

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 25 年 6 月 7 日現在

機関番号：14401

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2011～2012

課題番号：2 3 6 5 4 1 0 1

研究課題名（和文）ヘリウム中における超伝導微粒子の光による作製と選別

研究課題名（英文）Optical fabrication and selection of superconductor fine particles in liquid helium

研究代表者

芦田 昌明 (ASHIDA MASAOKI)

大阪大学・基礎工学研究科・教授

研究者番号：6 0 2 4 0 8 1 8

研究成果の概要（和文）：高強度レーザーを照射して物質の表面を破壊する手法であるレーザーアブレーションを金属に対して液体ヘリウム中で行い、金属微粒子が作製できることを見いだした。さらに、生成された微粒子の飛散状況を調べ、超流動ヘリウム中では数時間のオーダーで微粒子が浮遊していることを確認し、その運動を光照射で制御できることも確かめた。

一方、液体あるいは気体ヘリウム中に磁場勾配を設けることで、マイスナー効果を利用して超伝導体の粉末を特定の場所に捕捉することにも成功した。

研究成果の概要（英文）：Laser ablation of metal targets in superfluid helium was performed with a Q-switched Nd:YAG laser and provides a novel opportunity to obtain nano- and micro-particles with high crystalline quality. In addition, optical manipulation of fabricated metal nanoparticles was successfully performed in superfluid helium, so that only the smaller particles were selectively transported. On the other hand, we succeeded in the magnetic trap of superconductor particles due to Meissner effect.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
交付決定額	2,800,000	840,000	3,640,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・物性 I

キーワード：光物性、応用光学・量子光工学、レーザーアブレーション、光ピンセット、ナノ材料、超流動ヘリウム、金属、超伝導

1. 研究開始当初の背景

超伝導体の微小化は、磁場侵入長やコヒーレンス長との比較、さらにサイズ量子化に伴うエネルギー準位間隔が超伝導ギャップより大きくなるナノスケールにおける安定性など、多くの興味を惹いてきた。これまでは単体金属を対象とした実験が主で、Al, In, Pbなどで粒径を小さくすることによる転移温度の上昇や臨界磁場の増大などが観測されているものの、共通の理解には至っていない。特に、単一ナノ微粒子を対象としたものはSTMによる実験などわずかな例しかない。一方、研究代表者らは、超流動ヘリウム中でレーザーアブレーションを行うことにより、

ワイドギャップ半導体 CuCl のナノ粒子の作製を行い、共鳴光を照射することで、サイズ、すなわちエネルギー準位が選別された粒子群を移動させる、いわゆる光マニピュレーションに初めて成功し、しかも、その際に粒子の凝集が回避されることも分かった。従って、本手法はナノ粒子の作製・選別、単一測定に有用であるものと考えられた。ナノ粒子生成の機構は未解明であるが、透過型電子顕微鏡による観察で結晶性の良いものも得られていることから、固体表面から脱離した高温のクラスター等は周囲が気体ヘリウムに囲まれ、ガス中蒸発法に似た環境になっているものと推測している。またこれまで、ZnO、

In, Ca等のナノ結晶の作製にも成功していた。従って、他の金属や遷移金属酸化物のナノ結晶も作製できるものと判断した。さらに、ヘリウム中でマイスナー効果による金属超微粒子の浮遊が観測されていること、金属は大きな分極を示すため、溶液中でも金属ナノ粒子の光マニピュレーションが行われていることが本計画立案の背景であった。

2. 研究の目的

液体や気体ヘリウム中でマイスナー効果とレーザーアブレーション、光マニピュレーション技術などを組み合わせることで、金属超伝導微粒子、特に超伝導ナノ粒子を作製、選別、配列する技術を開拓することを目的とする。この際、常伝導体や転移温度が低いものを分離し、さらに転移温度による選別も目指す。こうして得られる超伝導微粒子を用いて単一粒子測定も試み、転移温度、臨界磁場などの粒径依存性を明らかとし、超伝導が現れる最小サイズ、その原因解明など、基本的問題の解決にも挑戦する。

3. 研究の方法

液体あるいは気体ヘリウム中でレーザーアブレーションを行い、超伝導材料のナノ粒子を作製する。この際、マイスナー効果で超伝導を示すもののみを浮遊させ、そこにマニピュレーション用レーザーを照射して輻射力によりSi基板上に輸送し、超伝導体のみを選別する。また、雰囲気温度を変化させ、転移温度の高いもののみを選別することも試みる。一方、こうした手法に最適なレーザーの諸条件を明らかとする。また、作製した粒子群の電子顕微鏡観察、及び磁化率測定によって、形状、結晶構造、組成、及び超伝導転移温度や臨界磁場を評価する。

4. 研究成果

In, Ti, Cuなどを対象として、レーザーアブレーションを空气中、真空中、液体ヘリウム中で行い、いずれの環境下でも金属ナノ粒子が作製できることを見いだした。さらに、生成されたナノ粒子を含む微粒子の飛散状況を調べ、超流動ヘリウム中では数時間のオーダーで微粒子が浮遊していることを確認した。

上記の結果を受け、超流動ヘリウム中でレーザーを照射することにより、より粒径の小さな集団のみを選別して、センチメートル程度離れた位置に輸送、すなわち光マニピュレーションを行うことを試みた。走査型電子顕微鏡による観察で、アブレーションで得られた非常に広い粒径分布と異なり、粒径数百nm以下のナノ粒子のみが光マニピュレーションされることを明らかとした。

一方、液体あるいは気体ヘリウム中に磁場

勾配を設けることで、マイスナー効果を利用して超伝導体の粉末を特定の場所に捕捉することにも成功した。この結果を受け、高温超伝導体酸化物のレーザーアブレーションによるナノ粒子作製とそれに続く光マニピュレーションを試みた。しかしながら、アブレーションの際、価数変化が生じている可能性を見だし、その詳細の解明が必要なことが明らかとなった。この件を解決して、再度本研究を遂行する予定である。

他方、本研究で活用した電子線照射に伴う発光であるカソードルミネッセンスを他の対象にも適用し、ナノ酸化物の光学応答やナノ蛍光体による細胞イメージングへの応用についても端緒を得た。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計2件)

1. A. N. Hattori, M. Ichimiya, M. Ashida, and H. Tanaka, ZnO nanobox luminescent source fabricated by three-dimensional nanotemplate pulsed-laser deposition, Appl. Phys. Express, 5, 125203 (2012).

2. H. Niioka, T. Furukawa, M. Ichimiya, M. Ashida, T. Araki and M. Hashimoto, Multicolor Cathodoluminescence Microscopy for Biological Imaging with Nanophosphors, Appl. Phys. Express 4, 112402(3), (2011).

[学会発表] (計22件)

1. M. Ashida, "Optical Fabrication and Manipulation of Nanoparticles", 2012年12月11日, Regional Annual Fundamental Science Symposium 2012 (RAFSS 2012) (Persada Johor International Convention Centre, Johor Bahru, Malaysia), 招待講演

2. 新岡宏彦, 古川太一, 一宮正義, 永田智啓, 荳田昌明, 荒木勉, 橋本守, "希土類添加 Y2O3 ナノ蛍光体を用いたマルチモーダル蛍光・CL細胞イメージング", 2012年11月27-29日, 平成24年度日本分光学会国際シンポジウム・年次講演会(東京工業大学百年記念館)

3. 新岡宏彦, 古川太一, 一宮正義, 永田智啓, 荳田昌明, 荒木勉, 橋本守, "希土類添加ナノ蛍光体粒子を用いた蛍光・CL細胞イメージング", 2012年10月24-25日, 生理研研究会・電子顕微鏡機能イメージングの医学・生物学への応用「高次機能イメージングの最先端」(自然科学研究機構岡崎コンファレンス)

- センター), 招待講演
4. A. N. Hattori, M. Ichimiya, M. Ashida, and H. Tanaka, "Extremely small luminescent ZnO nanobox structure fabricated by three-dimensional nanotemplate pulsed-laser deposition", 2012年9月30日-10月3日, The 19th Workshop on Oxide Electronics (WOE19) (Apeldoorn, The Netherlands)
 5. 長谷川亮介, 若松龍太, 小泉淳, 大淵博宣, 一宮正義, 李東建, 寺井慶和, 本間徹生, 荳田昌明, 藤原康文, "OMVPE法によるEu添加GaNの選択成長と発光特性評価", 2012年9月29日, 日本材料学会半導体エレクトロニクス部門委員会平成24年度第1回研究会(和歌山大学)
 6. 新岡宏彦, 古川太一, 一宮正義, 永田智啓, 荳田昌明, 荒木勉, 橋本守, "光学顕微鏡とカソードルミネッセンス顕微鏡を用いたマルチモーダル細胞イメージング", 2012年9月22日-24日, 第50回日本生物物理学会年会(名古屋大学)
 7. T. Furukawa, H. Niioka, M. Ichimiya, T. Nagata, M. Ashida, T. Araki, and M. Hashimoto, "Multimodal Imaging via Light Microscopy and Cathodoluminescence Microscopy for Biological Specimens with Rare-earth Doped Nanophosphors", 2012年9月10日-13日, 第73回応用物理学会学術講演会(愛媛大学)
 8. 新岡宏彦, 古川太一, 一宮正義, 永田智啓, 荳田昌明, 荒木勉, 橋本守, "高輝度ナノ蛍光体粒子を用いたカソードルミネッセンス細胞イメージング", 2012年6月14-16日, ナノ学会第10回大会(大阪大学会館)
 9. 新岡宏彦, 古川太一, 一宮正義, 荳田昌明, 荒木勉, 橋本守, "ナノ蛍光体粒子とカソードルミネッセンス顕微鏡を用いたマルチカラー生体イメージング", 2012年5月14-16日, 日本顕微鏡学会第68回学術講演会(つくば国際会議場), 招待講演
 10. T. Furukawa, H. Niioka, M. Ichimiya, T. Nagata, M. Ashida, T. Araki, and M. Hashimoto, "Well-dispersed nanophosphors for cathodoluminescence microscopy produced by using laser ablation method", 2012年4月1日-4日, Focus on Microscopy 2012 (FOM2012) (Singapore)
 11. H. Niioka, T. Furukawa, M. Ichimiya, M. Ashida, T. Araki, and M. Hashimoto, "Multicolor cathodoluminescence imaging for biological cells with using nanophosphors", 2012年4月1日-4日, Focus on Microscopy 2012 (FOM2012) (Singapore)
 12. 板東真一郎, 岡本慎也, 那脇洋平, 藁輪陽介, 荳田昌明, "金属微粒子の光マニピュレーション" 2012年3月24-27日, 日本物理学会第67回年次大会(関西学院大学 西宮上ヶ原キャンパス)
 13. 鈴木伸明, 山本広大, 東川優理奈, 榎本勝成, 松島房和, 熊倉光孝, 荳田昌明, 森脇喜紀, "超伝導微粒子の空間捕捉", 2012年3月24-27日, 日本物理学会第67回年次大会(関西学院大学 西宮上ヶ原キャンパス)
 14. 服部 梓, 一宮正義, 荳田昌明, 田中秀和, "3次元ナノテンプレートPLD法で作製した単一ZnOナノ構造からの高輝度発光", 2012年3月15-18日, 第59回応用物理学関係連合講演会(早稲田大学 早稲田キャンパス)
 15. 新岡宏彦, 古川太一, 一宮正義, 荳田昌明, 荒木勉, 橋本守, "ナノ蛍光体を用いた多色カソードルミネッセンス細胞イメージング", 2012年3月6日, 日本顕微鏡学会バイオメディカルニューマイクروسコープ分科会平成23年度シンポジウム講演会(帝京大学), 招待講演
 16. 新岡宏彦, 古川太一, 一宮正義, 荳田昌明, 荒木勉, 橋本守, "ナノ蛍光体粒子を用いたカソードルミネッセンス生体イメージング", 2012年2月21-22日: 第3回デザインバイオニクス講演会(大阪大学)
 17. H. Niioka, T. Furukawa, M. Ichimiya, M. Ashida, T. Araki, and M. Hashimoto, "Super-resolution imaging of nanophosphors via cathodoluminescence microscopy for biological imaging", 2011年11月30-12月2日, 平成23年度日本分光学会年次講演会(理化学研究所横浜研究所)
 18. 新岡宏彦, 古川太一, 一宮正義, 永田智啓, 荳田昌明, 荒木勉, 橋本守, "分散化ナノ蛍光体粒子を用いたカソードルミネッセンス生体イメージング", 2011年11月28-30日, 第20回日本光学会年次学術講演会(大阪大学コンベンションセンター)
 19. 古川太一, 新岡宏彦, 一宮正義, 永田智啓, 荳田昌明, 荒木勉, 橋本守, "ナノ蛍光体粒子を用いたマルチカラー生体カソードルミネッセンスイメージング", 2011年11月28-30日, 第20回日本光学会年次学術講演会(大阪大学コ

ンベンションセンター)

20. 古川太一、新岡宏彦、一宮正義、芦田昌明、荒木 勉、橋本 守, "カソードルミネッセンスを用いた細胞の超解像イメージング" 2011年8月29-9月2日, 第72回応用物理学会学術講演会(山形大学小白川キャンパス)
21. 古川太一、新岡宏彦、一宮正義、芦田昌明、荒木 勉、橋本 守, "カソードルミネッセンスを利用した生体細胞の超解像イメージング手法", 2011年7月6-8日, 第37回レーザ顕微鏡研究会(理化学研究所)
22. 芦田昌明, "ナノ粒子の光マニピュレーション -光で創る・光で操る-", 2011年6月3日, 日本物理学会北陸支部特別講演会(福井大学文京キャンパス), 招待講演

6. 研究組織

(1) 研究代表者

芦田 昌明 (ASHIDA MASA AKI)
大阪大学・基礎工学研究科・教授
研究者番号: 6 0 2 4 0 8 1 8

(2) 研究分担者

松原 英一 (MATSUBARA EIICHI)
大阪大学・基礎工学研究科・講師
研究者番号: 1 0 4 2 1 9 9 2