



2021年11月24日

国立大学法人鳥取大学
大学共同利用機関法人高エネルギー加速器研究機構

高速データ解析で極薄膜物質の原子配列解析を加速 ～全反射高速陽電子回折における新しいデータ解析法の導入～

1. 概要

鳥取大学工学部機械物理系学科・同大学同学部先進機械電子システム研究センターの星健夫准教授（兼任：高エネルギー加速器研究機構物質構造科学研究所客員准教授）、同大学大学院博士前期（修士）課程の阪田大志郎氏、高エネルギー加速器研究機構（KEK）物質構造科学研究所（IMSS）低速陽電子実験施設（SPF=Slow Positron Facility）の望月出海助教・兵頭俊夫協力研究員（東京大学名誉教授）、九州大学工学研究院エネルギー量子工学部門の田中悟教授、同大学大学院修士課程の尾家翔太郎氏、東京大学総合文化研究科の福島孝治教授の共同研究グループは、測定データに対する新しい解析法を提案し、スーパーコンピュータを用いて、SPFにおける先端実験である全反射高速陽電子回折法（TRHEPD法、トレプト法）（注1）（図1）のデータ解析で、その有用性を実証しました。TRHEPD法は物質最表面や極薄膜物質の原子配列の超高精度解析法です。本研究により、高速かつ自動的にデータ解析する計算手法が確立されました。今後、革新的化学反応触媒・超高速情報処理ナノデバイスなどの開発に必要な原子配列解析の加速が期待されます。

本研究成果は、エルゼビア社が発行する「Computer Physics Communications」誌のオンライン版に10月4日に掲載されました。

2. 研究背景

コンピュータの高速化と情報ネットワークの発達によって、複雑な関係を内包する大量データも、高速かつ自動的に解析できるようになりつつあります。中でも、測定データ解析への応用が注目されています。近年開発された先端測定手法に、KEKのSPFで共同利用に供されているTRHEPD法があります。TRHEPD法では、量子ビームの一つである陽電子ビームを物質の表面すれすれに入射し、その回折波強度（回折パターンのスポット強度）を測定します。そのデータを解析して、数原子層の厚みしかないサブナノメートルスケールの

極薄膜物質の原子配列(原子1つ1つの座標)を超高精度に決めることができます。TRHEPD法は新しい測定手法であり、高速かつ自動的に解析する計算手法が整備されておらず、その超高精度をフルに活かすための、高速・自動解析手法が望まれていました。

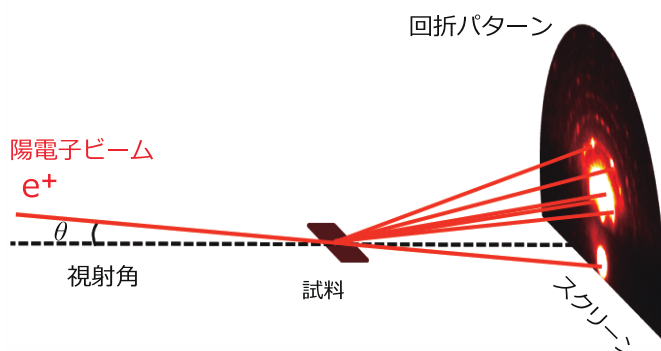


図1 TRHEPD法の実験(概要図)

3. 解析方法

本研究では、計算・データ駆動科学系研究者(星・福島ら)と実験系研究者(望月・兵頭・田中ら)が協力した分野融合チームが、新しい計算手法の提案とTRHEPD法の測定データ解析プログラムの開発を行いました。TRHEPD法による回折パターンの各スポットの強度は、量子散乱理論(注2)によりコンピュータで計算することができます。その具体的な計算手法は、TRHEPD法の提唱者でもある一宮彪彦(名古屋大学名誉教授)によって確立されました。それを利用して、実験で得られた回折スポット強度をできるだけ再現するような原子座標を探す計算方法(探索型逆問題解析)が解析の原理になります。

4. 解析結果

本研究では新しい2段階解析方法を提案し、その有用性を示すために、炭化ケイ素(SiC)表面上に作製した新しい極薄膜半導体材料である、 $\text{Si}_4\text{O}_5\text{N}_3/6\text{H-SiC}(0001)-(\sqrt{3}\times\sqrt{3})\text{R}30^\circ$ 表面(以下、SiON)へと適用しました。図2に、SiONの側面図を示します。0.7ナノメートル程度の厚みの複雑な構造です。ここでは、表面に垂直な方向をz軸として、原子最表面から8原子層分にあたる8変数(z_1, z_2, \dots, z_8)を決める問題を対象としました。

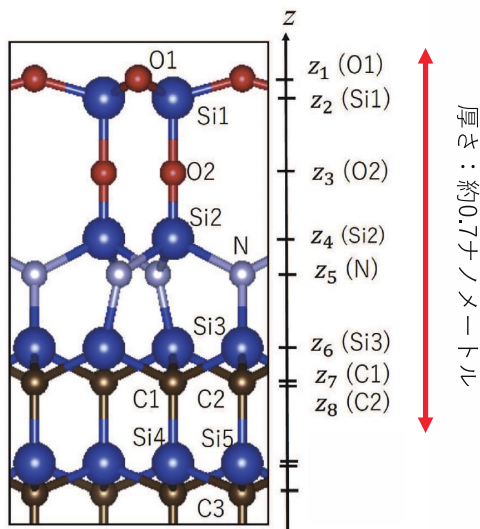


図2 $\text{Si}_4\text{O}_5\text{N}_3/6\text{H-SiC}(0001)-(\sqrt{3} \times \sqrt{3})\text{R}30^\circ$ 表面 (SiON 表面) の側面図。約 0.7 ナノメートルの厚みを持った、複雑な極薄膜物質。物質表面に垂直な方向をz軸とした。

2段階解析方法の1段階目は最適化手法であり、TRHEPD法で位置を決定したい原子の座標を変数として、最もよく実験の回折スポットの強度を再現する値を探索します。今回使ったTRHEPD法の測定データは、00スポット（最も強い鏡面反射シグナル）強度の視射角依存曲線（ロッキング曲線）です。それを図3に赤丸で示しています。これと、量子散乱理論を用いて計算した結果（計算データ、図3の曲線）を比較しました。

この解析では、R因子（注3）と呼ばれる、実験データと計算データの差を表す関数を対象として（以下ではR因子を一般的に目的関数と呼びます）、最適化問題（目的関数が最小となる1組の原子座標を探す問題）をコンピュータで解きました。本研究で探索する原子座標は8個なので、8変数の最適化問題です。その結果、最適化前のデータ（今回は他の実験手法による先行実験で報告されている構造データに基づく曲線）より、最適化後のデータの方が、より実験に近いことが分かります。

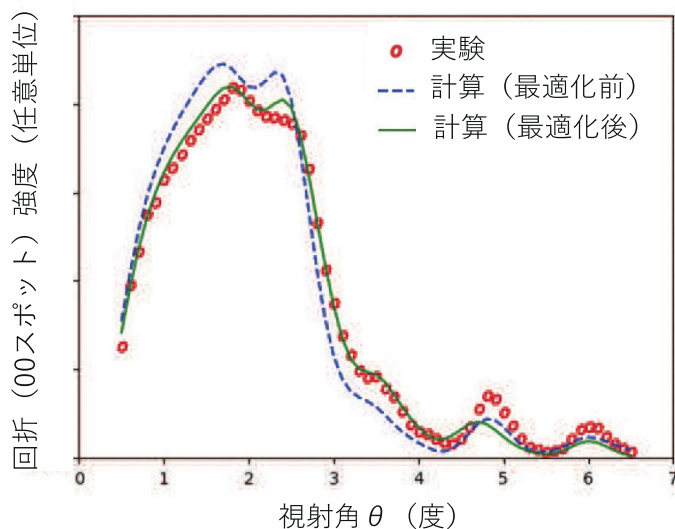


図3 解析第1段階（最適化）の結果。00スポットにおける回折強度の視射角依存性曲線（ロッキングカーブ）；実験データ、最適化前と最適化後の計算データ。

2段階解析方法の2段階目は、データ駆動型感度解析法です。TRHEPD法の回折データが、どの原子の座標情報をどの程度反映しているのかを解析しました。図4に1個の原子の座標だけ動かした、変数が1つの1次元の場合の概念を示しています。ここでの「感度」とは、目的関数の最小値（谷底）の原子座標が、決まりやすい（高精度に特定しやすい）程度を意味します。実際の目的関数は8変数関数であり、8次元データ空間における様々な方向への解析が必要となります。8次元データ空間は人間による直接知覚が困難ですが、計算科学的解析（分散・共分散行列の固有値解析）（注4）により、8次元空間内の感度の高い方向、低い方向を見つけることができました。図5は、解析結果のうち、対照的な特徴をもつ2次元データ部分空間を例として可視化したものです。図5左図では、左上から右下に向かう太い矢印方向に色（目的関数の値）が大きく変化し、この方向に感度が高いことがわかります。この方向は、第1層と第2層の層間距離（ $z_1 - z_2$ ）が変化する方向になります。つまり、この層間距離を少し変えるだけで、目的関数（実験データと計算データの差）が大きく変わることがわかります。同様に、図5右図では、左右方向に感度が高く上下方向には低いことから、縦軸の z_8 の変化に対しては感度が低いことがわかります。このような解析により、このSiONに対するTRHEPD実験では、陽電子が最表面から6層（図2の z_1, \dots, z_6 ）程度の深さを主に見ていることがわかりました。データ駆動型感度解析は、どの範囲の原子座標を最適化法（第1段階解析）の変数とするべきかの客観的な指針を与えます。上記2段階解析は、ともに、人的思索・試行錯誤を必要としない自動解析です。

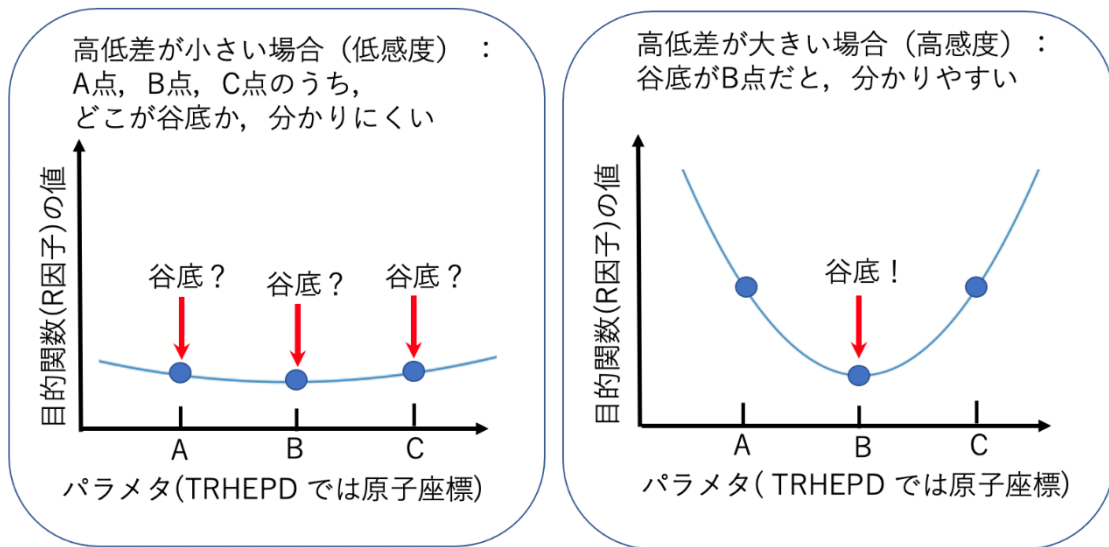


図4 感度の概念「今は谷底にいる？」。左図：高低差が小さいと、分かりにくい（低感度）。右図：高低差が大きいと、分かりやすい（高感度）。

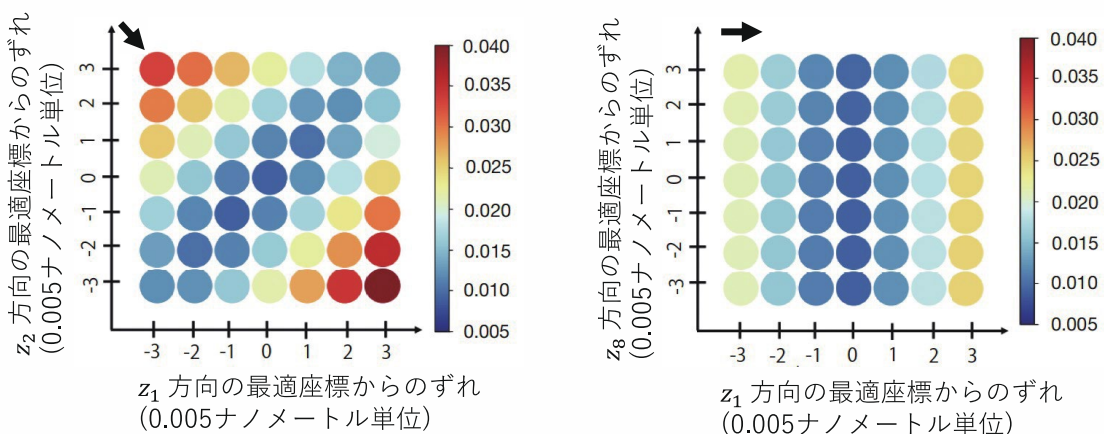


図5 感度解析の結果。対象となる関数の値を色で表示。8次元データ空間 (z_1, z_2, \dots, z_8) に対する感度解析により、特徴的な2次元部分空間を抽出。左図： (z_1, z_2) 空間図。太い矢印の方向（右下方向）が高感度方向。右図： (z_1, z_8) 空間図。太い矢印の方向（右方向）が、相対的な高感度方向。

第1段階の最適化は、これまでパーソナルコンピュータ（PC）を使った人的な試行錯誤で、正味10時間程度かかっていました。それが、自動最適化手法の導入により、8変数に対する解析が同じPCで1分以内に終わるようになりました。第2段階の感度解析は、スーパーコンピュータ Oakforest-PACS（注5）における約2000台のコンピュータを並列に用いて1時間半程度で終わりました。仮に1台（PCに相当）で計算すると（実際には最初から諦めて行ってすらいなかったのですが）、連続計算で約4ヶ月かかると概算されるため、データ解析作業が驚異的に（PCの2,000倍に）高速処理されたと言えます。

5. 研究展望

本研究には2つの展望があります。1つは、実験手法上の発展です。TRHEPD法による高精度な測定データの高速な解析が確立されたことで、原子スケール極薄膜物質の構造(原子座標)測定により、革新的な化学反応触媒・超高速情報処理ナノデバイスなど、多彩な物質の開発に必要な原子配列解析が促進されます。もう1つは、計算手法の発展です。さらに新しい計算手法開発のほか、サブナノメートルスケール極薄膜物質に対する他測定(表面エックス線回折、低速電子線回折、低速陽電子回折など)にも適用する研究も進んでいます。

6. 雑誌情報

雑誌名: Computer Physics Communications

タイトル: Data-driven sensitivity analysis in surface structure determination using total-reflection high-energy positron diffraction (TRHEPD)、和訳: 全反射高速陽電子回折(TRHEPD)を用いた表面構造決定におけるデータ駆動型感度解析

著者: 星健夫 1、2、3、阪田大志郎 1、尾家翔太郎 4、望月出海 3、田中悟 4、兵頭俊夫 3、福島孝治 5

所属: 1 鳥取大学工学部機械物理系学科、2 鳥取大学工学部附属先進機械電子システム研究センター、3 高エネルギー加速器研究機構 物質構造科学研究所 低速陽電子実験施設、4 九州大学工学研究院エネルギー量子工学部門、5 東京大学大学院総合文化研究科

URL:

<https://doi.org/10.1016/j.cpc.2021.108186>

7. 用語解説

・(注1) 全反射高速陽電子回折法(TRHEPD法、トレプト法)・・・エネルギー10 keV程度の質の良い陽電子ビームを試料表面にすれすれの角(視射角 $\theta = 0^\circ \sim 6^\circ$)で入射し、得られる回折パターンのスポット強度から表面の原子配列を調べる方法。Total-Reflection High-Energy Positron Diffractionの頭文字をとってTRHEPDと略称される。あらゆる物質は内部の静電ポテンシャルが正であるため、視射角が全反射臨界角以下の場合、陽電子は最表面の原子のみの情報をもたらす。視射角が臨界角より大きくなると物質内部に侵入するが、表面に近づくように屈折して表面直下の原子層の情報をもたらす。

・(注2) 量子散乱理論・・・陽電子は電子と同様に量子力学的な波であり、量子散乱理論は波としての方程式を与える。波としての方程式を解くことで、回折現象を扱うことができる。

・(注3) R因子・・・実験から得た回折強度(図3の赤丸)と、仮定した原子座標から計算した回折強度(図3の曲線)がどの程度ずれているのかを表す関数。R因子が十分小さく

なれば、仮定した原子座標が実験結果を十分に再現できたことになる。

・(注 4) 分散共分散行列の固有値解析・・・分散共分散行列は、分散（ばらつきの程度を表す統計量）の概念を多変数に拡張した行列。ある変数のばらつきと別の変数のばらつきの間に、どの程度の関係（相関）があるかを示している。分散共分散行列の固有値解析は、ばらつきの大きい方向・小さい方向を自動的に特定する計算方法。

・(注 5) Oakforest-PACS・・・最先端共同 HPC 基盤施設（東京大学情報基盤センター、筑波大学計算科学研究センター）の運用するスーパーコンピュータ。

8. 研究助成

本研究は、以下の助成を受けています。科研費基盤 (B)「超並列マシンを用いた計算統計と測定技術の融合」(代表：星健夫)、科研費基盤 (C)「全反射高速陽電子回折によるチタニア表面の光照射反応におけるモルフォロジ変化の解明」(代表：望月出海)、科研費基盤 (C)「全反射高速陽電子回折による Si(111)7×7 再構成表面の原子座標の決定」(代表：兵頭俊夫)、科研費基盤 (A)「物理学・情報科学に共通する大規模行列関数の総合的数値計算法の創成」(代表：曾我部知広)、文科省ポスト「京」プロジェクト重点課題 (7)「次世代の産業を支える新機能デバイス・高性能材料の創成」(代表：常行真司)。