

令和 6 年 6 月 5 日現在

機関番号：12102

研究種目：若手研究

研究期間：2020～2023

課題番号：20K14382

研究課題名（和文）光による電子構造制御の第一原理計算

研究課題名（英文）First principles investigation on optical-control of electronic structure

研究代表者

佐藤 駿丞（Sato, Shunsuke）

筑波大学・計算科学研究センター・准教授

研究者番号：90855462

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,300,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、光による電子状態の自在な制御を実現するため、時間依存密度汎関数理論に基づく第一原理電子計算や、量子マスター方程式に基づく量子ダイナミクス計算を用いて、光が物質中に駆動する電子の非平衡・非線形ダイナミクスを解析した。その結果、高強度の光の下で、物質の光学特性や輸送特性が超高速に変化すること、またこれらの物性変化の背後にある電子状態の変化やその占有数効果などの微視的な物理過程を明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究は、光による電子状態の制御を目指し、時間依存密度汎関数理論と量子ダイナミクス計算を用いて電子の非平衡・非線形ダイナミクスを解析した。学術的意義として、超高速ダイナミクスや微視的物性過程の解明に貢献し、理論物理学と材料科学の進展に寄与する。社会的意義としては、次世代デバイスやエネルギー変換技術、新材料の開発における革新を促進する。これにより、再生可能エネルギーの利用拡大や高性能デバイスの実現が期待される。

研究成果の概要（英文）：In this study, to achieve flexible control of electronic states using light, we analyzed the nonequilibrium and nonlinear dynamics of electrons driven by light in materials through first-principles electronic calculations based on time-dependent density functional theory and quantum dynamics calculations based on the quantum master equation. As a result, we found that under high-intensity light, the optical and transport properties of materials change at ultrafast speeds, and we elucidated the microscopic physical processes behind these property changes, such as changes in electronic states and occupancy effects.

研究分野：光物性

キーワード：超高速現象

### 1. 研究開始当初の背景

近年の光科学技術の発展により、高強度な光を精密に制御することが可能となってきた。強い光が固体に入射すると、光と物質の非線形な相互作用により固体中に超高速な非平衡現象が誘起される。このような現象を光の自由度を介して制御することで、光を用いて物質の性質を制御したり、新たな物性を創り出す技術が注目されている。しかし、これらの光誘起非平衡現象は複雑であり、その理解は困難である。そのため、微視的ハミルトニアンに基づいた第一原理計算が有効であり、申請者はこれまでにこの手法の開発と応用を進めてきたが、個々の実験結果の解釈にとどまっている。光による物性制御や新奇な物性の創発を実現するためには、光が固体中に誘起する超高速現象の統一的な理解と理論体系の構築が必要である。

### 2. 研究の目的

本研究の目的は、光による電子構造制御(バンド構造エンジニアリング)の微視的理論の構築である。具体的には、GaAs や Si などの半導体・絶縁体に高強度フェムト秒レーザーや THz 電場パルスを照射し、その電子ダイナミクスを第一原理計算により系統的に調べ、光による電子構造変化の微視的機構を解明することを目指す。さらに、解明された機構に基づき、グラフェンや遷移金属ダイカルコゲナイドなどの二次元物質のバンド構造を制御し、光を使ってこれらの材料の輸送特性や光学特性を超高速で制御する方法を確立する。最終的に、光エレクトロニクス・光スピントロニクス技術の基盤を構築することを目指す。

### 3. 研究の方法

本研究では、光が固体中に誘起する非平衡電子ダイナミクスを理解するため、時間依存密度汎関数理論(TD-DFT)に基づく第一原理電子ダイナミクス・シミュレーションを用いる。また、場合によっては緩和・散逸の効果を取り入れるために量子マスター方程式に基づく量子ダイナミクス計算を用いる。本研究では、高強度フェムト秒レーザーや THz 電場を典型的な半導体・絶縁体(例: GaAs, Si)に照射し、光励起によるバンドの混成過程を調査する。また、ポンプ・プローブ・シミュレーションにより、ポンプ光とプローブ光の時間差を変えながら、物質の光学応答の変化を時間領域で追跡し、光ドレスト状態形成のダイナミクスを解析する。さらに、この理論をグラフェンや遷移金属ダイカルコゲナイド(TMD)などの二次元物質に応用し、光によるバンド構造制御を通じてこれらの材料の輸送特性や光学特性の超高速制御方法を探求する。グラフェンでは、電流特性の評価を通じて輸送特性の最大増幅・抑制条件を導出し、TMD ではスピン軌道相互作用を利用した磁気特性やスピン輸送特性の制御を目指す。これにより、将来の光エレクトロニクス・光スピントロニクス技術の基盤を構築する。

### 4. 研究成果

#### (1) グラフェンからの高次高調波発生、およびその微視的機構の解明

我々は、グラフェンにおける高次高調波発生(HHG)のメカニズムを明らかにするための理論的研究を行った[Phys. Rev. B 103, L041408 (2021)]。本研究では特に、楕円偏光を用いた場合のHHGの強化に焦点を当てている。量子マスター方程式を用いた二バンドモデルに基づくシミュレーションにより、実験で観測されたHHGの強化現象を再現している。研究の結果、HHGの強化は、楕円偏光の垂直な電場成分によって誘起されるバンド内遷移(intraband transitions)とバンド間遷移(interband transitions)の複雑な非線形結合が原因であることが判明した。また、異なる励起チャネルからの寄与が互いに干渉し合うことで、HHG信号が部分的に抑制されることも分かった。この破壊的干渉を抑制するために、一部のチャネルをブロックする方法が有効であることを示唆している。さらに、バンドギャップの変化がHHGの強度に大きな影響を与えることが確認された。バンドギャップを増加させることでHHGが強化される現象は、マルチフォトンプロセスが重要な役割を果たしていることを示している。また、化学ポテンシャルの調整によってもHHGの強化が可能であることが示された。この方法により、パウリブロッキング効果を利用して破壊的干渉をキャンセルし、HHGを最適化することができる。その後の、化学ポテンシャル制御によって高調波強度を制御できることが他グループの実験により実証されている[Nat. Comm. 13, 6630 (2022)]。この研究は、グラフェンの高次高調波発生の詳細なメカニズムを解明し、その強化方法を提案することで、次世代の光源開発や超高速電子動力学の研究に貢献する。特に、非線形結合と干渉効果の理解を深めることで、高調波発生の効率を向上させる新しい技術の開発が期待される。

### (2) 光による電子状態制御と、その散逸による影響に関する研究

我々は、光によって変調された電子状態である Floquet-Bloch 状態が物質内部の散乱の効果でどのような影響を受けるのかに関して研究を行った[Nano Lett. 21, 5028 (2021)]。時間分解角度分解光電子分光 (tr-ARPES) と時間依存密度汎関数理論 (TDDFT)、緩和を伴う二準位モデルを用いて、WSe<sub>2</sub> とグラフェンを対象に実験とシミュレーションを行った。WSe<sub>2</sub> では、Floquet-Bloch 状態の形成が確認され、実験とシミュレーションが良好に一致した。一方、グラフェンでは、シミュレーションで予測されたバンドギャップが実験では観測されず、散乱が Floquet-Bloch 状態の形成を妨げることが示された。特に、散乱時間が駆動電場の周期に比べて短い場合、Floquet 効果が消失する。高い電場強度では、エネルギー交換が散逸を上回り、Floquet-Bloch 状態が再現することも示された。この研究は、Floquet エンジニアリングの実践的な限界と、成功には長い散乱時間が必要であることを明らかにしている。

### (3) THz 領域における高次高調波発生および非線形輸送特性に関する研究

我々は、THz 光照射下のグラフェンに対して、高次高調波発生 (HHG) 及び電荷輸送特性について研究を行った[New J. Phys. 23, 063047 (2021), Phys. Rev. B 106, 024313 (2022), Phys. Rev. B 109, 045421 (2024)]。これらの現象は、グラフェンが持つディラックコーンと呼ばれる電子構造によって大きな影響を受けている。我々は、量子マスター方程式と緩和時間近似を用いたシミュレーションにより、波数空間内において、THz 光による電子の大きな変位が有効伝導度の低下を引き起こし、非線形電流と HHG を誘発することが明らかにした。静的電場下でのグラフェンの非線形電気伝導特性は、弱電場領域においては電場強度の増加に伴い伝導度が低下し、強い電場下では Landau-Zener トンネリングプロセスにより伝導度が再び増加するという非線形な挙動を示すことを明らかにした。この伝導特性の変動は、THz 誘起透明性や非線形輸送現象とも一致している。また、準静的近似を導入することで、THz 光照射下での HHG と非線形電荷輸送特性を効果的にモデル化し、熱力学モデルと比較することで非平衡電子動力学の重要性を明らかにした。これらの研究成果は、グラフェンを用いた超高速光電子デバイスの開発に貢献し、将来の光通信技術や量子デバイスへの応用が期待される。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計19件（うち査読付論文 19件 / うち国際共著 15件 / うちオープンアクセス 14件）

1. 著者名 Shin Dongbin, Latini Simone, Schafer Christian, Sato Shunsuke A., Baldini Edoardo, De Giovannini Umberto, Hubener Hannes, Rubio Angel	4. 巻 129
2. 論文標題 Simulating Terahertz Field-Induced Ferroelectricity in Quantum Paraelectric SrTiO <sub>3</sub>	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physical Review Letters	6. 最初と最後の頁 167401-1-6
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevLett.129.167401	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 該当する
1. 著者名 Yu Wan-Dong, Liang Hao, Gao Cong-Zhang, Sato Shunsuke A., Wei Bao-Ren, Castro Alberto, Rubio Angel, Peng Liang-You	4. 巻 106
2. 論文標題 Charge transfer in ultrafast isomerization of acetylene ions	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physical Review A	6. 最初と最後の頁 033111-1-8
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevA.106.033111	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 該当する
1. 著者名 Mao Wenwen, Rubio Angel, Sato Shunsuke A.	4. 巻 106
2. 論文標題 Terahertz-induced high-order harmonic generation and nonlinear charge transport in graphene	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 024313-1-8
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.106.024313	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 該当する
1. 著者名 Niedermayr A., Volkov M., Sato S. A., Hartmann N., Schumacher Z., Neb S., Rubio A., Gallmann L., Keller U.	4. 巻 12
2. 論文標題 Few-Femtosecond Dynamics of Free-Free Opacity in Optically Heated Metals	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physical Review X	6. 最初と最後の頁 021045-1-17
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevX.12.021045	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 該当する

1. 著者名 Sato Shunsuke A	4. 巻 4
2. 論文標題 First-principles calculations for transient absorption of laser-excited magnetic materials	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Electronic Structure	6. 最初と最後の頁 014007 ~ 014007
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/2516-1075/ac52df	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 Umberto De Giovannini, Shunsuke A.Sato, Hannes Hubener, Angel Rubio	4. 巻 254
2. 論文標題 First-principles modelling for time-resolved ARPES under different pump-probe conditions	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena	6. 最初と最後の頁 147152 ~ 147152
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.elspec.2021.147152	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 Shunsuke A. Sato	4. 巻 34
2. 論文標題 Two-step Brillouin zone sampling for efficient computation of electron dynamics in solids	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Physics: Condensed Matter	6. 最初と最後の頁 095903 ~ 095903
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1361-648X/ac3f00	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 Guillermo Albareda, Kevin Lively, Shunsuke A. Sato, Aaron Kelly, Angel Rubio	4. 巻 17
2. 論文標題 Conditional Wave Function Theory: A Unified Treatment of Molecular Structure and Nonadiabatic Dynamics	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Chemical Theory and Computation	6. 最初と最後の頁 7321 ~ 7340
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jctc.1c00772	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 該当する

1. 著者名 Dongbin Shin, Simone Latini, Christian Schafer, Shunsuke A. Sato, Umberto De Giovannini, Hannes Hubener, Angel Rubio	4. 巻 104
2. 論文標題 Quantum paraelectric phase of SrTiO3 from first principles	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.104.L060103	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 該当する

1. 著者名 Simone Latini, Dongbin Shin, Shunsuke A. Sato, Christian Schafer, Umberto De Giovannini, Hannes Hubener, Angel Rubio	4. 巻 118
2. 論文標題 The ferroelectric photo ground state of SrTiO3: Cavity materials engineering	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Proceedings of the National Academy of Sciences	6. 最初と最後の頁 1~5
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1073/pnas.2105618118	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 該当する

1. 著者名 Shunsuke A. Sato, Angel Rubio	4. 巻 23
2. 論文標題 Nonlinear electric conductivity and THz-induced charge transport in graphene	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 New Journal of Physics	6. 最初と最後の頁 063047 ~ 063047
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1367-2630/ac03d0	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 該当する

1. 著者名 Sven Aeschlimann, Shunsuke A. Sato, Razvan Krause, Mariana Chavez-Cervantes, Umberto De Giovannini, Hannes Hubener, Stiven Forti, Camilla Coletti, Kerstin Hanff, Kai Rossnagel, Angel Rubio, Isabella Gierz	4. 巻 21
2. 論文標題 Survival of Floquet-Bloch States in the Presence of Scattering	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Nano Letters	6. 最初と最後の頁 5028 ~ 5035
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.nanolett.1c00801	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 該当する

1. 著者名 Shunsuke A. Sato	4. 巻 194
2. 論文標題 First-principles calculations for attosecond electron dynamics in solids	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Computational Materials Science	6. 最初と最後の頁 110274 ~ 110274
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.commatsci.2020.110274	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 Shunsuke A. Sato	4. 巻 194
2. 論文標題 First-principles calculations for attosecond electron dynamics in solids	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Computational Materials Science	6. 最初と最後の頁 110274
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.commatsci.2020.110274	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 Lively Kevin, Albareda Guillermo, Sato Shunsuke A., Kelly Aaron, Rubio Angel	4. 巻 12
2. 論文標題 Simulating Vibronic Spectra without Born-Oppenheimer Surfaces	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry Letters	6. 最初と最後の頁 3074 ~ 3081
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcllett.1c00073	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 Yu Wandong, Gao Cong-Zhang, Sato Shunsuke A., Castro Alberto, Rubio Angel, Wei Baoren	4. 巻 103
2. 論文標題 Single and double charge transfer in the Ne <sup>2+</sup> He collision within time-dependent density-functional theory	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review A	6. 最初と最後の頁 32816
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevA.103.032816	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 Sato Shunsuke A., Hirori Hideki, Sanari Yasuyuki, Kanemitsu Yoshihiko, Rubio Angel	4. 巻 103
2. 論文標題 High-order harmonic generation in graphene: Nonlinear coupling of intraband and interband transitions	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 L041408
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.103.L041408	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 該当する

1. 著者名 Sato S A, De Giovannini U, Aeschlimann S, Gierz I, Hubener H, Rubio A	4. 巻 53
2. 論文標題 Floquet states in dissipative open quantum systems	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics	6. 最初と最後の頁 225601 ~ 225601
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1361-6455/abb127	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 該当する

1. 著者名 Wang Chang-Ming, Tancogne-Dejean Nicolas, Altarelli Massimo, Rubio Angel, Sato Shunsuke A.	4. 巻 2
2. 論文標題 Role of electron scattering on the high-order harmonic generation from solids	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review Research	6. 最初と最後の頁 33333
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevResearch.2.033333	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 該当する

〔学会発表〕 計12件 (うち招待講演 5件 / うち国際学会 4件)

1. 発表者名 Shunsuke A. Sato
2. 発表標題 Application of real-time TDDFT simulation to nonlinear and nonequilibrium electron dynamics in matter
3. 学会等名 Fundamentals in density functional theory (DFT2022) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Shunsuke A. Sato
2. 発表標題 Application of TDDFT to recent attosecond experiments
3. 学会等名 9th Time-Dependent Density-Functional Theory: Prospects and Applications (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 佐藤駿丞
2. 発表標題 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
3. 学会等名 第70回応用物理学会春季学術講演会 (招待講演)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 佐藤駿丞
2. 発表標題 光誘起非平衡電子ダイナミクスの第一原理計算
3. 学会等名 日本物理学会2023年春季大会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Shunsuke A. Sato
2. 発表標題 Theoretical study on attosecond electron dynamics in solids
3. 学会等名 2021 P-COE Workshop (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 佐藤駿丞, Matteo Lucchini, Giacinto D. Lucarelli, Bruno Moio, Gian Luca Dolso, Giacomo Inzani, Rocio Borrego-Varillas, Fabio Frassetto, Luca Poletto, Hannes Hubener, Umberto De Giovannini, Mauro Nisoli, Angel Rubio
2. 発表標題 固体MgF <sub>2</sub> におけるアト秒励起子ダイナミクスの理論的解析
3. 学会等名 日本物理学会第2021年秋季大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 佐藤駿丞
2. 発表標題 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
3. 学会等名 日本物理学会第77回年次大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Shunsuke Sato
2. 発表標題 Theoretical study on nonlinear transport in graphene under optical-driving and dissipation
3. 学会等名 日本物理学会第77回年次大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Shunsuke A. Sato
2. 発表標題 Real space and real time electron dynamics simulations for attosecond physics in solids
3. 学会等名 APS March Meeting 2021 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 佐藤駿丞
2. 発表標題 グラフェンにおける光誘起異常Hall効果の理論的研究
3. 学会等名 日本物理学会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 佐藤駿丞
2. 発表標題 固体におけるアト秒電子ダイナミクスの理論的研究
3. 学会等名 日本物理学会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 佐藤駿丞
2. 発表標題 グラフェンにおける高次高調波発生の理論的解析
3. 学会等名 日本物理学会
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

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

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			
ドイツ	Max-Planck研究所			