



JASRI



熊本大学
Kumamoto University

頒布先：文部科学記者会、科学記者会、大阪科学・大学記者クラブ、
兵庫県政記者クラブ、中播磨県民センター記者クラブ、西播磨県民
局記者クラブ、熊本県内報道機関、PR TIMES
報道解禁：なし

2026 年 5 月 12 日

公益財団法人高輝度光科学研究センター

国立大学法人電気通信大学

国立大学法人熊本大学

深層事前分布に基づくグリッド除去技術による

軟 X 線角度分解光電子分光の抜本的高効率化

～エネルギー分解能を損なわない高速/高精度観測環境を構築～

【概要】

公益財団法人高輝度光科学研究センター(JASRI)の山神 光平 研究員は、横山 優一 研究員および中村 哲朗 技術員、電気通信大学の庄野 逸 教授および住谷 祐太 氏(当時: 博士前期課程学生)、熊本大学の水牧 仁一朗 教授とともに、大型放射光施設 SPring-8^{*1}の軟 X 線固体分光ビームライン BL25SU で稼働しているマイクロ集光軟 X 線角度分解光電子分光システム(μ SX-ARPES)に、独自開発した「深層事前分布に基づくグリッド除去法」(DPDM)^{*2}を統合することで、従来のエネルギー分解能を損なうことなく超高効率な μ SX-ARPES 測定が行える環境を実現しました。本開発研究で具体的に実現、実証した点は以下となります。

1. ARPES データに存在する周期的なグリッド構造やスパイク構造を約 30 秒で効果的に除去するシステムを開発しました。
2. 重い電子系物質 CeRu_2Si_2 の測定において、DPDM と組み合わせることで、約 40 秒という短時間で統計的に信頼できる ARPES データが得られることを示しました。グリッド除去の処理時間を合わせた合計測定時間は約 70 秒で、従来の測定方法で同等のデータを得るために要した 2700 秒と比較して 90%以上の時間短縮に成功したことを意味します。
3. この効率化により、これまで時間的制約により困難であった超高分解能測定が可能となります。51.6 meV という、SX-ARPES における歴代最高クラスのエネルギー分解能での測定であっても、実用的な測定時間で実施できる見込みを示しました。

本研究成果は、SX-ARPES 測定の時間的負担という根本的な技術的制約を克服し、今後、次世代放射光光源を活用した超高分解能測定や 3 次元非平衡電子構造観測といった新しい軟 X 線分光測定技術の発展に道を開くものと期待されます。この研究成果をまとめた論文は、米国物理学協会が発行する国際科学雑誌『Review of Scientific Instruments』にオープンアクセスとして 5 月 8 日に掲載されました。

【開発研究の背景】

角度分解光電子分光(Angle-resolved photoemission spectroscopy: ARPES)は、物質中の電子が持つエネルギーを運動量の関数として測定し、物質の電子構造を直接可視化する強力な実験手法です。中でも、軟 X 線(SX、光子エネルギー: ~ 800 eV)を励起光として用いた軟 X 線 ARPES (SX-ARPES)は、物質内部にも感度があり、物質の電子構造を 3 次元運動量空間に分解して観測できる特徴を有しています。しかし、微細な電子構造の観測に適した真空紫外光(VUV、光子エネルギー: ~ 40 eV) ARPES (VUV-ARPES)と比較すると、光電子放出の光イオン化散乱断面積^{※3}が 1 桁以上小さいため、長い測定時間が必要です。このため、表面酸化といった試料の経時変化や、励起光のエネルギー変動による分解能の悪化などの問題が起こりやすく、SX-ARPES ユーザーは大きな負担を抱えながら実験を実施する必要がありました。

研究グループは、従来のエネルギー分解能を維持しつつ、より速く統計精度(S/N 比)の高い ARPES データを獲得するため、静電半球型光電子分析器(アナライザー)に備わっている電圧固定測定モード(Fixed mode)に注目しました(図 1)。このモードでは、光電子を検出するマルチチャンネルプレート(MCP)の検出領域に到達する光電子に限定して、運動エネルギーと放出角度を測定します。より広い運動エネルギー範囲を測定可能な電圧掃引モード(Swept mode)と比較して、高い S/N 比のスペクトルを短い時間で取得できます。しかし、迷光電子^{※4}を遮断するための金属メッシュフィルターや検出ユニットの経年劣化によって、周期的なグリッド構造と非周期的なスパイク構造がデータ内に形成されます(図 1)。これらがスペクトル解析を行う上で大きな障壁となっており、グリッド除去技術が必要不可欠でした。

【開発内容と成果】

研究グループは、SPRing-8 の軟 X 線固体分光ビームライン BL25SU に設置されているマイクロ集光 SX-ARPES システム(μ SX-ARPES)に、「深層事前分布に基づくグリッド除去法」(Deep-Prior based Denoising Method: DPDM)を統合したシステムを構築しました(図 2)。DPDM は、学習済みデータセットを必要としないトレーニングフリーの手法であり、4 層 U 字型畳み込みニューラルネットワークの構造的特性を利用しています。DPDM 専用 PC を用意し、他の PC からリモート接続によってグリッド除去システムを操作することで、リアルタイム(約 30 秒)でグリッド除去が可能な環境を構築しました。ユーザーは平均二乗誤差で定義された損失関数を参照しながら最適なグリッド除去後の画像を選択します。

構築したシステムを用いて、以下のように ARPES データ取得の超高効率化を実証しました。

I. 超高効率測定の実証

重い電子系物質 CeRu_2Si_2 を対象として Fixed mode で ARPES 測定を行い、DPDM を適用した結果、40 秒の積算時間のデータでも明瞭なスペクトルが得られ、バンド分散が識別できました。これまで、Swept mode で 2700 秒の測定時間を要していたことを考えると、90%以上の時間短縮が可能であることを実証しました(図 3)。

II. 不鮮明なバンド構造の抽出

結晶欠陥や電子間相互作用、そして熱的效果によって引き起こされる光電子の散乱は、バンド構造を不明瞭にすることがあります。VUV-ARPES にてバンド分散が不明瞭であることが報告されているフェリ磁性半導体 $\text{Mn}_3\text{Si}_2\text{Te}_6$ を対象として DPDM を適用しました。グリッド除去後のデータでは、不明瞭だった複数のバンド構造が鮮明になり、それらのバンドに対応するピークをスペクトル上で捉えることに成功しました(図 4)。これは、DPDM によってグリッド構造を除去したことで埋もれたスペクトル構造が顕

在化したことを示しています。

【今後の展開】

本研究で開発された DPDM による超高効率 μ SX-ARPES システムは、これまでの μ SX-ARPES システムの測定分解能を損なうことなく、測定時間の大幅短縮を可能にしました。今後、以下のような軟 X 線電子分光に関するブレークスルーが期待されます。

1. 超高エネルギー分解能測定の実現

ARPES のエネルギー分解能は「光のエネルギー分解能」と「アナライザーのエネルギー分解能」の 2 つの要素で主に決まります。エネルギー分解能を良くするほど、高い S/N 比を稼ぐためには長い測定時間が必要となります。これまでの μ SX-ARPES システムの標準的なエネルギー分解能はおよそ 90 meV ですが、DPDM を駆使することで、51.6 meV の超高分解能測定が可能となりました(図 5)。今後、SPRing-8-II 計画^{※5}によって軟 X 線ビームの質が向上し、SX-ARPES のエネルギー分解能は世界最高レベルの 30 meV を切ることが予測されます。この分解能は VUV-ARPES に匹敵する分解能であり、銅酸化物高温超伝導体の超伝導ギャップのエネルギースケールと対応します。今後、高温超伝導体の発現機構などに深く関わるフェルミ準位近傍の電子構造を 3 次元運動量空間で詳細に解明する道が開かれます。また、3 GeV 高輝度放射光施設 NanoTerasu^{※6}などの他の放射光施設へも展開することで、軟 X 線電子分光のブレークスルーが加速されると期待されます。

2. 3 次元非平衡電子構造の観測

SPRing-8-II 計画により、コヒーレント(光の波の位相が揃った状態)な放射光軟 X 線の利用が視野に入っています。例えば、SX-ARPES によって、外場(熱、光、電場、磁場)を印加された非平衡バルク電子構造の観測が可能になると考えられます。DPDM による超高効率化は、次世代光源を用いた 3 次元非平衡電子構造ダイナミクス観測技術の開発にも大きく寄与することが期待されます。

【研究開発支援】

本研究は、JSPS 科研費 若手研究(課題番号：25K17944)および JST PRESTO (助成番号 JPMJPR25JA)の助成を受けて行われました。

【論文情報】

題名：Development of ultra-high efficiency soft X-ray angle-resolved photoemission spectroscopy equipped with deep prior-based denoising method

日本語訳：深層事前分布に基づくノイズ除去法を搭載した超高効率軟 X 線角度分解光電子分光法の開発

著者：Kohei Yamagami, Yuichi Yokoyama, Yuta Sumiya, Hayaru Shouno, Tetsuro Nakamura and Masaichiro Mizumaki

ジャーナル名：Review of Scientific Instruments

DOI：10.1063/5.0314932

【参考情報】

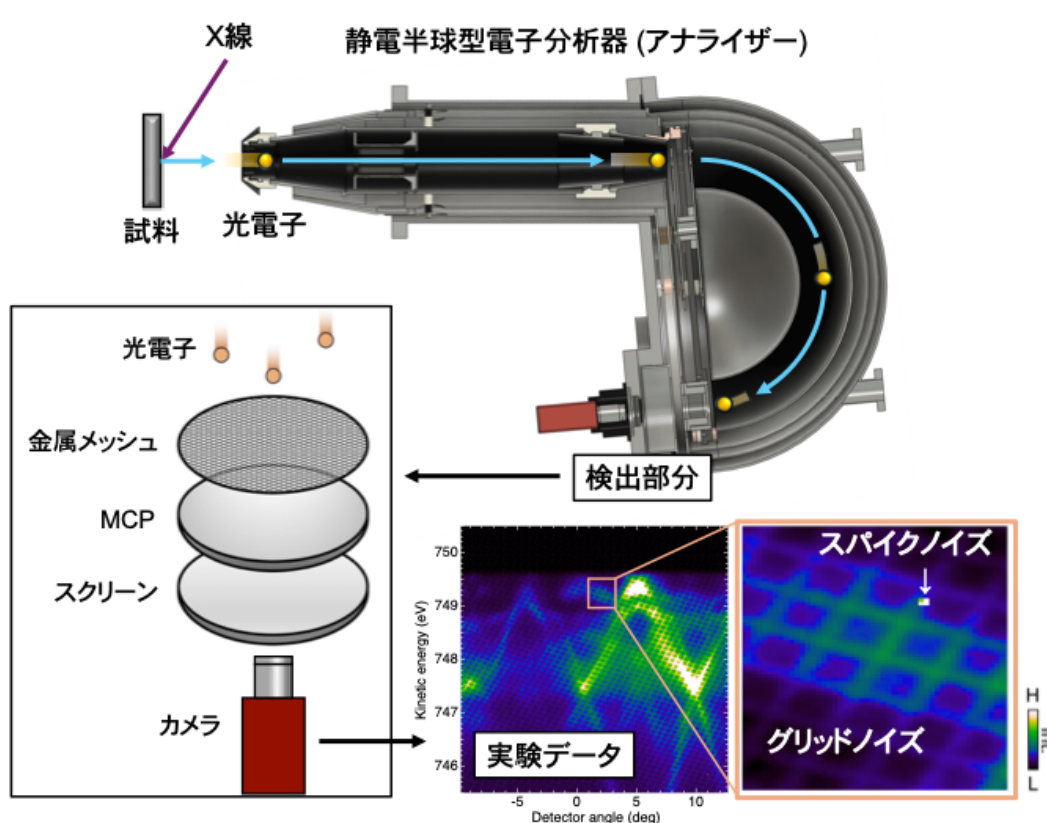


図1. 静電半球型光電子分析器(アナライザー)を用いた光電子検出の構造と Fixed mode で得られる ARPES データ。データを拡大すると金属メッシュ由来のグリッド構造と検出器の劣化によるスパイク構造が存在する。

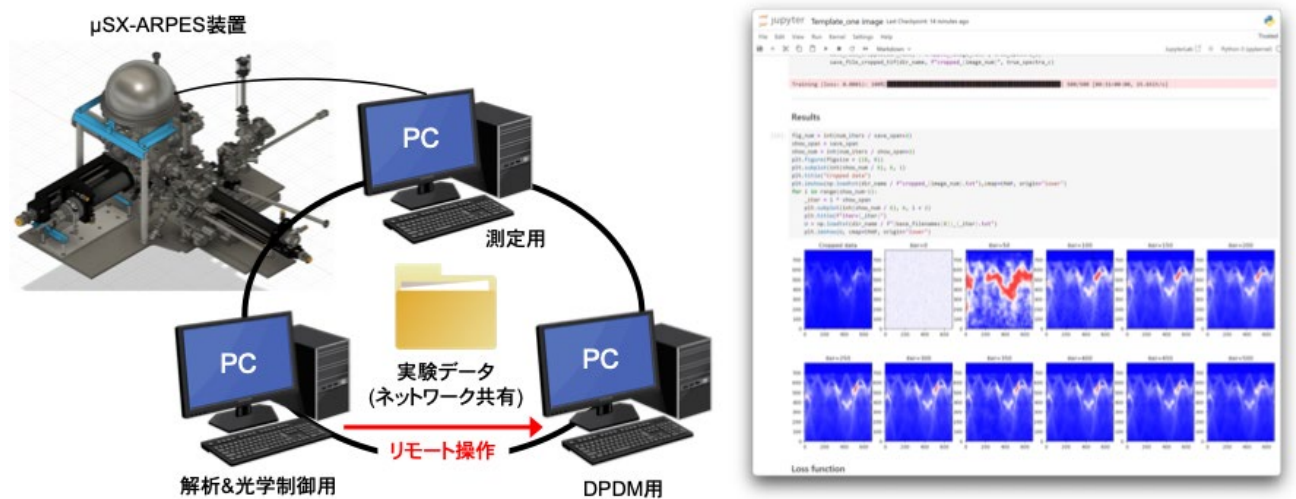


図2. (左) DPDM と統合した超高効率 μ SX-ARPES システムの概要図。(右) DPDM のグリッド処理画面。Python コードで構築したシステムを jupyter 上で実行する。

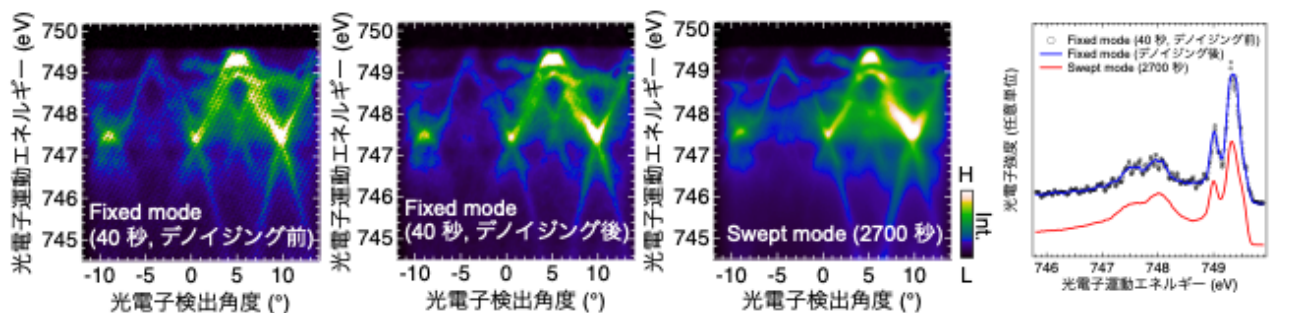


図3. CeRu_2Si_2 に対する SX-ARPES 測定。左から順に Fixed mode で取得した実験データのグリッド除去前と後、Swept mode で取得した実験データ、そして、光電子検出角度 5° の部分を切り出したエネルギー分散スペクトル。測定時間はそれぞれ Fixed mode は 40 秒、Swept mode は 2700 秒である。Fixed mode のデノイジング後のデータは Swept mode と同程度の滑らかさであることがわかる。

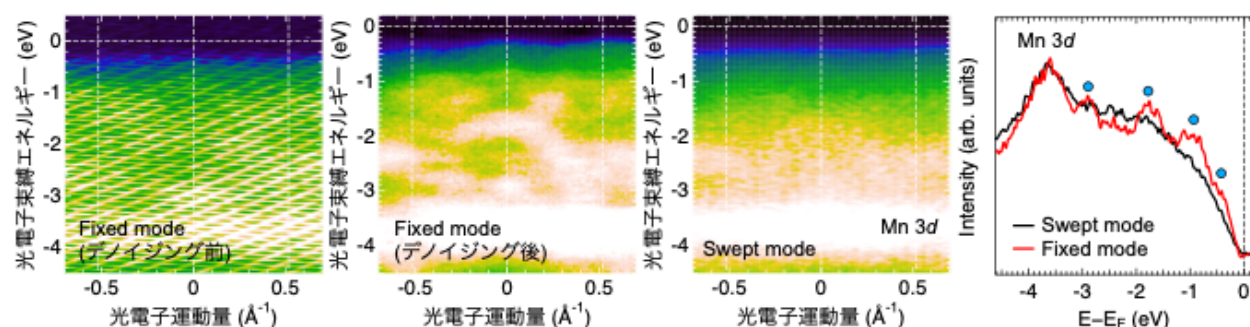


図4. $\text{Mn}_3\text{Si}_2\text{Te}_6$ に対する SX-ARPES 測定。左から順に Fixed mode で取得した実験データのグリッド除去前と後、Swept mode で取得した実験データ、そして、光電子運動量 $0 \text{ \AA}^{-1}$ の部分を切り出したエネルギー分散スペクトル。Mn 3d 電子由来のフラットバンドに加えて、Fixed mode のデノイジング後のデータはさらに 4 つもの明瞭なピークがスペクトル内に観測できている。

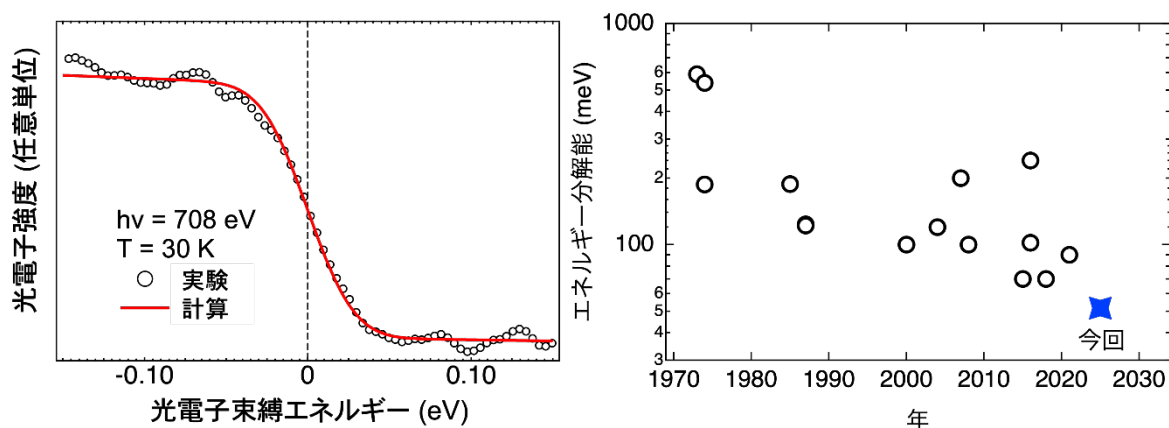


図5. (左) Swept mode で測定した金のフェルミ準位における角度積分光電子スペクトル。測定は BL25SU での最高エネルギー分解能環境下で行った。赤線はエネルギー分解能を 51.6 meV と仮定したフェルミディラック分布関数のフィッティング結果。測定時間は 2 時間を要し、ARPES 測定ではさらに時間が必要である。DPDM によって、より実用的な測定時間に短縮することが期待される。(右) SX-ARPES のエネルギー分解能の変遷。次世代放射光光源と組み合わせることで VUV-ARPES の

エネルギー分解能に匹敵する 30 meV の達成が期待される。

【用語解説】

※1. 大型放射光施設 SPring-8：理化学研究所が所有する兵庫県の播磨科学公園都市にある世界最高性能の放射光を生み出す大型放射光施設で、利用者支援は高輝度光科学研究センター(JASRI)が行っている。SPring-8（スプリングエイト）の名前は Super Photon ring-8 GeV に由来。SPring-8 では、放射光を用いてナノテクノロジー、バイオテクノロジーや産業利用まで幅広い研究が行われている。

※2. 深層事前分布に基づくグリッド除去法：深層学習のニューラルネットワークの構造そのものが持つ特性を画像処理の事前情報として利用する手法。トレーニングデータセットを必要とせず、ARPES データに特有のグリッドを効率的に除去するために本研究で応用された。

※3. 光イオン化散乱断面積：物質中の特定の電子軌道が、入射した特定のエネルギーの光子を吸収し、光電子を放出してイオン化する現象が起こる確率を定量的に表す物理量。これは、光と物質の相互作用の強さを表す基本的なパラメーターであり、光子のエネルギーの関数として表される。

※4. 迷光電子：光電子分析プロセス中に意図しない軌道で検出器に入射する電子。ARPES データのバックグラウンドノイズとして寄与し、スペクトル品質を低下させる要因の一つとなる。

※5. SPring-8-II 計画：現在の SPring-8 を超える世界最高レベルの性能を目指すアップグレード計画が進んでいる次世代大型 6 GeV 放射光施設計画。放射光の輝度とコヒーレンスが格段に向上し、超高分解能測定や高速・高感度測定を可能にすることで、物質科学研究のさらなるブレークスルーが期待される。

※6. NanoTerasu：宮城県仙台市にある次世代放射光施設。SPring-8 とは異なる中規模なエネルギー領域（3 GeV）に特化し、特に産業利用や地域イノベーションへの貢献を強く目指している。高輝度な軟 X 線・極端紫外線を発生させ、半導体や新素材開発における微細構造・機能解析に用いられている。

国の主体機関である量子科学技術研究開発機構と地域パートナー(宮城県、仙台市、東北大学、東北経済連合会で構成)の代表機関である光科学イノベーションセンターによる官民地域パートナーシップという新しい枠組みによって整備・運営する特定先端大型研究施設で、東北大学青葉山新キャンパス内に立地している。利用者支援等は高輝度光科学研究センター(JASRI)が行っている。最新の円型加速器設計を国内で初めて採用した第 4 世代放射光施設で、従来の 100 倍の高輝度化と高コヒーレント化を実現することで、物質構造の解析に加え、機能に影響を与える「電子状態」、「ダイナミクス」等の詳細な解析が可能。

《問い合わせ先》

(発表者) ※研究内容については発表者にお問い合わせください。

山神 光平 (ヤマガミ コウヘイ)

公益財団法人高輝度光科学研究センター 分光・イメージング推進室 研究員

住所：兵庫県佐用郡佐用町光都 1-1-1

TEL：050-3496-8970（内線：63625）FAX：0791-58-0830

E-mail：kohei.yamagami@spring8.or.jp

（報道に関すること）

公益財団法人高輝度光科学研究センター 利用推進部 普及情報課

TEL：050-3502-3763

E-mail：kouhou@spring8.or.jp

国立大学法人電気通信大学

総務部総務企画課広報係

TEL：042-443-5019

E-mail：kouhou-k@office.uec.ac.jp

国立大学法人熊本大学

総務課広報戦略室

TEL：096-342-3271

E-mail：sos-koho@jimu.kumamoto-u.ac.jp

（SPring-8 / SACLA に関すること）

公益財団法人高輝度光科学研究センター 利用推進部 普及情報課

TEL：050-3502-3763

E-mail：kouhou@spring8.or.jp