

研究終了報告書

「機械学習による電子線制御技術のフロンティア開拓」

研究期間: 2021 年 10 月～ 2024 年 3 月

研究者: 森本 裕也

1. 研究のねらい

電子線は、電子顕微鏡、電子線描画装置、放射線治療など、基礎科学の実験機器から工業製品、医療機器まで様々な用途に用いられている。これまでの約 100 年に渡る電子線制御技術の発展により、電子線のビーム形状を制御する技術は確立され、電子顕微鏡の空間分解能はサブ・オングストロームに達している。その一方で、電子線の時間構造(試料上での電子数の時刻変化)を制御する技術は未だ確立されていない。例えば、大多数の電子顕微鏡では、時間的に一定の、直流電子線が利用されている。

電子線の時間構造を制御することで、これまでにない新たな可能性が電子線技術に生まれる可能性がある。例えば、時間幅の短い電子パルスが発生できれば、化学反応などの超高速現象を、電子顕微鏡の高い空間分解能と併せて測定することができる。また、電子線の時間構造により、試料の損傷をコントロールできる可能性が理論的に示されている。試料損傷の制御は、従来の電子顕微鏡では観測不可能であった試料の構造決定や、効率的な電子線治療への応用に繋がることが期待される。

電子線の時間構造を、極限的なアト秒(10 のマイナス 18 乗秒)の精度で制御できる手法が、レーザー光を用いる方法である。光が非常に高い振動数を持つ電磁場であるという特性を生かし、私達は世界で初めて、アト秒時間幅の電子パルスの直接検出に成功している。時間整形された電子線を応用するためには、用途に応じて時間構造をデザインし、実験的に発生させる必要がある。しかしながら、電子線の時間構造制御には数多くの自由度・選択肢が存在し、最適な条件を選ぶのが極めて困難である。また、応用を検討する際にも、アト秒の精度で整形された電子線と物質の相互作用を適切に記述する理論が確立しておらず、目的とそれに最適な電子ビームの時間構造を結び付けるに至っていない。

本研究課題では、これらの新技術の障害について、機械学習を用いたアプローチを試みる。具体的には、機械学習によって所望の時間構造を有する電子ビームを発生させる条件を導き出すことを可能とする。また、アト秒の精度で変調された電子線と物質との相互作用を適切に記述する理論の枠組みを開発し、機械学習と組み合わせることで、未開拓の応用研究への第一歩を踏み出す。更に計算だけではなく、実験にて、デザインされた時間構造を有する電子線の発生の実証を目指す。

2. 研究成果

(1) 概要

与えられた実験上の条件から電子線の時間構造を計算するための量子力学モデルを考案し、その結果を用いた機械学習を実行した。その結果、時間変調された電子ビームの時間構造を良く回帰できるモデルを構築することに成功した。また、学習に使用したデータをつぶさに解析することで、数多くの実験条件のもとで世界最短のレーザーパルスの時間幅よりも更に短い電

電子パルスが発生させることが可能であることが判明した。それと並行して、時間整形された電子線と原子の間の散乱過程を記述できる量子力学モデルを開発した。最も単純な孤立原子を標的とする系に適応し、これまでの知見と比較したところ、未知の非対称性が現れることを発見し、その由来も明らかにした。実験設備の面では、飛行軌道シミュレーションを用いて独自の装置を設計し、部品組み立てを完了し、実験実証を行う準備が整った。

(2)詳細

研究テーマ A「自由自在な電子線時間制御」

図 1(a)に電子線の時間構造がレーザー光によって変調を受ける様子を示している。電子線(青色)は、電子顕微鏡や加速器などで使用される電子銃から発せられる。発生時は、単調な時間構造を有している。この電子線に対してレーザー光(赤色)を照射する。電子と光は直接相互作用しないため、それらの相互作用を誘起するには、媒介物質が必要である。これまで使用された物質の例は、ナノ薄膜、プリズムや微細加工したシリコンである。光が物質に照射されると、物質が光の電磁場に応答し、物質の周りに新たな電磁場が生じる。その電磁場と入射電子が相互作用して、電子は加速あるいは減速される(図中の赤矢印参照)。この加減速は、光電場の振動の周期で行われ、試料に到達する電子の時間構造を変化させる。電子線の時間構造は、私達が開発したアト秒オシロスコープで測定される。

上記の手法で得られる電子線の時間構造は、媒介物質の種類、試料までの距離、電子線のエネルギー、量子性(粒子あるいは波のどちらの描像に近い)、レーザー光の中心波長、波長帯域、レーザー光のスペクトル・位相、光の強度などに依存する。これらの多くの自由度のため、目的の電子線の時間構造から、最適な制御方法の選択を一意に行うことはできない。本研究課題では、まず、与えられた条件から電子線の時間構造を計算するための1次元量子力学モデルを開発した。そのモデルでは、電子線内の電子を時間幅の長い波束として取り扱い、運動量空間にフーリエ変換する。次に、電子とレーザー光の相互作用を、いくつかの文献で用いられた方法に従い、運動量空間の電子波束の位相の変調として取り扱う。そして、試料までの飛行に対応する演算子を作用させ、最終的に実空間にフーリエ変換することで、実空間上での電子の波動関数を得る。このようにして得られた電子線の時間構造から、機械学習用の特徴量、例えば、1番強いピークの時間幅、2番目に強いピークの時間幅、強いピークの数と間隔、ピークの時間幅とその頻度のヒストグラム、などを抽出した。その後、電子のエネルギー、レーザーの強度、レーザーの中心波長・スペクトル・位相などの条件と、上記の特徴量を学習データとして、多層ニューラルネットワークを用いた機械学習を実施した。その結果、電子ビームの時間構造、特にピークの時間幅を良く回帰できるモデルを構築することに成功した(図 1(b))。また、特定の媒介物質(具体的には無限に薄い金属薄膜)と中心波長を固定したレーザー光で、レーザー光のスペクトル、位相、強度を変化させるだけで、多様な電子線の時間構造を得られることが判明した。したがって、自由自在な電子線の時間変調を実施する場合、様々な中心波長のレーザーを複数台準備せずとも、1台の装置で多様な時間構造を与えることを示唆する結果を得た。

また、機械学習に用いた学習データの詳細を調べたところ、現在報告されている世界最短のレーザーパルスの時間幅(43 アト秒)と同程度かより短い時間幅の発生を示唆するデータが数多く存在した。これは今後の実験により、レーザーパルスよりも時間幅の短い電子パルスが発

生できることが期待される。今後の計算、AI、実験の協調した発展により、究極的にはアト秒よりも短いzept秒域の時間幅のパルスが発生可能であることが示唆された。

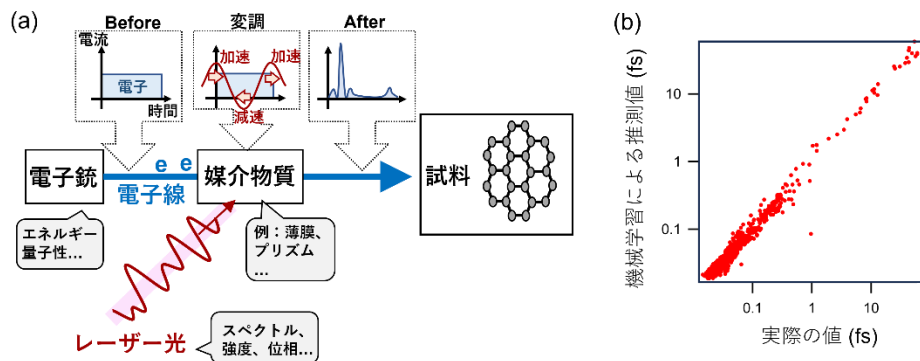


図 1. 電子ビームの時間変調。(a)時間変調のスキームと多くのパラメタ。(b)最短電子パルスの時間幅についての回帰解析の結果。

研究テーマ B「有用な電子線の時間構造の発見」

時間的に短い電子パルスは、超高速現象の観測に有用であるが、他の応用、例えば、顕微鏡測定における試料の損傷を減らすという目的には、別の最適な時間構造が存在する可能性がある。本研究課題では、新しい量子散乱理論を開発し、機械学習と組み合わせることで、試料との相互作用が弱い、つまり、試料に最も損傷を与えない時間構造を推定することを大きな目標とする。逆に、相互作用が強くなる時間構造の推定も目標である。

アト秒の精度で整形された電子線と物質の相互作用を適切に記述する理論は未だ確立しておらず、理論式の導出から研究を開始した。従来の研究では、電子線は平面波あるいは低次元の波束として取り扱われてきたが、私共は電子線を 3 次元の波束として取り扱い、かつ、通常摂動的に扱われる電子線と試料との相互作用を非摂動的に扱う理論式を導出した。我々の理論式は、試料の状態が時間とともに変化する場合にも使用できる。

導出した式を用いてシミュレーションを実行した。試料としては、孤立した気体原子を仮定した。まず、電子線の中心から原子が右方向に動いた際に(図 2(a))、電子線がどの方向に散乱されやすいかを計算した。これまでの時間幅の長い電子線を用いた実験研究からは、電子は右方向に散乱されやすいことが分かっている。しかしながら、もっとも単純な水素原子を試料とした私共の計算結果は、右でも左でもなく、上下(図 2(a)では紙面手前と奥に対応)により散乱されやすいことを示唆した(図 2(b)左図)。なお、この結果は電子線の時間幅に大きく依存しなかった。この上下方向に散乱されやすいという結果は過去の実験研究の結果に反するため、更なる計算を進めたところ、原子番号が大きい(つまり重い)原子ほど上下ではなく、右方向への散乱が大きくなることが判明した(図 2(b)参照)。電子顕微鏡を用いた実験では、散乱能が大きい重い原子種から成る試料が用いられることが多いため、上下に強く散乱されるという現象がこれまで実験的に観測されなかったと推測される。更に考察を勧めると、電子線がどの方向に散乱されやすいかは、電子線の量子力学的な性質である空間コヒーレンス(電子ビームの各位置における位相の揃い度合い)に由来していることが明らかになった。また、試料の種類に寄らず常に生じる強い上下方向への散乱と、試料の種類に由来する右方向への散乱が競合していることも明らかとなった。したがって、私共が導出した式を用いることで、電子-原子

散乱における非対称性という基本的な物理量とその由来が解明された。

また、電子ビームの時空間的な構造をうまく変調することで、電子-原子散乱の散乱確率および非対称性を制御できる可能性を理論的に調べた。私共は、電子線の進行方向の運動量の射影成分が正規分布を取るような電子線を発生させることで、アト秒～フェムト秒の時間幅に応じて散乱確率が 1000 倍以上も変化することを発見した(図 2(c))。また、上述の上下方向への強い散乱を、電子線の時間幅によって、左右方向に強い散乱に制御できることも示した(図 2(d)参照。正の符号は左右への散乱が強く、負の符号が上下への散乱が強いことを示している)。また、そのような特異的な挙動を示す電子線を発生させる具体的な手法を提案した。本結果を基にした、散乱確率を大きく低減あるいは増強させる電子線の時空間構造を推測するための機械学習を開始した。

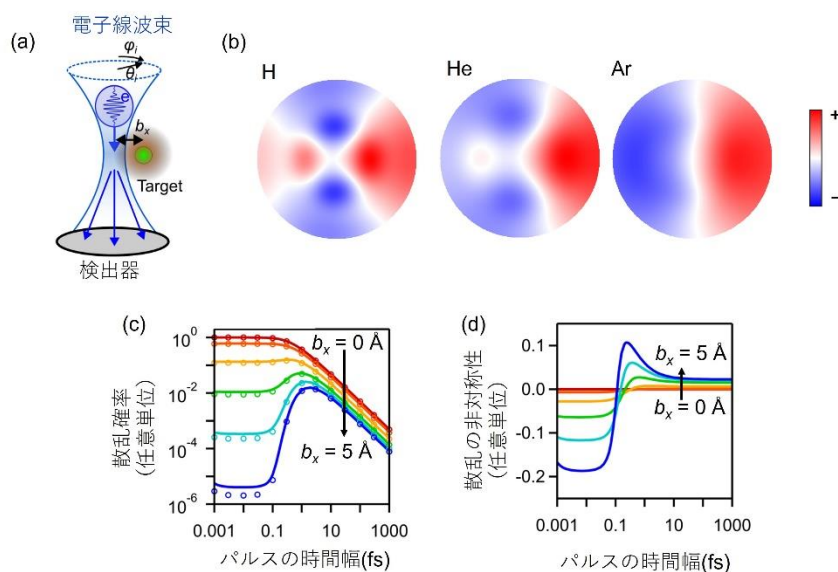


図 2. 電子線と原子の弾性散乱過程。(a) 散乱過程の概略図。(b) 散乱の非対称性。円形は、(a) 中の検出器に対応する。赤色は信号強度が大きく、青色は信号強度が弱い場所を表している。(c) 整形された電子波束による散乱確率の制御。(d) 整形された電子波束による散乱非対称性の制御。

研究テーマ C「実験との融合」

シミュレーションに基づく機械学習の予想を検証し、かつ、機械学習の予想精度を高めるためのデータを取得するためには実験研究によるデータ取得が必要である。そこで、独自の実験装置の整備を行った。実験装置の部品は全て私共で設計を行った。設計にあたっては、電子の飛行軌道シミュレーションを用いて、部品の形状・材質、部品に印加する電圧や電流の最適化を行った。その後、装置を組み立て、電子銃の 30 kV の高圧試験が行われ、放電が起らないことが確認された。また、パルス電子の発生にも成功した。以上の成果により、装置の稼働、電子ビームの自由自在な時間構造変調とその応用に向けた準備が整った。

3. 今後の展開

本課題で得られた成果は、今後の実験研究で大いに役立つであろう。所望の電子線の時間

構造を得るための条件を与える機械学習プログラムは、実験データを用いた転移学習によって精度がより高められ、以降の実験における条件探しの時間・手間を大きく省くことに寄与するであろう。AI の助けにより世界最短パルスの発生に成功すれば、広い研究領域にインパクトを与えることになるであろう。また、逆に、時間変調用のレーザー光について未知の状態、変調された電子ビームの時間構造を測定することで、レーザー光のパラメタを機械学習の助けで決定できるようになるであろう。レーザー光の時間波形やスペクトル位相などは、短パルスレーザーを利用するあらゆる研究分野に必要な情報であるが、それらの測定は容易では無いため、電子線を媒介とした短パルスレーザー光の評価法はレーザー科学に新しい可能性を与える可能性がある。

時間変調された電子線の応用可能性を検討するために開発した理論は、今後、更に大きくかつ複雑な試料、例えばグラフェンなどの 2 次元物質、3 次元の結晶、タンパク質などを対象とすることで、物理や化学だけでなく生物学まで多種多様な応用へと繋がるであろう。もし放射線治療の副作用を照射する電子線の時間構造で制御できるならば、医療の進歩に貢献するであろう。

以上で述べた今後の展開に関しては、既に開始している JST 創発的研究支援事業の研究課題「光変調された電子線と原子・分子・固体の衝突」に引き継がれ、研究開発が進められている。

4. 自己評価

当初定めた目標を期間内には全て達成することができなかったが、その一方で、予想を超えた発見(上記、研究テーマ B 参照)があった。予想外の発見を報告する論文を投稿したところ、査読者から複数回厳しいコメントを頂戴し、私共の発見を正当化するための更なる理論研究に時間を要した。その一方で、深い考察を行ったことで、発見した事象の起源や、なぜ以前の研究では見つからなかったのかという事まで明らかにすることができた。本 ACT-X で開始した研究は創発的研究支援事業にて継続されるため、実験を含めた更なる成果の達成を目指す。

5. 主な研究成果リスト

(1) 代表的な論文(原著論文)発表

研究期間累積件数:0件

(2) 特許出願

研究期間全出願件数:0 件(特許公開前のは件数にのみ含む)

(3) その他の成果(主要な学会発表、受賞、著作物、プレスリリース等)

総説論文(査読あり、計 3 件)

Y. Morimoto, "Attosecond electron-beam technology: a review of recent progress" *Microscopy*, 72 (1) 2-17 (2023).

森本裕也, "Award Account: アト秒電子パルスの発生と電子回折への応用", *Molecular Science* 17, A0125 (2023).

森本 裕也、「解説：中赤外パルスを用いたアト秒電子ビーム制御」、レーザー研究、50(6)、308(2022)。

記事(2件)

Y. Morimoto, "Attosecond movies of nano-optical fields", Nature Photonics 17(9) 736–737 (2023).

森本 裕也、「アト秒物理学とナノサイエンス：2023 年ノーベル物理学賞とその先」、ナノ学会誌、22 (2) 41–42(2024)。

査読中の原著論文(計 3 件)

Y. Morimoto and P. Baum, "Field-induced rocking curve effects in attosecond electron diffraction", arXiv:2311.03766.

Y. Morimoto, P. Hommelhoff, L.B. Madsen, "Scattering-asymmetry control with ultrafast electron wave packet shaping", arXiv:2203.13425.

Y. Morimoto and L.B. Madsen, "Scattering of ultrashort electron wave packets: optical theorem, differential phase contrast and angular asymmetries", arXiv:2401.16799.

招待講演(計 12 件)

ACHIP+ workshop、2024 年 3 月 19 日、ハンブルク。

日本顕微鏡学会 超高分解能顕微鏡法分科会 研究会、2024 年 3 月 8 日、神奈川。

非平衡固体物性の最前線、2023 年 11 月 13 日、東京。

第 43 回 ナノテストングシンポジウム NANOTS2023、2023 年 11 月 8 日、大阪。

第 7 回レーザー加工若手研究会、2023 年 8 月 10 日、東京。

CLEO 2023、San Jose、USA、2023 年 5 月 12 日、サンノゼ。

日本顕微鏡学会 第 79 回日本顕微鏡学会学術講演会、2023 年 6 月 26 日、島根。

第 7 回超高速光エレクトロニクス研究会、2023 年 4 月 7 日、徳島。

14th Asian International Seminar on Atomic and Molecular Physics、2023 年 2 月 17 日、オンライン。

レーザー学会 第 43 回年次大会、2023 年 1 月 20 日、名古屋。

日本顕微鏡学会 超高分解能顕微鏡法分科会 研究会、2022 年 2 月 18 日、オンライン。

The 4th Workshop of the Reaction Infography、2021 年 11 月 4 日、オンライン。

受賞(計 3 件)

エヌエフ基金 研究開発奨励賞・優秀賞、2022 年

分子科学会奨励賞、2022 年

第 15 回風戸研究奨励賞、2022 年