

ベイズ最適化を用いた有機薄膜のマイクロビーム GI-WAXS マッピング Microbeam GI-WAXS mapping of organic thin film libraries with Bayesian optimization

東北大院工¹, 高輝度光科学研究セ² ○丸山 伸伍¹, 大内 華奈¹, 小金澤 智之², 松本 祐司¹

Tohoku Univ.¹, Japan Synchrotron Radiation Research Institute (JASRI)².

○Shingo Maruyama¹, Kana Ohuchi¹, Tomoyuki Koganezawa², Yuji Matsumoto¹

E-mail: maruyama-s@tohoku.ac.jp

【緒言】高強度の放射光 X 線を用いた X 線回折は、結晶性や散乱強度の低い有機薄膜において有用である。しかし、有機薄膜でよく用いられる斜入射 X 線回折 (GI-WAXS) 測定は、基板の全反射となるようなすれすれの入射角度を用いて行うため、一般的にフットプリントが大きく、空間分解能は悪く、マッピング測定には不向きであった。今回、我々は放射光マイクロビーム X 線を用いることでフットプリントを 1.5 mm 程度に抑えた空間分解能の高い GI-WAXS 測定を実現し、1 枚の基板上で組成と成膜温度を連続的に変化させた有機コンビナトリアル薄膜の 2 次元マッピング測定を行った。さらに、近年材料分野でも利用が進みつつある、ガウス過程回帰に基づくベイズ最適化を用いることで、限られたビームタイムの中で効率よく測定を行うことを試みた。

【実験】赤外レーザー蒸着法を用いて、15 mm 角の基板内で約 20~100℃の温度傾斜を設けた SiO₂/Si 基板上に、p 型有機半導体 DNTT と n 型ドーパント Liq を可動マスクにより Fig.1 に示すような組成傾斜となるように 100 nm 成膜した。この 2 次元コンビナトリアル薄膜に対して、SPring-8 BL46XU におけるマイクロビーム GI-WAXS を用いて室温でマッピング測定を行った。

【結果と考察】マイクロビーム GI-WAXS 測定は、まず一般的なグリッドマッピング測定によって 65 (ビームと垂直方向) × 7 (ビームと平行方向) =

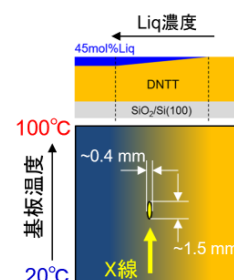


Fig. 1 サンプル模式図

455 点の実際の測定を行い“正解”データを得た。次に、回折パターンの中で、DNTT 由来の回折スポットに着目し、その強度の最大値の検出と大域的な形状の双方を目的としてベイズ最適化を行った (Fig.2)。具体的には、ガウス過程回帰によって予測された形状と分散を元に、上限信頼限界(UCB)を獲得関数として、測定点数 n を増やしながら予測された強度形状と実際のデータを比較した。その結果、UCB 獲得関数 ($=\mu+k\sigma$) における活用と探索を決めるパラメータ k を、測定初期に探索 (分散) 重視、測定後期に活用 (予測値) 重視とすることで、グリッドマッピングと比較して少ない測定点数で大域的な形状予測と最大値の検出が可能であることが分かった。

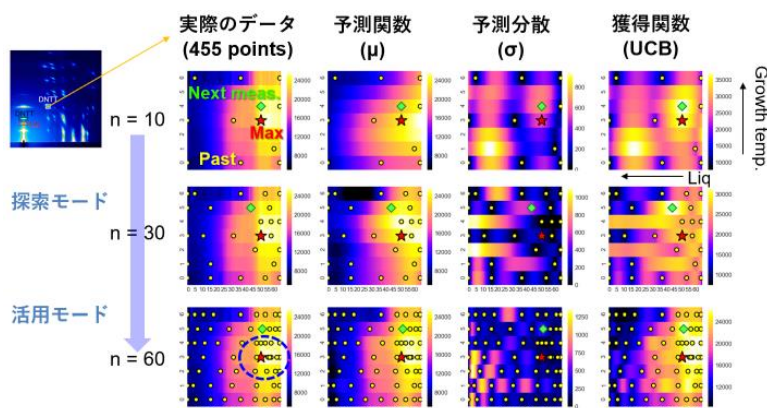


Fig. 2 GI-WAXS マッピング測定における実際の強度マップ、予測関数、予測分散、獲得関数。すでに測定された測定点(測定点数 n) を丸印、次の測定点を四角印、実際の最大値を星印で表した。