

氏 名 戸田 悠斗

学位(専攻分野) 博士(理学)

学位記番号 総研大甲第 2643 号

学位授与の日付 2026 年 3 月 24 日

学位授与の要件 物理科学研究科 核融合科学専攻
学位規則第6条第1項該当

学位論文題目 入射水素イオンの固体表面における電子捕獲過程に関する
理論研究

論文審査委員 主 査 菅野 龍太郎
核融合科学コース 准教授
伊藤 篤史
核融合科学コース 准教授
増崎 貴
核融合科学コース 教授
吉本 芳英
東京大学 大学院情報理工学系研究科 准教授
小林 亮
名古屋工業大学 物理工学科 准教授

博士論文の要旨

氏名：戸田 悠斗

論文題目：入射水素イオンの固体表面における電子捕獲過程に関する理論研究

本研究では、プラズマ-壁相互作用 (PWI) における固体表面での入射イオンの電子捕獲過程について、電子の量子力学的なダイナミクスまで考慮した第一原理計算及び解析手法を構築することを目的とした。特に、固体表面で反射し再放出される原子/イオンの電荷状態の評価を多電子の同時検出確率として定式化することで、実験と比較可能な観測量へと変換する方法を確立した。

原子スケールの PWI 研究では、歴史的に入射イオンと表面原子とを古典的な粒子で考えることが多く、さらにプラズマから飛来する粒子をイオンではなく中性の原子で代替してきた。この置き換えは、「入射イオンは壁表面で速やかに電子を受け取り中性化する」という仮定に基づいて正当化されてきたが、イオン中性化の過程や固体中でのイオンの状態は明らかではない。表面におけるイオン中性化は固体表面近傍の電子の局在性やバンド構造、電子間相互作用が関与する多体量子問題である。イオン中性化過程においては、状態遷移や励起状態を含む電子ダイナミクスが重要であり、Born-Oppenheimer 近似ではこの問題を扱うことができない。一方、表面物理の分野では共鳴中性化や Auger 中性化などの素過程を中性化機構としたモデルに基づく研究が長く続けられてきた。しかし、これらの中性化機構の優位性は系や条件によって結果が分かれ、必ずしも統一的な理解には至っていない。

第一原理的に電子の波動関数の時間発展を数値的に計算することで、表面から入射イオンへの電荷移動や電子励起を扱った先行研究も存在する。しかし、それらの研究は電荷移行過程の解析に主眼を置いたものであり、衝突後の入射粒子の電荷状態を確率として定量化し、実験と直接比較可能な中性化確率を第一原理的に評価する枠組みは、十分に確立されているとは言えない。

そこで本研究では、壁表面の構造と電子状態を含め、イオン中性化を多体量子問題として扱う第一原理的 PWI シミュレーションの枠組みを整備することを目指した。そのために、(i) 入射粒子を明示的にイオンとして扱った古典シミュレーションにより、入射粒子電荷が壁の損耗や固体中でのイオンの散乱に与える影響を定量化すること、(ii) 古典計算では扱えないイオンの電子捕獲過程を、特定の中性化機構モデルに依存しない時間依存密度汎関数理論(TDDFT)の枠組みで記述し、実験と直接比較可能な中性化確率を評価する方法を確立すること、の二段階を達成目標として設定した。

まず(i)として、ZBL ポテンシャルを拡張してイオン-中性原子間相互作用を表す二体ポテンシャルを構築し、BCA に適用した。アモルファスカーボンへの炭素入射では、 C^{6+} 入射においてスパッタリング収率が中性入射に対して 1.8-2.1 倍に増加し、平均侵入深さは 0.26-0.72 倍に減少することを示し、入射粒子の電荷が壁の損耗や固体中の粒子散乱を有意に変化させ得ることを確認した。ただし、固体中を散乱する入射イオンは現実には中性

原子へ変化し得るが、本 BCA 計算では終始イオン状態のまま電荷状態が固定されてしまうという問題が残る。したがって、将来的により良い予測を得るためには、入射粒子の電荷状態の動的変化を理解することが不可欠である。

そこで、電荷状態の変化の問題に正面から取り組むため、(ii)として、TDDFT と MD とを組み合わせた **Ehrenfest MD** を導入し、入射粒子の運動と電子の運動とを同時に追跡することで、従来の中性化モデルに依存せずに表面からの電子遷移を第一原理的に記述する方法を導入した。

Ehrenfest MD を用いた、表面から入射イオンへの電荷移行を計算した先行研究は存在するものの、電荷に注目した解析では入射粒子の電荷状態を適切に評価できない。そこで本研究の中核をなす成果として、イオン中性化確率を推定するために、部分領域内の電子検出確率を算出する手法を開発した。水素のケースでは水素原子核を中心とする球状の部分領域を電子検出領域として定義し、その中に観測される電子数ごとの検出確率を理論的に導出した。検出される電子の数に応じて、観測される水素の荷電状態を判別できる。例えば検出される電子の数が 1 つならば中性の水素原子、0 ならば水素イオン、2 つならば水素負イオンの状態であると解釈する。しかし、電子検出確率を定義通りに計算すると、波動関数の定義から計算量は電子数を N として $O[(N!)^2]$ となり、 N が大きい場合には現実的な時間での計算が不可能である。本研究ではこれを電子検出領域における **TDKS** 軌道の局所重なり行列の固有値を用いて表現する形式を導出した。この定式化により、計算量を $O(N^2)$ まで削減し、多電子系に対して現実的な時間で電子検出確率の計算を可能とすることができるようになった。

この手法を用いて、タングステンの $\{110\}$ 面を表面とする厚み 8.94 \AA の薄膜に対して水素イオン入射を行い、衝突後の水素がとる電荷状態の入射エネルギー依存性を評価した。入射条件として水素が最表面の原子と正面衝突して反射するケースと、ブリッジサイトの中心に入射することで水素がチャネリングにより貫通するケースとについて調べた。ここでは電子捕獲過程のエネルギー依存性を調べるために、 1 eV から 1 MeV にわたるエネルギーレンジで水素イオン入射を行った。水素イオン入射では、低エネルギー側で中性化確率が大きく、反射条件の 1 eV 入射で中性化確率は約 0.7 となった。一方で入射エネルギーの増加とともに中性化確率は減少し、 1 MeV ではほぼ 0 となり、イオン生存確率がほぼ 1 となった。また本研究においてはタングステン表面で水素負イオンが生成される可能性が示された。負イオン化確率は 100 eV から 10 keV の領域で有意となり、 1 keV 付近にピークを持つことを示した。

さらに、同様のタングステン表面に対して中性水素入射を行ったところ、 10 eV 以下の比較的低エネルギーの入射では中性のまま反射する傾向が強い一方、高エネルギー入射ではイオン化確率が増加し、電荷状態が入射エネルギーに依存することが確認された。また中性原子入射のシミュレーションの方がイオン入射と比較して負イオン化確率が高い傾向が示された。さらに、これらの電荷移行は、単一の軌道だけが遷移する一電子過程ではなく、多数の軌道が表面局在成分と入射粒子局在成分へ同時に分裂する多電子過程として理解されることを示した。

本研究で用いた手法及び計算条件の妥当性について多角的に評価するため、電子阻止能の評価、シミュレーション中の数値安定性、系のサイズ依存性の検証、**Ehrenfest MD** の

限界について議論した。とりわけ、タングステン内部を進行中の水素原子核が受ける電子阻止能については、**Ehrenfest MD** による算出結果と実験結果とで良い一致が見られた。これらの検証結果から、計算条件及び手法の妥当性が確認された。

総括として、本研究は、入射粒子を中性原子で代替する従来の **PWI** シミュレーションの仮定を再検討し、入射イオンの中性化過程を第一原理・時間依存の枠組みで記述するとともに、再放出後の電荷状態変化を量子力学的な電子の検出確率として評価する手法を確立した。本研究で導出した電子の同時検出確率の手法は電子数が数百から千に及ぶ多体電子系においても高速に解析計算を実行する手法であり、水素だけでなく、より電子の多い多価イオンや分子イオンなどについても適用可能なフレームワークを構築することができた。本研究は、イオン中性化過程の第一原理的な解析方法として、これからの **PWI** 研究における基盤的技術となると期待される。

Results of the Doctoral Thesis Defense

博士論文審査結果

Name in Full

氏名 戸田 悠斗

Title

論文題目 入射水素イオンの固体表面における電子捕獲過程に関する理論研究

出願者は、プラズマ-壁相互作用(PWI)現象における重要な素過程として、飛来する水素イオン粒子が固体表面で電子を捕獲し中性化する過程に関する理論研究に取り組んだ。本論文では、電子の量子ダイナミクスを加味した Ehrenfest 分子動力学(MD)によって第一原理的なシミュレーションを遂行した。さらに、入射後に反射もしくは貫通することで再放出された水素が中性・正イオン・負イオンのいずれかとして観測される量子力学的な確率について、水素原子核近傍の電子の同時検出確率に基づく独自の理論的アプローチを構築した。

まず、出願者は、イオンの電子捕獲過程に関する歴史的な理論モデルについて整理した。加えて、従来の PWI 研究で用いられてきた二体衝突近似法(BCA)、分子動力学、密度汎関数理論といった原子レベルのシミュレーションにおいても、イオン入射を原理的に扱えず中性原子で代替されてきた実情を概観した。その上で、イオンの電子捕獲という本課題は、十分な解決に至っていない歴史的な問題であると指摘した。

そこで、出願者は、BCA 計算のフレームワークにおいてポテンシャルモデルをイオン入射用に拡張し、中性入射と比べてイオン入射ではスパッタリング収率が約 2 倍に増加し、侵入長は 1/4 から 3/4 程減少することを見出した。このように、イオン入射を中性原子で代替する従来の慣習が、現象の定量的評価において大きな影響を与えることが明確になった。

そのため、イオンが固体表面及び内部で電子を捕獲して中性化する過程も含めた理論体系を構築すべく、原子核の運動を古典力学的に解くと同時に、電子の波動関数の量子力学的な運動を時間依存密度汎関数理論(TDDFT)に従って解く Ehrenfest MD を導入した。本シミュレーションを実行する QUMASUN コードの開発への貢献は、指導教員らとの共著論文において確認された。本計算手法をタングステン(110)表面への水素イオン入射過程に適用し、反射および貫通過程について電子状態の変化を追跡した。時間発展によりタングステン中の電子は水素原子核の周辺に遷移するが、反射して十分離れた時点でもその電荷量は非整数となることを示した。これは、入射水素イオンが中性化した状態、イオンのまま変化しなかった状態、負イオンに変化した状態が重なり合った量子力学的な特性によるものであると説明した。同時に、量子過程においては電子密度だけからでは、反射後の水素の荷電状態を判断することはできないことに言及した。この点は TDDFT を同様に用いた先行研究以来の課題であった。

出願者は、電子密度ではなく、実際に時間発展で解いている電子の波動関数に着目し、水素原子核近傍における整数個の電子の同時検出確率を波動関数から解析的に導出した。これにより、同時検出される電子数が 0、1、2 の場合に応じて、それぞれ正イオン、中性、負イオンの水素が検出される確率と見做せることを見出した。

本解析法を用い、タングステン表面での入射水素イオンの反射現象における正イオン、中性の原子、

負イオンの検出確率について、1 eV から 1 MeV の範囲での入射エネルギー依存性を調べた。エネルギーが低いほど反射後は中性水素として検出される確率が上がるが、中性化率は最大でも 70%程度に留まった。入射エネルギーの増加に伴い中性化率は減少し、正イオンとして検出される確率は増加する。1 MeV 入射時には正イオン検出確率がほぼ 100%に達する。さらに、10 eV から 10 keV の範囲では負イオンの検出確率も有意となり、最大 25%程度に達することも明らかにした。比較として、中性の水素原子を入射した計算も行い、10 keV 以上のエネルギーでは各確率は水素イオン入射時とほぼ一致したが、電子の応答が間に合わなくなることが原因であると考えられる。これに対して、10 keV 未満では負イオン検出確率が水素イオン入射時よりも大きくなり、最大 35%程度に達した。加えて、入射水素イオン・原子がチャネリングによって 4 層構造のタングステンターゲットを貫通する場合についても報告した。

同時検出確率の計算コストは、系内の全電子数 N に依存し $O[(N!)^2]$ と非常に大きく、実用上の障害となっていた。出願者は、固有値問題と漸化式によって、この計算コストを $O(N^2)$ に減じるアルゴリズムの開発に成功した。これにより、同時検出確率の計算時間は百万倍以上高速化され、水素よりも多くの電子を捕捉する原子分子への適用を現実のものとする、実用的な解析手法を確立した。先行研究との比較において Ar イオン入射時の電荷状態の変化を定量的に評価することができた。

最後に、本計算の妥当性を検証すべく、ミクロな計算で問題となるサイズ依存性や、鏡像効果の影響についても議論した。正・負イオンの検出確率などについても実験との比較を行っているが、特にイオン粒子が固体中を進む際に受ける抵抗を定量化した電子阻止能について、本計算による見積もりが実験結果と非常によく一致していることを示した。

上記の研究は、水素イオンの電子捕獲過程に関して、従来の理解から一歩進んだ新しい考え方を提唱するものとして新規性・独創性は十分である。加えて、本研究で開発した解析手法は、タングステン表面への水素イオン入射という枠を超えて、入射粒子と固体表面のより一般的な組み合わせに展開可能なフレームワークとなっており、学術的な価値が認められる。

2026 年 1 月 21 日に行われた公開発表会においては、60 分間の口頭発表の後、20 分間の質疑応答を行い、参加者からの質問に的確に回答した。その後は審査委員との質疑応答を 120 分程度行い、より専門的な問い掛けに対して、審査委員と議論を行いながら適切な結論を導くことができた。これらにより、本研究に対する理解と深い知識を有することが確認された。

出願者は、第一著者として査読付き論文 1 編を発表している他、国際会議での口頭発表 4 件（うち招待講演 1 件）、ポスター発表 1 件を行っている。加えて論文要旨として英語表記の版も提出していることから、十分な英語能力を有していることが確認された。2024 年 10 月には第 19 回日本物理学会領域 2 学生優秀発表賞を受賞しており、十分な研究能力を有していると判断できる。また出願者が博士課程修了に必要な単位数を既に取得していることを確認した。

以上のことから本審査委員会は、出願者の研究成果が課程博士に係る学位論文の内容として相応しいと結論し、試験結果について全員一致で合格と判定した。