

令和 6 年 5 月 21 日現在

機関番号：13901

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2021～2023

課題番号：21K03521

研究課題名（和文）機械学習によるフェムト秒レーザー誘起気相プラズマ反応の最適制御

研究課題名（英文）Optimization of femtosecond laser induced gas-phase plasma reaction using machine learning

研究代表者

松田 晃孝（Matsuda, Akitaka）

名古屋大学・理学研究科・講師

研究者番号：10413999

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,200,000円

研究成果の概要（和文）：フェムト秒レーザー誘起気相プラズマ反応の最適制御を目指し、機械学習の中でも強レーザー場における選択的結合切断において成果を挙げている遺伝的アルゴリズムを採用しレーザー波形最適制御システムの構築を行った。フェムト秒レーザー光の波長成分ごとの位相を遺伝情報と見なし、分子の生成量を直接反映するプラズマ発光強度をレーザー波形最適化の指標として用いた。空气中レーザープラズマを対象とした実験において、40世代目以降においてレーザー光のパルス幅が最も短い場合と比較して大きな発光強度が得られた。このことは、気相プラズマ反応の最適制御に成功したことを示している。

研究成果の学術的意義や社会的意義

気相プラズマ反応は高い反応性を示すことから、物質科学の側面からエネルギーや環境など多岐にわたる問題を解決するための反応法として注目を集めている。本研究では、フェムト秒強レーザー場において成功が収められてきたレーザーパルス波形整形による反応制御法をレーザー誘起気相プラズマ反応に適用し、発光強度を指標とした実験において機械学習による反応の最適制御が可能であることを明らかにした。今後、様々な分子系への適用を進めることで高効率・高選択的な新奇プラズマ反応法の開拓につながると期待される。

研究成果の概要（英文）：Optimal control system for femtosecond laser induced plasma reaction was developed incorporating femtosecond laser pulse shaping technique. Among the various types of machine learning algorithms, genetic algorithm, which has been successful in selective breaking in intense laser fields, was adopted. The spectral phase of the femtosecond laser pulse was utilized as the genetic information. The developed system was applied to aerial femtosecond laser plasma and the optimal phase which gives the maximum optical emission intensity was explored. The intensity of the plasma emission increased stepwise along with the generation. After the 40th generation, the intensity exceeded that expected for the shortest pulse. This indicates that the laser plasma reaction was successfully optimized.

研究分野：光分子科学

キーワード：強レーザー場 レーザーフィラメント レーザー誘起プラズマ 機械学習

### 1. 研究開始当初の背景

気相プラズマ反応は高い反応性を示すことから、物質科学の側面からエネルギーや環境など多岐にわたる課題を解決するための反応法として近年注目を集める技術の一つとなっており、様々な反応制御法が模索されている。これに対し、高強度フェムト秒レーザーを集光することで発生されるレーザー誘起プラズマは多くの制御パラメーターを有しており、高効率・高選択的な気相プラズマ反応の実現が可能であると期待される。実際、研究代表者らは、フェムト秒レーザー誘起プラズマによる気相エチレンの多体反応において、最も重要なパラメーターの一つであるレーザー場強度を変化させることで構造の異なるカーボン薄膜が選択的に生成されることを見出している[1]。

### 2. 研究の目的

本研究では、このような選択的反応を実現するための新奇レーザープラズマ反応場の足がかりとして、単分子解離反応において成功が収められてきたレーザー波形整形による反応制御法を複数の分子が関与する気相プラズマ多体反応に適用する。機械学習を用いたレーザー波形の探索に取り組み、多様な反応系に適用可能なレーザープラズマ反応制御基盤の確立を目指す。

### 3. 研究の方法

(1) フェムト秒レーザー波形整形装置  
 フェムト秒レーザー光は幅広い帯域幅を持ち、波長成分ごとの位相を変化させることで電場波形を整形することができる。本研究において構築したフェムト秒レーザー波形整形装置を図1に示す。チタンサファイアレーザー再生増幅器（中心波長 800 nm、帯域幅 25 nm）から出力されるレーザー光を回折格子に入射することで波長分散させ、円筒レンズを用いて反射型の空間光位相変調器に結像させる。波長成分ごとに位相変調されたレーザー光を回折格子によって再び合波することで、波形整形されたレーザーパルスが得られる。構築した波形整形装置の性能を確認するため、周波数分解光ゲート法を利用したパルス幅計測装置による評価を行った。

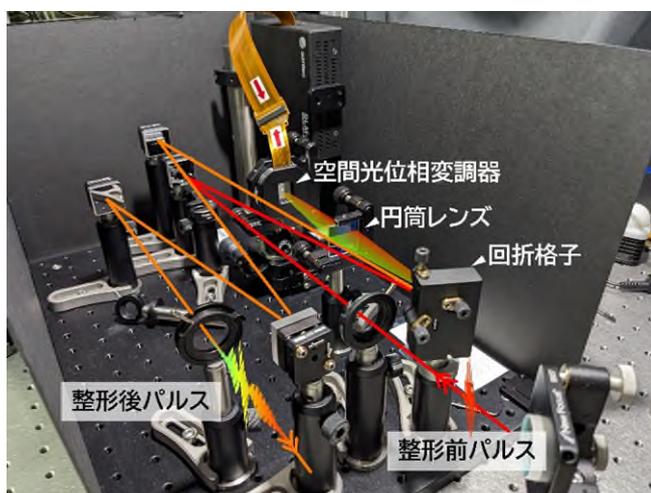


図1 構築したフェムト秒レーザー波形整形装置

### (2) フェムト秒レーザープラズマ誘起多体反応の最適制御

機械学習の中でも、フェムト秒強レーザー場を用いた単分子解離反応において成果が挙げられている遺伝的アルゴリズムを用いてフェムト秒レーザープラズマ誘起多体反応の最適波形の探索を行った。遺伝的アルゴリズムは生物の進化による環境への適合に着想を得た最適化手法で、問題についての先験的な知識を要しないことから、本研究のように事前のモデル化が困難な実験系の最適化において有効な手法の一つである。本研究では、フェムト秒レーザー光の波長成分ごとの位相を遺伝情報とみなし、遺伝的アルゴリズムを用いて多体反応に最適なレーザー波形の探索を行った。多体反応の最適化の指標には、分子の生成量を直接反映するプラズマ発光強度を用いた。

チタンサファイアレーザー再生増幅器（中心波長 800 nm、パルス幅 50 fs、繰り返し周波数 1 kHz）から出力されるレーザー光を波形整形装置に導入し、位相変調により波形整形を行う。得られたレーザー光を平凸レンズを用いて試料ガスに集光することでレーザープラズマを発生させる。各波長成分について位相をランダムとした初期母集団を開始し、(i)全個体の発光強度を評価、および(ii)選別、交差、突然変異による次世代の遺伝情報の作成を繰り返し、発光強度を最大化するような波形の探索を行った。

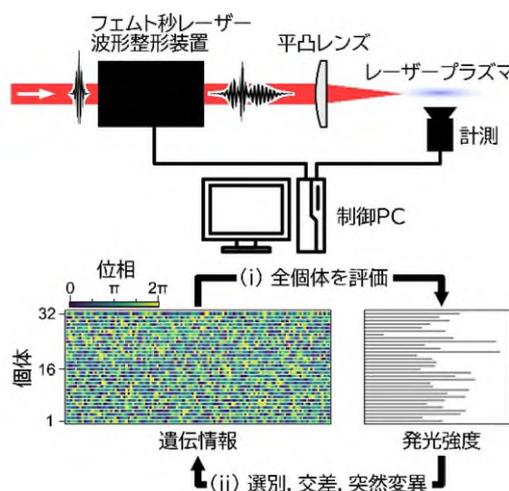


図2 レーザープラズマ誘起多体反応の最適制御システムの概略図

#### 4. 研究成果

(1) 第2次高調波発生を利用した最適制御システムの評価構築を行ったレーザー波形最適制御システムが適切に機能するかどうかを評価するとともに、遺伝的アルゴリズムに関連する各種パラメーター（選別、交差、突然変異）の決定を行うために、 $\beta$ -BBO結晶を用いた第2次高調波発生を対象として強度が最も強くなるレーザー波形の探索を行った。図3に世代ごとの高調波強度の変化を示す。世代が進むとともに、第2次高調波の強度が強くなっており、波形の最適化が進んでいることを示している。第2次高調波発生においてはパルス幅が最も短くなる場合に強度が最も強くなるが、最適化が進んだ350世代目におけるパルス波形を計測したところ、パルス幅が最も短くなるフーリエ限界パルスと一致しており、パルス波形の最適化が達成されたことを示している。

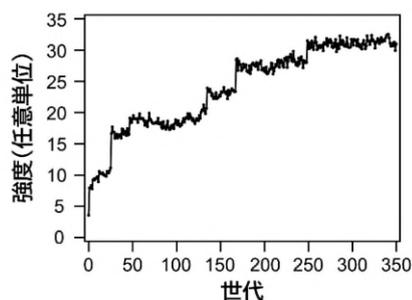


図3 遺伝的アルゴリズムによる第2次高調波発生最適波形探索

#### (2) フェムト秒レーザープラズマの最適波形探索

##### ①空気中の発光強度の高強度化

フェムト秒レーザー誘起プラズマにおいても最適波形の探索が実現可能であるのかを確認するために、空気中におけるフェムト秒レーザープラズマ発生を対象として、発光強度が最大となる波形の探索を行った。図4に世代ごとの空気中のプラズマ発光強度の変化を示す。世代とともにプラズマ発光強度が強くなっており、波形最適化が進んでいることを示している。パルス幅の最も短いフーリエ限界パルスを用いたときのプラズマ発光強度と比較すると、40世代目以降において発光強度は約1.2倍となった。高次の非線形過程であるレーザープラズマ発生においてはパルス幅が最も短いときに反応が効率的に起こると推察されるが、この結果は、遺伝的アルゴリズムを用いることによって、発光強度のより強くなるパルス波形の探索に成功したことを示している。発光スペクトルの詳細を分析したところ、窒素分子の中性励起状態およびイオン状態に由来するピークの強度の比率が変化していることが示され、特定の分子ダイナミクスの誘起に適した波形最適化が行われたことが示唆された。

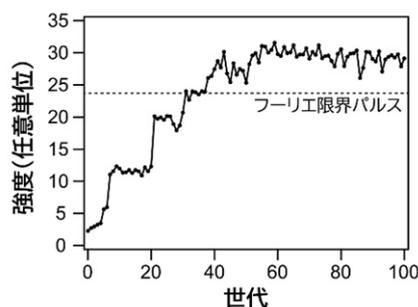


図4 遺伝的アルゴリズムによる空気中レーザープラズマ発生最適波形探索

##### ②メタン分子の多体反応

メタンは二酸化炭素に次ぐ地球温暖化の原因物質であると同時に近年の資源量の急増を背景に転換技術の開発が精力的に行われ、中でも非熱プラズマを用いた手法が有力な方法として現在注目を集めている。メタンにおいてはレーザープラズマ多体反応により $C_2$ が生成され、その発光が450から600nmの可視光領域に観測されることが知られている[2]。そこで、ガラス製のガスセル内にメタンガスを導入し、遺伝的アルゴリズムによる $C_2$ 生成に適したレーザー波形の探索を行った。世代とともにプラズマ発光強度の増加は観測されたが、400世代目までにおいてフーリエ限界パルスを用いた場合の発光強度に達せず、最適解の探索に多くの世代を費やす必要があることが示された。今後、より効率的な探索を遂行するための遺伝的アルゴリズムパラメーターの検討を行うとともに、その他の機械学習アルゴリズムの導入を行うことで、多体反応に最適なレーザー波形の探索が可能であると期待される。

上記に加え、フェムト秒レーザープラズマを利用したメタンの転換反応研究の候補として、空気中に豊富に存在する酸素を酸化剤として利用した反応について検討を行った。実験には研究者らが開発を行ってきたレーザー誘起気相プラズマ反応により生成される分子を反応チャンバーから質量分析計に直接サンプリング可能なプラズマ反応解析装置を用いた[3]。メタン/酸素混合系において液体燃料として有用な含酸素化合物の生成が観測された一方で、酸素ガスの一部をより酸化力の強いオゾンとした場合には一部の生成物に関して生成比率が変化することが見出され、適切なレーザー波形を用いることで反応の効率化が可能であることが明らかとなった。プラズマ発光に着目した探索に加え、質量分析計と組み合わせた探索を行う装置の開発を進めることで、より多くの分子系を対象に高効率・高選択的な新奇プラズマ反応法の開拓が可能となると期待される。

[1] A. Matsuda, T. Hayashi, R. Kitaura, A. Hishikawa, *Chem. Lett.* **2017**, *46*, 1426.

[2] H. Xu, R. Li, S. L. Chin, *Chin. Opt. Lett.* **2015**, *13*, 070007.

[3] A. Matsuda, K. Tani, Y. Takeuchi, Y. Hayakawa, A. Hishikawa, *ACS Omega* **2021**, *6*, 29862.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Akitaka Matsuda, Kentaro Tani, Yukari Takeuchi, Yui Hayakawa, Akiyoshi Hishikawa	4. 巻 6
2. 論文標題 Association Reaction of Gaseous C <sub>2</sub> H <sub>4</sub> in Femtosecond Laser Filaments Studied by Time-of-Flight Mass Spectrometry	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 ACS Omega	6. 最初と最後の頁 29862 ~ 29868
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1021/acsomega.1c04354	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 -

〔学会発表〕 計8件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 3件）

1. 発表者名 Akitaka Matsuda, Aoi Sakagami, Nana Fujikawa, Akiyoshi Hishikawa
2. 発表標題 Many-body reactions in CH <sub>4</sub> /O <sub>2</sub> binary system induced by femtosecond laser filament
3. 学会等名 38th Symposium on Chemical Kinetics and Dynamics (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 松田晃孝, 坂上葵, 藤川奈々, 菱川明栄
2. 発表標題 フェムト秒レーザーフィラメントにおけるCH <sub>4</sub> /O <sub>2</sub> 多体反応の質量分析
3. 学会等名 第17回分子科学討論会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 松田晃孝, 奥村祐哉, 菱川明栄
2. 発表標題 フェムト秒レーザーフィラメントにおける気相ヘキサン会合反応の飛行時間質量分析
3. 学会等名 第16回分子科学討論会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 松田晃孝, 奥村祐哉, 菱川明栄
2. 発表標題 フェムト秒強レーザー場を反応場とした気相ヘキサン多体反応
3. 学会等名 第53回中部化学関係学協会支部連合秋季大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 A. Matsuda, K. Tani, Y. Takeuchi, Y. Hayakawa, A. Hishikawa
2. 発表標題 Association reaction of gaseous C <sub>2</sub> H <sub>4</sub> in femtosecond laser filaments studied by mass spectrometry
3. 学会等名 36th Symposium on Chemical Kinetics and Dynamics (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Y. Okumura, A. Matsuda, A. Hishikawa
2. 発表標題 Association reaction of gaseous C <sub>6</sub> H <sub>14</sub> in femtosecond laser filament studied by product mass spectrometry
3. 学会等名 36th Symposium on Chemical Kinetics and Dynamics (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 松田晃孝, 谷健太郎, 竹内ゆかり, 早川優衣, 菱川明栄
2. 発表標題 フェムト秒レーザーフィラメントにおける気相C <sub>2</sub> H <sub>4</sub> 会合反応の質量分析
3. 学会等名 第15回分子科学討論会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 奥村祐哉, 松田 晃孝, 菱川明栄
2. 発表標題 気相C6H14におけるレーザーフィラメント誘起会合反応生成物の質量分析
3. 学会等名 第15回分子科学討論会
4. 発表年 2021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