

中性子反射率測定におけるディープラーニングの応用



青木 裕之
Aoki Hiroyuki

1 はじめに

中性子反射率測定（NR）は薄膜状の試料の表面やその内部の界面で反射する中性子線の干渉を解析することで、試料表面及び内部の界面構造をサブナノメートルの精度で評価する手法として様々な分野で用いられている。中性子は水素等の軽元素に対しても高いコントラストが得られることから高分子材料や生体膜を始めとするソフトマターの構造解析に有効である他、スピン偏極させることで磁気モーメントを評価できるため、磁性薄膜の強力な構造評価手段となっている。日本では大型加速器施設 J-PARC に反射率装置が設置されているが、この世界最大級のパルス中性子源をもってしても NR の測定時間は1つの試料当たり数十分から数時間の測定時間を要する。そのため時間と共に構造が変化する試料の測定を行うことが難しいため、より高速な測定が求められてきた。また、中性子実験は大型実験施設でしか行うことができないため、その限られたマシンタイムの利用効率を向上するという意味でも測定の高速度化は重要な課題となっている。

近年、機械学習が大きな注目を集めており、特に人工ニューラルネットワークによって多数のデータを学習することで、その中に隠れている特徴を見出すディープラーニングが日進月歩で発展しており、様々な分野へ展開されている。本稿では、NR 測定にディープラーニングを応用し、測定時間を大幅に短縮する試みについて紹介する¹⁾。

2 中性子反射率測定の高速度化

NR プロファイルは運動量遷移 $q = 4\pi \sin\theta / \lambda$ (θ, λ はそれぞれ中性子の入射角及び波長) に対する中性子の反射率で与えられ、**図1** はシリコン基板上的の厚さ 80 nm のポリスチレン膜に対する測定結果を示している。緑のデータ点は通常の測定時間で得られたプロファイルであり、膜の表面及び基板との界面の反射波の干渉による Kiessig フリンジと呼ばれる振動パターンが $q = 0.1 \sim 1 \text{ nm}^{-1}$ まで観測されている。NR ではこのようなプロファイルを理論解析することで薄膜試料に対して深さ方向の物質分布を中性子散乱長密度 (SLD) と呼ばれる物質固有の中性子に対するコントラストの空間分布という形で得ること

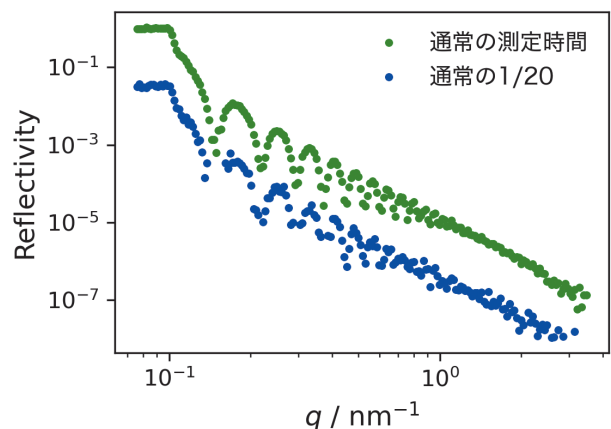


図1 ポリスチレン薄膜の中性子反射率プロファイル
緑は通常の測定時間、青はその 1/20 の時間で測定したもの。青のデータは下方にシフトしている

ができる。一般的な測定条件より 20 倍高速な測定、すなわち 1/20 の測定時間で得られる NR プロファイルを同図中の青点で示す。緑のデータと比較すると、 0.4 nm^{-1} 以上ではフリンジが統計ノイズに埋もれて認識できなくなっていることが分かる。このように短時間の測定では、試料の構造を反映して NR プロファイル中に現れる干渉パターンが失われるため、正確な構造評価を行うことが不可能となる。一方、これを言い換えれば、短時間で得られたデータであっても、その中に含まれるノイズ成分と真の NR 信号を正確に分離することができれば、短時間で測定されたデータであっても構造評価が可能となり、結果として NR 測定の高速度が実現されると考えられる。

3 ディープラーニングによるデータ処理

ディープラーニングによる画像のノイズ除去については、これまでに数多くの研究がなされており、その中でも DnCNN と呼ばれるニューラルネットワークが有効であることが報告されている²⁾。DnCNN は入力データとなるノイズを有する画像と教師データであるノイズを含まない画像の残差を学習するように構成されており、画像中のノイズ成分を決定することができる。NR についても画像と類似の問題であるため、DnCNN が有効であるものと考えられる。一方で、NR 測定において生じるノイズは画像とは異なった統計を示すため、学習で使用する訓練データは画像とは異なった手法で与えなくてはならない。J-PARC MLF に設置された反射率装置 SHARAKU では測定時間等の実験条件を設定することで実験データをシミュレーションすることが可能となっているため、任意に生成した 20 万以上の構造に対して教師データとして理論 NR プロファイルを計算し、入力データとしてシミュレータによって実験データを生成し、訓練を実行した。訓練によって得られた学習結果を実験データに適用することで、データ中のノイズ成分を推測し、データから差し引くことで真の NR プロファイルを予測することが可能となる。

図 2 は厚さ約 60 nm 及び 4 nm の 2 層から成る高分子薄膜の NR データである。緑で示したデータは通常の測定条件となるおよそ 1 時間半の測定時間で

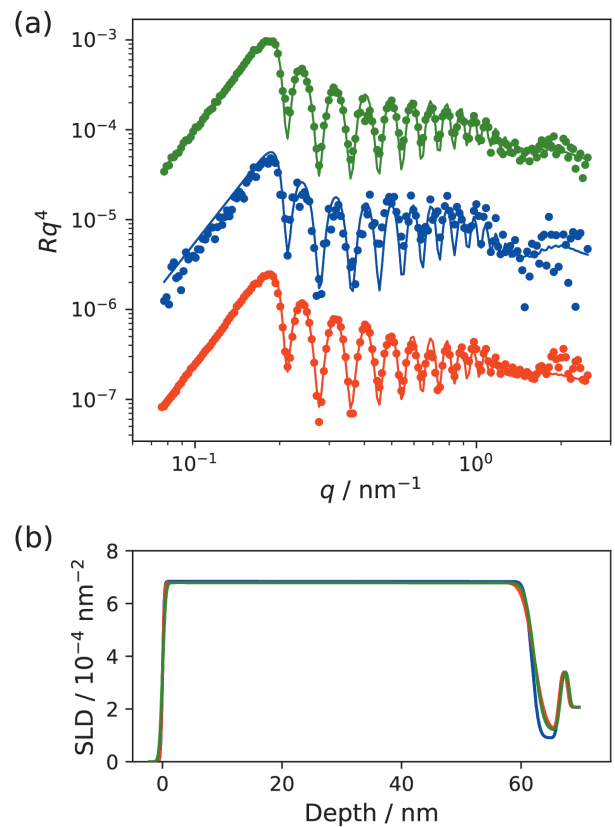


図 2 高分子薄膜の NR データ (a) 及び SLD 分布 (b)

(a) 中の緑及び青のデータはそれぞれ 1 時間半、5 分の測定時間で得られたものであり、赤のデータは 5 分での測定データに対して DnCNN によるノイズ除去処理を行ったデータである。(b) 中の緑、青及び赤の曲線はそれぞれ 1 時間半の測定、5 分の測定、DnCNN 処理によって得られた NR データから得られた SLD 分布である

得られた NR データであり、青はその 1/20 である 5 分で測定したデータである。両者を比較すると、5 分のデータには大きなノイズが含まれ、実線で示したフィッティング解析による結果も十分に合っていないことが分かる。その結果、解析によって得られる SLD 分布は図 2b の緑及び青で示すように、60 ~ 70 nm 辺りで異なった結果が得られている。一方、図 2a 中の赤で示したデータは、5 分での測定データから DnCNN によって処理した NR プロファイルであり、ノイズが除去されていることが分かる。そのフィッティング解析で得られた SLD 分布は図 2b 中赤の実線であるが、緑の実線とほぼ重なっていることから分かるように 1 時間半で測定した結果と全域にわたって良い一致を示しており、1/20 の時間で測定したデータでも精度を低下させることなく解析可能であることが示された。ここでは詳細なデータは示さないが、ピーク信号雑音比 (PSNR) 及び

構造類似性指数 (SSIM) によるノイズ量の定量的な解析では測定時間が 1/10~1/20 であっても通常の測定条件と同等の精度が得られることが示されている¹⁾。これは DnCNN によって解析精度を落とすことなく測定時間を 1 桁短縮可能であることを示しており、NR 測定の高速化にディープラーニングが非常に有効であることが分かった。

4 まとめ

NR の測定時間をディープラーニングによって大幅に高速化可能であることが示された。これによりオペランド測定やその場測定の時間分解能が飛躍的に向上し、時間と共に変化する試料に対して、その構造変化を実時間解析が可能となるものと考えられる。また、近年開発された NR トモグラフィ^{3,4)}のように計測時間の長さから現実的には行うことが

困難であった測定もルーチンで行うことが可能になるものと考えられ、新たな計測手段の開発を加速するであろう。ここで紹介したノイズ除去による測定高速化は NR に限定されたものではなく、適切な学習データが用意できれば他の散乱測定や分光測定に対して広く応用可能である。今後、様々な計測手段に展開することが期待される。

参考文献

- 1) H. Aoki, *et al.*, *Sci. Rep.*, **11**, 22711 (2021)
- 2) K. Zhang, *et al.*, *IEEE Trans. Image Process.*, **26**, 3124 (2017)
- 3) K. Sakurai, *et al.*, *Sci. Rep.*, **9**, 571 (2019)
- 4) H. Aoki, *et al.*, *Langmuir*, **37**, 196 (2021)

(日本原子力研究開発機構 J-PARC センター/ 高エネルギー加速器研究機構物質構造科学研究所)