

メスバウアーハミルトニアン推定

森口 椋太

東京大学大学院理学系研究科

自己紹介

- 慶應義塾大学工学部物理学科
 - 量子ドットの非定常電流の理論解析
- 東京大学理学系研究科物理学専攻
 - ベイズ推論によるデータ解析
 - メスバウアースペクトルにおけるベイズ推論の論文 ([Moriguchi, et al. 2022](#))
- 日本物理学会 2023年春季大会 一般発表予定

SPRing-8全ビームラインベイズ化計画

敬称略

情報と放射光研究者のマッチング

メスバウアー

BL35XU 岡田研学生+筒井

小角散乱

BL08B2 岡田研学生+桑本

BL19B2

XAS測定

BL37XU 岡田研学生+水牧

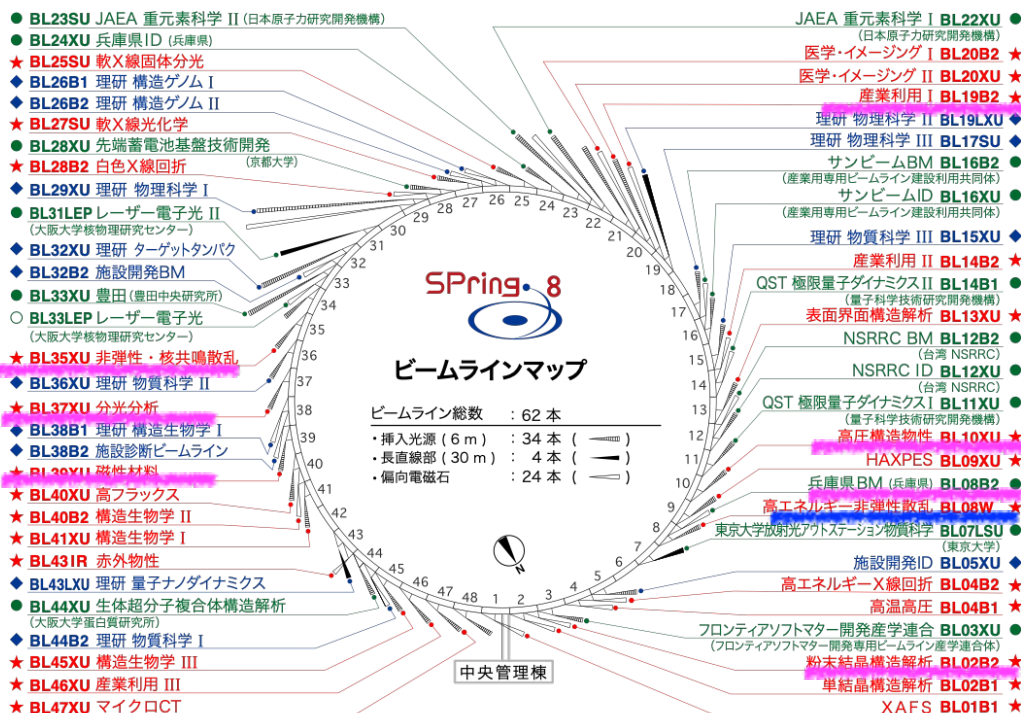
BL39XU

放射光ユーザーへの展開

時分割XRD

BL02B2 横山優一+河口彰吾、沙織

BL10XU ユーザー：公立大、東工大



赤色BLが共用BL(JASRI担当): 計26本

全BL本数: 62本

来年度には過半数をこえる予定

年度	2021	2022	2023
導入	2	8	14
全BL	26	26	26

アンケート

- スペクトルや画像データからフィッティングを行っている
- そのフィッティングの際に、パラメータを手打ちで決めている。最急降下法などを使っているが、うまくいかない。
- フィッティング用のモデルが複数あって、事前にどれを使うかを決めておかないといけない。
- S/Nが悪いデータや欠損データをなんとかした。
- 複数計測の統合を行いたい。
- そのような方は、一度ベイズ計測をお試しく下さい。

目次

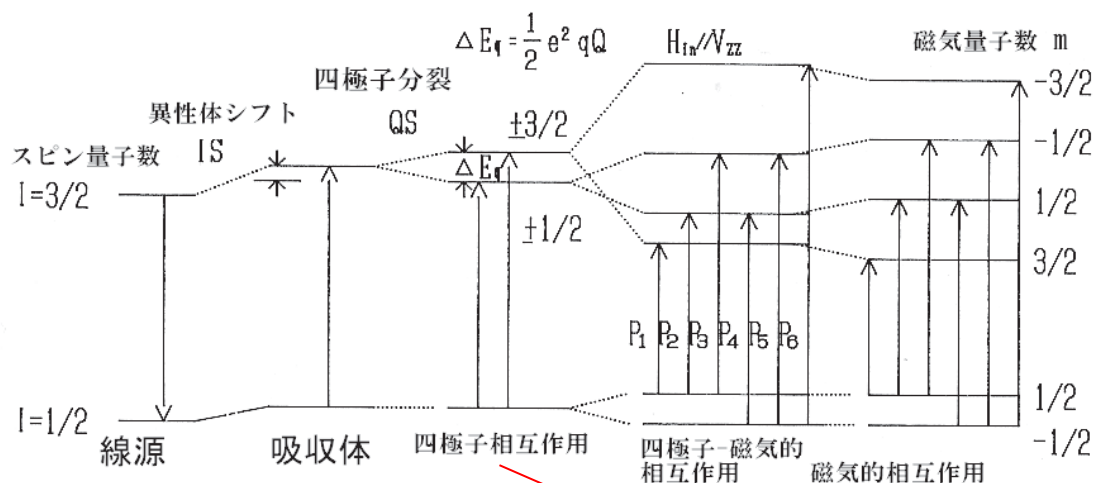
- メスバウアーにおけるハミルトニアン
- メスバウアーにおけるベイズ推論
- 数値実験
- まとめ
- 今後の展望

目次

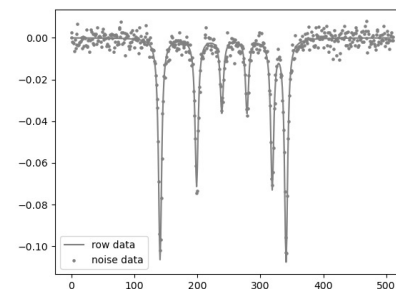
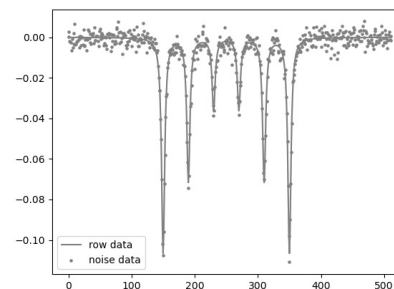
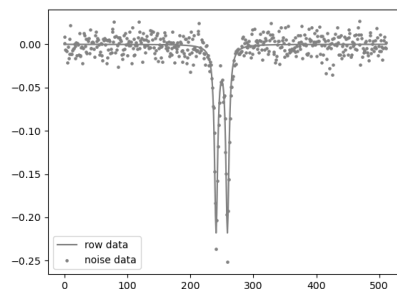
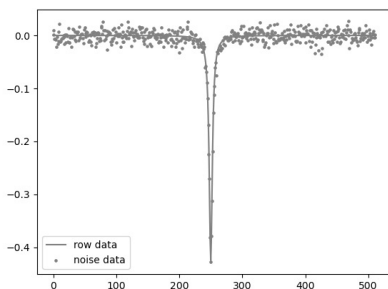
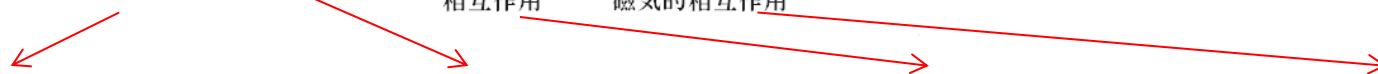
- メスバウアーにおけるハミルトニアン
- メスバウアーにおけるベイズ推論
- 数値実験
- まとめ
- 今後の展望

メスバウアーにおけるハミルトニアン

メスバウアー分光：物質中の原子核の吸収スペクトル



別の測定データや事前情報からハミルトニアンを決定していた



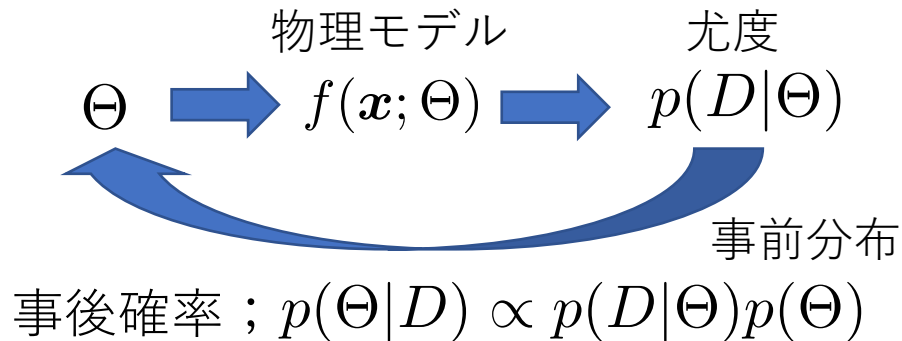
目次

- メスバウアーにおけるハミルトニアン
- メスバウアーにおけるベイズ計測
- 数値実験
- まとめ
- 今後の展望

メスバウアーにおけるベイズ計測

データが得られた時のパラメータの確率（事後確率）を計算
→事後確率から推定値を計算（Nagata et al. 2012）

ベイズ計測概念図



ベイズ自由エネルギー ; $F = -\log \int p(\Theta|D)d\Theta$

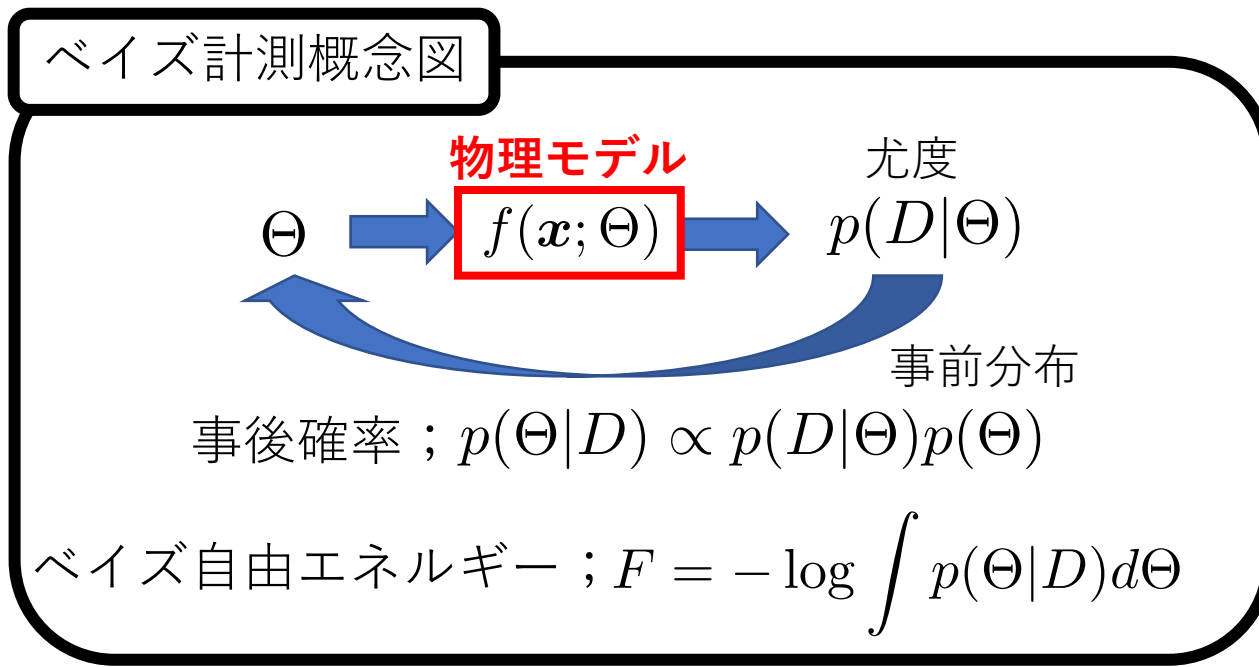
※ Θ : パラメータ集合 D : データ集合

※ $\Theta = \{A, B_{hf}, \eta, \theta, \phi, E_{\text{center}}, \Gamma\}$

メスバウアーにおけるベイズ計測

データが得られた時のパラメータの確率（事後確率）を計算
→事後確率から推定値を計算（Nagata et al. 2012）

ベイズ計測概念図



※ Θ : パラメータ集合 D : データ集合

※ $\Theta = \{A, B_{hf}, \eta, \theta, \phi, E_{\text{center}}, \Gamma\}$

解析手法；物理モデル

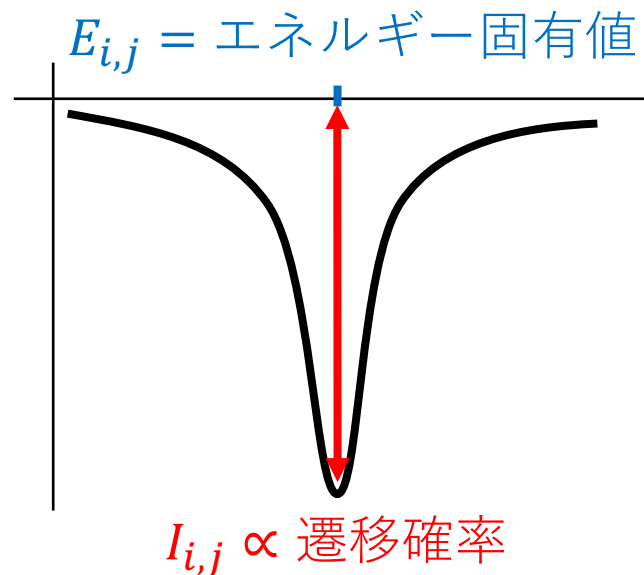
$$\text{物理モデル} : f(x; \Theta) = \sum_{i,j} \frac{1}{\pi} \frac{I_{i,j} \times \Gamma}{(x - E_{i,j} - E_{\text{shift}})^2 + \Gamma^2}$$

物理モデル詳細

$$\begin{aligned} INT_{i,j} &= \int_{\vartheta=0}^{\pi} \int_{\varphi=0}^{2\pi} \mathbf{E}_{M1} \cdot \mathbf{E}_{M1}^* \sin \vartheta d\varphi d\vartheta \\ &= |a_{i,j}(1,1)|^2 + |a_{i,j}(1,0)|^2 + |a_{i,j}(1,-1)|^2 \end{aligned}$$

$$a_{i,j}(\mathbf{L}, m) = \sum_{m_{e_j} - m_{g_i} = m} \langle m_{e_j} | n_{e_j} \rangle \langle m_{g_i} | n_{g_i} \rangle^* \langle I_{g_i} \mathbf{L} m_{g_i} m | I_{e_j} m_{e_j} \rangle$$

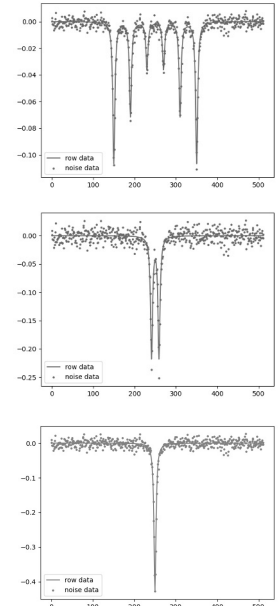
$$E_{i,j} = E_{e,i} - E_{g,j} + E_{\text{center}} \quad \text{※今回は粉末試料を想定}$$



解析手法；物理モデル

スペクトルに関する3つのハミルトニアン

- 磁氣的相互作用項： $H_{M3/2}, H_{M1/2}$
- 四極子相互作用項： $H_{Q3/2}, H_{Q1/2}$
- 異性体シフト： H_c



各ハミルトニアン

$$H_{M3/2} = \begin{pmatrix} \frac{3}{2}\alpha \cos \theta & -\frac{\sqrt{3}}{2}\alpha \sin \theta e^{i\phi} & 0 & 0 \\ -\frac{\sqrt{3}}{2}\alpha \sin \theta e^{-i\phi} & \frac{\alpha}{2} \cos \theta & -\alpha \sin \theta e^{i\phi} & 0 \\ 0 & -\alpha \sin \theta e^{-i\phi} & -\frac{\alpha}{2} \cos \theta & -\frac{\sqrt{3}}{2}\alpha \sin \theta e^{i\phi} \\ 0 & 0 & -\frac{\sqrt{3}}{2}\alpha \sin \theta e^{-i\phi} & -\frac{3}{2}\alpha \cos \theta \end{pmatrix}$$

$$H_{Q3/2} = \begin{pmatrix} 3A & 0 & \sqrt{3}A\eta & 0 \\ 0 & -3A & 0 & \sqrt{3}A\eta \\ \sqrt{3}A\eta & 0 & -3A & 0 \\ 0 & \sqrt{3}A\eta & 0 & 3A \end{pmatrix}$$

$$H_{M1/2} = \begin{pmatrix} -\frac{\beta}{2} \cos \theta & -\frac{\beta}{2} \sin \theta e^{-i\phi} \\ -\frac{\beta}{2} \sin \theta e^{+i\phi} & +\frac{\beta}{2} \cos \theta \end{pmatrix}$$

$$H_{Q1/2} = 0$$

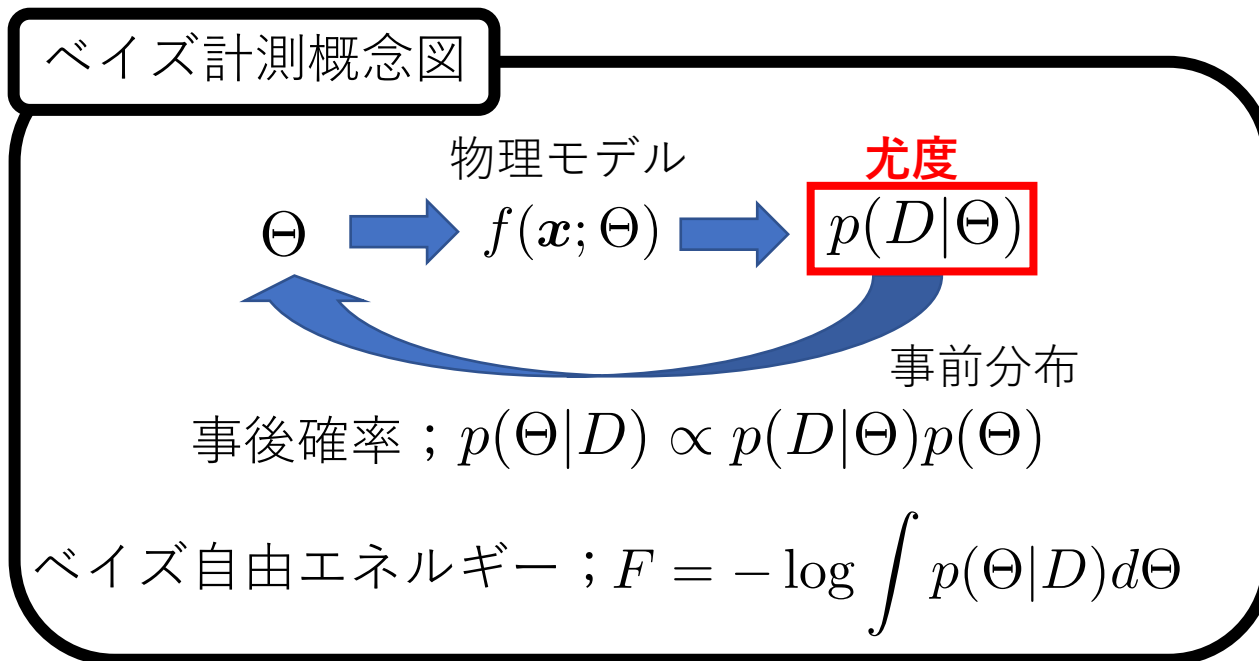
$$H_c = E_{center}$$

$$\begin{aligned} \alpha &= g_{\frac{3}{2}} \mu_N B_{hf} \\ \beta &= g_{1/2} \mu_N B_{hf} \end{aligned}$$

メスバウアーにおけるベイズ計測

データが得られた時のパラメータの確率（事後確率）を計算
→事後確率から推定値を計算（Nagata et al. 2012）

ベイズ計測概念図

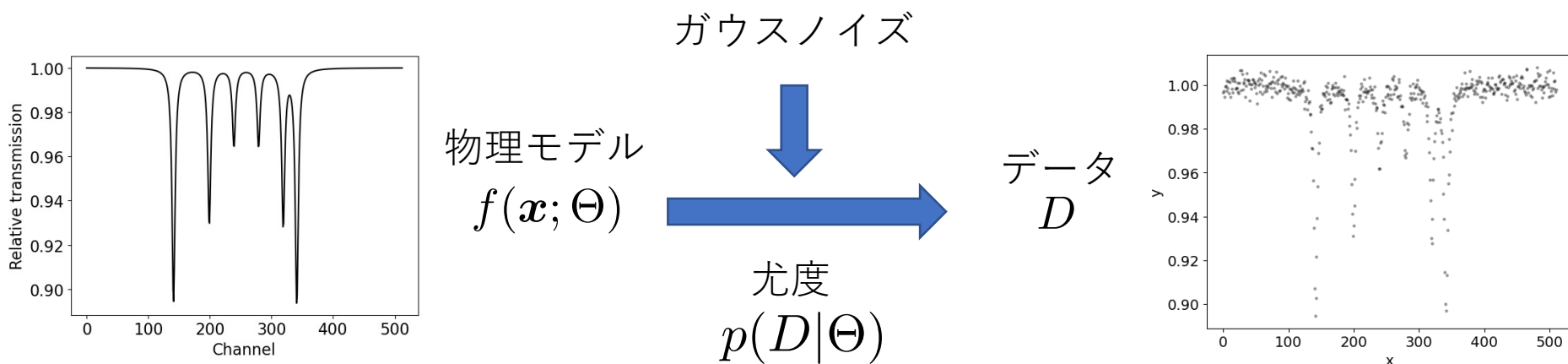


※ Θ : パラメータ集合 D : データ集合

※ $\Theta = \{A, B_{hf}, \eta, \theta, \phi, E_{\text{center}}, \Gamma\}$

解析手法；尤度

データの生成過程を以下のように仮定



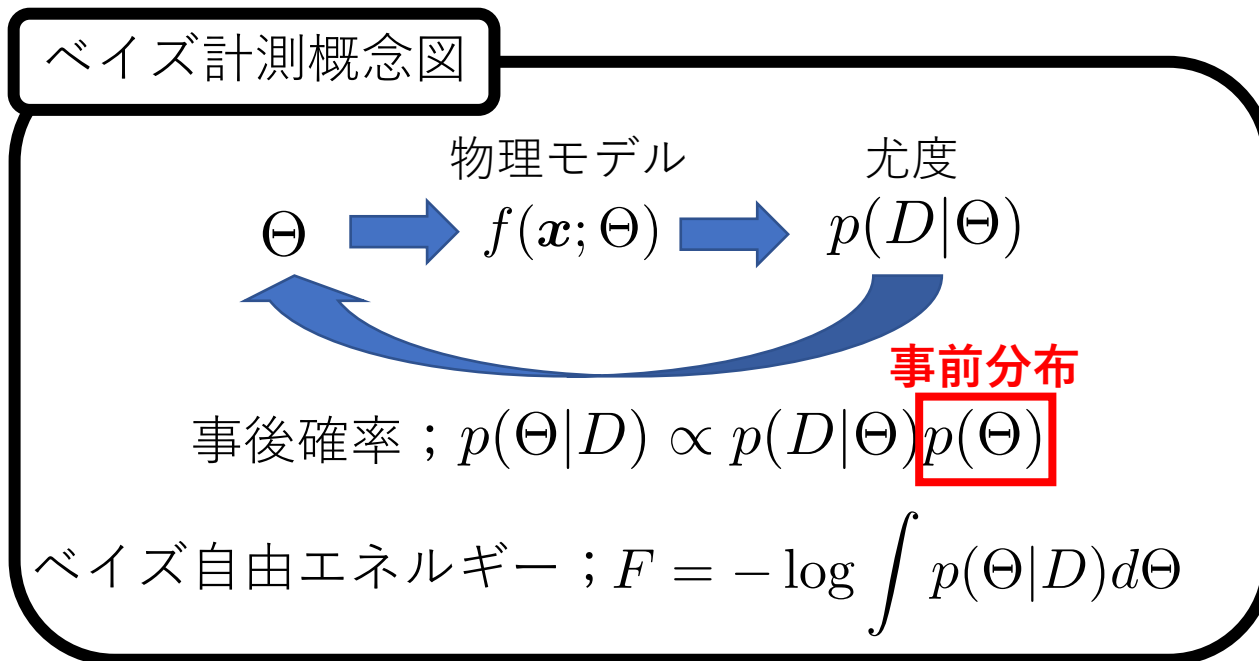
尤度

$$p(D|\Theta) = \prod_{i=1}^n p(y_i|x_i, \Theta) \propto \exp\left(-\frac{n}{\sigma_{\text{model}}^2} E_n(\Theta)\right)$$
$$E_n(\Theta) = \sum_{i=1}^n \frac{1}{2n} (y_i - f(x_i; \Theta))^2$$

メスバウアーにおけるベイズ計測

データが得られた時のパラメータの確率（事後確率）を計算
→事後確率から推定値を計算（Nagata et al. 2012）

ベイズ計測概念図



※ Θ : パラメータ集合 D : データ集合

※ $\Theta = \{A, B_{hf}, \eta, \theta, \phi, E_{\text{center}}, \Gamma\}$

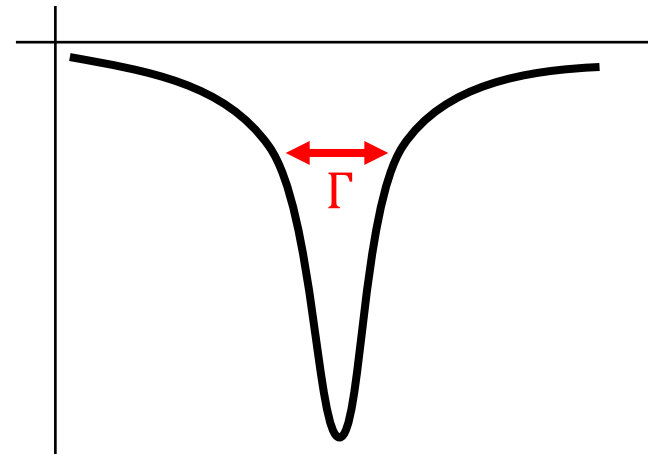
解析手法；事前分布

事前分布にはパラメータの範囲などの事前情報を入れる

$$p(\Theta) = \varphi_A(A) \varphi_{B_{hf}}(B_{hf}) \varphi_{\eta}(\eta) \varphi_{\theta}(\theta) \varphi_{\phi}(\phi) \varphi_{E_{\text{Center}}}(E_{\text{Center}}) \varphi_{\gamma}(\gamma)$$

$$\begin{aligned} \varphi_{\Gamma}(\Gamma) &= \text{Gamma}(\Gamma; \eta, \lambda) \\ &= \frac{1}{G(\eta)} (\lambda)^{\eta} (\Gamma)^{\eta-1} \exp(-\lambda \Gamma) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \varphi_x(x) &= \text{Uniform}(x; x_{\max}, x_{\min}) \\ x &= (A, B_{hf}, \eta, \theta, \phi, E_{\text{Center}}) \end{aligned}$$



線幅 Γ のみ

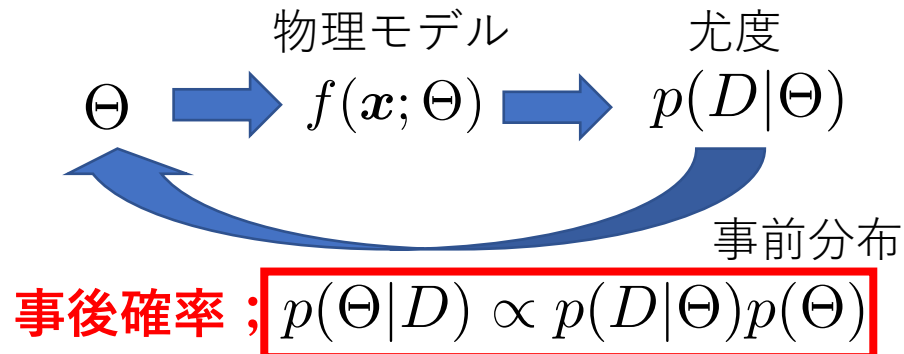
時間とエネルギーの不確定性関係から下限が推定できるためガンマ分布

$$\tau \cdot \Gamma \geq h$$

メスバウアーにおけるベイズ計測

データが得られた時のパラメータの確率（事後確率）を計算
→事後確率から推定値を計算（Nagata et al. 2012）

ベイズ計測概念図



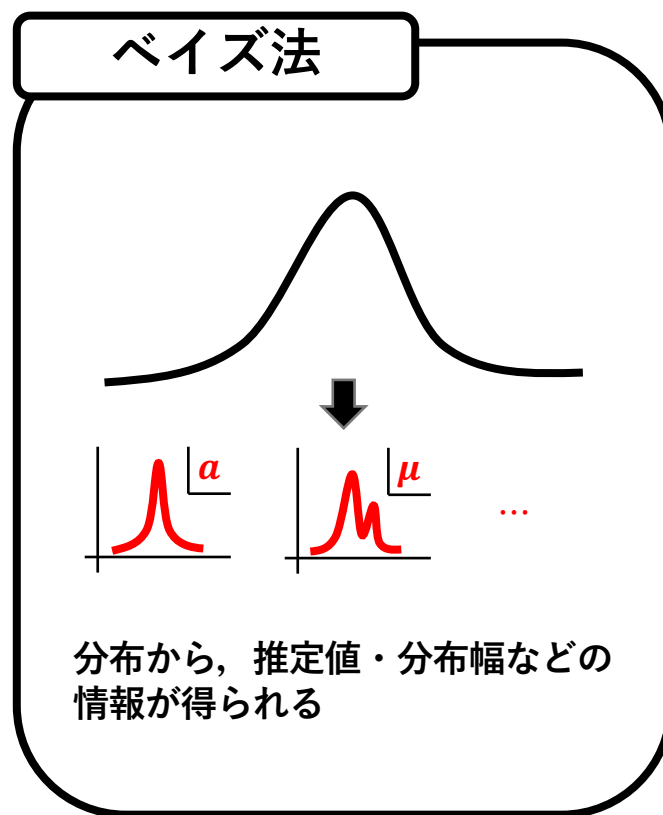
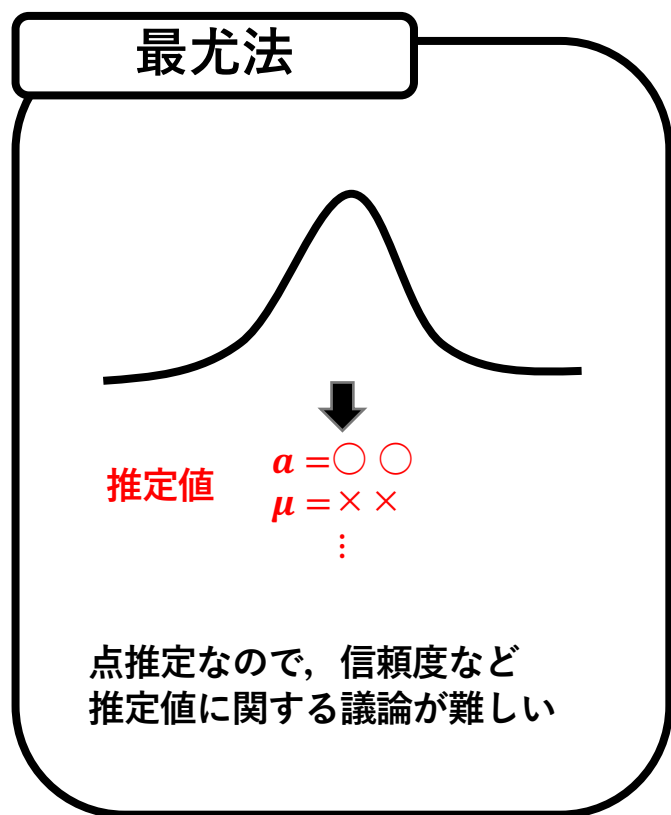
ベイズ自由エネルギー ; $F = -\log \int p(\Theta|D)d\Theta$

※ Θ : パラメータ集合 D : データ集合

※ $\Theta = \{A, B_{hf}, \eta, \theta, \phi, E_{\text{center}}, \Gamma\}$

解析手法；事後確率

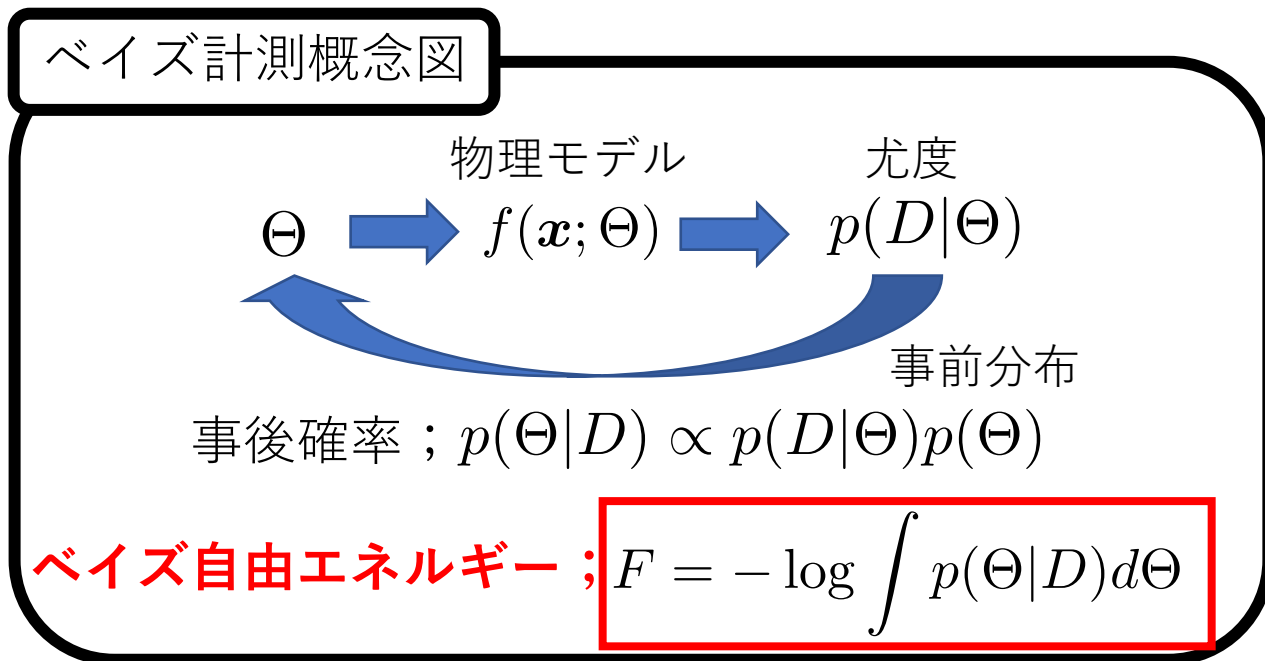
事後確率によってパラメータの推定が可能



メスバウアーにおけるベイズ計測

データが得られた時のパラメータの確率（事後確率）を計算
→事後確率から推定値を計算（Nagata et al. 2012）

ベイズ計測概念図



※ Θ : パラメータ集合 D : データ集合

※ $\Theta = \{A, B_{hf}, \eta, \theta, \phi, E_{\text{center}}, \Gamma\}$

解析手法；ベイズ自由エネルギー

χ二乗法

$$\log \frac{p'(D|\Theta_{ML'})}{p(D|\Theta_{ML})}$$

”最尤推定量”付近で
ガウス分布に近似できる場合
対数尤度比がχ二乗分布に
漸近することを利用



ベイズ法

$$F = -\log \int p(D|\Theta)p(\Theta)d\Theta$$

$$F' = -\log \int p'(D|\Theta)p(\Theta)d\Theta$$

ベイズ自由エネルギーの
大小関係によってどちら
のモデルの確率が高いか
を評価

- 一般に尤度は単峰なガウス分布ではない
- パラメータ範囲などの事前情報を用いていない

→ベイズ自由エネルギーによるモデル選択が最適

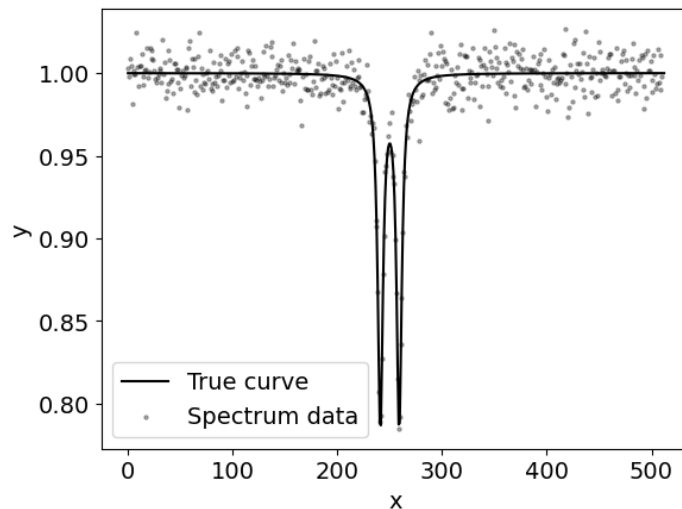
目次

- メスバウアーにおけるハミルトニアン
- メスバウアーにおけるベイズ推論
- 数値実験
- まとめ
- 今後の展望

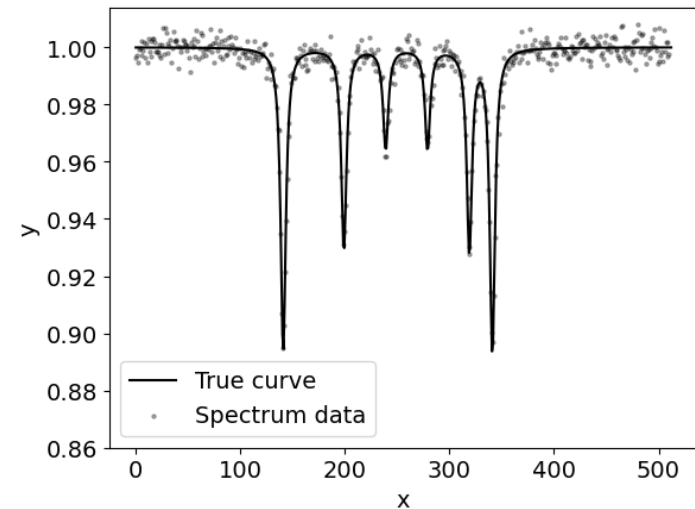
数値実験

以下二つの相互作用の組み合わせについて解析を行った

$H_c + H_Q$ の人工データ



$H_c + H_Q + H_M$ の人工データ

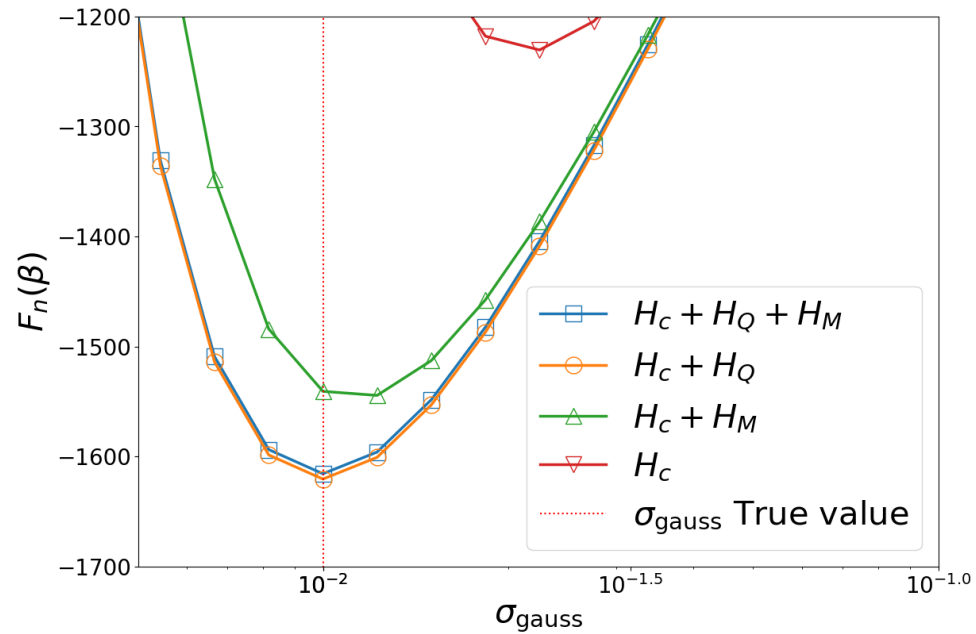
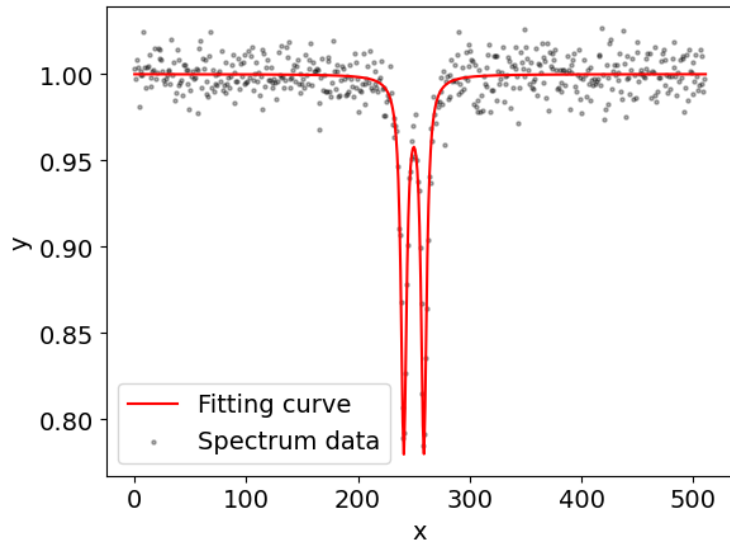


H_M : 磁氣的相互作用項
 H_Q : 四極子相互作用項
 H_c : 異性体シフト

数値実験；ハミルトニアン選択

磁氣的相互作用なしの場合の実験結果

$H_c + H_Q$ の人工データとフィッティング

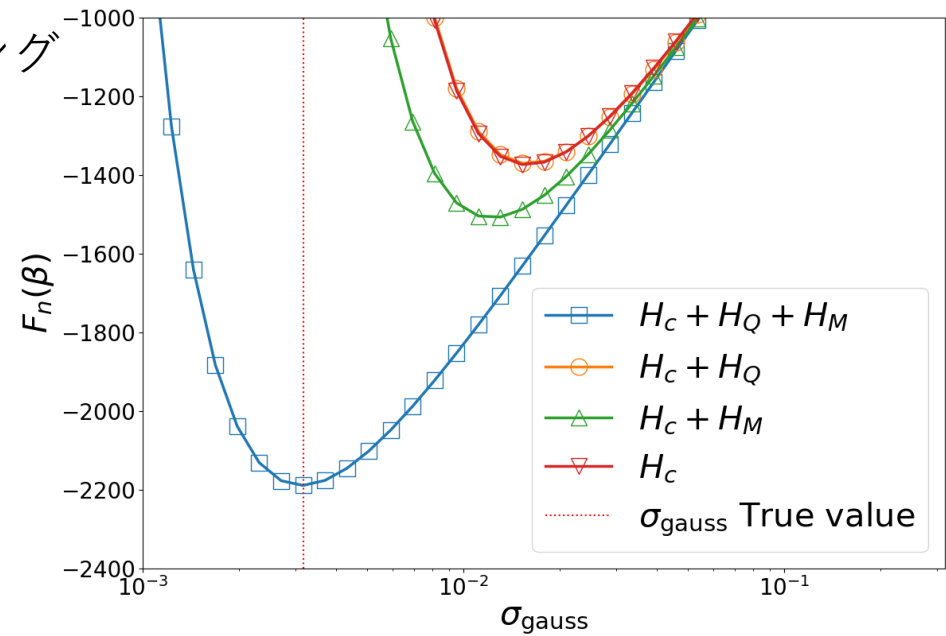
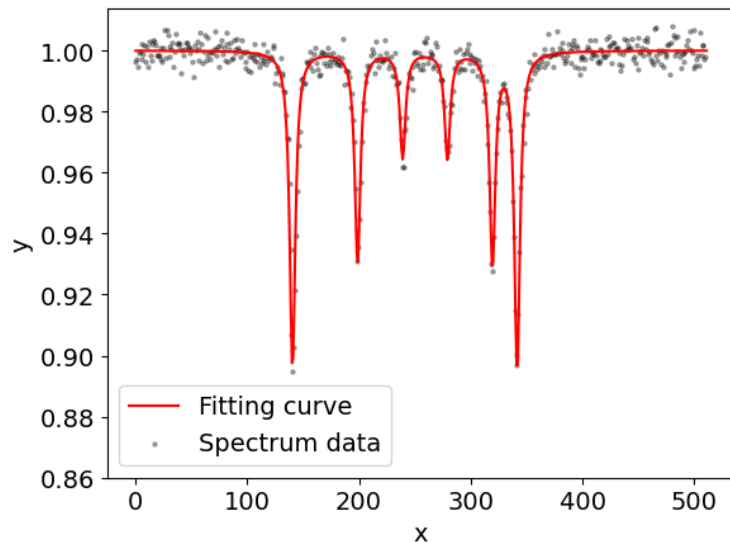


→ $H_c + H_Q$ が最も自由エネルギーが低い

数値実験；ハミルトニアン選択

磁氣的相互作用ありの場合の実験結果

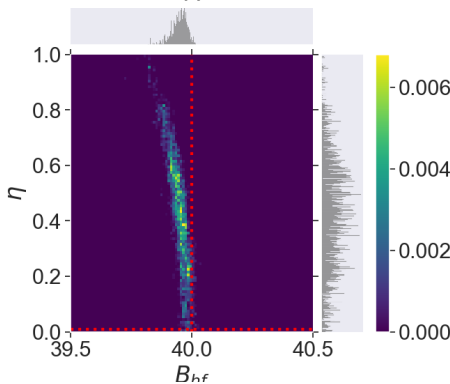
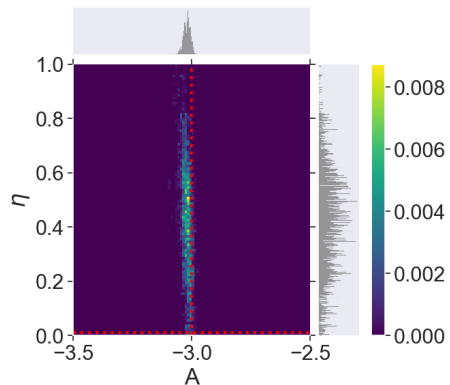
$H_c + H_Q + H_M$ の人工データとフィッティング



→ $H_c + H_Q + H_M$ が最も自由エネルギーが低い

数値実験；事後分布

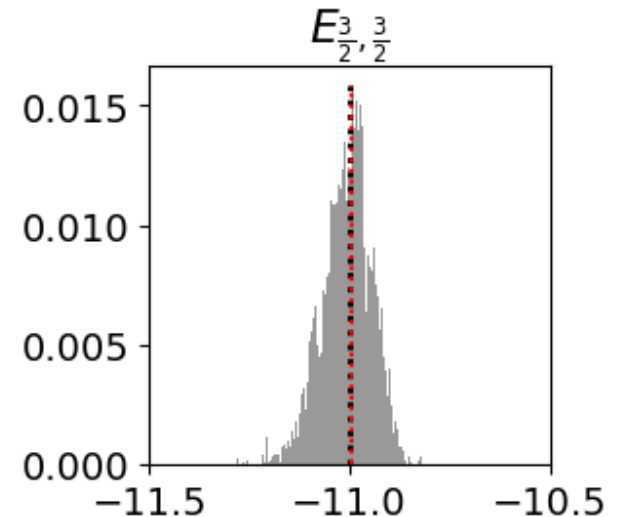
得られた物理量の事後分布から、
エネルギー固有値などの分布も計算可能



エネルギー固有値
の事後分布を算出



$$E_{\frac{3}{2}, \frac{3}{2}} = \frac{1}{2} g_{3/2} \mu_N B_{hf} + 3A \sqrt{\left(1 + \frac{g_{3/2} \mu_N B_{hf}}{3A}\right)^2 + \frac{\eta^2}{3}}$$



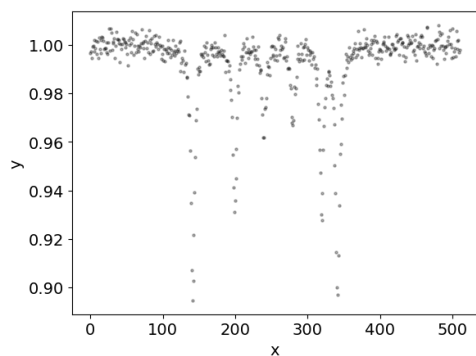
→得られたサンプルを用いて更なる議論が可能

目次

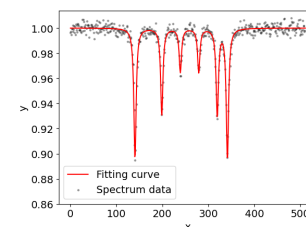
- メスバウアーにおけるハミルトニアン
- メスバウアーにおけるベイズ推論
- 数値実験
- まとめ
- 今後の展望

まとめ

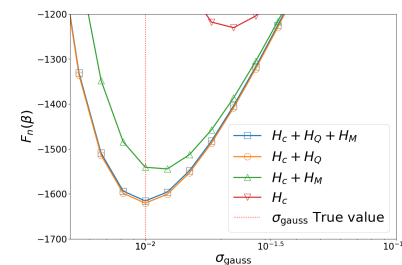
- ベイズ計測により，データドリブンでハミルトニアン推定やモデル推定が可能
- 物理量の事後分布が得られることにより，解析結果の議論の幅が広がる



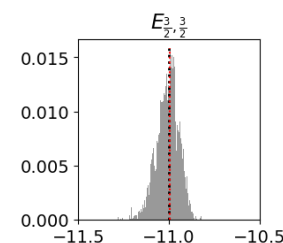
フィッティング



ハミルトニアン推定



パラメータ分布



目次

- メスバウアーにおけるハミルトニアン
- メスバウアーにおけるベイズ推論
- 数値実験
- まとめ
- 今後の展望

今後の展望

- では、ベイズ計測のデメリットはなんなのか？

→ 計算量

→ パラメータ調整が最尤法と異なる

- 計算を削減する研究がすすんでいる

- 事前分布モデリング
 - [Kashiwamura, et al. 2022](#)

- サンプリングアルゴリズムの改良
 - 研究中

