

はじめに: データ解析ソフトウェア「2DMAT」v.1の紹介

○星健夫¹, 本山裕一², 吉見一慶²

¹鳥取大学工学部, ²東京大学物性研究所

1. イントロ: 測定データ解析による計測イノベーション
2. 全反射高速陽電子回折(TRHEPD, トレプト)
3. 「2DMAT」開発の経緯と協力者
4. 機能概要と応用例
5. まとめと展望

イントロ: データ解析による計測イノベーション

- データ解析のブレークスルーは、計測技術に革新をもたらす。

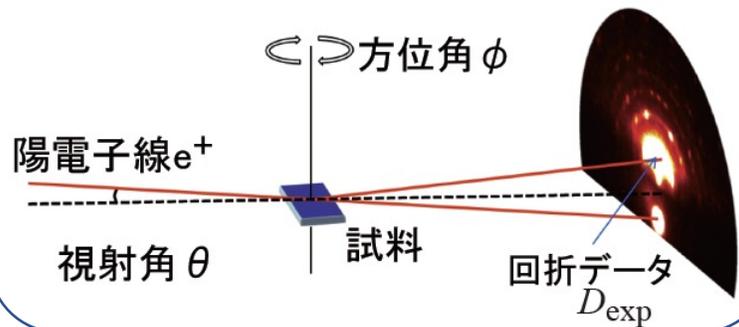
例: クライオ電子顕微鏡法 (2017年ノーベル化学賞)

- 我々は、スーパーコンピュータ(超並列計算)を前提とした、汎用な高速・高信頼データ解析ソフトを開発し、計測イノベーションを目指す。
- ソフトウェアは、実験系研究者が利用することを、想定。

当座対象実験: 2次元物質構造解析向け量子ビーム回折実験

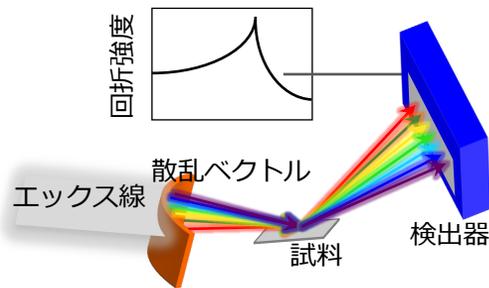
(3次元構造(結晶)に比べて、構造特定が困難 (シグナルが微弱, 構造が多様))

全反射高速陽電子回折(TRHEPD)



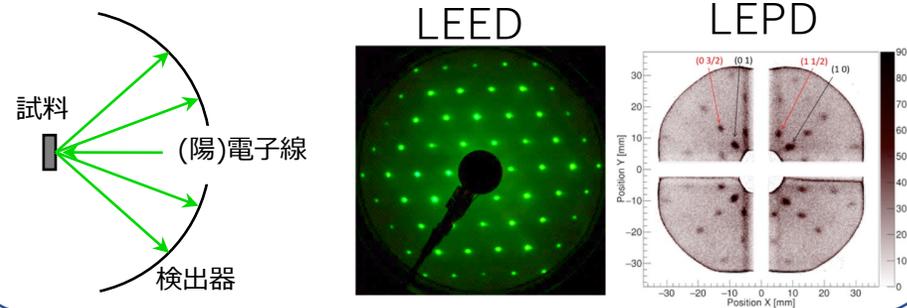
(対応済)

表面エックス線回折(SXRD)



(2021年度対応予定)

低速電子回折(LEED)・低速陽電子回折(LEPD)



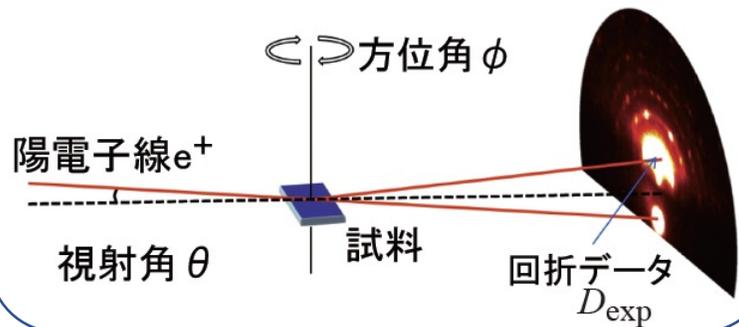
(2021年度対応予定)

イントロ: データ解析

- データ解析のブレークスルーは、
例: クライオ電子顕微鏡法 (2017年ノーベル賞)
- 我々は、スーパーコンピュータ(京)を用いた
汎用な高速・高信頼データ解析
- ソフトウェアは、実験系研究者が

- 当座対象実験: 2次元物質構造解析
(3次元構造(結晶)に比べて、)

全反射高速陽電子回折(TRHEPD)



(対応済)

表面

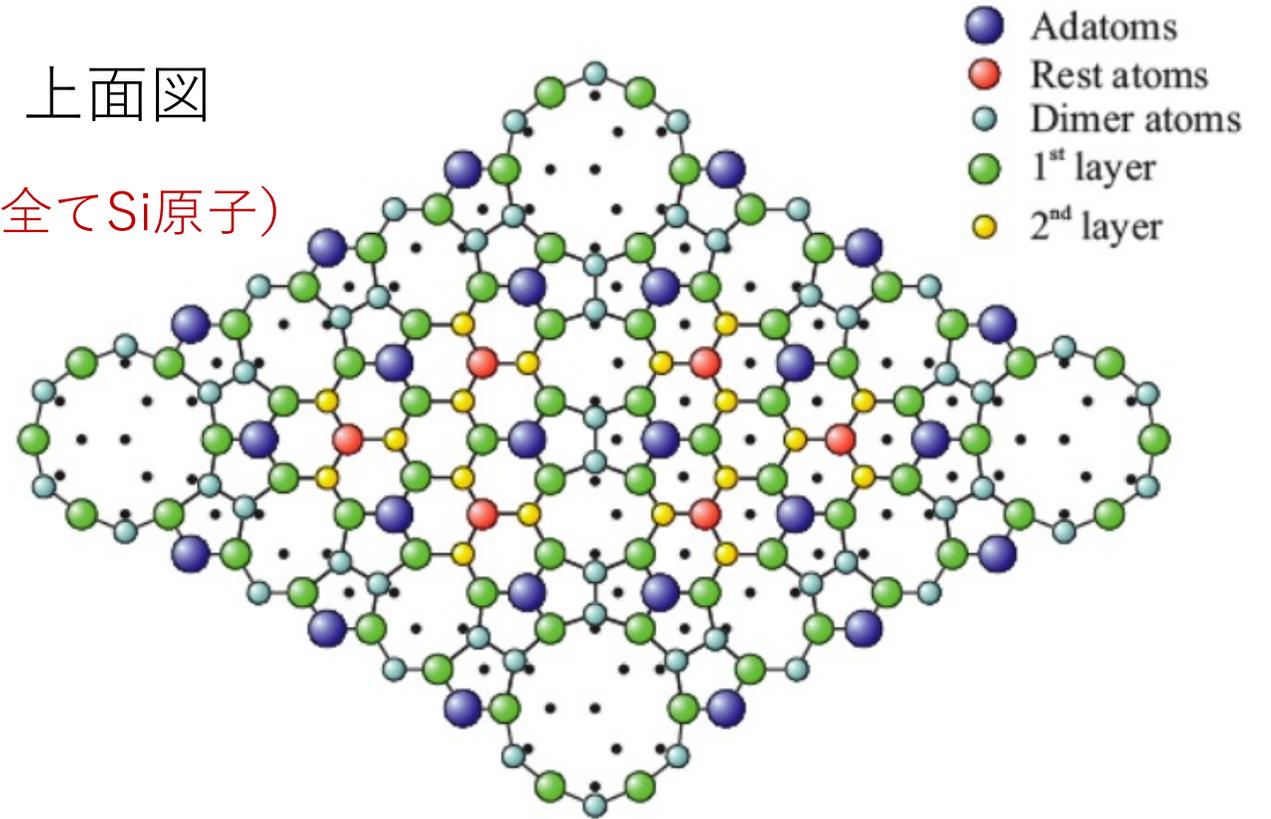
エ

(2021)

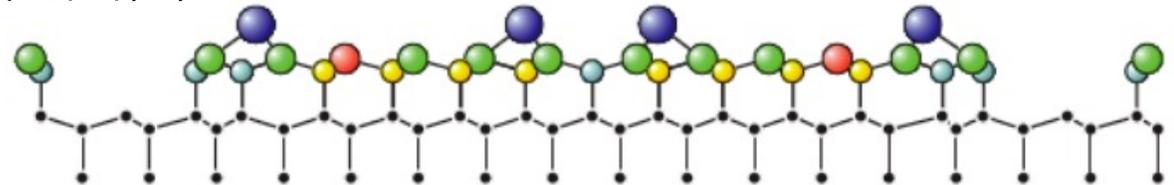
複雑な表面構造の例: Si(111)-7x7面

上面図

(全てSi原子)



側面図



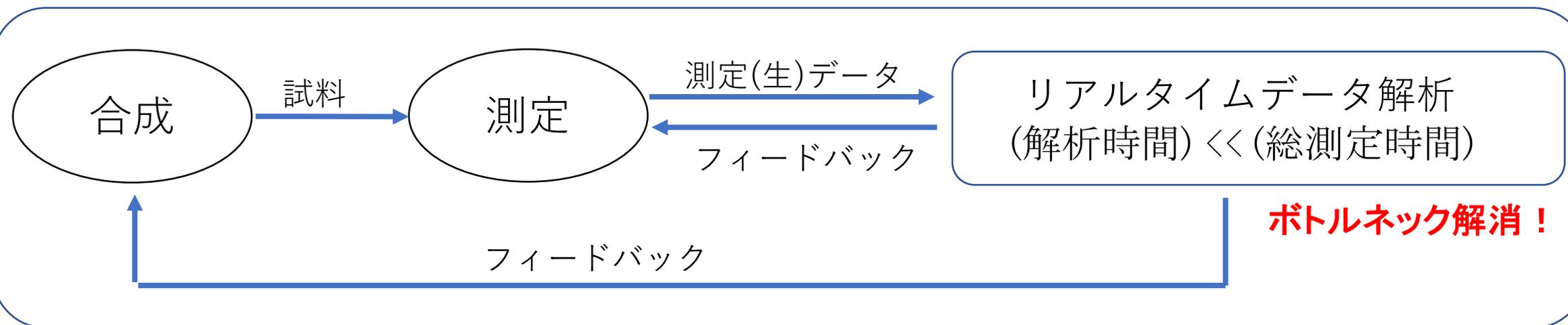
イントロ: データ解析による計測イノベーション

- データ解析のブレークスルーは、計測技術に革新をもたらす。

例: クライオ電子顕微鏡法 (2017年ノーベル化学賞)

- 我々は、スーパーコンピュータ(超並列計算)を前提とした、汎用な高速・高信頼データ解析ソフトを開発し、計測イノベーションを目指す。
- ソフトウェアは、実験系研究者が利用することを、想定。

- 展望: 「リアルタイム解析」実現による、物質開発サイクルの劇的加速(プロセスイノベーション)



数理的問題設定：探索型逆問題解析

- (a) 測定量 D (生データ)から目的状態量 X (欲しい量)を計算する.
- (b) 「順問題モデル」を与える. つまり,
測定量 D が目的量 X の関数として与える.

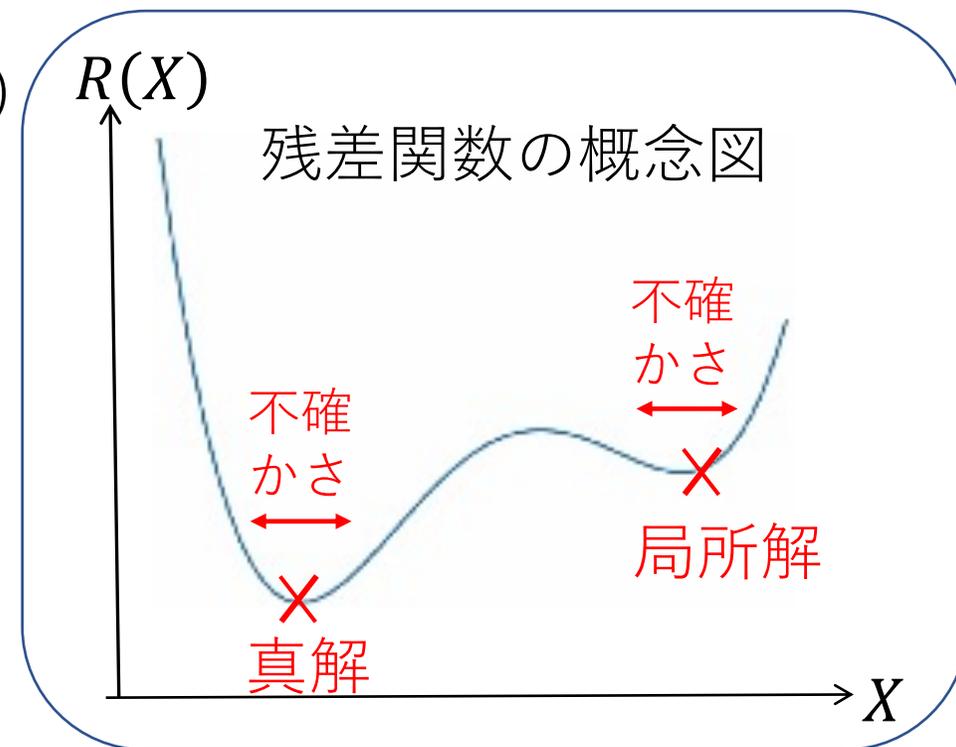
$$D_{\text{cal}} \equiv D_{\text{cal}}(X) \quad (1)$$

→ 解法：探索型逆問題解析・・・残差関数(R-factor)

$$R(X) \equiv |D_{\text{cal}}(X) - D_{\text{exp}}| \quad (2)$$

の最適化問題, 及び, (高次元)不確かさ解析.

- (c) 「順問題モデル」を取り替えることで,
様々な実験に対応可能.

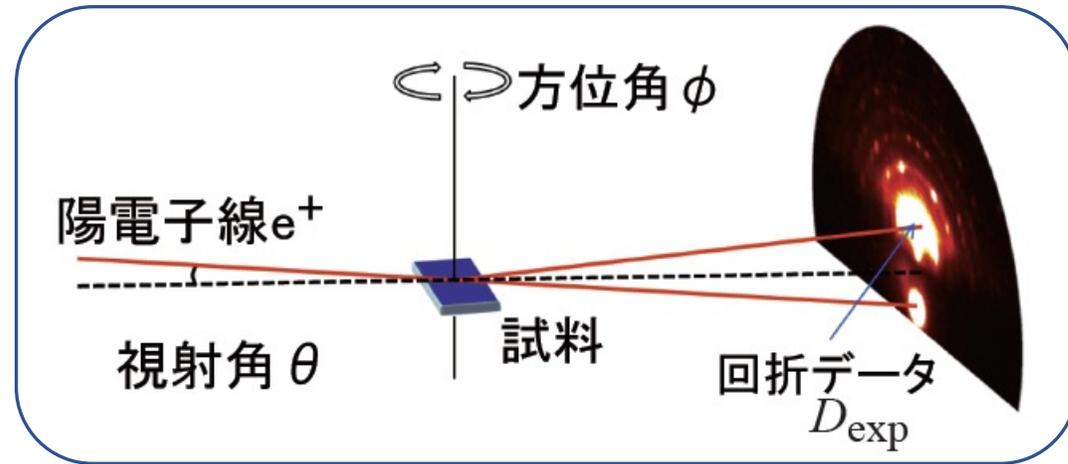


全反射高速陽電子回折(Total-reflection high-energy positron diffraction; TRHEPD, トレプト)

[1] <https://www2.kek.jp/imss/spf/>; [2] (総説) Fukaya, *et al.*, J. Phys. D 52, 013002 (2019)

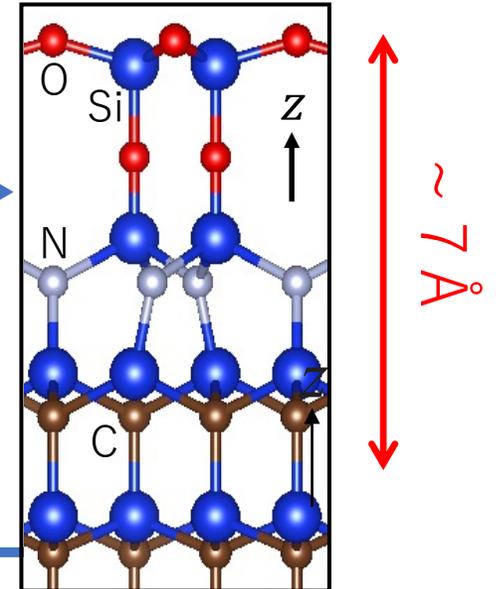
- 2次元構造解析のブレークスルー. 反射高速電子線回折(RHEED)の陽電子版.
- 現状では, KEK物構研SPFでのみ実用的測定が稼働中(全国共同利用).
- 回折データ D_{exp} から, 表面原子配列 X を決定する

$$\text{残差関数(R-factor)} : R(X) \equiv |D_{\text{cal}}(X) - D_{\text{exp}}|$$



探索型
逆問題解析

原子配列 X (側面図)



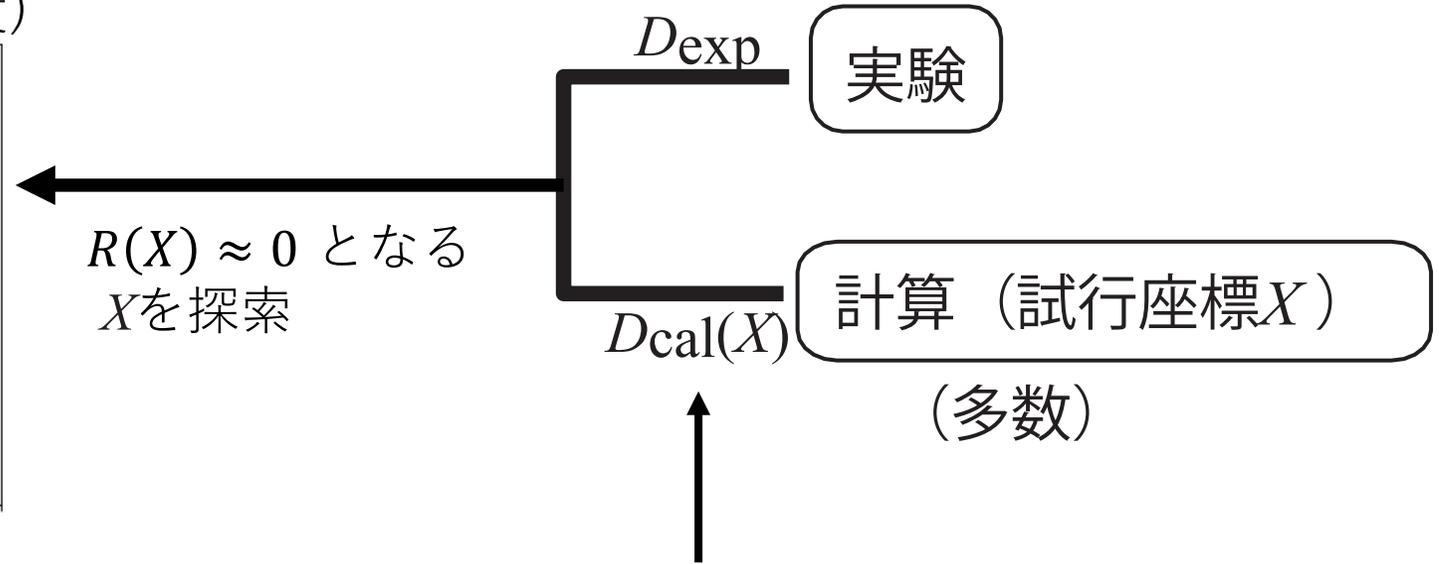
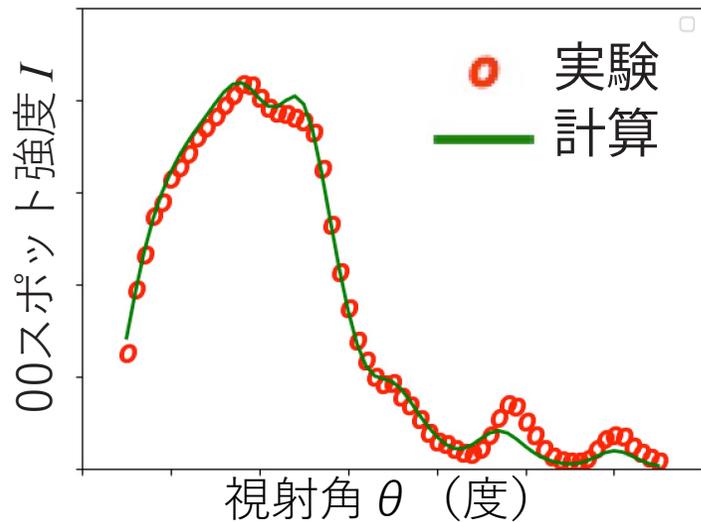
$\text{Si}_4\text{O}_5\text{N}_3 / 6\text{H-SiC} (0001) - (\sqrt{3} \times \sqrt{3}) R30^\circ$ (SiON表面)

(*) Hoshi, *et al.*, <https://arxiv.org/abs/2103.04875>

データ解析の数理基盤：探索型逆問題解析

解析原理：測定量（回折強度）における，実験データ D_{exp} と計算データ $D_{\text{cal}}(X)$ の数値的一致
→ 残差関数(R因子) $R(X) \equiv |D_{\text{cal}}(X) - D_{\text{exp}}|$ の最適化問題・感度解析

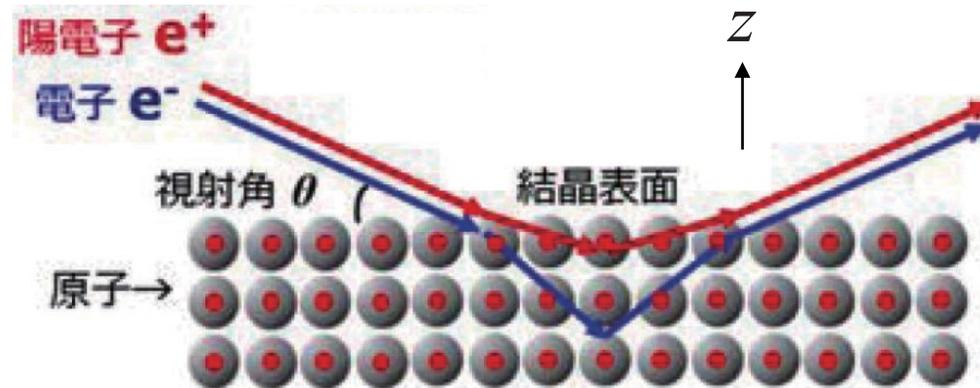
ロッキングカーブ(回折強度)



順問題：量子散乱問題

$$(\Delta + E + U(\mathbf{r}))\Psi(\mathbf{r}) = 0$$

$U(\mathbf{r})$ ：半無限系, xy方向のみ周期的
一宮, JJAP22, 176 (1983)(RHEED)



「2DMAT」開発の経緯と協力者

開発経緯

(i) 2019年度 科研費などで、プロトタイプ開発.

→ 全反射高速陽電子回折(TRHEPD, トレプト)を対象として, 応用研究開始.

Tanaka et al, Acta. Phys. Pol. A137, 188 (2020);

JJAP Conf. Series, in press (<https://arxiv.org/abs/2002.12165>);

Hoshi *et al.*, submitted (<https://arxiv.org/abs/2103.04875>).

(ii) 2020年度, 2021年度 東大物性研ソフトウェア開発・高度化プロジェクト(本山・吉見・星)

→ 「2DMAT」v.1で公開(2021年3月).

注: GNU General Public License version 3 (GPL v3) に準じて配布.

(ただし, 我々が指定した論文を引用してほしい).

注: TRHEPD解析には, 花田貴(東北大)開発の「sim-trhepd-rheed」を接続;

<https://github.com/sim-trhepd-rheed/sim-trhepd-rheed/>

協力者(上記(ii)における)

実験系: 花田貴(東北大), フォグリ ヴォルフガング(学芸大), 白澤徹郎(産総研),

望月出海(KEK物構研SPF), 高山あかり(早稲田大), 長谷川修司(東大)

計算系(データ駆動科学・高速計算技術): 福島孝治(東大), 山本有作(電通大), 深谷猛(北大)

ソフトウェア「2DMAT」の概要

- 全体構想：汎用ソフトウェアの開発
→ 5種解析手法と4種測定とで、任意組み合わせを可能に。

5種解析手法

- (1) 局所更新(Nelder-Mead法)[1]
- (2) グリッド型探索 [1]
- (3) ベイズ最適化 [2]
- (4) レプリカ交換モンテカルロ法 [2]
- (5) ポピュレーションアニーリング
モンテカルロ法[3](2021年度予定)

注：(2)-(5)は、並列(MPI対応)コード。

4種測定法

- 全反射高速陽電子回折
(TRHEPD) [1]
- 他実験
SXRD, LEED, LEPD
(2021年度予定)

注：アルゴリズム評価用のテスト関数も実装

任意の
組み合わせ
を可能に!

他に、シミュレーション（第一原理計算）連携[2]

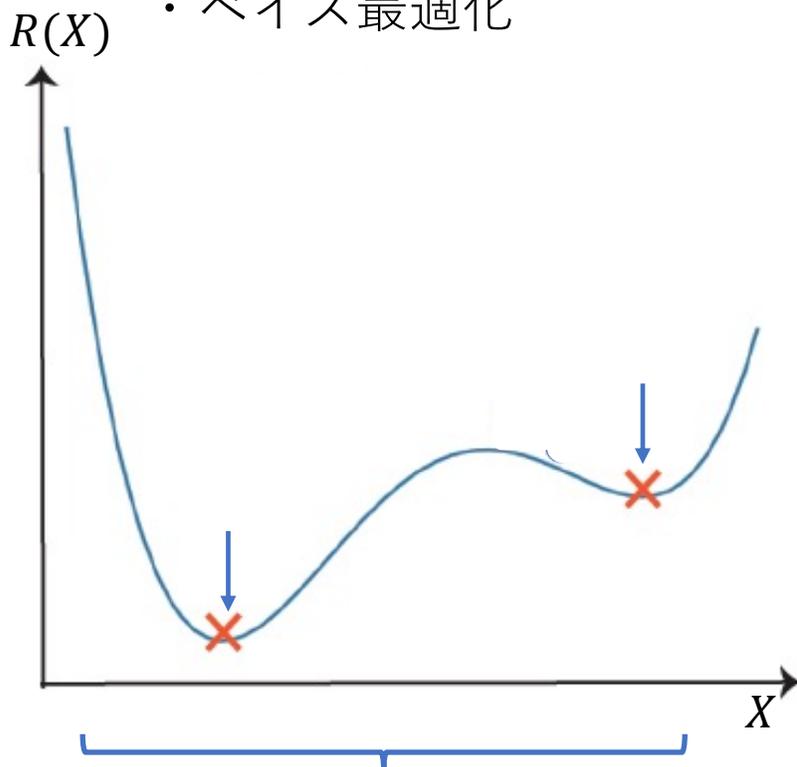
- [1] 旧コード(2019)
- [2] 2DMAT v.1 (本講習)
- [3] Hukushima and Iba, 2003

ソフトウェア「2DMAT」のアルゴリズム(詳細は, 次の講演)

残差関数(R-factor) $R(X)$ に対する, 5種探索アルゴリズム.

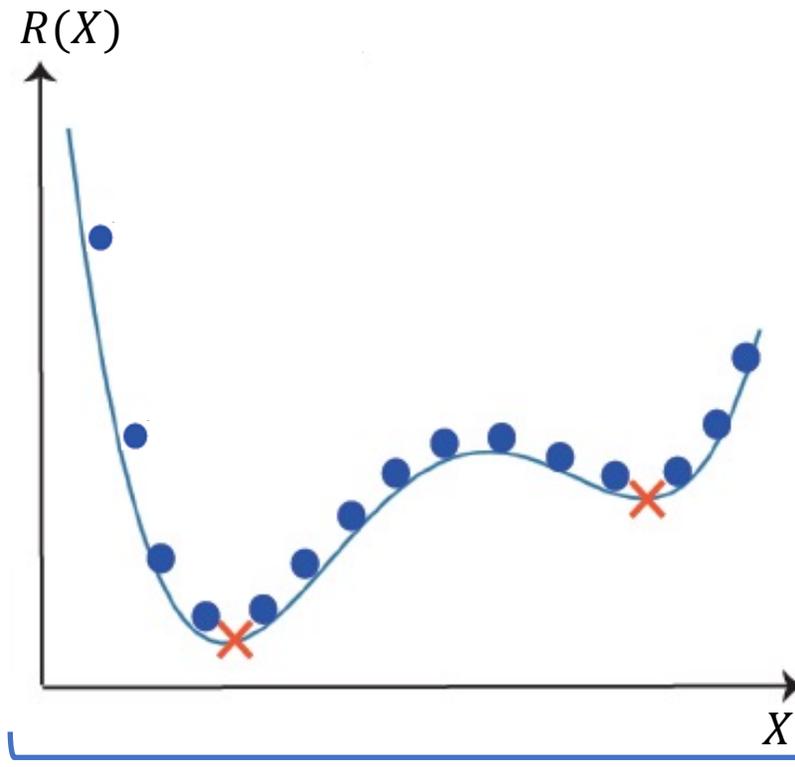
(a) 最適化

- ・ 局所更新
- ・ ベイズ最適化



目標: 最適点

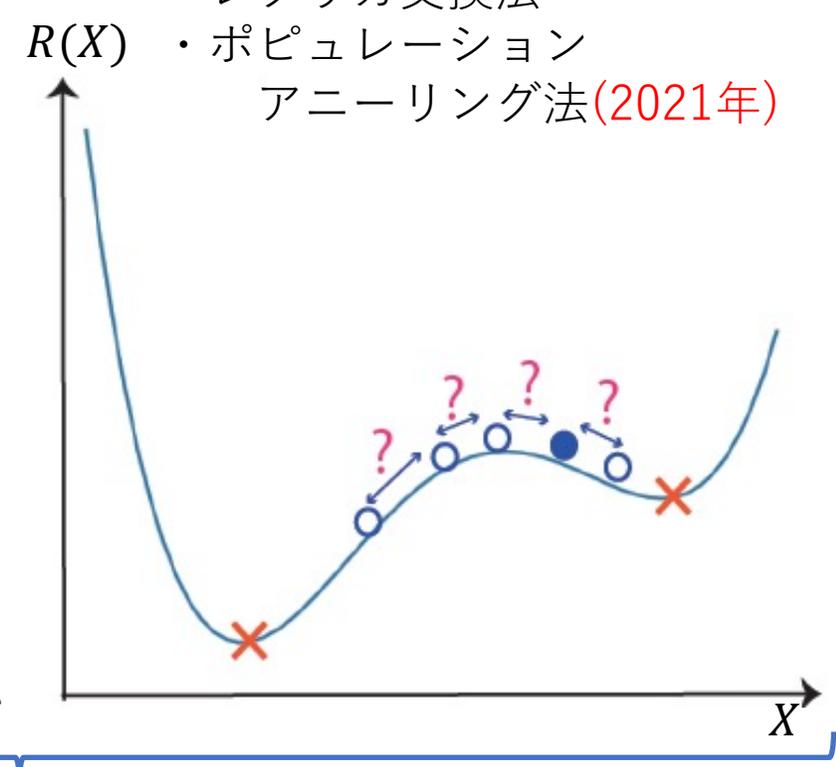
(b) グリッド型探索
(「絨毯爆撃」型)



目標: 最適点, 及び, 領域情報

(c) 並列化モンテカルロ法
(確率的サンプリング)

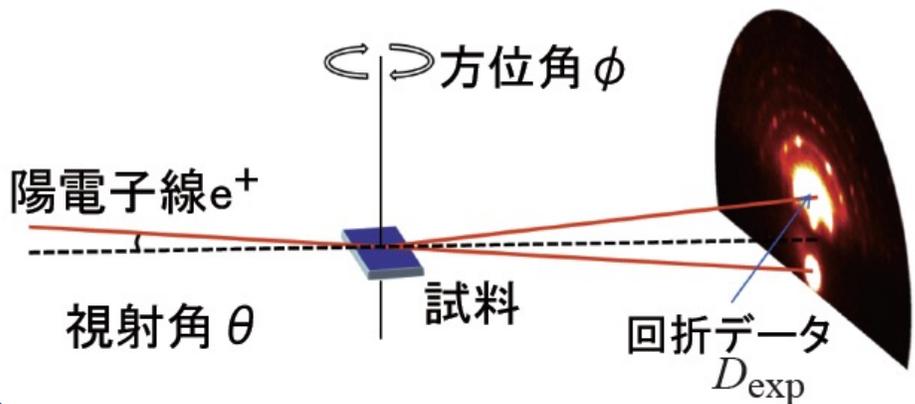
- ・ レプリカ交換法
- ・ ポピュレーション
アニーリング法(2021年)



実問題への応用例

全反射高速陽電子回折(TRHEPD)を用いた解析例(Hoshi, *et al*, <https://arxiv.org/abs/2103.04875>)
 $\text{Si}_4\text{O}_5\text{N}_3/6\text{H-SiC}$ (0001)- $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})\text{R}30^\circ$ (SiON/SiC系)

測定(@KEK物構研陽電子施設)

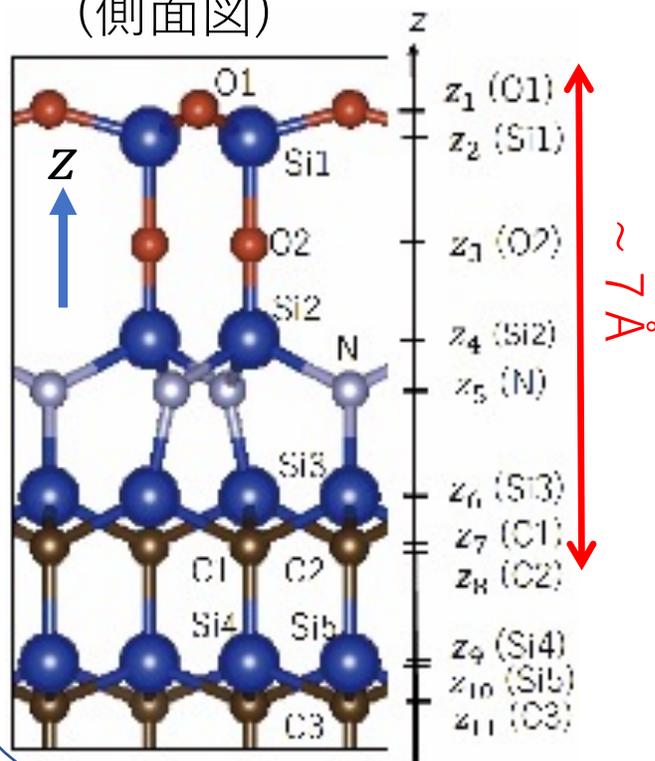


探索型逆問題解析

残差関数：

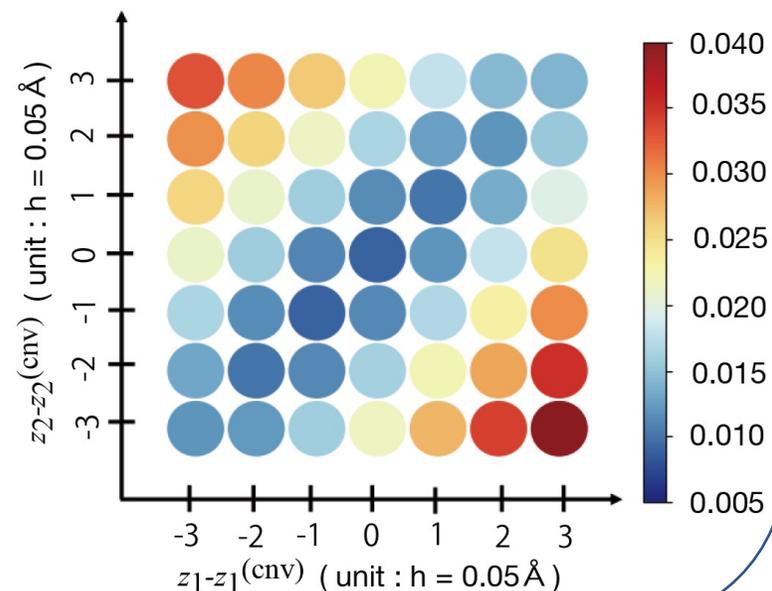
$$R(X) \equiv |D_{\text{cal}}(X) - D_{\text{exp}}|$$

表面構造X
(側面図)



異方的感度：

(分散共分散行列対角化を用いて、特徴的2次元データ空間を抽出、残差関数 $R(X)$ をプロット)



テスト関数の実装: アルゴリズム評価用

現状では4種関数: 多次元2次形式, Rosenbrock関数, Ackley 関数, Himmelblau 関数

例: Himmelblau関数 4つのミニマム ($f(x,y)=0$) を持つ関数.

$$f(x, y) = (x^2 + y - 11)^2 + (x + y^2 - 7)^2$$

図1 Himmelblau関数の等高線図

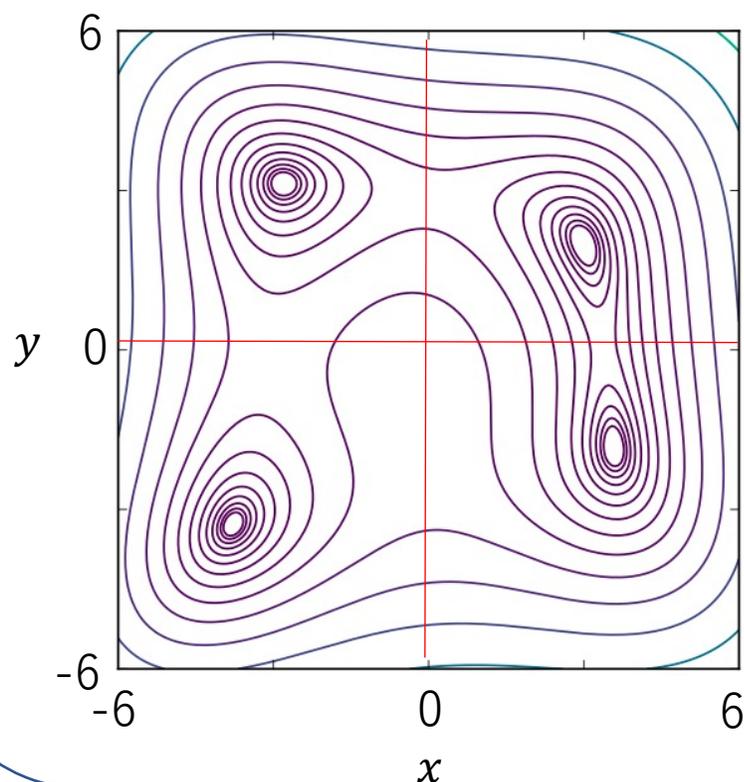
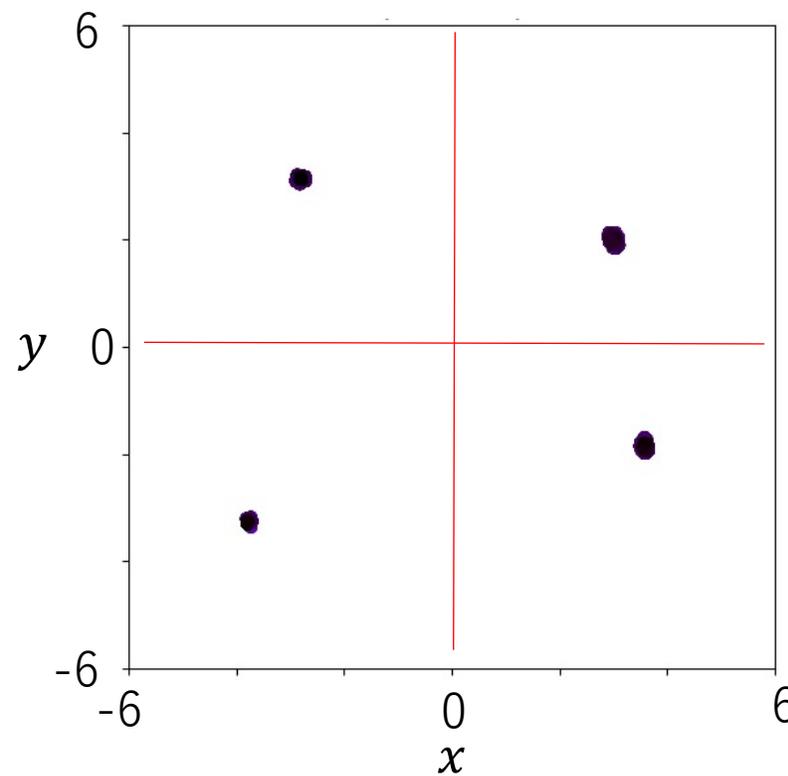


図2 解析結果: 4つのミニマムを全て検出.
(手法: レプリカ交換モンテカルロ法)



まとめと展望

目標

- スパコン(超並列計算)を前提とした, 高速・高信頼な汎用測定データ解析ソフト
- ソフトウェアは, 実験系研究者が利用することを, 前提.
- リアルタイム解析による, 物質開発サイクルの劇的加速

現状

- 2019年度 プロトタイプ開発.
全反射高速陽電子回折(TRHEPD)での応用研究
- 2021年3月「2DMAT」v.1

5種 解析 手法

- (1) 局所更新(Nelder-Mead法),
- (2) グリッド型探索,
- (3) ベイズ最適化,
- (4) レプリカ交換法,
- (5) ポピュレーションアニーリング(2021年度) (他にシミュレーション連携)

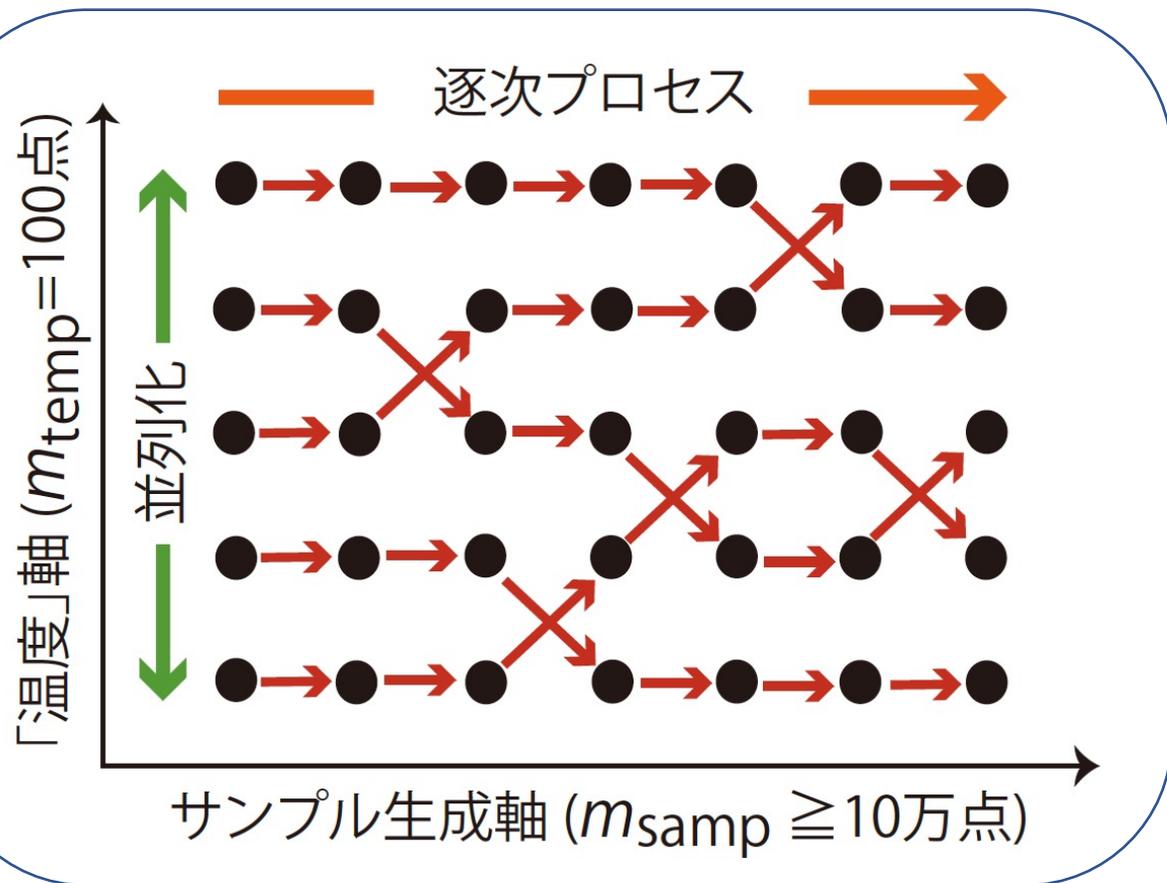
展望

対象実験の拡大(2021年度)

→表面エックス線回折(SXRD) 低速電子回折(LEED), 低速陽電子回折(LEPD)
さらに別な実験も? (サーベイ中, 応相談)

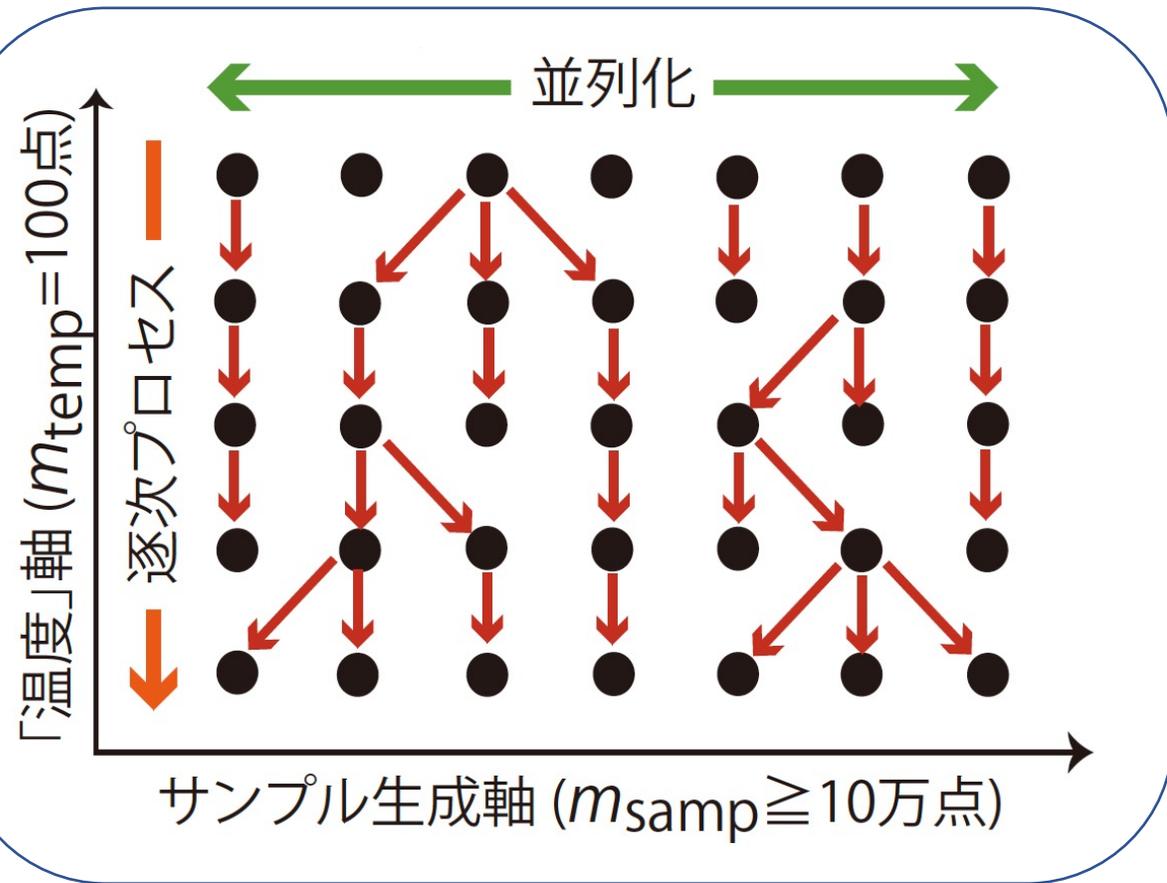
2種並列モンテカルロ法の比較

(a) レプリカ交換 [1]
低い最大並列度数 (~ 100)



[1] 福島ら, J. Phys. Soc. Jpn., 65, 1604 (1996).

(b) ポピュレーションアニーリング [2]
高い最大並列度数 (≥ 10 万)



[2] 福島ら, AIP Conf. Proc. 690, 200 (2003).