

IV. 量子物性研究部門

1. メンバー

教授	矢花 一浩
准教授	小泉 裕康、全 暁民
講師	前島 展也
助教	佐藤 駿丞
研究員	山田 篤志、山田 俊介、竹内 嵩、廣川 祐太 (~2020.9)、 Arqum Hashmi (~2020.4)、金谷 和至
学生	大学院生 2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が、特に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質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。

これらの計算科学研究に加えて、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。SALMON は計算機科学者との協力のもと、来年度より本格稼働が始まる富岳を含む様々なプラットフォームで最適化されている。

国内外の研究機関との共同研究も、特にアト秒科学を始めとして活発に進めている。また佐藤助教は国際テニュアトラック助教としてマックスプランク物質構造動力学研究所に長期滞在し、研究を進めている。

3. 研究成果

【1】光物質科学分野の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)、廣川、朴)

パルス光と物質の相互作用を、物質科学の第一原理計算法の一つである時間依存密度汎関数理論(TDDFT)に基づき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、同年11月にv.1を公開したが、この時点では、筑波大と分子研で開発を行ってきたコードが内部に共存するものであった。2020年7月に、v.2を公開した。このバージョンで、コード内部は全面的に書き直され、孤立系(分子・ナノ粒子)から周期系(結晶)まで統一的に扱えるものとなった。これにより、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を整えられた。

2021年度より、世界一位の能力を持つ「富岳」の稼働が始まるが、SALMONはすでに富岳への対応を十分と進めており、2019年度末の段階で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示している。またSALMONは、過去にGPU対応していた時期があったが現在のv.2はGPUを利用することができない。そこで本年度、コードの維持発展が容易なOpenACCを用いたGPU化に取り組み、時間発展計算の基本部分に関するGPU化が完了した。来年度さらに、基底状態計算、スピン軌道力を含んだ計算、及びMPIとGPUを用いたハイブリッドな並列加速計算が可能となるよう、コードの改良を進める計画である。

SALMONの利用促進に向けた取り組みとして、ウェブページの改修を行うとともに利用方法に関するビデオを作成し、YouTubeに掲載した。SALMONを普及する活動として、9月と3月に大阪大学が実施するコンピューショナル・マテリアルズ・デザインワークショップにおいて、また2月には高度情報科学技術研究機構のサポートのもと大阪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。

【2】グラファイトの非線形光応答(矢花、植本(神戸大工))

グラファイトの単層膜であるグラフェンは光科学の分野でも様々な応用が期待されているが、その可飽和吸収特性はモード同期レーザー素子としてすでにデバイス応用がなされている。またグラファイトを用いた炭素繊維は軽量で高強度な材料となるが加工が難しく、高強度レーザーを用いたレーザー加工が有効である。このような高強度パルスレーザーとグラファイト薄膜(グラフェン多層膜)の相互作用を原子レベルから理解するため、SALMONを用いた解析を行い、その結果を論文に発表した。この研究は、神戸大学の研究者、及び炭素材料の加工や可飽和吸収の応用に関する実験を行っているIHI社の研究者と共同で行った。

図1に、様々な電場強度とパルス長を持つパルス電場をグラファイトの単位セルに印加した時に起こる電子励起エネルギーを示している。電場強度が $0.01\text{V}/\text{\AA}$ から $1\text{V}/\text{\AA}$ に至る間では、電場から電子へのエネルギー移行がパルス長を長くしても増加しないことがわかる。このようにして、SALMONを用いた第一原理計算により、グラファイトで可飽和吸収が起こる条件を非経験的に特定することに成功した。さらに光電磁場の伝搬と電子ダイナミクスを同時に解き進める計算方法を用いることで、可飽和吸収が起きる際にパルス光が内部まで強度を失わずに到達する様子を示した。このような知見は、炭素素材のレーザー加工の初期過程を理解する上で有益な情報を与えている。

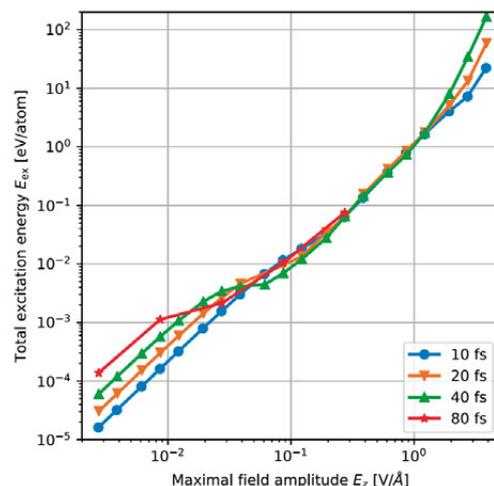


図 1: グラファイト単位セルにパルス

【3】時間依存密度汎関数理論における金属の光応答に対する電子-格子相互作用の影響(山田(篤)、矢花)

TDDFT を用いたこれまでの研究の多くはバンドギャップのある誘電体の光応答であったが、今度はアルミニウム金属に対する研究に着手し、最初の段階としてまず弱い光を用いた線形応答による誘電関数を検討した。通常は完全な結晶構造の系にデルタ関数型の電場を与えて起こる電子ダイナミクスから誘電関数を得るが、金属の $\omega = 0$ eV 周辺の広い幅のスペクトルを再現することができない。金属内の古典電子モデル等によればこれは電子とイオンの衝突に由来しており、誘電関数の再現のためにはその効果を取り入れる必要がある。図 2 に示されているように、温度効果としてイオン配置を結晶構造からランダムに変位させたスーパーセルの系の計算を行うと、 $\omega = 0$ 周辺の幅が再現できることが得られた。結晶構造からのランダムな変位によりバンド間遷移のエネルギーがシフトした不均一広がりによる幅広いスペクトルを再現したためである。これにより TDDFT における電子-格子の相互作用の理解が深まり、その光応答への影響を検証することができた。バンドギャップのある系や光励起後の伝導帯電子に対する計算が進行中であり、これらの比較から電子-格子相互作用の基礎的な議論を展開した。

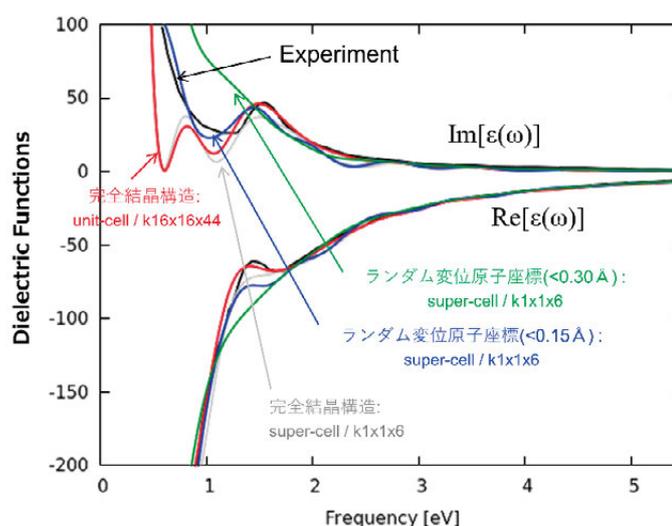


図 2: TDDFT に原子位置の変位（温度効果）を取り入れて計算したアルミニウムの誘電関数

【4】Maxwell+分極力場 MD 法を用いた瞬間誘導ラマン散乱誘起テラヘルツ波発生の解析(山田(篤))

昨年度は、Maxwell 方程式と TDDFT 法とをマルチスケール法の枠組みで融合した SALMON 独自の計算手法のアイデアを、分子科学分野で広く用いられている分子シミュレーションへと技術転用して構築した Maxwell+分極力場 MD 法の開発を行った。これは分子力場ポテンシャルモデルに基づくいわゆる古典 MD(分子動力学)法と Maxwell 方程式(光)とを統合したシミュレーションであり、静電場に対する分子上の電荷分布の再配置(電子分極)を記述することのできる分極力場を応用することにより実現した。今年度は本手法を、有機分子結晶(5,6-dichloro-2-methylbenzimidazole, DCMBI)を用いた瞬間誘導ラマン散

乱 (ISRS) 誘起のテラヘルツ波発生へと適用し、その分光プロセスの解析を行った。第一原理計算に比べて計算コストが圧倒的に安価であるため、複雑な系に対しテラヘルツ分光のようなピコ秒を超える分光測定の記事が可能になった。本シミュレーションにより、可視光パルスで誘起されるラマン活性のコヒーレントフォノンの発生、赤外活性の分子振動からのテラヘルツ波放射、位相整合条件を満たしたテラヘルツ波の増幅といった一連のプロセスを詳細に記述するとともに、テラヘルツ放射を特徴づける分子運動を明らかにした。これらの解析を通じ本計算手法のテラヘルツ分光での有効性を実証した。

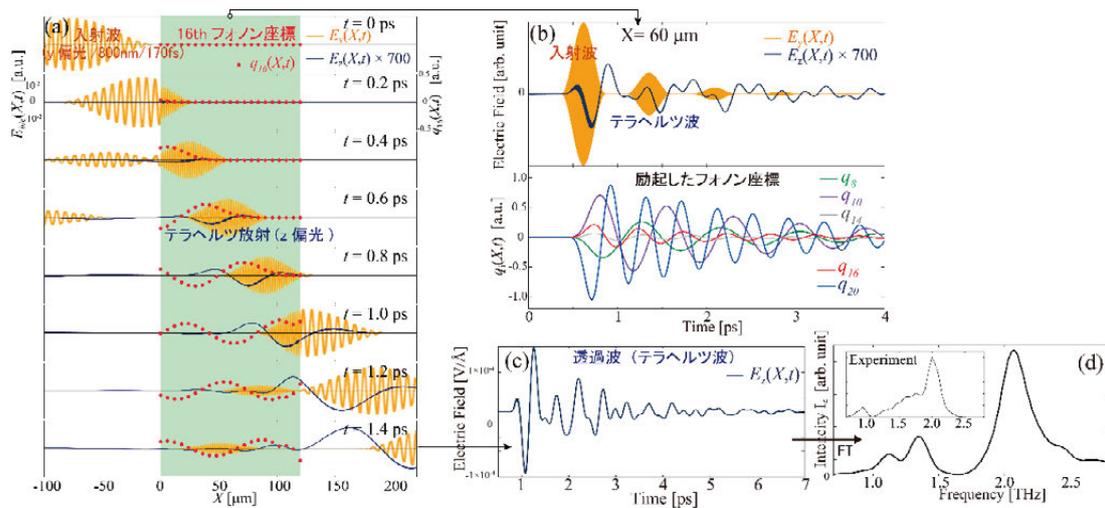


図 3: 誘起テラヘルツ波発生実験のシミュレーション結果: (a) 近赤外入射パルス、テラヘルツ放射波、16 番目のフォノン座標、(b) $X=60\mu\text{m}$ における電場および励起したフォノン座標、(c) 透過波 (テラヘルツ波)、(d) (c)のスペクトル (挿入図は実験測定データ)

【5】 ナノ薄膜における高次高調波発生の第一原理計算 (山田 (俊)、矢花)

高次高調波発生は、高強度パルス光と物質の相互作用で最も興味深い非線形現象であり、アト秒科学の創生など基礎科学を進展させるとともに、コンパクトな X 線源などへの応用が期待されている。最近 10 年間は、すでに多くの研究がなされている気相物質 (原子や分子) に加え、固体や 2 次元薄膜など凝縮系からの高次高調波発生に高い関心が持たれている。高密度な物質である固体からは、高強度な高次高調波の発生が期待されるが、どのような厚さの物質からどの程度の強度の高次高調波が発生するのか、また透過波と反射波に含まれる高次高調波はどのように違うのかといった基本的な性質すら良く理解されていないのが現状である。

我々は SALMON を用いて、最も単純な物質であるシリコンの薄膜からの高次高調波

発生 (HHG) の膜厚依存性、特に高次高調波を最大化する膜厚を調べた。³⁾薄膜に高強度パルス光を照射した際に観測される反射波及び透過波に含まれる高次高調波は、薄膜中における光伝搬の効果により、バルク中の微視的な HHG 信号から大きく変調を受ける。また、極めて薄い薄膜においては電子状態の表面効果による HHG の変調が顕著になると考えられる。そこで我々は、電子系の表面効果と光伝搬の効果を統一的に記述可能な微視的 Maxwell-TDDFT 法を用いて Si 薄膜の HHG に関する第一原理計算を行った。さらに、表面電子状態の効果や光伝搬の効果を探るため、巨視的 Maxwell-TDDFT 法、Maxwell 方程式に対する 2 次元近似の方法などを用い、結果を比較した。図 4 に、反射波・透過波に含まれる 3 次から 9 次の高次高調波成分の膜厚依存性を示した。表面効果が重要となる膜厚の小さい領域では微視的 Maxwell-TDDFT 法 (赤)、膜厚の大きい領域では表面効果を見逃した巨視的 Maxwell-TDDFT 法 (青) を用いている。この膜厚依存性は線形領域での透過率と概ね相関しており、前面・裏面における基本波の強度が反射・透過 HHG の強度を決定していることが明らかになった。また、高次高調波を最大化する膜厚は概ね 2 から 15nm 程度であり、Maxwell 方程式を 2 次元近似する理論を用いて、この高次高調波の強度が最大となる膜厚を、バルク伝導率の値から理解することに成功した。

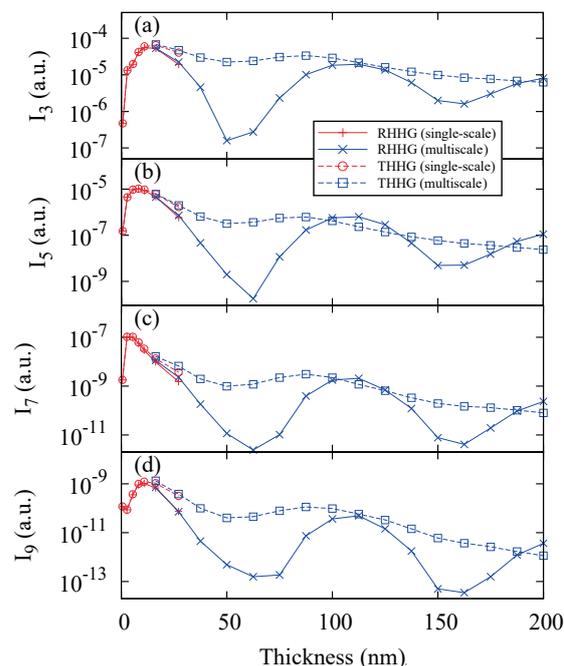


図 4: シリコン薄膜に 1.5eV のパルス光を照射した時に反射波・透過波に発生する高次高調波の膜厚依存性。

【6】アト秒過渡吸収分光における結晶対称性に関する研究（山田（俊）、矢花）

多くの固体におけるアト秒過渡吸収分光ではポンプ光の2倍の振動数に対応する信号が観測されるが、一部の固体ではその他の振動数も確認されている。本研究ではアト秒過渡吸収分光で観測される振動と結晶対称性の関係を明らかにするために、理論的解析と第一原理計算による検証を行った。固体におけるポンプ光照射下の伝導率テンソルを解析した結果、波動関数の結晶対称性に対する依存性が伝導率の振動特性を決定することが明らかになった。特に反転対称性または鏡映対称性を持つ結晶では2倍の振動数となることが予測され、多くの実験結果と整合している。また、N回回転対称な結晶では円偏光のポンプ光に対してN倍の振動数の信号が予想されることがわかった。実際にポンプ・プローブ実験を模擬した第一原理計算を4H-SiC結晶に対して実施したところ、理論的予測を裏付ける結果が得られた。

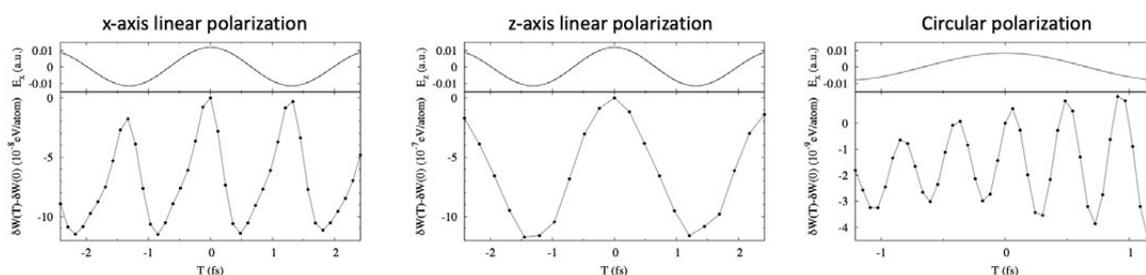


図 5: 4H-SiC における過渡吸収（プローブ光の吸収エネルギー）の第一原理計算。左から順に鏡映対称の場合（直線偏光）、対称性の無い軸の場合（直線偏光）、6回回転対称の場合（円偏光）に対応している。

【7】サブ nm ギャップを持つプラズモニックメタ表面の非線形光学応答（竹内、矢花）

金属ナノ粒子を二次元的に周期配列した薄膜であるメタ表面は、粒子の素材・形状から決まる特異かつ幅広い光物性を発現する。メタ表面を構成する金属ナノ粒子間の距離(ギャップ)を縮めることで、光はギャップに局在して増強し、より特異な光物性を発現する。特にこの2-3年、実験系で自己組織化により1nm以下(サブ nm)のギャップを持つメタ表面が作成され、高い非線形光学応答の発現から基礎科学的にも応用的にも注目を集めている。しかし一方、このようなサブ nm の空間スケールでは量子力学的効果が顕著に

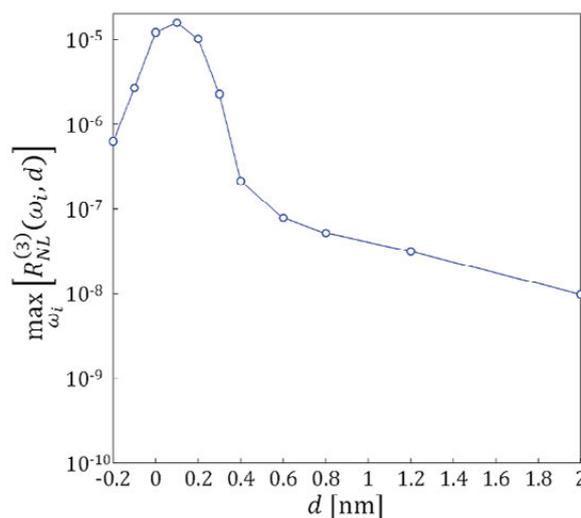


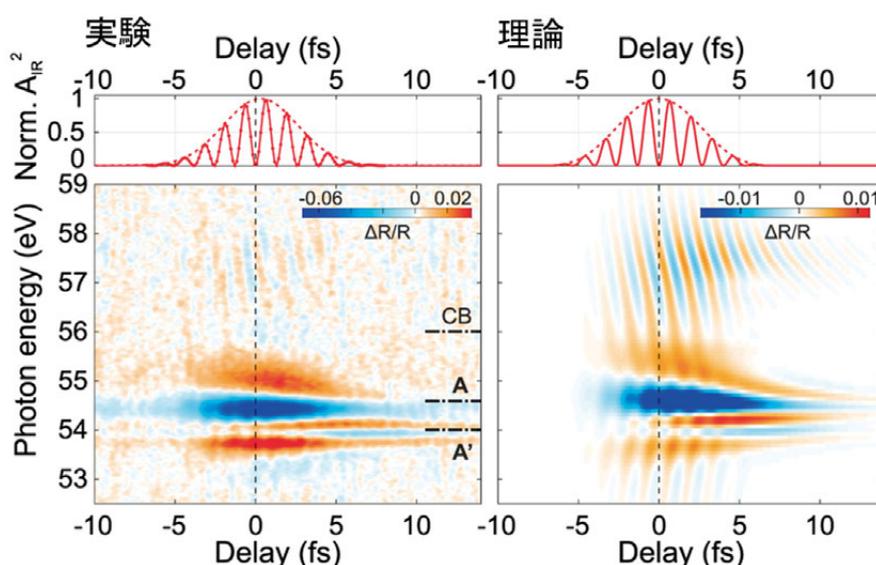
図 6: サブ nm ギャップを持つメタ表面の3次非線形反射率

表れ、古典電磁気学だけにに基づく従来の理論計算が破綻する。そのため、サブ nm のギャップを持つメタ表面に対する理論研究は難航しており、その発現する光物性については上記の一部の実験により氷山の一角が明らかにされたのみだった。

そこで我々は SALMON を用い、量子力学的効果がメタ表面の非線形光学応答に及ぼす影響を明らかにした。図 6 では、横軸はギャップ d 、縦軸は 3 次の非線形反射率 $R_{NL}^{(3)}$ を示す。この図より、 $R_{NL}^{(3)}$ はギャップ 0.6nm までは単調増加することが分かる。この増加傾向は、ギャップでの強い光増強に起因するものであり、実験系の先行研究とも定性的に一致する。一方、ギャップ 0.4nm 未満の領域では、 $R_{NL}^{(3)}$ は急激に上昇し、特にピークとなるギャップ 0.1nm では 0.6nm に比べ約千倍高い $R_{NL}^{(3)}$ が得られている。ここでの増加傾向は、ギャップでの光増強だけでは説明できず、金属ナノ粒子間を流れるトンネル電流が持つ高い非線形性に起因する。このような高い非線形効果は、光情報素子の高効率化に役立つため、応用面において大いに期待できる。本成果は国際誌 Scientific Reports 誌に掲載された。

【8】光が誘起する超高速励起子ダイナミクスの理論的解析(佐藤)

我々は、光が固体物質中に誘起する超高速な電子ダイナミクスの微視的機構の解明に取り組んでいる。本研究では、ミラノ工科大のアト秒実験グループとの共同研究により、近赤外フェムト秒レーザーが固体 MgF_2 に誘起する超高速な励起子のダイナミクスについて調べた。実験では、アト秒過渡反射分光と呼ばれる時間分解分光手法を固体 MgF_2 に適用することで、赤外フェムト秒レーザーが引き起こす反射スペクトルの変化を調べた。実験によって得られた過渡反射スペクトルを図 7(左部)に示した。赤外フェムト秒レーザーが固体 MgF_2 の励起子ピーク(55eV)近傍で超高速に反射スペクトルを変調していることが明らかとなった。さらに、この過渡反射スペクトルを Wannier-Mott 模型に基づく量子ダイナミクス計算により解析したところ(図 1 右部)、光が誘起する励起子ダイナミクスにおいて、(i)励起子の離散エネルギー構造(原子的描像)に由来する比較的遅いフェムト秒の光学応答と(ii)電子-正孔の連続エネルギー構造(固体的描像)に由来するに速いアト秒の光学応答が共存していることが明らかとなった。本研究により明らかとなった励起子ダイナミクスにおける「原子的な描像」と「固体的な描像」の共存は、励起子を光制御するための新しい方法論を示唆するものであり、超高速光物性制御技術の基盤となるものである。本共同研究の成果は、論文”Unravelling the intertwined atomic and bulk nature of localised excitons by attosecond spectroscopy”として Nature Communications 誌より発表された。



Created by modifying “Nat. Commun.12, 1021 (2021)” (Licenced under CC BY 4.0)

図 7: 固体 MgF2 に対するアト秒過渡反射スペクトル。実験に用いられたフェムト秒パルスと誘起された反射スペクトル変化(左図)、及び理論計算結果(右図)が示されている。

【9】 グラフェンからの高次高調波発生の理論的解析 (佐藤)

近年、極限的な非線形光学現象として固体からの高次高調波発生が大きな注目を集めている。高調波発生は、光が物質に照射された際に入射した光の光子エネルギーの整数倍のエネルギーを持った光が放出される現象であり、高強度領域においては極限的な光のアップコンバージョン過程として新奇な光源開発の観点から精力的に研究が進められている。本研究では、固体からの高次高調波発生の微視的機構を解明するため、中赤外楕円偏光照射下においてグラフェンから発生する高調波を量子マスター方程式に基づく電子ダイナミクス計算により解析した。図 8(a)に、シミュレーションによって得られた 7 次高調波の発生強度の照射光楕円率依存性を示した。その結果、先行研究の実験[N. Yoshikawa, et al., Science 365, 736 (2017)]で報告されている楕円偏光による高調波発生の増強を再現することが出来た。さらに理論計算に基づく微視的な解析を行うことで、楕円偏光が引き起こすバンド内遷移とバンド間遷移が非線形に結合することで高次高調波発生が増強されていることが明らかとなった。また、グラフェンの化学ポテンシャルを変調することで、バンド内遷移・バンド間遷移の結合によって生じる非線形過程の干渉を制御し、高次高調波発生をさらに増強できる可能性を理論的に示した(図 8(b))。本研究成果は、固体高次高調波発生の微視的機構の理解を進展させるとともに、その新たな増強機構を提案するものである。本共同研究の成果は、論文”High-order harmonic generation in graphene: Nonlinear coupling of intraband and interband transitions”として Physical Review B 誌より発表された。

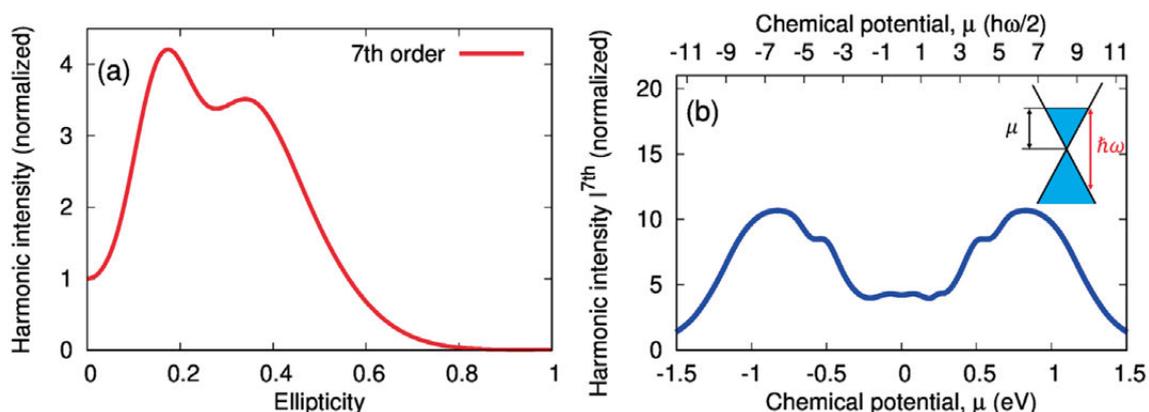


図 8: (a) グラフェンから発生する 7 次高調波強度の励起光楕円率依存性。(b) グラフェンから派生する 7 次高調波の化学ポテンシャル依存性。

【10】銅酸化物高温超伝導の機構解明から新しい超伝導度理論へ（小泉）

1986 年に発見された銅酸化物超伝導は現在の超伝導の標準理論では説明できず、現在もその機構解明が物理学の大問題の一つとして君臨している。銅酸化物超伝導を説明するためには、標準理論を超える理論が必要であるが、これまで問題がないとされてきた標準理論にも、実は、実験と大きな齟齬があることが明らかになってきた。それは、“磁場中で起こる可逆な超伝導-常伝導転移が標準理論では説明できない”という点と“回転している超伝導体内に存在する磁場から求められる電子の質量が自由粒子の質量であるのに対し、標準理論では固体内の有効質量になってしまう”という点である。この 2 つの齟齬は、我々が、銅酸化物超伝導の理論として構築した新しい超伝導理論により解決されることを示した[EPL 131, 37001 (2020); J. Supercond. Nov. Magn. <https://doi.org/10.1007/s10948-021-05827-9>]。

【11】新しい超伝導理論による粒子数を保存するボゴリューボフ・ドジャンヌ方程式の定式化と計算方法の開発（小泉）

新しい超伝導理論は、ベリー接続を超伝導で現れる位相変数とする理論である。現在の標準理論は粒子数を保存しない定式化が必要であるが、この理論では、粒子数を保存する定式化が可能である。この理論は、現在の標準理論を含み、その欠点を克服し、銅酸化物高温超伝導を解明する可能性のある理論である。その理論についてのレビューを発表した[J. Mod.

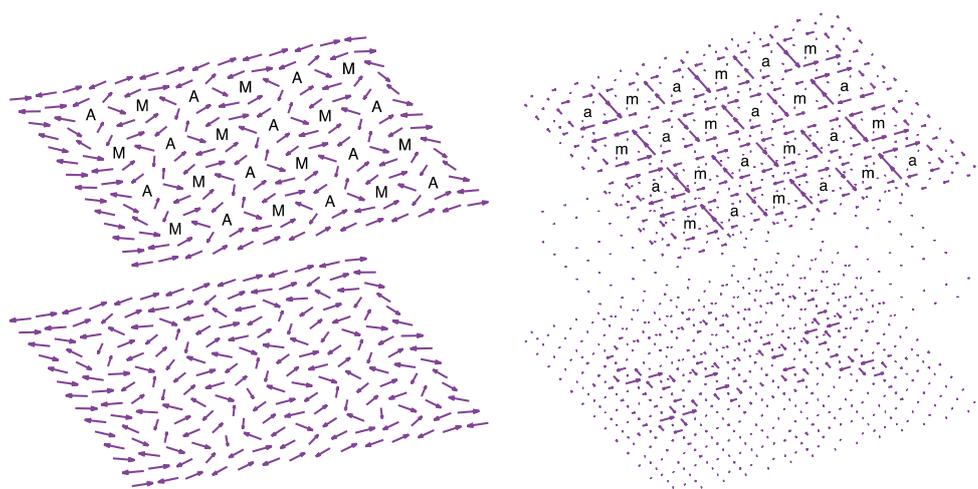


図9: (左) 銅酸化物に対するバルク-表面2層モデルのスピンの図。上がバルク層で下が表面層。表面層のスピンはバルク層に比べて、かなり小さいが、規格化して見やすくしてある。
(右) 2層モデルのスピนว誘起ループ電流の図。2層をつなぐ方向にも電流が生じる。

Phys. B 34, 2030001(2020)]. また、その理論に基づき、粒子数を保存するボゴリューボフ・ドジャンヌ方程式の定式化と計算方法を開発、および計算プログラムの作成を行った。以下にその計算例を示す(図9)。今後、これを利用し、銅酸化物超伝導の機構解明を進める。

【12】スピนว誘起ループ電流量子ビットの外部電流による制御（小泉、石川）

銅酸化物高温超伝導体にはナノサイズのループ電流、“スピนว誘起ループ電流”が CuO_2 面に存在している。このループ電流を量子ビットとする量子コンピューターの実現を目指している。我々は、このループ電流の量子状態は外部電流を使って制御が可能であるという結果を得た。そして、この状態変化を Landau-Zener の非断熱遷移の理論を利用し制御することにより、量子ビットとして使える可能性を見出した。以下にその計算例を示す(図10)。今後、量子ビットの読み出しを加えていく予定である。

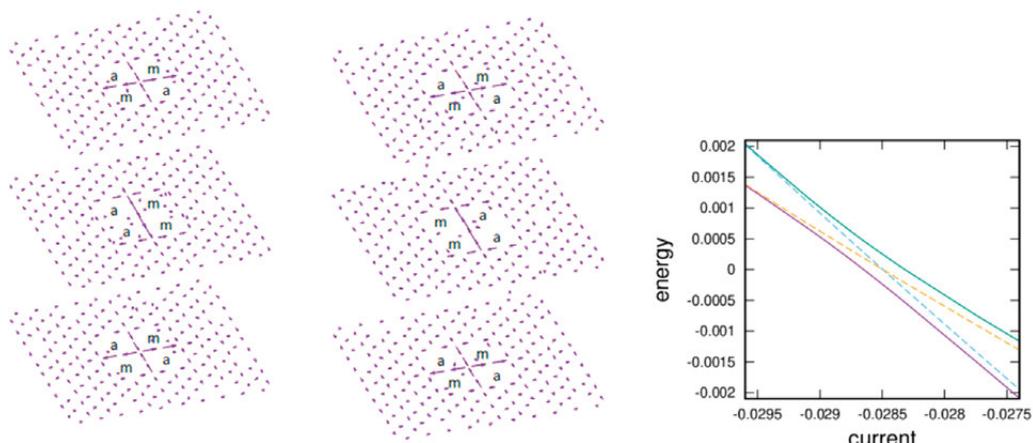


図 10: 3 層モデルで、2 層目のループ電流を量子ビットとして使用。“a”，“m”は、ループ電流の巻数がそれぞれ+1, -1 であることを示している。外部電流により左にある 2 つの状態間の非断熱遷移がおこる。

【13】 強レーザー場における Ar 原子異常な励起過程の研究 (全)

強レーザー場中に原子の励起確率はレーザー強度が強くなると、大きくなるのは一般的な理解である。最近の実験で異常な励起過程(励起確率は左図のように、振動している)を観測された。この現象は従来よく使われている強レーザー場の近似で、解釈できないである。その現象解明のために、我々は数値計算で、その現象を再現した(図 11)。さらに、

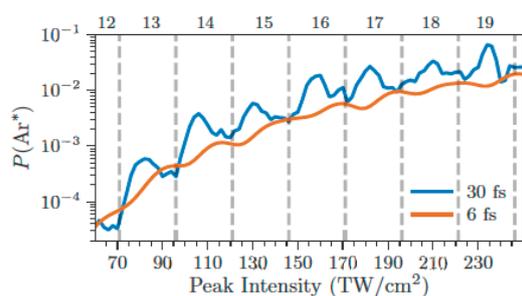


図 11: 全励起確率と強度の関係

最終励起状態を詳しく分析すると、Stark エネルギーの shift による、多光子共鳴の起用を明らかになった。短パルス(6fs)の場合は、レーザー光子エネルギーの分散が幅広いために、多光子共鳴の成分が小さいので、多光子共鳴の起用も少ないためである。計算結果は実験グループと国際共同研究の成果として、Phys. Rev. A に発表した。[Phys. Rev. A 101, 053402 (2020).]

【14】 強レーザー場における原子電離過程中的非双極子効果の研究 (全)

強レーザー場における原子電離過程は従来、双極子の近似で説明することができるが、最近、実験で、非双極子の効果も観測された。具体的には図 12 のように、双極子の近似では、レーザー進行方向とその逆方向の光電子の運動量分布が同じである。非双極子を考慮すると、この対称性が破れてしまう。光電子の運動量分布はレーザー進行方向の方が、大きくなっている。計算結果は国際共同研究の成果として、Phys. Rev. Lett. に発表した。[Phys. Rev. Lett. **125**, 073202 (2020).]

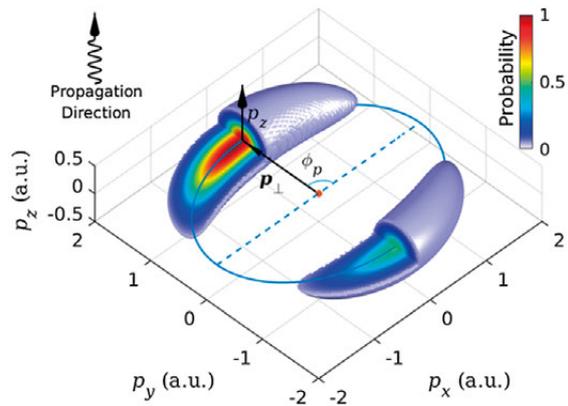


図 12: 楕円偏光強レーザー場の光電子運動量の分布。

【15】 トポロジカル物質におけるレーザー誘起状態の研究 (前島)

2次元量子井戸系におけるレーザー誘起トポロジカル状態制御について数値的解析を行った。2次元トポロジカル絶縁体として知られる量子井戸 HgTe/CdTe の電子状態を記述する理

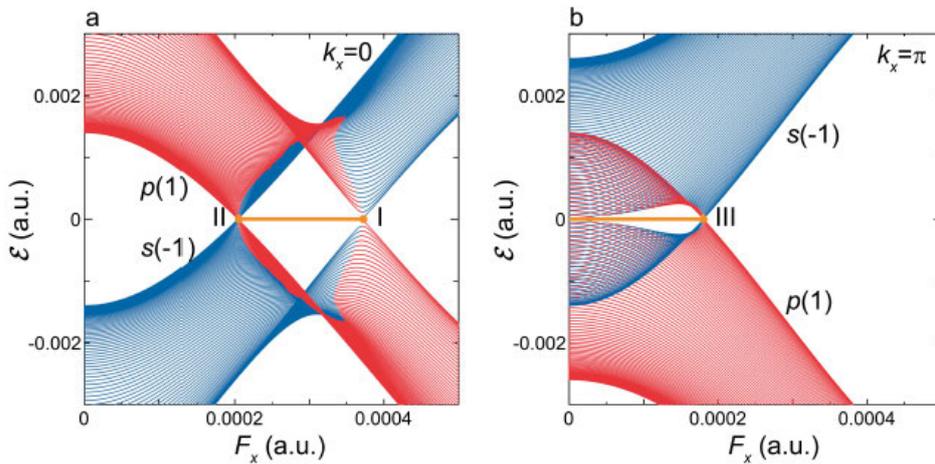


図 13: (a)波数 $k_x=0$ および(b)波数 $k_x=\pi$ におけるフロケバンドのレーザー電場 F_x 依存性

論模型である BHZ 模型に CW レーザーを照射した場合の電子状態・バンド構造をフーリエ・フロケ展開に基づく数値対角化により解析した。その結果、トポロジカルに自明な通常の絶縁体にレーザーを照射しレーザー強度を増加させるとフロケバンド間の準位交差が生じる領域ではレーザー誘起フロケトポロジカル絶縁体状態およびギャップレスなエッジ状態が現れることを見出した(図 13a,b)。また特定のレーザー強度ではギャップが消滅したフロケデ

イラック半金属状態となることも分かった。加えてエッジ状態が出現する波数領域はブリルアンゾーン中の分極分布の zero contour の存在する領域と一致することが分かったほか、さらに同系にスピン軌道相互作用スピン軌道相互作用を導入した模型でも同様の性質が維持されることを示した。

4. 教育

張 博源 (博士) Creation of Floquet Dirac semimetals in laser-driven semiconductor quantum wells

石岡 大樹 (修士 (工学)) スピン渦誘起電流モデルによるモンテカルロ法を用いた多層の銅酸化物超伝導体の研究

杉浦 大航 (修士 (理学)) 1次元周期ポテンシャル模型による高次高調波発生の分析

松下 宗永 (卒業論文) 2次元フロケットポロジカル状態に対する Sz 非保存型摂動効果：エッジ状態の解析

永野 史華 (卒業論文) 2次元フロケットポロジカル状態に対する Sz 非保存型摂動効果：チャーン数の解析

守尾 直輝 (卒業論文) 銅酸化物高温超伝導体の ARPES スペクトルの理論研究：フェルミアーークとキンク

小杉 怜 (卒業論文) 銅酸化物高温超伝導体に関する理論研究：フェルミアーークとフェルミポケットについて

5. 受賞、外部資金、知的財産権等

受賞

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 (2020 年度直接経費：35,260 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 (2020 年度直接経費：2,170 千円)
3. 共同研究経費、株式会社住友金属鉱山、「ナノ粒子の光応答／光制御」、矢花一浩、2019-2020 年度、全年度直接経費：3,659 千円 (2020 年度直接経費：2,750 千円)
4. 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 (2020 年度直接経費：4,600 千円)

5. 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 (2020 年度直接経費：400 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 (2020 年度直接経費：1,300 千円)

知的財産権

1. 情報処理装置、設計システム、設計方法及びプログラム 2021/2/25 出願 吉田智大、矢花一浩、竹内嵩

6. 研究業績

A) 研究論文

A) 査読付き論文

1. Takashi Takeuchi, Kazuhiro Yabana, "Extremely large third-order nonlinear optical effects caused by electron transport in quantum plasmonic metasurfaces with subnanometer gaps", *Scientific Report* **10**, 21270 (2020).
2. Shuta Kitade, Atsushi Yamada, Ikki Morichika, Kazuhiro Yabana, Satoshi Ashihara, "Nonlinear Shift in Phonon-Polariton Dispersion on a SiC Surface", *ACS Photonics* **8**, 152 (2020).
3. Shunsuke Yamada, Kazuhiro Yabana, "Symmetry properties of attosecond transient absorption spectroscopy in crystalline dielectrics", *Physical Review* **B101**, 165128 (2020).
4. Bárbara Buades, Antonio Picón, Emma Berger, Iker León, Nicola Di Palo, Seth L. Cousin, Caterina Cocchi, Eric Pellegrin, Javier Herrero Martin, Samuel Mañas-Valero, Eugenio Coronado, Thomas Danz, Claudia Drax, Mitsuharu Uemoto, Kazuhiro Yabana, Martin Schultze, Simon Wall, Michael Zürch, Jens Biegert, "Attosecond state-resolved carrier motion in quantum materials probed by soft x-ray XANES", *Applied Physical Review* **8**, 11408 (2021).
5. Atsushi Yamada, Kazuhiro Yabana, "Modulation of probe signal in coherent phonon detection revisited: Analytical and first-principles computational analyses", *Physical Review* **B101**, 214313 (2020).
6. M. Uemoto, S. Kurata, N. Kawaguchi, K. Yabana, "First-principles study of ultrafast and nonlinear optical properties of graphite thin films", *Physical Review* **B103**, 085433 (2021).

7. Atsushi Yamada, "Multiscale simulation of terahertz radiation process in benzimidazole crystal by impulsive stimulated Raman scattering", *The Journal of Chemical Physics* **153**, 244506 (2020).
8. Srijana Bhandari, Atsushi Yamada, Austin Hoskins, Jameson Payne, Huseyin Aksu, Barry D. Dunietz, "Achieving Predictive Description of Negative Differential Resistance in Molecular Junctions Using a Range - Separated Hybrid Functional", *Advanced Theory and Simulations* **4**, 200016 (2020).
9. H. Koizumi, "Possible Occurrence of Superconductivity by the π -flux Dirac String Formation Due to Spin-Twisting Itinerant Motion of Electrons", *Symmetry* **12**, 776 (2020).
10. H. Koizumi, "Reversible superconducting-normal phase transition in a magnetic field and the existence of topologically protected loop currents that appear and disappear without Joule heating", *EPL* **131**, 37001 (2020).
11. H. Koizumi, "London moment, London's superpotential, Nambu-Goldstone mode, and Berry connection from many-body wave functions", *Journal of Superconductivity and Novel Magnetism* (2021) .
12. T. Pauly, A. Bondy, K. R. Hamilton, N. Douguet, X. M. Tong, D. Chetty, and K. Bartschat, "Ellipticity Dependence of Excitation and Ionization of Argon Atoms by Short-Pulse Infrared Radiation", *Physical Review A* **102**, 013116:1-6 (2020).
13. H. C. Ni, S. Brennecke, X. Gao, P. L. He, S. Donsa, I. Brezinova, F. He, J. Wu, M. Lein, X.M. Tong, and J Burgdorfer, "Theory of Subcycle Linear Momentum Transfer in Strong-Field Tunneling Ionization", *Physical Review Letters* **125**, 073202:1-7 (2020).
14. G.S. Boltaev, R.A. Ganeev, N. A. Abbasi, M. Iqbal, V.V. Kim, H. Al-Harmi, X.M. Tong, and A.S. Alnaser, "Routes to Control Cooper Minimum in High Order Harmonics Generated in Argon Gas", *New Journal of Physics* **22**, 083031:1-9 (2020).
15. D. Chetty, R. D. Glover, B. A. deHarak, X. M. Tong, H. Xu, T. Pauly, N. Smith, K. R. Hamilton, K. Bartschat, J. P. Ziegel, N. Douguet, A. N. Luiten, P. S. Light, I. V. Litvinyuk, and R. T. Sang, "Observation of dynamic Stark resonances in strong-field excitation", *Physical Review A* **101**, 053402 (2020).
16. W.C. Jiang, X.M. Tong, R. Pazourek, S. Nagele, and J. Burgdorfer, "Theory of bound state coherences generated by optical attosecond pulses", *Physical Review A* **101**, 053435 (2020).
17. B. Zhang, N. Maeshima, K. Hino, "Edge states of Floquet-Dirac semimetal in a laser-driven semiconductor quantum-well", *Scientific Reports* **11**, 2952 (2021).

18. Chang-Ming Wang, Nicolas Tancogne-Dejean, Massimo Altarelli, Angel Rubio, and Shunsuke A. Sato, "Role of electron scattering on the high-order harmonic generation from solids", *Physical Review Research* **2**, 033333 (2020).
19. Jiaojian Shi, Edoardo Baldini, Simone Latini, Shunsuke A. Sato, Yaqing Zhang, Brandt C. Pein, Pin-Chun Shen, Jing Kong, Angel Rubio, Nuh Gedik, and Keith A. Nelson, "Room Temperature Terahertz Electroabsorption Modulation by Excitons in Monolayer Transition Metal Dichalcogenides", *Nano Lett* **20**, 5214 (2020).
20. S. A. Sato, U. De Giovannini, S. Aeschlimann, I. Gierz, H. Hübener and A. Rubio, "Floquet states in dissipative open quantum systems", *Journal of Physics B* **53**, 225601 (2020).
21. Yasuyuki Sanari, Hideki Hirori, Tomoko Aharen, Hirokazu Tahara, Yasushi Shinohara, Kenichi L. Ishikawa, Tomohito Otobe, Peiyu Xia, Nobuhisa Ishii, Jiro Itatani, Shunsuke A. Sato, Yoshihiko Kanemitsu, "Role of virtual band population for high harmonic generation in solids", *Physical Review B* **102**, 041125(R) (2020).
22. Umberto De Giovannini, Hannes Hübener, Shunsuke A. Sato, Angel Rubio, "Direct measurement of electron-phonon coupling with time-resolved ARPES", *Physical Review Letter* **125**, 136401 (2020).
23. Dongbin Shin, Shunsuke A. Sato, Hannes Hübener, Umberto De Giovannini, Noejung Park, Angel Rubio, "Dynamical amplification of electric polarization through nonlinear phononics in 2D SnTe", *npj Computational Materials* **6**, 182 (2020).
24. M. Nuske, L. Broers, B. Schulte, G. Jotzu, S. A. Sato, A. Cavalleri, A. Rubio, J. W. McIver, L. Mathey, "Floquet dynamics in light-driven solids", *Physical Review Research* **2**, 043408 (2020).
25. Shunsuke A. Sato, "First-principles calculations for attosecond electron dynamics in solids", *Computational Materials Science*. **194**, 110274 (2020).
26. Shunsuke A. Sato, Hideki Hirori, Yasuyuki Sanari, Yoshihiko Kanemitsu, Angel Rubio, "High-order harmonic generation in graphene: nonlinear coupling of intra and interband transitions", *Physical Review B* **103**, L041408 (2021).
27. Matteo Lucchini, Shunsuke A. Sato, Giacinto D. Lucarelli, Bruno Moio, Giacomo Inzani, Rocío Borrego-Varillas, Fabio Frassetto, Luca Poletto, Hannes Hübener, Umberto De Giovannini, Angel Rubio, Mauro Nisoli, "Unravelling the intertwined atomic and bulk nature of localised excitons by attosecond spectroscopy", *Nature Communications* **12**, 1021 (2021).

28. Kevin Lively, Guillermo Albareda, Shunsuke A. Sato, Aaron Kelly, Angel Rubio, "Simulating Vibronic Spectra without Born-Oppenheimer Surfaces", *The Journal of Physical chemistry Letters* **12**, 3074–3081 (2021).
29. Wandong Yu, Cong-Zhang Gao, Shunsuke A. Sato, Alberto Castro, Angel Rubio, Baoren Wei, "Single and double charge transfer in the Ne^{2++}He collision within time-dependent density-functional theory", *Physical Review A* **103**, 032816 (2021).

B) 査読無し論文

1. S. Yamada, K. Yabana, "Determining the optimum thickness for high harmonic generation from nanoscale thin films: an ab initio computational study", submitted
2. H. Koizumi, A. Ishikawa, "Theory of supercurrent in superconductors", submitted.
3. Dongbin Shin, Simone Latini, Christian Schäfer, Shunsuke A. Sato, Umberto De Giovannini, Hannes Hübener, Angel Rubio, "The quantum paraelectric phase of SrTiO_3 from first principles", submitted.
4. Simone Latini, Dongbin Shin, Shunsuke A. Sato, Christian Schäfer, Umberto De Giovannini, Hannes Hübener, Angel Rubio, "The Ferroelectric Photo-Groundstate of SrTiO_3 : Cavity Materials Engineering", submitted.
5. 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, "On the survival of Floquet-Bloch states in the presence of scattering", submitted.
6. S. A. Sato, A. Rubio, "Nonlinear electric conductivity and light-induced charge transport in graphene", submitted.
7. Kazuhiro Yabana, Atsushi Yamada, Yuta Hirokawa, Shunsuke Yamada, Masashi Noda, Mitsuharu Uemoto, Taisuke Boku, "Large-scale ab initio simulation of light-matter interaction at the atomic scale in Fugaku", submitted

B) 国際会議発表

A) 招待講演

1. Kazuhiro Yabana, "Performance Evaluation of Electron Dynamics Simulation in Supercomputer Fugaku", 12th symposium on Discovery, Fusion, Creation of New Knowledge by Multidisciplinary Computational Sciences (2020-10/6)
2. Kazuhiro Yabana, "Multi-scale Simulation Method for Ultrafast Electron-Ion Dynamics in Dielectrics", 2020 SSRL/LCLS Users Meeting (2020-10/6)

3. Shunsuke A. Sato, "Real space and real time electron dynamics simulations for attosecond physics in solids", APS March Meeting 2021 (2021-3/16)

B) 一般講演

1. R.T. Sang, D. Chetty, R.G. Glover, B.A. deHarak, X.M. Tong, H.Xu, K Bartschat, N. Douguet, A.N. Luiten, P.S. Light, I.V. Litvinyuk, "Observation of dynamic Stark resonances in strong-field excitation", 51st Annual Meeting of the APS Division of Atomic, Molecular and Optical Physics, Portland, Oregon (online), (2020-6/1-5).
2. C.T.B. Chu, X.M. Tong, S.I. Chu, "Exploration of the Circularly Polarized Attosecond Pulse Generation Mechanisms by Polarization Gating", 51st Annual Meeting of the APS Division of Atomic, Molecular and Optical Physics, Portland, Oregon (online), (2020-6/1-5)
3. P. Ranitovic, C. Hogle, L. Martin, X.M. Tong, K. Ueda, T Miteva, L Cederbaum, H Kapteyn and M Murnane, "Laser-Enabled Control of Interatomic-Coulomb-Decay Dynamics", the 22nd International Conference on Ultrafast Phenomena, (online), (2020-11/16-19)
4. Atsushi Yamada, "Maxwell + Polarizable MD multi-scale simulation for vibrational spectroscopy", 16th, March (2021) APS March Meeting 2021 (online), (2021-3)
5. S. Yamada, K. Yabana, "The most efficient thickness of Si nano film for high-harmonic generation", APS March Meeting 2021, (online), (2021-3)
6. T. Takeuchi, K. Yabana, "Optical properties of plasmonic metasurface with sub-nm gaps - Extremely large third-order nonlinear optical effects caused by electron transports ", APS March Meeting 2021, (online), (2021-3)
7. T. Takeuchi, K. Yabana, "Nonlinear Optical Responses of Plasmonic Meatsurface with Sub-nm Gaps Calculated by TDDFT with Jellium Model", IEEE Photonics Conference, (online), (2020-9)
8. T. Takeuchi, K. Yabana, "Huge 3rd-order Nonlinearity in Plasmonic Metasurface with Sub-nm Gap - Theoretical investigation based on TDDFT with Jellium Model", The 16th international conference on Near-field Optics, Nanophotonics & Related Techniques, (online), (2020-8)
9. Yabana Kazuhiro, Hirokawa Yuta, Yamada Atsushi, Yamada Shunsuke, Noda Masashi, Uemoto Mitsuharu, Boku Taisuke, "Large-Scale Ab Initio Calculation of Ultrafast Dynamics in Thin-Film Dielectrics", The 22nd International Conference on Ultrafast Phenomena, (online), (2020/11/17)

10. Shunsuke Yamada, Kazuhiro Yabana, "Symmetry aspects of attosecond transient absorption spectroscopy in a dielectric crystal", Tu4A.39, The 22nd International Conference on Ultrafast Phenomena, (online), (2020-11/17)

C) 国内学会・研究会発表

A) 招待講演

B) その他の発表

1. 奥村拓馬, 東俊行, D.A. Bennett, P. Caradonna, H.I. Chiu, 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, 峰海里, 三宅康博, K.M. Morgan, 二宮和彦, 野田博文, G.C. O'Neil, 岡田信二, 奥津賢一, 大澤崇人, N. Paul, C.D. Reintsema, 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, 竜野秀行, X.M. Tong, 上野恭裕, J.N. Ullom, 渡辺伸, 山田真也, "超伝導検出器による金属内ミュオンからの電子特性 X 線の観測", 10pA1-9 日本物理学会秋季大会 (2020-9/8-11)
2. 山田俊介, 矢花一浩, "半導体ナノ薄膜における高次高調波発生の第一原理計算" 日本物理学会 2020 年秋季大会, オンライン開催, 11pE1-2, (2020-9/9-11)
3. 張博源, 前島展也, 日野健一, "フロケットポロジカル絶縁体におけるディラック半金属状態", 日本物理学会 2020 年秋季大会, オンライン開催 (2020-9/9-11)
4. 佐藤駿丞, "固体におけるアト秒電子ダイナミクスの理論的研究", 日本物理学会第 2020 年秋季大会, オンライン開催, (2020-9/9-11)
5. 佐藤駿丞, 廣理英基, 佐成晏之, 金光義彦, Angel Rubio, "グラフェンにおける高次高調波発生の理論的解析", 日本物理学会第 2020 年秋季大会, オンライン開催, (2020-9/8-11)
6. 奥村拓馬, 東俊行, D.A. Bennett, P. Caradonna, H.I. Chiu, 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, 峰海里, 三宅康博, K.M. Morgan, 二宮和彦, 野田博文, G.C. O'Neil, 岡田信二, 奥津賢一, 大澤崇人, N. Paul, C.D. Reintsema, 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, 竜野秀行, X.M. Tong, 上野恭裕, J.N. Ullom, 渡辺伸, 山田真也, "超伝導検出器による金属内ミュオン原子から放出される電子特性 X 線の高分解能分光", 日本原子衝突学会第 45 回年会 (2020-12/8-10)
7. 竹内嵩, 矢花一浩, "ナノ金属球で構成されたメタ表面における 3 次非線形光学効果の増強機構", CREST 「次世代フォトニクス」 第 5 回領域会議, オンライン開催, (2020-12)

8. 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による 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", 日本化学学会 第 101 春季年会, オンライン開催, (2021-3)
9. 山田篤志, "Maxwell+ MD マルチスケールシミュレーションによる 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", 日本物理学会第 76 回年次大会, オンライン開催, (2021-3)
10. 竹内嵩, 矢花一浩, "サブ nm ギャップを有するプラズモニックメタ表面の非線形光学応答解析 —電子輸送に基づく非線形性の増強—", 第 81 回応用物理学会秋季学術講演会, オンライン開催, (2020-9)
11. 山田篤志, "Maxwell+ MD マルチスケールシミュレーションを用いた DCMBI 結晶の瞬間誘導ラマン散乱誘起テラヘルツ波発生過程", 第 34 回分子シミュレーション討論会, オンライン開催, (2020-12/15)
12. 佐藤駿丞, P. Tang, M. A. Sentef, U. De Giovannini, H. Hübener, A. Rubio, "グラフェンにおける光誘起異常 Hall 効果の理論的研究", 日本物理学会第 76 回年次大会, オンライン開催 (2021-3)

(4) 著書、解説記事等

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. 2020 年度 TIA 連携プログラム探索推進事業「かけはし」採択プロジェクト“有機無機スピノエレクトロニクス TIA 連携研究”（代表者：数理物質系, 丸本一弘准教授）の一員として研究協力を行なっている（前島）。

産学官連携

1. 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共同研究を行った（矢花）。

国際連携・国際活動

1. 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（矢花）。

2. 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. 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。
4. 非平衡量子ダイナミクスに関し、マックスプランク物質構造ダイナミクス研究所の理論グループと共同研究を行っている(佐藤)。
5. アト秒科学に関し、チューリッヒ工科大の実験グループと共同研究を行っている(佐藤)。
6. アト秒科学に関し、ミラノ工科大の実験グループと共同研究を行っている(佐藤)。

8.シンポジウム、研究会、スクール等の開催実績

9.管理・運営

矢花：副センター長、センター長特別補佐、計算科学研究センター運営委員会委員、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、物理学域運営委員

10.社会貢献・国際貢献

矢花：令和2年度テニュアトラック普及・定着事業委員会委員

卓越研究員事業委員会委員

(プレスリリース)

1. 佐藤駿丞, "東大・京大など、 $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbCl}_3$ 単結晶にレーザーパルスを照射した際広い波長範囲の光が発生する機構を解明", 日経電子版 (2020/7)
2. 佐藤駿丞, "光と固体の量子力学的な相互作用による新たな光の発生機構を解明-高次高調波光の発生機構の解明に向けた新たな知見", 筑波大学他プレスリリース (2020/7/29)
3. 小泉裕康, "なぜ、超伝導電流は電気抵抗なしで消えるのか? ~磁場中での超伝導-常伝導相転移を説明する新理論~ (2020.12.18 EPL's top 10 most discussed and shared research from 2020 選出) (2020/8/22) 筑波大学広報誌 TSUKU COMM からの研究成果発信
4. 佐藤駿丞, "光が引き起こす励起子のダイナミクスには二つの時間スケールが共存する", TSUKU COMM, vol. 51 (2021/4)

11.その他

とくになし