多結晶変形（粒界すべり）等も観察されている。また、シリコンやカーボンナノチューブなど試料を変えても、同様な実験は可能である。接触や摩擦のように、静的観察では推測できない現象を、直接観察できるところが本観察法の魅力である。

4. 今後の課題と発展

これまで、機械加工時の構造変化だけに注目してきた。今後はその時に印可されている応力を実測する。構造、応力の同時観察によって、原子サイズの材料力学を研究する礎を構築することを目指す。

5. 発表論文リスト

1. Direct atomistic observation of deformation in multiwalled carbon nanotubes, Tokushi Kizuka, *Phys. Rev.* **B59** (1999) 4646-4649.
2. *In-situ* high-resolution transmission electron microscopy of direct bonding processes between silicon tips with oxide surfaces at room temperature, Tokushi Kizuka et al., *Appl. Phys. Lett.*, **75** (1999) 1743-1745.
3. Atomic scale electron beam processing, Tokushi Kizuka et al., *Jpn. J. Appl. Phys.*, **38** (1999) 1595.
4. Direct atomistic observation of grain boundary sliding - I. gold Tokushi Kizuka et al., *Mat. Sci. Forum*, **304-306** (1999) 555-560.
5. Direct atomistic observation of grain boundary sliding - II. silicon Tokushi Kizuka et al., *Mat. Sci. Forum*, **304-306** (1999) 561-566.
6. Direct Atomistic Observation of Growth and Related Structural Dynamics of Gold Clusters on Magnesium Oxide Tokushi Kizuka, *Current Topics in Crystal Growth Research*, Vol. 5 (Research Trends, Trivandrum, India, 1999) p91-106.
7. Structure of nanocrystalline Ag/ZnO, Ag/WO₃, and Ag/Alumina composites prepared by gas evaporation and *in situ* compaction Tokushi Kizuka, *Jap. Inst. Met.* **40** (1999) 1038-1043.
8. Atomic processes of grain boundary migration and phase transformation in zinc oxide nanocrystallites Tokushi Kizuka, *Phil. Mag. Lett.*, **79** (1999) 417-422.
9. Atomistic solid junction in time-resolved high-resolution transmission electron microscopy Tokushi Kizuka, *Solid Junction*, (1999, Springer) accepted.
10. Atomistic formation process and electric conductance of Au/Au point-contact boundaries Tokushi Kizuka and Satoru Fujisawa, *Proc. Int. Symp. Advanced Nanoelectronics: Devices, Materials and Computing*, 2000, 3, 14-15, The Institute of Scientific and Industrial Research, Osaka, in print (Invited)
11. Atomistic formation process of Si/Si tunnel junctions and Si/Au/Si quantum dots by mechanical contact Tokushi Kizuka and Kazue Hosoki, *Proc. Int. Symp. Advanced Nanoelectronics: Devices, Materials and Computing*, 2000, 3, 14-15, The Institute of Scientific and Industrial Research, Osaka, in print (Invited)