

情報量規準を用いた信頼区間推定付きの XPS スペクトルの 自動スパースモデリング

Automatic sparse modeling of XPS spectrum using information criterion
with estimation of confidence interval

物材機構¹, 統数研², 電通大³, 東大⁴ ○篠塚 寛志¹, 永田 賢二¹, 吉川 英樹¹, 本武 陽一²,
庄野 逸³, 岡田 真人^{4,1}

NIMS¹, The Institute of Statistical Mathematics², The University of Electro-Communications³,
The University of Tokyo⁴ ○Hiroshi Shinotsuka¹, Kenji Nagata¹, Hideki Yoshikawa¹,
Yoh-Ichi Mototake², Hayaru Shouno³, Masato Okada^{4,1}

E-mail: SHINOTSUKA.Hiroshi@nims.go.jp

近年は分析装置の高感度化・高分解能化に伴い測定がハイスループット化され、大量のスペクトルデータが蓄積される時代にある。我々はこれまでに、ノイズが大きく複雑な XPS スペクトルにおいても従来経験的に得てきた解と整合する解をベイズ情報量規準を介して自動で抽出する、解析者依存性のない低コストで実用的なスペクトル分解手法(BIC-fitting)を開発した[1]。BIC-fitting は擬似的に大域解探索を行うことができるだけでなく、与えられたスペクトルを表現するのに適切なピーク本数を推定することもできる。スペクトルのフィッティングはノイズの影響を受けやすいため、フィッティングパラメータがどれだけ揺らぎ得るかを表す信頼区間もまた重要なファクターである。

我々はこうした背景をもとに、信頼区間推定付き BIC-fitting 手法を開発した[2]。まず、様々な人工スペクトルデータに対してベイズ的交換モンテカルロ法によりスペクトル分解を行い、ベイズ事後確率分布の可視化によるフィッティングパラメータの信頼区間を評価した。その結果から、パラメータの信頼区間とピーク間距離や S/N 比との関係を表す一般的なモデル式を導出した。次に実用性を確かめるべく、実スペクトルデータに対して、ベイズ的交換モンテカルロ法で得られた各ピークパラメータの信頼区間と、BIC-fitting の結果と提案する一般式から得られる信頼区間との比較を行った。その結果、両手法で得られるパラメータ信頼区間が良く一致することを確かめた。このことから、BIC-fitting により簡便に適切なピーク本数を推定するだけでなく、フィッティングパラメータの信頼区間も求めることができるようになった (Fig. 1)。

[1] H. Shinotsuka et al., *J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom.* **239**, 146903 (2020). DOI: 10.1016/j.elspec.2019.146903.

[2] H. Shinotsuka et al., *Science and Technology of Advanced Materials*, to be published. DOI: 10.1080/14686996.2020.1773210.

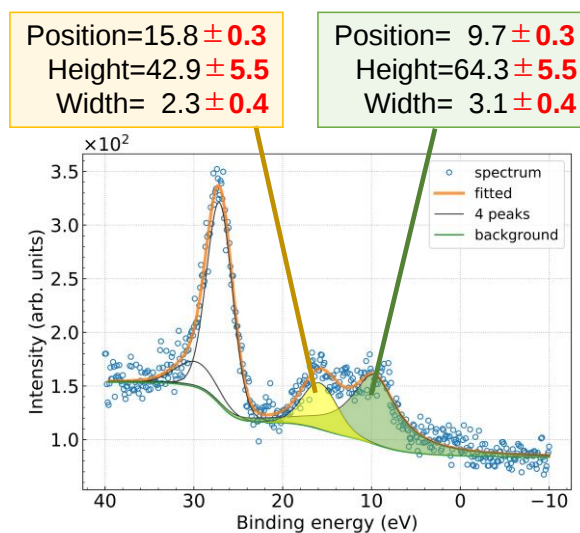


Fig. 1. Fitted result of a valence spectrum of SiO₂, and confidence intervals of peak parameters