

スパースモデリングによる 放射光データ解析への展開

五十嵐 康彦

筑波大学 システム情報系

東北大学 未踏スケールデータアナリティクスセンター

11月8日(火)

自己紹介：五十嵐康彦

2009.3 東京大学工学部計数工学科（計測システムコース）卒業

2014.3 東京大学大学院新領域創成科学研究科 博士(科学)修了

2014.4～2017.3 東京大学大学院新領域創成科学研究科

岡田研究室，新学術領域「**スパースモデリング**」 特任研究員

2017.4～2017.9 国立研究開発法人物質・材料研究機構

情報統合型物質材料研究拠点 NIMSポスドク研究員

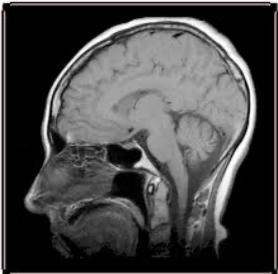
2017.10～2019.3 JSTさきがけ専任研究員@東京大学

2019.4～2020.2 東京大学大学院新領域創成科学研究科 助教

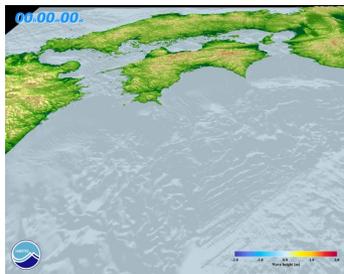
2020.3～ 筑波大学システム情報系 准教授

研究内容：自然科学分野へのデータ駆動科学の適用

脳科学



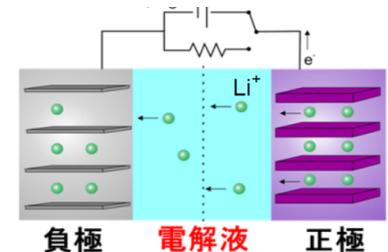
地球科学



天文学



物質科学



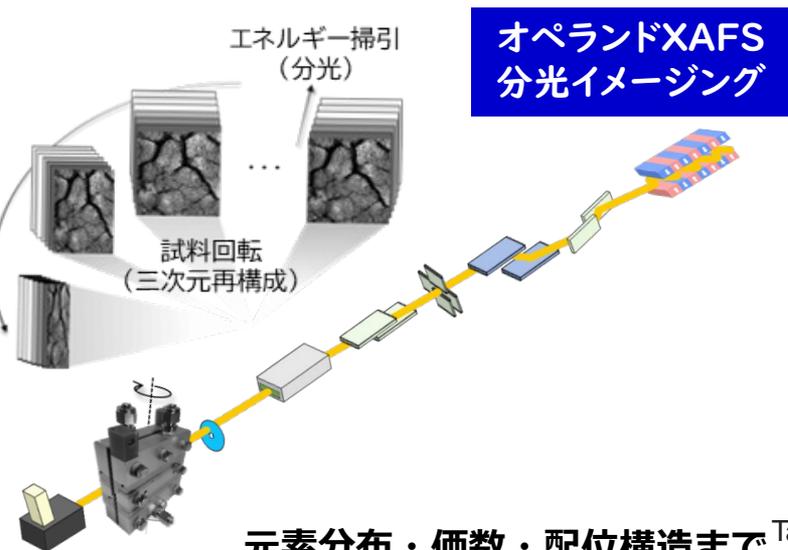
次世代放射光施設, Nano Terasu



<https://www.qst.go.jp/site/3gev/41110.html>

先端計測による材料開発の高まり

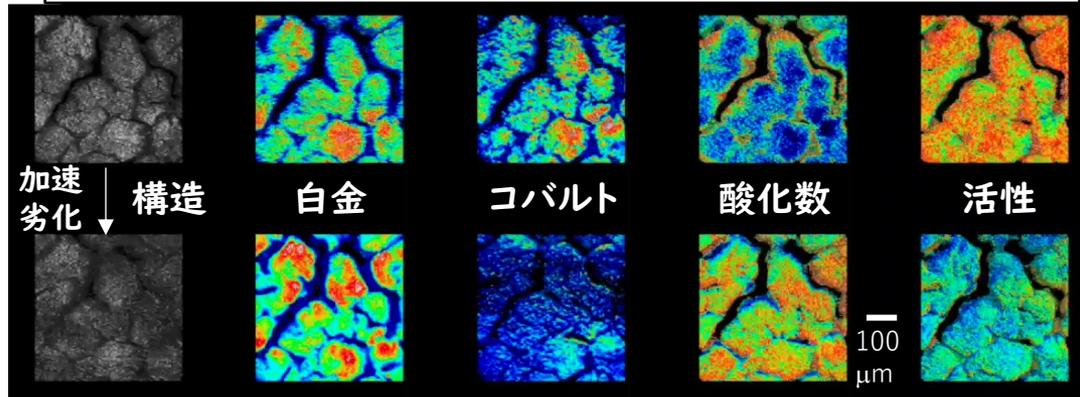
放射光データによる機能材料の反応理解に向けて



元素分布・価数・配位構造まで
丸ごと可視化する革新的分光イメージング

M. Tada, et al. *Phys. Chem. Chem. Phys.* (2011).

燃料電池：資源元素Co (耐久性向上) 溶出機構を解明

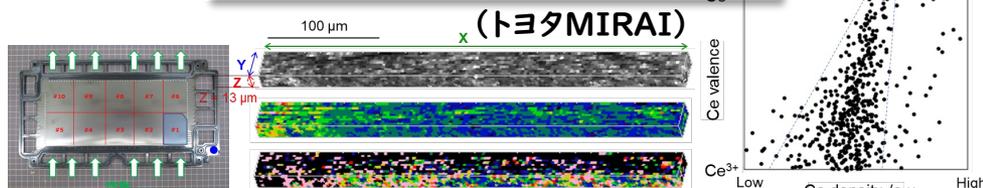


Tan, Yuanyuan, et al. *The Journal of Physical Chemistry C* 123.31 (2019): 18844-18853.

**燃料電池発電制御の最重要課題：
液水の生成をリアルタイムで可視化**

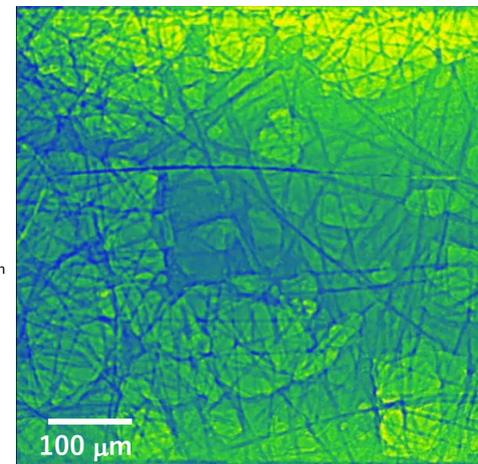
(シミュレータ開発と連携、可視化データ実装)

**燃料電池の悩みの種、
動くラジカル捕捉剤を可視化**



Matsui, Hirosuke, et al. *ACS Applied Materials & Interfaces* 14.5 (2022): 6762-6776.

**実機能材料のオペランド可視化を実現
可視化が機能材料の反応理解と制御の鍵になることを提示**



計測インフォマティクスによる、 先端計測の限界突破の重要性

ブラックホール直接撮像

おとめ座銀河団の
巨大楕円銀河
M87の銀河中心核

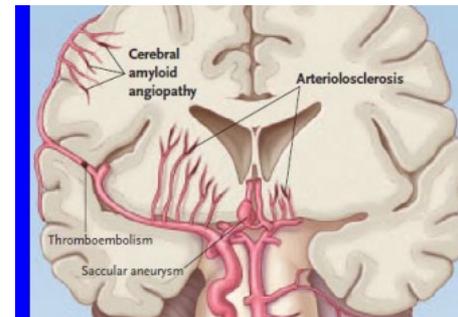
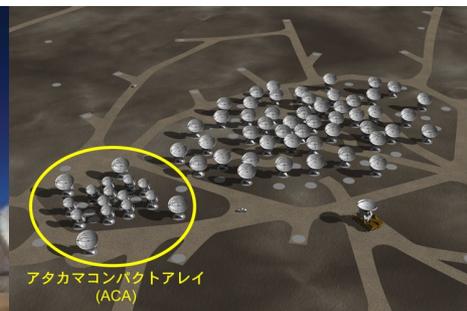
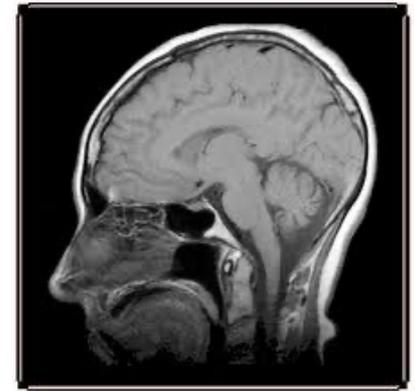
1.3億kmの
位置まで内視

M87の中心の巨大ブラックホール

EHT collaboration

The Event Horizon Telescope Collaboration et al.,
Astro. J. Letters, 2019

脳や体の病気の早期診断



スパースモデリングによって向上した計測限界と社会貢献への波及

発表の流れ

1. スパースモデリング

- 画像データにおけるスパース性
- 行列分解による画像特徴量抽出

Cf. Data-Driven Science and Engineering: Machine Learning, Dynamical Systems, and Control by Brunton and Kutz

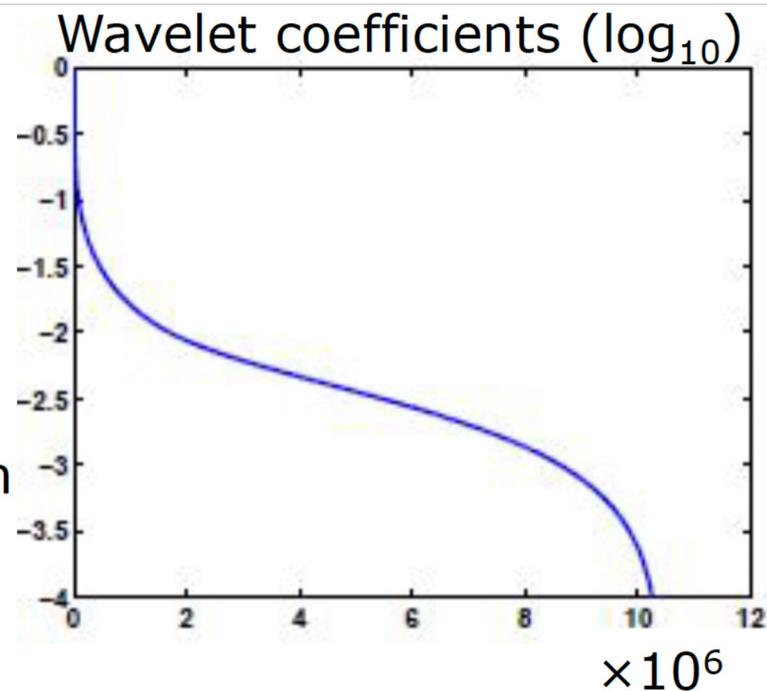
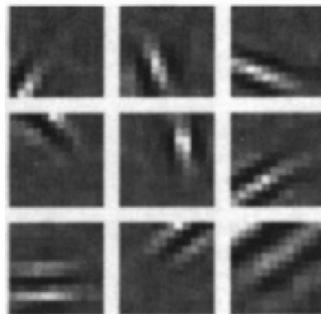
- スパースコーディングと本研究の位置づけ

2. スパースモデリングによるさまざまな画像処理
3. スパースモデリングによる超解像解析
4. X線吸収微細構造データに対する
スパースモデリングによる物理情報抽出

画像データにおけるスパース性とデータ圧縮やノイズ除去



→
wavelet
transformation

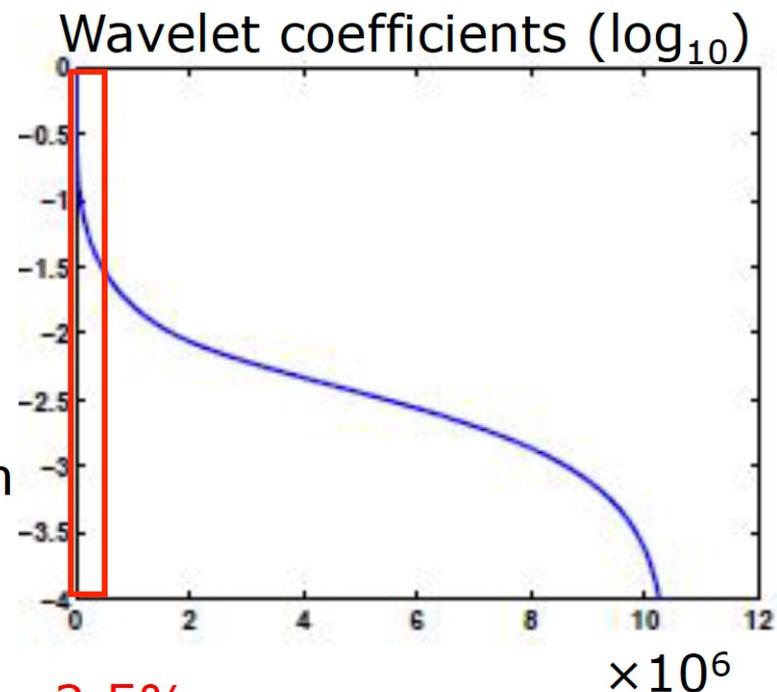
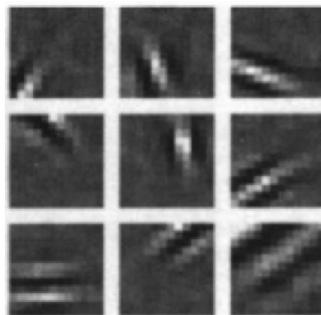


[Roberg and Wakin, 2007]

画像データにおけるスパース性と データ圧縮やノイズ除去



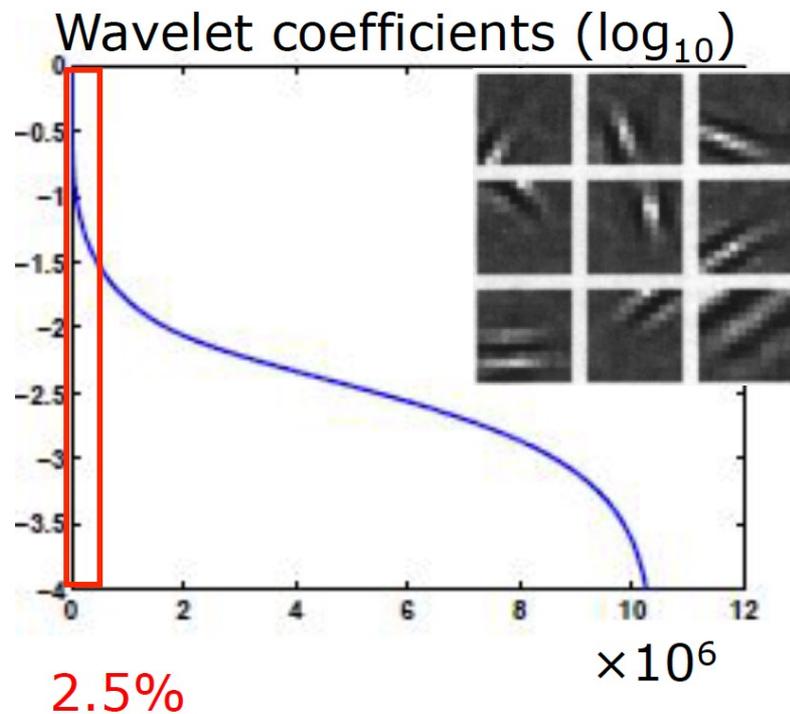
→
wavelet
transformation



2.5%

[Roberg and Wakin, 2007]

画像データにおけるスパース性とデータ圧縮やノイズ除去



[Roberg and Wakin, 2007]

画像データにおけるスパース性と データ圧縮やノイズ除去

Original Image



Reconstructed image from
2.5% coefficients



[Roberg and Wakin, 2007]

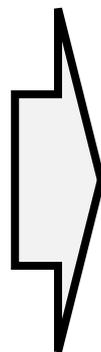
少数のウェーブレット基底によって、画像が表現可能
(データ圧縮が可能)

画像データにおけるスパース性と データ圧縮やノイズ除去

自然画像

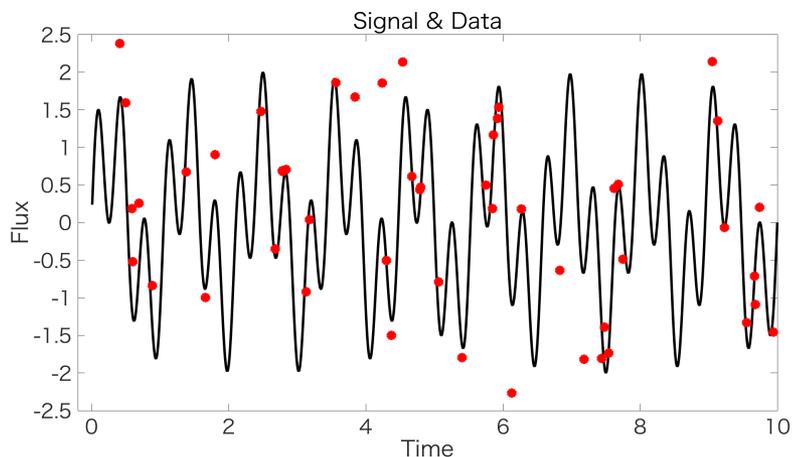


隣接間差分

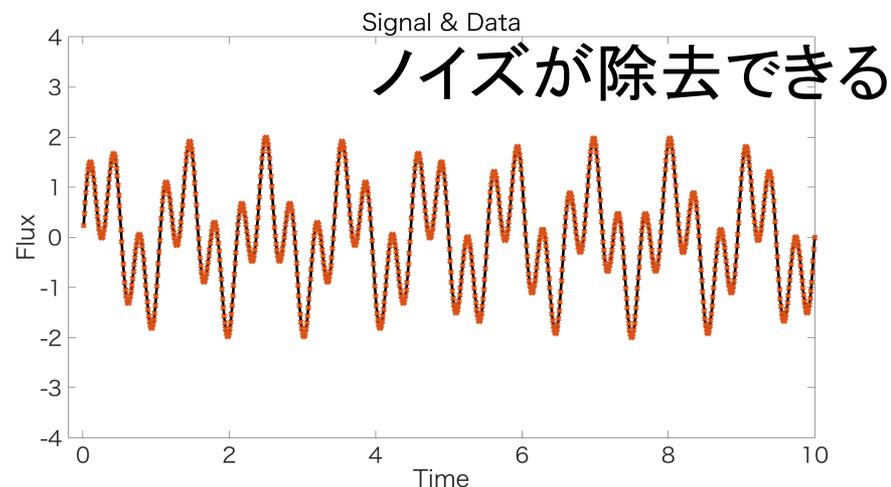


隣接間差分 (Total variation) におけるスパース性も存在

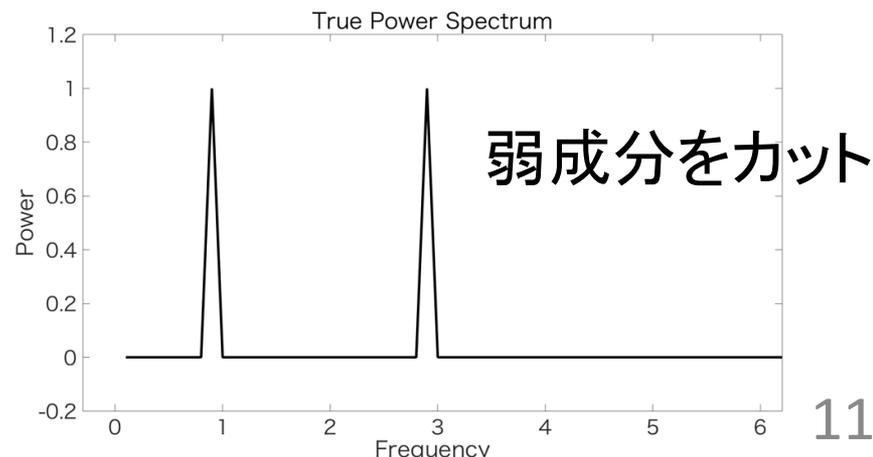
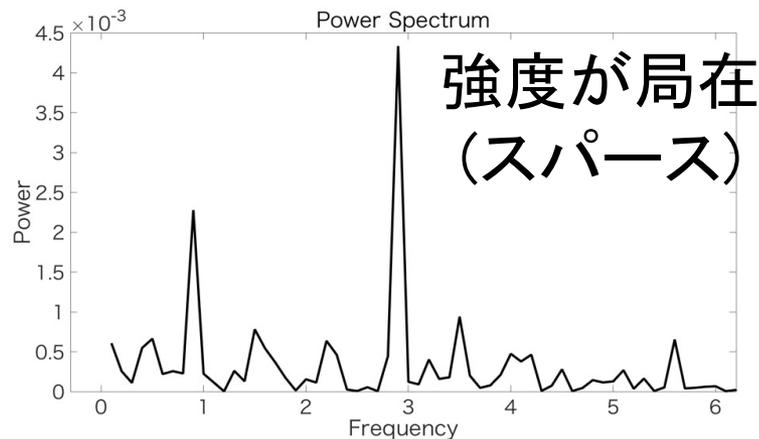
画像データにおけるスパース性と データ圧縮やノイズ除去



フーリエ変換

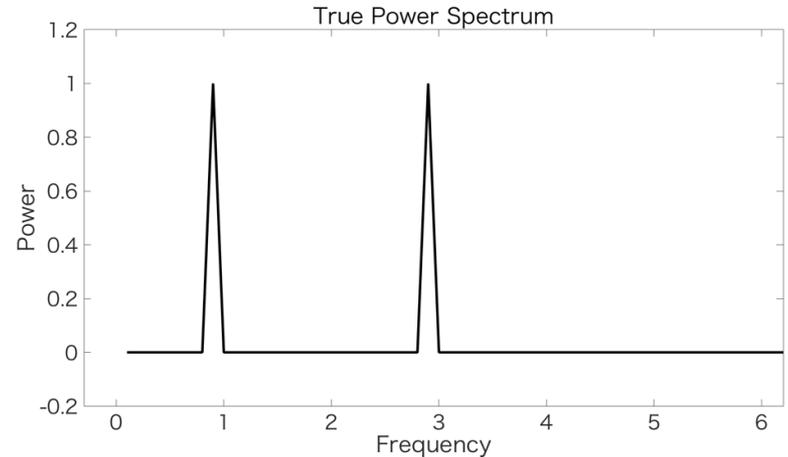
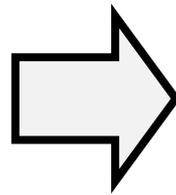
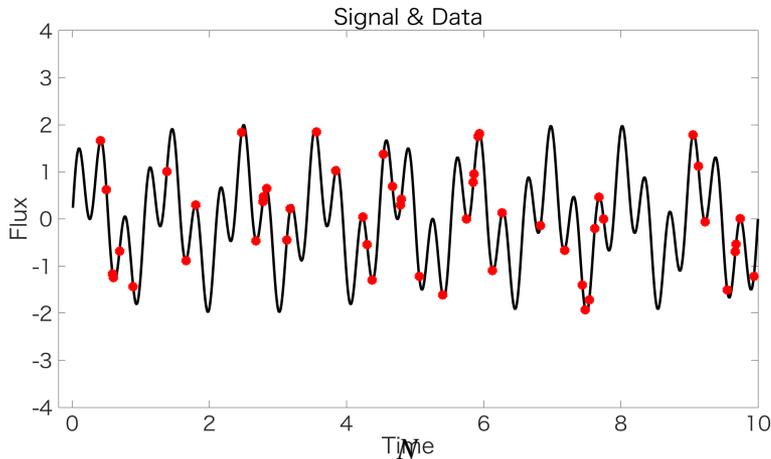


逆フーリエ変換



フーリエ変換は線形変換

1次元のフーリエ変換について考える



$$\text{Signal } y(t) = \sum_{i=1}^N (a_i \cos(\omega_i t) + b_i \sin(\omega_i t))$$

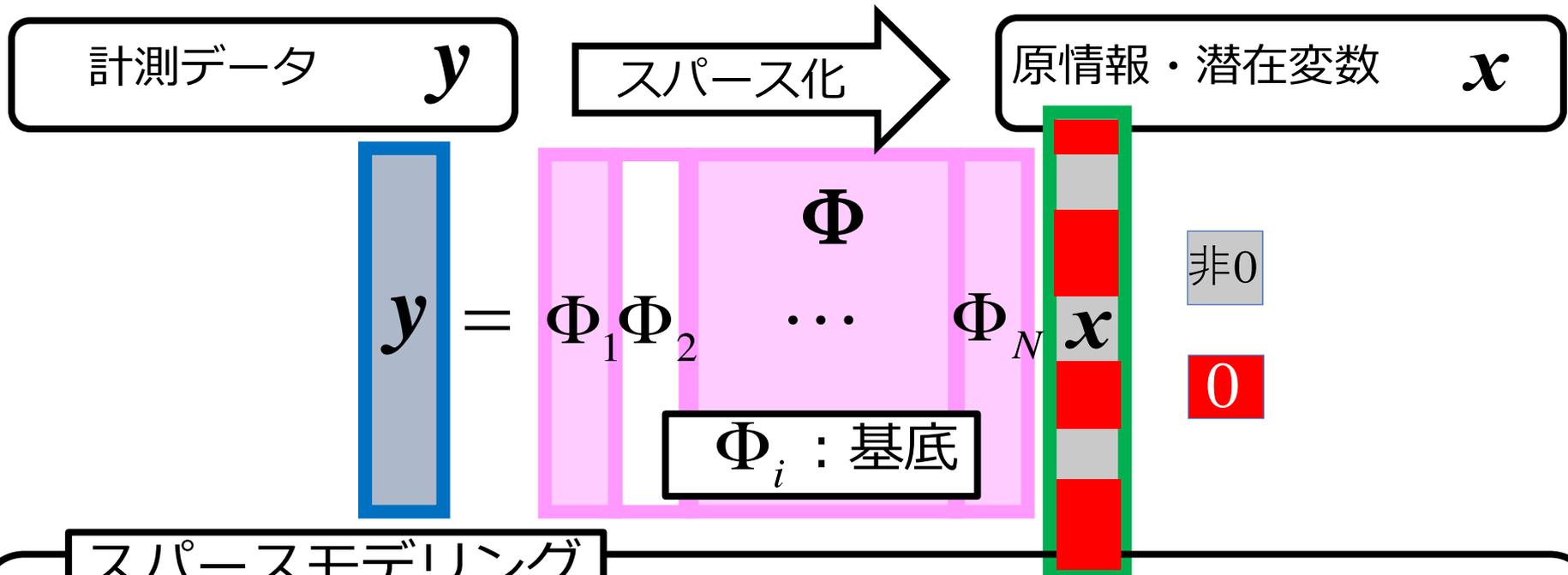
$$\omega_i = \frac{2\pi i}{N\Delta t} \quad b_9 = 1, b_{29} = 1 \quad \text{Other coefficients} = 0$$

$$\begin{pmatrix} y_1 \\ y_2 \\ \vdots \\ y_M \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \cos(t_1\omega_1) & \cdots & \cos(t_1\omega_N) & \sin(t_1\omega_1) & \cdots & \sin(t_1\omega_N) \\ \cos(t_2\omega_1) & \cdots & \cos(t_2\omega_N) & \sin(t_2\omega_1) & \cdots & \sin(t_2\omega_N) \\ \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \vdots \\ \cos(t_M\omega_1) & \cdots & \cos(t_M\omega_N) & \sin(t_M\omega_1) & \cdots & \sin(t_M\omega_N) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} a_1 \\ a_2 \\ \vdots \\ a_N \\ b_1 \\ b_2 \\ \vdots \\ b_N \end{pmatrix}$$

潜在変数
 \mathbf{x}

基底 Φ

スパースモデリング



スパースモデリング

潜在変数が**スパース**(0が多い)
0の場所を推定しながら, 方程式を解く

[Tibshirani, 1996]

$$E(x) = \left\| y - \sum_i \Phi_i x_i \right\|^2 + \lambda \sum_i |x_i| \quad \Phi_i : \text{基底}$$

データの再構成 **スパースな変数**

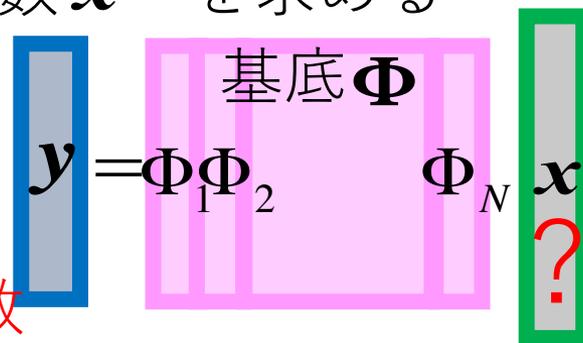
計測から潜在構造推定へ 基底選択から基底学習へ

基底選択

データ \mathbf{y} と基底関数 Φ から、潜在変数 \mathbf{x} を求める

$$E(\mathbf{x}) = \left\| \mathbf{y} - \sum_i \Phi_i x_i \right\|^2 + \lambda \sum_i |x_i|$$

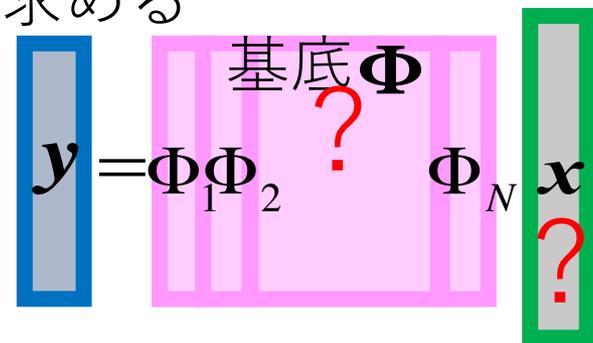
データの再構成 スパースな変数



基底学習

変数 \mathbf{x} だけでなく、基底 Φ も同時に求める

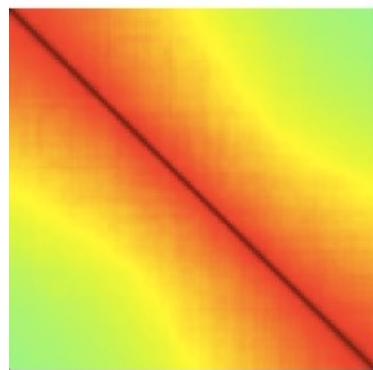
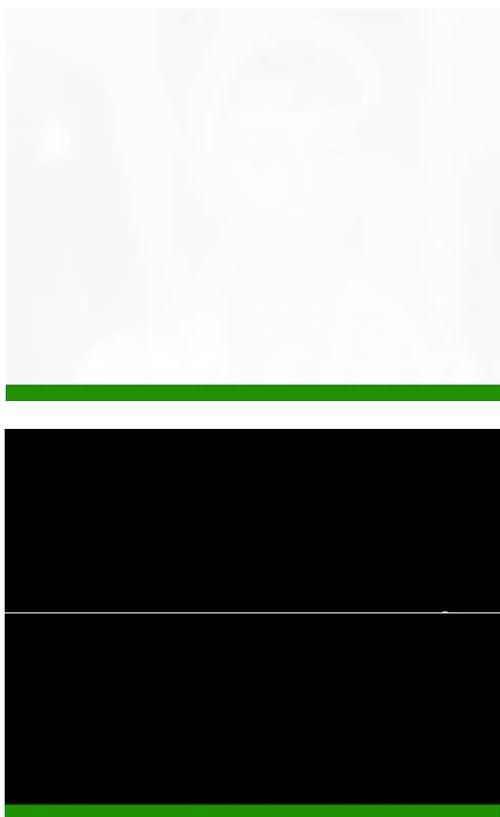
$$E(\Phi, \mathbf{x}) = \left\| \mathbf{y} - \sum_i \Phi_i x_i \right\|^2 + \lambda \sum_i |x_i|$$



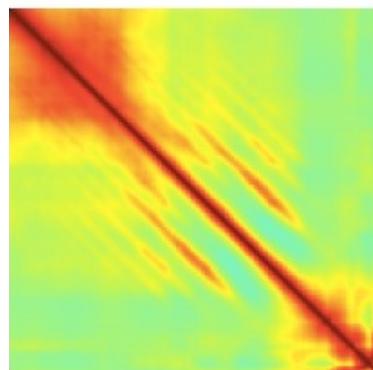
基底学習：データから潜在構造を知る

$$E(\Phi, \mathbf{x}) = \left\| \mathbf{y} - \sum_i \Phi_i x_i \right\|^2 + \lambda \sum_i |x_i|$$

画像[Olshausen & Field 1996]



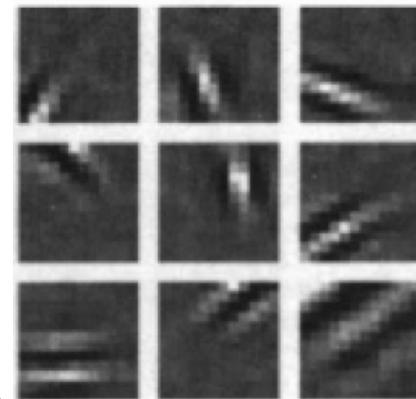
統計的相関



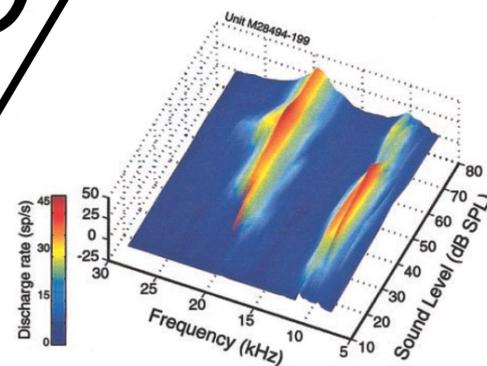
音声[Terashima et al., 2013]

スパース
モデリング

ウェーブレット



基底の抽出



和音

解析データによって、適切な基底の選択が重要

発表の流れ

1. スパースモデリング

- 画像データにおけるスパース性
- 行列分解による画像特徴量抽出

Cf. Data-Driven Science and Engineering: Machine Learning, Dynamical Systems, and Control by Brunton and Kutz

- スパースコーディング
- スパースモデリングによるさまざまな画像処理
- スパースモデリングによる超解像解析

2. 解析データと解析結果

3. まとめ

SVD(singular value decomposition,特異値分解 ≒主成分分析) を用いた画像からの特徴量抽出

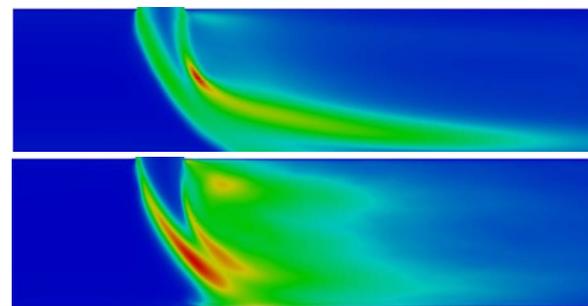
SVD(特異値分解)で用いられるデータ X を以下のように定義する.

$$X = \begin{bmatrix} | & | & \cdots & | \\ \mathbf{x}_1 & \mathbf{x}_2 & \cdots & \mathbf{x}_m \\ | & | & \cdots & | \end{bmatrix}$$

$$(X \in \mathbb{C}^{n \times m}, n \gg m)$$



顔画像



時系列データ

<https://navier.energy.nagoya-u.ac.jp/group.html>

x_k には列ベクトルに変換されたデータが格納される。顔画像やシミュレーション結果の各時刻のデータが x_k に列ベクトルとして入る。この x_k をスナップショットと呼ぶ。ここでは $n \gg m$ とする。

対象データの行列分解： SVDの導入

$$X = U\Sigma V^* = \begin{bmatrix} | & & | \\ \mathbf{u}_1 & \dots & \mathbf{u}_n \\ | & & | \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \sigma_1 & & \\ & \ddots & \\ & & \sigma_n \end{bmatrix} \begin{bmatrix} - & \mathbf{v}_1^* & - \\ & \vdots & \\ - & \mathbf{v}_n^* & - \end{bmatrix}$$

$$= \sigma_1 \mathbf{u}_1 \mathbf{v}_1^* + \sigma_2 \mathbf{u}_2 \mathbf{v}_2^* + \dots + \sigma_n \mathbf{u}_n \mathbf{v}_n^*$$

U を左特異ベクトル, V を右特異ベクトル, $\sigma_1 \dots \sigma_n$ を特異値と呼ぶ.
 U, V はユニタリ行列($X \in \mathbb{C}^n$). Σ は対角行列.

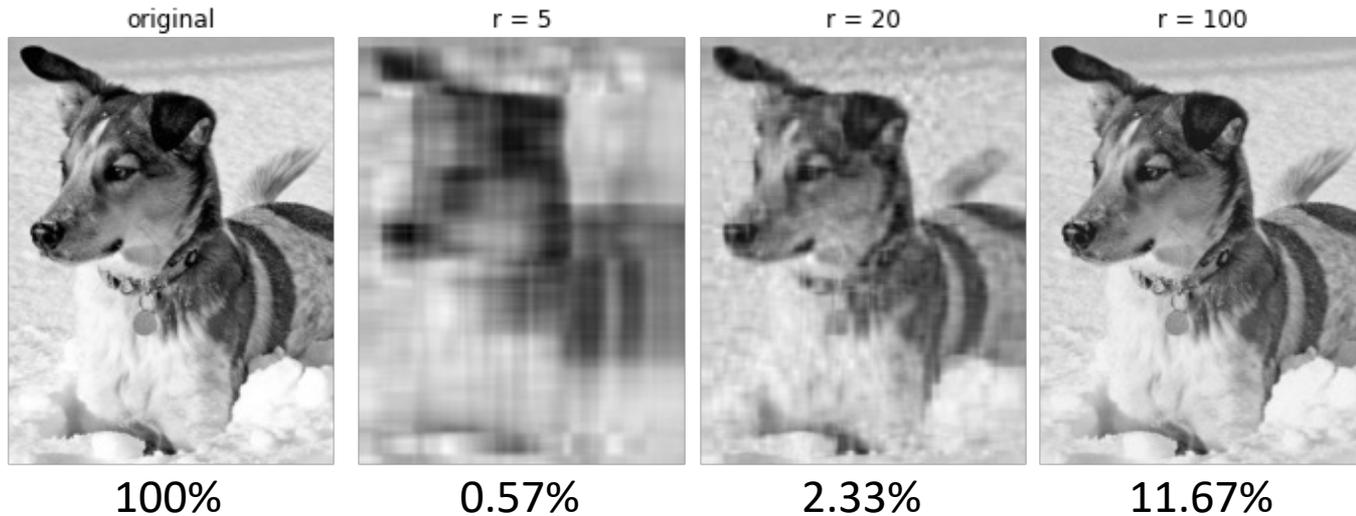
特異値は値の大きい順に並んでおり, それぞれ非負の値を取る.

$$\sigma_1 \geq \sigma_2 \geq \dots \geq \sigma_n \geq 0$$

特異値特異ベクトルは重要度順に並んでいる. $\sigma_1 \mathbf{u}_1 \mathbf{v}_1^*$ が最も重要な情報を表しており, 次に重要な情報は $\sigma_2 \mathbf{u}_2 \mathbf{v}_2^* \dots$

SVDではデータ X に対して前処理を行わずに計算しているが, データ X を基準化(平均を0に揃える)した後にSVDを行うのがPCA(主成分分析)である.

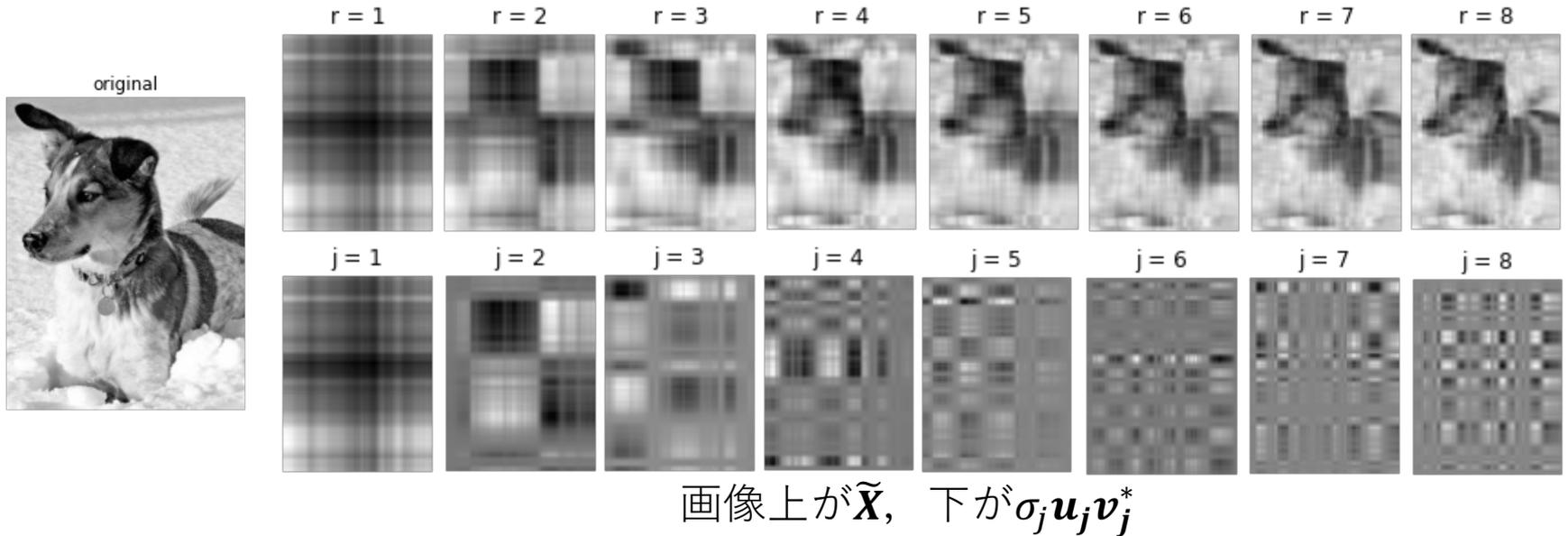
1枚の画像データをSVDした場合(1/3)



r の値を5, 20, 100と変化させてTruncated SVDを実装した結果が上の画像である。このデータの場合、特異値は1500個存在する。

その内のわずか11.67%の情報を用いるだけでも、画像はかなり綺麗に再構成されている事が分かる。

1枚の画像データをSVDした場合(2/3)

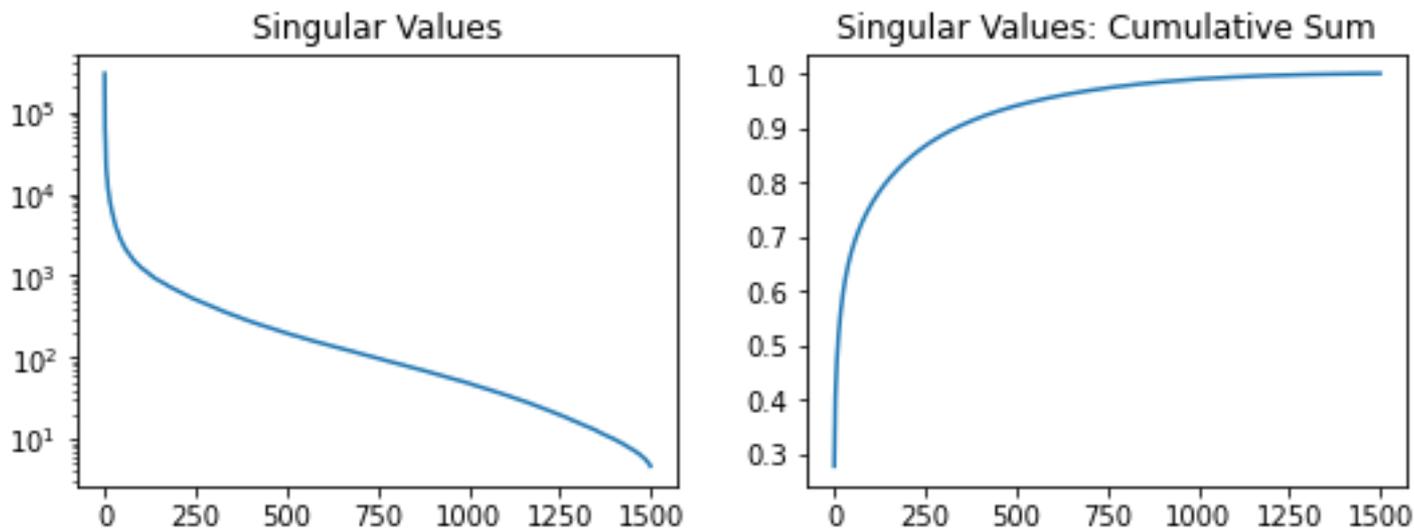


特異値の大きい順に $\sigma_j \mathbf{u}_j \mathbf{v}_j^*$ を可視化した結果である。

$\sigma_1 \mathbf{u}_1 \mathbf{v}_1^*$ は画像のどの辺りに黒や白が集中しているのかを表しており、

重要度が下がるにつれてより細かくどのあたりに色が集中しているのかを見ていることが分かる。

1枚の画像データをSVDした場合(3/3)

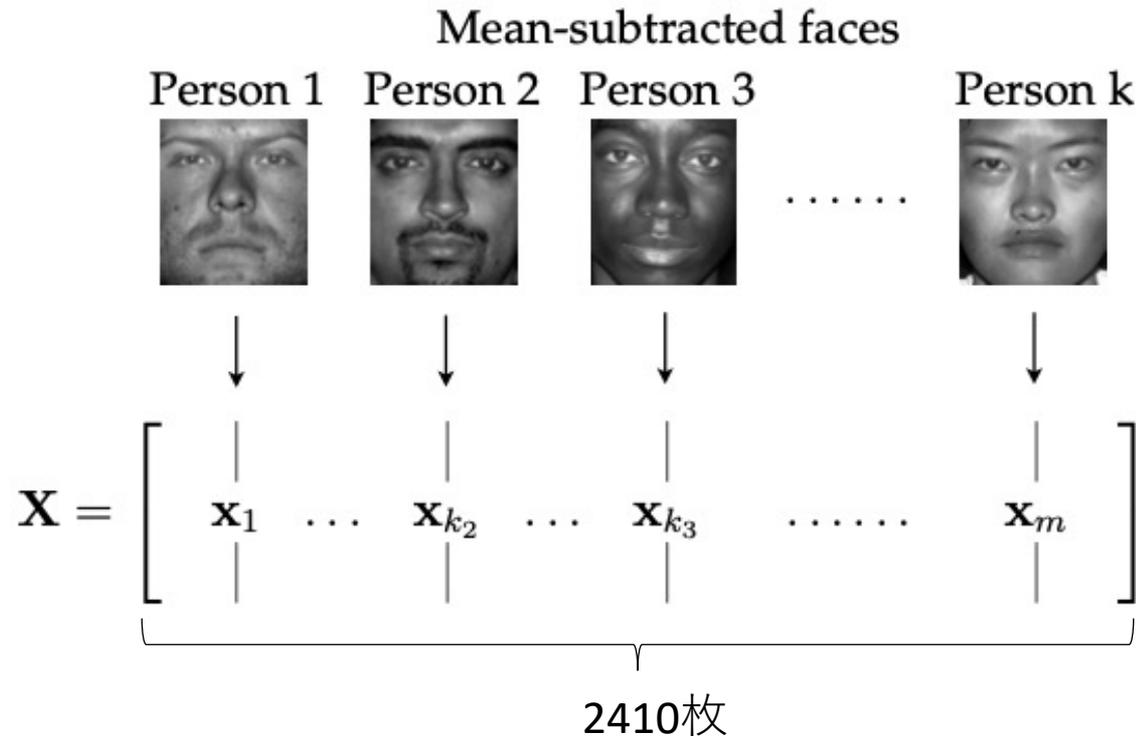


特異値の値(左)を見ると、最初の数十個はかなり大きな値を持っている事がわかる。つまり最初の数十個に重要な情報があると解釈できる。

右のグラフは寄与率を表したもの。元画像の11.67%である $r=100$ だけで、約80%再構成出来ている事が分かる。

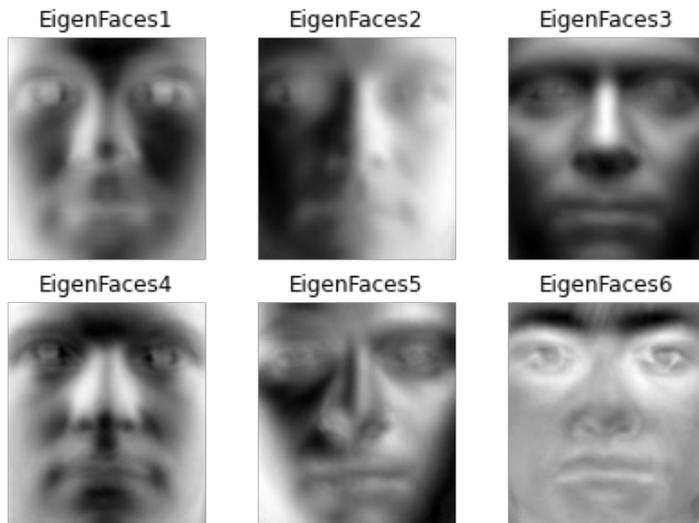
(寄与率： $\sum_{i=1}^r \sigma_i / \sum_{i=1}^m \sigma_i$)

多数の顔画像データをSVDした場合 (1/6)



平均データで基準化した顔画像を列ベクトルとして水平方向に並べていき、データ \mathbf{X} を作成する。このデータ \mathbf{X} に対してSVDを適応し、特異値、特異ベクトルを求める(平均を0にしてある為、処理全体としてはPCAを行なっている)。

多数の顔画像データをSVDした場合 (2/6)



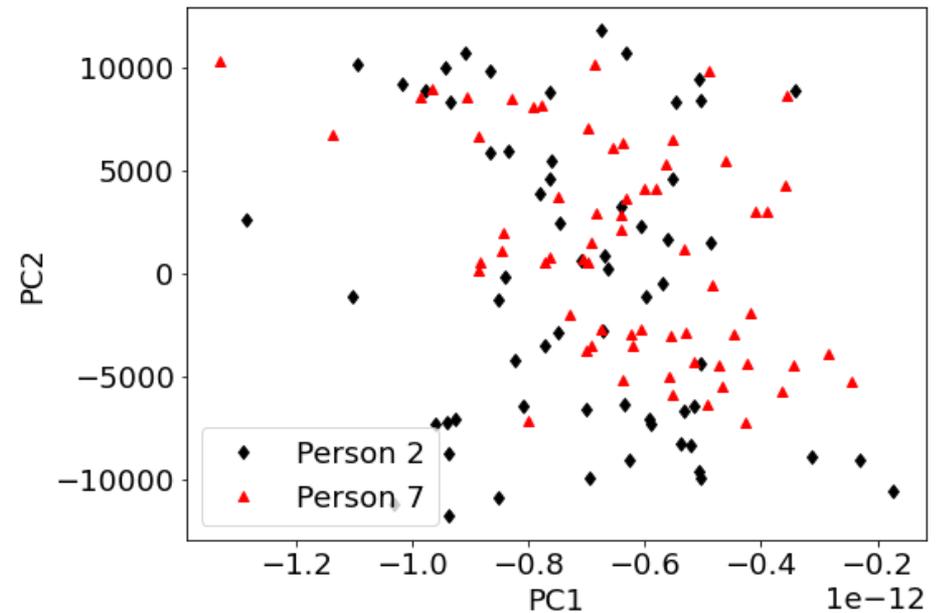
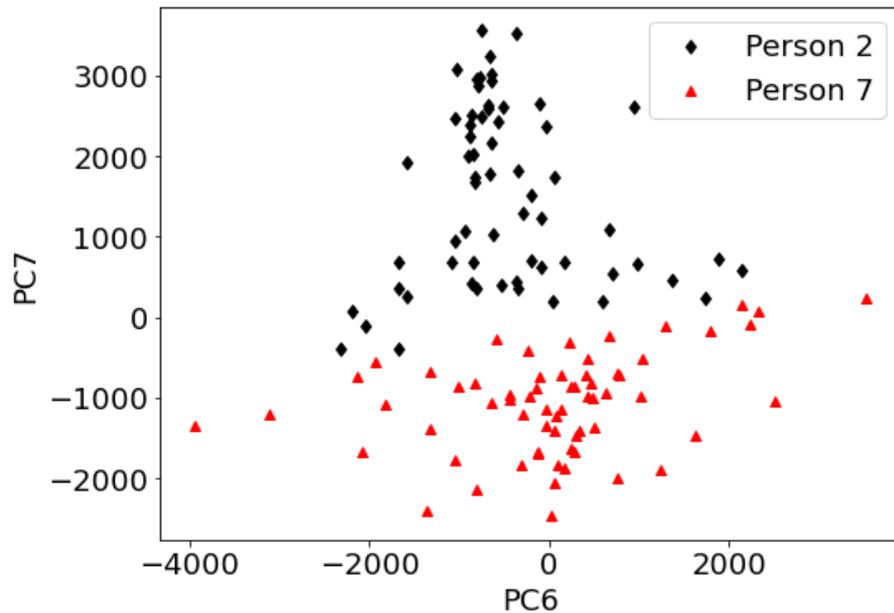
$$X = \hat{U}\hat{\Sigma}V^*$$
$$= \begin{bmatrix} | & & | \\ \mathbf{u}_1 & \dots & \mathbf{u}_m \\ | & & | \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \sigma_1 & & \\ & \ddots & \\ & & \sigma_m \end{bmatrix} \begin{bmatrix} - & \mathbf{v}_1^* & - \\ & \vdots & \\ - & \mathbf{v}_m^* & - \end{bmatrix}$$

EigenFaces(主成分 \hat{U})

得られた X に対してSVDを適応し、左特異ベクトル \hat{U} を得る。ここで、この主成分 \hat{U} を特にEigenFaces(固有顔)と呼ぶ。

このEigenFacesは2410枚の画像の中にある共通した特徴により構成される。

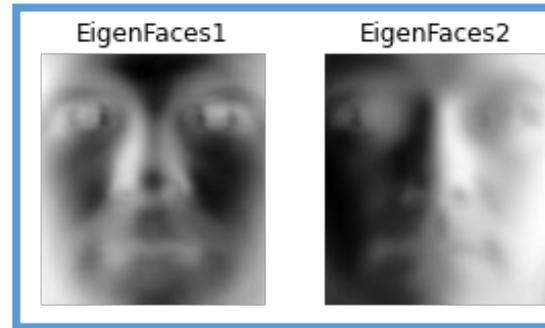
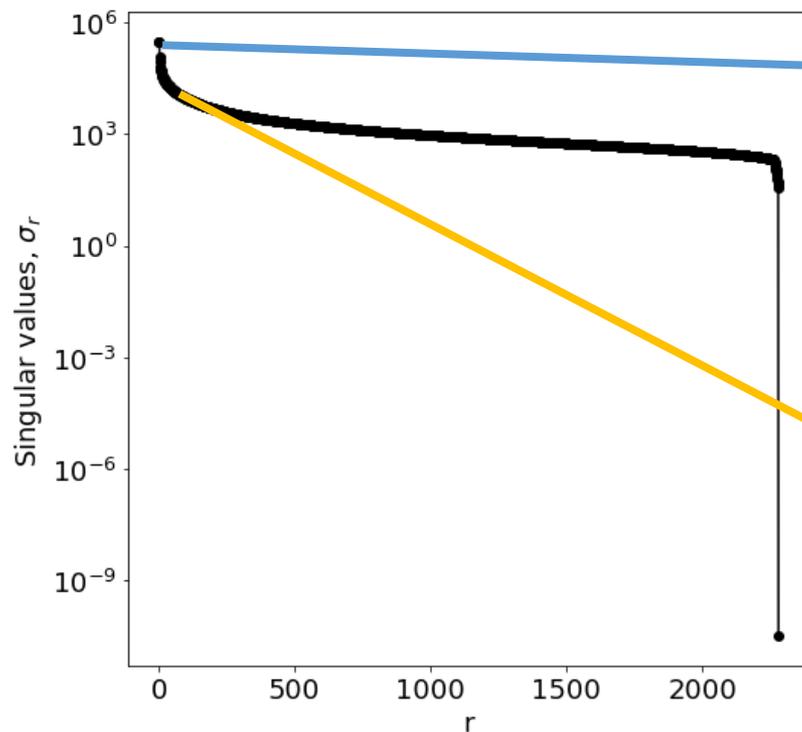
多数の顔画像データをSVDした場合 (3/6)



第6,7の固有顔を2次元空間にプロットした結果が上図である。
Person2とPerson7が上手く分離している事が確認できる。しかし
第1,2番目の固有顔で同様の事を行うと分離する事が出来ない。

=> 顔の識別という目的において、第6,7成分が適切な特徴量となる

多数の顔画像データをSVDした場合 (4/6)



全ての顔に
共通の特徴
(目, 鼻の位置など)

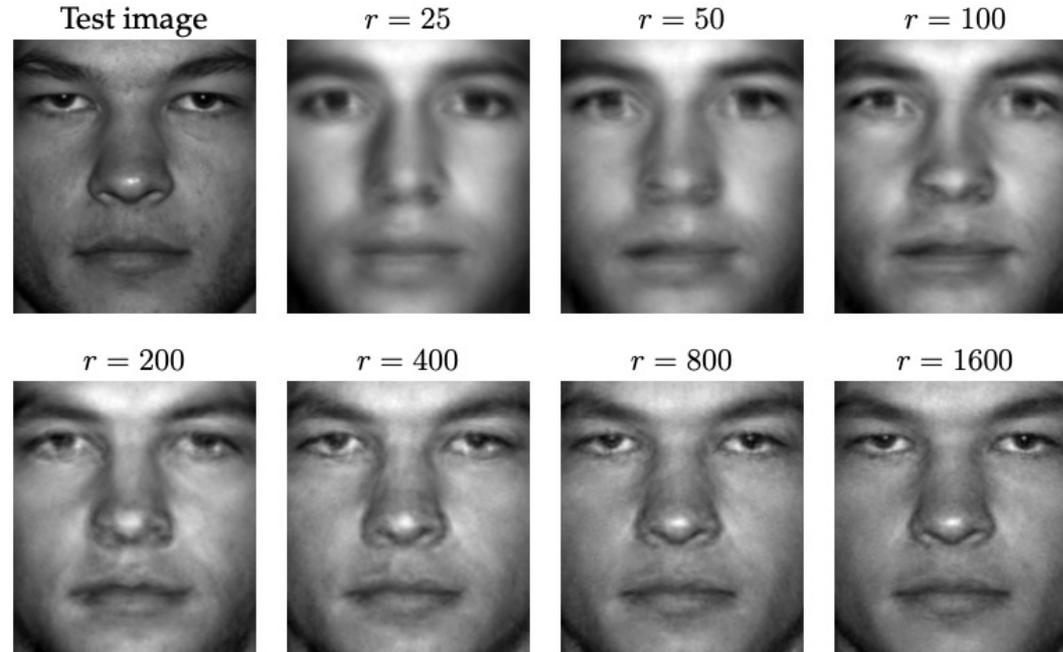


骨格や眉の形,
目, 鼻の形がよ
り捉えられている

考えられる理由として, 最初の固有顔には全ての顔共通の特徴が集まり, それ以外の固有顔には人の細かい特徴が集まっていると考えられる(骨格や目, 鼻の形, 陰影など).

その為, 全ての顔共通の特徴が含まれる1番目の固有顔では分離を行う事が出来ない.

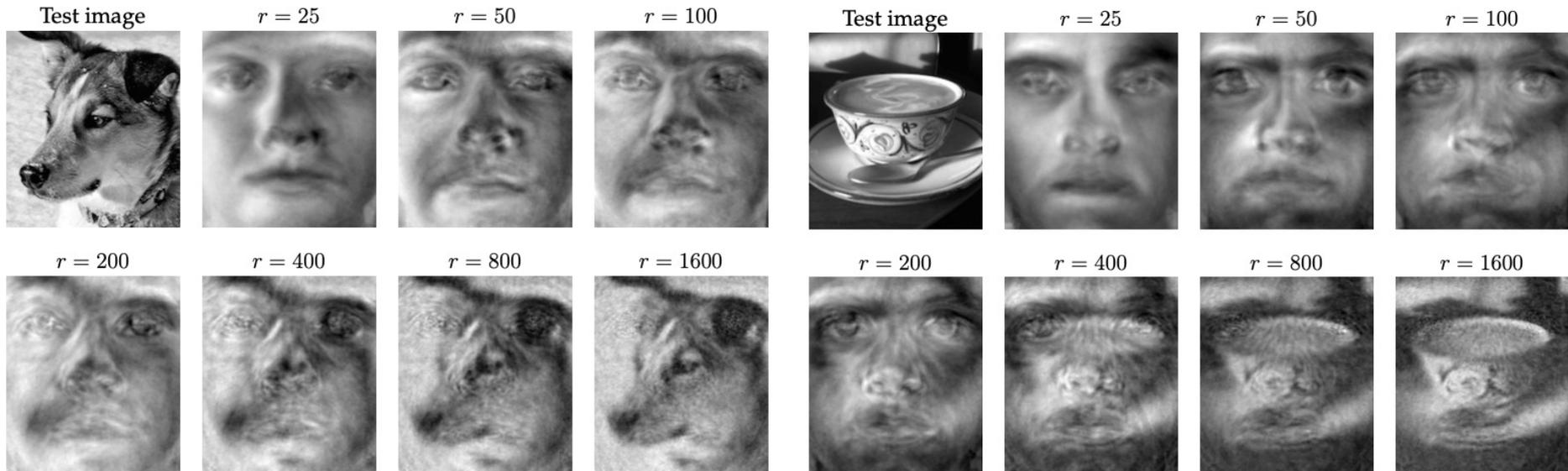
多数の顔画像データをSVDした場合 (5/6)



得られた特異値, 特異ベクトルの先頭から r 個使用してテスト画像の再構成を行なった.

$r \leq 200$ まではあまり良く再構成出来ていないが, $400 \leq r$ あたりになると良く再構成出来ている事が分かる.

多数の顔画像データをSVDした場合 (6/6)



また、得られた主成分は人以外の画像に対しても有効である。書籍の中では、犬の画像とカプチーノの画像をテスト画像とし、再構成を行なっていた。共に $r \geq 800$ になると正しく再構成出来ている事が分かる。

つまり主成分の中には、人以外の画像にも共通する特徴が得られていると分かる。

STEM-EELSによるシリコンダイオード計測

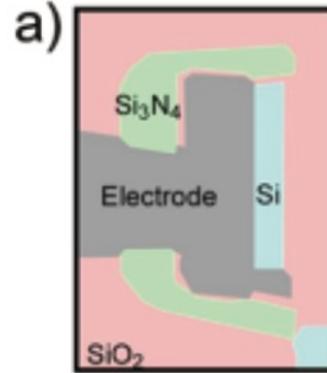
空間構造に対応する各種特徴量

イメージ $V_{x,y,e}$

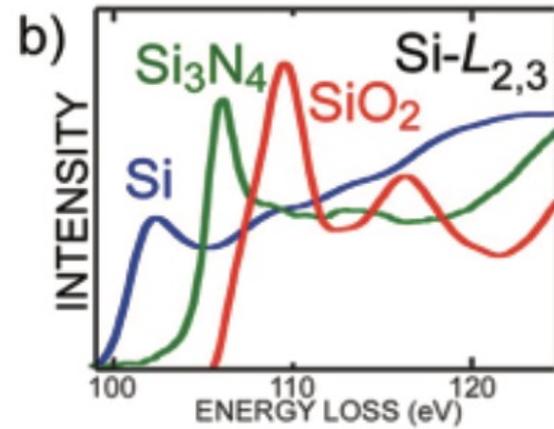


(3次元データ)

空間構造 $W_{x,y}$



各成分のスペクトル H_e



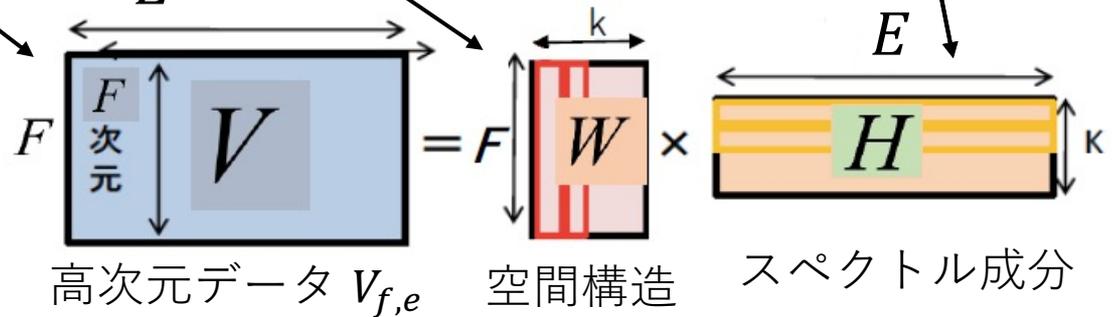
ノイズ
+ n

各フレームは各光子エネルギーでの吸光度

各フレームの
2次元配列を
1次元ベクトル
に並べ換える

【行列表示】

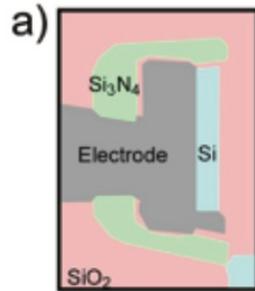
$$V = WH + n$$



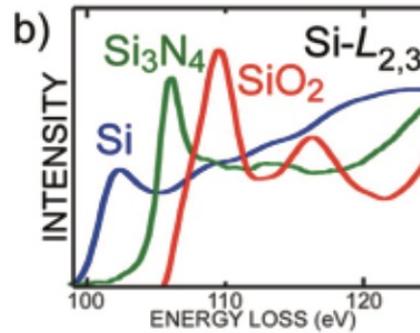
Shiga, Motoki, et al. "Sparse modeling of EELS and EDX spectral imaging data by nonnegative matrix factorization." *Ultramicroscopy* 170 (2016): 43-59.

SVDによって、高次元データから空間構造とスペクトル成分に分離できるか？ 28/10

STEM-EELSによるシリコンダイオード計測



(a) PCA



SVD(≒PCA)
成分マップに不自然な
オーバーラップ有り

スペクトルも不自然

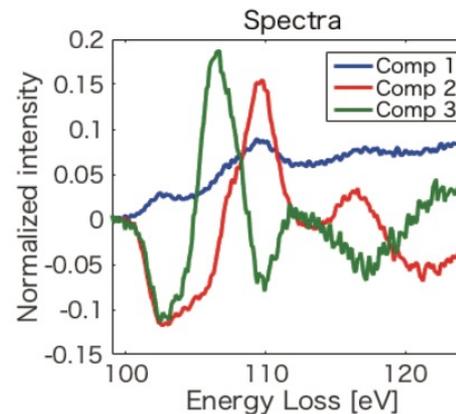
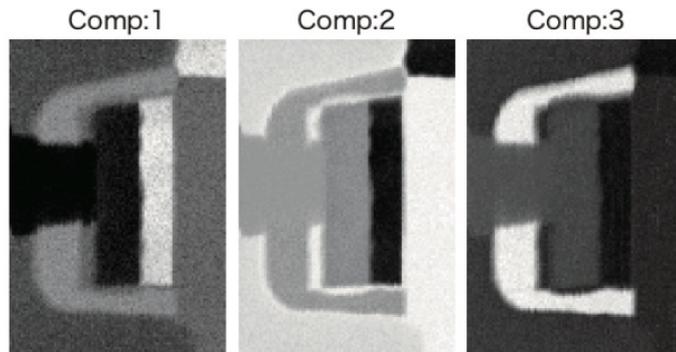


EELSデータの特徴を捉える
ように制約を修正

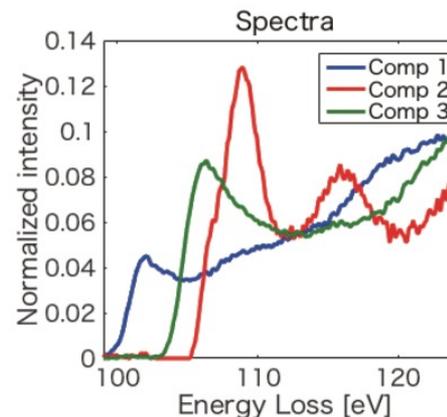
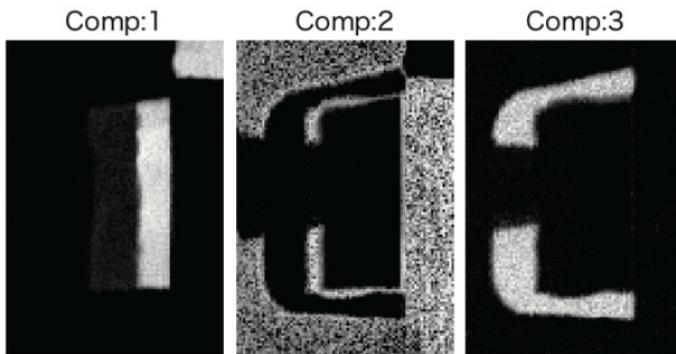
行列分解の制約を,
直交制約ではなく,
空間構造とスペクトル成分
の非負性として加える
(Non-negative factorization, NMF)

+
成分数が少数
(NMF-SO-ARD)

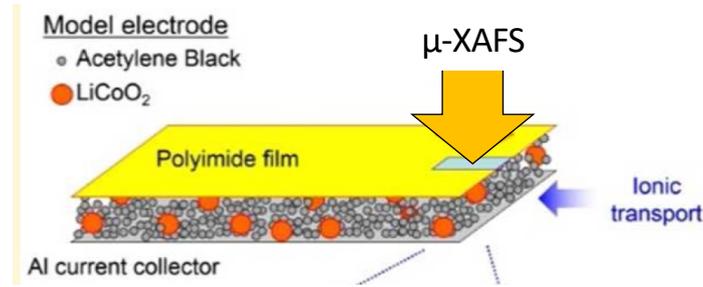
Shiga, Motoki, et al.
Ultramicroscopy 170 (2016): 43-59.



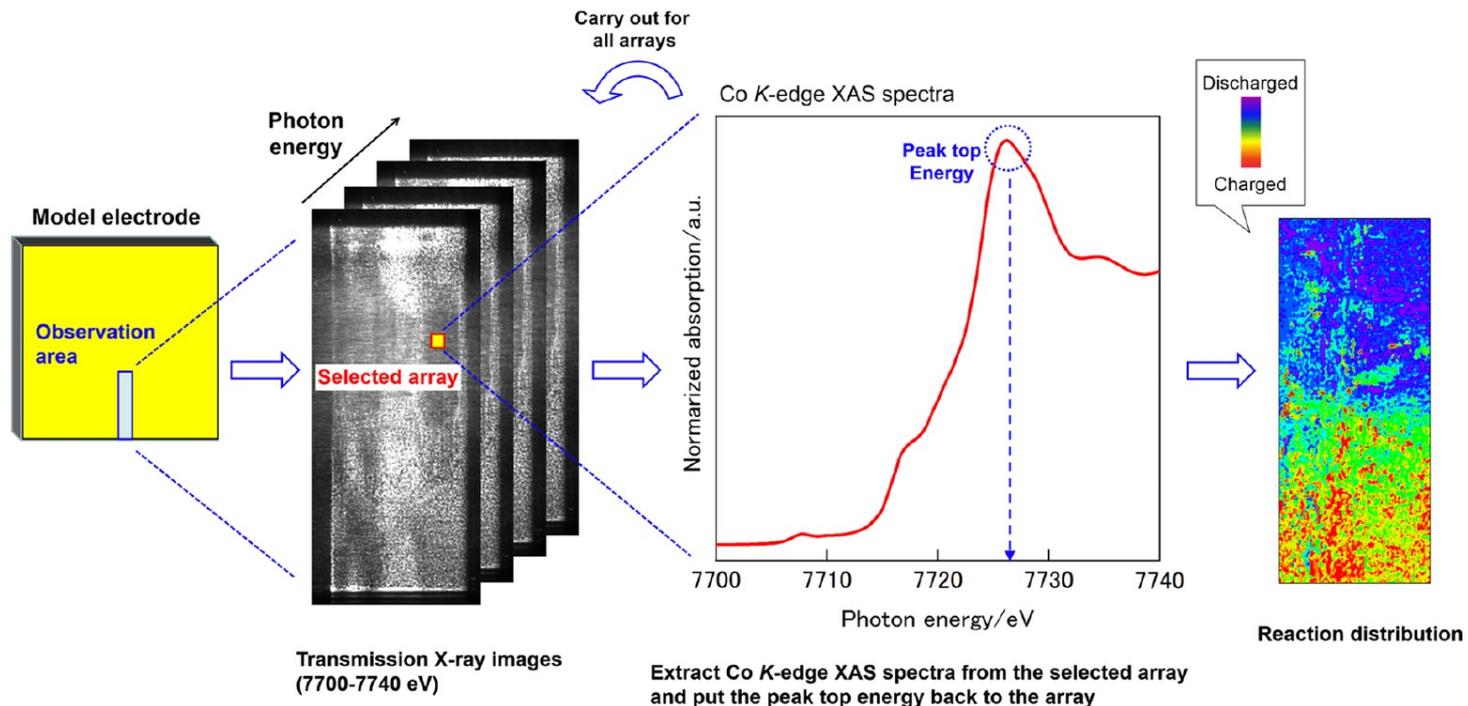
NMF-SO-ARD



モデル二次電池の充電過程の XAFSイメージングデータ



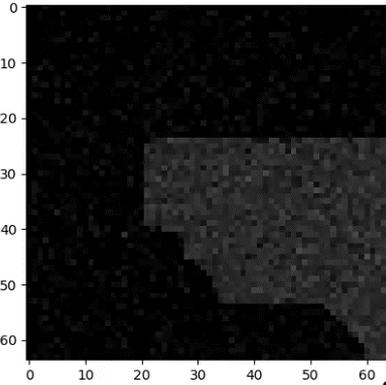
Nakamura et al.
J. Phys. Chem. C, 121,
2118-2124 (2017)



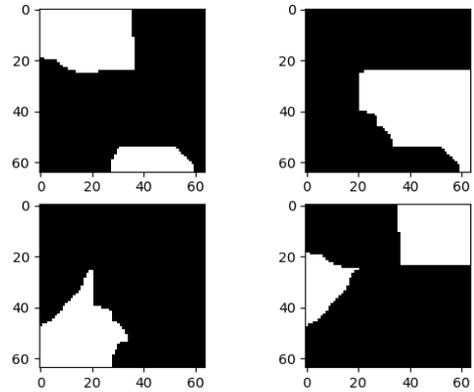
NMFによる特徴量の空間マッピング

空間構造に対応する各種特徴量

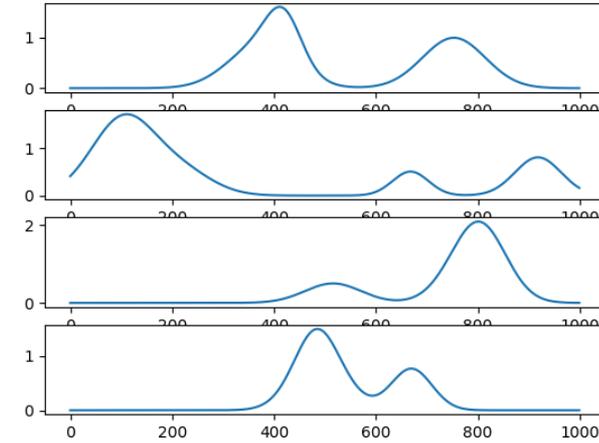
XASイメージ $V_{x,y,e}$



空間構造 $W_{x,y}$



XAS spectra H_e



ノイズ
+ n

=

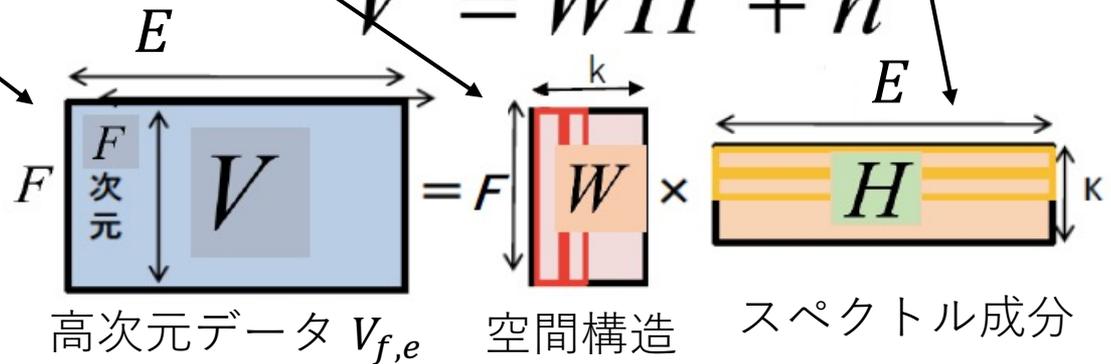
×

各フレームは各光子エネルギーでの吸光度

【行列表示】

$$V = WH + n$$

各フレームの
2次元配列を
1次元列ベク
トルに並べ換
える



Tanimoto, Hiroki, et al. "Non-negative matrix factorization for 2D-XAS images of lithium ion batteries." *Journal of Physics Communications* (2021).

発表の流れ

1. スパースモデリング

- 画像データにおけるスパース性
- 行列分解による画像特徴量抽出

Cf. Data-Driven Science and Engineering: Machine Learning, Dynamical Systems, and Control by Brunton and Kutz

- スパースコーディングと本研究の位置づけ

2. スパースモデリングによるさまざまな画像処理
3. スパースモデリングによる超解像解析
4. X線吸収微細構造データに対する
スパースモデリングによる物理情報抽出

自然画像一般における スパースに表現可能な基底について



a



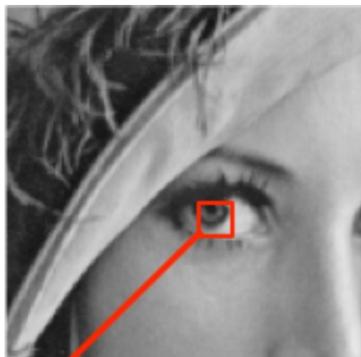
b



c

- 各画像を、パッチに分割して処理する。ただし、処理後の統合を考慮して、それぞれのパッチを重複させる

パッチ処理と辞書(=基底の候補)

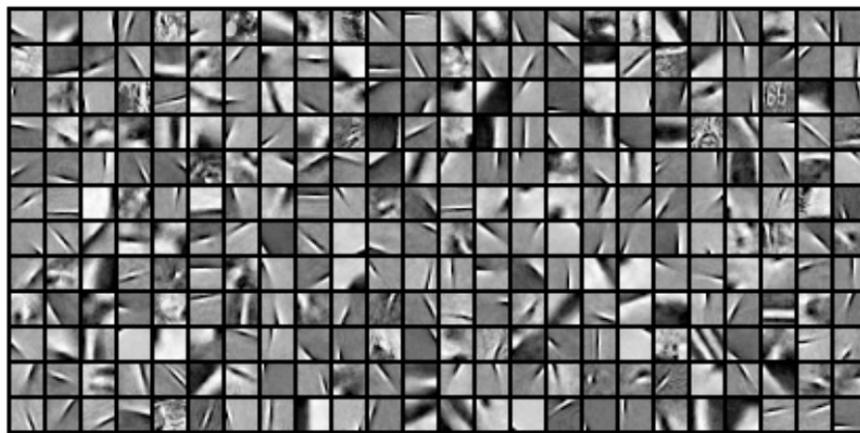


画像から切り出したパッチを
基底の線形和で近似.

$$\begin{matrix} \text{Patch} \\ \approx 0.69 \times \begin{matrix} \text{基底1} \\ \text{基底1} \end{matrix} + 0 \times \begin{matrix} \text{基底2} \\ \text{基底2} \end{matrix} + 0.25 \times \begin{matrix} \text{基底3} \\ \text{基底3} \end{matrix} + \dots + 0 \times \begin{matrix} \text{基底K} \\ \text{基底K} \end{matrix} \end{matrix}$$

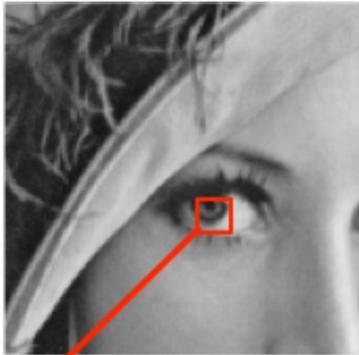
再構成に用いる
基底の候補

辞書



画像のスパース表現

スパースコーディング: 画像をスパースな基底で近似できるように辞書学習すること [Olshausen & Field 1996, Lee 2006]



画像から切り出したパッチを
基底の線形和で近似.

$$\mathbf{y} \approx 0.69 \times \text{基底1} + 0 \times \text{基底2} + 0.25 \times \text{基底3} + \dots + 0 \times \text{基底K}$$

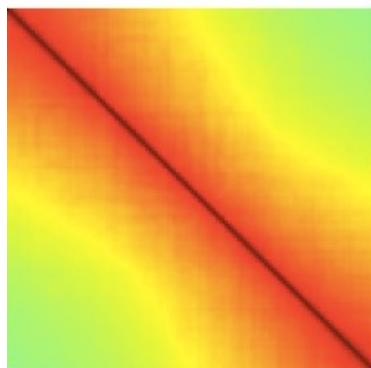
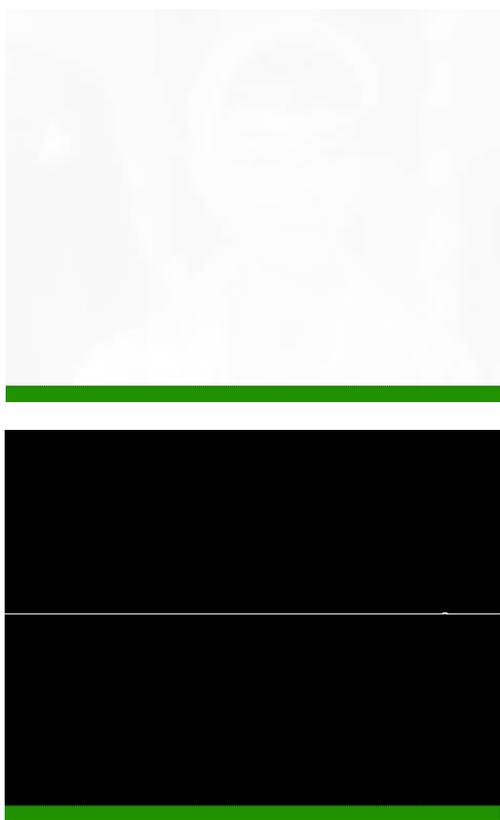
$$\mathbf{y} \approx \begin{bmatrix} \mathbf{d}_1 & \mathbf{d}_2 & \mathbf{D} & \dots & \mathbf{d}_K \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 0.69 \\ 0 \\ 0.25 \\ 0 \\ \vdots \\ 0 \end{bmatrix} \boldsymbol{\alpha}$$

係数ベクトルの大部分の要素の値はゼロ
スパース

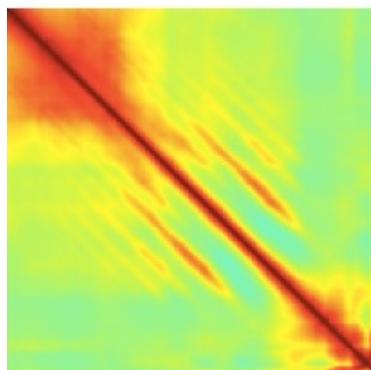
基底学習：データから潜在構造を知る

$$E(\Phi, \mathbf{x}) = \left\| \mathbf{y} - \sum_i \Phi_i x_i \right\|^2 + \lambda \sum_i |x_i|$$

画像[Olshausen & Field 1996]

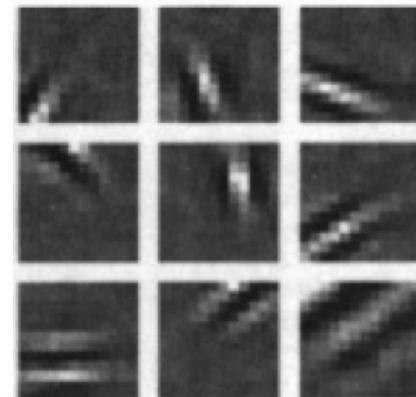


統計的相関



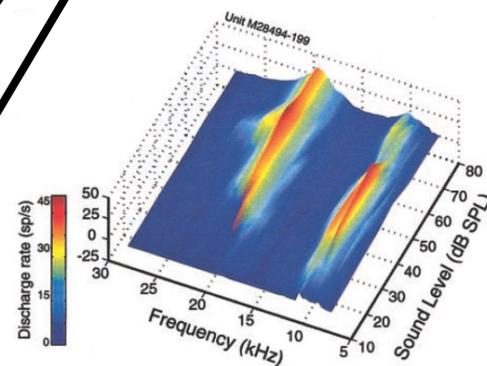
音声[Terashima et al., 2013]

ウェーブレット



基底の抽出

スパース
モデリング



和音

解析データによって、適切な基底の選択が重要

各手法の違いと発表研究の位置づけ

線形回帰(フーリエ変換, ウェーブレット変換), スパース線形回帰 (Lasso)

- 基底(特徴量)は固定. **一回の計測データでも解析可能**

主成分分析(SVD, PCA)

非負値行列分解 (NMF)

- 基底(特徴量)は**統計的機械学習**を行う.
数百枚程度の計測データを用いる
- **同スケールのデータに対して有効**

スパースコーディング

- 基底(特徴量)は**統計的機械学習**を行う.
バッチに分けて大量の自然画像などに対して学習を行う
- **スケールの異なる画像に対しても有効.**
- 画像処理における**汎用性**が高い

深層学習, Vision Transformer等

- 基底(特徴量)を非線形性を入れつつ, 学習可能
- 様々な手法が開発されているが, 適用時には個々のタスクに対して**再学習が必要**であり, 大量のデータが必要に.

各手法の違いと発表研究の位置づけ

線形回帰(フーリエ変換, ウェーブレット変換), スパース線形回帰 (Lasso)

- 基底(特徴量)は固定. 一回の計測データでも解析可能

主成分分析(SVD, PCA)

非負値行列分解 (NMF)

- 基底(特徴量)は統計的機械学習を行う.
数百枚程度の計測データを用いる
- 同スケールのデータに対して有効

スパースコーディング

- 基底(特徴量)は統計的機械学習を行う.
バッチに分けて学習を行う
- スケールの異なる自然画像に対しても有効.
- 画像処理における汎用性が高い

- 
1. 一般の自然画像を学習した基底を用い, スパースコーディング(超解像)を行う
- 汎用的な手法を適用できるか検証し, 実際の放射光解析における活用を視野に

深層学習, Vision Transformer等

- 基底(特徴量)を非線形性を入れつつ, 学習可能
- 様々な手法が開発されているが, 適用時には個々のタスクに対して再学習が必要であり, 大量のデータが必要に.

各手法の違いと発表研究の位置づけ

線形回帰(フーリエ変換, ウェーブレット変換), スパース線形回帰 (Lasso)

- 基底(特徴量)は固定. 一回の計測データでも解析可能

主成分分析(SVD, PCA)

非負値行列分解 (NMF)

- 基底(特徴量)は統計的機械学習を行う.
数百枚程度の計測データを用いる
- 同一スケールのデータに対して有効

スパースコーディング

- 基底(特徴量)は統計的機械学習を行う.
バッチに分けて学習を行う
- スケールの異なる自然画像に対しても有効.
- 画像処理における汎用性が高い

深層学習, Vision Transformer等

- 基底(特徴量)を非線形性を入れつつ, 学習可能
- 様々な手法が開発されているが, 適用時には個々のタスクに対して再学習が必要であり, 大量のデータが必要に.



2. 計測過程や物理法則から, 基底(特徴量)を選出.
上記の事前知識を用いることで, ノイズレベルの大きな実験データに対しても信号とノイズを見分け, 物理情報を抽出する

発表の流れ

1. スパースモデリング

- 画像データにおけるスパース性
- 行列分解による画像特徴量抽出

Cf. Data-Driven Science and Engineering: Machine Learning, Dynamical Systems, and Control by Brunton and Kutz

- スパースコーディングと本研究の位置づけ

2. スパースモデリングによるさまざまな画像処理

3. スパースモデリングによる超解像解析

4. X線吸収微細構造データに対する スパースモデリングによる物理情報抽出

各手法の違いと発表研究の位置づけ

線形回帰(フーリエ変換, ウェーブレット変換), スパース線形回帰 (Lasso)

- 基底(特徴量)は固定. 一回の計測データでも解析可能

主成分分析(SVD, PCA)

非負値行列分解 (NMF)

- 基底(特徴量)は統計的機械学習を行う.
数百枚程度の計測データを用いる
- 同一スケールのデータに対して有効

スパースコーディング

- 基底(特徴量)は統計的機械学習を行う.
バッチに分けて学習を行う
- スケールの異なる自然画像に対しても有効.
- **画像処理における汎用性が高い**

深層学習, Vision Transformer等

- 基底(特徴量)を非線形性を入れつつ, 学習可能
- 様々な手法が開発されているが, 適用時には個々のタスクに対して再学習が必要であり, 大量のデータが必要に.

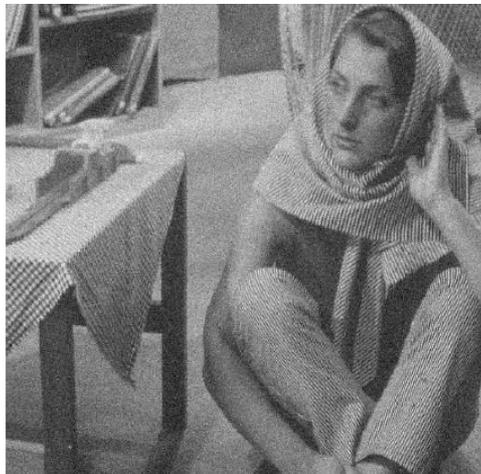
Image Denoising (Gray) [E. & Aharon ('06)]



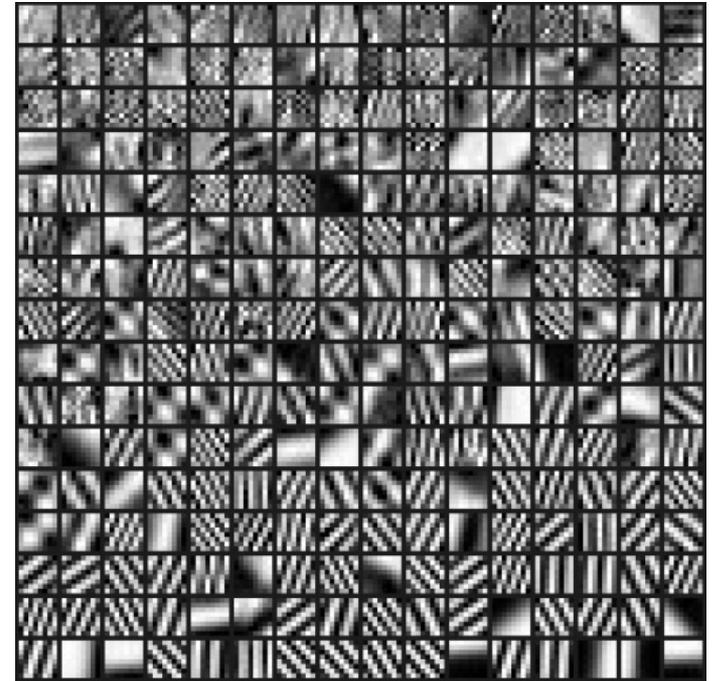
Source



Result 30.829dB



Noisy image



The obtained dictionary after 10 iterations

Inpainting [Mairal, E. & Sapiro ('08)]



Original



80% missing



Result



Sparse and Redundant Representation Modeling of Signals – Theory and Applications By: Michael Elad, 2010

Image Compression [Bryt and E. ('08)]

- ❑ The problem: Compressing photo-ID images.
General purpose methods (JPEG, JPEG2000) do not take into account the specific family.
- ❑ By adapting to the image-content (PCA/K-SVD), better results could be obtained.
- ❑ For these techniques to operate well, train dictionaries locally (per patch) using a training set of images is required.
- ❑ In PCA, only the (quantized) coefficients are stored, whereas the K-SVD requires storage of the indices as well.

Geometric alignment of the image is very helpful and should be done [Goldenberg, Kimmel, & E. ('05)].

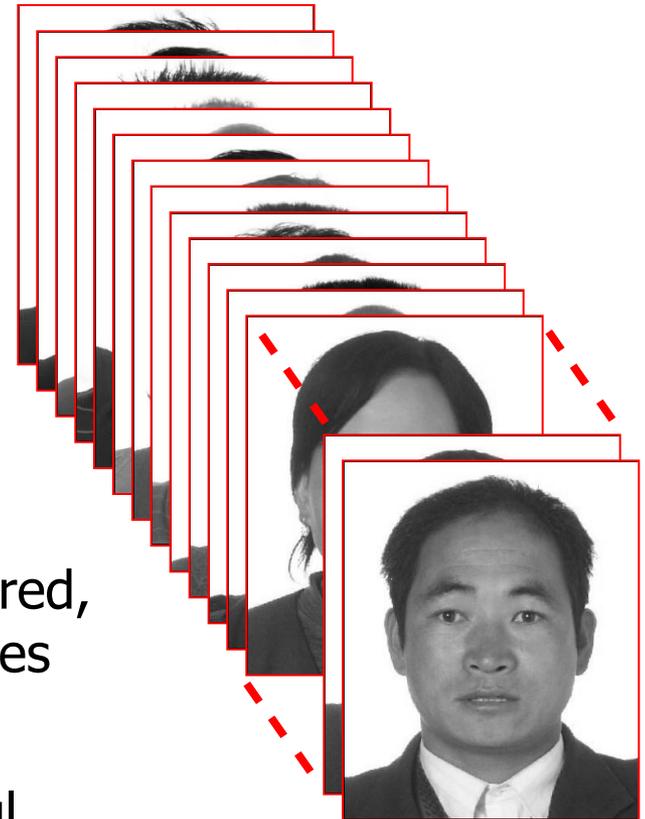


Image Compression

Detect main features and warp the images to a common reference (20 parameters)

Divide the image into disjoint 15-by-15 patches. For each compute mean and dictionary

Per each patch find the operating parameters (number of atoms L , quantization Q)

Warp, remove the mean from each patch, sparse code using L atoms, apply Q , and dewarp

On the training set

Training set (2500 images)

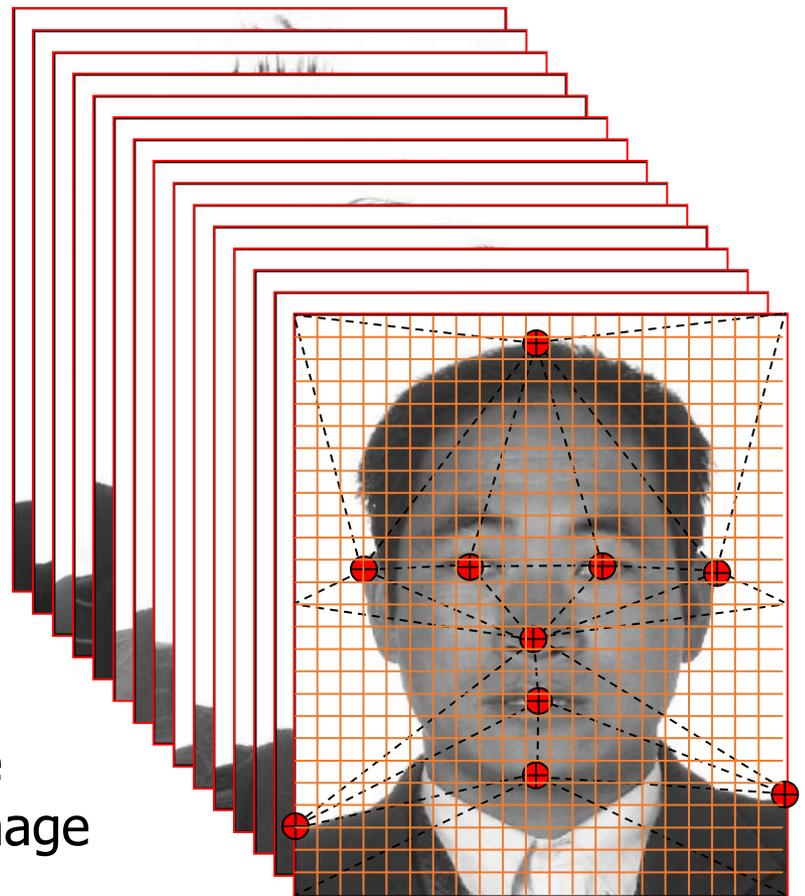


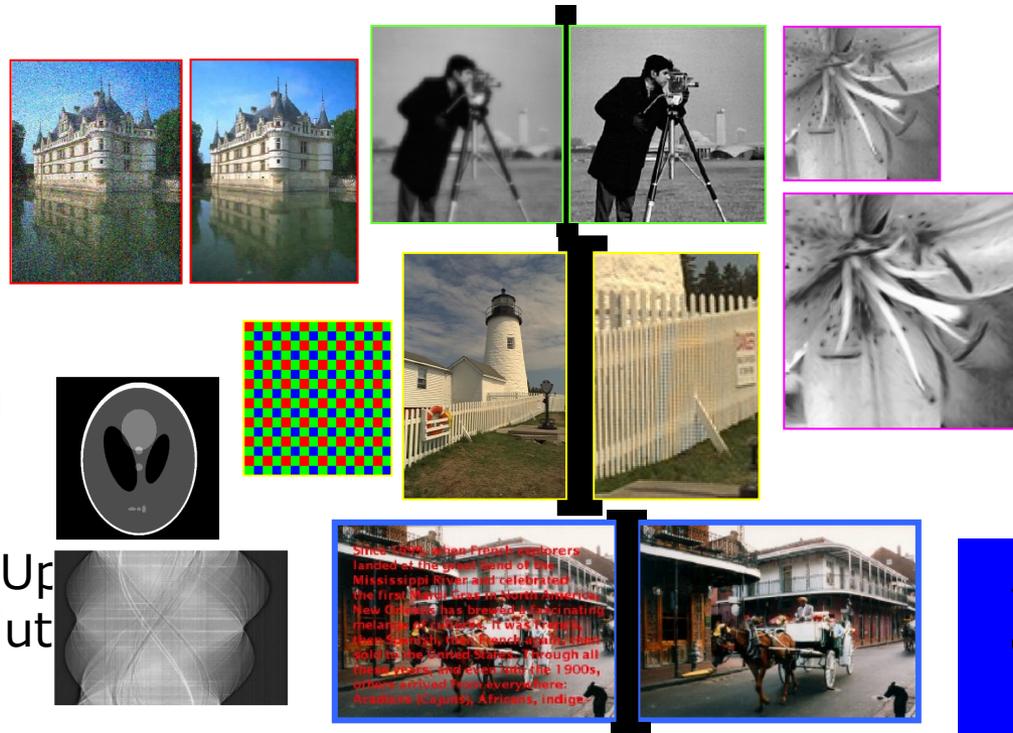
Image Compression Results



Discovery : Solving Inverse Problems

Inverse Problems: Recovery of images from corrupted measurements

- ❑ De-Noising
- ❑ De-Blurring
- ❑ In-Painting
- ❑ De-Mosaicing
- ❑ Tomography
- ❑ Image Scale-Up & super-resolution
- ... and more ...



$$y = Hx + n$$

発表の流れ

1. スパースモデリング

- 画像データにおけるスパース性
- 行列分解による画像特徴量抽出

Cf. Data-Driven Science and Engineering: Machine Learning, Dynamical Systems, and Control by Brunton and Kutz

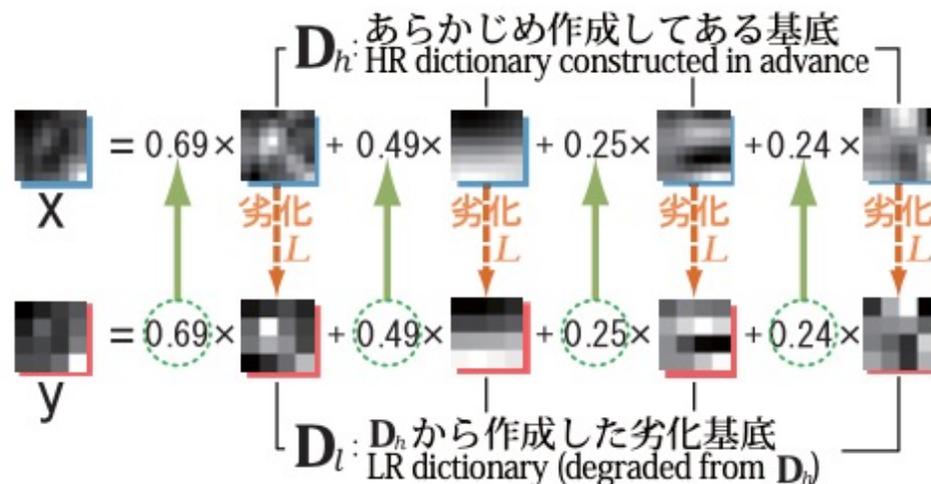
- スパースコーディングと本研究の位置づけ

2. スパースモデリングによるさまざまな画像処理

3. スパースモデリングによる超解像解析

4. X線吸収微細構造データに対する スパースモデリングによる物理情報抽出

シングルフレームを用いた スパースコーディングによる超解像



$$\underset{\alpha}{\text{minimize}} \|y - \mathbf{D}\alpha\|_2^2 + \eta \|\alpha\|_1, \quad \eta > 0$$

- 高解像度の自然画像から得られた基底を低解像度化することで、低解像度画像の基底を作成
- 低解像度画像において得られた係数ベクトルは、高解像度画像を生成する場合も、共通して用いる
- Image scale-up using bicubic interpolation is far from being satisfactory for this task.

[Yang, Wright, Huang, and Ma ('08); Zeyde, Protter, & Elad ('11)]

Super-Resolution – Results (1)

An amazing variety of practical problems (design, analysis, and operation) can be formulated as an optimization problem, or some variation such as a control problem. Indeed, mathematical optimization has become a standard tool. It is widely used in engineering, in electrical systems, and optimal design problems and aerospace engineering. Optimization is used in design and operation, finance, supply chain management, and other areas. The list of applications is still growing.

For most of these applications, mathematics is used by a human decision maker, system designer, or process, checks the results, and modifies the process when necessary. This human decision maker is often replaced by the optimization problem, e.g., buying a stock portfolio.

SR Result
PSNR=16.95dB

The training image: 717×717 pixels, providing a set of 54,289 training patch-pairs.

An amazing variety of practical problems (design, analysis, and operation) can be formulated as an optimization problem, or some variation such as a control problem. Indeed, mathematical optimization has become a standard tool. It is widely used in engineering, in electrical systems, and optimal design problems and aerospace engineering. Optimization is used in design and operation, finance, supply chain management, and other areas. The list of applications is still growing.

For most of these applications, mathematics is used by a human decision maker, system designer, or process, checks the results, and modifies the process when necessary. This human decision maker is often replaced by the optimization problem, e.g., buying a stock portfolio.

Bicubic interpolation
PSNR=14.68dB

Ideal
Image

An amazing variety of practical problems (design, analysis, and operation) can be formulated as an optimization problem, or some variation such as a control problem. Indeed, mathematical optimization has become a standard tool. It is widely used in engineering, in electrical systems, and optimal design problems and aerospace engineering. Optimization is used in design and operation, finance, supply chain management, and other areas. The list of applications is still growing.

For most of these applications, mathematics is used by a human decision maker, system designer, or process, checks the results, and modifies the process when necessary. This human decision maker is often replaced by the optimization problem, e.g., buying a stock portfolio.

An amazing variety of practical problems (design, analysis, and operation) can be formulated as an optimization problem, or some variation such as a control problem. Indeed, mathematical optimization has become a standard tool. It is widely used in engineering, in electrical systems, and optimal design problems and aerospace engineering. Optimization is used in design and operation, finance, supply chain management, and other areas. The list of applications is still growing.

For most of these applications, mathematics is used by a human decision maker, system designer, or process, checks the results, and modifies the process when necessary. This human decision maker is often replaced by the optimization problem, e.g., buying a stock portfolio.

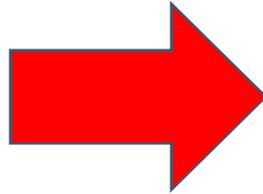
Given Image

[Zeyde, Protter, & Elad ('11)]

Super-Resolution – Results (2)



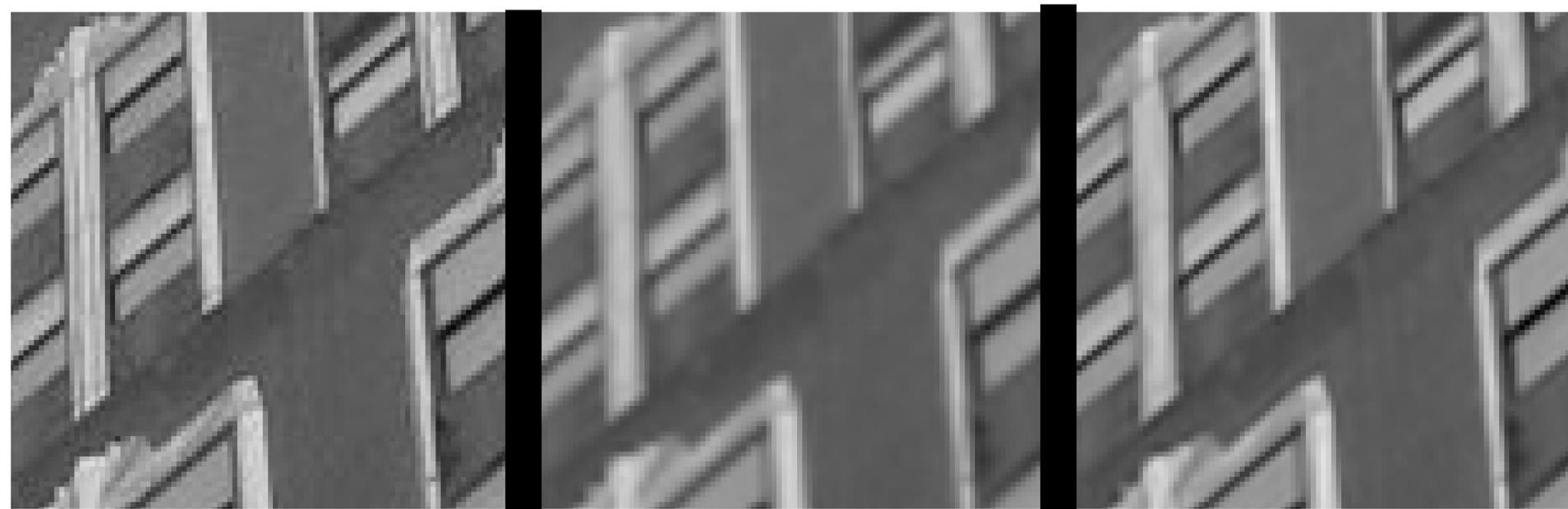
Given image



Scaled-Up (factor 2:1) using the proposed algorithm,
PSNR=29.32dB (3.32dB improvement over bicubic)

[Zeyde, Protter, & Elad ('11)]

Super-Resolution – Results (2)



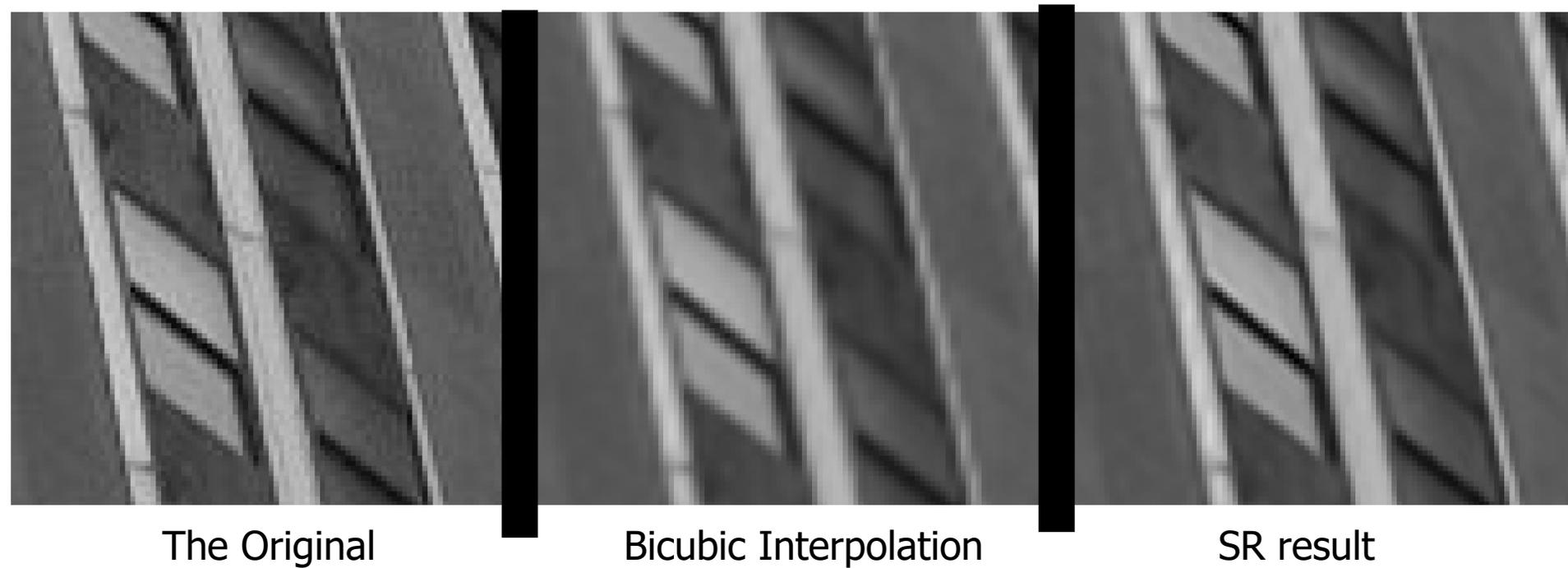
The Original

Bicubic Interpolation

SR result

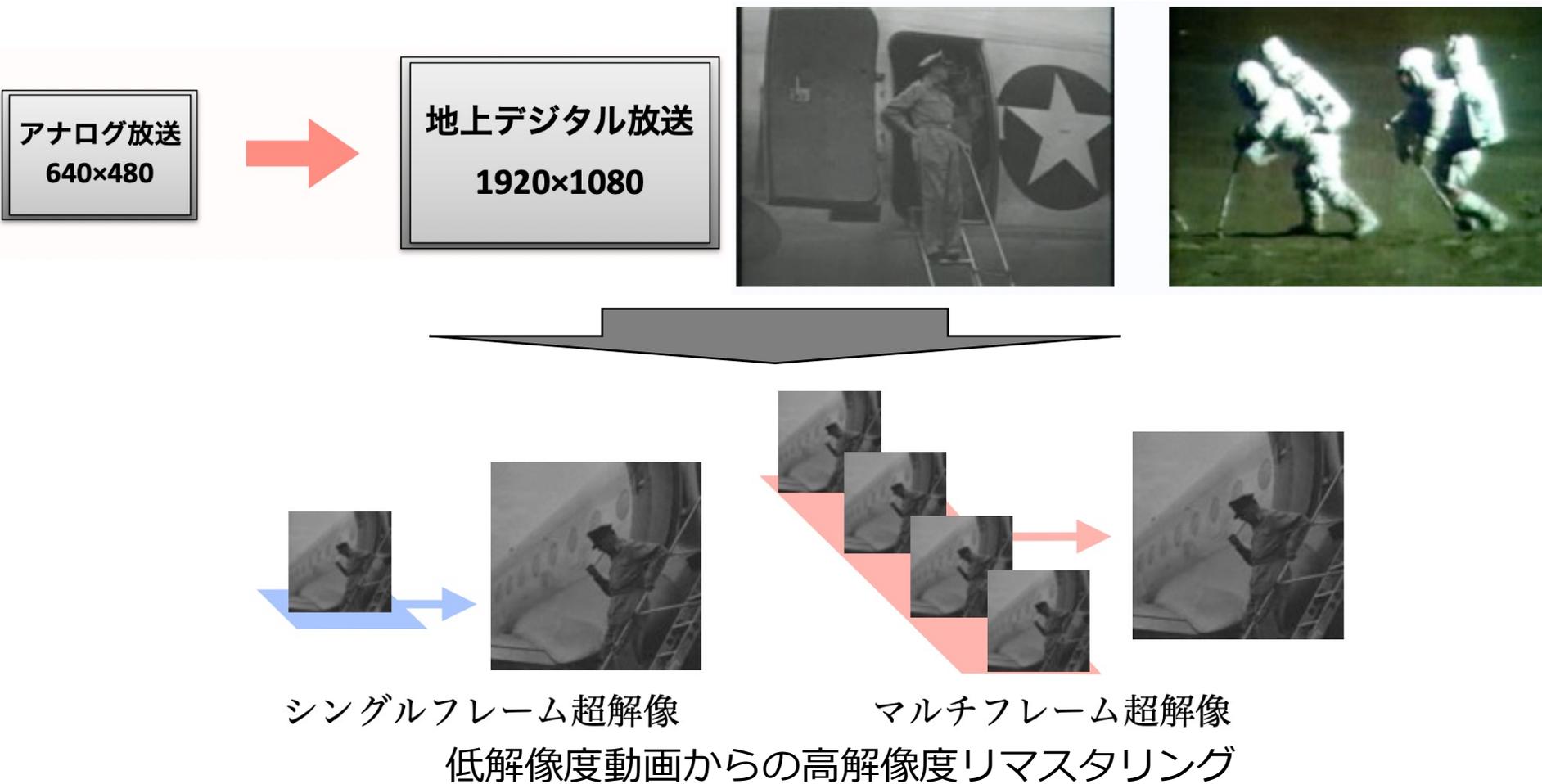
[Zeyde, Protter, & Elad ('11)]

Super-Resolution – Results (2)

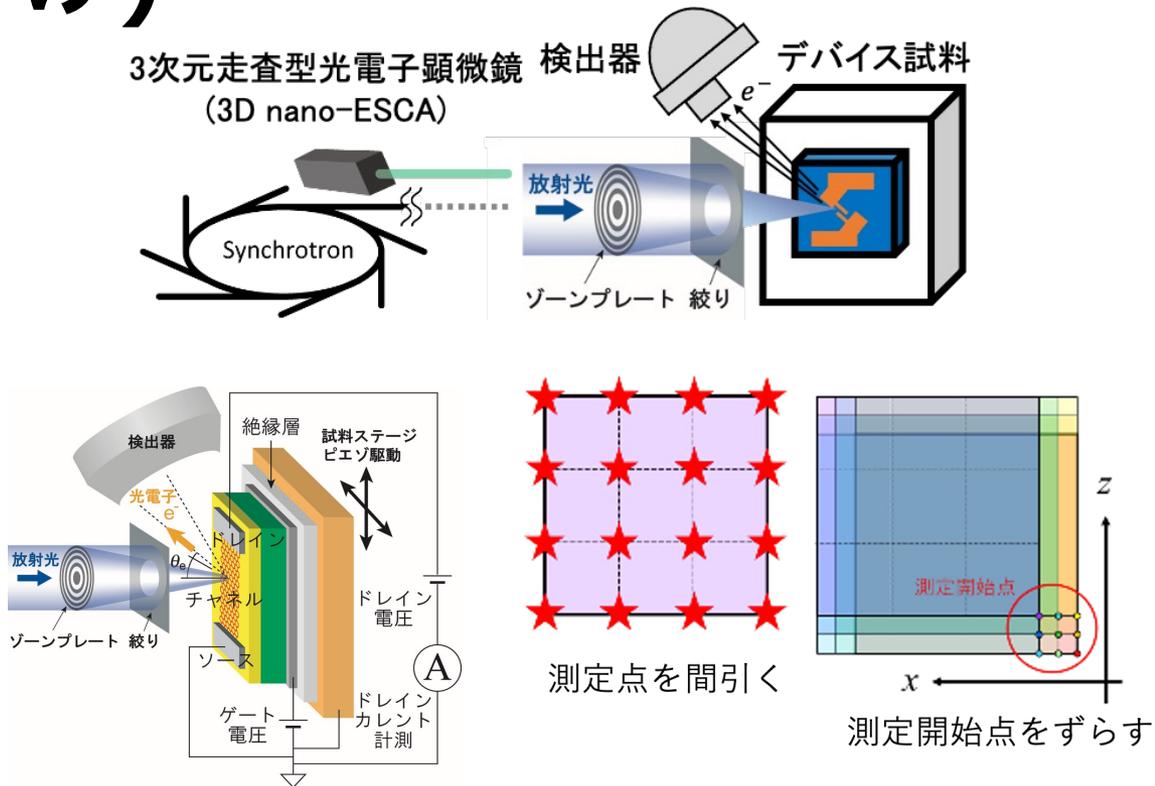
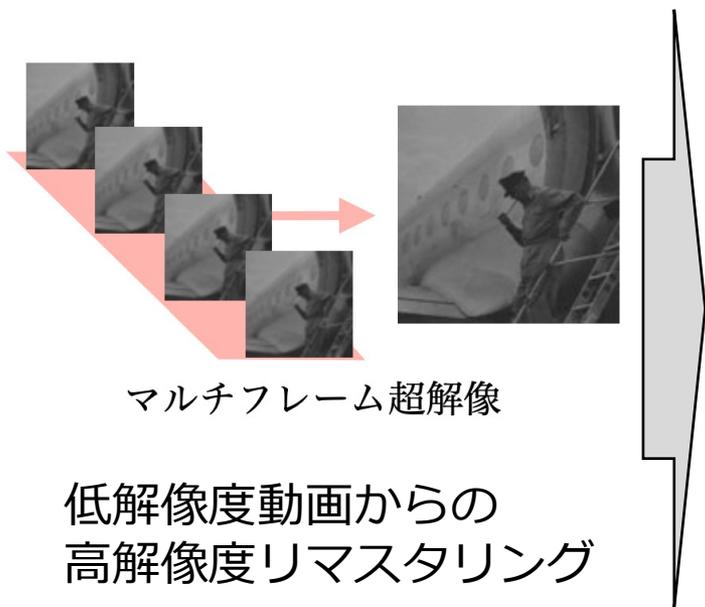


[Zeyde, Protter, & Elad ('11)]

デジタル・リマスター技術としての超解像解析



放射光データとマルチフレーム超解像解析 (本研究のきっかけ)



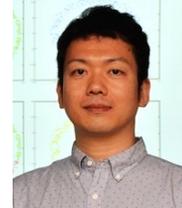
- 通常の超解像解析は、任意の動画のズレを推定しつつ、高解像度画像生成
- 放射光計測などの先端計測では、複数の画像を精密にコントロールしながら、与えられた計測時間・計測手法等を最適化する必要
- 数理的には同じ問題でありながら、推定したい問題は異なる
(解析の目的依存で、無数に問題が出てくるデータ駆動科学の面白さ)

謝辞

CREST バイズ推論とスパースモデリングによる計測と情報の融合



岡田 真人 (東大)



日野 英逸 (統数研)

CREST 科学者拡張型の階層的自律探索による新材料創製



永村直佳 (NIMS)



岩崎悠真 (NIMS)



吹留博一(東北大学)



関根正大 (筑波大)

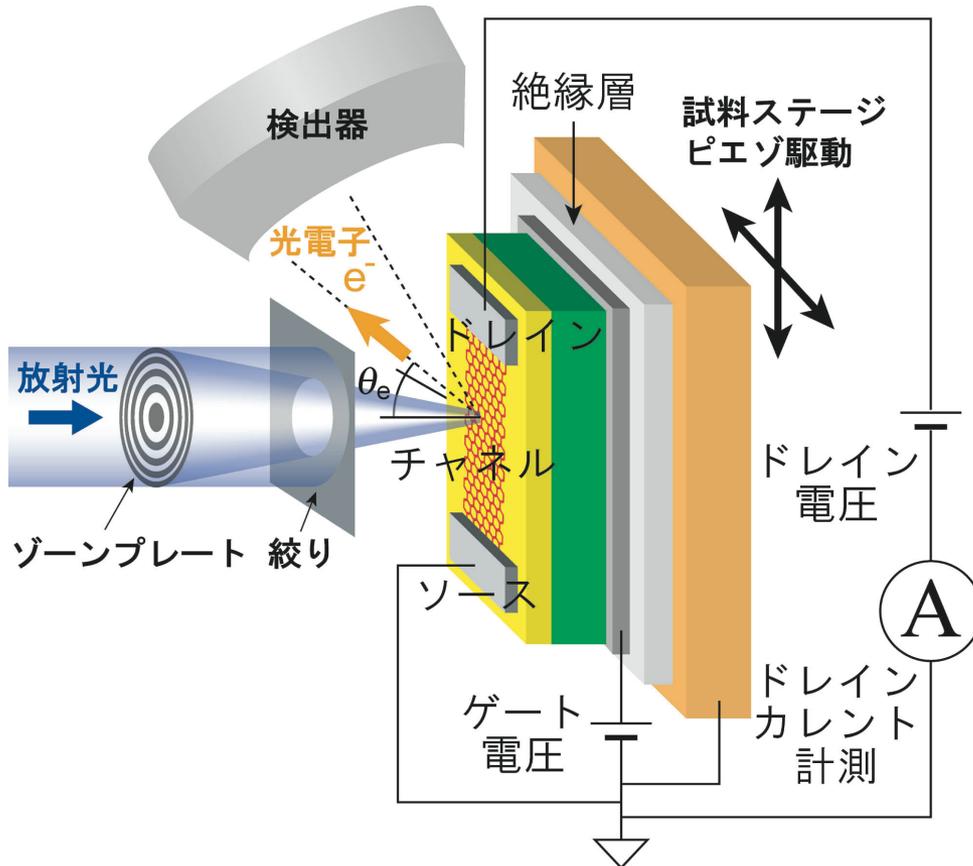


楠田真大 (筑波大)

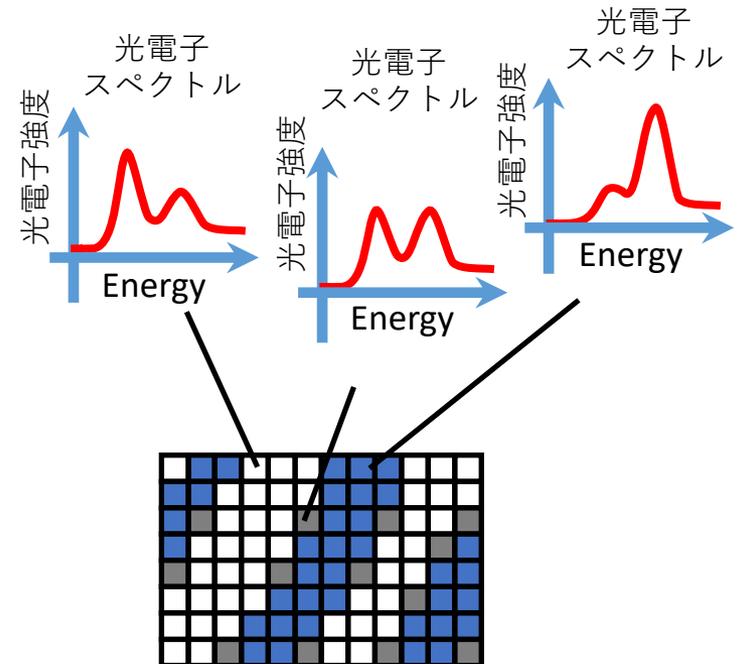
SPRING-8 BL07LSUの3DnanoESCA装置で測定
今後は、ナノテラスにおいても測定予定



顕微分光装置



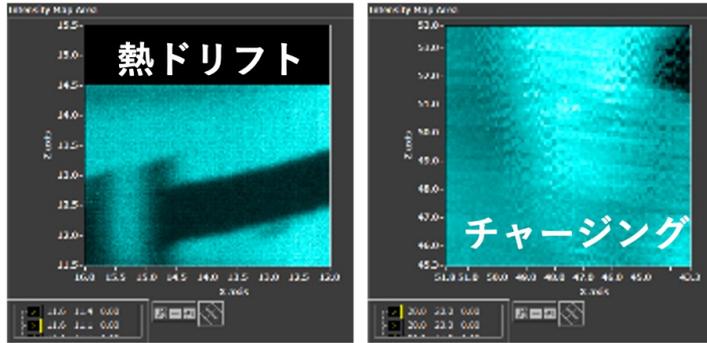
- 入射光を絞って、試料の方をscanする。
- 入射光のスポットサイズは、100 nm程度。なので、空間分解能もその程度としている。
- 下図のように光電子スペクトルの空間分布が得られる。



顕微分光への超解像技術適用

課題

- 機械的振動の影響を除去し、実効的な空間分解能を向上させたい
- 熱ドリフトやradiation damageがあるので測定点を減らして短時間計測にしたい

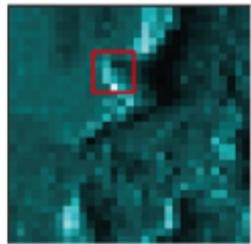


“超解像技術”を適用してみる
(スパースモデリング)



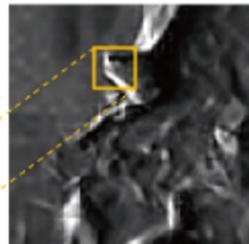
Target low resolution image Y_1

超解像イメージ



$$y_1 \in \mathbb{R}^{5 \times 5}$$

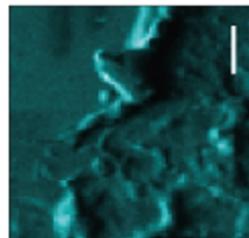
Magnify



$$x \in \mathbb{R}^{15 \times 15}$$

i -th low resolution image Y_i

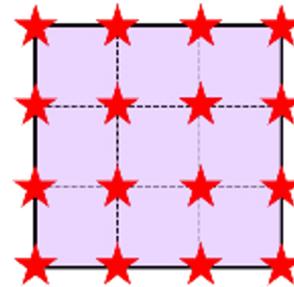
実際の測定データを用いた解析結果



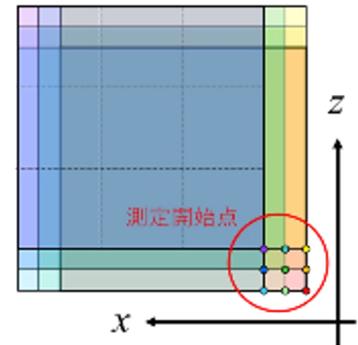
origin of LR patch

shifted origin to be estimated

3 μ m



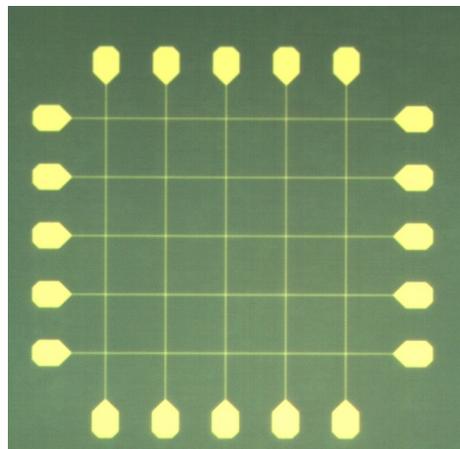
測定点を間引く



測定開始点をずらす

T. Kato *et al.* Neurocomputing
240 115 (2017).などのスパース
モデリング技術を適用

研究目的 研究対象



評価用のAu 試料

(軸の単位: μm)

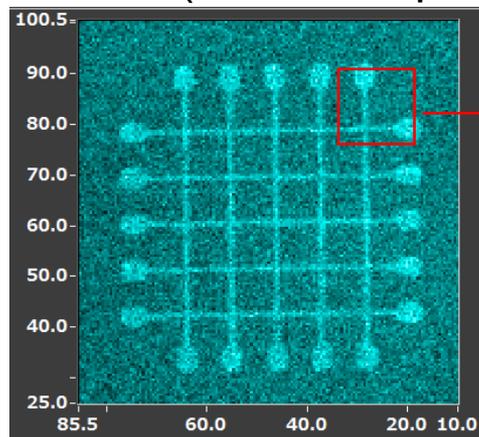


図2. Au 4fの光電子
強度mapping
(パターン全体)

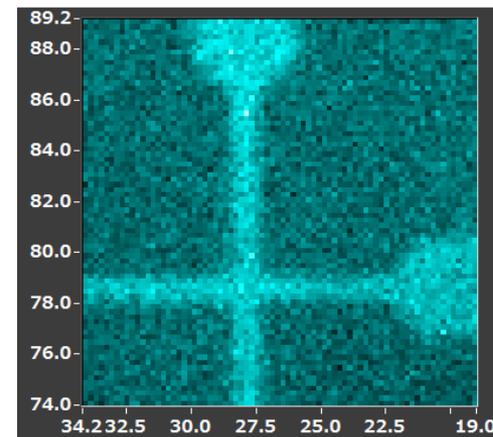
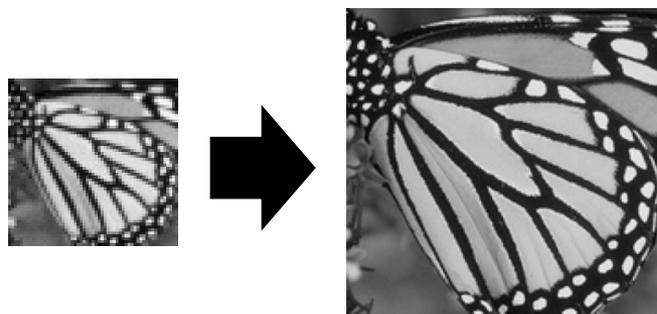


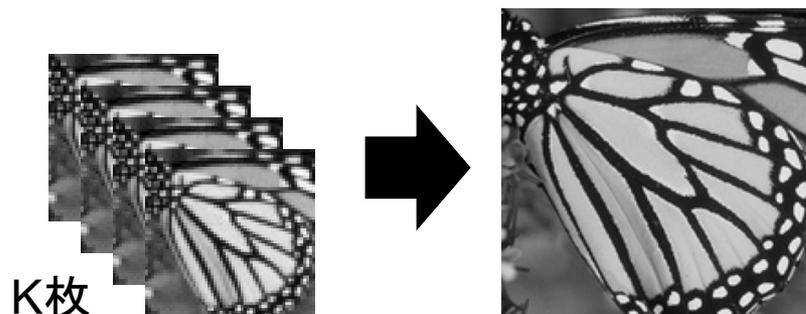
図3. Au 4fの光電子
強度mapping
(パターン一部)

放射光を用いた顕微分光計測により得られた複数枚の評価用のAu試料の低解像度画像に対してマルチフレーム超解像を適応し、高解像度画像を得る。

シングルからマルチフレーム超解像



シングルフレーム超解像

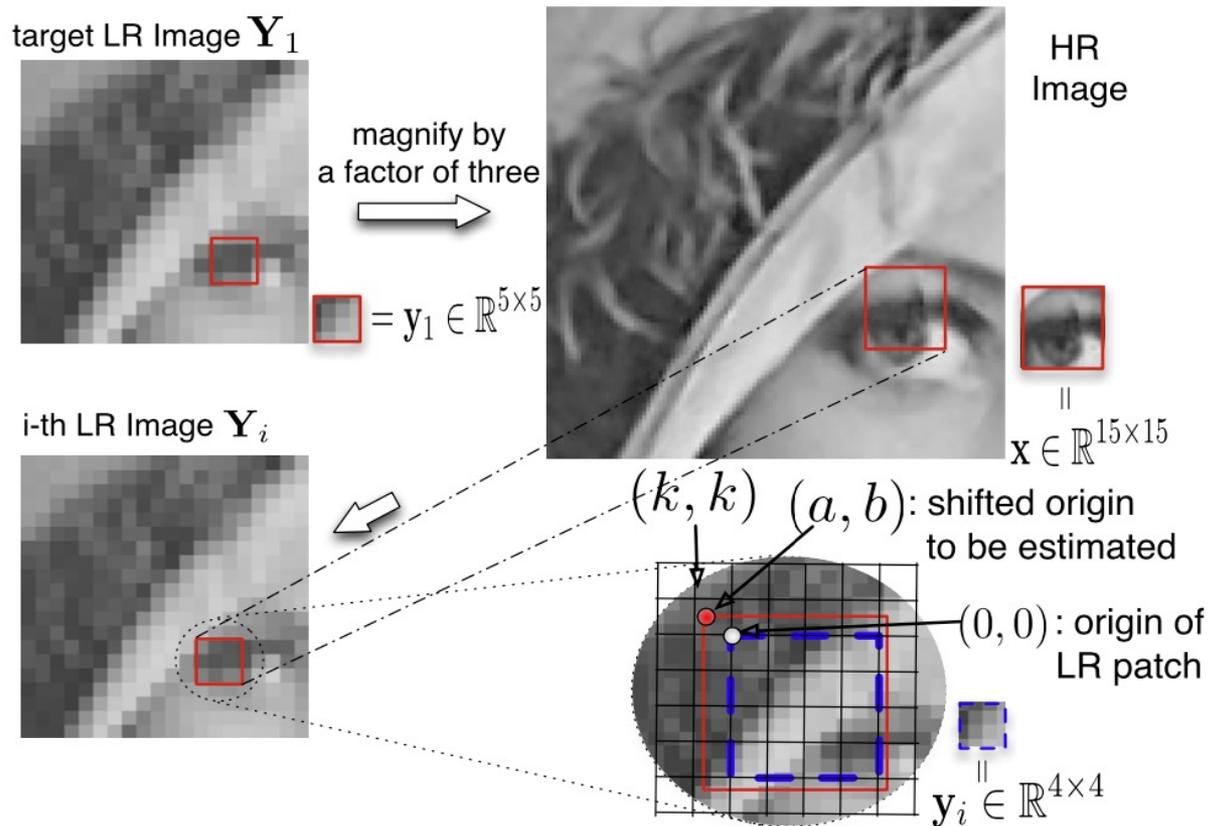


マルチフレーム超解像

今回のスパース超解像, ベイズ超解像はマルチフレーム超解像である.

K枚のLR画像 $\mathbf{y}^{(k)}$ ($k = 1, 2, \dots, K$)を用いて超解像を行う.

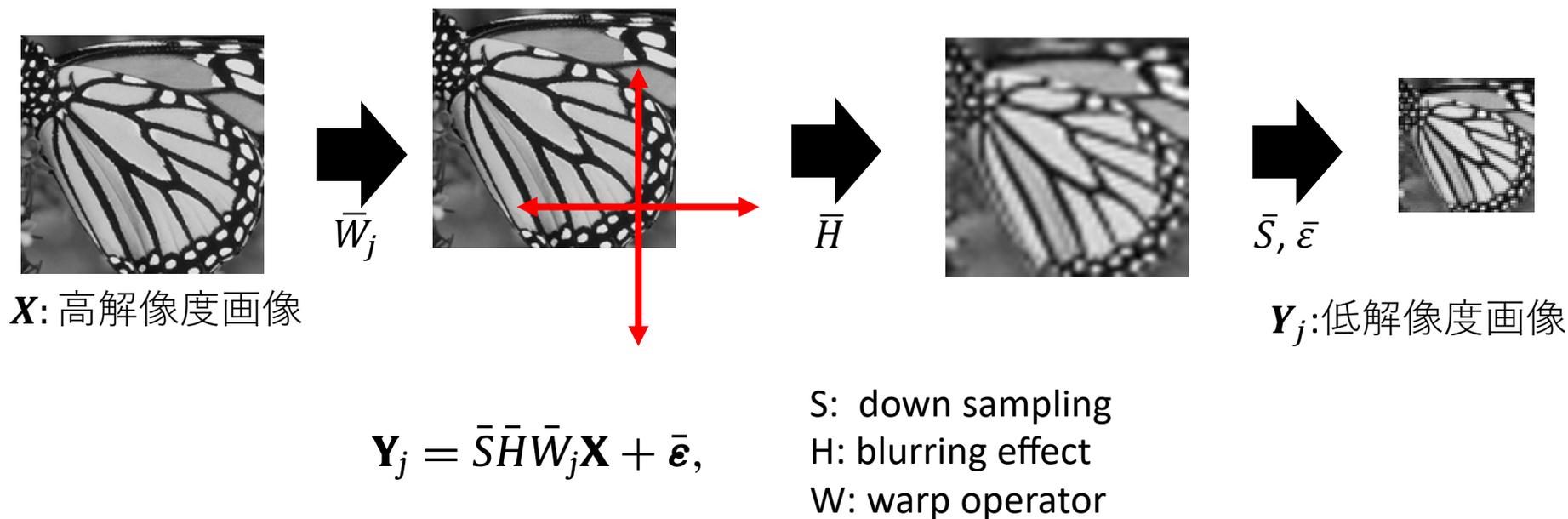
画像の観測モデルの導入



[Kato, Hino, Murata, 2017]

- ダウンサンプリング、画像のボケ、画像のシフトを観測モデルとして導入
- スパースコーディングによって、低解像度画像から高解像度画像を推定する

スパースコーディングによる超解像劣化過程

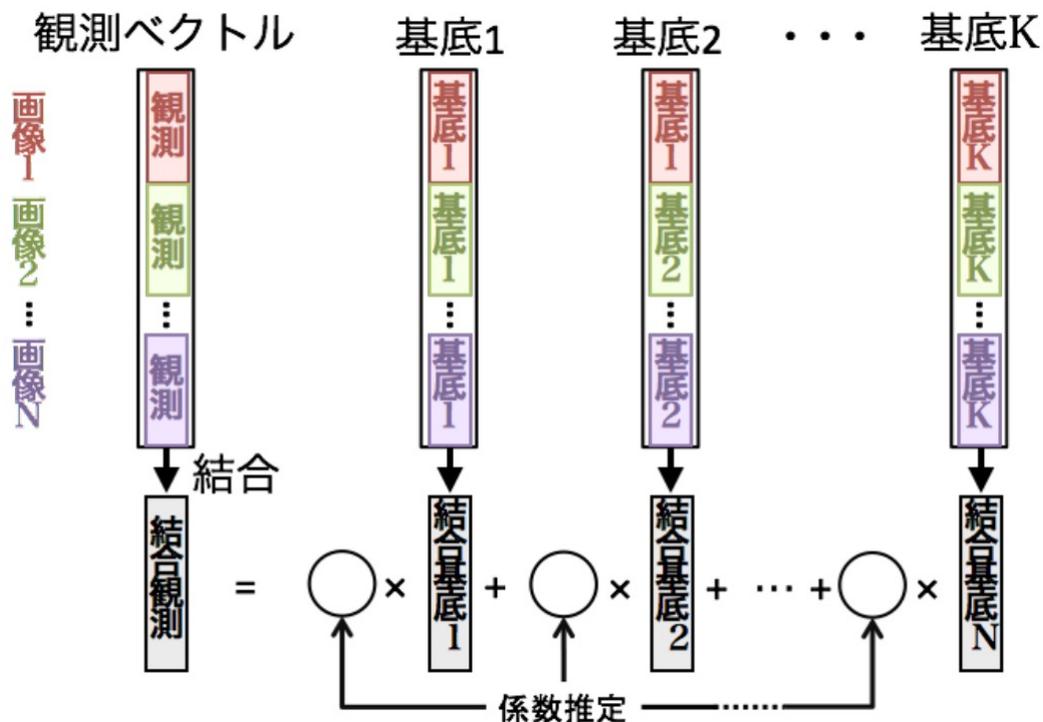


スパース超解像では、高解像度画像から低解像度画像が生成されるという劣化過程を観測モデルとしている。

マルチフレームを用いた スパースコーディングによる超解像

どのように複数枚の劣化画像の情報を利用するか？

複数の観測パッチを繋げたベクトルを，観測画像毎の劣化を反映させて繋げた辞書でスパースコーディングする



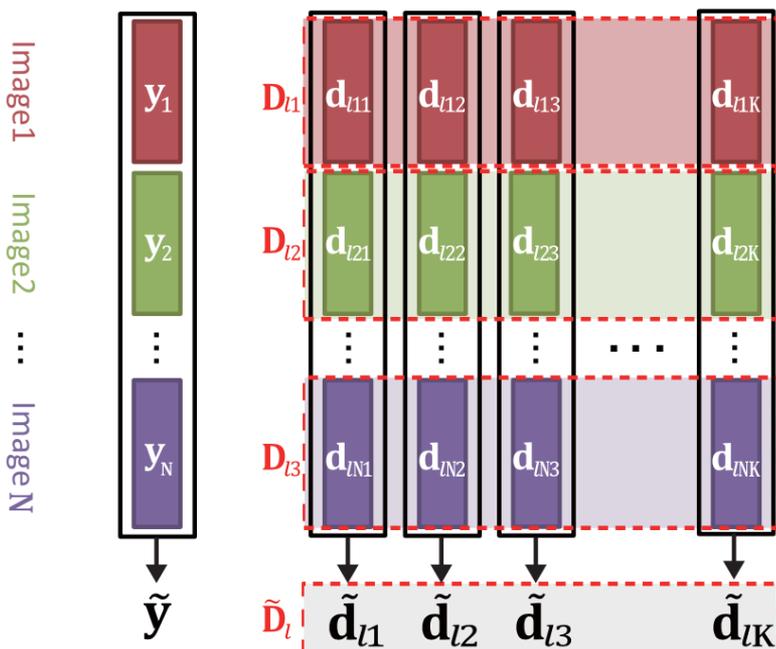
[Kato, Hino, Murata 2015]

マルチフレームを用いた スパースコーディングによる超解像

どのように複数枚の劣化画像の情報を利用するか？



複数の観測パッチを繋げたベクトルを，観測画像毎の劣化を反映させて繋げた辞書でスパースコーディングする



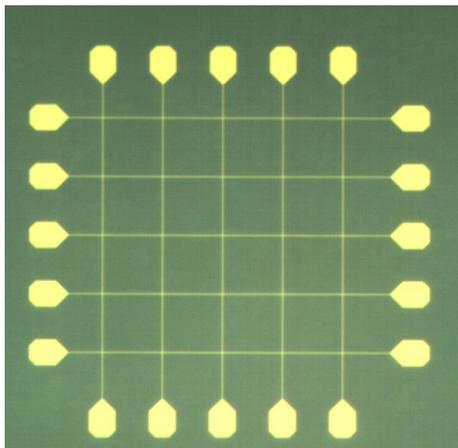
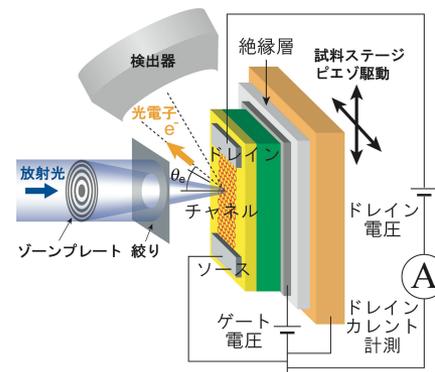
$$\min_{\alpha} \|\tilde{D}_l \alpha - \tilde{y}\|_2^2 + \eta \|\alpha\|_1$$

$$\text{with } \tilde{D}_l = \begin{bmatrix} D_{l1} \\ \vdots \\ D_{lN} \end{bmatrix} \quad \text{and} \quad \tilde{y} = \begin{bmatrix} y_1 \\ \vdots \\ y_N \end{bmatrix}$$

結合した低解像度観測パッチ \tilde{y} を， \tilde{D}^l を用いてスパースコーディング

結合辞書の作成は，高解像度空間における位置ズレ W の推定を伴う

なぜ分解能を基準にベイズ最適化を行ったか？



評価用のAu 試料

(軸の単位: μm)

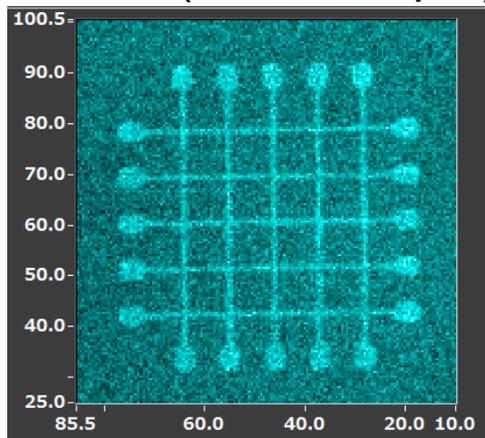
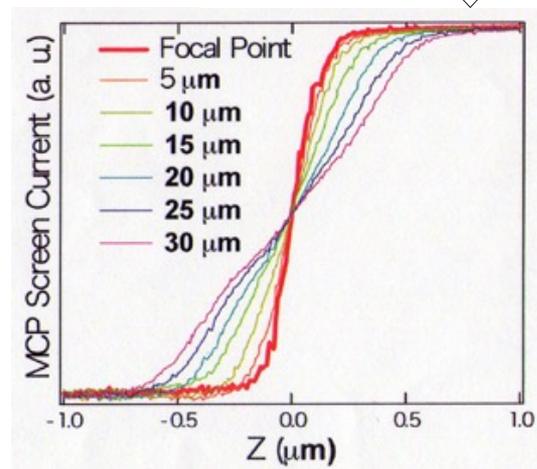
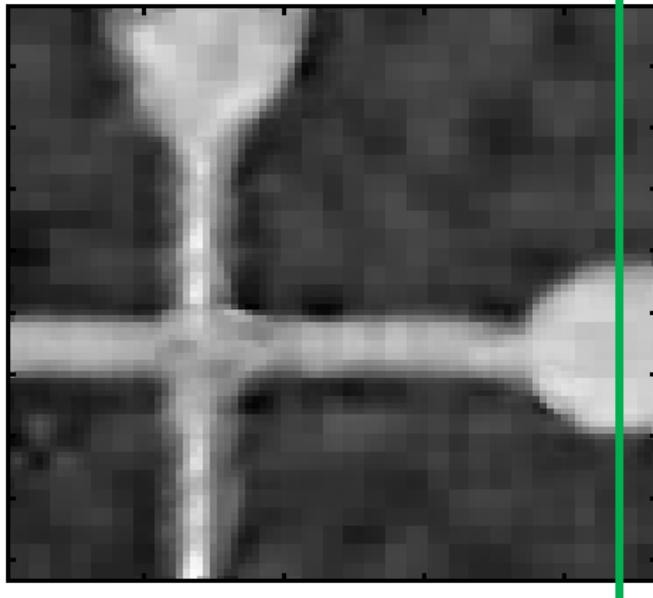


図2. Au 4fの光電子強度mapping (パターン全体)

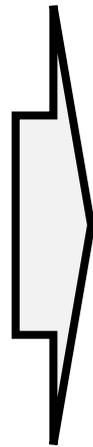


事前の分解能測定し, Focal pointを合わせる

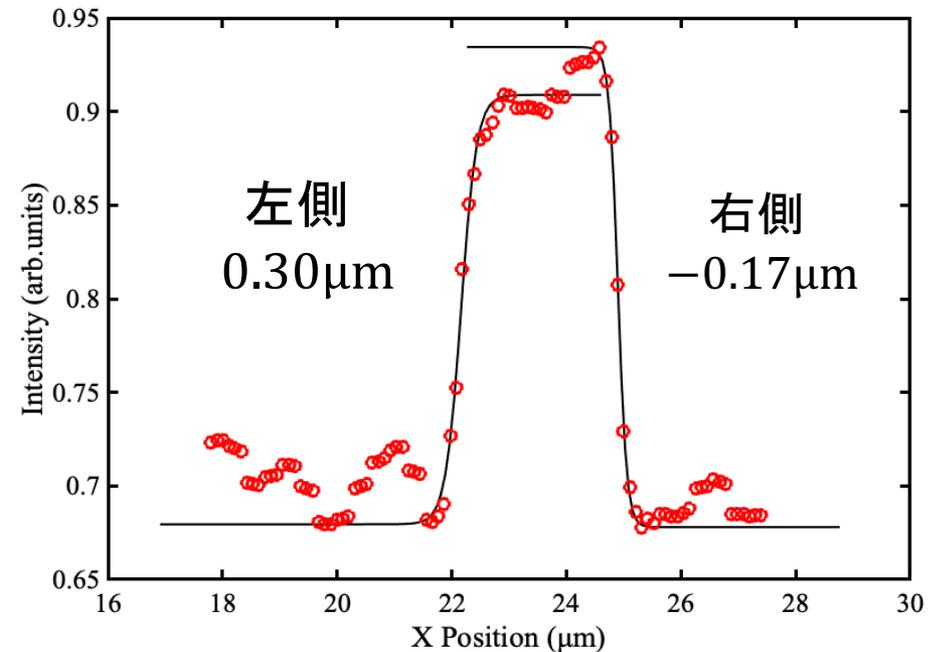
分解能の定義と導出



1次元の
断面図



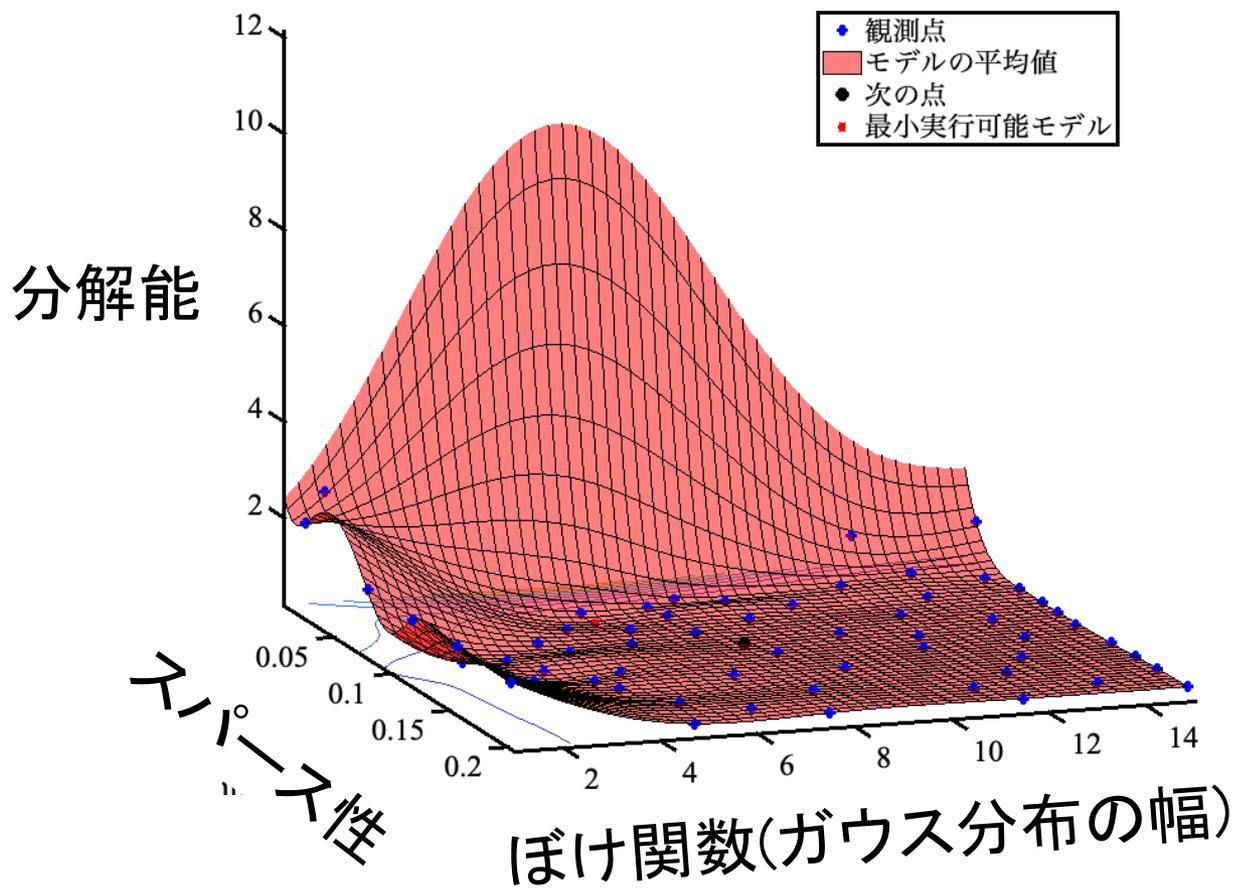
$$\frac{[\max(y) - \min(y)]}{(1 + \exp(-\alpha x + \beta))} + \min(y)$$



(i) シグモイド関数で、左半分・右半分を上記の式で回帰する

(ii) 回帰曲線から、半値幅を求め、分解能とする。また、左右でそれぞれ求めた値の、絶対値平均、分解能(0.23μm)として評価する

分解能を基準としたベイズ最適化によるハイパーパラメータの選択



発表の流れ

1. イントロダクション

2. スパースモデリング

- 画像データにおけるスパース性
- 行列分解による画像特徴量抽出

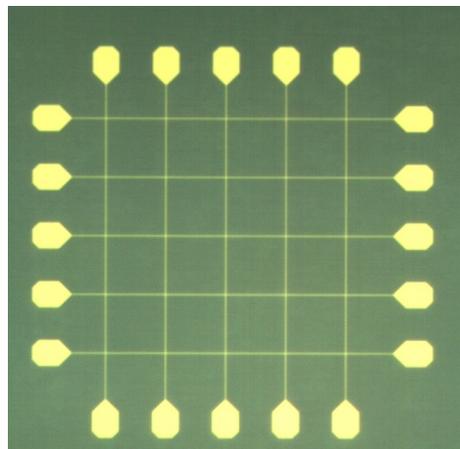
Cf. Data-Driven Science and Engineering: Machine Learning, Dynamical Systems, and Control by Brunton and Kutz

- スパースコーディング
- スパースモデリングによるさまざまな画像処理
- スパースモデリングによる超解像解析

3. 解析データと解析結果

4. まとめ

研究目的 研究対象



評価用のAu 試料

(軸の単位: μm)

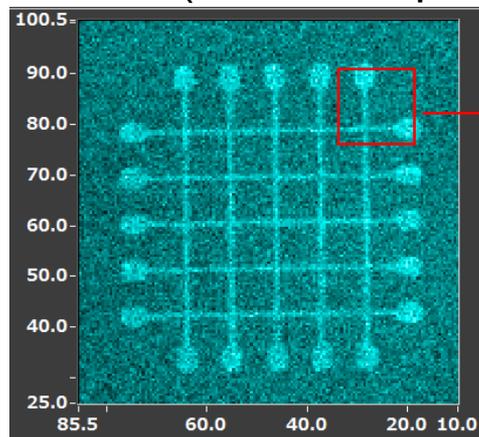


図2. Au 4fの光電子
強度mapping
(パターン全体)

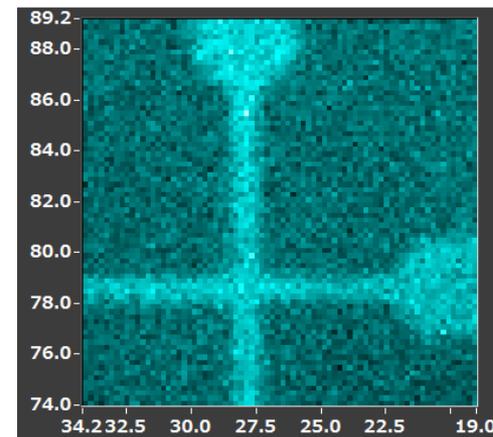


図3. Au 4fの光電子
強度mapping
(パターン一部)

放射光を用いた顕微分光計測により得られた複数枚の評価用のAu試料の低解像度画像に対してマルチフレーム超解像を適応し，高解像度画像を得る。

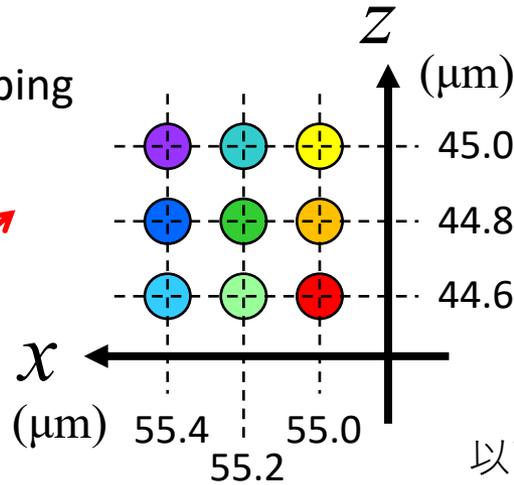
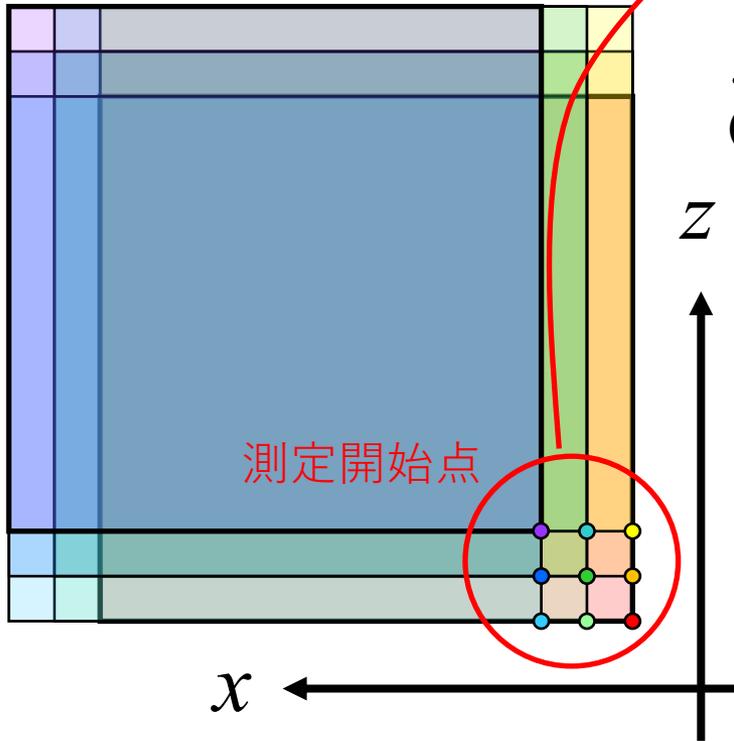


測定点と得られる複数の画像データ



測定開始点をずらしながらmapping

以下座標は (x, z) で表記



C1sMapping181214061510

測定開始点が $(55.0, 45.0)$
200 nm($=0.2 \mu\text{m}$) stepで
細かくとったデータ

以下9点は500 nm($=0.5 \mu\text{m}$) stepで
場所をずらしてとったデータ↓

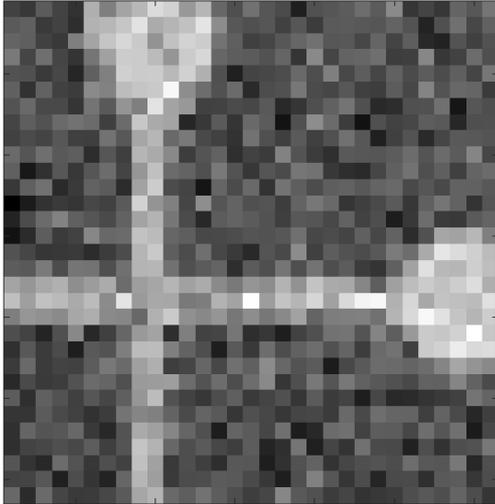
測定開始点

- (55.0, 45.0) : C1sMapping181214053854
- (55.0, 44.8) : C1sMapping181214054306
- (55.0, 44.6) : C1sMapping181214054701
- (55.2, 44.6) : C1sMapping181214055057
- (55.2, 44.8) : C1sMapping181214055454
- (55.2, 45.0) : C1sMapping181214055847
- (55.0, 45.0) : C1sMapping181214060239
- (55.0, 44.8) : C1sMapping181214060634
- (55.0, 44.6) : C1sMapping181214061101

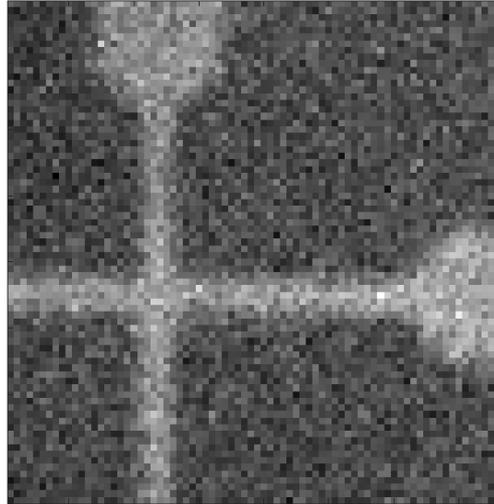
計9枚の低解像度画像から、高解像度画像を取得することを目指す

超解像の解析対象と高解像度画像

Low resolution image



High resolution image



Denoising Convolutional Neural Network(DnCNN)

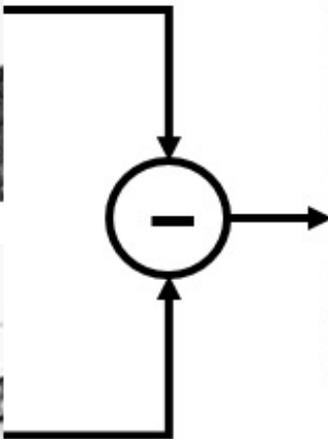
RGB Colorspace

Luminance (Y) Channel

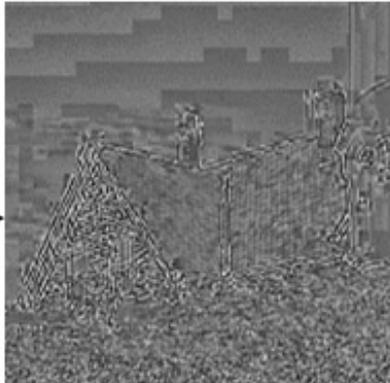
Patch from Original Image



Patch from Compressed Image, Quality = 10



Residual Image



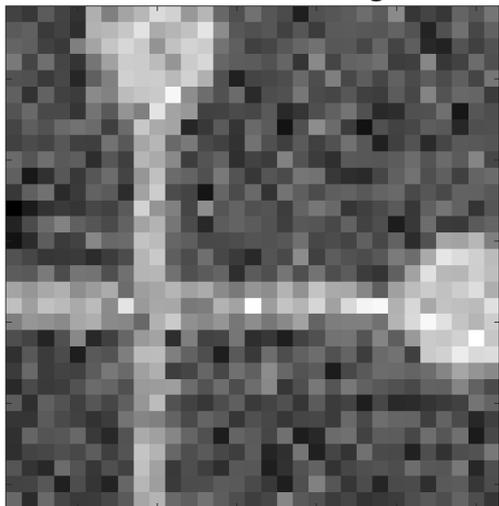
(Magnitude rescaled for visualization)

[Kai Zhang, Wangmeng Zuo 2016]

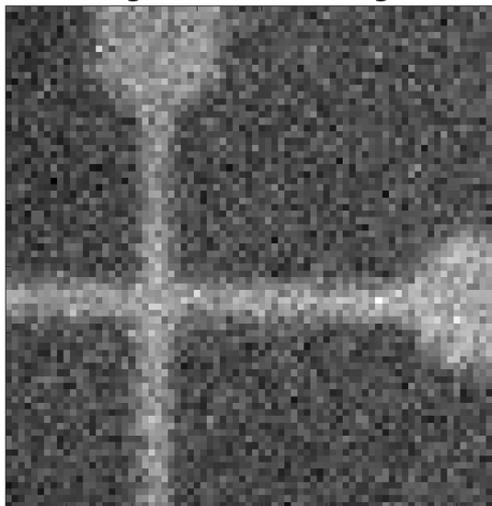
DnCNNは残差学習法によりネットワークに画像に含まれるノイズを学習させたモデルである。全部で20層の畳み込み層で構成されている。

参照画像： DnCNNでノイズ除去した高解像度画像

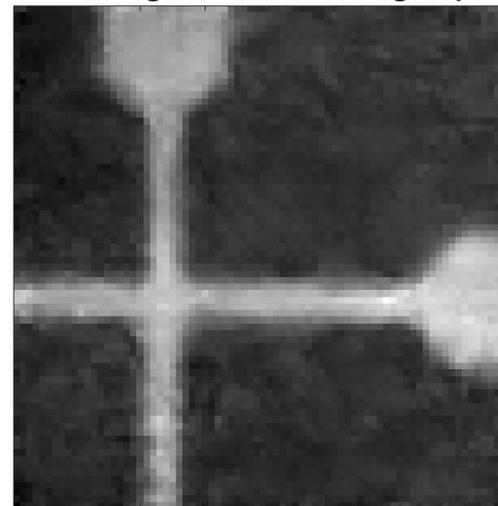
Low resolution image



High resolution image

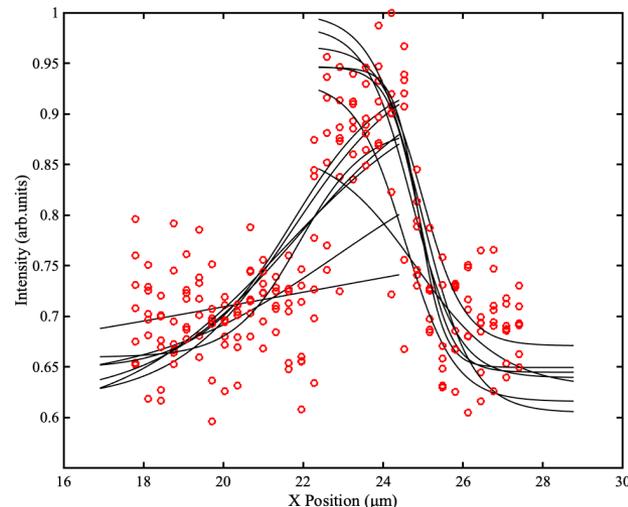
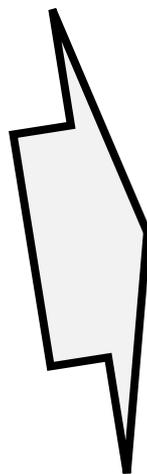
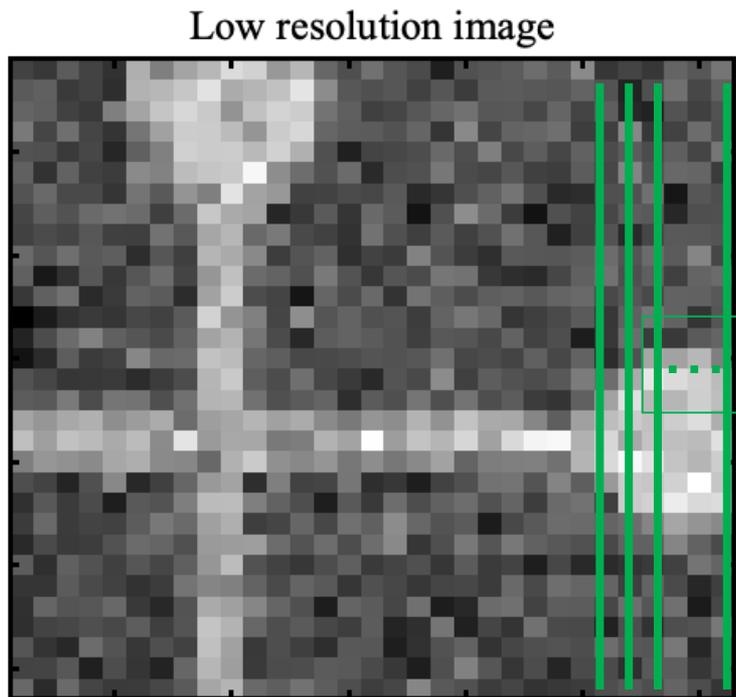


Denoised high resolution image by CNN

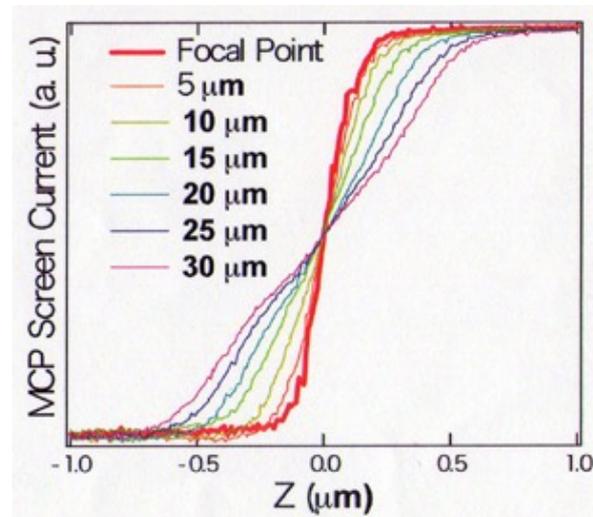


denoised-HRI(by DnCNN)をtrue画像としてPSNRによる評価を行う

分解能の評価(低解像度画像)



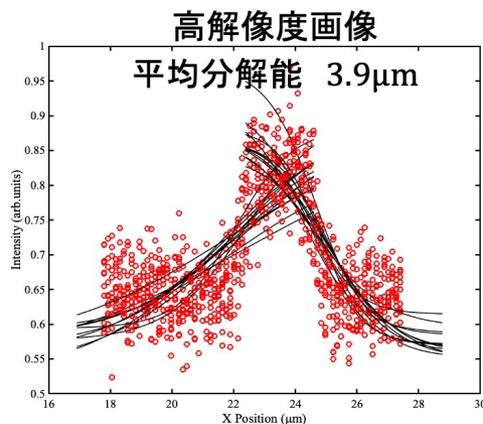
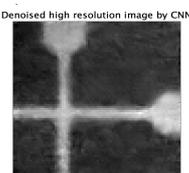
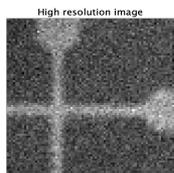
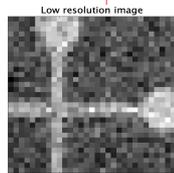
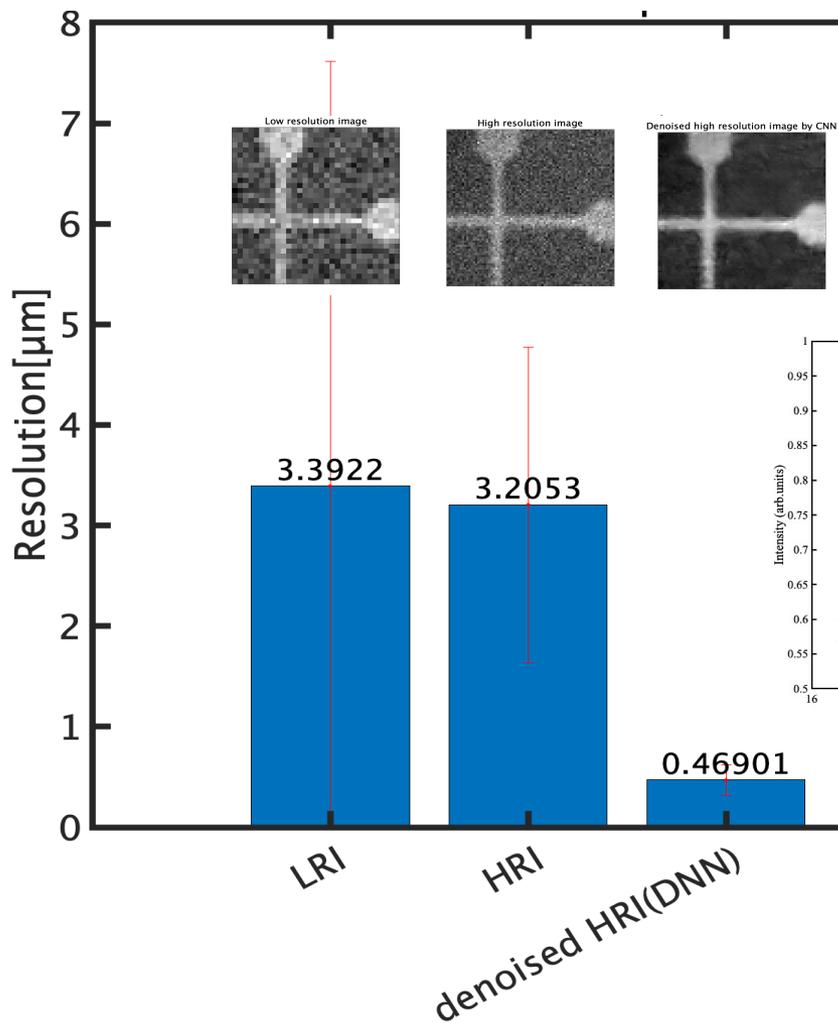
平均分解能 $3.4\mu\text{m}$



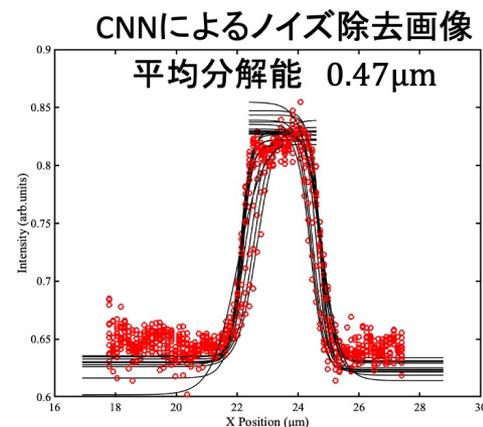
低解像度画像を、一次元でプロットし、シグモイド関数でフィットし分解能を算出

事前の分解能測定で得られた結果とほぼ同一

Au試料に対する超解像像による分解能の向上

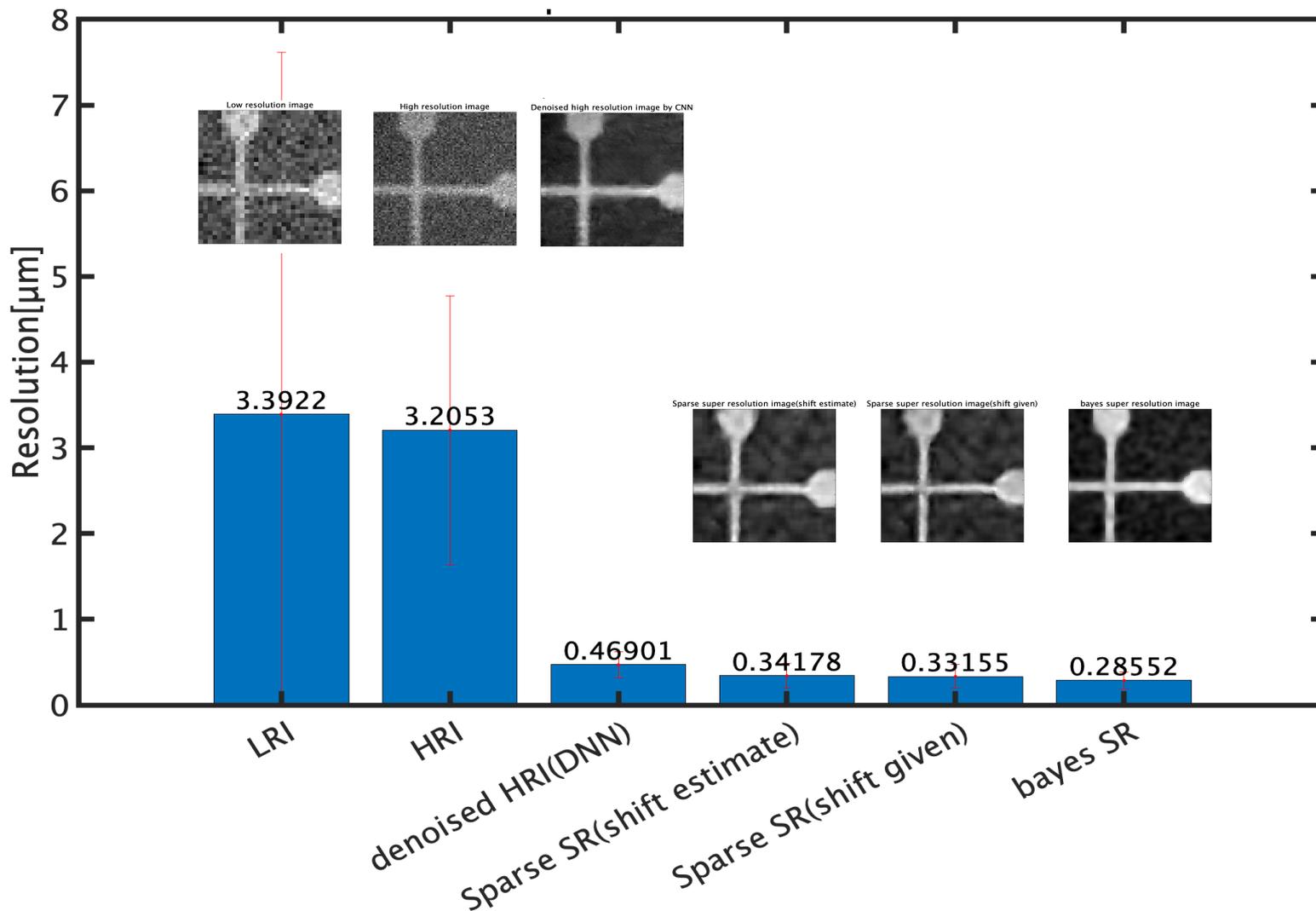


ノイズ除去



➤ 高解像度画像をノイズ除去により解像度は10分の1程度になる

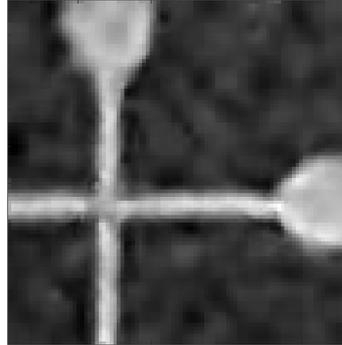
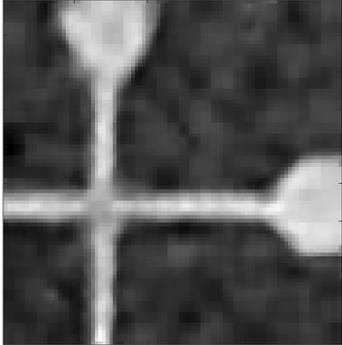
Au試料に対する超解像による分解能の向上



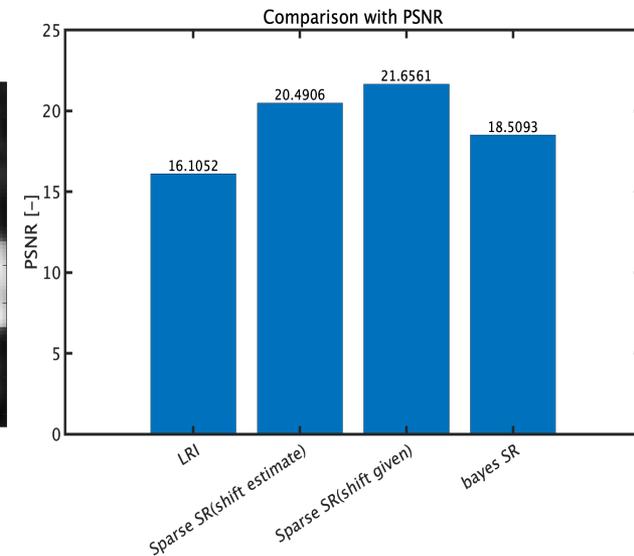
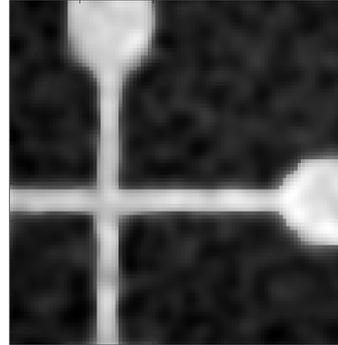
- 9枚の低解像度画像を用いた超解像解析により、高解像度画像をノイズ除去した場合よりも分解能がいずれの手法でもよくなる

超解像結果(LRI 9枚)

Sparse super resolution image(shift estimate) Sparse super resolution image(shift given)



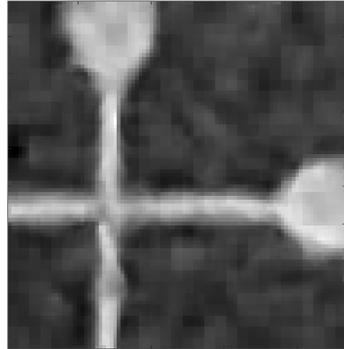
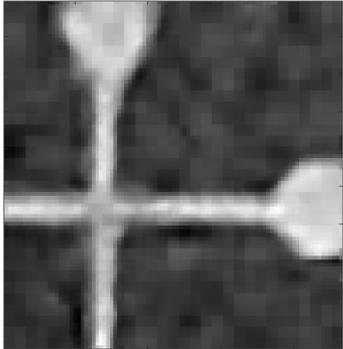
bayes super resolution image



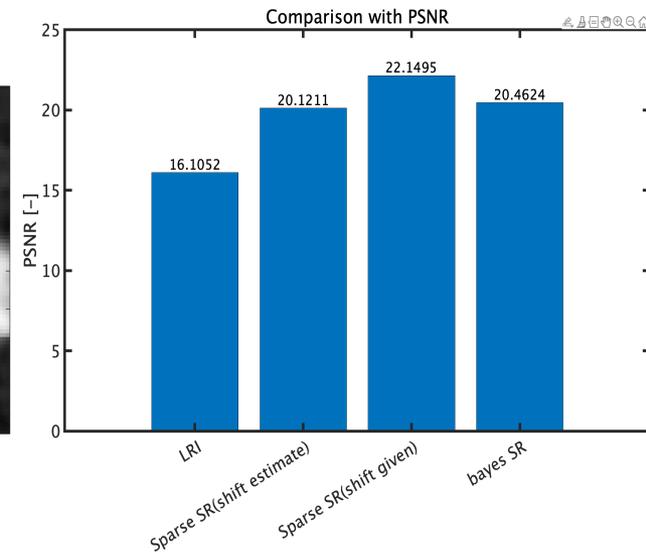
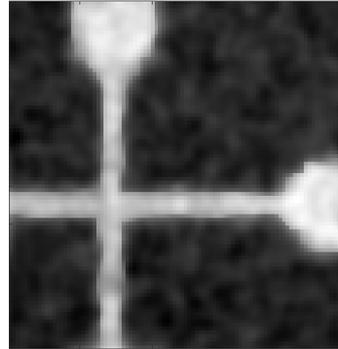
- Sparse Super Resolution (SR)による結果が最もPSNRが高いBayes超解像は、横・縦とはっきりした画像が得られている
- ただし、計測による影響と見られた、HRIでみられた縦軸が細く、横軸が太い画像ではなくなっている

超解像結果(LRI 5枚)

Sparse super resolution image(shift estimate) Sparse super resolution image(shift given)



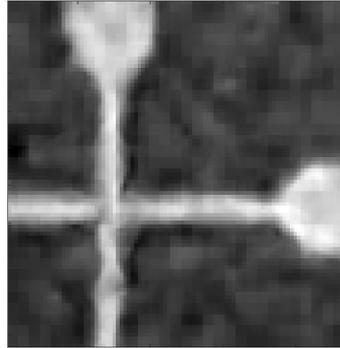
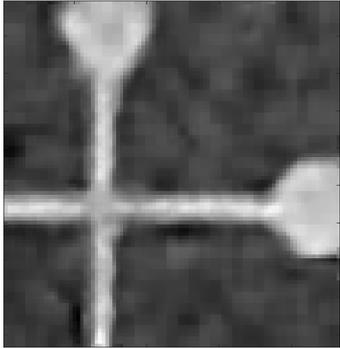
bayes super resolution image



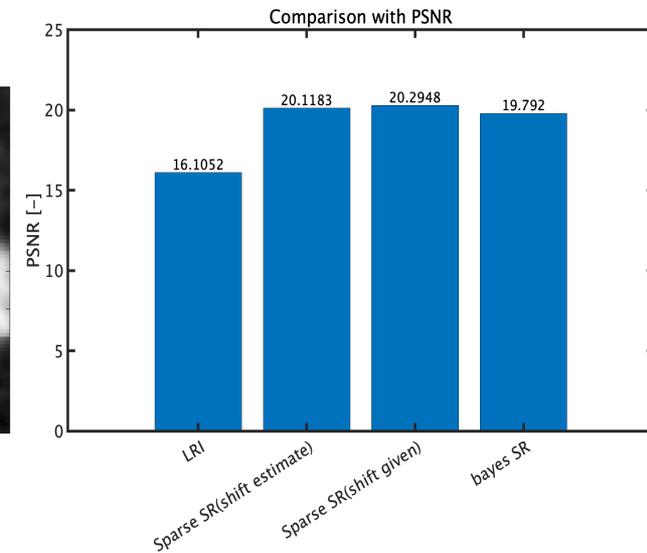
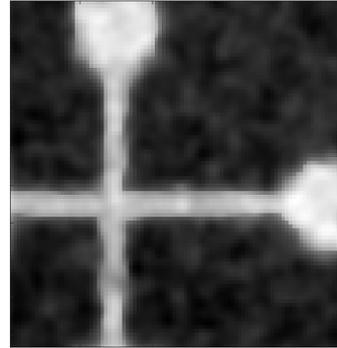
- 5枚程度まで、低解像度画像を減らした場合でも、真の画像との差分であるPSNRはあまり変化しない
- ベイズ超解像は多少ノイズのざらつきが多くなる
- スパース超解像の結果では、横棒のノイズが大きくなり、ぼやけた画像になっている

超解像結果(LRI 4枚)

Sparse super resolution image(shift estimate) Sparse super resolution image(shift given)

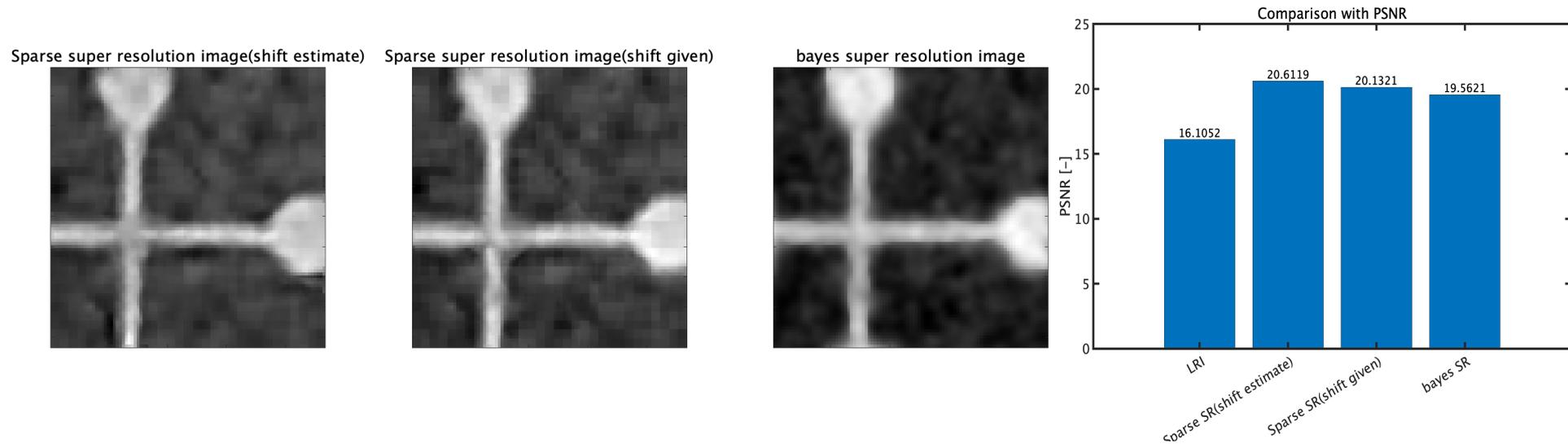


bayes super resolution image



- 5枚程度まで、低解像度画像を減らした場合でも、真の画像との差分であるPSNRはあまり変化しない
- ベイズ超解像は多少ノイズのざらつきが多くなる
- スパース超解像の結果では、横棒のノイズが大きくなり、ぼやけた画像になっている

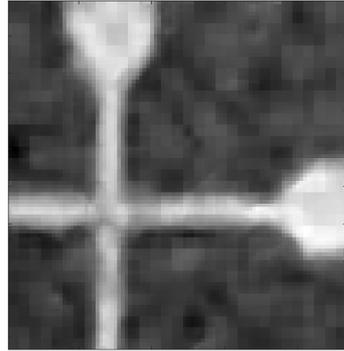
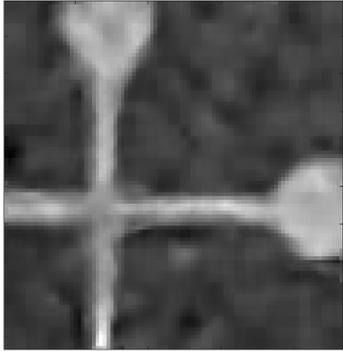
超解像結果(LRI 3枚)



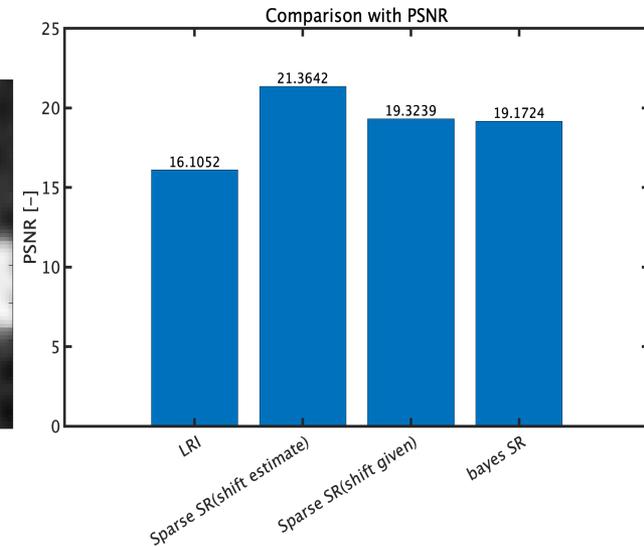
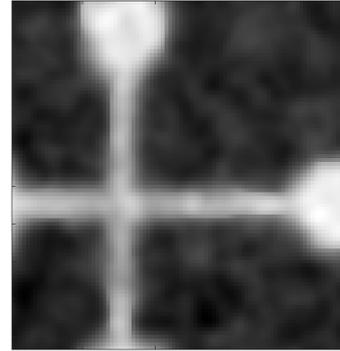
- 5枚程度まで、低解像度画像を減らした場合でも、真の画像との差分であるPSNRはあまり変化しない
- ベイズ超解像は多少ノイズのざらつきが多くなる
- スパース超解像の結果では、横棒のノイズが大きくなり、ぼやけた画像になっている

超解像結果(LRI 2枚)

Sparse super resolution image(shift estimate) Sparse super resolution image(shift given)



bayes super resolution image

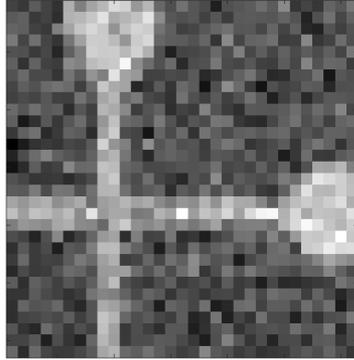


- 5枚程度まで、低解像度画像を減らした場合でも、真の画像との差分であるPSNRはあまり変化しない
- ベイズ超解像は多少ノイズのざらつきが多くなる
- スパース超解像の結果では、横棒のノイズが大きくなり、ぼやけた画像になっている

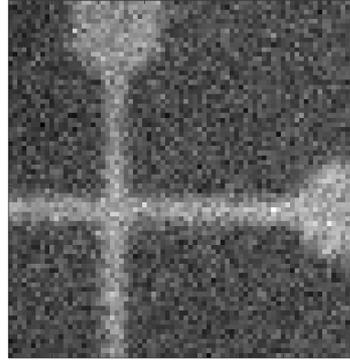
超解像結果(LRI 1枚)

K=1 (The number of Low resolution images used)

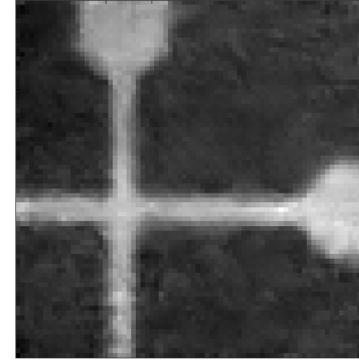
Low resolution image



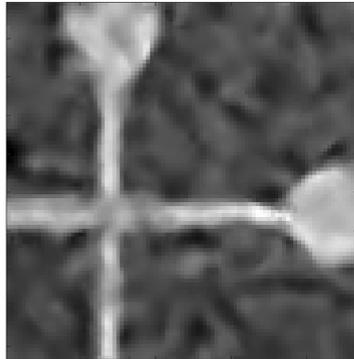
High resolution image



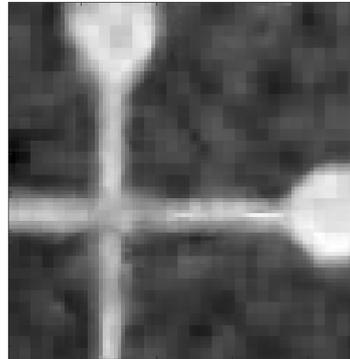
Denoised high resolution image by CNN



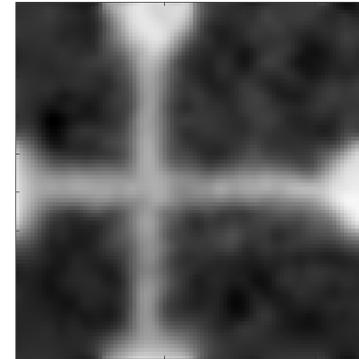
Sparse super resolution image(shift estimate)



Sparse super resolution image(shift given)



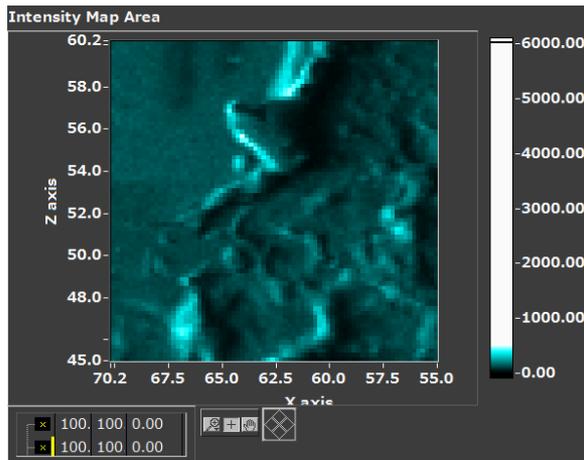
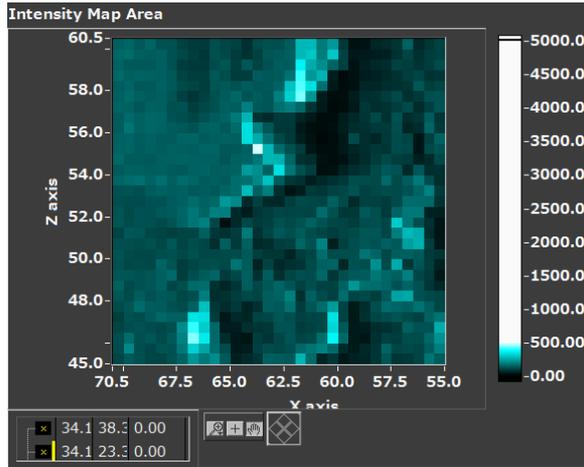
bayes super resolution image



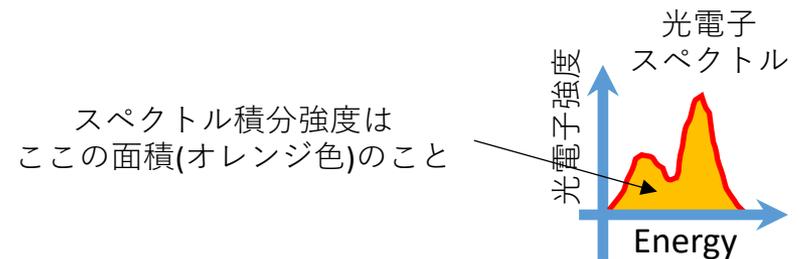
ベイズ超解像では、大きく真の画像からズレた画像が得られる



画像1



- 左上図のように、 $15\ \mu\text{m} \times 15\ \mu\text{m}$ の範囲を $500\ \text{nm}$ stepでspectral mappingした。これを $200\ \text{nm}$ ずつずらして9枚のspectral imagingを取得した。
- 測定step($500\ \text{nm}$)もずらす間隔($200\ \text{nm}$)も入射光のspot size($100\ \text{nm}$)より大きい。
- 粗いstepでとった低解像度のイメージから高解像度のイメージが推定できるか。
- Spectral imagingなので、粗いstepでとったspectral imagingから、画像上任意点のスペクトル予測が可能か。
- 左の画像はともに、スペクトル積分強度mapping。スペクトル積分強度とは、測定したエネルギー全領域の光電子強度を足したもの。
- 左下図は、同じ範囲を $200\ \text{nm}$ stepで細かく測定したスペクトル積分強度mappingなので左上図よりも解像度がよい。

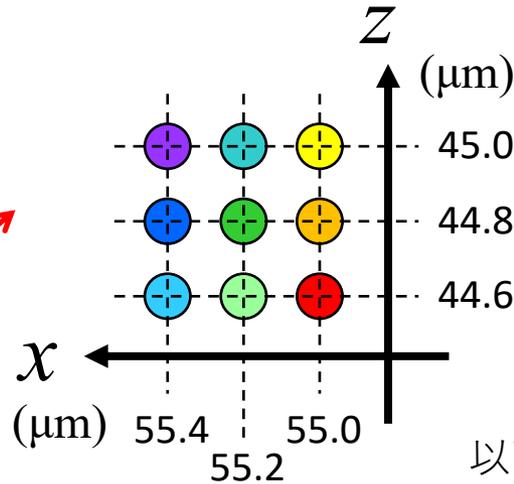
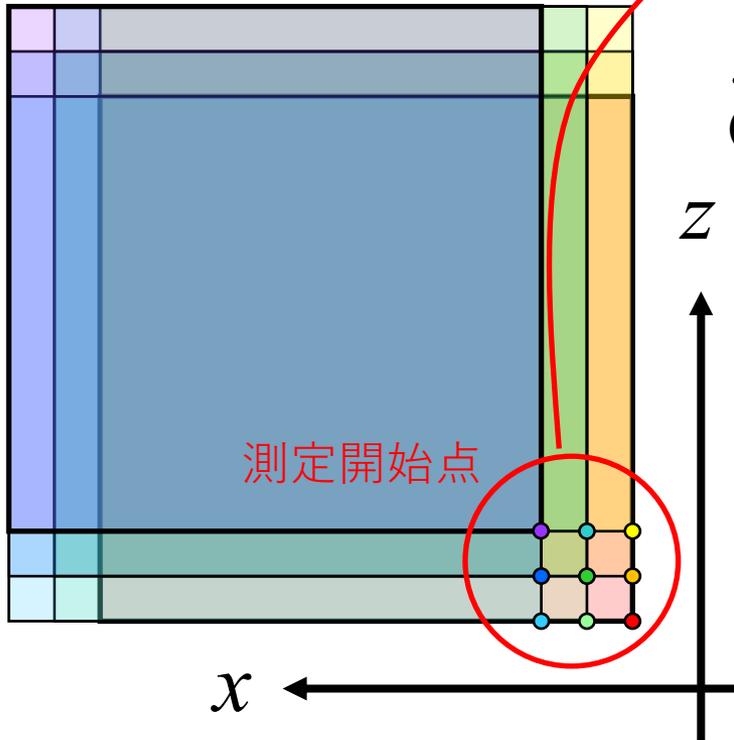




測定点とデータの対応(画像1)

こういう感じで、測定開始点をずらしながらmappingした。

以下座標は (x, z) で表記



C1sMapping181214061510

測定開始点が $(55.0, 45.0)$
200 nm($=0.2 \mu\text{m}$) stepで
細かくとったデータ

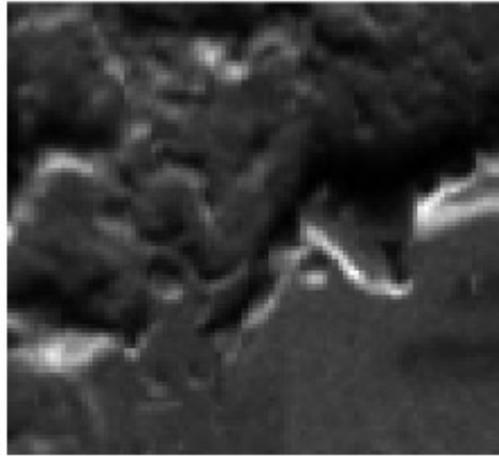
以下9点は500 nm($=0.5 \mu\text{m}$) stepで
場所をずらしてとったデータ↓

測定開始点

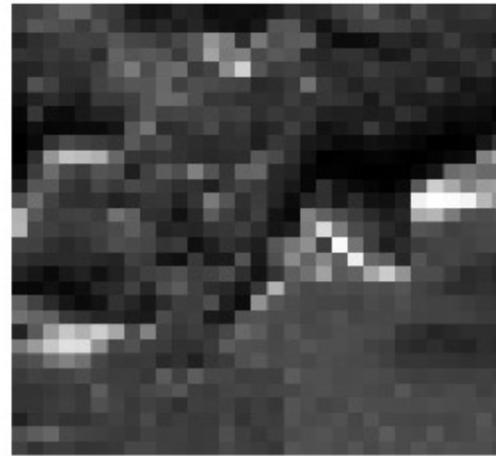
- $(55.0, 45.0)$: C1sMapping181214053854
- $(55.0, 44.8)$: C1sMapping181214054306
- $(55.0, 44.6)$: C1sMapping181214054701
- $(55.2, 44.6)$: C1sMapping181214055057
- $(55.2, 44.8)$: C1sMapping181214055454
- $(55.2, 45.0)$: C1sMapping181214055847
- $(55.0, 45.0)$: C1sMapping181214060239
- $(55.0, 44.8)$: C1sMapping181214060634
- $(55.0, 44.6)$: C1sMapping181214061101

ちなみにファイル番号はそのまま測定日時なので、そういう時間スケールで測定をしています。
(2018年12月14日6時15分10秒に測定開始、みたいな)

実解析対象への超解像解析



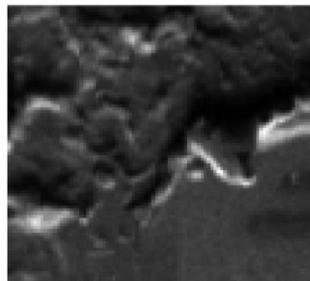
True image(HRI)



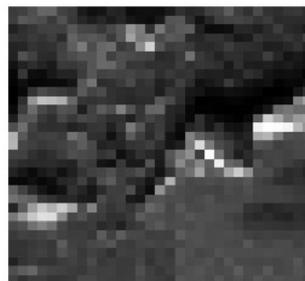
LRI

HRI(High resolution image)を
true画像としてPSNRによる評価を行う

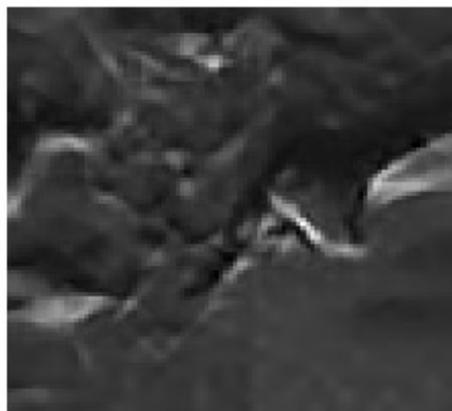
実解析対象への超解像解析



True image(HRI)

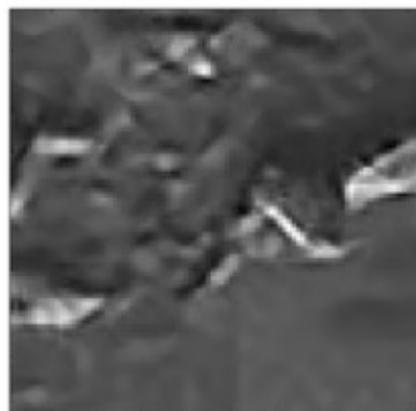


LRI



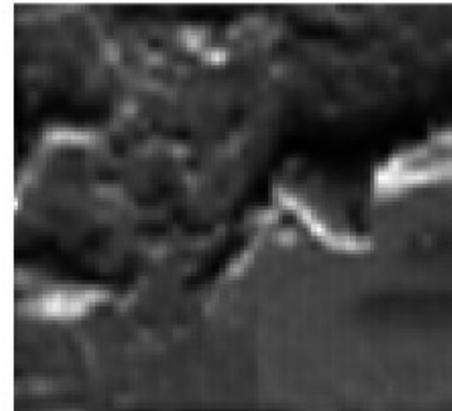
Sparse SR
(shift est)

PSNR: 19.77



Sparse SR
(shift given)

PSNR: 16.21

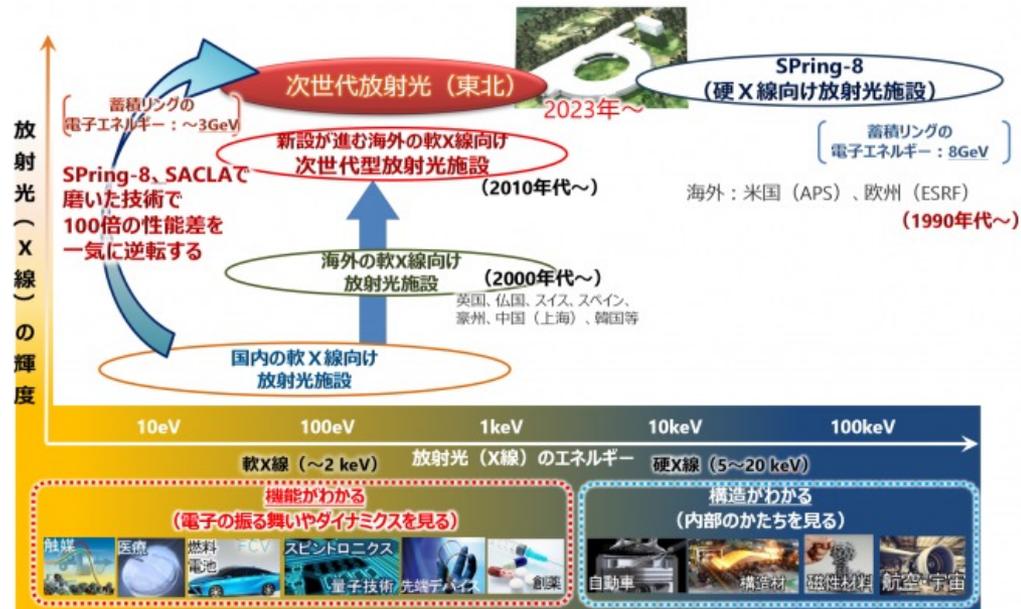


Bayes SR

PSNR: 17.95

Sparse Super Resolution (SR)による結果が最もPSNRが高い
Bayes超解像に比べてボヤけていない超解像が得られる

次世代放射光施設, Nano Terasuへの展開



<https://www.qst.go.jp/site/3gev/41110.html>

- スパースモデリングを用いることで、マルチフレームの低解像度画像から超解像解析
- 帯電効果や照射ダメージによる試料劣化や熱ドリフトによるアーティファクトを防ぎつつ、短時間での効率的な放射光施設の利用促進し、産学連携による材料開発を推進

発表の流れ

1. スパースモデリング

- 画像データにおけるスパース性
- 行列分解による画像特徴量抽出

Cf. Data-Driven Science and Engineering: Machine Learning, Dynamical Systems, and Control by Brunton and Kutz

- スパースコーディングと本研究の位置づけ

2. スパースモデリングによるさまざまな画像処理

3. スパースモデリングによる超解像解析

4. X線吸収微細構造データに対する スパースモデリングによる物理情報抽出

各手法の違いと発表研究の位置づけ

線形回帰(フーリエ変換, ウェーブレット変換), スパース線形回帰 (Lasso)

- 基底 (特徴量) は固定. 一回の計測データでも解析可能

主成分分析(SVD, PCA)

非負値行列分解 (NMF)

- 基底 (特徴量) は統計的機械学習を行う.
数百枚程度の計測データを用いる
- 同一スケールのデータに対して有効

スパースコーディング

- 基底 (特徴量) は統計的機械学習を行う.
バッチに分けて学習を行う
- スケールの異なる自然画像に対しても有効.
- 画像処理における汎用性が高い

深層学習, Vision Transformer等

- 基底 (特徴量) を非線形性を入れつつ, 学習可能
- 様々な手法が開発されているが, 適用時には個々のタスクに対して再学習が必要であり, 大量のデータが必要に.



2. 計測過程や物理法則から, 基底 (特徴量) を選出.
上記の事前知識を用いることで, ノイズレベルの大きな実験データに対しても信号とノイズを見分け, 物理情報を抽出する

謝辞

CREST **ベイズ推論とスパースモデリングによる計測と情報の融合**
岡田 真人 (東大教授)

CREST **データ駆動科学による
高次元X線吸収計測の革新**

**文部科学省科学研究費助成事業
旭硝子財団**

赤井一郎 熊本大学 教授
熊添博之 熊本大学 特任助教
岩満一功 熊本大学 技術職員
岡島敏浩 あいちSR 副所長
Fabio Iesari あいちSR 特任研究員
妹尾与志木 SAGA-SR 所長

清水亮太 東京工業大学
小松遊矢 東京工業大学
松村大樹 日本原子力研究開発機構
折茂慎一 東北大学
一杉太郎 東京大学
齋藤寛之 量子科学技術研究開発機構

CREST **科学者拡張型の階層的自律探索による新材料創製**

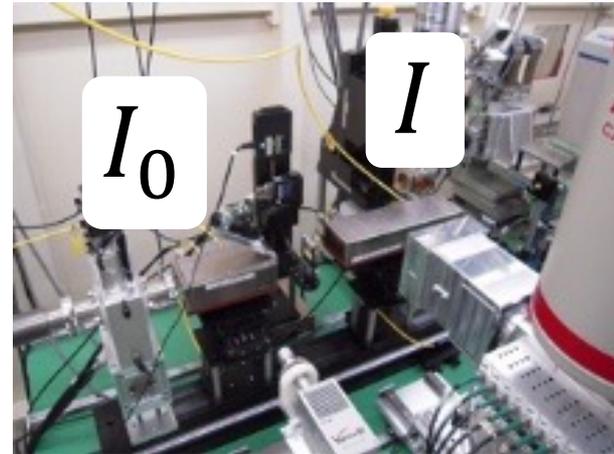
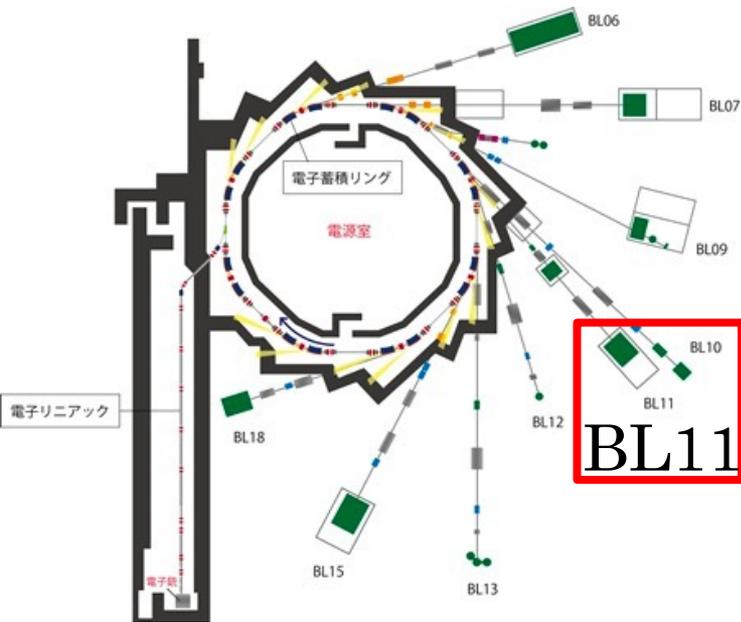
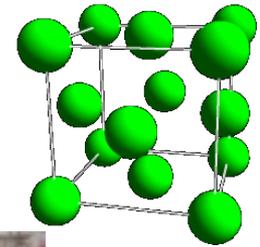
SPring-8におけるBL14B1及び,
SAGA-LSにおけるBL11において測定されたデータを用いた

X線吸収分光法

九州シンクロトン光研究センター



計測対象：銅箔

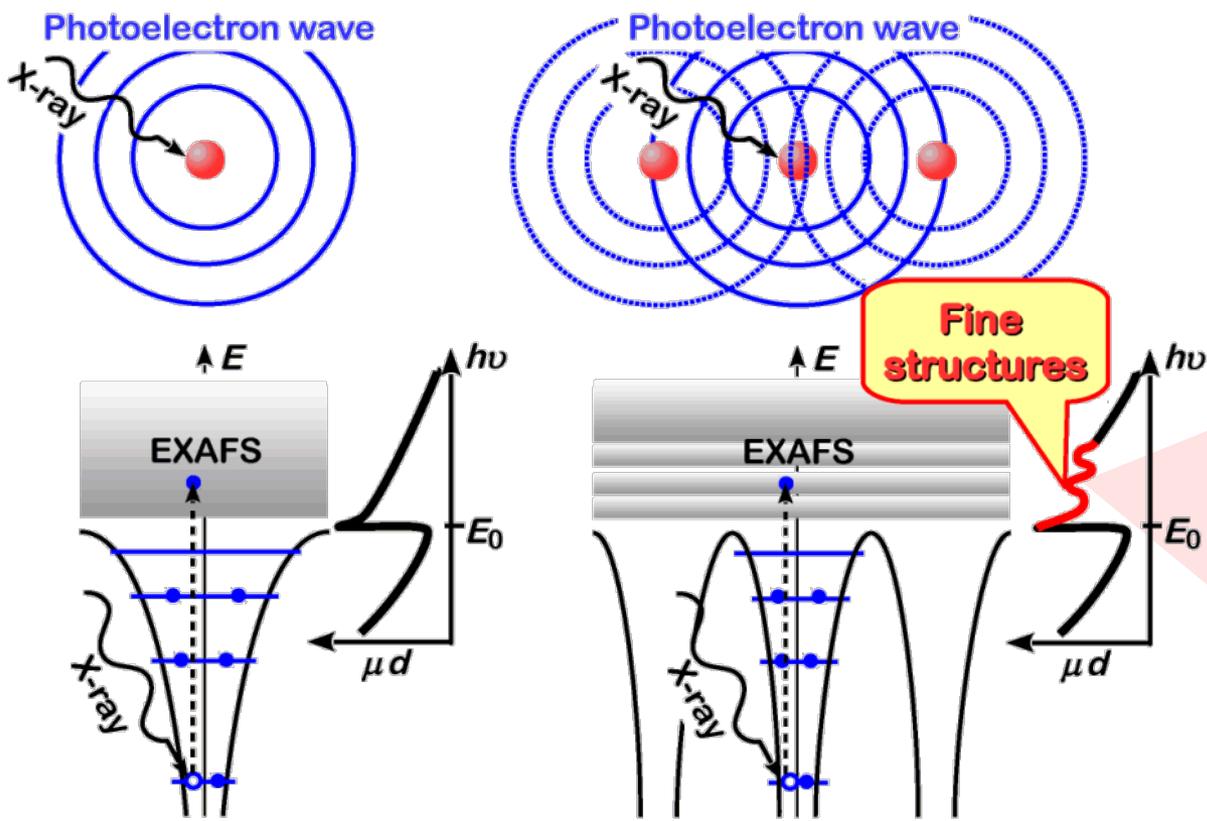


$$\mu d = \ln \left(\frac{I_0}{I} \right),$$

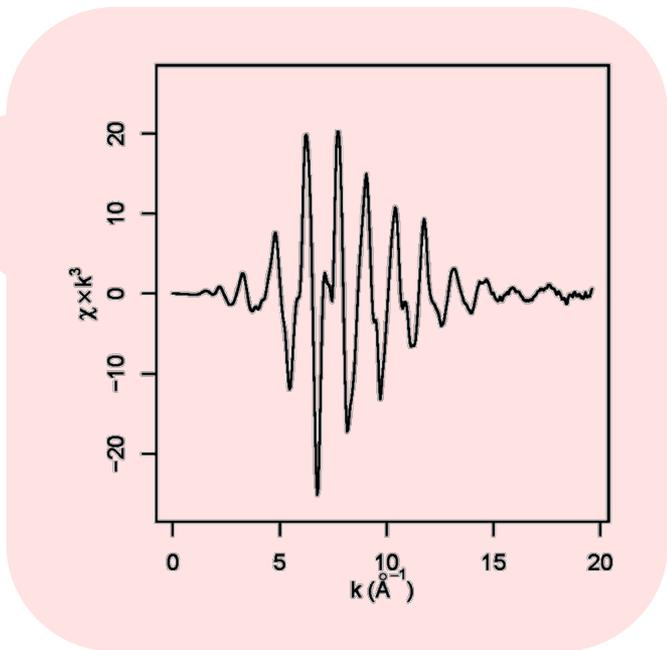
μ : 吸収係数, d : 試料の厚さ

選択した原子種(X線吸収端)近傍の原子距離レベルのミクロ構造
試料形態は選ばず、汎用的で産業レベルでも利用が極めて多い

EXAFS (Extended x-ray absorption fine structures: 広域X線吸収微細構造)



- 干渉するのは電子波
X線吸収で放出される光電子波と、その近接原子との散乱波の干渉により、X線吸収が変調を受ける



実データ解析への展開： フォトクロミック特性をもつ YO_xH_y の結晶構造の解析

フォトクロミック特性をもつ YO_xH_y 薄膜結晶

• Y周りのOの配位構造は四面体(T_d) / 八面体(O_h)サイトのどちらか？

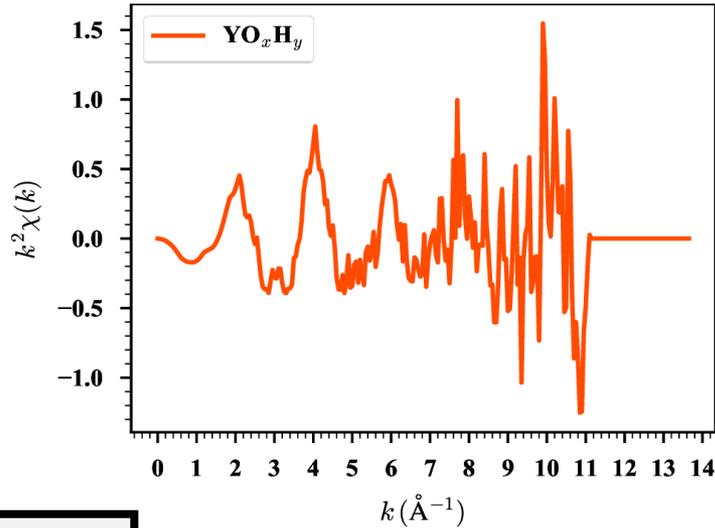
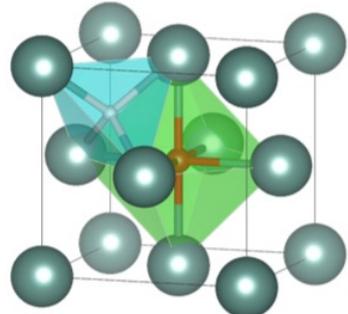
➤ EXAFSによる構造決定。しかし、薄膜のためノイズが大きい。

• 正四面体/正八面体の場合、第1近接(d_1)、第2近接(d_2)原子間距離の比率が異なる。

➤ Yは面心立方(fcc)サイトを占める。

➤ fcc構造中で酸素原子は、 T_d サイト、 O_h サイトのどちらを占めるか？

T_d : 8サイト
 O_h : 1サイト



どこまでがノイズで、どの特徴が信号なのかを、
事前知識をもとにスパースモデリングとベイズ推論によって推定する

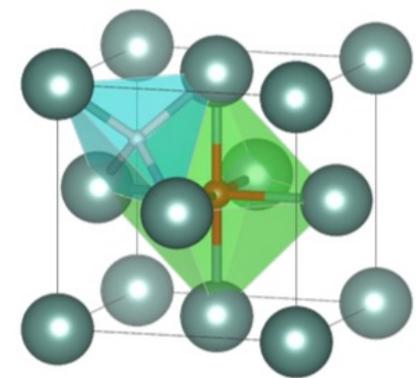
実データ解析への展開： フォトクロミック特性をもつ YO_xH_y の結晶構造の解析

フォトクロミック特性をもつ YO_xH_y 薄膜結晶

• Y周りのOの配位構造は四面体 (T_d) / 八面体 (O_h) サイトのどちらか？

- Yは面心立方 (fcc) サイトを占める。
- fcc構造中で酸素原子は、
 T_d サイト、 O_h サイトの
どちらを占めるか？

T_d : 8サイト
 O_h : 1サイト

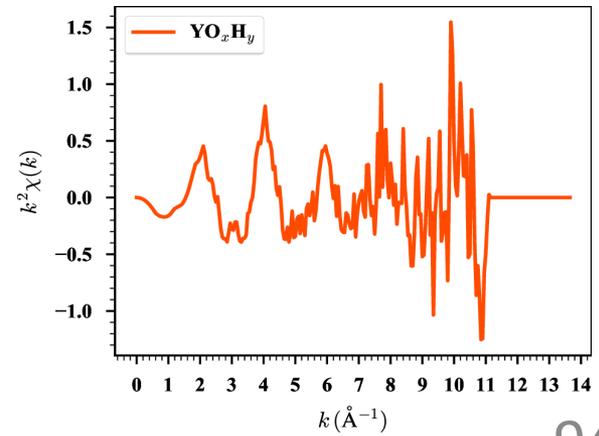


➢ EXAFSによる構造決定。しかし、薄膜のためノイズが大きい。

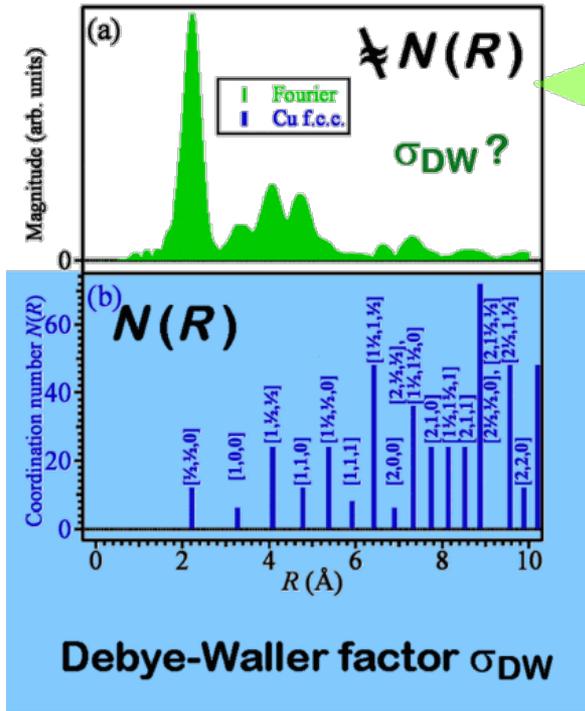
• 正四面体/正八面体の場合、第1近接 (d_1)、第2近接 (d_2) 原子間距離の比率が異なる。

$$\begin{matrix} (T_d) & d_1:d_2 = 1:2\sqrt{6}/3 \sim 1:1.633 \\ (O_h) & d_1:d_2 = 1:\sqrt{2} \quad \sim 1:1.414 \end{matrix}$$

$$d_1 \sim 2.27 \text{ \AA} \rightarrow \begin{cases} (T_d) & d_2 = 3.21 \text{ \AA} \\ (O_h) & d_2 = 3.71 \text{ \AA} \end{cases}$$



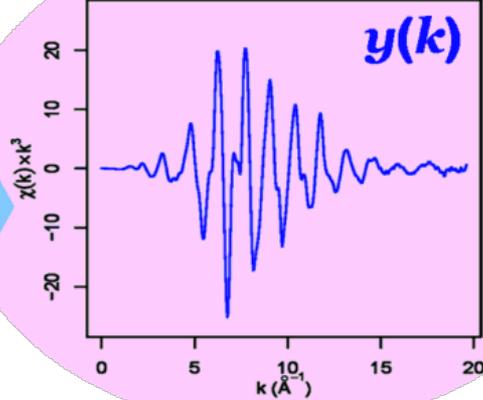
基底1：フーリエ基底



Fourier transform

$$y(k) = \sum_{R_j} a(R_j) \sin(2kR_j) + b(R_j) \cos(2kR_j)$$

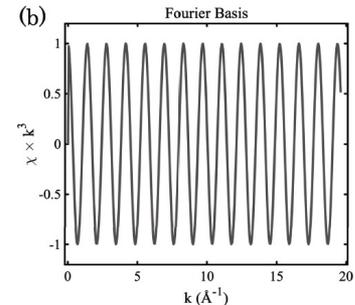
EXAFS oscillation



Causality

フーリエ基底

$$\chi(k) k^3 \propto \sum_j N_j(R_j) t_j(k) \frac{k^2}{R_j^2} \exp \left[-2 \left(k^2 \sigma_j^2 + \frac{R_j}{\Lambda} \right) \right] \sin(2kR_j + \delta_j)$$



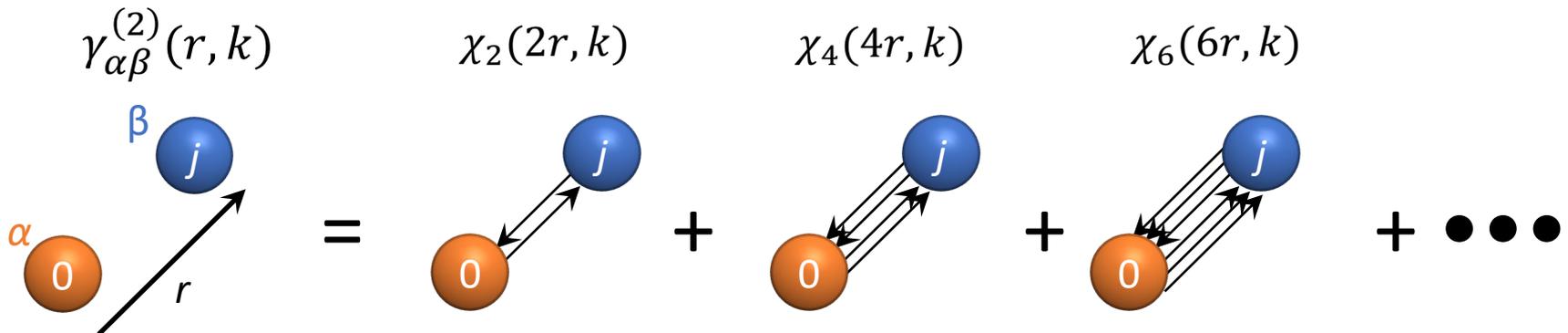
平面波のフーリエ基底によって、近接構造の位置を推定. 理論計算(FEFF)との併用で構造解析

散乱効果を考慮した基底関数

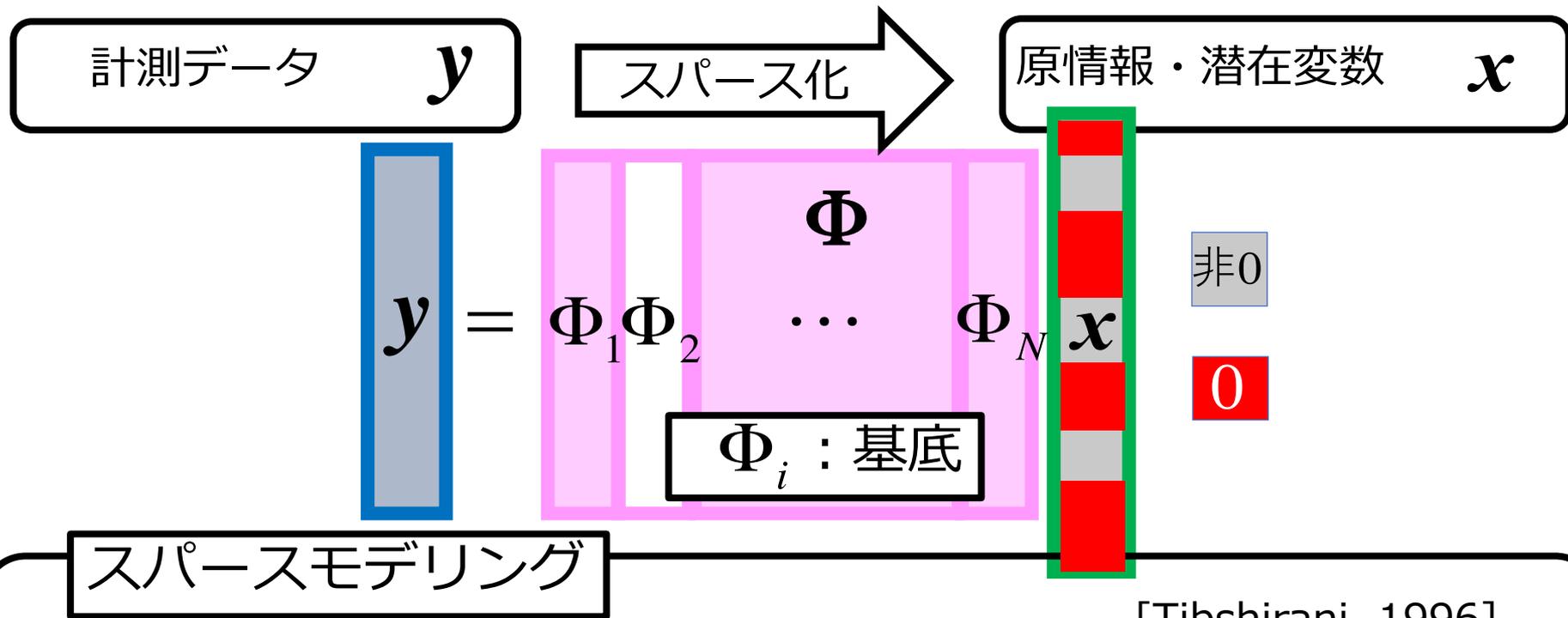
[F. Iesari, et al., Arxiv, 2021]

- $$\chi_\alpha(k) = \sum_\beta \int_0^\infty \gamma_{\alpha\beta}^{(2)}(r, k) n_{\alpha\beta}(r) dr$$

$$\cong \sum_\beta \left[\sum_{j=1}^N A_{\alpha\beta}(r_j, k) \sin[\Psi_{\alpha\beta}(r_j, k)] \Delta r_j \right] n_{\alpha\beta}(r)$$
- $n_{\alpha\beta}(r)$: 原子 α から見た原子 β の配位数
- $\gamma_{\alpha\beta}^{(2)}(r, k)$: 多重散乱を組みこんだ原子 α に対する原子 β の散乱係数
 GNXASにより計算している[A. Di Cicco ed., GNXAS, 978-83-908112-8-4, 2009]



どの基底も，線形モデルとなる ⇒ スパースモデリング



[Tibshirani, 1996]

潜在変数が **スパース** (0が多い)

0の場所を推定しながら，方程式を解く

$$E(x) = \left\| y - \sum_i \Phi_i x_i \right\|^2 + \lambda \sum_i |x_i| \quad \Phi_i : \text{基底}$$

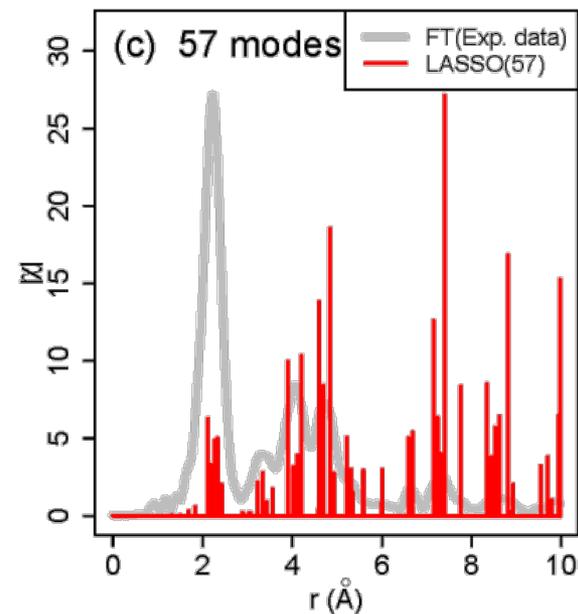
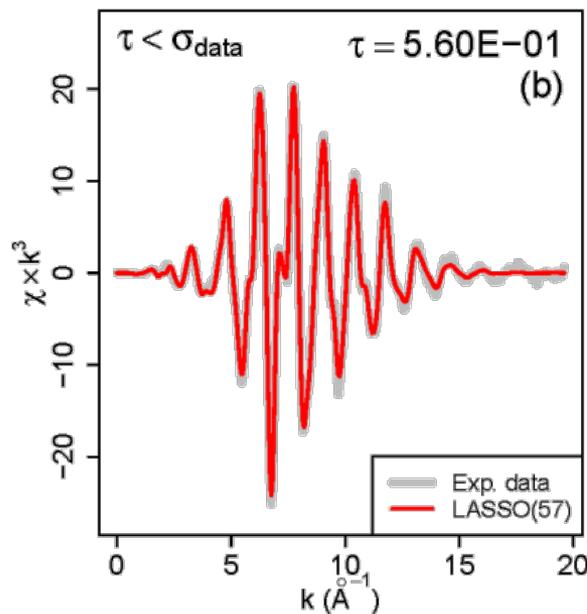
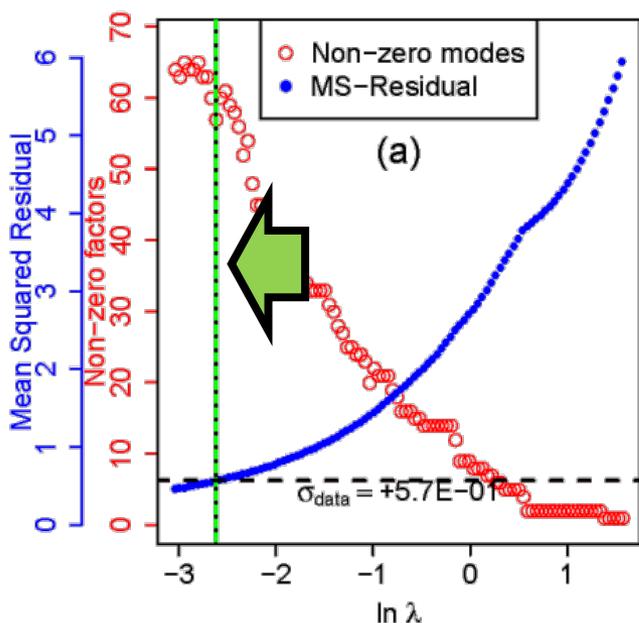
データの再構成

スパースな変数

どのように正則化パラメータ λ を最適化するか?

$$\hat{\mathbf{w}}(\lambda; \sigma_{\text{DW}}) = \arg \min_{\mathbf{w}} (\|\mathbf{y} - \Phi(\sigma_{\text{DW}})\mathbf{w}\|_2^2 + \lambda \|\mathbf{w}\|_1)$$

- 正則化パラメータ λ によってスパース解 $\hat{\mathbf{w}}(\lambda)$ がコントロールで
- RMSE(回帰誤差)は, 基底の数が増えることで単調減少する



正則化パラメータを最適化するために交差検定を導入する。

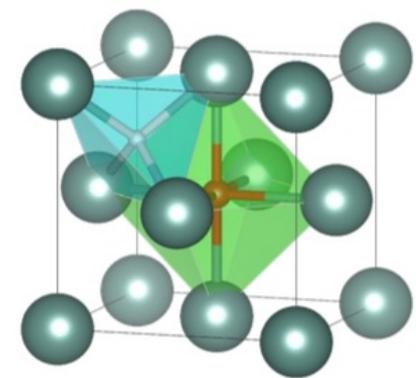
実データ解析への展開： フォトクロミック特性をもつ YO_xH_y の結晶構造の解析

フォトクロミック特性をもつ YO_xH_y 薄膜結晶

• Y周りのOの配位構造は四面体 (T_d) / 八面体 (O_h) サイトのどちらか？

- Yは面心立方 (fcc) サイトを占める。
- fcc構造中で酸素原子は、
 T_d サイト、 O_h サイトの
どちらを占めるか？

T_d : 8サイト
 O_h : 1サイト

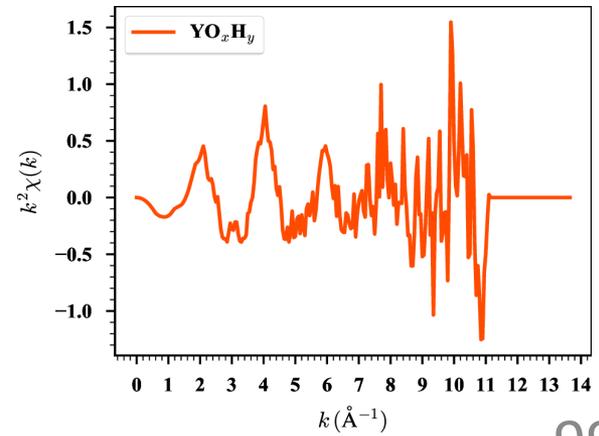


➢ EXAFSによる構造決定。しかし、薄膜のためノイズが大きい。

• 正四面体/正八面体の場合、第1近接 (d_1)、第2近接 (d_2) 原子間距離の比率が異なる。

$$\begin{matrix} (T_d) & d_1:d_2 = 1:2\sqrt{6}/3 \sim 1:1.633 \\ (O_h) & d_1:d_2 = 1:\sqrt{2} \sim 1:1.414 \end{matrix}$$

$$d_1 \sim 2.27 \text{ \AA} \rightarrow \begin{cases} (T_d) & d_2 = 3.21 \text{ \AA} \\ (O_h) & d_2 = 3.71 \text{ \AA} \end{cases}$$



計測データのベイズ推論 事前知識の導入

(3/4)

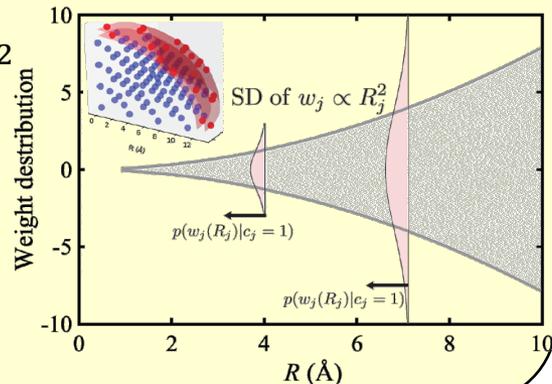
事前確率を導入

• 動径分布関数 $\propto R^2$

$$P(\omega_{j,\ell} | c_{j,\ell} = 1)$$

$$\propto \exp \left[-z_{\omega}^0 \left(\frac{\omega_{j,\ell}}{R_j^2} \right)^2 \right]$$

スパース性

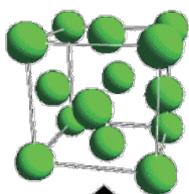


(a) Object: Cu foil

$c \sim$ distance R

$w \sim N(R)$

Basis, Physical Parameter θ



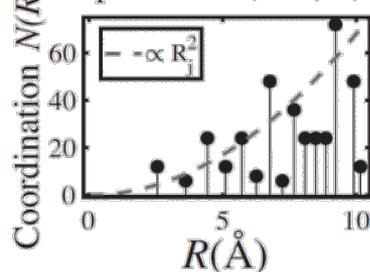
(f) Model selection

$$P(c(\text{Basis}, \theta) | \mathbf{y}) \propto P(\mathbf{y} | c) = \int P(\mathbf{y} | w, c) P(w | c) dw$$

Marginalization by gaussian integral

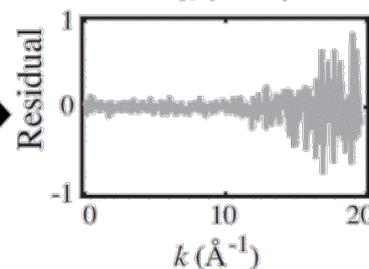
(b) Physical model

Sparse RDF, $P(w | c)$



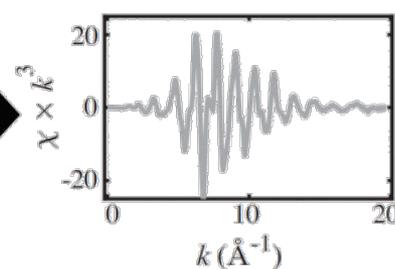
(c) Observation process

$P(\mathbf{y} | w, c)$



(d) Measurement data

\mathbf{y}



(e) Posterior probability (reliability)

$$P(w | \mathbf{y}, c) \propto p(\mathbf{y} | w) p(w | c)$$

Bayes' theorem



計測データのベイズ推論 事前知識の導入

(4/4)

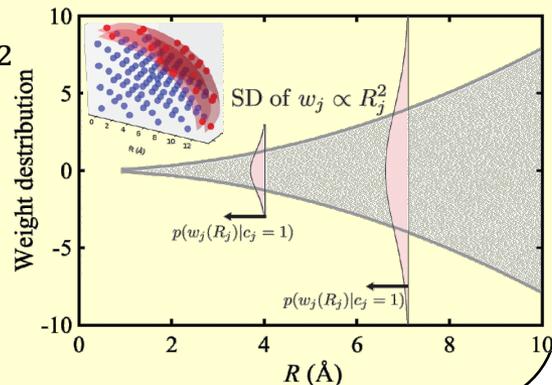
事前確率を導入

• 動径分布関数 $\propto R^2$

$$P(\omega_{j,\ell} | c_{j,\ell} = 1)$$

$$\propto \exp \left[-z_{\omega}^0 \left(\frac{\omega_{j,\ell}}{R_j^2} \right)^2 \right]$$

スパース性



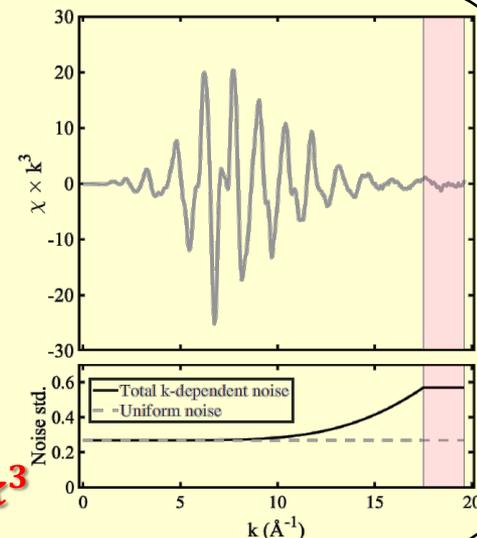
重畳ノイズのモデルを導入

正規ノイズの標準偏差

• k -非依存誤差

• k -依存誤差

$$\therefore y(k) = \chi(k) k^3$$

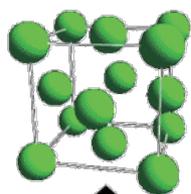


(a) Object: Cu foil

$c \sim$ distance R

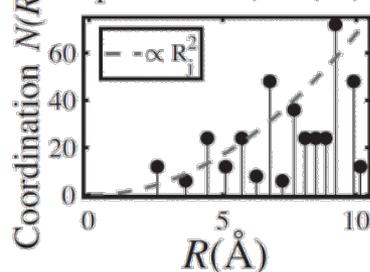
$w \sim N(R)$

Basis, Physical Parameter θ



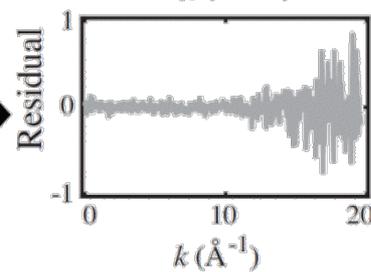
(b) Physical model

Sparse RDF, $P(w|c)$



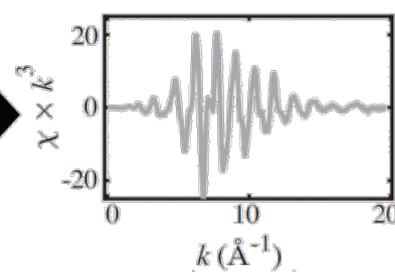
(c) Observation process

$P(y|w, c)$



(d) Measurement data

y



(f) Model selection

$$P(c(\text{Basis}, \theta) | y) \propto P(y|c) = \int P(y|w, c) P(w|c) dw$$

Marginalization by gaussian integral

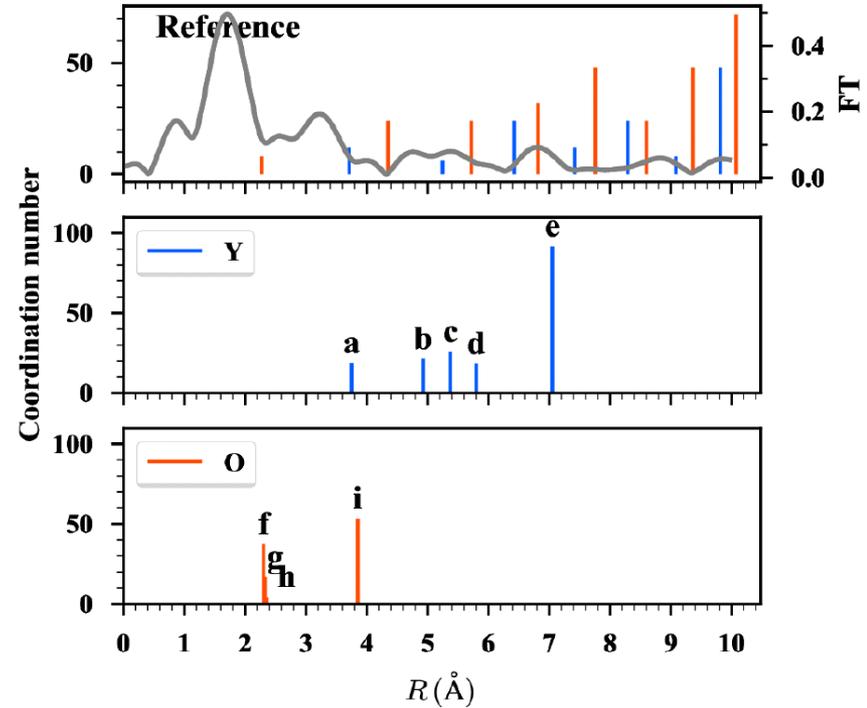
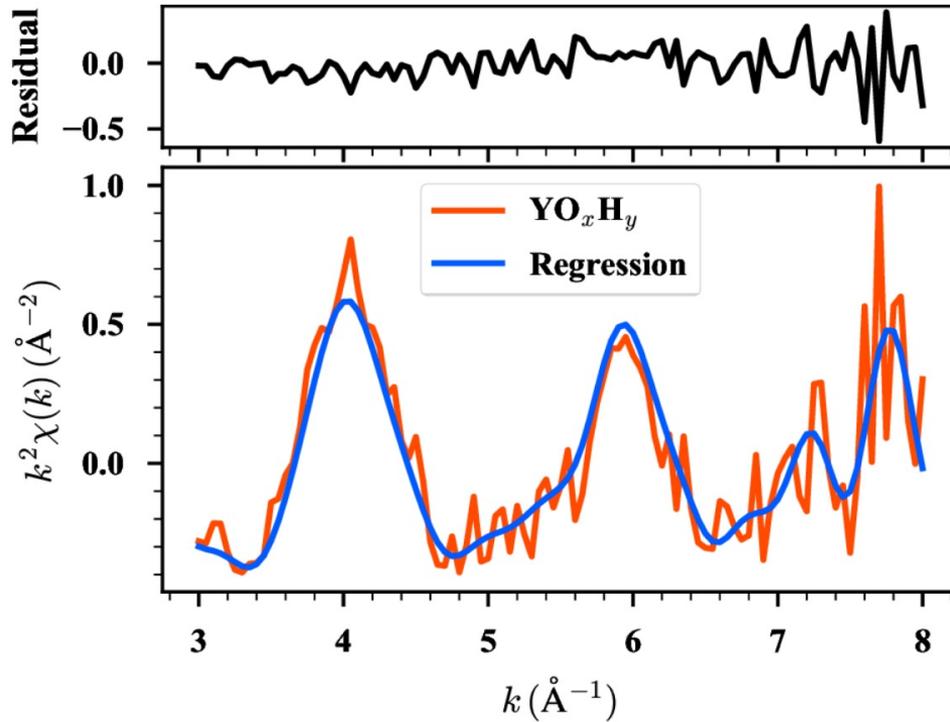


(e) Posterior probability (reliability)

$$P(w|y, c) \propto p(y|w) p(w|c)$$

Bayes' theorem

実材料計測への展開



Referenceの配位数は YH_2 （蛍石構造）のもの

$\frac{d_{\text{Y-Y}}}{d_{\text{Y-O}}} = \frac{3.75}{2.30} \sim 1.63$ と T_d の比率(1.633)に近いことから、Oは四面体サイトを形成していると考えられる

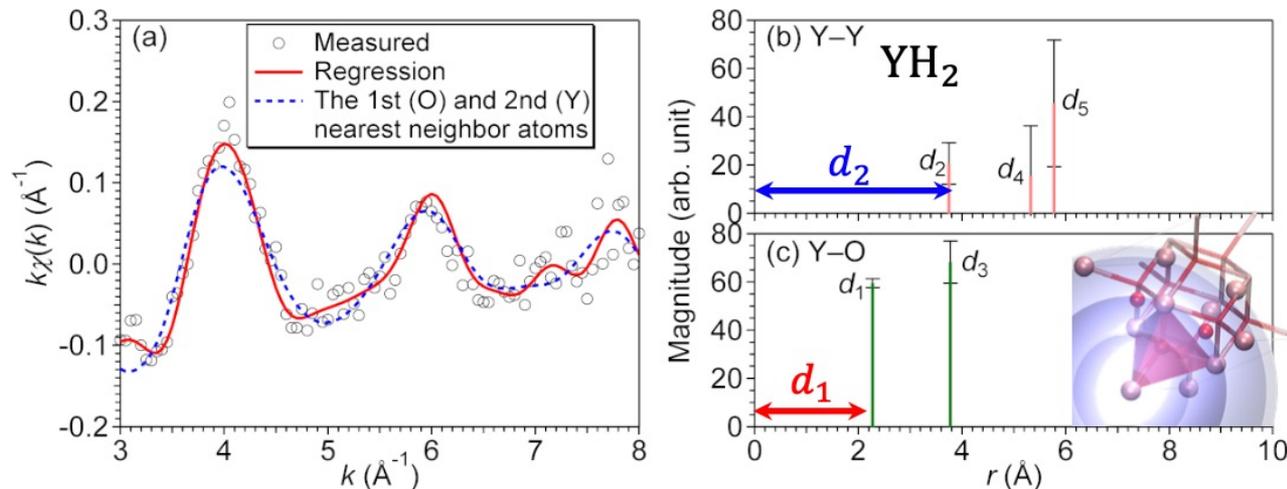
EXAFSの計測ノイズを適切にモデリングすることで、候補となる構造のモデル選択に繋がる

EXAFSのスパースモデリング 配位構造の推定

フォトクロミック特性をもつ YO_xH_y 薄膜結晶

- Y周りのOの配位構造は四面体(T_d) / 八面体(O_h)サイトのどちらか?
- 正四面体/正八面体の場合、第1近接(d_1)、第2近接(d_2)原子間距離の比率が異なる。

(T_d) $d_1:d_2 \sim 1:1.633$ (O_h) $d_1:d_2 \sim 1:1.414$,



- 元素識別動径分布関数
- ノイズを刈り込んで、計測データを再現
- $d_1:d_2 = 2.30\text{\AA} : 3.75\text{\AA} = 1:1.63$
- 酸素原子は T_d サイトを占めている。

まとめ

線形回帰(フーリエ変換, ウェーブレット変換), スパース線形回帰 (Lasso)

- 基底 (特徴量) は固定. 一回の計測データでも解析可能

主成分分析(SVD, PCA)

非負値行列分解 (NMF)

- 基底(特徴量) は統計的機械学習を行う.
数百枚程度の計測データを用いる
- 同一スケールのデータに対して有効

スパースコーディング

- 基底(特徴量) は統計的機械学習を行う.
バッチに分けて学習を行う
- スケールの異なる自然画像に対しても有効.
- 画像処理における汎用性が高い

深層学習, Vision Transformer等

- 基底(特徴量) を非線形性を入れつつ, 学習可能
- 様々な手法が開発されているが, 適用時には個々のタスクに対して再学習が必要であり, 大量のデータが必要に.



2. 計測過程や物理法則から, 基底 (特徴量) を選出. 上記の事前知識を用いることで, ノイズレベルの大きな実験データに対しても信号とノイズを見分け, 物理情報を抽出する



1. 一般の自然画像を学習した基底を用い, スパースコーディング (超解像) を行う
➤ 汎用的な手法を適用できるか検証し, 実際の放射光解析における活用を視野に