

## A kutatás eredményeinek összefoglalója

Az új anyagok szerkezetének atomi szintű megismerése alapvető jelentőségű a modern anyagtudomány számára. Ez egy igen sokrétű kutatási terület, amelyen belül jelen munkánk során három különböző témakörben értünk el eredményeket:

- (i) A krisztallográfiai fázisprobléma megoldására általunk felfedezett "charge flipping" módszert (a név legjobb magyar közelítése: "töltésalternálás") több, a gyakorlatban azonnal alkalmazható irányba fejlesztettük tovább.
- (ii) Fontos előrelépést tettünk a kristályos alapállapot matematikailag egzakt megértéséhez.
- (iii) Megoldottuk a szabadelektron-lézereknél most születő egyrészesecske-leképezés módszerének egy kritikus problémáját.

Elért eredményeink, témakörök szerinti csoportosításban:

### 1. A krisztallográfiai fázisprobléma megoldása

Kristályos anyagok esetén a szerkezetkutatás leghatékonyabb módszere a röntgendiffrakció. A röntgennyaláb áthatol a kristályon, az atomok elektronháján szóródva interferenciát szenved, és a szerkezeti információt a szórt hullámok irányába, intenzitásába és relatív fázisába kódolja. A mérés során azonban a szórt hullámok fázisa elvész, e nélkül pedig az atomok térbeli helyzete nem rekonstruálható. Ez a krisztallográfia most 100 éves fázisproblémája, megoldása (azaz a hiányzó fázisok meghatározása) eddig bonyolult matematikai módszereket és a felhasználók többsége által fekete dobozként használt komplex programcsomagokat igényelt.

Az általunk korábban kifejlesztett charge flipping (CF) eljárás egy új és meglepően egyszerű megoldása a fázisproblémának. A duális terekben iteráló módszer koncepcionális jelentősége, hogy nem alkalmazza a klasszikus direkt módszerek atomicitáson alapuló statisztikus fázisösszefüggéseit, és a diffrakciós adatokon túl, csupán az elektronsűrűség valós térbeli ürességére (sparseness) alapoz. Az algoritmus működése teljesen *ab initio*, szemben a korábbi módszerekkel, nincs szüksége sem a kémiai összetétel, sem az atomtípusok, sem pedig a tércsoport szimmetriák előzetes ismeretére. Könnyű reprodukálhatóságának köszönhetően a charge flipping módszert a nemzetközi tudományos közösség gyorsan elfogadta, és a szerkezetmeghatározás számos területén alkalmazta (egykristályok, polikristályok, pszeudo-szimmetrikus szerkezetek, modulált szerkezetek, kvázikristályok, fehérjék, zeolitok). A módszert egyre több felhasználói programcsomag kínálja alternatívaként nehéz esetek elemzésére. A kifejlesztett algoritmus oktatásra is kiválóan alkalmas, tárgyalása minden új krisztallográfiai tankönyvben szerepel. Az *Acta Crystallographica A – Foundations of Crystallography* folyóirat 2006. évfolyamának címlapját ez a módszer illusztrálta, összefoglaló cikkünket a 60 éves International Union of Crystallography 2008-as jubileumi különszáma közölte.

A fázisproblémával foglalkozó II. OTKA szerződésünkben egy ambiciózus kutatási tervet fogalmaztunk meg, célkitűzésként felsoroltunk mindent, amit a területen megoldandó problémának láttunk, egyben megemlítve a reális esélyeket is. A megfogalmazott feladatok mindegyikével érdemben foglalkoztunk.

Először további alkalmazásokat kerestünk, a korábban már sikeresnek bizonyult röntgendiffrakciós egykristályadatok mellett. Kidolgoztuk a módszer "band flipping" változatát, amelyet az eredeti eljárással kombinálva sikeresen alkalmaztunk közvetlenül neutroindiffrakciós adatokból történő szerkezetmegoldásra (*Acta Cryst. A* **63**, 156, 2007). Itt az iteratív algoritmus valós térbeli részében az elektronsűrűség nem egy kis, pozitív  $\delta$  küszöbszint alatt vált előjelet, hanem csak egy  $[-\delta, +\delta]$  tartományban, ami lehetővé teszi a nagy negatív szórásűrűségek kialakulását is. Lényeges megfigyelésünk, hogy az iteratív eljárás konvergenciája meggyorsítható, ha a charge flipping algoritmus eredeti és band flipping változatait periodikusan váltogatjuk, a konvergenciát azonban csak a band flipping szakaszban lehet detektálni. Publikációnk további, nem várt előrelépést is eredményezett. Palatinus és munkatársai megmutatták (*Acta Cryst. A* **67**, 9, 2011), hogy a negatív szórásűrűségeket lehetővé tevő új algoritmus-változatunk nem csak neutroindiffrakciós adatok, hanem két szerkezet kis eltéréseit leíró differenciaszerkezetek esetén is hasznos eszköz a fázisprobléma megoldására.

Az eredeti terv szerint, programcsomagunkba beépítettük a pordiffrakciós adatok ill. a kétdimenziós adatok kezelésének lehetőségét is. Ezekről a fejlesztésekről azonban csak egy előadásunk született (European Powder Diffraction Conference 11, Warsaw 2008), mivel időközben a charge flipping ilyen irányú alkalmazásai neves csoportok által rendkívül gyorsan publikálásra kerültek, ráadásul rögtön speciális anyagokon (korábban megoldhatatlan, iparilag is fontos zeolitok) ill. speciális kísérleti eszközökkel (precessziós elektrondiffrakció). Megjegyezzük, hogy az irodalomban megjelent új alkalmazások metodikai hozzáadott értéke így is korlátozott, mivel a vizsgált centroszimmetrikus ill. nehézatomokat tartalmazó szerkezetek nem jelentenek igazi kihívást a CF módszer alapváltozatának.

További munkánkban a metodikai fejlesztésnek azokra a kritikus pontjaira koncentráltunk, amelyek általánosan, az adott alkalmazástól függetlenül hozzájárulnak a módszer hatékonyságának javításához. Ezeket összegezve, valamint a területet áttekintve cikket írtunk a 60 éves International Union of Crystallography jubileumi különszámába (*Acta Cryst. A* **64**, 123, 2008). Itt közölt új eredményeink: Dinamikus becslés az algoritmus legfontosabb  $\delta$  paraméterére az elektronsűrűség térkép szórása alapján. Ez fontos előrelépés, amellyel sikerült megszabadulni a paraméter hasznos tartományának attól a változékonyságtól, amelyet korábban az alkalmazott valós térbeli rács felosztása, ill. a diffrakciós adatok felbontása okozott. Ugyancsak lényeges javítást, a konvergenciához szükséges iterációs ciklusok számának több nagyságrendnyi csökkenését értük el a diffrakciós adatok normálásával. Több különböző normálási sémát teszteltünk, és arra jutottunk, hogy elegendő a normálást a kémiai összetétel legnehezebb atomszórási tényezője alapján elvégezni ( $E_{\text{obs}} = F_{\text{obs}}/f_{\text{heavy}}$ ). Ez a változat nem fordul elő a kristallográfiai gyakorlatban, pedig tapasztalatunk szerint legalább olyan jól működik, mint a klasszikus direkt módszerek  $E$ -értékei, előnye pedig az, hogy a módszer továbbra

is kevésbé tér el a teljesen *ab initio* jellegtől, a legnehezebb atom típusának ismerete sokkal kevesebb plusz információt jelent, mint a pontos kémiai összetétel. A cikkben két új algoritmusváltozatot is közöltünk, amelyek ugyancsak nagyságrendileg gyorsítják az algoritmus konvergenciáját és jól kombinálhatók a korábban említett adatkezeléssel. Ilyen változtatást lényegesen könnyebb a reciprok térben elérni, mint valós térben. Ennek oka az, hogy a CF algoritmus eredeti változata a gyenge perturbációkat valós térben és lokálisan kelti, ezért ha az iterációs folyamat egy stagnáló állapotba kerül, akkor ezt könnyebb megtörni egy más jellegű, a valós térben nem lokális perturbációval. Korábbi publikációinkban ennek kiváló példája volt a gyenge reflexiók modulusának szabadon engedése ill. a fázisaik  $\pi/2$ -es eltolása. Új eredményünk az ún.  $F_{\text{obs}} + \Delta F$  változat, amely a fázisokat nem perturbálja, a számolt modulusokat viszont minden lépésben tükrözi a mért modulusokra. Némi egyszerűsítéssel, ez a valós-térbeli charge flipping legtermészetesebb reciprok-térbeli "F-flipping" párja. Valós térben is sikerült javítást elérni, az algoritmus flip-mem változata az iterációs folyamat memóriáját felhasználva pozitív visszacsatolás segítségével gyorsítja a konvergenciát. Ezeket a gyorsításokat azonban nem kapjuk ingyen, a konvergencia detektálása minden ilyen esetben megnehezül, a megoldás és nem-megoldás közötti kontraszt csökken. A jobb detektálhatóság eléréséhez először több jósági tényezőt (figure of merit) követtünk, de az igazi megoldást egy későbbi cikkünk adta meg (*Acta Cryst. A* **67**, 284, 2011), ebben a konvergencia detektálását teljesen különválasztottuk az iterációs folyamattól és egy segédciklusba helyeztük át. Végül részletesen foglalkoztunk a konvergencia után kapott elektronsűrűség minőségének javításával, amely különösen akkor fontos, ha a szerkezetben egyszerre vannak jelen könnyű és nehéz elemek. Megmutattuk, hogy egy extra Fourier-ciklus, amely a küszöbszintnél alacsonyabb elektronsűrűségeket törli, majd az reciprok-térbeli adatokat visszaállítja (low density elimination), egy lényegesen tisztább valós térbeli sűrűséghez vezet. Ezt a lépést azokkal a modulusokkal kell elvégezni, amelyekkel az iteráció történt, de az elektronsűrűség végső analízisét, atomi szerkezetre konvertálását már a természetes  $F_{\text{obs}}$  modulusokkal vissza-transzformálva kell elvégezni. A cikkben ugyancsak felhívtuk a figyelmet arra a tényre, hogy a charge flipping algoritmus nem csak *ab initio* módon használható. A módszer kiválóan alkalmas már megoldott szerkezetek stabilitás-vizsgálatára, de pl. ismert szerkezeti fragmensek vagy szerkezeti tényezők a módszer alkalmazhatóságát kiterjeszthetik akár a proteinkrisztallográfia területére is.

Következő munkánk a szimmetriák szerepének vizsgálata volt. A charge flipping algoritmus egyik specialitása, hogy a tércsoport szimmetriáinak ismerete nélkül működik, formálisan P1 tércsoportban. Az iteráció során az origó nincsen rögzítve, a fázisok folytonosan változhatnak, a jó elektronsűrűség pedig tetszőleges helyen kialakulhat – ezzel a megoldás hatékonysága és gyorsasága javul. A szimmetriák nélküli működésnek azonban vannak hátrányai is, főképpen az, hogy nagy szimmetriájú tércsoportok esetén jelentősen megnöveli a megoldandó atomok számát, azaz a feltérképezendő fázistér nagyságát. Ezért megpróbáltuk a szimmetriákat mellékfeltételként rákényszeríteni egyrészt a kezdőállapotra, másrészt magára az iterációs folyamatra. Ennek a kényszernek nagyon sok variánsa létezik, pl. a mellékfeltételt elő lehet írni valós térben, reciprok térben, egy aszimmetrikus egység kiterjesztésével, a térfogatelemek átlagolásával, minden szimmetriaelemet felhasználva, csak egyes szimmetriaelemeket felhasználva, a szimmetrizálást minden lépésben végrehajtva, csak ritkább periódusban beavatkozva stb.

A teszteket számos anyagon, és a legkülönbözőbb tércsoport szimmetriákkal végeztük el. Minden erőfeszítésünk ugyanarra az eredményre vezetett: ugyan el tudjuk érni, hogy a jó szerkezet az adott szimmetriával, az adott helyen keletkezzen, de ezért hatalmas árat kell fizetni: 3-6 nagyságrenddel lecsökken a sikeres megoldások hányada (success rate). Így ez a megközelítés praktikusán nem alkalmazható. Ez a negatív eredmény nem került publikálásra, tapasztalatainkat csak egy konferencia előadásban osztottuk meg a tudományos közösséggel (European Crystallographic Meeting, Darmstadt 2010). A szimmetriák és a CF jellegű iterációs algoritmus kombinálását azonban nem adtuk fel, a legtermészetesebb hozzáállást megfordítva, már nem a valódi szimmetriákat erőltetjük, hanem a fals szimmetriák megjelenése ellen küzdünk. A CF algoritmus reciprok térbeli javításai valószínűleg mind ezt a szerepet töltik be, és hasonlóan jó (de nem jobb) eredményt sikerült elérnünk egy periodikus, valós térbeli törléssel is.

Kutatási tervünk egyik legfontosabb célkitűzése a diffrakciós kísérletekben előforduló adathiány hatékony kezelése volt. A hiányos adatok minden szerkezetmegoldó algoritmus számára komoly kihívást jelentenek, azonban a duális terek között iteráló algoritmusok (így a charge flipping) ebből a szempontból különösen problémásak, mivel az inverz Fourier transzformáció lépése megkerülhetetlen, és ehhez az összes mért és hiányzó szerkezeti tényezőre szükség van. Ezt jól illusztrálja, hogy míg az eredeti CF algoritmus kiválóan működik, ha a szerkezeti tényezők modulusai egy  $0.8\text{\AA}$  felbontású teljes reciprok gömbön belül rendelkezésre állnak, akár néhány százalék hiányzó adat szerencsétlen kezelése (pl. nullázása) használhatatlanná teszi a módszert. Az adathiány egyik tipikus oka a rosszul diffraktáló kristály, amely a nagy felbontású reflexiók hiányát okozza, de különböző instrumentális okok miatt hiányozhat pl. a kis felbontású tartomány, vagy akár egy tórusztérfogot komplementere is. Ezeket az eseteket az adatok és az algoritmus egy összetett módosításával sikerült általánosan kezelnünk (*Acta Cryst. A* **67**, 284, 2011). Ehhez először is felhasználtuk a szerkezeti tényezők korábban bevezetett nehézatomb-normálását, az adatokat pedig három diszjunkt tartományra osztottuk: (i) megfigyelt, (ii) nem megfigyelt és szabadon engedett, (iii) nem megfigyelt és törölt. Az új iterációs séma a projekciók nyelvén az  $\frac{1}{2}(R_M R_\delta + I)$  képlettel írható le. Itt  $R_\delta$  az algoritmus névadó, valós térbeli charge flipping lépése a korábban bevezetett dinamikus  $\delta$  paraméterrel,  $R_M$  pedig egy, a reciprok térbeli félciklusban működő perturbáció, amely a három adattartományra különbözőképpen hat: a megfigyelt reflexiók modulusát a mért értékre tükrözi, a nem megfigyelt és szabadon engedett reflexiókat nem változtatja, a nem megfigyelt és nullázott reflexiókat pedig a zérus értékre tükrözi. Az  $R_M R_\delta$  kombináció önmagában túl erős perturbáció lenne, ezért az algoritmus további része egy csillapítást okozó negatív visszacsatolás. Konvex mellékfeltételek esetén az iterációs séma AAR (averaged alternating reflections) néven ismeretes, amelyet itt nem-konvex esetben alkalmaztunk. Az algoritmus minden alkatrésze lényeges, az algoritmus működését a  $\delta$  paraméter megválasztásával ill. a nem megfigyelt reflexiók különböző adatkezelésű tartományainak megválasztásával lehet rugalmasan hangolni. Megjegyezzük, hogy a módosított algoritmus továbbra is teljesen *ab initio*, újabb fizikai mellékfeltételeket nem alkalmaztunk. Cikkünkben nyolc kiválasztott szerkezeten részletesen vizsgáltuk a reciprok tér különböző felbontású gömbhéjainak hiányát. Az adathiányt fokozatosan növelve igen meggyőző eredményeket kaptunk. Pl. számos esetben az algoritmus működőképes marad akkor is, ha az eredeti  $0.8\text{\AA}$  felbontású

adatkészletből eltávolítjuk az összes nagyfelbontású reflexiót a 0.8-1.6Å közé eső tartományban. Ez azt jelenti, hogy a krisztallográfiai irodalomban elvárt adatmennyiség 1/8-ad részével is sikeres és jó minőségű szerkezetmegoldás lehetséges. Pontos szabályt nem lehet felállítani, van amikor még ezt a határt is túl lehet lépni, de természetesen továbbra is léteznek nehezen megoldható szerkezetek, amelyek az eredeti adatmennyiség esetén is problémát jelentenek. A krisztallográfiai gyakorlatban azonban gyakran könnyen megoldható szerkezetekről van szó, a problémát nem maga a szerkezet, hanem az adathiány jelenti. Ezek az esetek a továbbiakban nem jelentenek problémát, a módosított algoritmus alkalmazása biztosra vehető.

A felsorolt fejlesztések kedvező fogadtatását jelzi, hogy a krisztallográfia legfontosabb konferenciáin tarthattunk keynote előadásokat (European Crystallographic Meeting 24 Marrakesh 2007, IUCr Conference XXI Osaka 2008, European Powder Diffraction Conference 11 Warsaw 2008) ill. szekció előadást (European Crystallographic Meeting 26, Darmstadt 2010). A módszert egy nemzetközi iskola keretein belül fiatal krisztallográfusoknak is tanítottuk (Crystallographic Computing School, Kyoto 2008).

## 2. A kristályos alapállapot matematikai vizsgálata

A kristályszerkezetek meghatározására irányuló munkánkkal párhuzamosan, 2005-ben elkezdtük egy alapvető rokon probléma vizsgálatát, nevezetesen azt, hogy miként befolyásolja az atomok közötti kölcsönhatás magának a szerkezetnek a kialakulását. Ez a munka a jelen pályázat teljes időtartama alatt folytatódott. Változatlanul Fourier-transzformálható kölcsönhatásokat tekintettünk. Míg a korábbi munkákban a Fourier-transzformáltról feltételeztük, hogy nem vesz fel negatív értékeket, most a részben negatív Fourier-transzformálttal bíró kölcsönhatásokra összpontosítottunk. Az irodalomban fellelhető előzményekből kiderült ugyanis, hogy az ilyen párpotenciálok az atomok egy különös fajta rendeződését váltják ki: van egy kedvező rács egy kedvező rácsállandóval, leggyakrabban tércentrált köbös cella, melyben a szomszédok távolságát a potenciál Fourier-transzformáltja (negatív) minimumának a helye szabja meg. Mihelyt a sűrűség eléri a megfelelő értéket, a rács kialakul és nagyobb sűrűség mellett is megmarad változatlan rácsállandóval olyan módon, hogy a többlet részecskék a rácshelyeken egymásra halmozódnak. Ennek a furcsa jelenségnek a puhaanyag-fizikában találtak kísérleti megvalósulásait, a magyarázatot pedig a klasszikus sűrűségfunktional-elmélet szolgáltatta.

Célunk az volt, hogy a sűrűségfunktional-elmélet heurisztikus érvelésén túlmenő, matematikailag szigorú bizonyítást adjunk. Az erre irányuló kutatásunkból született egy meglehetősen hosszú matematikai cikk (*Comm. Math. Phys.* **305**, 657, 2011), melynek főbb eredményei a következők. (1) Matematikailag szigorúvá tettük a sűrűségfunktional-elméletben alkalmazott energiafunktional alkalmazhatóságát. Ehhez bevezettünk három matematikai definíciót. Az első a legjobb szuperstabilitási állandó, amely a párenergia minimuma megszorozva a térfogattal. A második a végtelen sűrűségű alapállapot. Ez egy mérték, mely a véges részecskeszámú alapállapotokhoz rendelhető pontmértékek (Dirac-delták összege) ún. gyenge limeszeként áll elő. Harmadikként definiáltunk egy, a normált

mértékek terén értelmezett energiafunkcionált, amely a párpotenciálnak mindkét vektorváltozójában vett, az adott mérték szerinti integrálja. A három fogalmat egy tételben kötöttük össze, bizonyítva, hogy a funkcionál a végtelen sűrűségű alapállapotokon veszi fel a minimumát, és a minimum értéke a legjobb szuperstabilitási állandó. (2) A funkcionált minimalizáló mértékről beláttuk, hogy ez a Lebesgue-mérték, ha a párpotenciál Fourier-transzformáltja mindenütt pozitív; ha viszont a Fourier-transzformált részben negatív, a minimalizáló mérték nem lehet térben homogén. Mivel a végtelen sűrűségű alapállapot a véges sűrűségűek gyenge limesze, az előbbire érvényes állítások kiterjednek az utóbbiakra is, kellően nagy, de véges sűrűség mellett. Ezáltal beláttuk a sűrűségfunkcionál-elméleten alapuló következtetések részleges helyességét. (3) Teljes leírást adtunk a végtelen sűrűségű alapállapotokról abban az esetben, melyben a párpotenciál Fourier-transzformáltja nemnegatív, de felveheti a nulla értéket. Ekkor ezek az alapállapotok folytonosan degeneráltak; megmutattuk, hogy valójában egy konvex halmazt alkotnak. (4) A részben negatív Fourier-transzformált két speciális esetben megmutattuk, hogy a térben inhomogén nagy sűrűségű alapállapotok nem lehetnek Bravais-rácsok (melyek minden pontjában tehát a sűrűséggel arányos számú részecskének kellene felhalmozódnia). Hogy pontosan mik az alapállapotok, azt nem tudtuk megmondani – vélhetően periodikusak, a rácspontok körül (és nem a rácspontokon) felhalmozódó részecskékkel. (Ezért lesz csak részben helyes a sűrűségfunkcionál-elméleten alapuló következtetés.) Az első példában a potenciál Fourier-transzformáltjának a reciprokrács minden rácsegyenese mentén vett összege, az origó kihagyásával, nemnegatív. A másik esetben a potenciál vagy végtelenhez tart az origóban vagy csúcsa van ott, és Fourier-transzformáltjának negatív része kompakt tartójú.

Egy másik, rövidebb cikkben (*J. Phys. A* **44**, 035205, 2011) egy egyszerű egydimenziós példát adtunk olyan párpotenciálra, melynek alapállapota minden 1-nél nem kisebb sűrűségre az 1 periódusú rács, és a rácspontokban  $n$  vagy  $n+1$  részecske helyezkedik el tetszőleges elrendezésben, ha a sűrűség  $n$  és  $n+1$  közé esik. A kérdéses potenciál,  $u(x)$  az  $x$  páros függvénye,  $u(0)=1$ ,  $u(x)=0$  ha  $x \geq 1$ , és  $u(x) \geq 1-x$ , ha  $0 < x < 1$ . A határesetben, mikor  $u(x)=1-|x|$  a  $[-1,1]$  intervallumban,  $u$  Fourier-transzformáltja nemnegatív, és a korábban mondottak szerint további folytonos elfajultság lép fel. A többi esetben  $u$  Fourier-transzformáltjának van negatív része, de a bizonyítás ezúttal a direkt térben történik.

Egy harmadik cikkünk (*J. Math. Phys.* **50**, 032107, 2009) a párpotenciál részben negatív Fourier-transzformáltjának lehetséges következményeivel foglalkozik sokrészecskés Bose-rendszerekben. Ez a kérdés az irodalomban először az 50-es években vetődött fel, majd a 70-es években, elsősorban orosz szerzők cikkeiben lett részletesen kifejtve. A lényeges megállapítás az volt, hogy ezeknek a rendszereknek az alapállapota ún. koherens kristály, amelyben egyszerre fordul elő Bose-Einstein kondenzáció és periodikus hosszútávú rend. Mai terminológiával ezt szuper-szilárdtestnek neveznénk. Mivel sem a Bose-Einstein kondenzáció kölcsönható rendszerekben, sem pedig a periodikus rend egy kvantummechanikai alapállapotban szigorúan nem bizonyítható a ma rendelkezésre álló matematikai eszközökkel, a cikk egyrészt az egyszerre létező két típusú rend detektálásának lehetséges módszereit taglalja, másrészt egy leegyszerűsített példán illusztrálja a jelenséget.

### 3. Egyrészecske-leképezés szabadelektron lézernyalámban

Utolsó témánk napjaink szerkezetkutatásának forradalmian új területe – a "kristályok nélküli krisztallográfia". Ennek alapötlete egy olyan kísérlet, amelyben molekulák azonos replikáit egymás után lövik be egy ultrarövid és rendkívül intenzív röntgenimpulzusba, a molekulák a sugárkárosodás hatására felrobbannak, de még a Coulomb-robbanás előtt elegendő diffrakciós információt szolgáltatnak az eredeti szerkezet rekonstrukciójához. A tudományos érdeklődést az magyarázza, hogy nem minden biológiai molekula kristályosítható (vagy kristályosítható könnyen), ezért a régi módszerek nem alkalmazhatók, az új kísérlet technikai feltételei pedig a röntgen szabadelektron lézerek megépítésével mostanában válnak elérhetővé. Az egyrészecske-leképezés megvalósítása számos megoldandó kísérleti és elméleti problémát jelent, ezek közül mi a 2D diffrakciós szeletek 3D orientálásával foglalkoztunk. A probléma lényege, hogy a nyalámba érkező molekulák orientációja ismeretlen, és az általuk diffraktált 2D kép rendkívül alacsony beütésszámú ill. zajos. Az ismeretlen orientációjú és zajos 2D képeket kell úgy szelektálni és orientálni, hogy ezekből már a szerkezetmegoldásra alkalmas 3D intenzitáseloszlást kapjunk. Az irodalomban számos megközelítés született a probléma megoldására, a legtermészetesebb pl. az egyes Ewald-gömbök metszeteinek keresése, ez azonban a kísérletekben jelenleg elérhetőnél nagyobb intenzitásokat igényel. Idén publikált eredményünk (*J. Structural Biology* **179**, 41, 2012) más megközelítésen alapul. Lényege egy iterációs eljárás, amely véletlen intenzitás-eloszlásból kiindulva rögtön a teljes 3D reciprok teret építi fel. Minden iterációs lépésben minden 2D képet megpróbálunk újra elhelyezni úgy, hogy a már kialakult 3D intenzitáseloszláshoz a korrelációk alapján legjobban illeszkedjen. A módszert sikeresen teszteltük egy nagy fehérjemolekula (NapAB = periplasmic nitrate reductase) szimulált diffrakciós adatain. Az algoritmus képes volt a  $10^5$ , erősen zajos diffrakciós kép nagy pontosságú orientációjára kizárólag a képekben található információk alapján. Megmutattuk, hogy az orientált képekből összeállított háromdimenziós intenzitás-eloszlásból a hibrid input-output algoritmust segítségével meghatározható a molekula atomi felbontású szerkezete. Végül két technikai megjegyzés: (i) A rekonstrukcióhoz felhasznált  $10^5$  kép egy nagyságrenddel kisebb replikaszámot jelent más módszerekhez képest. (ii) Az algoritmus molekulamérettel ill. adatmennyiséggel való skálázhatósága lényegesen jobb, mint más módszereké, de a numerikus számításokhoz így is grafikus kártyák alkalmazására volt szükség.