ベイズ超解像のラマン散乱スペクトルへの応用

Application of Bayesian super-resolution to Raman spectra 名古屋大¹, JST さきがけ² 〇原田 俊太^{1,2}, 辻森 皓太¹, 廣谷 潤^{1,2} Nagoya Univ.¹, JST PRESTO² OShunta Harada^{1,2}, Kota Tsujimori¹, Jun Hirotani^{1,2}

E-mail: shunta.harada@nagoya-u.jp

【はじめに】アレイ型検出器を用いた分光分析では、分解能が検出器の数によって制限される場合がある。例えば、CCD検出器を用いたラマン分光測定では、CCDアレイの数によってピクセル分解能が制限されるため、広範囲で高分解能のスペクトルを取得することはできない。ベイズ超解像は、位置ずれを含む複数の低解像度画像から、ベイズ推定によって位置ずれを推定し、高解像度画像を得る方法である^[1,2]。本研究では、画像の高解像度化に用いられるベイズ超解像をラマン散乱スペクトルに応用して、ピクセル分解能を向上させることにより、ピーク形状の微細な形状を評価し、フィッティングを用いずにラマンシフトの精密評価を試みた。

【実験方法】測定試料には、陽電子寿命による空孔欠陥測定用単結晶シリコン(NMIJ CRM 5606a)を用いた。532 nmのレーザーを用い、グレーティングを回転させることで、波数の原点をず らしながら、約1 cm⁻¹のピクセル分解能で 200 個のラマン散乱スペクトルを取得した。得られた スペクトルからベイズ超解像により 0.01 cm⁻¹のピクセル分解能のスペクトルデータを再構築し た。ベイズ超解像の事前分布には、隣接画素間に滑らかさ制約を置くようにガウス分布を用いた。 EM アルゴリズムにより、パラメータ推定を行い、0.01 cm⁻¹間隔で各点の強度の平均値を計算し 高解像度のスペクトルデータを得た。

【結果・考察】Fig.1に超解像後のスペクトルを示す。0 cm⁻¹付近に観察されたピーク(Fig.1(a))は レイリー散乱の漏れ光であるが、非対称的なピーク形状となっており、ガウス関数など対称的な 関数でフィッティングを行うと、ピーク位置には系統的な誤差が生じることが予想される。また、 520 cm⁻¹付近に観察されたシリコンのラマン散乱(Figs.1(c)(d))では、ピークトップの形状が非対称 となっていることがわかる。このようなピーク形状の非対称性は、通常の分解能のスペクトルで は観測できないものであり、光学軸のわずかなずれによって生じていると考えられる。また、200

このデータから超解像スペクトルを再構築 するため、積算によって S/N 比も向上してお り、2 フォノンラマン散乱のピークも検出す ることができている(Fig. 1(b))。超解像スペ クトルの極大値からシリコンのラマンシフ トを見積もったところ、520.55 (+0.12, -0.09) cm⁻¹となり、報告されている値 (520.45±0.28 cm⁻¹)と同等の値であることが明らかとなっ た。このことから、ベイズ超解像によってラ マン散乱ピークの微細な形状や、ラマンシフ トを精密に評価できることが明らかとなっ た。

【参考文献】

[1] M. E. Tipping and C. M. Bishop, *Advances in Neural Information Processing Systems 15*[2] A. Kanemura et al., *Neural Networks* 22, 1025–1034 (2009).

[3] N. Itoh and K. Shirono, *J. Raman Spectrosc.* **51**, 2496–2504 (2020).



Fig. 1: Reconstructed Raman spectrum by Bayesian superresolution for (a) Rayleigh scattering, (b) two-phonon Raman scattering and (c)(d) Raman scattering of Si.