

論文審査の結果の要旨

氏名 清水 俊樹

本論文は五章から構成されており、サブミリ秒サブオングストローム分解能で、確率論的な単分子の動的挙動を観察し、解析する新手法について論じている。

第一章では、まず空間的・時間的分解能という観点から様々な単分子イメージング手法について述べている。研究の背景として従来の単分子を実時間で動画撮影する電子顕微鏡技術(SMART-EM)の例を挙げ、高速撮像の必要性について説明することで、本研究の着想経緯と目的を明らかにしている。

第二章では、ノイズの多い透過電子顕微鏡(TEM)動画に対し、様々なノイズ除去手法の検討について述べている。高速カメラによる撮像は、ノイズが多く分子がはっきりと見えないという問題点があった。本研究は、高速電顕分子動画に対し Chambolle ノイズ除去法が最も適していることを見出した。デノイジング処理した画像に対し、シグナルノイズ比や分子特徴の保持の観点から評価した。このデノイジング技術を駆使することで、様々な分子の現象がサブミリ秒レベルで撮像可能であることを示したものであり、その動画から得られる分子の動的情報は、物理的及び化学的観点から興味深い。

第三章では、フラレン二量化反応のミリ秒レベル解析について述べている。第二章で述べたデノイジング技術を用いることで、1.9 ミリ秒以下の時間分解能でフラレン分子が環化付加反応する決定的瞬間を撮影することに成功した。また、シミュレーション解析及び TEM 画像とシミュレーション画像の相互相関解析を行うことで、フラレン分子の多段階融合反応における短寿命の反応中間体の構造が推定できた。今まで計算科学によってのみ提唱されていた化学反応の機構が、このミリ秒解析により新たに解明されると期待でき、有機科学的観点からすると非常に興味深い。

第四章では、カーボンナノチューブ内でのフラレン分子のシャトル運動について述べ

ている。電子線照射観察下において、フラーレン分子が二量化反応し、カーボンナノチューブ内に隙間ができることで、中の分子がシャトル運動を起こしやすい環境を作成している。これにより、フラーレン分子がシャトル運動する決定的瞬間の動画をサブミリ秒レベルで撮影することに成功している。その動画を解析することで、振動するカーボンナノチューブと相互作用しながらフラーレン分子はシャトル運動や回転運動をしているといった分子の動的機構が明らかになり、ナノメカニカル挙動への理解を深めるサブミリ秒電子顕微鏡動画撮影手法の有用性を示した。

第五章では、本研究の総括と展望が述べられている。本論文では、原子分解能電子顕微鏡、高速カメラ、高速電顕単分子イメージングに対し最適化されたデノイジング技術を組み合わせることで、化学反応やナノメカニカル現象の観察及びその解析を行い、その結果をまとめている。単分子の確率論的な動的挙動をサブミリ秒サブオングストロームレベルで観察及び解析を行うことで、化学反応平衡状態や分子の配座の変化などの今まで理論計算でしか行われていなかった現象を解明することが可能だと考えられる。さらには、動画という伝えやすい情報を提供することが可能なので、子供達への教育効果も期待できる。

なお、本論文における各章の研究は中村栄一博士及び原野幸治博士、スタックナージョシュア博士、村山光宏博士、ルンゲリッヒドミニク博士との共同研究によるものであるが、研究計画および検討の主体は論文提出者であり、論文提出者の寄与が十分であると認められる。

本論文は、確率論的な単分子動的挙動解析におけるサブミリ秒電子顕微鏡動画撮影手法の有用性を示した点でナノスケール科学の観点から興味深いものである。また、これらの研究結果はナノレベル現象の知見を与えるものであり、材料工学から生命科学への応用も期待されると考えられる。したがって、本論文は博士（理学）の学位論文として価値のあるものと認める。