

機関番号：32682

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2011～2013

課題番号：23540469

研究課題名(和文) 生体物質を利用した原子光学素子の開発

研究課題名(英文) Atom optical element synthesized by biomaterials

研究代表者

立川 真樹 (Tachikawa, Maki)

明治大学・理工学部・教授

研究者番号：60201612

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,000,000円、(間接経費) 1,200,000円

研究成果の概要(和文)：原子光学は、回折や干渉などの光学現象を原子波で実現するものである。回折格子などの光学素子が μ オーダーの周期構造をもつものに対して、原子線のドブロイ波長は極めて短く、同様の原子光学素子にはナノメートルレベルの周期構造が要求される。そこで我々は、生体物質が合成し自己組織化によって配列させる磁性ナノ粒子アレイに着目し、磁性粒子配列が形成する周期的ゼーマンポテンシャルを利用して、物質波に対する回折格子を開発する。本研究では、原子線散乱実験のための基盤技術として、レーザー冷却によってコヒーレントなCs低速原子ビームを生成するとともに、酸化鉄結晶(Fe₃O₄)を内包するフェリチンの2次元結晶化法を開発した。

研究成果の概要(英文)：Atom optics deals with optical phenomena of atomic beams, such as diffraction and interference, caused by the wave nature of matter. Diffraction gratings in optics have lattice constants of the order of microns. Correspondingly, those in atom optics require periodic structures of the order of nanometers since de Broglie wavelengths of atoms are extremely short. Our final goal is to develop an atom-optical grating with a 2-dimensional magnetic nanoparticle array synthesized and organized by biomaterials. The periodic Zeeman potential produced by the magnetic nanoparticles works as a reflective grating for atoms with spins. Towards the atom scattering experiment, we constructed a slow and coherent Cs beam source using laser cooling and trapping techniques. We also developed a new method of producing a 2-dimensional single crystal of ferritins, each of which contains a Fe₃O₄ nanoparticle.

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・原子・分子・量子エレクトロニクス

キーワード：原子光学 レーザー冷却 蛋白質 ナノ粒子

一方、実験の鍵となるフェリチンの2次元結晶を得るには、高純度のフェリチン蛋白質を精製しなければならない。結晶化に適したフェリチンの遺伝子を組み込んだ大腸菌を大量培養し、超音波粉碎、遠心分離、多段階のクロマトグラフィーを経て高純度に濃縮されたフェリチン成分を抽出する。これを過剰の鉄イオンの溶液中に分散すると、籠状構造の内側の空洞に進入した鉄イオンは酸化鉄として析出し、直径7 nmのコアを形成する。フェリチンには自己集積性があり、金属イオンを塩橋として結晶化する。研究分担者の吉村が独自に開発した方法により、蛋白質溶液と空気の境界にできる変性膜下にフェリチン単層膜を吸着させ、これを基板上に移しかえる。こうして取りだしたフェリチンの2次元結晶を加熱処理し、表面の蛋白質成分を蒸発させると酸化鉄のナノ粒子アレイが露出する。今回はさらに、基板上で2次元結晶化を誘導する新たな方法を開発する。

実験の最終段階では、真空チェンバー内にナノ粒子アレイをターゲットとして導入し、低速原子線の散乱実験を行う。外場により磁化した酸化鉄ナノ粒子は、約1万ボア磁子分の磁気双極子に相当する。配列内のナノ粒子同士の磁氣的相互作用は弱く、それぞれが独立した磁石として外場に応答し超常磁性を示す。ネオジム磁石上に基板を設置し双極子を垂直方向にそろえ、上空に2次元周期磁場を発生させる。双極子磁場強度はナノ粒子表面で0.5 T程度であり、入射した low-field seeking states の低速原子を非接触で散乱するのに十分な強度である。散乱された原子線は、下流のピンホールを通過後に白金線上で表面イオン化されて2次電子増倍管で高感度に検出される。マイクロメータドライブでピンホールと検出系を横方向に動かすことにより、原子線の空間分布を測定することができる。磁性アレイの格子定数から1次回折角は0.1ラジアン程度と見積もられ、冷却原子ビームの単色性をもってすれば、回折ピークを十分に分解できる。

4. 研究成果

(1) 低速原子ビームの生成

Cs の低速原子線を生成するために新たに設計・製作した真空チェンバーの概要を図3に示す。チェンバー本体はICFフランジを備えたステンレス管を組み合わせて製作されており、原子線源部(領域A)、原子線検出部(領域D)および排気系(領域B・C)から構成される。原子線源部では、ディスプレイに通電してCs蒸気を充満させ、ピラミッドMOTにより極低温原子集団を生成する。ピラミッドミラーは線源部の最奥部に設置され、その開口によって線源部と検出部が接続されている。検出部は4方向クロス管になっており、散乱実験に必要なターゲットや検出素子の導入ポートを後付けすることがで

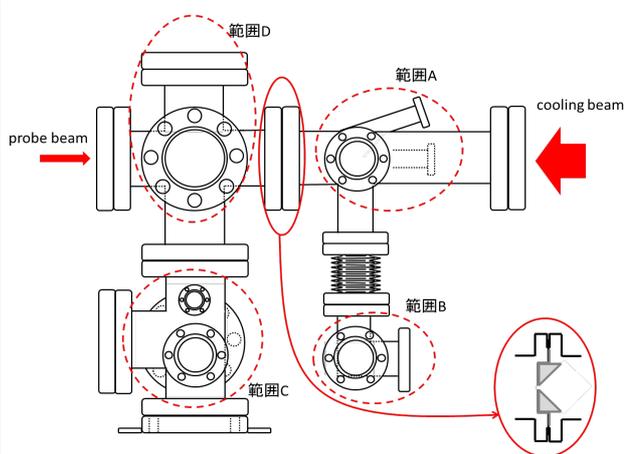


図3 真空チェンバーの概要

きる。ターボ分子ポンプによるあらかじめ引き後にイオンポンプを起動させ、 10^{-7} Paの真空度を得る。

ピラミッドMOTに捕捉されたCs原子集団を図4に示す。図中青丸で囲んだものが原子雲であり、赤丸で囲んだものはミラーへのうつり込みみである。原子雲は直径1 mm程度である。プローブ光の吸収強度から原子数密度は $1 \times 10^{10}/\text{cm}^3$ 程度、トラップを開放した時の拡散速度から原子温度は400~1000 μK であることがわかった。

この原子雲を線源としてパルス原子ビームを生成した。原子集団をトラップし、rear plugging beamをシャッターで遮断することによりパルス原子ビームを出射させる。原子ビームを観測するために、原子雲から120 mm下流でx軸方向にprobe光を入射した。原子ビームが到達するとprobe光により励起され、自然放出を起こす。自然放出光を2枚のレンズによって光電子増倍管に集光し、その出力の時間変化をオシロスコープで観測する。

加速レーザー光の強度を変化させたときのパルス原子線の飛行時間信号を図5に示す。各信号はピーク値が一致するように規格化してある。レーザー光強度が増すにつれて、原子線が速く到達するようになり、到達時間の広がり狭くなる。飛行時間信号に理論曲線をフィットさせることにより、原子線の重心速度と速度分布の指標となる原子線温度を決定することができる。加速レーザー光の強度や照射時間を調整することにより、原子

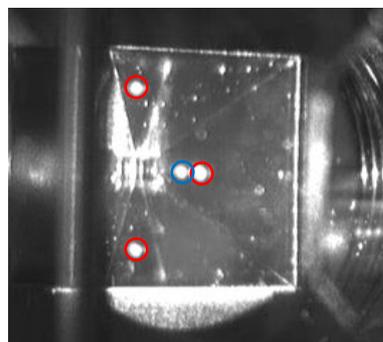


図4 MOTに捕捉されたCs原子雲

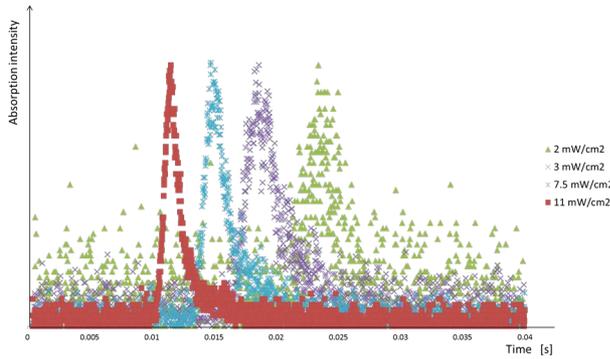


図5 パルス原子線の飛行時間信号

線の重心速度は3.5 m/s ~ 10 m/sの間で制御できることが明らかになった。対応するドブロイ波長は0.86 nm ~ 0.30 nmであり、このとき熱的ドブロイ波長は2 nm以上に保たれている。

熱的ドブロイ波長はドブロイ波長に比べて数倍以上の長さを保っており、今回生成された低速原子ビームは回折実験において有効であると考えられる。しかし、回折縞をより良い visibility で観測するためには、さらに原子線の温度を下げる必要がある。捕捉された原子雲の初期温度をさらに低温化するために、ドップラー冷却以上の冷却が可能な偏光勾配冷却 (Polarization Gradient Cooling, PGC) の導入を試みた。

PGCは、光の定在波の偏光状態が空間的に変化するとき、その中で運動する原子に働く力を利用した冷却法であり、原子が縮退した副準位を持つときに有効である。予備冷却として磁気光学トラップを行った後、磁場を遮断しレーザー光の離調を大きくすることでPGCを行うことができ、典型的には原子を数十 μK に冷却することができる。高速度カメラで原子雲の時間変化を撮影することにより、原子集団の拡散速度を評価した。図6は、1000 fpsのフレームレートで撮影した画像である。(a)はMOT形成後に磁場のみを切った場合、(b)はMOT形成後に磁場を切りPGCを行った場合である。(b)の3コマ目以降で原子雲が薄くなっているのは、PGCのために

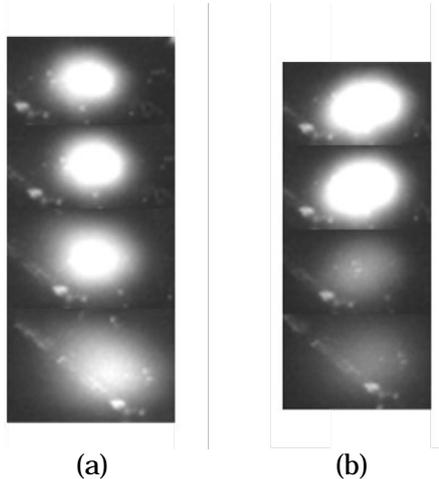


図6 原子雲が拡散する様子

冷却光の強度を弱くしたためである。前者の拡散係数は $8.4 \times 10^{-3} \text{ cm}^2/\text{s}$ であるのに対し、後者の拡散係数は $2.4 \times 10^{-3} \text{ cm}^2/\text{s}$ となっており、PGCによって原子集団の拡散が抑えられ冷却されていることが確認できた。

(2) 磁性ナノ粒子アレイの合成

フェリチンを用いて生成するナノ粒子は、バルクでは強磁性体である Fe_3O_4 の単結晶である。フェリチン蛋白質の自己組織化によってナノ粒子アレイを作成するためには、酸化鉄結晶を内包するフェリチン (マグネトフェリチン) を高濃度で精製する必要がある。鉄コアを内包しないアポフェリチンが混在すると、アレイに欠損が生じるためである。

フェリチン溶液と硫酸アンモニウム鉄 () 溶液を混合して反応させると、フェリチン空洞内に酸化鉄コアが析出する。このときArガスを溶解させておくと Fe^{2+} と Fe^{3+} が混在するようになり、 Fe_3O_4 を合成することができる。この段階ではコア形成率は50%程度であり、コアサイズも不均一である。これを特殊なカラムに通しマグネトフェリチンを分離する。今回我々は、ステンレスパウダーを分散させたカラム外部に磁石を置き、その磁場勾配でマグネトフェリチンのみをカラム内壁やステンレスパウダー表面に吸着させてアポフェリチンから分離した。その結果、ほぼ100%の精製率を得ることができ、コアサイズも6~7 nmとほぼ均一となった。小さいコアのフェリチンは吸着力が弱く残留しなかったようである。

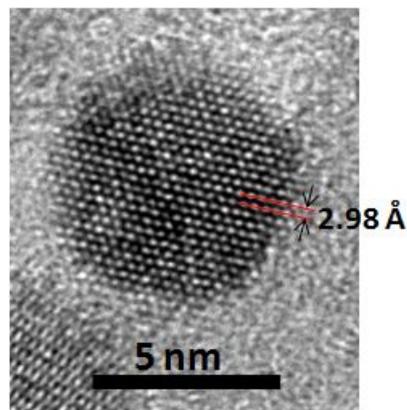


図7 鉄コアの高分解能TEM像

図7は精製したコアを高分解能透過型電子顕微鏡で観察したものである。析出したコア全体にわたって結晶性があり、格子面間隔は Fe_3O_4 の(220)面のものと一致している。電子線回折像からもコアの組成が Fe_3O_4 であることが確認できた。

精製したマグネトフェリチンを2次元結晶化してナノ粒子アレイを作成するには、これまで、溶液 - 気相界面でCdイオンを架橋にして自己組織化を促し、これを基板に転写するタンパク質変性膜法が用いられてきた。しかし、転写対象が今回目的とするSi基板の

場合、その成功率は低く再現性も悪い。そこで今回新たに、Si 基板の上にフェリチン溶液を滴下して乾燥させ、直接 2 次元結晶を作成する方法を試みた。自己組織化に必要なフェリチン同士の引力相互作用を生み出すために、ヘキシルアミンを混合する。ヘキシルアミンは親水性のアミノ基と疎水性の炭素鎖をもつ。アミノ基はフェリチン表面の負電荷を持つ部分と結合し、疎水基を外側にしてフェリチンを取り囲む。疎水性相互作用によりヘキシルアミンに囲まれたフェリチン同士が結合し 2 次元結晶を形成する。実験条件の最適化を図ったところ、疎水化処理した Si 基板の上に 1 μm 四方の 2 次元結晶が安定して作成できるようになった。図 8 はその SEM 像である。図中のフーリエ変換像からも単結晶性の良さが分かる。

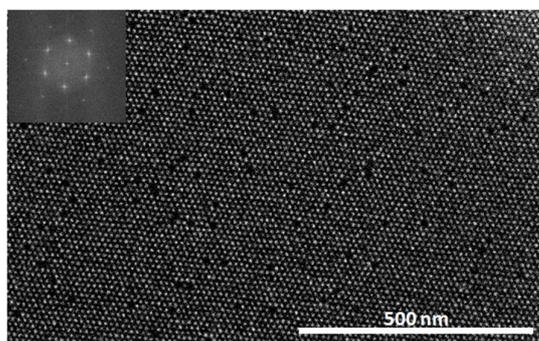


図 8 マグネトフェリチンの 2 次元結晶

(3) 現状の問題点と今後の展望

マグネトフェリチンを原子光学素子として応用するための基盤技術として、Cs 低速原子線の生成と安定性の良いフェリチン結晶作成法の開発を行ってきた。残念ながら、研究期間内に最終目標である原子線の回折実験の結果を得ることはできなかったが、引き続き研究を継続していく所存である。ここでは、現時点でのいくつかの課題をまとめるとともに、今後の方向性について述べたい。

Cs 原子集団はドップラー冷却と PGC によって 100 μK 程度に冷却されているが、加速レーザーによって並進速度を得る過程で加熱効果を受けて温度が上昇している。熱的ドブロイ波長がさらに長いコヒーレントな原子線を得るためには、moving molasses 法により冷却しながら加速させることが望ましい。

マグネトフェリチンは精製技術の格段の進歩により、単結晶の大きさがミクロンレベルまで向上した。原子線の回折格子として利用するには、ミリメートル程度の結晶が必要であり、現時点多結晶フェリチンによる回折実験ならば実現可能である。今後は単結晶域を拡張し、単結晶回折も視野に入れていきたい。

最後に、研究過程で着想した新しいテーマについても言及したい。磁化したナノ粒子が形成する磁場内を原子が運動する場合、その熱揺らぎがどの程度原子集団に伝搬するか

は興味深い。磁性をはじめとしたナノ粒子の物性は未解明な点が多く、応用上も重要である。冷却原子によってナノ粒子の周辺環境をプローブするマグネトメトリーが可能になるかもしれない。

5 . 主な発表論文等

〔雑誌論文 (査読あり)〕(計 3 件)

- (1) B. Boche, G. Yordanov, H. Yoshimura, C. Dushkin, Synthesis of ZnO Nanoparticles in the Presence of Different Additives, *Nanoscience & Nanotechnology* **11**, 58-61 (2011).
- (2) I. Llorente Garcia, B. Darquie, C. D. J. Sinclair, E. A. Curtis, M. Tachikawa, J. J. Hudson, and E. A. Hinds, Shaking-induced dynamics of cold atoms in magnetic traps, *Phys. Rev. A* **88**, 43406 (2013).
- (3) T. Harada and H. Yoshimura, Ferritin encapsulated photo-luminescent rare earth particle, *J. Appl. Phys.* **114**, 44309 (2013).

〔国際学会発表〕(計 5 件)

- (4) T. Harada and H. Yoshimura, Fabrication of CdTe Nanoparticles in a Protein Cage, 10th International Conference on Material Chemistry (MC10), July 4-7, 2011, Manchester, UK.
- (5) M. Tachikawa, H. Odashima, N. Kase, and K. Nagase, Size effect on thermal radiation of a dielectric microparticle, The 23rd International Conference on Atomic Physics, July 23-27, 2012, Ecole Polytechnique, Palaiseau, France.
- (6) T. Harada and H. Yoshimura, Fabrication of lanthanoid (Eu, Y, Tb) nanoparticles in the cavity of ferritin, International Conference on Nanoscience + Technology (Icn+T), July 23-27, 2012, Paris, France.
- (7) H. Yoshimura, Synthesis of Protein Encapsulated Nanoparticles, Annual World Congress of Nanomedicine 2013, June 2013, Suzhou, China. (invited)
- (8) H. Yoshimura, Synthesis of Protein Encapsulated Rare Earth Nanoparticles, 3rd International Conference on Nanotek & Expo, December 2-4, 2013, Las Vegas, USA. (invited)

6 . 研究組織

(1) 研究代表者

立川 真樹 (TACHIKAWA, Maki)
 明治大学・理工学部・教授
 研究者番号: 60201612

(2) 研究分担者

吉村 英恭 (YOSHIMURA, Hideyuki)
 明治大学・理工学部・教授
 研究者番号: 70281441