

## 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 晓民
講師	前島 展也
助教	佐藤 駿丞、萩原 聰
研究員	黒田 文彬
学振外国人特別研究員	Sri Kasi Matta (2022.8.24~)
学生	大学院生 2名、学類生 1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 優也 (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。具体的には、光と物質の相互作用に関係し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、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の実現を目指した理論的解明、および表面や界面における電気化学反応に対する第一原理計算に基づく研究を行っている。

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)法に基づく第一原理計算コードの開発を進めており、蓄電池や燃料電池、触媒・腐食現象など、実社会と強く結びついた研究への応用を目指して、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。

### 3. 研究成果

#### [1] 誘電率補正 RISM (DRISM) 法導入による ESM-RISM の改良 (大谷)

二次電池や燃料電池、電気化学触媒などの電気化学性能の向上には、電極と電解液の界面（電気化学界面）で発現する電気化学的特性の理論的理理解と予測が必要である。電荷中性電位や電気二重層キャパシタンスなどに代表される電気化学的特性は電気化学界面を構成する材料やバイアス電圧などの環境パラメータに依存するため、電気化学界面における物理現象の詳細を理解するためには網羅的研究が不可欠である。このため、我々は有効遮蔽媒体法 (ESM) を用いた密度汎関数法と参照相互作用サイトモデル (RISM) を組み合わせた ESM-RISM 法を開発し、電気化学界面反応シミュレーションをおこなっている。ESM-RISM では電極表面と反応物を量子力学的理論で、溶媒和系を古典溶液理論で扱っており、電気化学界面における電気二重層形成を自然に記述することが可能である。しかし、通常の RISM 理論では、双極子溶媒分子を持つ溶液の誘電率を過小評価するという問題があることが知られている。本研究では、誘電率補正した RISM (DRISM) を ESM-RISM に導入することにより、この問題の改善を試みた。まず、バルクの NaCl 水溶液について、活量係数の塩濃度依存性を計算した。従来の RISM の結果 (図 1(a)XRISM) では実験結果と比較して活量係数を過小評価しているが、DRISM では実験をよく再現することを確かめた。次に電極と電解液の界面において、電荷中性電位 (図 1(b)) や電気二重層キャパシタンス (図 1(c)) を計算し、DRISM の結果が従来の RISM の結果(XRISM)を改善することを確認した。界面の電気化学特性の予測性能が改善することにより、電極皮膜の形成機構や電気化学触媒の機能発現理由に対する理論解析などへの応用が期待される。

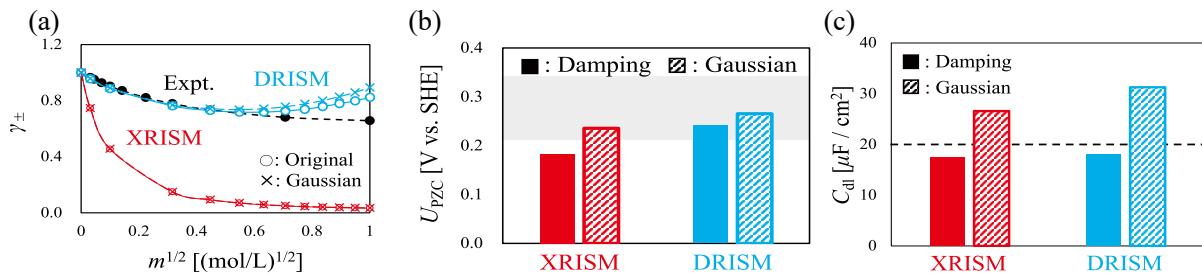


図 1. (a) 平均活量係数、(b) 電荷中性電位、(c) 電気二重層 (図 2(c)) キャパシタンス

#### [2] Li イオン電池正極材料 $\text{LiCoO}_2$ の充放電過程における構造変化解析：クラスター展開法とペイズ最適化による複合アプローチ (大谷)

現在、多くの情報端末機器に用いられている Li イオン電池は、電気自動車の電源や蓄電システムへのさらなる応用が期待される。Li イオン電池には典型的な正極材料として  $\text{LiCoO}_2$  (LCO) が使われているが、現在の Li イオン電池では、理想的な理論容量の約半分しか使用

されていない。この理由の一つとして、高充電時における  $\text{Li}_{1-x}\text{CoO}_2$  の不安定性に起因した酸素脱離を伴う構造変化が挙げられる。したがって、充放電時の Li 及び O イオンの脱離による結晶構造変化の理解は LCO 電極の性能改善にとって重要である。我々は、 $\text{Li}_{1-x}\text{CoO}_{2-y}$  ( $0 \leq x \leq 1, 0 \leq y \leq 1/2$ ) の安定構造を、密度汎関数法 (DFT) による数値計算に基づき探索した (図 2(a), (b))。構造探索にはクラスター展開(CE)とベイズ最適化(BO)を組み合わせた CE+BO 法を用いた。 $\text{Li}_{1-x}\text{CoO}_2$  に対する構造探索の結果から熱力学凸包を構築し、得られた安定構造の自由エネルギーが実験の充放電曲線を再現することを確認した (図 2(c))。さらに、凸包の解析から、 $\text{Co}_2\text{O}_3$  などの準安定構造が存在することがわかった。これは、秩序化した O イオンの空孔サイトと格子緩和によるものと解釈される。この結果を LCO 電極を使った充放電サイクルと照らし合わせると、これらの準安定構造は高充電時に酸素発生を伴う結晶構造変化により現れることが示唆される (図 2(b) (d))。加えて、CE+BO 法で用いる目的変数の選択による最適化効率の違いを調べた。本研究では目的変数に新しく相安定性の指標である凸包距離を用いており (BO2)、先行研究では形成エネルギーを目的変数に用いている (BO1)。BO1 と BO2 で熱力学凸包を構築するために必要な DFT 計算の回数を比較した結果、本研究で提案している BO2 を用いることで DFT 計算の回数を従来法と比較して大幅に削減することが可能であることがわかった。本手法は一般性の高い手法であることから、電池材料探索のみならず磁性材料や合金材料などの探索にも有効であると考えられる。

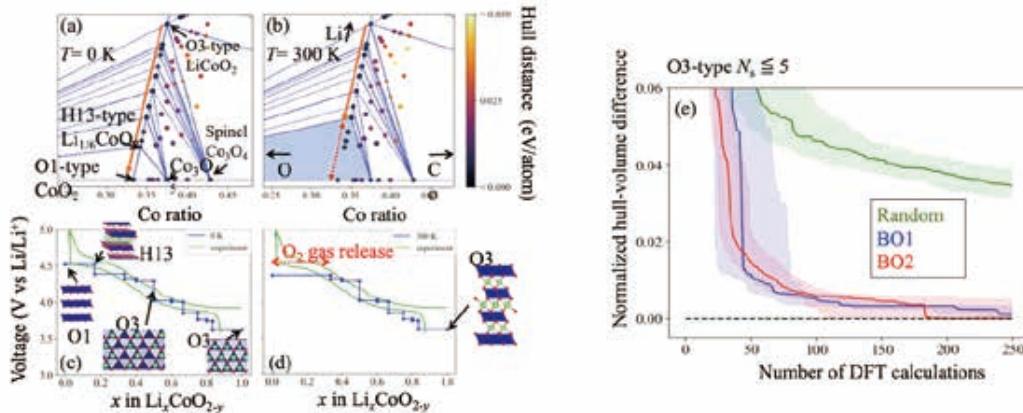


図 2.  $\text{Li}-\text{Co}-\text{O}$  の Convex hull 図: (a)  $T = 0 \text{ K}$ , (b)  $T = 300 \text{ K}$ ,  $\text{LiCoO}_2$  の充放電曲線: (a)  $T = 0 \text{ K}$ , (b)  $T = 300 \text{ K}$ . (e) Convex hull 構築に必要な DFT 計算の回数

### [3] 斜方入射する高強度パルス光と物質の相互作用を記述するマルチスケール第一原理計算（植本（神戸大）、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。しか

しこれまで、そのような斜方入射する高強度パルス光の伝搬を記述する理論と計算法は、発展していなかった。我々は論文(M. Uemoto, K. Yabana, Opt. 30, 23664(2022))において、第一原理計算の基づく計算法を提案し、シリコン薄膜に対する斜方入射を例として計算の結果を示した。

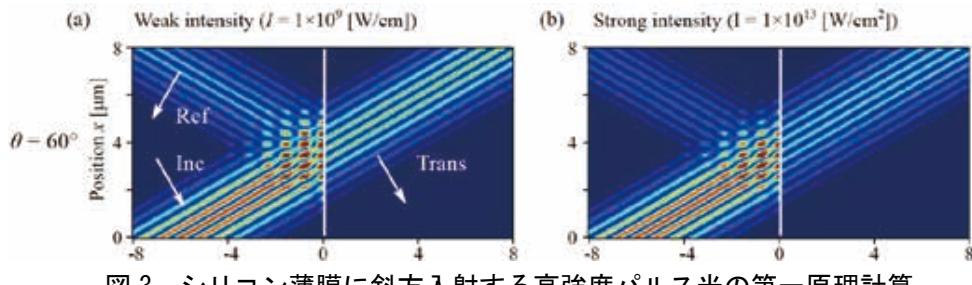


図3. シリコン薄膜に斜方入射する高強度パルス光の第一原理計算

理論の枠組みでは、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る。これにより、これまで開発を行ってきた垂直入射の場合から計算コストはそれほど増大することなく、斜方入射の非線形伝搬に対する計算が可能になる。ただし  $p$  偏光での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、そのまま偏微分方程式を解くと数値的なノイズが発生する。そのため、物質表面を平滑化する手法を導入することで克服した。

#### [4] 固体からの高次高調波発生に対する伝搬効果(山田俊介、乙部智仁（関西光科学研究所）、D. Freeman, A. Kheifets（オーストラリア国立大）、矢花）

固体にパルス光を照射して起こる高次高調波発生は、基礎的な興味に加え可視赤外光を入射して深紫外から軟 X 線を得るデバイスの原理として高く注目されている。本研究では、時間依存密度汎関数理論に基づく電子ダイナミクス計算と、パルス光の伝搬を記述するマクスウェル方程式をマルチスケールで結合した枠組みを用いて、シリコン薄膜から放出される高次高調波に対して生成と伝搬の効果を調べた(S. Yamada et.al, Phys. Rev. B107, 035132 (2022))。その結果、反射高調波が膜厚によらないのに対し透過高調波は著しく減衰し、 $1 \mu\text{m}$  程度の薄膜では表面から発生する高次波と裏面から発生する低次波が高次高調波に混在して現れることを明らかにした。これらの結果は、高次高調波発生を用いた固体光デバイスを設計する上で、基本的な知見を与えるものである。

図4に、計算の概略を示す。(a)は計算方法を示している。(b)と(c)は、厚さ  $3\mu\text{m}$  のシリコン(Si)薄膜をパルス光が伝搬する典型的な計算例を示している。パルス強度が  $5 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$  の強い入射パルスの場合の、反射パルスと透過パルスのフーリエスペクトルを(c)の挿入図に示す。反射波・透過波とも高次高調波が含まれていることが分かる。透過波のスペクトルで、およそ 20eV の振動数でシグナルが消失していることが見出される。これは、20eV以下のシグナルは薄膜の裏面から発生し、20eV以上のシグナルは薄膜の表面から発生するというメカニズムの差に起因する。このような知見は、電子ダイナミクス計算と光伝搬を、マルチスケール手法を用いて連結することで初めて得られたものであり、固体からの高次高調波発生デバイスを設計する上で有用な情報を提供するものである。

## [5] 磁性体に対するアト秒過渡吸収分光の第一原理計算とスピンドイナミクスの解析（佐藤）

本研究では、時間依存密度汎関数理論(TDDFT)に基づく第一原理計算により、フェムト秒( $10^{-15}$ 秒)レーザー照射によって磁性体の光学応答がどのように変化するのかを微視的に解析した。レーザー照射下における磁性体の光学特性を解析するため、我々はポンプ光とプロープ光と呼ばれる二つの光パルスの下での電子ダイナミクスを計算し、一つ目のポンプ光によって変調された磁性体の光学応答を二つ目のプロープ光によって調べるポンプ・プロープ分光計算を採用了。このようなポンプ・プロープ計算をポンプ光とプロープ光の間の時間差(Time delay)を変えながら繰り返し実行することで、光が駆動する電子ダイナミクスを反映した過渡光学応答を時間領域で解析できる。

右図 5(a)には、フェムト秒レーザー照射下におけるによって固体コバルトの吸光度の変化  $\Delta\mu$  がポンプ光とプロープ光の時間差(Time delay)の関数として示されている。また、右図(b)にはこの計算で用いたポンプ光の時間波形を示した。この計算の結果、フェムト秒レーザー照射によって固体コバルトの吸光度が 58eV 付近で鋭く減少することが分かった。さらに微視的な電子密度ダイナミクスを解析したところ、光励起によって majority-spin の電子と minority-

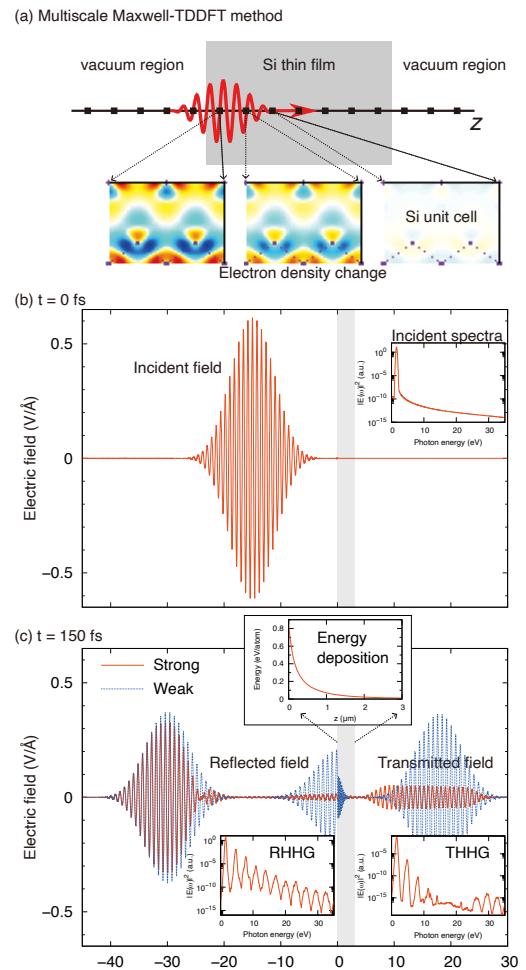


図4. 高強度パルス光がシリコン薄膜を伝搬する第一原理計算。反射波と透過波のスペクトルに高次高調波が含まれている。

spin の電子の密度がコバルト原子の周りで局所的に増減することで吸収端のシフトが起こっていることを明らかにした。この知見を応用することで、光が駆動するスピンドライナミクスをアト秒の時間分解能で元素選択的に測定することが可能である。

本研究成果は、現在、論文投稿準備中である。

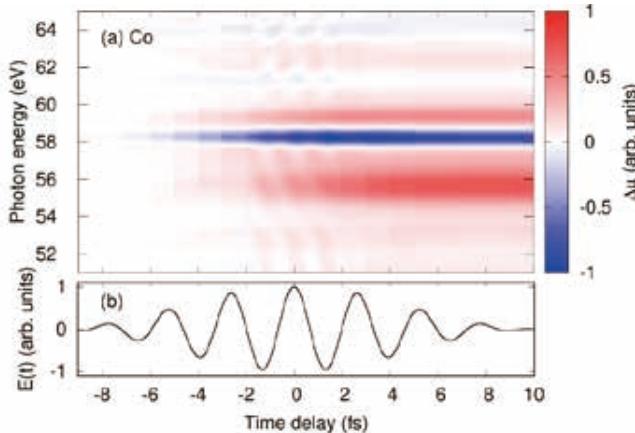


図 5. (a) 第一原理計算によって得られた固体コバルトの過渡吸収スペクトル。  
(b) ポンプ光電場の時間波形。

## [6] THz 領域におけるグラフェンからの高次高調波発生に関する理論的研究（佐藤）

近年、光物理分野では固体からの高次高調波発生に関する研究が盛んにおこなわれている。本研究では、THz 領域におけるグラフェンからの高次高調波発生に注目し、その発生機構を微視的な電子ダイナミクス計算により解明することを試みた。我々は、強束縛近似に基づく電子系のハミルトニアンを用いて量子マスター方程式を解くことで、緩和効果を取り入れた量子ダイナミクス計算を実行し、THz 電場がグラフェン内に駆動する電子ダイナミクス解析した。

右図 6 には THz 電場の下での電子ダイナミクス計算により得られた高調波スペクトルが示されている。照射した電場のエネルギー(1.24 meV)の奇数倍のエネルギーを持った光がグラフェンから放射されている様子が示されている。また、図には異なる化学ポテンシャルに対する計算結果が示されており、高調波発生が化学ポテンシャルのシフトによって増強されている様子が確認できる。さらに微視的な占有数分布の解析を行ったところ、THz 電場のもので形成される非平衡定常状態が高次高調波発生において重要な役割を果たしていることが明らかとなった。本研究成果は、THz 領域における高次高調波発生の基礎的理解を発展させるものである。この研究は、Max-Planck 研究所(ハンブルク)との共同研究であり、論文”この研究は、Max-Planck 研究所(ハンブルク)との共同研究であり、論文” Terahertz-

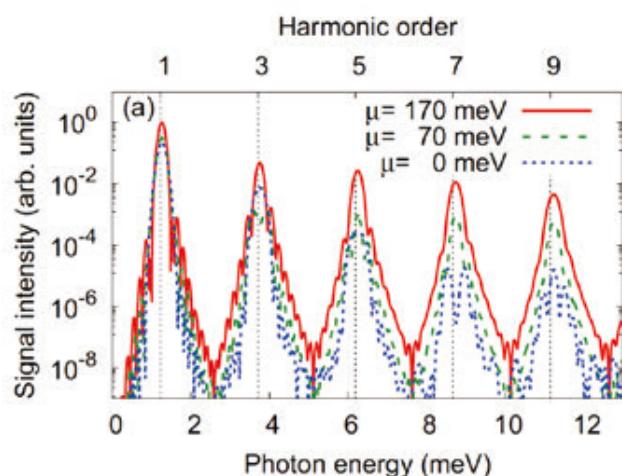


図 6. グラフェンから放射される高調波スペクトル

induced high-order harmonic generation and nonlinear charge transport in graphene”として Physical Review B誌から発表された。

### [7] 銅酸化物高温超伝導機構解明に関する研究（小泉）

銅酸化物超伝導体の機構解明に向けて、表面とバルクの両方の CuO<sub>2</sub>面を持つモデルを使い、角度分解光電子分光法によるエネルギー分散の測定結果と走査型トンネル顕微鏡による局所状態密度の測定結果をシミュレートするプログラムを作成し、計算を行った。その結果、概ね実験と一致する結果を得た（図 7 参照）。計算結果は、銅酸化物の表面ではスマートボーランの生成が抑制され、スピントルがほとんどできていないことを示していると考える。また、バルクには安定なスピントルとスピントル誘起ループ電流が存在していても矛盾がなく、他の実験結果から、ナノサイズのループ電流が存在することは疑いがないので、スピントル誘起ループ電流がその候補であることを示している。

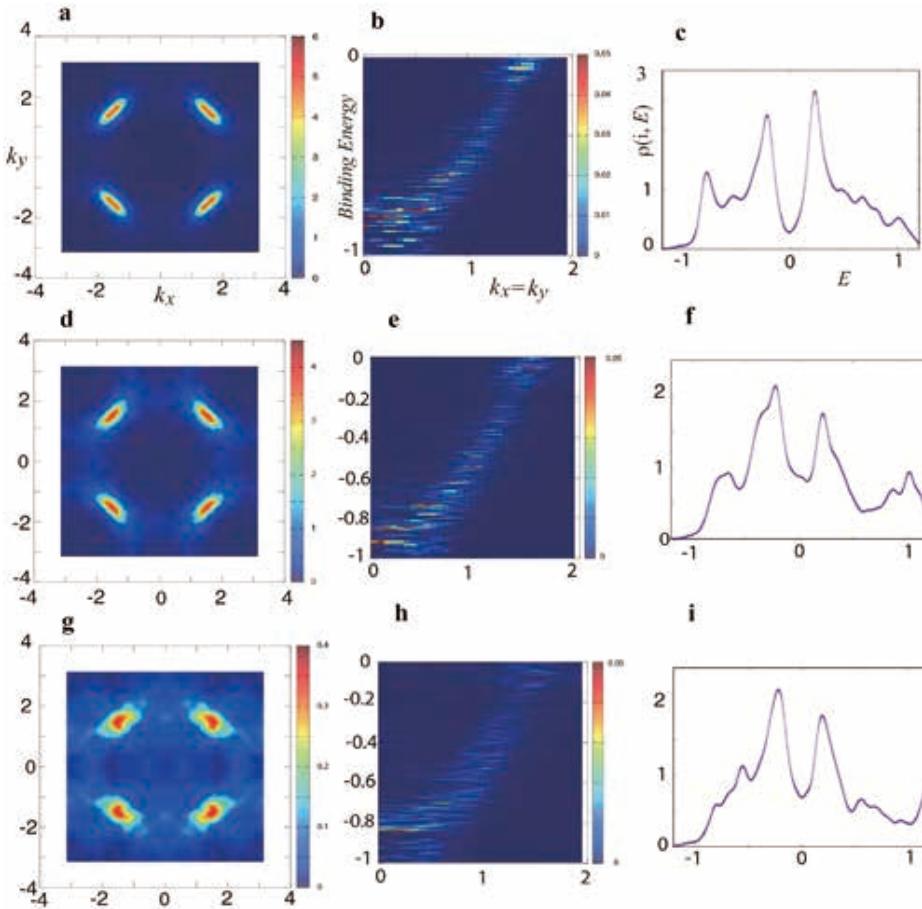


図 7. 銅酸化物超伝導体に対する角度分解光電子分光法により観測されたエネルギー分散、走査型トンネル顕微鏡により観測された局所状態密度のシミュレーション。a, d, g: フェルミーエネルギー近傍の角度分解光電子分光スペクトル強度。b, e, h: (0, 0) - (π, π)にそった、光電子のスペクトル。c, f, i: 走査型トンネル顕微鏡による局所状態密度のシミュレーション。ホール濃度が上から下に行くに従い、(a, b, c) → (d, e, f) → (g, h, i) → と増加している。

銅酸化物超伝導体は、現在の超伝導の標準理論では説明できないが、我々は、標準理論を超えて、銅酸化物超伝導も説明する新しい超伝導理論の構築を行ってきている。その結果、多体波動関数から生じる非自明なベリー接続を使うと、現在の超伝導理論で一般的に用いられている‘粒子数を保存しない理論的な枠組み’を、‘粒子数を保存する理論的枠組み’に変更が可能であることを以前示すことができた。本年ではさらに、この多体波動関数から生じる非自明なベリー接続が、ディラックによって無視して良いとされた、‘シュレディンガー方程式に現れる U(1)位相の自由度’となることを示した。今後この位相は、量子力学の基礎理論の中に組み込まれていくものと考えられる。そして、それは、超伝導電流、電磁誘導による起電力、その他の原因による起電力の生成の統一的な記述に利用されていく可能性がある。

### [8] 銅酸化物高温超伝導体を量子ビットとした量子コンピューターに関する研究（小泉）

銅酸化物に存在すると理論的に予想されているナノサイズのループ電流、“スピニ渦誘起ループ電流”の実験的個別検出に向け、電流の作る磁場をシミュレーションするプログラムを作成した。今後、実験家と協力して、“スピニ渦誘起ループ電流”的個別検出を行っていき、量子ビットへの応用に繋げていきたい。

### [9] 強レーザーで原子励起状態の制御（全）

我々は、数サイクルパルスのキャリアエンベロープ位相 (CEP) が原子励起過程に果たす役割について、Griffith 大学の実験と共同研究を行った。我々は、多光子領域とトンネル領域の間に位置する  $50\text{--}300 \text{ TW}/\text{cm}^2$  の強度範囲における CEP の関数としての Ar 原子の励起率に焦点を当てた。時間依存シュレディンガー方程式(TDSE)の解に基づく数値シミュレーションにより、原子の束縛状態が強度と CEP の両方に非常に敏感であることを右図のように示す。強度に対する感受性のため、CEP の効果は実験内で大きく減少するが、それでも良い一致が得られる。このように、TDSE の結果を実験で検証することは、励起プロセスをコヒーレントに制御するために、精密に調整されたレーザー光束の使用を促す原理証明となる。また、計算結果を詳細に解析したところ、CEP に依存する束縛状態の確率が著しく変化していることが確認され、これは多光子領域からトンネル領域への遷移に起因していると考えられる。本研究は国際共同研究結果として、科学雑誌

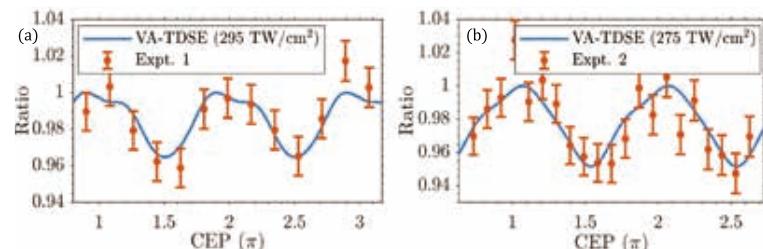


図 8. 強レーザーにおける Ar 原子励起確率と CEP の関係

『Physical Review Letters 128, 173201 (2022)』に発表した。

## [10] X 線偏光で捉えた特異な量子干渉効果（全）

$\text{Pb}^{78+}$  原子イオンにおける二電子再結合は本質的に無極性  $J_{1/2} \rightarrow J_{1/2}$  の遷移であるが、強く偏光することを実験的に示した。この予期せぬ偏光は、放射性再結合との量子干渉によるものであることが我々の計算で示された。この干渉効果は、非対称な共鳴プロファイルについて研究されているが、偏光について研究されたことはない。本研究では、偏光に対する効果は、非対称性をもたらすものとは異なる部分波から生じ得ることを示し、小さな干渉を示唆するほぼ対称的な共鳴であっても、予期せぬ大きな偏光をもたらすことを示した。本研究の成果は科学誌『Physical Review Letters 130, 113001 (2023)』に掲載されました。

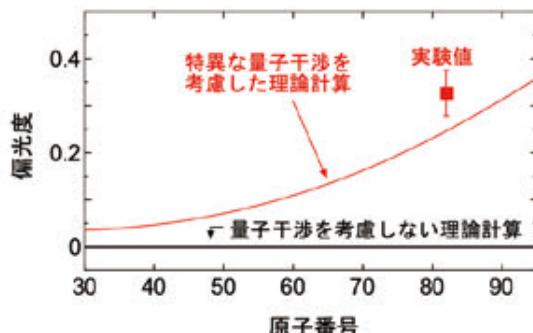


図 9. 偏光度の計算と実験結果の比較

## [11] 2 本足イオン性ハバード梯子模型におけるスピン励起状態（前島）

低次元強相関電子系の理論模型の一種である2本足イオン性ハバード梯子模型の動的電荷構造因子や光学伝導度を厳密対角化などにより数値的・解析的に調べた。特に、解析的手法であるボンド演算子法を動的電荷構造因子スペクトルの計算に応用し、空間依存ポテンシャルが波数  $K=(\pi,0)$  を有する2本足梯子における結果が厳密対角化の計算結果をよく再現することを確認した。また、実験的にも実現されているランダムポテンシャル下の系では2トリプロン状態の連続準位、2トリプロン束縛準位、3トリプロン連続準位からの寄与が重なったスペクトルが観測されることを見出した(図 10)。

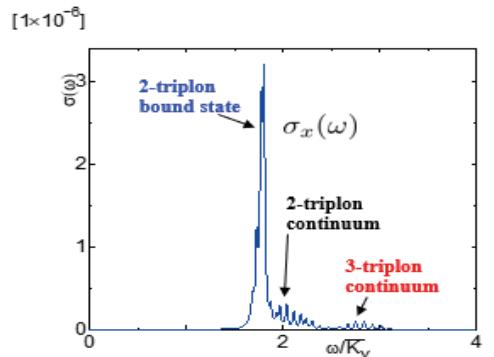


図 10. ランダムポテンシャル下における2本足梯子模型の光学伝導度  $\sigma_x(\omega)$ 。

### [12] レーザー誘起 3 次元フロケーディラック・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モデルである 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のフロケ状態を厳密対角化によって調べ、フロケ-ディラック半金属と呼ばれるトポロジカルに非自明な特徴を持つ半金属状態が現れることを見出した。更に円偏光レーザー照射下で実現するフロケ-ワイル半金属状態では up 電子と down 電子に対する光-電子相互作用の違いから表面状態の分散曲線に差異、および表面磁化が出現することを示した(図 11)。

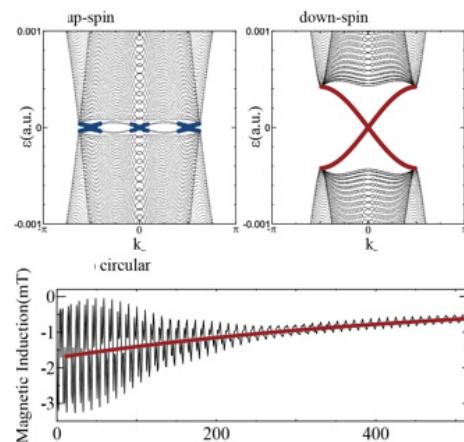


図 11. (上) 円偏光レーザー照射下における表面状態の分散曲線。左が up-spin, 右が down-spin 電子。(下) 円偏光レーザー照射下における表面磁化(横軸は時間)。

## 4. 教育

1. 守尾 直輝 (修士 (工学)) 銅酸化物高温超伝導体の理論研究: スピン渦誘起ループ電流のパターンと磁場のシミュレーション
2. 張 潤南 (博士論文) Creation of Floquet-Weyl semimetals and induced magnetization by optically resonant excitation
3. 萩野 遼 (修士論文) 原子系における高強度円偏光レーザーによる逆ファラデー効果
4. 篠島 俊樹 (卒業論文) レーザー誘起フロケノーダルライン半金属相の擬エネルギー一バンド構造
5. 笠原 杏太 (卒業論文) フロケワイル半金属相における逆ファラデー効果
6. 荏込 剛琉 (卒業論文) フロケワイル半金属のバンド構造のレーザー周波数依存性
7. 後閑 淳志 (卒業論文) ディラック半金属 Cd<sub>3</sub>As<sub>2</sub> のバンド構造の 8 バンド模型による解析
8. 山口 仁誠 (卒業論文) ディラック半金属 Cd<sub>3</sub>As<sub>2</sub> におけるディラック点近傍のバンド構造の解析
9. 玄 政彦 (卒業論文) Pd 表面の水分子吸着構造と仕事関数の第一原理計算

## 5. 受賞、外部資金、知的財産権等

### 外部資金

1. JST CREST 「光・電子融合第一原理計算ソフトウェアの開発と応用」、矢花一浩、代表、2016-2022 年度、全年度直接経費 : 177,500 千円 (2022 年度直接経費 : 2,000 千円)
2. 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 千円 (2022 年度直接経費 : 2,403 千円)
3. 科研費基盤 (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 千円 (2021 年度直接経費 : 2,700 千円)
4. 科研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ト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 千円 (2022 年度直接経費 : 800 千円)
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 (2022 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. 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 (2022 年度直接経費 : 3,000 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」
7. 基盤研究 C、全 暁民、代表、令和 4 年、2730 千円/(総額 : 4160 千円)、“Coherent Control of Atomic Excitation in Strong Fields”

## 6. 研究業績

### (1) 研究論文

#### A) 査読付き論文

1. D. Freeman, A. Kheifets, S. Yamada, A. Yamada, K. Yabana, “High-order harmonic generation in semiconductors driven at near- and mid-infrared wavelengths”, Phys. Rev. B106, 075202 (2022).
2. S. Yamada, T. Otobe, D. Freeman, A. Kheifets, K. Yabana, “Propagation effects in high-harmonic generation from dielectric thin films”, Phys. Rev. B107, 035132 (2023).
3. T. Takeuchi, K. Yabana, “Electron spill-out effect on third-order optical nonlinearity of metallic nanostructure”, Phys. Rev. A106, 063517 (2022).
4. M. Uemoto, K. Yabana, “First-principles method for nonlinear light propagation at oblique incidence”, Optics Express 30, 23664 (2022).
5. G. Duchateau A. Yamada, K. Yabana, “Electron dynamics in alpha-quartz induced by two-color 10-femtosecond laser pulses”, Phys. Rev. B105, 165128 (2022).

6. B. Yilmaz, M. Otani, T. Ishihara, and T. Akbay, “First-Principles Investigation of Charged Germa Graphene as a Novel Cathode Material for Dual-Carbon Batteries”, *Chem Sus Chem*, 16, 4, e202201639 (2022-12)
7. S. Hagiwara, S. Nishihara, F. Kuroda, and M. Otani, “Development of dielectrically consistent reference interaction site model combined with the density functional theory towards electrochemical interface simulations”, *Phys. Rev. Mater.* 6, 093802 (2022).
8. Yasuhiro Oishi, Hirotugu Ogi, Satoshi Hagiwara, Minoru Otani, and Koichi Kusakabe, “Theoretical analysis on the stability of 1-pyrenebutanoic acid, succinimidyl ester adsorbed on graphene”, *ACS Omega* 7, 35, 31120–31125. (2022),
9. S. Hagiwara, J. Haruyama, M. Otani, Y. Umemura, T. Takeuchi, and H. Sakaue, “Theoretical Consideration of Side Reactions between the VS4 Electrode and Carbonate Solvents in Lithium–metal Polysulfide Batteries”, *Electrochemistry*, 90(10), 107002 (2022).
10. T. Shimada, N. Takenaka, Y. Ando, M. Otani, M. Okubo, and A. Yamada, “Relationship between Electric Double-Layer Structure of MXene Electrode and Its Surface Functional Groups”, *Chemistry of Materials*, 34, 2069-2075(2022)
11. S. Hagiwara, Y. Ando, Y. Goto, S. Shinoki, and M. Otani, “Electronic, adsorption, and hydration structures of water-contained Na-montmorillonite and Na-beidellite through the first-principles method combined with the classical solution theory”, *Physical Review Materials* 6, 025001-1-9 (2022)
12. Linghui Li, Satoshi Hagiwara, Cheng Jiang, Haruki Kusaka, Norinobu Watanabe, Takeshi Fujita, Masashi Miyakawa, Takashi Taniguchi, Fumiaki Kuroda, Minoru Otani and Takahiro Kondo, “Boron mono sulfide as a promising high performance metal free electrocatalyst”, *Nature Communication*. submitted
13. Fumiaki Kuroda, Satoshi Hagiwara, and Minoru Otani, “Structural changes in the lithium cobalt dioxide electrode: A combined approach with cluster expansion and Bayesian optimization”, *npj Computational Materials*. submitted
14. Taisuke Hasegawa, Satoshi Hagiwara, Minoru Otani, and Satoshi Maeda, “A combined simulation method of SC-AFIR and ESM-RISM toward the systematic exploration of elementary reactions and the construction of a reaction path network at solid-liquid interface”, *Journal of Physical Chemistry Letter*. submitted
15. 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, 113001:1-6 (2023).

16. X.M. Tong, D Kato, T Okumura, S Okada, and T Azuma, "Electronic K x rays emitted from muonicatoms: an application of relativistic density functional theory", Phys. Rev. A 107, 012804(2023).
17. D Chetty, RD Glover, X.M. Tong, BA deHarak, H Xu, N Haram, K Bartschat, AJ Palmer, AN Luiten, PS Light, IV Litvinyuk, and RT Sang, "Carrier-Envelope-Phase Dependent Strong-Field Excitation", Phys. Rev. Lett. 128, 173201 (2022).
18. H. Koizumi, "Schrödinger representation of quantum mechanics, Berry connection, and superconductivity", PHYSICS LETTERS A 450, 03759601 (2022).
19. H. Koizumi, N. Morio, A. Ishikawa, T. kondo, " Study of Cuprate Superconductivity Using the Particle Number Conserving Bogoliubov-de Gennes Equations: ARPES and STS Images From Surface Plus Bulk Layers Model ", JOURNAL OF SUPERCONDUCTIVITY AND NOVEL MAGNETISM 35, 2370 (2022).
20. H. Koizumi and A. Ishikawa, "Spin-vortex-induced Loop Current Qubits: Gate Control and Readout Using External Current Feeding", J Supercond Nov Magn 35, 1337-1352(2022).
21. H. Koizumi, N. Morio, A.Ishikawa, T. Kondo, "Study of Cuprate Superconductivity Using the Particle Number Conserving Bogoliubov - de Gennes Equations: ARPES and STS Images From Surface Plus Bulk Layers Model", J. Supercond. Nov. Magn. 35, 2357 (2022).
22. H. Koizumi, "Schrödinger representation of quantum mechanics, Berry connection, and superconductivity", Phys. Lett. A 450, 128367 (2022).
23. H. Koizumi, "Supercurrent and electromotive force generations by the Berry connection from many-body wave functions", J. Phys. A: Math. Theor. 56 185301(2023)
24. R. Zhang, K. Hino, and N. Maeshima "Floquet-Weyl semimetals generated by an optically resonant interband-transition", Phys. Rev. B **106**, 085206 (2022)
25. Mahmut Sait Okyay, Shunsuke A. Sato, Kun Woo Kim, Binghai Yan, Hosub Jin, Noejung Park, "Second harmonic Hall responses of insulators as a probe of Berry curvature dipole", Commun.Phys. 5, 303 (2022)
26. K. Nakagawa, H. Hirori, S.A. Sato, H. Tahara, F. Sekiguchi, G. Yumoto, M. Saruyama, R. Sato, T. Teranishi, Y. Kanemitsu, "Size-controlled quantum dots reveal the impact of intraband transitions on high-order harmonic generation in solids", Nature Physics,18,874 (2022)
27. A. Niedermayr, M. Volkov, S. A. Sato, N. Hartmann, Z. Schumacher, S. Neb, A. Rubio, L. Gallmann, U. Keller, "Few-Femtosecond Dynamics of Free-Free Opacity in Optically Heated Metals", Phys. Rev. X 12, 021045 (2022)

28. Wenwen Mao, Angel Rubio, Shunsuke A. Sato, “Terahertz-induced high-order harmonic generation and nonlinear charge transport in graphene”, Phys. Rev. B 106, 024313 (2022)
29. Ofer Neufeld, Wenwen Mao, Hannes Hübener, Nicolas Tancogne-Dejean, Shunsuke A. Sato, Umberto De Giovannini, Angel Rubio, “Time- and angle-resolved photoelectron spectroscopy of strong-field light-dressed solids: Prevalence of the adiabatic band picture”, Phys. Rev. Research 4, 033101 (2022)
30. Dongbin Shin, Simone Latini, Christian Schäfer, Shunsuke A. Sato, Edoardo Baldini, Umberto DeGiovannini, Hannes Hübener, Angel Rubio, “Simulating Terahertz Field-Induced Ferroelectricity in Quantum Paraelectric SrTiO<sub>3</sub>”, Phys. Rev. Lett. 129, 167401 (2022)
31. Wan-Dong Yu, Hao Liang, Cong-Zhang Gao, Shunsuke A. Sato, Bao-Ren Wei, Alberto Castro, Angel Rubio, Liang-You Peng, “Charge transfer in ultrafast isomerization of acetylene ions”, Phys. Rev. A 106, 033111 (2022)
32. Alberto Castro, Umberto De Giovannini, Shunsuke A. Sato, Hannes Hübener, Angel Rubio, “Floquet engineering the band structure of materials with optimal control theory”, Phys. Rev. Research 4, 033213 (2022)
33. Matteo Lucchini, Fabio Medeghini, Yingxuan Wu, Federico Vismarra, Rocío Borrego-Varillas, Aurora Crego, Fabio Frassetto, Luca Poletto, Shunsuke A. Sato, Hannes Hübener, Umberto De Giovannini, Angel Rubio, Nisoli, “Controlling Floquet states on ultrashort time scales”, Nat. Commun. 13, 7103 (2022)
34. Alberto Castro, Shunsuke A. Sato, “Floquet engineering non-equilibrium steady states”, Phys. Rev. Lett. submitted.
35. Alberto Castro, Umberto De Giovannini, Shunsuke A. Sato, Hannes Hübener, Angel Rubio, “Floquet engineering with quantum optimal control theory”, New J. Phys. 25 043023(2023)
36. Gian Luca Dolso, Bruno Moio, Giacomo Inzani, Nicola Di Palo, Shunsuke A. Sato, Rocío Borrego-Varillas, Mauro Nisoli, Matteo Lucchini, “Reconstruction of ultrafast exciton dynamics with a phase-retrieval algorithm”, Optics Express 30, 12248 (2022)

## B) 査読無し論文

なし

## (2) 国際会議発表

### A) 招待講演

1. M. Otani, "Study of corrosion at metal and water interfaces using DFT and the classical liquid theory hybrid simulations", Electrified solid/water interfaces – theory meets experiment, Ringberg, Germany, May 15-18, 2022, online
2. K. Yabana, "First-principles calculations of ultrafast dynamics in solids", 15th Asia Pacific Physics Conf.(APPC15), Aug.21-16, 2022, online.
3. K. Yabana, "Maxwell-TDDFT simulation for high-field propagation dynamics", Optics Incubator on On-Chip High-Field Nanophotonics, July 6-8, 2022, Washington DC, USA.
4. Kazuhiro Yabana, "TDDFT for extreme optics: nonlinearity and nonlocality", 9th Workshop on TDDFT, Oct. 25-27, 2022, Benasque, Spain.
5. Kazuhiro Yabana, "Time-dependent density functional theory for extreme nonlinear optics", 23rd Asian Workshop on First-Principles Electronic Structure Calculations, Oct. 31-Nov. 2, 2022, online.
6. Kazuhiro Yabana, "Propagation effect in high harmonic generation from thin films", Theory days on ultrafast processes in molecules and clusters, Nov. 23-25, 2022, online.
7. Kazuhiro Yabana, "Time dependent density functional theory in real time: Linear and nonlinear optical response", 3rd APCTP-KIAS Electronic Structure Calculations Winter School, Invited lecture, Jan. 17-20, 2023, online.
8. Kazuhiro Yabana, "Propagation and energy transfer of intense and ultrashort laser pulse in solids: First-principles computational approach", SPIE Photonics West, LAMON XXVIII, Jan. 28-Feb. 2, 2023, San Francisco, USA.
9. Shunsuke A. Sato, "Application of TDDFT to recent attosecond experiments", 9th Time-Dependent Density-Functional Theory: Prospects and Applications, Benasque, Spain, October
10. Shunsuke A. Sato, "Application of real-time TDDFT simulation to nonlinear and nonequilibrium electron dynamics in matter", Fundamentals in density functional theory , December 7-22, 2022, Kyoto University
11. H. Koizumi, "Jahn-Teller Effect, Berry Phase, and Superconductivity", Spontaneous Symmetry Breaking and Jahn-Teller Effects, The Institute of Chemistry and the Academy of Science of Moldova, (online, Feb. 10, 2023).

### B) 一般講演

1. K. Yabana, "Development and applications of SALMON - First-principles computations in optical science -", 2022 EPCC-CCS Workshop, Univ. Edinburgh and online, 2022.12.15

2. M. Otani, "Study of corrosion at metal and water interfaces using DFT and the classical liquid theory hybrid simulations", Workshop: "Electrified solid/water interfaces – theory meets experiment", Düsseldorf Germany (on-line), May 15-18, 2022.
3. H. Koizumi, "Schrödinger representation of quantum mechanics, Berry connection, and superconductivity", Novel Quantum States in Condensed Matter, (Tokyo, Japan, Nov. 8, 2022).
4. H. Koizumi, "Schrödinger representation of quantum mechanics, Berry connection, and superconductivity", 2nd International symposium on trans-scale quantum sciences Novel Quantum States in Condensed Matter 2022 (Tokyo, Japan, Nov. 10, 2022).
5. H. Koizumi, "U(1) phase neglected by Dirac and superconductivity: the particle number conserving Bogoliubov-de Gennes equations applied for calculations of spectroscopic properties of cuprate superconductivity", Integrated Spectroscopy for Strong Electron Correlation-Theory, Computation and Experiment 2022 (Tokyo, Japan, Dec. 8, 2022).
6. Shunsuke A. Sato, "Real-time TDDFT for extremely nonlinear and ultrafast phenomena", 9th Time-Dependent Density-Functional Theory: Prospects and Applications, Benasque, Spain, October 18-28, 2022.

### (3) 国内学会・研究会発表

#### A) 招待講演

1. 矢花一浩、「高強度パルス光の伝搬とエネルギー移行の第一原理計算」レーザー学会 第43回年次大会、ウインクあいち、2023年1月18-20日
2. 矢花一浩、「フェムト秒レーザーから物質へのエネルギー移行の第一原理計算」第5回天田財団レーザプロセッシング助成研究成果発表会、2022年4月20日
3. 矢花一浩、「フェムト秒レーザーから物質へのエネルギー移行過程に対する第一原理計算」電気学会全国大会、名古屋大学、2023年3月15-17日
4. 大谷 実、「密度汎関数法と溶液論のハイブリッド法を用いた電気二重層キャパシタの電極界面シミュレーション」2022年電気化学秋季大会 招待講演
5. 大谷 実、「電気化学界面における化学反応路探索」化学反応路探索のニューフロンティア 招待講演

#### B) その他発表

1. 矢花一浩、「先端の光科学のための第一原理計算ソフトウェア SALMON の開発と応用」第35期 CAMM フォーラム本例会 オンライン講演、2022年4月1日

2. 矢花一浩、「フェムト・アト秒スケールの実時間第一原理計算」、第 67 回物性若手夏の学校講義 オンライン、2022 年 8 月 3-5 日
3. 矢花一浩、「ここまで来た物質科学の GPU 活用」、CMSF 勉強会 “プログラム高度化最前線と今後の課題共有”、オンライン、2022 年 9 月 16 日
4. 矢花一浩、「高次高調波発生と光伝搬ダイナミクス」、Q-LEAP 第 21 回 ATTO 懇談会、東大理・化学本館、2022 年 9 月 28 日
5. 矢花一浩、「光科学のための第一原理計算ソフトウェア SALMON の開発とその GPU 化」、GPU UNITE オンライン、2022 年 10 月 7 日
6. 矢花一浩、「フェムト秒レーザー初期過程のための理論と計算」、日本光学会冬季講習会、講師、オンライン、2023 年 1 月 26 日
7. 大谷実、「固液界面における 電気化学反応シミュレーション技術の 開発と応用」第 130 回触媒討論会 特別講演
8. 大谷実、「電解液界面における構造及び化学反応解析と富岳を用いたシミュレーション技術の社会実装」、「富岳」電池課題 第 3 回公開シンポジウム、1 月 5 日 (NIMS)
9. 大谷実、「電気化学界面シミュレーション技術の発展と产学連携」@金沢商工会議所理論化学討論会 (5/18)
10. 黒田 文彬、萩原 聰、大谷 実、「Li イオン電池正極材料 LiCoO<sub>2</sub> の充放電過程における構造変化に関する研究：クラスター展開とベイズ最適化の複合的アプローチ」日本物理学会 2022 年秋季大会 口頭発表
11. 大谷実、本山裕一、萩原聰、吉見一慶「ESM-RISM 法を実装した Quantum ESPRESSO の高度化」日本物理学会 2022 年秋季大会 ポスター発表
12. 萩原聰、安藤康伸、後藤佑太、篠木進、大谷実、「密度汎関数法+古典溶液理論による層状粘土鉱物のカチオン吸着構造と水和構造の研究」日本物理学会 2022 年秋季大会 口頭発表
13. 萩原 聰、「原子層鉱物の機能開拓に向けた計算・計測連携研究会」@筑波大学計算科学研究センター 会議室 B(5/17)
14. 萩原 聰、「量子・古典融合理論と 反応経路自動探索法を組み合わせた電気化学界面シミュレーション手法の開発」、「富岳」成果創出加速プログラム 研究交流会 2023-3
15. 小泉裕康、「ディラックが無視した U(1)位相とベリー接続、粒子数を保存するボゴリューボフ=ド・ジャンヌ方程式」、第 70 回 日本物理学会 2023 年 3 月 春季大会、オンライン 2023 年 3 月 22-25 日.
16. 小泉裕康、自然言語処理の量子情報理論、自然言語フォーラム第 6 回会合 5 月 23 日  
講演：法政大学 雪田修一「モノイド圏と言語処理」

17. 守尾直輝、小泉裕康、「銅酸化物超伝導体のバルクに存在するスピン渦誘起ループ電流のパターンと地場のシミュレーション」、第 70 回 日本物理学会 2023 年 春季大会、オンライン 2023 年 3 月 22-25 日.
18. 張潤南、前島展也、日野健一、「光共鳴励起によるフロケワイル半金属相の創成と制御」日本物理学会 2022 年秋季大会、東京工業大学、2022 年 9 月 15 日
19. 佐藤駿丞、「第一原理電子ダイナミクス計算による光誘起超高速現象の微視的解析」物質設計評価施設 (MDCL)セミナー 東京大学物性研究所 2022-10
20. 佐藤駿丞、「強レーザー電場下におけるアト秒電子ダイナミクスの第一原理的解析 (シンポジウム講演)」、第 70 回 応用物理学会春季学術講演会、上智大学、2023-3
21. 佐藤駿丞、「光誘起非平衡電子ダイナミクスの第一原理計算(シンポジウム講演)」、第 70 回 日本物理学会 2023 年 3 春季大会、オンライン

## 7. 異分野間連携・産学官連携・国際連携・国際活動等

### 国際連携・国際活動

1. 矢花：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、ボルドー大学、オーストラリア国立大学、インド工科大学ボンベイ校の理論研究者と実施している。
2. 小泉：国際共同研究推進プログラム(筑波大学) エラー訂正を備えた量子コンピュータ用トポロジカルに保護されたループ電流量子ビットの開発 (Development of topologically protected loop current qubits for fault-tolerant quantum computers)

## 8. シンポジウム、研究会、スクール等の開催実績

1. SALMON の利用に関するチュートリアルを、大阪大学コンピュテーションナル・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。また、高度情報科学技術研究機構の支援のもと、名古屋大学情報基盤センターにおいてハンズオンチュートリアルを実施した。

## 9. 管理・運営

### 組織運営や支援業務の委員・役員の実績

1. 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、運営協議会委員、先端計算科学推進室室長、共同研究委員会委員、量子物性研究部門長など。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など。
2. 小泉：(学内) 筑波大学全学計算機システム 3D サテライト管理

3. 前島：（学内）応用理工学類 e ラーニング委員、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

## 10. 社会貢献・国際貢献

2022 年 4 月から科学雑誌 The European Physical Journal D の Associate Editor に務めている。  
(全)