

令和五年度 修士論文

スパースモデリングを用いた
AIの運動量密度の再構成

指導教員 櫻井 浩 教授

群馬大学大学院理工学府 理工学専攻
電子情報・数理教育プログラム

岸本 篤実

目次

第1章 序論	
1-1 研究背景	1
1-2 圧縮センシング	3
1-3 目的	3
第2章 原理	
2-1 コンプトン散乱	4
2-2 直接フーリエ変換法による運動量密度の再構成法	6
2-3 スパースモデリングを用いた運動量密度の再構成	7
第3章 実験	
3-1 実験装置	9
3-2 実験に使用した Al 単結晶	11
3-3 実験方法	13
3-4 解析の流れ	15
第4章 結果・考察	
4-1 コンプトンプロファイル	21
4-2 2次元再構成	24
4-3 先行研究との異方性の比較	25
第5章 3次元再構成	
5-1 金属自由電子モデルでの検討	28
5-2 Al 単結晶の測定データでの検討	50
第6章 結論と今後の課題	
6-1 本研究の結論	64
6-2 今後の課題	64
参考文献	65
学会発表	66
謝辞	67

第 1 章 序論

1-1 研究背景^{[1][2][3][4][5][6]}

材料の特性はフェルミ面に支配される。例えば、金属の電氣的性質はほとんどフェルミ面の形状によって決定される。また、日用品から、エネルギー分野、医療分野など、幅広い分野での材料として用いられる形状記憶合金の特性は、フェルミ面に起因すると言われている。Fig.1.1 に、形状記憶合金である $\text{Ni}_{0.62}\text{Al}_{0.38}$ のフェルミ面を示す。マルテンサイト変態を起こした形状記憶合金は、加熱することで元の母相に戻るものがある。 $\text{Ni}_x\text{Al}_{100-x}$ の高温の母相と低温のマルテンサイト相の結晶構造を Fig.1.2 に示す。このような形状記憶効果は、フェルミ面のネスティングに起因すると言われている。ネスティングとは、フェルミ面が平行移動して重なり合うことである。 $\text{Ni}_{0.62}\text{Al}_{0.38}$ のネスティングの様子を Fig.1.3 に示す。このように、形状記憶合金などの材料の特性はフェルミ面によって決まるため、材料開発にフェルミ面の知見は有効である。

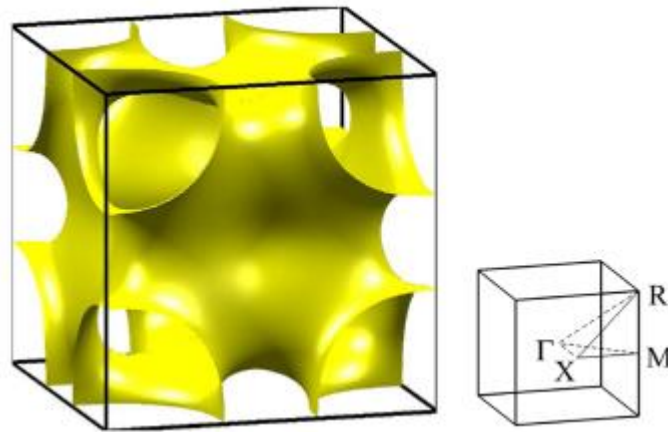


Fig.1.1 $\text{Ni}_{0.62}\text{Al}_{0.38}$ のフェルミ面^[1]

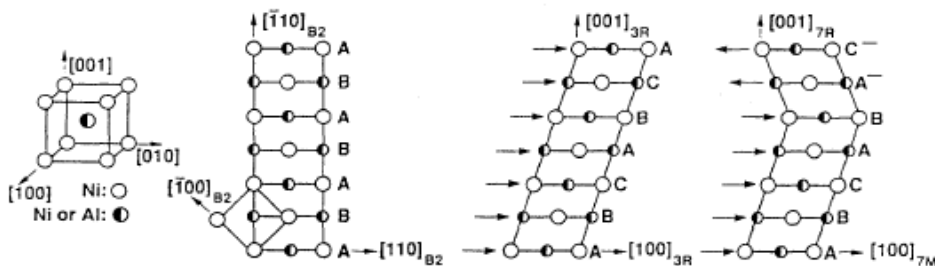


Fig.1.2 $\text{Ni}_x\text{Al}_{100-x}$ の $[001]$ 方向に沿って見た、高温の母相と低温のマルテンサイト相の結晶構造^[2]

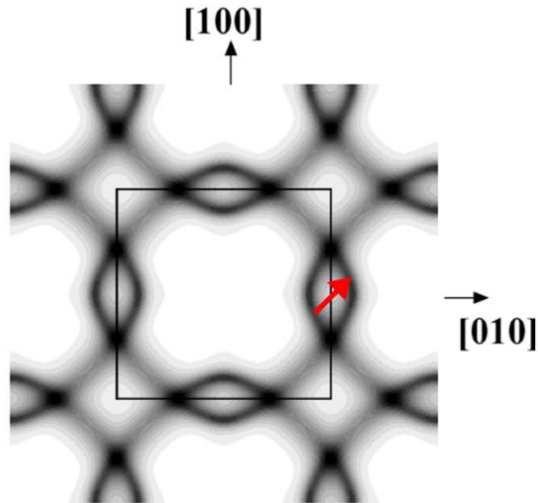


Fig.1.3 $\text{Ni}_{0.62}\text{Al}_{0.38}$ のブロッホスペクトル関数の強度^[1]
矢印は、[110]方向に沿ったネスティングベクトルを示している

フェルミ面の測定方法は、コンプトン散乱によるコンプトンプロファイル測定や、ドバースファンアルフェン効果による測定、角度分解光電子分光による測定などが挙げられる。ドバースファンアルフェン効果による測定は、測定試料が高純度の必要があるため合金のフェルミ面は測定が難しく、また、低温で測定する必要がある。角度分解光電子分光による測定は、光電子であるため試料の表面のみの測定になってしまい、また、磁場中では測定することができない。それに比べてコンプトン散乱によるコンプトンプロファイル測定では、合金でも測定が可能であり、室温、磁場中でも測定が可能であり、バルク敏感、つまり試料の内部の測定が可能である。したがって、コンプトンプロファイル測定はフェルミ面の測定に有効である。

コンプトンプロファイルを様々な方位から測定、再構成することでフェルミ面の形状を得ることができるのだが、多数の方位のコンプトンプロファイルの測定や、コンプトン散乱断面積が小さいため長時間の測定が必要であり、膨大な時間が必要となる。そこで、得られた信号の測定精度を落とすことなく、測定点数及び測定時間を削減し、大幅に測定時間を短縮するために、圧縮センシングを用いた再構成法の検討を行うことにした。

1-2 圧縮センシング^{[7][8][9]}

圧縮センシングは、対象となる信号をできるだけ少ない観察から復元する技術である。観察と圧縮を同時に行い効率的にデータの取得を行うため、大容量で冗長なデータ取得を制限できる。つまり、圧縮センシングは少ない情報から多くの重要な知見を得ることができるのである。例えばMRIでは、少ないデータからでも画像を構築することが可能となり、計測時間を大幅に縮減できる。電子顕微鏡や中性子散乱などによる実空間分布の解析にも利用できる。また、最近では天文学の分野においても、圧縮センシングが積極的に活用され始めている。

1-3 目的

本研究の目的は、スパースモデリングを用いた運動量密度再構成法の開発をすることである。スパースモデリングを用いることで、測定精度を落とすことなく、測定点数・測定時間を削減できるのではないかと考えた。スパースモデリングの計算コードは岡山大学大槻純也准教授より頂いた。スパースモデリングを用いた運動量密度再構成法を検討するに当たって、まず金属自由電子モデルから求めたコンプトンプロファイルでの検討を行い、次にフェルミ面の形状が分かっているAl単結晶のコンプトンプロファイル測定データでの検討を行った。金属自由電子モデルから求めたコンプトンプロファイルでの検討に関しては、計算メッシュの数、結晶方位依存性、統計誤差依存性の3点から評価を行い、Al単結晶のコンプトンプロファイル測定データでの検討に関しては、統計誤差依存性についての評価を行った。

第2章 原理

2-1 コンプトン散乱^[10]

コンプトン散乱は、光子と電子の非弾性散乱であり、入射 X 線に比べ散乱 X 線のエネルギーが小さくなる現象である。Fig.2.1 にコンプトン散乱の概略図を示す。

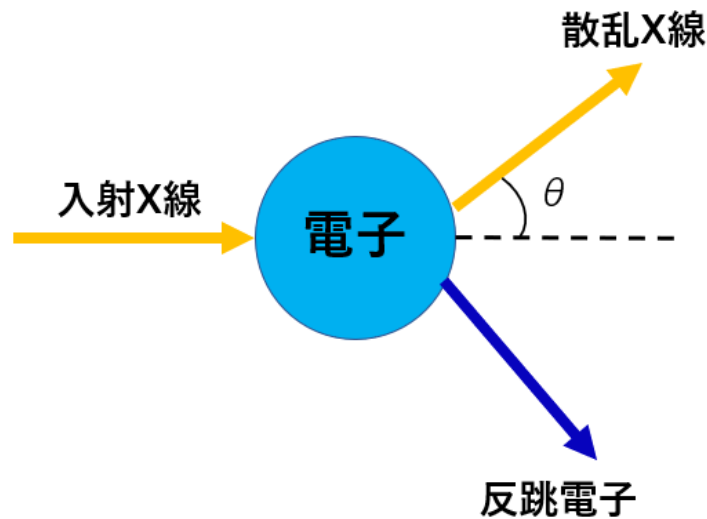


Fig.2.1 コンプトン散乱の概略図

入射 X 線のエネルギーを E_1 、散乱 X 線のエネルギーを E_2 、散乱角を θ 、散乱ベクトルを \mathbf{k} 、電子の運動量を \mathbf{p} 、電子の静止質量を m とすると、運動量・エネルギー保存則より散乱 X 線のエネルギーを E_2 は

$$E_2 = \frac{E_1}{1 + \frac{E_1}{mc^2}(1 - \cos\theta)} + \frac{\frac{\hbar}{m}\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}}{1 + \frac{E_1}{mc^2}(1 - \cos\theta)} \quad (1)$$

となる。第1項は、入射 X 線が電子にエネルギーを与えたことで散乱 X 線のエネルギーが減少することを示している。第2項は、電子が動いているために生じるドップラー効果を表している。このドップラー効果は、X 線の散乱ベクトル \mathbf{k} と電子の運動量を \mathbf{p} の内積になっていることから、散乱 X 線は \mathbf{p} の k 軸方向、つまり z 軸方向の運動量成分 p_z に比例してドップラー効果を受ける。その結果、 p_x, p_y に関わらず p_z が等しい電子状態はみな同じドップラー効果を X 線に与え、散乱 X 線は同じエネルギー E_2 になる。ゆえに、エネルギー E_2 の X 線を観測する確率は、電子が p_z を持つ確率に比例、つまり電子運動量密度 $\rho(\mathbf{p})$ を p_x と p_y で積分

した量に比例する。これを式で表すと、

$$J(p_z) = \iint \rho(p_x, p_y, p_z) dp_x dp_y \quad (2)$$

となり、これがコンプトンプロファイルである。これは電子運動量密度 $\rho(\mathbf{p})$ の散乱ベクトルを z 軸に投影した運動量分布である。 z 軸は X 線の散乱ベクトルに平行である。電子運動量密度 $\rho(\mathbf{p})$ は運動量空間における波動関数 $\Phi(\mathbf{p})$ を用いて、

$$\rho(\mathbf{p}) = |\Phi(\mathbf{p})|^2 \quad (3)$$

と表され、運動量空間における波動関数 $\Phi(\mathbf{p})$ は、実空間における波動関数 $\psi(\mathbf{r})$ のフーリエ変換

$$\Phi(\mathbf{p}) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}^3} \int \psi(\mathbf{r}) \exp(i\mathbf{p} \cdot \mathbf{r}) d\mathbf{r} \quad (4)$$

で表される。

2-2 直接フーリエ変換法による運動量密度の再構成法^[11]

従来の運動量密度の再構成法は直接フーリエ変換法を用いている。この方法は、各方位のコンプトンプロファイル

$$J(p_z) = \iint \rho(\mathbf{p}) dp_x dp_y \quad (5)$$

をフーリエ変換することで、各方位の $B(r_i)$ 関数

$$B_\zeta(0,0,z) = \int J_\zeta(p_z) e^{ip_z z} dp_z \quad (6)$$

を求める。(6)式の各方位の $B(r_i)$ 関数はとびとびの値であるため、間を補完することで、3次元または2次元の $B(r)$ 関数

$$B(r) = \iiint \rho(\mathbf{p}) e^{i\mathbf{p}\cdot\mathbf{r}} d\mathbf{p} \quad (7)$$

となる。これを逆フーリエ変換することで、3次元または2次元の運動量密度

$$\rho(\mathbf{p}) = (2\pi)^{-3} \iiint B(r) e^{-i\mathbf{p}\cdot\mathbf{r}} dr \quad (8)$$

を求める方法である。

2-3 スパースモデリングを用いた運動量密度の再構成^{[8][11]}

スパースモデリングとは、スパース性（疎性）と呼ばれる本質部分に関わるものが疎であるという性質を駆使して、高次元データから説明変数のうち本質的な寄与をするものだけを自動的に抽出することができるように工夫する枠組みである。スパースモデリングは圧縮センシングの技法の1つとして用いられる。スパースモデリングの計算コードは岡山大学大槻純也准教授より頂いた。

(8) 式の逆フーリエ変換では、 $B(\mathbf{r})$ の欠落した情報が補完によって補われたが、精度が低下する可能性がある。そこで、以下では圧縮センシング法を適用することで直接式を解く。補完なしの $\rho(\mathbf{p})$ の場合、(7) 式

$$B(\mathbf{r}) = \iiint \rho(\mathbf{p}) e^{i\mathbf{p}\cdot\mathbf{r}} d\mathbf{p} \quad (7)$$

は、

$$B_i = \sum_j A_{ij} \rho_j, \quad \text{ただし } B_i \equiv B(\mathbf{r}_i), \rho_j \equiv \rho(\mathbf{p}_j) \Delta p^3_{\text{calc}}, A_{ij} \equiv e^{i\mathbf{p}_j \cdot \mathbf{r}_i} \quad (8)$$

と表すことができる。 ρ_j は領域全体をカバーする密な格子上で定義される。一方、 B_i は、式(6)のいくつかのコンプトンプロファイルから計算された直線上でのみ与えられる。したがって、この線形方程式(8)は未知の変数の数よりも方程式の数の方が少ない、過小決定システムを形成する。従来の再構成法では、 $B(\mathbf{r})$ に補完した値を入れる、つまりこの線形方程式(8)を解くために追加の方程式を与えている。スパースモデリングを用いた再構成法では、方程式を追加する代わりに決定する変数を減らす。このために、 $\rho(\mathbf{p})$ が定数であると仮定する。 $\rho(\mathbf{p})$ が定数であると仮定すると、広範囲の領域で $\nabla\rho(\mathbf{p}) = 0$ となる。これは、フェルミ面から離れた、エネルギーバンドが完全に占有されているか空の場所でも当てはまる。このような方法は、一般化された LASSO の形式の、次の関数を最小化することで得られる。

$$\mathcal{F}(\{\rho_j\}) = \frac{1}{2} \sum_{i \in \text{measured}} [B_i - \sum_j A_{ij} \rho_j]^2 + \lambda \sum_j \sum_{\xi = p_x, p_y, p_z} \left| \sum_{j'} (D_\xi)_{jj'} \rho_{j'} \right| \quad (9)$$

ここで、(9) 式第1項の和は測定したコンプトンプロファイルから計算された B_i に引き継がれる。 D_ξ は微分値 $\frac{\partial}{\partial \xi}$ を表す行列で、一次前方差分を用いることで、 $(D_\xi \rho)_j = \rho_{j(+\xi)} - \rho_j$

で与えられる。(9) 式第2項は、第1項を特定の範囲内に保ちながら、 $\frac{\partial \rho(\mathbf{p})}{\partial \xi} = 0$ になるようにする。2番目の値が解にどの程度影響するかは、正則化パラメータ λ によって制御される。

$\rho(\mathbf{p})$ が満たすべき追加の関係が2つある。1つは

$$\rho(\mathbf{p}) \geq 0, \quad (10)$$

もう1つは

$$\iiint \rho(\mathbf{p}) d\mathbf{p} = \int J_{\zeta}(p_z) dp_z \equiv n \quad (11)$$

ここで、 n は単位胞内の電子の総数を表す。離散表現では、(10)式と(11)式はそれぞれ次のように表される。

$$\rho_j \geq 0, \quad \sum_j \rho_j = n \quad (12)$$

よって、式(12)の条件において、(9)式の関数 \mathcal{F} を最小化すれば良い。

第3章 実験

3-1 実験装置

本実験は、兵庫県の播磨科学公園都市にある大型放射光施設 SPring-8 の BL08W にて行った。BL08W は、100keV~300keV の非常に高エネルギーで、直線偏光または楕円偏光の単色 X 線を利用できるウィグラービームラインである。コンプトン散乱測定及び磁気コンプトン散乱測定が可能である。

Fig.3.1 に実験装置の配置図、Fig.3.2 に実験装置の写真を示す。ウィグラーから放射された白色 X 線が Si(400)モノクロメータで 115.56keV に単色化され入射する。スリットは高さ $2000\mu\text{m}$ × 幅 $1000\mu\text{m}$ とした。入射 X 線が真空チャンバーの中の試料で散乱角 165° 方向にコンプトン散乱し、散乱 X 線は Ge(620)アナライザでエネルギー分光され、二次元検出器(I.I. + CCD カメラ)で検出される。

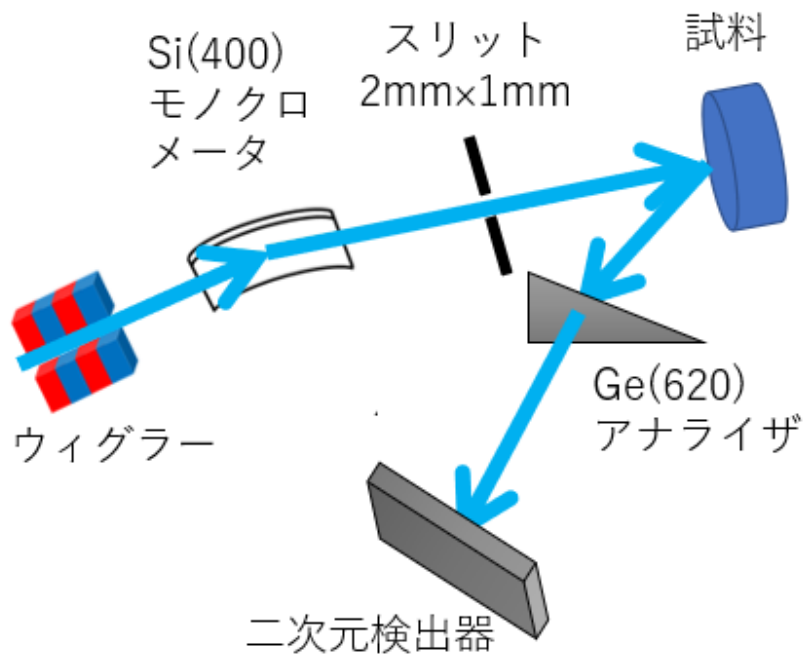


Fig.3.1 実験装置の配置図

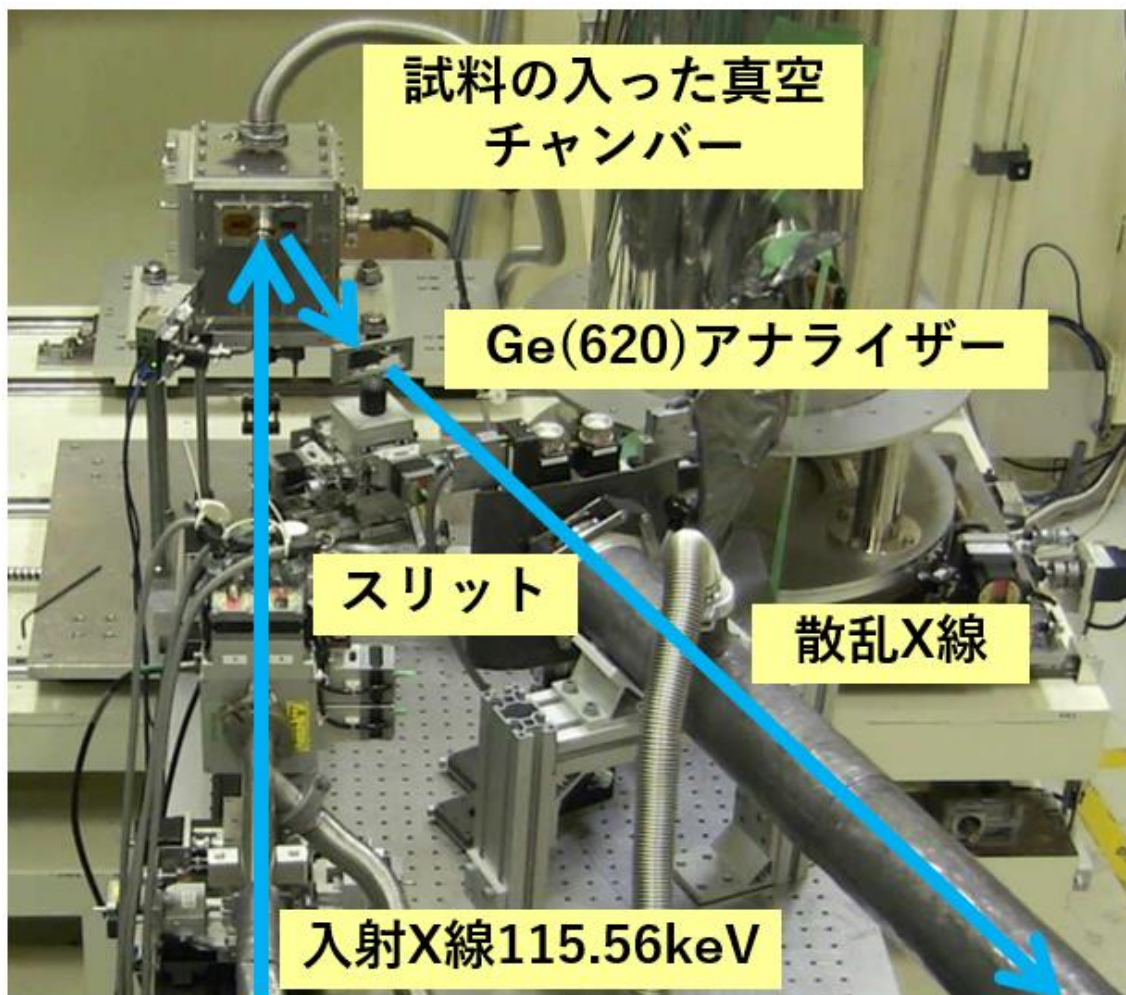


Fig.3.2 実験装置の写真

3-2 実験に使用した Al 単結晶

測定試料は直径 5mm, 厚さ 3mm の円筒形の Al 単結晶を用いた。Fig.3.3 に測定試料の写真、Fig.3.4 に測定試料のモデルを示す。(100)面が出ている Al 単結晶と、(111)面が出ている Al 単結晶の 2 種類を使用した。(100)面が出ている Al 単結晶は[001]方向に切れかきが入っており、(111)面が出ている Al 単結晶は $[1\bar{1}0]$ 方向に切れかきが入っている。(100)面が出ている Al 単結晶を Al100、(111)面が出ている Al 単結晶を Al111 とした。

Fig.3.5 に測定試料の置き方の図を示す。測定試料は、面が地面に対して水平になるような置き方と、面が地面に対して垂直になるような置き方の 2 通りの置き方で実験を行った。面が水平になるような置き方を Setup A、面が鉛直になるような置き方 Setup B とした。

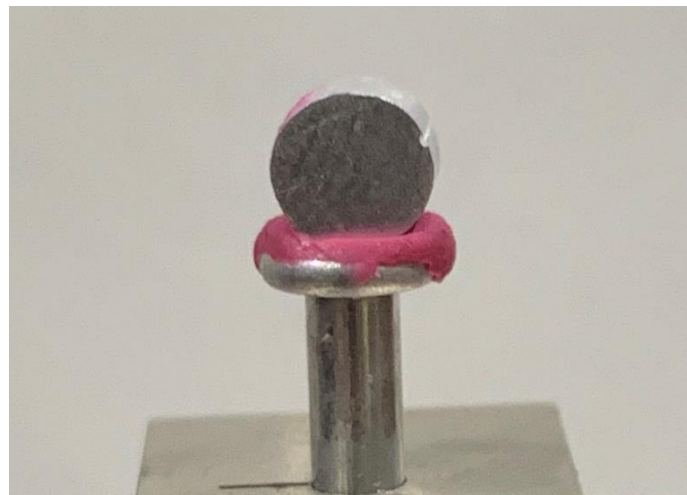


Fig.3.3 測定試料の写真

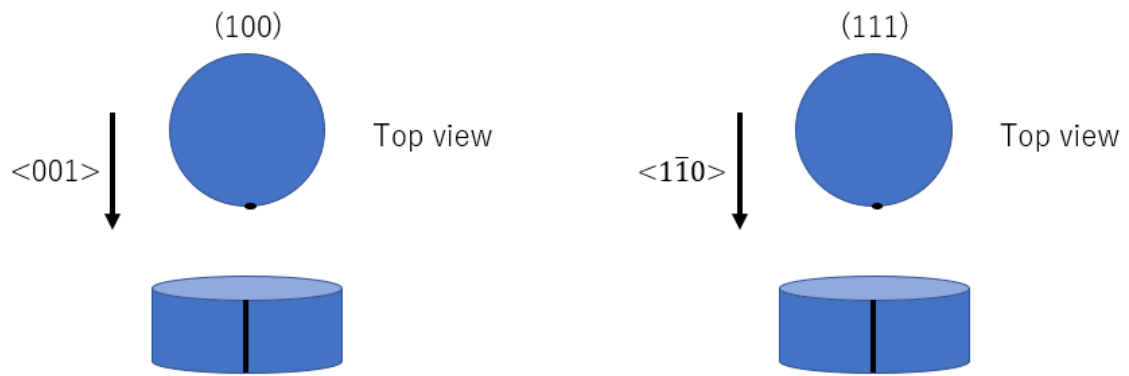


Fig.3.4 測定試料のモデル

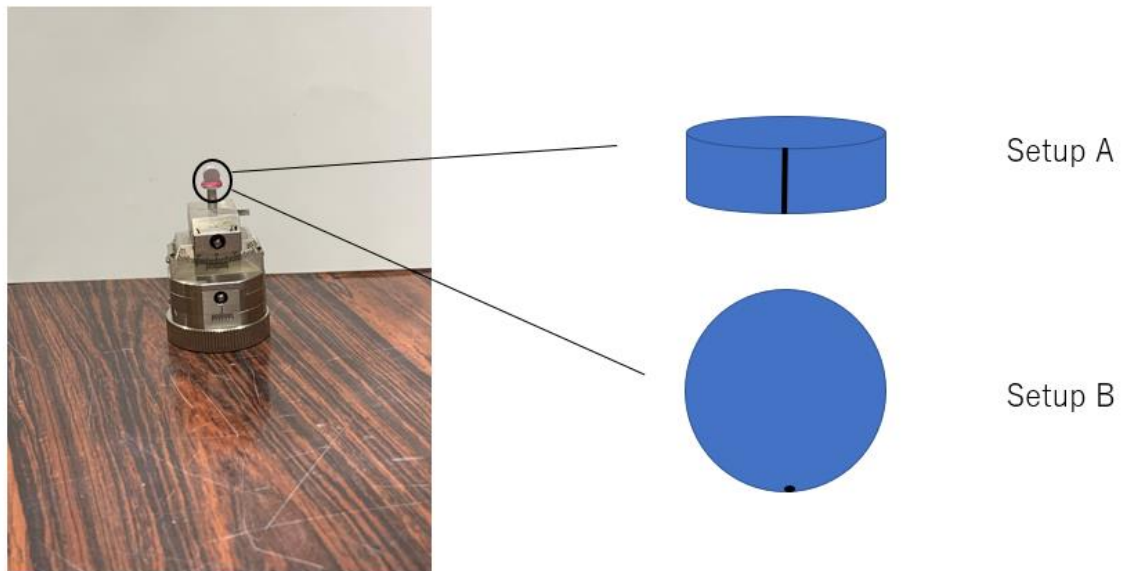


Fig.3.5 測定試料の置き方の図

3-3 実験方法

Al単結晶の結晶方位が散乱ベクトルの方向(約 6.13°)になるように試料を設置し、回転ステージで結晶方位を変更して以下の測定A~Nを行った。Table3.1に測定に関する一覧表を示す。

測定AはAl100を用いて、 $[100]$ ~ $[110]$ の間で等間隔に 11.25° 刻みで 45° まで、1方位あたり600secの6cycleで5方位のプロファイルを測定した。測定BはAl100を用いて、同じく $[100]$ ~ $[110]$ の間で等間隔に 1° 刻みで 45° まで、1方位あたり60secの15cycleで46方位のコンプトンプロファイルを測定した。測定CはAl111を用いて、 $[111]$ ~ $[110]$ の間で等間隔に 8.82° 刻みで 35.28° まで、1方位あたり600secの6cycleで5方位のプロファイルを測定した。測定DはAl111を用いて、同じく $[111]$ ~ $[110]$ の間で等間隔に 1° 刻みで 36° まで、1方位あたり60secの19cycleで37方位のプロファイルを測定した。測定EはAl100を用いて、 $[100]$ ~ $[111]$ まで等間隔に 13.7° 刻みで 54.8° まで、1方位あたり600secの6cycleで5方位のプロファイルを測定した。測定FはAl100を用いて、同じく $[100]$ ~ $[111]$ の間で等間隔に 1° 刻みで 55° まで、1方位あたり60secの16cycleで56方位のプロファイルを測定した。測定GはAl100を用いて、切れかきを水平方向から 60.8° 傾けて等間隔に 13.7° 刻みで 54.8° まで、1方位あたり600secの6cycleで5方位のプロファイルを測定した。測定HはAl100を用いて、切れかきを水平方向から 60.8° 傾けて等間隔に 1° 刻みで 55° まで、1方位あたり60secの16cycleで56方位のプロファイルを測定した。測定IはAl100を用いて、 $[100]$ ~ $[331]$ の間で等間隔に 11.75° 刻みで 47° まで、1方位あたり600secの6cycleで5方位のプロファイルを測定した。測定JはAl100を用いて、 $[100]$ ~ $[331]$ の間で等間隔に 1° 刻みで 47° まで、1方位あたり60secの20cycleで48方位のプロファイルを測定した。測定KはAl100を用いて、切れかきを鉛直方向から 10° 傾けて等間隔に 11.75° 刻みで 47° まで、1方位あたり600secの6cycleで5方位のプロファイルを測定した。測定LはAl100を用いて、切れかきを鉛直方向から 10° 傾けて等間隔に 1° 刻みで 47° まで、1方位あたり60secの20cycleで48方位のプロファイルを測定した。測定MはAl111を用いて、 $[111]$ ~ $[11\bar{1}]$ の間で等間隔に 11.25° 刻みで 45° まで、1方位あたり600secの6cycleで5方位のプロファイルを測定した。測定NはAl111を用いて、同じく $[111]$ ~ $[11\bar{1}]$ の間で等間隔に 1° 刻みで 45° まで、1方位あたり60secの15cycleで46方位のコンプトンプロファイルを測定した。

Table3.1 測定の一覧表

測定		測定方法	測定時間	samplesetup	sample
測定A	A1(0deg)~A5(45deg)	[100]-[110] step11.25deg, 45degまで	600sec 6cycle, 1 方位あたり3600sec	setupA	100
測定B	B1(0deg)~B46(45deg)	[100]-[110] step1deg, 45degまで	60sec 15cycle, 1 方位あたり900sec	setupA	100
測定C	C1(0deg)~C5(35.28deg)	[111]-[110](きれかき真下) step8.82deg, 35.28degまで	600sec 6cycle, 1 方位あたり3600sec	setupB	111
測定D	D1(0deg)~D37(36deg)	[111]-[110] step1deg, 36degまで	60sec 19cycle, 1 方位あたり1140sec	setupB	111
測定E	E1(0deg)~E5(54.8deg)	[100]-[111] step13.7deg, 54.8degまで	600sec 6cycle, 1 方位あたり3600sec	setupB	100
測定F	F1(0deg)~F56(55deg)	[100]-[111] step1deg, 55degまで	60sec 16cycle, 1 方位あたり960sec	setupB	100
測定G	G1(0deg)~G5(54.8deg)	切れかきが水平から60.8deg step13.7deg, 54.8degまで	600sec 6cycle, 1 方位あたり3600sec	setupB	100
測定H	H1(0deg)~H56(55deg)	切れかきが水平から60.8deg step1deg, 55degまで	60sec 16cycle, 1 方位あたり960sec	setupB	100
測定I	I1(0deg)~I5(47deg)	[100]-[331] step11.75deg, 47degまで	600sec 6cycle, 1 方位あたり3600sec	setupB	100
測定J	J1(0deg)~J48(47deg)	[100]-[331] step1deg, 47degまで	60sec 20cycle, 1 方位あたり1200sec	setupB	100
測定K	K1(0deg)~K5(47deg)	切れかきが垂直から10deg step11.75deg, 47degまで	600sec 6cycle, 1 方位あたり3600sec	setupB	100
測定L	L1(0deg)~L48(47deg)	切れかきが垂直から10deg step1deg, 47degまで	60sec 20cycle, 1 方位あたり1200sec	setupB	100
測定M	M1(0deg)~M5(45deg)	[111]-[11 ¹]step11.25deg, 45degまで	600sec 6cycle, 1 方位あたり3600sec	setupB	111
測定N	N1(0deg)~N46(45deg)	[111]~[11 ¹]step1deg, 45degまで	60sec 15cycle, 1 方位あたり900sec	setupB	111

3-4 解析の流れ

解析は、①測定した2次元データを1次元に積算、②コンプトンプロファイルを求める、③コンプトンプロファイルをコアとバレンスに分離、④複数方位のバレンスを2次元再構成の4工程で行った。

①測定した2次元データを1次元に積算

Fig.3.6 に二次元検出器で測定した測定 A1 の2次元データを示す。このような2次元データを1次元に積算した。Fig.3.7 に1次元に積算したデータを示す。

②コンプトンプロファイルを求める

Fig.3.7 の1次元に積算したデータからバックグラウンドを引き、energy calibration を解析し、多重散乱の効果を引き、運動量・エネルギー保存則 $\frac{p_z}{mc} = \frac{\omega' - \omega + \frac{\omega\omega'}{mc^2}(1 - \cos\theta)}{\sqrt{\omega^2 + \omega'^2 - 2\omega\omega' \cos\theta}}$ からエネルギーを運動量に変換し、コンプトンプロファイルを求めた。Fig.3.8 にバックグラウンド、Fig.3.9 に Setup A のときの多重散乱の効果、Fig.3.10 に Setup B のときの多重散乱の効果、Fig.3.11 に energy calibration を解析した図、Fig.3.12 に求めた測定 A1 のコンプトンプロファイルを示す。バックグラウンドは試料をセットしていない状態で測定を行った。

③コンプトンプロファイルをコアとバレンスに分離

求めたコンプトンプロファイルにコアを追加し、コンプトンプロファイルからコアを引いたバレンスを追加したデータを Fig.3.13 に示した。また、コンプトンプロファイルからコアを引きバレンスのみにしたデータを Fig.3.14 に示した。

ここで、コアは Al の反応に寄与しない電子を示しており、1s, 2s, 2p 軌道の 10 個の電子を表している。バレンスは Al の反応に寄与する電子を示しており、3s, 3p 軌道の 3 個の電子を表している。

④複数方位のバレンスを2次元再構成

複数方位のバレンスのみにしたデータを用いて2次元再構成をした。測定 A の5方位のバレンスを2次元再構成した結果を Fig.3.15 に示した。

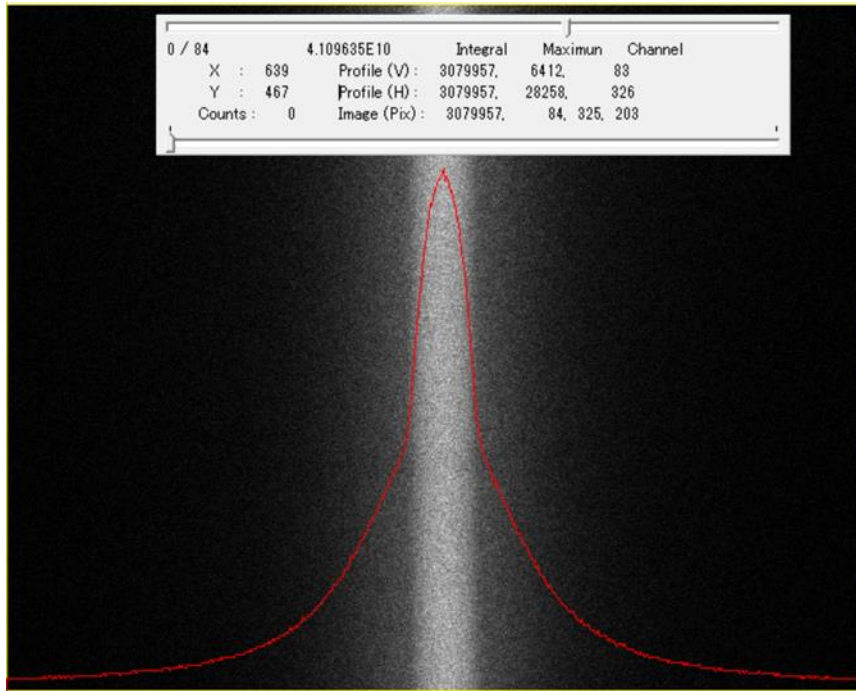


Fig.3.6 二次元検出器で測定した測定 A1 の 2 次元データ

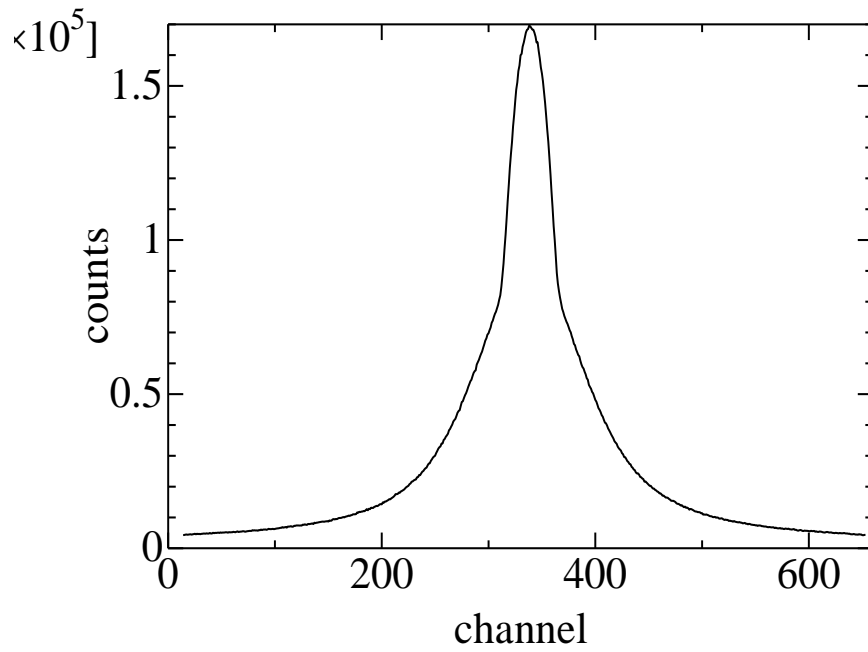


Fig.3.7 1次元に積算したデータ

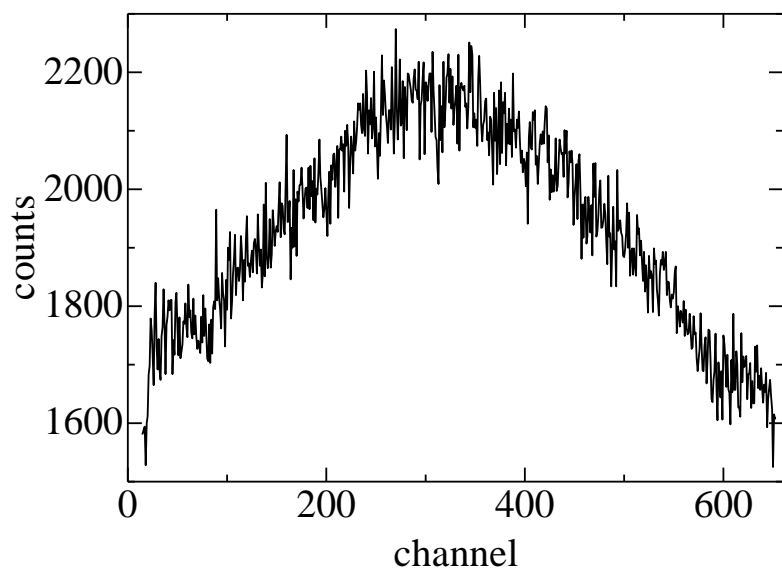


Fig.3.8 バックグラウンド

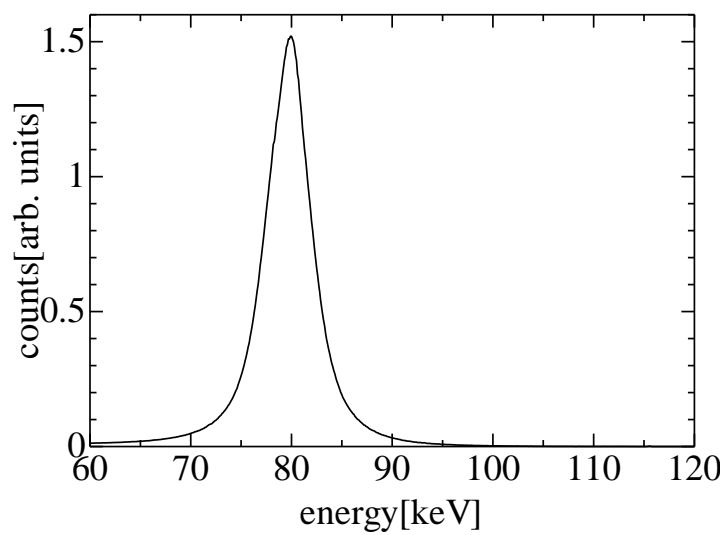


Fig.3.9 Setup A のときの多重散乱の効果

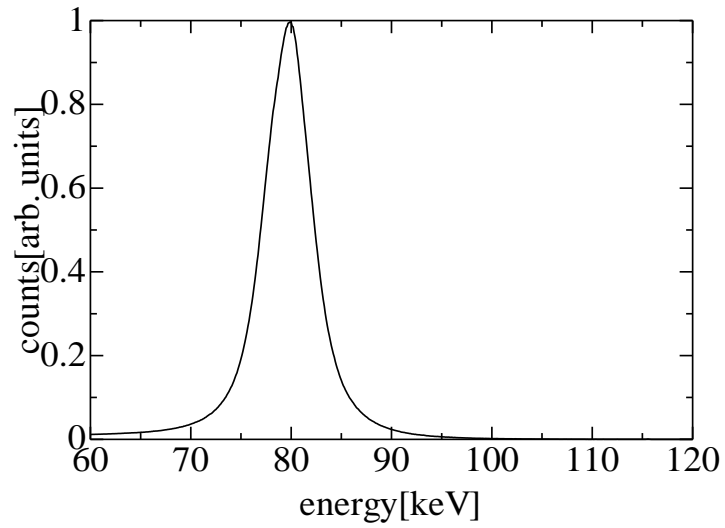


Fig.3.10 Setup B のときの多重散乱の効果

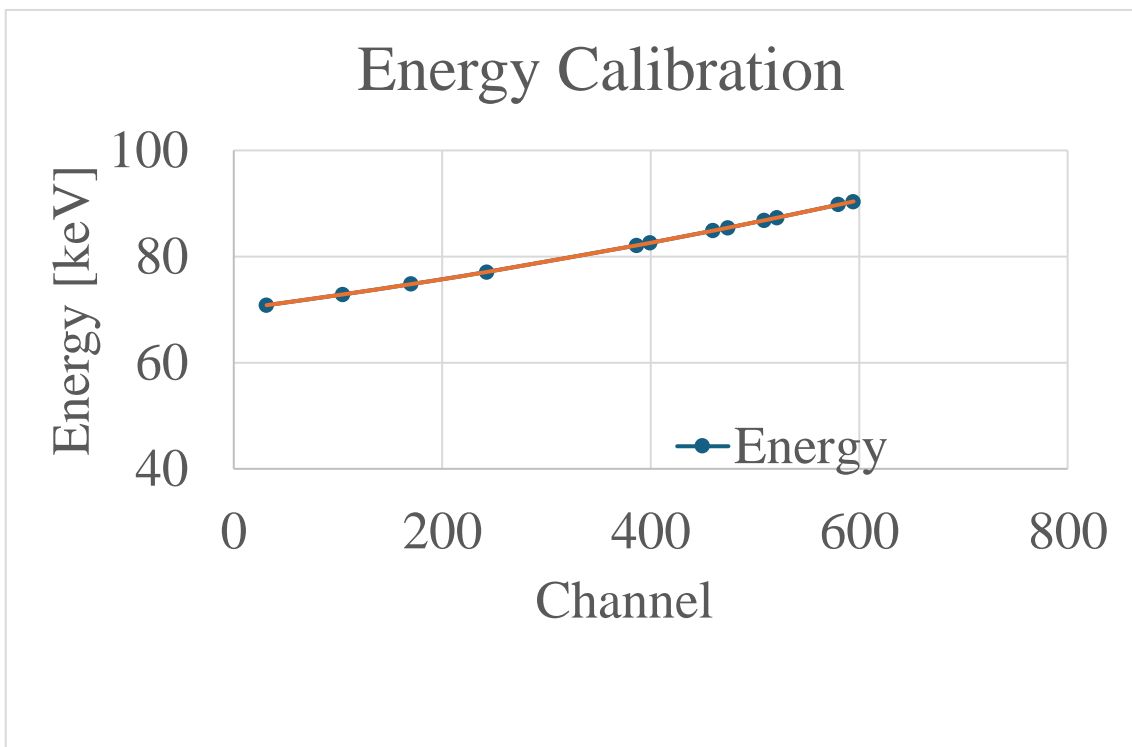


Fig.3.11 energy calibration 解析

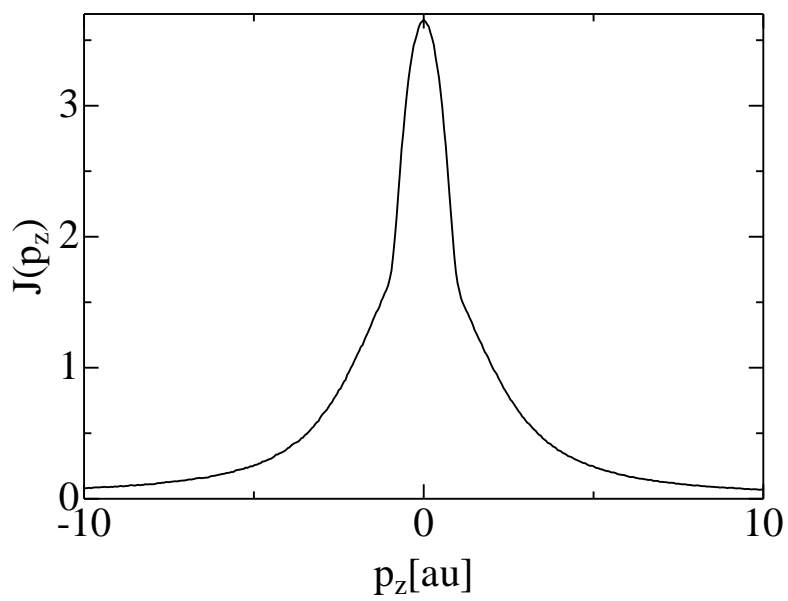


Fig.3.12 測定 A1 のコンプトンプロファイル

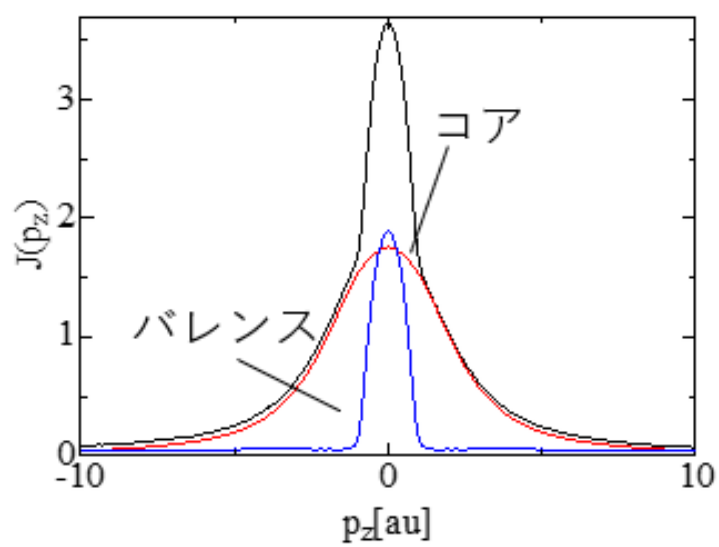


Fig.3.13 測定 A1 のコンプトンプロファイルにコアとバレンスを追加したデータ

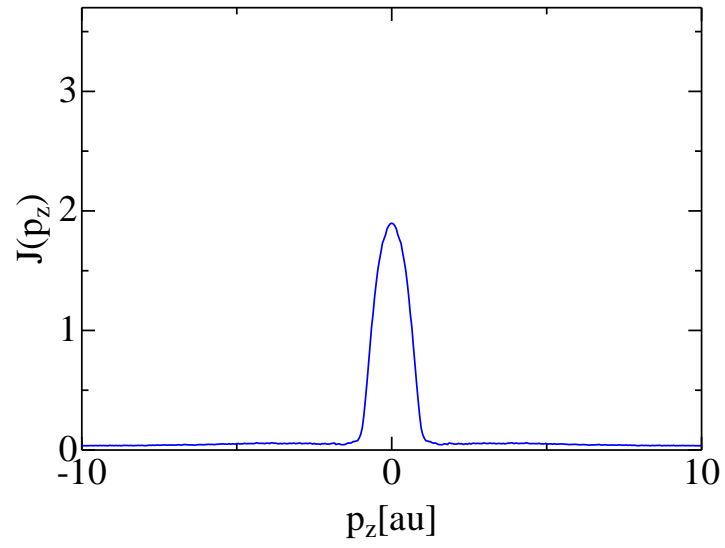


Fig.3.14 測定 A1 のバレンスのみにしたデータ

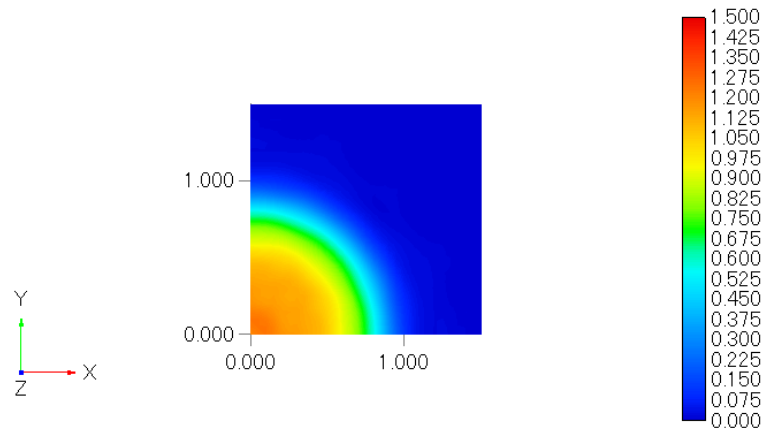
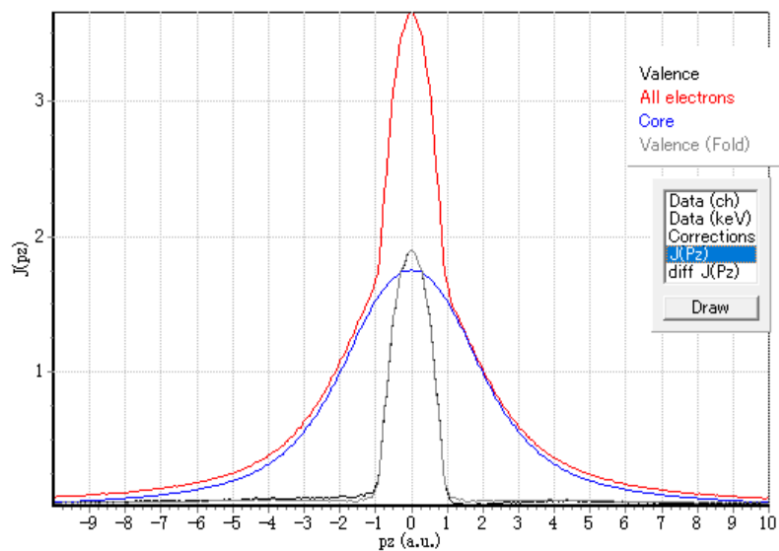


Fig.3.15 測定 A の 2 次元再構成結果

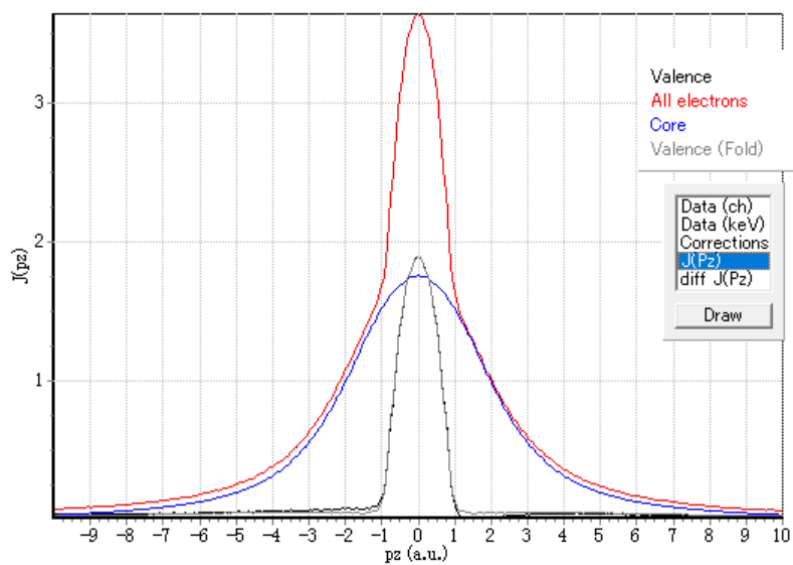
第4章 実験結果・考察

4-1 コンプトンプロファイル

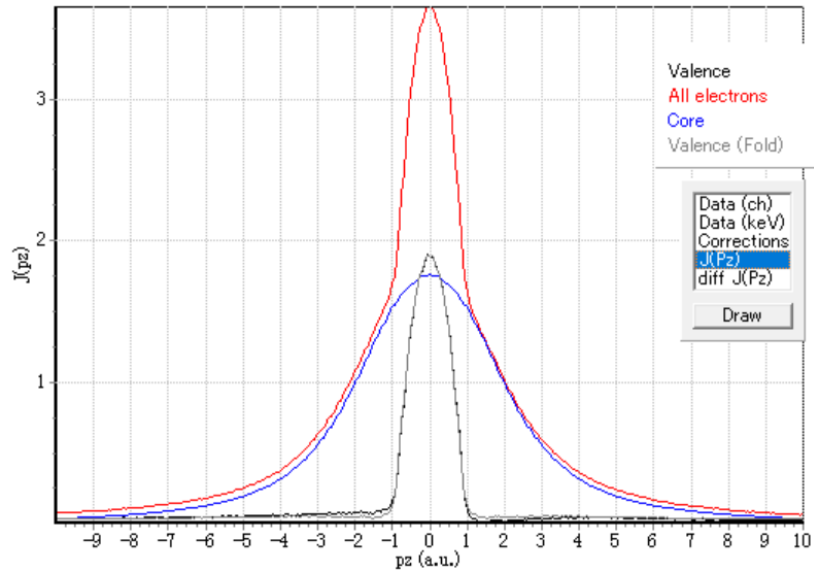
測定 A[100]~[110]の5方位のコンプトンプロファイルの測定結果を Fig.4.1(a)~(e)に示す。横軸が運動量 p_z (a.u.), 縦軸がコンプトンプロファイル $J(p_z)$ (a.u.⁻¹)である。



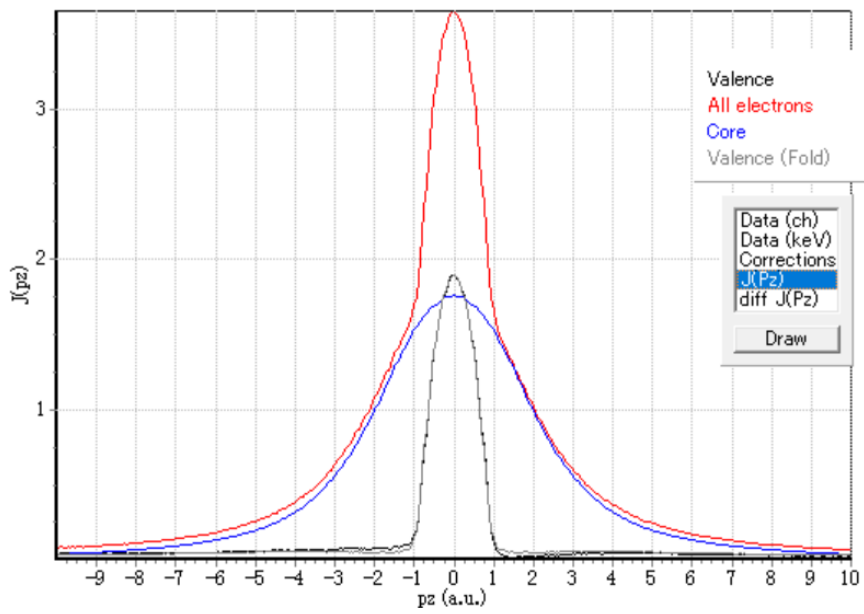
(a) 測定 A1, 0°, [100]



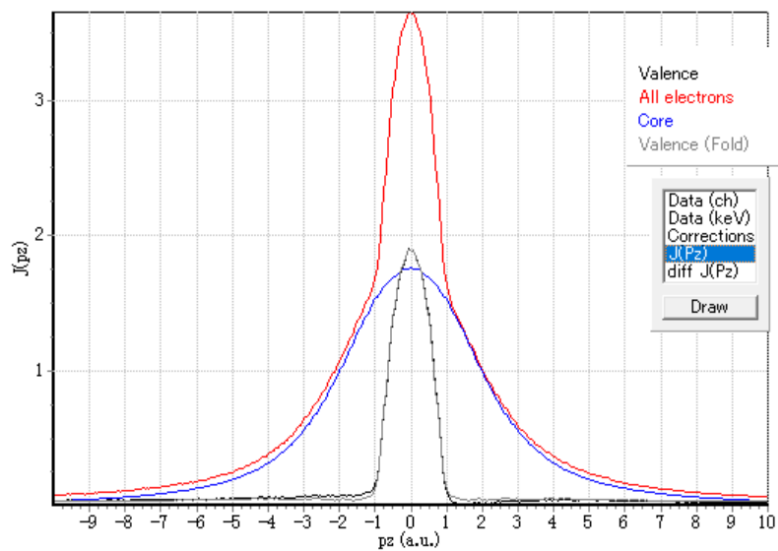
(b) 測定 A2, 11.25°



(c) 測定 A3, 22.5°



(d) 測定 A4, 33.75°



(e) 測定 A5, 45°, [110]

Fig.4.1 測定 A のコンプトンプロファイル

先行研究^[12]と(100)のコンプトンプロファイルを比較した図を Fig.4.2 に示す。Fig.4.2 から、概ね先行研究と一致していた。

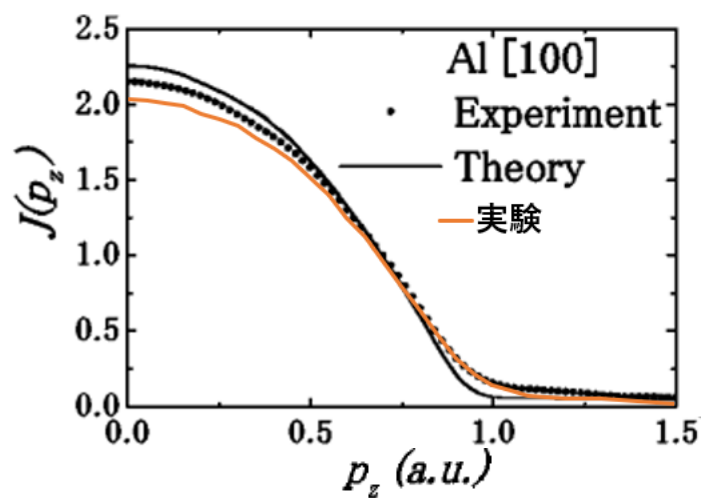


Fig.4.2 先行研究と本実験の[100]のコンプトンプロファイルの比較^[12]

4-2 2次元再構成

測定 A 及び測定 B の 2 次元再構成結果を Fig.4.3 に示す。図の X 軸が p_x (a.u.), Y 軸が p_y (a.u.), Z 軸が電子運動量密度 $n(\mathbf{p})$ (arb.unit) である。

Fig.4.3 から、球に近い形状を確認できた。Al のフェルミ面は概ね金属自由電子モデルで考えられ、金属自由電子モデルのフェルミ面は球であることから、測定 A 及び測定 B の 2 次元再構成はフェルミ面を確認できたと分かる。したがって、様々な方位のコンプトンプロファイルを測定することができたと考える。

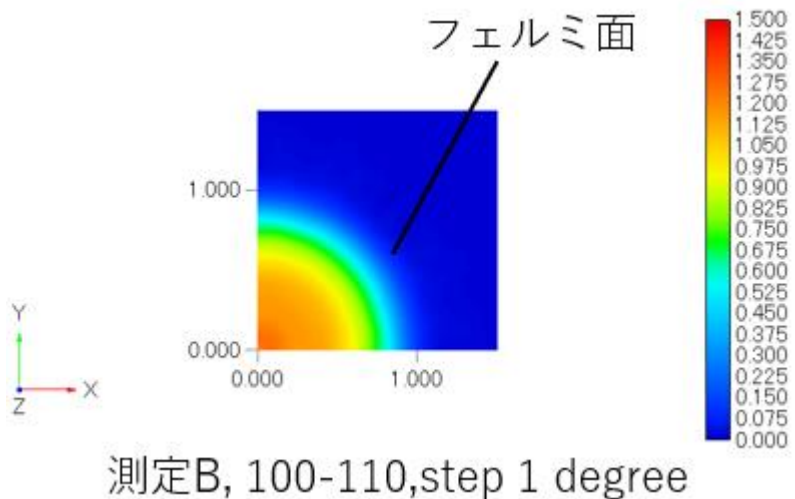
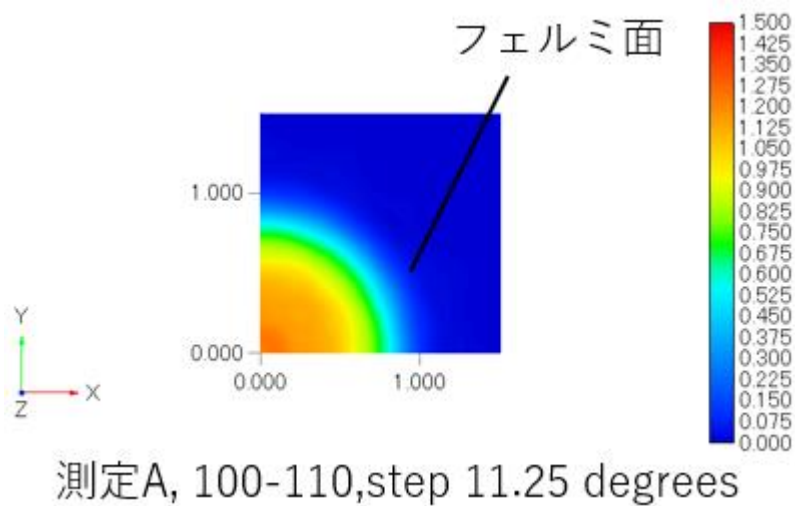
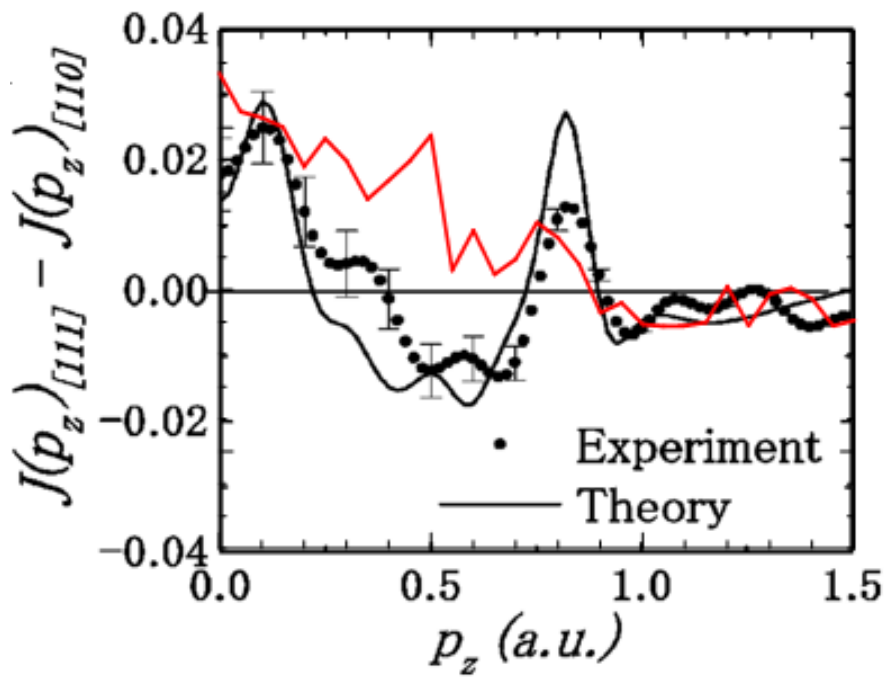
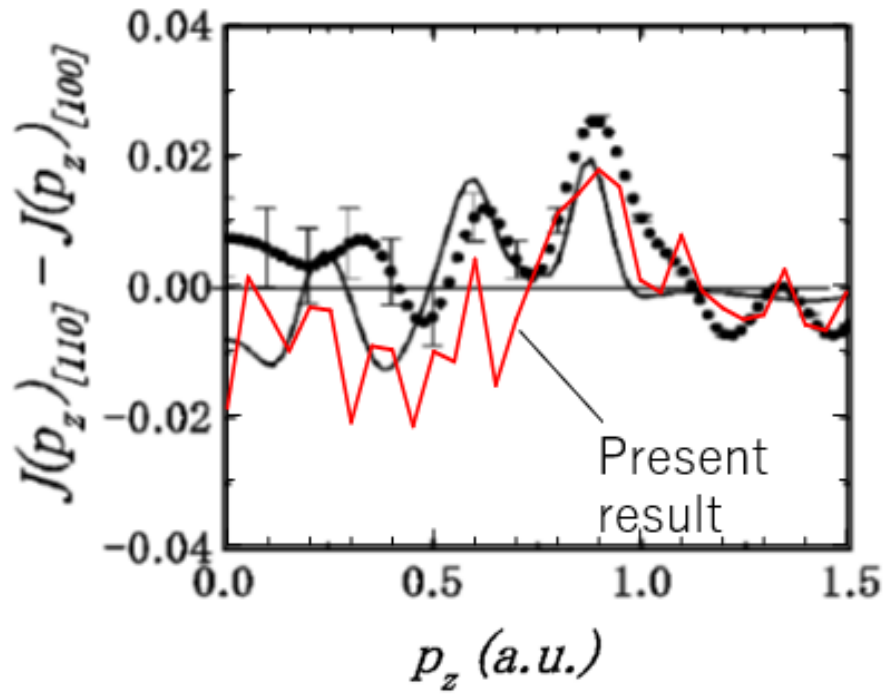


Fig.4.3 測定 A 及び測定 B の 2 次元再構成結果

4-3 先行研究との異方性の比較

先行研究^[12]と異方性を比較した結果を Fig.4.4 に示す。



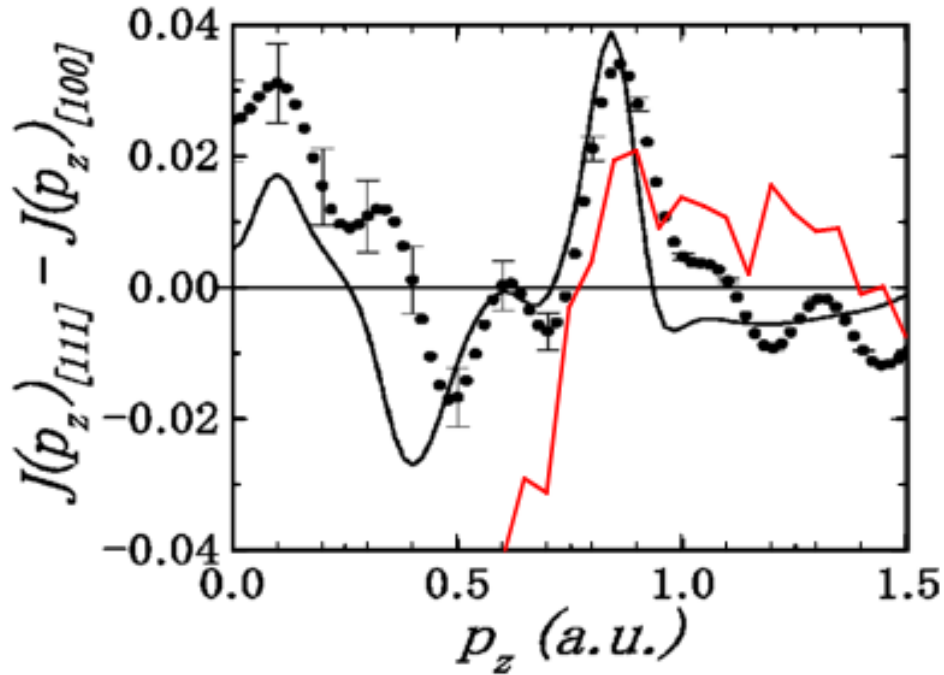


Fig.4.4 先行研究との異方性の比較^[12]

Fig4.4 から、 $J(p_z)_{[110]} - J(p_z)_{[100]}$ は先行研究と今回の結果が概ね一致したが、 $J(p_z)_{[111]} - J(p_z)_{[110]}$ は $0.2 < p_z < 0.7$ で一致せず、 $J(p_z)_{[111]} - J(p_z)_{[100]}$ は $p_z < 0.7$ で先行研究と今回の結果が一致しないことが分かった。 $J(p_z)_{[110]} - J(p_z)_{[100]}$ は測定 A のデータを用いたため、この結果から、測定 A は信頼できることが分かった。

setup A では回転させても厚さが一定であるが、setup B では回転させると厚さが変わってしまう。そこで、setup B にて試料を回転させていないため同じ厚さとなる測定 C の $J(p_z)_{[111]}$ と、測定 E の $J(p_z)_{[100]}$ を用いて異方性を先行研究^[12]と比較した。比較した図を Fig.4.5 に示す。

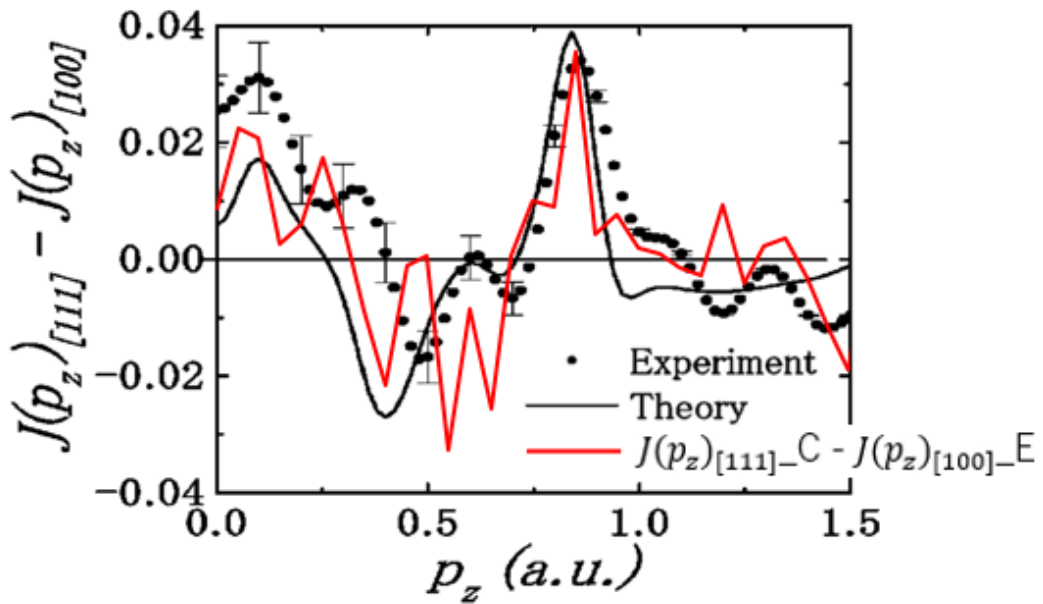


Fig.4.5 試料の厚さを揃えての先行研究との異方性の比較^[12]

Fig.4.5 より、試料の厚さを揃えた測定 C の $J(p_z)_{[111]}$ - 測定 E の $J(p_z)_{[100]}$ は、概ね先行研究と一致した。この結果から、測定 C の $J(p_z)_{[111]}$ と、測定 E の $J(p_z)_{[100]}$ は信頼できることが分かった。

以上より、厚さが常に一定であった測定 A は信頼できることが分かった。測定 B は測定 A と同じ試料の置き方でコンプトンプロファイルを測定したことから、測定 B も信頼できると考える。また、測定 C の [111] と、測定 E の [100] は信頼できることが分かった。

第 5 章 3 次元再構成

5-1 金属自由電子モデルでの検討

5-1-1 金属自由電子モデル

金属自由電子モデルの運動量密度 $\rho(\mathbf{p})$ を、半径 1 a.u.の球とし、球の内部の運動量密度を $\rho(\mathbf{p}) = 1$,球の外部の運動量密度を $\rho(\mathbf{p}) = 0$ とした。金属自由電子モデルの運動量密度 $\rho(\mathbf{p})$ の図を Fig.5.1 に示す。

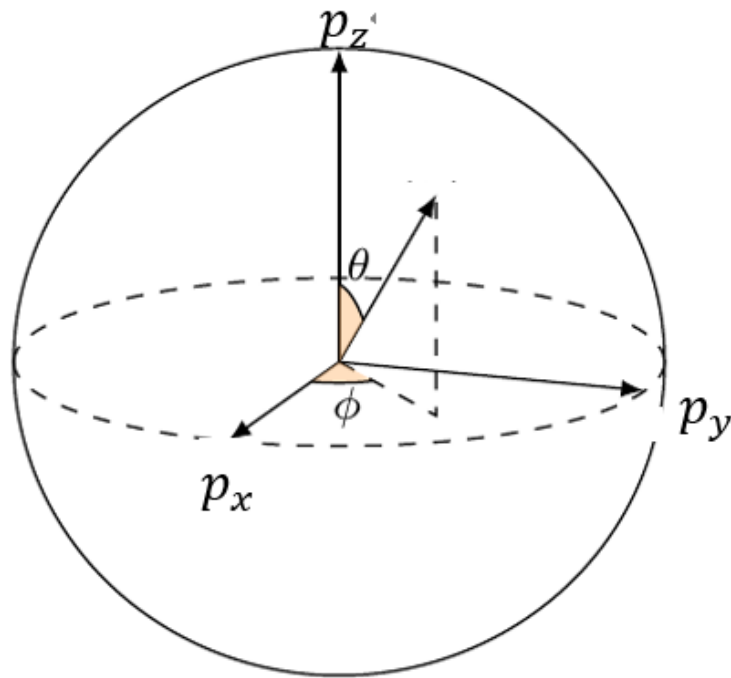


Fig.5.1 金属自由電子モデルの運動量密度

$\rho(p_x, 0, 0)$ での金属自由電子モデルの運動量密度 $\rho(\mathbf{p})$ の図を Fig.5.2 に示した。

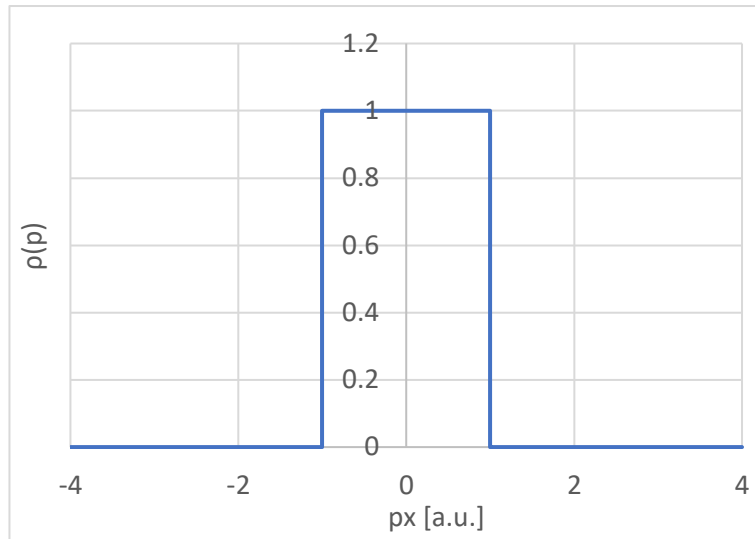


Fig.5.2 $\rho(p_x, 0, 0)$ での運動量密度 $\rho(\mathbf{p})$

コンプトンプロファイル $J(p_z)$ は式 (2) より、運動量密度 $\rho(\mathbf{p})$ の 2 重積分

$$J(p_z) = \iint \rho(\mathbf{p}) dp_x dp_y$$

で表され、球の 2 重積分は球の断面積、すなわち放物線になる。金属自由電子モデルのコンプトンプロファイルを Fig.5.3 に示す。

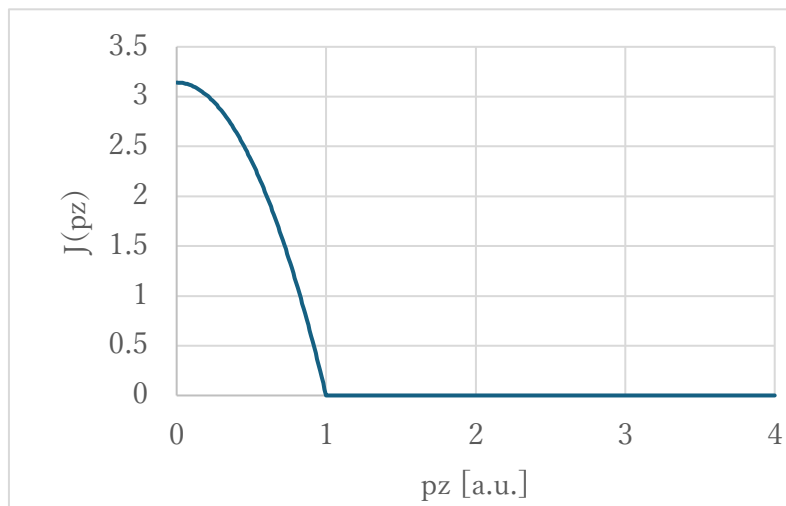
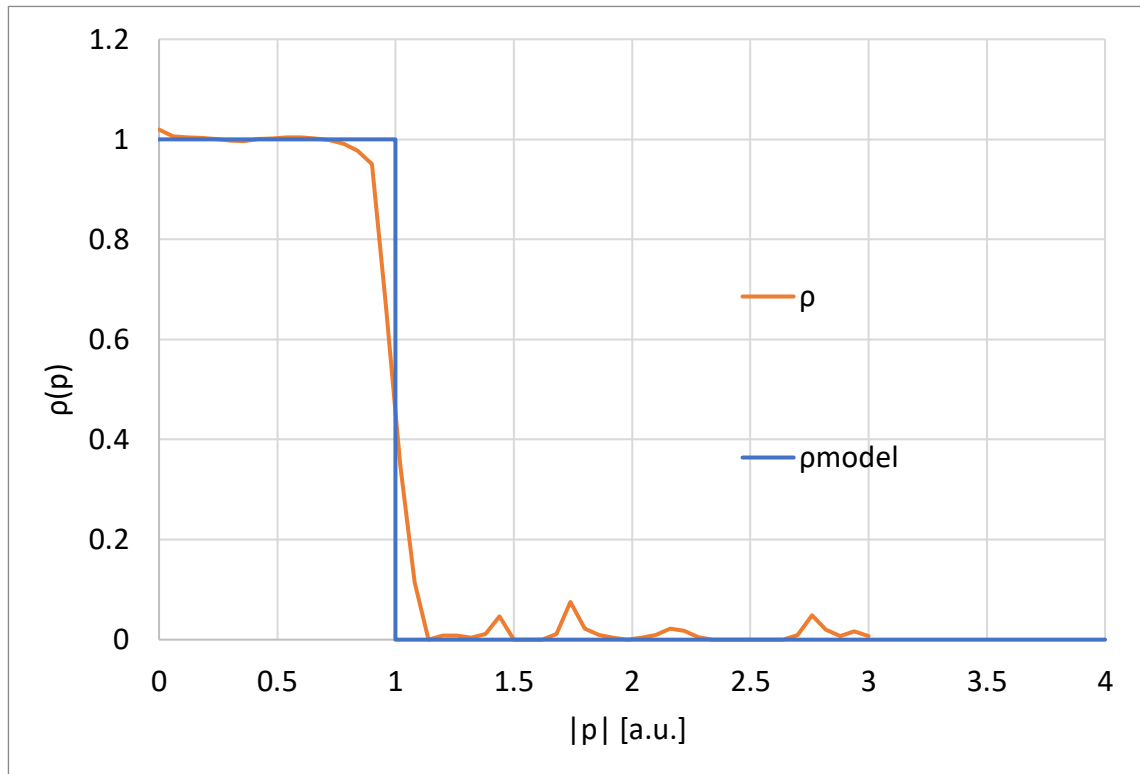


Fig.5.3 金属自由電子モデルのコンプトンプロファイル

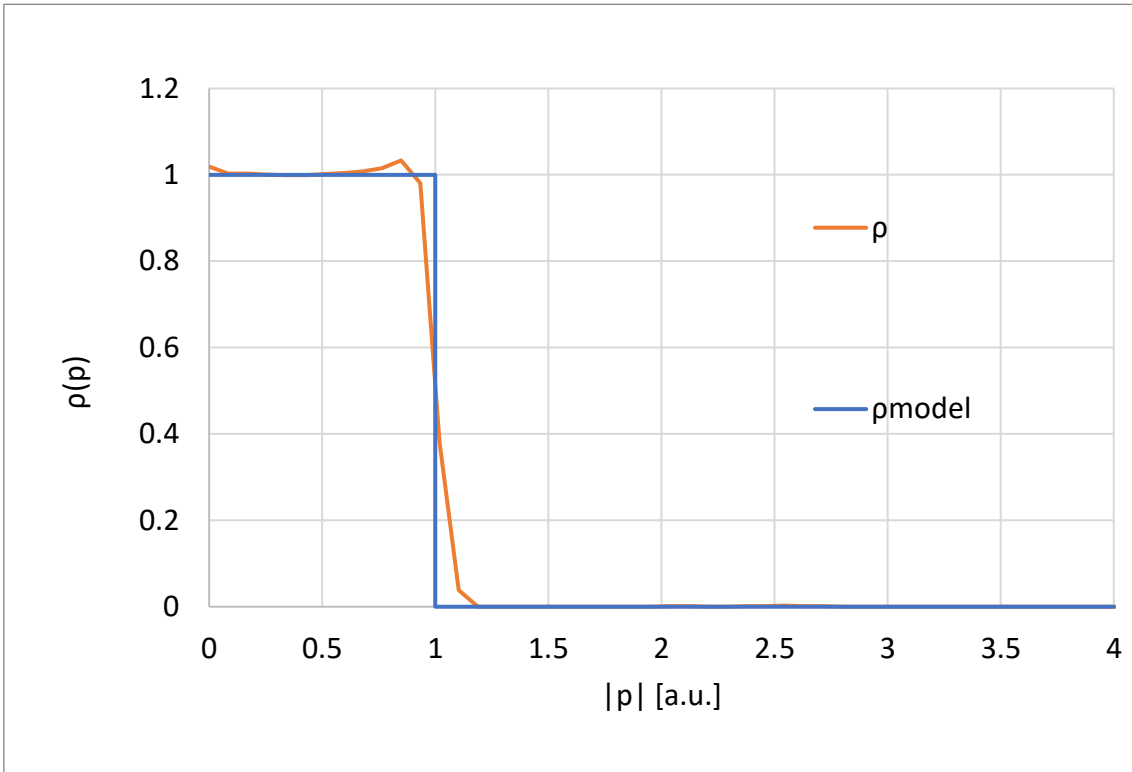
このコンプトンプロファイルを、スパースモデリングを用いて 3 次元再構成をする。

5-1-2 スパースモデリングを用いた金属自由電子モデルの再構成

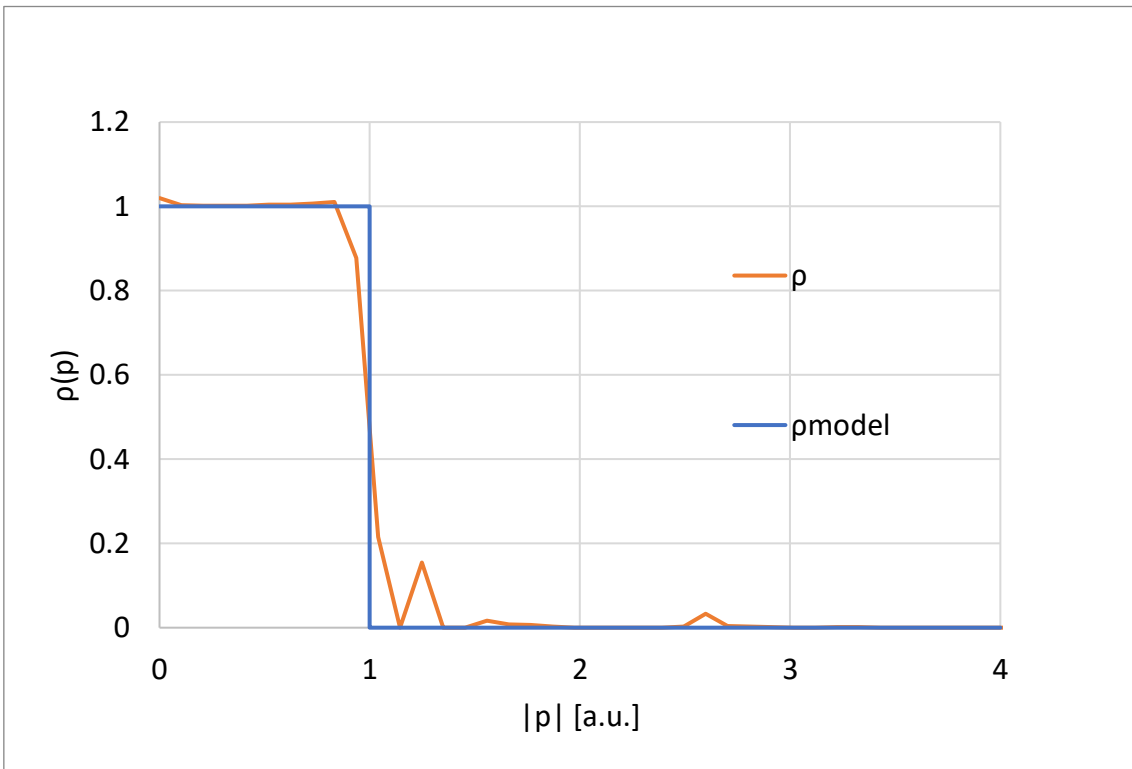
スパースモデリングを用いて金属自由電子モデルのコンプトンプロファイルを再構成した結果を、Fig5.4(a)~(c)に示す。金属自由電子モデルの運動量密度を ρ_{model} 、金属自由電子モデルのコンプトンプロファイルを再構成した運動量密度を ρ とした。



(a) [100]



(b) [110]



(c) [111]

Fig5.4 金属自由電子モデルの再構成結果

Fig5.4 から、 ρ と ρ_{model} が概ね一致していることが分かった。したがって、スパースモデリングを用いた再構成により、金属自由電子モデルの運動量密度を再現できたと言える。

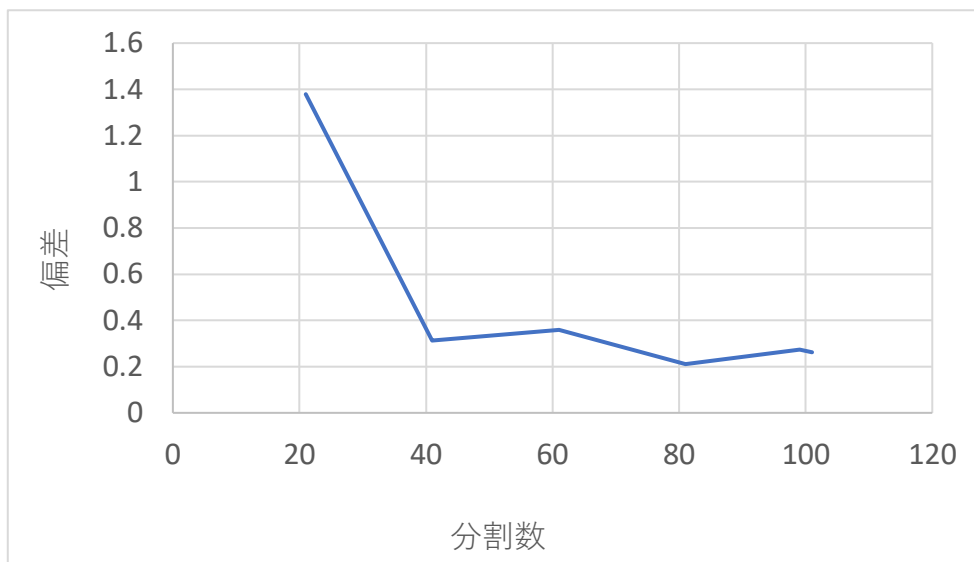
金属自由電子モデルの運動量密度 ρ_{model} と、金属自由電子モデルのコンプトンプロファイルを再構成した運動量密度 ρ の偏差 S を求めることで、計算メッシュの数、結晶方位依存性、統計誤差依存性の3点を評価することにする。偏差 S は

$$S = \sum (\rho - \rho_{\text{model}})^2$$

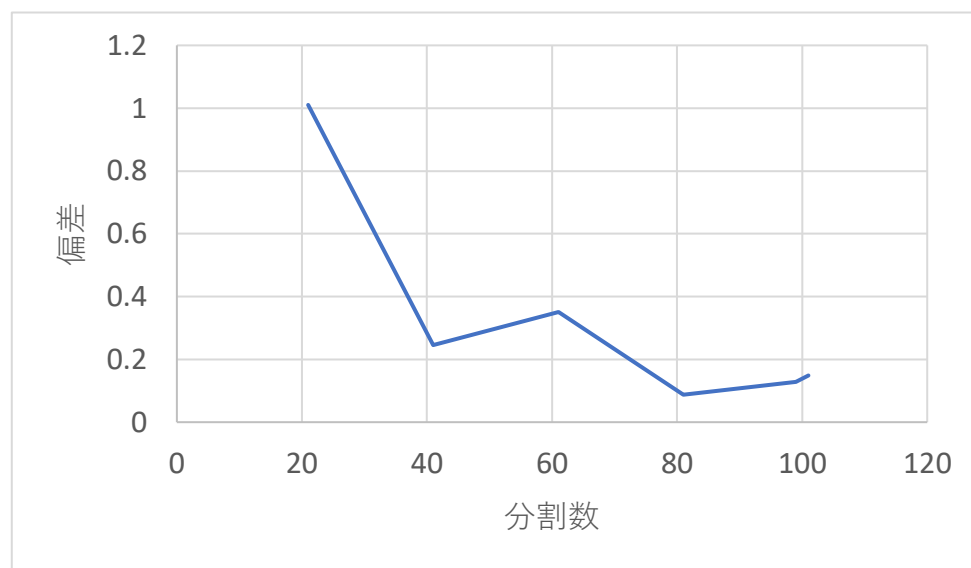
とした。

5-1-3 計算メッシュの数

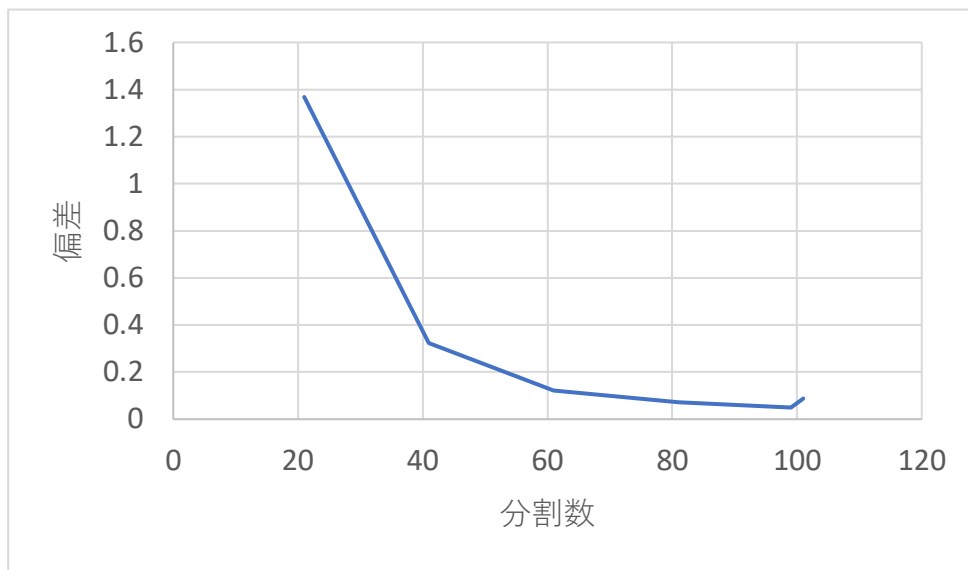
6 a.u.の範囲を 20~100 分割して、それぞれの分割数ごとに再構成し、それぞれ偏差 S を求めた。Fig.5.5(a)~(c)に[100], [110], [111]の分割数と偏差の図を示した。Fig.5.5(d)に分割数と[100], [110], [111]の偏差の和を示した。



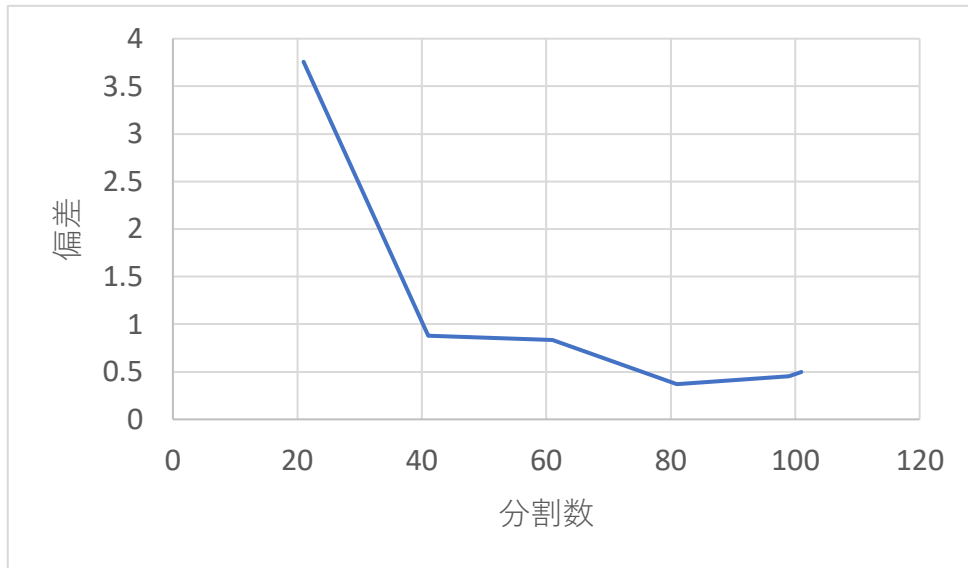
(a) [100]の分割数と偏差



(b) [110]の分割数と偏差



(c) [111]の分割数と偏差



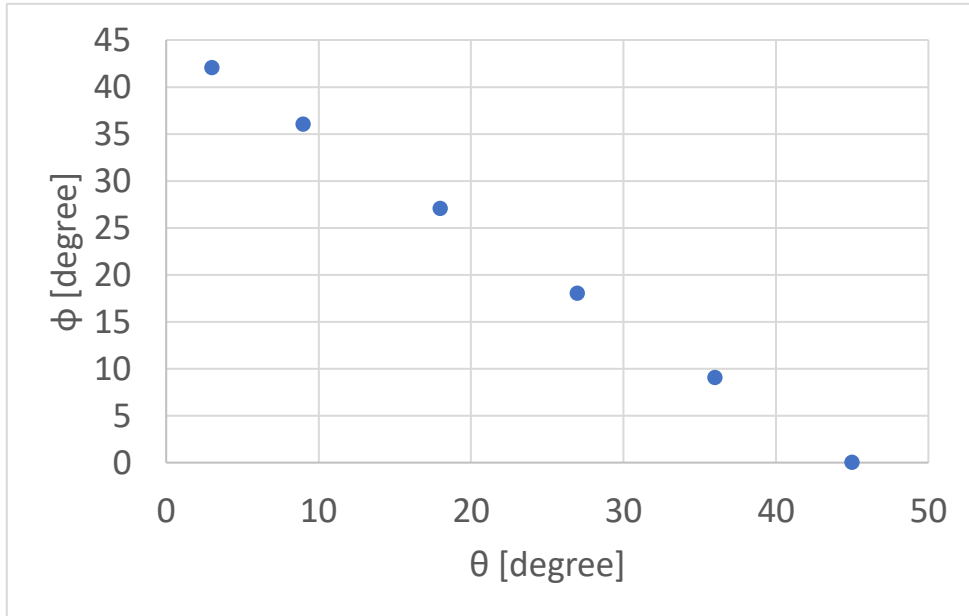
(d) 分割数と[100], [110], [111]の偏差の和

Fig.5.5 分割数と偏差の和

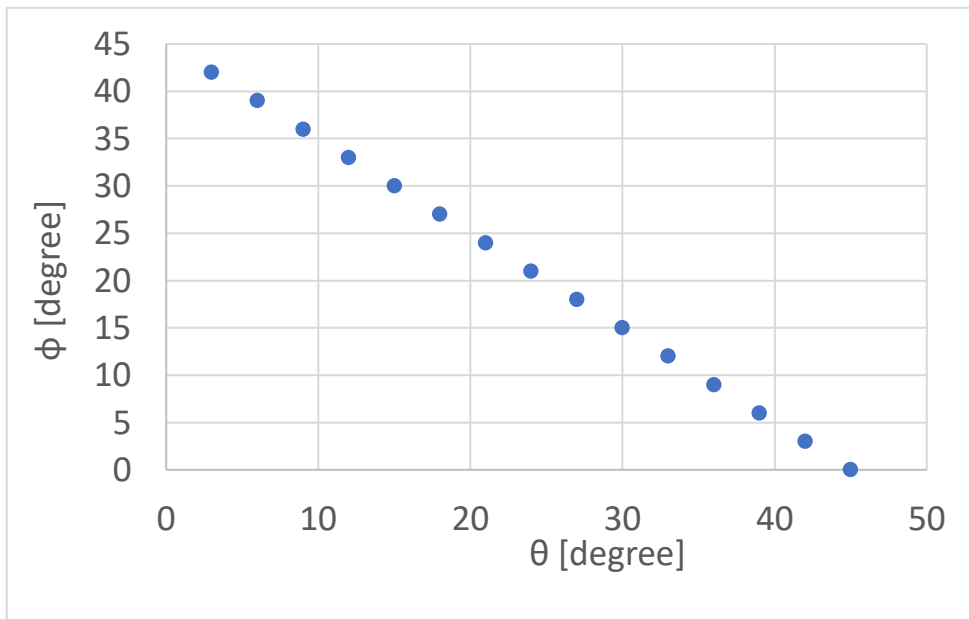
Fig.5.5 から、分割数が増えるにつれて偏差は小さくなるが、分割数が 60~80、すなわちメッシュ間隔が 0.1~0.08 a.u. で概ね偏差が飽和することが分かった。したがって、結晶方位依存性と統計誤差依存性はメッシュ間隔 0.1 a.u. で検討を行った。

5-1-4 結晶方位依存性

結晶方位依存性による評価では、6方位と15方位のコンプトンプロファイルの再構成を行い、比較をした。Fig.5.6(a)及び(b)に、再構成に用いた方位をそれぞれ示した。



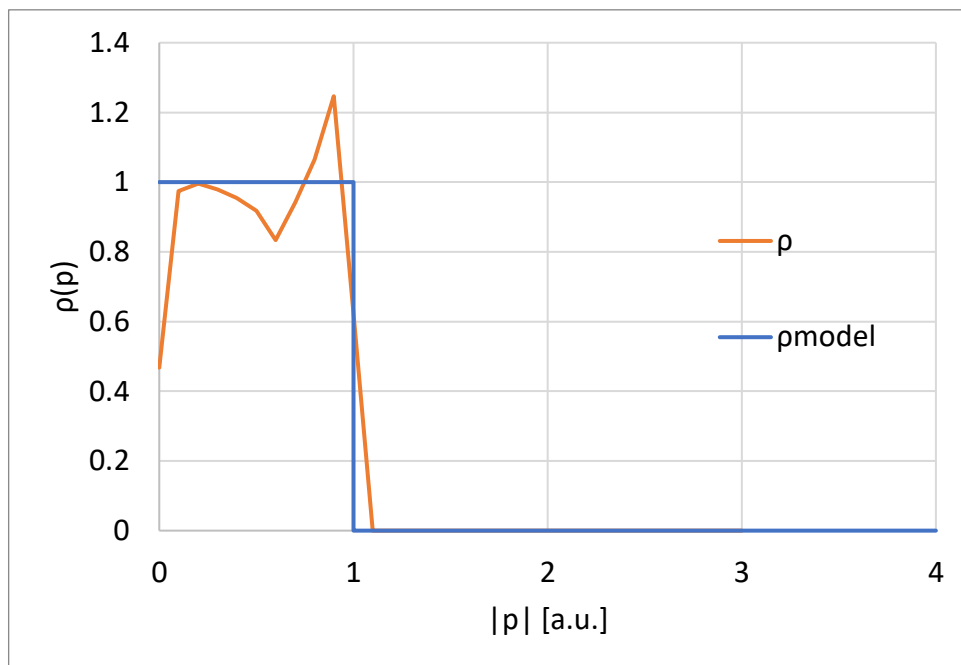
(a) 6方位



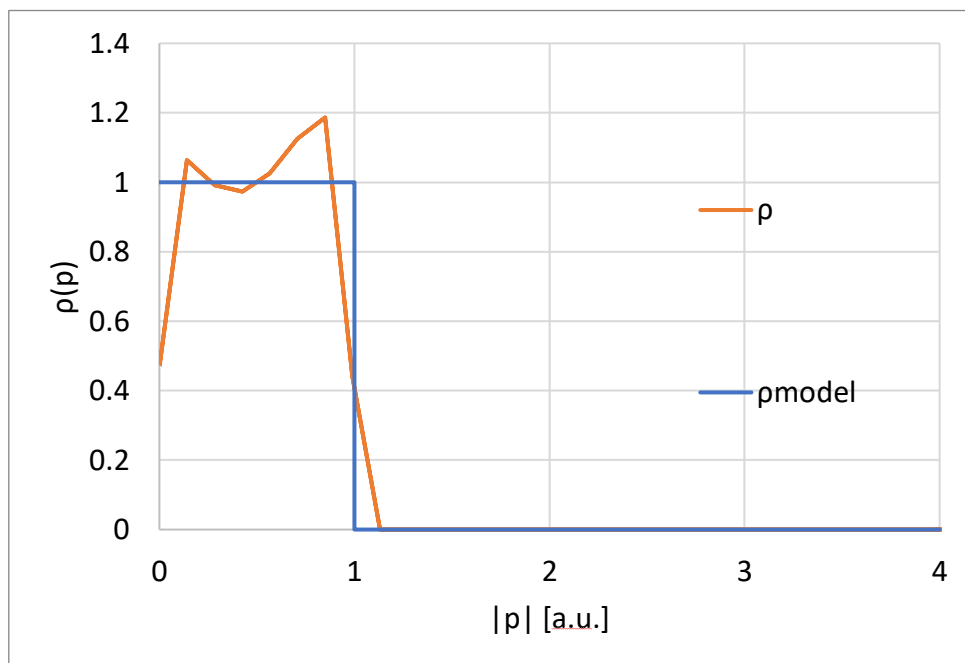
(b) 15方位

Fig.5.6 再構成に用いた方位

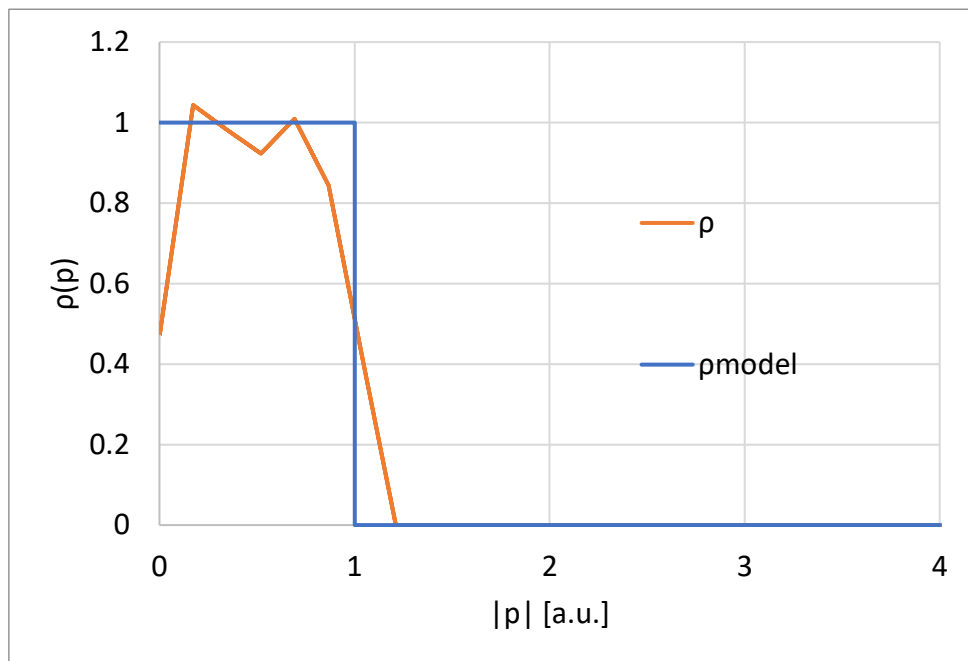
6 方位での再構成結果を Fig.5.7(a)~(c)に示した。金属自由電子モデルの運動量密度を ρ_{model} 、金属自由電子モデルのコンプトンプロファイルを再構成した運動量密度を ρ とした。



(a) [100]



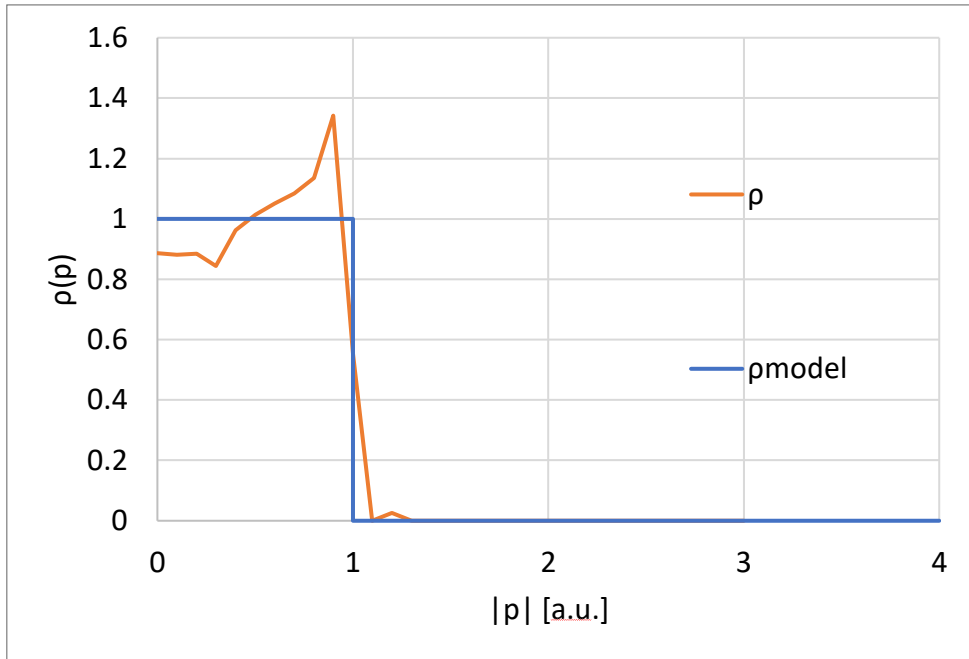
(b) [110]



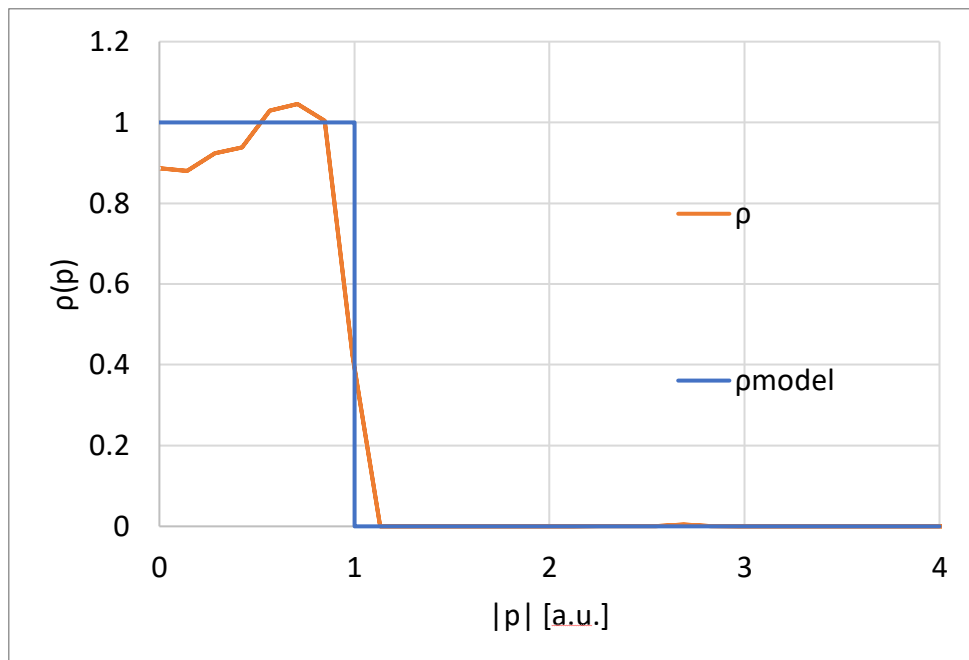
(c) [111]

Fig.5.7 6方位での再構成結果

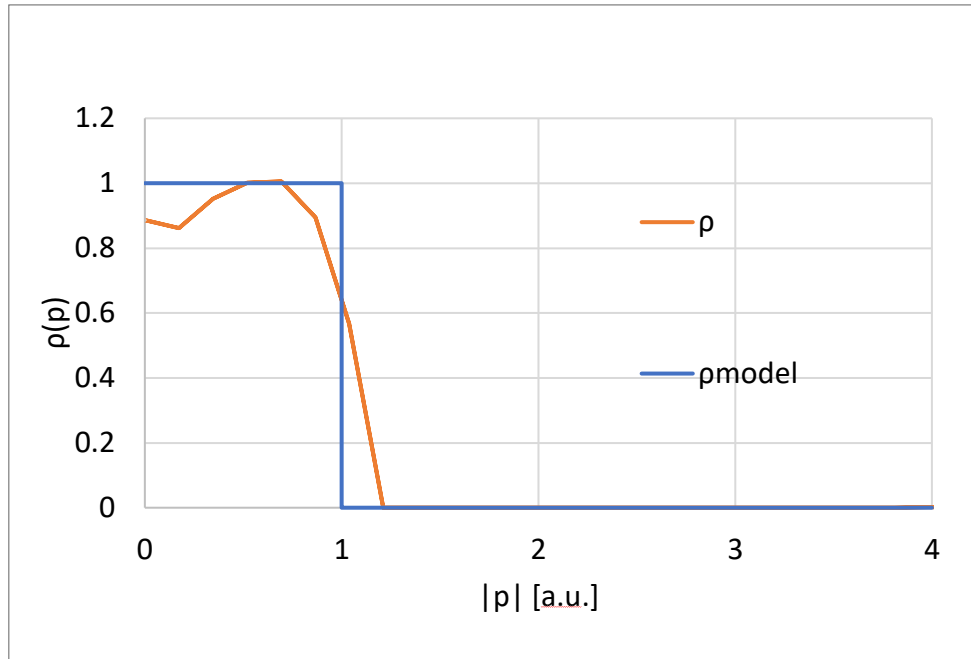
15方位での再構成結果を Fig.5.8(a)~(c)に示した。



(a) [100]



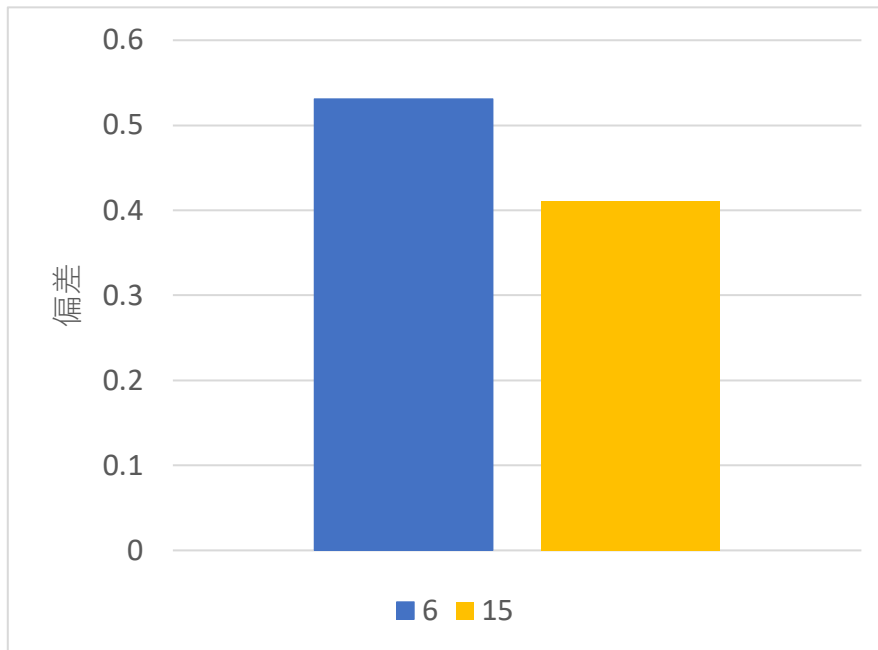
(b) [110]



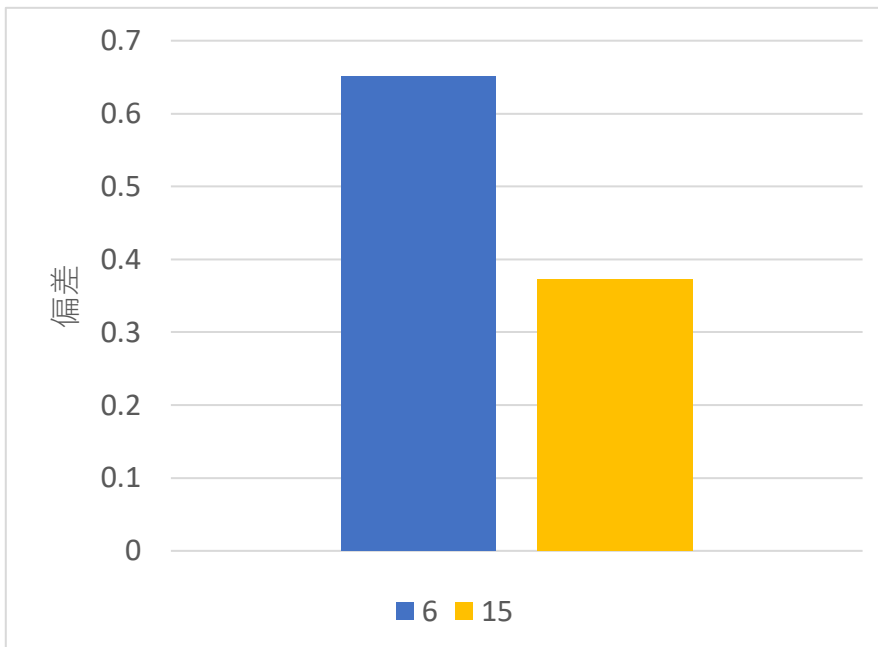
(c) [111]

Fig.5.8 15 方位での再構成結果

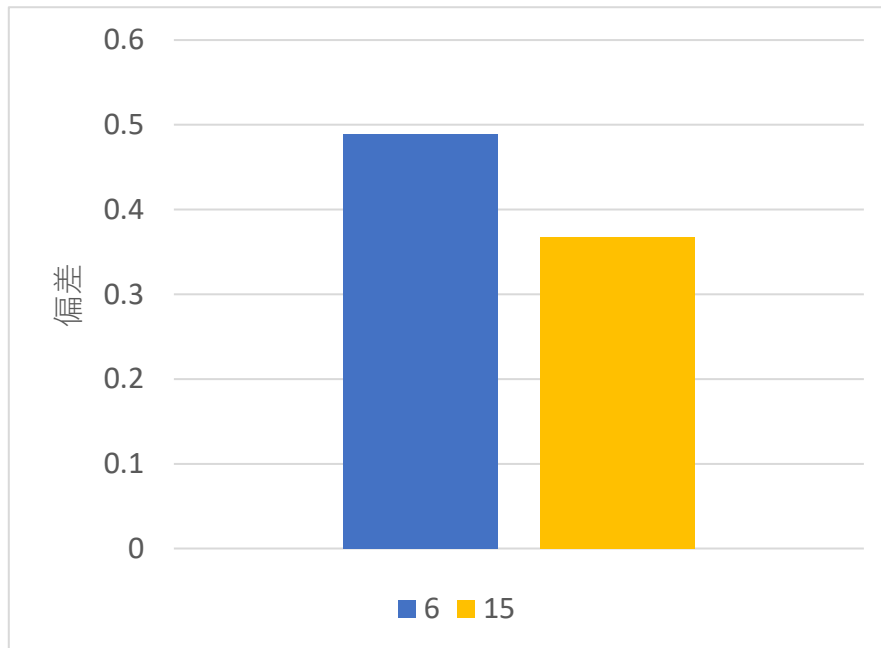
6 方位での再構成結果と 15 方位での再構成結果のそれぞれにおいて、偏差 S を求めた。Fig.5.9(a)~(c)に、6 方位での偏差と 15 方位での偏差を比較した図を示す。Fig.5.9(d)に[100], [110], [111]の偏差の和を 6 方位と 15 方位で比較した図を示す。



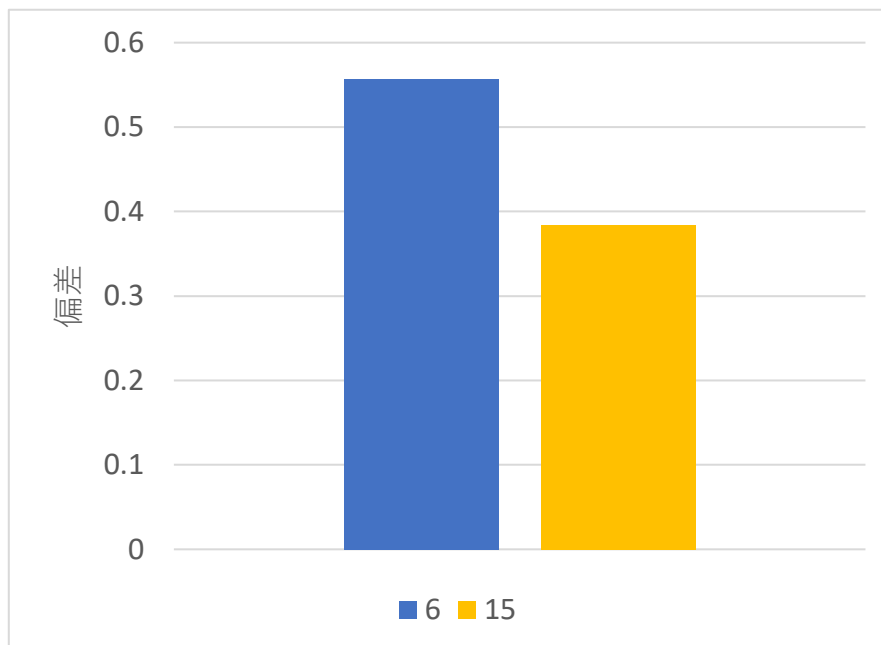
(a) [100]



(b) [110]



(c) [111]



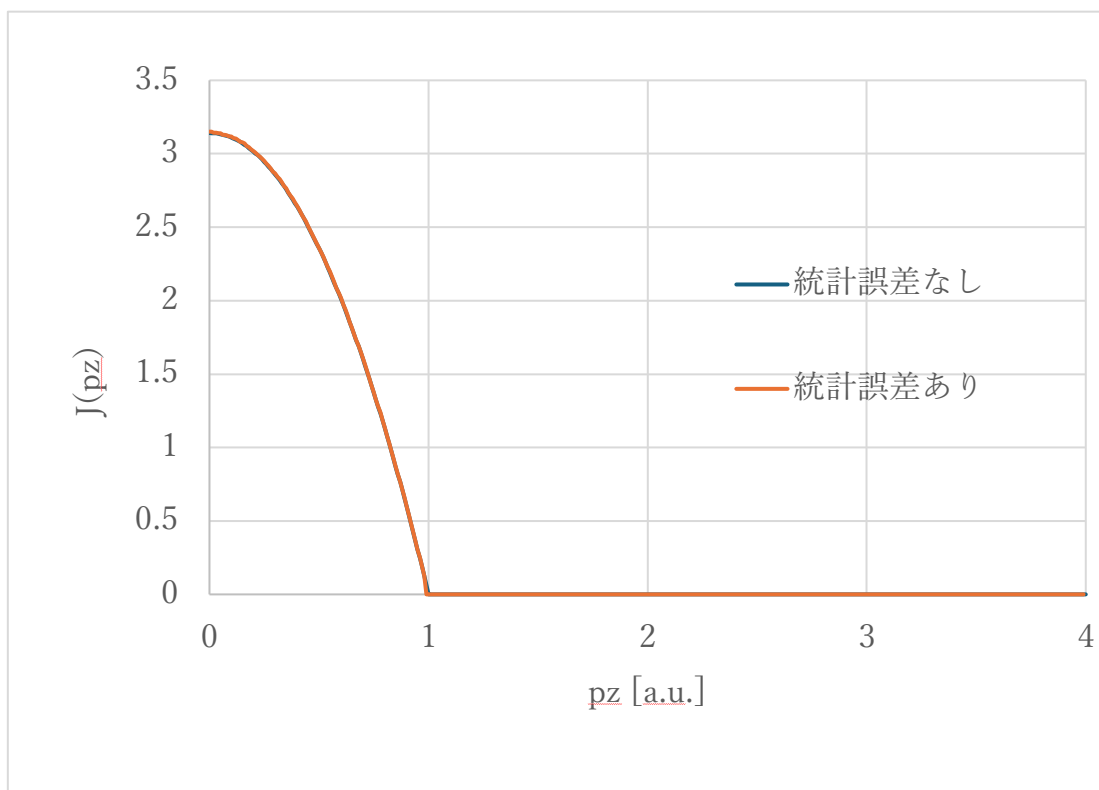
(d) [100], [110], [111]の偏差の和

Fig.5.9 6方位での偏差と15方位での偏差の比較

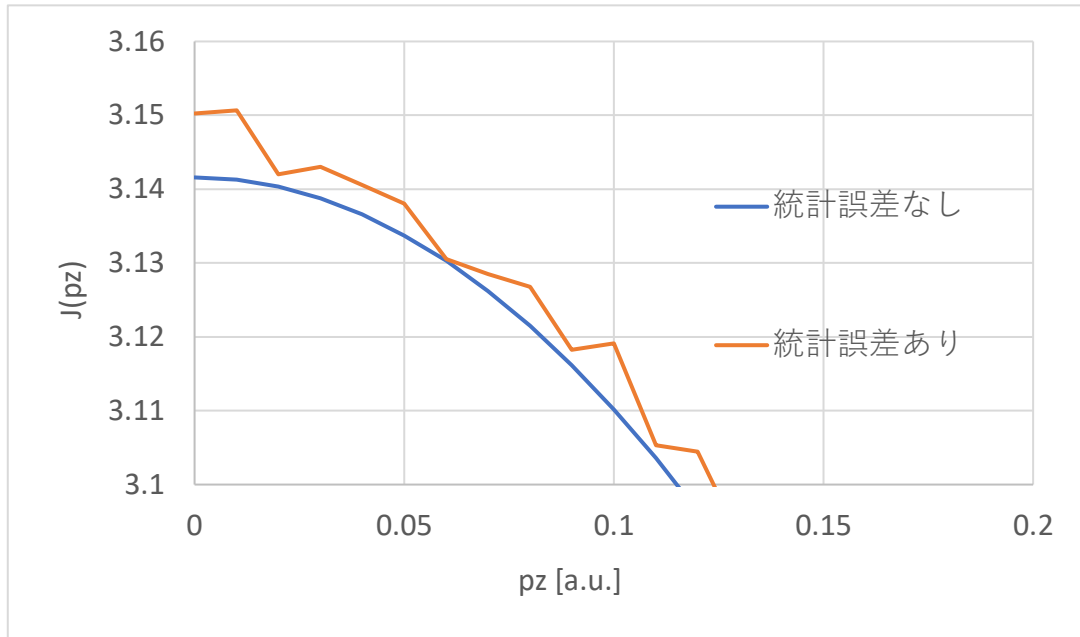
Fig.5.9 より、結晶方位数は多い方が偏差は小さくなるが、大きくは変わらないことが分かった。

5-1-5 統計誤差依存性

統計誤差を含むコンプトンプロファイルを求めた。例えばピークで10万カウント計測した場合の統計誤差の割合は、 $\frac{1}{\sqrt{10^5}}$ となる。Fig.5.10(a)に統計誤差を含まないコンプトンプロファイルと統計誤差を含むコンプトンプロファイルを比較した図を示す。Fig.5.10(b)に(a)を拡大した図を示す。



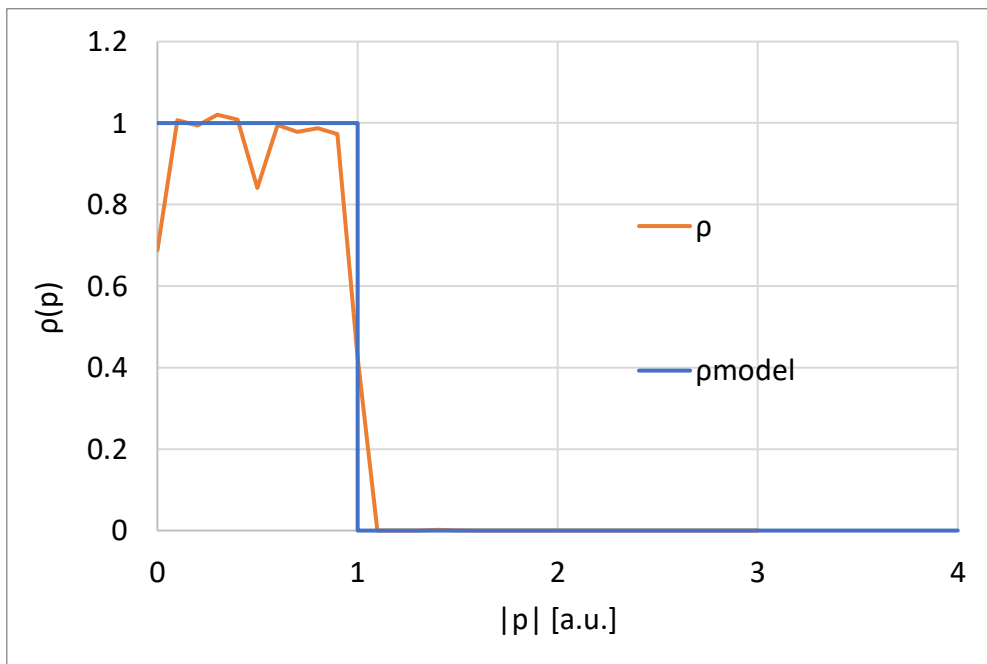
(a) 統計誤差を含まない $J(p_z)$ と統計誤差を含む $J(p_z)$



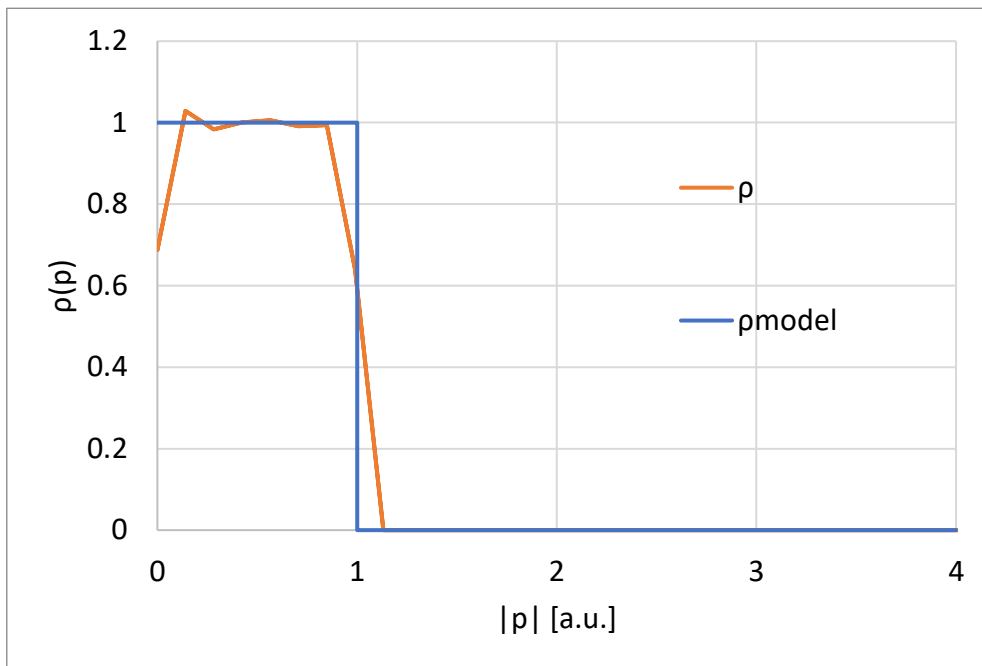
(b) 拡大図

Fig.5.10 統計誤差を含まない $J(p_z)$ と統計誤差を含む $J(p_z)$ の比較

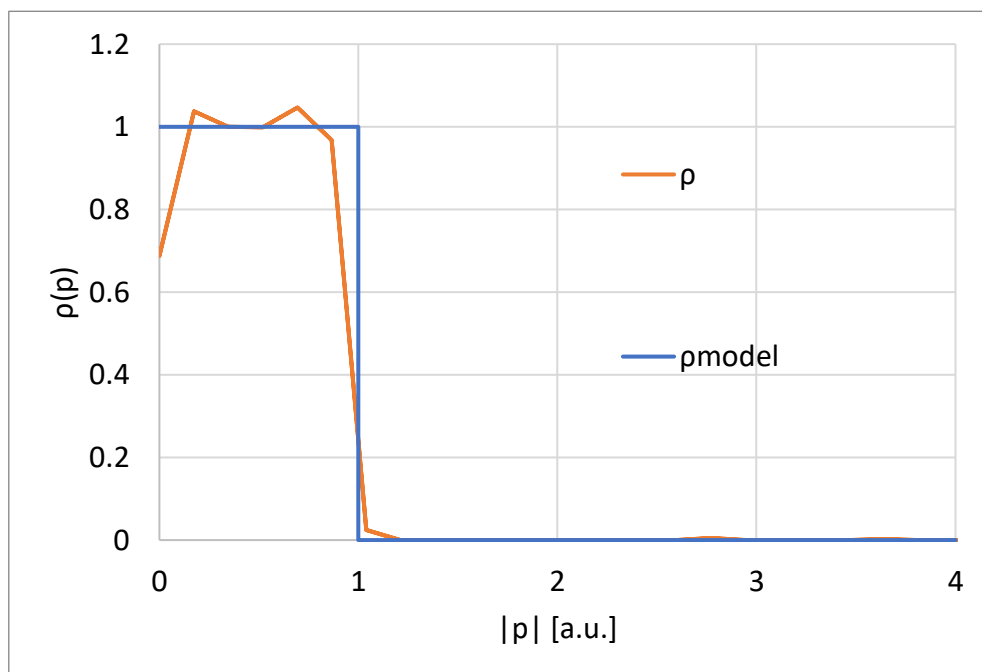
まず、統計誤差を含まないコンプトンプロファイルで再構成を行った。Fig.5.11(a)~(c)に再構成結果を示す。



(a) [100]



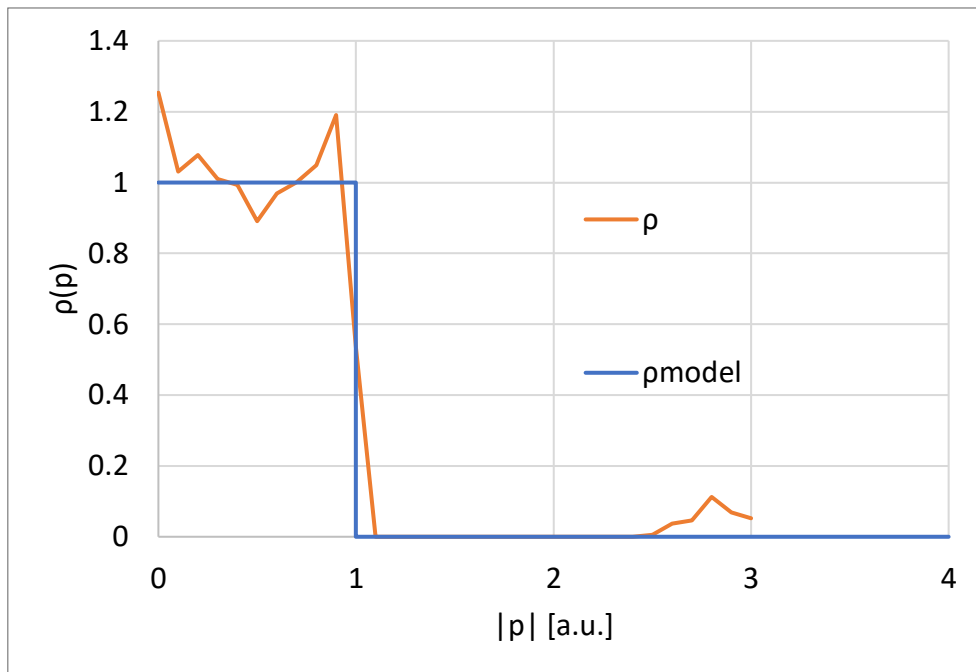
(b) [110]



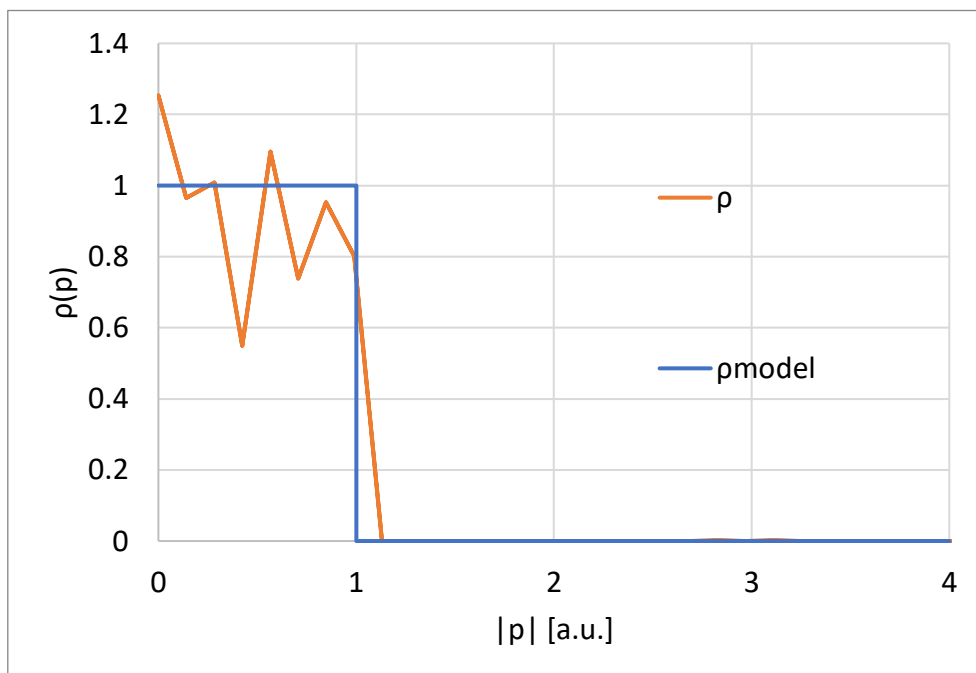
(c) [111]

Fig.5.11 統計誤差を含まない $J(p_z)$ の再構成結果

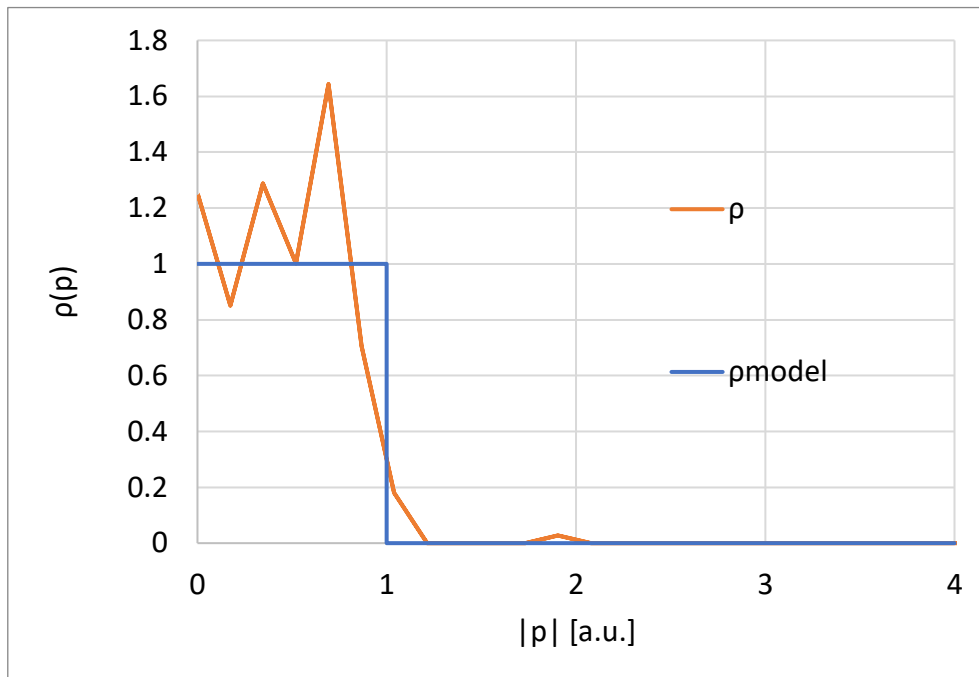
次に、統計誤差を含むコンプトンプロファイルで再構成を行った。このコンプトンプロファイルの統計誤差の割合は、 $\frac{1}{\sqrt{10^3}}$ である。Fig.5.12(a)~(c)に再構成結果を示す。



(a) [100]



(b) [110]



(c) [111]

Fig.5.12 統計誤差を含む $J(p_z)$ の再構成結果

Fig.5.11 と Fig.5.12 から、統計誤差を含むコンプトンプロファイルの方が、統計誤差を含まないコンプトンプロファイルよりも、金属自由電子モデルの運動量密度との一致の度合いが悪いことが読み取れる。

統計誤差の割合が異なるコンプトンプロファイルを 8 つ用意し、それぞれ再構成して、それぞれについて偏差 S を求めた。Fig.5.13 にそれぞれのコンプトンプロファイルのピークカウントと統計誤差の割合の図を示し、Fig.5.14 に統計誤差の割合と偏差の図を示した。

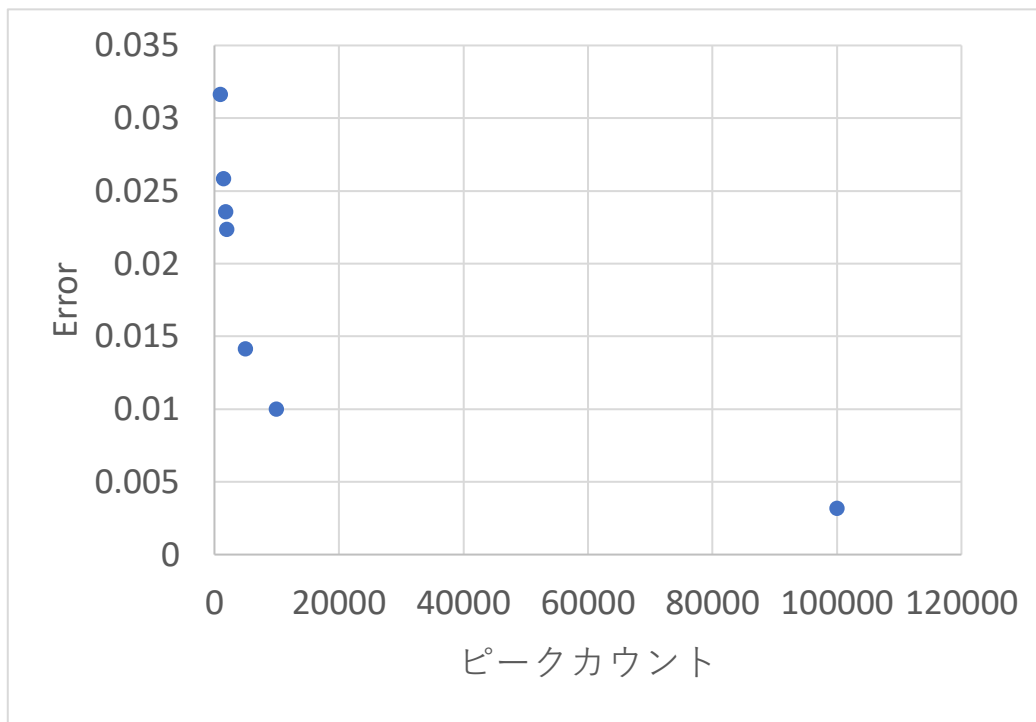


Fig.5.13 ピークカウントと統計誤差の割合

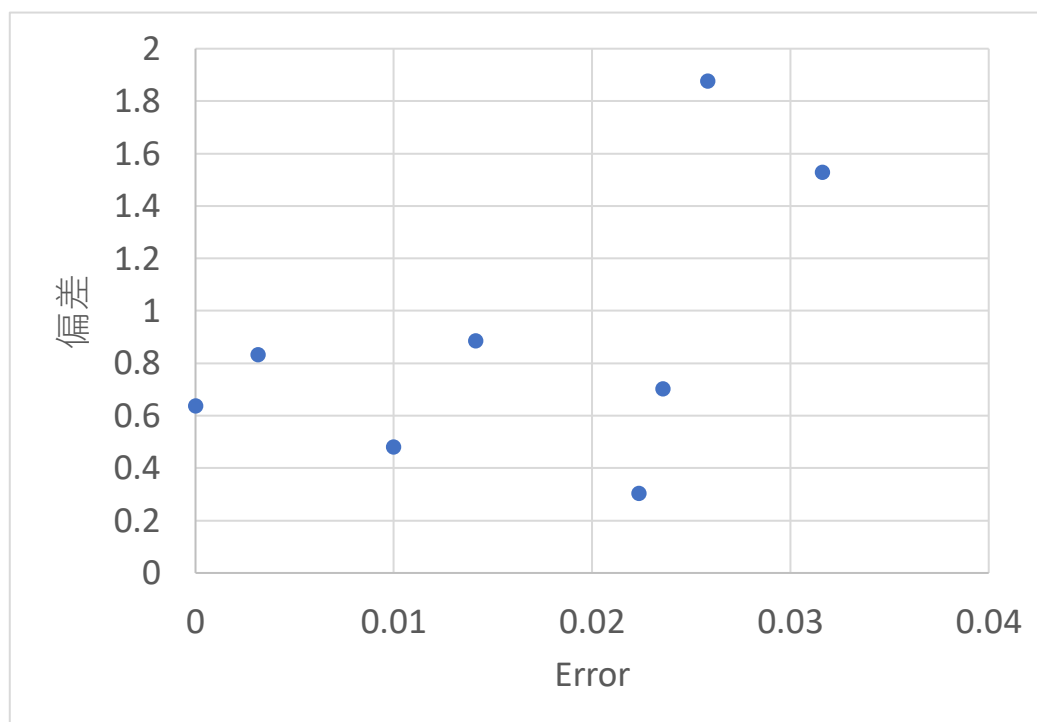


Fig.5.14 統計誤差の割合と偏差

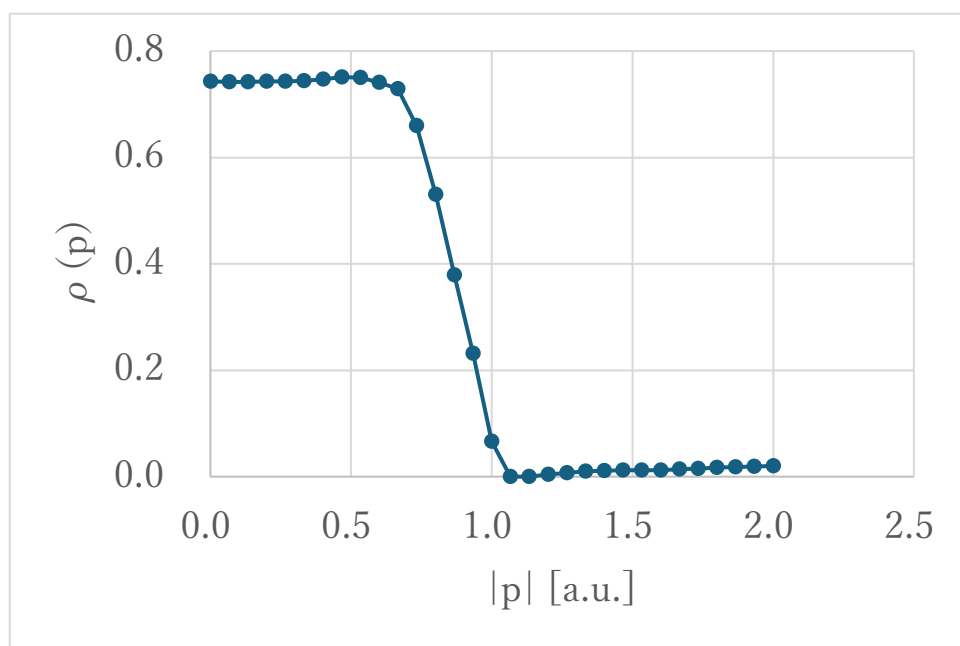
Fig.5.14 から、統計誤差の割合が 0.025 あたりまでは、統計誤差の割合が増えても偏差はあまり変化しなかったが、統計誤差の割合が 0.025 を超えたあたりから、急激に偏差が増加することが分かった。

5-2 Al 単結晶の測定データでの検討

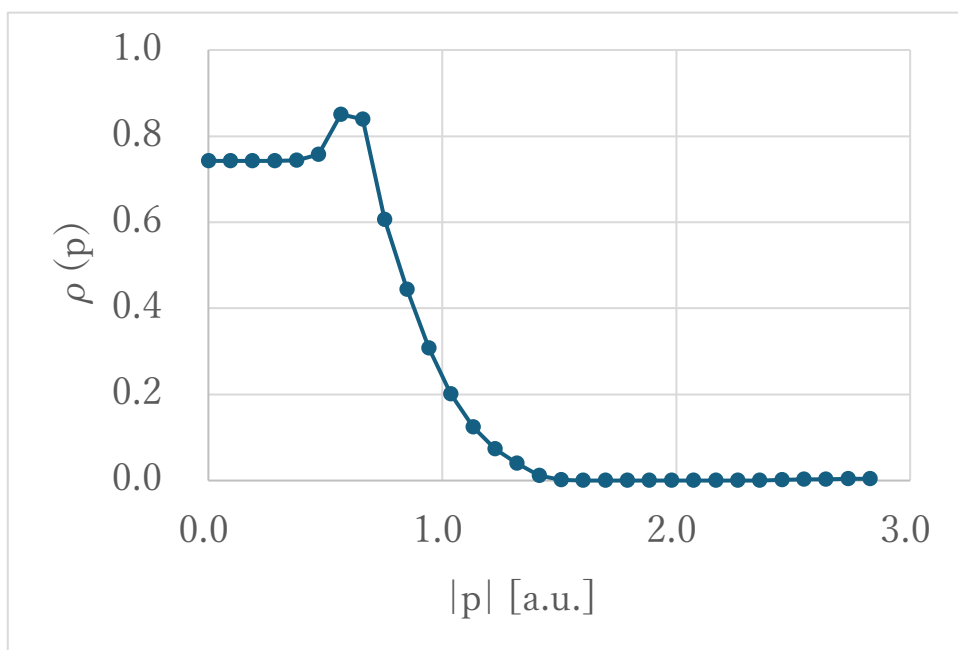
5-2-1 Al 単結晶測定データの 3 次元再構成

Al 単結晶のコンプトンプロファイルの測定から、測定 A、測定 B、測定 C の [111]、測定 E の [100] は信頼できると分かったため、今回は測定 A 及び測定 B のデータを用いて検討を行った。

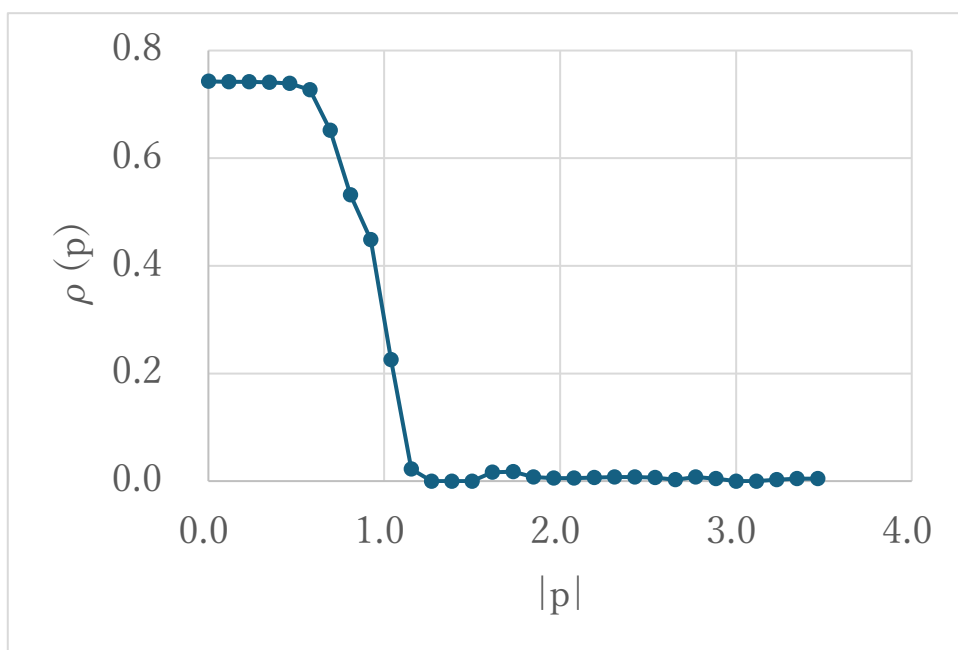
測定 A のコンプトンプロファイルを用いて 3 次元再構成した結果を、Fig.5.15(a)~(c) に示した。メッシュ間隔は 0.01 a.u. で再構成した。



(a) [100]



(b) [110]



(c) [111]

Fig.5.15 測定 A の 3 次元再構成結果

5-2-2 $\rho_{av}(p)$ による評価^[11]

Al 単結晶のコンプトンプロファイル測定データを用いた 3 次元再構成を評価するために、 $\rho(\mathbf{p})$ を求めることにする。

Al は異方性が小さいと考えて、

$$\rho(\mathbf{p}) \cong \rho_{av}(p)$$

コンプトンプロファイルの平均 $J_{av}(p)$ は

$$J_{av}(p) = \left(\frac{1}{35}\right) [10J_{100}(p) + 16J_{110}(p) + 9J_{111}(p)]$$

したがって、運動量密度の平均 $\rho_{av}(p)$ は

$$\rho_{av}(p) = -\frac{1}{2\pi p} \frac{dJ_{av}}{dp}$$

と表される。Fig5.16 に $J_{av}(p)$ を示し、Fig5.17 に $\rho_{av}(p)$ を示す。

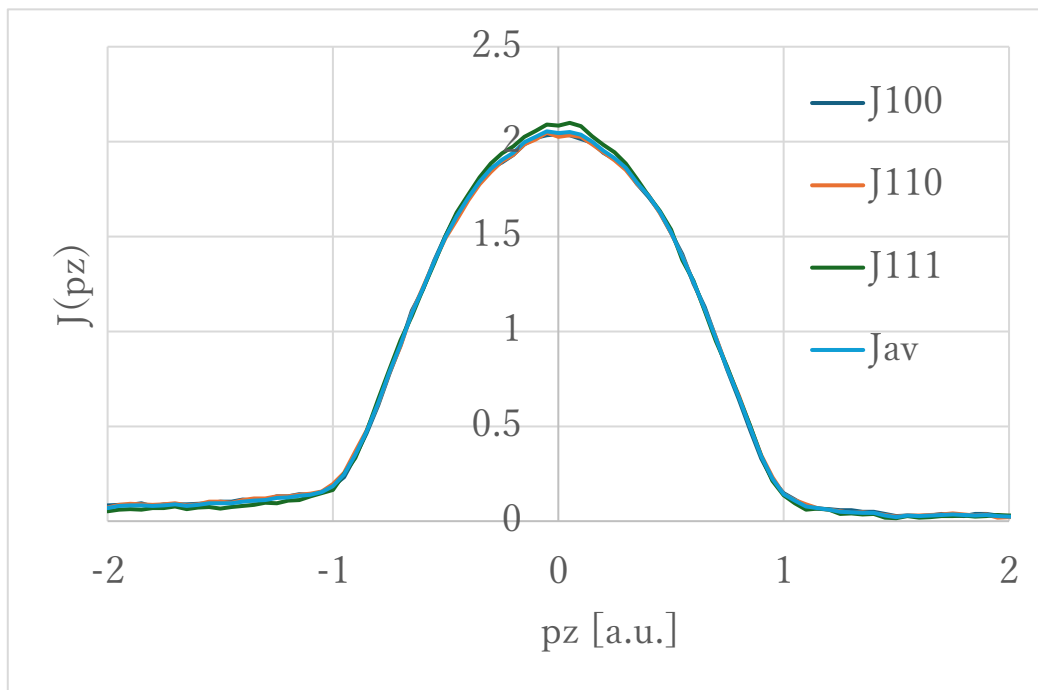


Fig5.16 $J_{av}(p)$

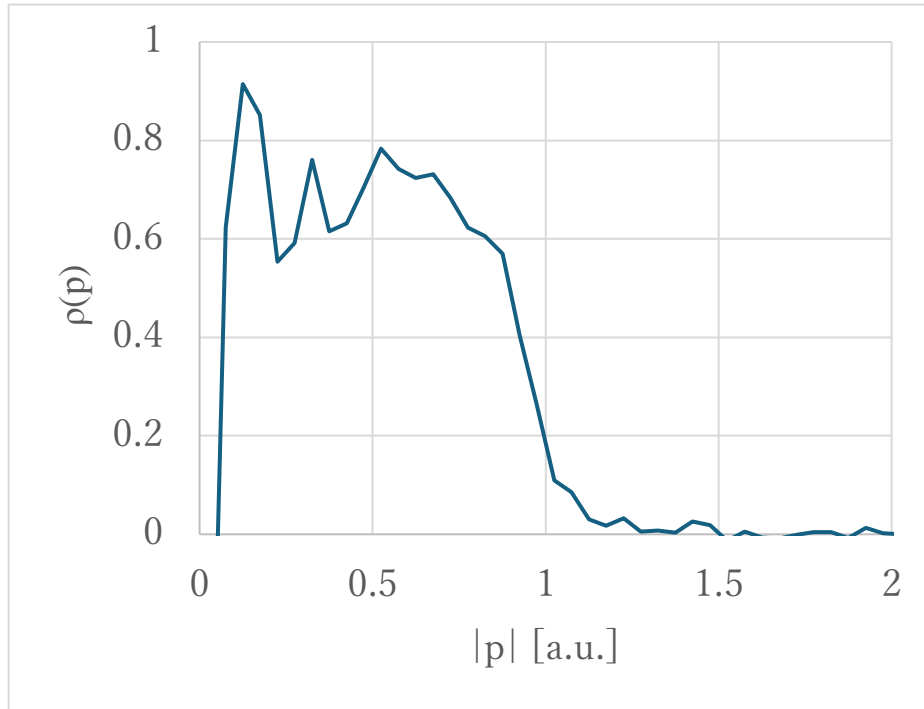
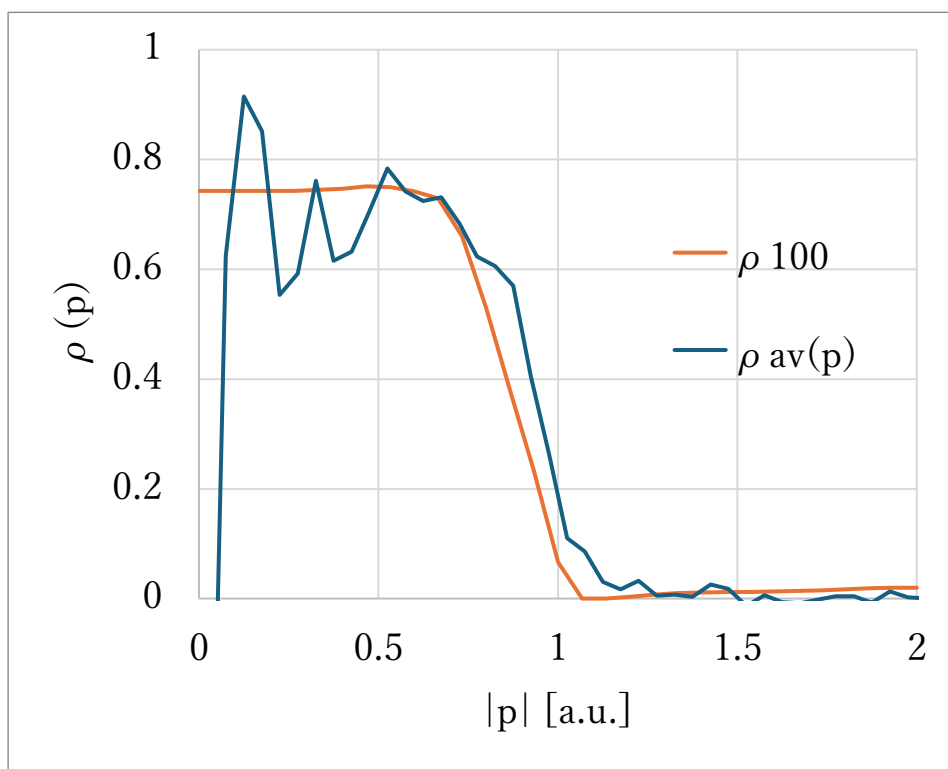
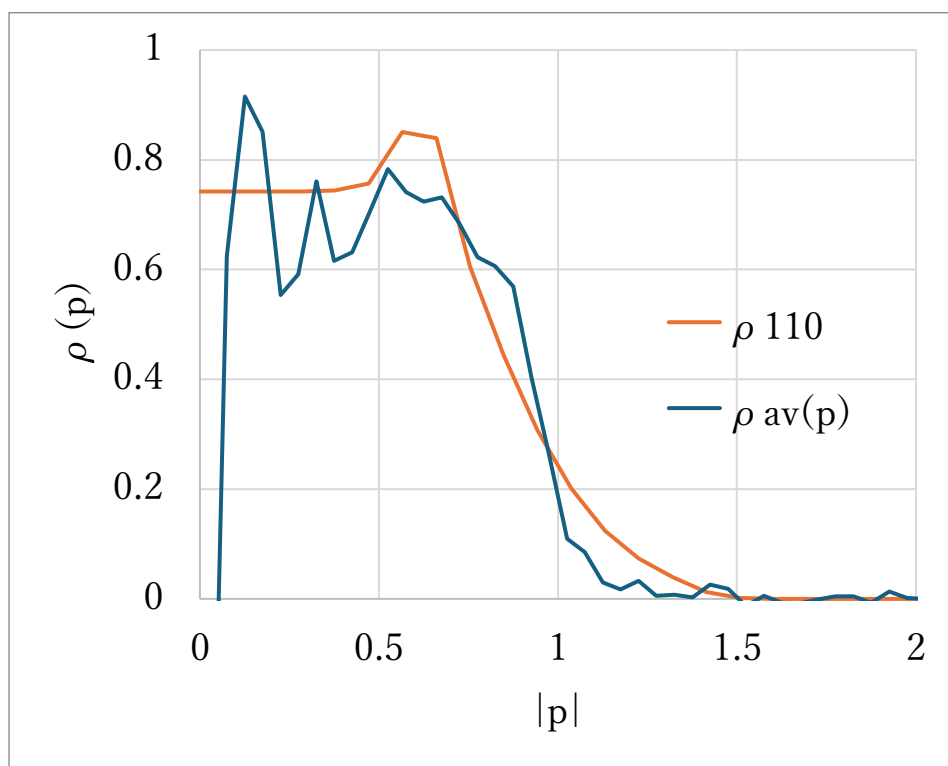


Fig5.17 $\rho_{av}(p)$

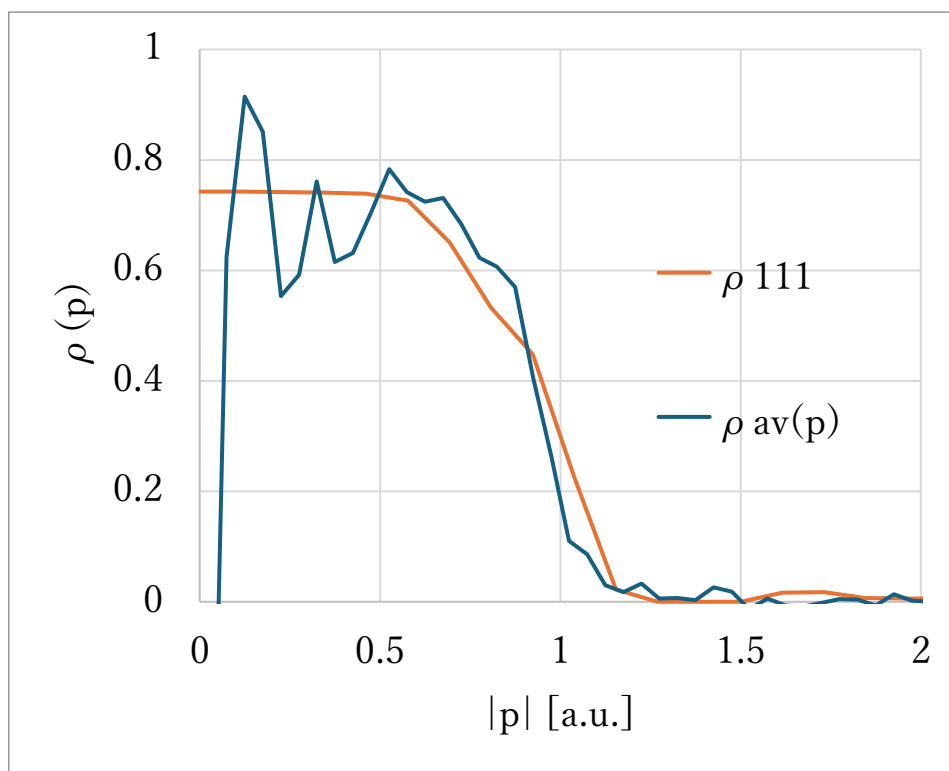
Al 単結晶のコンプトンプロファイルの測定データを再構成した運動量密度と、 $\rho_{av}(p)$ を比較する。Fig.5.17(a)~(c)に比較した図を示す。



(a) [100]



(b) [110]



(c) [111]

Fig.5.17 再構成結果と $\rho_{av}(p)$ の比較

Fig.5.17 より、Al 単結晶のコンプトンプロファイルの測定データを再構成した運動量密度と、 $\rho_{av}(p)$ は概ね一致していることが分かった。

5-2-3 従来の2次元再構成との比較

従来の2次元再構成と、スパースモデリングを用いた3次元再構成を比較した。Al単結晶のコンプトンプロファイル測定データのうち、測定Aのコンプトンプロファイルを再構成して比較した。3次元再構成結果の $p_x p_y$ 平面での2次元プロットと、2次元再構成結果を比較した図をFig.5.18に、3次元再構成して得られた運動量密度 $\rho(p)$ の $p_x p_y$ 平面での勾配 $|\nabla\rho(p)|$ の2次元プロットと、2次元再構成結果を比較した図をFig.5.19に示す。

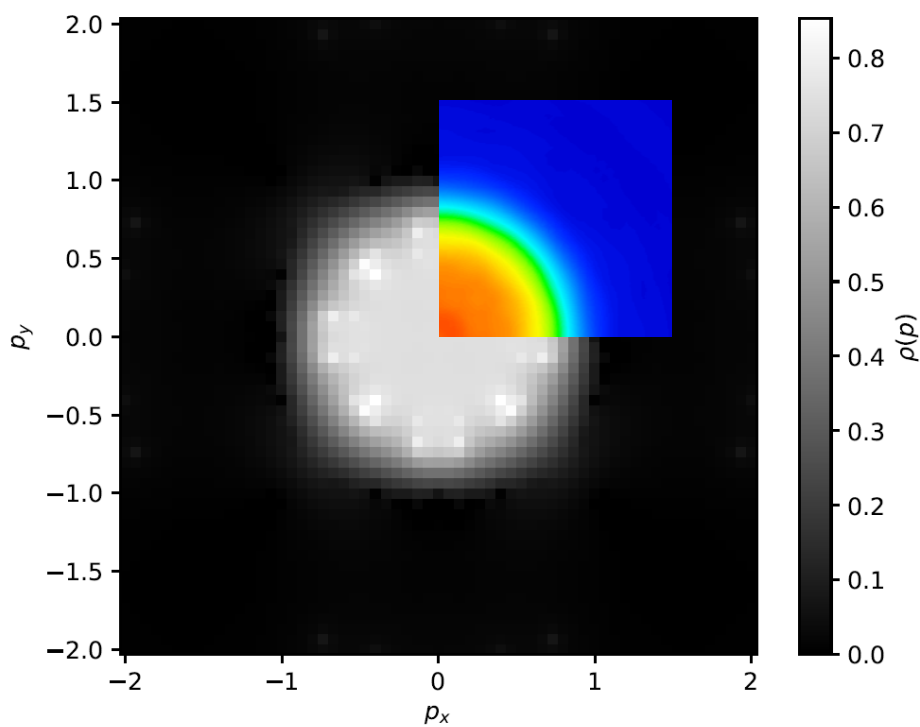


Fig.5.18 3次元再構成結果と2次元再構成結果の比較

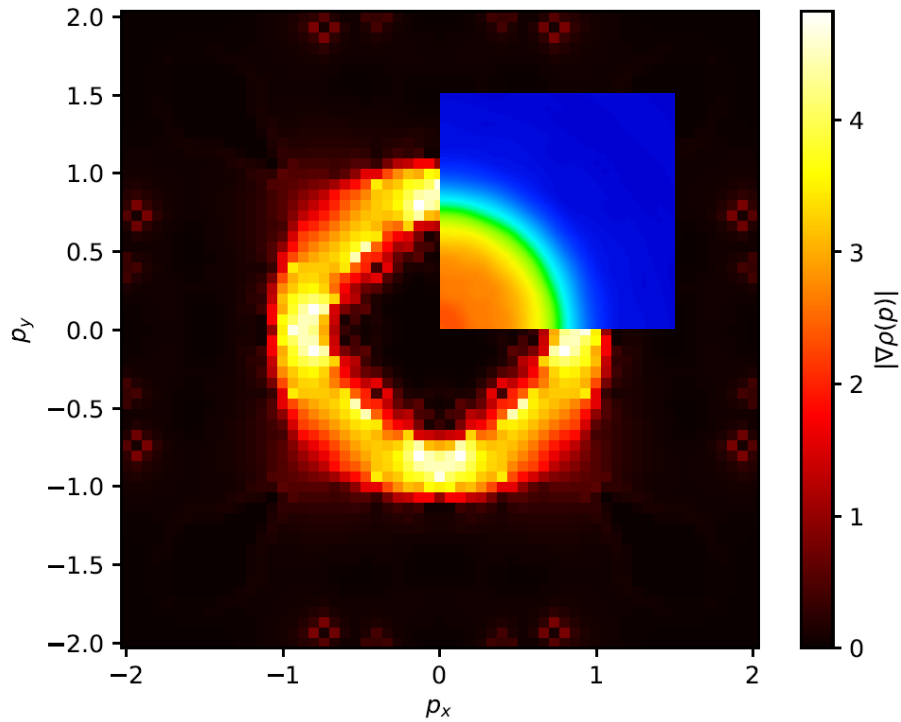
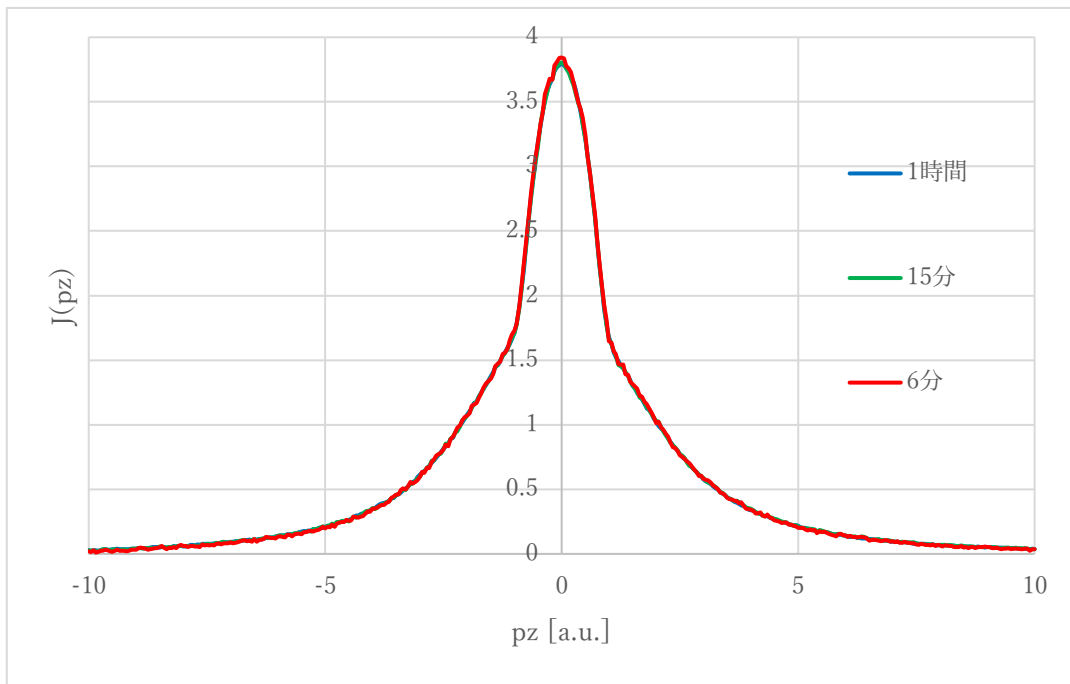


Fig.5.19 $|\nabla\rho(\mathbf{p})|$ と 2次元再構成の比較

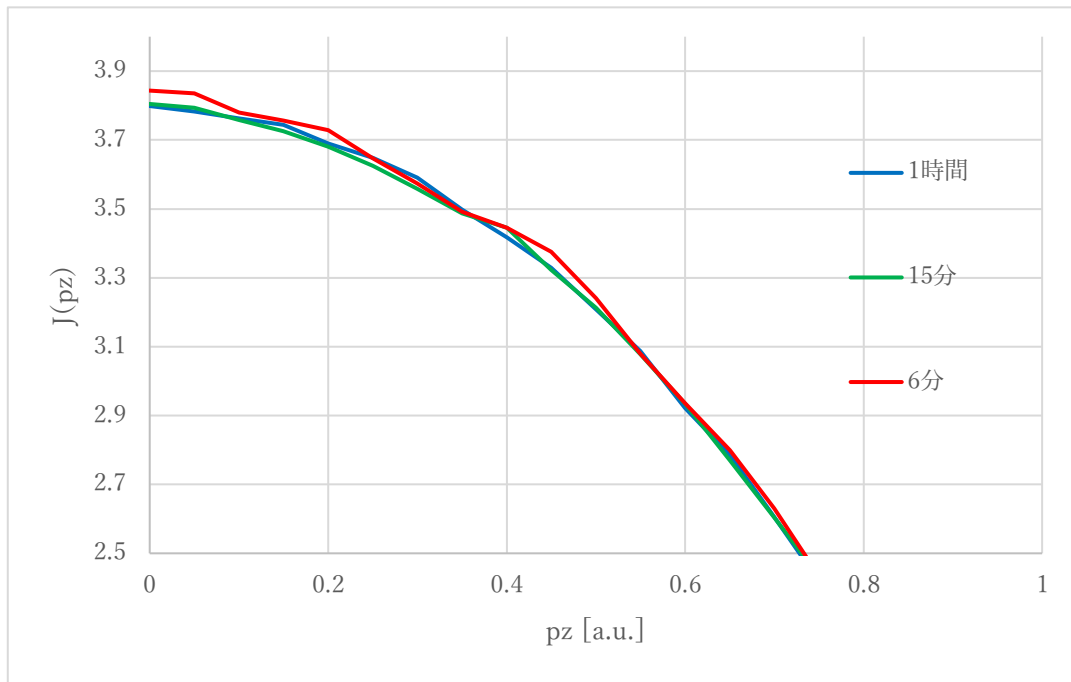
Fig5.18 より、3次元再構成結果と2次元再構成結果のフェルミ面の位置が一致していることが分かる。また、Fig.5.19 より、3次元再構成結果の $\rho(\mathbf{p})$ の勾配の大きい部分と、2次元再構成結果のフェルミ面の位置が一致していることが分かる。

5-2-4 統計誤差依存性

統計誤差依存性について調べるために、測定 A 及び測定 B のデータを用いて、測定時間が 1 方位当たり 1 時間、15 分、6 分の 3 種類のコンプトンプロファイルを用意した。Fig.5.20(a)に 1 方位当たり 1 時間、15 分、6 分の測定時間の [100] のコンプトンプロファイルの図を示し、Fig.5.20(b)に拡大図を示した。それぞれのコンプトンプロファイルの統計誤差の割合は、1 方位当たり 1 時間のコンプトンプロファイルは 0.3%、1 方位当たり 15 分のコンプトンプロファイルは 0.7%、1 方位当たり 6 分のコンプトンプロファイルは 1.1% であった。



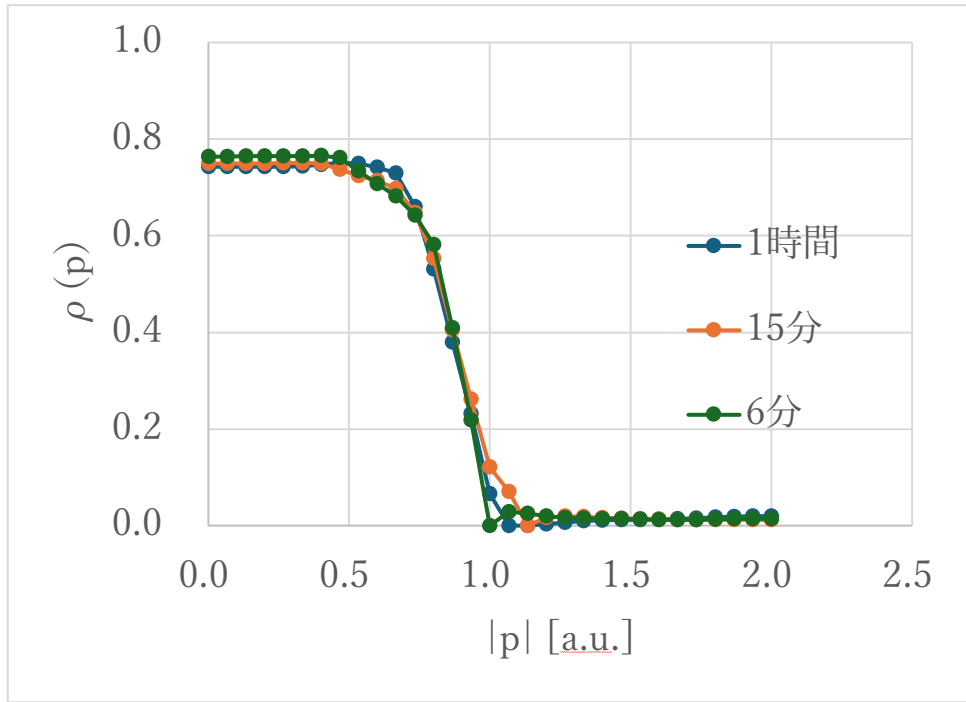
(a) 1 方位当たり 1 時間、15 分、6 分の [100] のコンプトンプロファイル



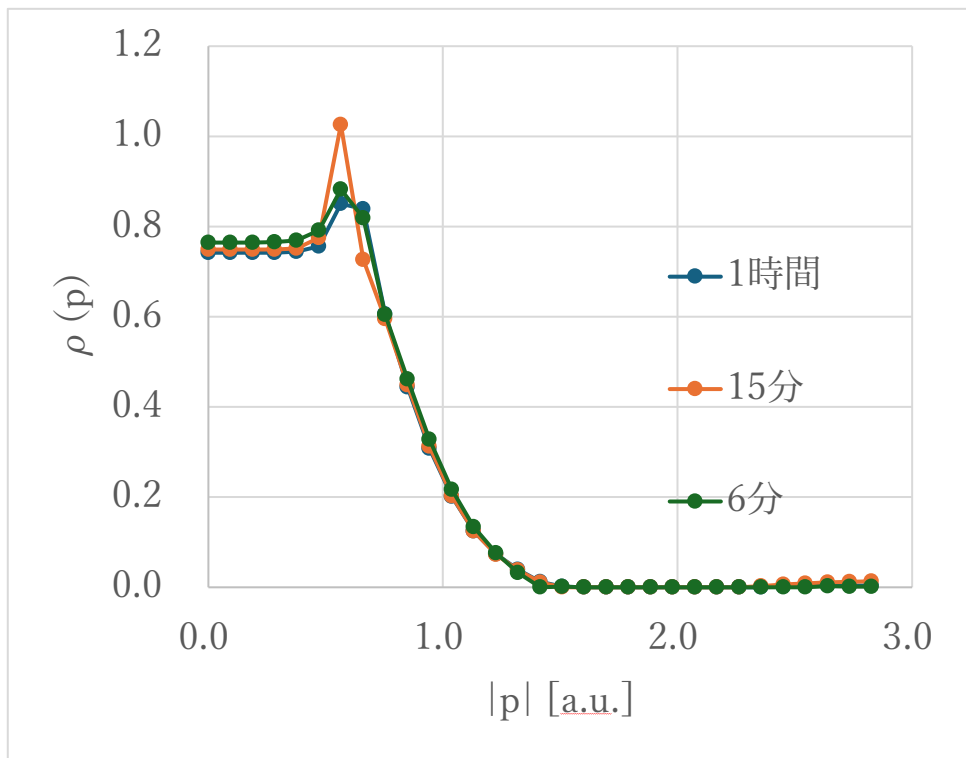
(b) 拡大図

Fig.5.20 測定時間の異なるコンプトンプロファイル

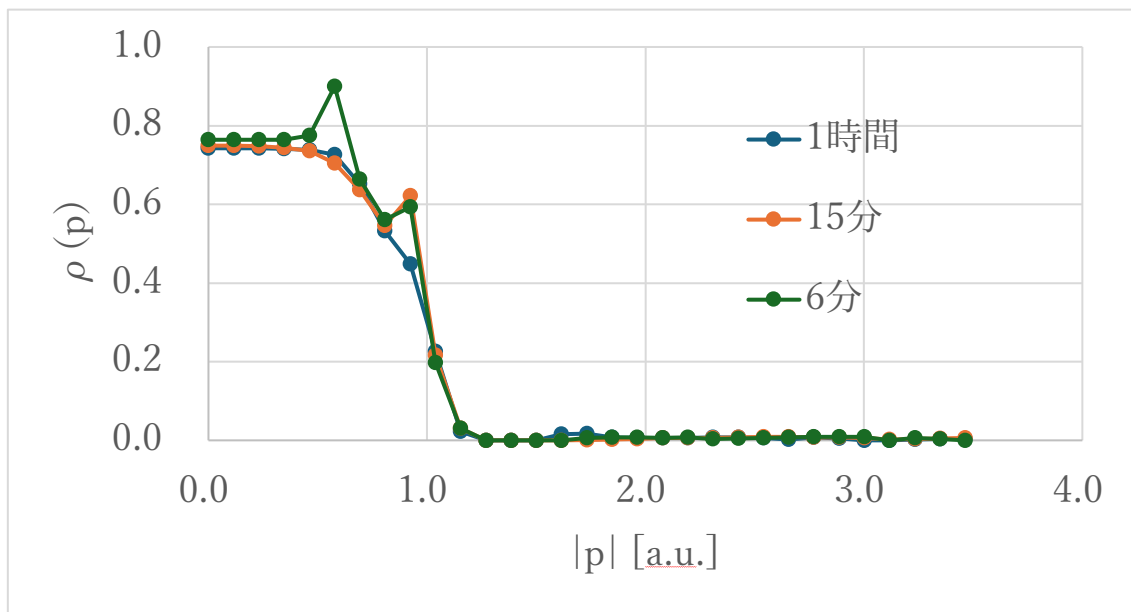
測定時間が1方位当たり1時間、15分、6分の3種類のコンプトンプロファイルをそれぞれ3次元再構成した。再構成結果を比較した図を Fig.5.21(a)~(c)に示した。



(a) [100]



(b) [110]

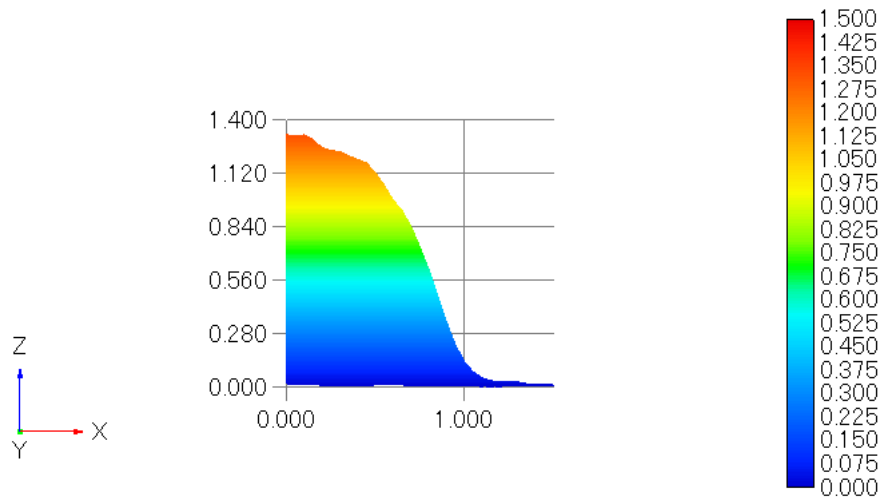


(c) [111]

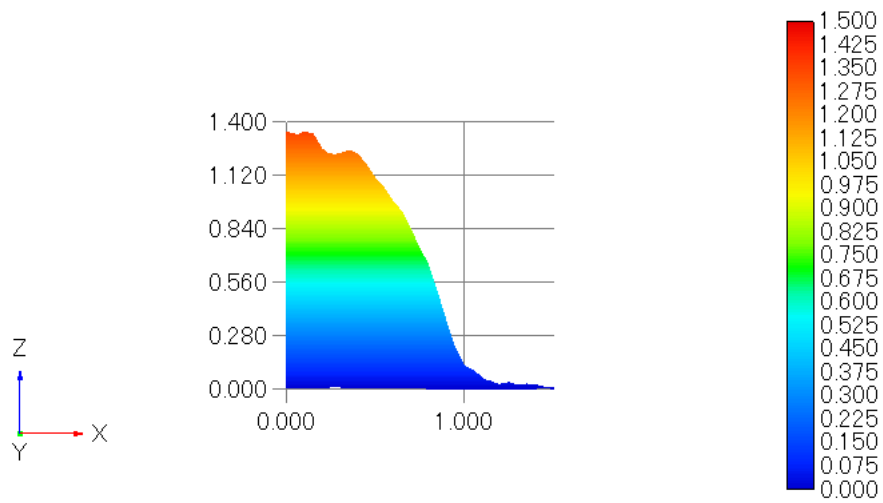
Fig.5.21 再構成結果

Fig.5.21 より、測定時間を変えても概ね再構成結果が一致することが分かる。したがって、スパースモデリングを用いた 3 次元再構成は、測定時間が短くても可能であることが分かった。

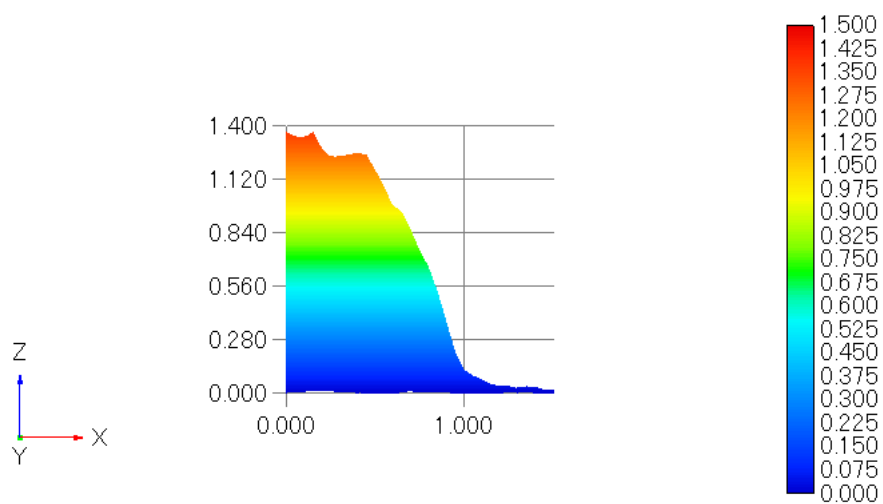
次に、従来の 2 次元再構成法においても、測定時間が 1 方位当たり 1 時間、15 分、6 分の 3 種類のコンプトンプロファイルを再構成した。Fig5.22(a)~(c)に再構成結果を示す。



(a) 測定時間 1 時間



(b) 測定時間 15 分



(c) 測定時間 6 分

Fig5.22 2次元再構成結果

Fig5.22 より、従来の 2 次元再構成法では、測定時間が長い方が良いことが分かる。

第 6 章 結論と今後の課題

6-1 本研究の結論

スパースモデリングを用いて運動量密度再構成をすることができた。

・金属自由電子モデルでの検討

1. 計算メッシュの数

メッシュ間隔が 0.1~0.08 a.u. で概ね偏差が飽和することが分かった。よって、メッシュ間隔は 0.1~0.08 a.u. より小さくする必要がある。

2. 結晶方位依存性

結晶方位数は多いほうが偏差は小さくなるが、大きくは変わらないことが分かった。

3. 統計誤差依存性

統計誤差の割合が 0.025 あたりまでは、統計誤差の割合が増えても偏差はあまり変化しなかったが、統計誤差の割合が 0.025 を超えたあたりから、急激に偏差が増加することが分かった。したがって、統計誤差の割合が 0.025 あたりまでなら、統計的ノイズに強いと言える。

・Al 単結晶の測定データでの検討

従来の 2 次元再構成法とスパースモデリングを用いた 3 次元再構成法で、フェルミ面の位置が一致していることが分かった。

また、従来の 2 次元再構成法では測定時間を変えると、測定時間が長い方が良いのに対し、スパースモデリングを用いた 3 次元再構成法では、測定時間を変えても再構成結果が概ね一致したことから、従来の 2 次元再構成法に比べて、スパースモデリングを用いた 3 次元再構成法は統計的ノイズに強いことが分かった。

6-2 今後の課題

金属自由電子モデルについて、どの方位のコンプトンプロファイルを選んで再構成を行うかを検討する必要がある。

Al 単結晶のコンプトンプロファイル測定データにおいて、結晶方位依存性の検討を行う必要がある。また、本実験では異方性の小さい Al について検討を行ったが、異方性が Al よりも大きい Cu のような金属についても検討を行う必要がある。

参考文献

- [1] Dugdale *et. al.*, Phys. Rev. Lett 96,046406(2006)
- [2] S. M. Shapiro *et.al.*, Phys. Rev B 44,9301(1991)
- [3] 木村憲彰, ドハース・ファンアルフェン効果とフェルミ面, 物性研究 65, 455-459 (1996)
- [4] 摂待力生, ドハース・ファンアルフェン効果によるフェルミ面研究, 生産と技術, Vol.60, No. 3, 20-21(2008)
- [5] 匂坂康男, 角度分解紫外光電子分光, 放射光, Vol.3, No.3, 273-274(1990)
- [6] Charles Kittel, キittel固定物理入門(上), 第7版, 宇野 良清 他訳, 丸善株式会社, 260 (1998)
- [7] 増井孝之, 三好光晴, 竹井直行, 圧縮センシング - 臨床 MRI 検査への応用, INNERVISION Vol.29, No.9, 61(2014)
- [8] 大関真之, 「今日からできるスパースモデリング」(2016.07.22)
<http://www-adsys.sys.i.kyoto-u.ac.jp/mohzeki/Presentation/lecturenote20160822.pdf>
- [9] 大槻純也, 大関真之, 品岡寛, 吉見一慶, 最大エントロピー法でいいの? - スパースモデリングの量子多体論への応用 -, 固体物理, Vol.53, No.4, 173-188(2018)
- [10] 坂井信彦, RADIOISOTOPES 47, 354-355(1998)
- [11] Otsuki *et. al.*, arXiv:2210.07701v2,1-4(2022)
- [12] T. Ohata *et. al.*, Phys. Rev. B 60,16528-16530 (2000)

学会発表

日本物理学会 2024 年春季大会

講演番号：20aK1-2

2024 年 3 月 20 日 発表予定

スパースモデリングを用いた AI の運動量密度の再構成

岸本篤実, 狩野涼, 大槻純也¹, 水牧仁一朗², 小泉昭久³, 辻成希⁴,

星和志, 鈴木宏輔, 櫻井浩

群大院理工, 岡山大基礎研¹, 熊大院先端科学², 兵庫県立大³, JASRI⁴

謝辞

本研究の実験、解析を進める上で大変多くの御指導と御鞭撻を賜り、また、本論文において始終適切なお指導を頂きました、群馬大学理工学府櫻井浩教授に心より感謝の意を表し、厚く御礼申し上げます。

主査後藤民浩教授と、副査高橋学教授に心より感謝の意を表し、厚く御礼申し上げます。

本研究において、多くの御指導と御鞭撻を賜りました、群馬大学理工学府鈴木宏輔准教授に心より感謝の意を表し、厚く御礼申し上げます。

実験や解析を進める上で多くの御指導と御鞭撻を賜りました、群馬大学星和志講師に深く感謝いたします。

日頃より多くの御協力と激励を賜りました、鈴木真粧子准教授に厚く御礼申し上げます。

計算コードを提供し、その利用方法についてご指導くださった岡山大学大槻純也准教授に感謝いたします。また、実験、解析を進める上で大変多くの御指導と御鞭撻を賜りました、熊本大学水牧仁一郎教授、高輝度光科学研究センター辻成希博士、兵庫県立大学小泉昭久准教授に、心から御礼申し上げます。

令和6年3月1日
群馬大学 理工学府 理工学専攻
電子情報・数理教育プログラム
櫻井研究室
修士2年 岸本 篤実