

令和 5 年 5 月 26 日現在

機関番号：12601

研究種目：若手研究

研究期間：2020～2022

課題番号：20K15188

研究課題名（和文）不可逆過程計測のための高感度シングルショットテラヘルツ時間波形計測

研究課題名（英文）High-sensitive single shot THz detection for irreversible process measurement

研究代表者

谷 峻太郎（Tani, Shuntaro）

東京大学・物性研究所・助教

研究者番号：80711572

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,300,000円

研究成果の概要（和文）：本研究課題は超短パルスレーザーにより引き起こされる破壊過程をテラヘルツ放射を通して明らかにすることを目的としたものである。本研究では主として2つの成果を得た。1つはレーザーアブレーションに伴うテラヘルツ電磁波放射の時間波形から金属におけるレーザーアブレーションのメカニズムを明らかにしたことである。もう1つは、シングルパルス照射毎に起こる表面形状の変化を深層ニューラルネットワークを用いた差分方程式により記述することに成功し、予測性の高いレーザー加工シミュレーターの開発に成功したことである。

研究成果の学術的意義や社会的意義

超短パルスレーザーによる物質の破壊過程は超短パルスレーザーアブレーションと呼ばれ、強い光電場により瞬間的に駆動された物質系がどのように振る舞うのかという興味のもと30年以上に渡って研究が行われてきたがそのメカニズムは未だ明らかになっていなかった。また超短パルスレーザーアブレーションを用いた加工ができることが知られていたが、多パルス照射後の3次元形状を予測できるモデルは存在しなかった。本研究課題の遂行により明らかになったアブレーションメカニズムおよび、構築された深層学習に基づくシミュレータはこれらの課題を乗り越えたものである。

研究成果の概要（英文）：The purpose of this research project is to clarify the destruction process induced by ultrashort laser pulses through terahertz radiation. Two main results were obtained in this study: first, the mechanism of laser ablation in metals was clarified from the time waveform of terahertz electromagnetic radiation associated with laser ablation. The second is the development of a highly predictive laser processing simulator by using a deep neural network to describe the surface profile change that occurs with each single pulse irradiation using difference equations.

研究分野：レーザー加工

キーワード：レーザーアブレーション テラヘルツ時間領域分光 深層学習

1. 研究開始当初の背景

パルスレーザーによる物質の破壊現象をレーザーアブレーションという。なかでも超短パルスによるレーザーアブレーションは、強い光電場により瞬間的に駆動された物質系がどのように振る舞うのかという基礎科学の側面、および高品位な微細加工が可能であるという応用科学の側面から盛んに研究が行われてきた。とりわけレーザーアブレーションの過渡過程は、光-電子-格子-原子が非線形かつ不可逆に相互作用する系として時間分解電子線・X線回折測定、時間分解反射率・複屈折率測定などの分光手法により観測が行われ、電子励起過程や電子構造の崩壊過程、格子の熱化過程が明らかにされてきた。一方、レーザーアブレーションの根幹をなす原子結合の破断過程については理論的研究が先行し、実験的観測が困難であった。これは前述のポンプ・プローブ法(高強度レーザーにより誘起された物質状態の変化を、別のプローブパルスにより瞬間的に切り出して観測する手法)では、プローブ光によって空間的に平均化された情報しか得られず、特異点的な破断過程の信号が埋もれてしまうためである。研究代表者は強い光に駆動される荷電粒子の運動に着目し、破断過程のダイナミクスを探る手法として時間領域テラヘルツ分光法を用いた研究を進めてきた。しかしながら、レーザー加工が不可逆過程であることに伴い、パルス毎に照射表面の形状が変化し、結果としてレーザーアブレーション過程のパルスごとの変動が大きな寄与を担っているのではないかと考えるに至った。そこで、シングルショットでテラヘルツ電場波形を高感度に検出する手法を開発すべく本研究課題を提案するに至った。

2. 研究の目的

本研究課題は超短パルスレーザーにより引き起こされる破壊過程をテラヘルツ放射を通して明らかにすることを目的とする。加えてパルス毎に変化する表面形状の影響を定量的に評価することを目的とする。

3. 研究の方法

本研究はテラヘルツ電場の時間領域計測およびアブレーションによる形状変化の2方向から研究を進めた。テラヘルツ電場波形の精密測定手法および解析手法の開発と、シングルショットで起こる表面形状の変化の定量化手法の開発を行なった。前者についてはレーザーアブレーションに伴い発生するテラヘルツ電場波形から Fresnel-Kirchhoff 積分を用いて荷電粒子の作る過渡電流の時間波形とその振幅の絶対値を決定する手法を開発した。また後者については様々な表面形状に対して、シングルパルスのレーザーアブレーションによって生じる形状変化をナノメートル精度で大量に取得することにより、深層ニューラルネットワークを用いた定式化およびランジュバン方程式を用いた定式化を行なった。

4. 研究成果

本研究課題の遂行を通して、金属のレーザーアブレーションのメカニズムをテラヘルツ時間領域分光を通して明らかにすることに成功した。これまで金属のアブレーション過程として複数のメカニズムが提案されており、とりわけスパレーション(超短パルスレーザーに伴って発生する衝撃波の後続に生じる希薄波によって生じる圧力由来の破断現象)と相転移が主流のメカニズムとして認識されている。他のメカニズムとして、光励起に伴う多光子光電子放出により、物質の表面が正に帯電することでイオン同士が反発しあって破壊されるクーロン爆発や電子の作る電場によりイオンが引きずり出される静電アブレーションのようなクーロン力に由来するメカニズムも提案されていたが、金属中の高い電気伝導率のためすぐさまチャージインバランスが解消されると考えられることからほとんど寄与するとは考えられていなかった。本研究では前節に記載の通り Fresnel-Kirchhoff 積分を空間伝搬の効果を含めた計算を行い、過渡電流と検出される電場の関係式を導いた。結果、検出される電場波形は Liénard-Wiechert ポテンシャルから導かれる過渡電流の1階微分ではなく、2階微分となることが明らかになった。これは Gouy 位相シフトと回折限界の周波数依存性が微分操作に対応するためである。この結果得られる電場波形から、従来の定説と異なり、強い電場により駆動される金属表面付近では放出された電荷と鏡像電荷のクーロン相互作用のため、表面に強い電場がかかることが明らかとなった。多光子光電子放出と鏡像電荷とのクーロン相互作用により作られる電荷分布について、解析解を導き、熱拡散方程式と Fowler-DuBridge 方程式を用いて計算された多光子光電子放出のレートを用いることで、アブレーション閾値近傍で 30 V/nm に及ぶ電場が表面にかかっていることが見出された。2つの銅原子間のポテンシャルの最大勾配が 20 V/nm であることを踏まえると、この値は物質からイオンを取り出すのに十分な大きさである。すなわち、静電アブレーションメカニズムが最も有力なアブレーションメカニズムであることを実験と理論モデルを組み合わせることで示すことができた。さらに電場波形の積分値から得られる電荷変位量と解析解とを照らし合わせることで、レーザー照射後 100 フェムト秒以内にイオンが加速し始めていること見出された。これは定説となっているスパレーションモデルから予想される数ピコ秒よりもはるかに早いタイムスケールであり、アブレーションメカニズムに関する理解を大きく変えるもので

ある。
 加えてシングルパルスに対してナノメートル精度の 3 次元形状を大量に収集することにより、レーザーアブレーションに伴う形状変化の微分方程式を深層ニューラルネットワークを用いて記述することに成功した（図 1）。これまで形状のような多自由度の発展を計算する計算コストが大変大きく、また物理モデルも確立していなかったため、シリコンのような材料に対して多パルス照射後の 3 次元形状を予測可能なモデルは存在していなかった。本研究により構築された深層ニューラルネットワークに基づく形状の微分方程式は、多パルスの対する形状予測を可能にするものであり、実際に良い精度を加工結果を予測可能であることを、様々な形状に対して実験的に検証した（図 2）。これは研究代表者の知る限り物理学分野における深層学習の適用事例として実験データから系の発展方程式を抽出した初めての事例であり、繰り返し実験が適用できない不可逆系に対して、大規模データを用いることで発展方程式を抽出できることを示したものである。

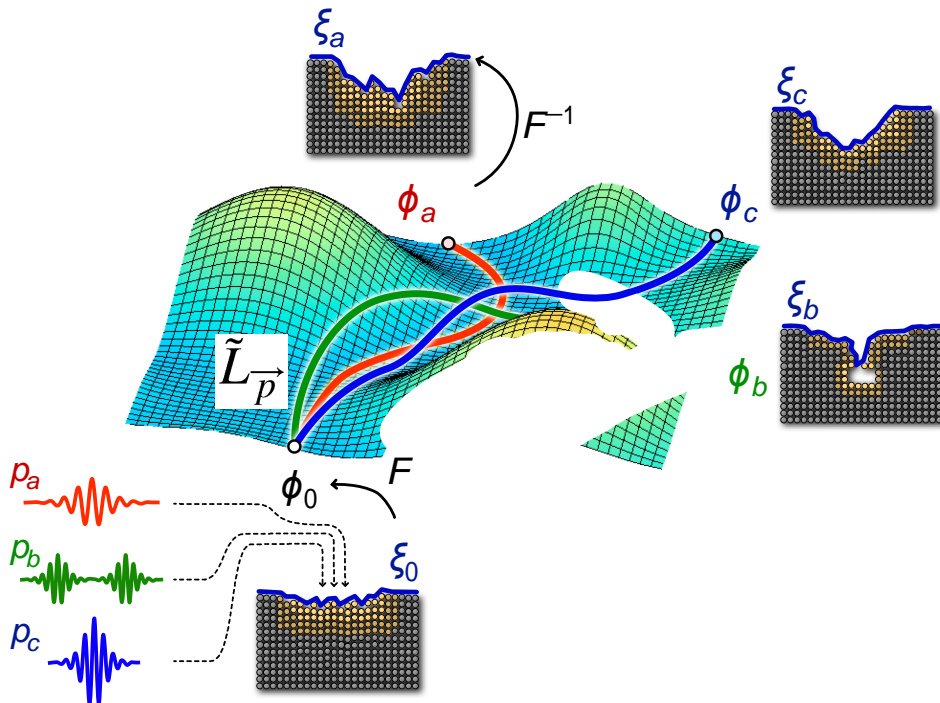


図 1：深層ニューラルネットワークによる形状の微分方程式化

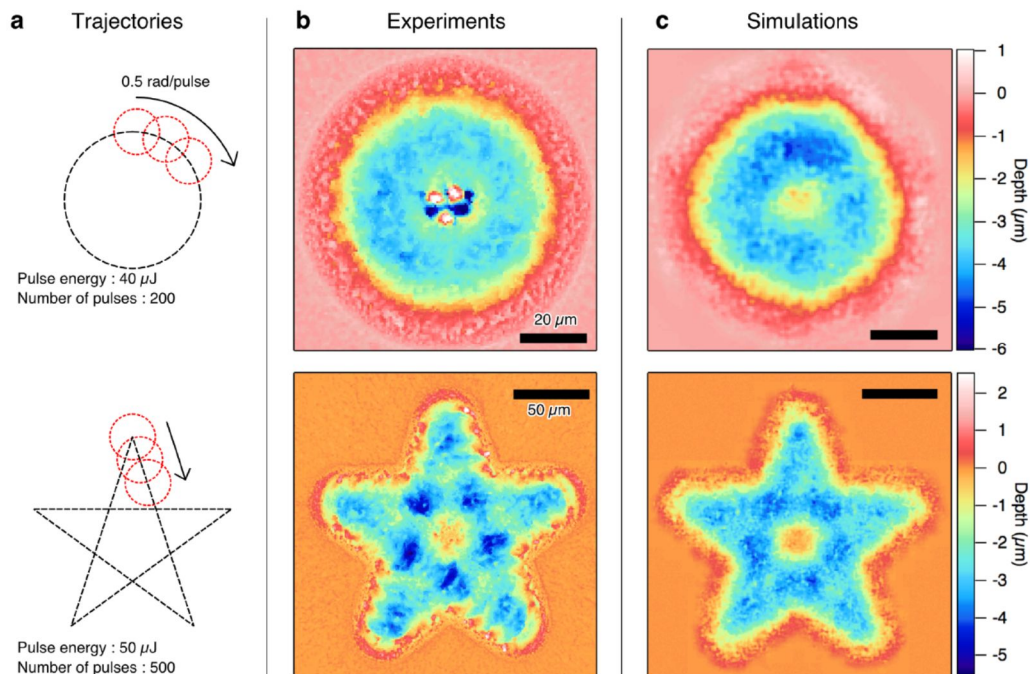


図 2：シリコンの超短パルスレーザー多パルス照射後の 3 次元形状のシミュレーションと実験的検証

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 2件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 Tani Shuntaro, Kobayashi Yohei	4. 巻 133
2. 論文標題 Pulse-by-pulse evolution of surface morphology driven by femtosecond laser pulses	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 143104 ~ 143104
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0140178	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Shuntaro Tani, Kobayashi Yohei	4. 巻 12
2. 論文標題 Ultrafast laser ablation simulator using deep neural networks	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁 5837
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41598-022-09870-x	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 谷峻太郎, 小林洋平	4. 巻 57
2. 論文標題 深層学習を用いた不可逆現象の定量化 超短パルスレーザーアブレーションシミュレーター	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 固体物理	6. 最初と最後の頁 25-36
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計7件（うち招待講演 6件/うち国際学会 2件）

1. 発表者名 谷峻太郎, 小林洋平
2. 発表標題 レーザー加工学理解明のための深層学習を用いた不可逆過程の定量化
3. 学会等名 レーザー学会東京支部セミナー (招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 谷峻太郎, 小林洋平
2. 発表標題 レーザー加工学理解明のための深層学習を用いた不可逆過程の定量化
3. 学会等名 第96回レーザー加工学会 (招待講演)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 谷峻太郎, 小林洋平
2. 発表標題 深層学習によるレーザー加工過程のシミュレーション
3. 学会等名 第69回応用物理学会春季学術講演会 (招待講演)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Shuntaro Tani, Yohei Kobayashi
2. 発表標題 Neural-Network-Based Ultrashort Laser Ablation Simulator for Micro-Machining
3. 学会等名 CLEO 2023 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Shuntaro Tani, Yohei Kobayashi
2. 発表標題 Direct observation of electromagnetic field emission from laser ablation
3. 学会等名 Optical Terahertz Science and Technology 2022 (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 谷峻太郎, 小林洋平
2. 発表標題 フェムト秒レーザー加工の光制御
3. 学会等名 第70回応用物理学会春季学術講演会 (招待講演)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 谷峻太郎, 小林洋平
2. 発表標題 大規模データによる不可逆過程の定量化 超短パルスレーザー加工を題材として
3. 学会等名 第4回多結晶材料情報学応用技術研究会 (招待講演)
4. 発表年 2022年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関