

電子顕微鏡像の解釈をめぐる歴史：測定法とシミュレーション

山口まり

東京外国語大学非常勤講師

透過型電子顕微鏡は、1931年にドイツのシーメンス社で開発され、その後、装置や測定法の改良を経て、1970年代に入り原子の顕微鏡像が得られた。原子のような微視的対象を可視化した高分解能の電子顕微鏡像を解釈する際には、様々な実験条件で得られた顕微鏡像とシミュレーションパターンとを比較し、それぞれの間で一致が認められることが不可欠とされている。これは、実験条件によって画像のコントラストが著しく変化することから、恣意的な顕微鏡像の選択を避け、像解釈の客観性を担保するために行われている。

本発表では、1930年代から1990年代までの透過型電子顕微鏡（以下、電子顕微鏡という）の分解能向上の過程における、顕微鏡像解釈の歴史をたどる。この歴史を、測定法を指標として4期（第1期（1931–50年代）：光学顕微鏡との相違；第2期（1956–1960年代）：転位の像と格子像の解釈；第3期（1970–90年代中頃）：結晶構造の電子顕微鏡像の解釈；第4期（1994年以後）：定量的情報と電子顕微鏡像解釈の問題）に分け、それぞれの期間で、研究者らが得た顕微鏡像はどのようなもので、それらの画像の解釈には何が必要とされ、最終的にシミュレーションとの一致が必要とされるようになったのか、を明らかにする。そして、電子顕微鏡法におけるシミュレーションは、実験装置に関する理論に基づいた理想条件下の顕微鏡実験結果を示すものといえるだろう。本発表では、もっぱら結晶構造の実験観察事例を扱い、生物試料や基板上の分子内の原子の観察は取り上げない。

第1期（1931–50年代）：光学顕微鏡との相違

ブリュッセル大学の Marton が、1934年に、電子顕微鏡と光学顕微鏡では、両者の設計は似通っているが、コントラストの形成においては全く異なっていることを明らかにした。1940年には、レプリカ法を用いて電子顕微鏡で金属表面の観察が行われるようになった。しかし、コントラストの形成メカニズムが異なっているため、光学顕微鏡像と電子顕微鏡像では見え方が違った。このことは、光学顕微鏡像を解釈するために必要とされてきた経験や知識は、そのまま電子顕微鏡像解釈に用いることができないという事態を示していた。

第2期（1956–1960年代）：転位の像と格子像の解釈

1956年、キャベンディッシュ研究所の Hirsch らは、アルミニウムの転位（結晶内のずれによる線状の原子配列の乱れ）を直接観察することに成功した。この観察は、転位の近傍でひずみが生じ、電子線の強度に違いが出ることを利用して、コントラストを得る方法を用いていた（回折コントラスト）。この顕微鏡像を解釈するには、結晶と電子線の関係についての知識が要求され、回折コントラスト法は、「敬遠されがち」の測定法であった。その後、結晶と電子線の相互作用に関する理論に基づいたシミュレーションが行われ、像解釈に用いられた。

1956年、イギリスのチューブ・インベストメンツ研究所の Menter は、2波の電子線を干渉させることによって、フタロシアニンの結晶格子（結晶を構成する原子や分子、イオンの規則的な配列構造）の像を得た（2波干渉法）。Menter は、格子像の途切れた部分を転位と解釈したが、他の研究者が行ったその後の研究により、格子像と結晶格子は一對一の関係にないことが明らかにされた。その結果、格子縞の間隔は、分解能の指標として用いられるようになった。

1960年中頃になると、電子顕微鏡の固体化学への応用可能性が示され、ニオブ酸化物などの不定比化合物の観察が行われるようになった。1969年、オーストラリア連邦科学産業研究機構の Allpress らのグループは、ニオブ酸化物の格子像にブロック構造が認められるとする研究成果を発表しようとしたが、査読者からその解釈の根拠の提出を求められた。これを受けて、このグループは、電子線散乱理論に基づいた、シミュレーションプログラムの開発に着手した。

第3期（1970–80年代）：結晶構造の電子顕微鏡像の解釈

アリゾナ大学の飯島が、1971年、多くの電子線を干渉させて（多波干渉法）、酸化ニオブ化合物の結晶を観察し、結晶内のブロック構造と金属原子の像を得た。Allpress らは、飯島のデータを共有し、その顕微鏡像と彼らの開発したプログラムを使ったシミュレーションパターンとを比較すると、よく一致した。これは、ある条件の下での測定では、電子顕微鏡像と結晶の構造とが一對一で対応していることを示すものであった。

他方、京都大学化学研究所の水渡・植田のグループは、フタロシアニン結晶の観察を1950年代から行っていた。彼らは、多波干渉法を用いて1970年、結晶内に並ぶ四葉のクローバー型をしたフタロシアニン分子の顕微鏡像を得た。その際水渡らは、光回折を用いたモデル実験を行い、結晶内の分子配向を決定した。この京大化研のグループは、シミュレーションプログラムの開発も進めており、1974年にはシミュレーションで、結晶内の原子を可視化できることを示した。それが実際に電子顕微鏡像として得られるのは、その5年後であった。彼らは、様々な測定条件下の顕微鏡像とシミュレーションパターンとがよく一致していることを示した。

第4期（1994年以後）：定量的情報と電子顕微鏡像解釈の問題

1990年代に入り、それまで使われていた蛍光板に代わって CCD (charge-coupled device、入射した光を電気信号に変換する) が用いられるようになった。蛍光板に写し出された顕微鏡像の強度（明暗）を定量的に計測することは、それまでにも行われてきたが、CCDの導入で、より精確な定量的情報が得られるようになった。1994年に、ケンブリッジ大学の Stobbs とフランス国立科学センターの Hÿtch が、シミュレーションパターンと高分解能電子顕微鏡像のコントラストが一致しないと指摘した。この不一致は、Stobbs-factor 問題として研究者らに深刻に受け止められた。顕微鏡像とシミュレーションパターンの不一致は、顕微鏡像解釈の信頼性を貶めることになるからである。Stobbs らの指摘以来、研究者らはその原因を探ってきた。一応の解決策は見つかったが、その原因の特定はできていない。