

信号処理を用いた結晶性材料の構造解析

遠藤 智子*

東京電機大学 情報環境学部

概要

本稿では、ナノ材料の構造解析に適した信号処理として 3 次元ウェーブレットを提案する。提案するウェーブレットは固体物理学の結晶構造を取り入れた階層構造を持つ。このウェーブレットを用いることによってナノ炭素材料の構造解析や新材料の設計に寄与できると考えられ、これについて議論を行う。

1 はじめに

物質の組織や構造を理解する上で顕微鏡や分光計などの装置を用いて対象とする材料分析することは欠かせない技術である。分析した結果を用いて、さらに分子モデリングやシミュレーションなどの数値解析に発展させ、新たな材料設計へ向けた検証が行われる。

対象とする材料の分析には従来から電子顕微鏡等の画像も用いられている。炭素材料の構造・形態評価に押田ら [1] は顕微鏡の画像解析を用いてを行っている。この論文の中で、「顕微鏡観察は解析法の一つであり、画像処理を導入することにより顕微鏡観察を定量化し、試料の組織・構造の詳細な解析を行うことができる」と説明しており、材料を理解する上で画像解析は欠かせないツールの一つとなっている。

現在、画像解析の技術は向上し、ナノスケールの材料の形態の 3 次元構造の可視化や内部の欠陥の状態を観察できるようになってきた。これらの技術は 3 次元結晶構造を一度 2 次元画像に射影し、射影像を加工して情報を得るものである。しかし、3 次元構造を 2 次元画像に変換するため、結晶を切断する際のスライスの間隔や透過型電子顕微鏡の傾斜角度の間隔により再構成された 3 次元像に虚像が生じる問題がある。この問題を回避するために画像を多くし 3 次元画像を再構成させると計算量が膨大になる。そこで、ナノスケールの結晶性材料の性質に合わせた内部構造の特徴抽出方法の開発が望まれる。

我々は、結晶性材料の内部構造の特徴抽出や材料設計を目的した固体物理学 [2] の結晶構造を取り入れた 3 次元ウェーブレットを提案する。この新しい提案法は、

*e-mail:tomoko.endo.yamagishi@gmail.com

結晶性材料の内部構造の自動抽出手法の確立や既存の結晶性材料の特性を調べるだけでなく、所望の特性を持った結晶性材料の開発に寄与できると期待できる。

本稿では、はじめに、2節で結晶構造の数理的構造について説明する。3節では、結晶構造を取り入れた新しい3次元ウェーブレット (Crystal wavelets) を提案し、その構成法と Haar ウェーブレット基底関数の周波数特性を明らかにする。最後に4節では、Crystal wavelets を用いたナノ材料設計へ向けた展開について議論する。

2 結晶構造

結晶を構成する原子は規則正しい3次元空間の配列をとっている。それらの原子の位置を点で表したものを格子点と呼び、格子点の規則的な配列を結晶格子と呼ぶ (図1)。

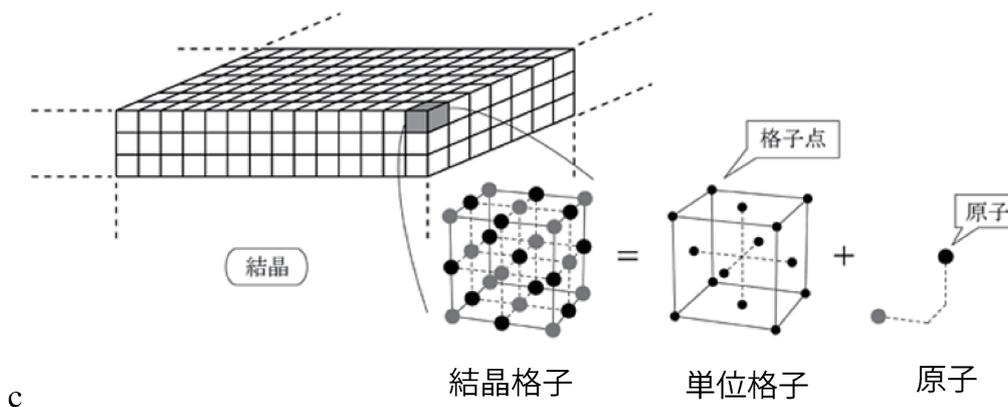


図1: 結晶構造と結晶格子

結晶格子の規則性を表す最小の平行六面体を単位格子という (図2)。単位格子を格子定数で分類すると14種類の単位格子ができ、この14種類の単位格子をブラベー格子という。ここで、格子定数は単位格子3つの軸の長さとして3つの軸間のなす角 (6つの定数) であり、ブラベー格子における原子の半径、原子の同士の距離 (最近接格子点間距離)、単位体積あたりの原子の体積占有率 (充填率) は、格子定数を用いて求めることができる。

ブラベー格子は3つの基本並進ベクトルによって表現される。3次元空間の3つの基本並進ベクトルを

$$\begin{aligned} \mathbf{t}_1 &= (x_1 \ y_1 \ z_1)^T, \quad \mathbf{t}_2 = (x_2 \ y_2 \ z_2)^T, \quad \mathbf{t}_3 = (x_3 \ y_3 \ z_3)^T, \\ &(x_i \ y_i \ z_i)^T \in \mathbb{R}^3, \quad i = 1, 2, 3 \end{aligned}$$

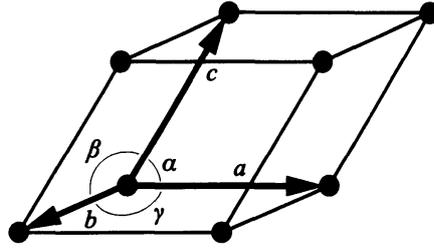


図 2: 単位格子の例

と定義する. 基本並進ベクトル t_1, t_2, t_3 は線形独立である. また, ブラベー格子を構成する他の並進ベクトルは, 基本並進ベクトルを用いて, $t_4 = t_1 + t_2$, $t_5 = t_2 + t_3$, $t_6 = t_3 + t_1$, $t_7 = t_1 + t_2 + t_3$, $t_0 = \mathbf{0}$, と表される (図 3 (a)). ブラベー格子は格子点の集合として

$$\Lambda = \{t : t = \sum_{i=1}^3 n_i t_i \mid n_i \in \mathbb{Z}, i = 1, 2, 3\} \quad (2.2)$$

と定義される. ブラベー格子を平行移動すると結晶格子が構成される. この結晶格子に原子を配置すると結晶構造となり (図 3 (b)), 結晶格子に配置された原子は結晶の種類によって大きさが異なる. ここで, 原子の大きさとは格子点と格子点の間隔 (原子間距離) を指す. 本稿で取り扱う 3次元信号は, 結晶の種類に合わせた原子の大きさを格子点に載せた物理量を表す.

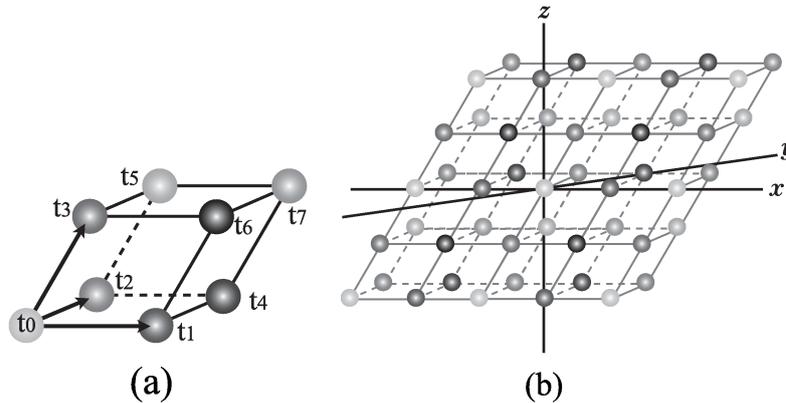


図 3: 基本並進ベクトル (a) と結晶構造 (b)

ブラベー格子の一例として単純六方格子 (図 4) を取り上げる.

格子定数, 原子を球として考えた時の原子半径, 球の体積は, 格子定数: a (1 辺の長さ), c (六方系の z 軸の長さ) 原子半径: $r = \sqrt{3}a/4$, 球の体積: $V = \sqrt{3}a^3 \pi/16$

となり、2つの基本並進ベクトルのなす角を120度とし、もう一つの基本並進ベクトルを z 軸方向に直角になるようにする。このとき3つの基本並進ベクトルは、

$$t_1 = a(1 \ 0 \ 0)^T, \quad t_2 = a\left(-\frac{1}{2} \ \frac{\sqrt{3}}{2} \ 0\right)^T, \quad t_3 = c(0 \ 0 \ 1)^T \quad (2.3)$$

となる。

単純六方格子を構成する他の基本並進ベクトルから、 $t_4 = -t_1 - t_2$, $t_5 = t_2 + t_3$, $t_6 = t_3 + t_1$, $t_7 = t_1 + t_2 + t_3$, $t_0 = 0$ と表す。

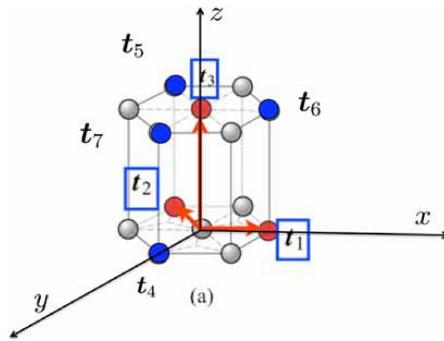


図 4: 単純六方格子

次に、ここで説明した結晶格子を用いた任意の格子定数に対応できる3次元双直交ウェーブレット (Crystal wavelets) を提案する。

3 Crystal Wavelets

本節では、2節で取り上げた結晶理論を取り入れた Crystal wavelets を提案する。提案するウェーブレット斜交系構造と結晶構造をの性質を取り入れた新しい3次元ウェーブレットである。Crystal wavelets は結晶格子に整合する有限の種類格子を定義し、これらの格子によって結晶データを取り扱うことによりすべての結晶格子に対して必要な分析を行うことができる。

初めに、提案手法を説明する準備として、1次元双直交ウェーブレットの構成法について説明する。次に、提案する crystal wavelets の構成法を示し、最後に、ブラベー格子の crystal wavelets フィルタの実現例を示す。

準備のため、リフティング [3, 4] を用いたポリフェーズ表現による1次元双直交ウェーブレットの構成法について説明する。

解像度 2^j の信号 $\{c_j[k]\}_{k \in \mathbb{Z}}$ はダウンサンプリングによって、解像度が半分の粗い成分 $\{c_{j-1}[k]\}_{k \in \mathbb{Z}}$ と詳細な成分 $\{d_{j-1}[k]\}_{k \in \mathbb{Z}}$ に分けられる。ポリフェーズ表現におい

ては、信号

$$\hat{c}_j(\omega) = \sum_{k \in \mathbb{Z}} c_j[k] e^{-i\omega k}, \quad \omega \in \mathbb{R} \quad (3.1)$$

を次のように偶数番と奇数番に分ける.

$$\hat{c}_{j,e}(\omega) = \sum_{k \in \mathbb{Z}} c_j[2k] e^{-i\omega k}, \quad \hat{c}_{j,o}(\omega) = \sum_{k \in \mathbb{Z}} c_j[2k+1] e^{-i\omega k} \quad (3.2)$$

このように記述するとき、信号の分解は

$$\begin{pmatrix} \hat{c}_{j-1}(\omega) \\ \hat{d}_{j-1}(\omega) \end{pmatrix} = \widehat{P}(\omega)^\dagger \begin{pmatrix} \hat{c}_{j,e}(\omega) \\ \hat{c}_{j,o}(\omega) \end{pmatrix} \quad (3.3)$$

のように表される. ここで, $\widehat{P}(\omega)^\dagger$ はポリフェーズ行列 $\widehat{P}(\omega)$ のエルミート共役である. このポリフェーズ行列は以下に述べる Split, Predict, Update からなるリフティングスキームによって表現できる.

predictor 演算子 p は偶数番信号 $c_j[2k]$ から奇数番信号 $c_j[2k+1]$ を予測するために用いられる. まず, 詳細成分 $d_{j-1}[k]$ は, 奇数番信号 $c_j[2k+1]$ から predictor 演算子を用いて予測された信号 $p(c_j[2k])$ の差分により得られる.

$$c_j[2k+1] \rightarrow d_{j-1}[k] = c_j[2k+1] - p(c_j[2k]) \quad (3.4)$$

次に, 粗い成分 $c_{j-1}[k]$ は, 詳細成分 $d_{j-1}[k]$ から updater 演算子 u を用いて予測された信号 $u(d_{j-1}[k])$ と, 偶数番信号 $c_j[2k]$ の和により得られる.

$$c_j[2k] \rightarrow c_{j-1}[k] = c_j[2k] + u(d_{j-1}[k]) \quad (3.5)$$

ここで, updater 演算子 u は, 粗い成分 $c_{j-1}[k]$ の和が, 解像度 j を下げることにより元の信号 $c_j[k]$ の和の半分になるように選ぶ.

$$\sum_k c_{j-1}[k] = \frac{1}{2} \sum_k c_j[k] \quad (3.6)$$

最後に, 分解による信号のエネルギーを保存するため正規化すると, 以下のポリフェーズ行列が得られる.

$$\widehat{P}(\omega)^\dagger = \begin{pmatrix} \sqrt{2} & 0 \\ 0 & 1/\sqrt{2} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 & \hat{u}(\omega) \\ 0 & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ -\hat{p}(\omega) & 1 \end{pmatrix} \quad (3.7)$$

ここで, $\hat{p}(\omega)$ は $\sum_k p(c_j[2k]) e^{-i\omega k} = \hat{p}(\omega) \hat{c}_{j,e}(\omega)$ から定義され, $\hat{u}(\omega)$ も同様である. なお, ポリフェーズ行列は必ず逆行列を持つため, 分解, 再構成により元の信号が完全に復元される. すなわち, 完全再構成となる.

解像度 2^j の信号 $\{c_j[k]\}_{k \in \mathbb{Z}}$ は, ローパス (LP)・フィルタ $\{h[k]\}_{k \in \mathbb{Z}}$ とハイパス (HP)・フィルタ $\{g[k]\}_{k \in \mathbb{Z}}$ を用いて2つの成分, 粗い成分 $\{c_{j-1}[k]\}_{k \in \mathbb{Z}}$ と詳細な成分

$\{d_{j-1}[k]\}_{k \in \mathbb{Z}}$ に分解される。ここで、LP フィルタ $\{h[k]\}_{k \in \mathbb{Z}}$ と HP フィルタ $\{g[k]\}_{k \in \mathbb{Z}}$ は

$$\hat{h}(\omega) = \sum_{k \in \mathbb{Z}} h[k] e^{-i\omega k}, \quad \hat{g}(\omega) = \sum_{k \in \mathbb{Z}} g[k] e^{-i\omega k}, \quad \omega \in \mathbb{R} \quad (3.8)$$

のように表され、さらに、次のように偶数番と奇数番に分ける。

$$\hat{h}_e(\omega) = \sum_{k \in \mathbb{Z}} h_j[2k] e^{-i\omega k}, \quad \hat{h}_o(\omega) = \sum_{k \in \mathbb{Z}} h_j[2k+1] e^{-i\omega k} \quad (3.9)$$

$$\hat{g}_e(\omega) = \sum_{k \in \mathbb{Z}} g_j[2k] e^{-i\omega k}, \quad \hat{g}_o(\omega) = \sum_{k \in \mathbb{Z}} g_j[2k+1] e^{-i\omega k} \quad (3.10)$$

このように記述するとき式 (3.3) は LP フィルタと HP フィルタにより

$$\begin{pmatrix} \hat{c}_{j-1}(\omega) \\ \hat{d}_{j-1}(\omega) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \hat{h}_e^*(\omega) & \hat{h}_o^*(\omega) \\ \hat{g}_e^*(\omega) & \hat{g}_o^*(\omega) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \hat{c}_{e,j}(\omega) \\ \hat{c}_{o,j}(\omega) \end{pmatrix} \quad (3.11)$$

$$= \widehat{P}(\omega)^\dagger \begin{pmatrix} \hat{c}_{e,j}(\omega) \\ \hat{c}_{o,j}(\omega) \end{pmatrix} \quad (3.12)$$

と表される。ここで、ポリフェーズ行列 $\widehat{P}(\omega)$ は

$$\widehat{P}(\omega) = \begin{pmatrix} \hat{h}_e(\omega) & \hat{g}_e(\omega) \\ \hat{h}_o(\omega) & \hat{g}_o(\omega) \end{pmatrix} \quad (3.13)$$

である。

具体的なポリフェーズ行列の構成例を示す。まず、Haar フィルタは式 (3.7) における $\hat{p}(\omega) = 1$ と $\hat{u}(\omega) = 1/2$ を選ぶことによって、 $\hat{h}(\omega) = \hat{h}(\omega) = (1 + e^{-i\omega})/\sqrt{2}$ 、と $\hat{g}(\omega) = \hat{g}(\omega) = (-1 + e^{-i\omega})/\sqrt{2}$ となり、 $\hat{g}(\omega)$ と $\hat{h}(\omega)$ は直交となる。また、線形予測により predictor 演算子と updater 演算子を

$$\hat{p}(\omega) = \frac{1 + e^{i\omega}}{2}, \quad \hat{u}(\omega) = \frac{1 + e^{-i\omega}}{4} \quad (3.14)$$

とすると以下のような CDF (2,2) フィルタが得られる。

$$\begin{aligned} \hat{h}(\omega) &= \frac{-e^{-i2\omega} + 2e^{i\omega} + 6 + 2e^{-i\omega} - e^{-i2\omega}}{4\sqrt{2}}, \\ \hat{g}(\omega) &= \frac{-1 + 2e^{-i\omega} - e^{-i2\omega}}{2\sqrt{2}} \end{aligned}$$

ここで、CDF (Cohen-Daubechies-Feauveau) は、Cohen, Daubechies および Feauveau によって構成されたコンパクトな台を持つ双直交ウェーブレットである [?].

提案する crystal wavelets は前節で述べた 1 次元双直交ウェーブレットを 3 次元に拡張することによって構成することができる。以下、本節では crystal wavelets の構成法について述べる。

まず、解像度 2^j の信号 $\{c_j[\mathbf{t}]\}_{\mathbf{t} \in \Lambda}$ がブラベー格子上で与えられるとする。ブラベー格子 Λ は 8 つの独立な部分格子 Λ_m

$$\Lambda_m = \{\mathbf{t} : \mathbf{t} = 2(n_1 \mathbf{t}_1 + n_2 \mathbf{t}_2 + n_3 \mathbf{t}_3) + \mathbf{t}_m \mid n_i \in \mathbb{Z}, i = 1, 2, 3\}, \quad m = 0, 1, \dots, 7 \quad (3.15)$$

に分けられる。式 (3.15) を用いて、信号 $\{c_j[\mathbf{t}]\}_{\mathbf{t} \in \Lambda}$ を対応する部分格子 Λ_m の 8 つの部分に分ける。

$$\hat{c}_{m,j}(\boldsymbol{\omega}) = \sum_{\mathbf{t} \in \Lambda} c_j[2\mathbf{t} + \mathbf{t}_m] e^{-i\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{t}}, \quad \boldsymbol{\omega} \in \mathbb{R}^3$$

ただし、 $\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{t}$ は $\boldsymbol{\omega}$ と \mathbf{t} の内積を表す。この信号の分解は 1 次元の考え方を拡張し、ポリフェーズ行列を用いて

$$\begin{pmatrix} \hat{c}_{j-1}(\boldsymbol{\omega}) \\ \hat{d}_{1,j-1}(\boldsymbol{\omega}) \\ \hat{d}_{2,j-1}(\boldsymbol{\omega}) \\ \hat{d}_{3,j-1}(\boldsymbol{\omega}) \\ \hat{d}_{4,j-1}(\boldsymbol{\omega}) \\ \hat{d}_{5,j-1}(\boldsymbol{\omega}) \\ \hat{d}_{6,j-1}(\boldsymbol{\omega}) \\ \hat{d}_{7,j-1}(\boldsymbol{\omega}) \end{pmatrix} = \widehat{P}(\boldsymbol{\omega})^\dagger \begin{pmatrix} \hat{c}_{0,j}(\boldsymbol{\omega}) \\ \hat{c}_{1,j}(\boldsymbol{\omega}) \\ \hat{c}_{2,j}(\boldsymbol{\omega}) \\ \hat{c}_{3,j}(\boldsymbol{\omega}) \\ \hat{c}_{4,j}(\boldsymbol{\omega}) \\ \hat{c}_{5,j}(\boldsymbol{\omega}) \\ \hat{c}_{6,j}(\boldsymbol{\omega}) \\ \hat{c}_{7,j}(\boldsymbol{\omega}) \end{pmatrix} \quad (3.16)$$

で与えられる。ここで、 $\widehat{P}(\boldsymbol{\omega})^\dagger$ は 8×8 のポリフェーズ行列のエルミート共役であり、次の式のように表される。

$$\begin{aligned}
\widehat{P}(\omega)^\dagger &= \begin{pmatrix} 2\sqrt{2} & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & \frac{1}{2\sqrt{2}} & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & \frac{1}{2\sqrt{2}} & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \frac{1}{2\sqrt{2}} & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & \frac{1}{2\sqrt{2}} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & \frac{1}{2\sqrt{2}} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & \frac{1}{2\sqrt{2}} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & \frac{1}{2\sqrt{2}} \end{pmatrix} \\
&\times \begin{pmatrix} 1 & \hat{u}_1(\omega) & \hat{u}_2(\omega) & \hat{u}_3(\omega) & \hat{u}_4(\omega) & \hat{u}_5(\omega) & \hat{u}_6(\omega) & \hat{u}_7(\omega) \\ 0 & 1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \quad (3.17) \\
&\times \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ -\hat{p}_1(\omega) & 1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ -\hat{p}_2(\omega) & 0 & 1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ -\hat{p}_3(\omega) & 0 & 0 & 1 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ -\hat{p}_4(\omega) & 0 & 0 & 0 & 1 & 0 & 0 & 0 \\ -\hat{p}_5(\omega) & 0 & 0 & 0 & 0 & 1 & 0 & 0 \\ -\hat{p}_6(\omega) & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 1 & 0 \\ -\hat{p}_7(\omega) & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 1 \end{pmatrix}
\end{aligned}$$

$\widehat{P}(\omega)^\dagger$ は、7つの predictor 演算子 $\hat{p}_m(\omega)$ と updater 演算子 $\hat{u}_m(\omega)$, $m = 1, 2, \dots, 7$ から成るリフティングによって表される. 式 (3.16) の $\hat{c}_{j-1}(\omega)$ は元信号の平滑成分, $\hat{d}_{m,j-1}(\omega)$, $m = 1, 2, \dots, 7$ は元信号の詳細成分を表している. ウェーブレット逆変換はポリフェーズ行列に双対な行列 (再構成行列) $\widehat{P}(\omega) = \widehat{P}(\omega)^\dagger^{-1}$ によって与えられ, 完全再構成

$$\widehat{P}(\omega)\widehat{P}(\omega)^\dagger = I \quad (3.18)$$

が成り立つ.

LP フィルタと HP フィルタはブラベー格子 Λ 上に定義されるが, 工学的に実現可能なフィルタは有限の格子点からなる. そのため有限整数集合 $B \subset \mathbb{Z}$ を考え,

フィルタが構成される格子 Λ_B を

$$\Lambda_B = \{t : t = \sum_{i=1}^3 n_i t_i \mid n_i \in B, i = 1, 2, 3\}$$

と定義する。LP フィルタ $\{h[t]\}_{t \in \Lambda_B}$ は

$$\hat{h}(\omega) = \sum_{t \in \Lambda_B} h[t] e^{-i\omega \cdot t}, \quad \omega \in \mathbb{R}^3$$

と表され、 $\hat{h}(\omega)$ は $\omega \rightarrow \omega + 2\pi\lambda$ について周期的となる。ブラベー格子 Λ が 8 つの独立な部分格子 Λ_m に分解されることを用いると、LP フィルタ $\{h[t]\}_{t \in \Lambda_B}$ は

$$\begin{pmatrix} \hat{h}(\omega + \pi\lambda_0) \\ \hat{h}(\omega + \pi\lambda_1) \\ \hat{h}(\omega + \pi\lambda_2) \\ \hat{h}(\omega + \pi\lambda_3) \\ \hat{h}(\omega + \pi\lambda_4) \\ \hat{h}(\omega + \pi\lambda_5) \\ \hat{h}(\omega + \pi\lambda_6) \\ \hat{h}(\omega + \pi\lambda_7) \end{pmatrix} = \widehat{U}(\omega) \begin{pmatrix} \hat{h}_0(2\omega) \\ \hat{h}_1(2\omega) \\ \hat{h}_2(2\omega) \\ \hat{h}_3(2\omega) \\ \hat{h}_4(2\omega) \\ \hat{h}_5(2\omega) \\ \hat{h}_6(2\omega) \\ \hat{h}_7(2\omega) \end{pmatrix} \quad (3.19)$$

と表される。ただし、行列 $\widehat{U}(\omega)$ は

$$\widehat{U}(\omega) = \begin{pmatrix} 1 & e^{-i\omega \cdot t_1} & e^{-i\omega \cdot t_2} & e^{-i\omega \cdot t_3} & e^{-i\omega \cdot t_4} & e^{-i\omega \cdot t_5} & e^{-i\omega \cdot t_6} & e^{-i\omega \cdot t_7} \\ 1 & -e^{-i\omega \cdot t_1} & e^{-i\omega \cdot t_2} & e^{-i\omega \cdot t_3} & -e^{-i\omega \cdot t_4} & e^{-i\omega \cdot t_5} & -e^{-i\omega \cdot t_6} & -e^{-i\omega \cdot t_7} \\ 1 & e^{-i\omega \cdot t_1} & -e^{-i\omega \cdot t_2} & e^{-i\omega \cdot t_3} & -e^{-i\omega \cdot t_4} & -e^{-i\omega \cdot t_5} & e^{-i\omega \cdot t_6} & -e^{-i\omega \cdot t_7} \\ 1 & e^{-i\omega \cdot t_1} & e^{-i\omega \cdot t_2} & -e^{-i\omega \cdot t_3} & e^{-i\omega \cdot t_4} & -e^{-i\omega \cdot t_5} & -e^{-i\omega \cdot t_6} & -e^{-i\omega \cdot t_7} \\ 1 & -e^{-i\omega \cdot t_1} & -e^{-i\omega \cdot t_2} & e^{-i\omega \cdot t_3} & e^{-i\omega \cdot t_4} & -e^{-i\omega \cdot t_5} & -e^{-i\omega \cdot t_6} & e^{-i\omega \cdot t_7} \\ 1 & e^{-i\omega \cdot t_1} & -e^{-i\omega \cdot t_2} & -e^{-i\omega \cdot t_3} & -e^{-i\omega \cdot t_4} & e^{-i\omega \cdot t_5} & -e^{-i\omega \cdot t_6} & e^{-i\omega \cdot t_7} \\ 1 & -e^{-i\omega \cdot t_1} & e^{-i\omega \cdot t_2} & -e^{-i\omega \cdot t_3} & -e^{-i\omega \cdot t_4} & -e^{-i\omega \cdot t_5} & e^{-i\omega \cdot t_6} & e^{-i\omega \cdot t_7} \\ 1 & -e^{-i\omega \cdot t_1} & -e^{-i\omega \cdot t_2} & -e^{-i\omega \cdot t_3} & e^{-i\omega \cdot t_4} & e^{-i\omega \cdot t_5} & e^{-i\omega \cdot t_6} & -e^{-i\omega \cdot t_7} \end{pmatrix} \quad (3.20)$$

である。 $\hat{h}_m(\omega)$ と $\hat{h}(\omega + \pi\lambda_k)$ は

$$\begin{aligned} \hat{h}_m(\omega) &= \sum_{t \in \Lambda_B} h[2t + t_m] e^{-i\omega \cdot t}, \\ \hat{h}(\omega + \pi\lambda_k) &= \sum_{m=0}^7 e^{-i(\omega + \pi\lambda_k) \cdot t_m} \hat{h}_m(2\omega), \\ m &= 0, 1, \dots, 7, \quad k = 0, 1, \dots, 7 \end{aligned} \quad (3.21)$$

である。さらに、HP フィルタ $\{g_k[t]\}_{t \in \Lambda_B}$ と $\hat{h}(\omega + \pi\lambda_k)$ が

$$\begin{aligned} \hat{g}_{k,m}(\omega) &= \sum_{t \in \Lambda_B} g_k[2t + t_m] e^{-i\omega \cdot t}, \\ \hat{g}_k(\omega) &= -\hat{h}(\omega + \pi\lambda_k), \\ m &= 0, 1, \dots, 7, \quad k = 1, \dots, 7 \end{aligned} \quad (3.22)$$

と表される。ここで、ポリフェーズ行列 $\widehat{P}(\omega)$ を用いると式 (3) は

$$\begin{pmatrix} \hat{h}(\omega) \\ \hat{g}_1(\omega) \\ \hat{g}_2(\omega) \\ \hat{g}_3(\omega) \\ \hat{g}_4(\omega) \\ \hat{g}_5(\omega) \\ \hat{g}_6(\omega) \\ \hat{g}_7(\omega) \end{pmatrix} = \widehat{P}(\omega)^\dagger \begin{pmatrix} 1 \\ e^{-i\omega t_1} \\ e^{-i\omega t_2} \\ e^{-i\omega t_3} \\ e^{-i\omega t_4} \\ e^{-i\omega t_5} \\ e^{-i\omega t_6} \\ e^{-i\omega t_7} \end{pmatrix} \quad (3.23)$$

と表される。 $\widehat{P}(\omega)^\dagger$ は LP フィルタと HP フィルタにより

$$\widehat{P}(\omega)^\dagger = \begin{pmatrix} \hat{h}_0^*(\omega) & \hat{h}_1^*(\omega) & \hat{h}_2^*(\omega) & \hat{h}_3^*(\omega) & \hat{h}_4^*(\omega) & \hat{h}_5^*(\omega) & \hat{h}_6^*(\omega) & \hat{h}_7^*(\omega) \\ \hat{g}_{1,0}^*(\omega) & \hat{g}_{1,1}^*(\omega) & \hat{g}_{1,2}^*(\omega) & \hat{g}_{1,3}^*(\omega) & \hat{g}_{1,4}^*(\omega) & \hat{g}_{1,5}^*(\omega) & \hat{g}_{1,6}^*(\omega) & \hat{g}_{1,7}^*(\omega) \\ \hat{g}_{2,0}^*(\omega) & \hat{g}_{2,1}^*(\omega) & \hat{g}_{2,2}^*(\omega) & \hat{g}_{2,3}^*(\omega) & \hat{g}_{2,4}^*(\omega) & \hat{g}_{2,5}^*(\omega) & \hat{g}_{2,6}^*(\omega) & \hat{g}_{2,7}^*(\omega) \\ \hat{g}_{3,0}^*(\omega) & \hat{g}_{3,1}^*(\omega) & \hat{g}_{3,2}^*(\omega) & \hat{g}_{3,3}^*(\omega) & \hat{g}_{3,4}^*(\omega) & \hat{g}_{3,5}^*(\omega) & \hat{g}_{3,6}^*(\omega) & \hat{g}_{3,7}^*(\omega) \\ \hat{g}_{4,0}^*(\omega) & \hat{g}_{4,1}^*(\omega) & \hat{g}_{4,2}^*(\omega) & \hat{g}_{4,3}^*(\omega) & \hat{g}_{4,4}^*(\omega) & \hat{g}_{4,5}^*(\omega) & \hat{g}_{4,6}^*(\omega) & \hat{g}_{4,7}^*(\omega) \\ \hat{g}_{5,0}^*(\omega) & \hat{g}_{5,1}^*(\omega) & \hat{g}_{5,2}^*(\omega) & \hat{g}_{5,3}^*(\omega) & \hat{g}_{5,4}^*(\omega) & \hat{g}_{5,5}^*(\omega) & \hat{g}_{5,6}^*(\omega) & \hat{g}_{5,7}^*(\omega) \\ \hat{g}_{6,0}^*(\omega) & \hat{g}_{6,1}^*(\omega) & \hat{g}_{6,2}^*(\omega) & \hat{g}_{6,3}^*(\omega) & \hat{g}_{6,4}^*(\omega) & \hat{g}_{6,5}^*(\omega) & \hat{g}_{6,6}^*(\omega) & \hat{g}_{6,7}^*(\omega) \\ \hat{g}_{7,0}^*(\omega) & \hat{g}_{7,1}^*(\omega) & \hat{g}_{7,2}^*(\omega) & \hat{g}_{7,3}^*(\omega) & \hat{g}_{7,4}^*(\omega) & \hat{g}_{7,5}^*(\omega) & \hat{g}_{7,6}^*(\omega) & \hat{g}_{7,7}^*(\omega) \end{pmatrix} \quad (3.24)$$

と表される。即ち、3次元信号は LP フィルタと 7つの HP フィルタにより分解され、

$$\hat{h}(\omega) \hat{h}^*(\omega) + \sum_{m=1}^7 \hat{g}_m(\omega) \hat{g}_m^*(\omega) = 8 \quad (3.25)$$

のハーフバンド条件が成り立っている。

スケーリング関数 $\phi \in L^2(\mathbb{R}^3)$ はトゥー・スケール関係が成り立ち、多重解像度解析 (MRA) の条件 [5] を満たす。

$$\phi(\mathbf{r}) = \sum_{\mathbf{t} \in \Lambda_B} 2\sqrt{2}h[\mathbf{t}]\phi(2\mathbf{r} - \mathbf{t}), \quad \mathbf{r} \in \mathbb{R}^3$$

ただし、 $\mathbf{r} = x\mathbf{t}_1 + y\mathbf{t}_2 + z\mathbf{t}_3 \in \mathbb{R}^3$ である。スケーリング関数のフーリエ変換は

$$\hat{\phi}(\omega) = \frac{1}{2\sqrt{2}} \hat{h}\left(\frac{\omega}{2}\right) \hat{\phi}\left(\frac{\omega}{2}\right), \quad \omega \in \mathbb{R}^3 \quad (3.26)$$

となり、 $\hat{h}(\omega/2)$ とのかけ算で表され、

$$\hat{\phi}(\omega) = \prod_{j=1}^{\infty} \frac{1}{2\sqrt{2}} \hat{h}\left(\frac{\omega}{2^j}\right), \quad \hat{\phi}(0) = 1$$

となる。

スケーリング関数に対応するウェーブレット関数 $\psi_m(\mathbf{r})$, $m = 1, 2, \dots, 7, \mathbf{r} \in \mathbb{R}^3$ は

$$\hat{\psi}_m(\boldsymbol{\omega}) = \frac{1}{2\sqrt{2}} \hat{g}_m\left(\frac{\boldsymbol{\omega}}{2}\right) \hat{\phi}\left(\frac{\boldsymbol{\omega}}{2}\right), \quad \boldsymbol{\omega} \in \mathbb{R}^3$$

である。以下ではスケーリング関数, ウェーブレット関数から得られる Haar 型 Crystal wavelets フィルタについて具体的に説明する。

Haar 型の crystal wavelets フィルタは, 式 (3.17) において

$$\hat{p}_m(\boldsymbol{\omega}) = 1, \quad \hat{u}_m(\boldsymbol{\omega}) = \frac{1}{8}, \quad m = 1, 2, \dots, 7$$

と与えると, 式 (3.23) は

$$\begin{pmatrix} \hat{h}(\boldsymbol{\omega}) \\ \hat{g}_1(\boldsymbol{\omega}) \\ \hat{g}_2(\boldsymbol{\omega}) \\ \hat{g}_3(\boldsymbol{\omega}) \\ \hat{g}_4(\boldsymbol{\omega}) \\ \hat{g}_5(\boldsymbol{\omega}) \\ \hat{g}_6(\boldsymbol{\omega}) \\ \hat{g}_7(\boldsymbol{\omega}) \end{pmatrix} = \frac{1}{2\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1 & 1 & 1 & 1 & 1 & 1 & 1 & 1 \\ -1 & 1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ -1 & 0 & 1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ -1 & 0 & 0 & 1 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ -1 & 0 & 0 & 0 & 1 & 0 & 0 & 0 \\ -1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 1 & 0 & 0 \\ -1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 1 & 0 \\ -1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 \\ e^{-i\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{t}_1} \\ e^{-i\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{t}_2} \\ e^{-i\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{t}_3} \\ e^{-i\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{t}_4} \\ e^{-i\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{t}_5} \\ e^{-i\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{t}_6} \\ e^{-i\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{t}_7} \end{pmatrix} \quad (3.27)$$

で表される。双対変換は

$$\begin{pmatrix} \hat{h}(\boldsymbol{\omega}) \\ \hat{g}_1(\boldsymbol{\omega}) \\ \hat{g}_2(\boldsymbol{\omega}) \\ \hat{g}_3(\boldsymbol{\omega}) \\ \hat{g}_4(\boldsymbol{\omega}) \\ \hat{g}_5(\boldsymbol{\omega}) \\ \hat{g}_6(\boldsymbol{\omega}) \\ \hat{g}_7(\boldsymbol{\omega}) \end{pmatrix} = \frac{1}{2\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1 & -1 & -1 & -1 & -1 & -1 & -1 & -1 \\ 1 & 7 & -1 & -1 & -1 & -1 & -1 & -1 \\ 1 & -1 & 7 & -1 & -1 & -1 & -1 & -1 \\ 1 & -1 & -1 & 7 & -1 & -1 & -1 & -1 \\ 1 & -1 & -1 & -1 & 7 & -1 & -1 & -1 \\ 1 & -1 & -1 & -1 & -1 & 7 & -1 & -1 \\ 1 & -1 & -1 & -1 & -1 & -1 & 7 & -1 \\ 1 & -1 & -1 & -1 & -1 & -1 & -1 & 7 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 \\ e^{-i\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{t}_1} \\ e^{-i\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{t}_2} \\ e^{-i\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{t}_3} \\ e^{-i\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{t}_4} \\ e^{-i\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{t}_5} \\ e^{-i\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{t}_6} \\ e^{-i\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{t}_7} \end{pmatrix}$$

により与えられる。Haar 型の Crystal wavelets フィルタはポリフェーズ行列の要素が整数で表されるため演算は容易である。結晶構造は様々な角度の基本並進ベクトルによって構成されるが, 右辺の $e^{-i\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{t}_m}$, $m = 1, 2, \dots, 7$, に含まれる基本並進ベクトル \mathbf{t}_m を決めることにより, 結晶格子に合わせたフィルタを作成できる。

次に, 結晶構造に合わせた Crystal wavelets フィルタを構成し, 性質を理解する。結晶格子には前節で説明した単純六方格子を用いる。簡単化のため, 格子定数 a , c を 1 に正規化し性質を調べる。

式 (3.27) から求めた Haar ウェーブレットのスケーリング関数について式 (2.3) を用いて周波数特性を示す。ここで、実空間 x 軸, y 軸, z 軸に対応するフーリエ領域の 3 次元座標軸をそれぞれ ζ 軸, η 軸, ξ 軸とする。各図において, (a) は ζ 軸, η 軸, ξ 軸に対して, $\zeta = 0$ の断面における η 軸, ξ 軸の周波数特性を 2 次元密度グラフとして表し, 同様に, (b) $\eta = 0$ の断面, (c) $\xi = 0$ の断面を 2 次元密度グラフとして表す。図 5 には単純六方格子を示す。(a), (b), (c) は単純六方格子の周波数特性である。HC では (a), (b) は長方形構造を持ち, (c) は六角形の構造からなるフィルタが形成されている。

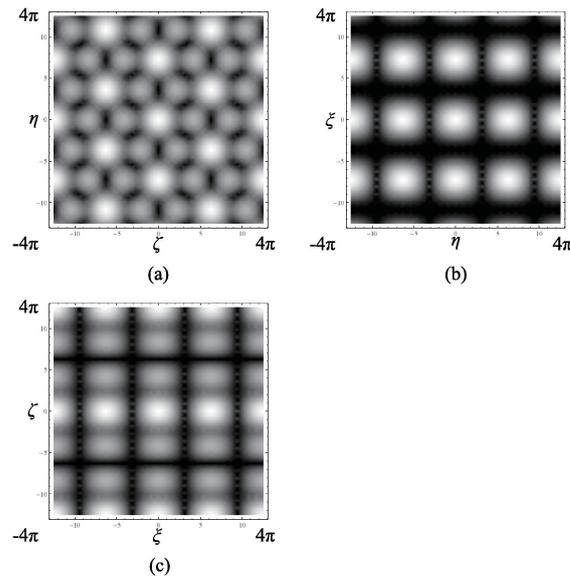


図 5: 単純六方格子の Haar スケーリング関数の特性 (a) $\xi = 0$ の断面における周波数特性, (b) $\eta = 0$ の断面における周波数特性, (c) $\zeta = 0$ の断面における周波数特性

次節では結晶構造を用いたウェーブレット, 特に, 単純六方格子ウェーブレットを用いた材料設計への応用に関して議論する。

4 ナノ材料設計への応用へ向けた今後の課題

六角形を組み合わせた構造は「ハニカム構造」とも呼ばれる。「ハニカム」とは「蜂の巣」という意味であるが, この構造は様々なところで使用されており, 蜂の巣は勿論, サッカーゴールの網もハニカム構造である。ハニカム構造の一つに炭素原子のみで構成されている「グラファイト (Graphite ; 黒鉛)」があげられる。グ

ラファイトは、グラフェン(Graphene)¹と呼ばれる2次元の蜂の巣状格子内に詰められた単層の原子を積み重ねた3次元の構造体である。図6²に示すように、グラフェンを丸く丸めるとフラーレンと呼ばれる球体に、巻けばカーボンナノチューブ、重ね合わせるとグラファイトが得られる[6]。これらの炭素原子でできた構造体は「ナノ炭素材料」とも呼ばれ、電気や熱の伝導率が高いことから、放熱部材への応用、導電性材料への応用によって省エネルギー効果を高めることが期待されている。

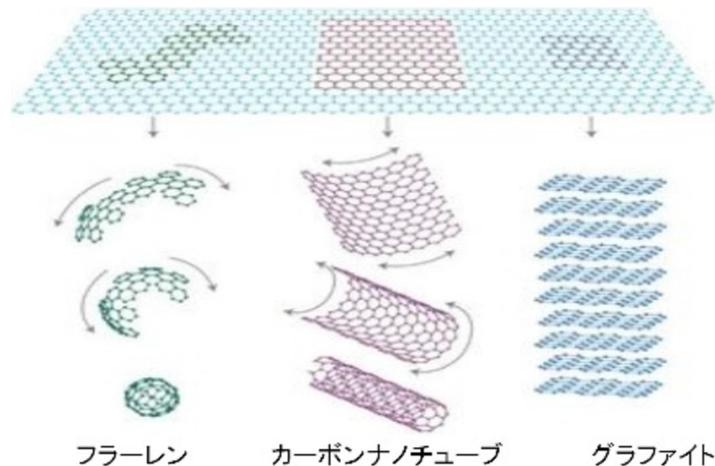


図 6: ナノ炭素材料

持田らは「炭素材料の組織制御」[7]の中で、“優れた炭素材料の調製はその物性を発現する構造を設計することが必要である。そのためには、(1) 目的とする炭素材の構造把握、(2) 物性－構造相関、(3) 構造決定の機構解明、(4) 構造誘導と制御が重要となる。”と述べている。この報告の中では、(1) 目的とする炭素材を μm 単位構造の把握を行っているが、ナノ炭素材料における材料の構造を把握するためには nm 単位で炭素材料の構造を把握する必要がある。

ナノ炭素材料の構造の把握には、電子顕微鏡やその画像を用いたシミュレーションが多く使われる。電子顕微鏡の中でも、透過型電子顕微鏡を用いることによって原子の並びや構造を観察することができる[8]。図7にグラフェンの透過型電子顕微鏡像(a)とそのフーリエ変換像(b)を示す。このようにフーリエ変換することによって、炭素原子が六角形に並んで繰り返されることがわかる。

¹グラフェンに対する新奇な実験に対して2010年のノーベル物理学賞がA. Geim, K. Novoselovの両教授に授与されている。

²www.nature.comより引用

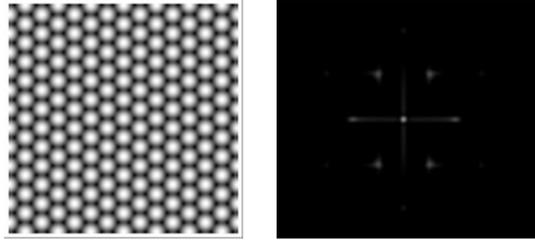


図 7: グラフェンの透過型電子顕微鏡像 (左) とフーリエ変換像 (右)

グラフェンの実格子の定義は格子定数を a とすると,

$$\tau_1 = \left(0, \frac{a}{\sqrt{3}}\right), \tau_2 = \left(-\frac{a}{2}, -\frac{a}{2\sqrt{3}}\right), \tau_3 = \left(-\frac{a}{2}, \frac{a}{2\sqrt{3}}\right)$$

となる。これは、本稿で紹介した Crystal wavelets の結晶格子の表現 (式 (2.3)) の 2次元版といえる。2次元の格子構造の場合、結晶格子は

$$t_1 = a(1, 0), t_2 = a\left(-\frac{1}{2}, \sqrt{3}\right) t_3 = a\left(-\frac{1}{2}, -\sqrt{3}\right)$$

と表現できる。これは、グラフェン格子の実格子を $\sqrt{3}$ 倍し、原点を中心に 90 度回転したものに他ならない。この格子定数を用いた 2次元ウェーブレットは、榊原ら [9, 10] によって「Trangular Wavelets」と名付けられている。2次元では Trangular Wavelets を用いて様々なナノ炭素材料の設計に寄与できると考えられる。例えば、名古屋大学で作られた「ワープド・ナノグラフェン」[11] は新しい形態の湾曲構造を持つグラフェンであるが、分子間に微小な空間が多数存在するため有機溶媒によく溶けるといわれる。これはグラフェンから電子デバイスを作る際には有利な性質の一つであり、湾曲のもととなるのは六角形のグラフェンの中に含まれる 7 つの五角形構造である。ウェーブレットの観点で考えると、湾曲を作る五角形は六角形の中の格子欠陥と捉えられる。この格子欠陥がどの位置にどのくらいの数があれば有機溶媒によく溶け、かつ、グラフェンの特性を活かせるのかなど、提案したウェーブレットがナノ材料設計に活かせると考えられる。

今後、提案したウェーブレットを用いてナノ炭素材料の原子構造での組織構造の把握や特性を行い、ナノ材料の製品や機械的、電気的特性に活かして行く予定である。

参考文献

- [1] 押田ら, 顕微鏡像の画像解析による炭素材料の構造・形態評価, 炭素, (2014) pp.292–304.

- [2] G. Grosso and G. P. Parravicini, Solid State Physics, Elsevier Academic Press, 2000.
- [3] W. Sweldens, The lifting scheme: a custom-design construction of biorthogonal wavelets, J. Appl. Comput. Harmonic Analysis, vol.3, no.2, pp.186–200, 1996.
- [4] G. Uytterhoeven, D. Roose, and A. Bultheel, Wavelet transforms using the Lifting Scheme, ITA-Wavelets Report WP 1.1, Department of Computer Science, Katholieke Universiteit Leuven, Belgium, November 1996.
- [5] S. Mallat, A Wavelet Tour of Signal Processing, 2nd ed., Academic Press, 2001.
- [6] A. Geim, K. Novoselov, The rise of graphene, Nature Materials, 2007.
- [7] 持田ら, 炭素材料の組織制御, 機能物質科学研究所報告, 第4巻, 第2号 pp. 81–88 (1990) .
- [8] 坂公恭, 結晶電子顕微鏡学, 内田老鶴圃 (1997).
- [9] S. Sakakibara and Oleg V. Vasilyev, Construction of triangular biorthogonal wavelet filters for isotropic image processing, EUSIPCO 2006.
- [10] K. Fujinoki and Oleg V. Vasilyev, Triangular Wavelets: An Isotropic Image Representation with Hexagonal Symmetry, Journal on Image and Video Processing Volume 2009.
- [11] K. Kawasumi Et al., A grossly warped nanographene and consequences of multiple odd-membered ring defects, Nature Chemistry, pp739–744, 2013.