

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 3 年 6 月 2 日現在

機関番号：14401

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2018～2020

課題番号：18K03456

研究課題名(和文)量子強相関系の電子・格子自由度に関する自己無撞着構造計算法の開発

研究課題名(英文) Self-consistent electron-lattice simulation methods for the strongly correlated quantum systems

研究代表者

草部 浩一 (Kusakabe, Koichi)

大阪大学・基礎工学研究科・准教授

研究者番号：10262164

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円

研究成果の概要(和文)：物質ごとに電子相関強度(U)を自己無撞着的に決定すると、多層系銅酸化物高温超伝導体の正孔分布と超伝導の層数依存性を再現できる。バッファ層の元素置換により、既知の水銀一層系を超える転移温度を示しうる系が複数存在することを結論した。高結晶性グラファイトのピコ秒超音波計測法による弾性定数評価結果は、短距離電子相関効果を取り込んだACFDT-RPT+U法及びLDA+U+RPA法により、よく再現される。その断熱ポテンシャル面は、強相関効果により非調和性が増加する。これを再現する多配置参照密度汎関数法に基づくと、原子間力決定には密度汎関数摂動理論を超える定式化を必要とする。

研究成果の学術的意義や社会的意義

実験と整合する強電子相関効果を取り込んだ理論形式により、新型の銅酸化物高温超伝導体を設計すると、現在なお未確認の物質相が予想できる。このように強相関電子系の物質設計が本研究を基盤として各段に進む可能性がある。

グラファイトというファンデルワールス相互作用で結合する物質において、弾性特性が電子相関効果により強く影響を受けることが明らかとなった。本研究を基盤とする電子状態計算に基づく物質構造計算は、実験の精密再現を可能とすることが示された。よって本研究は、今後の物質設計やデバイス設計の技術において基盤の一つを与えると同時に、産業応用上も重要な発見を導くものと考えられる。

研究成果の概要(英文)：The hole distribution of the multilayer copper oxide high-temperature superconductor and the layer number dependence of the superconductivity can be reproduced by determining the electron correlation strength (U) for each material self-consistently. It was concluded that there are multiple systems that can exhibit transition temperatures above the known mercury single layer system due to element substitution of the buffer layer. The c-axis elastic constant of highly crystalline graphite by the picosecond ultrasonic measurement is well reproduced by the ACFDT-RPT+U method and the LDA+U+RPA method, which incorporate the short-range electron correlation effect. The anharmonicity of the adiabatic potential surface increases due to the strong correlation effect. Based on the multi-reference density functional theory that reproduces this, we conclude that interatomic force determination requires a formulation that goes beyond the density functional perturbation theory.

研究分野：物性理論

キーワード：強相関電子系 密度汎関数法 銅酸化物 エキシトン RPA 多体摂動論 GW グラファイト

## 1. 研究開始当初の背景

- (1) 電子状態に現れる多粒子系特有の量子力学的重ね合わせ状態が示す「多配置(Multi configuration)」効果は、配置間相互作用と電子相関効果の起源である。従来の「単一配置参照型」の密度汎関数法(DFT)では表現論上表すことが出来ないこの「多配置」効果を取り込んだ多配置参照密度汎関数法(MR-DFT)[Kusakabe-2001]は、電子密度分布自体の表現能力が従来型より上がり、電子状態計算の収束を判定できる唯一の方法論である[Kusakabe-2011]。原子間力、フォノン分散に対しても質的・量的改善をもたらすことが予想された。この多配置型を採用する DFT 自体は、世界的に複数グループで検討がなされてきたが、開発当初は、バルク系での断熱ポテンシャル面改善効果を実測と直接比較を行って証明した研究事例が提出されていなかった。
- (2) 従来の密度汎関数論の議論では、多配置参照を計算段階で用いずとも、交換・相関エネルギー汎関数の構築時に一体の有効ポテンシャルを表現改善すれば、単一配置参照であっても密度を表記できるだろうとする認識が残っていた。(歴史経緯は例えば[Martin-2008])。「量子多体系が示す密度(秩序変数)のソボレフ空間」に関するこの認識の是非は、数学的議論だけでなく、計算理論と実施例を与えることによって解決がなされるべき課題である。そこで、具体例の提出が無く、MR-DFT の明示的な利用の価値判断もなされないままであった。
- (3) 多配置効果に基づく強相関効果自体は、電子系の量子相転移現象に着目が集まってきたことから、従来、遷移金属酸化物や希土類化合物、有機物結晶などの系が主に対象であった。特に銅酸化物高温超伝導体では、多配置効果により特異な超伝導状態発生がある。我々はその電子密度分布自体の再現にも、多配置効果を考慮した計算法を必要とすることを、先行する基盤研究(C)「超過程から発生する強相関量子物性の理論計算」とそれに続く産学共同研究・アドバンスソフト(株)「共同巻電子系解析プログラムの研究」の中で指摘してきた。[Nishiguchi-2017]
- (4) 強相関効果の断熱ポテンシャル面への影響は、さらにファンデルワールス結晶で顕著となる可能性があった。ファンデルワールス結晶では、ハイブリッド型計算によっても断熱ポテンシャル面の収束が見出し難く、DFT モデルを実測との比較を基準にして、個別の物質ごとに判断する方法が避けられない。興味深いことに DFT が与える電子密度分布自体は拡散モンテカルロ法結果と比較しても遜色無く、密度分布自体の収束は知られている。[Kanai-2009] その一方、GGA の断熱ポテンシャルが結合を表現しない例も複数知られている。典型的なグラファイトの断熱ポテンシャルに関しては、2008 年の ACFDT-RPA 計算において、実験データの良い再現が報告された。[Lebégue-2010] しかし後から見ると、この例についても、我々の実験・理論連携研究から、ある疑問が呈された。[Kusakabe-2020]

## 2. 研究の目的

- (1) 従来の強相関電子模型の理論と密度汎関数法において、個別独立に開発がされた各種の近似計算手法を、MR-DFT の枠組みで統一的に扱う。具体的な計算手法として、遮蔽相互作用強度( $U$ )の決定理論を構築する。制限 RPA 法が取り入れることが出来ない頂点補正と、GW-BSE の近似を超えた終状態相関効果の両者を考慮する有効 2 体相互作用の決定理論を開発する。
- (2) 強相関電子系が現れる典型的例として、少数多体系(半導体中のエキシトンとそのダイナミクス)と遷移金属酸化物等(各種層状超伝導体の有効理論構築と超伝導設計)の強相関電子系への適用例を取得する。これにより、強相関系の有効多体ハミルトニアンを与える一般的な手法を提供する。
- (3) 原子間力決定、フォノン分散決定の基礎となる、断熱ポテンシャル面の精密計算を、MR-DFT に基づく計算理論を具体的に適用して、実施可能とする。
- (4) 断熱ポテンシャル面(PES)に現れる強相関効果を明らかにして、構造決定、弾性定数評価、原子間力決定、フォノン分散評価に向けた方法を整備する。強相関電子系特有の電子・格子相互作用の特徴を見出して評価理論を展開する。MR-DFT を密度汎関数摂動理論(DFPPT)に適用した際の課題を割り出し、強相関電子系や強結合系に適用した場合の有効性を確認する。
- (5) 原子間力決定、フォノン分散評価を可能にするために、PES の評価事例を具体的に取得し、調和ポテンシャルの範囲を超えた効果の有無を確認する。
- (6) さらに、強相関ナノ炭素材料の電子論的デバイス設計、化学反応効果(触媒効果)の解明と物質設計へとつなげる。

## 3. 研究の方法

- (1) 層状銅酸化物高温超伝導体の荷電分布・超伝導と構造の同時再現を進める。そのため、MR-DFT による  $U$  の決定法を応用した量子シミュレーションを実施する。多層系銅酸化物を例にして  $U$  の効果を化合物ごとに定め、組成、原子配置により定められる正孔密度と、相関強度  $U$  の自己無撞着決定を行う。

- (2) 強相関係の電子状態計算法が与える原子構造と電子密度、超伝導安定性が、実験に整合する例を提示する。銅酸化物のオーバードープ域に見られる強磁性的揺らぎと反強磁性相関の拮抗を表現する。
- (3) MR-DFTに基づく相関強度決定を、半導体中の素励起間有効相互作用の決定(ハミルトニアン決定)に適用する。エキシトン、バイエキシトン状態を有効的に再現する方法を構築する。MoS<sub>2</sub>等の原子層半導体を対象に具体的な物質系へ適用する。n-GaAsやBi<sub>2</sub>S<sub>3</sub>のPEEM表面観察実験で発見された電子・電子間相互作用効果を、トポロジカル量子効果と組み合わせる論じる。
- (4) 原子間力をMR-DFTを元に行う際に現れるDFPTの可能性と限界を示す。力定理の一般化が可能であっても、有効ハミルトニアン形成の段階で生じる困難がある。電子局在軌道への射影演算子を、原子座標に依存して定める必用があることを、実例に基づいて示す。
- (5) 断熱ポテンシャル面(PES)変調効果として、PESに現れる強い非調和項は、電子・電子間相互作用の効果であり、電子・格子相互作用の高次項を与える。この定式化を根拠づける。新しい表現形式の電子・格子相互作用を定める理論を、原子層物質等へのMR-DFTの適用事例から検証評価する。
- (6) 強相関状態とフォノン間相互作用の発生起源となるこの強い非調和性を、グラフェンへの有機分子吸着系等で確認する。同時に、ナノグラフェンに特有の局在電子状態(ゼロモード)におけるUの発生とその磁性を調べる。
- (7) ナノグラフェン等の触媒反応や合成反応を例に、非調和性PESの高い物質構造を探索するツールを開発する。そのため、ポテンシャル障壁を超える反応ダイナミクス計算を遺伝的アルゴリズムの適用により高速化する。
- (8) これらの目標を達成するため、高エネルギー加速器機構、インドネシア大学、法政大学、そして大阪大学内や企業研究者との共同研究を推進して、強相関電子系における電子・格子自由度に関わる自己無撞着構造計算理論を格段に進める。

#### 4. 研究成果

- (1) 3層以上のCuO<sub>2</sub>面積層構造をもつ銅酸化物高温超伝導体の正孔キャリア分布は、outer planeの方がinner planesよりも大きくなる。inner planesはドープされ難くハーフフィルド近傍に留まる。この正孔分布(電子密度分布)は、従来型の単一参照密度汎関数計算でもHartree-Fock計算によっても、有効ポテンシャルの最適化による単一参照型の表現では再現が困難な物性である。ここに、相関効果をTPSCのレベルで導入すると、正しくouter planeに正孔が多く分布することが西口・寺西・草部により示されていた。[Nishiguchi-2017] さらに、多層系の一般的な傾向として、一層系よりも三層系がより高い転移温度を示すことが実験事実である。[Mukuda-2012]

この正孔分布の傾向と、超伝導の層数依存性に関する実験事実を、同時に自己無撞着的な方法で再現できることを、2粒子自己無撞着計算(TPSC)を3層水銀系銅酸化物の有効模型に拡張適用して示した。[Nishiguchi-2018] 実際、多層系銅酸化物では、1層系よりも3層系の方が、転移温度が上昇するが、こ

これは相関強度(U)を物質に依存する量として理論評価し、水銀系ではU~3 eVを結論する理論において初めて再現される。このように、低エネルギー有効部分多体系が、高エネルギーのバンド間散

$$\left( H^1 + P_A V_{ee} P_A + H_{C,counter}^1 + P_A V_{ee} (1 - P_A) \frac{1}{H^1 + H_{C,counter}^1 - E} (1 - P_A) V_{ee} P_A \right) |\Psi_A\rangle = E |\Psi_A\rangle.$$

図1 MR-DFTにおける相関強度を決定する4頂点ダイアグラム。

乱の繰り込み(cRPA)と同時整合的に定義される必要がある。その基礎を、幾つかの論文提出を重ねて与えた。[Nishiguchi-2018, Teranishi-2018, Kusakabe-2020] さらに、このMR-DFTによるUの決定法(図1)を基盤として、c-RPA計算により水銀1層系とタリウム1層系の超伝導転移温度の差異が、遮蔽効果の物質差に起因することを論じた。[Teranishi-2018] 興味深いことに、標準的なGGA計算でも水銀系超伝導体の原子位置は実験との良い一致が見られ、原子配置自体は電荷分布の基本的な構造とともに得られている。相関効果自体からくる電荷密度の変動成分は、原子間結合距離等を大幅に変更するまでには至らないものの、低エネルギーの基底状態相転移はフェルミ準位近傍の重要なバンド内でのモット絶縁体化、高温超伝導発現、などを伴って発生する、という繰り込み可能な描像を示唆している。MR-DFTは、その両者を整合的に表現する。

- (2) CuO<sub>2</sub>面内の相転移が、バッファ層の詳細に依存して定まる遮蔽効果を通して強く影響されていることから、Uの物質依存性が最適濃度域近傍でも転移温度にさらなる変化をもたらすことを、Tl系と水銀系の比較を通して明らかにした。[Teranishi-2018] 酸素の占有バンドがフェルミ準位から離れるように抑えられている水銀系に対して、Tl系では酸素のバンドがフェルミ準位近傍にあってより強い遮蔽効果を生じUの値が減少している。バンド効果も評価することで、実験的に知られている水銀系に対してTl一層系の転移温度が半分ほどに押し下げられて

いることが十分に理解できることを、明らかにした。

バッファ層にある元素を置換する効果を検討するため、複数の候補物質に対して cRPA による U の評価と、バンドの微細な差異によるフェルミ面形状効果の双方を評価しながら、1 層系の範囲内で検討を進めた。その結果、既知の水銀一層系を超える転移温度を示しうる未合成の一層系が複数存在することを結論した。[Teranishi-2021] このバッファ層効果は、3 層系などのシリーズにも現れる可能性が高く、超伝導転移温度が類似物質よりも上昇する可能性が示された。

(3) 寺西・西口・草部・柚木は、銅酸化物のオーバードープ域に見られる強磁性的揺らぎを電子相関効果(U)の物質依存性から調べた。オーバードープ域では遮蔽が強まり U が抑えられると同時に、反強磁性揺らぎが抑えられる。それに比べ強磁性的揺らぎが相対的に発達してくる。その結果、反強磁性揺らぎによる超伝導状態が抑えられ、異なる強磁性的揺らぎによる状態が発達する。この抑制効果は、オーバードープ域での d 波超伝導相を縮小させている可能性があり、オーバードープ域での超伝導相を安定化させる設計に対しても、知見を与えると考えられる。

(4) 株式会社カネカ製のグラファイトは、10 マイクロメートルスケールの結晶粒が相互に隙間なく結合し、各結晶粒中のグラフェン面が 500 ナノメートル厚程度の c 軸膜厚方向に積層空隙を全く持たない構造を保つ。この系にレーザー励起により弾性波を発生させ弾性定数決定を行う、ピコ秒超音波計測法が大阪大学荻研究室で実施され、従来の HOPG 等での測定値 36~39 GPa を遙かに超える、 $C_{33}$  の決定値  $48.4 \pm 5.3$  GPa を観測した。[Kusakabe-2020, Kusakabe-2021]

そこで、38GPa に近い  $C_{33}$  を与えた ACFDT-RPA 計算再考した。この実験とのずれは、長距離相関効果に加えて、原子スケールの極短距離に現れる電子相関効果である可能性が示唆すると考、MR-DFT に基づいて短距離相関効果を表現する、ACFDT-RPT+U 法及び LDA+U+RPA 法を新規に開発した。2 つの計算手法の違いは、相関部分の  $\lambda$  積分を求める順序にある。計算結果は 48~51 GPa 程度の数値を与えており、実験とほぼ整合する値を得た。これは、U 項が断熱ポテンシャル面に非調和性を与えた結果である。(図 2)

よって、グラファイトの断熱ポテンシャル面(PES)に強相関電子系特有の短距離電子相関効果(U 項)が現れることを発見した。[Kusakabe-2020]この方法により、精密測定が明らかにした単結晶グラファイトの 45GPa を超える c 軸方向弾性定数を再現することに成功した。

(5) グラフェン面上に吸着した芳香族分子においても同様の効果が現れることを LDA+U+RPA 法を用いて阪大の大石らと明らかにした。ポテンシャル局面に 3 次以上の項が、局所軌道(グラフェン・芳香環の場合には p 軌道)の変形効果として現れる。この結果は、生体物質センサーの機能強化等でも、設計精度を向上させるものになり得る。[Kusakabe-2021]

我々の計算法では、断熱ポテンシャル面の各点で、局所軌道の再決定を行う。非調和性の起源は、線形応答の範囲を超えた高次補正効果である。展開基底の自己無撞着再決定を行い局所ワニエ軌道の常時再決定を求める自己無撞着ループを断熱ポテンシャル面決定時に必要とする。よって、従来の密度汎関数摂動理論(DFT)の定式化範囲を超える。その結果、繰り込まれた表記のフォノン・フォノン間及び電子・フォノン間高次相互作用過程が求められることが分かった。

このように、強相関系用の多配置参照密度汎関数法において力定理の一般化は可能である。ここでは、電子・フォノン間相互作用を含めた多体系としての取り扱いが不可避となる。ファンデルワールス系では、電子系をフォノン系から分離して表記できるエネルギー範囲(結果として温度範囲)に注意が必要となる本質的に電子・フォノン複合系の強結合領域にある。

(6) 強電場下における GaAs や GaN による量子井戸構造でのエキシトン光学スペクトル計算を行い、量子閉じ込め効果と波動関数の特徴的な量子運動を決定した。

さらに、半導体中の素励起間有効相互作用(長距離成分をもつ直接項(U-V)と交換項(J))の決定を c-RPA 計算を元にして評価し、低エネルギー有効モデルを導き出す方法を整備した。c-RPA 計算結果が、遮蔽型有効相互作用の距離依存性で表現できることを確認した。ワニエ化法を伝導帯・価電子帯に適用して強結合モデルを導き、有効ハミルトニアンを得る方法を整備した。エキシトンダイナミクスの量子計算プログラムを構築した。これを、 $\text{MoS}_2$  に適用してエキシトン束縛状態を調べ、エキシトン半径の決定から実験データとの比較が可能になることを確認した。

高エネルギー物理学研究所の福本准教授との共同研究として、半導体表面での PEEM スペクトルへの素励起間有効相互作用の理論構築を行った。n-GaAs 表面での励起過程には電子間相互作用効果が表れている可能性がある。 $\text{Bi}_2\text{Se}_3$  におけるトポロジカル量子効果に現れる薄膜化効果を調べて、PES の決定が未知のバンド変調効果に関係する可能性をシミュレーションにより評価し、PEEM 実験との直接比較を行った。その結果、バルク劈開による系では、原子層スケール

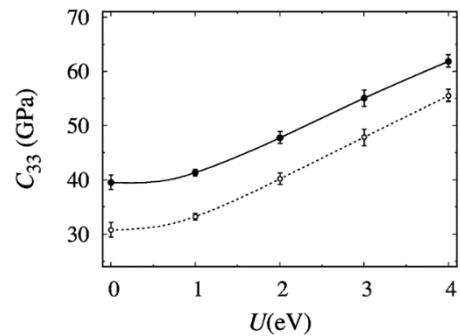


図 2 LDA+U+RPA 法計算により決定されたグラファイト結晶の弾性定数  $C_{33}$ 。c-RPA 評価値は  $U \sim 2.1$  eV。

で現れる薄膜効果によるギャップ形成が起こる可能性は低く、劈開時の表面層に複数の終端面が現れる効果がより実験との整合性が採れるものと結論した。

(7) 電子・格子結合系での超高速波束ダイナミクスと非断熱ダイナミクスのコヒーレント制御法を理論解明した。断熱ポテンシャル面間の交差点近傍では、波束のコヒーレント運動によってラマン散乱過程が本質的となる。この過程は、フェムト秒スケールでの光励起・光脱励起過程解明に必須の効果である。

(8) 動的平均場近似(DMFT)等では、近藤不純物系を解析する際に用いる解析接続の精度向上に技術的課題が残されている。[Yoon-2018] そこで、スペクトル関数特性を機械学習法により特定するための解析接続計算法を整備した。阪大の酒井との共同研究で、虚時間グリーン関数の圧縮法[Yoshimi-2019]を取り込んで評価した結果、学習後には極めて計算量が抑えられた手続きで高精度解析接続が可能であることを結論した。

(9) グラフェンのアームチェア端を動的に変調することでエッジ状態を発生させ、系の伝導特性を制御する、コヒーレントフォノン導入法を予言した。[Kusakabe-2018] ここでは、電子相関効果による局所磁気モーメントの発生が見込まれる。

Ni との積層構造である Ni/graphene/Ni 構造を作成し磁場制御することで、電子デバイス化することを提案した。[Wicaksono-2018] 上下の Ni 層の磁化を反平行配置とするグラフェンのバンドギャップ形成を動的に起こせることができ、平行配置ではスピン偏極した Weyl 電子系が形成して伝導度に Dirac 電子系特有のクライントネル効果が現れる。

磁気抵抗デバイスを与える Ni/hBN/Ni 積層薄膜構造では、平坦な BN 面に構造変調が生じることをシミュレーションデータから見出した。BN 面にマイクロな電気分極スピン分極が生じる。両 Ni 極が反平行磁場配置になっているとき、電気分極を電場でスイッチすると、スピン配向のどちらがより伝導度を高めるかが反転して、スピン流の反転が生じる。阪大の Harfah, Wicaksono, インドネシア大学の Majidi との共同研究として、BN 層の分極反転からスピン流を反転させる交差相関が生じることを発見した。[Harfah-2020] さらに Ni/BN/Graphene/BN/Ni 系では、1000 を超える TMR を示す強い磁気抵抗効果が現れる。

(10) JAXA の森下との共同研究として、グラフェン原子欠損の電子強相関効果から発生する近藤遮蔽とフェリ磁性の存在を、一群のフェナレニル充填可能分子(PTM)に対して証明した。[Morishita-2018, Morishita-2021] この系は、量子計算のアルゴリズムに応じて、適切に選択された多電子系を、相互作用強度の制御性もある範囲で確保しながら、物質設計として与えることを可能にするものと考えることが出来る。

(11) グラフェン原子欠損に特有な PES が発現する脱水素触媒作用が、各種アルカン分子からの脱水素反応も引き起こすことを理論的に確認した。この反応で CO<sub>2</sub> 発生を伴わない水素製造プロセスを発明し、法政大学、(株)ダイセルと共同で特許出願した。[Kusakabe-2019]

(12) 爆轟反応による炭素系材料(ナノダイヤモンド、ナノグラフェン)の合成を例に、遺伝的アルゴリズムを用いた合成反応過程の高速シミュレーション技術を、NIMS、(株)ダイセルと共同で開発した。水素吸着・脱離反応、アルカン脱水素反応等の産業応用上重要な系において、PES の物質依存性探索、構造探索を可能にする、遺伝的アルゴリズムによる高速化を実現した。

## 参考文献

- [Harfah-2020] H. Harfah, *et al.*, ACS Appl. Elect. Materials, **2**, 1689 (2020).  
[Kanai-2009] Y. Kanai and J.C. Grossman, Phys. Rev. A **80**, 032504 (2009).  
[Kusakabe-2001] K. Kusakabe, J. Phys. Soc. Jpn., **70**, 2038 (2001).  
[Kusakabe-2011] K. Kusakabe and I. Maruyama, J. Phys. A: Math. Theor. **44**, 135305 (2011).  
[Kusakabe-2018] K. Kusakabe, *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn., **87** 084716 (2018).  
[Kusakabe-2019] 草部浩一, 高井和之, 西川正浩, 劉明, 特願 2019-135780 (2019).  
[Kusakabe-2020] K. Kusakabe, *et al.*, Phys. Rev. Materials, **4**, 043603 (2020).  
[Kusakabe-2021] 草部浩一, 荻博次, *academist Journal*, <https://academist-cf.com/journal/?p=13661>.  
[Lebégue-2010] S. Lebégue, *et al.*, Phys. Rev. Lett. **105**, 196401 (2010).  
[Martin-2008] R.M. Martin, “Electronic Structure” (Cambridge, 2008).  
[Morishita-2019] N. Morishita, K. Kusakabe, J. Phys. Soc. Jpn., **88**, 124707 (2019).  
[Morishita-2021] N. Morishiga, K. Kusakabe, Phys. Lett. A, in press.  
[Mukuda-2012] H. Mukuda, S. Shimizu, A. Iyo, Y. Kitaoka, J. Phys. Soc. Jpn., **81**, 011008 (2012).  
[Nishiguchi-2017] K. Nishiguchi, S. Teranishi, K. Kusakabe, J. Phys. Soc. Jpn., **86**, 084707 (2017).  
[Nishiguchi-2018] K. Nishiguchi, S. Teranishi, K. Kusakabe, H. Aoki, Phys. Rev. B, **98**, 174508 (2018).  
[Teranishi-2018] S. Teranishi, K. Nishiguchi, K. Kusakabe, J. Phys. Soc. Jpn., **87**, 114701 (2018).  
[Teranishi-2021] S. Teranishi, K. Nishiguchi, K. Kusakabe, J. Phys. Soc. Jpn., **90**, 054705 (2021).  
[Yoon-2018] H. Yoon, J.-H. Sim, M.J. Han, Phys. Rev. B, **98**, 245101 (2018).  
[Yoshimi-2019] K. Yoshimi, *et al.*, Comp. Phys. Commun. **244**, 319 (2019).  
[Wicaksono-2018] Y. Wicaksono, S. Teranishi, K. Nishiguchi, K. Kusakabe, CARBON, **143**, 828 (2018).

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計14件（うち査読付論文 9件 / うち国際共著 2件 / うちオープンアクセス 6件）

1. 著者名 草部浩一, 荻博次	4. 巻 -
2. 論文標題 誰も知らなかったグラファイトの姿	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 academist Journal <a href="https://academist-cf.com/journal/?p=13661">https://academist-cf.com/journal/?p=13661</a>	6. 最初と最後の頁 13661
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Naoki Morishita, Koichi Kusakabe	4. 巻 -
2. 論文標題 Zero-energy modes in a super-chiral nanographene network of phenalenyl-tessellation molecules	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physics Letters A	6. 最初と最後の頁 in press
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Teranishi Shingo, Nishiguchi Kazutaka, Kusakabe Koichi	4. 巻 90
2. 論文標題 Material Optimization of Potential High-Tc Superconducting Single-Layer Cuprates	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of the Physical Society of Japan	6. 最初と最後の頁 054705 ~ 054705
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7566/JPSJ.90.054705	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 N. Morishita, K. Kusakabe	4. 巻 88
2. 論文標題 Counting the Zero Modes and Magnetic Moment by Topology of a Phenalenyl-Tessellation Molecule with Vacancies	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 J. Phys. Soc. Jpn.	6. 最初と最後の頁 124707-1-7
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7566/JPSJ.88.124707	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 K. Kusakabe, A. Wake, A. Nagakubo, K. Murashima, M. Murakami, K. Adachi, H. Ogi	4. 巻 4
2. 論文標題 Interplanar stiffness in defect-free monocrystalline graphite	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Phys. Rev. Materials	6. 最初と最後の頁 043603-1-5
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevMaterials.4.043603	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 H. Harfah, Y. Wicaksono, M.A. Majidi, and K. Kusakabe	4. 巻 2
2. 論文標題 Spin-current control by induced electric-polarization reversal in Ni/hBN/Ni: A cross-correlation material	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 ACS Appl. Elect. Materials	6. 最初と最後の頁 1689-1699
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsaem.0c00238	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Kunio Ishida, Hiroaki Matsueda	4. 巻 2005
2. 論文標題 Dynamics of photoinduced phonon entanglement generation between remote electron-phonon systems	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 arXiv: 2005.14615	6. 最初と最後の頁 14615-1-10
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 K. Ishida	4. 巻 73
2. 論文標題 Interplay of electron-phonon nonadiabaticity and Raman scattering in the wavepacket dynamics of electron-phonon-photon systems	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Eur. Phys. J. D	6. 最初と最後の頁 117-1-7
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1140/epjd/e2019-90485-5	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 K. Ishida	4. 巻 15
2. 論文標題 Coherent Control of Nonadiabatic Dynamics of Electron-Phonon Systems by Quantized Light Field	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Progress in Ultrafast Intense Laser Science	6. 最初と最後の頁 121-132
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1007/978-3-030-47098-2_6	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 草部浩一	4. 巻 35
2. 論文標題 ナノグラファイトの構造と電子状態の関係：トポロジカル物性の予測	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 ニューダイヤモンド	6. 最初と最後の頁 38-44
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 K. Nishiguchi, S. Teranishi, K. Kusakabe, H. Aoki	4. 巻 98
2. 論文標題 Superconductivity arising from layer- differentiation in multi-layer cuprates with inter-layer effects	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Phys. Rev. B	6. 最初と最後の頁 174508-1-10
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.98.174508	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 S. Teranishi, K. Nishiguchi, K. Kusakabe	4. 巻 87
2. 論文標題 Material-dependent screening of Coulomb interaction in single-layer cuprates	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 J. Phys. Soc. Jpn.	6. 最初と最後の頁 114701-1-6
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7566/JPSJ.87.114701	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Y. Wicaksono, S. Teranishi, K. Nishiguchi, K. Kusakabe	4. 巻 143
2. 論文標題 Tunable induced magnetic moment and in-plane conductance of graphene in Ni/Graphene/Ni nano spin-valve like structure: a first principles study	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 CARBON	6. 最初と最後の頁 828-836
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.carbon.2018.11.075	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 K. Kusakabe, K. Nishiguchi, S. Teranishi, Y. Wicaksono	4. 巻 87
2. 論文標題 Edge States Caused by Shift of Dirac Points at the Armchair Edge of Distorted nanographene	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 J. Phys. Soc. Jpn.	6. 最初と最後の頁 084716-1-8
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7566/JPSJ.87.084706	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

〔学会発表〕 計45件 (うち招待講演 8件 / うち国際学会 9件)

1. 発表者名 Koichi Kusakabe, Akira Nagakubo, Hirotsugu Ogi, Kensuke Murashima, Mitsuaki Murakami
2. 発表標題 Unharmonic adiabatic potential by short-range correlation effect enlarging C33 of crystalline graphite
3. 学会等名 APS March Meeting 2021 (on-line) R19-00012, March 21 2021
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Yusuf Wicaksono, Halimah Harfah, Koichi Kusakabe
2. 発表標題 High Magnetoresistance Ratio on the In-plane Conductance of Graphene in Ni/Graphene/Ni Nanostructure
3. 学会等名 2021年第68回応用物理学会春季学術講演会 (on-line) 18a-P04-7, 2021-3-18
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 大内涼雅, 草部浩一
2. 発表標題 第一原理計算に基づくGaAsにおける1次過程光電子放出強度評価の理論
3. 学会等名 日本物理学会第76回年次大会 (on-line) 14aE2-9, 2021-3-14
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 大石泰弘, 草部浩一
2. 発表標題 グラフェン上吸着芳香族分子における電子相関効果による断熱ポテンシャル面の理論的評価
3. 学会等名 日本物理学会第76回年次大会 (on-line) 13aG1-11, 2021-3-13
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 秋山尚平, 草部浩一, Yusuf Wicaksono
2. 発表標題 窒素・燐ドーピングした欠陥構造を有するグラフェンのプロパン脱水素触媒効果
3. 学会等名 日本物理学会第76回年次大会 (on-line) 14aJ1-9, 2021-3-14
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 草部浩一
2. 発表標題 進化論的アルゴリズムを用いた固体中の物質輸送シミュレーション加速化方法
3. 学会等名 日本物理学会第76回年次大会 (on-line) 15pL1-1, 2021-3-15
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Yusuf Wicaksono, Halimah Harfah, Muhammad Aziz Majidi, Koichi Kusakabe
2. 発表標題 Theoretical Study on Optical-induced Magnetic Tunnel Junction based on Gr-hBN Heterostructure
3. 学会等名 応用物理学会関西支部2020年度第1回 + 第2回合同講演会 (on-line), Poster-20, 2021-1-27
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 草部浩一
2. 発表標題 非酸化的脱水素触媒としての爆轟スス（欠陥含有グラフェン）に関する基礎研究
3. 学会等名 弊衝擊科学共同研究講座報告会, (大阪大学) 2021-3-17 (招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 草部浩一
2. 発表標題 情報理論に駆動されたマテリアルズインフォマティクスの展開
3. 学会等名 兵庫県立大学大学院物質理学研究科・マテリアルズインフォマティクス研究会, (兵庫県立大学) 2021-3-22 (招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 奥山直人, 草部浩一
2. 発表標題 衝擊科学共同研究講座2020年度の活動
3. 学会等名 第4回豊中地区共同研究講座交流会, (大阪大学) 2021-3- (招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 寺西慎伍, 西口和孝, 柚木清司, 草部浩一
2. 発表標題 過剰ドーブされた銅酸化物における電子相関起源強磁性揺らぎの理論
3. 学会等名 日本物理学会 2020年秋季大会 (on-line) 8aH1-6, 2020-9-8
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 草部浩一
2. 発表標題 多配置参照法による+U計算からの断熱接続計算理論
3. 学会等名 日本物理学会 2020年秋季大会 (on-line) 10pL3-7, 2020-9-10
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Koichi Kusakabe, Takahiro Ishikawa, Yuto Makino, Satoshi Sakamoto
2. 発表標題 Simulation for detonation process of TNT/RDX by an evolutionary algorithm
3. 学会等名 2020年第81回応用物理学会秋季学術講演会 (on-line) 9a-Z26-8, 2020-9-9
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Kunio Ishida
2. 発表標題 Entanglement properties of two electron-phonon systems coupled by light
3. 学会等名 10th Shanghai-Tokyo Advanced Research (STAR) Symposium on Ultrafast Intense Laser Science (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Koichi Kusakabe
2. 発表標題 Theoretical Simulations for Design of Nanographene: Its Functions and Applications
3. 学会等名 5th Int. Symp. Current Prog. Mathe. Sci. 2019 (5th ISCPMS 2019) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 石田邦夫
2. 発表標題 空間的に離れた電子・格子系間の光誘起フォノン量子もつれ生成
3. 学会等名 日本物理学会2019年秋季大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 草部浩一, 和氣惇, 長久保白, 荻博次, 村島健介, 村上睦明
2. 発表標題 グラファイト弾性定数に現れる電子相関効果
3. 学会等名 日本物理学会2019年秋季大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Halimah Harfah, Yusuf Wicaksono, Muhammad Aziz Majidi, Koichi Kusakabe
2. 発表標題 Spin-Current Control by Induced Electric-Polarization Reversal in Ni/hBN/Ni Magnetic Tunnel Junction: A Cross-Correlation Materials
3. 学会等名 第80回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 玉垣 侑也、草部 浩一、寺西 慎伍、西口 和孝
2. 発表標題 Nd <sub>2</sub> CuO <sub>4</sub> における3d/4f局在電子軌道の超交換相互作用の理論的評価
3. 学会等名 第80回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Yusuf Wicaksono, Halimah Harfah, Koichi Kusakabe
2. 発表標題 A Comparison of Theoretical Estimate of the Energy Barrier between Bi-stable state of hBN-based Magnetic Tunnel Junction
3. 学会等名 第80回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Shingo Teranishi, Kazutaka Nishiguchi, Seiji Yunoki, and Koichi Kusakabe
2. 発表標題 Theoretical analysis of ferromagnetic spin fluctuations in over-doped cuprate superconductors
3. 学会等名 International Conference on Strongly Correlated Electron Systems 2019
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Yuki Sakai, Koichi Kusakabe
2. 発表標題 Machine Learning Approach to Analytic Continuation of Temperature Green 's Function into Spectral Function
3. 学会等名 International Symposium for Nano Science (ISNS 2019)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 伊藤きさら, 石田邦夫
2. 発表標題 強結合モデルによるGaN系半導体量子井戸の励起子光学特性と電場効果の理論
3. 学会等名 第30回光物性研究会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Kunio Ishida, Hiroaki Matsueda
2. 発表標題 Photoinduced phonon entanglement between remote electron-phonon systems
3. 学会等名 American Physical Society March Meeting
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 草部浩一, 石河孝洋, 牧野有都, 西川正浩, 阪本聡
2. 発表標題 TNT結晶爆轟反応過程への進化的アルゴリズムの応用
3. 学会等名 日本物理学会 第75回年次大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 酒井裕貴, 草部浩一
2. 発表標題 ニューラルネットワークによる実時間スペクトル関数の再構築
3. 学会等名 日本物理学会 第75回年次大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 石田邦夫, 松枝宏明
2. 発表標題 遠隔系間の光誘起フォノン量子もつれ生成ダイナミクスと光学応答
3. 学会等名 日本物理学会 第75回年次大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 石田邦夫
2. 発表標題 Dressed-state picture of nonadiabatic dynamics of electron-phonon-photon systems
3. 学会等名 9th Shanghai Tokyo Advanced Research Symposium on Ultrafast Intense Laser Science (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 草部浩一, 西口和孝, 寺西慎伍, Wicaksono Yusuf
2. 発表標題 コヒーレントフォノン導入によるディラック点の移動とアームチェア・エッジ状態の理論
3. 学会等名 日本物理学会2018年秋季大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 草部浩一, 西口和孝, 寺西慎伍, Wicaksono Yusuf
2. 発表標題 コヒーレントフォノン導入によるディラック点の移動とアームチェア・エッジ状態の理論
3. 学会等名 日本物理学会2018年秋季大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 草部浩一
2. 発表標題 V111構造をもつナノグラフォンからの水素脱離のシミュレーション評価
3. 学会等名 日本物理学会2018年秋季大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 伊藤きらら, 石田邦夫
2. 発表標題 強結合モデルによるIII族窒化物半導体量子井戸中の励起子状態と電場効果の理論
3. 学会等名 日本物理学会2018年秋季大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 寺西慎伍, 西口和孝, 草部浩一
2. 発表標題 銅酸化物におけるバッファ層構造の違いに起因する遮蔽効果の物質依存性
3. 学会等名 日本物理学会2018年秋季大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 西口和孝, 寺西慎伍, 草部浩一, 青木秀夫
2. 発表標題 電子相関の層分化から生じる多層系銅酸化物の高温超伝導
3. 学会等名 日本物理学会2018年秋季大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 石田邦夫
2. 発表標題 Interplay of non-Born-Oppenheimer effects and Raman scattering in the quantum dynamics of electron-phonon-photon systems
3. 学会等名 17th International Symposium on Ultrafast Intense Laser Science (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Yusuf Wicaksono, Shingo Teranishi, Kazutaka Nishiguchi, Koichi Kusakabe
2. 発表標題 Tunable Induced Magnetic Moment and In-Plane Conductance of Graphene in Ni/Graphene/Ni Nano Spin-Valve Like Structure: A First Principles Study
3. 学会等名 The International Symposium for Materials Scientists "Inspiration for Innovation by Interaction" (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Shingo Teranishi, Kazutaka Nishiguchi, Koichi Kusakabe
2. 発表標題 Material-dependent screening of Coulomb interaction in single-layer cuprates
3. 学会等名 The International Symposium for Materials Scientists "Inspiration for Innovation by Interaction", (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Yusuf Wicaksono, Shingo Teranishi, Kazutaka Nishiguchi, Koichi Kusakabe
2. 発表標題 Magnetic Field Dependence of Opening and Closing Dirac Cone in Ni/Graphene/Ni nano-spin-valve-like structure
3. 学会等名 1 and 2 DM International Conference (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Halimah Harfah, Yusuf Wicaksono, Muhammed Aziz Majidi, Koichi Kusakabe
2. 発表標題 First-Principle Studies of Ni/hBN/Ni nano-spin-valve-like Structure for Spin Electronics
3. 学会等名 1 and 2 DM International Conference (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 玉垣侑也, 草部浩一, 寺西慎伍, 西口和孝
2. 発表標題 Nd <sub>2</sub> CuO <sub>4</sub> における3d/4f局在電子軌道の第一原理有効ハミルトニアン of 理論的評価
3. 学会等名 2019年 第66回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Yusuf Wicaksono, Halimah Harfah, Koichi Kusakabe
2. 発表標題 In-plane Magnetoresistance of Graphene in Ni/Graphene/Ni Spin-valve-like Structure: A New Prospective of Spin-logic Device
3. 学会等名 2019年 第66回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Halimah Harfah, Yusuf Wicaksono, Muhammad Aziz Majidi, Koichi Kusakabe
2. 発表標題 Influence of Stacking Arrangement of the 2D Materials-Based Spin Valve on Magnetoresistance Performance: A First Principles Study of Ni/hBN/Ni Spin Valve
3. 学会等名 2019年 第66回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 伊藤きらら, 石田邦夫
2. 発表標題 強電場下におけるGaN系量子井戸中励起子の光学スペクトルの計算
3. 学会等名 日本物理学会第74回年次大会(2019年)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 草部浩一
2. 発表標題 電子相関効果を伴う電子移動励起による分子振動活性化シミュレーション
3. 学会等名 日本物理学会第74回年次大会(2019年)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Koichi Kusakabe
2. 発表標題 Recent research progress in theoretical materials science for high-Tc cuprates and graphene
3. 学会等名 UI-OU Joint Seminar on Theoretical Condensed-Matter Physics (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計1件

1. 著者名 K. Kusakabe	4. 発行年 2019年
2. 出版社 Jenny Stanford Publishing	5. 総ページ数 91
3. 書名 Chapter 4 Electronic Properties of Nanographene, in "Physics and Chemistry of Graphene (Second Edition)- Graphene to Nanographene, 2nd Edition", T. Enoki, T. Ando Edt.	

〔出願〕 計1件

産業財産権の名称 アルカン脱水素触媒, 及びこれを用いる水素製造方法	発明者 草部浩一, 高井和之, 西川正浩, 劉明	権利者 大阪大学, 法政大学, (株)ダイセル
産業財産権の種類、番号 特許、特願2019-135780	出願年 2019年	国内・外国の別 国内

〔取得〕 計0件

〔その他〕

大阪大学基礎工学研究科草部研究室ホームページ  
<http://www.artemis-mp.jp/index.html>

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究 分担者	石田 邦夫  (Ishida Kunio)  (40417100)	宇都宮大学・工学部・教授    (12201)	

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
連携 研究者	西口 和孝  (Nishiguchi Kazutaka)  (30796032)	大阪大学・理学研究科・特任研究員    (14401)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関		
インドネシア	インドネシア大学		