

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 17 日現在

機関番号：12102

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2011～2013

課題番号：23651127

研究課題名(和文) ナノ粒子操作のためのメカニカル原子ピンセット

研究課題名(英文) Mechanical atomistic pincette for nanoparticle manipulation

研究代表者

木塚 徳志 (Kizuka, Tokushi)

筑波大学・数理物質系・教授

研究者番号：10234303

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 1,900,000円、(間接経費) 570,000円

研究成果の概要(和文)：ナノ粒子操作を可能とする機械的な微小ピンセットをその場電子顕微鏡による原子直視法を用いて開発した。ピンセットとなる微小金属プローブの加工法、つまり、金属針のナノメートル微細化法について調べた。この加工には、機械的研磨、収束イオンビーム加工、および接触-引き離し法を用いた。最終的に、先端が数ナノメートルの金属ナノプローブが作製された。このナノプローブを用いて、数ナノメートルのカーボンナノカプセルやフラーレン分子を挟んだナノ構造を組み立てることができた。こうしたナノクラフトだけでなく、ピンセット操作途中のナノプローブ-ナノ粒子間の相互作用を明らかにした。

研究成果の概要(英文)：We developed nanometer-sized mechanical tweezers for nanoparticle operation using direct atomic observation by in situ high-resolution transmission electron microscopy. We investigated various processing methods to fabricate fine metallic probes for tweezers, i.e., nanometer scale miniaturization methods of metallic needles. For the processing, we used mechanical polishing methods, focused ion beam processing, and contact-separation methods. As result, we obtained nanometer metallic probes. Using the probes, we could produce sandwiched structures of carbon nanocapsules and fullerene molecules. In addition to such nanocraft, we also investigated interaction between nanoprobes and nanoparticles during tweezers operation.

研究分野：ナノ工学

科研費の分科・細目：ナノ・マイクロ科学・ナノ材料・ナノバイオサイエンス

キーワード：分子操作 原子操作 電子顕微鏡 ピエゾ素子 走査プローブ顕微鏡 原子間力顕微鏡 ナノチップ  
ナノクラフト

### 1. 研究開始当初の背景

現在の精密工学の分野では、物質を挟むピンセットの対象は、マイクロメートルサイズの物質に留まっている。数原子が集めた原子クラスターやナノ粒子を自由に操作することはできれば、新たな型のナノクラフトが実現する。

### 2. 研究の目的

本研究の目的は、ナノ粒子の機械的操作を可能とする機械的な微小ピンセットをその場電子顕微鏡による原子直視法を用いて開発することである。数ナノメートルの微結晶や分子を挟み、移動させ、これまでにないナノ構造を組み立てることを目指す。走査プローブ顕微鏡法による物質操作との大きな違いは、本手法は顕微鏡手術のように、ナノ粒子をその場で観ながら、操作することである。その結果、ナノ粒子の操作性は向上し、さらに操作途中のプローブ・ナノ粒子間の相互作用までも明らかにすることができるようになる。本研究では、具体的には、ピンセットとなる微小金属プローブの加工法、つまり、金属針のナノメートル微細化法を開発し、作製された金属針で実際にナノ物質を挟むことを試みた。

### 3. 研究の方法

本研究は、以下の2項目に大きく分けられる。

#### (1) 微小金属プローブの加工法の開発

金属薄板を切り出し、その片端を機械的な研磨、収束イオンビームによる加工、およびナノチップ操作によって、ナノ物質を操作できるほど小さなピンセットとなる微小金属プローブを開発した。

#### (2) ナノ物質を挟む操作の試行

作製されたナノプローブを用いて実際にナノ物質を挟んだ。これには、研究代表者がこれまで開発してきた単一ナノプローブ操作機能を組み入れたその場高分解能透過電子顕微鏡に、新たに設計・製作したナノ粒子を挟む3軸ピエゾ駆動操作電子顕微鏡観察ステージを導入した。

### 4. 研究成果

#### (1) 微小金属プローブの機械加工

ナノピンセットの素材である金、銀、プラチナ、アルミニウムおよびロジウムなどの金属薄板を短冊状に切り出した。この短冊状金属片の片側の端を三角形に切断した。切断面には切断刃の表面形状に由来する荒れが生じたために、この切断面を研磨した。この研磨に使用する研磨材によって、切断面の形態が変化し、この後のナノプローブ形成に大きく影響することがわかった。特に、素材の薄板の組織は、表面と内部で異なり、素材ごとに最適な研磨条件が異なることが判明した。本研究では、研磨条件を様々に変えて試行した結果、最終的にサブミリスケールで先

鋭化したナノピンセットに適した先端が得られるようになった(図1)。

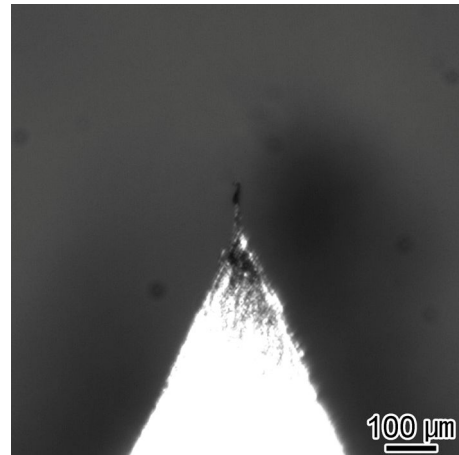


図1 銀薄板片端の研磨

#### (2) 収束イオンビーム加工

サブミクロンレベルで先鋭化した金属先端を得るために、機械研磨の後に収束イオンビームによる加工を行った。短冊状金属片の面方向から、ガリウムイオンビームを照射し、線状に走査して三角形状端面を作った。この後で、面と垂直な方向から、同イオンビームを照射して、面方向の厚さを小さくした。イオン照射の加速電圧、走査形状、照射時間等の各条件で、加工形状が異なることがわかった。本研究では、こうした研磨条件を最適化し、先端径が50~100nmの金属針を得ることができた(図2)。

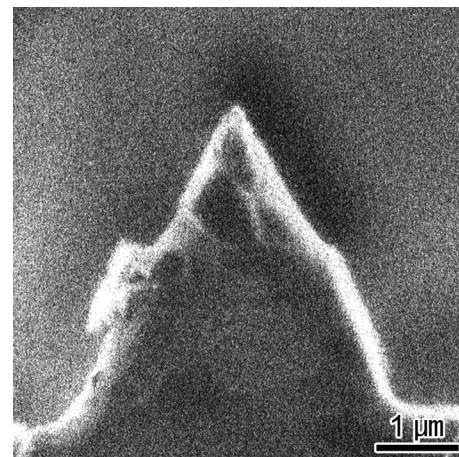


図2 金薄板片端のイオンビーム加工

#### (3) 接触によるナノチップ形成

数10nmの金属針同士を接触させて引き離す操作を繰り返して、数ナノメートルに先鋭化した先端を得ることができた(図3)。この引き離し時の接触部の機械的特性の解析から、引き離し後に形成されるナノ先端(ナノプローブ)の強度がわかった。接触部の応力-歪み曲線(図4)を、その場電子顕微鏡法

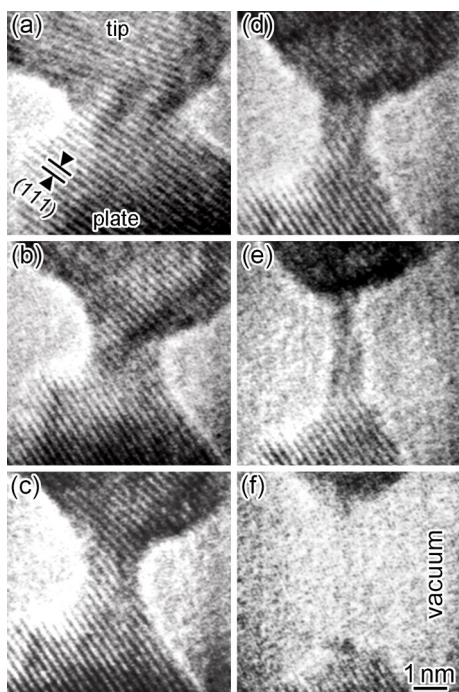


図3 破断による銀ナノ先端作製

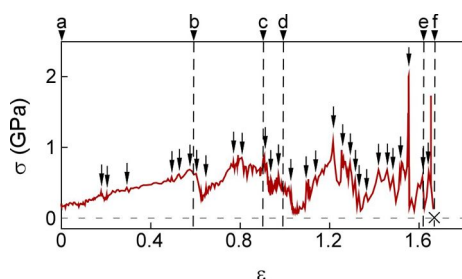


図4 ナノ接触部の応力歪み曲線

によって評価した結果、ナノプローブの強度は同じ金属素材のそれより数桁大きくなるのがわかった。このことは、ナノメートル化による強度低下がなく、作製したナノプローブがナノピンセットに応用できることを意味している。

#### (4) 分子ピンセット操作

作製した金属ナノプローブを高分解能透過型電子顕微鏡に挿入し、その試料室で、カーボンナノカプセルやフラーレンなどの分子を一つ挟むことを試みた。この挟む過程をその場観察して、ナノプローブを操作した。また、この操作と同時に、ナノプローブ間の電気的コンダクタンスを測定し、ナノカプセルやフラーレン分子に両方のナノプローブが接触したことを確認した。また、挟まれたときのプローブと分子の構造に対する高分解能観察像を計算し、実際に観察された像と比較して、挟む操作を電子顕微鏡学的に確認した。この結果、本研究では、フラーレン C<sub>60</sub> 分子、C<sub>70</sub> 分子、およびコバルトおよび炭化コバルトナノ粒子を内包したカーボンナノカプセルを挟む操作が実現された。

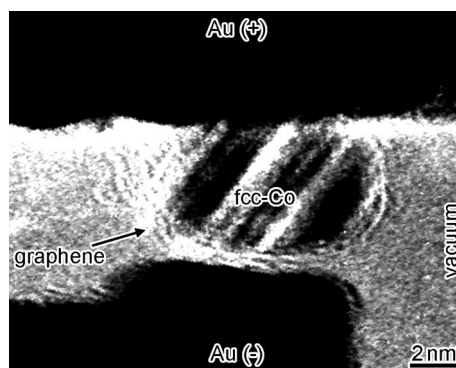


図5 単一分子ピンセット操作

以上、本研究では、分子を挟むためのピンセット開発を行い、カーボンナノカプセルやフラーレンなどの単一分子に応用した。

#### 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18件)

Distance control of electromigration-induced silver nanogaps  
Hideki Masuda and Tokushi Kizuka  
J. Nanosci. Nanotechnol. 14(3), 2436-2440 (2014)  
doi: 10.1166/jnn.2014.8502

Electrical conductivity of single molecular junctions assembled from Co- and Co3C-encapsulating carbon nanocapsules  
Daisuke Matsuura and Tokushi Kizuka  
J. Nanosci. Nanotechnol. 14(3), 2441-2445 (2014)  
doi: 10.1166/jnn.2014.8506

Atomic configuration of graphene/VC interfaces in VC-encapsulating carbon nanocapsules  
Gaku Yazaki, Daisuke Matsuura, and Tokushi Kizuka  
J. Nanosci. Nanotechnol. 14(3), 2482-2486 (2014)  
doi: 10.1166/jnn.2014.8496

High-resolution transmission electron microscopy of isolated fullerene C<sub>60</sub> molecules  
Tokushi Kizuka  
J. Nanosci. Nanotechnol. 14(3), 2687-2688 (2014)  
doi: 10.1166/jnn.2014.8611

The structure of graphene/nickel interfaces within nickel-encapsulating carbon nanocapsules studied by high-resolution transmission electron microscopy

Tokushi Kizuka and Akira Akagawa  
J. Nanosci. Nanotechnol. 14(4), 3176-3180  
(2014)  
doi: 10.1166/jnn.2014.8519

Interface structure of niobium  
carbide-encapsulating carbon  
nanocapsules studied by high-resolution  
transmission electron microscopy

Tokushi Kizuka and Haruki Koizumi  
J. Nanosci. Nanotechnol. 14(4), 3228-3232  
(2014)  
doi: 10.1166/jnn.2014.8609

Critical shear stress of rhodium  
nanocontacts studied by in situ  
high-resolution transmission electron  
microscopy

Takayuki Ohko and Tokushi Kizuka  
J. Nanosci. Nanotechnol. 14, (2014) in print

Structure and conductance of aluminum  
nanocontacts studied by in situ  
high-resolution transmission electron  
microscopy

Takayuki Ohko and Tokushi Kizuka  
J. Nanosci. Nanotechnol. 14, (2014) in print

Transformation of the deformation  
mechanism from dislocation-mediated slip  
to homogeneous slip in silver nanowires

Jianbo Feng and Tokushi Kizuka  
J. Nanosci. Nanotechnol. 13(2), 394-400  
(2013)  
doi: 10.1166/jnn.2013.6899

Synthesis of nickel-encapsulated carbon  
nanocapsules and cup-stacked-type carbon  
nanotubes via nickel-doped fullerene  
nanowhiskers

Tokushi Kizuka, Kun'ichi Miyazawa, and  
Akira Akagawa  
J. Nanotechnol. 2012, 376160 (2012) [5 pp]  
doi: 10.1155/2012/376160

Solvation-assisted Young's modulus  
control of single-crystal fullerene C<sub>70</sub>  
nanowhiskers

Tokushi Kizuka, Kun'ichi Miyazawa, and  
Takayuki Tokumine  
J. Nanotechnol. 2012, 583817 (2012) [5 pp]  
doi: 10.1155/2012/583817

Synthesis of carbon nanocapsules and  
nanotubes using Fe-doped fullerene  
nanowhiskers

Tokushi Kizuka, Kun'ichi Miyazawa, and  
Daisuke Matsuura  
J. Nanotechnol. 2012, 613746 (2012) [6 pp]  
doi: 10.1155/2012/613746

Young's modulus of single-crystal  
fullerene C<sub>70</sub> nanotubes

Tokushi Kizuka, Kun'ichi Miyazawa, and  
Takayuki Tokumine  
J. Nanotechnol. 2012, 969357 (2012) [5 pp]  
doi:10.1155/2012/969357

Synthesis of cobalt-encapsulated carbon  
nanocapsules using cobalt-doped fullerene  
nanowhiskers

Daisuke Matsuura, Kun'ichi Miyazawa, and  
Tokushi Kizuka  
Int. Sch. Res. Net. Nanotechnol. 2012, 871208  
(2012) [7 pp]  
doi: 10.5402/2012/871208

Structures of graphene/cobalt interfaces in  
cobalt-encapsulated carbon nanocapsules

Daisuke Matsuura, Kun'ichi Miyazawa, and  
Tokushi Kizuka  
J. Nanomater. 2012, 843516 (2012) [7 pp]  
doi: 10.1155/2012/843516

Breakdown of ballistic conduction in  
single-atom-width gold wires

Satoshi Kodama and Tokushi Kizuka  
J. Nanosci. Nanotechnol. 12(2), 1001-1003  
(2012)  
doi: 10.1166/jnn.2012.5878

Synthesis of oriented bundle fibers of  
fullerene C<sub>70</sub> crystal nanotubes

Tokushi Kizuka, Kun'ichi Miyazawa, and  
Takayuki Tokumine  
J. Nanosci. Nanotechnol. 12(3), 2825-2828  
(2012)  
doi: 10.1166/jnn.2012.5803

Current-voltage characteristics of silver  
nanocontacts studied by in situ  
transmission electron microscopy

Hideki Masuda and Tokushi Kizuka  
J. Phys. Soc. Jpn. 81(11), 114707 (2012) [5 pp]  
doi: 10.1143/JPSJ.81.114707

[学会発表](計 9件)

In situ transmission electron microscopy  
of bending process of C<sub>60</sub>/C<sub>70</sub>  
nanowhiskers

Daisuke Matsuura, Chika Hirata, Toshio  
Konno, Takatsugu Wakahara, Kun'ichi  
Miyazawa, Tokushi Kizuka  
The 12th Asia Pacific Physics Conference  
(Makuhari, 2013)  
2013, 7, 17 Poster presentation

In situ transmission electron microscopy  
of tantalum nanocontacts

Satoshi Murata and Tokushi Kizuka  
12th International Conference on Atomically

Controlled Surfaces, Interfaces and Nanostructures in conjunction with 21st International Colloquium on Scanning Probe Microscopy (Tsukuba International Congress Center, 2013)  
2013, 11, 8 Poster presentation

Atomic configuration and mechanical properties of silver nanocontacts  
Jianbo Feng and Tokushi Kizuka  
Tsukuba Nanotechnology Symposium (Univ. Tsukuba, 2012)  
2012, 7, 26-27, poster presentation

In situ transmission electron microscopy of single molecular junctions using carbon nanocapsules encapsulating cobalt and cobalt carbide  
Daisuke Matsuura and Tokushi Kizuka  
The 25th International Microprocesses and Nanotechnology Conference (Kobe, 2012)  
2012, 11, 2 Oral presentation

Non jump-to-contact approach between tungsten nanotips  
Hideki Masuda and Tokushi Kizuka  
The 25th International Microprocesses and Nanotechnology Conference (Kobe, 2012)  
2012, 11, 2 Oral presentation

Formation process of silver nanogaps using electromigration studied by in situ high-resolution transmission electron microscopy  
Hideki Masuda and Tokushi Kizuka  
International Symposium on Interdisciplinary Materials Science (Tsukuba CAPIO, 2011)  
2011, 3, 9-10, poster presentation

In situ high-resolution transmission electron microscopy of single-atom-width tantalum wires  
Hideki Masuda and Tokushi Kizuka  
The 6th International Symposium on Surface Science (Funabori Tower Hall, Tokyo, 2011)  
2011, 12, 15, oral presentation

Conductance of zinc oxide nanocontacts studied by in situ transmission electron microscopy  
Toshikazu Kase and Tokushi Kizuka  
International Conference on Solid State Devices and Materials (Tokyo, 2010)  
2010, 9, 22-24, oral presentation

In situ high-resolution transmission electron microscopy of electromigration in platinum nanocontacts  
Satoshi Kodama and Tokushi Kizuka  
23rd International Microprocesses and

Nanotechnology Conference (Kokura, 2010)  
2010, 11, 10, oral presentation

〔図書〕(計 2件)  
in-situ 測定 / その場観察実例集 ~ 各種計測技術の実践テクニックおよび材料・デバイス別分析例  
分担執筆: 木塚徳志、第 12 節 金属変形の in-situ 観察 p216-222  
(情報機構、2013 年 12 月)(総 270 ページ)

日本学術振興会微細組織と機能性第 133 委員会 50 周年記念誌  
分担執筆: 木塚徳志、微粒子の変形 (電子顕微鏡観察) p165-170  
(日本学術振興会、2013 年 6 月)(総 287 ページ)

〔その他〕  
ホームページ  
[http://www.ims.tsukuba.ac.jp/~kizuka\\_lab/index.html](http://www.ims.tsukuba.ac.jp/~kizuka_lab/index.html)

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

木塚 徳志 (Kizuka, Tokushi)  
筑波大学・数理物質系・教授  
研究者番号: 52019963