

ラマンスペクトルデータを用いた機械学習への応用

日大 生産工 ○長沼 岳
 日大 生産工(院) 趙 立民
 德島大院 社会産業理工学研究部／徳島大 ポストLED フォトニクス研究所 柳谷 伸一郎
 德島大院 社会産業理工学研究部 大野 恭秀
 德島大院 社会産業理工学研究部 永瀬 雅夫
 日大 生産工 南 康夫

1. まえがき

ラマン分光法は、物質にレーザーを照射した際に発生するラマン散乱光を測定することで、物質の構造解析、同定、物性評価を行う分析手法である。無機物や有機物の幅広い試料に適用でき、非破壊での測定や、微細な部分の評価が可能である¹⁾。

また、近年の材料評価や分類には機械学習が広く用いられる。機械学習は大量のデータをもとに規則性やパターンを学習し、新しいデータを分類、予測する。画像認識分野において、畳み込みニューラルネットワーク(CNN)が広く使用されている。CNNは、画像データを学習することで入力画像から特徴量を抽出し、それらを区別する仕組みである。そのため、材料評価においてもCNNによって画像認識による分類を効率的に行うことが可能となる²⁻⁴⁾。

グラフェンは、炭素原子が六角形に結合した2次元のハニカム構造を持ち、極めて高い伝導性、強度、柔軟性を備えている。特に単層グラフェンは電子構造が特殊であることから、センサーなどの電子デバイスに組み込む研究が盛んになされている。

本研究では、長年の使用により欠陥(不注意な取り扱いに依る物理的損傷)のできた単層グラフェンを試料に用いてラマン分光イメージングを行い、傷のある部分、キズのない部分それぞれのラマンスペクトルを機械学習させ、分類することを試みた。

2. 実験方法および測定方法

2.1 試料—単層グラフェン—

本研究で使用する試料は、炭化ケイ素(SiC)基板上に成膜された単層グラフェンである。徳島大学 永瀬・大野研究室から提供されたこの試料は、厚さ500 μmのSiC基板を高温で熱分解

することによって作製された^{5,6)}。試料のサイズは10×10 mm²である。

本研究とは別の実験に使用し続けてきたため、大面積のグラフェンに傷が付くなどしていると考えられる。Van der Pauw法により試料のキャリア移動度とキャリア密度が測定したところ、キャリア移動度は328 cm²/Vs、シートキャリア密度は 5.13×10^{12} cm⁻²であり、移動度が単層グラフェン作製直後の値よりも低下していることを確認した。

2.2 ラマン分光

単層グラフェンを評価するにあたり、レーザーラマン分光高度計(NRS-5500, JASCO)を使用した。波数50 - 8000 cm⁻¹の範囲のラマンスペクトルを計測可能であり、単層グラフェンの特徴的なスペクトルを捉えることができため、単層グラフェンのクオリティー評価に適している。

2.3 機械学習

測定したSiCのラマンスペクトル81個、グラフェンのラマンスペクトル44個を用いてCNNで学習を行った。SiCの波形データ81個とグラフェンの波形データ20個を学習用にし、残りのグラフェンの波形データ24個を評価用とした。格子状データのプロットそれぞれをSiC基板上の単層グラフェンと、SiC基板に分類した。そしてそれらの評価が正しいかどうかをプログラム内で確認した。

3. 実験結果および検討

SiC基板上の単層グラフェンのラマンスペクトルとをSiC基板のラマンスペクトルを測定したところ、それぞれ図1(a), (b)のようになった。両者を比較すると、図1(a)のみに約2700 cm⁻¹にピークが見られる。このピークは単層グラフェ

Application of Machine Learning to Raman Spectral Data

Gaku NAGANUMA, Limin ZHAO, Shin-ichiro YANAGIYA, Yasuhide OHNO,
 Masao NAGASE, and Yasuo MINAMI

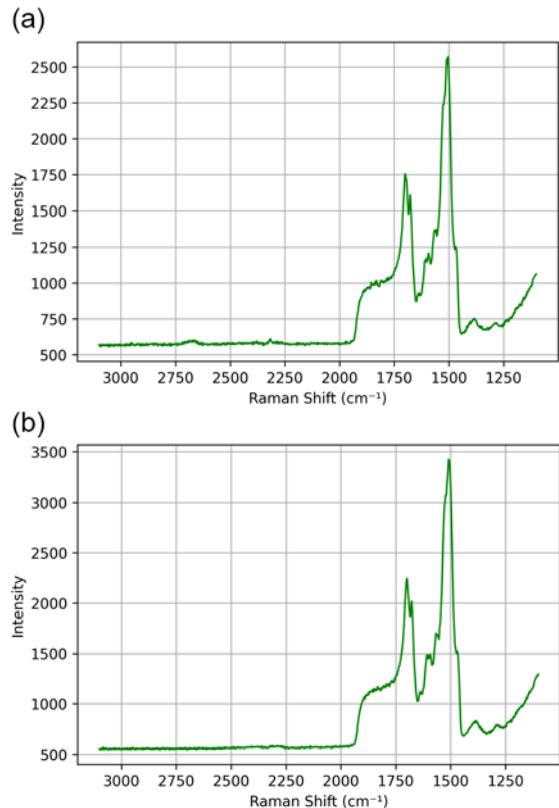


図1 (a)SiC基板上の単層グラフェンのラマンスペクトル。(b)SiC基板のラマンスペクトル。

ンの2Dモードによるもので、単層グラフェンのクオリティの評価に利用され、本研究で用いる単層グラフェンはハイクオリティと言える。

ラマンイメージングを行う試料の領域を図2に示す。イメージの中央に濃い灰色で示した部分には、傷（試料の不注意な取り扱いに依る物理的損傷）があると考えられる。この濃い灰色の部分とその周辺のラマンスペクトルを10 μm間隔で測定した。ラマンスペクトルの測定位置は図中に円（○）で示している。

これらのラマンスペクトルをCNNを用いた機械学習によって、SiC基板上の単層グラフェン、SiC基板のみに分類したところ図3のようになった。赤色の丸（●）はSiC基板上の単層グラフェン、青色の丸（●）はSiC基板のみをそれぞれ示している。傷周辺のSiCのみになった領域は、今回の測定では1点のみ確認され、顕微鏡イメージでは判別できない点でグラフェンが剥離していることがわかった。

4. まとめ

本研究では、市販のラマン分光装置を用いて、グラフェンの損傷評価を行い、得られたデータをもとに機械学習アルゴリズムを適用してそ

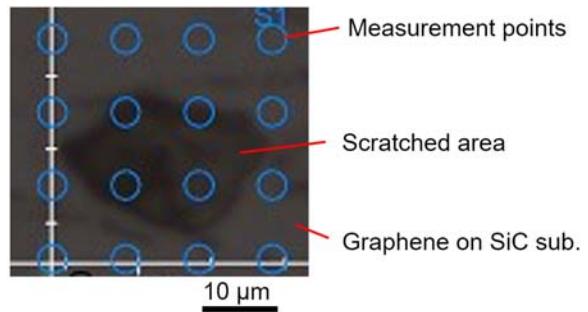


図2 ラマンイメージングを行う試料の領域。

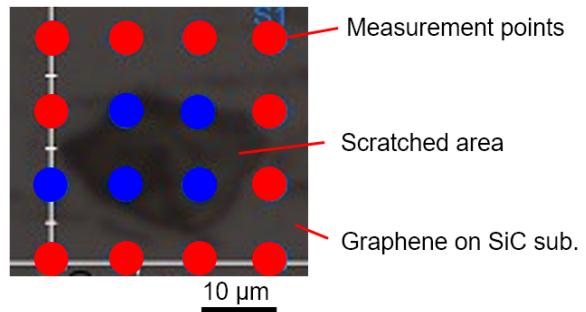


図3 機械学習により、ラマンスペクトルの測定点を単層グラフェン、SiC基板に分類したものの。

れぞれの測定点の分類を行った。まず、ラマン分光装置によるグラフェンのスペクトルから、傷がついていると考えられる部分とそうでない部分でラマンスペクトルに違いが生じたため、欠陥評価が十分に行われていると考えられる。また、それらのデータを機械学習に読み込ませることで、CNNは欠陥のある部分とそうでない部分を分類し、ラマンスペクトルのデータに基づく機械学習モデルの有効性を示した。本研究の結果は、ラマン分光法を用いた物質の欠陥評価が機械学習を活用することで、より効率的な評価を可能とすることを示している。

参考文献

- 1) 大久保 優晴, 色材協会誌 **78**, pp. 489-494 (2005).
- 2) 趙立民ほか, 第57回日本大学生産工学部学術講演会, 講演予稿集 p. 172 (2024).
- 3) 趙立民ほか, 第86回応用物理学会秋季学術講演会, 講演予稿集 p. 03-024 (2025).
- 4) 趙立民ほか, 2025年第72回応用物理学会春季学術講演会, 講演予稿集 p. 17-066 (2025).
- 5) K. Kobayashi *et al.*, Appl. Phys. Express **8**, 036602 (2015).
- 6) T. Aritsuki *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys. **55**, 06GF03 (2016).