



Title	AIを用いた室温走査型プローブ顕微鏡の高機能自動計測に関する研究
Author(s)	Diao, Zhuo
Citation	大阪大学, 2024, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://doi.org/10.18910/96111
rights	
Note	

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

The University of Osaka

博士論文

AIを用いた室温走査型プローブ顕微鏡の
高機能自動計測に関する研究

2024年3月
DIAO ZHUO

AIを用いた室温走査型プローブ顕微鏡の
高機能自動計測に関する研究

博士(工学) 論文提出先
大阪大学大学院基礎工学研究科

2024年3月

DIAO ZHUO

概要

本論文は、著者が大阪大学基礎工学研究科 システム創成専攻電子光科学領域において行った、「AI を用いた室温走査型プローブ顕微鏡の高機能自動計測に関する研究」をまとめたものであり、全体は 6 章から構成されている。以下、各章ごとの内容の概要を述べる。

第 1 章 序論

本章では、本研究に関する研究背景および研究目的を述べ、本研究の走査型プローブ顕微鏡 (SPM) 技術の開発と表面科学の分野における位置付けを示した。特に、surface dynamics やドーパント原子操作が可能な室温環境では、極低温と同様に 1 原子レベルの高機能計測を行うために、熱ドリフト/探針変化/実験の煩雑化に関する課題を解決しなければならない。研究手法として、人間の代わりに、AI やアルゴリズムを用いた SPM 自動計測ソリューションはこれらの課題の解決につながる。その時、実験で測定した結果をその場で解釈して次の実験操作の意思決定を行うという「Look-then-Perform」戦略は AI のシステムにも同様に適用できる。本研究の目的は AI 技術を用いて、SPM が室温で高機能計測を可能にする技術の確立であり、そのために computer vision の技術を用いて、SPM の空間認識能力である“Look”に関する顕微鏡技術の開発の重要性を強調した。SPM 自動測定システムの開発方針として、「Look-then-Perform」のフレーム間の画像について、原子表面を自律的にマッピングし、考案したアルゴリズムを用いて探針-試料の実空間における位置特定し、AI を用いた表面を認識させることにより、SPM の空間認識ができるようになり、画像間の対応関係を認識させることによって、自動計測が可能となる。

第 2 章 AI による自動制御可能な走査型プローブ顕微鏡装置の構築

本章では、実験に用いた SPM および走査型トンネル顕微鏡 (STM) について、測定原理を述べ、超高真空中で動作する SPM の装置構成について説明した。続いて、SPM 装置のハードウェアと電子回路について説明し、機械学習と自動計測を対応させた SPM 走査コントローラーのシステム開発について述べた。開発した SPM 走査コントローラーは Python, LabVIEW FPGA, LabVIEW PC の 3 つのプラットフォームから構成され、それぞれは機械学習と自動計測に関する処理、走査に関する信号処理、それとユーザーインターフェースの役割を果たし、具体的な実装は付録 A に示した。開発した SPM 装置を用いて、Si(111)-(7×7) 表面で画像化する性能の検証結果と surface dynamics を測定するための走査帯域に関する評価結果を示した。

第 3 章 プローブ顕微鏡に向けた自動熱ドリフト補正アルゴリズムの考案

本章では、コンピュータ・インターフェースを介して SPM 画像に適用できる自動熱ドリフト補正アルゴリズムを用いた SPM 実装を示した。考案した特徴点マッチングを用いた手法は、連続で計測した画像から特徴点のペアを抽出してマッチングさせ、探針と試料の実空間におけ

る時間的なずれを計算して補正できる。この手法で追加した2段階目処理のアルゴリズムとして、マッチング特徴点のペアから正解のペアを見つけ出すことができ、室温における探針/試料の変化にロバスト性を示し、原子精度の補正ができることを証明した。本手法を用いた自動計測のデモンストレーションとして、Sn吸着したSi(111)-(7×7)表面でhalf unit cell内に閉じ込めたSn原子の拡散を長時間観察し、サンプリングしたSn原子の状態からエネルギー障壁の計算を見積もった。さらに本手法の派生として、検出する特徴点を表面の結晶構造に関する特徴に置き換えたアルゴリズムを考案し、室温特有なダイナミックスにより高いロバスト性を実現し、「Look-then-Perform」の原子画像フレーム間の対応をはっきりさせた。

第4章 SPM 探針の自動修復システムの開発

本章では、Si(111)-(7×7)表面上でSPM探針を室温で異なる状態に調整できるシステムの開発について述べる。表面プロパティと探針の状態を、測定したSPM原子像の外見から、11個のカテゴリに分けるデータセットを構築した結果を述べた。続いて、本研究で設計した原子像を入力とするカテゴリのmulti-class分類を行う畳み込みニューラルネットワークアーキテクトを示し、学習させる手法とプロセスを示した。リアルタイムで探針を修復するシステムの実装として、訓練したニューラルネットワークを用いて測定した原子像の探針状態を判断し、悪い状態の探針を状態変化させる状態制御プロセスによって、実験的に良い探針に修復することや、特定な状態の探針を作り上げる結果を示した。さらに、探針の状態変化を検知するために、状態制御プロセスの測定信号に関するパターン認識ニューラルネットワークを学習させた結果を示し、探針自動修復システムの効率を向上させた。

第5章 表面の情報検出ディープラーニングを用いた高機能自動計測システム

本章では、表面の情報検出に用いる複合型ニューラルネットワークを用いたAIモデルを構築し、室温の自動計測実験で実装した結果を示した。訓練したAIモデルはリアルタイムの自動測定に対応することができ、室温でのロバスト性とデータのバリエーションを考慮した、実験的にデータ取得する戦略によって、学習データセットを構築した。様々なオブジェクト検出指標を用いて、本複合型ニューラルネットワークを評価した結果、すべての指標は90%以上の高精度を実現でき、本AIモデルを用いたリアルタイム計測で推定する能力が約束された。第3章のドリフト補正と第4章の探針修復するシステムを統合し、本AIモデルを用いて検証実験を行った。Si(111)-(7×7)表面における自動制御による原子分解能走査デモンストレーションによって、開発したSPM自動計測システムはAIによって高質量の原子像を取得することができることを示した。Si(111)-(7×7)表面における走査型トンネル分光実験のデモンストレーションによって、トンネル分光データをbig dataに拡張し、室温における高いばらつのあるデータを統計解析することによって、より妥当な傾向を抽出することができ、AIがSPMを用いたデータ取得の強化と表面特性評価への深い洞察に貢献する結果を示した。

第6章 結論

本章では、第2章から第5章で得られた、AI SPMシステムとそれを用いた室温の検証実験の研究結果を総括し、本論文の結論としている。また、本研究で開発したAI SPMを用いて、今後展開できる研究の可能性について提示した。

目次

概要	i
第1章 序論	1
1.1 研究背景	1
1.1.1 ナノテクノロジーを支える表面測定技術	1
1.1.2 室温高機能計測における課題	6
1.1.3 AIが走査プローブ顕微鏡分野に寄与するイノベーション	7
1.1.4 走査型プローブ顕微鏡からナノロボティクスへ	8
1.2 研究目的	10
1.3 本文論文の構成	10
参考文献	12
第2章 自動制御可能な走査型プローブ顕微鏡装置の構築	17
2.1 はじめに	17
2.2 走査型プローブ顕微鏡の原理	17
2.2.1 走査型トンネル顕微鏡の原理	18
2.2.2 走査トンネル分光測定の原理	21
2.3 走査型プローブ顕微鏡の装置構成	21
2.4 SPM マルチプラットフォームシステムによる自動計測への対応	27
2.5 作製したシステムを用いた Si(111)-(7×7) 表面における観察	29
2.6 終わりに	32
参考文献	33
第3章 プローブ顕微鏡に向けた熱ドリフト自動補正アルゴリズムの考案	36
3.1 はじめに	36
3.2 自動熱ドリフト補正システムの課題と実現すべき技術の特徴	36
3.3 特徴点マッチングを用いた自動ドリフト補正アルゴリズム	39
3.3.1 特徴点の抽出とマッチング	39
3.3.2 K-means による多数決フィルター	41
3.3.3 z 方向ドリフト速度の推定	43
3.4 本アルゴリズムのロバスト性評価	44
3.4.1 探針状態変化する際の推定結果	44
3.4.2 表面が測定中に変化する際の推定結果	45
3.5 KPM 法による長時間のドリフト補正実験	47
3.6 Sn/Si(111)-(7×7) 表面の熱拡散現象の長時間イメージング	49
3.7 表面結晶構造の情報をベースにしたドリフト補正アルゴリズム	50
3.7.1 特徴点マッチングの代替案—原子/欠陥マッチング	51

3.8 終わりに	54
参考文献	56
第4章 SPM 探針の自動修復システムの開発	58
4.1 はじめに	58
4.2 探針状態と表面状態に関するデータセットの構築	58
4.2.1 データセットの定義	58
4.2.2 データセットの事前処理	60
4.3 SPM 計測画像に関するパターン認識ニューラルネットワーク	61
4.3.1 ニューラルネットワークの構造と学習	62
4.3.2 推定結果の事後処理	64
4.4 室温の Si(111)-(7×7) 表面における SPM 探針の状態制御に関する検証実験	66
4.5 SPM 探針の状態制御データに関するパターン認識ニューラルネットワーク	71
4.5.1 状態制御プロセスが起こす探針/表面状態変化	71
4.5.2 状態制御プロセスで得られた信号	72
4.5.3 マルチ入力次元信号に対する畳み込みニューラルネットワーク	75
4.6 終わりに	77
参考文献	79
第5章 表面の情報検出ディープラーニングを用いた高機能自動計測システム	81
5.1 はじめに	81
5.2 表面の情報検出に用いる複合型ニューラルネットワーク	82
5.3 室温リアルタイムの計測のための学習データ取得戦略	85
5.4 複合型ニューラルネットワークモデルの精度評価	88
5.4.1 異なるタスクに対する評価指標	88
5.4.2 Net1 のモデル精度評価	89
5.4.3 Net2, Net3 のモデル精度評価	91
5.5 Si(111)-(7×7) 表面におけるシステム自動制御による室温原子分解能走査	92
5.6 Si(111)-(7×7) 表面の原子サイトにおける室温走査トンネル分光の big data 取得と解析	95
5.6.1 big data を拡張した IV カーブの取得方法と解析結果	95
5.6.2 IV カーブの類似性指標とグループ化した IV カーブの抽出	98
5.6.3 big data を用いた Si(111)-(7×7) 原子サイトの室温 STS 解析結果	99
5.7 終わりに	101
参考文献	103
第6章 結論	105
6.1 本研究のまとめ	105
6.2 今後の展望	106
研究業績	108
謝辞	111
付録 A SPM システムに関するマルチプラットフォーム間の連携	112

第1章 序論

1.1 研究背景

1.1.1 ナノテクノロジーを支える表面測定技術

物質の特性評価

自然に存在する万物は原子から構成されており、物質を原子および分子のスケールで設計、操作、および応用する技術であるナノテクノロジーはさまざまな分野で革命的な進歩をもたらしている。サイズが小さくなるにつれて、統計力学的効果や量子力学的効果など、さまざまな物理現象が明らかになり、多くの物理的性質が巨視的系と比較して変化する。よって、ミクロの視点で物質を可視化することで、自然科学のメカニズムを解明できるので、小さいモノを可視化する手段は研究者にとって長年の夢であった。

今までの技術革命において、ナノテクノロジーの貢献が欠かせない。例えばエレクトロニクスの分野は1947年にトランジスタ [1] が発明され、現在に至って寸法が1 nmに近いトランジスタ [2] が生産されるようになり、炭素ベース [3] の半導体も開発されている。Moore 法則 [4] に従って、極限に微細化したトランジスタをベースに開発した電子デバイスが電気製品に埋め込まれて、世の中に溢れている。特に、CPU, GPU, TPU など億単位のトランジスタが積まれた演算器は、人工知能 (AI) に関する計算を支える土台である。2023年に発表された大規模言語モデル GPT-3 は機械学習モデル [5] の学習パラメーターを数桁倍以上に増やすことで、人間に近いパフォーマンス [6] を実現したことにより、AIによる次の技術革新が近いと言われている。そこで、AIの大規模モデルをサポートするために、トランジスタ表面の特性向上はAI計算力の向上に貢献できる。また、生体工学の発展には、生体の機能や構造の解析が不可欠である。これには、細胞の機能やDNAメカニズムの詳細な解明が必要であり、その過程ではナノスケールにおける物質の性質を研究することが欠かせない。「サンプルの構成と加工-特性と性能の評価」というループは材料科学・工学研究における重要なプロセス [7] であり、この過程で物質の特性評価する表面測定技術が不可欠な役割を果たしている。

原子レベルでの表面測定に関する技法の選択肢は多く、測定する状況において追求したい明確な答えに対応するツールを使用する必要がある。元素分析のために、位相解析によって結晶構造をデータ化するX線回折 (XRD: X Ray Diffraction) [8] やエネルギー分光解析によって元素の定性化を行うX線光電子分光 (XPS: X-ray photoelectron spectroscopy) [9] が用いられる。また、表面分析のための電子分光 (LEED: Low-energy electron diffraction) [10]、分子分析のための振動分光 (ラマン分光) [11] などの手法も用いられる。これらの手法は物質の結晶単位に特定の物性解析ができるものの、原子レベルの欠陥や空孔といった局所的な特性を調べることができない。そのために、実空間の物質表面を原子レベルで可視化できる透過電子顕微鏡 (TEM) [12]、走査電子顕微鏡 (SEM) [13]、走査型プローブ顕微鏡 (SPM) [14] を用いる手法は有用である。電子顕微鏡は1840年代に初めて発明 [15] され、1960年代までに、TEMの分解能は0.3 nm、SEMの分解能は15 nmまで発展され、活発な進化を成し遂げた [16, 17]。それに関

わらず, 実空間上, 表面原子をマッピングした後局所的な位置での電氣的・機械的測定と組成の同定などの物性解析を組み合わせる能力に需要があったため, SPM の能力が実証され, その発展も約束された。

本博士論文はプローブ顕微鏡エンジニアリング, つまり SPM の走査技術をテーマにしており, SPM の特有な特徴として, 最も優れた表面感度 (すなわち原子分解能) を持ち, 3次元のデータを提供できる [18]. しかし, SPM にはデータ取得の速度が遅い, 実験者の専門性が要求されるなどの欠点も存在する. その具体的な特徴は以降の段落で述べる.

走査型プローブ顕微鏡測定技術の発展

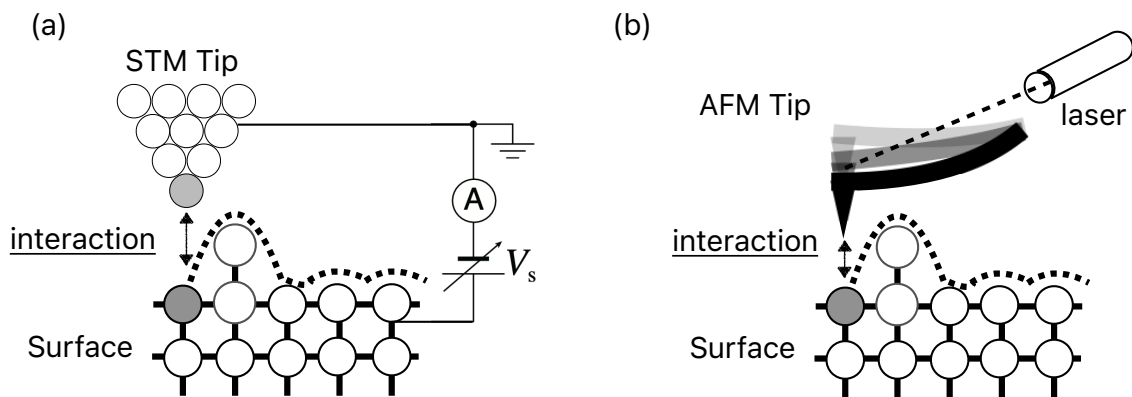


図 1.1: 走査型プローブ顕微鏡の基本概念図. (a) 走査型トンネル顕微鏡と (b) 原子間力顕微鏡は, どちらも探針を用いて試料を走査する. どちらの手法も, 探針と試料の相互作用を一定に保つために異なるフィードバック信号を使用するが, その基本的な動作原理と画像取得メカニズムは類似している. 走査型トンネル顕微鏡はバイアス電圧が印加されると探針頂点と試料間にトンネル電流を相互作用力として利用している. 原子間力顕微鏡は振動している AFM 探針の微小な変位をレーザーで検出することで原子間力として利用している.

最初の SPM は局所的な電子構造, 電位, 化学的機能性の高分解能検査を目的として注目浴びた. 1981 年, IBM Zürich の Rohrer, Binnig, Gerber によって, 走査型トンネル顕微鏡 (STM) が開発され, 固体表面上の原子を可視化することに成功し, 局所的な電子物性の研究が進んだ [19]. STM は, 原子レベルで鋭い金属探針を使い, トンネル効果と呼ばれる量子力学的効果に基づいて, 金属表面から微小電流を収集する [図 1.1(a)]. トンネル電流は非常に局所的な性質を持っているため, トンネル電流を一定に保つためのフィードバックループを使いながら, 表面上で探針を raster scan (矩形パターンの画像取得と再構成) することで, 原子レベルの分解能を持つ画像を得ることが可能である. STM が発明されて間もなく, 1986 年 Binnig, Quate, Gerber は, トンネル電流の代わりに探針と表面間のファンデルワールス力を機械的に検出することで, 原子間力で探針と試料の相互作用をマッピングする原子間力顕微鏡 (AFM) [20] を発明した [図 1.1(b)]. AFM は, 導電性または半導体の試料を必要とする STM とは異なり, ほとんどの種類の表面を画像化することができる [21]. それから AFM は, 磁力や静電気力など様々なタイプの力のマッピングや, 化学的相互作用のプロービングに拡張できることが提案された. ナノメートルレベルと原子レベルの電流と力を検出するというこの二重の能力により, さまざまな走査型プローブ顕微鏡 (SPM) ファミリーの拡大していった. 磁気力顕微鏡 (MFM) [22], 静電気力顕微鏡

(EFM)[23], 走査型静電容量顕微鏡 (SCM)[24], ケルビンプローブフォース顕微鏡 (KPFM)[25] などの技術が登場し, ナノメートルスケールの材料の局所的な電氣的, 磁氣的, 化学的, 機械的, 光学的, 熱的特性をナノレベルで観察できる. これらの SPM を利用することで, 汚染と表面清浄性 [26], 表面形態と再構成 [27], プロセスモニタリング [28], 表面化学 [29], 生物学的特性, 電氣的・機械的な局所表面特性 [30], 薄膜分析 [31] などに関する幅広い用途に効果的に対応できる SPM は急速な成長を成し遂げた.

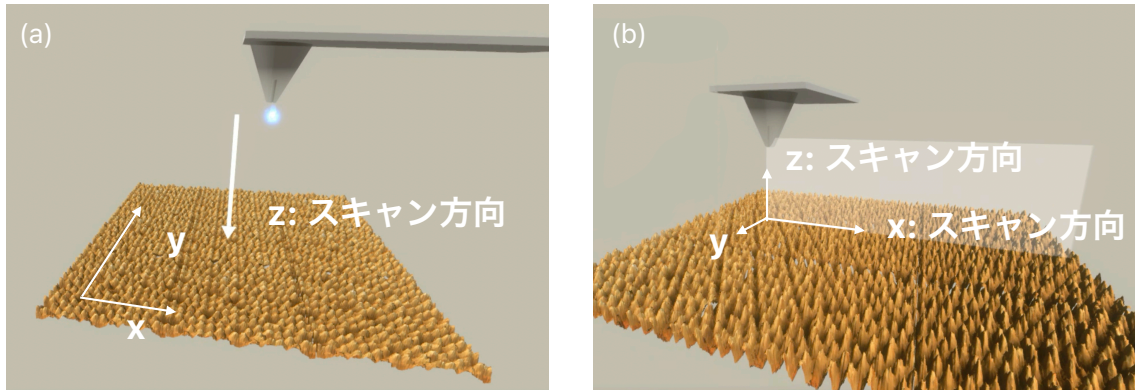


図 1.2: SPM 探針と試料が実空間 (x, y, z) 上における走査を示した図. (a) z と SPM 探針-試料相互作用に関する依存性測定概念図. (b) z と SPM 探針-試料相互作用に関する依存性の 1 次元カーブに, x 軸を加えて, x, z 平面に関する 2D mapping 測定概念図. AFM を用いた場合, (a) の測定は force spectroscopy, (b) の測定は 2D force mapping と呼ばれる.

SPM を用いた実験手法では, 原子表面のイメージングだけでなく, サブ-原子精度で 3 次元走査できる能力によって, ナノ・原子レベルでの局所構造や材料機能の制御・変更が可能であることが実証されている. 図 1.2 に示したのは, 実空間 (x, y, z) における探針と試料であり, SPM の探針は実空間上 1 pm オーダーの制御ができるので, 3 次元データを提供することにより, 個々の原子を分解することができる [32]. 例えば, STM を用いて, 探針の空間座標を一定にした状態で, トンネル電流の電圧微分の電圧依存性を測定する走査型トンネル分光法 (STS) は, 局所電子状態密度 (LDOS) を評価することが可能である [33, 27, 12]. AFM を用いて, 図 1.2(a) のように探針-試料間距離 z と原子間力の依存性を測定する force spectroscopy [36] では, 原子の識別 [37] やポテンシャルを求める [38] ことが可能である. さらに, 依存性の関係を示す STS や force spectroscopy の 1 次元のデータは, 実空間上の (x, y) にいずれの次元を追加すると, 2D mapping のデータとして測定できる. 例えば, 図 1.2(b) において, z と原子間力の依存性カーブに x の次元を加えると, 2D force mapping ができ, 水平力の測定 [39] が可能である. また, SPM 探針と試料間の相互作用力を利用して, 試料の原子を別の場所に移動させる原子操作は STM と AFM で実証された [40, 8, 24]. 以上で述べたような, SPM を用いた原子精度における 3 次元実空間上のデータ取得を活用した高機能計測は, 表面科学にとって不可欠なツールとなった.

温度に依存した高機能計測

実験動作温度 T がボルツマン因子と深い関わりを持つと同時に, 表面の活性やエネルギーも T に依存するため [23], SPM を用いた表面研究においては, 温度 T は無視できない重要なパラメーターとなる. 一般的に, 低い温度ほど探針と試料の両方で電子の熱拡散が小さくなるので,

より低い温度は測定表面にとってより安定な傾向を示す。また、SPM 測定する際のエネルギー分解能 ΔE は式 1.1 で与えられる [19]。

$$\Delta E \simeq \sqrt{(3.3kT)^2 + a(V_{\text{noise}})^2} \quad (1.1)$$

ここで、 k はボルツマン定数であり、 V_{noise} は測定系のノイズで、 a はノイズのオーダーを代表する定数ある。STM にとって、小さい T が意味するのは探針内の電子のフェルミ・ディラック分布の幅が小さくなることであり、試料電圧の値で試料にトンネルする電子のエネルギーのばらつきを小さくすることができる。温度が 10 mK に到達した極低温 SPM[45] と室温 SPM(300 K) におけるエネルギー分解能も数桁の差があるので、物性計測という観点からは STM にとって低い温度での測定が望ましい。

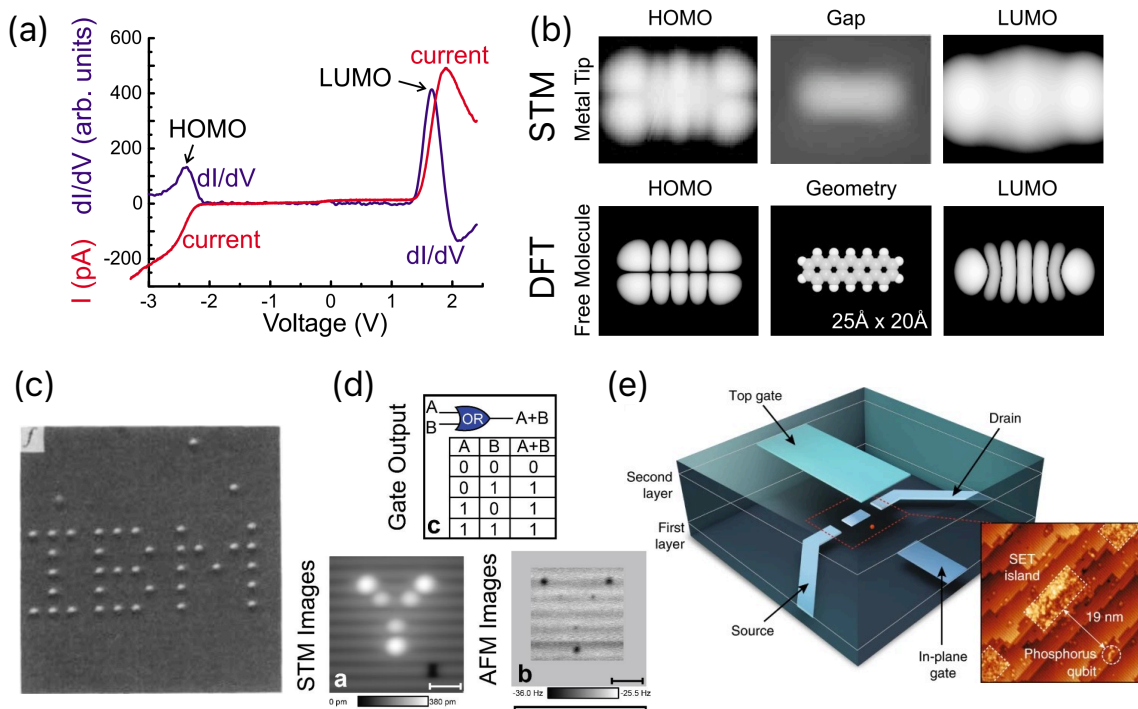


図 1.3: 極低温における SPM 実験の典型的な実験結果. (a) STM を用いた STS 測定における iv (赤) 曲線 (IV カーブ) と di/dv (青) 曲線は単一のペンタセン分子の最高 (HOMO) および最低 (LUMO) 分子軌道を示す [46]. (b) ペンタセンが先端についた探針によって取得された STS 2D マッピング画像で単一ペンタセンのフロンティア軌道を示す. STM 走査した結果と密度汎関数理論 (DFT) シミュレーションの結果とよく一致している [46]. (c) STM を用いたニッケル (110) 表面上にキセノン原子のパターン化された配列による初めての原子文字 [40]. (d) Si-H ダングリングボンドで構成された OR ゲートに関する STM 画像, AFM 画像と OR ゲートの真理値表 [47]. (e) STM リソグラフィーによって Si(100) 表面で P ドープした垂直ゲート単一電子トランジスタ. P ドナー量子ドットは単一電子トランジスタアイランドから 19 nm 離れた位置に配置される [48]. (a)(b) の部分は Ref. [46] より, 著者と American Physical Society より許可を頂いた. (c) の画像は Ref. [40] より, (d) は Ref. [47] より, (e) は Ref. [48] より, Springer Nature から再利用の許可を頂いた。

極低温 STM(約 4 K) はスタティックな環境において測定可能なので、アプリケーションとして室温と比べて原子レベルの物性計測と原子操作を実現する難易度が低い。原子レベルの物性

計測の典型的な例として、図 1.3(a) に示すように、ペンタセン 1 分子で得られた IV カーブとさらに試料電圧で微分した di/dv 曲線は、正と負の両方の試料電圧で顕著なピークを示しており、これは最高 (HOMO) と最低 (LUMO) の分子軌道に起因している [46]。また、図 1.3(b) に示すように、試料電圧を LUMO または HOMO に固定し、 di/dv 強度を空間的にマッピングすることで、ペンタセン分子のフロンティア軌道を実空間で直接可視化することができる [46]。原子スケールで材料を変更する原子操作例として、1990 年 Eigler らは STM を用いて初めての原子文字を書いた [図 1.3(c)]。これは極低温 (4 K) での環境下で Ni(110) 表面上に吸着した Xe 原子を探针で移動して、人工的に原子の配列をパターン化した結果である [40]。半導体の研究において、STM は H で終端したシリコン表面から個々の H 原子を脱離させることができる [49]。結果として生じる反応性のダングリングボンドを使用して、正確に定義された位置にドーパントを組み込むことができる。図 1.3(d) に示したように、この STM 原子操作技術によって、バイナリーワイヤーと OR ゲートを Si-H ダングリングボンドで構成した結果は、究極の小型回路の実証を可能にした [47]。また、量子情報の研究として、STM で単一電子トランジスタを作製し、Kane 型量子コンピュータ [50] のメカニズムである P 原子ドーピングした領域を量子ビットとして扱う、量子ビットの読み取りが可能であることが示された [48][図 1.3(e)]。これらの実験は実験者が SPM のシステムを完全に理解した上に、高度なテクニックがないといけない。また、このような原子分解能の実験は様々な試行錯誤を行う必要があり、実験者は膨大な時間を消費している。

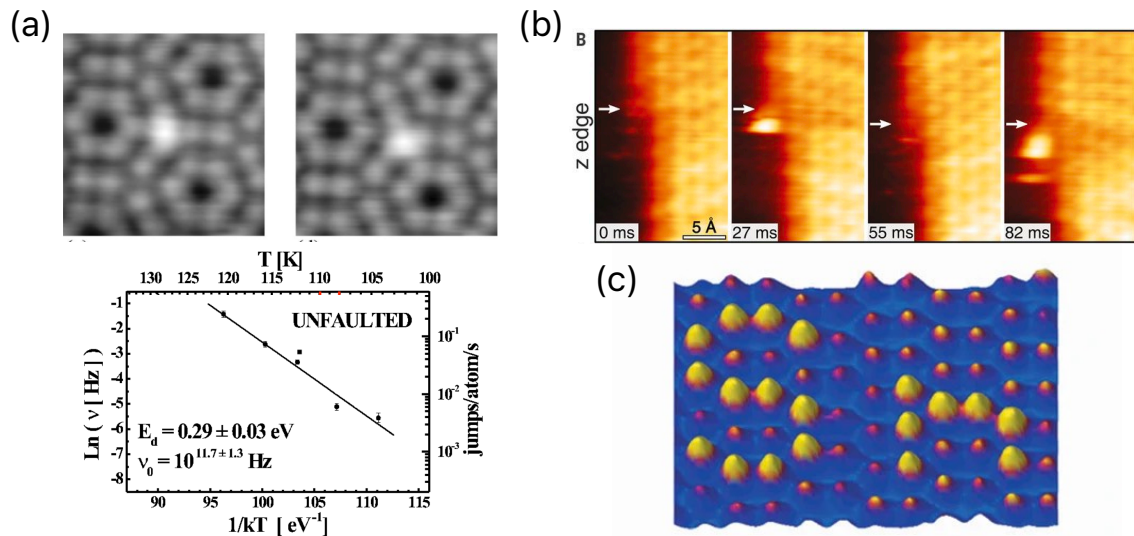


図 1.4: 室温/高温における SPM 実験の典型的な実験結果. (a) Si(111)-(7×7) 結晶内単一 Pb 吸着原子が拡散するとき、108 K の STM 動画から抽出された一連のフレームと Arrhenius plot. STM 像からは単一の Pb 原子が (7×7) 内で占有することができる領域を示している [25]. (b) 高速 STM で撮影した Ni(111) 上の top-fcc EG 層の z(zigzag) edge におけるグラフェン成長の様子 [52]. (c) Sn 原子が嵌め込んだ Ge(111)-c(2×8) 表面で AFM を使用した Sn 原子室温原子操作の結果 [8]. (a) は Ref. [25] より、著者と American Physical Society の許可を頂いた。 (b) は Ref. [52] より、Science Journals Default License の元に引用した。 (c) は Ref. [8] より、Springer Nature から再利用の許可を頂いた。

極低温と比べて室温では実験環境が不安定になるが、室温 SPM の研究は逆にこの不安性を利用して、surface dynamics やドーパント原子操作など室温しかできない実験を行うことができる。

しかし、不確実性の高い状況で実験することになるので、研究の難しさがさらに増す。Surface dynamics は化学 [53, 54] や生物 [55] の反応過程、拡散 [26, 25] や結晶成長 [52, 57] といった変化のある表面を注目する研究である。表面のリアクティブ性を評価した研究例として STM を用いて Si(111)-(7×7) 表面上の単一 Pb 原子の吸着と拡散をその場で観察/定量化することができる [25][図 1.4(a)]。Ni(111) 表面上、数百度までの温度でその場でグラフェンの成長を画像化した例もあり [図 1.4(b)]、高速 STM は表面の成長過程を可視化し解析するツールとして使われている [52]。ドーパントの研究例として、Sn 原子が嵌め込んだ Ge(111)-c(2×8) 表面における Sn 原子の水平操作によって、「Sn」という文字を書いた研究もある [8]。これは室温の環境で表面原子が熱振動していて、熱拡散しやすい現象を利用しているため、極低温と比べてより多くの表面が動かせる [8, 24]。しかし、これらの室温 SPM を用いた高機能計測に関する先行研究の例は、研究者の卓越した実験技能だけでなく、運も必要としており、基礎ならびに応用研究が進むとは言い難い。

1.1.2 室温高機能計測における課題

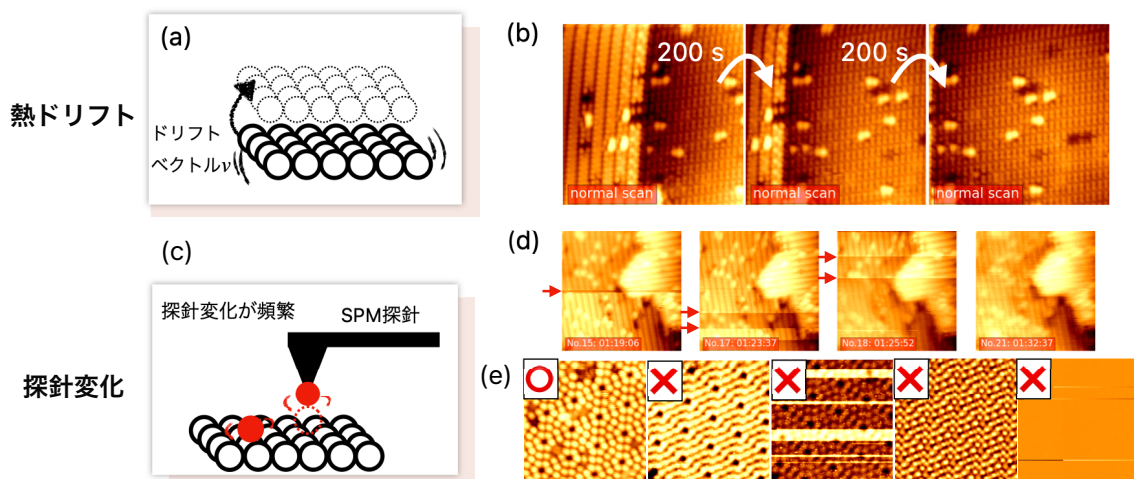


図 1.5: 室温高機能計測における 2 つの課題. (a) 熱ドリフトのイメージ図. (b) 200 s 間隔で撮った STM 像から表面がずれていくことがわかる. (c) 探針変化のイメージ図. (d) STM 動画から取り出したシーケンス画像. 赤矢印は探針が変化した場所を示す. (e) 異なる探針状態で測定した原子像.

Surface dynamics やドーパント原子操作など静止していない環境における実験は室温でしかできない。しかし、室温高機能計測は実験条件が最適化されていないことが課題となり、これによって、極低温と比べて実施する難易度が高く、極低温で高機能計測の研究は室温より発達している現状になった。室温高機能計測における課題は主に以下の 3 つが挙げられる。

1. 熱ドリフト

熱ドリフト [図 1.5(a)] は、観察表面が熱によって、時間とともにずれていく現象である [図 1.5(b)]。ドリフトによって、探針-試料間の相対位置が特定できなくなるため、室温で原子を狙いながら物性計測を行うことが困難となる。また、ドリフトが存在している状態で表面をイメージングすると、測定結果には歪みが発生し、良い原子像が得られない。

2. 探針変化

室温だと表面と探針の原子が熱的に不安定であるため、探針の状態変化は頻繁に発生する [図 1.5(c), (d)]. それによって、良い探針が急に悪い探針に変化する. 図 1.5(e) が示したように、SPM の測定結果は探針状態に強く依存するので、室温の計測では悪い探針を修復する操作も頻繁的に行わないといけない.

3. 実験の煩雑化

極低温でも存在する問題として、SPM を扱う敷居が高く、SPM 経験の少ない PhD 学生は良い原子像を得られるまで数ヶ月の訓練が必要だった. そして SPM を用いた実験は試行錯誤の繰り返しなので、精神的に悪影響を及ぼすと言われている [1]. 室温の環境になると、実験の不確実性が高くなり、試行錯誤にかかる時間はさらに増す. 実験の煩雑化という問題によって、例えば原子操作による大規模配列を人間が行う限り、現段階の実現環境ではコスト高い問題があるので、前述した原子サイズデバイスの社会実装や、理論上に発揮するであろう表面特性をデモンストレーションすることはできなかった. 従って、実験の煩雑化は実験の効率低下や、人間にとって労力と時間のコストがかかる要因となっている.

1つ目と2つ目の課題は、室温における測定環境が最適化されていないことを示しており、SPM で良い測定結果が得られにくい原因となっている. 3つ目の課題を解決するためには、機械が人間の代わりに自動 SPM 実験を行う技術を活用することが考えられる.

1.1.3 AI が走査プローブ顕微鏡分野に寄与するイノベーション

自動実験システムの開発に関する SPM 自動化技術は、特に AI を通じて SPM の課題に対処する主流のソリューションとして浮上している. 信号処理と computer vision における十分に訓練されたディープラーニング (DL) 学習モデルは、人間に近いパフォーマンスで特定のパターンを検出および認識できる [59, 60]. SPM のデータは通常、信号または画像として表示されるため、信号処理と computer vision 分野の DL モデルを活用できる. DL は SPM データ分析の能力を提供でき、ないし複雑でハイペースな実験操作中に効果的な意思決定を行うなど、AI によるリアルタイム測定も可能にする [図 1.6]. この際に、人間が実験する時と同様に、Look-then-Perform 戦略、つまり計測したデータに基づいて次の操作を行い、再計測して確認するような feedback ルーチンを取る. 「Look」に関する AI の実装として、SPM の測定信号 (1D) から特定な状態を検出させることができ、SPM の画像 (2D) から表面の全体的な状態、オブジェクトの情報として吸着物/周期結晶/原子や欠陥の認識ができれば、AI 制御の SPM は測定に関する操作に移ることができる. このように AI を用いた実験における in-situ のインターフェースが構築することができれば、機械は人間の代わりに実験を行うことができ、人間が実験へ介入する依存を減らすことができる [61].

最近の SPM における AI による画像認識技術の学際的領域では、SPM のデータ解析とデータ処理に関して様々な先行研究がなされている. SPM で測定した原子像の外見に対して、DL モデルでナノ構造のパターンを分割させる [2] ことができ、原子像に乗っているナノ粒子を区別させる [3] 技術も発表されている. また、DL モデルによって表面結晶に含まれている原子を抽出させ [4, 5], ドーパントや欠陥など表面構造の認識する研究 [6] も行われている. これらの AI データ解析技術は、AI が測定する表面に関する情報、いわば作業空間への認識に役に立つ. もしリアルタイム計測データの処理に実装することができれば、SPM を自動化するために必要な情報を提供できる. 熱的な効果が大幅に減少した極低温環境では、DL モデルで出力させた情報

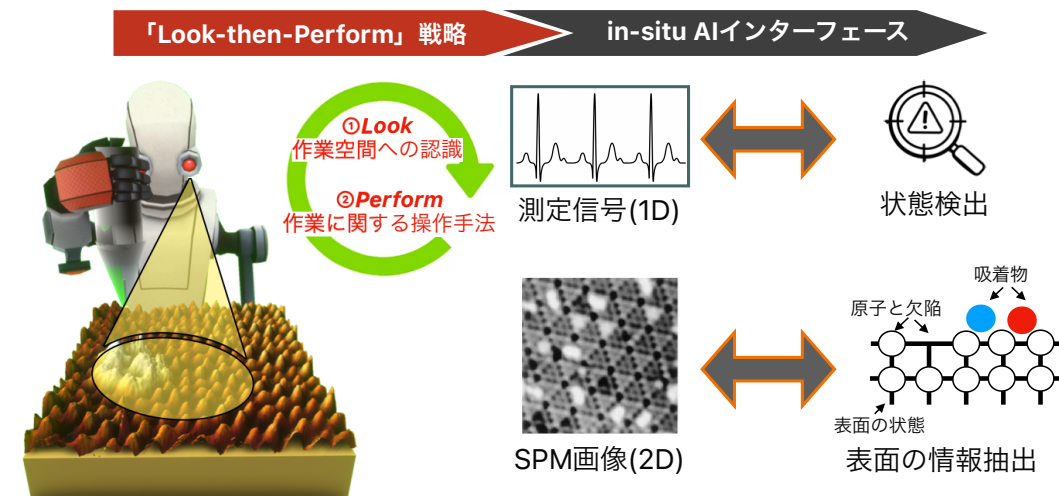


図 1.6: 物理学実験における「Look-then-Perform」戦略. 人間と AI が SPM 実験を行うプロセスとして, まず実験データが得られるとき, データを認識 (Look) させてから, 作業を行う意思決定を行 (Perform) という Look-then-Perform プロセスが必要である. 実験データのタイプとして, 1D の測定信号と 2D の SPM 画像に分けることができ, それらは in-situ の AI インタフェースによって認識させる必要がある.

を元に, 自律的な計測技術 [18, 68, 69] や原子操作 [70] を可能にする AI ベースのアプローチの有効性が示されている. しかし, 熱の問題が軽減されている極低温環境でのセットアップとは対照的に, 室温では AI ベースの SPM システムの再現性を実証し直す必要がある. 特に, 室温測定では本来不安定な環境下で, 様々なアクシデントが発生しうる. 従来の研究において, 学習データセットを構築する際に, シミュレーションデータセット [3, 5] が用いられるが, 実際の測定における探針状態や表面構造パターンの違いによる原子像の変動を包括的に網羅していない可能性がある. リアルタイム測定に AI の技術を活用するためには, 室温 SPM システムの信頼性と性能を向上させるための AI ソリューションが必要であり, 室温における AI 制御 SPM のリアルタイム測定に関する研究はまだなされていない.

1.1.4 走査型プローブ顕微鏡からナノロボティクスへ

AI を用いた SPM 自動化の技術進化から展開される成果はナノロボティクス [71] と深く関わっている. 分子 [72] や原子を組み替えることができるナノロボットは SPM によって実装できる. それによって, 量子デバイス [48, 73], 高密度メモリ [74], 微細化した電気デバイス [47, 75] に関するアプリケーションを実現可能にした. 世界初のナノロボティクスの実現は, SPM がリモートされているナノロボットとして原子表面に文字を書かせることができた [40]. しかし, 室温における課題や原子操作の制御パラメーター決定の難しさにより成功率が低くなるなどの問題があり, これ以来原子の大規模組み替えが実現できなかった. また, 表面の原子精度の測定をロボットとして扱える SPM 自動化システムに任せれば, 大量かつ有効的なデータを big data として取り扱うことができる. それによって, 実験の再現性が確かめやすくなる. さらにデータ解析する幅も広がり, 表面特性評価に対する洞察が深まる.

SPM の自動化における課題を振り返ると, ロボティクスにおける空間認識の課題に酷似している. ロボティクスにおいて, SLAM (Simultaneous localization and mapping) は未知の

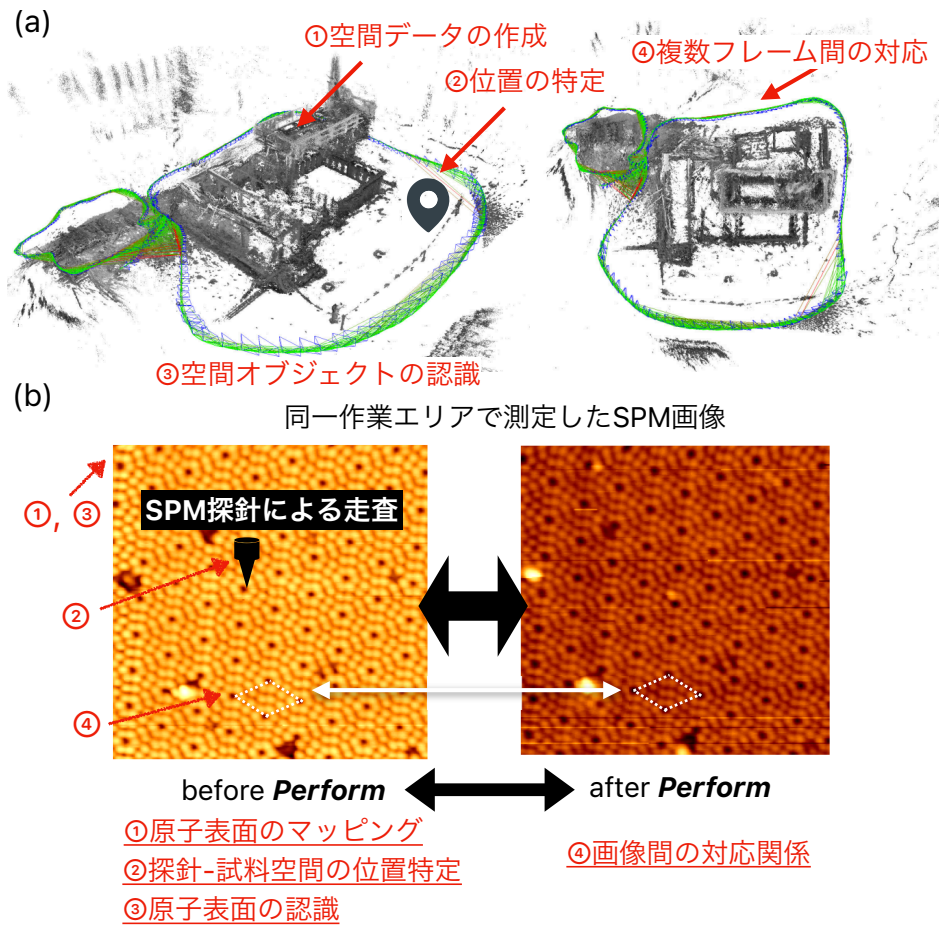


図 1.7: ロボティックスと SPM における空間認識能力の対応. (a) ロボティックスにおける SLAM (Simultaneous localization and mapping) 問題. ロボットは作業を行う前に, 作業空間のデータを作成する同時に, 今の位置を空間上で追跡する必要がある. また, 空間上のオブジェクトを認識させる. (b) SPM 走査を自動化する際の表面認識に関する問題. (a) の画像は Ref. [76] より, Springer Nature から再利用の許可を頂いた.

環境の地図を作成または更新すると同時に, その中でのロボットの位置を追跡する不可欠な技術である [76]. SLAM によって, 作業ロボットは空間データの作成 (マッピング), 自己位置の特定, 空間に存在するオブジェクトの認識や異なる場所における作成した空間データへの対応ができる [図 1.7(a)]. それに対して, 図 1.7(b) で示すように, SPM は探針の走査によって①原子表面をマッピングし, ②探針-試料の位置特定によって原子精度の高機能計測を実現している. しかし, 熱ドリフトによって像の歪みが生じ, 探針-試料間の位置特定ができなくなり, 探針の状態によって原子分解能の画像が得られない可能性がある. それは第 1.1.2 小節で述べた 1 つ目と 2 つ目課題につながる. 1 つ目と 2 つ目の課題の解決により, 実験環境が最適化され, SPM が表面をマッピングする条件が保証されるので, 正しく画像化された原子像に基づいて, ③測定した SPM 画像の情報と画像に含むオブジェクト (吸着物, 単位結晶と原子) を認識させることができる. さらに, 「Look-then-Perform」ルーチンにおける現在および過去のフレームに関する④位置とオブジェクトの対応をはっきりさせるシステムによって, SPM はロボットとしての空間認識能力を得る. よって, 室温における 3 つの課題を解決し, AI による SPM 計測信号や画像を理解させるインタフェースを構築できれば, 開発した SPM システムはナノロボティックスに

における SLAM 相当な能力を得ることになり、SPM が知能が高いナノロボットとしてナノロボティックスへ自動的に運用できる土台となる。

1.2 研究目的

以上を踏まえて、本研究の目的は AI の技術を用いて、第 1.1.2 小節で述べた室温における課題を解決し、SPM を高機能計測を可能にする技術を確立することである。それによって、1 原子レベルの物性計測/surface dynamics/原子操作を含めた自動計測への応用を設計する。

この研究目的を達成するために、まず室温の計測環境を最適化を行う必要がある。まず、熱ドリフトを自動的に補正するアルゴリズムを開発し、原子表面をマッピングする際発生する歪みをなくし、探針-試料空間の位置特定を可能にする。次に、探針を良い状態に制御できるシステムを開発し、原子表面のマッピングを安定させながら原子分解能で測定可能にする。次に AI を用いた SPM 自動化のために、「Look-then-Perform」に関する AI インタフェースを構築する。1D の測定信号に対して、状態検出を行う AI と、2D の SPM 画像から俯瞰的な情報を抽出させる AI を訓練し、リアルタイム自動計測に対応できる精度を保証することによって、SPM 装置によって計測状態の検出と原子表面の認識を可能にする。最後に、以上の手法を統合したシステムを用いて自動で高機能計測に関する実験へ適用した結果を示す。

1.3 本文論文の構成

本章では研究の背景、課題と目的について述べた。

第 2 章では、SPM と STM の測定原理を述べた後、SPM の測定装置構成について説明する。本研究目的の実現にかかわる SPM 自動化に関する AI システムの実装を成功させるには、測定した表面を高精度で認識させる AI モデル以外に、スキャンロジックや AI 機能を含む制御ハードウェアとソフトウェアの高度な統合が必要である。AI の運用および自動測定を対応させた自作した SPM 制御システムの構成と測定結果についても述べる。

第 3 章では、本章で述べた 1 つ目の課題である熱ドリフトに関する自動補正手法について、室温特有な surface dynamics に向けた高いロバスト性と高い精度を実現した特徴点マッチング法と原子/欠陥マッチング法を説明する。また、SPM 高機能自動計測の 1 つ目の応用実験として、長時間の拡散実験の結果を示す。

第 4 章では、本章で述べた 2 つ目の課題である、探針が変化した場合に自動で良い探針に変化させるためのシステムについて述べる。このシステムは SPM 測定画像から探針のクオリティを判断することのできる AI を利用している。その再現性を実験的に示す。さらに、探針状態改変プロセスの測定信号を DL モデルで認識させ、確率的に探針状態制御する手法と自動原子操作に関する手法を説明する。

第 5 章では、本章で述べた 3 つ目の課題である煩雑化を解決する実験を、AI によって自動で行った実験結果について述べる。SPM 測定画像を網羅的に情報を抽出する AI に関して、自動学習データセット収集の戦略と室温で動作する精度の評価を行う。そして、自動測定のインタフェースを実装した SPM 装置を用いて、AI から得られた情報をもとに計測プログラムによって、Si(111)-(7×7) 上での 2 つの SPM 自動実験のデモンストレーションを示す。

本博士論文の研究目的である SPM を室温で高機能計測を可能にする技術を確立するために、室温の計測環境の最適化は第 3, 4 章で考案したドリフト補正手法と探針修復システムによって

実現する。「Look-then-Perform」に関する実験結果を認識させる AI インタフェースを構築するために, 第4章で説明する測定信号モデルと5章で説明する SPM 画像認識モデルを構築する. 第6章では, 本論文のまとめについて述べる. さらに今後の展望について述べる.

参考文献

- [1] Bardeen, J. *et al.* The transistor, a semi-conductor triode. *Phys. Rev.* **74**, 230–231 (1948). [<URL>](#).
- [2] Chen, M.-L. *et al.* A finfet with one atomic layer channel. *Nature Communications* **11**, 1205 (2020). [<URL>](#).
- [3] Avouris, P. *et al.* Carbon-based electronics. *Nature Nanotechnology* **2**, 605–615 (2007). [<URL>](#).
- [4] Moore, G. E. Cramming more components onto integrated circuits, reprinted from electronics, volume 38, number 8, april 19, 1965, pp.114 ff. *IEEE Solid-State Circuits Society Newsletter* **11**, 33–35 (2006).
- [5] Vaswani, A. *et al.* Attention is all you need. In *Proceedings of the 31st International Conference on Neural Information Processing Systems*, NIPS’17, 6000–6010 (Curran Associates Inc., Red Hook, NY, USA, 2017). [<URL>](#).
- [6] Brown, T. B. *et al.* Language models are few-shot learners. In *Proceedings of the 34th International Conference on Neural Information Processing Systems*, NIPS’20 (Curran Associates Inc., Red Hook, NY, USA, 2020). [<URL>](#).
- [7] Smith, J. *et al.* Linking process, structure, property, and performance for metal-based additive manufacturing: computational approaches with experimental support. *Computational Mechanics* **57**, 583–610 (2016). [<URL>](#).
- [8] Holder, C. F. *et al.* Tutorial on powder x-ray diffraction for characterizing nanoscale materials. *ACS Nano* **13**, 7359–7365 (2019). [<URL>](#).
- [9] Siegbahn, K. *et al.* β -ray spectroscopy in the precision range of 1 : 105. *Nuclear Physics* **1**, 137–159 (1956). [<URL>](#).
- [10] Ertl, G. Untersuchung von oberflächenreaktionen mittels beugung langsamer elektronen (leed): I. wechselwirkung von o₂ und n₂o mit (110)-, (111)- und (100)-kupfer-oberflächen. *Surface Science* **6**, 208–232 (1967). [<URL>](#).
- [11] Singh, R. C. v. raman and the discovery of the raman effect. *Physics in Perspective* **4**, 399–420 (2002). [<URL>](#).
- [12] Ruska, E. The development of the electron microscope and of electron microscopy. *Bioscience Reports* **7**, 607–629 (1987). [<URL>](#).

- [13] McMullan, D. Scanning electron microscopy 1928–1965. *Scanning* **17**, 175–185 (1995). [<URL>](#).
- [14] Voigtländer, B. *Introduction*, 1–11 (Springer Berlin Heidelberg, Berlin, Heidelberg, 2015). [<URL>](#).
- [15] Müller, E. W. *et al.* Field ionization of gases at a metal surface and the resolution of the field ion microscope. *Phys. Rev.* **102**, 624–631 (1956). [<URL>](#).
- [16] Müller, E. W. Field ion microscopy. *Science* **149**, 591–601 (1965). [<URL>](#).
- [17] Haguenau, F. *et al.* Key events in the history of electron microscopy. *Microscopy and Microanalysis* **9**, 96–138 (2003). [<URL>](#).
- [18] Ma, Z. *et al.* Precise nanoscale measurements with scanning probe microscopy (spm): A review. *Journal of Nanoscience and Nanotechnology* **17**, 2213–2234 (2017). [<URL>](#).
- [19] Binnig, G. *et al.* Surface studies by scanning tunneling microscopy. *Phys. Rev. Lett.* **49**, 57–61 (1982). [<URL>](#).
- [20] Binnig, G. *et al.* Atomic force microscope. *Phys. Rev. Lett.* **56**, 930–933 (1986). [<URL>](#).
- [21] Hofer, W. A. *et al.* Theories of scanning probe microscopes at the atomic scale. *Rev. Mod. Phys.* **75**, 1287–1331 (2003). [<URL>](#).
- [22] Martin, Y. *et al.* Magnetic imaging by “force microscopy” with 1000 Å resolution. *Applied Physics Letters* **50**, 1455–1457 (1987). [<URL>](#).
- [23] Kantorovich, L. N. *et al.* Electrostatic energy calculation for the interpretation of scanning probe microscopy experiments. *Journal of Physics: Condensed Matter* **12**, 795 (2000). [<URL>](#).
- [24] Matey, J. R. *et al.* Scanning capacitance microscopy. *Journal of Applied Physics* **57**, 1437–1444 (1985). [<URL>](#).
- [25] Nonnenmacher, M. *et al.* Kelvin probe force microscopy. *Applied Physics Letters* **58**, 2921–2923 (1991). [<URL>](#).
- [26] Musket, R. G. *et al.* Preparation of atomically clean surfaces of selected elements: A review. *Applications of Surface Science* **10**, 143–207 (1982). [<URL>](#).
- [27] Giessibl, F. J. Atomic resolution of the silicon (111)-(7×7) surface by atomic force microscopy. *Science* **267**, 68–71 (1995). [<URL>](#).
- [28] Williams, C. C. Two-dimensional dopant profiling by scanning capacitance microscopy. *Annual Review of Materials Science* **29**, 471–504 (1999). [<URL>](#).
- [29] Lu, G. *et al.* Photooxidation of CH_3Cl on $\text{TiO}_2(110)$: A mechanism not involving H_2O . *The Journal of Physical Chemistry* **99**, 7626–7631 (1995). [<URL>](#).

- [30] Bischoff, M. M. J. *et al.* Influence of impurities on localized transition metal surface states: Scanning tunneling spectroscopy on v(001). *Phys. Rev. Lett.* **86**, 2396–2399 (2001). [<URL>](#).
- [31] Burnham, N. A. *et al.* Interpretation issues in force microscopy. *Journal of Vacuum Science & Technology A* **9**, 2548–2556 (1991). [<URL>](#).
- [32] Fukuma, T. *et al.* Atomic-scale distribution of water molecules at the mica-water interface visualized by three-dimensional scanning force microscopy. *Phys. Rev. Lett.* **104**, 016101 (2010). [<URL>](#).
- [33] Hamers, R. J. *et al.* Surface electronic structure of si (111)-(7×7) resolved in real space. *Phys. Rev. Lett.* **56**, 1972–1975 (1986). [<URL>](#).
- [34] Avouris, P. *et al.* Atom-resolved surface chemistry studied by scanning tunneling microscopy and spectroscopy. *Phys. Rev. B* **39**, 5091–5100 (1989). [<URL>](#).
- [35] Zandvliet, H. J. *et al.* Scanning tunneling spectroscopy. *Annual Review of Analytical Chemistry* **2**, 37–55 (2009). [<URL>](#).
- [36] Lantz, M. A. *et al.* Quantitative measurement of short-range chemical bonding forces. *Science* **291**, 2580–2583 (2001). [<URL>](#).
- [37] Sugimoto, Y. *et al.* Chemical identification of individual surface atoms by atomic force microscopy. *Nature* **446**, 64–67 (2007). [<URL>](#).
- [38] Butt, H.-J. *et al.* Force measurements with the atomic force microscope: Technique, interpretation and applications. *Surface Science Reports* **59**, 1–152 (2005). [<URL>](#).
- [39] Sugimoto, Y. *et al.* Vertical and lateral force mapping on the Si(111)–(7 × 7) surface by dynamic force microscopy. *Phys. Rev. B* **77**, 195424 (2008). [<URL>](#).
- [40] Eigler, D. M. *et al.* Positioning single atoms with a scanning tunnelling microscope. *Nature* **344**, 524–526 (1990). [<URL>](#).
- [41] Sugimoto, Y. *et al.* Atom inlays performed at room temperature using atomic force microscopy. *Nature Materials* **4**, 156–159 (2005). [<URL>](#).
- [42] Sugimoto, Y. *et al.* Complex patterning by vertical interchange atom manipulation using atomic force microscopy. *Science* **322**, 413–417 (2008). [<URL>](#).
- [43] Laidler, K. J. The development of the arrhenius equation. *Journal of Chemical Education* **61**, 494 (1984). [<URL>](#).
- [44] Morgenstern, M. *et al.* Experimental evidence for edge-like states in three-dimensional electron systems. *Phys. Rev. B* **64**, 205104 (2001). [<URL>](#).
- [45] Song, Y. J. *et al.* Invited review article: A 10 mk scanning probe microscopy facility. *Review of Scientific Instruments* **81**, 121101 (2010). [<URL>](#).

- [46] Repp, J. *et al.* Molecules on insulating films: Scanning-tunneling microscopy imaging of individual molecular orbitals. *Phys. Rev. Lett.* **94**, 026803 (2005). [<URL>](#).
- [47] Huff, T. *et al.* Binary atomic silicon logic. *Nature Electronics* **1**, 636–643 (2018). [<URL>](#).
- [48] Koch, M. *et al.* Spin read-out in atomic qubits in an all-epitaxial three-dimensional transistor. *Nature Nanotechnology* **14**, 137–140 (2019). [<URL>](#).
- [49] Pavliček, N. *et al.* Tip-induced passivation of dangling bonds on hydrogenated si(100)-2 $\times$ 1. *Applied Physics Letters* **111**, 053104 (2017). [<URL>](#).
- [50] Kane, B. E. A silicon-based nuclear spin quantum computer. *Nature* **393**, 133–137 (1998). [<URL>](#).
- [51] Custance, O. *et al.* Single adatom adsorption and diffusion on Si(111) – (7 $\times$ 7) surfaces: Scanning tunneling microscopy and first-principles calculations. *Phys. Rev. B* **67**, 235410 (2003). [<URL>](#).
- [52] Patera, L. L. *et al.* Real-time imaging of adatom-promoted graphene growth on nickel. *Science* **359**, 1243–1246 (2018). [<URL>](#).
- [53] Barth, C. *et al.* Imaging the atomic arrangements on the high-temperature reconstructed α -al₂o₃(0001) surface. *Nature* **414**, 54–57 (2001). [<URL>](#).
- [54] Jelínek, P. High resolution spm imaging of organic molecules with functionalized tips. *Journal of Physics: Condensed Matter* **29**, 343002 (2017). [<URL>](#).
- [55] Koder, N. *et al.* Video imaging of walking myosin v by high-speed atomic force microscopy. *Nature* **468**, 72–76 (2010). [<URL>](#).
- [56] Brihuega, I. *et al.* Surface diffusion of single vacancies on Ge(111)–c(2 $\times$ 8) studied by variable temperature scanning tunneling microscopy. *Phys. Rev. B* **70**, 165410 (2004). [<URL>](#).
- [57] Meusel, M. *et al.* Time- and temperature-dependent growth behavior of ionic liquids on au(111) studied by atomic force microscopy in ultrahigh vacuum. *The Journal of Physical Chemistry C* **125**, 20439–20449 (2021). [<URL>](#).
- [58] Extance, A. How atomic imaging is being pushed to its limit. *Nature* **555**, 545–547 (2018). [<URL>](#).
- [59] He, K. *et al.* Deep residual learning for image recognition. In *2016 IEEE Conference on Computer Vision and Pattern Recognition (CVPR)*, 770–778 (2016). [<URL>](#).
- [60] Liu, S. *et al.* Very deep convolutional neural network based image classification using small training sample size. In *2015 3rd IAPR Asian Conference on Pattern Recognition (ACPR)*, 730–734 (2015). [<URL>](#).
- [61] Gordon, O. M. *et al.* Machine learning at the (sub)atomic scale: next generation scanning probe microscopy. *Machine Learning: Science and Technology* **1**, 023001 (2020). [<URL>](#).

- [62] Farley, S. *et al.* Improving the segmentation of scanning probe microscope images using convolutional neural networks. *Machine Learning: Science and Technology* **2**, 015015 (2020). [<URL>](#).
- [63] Gordon, O. M. *et al.* Automated searching and identification of self-organized nanostructures. *Nano Letters* **20**, 7688–7693 (2020). [<URL>](#).
- [64] Hofer, L. R. *et al.* Atom cloud detection and segmentation using a deep neural network. *Machine Learning: Science and Technology* **2**, 045008 (2021). [<URL>](#).
- [65] Lin, R. *et al.* Temimagenet training library and atomsegnet deep-learning models for high-precision atom segmentation, localization, denoising, and deblurring of atomic-resolution images. *Scientific Reports* **11**, 5386 (2021). [<URL>](#).
- [66] Yang, S.-H. *et al.* Deep learning-assisted quantification of atomic dopants and defects in 2d materials. *Advanced Science* **8**, 2101099 (2021). [<URL>](#).
- [67] Wang, S. *et al.* Automated tip conditioning for scanning tunneling spectroscopy. *The Journal of Physical Chemistry A* **125**, 1384–1390 (2021). [<URL>](#).
- [68] Krull, A. *et al.* Artificial-intelligence-driven scanning probe microscopy. *Communications Physics* **3**, 54 (2020). [<URL>](#).
- [69] Thomas, J. C. *et al.* Autonomous scanning probe microscopy investigations over ws2 and au{111}. *npj Computational Materials* **8**, 99 (2022). [<URL>](#).
- [70] Chen, I.-J. *et al.* Precise atom manipulation through deep reinforcement learning. *Nature Communications* **13**, 7499 (2022). [<URL>](#).
- [71] Sitti, M. *et al.* Controlled pushing of nanoparticles: modeling and experiments. *IEEE/ASME Transactions on Mechatronics* **5**, 199–211 (2000). [<URL>](#).
- [72] Junno, T. *et al.* Controlled manipulation of nanoparticles with an atomic force microscope. *Applied Physics Letters* **66**, 3627–3629 (1995). [<URL>](#).
- [73] He, Y. *et al.* A two-qubit gate between phosphorus donor electrons in silicon. *Nature* **571**, 371–375 (2019). [<URL>](#).
- [74] Kalff, F. E. *et al.* A kilobyte rewritable atomic memory. *Nature Nanotechnology* **11**, 926–929 (2016). [<URL>](#).
- [75] Eigler, D. M. *et al.* An atomic switch realized with the scanning tunnelling microscope. *Nature* **352**, 600–603 (1991). [<URL>](#).
- [76] Fleet, D. *et al.* (eds.). *LSD-SLAM: Large-Scale Direct Monocular SLAM* (Springer International Publishing, Cham, 2014). [<URL>](#).

第2章 自動制御可能な走査型プローブ顕微鏡装置の構築

2.1 はじめに

本章では走査型プローブ顕微鏡 (SPM) および走査型トンネル顕微鏡 (STM) の測定原理を述べた後、本研究で用いた超高真空 (ultra-high vacuum; UHV) で動作する SPM の測定装置構成について説明する。また、自作した SPM システムについて解説する。本研究課題を解決するための SPM 装置の制御には、測定信号の検出や取得、SPM ステージ制御信号の演算や出力を担当するハードウェアと計測の意思決定やユーザーインターフェースを担当するソフトウェアを開発が不可欠である。特に、本研究で開発した SPM は高い原子分解能と帯域幅を持ち、測定のカスタマイズや AI との連携ができるシステム仕様となっている。本章ではこれらに関する基盤技術について解説し、最後にデモンストレーションとして、それらを用いた計測結果を示す。

具体的には、第 2.2 節では SPM の測定原理について述べる。検出するトンネル電流の基本原理解について説明してから、トンネル電流の物理モデルについて述べる。また、第 5 章ではトンネル電流に基づいた走査トンネル分光測定 (scanning tunneling spectroscopy, STS) の自動測定とデータ解析を行うので、STS についての原理について述べる。第 2.3 節では、STM の装置構成 (ハードウェア) と計測のための電子回路について説明する。第 2.4 節では自作した自動制御可能な走査型プローブ顕微鏡の制御システムについて解説する。この制御システムは LabVIEW FPGA で開発したハードウェア、Python で構築したミドルウェアサーバーと LabVIEW PC で構築したユーザーインターフェースから構成されており、詳細の説明は付録 A 参照できる。第 2.5 節では、Si(111)-(7×7) 試料を用いて、開発した制御システムの画像化性能の検証結果と走査帯域に関する評価結果を述べる。

2.2 走査型プローブ顕微鏡の原理

SPM では、原子サイズの先端を持つ探針をナノスケールの制御ができ、探針を試料表面上で走査しながら探針-試料間の相互作用を検知することで表面の画像化を行う [1]。SPM には様々な種類があり、それぞれ異なる種類の物理量で相互作用を検知している。SPM ファミリーは探針と試料の相互作用を維持するために異なるフィードバック信号を利用している。基本的な動作原理はどの技術も似ており、探針をフィードバック制御しながら表面上に動かせることによって試料の表面形状を記録するという装置の動作原理はほぼ同じである。この節では走査型トンネル顕微鏡 (STM) に関する相互作用に関する物理的意味を説明する。

2.2.1 走査型トンネル顕微鏡の原理

トンネル効果

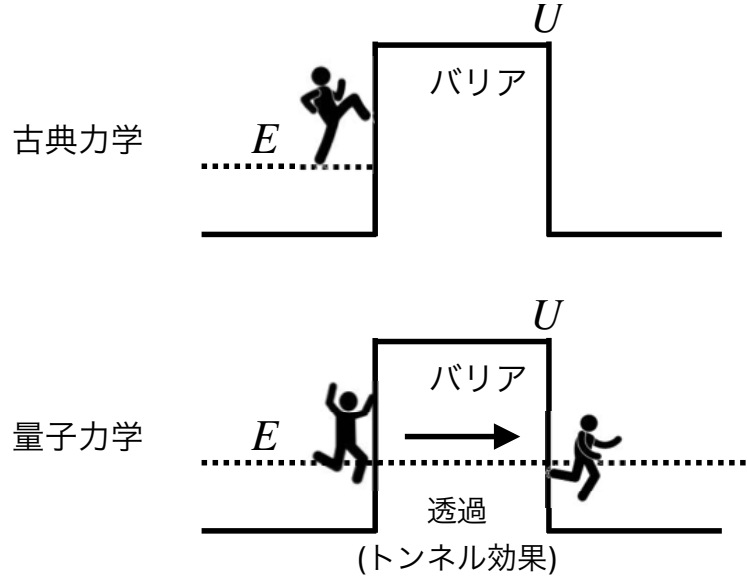


図 2.1: 古典力学と量子力学における、物体がポテンシャル障壁を通過する際の現象の説明。古典メカニズムのとき、オブジェクトは運動エネルギー E を持つ剛体として運動方程式で表現されるので、ポテンシャル障壁 U を越えるために $E > U$ にならなければならない。それに対して、量子メカニズムでは、オブジェクト (粒子) は波動方程式として表現できるので、 $E < U$ の場合でもポテンシャル障壁を透過することができる。

STM の基本原理はトンネル効果の概念に基づいている。トンネル効果は古典的なメカニズムでは説明できず、量子力学に基づく考え方が必要である [2]。例えば、図 2.1 の古典力学の考え方から見ると、運動量 p 、重量 m のオブジェクト (粒子) がポテンシャル U のバリアを超えようとするとき、以下の式が成り立つ。

$$\frac{p^2}{2m} + U(x) = E \quad (2.1)$$

ここで、 E は状態エネルギーであり、 $U(x)$ はその粒子が持つポテンシャルである。この時、 $E > U$ のときのみこの粒子がバリアを超えることができる。しかし、量子的な考えではその粒子は粒子と波動の二重性 [3] を持ち、 $E > U$ の関係が成り立たなくても波動関数として認識できるのでバリアを透過して通ることもできる。波動関数 $\psi(x)$ は、量子力学における式 2.2 の Schrödinger 方程式の解である [4]。

$$-\frac{\hbar^2}{2m} \frac{d^2}{dz^2} \psi(x) + U(x)\psi(x) = E\psi(x) \quad (2.2)$$

古典力学的に粒子がバリアを乗り越えられるとき、すなわち $E > U$ の場合では式 2.2 の解は以下のように解ける。

$$\psi(x) = \psi(0)e^{\pm ikx} \quad (2.3)$$

$$k = \frac{\sqrt{2m(E - U)}}{\hbar} \quad (2.4)$$

ここで, k は波数ベクトルと呼ばれ, 波動関数がバリアに当たるとき, 透過する波と反射する波を生成する. 式 2.6 より, Schrödinger 方程式から伝送線路の物理モデルを導出することができ, 量子力学に基づくモデルで古典モデルの説明が付くことがわかる. 一方で, $E < U$ の場合は同時に式 2.2 の解があり, 以下のように解ける.

$$\psi(x) = \psi(0)e^{-\kappa x} \quad (2.5)$$

$$\kappa = \frac{\sqrt{2m(U - E)}}{\hbar} \quad (2.6)$$

ここで, κ は減衰定数と呼ばれる. このとき波動関数の解は透過する波のみ構成されている. この解は, 場所 x において, その粒子を観察できる確率密度は $|\psi(0)|^2 e^{-2\kappa x}$ に比例することを意味している. 言い換えると, 粒子は古典的にバリアを超えられない状態でもバリアを透過する現象があるが, そのオーダーは距離 x 逆指数のように減衰するので, バリアの距離がある程度小さければバリアの向こうでも粒子を十分に観察できる. このメカニズムを STM のモデルに適用すると, 探針と試料の間の距離は 1 nm 程度なので, 探針と試料間の電位の差がある場合, 探針と試料が繋がらなくても微小な電流を検知できる.

入射する波が通過する確率 T について考える. T は同時に, 入射波に対する透過波の振幅や強度 I を表すことができ, 透過係数とも呼ばれる. 透過係数 T は WKB(Wentzel-Kramers-Brillouin) 近似の手法を用いて解を求めることができ, 式 2.7 のように与えられる [5, 6].

$$T(E, U) = \frac{I(x)}{I(0)} = \exp^{-2x\sqrt{\frac{2m}{\hbar^2}[U-E]}} \quad (2.7)$$

トンネル電流

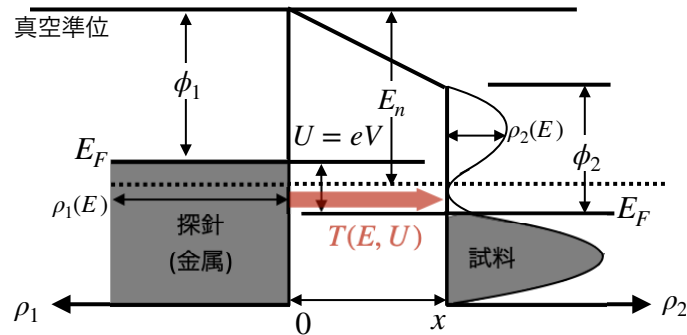


図 2.2: STM における探針-真空-試料のトンネル接合.

STM のトンネル電流を考えると, 図 2.1 のモデルに, 探針-真空-試料のトンネリング接合に電流が流れるモデルとして特徴をつけられる. トンネル電流 I_t は, 電子が探針側から試料側へ T の確率で透過した量で定められ, 探針側と試料側の電子の表面電子密度 ρ_1, ρ_2 に関係している.

$$I_t \propto \int_0^{eV} \rho_2(E - eV) \rho_1(E) T(E, eV) dE \quad (2.8)$$

このとき、探針側のエネルギー E にある電子が試料側の $-eV + E$ のエネルギー準位に遷移している。図 2.2 は STM における探針-真空-試料のトンネル接合を示す概念図である。 ϕ_1, ϕ_2 は探針と試料に関する仕事関数であり、バルクから真空準位に電子を移動させるのに必要な最小エネルギーとして定義される。一般に、仕事関数は材料だけでなく、結晶の配列にも依存している。そして、フェルミ準位 E_F は仕事関数オーダー以下になり、電子が占有する上限を示している。便利上、真空準位を基準と置く (探針側の $E_F = \phi_1$)。探針-試料間に電位差 V を与えることにより、ある E_n のエネルギー準位にある波動関数 ψ_n を持つ電子は、 E_n は E と $-eV + E$ の間にあるならばトンネル効果により、探針-試料に流れる可能性がある。平均化した仕事関数 $\phi = \frac{\phi_1 + \phi_2}{2}$ を式 2.7 に代入すると、

$$T(E, eV) = \exp^{-2x \sqrt{\frac{2m}{\hbar^2} [\phi + \frac{eV}{2} - E]}} = \exp^{-2\kappa x} \quad (2.9)$$

このとき電子の波動関数の減衰定数 κ は、

$$\kappa(E) = \sqrt{\frac{2m}{\hbar^2} [\phi + \frac{eV}{2} - E]} \quad (2.10)$$

となるが、ブリュアンゾーンの中心 (Γ 点) から離れた電子状態でもトンネル電流に寄与する場合、表面の電子状態に平行した運動量 $k_{\parallel}$ も以下の関係で減衰定数に影響する。

$$\kappa(E) = \sqrt{\frac{2m}{\hbar^2} [\phi + \frac{eV}{2} - E] + k_{\parallel}^2} \quad (2.11)$$

さらに、一般的に観察する試料の状態密度 ρ_2 は複雑なものであるが、探針を金属だと考えると状態密度 ρ_1 は定数となるので、 $\int_0^{eV} \rho_1 dE$ も定数であり、トンネル電流 I_t は以下のように簡略化できる。

$$I_t \propto \int_0^{eV} \rho_2(E - eV) \exp^{-2\kappa x} dE \quad (2.12)$$

もし試料も金属だと想定する場合、 $\int_0^{eV} \rho_2(E - eV) dE$ も定数なので、 $I_t \propto \exp^{-2\kappa x}$ となり、トンネル電流の大きさは探針-試料間距離の逆指数の関係となる。また、平均化した仕事関数 ϕ と表面に平行した波の運動量の値は大きいほど、電流の減衰が早いことがわかる。ここまではトンネル電流の定性化を行なったが、より詳細に定式化を行う 1980 年代の Tersoff-Hamann 理論では、一次摂動理論 [7] に基づくと、トンネル電流 I_t は n th 状態の電子が m th 状態に遷移する場合に考えうるすべての遷移過程を合計計算した値で与えられる [8, 9]。

$$I_t = \frac{4\pi e^2}{\hbar} V \rho_0(E_F) \rho_1(E_F) |M|^2 \quad (2.13)$$

ここで、 M は n, m 状態における遷移確率を表す行列であり、 $n \rightarrow m$ に状態遷移する確率を M_{nm} として表すと、 M_{nm} は表面で積分した式で与えられる。

$$M_{nm} = -\frac{\hbar}{2m} \int (\psi_m^* \Delta \psi_n - \psi_n \Delta \psi_m^*) dS \quad (2.14)$$

それ以外のトンネル電流を定式化する理論 [10, 11] もあり、それらを用いた第一原理計算に基づいた STM 画像のシミュレーションが可能である。

2.2.2 走査トンネル分光測定の実理

試料表面の電子状態密度 $\rho_2(E)$ が V に対する変化を調べるのが走査トンネル分光測定である [12]. 探針側と試料側に印加する電圧 V を変えながらトンネル電流 I_t を記録すると, IV カーブと呼ばれる電圧電流依存性のデータが取れる. そのデータを式 2.12 を V で微分したものに代入して計算する.

$$\frac{dI}{dV} \propto e\rho_2(eV)T(eV, eV) + e \int_0^{eV} \rho_2(E) \frac{d}{d(eV)} (T(E, eV)) dE \quad (2.15)$$

ここで, 注意すべきこととして, 計算上探針側の電子状態密度 ρ_1 を定数として扱っているが, 実際の測定では V を変化させると, 探針先端の原子構造の変化や, 電界蒸発 [14] などによる試料側の原子構造変化が起こりうる [13]. これらの要素は STM を用いた走査トンネル分光測定における不確かさをもたらす要因の 1 つとなる. 透過係数 T は電圧 V によって変化するので, 式 2.15 から V と $\rho_2(eV)$ の関係を知るために, T の依存性を消す必要があり, $\frac{dI}{dV}$ の正規化プロセス $(di/dv)/(I/V)$ によって以下のように得られる [15, 16, 17].

$$(di/dv)/(I/V) \propto \frac{\rho_2(eV) + \int_0^{eV} \frac{\rho_2(E)}{T(eV, eV)} \frac{d}{d(eV)} (T(E, eV)) dE}{\frac{1}{eV} \int_0^{eV} \rho_2(E) \frac{T(E, eV)}{T(eV, eV)} dE} \quad (2.16)$$

$T(E, eV)$ と $T(eV, eV)$ は, この方程式の分子と分母に比として現れるので, V と x に対する指数依存性は相殺される傾向がわかる. 式 2.16 分子の第 1 項は試料の LDOS(Local density of state) と呼ばれる. V がエネルギーバリアと比べて十分に小さいとき, $T(eV, eV)$ は定数とみなすので, 式 2.16 分子の第 2 項は 0 に近似できる. このとき STS 測定で得られたデータはブリュアンゾーンの Γ 点に関する LDOS の値を示している.

式 2.16 は $V > 0$ における導入であり, $T(E, eV) \leq T(eV, eV)$ となり, 透過係数 T は $E = eV$ において最大となる. 逆に $V < 0$ の場合では同様に導出できて, この場合は $T(E, eV) \geq T(eV, eV)$ となり, 透過係数 T は $E = 0$ において最大となる. 式 2.16 の全ての項は同じオーダーであるが, 正規化した LDOS 項以外に, 徐々に変化しているバックグラウンド項も混ざっている. そしてバックグラウンド項と分母の項どちらも LDOS 項より大きいことがわかる. 表面の低位充填(深い位置)した電子占有状態を STS で求めることは困難である [15, 16].

2.3 走査型プローブ顕微鏡の装置構成

超高真空装置排気系

SPM で清浄な試料表面を観察するためには, 不純物による汚染がない状態が必要である. Si を長時間測定するには, 1.0×10^{-8} Pa 以下の超高真空 (Ultra High Vacuum: UHV) の環境が必要である. UHV を維持する超高真空系によって, 大気中の分子が試料表面に吸着して汚染することを防ぐために, 図 2.3 では超高真空系を構成するパーツを示したように, 主に観測室, 処理室, ロード ロック室の 3 つのチャンバーで構成されている. 探針や試料の運搬はトランスファー ロッドを用いて行う. また, 各チャンバー間はゲートバルブによって仕切られている.

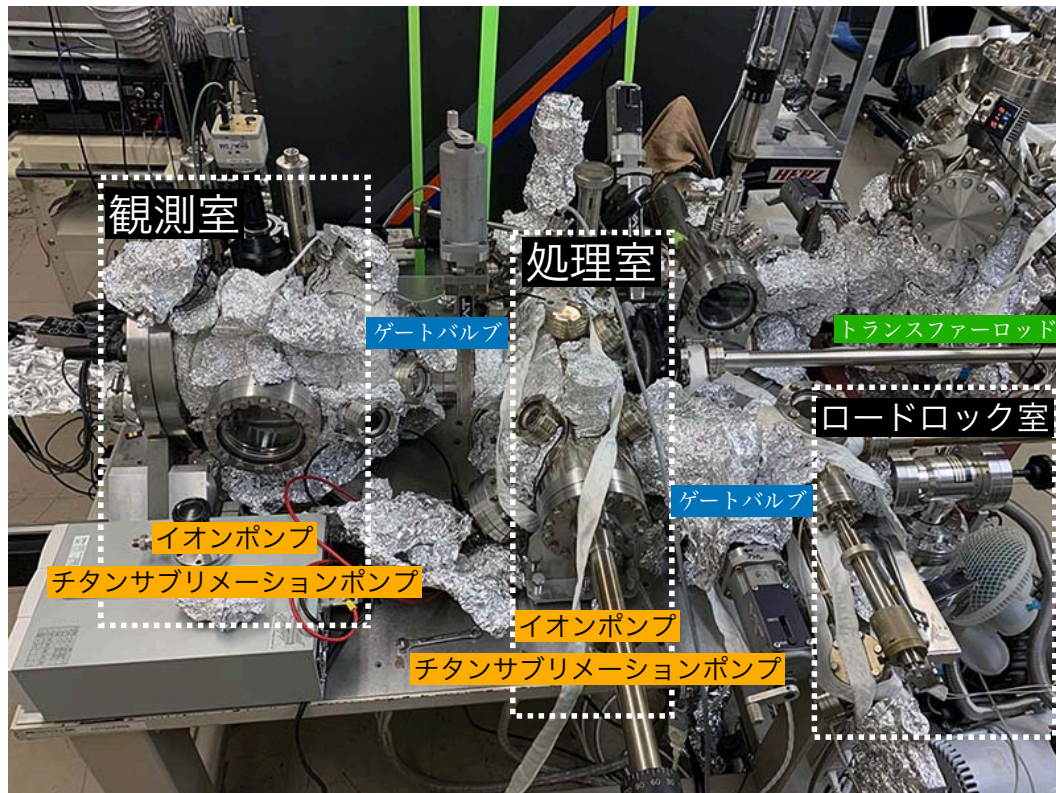


図 2.3: 超高真空 (UHV) 装置排気系の装置構成. 3つのチャンバー (観測室, 処理室, ロードロック室) で構成されており, それぞれのチャンバーはゲートバルブでガスの循環を制御している. 観測室と処理室にはイオンポンプとチタンサブリメーションポンプが入っている. 試料と探針はトランスファーロッドを用いて各チャンバー間を移動させることができる.

ロードロック室は試料や探針を交換するために用意された容積が小さいチャンバーである. 試料と探針を交換したい場合, ロードロック室と処理室の間のゲートバルブを閉めて, ロードロック室だけ真空から大気状態にする. そうすれば, 試料と探針を交換後真空状態に戻すときには, ロードロック室だけベーキングすれば良く, ベーキングの時間を短縮できる. 処理室は試料を作製するためのチャンバーであり, 試料と探針を保存するためのストッカーと, 試料を通電加熱させて清浄化を行うためのストッカーで構成されている. 通常は 1.0×10^{-8} Pa の真空度を維持している. 観測室はSPM測定するためのチャンバーであり, (後述するとおり) SPMステージと防振機構が入っている. 通常は 1.0×10^{-9} Pa の真空度を維持している. 各チャンバーの真空度の計測は, それぞれのチャンバー内に設置されている電離真空計で行っている. ロードロック室には粗引き用のターボ分子ポンプとドライスクロールポンプが取り付けられている. 観測室と処理室の真空引きは, 各チャンバー下部に取り付けてあるイオンポンプとチタンサブリメーションポンプで行っている.

SPMステージは, SPMの探針を試料に走査させるための機構であり, チャンバー外部の制御回路によって, 図 2.4 が示した SPMステージの部品に電気信号を与えることで, 探針による試料の局所的な位置での走査によって測定を行なっている. 高周波の機械的ノイズ源を制限するために, SPMステージは防振機構の上に配置されている. 防振機構, SPMステージの部品である走査用スキャナ, 粗動アプローチ, 探針ホルダ, 探針ホルダの解説を以下で述べる.

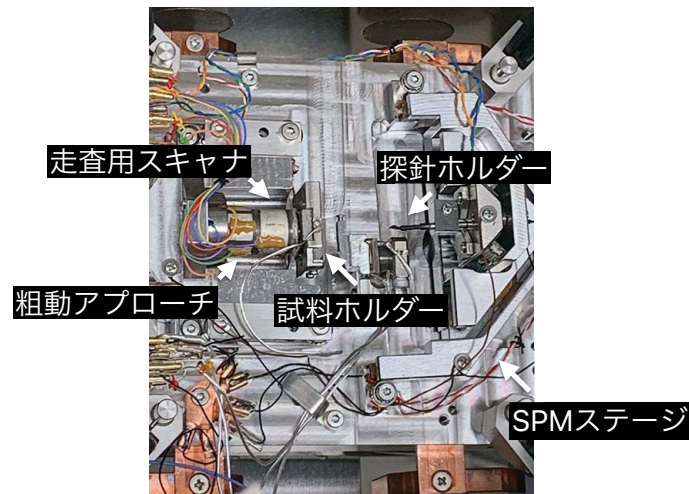


図 2.4: SPM ステージの構成. 試料 (ホルダー) と探針 (ホルダー) の相対位置は走査用スキャナと粗動アプローチによって制御している.

防振機構

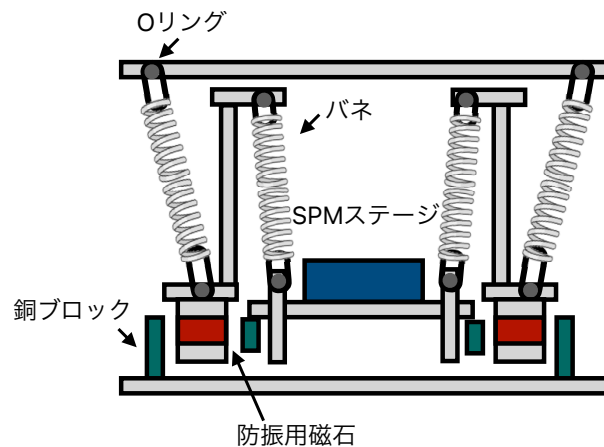


図 2.5: SPM 防振機構の構成. 2 段のバネ・ダンパ機構から構成されている.

SPM 測定では、探針と試料までの距離が nm レベルであり、微小な振動でも装置の安定性に影響を及ぼす。そのため、STM 測定中は外部からの音や機械的な振動を除去するための防振機構が必要となる [18]。

図 2.5 は、本研究で使用している UHV-SPM 装置の観測室内の防振機構が示されている。試料と探針を含む SPM ステージはバネで吊るされ、銅ブロックや防振用磁石で構成された渦電流型の除振機構が O-リングを使用して組み込んでいる。2 段のバネ吊りにより、真空装置からの外乱を低減させている。O-リングはバネ（金属）との音響インピーダンスの違いを利用して外乱の侵入を防止している。さらに、銅ブロックと磁石を交互に配置することで、バネ吊りの振動を低減し、振動によって生じた渦電流のダンピング効果を利用して振動による影響を大幅に軽減している。

走査用スキャナ

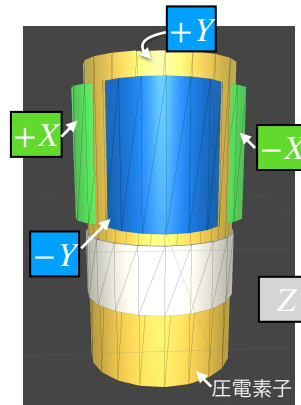


図 2.6: 走査用 Tube スキャナの 5 つ電極 ($-X$, $-X$, $-Y$, $+Y$, Z) 位置を示した図. 電極方向に電圧をかけると, 走査用スキャナの中に入った圧電素子はその方向に曲げ, 結果的にその方向に変位が生じる.

走査用スキャナは高い機械的共振周波数を持つピエゾ (圧電) 素子からできていて, 電圧を印加するだけで, pm 精度の走査が可能になる. 本研究で用いている走査用スキャナは円柱型をしており [図 2.6], 圧電素子と電極で構成されている Tube スキャナと呼ばれる. この Tube スキャナの電極は 5 等分されて, 内部は一体化した電極で構成されている. 5 等分された電極は実空間において, $-X$, $-X$, $-Y$, $+Y$, Z の方向に配置されていて, それぞれ対応した方向に電界を印加することで圧電素子の変形が起こり, 結果的に圧電素子はその方向に曲がり, 変位が生じる. Tube スキャナは隣り合った電極に電圧をかけると $\pm X$, $\pm Y$ 方向の変位を制御させることができ, Tube 内部の電極に電圧をかけると Z 方向の変位を制御できる. ここで注意すべきなのは, Tube スキャナに電圧をかけると即時に変位することではなく, 電荷が蓄積して, 応答時間をもつので, その変位は非線形となる creep 現象も発生する [8]. また, Tube スキャナにも熱的な影響を受けて, 非線形的な挙動を示してしまう [20].

走査用スキャナは高い機械的共振周波数を持つ圧電素子 (ピエゾ) から構成されており, 電圧を印加するだけで, pm 程度の精度での走査が可能になる. 本研究で使用している走査用スキャナは円柱型をしており [図 2.6], 圧電素子と電極で構成される Tube スキャナと呼ばれる. この Tube スキャナの電極は 5 等分されており, 内部は一体化した電極となっている. 5 等分された電極は実空間において, $-X$, $-X$, $-Y$, $+Y$, Z の方向に配置され, それぞれの方向に電界を印加することで圧電素子の変形し, 結果的にその方向に曲がりや変位が生じる.

Tube スキャナは隣り合った電極に電圧をかけることで $\pm X$, $\pm Y$ 方向の変位を制御し, Tube 内部の電極に電圧をかけることで Z 方向の変位を制御できる. ただし, Tube スキャナに電圧をかけた場合, 即座に変位するのではなく, 電荷が蓄積されるため, 応答時間がかかり, その変位は非線形であり, creep 現象が発生することに注意が必要がある [8]. また, Tube スキャナは熱的な影響を受け, 非線形的な挙動を示すこともある [20].

粗動アプローチ

走査用スキャナは原子分解能の走査に使用されるが, 試料と探針の位置を巨視的なスケールで調整することはできない. その代わりに, 巨視的なスケールで位置を移動させる必要がある

ため、走査用スキャナの後ろに粗動アプローチ機構としてピエゾモーターを使用した部品を追加する。粗動アプローチ機構はセラミック製の圧電体であり、この圧電体がゆっくりと動するとき、走査用スキャナの Z 方向に電位を与えることと同じメカニズムで、 z 方向に変位が生じる。また、この圧電体が高周波で動くとき、スティック・スリップ現象 [21, 22] を利用して、慣性によって全体的なボディが SPM ステージ上に動くことができる。このプロセスを何千回も繰り返すことで、巨視的な運動が得られ、ミリメートルの範囲の粗動を高い信頼性で実現できる。

SPM 探針および探針ホルダ

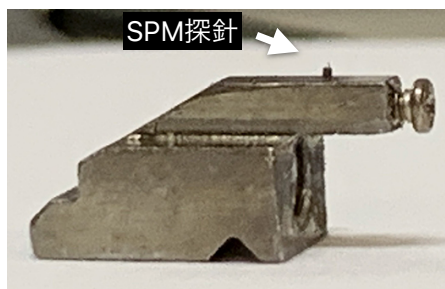


図 2.7: 探針が取り付けられている状態の探針ホルダ。

探針が取り付けられた探針ホルダの様子を図 2.7 に示す。STM 探針の場合、Pt/Ir 探針や W 探針などの導電性材料が使用される。Pt/Ir 探針の場合は、機械研磨またはハサミで切断することで作製することができる。一方、W 探針は電解研磨によって作製することができる [23]。鋭い構造の探針を作製することにより、高い共振周波数を持つ構造を形成し、位相の遅延を減少させることでデータ採取速度を向上させることができる。また、どの探針を使用しても、探針表面の酸化層や吸着した不純物を取り除かないと探針の導電性を確保できない。そのため、真空状態に入れる前には化学洗浄の方法でそれらを取り除く必要がある。

SPM の探針先端の形状や化学性質は、SPM を用いた試料表面の画像化に影響を与え、STM での電子状態の取得にも影響を及ぼす。探針の先端が単一の安定な原子で構成されている場合、トンネル電流も安定し、原子分解能の画像を容易に取得できる。一方、複数の原子からなる探針先端 (multi tip) では、原子精度の画像が得られないことがある。また、探針先端が酸化層で覆われている場合、その抵抗はトンネル間のレジスタンスを上回り、探針と試料が衝突する危険性がある。

試料ホルダ

SPM の測定試料は試料ホルダに固定されており、試料ホルダはチャンバー内の板ばねで固定されている。試料ホルダの写真は図 2.8 に示す。試料と試料ホルダ間を固定するのはモリブデン板であり、モリブデン板は非常に高い融点を持っている。これにより、試料を通電加熱させる際に溶けて固定が外れることを防ぐ。また、試料ホルダをチャンバー内に固定する板ばねは試料と導通するため、観測室で SPM 計測する際に与える試料電圧信号と処理室で試料を通電加熱する際に与える信号は板ばねを介して試料に適用できる。

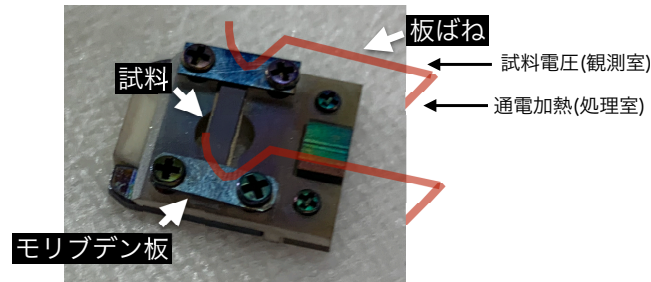


図 2.8: 試料が取り付けられている状態の試料ホルダ. 試料はモリブデン板で固定されており, 試料ホルダ全体は各チャンバー内の板ばねで固定されている. この系は導通して, 板ばねに電圧を印加することで, 試料に電圧を印加したり, 試料を通電加熱させることができる.

電気系制御回路

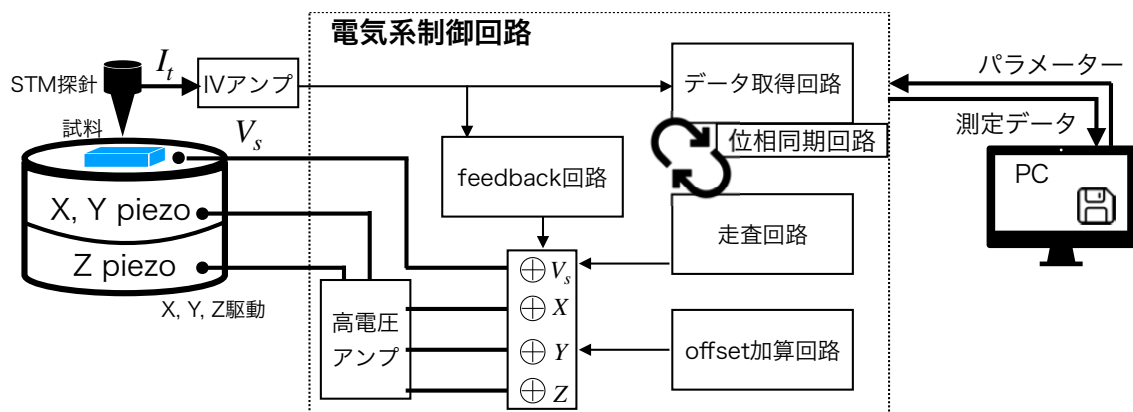


図 2.9: STM フィードバック制御系の構成図. システムは入力信号 I_t (トンネル電流) を受け, z 方向のフィードバックと実空間座標を代表する X, Y, Z および試料電圧 V_s に関する走査信号を処理してから SPM 装置に出力させる. 本研究で作製した電気系制御回路は FPGA で実装した.

SPM では, 装置本体と電子回路がフィードバック系を構成している. そのため, 装置の剛性だけでなく, 電子回路のノイズや帯域も測定に重要な影響を及ぼすため, 洗練された低ノイズで高帯域幅の測定回路系を構築することは SPM 装置の性能向上につながる. 図 2.9 は, 本研究で使った STM フィードバック制御系の構成図である. IV アンプと走査用スキャナに印加する高圧アンプを除くと, FPGA が組み込まれた計測ボード (NI 社 PXIe-7857R) で構成されている. 以下では, 装置の構成について説明する.

- IV アンプ

STM の微小なトンネル電流 I_t を検出し, 電圧に変換する. 増幅率は 10^8 V/A である. 本研究では, 市販の IV アンプ (NF 社の LI-76) を使用した.

- フィードバック回路

トンネル電流を一定にするために探針-試料間距離 Z を制御する. 比例と積分の制御 (PI 制御) を用いて行っている.

- 走査回路

SPM の走査信号を生成するための回路である。走査回路が生成する走査信号の振幅と周波数をパラメータとして、走査速度と測定エリアの大きさが決定される。

- offset 加算回路

スキャナに入れる走査信号を各回路系でまとめて加算する回路である。また、走査エリアの座標は offset として与えることができ、試料に関する傾き補正も実装されている。

- 高電圧アンプ

スキャナの変位は高圧で駆動させる必要があるため、制御回路で流れる一般的な大きさの電気信号 (± 10 V 以下) を増幅してからスキャナに入力する必要がある。本研究で使用した高圧アンプは Nanonis 社 Specs の高圧アンプユニットを利用しており、 $\pm X, \pm Y, \pm Z$ 方向の走査信号をそれぞれ 15 倍増幅している。

- データ取得回路

生成した走査信号のタイミングと同期しながら、出力信号を flatten のデータとしてサンプリングする回路である。また、flatten のデータを再構成する (例えば、原子画像の結果を矩形のデータとして)。走査信号の周波数を考慮しながら、狭い帯域の Low Pass フィルターや平滑化処理によって測定ノイズの影響を除去する機能も含まれている。

2.4 SPM マルチプラットフォームシステムによる自動計測への対応

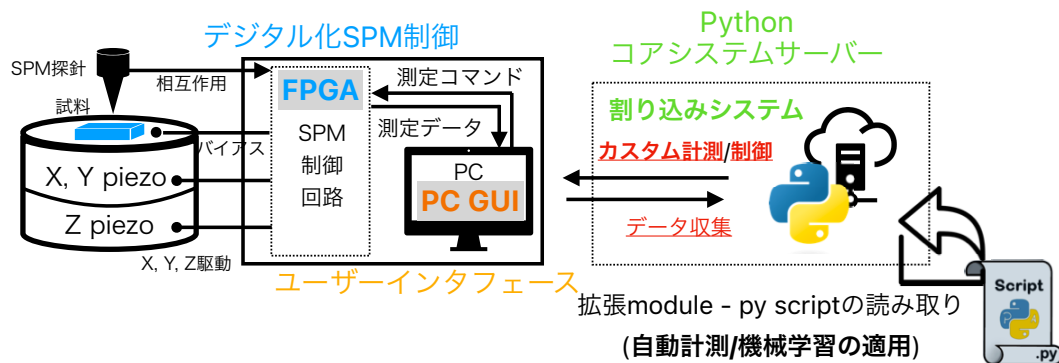


図 2.10: SPM 制御システムのマルチプラットフォーム開発のフレームワーク図。

本博士論文で使用されている SPM 制御システムは、自動計測と機械学習を適用可能なように、図 2.10 で示したプラットフォームに分けて自作している。従来の SPM システムは、様々な機能を組み込んだ電気回路を含む制御ユニットと計測パラメーターを与え、データを取得する PC のみで構成されていたが、本システムは Python サーバー上の割り込みシステムも加えることで、プログラム可能な自動計測や GPU を用いた機械学習の機能を拡張している。Python サーバー上では、ユーザーがカスタマイズした実装をモジュール (py script) として導入可能である。SPM 制御システムは 3 つの異なるプラットフォーム (Python サーバー、FPGA、PC GUI) で構成されていて、それぞれのシステム特徴は以下でまとめる。

- Python サーバー

SPM 測定に関するデータ取得と計測のロジック、それと自動測定や機械学習に関する処理は Python サーバーで実装している。このようなシステムアーキテクトを取ることで、カスタマイズした計測手法は Python のコードのみで実現可能となる [付録 A-1.1]。また、Python の機械学習のライブラリが SPM で利用可能となる。さらに、人間が PC GUI で操作すると同様な処理は Python 側 1 行のコードのみで容易に実現できる、Python から FPGA や PC GUI のデータを取得/変更する API¹を実装することによって、自動計測を実現した [付録 A-1.2]。

- FPGA

図 2.9 に関する SPM 測定回路を FPGA(NI 社 PXIe-7857R) で実装している。FPGA を使用することで、従来の測定系と比べた利点として、内部のハードウェアを変更可能であり、コーディングを編集した後に FPGA をコンパイルすることで、即座に SPM 測定に反映させることができる。このため、従来のアナログ制御回路と比較して、高いシステムの拡張性を持つ計測や制御ロジックが実現されている。FPGA に関する説明は付録 A-2 でまとめ、SPM 内部の計算処理は付録 A-2.3 でまとめる。また、FPGA を用いた制御の高速化も行ったことにより、SPM 装置の性能を上げることができた [付録 A-2.4]。

- PC GUI

PC 上の GUI(ユーザーインターフェース)の開発は LabVIEW を搭載した PC 上で行われた。PC ホストで動作している LabVIEW は、パラメータ設定とデータの表示を行う機能を持つが、PC-FPGA と Python-PC 間のデータ通信を行うことができ、マルチプラットフォーム間のデータを仲介する役割も担っている。特に、人間が PC GUI で行った操作は、Python サーバーで処理されるため、Python-PC 間のデータ通信を行うことが必要である。そのために、Labview から Python への制御、そして Python から Labview への制御を簡単に行う API を実装した [付録 A-3]。

仕様上、計算用のハイスペック PC に Python サーバーのプロセスを立ち上げ、個別に複数台の測定用 PC に LabVIEW を立ち上げて複数台の SPM を制御可能にするデプロイ方式を考慮しているため、Python サーバーと LabVIEW PC 間では TCP プロトコルを使用して、LAN 内部で通信可能である。ただし、この研究では便宜上、Python サーバーと LabVIEW を同じ PC で稼働させている。3つのプラットフォーム間の連携や詳細な実装については、付録 A で詳しく述べている。

¹<https://www.zdiao.xyz/pykit-doc/>

2.5 作製したシステムを用いた Si(111)-(7×7) 表面における観察

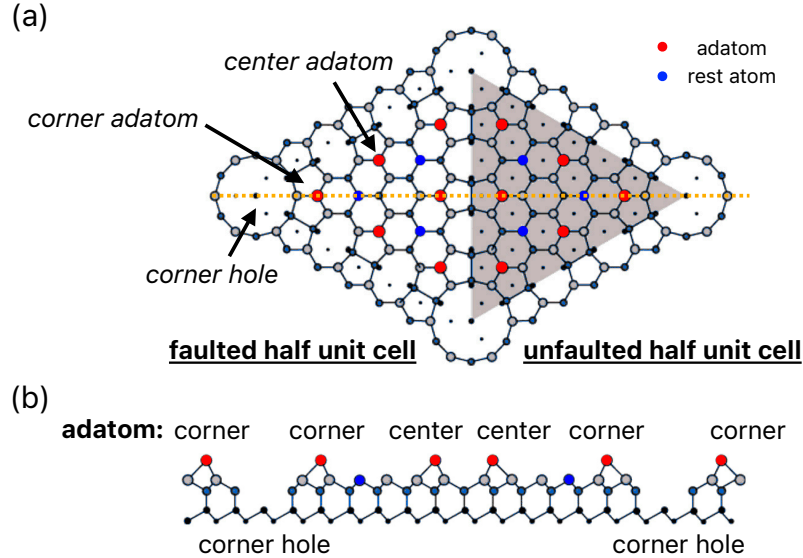


図 2.11: (a) Si(111)-(7×7) の DAS 構造. (b) オレンジ波線方向における断面図. Si(111)-(7×7) の単位結晶 (unit cell) は 49 個の原子が 4 つ積層に配置されることにより構成されている. 1 つの unit cell は左右対象となっているが, 左半分と右半分の電子状態が違うので, それぞれ faulted half/unfaulted half unit cell と呼ばれる区別する.

図 2.11 は Si(111)-(7×7) の表面構造を示しており, この構造は Dimer Adatom Stacking fault (DAS) モデルとして知られている [24]. この表面は, faulted half (左半分) と unfaulted half (右半分) の二量体 (Dimer) の unit cell で構成されている. これらの二量体の積層構造の上に, 原子 (adatom) が表面の非結合位置に付着している. adatom は, その付着位置に応じて 4 つの異なるタイプが存在し, corner hole に隣接している場合は corner adatom と呼ばれ, それ以外の場合は center adatom と呼ばれる. adatom と結合していない積層の原子として rest atom が存在している. そして corner hole には原子が存在しない. 単位格子内において, adatom に 12 本, rest atom に 6 本, corner hole に 1 本のダングリングボンドが存在し, 全体で 19 本のダングリングボンドが存在する. 一方, バルクを切断しない理想的な (111) 表面では, 49 本のダングリングボンドが存在する. したがって, DAS 構造が形成されることで, ダングリングボンドの数が著しく減少し, 表面が安定化することが示唆される [25, 26].

Si(111)-(7×7) 再構成表面 j は, N type High ドープされた抵抗率 $0.02 \Omega \cdot \text{cm}$ の Si(111) 基板を用いて, 通電加熱で清浄表面を作製した. まず, Si(111) 基板を UHV の中で通電加熱し, 温度を 500°C に設定して 10 時間程度の degas を行った. その後, 数回の flashing 処理を 1200°C の温度で行った. 7×7 の再構成を促すために, 表面から飛び出した Si 原子が周囲に拡散しながら表面を再構成させることで, より平坦な表面を形成できる. そのために, 温度を 900°C から室温まで下げる必要がある. 特に 900°C から 800°C の区間は 7×7 の再構成が進む温度帯であるため, この温度帯ではゆっくりと下げる必要がある.

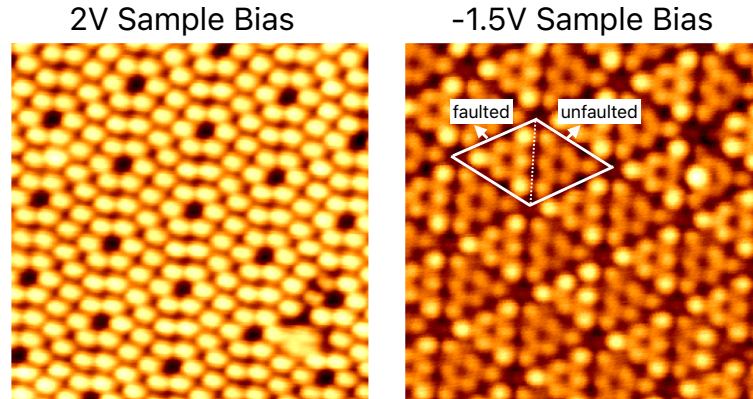


図 2.12: Si(111)-(7×7) 表面における STM 凹凸像. 試料電圧は $V_s = +2\text{V}$ (左) および $V_s = -1.5\text{ V}$ (右). 特に, 負の試料電圧の画像において, faulted half unit cell と unfaulted half unit cell に該当する half cell は矢印で示した.

Si(111)-(7×7) 表面の STM 像を図 2.12 に示す. 2つの原子像は, 11.75×11.75 nm の測定範囲で, 105 s をかけて撮った. 正の試料電圧 (2 V) の下では, adatom の違いを識別することはできないが, 負の試料電圧 (-1.5 V) を適用すると, 電子状態の違いから faulted half unit cell と unfaulted half unit cell, また center adatom と corner adatom の違いが識別できる. 積層欠陥が入っている faulted half unit cell 側の電子密度が, 積層欠陥が入っていない unfaulted half unit cell 側よりも高い傾向がある. さらに Si(111)-(7×7) 表面では, adatom から rest atom への電荷移動が発生するため, rest atom に隣接する数の多い center adatom の電子密度は corner adatom よりも低くなる. その結果, 負の試料電圧 (-1.5 V) を適用すると, 占有状態の像においては faulted half unit cell の方が unfaulted half unit cell よりも明るくなり, center adatom の方が corner adatom よりも明るくなることが観察された. これは過去の Si(111)-(7×7) 表面の研究結果と一致する [27, 28].

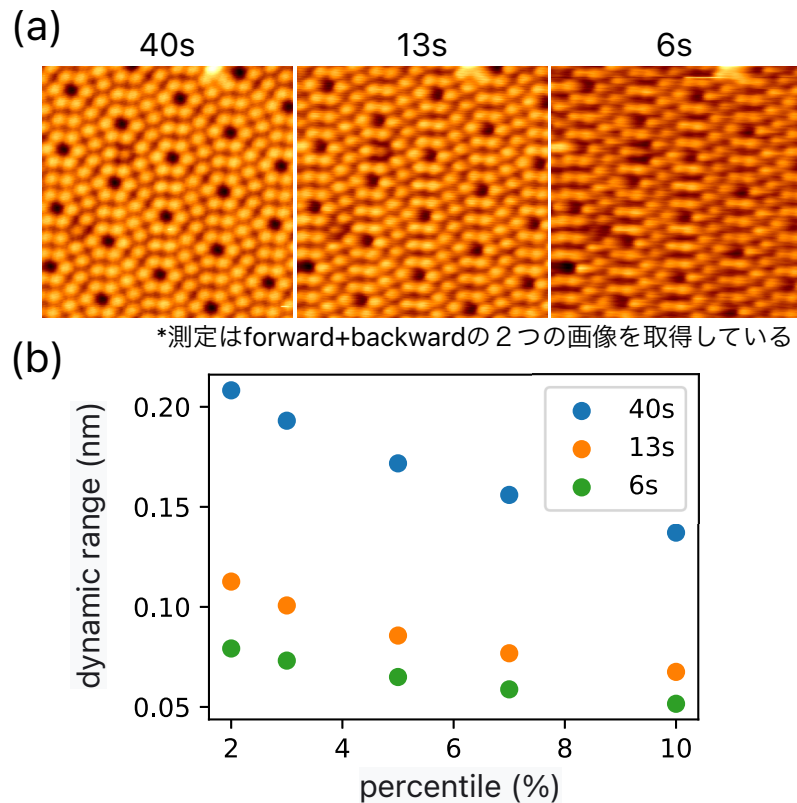


図 2.13: 異なる走査速度で取得した Si(111)-(7×7) 原子像とダイナミックレンジの比較.

第1章で紹介した表面における理化学的な反応や拡散など, surface dynamics の室温での観察を目指すために, SPM で撮影するフレームレートは表面変化に追従する必要がある. 表面の走査エリアの単位面積に対して走査速度が早いほど撮像時間も少なく (つまり, 1 画像のサンプリングレートが大きく) なる. このシステムの走査速度の限界を評価するために, 異なる走査速度で同じ 11.75×11.75 nm の測定範囲を 2 V の試料電圧で測定した結果を図 2.13 に示す. 図 2.13(a) ではそれぞれ, 40s, 13s, 6s をかけて測定した原子像が表示されている. この走査では x 方向に forward と backward の 2 つの方向で走査し, 結果として 2 つの方向から原子像を取得した. 3 つの原子像はすべて Si 原子の表面を画像化しているが, 走査時間が短いほど画像がぼやけて見える. これは, x, y 方向の走査に対する z 方向のフィードバックが追いついていないことが理由と考えられる. 結果的に, 高速な撮影により, 探針がある (x_i, y_i) の位置に移動した際に z 方向のフィードバックがまだ収束していない状態で, 次の (x_{i+1}, y_{i+1}) の位置に移動するため, 表面のダイナミックレンジが減少してしまう. 図 2.13(b) は, 3 つの画像のダイナミックレンジを比較したものである. ダイナミックレンジの計算には, 原子像の配列を大きい順にソートし, percentile の値を 2, 3, 5, 7, 10 としてそれぞれの percentile の値と (100-percentile) の値の差を用いた. ダイナミックレンジは 40s をかけて撮影した原子像が最も大きく, 0.15 から 0.2nm の範囲を占めるが, 6s をかけて撮影した原子像のダイナミックレンジは約 0.05 nm で, これ以上走査速度を上げるとダイナミックレンジが 0 に収束し, 画像が得られなくなる.

これにより, 開発した SPM システムの画像化におけるフレームレートに関する評価を行った. ただし, 異なる試料に適用する際には, 表面の高さや電子状態, 探針の状態などが異なるため, この評価値は目安程度に留めておくべきである. 装置の走査帯域を向上させる方法として, ソフトウェアとハードウェアの両面での改良が考えられる. ソフトウェア面では, 走査方法を改

善することで時間を節約できる。今回の方法では x 方向の forward と backward で2つの画像を取得しているが、1つのみ取得すれば時間を半減できる。また、Spiral 走査方法や圧縮センシングの手法を利用することも効果的である。ハードウェア面では、装置の制限要因の一つであるピエゾの x, y, z 方向の移動を制御する部分を高速 Scanner に置き換えることで根本的な高速化が可能である。また、制御システムの更なる高速化には、高帯域で遅延が少ない ADC や DAC の導入が必要である。いずれにせよ、この SPM 装置に関して Si(111)-(7×7) の画像化における限界として、11.75×11.75 nm の走査範囲では 6 s での撮影が可能であることが確認された。これは、今後の Si(111)-(7×7) における Sn 原子の拡散実験に対して十分なパフォーマンスを発揮できることを示している。

2.6 終わりに

本章では、自動制御可能な SPM 制御装置の開発に焦点を当て、SPM 装置の原理について詳細に説明した。本研究では STM を実装したため、STM の測定で用いる探針-試料の相互作用であるトンネル電流の原理を述べ、STM が検出するトンネル電流の定性化を行なった。さらに、STM が測定する STS の原理について述べ、IV カーブの依存関係から LDOS を評価する原理を説明した。これらの原理に基づいて、本研究で使用している SPM 装置の構成について述べた。さらに、開発した自動制御可能な SPM 制御システムについて説明した。この SPM 制御システムは、LabVIEW FPGA, Python, LabVIEW PC の3つのプラットフォームで開発されており、GPU 加速を活用した機械学習や自動計測に対応している。最後に、Si(111)-(7×7) 表面を用いて、装置が正常に表面を画像化できることを実証し、画像化する速度と画像取得の品質に関する評価も行った。

参考文献

- [1] Quate, C. F. Vacuum tunneling: A new technique for microscopy. *Physics Today* **39**, 26–33 (1986). [<URL>](#).
- [2] Walmsley, D. G. Pre-microscope tunnelling —inspiration or constraint? *Surface Science* **181**, 1–26 (1987). [<URL>](#).
- [3] Eddi, A. *et al.* Unpredictable tunneling of a classical wave-particle association. *Phys. Rev. Lett.* **102**, 240401 (2009). [<URL>](#).
- [4] Greiner, W. *Quantum Mechanics* (Springer Berlin Heidelberg, 2001). [<URL>](#).
- [5] Simmons, J. G. Generalized thermal $j - v$ characteristic for the electric tunnel effect. *Journal of Applied Physics* **35**, 2655–2658 (2004). [<URL>](#).
- [6] Simmons, J. G. Generalized formula for the electric tunnel effect between similar electrodes separated by a thin insulating film. *Journal of Applied Physics* **34**, 1793–1803 (2004). [<URL>](#).
- [7] Bardeen, J. Tunnelling from a many-particle point of view. *Phys. Rev. Lett.* **6**, 57–59 (1961). [<URL>](#).
- [8] Tersoff, J. *et al.* Theory and application for the scanning tunneling microscope. *Phys. Rev. Lett.* **50**, 1998–2001 (1983). [<URL>](#).
- [9] Tersoff, J. *et al.* Theory of the scanning tunneling microscope. *Phys. Rev. B* **31**, 805–813 (1985). [<URL>](#).
- [10] Lang, N. D. Spectroscopy of single atoms in the scanning tunneling microscope. *Phys. Rev. B* **34**, 5947–5950 (1986). [<URL>](#).
- [11] Hirose, K. *et al.* First-principles calculation of the electronic structure for a bielectrode junction system under strong field and current. *Phys. Rev. B* **51**, 5278–5290 (1995). [<URL>](#).
- [12] Zandvliet, H. J. *et al.* Scanning tunneling spectroscopy. *Annual Review of Analytical Chemistry* **2**, 37–55 (2009). [<URL>](#).
- [13] Nishikawa, O. *et al.* Atomic configurations of tip apexes and scanning tunnelling microscopy-spectroscopy. *Materials Science and Engineering: B* **8**, 81–97 (1991). [<URL>](#).
- [14] Tsong, T. T. *et al.* Field evaporation rates of tungsten. *physica status solidi (a)* **1**, 513–533 (1970). [<URL>](#).

- [15] Feenstra, R. *et al.* Tunneling spectroscopy of the $\text{Si}(111)2 \times 1$ surface. *Surface Science* **181**, 295–306 (1987). [<URL>](#).
- [16] Kubby, J. A. *et al.* Tunneling microscopy of $\text{Ge}(001)$. *Phys. Rev. B* **36**, 6079–6093 (1987). [<URL>](#).
- [17] Hamers, R. J. *et al.* Imaging chemical-bond formation with the scanning tunneling microscope: NH_3 dissociation on $\text{Si}(001)$. *Phys. Rev. Lett.* **59**, 2071–2074 (1987). [<URL>](#).
- [18] Kuk, Y. *et al.* Scanning tunneling microscope instrumentation. *Review of Scientific Instruments* **60**, 165–180 (1989). [<URL>](#).
- [19] Croft, D. *et al.* Creep, Hysteresis, and Vibration Compensation for Piezoactuators: Atomic Force Microscopy Application. *Journal of Dynamic Systems, Measurement, and Control* **123**, 35–43 (1999). [<URL>](#).
- [20] Dürselen, R. *et al.* Calibration and applications of a high-precision piezo scanner for nanometrology. *Scanning* **17**, 91–96 (1995). [<URL>](#).
- [21] Besocke, K. An easily operable scanning tunneling microscope. *Surface Science* **181**, 145–153 (1987). [<URL>](#).
- [22] Pan, S. H. *et al.* He^3 refrigerator based very low temperature scanning tunneling microscope. *Review of Scientific Instruments* **70**, 1459–1463 (1999). [<URL>](#).
- [23] Ibe, J. P. *et al.* On the electrochemical etching of tips for scanning tunneling microscopy. *Journal of Vacuum Science & Technology A* **8**, 3570–3575 (1990). [<URL>](#).
- [24] Takayanagi, K. *et al.* Structure analysis of $\text{Si}(111)-7 \times 7$ reconstructed surface by transmission electron diffraction. *Surface Science* **164**, 367–392 (1985). [<URL>](#).
- [25] Schlier, R. E. *et al.* Structure and adsorption characteristics of clean surfaces of germanium and silicon. *The Journal of Chemical Physics* **30**, 917–926 (2004). [<URL>](#).
- [26] Binnig, G. *et al.* 7×7 reconstruction on $\text{Si}(111)$ resolved in real space. *Phys. Rev. Lett.* **50**, 120–123 (1983). [<URL>](#).
- [27] Avouris, P. *et al.* Atom-resolved surface chemistry studied by scanning tunneling microscopy and spectroscopy. *Phys. Rev. B* **39**, 5091–5100 (1989). [<URL>](#).
- [28] Tromp, R. M. *et al.* Atomic and electronic contributions to $\text{Si}(111)-(7 \times 7)$ scanning-tunneling-microscopy images. *Phys. Rev. B* **34**, 1388–1391 (1986). [<URL>](#).
- [29] Gura, L. *et al.* Spiral high-speed scanning tunneling microscopy: Tracking atomic diffusion on the millisecond timescale. *Applied Physics Letters* **119**, 251601 (2021). [<URL>](#).
- [30] Gura, L. *et al.* Resolving atomic diffusion in $\text{Ru}(0001) - \text{O}(2 \times 2)$ with spiral high-speed scanning tunneling microscopy. *Phys. Rev. B* **105**, 035411 (2022). [<URL>](#).
- [31] Oxvig, C. S. *et al.* Structure assisted compressed sensing reconstruction of undersampled afm images. *Ultramicroscopy* **172**, 1–9 (2017). [<URL>](#).

- [32] Rost, M. J. *et al.* Scanning probe microscopes go video rate and beyond. *Review of Scientific Instruments* **76**, 053710 (2005). [<URL>](#).

第3章 プローブ顕微鏡に向けた熱ドリフト自動補正アルゴリズムの考案

3.1 はじめに

SPM を用いた室温における原子分解能の走査では、熱またはpiezocreeepのドリフトがイメージングソースと観察対象物の間で空間的なずれを引き起こす [1, 2, 3]. その結果、同一範囲を撮像できない場合は測定画像に歪みをもたらす [4, 8, 6]. ドリフトにより、SPM 探針と試料の相対距離が特定できなくなる問題は、室温 SPM の高機能計測の妨げになる。一般的に、piezocreeepはpiezoに急激な充電と放電をさせることにより起こる現象であり、原子レベルのスケールでその影響をなくすには、非常に長い時間を要する。しかし、熱によるドリフトは表面の原子が熱振動によって発生する現象であり、速度のベクトルがランダムに変化する。特に、一日の温度変化や実験室の人の入出による温度の変化は、SPM 測定におけるドリフト速度に強く影響していることが経験上わかっている。熱ドリフトは、feedforward 技術 [7] を利用することで補正することができ、低温測定時と同じ程度の精度で維持することができる [6, 8]. 周囲温度と熱平衡にある顕微鏡の場合、熱的ドリフトは数分という短い時間では、ほぼ線形（ドリフト速度一定）の時間関数と見なすことができる。しかしながら、長時間では、熱ドリフトは非線形の現象であり、周囲温度のわずかな変動で起因する。したがって、上記の feedforward 技術を利用するには、ドリフト速度を定期的に測定および更新する必要がある。実験者には熟練した技術と根気が要求される。そこで、本章では、画像処理の分野で利用されている手法を用いた、非線形な熱的ドリフトや長期にわたるpiezocreeep [8], および画像のコントラストの変化にも適用できる2つの手法を考案した。2つの手法を特徴点マッチング手法 (KPM 法: Key Point Matching), 原子/欠陥マッチング手法 (ADM 法: Atom and Defect Matching) として命名した。これら方法では、これまでの SPM 測定の手法とは異なり、数日にわたって原子レベルの精度で試料の同じスポットをナノメートルスケールでイメージングすることを可能にする。第 3.2 節では本2つの手法が先行研究の方法の特徴を比べる。第 3.3 節は KPM 法のアルゴリズムについて紹介する。KPM 法が示した特徴とそのロバスト性の評価は第 3.4 節で行う。開発した KPM 法に基づいて、実験的な実装を行い、Sn/Si(111)-(7×7) 表面で検証を行なった結果を 3.5 節で示す。また、KPM 法を用いた SPM 研究のアプリケーションとして、Sn/Si(111)-(7×7) 表面の原子拡散現象を室温 STM を用いて観察し、原子対の状態遷移に必要な energy barrier を計算した研究結果を 3.6 節で述べる。最後に、KPM 法のアルゴリズムをベースに、第 5 章で述べる機械学習による表面情報を認識するニューラルネットワークから得られる情報を本アルゴリズムに統合することで、さらなるロバスト性を実現する ADM 法も 3.7 節で示す。

3.2 自動熱ドリフト補正システムの課題と実現すべき技術の特徴

本研究で開発した熱ドリフト自動補正システムでは、前節で述べた背景を踏まえて、以下の目標設定を行った。

- 全ての流れを自動で行い、オペレーションに人が関与しない
- 原子スケールでの精度の補正を実現する
- 室温 SPM 特有のダイナミックス (探針の改変や試料の変化に関する不安定現象) にロバストである

従来の SPM 計測系でもドリフト補正する機能が実装されている。例えば, SPM コントローラーとして有名な NanonisTM は atom tracking[7] という手法を利用しており, DulcineaTM は画像ベースの手法である template matching[9] を使用している。図 3.1 はこれらの手法のイメージ図を示している。Atom tracking は探針を原子の形とした円の軌跡で描かせながら, フィードバック制御により原子の上に探針を配置させる手法である。 x, y, z 方向の速度をうまく調整できれば, 丸い原子の上に回転する探針の信号はコンスタントになる。atom tracking 法は原子精度を実現しているが, 実験者に求める操作の難易度が高く, 追加したハードウェアの実装を必要としている。それに対して, template matching は画像ベースの手法であり, ドリフト前の画像 (map0) とドリフト後の画像 (map1, M) を, map0 から手動で選んだある領域 (template, T) を M の中で検索するアルゴリズムである。このような画像ベースの手法では, 追加したハードウェアの実装を必要とせず, 計測画像間にソフトウェア的にプラグインを導入することで実装できる。しかしながら, 計測画像のピクセル単位の精度しか実現できない。一方で, 画像ベースの手法はコンピュータインターフェースを介して任意の機器に普遍的に適用できるという利点がある。

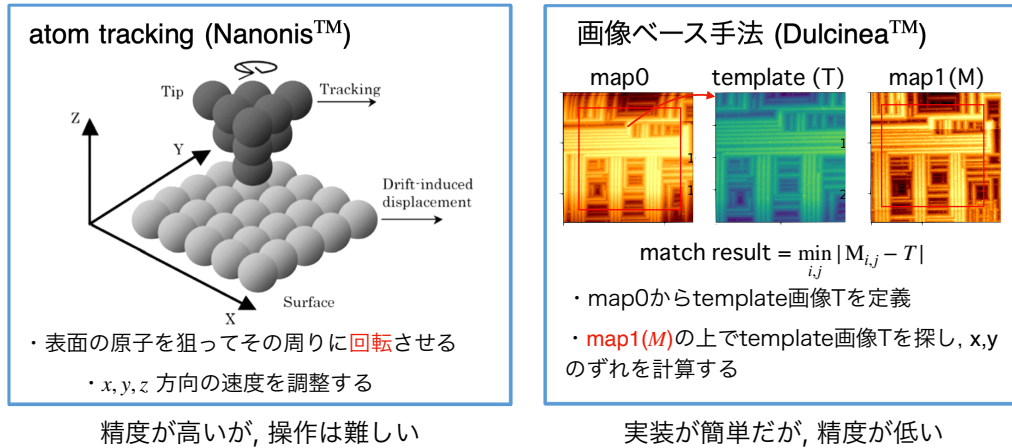


図 3.1: 市販の SPM 計測コントローラに搭載されている代表的なドリフト補正手法と特徴。

さらに, 近年ではもう 1 つの画像ベースのアルゴリズムである phase correlation[10, 11] のアルゴリズムがドリフト補正でよく使われている。phase correlation では, 2 つのサイズが等しい画像 M_1, M_2 に対して画素のずれを計算するために, まずそれぞれの画像に対して 2D フーリエ変換 ($\mathcal{F}$) を行う。

$$G_1 = \mathcal{F}(M_1) \quad (3.1)$$

$$G_2 = \mathcal{F}(M_2) \quad (3.2)$$

ここで, 2 つの画像に関する 2D フーリエ変換の結果 G_1, G_2 に関して, G_1 と G_2 の複共役 G_2^* に関する要素ごと ($\odot$) の積 R_0 を計算し, 2D フーリエ逆変換によって, その実数部分 r を得る。

$$R_0 = G_1 \odot G_2^* \quad (3.3)$$

$$r = \Re(\mathcal{F}^{-1}(\frac{R_0}{|R_0|})) \quad (3.4)$$

ここで, r は M_1, M_2 と同じサイズの 2 次元行列であり, 画像間のずれ dx, dy は r のピーク値の x, y 座標として計算できる.

$$dx, dy = \arg \max_{(x,y)} r \quad (3.5)$$

phase correlation 法の利点は, 計算量が少なく, 比較したい 2 つの画像を代入すれば人為的な操作も必要なく, ドリフト補正量を計算できるところにある. しかし, phase correlation は画像全体に適用するアルゴリズムであり, 室温における探針と表面の変化がある場合にはロバストではない. 本研究で考案した KPM 法は画像処理の手法である特徴点検出から改良された手法であり, ADM 法は表面の構造が見える顕微鏡に向けた原子と欠陥の配置に基づく手法である. 室温特有な表面におけるダイナミックな変化として, 探針と試料が測定中に変化することがよくあることを考慮して, 第 3.4 節の手法を比較すると, 結果的に phase correlation 法と単純な特徴点検出法だけでは室温においてロバストではないことが示される. そこで, 本研究で考案した KPM, ADM 法は以上の目標設定を実現できる手法としてこれから紹介する.

表 3.1: 既存の手法と本研究で用いる方法の比較. “✓”は完璧に対応していること, “△”は対応していないが, 場合によっては使えること, そして “×”は対応していないことを意味している.

	原子分解能精度	自動化	ロバスト性
KPM 法と ADM 法 (本研究 / 画像ベース)	✓	✓	✓
atom tracking	✓	×	△
template matching(画像ベース)	×	✓	△
phase correlation(画像ベース)	△	✓	△

3.3 特徴点マッチングを用いた自動ドリフト補正アルゴリズム

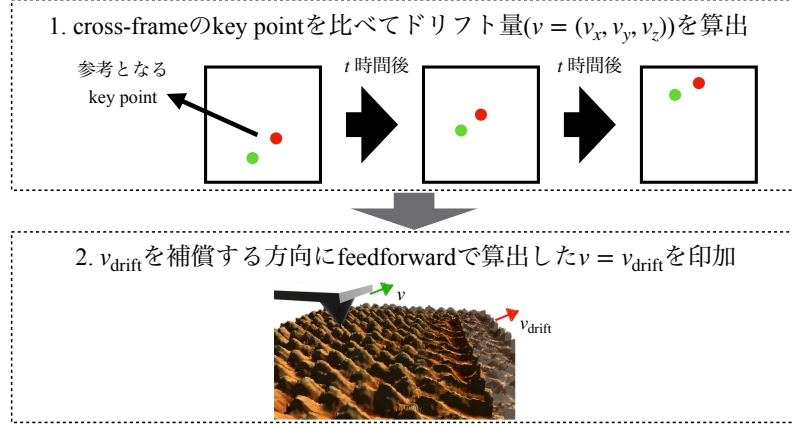


図 3.2: 本研究において、特徴点マッチングのアルゴリズムを用いてリアルタイムのドリフト補正をする方法を表した図。連続で取得した画像から参考となるポイント (key point) を抽出して、画像間での key point の位置のずれを検出することでドリフトを補正する。

KPM 法では、連続に測定した画像から、撮像時間 t の間に生じた画像内にあるオブジェクト (key point) のずれから、ドリフト速度 v を計算する [図 3.2]。その後、ドリフト速度 v を用いて、feedforward 制御を行う。参照するオブジェクトは画像の特徴点を用いて [12]、特徴点を検出するアルゴリズムによって一意的に画像上の key point を見つけることができる。このアルゴリズムをそれぞれの画像に適用し、抽出した key point を比べることで、熱ドリフトの速度 v を計算することができる。しかし、画像間の key point 検出結果が異なり、比較すべき key point は間違える可能性があるため、このようなドリフト計算の間違いはさらに SPM 測定画像間に大きなずれをもたらす。よって、特徴点を用いた計算結果を再検証するために、SPM で計測した画像に向けて考案したアルゴリズムは、2 段階に分かれている。第一段階は key point を抽出し、計測した画像間の key point の対応関係をマッチングする。第二段階ではマッチングしたペアのうち、正しいペアを選ぶ。このときに用いるのは、新たに考案した K-means による多数決フィルターである。計算した画像間 key point の変位量からドリフトの速度を推定し、feedforward の速度 v として探針の移動速度に代入し、ドリフトの方向 v_{drift} を追従することで、ドリフトをキャンセルする。SPM の制御装置では、ドリフト速度を代入する項目が設定されて、正しいドリフト速度を設定できればドリフト補正が可能な仕様となっている。

3.3.1 特徴点の抽出とマッチング

このアルゴリズムは 2 つ段階の処理から構成されており、最初のステージでは画像間の特徴点を抽出し、画像間の特徴点がペアとして作るようにマッチングする。図 3.3(a) は自動ドリフト補正システムの第一段階の実装を表している。最初のステージでは、3 つの連続した画像から特徴点のペアを抽出している。画像の事前処理として、先に表面を校正させるために平均 flatten 処理を行った。図 3.4(b) に flatten した結果を示す。

$$c_{i,j} = p_{i,j} - \frac{1}{N} (\sum_{j=k}^{k=N} p_{i,k} + \sum_{i=k}^{k=N} p_{k,j}) \quad (3.6)$$

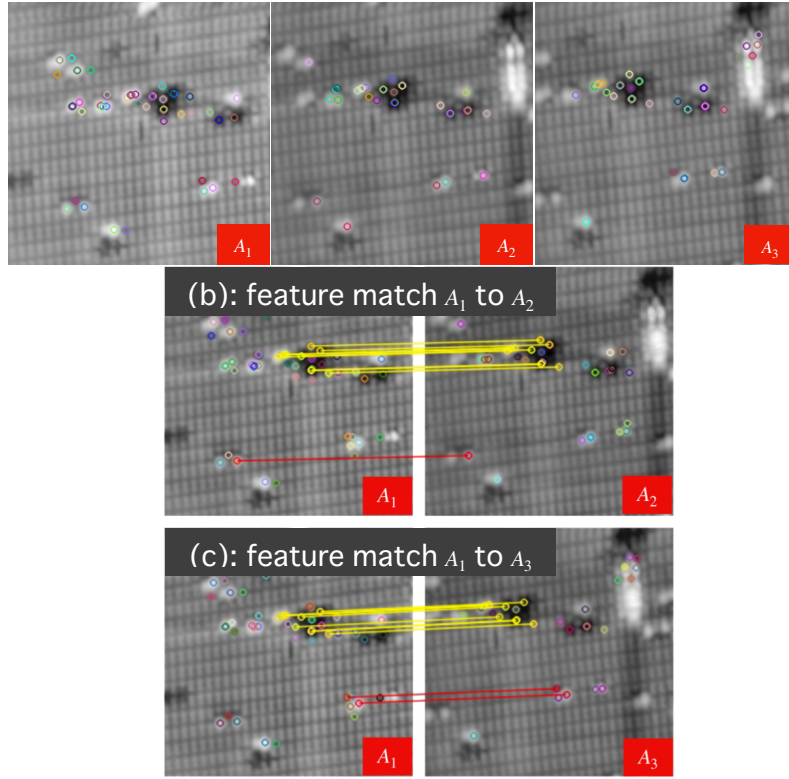
(a)連続した3つのスキャン画像 (A_1, A_2, A_3)と特徴点

図 3.3: 自動ドリフト補正アルゴリズムの1段階目の結果を示す図. (a) 連続する3つの画像 (A_1, A_2, A_3) の取得, それらからの特徴点の抽出 (多色ドット) (b)(c) A_1 と A_2 , A_1 と A_3 の間の特徴点のペアのマッチング (ドットを結ぶ線) の結果.

ここで, (x, y) 方向が $N \times N$ のピクセルを持つ $p_{i,j}$ は, 平均 flatten 処理後 $c_{i,j}$ に変換される. 次に, $(N_k \times N_k) = (11 \times 11)$ ピクセルのカーネルと $\sigma=1$ の標準偏差を持つ Gaussian Hann フィルタ [13] に適用する. 画像 $c_{i,j}$ は以下のカーネル K で畳み込みを行う.

$$K(x, y) = \exp \frac{(x - \frac{N_k}{2})^2 - (y - \frac{N_k}{2})^2}{2\sigma^2} \times \sin^2(\frac{\pi y}{N_k}) \quad (3.7)$$

図 3.4(a) の測定データにおける外れ値の場所では, 探針の変化により feedback のエラー値が大きくなるので, 数値の大きい異常値が現れる. これによって, 画像のコントラストが変わり, 表面の高さがより暗く見える. Gaussian フィルタは計測データの平滑化を行う役割を [14], 一般的な画像に対して次のアルゴリズムがよりロバストに働く役割を持つ. また, SPM 画像に対して適用すると, このような SPM 特有の feedback 測定中に生じた外れ値も排除できる [図 3.4(c)]. ここで, Gaussian Hann フィルタ [図 3.4(d)] は Gaussian フィルタ [図 3.4(c)] よりも画像コントラストを上げることができる. フィルターを適用すると, 次の特徴点抽出する処理の際によりロバストに働く.

画像 (図 3.3(a) の STM topography のドット) から特徴点を抽出するには, KAZE 特徴検出器 [15] と同等の精度と高速計算を実現する AKAZE 検出器 [16] を使用した. 1 枚目の画像の特徴点を 2 枚目の画像と 3 枚目の画像にそれぞれマッチングさせて, その結果はそれぞれ図 3.3(b) と図 3.3(c) に示した. 図 3.3(b) と図 3.3(c) の線で示した特徴点のマッチングは, OpenCV [17]

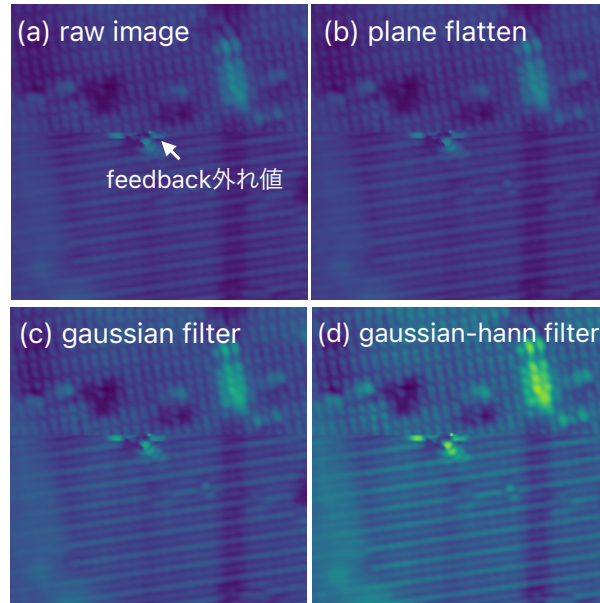


図 3.4: SPM 画像における事前画像処理. (a) 測定した生データ. (b) 生データを平均 flatten 化した画像. (c) 平均 flatten 化した画像に対して Gaussian filter を作用させた画像. (d) 平均 flatten 化した画像に対して Gaussian-hann filter を作用させた画像. Gaussian filter と Gaussian-Hann filter のパラメーター同様に、カーネルサイズは 11 であり、 $\sigma=0.5$ として設定した.

の Brute-Force matcher を用い、crossCheck を有効にして行った. Brute-Force matcher は総当たりで特徴点のペアを検索するアルゴリズムであり、2つの画像の全特徴点のベクトルに関する hamming 距離を全て計算し、最も値に近いものをペアリング (最近傍マッチング) している. crossCheck は、画像の順序が入れ替わっている場合に、ペアリングが互い違いであることを検証する. 次に、第2段階の計算のために、マッチした点のペア間の相対位置が計算され、ピクセル (x, y) 座標のリストに格納される.

3.3.2 K-means による多数決フィルター

第2段階では、第1段階でマッチした点のペア間の相対位置の (x, y) 座標を K-means クラスタリング [18] を用いてグループ分けをする [図 3.5(c) と図 3.5(c) 参照]. このアルゴリズムの結果、黄色で表される密集した点と、赤で表される離れて分布した点にグループかけされた. その黄色の点となるグループは正解グループであり、第二段階の役割はポイントが密集するところを選んで、それ以外のポイントを排除する. この処理により、多数決フィルターとしての適用ができる. K-means という手法は値が近いデータ同士をグループにする手法であり、ある基準として値が近い同士がそれぞれ n 個のグループに分ける. 先験的に未知のクラスター数 n を定義するために、反復するアプローチを用いる. アルゴリズムの初期化として、2つのクラスター ($n = 2$) が K-means アルゴリズムに与えられる. K-means によって計算された各クラスターについて、クラスターの中心点 (g_c : クラスター内のすべての点の重心座標) に対するクラスターの各点の平均分離 (g_j) が与えられた距離 d より小さいことを確認する. 以上で述べる条件を式 3.8 で表す.

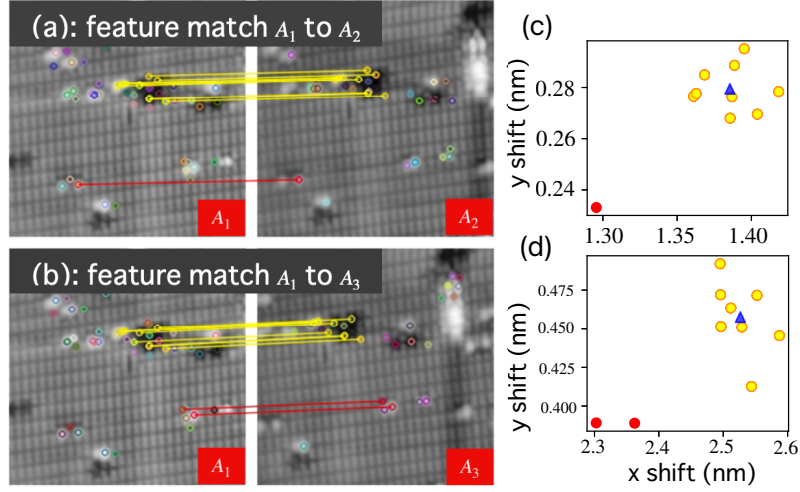


図 3.5: 抽出した特徴点ペアに対する 2 段階目の手法を適用. (c)(d) はそれぞれ画像 A_1 と A_2 , A_1 と A_3 間の特徴点のペア間の相対位置の (x, y) 座標のプロット. その際に K-means に基づく手法によるクラスタリングを行い, それ際画像間の相対変位を代表する重心座標 (青い三角形) X_C, Y_C を選択した. 黄色の線と点は, 同じグループに割り当てられた特徴点のペアであり, 赤色のものはドリフト補正の計算から除外された特徴点のペアを表す.

$$d \geq \frac{1}{m} \sum_{1 \leq j \leq m} \sqrt{(g_j - g_c)^2} \quad (3.8)$$

ここで, m はある 1 つのクラス内に含まれる点の数である. d の値は画像取得パラメータ (画像のサイズと解像度のピクセル) に従って経験的に決定される. 例えば, 本研究では $(20 \times 20) \text{ nm}^2$ スキャンエリアの (256×256) ピクセル画像に対して, $d = 1 \text{ nm}$ の値を使用した. この条件が満たされない場合, n は 1 単位ずつ増加し, K-means にフィードバックされ, 式 3.8 の条件をもう一度検証する. n の加算反復は各グループで式 3.8 の条件が満たされたときに停止する. クラスターの数が増え, 「多数決」が適用され, 最も多くの点を含むグループの重心位置が選択され, A_1 に対する画像 A_2 と A_3 の相対的な変位として示す. しかし, マッチした特徴点のペアの数が 5 より少ない場合, アルゴリズムはすべてのマッチした点を選択して重心を計算する.

求めた第 2 段階の重心座標は画像間の変位として, ドリフトベクトルの算出に使う. 測定した画像が対応する測定時間 (time stamp), t に対する重心座標 (centroids) の X_C 座標と Y_C 座標の線形回帰 [19] フィッティングの傾き [図 3.6] は, それぞれ X スキャン方向と Y スキャン方向のドリフト速度に対応する. 次に, X および Y チャンネルに線形的に feedforward 信号を印加することによってドリフトが補正される. ドリフト補正の機能がアクティブされている間は, 3 つの新しい画像を取得するたびこのようなドリフト値の推定を始める. 算出された速度は, すでに印加した feedforward 速度 (v_{dx}, v_{dy}) の校正値 dv_{dx}, dv_{dy} として, もう一度システムに feedback する. このような数回の更新により, 本アルゴリズムは原子分解能精度のドリフト補正も実現でき, 同じ表面領域を長時間撮像できる.

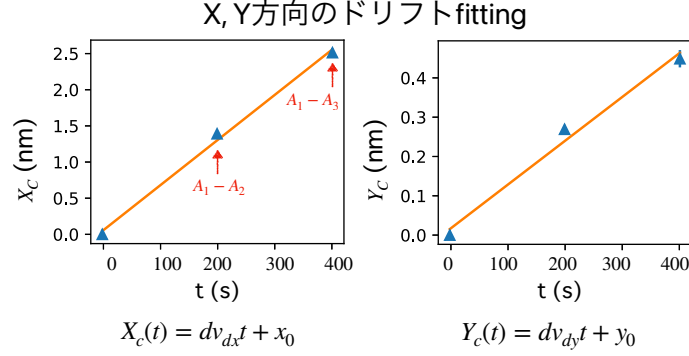


図 3.6: 重心の X_C, Y_C 座標から X, Y スキャン方向のドリフト速度 v_x, v_y を推定する結果. 一回のドリフト補正では, X, Y 方向の feedforward 速度は次のように更新される: $v_x = v_x + dv_{dx}, v_y = v_y + dv_{dy}$.

3.3.3 z 方向ドリフト速度の推定

これまでのアルゴリズムでは2つの同一なスキャンレンジで計測した $(k \times k)$ のピクセルを持つマップ M_1, M_2 からドリフトによる変位量 (dx, dy) を計算することができた. z 方向のドリフト速度推定は, x, y 方向のドリフト推定後行うことができる. z 方向のドリフト量 dz を求めるためには, 変位量 (dx, dy) を基づいて, M_1 と M_2 の X, Y 空間のアラインメント処理を行う.

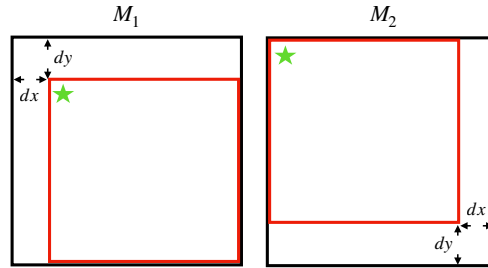
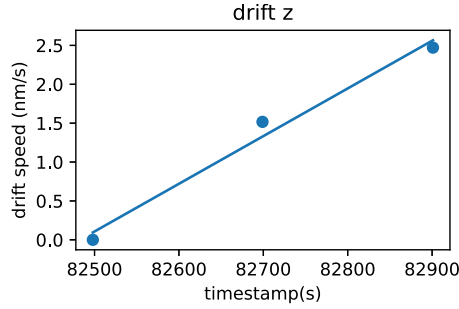


図 3.7: Z Map のアラインメント処理のイメージ図.

図 3.7 で M_1 と M_2 それぞれのアラインメント処理のイメージを示す. M_1 と M_2 中の赤い長方形が囲んだ領域はアライメントすべき領域を表す. まず M_1 と M_2 は式 3.6 によって flatten 処理を行う. M_1 のアラインメントに関して, X, Y 座標の $(0, 0)$ から dx, dy までの要素を取り除いた, 得られたトリミングされた画像を $M_1[dx :, dy :]$ として記述する. M_2 のアラインメントに関して, X, Y 座標の最後から数えて, dx, dy 個分のピクセル要素を取り除くことで得られた画像を $M_2[: -dx, : -dy]$ として記述する. このとき, $M_1[dx :, dy :]$ と $M_2[: -dx, : -dy]$ は X, Y 方向のドリフト補正の影響をなくし, 得られた画像は同一領域でピクセルサイズも同じものとなる. 2つの z マップを測定した時間差の間の z 方向の変位量 dz は,

$$dz = \text{trimming mean}(M_2[: -dx, : -dy] - M_1[dx :, dy :]) \quad (3.9)$$

によって計算される. “trimming mean”関数は, 配列の 10% から 90% の値の平均値を求める関数である. 図 3.6 における 3 つ連続で測定した結果に KPM 法で適用すると, 同じように線形的なモデルによって, z 方向のドリフト速度 v_z が図 3.8 のように求まる.

図 3.8: z 方向のドリフト速度 v_{dz} の推定.

ここで, 注意すべきこととして, z 方向のドリフト補正は x, y 方向と同じように feedforward 信号としてシステムに代入するが, feedback はしていない. (x, y 方向は dv_{dx}, dv_{dy} の加算速度が代入されるが, z 方向は v_{dz} の値をそのまま代入する) この理由は, システムの feedforward の信号は仕様上, 測定した結果に含まないようにしているためである.

3.4 本アルゴリズムのロバスト性評価

3.4.1 探針状態変化する際の推定結果

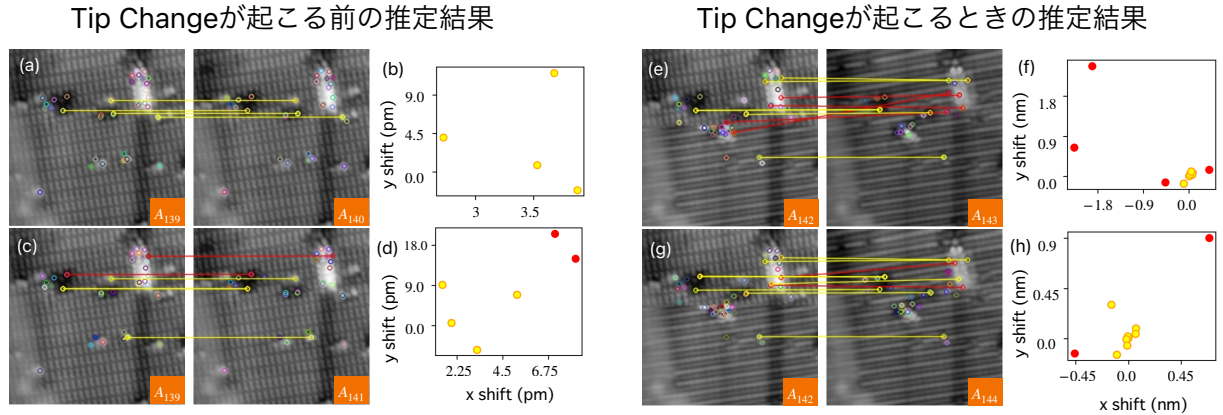


図 3.9: Tip Change が起こる場合の推定結果.

KPM 法は画像のコントラストや解像度の変化に対して非常にロバストである. この特性は図 3.9 で実証されており, 探針の自発的な状態変化の前 ($A_{139}, A_{140}, A_{141}$) と変化しているところ ($A_{142}, A_{143}, A_{144}$) の 3 つの画像からの特徴点マッチング結果が示されている. 画像 A_{142} の取得中に探針先端で発生した原子の再構成により, 画像化のコントラストが変化し, 異なる特徴点のペアが生成された [図 3.9(e) と図 3.9(g) 参照]. このように探針が劇的に変化しても, このアルゴリズムは新たに検出された点のペアをクラスタリングし, K-means による多数決を適用して [図 3.9(e) と図 3.9(g) の黄色で示した点と線], 安定的にドリフト速度を更新することができた. これまでのところ, 探針状態の変化がアルゴリズムを失敗させるほど致命的な状況は見つかっていない. アルゴリズムが失敗したとしても, 本システムは特徴点が一致しない場合

のマッチングしたペアの数から検知もできるので、その時はドリフトを補正せず、ドリフト速度を再計算するために3つの新しい画像の取得してから再開する。

3.4.2 表面が測定中に変化する場合の推定結果

第3.2節で述べたように、KPM法はatom trackingと同じ精度を持ちながら、自動かつロバストでドリフト補正を行うことが可能である。そのために、KPM法は室温測定中によく起こる探針の変化と表面の変化が起こっても安定性を保ち、推定精度の低下が起こらないことが望ましい。このようなイベントにKPM法を適用して、そのロバスト性を証明したのは図3.9で示した。このとき、同じくドリフト補正に最新的手法として用いられるphase correlationも自動化が実現されるが、その手法とKPM法との比較も行う。

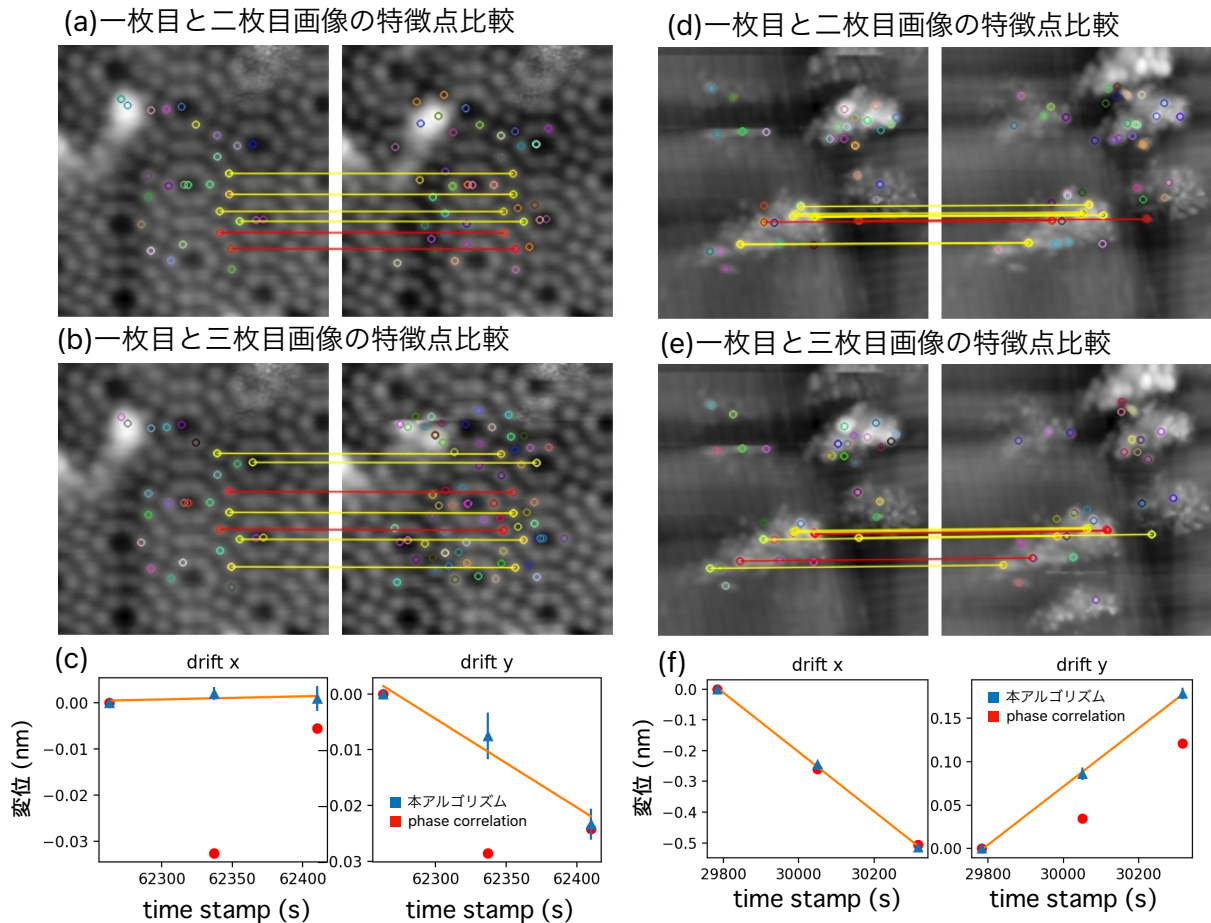


図 3.10: (a)(b)(c) 拡散原子を観察するとき、(d)(e)(f) 試料にゴミが乗ったときの測定画像に対して、本アルゴリズムと phase correlation を適用するときの推定結果の比較。

図3.10(a)(b)(c)は拡散する原子を観察するときにドリフト補正を適用した時の結果を示す。このとき、ドリフトはほぼ補正されており、画像間の変位は限りなく0となっている。本手法とphase correlationで求めた X, Y 方向の変位は表3.2に示した通り、求めた値は1ピクセル以下である。

しかし、phase correlationの手法では拡散原子の移動によりわずかな変位がドリフトの計算に影響し、求められた X, Y 方向の変位は本来の値と異なってしまう。その理由はphase correlation

表 3.2: 拡散する原子を観察するとき手法計算値の比較.

	KPM [pixel]		phase correlation [pixel]	
	X	Y	X	Y
画像 1 枚目と 2 枚目	0.056	-0.021	-0.89	-0.78
画像 1 枚目と 3 枚目	-0.027	-0.64	-0.15	-0.66

は画像全体の値を比べていることに対して, KPM 法は画像の部分的な特徴点を比べ, 第2段階のフィルター処理によって移動した原子上の特徴点は外れ値として排除され, ロバスト性と精度の向上が実現した. また, 連続する3つの画像のドリフト推定のフィッティング結果 [図 3.10(c)] から, 0 nm 以下の精度にもかかわらず, KPM 法は線形的に変位の値を求めることができるが, phase correlation は精度が追いつかないせいで, 値のレンジが飛んでしまう. 同様に, 図 3.10(d)(e)(f) は計測中にゴミが表面に乗ったときドリフト補正を適用した時の結果を示す. このとき, ドリフト補正は行われておらず, 図 3.10(f) から大きい線形的な変位関係から大きいドリフトが検知される. しかし, 2枚目と3枚目では大きいゴミが表面に現れ, これにより phase correlation の Y 方向のドリフトフィッティングでは求めた変位の線形性がなく, 真値から少しズレた値として求まる.

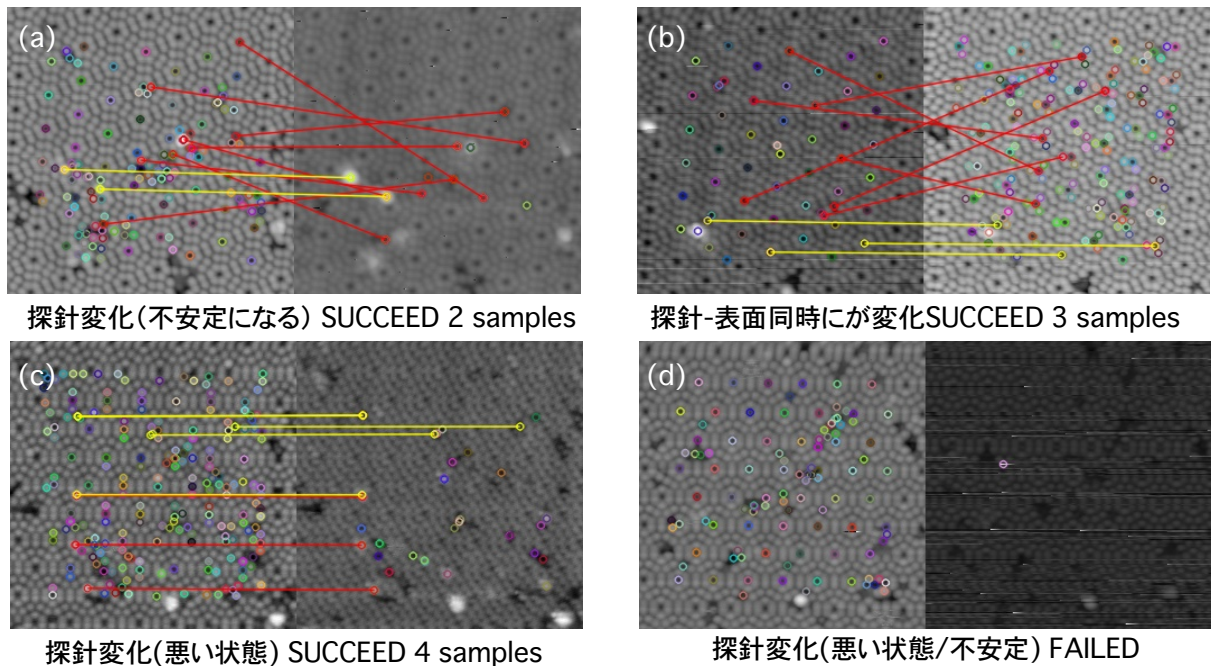


図 3.11: 探針-試料が変化するケースにおける KPM 法のロバスト性のテスト結果.

以上を踏まえて, KPM 法は連続で測定した画像間の特徴を抽出し比べることで画像間のずれを算出する手法であるため, 画像化する結果に依存探針の状態変化や画像化する対象である試料が変化する際のロバスト性が重要である. 探針の変化や試料の変化は微小な場合, KPM 法の第二段階の多数決統計手法により, ある程度のロバスト性が保たれることを証明した. さらに, 測定が非常に不安定な状況を想定して, 図 3.11 に示したように, (a) 探針が不安定な状態に変化するケース, (b) 探針-表面が同時に変化するケース, (c) 探針が悪い状態に変化するケース, (d)

探針が悪い状態かつ不安定に変化するケースの4つの特徴点マッチング結果を示した。図中の黄色の線で結んだペアはKPM法で求めた正解であり、ケース(a)(b)(c)はマッチングが成功したものの、多くのサンプリングしたペアは不正解になった。結果的に、ケース(a)は2個のサンプル、ケース(b)は3個のサンプル、ケース(c)は4個のサンプルしか検出できないため、ドリフト算出に使えるサンプルは少数となりアルゴリズムの精度に影響する。また、ケース(d)のように極めて探針状態が悪いときではKPM法による特徴点ペアの検出が失敗する可能性もあることがわかった。

特徴点抽出が成功しない原因としては、KPM法の第一段階にあると考えられる。例えば、探針状態が異なると取得画像の表面の見た目も著しく異なるため、検出した特徴点も異なりマッチングしにくくなる。不安定な探針ではノイズの多い画像を得るため、図3.11(d)のように検出した特徴点はフィードバックが発散する場所に集中してしまいため、正常に特徴点を検出する画像と比べるとマッチングが成立しない。この特徴量を検出する手法はあらゆる画像に適用できるが、顕微鏡画像の特性を考慮していない。その手法の改善策として、第3.7節では表面の結晶構造が事前に分かった状態でのKPM法の第一段階の特徴検出とマッチングの代替案に関する手法を説明する。

3.5 KPM法による長時間のドリフト補正実験

KPM法を用いて、Sn蒸着したSi試料(Sn/Si(111)-(7×7))で計測を行った。通常では、室温の超高真空におけるドリフトのずれは数Å/minから数nm/minまでとなっている。図3.12(a)では、ドリフト補正しない時の、約4分おきにサンプリングした表面の画像を示している。4つの画像に関するドリフトによる変化は、水色マークが示した場所から追跡できる。室温におけるドリフトがあるにもかかわらず、KPM法によるドリフト補正手法を用いると、72時間に同じ計測エリアに固定することができる。図3.12(b)では、72時間にわたってSn/Si(111)-(7×7)表面の同じ領域で連続的に測定した862枚のSTM topography画像から抽出された6枚の画像を示している。原子像の変化はないことから、2時間から64時間までほぼ計測領域が動いていないことがわかる。以上の結果から、本アルゴリズムは室温環境においても長時間、原子レベルで同じ表面を正確に画像化が可能であることを実証できた。このツールを用いることで、室温で表面原子の拡散を計測できるようになる。

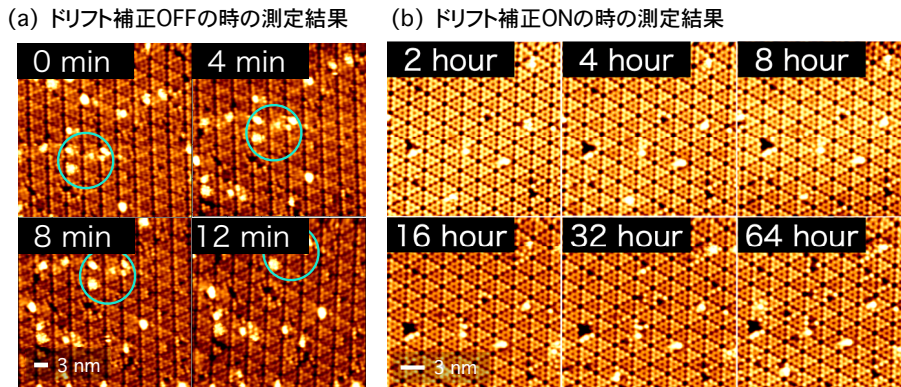


図 3.12: Sn/Si(111)-(7×7) 表面におけるドリフト補正を行なわなかった (OFF) と行った (ON) ときの計測経過時間と画像の変化。

図 3.13 は、図 3.12(b) の表面を計測するとき実験的に計測領域の位置を保つためにピエゾが変位した軌跡である。図 3.13 の X, Y の軌跡は、本アルゴリズムが同じ表面スポットを 72 時間追跡する間のドリフトの強い非線形挙動を示していることがわかる。ドリフト補正は 3 枚の画像ごとに更新されるため、長時間に渡るこの非直線性があっても KPM 法に影響が出ない。

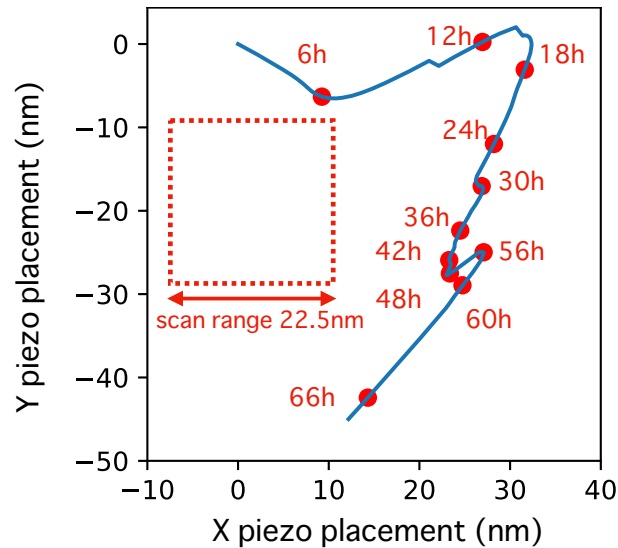


図 3.13: ドリフト補正する際のピエゾ X, Y 方向の運動軌跡. 運動軌跡における赤い点で示した時間は経過時間である. 挿入図は全軌跡の範囲に対するスキャンエリアの大きさを示す。

図 3.14 のグラフは、72 時間のドリフト補正実験中の X および Y スキャン方向のドリフト速度の変化量を示している。画像を追跡し始める初期段階では、両方向とも急激な変化を示している。このようなドリフト速度の急激な変化が起こる原因は、計測開始時スキャナを目的の表面領域まで移動させたことに起因するピエゾクリープによるものである。本アルゴリズムを開始したあと、6 回のループ (すなわち約 1 時間) の後、クリープの影響は無視できるようになり、ドリフト速度はそれぞれ X 方向で 1.3 pm/min 、 Y 方向で 5.1 pm/min の標準偏差で安定した。実験中に、1 ループでは 3 つの画像を収集してからフィッティングし、ドリフト速度の変位の平均を計算した結果、KPM 法がドリフト補正した後、探針が表面の相対場所に特定するとき配置する誤差は X 方向で 1.4 pm 、 Y 方向で 3.1 pm であった。これらの値から、KPM 法が subangstrom オーダーのドリフト補正を行うのに十分な精度と安定性を持っていることがわかる。

KPM 法の精度と補正する速度のオーダーは計測範囲に依存する。例えばドリフト速度が極めて大きい場合、画像間のドリフトで変位した距離は計測領域より大きくなり、計測した画像間に同一な特徴が見えない。このとき、計測範囲を大きく設定すれば、同一な特徴を画像間に観測でき、特徴点による追跡もできる。しかし、この時、単位ピクセルに対する計測レンジが大きくなったため、ドリフト補正の精度も低下してしまう。逆に、極めて小さい計測範囲を設定すれば、高速にイメージングすることもでき、その時補正精度は本手法で報告した値より高い精度を得られると考えられる。

また、この手法を用いて、原子の位置を狙った分光計測 [6]、サンプルバイアスのパルスによる原子操作 [20]、さらには 3 次元分光測定 [21] など、さまざまな実験を行うためにイメージングループを一時停止することが可能である。この時、最後に計算されたドリフト速度が、イメージングループに戻るまでのドリフトを補正するために使用される。

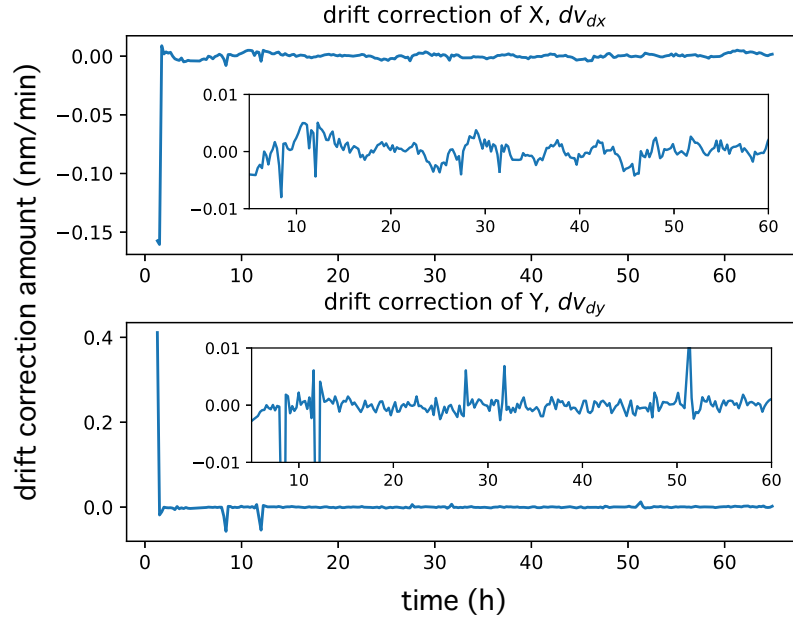


図 3.14: X, Y 方向のドリフト速度を更新するたびの校正值. 挿入図はピエゾクリープを支配している初期段階を除いたデータを拡大したもの.

3.6 Sn/Si(111)-(7×7) 表面の熱拡散現象の長時間イメージング

KPM 法の表面科学分野への適用例として, Si(111)-(7×7) 表面における 2 つの Sn 吸着原子の拡散 [22] に関する実験を行うために, KPM 法のドリフト補正アルゴリズムを適用した. この時は測定領域を小さく絞り速く測定しており, 測定パラメーターとしてピエゾクリープをキャンセル [2] するための待機時間は 5 s, 画像取得時間は 66 s, setpoint は 200 pA, Sample Bias は 1.5 V である. 図 3.15(a) が示したのは表面の関心領域を 18 時間をかけて, 927 枚の原子像をイメージングした時に Sn 原子が動き回っていることが観察できる結果である. 図の Sn 原子ペアの配置の動きから, Si(111)-(7×7) 表面の half unit cell 内に捕捉されている 1 対の Sn 原子のスイッチング挙動を特徴付けることができる. Sn 原子ペアの吸着形態は 2 つ存在し, 図 3.15(b) のとおり P と P^* と定義する. 図 3.15(a) の 6 つの画像 (1-6) に示されているように, P と P^* の間の状態遷移は可逆的であり, 極めて低い頻度で起こることを確認した. また, P^* 状態を保ったまま, unit cell 内の他の等価的な吸着サイトへのジャンプは, 最速画像速度 (66 s) に近い頻度で発生することがわかった [図 3.15(a) の画像 2-5 参照]. P^* 状態の間の遷移を観測するためには, より高速な計測を行う必要があり, その時高速の計測装置あるいは高速化した計測手法は有効である.

次に, 可逆のペア遷移である $P \leftrightarrow P^*$ に焦点を絞って解析を行った. 現状 $P^* \leftrightarrow P^*$ を解析できない理由は, 実験を行った画像速度では P^* 配置のペアのジャンプは撮像中に見逃される可能性があるからである. それに対して, $P \rightarrow P^*$ と $P^* \rightarrow P$ の状態遷移はイメージングするフレーム以下の周波数で起こっていて, 図 3.16 のように 18 時間の間で定量化できる. この結果から, Sn 原子は P^* 配置よりも P 配置に長く留まる傾向があることが示唆される. したがって, P 配置は P^* 配置よりも安定であると考えられる.

このような遷移を起こる原因として, Sn 原子のペアは熱的な効果により活性化されていることが考えられる. この際に, Arrhenius の式に基づく物理モデル [23] に従うと仮定する.

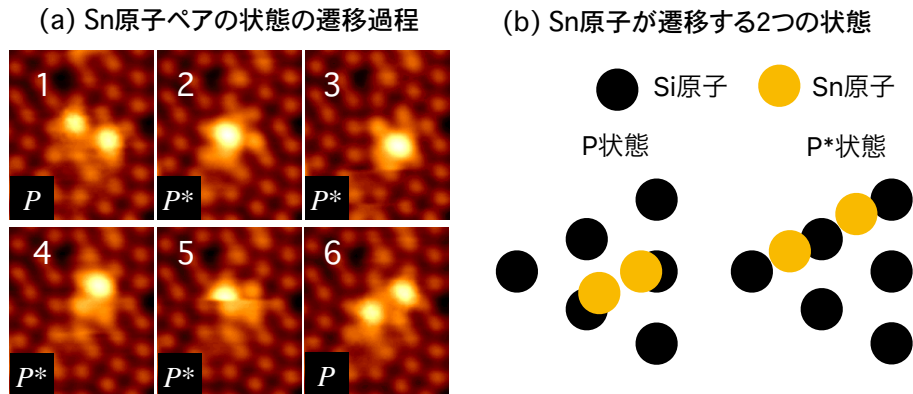


図 3.15: Si(111)-(7×7) 表面の half unit cell 上で, ペアとなった Sn 原子が $P(1,6)$ と $P^*(2-5)$ の 2 種類の吸着場所の間で可逆的にスイッチングする様子を示す連続画像. 画像 2-5 は, half unit cell 内の 3 つの等価な吸着位置間の P^* 配置場所の Sn 原子のペアの拡散を示している.

$$\Gamma = \Gamma_0 \exp[-E_g/kT] \quad (3.10)$$

ここで, Γ_0 は固有の周波数, E_g を遷移の energy barrier, k をボルツマン定数, T を温度として, 両遷移の energy barrier を大まかに見積もることができる. このとき, 可変温度 STM がいないため, energy barrier の概算を行うために文献から Γ_0 の値を採用した [24, 25, 26]. Si(111)-(7×7) 面の half unit cell に吸着した単一 Pb 原子の拡散実験から得られた固有周波数の典型的な値 [25] は 10^{12} ジャンプ/原子/秒である. この Γ_0 の値と実験が室温 (293 K) で行われたことを考慮すると, $P \rightarrow P^*$ 遷移の energy barrier は 0.91 ± 0.01 eV, $P^* \rightarrow P$ 遷移の energy barrier は 0.86 ± 0.03 eV となる. これらの値の誤差は, Sn ペアが与えられた状態遷移にかかった時間の統計的標準偏差によって与えられる. 計算された energy barrier の値は, 半導体表面の IV 族原子上原子の拡散にとって妥当な範囲である [25, 26]. こういった長時間の拡散原子の観察実験はこのドリフト補正手法を通して, 表面系の物理的特性を得られることを提案した.

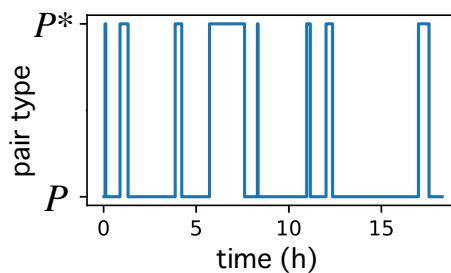


図 3.16: Sn 原子ペアの P と P^* の間のスイッチング挙動 (図 3.15) を 18 時間の間でタイムラインでプロットしたもの.

3.7 表面結晶構造の情報をベースにしたドリフト補正アルゴリズム

第 3.3 小節では KPM 法を画像間位置ずれの関係を求める手法として紹介した. KPM 法はあらゆる形式の画像に適用できる利点がある. しかし, SPM 画像に適用するとき, 室温の不安定

な環境における測定表面の変化や画像化する探針の状態変化によって、検出する特徴によって画像間をマッチできない可能性があることを、第3.4小節で示唆した。画像処理で用いる特徴点検出の手法は、画像の勾配に依存するので、画像のコントラストや外見の変化によって、同一の計測エリアでも、検出される特徴点の一意性が破綻する。そこで、画像の外見が変わっても、SPM 原子像の中の原子配列は変わらないので、特徴点マッチングの代わりに、単位結晶の原子/欠陥の情報をベースにした原子/欠陥マッチング（ADM）法を考案した。

3.7.1 特徴点マッチングの代替案—原子/欠陥マッチング

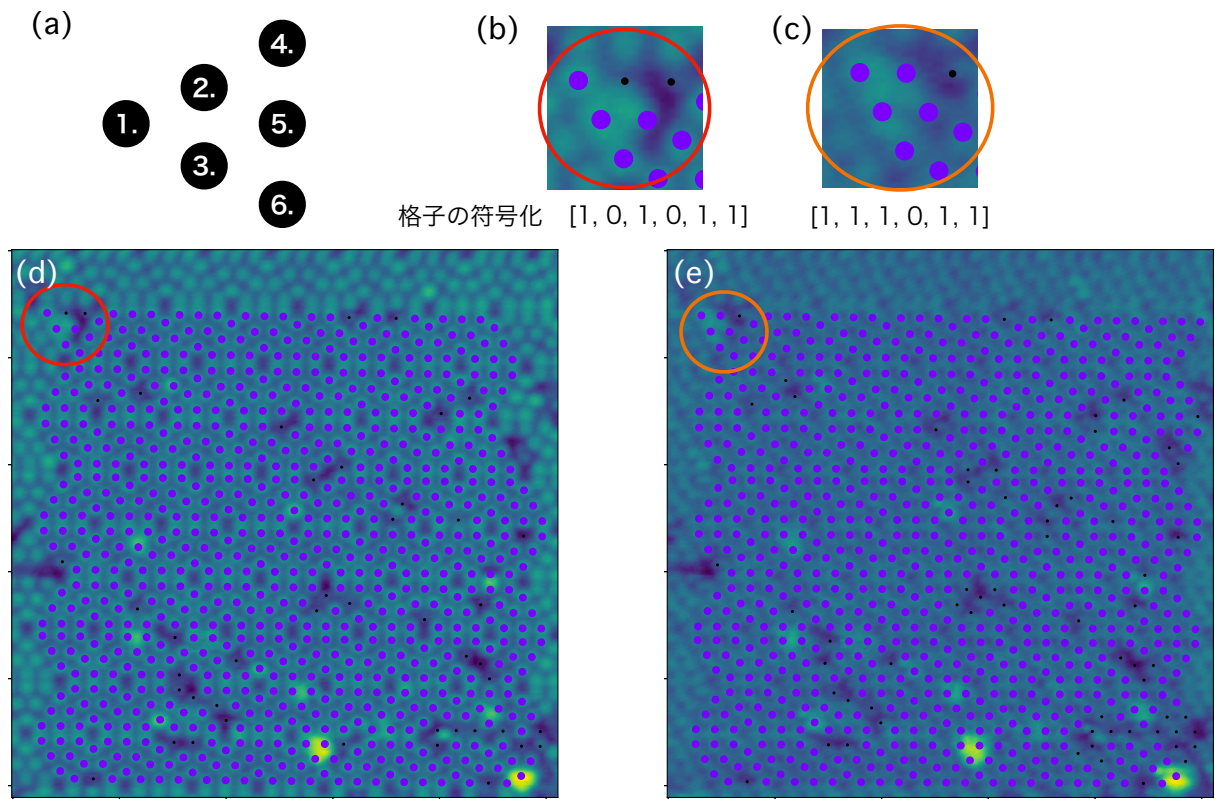


図 3.17: Si(111)-(7×7) 表面の half unit cell の原子/欠陥構造に関する符号化手法と適用例. (a) Si(111)-(7×7) 表面における 6 サイトの adatom 原子が対応する符号化の順番. (d) と (e) は同じ計測エリアにおいて、異なる探針状態でとった原子像であり、adatom の位置に原子が存在する場所は紫点、原子が存在しない場所は黒点でマークしてある. (b)(c) は (d)(e) の円範囲の部分拡大した図であり、ADM 法による符号化した結果を示している。

ADM 法の特徴は、測定した表面の原子構造に関する特徴を使用する。ADM 法では、KPM 法の第一段階の特徴点を検出してからマッチングする代わりに、結晶格子ごとに原子/欠陥を符号化し、特徴量とする。次に、その特徴量を独自のアルゴリズムでマッチングする。ADM 法を適用する前提条件は、測定した画像から表面の結晶格子をひとつずつオブジェクトとして検出可能で、さらに結晶格子内の原子位置を特定可能にする必要がある。そうすれば表面の結晶格子単位で、結晶格子を構築する原子の欠陥状況の特徴として、画像間の対応関係もわかる。ADM 法は原理的に、画像の外見によらず、表面の原子構造が正しく検出できるかどうかによるため、探

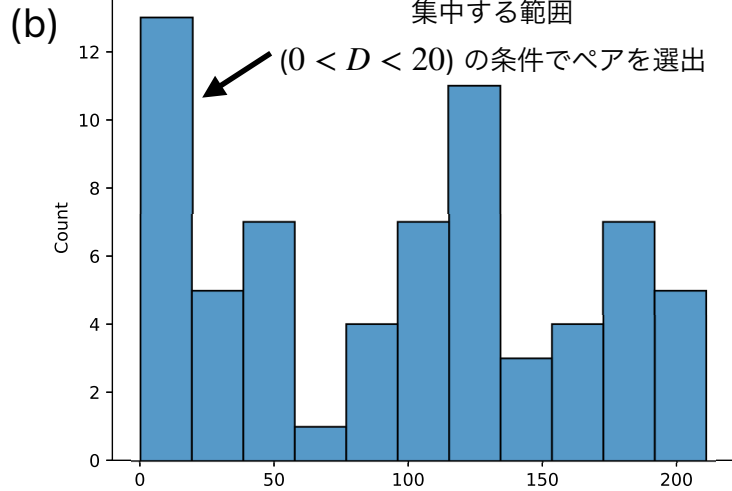
針状態による画像の変化の影響は無視できる。また、統計処理により、画像のエリア全体をに対して、表面の変化が十分小さい場合でも画像間を対応させることができる。この小節で説明した画像から表面の原子配列を検出する手法は第5章のディープラーニングの手法を利用している。

ADM法が利用する特徴量を得るために、単位格子の原子/欠陥状態は符号化される。図3.17(a)ではSi(111)-(7×7)表面のunit cellを符号化するルールを示している。1. Corner adatom, 2. Center adatom, 3. Center adatom, 4. Corner adatom, 5. Center adatom, 6. Corner adatomの6つの原子が図3.17(a)の数字の順番で、原子のある場所は欠陥状態かどうかで符号化される。図3.17(d)と(e)は図3.10のケース(c)で示した同一エリア異なる探針で計測した結果である。表面における原子の位置は第5章の手法によって抽出され、紫のポイントは原子が存在すると意味していて、黒いポイントは欠陥となっていることが認識されている。2つの画像上マークしたエリアはそれぞれ図3.10(b)と(c)で拡大表示している。そこで、本アルゴリズムにおける格子の符号化は欠陥が存在する格子のみ行われており、図3.10(a)の順番通り、(b)で示した格子は $[1, 0, 1, 0, 1, 1]$ 、そして(c)で示した格子は $[1, 1, 1, 0, 1, 1]$ として符号化される。

(a) Hashmap for map1 (符号化された格子 $P_1(i)$)



$P_2(j)$: map2に対応した
符号化された格子



$D(P_1(i), P_2(j))$: Map1格子とMap2格子ペアに関する座標ベクトルのノルム

図 3.18: 画像間符号化した Si(111)-(7×7) 表面の half unit cell の ADM 法に関するアルゴリズム。

次に、画像間の符号化された単位格子のペアを作るためのマッチング処理を行う。ここで、1番目の画像から n 個の格子が符号化され、 $P_1(i) : i = 1, \dots, n$ として格子の符号が記述される。2番目の画像から m 個の格子が符号化され、 $P_2(j) : j = 1, \dots, m$ として格子の符号が記述される。マッチングの基準として、符号間の Hamming 距離 HD とドリフトによる画像間のずれが近い値に一致性を見つけるために、 $P_1(i)$ と $P_2(j)$ 格子の中心座標の差に関するノルム D が考慮される。

$P_1(i)$ に対して、ペアとなる $P_2(j)$ に関する特徴量を Hamming 距離でマッチングするために、図3.18(a)で示した1番目の画像の特徴量全体 $P_1(i) : i = 1, \dots, n$ に関する Hashmap を作成

する. Hashmap は, 各 $P_1(i)$ に対して全ての $P_2(j)$ の中から Hamming 距離 $HD \leq 2$ の条件で $P_2(j)$ から選出され, Hamming 距離の昇順で並べている. ここで Hamming 距離 HD は式 3.11 で与えた2つの符号の XOR 演算 ($\oplus$) によって求められる.

$$HD = ||(\text{code}P_1 \oplus \text{code}P_2)|| \quad (3.11)$$

この Hashmap 作成の計算量を減らすために, Nearest Neighbor[27] のアルゴリズムを使用した. ここで, 選出条件を $HD = 0$ にすると $P_1(i), P_2(j)$ は完全に一致するペアだけ選出されるが, 室温における試料の変化や探針の悪い状態で画像化した結果に対する誤認識があると, ペアのマッチングが成立しない可能性があるため, 選出条件を $HD \leq 2$ にすることでエラーに対する耐性を得ることができる. 耐性を得た代わりに, ある $P_1(i)$ に対して, 複数のペア候補が存在するので, そのペア候補から正しいペアを選出する必要がある. 正しいペアを選出するために, 画像における $P_1(i)$ と $P_2(j)$ 格子の中心座標の差に関するノルム $D(P_1(i), P_2(j))$ を計算する.

$$D(P_1(i), P_2(j)) = \sqrt{(x_2 - x_1)^2 + (y_2 - y_1)^2} \quad (3.12)$$

ここで, (x_1, y_1) は $P_1(i)$ の結晶格子が画像 1 における中心座標であり, (x_2, y_2) は $P_2(j)$ の結晶格子が画像 2 における中心座標である. 図 3.18(b) は図 3.17(d) と (e) の2つの画像から ADM 法によって計算した $D(P_1(i), P_2(j))$ のヒストグラムである. ここで, $0 < D(P_1(i), P_2(j)) < 20$ の範囲でサンプル数が一番多いことがわかる. 画像間のドリフトによって, マッチングする格子ペアのずれ近い値になるという特性から, ヒストグラムで集中する範囲を条件として Hashmap の中からペア選出することにする.

Hashmap から選出したペアを図 3.19(a) に示す. 以上で説明したアプローチは KPM 法の第一段階の代わりに使用して, 第二段階の多数決フィルタを適用すると図 3.19(b) の結果を得る. 図の中の赤い線で結んだのはフィルタによって排除されたペアであり, 黄色の線で結んだペアは正解とみなすペアである. 前で紹介した KPM 法で選出した特徴点のペアは図 3.11(c) であり, 2つのマッチング結果を比べると, ADM 法はより多くのサンプルを検出することができ, 結果的により小さい標準偏差の推定値を得ることができるので, ドリフト補正精度も高くなる.

表 3.3: 図 3.11 の結果に関する KPM 法と ADM 法の計算値の比較.

	KPM 法 [pixel]				ADM 法 [pixel]			
	X	X std	Y	Y std	X	X std	Y	Y std
ケース (a)	0.658	0.184	-6.943	0.253	-0.278	0.270	-6.696	0.175
ケース (b)	-3.642	0.429	-2.940	0.769	-4.441	0.161	-2.809	0.377
ケース (c)	1.419	0.443	0.489	0.414	0.381	0.132	-0.634	0.247
ケース (d)	-	-	-	-	-2.516	0.513	-3.910	1.130

表 3.3 では KPM 法 [図 3.11] で計算した探針/試料が変化するイレギュラーの例を KPM 法と ADM 法をそれぞれ適用した後, 得られたドリフトずれの算出結果となる. KPM ケース (a)(b)(c) において, KPM 法の値は妥当だと図 3.11 では示しており, ADM 法で計算した X, Y 方向のドリフトずれがおおよそ KPM 法の計算結果と一致するので, ADM 法は KPM 法と同様なロバスト性を持つことが証明できる. また, ADM 法では X, Y 方向の標準偏差 (X std, Y std) は KPM 法と比べて小さいことから, ADM 法で抽出したサンプル数が多いためペアで算出したドリフトの分散の小さいことがわかる. さらに, ケース (d) において, KPM 法は特徴点の抽出に失敗す

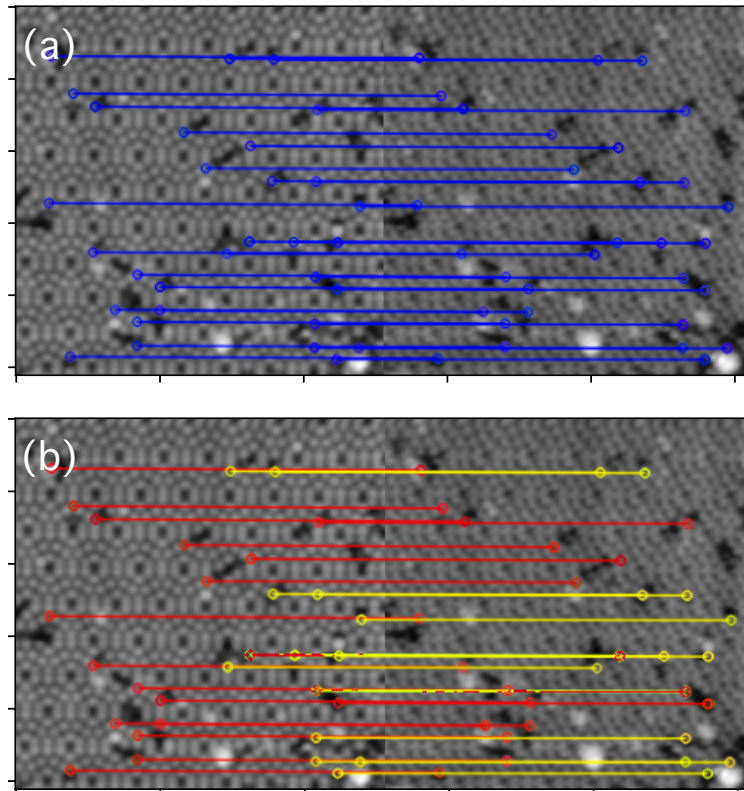


図 3.19: ADM 法の適用例 (a) KPM 法の第一段階の代わりに原子/欠陥の情報を用いて ADM 法を適用した結果 (b) 第二段階として多数決フィルタを適用した結果.

るためドリフト量が算出できないが, ADM 法ではドリフト量の算出に成功した. これにより, ADM 法は KPM 法と比べて, より高い精度を実現でき, よりロバストであることが証明できる.

ADM 法の展開として, 走査した画像間の対応関係を紐付けることができる. 図 3.20 では, 2 つ画像の格子に関する情報と格子の中心座標が分かった上で, 1 つ目の画像にある格子の中心座標をドリフト量を加えた上で, 2 つ目の画像にある格子の中心座標と比べて距離の近い格子間にペアを結んだ結果となる. このように画像間の格子の対応がわかるので, ADM 法は表面の情報を基づいて走査の自動化に適用できる. 例えば, 計測した画像の情報をベースに原子操作した後, 原子操作によって操作対象の構造が変化したかどうかを認識するために, ADM 法は利用できる.

この小節で説明した ADM 法は KPM 法と比べてより高い精度とロバスト性を実現できるが, 欠点として原子構造に関する情報が必要である. 計測した表面の原子構造を認識させることは容易ではない. ADM 法で用いる表面の原子構造を認識させる手法は第 5 章で説明する Si(111)-(7×7) では実証したが, 現段階ではあらゆる表面構造を認識できていない. よって, KPM 法が汎用的かつユーティリティ的なドリフト補正として活用できると考えている.

3.8 終わりに

本章では, 画像中の特徴点検出を用いて, 原子精度でのドリフトをリアルタイムで自動補正するアルゴリズムとして, 特徴点マッピング法 (KPM) と原子/欠陥マッチング法 (ADM) を提案し

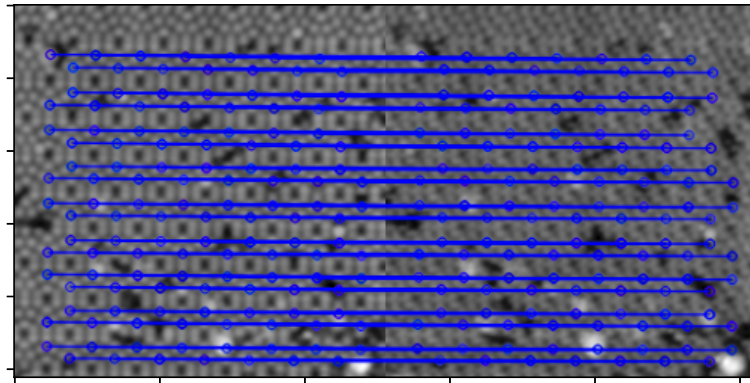


図 3.20: Si(111)-(7×7) 表面の格子間対応関係の検出結果

た. 2つ手法の共通点は連続する画像間で参考になるポイントを抽出し, マッチングしてから, マッチングしたペアのグループ化を行うことである. それぞれの手法について, 探針と表面の変化を含むわずかな変化に対してロバストであることを証明した. KPM 法の第一段階は元々画像処理でよく用いられる特徴点のアルゴリズムをベースで開発した手法で, 第 3.3 小節で述べた第二段階の多数決フィルタ処理によって, イメージングだけによる非線形のドリフト挙動下でも, subangstrom オーダーの精度で数日間同じ表面領域を追跡することができることを示した. KPM 法はコンピュータビジョン技術に基づいているため, 走査型プローブ顕微鏡に限らず, 走査型電子顕微鏡や透過型電子顕微鏡など, 他の顕微鏡セットアップにも適用できる. ADM 法は KPM 法第二段階のフィルタ処理を吸収して, ドリフト補正の精度とロバスト性の向上を実現した上に, 第一段階では特徴点の代わりに, 結晶格子に関する原子/欠陥の情報をベースに特徴量の検出できる手法と, 顕微鏡のドリフトに向けたマッチングアルゴリズムを考案して作り上げた. 第5章で述べる機械学習による表面認識の実装によって得られた結晶格子に関する原子/欠陥の情報をベースに特徴量の検出ができ, 室温特有なダイナミックスにより画像外見の変化に, さらに高いロバスト性と精度を実現できることを説明した.

自動計測の実験として, KPM 法を用いて Si(111)-(7×7) 試料の同じエリアを 70 時間以上の間に变化するプロセスを観測できた. Sn/Si(111)-(7×7) の拡散実験が示したように, この手法を用いた自動計測技術は, 人間の体力の限界を超えて, 長時間のオーダーで表面上の変化過程をトラッキングするだけではなく, 表面状態が変化する最中の様子を捉えることが可能になるので, 室温に存在する新たな物理現象の解明に活用することが見込める.

参考文献

- [1] Herbschleb, C. T. *et al.* The reactorstm: Atomically resolved scanning tunneling microscopy under high-pressure, high-temperature catalytic reaction conditions. *Review of Scientific Instruments* **85**, 083703 (2014). [<URL>](#).
- [2] Rana, M. S. *et al.* Nonlinearity effects reduction of an afm piezoelectric tube scanner using mimo mpc. *IEEE/ASME Transactions on Mechatronics* **20**, 1458–1469 (2015). [<URL>](#).
- [3] Park, S. B. *et al.* Linear and nonlinear behavior of piezoelectric materials. In *Proc.SPIE*, vol. 2715 (1996). [<URL>](#).
- [4] Hill, E. *et al.* Diffusion of hydrogen on the si(001) surface investigated by stm atom tracking. *Phys. Rev. B* **60**, 15896–15900 (1999). [<URL>](#).
- [5] Sugimoto, Y. *et al.* Atom inlays performed at room temperature using atomic force microscopy. *Nature Materials* **4**, 156–159 (2005). [<URL>](#).
- [6] Sugimoto, Y. *et al.* Chemical identification of individual surface atoms by atomic force microscopy. *Nature* **446**, 64–67 (2007). [<URL>](#).
- [7] Abe, M. *et al.* Room-temperature reproducible spatial force spectroscopy using atom-tracking technique. *Appl. Phys. Lett.* **87**, 173503 (2005). [<URL>](#).
- [8] Croft, D. *et al.* Creep, Hysteresis, and Vibration Compensation for Piezoactuators: Atomic Force Microscopy Application . *Journal of Dynamic Systems, Measurement, and Control* **123**, 35–43 (1999). [<URL>](#).
- [9] Sarvaiya, J. *et al.* Image registration by template matching using normalized cross-correlation. In *2009 International Conference on Advances in Computing, Control, and Telecommunication Technologies*, 819–822 (2009). [<URL>](#).
- [10] Yang, Q. *et al.* Automatic drift compensation using phase correlation method for nanomanipulation. *IEEE Transactions on Nanotechnology* **7**, 209–216 (2008). [<URL>](#).
- [11] Alba, A. *et al.* Phase correlation with sub-pixel accuracy: A comparative study in 1d and 2d. *Computer Vision and Image Understanding* **137**, 76–87 (2015). [<URL>](#).
- [12] Lowe, D. Object recognition from local scale-invariant features. In *Proceedings of the Seventh IEEE International Conference on Computer Vision*, vol. 2, 1150–1157 vol.2 (1999). [<URL>](#).

- [13] Wu, Y. *et al.* An automated vertical drift correction algorithm for afm images based on morphology prediction. *Micron* **140**, 102950 (2021). [<URL>](#).
- [14] Haddad, R. *et al.* A class of fast gaussian binomial filters for speech and image processing. *IEEE Transactions on Signal Processing* **39**, 723–727 (1991). [<URL>](#).
- [15] Alcantarilla, P. F. *et al.* Kaze features. In *Proceedings of the 12th European Conference on Computer Vision - Volume Part VI*, ECCV'12, 214–227 (Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, 2012). [<URL>](#).
- [16] Alcantarilla, P. F. *et al.* Fast explicit diffusion for accelerated features in nonlinear scale spaces. In Burghardt, T. *et al.* (eds.) *British Machine Vision Conference, BMVC 2013, Bristol, UK, September 9-13, 2013* (BMVA Press, 2013). [<URL>](#).
- [17] Bradski, G. The OpenCV Library. *Dr. Dobb's Journal of Software Tools* (2000). [<URL>](#).
- [18] Arthur, D. *et al.* K-means++: The advantages of careful seeding. In *Proceedings of the Eighteenth Annual ACM-SIAM Symposium on Discrete Algorithms*, SODA '07, 1027–1035 (Society for Industrial and Applied Mathematics, USA, 2007). [<URL>](#).
- [19] Rahe, P. *et al.* Flexible drift-compensation system for precise 3d force mapping in severe drift environments. *Review of Scientific Instruments* **82**, 063704 (2011). [<URL>](#).
- [20] Pavliček, N. *et al.* Synthesis and characterization of triangulene. *Nature Nanotechnology* **12**, 308–311 (2017). [<URL>](#).
- [21] Albers, B. J. *et al.* Three-dimensional imaging of short-range chemical forces with picometre resolution. *Nature Nanotech.* **4**, 307–310 (2009). [<URL>](#).
- [22] Custance, O. *et al.* Initial stages of sn adsorption on si(111)-(7 × 7). *Surface Science* **482-485**, 1406–1412 (2001). [<URL>](#).
- [23] Laidler, K. J. The development of the arrhenius equation. *Journal of Chemical Education* **61**, 494 (1984). [<URL>](#).
- [24] Gómez-Rodríguez, J. M. *et al.* Real-time observation of the dynamics of single pb atoms on Si(111) – (7 × 7) by scanning tunneling microscopy. *Phys. Rev. Lett.* **76**, 799–802 (1996). [<URL>](#).
- [25] Custance, O. *et al.* Single adatom adsorption and diffusion on Si(111) – (7 × 7) surfaces: Scanning tunneling microscopy and first-principles calculations. *Phys. Rev. B* **67**, 235410 (2003). [<URL>](#).
- [26] Brihuega, I. *et al.* Surface diffusion of single vacancies on Ge(111)–c(2 × 8) studied by variable temperature scanning tunneling microscopy. *Phys. Rev. B* **70**, 165410 (2004). [<URL>](#).
- [27] Cover, T. M. *et al.* Nearest neighbor pattern classification. *IEEE Trans. Inf. Theory* **13**, 21–27 (1967). [<URL>](#).

第4章 SPM 探針の自動修復システムの開発

4.1 はじめに

SPM の測定結果は探針の状態に大きく依存する。探針先端の鋭さは高い S/N 比と原子分解能を得るために重要な要素である [1, 2]。さらに、表面の原子分解能のクオリティは探針の状態に大きく依存し、不適切な探針状態では正確な測定結果が得られないことがある。高い原子分解能が必要な測定では、探針の状態を維持するために多くの時間と労力が必要である。本博士論文で述べている STS や原子操作などの高機能計測では、は通常のスキャンよりも探針により多くの負荷をかけることがあり、そのため探針の状態最適化がより重要になる。この章では、高機能な自動測定を実現するために、探針を最適な状態に維持または修復するシステムの開発に焦点を当てる。本研究の独自性は、AI を SPM の計測に活用する点にある。従来の AI を用いた探針修復の研究は、探針を良い状態または悪い状態の二値に調整するための極低温の実装 [3, 4, 18] である。しかし、本章では SPM 探針の複数の状態における制御が可能であることを示している。さらに、本研究は室温で行われており、室温の実験環境は極低温環境よりも不安定であり、予測できない要素が探針の劣化や熱ドリフトなどに影響を与える可能性がある。それにもかかわらず、探針調整システムの再現性を実証している。

第 4.2 節では、AI をシステムに適用するためのデータセットの定義とその構築方法について説明する。このデータセットは機械学習の教師データとして使用される。過学習の影響を減らし、精度を向上させるためのニューラルネットワークモデルの設計と学習手法については、第 4.3 節で詳しく説明する。また、このニューラルネットワークの出力結果の解析プロセスについても言及する。第 4.4 節では、訓練したニューラルネットワークを使用した探針修復システムの実装と検証結果について述べる。さらに、第 4.5 節では、別のニューラルネットワークを使用して探針状態を解析し、探針修復システムの効率向上を図るサブシステムについて報告する。最後に、学習したニューラルネットワークの精度評価に関する内容は、次章の第 5.4 節で詳しく説明する。

4.2 探針状態と表面状態に関するデータセットの構築

4.2.1 データセットの定義

機械学習のデータセットを構築するために、既存の計測データから、Si(111)-(7×7) の STM 画像を 11.25×11.25 nm から 37.5×37.5 nm のスキャンサイズで選出し、11 種類に分類した。図 4.1 には、データセットの画像例が示されている。画像の外観は探針の状態に強く依存しているため、分類された STM 画像から探針先端の状態を推測することが可能である。カテゴリは 3 つのグループに分かれている: 「良い探針」グループ、「悪い探針」グループ、そして「イベント」グループである。「良い探針」グループには原子構造が分解された画像が含まれ、一方で、「悪い探針」グループは原子分解能が低い画像に対応している。また、「イベント」グループは特定の表面情報を示している。

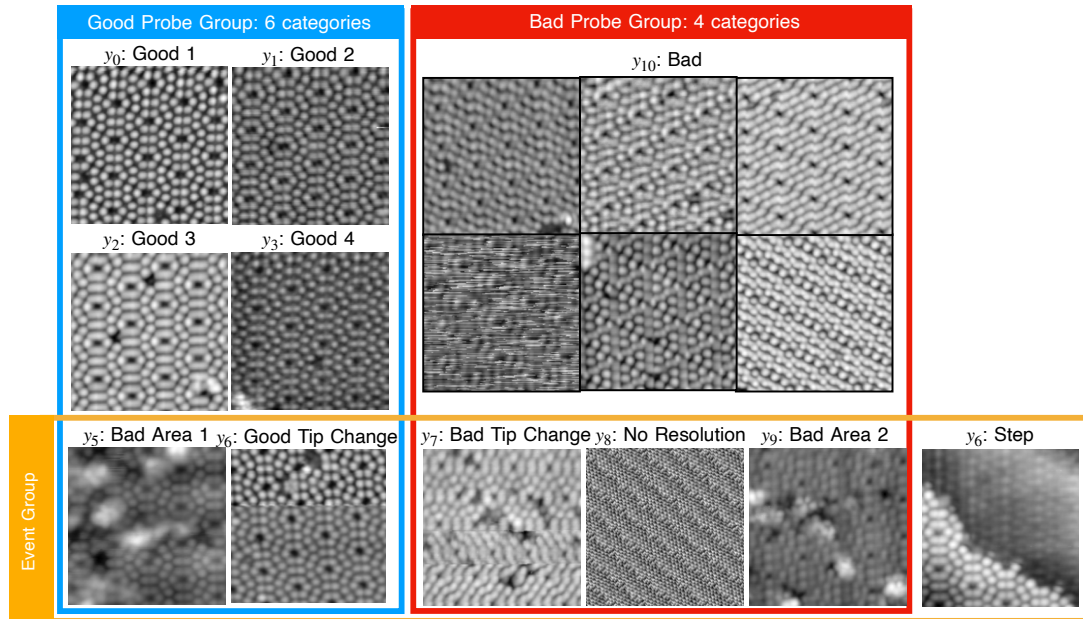


図 4.1: Si(111)-(7×7) で分類した 11 個のカテゴリ ($y_0, y_1, \dots, y_{10}$) の STM 像. 画像の範囲は 11.25×11.25 nm でトリミングした. 全てのデータは 1.5 V で撮っている.

データセットの分類基準として、ほとんどのカテゴリは原子と表面の外観に基づいて決定される. 例えば、「良い探針」グループの画像では、原子配列が綺麗に写っており、容易に区別できるのに対し、「悪い探針」グループの画像では、原子配列が不安定で一部の原子が容易に分離できない場合がある. 「イベント」グループのカテゴリは、特定のケースが起きたときの探針と表面状態が定義されており、表 4.1 で参照できる. また、「良い探針」グループのカテゴリは、探針先端の状態に基づいてさらに分けられている. 図 4.2 は、corner hole を横切るラインプロファイルについて、Good 1, Good 2, Good 3 の探針を比較したものである. Good 1, Good 2, Good 3 のラインを比較すると、Good 1 は z のダイナミックレンジが最大であり、したがって S/N 比も最高である. さらに、Good 3 のラインと Good 1, 2 のラインを比べると、Good 3 では 2 つの隣り合った center adatom は重なって見えてしまうが、Good 1 と 2 のラインでは 2 つの center adatom は別々に見える. この違いは、ラインプロファイルだけでなく、原子を画像化する際にも現れる. 「良い探針」グループにおける Good 4 では、探針の頂点に吸着原子があり、その結果、このような探針を用いた走査結果にはアシメトリーが現れる. しかし、アシメトリーが出る程度は「悪い探針」グループと比べて少なく、スキャン画像上の原子はまだ解像できる.

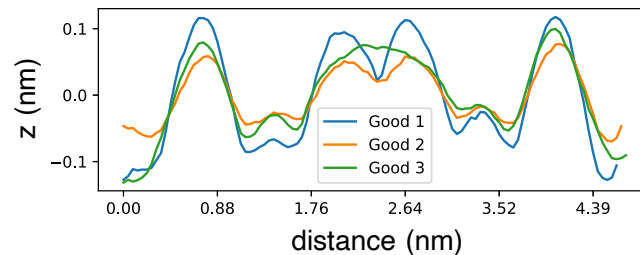


図 4.2: Good1, Good2, Good3 のカテゴリの分類する基準.

表 4.1: イベントグループのカテゴリー定義.

カテゴリー	説明
Bad Area 1	良い探針で, 表面の吸着物が多いあるいは 7×7 ではないエリアが存在する.
Bad Area 2	悪い探針で, 表面の吸着物が多いあるいは 7×7 ではないエリアが存在する.
Good Tip Change	良い探針で, 計測中探針の状態変化が起こっている.
Bad Tip Change	悪い探針で, 計測中探針の状態変化が起こっている.
No Resolution	探針が潰れているか, 表面が凸凹で原子が観察できない状態.
Step	表面にステップテラスが存在している状態.

4.2.2 データセットの事前処理

データ数を増やし, 過学習を防ぐために, 教師データに水増し処理を行っている. 水増し処理は, コードをワンラインで記述し, 処理速度も最適化されている Python パッケージである Albumentations[6] を使用している. 図 4.3 には, 2つの入力画像 (origin) に対して水増しを施した画像の例 (transformed image) を示している. この水増し処理では, 「左右反転」, 「上下反転」, 「アフィン変換」(画像の回転, スケール変更, 移動などの操作), 「ランダムなトリミング」, 「画素数の減少」などの加工を施すことで, 多様なバリエーションを生成できる. このような事後処理により, データセットを拡張することで, 学習済みモデルは走査範囲の変化や回転, 微細な探針形状の違いによるコントラストの変化など, 学習サンプルがカバーできないデータにもロバストに対応できるようになる.

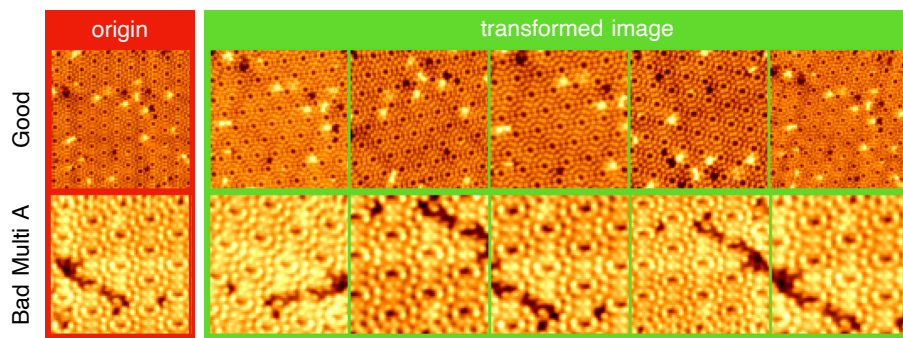


図 4.3: データセットの水増しアプローチに関する入力データ (origin) と出力結果 (transformed image).

```
import albumentations as A
transforms_train = A.Compose([
    A.Flip(),
    A.ShiftScaleRotate(shift_limit=0.0625, scale_limit=0.15,
        rotate_limit=45, p=0.5),
    A.Resize(height=256, width=256),
    A.RandomSizedCrop(height=256, width=256, min_max_height=(180, 256)),
    A.RandomGamma(gamma_limit=(80, 120), always_apply=False, p=1.0),
    A.Downscale(scale_min=0.8, scale_max=0.999, p=1),
])
```



```

        A.Normalize(mean=(0.485, 0.456, 0.406), std=(0.229, 0.224, 0.225)),
        A.Resize(height=256, width=256),
        ToTensorV2(),
    ]
)

transforms_train_tip_change = A.Compose([
    A.Flip(),
    A.ShiftScaleRotate(shift_limit=0.0625, scale_limit=0.15,
        rotate_limit=0, p=0.5),
    A.Resize(height=256, width=256),
    A.RandomGamma(gamma_limit=(80,120), always_apply=False, p=1.0),
    A.Downscale(scale_min=0.8, scale_max=0.999, p=1),
    A.Normalize(mean=(0.485, 0.456, 0.406), std=(0.229, 0.224, 0.225)),
    A.Resize(height=256, width=256),
    ToTensorV2(),
])

```

以上の記述は Albumentations を用いた python のコードであり、水増し処理が行われる。詳細な処理のパイプラインは“A”と書かれた処理のパイプラインとなっている。各パイプライン処理の詳細パラメーターも記載されている。入力画像はニューラルネットワークの構造に合わせて、ピクセルが 256×256 に固定されている必要がある。しかし、このコードは異なる大きさの画像を 256×256 に変換することができる。そのため、実際の入力画像の各次元のサイズに制限はない。探針の変化を含むラベル (y_6, y_7) の画像には “transforms_train_tip_change” のパイプラインが使われ、その他のラベルの画像には “transforms_train” のパイプラインが使われる。この違いは画像を回転させるかどうかに関するものである。探針の変化はスキャンラインで発生するため、横ラインの場所で大きな変化が現れる。そのため、この変化を含む画像については回転の水増し処理を行えないため、画像を回転しないパイプラインが使われている。最後に、変換された画像は GPU のメモリに格納されることができ、この格納されたデータが機械学習パッケージでの処理に直接利用される。

4.3 SPM 計測画像に関するパターン認識ニューラルネットワーク

すでに構築したデータセットを元に、ニューラルネットワークの構造や学習する際の処理を工夫することで、その結果過学習の影響を軽減し、高い推定精度を実現できる。また、ニューラルネットワークの出力データの事後解析を行う処理についても述べる。

4.3.1 ニューラルネットワークの構造と学習

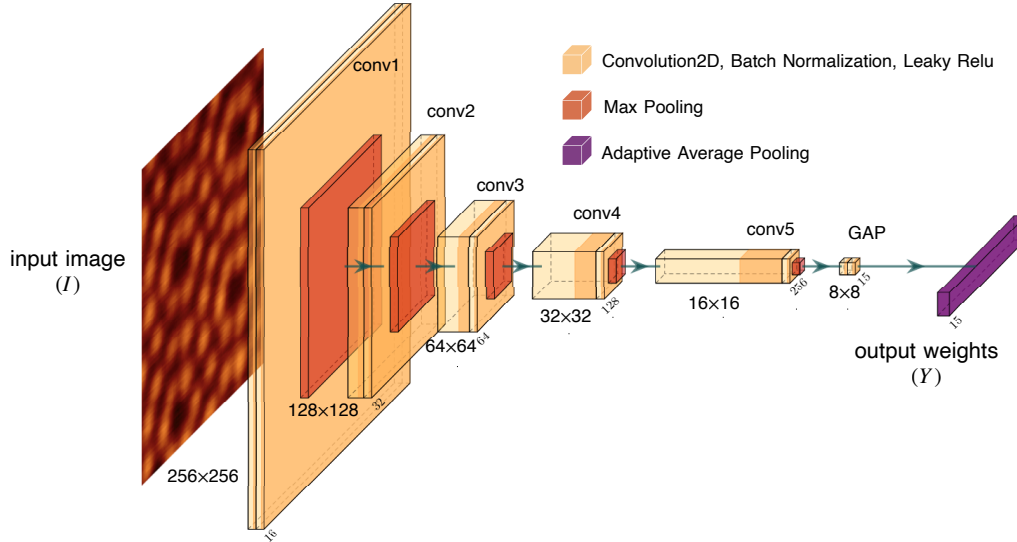


図 4.4: 表面と探針状態を分類する畳み込みニューラルネットワークの構造.

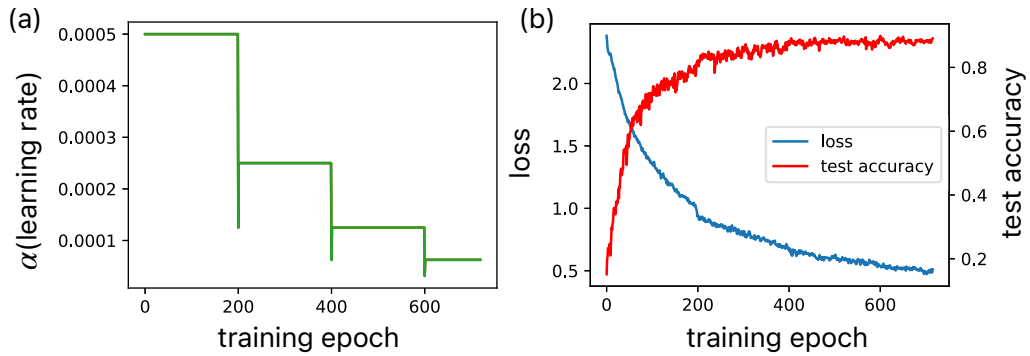
表面と探針状態を分類するタスクは画像のパターン認識に該当するので、畳み込みニューラルネットワークのモデル構造を採用する。ニューラルネットワークモデルの構造を図 4.4 に示し、モデルの中間層に関する詳細のパラメータは表 4.2 に記載した。CNN は 5 つの畳み込み層 (conv1, conv2, conv3, conv4, conv5) とグローバルプーリング層 [7] (GAP) から構成され、428205 個の学習可能なパラメータを持つ。1 つの畳み込み層は、 3×3 の kernel サイズと 1×1 の stride サイズを持つ 2D 畳み込み、Batch Normalization [8], Leaky ReLU 層 [9], 2×2 の kernel サイズと 2×2 の stride サイズを持つ Max Pooling 層を含む。特に、conv4 層と conv5 層では、自由度を制限するために、最大プーリング層の後に 20% のドロップアウト層 [10] が追加される。GAP 層では、全体的な特徴は 3×3 の kernel サイズ、 1×1 の stride サイズの 2D 畳み込みに変換される。GAP 層には、Batch Normalization, Leaky ReLU 層, 2D adaptive average pooling を通してから出力行列 Y を得る。一般的に、ニューラルネットワークの最後に全結合層を使用しているが、本ネットワークでグローバルプーリング層を使用する理由は、学習可能なパラメータを減らすことができ、過学習を避けられるためである [11]。また、活性化関数として式 4.1 に示す ReLU (rectified linear unit) は高い処理速度と収束性をもち、勾配消失問題に強い [12]。本ネットワークでは、ReLU [式 4.1] からさらにカスタマイズした負の入力値の場合でも逆伝播を可能にする Leaky ReLU [式 4.2] 活性化関数を用いる。

$$f_{\text{ReLU}}(x) = \max(0, x) \quad (4.1)$$

$$f_{\text{Leaky ReLU}}(x) = \max(0.01 * x, x) \quad (4.2)$$

表 4.2: 画像認識畳み込みニューラルネットワークの詳細パラメーター.

Layer (type)	Output Shape	Param count
Conv2d-1	[-1, 16, 256, 256]	448
BatchNorm2d-2	[-1, 16, 256, 256]	32
LeakyReLU-3	[-1, 16, 256, 256]	0
MaxPool2d-4	[-1, 16, 128, 128]	0
Conv2d-5	[-1, 32, 128, 128]	4,640
BatchNorm2d-6	[-1, 32, 128, 128]	64
LeakyReLU-7	[-1, 32, 128, 128]	0
MaxPool2d-8	[-1, 32, 64, 64]	0
Conv2d-9	[-1, 64, 64, 64]	18,496
BatchNorm2d-10	[-1, 64, 64, 64]	128
LeakyReLU-11	[-1, 64, 64, 64]	0
MaxPool2d-12	[-1, 64, 32, 32]	0
Dropout-13	[-1, 64, 32, 32]	0
Conv2d-14	[-1, 128, 32, 32]	73,856
BatchNorm2d-15	[-1, 128, 32, 32]	256
LeakyReLU-16	[-1, 128, 32, 32]	0
MaxPool2d-17	[-1, 128, 16, 16]	0
Dropout-18	[-1, 128, 16, 16]	0
Conv2d-19	[-1, 256, 16, 16]	295,168
BatchNorm2d-20	[-1, 256, 16, 16]	512
LeakyReLU-21	[-1, 256, 16, 16]	0
MaxPool2d-22	[-1, 256, 8, 8]	0
Dropout-23	[-1, 256, 8, 8]	0
Conv2d-24	[-1, 11, 8, 8]	25,355
BatchNorm2d-25	[-1, 11, 8, 8]	22
LeakyReLU-26	[-1, 11, 8, 8]	0
AdaptiveAvgPool2d-27	[-1, 11, 1, 1]	0

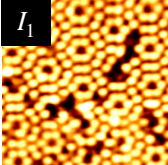
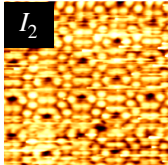
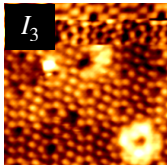
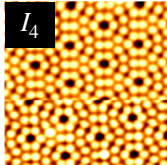
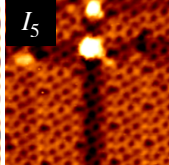
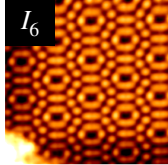
図 4.5: (a) 学習率 α 減衰の値プロット (b) 学習回数と loss やテスト精度に対する依存性プロット.

学習の段階で勾配を更新するために AdamW[13] optimizer を用いて勾配の最適化を行う. Adam[14] optimizer の学習率は動的に決めることができ, その結果人間による学習のパラメーター tuning が少なく済む [15]. しかし, Adam で実装されている学習重み減衰の計算方法は, SGD[16] optimizer に由来するもので, 数学的に正しいものではなかったが, AdamW ではこの実装ミスが修正されている. AdamW optimizer と一緒に適用したのは, ステップ学習率減衰 [17] という方法である. 学習率 α は 0.0005 から始まり, 図 4.5(a) が示すように 200 epoch ごとに半減し, 合計 720 epoch まで勾配の更新を行う. このステップ学習率減衰の方法を用いることで, 学習後期の損失を大幅に減少させ, 複雑なパターンの学習を改善することができる. 教師データを学習に用いるたび, オンラインで 4.2 節で紹介したデータの水増しの処理を行ってから勾配の更新に用いる. 勾配が更新されるたびに, 最適化された損失とテストデータセットを用いた検証精度の値は図 4.5(b) に示す. 720 epoch の学習があることで, 学習に用いたサンプルはデータセットの 720 倍分あるので, 測定パラメーターの変化 (画像の回転角度やスケール) にも対応可能である. 勾配の更新には cross entropy 損失関数 $L(Y, C)$ を用いる,

$$L(Y, C) = -Y[C] + \log(\sum_j \exp(Y[j])) \quad (4.3)$$

ここで, Y は 11 個の出力ラベルの重み値で, C は正しいカテゴリの index 番号である. この損失関数では multi-class の学習モデルに対応し, 各カテゴリの重みをそれぞれ出力するような Y の結果として得られる. このように損失関数を設計した理由は, 実際の測定結果では, 例えば同時に”Step”と”Bad Area 1”という結果もあり得るが, その時ネットワークの出力結果 Y は最もらしい単一のカテゴリの結果では同時に”Step”と”Bad Area 1”だという判断を下すことができないためである. multi-class に対応した Y を得ることで, Y に含む各カテゴリの重みの事後解析を通して, 同時に満たすラベルが存在しても判断することができる.

4.3.2 推定結果の事後処理

						
Category inference	Bad Area 1 (0.515) Good 2 (0.485)	Bad (1.000)	Bad (1.000)	Good Tip Change (0.528) Good (0.250)	Bad (0.755) Bad Area 2 (0.245)	Good 3 (1.000)
Good/bad inference	Good (1.000)	Bad (1.000)	Bad (1.000)	Good (0.779)	Bad (1.000)	Good (1.000)

* label name (weight)

図 4.6: 予測対象の画像 ($I_1, \dots, I_6$) と 2 つの予測タスクの結果 (category inference と good/bad inference). 一番マッチした分類ラベル名と重みを表に示す.

このモデルの推定処理に関しては, ピクセルが 256×256 の topography 画像 (I) を入力として受け入れ, 図 4.4 に示す各カテゴリの重みを $Y = (y_0, \dots, y_{10})$ として出力した後, Y に関する事後データ解析も行なっている. 事後データ解析によって, 以下の 2 つの予測タスクが行われる.

- 探針状態カテゴリの予測 (category inference)

- 探針が「良い探針」グループに属するかどうかの判定 (good/bad inference)

Category inference は入力した測定画像が属するカテゴリを予測するタスクであり, カテゴリ重みの総和を比較する処理を行う. Category inference では, 探針の種類を分類するために, Y の不確定要素を除去する閾値 (t) を設定する. Y の各要素 y_j について, 閾値 t より小さい値は無視し, 残りの要素のみを考慮する (これを $Y(y_j > t)$ と呼ぶ). そして, $Y(y_j > t)$ に含まれる各要素の割合を比較し, 重みの値が最も大きいものをカテゴリの結果として選び, その重み P_{class} を出力する.

$$P_{\text{class}} = \frac{\max(Y(y_j > t))}{\sum_j Y(y_j > t)} \quad (4.4)$$

Good/bad inference は探針が「良い探針」のグループに属するか, 「悪い探針」のグループに属するかを予測するタスクである. 図 4.1 のグループ分けに従って, $Y(y_j > t)$ の各要素に関して, 「良い探針」のグループ ($Y_{\text{good}}(y_j > t)$), 「悪い探針」のグループ ($Y_{\text{bad}}(y_j > t)$) とそれ以外に分けることができる. そして, 探針が「良い探針」グループに属するかどうかの判定は, 以下の重み $P_{\text{good}} > 0.5$ からわかる.

$$P_{\text{good}} = \frac{\sum_j Y_{\text{good}}(y_j > t)}{\sum_j Y_{\text{good}}(y_j > t) + \sum_j Y_{\text{bad}}(y_j > t)} \quad (4.5)$$

この例では, 図 4.6 に示す 6 枚の画像 ($I_1, \dots, I_6$) を入力画像としてランダムに選び, モデルの性能を確認した. 図 4.6 の画像の下に表に, 重み 0.2 より高い最も可能性の高いカテゴリでの category inference の結果と, good/bad inference の結果を示し, ラベル以降のかっこ内にはそれぞれ category inference の P_{class} と good/bad inference の P_{good} もしくは $1 - P_{\text{good}}$ を示している.

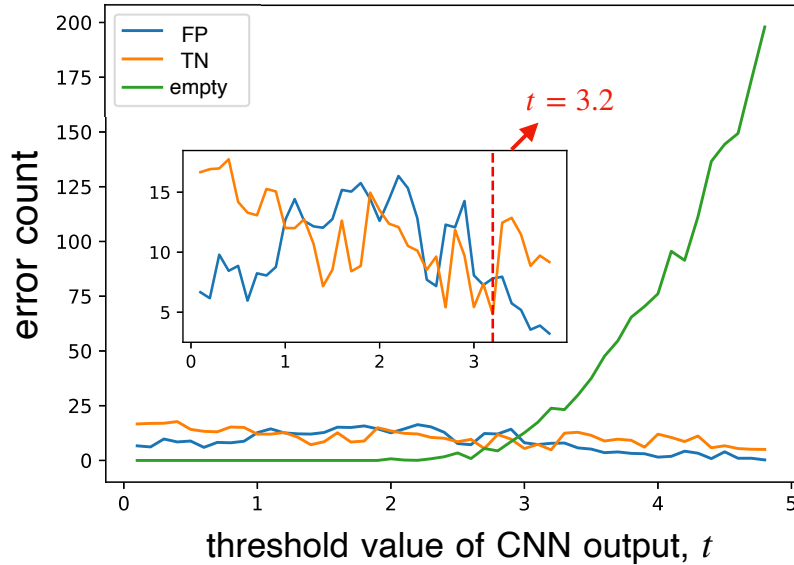


図 4.7: TN, FP と empty case に関する推定エラーの数と t の依存性.

ここで t の値は, Y の事後処理の各要素の重みに影響し, その結果として分類推定の精度に影響する. 基本的に, 分類推定のエラーには 3 つのタイプがある.

- True Negative (TN):

実際には「良い探針」であり、システムもそれを正しく予測する。これは正確な予測であり、探針修復システムは何も処理を行わない。

- False Positive (FP):

実際には「悪い探針」であるが、システムは「良い探針」と予測する。この場合、システムは誤って「良い探針」として判断し、修復処理を行わずに終了する。

- empty case:

閾値の設定が高すぎるため、 Y の全要素が 0 に足切りされてしまい、結果的に予測できないケースとなる。

システムは「良い探針」と「悪い探針」の判定を行い、その結果に応じて探針修復ルーチンを実行または停止する。TN と empty case のエラーは処理時間を増やすだけであり、探針修復ルーチンの実行には影響しない。しかし、FP のエラーはシステムの精度を低下させる。よって、目標は TN と empty case を最小限に抑えつつ、FP エラーをできるだけ少なくすることである。図 4.7 に示されているように、この目的に最適な閾値 $t = 3.2$ が特定される。

4.4 室温の Si(111)-(7×7) 表面における SPM 探針の状態制御に関する検証実験

ここまでの内容では、測定画像を入力として、畳み込みニューラルネットワークを使用して探針の状態を認識する方法について述べた。この手法は、SPM 測定における探針先端の自動修正の有用性を示しており、学習したネットワークを活用して、図 4.8(a) に示すような探針修復システムを構築した。このシステムは、探針先端の状態が事前に設定した基準を満たさない場合に、自動的に探針の状態を修復するプロセスを実行する。この修復プロセスでは、探針が表面に繰り返し接触される。これにより、探針先端の原子が構成する電子状態がランダムに変化する。探針を自動修復するシステムのコンセプトは、不適切な状態の探針が検出されると、表面に接触させ、探針先端の状態を変化させ、表面をイメージングして測定した原子像をディープラーニングモデルで評価することである。モデルの出力に基づいて、不適切な探針状態が検出された場合は再びループし、探針の状態を再度変化させるようにする。

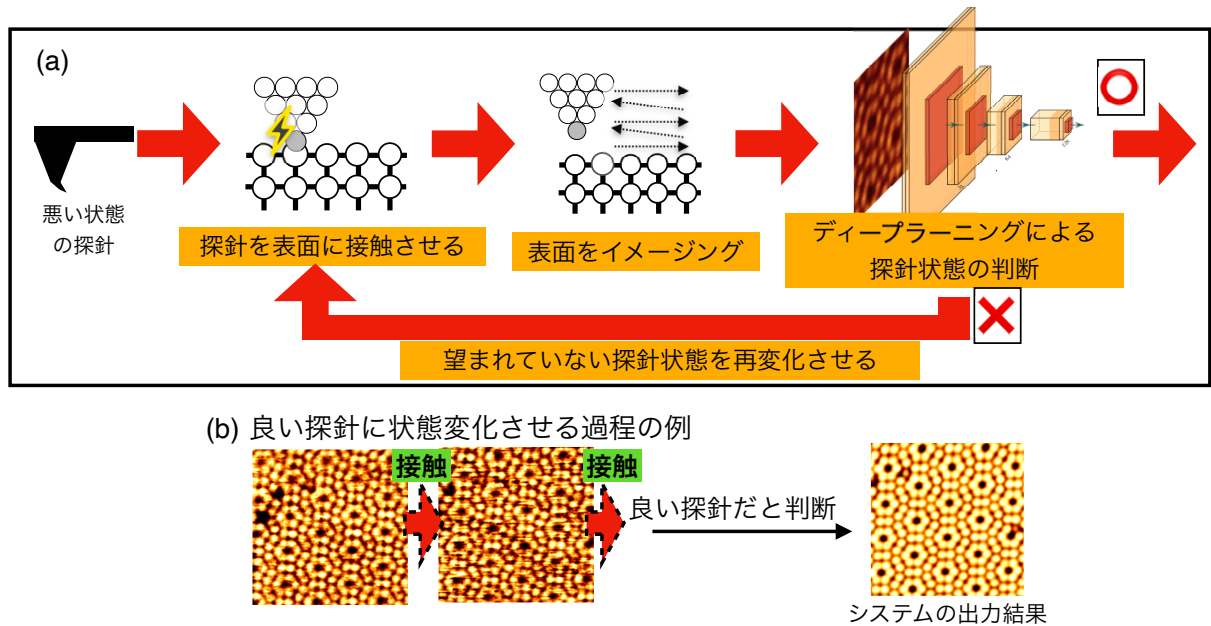


図 4.8: 畳み込みニューラルネットワークを用いたプローブ先端の自動調整システム図。

図 4.8(b) は良い探針に状態変化させる過程の例である。高いクオリティーの原子像が得られない探針が、2 回の接触プロセスによって、ネットワークが良い探針だと判断した結果、安定した原子分解能精度が取れる原子像が得られる探針が出力されたことがわかる。

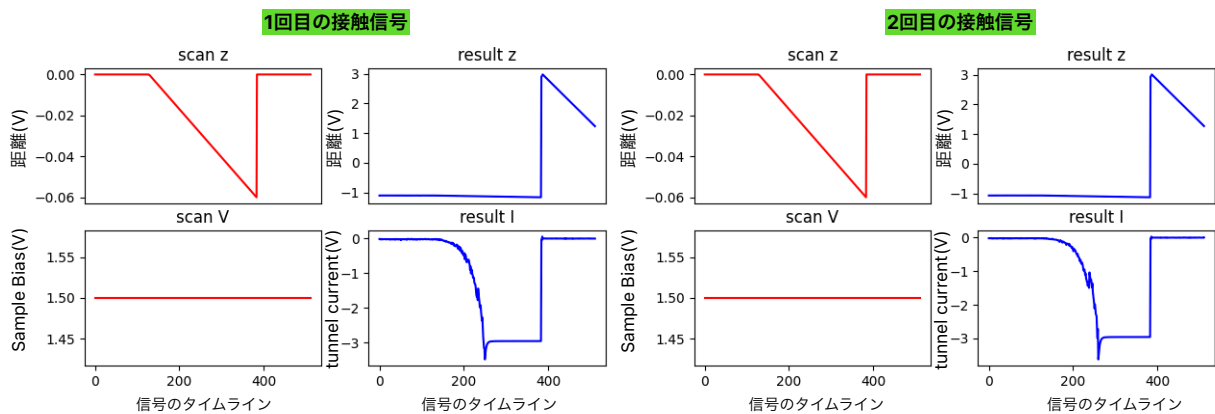


図 4.9: 探針修復過程 [図 4.8(b)] における 1 回目と 2 回目探針を表面に接触させるときの信号。

探針を試料に軽く接触させる操作として、探針は 200 pA の setpoint の場所から表面に向かって 0.9 nm 前進させるように設定されている。この操作によって探針が変化しない場合、次の操作はさらに 0.15 nm 表面側に移動する。よって、試料に向かって前進させる距離 z (nm) は、試行回数 n として、次式で設定している。

$$z = 0.9 + 0.15 * n \quad (4.6)$$

ここで、 n は探針を試料に軽く接触させる操作によって探針が変化しない場合のカウンターであり、変化しない場合の n はプラス 1 となり、変化した場合はマイナス 1 となる。図 4.9 では

探針修復過程 [図 4.8(b)] における 1 回目と 2 回目探針を表面に接触させるときの距離 (scan z), 試料電圧 (scan V) に関する入力信号と距離 (result z), トンネリング電流 (result I) に関する出力信号を示す. z に関するピエゾの圧電乗数は 15 nm/V のため, scan z で探針を前進させる信号の大きさは -0.06 V である. 探針が試料に接触した後, IV アンプの最大検出電圧に到達したため, result I の信号では -3 V の場所で信号の飽和が起こっている. 接触した後, 探針の z を 0 V の距離に戻した際に, result z の信号は計測を始めた場所に戻るのではなく, 過去の位置から大きな変化が現れている. その理由は試料に接触したことにより, 探針の先端では構造変化が起きたため, トンネリング電流の大きさも変わったためだと考えられる. ここで, 図 4.8(b) の 1 回目と 2 回目の接触した後得られた探針状態の結果が違いますが, 接触したときの信号はほぼ同じであるので, 現時点で探針修復の成否はほぼランダムで決まる.

ここで注意すべきなのは, 修復操作が探針先端の原子や多数の原子が強い相互作用力により測定表面に落ちる可能性があることである. そのため, 計測領域を現在の操作/観察範囲と探針修復領域に分ける必要がある. システムの設定では, 探針修復がアクティブになると, 現在の作業領域から y 方向に 37.5 nm 移動させ, Bad Area 1, Bad Area 2, Step ラベルのカテゴリーが検出されると, さらにスキャン領域を x 方向 (左または右) に移動させる. 移動したスキャン領域の距離 (x, y) はすべて記録され, 探針の状態が改善されたと判断された場合は, 元の作業領域に戻る. この実験では Si(111)-(7×7) の試料を使用し, $9.375 \times 9.375 \text{ nm}^2$ のスキャン範囲で, 画像取得時間, 画像ピクセル, 試料電圧, setpoint をそれぞれ 105 s, 256×256 , 1.5 V, 200 pA に設定して画像取得を行った. このプロセスに, 次のようなサイクル時間が含まれる: 探針が表面に軽く接触する操作に 1 秒, イメージングに 105 秒, 計算に 1 秒, そしてイメージング前にピエゾクリープ効果を最小限にするための 5 秒のアイドル時間である.

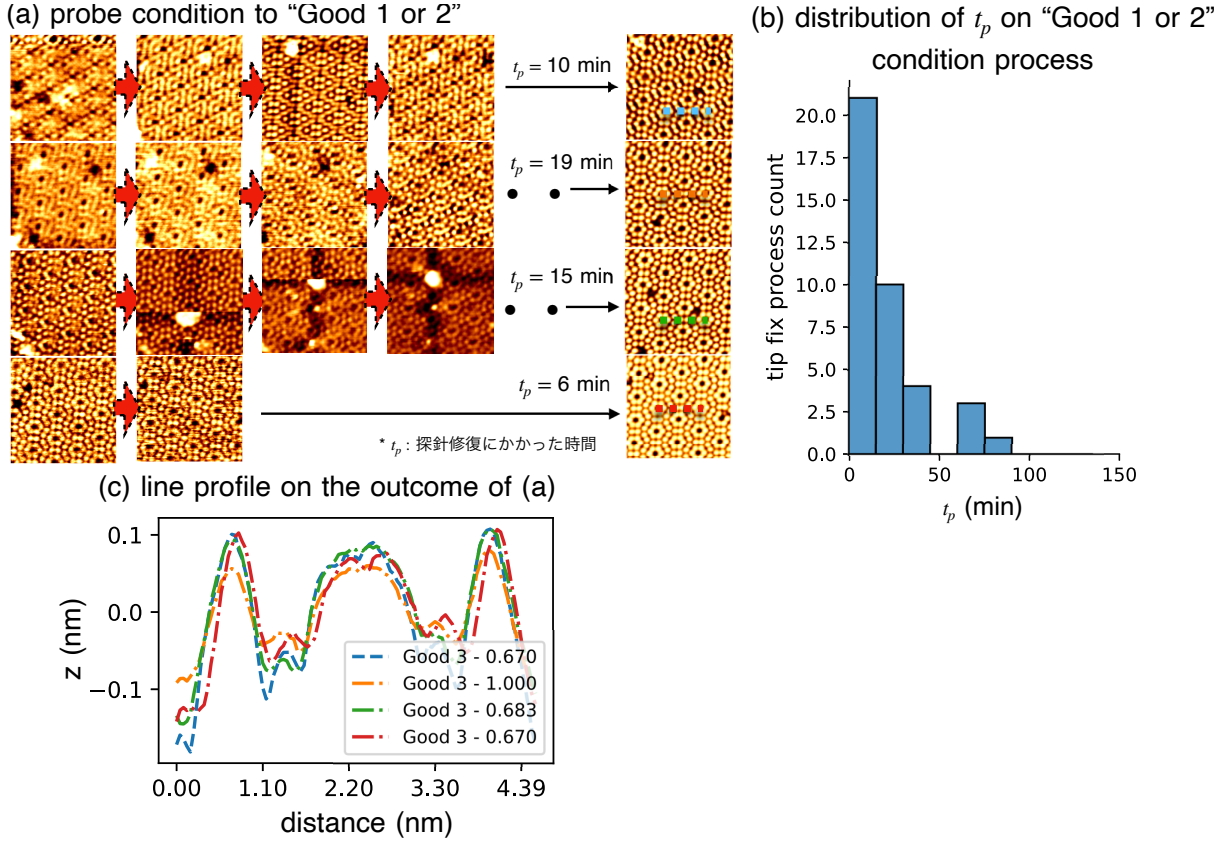


図 4.10: (a) Good 1 あるいは Good 2 の探針の状態制御をするときの原子画像のシーケンス (b) 探針の状態制御をするときにかかった時間 t_p の分布. (c) (a) のプロセスの最終のシーケンスの topography 上のラインプロファイルの比較. プロットの凡例は, 最も重みが高いカテゴリーのラベル名と重みの値を示す. (a) の topography マップ上の色のついた線は (c) の線の色に対応する.

このシステムの有効性を検証する実験として, Good 1 や Good 2, Good 3 の状態の探針を取得するために, 多くの探針修復ルーチンを実行させた. 自動的に繰り返しながら探針の先端を変化させるために, 探針の修復プロセス終了後, 本システムは探針を表面に衝突させることにより探針先端状態をリセットすることにし, 引き続き探針の修復プロセスを始める. また, 探針修復プロセスが終了を判断する条件として, どのネットワークのカテゴリ推定結果が来たときにその条件を満たすかは事前に設定できる. このようなルーチンを, 状態制御プロセスルーチンと呼ぶ. ここで, Good 1 あるいは Good 2, および Good 3 にその条件を設定した時, 最初の 4 回の表面に接触する操作の後に得られた topography シーケンスの例を, それぞれ図 4.10(a) および図 4.11(a) に示す.

画像取得と探針を変化させるプロセスを含む各探針の状態制御プロセスルーチンに要した時間 t_p が記録されている. 状態制御プロセスルーチンは, Good 1 あるいは Good 2 では 39 回, Good 3 では 81 回繰り返され, 各カテゴリーの t_p の分布が図 4.10(b) と図 4.11(b) にプロットされている. 表 4.3 に示したように, 探針を変化させるプロセスに要する回数の中央値は, Good 1 または 2 が 6 回, Good 3 が 9 回であり, それぞれ 22 分と 35 分の時間が消費された.

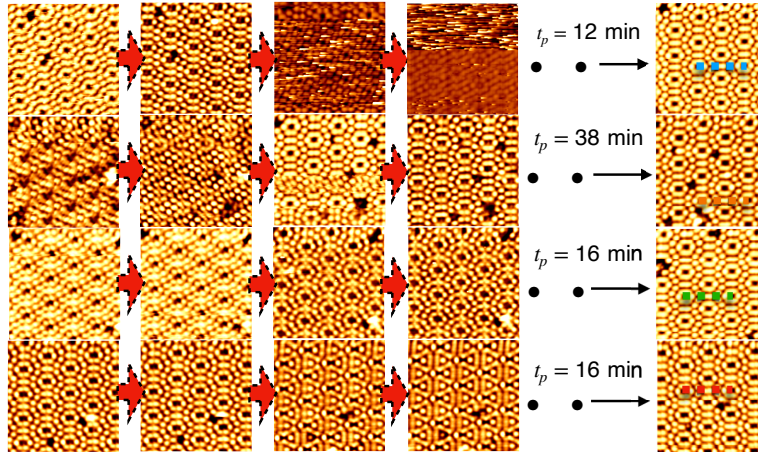
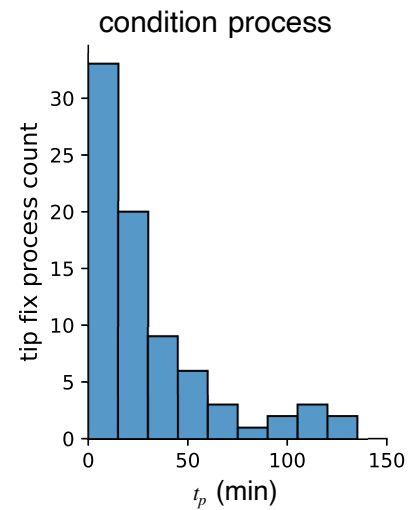
探針の状態制御を評価するために, 2 つの corner hole を横切る topography 上のラインプロファイルを図 4.10(c) や図 4.11(c) に示す. 推定された探針状態のカテゴリーとラベルに示され

表 4.3: 探針の状態制御をするためのルーチン数と経過時間.

探針の状態	ルーチン数 [count]			経過時間 [min]		
	平均値	中央値	標準偏差	平均値	中央値	標準偏差
Good 1 or 2	9.1	6	8.5	21.9	14.8	19.0
Good 3	15.3	9	16.7	34.5	21.0	35.4

た重みと比較する. Corner hole を横切るプロファイルは, Good 1 が最大のダイナミックレンジを持つことを示している [図 4.10(c)] ことが, Good 3 では2つの center adatom の形状が重なって分離されていない [図 4.10(c)] ことがわかるので, システムは自動的に探針を望んだ先端状態に修復できることを証明した.

(a) probe condition to “Good 3”

(b) distribution of t_p on “Good 3”

(c) line profile on the outcome of (a)

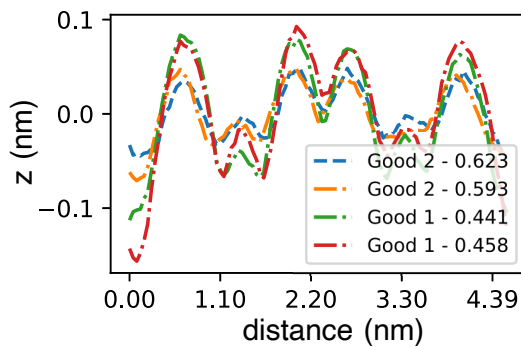


図 4.11: (a) Good 3 の探針の状態制御をするときの原子画像のシーケンス (b) 探針の状態制御をするときにかった時間 t_p の分布. (c) (a) のプロセスの最終のシーケンスの topography 上のラインプロファイルの比較. プロットの凡例は, 最も重みが高いカテゴリーのラベル名と重みの値を示す. (a) の topography マップ上の色のついた線は (c) の線の色に対応する.

この章で説明したシステムは, 訓練された畳み込みニューラルネットワークを使用して, 探針や試料の状態を分類し, それを室温においても探針の修復に適用できることを初めて実証した. 従来の探針修復に関する技術は, 探針状態を binary 分類 (良い/悪い) することに対して, この研究は探針をマルチ状態分類し, 探針の修復ルーチンに加えて, 終了条件を編集することにより,

探針の状態制御も可能となる．STM 探針の形状サイズは z ダイナミックレンジと2つの center adatom 原子の外観に関連付けることができ、データセットで定義した「良い探針」のグループの探針形状の状態は画像の外観から推測できる [18]．探針の状態は状態密度にも直接影響を受ける [19, 20] が、状態密度に基づくデータセットを作成するのは難しい [21]．探針形状の外観に基づく分類基準は柔軟性があり、他の SPM 装置にも適用できる．例えば、非接触原子間力顕微鏡 (NC-AFM) の実験では、プローブ形状が原子操作の成否に関与するため [22, 23]、このツールはこれらの実験にも適用できる．

4.5 SPM 探針の状態制御データに関するパターン認識ニューラルネットワーク

4.5.1 状態制御プロセスが起こす探針/表面状態変化

第 4.4 節で説明した探針の状態を制御するために、状態制御プロセスで探針の変化を起こすが、現在のプロセスにはランダム性があり、一度の制御で必ずしも探針の状態を確実に変化させることができない問題がある．図 4.8 で示した探針修復ルーチンでは、表面に接触するたびに再スキャンして探針の状態を確認している．このままの状態では、探針の状態を変える確実性がないため、表面への接触によって探針の状態が変わらない場合が多くあり、その結果、表面を再スキャンするプロセスに余分な時間がかかってしまうことがある．そのため、表面への接触時に得られる信号 z, I などの情報を活用し、この信号から探針の状態を検出できれば、探針の状態を変えずに表面を再スキャンする必要がなくなる．

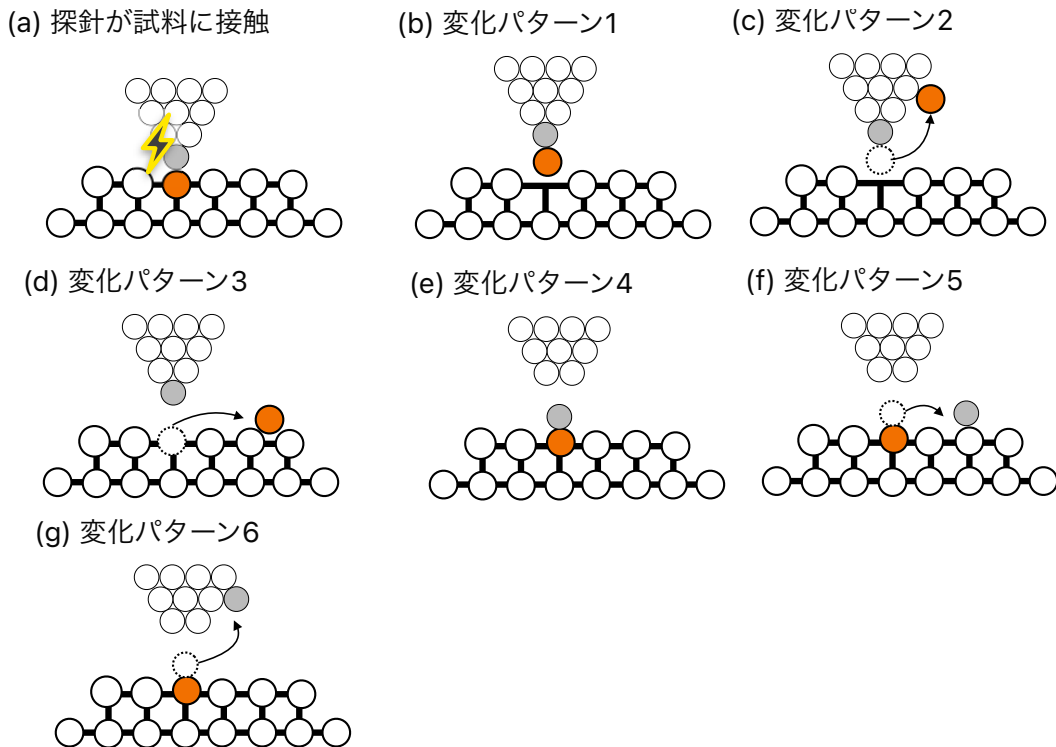


図 4.12: 状態制御プロセスが起こす探針/表面状態変化のパターンに関するメカニズムの予想.

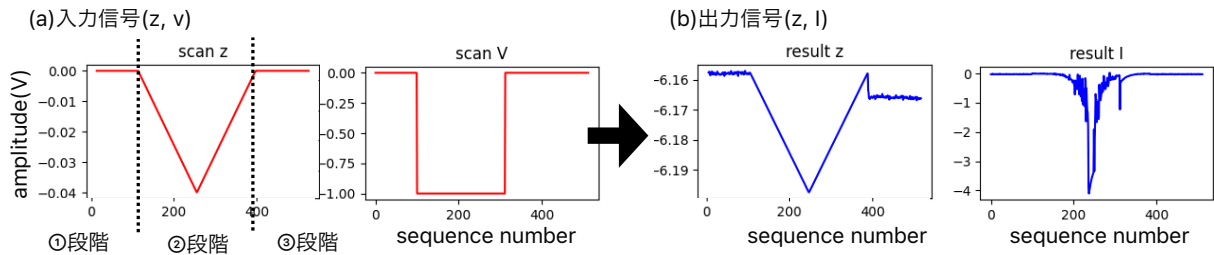


図 4.13: 状態制御プロセスに関する入力信号 (z , V) と出力信号 (z , I).

探針の状態制御プロセスは、表面上の任意の位置で探針の状態を変化させることができる。さらに、表面の特定の原子に対して行うと、それらの原子を操作することも可能である。図 4.12(a) が示すように、探針が表面に接触すると、その強い相互作用により、探針の先端原子と表面の原子が相互に影響しあうことで状態が変化する。(b)-(e) には、探針や表面の状態変化の予測されるパターンに関連するメカニズムの説明がある。例えば、探針の先端に表面の原子が付着する「原子ペン」[24] のような状況 [図 4.12(b)] や、その逆の場合、探針先端の原子が表面に落ちる [図 4.12(e)] こともあり得る。また、室温での拡散現象により、操作された原子がより安定な位置に移動する 2 段階のメカニズムが起こることがある。この場合、状態制御プロセスにより、操作された原子が探針に拡散すること [図 4.12(c, g)] や、表面に拡散すること [図 4.12(d, f)] が起こり得る。また、操作された原子を束縛していた化学結合を切った後、それらの原子が拡散する可能性もある。

探針の状態制御プロセスは、理想的な状況とは異なり、より複雑な振る舞いを示すことがある。実際の状況では、探針が複数の先端を持つ状態 (multi-tip) になったり、アシンメトリーな状態であったりすると、図 4.12 で想定した以外の現象が発生することがある。また、表面と探針の状態変化が同時に起こることもある。さらなる詳細な解析のためには、実際の状態制御プロセスで得られた I_z の信号データを用いて、表面変化や探針変化のパターンを統計的に分析する必要がある。もし、この信号データから表面変化や探針変化のパターンを機械学習の分類タスクで予測できれば、AI を用いた原子操作の実装が可能になるが、この博士論文ではこのテーマは扱われていない。この節で述べた内容は、 I_z の信号データを使用して探針修復の成功または失敗を予測することに焦点を当てているが、これらのアプローチは先ほど述べた原子操作の実装にも適用可能である。

4.5.2 状態制御プロセスで得られた信号

状態制御プロセスでは探針-試料間の相互作用を利用して強いインパクトを与え、探針の状態変化を誘発させている。図 4.13 は状態制御プロセスの入力信号と出力信号を示している。探針-試料に強いインパクトを与えるために、2 種類の入力信号が使用される。“scan z ”に関連する入力信号は探針-試料間の距離を縮め、相互作用力を強めることを意図している。“scan V ”に関連する入力信号は試料電圧にパルスを与え、探針や試料の原子に関連する電界蒸発を目指す。状態制御プロセス開始後、“scan z ”と“scan V ”信号は同時に計測装置に sequence として入力され、信号の行列はそれぞれ 512 個の測定電圧から構成される 1 次元の行列となる。これらの走査信号は段階的に段階 1 から段階 3 まで進行し、それぞれの段階において探針の制御は以下のように行う。

- 1 段階: z feedback をかけながらインパクトをかけようとする場所に一定時間待機する.
- 2 段階: z feedback を切って、インパクトを与える操作を行う.
- 3 段階: z feedback をかけ直してから、インパクトをかけた場所に一定時間待機する.

入力信号を測定器に送る際に、各 sequence 信号の適用後には、“result z ”は探針の z 軸位置を記録し、“result I ”は探針-試料間のトンネル電流を記録している。 z と I の出力信号の次元は入力信号と一致しており、それぞれの信号の sequence number は互いのタイミングに対応している。このような出力信号には表面や探針の状態変化に関する情報が含まれている。例えば、図 4.12 が示す変化した場所では、 z の高さが変動するため、1 段階と 3 段階の z 信号を比較することでその変化を追跡できる。また、インパクトを与えた時の 2 段階における I 信号の振る舞いの違いにより、探針-試料間の結合の変化を追跡することができる。

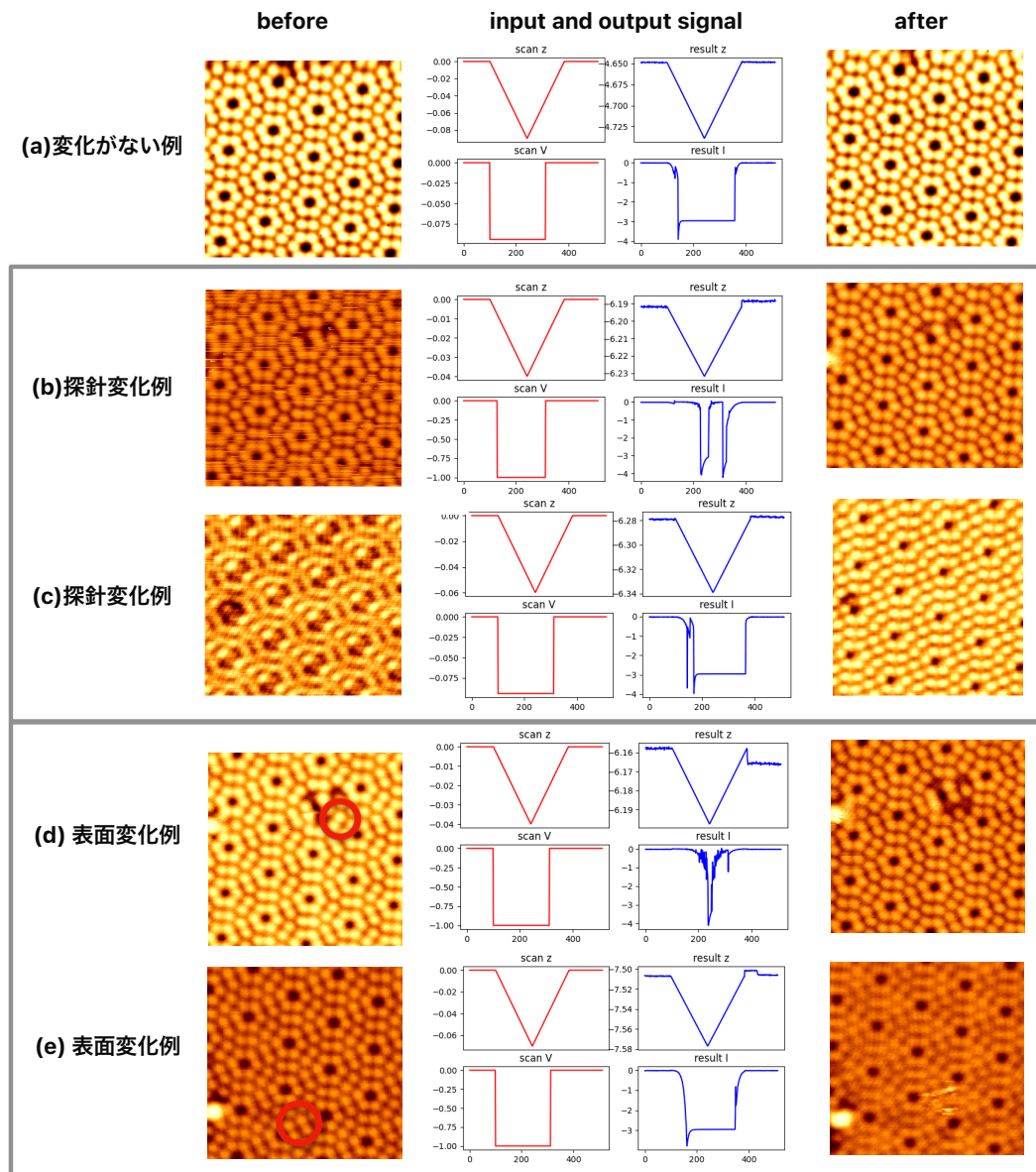


図 4.14: 状態制御プロセスする際に起こした探針/表面変化の例. それぞれの例は, 状態制御プロセスをする前や後の原子像を示していて, 原子像の間には状態制御プロセスの入力信号と出力信号を示している.

具体的な例として, 状態変化パターンに関する入力信号と出力信号, およびプロセス実行前と後の原子像を示したのが図 4.14 である. 図 4.14(a) は状態変化がない場合の例を示している. 出力信号を見ると, “result z”に関する 1 段階と 3 段階では高さが同じであるため, 探針や試料間の変化がないことが分かる. また, “result I”が 2 段階で一定値になったのは, トンネル電流の値が大きすぎて IV アンプの信号が飽和したためである. 図 4.14(b, c) は探針の状態変化する場合の例である. (b) では, “result z”の 1 段階と 3 段階に著しい高さの違いが見られるが, (c) では微小な差しかない. “result I”に注目すると, 特に (b) の 2 段階では 2 回の変化が起こっているように推測される. 最初の変化によって探針-試料間の電流が減少し, 再び変化することで電流が再び流れ始めたように見える. (b) と (c) では表面の変化は見られず, 探針先端の原子状態

の再調整のみが推測できる．図 4.12(f, g) のいずれかが発生したことが推測される．図 4.14(d, e) は表面の状態変化する場合の例である．“result z”では, (d) では before と after を見ると表面に存在する Si 原子が抜けたため, 1 段階と 3 段階の高さに変化があった．また, before と after の原子像から探針の状態変化もあり, この現象は図 4.12(b) に対応する．(e) では, unit cell に吸着物が生成されたため, 吸着物が動き回っていたことにより, 3 段階の高さが一定ではなく変化があった．特に (d) の 2 段階の “result I” を注目すると, 原子が取り抜けたことにより, トンネル電流が不安定になったように見える．この現象は探針から原子が表面にドロップしたこと [図 4.12(e)] に対応する．

4.5.3 マルチ入力次元信号に対する畳み込みニューラルネットワーク

このように, 探針/表面の変化に関する情報を含む出力信号 (z, I) を畳み込みニューラルネットワークによって認識させることができれば, 人間の代わりに, AI でも測定における判断ができる．具体的な戦略として, 出力信号 (z, I) から探針や表面の状態変化を判別し, 状態変化がない場合は原子像の再スキャンではなく, 再び状態制御プロセスを実行することにした．そのため, z, I に関する分類畳み込みニューラルネットワークの出力値を使用し, 探針や表面の状態変化を示す数値を設定した．教師データとして, 出力が 0 の場合は状態変化がないこと, 出力が 1 の場合は状態変化が起きていることを設定した．

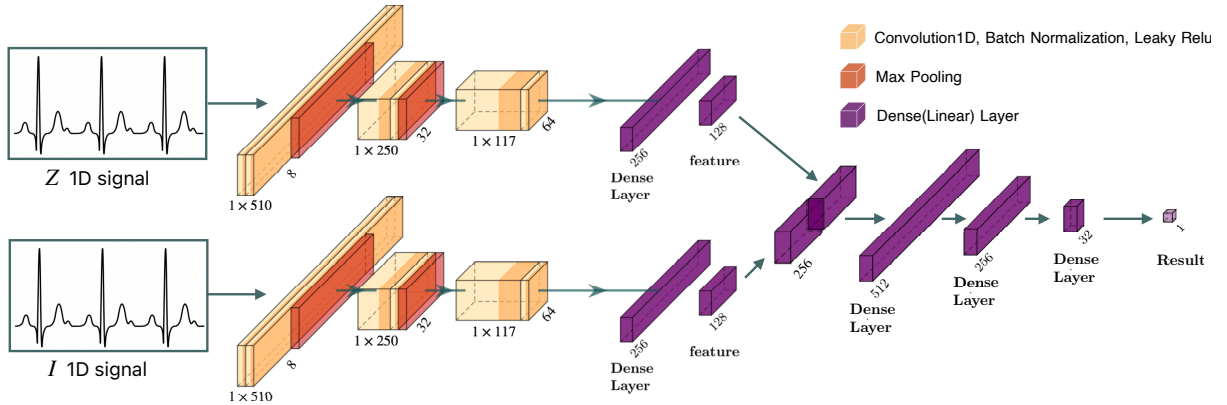


図 4.15: 状態制御プロセスの出力信号 z, I に関する分類畳み込みニューラルネットワークの構造．

図 4.15 では入力が出力信号 z, I , 出力で探針/表面の状態変化を判断させるニューラルネットワークの構造となっている．ニューラルネットワークの各層に関する詳細なパラメーターは表 4.4 に示す．今回設計したニューラルネットワークは 2 つ入力の構造となっており, 512 個の Z, I 信号がそれぞれ畳み込み処理を行ってから, 出力値を連結させる．それから multilayer perceptron(MLP) の構造を採用して, それによって 1 つの値を出力する．

全ニューラルネットワークに関する学習できるパラメーターは 2,204,385 個ある．教師データは 832 個であり, 訓練用データと検証用データは 80%, 20% の比例で分けた．損失関数は式 4.7 に示した MSE Loss を採用した．

$$MSE = \frac{1}{m} \sum_{i=1}^m (y_i - \hat{y}_i)^2 \quad (4.7)$$

ここで, m は入力と出力行列のデータ数であり, y_i と $\hat{y}_i$ はそれぞれニューラルネットワークの推定値と正解の値である. 訓練する際は, 第 4.3 小節で述べた AdamW Optimizer とステップ学習率減衰のトリックを使用した. 図 4.16 は訓練プロセスにおける学習回数 (training epoch) と損失 (左軸) や検証データ正解率 (右軸) の遷移図を示す. 訓練は 200 epoch として設定し, 第 200 epoch を確認すると正解率は 100% 近くに達成したことがわかる.

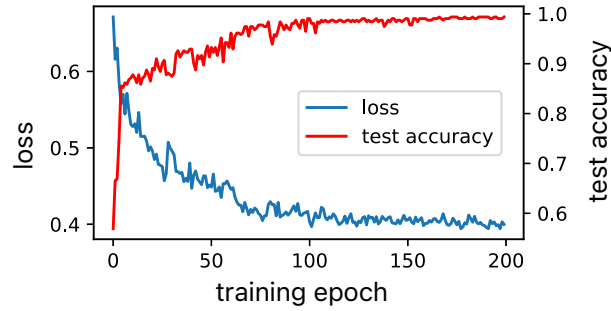


図 4.16: 図 4.15 の CNN を訓練する際の, 学習回数と loss やテスト精度に対する依存性プロット.

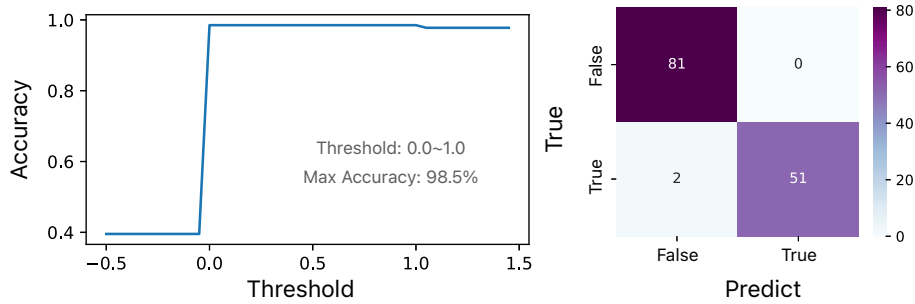


図 4.17: CNN 出力値に対する threshold に応じた CNN 精度の遷移 (左図) と threshold=0.5 に指定する際の confusion matrix (右図).

ニューラルネットワークの出力値に対して, ある threshold を設けて探針/試料が状態変化したかどうかを決める. 図 4.17 の左図では, threshold の値に対する予測の正解率が示されている. 0 から 1 の範囲で, 予測の正解率が最大の 98.5% に達することが分かった. 右図では, 予測値と真値の正誤を統計する confusion matrix がプロットされている. この confusion matrix は訓練したニューラルネットワークの評価指標として活用され, 第 5.4 小節で詳しく説明されている. confusion matrix において, 予測が誤ったケースとしては, 真値が True (探針/試料が状態変化した) に対して予測が False (探針/試料が状態変化しなかった) のサンプル数が 2 個あり, 真値が False に対して予測が True のサンプル数が 0 であることが示されている. 実際にこのニューラルネットワークを使用する場合, 真値が True に対して予測が False の場合, システムは探針の状態を誤って判断するが, その影響でシステムは状態制御プロセスをもう一度実行するだけである. 従って, 探針/試料が状態変化しないままシステムを終了させることはないので, システムの再現性 (Recall) はテストデータから 100% に達することが分かる.

以上で説明した状態制御プロセスの出力信号に対する分類ニューラルネットワークは探針の状態制御を迅速化できる. この状態制御プロセスは試料の原子を標的とした場合, 原子操作の判断にも活用できる. この場合, 図 4.12 に対応する原子操作パターンを表すために, 複数のニュー

ラルネットワークの出力値を用意すれば良い。ただし、より高い予測精度を得るためには、原子操作時のデータ数とパターンを増やすことが重要である。追加の訓練データを用意し、より多くの操作パターンをカバーすることで、ニューラルネットワークの性能を向上させることができる。これにより、より正確な原子操作の判断ができると見込む。

4.6 終わりに

本章では、SPM 探針の先端状態を再構成させるシステムを設計し、室温で Si(111)-(7×7) 表面上でその再現性を実験的に検証した結果について述べた。このシステムには multi-class CNN を利用して、計測した topography の画像を外見によって 11 個のカテゴリーに分類している。システムは自動で探針の状態を変えることができ、訓練した CNN の出力値からその状態になったかどうかを判断させるという状態制御プロセスによって、自動で探針の状態制御ができる。このシステムを用いた検証実験では、初めて室温においても、探針を再現性よく修復することが実証した。従来では探針状態を binary 信号 (良い/悪い) として検出しているが、この研究は多数の状態制御プロセスの試行に基づいて、特に topography 画像の外見から、探針の先端を鋭いタイプと鈍いタイプに分類することによって、そのいずれかの状態に、修正できることを実証した。また、状態制御プロセスの信号 (I, z) をさらに学習させることができ、その信号から探針/試料が状態変化したかどうかの判断に使えるので、探針修復の確実性と効率を引き上げることができた。この手法は探針を表面の原子に当てることによって、「原子ペン」手法による原子操作を、AI によって自動化に流用できる。

このツールはさまざまな実験のニーズに対応できる。例えば、自動的な高画質イメージングや原子操作など、実験目的に応じた探針先端条件の最適化に活用できる。さらに、このニューラルネットワークは探針状態と表面状態の両方を分類することができるため、自動的な計測タスクや計測操作の補助など、さまざまな SPM アプリケーションに使用できる可能性があり、第 5.5 節の自動計測にも活躍する。本章で示したモデルは Si(111)-(7×7) のみ対応しているが、学習データセットは第 5.3 小節の方法で実験的に自動で集められるので、他の試料への運用は低いコストのモデルチューニング作業によって可能となる。

表 4.4: マルチ入力次元信号み込みニューラルネットワークの詳細パラメーター.

Layer (type)	Output Shape	Param count
Conv1d-1	[-1, 8, 510]	32
BatchNorm1d-2	[-1, 8, 510]	16
LeakyReLU-3	[-1, 8, 510]	0
MaxPool1d-4	[-1, 8, 254]	0
Conv1d-5	[-1, 32, 250]	1,312
BatchNorm1d-6	[-1, 32, 250]	64
LeakyReLU-7	[-1, 32, 250]	0
MaxPool1d-8	[-1, 32, 123]	0
Conv1d-9	[-1, 64, 117]	14,400
BatchNorm1d-10	[-1, 64, 117]	128
LeakyReLU-11	[-1, 64, 117]	0
MaxPool1d-12	[-1, 64, 56]	0
Linear-13	[-1, 256]	917,760
LeakyReLU-14	[-1, 256]	0
Dropout-15	[-1, 256]	0
Linear-16	[-1, 128]	32,896
Conv1d-17	[-1, 8, 510]	32
BatchNorm1d-18	[-1, 8, 510]	16
LeakyReLU-19	[-1, 8, 510]	0
MaxPool1d-20	[-1, 8, 254]	0
Conv1d-21	[-1, 32, 250]	1,312
BatchNorm1d-22	[-1, 32, 250]	64
LeakyReLU-23	[-1, 32, 250]	0
MaxPool1d-24	[-1, 32, 123]	0
Conv1d-25	[-1, 64, 117]	14,400
BatchNorm1d-26	[-1, 64, 117]	128
LeakyReLU-27	[-1, 64, 117]	0
MaxPool1d-28	[-1, 64, 56]	0
Linear-29	[-1, 256]	917,760
LeakyReLU-30	[-1, 256]	0
Dropout-31	[-1, 256]	0
Linear-32	[-1, 128]	32,896
Linear-33	[-1, 512]	131,584
LeakyReLU-34	[-1, 512]	0
Dropout-35	[-1, 512]	0
Linear-36	[-1, 256]	131,328
LeakyReLU-37	[-1, 256]	0
Linear-38	[-1, 32]	8,224
Linear-39	[-1, 1]	33
ReLU-40	[-1, 1]	0

参考文献

- [1] Albrektsen, O. *et al.* Reliable tip preparation for high - resolution scanning tunneling microscopy. *Journal of Vacuum Science & Technology B* **12**, 3187–3190 (1994). [<URL>](#).
- [2] Hapala, P. *et al.* Mechanism of high-resolution stm/afm imaging with functionalized tips. *Phys. Rev. B* **90**, 085421 (2014). [<URL>](#).
- [3] Rashidi, M. *et al.* Autonomous scanning probe microscopy in situ tip conditioning through machine learning. *ACS Nano* **12**, 5185–5189 (2018). [<URL>](#).
- [4] Krull, A. *et al.* Artificial-intelligence-driven scanning probe microscopy. *Communications Physics* **3**, 54 (2020). [<URL>](#).
- [5] Wang, S. *et al.* Automated tip conditioning for scanning tunneling spectroscopy. *The Journal of Physical Chemistry A* **125**, 1384–1390 (2021). [<URL>](#).
- [6] Buslaev, A. *et al.* Albumentations: Fast and flexible image augmentations. *Information* **11** (2020). [<URL>](#).
- [7] Lin, M. *et al.* Network in network. *CoRR* **abs/1312.4400** (2014). [<URL>](#).
- [8] Ioffe, S. *et al.* Batch normalization: Accelerating deep network training by reducing internal covariate shift. *CoRR* **abs/1502.03167** (2015). [<URL>](#).
- [9] Maas, A. L. Rectifier nonlinearities improve neural network acoustic models (2013). [<URL>](#).
- [10] Srivastava, N. *et al.* Dropout: A simple way to prevent neural networks from overfitting. *Journal of Machine Learning Research* **15**, 1929–1958 (2014). [<URL>](#).
- [11] *Rethinking the Inception Architecture for Computer Vision*. [<URL>](#).
- [12] Agarap, A. F. Deep learning using rectified linear units (relu) (2019). [<URL>](#).
- [13] Loshchilov, I. *et al.* Decoupled weight decay regularization. In *International Conference on Learning Representations* (2019). [<URL>](#).
- [14] Kingma, D. P. *et al.* Adam: A method for stochastic optimization. In Bengio, Y. *et al.* (eds.) *3rd International Conference on Learning Representations, ICLR 2015, San Diego, CA, USA, May 7-9, 2015, Conference Track Proceedings* (2015). [<URL>](#).
- [15] Ruder, S. An overview of gradient descent optimization algorithms (2017). [<URL>](#).

- [16] Shamir, O. *et al.* Stochastic gradient descent for non-smooth optimization: Convergence results and optimal averaging schemes. In Dasgupta, S. *et al.* (eds.) *Proceedings of the 30th International Conference on Machine Learning*, vol. 28 of *Proceedings of Machine Learning Research*, 71–79 (PMLR, Atlanta, Georgia, USA, 2013). [<URL>](#).
- [17] You, K. *et al.* How does learning rate decay help modern neural networks? (2019). [<URL>](#).
- [18] Wang, Y. L. *et al.* Tip size effect on the appearance of a stm image for complex surfaces: Theory versus experiment for Si(111)–(7×7). *Phys. Rev. B* **70**, 073312 (2004). [<URL>](#).
- [19] Jelínek, P. *et al.* Tip-induced reduction of the resonant tunneling current on semiconductor surfaces. *Phys. Rev. Lett.* **101**, 176101 (2008). [<URL>](#).
- [20] Wang, J. *et al.* Direct imaging of surface states hidden in the third layer of si (111)-7 × 7 surface by pz-wave tip. *Applied Physics Letters* **113**, 031604 (2018). [<URL>](#).
- [21] Krejčí, O. *et al.* Principles and simulations of high-resolution stm imaging with a flexible tip apex. *Phys. Rev. B* **95**, 045407 (2017). [<URL>](#).
- [22] Sugimoto, Y. *et al.* Statistics of lateral atom manipulation by atomic force microscopy at room temperature. *Phys. Rev. B* **78**, 205305 (2008). [<URL>](#).
- [23] Sugimoto, Y. *et al.* Role of tip chemical reactivity on atom manipulation process in dynamic force microscopy. *ACS Nano* **7**, 7370–7376 (2013). [<URL>](#).
- [24] Sugimoto, Y. *et al.* Complex patterning by vertical interchange atom manipulation using atomic force microscopy. *Science* **322**, 413–417 (2008). [<URL>](#).

第5章 表面の情報検出ディープラーニングを用いた高機能自動計測システム

5.1 はじめに

SPM を用いた実験は複雑で、良いデータを撮るためには SPM 実験者の専門知識と豊富な操作経験が必要である。また、そのプロセスも時間と労力がかかり、試行錯誤を繰り返すことも多い [1]。AI による SPM 自動計測システムの構築は、人間への依存を減らすことができるため、このような問題を解決する主流のソリューションとして注目されている。SPM における AI と画像認識をかけ合わせる研究は現在、SPM データ解析と処理の領域で集中している [2, 3, 4, 5, 6]。もしこれらの AI データ解析技術をリアルタイムの測定データ処理に実装することができれば、SPM を自動化することができる。しかし、熱問題が軽減される極低温環境でのセットアップと違い、室温における AI ベースの SPM システムを実装するためにはいくつかの課題が存在する。図 5.1 が示したように、室温といった不安定な環境における測定で不良データや予測できないデータが頻繁に得られることである。そのため、データ解析の際で用いた AI モデルとは別に、予測できないデータを扱うためのロバスト性がリアルタイム計測モデルには重要である。また、データセット収集の際には大量なシミュレーションデータを訓練に用いることが一般的であるが、SPM シミュレーションデータは実際の測定における探針の状態や吸着物のパターンの違いによる原子像外見の変化パターンを網羅できない。

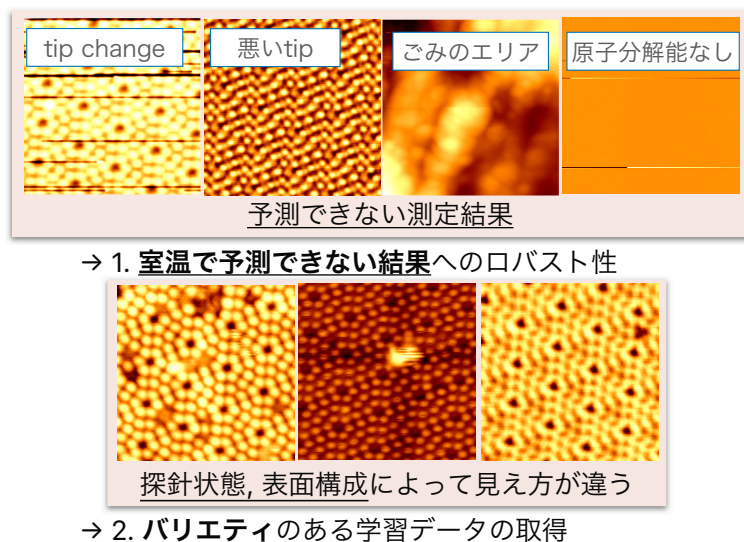


図 5.1: ニューラルネットワークをリアルタイム自動計測に用いる際の課題。

本章では、第 2 章で設計した SPM の AI 機能を含む制御ハードウェアと、第 3, 4 章で紹介したソフトウェアを高度に統合したシステムに加え、スキャンロジックを具体的に実装したこと

によって、ロバストなニューラルネットワークを用いた開発と実験結果について報告する。第5.2節では計測した表面の情報を網羅的に検出する複合型ニューラルネットワークについて紹介する。第5.3節で図5.1の説明で述べた室温でのリアルタイム計測で用いた訓練用データセットの課題に対して、高精度なニューラルネットワークを訓練するデータセットを大量に取得する戦略について紹介する。これによって学習したネットワークの精度評価は第5.4節で示す。続いて、この複合型ニューラルネットワークを活用した2つの自動表面特性評価のデモンストレーションを報告する。第5.5節では、Si(111)-(7×7)における自動制御による高品質画像収集システムについて紹介する。第5.6節でSi(111)-(7×7)における原子精度のSTS測定のためのbig data収集と解析結果について報告する。これらのデモンストレーションは、原子レベルの高精度測定を実現するための、計測に関する意思決定や室温条件での最適化など、実験のあらゆる段階が室温で完全に自動化されている。

5.2 表面の情報検出に用いる複合型ニューラルネットワーク

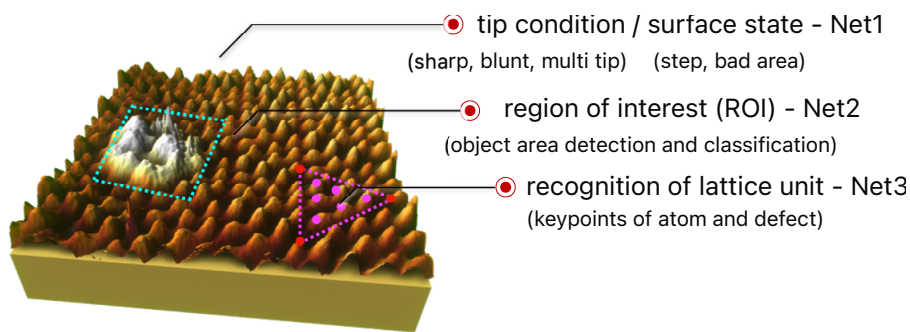


図 5.2: 複合型ニューラルネットワークが検出する情報の概要.

本研究で実装した複合型ニューラルネットワークが検出する表面の情報を図5.2に示す。このネットワークは測定した原子像を入力として、出力する情報は、(1) 鋭い/太い/multi tipなどの探針の状態とステップテラスのあるエリアやごみのあるエリアなどの表面の状態を multi-class 分類, (2) 吸着物の検出と分類, (3) Si(111)-(7x7) の faulted/unfaulted halfを検出と分類, および corner hole/corner adatom/corner adatom の位置特定を含む。

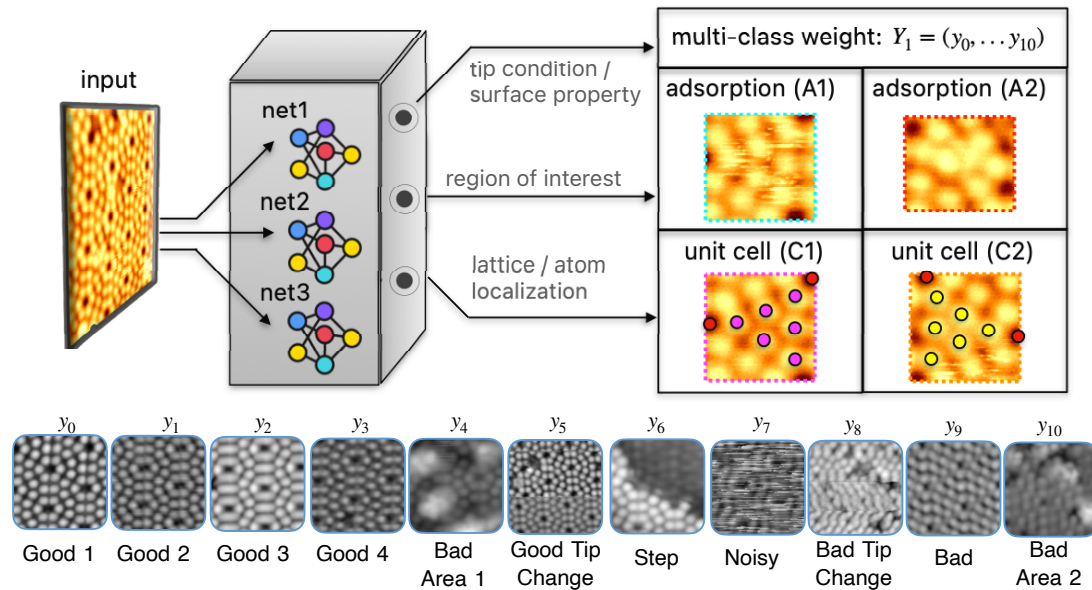


図 5.3: 複合型ニューラルネットワークの構造と出力データの構造.

図 5.3 では、このディープラーニングモデルのアーキテクチャが示されており、3つの異なるタスクをそれぞれ担当する3つの異なるモデル (“Net1”, “Net2”, “Net3”) を含む複合ネットワーク構造を設計した. 表 5.1 に複合ネットワークの詳細を示す. Net2 と Net3 はそれぞれ YOLOv8-small と YOLOv8-large 構造 [7] を用いており、ネットワークの初期パラメータは YOLOv8 の事前に学習されたモデルから読み込まれる. Net3 の YOLOv8-large は 43.7 百万の学習可能なパラメーターが存在しており、YOLOv8-small の 11.2 百万のパラメーターよりも多く、原子 key point の位置決め精度を向上させるために、より大きなモデルとして選択されているが、推定速度はおよそ 1/2 倍となる.

表 5.1: 複合型ニューラルネットワークに関する詳細の情報.

Name	Architecture	Task	Output value
Net1	Custom CNN	classification	scalar
Net2	YOLOv8s	detection	bounding boxes
Net3	YOLOv8l	keypoint detection	bounding boxes and keypoints

Net1 は、第 4 章で紹介したモデルであり、探針先端状態と表面特性の多クラス分類を行う. $(y_0, y_1, y_2, y_3, y_5, y_7, y_9)$ のカテゴリは探針の先端状態が良いかどうかの判定に、 (y_4, y_6, y_{10}) のカテゴリは表面上の動く吸着物 (A1) と動かない吸着物 (A2) を検出し、それらを bounding box(左上隅座標 (x, y) , 幅 w , 高さ h) の関心領域 (ROI) として出力する. Net3 は、Si(111)-(7×7) の faulted/unfault half(C1, C2) を bounding box として検出し、検出した各セル内の 3つの corner hole, 3つの center adatom, 3つの corner adatom を含む 9つの原子サイトを key point(座標 (x, y) の点) として特定できる.

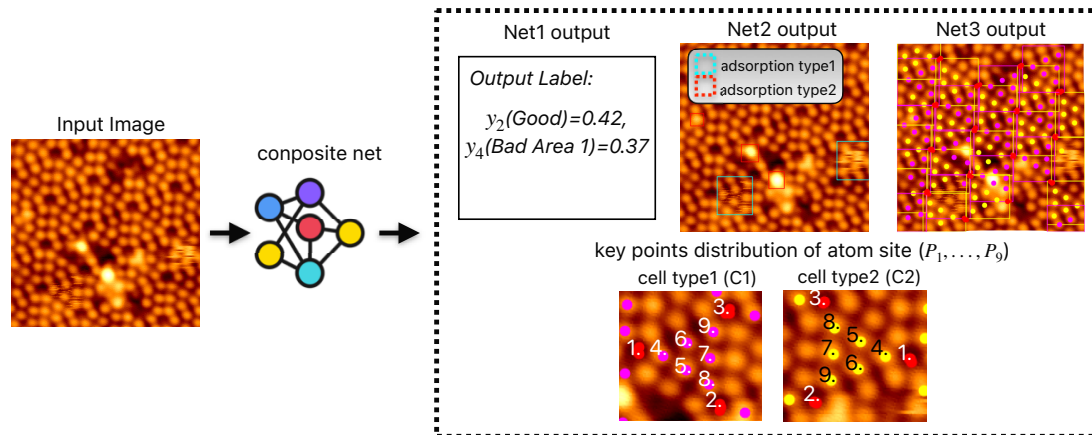


図 5.4: 複合型ニューラルネットワークが入力データに対する出力例.

モデルの検出例として, ある topography が選ばれて, 入力データとしてモデルにフィードすると, 図 5.4 のように結果が出力される. 入力した画像と出力した結果から比較すると, Net1 の出力 ($Y = (y_0, \dots, y_{10})$) は正規化され, 出力重みの最大値順から見ると, 探針の先端は良好 ($y_2 = 0.42$) であるが, 吸着物と欠陥の成分がある程度マップの面積を占有することにより, 表面は良好な状態ではない ($y_4 = 0.37$) 可能性があることがわかる. Net2 と Net3 の検出結果について, 検出 score が 0.3 以下の結果は除外されている. 吸着物 (Net2) と unit cell (Net3) の ROI は検出され, 異なるタイプを表す異なる色の bounding box として囲まれている. 特に, Net3 の unit cell 検出に関して, もし unit cell が他の吸着物で被さっていて, その被さる面積が多い場合は検出しないように学習データセットを設定している. 吸着物が被さる面積が少ない場合, 被さった原子サイトがあっても, その位置を予測して出す仕様である. Net3 の原子サイトの key point 検出に関しては, 9つの原子サイトの key point を, 以下の順番通りで出力される. P_1, P_2, P_3 は corner hole, P_4, P_8, P_9 は corner adatom, P_5, P_6, P_7 は center adatom を表す. よって, 検出したポイントの順番を参照することで, 原子サイトのタイプの分類も可能である. このように, Net2 と Net3 を利用すると, 測定したデータの特定の領域と原子サイトの座標を理解するのに役立ち, 対応する位置の表面特性評価を行うことができる.

表 5.2: 3つのネットワークを学習する際のハイパーパラメータ.

Name	Learning rate	Training epoch	Batch size
Net1	5×10^{-4}	720	16
Net2	2×10^{-3}	150	16
Net3	1×10^{-3}	300	16

すべてのニューラルネットワークは, スキャンした画像を入力として使用する. 画像の前処理として, 式 3.6 の平面 flatten 減算と式 3.7 の Gaussian Hann フィルタが適用され, その後画像の各次元の長さが 256×256 にリサイズされる. これらのデータセットは 80% が訓練用, 20% が検証用で分かれている. データを増やすために, ランダムアフィン変換, 画像のトリミング, コントラスト変化のバリエーションを設け, 学習用データセットと検証用データセットに対して別々に適用し, データセットを 5 倍に拡張した. AdamW optimizer で 3 つのネットワークを別々で学習して最後に 1 つの複合ネットワークに統合した. 学習する際のハイパーパラメータは表 5.2 に示す.

5.3 室温リアルタイムの計測のための学習データ取得戦略

図 5.1 で示したリアルタイム計測における学習データ収集の課題に対して、データ取得戦略を考案した。まずは予測不可能で不安定な結果に対するロバスト性を確保してから、大量なバリエーションがあるデータセットを集めるというステップを踏む、2 Phase の実験的に学習データを集める戦略を採用した。図 5.5(a) ではそのステップアップを含むデータ取得戦略のシステム図を示す。

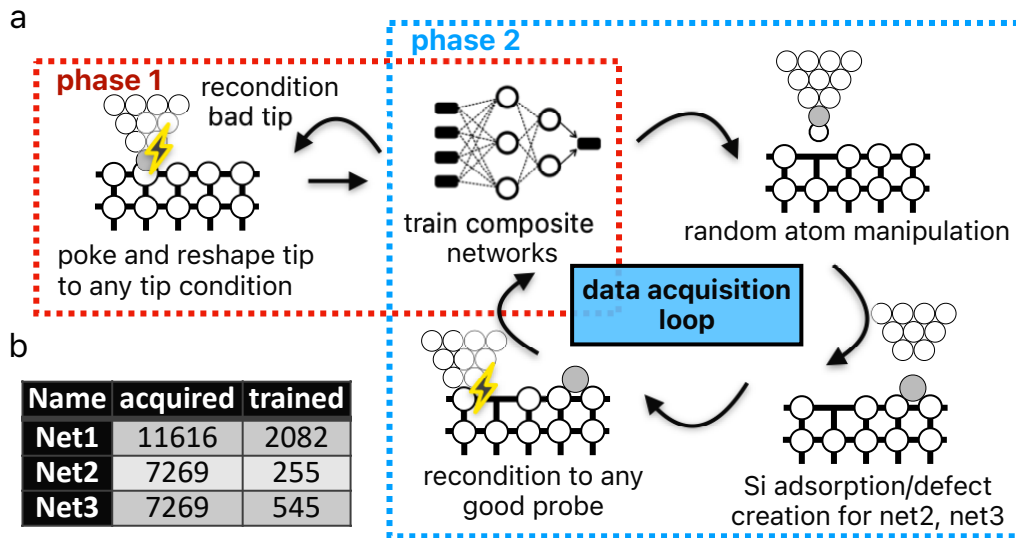


図 5.5: (a) 2 段階のステップアップを含むデータ取得方法に関するシステムの概略図。 (b) Net1, Net2, Net3 の学習のために取得したデータの数と訓練に用いたデータの数。

Phase 1 では、探針先端の状態のデータセットを生成することが主な目的である。この段階では、第 4 章で述べた探針の状態最適化で用いられた方法と同じ方法で探針の先端の形状を変更し、良い状態または悪い状態の探針でスキャンした topography を収集し、Net1 および Net3 の学習に使用する。この Phase には、図 4.8 で示した悪い探針を修復するシステムを使用するが、初期的に十分な量のデータセットが収集されていないため、モデル精度は低く、探針を良好な状態にリフォームしないと出力することができない。しかし、探針の修復が実現できなくとも、Phase 1 をひたすらループすることによってデータセットを収集し続けることができ、この間で探針はランダムに様々な状態に再形成され、大量のバリエーションのあるデータを取得でき、室温でのロバストなモデルの学習に役に立つ。

Phase 2 では、Net3 によって出力した原子位置の情報を用いて、後述する「原子ペン」[8] の手法を用いて unit cell に入った Si Adatom 原子を取り出す。原子操作した後、状態が悪くなった探針は Phase 1 で収集したデータによって高い推定精度を達成した Net1 を用いた探針修復システムで修復することもできる。Phase 2 をループさせることで、原子像上の吸着物と欠陥パターンをより多く生成することができ、これらのデータセットを 3 つのネットワークの学習に使用する。

この戦略により、リアルタイム測定用のモデルを学習するためのデータ数とばらつきを自動的に増やすことができる。図 5.5(b) の表で示した 10,000 点以上のデータが収集され、そのうち 2,000 点が Net1 の学習に使用される。一方、Net2 と Net3 を学習するために、7,000 の測定データから吸着物と欠陥サンプルを含む数百のデータを使用した。全てのデータを使用しない理由

として、あるタイプのデータが学習データを多く占めると過学習が起きやすいことを考慮して、データのバランスを考えてデータセットを作成した。

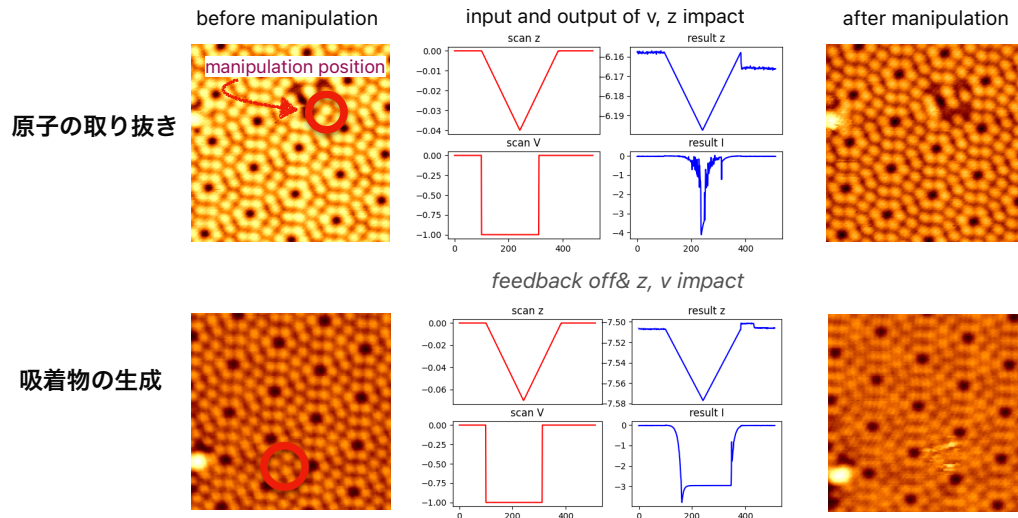


図 5.6: Si(111)-(7×7) での自動原子引き抜きの手法と結果.

「原子ペン」を自動的に行う手法として、熱ドリフトを補正してから、第 4.5 小節で述べた探針状態プロセスで操作対象の原子に探針を配置させて行う。図 5.6 は第 4.5 小節で述べた手法による原子操作した例であり、unit cell から Si adatom 原子を取り抜いた例と unit cell に Si 原子を落として、吸着物として生成させる例を示す。探針状態プロセスによって、原子に向かって叩くと表面の原子が確率的に取れる。続いて探針の先端に Si 原子がついた状態でもう一度表面の unit cell を叩くと、確率的に原子を落とすことができる。探針状態プロセスの信号を認識させ、試料/表面の状態変化が起こったかどうかを推定し、試料/表面の状態変化が起こったとき、原子操作が完了したものと見なす。

作成したデータセットには、教師データとして「正解」をラベリングする必要がある。Net1 に関するデータセットのラベリングはしやすく、各データを 11 個クラスに代表するファイルフォルダーに入れるとラベリング作業が完了する。Net2 と Net3 では画像の上で bounding box と key point のマーカーをつける必要があり、このようなデータをラベリングする上で、GUI として描画できるソフトとして CVAT[9] を利用した。CVAT は、Windows で WSL2(Windows Subsystem for Linux 2) を使用した仮想 Linux 環境の中で実行され、docker[10] 経由でセットアップされる。

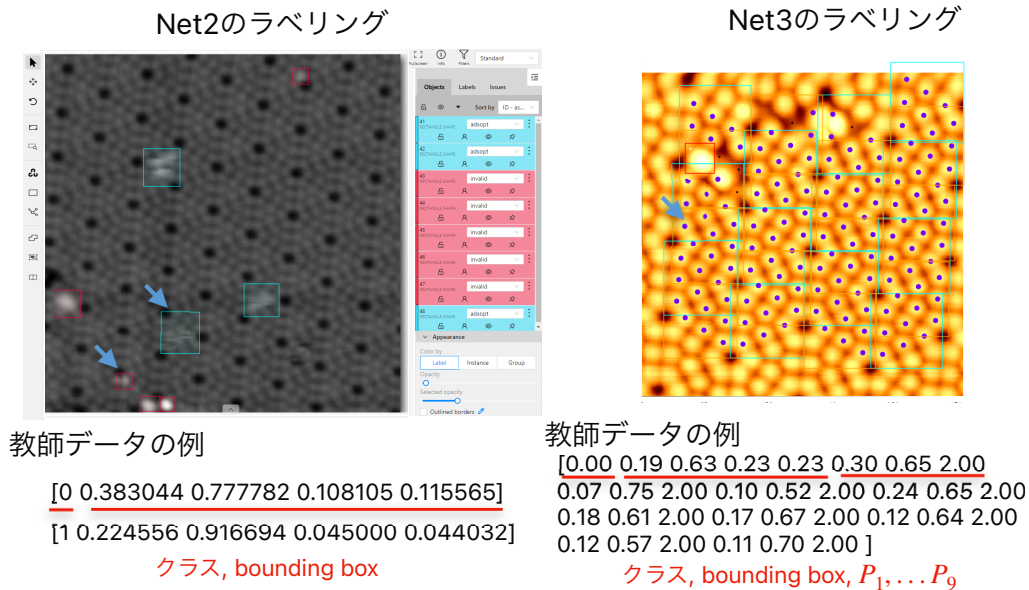


図 5.7: Net2 と Net3 の教師データをラベリングする例.

図 5.7 では Net2 と Net3 をラベリングする例を示す. ラベリングした結果は YOLO dataset のフォーマットに変換される. Net2 のラベリングに関して, 画像をインポートした後 GUI を用いて, クラスと bounding box の位置を設定する. 2つの青色の矢印が示したラベルのデータは「教師データの例」で実際のデータを示す. ラベリングした1つの bounding box には5つの値が含まれており, 最初の値はラベルのクラスを代表し (0 は動く吸着物で 1 は動かない吸着物を表す), 続く 4 つの値は bounding box のデータ構造となる. Net2 のラベリングに関して, Net2 の bounding box のラベルの後に 9 つの key point ($P_1, \dots, P_9$) のデータが続く. 1 つの key point には3つの値が含まれており, x, y と key point が見えるかどうかのフラグを表す. ここで, key point が見えるかどうかのフラグは一般的に 2 の値となるが, 障害物に被さって見えないときは 1, 学習の勾配更新に適用しないときは 0 と設定する [11].



図 5.8: 教師データのラベリング方法.

教師データの例 [図 5.7] を見ると, 1 つのデータのラベリングにつき, 膨大な作業が必要とすることがわかる. 特に, 1 つのマップに数十個の unit cell が存在し, unit cell 上の原子を丁寧に位置付ける必要があるため, このようなデータセットのラベリングには時間短縮の工夫をすることが望ましい. 実際のアプローチとして, 数十個のデータを手動ラベリングした後, 一度作成した教師データを用いてモデルを訓練する. 図 5.8 のように, 仮訓練したモデルにラベリング待ちのデータセットを入力し, 出力した情報に基づいて YOLO dataset のフォーマットの教師データを生成する. 続いて, CVAT の中に YOLO dataset のファイルをインポートし, CVAT の GUI を用いて人為的にラベリングが間違った場所を校正し, 校正した教師データを出力させ,

仮訓練したモデルを微調整する。このように、ほとんどのラベルはAIによって付与され、人間の膨大な手動作業を大幅に減らすことができた。

5.4 複合型ニューラルネットワークモデルの精度評価

5.4.1 異なるタスクに対する評価指標

分類を評価する *Recall* 指標

分類タスクでは、モデルで予測された結果を以下の場合に分けることができる：

- True Positive (TP): 実際は陽性である要素は正しく陽性だと予測された。
- True Negative (TN): 実際は陰性である要素は正しく陰性だと予測された。
- False Negative (FN): 実際は陽性である要素は間違って陰性だと予測された。
- False Positive (FP): 実際は陰性である要素は間違って陽性だと予測された。

真陽性の数を、実際に正のクラスに属する要素の総数（つまり、真陽性と偽陰性の合計である。これは、正のクラスに属するとラベル付けされなかったが、本来は属するはずだった項目である）で割ったものとして *Recall* 指標は定義される。

$$Recall = \frac{TP}{TP + FN} \quad (5.1)$$

この値が高いほど、間違って Positive だと判断するケースが少ないということを意味する。つまり、本来 Positive であるものが、推測すべき全データの内どれほど回収できたかという指標である。パターン認識する際、分類の *Recall* による判断から SPM システムの再現性を確認できる。例えば、探針修復システムが出力する探針の結果として、「悪い」探針が「良い」探針だと認識して出力したケースは FP である。FP のケースが出力された結果、システムは悪い探針を修復せず終了する。逆にもう 1 つの間違っている FN ケースでは、システムは「良い」探針を再修復させるので、時間が増えることに加えて、良い探針が修復される再現性には影響しない。

bounding box を評価する *IoU* 指標

画像上のオブジェクトを検出するために、オブジェクトの範囲を囲む bounding box の領域と、実際の正解 bounding box の領域を比べる指標として、IoU (Intersection over Union) 指標が導入できる。図 5.9 で示した予測の領域が ground truth の領域と交差する面積を $S_{overlap}$ 、ground truth の領域面積を S_{truth} とすると、*IoU* は以下のように定義される。

$$IoU = \frac{S_{overlap}}{S_{truth}} \quad (5.2)$$

IoU の値が 1 となるときは、予測の領域と ground truth の領域が完璧に重なり、*IoU* の値が 0 となるときはまったく重ならない。この研究では、 $IoU \geq 0.7$ の閾値を使用して、予測値が正しいかどうかの判断を行う。具体的には、 $IoU \geq 0.7$ を満たす予測された bounding box は、TP としてカウントされ、それ以外の場合は background としてカウントされる。この判定を用いて、

検証データセットにおける各オブジェクトを検出する性能を表すための混同行列を構築することができる。

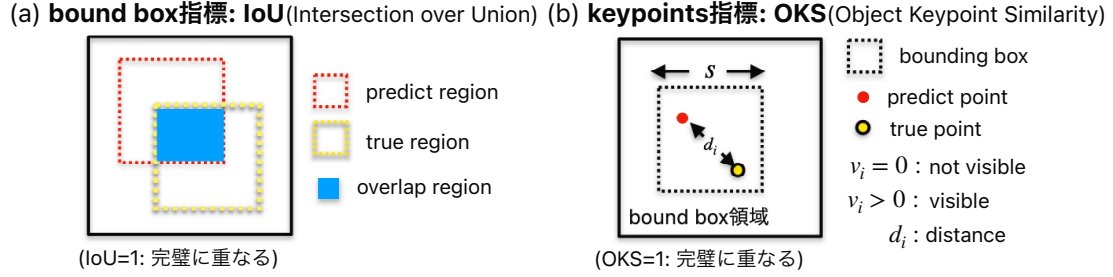


図 5.9: bounding box データの評価指標と keypoints データの評価指標の概略図。

key point を評価する OKS 指標

IoU 指標は画像上の範囲としての検出結果を評価する指標であり、画像上の点 (point) としての検出結果を評価するために OKS(Object Keypoint Similarity) 指標が導入できる。

key point 検出性能を定量化するために、オブジェクトインスタンス（本研究では C_1 または C_2 ）の予測した key point と ground truth 間の “Object Keypoint Similarity” (OKS) を標準指標とする。具体的には、 OKS は以下のように定義される：

$$OKS = \frac{\sum_i^n \exp(-d_i^2/2s^2)\delta(v_i > 0)}{\sum_i^n \delta(v_i > 0)} \quad (5.3)$$

ここで、 n は key point の数、 d_i は予測された key point とそれに対応する ground truth の key point とのユークリッド距離、 s は検出された物体領域のスケール、 $\delta(v_i > 0)$ は key point が見えていれば 1、他のオブジェクトが被ることにより隠れていれば 0 になる指標関数である。 OKS は 0 から 1 の範囲で、1 は予測された key point が ground truth と完全に一致することを示す。通常の評価では $OKS \geq 0.5$ の閾値を用いて予測 key point が真であることとして判定でき、 $OKS \geq 0.95$ で原子の位置特定の精度に対して、厳密な評価指標として用いることができる。

全体的に、key point 検出性能は OKS が閾値以上の key point の割合で定量化できる。これは key point クラスの平均精度 (AP) と呼ばれる。

5.4.2 Net1 のモデル精度評価

Net1 は SPM 画像に関するパターン認識するネットワークであり、入力画像に対して分類のタスクを行う。分類タスクのパフォーマンスを確認するために、混同行列 [12] を用いた評価を適用できる [図 5.10]。混同行列は、実際のデータである ground truth と機械学習モデルの予測の 2 つの要素を比較する表である。図 5.10 が示した行列の各要素は、人間によるラベリングで構築した ground truth (横軸) とモデルの予測に関して最も重みが高いラベル (縦軸) に対応するケースの数を表し、各クラスの ground truth で正規化される。このように正規化された表は、*Recall* 指標とみなすことができ、この AI を SPM 測定に実装する際のシステム再現性を確認できる。

confusion matrix of Net1 category

Predicted	Good 1	0.96	0.04	0.00	0.00	0.00	0.01	0.00	0.00	0.00	0.00
	Good 2	0.04	0.89	0.03	0.01	0.01	0.02	0.01	0.00	0.01	0.00
	Good 3	0.00	0.04	0.96	0.00	0.05	0.04	0.01	0.00	0.01	0.00
	Good 4	0.00	0.01	0.00	0.95	0.02	0.01	0.00	0.00	0.00	0.00
	Bad Area 1	0.00	0.00	0.00	0.00	0.86	0.01	0.00	0.00	0.00	0.00
	Good Tip Change	0.00	0.01	0.00	0.00	0.01	0.86	0.00	0.00	0.01	0.00
	Step	0.00	0.00	0.00	0.00	0.01	0.03	0.95	0.00	0.01	0.01
	Bad Tip Change	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.01	0.00	0.84	0.00	0.00
	No Resolution	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.02	0.00	0.09	0.89	0.00
	Bad Area 2	0.00	0.00	0.01	0.04	0.02	0.00	0.00	0.07	0.06	0.99
	Bad	0.00	0.00	0.00	0.00	0.03	0.00	0.02	0.00	0.00	0.93
		Good 1	Good 2	Good 3	Good 4	Bad Area 1	Good Tip Change	Step	Noisy	Bad Tip Change	Bad Area 2
		True									

図 5.10: 探針状態と表面状態を分類する Net1 モデル性能の評価. 分類精度を示す混同行列は, 横軸は検証データの ground truth であり, 縦軸はモデルの推定値を示す. 混同行列の値はデータの数を示し, *Recall* で正規化されている.

図 5.10 が示す混同行列の対角要素は人間が定義した真値と予測した値が一致したことを意味する. 逆に, 対角以外の要素では, 機械学習の予測が間違っていることを意味する. 例えば Fig. 5.10 の 1 行 1 列目における “Good 1” の状態の探針で計測すると, 計測した topography から, システムは 98% の確率でその探針を正しく識別できる. 全てのテストサンプルのケースを統計すると, 全クラスの平均 *Recall* は 0.93 であり, 良い探針か悪い探針かをバイナリで判定する *Recall* は 0.98 である.

モデルを検証したとき, ラベルが Bad Area1, Bad Area2, Good Tip Change, Bad Tip Change と Bad Noisy で間違えるケースが多く見られる. このモデルは multi-class の分類を行っているが, 混同行列によるモデルの検証は最も重みが高いラベルのみ考慮しているため, 複数の class ラベルが同時的に当てはめられる誤認識が起こりやすいと考えられる. Bad Area1, Bad Area2 でよく間違える理由として, データを増やす際のトリミングによって原子像の “Bad Area” に該当する部分が抜け落ち, “Bad Area” に該当する部分が画像全体に占める割合が少なくなり, モデルが違う予測をしたことと考えられる. また, Bad Noisy は探針が不安定のまま測定を続けた後の原子画像に起因するので, この状態の探針は計測中に頻繁に Tip Change するので, Bad Noisy と Bad Tip Change の重みが同時に高くなり, 両方に関する分類が混ざって誤認識が起こったことが考えられる. 同じ理由で, Good Tip Change が間違えるケースも Tip Change したところ以外では Good な表面が多くなり, Good に関する重みも高くなり誤認識が起こるかもしれない. 実際の測定は各ラベルの重みを比較する仕様にする, 複数の class ラベルが同時的に当てはまる誤認識を軽減することができる.

5.4.3 Net2, Net3 のモデル精度評価

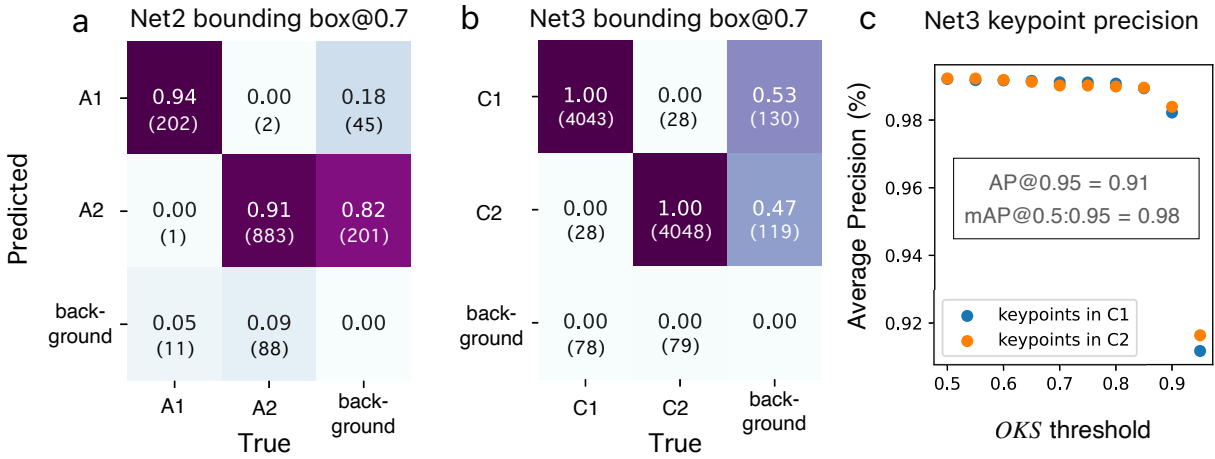


図 5.11: (a) Net2 の吸着物検出する性能を示す混同行列. (b) Si(111)-(7×7) の unit cell を検出する Net3 の精度を示す混同行列. (c) OKS 閾値と原子の keypoints 検出における Net3 の平均精度の依存性図. a と b の混同行列の値はデータの数を示し, Recall で正規化されている.

Net2 では, 移動する吸着物 (A_1) と移動しない吸着物 (A_2) を検出してから分類を行っている. オブジェクト検出と分類のタスクを評価するために, bounding box の指標を用いて検証する. 評価するとき, クラスが正しく検出されたオブジェクトの $IoU \geq 0.7$ を閾値として正解とみなす. 図 5.11 (a) では, 検証データセットの予測値と ground truth を比較した混同行列を示し, 行列要素内の括弧で囲まれた数字はテストサンプル数を表す. Net1 の混同行列と同様に, この混同行列も ground truth の数で正規化されている. カテゴリーラベルには “background” も含まれ, これは入力した画像には検出できる対象がない状況を示唆している. YOLOv8 のモデルを用いたオブジェクト検出には, 検出ターゲットを重複して検出する現象が起きるので, 検出ターゲットに対して複数の検出領域には IoU が低い結果も存在する. そのため, 図 5.11 (a) の背景がターゲットオブジェクトとして誤認識されるしまうケースもある程度存在する. 検証した bounding box の全体精度から計算した A_1 と A_2 の平均検出 Recall は 0.92 である.

Net3 では, Net2 と同様に $IoU \geq 0.7$ を閾値として, 2 つの unit cell (C_1 , C_2) と背景の正規化混同行列を図 5.11 (b) にプロットした. 学習データの単位 topography あたりに, 数十個の unit cell サンプルが存在するおかげで Recall はほぼ最大性能の 1.0 を達成している. また, Net3 は C_1 , C_2 における Si 原子 (adatom) の場所を特定することもでき, key point を正確に特定する能力は OKS 指標で評価する. 0.5 から 0.95 まで 0.05 ずつ変化する OKS の閾値を設定した場合, C_1 と C_2 で検出された Average Precision との依存性を 5.11 (c) にプロットした. このモデルは, Key point 検出する際に, 典型的な精度指標である平均した Average Precision (mAP) が 0.98 を超える. また, 特定する位置精度が最も厳密な指標として, $OKS \geq 0.95$ で平均した Average Precision (mAP) は 0.91 である. 今回の topography の計測は $(10 \times 10) \text{ nm}^2$ から $(30 \times 30) \text{ nm}^2$ レンジで設定しているため, このレンジで推定した原子位置は $OKS \geq 0.95$ の条件を満たせば, subangstrom オーダーの精度を実現できる.

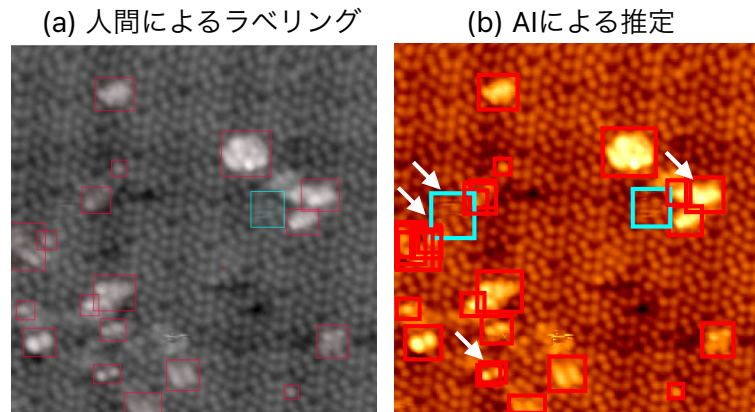


図 5.12: Net2 background 検出に関するエラー (a) 人間によるラベリング. (b) 訓練した Net2 による推定.

Net2 の領域検出に対して, background が間違って吸着物として検出されるケースが多い [図 5.11] エラーが発生している. その原因は, 人間によるラベリングと AI による推定の間でデータの解釈の齟齬があることと, 人間によるラベリング漏れがあるが考えられる. 図 5.12 では Net2 の検出タスクに対する (a) 人間によるラベリング結果と (b) AI による推定の結果を示している. 図 5.12(b) の矢印に注目すると, AI は動く吸着物 (水色) の検出ができていますが, 人間によるラベリングでは漏れている. よって, 学習データセットは常に正しいと限らない. また, AI は 1 つの動かない吸着物の領域 (赤色) を重複検出することが観察される. AI によって検出される結果は客観的に見ると間違っていないが, 人間が定義する検出すべき領域と違いがあるので, このようなエラーは background のラベルに集中してしまう. より正しい評価を行うために, 図 5.12 が示したデータの解釈の齟齬がないような指標を設計して, モデルの精度を評価する必要がある.

全体として, これらのモデルは, ステップアップデータ取得戦略によってリアルタイムで取得されるバラエティのあるデータセットから学習される. すべてのモデルは室温でのリアルタイムデータでも高い精度を達成し, SPM 自動化のための計測のロバスト性と計測した表面の特定領域を特定 (ローカライゼーション) する性能を保証している.

5.5 Si(111)-(7×7) 表面におけるシステム自動制御による室温原子分解能走査

SPM 自動計測のために, DL を用いた推定のための AI server と SPM をリモートできる Scan Modules の機能を備えた py script を, 第 2 章で開発した SPM フレームワークにおける Python サーバー上で実装を行った. 図 5.13 にはこのように実装した AI を用いたリアルタイム SPM 自動測定システムの概略図を示す.

システムは STM で測定した topography 画像を取得した後, 学習された複合型ネットワーク (Net1, Net2, Net3) を用いて, 測定し表面の認識を行う. AI から抽出される情報に基づいて, Scan Modules 内のプログラムは SPM の制御を行う. 第 3 章で開発ドリフト補正アルゴリズムを Thermal drift compensation のブロックで実装した. 第 4 章で開発した探針修復システムを Tip condition optimization のブロックで実装した. 室温で高品質のデータを得るために, 熱ドリフト補正モジュールを用いて, 熱ドリフトをキャンセルし, 画像の歪みを軽減する. また, 探針の自

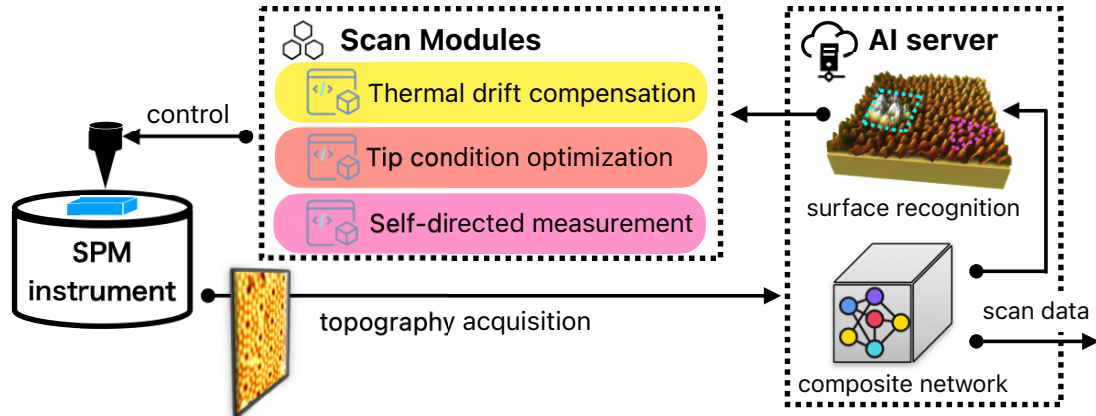


図 5.13: 様々な自動化モジュールで統合したディープラーニングを用いた室温走査プローブ顕微鏡システムの概略図。

動修復モジュールを用いて、探針の先端を最適な状態に保つ。よって、この2つの Scan Module ブロックによって、自動的に室温の測定状態は最適化される。Self-directed measurement ブロックには、あらかじめ AI で出力した情報から自律実験を行うスキャンロジックがプログラミングされており、Thermal drift compensation と Tip condition optimization のブロックと連携しながら、SPM 自動計測を行うことができる。本研究では、2 Phase のステップアップする学習データ取得戦略とこれから述べる自動計測の実装は全て Self-directed measurement ブロックで行った。

最初の自動計測のデモンストレーションとして、自動的に高品質な原子分解能を得る実験システムを示す。このシステムは Net1 の推定結果を用いて、計測表面の状態を認識するが、実験の計測エリアは不純物と原子構造の欠陥が多い (Bad Area 1, Bad Area 2)。ステップテラス (Step) を含む領域を検出していたら走査範囲をずらす。また、探針の状態が悪い探針のカテゴリーの中に入っていたら探針の自動修復を行う。

図 5.14(a) は、スキャナの空間上の X, Y 座標でプロットした 45 枚のスキャン画像を示す。横軸 X ではピエゾの全移動範囲は $0 - 750 \text{ nm}$ であり、ターゲットにしたワークスペースは $596 - 750 \text{ nm}$ である。赤い“V”マークからスキャンが開始し、機械学習の制御で移動した領域が辿る経路を赤い線で描く。システム図 5.14(a) の topography 像に対して、Net1 が出力する重みで最大のラベルをプロットしたものが図 5.14(b) である。“atom manipulation”の領域は、最初からゴミが表面に現れるまで、ステップアップデータ取得戦略 [図 5.5(a)] のフェーズ 2 で述べた原子操作を行っていた。Net1 によるラベル重み付け (y_4, y_6, y_{10}) のいずれかの重み値が 3.2 を超えた場合、問題のある領域があるとシステムに認識される。この場合、システムは代替スキャン領域の探索を開始し、“searching good area”の領域でこのプロセスの様子を示す。このとき、適切な領域を特定するために、システムは最大のスキャン範囲内でスキャン領域をシフトする。シフトするアルゴリズムは、計測した topography の x サイズ分だけ左にシフトするが、最大のスキャン範囲の端に到達するときは topography の y サイズ分だけ下にシフトし、続いてのシフトは x サイズ分だけ右方向となる。注目すべきこととして、このような好ましくない領域を避けることを目的としたスキャン領域のシフト以外にはドリフト補正による X と Y の両方の調整も含まれることである。このわずかな X, Y 方向のずれは熱ドリフトベクトルをキャンセルするために、リアルタイムでピエゾに追加したモーションであり、熱ドリフトが動作していることを証明した。

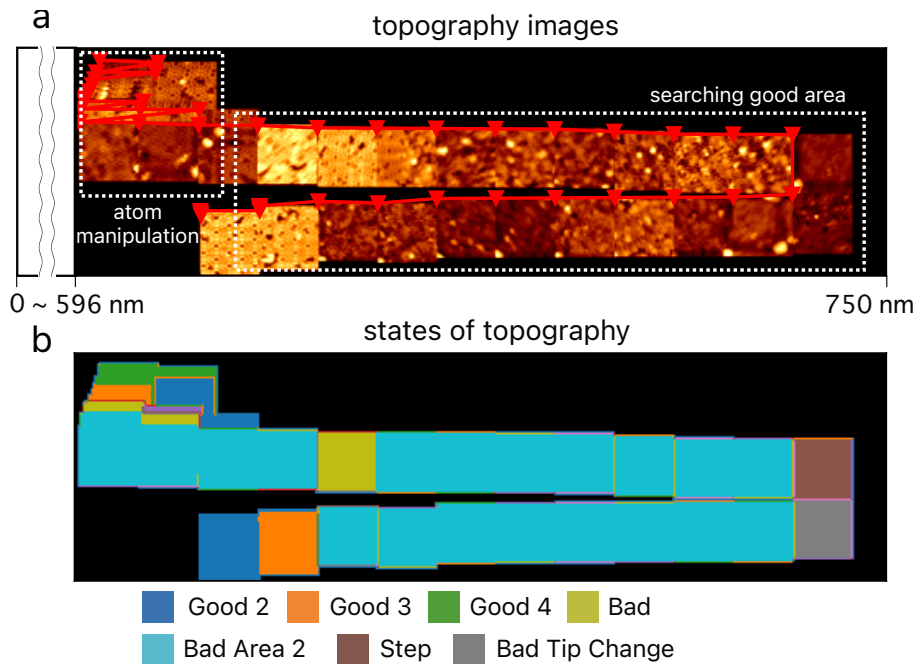


図 5.14: 自動制御による原子分解能走査のプロセス. (a) 計測した Topography の画像. (b) Net1 を用いて推定した最上位の結果. 全ての原子像は, 試料電圧 2 V, setpoint -200 pA, 計測時間 105 秒, 測定範囲 11.25×11.25 nm という条件で測定していた.

次節で述べる自動で室温 STS を行うためには, 適切な実験条件を設定する必要がある. このデモンストレーションが示すように, 高度な自動化システムとディープラーニング技術の融合により, 原子分解能で領域を特定する最適な実験条件を確立することができる. ドリフト補正による探針の試料上の位置特定は信頼性の高い原子分解能での室温 STS 測定を行う前提条件であり, 適切な探針の使用が保証される探針修復モジュールは高品質な画像を取得できる. さらに, Net1 の表面状態の推定結果を利用して, 測定エリアは Si(111)-(7×7) の原子分解能が取れる場所であることも保証できる.

5.6 Si(111)-(7×7) 表面の原子サイトにおける室温走査トンネル分光の big data 取得と解析

5.6.1 big data を拡張した IV カーブの取得方法と解析結果

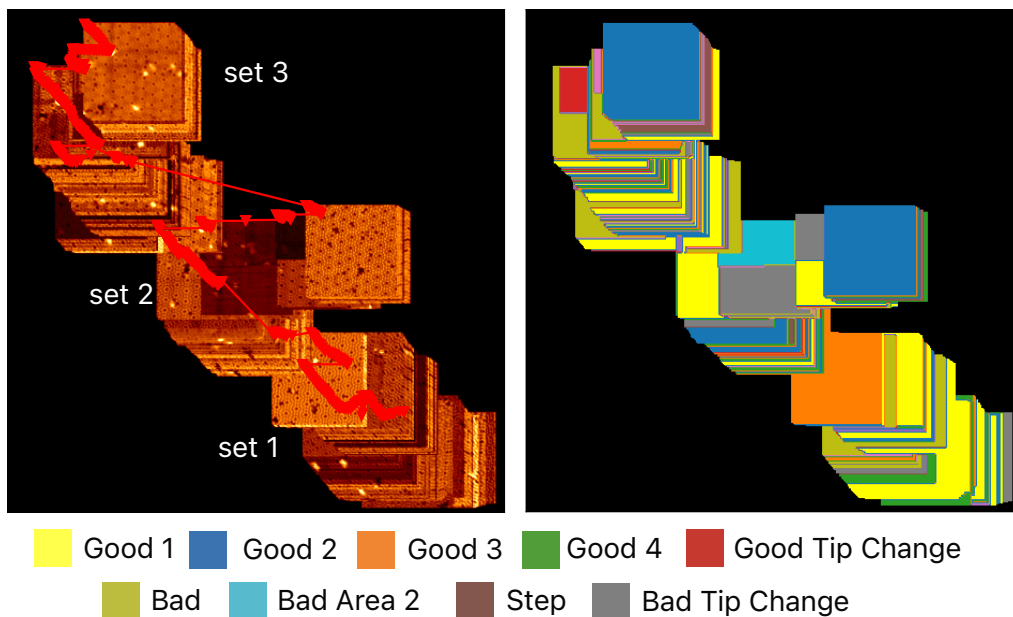


図 5.15: 図 5.16 に関する IV カーブデータ取得する際に画像取得のプロセス. ドリフト補正, 探針修復, STS 測定に関する原子の位置特定するための原子像と Net1 を用いて推定した最上位の結果がプロットされる. 全ての原子像は, 試料電圧 2 V, setpoint -200 pA, 探針修復するときは計測時間 105 秒, 測定範囲 11.25×11.25 nm, ドリフト補正や IV カーブ取得する前は計測時間 131 秒, 測定範囲 22.5×22.5 nm という条件で測定していた.

原子サイトの STS を行うためには, 探針を用いて精密的に対象原子を狙い, 良い電子状態の探針で測定する必要がある. Si(111)-(7×7) 表面の電子状態は, 室温 [13, 14, 15] と極低温 [16, 17] で測定した例が存在するが, 原子サイトの STS を得られるのは極低温のみとなっている. 室温で STS を行う場合, 激しい熱振動を受ける原子が熱ドリフトでずれる問題と, 探針が頻繁的に状態変化する問題があるので, 正確に測定する方法を考案する必要がある. また, 式 1.1 で示した室温におけるエネルギー分解能は極低温と比べて遥かに低いので, 室温 STS 測定, すなわち本質的に不確実な環境下で信頼性の高いデータを確実に取得するために, 今まで開発した AI とアルゴリズムを用いて, 同じプロパティを持つ Si Adatom 原子に対して, 複数回の測定を行い, 自動的に 1 本のカーブを big data で構成されたデータグループとして拡張できる自動計測 SubModule を導入した. 取得した big data から統計解析を行うことによって, 低いエネルギー分解能の中の傾向を抽出する.

具体的には, この自動 STS 計測システムは, 吸着物が存在しない faulted および unfaulted half unit cell 内の center および corner adatom の位置をターゲットとして特定する. この過程で, Net2 は吸着領域がないかどうかの検出に役立ち, Net3 は unit cell と原子の位置の分類と位置特定に役立つ. このシステムは 1 回の測定サイクルで, C1 type と C2 type の両方の half unit cell をランダムに選択し, 各 half unit cell 内の 3 つの center adatom と 3 つの corner adatom

について STS 測定を行う。これらの測定後、探針の状態を評価し、最適な状態に保たれていることを確認した後、熱ドリフトを補正する。この手順の全体はプログラムした SubModule が主導的に繰り返し実行されるため、室温というエネルギー分解能が低い条件下でもロバストで信頼性の高いデータを自動的に生成することができる。

図 5.15 では IV カーブの big data を自動計測するプロセスで取得した原子像と表面状態を示す。この計測は 3 set の実験が含まれ、合計の計測時間が 58 時間であり、695 枚の原子画像と 2832 個の IV カーブが取得された。ドリフト補正と IV カーブを取得するために参照する原子画像は測定範囲 22.5×22.5 nm で、探針修復するための原子画像は 11.25×11.25 nm である。

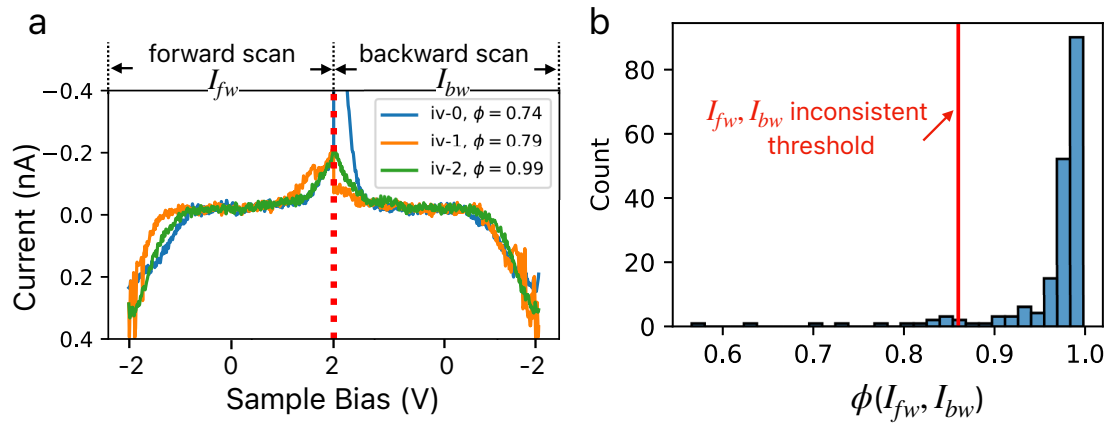


図 5.16: (a) IV 測定の 3 つの生データ ("iv-0", "iv-1", "iv-2"). 測定は試料電圧が 2 V, setpoint -200 pA の設定値から, forward スキャンとして 2 V から -2 V まで, backward スキャンとして 2 V から -2 V まで, 試料電圧を変えながら IV 測定を行った. (b) forward スキャンの IV カーブ I_{fw} と backward スキャン IV カーブ I_{bw} の類似度指標 $\phi(I_{fw}, I_{bw})$ のヒストグラム.

一回の IV カーブ測定方法として、試料電圧 2 V から -2 V まで変化させながらトンネル電流を測定した前方掃引 (I_{fw}) と、試料電圧 -2 V から 2 V まで変化させる後方掃引 (I_{bw}) の両方が含まれる。スキャンの z 軸における開始位置は、図 5.16(a) に示すように、2 V の試料電圧で z 位置が -200 pA の setpoint で特定されるターゲット Si Adatom 原子から開始される。IV カーブ測定におけるスキャンの z 軸開始位置の変化によって、測定したトンネル電流のオーダーは指数関数的に変わるので、faulted half と unfaulted half における異なる Si Adatom 原子で一意的な z 高さの決め方はこの実験において大事である。試料電圧 2 V における各 Adatom 原子の電子状態密度は同じになるので、このような測定方法を取ると、各 Adatom 原子に関して、同じ z の高さで測定を開始することができる。

測定中の様々な環境変化により、 I_{fw} と I_{bw} の数値が必ずしも一致しない場合がある。探針が安定し、表面が乱されていない場合のみ、 I_{fw} と I_{bw} は一致する傾向がある。これらの曲線間の一致度を評価するために、後述する式 5.4 のコサイン類似度指標を採用し、 $\phi(I_{fw}, I_{bw})$ として計算できる。図 5.16(a) に示すように、「iv-0 と iv-1」の曲線における ϕ がそれぞれ 0.74 と 0.79 に留まり、このとき測定中に I_{fw} と I_{bw} の不一致が生じたことがわかる。対照的に、「iv-2」の曲線で観察されるように、高い相関がある場合、曲線は 0.99 の ϕ 値を達成する。取得したすべての 378 本の IV 曲線のセットについて、 $\phi(I_{fw}, I_{bw})$ 値が計算され、図 5.16(b) のヒストグラムに描かれている。 $\phi(I_{fw}, I_{bw}) < 0.86$ を閾値として、測定中に表面や探針が変化したことを、IV 測定が破綻したものと定義する。このとき、この STS パラメーターを使用した測定が不一致にな

る確率は7.4%であると計算される. このような不一致が生じる原因として, 試料電圧の印加に起因する先端頂点への影響が関連しており, IV 測定と同時に, 電圧の印加は探針状態を変化させるプロセス [18] に例えることができる. このようなケースは, 測定中に頻繁に観察され, 結果的に探針の変化や不純物の表面への落下などの不都合を起こす.

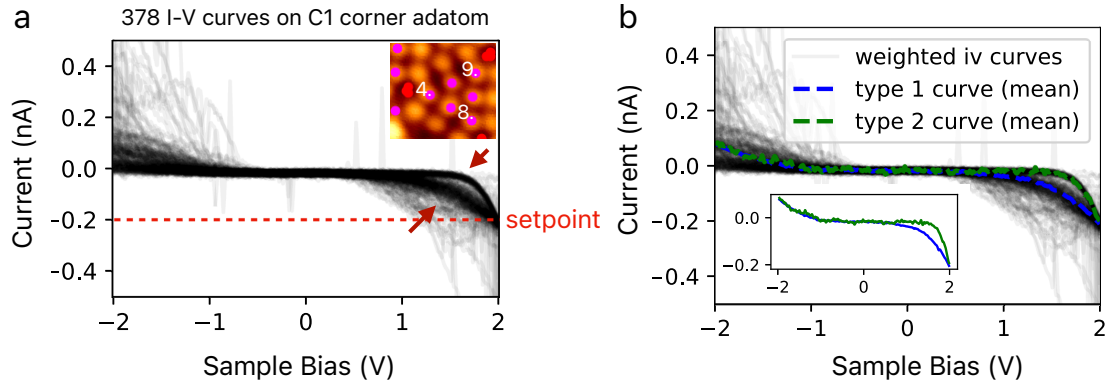


図 5.17: C1 タイプの unit cell 上で測定した 378 個の corner adatom の曲線の解析結果. (a) 全ての曲線のトンネル電流と試料電圧依存性の重み付けプロット. 水平の赤破線は, IV スキャン開始前の setpoint の位置を示す. Topography 上の "4", "8", "9" とラベル付けされた 3 点は, C1 タイプの unit cell 上の corner adatom の位置を特定するために Net3 によって検出された keypoint の序列番号を示す. (b) 2 つの傾向グループの平均値を表す 2 つの IV カーブ. type 1 の曲線は全体的なデータに基づく選択法で, type 2 の曲線は参照曲線に基づく選択法で第 5.6.2 小節の手法で選択されている.

C1 type の unit cell 内にある corner adatom(Net3 によって検出された P_4, P_8, P_9) の位置で測定された 378 本の IV カーブを図 5.17(a) に重み付きでプロットした. 前述したような不安定な測定環境の影響があるにもかかわらず, 原子レベルの表面特性の傾向は統計的なデータによって裏付けられている. これらの曲線は, I_{fw} と I_{bw} の両方を包含している. そして測定は 2 V の試料電圧の下, -200 pA の setpoint から始まり, ほとんどすべての I_{fw} と I_{bw} 曲線がこの位置で正確に整列している. この観察結果は, x, y, z 軸に沿ったドリフトが効果的に補正されていることを示しており, 室温測定中でさえ, システムが熱ドリフトの影響を軽減できることを示す説得力のある証拠である. さらに, プロットではすべての曲線に重み付けがされていることを考慮すると, 線の色が濃い領域はより重みのある領域を示し, 特定の領域内の IV カーブのより顕著な傾向を反映している. 特に, 試料電圧 1-2 V の範囲を見ると, 2 つの IV カーブが最も顕著な傾向が見える [図 5.17(a) の 2 つの矢印].

これらの 2 つの異なる傾向を区別して表すために, コサイン類似度に基づくアルゴリズム [第 5.6.2 小節を参照] が採用され, これらの 2 つの傾向を表す IV カーブのセットを統計的に区別して選択する. 図 5.17(b) では, 2 つの傾向に対応する各セット内のすべての曲線の平均値が, 青と緑の点線でプロットされている. C1 type の corner adatom で, 同じ性質にもかかわらず, これら 2 つの傾向が異なる理由は, IV カーブ測定中の STM 先端における電子状態密度の違いに起因している可能性がある. しかし, この自動 SPM システムは原子分解能のトポグラフィーを取得する能力を保証しているが, 測定中に先端の局所的な電子状態密度を一定に保つことはまだ難しい.

5.6.2 IV カーブの類似性指標とグループ化した IV カーブの抽出

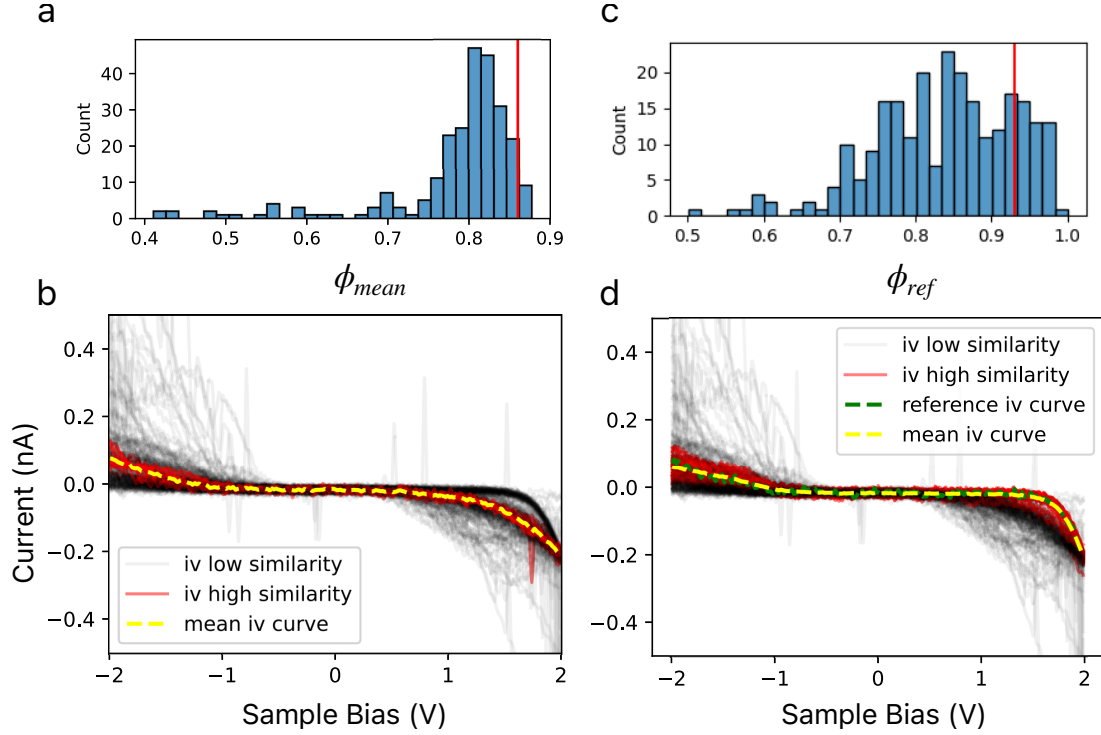


図 5.18: 図 5.17 の big data から傾向を抽出する過程. (a) 全体的なデータに基づく選択法で計算された ϕ_{mean} のヒストグラム. (b) 全体的なデータに基づく選択法によって選択したデータグループ (赤) とデータの平均値 (黄) に関する曲線プロット. (c) 参照曲線に基づく選択法で計算した ϕ_{ref} のヒストグラム. (d) 参照曲線に基づく選択法における参考曲線 (緑), 選択したデータグループ (赤) およびデータの平均値 (黄) に関する曲線プロット.

n 個の IV カーブデータを持つ big data のグループの中に、傾向が高い部分を抽出するために、コサイン類似度 ϕ を用いた統計処理が用いられる. n 個のデータのうち、2 つの IV カーブ I_1, I_2 の類似度 ϕ は次式で計算される.

$$\phi(I_1, I_2) = \frac{\sum_{k=1}^n I_1[k] \cdot I_2[k]}{\sqrt{\sum_{k=1}^n I_1[k]^2 \cdot \sum_{k=1}^n I_2[k]^2}} \quad (5.4)$$

特に、 $\phi(I_1, I_2)$ は -1 から 1 までの範囲であり、 $\phi(I_1, I_2) = 1$ のときは 2 つの曲線が完全に等しいことを意味する. IV カーブの相似度を ϕ から計算することで、全体のデータの中で最も一般的 (大多数) なデータを抽出した曲線群を得ることができる.

大多数なデータグループを選択する方法は主に 2 つの方法があり、それぞれ全体データに基づく方法とあらかじめ決めた参照データに基づく方法がある. 全体データに基づく選択法では、全 IV カーブデータが $I_1, I_2, \dots, I_m$ と与えられたとき、まずあるデータ I_k と他の全ての曲線に対応するコサイン類似度の平均値 $\phi_{mean}[k]$ を計算する.

$$\phi_{mean}([I_k]) = \sum_m^i \phi([I_k, I_i]) / m \quad (5.5)$$

I_k の曲線に対する $\phi_{mean}([I_k])$ は全体的な曲線に対してどれくらい共通しているかを意味するので、 $\phi_{mean}([I_k]) > T_1$ の条件で閾値 T_1 を適用し、この条件を満たす I_k 曲線を全て大多数グ

ループとして選ぶのは全体データに基づくデータ選択方法である．図 5.18(a) は図 5.17 で示した 378 本の IV カーブに関する ϕ_{mean} のヒストグラムである．ここで $T_1 = 0.86$ で閾値を適用すると， $\phi_{mean} > 0.86$ に該当するすべてのカーブが選択され，図 5.18(b) の赤い線のグループでプロットする．また，赤い線から平均値を計算した曲線は黄色の線で示し，これは全体的なデータに基づく選択法によって算出した IV カーブの傾向である．

参照データに基づく選択法は，あらかじめ IV カーブのグループから抽出された 1 本の IV カーブを参照データ I_{ref} として，参照データに類似したデータ群を選択する方法である．IV カーブ I_k に対して閾値 T_2 を与え， $\phi_{ref}(I_{target}, I_k) > T_2$ の条件を用いて， I_{ref} を基準とした I_k との相似性を評価して，大多数のグループに加えられるかどうかを判定する．図 5.18(d) の緑線を I_{ref} として，それ以外のすべての IV カーブとコサイン類似度の計算 ϕ_{ref} を行い， ϕ_{ref} 値のヒストグラムを図 5.18(c) で示す．ここで同様に $T_2 = 0.92$ で閾値を適用すると， $\phi_{ref}(I_{target}, I_k) > 0.92$ に該当するすべてのカーブが選択され，図 5.18(d) の赤い線のグループでプロットし，選択された IV カーブグループの平均は黄色の曲線で示す．

5.6.3 big data を用いた Si(111)-(7×7) 原子サイトの室温 STS 解析結果

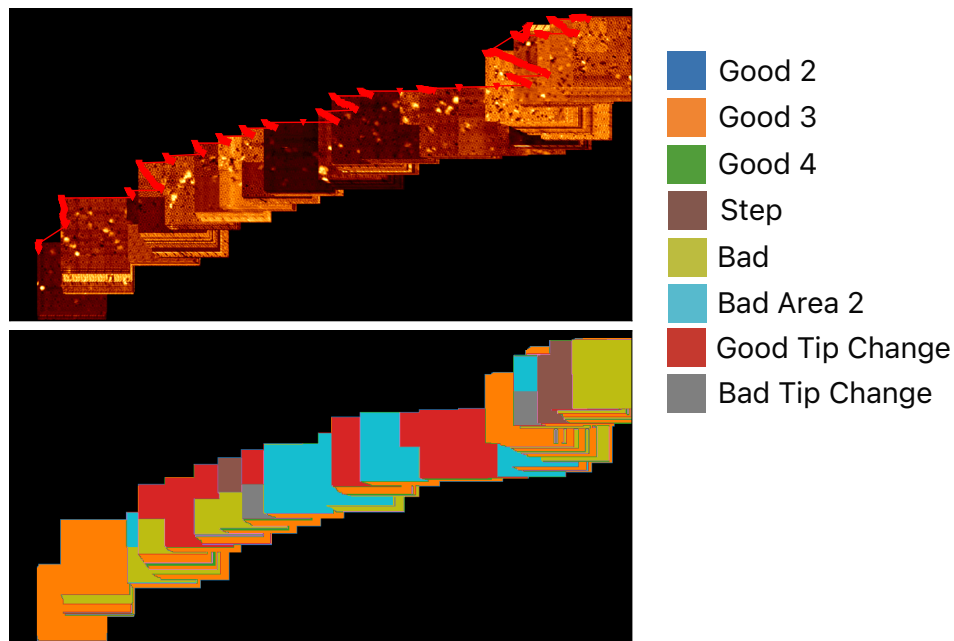


図 5.19: 図 5.20 に関する IV カーブデータ取得する際に画像取得のプロセス．ドリフト補正，探針修復，STS 測定に関する原子の位置特定するための原子像と Net1 を用いて推定した最上位の結果がプロットされる．全ての原子像は，試料電圧 2 V，setpoint -200 pA，探針修復するときには計測時間 105 秒，測定範囲 11.25×11.25 nm，ドリフト補正や IV カーブ取得する前は計測時間 131 秒，測定範囲 22.5×22.5 nm という条件で測定していた．

続いて，より高分解能の STS 測定を目的とした，より高いトンネル電流を検出するために，IV 測定を行う前にターゲット原子にさらに接近させるアプローチを測定前に追加した．具体的には，setpoint を -200 pA，試料電圧 2 V で， z 位置から約 $2.6 \text{ \AA}$ の距離まで先端をターゲット原子に向けて移動させる．この方法を用いて，faulted half と unfaulted half unit cell における

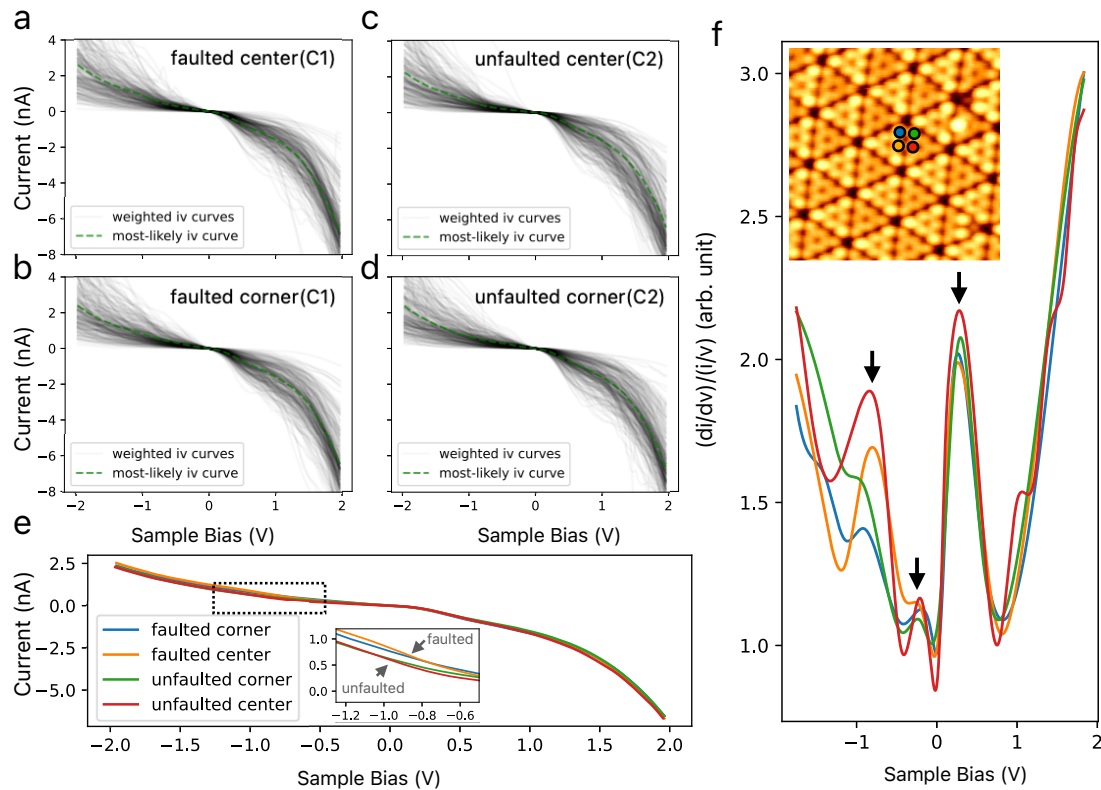


図 5.20: (a) faulted center adatom (b) faulted corner adatom (c) unfaulted center adatom (d) unfaulted corner adatom のトンネル電流と試料電圧に関する依存性の重み付けプロット. 緑の破線は全体的なデータに基づく選択方法によって最も可能性の高い IV カーブの平均値を示す. (e) (a), (b), (c), (d) の緑の破線として計算された 4 つの IV カーブのプロット. (f) (e) の 4 つの IV カーブデータから計算した di/dv プロット. Topography は -1.5 V の試料電圧, 200 pA の setpoint で測定され, スキャン範囲は 11.25×11.25 nm である. Topography 上の 4 点は IV 測定する原子の場所を表す. Topography の点と di/dv 線の色は対応している.

center adatom と corner adatom において, それぞれ測定した合計 324 本の IV カーブを収集した. 図 5.20 には原子画像を取るプロセスを示し, 測定された IV カーブは, 図 5.20(a)(b)(c)(d) にそれぞれプロットされている. 図 5.17 の計測ではトンネル電流大きさの範囲は約 0.4 nA に対して, 探針をより近づけることによって, 今回のトンネル電流大きさのオーダーは約 10 nA に達した. これによって, 試料電圧の大きい場所ではトンネル電流のばらつきも大きくなっていることがわかり, 1 本の IV カーブの代わりに IV カーブのデータグループを取得できるこの測定は, 測定の曖昧さを確認できる. データのばらつきが大きい理由は, 測定における探針/試料の状態変化以外に, 室温における探針と試料の Tunnel junction に関する電子密度のフェルミ・ディラック分布の幅は熱拡散により広がり, 探針-試料間に流れるトンネル電流のばらつきも大きくなると考えられる [19, 20]. 室温測定における不確かさが存在するにも関わらず, 個々のタイプの原子に関する最も代表的な傾向は全体データに基づく選択法を用いて解析でき, 抽出したそれぞれの IV カーブは図 5.20(e) にプロットする. 特に, 負の試料電圧を持つ領域を拡大すると, faulted half と unfaulted half unit cell の違いによって, 曲線の微妙な違いが明らかになる. この領域では, faulted half のコンダクタンスが, unfaulted half のコンダクタンスよりも高いことが観察された.

続いて、4種類の原子サイトにおける di/dv 曲線を計算し、図 5.20(f) に示す。 z 軸に沿った各原子の相対的な位置はすべて、2 V の試料電圧における z フィードバック位置に関して決定されるため、異なる原子の相対的な z 位置はほぼ同じである。負の試料電圧では、4つの部位の曲線は明確な変化を示す。この傾向は、-1.5 V の試料電圧で得られた図 5.20(f) の Si(111)-(7×7) 原子像における4つのサイトに関するタイプの外観にも反映されている（4つの原子の位置を表す点の色は、 di/dv 曲線の色に対応する）。4つの原子に関する明暗さの違いは adatom から rest atom への電荷移動のため、rest atom の近傍数が多い center adatom は corner adatom よりも電子密度が低くなることから由来する。特に、この4つの原子サイトの傾向は STS 曲線で明らかにされ、ピークの位置 [図中の下向き矢印] は過去の結果と対応できる [16]。また、過去の STS 結果との違いとして、Si(111)-(7×7) の表面状態の最も顕著なピークは、はっきり-0.8 V と 0.3 V に現れることが測定できた。このピーク位置は、紫外光電子分光 (UPS) [21] と逆光電子分光 (IPS) [22] の測定結果 [21, 22] から裏付ける。IPS と UPS は表面全体の電子状態しか測定できないが、サイトごとの STS 曲線の違い [図 5.20(f)] を比較すると、表面全体的な状態の-0.8 V のピークには center adatom の密度状態が最も寄与していることがわかる。

しかし、極低温 STM の測定結果と比べて、室温でとったこのデータとの違いも存在する。例えば、図 5.20(f) における正の試料電圧では、700 mV におけるバンドギャップが存在し、700 mV 以降では一気にトンネル電流が流れやすくなるが、その傾向は極低温では見られない。考えられる理由として、今回の Si 基板は High ドープであり、電流は元々流れやすくなっている。また、材料の金属と絶縁体の転移は高い温度によって起こる [23]。高温によって、元々あったバンドギャップが消える現象は Ti_2O_3 で観察されており、High ドープの Si(111)-(7×7) において同様な現象が起こったと推測できる [24]。いずれにせよ、本研究で開発した自動測定システムによって、Si(111)-(7×7) 原子サイトにおける STS の違いを比べることは今まで極低温 STM しかできなかったが、室温でも同様にできることが実証した。さらに、IV カーブをデータセットに拡張し、ビッグデータとしてデータの分散を考慮した統計解析を採用するこの自動測定アプローチにより、信頼性と妥当性を兼ね備えた室温測定のデモンストレーションとなる。

5.7 終わりに

本章では、室温 SPM 自動測定システムの実装とそれを用いたデモンストレーションを示した。具体的に、Si(111)-(7×7) の原子像を網羅的に情報を抽出するニューラルネットワークをリアルタイム測定に向けて訓練した。本研究で扱うディープラーニングモデルの特徴は、学習データセットは第 5.3 小節で述べた方法により、実験的に集めている。学習データセットは、室温で予測できない結果へのロバスト性とバラエティのある学習データの取得に関する2つのポイントを意識しながら設計した、自動データ取得の戦略によって構築し、そのおかげで 90%を超える素晴らしい精度を達成した。

この AI を室温で自律的にリアルタイムデータを収集できるディープラーニング支援 SPM システムに導入し、室温での2つの自動計測実験の結果を述べた。最初のデモンストレーションでは、室温において、表面上のスキャン領域を自動的に選択し、原子分解能の画像を得るために、ドリフト補正や探針の状態制御を自動的に行うような測定条件の最適化ができ、自律的に高品質のデータを取得するシステムの能力を示した。2つ目のデモンストレーションは、室温での原子サイト STS 特性評価におけるシステムの有効性を示すものである。従来では、原子サイトの STS 特性は極低温でしか取れない事実に対して、室温という不確かな室温における IV カーブ測定は、エネルギー分解能が低い傾向にあり、測定が破綻（探針や試料が変化）する確率は 7.4%で

ある事実が存在するにもかかわらず、その不確かさを可視化でき、統計解析できる自動測定の方法を示した。このシステムの自動ドリフト補正、探針の状態制御、および DL 出力によって特定の目標を特定する自動測定によって、1つの IV カーブをグループデータとしての big data に拡張でき、統計的な傾向がわかる信頼性の高い原子サイトの IV カーブを取得できる。異なる実験装置の結果と比べると、UPS と IPS で観察される Si(111)-(7×7) の -0.8 V の電子状態のピークは、center adatom が一番寄与していることがわかった。

本章で用いるディープラーニングモデルは Si(111)-(7×7) 試料にのみ適用できるが、他の試料に関する学習データセットが構築できれば同様の手法で自動計測が実現できる。よって第 5.3 小節で述べた自動的にデータセットを集める方法を用いると、本章で述べた自動計測手法は他の試料にも適用できる可能性が示唆され、その際に必要とされる主な作業は取得したデータセットをラベリングすることだけである。

参考文献

- [1] Extance, A. How atomic imaging is being pushed to its limit. *Nature* **555**, 545–547 (2018). [<URL>](#).
- [2] Farley, S. *et al.* Improving the segmentation of scanning probe microscope images using convolutional neural networks. *Machine Learning: Science and Technology* **2**, 015015 (2020). [<URL>](#).
- [3] Gordon, O. M. *et al.* Automated searching and identification of self-organized nanostructures. *Nano Letters* **20**, 7688–7693 (2020). [<URL>](#).
- [4] Hofer, L. R. *et al.* Atom cloud detection and segmentation using a deep neural network. *Machine Learning: Science and Technology* **2**, 045008 (2021). [<URL>](#).
- [5] Lin, R. *et al.* Temimagenet training library and atomsegnet deep-learning models for high-precision atom segmentation, localization, denoising, and deblurring of atomic-resolution images. *Scientific Reports* **11**, 5386 (2021). [<URL>](#).
- [6] Yang, S.-H. *et al.* Deep learning-assisted quantification of atomic dopants and defects in 2d materials. *Advanced Science* **8**, 2101099 (2021). [<URL>](#).
- [7] Jocher, G. *et al.* Ultralytics yolov8 (2023). [<URL>](#).
- [8] Sugimoto, Y. *et al.* Atom inlays performed at room temperature using atomic force microscopy. *Nature Materials* **4**, 156–159 (2005). [<URL>](#).
- [9] Sekachev, B. *et al.* opencv/cvat: v1.1.0 (2020). [<URL>](#).
- [10] Merkel, D. Docker: lightweight linux containers for consistent development and deployment. *Linux journal* **2014**, 2 (2014). [<URL>](#).
- [11] Lin, T. *et al.* Microsoft COCO: common objects in context. *CoRR* **abs/1405.0312** (2014). [<URL>](#).
- [12] Stehman, S. V. Selecting and interpreting measures of thematic classification accuracy. *Remote Sensing of Environment* **62**, 77–89 (1997). [<URL>](#).
- [13] Hamers, R. J. *et al.* Surface electronic structure of si (111)-(7×7) resolved in real space. *Phys. Rev. Lett.* **56**, 1972–1975 (1986). [<URL>](#).
- [14] Neddermeyer, H. *et al.* Scanning tunneling spectroscopy on si. *Ultramicroscopy* **25**, 135–147 (1988). [<URL>](#).

- [15] Avouris, P. *et al.* Atom-resolved surface chemistry studied by scanning tunneling microscopy and spectroscopy. *Phys. Rev. B* **39**, 5091–5100 (1989). [<URL>](#).
- [16] Mysliveček, J. *et al.* Structure of the adatom electron band of the Si(111)– 7×7 surface. *Phys. Rev. B* **73**, 161302 (2006). [<URL>](#).
- [17] Odobescu, A. B. *et al.* Energy gap revealed by low-temperature scanning-tunnelling spectroscopy of the si(111)- 7×7 surface in illuminated slightly doped crystals. *Journal of Physics: Condensed Matter* **24**, 395003 (2012). [<URL>](#).
- [18] Wang, S. *et al.* Automated tip conditioning for scanning tunneling spectroscopy. *The Journal of Physical Chemistry A* **125**, 1384–1390 (2021). [<URL>](#).
- [19] Morgenstern, M. *et al.* Experimental evidence for edge-like states in three-dimensional electron systems. *Phys. Rev. B* **64**, 205104 (2001). [<URL>](#).
- [20] Fardian-Melamed, N. *et al.* Temperature dependence of the stm morphology and electronic level structure of silver-containing dna. *Small* **16**, 1905901 (2020). [<URL>](#).
- [21] Himpsel, F. J. *et al.* Probing valence states with photoemission and inverse photoemission. *Journal of Vacuum Science & Technology A* **2**, 815–821 (1984). [<URL>](#).
- [22] Himpsel, F. J. *et al.* Electronic structure of si(111) surfaces. *Surface Science* **132**, 22–30 (1983). [<URL>](#).
- [23] Zimmers, A. *et al.* Role of thermal heating on the voltage induced insulator-metal transition in vo₂. *Phys. Rev. Lett.* **110**, 056601 (2013). [<URL>](#).
- [24] Klusek, Z. *et al.* Room and high-temperature scanning tunnelling microscopy and spectroscopy (ht-stm/sts) investigations of surface nanomodifications created on the tio₂(110) surface. *Surface Science* **601**, 1513–1520 (2007). [<URL>](#).

第6章 結論

6.1 本研究のまとめ

序章では, SPM を用いた原子精度物性計測, surface dynamics, そしてドーパント原子操作などにおける高機能計測を室温で行う必要性と AI を用いて SPM 制御に活用する有効性について説明した. 2 章では, SPM の測定原理と AI 駆動 SPM 装置の構成について述べた. 続く 3 章では, 室温における熱ドリフトの課題に対処するための熱ドリフト補正アルゴリズムを提案し, 4 章では探針変化に対する自動探針修復システムを提案した. これにより, 室温下での SPM の測定環境を最適化するための解決策を示した. さらに, 4 章では SPM 信号の解析, そして 5 章では SPM 画像のパターン認識やオブジェクト検出を行うためのニューラルネットワークを構築し, 「Look-then-Perform」に関連する AI インタフェースを構築した. これらの取り組みを通じて, 自動計測のシステムを AI の実装やアルゴリズムの考案を通じて解決し, 室温 SPM の高機能計測を可能にする技術を確立した. 具体的に行った研究成果としては以下の通りである.

1. 自動ドリフト補正アルゴリズムの考案

特徴点マッチング手法を利用した高精度な自動ドリフト補正システムを開発した. この手法は, 時間差を設けて連続的に取得された画像間で特徴点を検出しマッチングする第一段階とマッチングした特徴点をクラスタリングする第二段階に分かれる. この手法は室温下での走査中の探針や試料の変化に対してロバスト性を示した. この手法を用いた自動計測の実験では, Sn 吸着した Si(111)-(7×7) 表面における 72 時間に及ぶドリフト補正を成功させ, 数十 pm オーダーの高精度なドリフト補正を実現した. さらに, Sn 原子の長時間拡散状態をサンプリングし, energy barrier の計算をデモンストレーションした. また, 特徴点マッチング手法の第一段階の代替案として, unit cell の情報をマッチングするアルゴリズムも提案した. このアルゴリズムは Si(111)-(7×7) の表面に対してロバストであり, 画像のアライメントやオブジェクト対応を検出し, 自動計測における複数フレームの画像の比較に利用できることを示した.

2. ディープラーニングを利用した SPM 探針の状態制御するシステムの実装

Si(111)-(7×7) 表面上での室温実験において, SPM の探針状態を制御するシステムを開発し, 再現性を確認した. このシステムは探針の鋭さや太さなどの状態を制御し, 悪い状態の探針を修復することが可能である. システムの実装では, 「Look-then-Perform」戦略が採用された. まず, 「Look」の段階では, SPM 画像から探針の状態と表面の特性を抽出するためにディープラーニングを用い, 探針と表面の情報を 11 個のカテゴリーに分類するモデルが開発された. 一方, 「Perform」の段階では, 探針の状態変化を検知するためのディープラーニングモデルが訓練された. このモデルは, 探針の状態を変化させる際に得られたスキャン信号を元に, 探針の状態をほぼ確実に変化させることができた. 設計されたディープラーニングモデルは, SPM 画像と走査信号を認識し, 探針と表面の基本情

報を提供する。このモデルは、SPM の自動計測や原子操作にも応用可能であることを示した。

3. リアルタイム計測に用いた AI の構築とそれを用いた自動高機能計測の実証

SPM のリアルタイム計測に使用可能な AI を構築した。構築された AI は、原子画像から表面や試料の状態、吸着物や単位結晶の検出、原子や欠陥の位置特定など、包括的な情報を抽出できる。リアルタイムでの計測に活用可能な AI を訓練するために、学習データセットの取得には室温でのロバスト性とデータの多様性を考慮した戦略が用いられ、訓練されたモデルはすべて 90 % 以上の精度を達成した。次に、この AI は自律的な室温 SPM 自動計測実験に運用した。最初のデモンストレーションでは、スキャン範囲の検索能力と高品質の探針を使用した自動データ取得システムが示された。2 番目のデモンストレーションでは、原子精度の STS 測定を行うために IV カーブを big data に拡張した高機能計測が示された。室温における不確かな環境で信頼性の高い STS 結果を得るために、このシステムで得られた IV カーブの big data から統計解析が行われ、Si(111)-(7×7) における原子サイト特有な特性を計測できた。

従って、SPM の自動計測は、「Look-then-Perform」のプロセスで進められる。このプロセスでは、「Look」段階において、原子表面のマッピングや探針-試料空間の位置特定など、研究背景に 4 つの重要ポイントにアルゴリズムや AI の解決策を提案した [図 1.6]。そして、「Perform」のシステムを用いて、Si(111)-(7×7) 表面において長時間の実験や 1 原子レベルの高精度な物性計測を自動で実行できることを示した。さらに、第 5.3 小節で示した自動的な学習データセット構築の実験を他の表面に適用することで、Si(111)-(7×7) 以外の表面でも同様な自動計測実験が可能になる見込みである。従来、人間の体力や操作精度の限界で物理的に実行困難だった SPM 計測実験が、AI 制御システムの支援によって実現可能になった。この SPM 計測技術の発展は、表面科学の研究において SPM を利用する際の推進材料となると予想される。

6.2 今後の展望

以上を踏まえて、SPM 技術の室温機能計測を実現するための技術を確認することができた。SPM 実験とディープラーニングの統合は、将来的に表面特性の評価方法に革命をもたらすことを約束されている。この学際研究により、複雑で時間がかかる実験操作の自動化や、膨大な STS データを掘り下げる解析結果のように、より深い物理的発見を解き明かすことができる。同時に、SPM 計測技術のさらなる発展や高機能計測の科学的実験への応用も見据えられる。この研究から派生する以下のテーマは、今後インパクトを与えることが期待される。

汎用的な表面特性評価のための AI モデルの構築

本研究で開発された AI は Si(111)-(7×7) の表面上で自動データ収集ルーチンを実行し、学習データセットを収集するための予備実験が必要である。この研究の延長として、試料は Si(111)-(7×7) の表面のみならず、より汎用的な AI モデルの構築ができれば、あらゆる試料で SPM 実験の自動化を実現できる。このビジョンを達成するためには、表面の結晶構造 (hcp, fcc など) を考慮したデータセットを構築する必要がある。様々な表面構造を持つ試料で測定した原子像を取得し、ラベリングする必要がある。また、より複雑化になったデータセットに対して、Transformer¹

¹Dosovitskiy, A., et al. arXiv preprint arXiv:2010.11929 (2020).

のような大規模モデルで幅広い材料構造を網羅する能力を持つような AI モデルを設計する。また, SPM システムの進化によって, 取得する SPM データも膨大な数となり, このような AI モデルを開発できれば, 一般的な SPM データの解析の効率化にも利用できるようになる。SPM システムの進化に伴い, 取得する SPM データはますます膨大になっている。このような AI モデルを開発すれば, 一般的な SPM データの解析を効率化するだけでなく, 広範な SPM データの解析にも応用できる可能性がある。

Surface dynamics に向けた SPM 技術の開発

第 3.6 小節で述べたように, 本博士論文で開発したドリフト補正アルゴリズムは同一領域での長時間観察が可能であることを示した。ドリフト補正と探針の自動修復技術は, 表面の変化を同一領域で連続的に観察し, surface dynamics に関する実験を自動化し, 取得データの品質を向上させることができる。しかし, 本 SPM の帯域幅の制限により, サンプルングできない原子のタイプ [図 3.15] も多く存在する。これを解決するためには, より高速な SPM システムを開発する必要がある。例えば, ハードウェア的には, 高い共振周波数の走査用スキャナーを開発することや, 付録 A-2.4 で示した高いサンプルングレートを持つ ADC と DAC を搭載した SPM コントローラの開発が挙げられる。

さらに, 温度は物理現象における不可欠な要素である。本研究で開発した SPM 装置は室温に向けた課題を解決し, 原子表面の surface dynamics に関する温度依存を調査するために最適化されている。これは表面科学における温度依存の実験に活用できる。例えば, 表面拡散の研究や, 材料の絶縁体から金属への転移の観察, 超伝導の温度依存性の理解を推進することが期待される。その際には温度制御が可能な SPM の開発も課題となる。

SPM を用いた自動原子操作システムの開発および社会実装

室温での原子操作技術は, 表面に吸着した原子さえも構造を変えられるほどの精度を持っている。これまで数十個の原子を並べて文字を書く研究があった²。しかしながら, 数百個の原子を高精度で操作することは人手では難しく, SPM システムが自動的にこれを行う必要がある。大量の原子を操作できるようになることは, 個々の分子やその集団としての挙動を制御できる可能性を示唆し, ナノ構造における制御された物性が新たな機能や機能発現機構の解明につながるかもしれない。さらに, ナノ構造配列を操作する技術は他のナノデバイスの作製の基盤となる。例えば, Kane 型量子コンピュータの作製が挙げられる³。Kane 型量子コンピュータの製作には, Si 基板上に P 原子を均一な周期列で並べることが必要であり, 1 格子間隔の誤差も重要な問題となる。将来的には, 古典コンピュータに GPU が組み込まれたように, Si から構成される Kane 型量子コンピュータも同様に古典コンピュータに組み込まれば, 計算能力の向上に寄与することが期待される。

²Sugimoto, Y. et al. *Nature Mater* **4**, 156-159 (2005).

³Kane, B. E. *Nature* **393**, 133-137 (1998).

研究業績

原著論文 (学位論文に関係)

1. Zhuo Diao, Keiichi Ueda, Linfeng Hou, Hayato Yamashita, Oscar Custance and Masayuki Abe, Automatic drift compensation for nanoscale imaging using feature point matching, Appl. Phys. Lett., **122**, 121601(2023); <https://doi.org/10.1063/5.0139330>
2. Zhuo Diao, Linfeng Hou and Masayuki Abe, Probe conditioning via convolution neural network for scanning probe microscopy automation, Appl. Phys. Express, **16**, 085002(2023); <https://doi.org/10.35848/1882-0786/acecd6>
3. Zhuo Diao, Keiichi Ueda, Linfeng Hou, Masayuki Abe, Deep learning-assisted room-temperature scanning probe microscopy for autonomous atomic resolution characterization, in preparation.

原著論文 (学位論文に関係しない)

1. Zhuo Diao, Daiki Katsube, Hayato Yamashita, Yoshiaki Sugimoto, Oscar Custance and Masayuki Abe, Automated extraction of the short-range part of the interaction in non-contact atomic force microscopy. Appl. Phys. Lett., **117**, 033104 (2020); <https://doi.org/10.1063/5.0007754>
2. Keiichi Ueda, Diao Zhuo, Linfeng Hou, Hayato Yamashita, Masayuki Abe, time-reduction imaging method for scanning-probe microscopy using a compressed sensing algorithm based on sequential reconstruction method. Journal of the Ceramic Society of Japan, **131**(10), 645-650 (2023); <https://doi.org/10.2109/jcersj2.23042>.

国際学会発表

1. Zhuo Diao, Keiichi Ueda, Linfeng Hou and Masayuki Abe: "Surface information detection of scanning probe microscopy topography data via CompositeNetwork", MNC2023 16P-1-70, Keio Plaza Hotel Sapporo(Poster), 2023.11.16
2. Zhuo Diao, Keiichi Ueda, Linfeng Hou and Masayuki Abe: "Deep Learning-Assisted Room-Temperature Scanning Probe Microscopy for Autonomous Surface Characterization", Nanocon 2023, OREA Congress Hotel Brno Czech(Oral), 2023.10.19

3. Zhuo Diao, Keiichi Ueda, Linfeng Hou, Hayato Yamashita, Oscar Custance and Masayuki Abe: "Automatic thermal drift compensation for scanning probe microscopy using the feature point extraction" , ALC' 22, 18P-28, Okinawa(Poster), 2022.10.18
4. Zhuo Diao, Daiki Katsube, Hayato Yamashita and Masayuki Abe, "Separation of short and long range forces of force spectroscopy by Monte Carlo method " , MNC 2020, 2020-26-4(Online), 2020.11.
5. Zhuo Diao, Daiki Katsube, Hayato Yamashita and Masayuki Abe, "Bayesian inference on non-contact atomic force microscopy force spectroscopy analysis" , MLM2020, Kanazawa, Japan(Poster), 2020.1
6. Zhuo Diao, Yoshiaki Sugimoto, Daiki Katsube and Masayuki Abe, "Machine-learning Extraction of Short-Range Force Part with Non-contact Atomic Force Microscopy" , ACSIN-14 & ICSPM26(Poster), Sendai, Japan, 2018.10.21
7. Keiichi Ueda, Z. Diao, Zhuo Diao, Hayato Yamashita, and Masayuki Abe, "Analysis of Si atom diffusion on Si(111)-(7×7) with multiple scanning tunneling microscopy images" , 31st ICSPM, 2023
8. Keiichi Ueda, Z. Diao, Zhuo Diao, Hayato Yamashita, and Masayuki Abe, "Evaluation Methods for Under-Sampled Scanning Probe Microscopy with Feature Correlation" , MNC2023 16P-1-60, Keio Plaza Hotel Sapporo(Poster), 2023.11.16
9. Keiichi Ueda, Z. Diao, Zhuo Diao, Hayato Yamashita, and Masayuki Abe, "Under-sampled imaging method of scanning tunneling microscopy" , 29th ICSPM, 2021

国内学会発表

1. Diao Zhuo、山下 隼人、阿部 真之、"走査型プローブ顕微鏡を用いたナノスケールの実空間可視化を補助する Mixed reality インタフェース"、第 71 回応用物理春季学術講演会、23p-12F-4、東京都市大学世田谷キャンパス、2024.3.23
2. Diao Zhuo、山下 隼人、阿部 真之、"AI 言語モデルを用いた SNS コマンド型走査型プローブ顕微鏡 自動計測エージェントの開発"、第 71 回応用物理春季学術講演会、24p-P04-1 7(ポスター)、東京都市大学世田谷キャンパス、2024.3.24
3. Diao Zhuo、上田 啓市、Hou Linfeng、山下 隼人、Custance Oscar、阿部 真之、"特徴点マッチングを用いたナノスケールイメージングに向けた 自動ドリフト補正システム"、第 70 回応用物理春季学術講演会、16a-D405-6、上智大学四谷キャンパス、2023.3.16
4. Diao Zhuo、Hou Linfeng、Oscar Custance、阿部 真之、"畳み込みニューラルネットワークを用いた SPM 探針先端修復システム"、第 70 回応用物理春季学術講演会、16p-PA10-10(ポスター)、上智大学四谷キャンパス、2023.3.16
5. DIAO ZHUO、勝部 大樹、阿部 真之、"機械学習を用いた周波数シフトカーブの自動処理法"、第 79 回応用物理学会秋季学術講演会、18p-143-3、名古屋国際会議場、2018 年 9 月。

6. DIAO ZHUO、杉本宜昭、勝部大樹、阿部真之、”機械学習を用いた周波数シフトカーブの自動解析”、日本表面真空学会学術講演会、神戸国際会議 (3Ba04)、2018 年 11 月.
7. DIAO ZHUO、勝部大樹、山下隼人、杉本宜昭、阿部真之、”機械学習を用いたフォースマッピングの自動解析”、第 80 回応用物理学会秋季学術講演会、19a-C310-5、北海道大学、2019 年 9 月.
8. DIAO ZHUO、勝部 大樹、山下 隼人、阿部 真之、”ベイズ推定を用いた NC-AFM の短距離力の抽出および異なる探針のフォースカーブの比較”、第 67 回応用物理学会春季学術講演会、14a-PB5-3、上智大学四谷キャンパス、2020 年 3 月.
9. DIAO ZHUO、勝部 大樹、山下 隼人、阿部 真之、”モンテカルロ法による NC-AFM のフォースカーブの解析”、第 81 回応用物理学会春季学術講演会、10p-Z06-18、2020 年 9 月.
10. 上田啓市、DIAO ZHUO、Hou Linfeng、山下隼人、阿部真之、”Under-sampled SPM に関する評価手法の開発”、日本顕微鏡学会第 79 回学術講演会、2023 年 6 月
11. 上田啓市、DIAO ZHUO、Hou Linfeng、山下隼人、阿部真之、”圧縮センシングを応用した 時間短縮 SPM の開発”、第 70 回応用物理春季学術講演会、上智大学四谷キャンパス、2023.3.16

受賞

1. 2019 年 3 月, 大阪大学基礎工学部電子物理科学科 卒業論文優秀発表賞
2. 2021 年 3 月, 大阪大学基礎工学研究科電子光科学領域 修士論文優秀発表賞

謝辞

本研究の遂行に際し、大阪大学基礎工学研究科附属極限科学センターの阿部 真之 教授より終始熱心なるご指導と励ましを賜りましたことを心より感謝申し上げます。

本研究を編纂にあたり、副査をお引き受け頂いた大阪大学基礎工学研究科システム創成領域電子光科学領域の浜屋 宏平 教授と酒井 朗 教授より懇切なる御指導と御助言を頂きましたことに深甚なる感謝の意を表します。

また、本論文の執筆にあたり、大阪大学基礎工学研究科附属極限科学センターの山下 隼人 助教からは温かいご指導と有益な助言を賜りましたことに深く感謝いたします。

さらに、本研究の進行および執筆において、国立研究開発法人物質・材料研究機構の Oscar Custance 主任研究員より貴重なご指導と助言を頂戴し、心より感謝申し上げます。

さらに、本研究の進行において、東京工業大学理学院の山崎 詩郎 助教より貴重な助言を頂戴し、心より感謝申し上げます。

また、本研究の各段階において大変なご協力を賜りました、東京都立産業技術研究センター研究開発本部の上田 啓市氏に深く感謝申し上げます。

また、本研究の各段階において大変なご協力を賜りました、大阪大学基礎工学研究科システム創成領域電子光科学領域の Li Fengxuan 氏, Hou Linfeng 氏に深く感謝申し上げます。

また、博士論文の日本語の添削において、大変なご協力を賜りました、友人の辻 健太郎君、勾坂 知貴君と辻 明宏君にも深く感謝申し上げます。

さらに、諸々の事務手続きに尽力して下さった塚越 亜紀 秘書にも心から感謝の意を表します。

最後に、この3年間、公私にわたりご支援いただいた阿部研究室の皆様にも心からの感謝を申し上げます。

付 録 A SPMシステムに関するマルチプラットフォーム間の連携

本研究で開発した SPM 走査コントローラーは Python, LabVIEW FPGA, LabVIEW PC の 3つのプラットフォームから構成され, それらのプラットフォーム間で連携するシステム構造について, この章で説明する.

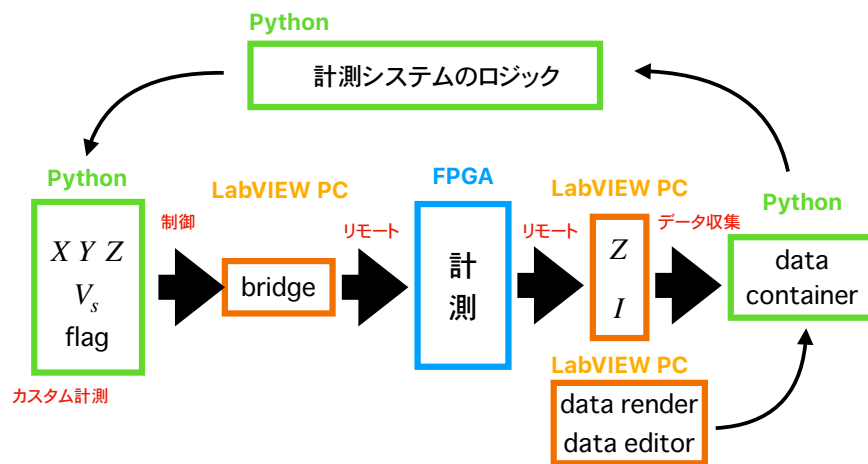


図 A.1: 本研究で開発した SPM システムの制御を説明するダイアグラム.

計測時のマルチプラットフォーム間の簡略な処理フローを図 A.1 に示す. 走査信号は py script で生成され, LabVIEW を介して FPGA に送信される. 走査信号やカスタムした走査パターンについての詳細な説明は, 付録 A-1.1 で行う. SPM データは走査によって得られ, FPGA から LabVIEW を経由して Python サーバーに転送される. Python サーバー側では計測結果を格納するためのメモリープールが準備されている. データを表示するためには, LabVIEW にデータを送る必要がある. そして Python で読み込んだユーザースクリプトにより, 取得したデータに基づいて計測の意思決定を自動化することが可能である.

それぞれのプラットフォームのシステム開発と 3つの異なるプラットフォームを連携させるための通信手段については以下のような内容を述べる. このように柔軟性の高いシステムを構築するために, LabVIEW PC と LabVIEW FPGA に特有な仕様が採用された. 結果的に, Python の実装だけで, 走査パターンのカスタマイズが可能であり, 自動制御も可能である. LabVIEW と LabVIEW FPGA の通信には FIFO (First-In, First-Out) を使用しており, その仕組みについては付録 A-2.2 で詳細に説明する. FPGA の実装においては, FPGA の特徴と伝統的な計算機の違いについて述べた後, 本研究の SPM システムの電氣的制御のためのシステムブロックを示す. また, SPM の時間分解能を向上させるための, 高速デジタルフィードバックを実現するアプローチについて付録 A-2.4 で解説する. LabVIEW PC と Python 間の通信は, Pykit For LabVIEW と呼ばれる拡張ツールキットを利用し, TCP 方式を用いてデータ連携を行って

いる. LabVIEW PC の実装では, ユーザーインタフェースを構築していて, その方法について付録 A-3 で説明する.

A-1 Python サーバーにおける計測の実装

A-1.1 カスタマイズ走査の実装

表 A.1: STM 測定時の入力信号と出力信号

入力信号	説明	出力信号	説明
X	ピエゾ X の位置 (V)	I	トンネル電流 (V)
Y	ピエゾ Y の位置 (V)	Z	feedback 後の Z 位置 (V)
Z	ピエゾ Z の位置 (V)		
V	Sample Bias(V)		
Flag	計測モードの設定 (uint32)		

表 A.1 には, カスタマイズ走査の際に扱う入力信号 (X, Y, Z, V, Flag) と出力信号 (I, Z) に関する詳細が記載されている. このシステムでは, Python からスキャンの入力信号を生成し, Flag の設定に従って出力信号を Python に送り, 適切な処理を行っている. 特筆すべきは, 本開発システムでは LabVIEW と LabVIEW FPGA のコーディングが不要であり, Python のみでカスタマイズ走査を実装できる点である. 入力行列の例として, 通常の走査による原子の凹凸像 (topography) 取得や, 走査型トンネル分光測定 (STS) に関連する $I-V$ カーブ測定の走査などが挙げられる.

topography の取得 (raster 走査)

- X: [0, 1, 2, 0, 1, 2, 0, 1, 2]
- Y: [0, 0, 0, 1, 1, 1, 2, 2, 2]
- Z: [0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0]
- V: [0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0]
- Flag: [3, 3, 3]

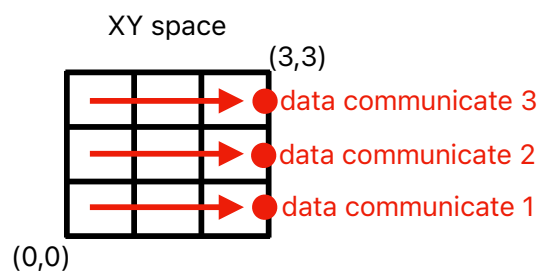


図 A.2: Topography を取得するための raster 走査

例えば、次のような配列を考える． X, Y の空間内で探針を移動させ、 z フィードバックによって探針の高さを変えることで、表面の凹凸像を撮影できる．この際、 V と Z を一定にし、 X と Y を図 A.2 に示したような 3×3 のグリッドでプログレッシブスキャンのように探針を移動させる．この時の入力信号の行列は、図中に示されている．この場合、 x 方向は高い周波数で変動する fast scan として機能し、 y 方向は低い周波数で変動する slow scan として機能する．また、一行の走査が終了するたびに、FPGA から Python へのデータ送信を行うように設定するため、Flag の値は X 方向の一行のデータ数 3 となり、出力された 9 個のデータを 3 つの 3 個セットで通信させる．

scanning tunneling spectroscopy の取得 (iv curve 走査)

- X : [2, 2, 2, 2, 2, 2, 2, 2, 2]
- Y : [2, 2, 2, 2, 2, 2, 2, 2, 2]
- Z : [2, 2, 2, 2, 2, 2, 2, 2, 2]
- V : [0, 1, 2, 3, 4, 5, 6, 7, 8]
- Flag: [$9 + 2^0 \times 2^{16}$]

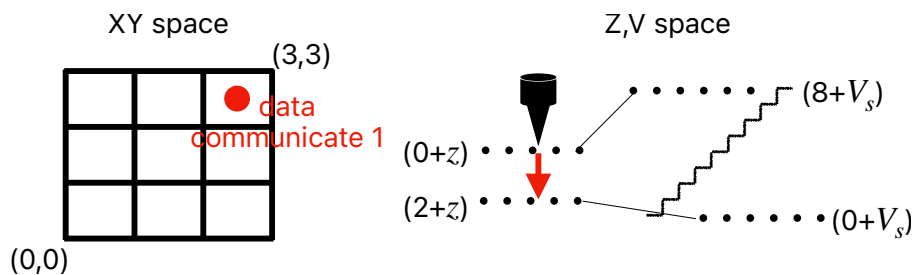


図 A.3: Scanning tunneling spectroscopy を取得するための iv curve 走査

走査分光測定 of IV カーブを取得するために、図 A.2 に示されるように X, Y の空間で探針を特定の原子の位置 (3, 3) に配置させ、その位置に探針を移動させた後、 z フィードバックを切る．より高い分解能を得るため、探針の z 方向を表面に近づけ、 V の信号を変動させながら I を取得する．この時の入力信号の行列は、図 A.2 に示されている．特に、設定した走査信号 Z および V に関しては、 Z はフィードバックを切った後の z の相対的な距離を表し、 V は本来のサンプルバイアス (V_s) からの相対的な値となる．この場合、Flag の設定は 9 つの値を一度に受け取るようにされており、 z フィードバックを切るための制御として、Flag に $2^0 \times 2^{16}$ の演算処理が加えられている．

Flag 信号の演算処理

Flagのデータ構造

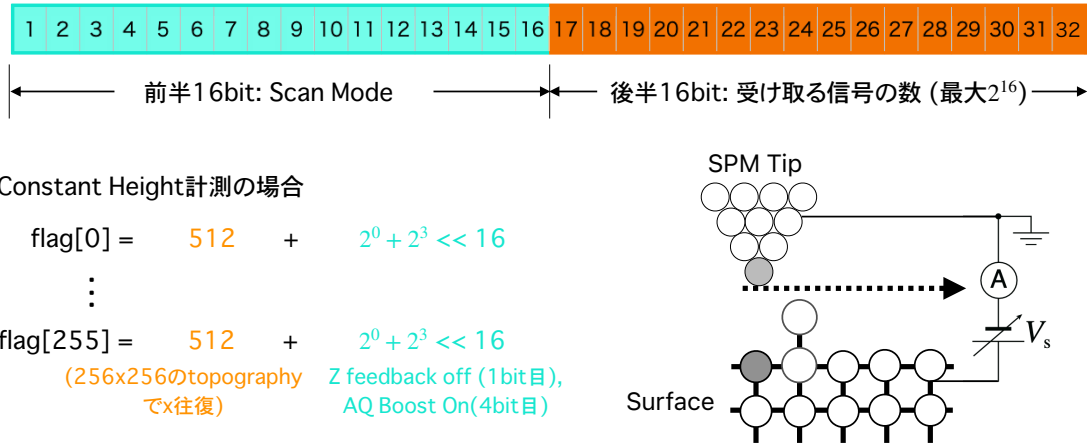


図 A.4: 走査信号 Flag に関するデータ構造

図 A.4 には走査信号 Flag のデータ構造を示している。Flag 信号は 32bit の uint(unsigned integer) として FPGA に代入してビットを分解して扱う。前半の 16bit は計測のモード設定を行い, “flag_mode” と呼ぶ。この Flag が順番的に FPGA 読み込まれた場合, FPGA の中でも計測モードによって設定変更される。後半の 16bit は入力信号の受け取る時の分け方の記述として, 値は受け取る計測信号 Z, I の数を示す。出力信号は多いため (解像度 256×256 の原子像は 6 万以上ある), 一気に受け取ると処理する時間がかかる。また, 計測している間でも原子像を確認したい場合, 画像の 1 行ずつ描画するユーザーインターフェースが必要である。よって, Flag 信号の後半は, スキャン信号を分けて処理することができ, FPGA がデータを格納する slice を減らすことができ, PC のパフォーマンスとユーザーインターフェースの最適化につながる。

図 A.4 では, 走査信号の Flag のデータ構造が示されている。Flag 信号は 32 ビットの uint(unsigned integer) として FPGA に代入され, ビットごとに分解されて処理される。前半の 16 ビットは測定モード設定を行い, 「flag_mode」と呼ばれる。この Flag が FPGA に順次読み込まれると, FPGA 内でも計測モードに応じた設定変更が行われる。後半の 16 ビットは, 入力信号を受け取る際の分割方法を示し, 受け取る計測信号 Z と I の数を表す。出力信号が多いため (256×256 の解像度の原子像は 6 万以上になる場合がある), 一度に受け取るとその処理に時間がかかる。また, 計測中に原子像をリアルタイムで確認するためには, 画像を 1 行ずつ描画するユーザーインターフェースが必要である。そのため, Flag 信号の後半部分はスキャン信号を分割処理することができ, FPGA がデータを格納する slice を減らすことができ, PC のパフォーマンス向上とユーザーインターフェースの最適化につながる。

以下の Python のソースコードには, flag の扱い方を示す。現在提供している計測モードは 5 つであり, “Z_FB_OFF” は FPGA の z feedback をオフにするモードである。“Lift_W” と “Lift_R” は AFM の lift mode のために用意されて, 高さを記録/反映するモードである。“AQ_Boost” は z feedback しないとき早く測定させるモードであり, AQ_Boost モードにおける走査速度は FPGA に設定できる。“Z_OSC” は探針を z 方向で正弦波をかけて振動させるモードであり, 振動の周波数と振幅は FPGA で設定できる。このデータ構造はシステムの拡張性を考慮して設計している。計測モードをさらに追加する場合, FPGA で計測を実装し, Python でモードの Flag を追加すれば反映できる。また, topography 測定は一般的な実験で使われており, topography 測定にあたる flag_mode の値が 0 になるように, 計測モードのビット演算を処理しなくてもで

きるようにした.

```
class FlagArrayMode(IntFlag):
    Z_FB_OFF = auto()    # Zの feed backを off
    Lift_W = auto()      # Life Modeにおいて, スキャンした高さを記録
    Lift_R = auto()      # Life Modeにおいて, 記録した高さを Zの feed frowardに代入
    AQ_Boost = auto()     # feedback しない測定を想定して, 測定速度を早くする
    Z_OSC = auto()       # feedforwardで Zを振動させる
```

図 A.4 の Flag 設定は, constant height 測定する際の Flag 設定の演算過程を例にしている. Flag に関する値の演算に合わせて, 以下のソースコードも用いて説明する. Constant height 測定は, z の高さ一定にしたまま, 表面の x, y 方向で走査する測定であり, その時解像度 256×256 で, x を forward と backward 往復で測定する条件を例にした. この時, flag_mode の設定では z feedback を切って [1 ビット目], 早く計測させる [4 ビット目] ことにするために, モードのビット演算は 9 となる. flag_mode を前半の 16 ビットに持っていく演算によって 589824 という値になり, 後半の 16 ビットに関して, 計測の 1 行目である 512 個の信号数を加算すると最終的に Flag の値は 590336 となる.

図 A.4 は constant height 測定時の Flag 設定の計算手順を例示している. Flag の値を計算する手法についての詳細を示すため, 以下のソースコードも用いて説明する. constant height 測定は, z の高さを一定に保ちながら, 表面の x および y 方向を走査する測定方法である. この例では, 256×256 の解像度で x を前進と後退させる条件を採用している. Flag モードの設定では, z feedback を切り [1 ビット目], より速く測定を行うため [4 ビット目] に, モードのビット演算は 9 となる. 具体的には, flag_mode を前半の 16 ビットに配置する演算により 589824 という値が得られ, 残りの 16 ビットに関しては 1 行目の計測で 512 個の信号数を加算し, 最終的に Flag の値は 590336 となる.

```
# Mode設定の例: [Zの feed backを off], [Life Modeにおいて, スキャンした高さを記録]
flag_mode = int(FlagArrayMode.Z_FB_OFF | FlagArrayMode.AQ_Boost) # output: 9
# IngFlag タイプを int 型に変換. Flag の前半の 16bit にしたいので, ビットを 16 個分ずらす.
flag_mode = flag_mode << 16 # output: 589824
# もし入力信号を 256 個に分ける場合, そのときの flag の値は
flag = flag_mode + 512 # output: 197120
```

A-1.2 自動計測の実装

図 A.5 では, 自動計測時における Python Server のワークフローが示されている. SPM が生成した結果は Python Server 内で, ユーザーが実装した AI Inference のスクリプトによってパターン認識される. AI による推論結果は次の走査の意思決定に必要な情報として, システム内で活用される. この際, Scan Module 内でカスタマイズした走査手法をプログラミングすれば, 自動計測 (Self-directed measurement) が実現できる. 特に, SPM システムを Python Server から制御するための API が提供されている. LabVIEW PC での GUI で SPM を操作する機能と同じように, Python Server でも同様の操作が可能である. その時では, ユーザーは通常の SPM 操作手順に従いながら, 作成した自動走査プログラムを Python Server にインポートする必要がある.

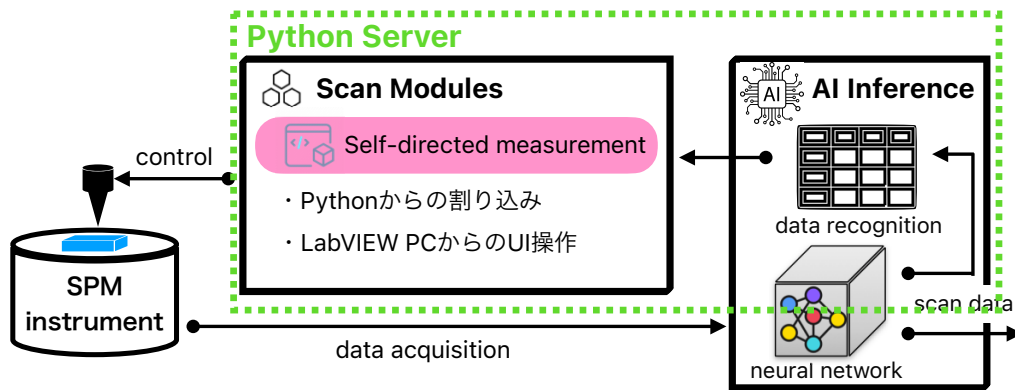


図 A.5: Python による自動計測実装のシステム図

自動走査プログラムは、SPM 測定に関する特定のタイミングで Python から SPM システムに割り込み処理を行うことが可能である。図 A.6 はシステムに割り込み可能なタイミングを計測開始の時間から、チャートで示している。作製した API の高いレイヤーにおける各タイミング (イベント) のリストと説明は以下になる。

- ScanEventStateStart: スキャン開始したタイミング
- OnScanFlagRead: スキャン中各 Flag 信号が処理される前のタイミング
- OnScanFinish: FPGA 側のスキャンが終了したタイミング
- ScanEventStateFinish/Stop: スキャン終了/手動で止めたタイミング (OnScanFinish の違いとは、OnScanFinish を呼ぶタイミングはソフトウェア側のデータ処理は全て終わっていない、ScanEventStateFinish/Stop を呼ぶタイミングではソフトウェア側のデータ処理は全て終わった時である。)
- ScanFileAddEvent: 計測したファイルが保存されたタイミング
- ScanEventStateIdle: 計測に関する一連処理が終わって、待機状態になったタイミング

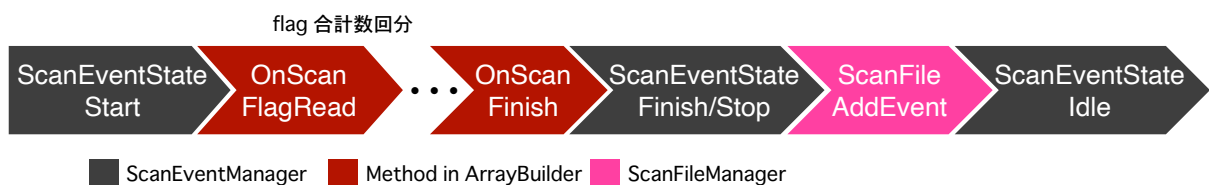


図 A.6: 走査プロセスにおける Python からの割り込みタイミング

```
def OnScanEventUpdate(self, sender, data):
    if data == ScanEventManager.ScanEventState.Start:
        pass

ScanEventManager.instance.ScanUpdateEvent += self.OnScanEventUpdate
```

以上では、イベントを登録する Python の処理を示している。ScanEventManager のというクラスの中に、ScanEventState に関するイベントが存在する。このコードは、“ScanEventManager.instance”でこのクラスのインスタンスを参照し、ScanEventState に関するイベントを“self.OnScanEventUpdate”という関数に登録することができる。そうすれば、ScanEventState のタイミングでは、登録した関数がよばれるようになる。

続いて、自動走査プログラムが人間の代わりに、Labview PC の UI を操作する処理について説明する。作製した API の中に、“RemoteDataType”を参照すると、以下のコードになる。

```
class RemoteDataType(Enum):
    PythonScanParam = "PythonScanParam"
    StageConfigure = "StageConfigure"
    ScanDataHeader = "ScanDataHeader"
    DriftX = "set_drift_x"
    DriftY = "set_drift_y"
    DriftZ = "set_drift_z"
    DriftX_ADD = "set_drift_x_add" # write only
    DriftY_ADD = "set_drift_y_add" # write only
    DriftZ_ADD = "set_drift_z_add" # write only
    ScanEnabled = "ScanEnabled"
    StageOffset_X_Tube = "set_x_tube_offset"
    StageOffset_Y_Tube = "set_y_tube_offset"
    StageOffset_X_Tube_ADD = "set_x_tube_offset_add" # write only
    StageOffset_Y_Tube_ADD = "set_y_tube_offset_add" # write only
    StageOffset_X_HS = "set_x_hs_offset"
    StageOffset_Y_HS = "set_y_hs_offset"
    StageOffset_X_HS_ADD = "set_x_hs_offset_add" # write only
    StageOffset_Y_HS_ADD = "set_y_hs_offset_add" # write only
    Tip_Position_X = "set_tip_x"
    Tip_Position_Y = "set_tip_y"
    Tip_Position_Z = "set_tip_z"
    Tip_Position_V = "set_tip_v"
    Go_Home = "go_home"
    Tube_Z_SetPoint = "tube_z_setpoint"
    HS_Z_SetPoint = "hs_z_setpoint"
    TipShaper_Run = "TipShaper.Run" # write-only
    TipShaperConfigure = "TipShaperConfigure"
    ScanOffset_Area_Idle = "ScanOffset.Area_Idle" # read-only
    ScanOffset_Tip_Idle = "ScanOffset.Tip_Idle" # read-only
    ScanIdleTime = "ScanInterpolate.Idle_Time"
    ScanButtonLocked = "ScanEnabled.Locked"
```

これらは Labview 上に格納した UI の変数に対応しており、“LabviewRemoteManager”というクラスを使えば、Python 上から Labview の変数を取得/変更することができる。例えば、“RemoteDataType.StageConfigure”はスキャンオフセットや試料電圧の情報を格納するデータ

であり, “GetLabviewRemoteDataWithBlock” という関数を使えば Python 側でその値を取得できる. 一方で, “RemoteDataType.DriftX” はドリフトの X 方向フィードフォワードの値を設定する項目であり, この変数を変えたい場合, “SendLabviewRemoteData” という関数を使えば, 簡単に変更可能である. それぞれの例は, 以下の 1 行のコードだけで実現できる.

```
l = LabviewRemoteManager.instance
l.GetLabviewRemoteDataWithBlock(RemoteDataType.StageConfigure)
l.SendLabviewRemoteData(RemoteDataType.DriftX, str(0.01))
```

作製した API の詳細な実装については Github 上で参照できる¹. また, ユーザーが任意のタイミングで Python Server の処理を実行したい場合は, LabVIEW PC 上に UI オブジェクトを配置し, ユーザーが UI を操作することで Python による計測を実行できる. この詳細については, 第 A-3 節で説明する.

A-2 FPGA を用いた SPM 組み込みシステムの実装

A-2.1 FPGA の pipeline とパフォーマンス最適化

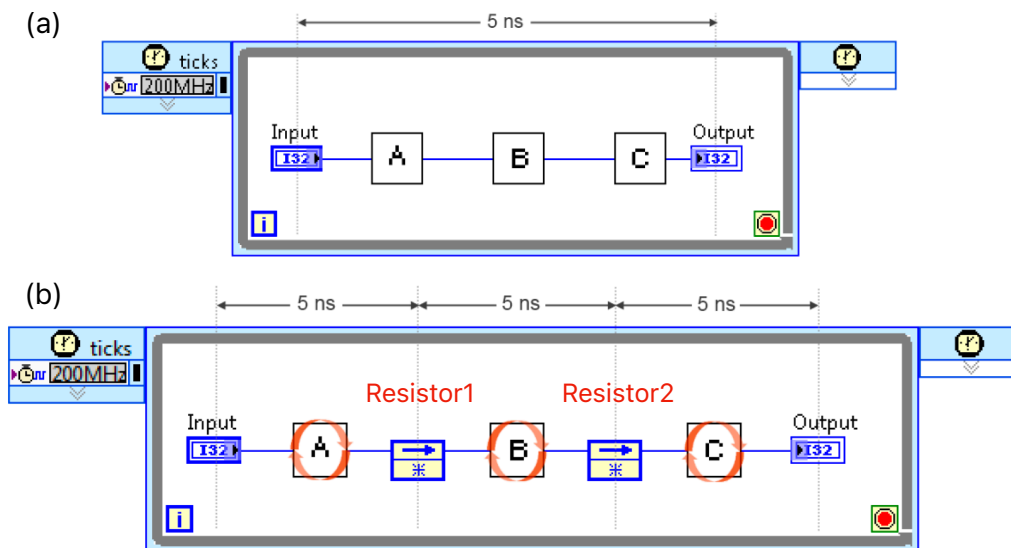


図 A.7: (a) LabVIEW FPGA の single-cycle Timed Loop (SCTL) に関するブロック. (b) SCTL に pipeline が入ったときの違い.

FPGA (Field-programmable gate array) の技術を利用すると, 専用にカスタマイズ可能なハードウェアを実装できる. FPGA が最も異なる点の一つは, そのループタイミングが信頼できることである. 図 A.7(a) では, LabVIEW FPGA の single-cycle Timed Loop (SCTL) を使ったループブロックが示されている. ここで与えられたクロックは 200MHz であり, この SCTL ブロック内の計算処理は 5 ns の頻度で実行される固定されたループである. この固定されたタイミングのループは, タイミングに関する信頼性を提供する. しかし, 一方で, SCTL ブロック内の処理が 5 ns 以内で完了する必要があるため, 処理すべきタスクが増えると FPGA ブロッ

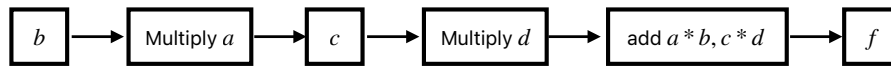
¹<https://github.com/DIAOZHUO/Labview-SPMController>

ク内の遅延が 5 ns を超えてしまう可能性がある。そのため、コンパイラが警告を出す可能性があり、固定ループのタイミング管理は複雑なことがある。

ループのタイミングを管理する手法の一つとして、SCTL ブロック内にパイプラインを導入する方法がある。図 A.7(b) では、Resistor1 を「A」と「B」の処理の間に配置することで、ループは「A」から「B」に到達する前に一時停止し、結果として 1 つのループの実行時間を短縮することができる。しかしこの手法には、実行の遅延が増えるという問題が伴う。図 A.7(a) の場合、全ての処理を完了するためにかかる時間は 1 サイクルで 5 ns だが、図 A.7(b) では 2 つのパイプラインを増やすことで全ての処理を完了する時間が 3 サイクルで 15 ns となった。

$$\text{計算タスク: } f = a * b + c * d$$

(a) CPUを用いた計算フロー



(b) FPGAを用いた計算フロー

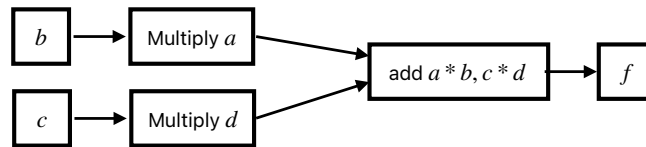


図 A.8: CPU と FPGA に関する計算フローの違い

FPGA を設計するとき、ハードウェア性能の限界絞り出すために、High Throughput の設計が必要である。それは、PC の CPU を用いたプログラミングの設計と違ったパフォーマンス最適化の理念である。例えば $f = a * b + c * d$ の計算を CPU のコードを実行させるとき、図 A.8(a) が示したように、CPU は固定した機能のコマンドをシーケンスとして順次実行する。しかし、FPGA 自体は高度的な専門化した並列回路であり、計算に関する処理やデータフローの設計なども可能である。CPU と FPGA を用いる計算は同時に、クロック数を上げることでパフォーマンス向上できる。FPGA で特徴的な手段として、図 A.8(b) のように、 $a * b$ と $c * d$ を並列計算させるデータフローを設計することで、データの帯域幅を増やすことができ、結果的に pipeline を減少でき、さらなるパフォーマンス向上がみられる。

FPGA の設計では、ハードウェアの性能を最大限に引き出すために、High Throughput の設計が不可欠である。これは、PC の CPU を用いたプログラミングとは異なる、パフォーマンス最適化の考え方である。例えば、 $f = ab + cd$ の計算を CPU で実行させる場合、図 A.8(a) に示されるように、CPU は固定された機能のコマンドを順次実行する。しかし、FPGA は高度に専門化された並列回路であり、計算処理やデータフローの設計を自由に行える。計算のパフォーマンスを上げるためには、クロック数を上げる方法は CPU と FPGA にとって共通である。FPGA 特有の手法として、図 A.8(b) のように、 ab と cd を並列計算させるデータフローを設計することが挙げられる。これによりデータの帯域幅を増やし、結果としてパイプラインを減らし、さらなるパフォーマンス向上が期待できる。

A-2.2 FIFO による入力と出力信号の通信

FIFO(First In First Out) は計算機システム理論において、データ構造を管理する方法である。特にデータのバッファに対して、“Queue”の処理順(先着順)でデータ进行处理し、新たに追加したデータは一番優先順が低い場所にスタックされる。

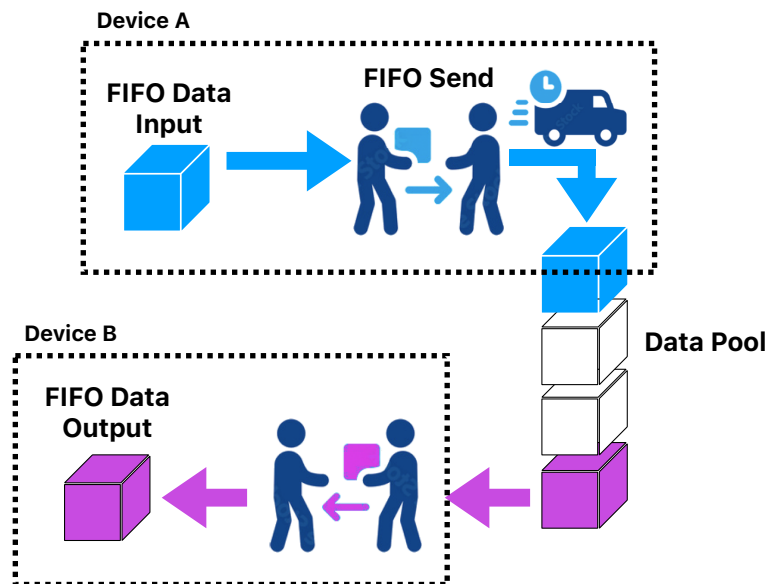


図 A.9: FIFO 形式のデータ通信.

図 A.9 では、異なるデバイス間で FIFO を利用した通信の概念図を示している。この場合、Device A を送信側、Device B を受信側として定義する必要がある。Device A から送信されるデータは、FIFO Send の関数によってデータを一時的に保持する Data Pool に格納される。この Data Pool は、荷物の配達に例えると、中継役を果たす。Device B がデータを受信する関数を呼ぶタイミングで、Data Pool からデータを Queue の形式で受け取ることができる。このデータ通信のプロセスでは、Device A と Device B 間で大量の通信量やメモリの確保が不要で、一度の通信に必要なデータを受信するためのメモリがあれば十分である。したがって、この FIFO 構造によるデータ通信は FPGA のメモリリソースを節約する。例えば、 256×256 のデータを含む複数のチャンネルから情報を取得する際、そのサイズの FPGA メモリが消費されることはない。データを取得するたびに FIFO を使用して Data Pool に送信されるため、FPGA では約 1000 個のレジスタのみが使用されている。また、FIFO 通信は Thunderbolt 3 の規格において、FPGA 側の SRAM と PC 側の DRAM の間で DMA (Direct Memory Access) によって通信されているため、通信帯域は数 Gbit/s に達している。

A-2.3 SPM のシステムブロック

図 A.10 で示したように、SPM 組み込みシステムでは、主に “SPM main loop”, “Z feedback loop”, “Offset Interpolation loop” という 3 つのループブロックより構成されている。“SPM main loop”はいくつかのサブプロセス (Sequencer, Feedforward, Delay, Analog Read) から構成された SPM メインループである。Sequencer サブシステムは他プラットフォームから FIFO によって送信された走査信号の再生位置を管理するプロセスであり、計測開始時と伴い走査信

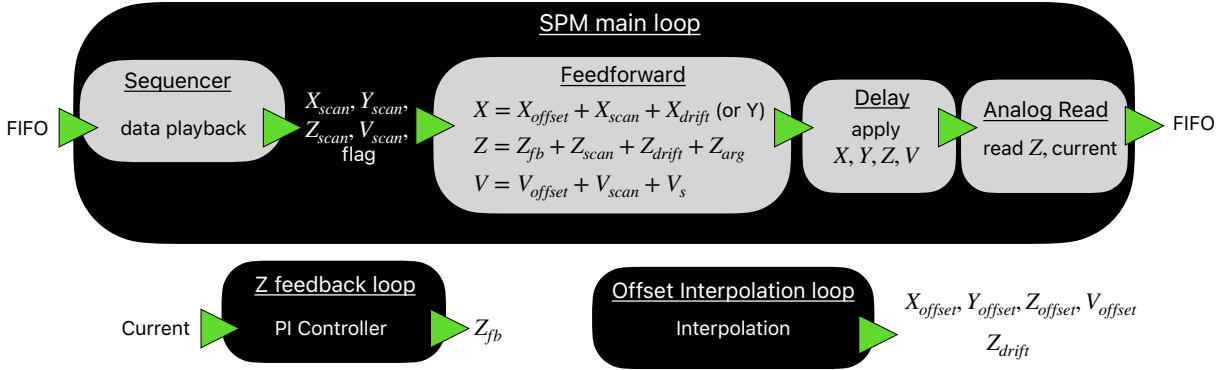


図 A.10: FPGA で実装した SPM システムブロック。

号の配列から一個ずつ取り出す役割を果たしている。計測開始するとき、1 回ループのたび 1 つのサンプリングする走査ポイント ($X_{scan}, Y_{scan}, Z_{scan}, V_{scan}, \text{flag}$) を SPM 装置に入力させる。Feedforward サブシステムは走査信号の Feedforward 信号処理を行なっている。Feedforward 信号処理には、 X 方向を例として説明すると、走査エリアを決める offset 信号 (X_{offset})、走査信号 (X_{scan}) とドリフト速度をキャンセルさせる信号 (X_{drift}) を加算している。加算するときの値や加算する項目は第 A-1.1 小節で述べた Flag で制御できる。続いて Delay サブシステムは SPM 装置に与えた信号の応答を待つために設けた待機するシステムである。待機している時間では異なるループブロック間の cross-loop 通信を行い、FPGA のタイミング遅延を有効利用している。最後の Analog Read サブシステムは計測したデータを採取し、FIFO によって他プラットフォームに送信する。

“Z feedback loop”は探針の奥行き制御を行うループであり、第 A-2.4 小節でさらに高速化できる。フィードバックは PI 制御を使用しており、 $e(t) = |V_{in} - \text{setpoint}|$ 、P と I の係数を K_p 、 K_i と設定すると PI 制御の計算は式 A.1 のようになる。

$$V_{out} = K_p e(t) + K_i \int e(t) dt \quad (\text{A.1})$$

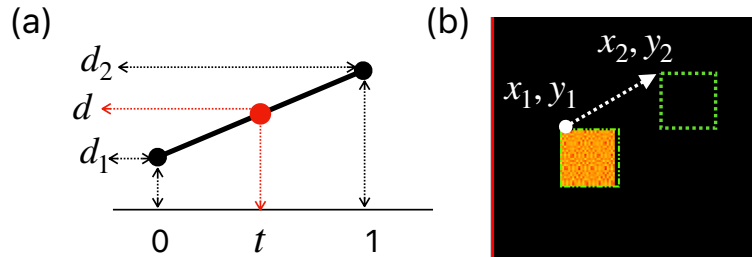


図 A.11: offset 位置に適用する線形補間のイメージ図。

“Offset Interpolation loop”は走査信号の線形補間を行うループである。式 A.2 は線形補間の計算であり、図 A.11(a) が示したように、例えば現在の信号は d_1 であり、その信号を d_2 に変更させたい場合は急激に信号の値を変更するのではなく、 t という時間を経て徐々に d_2 に変更する仕様となっている。

$$d = d_1 + (d_2 - d_1) * t \quad (\text{A.2})$$

図 A.11(b) が示した SPM の走査エリアにおいて、走査エリア座標を (x_1, y_1) から (x_2, y_2) に変更する場合、 piezo のクリープ現象を軽減するために線形補間を使用して移動する。X, Y, Z チャンネルに関する変更速度は、この研究では 1.5 nm/s と設定している。また、ドリフトのフィードフォワード項 Z_{drift} について、ドリフトを補償するためにドリフトした距離に応じて Z_{drift} の値が累積される。このため、長時間のドリフト補正を行うと Z_{drift} の値がオーバーフローのリスクがある。この問題を解決するために開発した仕様では、毎回の走査終了時に Z_{drift} を 0 にリセットし、その差分値を Z_{scan} に加算する方式を採用している。これにより、1 回の計測で蓄積されたドリフト値は Z_{scan} に移され、計測開始時には Z_{scan} の線形補間による値の調整が行われ、その値が最終的に $Z_{feedback}$ に反映される。

A-2.4 高速デジタルフィードバック回路のアルゴリズム

探針からの信号（例えば、STM の場合はトンネル電流）を一定に保ちつつ、探針と試料の間の距離を制御する回路は、SPM の制御システムにおいて極めて重要である。従来の SPM 測定回路は複数のアナログ回路から成り立っており、制御システムは物理的に構築されており、PC とのインタフェース構築には複雑さやコストがかかる傾向にあった。しかし、このシステムでは FPGA を利用したデジタル制御を採用することで、カスタムな計測と機械学習の統合が可能になった。ただし、デジタル回路を使用する際には、洗練されたアナログフィードバック回路と比較して応答帯域が狭くなるという代償がある、デジタルフィードバック回路の応答帯域が狭くなる原因として主に以下の 2 つが考えられる。

1. ADC と DAC のサンプリング遅延

フィードバック制御する信号はもともとアナログ信号である。この信号をデジタル回路で扱う際には、analog to digital converter (ADC) を介してデジタル信号に変換する必要がある。そして、デジタル回路で計算された結果を反映させるためには、digital to analog converter (DAC) を通じて再びアナログ信号に変換する必要がある。

2. デジタル回路の float 計算による遅延

アナログ信号の演算はアンプを使用して加算回路や乗算回路を構築するため、アンプ自体の帯域で遅延が決定される。一方で、デジタル回路を用いたアナログ信号の計算は浮動小数点 (float) 演算を行う必要がある。FPGA における float の演算は、通常数十個の pipeline 遅延が FPGA クロック周波数に影響を与え、PID 制御などの計算において更新速度に制限が生じる。(PID 制御に関する計算を例にすると、40 MHz の FPGA クロックでは 100 kHz 程度の 1 サイクルの更新速度となる)。

このシステムが採用している NI 7857r の装置は、ADC と DAC のサンプリング周波数は 1 MHz であり、これは Gain のバンド図から評価されている。しかし、実際の制御には遅延を考えないといけなく、位相のずれに関するバンド図の評価は図 A.12 に示す。評価方法としては、入力した信号と同じ値の信号を出力させ、Network Analyzer で解析した。その時、予想される FPGA の中で計算するプロセスは図 A.12(a) に示した。入力したアナログ信号 V_{in} は 1 MHz のサンプリングレートによる遅延で 1 μ s がかかり、その後 16bit オーダーのビット (fixed point) を実際の電圧数の浮動小数点 (float) に変換するために、FPGA では 18 pipelines が消費する。数値的な電圧を出力するために、以上のプロセスを繰り返して、float を fixed point に変換し

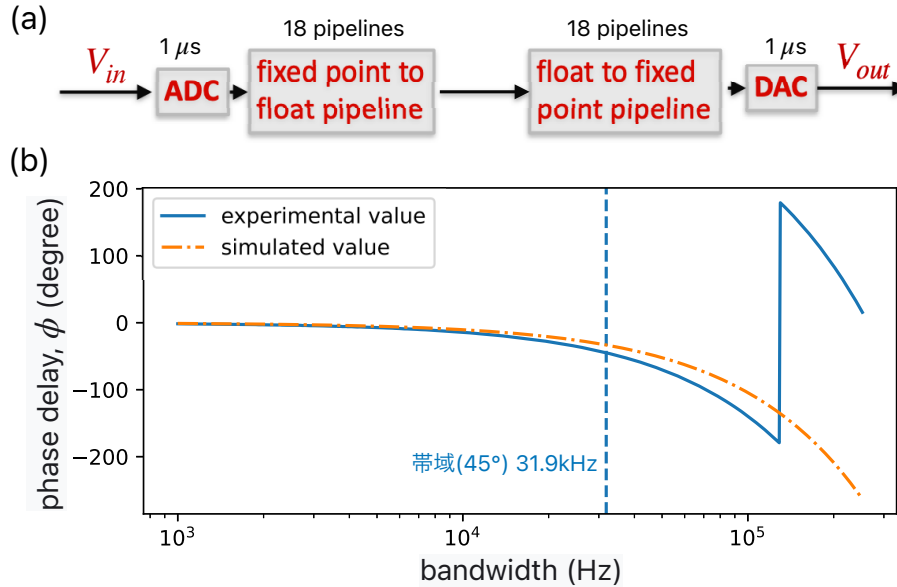


図 A.12: NI 7857r を用いて、入力信号をそのまま出力する場合、(a)ADC と DAC の処理 pipeline と (b) 位相遅延のバンド図。バンド図の青線は実験で測定した値であり、オレンジ色の線は装置のスペックに従って計算した値である。

て 1 MHz サンプリングの DAC を通す。NI 7857r の内部クロックは 40 MHz であり、18 個の pipeline は 450 ns を消費するため、全体的に 2.9 μ s を消費することになる。

このシステムが採用している PXIe-7857R 装置に関して、ADC と DAC のサンプリング周波数が 1 MHz であり、これは Gain のバンド図から評価されている。ただし、実際の制御プロセスでは遅延を考慮する必要がある。位相のずれに関する評価は図 A.12 に示されている。この評価では、入力した信号と同じ値の信号を出力し、それを Network Analyzer で解析している。この際、FPGA 内での計算プロセスは図 A.12(a) に示されるように予想される。具体的には、入力されたアナログ信号 V_{in} には 1 MHz のサンプリングレートによる遅延で 1 μ s がかかる。その後、FPGA 内では、実際の電圧数を表すために 16 ビットオーダーの固定小数点を浮動小数点に変換するために、18 個のパイプラインが使用される。このプロセスを通じて数値的な電圧を出力するため、この変換を繰り返し、1 MHz サンプリングの DAC を通過させる。NI 7857r の内部クロックは 40 MHz であり、18 個のパイプラインは 450 ns を消費するため、全体的には 2.9 μ s を要することになる。全体的な遅延時間 t 、入力信号の周波数 f とすると、位相の遅延 ϕ は、

$$\phi = t * f \quad (\text{A.3})$$

となり、この評価方法にしたがってシミュレーションした位相のバンド図は図 A.12(b) のオレンジ色の波線、実験的に得られた位相の遅延は青線でプロットした。2つの線はほぼ重なるので、以上の仮説は成立することがわかる。

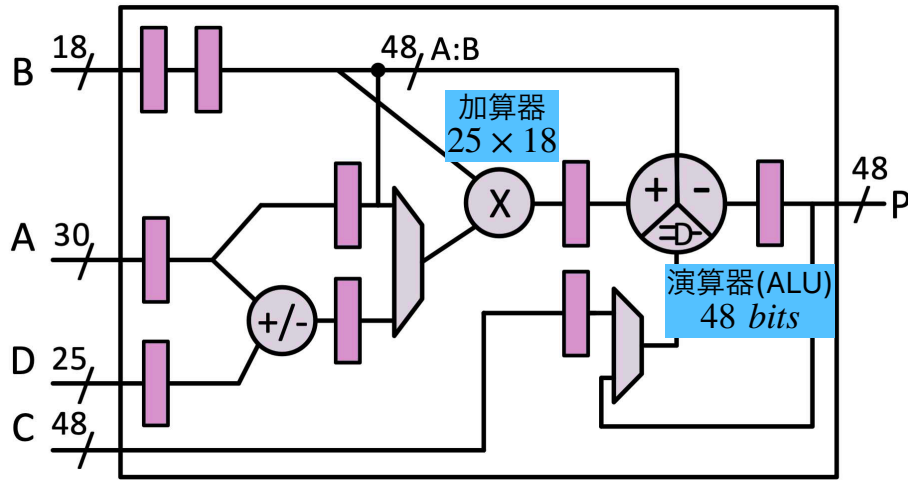


図 A.13: DSP48e におけるデパンクチャ処理.

以上の遅延となる要素を踏まえて、デジタルフィードバック帯域を増やすために、以下の3つのアプローチを採用した。

1. 外部から高速 ADC と DAC を導入

ADC と DAC のサンプリング遅延を減らすために、アナログ信号を外部 ADC (LTC2207, 100 MHz サンプリング) に入力しデジタル信号に変換してから、FPGA のデジタル IO に入力するようにした。そして、アナログ信号の出力は FPGA のデジタル IO から外部 DAC (LTC1668, 50 MHz サンプリング) に繋いで出力するようにした。

2. DSP48e を用いた fixed point 計算

デジタル回路の計算遅延を減らすために、掛け算と割り算する際は DSP48e [図 A.13] を使用した。DSP48e を用いると、入力 A, B, C に対して計算結果 P を最大 2 pipelines で以下の計算で行うことができる。

$$P = A * B + C \quad (\text{A.4})$$

しかし、この場合浮動小数点は使えず、A は 18bit, B は 25bit, C は 48bit の fixed point として代入しないといけない。

3. float に変換しないフィードバック計算アルゴリズム (HSPID)

計算遅延を減らすために、式 A.1 に関する計算を行う際に、float を使用せずに fixed point によるデジタルフィードバックを設計した。PI 制御は、物理的なモデルがなく信号の大きさを比較して制御するため、実際の信号値が得られなくても制御可能である。ADC から変換された fixed point (16 ビットの配列) は実際の電圧に変換せずに、16 ビットの整数値 [0-65535 の範囲の値] として V_{in} に代入され、計算された V_{out} も 16 ビットの整数として DAC に直接デジタル信号として代入される。その結果、作った HSPID の 1 サイクルは 10 pipelines となり、100 MHz のクロック数で実行させると更新速度は 10 MHz まで上げた。

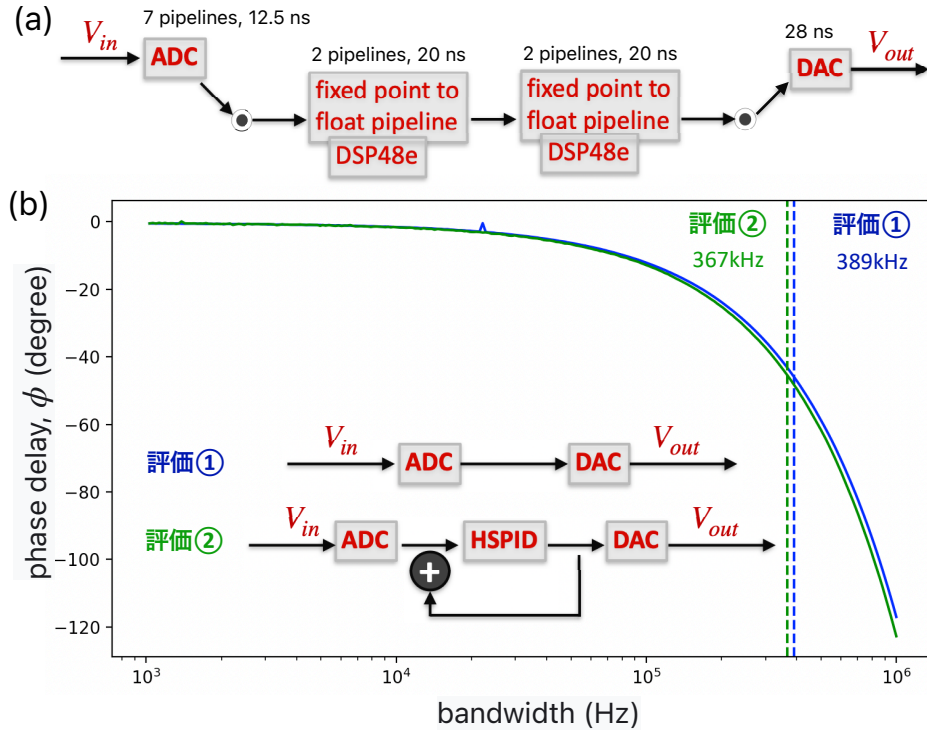


図 A.14: (a) 外部の ADC と DAC を代入した自作システムの高速処理 pipeline と (b) このシステムを用いた位相遅延のバンド図. バンドには, 青線の評価 1 では入力信号をそのまま出力する評価方法であり, 緑線の評価 2 では入力信号を PID 制御でフィードバックした後出力する評価方法を使用している.

以上で述べた新しいシステム改良を用いて, 図 A.14 の 2 つの評価を行った. 評価 1 では, 自作した外部 ADC と DAC システムを導入し, DSP48e を用いてデジタル信号を電圧の float に変換するパイプラインの条件で評価した. 評価 2 では, デジタル信号を電圧の float に変換せずに, HSPID を用いてフィードバック制御を行う条件で評価した. これらの評価による位相の遅延結果は図 A.14(b) に示されている. 高速化したシステムにより, システムのアナログ IO (評価 1) の帯域を 389 kHz, フィードバック制御 (評価 2) の帯域を 367 kHz に伸ばすことができた. しかし, このシステムを使用したシステムのアナログ IO 理論帯域は約 3 MHz であり, 実際の結果はその帯域に到達できていないようである. 外部 ADC と DAC を稼働させる FPGA のクロック信号が外部 ADC と DAC のクロックに追いつかないことが原因と考えられる. FPGA は最大 40 MHz の方形波クロックを出力できるが, この周波数ではノイズが大きく外部 ADC が誤動作する可能性があるため, ADC を 10 MHz, DAC を 40 MHz で稼働することにした. さらに帯域の最適化を行うために, FPGA のデジタル IO の帯域を拡張し, 出力信号の歪みを減少させる回路を導入することが考えられる.

A-3 LabVIEW PC を用いたユーザーインターフェースの実装

第 A-1.2 小節では Python Server にインポートしたユーザーのスクリプトで装置制御する方法を説明したが, この小節ではユーザーが手動で装置を操作する方法を説明する. ユーザーは LabVIEW PC 上のボタンや入力フィールドを通じて SPM 装置を操作し, Python Server が

それに応答する仕様になっている。LabVIEW PC は Python の関数を呼び出すことによって、Python Server 上で事前に用意された関数を実行させることができる。LabVIEW PC と Python 間の通信は Pykit For LabVIEW を利用して行われており、その実装に関する LabVIEW のブロック図の例を図 A.15 に示す。以下の6つポイントで実装を説明する。また、実装方法の詳細は Pykit For LabVIEW のドキュメントに参照できる²。

1.無限ループ

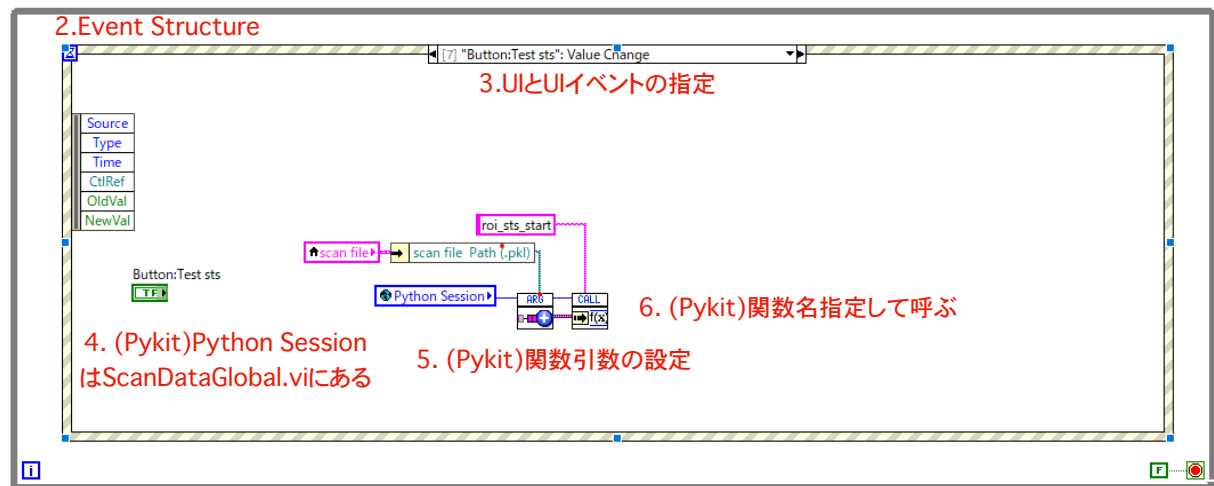


図 A.15: LabVIEW PC を使用した Python サーバーに割り込み処理の例。

1. 無限ループ GUI がユーザーの応答を待ち続かせるために、無限ループの中に処理を書く。
2. Event Structure ユーザーが UI のオブジェクトとのインタアクションを検知させるフレームワーク。
3. UI イベントある特定な UI オブジェクトにある特定なインタアクションがあった場合、Event Structure 内を callback させる。この図を例にしたのは、ある特定なボタンがクリックするタイミングである。
4. Python Session Python Server と TCP 通信する際のアドレスとポート番号を含むセッションの情報。
5. Python 関数の引数 LabVIEW PC から Python 関数の引数を指定できる。!footnote
6. Python 関数の呼び出し Python 内の関数名を与えることで、このタイミングで関数を呼び出しすることができる。

²<https://www.zdiao.xyz/pykit-doc/>