

スパースモデリングを用いた原子核密度の解析手法

[1] 要旨：

中性子線回折データをスパースモデリング(SM)により解析することで、これまでより詳細な原子核密度分布を求める手法の開発に成功した。従来、中性子線回折データから核密度分布を解析するためには最大エントロピー法(MEM)と呼ばれる手法が用いられてきた。しかし、SMによる解析法を新たに開発し、これを典型的な強誘電体の1つである KH_2PO_4 (KDP)に適用したところ、MEMでは不鮮明だった水素原子の核密度分布を詳細に可視化することができた。

[2] 本文

これまで、中性子線回折データから核密度分布を求めるためには、最大エントロピー法(MEM)と呼ばれる手法が広く用いられ、多くの成果を上げてきた。しかしながら MEM は、実験から得られる回折データを再現する核密度分布のうち出来るだけ一様な分布を選ぶ傾向にある。一方、実際の核密度は非常に局在性が強く原子位置以外ではほとんど値を持たない。そのため、MEM は核密度分布の解析に適しているとは言い難かった。

最近、島根大学大学院自然科学研究科の研究グループは、中性子線回折データをスパースモデリング(SM)により解析することで、より詳細な原子核密度分布を求める手法の開発に成功した。この成果は、日本物理学会が発行する英文誌 *Journal of the Physical Society of Japan (JPSJ)* の 2019 年 5 月号に掲載された。

SM はもともと計測工学の分野で発展し、画像復元や MRI による断層写真の再構成などに応用されてきた。数学的には多変数の線型最適化問題において、ほとんどの変数の値はゼロである(疎性: sparsity)と仮定して最適解を求める手法である。最近では電波望遠鏡から得られるデータの解析に応用され、ブラックホールの可視化に使用されたことは記憶に新しい。

SM では変数の 1 次ノルム、すなわち絶対値の総和を最小にすることで疎性を持たせようとする手法が良く用いられ、LASSO(least absolute shrinkage and selection operator)と呼ばれている。しかし、核密度には総和則があり 1 次ノルムは定数であるため、この方法は使えない。そこで、著者らは 1/2 次ノルムによるスパースモデリングの定式化を行い、逐次的に行う収束計算に必要な近接作用を新たに求めた。

こうして開発された SM による手法を、典型的な強誘電体の 1 つである KH_2PO_4 (KDP)に適用して求めた原子核密度の等密度面を図 1 に示す。MEM により求めたものと比較してある。KDP は高温で水素原子が 2 箇所の安定位置に存在するが、温度を下げると一方に偏り強誘電性を示すことが様々な実験から分かっている。図中の水色の部分が水素原子の核密度分布である。MEM による結果では水素原子が別れて存在することが分かりにくい、SM による結果でははっきり分かれて存在することがわかる。図 2 は酸素と水素が一直線上に並ぶ面で切った時の核密度分布の等高線図を SM と MEM で比較したものである。SM の結果では、水素原子が分かれて存在することに加え、水素結合により酸素原子の核密度分布が水素側に寄っていることも見て取れる。

SM による手法は原理的にどのような結晶にも適用可能であり、水素原子のように軽い原子でも核密度を MEM に比べて詳細に解析できることがわかった。そのため、基礎研究はもとより新しい機能を持った次世代デバイスの開発や探索にも役立つことが期待される。さらに、解析にかかる時

間も MEM に比べて 5 分の 1 程度で済むことも報告されている。これらのことから、中性子線回折データから核密度分布を解析する手法として SM は MEM に取って代わる有力な候補であると考えられる。

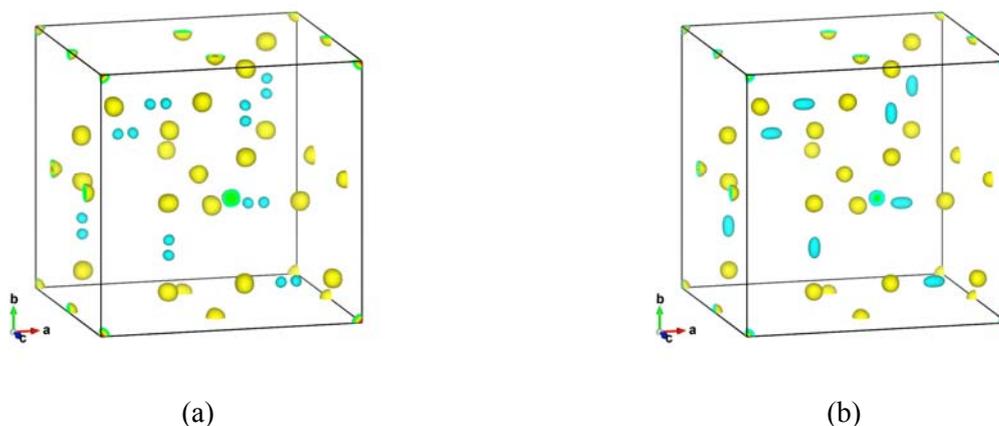


図 1 室温における KDP の原子核密度分布の等密度面。(a) SM による結果と (b) MEM による結果。水色の部分が水素原子の核密度に対応する。SM の結果では水素がはっきり 2 箇所に分かれて存在することがわかるが、MEM の結果では判別できない。

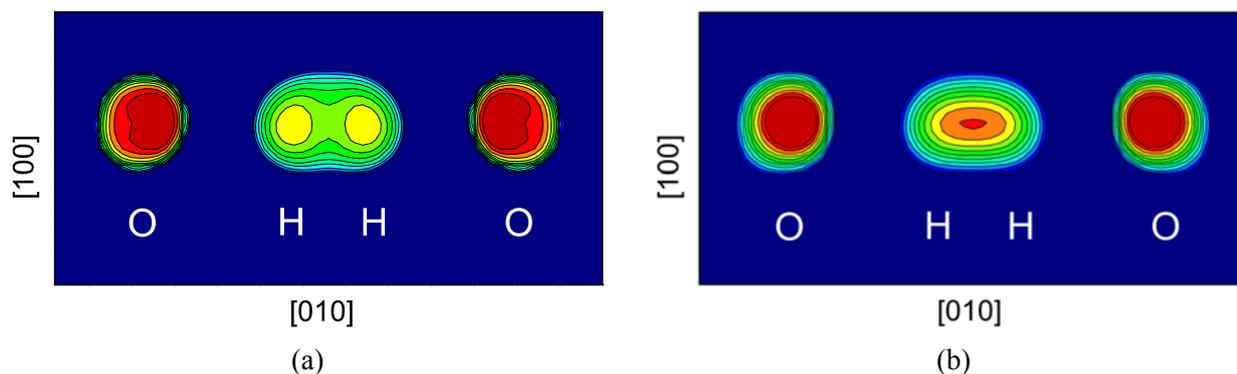


図 2 酸素と水素が一直線上に並ぶ面で切った時の原子核密度分布の等高線図。(a) SM による結果と (b) MEM による結果。SM の結果では、水素の核密度分布の分裂に加え、酸素の核密度分布が水素結合により水素側に寄っていることがわかる。

原論文(4月4日公開済)

[A Method Evaluating Nuclear Density from Neutron Diffraction Data by Using Sparse Modeling](#)
Hiroshi Tanaka, Michihiro Oie, and Kazuki Oko: *J. Phys. Soc. Jpn.* **88**, 053501 (2019).

< 情報提供：田中宏志（島根大学学術研究院理工学系 教授） >