

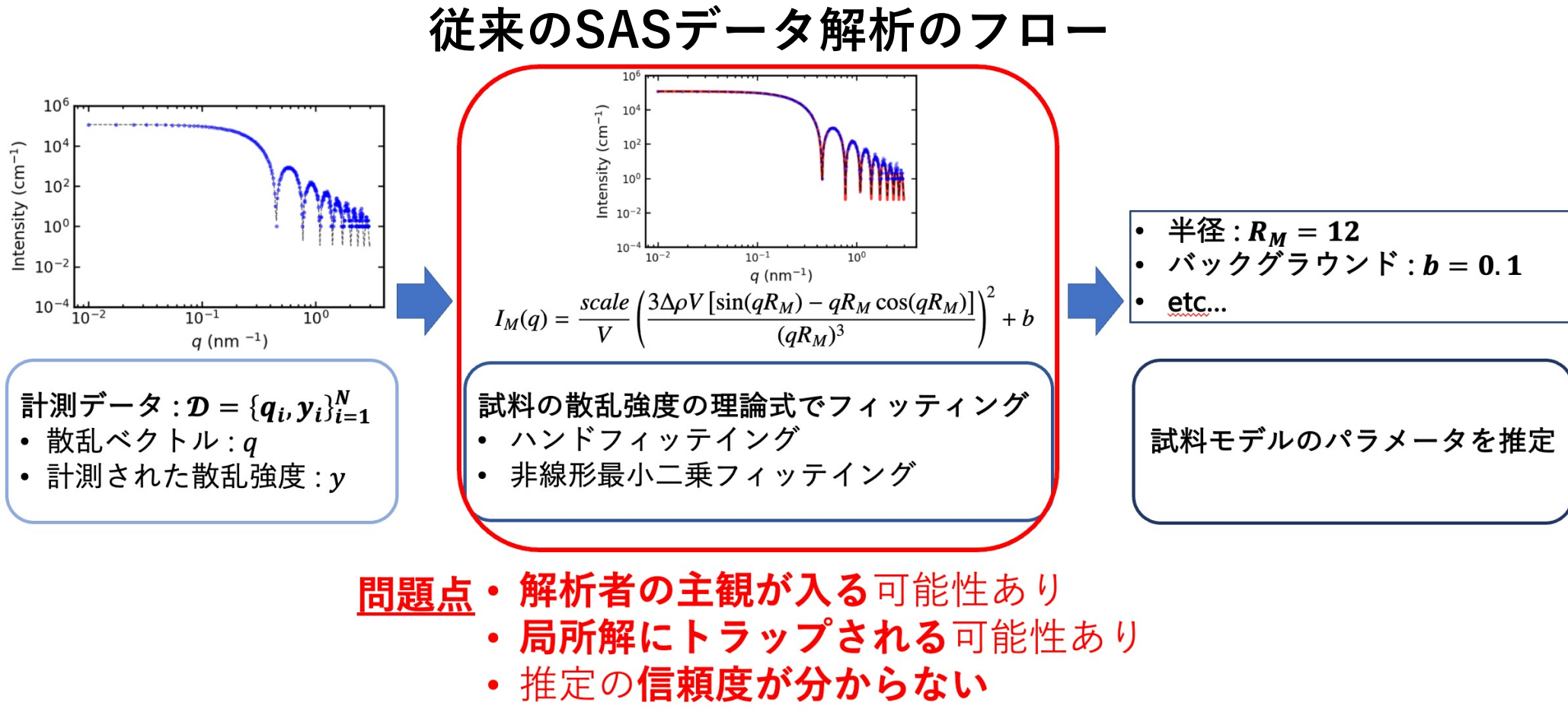
小角散乱法の計測データを用いた試料パラメータのベイズ推定

林 悠偉^A, 片上 舜^A, 桑本 滋生^B, 永田 賢二^C, 水牧 仁一郎^B, 岡田 真人^A^A東京大学大学院 新領域創成科学研究科, ^B公益財団法人高輝度光科学研究センター, ^C国立研究開発法人物質・材料研究機構

研究背景

小角散乱(SAS)法[1]は、X線や中性子線を試料に照射して生じる散乱のうち小角度領域の散乱強度を調べることで試料構造を解析する。

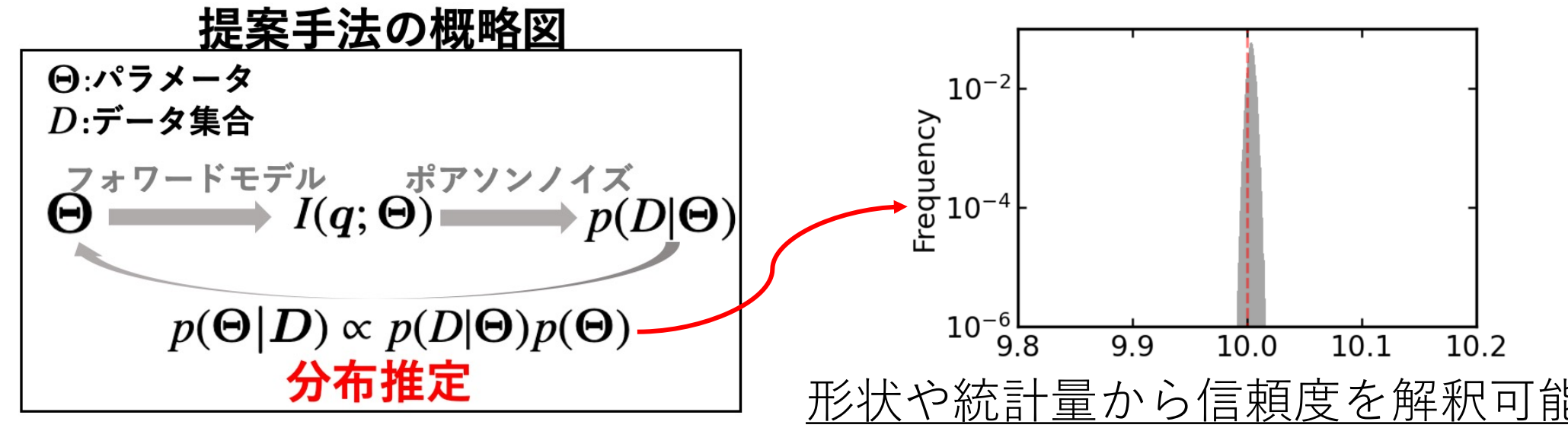
[1] A. Guinier et al.,1955



推定の信頼度を解釈することが出来るパラメータ推定手法が必要

目的

- パラメータを**分布推定**し、推定の**信頼度が解釈可能**な手法を提案する。
- 単分散球粒子の人工データを用いて提案手法の性能を評価する。



定式化

単分散球粒子のデータ生成過程

- 散乱ベクトル: q
 - 散乱強度: $I_M(q) = \left(\frac{\phi}{V} F(q, R_M)^2 + b \right) \times t$
- $\Delta\rho = \rho_s - \rho_m$
- $F(q, R_M) = \Delta\rho V \Phi(qR_M)$
- $\Phi(qR_M) = \frac{3[\sin(qR_M) - qR_M \cos(qR_M)]}{(qR_M)^3}$
- 入射光波数: k_i
- 散乱光波数: k_s
- 試料
- $q = |q| = |k_s - k_i| = \frac{4\pi \sin\theta}{\lambda}$

散乱強度は検出器に入射された光子の数として計測されるので、データ生成過程はポアソン過程であると仮定

散乱強度の計測値: $y = \text{Poisson}(I_M(q)) \cdots (1)$

ベイズ推論[2]

- 計測データ: $\mathcal{D} = \{q_i, y_i\}_{i=1}^N$
 - モデルパラメータ: $\Theta = \{R_M, b, t\}$
 - 散乱強度の計測値の分布: $p(y_i|q, \Theta) = \frac{I(q; \Theta)^{y_i} \exp(-I(q; \Theta))}{y_i!}$
 - 尤度: $p(\mathcal{D}|\Theta) = \prod_{i=1}^N p(y_i|q, \Theta) = \exp(-NE(\Theta))$
 - 事後分布: $p(\Theta|\mathcal{D}) = \frac{p(\mathcal{D}|\Theta)p(\Theta)}{\int p(\mathcal{D}, \Theta)d\Theta} \propto \exp(-NE(\Theta))p(\Theta)$
- ポアソンコスト
- $E(\Theta) \equiv \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \left\{ I(q; \Theta) - y_i \log I(q; \Theta) + \sum_{j=1}^{y_i} \log j \right\}$
- [2] K. Nagata, et al., 2019

交換モンテカルロ(EMC)法[3]

逆温度 $\beta_1, \beta_2, \dots, \beta_L$ を用意し、次式の同時確率から Θ をサンプリング

$$p(\Theta_1, \Theta_2, \dots, \Theta_L | \mathcal{D}, \beta_1, \beta_2, \dots, \beta_L) = \prod_{l=1}^L p(\Theta_l | \mathcal{D}, \beta_l)$$

EMCのアルゴリズムの概要

- 各レプリカで独立なMCMCサンプリング
- 隣り合うレプリカ間で状態を交換
→局所解から逃れることが可能

[3] K. Hukushima and K. Nemoto, 1996

EMCの概念図

数値実験

- 単分散球の人工データ $\mathcal{D}$ からモデルパラメータ Θ を分布推定する。
- 推定結果を、提案手法と非線形最小二乗フィッティングで比較する。

モデルパラメータ

半径 R_M , バックグラウンド b , 計測時間 t

$$\Theta = \{R_M, b, t\}$$

真値 $\Theta^* = \{R_M^*, b^*, t^*\}$ は表1の値である。

表1: モデルパラメータの真値

Radius R_M^* (nm)	10
Background noise b^* ($\text{cm}^{-1} \text{sr}^{-1}$)	0.01
Measuring time t^*	10

人工データの生成

- 波数 $\{q_i\}_{i=1}^N$ を $[q_{\min}, q_{\max}]$ の区間で等間隔に $N = 400$ 個与える
 - $\{q_i\}_{i=1}^{400}$ に対して式(1)から散乱強度の計測値 $\{y_i\}_{i=1}^{400}$ を計算
- 以上の手順で、 $\mathcal{D} = \{q_i, y_i\}_{i=1}^{400}$ を得た。

実験設定

① データが十分に得られている場合

$$q_{\min} = 0.01 \text{ nm}^{-1}, \quad q_{\max} = 3.0 \text{ nm}^{-1}$$

② 小角領域のデータが得られていない場合

$$q_{\min} = 2.35 \text{ nm}^{-1}, \quad q_{\max} = 3.0 \text{ nm}^{-1}$$

③ データが殆ど得られていない場合

$$q_{\min} = 2.65 \text{ nm}^{-1}, \quad q_{\max} = 3.0 \text{ nm}^{-1}$$

結果

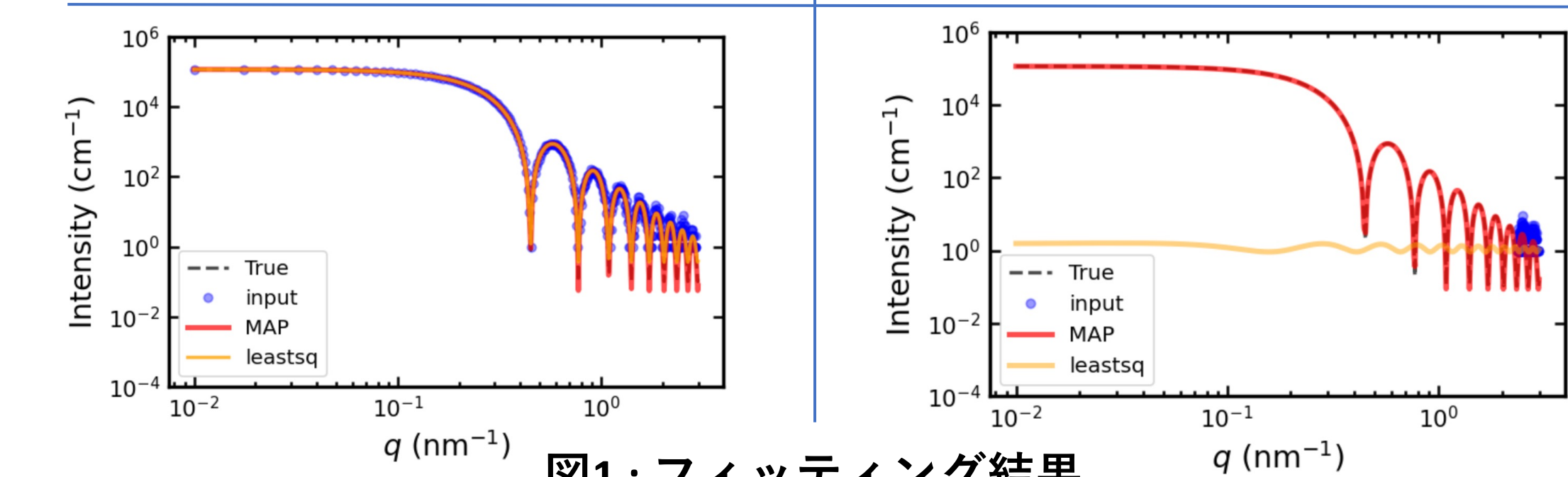


図1: フィッティング結果

- 小角領域のデータの欠損に対して堅牢

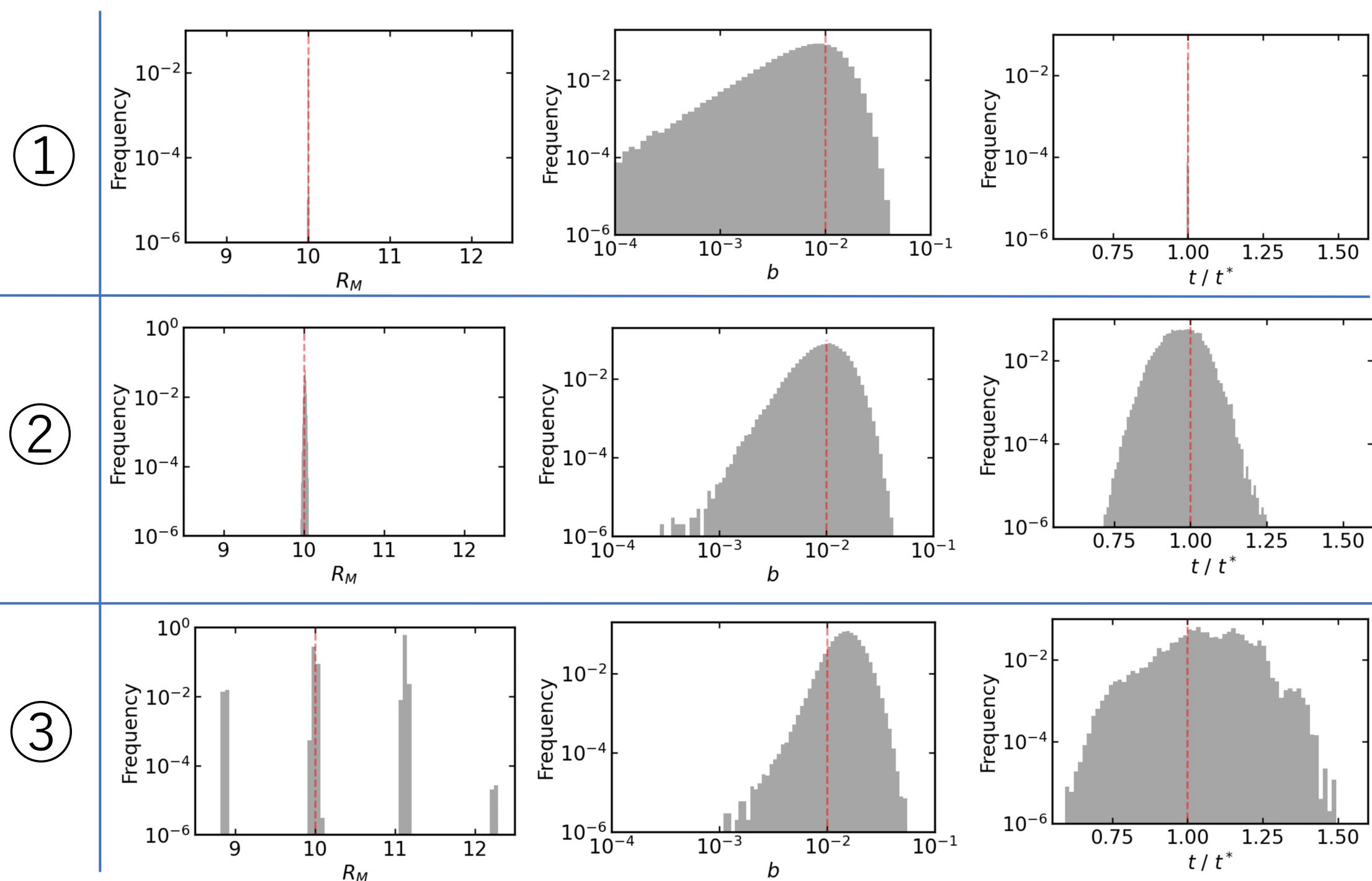


図2: 各モデルパラメータの事後分布(破線: 真値)

- R_M, t の推定では $q_{\min}$ が大きくなるに連れて不確かさが大きくなる
- ③の R_M の分布は複数ピークを持っている
→ $q_{\min} = 2.65 \text{ nm}^{-1}$ のときは推定限界を迎えている

まとめ

- 分布推定することで推定の信頼度を分布形状や統計量から解釈可能
- 小角領域のデータの欠損に対して堅牢な推定が可能