

Title	長辺振動水晶振動子を備えたその場透過型電子顕微鏡による原子スケール力学の研究
Author(s)	張, 家奇
Citation	
Issue Date	2021-03
Type	Thesis or Dissertation
Text version	ETD
URL	http://hdl.handle.net/10119/17483
Rights	
Description	Supervisor:大島 義文, 先端科学技術研究科, 博士

氏 名	ZHANG, Jiaqi
学 位 の 種 類	博士(マテリアルサイエンス)
学 位 記 番 号	博材第 509 号
学 位 授 与 年 月 日	令和 3 年 3 月 24 日
論 文 題 目	A study of atomic scale mechanics by in situ transmission electron microscopy with a quartz length-extension resonator
論 文 審 査 委 員	主査 大島 義文 北陸先端科学技術大学院大学 教授
	富取 正彦 同 教授
	安 東秀 同 准教授
	本郷 研太 同 准教授
	長谷川 幸雄 東京大学 物性研究所 教授

論文の内容の要旨

In this thesis, the mechanical properties of Pt and Au nanocontacts (NCs) are investigated by in situ transmission electron microscopy (TEM) observation combined with length-extension resonator (LER) to obtain structural information simultaneously with measuring the spring constant (force constant) and conductance measurements.

The Pt and Au NCs were fabricated with our developed *in situ* TEM holder, which equipped with a quartz length-extension resonator (LER) as a force sensor to examine the elastic properties of atomic-scale materials. The spring constants were determined based on shifts in the resonance frequency of the LER during TEM observation. The mechanical stability of our developed TEM holder was sufficient to allow chains of Pt atoms in the NC to be maintained for at least several seconds. This holder shows high mechanical stability therefore has significant potential with regard to the characterization of nanoscale mechanical properties.

Using our developed holder, we precisely determine the individual bond spring constant in tip-suspended platinum (Pt) monatomic chains using transmission electron microscopy combined with force spectroscopy enabled by a quartz length-extension resonator. We synthesize ~150 Pt monatomic chains consisting of 2–5 atoms. The single bond spring constant at the middle of chain is estimated to be 25 N/m, while that of the bond to the suspending tip is 23 N/m. The chain spring constant shows plateau-like behavior during stretching process, similarly to the quantized conductance. These characteristics including the breaking point are explained by the configurations minimizing the calculated string tension.

In addition, the deformation process and size effect on the Young's modulus of Au nanojunctions with diameter below 3 nm along the [111] direction is evaluated. The narrowest part of the plastic ultrathin nanocontacts becomes thinner under stretch while the angle of the pyramidal shape Au tips still constant. Such deformation process indicates the volume of the nanocontact is not constant and the additional atoms are migrating to the contact area through surface diffusion. The Young's modulus, which is calculated from the spring constant and corresponding

geometrical information of the nanocontact, is found to be gradually decrease when the size is reduced. The size dependence of the Young's modulus can be explained by a core-shell model, which shows that the shell of 1 atom layer in thickness has very low Young's modulus (~ 25 GPa) and the core has the similar value to the one of bulk [111] Au crystal. These results are in consistent of the observation of surface atom diffusion and indicate that the surface atoms play an important role in the mechanical properties of ultrathin nanomaterials.

Finally, the influence of dislocation on the mechanical properties for Au crystal has been studied. An edge dislocation was found to be appeared and disappeared repeatedly in the Au nanowire when it was stretched. The dislocation would be climbed up during stretching, and the new atom layer will be formed leading to elimination of the dislocation. The spring constant of the nanocrystal will be largely reduced when the dislocation is formed and recover to the normal value after the dislocation is eliminated.

In conclusion, mechanical properties of atomic scale materials are investigated by our homemade TEM holder. Our result indicate that the atomic scale shows unique mechanical properties than the bulk one. The understanding of mechanics in atomic scale provide essential information for fundamental understanding and applications such as future atomic scale devices and catalyst.

Keywords: structure-dependent electronic properties, suspended graphene nanoribbons, in-situ TEM observation, nonequilibrium phase transitions, restructure

論文審査の結果の要旨

ナノ・原子スケールにおける力学的性質は、摩擦の理解からナノ電気機械システムの開発に至る広い範囲で重要なため大変注目されている。この性質は、バルク材料の力学的性質と異なり、結晶方位やサイズに敏感であることが指摘されており、その理解には、力学的性質の測定と同時に構造を把握する必要がある。このような測定法はこれまでも開発が試みられているが、まだ信頼性のある結果が得られていない。

本研究では、長辺振動水晶振動子 (Length Extension Resonator (LER)) を組み込んだ透過型電子顕微鏡 (TEM) ホルダーを開発し、Pt や Au ナノ接点の構造を観察しながら、同時に、その力学的性質を LER センサーによって検出することを行っている。LER センサーにより、わずか 25pm 程度という小さい振幅で共振させることで、このセンサーと固定電極間に金属ナノ接点を形成することによって生じる共振周波数シフトからナノ接点の等価バネ定数を得ることが出来る。このような力学的性質を計測できる TEM ホルダーは、世界的にみても類がなく、さらに、原子スケールの接点を安定して形成するために施されたいくつかの工夫によって電極の剛性が高くなっている点でもオリジナリティーが認められる。

ナノ接点の等価バネ定数を正確に測定するため、LER の熱ノイズ計測、および、TEM 観察による LER 振幅計測から、LER の感度 (変位に対する発生電荷量)、および、等価バネ定数の正確な評価を行っ

た。この結果、約 1N/m 程度の分解能で等価バネ定数を計測できることが分かった。

2～5 個の原子からなる Pt 単原子鎖について約 150 個のばね定数を測定し、電極のばね定数を差し引くことで、そのばね定数がそれぞれ 23, 12, 8, 6 N/mであることを明らかにした。さらに、Pt 原子鎖中央における原子間結合のばね定数は 25N/m、エッジ原子との結合のばね定数は 23 N/m であること、さらに、この原子間結合は 0.25 nm から最大 0.31nm まで伸びて破断することを明らかにした。この結果を第一原理計算と比較し、この Pt 単原子鎖の力学的性質が熱力学的な「張力」という概念で理解できることを示した。また、Au(111)接点ヤング率のサイズ依存性を測定し、この依存性から接点表面原子層のヤング率が 22.2 Gpa、コアのヤング率が 130.2Gpa と見積もった。これは、表面原子層が表面融解などから推測できるように柔らかいことを示しており、物理的に妥当な結論と考えられる。

以上、本論文は、LER センサーを組み込んだ透過型電子顕微鏡 (TEM) ホルダーを開発し、Pt 単原子鎖のバネ定数や個々の原子間結合のバネ定数を求め、さらに、Au(111)接点ヤング率のサイズ依存性の測定にも成功しており、学術的に貢献するところが大きい。よって博士(マテリアルサイエンス)の学位論文として十分価値あるものと認めた。