

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 (2021. 11～)
研究員	山田 篤志、山田 俊介、竹内 嵩、萩原 聡 (～2021. 10)、 黒田 文彬 (2021. 11～)、金谷 和至
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 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。本年度より大谷実教授が着任し、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がスタートした。今後、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を展開して行きたいと考えている。当部門は、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、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)法に基づく第一原理計算コード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。

3. 研究成果

[1] 光と物質の相互作用を記述する第一原理計算ソフトウェア SALMON の開発（矢花、佐藤、山田（篤）、竹内、山田（俊）、額田）

第一原理計算法の一つである TDDFT に基づき、パルス光と物質の相互作用を記述する汎用のソフトウェア SALMON (Scalable Ab initio Light-Matter simulator for Optics and Nanoscience) の開発を進めている。SALMON は 2017 年 6 月に v.0 を公開し、2020 年 7 月に、v.2 を公開した。このバージョンで、コード内部は整理され、少なくともこの先数年間は安定して SALMON を維持発展させる基盤が整えられている。本年度は、SALMON の開発を主要な課題とする CREST 研究の中心部分が終了する 2022 年 3 月末に、v.2.1 を公開した。このバージョンでは、スピン軌道相互作用の利用が可能となるとともに、OpenACC を用いた GPU 化が実装された。

また SALMON は「富岳」への対応も進めてきたが、その試用段階において全系の 1/6 を用いることにより、10,000 原子を超える物質とパルス光の相互作用の計算が可能であることを実証した。その論文 (Y. Hirokawa et.al, Int. J. High Performance Computing Applications 36, 182 (2022)) の出版に合わせて、2022 年 1 月 6 日に筑波大学、神戸大学、科学技術振興機構が共同でプレスリリースを行った。

SALMON の利用促進に向けた取り組みとして、SALMON により可能となる計算例や利用方法に関するビデオを多数作成し、YouTube に掲載している。SALMON を普及する活動として、2021 年 9 月と 2022 年 3 月に大阪大学が主催するコンピュテーショナル・マテリアルズ・デザインワークショップにおいて、また 2022 年 1 月には高度情報科学技術研究機構のサポートのもと京都大学のスーパーコンピュータを用いて、ハンズオンチュートリアルを実施した。

これまで SALMON の開発は、筑波大学の CREST プロジェクトメンバーが中心となり行ってきたが、そのプロジェクトの中心部分が本年度末で終了することに伴い、今後は国内の様々な機関に所属する約 10 名の研究者からなる開発者ミーティングを定期的で開催し、開発その他の活動を行う予定である。

[2] 量子流体模型に基づくプラズモニクスの記述（竹内、矢花）

金属ナノ粒子の光応答では表面プラズモンが重要な役割を果たす。この応答は古典電磁気学により記述することが可能であるが、最近は古典論では記述できない量子効果として、ナノ粒子の表面における電子染み出しの効果や、複数のナノ粒子が接近した時に生じるトンネル電流の効果などが大きな関心を集めている。そのような量子効果を記述するのに、TDDFT を用いた記述が有効であるが、TDDFT の計算は物質に含まれる電子数に対応する軌道を用意することから、計算量が物質のサイズの 2 乗に比例し、サイズの大きいナノ粒子に対して計算を行うことが困難であった。このような事情のため、TDDFT に対する半古典近似とみなせる量子流体模型(QHT)が発展してきた。しかし QHT では、流体方程式を電子密度

が非常に小さい領域で正確に解くことが難しく、これまでは線形応答に対する計算がほとんどであった。

本研究はそのような困難を克服する方策として、QHT の基礎方程式と 1 軌道の時間依存シュレディンガー方程式の等価性に着目し、新たな数値解法を提案した。この方法を用いることで、非線形応答を何ら問題なく調べることが可能になった (T. Takeuchi et.al, Optics Exp. 30, 11572 (2022))。図 1 に、直径が 4.3nm のナノ粒子に対する QHT と TDDFT の非線形光応答の計算結果の比較を示している。(a)では単一のパルスに対する計算の結果を、横軸にパルスに含まれる振動数成分をとり比較した結果を示しており、(b)では多数のパルスに対する計算の結果を、系に加えたパルスの平均振動数に対する 3 次の非線形応答の比較として示している。いずれの場合も、QHT において電子染み出しを適切に記述すると、非線形応答が TDDFT にほぼ一致することを示している。

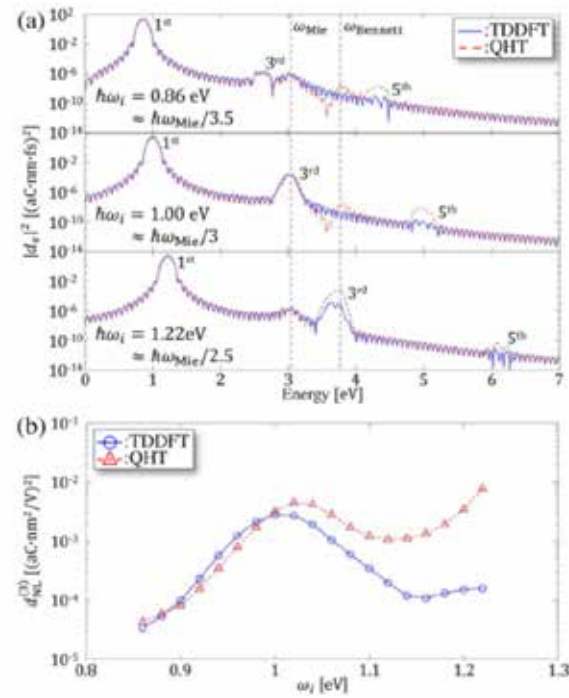


図 1: QHT と TDDFT を用いたナノ粒子の非線形光応答の比較。

[3] 遷移金属ダイカルコゲナイドの非線形光応答 (Hashmi, 乙部 (関西光科学研究所)、矢花、山田 (俊)、山田 (篤))

SALMON において、軌道関数をスピンの非共線的(noncollinear)となる配位を記述できるよう拡張し、スピン軌道力を導入した。これを用いた最初の応用として、バレー自由度に関心が持たれる遷移金属ダイカルコゲナイド(TMCD)の典型的な物質である WSe₂ 単原子層の非線形光応答を調べた (A. Hashmi et.al, Phys. Rev. B105, 115403 (2022))。スピン軌道力を含めた計算は、計算量が極めて大き

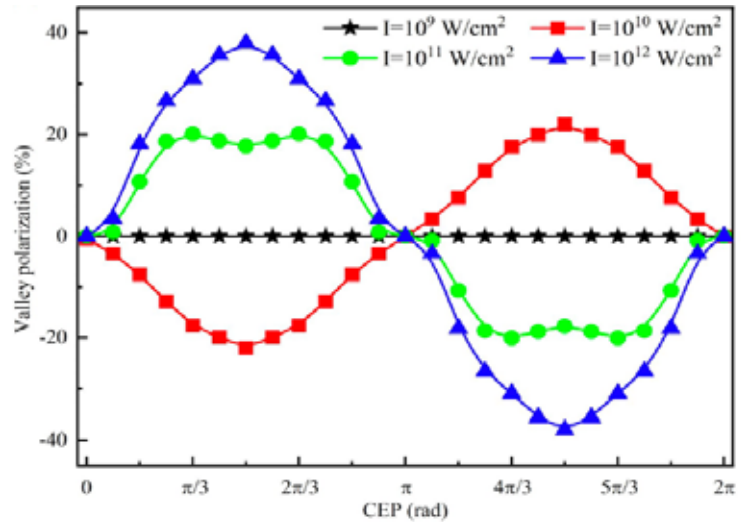


図 2: WSe₂ 単原子層に高強度な直線偏光の単一サイクルパルスを加えたときの、K・K' バレー励起の非対称性を、横軸にキャリアエンベロープ位相 (CEP)

くなる。2021 年度から本格的に稼働したスーパーコンピュータ「富岳」を用いることで、研究を順調に進展させることが可能になった。

TMCD は円偏光パルスを用いて、 K, K' バレーのどちらかを選択的に励起できることが知られている。本研究では高強度なシングルサイクルの直接偏光パルスを用いて、非線形励起過程によりバレーを選択的に励起できることを示した。図 2 は、横軸をシングルサイクルパルスのキャリアエンベロープ位相(CEP)にとり、いくつかの光強度に対してバレー非対称性を示したものである。バレー非対称性は CEP に敏感に依存し、また光の強度によって符号が変化している。 k 空間における励起したキャリアの分布を調べると、節を持つ構造が見出された。この節の存在は、massive Dirac 模型を用い、Landau-Zener 近似で遷移を評価する際に現れる Stuckelberg 干渉として理解できることを示した。

[4] 固体からの高次高調波発生と位相緩和効果 (D. Freeman, A. Kheifets (オーストラリア国立大)、山田 (俊)、山田 (篤)、矢花)

固体からの高次高調波発生、特に原子配置の熱的揺らぎに伴う位相緩和効果に関し、オーストラリア国立大学の理論グループと共同研究を行い、論文を投稿中である(D. Freeman et.al, arXiv:2109.07693)。図 3 に、結晶のイオン配置に熱的な揺らぎが加わった場合の計算例を示す。この計算は、乱雑な揺らぎを考慮するため、512 原子からなる単位セルを用いた電子ダイナミクス計算を行っている。左上の図は、揺らぎのない場合の電流を示すが、パルスの後半(100 fs 以降)には非線形効果に起因する複雑な振動が現れている。一方、熱的な揺らぎを考慮した左下に示す電流では、位相緩和が考慮されたことにより電流に現れる乱雑な信号が軽減されていることがわかる。右側に示すスペクトルを見ると、揺らぎのない場合の方が(右上)高次まで明瞭なシグナルが見られるが、一方で揺らぎを考慮した場合(右下)には、40 次を超える高次の信号は消失するが、20 次程度までの低次の信号は、揺らぎのない場合よりもシャープになっている。このよう

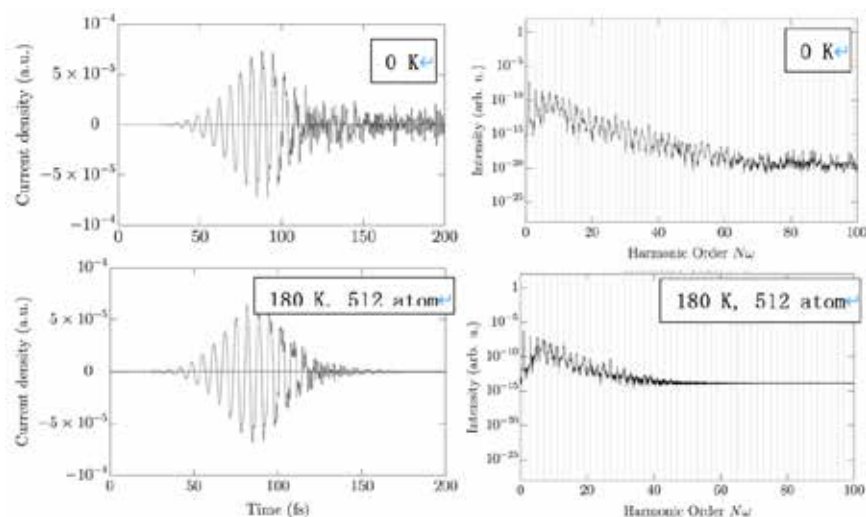


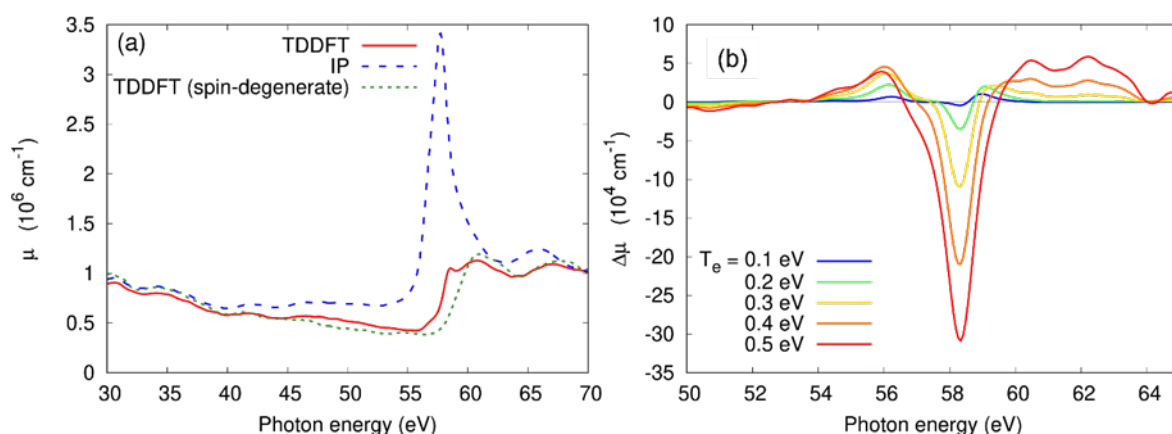
図 3: シリコン結晶にパルス電場を加えた時の電流（左）とスペクトル（右）。上は完全結晶(0K)の場合。下は512原子の単位セルで180Kに相当する熱揺らぎを加えた原子配置の場合。

子ダイナミクス計算を行っている。左上の図は、揺らぎのない場合の電流を示すが、パルスの後半(100 fs 以降)には非線形効果に起因する複雑な振動が現れている。一方、熱的な揺らぎを考慮した左下に示す電流では、位相緩和が考慮されたことにより電流に現れる乱雑な信号が軽減されていることがわかる。右側に示すスペクトルを見ると、揺らぎのない場合の方が(右上)高次まで明瞭なシグナルが見られるが、一方で揺らぎを考慮した場合(右下)には、40 次を超える高次の信号は消失するが、20 次程度までの低次の信号は、揺らぎのない場合よりもシャープになっている。このよう

に、多数の原子を含む単位セルを考え、熱的な揺らぎのある原子配置を考慮することにより、位相緩和の効果を実量的に分析することが可能になった。

[5] アト秒過渡吸収分光の第一原理計算と磁性体への応用（佐藤）

本研究では、高強度な光によって励起された磁性体の光学応答がどのように変調されるのかを、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解析した。図 4(a)に TDDFT 計算により得られた固体 Co の吸収スペクトルを示す(赤線)。さらに、局所電場効果を見逃した独立粒子近似(IP)計算により得られた吸収スペクトルを青線、スピン自由度を縮退させた TDDFT 計算により得られた吸収スペクトルを緑線で示した。いずれの結果においても、57eV 付近で吸光度の急峻な上昇が確認される。これは、Co の内殻 3p 軌道からフェルミ面への電子励起に起因する吸収端を反映している。本研究では、レーザー励起された固体の性質を調べるために、レーザー光によって電子系が加熱され有限電子温度状態が実現されることを仮定し、吸収スペクトルの電子温度依存性を調べた。図 4(b)に、TDDFT 計算によって得られた固体 Co の吸収スペクトル変化を示した。電子温度の上昇に伴い、吸収端付近で吸光度の急激な現象が確認できる。第一原理計算に基づく微視的な解析を進めたところ、観測された吸光度の減少は、レーザー加熱によって固体の磁性が消失し、内殻準位の交換分裂が減少することに起因していることが明らかとなった。この研究で明らかとなった光励起された磁性体の磁気応答と光学応答の関係を応用することで、光が駆動する磁性・スピンドYNAMICS を過渡吸収分光を通じて調べることが可能となる。本研究成果は、論文” First-principles calculations for transient absorption of laser-excited magnetic materials” として Electronic Structure 誌より発表された。



Created by modifying “Electron. Struct. 4 014007 (2022)” (Licenced under CC BY 4.0)

図 4: (a)第一原理計算により得られた固体 Co の吸収スペクトル。(b)電子温度上昇に伴う固体 Co の吸収スペクトル変化。

[6] THz 光が駆動するグラフェン内の非線形電子ダイナミクスの理論的解析（佐藤）

近年のレーザー技術の発展により、高強度 THz 光とグラフェンの非線形相互作用に関する研究が精力的に進められており、高強度 THz 光が誘起する透過率上昇や高次高調波発生などの極限的な非線形光学現象が盛んに調べられている。本研究では、このような極限的な非線形現象の微視的機構を解明するため、緩和の効果を取り入れた量子マスター方程式により、THz 光が誘起するグラフェン内の電子ダイナミクスを解析した。グラフェン内における電子の散乱時間は THz 電場の時間スケールより短いため、THz 光を用いる代わりに定常電場の元でのグラフェンの伝導特性を調べた。定電場 E_0 の下でグラフェンに流れる電流 J を求め、その比から実効的な伝導度 $\sigma = J/E_0$ を評価した。その結果を図 5 に示す。図 5 には異なる化学ポテンシャルに対する結果が示されており、いずれの場合も印加する電場強度の上昇によって伝導度が減少していることが確認できる。また、化学ポテンシャルが比較的小さい場合、さらに高強度の電場を印加することで、伝導度が上昇に転じることが分かった。グラフェンにおける非線形伝導の微視的起源を解析したところ、高強度電場印加によって熱的キャリア、あるいはドーパされたキャリアの大部分が Brillouin zone 内で大きく移動し、伝導性を担うキャリアが枯渇することによって伝導度が低下していることが明らかとなった。また、より強電場領域においては、Zener トンネル現象により価電子帯から伝導帯へ励起キャリアが供給されることで、伝導度が再び上昇に転じることが分かった。本研究成果は、グラフェンにおける THz 誘起非線形電子ダイナミクス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” Nonlinear electric conductivity and THz-induced charge transport in graphene”として New Journal of Physics 誌から発表された。

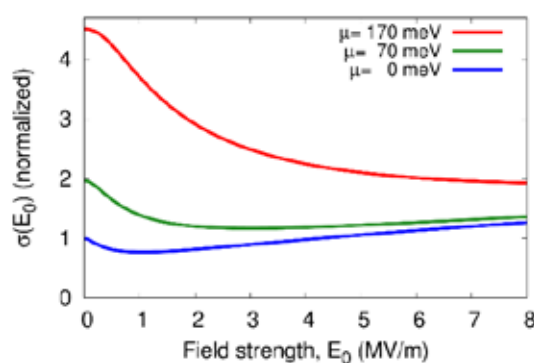


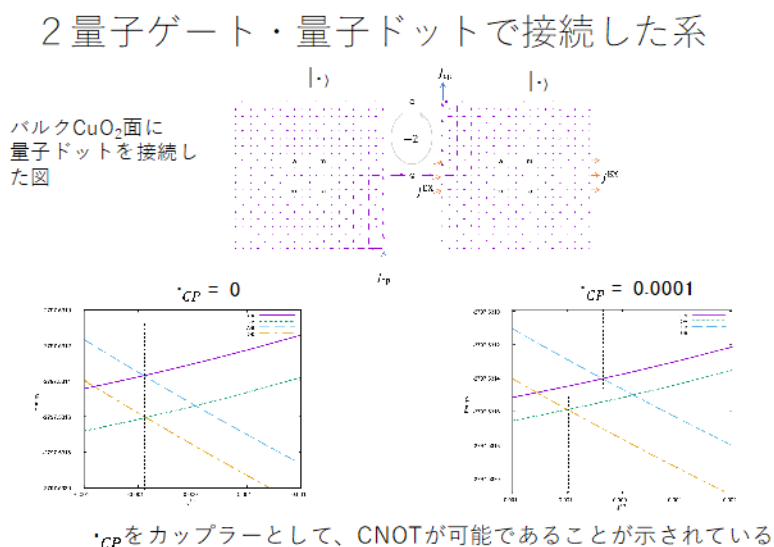
図 5: グラフェンにおける非線形電気伝導度の電場依存性。異なる化学ポテンシャル μ に対する結果が示されている。

[7] 非自明なベリー接続に基づく新しい超伝導の理論（小泉）

電子に対する多体波動関数から、ベリー接続が計算できる。そして、このベリー接続が非自明な時に、電流が存在する基底状態が実現可能であることをこれまでの研究で明らかにしてきた。このような基底状態をもつ状態が超伝導状態であるとする新しい超伝導理論を構築している。この超伝導状態を記述するために、粒子数を保存するボゴリューボフ=ド・ジャンヌの方程式を作り、計算を行った (H. Koizumi, A. Ishikawa, J. Supercond. Nov. Magn. 34 (2795-2808), 2021)。また、アンドレーフ反射の問題やジョセフソン効果の問題に適用した (H. Koizumi, J. Supercond. Nov. Magn. (2017-2029), 2021)。さらに、ロンドンモーメントの問題にも適用し、これまで、実験と矛盾のあった超伝導電流キャリアの質量について、正しい値を得ることができた。そして、ロンドンが超伝導状態に存在すると考えた‘Superpotential’や南部陽一郎が超伝導状態に存在すると考えた‘Nambu-Goldstone モード’を非自明なベリー接続と関連づけ論じた (H. Koizumi, J. Supercond. Nov. Magn. 34 (1361-1370), 2021)。

[8] スピン渦誘起ループ電流量子ビット（小泉）

銅酸化物高温超伝導体にその存在が予言されている“スピン渦誘起ループ電流”を量子コンピュータの情報単位‘量子ビット’として使用する可能性について理論的に考察した。この量子ビットでは、外部電流によりランダウ=ゼーナー遷移を利用した量子ビットの制御が可能であり、また、量子ビットのカップリングも外部電流を使って可能であることを、銅酸化物の CuO_2 面をスタックしたモデルと CuO_2 面のブロックを量子ドットとで繋げた系についてシミュレーションにより示した (H. Koizumi, A. Ishikawa, J. Supercond. Nov. Magn. (2022). <https://doi.org/10.1007/s10948-022-06184-x>)。



[9] ミュオン原子形成過程の解明（全）

負ミュオンが金属の鉄の中に打ち込まれると、図1のように負ミュオンと鉄原子核で構成されるミュオン鉄原子が生成される。今回、国際共同研究グループは宇宙 X 線観測などに向けて開発されてきた TES を大強度陽子加速器施設 J-PARC 物質・生命科学実験施設 MLF に持ち込み、ミュオン鉄原子から放出される電子特性 X 線を精密測定した。TES 検出器の高いエネルギー分解能により、ミュオン鉄原子によ

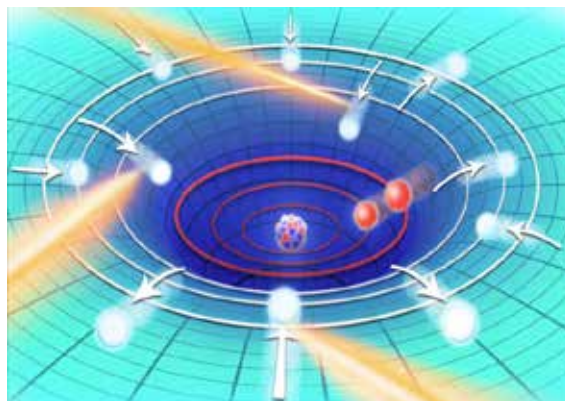


図6 ミュオン原子脱励起過程のダイナミクス

る電子特性 X 線のエネルギースペクトルが、1 本の鋭いピークではなく、幅広い非対称な構造を持つことが分かった。また、理論計算と実験と比べて、このスペクトル構造からミュオン原子形成過程における負ミュオン・束縛電子のフェムト秒ダイナミクスの解明に成功した。本研究は、科学雑誌『Physical Review Letters』の Editors' Suggestion に選ばれた。「Physical Review Letters 127, 053001 (2021).」

[10] 強レーザー場における原子電離中異常な光電子運動量分布の解明（全）

強レーザー場における原子電離過程を実験と理論研究を行った。非双極子の影響でレーザー伝播方向の電子運動量が図7中の赤線になることを実験で確認した。単純なモデルでディップ構造が再現できないために、我々が使っているモデルポテンシャルを使用した理論的予測は実験とよく一致している。詳しく分析すると、実験で観察されたディップ構造は原子核による光電子の後方散乱の起因である。本研究は、科学雑誌『Physical Review Letters』の Editors' Suggestion に選ばれた。「Physical Review Letters 128, 023301 (2022).」

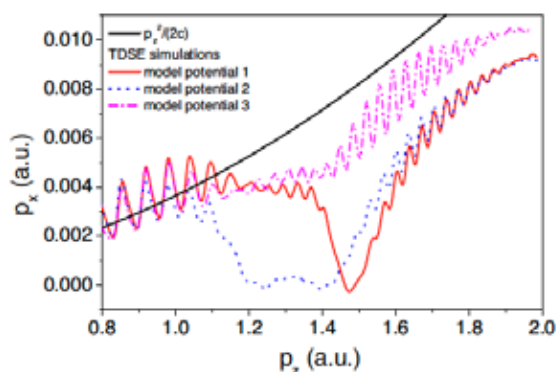


図7 レーザー進行方向の光電子運動量分布

[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光学伝導度を厳密対角化などにより数値的に調べ、本来は電荷励起状態を観測する量である光学伝導度にスピン励起状態起源のスペクトルピークが現れることを見出した。更に光学伝導度計算で重要となる電流演算子に対する解析および電荷動的構造因子との比較検討を行った結果、

空間依存ポテンシャルが波数 $K=(\pi,\pi)$ を有する 2 本足梯子において、梯子の rung 方向に対する光学伝導度 σ_y によってスピン $S=1$ の準粒子 (triplon) を 2 つ含む 2-triplon 状態と呼ばれる連続準位帯の 1 重項状態を観測できること、一方、梯子の leg 方向に対する光学伝導度 σ_x によって triplon を 3 つ含む 3-triplon 連続準位帯の 1 重項状態を観測できることを見出した(図 8)。

[12] レーザー誘起 3 次元フロケ-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のフロケ状態を厳密対角化によって調べた結果、直線偏光レーザー照射下では複数のフロケバンドが縮重した結果として、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。加えて円偏光レーザー照射下では、前述のフロケ-ディラック半金属の up 電子と down 電子の縮重が解けた結果として、フロケ-ワイル半金属状態が出現することが分かった(図 9)。更にフロケ-ワイル半金属における Γ -Z line 上のワイル点はレーザー強度の増大と共に Γ 点へと近づき、ある臨界電場強度で消滅することを示した。

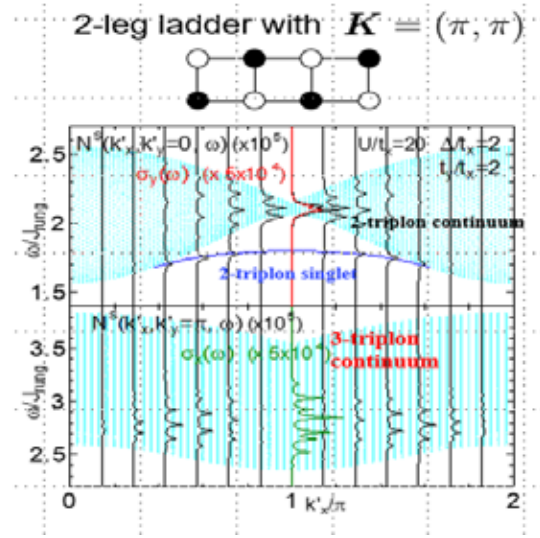


図 8: (上) 波数 $K=(\pi,\pi)$ を有する 2 本足梯子模型 (下) 同梯子模型における電荷動的構造因子 $N(k,\omega)$ と光学伝導度 $\sigma_\gamma(k,\omega)$ ($\gamma=x$ or y)。

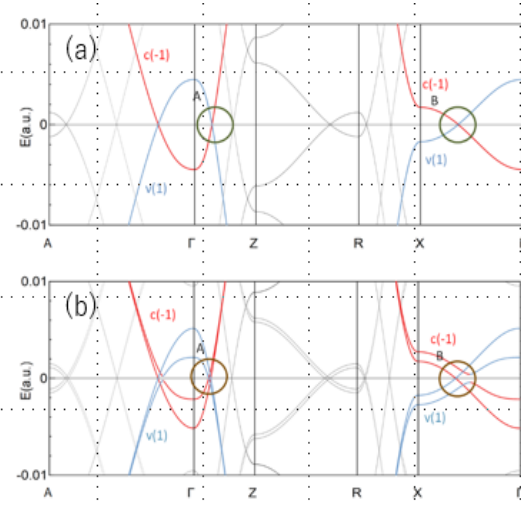


図 9: (a) 直線偏光レーザー照射における分散曲線(緑丸にディラック点), (b) 円偏光レーザー照射における分散曲線(茶丸にワイル点)。

[13] 3D-RISM 法による粘土鉱物の層間カチオンの水和・吸着構造の研究（大谷、萩原、黒田）

粘土鉱物は、古代より人類の身の回りの生活を支えてきた重要な材料の一つであるが、現代においても、陶磁器や化粧品、イオン交換剤など多くのものに利用されている。特に、最近では、蓄電池の電極保護剤として期待されるなど注目を集めている。本研究では、典型的な粘土鉱物である、モンモリロナイト(MMT)とバイデライト(BEI)に対して、層間カチオンである Na^+ の水和構造と母材への吸着構造の研究を行った。計算には、密度汎関数(DFT)法と古典溶液理論(3D-RISM)を組み合わせたハイブリッド手法を用いて、粘土鉱物とカチオンには DFT を適用し電子状態を正確に考慮し、層間の水には 3D-RISM を適用し溶媒分布を効率よく計算した（図 10(a)）。層間の水分子数を変えて含水比を計算し、3D-RISM で実験の含水比を再現することを確認したのちに、層間カチオン(Na^+)の吸着位に対する電子状態と水和構造の変化を解析した。電子状態はカチオン位置には大きく依存しないが、図 10(b)に示すように、水和構造は大きく変化し、カチオン位置が層間の中心付近の場合には、外圏錯体を構成するが、母材に吸着した場合には内圏錯体を構成することが明らかになった。

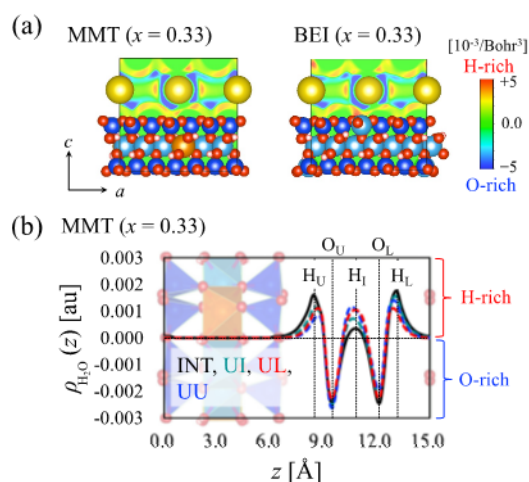


図 10 : (a) MMT と BEI の構造モデルと層間の水分布。(b) ac 面内の水分子の分布の平均値 (上)。カチオン周りの水分子の分布の模式図 (下)

4. 教育

- ・石川 亜留都（修士） スピン渦誘起ループ電流量子ビットの理論的研究:電流によるゲート操作と量子ドットを利用した状態の読み出し
- ・酒井 貴義（修士） 2次元フロケットポロジカル絶縁体の非自明表面状態の理論的解析
- ・近藤 拓海（卒業論文） 3層モデルにおける銅酸化物超伝導体の理論研究：電子対ギャップの平均場とスピンモーメントの平均場を用いた2種の計算方法
- ・田中 迪（卒業論文） 2次元フロケットポロジカル状態のエッジ状態に対する sp 軌道間ホッピング効果
- ・松本 祐介（卒業論文） 2次元フロケットポロジカル状態におけるエッジ状態と分極の関係
- ・防村 春樹（卒業論文） 3次元フロケワイル半金属のバンド構造に対するレーザー強度の影響

5. 受賞、外部資金、知的財産権等

受賞

該当なし

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、2016-2021 年度、全年度直接経費：177,500 千円（2021 年度直接経費：32,540 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（2021 年度直接経費：2,320 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：3,400 千円）
4. 科研費基盤（C）「分光測定を再現する Maxwell 方程式と融合した分子動力学マルチスケール法の開発」、山田篤志、代表、2019－2023 年度、全年度直接経費：2,100 千円（2021 年度直接経費：610 千円）
5. 科研費「サブ nm ギャップを持つメタ表面の量子効果」、竹内嵩、（2021 年度直接経費：1000 千円）
6. 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（2021 年度直接経費：600 千円）、「光による電子構造制御の第一原理計算」
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（2021 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」
8. 科研費基盤(S)、大谷、分担、2020-2025 年度、全年度直接経費：15,000 千円（2021 年度直接経費：5,000 千円）、「孤立分子・孤立軌道の特異性に 基づく蓄電材料機能の革新」
9. 「富岳」成果 創出 加速プログラム、大谷、分担、2020-2024 年度、全年度直接経費：18,000 千円（2021 年度直接経費：6,000 千円）、「次世代二次電池・燃料電池開発 による ET 革命に向けた計算・データ材料科学研究」
10. NEDO 超先端材料超高速開発基盤技術プロジェクト、大谷、分担、2021 年度、全年度直接経費：3,000 千円（2021 年度直接経費：3,000 千円）

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 and K. Yabana, “Determining the optimum thickness for high harmonic generation from nanoscale thin films: An ab initio computational study”, *Phys. Rev. B* 103, 155426 (2021).
2. Y. Hirokawa, A. Yamada, S. Yamada, M. Noda, M. Uemoto, T. Boku, K. Yabana, “Large-scale ab initio simulation of light-matter interaction at the atomic scale in Fugaku”, *The International Journal of High Performance Computing Applications*, 36, 182–197 (2022).
3. Guillaume Duchateau, Atsushi Yamada and Kazuhiro Yabana, “Electron dynamics in α -quartz bulk induced by two-color 10-femtosecond laser pulses”, *Phys. Rev. A* 105, 165128 (2022).
4. Atsushi Yamada, “Classical Electronic and Molecular Dynamics Simulation for Optical Response of Metal System”, *J. Chem. Phys.*, 155, 174118 (2021).
5. E. Epifanovsky, A. Yamada, et. al, “Software for the frontiers of quantum chemistry: An overview of developments in the Q-Chem 5 package”, *J. Chem. Phys.* 155, 084801 (2021).
6. S. Bhandaari, S. Sarkar, A. Schubert, A. Yamada, J. Payne, M. Ptaszek, E. Geva, B.D. Dunietz, “Intersystem crossing in tetrapyrrolic macrocycles. A first-principles analysis”, *J. Phys. Chem. C* 125, 13493 (2021).
7. T. Takeuchi, K. Yabana, “Numerical scheme for nonlinear optical response of metallic nanostructure: Quantum hydrodynamics theory solved by adopting effective Schrödinger equation”, *Optics Express* 30, 11572-11587 (2022).
8. A. Hashmi, S. Yamada, A. Yamada, K. Yabana, T. Otobe, “Nonlinear dynamics of electromagnetic field and valley polarization in WSe₂ monolayer”, *Appl. Phys. Lett.* 120, 051108 (2022).
9. A. Hashmi, S. Yamada, A. Yamada, K. Yabana, T. Otobe, “Valley polarization control in WSe₂ monolayer by a single-cycle laser pulse”, *Phys. Rev. B* 105, 115403 (2022).
10. Dandan Hui, Husain Alqattan, Shunsuke Yamada, Vladimir Pervak, Kazuhiro Yabana, Mohammed Th. Hassan, “Attosecond electron motion control in dielectric”, *Nature Photonics* 16, 33–37 (2022)
11. D. Freeman, S. Yamada, A. Yamada, K. Yabana, Anatoli Kheifets, “High order harmonic generation in semiconductors driven at near- and mid-IR wavelengths”, arXiv:2109.07693.
12. Kuo Zhong, Wei Yu, Yovan de Coene, Atsushi Yamada, Olga Krylychkina, Stijn Jooen, Olivier Deschaume, Carmen Bartic and Koen Clays, “Dual photonic bandgap hollow sphere colloidal photonic crystals for real-time fluorescence enhancement in living cells”, *Biosens. Bioelectron.* 194, 113577 (2021).

13. S. Hagiwara, C. Hu, S. Nishihara, and M. Otani, “Bias-dependent diffusion of a H₂O molecule on metal surfaces by the firstprinciples method under the grand-canonical ensemble”, *Phys. Rev. Mater.* 5, 065001-1-19 (2021).
14. T. Okumura, T. Azuma, D.A. Bennett, P. Caradonna, I. Chiu, W.B. Doriese, M.S. Durkin, J.W. Fowler, J.D. Gard, T. Hashimoto, R. Hayakawa, G.C. Hilton, Y. Ichinohe, P. Indelicato, T. Isobe, S. Kanda, D. Kato, M. Katsuragawa, N. Kawamura, Y. Kino, M.K. Kubo, K. Mine, Y. Miyake, K.M. Morgan, K. Ninomiya, H. Noda, G.C. O’Neil, S. Okada, K. Okutsu, T. Osawa, N. Paul, C.D. Reintsema, D.R. Schmidt, K. Shimomura, P. Strasser, H. Suda, D.S. Swetz, T. Takahashi, S. Takeda, S. Takeshita, M. Tampo, H. Tatsuno, X.M. Tong, Y. Ueno, J.N. Ullom, S. Watanabe, and S. Yamada, “De-excitation dynamics of muonic atoms revealed by high precision spectroscopy of electronic K x rays using superconducting transition-edge sensor microcalorimeters”, *Phys. Rev. Lett.* 127, 053001:1-7 (2021).
15. 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, and R.T. Sang, “Carrier-Envelope-Phase Dependent Strong-Field Excitation”, *Phys. Rev. Lett.* 128, 173201 (2022).
16. K. Lin, S. Brennecke, H.C. Ni, X. Chen, A. Hartung, D. Trabert, K. Fehre, J. Rist, X.M. Tong, J. Burgdorfer, L.P.H. Schmidt, M.S. Schoffler, T. Jahnke, M. Kunitski, F. He, M. Lein, S. Eckart, and R. Dorner, “Magnetic-field effect in high-order above-threshold ionization”, *Phys. Rev. Lett.* 128, 023301:1-6 (2022).
17. H. Koizumi, A. Ishikawa, “Berry connection from many-body wave functions and superconductivity: Calculations by the particle number conserving Bogoliubov-de Gennes equations”, *J. Supercond. Nov. Magn.* 34(11), 2795-2808
18. H. Koizumi, “Superconductivity by Berry Connection from Many-body Wave Functions: Revisit to Andreev–Saint-James Reflection and Josephson Effect”, *J. Supercond. Nov. Magn.* 10.1007/s10948-021-05905-y
19. H. Koizumi, “London Moment, London’s Superpotential, Nambu-Goldstone Mode, and Berry Connection from Many-Body Wave Functions”, *J. Supercond. Nov. Magn.* 34 (1361-1370), 2021.
20. H. Koizumi, A. Ishikawa, “Spin-vortex-induced Loop Current Qubits: Gate Control and Readout Using External Current Feeding”, *J. Supercond. Nov. Magn.* (2022).
<https://doi.org/10.1007/s10948-022-06184-x>
21. S.A. Sato, “First-principles calculations for attosecond electron dynamics in solids”, *Comput. Mater. Sci.* 194, 110274 (2021)

22. S. Aeschlimann, S.A. Sato, R. Krause, M. Chávez-Cervantes, U. De Giovannini, H. Hübener, S. Forti, C. Coletti, K. Hanff, K. Rossnagel, A. Rubio, I. Gierz, “Survival of Floquet–Bloch States in the Presence of Scattering”, *Nano Lett.* 21, 5028 (2021).
23. S.A. Sato, A. Rubio, “Nonlinear electric conductivity and THz-induced charge transport in graphene”, *New J. Phys.* 23, 063047 (2021).
24. S. Latini, D. Shin, S.A. Sato, C. Schäfer, U. De Giovannini, H. Hübener, A. Rubio, “The ferroelectric photo ground state of SrTiO₃: Cavity materials engineering”, *PNAS* 118 e2105618118 (2021).
25. D. Shin, S. Latini, C. Schäfer, S.A. Sato, U. De Giovannini, H. Hübener, A. Rubio, “Quantum paraelectric phase of SrTiO₃ from first principles”, *Phys. Rev. B* 104, L060103 (2021).
26. G. Albareda, K. Lively, S.A. Sato, A. Kelly, A. Rubio, “Conditional Wave Function Theory: A Unified Treatment of Molecular Structure and Nonadiabatic Dynamics”, *J. Chem. Theory Comput.* 17, 7321 (2021).
27. S.A. Sato, “Two-step Brillouin zone sampling for efficient computation of electron dynamics in solids”, *J. Phys.: Condens. Matter* 34, 095903 (2021).
28. U. De Giovannini, S. A.Sato, H. Hübener, A. Rubio, *J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom.* “First-principles modelling for time-resolved ARPES under different pump–probe conditions”, *Spectrosc. Relat. Phenom.* 254, 147152 (2021).
29. S.A. Sato, “First-principles calculations for transient absorption of laser-excited magnetic materials”, *Electronic Structure*, Volume 4, Number 1(2022).
30. 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”, *Phys. Rev. Mater.* 6, 025001 (2022).
31. J. Haruyama, S. Takagi, K. Shimoda, I. Watanabe, S. Sodeyama, T. Ikeshoji, and M. Otani, “Thermodynamic analysis of Li-intercalated graphite by first-principles calculations with vibrational and configurational contributions”, *Journal of Physical Chemistry C* 15, 27891 (2021).
32. 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 (2022).

B) 査読無し論文

1. 山田篤志, 「光・分子動力学統合の計算化学の開発: 金属の光応答を記述する分子シミュレーション」, The Molecular Simulation Society of Japan[分子シミュレーション学会誌] アンサンブル, vol.24, No.1, 39-44 (2022)

(2) 国際会議発表

A) 招待講演

1. Kazuhiro Yabana, “Ab initio description of ultrafast dynamics in solids”, CLEO Europe, Online, Jun. 21 (2021)
2. Atsushi Yamada and Kazuhiro Yabana, “Electron and Phonon Dynamics in Nonlinear Optics by Multiscale First-Principles Simulation”, International Conference: Advanced Laser Technologies, Online, Sep. 7 (2021)
3. Kazuhiro Yabana, “Time-dependent density functional theory for extremely nonlinear optics”, International Conference: Advanced Laser Technologies, Online, Sep. 7 (2021)
4. Kazuhiro Yabana, “Real-time TDDFT coupled with Maxwell equations for light-propagation through thin films”, Theory days on New computational methods for electron dynamics Toulouse+Online Nov. 24-26, 2021
5. Kazuhiro Yabana, “Ab Initio Simulations of Ultrafast Phenomena in Solids: State of the Art and Challenges”, First Int. Conf. on Scientific Opportunities with Advanced Attosecond Lasers Dongguan, China and online Jan. 15-18, 2022
6. Atsushi Yamada, “First-principles calculations of initial stage of laser damage”, The 22nd International Symposium on Laser Precision Microfabrication (LPM2021), online, June 8 to June 11, (2021)
7. Shunsuke A. Sato, “Theoretical study on attosecond electron dynamics in solids”, 2021 P-COE Workshop, Augst 19, 2021; DGIST Korea/Online

B) 一般講演

1. T. Takeuchi and K. Yabana, “Large Third-Order Nonlinear Optical Effect Induced by Plasmonic Metasurface with Sub-nm Gaps”, EG-P.9, CLEO/Europe-EQEC 2021, online, Jun. 25, 2021.
2. S. Yamada and K. Yabana, “First-principles calculations for determining the thickness to maximize HHG efficiency of laser-irradiated nano films”, CG-P.21, CLEO/Europe-EQEC 2021, online, Jun. 24, 2021.

3. Atsushi Yamada "Terahertz generation spectroscopy by Maxwell + MD multiscale simulation", CCSSymposium, online, Oct.8(2022-10)
4. H. Ni, S. Brennecke, X. Gao, P.L. He, S. Sonza, I. Brezinova, F. He, J. Wu, M. Lein, X.M. Tong and J. Burgdorfer, "Noadiabatic Subcycle Linear Momentum Transfer in Tunneling Ionization", 32nd International Conference on photonic, electronic and atomic collision, July 20-23, 2021(online).
5. T. Okumura, T. Azuma, D.A. Bennet, P. Caradonna, I. Chiu, W.B. Doriese, M.S. Durkin, J.W. Fowler, J.D. Gard, T. Hashimoto, R. Hayakawa, G.C. Hilton, Y. Ichinohe, P. Indelicato, T. Isobe, S. Kanda, D. Kato, M. Katsuragawa, N. Kawamura, Y. Kino, K.M. Kubo, K. Mine, Y. Miyake, K.M. Morgan, K. Ninomiya, H. Noda, G.C. O'Neil, S. Okada, K. Okutsu, T. Osawa, N. Paul, C.D. Reintsema, D.R. Schmidt, K. Shimomura, P. Strasser, H. Suda, D.S. Swetz, T. Takahashi, S. Takeda, S. Takeshita, M. Tampo, H. Tatsuno, X.M. Tong, Y. Ueno, J.N. Ullom, S. Watanabe, and S. Yamada, "High resolution measurement of electronic K x rays from muonic atoms in metal", 32nd International Conference on photonic, electronic and atomic collision, July 20-23, 2021(online).
6. XM Tong, "Exchange-correlation functional with self-interaction corrections for many-atom systems", 32nd International Conference on photonic, electronic and atomic collision, July 20-23, 2021(online).
7. B. Yilmaz, I. Alpaslan, M. Otani, T. Ishihara, T. Akbay, "Computational investigation of Li-ion adsorption on charged graphene", 240th ECS meeting, online, October 10, 2021.
8. I. Alpaslan, B. Yilmaz, M. Otani, T. Ishihara, T. Akbay, "computational investigation of electric field driven Lithium intercalation into bilayer graphene", 240th ECS meeting, online, October 10, 2021
9. S. Hagiwara and M. Otani, "Bias-dependent H₂O-monomer diffusion on metal surfaces through the ab initio density functional theory calculations", Materials Research Meeting 2021, online, December 13, 2021.

(3) 国内学会・研究会発表

A) 招待講演

1. 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」レーザー学会東京支部セミナー 東海大学+オンライン 2021 年 12 月 17 日
2. 大谷実、「第一原理計算と溶液理論の融合による電気化学反応シミュレーション：電池材料や腐食への応用」、第 78 回固体イオニクス研究会、オンライン、2021 年 7 月 28 日

B) その他の発表

1. 山田篤志、「Maxwell+ 分極力場 MD マルチスケールシミュレーションの開発と DCMBI 結晶の瞬間誘導ラマン散乱誘起テラヘルツ波発生プロセスの解析」、第 23 回理論化学討論会、オンライン、2021 年 5 月
2. 山田篤志、矢花一浩、「低-高強度短パルス光照射に対する金属・半導体・絶縁体の光学応答変化の第一原理計算に基づく解析」、日本物理学会、オンライン、2021 年 9 月 23 日
3. 山田篤志、「電子の古典的運動を取り入れた金属力場モデルの開発：分子シミュレーションによる金属ナノ粒子の光吸収とエネルギー緩和」、第 15 回分子科学討論会、オンライン、2021 年 9 月 20 日
4. D. Freeman、山田俊介、山田篤志、A. Kheifets、矢花一浩、「半導体からの高次高調波発生の第一原理計算：パルス形状・原子配置依存性に関する分析」、日本物理学会 2021 年秋季大会（オンライン）、2021 年 9 月 23 日
5. 竹内嵩、矢花一浩、「金属ナノ構造の非線形光学応答解析 —有効 Schrödinger 方程式に基づく数値解析法の開発—」、第 82 回応用物理学会秋季学術講演会（オンライン）、2021 年 9 月 12 日
6. 山田篤志、「自由電子の古典的運動を組み込んだ金属力場モデルの開発：水溶液中ナノ粒子の光吸収とエネルギー緩和」溶液化学シンポジウム、オンライン、2021 年 10 月 29 日
7. 山田篤志、「金属内自由電子の古典ダイナミクスを組み込んだ分子シミュレーションの開発：水溶液中ナノ粒子の光吸収とエネルギー緩和」、分子シミュレーション討論会、岡山大学、2021 年 12 月 1 日
8. 山田篤志、「金属内自由電子の古典的運動方程式を組み込んだ分子シミュレーションの開発：水溶液中ナノ粒子の光吸収とエネルギー緩和」、日本化学会第 102 春季年会、オンライン、2022 年 3 月 24 日
9. 吉田智大、竹内嵩、矢花一浩、「ランダムメタ表面の光学応答の FDTD 法に基づく解析」、第 69 回応用物理学会春季学術講演会、オンライン、2022 年 3 月 24 日
10. 張潤南、前島展也、日野健一、「フロケットポロジカル半金属におけるレーザー誘起ディラック分散とワイルノード II」、日本物理学会 2021 年秋季大会、オンライン開催)
11. 前島展也、日野健一、「サイト依存ポテンシャル下の $S=1/2$ スピン梯子系における多トリプロン状態」、日本物理学会 2021 年秋季大会、オンライン開催)
12. 張潤南、前島展也、日野健一、「レーザー誘起バンド間共鳴遷移によるフロケットポロジカル半金属物質の創成および表面状態の解析」、日本物理学会第 77 回年次大会、オンライン開催)

13. 前島展也, 日野健一, “サイト依存ポテンシャル下の $S=1/2$ スピン梯子系における多トリプロン状態 II”, 日本物理学会第 77 回年次大会, オンライン開催)
14. 小泉裕康, “ロンドンモーメントに現れる電子の質量とベリー接続”, 日本物理学会 第 76 回年次大会(オンライン, 3.12-15)
15. 石川亜留都, 小泉裕康, “スピン渦誘起ループ電流量子ビット: 電流によるゲート操作シミュレーション”, 日本物理学会 第 76 回年次大会(オンライン, 3.12-15)
16. 守尾直輝, 石川亜留都, 小泉裕康, “銅酸化物高温超伝導対の表面バルク 2 層モデルを使った ARPES シミュレーション” 日本物理学会 2021 年秋季大会 (オンライン, 9/20-13)
17. 石川亜留都, 小泉裕康, “スピン渦誘起ループ電流量子ビット: 量子ドットの利用” 日本物理学会 2021 年秋季大会 (オンライン, 9/20-13)
18. 小泉裕康, “粒子数を保存するボゴリューボフ変換による超伝導理論: アンドレーフ反射 とジョセフソン効果についての考察” 日本物理学会 2021 年秋季大会 (オンライン, 9/20-13)
19. 佐藤駿丞, M. Lucchini, G.D. Lucarelli, B. Moio, G. Luca Dolso, G. Inzani, R. Borrego-Varillas, F. Frassetto, L. Poletto, H. Hübener, U. De Giovannini, M. Nisoli, A. Rubio, 「固体 MgF_2 におけるアト秒励起子ダイナミクスの理論的解析」, 日本物理学会第 2021 年秋季大会(オンライン), 2021 年 9 月 23 日
20. Shunsuke A. Sato, 「Theoretical study on nonlinear transport in graphene under optical-driving and dissipation」, 日本物理学会第 77 回年次大会(オンライン), 2022 年 3 月 19 日
21. 佐藤駿丞, 「レーザー励起された磁性体の過渡光学応答第一原理計算」, 日本物理学会第 77 回年次大会(オンライン), 2022 年 3 月 15 日
22. 萩原聡, 「3D-RISM 法による粘土鉱物の層間カチオンの水和・吸着構造の研究」, 「富岳」成果創出加速プログラム 富岳」電池課題 第 2 回公開シンポジウム (成果報告会), 2022 年 3 月 11 日
23. 黒田文彬, 深澤太郎, 三宅隆「クラスター展開法による fcc Ni の遍歴磁性へのアプローチ」, 日本物理学会第 77 回年次大会, オンライン開催, 2022 年 3 月 16 日

(4) 著書、解説記事等

1. K. Yabana, T. Takeuchi, M. Uemoto, A. Yamada, S. Yamada, “Ab initio computational approach for nanophotonics based on time-dependent density functional theory”, Progress in Nanophotonics 6, pp 103-133, (2021), Springer International Publishing
2. 萩原聡、大谷実 (2021). 第 I 編 第一章 第一原理計算による電池固液界面の理論計算, 森分博紀 (監修), AI・MI・計算科学を活用した蓄電池研究開発動向 R&D Trends

on Batteries Materials and Devices using AI/ML/Computational Science, (株) シーエムシー・リサーチ, pp. 3-14, ISBN 978-4-910581-05-7.

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）

1. 光科学第一原理ソフトウェア SALMON の開発にあたり、高性能計算システム研究部門の朴教授、額田教授と研究協力を行っている(矢花、他)。
2. 自然言語フォーラムを主宰し、量子コンピュータのキラーアプリとして自然言語処理と生成文法としての自然言語に関する情報交換、勉強会を月一回行っている(小泉)。1月31日第2回定期ミーティングで「量子論、論理、計算科学」、2月28日第3回定期ミーティングで「量子情報、自然言語処理、普遍文法」という講演を行った。

産学官連携

1. 矢花：株式会社住友金属鉱山と、SALMON を用いたメタ表面の光応答に関する学術指導を行った。
2. 大谷：クニミネ株式会社に対し、粘土鉱物の第一原理計算に関する学術指導を行い、学術論文を共同で出版した。
3. 大谷：トヨタ自動車株式会社と有機高分子の金属表面上での電気化学酸化反応制御に関する共同研究をおこなった。
4. 大谷：第日本塗料株式会社と金属材料の腐食に関する共同研究をおこなった。
5. 大谷：一般社団法人電気化学界面シミュレーションコンソーシアムの代表理事を務め、運営を行った。
6. 大谷：東京大学物性研究所のソフトウェア開発・高度化プロジェクトに採択され、当部門で開発している ESM-RISM 法の高度化・高速化を行った。
7. 矢花：量子科学技術研究開発研究機構関西光科学研究所の研究者と、JST-CREST 研究に基づき SALMON の開発と応用に関わる共同研究を行った。

国際連携・国際活動

1. 矢花：アト秒光科学に関し、グラーツ工科大学、マックスプランク量子光学研究所、アリゾナ大学の実験グループと共同研究を行っている。
2. 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の理論研究者と実施している。

3. 矢花：H2020-MSCA-RISE(欧州の国際交流プロジェクト)による光と物質の相互作用に関する理論と計算に関わる国際ネットワーク形成プロジェクト ATLANTIC に基づく国際共同研究を行っているが、今年度はコロナ禍のため活動が休止していた。

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、大阪大学コンピューショナル・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。また、高度情報科学技術研究機構の支援のもと、京都大学学術メディア総合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

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：筑波大学全学計算機システム 3D サテライトの管理
3. 前島：（学内）応用理工学類 2 年クラス担任、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（後期）世話人

10. 社会貢献・国際貢献

1. 矢花一浩（プレスリリース）、“「富岳」を用いた 1 万超の原子を含むナノ物質の超高速光応答シミュレーションに成功”、筑波大学、神戸大学、科学技術振興機構（2022.1.6）

11. その他

特になし