

「Improved model potential free 法プログラムのマニュアル」

関連論文 : Ken-ichi Amano, Ryosuke Sawazumi, Hiroshi Imamura, Tomonari Sumi, Kota Hashimoto, Kazuhiro Fukami, Haru Kitaoka, Naoya Nishi, and Tetsuo Sakka, “An Improved Model-potential-free Analysis of the Structure Factor Obtained from a Small-Angle Scattering: Acquisitions of the Pair Distribution Function and the Pair Potential”, *Chemistry Letters*, **49**, 1017-1021 (2020).

概要 : Improved model potential free(IMPF)法の使い方を説明する。使い方の概要は、まず必要なインプットファイル(SAXS_NM と Sq)をそろえて、シェルスクリプト im1.sh を走らせ、その計算が終わったのちに im2.sh を走らせる。これにより、(a) pot-u_all_range_super_ave、(b) h-out_all_range_super_ave、(c) hcal_all_range_super_ave が算出される。(a)は粒子間の二体ポテンシャル $\langle\langle u_{\text{cal}}(r) \rangle\rangle$ 、(b) は粒子間の全相関関数 $\langle\langle h_{\text{cal}}(r) \rangle\rangle$ 、(c)は高波数側も補外された全相関関数 $\langle\langle h_{\text{cal}}(q) \rangle\rangle$ に相当する。ちなみに、 $\langle\langle g_{\text{cal}}(r) \rangle\rangle = \langle\langle h_{\text{cal}}(r) \rangle\rangle + 1$ の関係が成り立つ ($\langle\langle g_{\text{cal}}(r) \rangle\rangle$ は二体分布関数とか規格化された密度分布とか、動径分布関数とか言われる)。

補足 : このプログラムは、Fortran で書いた。Fortran プログラムのコンパイルには、ifort を利用する。シェルスクリプトは Linux のコマンドで書いた。

手順等の説明 :

①構造因子インプットファイル Sq の準備について

基本的に SAXS_NM.f で IMPF 法を行うが、事前に構造因子インプットファイル Sq を用意する必要がある。実験データからこれを準備する方法を下記に説明する。

まず、Mathematica プログラム「Sq fitting with AICc.nb」を開く。これに実験データから得た生の構造因子を読み込ませる（構造因子の生データは例えば「Sq-Mathematica.dat」等のメモ帳にでも書いておけば良い）。で、多項式を用いたスムーズなフィッティングにより、構造因子の生データを Fortran 形式で数式表示させる。また、構造因子の生データの超低波数側で、別の多項式を用いてフィッティングしたい時は、Mathematica プログラム「Sq fitting with AICc lowq.nb」を開く。これに実験データから得た生の構造因子を読み込ませる（構造因子の生データは例えば「Sq-Mathematica-lowq.dat」等のメモ帳にでも書いておけば良い）。で、先ほどと同じく多項式を用いたスムーズなフィッティングにより、構造因子の生データを Fortran 形式で数式表示させる。

次に、先ほどのフィッティングで得られてた数式を exp_Sq_inp.f の該当箇所に書き込

む。インプットファイル Exp_Sq_inp にパラメーターを書き込む。そして、exp_Sq_inp.f から Sq ファイルを算出する。この時、求まる Sq は、直径 ds に関係なく、「形状」は全く同じである。異なるのは、プロット間隔のみである。つまり、異なる 2 つの ds を代入して得られる Sq らは、どちらも全く同じフィッティング曲線上に乗るものである。しかし、プロット間隔だけ異なる。プロット間隔は、今後の SAXS_NM.f におけるプロット間隔と同じにしておく必要がある。

①インプットファイル SAXS_NM について

SAXS_NM は SAXS_NM.f に直接インプットするファイルです

SAXS_NM を開く

1 行目 : 0.38197 → バルク数密度×(粒子の直径)³ [バルク数密度(個/m³)・粒子の直径(m)]

2 行目 : 10.0 → 粒子の直径(nm) およその直径で OK

3 行目 : 0.010 → 粒子の直径を 1 として無次元化されたメッシュ幅

4 行目 1 列目と 2 列目 : 1.d-6 0.10 → 収束判定値 【(例)1.d-5~1.d-9】、混合パラメーター 【(例)0.05~1.0】

5 行目 : 1 → クロージャーの種類(HNC=1, PY=2, VM=3, VCGM=4, KH=5) 通常は HNC を推奨。粒子が剛体ポテンシャルチックな時とクラスター相を形成してそうな時は PY を推奨。残りは無視で OK。

```
read(5,*)rho      ! (Number Density)*ds^3 0.6494
read(5,*)ds(nm)
read(5,*)dx
read(5,*)w,xx
read(5,*)HNC PY ! HNC=1, PY=2, VM=3, VCGM=4, KH=5
```

②プログラムファイル SAXS_NM.f について

49 行目 nump=9 シェルスクリプトで操作するので 9 のままにしておく。ただし、以下で説明するシェルスクリプト im1.sh において、例えば ista=16 と設定した場合は、nump=15 と書き換える。

66 行目 cjv2 アメーバの最大値と最小値の差に関する判定値 【(例)1.d-5~1.d-8】

68 行目 cjv3 極小位置における判定値 【(例)1.d-3~1.d-5】

70 行目 nx メッシュの数 FFT を使うので 2ⁿ である必要がある 【(例)1024,2048,4096】

76 行目 endp スパースモデリングの最遠方の点の位置 【(例)5~10】

77 行目 wpm スパースモデリングの最近接の点の位置 【(例)0.7~1.0】

78 行目 `ampran` スパースモデリングで作った二体ポテンシャルをランダムに微小変化させるパラメーター 【(例)0.01~0.2】

③インプットファイル `Sq` について

実験由来の構造因子を入れておくファイル

1 列目 nm^{-1}

2 列目 構造因子

`Sq` の 1 列目の幅(Δq)は $\pi/(n_x * dx * ds)$ とする

1 行目は Δq と $S(\Delta q)$

2 行目は $2\Delta q$ と $S(2\Delta q)$

3 行目は $3\Delta q$ と $S(3\Delta q)$

・
・
・

という順番で書く。ちなみに、記入する行数は任意である。ただし、ある程度高波数側まで記入しないと計算はできない。目安として構造因子中の上に凸のピークが 2 個以上あれば良い。ちなみに、天野であれば `Sq` は、実験由来の構造因子（プロットデータ）を、 n 次関数等でフィッティングし、プロットデータを関数化してから `Sq` を記入する。フィッティングの次数 n は AICc (赤池情報量基準コレクティッド) で決める。これは `Mathematica` や `Matlab` 等で可能である。

④シェルスクリプト `im1.sh` について

`SAXS_NM.f` の並列計算用のシェルスクリプト。

スパースモデリングで用意した点の数が 10, 11, 12, 13, 14, 15 だった場合、このシェルスクリプトによって勝手に作成されるフォルダーは 6 個となる。複数のフォルダーが用意され、各フォルダーで計算が実行される。

1 行目 `ista` スパースモデリングで利用する最小のポイント数を記入

2 行目 `iend` スパースモデリングで利用する最大のポイント数を記入

`im1.sh` により IMPF において中心となる計算が一斉に行われる。しかし、とあるフォルダーにおいて計算が実行されていない場合もある。よって、`im1.sh` を実行後は、各フォルダーで

生まれている log というファイルを確認し、計算が進行中か linux の more もしくは less コマンドで確認する事 (計算中のため書き込み中かもしれないので vi エディターで開かない方が良い)。もしくは、top コマンドで確認する事。

⑤シェルスクリプト **im1_quit.sh** について

このシェルスクリプトでは im1.sh で走らせた計算をすべてストップすることができる。ストップさせる必要が無いなら利用しなくても良い。

1 行目 ista スパースモデリングで利用する最小のポイント数を記入
2 行目 iend スパースモデリングで利用する最大のポイント数を記入

⑥シェルスクリプト **im2.sh** について

im1.sh の計算結果をまとめて、(a) pot-u_all_range_super_ave、(b) h-out_all_range_super_ave、(c) hcal_all_range_super_ave を得る。(a)は粒子間の二体ポテンシャル $\langle\langle u_{cal}(r) \rangle\rangle$ 、(b) は粒子間の全相関関数 $\langle\langle h_{cal}(r) \rangle\rangle$ 、(c)は高波数側も補外された全相関関数 $\langle\langle h_{cal}(q) \rangle\rangle$ に相当する。

5 行目 nsta アクセプトされた最小のスパースモデリングの点の数を記入
6 行目 nend アクセプトされた最大のスパースモデリングの点の数を記入

(ア): 例えば、ista=10, iend=30 として、im1.sh を走らせたとする。この計算が終われば、各フォルダー (SAXSfolder10~SAXSfolder30)において二体ポテンシャルを表現する点の数がそれぞれ 10 ~ 30 個とした時の解 (pot-u_all_range_ave、h-out_all_range_ave、hcal_all_range_ave) が各フォルダー中に生成される。

(イ): 一般的に点の数が少なすぎると計算が収束しない。よって、i=10 と 11 の時の計算結果は算出されなかった場合は、**nsta=12** とする。つまり、i=12 からの計算結果を im2.sh における計算に利用するという事である。

(ウ): 逆に点の数が多すぎると一般的に q^{-2} law (関連論文の式(7)参照) を満たした計算結果が得られない。 q^{-2} law の判定方法は、各フォルダー (SAXSfolder10~SAXSfolder30) に生成された hcal_all_range_ave(hcal(q)) をグラフ表示ソフト Gnuplot 等で扱い、横軸に波数 q 、縦軸に $hcal(q)*q^2$ とし表示し、高波数側 (インプットデータ Sq に無い波数側) のピークが低波数側 (インプットデータ Sq に書いた波数側) のピークの高さを超えたらアウトとする。参考に関連論文の式(7)下の文章も読むことをおすすめします。以上の確認により、i = 25 以降アウトであれば、**nend = 24** とする。つまり、i = 24 までの計算結果を im2.sh における計算に利用するという事である。

注意事項：

本プログラムは、フリープログラムです。社会に役立つ研究や基礎研究などのためなら自由に利用できます。しかし、軍事研究には利用できません。修正などのサポート、動作保証は一切行ってませんのでご了承ください。本プログラムの著作権は天野健一が保有しています。著作者である天野健一は、本プログラムに起因するいかなるトラブルについて責任を負いません。本プログラムの利用は使用者の自己責任でお願いします。本プログラムの再配布は禁止します。本プログラムの仕様等は予告なく変更される場合があります。