電子回折イメージングに対する量子ノイズおよび 入射ビーム角度拡がりの影響

学位論文内容の要旨

近年、計測技術の発達により様々な物質の構造が原子スケールで解明され、産業への応用が実現されている。例えば、カーボンナノチューブ (CNT) に代表される新素材開発のような工業的応用、DNA やタンパク質の医療・創薬への応用などが挙げられる。構造解析に用いられる代表的な計測・解析技術として、電子顕微鏡、X 線結晶構造解析、核磁気共鳴分光法 (NMR) などがある。これらの手法は各計測原理と現状技術の制約により、それぞれ固有の特徴を有している。そのため、目的物質に対する上記手法の相補的な組み合わせにより、その構造の解明が行われる。しかしながら、これら既存手法を用いても、すべての物質に対する構造解析が可能ではなく、非周期構造の物質に対して、原子スケールでの構造決定を行うことは一般的に困難である。この問題は、例えば、創薬の研究で重要となる細胞膜付近に存在する『膜タンパク質』などの結晶化困難な物質に当てはまり、新たな原子スケールでの構造解析手法が強く求められている。新たな手法の一つとして、結像のためのレンズを必要としない非周期な物質に対する構造解析手法である“回折イメージング”が大きな注目を集めている。回折イメージングとは、実験により計測された回折パターンを元に計算機による数値計算を行うことで試料構造を再構成するイメージング手法であり、物理的なレンズ作用をデジタル計算によって実現する“デジタルレンズ”顕微鏡と言える。この手法は、結像のためのレンズを必要とせず、レンズ収差に影響されない回折限界分解能のイメージングを実現することが原理的に可能である。回折イメージングの光源として X 線を用いる研究は、様々な試料に対する応用が盛んに行われるが、電子線を用いた回折イメージングは着実に研究は進んでいるものの、実現可能性を検証する結果の報告が主であり、応用段階に至っていない現状にある。本論文は、電子線を用いた回折イメージングの現状と課題に対する検討、数値実験および電子顕微鏡を用いた物理実験により得られた結果をまとめたものである。

回折イメージングは、計測実験と数値計算の二つに大別される。計測実験において必要なことは、“フーリエ変換の関係を満たす理想的な回折パターンの計測”であるが、電子回折イメージングにおいて理想的な回折パターンから外れる主な要因として、1. 量子ノイズ、2. 入射ビームの角度拡がりなどが挙げられる。1 は、量子力学に起因する検出ゆらぎにより、回折パターンの検出強度に確率的な誤差が生じる。2 は、入射ビームの角度拡がり回折パターンに畳み込まれ、理想的な回折パターンにボケを与える。これらへの対処法が電子回折イメージングを実現する際の主な課題となる。本論文では

上記 1 と 2 の課題について、回折イメージングに対する影響とその解消法をまとめている。

本論文は全 7 章から構成されている。

第 1 章では、現在までの回折イメージング研究の歴史と本研究で取り扱う問題を整理し、本研究の目的を述べる。

第 2 章では、回折イメージングの概要を解説する。まず、回折イメージングに必要な回折パターンの計測実験条件についてまとめ、次にそれら計測データから物体構造をイメージングする手法として反復位相回復法を説明する。

第 3 章では、電子回折イメージングの課題である量子ノイズおよび入射ビームの角度拡がりに対し、第 2 章で説明した実験条件およびイメージング手法を用いた数値実験により、それらの影響を考察する。その結果、回折イメージングへ量子ノイズを含む回折パターンを用いた場合、再構成イメージ強度が初期値に依存してばらつきを生じること、また、入射ビームの角度拡がりを含む回折パターンを用いた場合、角度拡がりに対応して再構成イメージが縮小されることを明らかにする。

第 4 章では、第 3 章で示した各課題の影響に対する解消法としてデコンボリューション法およびアンサンブル法を適用し、数値実験においてそれらの有効性を考察する。その結果、反復位相回復法に繰り返し型デコンボリューション法を組み込むことで角度拡がりの影響が改善されること、いくつかの異なる収束解にアンサンブル法を適用することで量子ノイズの影響が軽減できることを明らかにする。以上によって、電子回折イメージングの課題に対する数値実験的検証を行い、第 5 章、第 6 章で述べる電子計測実験における考察の基礎を確立する。

第 5 章では、第 3 章で示した角度拡がりの影響および第 4 章で示した解消法についての実験的定量評価を行うため、構造が既知の試料に対する電子回折イメージングの実験的検証について述べる。実験装置は、200 kV の透過型電子顕微鏡 JEM2010F、既知試料は 100 nm 幅の TEM 用回折格子を用いる。その結果、第 3 章で示した数値実験と同様に計測実験においても再構成イメージの縮小が起きること、また、解消法を用いることで改善できることを明らかにする。これより、電子回折イメージングにおける装置上の課題をアルゴリズムによって軽減できることを実験的に検証した。

第 6 章では、さらに高分解能を実現する応用実験として“低加速電子線による高分解能イメージング”を目的に、結像のための対物レンズを使用しない装置を用いた実験を行い、低加速でかつ高分解能な回折イメージングの可能性および解消法の有効性を検証する。まず、20 kV の加速電圧を用いて、多層カーボンナノチューブを試料とし、その特徴的構造であるチューブ外径 4 nm、内径 1.9 nm および 0.34 nm のウォール間構造のイメージングを行う。また、解消法の適用により、入射ビームの角度拡がりの影響として制限されていた全体構造の再構成を実現する。

第 7 章では、本研究で得られた成果のまとめを述べる。

本研究では、電子回折イメージングの課題である量子ノイズおよび入射ビームの角度拡がりに対してそれらの解消法を提案し、実験的にこれらの方法の有効性を示した。今後、従来では解析困難であった物質の原子スケール構造解明に適用され、応用物理学の基礎と応用に貢献することが期待される。

学位論文審査の要旨

主査	教授	郷原	一壽
副査	教授	石政	勉
副査	教授	折原	宏
副査	准教授	内田	努
副査	准教授	柴山	環樹

学位論文題名

電子回折イメージングに対する量子ノイズおよび 入射ビーム角度拡がりの影響

近年、計測技術の発達により様々な物質の構造が原子スケールで解明され、産業への応用が実現されている。例えば、カーボンナノチューブ (CNT) に代表される新素材開発のような工業的応用、DNA やタンパク質の医療・創薬への応用などが挙げられる。構造解析に用いられる代表的な計測・解析技術として、電子顕微鏡、X 線結晶構造解析、核磁気共鳴分光法 (NMR) などがある。これらの手法は各計測原理と現状技術の制約により、それぞれ固有の特徴を有している。そのため、目的物質に対する上記手法の相補的な組み合わせにより、その構造の解明が行われる。しかしながら、これら既存手法を用いても、すべての物質に対する構造解析が可能ではなく、非周期構造の物質に対して、原子スケールでの構造決定を行うことは一般的に困難である。この問題は、例えば、創薬の研究で重要となる細胞膜付近に存在する『膜タンパク質』などの結晶化困難な物質に当てはまり、新たな原子スケールでの構造解析手法が強く求められている。新たな手法の一つとして、結像のためのレンズを必要としない非周期な物質に対する構造解析手法である“回折イメージング”が大きな注目を集めている。回折イメージングとは、実験により計測された回折パターンを元に計算機による数値計算を行うことで試料構造を再構成するイメージング手法であり、物理的なレンズ作用をデジタル計算によって実現する“デジタルレンズ”顕微鏡と言える。この手法は、結像のためのレンズを必要とせず、レンズ収差に影響されない回折限界分解能のイメージングを実現することが原理的に可能である。回折イメージングの光源として X 線を用いる研究は、様々な試料に対する応用が盛んに行われているが、電子線を用いた回折イメージングは着実に研究は進んでいるものの、実現可能性を検証する結果の報告が主であり、応用段階に至っていない現状にある。本論文は、電子線を用いた回折イメージングの現状と課題に対する検討、数値実験および電子顕微鏡を用いた物理実験により得られた結果をまとめたものである。

回折イメージングは、計測実験と数値計算の二つに大別される。計測実験において必要なことは、“フーリエ変換の関係を満たす理想的な回折パターンの計測”であるが、電子回折イメージングにおいて理想的な回折パターンから外れる主な要因として、1. 量子ノイズ、2. 入射ビームの角度拡がり

挙げられる.1 は, 量子力学に起因する検出ゆらぎにより, 回折パターンの検出強度に確率的な誤差が生じる.2 は, 入射ビームの角度拡がり回折パターンに畳み込まれ, 理想的な回折パターンにボケを与える. これらへの対処法が電子回折イメージングを実現する際の主な課題となる. 本論文では上記1と2の課題について, 回折イメージングに対する影響とその解消法をまとめている.

本論文は全7章から構成されている.

第1章では, 現在までの回折イメージング研究の歴史と本研究で取り扱う問題を整理し, 本研究の目的を述べている.

第2章では, 回折イメージングの概要を解説する. まず, 回折イメージングに必要な回折パターンの計測実験条件についてまとめ, 次にそれら計測データから物体構造をイメージングする手法として反復位相回復法を説明している.

第3章では, 電子回折イメージングの課題である量子ノイズおよび入射ビームの角度拡がりに対し, 第2章で説明した実験条件およびイメージング手法を用いた数値実験により, それらの影響を考察した. その結果, 回折イメージングへ量子ノイズを含む回折パターンを用いた場合, 再構成イメージ強度が初期値に依存してばらつきを生じること, また, 入射ビームの角度拡がりを含む回折パターンを用いた場合, 角度拡がりに対応して再構成イメージが縮小されることを明らかにしている.

第4章では, 第3章で示した各課題の影響に対する解消法としてデコンボリューション法およびアンサンブル法を適用し, 数値実験においてそれらの有効性を考察する. その結果, 反復位相回復法に繰り返し型デコンボリューション法を組み込むことで角度拡がりの影響が改善されること, いくつかの異なる収束解にアンサンブル法を適用することで量子ノイズの影響が軽減できることを明らかにする. ここまでに, 電子回折イメージングの課題に対する理論的検証を行い, 第5章, 第6章で述べる電子計測実験における考察の基礎を確立している.

第5章では, 第3章で示した角度拡がりの影響および第4章で示した解消法についての実験的定量評価を行うため, 構造が既知の試料に対する電子回折イメージングの検証を報告する. 検証実験装置は, 200 kV の透過型電子顕微鏡 JEM2010F, 既知試料は, 100 nm 幅の TEM 用回折格子を用いる. その結果, 第3章で示した数値実験と同様に計測実験においても再構成イメージの縮小が起きること, また, 解消法を用いることでそれらの影響が改善できることを明らかにする. これより, 電子回折イメージングにおける装置上の課題をアルゴリズムによって解決できることを実験的に検証している.

第6章では, さらに高分解能を実現する応用実験として“低加速電子線による高分解能イメージング”を目的に, 結像のための対物レンズを使用しない装置を用いた実験を行い, 低加速でかつ高分解能な回折イメージングの可能性および解消法の有効性を検証する. まず, 20 kV の加速電圧を用いて, 試料として用いた多層カーボンナノチューブの特徴的構造であるチューブ外径 4 nm, 内径 1.9 nm および 0.34 nm のウォール間構造のイメージングを行う. また, 解消法の適用により, 入射ビームの角度拡がりの影響として制限されていた全体構造の再構成を実現している.

第7章では, 本研究で得られた成果のまとめを述べている.

これを要するに著者は, 電子回折イメージングに対する新たな知見を得たものであり, 応用物理学に対して貢献するところ大なるものがある. よって著者は, 北海道大学博士(工学)の学位を授与される資格あるものと認める.