

平成 25 年度 「秀でた利用 6 大成果」

1. 微細加工 PF：北海道大学

「パルス状コヒーレント X 線溶液散乱法のための溶液試料ホルダの開発」

ユーザー氏名： 木村隆志^a、城地保昌^b、別所義隆^c、西野吉則^a

(^a 北海道大学、^b 高輝度光科学研究センター、^c 台湾中央研究院)

実施機関担当者：松尾保孝、大西広（北海道大学）

2. 微細構造解析 PF：物質・材料研究機構

「ナノワイヤ結晶成長のその場 TEM 観察」

ユーザー氏名： Rebecca Boston（University of Bristol）

実施機関担当者：根本善弘（物質・材料研究機構）

3. 微細構造解析 PF：産業技術総合研究所

「弾性応力下におけるマルテンサイト鋼中の水素起因格子欠陥の形成促進と水素脆化」

ユーザー氏名： 土信田知樹^a、鈴木啓史^a、高井健一^a、平出哲也^b（^a 上智大学、^b 日本原子力研究開発機構）

実施機関担当者：大島永康（産業技術総合研究所）

4. 分子・物質合成 PF：北陸先端科学技術大学院大学

「植物培養細胞を利用した有用たんぱく質合成技術の開発」

ユーザー氏名： 森正之（石川県立大学）

実施機関担当者：梅津喜崇、大木進野（北陸先端科学技術大学院大学）

5. 分子・物質合成 PF：自然科学研究機構 分子科学研究所

「内包フラーレン分子錯体の特徴的分子磁性の ESR 測定」

ユーザー氏名： 森中裕太^a、佐藤悟^b、若宮淳志^a、二川秀史^b、溝呂木直美^b、田邊史行^a、村田理尚^a、小松紘一^a、古川貢^c、加藤立久^a、永瀬茂^a、赤阪健^b、村田靖次郎^a

(^a 京都大学、^b 筑波大学、^c 分子科学研究所)

実施機関担当者：横山利彦（分子科学研究所）

6. 分子・物質合成 PF：名古屋工業大学

「フッ化物薄膜を用いた真空紫外光源」

ユーザー氏名： 小野晋吾^a、福田健太郎^b、須山敏尚^b、柳田健之^c、吉川彰^d

(^a 名古屋工業大学、^b 株式会社トクヤマ、^c 九州工業大学、^d 東北大学)

実施機関担当者：種村真幸（名古屋工業大学）



北海道大学



微細加工プラットフォーム

パルス状コヒーレントX線溶液散乱法のための 溶液試料ホルダの開発

Development of Solution Sample Holder for Pulsed Coherent X-ray Solution Scattering

ユーザー氏名: 木村隆志(Takashi Kimura)^a, 城地保昌(Joti Yasumasa)^b, 別所善隆(Yoshitaka Bessho)^c, 西野吉則(Yoshinori Nishino)^a
(^a北海道大学(Hokkaido University), ^b高輝度光科学研究センター(JASRI/SPRING-8), ^c台湾中央研究院(Academia Sinica))

実施機関担当者: 松尾保孝、大西広 (北海道大学)

▶ Key words

X-ray microscopy, Environmental cell, Biological imaging

概要 / Overview

新世代のX線光源であるX線自由電子レーザー(X-ray free-electron Laser: XFEL)による観察では、高ピーク輝度・超短パルスという特徴から、放射線損傷の影響を回避した、生物試料などの自然な状態の構造を捉えることができる。ナノテクノロジープラットフォームの支援の下開発した微量な溶液試料を封じ込めるマイクロ流体封入アレイと、XFELによる計測を組み合わせ、生きた細菌の高分解能イメージング法の開発について紹介する。

In bioimaging, it is essential to keep the sample close to its natural state. By freezing the sample in time using a femtosecond pulse duration, an X-ray free electron laser (XFEL) can overcome the radiation damage problem, which limits the achievable resolution. In this poster, we present a method for capturing snapshots of live cells kept in a micro-liquid enclosure array by a single-shot XFEL diffraction.

X線自由電子レーザーによる溶液中試料イメージング



X線自由電子レーザー施設 SACLA
(SPRING-8 Angstrom Compact free-electron LAser)

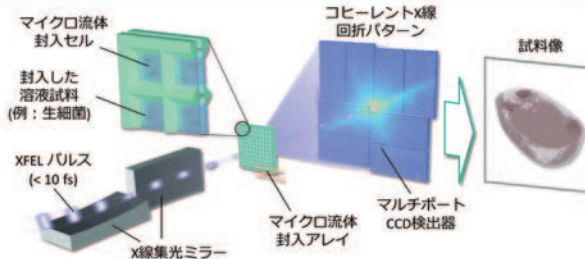
X線自由電子レーザー

- ・高ピーク輝度
...パルス当たりの光子数 10^{11}
- ・超短パルス
...パルス幅 10^{-14} 秒以下
- ・空間完全コヒーレント

- 生細菌などの溶液中試料の高空間分解能イメージングの実現を目指し、XFELを利用したパルス状コヒーレントX線溶液散乱法の開発を行った。従来、電子顕微鏡やX線顕微鏡で生物試料を高分解能観察する際、放射線損傷による試料構造の破壊が問題となっていた。XFELによる計測では、フェムト秒のパルス幅により、試料構造が破壊される前の自然な状態を観察することが可能である。

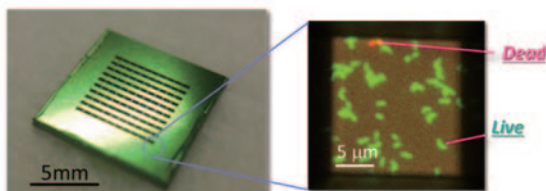
パルス状コヒーレントX線溶液散乱法

Pulsed Coherent X-ray Solution Scattering



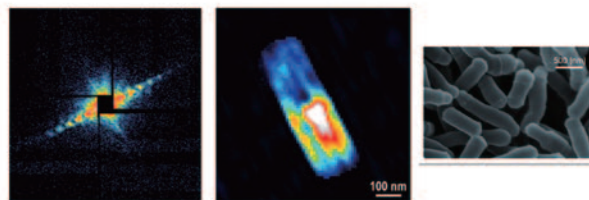
- 計測では、微量な溶液試料を真空中に保持可能なマイクロ流体封入セルを利用する。XFELのパルス照射後に試料が破壊されてしまうため、多数の封入セルをチップ上に集積したマイクロ流体封入アレイを使用する。

マイクロ流体封入アレイの開発と生細菌の観察



開発したマイクロ流体封入アレイ(左)と
封入セル内部の細菌の蛍光顕微鏡像(右)

- マイクロ流体封入アレイの作製には、北大クリーンルーム施設の半導体プロセス装置を利用した。マイクロ流体封入アレイ上の各封入セルは、二枚の窒化ケイ素薄膜の間に、数 μm 厚以下の溶液試料をパッキングする構造になっている。封入セル内部の細菌を蛍光顕微鏡で観察した結果、99%以上の細菌が1時間以上内部で生存可能であることを確認している。



生細菌(*Microbacterium lacticum*)のコヒーレントX線回折パターン(左)と
再構成した試料像(中)、*M. lacticum*の走査型顕微鏡像(右)

- X線自由電子レーザー施設SACLAを利用して実験を行い、封入セル内部の生細菌のコヒーレントX線回折パターン取得に成功した。反復的な位相回復計算により試料像を再構成し、570 nmサイズの生細菌の内部構造を数十nm以下の分解能でイメージングすることに成功した。

Reference: T. Kimura *et al.*, Nature Communications 5 (2014) 3052.

▶ Contact

氏名: 西野吉則、木村隆志(北海道大学)

e-mail: yoshinori.nishino@es.hokudai.ac.jp, takashi.kimura@es.hokudai.ac.jp

実施機関: 北海道大学ナノテク連携研究推進室、nanoplat@cris.hokudai.ac.jp





物質・材料研究機構



微細構造解析プラットフォーム

ナノワイヤ結晶成長のその場TEM観察

In-situ TEM observation of nanowire crystal growth

ユーザー氏名: Rebecca Boston (University of Bristol)

実施機関担当者: 根本善弘 (物質・材料研究機構)

Key words

in-situ observation, crystal growth, microcrucible

BUILDING GLOBAL
ENGAGEMENTS
IN RESEARCH

概要 / Overview

微細坩堝法という結晶成長法による Y_2BaCuO_5 (Y211) のナノワイヤの結晶成長をTEMの中で行い、結晶成長の様子をTEMでその場観察を行った。微細坩堝法とは原料の塊を加熱することで Y_2BaCuO_5 などの酸化物ナノワイヤを原料表面に成長させる結晶育成法である。この結晶育成の際に原料の一部が結晶成長を促進する触媒的な役割を果たし、ポーラスな原料の塊の表面の凹凸が坩堝の役割を果たすことからこのような名称と呼ばれている。本研究に使用したTEMはJEOL社製のJEM-ARM200FとJEM-2100F、試料加熱ホルダーはProtochips社製のAduroである。

We did Y_2BaCuO_5 (Y211) nanowire crystal growth in TEM and in-situ TEM observation. The crystal was grown by Microcrucible method. This method is that an oxide nanowire crystal grows on the surface of ingredient by heating the ingredient. A part of ingredient work as catalyst and concave structure of surface of solid phase ingredient work as crucible during the crystal growth. Microcrucible method is named from these functions.

TEM: JEM-ARM200F and JEM-2100F (JEOL Ltd.) Heating sample holder: Aduro (Protochips Ltd.)



Dr. Rebecca Boston

結晶成長の鍵=界面構造の分析

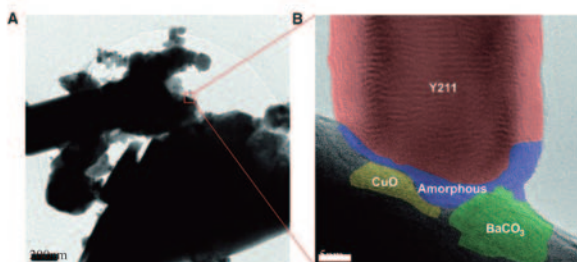
Interface structure = key of crystal growth

EDX元素分析

EDX elemental analysis

- 高温で結晶成長を行うが、高温ではEDXが使用できないので、結晶成長後に急冷して、成長したナノワイヤと原料の界面を調べた。図Aは試料の全体像で、図BはEDX分析により判明した界面構造である。ナノワイヤと原料の界面には青色で示したアモルファス相が存在するが、結晶成長温度では固相の原料が坩堝の壁のように働き、その中に結晶の元となるアモルファス相がある。EDX分析の結果、アモルファス相にはY211相の結晶成長に必要なY、Ba、Cu、Oの全ての元素が含まれていることが分かった。アモルファス相は主に低融点の BaCO_3 が溶融相を作り、そこにYとCuが溶け込んで形成されたと思われる。結晶成長を促す種結晶の役割を果たすと思われるナノ粒子も含まれていた。

- Figure A is a Image of an in situ heating experiment, rapidly cooled during the initial stages of nanowire growth. Figure B is a Image of the region highlighted by the red square in Figure A, with the composition of different phases identified using the lattice fringes observed. In Figure B, the blue region is amorphous and contains a mixture of yttrium, copper, and barium, as determined by EDX. Seed crystals which assist crystal growth of nanowire were also found in the amorphous region.



図A、B: 結晶成長の直後に急冷した Y_2BaCuO_5 ナノワイヤと原料の全体像(A)と界面構造(B)。

Figure A, B: TEM images of a Y211 nanowire quenched during growth.

結晶成長のダイナミクスを観察

Dynamics of crystal growth

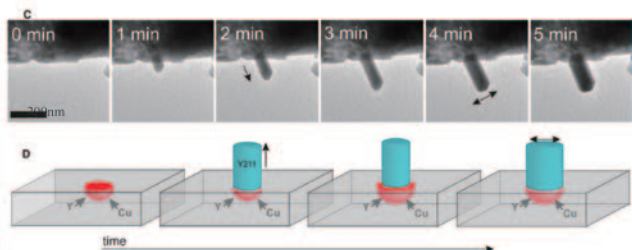
TEMモード動画撮影

Moving Image Photographing

本研究成果はScienceに掲載された。

"In-situ TEM Observation of a Microcrucible Mechanism of Nanowire Growth"
Science 344, 623 (2014)

- TEMモードでナノワイヤの結晶成長過程の動画撮影を行った。図Cに結果を示す。図Dは図Cの写真の時刻に対応した成長メカニズムを示すイラストである。ナノワイヤ結晶はまず長手方向に成長して(0~3分)、次に横方向に成長している様子が分かる(4~5分)。このような結晶成長となる理由は、まず原料の表面にある大きさのアモルファス領域ができて、その太さのままナノワイヤが長手方向にのみ成長する。その後、アモルファス領域が拡大して、ナノワイヤの側面に元素が供給されるようになるために、ナノワイヤが太くなるように成長したと考えられる。
- TEM video images and mechanism illustration of nanowire crystal growth is shown in Figure C and D. Time scale of Figure C and D is same. The nanowire grew and became long at first step. (0~3min)
The nanowire grew and became wide at second step. (4~5min)
The reason why crystal growth direction changed is because the amorphous region became larger and elements were supplied to the side surface of nanowire at second step.



図C、D: Y_2BaCuO_5 ナノワイヤの結晶成長過程と成長メカニズム

Figure C, D: Images showing mechanisms of nanowire expansion due to creep in the microcrucible system.

Contact

氏名: 根本 善弘 (物質・材料研究機構 電子顕微鏡ステーション)
e-mail: NEMOTO.Yoshihiro@nims.go.jp



弾性応力下におけるマルテンサイト鋼中の水素起因 格子欠陥の形成促進と水素脆化

Enhanced lattice defect formation associated with hydrogen and hydrogen embrittlement under elastic stress of a tempered martensitic steel

ユーザー氏名：土信田知樹、鈴木啓史、高井健一、平出哲也*（上智大、原子力機構*）

実施機関担当者：大島永康（産総研）

▶ Key words

hydrogen embrittlement, vacancy type defect, positron microscope

概要 / Overview

水素を含んだ鉄鋼材料は含まないものに比べ、応力付与によって延性低下が著しく進展し、より破断しやすくなる（水素脆化問題）。水素脆化の機構は、材料中の格子欠陥形成と深く関係するとされているが、一般に格子欠陥の実験的評価が難しいため不明な点も多い。本研究課題では、水素脆化と格子欠陥との関係を明らかにするために、昇温脱離分析（TDA）と陽電子プローブマイクロアナライザー（PPMA）を用いて、一定弾性応力下に保持された鉄鋼材料（焼戻しマルテンサイト鋼）の水素チャージによって形成する格子欠陥の検出を試みた。この結果、弾性応力下であっても水素をチャージすることで鋼中での原子空孔生成が著しく促進されること、さらに生成した空孔型欠陥が鋼の延性低下をもたらすことを明らかにした。

Studying the creation and time evolution of defects is an important issue for interpreting the hydrogen embrittlement mechanism of steels. We have studied the relationship between hydrogen embrittlement of high strength steel and lattice defects associated with hydrogen by thermal desorption analysis (TDA) and positron probe microanalyzer (PPMA).

供試材：高強度鋼（焼入れ焼戻しマルテンサイト）

化学成分 (mass%) (母材 Fe)

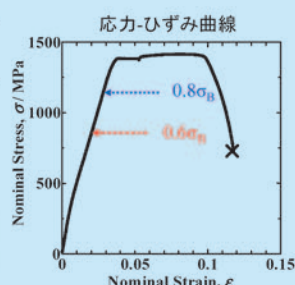
C	Si	Mn	P	S
0.32	1.75	0.72	0.015	0.007

熱処理温度 (°C)

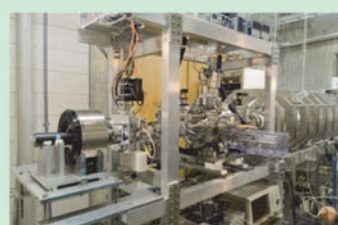
焼入れ温度	焼戻し温度
1010	525

力学特性 (MPa)

0.2%耐力	引張強さ (σ_B)
1370	1443



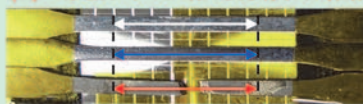
陽電子プローブマイクロアナライザー (PPMA) を用いた欠陥検出



PPMA: 電子の反粒子である陽電子のマイクロビームを用いる原子空孔・分子間空隙評価装置 (世界で1台) さまざまな材料 (金属・半導体・高分子) に適用可能

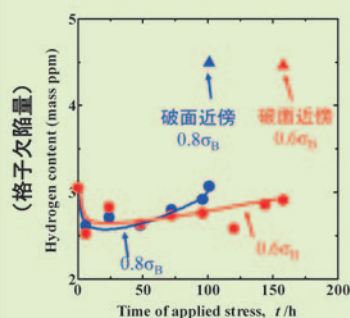
ナノテクプラット公開中

- (i): 水素チャージ無・応力無
- (ii): 水素チャージ無・応力有 (75時間)
- (iii): 水素チャージ有・応力有 (75時間)



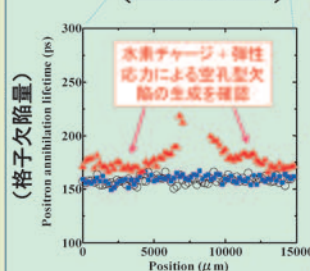
昇温脱離分析 (TDA) による水素を用いた欠陥検出

TDA の分析結果



- (1) 応力負荷時間ともに格子欠陥増加
- (2) 破面近傍で格子欠陥量が著しく増加
- (3) 負荷応力比が大きいくほど格子欠陥形成速度が増加
- (4) 各応力下での破面近傍の格子欠陥量は等しい

PPMA の分析結果



- (1) 水素を含まないで一定荷重負荷 → 格子欠陥形成なし
- (2) 水素を含んで一定荷重負荷 → 格子欠陥形成
- (3) 格子欠陥量と形成分布 → 破面近傍で局所的に形成
- (4) 格子欠陥の種類 → 空孔型欠陥 (原子空孔・マイクロボイド)

本研究結果を論文として発表した: T. Doshida et al., ISIJ International 52, 198 (2012)

日本鉄鋼協会 平成25年度 澤村論文賞を受賞

▶ Contact

氏名: 高井健一(上智大) / 大島永康(産総研)

e-mail: takai@me.sophia.ac.jp / nagayasu-oshima@aist.go.jp

植物培養細胞を利用した有用たんぱく質合成技術の開発 Development of a method for synthesizing useful proteins by using suspension-cultured plant cells

ユーザー氏名: 森正之 (石川県立大学) M.Mori (Ishikawa Prefectural Univ.)

実施機関担当者: 梅津喜崇、大木進野 (北陸先端科学技術大学院大学) Y.Umetzu & S.Ohki (JAIST)

▶ **Key words** plant cells, protein expression, labeling, NMR

概要 / Overview

今日までに、遺伝子組み換え大腸菌や酵母、無細胞系など多くのたんぱく質合成方法が開発されてきた。本課題では、これらの手法では合成できない複雑な構造を有するたんぱく質の合成を可能にする、植物培養細胞(BY-2)を利用した新しいたんぱく質合成技術を開発している。例えば、この技術を使うと、SS(ジスルフィド)結合を持つたんぱく質などの合成もできる。さらに、この方法は大容量での合成も行うことができるので、産業化が見込める。

Until today, various protein expression methods including *E. Coli*, pichia, and cell-free systems have been developed. In this project, we are developing an another alternative system with suspension cultured plant cells, BY-2. It enables to express the proteins, forming complicated structure, that are too difficult to be synthesized by known systems. For example, the new method can prepare mature and bioactive proteins containing SS-(disulfide) bonds. Moreover, the method is adoptable to large-scale protein expression, so that it would be employed for industrial use.

新規のたんぱく質合成技術

The new system for protein expression

高い合成効率

High productivity

- 目的のたんぱく質遺伝子をもつウイルスベクター遺伝子を、植物培養細胞の染色体DNAへ導入する。この結果、目的たんぱく質のsubgenomic RNAが大量に作られ、高効率でたんぱく質合成が行われる。わずか 50 mL の液体培地で細胞を培養しても、数ミリグラムの目的たんぱく質を得ることができる。
- Virus vector cDNA with a DNA of the sample protein is constructed. Then this DNA is integrated into chromosomal DNAs in plant cells. It makes a large amount of subgenomic RNA encoding the target protein, thus achieves high productivity. Cells cultured even in 50 mL medium produce several mg of the target protein.

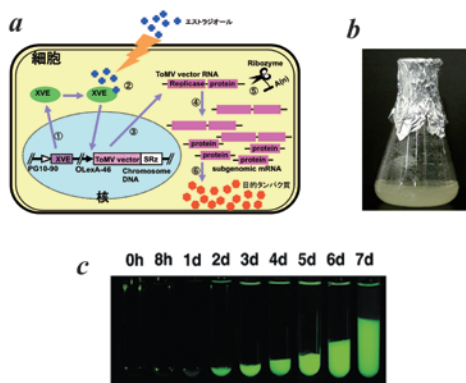


図1 植物培養細胞を利用したたんぱく質合成技術 (a) 概略図、(b) 細胞が入った液体培地、(c) 蛍光たんぱく質GFPを合成した様子。たんぱく質合成を開始した後の時間・日数を表示。
Fig. 1. Protein expression system using plant cells (a) overview, (b) suspension cultured plant cells in the liquid medium, (c) expression of GFP. Days indicated in the photo mean the expression time after induction.

基礎研究への応用事例

Applications in academia

安定同位体標識

Stable-isotope labeling

- NMRで解析可能なたんぱく質を合成する技術を確認。液体培地に ^{13}C や ^{15}N で安定同位体標識された試薬を加えることにより、各種の標識パターンを持つたんぱく質を調製できる。
- We have established the protocols to prepare the proteins for NMR study. Addition of ^{13}C - and/or ^{15}N -labeled chemicals allows us to obtain stable-isotope labeled proteins.

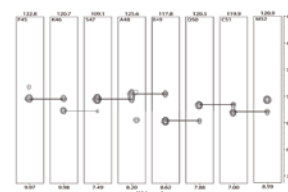


図2 ^{13}C と ^{15}N で安定同位体標識したたんぱく質の3次元NMRスペクトルHNCAのストリップデータ
Fig. 2. Strips of HNCA spectrum recorded for the (^{13}C , ^{15}N)-doubly and uniformly labeled protein

たんぱく質の構造・機能を探る

Analyses of structure and function

- 種子の大きさを揃えるESF(embryo surrounding factor)を大量に調製することに成功。その立体構造をNMRで解明。機能を担うアミノ酸残基を特定。
- ESF, a peptide that regulates the size of seeds was successfully synthesized by this protein expression system. NMR study solved the three-dimensional structure of ESF, and identified the key amino acid residues responsible for the function.

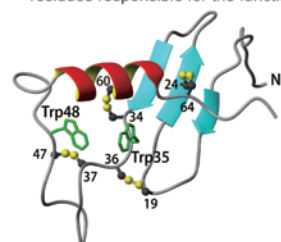


図3 ESFの立体構造
Fig. 3. Structure of ESF

Reference:
Science (2014) **344**, 168-172.

▶ Contact

氏名: 森 正之 (石川県立大) / 大木進野 (北陸先端大)
e-mail: mori@ishikawa-pu.ac.jp / shinya-o@jaist.ac.jp



自然科学研究機構 分子科学研究所



分子・物質合成プラットフォーム

内包フラーレン分子錯体の特徴的分子磁性のESR測定

ESR and X-ray observation of a helium atom and placing a nitrogen atom inside He@C_{60} and He@C_{70}

ユーザー氏名: 森中裕太^a, 佐藤悟^a, 若宮淳志^a, 二川秀史^a, 清呂木直美^b, 田邊史行^a, 村田理尚^a, 小松紘一^a, 古川貢^c, 加藤立久^a, 永瀬茂^d, 赤阪健^e, 村田靖次郎^a
(^a京都大学, ^b筑波大学, ^c分子科学研究所)

Yuta Morinaka^a, Satoru Sato^b, Atsushi Wakamiya^a, Hidefumi Nikawa^b, Naomi Mizorogi^b, Fumiyuki Tanabe^a, Michihisa Murata^a, Koichi Komatsu^c, Ko Furukawa^d, Tatsuhisa Kato^a, Shigeru Nagase^e, Takeshi Akasaka^b & Yasujiro Murata^a (^aKyoto University, ^bUniversity of Tsukuba, ^cInstitute for Molecular Science)

実施機関担当者: 横山利彦 (分子科学研究所)
Toshihiko Yokoama (Institute for Molecular Science)

▶ Key words

ESR, X-ray analysis, Endofullerene, He@C_{60} , He@C_{70}

概要 / Overview

X-線回折による鮮明なHe原子像を世界で初めて撮影することに成功した。この鮮明なHeの原子像は、開包合成法でケージ状分子 C_{60} にHe原子を内包(He@C_{60})することで始めて得られた。 C_{60} に窒素プラズマを照射すると窒素原子がケージ内に侵入することが知られているので、同じ手法を He@C_{60} に対して行い、得られた試料溶液を施設利用機器ESR装置で測定しHeに加えて窒素原子も安定に注入されたことを確かめた。また、この結果は理論計算からも支持された。

Here we report the X-ray diffraction study of He@C_{60} and the clear observation of a single helium atom inside C_{60} . In addition, the close packing of a helium atom and a nitrogen atom inside fullerenes is realized using two stepwise insertion techniques, that is, molecular surgery to synthesize the fullerenes encapsulating a helium atom, followed by nitrogen radio-frequency plasma methods to generate the fullerenes encapsulating both helium and nitrogen atoms. Electron spin resonance analysis reveals that the encapsulated helium atom has a small but detectable influence on the electronic properties of the highly reactive nitrogen atom coexisting inside the fullerene, suggesting the potential usage of helium for controlling electronic properties of reactive species.

C_{70} , C_{60} ナノケージにヘリウムと窒素が共存する証拠

Generation of the C_{70} and C_{60} incorporating a helium atom and a nitrogen atom.

有機化学的に合成された He@C_{70} , He@C_{60} に窒素プラズマ放電することで、 C_{70} , C_{60} ナノケージ内にヘリウムと窒素原子を共存させることに成功した。その証拠として、窒素原子由来のESRスペクトルにヘリウム原子の影響をはっきりと観測することができた。

The close packing of a helium atom and a nitrogen atom inside fullerenes is realized using two stepwise insertion techniques, that is, molecular surgery to synthesize the fullerenes encapsulating a helium atom, followed by nitrogen radio-frequency plasma methods to generate the fullerenes encapsulating both helium and nitrogen atoms. ESR analysis reveals that the encapsulated helium atom has a detectable influence on the electronic properties of the highly reactive nitrogen atom coexisting inside the fullerene.

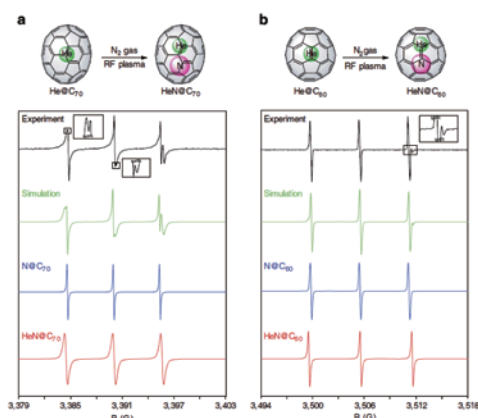


図1. He@C_{70} と He@C_{60} に窒素プラズマを照射して得られた試料のESRスペクトル
Figure 1. (a) Experimental ESR spectrum of HeN@C_{70} and N@C_{70} in CS_2 at 220 K (black line), and simulated spectra of the mixture (green line), N@C_{70} (blue line) and HeN@C_{70} (red line), respectively. (b) Experimental ESR spectrum of HeN@C_{60} and N@C_{60} in CS_2 at room temperature (black line), and simulated spectra of the mixture (green line), N@C_{60} (blue line) and HeN@C_{60} (red line), respectively.

ヘリウム原子像の直接撮影に成功

X-ray crystal structure of $\text{He@C}_{60} \cdot (\text{NiOEP})_2$.

C_{60} ナノケージに閉じ込めることで、これまで困難であったヘリウム原子像の直接撮影に成功した。

Crystallographic data containing helium has not been reported, owing to the difficulty in embedding helium into crystalline materials. Here we report the clear observation of a single helium atom inside C_{60} .

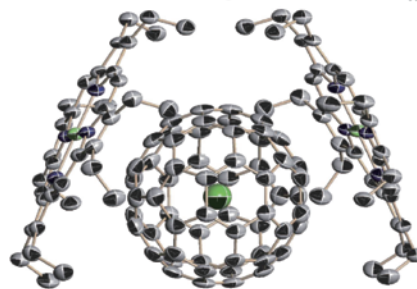


図2. ニッケルポルフィリンに挟まれて結晶化した He@C_{60} のX-線回折像
Figure 2. X-ray crystal structure of $\text{He@C}_{60} \cdot (\text{NiOEP})_2$. Thermal ellipsoids at the 50% probability level and hydrogen atoms are omitted for clarity. NiOEP, nickel(II) octaethylporphyrin.

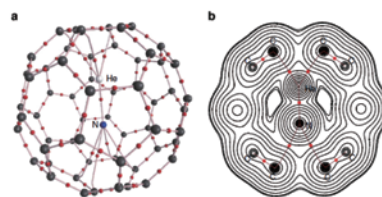


図3. HeN@C_{60} 分子の理論計算で得られた最安定構造
Figure 3. AIM analysis of HeN@C_{60} at the MP2 level. (a) Molecular depiction with displaying BCPs in red. (b) Cross-section contour map of electron density with bond paths in brown and BCPs in red.

▶ Contact

氏名: 加藤立久、村田靖次郎(京都大学)/横山利彦(分子科学研究所)
e-mail: kato.tatsuhisa.6e@kyoto-u.ac.jp



名古屋工業大学



分子・物質合成プラットフォーム

フッ化物薄膜を用いた真空紫外光源

Vacuum ultraviolet field emission lamp using fluoride thin film

ユーザー氏名: 小野 晋吾^a, 福田 健太郎^b, 須山 敏尚^b, 柳田 健之^c, 吉川 彰^d (^a名工大, ^b㈱トクヤマ, ^c九工大, ^d東北大)
S. Ono^a, K. Fukuda^b, T. Suyama^b, T. Yanagida^c, A. Yoshikawa^d (^a NITech, ^b Tokuyama Corp., ^c Kyutech, ^d Tohoku Univ.)

実施機関担当者: 種村 眞幸 (名工大) M. Tanemura (NITech)

Key words

Vacuum ultraviolet, Field emission lamp, Fluoride

概要 / Overview

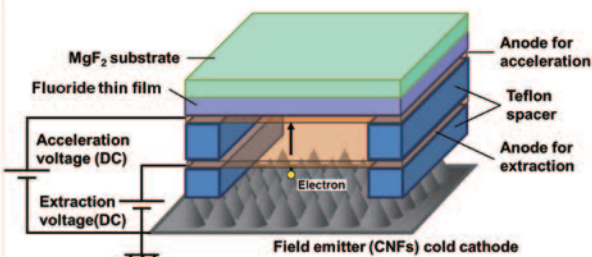
真空紫外領域で動作するフィールドエミッションランプを開発した。KMgF₃またはNd³⁺:LuF₃薄膜を蛍光体として用いたこれらの光源は、固体蛍光体を用いる光源の中で世界最短波長で動作するとともに、従来のガスランプに対して、高い安定性や長寿命化が見込まれる。また、冷陰極であるカーボンナノファイバーを電子源として用いることにより、消費電力や発熱を抑えることができ、紫外線照射対象に熱ダメージを与えない。このような光源は、水銀ランプのように環境汚染を引き起こす物質を用いていないことから、殺菌や表面処理など幅広い分野への利用が期待できる。

We demonstrated a field emission lamp by employing KMgF₃ and Nd³⁺:LuF₃ thin films as solid state vacuum ultraviolet (VUV) phosphor. The lamp using KMgF₃ was operated at wavelengths 140–220 nm, which is the shortest wavelength reported for solid-state phosphor lamps. In addition, a solid-state phosphor brings many advantages, such as stability, safety, and longevity compared with gas-state phosphor. Such VUV light is a powerful tool for sensing, material processing, and decomposition of chemical materials.

真空紫外フィールドエミッションランプ

The vacuum ultraviolet field emission lamp

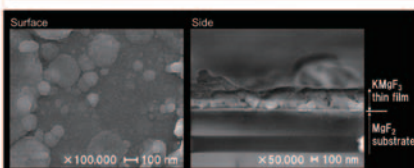
- フッ化物薄膜を蛍光体とし、電界放出型電子源として用いるカーボンナノファイバー(CNFs)と組み合わせることでフィールドエミッションランプ(FEL)を作製した。CNFs作製には、グラファイト基板にAr⁺イオンビームを照射する簡単な手法を用いており、室温で作製可能である。
- The field emission lamp was constructed by stacking CNFs, two mesh electrodes, two spacers, and the KMgF₃ thin film on an aluminum sheet. The CNFs were grown on a glassy carbon substrate by bombardment with Ar⁺ ions at room temperature.



カーボンナノファイバーを電子線源とし、フッ化物薄膜を蛍光体として用いたフィールドエミッションランプ
The VUV field emission lamp composed of a CNF field emitter, a fluoride thin film and two copper mesh electrodes.

パルスレーザー堆積法によるフッ化物薄膜作製

The fluoride thin films prepared by pulsed laser deposition

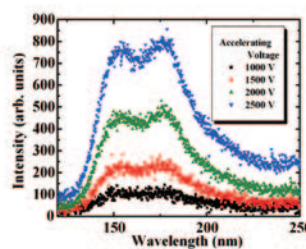


パルスレーザー堆積法で作製したKMgF₃薄膜
Surface and cross section of KMgF₃ thin film prepared by PLD.

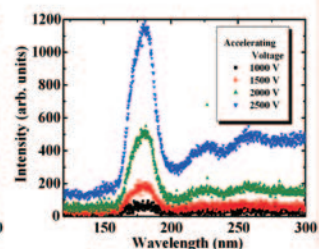
深紫外から真空紫外に及ぶ発光スペクトル

VUV and DUV output spectra from the field emission lamp

- 我々の開発したフィールドエミッションランプは、深紫外から真空紫外領域に及ぶ短波長紫外光を発する。光の中でも極めて高い光子エネルギーを有するこのような紫外線は、化学結合を直接切断できることから、計測、環境、医療など多岐にわたる応用が期待できる。
- The operating area of our field emission lamp reached to VUV region. The high photon energy of VUV light enables cutting of the specific chemical bond. Therefore, it can be applied to a wide range of application such as surface treatment, sensing and sterilization.



KMgF₃薄膜を蛍光体としたFELからの発光スペクトル
Output spectra from the field emission lamp using KMgF₃ thin film



Nd³⁺:LuF₃薄膜を蛍光体としたFELからの発光スペクトル
Output spectra from the field emission lamp using Nd³⁺:LuF₃ thin film

- 現在様々な分野で用いられている酸化物や窒化物よりも大きなバンドギャップを有する材料が数多く存在するフッ化物は、真空紫外領域でのデバイス開発におけるキーマテリアルである。我々は材料ターゲットと作製された薄膜の組成ずれが少ないパルスレーザー堆積法を用いることで、フッ素などの有毒なアシストガスを用いることなく、フッ素欠陥の少ない蛍光体として十分な品質の薄膜を作製することに成功した。この薄膜の電子線励起発光効率は単結晶のそれと同等である。
- Even when using ZnO, AlN and BN, which have been extensively studied as UV phosphors, the operating wavelength has not been extended to the VUV region. Fluoride is a promising VUV phosphor candidate. The high quality fluoride thin film was prepared by pulsed laser deposition without any assist gas, and its fluorescence performance was nearly equal to that of a single crystal.

Contact

氏名: 小野 晋吾、種村 眞幸(名古屋工業大学)

e-mail: ono.shingo@nitech.ac.jp, tanemura.masaki@nitech.ac.jp

ナノテクノロジープラットフォーム

- ▶ 最先端の研究設備とその活用のノウハウを有する25機関が全国的な設備の共用体制を構築
- ▶ 「微細構造解析」「微細加工」「分子・物質合成」の研究領域において広く一般の研究者・技術者に対し、施設利用機会と高度な技術支援を提供



微細構造解析プラットフォーム

主要研究設備

マルチビーム超高圧電子顕微鏡、収差補正分析電子顕微鏡、単原子分析電子顕微鏡、陽電子プローブマイクロアナライザー装置、軽元素対応型超高分解能走査透過型電子顕微鏡、反応科学走査透過電子顕微鏡、極低温高分解能透過電子顕微鏡、超高圧電子顕微鏡、放射光Spring8ビームライン、電子分光型超高圧電子顕微鏡



微細加工プラットフォーム

主要研究設備

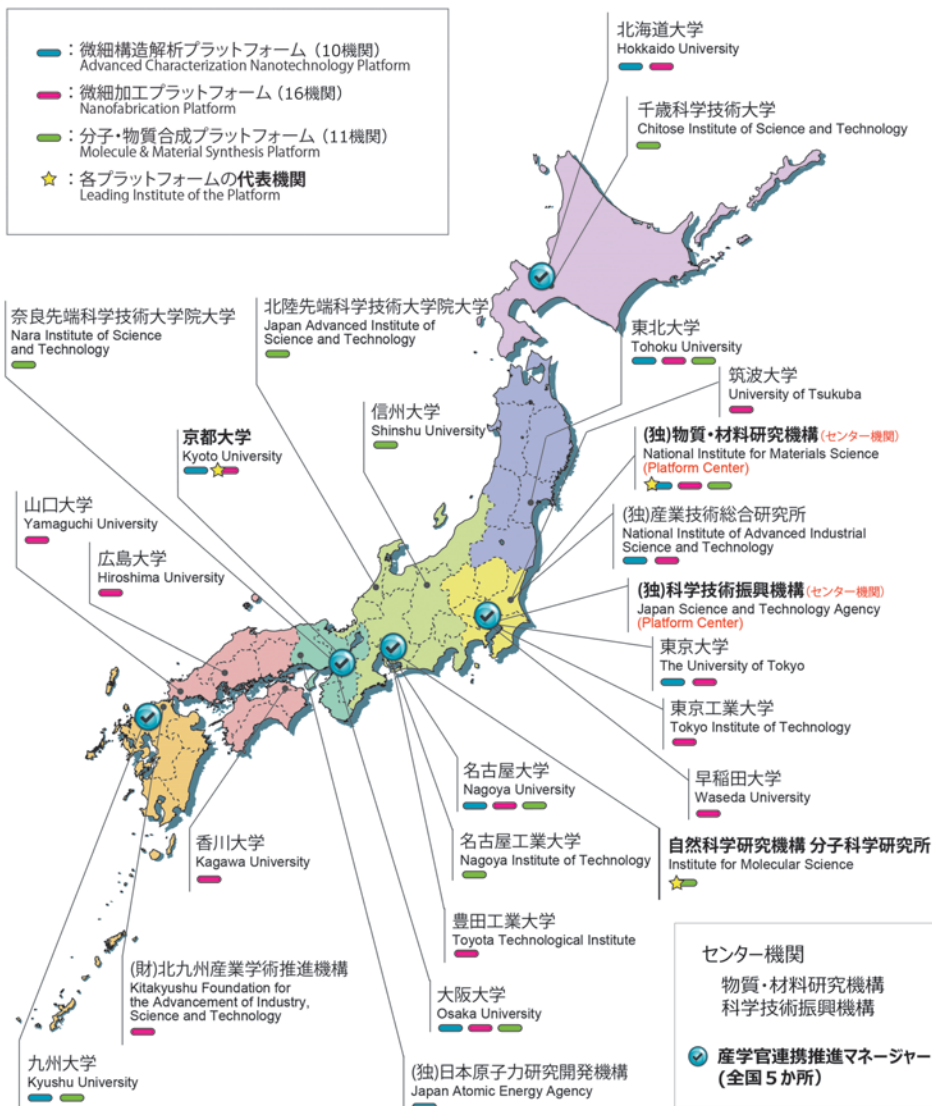
電子ビーム露光装置、ステッパー、RIE (Reactive Ion Etching) 装置、スパッタ装置、CVD装置、収束イオンビーム装置、レーザー加工装置、膜特性計測・分析装置、形状計測装置、表面計測装置 (SEM等)



分子・物質合成プラットフォーム

主要研究設備

核磁気共鳴装置、光分析装置、質量分析・その他材料評価、バイオ用光学顕微鏡、バイオ評価、真空成膜装置や薄膜/ナノ調製加工、化学材料合成・素子作成、バイオ調製、透過型電子顕微鏡 (TEM)、表面分析 (走査電子顕微鏡 (SEM)/EDX/EPMA、電子分光 (XPS/UPS/AES))、X線回折装置、走査型トンネル顕微鏡 (STM)/原子間力顕微鏡 (AFM)



ユーザー総合窓口

<http://nanonet.mext.go.jp/>

