

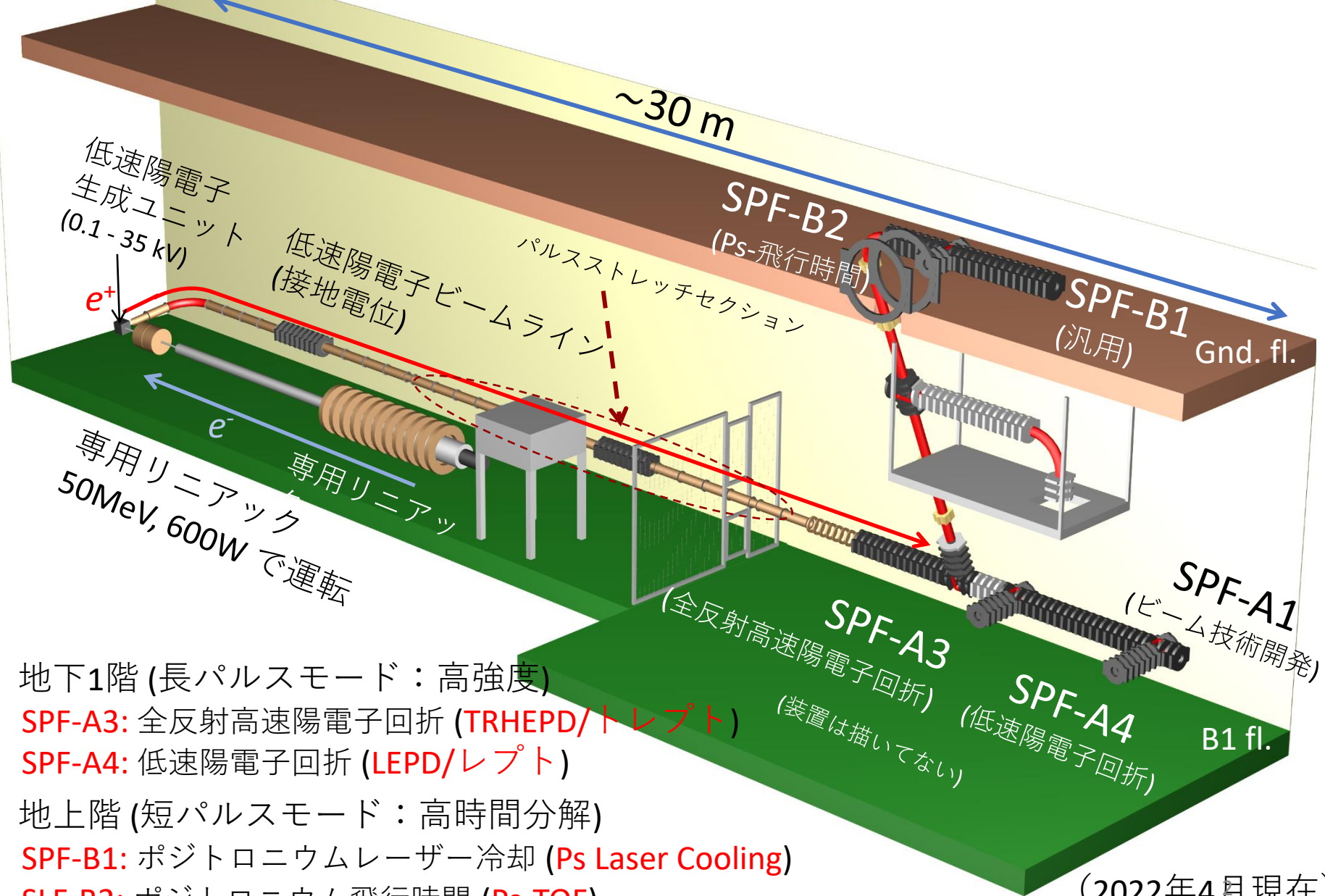
2022/4/26(Tue)13:35-13:50
@ CCMS Webハンズオン: 2DMAT講習会 (オンライン)

KEK物構研 低速陽電子実験施設 での2DMATの利用

望月出海

KEK物構研低速陽電子実験施設(SPF)

低速陽電子実験施設(Slow Positron Facility, SPF)



- 地下1階 (長パルスモード：高強度)
 - SPF-A3: 全反射高速陽電子回折 (TRHEPD/トレプト)
 - SPF-A4: 低速陽電子回折 (LEPD/レプト)
- 地上階 (短パルスモード：高時間分解)
 - SPF-B1: ポジトロニウムレーザー冷却 (Ps Laser Cooling)
 - SPF-B2: ポジトロニウム飛行時間 (Ps-TOF)

(2022年4月現在)

SPF共同利用実験

2022年度第1期(5-7月期)時間配分カレンダー

2022年度 低速陽電子 第1期スケジュール 配分(2021/7承認済)

Date	Sun 5/1	Mon 5/2	Tue 5/3	Wed 5/4	Thu 5/5	Fri 5/6	Sat 5/7	Sun 5/8	Mon 5/9	Tue 5/10	Wed 5/11	Thu 5/12	Fri 5/13	Sat 5/14
Linac	E													
PF	T/M													
SPF	T/M													

Date	Sun 5/15	Mon 5/16	Tue 5/17	Wed 5/18	Thu 5/19	Fri 5/20	Sat 5/21	Sun 5/22	Mon 5/23	Tue 5/24	Wed 5/25	Thu 5/26	Fri 5/27	Sat 5/28
Linac	E													
PF	E													
SPF	2021T002辻川(TRHEPD,B1F)													

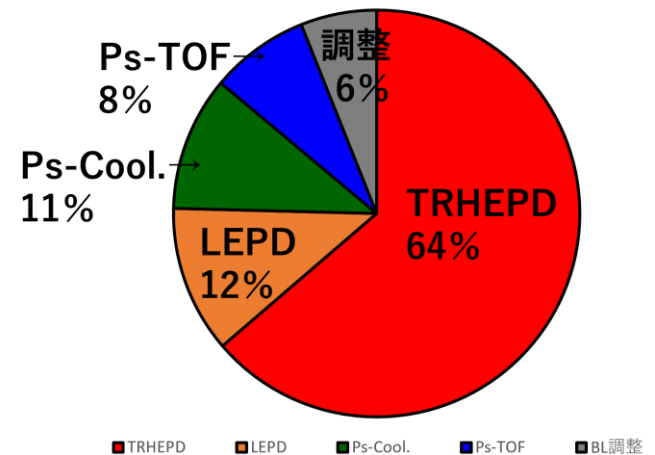
Date	Sun 5/29	Mon 5/30	Tue 5/31	Wed 6/1	Thu 6/2	Fri 6/3	Sat 6/4	Sun 6/5	Mon 6/6	Tue 6/7	Wed 6/8	Thu 6/9	Fri 6/10	Sat 6/11
Linac	E													
PF	E													
SPF	2021G077前島(TRHEPD,B1F)													

Date	Sun 6/12	Mon 6/13	Tue 6/14	Wed 6/15	Thu 6/16	Fri 6/17	Sat 6/18	Sun 6/19	Mon 6/20	Tue 6/21	Wed 6/22	Thu 6/23	Fri 6/24	Sat 6/25
Linac	E													
PF	E													
SPF	2022G087石田(PsCOOL,1F)													

Date	Sun 6/26	Mon 6/27	Tue 6/28	Wed 6/29	Thu 6/30	Fri 7/1	Sat 7/2	Sun 7/3	Mon 7/4	Tue 7/5	Wed 7/6	Thu 7/7	Fri 7/8	Sat 7/9
Linac	E													
PF	HB													
SPF	2021G064塚谷(TRHEPD,B1F)													

凡例 T:立上げ M:マシンスタディー B:ボーンテス(入射器) E:ユーザー実験 HB:ハイブリッド・ユーザー実験 MA:保守 入射器保守:ビーム調整

2021年度全体
17課題 3992時間



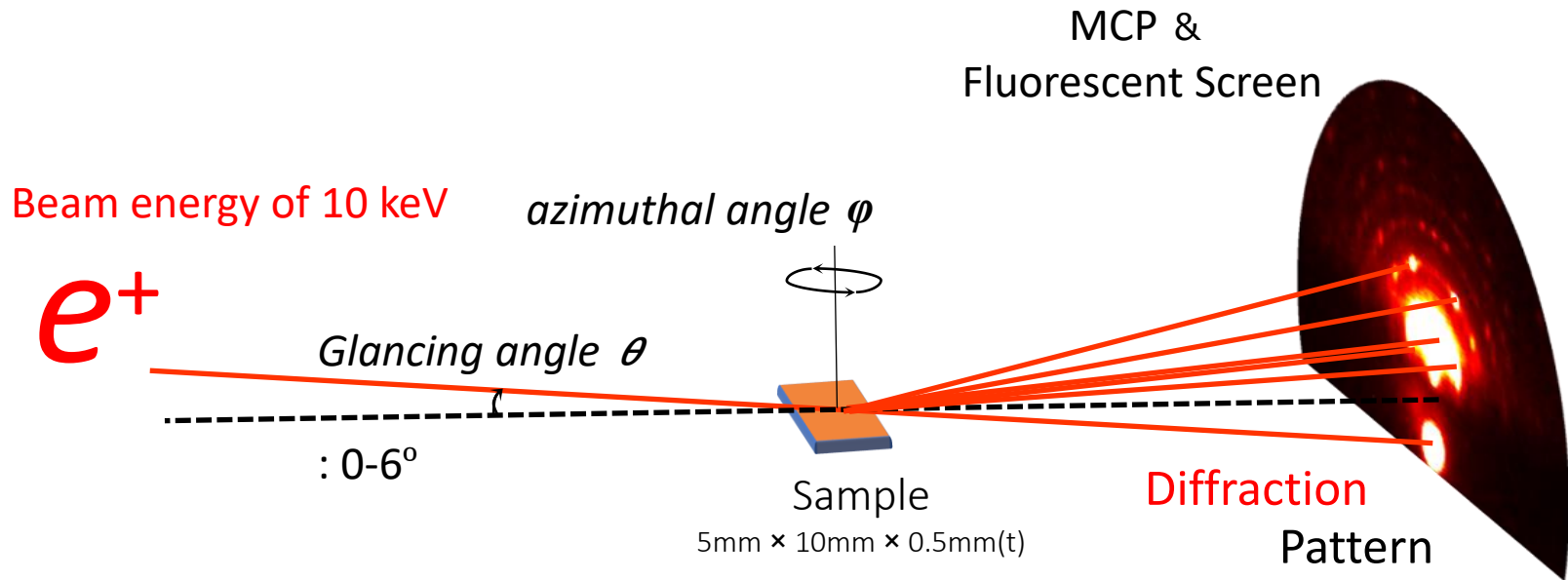
- SPF共同利用実験年間利用者数 : 30～40 人
- SPF共同利用実験年間課題数 : 15～20 課題
- 2DMATアクティブユーザー : ～30 人
- 2DMAT潜在ユーザー : 50～60 人

Outline

1. 全反射高速陽電子回折(TRHEPD, トレプト)法
の特徴
2. TRHEPD解析への2DMATの適用
3. 今後の展望

Total-reflection high-energy positron diffraction (TRHEPD)

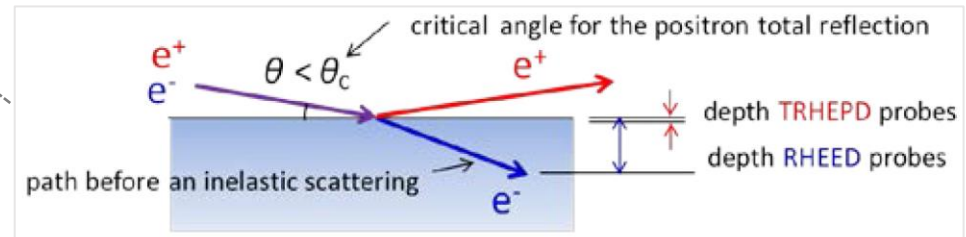
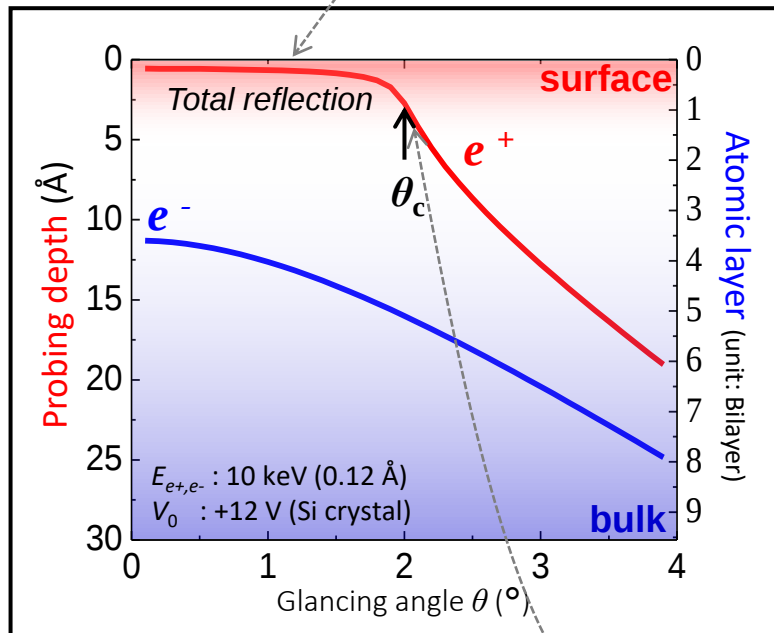
TRHEPD is the **positron** counterpart of RHEED.



The e^+ beam (10 keV) is incident on the sample, with a small glancing angle ϑ . Forward scattered diffraction beams are detected by an MCP & fluorescent screen.

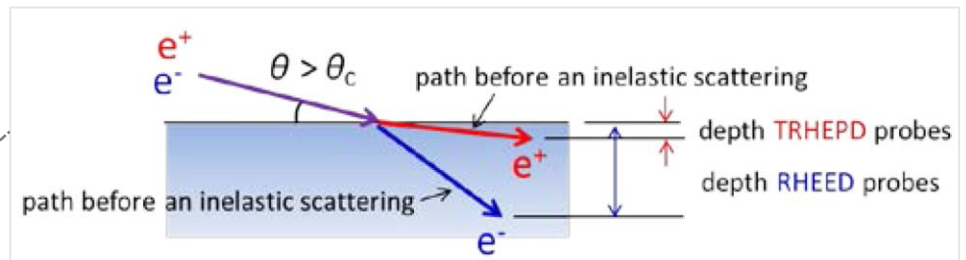
Exceeding surface sensitivity of TRHEPD

Probing depths of e^+ and e^-



For the positron, when the θ is smaller than the θ_c , diffracted beams are only from the topmost surface.

(For the electron, those always include the beams from the deeper region.)



When the θ is over the θ_c , the positrons penetrate, being refracted toward the surface.

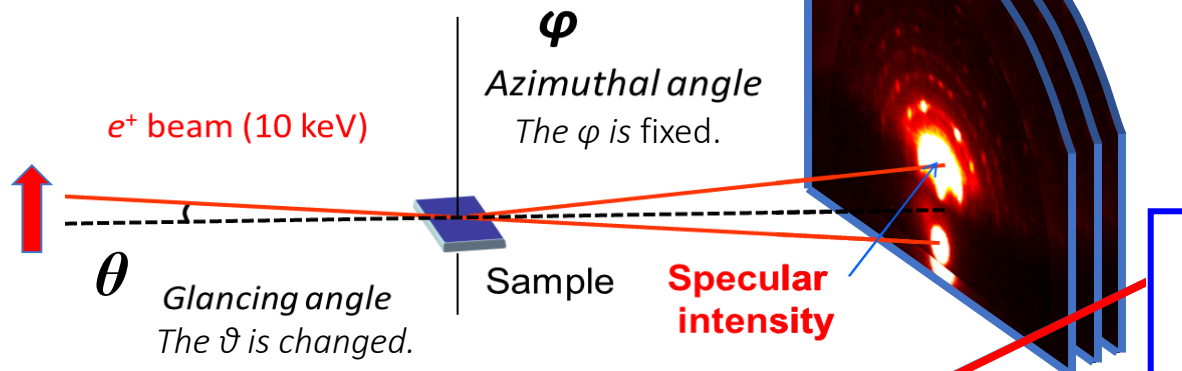
The diffraction intensity depends on the structure of the region determined by the direction of the refracted beam and the mean free path before undergoing an inelastic scattering.

- **The e^+ is the only particle for which the range of the total-reflection overlaps with that of the Bragg condition.**

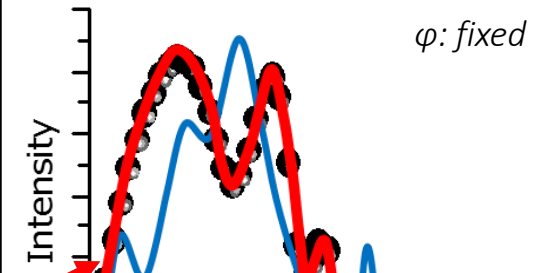
How to analyze

1. Rocking-curve analysis

The intensity of the specular spots is plotted as a function of the ϑ ($0 \sim 6^\circ$) with the φ fixed.



Rocking curve of the specular intensity

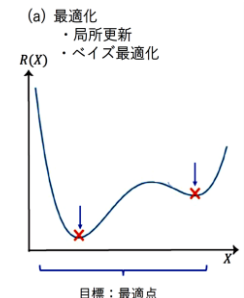


“2DMAT”のアルゴリズム適用

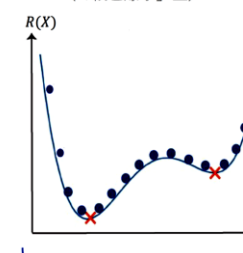
<https://arxiv.org/abs/2204.04484>

局所探索
：最適点を探す

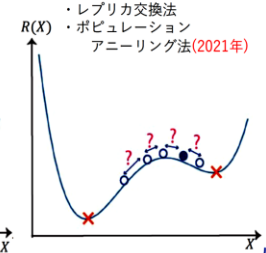
大域探索
：(最適点を探す)
：領域情報を得る



(b) グリッド型探索
 (“絨毯爆撃”型)



(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)

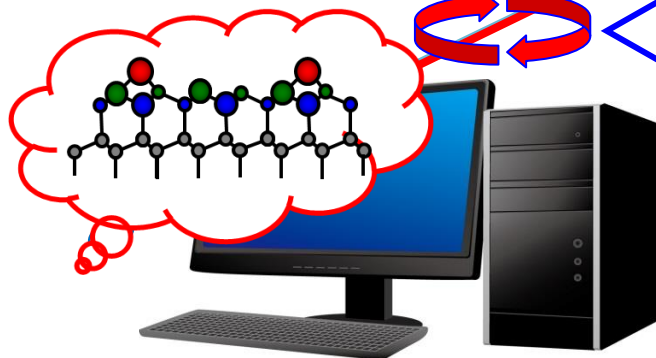


2. Modeling

of surface structure

3. Calculations

based on fully-dynamical diffraction theory



by Sim-TRHEPD-RHEED

4. Fitting

and Comparison

• R-factor

$$R = \sqrt{\sum_i [f(\theta_i) - f_i]^2} \times 100 (\%)$$

※ $\sum_i f(\theta_i) = \sum_i f_i = 1$ $f(\theta_i)$: experiment
 f_i : calculation

→ 表面構造解析の“試行錯誤”に2DMATを適用

● 2DMATフレームワーク

2DMAT (<https://www.pasums.issp.u-tokyo.ac.jp/2dmat/>)

量子ビーム計測

- ・ TRHEPD
- ・ RHEED
- ・ SXRD
- ・ LEED
- ・ LEPD

評価用テスト関数も実装済

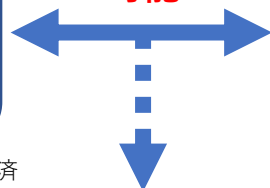
シミュレーション

データ解析法

- (1) 局所探索(Nelder-Mead法)
- (2) ベイズ最適化
- (3) グリッド探索
- (4) レプリカ交換モンテカルロ法
- (5) ポピュレーションアニーリング
モンテカルロ法

(2)-(5)は、並列計算コード(MPI対応)

任意に
組み合わせ
可能

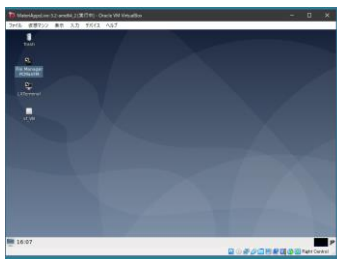


第一原理DFT計算(Quantum Espresso)との連携

● 共通の動作環境 (VirtualBox & MaterApps)



VirtualBox <https://www.virtualbox.org/>



MaterApps

<https://ma.issp.u-tokyo.ac.jp/>



● WEB上マニュアル

2021/09/28 22:05

Welcome to 2DMAT's documentation

Welcome to 2DMAT's documentation!

Contents:

はじめに

2DMATとは

ライセンス

バージョン履歴

主な開発者

py2dmat のインストール

実行環境・必要なパッケージ

ダウンロード・インストール

実行方法

アンインストール

チュートリアル

TRHEPD 離間器ソルバー

Nelder-Mead法による最適化

グリッド探索

ベイズ最適化

レプリカ交換モンテカルロ法による探索

ポピュレーションアニーリングによる探索

入力ファイル

[base] セクション

[solver] セクション

[algorithm] セクション

[runner] セクション

出力ファイル

共通ファイル

探索アルゴリズム

Nelder-Mead 法 minsearch

自明並列探索 mapper

交換モンテカルロ法 exchange

ポピュレーションアニーリングモンテカルロ法 pamc

ベイズ最適化 bayes

離間器ソルバー

analytical ソルバー

sim-trhepd-rheed ソルバー

sxrd ソルバー

関連ツール

py2dmat_neighborlist

tool/to_dft/to_dft.py

(開発者向け)ユーザー定義アルゴリズム・ソルバー

共通事項

Solver の定義

Algorithm の定義

実行方法

謝辞

お問い合わせ

<https://issp-center-dev.github.io/2DMAT/manual/master/ja/index.html>

KEK物構研低速陽電子実験施設での2DMATの利用

Outline

1. 全反射高速陽電子回折(TRHEPD, トレプト)法
の特徴
2. TRHEPD解析への2DMATの適用
3. 今後の展望

①ベイズ事後確率分布 & モンテカルロ法による探索

ベイズの定理・ベイズ推定

ベイズ事後確率分布: $P(X|D)$

$$P(X|D) = \frac{P(D|X) P(X)}{P(D)} \\ \propto P(D|X) P(X)$$

(事後分布) $\propto$ (尤度) $\cdot$ (事前分布)

観測データ D から、状態量 X を推定。

$P(X)$: 状態量 X の確率分布 (事前分布)

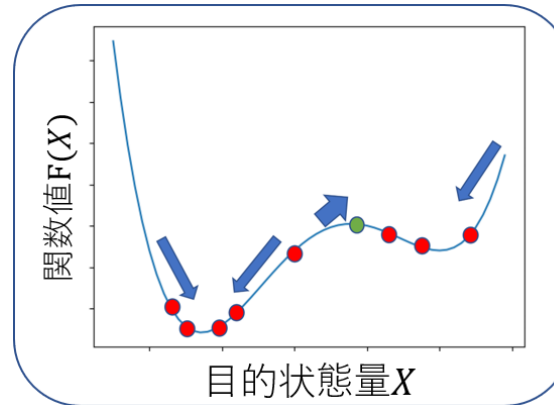
$P(D|X)$: 状態量 X であるとき、
観測データ D である確率 (尤度)

$P(X|D)$: 観測データ D であるとき、
状態量 X である確 (事後分布)

※事前分布 $P(X) = (\text{const})$
(探索範囲内で一様)

尤度 $P(D|X) \propto e^{-F(X)/\tau}$ として計算。

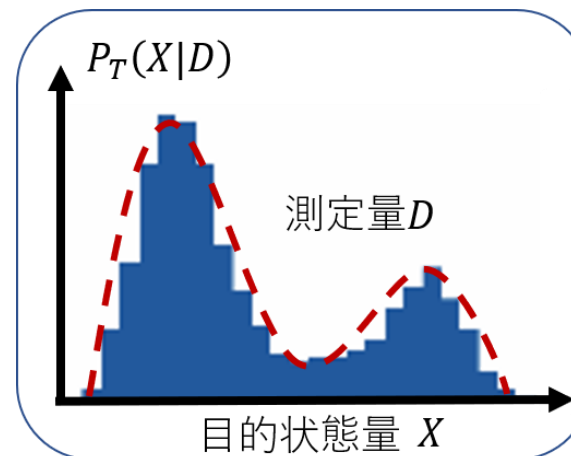
MC(マルコフ連鎖)モンテカルロ法 の概念図



許容不確かさ「 τ 」を
パラメータとし、探索
する系の上をレプリカ
が「酔歩」するように
サンプル点生成。

- ・ 逐次型アルゴリズムでサンプル点を生成。
→ 並列化モンテカルロ法を用いる

ベイズ事後確率分布の模式図



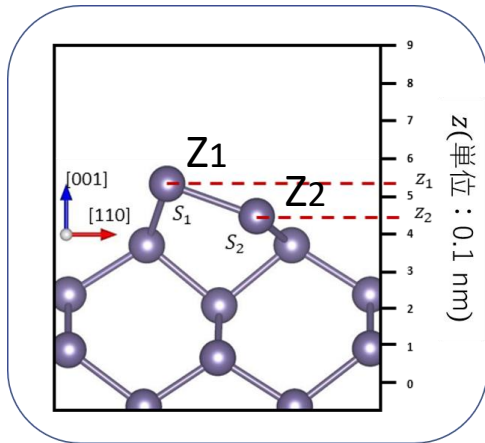
確率分布 $P_T(X|D)$ を
 X 定義域内において
ヒストグラムで取得。

$$P_T(X|D) \propto e^{-F(X)/\tau}$$

①ベイズ事後確率分布 & モンテカルロ法による探索

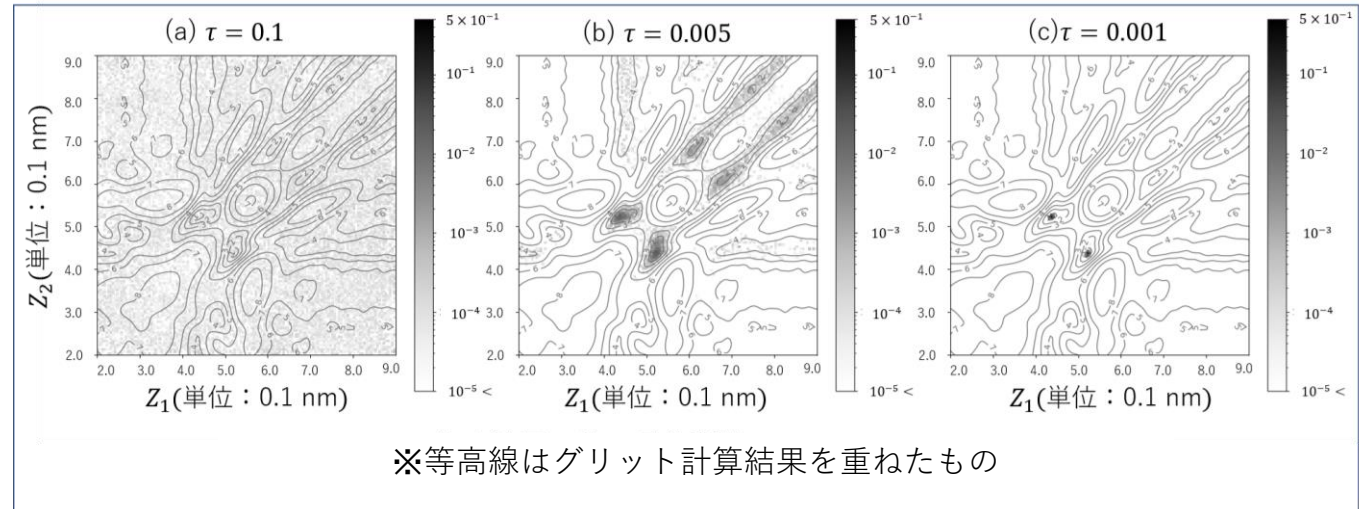
τ 値の取り方で局所解近傍の分布も見れる → 最適な1点を示す最適化とは異なる探索

Ge(001)-c4x2表面



※ One-beam条件
=Z座標のみに感度がある。

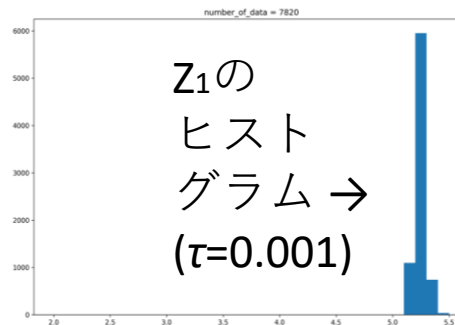
最表面2原子（ダイマー）のZ座標(z_1, z_2)に対するベイズ事後確率分布 $P_\tau(z_1, z_2 | D_{\text{exp}})$



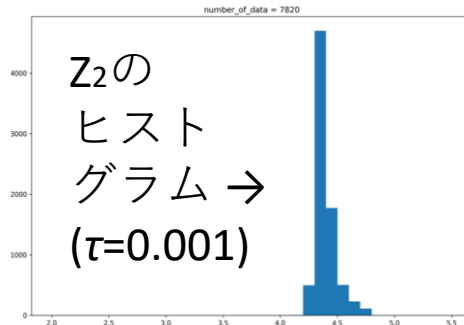
※等高線はグリッド計算結果を重ねたもの

高次元データ解析

- ・ τ によっては
複数ピーク
- ・ 不確かさ(ピーク幅)



Z1の
ヒスト
グラム →
($\tau=0.001$)



Z2の
ヒスト
グラム →
($\tau=0.001$)

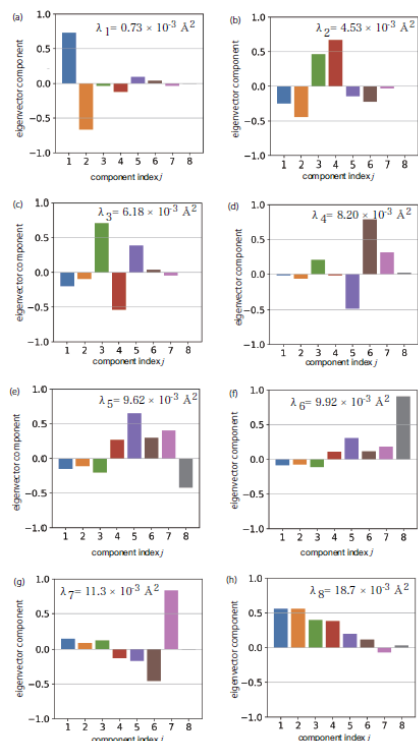
● 統計的に“不確かさ”を正しく扱える。

② 感度解析 (分散共分散行列の固有値解析)

最適点を基準点とした分散共分散行列の固有値解析を行い、構造パラメータが解析結果にどれだけ影響を及ぼすかを定量化

SiON表面の感度解析と決定した原子配置 (側面図)

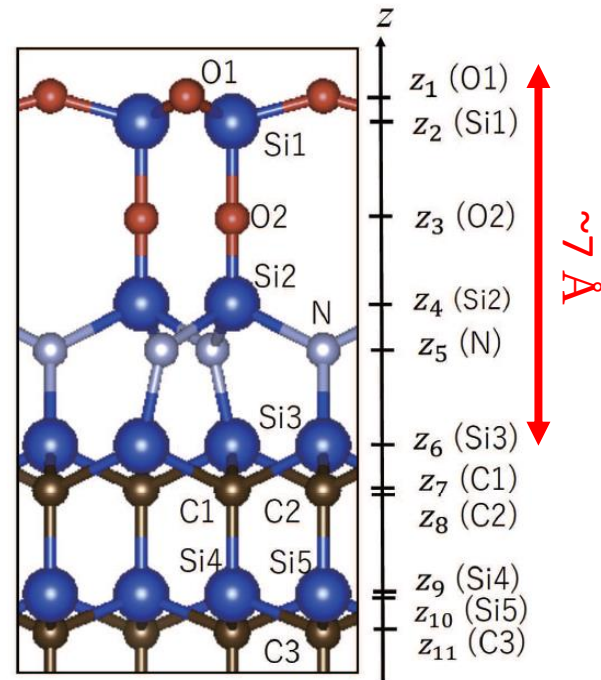
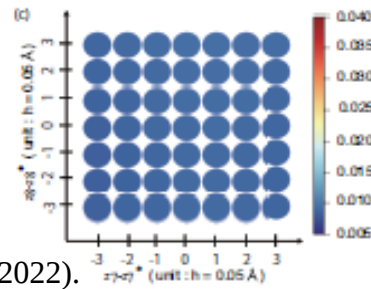
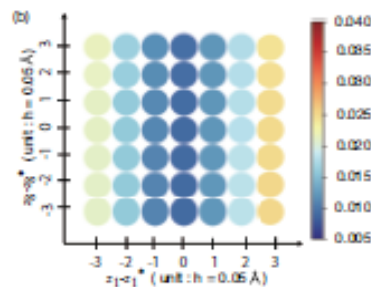
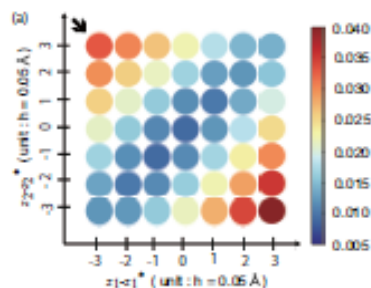
分散共分散行列の各固有ベクトル成分
(不確かさの異方性が表現されている)



“Z₁-Z₂”
plane

“Z₁-Z₈”
plane

“Z₇-Z₈”
plane



この系では、上から6原子層
($\sim 7 \text{ \AA}$) 目までのパラメータに
高感度であると分かった。

T. Hoshi et al., Comput. Phys. Commun. 271, 108186 (2022).

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

● パラメータの選び方やデータ取得の測定条件をあらかじめ割り出せる。

③ 第一原理DFT計算 (Quantum Espresso) との連携

順問題ソルバー“Sim-trhepd-rheed”では、
構造解析から得られた原子配置を、
DFT計算で構造最適化するための座標
データ変換ツールを実装

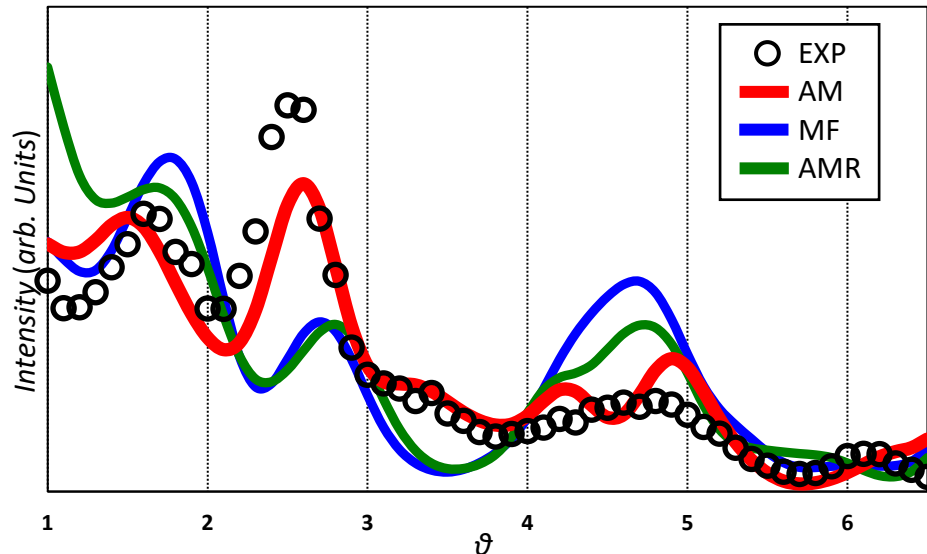
<https://issp-center-dev.github.io/2DMAT/manual/master/ja/tool.html#tool-to-dft-to-dft-py>

“tool/to_dft/to_dft.py”

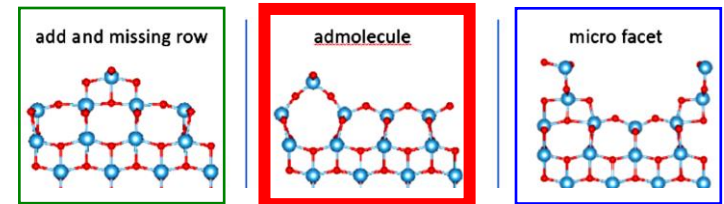
Quantum Espresso

用の入力データを作成

チタニア表面のTRHEPD構造解析の結果



DFT計算による原子配置と
表面エネルギーの比較



構造	LDA [J/m ²]
<u>add and missing row</u>	<u>1.93</u>
<u>admolecule</u>	<u>1.03</u> ← 最安定
<u>micro facet</u>	<u>1.76</u>

● 構造解析の結果を初期値に、DFT計算によるエネルギー最適化。

エネルギー的な安定性も検証し、実験的・理論的に矛盾の無い形で構造決定。

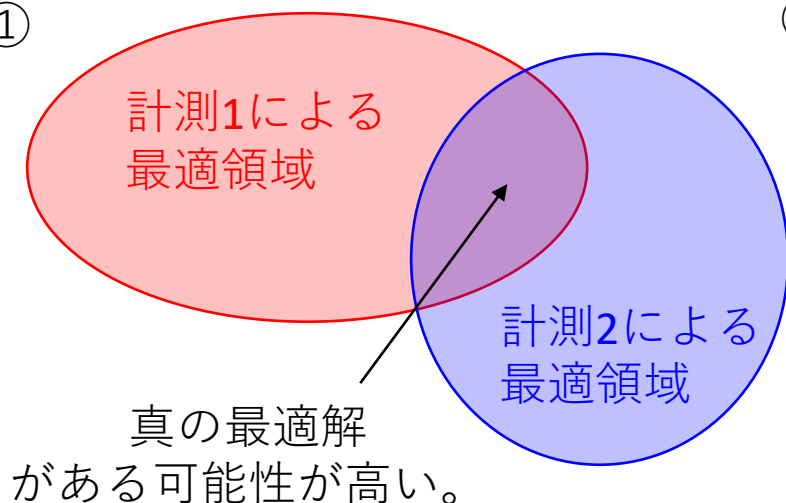
→ 電荷密度分布やバンド分散などもシミュレーションできる。

STMや光電子分光法などの計測も連携可能に。

今後の展望：計測データインフォマティクスの活用

● ①マルチモーダル解析, ②ベイズモデリング, ③フィードバック

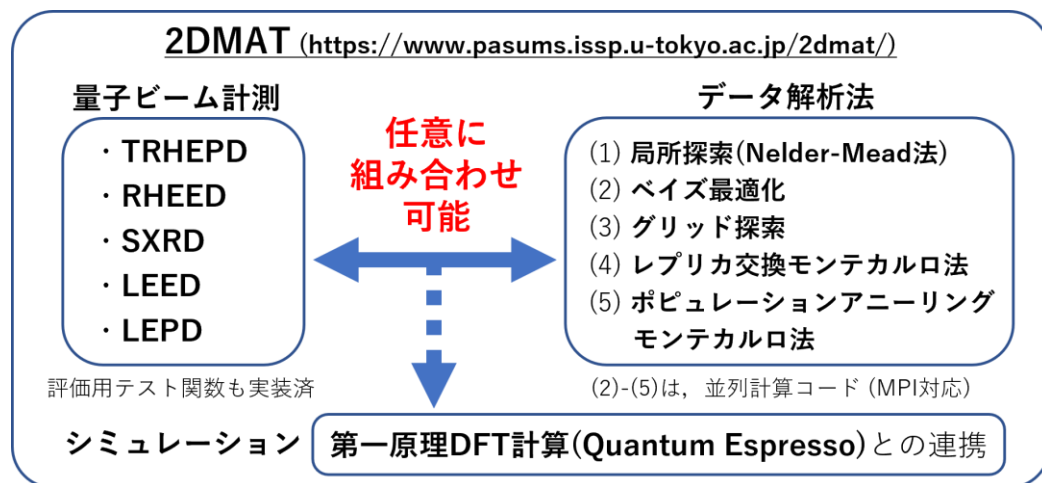
①



② パターソンマップなど他の情報による原子間隔 & 方向などの **constraint**、測定データ自身のばらつき、時間発展、物理シミュレーション(DFT計算)など、各々の数理モデルを構築して事前確率に取り込む。

例：状態量が時間について連続的であることを、“バネ”的な1次元相関構造として $P(X)$ に取り込む。

例：特定2原子が近すぎる構造はエネルギーが高く、実現する可能性が低いとして $P(X)$ に取り込む。



③ 感度解析やDFT計算などから得られた情報をフィードバックして、測定条件や解析手法を再検討し、より感度や精度の高い、効率的なデータ取得を行う。(リアルタイム化?)