

イベント駆動型画像センサーによる超高速光電子画像計測法の開発

九州大学大学院理学研究院 准教授 堀尾 琢哉

1. はじめに

光電子画像計測法とは、物質にレーザー光を照射し、その際放出される光電子の速度・角度分布を可視化することで、物性・反応性の根源である物質内電子の振る舞いに迫る手法である。言うまでもなく、光電子の散乱画像を如何にして精度良く撮像できるかが、同手法の成否に関わる。撮像には、後述する二次元位置敏感型検出器により 1 個の光電子を約 10^6 個まで増幅した後、その電子集団を蛍光体に照射し、そこからの発光をカメラにより記録する。つまり、光電子の数と飛来位置を如何に正確に記録できるかが鍵となる。撮像用カメラとして、数メガピクセルの CCD もしくは CMOS センサーを搭載した理科学用カメラを使用するのが一般的であるが、それらの画像読み出し速度 (fps: frames per second) は数十からせいぜい数百 fps である。この場合、1 フレームの画像に輝点 (つまり光電子) が多数存在すると互いに重なり合い、複数個の輝点を 1 個の輝点として誤認してしまう。そのため、1 フレームの画像に輝点がまばらになるよう、レーザー光の出力や繰返し周波数を抑えるなどして、光電子発生レートを強制的に下げざるを得ない。これは計測時間の大幅な増加を生む。光電子画像計測法のみならず、現代科学の多くの分野において高繰返しかつ高出力レーザーの導入が進んでおり、肝心の画像計測の方がこの流れに追従できていない。例えば、繰返し周波数 1 MHz の高出力レーザーで光電子画像計測を行う場合を考える。レーザーパルスは $1\ \mu\text{s}$ に 1 発出射され、一般的な実験条件では、レーザーパルス 1 発あたり、1 個から 10 個程度の光

電子が発生する。これは、リアルタイムで光電子の計数と位置を記録するために、1 Mfps という超高速で画像読み出しを行う必要性を意味する。高速度カメラにより実現可能であるが、仮に 1 M ピクセル、16 bit 階調の画像を、同速度で読み出すと毎秒あたりの容量は 2 テラバイトにもなり情報爆発をきたす。

そこで着目したのがイベント駆動型画像センサー^[1]である。同センサーは、近年自動運転を始めとする分野で開発が進み、人間の眼細胞を模倣した画素子である。輝度の時間変化があった画素 (x, y, t) (=“動くもの”だけの位置情報) のみを最大 1 Mfps で読み出せるため、従来型の画像センサーに比べ高速かつ圧倒的にデータ容量が少ない (従来型カメラは、輝度に変化していない画素、すなわち画像計測法では無駄な情報も出力する)。光電子画像計測法は、広義に荷電粒子画像計測法の一つであり、イベント駆動型画像センサーを同分野に応用した初めての例は、筆者の知る限り、沖野友哉博士らである。彼らは繰返し 1 kHz のチタンサファイア (Ti:Sa) レーザーでエタノール分子をクーロン爆発させ、その際発生する解離イオン種の運動量画像をイベント駆動型画像センサーで可視化した例を報告している^[2]。イオン種は質量選別が可能であるため背景信号に邪魔されることはないが、光電子の場合は真空装置の残留ガスや電極からの二次電子放出に悩まされるため、イオン画像の取得に比べ実験難易度が格段に上がる。イベント駆動型センサーを用いて光電子画像を撮像できれば、当該分野の動向を変革させるのは明白であり、さらにレーザーの

繰返し周波数を 100 倍の 100 kHz (将来的には 1 MHz=1,000 kHz を目指す) にすれば、極めて高効率の光電子画像計測法を実現できると確信し、本研究を着想した。以下にその実験手法と得られた成果について述べる。

2. 実験手法

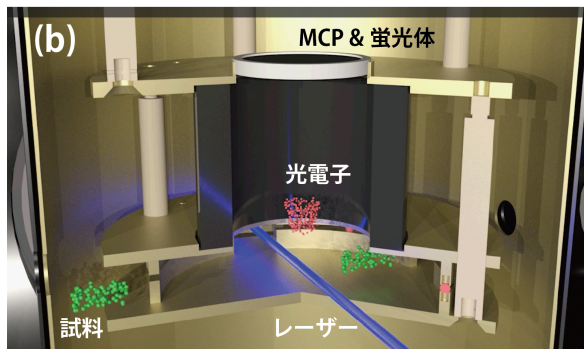
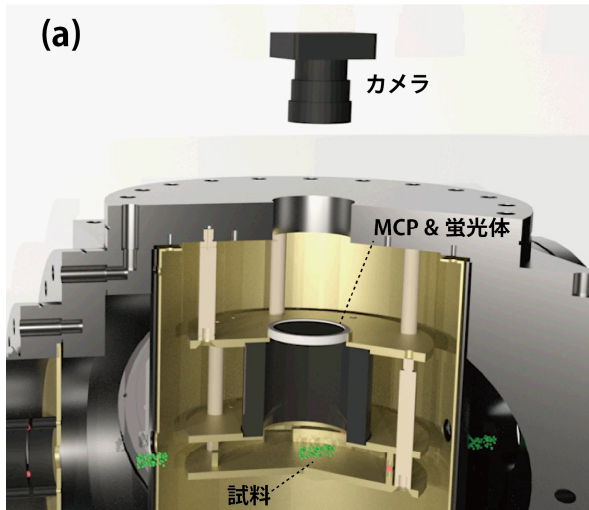


Fig. 1 光電子画像計測法の概略図。

(a)全体図 および (b)拡大図。

Fig. 1 に光電子画像計測法の概念図を示す。目的試料を真空中に導入し、そこにレーザー光を照射することで光電効果を誘起する。光電効果により試料から放出された光電子は立体角 4π 方向に散乱するが、それら全てを静電場 (約 10 V/cm) により捕集し、二次元位置敏感型検出器 (マイクロチャンネルプレート (MCP) と蛍光体) に誘導する。蛍光体からの発光を撮像することで三次元空間に広がった光電子放出分布の二次元射影像

を取得し、その画像に逆アーベル変換と呼ばれる数学的处理 (一種のコンピュータトモグラフィ:CT) を施すことで元の光電子放出分布を得ることが出来る。この二次元射影像を撮像するため、新たにイベント駆動型画像センサーを搭載したカメラ (CenturyArks 社製 SilkyEvCam HD, 1280×720 ピクセル、以下イベント駆動型カメラと呼ぶ) を導入し、その性能評価を行った。

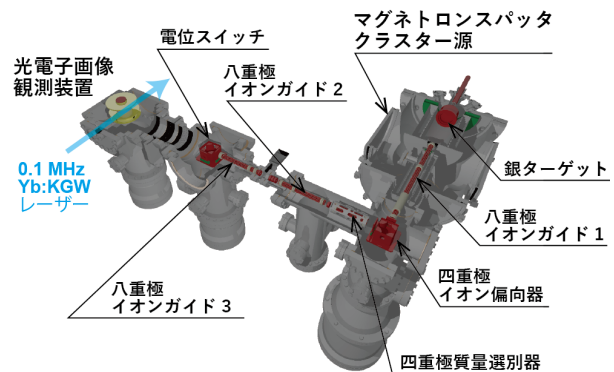


Fig. 2 本研究で用いた実験装置の概略図。

本実験は Fig. 2 に示す既存の装置を用いて行った。二次元射影像観測用の試験試料には銀原子の負イオン Ag^- を用いた。同負イオンの電子束縛エネルギー (= 銀原子の電子親和力) は $1.302 \text{ eV}^{[3]}$ であり、近赤外光や可視光でも容易に電子脱離を起こせる利点がある。前述の背景信号による障害は受けず、性能試験に最適な系である。真空チャンバーに設置した直径 50.8 mm, 厚さ 5 mm の銀ターゲットを高速のアルゴンイオンによりスパッタすることで、銀原子が放出される。スパッタ時に生ずるプラズマにより、負電荷が銀原子に付与され、イオンガイドと四重極質量選別器により Ag^- のみを後段の光電子画像観測装置まで導いた。光源には、繰返し周波数 100 kHz の Yb:KGW 再生増幅器を用いた。その基本波 1030 nm の光子エネルギー 1.20 eV は、銀原子負イオン Ag^- の電子脱離を誘起するには不十分なため、基本波の出力と光パラメトリック増幅器の組み合わせによ

り、波長 310 から 2,600 nm の連続波長可変レーザー光を発生させた。四重極質量選別器通過後の銀原子負イオン Ag^- は連続イオンビームとして得られる。光パラメトリック増幅器から出射される繰り返し周波数 100 kHz のフェムト秒パルスと同期させるためポテンシャルスイッチを使い、その後、 Ag^- から放出された光電子散乱分布の二次元射影像をイベント駆動型カメラで撮像した。

3. 結果と考察

Fig. 3(a)に銀原子負イオン Ag^- から放出された光電子の二次元射影像を示す。光電子脱離に用いたレーザーの波長は 400 nm (光子エネルギー 3.10 eV) であり、エネルギー保存則から 1.80 eV ($= 3.10 - 1.302$ eV) の運動エネルギーを持った光電子が発生する。画像の中心に銀原子負イオン Ag^- が位置し (もちろん視認はできない)、そこから放出された光電子の放出分布を MCP に対して射影した像である。撮像は 1 分以内の積算で完結する。Fig. 3(a)において、白の四角の破線で囲った領域の拡大図を右上図に示す。良く見ると、周辺ピクセルと比べて著しくカウント数の多い点 (以降、ホットピクセルと呼ぶ) が一つだけ確認できる (拡大図中の白い輝点)。イベント駆動型カメラの設定など、撮影条件やその他の実験条件を検討したもの、残念ながらこのホットピクセルの原因を特定することは出来なかった (ホットピクセルの位置が毎回同じであれば、容易に除去可能であるが、ホットピクセルの位置がランダムに変わるので非常に厄介な問題である)。そこで、これらホットピクセルの影響を低減するため、Fig. 3(a)の画像に 3×3 の画像フィルターを施すこととした。得られた結果が Fig. 3(b)である。ホットピクセルの影響が低減化されているのが見て取れる。しかし、画像フィルターを施した場合に起こる問題が画像分解能の低下である。それを精査

するため、Fig. 3(a)および 3(b)の両画像に対して逆アーベル変換を行い、元の三次元分布を復元し、そこから光電子の運動エネルギー分布 (光電子スペクトル) を抽出した (逆アーベル変換には Verlet らが開発した Polar Onion Peeling 法^[4]を用いた)。

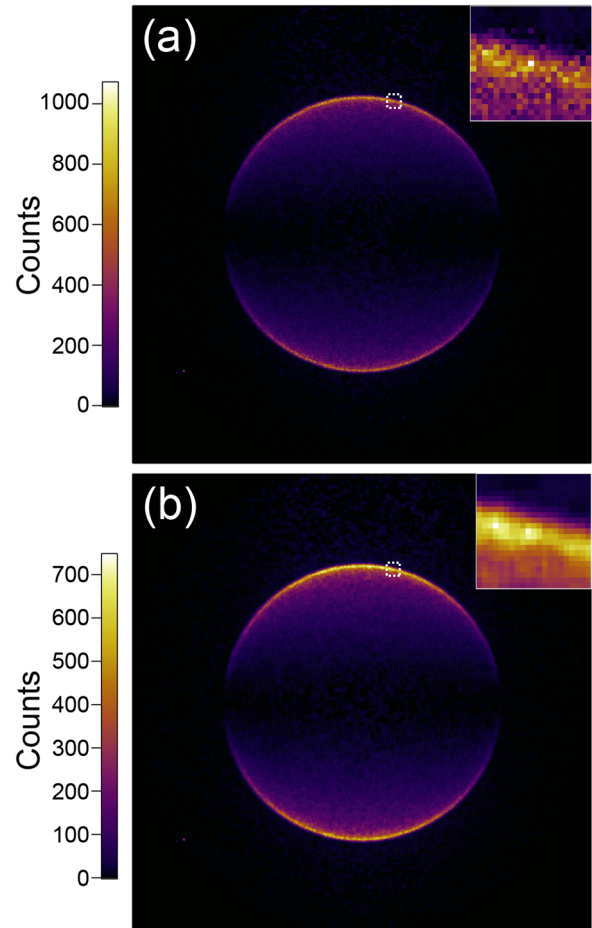


Fig. 3 レーザー波長 400 nm にて得られた銀原子負イオン Ag^- から放出された光電子の二次元射影像。

その結果を、Fig. 4(a)および 4(b)にそれぞれ示す。画像フィルター無しの場合のエネルギー分解能が 4.3%、 3×3 の画像フィルター有りではエネルギー分解能が 4.7%であった。分解能が大きく損なわれない上、ベースラインのノイズが低減されていることから、 3×3 画像フィルターの画像処理が本実験では有効であると総合的に判断した。以上の通り、イベント駆動型画像センサーと繰り返し

周波数 100 kHz のレーザーを組み合わせることで、超高速光電子画像計測法を実現した。

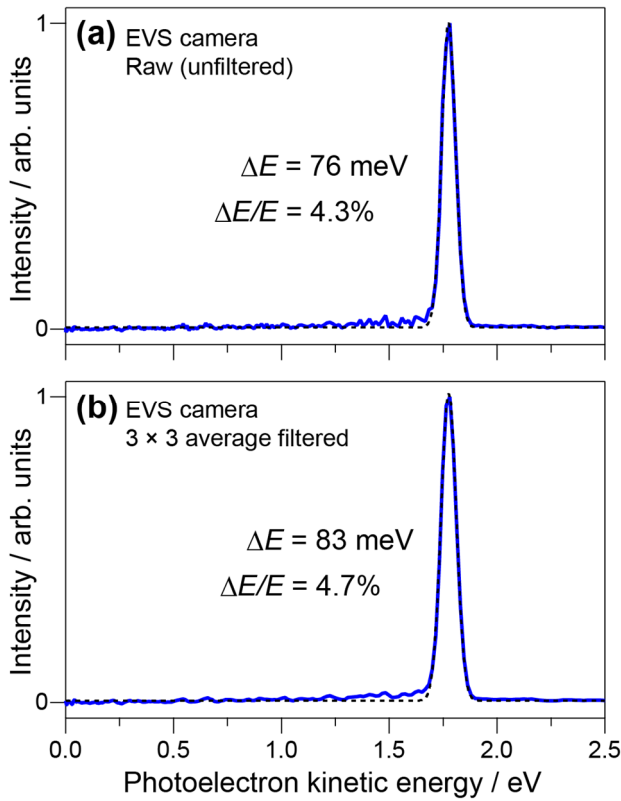


Fig. 4 Fig. 3(a)および 3(b)から得られた Ag^- の光電子スペクトル。

イベント駆動カメラの性能評価後、Fig. 2 に示す装置を使い銀三量体負イオン Ag_3^- を気相合成し、その光電子画像観測を行った。以下では、その結果について詳述する。 Ag_3^- の基底電子状態は直線型構造を有し、その最高被占軌道（以下、HOMO）、および HOMO の次に軌道エネルギーが低い HOMO-1 は、それぞれ σ_u および σ_g 軌道である。 σ_u 軌道は、中央の銀原子上に節（波動関数の値がゼロになる位置）を持ち、原子 p 軌道に似た電子分布を、一方、 σ_g 軌道は角度方向に節の無い、原子 s 軌道に共通する特徴を有する。レーザー波長を変えながら、これら二つの対称的な被占軌道から電子を叩き出し、その際発生する光電子の散乱分布の二次元射影像をイベント駆動型カメラで撮影した。得られた結果を Fig. 5 に示す。

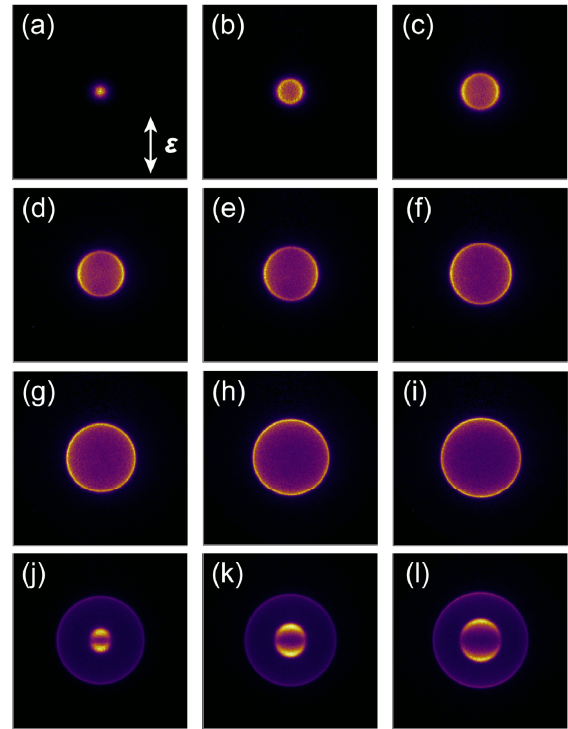


Fig. 5 銀三量体負イオン Ag_3^- から放出された光電子の二次元射影像。光電子脱離に用いたレーザーの光子エネルギーは以下の通り。
(a) 2.43, (b) 2.53, (c) 2.64, (d) 2.76, (e) 2.89, (f) 3.02, (g) 3.18, (h) 3.35, (i) 3.45, (j) 3.65, (k) 3.77, (l) 3.88 eV

Fig. 5(a)を見ると、画像中心に光電子信号が集中している。これは HOMO から電子脱離しきい値(2.43 eV^[3])とレーザーの光子エネルギーが等しいため、運動エネルギーがほぼゼロの光電子が発生していることを意味する。光子エネルギーを増加させると、それに伴い信号の分布が拡大していく様子が明らかである。光電子が獲得する運動エネルギーが増えるためである。レーザー電場の偏光軸（図(a)中に示した両矢印）に対する角度分布を見ると、運動エネルギーの増加に伴い、偏光軸と垂直な方向に異方性を示すことが分かる（例えば図(e)）。古典的には電子はレーザー電場と平行な方向に揺動されると想像できるので、この直感と矛盾する。これが量子力学的効果であり、HOMO が原子 p 軌道に似た性格を帯びているた

めである。原子 p 軌道から光電子の波が放出される場合、光学選択則より s 波と d 波の二つの波が放出される。その波の出方は光電子の運動エネルギーに依存し、エネルギーが低い場合は、s 波が支配的であるのに対し、エネルギーが高くなると、d 波の寄与が増加する。それら二つの波がレーザー偏光軸と平行な方向で破壊的干渉を、垂直な方向で建設的干渉を起こした結果、前述の結果となる。さらに光電子の運動エネルギーを増加すると、画像中央に新たな信号が出現する。これが HOMO-1 から放出された光電子であり、レーザー偏光軸に沿って著しい異方性を示す。これは前述の通り、HOMO-1 が原子 s 軌道と似た性格を有するため、低エネルギーでは p 波が支配的に放出されたことを意味している。

4. 結論

本研究では、次世代の超高速光電子画像計測法の開発に成功し、それが占有軌道の固有エネルギーだけでなく、それらの軌道形状（厳密には軌道角運動量）までも調べる強力な実験手法であることを示した。本成果は、2025 年に米国物理学協会の専門学術誌 The Journal of Chemical Physics に掲載された^[5]。その他、研究計画書で記載したように、蛍光体上の輝点に対して重心演算処理を行うことで画像分解能を向上させる研究も推進した。本成果も今後公表する予定である。

5. 参考文献

- [1] ソニーセミコンダクタソリューションズグループ株式会社 ウェブサイト. 技術紹介ページ: 技術_産業用イメージセンサー_“イベントベースビジョンセンサー (EVS) 技術”.
<https://www.sony-semicon.com/ja/technology/industry/evs.html>
- [2] 沖野友哉, 緑川克美, 第 16 回分子科学討論会 2022 横浜 1A22.
- [3] J. Ho, K. M. Ervin, and W. C. Lineberger; Photoelectron spectroscopy of metal cluster anions: Cu_n^- , Ag_n^- , and Au_n^- , J. Chem. Phys., **93**, (1990), 6987.
- [4] G. M. Roberts, J. L. Nixon, J. Lecointre, E. Wrede, and J. R. R. Verlet; Toward real-time charged-particle image reconstruction using polar onion-peeling, Rev. Sci. Instrum., **80**, (2009), 053104.
- [5] Y. Suzuki, T. Nishizato, K. Matsumoto, Y. Ushiki, Y. Aoki, A. Terasaki, and T. Horio; Photoelectron imaging spectroscopy of Ag_3^- in the S_0 and S_1 states, J. Chem. Phys., **162**, (2025), 184304.

6. 謝辞

本研究は島津科学技術振興財団の助成金により行われました。この場を借りて、深く御礼を申し上げます。