

令和 6 年 6 月 13 日現在

機関番号：15201

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2019～2023

課題番号：19K12628

研究課題名（和文）スパースモデリングを用いた核密度解析手法の開発

研究課題名（英文）Development of nuclear density analysis method by using sparse modeling

研究代表者

田中 宏志（Tanaka, Hiroshi）

島根大学・学術研究院理工学系・教授

研究者番号：10284019

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,300,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、中性子線回折データをスパースモデリングにより解析するプログラムを開発し、KDPなどの物質に適用することで、従来法では明確に捉えられなかった詳細な核密度分布を確認した。また、粉末回折データ解析のためにG-type解析テクニックを導入し、TiO₂の非調和的振動を詳細に解析した。さらに、スパースモデリングの任意パラメータの最適化を行い、最も確からしい核密度分布を再現した。また、機械学習を用いて電子密度解析におけるアーティファクトの検出を試み、高精度での検出に成功した。これにより、解析精度と効率が向上し、広範な応用が期待される。

研究成果の学術的意義や社会的意義

この研究は、従来の解析法では明確に捉えられなかった詳細な核密度分布をスパースモデリングで明らかにすることで、物質内部の微細構造の理解を深化させるものである。特に、KDPやTiO₂などの物質の解析において、新たな知見を提供した。さらに、G-type解析テクニックの導入により、幅広いデータセットへの対応が可能となり、解析手法の汎用性が向上した。機械学習を用いたアーティファクト検出の成功は、解析精度を大幅に向上させるだけでなく、新材料開発やエネルギー分野の進展に寄与する。この研究は、学術的に重要な技術革新をもたらし、社会的にも広範な応用が期待される。

研究成果の概要（英文）：In this study, we developed a program to analyze neutron diffraction data using sparse modeling and applied it to materials such as KDP, confirming detailed nuclear density distributions that could not be clearly identified with conventional methods. Additionally, we introduced a G-type analysis technique for powder diffraction data, enabling detailed analysis of anharmonic vibrations in TiO₂. Furthermore, we optimized the arbitrary parameters of sparse modeling to reproduce the most probable nuclear density distributions. We also attempted to detect artifacts in electron density analysis using machine learning, achieving high-precision detection. These advancements improve the accuracy and efficiency of analysis and are expected to have wide-ranging applications.

研究分野：計算物理学

キーワード：スパースモデリング 核密度解析 中性子線回折

1. 研究開始当初の背景

中性子線回折は原子核密度、正確には散乱長密度のフーリエ変換で与えられる。そのため、中性子線回折データを逆フーリエ変換すれば原子核密度が得られるはずであるが、観測されるデータ数が有限であるため生じるギブス振動や測定誤差により詳細な核密度分布を得ることは難しい。そのため最小自乗法や最大エントロピー法 (Maximum Entropy Method: MEM) による解析が行われて来た。いくつかの系では、MEM を用いることで少ない観測データから最小自乗法よりも詳細な核密度分布が再現できることが報告されている。

しかしながら、原理的に MEM は観測データを再現する核密度分布のうち最も変化の緩やかなもの (エントロピーの大きいもの) を選ぶ傾向にある。一方、核密度分布は原子の平衡位置に局在している (スパースである) ため、MEM による解析とは本来相性が悪いと予想できる。

近年、元となるデータのスパース性を利用して、少ない観測データから元のデータを推定する手法としてスパースモデリングが注目されており、ブラックホールの分布の解析などで成果をあげている。

そこで我々は、中性子線回折の解析にスパースモデリングを適用すれば、より少ないデータで詳細な核密度分布を再現できるのではないかと考えた。

2. 研究の目的

本研究の目的は、原子核密度分布のスパース性に着目し、中性子線回折のデータ解析にスパースモデリングを用いることで、少ない観測データからより詳細な原子核密度分布を求める新しい手法を開発することである。さらに、この解析プログラムを汎用化ならびに高速化し、MEM に代表される従来の解析法に取って代わる手法として確立することを目的とする。

3. 研究の方法

本研究では、以下の3つのステップにより研究を行った。

(1) 解析プログラムの作成と有効性の確認

まず、我々の研究室にある中性子線回折データをスパースモデリングにより解析するプログラムを作成し、実際に適用することで問題点の洗い出しを行う。例えば、MEM による解析ではしばしば解析結果が核密度分布の初期値の選び方に依存する場合があることが分かっている。また、対称性の高い系では稀に対称性の高い位置に不合理な核密度分布のピークが現れることが知られている。そこでまず、スパースモデリングにこのような解析上の問題点が無いかを確認する。また、スパースモデリングではデータ (核密度分布) のスパース性の強さの入れ方に任意性がある。それが解析結果にどのように影響するか、またスパース性をどの程度考慮すれば最適な解が得られるかという客観的な指針を調べる必要がある。

こうした問題点の有無の確認と手法としての最適化を施した後、よく知られた系に適用することで、スパースモデリングの従来法に対する有効性を確認する。

(2) 解析の高速化

スパースモデリングでは、膨大な数の変数 (核密度分布) で記述されるラグランジアン の極小値を求める必要がある。予備的な解析では最急降下法で極小値を探したが、極小値を見つけるまでに MEM 解析に比べて 10 倍以上の逐次計算が必要であった。MEM と比べて解析結果に優位性があっても解析が遅いと手法として普及しない可能性がある。

幸い、スパースモデリングは線形の最適化問題であるため多くの加速法が提案されている。そこでフーリエ変換が主要な部分になると予測されるが、中性子線解析に効果的な加速法を調べて解析の高速化を図る。

(3) 解析プログラムの汎用化

上記の(1)、(2)でスパースモデリングが中性子線解析の手法として優位であることを確認した上でプログラムの汎用化を行う。具体的には任意の結晶系と構成原子からなる試料の回折データに対して解析が行えるようにする。

以上のことより、MEM や最小自乗法に代わってより詳細な核密度分布を解析できる手法を提供する。

4. 研究成果

(1) スパースモデリングを用いた中性子線回折データ解析プログラムの開発と応用

本研究では、中性子線回折データをスパースモデリングにより解析することで詳細な核密度分布を求めるプログラムを開発し、その有効性を確かめた。スパースモデリングは、データがスパースであるという仮定のもと、従来の最大エントロピー法 (MEM) よりも詳細な情報を引き出すことが可能である。典型的な強誘電体である KDP の常誘電相において、この手法を適用した結果、水素原子が二つのサイトに存在することを明確に確認することができた。この成果は J. Phys.

Soc. Jpn に投稿され、注目論文に選ばれるなど、高い評価を得た。

KDP は常誘電相で二つの安定な水素原子サイトを持つことが知られていたが、従来の MEM 解析ではこの事実を明確に示すことが困難であった。しかし、スパースモデリングを用いることで、核密度分布の詳細な解析が可能となり、水素原子が二つのサイトに安定して存在することを確認した。この結果は、スパースモデリングが MEM よりも優れていることを示しており、今後の中性子線回折データ解析において重要な技術となることが期待される。

(2) プログラムの改良と新規データへの適用

2020 年度には、スパースモデリングを用いた解析プログラムに対して、G-type 解析テクニックを導入した。これにより、粉末の回折データなどで反射が重なった場合の解析が可能となり、プログラムの汎用性が大幅に向上した。この改良により、より多くの回折データに対して詳細な解析が可能となり、広範な応用が期待される。さらに、この改良されたプログラムを TiO₂ の中性子線回折データに適用し、G-type を含む回折データの解析が有効であることを確認した。TiO₂ では、酸素原子の非調和的な振動が知られていたが、従来の MEM 解析ではその振動の詳細を明確に捉えることができなかった。スパースモデリングを用いた解析では、酸素原子の非調和的な振動に対応した核密度分布が三角形に歪んでいることがはっきりと確認され、G-type 解析テクニックの有効性が示された。

(3) 任意パラメータの最適化と新たな適用分野の開拓

2021 年度の研究では、スパースモデリングに必要な任意パラメータの最適化に焦点を当てた。スパースモデリングは、実験的に得られていない情報についてスパースであるという仮定のもとに解析を行うが、その際のスパース性をコントロールするパラメータには任意性がある。このパラメータを適切に調整することで、最も確からしい核密度分布を再現することが可能である。本研究では、データのスパース性を L1/2 ノルムで制御し、解析の結果、スパース性がない場合の L1/2 ノルムの値に対して半分程度の値を収束値とすることで、最も確からしい核密度分布が得られることを明らかにした。この成果は、秋の日本物理学会で発表され、高い評価を受けた。また、スパースではない核密度分布に対してもスパースモデリングが有効かどうかを検証するため、イオン伝導体に対する解析を行い、MEM との比較を行った。その結果、スパースモデリングは MEM と定量的にほぼ同じ核密度分布を与えることが確認され、広がった核密度に対しても無理にスパースにすることなく、正確に解析できることが示された。

(4) スパースモデリングのさらなる発展と機械学習の応用

2022 年度には、スパースモデリングを用いた解析手法をさらに発展させるため、以下の二つのテーマに取り組んだ。一つは、X 線回折データを用いた電子密度解析への応用である。スパースモデリングがイオン伝導物質のように局在していない核密度にも無理に局在化せず解析できることがわかったため、電子密度解析にも応用可能であると考え、予備的な解析を行った。従来の電子密度解析では MEM が多用されていたが、スパースモデリングによる解析が可能であれば、核密度解析から電子密度解析まで一貫したアルゴリズムで解析できる可能性がある。もう一つは、機械学習によるアーティファクトの検出である。対称性の高い系では、電子密度解析において原子が存在しない位置に電子密度のピークが観測されるアーティファクトがしばしば発生する。機械学習を用いてこれらのアーティファクトを検出・除去する試みを行い、予備的な解析では 90%以上の精度でアーティファクトを検出することに成功した。この結果は、電子密度解析の精度向上に大きく寄与するものである。これらの研究成果は、スパースモデリングが中性子線および X 線回折データの解析において、従来の方法よりも詳細で正確な情報を提供できることを示しており、今後の材料科学および物理学研究において重要な技術となることが期待される。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2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 Abe Tomohiro, Kim Sangwook, Moriyoshi Chikako, Kitanaka Yuuki, Noguchi Yuji, Tanaka Hiroshi, Kuroiwa Yoshihiro | 4. 巻 117 |
| 2. 論文標題 Visualization of spontaneous electronic polarization in Pb ion of ferroelectric PbTiO ₃ by synchrotron-radiation x-ray diffraction | 5. 発行年 2020年 |
| 3. 雑誌名 Applied Physics Letters | 6. 最初と最後の頁 252905 ~ 252905 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0037396 | 査読の有無 有 |
| 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 - |

| | |
|---|-------------------------------|
| 1. 著者名 Tanaka Hiroshi, Oie Michihiro, Oko Kazuki | 4. 巻 88 |
| 2. 論文標題 A Method Evaluating Nuclear Density from Neutron Diffraction Data by Using Sparse Modeling | 5. 発行年 2019年 |
| 3. 雑誌名 Journal of the Physical Society of Japan | 6. 最初と最後の頁 053501 ~ 053501 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7566/JPSJ.88.053501 | 査読の有無 有 |
| 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6件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

| |
|----------------------------------|
| 1. 発表者名 森田卓実, 田中宏志 |
| 2. 発表標題 スパース・モデリングによる核密度解析の考察 |
| 3. 学会等名 日本物理学会 |
| 4. 発表年 2021年 |

| |
|----------------------------|
| 1. 発表者名 廣見開成, 田中宏志 |
| 2. 発表標題 リッジ回帰を用いた電子密度解析 |
| 3. 学会等名 日本物理学会 |
| 4. 発表年 2021年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 田中宏志, 齊藤 高志, 森 一広, Seungyub Song, Widya Rika, 神山崇 |
| 2. 発表標題 スパースモデリングによるイオン伝導体の原子核密度解析 |
| 3. 学会等名 中性子線科学会 |
| 4. 発表年 2021年 |

| |
|-----------------------------------|
| 1. 発表者名 田中宏志 |
| 2. 発表標題 スパースモデリングを用いた核密度解析の高速化 |
| 3. 学会等名 日本物理学会 |
| 4. 発表年 2019年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 齊藤武宏, 田中宏志 |
| 2. 発表標題 電子密度解析におけるアーティファクトの機械学習による検出I |
| 3. 学会等名 日本物理学会 |
| 4. 発表年 2023年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 大西善基, 田中宏志 |
| 2. 発表標題 電子密度解析におけるアーティファクトの機械学習による検出II |
| 3. 学会等名 日本物理学会 |
| 4. 発表年 2023年 |

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

田中宏志教授の論文がJPSJの 注目論文 に選ばれました
<https://www.riko.shimane-u.ac.jp/docs/2019051400057/>

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 |
|---------|---------|
|---------|---------|