SURE 静岡大学学術リポジトリ
Shizuoka University REpository

深紫外光・X線領域でのコヒーレント回折顕微鏡法の研究とその超解像への応用

メタデータ	言語: Japanese 出版者: 静岡大学 公開日: 2018-11-21 キーワード (Ja): 位相回復, 回折イメージング, コヒーレントX線 キーワード (En): 作成者: 中島, 伸治 メールアドレス: 所属:
URL	http://hdl.handle.net/10297/00025951

様　式　Ｃ－１９、Ｆ－１９－１、Ｚ－１９　（共通）

科学研究費助成事業　　研究成果報告書

平成 ２９ 年　 ６ 月 １４ 日現在

機関番号：１３８０１
研究種目：基盤研究(C)（一般）
研究期間：2014～2016
課題番号：２６３９００８１

研究課題名（和文）深紫外光・X線領域でのコヒーレント回折顕微鏡法の研究とその超解像への応用

研究課題名（英文）Study of coherent diffractive microscopy and its application to super resolution in the fields of deep-ultraviolet light and x-ray

研究代表者
中島　伸治（NAKAJIMA, NOBUHARU）

静岡大学・工学部・教授

研究者番号：２０１６４１８９

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費）　　3,900,000円

研究成果の概要（和文）：近年，シンクロトロン放射光から得られるコヒーレントX線を照明光として，レンズを用いずナノ物体構造のイメージングを行う回折顕微鏡法の研究が盛んになっている。最近，我々は，開口アレイフィルターを用いた解析的な位相回復法による新規の回折イメージング法を提案し，可視光のレーザー光源を用いた実験により本方法の有効性を確認した。本研究では，適応範囲を深紫外光及びX線領域へ拡張するために方法の改良を行った。その結果，原子のイメージングが可能であることを計算機実験により示し，さらに白色光源から抽出した紫外光による回折イメージングの実験により方法の有効性を実証した。

研究成果の概要（英文）：Lensless coherent diffractive microsopy has been studied actively during the past decade in the fields of nanostructure imaging with coherent x-ray illumination from synchrotron radiation sources. Recently, we have proposed a novel method of coherent diffractive imaging using a deterministic phase-retrieval method with an aperture-array filter, and then the effectiveness of our method has been demonstrated by the experiments at optical wavelengths. In this study, our method has been improved in order to extend the sphere of its application into the areas of deep-ultraviolet light and x-ray. As a result,the possibility of the atomic-size object reconstruction using our method has been demonstrated in computer simulations, and the effectiveness of our method has been shown in the proof-of-concept expereiment with ultraviolet light illumination from a white light source.

研究分野：工学

キーワード：位相回復　回折イメージング　コヒーレントX線

1．研究開始当初の背景

(1) X線を用いた顕微鏡は透過性があるため，電子線が透過しない厚みのある物体の内部構造を観察できる。しかし，従来の X 線の結像で用いられているフレネルレンズは，物体を照明する X 線の波長程度の高精度な加工が難しく，現在でも高性能レンズを作製することができない。そのため，光学レンズのように照明光の波長程度（理論限界）までの分解能が得られない。

最近，放射光施設（電子加速器）から高強度なコヒーレント X 線が得られるようになったため，過去に光学分野で開発されたレンズを用いないコヒーレント回折イメージング法（物体からの回折光強度から直接，位相分布を回復して，その振幅と位相からなる波動関数を計算機で逆伝搬させて物体像を再生する方法）を，生物・材料等の微小な内部構造観測に利用することが試みられるようになった。この方法はレンズを用いないため原理的に照明光の波長程度の分解能が得られる利点がある。

コヒーレント回折イメージング法としてよく知られているのがホログラフィー法であるが，X 線は，レーザー光ほど空間コヒーレンスが良くないため，物体近くに参照光用の穴を設ける必要がある。そのため，その穴の物理的大きさで再生物体の分解能が制限され低下する問題がある。そこで，最近，光学分野で開発された参照光を用いない位相回復法が利用されるようになった。特に，1 枚の回折光強度（シングルショット測定）分布および物体の広がり等の既知情報を用いて回折光の位相を計算機による反復アルゴリズムで求める方法（反復位相回復法）が，コヒーレント X 線領域の実験で多く利用されている。しかし，反復法は計算機によるアルゴリズムによって位相分布を再生するため，解の収束性の問題が常に存在し，物体が位相変化をもつ複素振幅物体の場合，しばしば別の解に停滞することが知られている。

(2) 本研究室では，光学分野において，解析的（非反復的）に強度から位相を回復する方法の研究を行ってきた。この方法は，ホログラフィーのような参照光による干渉縞を利用せず，開口アレイフィルターを用いて回折強度を観測する手法であるため，低コヒーレンスでも再生できる特徴がある。2007 年，今までの研究を発展させ新しい光・X 線用のシングルショット位相回復法を考案した。その後，半導体レーザー光（波長：0.635μm）を用いた実験を行い，実際に物体を照明光波長の約 6 倍の分解能で再生できることを実証した。

将来的に，放射光の高コヒーレント X 線源だけでなく研究室レベルで使用される光源でも利用できるようにするためには，さらに方法を発展させて，より短波長な深紫外光・X 線領域の低コヒーレンス光源でも使用可能となる顕微鏡法へ改良する必要がある。

2．研究の目的

(1) 将来的には，可視光に比べて遥かに短波長の X 線や電子線を照明光として用いた顕微鏡システムへ発展させる予定である。そのために，本方法（開口アレイフィルターによる位相回復）の上記の波長領域での適用可能性を理論的および計算機シミュレーションで調べる必要がある。特に，本方法の分解能の限界を調べることが目的である。

(2) 既存の装置および申請予算の関係から，すぐに X 線源を用いた実験に取りかかることはできない。そこで，X 線領域へ進む前段階として，今回申請した研究では，深紫外光領域（200nm～350nm）での本方法によるレンズレス回折顕微鏡法の実験を行い，その実験から，本方法の位相回復で必要となる開口アレイフィルターの開口サイズ，開口間隔，さらに物体面とフィルター面間の距離，フィルター面と観測面間の距離などの最適値を調べる。

(3) 上記の深紫外光領域の実験が成功した場合は，実際の生物試料の 3 次元再生およびエバネッセント光照明による超解像システムの構築を目指す。

3．研究の方法

(1)上記の研究目的(1)については，種々の条件で計算機シミュレーションを行う。

(2)研究目的(2)の実験では，本方法の特徴である参照波を用いないという利点を示すため，レーザーよりも空間コヒーレンスが低い（すなわち熱光源を）照明光として用いる。まず，白色光源用ランプの波長帯域から干渉フィルターを用いて，紫外光成分のみを取り出して物体照明光源とすることを行う。しかし，空間コヒーレンスを物体再生に必要な状態まで改善するため，ピンホールなどで照明光を制限する必要があり，そのため光量が低下し，照明光による物体からの回折強度分布の信号対雑音比が悪くなる。そこで，紫外光波長領域で光の感度が高い冷却 CCD カメラを新規に購入する。それらの装置を用いて，本方法の位相回復で必要となる開口アレイフィルターの開口サイズ，開口間隔，さらに物体面とフィルター

面間の距離，フィルター面と観測面間の距離などの最適値を実験で確かめる。

(3) 上記(2)の実験が成功した場合は，市販のナノサイズ球形ポリマーやタマネギの細胞などの 3 次元再生を行う。さらに，全反射面でプリズム面から空気層へ光の波長程度の距離を染み出すエバネッセント波によって物体を照明して，その回折光の振幅と位相を本方法で再生し，照明波長以下の物体の構造再生（超解像）を試みる。

４．研究成果

(1)原子サイズ物体の再生シミュレーション

本方法（開口アレイフィルターによる位相回復）を用いて原子サイズ物体の回折強度からイメージングが可能かどうか調べるため，計算機シミュレーションを行った。

図 1 のような測定システムを想定した。波長 0.1Åのコヒーレントな電子線を，図 2(a)の物体（直径約 2.78Åの金原子が 36 個ランダムに分布したものを想定した）に照射し，その物体からの回折波を開口アレイフィルター（128×128 開口：各開口の幅 0.246μm，開口間隔 31.25μm）を通して強度分布を測定する状態を想定して計算した観測強度分布が図２(b)である。図２(b)の中の差し込み図は１つの開口からの回折強度分布の代表的な形を表している。

図２(b)の強度分布からサンプリング位置を変えた128×128点のデータ数枚から解析的位相回復法で再生した物体が図３(a)である。さらに，雑音を加えた強度データから再生した結果が図３(b)である。なお，図２(b)の中心付近は照明光の強い透過成分をカットしているため，中心付近のデータを得ることができないが，原子集合のような物体は再生可能であることが分かる。また，再生分解能限界を理論的に調べた結果，約4Åまで分解できることが分かった。以上の成果は，「５．主な発表論文等」の論文③として発表した。

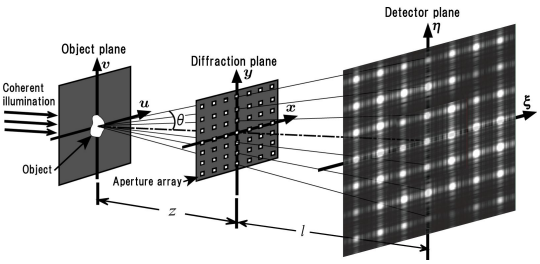
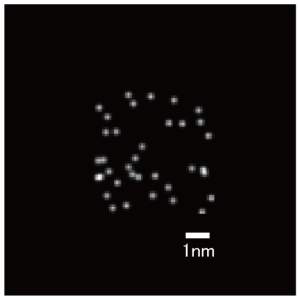
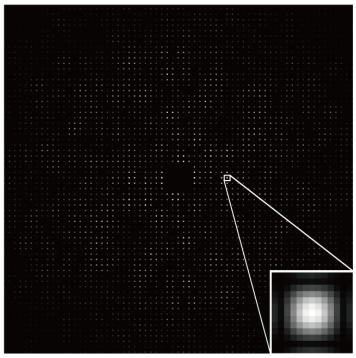


図１：測定システムの概略図

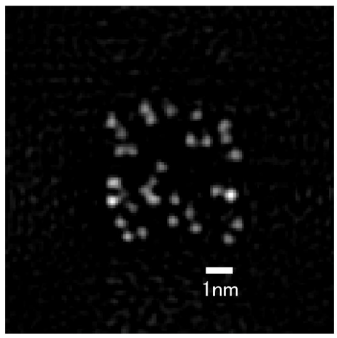


(a)

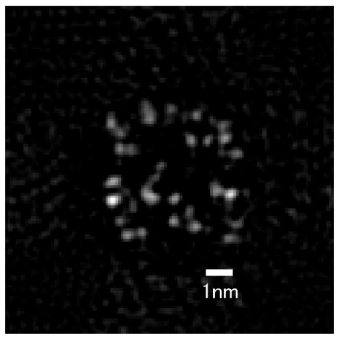


(b)

図２：(a)元の物体，(b)観測強度分布（差し込み図は１開口からの回折強度分布）



(a)



(b)

図３：(a)雑音がない場合の再生物体，(b)雑音を加えたデータからの再生物体

(2)**開口フィルターの開口サイズ条件の緩和**

開口アレイフィルターを用いる本方法では，位相回復するための開口サイズ制限条件があり，あまり大きな開口を用いることができなかった。これを改善するため，新しい手法を提案し，理論解析及び計算機シミュレーションによって，その手法の有効性を示した。この結果は，「５．主な発表論文等」の論文②として発表した。

(3)**白色光源を用いた位相回復実験**

レーザ光と異なりコヒーレンスが悪い一般の熱光源を物体照明光として用いた場合の本方法の有効性を実験的に調べた。

図４の実験系において，メタルハライド光源から干渉フィルターにより波長選択した波長 365nm の紫外光を直径 1mm のピンホールで空間コヒーレンスを改善して物体照明光とした実験を行った。図５(a)が物体(直径 50μm 円形開口とポジパターンの USAF テストパターンにより作成)である。図５(ｂ)が図４の距離 z = 80mm，l ＝ 55mm とした測定条件で観測した回折強度分布である。この強度分布から再生した再生物体の振幅と位相がそれぞれ図５(ｃ)と図５(ｄ)である。

この結果から，熱光源を用いても本方法は有効であることが分かった。 しかし，干渉フィルターおよびピンホールによって光量が制限されているため，CCD カメラで長時間（約 13 分）測定する必要があり，そのためカメラの暗電流ノイズの影響により再生が劣化する現象が見られた。これを改善するためには，さらに光量がある発光ダイオード等を使用する必要があるが，その実験は予算の関係から今後の課題となった。

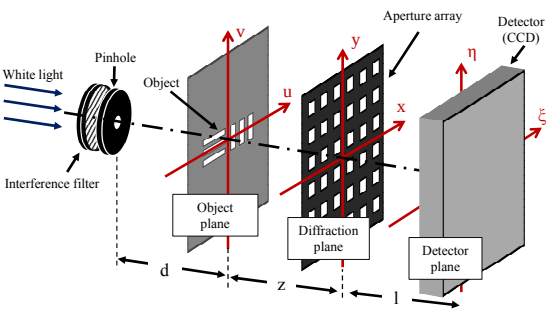
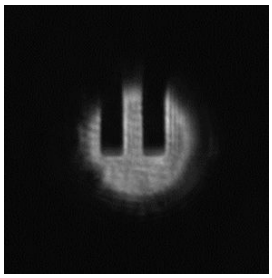
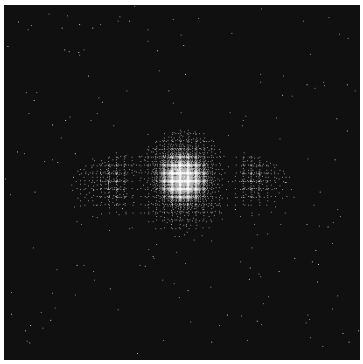


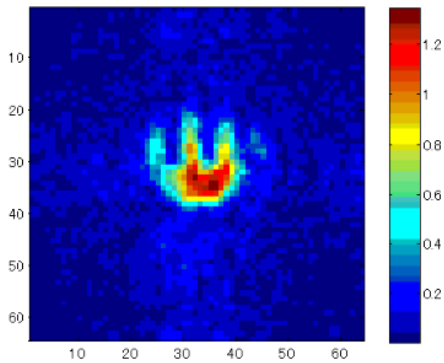
図４：白色光源による実験系の概略図



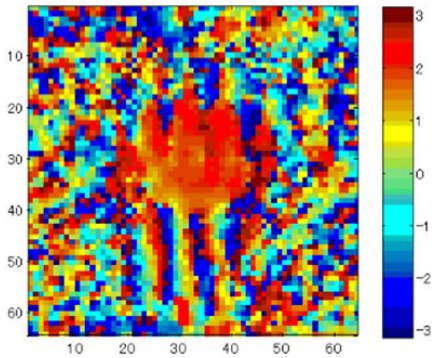
(a)



(b)



(c)



(d)

図５：白色光照明を用いた物体再生結果
(a)元の物体の顕微鏡像，(b)観測強度分布，(c)再生物体振幅，(d)再生物体位相

(4)走査型位相回復システムによる再生実験

予算上，本科研費の研究目的(3)を行うことができなくなったため，研究方針を変更して，別の走査型システムを用いた実験を行った。図６が実験系の概略図である。波長 635nm の半導体レーザからの光を，ピンホールおよびビームエクスパンダーを用いて広げ，ガウス振幅フィルターとレンズ L_1により波面整形を行い物体照明ビーム光とした。物体を縦と横に動かしながら回折光をレンズ L_2で集め CCD カメラで光強度分布を測定した。

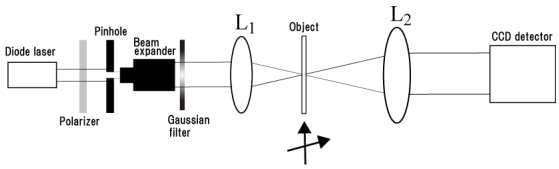


図６：走査型位相回復実験の概略図

図７が焦点距離250mmレンズの物体を再生した結果である。図７(a)と７(b)は，それぞれレンズの透過振幅分布と位相分布である。図の破線に沿った断面分布が図７(c)と(d)に表してある。図７(c)の青線と赤線がそれぞれ横方向の振幅と位相の断面分布を表し，図７(d) の青線と赤線がそれぞれ縦方向の振幅と位相の断面分布を表している。図７(c)と７(d)の点線は物体レンズの焦点距離から計算した位相変化の理論値であり，実験結果とほぼ一致していることが分かる。本方法が走査型システムにおいても有効であることが実証できた。この結果は，「５．主な発表論文等」の論文①として発表した。

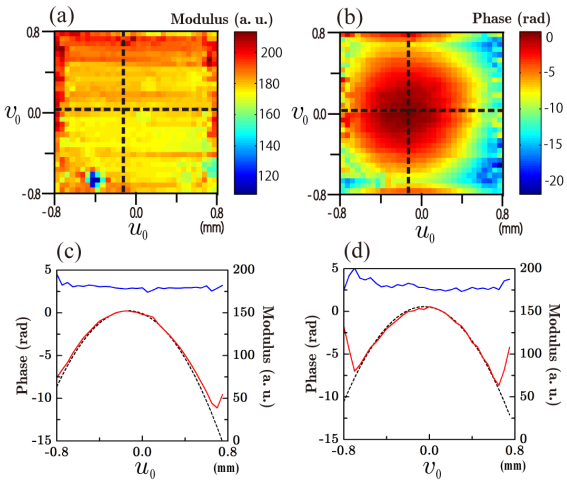


図７：焦点距離 250mm レンズ物体の再生結果 (a),(b)はそれぞれ再生振幅と位相，(c),(d)は(a),(b)のそれぞれ横及び縦方向の破線に沿った断面分布を表し，青線が振幅，赤線が位相，点線が位相の理論値を表す。

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　３件）

① Nobuharu Nakajima and Masayuki Yoshino, “Experimental demonstration of scanning phase retrieval by a noniterative method with a Gaussian-amplitude beam,” Opt. Commun., Vol. 382, 428-436 (2017).（査読有）

② Nobuharu Nakajima, “Coherent diffractive imaging with an aperture-array filter: relaxation of aperture’s size condition,” Opt. Rev., Vol. 22, 753-761 (2015).（査読有）

③ Nobuharu Nakajima, “Coherent diffractive imaging of atomic-size objects by means of a deterministic phase-retrieval method,” Phys. Rev. A, Vol. 89, 053819-1-11 (2014).（査読有）

〔学会発表〕（計３件）

① 中島伸治，ガウス振幅ビームを用いた走査型位相回復，第 77 回応用物理学会学術講演会， 2016 年 9 月 16 日，朱鷺メッセ（新潟県新潟市）

② 中島伸治，開口アレイフィルターによる回折イメージング：開口サイズ条件の緩和，第 75 回応用物理学会学術講演会，2014 年 9 月 19 日，北海道大学札幌キャンパス（北海道札幌市）

③ 中島伸治，位相回復問題ー光の分野から見た歴史と現状ー，日本放射光学会第 6 回若手研究会「コヒーレント X 線が拓く構造可視化の新しい世界」，2014 年 8 月 23 日，SPring-8 キャンパス（兵庫県相生市）

６．研究組織

(1)研究代表者

中島　伸治（NAKAJIMA, NOBUHARU）

静岡大学・工学部・教授

研究者番号：20164189

(2)研究分担者

なし