

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 5 年 6 月 15 日現在

機関番号：33919

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2020～2022

課題番号：20K04188

研究課題名（和文）構造化照明と圧縮センシングを用いた超高解像度2次元ラマン分光高速イメージング

研究課題名（英文）High-resolution and high-throughput Raman spectroscopic imaging using structured illumination and compressive sensing

研究代表者

來海 博央（Kimachi, Hirohisa）

名城大学・理工学部・教授

研究者番号：30324453

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,300,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、構造化照明法と圧縮センシング技術を組み合わせ、観察領域の材料の相、応力、ひずみを高空間分解能かつ高速に2次元マッピングする2次元ラマン分光イメージング顕微鏡を開発することを目的とした。まずレーザー（波長488nm）を用いた構造化照明の光学系を構築して光学シミュレーションとの比較を行い、2次元ラマン分光イメージングの可能性について検討した。次にSN比の低い微弱なラマンスペクトルから圧縮センシングで、ラマンスペクトルを復元した。さらに、1回の2次元の構造化照明で得られる信号から2次元ラマン画像を復元する圧縮センシング技術を開発した。この技術を応用して3次元ラマン画像の復元を行った。

研究成果の学術的意義や社会的意義

近年、SiCやGaNなどのパワーデバイスの性能や寿命が、製造過程や実働環境下で発生するひずみや材料中の欠陥に影響を受けるため、デバイススケールから問題領域を抽出し、ひずみや欠陥を定量的に評価することが重要となっている。本研究では、評価技術として顕微ラマン分光法が有力な候補となる可能性があることを示した。また、2次元構造化照明では9回の測定で高分解能な画像にするが、圧縮センシングを用いることで1回の測定で、ラマンやひずみの2次元イメージングを再構築ができることを示した点は高速化の点で意義がある。また、深さ方向への間引き走査で、3次元イメージングが可能であることを示した点も意義があると思われる。

研究成果の概要（英文）：In this study, we aimed to develop a two-dimensional Raman spectroscopic imaging microscope that combines structured illumination method and compressive sensing technique for high-spatial resolution and fast two-dimensional mapping of material phases, stresses and strains in the observed region. First, the optical system for structured illumination using a laser (wavelength 488nm) was constructed and the obtained images were compared with results from optical simulations. Then, the possibility of two-dimensional Raman spectroscopic imaging using structured illumination method was examined. Next, the Raman spectrum was reconstructed from the weak Raman spectrum with low signal-to-noise ratio by compressed sensing technique. We developed the technique to reconstruct the two-dimensional Raman image from the signal obtained by one-time two-dimensional structured illumination. This technique was applied to reconstruction of the three-dimensional strain image.

研究分野：材料力学

キーワード：構造化照明 圧縮センシング ラマン分光法 2次元イメージング ひずみ分布

## 1. 研究開始当初の背景

近年、電気自動車をはじめとする様々な機器が電動化されており、SiC や GaN などの新規材料をベースに高耐圧・低損失なパワーデバイスの開発が盛んに行われている。これらデバイスの性能や寿命の多くは、製造過程に導入される転位や欠陥、それによって発生するひずみや応力によって大きく影響を受ける。そのため、デバイススケールから問題領域を抽出し、ひずみや欠陥を定量的に評価することが求められている。その有力な評価手法の一つとして顕微ラマン分光法が挙げられる。レーザーと対物レンズを併用することで、488nm の波長の場合、レーザースポットを直径 700nm 程度に絞ることができ、高空間分解能で材料の相やひずみ、応力を定量的に評価できる。しかしながら、問題領域をデバイスサイズの 2 次元領域から抽出するためには、直径 700nm のレーザースポットを一点一点走査するため、多大な時間と解析労力を要する。従って、観察領域をそのまま測定領域とする広域測定と顕微ラマン分光法による高空間分解能の分光分析が可能で、相・ひずみが定量的かつ高速に 2 次元マッピングできる技術の確立が急務になっている。

## 2. 研究の目的

前節の背景により、広域測定でかつ顕微ラマン分光法による高空間分解能で、相・ひずみが定量的かつ高速に 2 次元マッピングできる技術の確立が急務であることを述べた。一方で、顕微ラマン分光法で得られる信号は非常に微弱であるため、分析ニーズに耐えうるレベルの信号を得るためには、測定時間を長くすることが必要となる。つまり、「高空間分解能化」と「高速イメージング化」の相反するニーズを実現する装置開発が必要となる。そこで本研究ではこれらを解決する手法として、低いレーザー強度で高空間分解能化を目指した構造化照明によりラマンイメージングの可能性を検討するとともに、構造化照明で必要となる測定回数を減らすために、少ない情報から本来の情報を復元する圧縮センシングを併用することで、相反する「高空間分解能化」と「高速イメージング化」を同時に実現する「構造化照明と圧縮センシングを用いた超高解像度 2 次元ラマン分光高速イメージング」の可能性を検討することを目的とした。

## 3. 研究の方法

研究の方法は大きく分けると 2 つのを行った。

- (1) 構造化照明を用いた広視野 2 次元ラマン分光イメージング顕微鏡の可能性の検討 (令和 2 ~ 3 年度)
  - (1 - 1) 構造化照明の照明の理論展開と光学系の構築と 2 次元領域からのラマン散乱光の同時分光法の検討
- (2) 圧縮センシングを用いた高速計測ならびに高分解能化 (令和 2 ~ 4 年度)
  - (2 - 1) 圧縮センシングによる微弱ラマンスペクトルの復元の検討
  - (2 - 2) 1 回の構造化照明で得られるラマン散乱光による 2 次元ラマンイメージングの再構築の検討
  - (2 - 3) 深さ方向への走査による 3 次元ラマンイメージングの再構築の検討

## 4. 研究成果

### (1) 構築した光学系と理論との比較

構造化照明法の光学系は回折光学素子(DOE)を用いた場合と用いない場合の2つを検討した。一般的に用いられる手法としては1次の回折光を利用する前者の方であるが、0次光や2次以上の光を含め光がより散乱されるため、分析に利用できるレーザー強度が著しく低下する。さらに、2次元領域に構造化照明として分散されるため、1点に対するエネルギー強度がさらに小さくなる。そこで本研究では、低いエネルギー強度でも実現可能なDOEを使用しない構造化照明についても検討した。

DOEを用いた構造化照明法の場合、顕微ラマン分光装置はDPSSレーザーから出射された488nmのレーザー光をDOEによって4つのレーザーに分岐させ、必要な光束のみをマスクにより通過させた。その後、5個の凸レンズで光束をリレーし、対物レンズの瞳径に入射させた。対物レンズを通してSiの表面上にレーザーが照射され、強度分布を有する干渉縞と干渉格子を生成した。この干渉光より生じたラマン散乱光は励起光とともに対物レンズで集光され、ノッチフィルタで励起光のみがカットされ、ラマン散乱光のみが透過する。通過したラマン散乱光はレンズにより分光器のスリットに集光され、分光器内の凹面鏡によってコリメートされる。そのラマン散乱光はグレーティングによって分光され、もう一つの凹面鏡によって冷却CCDに結像される。実験では、DOEの前方に配置したシリンドリカルレンズによってレーザー光を圧縮して2つの光束のみを利用したライン状の干渉縞と4光束を利用した正方形に配列した点状の干渉格子を形成できた。超解像画像の再構築に必要な縞模様の強度分布の位相シフトは、DOEをピエゾステージに載せ、ナノレベルで移動させることで行った。干渉光の間隔ならびにピエゾステージによる干渉光の移動量は、理論で求められた値と一致し、良好な構造化照明となった。ただ、得られたラマン散乱光は非常に微弱であった。

そこで、上記の光学系でDOEを使用しない構造化照明を形成したところ、DOEを使用した際の約10分の1のレーザー強度で、より強いラマン散乱光を得ることができ、ワットクラスのレーザーでなくても測定できる可能性を示した。

### (2) 圧縮センシングによる微弱ラマンスペクトルの復元の検討

測定されるラマンスペクトルが微弱であるため、信号強度の復元を行った。実験では試験片配置による散乱強度の変化がない(111)Siのラマンスペクトル(図1最上部)を対象に圧縮センシングによりラマンスペクトルの復元を行った。圧縮センシングでは、信号の分布強度の特性を利用し、新たな提案として一様乱数に沿ったランダムサンプリングで行った。各種パラメーターの影響を検討するため、収集率 $R$ を3種類、ソフト閾値処理の閾値 $\lambda$ を4種類、繰返し回数 $N_c$ を7種類、合計84種類について検討し、スパース度合い、ラマ

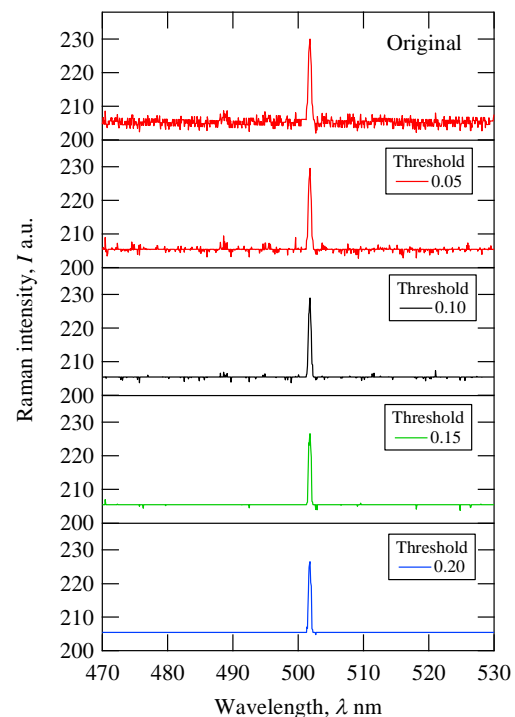


図1 復元されたラマンスペクトル( $R=0.5$ )

ンスpekトル強度ならびにピーク位置について検討した．その結果， $N_c = 400$  回でスペクトルが収束し， $R=0.4$  以上でスペクトル強度と中心位置が復元された．収集率  $R=0.5$  は他の収集率に比べ復元精度が高かった（図1最下部）．これにより，ピーク強度や位置を保ちつつ，ノイズをなくす復元が可能であることを示した．

### (3) 構造化照明で得られるラマン散乱光による2次元ラマンイメージングの再構築

数値解析で得られたひずみ場により算出されるラマンスペクトルからラマンデータキューブを作成し（図2），そのデータキューブから構造化照明に相当する9分の1のデータのみを抽出して圧縮センシングにより画像を再構築することで，高解像かつ高速なラマンイメージングの可能性を検討した．復元においては，圧縮センシングのパラメータが大きく影響を与えることが分かり，復元過程の値の増減が微小なラマン強度分布に対しては，復元状況によってパラメータを小さくすることによって，全体の復元と微小な変化部分の復元の両方に対応でき，今回のラマン散乱強度分布にも対応できることが分かった．圧縮センシングによる復元回数とパラメータをうまく調整することで，本来の9回分の測定で得られる画像と同程度の画像まで復元できることを示し，ラマンイメージングの高解像化と高速化が可能であることを示せた．

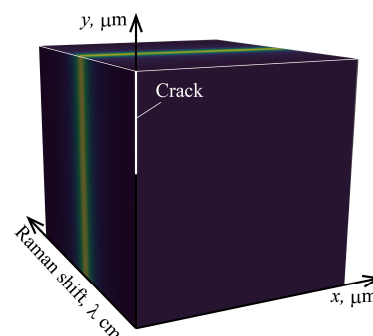


図2 ラマンデータキューブ

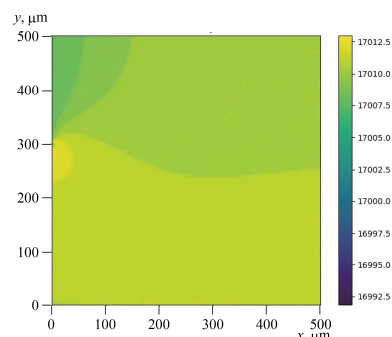


図3 パラメータを2段階で変えた圧縮センシングによるラマンイメージング画像の復元

### (4) 深さ方向への走査による3次元ラマンイメージングの再構築の検討

ここでは(3)節の技術を応用し，圧縮センシングによる三次元データキューブの復元を行った．対象はサファイア基板の上にエピタキシャル成長させたGa<sub>0.4</sub>N<sub>0.6</sub>を想定し，最大主ひずみを数値シミュレーションにより求め，主ひずみの3次元データキューブを作成した．そのデータキューブから8分の1のデータだけを用いて，圧縮センシングを用いて3次元の復元を行った．図4と図5を比較すると二つのひずみ分布がよく一致しており，3次元の圧縮センシングでもデータを復元することが可能であることが確認できた．今後，構造化照明法による3次元的な測定において3次元的に得られるラマンデータをデータキューブに適用し，3次元で復元することでひずみを高速に評価できると考えられる．

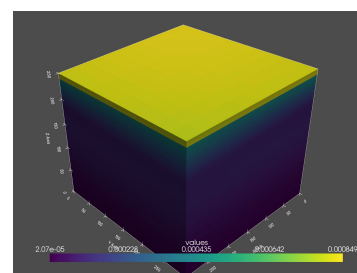


図4 3次元ひずみデータキューブ（元データ）

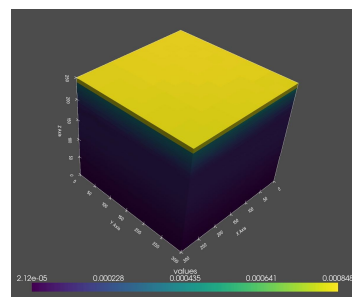


図5 図4の8分の1のデータで復元した3次元ひずみデータキューブ

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 0件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 木村 隼, 來海博央	4. 巻 第27号
2. 論文標題 圧縮センシングによる2次元ラマンイメージング画像の復元	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 名城大学 総合研究所 紀要	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 木村 隼, 來海博央	4. 巻 第27号
2. 論文標題 圧縮センシングによる微弱ラマンスペクトルの復元	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 名城大学 総合研究所 紀要	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計2件（うち招待講演 0件/うち国際学会 0件）

1. 発表者名 木村 隼, 來海 博央
2. 発表標題 シミュレーションデータキューブに基づく2次元ラマンイメージング画像の復元
3. 学会等名 日本機械学会東海支部 第71期講演会 TEC22
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 吉田俊輝, 奥村克典, 矢敷啓太, 來海博央
2. 発表標題 構造化照明を用いた蛍光粒子観察による分解能評価
3. 学会等名 日本機械学会東海学生会 第53回学生会卒業研究発表会講演会
4. 発表年 2022年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
--	---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------