arXiv:2304.03949v1 [cond-mat.str-el] 8 Apr 2023

利用隐式神经表示捕捉动力学关联

Sathya Chitturi,[1, 2, *] Zhurun Ji,[3, 4, †] Alexander N. Petsch,[1, 5, 6, ‡] Cheng Peng,[5] Zhantao Chen,[5] Rajan Plumley,[1, 5, 7] Mike Dunne,[1] S. Mardanya,[8] S. Chowdhury,[8] H. Chen,[9] A. Bansil,[9] A. Feiguin,[9] A. I. Kolesnikov,[10] D. Prabhakaran,[11] S. M. Hayden,[6] Daniel Ratner,[1] Chunjing Jia,[1, 5, 12] Youssef Nashed,[1] 和 Joshua J. Turner[1, 5, §]

[1]*SLAC*国家加速器实验室，美国加利福尼亚州门洛帕克，邮编*94025*[2]材料科学与工程系，斯坦福大学，美国加利福尼亚州斯坦福，邮编*94305*[3]物理与应用物理系，斯坦福大学，美国加利福尼亚州斯坦福，邮编*94305*[4]*Geballe*先进材料实验室，斯坦福大学，美国加利福尼亚州斯坦福，邮编*94305*[5]斯坦福材料与能源科学研究所，斯坦福大学，美国加利福尼亚州斯坦福，邮编*94305*[6]*H.H. Wills*物理实验室，布里斯托大学，英国布里斯托 *BS8 1TL*[7]物理系，卡内基梅隆大学，美国宾夕法尼亚州匹兹堡，邮编*15213*[8]物理与天体物理系，霍华德大学，美国华盛顿州[9]物理系，东北大学，美国波士顿[10]中子散射部，橡树岭国家实验室，美国田纳西州橡树岭，邮编*37831*[11]物理系，牛津大学，克拉伦登实验室，英国牛津 *OX1 3PU*[12]物理系，佛罗里达大学，美国佛罗里达州盖恩斯维尔，邮编*32611*(日期：2023年4月11日)

在研究多体系统的物理性质时，观测和描述固体中的集体激发是一项基础问题。通常，人们通过非弹性中子或X射线散射技术测量动力学结构因子 $S(\mathbf{Q}\ \omega)$，并将其与计算得到的动力学模型进行比较，以分析这些激发。在此，我们提出一种人工智能框架，将经过训练、用于模拟模型哈密顿量所生成数据的神经网络，与自动微分相结合，从实验数据中反演未知参数。我们在一个线性自旋波理论（LSWT）模拟器以及来自方格晶格自旋-1反铁磁体 La_2NiO_4 的先进非弹性中子散射数据上，对这一方法进行了基准测试。结果表明，与解析拟合相比，该模型对未知参数的预测具有极高的一致性。通过这一工作，我们展示了只需构建并训练一次可微模型，之后便可将其实时应用于多维散射数据，而无需人工引导的峰值搜索和拟合算法。这一原型方法有望为该领域带来一种新技术，自动检测并完善用于描述有序量子系统的更先进模型。

引言

量子物质的特点是，微观自旋或电荷排列形成宏观有序，或存在具有自发对称性破缺的相，因此它是凝聚态物理中种类丰富且复杂的一类材料。例如，材料的磁构型及其动力学往往是多种相互作用与晶体对称性协同作用的结果。大多数磁性材料中的集体自旋激发（如自旋波或磁振子）可用来探测这些相互作用。这些信息体现在它们的色散关系和关联中，并具有广泛的潜在应用，包括构建自旋电子器件，以及承载、传输和存储信息 [1–3]。

在过去几十年中，一个重要目标一直是刻画这些激发，而光谱技术（例如中子散射技术 [4–7]）的进步推动了这一目标的实现。这些技术利用散射中子的能量和方向来测量自旋激发的色散关系、寿命和振幅。尽管中子散射能够提供有关材料结构和磁性的重要信息，但中子的可获得性有限，即与其他散射技术相比通量较低、微分截面较小，且解释过程复杂，因此如何有效提高这些实验的效率，已成为一个长期课题 [8, 9]。此外，由于这一物理过程的复杂性、样品的多样性以及理论建模知识的有限性，中子散射数据的解释可能具有挑战性且耗时。在这些障碍面前，需要实验、理论和数据分析之间开展深入且协同的合作，以加快并简化对自旋性质的理解 [10]。

此外，随着数据采集速率的提高，以及采集超高维数据集的能力不断增强，能够在实验过程中轻松进行实时拟合也变得十分重要。进行“即时”拟合 [11]，既能通过判断何时已收集到足够的数据来高效利用昂贵的束流时间，也能结合自适应采样方法，以尽可能少的测量获取有关感兴趣参数的最多信息。目前，对于中子散射数据，实时拟合可能需要大量准备工作——例如，使用名为 SpinW [12]的软件包直接拟合，需要提取系统的本征模，因此需要准确且最好能自动运行的峰提取算法。当倒易空间中选取的路径很多，或色散关系沿这些路径发生显著变化时，这一过程可能需要大量人工指导和监控。此外，直接通过 SpinW 拟合并未考虑磁振子峰的强

度或其形状。直接拟合峰强度和形状的方法，例如在 HO-RACE 中实现的 Multi- 或 Tobyfit [13], 是可行的替代方案；然而，这些拟合过程仍需要大量人工指导，而且要么速度极慢，因而无法适应数据采集速率，要么需要一个解析且可快速计算的自旋波模型。通常，只有对于受挫程度极低或磁性不等价位点数量较少的简单系统，才有可能找到这样的模型。

在这项工作中，我们通过开发一个基于数据驱动的可微神经表示（也称为“代理模型”）的机器学习平台来解决这一问题，这将极大地改变此类实验的开展方式。该方法适用于任何计算动力学结构因子 S(Q ω) 的算法，无论其是否涉及磁性；其中 Q 为散射矢量，ω 为能量转移。该平台基于隐式神经表示理论的最新进展 [14, 15], 。动力学结构因子是许多非弹性 X 射线和中子实验测量的一般函数，并与微分截面相关，其关系为 $d^2\sigma d\Omega dEf = k f /k_i S(Q\ \omega)$，其中 k_i 和 k^f 分别为入射和出射波矢。这里，动力学结构因子近似表示为 S(Q $\omega \propto \sum_{m\,n} \int$ $^{-i\mathbf{Q}\cdot(\mathbf{r}_m -}$ $^{-i\omega t}\langle$ $_m$ —— $_n$ 0 $\rangle$ $\langle$ $_m$ $_n$ 0 $\rangle$) , dt e rn)e S (t)S ( ) , 其中 S (t)S ( ) 表示不同原子位点 m,n 处的自旋-自旋关联。此处忽略了中子极化因子和磁形状因子。这项工作拓展了近期的一项先前研究；该研究使用机器学习方法，在经过模拟训练数据 S(Q) [16, 17] 训练后计算静态结构因子。

本研究的重点是引入神经隐式表示来建模动力学状态。传统的前馈神经网络在大规模线性自旋波理论（LSWT）模拟上进行训练，也已用于非弹性中子散射数据，以根据数据预测磁性交换类型 [18]。近期，一种循环生成对抗网络方法能够使实验数据看起来像模拟数据，并已作为预处理步骤应用，以进一步帮助预测某一类自旋模型 [19]。我们指出，本研究与这些方法互为补充：我们的重点是在假定的哈密顿量模型中预测连续参数，而不是预测函数形式的离散选择。有关机器学习方法在 X 射线和中子数据中的应用综述，请参阅文献 [10]。

我们的方法提供了一种直接的方式，可以从非弹性中子或共振 X 射线散射数据中预测并快速学习自旋或电荷哈密顿量的参数。对于使用昂贵且先进的计算方法模拟强耦合电子（例如精确对角化（ED） [20], 密度矩阵重整化群（DMRG） [21, 22], 行列式量子蒙特卡洛（DQMC） [23, 24], 和变分蒙特卡洛（VMC） [25,），这种方法的优势将尤其显著。

26].

为进一步展示我们方法的通用性，我们报告了使用基于平均场理论的一系列成本较低的计算结果，即线性自旋波理论（LSWT）框架 [27]。我们基于自旋-1方格海森堡哈密顿量模型，对涵盖大量哈密顿量参数的广阔相空间模拟了大规模 LSWT 谱。我们使用基于图形处理器的机器学习框架，学习如何从散射数据中恢复这些参数；特别是，我们展示了该方法不依赖于实验数据的峰拟合算法。我们在橡树岭国家实验室的散裂中子源上获取的准二维奈尔反铁磁体 La_2镍O_4 的实验飞行时间中子谱学数据 [28] 上测试了我们的方法，并展示了该方法能够几乎直接利用来自中子散射文件的原始数据——**Q** ω 和S(**Q** ω)——返回能够表征所研究系统的哈密顿量参数。此外，我们对实验数据采集进行蒙特卡洛模拟，以展示连续拟合数据的潜力——在数据采集过程中实时进行拟合——从而为判断已从数据中收集到足够信息以结束实验提供指导。

机器学习方法

我们的机器学习框架基于神经隐式表示 [14, 15]。这类模型通常称为坐标网络，因为它们以坐标为输入，通常输出一个标量或一小组标量。例如，在计算成像领域，这些网络学习从像素位置（i，j）到 RGB值的映射。这种表示方式使模型能够在像素值之间进行查询，并通过神经网络经过训练的权重隐式表示图像。我们使用一种 SIREN 坐标网络 [14], ，即采用正弦激活函数的全连接神经网络 [30]；研究表明，它能够准确捕捉图像和场景中的高频特征，在三维形状表示等任务中尤为成功。此外，该映射的梯度和高阶导数可直接计算，并用于求解逆问题 [14, 31–33]。

在此，SIREN 模型作为一种快速且可微的隐式表示，用于描述动力学结构因子在不同模型哈密顿量参数下的超体积。我们在本文中研究的哈密顿量对应于更远邻海森堡模型，通常由式 1 [34, 35] 给出。

$$\mathscr{H} = J \sum_{\langle i,j \rangle} \hat{\mathbf{S}}_i \cdot \hat{\mathbf{S}}_j + J_p \sum_{\langle i,j' \rangle} \hat{\mathbf{S}}_i \cdot \hat{\mathbf{S}}_{j'}, \tag{1}$$

如图1a 所示，J 和 J_p 分别表示正方晶格上的第一近邻和第二近邻海森堡相互作用。因此，对于 Q_x 和 Q_y，采用正方晶格记号，其中 **a**和 **b** 对应连接第一近邻的矢量。

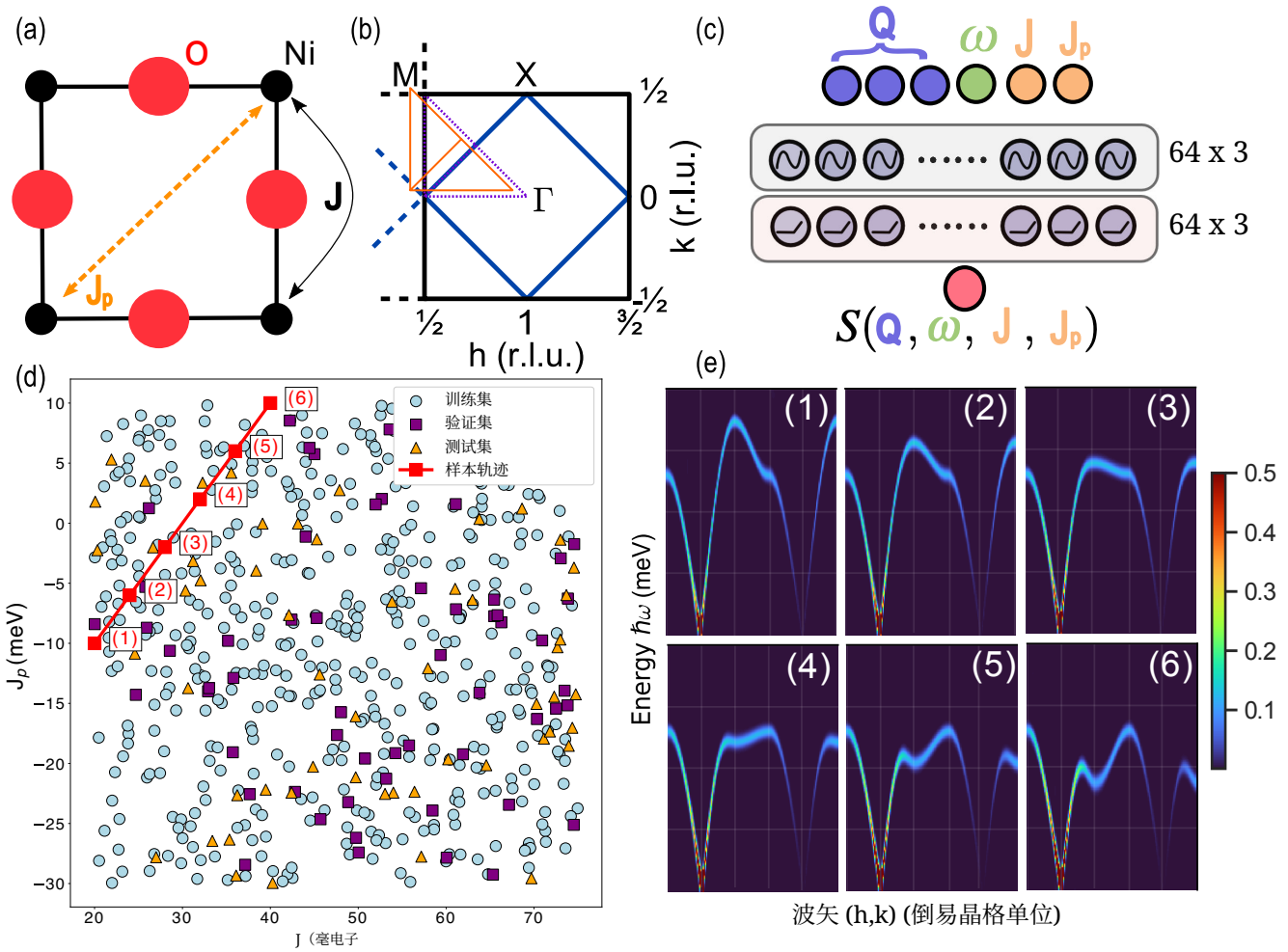

图 1. 机器学习流程、模型哈密顿量和倒易空间路径概览。(a) La_2NiO_4中的 Ni_4O_4 正方晶格 plaquette。J 和J_P 分别表示最近邻和次近邻相互作用。(b) 自旋-1方格晶格磁结构的布里渊区。图中标出了选定的高对称点。两条动量路径分别以紫色线和橙色线表示。(c) 用于预测标量动力学结构因子强度的 SIREN 神经网络示意图。所有节点均采用全连接架构。符号 64×3 和 64×1分别表示由 64 个神经元组成的三层和一层神经网络层。(d) J-J_P 空间中训练、测试和验证数据分布的示意图。(e) SIREN 模型沿 (d) 中绘制的相应轨迹给出的合成$S(\mathbf{Q}\ \omega)$预测。网格线分别对应能量和波矢的 [0, 50, 100, 150, 200]、 [P、M、X、P、 Γ、X]。

具体而言，我们的 SIREN 模型经过训练，用于表示标量函数 $\log(1+S(\mathbf{Q}\ \omega,J,J_P))\in\mathbb{R}^1_+$，它是动力学结构因子在特定 $\mathbf{Q}\in\mathbb{R}^3$ 处（以倒易晶格单位表示的倒易晶格矢量）、$\hbar$(以毫电子伏表示的能量转移）以及 J和 $J_p\in\mathbb{R}^1$ 处（特定哈密顿量耦合参数）的对数变换。该函数映射由公式 2 描述，SIREN 模型 Φ 见图 1c。

$$\Phi(\mathbf{Q},\omega,J,J_p)\rightarrow\log(1+S(\mathbf{Q},\omega,J,J_p)) \qquad (2)$$

我们采用 $\log(1+x)$ 变换，以放大弱信号并避免零附近的病态行为。这里需要指出，原则上，我们的模型是针对三维 Q 编写的；然而，由于散射数据有限，后续章节中的中子谱不包含 Q_z 分量。该模型基于 1,200 个 LSWT 模拟进行训练，这些模拟涵盖 $S(Q_{list},\omega_{list})$，并遍历大量可能的 J、$J_P$ 取值以及倒易空间中的两条路径（图 1b）。这里，Q路径1 和 2 分别表示为 P $\rightarrow$ M $\rightarrow$ X $\rightarrow$P $\rightarrow\Gamma\rightarrow$ X 和 P1 $\rightarrow$M1 $\rightarrow$X1 $\rightarrow$P 1 $\rightarrow\Gamma$1 $\rightarrow$X1，它们分别对应 $Q_{path1}=\{[\frac{3}{4}\ \frac{1}{4}\ 0],[\frac{1}{2}\ \frac{1}{2}\ 0],[\frac{1}{2}\ 0\ 0],[\frac{3}{4}\ \frac{1}{4}\ 0],[1\ 0\ 0],[\frac{1}{2}\ 0\ 0]\}$ 和 $Q_{path2}=[-0.07\ 0.03\ 0]+Q_{path1}$。这里，$Q_{list}\in\mathbb{R}^{N_Q}$ 和 $\mathbb{R}^{N_\omega}$ 是过载记法，分别表示 (Q ω)-空间中的一系列 N_Q 点和 N_ω 点。

一旦可微神经隐式模型训练完成，就可以使用基于梯度的优化来求解确定未知J 和J_P 参-

数的逆问题。我们用于优化任务的目标函数衡量预测值与“真实”r的对数皮尔逊相关系数，比较的是 $S(\mathbf{Q}\ \omega,J,J_P)$ 值（方程 3 ）。我们使用对数来提高数据中较弱特征的权重，并采用相关性作为度量指标，因为实验与模拟之间的归一化因子未知。采用先验是有利的，因为它能提高高 ω 处相干激发的权重，并进一步帮助避开弹性散射和非相干非弹性散射中的统计噪声污染；这类污染主要出现在低 $\hbar\omega$ 处，且无法通过背景扣除去除。这一点很重要，因为我们的目标并非完整描述谱权重；若要做到这一点，就需要在完整的三维$\mathbf{Q}$空间中精确处理每个中子，而不是使用降维后的二维$\mathbf{Q}$空间中的平均权重。优化期间，可以选择任意子集的（$\mathbf{Q}_{\text{list}}$, ω_{list}）坐标，只要这些坐标位于图1b所示的任一路径上即可。这里需要指出，从推断的角度看，可以选择任意动量或能量坐标；然而，我们的训练数据仅包含两条倒易空间路径。为确定哈密顿量参数，J 和J_P 在优化问题中被视为自由参数。方程 3 中的目标函数使用 Adam 优化器 [36], 进行优化。Adam 是一种常用的基于梯度的优化算法，它利用 TensorFlow [37]的自动微分功能计算 $\mathrm{d}L/\mathrm{d}J$ 和 $\mathrm{d}L/\mathrm{d}J_P$。更多详情请参阅方法部分。

$$\mathrm{L} = 1 - r(\log(1+S_{\text{measured}}), \Phi(\mathbf{Q},\omega,J,J_p)) \qquad (3)$$

在我们的方法中，无需使用沿两条$\mathbf{Q}_{\text{list}}$,ω_{list} 路径的所有点集来进行拟合。相反，每次优化迭代中都可以查询随机坐标批次($\mathbf{Q}_{\text{batch}}$, ω_{batch})，以提高计算效率并收敛到更优的极小值，其方式类似于随机梯度下降的正则化效果 [38]。优化过程的伪代码见算法1。

算法 1可微代理优化

当 N <MaxIter **时**
  问$_{\text{batch}}$, ω_{batch}, S_{batch} ∼ [**问**$_{\text{list}}$, ω_{list}, S_{list}]
  $\log(1+S^{\text{pred}}) = \Phi(\mathbf{Q}_{\text{batch}}, \omega_{\text{batch}}, J, J_P)$
  J, J_p ←ADAM(L(S_{batch}, S^{pred}))
结束 while

尽管我们的方法采用了神经网络前向模型和可微优化，但我们注意到，在许多机器学习研究中，默认做法是在模拟数据上训练逆向模型。更具体地说，这类模型以原始数据为输入，直接预测未知参数。在我们的情形中，这将是一个如下形式的模型$S(\mathbf{Q}_{\text{list}}, \omega_{\text{list}}) \rightarrow (J, J_P)$。例如，$S(\mathbf{Q}_{\text{list}}, \omega_{\text{list}})$可以表示为图像，预测任务则可以采用标准的卷积神经网络架构 [39]。这与文献 [18, 19] 中的研究类似，该研究训练逆向模型，以根据实验数据预测自旋模型类别。尽管这类方法通常能在模拟测试数据上取得良好效果，但对实验数据进行推断往往更具挑战性，通常需要详细建模，并通过数据集增强来校正实验效应，同时考虑背景噪声、数据缺失以及仪器轮廓匹配等属性 [40, 41]。具体而言，从逆向建模的角度看，实验数据通常不属于用于训练模型的数据分布。在这种情况下，文献 [19], 最近提出的循环 GAN 等生成式方法，提供了一种优雅的替代方案，可最大限度地减小实验数据与模拟数据之间的偏差。当预测结果为连续值（即回归任务）时，逆向预测流程对数据分布差异的鲁棒性可能更低，因为模型可能需要学习更细微的特征。因此，我们没有选择逆向建模方法，而是采用了 SIREN 神经网络前向模型与可微优化。采用这种方法时，机器学习模型只在分布内进行预测，而实验中的非理想因素则仅在优化步骤中予以考虑。这里我们指出，文献 [19] 中的生成式方法可能有助于增强我们的方法：可直接将“转换后”的实验数据用于损失函数。

结果与讨论

首先，我们使用模拟的 SpinW 数据评估机器学习框架的性能，以证明将神经隐式模型用作 LSWT 模拟器替代方案的可行性。图 2 展示了输入参数为 $J = 45.57$毫电子伏和 $J_p = 2.45$毫电子伏时的线性自旋波理论模拟和机器学习“模拟”。请注意，在此示例中，机器学习框架直接接收了（J，J_P）作为输入（而不是通过神经表示进行梯度下降来获取这些参数）。显然，机器学习预测与线性自旋波理论模拟几乎无法区分，这凸显了神经表示模仿理论计算的能力。

尽管我们的模型能够很好地逼近模拟数据，但此方法的主要目标是提供一种工具，能够从真实实验数据中可靠地提取所关注的自旋哈密顿量参数。因此，在自动扣除背景后，我们将该方法应用于散裂中子源测得的准二维奈尔反铁磁体 La_2NiO_4 的非弹性中子散射数据 [29]。虽然采集了完整的三维数据集，但在纳入真实数据之前，我们选择了 Q 空间中的两条路径来模拟用于模型训练的谱。模型在两条模拟路径上完成训练后，我们采用基于梯度的优化来求解逆问题，即从数据中确定 J 和 J_P 。需要指出的是，两条实验路径的优化是联合进行的，因此两者的拟合参数相同。结果表明，与详细且耗费大量资源的解析拟合结果相比，我们的方法在定性和定量上都取得了出色的预

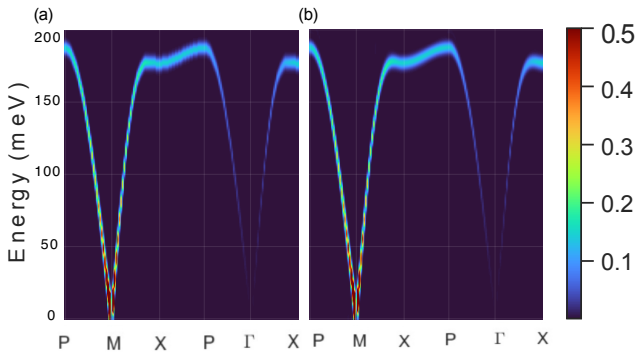

图2. 真实线性自旋波理论（LSWT）模拟及相应机器学习前向模型的可视化。使用 SpinW 软件程序计算的真实模拟 S(**Q**, ω) 示例（a），以及在参数 J = 45.57、J_p = 2 45 . 毫电子伏条件下对应的机器学习前向模型预测（b）。

测结果，如图3a 和 b 所示。取自 Petsch 等人 [28] 的线性自旋波理论（LSWT）极限下的解析参数为 J = 29.00 (8)毫电子伏，且J_p = 1.67(5)毫电子伏。此外，实验数据在低能量处显示出自旋能隙，此处未予考虑。机器学习拟合得到的参数为 J = 29.68毫电子伏，且J_p = 1.70毫电子伏。对 J 的轻微高估是由多种因素造成的。首先，Q 的三维性会带来细微差异，进而导致磁形状因子和极化因子出现变化。分析数据中未包含三维信息，因为数据已在 **Q** 处取平均，因此模拟图像中忽略了这些因素。此外，此处的分辨函数和有限寿命也只是近似处理，而且线性自旋波理论（LSWT）无法描述任何多磁振子散射。最后，为了减少参数数量、使结果更清晰，未考虑实验观测到的由自旋能隙 [28, 42] 引起的能量位移。还需指出，我们也尝试了对每条路径分别进行拟合，并得到了类似的预测；对于路径二而言，这一结果尤为可观，因为实验中缺失了相当一部分数据（见补充信息SI2）。此外，补充信息SI3提供了使用 SpinW 进行算法峰拟合的结果，该方法在此数据集上也得到了类似结果。

此外，由于神经隐式模型的评估成本很低，我们还构建了目标函数相对于 J 和 J_P 的损失景观。我们发现目标函数表现良好，且梯度下降方案得出的拟合结果接近解析结果（图3e）。

在此，我们强调，提供给算法的唯一信息是关于 **(Q ω)** 空间某个区域的知识，以便在拟合数据之前执行自动背景扣除。重要的是，无需进行峰值搜索或提取，因为优化目标使用的是 **(Q ω)** 空间中所有给定体素的强度，或二维强度图上的所有像素的强度，而非磁振子峰位置。

我们预计，实时拟合此类复杂数据的能力可以轻松与自主实验操控代理相结合。例如，神经隐式模型能够提供快速且可扩展的前向计算，从而提供足够的采样，以准确估计分布；这对于贝叶斯实验设计至关重要 [43, 44]。

在真实实验条件下，另一个关键方面是能够迅速判断是否已获得足够的统计数据，以理解所测量的必要物理特性。尤其是，由于中子散射测量的探测器计数率通常较低，这会显著影响设施测量时间的效率。此外，人们希望尽可能缩短所需时间，同时不牺牲数据质量，也不使信息在统计上失去意义，并最终以最高效的方式可靠地分析磁激发。

为检验我们的框架在实验过程中进行实时拟合的有效性，并缩短数据采集时间，我们利用当前实验数据生成适用于低计数情况的可信数据。具体而言，我们对实验数据进行平滑处理，并将其作为概率分布，再通过拒绝采样进行抽样（见方法）。这里需要指出的是，不存在“探测器噪声”，实验中的噪声完全来自数据的背景散射。

在图 4a 中，我们展示了机器学习拟合得到的参数随路径区域内探测到的中子数量的变化。图 4b 还展示了路径1在选定时刻的可视化结果。机器学习预测取自10次独立梯度下降优化中得到的最低目标函数值；这些优化均从哈密顿量参数空间中的随机位置开始。我们还指出，使用预测值的中位数也会得到非常相似的结果。这项测试表明，机器学习模型能够快速收敛到真实解。

从实验角度来看，能够随着数据采集持续进行拟合非常有用。如果还能使用倒易空间中的其他路径，那么只需通过额外的模拟进行训练，无需改变整体机器学习模型或框架即可实现。这是因为该模型被设计为能够通用地接受倒易坐标作为输入。一般而言，拟合这类高维数据与必须针对每条路径运行峰值搜索算法（通常需要人工引导）并不相容。重要的是，这里所述的算法将成为一项宝贵工具，既能加快这类实验的开展，也能使多项实验得以进行。通过这项分析，我们展示了机器学习模型可在实验前完成训练，从而实现实时拟合与决策。

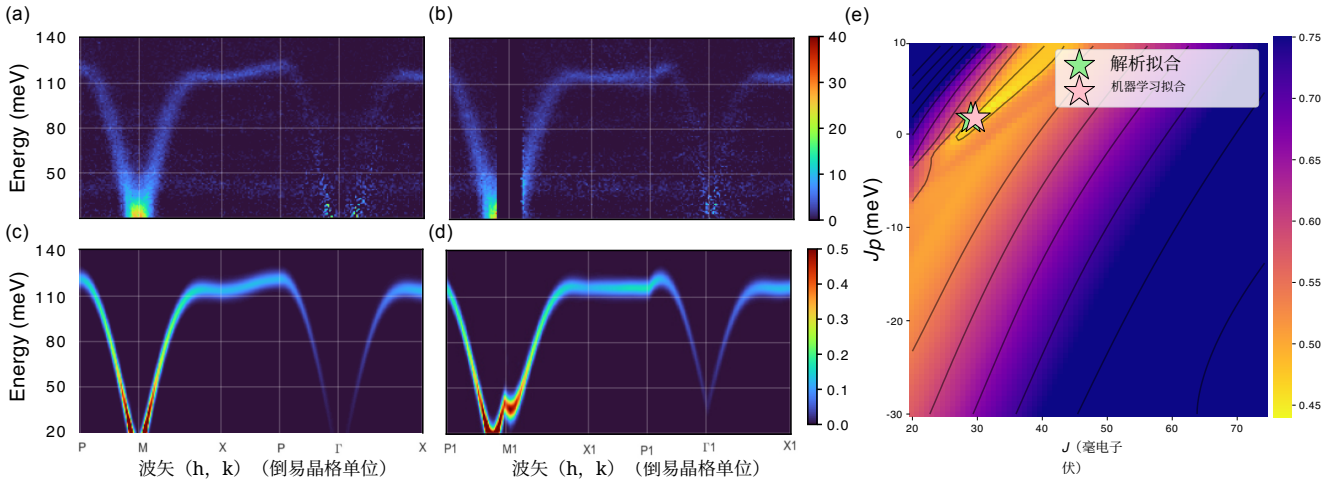

图3. 机器学习前向模型的预测与基于梯度的优化。(a) 和 (b) 显示经过自动背景扣除后的实验数据。色标表示以以下单位计的$S(\mathbf{Q}\ \omega)$：mbarn sr^{-1}毫电子伏$^{-1}$f.u.$^{-1}$。(c) 和 (d) 显示两条路径对应的机器学习预测。预测剖面的视觉表现与实验数据高度吻合。 ω较低时的偏差是由于模型中忽略了各向异性自旋能隙。(e) 哈密顿量参数空间（J，J_P）中目标拟合的损失景观可视化。

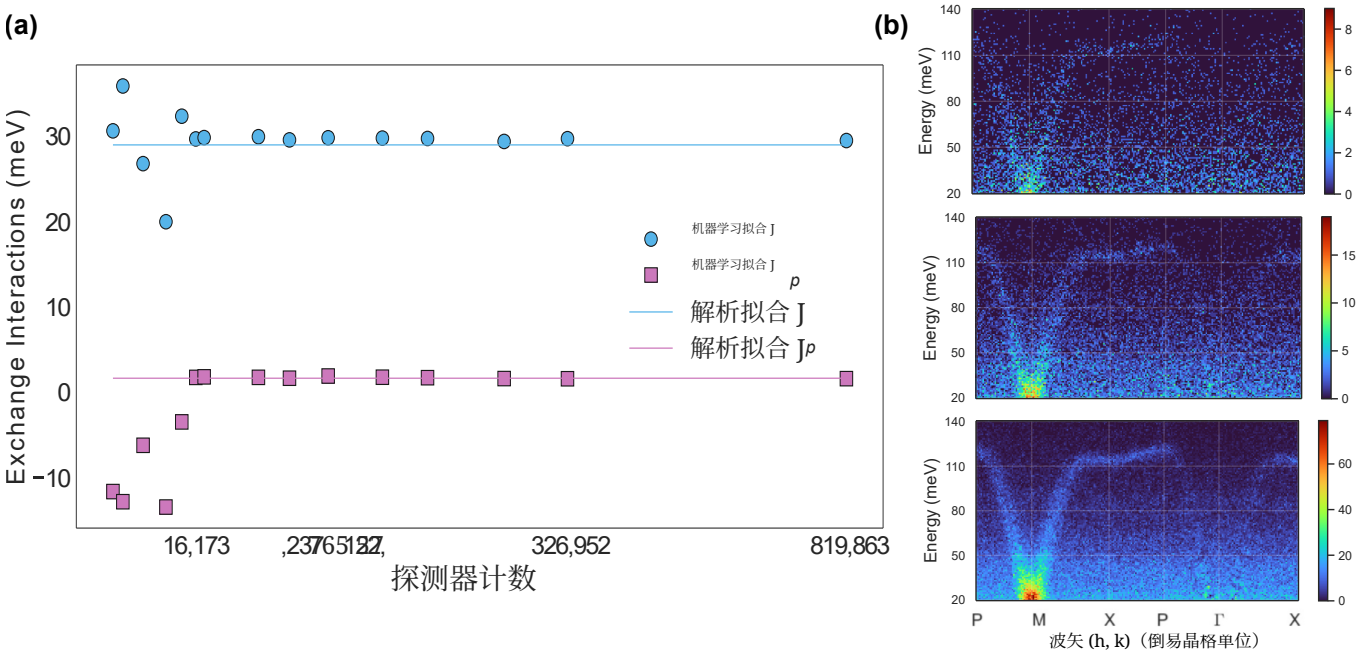

图4. (a) J 和J_P 的机器学习预测随探测器计数的变化；根据泊松统计，对“探测器计数”轴进行平方根缩放。请注意，机器学习预测的收敛时间远早于实验中记录的计数时间。(b) 可能的低计数数据（未进行算法背景扣除）的可视化，总探测器计数分别为：16,173、57,237 和 326,952（从上到下）。

结论

我们开发了一种强大的工具，用于识别描述线性自旋波谱的关键参数。除了线性自旋波理论之外，我们的机器学习算法还可以与基于更复杂、耗时更长的模型相结合，这些模型源自例如，精确对角化和密度矩阵重整化群方法。它突破了实时拟合非弹性中子和X射线散射数据的障碍，无需复杂的峰拟合算法或耗费大量用户精力的后处理，并能够纳入倒易空间中的完整三维数据。此外，能够在实验过程中持续拟合数据，

将有助于确定数据采集的最佳停止时机，并为实验提供指导。这种方法开辟了新的可能性，可显著提升分析有序量子系统中激发散射的能力。

方法

样品制备与数据采集

在本实验中，使用了通过浮区法生长的 21 g 准二维奈尔反铁磁体 $La_2NiO_{4+\delta}$($P4_2/ncm$（ $=b$ =5.50 Å，c =12.55 Å）单晶。所呈现的飞行时间中子谱学数据采集自橡树岭国家实验室散裂中子源的 SEQUOIA 仪器 [29]，入射中子能量为 190 毫电子伏，高通量费米斩波器以 300 Hz 运转，样品温度为 6 K。数据在面外动量 $Q_z \in \pm 10$倒易晶格单位范围内积分。晶格可近似为 I4/mmm， $=b \approx 3.89$Å。I4/mmm 中的 Q_x 和 Q_y 等同于方格子记号中的 Q_x 和 Q_y。更多详情请参见参考文献 [28]。

SpinW模拟与拟合

用于$S(\mathbf{Q}\ \omega)$模拟的两条动量路径分别为$\mathbf{Q}_{\text{list1}} = \{[\frac{3}{4}\ \frac{1}{4}\ 0], [\frac{1}{2}\ \frac{1}{2}\ 0], [\frac{1}{2}\ 0\ 0], [\frac{3}{4}\ \frac{1}{4}\ 0]; [1\ 0\ 0], [\frac{1}{2}\ 0\ 0]\}$和 $\mathbf{Q}_{\text{list2}} = [-0.07\ 0.03\ 0] + \mathbf{Q}_{\text{list1}}$。使用 SpinW 软件绘制自旋波谱时 [12]，每条路径进行了 600 次模拟（总计 1200 次），随机采样J 和J_P ，其取值范围分别为 [20, 75]和 [-30, 10] 毫电子伏。选择J 的下限和J_P 的上限，使基态保持为奈尔态；在线性自旋波理论中，当$J > 2J_P$ 且$J > 0$时，满足这一条件。对于$\mathbf{Q}$中的每个位置，均获取了对应的 0–200 毫电子伏能量。量子涨落重整化因子Z_c 设为 1.09 [28, 45, 46]。模拟后，数据使用基于束线仪器轮廓的能量相关核进行卷积。此过程使用了 SEQUOIA 的内置工具，对能量转移（ ω）以毫电子伏为单位时，分辨率（半高全宽）随能量变化的关系进行多项式拟合：半高全宽 $= 1.4858 \times 10^{-7}(\ \omega)^3 + 1.2873 \times 10^{-4}(\hbar\omega)^2 - 0.084492\ \omega + 14.324$ [29]。此外，数据还在$\mathbf{Q}$ 方向上使用一维高斯核（$\sigma = 5$ 像素）进行了展宽，以校正模拟中的离散采样，并部分考虑仪器的动量分辨率。

基于 SpinW 软件的自旋波谱拟合使用其内置函数实现。输入数据为从实验自旋波色散数据中提取的峰值信息。使用粒子群算法优化R 值，以寻找定义如下的全局最小值：

$$R = \sqrt{1/nE \times \Sigma_{i,\mathbf{Q}}\, 1/\sigma_{i,q}^2 (\frac{\omega_i^{\text{sim}}}{\hbar}_{,\mathbf{Q}} - \frac{\omega_{i,q}^{\text{meas}}}{\hbar})^2}$$，其中，(i,q) 分别表示自旋波模态和动量索引。E_{sim}和E_{meas} 分别为模拟和测得的自旋波能量，σ 为此前通过拟合非弹性峰确定的测量自旋波能量的标准差，n_E 为待拟合的能量数量。

代理模型训练

使用 1,000 次模拟的 (S(Q ω), J, J_P) 元组训练了一个 5 层 SIREN 神经网络（图 1c）；另外留出 200 次模拟用于验证和测试。这里，将 ω [0 -200]毫电子伏、$\frac{\hbar}{}$J [20 - 75] 毫电子伏和 J_P [-30 - 10] 毫电子伏归一化到 0-1，使所有参数的尺度大致相同。模型通过优化预测值与标签之间的均方误差目标函数 L（相对于网络参数）来预测 $\log(1 + S(Q\ \omega, J, J_P))$。训练期间使用了以下超参数和设置：采用自适应矩估计算法（ADAM）进行优化（$\beta_1 = 0.9$, $\beta_2 = 0.999$），批量大小为 [36], , 048，学习率为 = 0. 001。前十个周期之后，每个周期的学习率都按 exp(-0.1) 的因子进行指数衰减。我们使用搭载 Keras API [47] 的 NVIDIA A100 GPU 硬件，模型训练了 50 个周期。

机器学习参数提取

在进行可微优化之前，按照以下步骤自动对实验数据进行背景扣除。首先，为每个切片选择一个（$\mathbf{Q}_{\text{list}}$, ω_{list}）空间区域（Q 轴上的 160-170 像素位置），并沿 $\mathbf{Q}_{\text{list}}$ 求平均，以得到一维能量剖面。此步骤基于对散射各向同性以及奈尔基态的先验假设。接着，使用 Savitzky–Golay 滤波器（窗口大小 = 51，多项式阶数 = 3）拟合一维能量剖面，并用于背景扣除。

从数据中恢复未知的 J、J_P 参数时，对神经网络隐式表示进行基于梯度的优化。对于本文展示的实验数据，采用实测与模拟的 （$1-r$）之间的指标 （$1+S$（$\mathbf{Q}$ ω, J, J_P）） 作为目标函数（公式 4；此处，r 表示皮尔逊相关系数。未对模拟数据进行归一化，以使其相对于实验数据进行缩放。

$$L = 1 - r(\log(1 + S_{measured}), \Phi(\mathbf{Q}, \omega, J, J_p)) \qquad (4)$$

目标 L 根据 J、J_P、$\mathbf{Q}_{\text{list}}$ 和 ω_{list}，使用 ADAM 算法进行了优化；这些数据从包含实验数据的路径列表中随机采样得到。此处，$(\mathbf{Q}_{\text{list}}, \omega_{\text{list}})$ 采样的批量大小设为 4,096，并进行了 2,000 个 Adam 优化步，学习率为 0.005。

低计数数据生成与拟合

使用 3x3 高斯卷积核对每个切片的高计数数据（未进行背景扣除）进行平滑处理。随后，使用总强度将所得图像分别归一化到 (0, 1)。每个切片均被视为概率分布，并使用蒙特卡洛拒绝采样进行采样。通过这一过程创建了一系列中子计数范围为 (1×10^4 - 9×10^6) 的数据集。使用前述方法对每个数据集分别进行自动背景扣除，并从 (J、J_P) 中的随机起始位置出发，使用机器学习优化过程拟合十次。请注意，使用相应的低计数数据来执行自动背景扣除。

数据可用性

模拟数据和代码可在 https://github.com/slaclab/neural-representation-sqw.git。

作者贡献

S.R. Chitturi、Z. Ji 和 A.N. Petsch 对本研究的贡献相同。

致谢

本研究得到美国能源部科学办公室基础能源科学项目资助，项目编号为 DE-SC0022216；同时也得到合同 DE-AC02-76SF00515 的资助，资助对象包括材料科学与工程部和直线加速器相干光源（LCLS）。本研究部分工作使用了散裂中子源的资源。该设施是美国能源部科学办公室用户设施，由橡树岭国家实验室运营。J. J. Turner 感谢美国能源部科学办公室基础能源科学项目通过早期职业研究计划提供的支持。Z. Ji 获得斯坦福科学奖学金和 Urbenek-Chodorow博士后奖学金的资助。A.N. Petsch 和 S.M. Hayden 感谢工程与物理科学研究委员会（EPSRC）通过项目编号 EP/L015544/1 和 EP/R011141/1 提供的经费和支持。

* chitturi@斯坦福.edu
† zhurun@斯坦福.edu
‡ apetsch@stanford.edu § joshuat@slac.stanford.edu

[1] Chumak, A. V., Vasyuchka, V. I., Serga, A. A. & Hillebrands, B. 磁振子自旋电子学。《自然·物理》11, 453–461 (2015年)。 [2] Neusser, S. & Grundler, D. 磁振子学：纳米尺度上的自旋波。《先进材料》21, 2927–2932 (2009年)。 [3] Gutfleisch, O. et al. 面向21世纪的磁性材料与器件：更强、更轻且能效更高。《先进材料》23, 821–842 (2011)。 [4] Rossat-Mignod, J. et al. $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ 系统的中子散射研究。《物理学C：超导》185, 86– 92 (1991)。 [5] Chatterji, T. 《磁性材料的中子散射》（Elsevier，2005年）。 [6] Braden, M. et al. Sr_2RuO_4中磁激发的非弹性中子散射研究。Physical Review B 66, 064522 (2002)。 [7] Coldea, R. et al. La2CuO4中的自旋波与电子相互作用。Physical Review Letters 86, 5377 (2001)。 [8] Weinfurther, K., Mattingly, J., Brubaker, E. & Steele, J. 紧凑型高效中子散射相机的模型设计评估。《核仪器与方法物理研究A辑：加速器、光谱仪、探测器及相关设备》883, 115–135 (2018年)。 [9] Peterson, P. F., Olds, D., Savici, A. T. & Zhou, W. 在中子散射实验中利用基于事件的数据结构的进展。《科学仪器评论》89, 093001 (2018年)。 [10] Chen, Z. et al. 中子与X射线散射及光谱学中的机器学习。《化学物理评论》2, 031301 (2021)。 [11] Li, Z., Kermode, J. R. & De Vita, A. 通过在线机器学习量子力学力进行分子动力学模拟。Physical Review Letters 114, 096405 (2015)。 [12] Toth, S. & Lake, B. 单Q非公度磁结构的线性自旋波理论。《物理学杂志：凝聚态》27, 166002 (2015)。 [13] Ewings, R. et al. Horace：用于分析飞行时间中子仪器单晶光谱实验数据的软件。《核仪器与方法物理研究A辑：加速器、光谱仪、探测器及相关设备》834, 132–142 (2016年)。 [14] Sitzmann, V., Martel, J., Bergman, A., Lindell, D. & Wetzstein, G. 使用周期性激活函数的隐式神经表示。Advances in Neural Information Processing Systems 33, 7462 7473 2020– ( )。 [15] Xie, Y. et al. 视觉计算及其他领域中的神经场。《计算机图形学论坛》41, 641–676 (2022年)。 [16] Samarakoon, A. M. et al. 机器学习辅助揭示自旋冰$Dy_2Ti_2O_7$的特性。《自然·通讯》11, 1–9 (2020年)。 [17] Samarakoon, A., Tennant, D. A., Ye, F., Zhang, Q. & Grigera, S. A. 将机器学习与中子散射相结合，以调谐压力下自旋冰的哈密顿量。《通讯材料》3, 1–11 (2022年)。 [18] Butler, K. T., Le, M. D., Thiyagalingam, J. & Perring, T. G. 用于分析和理解非弹性中子散射数据的可解释、经校准神经网络。《物理学杂志：凝聚态》33, 194006 (2021)。 [19] Anker, A. S., Butler, K. T., Le, M. D., Perring, T. G. & Thiyagalingam, J. 使用生成对抗网络匹配实验与模拟的非弹性中子散射数据。ChemRxiv (2022年)。 [20] Dagotto, E. 高温超导体中的关联电子。《现代物理评论》66, 763 (1994)。 [21] White, S. R. 量子重整化群的密度矩阵表述。Phys. Rev. Lett. 69, 2863–2866 (1992)。

[22] White, S. R. 量子重整化群的密度矩阵算法。Physical Review B 48, 10345 (1993年)。 [23] Blankenbecler, R., Scalapino, D. J. & Sugar, R. L. 耦合玻色子-费米子系统的蒙特卡洛计算。I. Phys. Rev. D 24, 2278–2286 (1981年)。 [24] White, S. R. et al. 二维哈伯德模型的数值研究。Phys. Rev. B 40, 506–516 (1989年)。 [25] Ferrari, F., Parola, A., Sorella, S. & Becca, F. 一维J1-J2海森堡模型的动力学结构因子：变分蒙特卡洛方法。Physical Review B 97, 235103 2018( )。 [26] Hendry, D., Chen, H., Weinberg, P. & Feiguin, A. E. 使用受限玻尔兹曼机展开切比雪夫级数以求谱函数。Physical Review B 104, 205130 (2021年)。 [27] Kubo, R. 反铁磁体的自旋波理论。Physical Review 87, 568 (1952年)。 [28] Petsch, A. N. et al. 自旋-1方格晶格反铁磁体La_2NiO_4中的高能自旋波。arXiv预印本 (2023年)。arXiv:2304.02546。[29] Granroth, G. E. et al. SEQUOIA：SNS新启用的斩波式光谱仪。Journal of Physics: Conference Series 251, 012058 (2010年)。 [30] Hastie, T., Tibshirani, R., Friedman, J. H. & Friedman, J. H. 《统计学习要素：数据挖掘、推断与预测》第2卷（Springer，2009年）。 [31] Cheong, S. et al. 一种增强冷原子云集光能力的新型光场成像设备。Journal of Instrumentation 17, P08021 (2022年)。 [32] Vlaši´c, T., Nguyen, H. & Dokmani´c, I. 用于无网格逆障碍散射的隐式神经表示。arXiv预印本 (2022年)。arXiv:2206.02027。 [33] Levy, A., Wetzstein, G., Martel, J. N., Poitevin, F. & Zhong, E. 用于异质重建的摊销推断。Advances in Neural Information Processing Systems 35, 13038 13049 2022– ( )。 [34] Coldea, R. et al. La_2CuO_4 中的自旋波与电子相互作用。Phys. Rev. Lett. 86, 5377–5380 (2001年)。 [35] Marshall, W. & Lovesey, S. W. 《热中子散射理论》（Oxford University Press，1971年）。 [36] Kingma, D. P. & Ba, J. Adam：一种随机优化方法。arXiv预印本 (2014年)。arXiv:1412.6980。 [37] Abadi, M. et al. TensorFlow：异构分布式系统上的大规模机器学习。arXiv预印本 (2016年)。arXiv:1603.04467。[38] Bottou, L. 随机梯度下降技巧。Neural Networks: Tricks of the Trade: Second Edition 421–436 (2012年)。[39] Aloysius, N. & Geetha, M. 深度卷积神经网络综述。载于2017 International Conference on Communication and Signal Processing (ICCSP)，0588–0592（IEEE，2017年）。[40] Chitturi, S. R. et al. 从X射线粉末衍射图谱自动预测晶格参数。Journal of Applied Crystallography 54, 1799–1810 (2021年)。[41] Wang, H. et al. 基于可解释卷积神经网络，利用极少数据快速识别X射线衍射图谱。Journal of Chemical Information and Modeling 60, 2004–2011 (2020年)。[42] Nakajima, K., Yamada, K., Hosoya, S., Omata, T. & Endoh, Y. 化学计量比La2NiO4二维反铁磁体中的自旋波激发。Journal of the Physical Society of Japan 62, 4438–4448 (1993年)。[43] Granade, C. E., Ferrie, C., Wiebe, N. & Cory, D. G. 鲁棒的在线哈密顿量学习。New Journal of Physics 14, 103013 (2012年)。 [44] McMichael, R. D. & Blakley, S. M. 用于参数估计中自适应实验设计的简化算法。*Physical ReviewApplied* **18**，054001（2022年）。[45] Igarashi, J.-i. 零温下二维海森堡反铁磁体热力学量的 1/s 展开。*Physical Review B* **46**，10763（1992年）。 [46] Singh, R. R. t= 0，自旋-1/2 方格海森堡反铁磁体的热力学参数。*Physical Review B* **39**，9760（1989年）。[47] Chollet, F. 等Keras。https://keras.io（2015年）。[48] Roger, M. & Delrieu, J. M. 二维方格晶格上的循环四自旋交换：在高 T_c 超导体中的可能应用。*Phys.Rev.B* **39**，2299–2303（1989年）。 [49] Chubukov, A., Gagliano, E. & Balseiro, C. 含循环交换相互作用的受挫自旋-1/2 海森堡反铁磁体的相图。*Phys. Rev. B* **45**，7889–7898（1992年）。[50] Buttrey, D. J., Honig, J. M. & Rao, C. N. R. 准二维 La2**64**，287 4 295 1986 NiO 的磁性。*J. Solid State Chem.* –（）。[51] Tranquada, J. M. 等$La_2NiO_{4+\delta}$中的氧插层、阶段有序和相分离，含量为 $0.05 \lesssim \delta \lesssim 0.11$。*Phys. Rev. B* **50**，6340–6351（1994年）。

补充信息1：未进行背景扣除的数据

未进行自动背景扣除时，非弹性中子散射数据的路径1（a）和路径2（b）可视化（图5）。注意，在路径2中，数据有一部分缺失。

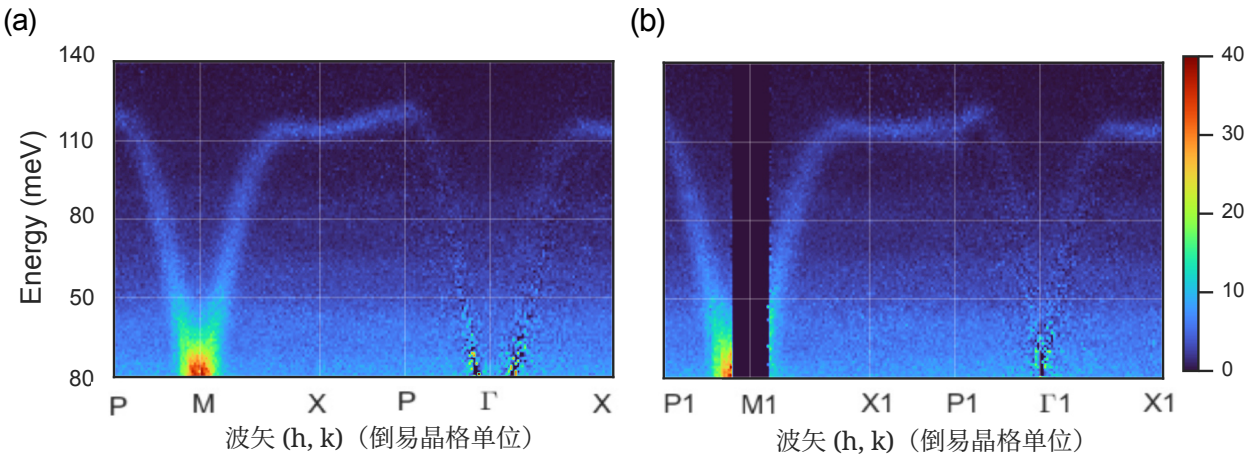

图 5. 未进行自动背景扣除的非弹性中子散射数据集。(a) 路径1和 (b) 路径2的可视化结果。注意，路径2中有一部分数据缺失。

补充信息SI2：缺失区域插值

路径2的原始数据中缺失了一个区域。然而，由于机器学习模型是线性自旋波理论模拟的正向代理模型，因此即使在没有数据的区域也能够进行预测。值得注意的是，与逆向建模方法相比，这是一项显著优势。

对于所示路径，当前使用的中子数据集中没有缺失的**Q**空间区域的数据。不过，$(Q_x,Q_y) \mapsto (Q_y,Q_x)$处有数据，即将二维动量旋转Q 45° 后，便可获得缺失路径区域的数据。由于假设该化合物是完全孪晶化的，$S(Q_x,Q_y,\omega) = S(Q_y,Q_x,\omega)$，因此可以用交换$Q_x$ 和Q_y 后得到的等效数据，替代**Q**空间中的缺失区域。图中展示了用等效数据补全缺失区域后的完整路径数据，并与前向模型的预测结果进行了比较。请注意，在这种情况下，路径2的预测仅使用路径2的数据。拟合过程中未使用路径1的任何信息。

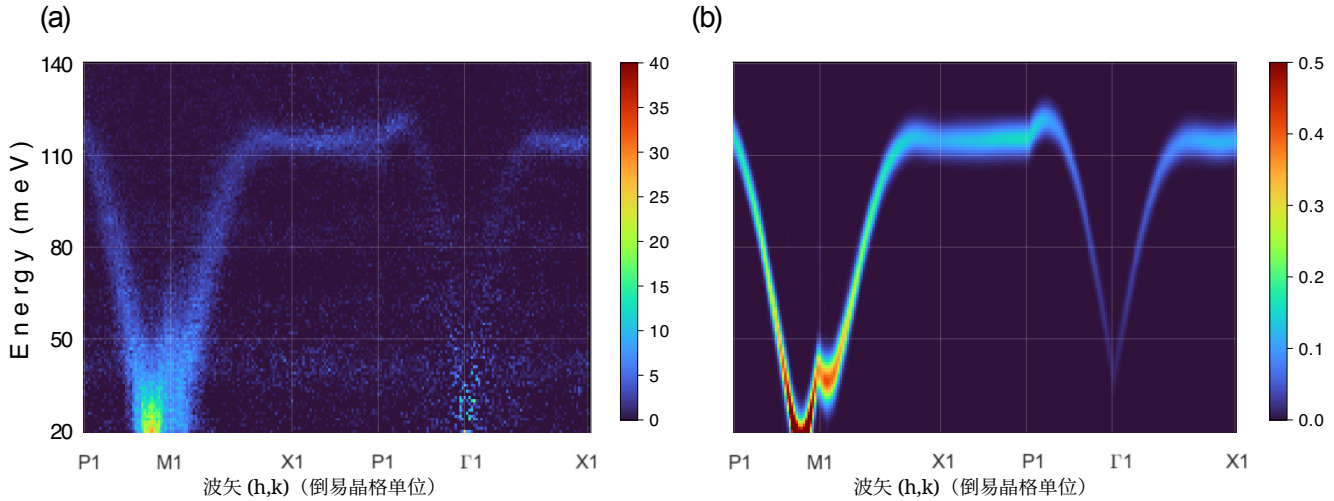

图6. 机器学习前向模型能够准确预测缺失区域的散射谱。(a) 通过交换Q_x 和Q_y来填补缺失区域后的实验数据。(b) 仅使用路径2中缺失区域的实验数据进行的机器学习预测。显然，机器学习预测与真实实验数据高度吻合。

补充信息SI3：SpinW 拟合结果

本节展示了同时使用路径1和路径2进行拟合时，(J,J_P) 参数的SpinW拟合结果（图3a和b）。进行SpinW拟合是为了给机器学习结果提供基准：$(J,J_P) = (29.15,1.55)$（结果为五次拟合的中位数，每次拟合最多迭代100次；路径1的拟合结果见图7）。与机器学习方法相比，SpinW拟合没有利用所有可用的像素信息，而是需要额外进行峰值搜索和峰拟合。当自旋哈密顿量包含更多参数，或感兴趣的能量区域内存在多个本征模时，我们的机器学习算法在速度和准确度方面都可能更具优势。

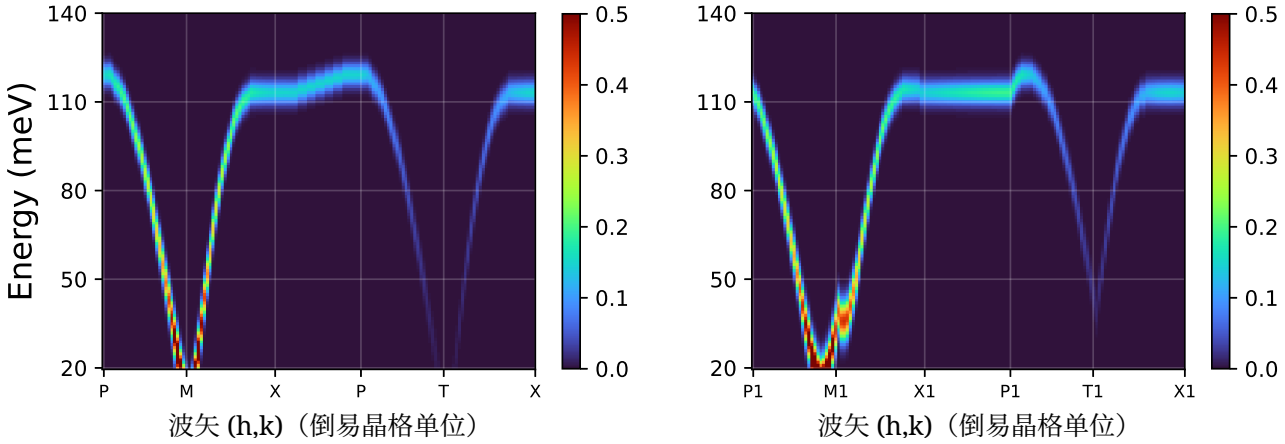

图 7. 作为基准的路径1（左）和路径2（右）的 SpinW 拟合结果。