小角散乱法データを用いた 試料パラメータのベイズ推論

林悠偉[A]，片上舜[A]，桑本滋生[B]，永田賢二[C]，
水牧仁一朗[B]，岡田真人[A]

東大新領域[A] 高輝度光科学研究セ[B] 物材機構[C]

目次

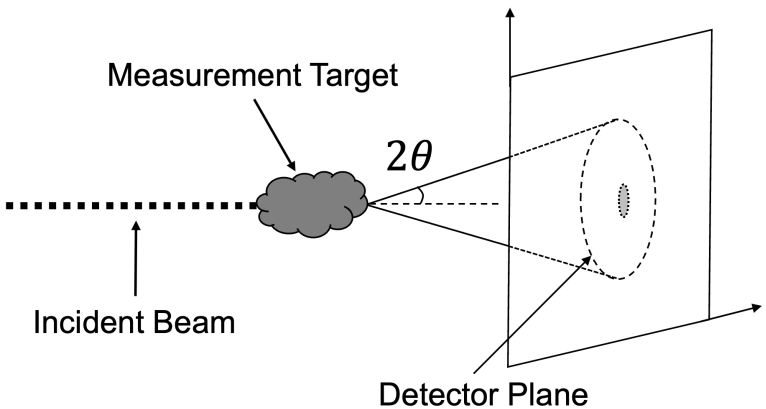
目次

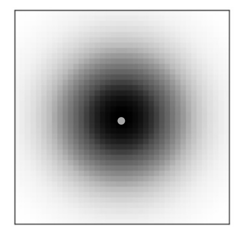
- 小角散乱法の実験概要
- 従来の解析方法
- ベイズ推定
- 数値実験

小角散乱 (SAS)

試料にX線や中性子線を照射して生じる散乱のうち**小さい角度領域の散乱強度**を調べ，試料の周期構造やナノ粒子の大きさ等の**ナノスケールの構造情報を非破壊的に解析**する.

実験の概略図

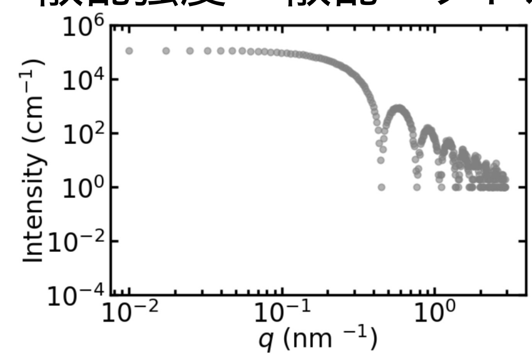




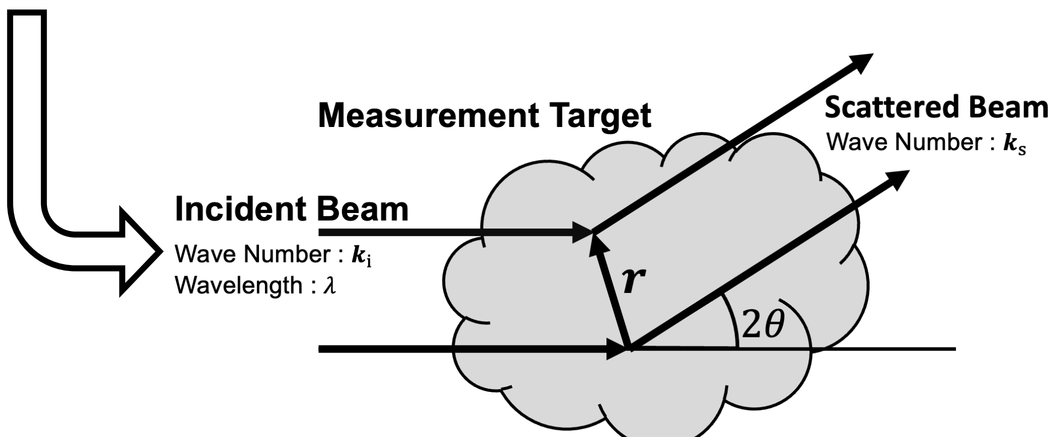
SAS Pattern

積分

散乱強度 – 散乱ベクトル



計測データ



Scattering Vector :

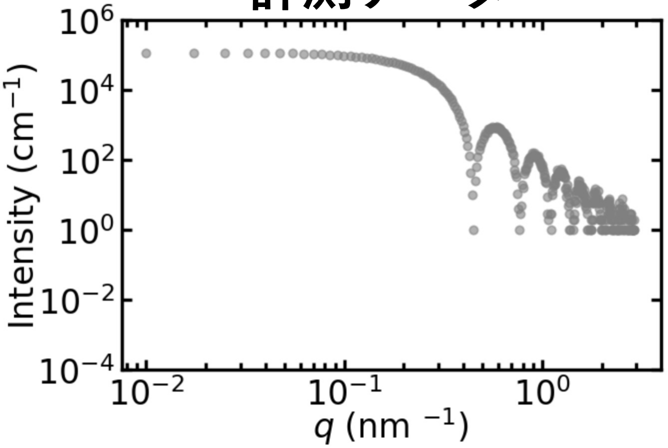
$$q = |\boldsymbol{q}| = |\boldsymbol{k}_s - \boldsymbol{k}_i| = \frac{4\pi\sin\theta}{\lambda}$$

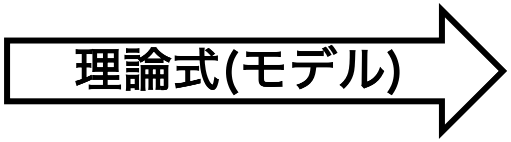
SASデータ解析

計測データに対してフィッティングを行い，試料の大きさなどのパラメータを推定する．

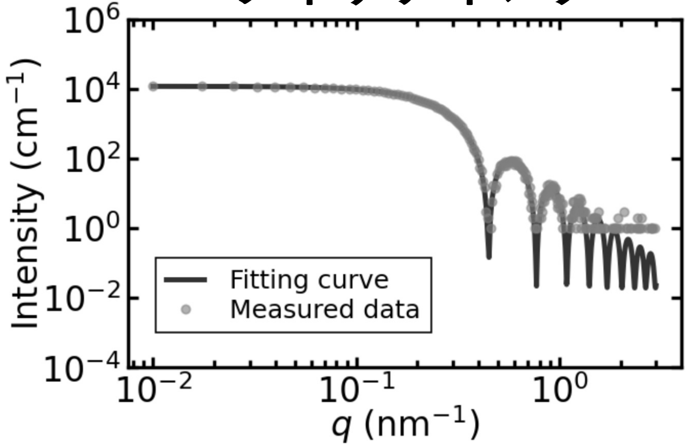
例：単分散球の場合

計測データ





フィッティング



モデル

散乱強度：

$$I_M(q;\Theta) = \left[\frac{\phi}{V}\left\{\frac{3\Delta\rho V\left[\sin(qR_M) - qR_M\cos(qR_M)\right]}{(qR_M)^3}\right\}^2 + b\right] \times t$$

パラメータ： $\Theta = \{R_M, b, t\}$

パラメータΘを推定

目次

- X線小角散乱法の実験概要
- 従来の解析方法
- ベイズ推定
- 数値実験

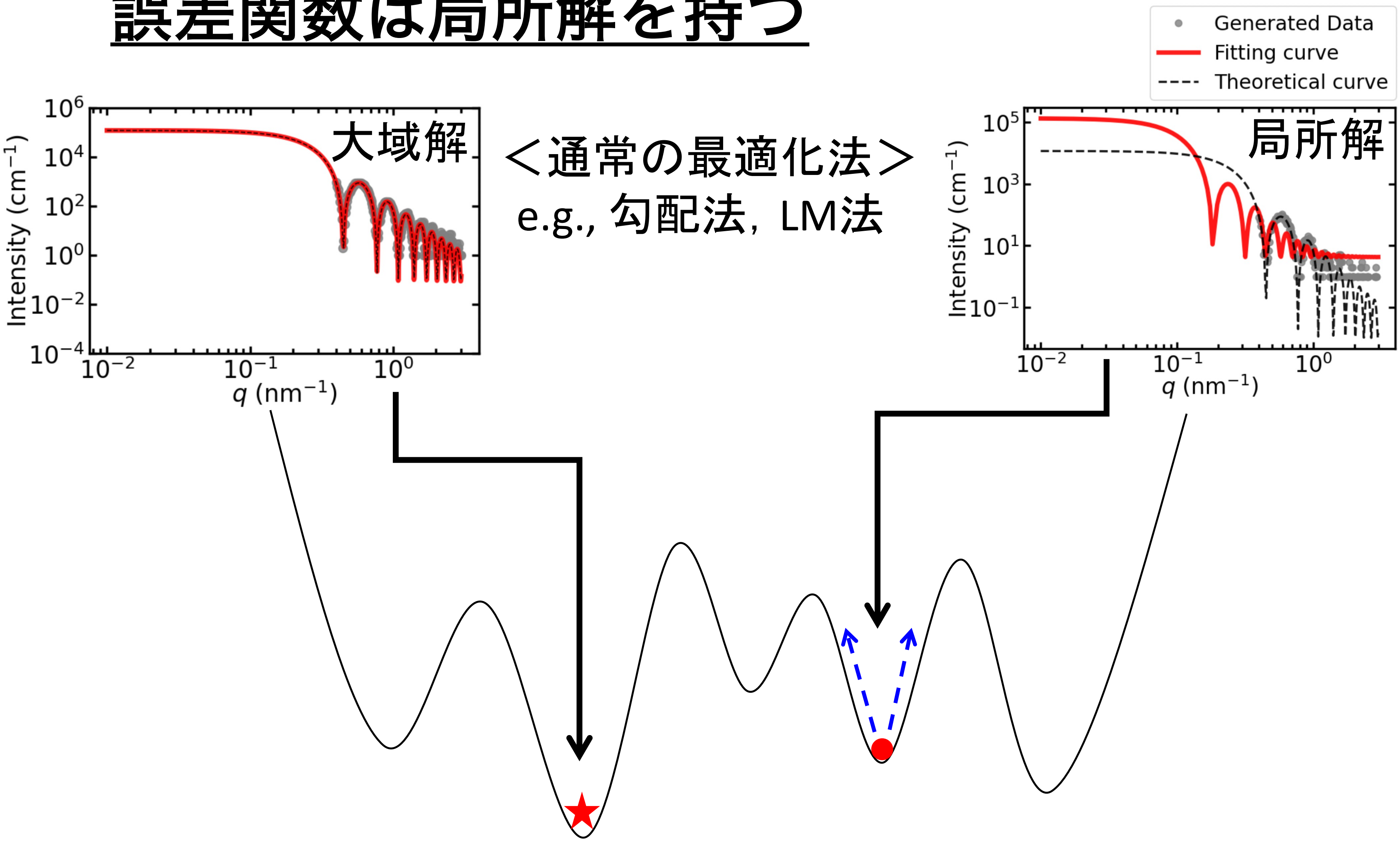
従来のフィッティング方法

- 非線形最小二乗法(勾配法，Levenberg-Marquardt法)
- ハンドフィッティング

問題点

- **局所解**に陥りやすく，逃れる機構を持たない．
- 推定結果の**信頼度**を調べることが難しい．
- 解析過程で用いた**事前知識**が客観的に分かり難い．

誤差関数は局所解を持つ



局所解から逃れることが可能で，
推定の信頼度を解釈することが出来る解析手法が必要

目次

- X線小角散乱法の実験概要
- 従来の解析方法
- ベイズ推定
- 数値実験

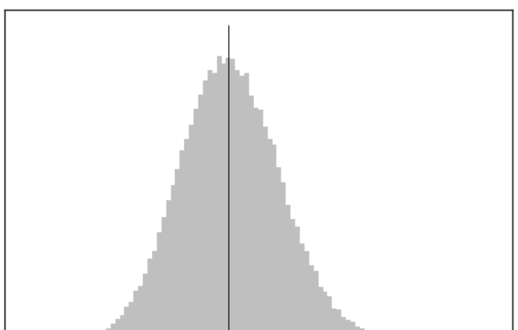
ベイズ推定

計測データからパラメータを事後分布として分布推定する.

パラメータ: Θ ⇨ 理論モデル : $I_M(\Theta)$ (散乱強度) ⇨ 計測データ : $\mathcal{D}$ $p(\mathcal{D}|\Theta)$

ベイズの定理 : $p(\Theta|\mathcal{D}) = \dfrac{p(\mathcal{D}|\Theta)p(\Theta)}{\int p(\mathcal{D},\Theta)d\Theta}$

ベイズ推定



パラメータの推定結果 (事後分布)

- ピーク形状
- 統計量 (分布の分散, 信用区間,…)

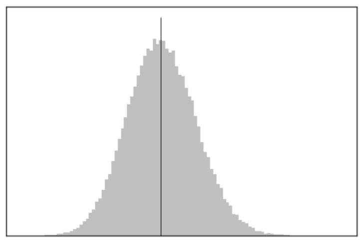
信頼度を解釈

ベイズ推定の要点

- パラメータのサンプリングに交換モンテカルロ法[1](EMC) を用いることで局所解から逃れることが可能.

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

- 分布推定することで形状や統計量から信頼度を解釈することが可能.



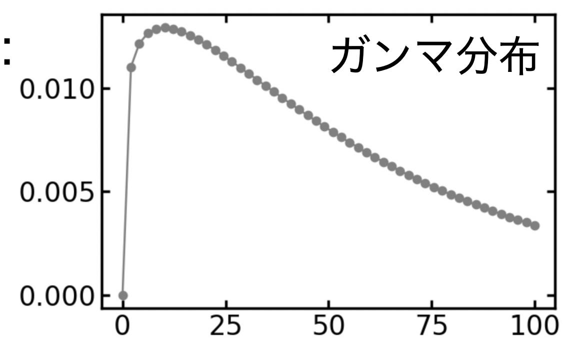
パラメータの推定結果
(事後分布)

- ピーク形状
- 統計量 (分布の分散，信用区間,⋯)

信頼度を解釈

- 事前知識を事前分布として，陽に用いることが可能.

例：正の領域で定義されるθの事前分布$p(\theta)$：

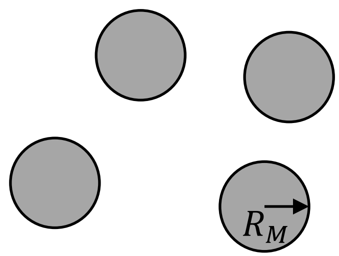


目次

- X線小角散乱法の実験概要
- 従来の解析方法
- ベイズ推定
- 数値実験

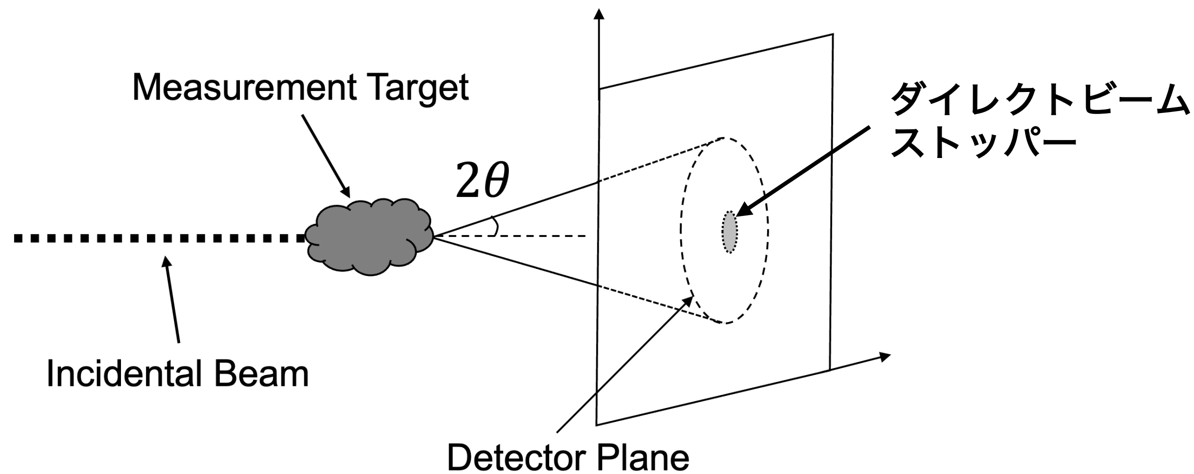
数値実験：モデルパラメータの推定

単分散球から成る試料の人工データから，パラメータ Θ を推定する.



例：ゴム中に希薄に分散させた
シリカ粒子など

単分散球



SAS概念図

目的

データの**小角領域の欠損**に対して**パラメータ推定の限界**を調べる.

パラメータ推定の手順

1. 理論モデルとパラメータΘの事前分布を設定する.

2. 事後分布からパラメータΘをEMCでサンプリングする.

数値実験 – 設定

理論モデル

散乱強度：$I_M(q;\Theta) = \left[\frac{\phi}{V} \left\{ \frac{3\Delta\rho V \left[\sin(qR_M) - qR_M \cos(qR_M)\right]}{(qR_M)^3} \right\}^2 + b \right] \times t$

パラメータ：$\Theta = \{R_M, b, t\}$

R_M: 粒子の半径
b : バックグラウンドノイズ
t : 計測時間

コスト関数

ポアソンコスト関数：$E(\Theta) = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^{N} \left\{ I(q_i;\Theta) - y_i \log I(q_i;\Theta) + \sum_{j=1}^{y_j} \log j \right\}$

事前分布

パラメータΘの事前分布： $p(\Theta) = p(R_M)p(b)p(t)$

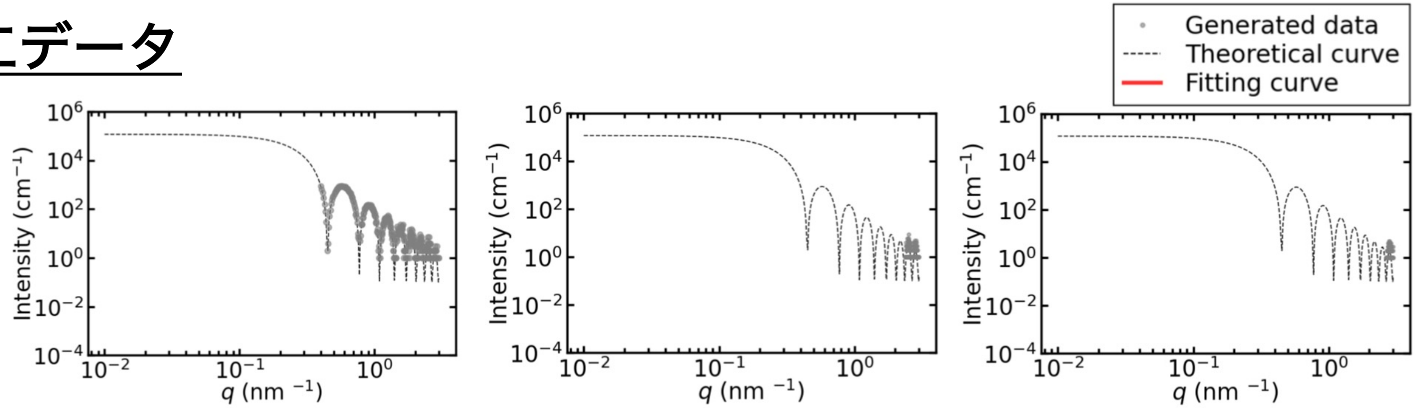
粒子の半径R_M： $p(R_M) = \mathrm{Gamma}(1.5, 100)$

バックグラウンドノイズb： $p(b) = \mathrm{Gamma}(1.8, 1)$

計測時間t： $p(t) = \mathrm{Gamma}(1.1, 1)$

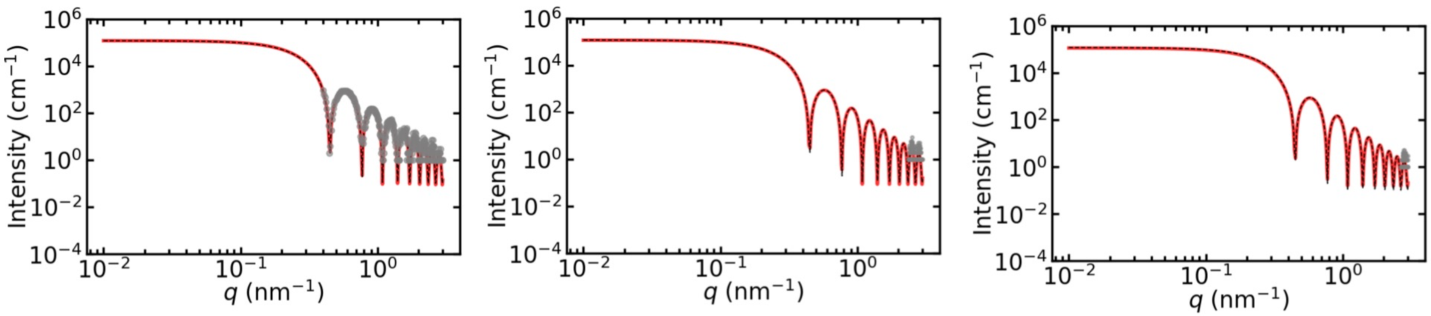
数値実験 – 結果

人工データ



$(a)\ q_{\min} = 0.4\ \mathrm{nm}^{-1}$　$(b)\ q_{\min} = 2.35\ \mathrm{nm}^{-1}$　$(c)\ q_{\min} = 2.65\ \mathrm{nm}^{-1}$

フィッティング結果



$(a)\ q_{\min} = 0.4\ \mathrm{nm}^{-1}$　$(b)\ q_{\min} = 2.35\ \mathrm{nm}^{-1}$　$(c)\ q_{\min} = 2.65\ \mathrm{nm}^{-1}$

MAP推定解

真値

$R_M = 10$

$b = 0.01$

$t = 10$

$q_{\min}$ [nm^{-1}]	R_M [nm]	b [cm^{-1}sr^{-1}]	t
0.4	$10.00^{+0.01}_{-0.01}$	$(8.71^{+15.10}_{-7.01}) \times 10^{-3}$	$10.06^{+0.15}_{-0.16}$
2.35	$10.02^{+0.03}_{-0.03}$	$(8.74^{+15.03}_{-6.15}) \times 10^{-3}$	$9.85^{+1.25}_{-1.55}$
2.65	$10.01^{+1.18}_{-1.16}$	$(1.60^{+1.49}_{-1.01}) \times 10^{-2}$	$9.51^{+4.05}_{-2.06}$

±(99%信用区間)

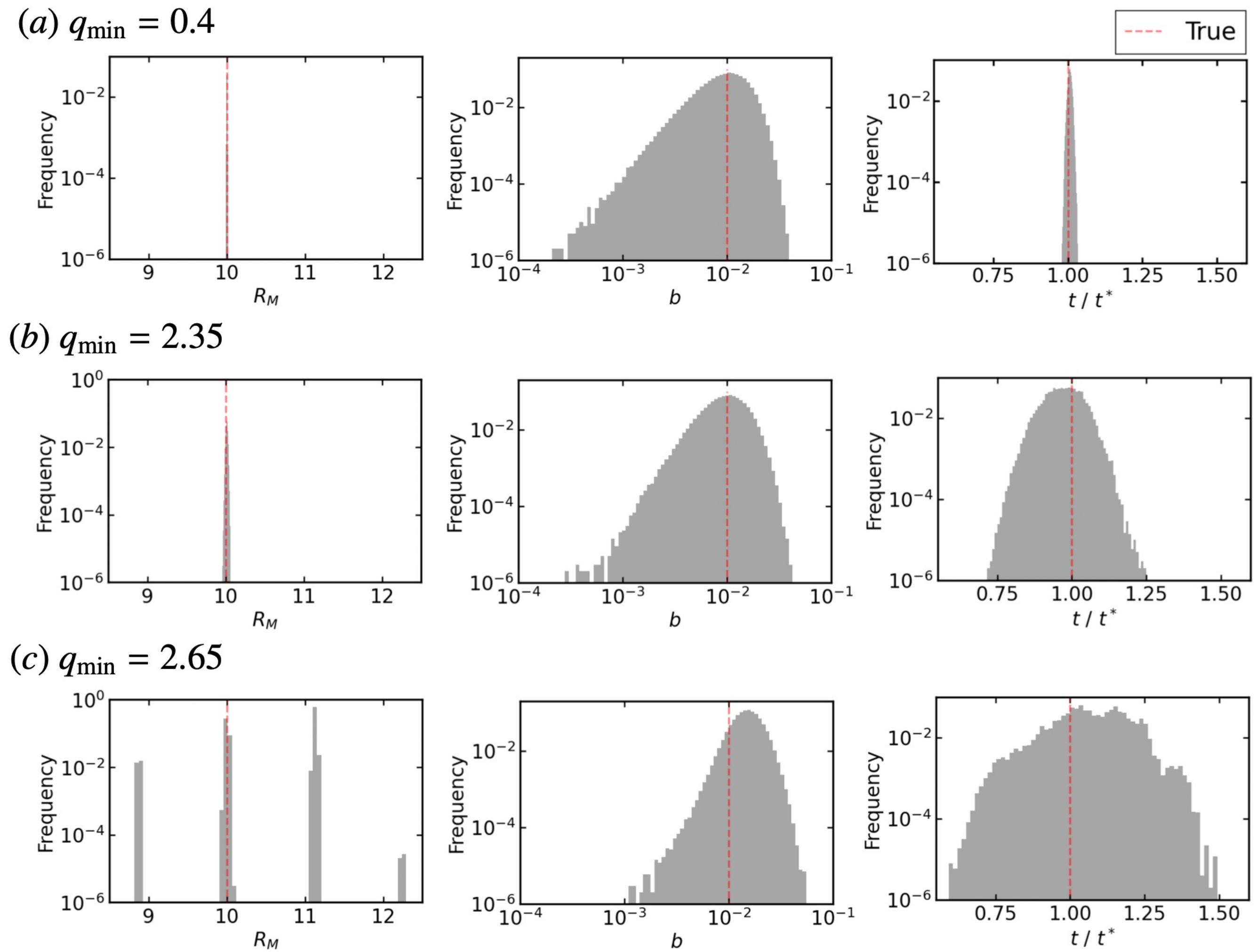
数値実験 – 結果

パラメータの事後分布

データ欠損

小

大



tの真値： t^*

$q_{\min} = 2.65$のときR_Mのヒストグラムに複数のピークが見られる.

→**$q_{\min} = 2.35\ - 2.65\ \mathrm{nm}^{-1}$で推定限界**

まとめ

- 交換モンテカルロ法を用いることで**局所解を避けてパラメータ推定**することが出来た.

- パラメータを分布推定し，**推定の信頼度を解釈**した.
  →データの角度領域の欠損に対する**推定限界**を求めた.

今後の課題

- 現実のデータを用いた本手法の性能評価

- ベイズモデル選択を用いた試料構造の解析