

多結晶電子回折像の解析における
データ科学的手法の推定モデル

筑波大学
図書館情報メディア研究科
2020年3月
鈴木 健太

目次

第 1 章	はじめに	1
第 2 章	諸定義	3
2.1	電子回折像	3
2.2	CNN (畳み込みニューラルネットワーク)	5
第 3 章	提案手法	6
3.1	手法の流れ	6
3.1.1	手法 1	6
3.1.2	手法 2	7
3.2	推定モデルの評価指標	8
3.2.1	損失関数	9
3.2.2	標準偏差	9
3.3	学習モデルの構築	10
3.4	学習の試行と精度の測定	12
3.4.1	予備実験 1	12
3.4.2	予備実験 2	14
3.4.3	学習方法の決定	17
3.5	データバランスを考慮した学習データの構築	19
第 4 章	評価実験	27
4.1	実験 1	27
4.2	実験 2	29
4.3	実験 3	30
4.4	実験結果のまとめと考察	32
第 5 章	むすび	34
	謝辞	35
	参考文献	36

第 1 章

はじめに

結晶を評価する手法の一つに、電子回折法 (ED : Electron Diffraction) [1] が存在する。これは、結晶の表面に電子線を照射して「電子回折像 (画像)」を得た後、その上に描かれている「電子回折図形 (電子回折パターン)」を解析することで、結晶を同定する手法である。類似した手法には、X 線を照射する X 線回折法 (XRD : X-ray Diffraction) [2] や、中性子線を照射する中性子回折法 (ND : Neutron Diffraction) [3] がある。回折図形は、回折の観測条件や結晶構造の状態などにより様々に変化するが、それらの情報を人手で正確に判断するのは極めて困難である。故に、回折像から結晶情報を自動 (機械) 的に推定することができれば、結晶の評価をより容易に行うことが可能になると考えられる。

一般に、結晶情報は、電子回折法をはじめとした回折実験を通じて解析される。対称性の高い単純な結晶構造ほど、結晶の評価は容易である。他方、対称性の低い複雑な結晶構造の場合は、多数の回折ピークが観測されるため、結晶の評価が困難となる。それ故、計算機を用いた回折パターンシミュレーション [4] [5] がしばしば併用される。これは、様々な結晶情報を数値化した「構造パラメータ (結晶構造に関する情報や電子線の入射方位など)」と呼ばれる値を入力とし、シミュレータにかけて画像を生成した後、実際の回折実験で得られた回折像と比較するといった手法 (順問題) である。しかしながら、この手法では、構造パラメータを先に仮定しなければならないため、相応の技術と経験を要する。一方、本研究では、画像を入力とし、構造パラメータの推定を行うことを考える (図 1.1)。すなわち、上記問題の逆問題となっている。入力する画像は、実際の回折実験によって得られたデータ (回折像) であり、特別な技術や経験を必要としない。

本研究では、深層学習の一種である「畳み込みニューラルネットワーク (以下、CNN)」を利用し、電子回折像を学習させて構造パラメータの推定を行う。なお、構造パラメータには様々な種類が存在するが、今回の推定対象は「電子線の入射方位 (結晶方位)」とする。入射方位は 3 次元ベクトルである。また、本研究で扱う多結晶 TiO_2 の電子回折像は、2 タイプの単結晶 TiO_2 から構成されているため、二種類の入射方位を有する。そこで、電子回折像から二種類の入射方位を同時に推定する手法のほか、二段階のプロセスで推定する手法も提案する。さらに、予備実験を通して、最適な学習方法を決定する。

評価実験では、489,500 枚の多結晶 TiO_2 電子回折像を用いて複数の学習データを作成し、各推定モデルの精度を検証した。その結果、(全 1 万枚中) 約 8 割のテストデータについては、本手法が有効である可能性を示すことができた。

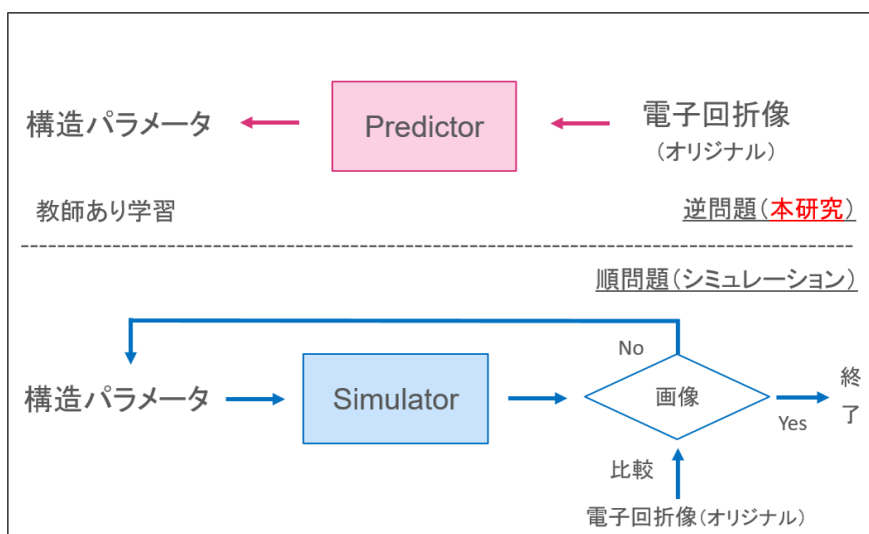


図 1.1 従来手法（順問題）と本手法（逆問題）の対比

関連研究

材料科学・工学と情報（データ）科学の融合学術分野は、マテリアルズインフォマティクス（MI）[6]として、近年注目されつつある。関連した研究には、階層型クラスタリングを用いてスペクトル（X線や電子線を物質に照射したときの応答）の分類を行う清原らの手法[7]や、ランダムフォレストを利用してX線回折パターンの分類を行う鈴木らの手法[8]がある。しかしながら、著者の知る限り、回帰問題を扱った手法（例えば、本研究のような、回折像から構造パラメータを推定するといった手法）はこれまで提案されていない。なお、電子線の入射方位のみであれば、既に解析プログラム[9]が存在する。

論文の構成

本論文の構成は以下の通りである。第2章では、電子回折像とCNNの基本事項を述べる。第3章では、提案手法の内容について詳述する。第4章では、評価実験の説明、実験結果の提示及び考察を行う。最後に、第5章にて、本研究のまとめと今後の課題・展望を記す。

第 2 章

諸定義

本章では、電子回折像と CNN の基本事項について述べる。

2.1 電子回折像

電子回折像とは、結晶の表面に電子線を照射することで生じる、電子回折パターンを画像に落とし込んだものである。電子回折像の例を図 2.1 及び図 2.2 に示す。

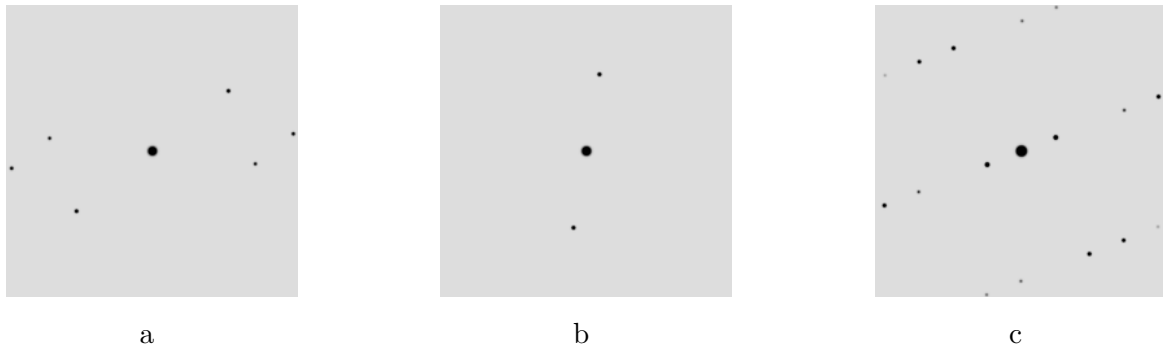


図 2.1 電子回折像 (単結晶体)

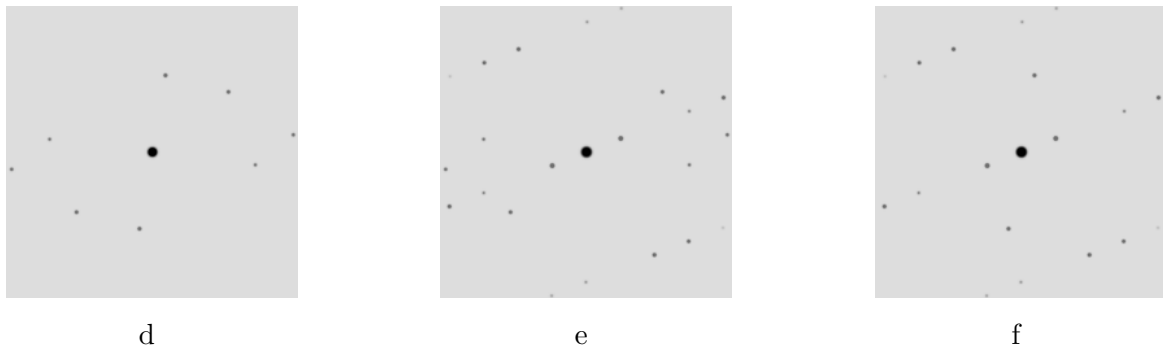


図 2.2 電子回折像 (多結晶体)

図 2.1 は、いずれも単結晶 TiO_2 （二酸化チタン）の電子回折像であり、電子線の入射方位のみが異なる。図 2.2 は、図 2.1 の各 2 枚を 0.5 : 0.5 の強度比で合成した、多結晶 TiO_2 の電子回折像（d : a と b, e : a と c, f : b と c の合成画像）である。上図のように、電子回折像には、黒色や灰色の斑点がいくつか写っている。これは回折スポットと呼ばれるものであり、ブラッグの条件（ $2d \sin \theta_B = n\lambda$, d : 格子面間隔, θ_B : ブラッグ角, n : 自然数, λ : 波長）を満たした電子の回折波によって生成される。複数の回折スポットにより形成される模様は、電子回折図形 [10] と呼ばれる。電子回折法は、電子回折図形（透過光（中心点）とそれら複数の回折スポット間の位置関係）を解析することで、結晶情報の同定を可能にしている。電子回折図形は、電子線の入射方位・物質の種類・結晶構造の状態などによって様々に変化する。また、多結晶は複数の単結晶から構成されており、結晶の種類や強度比などによって無限の組み合わせが考えられる。

入射方位が自明でないのは、結晶の物理的な切り口面に対して、その面に原子が平行に並んでいるとは限らない（斜めになっている）からである（図 2.3）。すなわち、入射方位とは、結晶の切り口に対する入射方位ではなく、結晶の格子に対する入射方位のことを指している。なお、図 2.3 において、カメラ長を L 、透過光から回折スポットまでの距離を R とすると、 θ_B が十分小さい場合は

$$\frac{R}{L} = \tan 2\theta_B \approx 2\theta_B \quad (2.1)$$

が成立する。

また、ブラッグの条件より、 θ_B が十分小さい場合は

$$\frac{\lambda}{d} = 2 \sin \theta_B \approx 2\theta_B \quad (2.2)$$

も成立する。

したがって、(2.1) 及び (2.2) 式から、 $R \cdot d = \lambda \cdot L$ (λ, L : 観測装置・条件に依存) を得る。

上式より、 d の算出には R の測定が必要不可欠なため、結晶構造解析を行う上で R は重要な要素となる。

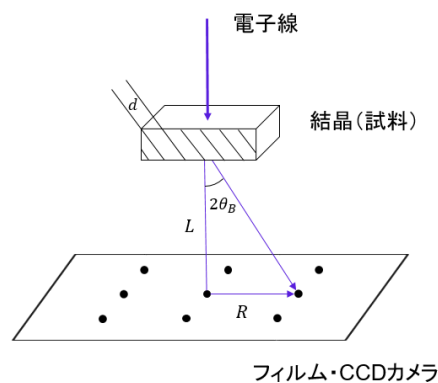


図 2.3 電子回折実験 [11]

2.2 CNN（畳み込みニューラルネットワーク）

Convolutional Neural Network : CNN [12] とは、多層ニューラルネットを用いた深層学習の一種であり、画像認識の分野で成果を挙げている。隣接層のユニット（ニューロン）が全て結合している通常のニューラルネットワークに対し、CNN は畳み込み層（及びプーリング層）と呼ばれる層において、特定のユニット同士のみが結合している。このような、空間的特性を考慮した設計により、画像の特徴を高い精度で抽出することが可能になる。一般的な CNN のモデルを図 2.4 に示す。

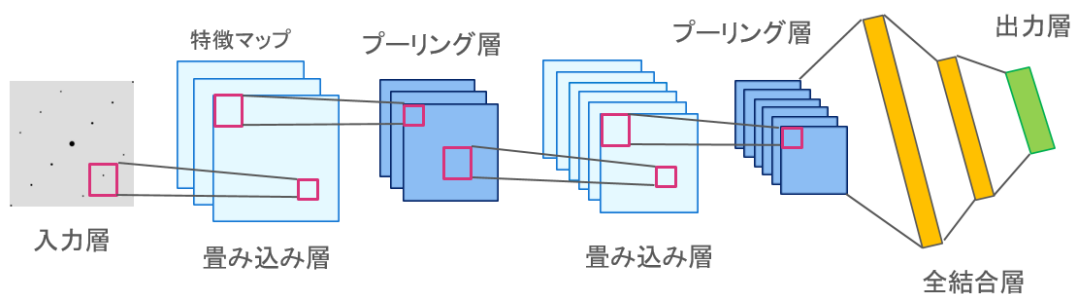


図 2.4 CNN の基本構造

図 2.4 のように、CNN は通常、畳み込み層（及びプーリング層）を複数回繰り返す。畳み込み層（Convolution Layer）では、任意の大きさのフィルタ（カーネル）を入力画像に重ね合わせ、任意の画素ずつ移動（ストライド）させることにより、画像の濃淡パターンを検出する。その際、フィルタは種類の異なるものを複数枚用いるのが一般的である。プーリング層（Pooling Layer）では、畳み込み処理によって抽出された特徴を圧縮する。これにより、以降の計算処理を軽減できる。また、特徴の位置感度を低下させ、位置に対するロバスト性を高める役割も持つ。それ故、画像がわずかに移動・回転したところで、出力結果に大きな変化を与えることはない。プーリング処理には、畳み込み層から出力された画像（特徴マップ）をいくつかの均等な領域に分割し、各々の領域内で最も大きな画素値を出力する最大値プーリング（Max Pooling）や、各々の領域における画素値の平均値を出力する平均値プーリング（Average Pooling）といった手法が存在する。なお、プーリング層から出力された画像も特徴マップと呼ばれる。以下は、畳み込み処理（図 2.5）とプーリング処理（図 2.6）の例である。

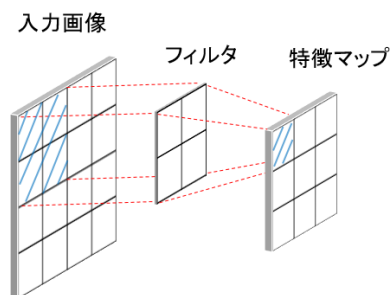


図 2.5 畳み込み処理

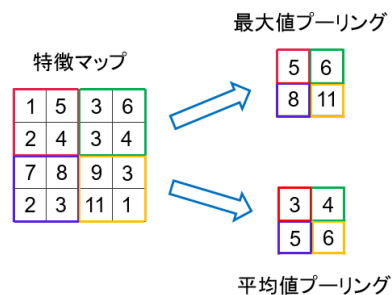


図 2.6 プーリング処理

第 3 章

提案手法

本章では、まず、提案手法の概要・推定モデルの評価指標・学習モデルの構築方法について説明する。その後、学習の試行と精度の測定を実施する。また、予備実験を通して、最適な学習方法を決める。最後に、データバランスを考慮した学習データの構築を行う。

3.1 手法の流れ

本研究では、深層学習の一種である CNN を用いて、電子回折像から構造パラメータを推定する。具体的には、電子回折像と構造パラメータの対を CNN で学習（教師あり学習）し、推定モデルを生成する。その後、得られた推定モデルに対して、未知の電子回折像を入力し、構造パラメータの推定値を出力するという流れである。

第 1 章で述べたように、今回の解析対象は「多結晶 TiO_2 (anatase) の電子回折像」とする。これらのデータは全て、「国立研究開発法人物質・材料研究機構 (NIMS)」より提供されたものである。また、構造パラメータは複数項目（例：結晶の「欠陥」・「伸び」・「不純物」・「格子定数」など）存在するが、今回の推定対象は「電子線の入射方位」とする。入射方位は x, y, z 成分を持った 3 次元ベクトルである。なお、多結晶 TiO_2 電子回折像は二種類の入射方位を持つ。

当初は、Multi-Layer Perceptron : MLP（多層パーセプトロン）を用いた手法も提案する予定であった。しかしながら、ハイパーパラメータの変更をいくつか試みたものの、学習が一向に収束しなかったため、今回は CNN を用いた手法のみを提案することにした。

3.1.1 手法 1

手法 1 では、二種類の入射方位を同時に推定する。流れを図 3.1 に示す。

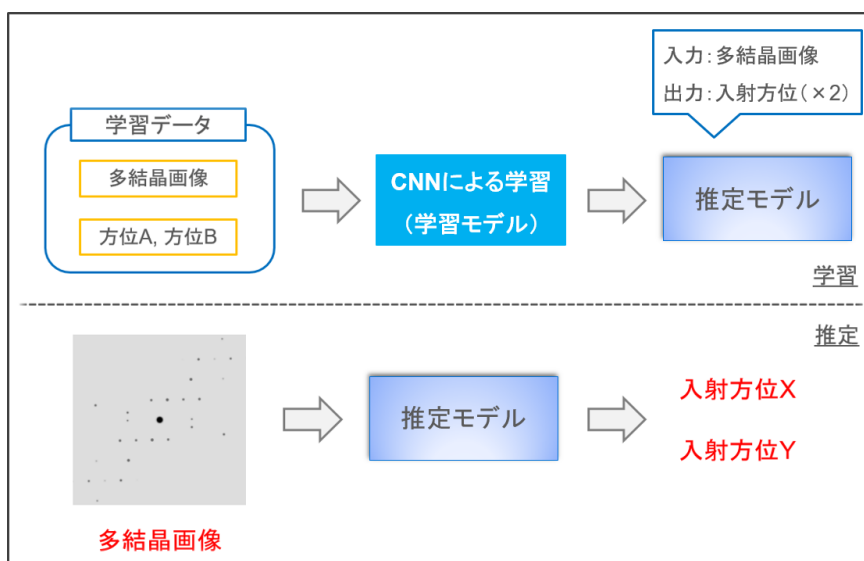


図 3.1 手法 1 の流れ

図 3.1 のように、多結晶 TiO_2 電子回折像と二種類の入射方位 A, B の対を CNN で学習し、推定モデルを生成する。その後、未知の多結晶 TiO_2 電子回折像を推定モデルに入力し、入射方位の推定値 X, Y を出力する。

3.1.2 手法 2

手法 2 では、二種類の入射方位を二段階のプロセスで推定する。流れを図 3.2 及び図 3.3 に示す。

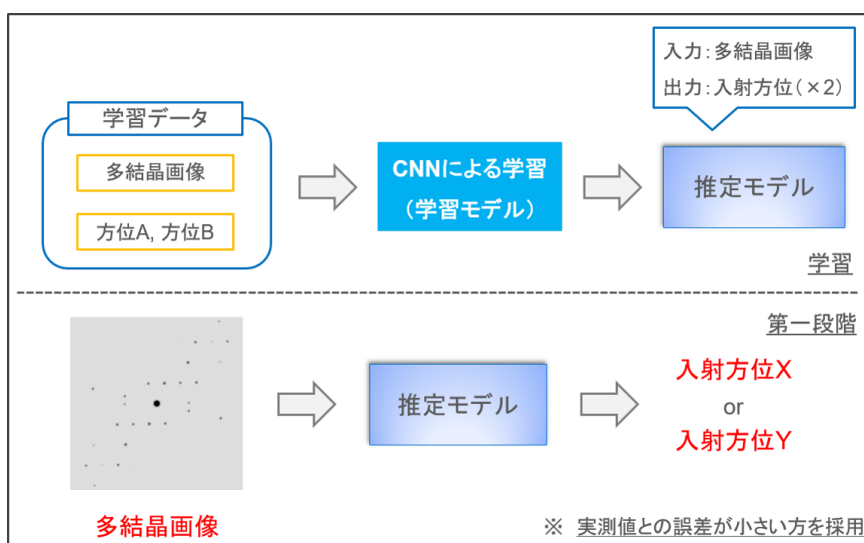


図 3.2 手法 2 の流れ (第一段階)

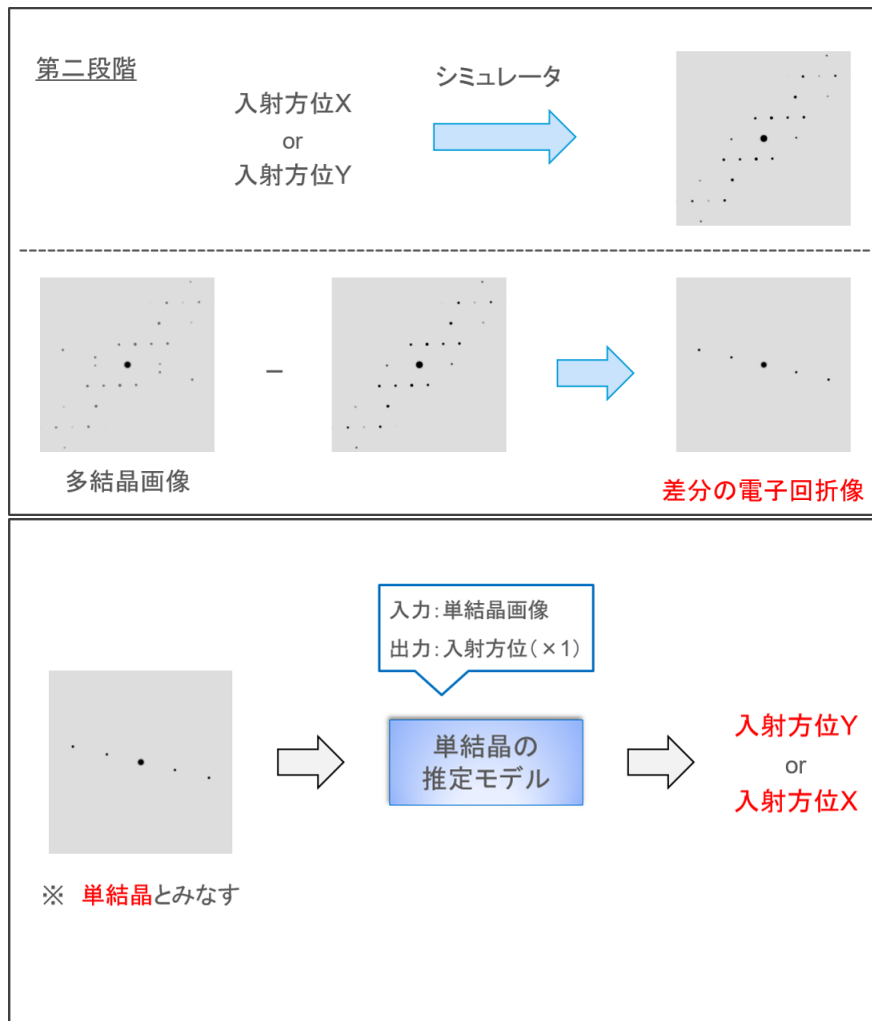


図 3.3 手法 2 の流れ (第二段階)

図 3.2 の第一段階では、まず、二種類の入射方位を同時に推定する (手法 1 のプロセスと同様)。その後、実測値と推定値の誤差をそれぞれ計算し、誤差が小さい方の推定結果 (X or Y) のみを取り扱う。

図 3.3 の第二段階では、第一段階で判明した入射方位 (X or Y) をシミュレータに入力し、電子回折像を生成する。この電子回折像の回折スポットを、第一段階で入力した多結晶 TiO_2 電子回折像から消去する。その結果、もう一方の電子回折像が抽出される。得られた電子回折像を単結晶 TiO_2 の電子回折像とみなし、単結晶用の CNN モデルを用いて、もう一方の入射方位の推定値 (Y or X) を出力する。

なお、今回は第一段階 (図 3.2) のみに着目し、その推定精度を検証することとする。

3.2 推定モデルの評価指標

本節では、推定モデルの精度測定に用いる、二種類の評価指標 (平均絶対誤差 MAE 及び標準偏差 σ) について説明する。

3.2.1 損失関数

損失（誤差）関数とは、推定値と実測値の誤差を計算するための関数である。回帰問題では、一般的に Mean Squared Error : MSE（平均二乗誤差）が用いられる。しかしながら、本研究で扱うデータのように、推定値と実測値の差分 d が $0 < |d| < 1$ の範囲を取り得る場合、二乗するとその値はより細かくなってしまふ。そのため、本研究では、より直観的な把握ができるように、「Mean Absolute Error : MAE（平均絶対誤差）」を採用することとする。

ここで、推定値を \hat{x}_i ($i = 1, 2, \dots, n$)、実測値を x_i ($i = 1, 2, \dots, n$) とすると、MAE は式 (3.1) のように表される。

$$MAE = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n |\hat{x}_i - x_i| \quad (3.1)$$

ただし、これはデータが実数（スカラー）の場合に限る。電子線の入射方位は3次元ベクトルであるため、誤差を計算するには上式を拡張する必要がある。

今、推定値が $[\hat{x}_i, \hat{y}_i, \hat{z}_i]$ ($i = 1, 2, \dots, n$)、実測値が $[x_i, y_i, z_i]$ ($i = 1, 2, \dots, n$) の形で与えられているとする。このとき、MAE を式 (3.2) のように拡張する。

$$MAE = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n (|\hat{x}_i - x_i| + |\hat{y}_i - y_i| + |\hat{z}_i - z_i|) \quad (3.2)$$

本研究では、式 (3.2) を損失関数として用いることとする。また、もう一つの評価指標である「標準偏差 (3.2.2 小節を参照)」の算出に、式 (3.2) を用いる。

3.2.2 標準偏差

先程の MAE には、データのバラツキを考慮しないという欠点が存在する。すなわち、極端な外れ値が含まれていた場合、推定モデルの精度に大きな偏りが生じてしまう。そこで、標準偏差 σ を導入する。MAE と σ の双方を観察することにより、推定モデルの精度に対して、より厳密な（データのバラツキを考慮した）評価を行うことができる。なお、 σ は以下の式 (3.3) で表される。

$$\sigma = \sqrt{\frac{1}{n} \sum_{i=1}^n (a_i - MAE)^2} \quad (3.3)$$

ただし、 $a_i = |\hat{x}_i - x_i| + |\hat{y}_i - y_i| + |\hat{z}_i - z_i|$ とする。

3.3 学習モデルの構築

本研究では、単結晶 TiO_2 の学習モデルを起点に、多結晶 TiO_2 の CNN 学習モデルを構築する。なお、単結晶 TiO_2 の学習モデルは図 3.4 の通りである。

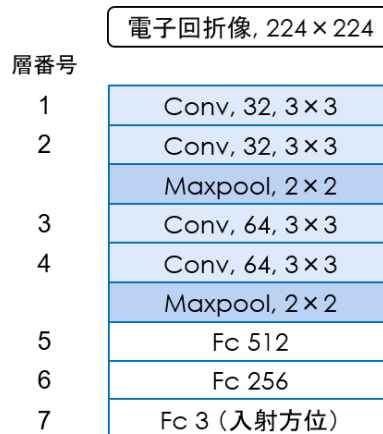


図 3.4 単結晶 TiO_2 の学習モデル

図 3.4 は、4つの畳み込み層（及び2つのプーリング層）、2つの全結合層、1つの出力層から構成される、7層の CNN モデル（最適化手法：Adadelta（Keras のデフォルトパラメータを適用）、バッチサイズ：16、プーリング層 / 全結合層の直後に 0.25 / 0.5 のドロップアウトを挿入）である。ただし、多結晶 TiO_2 は二種類の入射方位を持つため、出力層がもう一つ必要となる。二種類の出力層を持つ学習モデルを図 3.5 に示す。

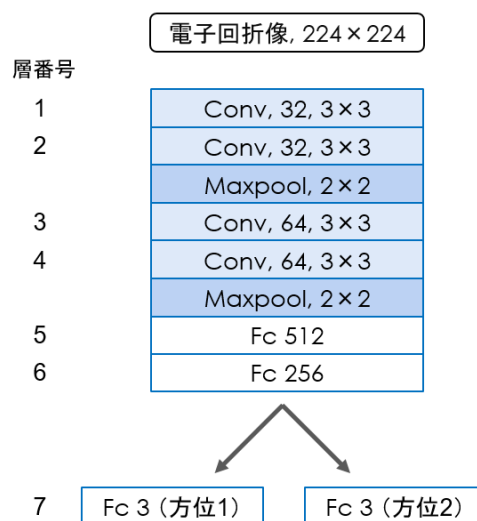


図 3.5 二種類の出力層を持つ学習モデル

図 3.5 のモデルで学習を実行したところ、学習データの数がおおよそ 10 万枚（本研究で扱うデータ数は 499,500 枚）を超える場合、サーバ本体のメモリ不足により、プログラムは強制終了されることが判明した。それ故、今回は最適化手法のほか、学習データの数（10 万枚）及び画像サイズ（ 224×224 ）も固定し、以下の手順に従って学習モデルを構築することとする。

1. 4 層（畳み込み層）を起点とし、学習が収束しなくなるまで、2. 及び 3. の検証を繰り返す。
2. 畳み込み層を 2 層（及びプーリング層を 1 層、0.25 のドロップアウトを 1 つ）追加する。
3. 2. の結果に対して、最適なバッチサイズ（16, 32, ...）及び全結合層の層数を決定する。

その際、バッチサイズの算出については、以下の計算式を参考にする。

$$\text{必要メモリ量 (GB)} = (\text{ユニット数} \times \text{バッチサイズ} + \text{パラメータ数}) \times 8e - 9 \quad (3.4)$$

式 (3.4) は、ニューラルネットワークの学習に必要なメモリ量を推定する計算式 [13] である。ユニット数及びパラメータ数は学習モデル構築時に算出可能であり、また、本研究で使用する GPU のメモリは約 11GB であるから、

$$(\text{ユニット数} \times \text{バッチサイズ} + \text{パラメータ数}) \times 8e - 9 \leq 11 \text{ (GB)} \quad (3.5)$$

を満たすバッチサイズを全て求めればよいことになる。

また、全結合層（ユニット数：1024, 2048, ...）を追加する際は、1 層につき 0.5 のドロップアウトを 1 つ付与することとする。

(i) 畳み込み層が 4 層のとき

式 (3.5) を満たすバッチサイズは、16, 32, 64, 128 であった（ユニット数：6,273,542, パラメータ数：102,958,822）。それぞれの値で学習を実行（100Epoch）したところ、いずれのバッチサイズにおいても、学習は収束した。このとき、1Epoch あたりの学習時間は、各 9 分、7 分、5 分、4 分であった。一般的に、バッチサイズが小さいほど、推定モデルの精度は高くなりやすい。しかしながら、今回は推定モデルの精度だけでなく学習時間も考慮し、バッチサイズを 128 に設定することとした（MNIST の手書き文字（6 万枚）も、バッチサイズは 128 に設定されている。また、10 万枚という学習データに対して、16 ~ 128 の差が推定モデルの精度に大きな影響を与えるとは考えにくい）。

一方、全結合層（ユニット数：1024）を 1 つ追加すると、メモリ不足でプログラムが動作しなかった（ユニット数：6,275,590, パラメータ数：206,244,582 より、計算上の必要メモリ量は約 8GB なので、本来プログラムは動作するはずである）。

(ii) 畳み込み層が6層のとき

式(3.5)を満たすバッチサイズは、(i)と同様、16, 32, 64, 128であった(ユニット数:7,176,710, パラメータ数:51,800,038)。しかしながら、いずれのバッチサイズにおいても、学習は収束しなかった。また、全結合層(ユニット数:1024)を1つ追加しても、学習は一向に収束しなかった(こちらの場合は、プログラムが動作した)。

したがって、多結晶 TiO₂ 電子回折像の学習モデルは、4つの畳み込み層(及び2つのプーリング層)、2つの全結合層、1つの出力層から構成される、7層のCNNモデルである(図3.5と同様)。最適化手法はAdadelata, バッチサイズは128であり、プーリング層/全結合層の直後に0.25/0.5のドロップアウトを挿入している。また、GPUの必要メモリ量は約7GBである。

3.4 学習の試行と精度の測定

本節では、3.3節で構築した学習モデルを用いて学習を行う。その後、生成された推定モデルの精度を各手法に従って測定する。また、より多くの電子回折像を学習させる方法について議論する。

実験環境は以下の通りである。

- OS (nslab3 サーバ) : Ubuntu 16.04.3 LTS (GNU/Linux 4.4.0-97-generic x86_64)
- サーバ本体のメモリ (RAM) : 32 GB
- CPU : Intel(R) Xeon(R) CPU E5-2620 v4 @ 2.10GHz (8 cores)
- GPU : GeForce GTX 1080 Ti (11 GB)

3.4.1 予備実験 1

はじめに、499,500枚から15万枚を無作為に抽出し、10万枚を学習データ、5万枚をテストデータに割り当てる。次に、10万枚の学習データを8:2(8万枚の訓練データ、2万枚の検証データ)に分割し、500Epochで学習を行う。そして、検証データにおける2つのMAE(損失)の合計が最も小さいモデルを、推定モデルとして採用する。推定モデルの精度については、テストデータを1万枚×5個のサブセットに分け、5回分のMAE、 σ 及び(それらの)平均値を算出することとする。

上記設定のもと、学習を試行した。検証データの学習経過(MAEの推移)を図3.6に示す。

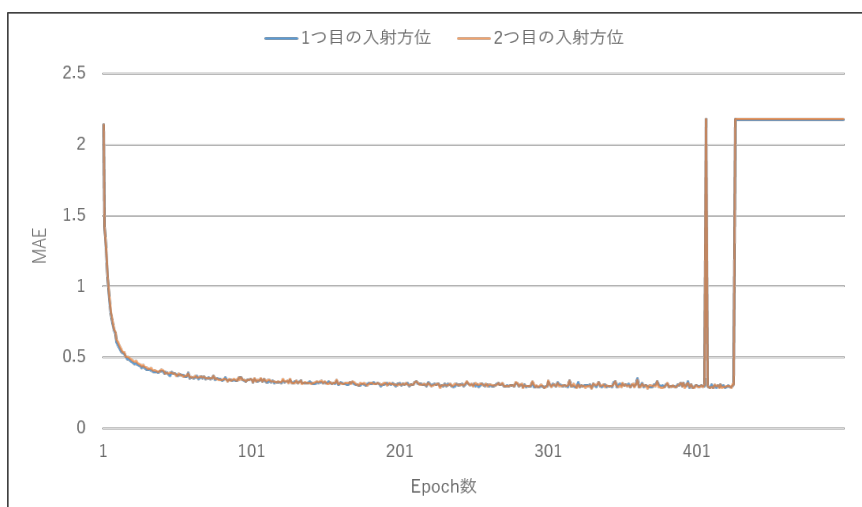


図 3.6 検証データの学習経過

続いて、推定モデルの精度（小数第4位まで表示）を表 3.1 及び表 3.2 に示す。

表 3.1 手法 1 における推定モデルの精度

テストデータ	MAE_1	σ_1	MAE_2	σ_2
1 セット目	0.2769	0.5148	0.2772	0.5064
2 セット目	0.2939	0.5430	0.2960	0.5491
3 セット目	0.2753	0.5115	0.2756	0.5040
4 セット目	0.2900	0.5366	0.2824	0.5121
5 セット目	0.2797	0.5192	0.2744	0.4934
平均	0.2832	0.5250	0.2811	0.5130

表 3.2 手法 2（第一段階）における推定モデルの精度

テストデータ	MAE	σ
1 セット目	0.2031	0.4022
2 セット目	0.2197	0.4373
3 セット目	0.2018	0.3956
4 セット目	0.2119	0.4162
5 セット目	0.2029	0.3978
平均	0.2079	0.4098

図 3.6 を見てわかるように、検証データにおける 2 つの MAE は、概ね同じように収束している。一方で、400Epoch を超えたところから学習が著しく不安定になり、最終的に学習直後と同じ状態が続いてい

る。また、表 3.1・表 3.2 を確認すると、(テストデータの) サブセット間における推定モデルの精度の偏りは比較的小さいことがわかる。

3.4.2 予備実験 2

予備実験 2 では、Fine-tuning 的手法を用いて、より多くの電子回折像を学習させる。Fine-tuning とは、既存の推定モデル (学習済みモデル) の重みを初期値とし、一部の層を再学習させる (重みの再調整を行う) ことで、新たに推定モデルを生成する手法である。これにより、短時間で高精度な推定モデルが生成可能となる。そこで、予備実験 1 の推定モデルの重みを起点に、新規の学習データを用いて、より精度の高い推定モデルの生成を試みる。具体的な手順は以下の通りである。

1. 残りの多結晶 TiO_2 電子回折像 349,500 枚を、4 つの学習データに分割する。
(学習データ 2 : 10 万枚, 3 : 10 万枚, 4 : 10 万枚, 5 : 49,500 枚)
2. 予備実験 1 の推定モデルの重みを用いて、学習データ 2 の学習を行い、推定モデル 2 を生成する。
3. 推定モデル 2 の重みを用いて、学習データ 3 の学習を行い、推定モデル 3 を生成する。
4. 推定モデル 3 の重みを用いて、学習データ 4 の学習を行い、推定モデル 4 を生成する。
5. 推定モデル 4 の重みを用いて、学習データ 5 の学習を行い、推定モデル 5 を生成する。
6. 予備実験 1 と同様に、推定モデル 5 の精度を測定する。

なお、今回は 50Epoch で学習を実行する (その他の設定は予備実験 1 と同様)。また、全結合層以降を新しい層に付け替えること (一般的な Fine-tuning の手法) はせず、既存の層を再学習することとする。これには、一部の学習データに特化した推定モデルではなく、全ての学習データを網羅した推定モデルを生成したいという意図がある。

(i) 全ての層を再学習した場合

まずは、全ての層を再学習し、最終的に (449,500 枚分の学習データから) 生成される推定モデル 5 の精度を確認する。

(2~5 の) 代表として、学習データ 2 における検証データの学習経過を図 3.7 に示す。

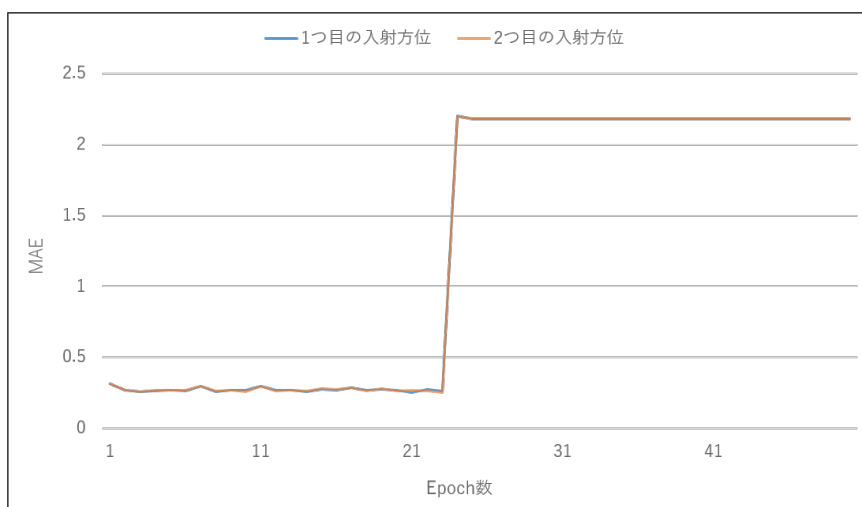


図 3.7 学習データ 2 における検証データの学習経過

続いて，推定モデル 5 の精度を表 3.3 及び表 3.4 に示す．

表 3.3 手法 1 における推定モデル 5 の精度

テストデータ	MAE_1	σ_1	MAE_2	σ_2
1 セット目	0.2657	0.4885	0.2705	0.4755
2 セット目	0.2753	0.4995	0.2812	0.4965
3 セット目	0.2589	0.4733	0.2674	0.4712
4 セット目	0.2714	0.4962	0.2693	0.4640
5 セット目	0.2685	0.4915	0.2732	0.4783
平均	0.2680	0.4898	0.2723	0.4771

表 3.4 手法 2 (第一段階) における推定モデル 5 の精度

テストデータ	MAE	σ
1 セット目	0.1957	0.3676
2 セット目	0.2057	0.3873
3 セット目	0.1899	0.3521
4 セット目	0.1965	0.3636
5 セット目	0.1993	0.3779
平均	0.1974	0.3697

図 3.7 より，MAE の値は学習直後から小さいことがわかる．しかしながら，20Epoch を超えたところで急激に悪化している．また，表 3.3・表 3.4 より，サブセット間における推定モデルの精度の偏りは比較的小さいことがわかる．

(ii) 全結合層以降のみを再学習した場合

今度は、全結合層以降のみを再学習し、(i)と同様に推定モデル5の精度を確認する。層の前半部分は、データの一般的な特徴を捉えているため、再学習の必要性が薄い。他方、層の後半部分では、データの具体的な特徴を捉えている。それ故、層の後半部分のみを再学習させることで、新しいデータへの適合がより容易になる。

(2~5の)代表として、学習データ2における検証データの学習経過を図3.8に示す。

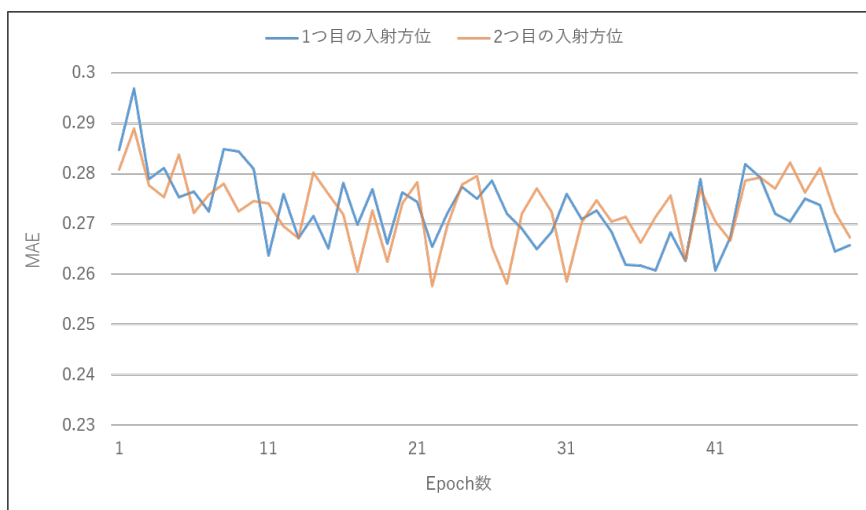


図 3.8 検証データの学習経過

続いて、推定モデル5の精度を表3.5及び表3.6に示す。

表 3.5 手法1における推定モデル5の精度

テストデータ	MAE_1	σ_1	MAE_2	σ_2
1 セット目	0.2432	0.4753	0.2342	0.4549
2 セット目	0.2525	0.4819	0.2452	0.4780
3 セット目	0.2389	0.4589	0.2335	0.4462
4 セット目	0.2512	0.4834	0.2336	0.4472
5 セット目	0.2473	0.4706	0.2337	0.4417
平均	0.2466	0.4740	0.2360	0.4536

表 3.6 手法 2 (第一段階) における推定モデル 5 の精度

テストデータ	MAE	σ
1 セット目	0.1723	0.3518
2 セット目	0.1810	0.3693
3 セット目	0.1690	0.3364
4 セット目	0.1743	0.3484
5 セット目	0.1735	0.3443
平均	0.1740	0.3500

図 3.8 より, MAE の値は学習直後から小さいことがわかる. 加えて, Epoch 間で多少の差はあるものの, 学習は最後まで安定している. また, 表 3.5・表 3.6 より, サブセット間における推定モデルの精度の偏りは比較的小さいことがわかる.

3.4.3 学習方法の決定

手法 1 における実験結果のまとめを表 3.7 及び図 3.9 に示す.

表 3.7 手法 1 における推定モデルの精度 (平均値)

予備実験	MAE_1	σ_1	MAE_2	σ_2
1	0.2832	0.5250	0.2811	0.5130
2 (i)	0.2680	0.4898	0.2723	0.4771
2 (ii)	0.2466	0.4740	0.2360	0.4536

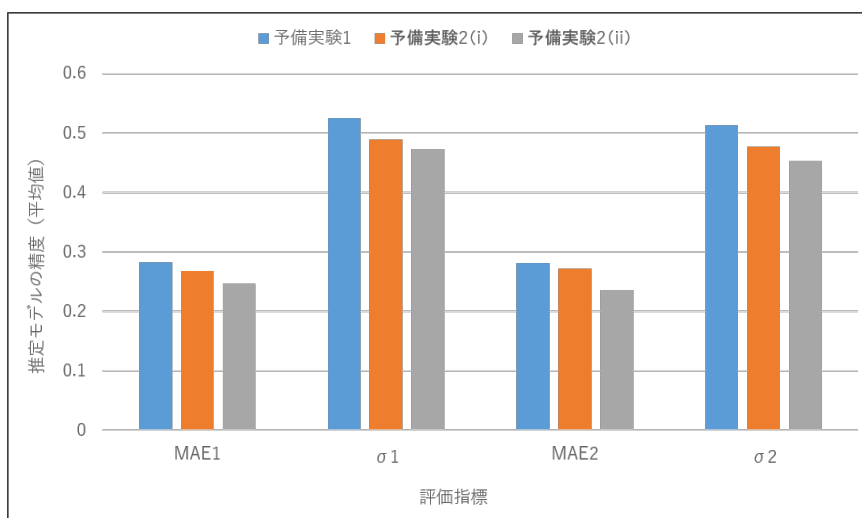


図 3.9 手法 1 における推定モデルの精度比較

続いて、手法2（第一段階）における実験結果のまとめを表3.8及び図3.10に示す。

表3.8 手法2（第一段階）における推定モデルの精度（平均値）

予備実験	MAE	σ
1	0.2079	0.4098
2 (i)	0.1974	0.3697
2 (ii)	0.1740	0.3500

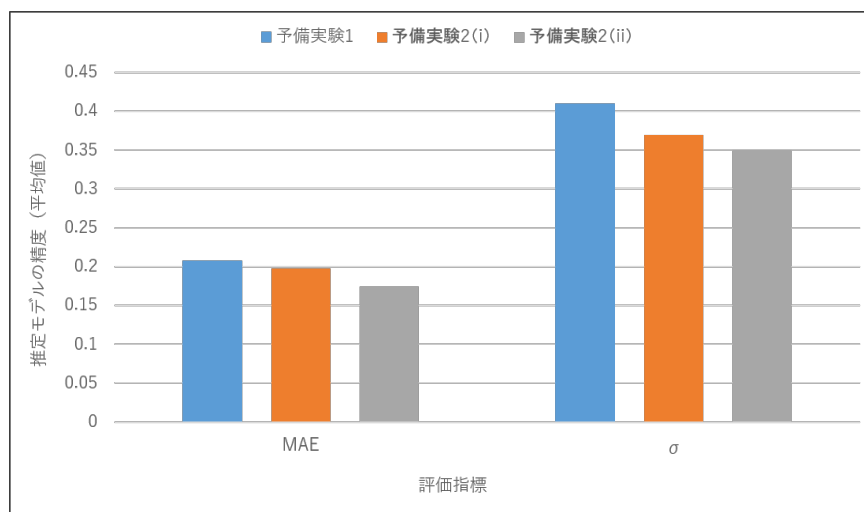


図3.10 手法2（第一段階）における推定モデルの精度比較

また、予備実験2(i)及び(ii)における、1Epochあたりの学習時間（2～4 / 5回目の学習）と推定モデル（の重み）のサイズを表3.9に示す。

表3.9 1Epochあたりの学習時間と推定モデルのサイズ

予備実験	学習時間 (s)	サイズ (KB)
2 (i)	261 / 234	1,206,604
2 (ii)	128 / 115	1,206,090

表3.7・図3.9及び表3.8・図3.10より、手法1, 2（第一段階）のどちらにおいても、予備実験2の方が推定モデルの精度（MAEと σ ）は高かった。すなわち、Fine-tuning的手法を活用して、より多くの電子回折像を学習させれば、推定モデルの精度向上が可能となる。さらに、予備実験2の(i)と(ii)では、学習の安定性（図3.7及び図3.8）・推定モデルの精度（表3.7・図3.9及び表3.8・図3.10）・1Epochあたりの学習時間及び推定モデルのサイズ（表3.9）の全てにおいて、(ii)の方が優れていた。

以上より、第4章の評価実験では、予備実験2(ii)の学習方法を適用することとする。

3.5 データバランスを考慮した学習データの構築

評価実験では、全 489,500 枚の学習データ（5 個のサブセットに分割）を扱う。そこで、学習データの構成について考える。具体的には、（非階層型）クラスタリングの一種である K-means 法を利用して、データバランスを考慮した（サブセット間におけるデータの均衡が保たれた）学習データを構築する。K-means 法の設定については、scikit-learn のデフォルトパラメータ（K-means++）に従うこととする。また、クラスタ数 K の決定にはエルボー法 [14] を適用する。エルボー法とは、各クラスタ数における SSE（クラスタ内誤差平方和）値をプロットしたグラフを作成し、「肘」のように曲がった点を最適なクラスタ数とする手法である。今回は、 $1 \leq K \leq 10$ の範囲で最適なクラスタ数を求め、二種類の学習データを構築する（以下を参照）。

(i) 489,500 枚を一括でクラスタリングする場合

はじめに、最適なクラスタ数 K を決定する。なお、 224×224 の画像サイズでは、サーバ本体のメモリが不足したため、 56×56 にリサイズ（縮小）して検証を行った。エルボー法の結果を図 3.11 に示す。

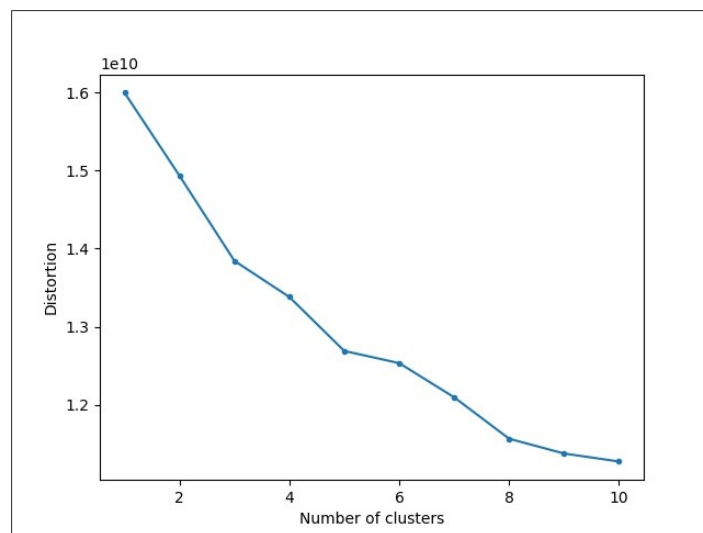


図 3.11 エルボー法による最適なクラスタ数の探索

図 3.11 より、最適なクラスタ数 K は 5 となる。次に、クラスタリングの結果を表 3.10 に示す。

表 3.10 クラスタの内訳

クラスタ	電子回折像の枚数
A	39,662 (7,932 × 5 + 2)
B	228,229 (45,645 × 5 + 4)
C	171,303 (34,260 × 5 + 3)
D	11,661 (2,332 × 5 + 1)
E	38,645 (7,729 × 5)

続いて、表 3.10 をもとに、学習データ（サブセット 1 : 10 万枚，2 : 10 万枚，3 : 10 万枚，4 : 10 万枚，5 : 89,500 枚）の構築を行う。なお、電子回折像の枚数が最も少ないサブセット 5 から考える。具体的な手順は以下の通りである。

1. 表 3.10 の端数は考慮せずに、サブセット 1 個あたりの平均枚数を計算する。
 $\Rightarrow 7,932 + 45,645 + 34,260 + 2,332 + 7,729 = 97,898$ (枚)
2. 平均枚数からサブセット 5 の枚数を引き、超過枚数を計算する。
 $\Rightarrow 97,898 - 89,500 = 8,398$ (枚)
3. クラスタ間におけるデータ比を概算する。
 $\Rightarrow 0.08 : 0.47 : 0.35 : 0.02 : 0.08$ (合計は 1)
4. 3. のデータ比に超過枚数を乗算し、クラスタごとの超過枚数を計算する。
 $\Rightarrow 680, 3916, 2939, 200, 663$ (合計が 8,398 にならない場合は適宜調整)
5. 各クラスタにおいて、元の枚数 (1. の各値) から超過枚数 (4. の各値) を引く。
 $\Rightarrow 7,252, 41,729, 31,321, 2,132, 7,066$ (暫定)
6. 残り 4 つのサブセット間におけるクラスタの内訳を等しくするため、
 5. の配分をいくらか修正する。
 $\Rightarrow 7,250, 41,729, 31,323, 2,129, 7,069$ (確定)
7. 6. により、残り 4 つのサブセットも確定する。
 $\Rightarrow 8,103, 46,625, 34,995, 2,383, 7,894$

上記の手順を経て構築された学習データを表 3.11 に示す。

表 3.11 (i) における学習データ

サブセット	A	B	C	D	E	合計 (枚)
1	8,103	46,625	34,995	2,383	7,894	100,000
2	8,103	46,625	34,995	2,383	7,894	100,000
3	8,103	46,625	34,995	2,383	7,894	100,000
4	8,103	46,625	34,995	2,383	7,894	100,000
5	7,250	41,729	31,323	2,129	7,069	89,500
合計 (枚)	39,662	228,229	171,303	11,661	38,645	489,500

表 3.11 より、サブセット間におけるクラスタ間のデータ比は、概ね等しいことがわかる。

(ii) 489,500 枚を分割してクラスタリングする場合

今度は、489,500 枚を 97,900 枚 × 5 個 のディレクトリに分割し、それらの中身をクラスタリングする。その後、各ディレクトリ内で 5 個のサブディレクトリを作り、データを整理する（(i) と同じ手順のため、説明は省略）。最後に、（ディレクトリ間で）同一番号のサブディレクトリを統合して、学習データを構築する（以下を参照）。

まずは、各ディレクトリに対して、最適なクラスタ数 K を決定する。なお、 224×224 の画像サイズでは、サーバ本体のメモリが不足したため、 112×112 にリサイズ（縮小）して検証を行った。

ディレクトリ I におけるエルボー法の結果を図 3.12 に示す。

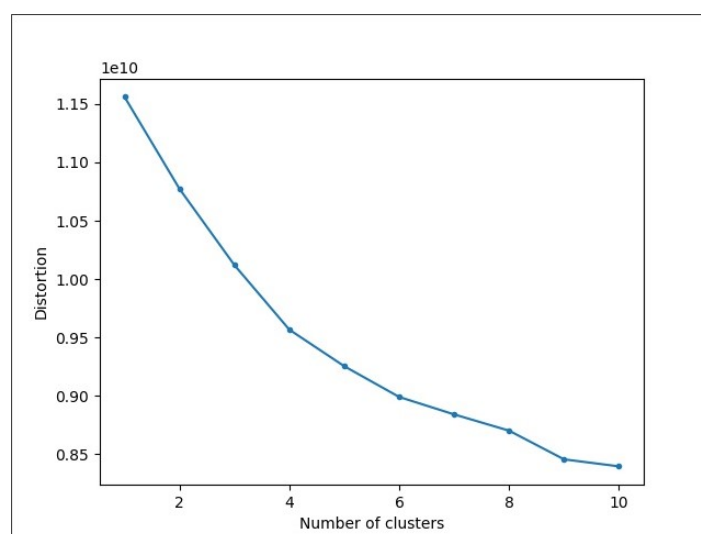


図 3.12 エルボー法による最適なクラスタ数の探索

図 3.12 より，最適なクラスタ数 K は 4 となる．次に，クラスタリングの結果を表 3.12 に示す．

表 3.12 クラスタの内訳

クラスタ	電子回折像の枚数
A_1	1,590 (318×5)
B_1	2,366 ($473 \times 5 + 1$)
C_1	45,058 ($9,011 \times 5 + 3$)
D_1	48,886 ($9,777 \times 5 + 1$)

続いて，(整理された)ディレクトリ I の構成(中身)を表 3.13 に示す．

表 3.13 ディレクトリ I の構成

サブディレクトリ	A_1	B_1	C_1	D_1	合計(枚)
1	325	484	9,205	9,986	20,000
2	325	484	9,205	9,986	20,000
3	325	484	9,205	9,986	20,000
4	325	484	9,205	9,986	20,000
5	290	430	8,238	8,942	17,900
合計(枚)	1,590	2,366	45,058	48,886	97,900

ディレクトリ II におけるエルボー法の結果を図 3.13 に示す．

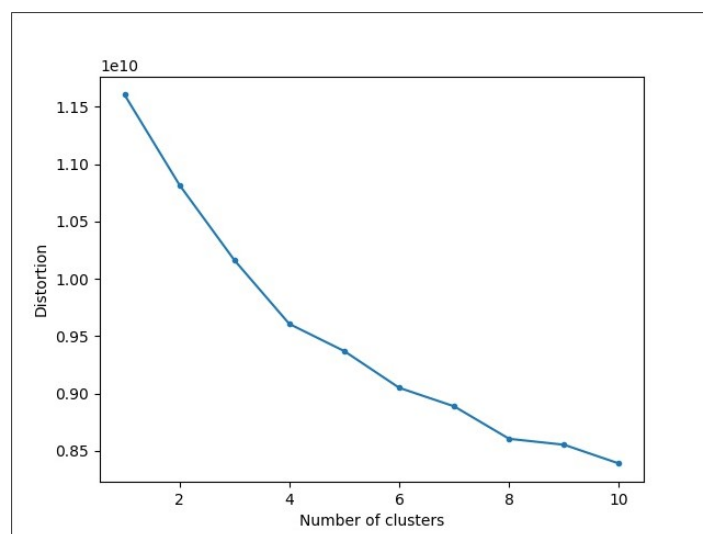


図 3.13 エルボー法による最適なクラスタ数の探索

図 3.13 より，最適なクラスタ数 K は 4 となる．次に，クラスタリングの結果を表 3.14 に示す．

表 3.14 クラスタの内訳

クラスタ	電子回折像の枚数
A_2	2,316 ($463 \times 5 + 1$)
B_2	48,198 ($9,639 \times 5 + 3$)
C_2	45,810 ($9,162 \times 5$)
D_2	1,576 ($315 \times 5 + 1$)

続いて，ディレクトリ II の構成を表 3.15 に示す．

表 3.15 ディレクトリ II の構成

サブディレクトリ	A_2	B_2	C_2	D_2	合計 (枚)
1	473	9,846	9,359	322	20,000
2	473	9,846	9,359	322	20,000
3	473	9,846	9,359	322	20,000
4	473	9,846	9,359	322	20,000
5	424	8,814	8,374	288	17,900
合計 (枚)	2,316	48,198	45,810	1,576	97,900

ディレクトリ III におけるエルボー法の結果を図 3.14 に示す．

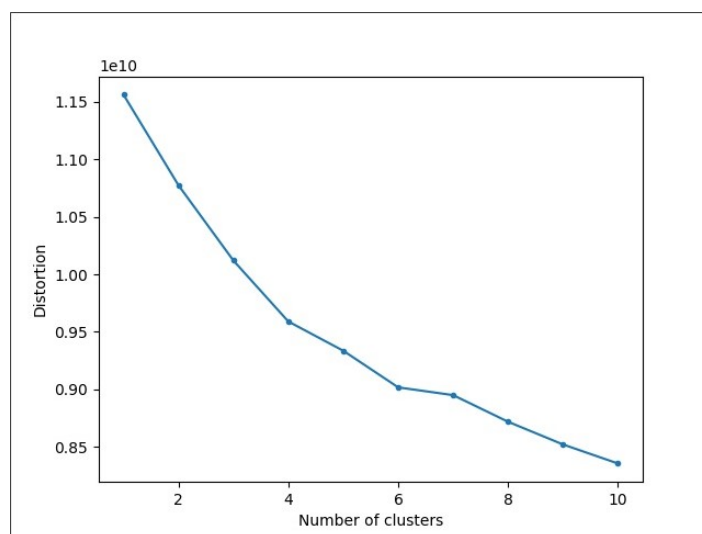


図 3.14 エルボー法による最適なクラスタ数の探索

図 3.14 より、最適なクラスタ数 K は 4 となる。次に、クラスタリングの結果を表 3.16 に示す。

表 3.16 クラスタの内訳

クラスタ	電子回折像の枚数
A_3	2,315 (463×5)
B_3	1,494 ($298 \times 5 + 4$)
C_3	48,776 ($9,755 \times 5 + 1$)
D_3	45,315 ($9,063 \times 5$)

続いて、ディレクトリ III の構成を表 3.17 に示す。

表 3.17 ディレクトリ III の構成

サブディレクトリ	A_3	B_3	C_3	D_3	合計 (枚)
1	473	306	9,964	9,257	20,000
2	473	306	9,964	9,257	20,000
3	473	306	9,964	9,257	20,000
4	473	306	9,964	9,257	20,000
5	423	270	8,920	8,287	17,900
合計 (枚)	2,315	1,494	48,776	45,315	97,900

ディレクトリ IV におけるエルボー法の結果を図 3.15 に示す。

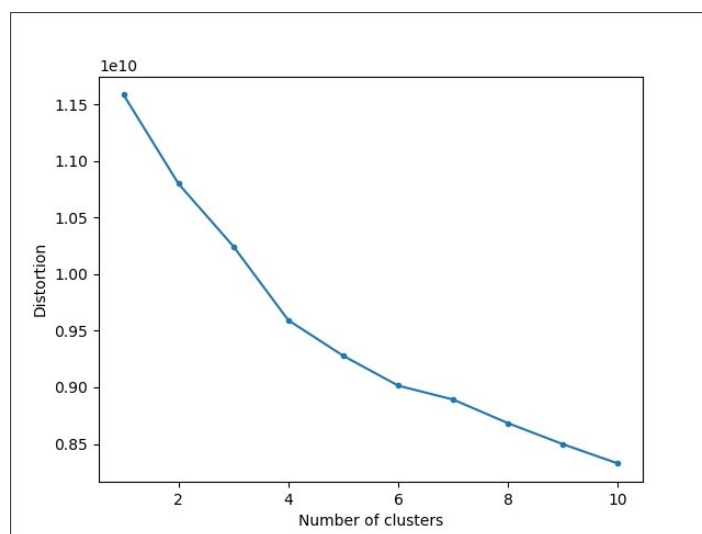


図 3.15 エルボー法による最適なクラスタ数の探索

図 3.15 より，最適なクラスタ数 K は 4 となる．次に，クラスタリングの結果を表 3.18 に示す．

表 3.18 クラスタの内訳

クラスタ	電子回折像の枚数
A_4	5,661 ($1,132 \times 5 + 1$)
B_4	42,749 ($8,549 \times 5 + 4$)
C_4	2,285 (457×5)
D_4	47,205 ($9,441 \times 5$)

続いて，ディレクトリ IV の構成を表 3.19 に示す．

表 3.19 ディレクトリ IV の構成

サブディレクトリ	A_4	B_4	C_4	D_4	合計 (枚)
1	1,157	8,733	467	9,643	20,000
2	1,157	8,733	467	9,643	20,000
3	1,157	8,733	467	9,643	20,000
4	1,157	8,733	467	9,643	20,000
5	1,033	7,817	417	8,633	17,900
合計 (枚)	5,661	42,749	2,285	47,205	97,900

ディレクトリ V におけるエルボー法の結果を図 3.16 に示す．

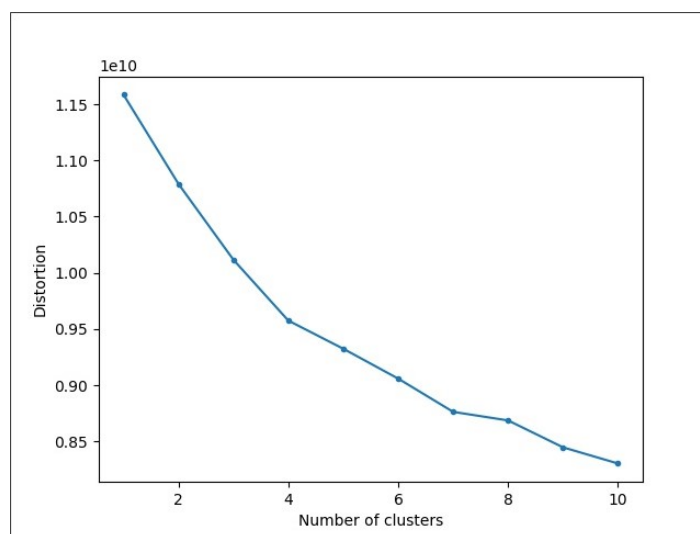


図 3.16 エルボー法による最適なクラスタ数の探索

第 4 章

評価実験

本章では、三種類の評価実験（概要及び結果）について述べる。その後、得られた実験結果に基づき、考察を展開する。

<実験 1~3 の共通事項>

ホールドアウト検証を利用する。499,500 枚のうち、489,500 枚を学習データ、1 万枚をテストデータに割り当てる。次に、489,500 枚の学習データを 8（訓練）: 2（検証）に分割し、500Epoch で学習を行う。そして、検証データにおける 2 つの MAE（損失）の合計が最も小さいモデルを、推定モデルとして採用する（Keras の「ModelCheckpoint」機能を適用）。最後に、テストデータを入力し、推定モデルの精度（テストデータ 1 万枚分の MAE と σ ）を算出する。このとき、MAE と σ の値が小さい推定モデルほど、高精度であるとする。ただし、片方（MAE or σ ）のみが最小値となる場合は、 σ の値が小さい方の推定モデルを優先する。なお、実験 1~3 において、学習データ及びテストデータの中身（多結晶 TiO_2 電子回折像のバリエーション）は等しい。また、学習モデルは 3.3 節、実験環境は 3.4 節、学習方法は 3.4.2 小節 (ii) と同様である。

4.1 実験 1

実験 1 では、以下 3 つの学習データ（サブセット 1: 10 万枚、2: 10 万枚、3: 10 万枚、4: 10 万枚、5: 89,500 枚）を用いて、推定モデルの精度検証と比較を行う。なお、本実験の目的は、クラスタリングの有用性を確認することである。

- 何も適用していない学習データ . . . (1)
- 3.5 節 (i) の学習データ . . . (2)
- 3.5 節 (ii) の学習データ . . . (3)

はじめに，推定モデル（1）の精度（小数第4位まで表示）を表4.1及び表4.2に示す．なお，参考として，サブセット1の結果も提示する．

表4.1 手法1における推定モデル（1）の精度

サブセット	MAE_1	σ_1	MAE_2	σ_2
1 (100,000 枚分)	0.2860	0.5183	0.2816	0.5052
5 (489,500 枚分)	0.2325	0.4382	0.2211	0.4335

表4.2 手法2（第一段階）における推定モデル（1）の精度

サブセット	MAE	σ
1 (100,000 枚分)	0.2125	0.4108
5 (489,500 枚分)	0.1641	0.3304

次に，推定モデル（2）の精度を表4.3及び表4.4に示す．

表4.3 手法1における推定モデル（2）の精度

サブセット	MAE_1	σ_1	MAE_2	σ_2
1 (100,000 枚分)	0.2869	0.5118	0.2833	0.5092
5 (489,500 枚分)	0.2311	0.4467	0.2348	0.4343

表4.4 手法2（第一段階）における推定モデル（2）の精度

サブセット	MAE	σ
1 (100,000 枚分)	0.2121	0.4067
5 (489,500 枚分)	0.1661	0.3250

続いて，推定モデル（3）の精度を表4.5及び表4.6に示す．

表4.5 手法1における推定モデル（3）の精度

サブセット	MAE_1	σ_1	MAE_2	σ_2
1 (100,000 枚分)	0.2866	0.5044	0.2782	0.4951
5 (489,500 枚分)	0.2351	0.4369	0.2266	0.4281

表 4.6 手法 2 (第一段階) における推定モデル (3) の精度

サブセット	MAE	σ
1 (100,000 枚分)	0.2180	0.4167
5 (489,500 枚分)	0.1729	0.3454

最後に、実験 1 のまとめを表 4.7 及び表 4.8 に示す。

表 4.7 手法 1 における各推定モデルの精度

推定モデル	MAE_1	σ_1	MAE_2	σ_2
(1)	0.2325	0.4382	0.2211	0.4335
(2)	0.2311	0.4467	0.2348	0.4343
(3)	0.2351	0.4369	0.2266	0.4281

表 4.8 手法 2 (第一段階) における各推定モデルの精度

推定モデル	MAE	σ
(1)	0.1641	0.3304
(2)	0.1661	0.3250
(3)	0.1729	0.3454

表 4.7 より、手法 1 において、 MAE_1 が最も小さいのは (2)、 MAE_2 が最も小さいのは (1)、 σ_1 及び σ_2 が最も小さいのは (3) の推定モデルであった。また、表 4.8 より、手法 2 において、 MAE が最も小さいのは (1)、 σ が最も小さいのは (2) の推定モデルであった。

したがって、手法 1 の最良モデルは (3)、手法 2 の最良モデルは (2) という結果になった (σ を優先)。しかしながら、推定モデル (1) ~ (3) の間で顕著な差は確認されなかった。

4.2 実験 2

実験 2 では、サブセット間のデータ数が等しい学習データ (サブセット 1~5: 97,900 枚) を用いて、推定モデル (4) の精度を検証する。なお、本実験の目的は、サブセット間のデータ数が均等か否かによる、推定モデルの精度差を確認することである。また、今回はクラスタリングを適用しない (ランダムに抽出する) こととする。

推定モデル (4) の精度を表 4.9 及び表 4.10 に示す。

表 4.9 手法 1 における推定モデル (4) の精度

推定モデル	MAE_1	σ_1	MAE_2	σ_2
(4)	0.2292	0.4470	0.2302	0.4396

表 4.10 手法 2 (第一段階) における推定モデル (4) の精度

推定モデル	MAE	σ
(4)	0.1671	0.3360

表 4.9 より, 手法 1 において, 推定モデル (1) ~ (3) と (4) の間に明確な精度差は見られなかった (なお, σ_1 と σ_2 の値は, 実験 1 の結果に比べて僅かに大きい). また, 表 4.10 より, 手法 2 においても, 推定モデルの精度はほとんど変わらなかった.

4.3 実験 3

実験 3 では, 画像のリサイズ (縮小) を行うことによって, 489,500 枚の電子回折像 (学習データ) を一括 (サブセットに分割しない) で学習させる. そして, 生成された推定モデルの精度を検証する. ここで, プログラムの動作を確認したところ, 56×56 以下の画像サイズであれば学習可能なことが判明したため, 今回は 56×56 と 28×28 の二通りについて考える (前者を (5), 後者を (6) とする). なお, 本実験の目的は, 1 回の学習で用いるデータ数 (の多寡) 及び画像サイズ (の大小) による, 推定モデルの精度差を確認することである.

推定モデル (5), (6) の精度を表 4.11 及び表 4.12 に示す.

表 4.11 手法 1 における推定モデル (5), (6) の精度

推定モデル	MAE_1	σ_1	MAE_2	σ_2
(5)	0.2880	0.5646	0.2956	0.5656
(6)	0.9669	1.1678	0.9858	1.1667

表 4.12 手法 2 (第一段階) における推定モデル (5), (6) の精度

推定モデル	MAE	σ
(5)	0.2193	0.4710
(6)	0.4227	0.6498

表 4.11 及び表 4.12 より, 56×56 にリサイズして一括学習を行った場合, 推定モデル (5) の精度は 1 個のサブセット (10 万枚) をも下回る結果となった. その上, 28×28 にリサイズすると, 推定モデル (6) の精度は (5) よりも大きく劣化することが判明した.

最後に, 参考として, 検証データの学習経過を図 4.1 及び図 4.2 に示す.

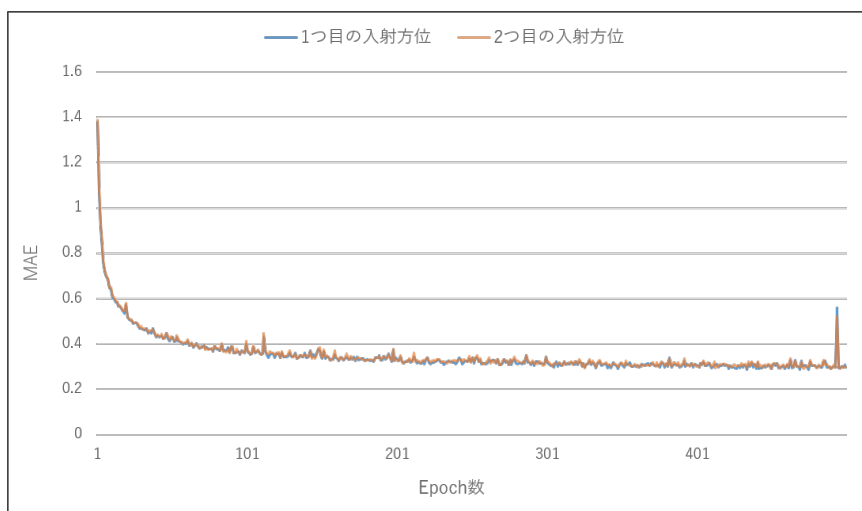


図 4.1 検証データ (5) の学習経過

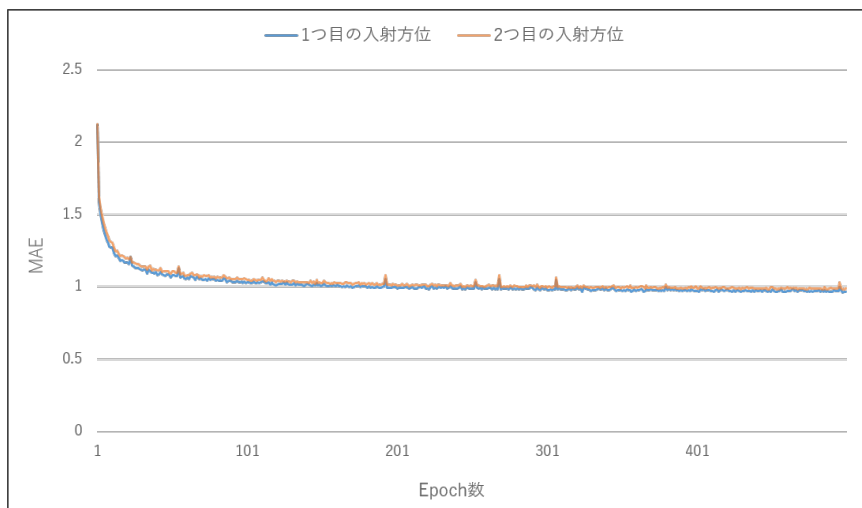


図 4.2 検証データ (6) の学習経過

4.4 実験結果のまとめと考察

実験1~3のまとめを表4.13及び表4.14に示す。

表 4.13 手法1における各推定モデルの精度

推定モデル	MAE_1	σ_1	MAE_2	σ_2
(1)	0.2325	0.4382	0.2211	0.4335
(2)	0.2311	0.4467	0.2348	0.4343
(3)	0.2351	0.4369	0.2266	0.4281
(4)	0.2292	0.4470	0.2302	0.4396
(5)	0.2880	0.5646	0.2956	0.5656
(6)	0.9669	1.1678	0.9858	1.1667

表 4.14 手法2（第一段階）における各推定モデルの精度

推定モデル	MAE	σ
(1)	0.1641	0.3304
(2)	0.1661	0.3250
(3)	0.1729	0.3454
(4)	0.1671	0.3360
(5)	0.2193	0.4710
(6)	0.4227	0.6498

表4.13より、手法1において、最も精度の高い推定モデルは(3)であった。また、表4.14より、手法2において、最も精度の高い推定モデルは(2)であった。なお、参考として、各手法における入射方位の絶対誤差（値の範囲）を表4.15及び表4.16に示す。

表 4.15 手法1における入射方位の絶対誤差

推定モデル	範囲
(3)	方位1 : 0.0013 ~ 4.6315 / 方位2 : 0.0018 ~ 4.6691

表 4.16 手法2（第一段階）における入射方位の絶対誤差

推定モデル	範囲
(2)	0.0024 ~ 3.9707

上記の結果を踏まえ、以下に考察を記す。

実験1では、3つの学習データを用いて、各推定モデルの精度とクラスタリングの有用性を検証した。結果として、(最も細分化されている)3.5節(ii)の学習データから生成された推定モデル(3)が最良であった。しかしながら、推定モデル(1)~(3)の間に、「顕著」と言えるまでの差は現れなかった。そのため、今回の検証に限り、クラスタリングの有用性は低いと考えられる。

実験2では、サブセット間のデータ数を等しくして、推定モデル(4)の精度を検証した。その結果、推定モデル(1)~(3)との間で大きな差は確認されなかった(推定精度は僅かに低い)。それ故、サブセット間のデータ数を均等にすることで得られる利点は非常に薄いと推測される。

実験3では、(学習)データを、 56×56 及び 28×28 にリサイズ(縮小)して一括学習を行い、生成された推定モデル(5)並びに(6)の精度を検証した。結果、実験1の推定モデル(1)~(3)と比べて、推定モデルの精度は大幅に劣化した(画像サイズが小さいほど、推定精度の劣化が激しい)。その上、1個のサブセット(10万枚)で生成された推定モデルの方が精度は高かった。すなわち、画像サイズを小さくして一度に多くのデータを学習させたとしても、より高精度な推定モデルが生成できるとは限らないということが伺える。

続いて、推定結果からわかることを述べる。表4.13と表4.14を確認したところ、いずれの推定モデルにおいても、MAEより σ の方が値は大きかった。これは、テストデータの推定精度に極端な偏りが生じている可能性を示している。事実、手法1の最良モデル(3)において、入射方位の絶対誤差が二種類とも平均以下であるデータは(1万枚中)7792枚存在した。また、手法2の最良モデル(2)において、入射方位の絶対誤差が平均以下であるデータは8170枚存在した。すなわち、残り2割のデータの中に大きな外れ値が含まれていると推測される。逆に、それらの結果を利用して、推定精度の高いデータと低いデータを特定できれば、効率的な推定モデルの精度改善が可能になるとと思われる。

最後に、手法1の評価基準について言及する。今回の検証において、 σ_1 及び σ_2 の最小値は、偶然にも同一の推定モデルで算出された。しかしながら、そうでない可能性も当然起こり得るため、評価基準の設定に不十分さが残った。この点に関しては、今後の課題とする。

第 5 章

むすび

本研究では、結晶の評価をより容易に行うため、電子回折像から構造パラメータを自動（機械）的に推定する手法を提案した。今回は、多結晶 TiO_2 の電子回折像を CNN で学習し、得られた推定モデルを用いて、電子線の入射方位を二種類推定した。その際、2 つの提案手法（二種類の入射方位を同時に推定 or 二段階のプロセスで推定）を導入した。評価実験では、複数の学習データを用意して、各推定モデルの精度を検証した。その結果、一度に学習させるデータ数と画像サイズのバランスが、推定モデルの精度に大きな影響を与えるという知見を得た。また、推定精度は極端に偏っており、その原因は、テストデータの約 2 割に存在する非常に大きな外れ値により生じていることが示唆された。逆に、8 割のデータについては、本手法が有効である可能性を示すことができた。

今後は、推定精度の高いデータと低いデータを分析し、推定モデルの精度を効率的に改善していきたい。また、クラスタ数を増やすことで、より細分化された学習モデルを構築し、それらの推定精度を検証したいと考えている。そして、手法 1 の適切な評価基準についても検討したい。

謝辞

本研究を進めるにあたり、数々のご指導を頂きました鈴木伸崇教授に深く感謝申し上げます。専門外にも関わらず、手厚くサポートして下さい、誠にありがとうございました。また、共同研究者であるNIMSの上杉文彦氏、石井真史氏、本研究に対するご助言を下さいました副指導教員の若林啓准教授、副査の松本紳教授にも深く感謝申し上げます。最後に、研究室メンバーの皆様、大変お世話になりました。

参考文献

- [1] 小山泰正, 松井良夫. これから電子顕微鏡を始める人へ (2) 電子回折の基礎 X線回折との違いを理解しよう. 日本結晶学会誌, Vol. 39, No. 4, pp. 271–278, 1997.
- [2] MF Toney. X-ray Diffraction. *LE Fitzpatrick, CR Brundle, CA Evans Jr, & S. Wilson (Comp. & Ed.), Encyclopedia of Material characterization*, pp. 198–213, 1992.
- [3] 平川金四郎. 中性子線回折. 応用物理, Vol. 43, No. 2, pp. 110–120, 1974.
- [4] Joel Reid, David Crane, Justin Blanton, Cyrus Crowder, Soorya Kabekkodu, and Tim Fawcett. Tools for Electron Diffraction Pattern Simulation for the Powder Diffraction File. *Microscopy Today*, Vol. 19, No. 1, pp. 32–37, 2011.
- [5] S Weber. XRDIFF: simulation of X-ray diffraction patterns. *Journal of Applied Crystallography*, Vol. 30, No. 5, pp. 565–566, 1997.
- [6] 伊藤聡. 日本のマテリアルズインフォマティクス研究 (特集マテリアルズインフォマティクス). 人工知能: 人工知能学会誌: journal of the Japanese Society for Artificial Intelligence, Vol. 34, No. 3, pp. 325–329, 2019.
- [7] 清原慎, 溝口照康. 機械学習を活用した界面構造探索とスペクトル解析 (特集マテリアルズインフォマティクス). 人工知能: 人工知能学会誌: journal of the Japanese Society for Artificial Intelligence, Vol. 34, No. 3, pp. 345–350, 2019.
- [8] 鈴木雄太, 日野英逸, 小嗣真人, 小野寛太. 機械学習を用いた X線回折パターンの分類. 日本物理学会講演概要集 73.1, pp. 2526–2526. 一般社団法人日本物理学会, 2018.
- [9] 小暮敏博. 初学者のための電子回折解析プログラム. 岩石鉱物科学, Vol. 32, No. 2, pp. 96–101, 2003.
- [10] 山本直紀. これから電子顕微鏡を始める人へ (3) 電子回折図形を見てみよう. 日本結晶学会誌, Vol. 39, No. 4, pp. 279–288, 1997.
- [11] MST | 一般財団法人材料科学技術振興財団. [ED] 電子回折法. <https://www.mst.or.jp/method/tabid/149/Default.aspx>, (参照 2019-11-27).
- [12] Jiuxiang Gu, Zhenhua Wang, Jason Kuen, Lianyang Ma, Amir Shahroudy, Bing Shuai, Ting Liu, Xingxing Wang, and Gang Wang. Recent advances in convolutional neural networks. *arXiv preprint arXiv:1512.07108*, 2015.
- [13] SONY. Neural Network Console (チュートリアル: 最適な学習実行環境の選び方). <https://support.dl.sony.com/docs-ja/2018/>, (参照 2019-12-23).

-
- [14] Trupti M Kodinariya and Prashant R Makwana. Review on determining number of Cluster in K-Means Clustering. *International Journal*, Vol. 1, No. 6, pp. 90–95, 2013.