

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 9 日現在

機関番号：10101

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2013～2014

課題番号：25600135

研究課題名(和文)ワンショット・ステレオ3D回折イメージングの開拓

研究課題名(英文) Toward one shot stereo imaging

## 研究代表者

郷原 一寿 (GOHARA, Kazutoshi)

北海道大学・工学(系)研究科(研究院)・教授

研究者番号：40153746

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：回折イメージングとは、実験により得られた回折波の振幅に事前情報を付加して、計算によって位相回復を行い、イメージングを行う手法である。結像のための対物レンズを使用することなく、非結晶材料に対しても適用可能であることから、分野を超えた広がりを見せている。回折イメージングにおいて、1枚の2次元回折データからステレオ3次元イメージングを可能とする、新たなアルゴリズムを開発する。そして、具体的な実験条件を考慮した計算機シミュレーションを行い、電子回折イメージングによって、原子分解能でステレオ3次元イメージングが得られることを検証した。

研究成果の概要(英文)：A diffraction pattern from an object gives the amplitude of the diffraction wave. In experiments, however, the phase is usually missing. If we could retrieve the missing phase, we would be able to reconstruct an image of the object by the inverse Fourier transformation. This is generally known as the phase problem. This innovative new imaging method is called the diffractive imaging. The method is expected to be indispensable for the material science. We also have been doing research and published papers of the diffractive imaging. Based on the results of these researches, 3D stereo atomic resolved imaging using electron microscopy has been examined theoretically and numerically.

研究分野：応用物理学

キーワード：回折イメージング 位相回復 ステレオイメージング

1. 研究開始当初の背景

回折イメージング(diffractive imaging)とは、実験により得られた回折波の振幅をもとに事前情報を付加して、計算によって位相回復を行い、物質のイメージングを行う手法である<sup>(1)</sup>。結像のための対物レンズを使用することなく、非結晶材料に対しても適用可能であることから、分野を超えた広がりを見せている<sup>(2),(3),(4)</sup>。

図1は、研究代表者(郷原)らが独自に開発した、結像のための対物レンズを用いない低加速電子回折顕微鏡により、単層カーボンナノチューブ(SCNT)を、加速電圧30keV、1.2Åの空間分解能でイメージングすることに成功した例を示している<sup>(5),(6),(7)</sup>。モデル計算との比較から、軽元素の炭素原子1つ1つが識別できること、2つの原子の重なり方に依存したコントラストが得られていること、さらにイメージの強度が静電ポテンシャルに対応していることが定量的に示された。

一方、回折イメージングをもとにして、一枚の回折パターンから3次元イメージングを可能とする方法、アンキログラフィ(ankylography)を提案し、X線領域で実証したという報告がなされた(*Nature*, 463, 214, 2010)。しかし、この方法に対して、否定的な報告もされており、大きな議論となっている。研究代表者は、図1の結果とアンキログラフィの実験条件を詳細に検討した結果、電子線を用いれば、一枚の回折パターンから3次元のステレオイメージが原子分解能で見出されることを見出した。

2. 研究の目的

本研究では、回折イメージングに対して、1枚の2次元回折パターンから、ステレオ3次元イメージングを可能とするアルゴリズムを構築し、原子分解能でのアルゴリズムの有効性を、主に計算機シミュレーションにより検証する。

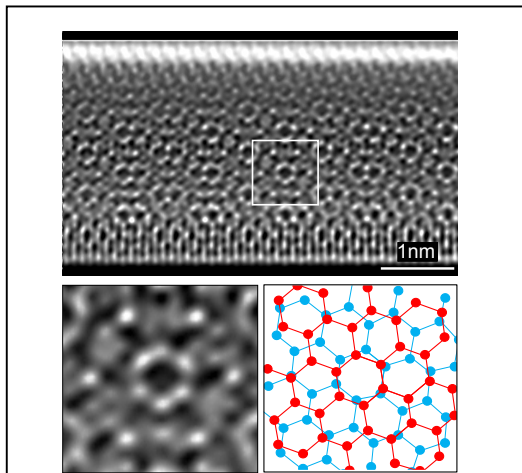


図1. 上: 単層カーボンナノチューブ  
下: 拡大図(左)、計算モデル(右)  
(*Appl. Phys. Lett.*, 98, 174103, 2011)

本研究によって、2次元回折パターンを1回のみ測定することで、ターゲット物体の3次元情報を得る実験条件を明らかとすることになる。また、3次元原子分解能イメージングの具体的なアルゴリズムを構築することは、回折イメージングをさらに深化させ、パルスX線やパルス電子線を用いた、新たな時空間4次元測定の道を拓くことになる。

3. 研究の方法

X線・電子線において、単一波長(エネルギー)  $k_0$  の波が試料によって散乱されると、実験によって計測されるのは、散乱角度  $\theta$  の範囲で、エバルト球を一部切り取った球上の回折強度分布である。試料が十分小さく吸収などが無視できる場合には、強度分布は原点に対して点対称性を持つ。従って、計測された1枚のエバルト球上の強度分布から、対称変換によって、2枚のエバルト球上の強度分布が得られる。これを分解・合成することで、2枚の曲面上の強度分布が得られる。角度  $\theta$  が小さいときには、曲面を平面と近似すると、入射方向に垂直な平面を僅かに±回転させた、2枚の平面上の強度分布が得られる。2枚の平面は、もとの入射方向を±回転させた方向から入射して得られる強度分布を反映した平面に対応している。以上の考察から、1枚のエバルト球上の計測データから、入射方向が僅かに異なる2枚の回折強度が得られる。それぞれをもとに、位相回復によって回折イメージングを行えば、2つのステレオイメージが得られる。角度が小さいという条件は、分解能を制限することになるが、電子顕微鏡においては、波長に対して10~20倍(散乱角6~3度)の分解能でも、原子分解能に達する。

エバルト球上に分布した回折強度は、散乱角度が小さいときには、2枚の平面と近似できることに着目し、これを回折イメージングに応用することは、斬新な発想であり、新たな方法論を提案することになる。電子のド・ブロイ波長からすれば、低加速電子顕微鏡においても、3次元で原子分解能を実現することができる。

本研究では、具体的に以下の3項目を順次進めた。

- (1) 3次元回折イメージングのシミュレーション用プラットフォームの構築
- (2) 位相回復の収束性に対する回折パターンの枚数依存性
- (3) ステレオ3次元イメージング用アルゴリズムの構築および原子分解能でのアルゴリズムの有効性の検証

#### 4. 研究成果

##### (1) 3次元回折イメージングのシミュレーション用プラットフォームの構築

まず始めに、これまでに構築した3次元回折イメージングのシミュレーションを元にして、本研究を行うためのプラットフォームを構築した。この過程で、検出器が平面の場合に、エバルト球上の回折強度と検出器で計測される強度の位置関係を考慮して、検出器の回折強度をエバルト球へ再配置し、離散化誤差を考慮することが重要であることが明らかとなった。このことに注意して、図2に示したように、試料を配置するオブジェクト空間と、それとフーリエ変換の関係にあるフーリエ空間を行き来でき、これに回折イメージングのアルゴリズムを組み込んだ、3次元シミュレータを構築した。なお、計算機のハードウェアは288コアマシンを所有していたが、メモリを大幅に増やして、3次元用に整備した。また、学内共有計算機資源である、アカデミッククラウドサーバの活用も積極的に進めた。

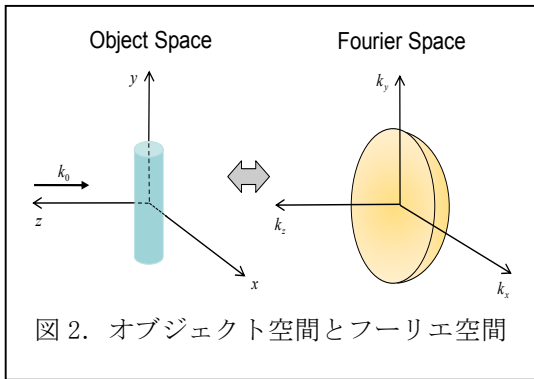


図2. オブジェクト空間とフーリエ空間

これらのソフトウェアおよびハードウェアの計算環境を整え、1枚の2次元回折パターンから原子分解で、3次元ステレオイメージが得られることを示すために、実際の実験条件を考慮したシミュレーションを行なった。

##### (2) 位相回復の収束性に対する回折パターンの枚数依存性

3次元回折イメージングは、通常、試料を回転して複数のエバルト球上の回折強度を計測し、位相回復によって回折イメージングを行う。エバルト球が平面とみなせる場合には、投影断面定理より、3Dトモグラフィの原理と同様になる。そして、投影面の枚数が多ければ多いほど精度が上がる。これに対して、アンキログラフィでは、1枚のみの半球面(エバルト球)上の強度分布を使えば、回折イメージングによって、オブジェクトの3次元イメージが得られるとしている。そこで、単層カーボンナノチューブを具体的な例として、(1)で構築したシミュレータを使い、位相回復の収束性を示すRファクターなどの評価量によって、回折パターンの枚数依存性について解析を行った。フーリエ空間の強度をど

のように補完しているかが重要な点であり、位相も含めてフーリエ空間の情報の欠損について情報理論的な考察を行った。

##### (3) ステレオ3次元イメージング用アルゴリズムの構築および原子分解能でのアルゴリズムの有効性の検証

ステレオ3次元イメージングは、散乱角が小さい場合に、角度が僅かに異なる2枚のエバルト球を使って、それぞれ位相回復を行い、対となる一組のステレオイメージを構成することが原理である。実際の実験条件を考慮し、(1)で構築したシミュレータによって、数値実験を行った。ここで、位相回復の精度が重要となることが、予備実験の結果から明らかとなり、ダイナミックサポートを適用するなど、新たなアルゴリズムの開発を進めた。そして、単層カーボンナノチューブ、グラフェンを具体的な例として、原子分解能でステレオ3次元イメージングが可能であることを示し、アルゴリズムの有効性を検証した。

#### <引用文献>

- (1) J. Miao, *et al.*, *Nature*, **400**, 342-344, 1999.
- (2) 郷原一寿, 上村 理, *顕微鏡*, **44**(1), 69-73, 2009.
- (3) 郷原一寿 他, *計測と制御*, **50**(5), 313-337 (2011).
- (4) 山崎 順, 田中信夫, *日本結晶学会誌*, **53**(5), 346-352 (2011).
- (5) 上村 理, 郷原一寿, *顕微鏡*, **48**(3), 183-189 (2013).
- (6) K. Kawahara *et al.*, *Phys. Rev. B*, **81**, 081404(R) (2010).
- (7) O. Kamimura *et al.*, *Appl. Phys. Lett.*, **98**, 174103 (2011).

## 5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 8 件)

- ① S. Danworaphong, M. Tomoda, Y. Matsumoto, O. Matsuda, T. Ohashi, H. Watanabe, M. Nagayama, K. Gohara, P. H. Otsuka, and O. B. Wright: Three-dimensional imaging of biological cells with picosecond ultrasonics, *Appl. Phys. Lett.* 106(16), 査読有, 163701-5, 2015. DOI:10.1063/1.4918275
- ② S. Hattanda, H. Shioya, Y. Maehara, and K. Gohara: K-means clustering for support construction in diffractive imaging, *J. Opt. Soc. Am. A*, 査読有, 31(3), 470-474, 2014. DOI:10.1364/JOSAA.31.000470
- ③ D. Ito, T. Komatsu, K. Gohara: Measurement of saturation processes in glutamatergic and GABAergic synapse densities during long-term development of cultured rat cortical networks, *Brain Research*, 査読有, 1534, 22-32, 2013. DOI:10.1016/j.brainres.2013.08.004
- ④ Y. Yamamoto, K. Yokoyama, M. Okumura, A. Kijima, K. Kadota, and K. Gohara: Joint action syntax in Japanese martial arts, *PLoS ONE* 8(9), 査読有, e72436, 2013. DOI:10.1371/journal.pone.0072436
- ⑤ M. Suzuki, K. Ikeda, M. Yamaguchi, S. N. Kudoh, K. Gohara: Neuronal cell patterning on a multi-electrode array for a network analysis platform, *Biomaterials*, 査読有, 34(21), 5210-5217, 2013. DOI:10.1016/j.biomaterials.2013.03.042
- ⑥ 上村理、郷原一寿: 「低エネルギー電子回折イメージング」、*日本結晶学会誌『最近の研究から』*、査読有、55(6)、350-355、2013. DOI:10.5940/jcrsj.55.350

[学会発表] (計 10 件)

- ① 郷原一寿: ナノ構造体可視化における電子回折イメージングの可能性、第一回放射光連携研究ワークショップ「次世代放射光が拓く可視光物質科学」、2015. 3. 17、「ステーションコンファレンス東京 (東京)」.
- ② T. Dobashi, O. Kamimura, Y. Maehara, R. Kitaura, H. Shinohara, and K. Gohara: Characterization of Multi-Layer Graphene by Using Low-Voltage Electron Diffraction Microscopy, 2014 MRS Fall Meeting, Wednesday, 2014. 12. 3, Boston (USA).

- ③ K. Gohara: Electron diffractive imaging for 3D atomic resolution, 10th Japanese-Polish Joint Seminar on Micro and Nano Analysis, 2014.10.25, Frontier Research in Applied Science Building (Sapporo).
- ④ O. Kamimura, T. Dobashi, Y. Maehara, R. Kitaura, H. Shinohara, and K. Gohara: Low-voltage electron diffraction microscopy of multi-layer graphene, 18th International Microscopy Congress (IMC 18), 2014. 9. 9, Prague (Czech Republic).
- ⑤ 郷原一寿: X線・電子線領域の回折と原子分解能イメージング、第6回日本放射光学会若手研究会「コヒーレントX線が拓く構造可視化の新しい世界」、2014. 8. 22、「SACLA 実験棟2階大会議室 (兵庫県)」.
- ⑥ O. Kamimura, T. Dobashi, Y. Maehara, and K. Gohara: Electron diffraction microscopy of carbon-based nano-materials, International Conference on Nanoscience and Nanotechnology (ICONN 2014), 2014. 2. 4, Adelaide (Australia).
- ⑦ 上村理、土橋高志、前原洋祐、郷原一寿: 日本顕微鏡学会第69回学術講演会『低エネルギー電子回折イメージング』、2013. 5. 2、「ホテル阪急エキスポパーク (大阪)」.

[図書] (計 1 件)

- ① 郷原一寿: 「回折イメージング」、*株式会社、マイクロビームアナリシス・ハンドブック*、140-141、2014.

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

○取得状況 (計 0 件)

[その他]

ホームページ等

## 6. 研究組織

(1) 研究代表者

郷原一寿 (GOHARA, Kazutoshi)  
北海道大学・大学院工学研究院・教授  
研究者番号: 40153746

(2) 研究分担者

塩谷浩之 (SHIOYA, Hiroyuki)  
室蘭工業大学・工学研究科・教授  
研究者番号: 90271642