



超解像による 分光分析の高精度化

名古屋大学 未来材料・システム研究所

原田 俊太



原田 俊太 (38歳)

名古屋大学 未来材料・システム研究所
未来エレクトロニクス集積研究センター准教授

研究のターゲット

化合物半導体, 酸化物, 金属間化合物...

結晶材料

結晶成長

SiC溶液成長、FZ法...

TEM, 放射光, ラマン...

計測

欠陥

転位、積層欠陥...

熱物性、半導体特性...

物性

インフォマティクス応用

深層学習、ベイズ推定、強化学習・逆強化学習...

社会活動

応用物理学会

先進パワー半導体分科会幹事

インフォマティクス応用研究グループ幹事

Problem : 既存の装置で高精度の測定を実現したい



- ✓ 分光分析精度を上げることは、研究・開発、検査の高度化に直結
- ✓ 精密に測定を行うためには、大規模な装置が必要
- ✓ 装置の更新なしに高精度の測定を行いたい

数億円

超高精度検査装置



WaferMasters, Inc.

数千万円

高精度分析装置



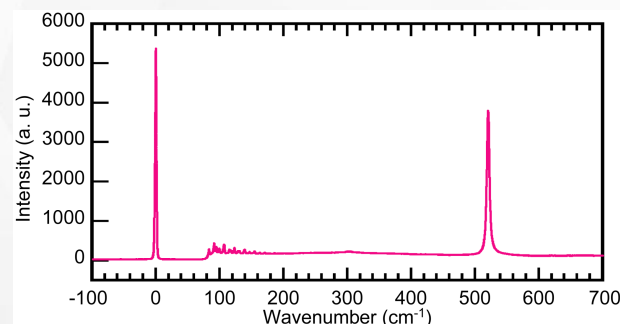
株式会社堀場製作所

小型・ポータブル

数十万円



株式会社東京インスツルメンツ



Solution : 情報学の分光データへの応用



画像超解像
(既存技術)

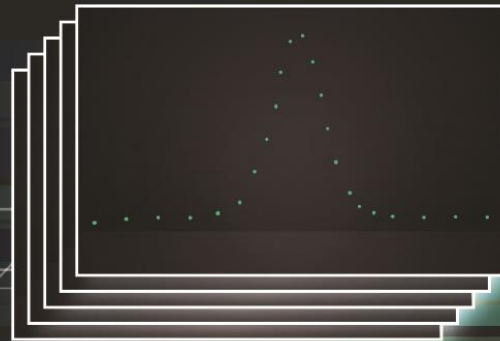


低解像画像

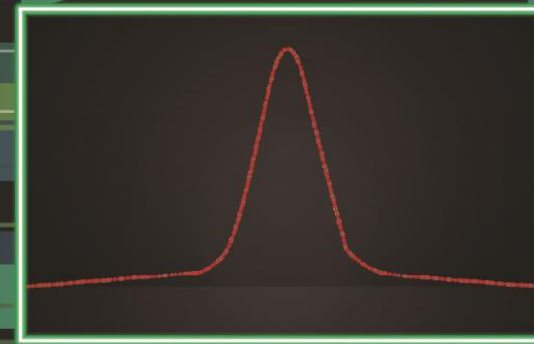


高解像画像

スペクトル超解像
(新技術)



低解像スペクトル



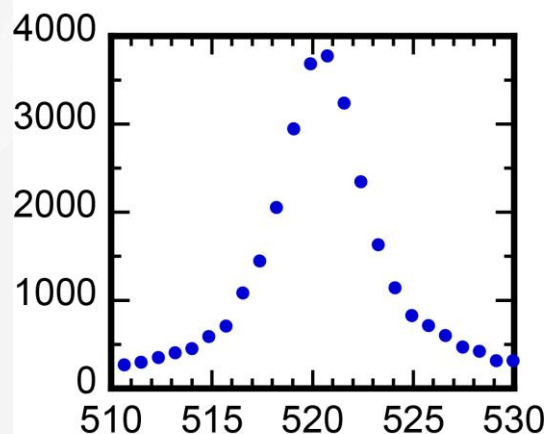
高解像スペクトル

情報学を応用し複数回の測定により高解像度のスペクトルを得る方法

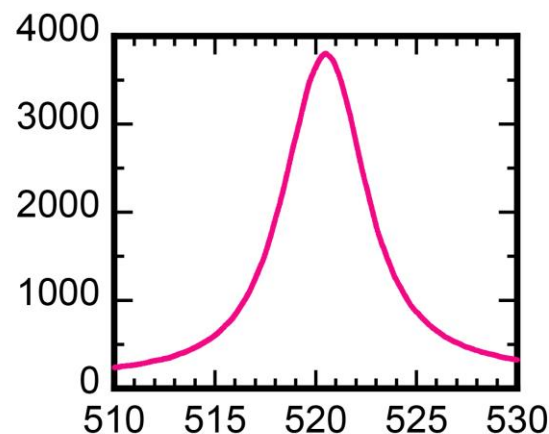
Technology : 分光データの精密解析



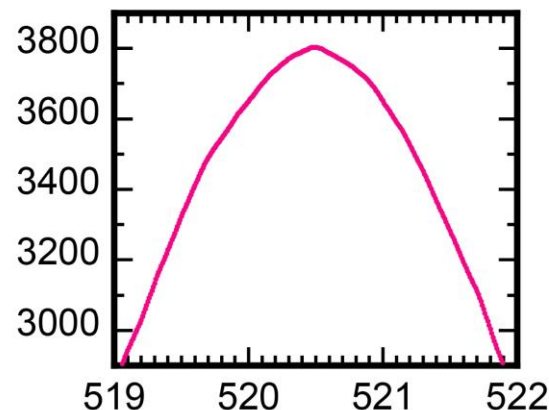
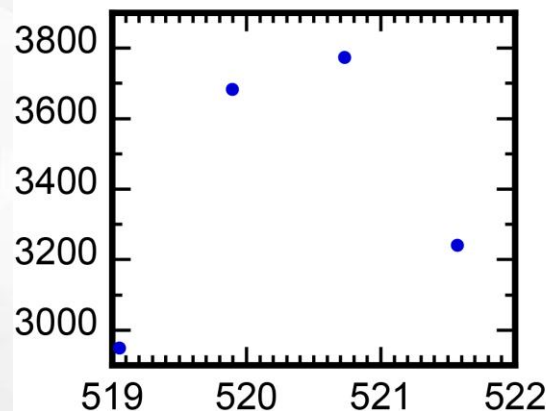
測定データ



本技術



超解像



ピーク位置の精密決定

	ピーク位置(cm ⁻¹)
本技術	520.55 (+0.12, -0.09)
計測標準	520.45 ± 0.28

✓ 通常測定の10倍以上の精度を達成

✓ 汎用装置で計測標準と同等の性能

特願2021-109205 解析方法及び解析装置
名古屋大学 単独出願

Journal of Electronic Materials, 51 (2022) 712-717.

Insight : 超解像応用の2つの展開



- ✓ 研究・開発用途で多数のニーズ
- ✓ 共同研究や研究会によって応用範囲拡大
- ✓ ヘビーユーザーである受託分析会社への導入に注力

ボトムアップで分析装置への組込を目指す



- ✓ 研究・開発用途での利用拡大により技術の知名度向上
「超解像を当たり前技術に」
- ✓ 検査装置メーカーと共同開発

この技術でしか検査できない
“キラーアプリ”の探索

Traction : 応用展開（ニーズ探索の結果）



電子線エネルギー損失分光法（EELS）

- ✓ 半導体、電池、触媒材料をナノスケールの空間分解能で分析可能
- ✓ 高分解能装置への設備更新の費用が高額（数億円）
- ✓ 受託分析会社と技術検証、共同研究チームで技術実証を実施中



X線光電子分光（XPS）

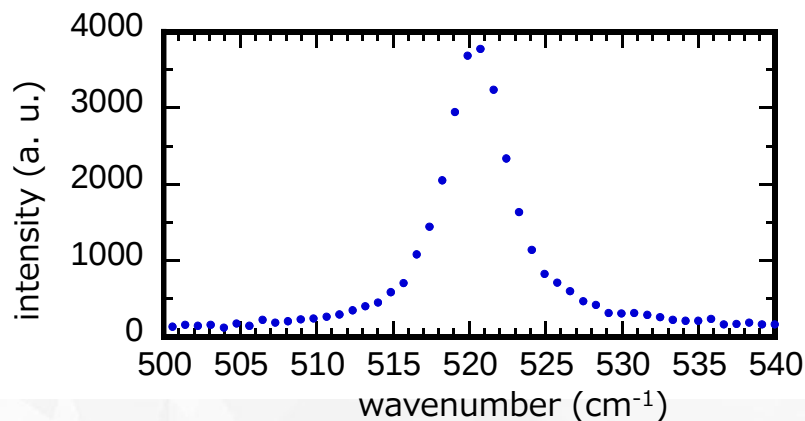
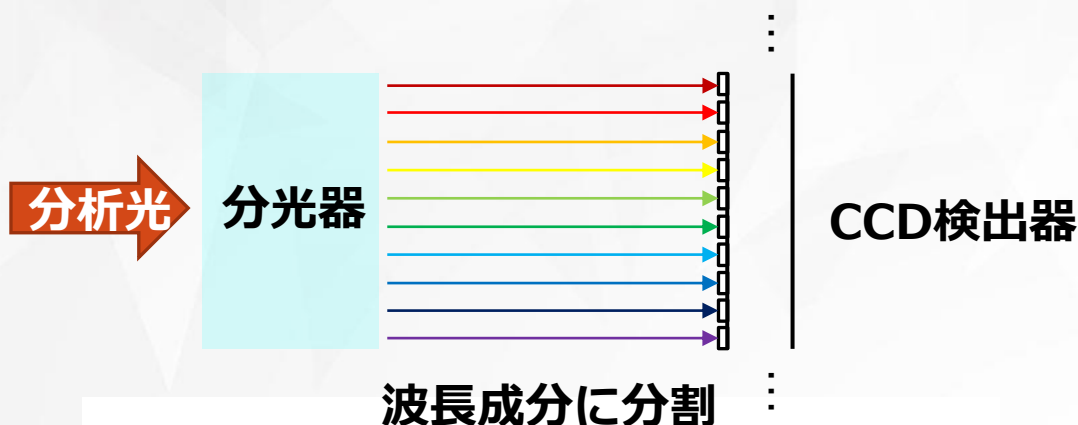
- ✓ 材料表面の元素、化学状態の分析手法
- ✓ 絶縁体の精密測定が困難。
- ✓ 共同研究チームで技術検証を実施中



その他（ラマン分光、蛍光X線、質量分析 etc..）

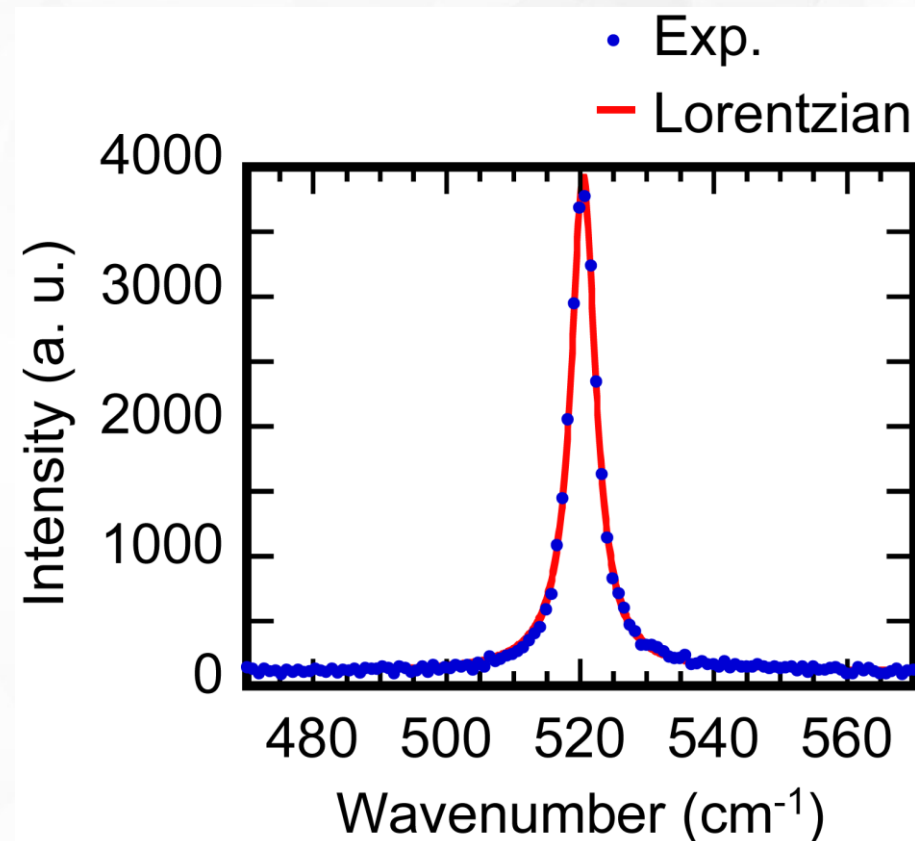
- ✓ 研究用途で多数のニーズ
- ✓ 共同研究チームで技術検証を実施中

CCD検出器を用いた分光測定



- ✓ 分光測定データは離散的
- ✓ CCD検出器の数以上のデータ点を増やせない

カーブフィッティング

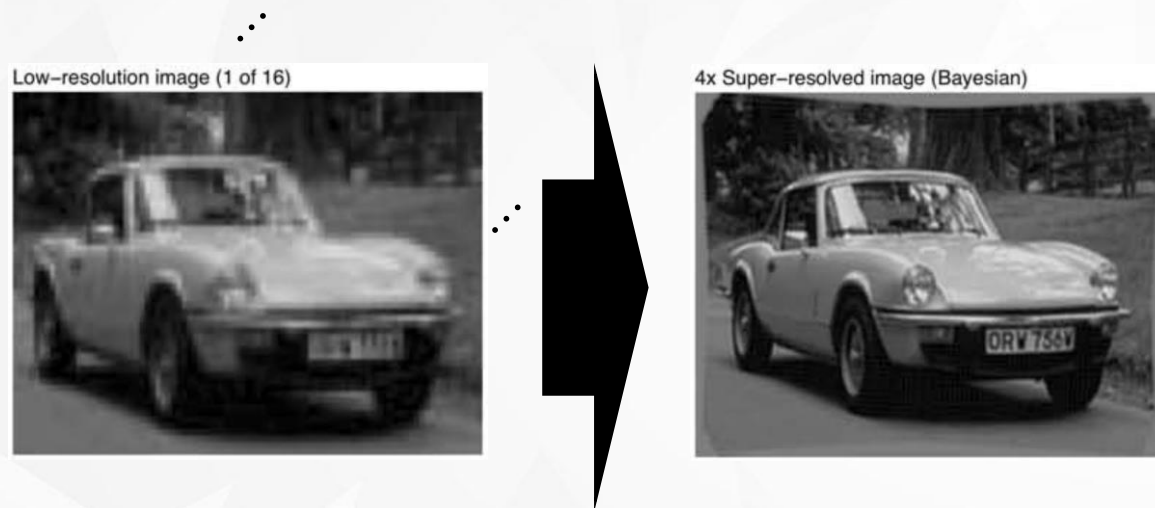


- ✓ モデル関数との違いは系統的な誤差につながる
- ✓ 応力、不純物濃度、温度の測定などでごく僅かなピーク位置を見積る場合、影響が懸念される。

ベイズ超解像の分光データへの応用



ベイズ超解像（画像データ）



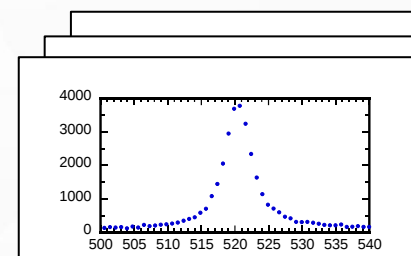
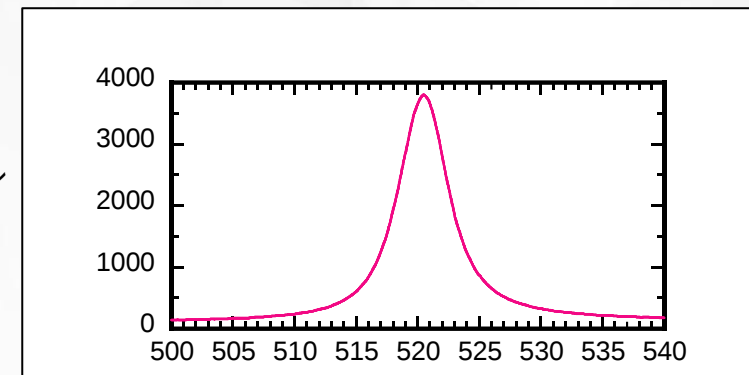
測定画像
16 枚

超解像画像

M. E. Tipping and C. M. Bishop, in *Advances in Neural Information Processing Systems 15* (MIT Press, Cambridge, 2003).

本研究（分光データ）

超解像スペクトル
(間隔0.01 cm⁻¹)



測定スペクトル
(測定点間隔0.8 cm⁻¹)

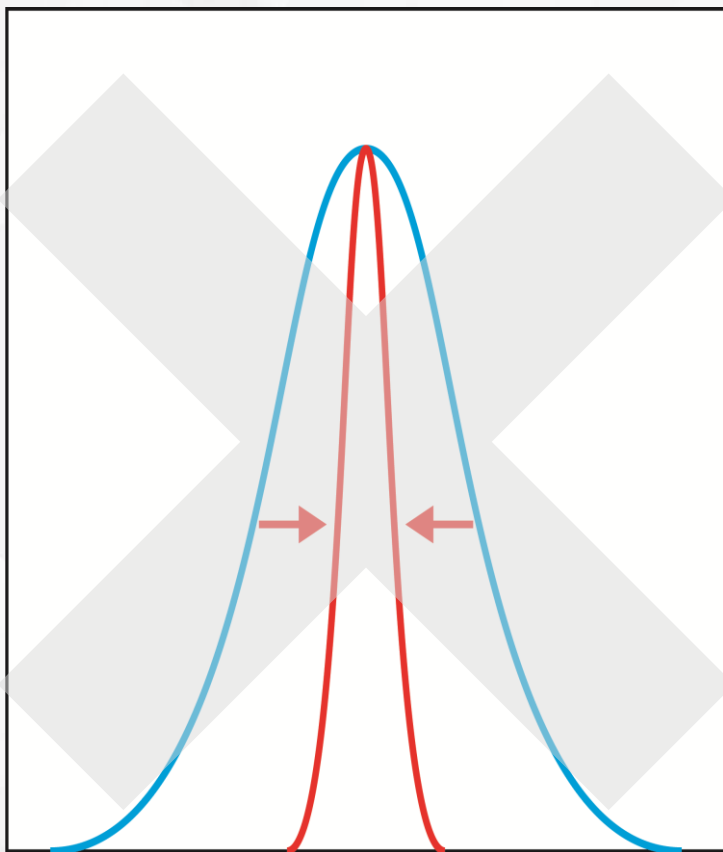
200 スペクトル

✓ **ベイズ超解像を応用し、スペクトル形状を精密に推定する方法を構築する。**

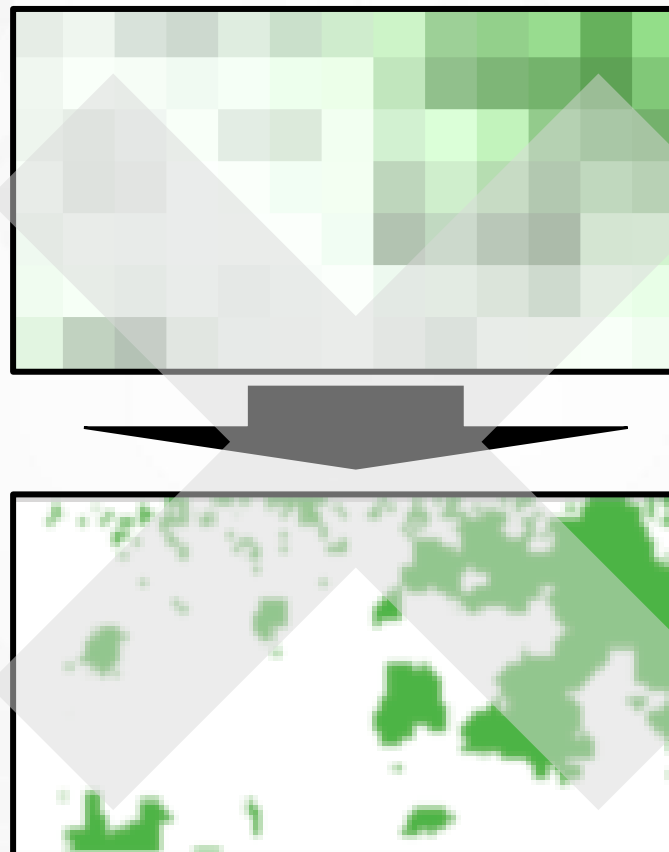
スペクトルの超解像の意味



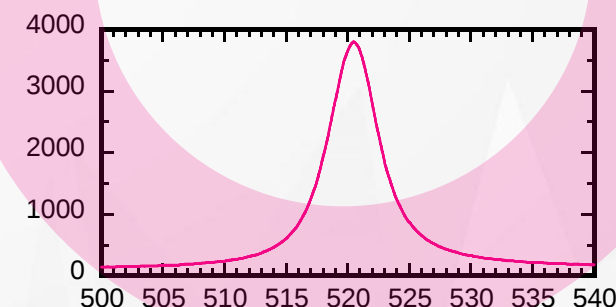
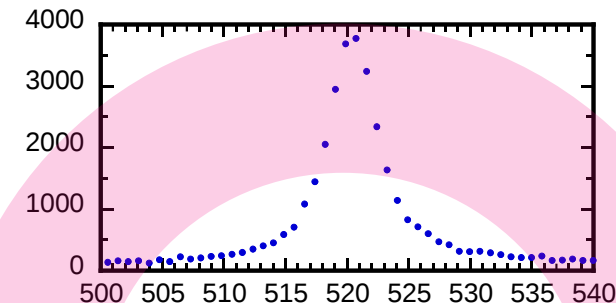
×スペクトル分解能



×マッピングの解像度



○波数のデータ間隔を細かくする



ここで言う「超解像」は、波数のデータ間隔を狭くすることを意味し、スペクトル分解能やマッピングの解像度を上げることではない。

ベイズの定理

事前分布確率 尤度

$$p(x|D, \theta) = \frac{p(x)p(D|x, \theta)}{p(D|\theta)}$$

事後分布確率

x : 超解像後のスペクトル
 D : 観測されたスペクトル
 θ : 観測の状態を表すパラメータ
(横軸方向のズレ：
グレーティングの角度)

周辺尤度最大化により θ を推定

$$\hat{\theta} = \arg \max_{\theta} \ln \int dx p(x)p(D|x, \theta)$$

期待値として超解像後のスペクトルを推定

$$\hat{x} = E(x) = \int dx xp(x|D, \hat{\theta})$$

ラマンスペクトルの取得

測定装置：

Renishaw In-Via Raman microscope

波長： 532 nm

グレーティング： 3000 gr/mm

測定データの間隔：

~0.8 cm⁻¹ (around 520 cm⁻¹)

測定試料：

Si基板 (NMIJ CRM 5606-a)

✓ グレーティングをずらして200 回測定

超解像

事前分布：

隣接データ間に滑らかさ制約

$$p(\mathbf{x}) = \frac{1}{Z} \exp \left\{ -\frac{\rho}{2} \sum_{i \sim j} (x_i - x_j)^2 \right\}$$

ρ ：滑らかさの度合い

周辺尤度最大化：

EMアルゴリズム

仮想実験によるハイパーパラメータの決定

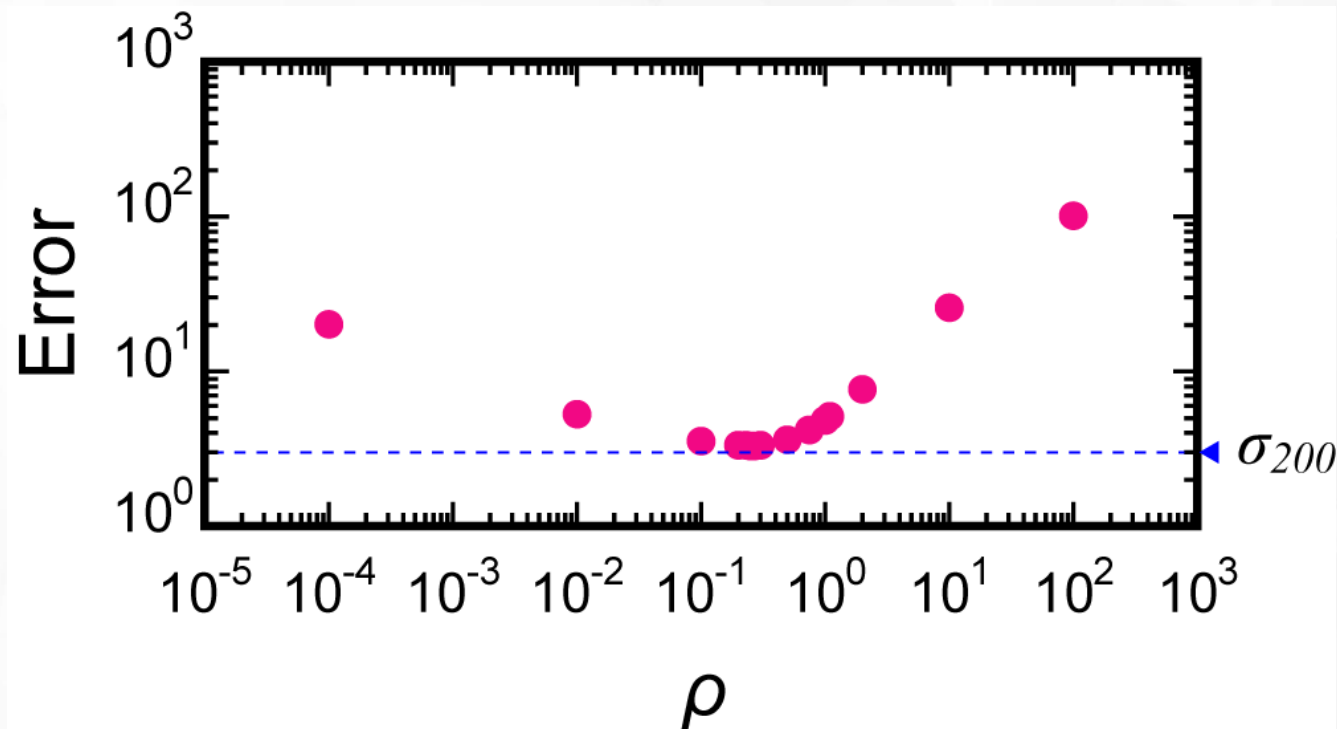


滑らかさの度合いを表す ρ を仮想実験での誤差が小さくなるように設定

仮想実験の手順

- ①実験データをローレンツ関数でフィッティング。
- ②ローレンツ関数にランダムなノイズと横軸方向のズレを加え、200個の仮想データを作成。
- ③各 ρ に対して超解像を実施し、元のローレンツ関数との平均誤差を評価。

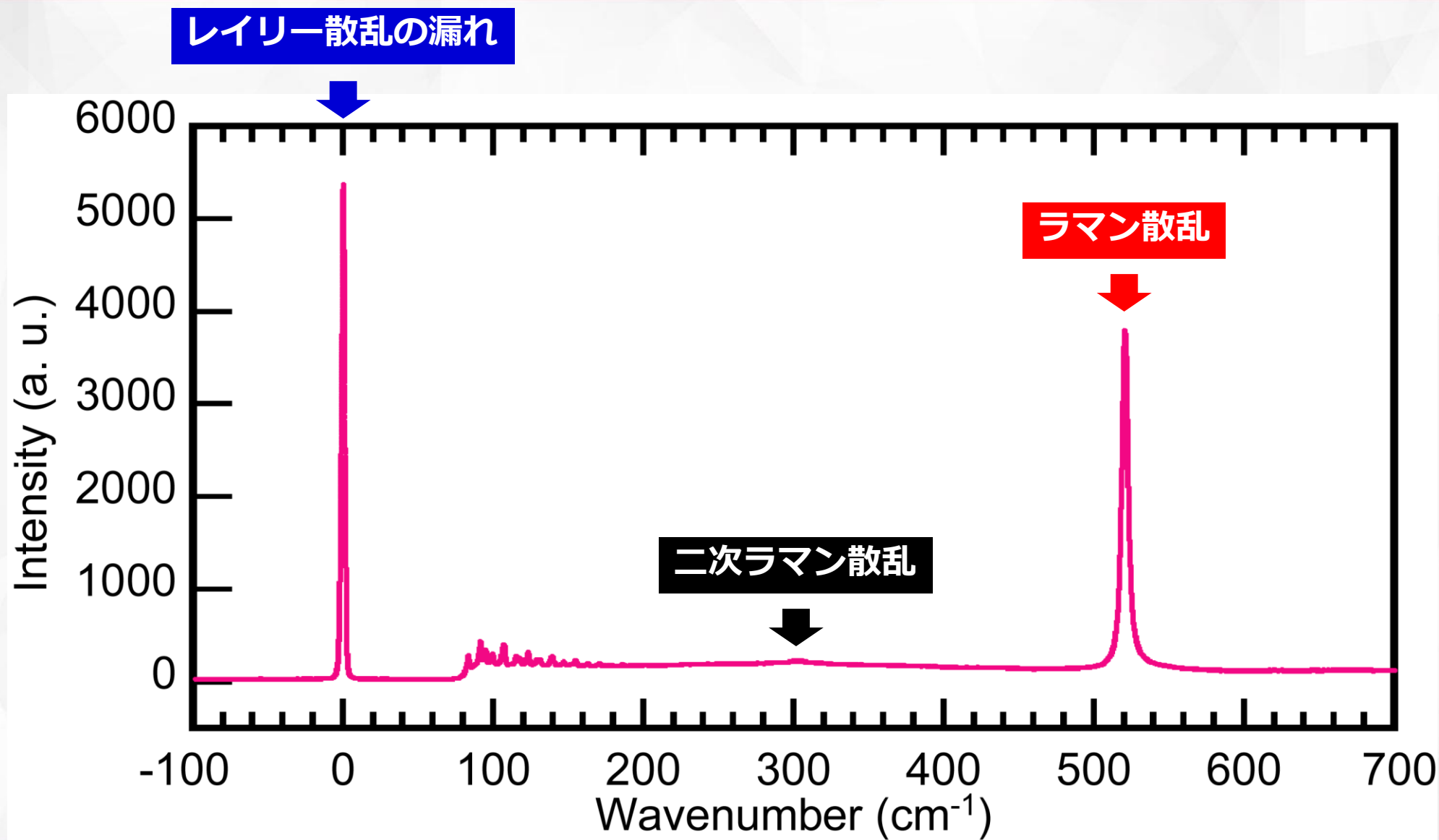
仮想実験データによる超解像の誤差



$\rho = 2.6 \times 10^{-1}$ で平均誤差は最小となり、平均誤差は200回積算した際のノイズの標準偏差と同程度。

このパラメータを用いて超解像を行う事で、データ間隔を狭めノイズ低減も可能。

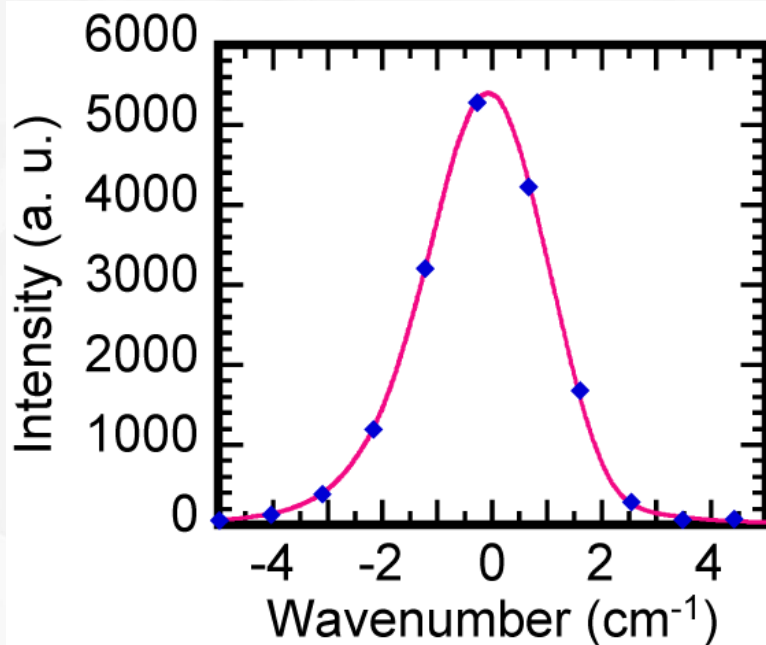
ラマン散乱スペクトルの超解像の結果



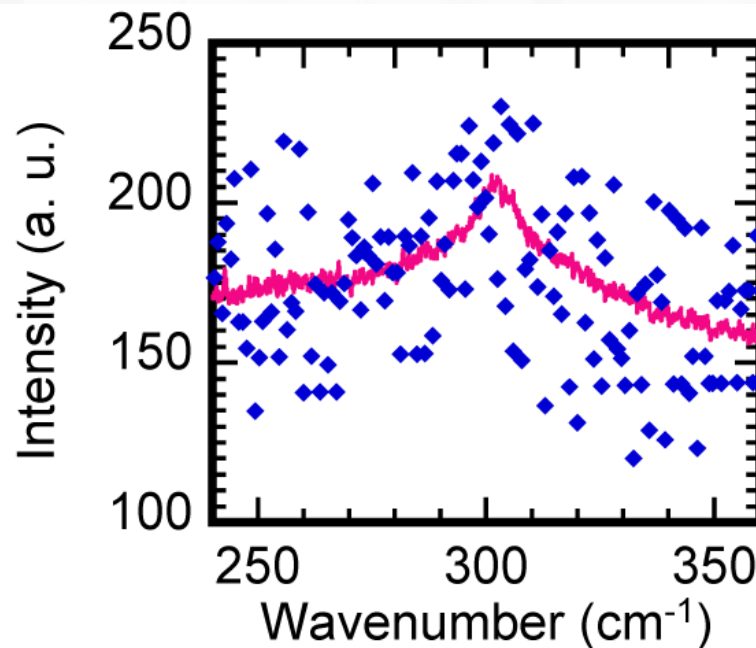
ラマン散乱スペクトルの超解像の結果



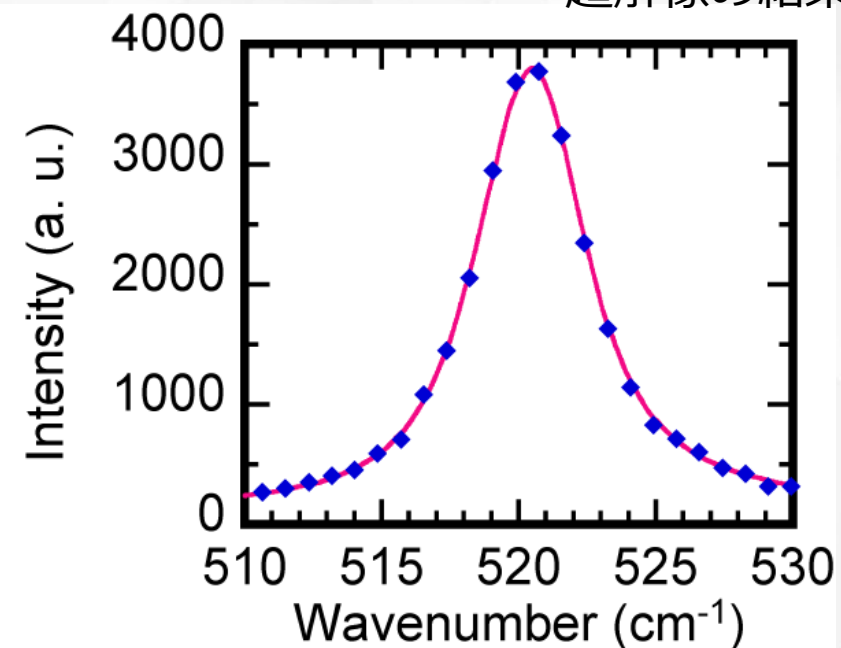
レイリー散乱



二次ラマン散乱



ラマン散乱



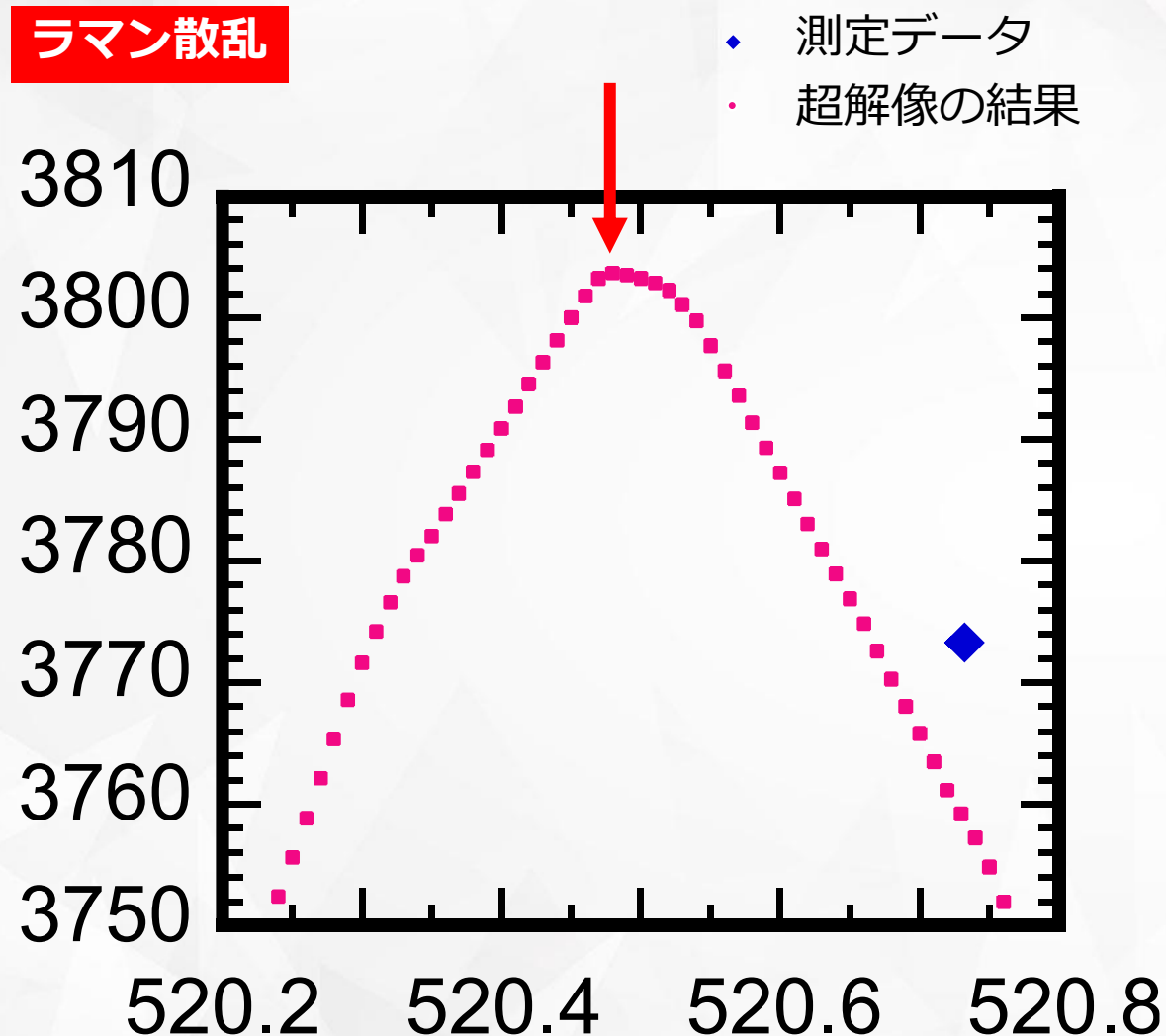
◆ 測定データ
— 超解像の結果

- ✓ ほぼ連続的にスペクトルが表現されている。
- ✓ 非対称なピーク形状の詳細を確認することができる。
- ✓ データ点の増加とともにS/Nも向上しており、強度の弱い二次ラマン散乱のピークも観察できる。

ラマン散乱スペクトルの超解像の結果



ラマン散乱



- ✓ ピークの先端形状は非対称的
- ✓ フィットティングを使わずに、高精度でピーク波数を決定することができる。

ラマンシフトの評価

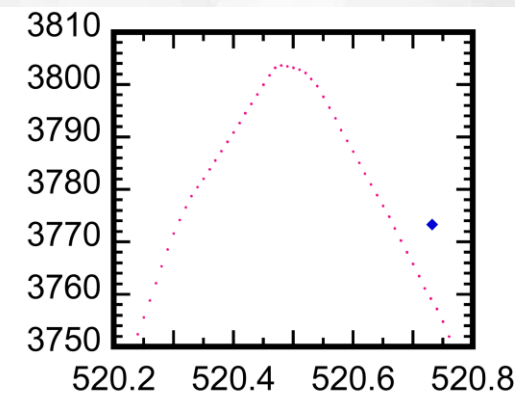
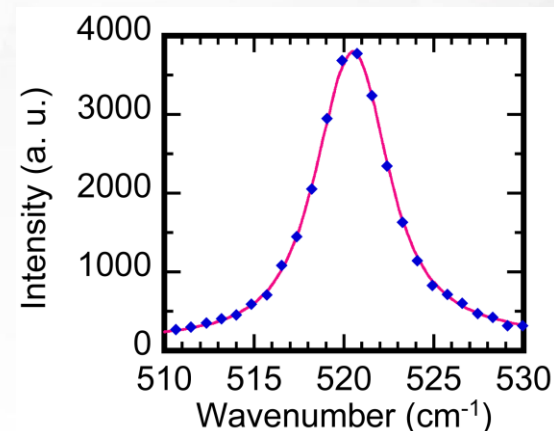
Parameters	Estimated values (cm ⁻¹)
Rayleigh scattering	-0.07 ± 0.06
Raman scattering	520.48 (+0.06, -0.03)
Raman shift	520.55 (+0.12, -0.09)
Reported Raman shift*	520.45 ± 0.28

*N. Itoh and K. Shirono, J. Raman Spectrosc. **51**, 2496 (2020).

計測標準グループの報告値と同等の値が得られた。

ベイズ超解像をラマン分光に応用

- ✓ 仮想実験によりハイパーパラメータを決定し推定精度の高い超解像を実現。
- ✓ Siのラマンシフトを高精度で測定できることを実証



Parameters	Estimated values (cm ⁻¹)
Rayleigh scattering	-0.07 ± 0.06
Raman scattering	520.48 (+0.06, -0.03)
Raman shift	520.55 (+0.12, -0.09)
Reported Raman shift*	520.45 ± 0.28

*N. Itoh and K. Shirono, J. Raman Spectrosc. **51**, 2496 (2020).

スペクトル超解像の応用探索



スペクトル超解像技術の汎用性を考え、幅広く応用探索をしている。

分光分析の非常識を常識に

