



Title	高分解能・高感度X線タイコグラフィ
Author(s)	鈴木, 明大
Citation	大阪大学, 2016, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://doi.org/10.18910/55916
rights	
Note	

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

The University of Osaka

論文内容の要旨

氏 名 (鈴木 明大)

論文題名

高分解能・高感度X線タイコグラフィ

論文内容の要旨

本論文は、放射光X線を利用したナノイメージング技術であるX線タイコグラフィの高空間分解能化、高位相感度化に関する研究をまとめたものであり、内容要約すると以下ようになる。

第1章では、タイコグラフィが結晶構造解析における直接的位相回復法として提案されたのち、イメージング手法として確立されるまでの歴史的背景をまとめた。さらに、X線タイコグラフィが抱えていた課題を指摘し、本研究の目的、意義、概略について述べた。

第2章では、X線タイコグラフィに関連する諸原理をまとめた。さらに、X線タイコグラフィにおける反復的位相回復アルゴリズムに関して詳述した。

第3章では、高空間分解能X線タイコグラフィの装置開発と実証実験に関して述べた。全反射ミラー集光照明光学系、実験装置恒温化システム、入射X線照射位置エラー修正法という3つの要素技術開発を行うことで、空間分解能を制限していた実験的要因を取り除き、TaジーマンズスターテストチャートとAuナノ粒子の20 nmを越える高空間分解能観察を実現した。試料像と同時に再構成された入射X線波動場の断面強度プロファイルは、すでに確立された手法である暗視野ナイフエッジ走査法による結果と良い一致を示しており、試料観察だけでなくX線プローブのキャラクタリゼーション技術として本手法を活用できることを示した。

第4章では、空間フィルターによるX線タイコグラフィの高位相感度化に関して述べた。試料面に空間フィルターとして矩形型のスリットを配置することで試料由来の散乱信号を優れた信号対雑音比で取得できることを、SPring-8 BL29XULにおけるX線タイコグラフィ測定を想定した計算機シミュレーションによって示した。さらに、厚さが12 nm、最小構造が17 nmの高解像極薄Taジーマンズスターテストチャートを試料に用いて、本手法の有効性を実証した。再構成された試料像の位相ヒストグラムから、位相感度は厚さ50 nm程度のタンパク質に相当する0.008 radと見積もられた。

第5章では、試料上流に配置した円柱構造体を参照光源として取得するインラインホログラムと、検出器の直前に配置したビームストップを利用する暗視野X線タイコグラフィに関してまとめた。はじめに、弱位相物体の高空間分解能・高位相感度観察に必要な回折パターンの強度ダイナミックレンジが、本手法によって圧縮されることを計算機シミュレーションによって示した。次に、厚さ30 nmのTaジーマンズスターテストチャートを利用した実証実験を行い、ビームストップによって失われた低空間周波数領域の回折パターンをインラインホログラムによって補完できることを実証し、磁性細菌MO-1の高感度内部構造観察へ応用した。その結果、細胞小器官であるマグネトソームを20 nm程度の空間分解能で可視化することに成功した。

第6章では、原理的に困難とされていた厚い試料の高空間分解能観察を可能にするマルチスライスX線タイコグラフィに関して述べた。回折パターンの高角側に現れる試料厚さの効果に着目することで、マルチスライス法を組み入れた位相回復アルゴリズムがX線領域においても機能することを見出した。集束イオンビームで微細構造を加工した2枚のPt薄膜を105 μm の間隔で貼り合わせた2層構造体をテスト試料として利用し実証実験を行った。従来の解析法では試料の厚さによって200 nm程度に制限される光軸面内方向の空間分解能が、本手法によって50 nmまで向上することを示した。

第7章では、本論文で得られた結果をまとめ、本論文の結論ならびに将来展望に関して述べた。

論文審査の結果の要旨及び担当者

氏 名 (鈴木 明 大)			
論文審査担当者	(職) 氏 名		
	主 査	准教授	高橋 幸生
	副 査	教授	山内 和人
	副 査	教授	桑原 裕司
	副 査	教授	安武 潔
	副 査	教授	森田 瑞穂
	副 査	教授	森川 良忠
	副 査	教授	遠藤 勝義
	副 査	教授	渡部 平司

論文審査の結果の要旨

本論文は、X線タイコグラフィを放射光ナノ構造イメージング法として確立することを目的として、高空間分解能・高位相感度を実現する X 線タイコグラフィ装置ならびに解析技術の開発に関する研究成果をまとめたものである。主な成果を要約すると以下の通りになる。

1. 大型放射光施設 SPring-8 の高輝度 X 線を全反射集光鏡により集光することで、高強度コヒーレント X 線ビームを形成している。また、SPring-8 の実験ハッチ内を恒温化し、試料上のナノ構造物を X 線照射の位置基準とすることで高い位置安定性・精度での X 線照射を実現している。これにより、X 線タイコグラフィによる高空間分解能観察を実現し、Au ナノ粒子の観察で 17nm の空間分解能を達成している。
2. 全反射集光鏡に由来する寄生散乱の検出器への到達を防ぐために、試料直前に矩形開口のスリットを配置することを提案し、計算機シミュレーションによりその最適形状を決定している。Ta 箔に集束イオンビーム加工を施すことによって矩形開口スリットを製作し、それを実装した全反射集光光学系を開発している。それを用いて、SPring-8 において厚さ 12nm の Ta ジーメンススターテストチャートの X 線タイコグラフィ測定を行ったところ、17nm の空間分解能、0.01rad を上回る位相感度を達成している。
3. 回折強度パターンのダイナミックレンジを圧縮し X 線タイコグラフィの高空間分解能・高位相感度化を実現する方法として、暗視野 X 線タイコグラフィを提案している。計算機シミュレーションを行い、最大位相変化量 0.01rad の試料を 15nm の空間分解能で観察するために必要な回折強度パターンのダイナミックレンジを 1000 分の 1 に圧縮できることを示している。SPring-8 において厚さ 12nm の Ta ジーメンススターテストチャートの暗視野 X 線タイコグラフィ測定を行ったところ、12nm の空間分解能、0.0086rad の位相感度を達成している。また、暗視野 X 線タイコグラフィを磁性細菌 MO-1 の定量的な内部構造解析に応用し、マグネトソームを約 20nm の空間分解能で可視化することに成功している。
4. マルチスライスアプローチを X 線タイコグラフィに応用することで、投影近似の成立しない厚い試料の高空間分解能観察が可能であることを実証している。SPring-8 において、厚さ 105 μ m の 2 層構造体を試料とした実証実験を行い、投影近似下では 192nm が限界である光軸面内方向の空間分解能を 53nm まで向上させている。

以上のように、本研究では、X 線タイコグラフィの技術的な課題を解決し、X 線タイコグラフィを高空間分解能・高位相感度を有する放射光ナノ構造イメージング法として確立している。これは、今後、実試料観察による X 線タイコグラフィの応用研究を展開するための基盤となるもので、意義深いと思われる。よって、本論文は博士論文として価値あるものと認める。