

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 3 年 5 月 31 日現在

機関番号：82110

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2018～2020

課題番号：18K04886

研究課題名(和文) 顕微電子分光データの三次元テンソル分解法による非経験的ナノ領域物性マッピング

研究課題名(英文) Tensor Decomposition of electron nano-spectroscopic data toward unempirical mapping of materials properties

研究代表者

巽 一徹 (Tatsumi, Kazuyoshi)

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究部門 J-PARCセンター・研究主幹

研究者番号：00372532

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円

研究成果の概要(和文)：本研究の目的は、高次元テンソル実験分光データの統計的記述に基づき、物理的に意味のあるスペクトル情報を抽出することである。実験環境の変化により、計画当初とは異なる有望な対象として、非弾性中性子散乱(INS)データにおいて統計的な情報抽出法の開発を進めた。INS実験強度分布のヒストグラムに関し、ポアソン統計に基づくビン幅最適化する方法を適用し、データのヒストグラム表現において有意なエネルギー幅・運動量変化幅の限度を抽出できるようにした。異なるカウント総数のデータについても統計データを外挿し、よく予測できることを示した。このことは、INS実験の測定時間を本手法により最適化できる可能性を示唆する。

研究成果の学術的意義や社会的意義

J-PARC等のパルス中性子源を用いた中性子実験施設では、個々の中性子の検出をデータとして記録する。その頻度はポアソン統計に従う。一方、ポアソン統計に基づくヒストグラムのビン幅の最適化が脳神経科学分野で開発され、非弾性中性子散乱(INS)を模擬したデータにおいても適用された。本研究では、INS実験データでその有用性を実証し以下の活用が示された：データに応じた最適ビン幅より、INS強度分布の微細構造の有意性を検視する。微細構造を実験的に取得するのに必要な計測時間をオンラインで把握し、最適な計測時間で実験を終了する。

研究成果の概要(英文)：The purpose of this research is to statistically extract physically significant spectral information from high dimensional tensors of experimental spectral data. Due to the changes in my experimental environment, I targeted inelastic neutron scattering (INS) data which were not initially considered. For histogram expression of the experimental INS intensity distribution, I applied a bin-widths optimization method to several experimental and phantom INS data sets. This method assumed an in-homogeneous Poisson process to generate the INS counts in a period of the energy and momentum space. The method was found to successfully extract the optimal bin-widths on the 4D axes. It was also found that the statistics was extrapolated to the data sets with different total counts and the investigator could infer the optimal bin-widths on them. This suggests that the method could be utilized to design the measurement time of INS experiments.

研究分野：材料科学

キーワード：非弾性中性子散乱 ヒストグラムビン幅最適化 ポアソン過程 実験計画 密度推定

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

1. 研究開始当初の背景

(1) 透過走査電子顕微鏡(STEM)に付随する電子分光では、デジタル制御技術及び電子源・検出器の開発の進展・成熟に伴い、試料や回折 2 次元平面上の多数のサンプル点においてスペクトルを取得するスペクトラムイメージングが達成され、得られるデータの規模が飛躍的に増大した。中性子実験においては、中性子線源の大強度化・非弾性散乱計測の高度化に伴い、運動量及びエネルギーの広範な 4 次元空間上で中性子計数データが取得できるようになってきている。

(2) 大規模データから統計的に有意な物理情報を抽出する上で、データが多次元に分布していることをうまく活用した解析法は、これらの電子顕微鏡や中性子散乱の実験分野では特殊な例を除き適用されてこなかった。

2. 研究の目的

本研究の目的は、高次元テンソル実験分光データの統計的記述に基づき、物理的に意味のあるスペクトル情報を抽出することである。当初は走査透過電子顕微鏡に付随する電子分光(電子線エネルギー損失分光, エネルギー分散型 X 線分光)を対象にすることを予定していたが、対象とする電子線エネルギー損失分光器が実験環境の変化により使用困難となった。このため、令和元年度以降は、ほかの有望な対象として、非弾性中性子散乱(INS)データにおいて統計的な情報抽出法の開発を検討した。J-PARC などのパルス中性子源を用いた非弾性中性子散乱実験のデータの特徴として、個々の中性子の検出が記録されていることが挙げられる。この特徴に基づいた統計的手法を同データに適用し、その有用性を検討することを目的とした。

3. 研究の方法

(1) ヒストグラムビン幅の最適化

INS のカウントの 4 次元空間分布がポアソン過程により生じるものとして、そのヒストグラムの 4 軸のビン幅は、ヒストグラムと潜在する確率密度の平均積分二乗誤差を最小化するように最適化できる。これは、次式で表されるコスト関数を最小化することに帰着される[1,2]：

$$\Delta_{n,q_a}^*, \Delta_{n,q_b}^*, \Delta_{n,q_c}^*, \Delta_{n,E}^* = \operatorname{argmin} C_n$$

$$C_n = \frac{\langle k_n \rangle - \langle (k_n - \langle k_n \rangle)^2 \rangle}{n^2 (\Delta_{q_a} \Delta_{q_b} \Delta_{q_c} \Delta_E)^2} \quad (1)$$

ここで $\Delta_{n,x}^*$ は総計数 n のデータの x 軸の最適ビン幅、 k_n は一つのビンの中性子計数、 $\langle \cdot \rangle$ はビンにわたっての平均を示す。

(2) 異なる計数のデータへの外挿

コスト関数は C_n と k_n から $m \neq n$ の総中性子計数の仮想的データへ次式により外挿できる[1]：

$$C_{m|n} = \left(\frac{1}{m} - \frac{1}{n} \right) \frac{1}{\Delta_{q_a} \Delta_{q_b} \Delta_{q_c} \Delta_E} \langle k_n \rangle - C_n$$

$$\Delta_{m|n,q_a}^*, \Delta_{m|n,q_b}^*, \Delta_{m|n,q_c}^*, \Delta_{m|n,E}^* = \operatorname{argmin} C_{m|n} \quad (2)$$

(3) ビン幅の探索範囲

今回用いたデータは、すでに細かなメッシュで形成された 4 次元ヒストグラムであった。従って、ビン幅はこの初期ヒストグラムのビン幅の整数倍の範囲で探索した。

(4) 実験データ

実験データは、同一の単結晶 Cu で異なる 3 種の計測条件で測定された INS データを用いた。1 つの計測条件に対して、総計測時間の一部のみを用いることで、系統的にカウント数の異なるデータセットを複数準備した。

(5) 模擬データ

この実験データを模擬した計算データを以下の手順で求めた。Cu の第一原理バンド計算で得られた 2 次の力定数を用いて調和フォノン状態を求め、干渉性散乱断面積を求めた。これを実験装置に対応した分解能関数でコンボリューションし、ポアソンレートを作成し、ポアソン分布に基づいてカウント数の 4 次元空間分布を初期ヒストグラムとして生成した。

4. 研究成果

(1) 異なる条件で測定された INS 実験データへの適用

4つの最適ビン幅の積 (Δ_n^* または Δ_m^*) の逆数をカウント数(n または m)の逆数に対して図1に示す。横軸の大きな $1/m$ の領域では、 $1/m$ の減少に伴い $1/\Delta_m^*$ はわずかに増加する。小さな $1/m$ の領域では、 $1/m$ の減少に伴い $1/\Delta_m^*$ は顕著に増加する。この挙動は、ポアソンレートをガウシアン過程や Ornstein-Uhlenbeck 過程で生成すると仮定した場合の1次元データにおける $1/m$ と $1/\Delta_m^*$ の関係式(3)[1]と、次元や生成過程は異なるものの定性的に符合する：

$$\frac{1}{\Delta_m^*} \propto -\left(\frac{1}{m} - \frac{1}{n_c}\right) \quad \text{for } m > n_c$$

$$= +0 \quad \text{otherwise} \quad (3)$$

(2) 外挿法による最適ビン幅の予測

4つの軸の最適ビン幅の個々の値をカウント数に対して図2に示す。特定のデータセット(☆のカウント数のデータセット)から異なるカウント数のデータセットに式(2)により外挿した最適ビン幅の値は、それぞれのデータセットでの式(1)による最適ビン幅とよく対応している。この外挿法を用いれば、 $\langle k_n \rangle$ と $\langle (k_n - \langle k_n \rangle)^2 \rangle$ を測定時に求められれば、必要なビン幅が判っている場合、必要な計測カウント数が予測できる。

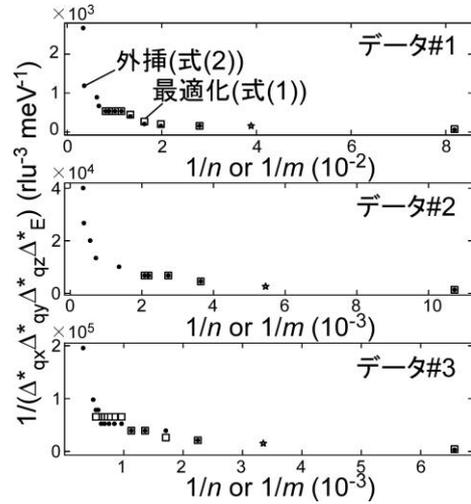


図1. 3種のデータでの異なるカウント数の逆数に対する最適ビン幅の積の逆数の挙動。

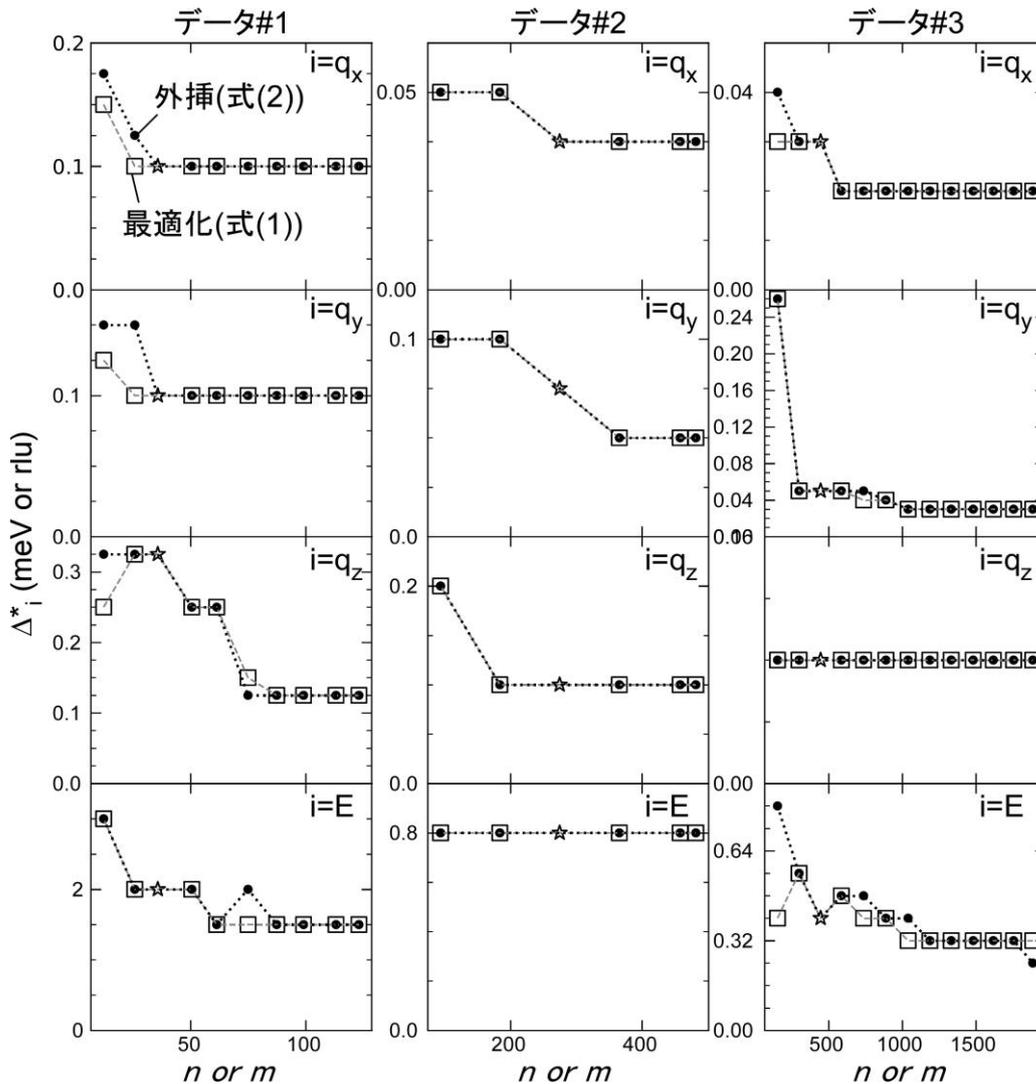


図2. 3種のデータでの異なるカウント数での最適ビン幅の結果。

(3) 解の一意性

今回の実験データを模擬した計算データを、ポアソンレートも含めて作製し、本手法での最適解がどれくらい、平均積分二乗誤差を最小とするビン幅の組み合わせ(真の解)からずれるか検討した。真の解は、採りうるビン幅の組み合わせを網羅した中で平均積分二乗誤差を最小にするビン幅の組み合わせとした。同等のカウント数の模擬データを 20 セット用意し、カウント数に対して推定ビン幅と真の解の差をまとめたものを、図 3 に示す。垂直の破線に挟まれた区間は、実験データのカウント数に相当する領域である。初期ヒストグラムのビン幅を単位として、実験的に得られている最大のカウント数の程度で、ずれは 1 程度に収まっていることが分かる。

<引用文献>

- [1] H. Shimazaki and S. Shinomoto, *Neural Computation*, 19 1503 (2007).
- [2] K. Muto, H. Sakamoto, K. Matsuura, T. Arima, and M. Okada, *J. Phys. Soc. Jpn.*, 88 044002 (2019).

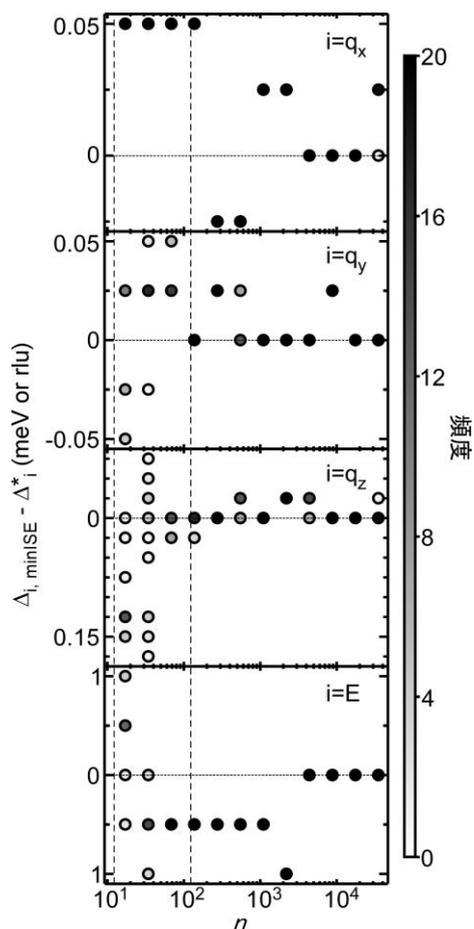


図 3. データ#1 を模擬した 20 個のデータセットでのカウント数に対する最適化したビン幅と真の解の差。得られた差の頻度をグレースケールで示す。縦軸の小目盛は初期ヒストグラムのビン幅に相当する。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 0件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Negi Devendra, Spiegelberg Jakob, Muto Shunsuke, Thersleff Thomas, Ohtsuka Masahiro, Schonstrom Linus, Tatsumi Kazuyoshi, Rusz Jan	4. 巻 122
2. 論文標題 Proposal for Measuring Magnetism with Patterned Apertures in a Transmission Electron Microscope	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Physical Review Letters	6. 最初と最後の頁 037201(1-6)
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevLett.122.037201	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計0件

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 （ローマ字氏名） （研究者番号）	所属研究機関・部局・職 （機関番号）	備考
---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------