

IV. 量子物性研究部門

1. メンバー

教授	矢花 一浩、大谷 実
准教授	小泉 裕康、全 暁民
講師	前島 展也
助教	佐藤 駿丞、萩原 聡
主任研究員	長谷川 太祐
研究員	黒田 文彬
学生	大学院生 6 名、学類生 2 名
教授	日野 健一（学内共同研究員、物質工学域） 岡田 晋（学内共同研究員、物理学域）
客員教授	小野 倫也（神戸大学大学院工学研究科）

2. 概要

本部門は、物質・材料科学や物性物理学、原子分子光科学などのいくつかの分野に渡る計算科学に基づく研究を行っている。当部門は光と物質の相互作用に関係した研究や、化学電池、触媒・腐食現象など、実社会と強く結びついた研究に特色を有している。時間依存密度汎関数理論に基づく固体中の電子ダイナミクスや光応答の計算、時間依存シュレディンガー方程式に基づく原子や分子と光の相互作用、強相関電子系の光応答など、多様な物質を対象とした光物性科学分野の計算科学研究を行っている。また強相関電子系では銅酸化物高温超伝導の機構解明、および銅酸化物超伝導体を量子ビットとした量子コンピューターの実現を目指した理論的解明を行っている。

これらの研究に加えて、独自の計算コード開発も行っている。時間依存密度汎関数理論 (TDDFT) に基づき光と物質の相互作用を記述する汎用の第一原理光科学ソフトウェアとして SALMON を開発し、ウェブサイト <http://salmon-tddft.jp> において公開している。また電気化学反応に有効なシミュレーション法として、有効遮蔽媒質 (ESM) 法と古典溶液理論 (RISM) を融合した ESM-RISM の開発を進めており、汎用ソフトウェアである Quantum ESPRESSO にコードを提供するとともに、その普及のため多くの企業研究者が参加するコンソーシアムを運営している。

また、今年度は学振外国人特別研究員として Sri Kasi Matta（～2023.8.23）、外国人受託研究員として王 軍平（煙台大学、准教授、2023.6.20～）の2名の受け入れを行なった。

3. 研究成果

[1] 菱形硫化ホウ素 / 水溶液界面における酸素発生反応機構の量子・古典融合理論による理論的解析（萩原、黒田、大谷）

環境負荷が小さい水の電気分解によって得られるエネルギーの蓄積・運用技術は、カーボンニュートラル社会の実現において重要なテーマである。近年、我々は、菱形硫化ホウ素 (r-BS) とグラフェンナノプレートを組み合わせた r-BS + G がアルカリ水溶液の電気分解において律速となる酸素発生反応 (OER) に対して高い効率を有する電極触媒となることを、筑波大学の実験グループとの共同から見出した。r-BS + G 電極触媒のさらなる高性能化を目指して、格子欠陥を有する r-BS/1M-KOH(aq) 界面に対して昨年度開発した誘電率補正した古典溶液理論と密度汎関数法を組み合わせた ESM-RISM 法を適用し、OER に対する活性サイトとその触媒機能の発現機構を解析した。

OER 反応過程における自由エネルギー変化を調べた結果 (図 1(a))、表面第一層と二層にホウ素欠をもつ r-BS/1M-KOH(aq) 界面 (V_{B1} および V_{B2}) が最も小さいエネルギー障壁を有することがわかった。OER の平衡電位 (E_{OER}) に対応するバイアスを印加したところ、 V_{B2} (V_{B1}) には正 (負) の電荷が誘起されることがわかった (図 1(b))。これは、平衡電位において正に帯電する V_{B2} を有する界面の方が V_{B1} より静電引力によって OH^- イオンを引き付けやすいことを意味している。この関係は、図 1(c) に示す電極表面周囲のイオン密度分布によって確認することができる。アルカリ水溶液中の OER は水溶液中の OH^- イオンが反応のトリガーであることから、自由エネルギー障壁の低さに加えて、 OH^- イオンを引き寄せやすい V_{B2} の方が OER に有利であると考えられる。また、バイアス印加時に導入される余剰電荷の符号は一般にゼロ電荷電位とターゲットとなる電位の相対関係によって決まる。したがって、本研究成果は、r-BS に限らず今後の電極触媒材料を設計する上で有用な知見を与えることが期待される。

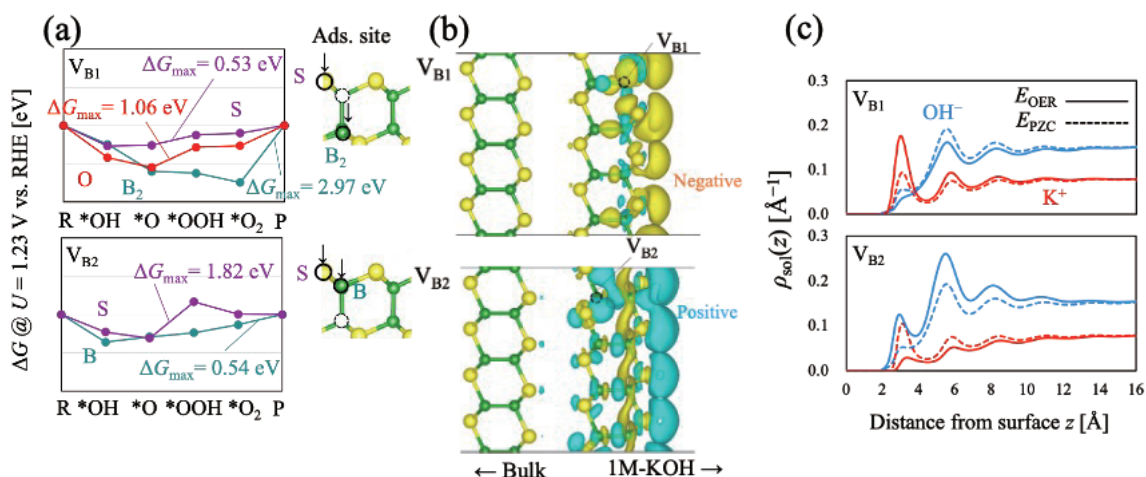


図 1 (a) OER 平衡電位 ($U = 1.23$ V vs. RHE) における反応経路に沿った自由エネルギー変化。(b) バイアス印加によって誘起された余剰電荷分布。(c) 1M-KOH 水溶液中のイオン密度分布。赤と青はそれぞれ K^+ と OH^- イオンの密度分布であり、実線と波線は、 E_{OER} およびゼロ電荷電位 (E_{PZC}) におけるイオン分布をそれぞれ表す。

[2] 固液界面における化学反応経路自動探索手法の開発（長谷川、萩原、大谷）

固体表面と液体界面で構成される固液界面は、蓄電池、触媒や金属腐食などの機能発現が起こる反応場として知られている。したがって、これらを利用した技術の向上には、固液界面における化学反応および電荷移動過程の微視的理解が重要である。しかし、固液界面ではさまざまな反応が起こるため、その反応過程を計算科学的手法によって詳細に調べることは困難である。そこで、本研究では、古典溶液理論と密度汎関数理論を組み合わせることで効率よく固液界面の物性値を計算することが可能な ESM-RISM 法と人工力を利用することで様々な反応経路を探索する化学反応自動探索手法である AFIR 法を組み合わせることで、固液界面における化学反応経路自動探索手法の開発を行い、それを Cu(111)/1M-NaCl 水溶液界面における水分子の分解反応過程へ応用した。

まず、水の分解反応にける反応中間体を吸着サイトの違いも考慮しながら計算し、それらの過程を結ぶ反応経路を詳細に探索することで、global reaction map を構築した (図 2(a))。そして、最も活性化障壁が低い最小エネルギー経路 (MEP) における反応過程を決定した図 2(b)。その結果、反応が進行するために必要な活性化障壁の高さが、界面環境によって異なることがわかった。この違いは、反応中間体と遷移状態に対する水和効果の違いから説明することが可能である。その結果、固液界面では二通りの反応経路が競合しながら水の分解が起こることがわかった。さらに、反応物の電荷解析を行ったところ、反応が進行するにつれて比較的大きな電荷が Cu(111) 表面に移動することがわかった図 2(c)。この電荷移動量は、電気化学的な反応過程に見られる量と整合することから、Cu(111)/ 水溶液界面における水分解反応は、電極電位によって促進することが可能であると考えられる。今後は、開発した固液界面における化学反応経路自動探索手法に電位制御手法を組み合わせることで、電気化学反応経路自動探索手法の開発を行なっていく予定である。

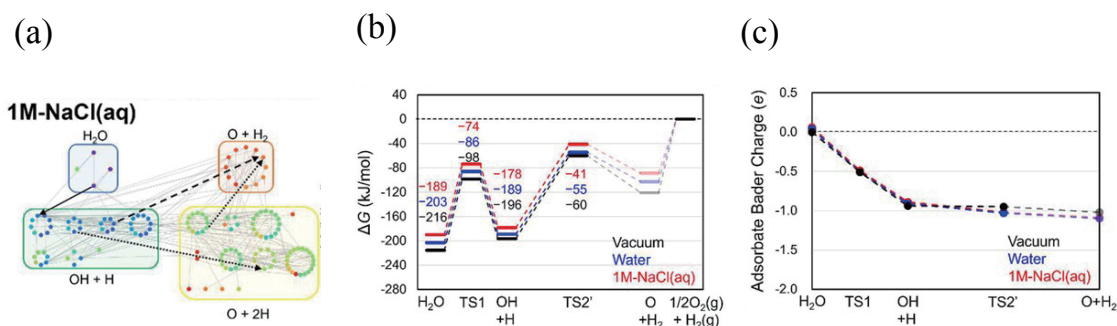


図 2 (a) Cu(111)/1M-NaCl(aq) 界面における global reaction map。 H_2O , $\text{OH} + \text{H}$, $\text{O} + 2\text{H}$, $\text{O} + \text{H}_2$ は始状態、反応中間体および終状態をそれぞれ表す。点は得られた構造を表し、線は反応経路を表す。(b) 各構造の自由エネルギーダイアグラム。TS1 及び TS2' は遷移状態を表す。(c) 各構造における分子及び原子上の Bader 電荷。

[3] 高強度パルス光と物質の相互作用の系統的分析 (矢花)

高強度超短パルスレーザーと物質の相互作用は、非線形な光応答や物質中での電子の超高速運動の解明など基礎科学の観点から興味が持たれるとともに、新奇な光デバイス原理の提案やレーザー加工初期過程の解明など、応用上も重要である。我々は、時間依存密度汎関数理論に基づく第一原理計算により、光により生じる電子のダイナミクスを記述し、さらに電子の運動を光波の伝搬を記述するマクスウェル方程式と結合した枠組みを発展させて、高強度パルス光と物質の相互作用を調べている。

本年度は、物質の非線形光応答に関する系統的な理解を得ることを目的として、金属 (Al)、半金属 (グラファイト)、半導体 (Si)、ワイドギャップ誘電体 (SiO₂) の4つの物質からなる 50-200nm の厚さの薄膜に、様々な強度を持つ超短パルスレーザーが入射して起こる光伝搬の第一原理計算を行った。(A. Yamada, K. Yabana, arXiv:2401.13417) 計算は、我々のグループを中心に開発を続けているソフトウェア SALMON を用い、粗視化近似を取り入れたマルチスケール Maxwell-TDDFT 計算の枠組みで行った。

計算で得られた薄膜からの光の反射率と透過率を、入射パルスの最大強度を横軸にとり示した結果を図3に示す。弱い光の場合における誘電関数で記述される物質の個性を反映した光応答から、光電場が1原子単位に近い高強度の光で物質内の電子が瞬時に励起しプラズマ反射が主要となる場合まで、多様な非線形光応答を記述することに成功した。その過程で現れる、多光子吸収、可飽和吸収、有効誘電率が0を切ることによる反射の減少、電子が量子占有分布から古典ボルツマン分布に変化することによる吸収の変化など、多様な非線形メカニズムを明らかにした。

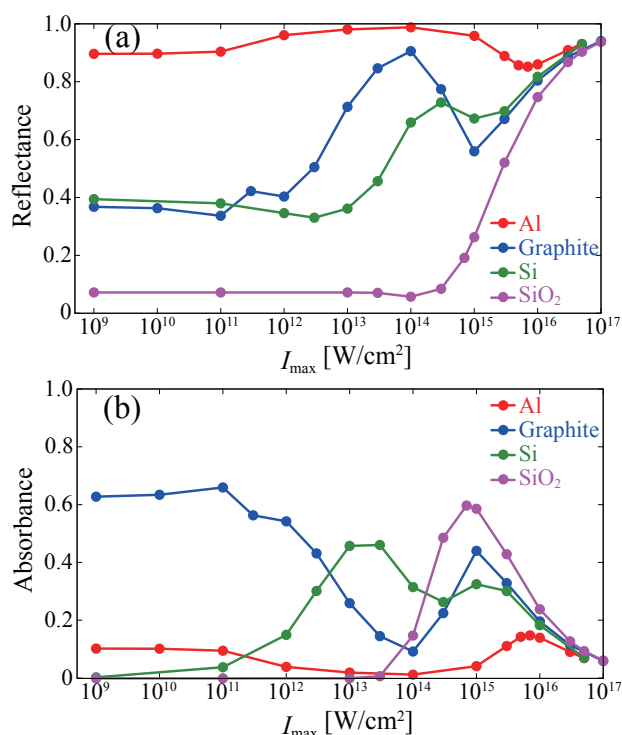


図3：さまざまな物質からなる薄膜によるパルス光の反射率(上)と吸収率(下)を、パルス光の最大強度を横軸にとり示す。

[4] 斜め入射するパルス光と物質の非線形相互作用を記述する計算方法の開発 (矢花)

光が平坦な物質に斜方入射して起こる現象は、電磁気学の基本的な課題である。例えば p 偏光した光は、ある入射角 (ブリュスター角) で無反射となる。また金属と誘電体の界面では、表面プラズモンとの結合が起こる。これらは線形光学における現象であるが、高強度パルス

光が入射し、非線形性が著しい場合にはどのような現象が起こるのかは興味深い。

昨年、平坦な物質への斜方入射が見かけ上 1 次元の波動方程式に類似した偏微分方程式で記述されることを用いた枠組みを構築したが、p 偏光入射では表面に分極電荷が発生するため電場が不連続となることに起因して、数値的なノイズが発生する困難があった。また、表面プラズモンポラリトンを記述しようとする、真空領域でエバネッセント波が生じることから、数値的困難が生じることが判明した。そこで本年は、これらの困難を克服することを目指して研究を継続した。昨年度の枠組みではベクトルポテンシャルに対して方程式を立てており、その場合に表面での発散の困難が現れたが、代わりに電場と磁場に対する方程式を解くことで困難が解消できることがわかった。またエバネッセント波に伴う問題は、真空領域を誘電体+金属からなる擬似的な誘電率が 1 にほぼ等しい物質と表すことで、一定の解決を得ることができた。これらの理論の発展により、線形領域で斜方入射が計算できることを確認した。図 4 に、クレッチマン配位における反射率の角度変化に現れる表面プラズモンに起因する反射の消失を示す。左は一定振動数を持つ連続波に対する解析的計算、右はパルス波に対する数値計算の結果である。数値計算は、パルスの長さにより反射消失の振る舞いが大きく変化しており、振動数に対する強い依存性を示唆している。今後マルチスケール Maxwell-TDDFT 計算法と組み合わせた実装と応用を計画している。

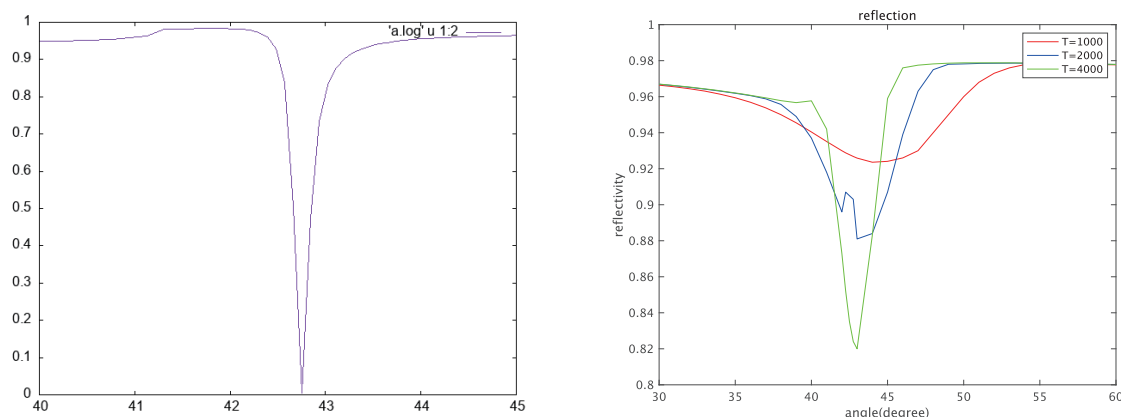


図 4: クレッチマン配位での光の反射率を、横軸を誘電体中の入射角にとり示す。左図は一定振動数の連続波に対する結果、右図はいくつかの時間長を持つパルス波に対する結果を示す。

[5] 遷移金属ダイカルコゲナイドに対するアト秒過渡吸収分光の第一原理的解析 (佐藤)

本研究では、時間依存密度汎関数理論に基づく第一原理計算と先端のアト秒過渡吸収分光実験を組み合わせることで、2 次元物質として近年注目を集めている遷移金属ダイカルコゲナイドの一種である MoSe_2 における光駆動アト秒電子ダイナミクスを調べた。図 5.(左)には第一原理計算の結果得られた基底状態の電子密度を示した。Mo 及び Se 原子付近に電子が局在している様子が確認できる。また、図 5.(右)には、レーザー励起後の電子密度変化を示した。Mo 原子上では極端な電子の局在化が見られるのに対し、Se 原子上では局在化が起

こていない。アト秒過渡吸収分光実験、及びその第一原理計算を行った結果、電子の局在化現象の有無に応じて、Mo 原子と Se 原子の内殻吸収端に、それぞれ電子局在化による多体効果、及び独立粒子描像に基づく占有変化に特有の光学等をアト秒の時間スケールで観測することに成功した。その結果、元素の特徴に応じて、原子スケールの局所的な電子のダイナミクスが物質の過渡的な光学応答を支配していることを明らかにした。この成果により、元素選択的に光による超高速な光学特性変調するための技術基盤を発展させた。この研究は、Max-Planck 研究所 (ハンブルク)、及びチューリッヒ工科大との国際共同研究であり、論文”Ultrafast electron localization and screening in a transition metal dichalcogenide” として Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A. 誌より出版された。

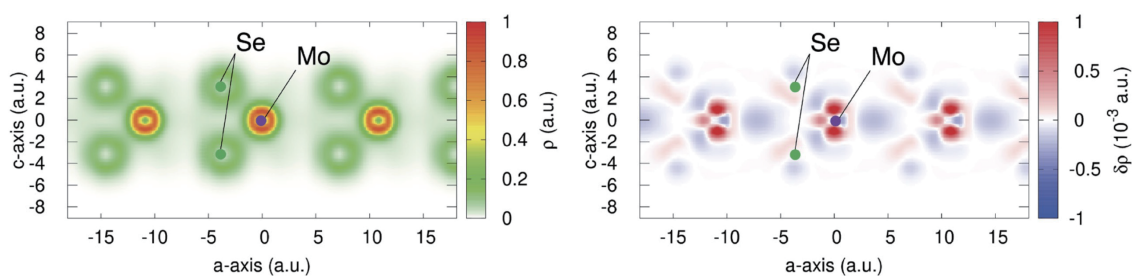


図5. (左)基底状態における MoSe₂ の電子密度。(右)光励起によって誘起される電子密度差。

[6] THz+MIR 光によるグラフェンからの高次高調波発生に関する研究 (佐藤)

本研究では、近年注目を集めている固体からの高次高調波発生の発生効率を向上することを目的とし、THz 光と中赤外 (MIR) 光の 2 色の光を照射することでグラフェンからの高次高調波発生が単色の場合と比べてどのように変化するかを微視的電子ダイナミクス計算により調べた。図 6.(左)には、MIR 光に対する 7 次高調波発生強度を、2 色目の光出る THz 光の電場強度の関数として示している。赤線 (Para.) は THz 光と MIR 光の電場分極方向が並行な場合、青線 (Perp.) は垂直な場合の結果を示しており、いずれの場合も THz 光と MIR 光の非線形相互作用によって高調波強度が増大する様子が確認できる。これに対し、緑線 (Thermo.) は、THz 電場効果を電子温度上昇で近似した場合の結果を示しており、単純な電子温度上昇では高調波発生強度の増幅が起こらないことを示している。従来の研究では、THz 光がグラフェンに駆動する電子ダイナミクスを単純な電子温度の上昇で記述する熱力学的モデルによる解析が主流であったが、本研究では THz 光が物

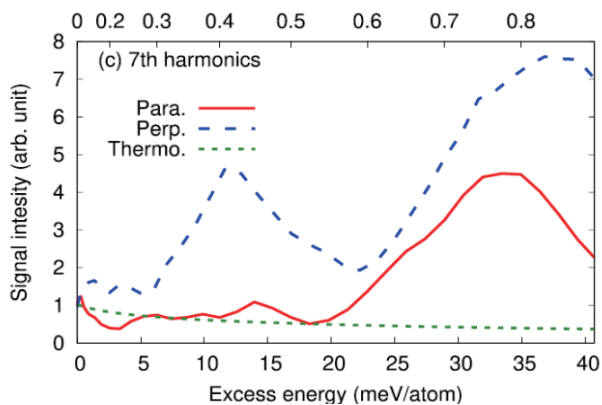


図 6. THz 光と MIR 光によって生じる 7 次高調波発生強度。

質内に駆動する電子ダイナミクスの非平衡性が、高次高調波発生現象において重要な役割を果たすことを明らかにした。本研究は、マックスプランク研究所(ハンブルク)との共同研究であり、論文”Enhancement of high-order harmonic generation in graphene by mid-infrared and terahertz fields”としてPhysical Review B 誌から出版されている。

[7] 銅酸化物高温超伝導体のスピン渦誘起ループ電流から生じる磁場の計算 (中山、王、小泉)

銅酸化物高温超伝導体にはナノサイズのループ電流が存在し、最適ドーピングの試料では、このループ電流の安定化温度が超伝導転移温度に一致することが知られている。そして、常伝導 - 超伝導の相転移の振る舞いもベレジンスキー=コスタリッツ=サウレス型でよく表され、超伝導にナノサイズのループ電流が深く関わっていることが確実である。しかし、このループ電流がどのようなものであるかは、明らかになっていない。我々は、中性子散乱による励起スペクトルがスピン渦の存在を示唆し、EXAFSによるスモールポーラロンが存在が、スピン渦を安定化する芯を与えると考えられることから、多くの実験結果と整合性する

ループ電流として、“スピン渦ループ電流”の存在を予言している。そして、この予言を確かめる為の検証実験として、ループ電流の作る磁場を測定することを提案している。

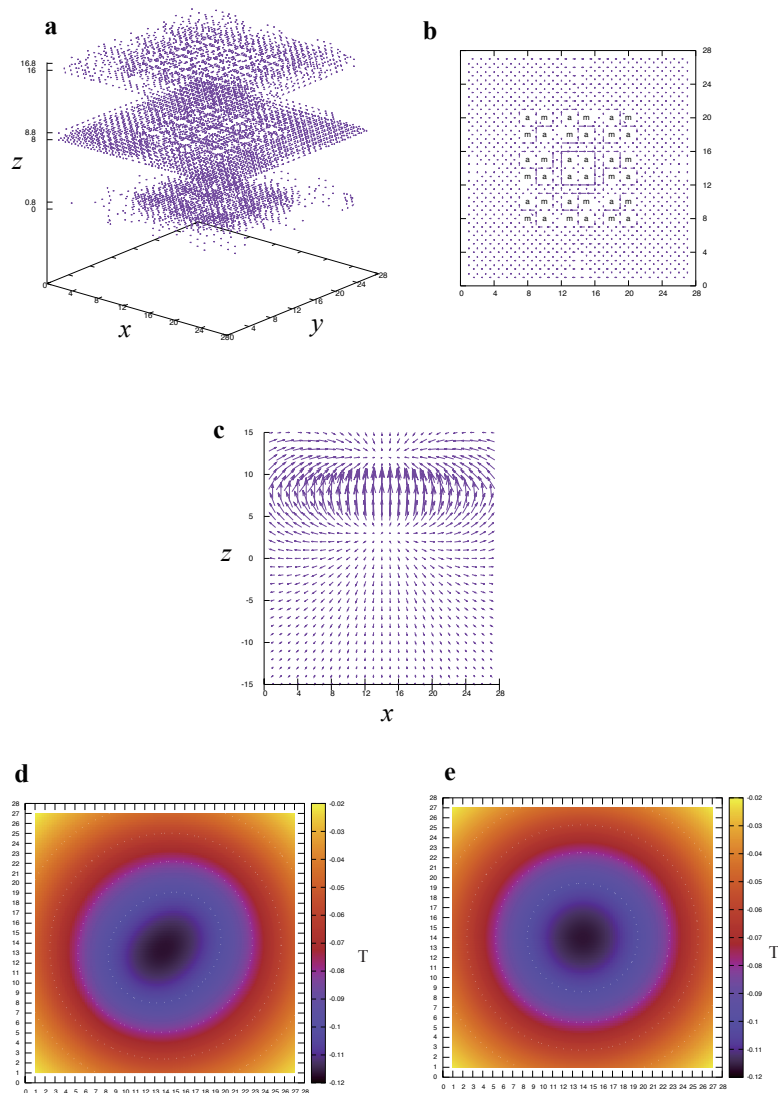


図 7. Bi2212 の CuO_2 2 重層が三層重なった系 (a) で、表面から二層目に (b) のような励起したループ電流が流れた場合の計算結果。磁場の断面図は (c) のようない、表面付近の磁場分布は (d) のようになる。表面層の電流から生じる磁場の寄与を除いた磁場分布は、(e) のようになる。

ループ電流の励起状態を磁気パルスの印加で作成し、その電流が作る磁場を表面近くで観測すれば、巻き数の異なるループ電流を生成することができ、観測される磁場は、ループ電流の巻き数の違いを反映したものになることが理論的に予言された。このことにより、スピン渦誘起ループ電流の存在の検証が可能であるという結論を得た。

[8] スピン渦誘起ループ電流を利用した量子ビット：2量子ビットからなる3ユニット系のシミュレーション（田谷、小泉）

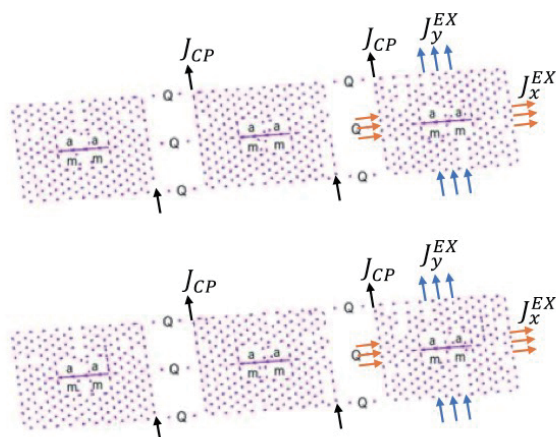


図 8. Bi2212 の CuO_2 2 重層が 3 つのユニットアイランドを形成した構造を持つナノ量子ビットアーキテクチャー。各アイランドには 2 量子ビット分の安定したループ電流状態が可能であり、アイランド間は量子ドットで結合されている。量子ドットを流れる電流を制御することにより、トフォリゲートなどが可能となる。

銅酸化物超伝導体に存在するナノサイズのループ電流は巻き数というトポロジカルな量子数を持ち、この巻き数は整数となり、低温では安定であると予想される。我々のこれまでの研究で、このループ電流は、外部電流によって、巻き数の違う状態に遷移させることができ、量子ビットとして使用可能であることが理論的に予想されることが示されている。これを“スピン渦誘起ループ電流量子ビット”と呼ぶ。このループ電流量子ビットのユニットとして、4 つ組のループ電流（図 8 で aamm と表されているもの）を使ったものの利用を理論的に考察している。各ユニットは、安定性が高く、操作性も良い 4 つの量子状態からなり、2 量子ビットを表現できる。4 つ組ループ電流量子ビットはアイランド化された試料に個別に存在し、アイランド間には、量子ドットが存在し結合されている。現在、3 つのアイランドからなる系についてシミュレーションを行っており、トフォリゲートという 3 量子ビットの重要な量子ゲートが簡単に達成できるという結果を得ている。

[9] 強相関物理系としての自然言語と量子コンピューターによる自然言語処理：プログラム lambeq の英語以外の言語への拡張（Hirankarn, Iqbal, 小泉）

自然言語処理は最近飛躍的に進歩し、ChatGPT などでは、分野によっては、人間を凌駕する、言語処理能力を示している。しかし、さらなる発展のためには、量子コンピューターを積極的に使用した処理が必要と考えられている。自然言語は数学的に見ると量子力学と類似の構造を持ち、強相関物理系と考えられる。これは、単語からなる文の意味が、単語各々の独立の意味から成り立っているのではなく、互いに強く影響しあって（強く相関して）文の

意味を作り出していることを考えれば、明らかである。現在、オックスフォード大学のグループにより作られた、lambeq という量子自然言語処理のためのソフトウェアが存在する。これはまだ、実験的な発展段階のソフトであり、また、英語以外の言語にはうまく対応していない。実際、量子コンピューターを使った自然言語処理には、確立した方法は存在しないが、すべての自然言語に共通する、チョムスキーの普遍文法に対応するものが存在し、量子コンピューターはそれを扱えると考えられている。また、我々の脳は量子コンピューターであると考えられる科学者（フォン・ノイマンもその一人である）は少なくなく、自然言語の理解には量子力学と量子コンピューターが必要であることは間違いない。我々は、現在 lambeq を英語以外の言語（日本語、ドイツ語、タイ語、マレーシア語）にも利用できるよう、拡張し、普遍文法的な自然言語処理を模索している。

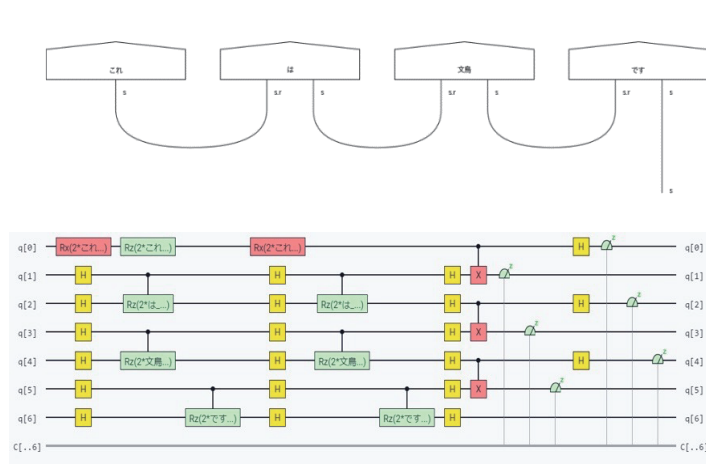


図 9. 上図)「これは文鳥です」という文章を 4 つのケットベクトルのテンソル積で表し、量子ビットに対応するワイヤーで繋いだストリング図。

下図) 上記の構造の文に対し、パラメータを持つ x 軸の周りの回転（赤いボックス）と z 軸の周りの回転（緑のボックス）、そして、その他の量子ゲートを組み合わせ、量子回路を作る。パラメータは言語処理の目的に合わせて量子機械学習により最適化する。

[10] 銅酸化物高温超伝導機構解明への標準理論を超える新しい超伝導理論（小泉）

銅酸化物高温超伝導体は、1986 年に発見されたが、現在も多くの研究者が納得する理論的説明が存在しない。銅酸化物高温超伝導体の解明には、現在の標準理論である BCS 理論を包含するより一般的な超伝導理論が必要である。そのような理論をディラックが量子力学を現在の形に整備する際に無視した $U(1)$ 位相を、ベリー位相の定式化を利用することにより、構築した（“Neglected $U(1)$ phase in the Schrödinger representation of quantum mechanics and particle number conserving formalisms for superconductivity”, H. Koizumi, J. Phys. A: Math. Thero. 56 (2023) 455303）。さらに、この理論を適用することにより、ファラデーの電磁誘導起電力に対応するものが、無視した $U(1)$ 位相より生じ、銅酸化物超伝導体で観測されている、ネルンスト効果を説明することを示した（“Supercurrent ans electromotive force generatons by the Berry connection from many-body wave functions”, H. Koizumi, J. Phys. A: Math. Thero. 56 (2023) 185301）。また、この理論に現れるローレンツ力以外の力は、第一種超伝導体が磁場中で起こすジュール熱なしの超伝導 - 常伝導転移を説明することを示した（“Reversible superconducting-normal phase

transition in a magnetic field: The energy-momentum balance including the velocity field of the Berry connection from many-body wave functions”, H. Koizumi, Phys. Scr. 99 (2024) 015952)。このジュール熱なしの相転移は、ローレンツ力だけでは説明できず、長い間説明されずにきた現象である。これが、新理論で説明できた訳である。

[11] Be 様高価イオンの二電子性再結合と放射再結合の干渉 (全)

自由電子が Be 様高価イオンに捕獲されたときに放出される X 線の偏光について理論的に系統的な研究を行った。 $J=1/2 \rightarrow J=1/2$ 遷移の二電子性再結合に着目し、その偏光は軸対称性のため偏光度がゼロであると予測された。二電子性再結合と放射再結合の干渉を含めると、電子エネルギーが共鳴エネルギーを越えると、図 10 のように、

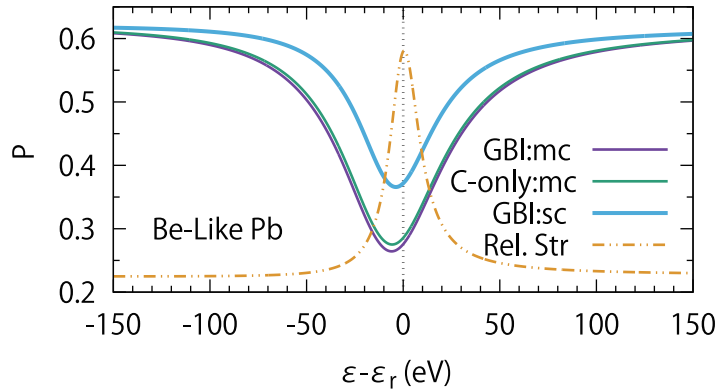


図 10：X 線の偏光度と電子エネルギーの関係

偏光度は劇的に変化する。われわれは、これまでの結果を広範な等電子系列に拡張し、低 Z イオンでは、二電子状態の配置相互作用が大きく影響し、高 Z イオンでは、Be-like イオンの基底状態の配置相互作用が重要な役割を果たすことを見いだした。本研究は国際共同研究結果として、科学雑誌『Physical Review A 107, 052801 (2023)』に発表した。

[12] 高次高調波発生 of マルチスケールシミュレーション：ミクロからマクロへ (全)

高強度レーザーパルス中のガスターゲットからの高次高調波発生 (HHG) を理論的に研究した。時間依存シュレディンガー方程式を単電子近似で解くことにより微視的高調波を求め、位相整合と自己吸収を伴う微視的高調波を 2 つのスケールで総和することにより巨視的高調波を求めた。ひとつはレーザー波長スケールで、伝播位相が変化してもレーザー強度は変化しない。もう 1 つは、レーザー強度と Gouy 位相シフトが変化するレーザービームウエストスケールである。Ar 原子を例にして、図 11 のように、巨視的な HHG エネルギー分布と発散を計算する。また、巨視的 HHG のガス圧力とガスジェットの位置依存性についても議論する。本研究は科学雑誌『Physical Review A 108, 023118 (2023)』に発表した。

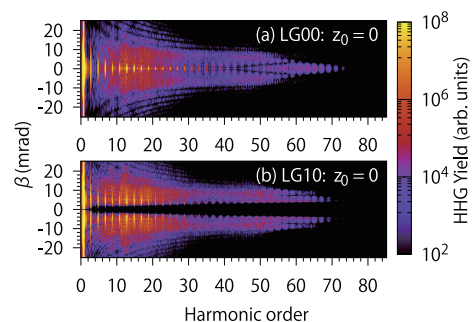


図 11: 巨視的高次高調波の空間発散と入射光の関係

[13] レーザー誘起 3次元フロケワイル半金属 (前島)

通常の絶縁体に高強度レーザーを照射した場合に発現するレーザー誘起フロケトポロジカル状態について数値的解析を行った。絶縁体を記述する理論模型である3次元2バンド模型に対してレーザー電場を導入した場合に出現するフロケワイル半金属特有の物性について数値対角化法によって調べた。特に、フロケ状態を形成する励起光の周波数およびピーク電場強度の変化に対するトポロジカル相転移の様子を誘電分極のパワースペクトルを数値計算することによって追跡した。その結果、フロケワイル半金属が発現するレーザー強度ではフロケバンドがギャップレスとなることに由来するドルーデ的な低エネルギーピーク構造が発現することを示した(図12)。またこのピーク構造は自明絶縁体ならびにトポロジカル絶縁体に相転移する際消失することも確認できた。

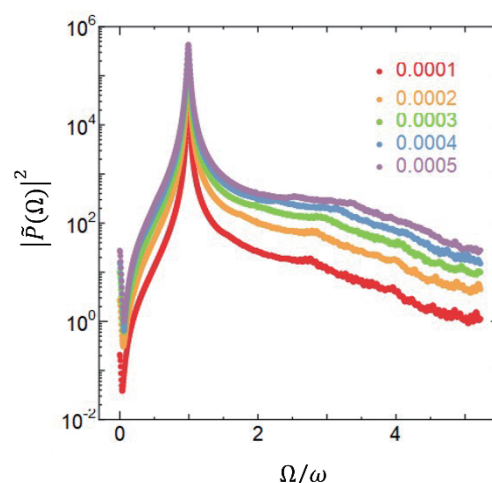


図 12：誘電分極のパワースペクトル $|P(\Omega)|^2$ 。右上の数値は照射レーザーの電場強度 (単位は a.u.)。

4. 教育

1. 防村 春樹 (修士論文) フロケワイル半金属における誘起双極子放射
2. 岡 大介 (卒業論文) フロケワイル半金属のバンド構造のレーザー制御
3. 采山 匠 (卒業論文) レーザー駆動グラフェンのバンド構造の理論的解析
4. 内海 雄太 (卒業論文) ディラック半金属 Cd_3As_2 のバンド構造の理論的解析
5. 中山 陽貴 (卒業論文) 銅酸化物高温超伝導体におけるスピン渦誘起ループ電流による磁場の計算

5. 受賞、外部資金、知的財産権等

受賞

1. HPCI ソフトウェア賞 [開発部門 奨励賞]、山田俊介, 廣川祐太, 飯田健二, 佐藤駿丞, 篠原康, 竹内嵩, 谷水城, 植本光治, 「SALMON (Scalable Ab-initio Light-Matter simulator for Optics and Nanoscience)」, 2023 年 5 月

外部資金

1. Q-LEAP 先端レーザーイノベーション拠点「次世代アト秒レーザー光源と先端計測技術の開発」、矢花一浩、分担、2018-2027 年度、全年度直接経費:22,727,000 円 (2023 年度直接経費:2,472,000 円)

2. 日本学術振興会科学研究費・基盤研究 (B)「第一原理計算が拓く多元的な極限ナノフォトニクス」、矢花一浩、2020-2023 年度、全年度直接経費：13,400,000 円（2023 年度直接経費：2,700,000 円）
3. 日本学術振興会科学研究費・特別研究員奨励費「ペロブスカイト及び遷移金属ダイカルコゲナイドの超高速光物性に関する研究」、矢花一浩、2022-2023 年度、全年度直接経費：1,200,000 円（2023 年度直接経費：400,000 円）
4. 基盤研究 C、全 曉民、代表、令和 5 年、520 千円 / (総額：4160 千円)、Coherent Control of Atomic Excitation in Strong Fields
5. 科研費若手、佐藤駿丞、代表、2020-2023 年度、全年度直接経費：3,300 千円（2023 年度直接経費：700 千円）、「光による電子構造制御の第一原理計算」
6. 光科学技術研究振興財団 研究助成、佐藤駿丞、代表、2023 年度、直接経費 600 千円、「光駆動非平衡定常状態を利用した物性制御理論の構築」
7. 科研費基盤 (B)、佐藤駿丞、分担、2021-2024 年度、全年度直接経費：17,030 千円（2023 年度直接経費：300 千円）、「THz メタマテリアル共振器によるフォノン強結合状態の実現と物性制御への応用」

知的財産権

該当なし

6. 研究業績

(1) 研究論文

A) 査読付き論文

1. S. Yamada, K. Yabana, T. Otake, “Subcycle control of valley-selective excitations via the dynamical Franz-Keldysh effect in WSe₂ monolayer” , Phys. Rev. B108, 035404 (2023).
2. A. Hashmi, S. Yamada, K. Yabana, T. Otake, “Enhancement of valley-selective excitation by a linearly polarized two-color laser pulse” , Phys. Rev. B107, 235403 (2023).
3. A. Yamada, K. Yabana, “Interaction of intense ultrashort laser pulse with solid targets: A systematic analysis using first-principles calculations” , arXiv:2401.13417.
4. A. Mathew, S. Kruk, S. Yamada, K. Yabana, A. Kheifets, “Wide-bandgap optical materials for high-harmonics generation at the nanoscale” , arXiv:2402.00327.
5. N. Nakamura, N. Numadate, S. Oishi, X.M. Tong, X. Gao, D. Kato, H. Odaka, T. Takahashi, Y. Tsuzuki, Y. Uchida, H. Watanabe, S. Watanabe, and Hiroki Yoneda, “Strong Polarization of a $J=1/2$ to $1/2$ Transition Arising from Unexpectedly Large

- Quantum Interference” , Phys. Rev. Lett. 130, 113001 (2023).
6. X.M. Tong, X. Gao, D. Kato, and N. Nakamura, “Interference between dielectronic and radiative recombination of Be-like highly charged ions” , Phys. Rev. A 107, 052801:1-5 (2023).
 7. X.M. Tong, “Multiscale simulation of high-order harmonic generation: From microscopic to macroscopic” , Phys. Rev. A 108, 023118:1-9 (2023).
 8. H. Koizumi, “Reversible superconducting normal phase transition in a magnetic field: The energy momentum balance including the velocity field of the Berry connection from many body wave functions” , Physica Scripta 99 (2024) 015952. arXiv:2308.00912.
 9. H. Koizumi, “Neglected U(1) phase in the Schrödinger representation of quantum mechanics and particle number conserving formalisms for superconductivity ” , J. Phys. A: Math. Theor. 56(2923)455303 (2023) .
 10. H. Koizumi, “Supercurrent and electromotive force generations by the Berry connection from many-body wave functions” , J. Phys. A: Math. Theor. 56, 185301 (2023).
 11. H. Koizumi, H. Nakayama, H. Taya, “Calculations of magnetic field produced by spin-vortex-induced loop currents in $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ thin films using the particle-number conserving Bogoliubov-de Gennes formalism” , arXiv:2403.15177.
 12. H. Koizumi, “Gauge invariant quantization for circuits including Josephson junctions” , arXiv:2403.08188.
 13. Runnan Zhang, Ken-ichi Hino, Nobuya Maeshima, Haruki Yogemura, Takeru Karikomi, “Laser induced surface magnetization in Floquet-Weyl semimetals” , Phys. Rev. B 108, 155308 (2023).
 14. N. Maeshima and K. Hino, “Multi-triplon Excitations of Hubbard Ladders with Site-dependent Potentials” , accepted for publication in J. Phys. Soc. Jpn. (2024).
 15. Linghui Li, Satoshi Hagiwara, Cheng Jiang, Haruki Kusaka, Norinobu Watanabe, Takeshi Fujita, Masashi Miyakawa, Takashi Taniguchi, Fumiaki Kuroda, Minoru Otani and Takahiro Kondo, “Boron monosulfide as an electrocatalyst for the oxygen evolution reaction” , Chemical Engineering Journal 471 144489 (2023).
 16. Taisuke Hasegawa , Satoshi Hagiwara , Minoru Otani , and Satoshi Maeda, “A Combined Reaction Path Search and Hybrid Solvation Method for the Systematic Exploration of Elementary Reactions at the Solid Liquid Interface ” , The Journal of Physical Chemistry Letters 14 ,8796 (2023).
 17. Fumiaki Kuroda, Satoshi Hagiwara, and Minoru Otani, “Structural changes in the

- lithium cobalt dioxide electrode: A combined approach with cluster expansion and Bayesian optimization” , *Physical Review Materials*, 7 , 115402 (2023) .
18. Satoshi Hagiwara, Fumiaki Kuroda, Takahiro Kondo, and Minoru Otani, “Electrocatalytic mechanisms for an oxygen evolution reaction at arhombohedral boron monosulfide electrode/alkaline medium interface” , *ACS Applied Materials and Interfaces* , 15 , 50174 (2023)
 19. U. Lin, M. R. Lai, M. Otani, T. Miyazaki, C. Jiang, “Solvent effects on anchoring ability of Ni₂(dobpdc) to mitigate dissolution of lithium polysulfides in Li S batteries: A combined DFT and 3D RISM modeling s tudy” , Submitted to *ACS Central Science*.
 20. Taisuke Hasegawa, “Nuclear quantum dynamics of three dimensional condensed phase systems by the constant uncertainty molecular dynamics” , *The Journal of Physical Chemistry Letters* 14 ,8043 8049 (2023)
 21. Kevin Lively, Shunsuke A. Sato, Guillermo Albareda, Angel Rubio, Aaron Kelly, “Revealing ultrafast phonon mediated inter-valley scattering through transient absorption and high harmonic spectroscopies” , *Phys. Rev. Research* 6, 013069 (2024).
 22. Wenwen Mao, Angel Rubio, Shunsuke A. Sato, “Enhancement of high order harmonic generation in graphene by mid infrared and terahertz fields” , *Phys. Rev. B* 109, 045421 (2024)
 23. Fumiya Sekiguchi, Minoru Sakamoto, Kotaro Nakagawa, Hirokazu Tahara, Shunsuke A. Sato , Hideki Hirori, Yoshihiko “Enhancing high harmonic generation in GaAs by elliptically polarized light excitation” , *Phys. Rev. B* 108, 205201(2023)
 24. Shunsuke Tanaka, Yuta Murotani, Shunsuke A. Sato, Tomohiro Fujimoto, Takuya Matsuda, Natsuki Kanda, Ryusuke Matsunaga, Jun Yoshinobu, “Frequency-resolved Microscopic Current Density Analysis of Linear and Nonlinear Optical Phenomena in Solids” , *J. Phys. Soc. Jpn.* 92, 094401 (2023).
 25. S. Tanaka, Y. Murotani, Shunsuke A. Sato, T. Fujimoto, T. Matsuda, N. Kanda, R. Matsunaga, J. Yoshinobu, “Gapless detection of broadband terahertz pulses using a metal surface in air based on field- induced second-harmonic generation” , *Appl. Phys. Lett.* 122, 251101 (2023).
 26. Alberto Castro, Shunsuke A. Sato, “Optimizing Floquet engineering for non-equilibrium steady states with gradient-based methods” , *SciPost Phys.* 15, 029 (2023).
 27. M. Volkov, S. A. Sato, A. Niedermayr, A. Rubio, L. Gallmann, U. Keller, “Floquet-Bloch resonances in near-petahertz electroabsorption spectroscopy of SiO₂” , *Phys. Rev. B* 107, 184304 (2023).

28. Hannes Hübener, Umberto De Giovannini, Shunsuke A. Sato, Angel Rubio, “Floquet band engineering in action” , Science Bulletin 68, 751 (2023).
29. Alberto Castro, Umberto De Giovannini, Shunsuke A. Sato, Hannes Huebener, Angel Rubio, “Floquet engineering with quantum optimal control theory” , New Journal of Physics, Volume 25, 043023 (2023)
30. Z. Schumacher, S. A. Sato, S. Neb, A. Niedermayr, L. Gallmann, A. Rubio, U. Keller, “Ultrafast electron localization and screening in a transition metal dichalcogenide” , Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A. 120, e2221725120 (2023).
31. Hideki Hirori, Shunsuke A. Sato, Yoshihiko Kanemitsu, “High-Order Harmonic Generation in Solids: The Role of Intraband Transitions in Extreme Nonlinear Optics” , J. Phys. Chem. Lett. 15, 2184 (2024).

B) 査読無し論文

なし

(2) 国際会議発表

A) 招待講演

1. K. Yabana, “Propagation of extreme pulsed light: first-principles computational study” , 10th Int. Symp. on Ultrafast Dynamics & Ultrafast Bandgap Photonics, Hersonissos, Crete, Greece, June 5-9,2023.
2. K. Yabana, “Computational optical science at the atomic scale – First-principles approach –” , 34th IUPAP Conf. on Computational Physics (CCP2023), Kobe, Japan, Aug. 5-8, 2023.
3. K. Yabana, “International and Interdisciplinary Research My personal experiences --” , TriSTAR Hamburg Forum for young researchers, online, Nov. 27-28, 2023.
4. K.Yabana, “Development of First Principles Computational Method for Nonlinear/Nonlocal Nanophotonics” , 13th Int. Conf. on Advanced Materials and Devices Jeju, Korea, Dec. 4- 8, 2023.
5. T. Okumura, ...,X.M. Tong et al., “High-resolution spectroscopy of electronic K x rays from muonic atoms using transition-edge sensor microcalorimeters” , XXXIII International Conference on Photonic, Electronic and Atomic Collisions (ICPEAC 2023), Ottawa, Canada, July 25- August 1, 2023.
6. H. Koizumi, “Supercurrent and Electromotive Force Generations by the Berry Connection from Many-Body Wave Functions” , the 25th International Conference on the Jahn-Teller Effect ,Online, U of York, Toronto, Canada, May 15-18

7. Shunsuke A. Sato, “Ab-initio computation for attosecond electron dynamics in solids” , the XXXIII International Conference on Photonic, Electronic and Atomic Collisions (ICPEAC 2023), Shaw Centre, Ottawa, Canada, July 25- August 1, 2023.
8. Shunsuke A. Sato, “Ab initio simulations of attosecond transient spectroscopy using time dependent density functional theory” Atto2Nano: modeling ultrafast dynamics across time scales in condensed matter” , CECAM HQ EPFL, Lausanne, Switzerland, September 26-29, 2023.
9. Shunsuke A. Sato, “First-principles electron dynamics simulations for light-induced electron dynamics in solids” , Optica High-brightness Congress 2024, Hotel Savoyen Vienna Vienna, Austria, March 12-14, 2024.

B) 一般講演

1. A. Yamada, S. Yamada, K. Yabana, “Nonlinear Propagation of High-Intensity Pulsed Light First-principles Calculations-” , CLEO2023, San Jose, USA, May 5-12,2023.
2. K. Yabana, “Development and applications of SALMON – First-principles computations in optical science -” , 2023 CCS-LBNL Workshop, Univ. Tsukuba, Apr.13, 2023.
3. K. Yabana, “Computational Optical Science at the Atomic Scale – First-Principles Approach” , UQ SCMB Chemistry Seminar, Aug. 21, 2023 (online).
4. K. Yabana, “Time-Dependent Density Functional Theory for Extremely Nonlinear Optics” , HiLASE, Prague, Czech, Sep.18, 2023.
5. X.M. Tong, D. Kato, T. Okumura, S. Okada and T. Azuma, “Electronic K x rays emitted from muonic atoms: an application of density functional theory” , XXXIII International Conference on Photonic, Electronic and Atomic Collisions (ICPEAC 2023), Ottawa, Canada, July 25- August 1, 2023.
6. D. Chetty, R.D. Glover, X.M. Tong, B.A. deHarak, H. Xu, N. Haram. K. Bartschat, A.J. Palmer, A.N. Luiten, P.S. Light, I.V. Litvinyuk, R. T. Sang, “Carrier-Envelope-Phase Effects for Multiphoton and Tunnel Excitation of Argon” , XXXIII International Conference on Photonic, Electronic and Atomic Collisions (ICPEAC 2023), Ottawa, Canada, July 25- August 1, 2023.
7. Satoshi Hagiwara , Fumiaki Kuroda , Linghui Li , Takahiro Kondo, and Minoru Otani , “Oxygen evolution reaction at the rhombohedral boron mono sulfide electrode/alkaline medium interface ” , CCP2023 34th IUPAP Conference on Computational Physics
8. M. Otani, “Study of electrochemical interfaces using DFT and the classical liquid

theory hybrid simulations” , 244th ECS Meeting Gothenburg, Sweden, Oct. 8-12, 2023.

9. F. Kuroda, S. Hagiwara, and M. Otani, “A combined approach with cluster expansion and Bayesian optimization: Structural changes in LiCoO₂ electrode” , MRM 2023 (Advanced Materials Research Grand Meeting), Kyoto, Dec.11-16.2023.
10. Shunsuke A. Sato, “Ab initio computation for attosecond electron dynamics in solids” , the XXXIII International Conference on Photonic, Electronic and Atomic Collisions (ICPEAC 2023), Shaw Centre, Ottawa, Canada, July 25-August 1, 2023.
11. Shunsuke A. Sato, “Limitations of time-dependent mean-field approximations to second-order nonlinear optical phenomena” , RIKEN Symposium Second Workshop on Fundamentals in Density Functional Theory (DFT2024), 20–22 February 2024, Auditorium, Integrated Innovation Building (IIB), RIKEN Kobe Campus

(3) 国内学会・研究会発表

A) 招待講演

1. 矢花一浩、「アト秒科学と電子ダイナミクス計算」、レーザー学会年次大会、日本未来科学館、2024 年 1 月 19 日
2. 佐藤駿丞、「固体中の光駆動非平衡電子ダイナミクスの第一原理計算」、非平衡固体物性の最前線、東京大学本郷キャンパス 2023 年 11 月 13-14 日
3. 佐藤駿丞、「実験と理論の比較から考察する固体高次高調波発生」、日本物理学会 2024 年春季大会、[オンライン開催 2024 年 03 月 18-21 日](シンポジウム講演)

B) その他の発表

1. 矢花一浩、「極限的パルス光とナノ物質の相互作用に対する第一原理計算」、第 10 回 HPCI システム利用研究課題成果報告会、品川グランドセントラルタワー、2023 年 10 月 25 日 -26 日
2. 奥村 拓馬、東 俊行 D.A. Bennett、W.B. Doriese、M.S. Durkin、J.W. Fowler、J.D. Gard、橋本 直、早川 亮大、G.C. Hilton、一戸 悠人、P. Indelicato、磯部 忠昭、神田 聡太郎、加藤 太治、桂川 美穂、河村 成肇、木野 康志、小湊 菜央、三宅 康博、K.M. Morgan、野田 博文、G.C. O’ Neil、岡田 信二、奥津 賢一、大豆生田 創、大澤 崇人、N. Paul、C.D. Reintsema、佐藤 寿紀、D.R. Schmidt、下村 浩一郎、P. Strasser、須田 博貴、D.S. Swetz、高橋 忠幸、武田 伸一郎、竹下 聡史、反保 元伸、竜野 秀行、X.M. Tong、外山 裕一、J.N. Ullom、渡辺 伸、山田 真也、山下 琢磨、「超伝導転移端検出器で探るミュオンアルゴン多価イオンのダイナミクス」、日本原子衝突学会第 48 回年会、東京工業大学、大岡キャンパス、2023 年 11 月 25-26 日

3. 小泉裕康、「エラー訂正を備えた量子コンピューターの実現について」 GIFT フォーラム、Zoom、主催：株式会社 IBJ、2023 年 6 月 23 日
4. 小泉裕康、「多体波動関数から生じるベリー接続に基づく超伝導理論：ネルンスト効果と磁場中での超伝導-常伝導相転移について」、日本物理学会第 78 回年次大会、東北大学、2023 年 9 月 16-19 日
5. 田谷隼十、小泉裕康「銅酸化物超伝導体薄膜の量子ビットへの応用に関する理論」、日本物理学会第 78 回年次大会、東北大学、2023 年 9 月 16-19 日
6. 田谷隼十、小泉裕康、「スピン渦誘起ループ電流量子ビットによるトフォリゲートの実装に関する理論研究」、日本物理学会 2024 年春季大会、オンライン、2024 年 3 月 18-21 日
7. 小泉裕康、「ジョセフソン接合を使った量子ビットにおける Quasiparticle poisoning」、日本物理学会 2024 年春季大会、オンライン 2024 年 3 月 18-21 日
8. 大谷 実、「電気化学反応シミュレーション技術の開発」、応用物理学会
9. 萩原聡、黒田文彬、Linghui Li、近藤剛弘、大谷実、「第一原理計算 古典溶液理論による 菱面体硫化ホウ素電極 アルカリ水溶液界面における酸素発生反応の研究」、日本物理学会第 78 回年次大会
10. 大谷 実、「固液界面における酸化還元反応の第一原理的研究」2022 年度学際共同利用成果報告 ポスター発表 2023 年 10 月 23 日
11. 黒田 文彬、萩原 聡、大谷 実、「クラスター展開とベイズ最適化の複合的アプローチを用いた LiCoO_2 の充放電過程における構造変化の研究」第 49 回固体イオニクス討論会、北海道大学、2023 年 11 月 15-17 日
12. 萩原 聡、第 3 回「富岳」成果創出加速プログラム研究交流会
13. 佐藤駿丞、「第一原理電子ダイナミクス計算とアト秒光科学への応用」、オンライン物性理論セミナー、オンライン、2023 年 4 月 25 日

(4) 著書、解説記事等

1. H. Koizumi, (アメリカ数学会、Mathematical Review, レビュー記事) MR4583602 Lie, Seok Hyung; Jeong, Hyunseok Delocalized and dynamical catalytic randomness and information flow. Phys. Rev. A 107 (2023), 042430.
2. H. Koizumi, (アメリカ数学会、Mathematical Review, レビュー記事) MR4620819 Li, Runze; Li, Dandan; Huang, Wei; Xu, Bingjie; Gao, Fei Tight bound on tilted CHSH inequality with measurement dependence. Phys. A 626 (2023), 129037.

7. 異分野間連携・産学官連携・国際連携・国際活動等

異分野間連携（センター内外）

産学官連携

1. 小泉：GIFT フォーラム（6月23日（金）Zoom、主催：株式会社IBJ）において、「エラー訂正を備えた量子コンピューターの実現」について講演を行った。

国際連携・国際活動

矢花：オーストラリア国立大学の理論研究者と、時間依存密度汎関数理論を用いたレーザーによる物質の励起過程に関する共同研究を実施。マックスボルン研究所、インド工科大学ボンベイ校、蔚山科学技術大学の研究者が、それぞれ一カ月程度センターに滞在し、共同研究を実施。

8. シンポジウム、研究会、スクール等の開催実績

矢花：SALMONの利用に関するチュートリアルを、大阪大学コンピュータショナル・マテリアルズ・デザイン（CMD）ワークショップにおいて、アドバンストコースとして年2回実施した。

9. 管理・運営

矢花：センター内の役職として、副センター長、センター長特別補佐、運営委員会委員、人事委員会委員、先端計算科学推進室室長、共同研究委員会委員。物理学域の役職として、運営委員会委員、物理学域だより編集委員。

前島：（学内）物性・分子工学サブプログラム数理専攻セミナー（前期）世話人

小泉：（学内）全学計算機システム 3D サテライト管理

10. 社会貢献・国際貢献

全：科学雑誌 The European Physical Journal D の Associate Editor に務めている。

小泉：ヤーン＝テラー効果に関する国際会議、Stirring committee 委員

11. その他

該当なし