

令和元年6月23日現在

機関番号：84502

研究種目：新学術領域研究(研究領域提案型)

研究期間：2014～2018

課題番号：26105013

研究課題名(和文)データ取得と3D原子イメージ再生アルゴリズムの研究

研究課題名(英文)Research on data acquisition and 3D atomic image reconstruction algorithm

研究代表者

松下 智裕(Matsushita, Tomohiro)

公益財団法人高輝度光科学研究センター・情報処理推進室・室長・主席研究員

研究者番号：10373523

交付決定額(研究期間全体):(直接経費) 34,000,000円

研究成果の概要(和文):原子分解能ホログラムを統一的に扱い、活性サイトの3D原子像を再構成するために、4つの課題を掲げて研究を行った。【課題1】「共通3D解析プラットフォームの構築」として3D原子像再生を統一的に行うソフトウェア「3D-AIR-IMAGE」を構築した。【課題2】「高精度低ノイズ計測系開発」として3D-AIR-IMAGEと連携する測定系を開発した。【課題3】「4D空間の高解像度再生」において、像再生のために計算の高速化を行い、約4,200倍の高速化を達成した。【課題4】「ホログラムのデータ処理技術」はバックグラウンド処理を中心に開発した。この成果を他の研究班に提供し多くの活性サイトが解明された

研究成果の学術的意義や社会的意義

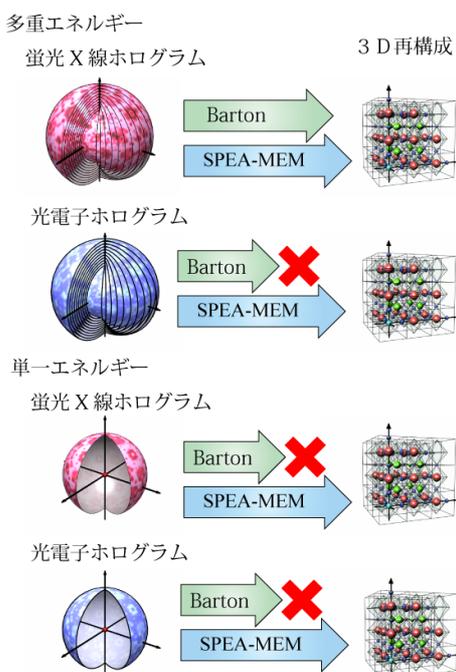
物質に機能を発現させる為に微量の元素(ドーパント)を添加することは普遍的に行われている技術であり、科学技術の根幹である。このドーパント周囲の原子構造によって物質の機能が大きく変化する。機能発現機構を解明するには、この「3D活性サイト」の原子構造解析が必須であり、原子分解能ホログラフィーが3D構造の観測に最適である。本研究によって1枚のホログラムから鮮明な原子像を数十～数百個再生できる3D原子像の新計算法SPEA-L1を提唱し、より高精度で高速計算ができるようにした。様々なデータ処理をソフトウェア3D-AIR-IMAGEに集約し、多くの研究者が3D活性サイトの機能解明をできるようにした。

研究成果の概要(英文):In order to treat the atomic resolution hologram and to reconstruct the 3D atomic image of "3D active site", we carried out research with four subjects. [Issue 1] "Construction of common 3D analysis platform". "3D-AIR-IMAGE" for reconstructing 3D atomic image of active site was developed. [Issue 2] "Development of high precision, low noise measurement system". A measurement system of atomic resolution hologram which works on "3D-AIR-IMAGE" was developed. [Issue 3] "High resolution reconstruction of 4D space". The research to speed up the calculation for image reconstruction of a large amount of the hologram was carried out. We achieved 4,200 times faster. [Issue 4] "Hologram data processing" The background processing for the atomic resolution hologram and so on are developed. These developed softwares and systems were provided to other research group and many active sites were elucidated.

研究分野：物性II

キーワード：物性実験 X線 理論 原子配列 ドーパント

1. 研究開始当初の背景



物質に機能を発現させる為に微量の元素(ドーパント)を添加することは普遍的に行われている技術である。このドーパントは母材の原子と置換したり、空隙に入ったり、凝集したりして、活性な原子サイトを形成する。活性原子サイトはキャリア放出や、触媒反応中心として機能するなど、機能物性の発現の元になる。機能発現機構を解明するには、この「3D活性サイト」の原子構造解析が必須であり、原子分解能ホログラフィーがこの3D構造の観測に最適である。測定法はドーパントを電子やX線で励起して、ドーパントから光電子や蛍光X線を放出させる。放出された光電子や蛍光X線は周囲の原子によって散乱され、放出角度分布上にホログラムを形成する。これを測定して計算で再構成するとドーパントの周囲、直径2~4 nmに渡って立体原子像が得られる。これを利用すれば「3D活性サイト」の機能発現機構の解明を行うことができる。3D原子像再構成計算法はBartonが1991年にフーリエ変換に基づく方法を提唱した。この方法は蛍光X線に関しては成功したが、光電子の場合は成功しなかった(左図)。また、エネルギー(波長)が異なった数十枚に及ぶ多重エネルギーホログラムを必要とし、長時間測定が必要で

ある。これらを解決するため、本研究代表者は光電子ホログラフィーの新しい計算法 SPEA-MEM(Scattering Pattern Extraction Algorithm with Maximum Entropy Method)を提唱した。フーリエ変換ではなく、フィッティングベースの計算法で、たった1枚のホログラムから鮮明な原子像を数十~数百個再生できる。また、光電子ホログラフィーでドーパントが測定可能であることも実証した。実用的に「3D活性サイト」を測定するには、実験中に解析し、実験へのフィードバックを可能にする必要がある。さらに、相転移の研究には高解像度化による原子位置の微小な変異の抽出が必須であり、大型分子に対する構造解析では大空間再生が必要となる。さらに、手法班A02で計画している原子構造の時間変化にも対応する必要がある。そこで、SPEA-MEMを発展させ、すべての原子分解能ホログラフィーを解析できる共通3D解析プラットフォームの構築、広い空間と高分解能を達成するための高精度のホログラムの計測・制御系の構築が必須であると考えた。さらに、時間変化する原子像、高解像度化、広い空間の像再生は計算量が莫大になるため大型計算機用コードの開発が必要になる。これらの総合的な開発を開始すべきであると確信するに至った。

2. 研究の目的

【課題1】共通3D解析プラットフォームの構築

SPEA-MEMを発展させてすべてのドーパント原子ホログラフィーを解析する共通プラットフォームを構築する。ターゲットは高性能パソコンで、直径2~4 nm、計算解像度10pm(ピコメートル)の原子像を1時間以内で再生することを目指す。この為の高速で軽量のアルゴリズムの開発を進める。また、「3D活性サイト」構造のデータベースを構築し、新分野の知見を蓄積する。

【課題2】高精度低ノイズ計測系開発

明瞭な原子像を得るためにノイズ抑制や測定精度向上を行う。手法班A02木下G、林Gと連携してホログラムのノイズや精度が向上できる高精度な計測制御系を開発する。共通3D解析プラットフォームに直接データを送り込むようにし、実験中でもフィードバックが得られるようにする。

【課題3】4D空間の高解像度再生

高精度低ノイズのホログラムを利用すれば、3D再生像の高解像度化が可能になる。二次相転移などのわずかな原子配列変化を捉えるため、計算解像度を1pm程度まで向上することを目指す。また、手法班A02では原子の動きを捉える時分割計測が計画されており、時間軸方向も加え4Dの像再生が必要となる。しかしながら、解像度が2倍になると計算量が8倍になり、急激に計算量が増え、時間軸を加えると膨大な計算量になる。これに対応するため、大型計算機のコード開発を進める。

【課題4】ホログラムのデータ処理技術

研究期間の途中で追加した課題である。測定されたドーパント原子ホログラムのデータを処理するには、バックグラウンド処理や結晶の対称性を考慮した対称操作などを行う必要がある。これらを一元的に処理できる技術を開発する。

3. 研究の方法

【課題1】光電子と蛍光X線のホログラムのデータ処理を一元化して効率化プラットフォームソフトウェアを開発する。ターゲットはパソコンとし、光電子ホログラムや蛍光X線ホログラム

などのドープ原子ホログラムを一元的に処理できるようにする。

【課題2】測定を測定制御ソフトウェアとともに高性能化し、課題1で作成したプラットフォーム上で動作するようにする。これにより、データ変換の手間の削減及び、複雑な動作が要求される測定に対応する。

【課題3】解像度を倍にすると計算量は8倍以上に膨れ上がる。したがって、パソコンでは計算が難しくなり、大型計算機が必須となる。大型計算機用やGPU用の高速計算ソフトを開発する。

【課題4】バックグラウンド処理や対称操作の処理は測定ごとにパラメータが異なるため、インタラクティブなデータ処理環境を開発する。

4. 研究成果



図1：共通解析プラットフォーム「3D-AIR-IMAGE」

初期の3つの研究課題「共通3D解析プラットフォームの構築」、「高精度低ノイズ計測系開発」、「4D空間の高解像度再生」に加え、実施途中で「ホログラムのデータ処理技術」を追加して研究を進めた。

【課題1】活性サイトの3D原子像再生を統一的行うために、ソフトウェアのプラットフォーム「3D-AIR-IMAGE」を製作した(図1)。Ver 0.0.1から開始し、2019年3月31日現在では、Ver 0.0.82までバージョンアップし、順次公開した。このプラットフォーム上にて、光電子ホログラフィー(PEH)、蛍光X線ホログラフィー(XFH)のシミュレーションプログラムや、原子分解能ホログラムから原子像を再生するプログラムなどが動作するように設計した。まず、光電子のシミュレーションプログラム(TMSP)の開発を進めた。特に、本研究後半では今までのシミュレ

ーションで再現できない高精度な光電子ホログラムが「光電子班」から供給されるようになり、理論のさらなる研究を行った。最終的には電子の平均自由行程と原子の温度振動効果を導入することで、非常に良い一致を示す高精度シミュレーションが可能になった。XFHのシミュレーションではすべての元素の原子散乱因子に対応した汎用的なシミュレーションを行えるようにした。いずれもマルチCPU対応で高速にシミュレーションできる。シミュレーションに用いる原子クラスターの生成方法としては、一般的に使用されているCIFファイルやタンパク質データベースのPDBファイルに対応した。

3D原子像再生法は、フーリエ変換ベースのBarton法、最大エントロピーを利用した計算法(SPEA-MEM)から、さらに研究を進めて、機械学習の理論(Lasso)を応用したSPEA-L1を開発した。Barton法は多重エネルギーの蛍光X線ホログラフィーと中性子ホログラフィーで高い信頼度で原子配列を再生できるため、よく利用される。一方で光電子ホログラフィーや単一エネルギーの原子分解能ホログラフィーには使用できない。まず、高速Barton法のアルゴリズムを開発し、通常アルゴリズムよりも計算時間を約100倍高速計算できるようにした[1]。これによりパソコンで1時間以内に原子像が得られるようになった。次にSPEA-L1を開発した。これは本プロジェクトで理論班と連携することによってのみ達成できた原子像再生法である。SPEA-L1は最小二乗法と機械学習で使われるLassoを使った理論であり、原子像が疎な解であるという性質を使う[2,3](図2)。ただし、単純なスパースモデリングでは像は再生できず、Threshold scaling法を使うことで、単一エネルギーのホログラムからでも像が再生できるようになった。これは光電子ホログラフィーや蛍光X線ホログラフィーノーマルモードの解析に利用でき、従来の方法ではできなかったBi₂Te₃中のMnドーパントの構造を解くことができた[4]。これらの機能を利用できるソフトウェアプラットフォーム3D-AIR-IMAGEは光電子ホログラム、蛍光X線ホログラム、中性子ホログラムなど、多くの実験のデータ処理に利用された。

また、このプログラムには活性サイトデータベースがあり、光電子や蛍光X線ホログラムの計測結果を同梱した。このサンプルデータに加え、マニュアルも準備して利用しやすい環境を整えている。

【課題2】低ノイズで高精度のホログラムの計測・制御系を構築した。前述の「3D-AIR-IMAGE」上で動作するプラグインとして蛍光X線、中性子、光電子ホログラムの測定が可能になっている。蛍光X線ホログラフィーのピエゾモーター駆動による極低温測定システムの開発も成功し

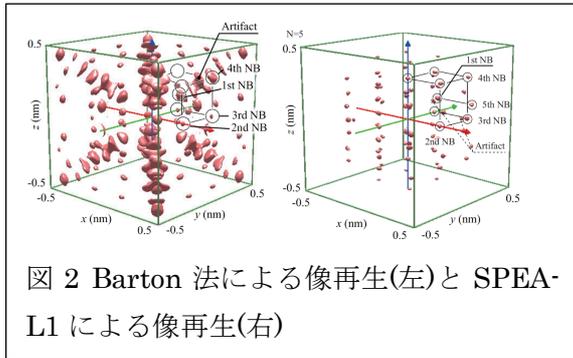


図 2 Barton 法による像再生(左)と SPEA-L1 による像再生(右)

ホログラムから 101^3 の画素数のボリューム画像を再生するのに、Xeon X5660 3.8GHz 1 コアによる計算時間は 196483 秒であったが、PC クラスタ(Xeon X5660 3.8GHz6 コア×8 ノード)で 2200 秒と 89 倍に向上した。その後、Barton 法は GPU と相性が良く、より高速に計算できることがわかった。コンシューマーな GPU(GeForce GTX 1080Ti + OpenACC)を使用して、単精度計算で 106 秒(1853 倍の向上)と非常に高速に計算できることが分かった。最終的には NVIDIA TESLA V100 を導入し、倍精度計算でも 120 秒程度になり、96 コア搭載の PC Cluster での並列実行に比べ 56 倍、通常の CPU に比べ 4,200 倍もの高速化を達成することができた。これより多くのホログラムを短時間で処理できるようになった。

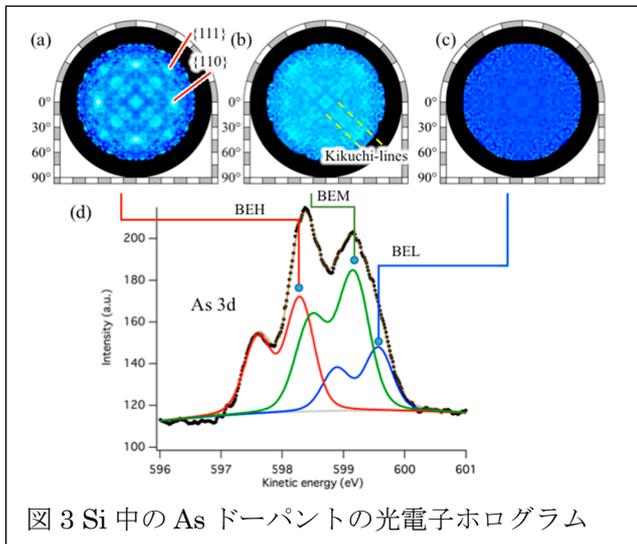


図 3 Si 中の As ドーパントの光電子ホログラム

ことができた。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 45 件) (査読有り)

1. Fast Calculation Algorithm Using Barton's Method for Reconstructing Three-Dimensional Atomic Images from X-ray Fluorescence Holograms, T. Matsushita, A. Kubota, N. Happo, K. Akagi, N. Yoshinaga, K. Hayashi, Z. Phys. Chem. 230, 449-455 (2015). DOI: 10.1515/zpch-2015-0652
2. Algorithm for Atomic Resolution Holography Using Modified L1-Regularized Linear Regression and Steepest Descent Method, T. Matsushita, Phys. Status Solidi B, 1800091-1-6 (2018). DOI: 10.1002/pssb.201800091
3. Atomic Image Reconstruction from Atomic Resolution Holography Using L1-Regularized Linear Regression, T. Matsushita, e-J. Surf. Sci. Nanotechnol. 14, 158-160 (2016). DOI: 10.1380/ejsnt.2016.158
4. Local structural analysis of In-doped Bi₂Se₃ topological insulator using X-ray fluorescence holography, K. Kimura, K. Hayashi, L. V. Yashina, N. Happo, T. Nishioka, Y. Yamamoto, Y. Ebisu, T. Ozaki, S. Hosokawa, T. Matsushita, H. Tajiri, Surf. Interface Anal. 51, 51-55 (2018). DOI: 10.1002/sia.6544
5. Individual Atomic Imaging of Multiple Dopant Sites in As-Doped Si Using Spectro-Photoelectron Holography, K. Tsutsui, T. Matsushita, K. Natori, T. Muro, Y. Morikawa, T. Hoshii, K. Kakushima, H. Wakabayashi, K. Hayashi, F. Matsui, T. Kinoshita, Nano Lett. 17, 7533-7538 (2017). DOI: 10.1021/acs.nanolett.7b03467

[学会発表] (計 170 件)

1. 松下智裕, Three-dimensional atomic imaging of dopants using atomic resolution holography,

た。蛍光 X 線ホログラフィーのノーマルモードの計測プログラムを追加した。放射線ダメージが懸念される試料では、短時間の照射ごとに位置を変えながら測定することを可能にした。また、光軸調整カメラシステムを開発し、サンプルと光軸を合わせる精度の向上を図った。

【課題 3】「3D-AIR-IMAGE」で高解像度な 3D 原子像の再生も行うこと可能にした。前述のように高速 Barton 法のアルゴリズムを開発したが、さらにマルチコア対応を行い高速計算できるようにした。21 枚の蛍光 X 線

【課題 4】以下に開発した機能を羅列すると、実測のホログラムのバックグラウンド処理、XFH のノーマルモードの測定データの解析、ホログラムの結晶軸の探索、光電子のピークフィッティングによるサイト分離、色々な方位で計測されたホログラムの断片をつなぎ合わせて 1 枚のホログラムに合成する処理、3D-AIR-IMAGE と Python 言語連携のアプリケーションインターフェースなどである。これを利用して光電子ホログラフィー班と連携し、シリコン結晶中の As ドーパントの構造を解くことができた[5] (図 3)。

このように従来の方法で得られなかった原子構造を解析できる理論を研究してソフトウェアを開発し、他の研究班に提供することで多くの成果を得る

- ICES2018, 2018年10月8日, 中国・上海 (招待講演).
2. 松下智裕, 原子分解能ホログラフィーの原理とドーパントの立体構造の観測, 非周期系物質の構造・物性研究の進化と深化 —異分野融合による材料開発への応用—, 日本物理学会 シンポジウム, 2018年3月24日, 東京理科大・野田キャンパス (招待講演).
 3. 松下智裕, スパースモデリングによる原子分解能ホログラフィーの立体原子像再生, ポスト京重点課題(7) 次世代の産業を支える新機能デバイス・高性能材料の創成サブ課題 G 第6回 共通基盤シミュレーション手法連続研究会, 2017年12月22日, 東京大学フューチャーセンター多目的ホール (招待講演).
 4. T. Matsushita, Principles of Atomic Resolution Holography and New Atomic Image Reconstruction Algorithm, 11th International Symposium on Atomic Level Characterizations for New Materials and Devices '17 (ALC' 17), 2017年12月5日, Kauai, Hawaii, USA (招待講演).
 5. T. Matsushita, 3D atomic image reconstruction algorithm for photoelectron holography and x-ray fluorescence holography, 5th International Symposium on Kumamoto Synchrotron Radiation (ISKSR5): Data Analysis and Data-Driven Science, 2017年11月29日, Kumamoto Univ. (招待講演).

[図書] (計 1 件)

1. 機能構造科学入門 大門寛・佐々木裕次 監修、丸善出版(2016) p9-26.

[産業財産権]

○出願状況 (計 1 件)

名称： 阻止電位型エネルギー分析機
発明者：室隆桂之、松下智裕
権利者：公益財団法人 高輝度光科学研究センター
種類：出願中
番号：PCT/JP2016/051742
出願年：2016年
国内外の別： 国内、国外

[その他]

ホームページ等

<http://www.3d-activesite.jp/>

6. 研究組織

(1) 研究分担者

研究分担者氏名：八方 直久
ローマ字氏名：Naohisa HAPPO
所属研究機関名：広島市立大学
部局名：情報科学研究科
職名：准教授
研究者番号 (8桁)：30285431

研究分担者氏名：窪田 昌史
ローマ字氏名：Atsushi Kubota
所属研究機関名：広島市立大学
部局名：情報科学研究科
職名：助教
研究者番号 (8桁)：60305787

(2) 研究協力者

研究協力者氏名：中田 謙吾
ローマ字氏名：Kengo NAKADA