

CONTENTS

P1 水素科学技術の将来のために P2 自動車産業における電動化と中性子イメージングの応用 P3 量子ビーム計測とデータ駆動科学の融合
P8 半導体ソフトエラー断面積測定 P11 J-PARC MLF情報 P12 JRR-3情報 P12 活動報告 P13 お知らせ

水素科学技術の将来のために

東北大学
折茂慎一

世界規模で気候変動問題がクローズアップされるなか、国内でも温室効果ガス排出量を2050年までに実質ゼロとする目標が掲げられており、今後、水素の有効活用に向けた技術開発の推進やそれを支える水素に関連する基礎科学(以下、水素科学)の構築がますます重要になると考えられます。

水素はクリーンな二次エネルギーとして位置づけられます。また同時に、水素には私たちの暮らしに欠かせない多様な物質・材料の合成および高性能化などの重要な役割もあります。いっぽうで、例えば鉄鋼材料での水素脆化などは抑制・低減すべき長年の技術課題です。最近では、有用有機物質と水素の同時合成反応や次世代創蓄電デバイスでの水素化物の利用、また室温にも迫る水素化物超伝導の探索など、数多くの萌芽研究も進んでいます。さらに、多様な物質・材料中での水素の挙動を精密に捉えるための中性子や放射光などを用いた量子ビーム計測や計算科学・数理学などにおいても目覚ましい進展があります。

これらを複眼的に捉えながら水素科学を展開するためには、工学・化学・物理学・生物学・地球科学などの幅広い学問分野の研究者が有機的に連携したうえで、物質・材料中の水素が示す結合多様性[1]やそれに起因する多彩な物性・機能性に関わる研究を進めることが必要です。

このような学問分野の枠を超えた有機的な連携を加速するために、科学研究費助成事業・新学術領域研究「水素科学技術の将来のために」が設置されました[2]。現在、100名以上の大学・研究機関の研究者や学生が結集して、材料内部

での水素の高密度化や高速移動、電子とのカップリング、また材料表界面での水素の局在(トラッピング)や高活性化、そしてそれらの水素の挙動をこれまで以上に高精度に解析・予測する先端計測・計算などの研究を進めています。

さらに、水素科学に関する大学・研究機関(いわゆる学界)相互の更なる連携、そして学界での水素科学の集積を産業界での技術開発に展開することで「水素科学技術」として社会実装に貢献することを目指して、今年度、日本MRS研究会制度のもとで「水素科学技術連携研究会(Hydrogenomics Alliance, Japan)」を設置します[3]。この研究会の理念は以下の通りです：

- 1) 異なる学問分野を尊重して、また既存の学協会等とも連携しながら、将来の連携研究を促進するための最先端動向の共有の場とする。
- 2) 産学官の研究者・技術者が、基礎科学から技術開発・社会実装までを見通す議論の場とする。
- 3) 関連分野の先達から若手に至る全世代交流を目指すことで、特に若手研究者・技術者にとっての人脈形成の場とする。

世界にも類を見ない日本独自の取り組みとして、広範な学問分野をシームレスに繋ぐ複眼的な視野、基礎科学から技術開発・社会実装までを見通す中長期的な視点、そして関連分野の将来を託す若手人材の育成などの観点で、水素科学技術のプラットフォームとして機能する研究会に育てて参りたいと思います。

水素科学技術の将来のために、そして産業競争力強化やそれと連動する学界の研究力強化のために、水素の挙動を捉えるために欠かせない中性子利用に係る多くの産業界の皆様方に、「水素科学技術連携研究会(Hydrogenomics Alliance, Japan)」の取り組みにぜひご関心をお寄せ頂きたいと願っています。

[1]原子状態 H^0 や共有結合性 H^{cov} 、イオン性(しかもプロトン H^+ とヒドリド H^- の両極性)、またそれらの中間状態にもなり、さらに各状態で水素自体

の大きさも劇的に変わります。

[2]<https://hydrogenomics.jp/>

[3]<https://hydrogenomics-alliance.jp/>

自動車産業における電動化と中性子イメージングの応用

株式会社デンソー
笹田 星児

自動車産業は、今まさに「100年に一度」と言われる変革期を迎えています。Connected (コネクティッド)、Autonomous (自動運転)、Shared & Service (シェアリング・サービス)、Electric (電動化)の頭文字からなる「CASE」という造語に示唆されるようにクルマに求められる価値は大きく変化し、それを実現する技術革新が求められています。この中でも、モノづくり目線で見ると最大の変革は電動化といえるでしょう。欧州を中心として脱炭素社会の実現に向け動き出す中、日本政府も2050年のカーボンニュートラル社会の実現を目指し、2035年までに新車販売で電動車100%を実現することを表明しました。自動車産業全体がこれまでの内燃機関から、モータを駆動力とする電動車へと大きくシフトチェンジを行っている真っ只中です。

内燃機関はエンジンやトランスミッションといった多数の機械系部品からなり、部品間の力学的なエネルギーの伝達により駆動力を生み出すため、部品間の精密な「すり合わせ」がシステムとしての差別化を生み出していました。それに対し電動車の構成部品はモータ・インバータ・バッテリーなどで、部品点数が少なくシンプルな構造であるため、材料素材の性能と加工技術により性能が左右されます。これら材料と加工の「評価・解析技術」は、電動車開発における競争力の源泉と言えるでしょう。

金属に対して高い透過能力を持つ中性子は、X線などでは得ることができない金属材料内部の情報を非破壊で取得できます。金属を中心に構成される電動車用のモータ開発において、材料・加工技術の評価に非常に有効なプローブの一つとして中性子を注目しています。また、中性子の持つ磁気モーメントを活かした磁場のセンシングも、モータの磁石やコア内の磁束の評価において有効な手段です。特にJ-PARC MLFにおいて利用可能な大強度パルス中性子は、中性子のエ

ネルギー情報を高精度に取得することを可能にし、高分解能な二次元検出器を用いることで、金属材料内部の組織情報や磁界情報を二次元イメージングすることが可能となってきました。例えば弊社では、モータのコア材料を加工するときに内部に発生する残留ひずみの二次元イメージングを通して、この加工残留ひずみが鉄損に与える影響を解析し、加工条件の最適化等へ適用しています。また磁石材料内部の磁化状態を非破壊で可視化することで、従来の破壊的評価技術の妥当性検証や新たな現象の解明に向けても検討を進めています。

これらの中性子のエネルギー情報を用いたイメージング技術の発展は著しく、同じ内部の評価プローブとして用いられる放射光と比較し、空間分解能では現状、劣るものの、バルク材料内部の100 μm を切る空間分解能での組織イメージングの可視化も実現されており、研究だけでなく製品評価に適用可能なレベルに進化しています。放射光と中性子、それぞれのプローブの特徴を活かし、相補的な活用を行うことで、従来手法では得られない新たな知見の獲得にもつながると期待しています。

最後に、産業利用という観点から希望を述べさせていただきます。自動車産業は先に述べたように大きな変革期を迎えており、開発トレンドが目まぐるしく変化する可能性があります。そのため製品の開発期間の短縮や評価・解析技術のタイムリーな提供が製品競争力につながります。放射光の場合、SPring-8という世界有数の大型施設に加え、近年では全国に産業利用に特化した中型・小型の放射光施設が建設され活用されています。弊社でも同じ愛知県内のあいちSRに専用ビームラインを設置し、放射光を研究だけでなく製品の不良解析/品質管理に活用するなど、より身近な存在になってきました。中性子においても、理化学研究所のRANSといった小型中性子源の開発活用が進み、産業界にとってより身近なプローブになることを期待させていただきます。

熊本大学 産業ナノマテリアル研究所
赤井 一郎

はじめに

中性子や放射光の量子ビームを用いた計測においてオペランド計測や顕微計測等は、やはりノイズとの戦いになる。データ駆動科学は、その様な状況においてもノイズまで解析する過学習をさけ、データに含まれる重要な成分を漏らさず抽出することが可能である。またベイズ推定[1]の枠組みを用いて、データを説明するモデルを、先入観や偏見を排し客観的に選択することが可能である。これは、計測データを起点として現象の理解を判断することに当たり、データ科学とは異なって、データ駆動で「科学」することが可能となる。

本稿では、複雑なスペクトルの分解をベイズ統計に従って行うベイズ分光法[2,3]と、広域X線吸収微細構造(EXAFS)の解析に適用したベイズ的スパースモデリング[4](SpM)について紹介する。

ベイズ分光法

ベイズ推定に基づくスペクトル分解

スペクトル計測は様々な研究領域で重要な計測法で、そのピーク分離やスペクトル分解は計測対象の物性を理解する目的で行われる。従来スペクトル分解には最小二乗法が用いられ、誤差関数 $E(\theta)$ を最小化する最尤推定値を求めていたが、それには本質的問題がある。スペクトル分解に用いるモデル関数は推定パラメータ θ を非線形に含み、誤差関数 $E(\theta)$ は高次元パラメータ空間で多数の極小値を持つ。この様な場合、パラメータ空間探索の初期値を与えて解析を行うが、得られる解は初期値に依存してしまい、得られる解がパラメータ空間全体で誤差関数を最小化する大域的最適解である統計的保証が無い。

一方ベイズ分光法[2,3]では、パラメータ空間を確率的に探索するレプリカ交換モンテカルロ(RXMC)法[5]等を用いて、データ $D := \{(x_1, y_1), \dots, (x_N, y_N)\}$ に基づくパラメータ θ の事後確率分布 $P(\theta | D, K, b)$ を(1)式によって評価する。

$$P(\theta | D, K, b) = \frac{P(D | \theta, K, b) P(\theta, K, b)}{P(D, K, b)}, \quad (1)$$

ここで、 K は D を解析するモデル関数 $f_k(x; \theta)$ の識別

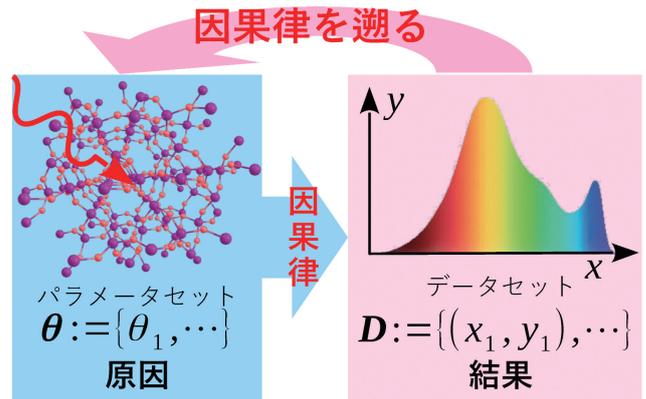


図1 ベイズ推定で因果律を遡る

子で、 b はベイズ統計の擬逆温度である。この(1)式は、図1に示した様に、データを起点として因果律を遡って、原因を特徴づける θ の確率分布を評価することに当たる。

計測データ y_i は、モデル関数と重畳するノイズ n_i によって $y_i = f_k(x_i; \theta) + n_i$ と表され、 n_i が標準偏差 σ_{noise} の正規分布に従う場合、擬逆温度は $b := \sigma_{\text{noise}}^{-2}$ となり(1)式の尤度項は次式の正規分布となる。

$$P(D | \theta, K, b) = \left(\frac{b}{2\pi} \right)^{N/2} \exp[-bN\epsilon_K(\theta)],$$

ここで $\epsilon_K(\theta)$ は、モデル関数 $f_k(x; \theta)$ の D に対する誤差関数である。(1)式の $P(\theta, K, b)$ はパラメータセット θ の事前確率で、適切な根拠に基づいてパラメータ空間の探索範囲を指定する。(1)式右辺の分母項は確率の規格化項で、分子項を θ 空間で周辺化したベイズ分配関数 $Z(K, b)$ である。

ベイズ分光法では、 $Z(K, b)$ を用いて $F(K, b) := -\ln Z(K, b)$ と定義されるベイズ自由エネルギーを規準としたモデル選択[2]が可能である。 D を説明するモデル関数の候補が複数ある場合 $[f_k(x; \theta), K=1, 2, \dots]$ 、どのモデルがデータ D を説明するのに適切か?の推定と、データに重畳するノイズの標準偏差 $\hat{\sigma}_{\text{noise}} = \hat{b}^{-1/2}$ の推定が(2)式[6]で可能である。

$$(\hat{K}, \hat{b}) = \arg \min_{K, b} F(K, b). \quad (2)$$

モデル選択が出来る利点に加えて、ベイズ分光法の最大の利点は、点推定ではなく、全ての推定パラメータの事後確率分布、つまり、推定量の統計分布を(3)

式で評価出来ることである。

$$P(\boldsymbol{\theta}|\mathbf{D}, \hat{K}, \hat{b}) \propto \exp[-\hat{b}N\mathcal{E}_{\hat{K}}(\boldsymbol{\theta})] P(\boldsymbol{\theta}, \hat{K}, \hat{b}). \quad (3)$$

この事後確率分布の評価は、量子ビーム計測の現場でも新しい指針を与えてくれる。放射光を用いた磁気コンプトン散乱は、電子運動量密度やスピン磁気モーメントの検出に有効な手段であるが、散乱断面積が小さく、これまで長時間の計測とデータ積算が必要と考えられてきた。しかしベイズ分光法を用いて事後確率分布を評価することで、積算回数を1/20に短縮出来る[7]ことが明らかになった。

ベイズ分光法の適用例

ベイズ分光法は強力で汎用性も高く、様々なスペクトル解析に適用してきた。それらの研究は、従来解析法の課題を解決するもので、詳細は参考文献[8-12]を参照いただきたい。

本稿ではX線磁気円二色性(XMCD)の解析にベイズ分光法を適用[13]した例を紹介する。XMCDスペクトルは、磁場下の磁性材料において、左右円偏光(\mp helicity)で計測されるX線吸収(XA)スペクトルの差分スペクトルとして計測され、 L_3 , L_2 吸収端では、磁性材料の軌道とスピンの磁気モーメントの推定に有効である。しかし差分でスペクトル変化は強調される一方、類似した吸収ピーク構造は相殺してXMCDスペクトルは複雑化するため、スピン分裂状態の分離抽出は不可能と考えられていた。この課題はベイズ分光法で解決出来る。

そのベイズ分光法による解析結果を図2にまとめた。図2(a)の緑色スペクトルが解析対象とした

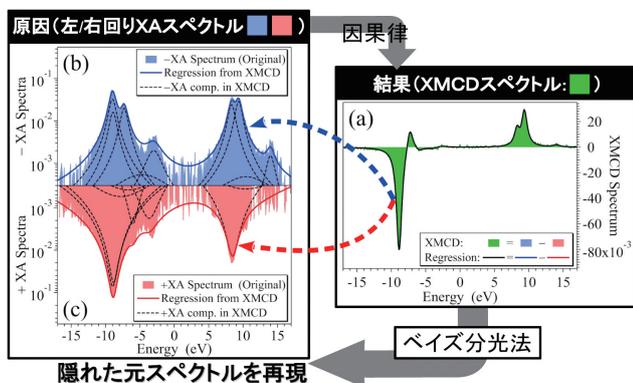


図2 ベイズ分光法を用いてXMCDスペクトルの因果律を遡る[13]

XMCDスペクトルで、(4)式のモデル関数でスペクトル分解を行った。

$$f_{K^-, K^+}^{\text{XMCD}}(x; \boldsymbol{\theta}) = \sum_{k^-=1}^{K^-} \mathcal{L}(x; \boldsymbol{\theta}_{k^-}) + \sum_{k^+=1}^{K^+} \mathcal{L}(x; \boldsymbol{\theta}_{k^+}), \quad (4)$$

ここでスペクトル関数 $\mathcal{L}(x; \boldsymbol{\theta})$ は \mp helicityのXAピーク構成成分で、差分のため -helicity成分 $\boldsymbol{\theta}_{k^-} := \{I_{k^-}, E_{k^-}, \Gamma_{k^-}\}$ の強度は正值($I_{k^-} > 0$)で、+helicity成分 $\boldsymbol{\theta}_{k^+} := \{I_{k^+}, E_{k^+}, \Gamma_{k^+}\}$ の強度 I_{k^+} は負値($I_{k^+} < 0$)とした。 \mp helicityそれぞれのピーク構造の成分数 K^-, K^+ は、(2)式を拡張した(5)式でモデル選択を行った。

$$(\hat{K}_-, \hat{K}_+, \hat{b}) = \arg \min_{K_-, K_+, b} F(K_-, K_+, b). \quad (5)$$

モデル選択結果で抽出された全ての \mp helicity成分のパラメータセット $\boldsymbol{\theta} := \{\boldsymbol{\theta}_{k^-}, \boldsymbol{\theta}_{k^+}\}$ を、(3)式でサンプリングして得られる平均値で(4)式を用いて描いた再現スペクトルが図2(a)の黒い実線スペクトルで、緑色のXMCDスペクトルをよく再現する。

このXMCDスペクトルのスペクトル分解結果は、XMCDスペクトルだけでなく、図2(b), (c)で青色と赤色スペクトルとして示した元の \mp helicity XAスペクトルそれぞれも再現する。図2(b), (c)の黒破線は(5)式のモデル選択で分離抽出された -helicity, +helicityそれぞれのスペクトル成分で、それらの和である青線と赤線スペクトルは元の \mp helicity XAスペクトルを再現できる。

この様に L_3 , L_2 吸収端で \mp helicityそれぞれのスピン分裂状態を分離抽出が実現できることによって、抽出された各成分のスペクトル強度のサンプル履歴を用

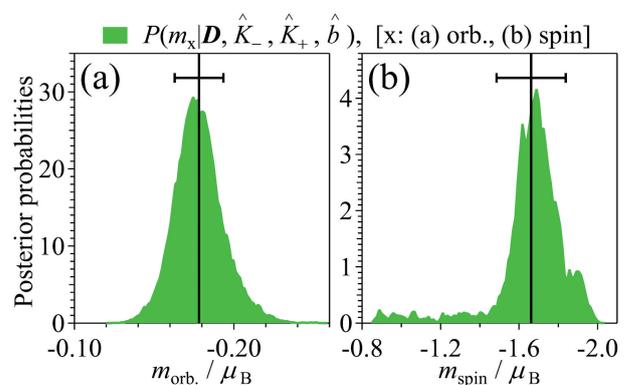


図3 軌道磁気モーメントとスピン磁気モーメントの事後確率分布[13]

いて、軌道とスピンの磁気モーメントの事後確率分布の評価が図3の様に可能である。従来これらの磁気モーメントはXMCDのスペクトル積分による点推定であったのに対し、図3に示した事後確率分布により推定精度評価が可能となる。

EXAFSのSpM

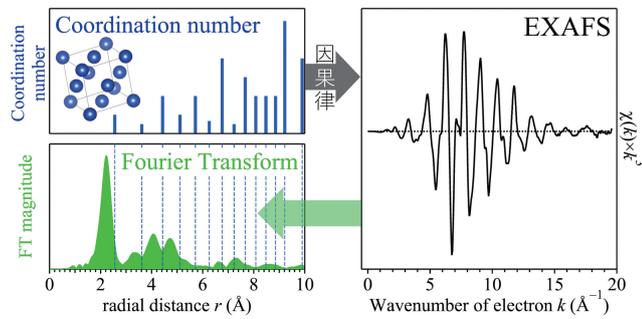


図4 EXAFS振動とフーリエ変換

EXAFS

EXAFS計測は、X線吸収端エネルギーで元素種を選択し、X線吸収で励振される光電子波の近接原子による後方散乱波との干渉現象を利用して、選択した元素近傍のマイクロ構造を解明する有効な方法である。

図4に光電子波の波数 k を横軸で示したEXAFS振動の例を示した。ここで k は、吸収端のエネルギー E_0 と k の原点を表すエネルギーオフセット ΔE 、電子質量 m で $k = \sqrt{2m(E - E_0 + \Delta E)}/\hbar$ と定義される。マイクロ構造が既知である場合、その構造情報を用いて、EXAFS振動から近接原子の熱ゆらぎ等の解析が可能である。一方、新規材料等の様に構造が未知の場合、図4に示したフーリエ変換が最初に用いられる。しかし、このフーリエ変換には以下の問題点がある。

- (1) フーリエ変換で得られる動径分布関数は選択原子からの動径距離 r の関数として得られるが、散乱による光電子波の位相シフトを無視しているため、フーリエ変換で得た動径分布のピーク構造は青破線で示した真値からずれる。
- (2) フーリエ変換は完全規格直交系の平面波基底関数を用いた展開で、データに重畳するノイズまでもスペクトル変換される。
- (3) 高波数側のEXAFS振動を強調する目的で、吸収強度 $\chi(k)$ に k^w ($w=1,2,3$)の荷重を掛けて解析されるため、解析データには波数 k に依存した計測ノイズが含まれるが、計測ノイズの k 依存性は考慮されていない。

さらにフーリエ変換で得られる動径分布関数は r の連続関数として評価されるが、本来固体材料における

近接原子は、結晶対称性や化学構造に従って特定の動径距離で配位する。つまり、動径距離においてスパースに配位する。確かに有限温度で熱振動により揺らぐとはいえ、平衡距離近傍の振動であることから、動径距離に対するスパース性[14]を組み込んだSpMの適用は妥当である。

EXAFSのベイズ的SpM

EXAFS解析におけるこれらの課題は、ベイズ的SpMで解決可能で、S/N比の厳しいEXAFSデータでも精密なマイクロ構造解析が可能[4]となる。

その例を図5に示した。図5(a)に青色で示したEXAFS信号は、SPring-8のBL14B1において、 CaF_2 の(111)基板上でエピタキシャル成膜した YO_xH_y 薄膜結晶のY元素K吸収端で計測[4]されたものである。しかし薄膜であるがゆえに吸収強度は弱く、EXAFS振動に加えて重畳するノイズによって計測値が大きく散乱してしまう。従来この様なS/N比の厳しいEXAFS振動データからマイクロ構造の抽出は困難であった。

我々が開発したEXAFSのベイズ的SpM[4]は、光電子波の原子ポテンシャルによる二体多重散乱理論に基づいた基底関数[15-17]を用い、L1正則化法であるLASSO法[18]とベイズ推定[19]を融合したSpMであ

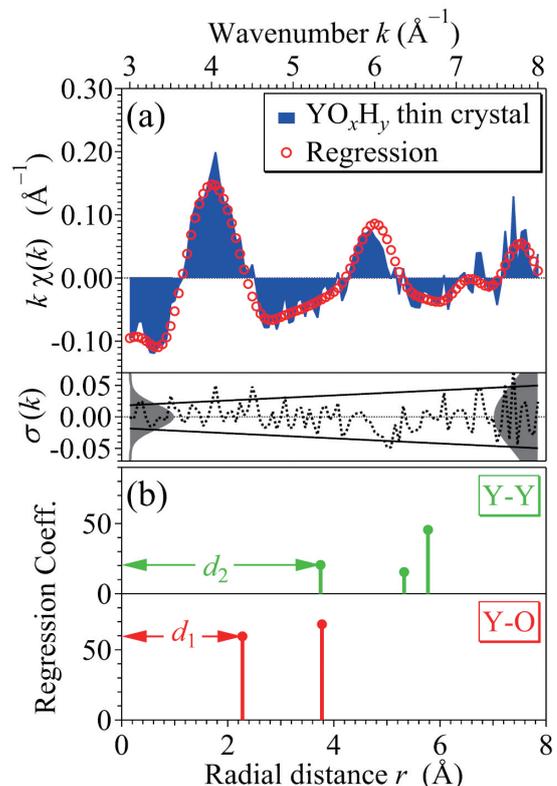


図5 ノイズ耐性の高いEXAFSのベイズ的スパースモデリング[4]

る。用いた基底関数には、散乱する元素の種類 β によって位相シフト、振幅減衰に違いがあることが組み込まれており、動径分布関数 $n_{\alpha\beta}(r)$ を元素種 β で区別し分離抽出することが可能である。

EXAFS解析におけるSpMは、原子配位が r においてスパースである固体材料の特徴を組み込むとともに、データに重畳するノイズまでを再現する過学習を避けた解を得る手段として有効である。 $n_{\alpha\beta}(r)$ に比例する回帰係数を $\omega := \{\omega_j\} [\omega_j \propto n_{\alpha\beta}(r)]$ とすると、各回帰係数 ω_j に対応する基底関数を列ベクトルにもつ計画行列 \mathbf{X} を用いて、EXAFSデータ $\mathbf{y} := \{y_i\} [y_i := k^w \chi_{\alpha}(k_i)]$ は、 $\mathbf{y} \approx \mathbf{X}\boldsymbol{\omega}$ の線形写像と書ける。まず、 $\boldsymbol{\omega}$ の非ゼロ成分を抽出するSpMに(6)式のLASSO法[18]を用いた。

$$\hat{\boldsymbol{\omega}}^{\text{LASSO}} = \arg \min_{\boldsymbol{\omega}} \left[\frac{1}{2} \|\mathbf{y} - \mathbf{X}\boldsymbol{\omega}\|_2^2 + \lambda \|\boldsymbol{\omega}\|_1 \right], \quad (6)$$

右辺第一項は尤度項で、第二項は $\boldsymbol{\omega}$ のスパース性を組み込む罰則項で、 λ はその制御パラメータである。

過学習を避けてデータを適切に説明する解を得るためにベイズ推定[4,19]を用いた。ベイズ推定では、 $\boldsymbol{\omega}$ の非ゼロ成分を表す2値(0,1)ベクトル \mathbf{c} の事後確率 $P(\mathbf{c}|\mathbf{y})$ を最大化する。ベイズの定理[1]を用いると $P(\mathbf{c}|\mathbf{y})$ は(7)式のように展開できるが、虚心坦懐な解析では、 $\boldsymbol{\omega}$ のどの要素が非ゼロであるかのバイアスを掛けるべきではなく \mathbf{c} の事前確率 $P(\mathbf{c})$ は一様と取るべきで、結果として $P(\mathbf{c}|\mathbf{y})$ は $P(\mathbf{y}|\mathbf{c})$ に比例するため、 $P(\mathbf{y}|\mathbf{c})$ を最大化させる。

$$P(\mathbf{c}|\mathbf{y}) = \frac{P(\mathbf{y}|\mathbf{c})P(\mathbf{c})}{P(\mathbf{y})} \propto P(\mathbf{y}|\mathbf{c}) \quad (7)$$

データ \mathbf{y} が得られる因果律は $\mathbf{c} \rightarrow \boldsymbol{\omega} \rightarrow \mathbf{y}$ であるから、 $P(\mathbf{y}|\mathbf{c})$ は(8)式のように $\boldsymbol{\omega}$ の周辺化で評価できる。

$$P(\mathbf{y}|\mathbf{c}) = \int P(\mathbf{y}|\boldsymbol{\omega}, \mathbf{c})P(\boldsymbol{\omega}|\mathbf{c})d\boldsymbol{\omega} \quad (8)$$

(8)式の $P(\mathbf{y}|\boldsymbol{\omega}, \mathbf{c})$ はデータ \mathbf{y} に対する $\boldsymbol{\omega}$ が与える再現データの尤度項で、重畳するノイズを正規分布 $N(0, \sigma(k))$ でモデル化することで定式化可能である。その標準偏差 $\sigma(k)$ は、波数 k に依存しないノイズと、X線吸収強度 $\chi_{\alpha}(k)$ に乗ずる荷重(k^w)に起因した k に依存するノイズ両方を考慮して、(9)式[4,19]を用いた。

$$\sigma(k) = \left(\frac{k}{k_{\text{noise}}} \right)^w \sqrt{\sigma_{\text{noise}}^2 - \frac{1}{z}}, \quad (9)$$

ここで σ_{noise} はEXAFS振動が減衰した高波数領域($k \geq k_{\text{noise}}$)における計測値 y_i の標準偏差である。

(8)式の $P(\boldsymbol{\omega}|\mathbf{c})$ は、回帰係数 $\boldsymbol{\omega}$ の非ゼロ成分の事前確率で、正規分布 $N(0, \sigma_{\omega\beta}(r))$ でモデル化した。この正規分布では、固体材料においては結晶構造や化学構造を反映して、原子配位は動径距離に対しスパースであることから、平均値を0として確率 $P(\boldsymbol{\omega}|\mathbf{c})$ が $\omega_j=0$ で最大化するようにした。一方非ゼロ要素($\omega_j>0$)の場合 ω_j の値は、 r の増加とともに $r \sim r + \Delta r$ の球殻内に配置する原子数が r^2 に比例して増加することが期待できるため、正規分布の標準偏差は $\sigma_{\omega\beta}(r) = r^2 / \sqrt{c_{\beta}}$ とした。

ベイズ推定では $F(\mathbf{c}) := -\ln P(\mathbf{y}|\mathbf{c})$ で定義されるベイズ自由エネルギーを情報量規準とし、それを最小化して \mathbf{c} のセットと全てのモデル化パラメータの推定[4]を行う。図5のデータでは、 k の原点を決めるエネルギーオフセット ΔE や、X線吸収強度 $\chi_{\alpha}(k)$ に乗ずる荷重(k^w)の冪数 w は、 $\Delta E = 1.0$ eV、 $w = 1$ と推定された。図5(b)はY周りで分離抽出したY、O元素の回帰係数 ω_Y, ω_O で、 $F(\mathbf{c})$ の最小化で得られた解である。またこれらが立つ動径距離 r は、散乱による位相シフトを基底関数に組み込んでいるため正しく推定できており、最近接O原子の距離 d_1 と第二近接Y原子の距離 d_2 の比[4]から、 YO_xH_y 薄膜結晶において、O原子はY原子へ四面体配位することが推定できた。

図5(a)の赤丸は、 ω_Y, ω_O を用いた再現EXAFSデータで、ノイズまで再現する過学習を避け、適切に再現できることが分かる。図5(a)の下段の黒破線は計測データに対するフィッティング残差で、高波数側のEXAFS振動を強調するため k^1 の荷重が掛かっていることを反映して、高波数側で残差の揺らぎが顕著になることが分かる。この k 依存の重畳ノイズは(9)式でモデル化して解析に組み込まれており、それを実線で示した。これはモデル化した正規ノイズの標準偏差 $\pm\sigma(k)$ の範囲で、両端の灰色はモデル化された正規ノイズの分布である。

以上の様に、このベイズ的SpMを用いたEXAFSの解析法は、(1)元素種情報を必要とするが事前に構造情報を必要としない、(2)光電子波散乱による位相シフトを組み込み、動径距離を正確に見積もることができる、(3) k 依存のノイズ(k^w の重みによる)のモデルを導入し、 k によって変化するノイズ強度を適切に評価できる、(4)その結果、S/N比の厳しいEXAFS信号でもノイズ耐性の高い解析が可能となる利点があり、今後EXAFSのデータ解析で有効な方法になることが期待できる。

まとめ

ベイズ推定に基づくデータ駆動科学的アプローチは、従来の誤差論において結果が誤差によって確率分布する考え方と異なり、計測データを起点として、因

果律を遡って原因が確率分布(事後確率分布)すると考える。本稿で紹介した例では、ノイズまでも再現する過学習をさげ、データを説明するモデル関数(基底成分)の選択をベイズ推定の枠組みで実現した。このモデル選択は、データを起点として現象を理解する学理を選択(構築)することに当たり、科学的アプローチの新しい方法である。今後このアプローチが、新しいフロンティアを開拓することを期待したい。

謝辞

本稿の内容は、JST, CREST, JPMJCR1861の支援を受け、あいちSR・岡島敏浩先生、JASRI・水牧仁一朗先生、東工大・青西亨先生、NIMS・山崎裕一先生、ならびに、東大・岡田真人先生、筑波大・五十嵐康彦先生、SAGA-LS・妹尾与志木先生、ならびに熊大・岩満一功氏、熊大・熊添博之氏との共同研究に基づくものである。

参考文献

- [1] T. Bayes, R. Price, *Phil. Trans. Roy. Soc.* **53**, 370 (1763).
<https://doi.org/10.1098/rstl.1763.0053>
- [2] K. Nagata, S. Sugita, M. Okada, *Neural Netw.* **28**, 82 (2012).
<https://doi.org/10.1016/j.neunet.2011.12.001>
- [3] I. Akai, K. Iwamitsu, M. Okada, *J. Phys. Conf. Ser.* **1036**, 012022 (2018).
<https://doi.org/10.1088/1742-6596/1036/1/012022>
- [4] H. Kumazoe, Y. Igarashi, F. Iesari, R. Shimizu, Y. Komatsu, T. Hitosugi, D. Matsumura, H. Saitoh, K. Iwamitsu, T. Okajima, Y. Seno, M. Okada, I. Akai, *AIP Adv.* in press (2021).
<https://doi.org/10.1063/5.0071166>
- [5] K. Hukushima, K. Nemoto, *J. Phys. Soc. Jpn.* **65**, 1604 (1996).
<https://doi.org/10.1143/JPSJ.65.1604>
- [6] S. Tokuda, K. Nagata, M. Okada, *J. Phys. Soc. Jpn.* **86**, 024001 (2017).
<https://doi.org/10.7566/JPSJ.86.024001>
- [7] Y. Yokoyama, N. Tsuji, I. Akai, K. Nagata, M. Okada, M. Mizumaki, *J. Phys. Soc. Jpn.* **90**, 094802 (2021).
<https://doi.org/10.7566/JPSJ.90.094802>
- [8] K. Iwamitsu, T. Yokota, K. Murata, M. Kamezaki, M. Mizumaki, T. Uruga, I. Akai, *Phys. Status Solidi B* **257**, 2000107 (2020).
<https://doi.org/10.1002/pssb.202000107>
- [9] K. Iwamitsu, Y. Furukawa, M. Nakayama, M. Okada, I. Akai, *J. Lumin.* **197**, 18 (2018).
<https://doi.org/10.1016/j.jlumin.2018.01.002>
- [10] A. Kiridoshi, S. Aihara, S. Arishima, T. Yamashiro, M. Mizumaki, K. Iwamitsu, I. Akai, *Phys. Status Solidi B* **255**, 1800136 (2018).
<https://doi.org/10.1002/pssb.201800136>
- [11] S. Yakura, K. Iwamitsu, S. Hira, T. Yamasaki, Y. Miyata, E. Magome, I. Akai, *Jpn. J. Appl. Phys.* **59**, 025506 (2020).
<https://doi.org/10.35848/1347-4065/ab6b72>
- [12] Y. Mototake, M. Mizumaki, I. Akai, M. Okada, *J. Phys. Soc. Jpn.* **88**, 034004 (2019).
<https://doi.org/10.7566/JPSJ.88.034004>
- [13] T. Yamasaki, K. Iwamitsu, H. Kumazoe, M. Okada, M. Mizumaki, I. Akai, *STAM: Methods* **1**, 75 (2021).
<https://doi.org/10.1080/27660400.2021.1932108>
- [14] I. Akai, K. Iwamitsu, Y. Igarashi, M. Okada, H. Setoyama, T. Okajima, Y. Hirai, *J. Phys. Soc. Jpn.* **87**, 074003 (2018).
<https://doi.org/10.7566/JPSJ.87.074003>
- [15] A. Filipponi, A. Di Cicco, C. R. Natoli, *Phys. Rev. B* **52**, 15122 (1995).
<https://doi.org/10.1103/PhysRevB.52.15122>
- [16] A. Di Cicco, *GNXAS Extended Suite of Programs for Advanced X-ray Absorption Data-analysis: Methodology and Practice*, (TASK publishing, Gdansk, Poland, 2009).
http://gnxas.unicam.it/pag_gnxas.html
- [17] F. Iesari, H. Setoyama, Y. Igarashi, M. Okada, H. Kumazoe, K. Iwamitsu, I. Akai, Y. Seno, T. Okajima, *arXiv/physics.data-an*, 2104.01805 (2021).
<https://arxiv.org/abs/2104.01805>
- [18] R. Tibshirani, *J. Roy. Stat. Soc. B* **58**, 267 (1996).
<https://doi.org/10.1111/j.2517-6161.1996.tb02080.x>
- [19] Y. Igarashi, F. Iesari, H. Setoyama, T. Okajima, H. Kumazoe, I. Akai, M. Okada, *arXiv/physics.data-an*, 2105.02341 (2021).
<https://arxiv.org/abs/2105.02341>

告では、通信装置の信頼性基準の確認方法として、加速器中性子源によるソフトウェア試験を規定しています。これは、通信装置のソフトウェアに対する信頼性を確認する手段として、加速器中性子源による再現試験が現状もっとも有効な手段であるためです。

この様な加速試験において重要なパラメータは加速係数です。加速係数 F_A は、加速器において自然界に対して何倍加速して試験をできるかの指標で、式(1)で表すことができます。

$$F_A = \frac{\text{加速環境のソフトウェア発生率}}{\text{自然界のソフトウェア発生率}} \quad \text{式(1)}$$

また、ある環境におけるソフトウェア発生率(単位時間当たりのソフトウェア発生数)は、中性子束 ϕ (E)とエネルギー毎のソフトウェア断面積 σ に依存し、式(2)であらわすことができます。

$$SER = \int_0^{\infty} \sigma_{SEU}(E_n) \phi(E_n) dE_n \quad \text{式(2)}$$

なお、ソフトウェア断面積 σ は、単位面積当たりの1つの中性子がソフトウェアを引き起こす確率で、式(3)であらわされます。

$$\sigma_{SEU}(E_n) = \frac{N_{SEU}(E_n)}{\Phi(E_n)} \quad \text{式(3)}$$

ここで、 $\Phi(E_n)$ はデバイスに照射された単位面積当たりの中性子数(中性子フルエンス)で、 $N_{SEU}(E_n)$ はそれら中性子によって生じたソフトウェアの発生数を示します。

この様に、加速係数は中性子スペクトルとソフトウェア断面積により算出することができますが、従来までエネルギー依存のソフトウェア断面積は(準)単色中性子源によって測定されていたため[4]、連続的な分布の測定が困難な状況でした。そのため、この様な試験をする際は、自然界と中性子スペクトル形状が似た加速器中性子源が用いられていました[5]。

自然界とは異なる中性子スペクトルを持つ小型加速器中性子源を用いて、様々な環境の精度の高い故障数を算出するには、中性子エネルギーごとのソフトウェア断面積を連続的に測定したデータが必要です。そ

こで、TOF法による測定を可能とするため、FPGAを使用して高時間分解能でソフトウェアを検出する方法を考案し、米国ロスアラモス国立研究所にてソフトウェア断面積を測定しました。

3. TOF測定を可能とする高速エラー検出回路

ソフトウェアを引き起こすSub-GeV領域の中性子は非常に早く、図3に示すように飛行距離 $L = 20$ mの場合、1 MeV中性子の飛行時間は1.4 μ s、800 MeV中性子の飛行時間は79.3 nsです。そのため、保存されたデータをシーケンシャルに読み出し、エラーをチェックする通常のSRAMでは、全領域をチェックするのに数10msの時間を要するので、TOF法による測定は不可能です。

そこで、我々は、FPGAの論理回路を構成するコンフィギュレーションRAM (CRAM)に発生したエラーによって引き起こされる論理回路の誤動作に着目しました。論理回路動作を決定するCRAMビットが書き換わると、直ちに異常な回路が再構成されるため、論理異常が発生します。FPGAは数百MHzの動作周波数で駆動できるため、論理異常を検知するユーザー回路をプログラミングすることにより、数nsでソフトウェアを検出することができます。そこで、多数のレジスタと監視回路を備えたユーザー回路により、TOF法でソフトウェアを引き起こした中性子エネルギーを特定する測定装置を開発しました。

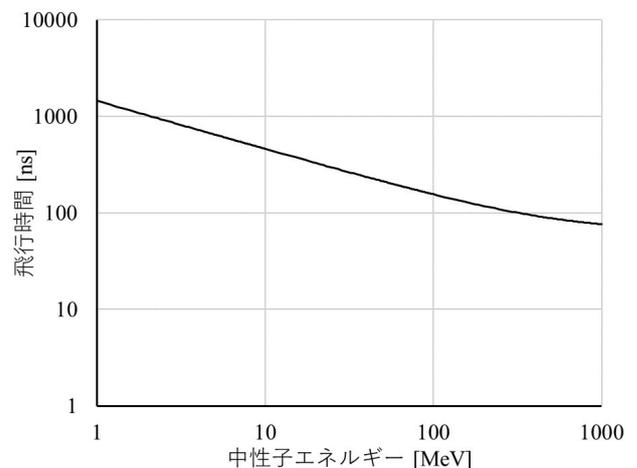


図3 飛行時間と中性子エネルギーの関係

4. LANSCEでのTOFソフトエラー断面積測定

実験はLANSCE (Los Alamos Neutron Science Center) の中性子照射場ICE-Houseにて実施しました。LANSCEは、800 MeV陽子線形加速器で、125 psの短い陽子パルスビームを生成可能です。図4はLANSCEのターゲットから19.7 mに設置されたフィッションチャンバによって測定された中性子エネルギースペクトルと、自然環境における中性子スペクトルです[5]。LANSCEの中性子エネルギースペクトルは自然界スペクトルに近く、中性子束は約8桁高いため、本実験を行うのに十分な強度があります。

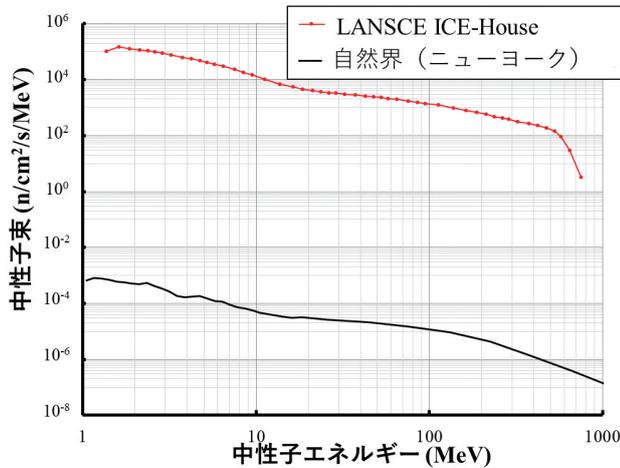


図4 LANSCE ICE-Houseの中性子スペクトル[5]

照射したデバイスは、市販の28 nm, 40 nm, 55 nmの3種類のデザインルールのFPGAです。ICE-Houseでの実験系を図5に示します。照射エリアは、厚いコンクリートとポリエチレンの壁によって2つの領域に分かれています。中性子ビームは、右から

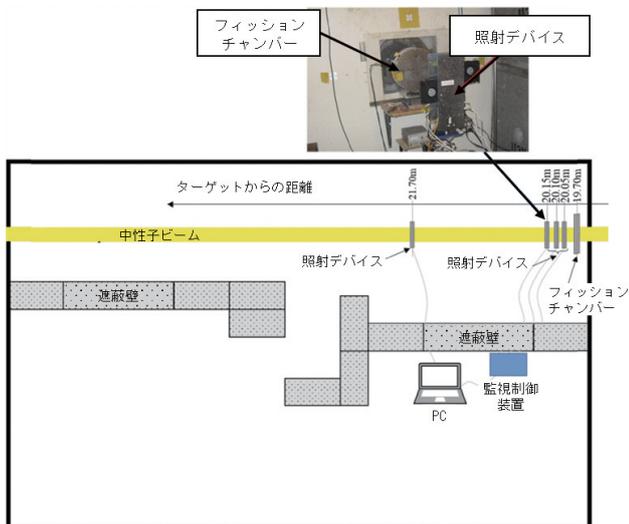


図5 実験体系

左へ照射されます。ここに照射用のFPGAを設置し、もう片方の領域に制御用の監視装置を設置しました。フィッションチャンバ測定器はタングステン中性子生成ターゲットから19.7 mの距離に設置しました。

5. 連続的なソフトエラー断面積の測定結果

3つのFPGAについて飛行時間に応じたエラーカウントを図6に示します。この飛行時間分布を中性子エネルギーへ変換し、(1)式に示した通り、照射した中性子フルエンスで割ることで、図7に示す中性子エネルギー毎のソフトエラー断面積を得ました[2]。この結果は、デバイスシミュレーション結果[6]と似た傾向を示しており、5 MeV未満のソフトエラーは酸素およびシリコンの弾性反跳によって引き起こされ、10 MeV付近の急激な増加は、(n,p)および(n,α)反応によって引き起こされます。

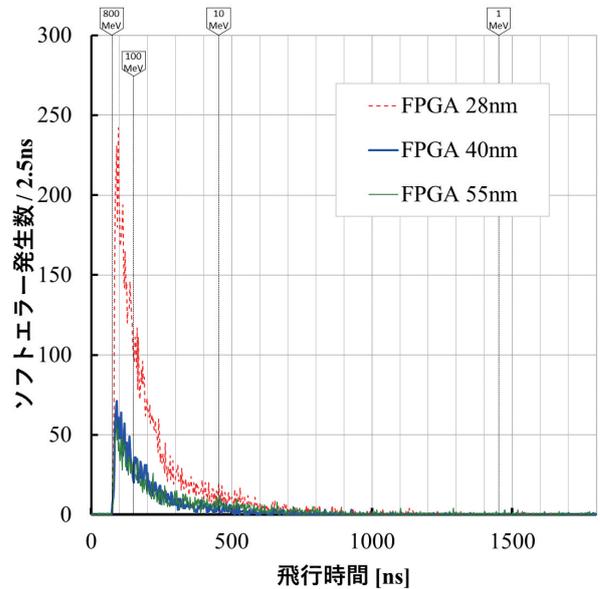


図6 ソフトエラーカウントの飛行時間分布[2]

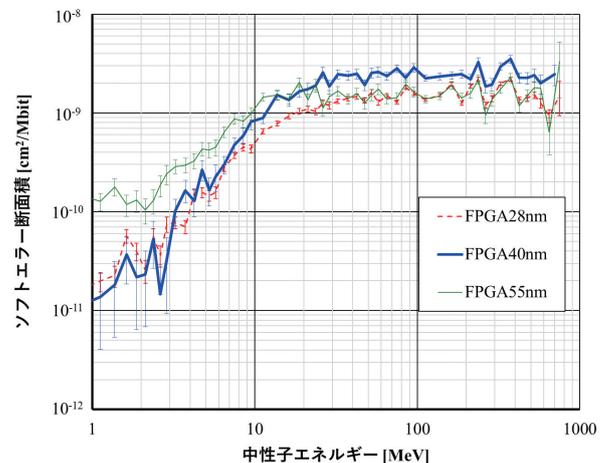


図7 エネルギー依存のソフトエラー断面積[2]

6. まとめ

TOF法により、FPGAの中性子エネルギー依存のソフトウェア断面積を測定する新しい手法を考案しました。この方法により、LANSCEのICE Houseにて1から800 MeVのエネルギー領域において、ソフトウェア断面積を測定することができました。これにより、今後、自然界と中性子スペクトルの異なる小型加速器中性子源などでのソフトウェア試験が活発になり、世の中を支える電子機器の信頼性向上に繋がると期待しています。

参考文献

- [1] H. Iwashita *et al.*, IEEE Trans. Nucl. Sci. 64 (2017) 689.
<https://ieeexplore.ieee.org/document/7742993>
 [2] H. Iwashita *et al.*, IEEE Trans. Nucl. Sci. 67

- (2020) 2363.
<https://ieeexplore.ieee.org/document/9201514>
 [3] NTT株式会社ニュースリリース“通信装置のソフトウェア対策、ITU-T国際標準制定” NTT. 2018-11-22.
<https://www.ntt.co.jp/news2018/1811/181122a.html>
 [4] K. Johansson *et al.*, IEEE Trans. Nucl. Sci. 45 (1998) 2519.
<https://ieeexplore.ieee.org/document/736493>
 [5] B. E. Takala, Los Alamos Science, Number 30 (2006) 96.
<https://permalink.lanl.gov/object/tr?what=info:lanl-repo/lareport/LA-UR-05-8767>
 [6] S. Abe and Y. Watanabe, IEEE Trans. Nucl. Sci. 61 (2014) 3519.
<https://ieeexplore.ieee.org/document/6975251>

J-PARC MLF 情報

2021B期の課題申請のうち、中性子線利用については成果公開課題として336件の申請があり、採択審査の結果、135件が採択となりました。うち、民

間企業からの課題は8件、5.9%でした。以下に採択された課題の分類を示します。

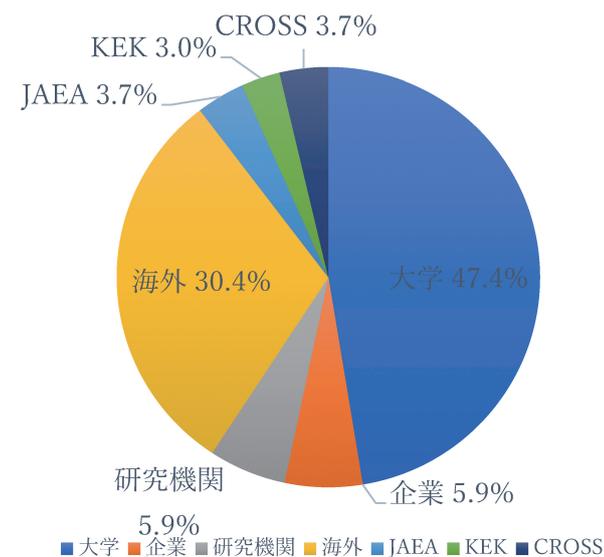


図1 2021B採択 成果公開課題の申請元分類

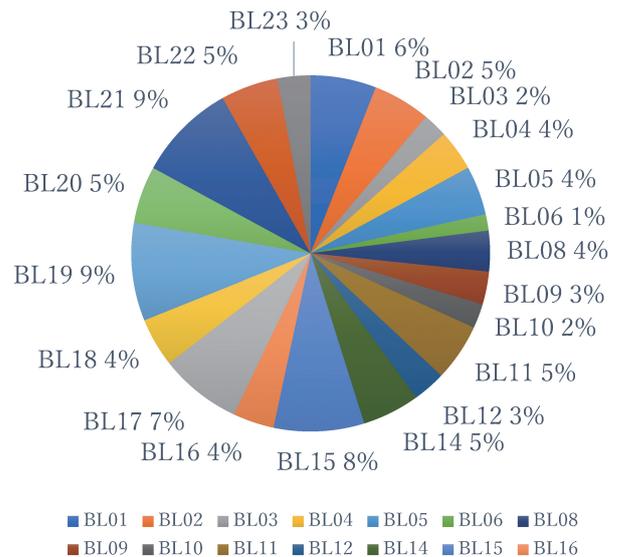


図2 2021B採択 成果公開課題の利用装置別分類

JRR-3 情報

JRR-3は、2021年2月26日に運転再開、同年7月12日に供用運転を開始しました。本年度中は、大きなトラブルもなく、7月12日～11月19日(4サイクル)の供用運転を当初の計画通り実施しました。2021年度の施設供用利用課題(第1回(通年)、第2

回(下期)及び随時課題)は、80課題(東大原子力専攻大学共同利用を含む)でした。以下に所内利用も含めた原子力機構所管のビーム実験装置の課題数と申請日数を示します。

	所内利用課題(件数)					施設供用利用課題(件数)				計
	IMT (商業利用)	独自研究	共同研究	受託研究	連携重点	成果非占有	成果占有	トライアル 1-入	大学共同 利用 原子力専攻	
MUSASI-L	1					1				2
HRPD	1	8				3				12
PNO	1				1	1				3
TAS-1	1	6	2			2				11
TAS-2	1	4	2			1				8
LTAS	1	5	2							8
SANS-J	1	11			1	20	8	3		44
RESA	1	2	2			3		1	6	15
SUIREN	1					1	3			5
PGA	1	2				7				6
TNRF	1	3	1		1		4			18
CHOP		1								1
CNRF	1	1						1	1	4
合計*	12	43	9	0	3	39	15	5	21	147
合計*			67 (45%)				80 (54%)			

*複数装置申請の重複を含みます。

表1 2021年度施設供用課題申請数集計

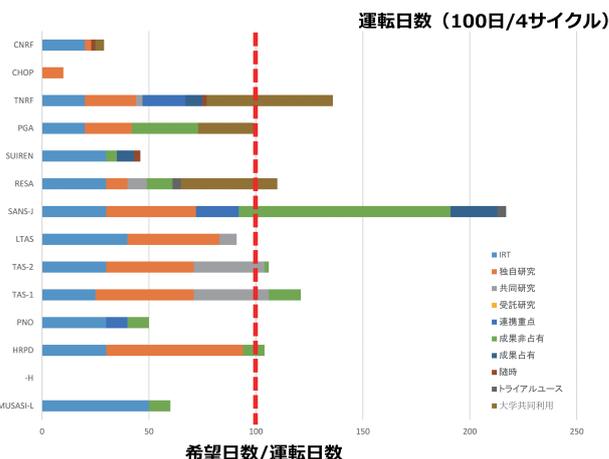


図1 2021年度施設供用課題申請数集計

活動報告

◆「要望書」を提出

本年度も協議会から文部科学大臣宛の「要望書」を提出しました。内容は、中性子施設が産業界が様々な視点から見て、より使いやすくなるための提案です。提出は2021年7月13日に中村副会長が文部科学省を訪問し、千原由幸・科学技術学術政策局長、生川浩史・研究開発局長局長対して行いました。



千原局長へ提出



生川局長へ提出

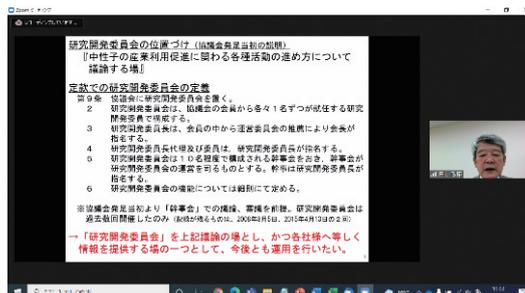
◆産業応用セミナーを開催(2021年9月21日、27日 JSR株式会社)

JSR(株)殿での産業応用セミナーを開催しました。今回は、同社のご要望に応じて高分子材料、生体

物質の解析技術を中心に講演を行いました。今回初めての試みとして、関連する特別講演を2日目に開催し、本セミナーがより理解を深めていただく場となることをめざしました。21日は23名、27日は24名の参加があり、熱心な議論が交されました。

◆研究開発委員会を開催(2021年10月7日)

協議会参加全社の研究開発担当の方の会議体である、研究開発委員会を10月7日にリモートで開催しました。暫くの間、この会議は幹事会だけの開催となっていましたが、リモートでの開催が一般化したこともあり、各社への情報提供、意見交換の場として、徐々に開催しました。今回は、一昨年来の協議会の運



営、特に研究会の運営見直しの考え方と、実行の現状を中心に事務局からご説明し、意見交換を行いました。2022年度からはこの委員会を定期的を開催することを予定しています。

◆中性子実験技術基礎講習会(レベル1講習会)を開催(2021年10月21日)

日本中性子科学会、CROSSとの共催で毎年開催している本年度のレベル1講習会をZOOMによるリモートで開催しました。本年度からは新たな講師の皆様も迎え、中性子の基礎から応用例について、回折、反射率、小角散乱、イメージング、即発 γ 線、準弾性・非弾性散乱、産業利用のそれぞれについて講演をいただきました。

「中性子の基礎」	野間 敬(CROSS)
「回折(結晶構造)」	小野寺陽平(京都大学)
「回折(材料工学)」	川崎 卓郎(JAEA)
「反射率法」	阿久津和宏(CROSS)
「小角散乱」	元川 竜平(JAEA)
「イメージング」	林田 洋寿(CROSS)
「即発ガンマ線分析」	瀬川麻里子(JAEA)
「準弾性・非弾性散乱」	小田 達郎(東京大学)
「中性子の産業利用」	峯村 哲郎(茨城県)



今回は当日の講義の映像を11月末日まで特設サイトに掲載し、参加者が復習を行うことができるようにしました。また、当日の講演時間内では説明が不足した先生には、講義を再収録いただき、初学の方により理解できる講義となるよう、ご配慮いただきました。参加者は、大学教員7名、大学学生23名、研究機関21名、民間13名(うち協議会11名)。合計64名でした。

◆CBI研究機構量子構造生命科学研究所／中性子産業利用推進協議会生物・生体材料研究会合同シンポジウムを開催(2021年10月29日)

生物・生体材料研究会(主査：上村みどり氏)をCBI研究機構・量子構造生命科学研究所(所長：上村みどり氏)のとの合同シンポジウムとして開催しました。創薬に繋がる観点から、以下の4演題で(講師の方の敬称略)前半をクライオ電子顕微鏡によるタンパク質構造解析の最新動向について、後半は中性子線によるタンパク質構造解析の最新動向について講演が行われました。

「クライオ電子顕微鏡を活用した構造創薬」
藤吉好則((株)CeSPIA / 東京医科歯科大学)

「クライオ電子顕微鏡法
～高難度タンパク質構造解析への挑戦～」
葦原雅道(Thermo Fisher JAPAN)

「中性子利用で広がる量子構造生命科学の世界
～SAXS、SANSを駆使する試料作製から解析まで～」
杉山正明(京都大学)

「中性子結晶解析でかなうウェットとドライの融合」
玉田太郎(量子科学技術研究開発機構)

参加登録者は、CBI研究機構4名、大学教員・学生29名、研究機関24名、一般企業69名、協議会参加企業18名の合計144名でした。

お知らせ

◆研究会開催予定

第2回中性子産業利用の研究会(茨城県中性子利用研究会／iMATERIA研究会 合同開催)

2022年1月11日(火)12:50～17:30(リモート開催)

金属材料研究会

2022年1月18日(火)13:00～15:00(会員企業限定)

有機・高分子材料研究会

2022年1月25日(火)13:00～15:00(リモート開催)

磁性材料研究会

2022年2月16日(水)14:00～16:30

東北大学金属材料研究所講堂にて開催。

(リモート中継を行うハイブリッド開催)

※前日2月15日(火)13:00から2月16日(水)12:30まで

金属材料研究所ワークショップ「二大中性子源(J-PARC、JRR-3)を活用する偏極中性子スピン科学の推進」が開催されます。本研究会はこのワークショップ

ブと連続して開催します。

CBI 研究機構量子構造生命科学研究所／生物・生体材料研究会合同シンポジウム

2022年3月4日(金)9:00～12:00(リモート開催)

ものづくり基盤研究会

2022年3月10日(木)10:00～12:00(リモート開催)

液体・非晶質研究会

2022年3月11日(金)10:30～17:00(リモート開催)

開催の詳細、上記以外の研究会開催情報については、協議会からのメール配信または協議会のウェブサイトでご確認下さい。

<http://j-neutron.com/>

◆新たな研究会を設置

協議会参加各社からの要望もあり、解析技術研究会として「イメージング研究会」を設置することにしました。この研究会では、J-PARC MLFの「パルス中性子イメージング研究会」と連携して、最新の情報提供を行う計画です。開催は2022年3月を予定しています。詳細は協議会からのメール配信または協議会のウェブサイトでご確認下さい。

◆2021年度中級者向けZ-Code講習会開催 (2021年12月1日～2022年2月28日)

本年度の本講習会も収録した映像をウェブ上で視聴して学習するオンデマンド方式で開催しています。参加申込等詳細は協議会のウェブサイトでご確認下さい。

<http://www.j-neutron.com/cat59/post-241.html>

◆2021年度量子ビームサイエンスフェスタ 開催(2022年3月7日～9日) (第13回MLFシンポジウム, 第39回PFシンポジウム)

本年の量子ビームサイエンスフェスタはオンラインで開催されます。開催の詳細、参加登録等の詳細は同フェスタのサイトでご確認下さい。

<https://mlfinfo.jp/sp/qbs-festa/2021/>

◆中性子・ミュオン産業利用報告会開催日程

2022年7月14日(木)午後～7月15日(金)終日。
秋葉原コンベンションホール。

<http://www.akibahall.jp/index.html>

◆中性子産業利用推進協議会総会開催日程

2022年7月14日(木)午前。秋葉原コンベンションホール。

<http://www.akibahall.jp/index.html>

◆リンクのご案内

中性子・ミュオン利用ポータルサイト J-JOIN : <https://jrr3ring.jaea.go.jp/jjoin/>

J-PARC : <http://j-parc.jp/c/index.html>

J-PARAC MLF (Meet @ MLF) : <https://mlfinfo.jp/ja/>

J-PARAC MLF (Meet @ MLF) 成果検索 : <https://mlfinfo.jp/ja/reports/published.html>

J-PARCセンターユーザズオフィス : <http://is.j-parc.jp/uo/ja/index.html>

茨城県中性子ビームライン : <https://www.pref.ibaraki.jp/sangyo/kagaku/tyusei/bl-top.html>

J-PARC MLF 成果検索 : <https://mlfinfo.jp/ja/publications.html>

JRR-3 : <https://jrr3.jaea.go.jp/>

JRR-3 Twitter : https://twitter.com/JAEA_JRR3

JRR-3 ユーザズオフィス : <https://jrr3uo.jaea.go.jp/>

(一財)総合科学研究機構(CROSS)中性子科学センター : <https://neutron.cross.or.jp/ja/>

J-PARC MLF 利用者懇談会 : <http://is.j-parc.jp/MLFuser/>

茨城県県内中性子利用連絡協議会 : <http://www.htc.co.jp/neutron/>

日本中性子科学会 : <https://www.jsns.net/>

日本中性子科学会・国内の中性子実験施設 : <https://www.jsns.net/facilities/>

日本中間子科学会 : <http://jmeson.org/>

季報「四季」編集委員会

委員長 杉山 純(CROSS)

委員 勅使河原 誠(J-PARC)・佐野 亜沙美(J-PARC)・水沢 多鶴子(CROSS)・

富安 啓輔(日産アーク)・原田 久(ヤマハ発動機)

事務局 日比 政昭・綿引 美知枝(中性子産業利用推進協議会)

※「四季」のバックナンバーは下記のサイトでご覧いただくことができます : <http://www.j-neutron.com/siki.htm>

中性子産業利用推進協議会(IUSNA) 季報「四季」【21年・冬】Vol.53

発行日 2021年12月25日

発行元 中性子産業利用推進協議会

〒319-1106 茨城県那珂郡東海村白方162-1 いばらき量子ビームセンター D201

TEL:029-352-3934 FAX:029-352-3935 E-mail:info@j-neutron.com

<http://j-neutron.com/>