

2024 年度年次報告書

計測・解析プロセス革新のための基盤の構築

2024 年度採択研究代表者

柴田 基洋

東京大学 生産技術研究所

助教

計算データに基づく電子分光計測の統計モデリング

研究成果の概要

本年度は、構造と方位を反映したスペクトル生成モデルの作成と潜在変数の分析、ノイズが重畳したスペクトルからの成分推定、関連共同研究に取り組んだ。

有機分子の炭素 K 端の内殻電子励起スペクトルデータベースを対象に、構造と方位をグラフニューラルネットワーク (GNN) で適当な次元の潜在変数にエンコードし、潜在変数をフィードフォワードニューラルネットワークでデコードすることでスペクトルを回帰するモデルの開発を行った。さらに、潜在変数が分子の方位や励起サイトの結合状態と相関すること、訓練データの潜在変数分布が正規分布に近似されデコーダ部が生成モデルとして機能することを実証した。

スペクトル成分の推定は、試験的に選んだ有機分子のサイトについて擬似的に計測スペクトルを作成し、特徴量空間からスペクトルを生成する生成モデルをマルコフ連鎖モンテカルロ法 (MCMC) と組み合わせた統計モデルにより行った。単成分については、元となるスペクトル成分を含んだ信用区間の推定が行えることを確認した。また、二成分系については、複数成分の可換な組み合わせが MCMC で得られるため個々の成分を考える際に分離が必要となるが、主成分分析を用いることで、成分の分離により個々の成分の信用区間を得ることができた。ただし、成分分離の精度評価や、多成分の分離手法には検討が必要である。

関連する共同研究として、スペクトルからの結合状態評価の高度化に向け、有機分子の投影電子状態密度と結合状態を表すオーバーラップポピュレーションを網羅的に第一原理計算し、GNN により回帰することで、結合状態を高速に予測するモデルを開発した。また、統計モデリングの回折図形への展開とマルチモーダル化に向け、BaTiO₃ の分極ドメイン積層系に対する収束電子回折図形を用いた逆解析に関する共同研究を行い、分極ドメインの積層順も含めた予測ができることを明らかにした。

【代表的な原著論文情報】

- 1) Nakagawa, R., Takahara, I., Shibata, K., Mizoguchi, T. Prediction of the overlap population diagram of organic molecules based on a graph neural network. *Chemistry Letters*, **54**(3) upaf038 (2025).