



2022年7月29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

先端量子ビーム計測技術向け汎用データ解析ソフトウェア 2DMAT の開発 ～2次元物質研究の新展開へ～

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(KEK)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)課程の岩本晴道氏・一ノ瀬颯人氏、東京大学物性研究所の本山裕一特任研究員・吉見一慶特任研究員、KEK 物質構造科学研究所低速陽電子(注1)実験施設(SPF= Slow Positron Facility)の望月出海助教の共同研究グループは、先端計測技術向けのデータ駆動科学を活用した汎用データ解析ソフトウェア 2DMAT(ツーディーマツト)を開発しました。本ソフトはWEB上で公開(<https://www.pasums.issp.u-tokyo.ac.jp/2dmat/>)されており、誰でも無償で利用できます。

本ソフトの主な解析対象は、2次元物質(注2)の構造です。2次元物質は、3次元物質とは異なる低次元の原理によって新機能を発現するため、次世代触媒や次世代超高速電子デバイス材料などへ応用が期待されています。しかしながら、2次元物質に対する計測技術は十分には確立されておらず、その構造(詳細な原子配列)決定の難しさが課題とされてきました。一方、量子ビームをもちいた表面構造解析技術が近年発展し、それらを単独あるいは相補的に利用することで、2次元物質の詳細な構造決定が可能になりつつあります。2DMATはこれら量子ビーム計測技術に対し、並列モンテカルロ型ベイズ推定(注3)などのデータ駆動科学を駆使した先進的なデータ解析手法を提供します。本研究では、最新の量子ビーム回折法(注4)である全反射高速陽電子回折(TRHEPD, トレプト)法(注5)(図1)と2DMATを組み合わせ、複雑なデータ構造に潜む「真の解」(正しい構造)を探索して短時間のうちに決定できることを示しました。

本研究により、2次元物質の構造決定を高効率・高信頼に行える汎用のデータ解析ソフトが開発されたことで、それらを対象とした新材料開発や、産業利用に向けた応用研究に大きな弾みがつくことが期待されます。

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7月21日に掲載されました。

2. 研究背景

最近の計測におけるデータ解析技術の革新は「計測インフォマティクス」と呼ばれ、大きく注目されています。特に新規の計測技術が勃興するとき、その潜在能力をフルに引き出すデータ解析手法が同時に発展することで、新たなブレークスルーがもたらされます。そうしたブレークスルーが渴望されている計測対象の一つに2次元物質があります。これまでは、放射光などのX線（エックス線）や電子をもちいた量子ビーム回折法が利用されてきましたが、近年、日本発の計測技術であるTRHEPD法が開発され、最表面から厚さ数原子層にかけての高精度な構造決定も可能となり、その実験装置がKEK物質構造科学研究所のSPFで共同利用に供され、2次元物質の構造解明に威力を発揮しています。

TRHEPDは、電子の反粒子である陽電子による量子ビーム回折法です。図1にあるように、試料にすれすれにビームを入射させ、スクリーンに映った回折パターンから、試料表面上に形成された2次元物質の構造を決定します。TRHEPD法の潜在能力をフルに引き出し、多くの実験系研究者に利用してもらうためには、汎用的なデータ解析ソフトの開発が必要不可欠でした。さらに、一つの物質に対して、複数の量子ビーム回折法（TRHEPD法・X線回折法・電子回折法など）を併用し、それらの実験データを統合的に解析できるソフトウェアも望まれていました。

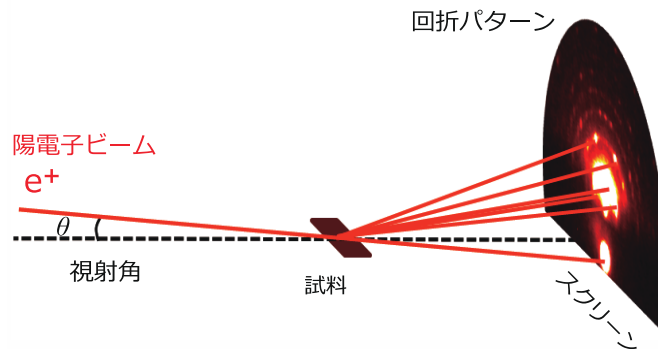


図1 TRHEPD法の実験（概要図）

3. 解析方法

本研究では、上記の需要に応えるため、複数実験手法（TRHEPD法・X線回折法・電子回折法）の単独および複合利用に対応可能なデータ解析ソフトウェア2DMATを開発しました。解析では、実測した回折実験データと、量子ビーム毎の回折理論に基づいた計算結果との差異(R因子と呼ばれる)を最小化するように、原子座標を探すことが原理となります。これを探索型逆問題解析と呼びます。こうした逆問題解析の解を高効率かつ高信頼に得るためには、並列モンテカルロ型ベイズ推定や、並列ベイズ最適化（注6）などの数理的な計算手法が最適です。

4. 解析結果

本研究の主な成果の一つとして、図 2 に並列モンテカルロ型ベイズ推定による大域探索法を示しました。大域探索とは、考えているデータ空間の全域を探索することで、「求める解がどのあたりにあるのか」が事前には分からない場合でも、R 因子が最小となる解（ここでは対象物質の原子座標の情報）を自動的に見つけることです。テスト系として Ge(001)-c(4×2)構造からの回折人工データを使用し、表面に垂直な方向をz軸として、原子最表面から2原子層分にあたる2変数 (z_1, z_2) を決定しました。並列モンテカルロ型ベイズ推定では、許容不確かさに相当するパラメータ τ を選択することで、「局所解」（限られた空間の探索においては解と誤認してしまうが、実際は正しくない解）と「真の解」（大域的に探索した上での正しい解）の両方を検出して区別できることが確かめられました。

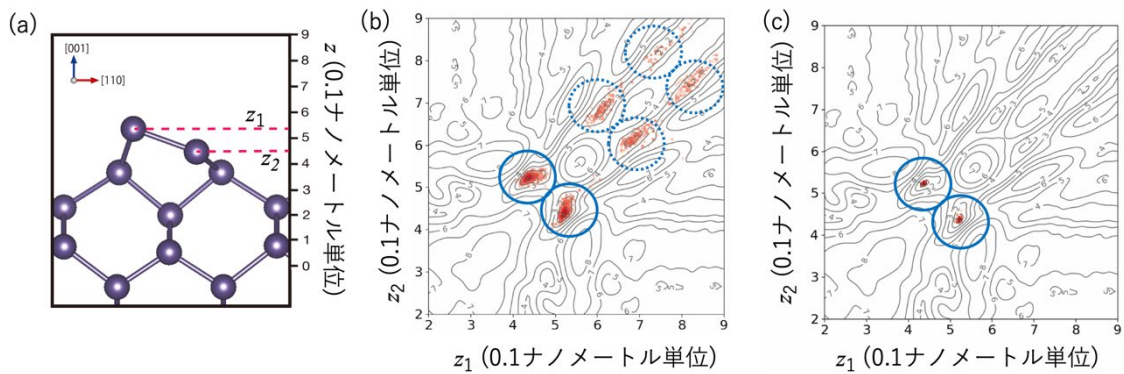


図 2 (a) Ge(001)-c(4×2)表面の側面図。物質表面に垂直な方向をz軸とした。奥行き方向に一部の原子を省略して描いている。(b) (c) 並列モンテカルロ型ベイズ推定による、(z_1, z_2) データ空間での探索結果。R 因子に対する許容不確かさ値 $\tau=0.005$ (b), 0.001 (c)での計算。サンプル点 (図中の赤点) は、R 因子の値が最小値+ τ 程度以下になる点。等高線は、R 因子の値の分布を示す。(b)では真の解 (実線円内) のほか、局所解 (点線円内) が検出されているが、(c)では真の解のみが検出されている。真の解が2つあるのは、図(a)のように左側の表面原子が高い構造($z_1 > z_2$)と右側の表面原子が高い構造($z_2 < z_1$)が同等であるため。

5. 研究展望

本研究で開発された汎用データ解析ソフト 2DMAT を活用することにより、様々な量子ビーム計測技術が、その潜在能力をフルに発揮できるようになります。2DMAT 普及に向けた講習会も開かれ (2021 年 4 月, 2022 年 4 月)、大学や企業の研究者にも波及しつつあります。これまで課題であった構造解析が容易になれば、2次元物質研究は新展開を迎え、次世代触媒・次世代電子デバイスの新素材開発や、産業利用へ向けた応用研究が加速することが期待されます。

6. 雑誌情報

雑誌名：Computer Physics Communications

タイトル：Data-analysis software framework 2DMAT and its application to experimental measurements for two-dimensional material structures、和訳：データ解析ソフトウェアフレームワーク 2DMAT と 2次元物質構造計測への応用

著者： 本山裕一 1、吉見一慶 1、望月出海 2、岩本晴道 3、一ノ瀬颯人 3、星健夫 3、4、5、2

所属：1 東京大学物性研究所、2 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、3 鳥取大学大学院工学専攻、4 鳥取大学工学部機械物理系学科、5 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

URL： <https://doi.org/10.1016/j.cpc.2022.108465>

7. 用語解説

・(注 1) 低速陽電子・・・陽電子は素粒子の 1 種。電子の反粒子で、電荷が正であること以外は電子と同じ性質をもっている。エネルギーの高い陽電子を、一旦、陽電子に対する負の仕事関数をもつニッケルやタングステンなどの金属（減速材，モデレータ）に入射し、その中で運動エネルギーをほぼ 0 にした後、表面から再放出させるという特殊な方法で低速化したものを低速陽電子という。再放出するときのエネルギーは仕事関数の絶対値（ニッケルでは 1 eV，タングステンでは 3 eV）となる。これを実験で使用する所望のエネルギーに再加速したのも同様に低速陽電子と呼ぶ。

・(注 2) 2次元物質・・・原子数層の厚みしかない、極めて薄い物質の総称。ここでは、多岐にわたって最先端で研究されている次のような物質材料を意味する。炭素原子の 2 次元ハチの巣格子状物質であるグラフェン、もしくはホウ素（ボロフェン）、ケイ素（シリセン）、ゲルマニウム（ゲルマネン）などのポストグラフェン材料、化合物シートである窒化ホウ素（*h*-BN）や遷移金属とカルコゲン（S, Se, Te）からなる遷移金属ダイカルコゲナイド、それらの積層・配向・インターカレーションなどを制御した新物質、結晶内部と原子の並び方が異なるために新たな特性を発現する表面再構成（表面超構造）など。

・(注 3) 並列モンテカルロ型ベイズ推定・・・モンテカルロ型ベイズ推定は、計測データが与えられた状況で、探索対象量（本研究では 2 次元物質の原子配列の位置座標）を確率分布（ベイズ事後確率分布と呼ばれる）として得る数理手法。サンプルデータ点からなるヒストグラムとして、任意形状の確率分布を表現できる。並列モンテカルロ法（レプリカ交換法・ポピュレーションアニリング法）をもちいることで、パーソナルコンピュータからスーパーコンピュータ「富岳」に至る、広範囲な計算機で高速かつ高精度なデータ解析が実現できる。

・(注4) 量子ビーム回折法・・・量子ビーム (X線・電子・陽電子・中性子など、量子力学に基づく波) による回折現象を利用した実験手法の総称。

・(注5) 全反射高速陽電子回折 (TRHEPD, 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。ここで利用される陽電子は(注1)の方法でエネルギーを揃えて再加速した低速陽電子であるが、電子をもちいる反射高速電子回折 (Reflection High-Energy Electron Diffraction) の陽電子版なので、それとの対応から「高速」陽電子回折と呼ばれる。さらに「全」反射と呼ばれるのは、電子にはない全反射が起こるため。

・(注6) 並列ベイズ最適化・・・ベイズ最適化は、最適点を探索する際に、不確かさの概念を活用しながら次に探索する点を決める数値手法。2DMATの並列ベイズ最適化は、東大で開発された数値ライブラリPHYSBO (<https://www.pasums.issp.u-tokyo.ac.jp/physbo>) をもちいて実行される。

8. 研究助成

本研究は、以下の支援を主に受けています。東京大学物性研究所ソフトウェア開発・高度化プロジェクト(2020年度, 2021年度) (提案代表: 星健夫)、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 (B) 「実用表面材料開発研究のための高効率な全反射高速陽電子回折実験システムの開発」 (代表: 和田健)、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)、スーパーコンピュータ「富岳」利用課題 (課題番号: hp210228, hp210267)。