

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 5 日現在

機関番号：12601

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2012～2014

課題番号：24654118

研究課題名(和文) スペクトル分解のベイズ理論とその展開

研究課題名(英文) Bayesian theory for spectral deconvolution and its expansion

研究代表者

岡田 真人 (Okada, Masato)

東京大学・新領域創成科学研究科・教授

研究者番号：90233345

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,700,000円

研究成果の概要(和文)：本研究の目的は、ベイズ統計の枠組みにもとづき、スペクトル分解のベイズ理論を提案することである。ベイズ統計を用いると、ピークの個数をデータから決定するモデル選択の問題を取り扱うことができる。分光学へのベイズ統計の導入はさらなる波及効果を生む。モデル選択の枠組みは、観測データからのモデルハミルトニアンのパラメータ選択への道を開く。また計測時間の短縮から生じる光子の離散性によるノイズにも対処可能である。また観測精度やノイズレベルが異なる複数種類のスペクトルをノイズレベルに応じて自動的に統合する枠組みも提案できる。

研究成果の概要(英文)：The purpose of this project is to propose the Bayesian theory for spectral deconvolution based on the framework of the Bayesian statistics. By using the Bayesian statistics, we can treat the model selection problem, which selects the optimal number of peak from the given data. The introduction of Bayesian statistics to the field of spectroscopy give the impact to the other fields. The framework of the model selection leads to the selection of parameter for the model hamiltonian from the observed data.

研究分野：情報統計力学

キーワード：分光学 スペクトル分解 ベイズ推論 モデル選択 有効ハミルトニアン

1. 研究開始当初の背景

図1(a)のような多峰性スペクトルを、ガウス関数に代表される単峰性の基底関数の線形和に分解することは、物性物理学だけでなく、より幅広い分光学の分野で必要とされる。ここでは、この問題をスペクトル分解と名づける。以下で述べるように、スペクトル分解では、基底関数の個数 K をいかに決めるかが重要な問題である。図1(b)の $K=2$ のように K が小さすぎると観測データを再現できない。図1(c), (d)のように、 K を大きくするとデータの再現性は良くなるが、 K を大きくしすぎると観測ノイズを再現するために余分な基底関数を用いてしまう。このように K に関するトレードオフがあり、最適な K が存在することがわかる。この最適な K を選ぶことを統計学ではモデル選択とよぶ。

スペクトル分解は単なる関数のフィッティングやデータ解析ではない。基底関数の中心位置や幅はエネルギー準位や緩和時間に対応する。基底関数の個数が適切でなければ、基底関数の位置がずれるので、物理量を正しく抽出できない。モデル選択は物理学として大変重要な課題である。

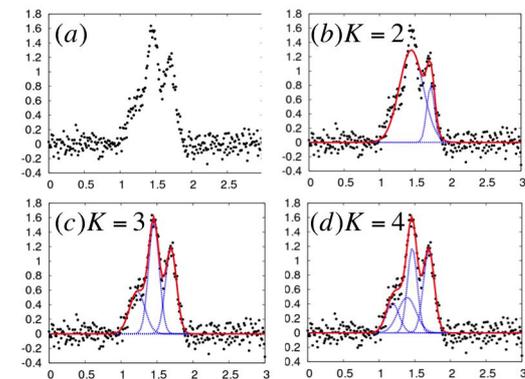


図1：多峰性スペクトルのスペクトル分解

2. 研究の目的

本研究の目的は、ベイズ統計の枠組みにもとづき、スペクトル分解のベイズ理論を提案することである。ベイズ統計を用いると、先ほどのモデル選択の問題を取り扱う事ができる。分光学へのベイズ統計の導入はさらなる波及効果を生む。モデル選択の枠組みは、観測データからのモデルハミルトニアンのパラメータ選択への道を開く。また計測時間の短縮から生じる光子の離散性によるノイズにも対処可能である。また観測精度やノイズレベルが異なる複数種類のスペクトルをノイズレベルに応じて自動的に統合する枠組みも提案できる。

3. 研究の方法

(1) スペクトル分解におけるベイズ推論

研究方法の一つとして、XPS に代表されるスペクトル計測データに対するベイズ推定手法を取り扱い、モデル選択の枠組みを利用することで、ピーク個数の自動決定を行える

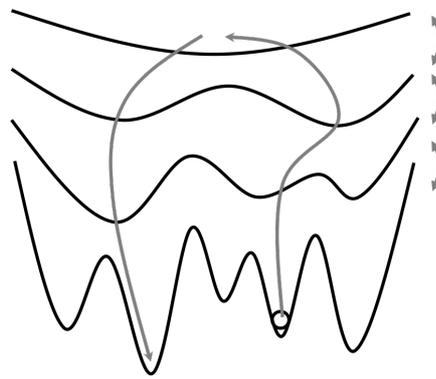


図2：レプリカ交換モンテカルロ法

アルゴリズムを開発する。また、与えられたデータから適切に情報抽出できたかどうかを判別する枠組みを構築する。

また、モデルハミルトニアンのパラメータ決定法の例題として、 NiGa_2S_4 における交換相互作用の自動抽出の問題に取り組む。

4. 研究成果

まず、スペクトル分解におけるベイズ理論の確立を行った。

図1(a)のスペクトルデータをガウス関数に代表される単峰性の関数の線形和に分解することを考えると、二つの大きな問題がある。一つは、パラメータの最適化である。一つのピークにつき、パラメータは強度・中心位置・幅の3つがあり、ピークの個数が3を超えると、10次元以上のパラメータ最適化を行う必要がある。また、フィッティング関数の非線形性により、誤差関数には局所最適解が存在することが示唆され、最適化を行う際の初期値の選び方などの問題がある。

もう一つは、先にも述べたように、ピークの個数 K をいかに決めるかである。もし、パラメータの決定と同様に、データとモデルの誤差を最小にするように決定する手法を考えると、ピークの個数 K をいくらでも増やすことにより誤差をどんどん小さくすることができてしまうため、別の評価指標が必要となる。

これら二つの問題点を解決するために、本研究では、レプリカ交換モンテカルロ(REMC)法を利用したベイズ推定手法に着目した。REMC法とは、マルコフ連鎖モンテカルロ法の一つのアルゴリズムであり、与えられた確率分布からサンプリングを行うアルゴリズムである。REMC法では、擬似的な温度パラメータを導入し、図2に示すように、複数の確率分布からのサンプリングを行う。サンプリングの途中で隣り合った温度間での確率的な交換を行うことで、局所最適解へのトラップを回避する。これをスペクトル分解のパラメータ最適化に応用するために、誤差関数をエネルギー関数とみなしたボルツマン分布を導入し、この確率分布からのサンプリングにより、初期値に依存しないパラメータ最適化法を実現する。

さらに、REMC 法を利用することで、モデル選択の問題も解決できる。ベイズ推定では、ベイズの定理を用いて、データが与えられたもとのパラメータの確率分布であるベイズ事後分布により推定を行う。この枠組みを用いると、モデルパラメータだけでなく、さらに深い構造であるピークの個数 K についても推定できるようになる。その際に導出される評価関数は、熱力学・統計力学における自由エネルギーに相当する関数であり、多重積分を含むため、通常計算困難であるが、REMC 法により生成されたサンプルを利用して期待値計算を行い、温度方向に積分することにより効率的に計算することができる。

こうした枠組みを用いて、図 1 のスペクトルデータから、ピークの個数として $K=3$ が適切であることをデータのみから判断することに成功した。さらに、XPS だけでなく、生命科学における NMR 解析や、地球惑星科学における反射スペクトル解析にも応用している。

さらに数理的観点からも、ベイズ推定における自由エネルギーから、ベイズ比熱を導入することで、推定される構造の変化を抽出する相転移現象をピックアップする枠組みを開発した。これにより、所望の情報抽出に必要なデータ数やノイズレベルなどを明らかにする系統的手法ができる可能性を見出すことができた。

(2) モデルハミルトニアンのパラメータ自動抽出

また、モデルハミルトニアンのパラメータ決定法の例題として、 NiGa_2S_4 における交換相互作用の自動抽出の問題に取り組んだ。

磁性体などの物性研究において交換相互作用の解析は重要である。しかし、電子スピンの距離や多体効果等に応じて無限に分類される交換相互作用パラメータ J の中で、どれが実効的であるかを評価するための客観的な指標はこれまで確立されていなかった (モデルの立て方の恣意性)。

その交換相互作用が特に重要な役割を果たす系の 1 つがフラストレートした量子スピン系で、低温までスピン無秩序状態を示す NiGa_2S_4 三角格子系もその一例である。磁性実験においては第三近接交換相互作用 J_3 が反強磁性、最近接交換相互作用 J_1 が強磁性であることが確認されており、この 2 つの相互作用の競合がスピン無秩序状態の要因の 1 つであることが示唆されている。理論先行研究では、複数のスピン配列に対して非制限ハートリー・フォック(UHF)計算で求めた量子系のエネルギーを古典スピンモデルで近似した方程式を連立させて解くことで J_1, J_2, J_3 を求めている。しかし、計算に用いるスピン配列の組合せを恣意的に選んでいるため、その組み合わせによって解析結果が変わる可能性がある (スピン配列の選び方の恣意性)。

上記のように、UHF 計算と実験結果をよ

りシームレスに繋ぐためには、モデルの立て方の恣意性とスピン配列の選び方の恣意性の 2 つを取り除く必要がある。そこでこれらの恣意性を同時に排除するため、16 サイト系における全てのスピン配列を利用してベイズ推論による交換相互作用パラメータ推定を行う。

ベイズ推論では、スペクトル分解の場合と同様にベイズの定理を用いることで、UHF 計算データが与えられたもとの交換相互作用パラメータの確率分布であるベイズ事後分布により推定を行う。この定式化により、交換相互作用パラメータの値だけでなく、どの交換相互作用が実効的であるかも推定できるようになる。さらに今回扱う古典スピンモデルは線形モデルであるため、自由エネルギーに相当する評価関数は解析的に計算することができる。

まず実効的な相互作用パラメータの数・種類を推定した結果、支配的であることで知られる J_3 だけでなく、値が小さいとされていた J_1 、及び磁性実験では考慮されなかった J_2 も考慮すべきであることが推定された。そして J_1, J_2, J_3 の値を求めた結果、反強磁性的な J_3 の大きさが J_1, J_2 と比較して大きい値になることが確認できた。

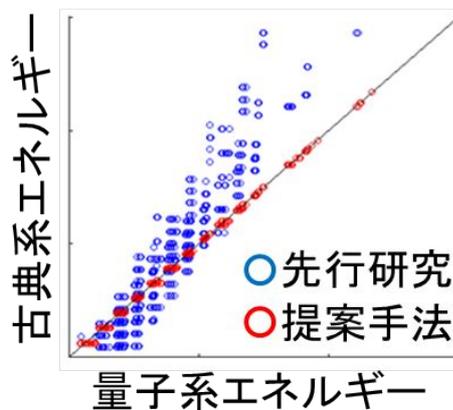


図 3: 近似精度の比較

図 3 は全てのスピン配列に対し、UHF 近似により計算した量子系のエネルギーを横軸に、古典スピンモデルに交換相互作用パラメータを代入することにより計算した古典系のエネルギーを縦軸にとったものである。青点は先行研究の結果、赤点が本手法の結果になるが、本手法では恣意性を排除した結果としてほぼ全てのスピン配列を近似できるようなパラメータを求めることができた。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計 3 件)

- (1) 永田賢二, 杉田精司, 佐々木岳彦, 岡田真人, 「実験データからピークの数を推

定するには？-スペクトル分解とベイズ統計—, 日本物理学会学会誌, Vol.69, pp.876-880, 2014 (査読あり).

- (2) Hikaru Takenaka, Kenji Nagata, Takashi Mizokawa, Masato Okada, “Model selection of NiGa₂S₄ triangular lattice by Bayesian inference”, Journal of the Physical Society of Japan, Vol.83, pp.124706-1—5, 2014 (査読あり).
- (3) Satoru Tokuda, Kenji Nagata, Masato Okada, “A numerical analysis of learning coefficient in radial basis function network”, IPSJ Transactions on Mathematical Modeling and Its Applications, Vol.6, pp.117-123, 2013 (査読あり).

〔学会発表〕(計 9 件)

- (1) 徳田悟, 永田賢二, 岡田真人, 「動径基底関数ネットワークのベイズ事後分布が持つ相転移」, 日本物理学会第 70 回年次大会, 2015 年 3 月 23 日, 早稲田大学.
- (2) 竹中光, 永田賢二, 溝川貴司, 岡田真人, 「ベイズ推論による三角格子スピン系 NiGa₂S₄ 有効モデル選択の温度依存性」, 日本物理学会第 70 回年次大会, 2015 年 3 月 22 日, 早稲田大学.
- (3) 村田伸, 永田賢二, 植村誠, 岡田真人, 「時系列スペクトルデータからの潜在的動力学推定」, 電子情報通信学会 NC 研究会, 2015 年 3 月 17 日, 玉川大学.
- (4) 竹中光, 永田賢二, 溝川貴司, 岡田真人, 「ベイズ統計による三角格子スピン系 NiGa₂S₄ のモデル選択」, 日本物理学会第 69 回年次大会, 2014 年 3 月 28 日, 東海大学.
- (5) 徳田悟, 永田賢二, 渡辺澄夫, 岡田真人, 「交換モンテカルロ法を用いた情報量規準 WBIC の計算機実験による検証」, 電子情報通信学会 NC 研究会, 2014 年 3 月 18 日, 玉川大学.
- (6) 竹中光, 永田賢二, 溝川貴司, 岡田真人, 「ベイズ統計による三角格子スピン系 NiGa₂S₄ のモデル選択」, 電子情報通信学会 NC 研究会, 2014 年 3 月 18 日, 玉川大学.
- (7) 徳田悟, 永田賢二, 岡田真人, 「A numerical analysis of learning coefficient in radial basis function network」, 情報処理学会第 92 回数理モ

デル化と問題解決研究会, 2013 年 2 月 27 日, 武雄市文化会館.

- (8) 徳田悟, 永田賢二, 岡田真人, 「動径基底関数ネットワークにおける学習係数の数値的導出」, 電子情報通信学会 NC 研究会, 2012 年 12 月 12 日, 豊橋技術科学大学.
- (9) 岡田真人, 「情報統計力学とスペクトロスコピー: スペクトル分解へのベイズ的アプローチ」, 日本物理学会 2012 年秋期大会 (招待講演), 2012 年 9 月 20 日, 横浜国立大学.

〔その他〕

ホームページ等

<http://mns.k.u-tokyo.ac.jp/~okada/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

岡田 真人 (Okada, Masato)

東京大学・大学院新領域創成科学研究科・教授

研究者番号: 90233345

(2) 研究分担者

(3) 連携研究者

佐々木 岳彦 (Sasaki, Takehiko)

東京大学・大学院新領域創成科学研究科・准教授

研究者番号: 90242099

溝川 貴司 (Mizokawa, Takashi)

東京大学・大学院新領域創成科学研究科・准教授

研究者番号: 90251397