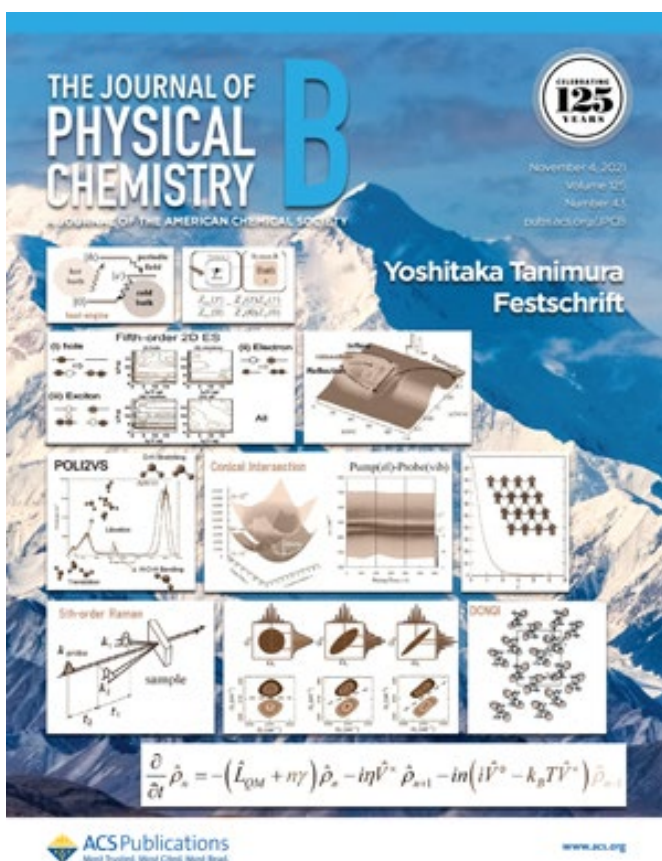


Yoshitaka Tanimura Festschrift

<https://pubs.acs.org/page/jpcbfk/vsi/tanimura-festschrift>



November 4, 2021 Volume 125, Issue 43

About the Cover:

Yoshitaka Tanimura Festschrift Virtual Special Issue. The cover shows the time evolution of Yoshitaka Tanimura's research results (the mountain in the background is Denali). The right image in the second row is courtesy of J. Phys. Soc. Jpn. 2013, 82, 033707. The left image in the fourth row is courtesy of J. Phys. Soc. Jpn. 2006, 75, 082001. This virtual special issue was organized by Guest Editors Graham R. Fleming, Vladimir Y. Chernyak, and Akihito Ishizaki.

Translated by DEEPL and modified by volunteers.

[Autobiography of Yoshitaka Tanimura | The Journal of Physical Chemistry B](#)

Cite this: *J. Phys. Chem. B* 2021, 125, 43, 11787-11792

Abbreviated Curriculum Vitae of Yoshitaka Tanimura

Data of Birth: June 26, 1960

Education

Keio University, Department of Instrumentation (with R. Kubo) 1984/3 B.S

Keio University, Department of Instrumentation (with R. Kubo) 1986/3 M.S.

Keio University, Department of Physics (with R. Kubo) 1989/3 Ph.D

Professional Experience

Beckman Institute for Advanced Study, University of Illinois at Urbana-Champaign

Postdoctoral fellow (with P. G. Wolynes, K. Hess, and A. J. Leggett) 1989/5-1992/9

Department of Chemistry, University of Rochester

Post-doctoral Fellow (with S. Mukamel) 1992/10-1994/3

Institute for Molecular Science

Associate professor 1994/4-2003/5

Department of Chemistry, Kyoto University

Professor 2003/6-present

School of Chemistry, Tel Aviv University

Visiting Professor 1995/11

Solid State and Structural Chemistry Unit, Indian Institute of Science

Visiting Professor 1997/1

Institute for Molecular Science

Visiting Professor 2012/6-2012/7

Department of Chemistry, Technical University of Munich

Visiting Professor 2010/3-2011/3

Department of Physics, University of Augsburg

Visiting Professor 2012/6-2012/7

Department of Physics, University of Hamburg, DESY

Visiting Professor 2012/2-2012/5

Freiburg Institute for Advanced studies, Freiburg University

Senior Research Fellow 2014

Department of Chemistry, Beijing University

Visiting Professor 2019

Fukui Institute for Fundamental Chemistry, Kyoto University

Vice Director 2015/4-2018/3

Faculty of Science, Kyoto University

Vice Dean of Science 2020/4-present

Awards

Morino Science Foundation Award, 2002

Humboldt Research Award, 2012

Yagami Award, 2013

American Physical Society Fellow, 2015

谷村吉隆自传

(Autobiography of Yoshitaka Tanimura *J. Phys. Chem. B* 2021, 125, 43, 11787-11792: Translated by DEEPL & modified by volunteers.)

• 序言

我的名字是吉隆(Yoshitaka)。吉(Yoshi)是“幸运”的意思，隆(Taka)表示“崛起”。小时候，我并不喜欢自己的名字，因为它太不常见了。我在神户出生，在东京长大。我的父亲是川崎重工的喷气发动机工程师，且是一个兢兢业业经常加班的日本商人。在上大学之前，我所就读的都是公立学校，并且我的成绩相当一般。我非常喜爱阅读比如相对论和量子力学之类的科学书籍，但除了这一爱好之外，我曾只是一个普普通通的小男孩。我的姐姐勤奋好学，而我的哥哥则是个技术宅。他曾直接从美国进口了一台个人电脑，这可能是最早进入日本的个人电脑之一。他现在是一家电子游戏公司的总裁。

高中时，我开始了攀岩和攀冰，从此便不再只是一个普普通通的男孩。在我 17 岁那年，有个意外发生了，我和我的朋友们被困在一座陡峭冷冽的雪山上好几天，我的脚趾全部冻伤了。这件事在电视和报纸上引起了轩然大波。

尽管我擅长数学和物理，我却厌恶学习。因此，我不熟稔英语、生物、化学等任何其他需要勤奋刻苦学习的科目。虽然我未曾刻苦用功学习，但我还是考入了庆应义塾大学的工程系，这是日本最好的私

立大学之一。

• 庆应义塾大学

在大一期间，我登山的时间大幅增加，整整一年之间，我有两百多天都在登山。大二的时候，我去了印度境内的喜马拉雅山脉，登上了传闻中恒河女神第一次触碰地球的地方——根戈德里（Gangotri）镇上的卡尔恰昆德山(Mt. Kharchakund，海拔 6632 米) 的顶峰。我曾立志成为一名专业登山运动员，渴望登上每一座海拔 8000 米级别的山峰。与此同时，我的大学成绩却极其糟糕。

在我二十岁那年，我的朋友在一次攀岩事故中丧生，这件事彻底地改变了我的人生。我对人生的目的和意义产生了强烈的求知欲，这种渴求与之前驱动我去登山的情绪相似。起初，我对哲学很感兴趣，但在意识到我在哲学系的朋友们并未从事学习研究我所感兴趣的哲学命题后，我的热情便消亡了。后来我得出了一个结论：人类还没有进步到足以回答“我们缘何在此”这类深奥的哲学命题，我们仍处于为回答这些哲学问题奠定科学基础的过程中。最后，我确信唯一通往哲学真理的大道只有基础科学，这个我一直以来颇为兴趣的主题。然而，我也清楚知道仅凭一己之力，我是无法达成这一壮举的。尽管如此，我还是希望通过基础科学这一桥梁帮助后人发现通往“真理”的道路。

诚然，对于一个成绩如此糟糕的学生来说，开展理论物理方面的基础研究的想法宛如痴人说梦。事实上，在那段时间，我甚至很少走进大学校园，因此我需要重读大二。此外，由于我在工程系，无法在

课堂上系统地学习物理。因此，我需要自学物理的基础知识。为此，我利用多出的大二学年进行了自学，并特地认真学习了朗道(Landau)和利夫希茨(Lifshitz)系列丛书。我自学了所需要的数学知识，这是我一生中学习最刻苦学习的时期。到大三秋天，我已经掌握了力学、量子力学和广义相对论。然而，当我自认为已经完成了掌握物理学的目标时，现实却给了我当头一棒，我发现实际上学习科学和进行科学研究之间有着天壤之别。

久保亮五

就在那时，我得知庆应义塾大学要成立物理系和化学系，并将其重组进理工学院。我还得知庆应义塾大学是世界著名物理学家久保亮五的故乡。

对亏了留级重读刻苦学习的一年，我想我也许有机会加入久保教授的研究小组。有一次，我在大学食堂附近和朋友谈论这个可能性时，发现有一位老先生在不远处看着我。一个月后，久保教授宣布他将招收其他系的学生。我立即赶到他的办公室，看到那位老先生正坐在那里。那是我第一次接触久保老师。

大四那年，我和几个来自其他系的学生一起加入了久保小组。理论物理系的几位老师轮流教我们如何阅读费曼(Feynman)、布洛赫(Bloch)、朗道(Landau)和久保(Kubo)等人的重要科学论文。我全力以赴，累成狗了还在学。

随机理论

大四下半年，我在久保老师的指导下开展了我的研究项目。我的论文主题是分析随机调制多能级系统的非线性光谱，与久保老师所发展的随机刘维尔方程（stochastic Liouville equation）密切相关。虽然这个方法是唯象的，但它有助于在非马尔可夫和非微扰条件下对系统的三阶光学响应函数进行解析计算。这个方法的优势显而易见：马尔可夫量子主方程（Markovian quantum master equation）方法只能预测出一个狄拉克 δ 函数形的拉曼峰和一个洛伦兹形的磷光峰，而随机刘维尔方程除了预测出这两个峰外还能给出一个在拉曼峰位置出现的洛伦兹形展宽的拉曼峰。

经过两个月的努力，我在久保研究组助理研究员高野宏（Hiroshi Takano）的帮助下，得到了增宽拉曼峰的明确解析表达式。随后，我发现这个峰具有奇特的性质，例如在快调制极限下它是拉曼光谱的一部分，而在慢调制极限下它则是磷光光谱的一部分。

当我自豪地向久保老师解释我的成果时，他只是静静地听着。令我惊讶的是，一周后他根据我的这一微不足道的成果发展出了一个一般性理论，并将我的表达式作为其中一个应用推导出来。这让我想起了“井底之蛙不识大海”这个谚语。我的毕业论文就是基于这些成果完成的。

久保老师是一个沉默寡言但善于思考的人。在我认识他之后的很长一段时间里，我都不知道他在想什么。他的指示模棱两可，难以捉摸。他就是我的尤达（Yoda，《星球大战》中的传奇绝地大师）。

进入研究生院后，我用英语重新撰写了论文，准备向《日本物理学杂志》(*J. Phys. Soc. Jpn*) 投稿。由于我没有从头认真学习英语，这个艰难的过程持续了整整一年。即便如此，我的英文论文写作质量依然不高。在那段时间，久保老师担任了日本科学委员会主席，工作非常繁忙。我的毕业论文总共花了两年半的时间才得以发表（1；下文括号中的数字表示我发表的论文列表中的相关论文）。

在等待论文完成期间，我重新拾起了登山这一爱好。让我始料未及的是，尽管我已经有三年多没有攀岩了，我的技术却有了很大的提升。虽然我攀岩的次数没有以前那么多，但我攀岩的路线变得更加有技术含量。

级联运动方程(Hierarchical Equations of Motions, 简称 HEOM)

我们所揭示的展宽拉曼光谱是从唯象的随机刘维尔方程中得到的。随机刘维尔方程所描述的噪声是非微扰和非马尔可夫的，但当时还没有基于哈密顿的动力学理论来描述这种现象。因此，我不确定这一过程是否真的存在。随机刘维尔方程可以处理这种噪声，因为它的傅立叶-拉普拉斯变换解可以表示为具有显著收敛特性的连分数形式。我寻思着能否能够找到一种形式与随机刘维尔方程相似但基于哈密顿系统的运动方程。

大约在那个时候，几位硕士生作为我的后辈加入了久保老师的研究小组。我们研究了费曼-弗农理论 (Feynman-Vernon theory)。在

该理论中，一个与热浴相互作用的系统的时间演化是由路径积分表示的约化密度算符（reduced density operator）来描述的。热浴的影响以影响泛函的形式被纳入约化密度算符之中，并由系统与热浴相互作用的谱密度函数（Spectral density function）所表征，表现为耗散和随温度变化的涨落。这两者根据久保的涨落耗散定理（fluctuation-dissipation theorem）相互关联，且整个系统在长时极限下趋近热平衡状态。

我猜测这一理论中的涨落对应于随机刘维尔方程中的随机噪声。作为探索这一猜测的第一步，我对约化密度算符进行了时间上的微分，得到了一个运动方程。我在组会上报告了我的发现。然而，久保老师对我的方法表示十分怀疑，并生气地说：“对一个用泛函积分所表示的密度矩阵求导并不提供任何新见解”。我当时感到大失所望。不过，几天后我意识到路径积分是位形空间中的一种积分表示，正因如此，它无法通过对时间求导来消除。

在下一次组会上，我提出了这一点，并通过推导出的量子主方程做了更进一步讨论。久保老师神情严肃地听着，并他回答道：“两能级体系是用能级空间而不是位形空间来表示的。这个系统不能用路径积分的形式来表达”。然而，在接下来的一周内，我证明了如果采用格拉斯曼（Grassman）变量的相干态表象，两能级体系的约化密度算符是可以用路径积分来表示。大约在那个时候，我发现卡尔代拉（Caldeira）和莱格特（Leggett）用一个与我的方法类似的方法，从布朗型哈密顿量中推导出了基于马尔可夫热浴的量子福克-普朗克方程（quantum

Fokker-Planck equation)。渐渐地，久保老师认可了我的方法。

假定谱密度函数是欧姆型 (Ohmic) 的且热浴的温度很高，涨落项和耗散项均表现为 δ 函数的形式 (在马尔可夫条件下)，我们就可以得到量子主方程，类似于量子福克-普朗克方程的情况。与传统的量子主方程不同，该方程的涨落项与温度成正比。这个量子主方程的稳态解是有限温度下的热平衡态。虽然这个方程只适用于高温，但它并不要求旋转波近似。

从这个量子主方程中，我意识到如果用德鲁德 (Drude) SDF 代替欧姆谱密度函数，量子主方程中的涨落将与随机刘维尔方程中的随机噪声表现出相同的时间相关性。我知道随机刘维尔方程可以改写成一个随机本征态表象中的系统密度算符的联立微分方程。参考这些方程，我在谱密度函数为德鲁德 (Drude) 形式的情况下，对约化密度算符代替了描述弛豫的项。当我对这个辅助密度算符求微分时，除了原来的约化密度算符和我之前引进的辅助密度算符之外，又出现了一个新的辅助密度算符。通过重复对辅助密度算符的时间微分过程，我得到了一个运动方程的层次结构，就类似于随机刘维尔方程的情况。我所得到的就是后来被称为级联运动方程 (HEOM) 的一个原型。

级联运动方程是在动力学理论框架下构建的：与随机刘维尔方程不同，HEOM 不仅包含涨落，还包括耗散。由于耗散 (与涨落通过涨落耗散定理相关联) 的存在，HEOM 的稳态解是有限温度下的热平衡态。最重要的是，HEOM 构成了一种非微扰、非马尔可夫的动力学理论。这些结果是在 1986 年获得的，但久保老师非常繁忙，直到 1988

年才读了我的论文。

彼时，久保研究小组只有我和高野先生。久保老师把我当孙子看待，我必须在每次的小组会议上汇报工作。在这种压力下，我拓展了 HEOM 方法来处理物理可观测量的非线性响应函数，并撰写了三篇论文。有几次，不仅久保老师，就连高野先生也睡着了，我不得不等上半个小时，等他们醒来。

1988 年年中，久保老师终于意识到我的博士学业已接近尾声。于是，他开始校对我的手稿。我推导出的运动方程是主方程的延伸，因为是在博士学习期间推导出来的，所以我将其命名为“博士方程”。遗憾的是，稿子中的这部分内容被久保老师删掉了。

我希望往《物理评论》期刊投稿，因为博士毕业后我想去美国工作。然而，久保老师强调了保持日本期刊科学性的重要性，因此他只允许我向《日本物理学会英文志》(2) 投稿。虽然久保老师花了很长时间才看完这篇论文，但当我告诉他我还将向《日本物理学会英文志》(投稿另外三篇论文 (3-5) 时，他立即校对了我的其他论文。这四篇论文构成了我博士论文的基础。

在这些论文都被接受后，我想让久保老师承认我的所推导出的方法并非一无是处。我问他：“久保老师，您曾说路径积分表示下的约化密度算符的时间微分不会产生任何新东西，但它确实产生了，不是吗？”他回答说：“我这么说过吗？”他始终是我的老师。

为了开阔我的视野并提高英语能力，我决定博士毕业后出国深造。然而，在离开日本之前，我独自一人去攀登了八年前我的朋友去世的

岩壁。我花了很长时间才到那里，但一旦开始攀爬，我只用了 30 分钟就完成了，这次是正常时间的十分之一。

• 伊利诺伊大学香槟分校 (The University of Illinois at Urbana-Champaign, 简称 UIUC)

论文答辩结束后，我联系了托尼·莱格特 (Tony Leggett) 教授，询问是否有博士后职位空缺。这个过程花了一些时间，因为我们是通过航空信件联系的，但最终托尼 (Tony) 为我安排了一个由他本人、化学系的彼得·沃林斯 (Peter Wolynes) 教授，以及电子工程系的卡尔·赫斯 (Karl Hess) 教授共同负责的博士后职位。由于我的化学成绩一直很差，我不确定自己能否胜任研究化学问题的的工作。不过，最终我还是决定去美国伊利诺伊大学香槟分校，因为我觉得这是一个开阔视野的好机会。

在 1989 年 5 月，我在像五星级酒店一样的贝克曼 (Beckman) 研究所开始了新的研究项目。在伊利诺伊大学香槟分校，新视野确实比比皆是。

低温校正 HEOM

我和卡尔 (Karl) 一起研究纳米线中电子导电的热效应。作为研究声子热浴的第一步，我对 HEOM 进行了拓展，利用层次结构的傅里叶表示来处理任意形式的谱密度函数和温度。作为应用，我引入了低温修正项。这篇论文 (6) 中所展示的级联运动方程便是日后最常

用的形式，但这些结果被埋没了近 15 年，因为即使是当时的一台高性能计算机也只有 32 MB 的内存，无法对其进行验证。老实说，我当时不相信在我有生之年还能完成相关计算。

级联量子福克-普朗克方程 (Hierarchical Quantum Fokker-Planck Equations, 简称 HQFPE)

我最初计划与彼得 (Peter) 一起研究蛋白质折叠问题，但我们最终研究的却是用系统-环境模型描述的化学反应问题。彼得过去曾使用基于变分原理的方法来研究化学反应过程中的量子效应。他提议拓展 HEOM 从而将其应用于具有双势阱的系统。这个问题也与应用卡尔代拉-莱格特 (Caldeira-Leggett) 理论解决量子测量问题密切相关，后者是研究量子力学基础的一次尝试。

对于这个系统，我拓展了 HEOM 方法，采用了描述位形空间的维格纳 (Wigner) 分布函数。在此之前，随机刘维尔方程和级联运动方程都只能通过连分数形式的拉普拉斯变换来求解。然而，维格纳分布函数的位形空间对于拉普拉斯变换来说太大了，因此我尝试直接求解无穷级数的微分方程。后来，我发现高阶辅助密度矩阵之间存在一种简单的关系，可以用来对方程截断而不会降低精度。这一结果是 HEOM (7) 发展过程中的一个里程碑。

通过对级联量子福克-普朗克方程进行数值积分，我们可以处理任何形状的势能面。此外，我们还可以在不增加额外计算成本的情况下，在系统中应用任何形状和强度的含时外场。级联量子福克-普朗

克方程是马尔可夫的福克-普朗克方程的扩展。在经典极限下，这组方程是克拉默（Kramers）方程在非马尔可夫噪声情况下的拓展。经典对应方程的存在使我们可以相同的物理条件下，通过比较量子计算和经典计算的结果，轻松识别量子效应。利用级联量子福克-普朗克方程，我们计算了量子与经典状态下的化学反应速率关于热浴耦合强度、噪声相关性和温度的函数关系，我们发现量子结果也表现出克拉默（Kramers）翻转行为（8）。

搬到地形开阔的伊利诺伊州后，我以为自己已经放弃了登山。然而，一位朋友告诉我，只要向西行驶 1000 英里就能到达落基山脉。于是，我多次前往那里。我不仅喜欢爬山，还喜欢开车（一辆庞蒂亚克菲耶罗（Pontiac Fiero））。在圣诞节期间，我在 10 天内驾车行驶了 8000 英里，途经路易斯安那州、得克萨斯州、亚利桑那州，以及其他几个州，并在山间徒步旅行。最后，我决定爬上 50 个州中每个州的最高点。

当时在日本，大多数统计物理学研究人员都在研究自旋晶格系统中的临界现象，而我则在研究开放量子动力学理论。通过与彼得（Peter）、卡尔（Karl）、托尼（Tony）以及他们的博士后和学生的交流，我意识到我所从事的研究在美国是一个重要领域。统计物理学中最先进的实验都是在物理化学实验室中进行的。

我在伊利诺伊州大学香槟分校工作了略多于两年的时间。在那里完成部分研究后，我向美国几所大学申请教职，希望能进一步开阔视野。然而，当时美国经济衰退，职位稀缺。更糟糕的是，苏联正在解

体，大名鼎鼎的俄罗斯科学家纷纷来到美国。对当时的我而言，获得一个大学教职看来似乎希望渺茫。于是，我联系了罗切斯特大学化学系的肖尔·穆卡梅尔（Shaul Mukamel）教授，询问是否有博士后职位空缺。他很快回复了我，告诉我应该马上过去罗切斯特。我在1991年秋天搬到了罗切斯特，为不能为卡尔（Karl）或托尼（Tony）再做任何工作而感到内疚。

• 罗切斯特大学

我原以为伊利诺伊州是个寒冷的地方。然而，当我搬到罗切斯特后，我才发现伊利诺伊州也没那么糟糕。那年冬天，罗切斯特的气温降到了零下32摄氏度。

肖尔（Shaul）对超快非线性光谱实验的发展趋势了如指掌，他召集了来自不同背景的博士后开展研究，为帮助实验人员观测新现象指明方向。他非常勤奋，每天两次来到我们五个博士后中间，与我们进行激烈的讨论。我们称其为“早晚服务”。

多态量子福克-普朗克方程（MSQFPE）

在罗切斯特的首个项目中，我对量子福克-普朗克方程进行了拓展，以处理多个电子势能面之间任意形式的非绝热和激光相互作用以及含时的电子跃迁。然后，我将这种方法用于计算超快非线性光谱。当时，肖尔（Shaul）正试图开发一种方法，通过将三阶响应函数拆分为激光激发部分和探测部分（门洞-窗户图景），来计算三阶响应函数。

然而，这种方法对耦合到热浴中的系统不起作用。他要求我对此阐明原因，于是我说等多态量子福克-普朗克方程这个项目完成后我就做，但后来他开始每天来我的办公室说：“Taka，你一定要做！”一周后，他终于说：“Taka，求你了……”于是，我不得不暂停多态量子福克-普朗克方程这个项目，转而开始进行繁琐的路径积分计算。

罗切斯特漫长、宁静、多雪的冬夜非常适合进行这样的计算。通过拓展赫尔曼·格拉巴特 (Herman Grabart) 及其同事所得到关于布朗系统约化密度矩阵的解析解，我推导得到了生成泛函，可以用于计算任意阶的非线性响应函数(9)。然后，我发现“门窗图景”之所以行不通，是因为它忽略了系统与热浴之间的量子相干性。例如，如果没有这种相干性，在光子回波测量中就不会出现回波峰。后来我意识到，在 HEOM 方法中，这种相干性被纳入了辅助密度矩阵中，因此 HEOM 可以用来处理含时外场并计算非线性响应函数。

多维光谱

当我基本完成这项工作，准备回到多态量子福克-普朗克方程项目时，肖尔 (Shaul) 来到我的办公室，建议用生成泛函方法计算一个布朗系统（曾被用作分子液体模型）的七阶拉曼回波信号。我进行了计算，发现这个模型中不仅没有回声，甚至连信号都没有产生。肖尔 (Shaul) 对我的结果很不满意，但数学计算就是给出这样的结果！不过，通过加入极化率的非线性分量，我构建的模型确实产生了信号，不仅在七阶，甚至在五阶也产生了信号。由于这些结果没有表现出明

显的回波峰值，我绘制了二维（2D）光谱，作为激发脉冲和检测脉冲之间时间间隔的函数。结果表明，这些二维剖面图对环境条件的敏感度远高于传统光谱。

受二维核磁共振的启发，肖尔（Shaul）一直在思考二维激光光谱的可能性。因此，他对我绘制的二维拉曼图很满意。我们指出，虽然当时的光源有限，但可以用红外激光器进行类似的实验。我们将这些结果与电子共振测量的表达式一起作为五阶二维拉曼光谱理论（11）发表。然而，我并没有想到，这种测量方法后来在超快相干二维光谱研究中变得非常普遍。

这篇二维拉曼论文提交后，肖尔（Shaul）来到我的办公室，带着满脸灿烂的笑容问我：“Taka，不知道怎么回事，你怎么不做多态量子福克-普朗克方程项目了？”他终于同意我去完成多态量子福克-普朗克方程的研究(14)。

我在罗切斯特待了两年半。我利用周末时间驱车走访了东部 20 个州的最高点。陈冠华和弗拉基米尔·切尔尼亚克 (Vladimir Chernyak) 对我在肖尔 (Shaul) 严格的工作管理下仍能完成这项工作表示钦佩。

在美国待了五年后，我觉得如果能在化学系工作，我的研究会有更好的发展。因此，我申请了日本分子科学研究所的教职。在绍尔（Shaul）和德韦恩·米勒（Dwayne Miller）的大力支持下，我在那里开始任职副教授。肖尔（Shaul）高兴得仿佛他变成了我一样。

• 分子科学研究所 (Institute for Molecular Science, 简称 IMS))

1994 年 4 月, 33 岁的我来到分子科学研究所。与日本大学不同, 分子科学研究所的副教授独立且资金充足, 有自己的研究助理和博士后。虽然也有博士生, 但教学任务微乎其微。曾担任理论部主任的中村广树 (Hiroki Nakamura) 说, 如果他转世投胎, 希望能回到 IMS 担任副教授。

奥村刚 (Ko Okumura) 作为副研究员加入了我的研究小组, 我们致力于开发非线性响应函数的解析理论, 其中也包括二维拉曼光谱的解析理论。铃木洋子 (Yoko Suzuki) 和加藤毅 (Tsuyoshi Kato) 也使用各种方法研究二维光谱学的各种理论。

多维光谱学的各种理论

在攻读博士期间, 我就指导了三名学生。每当有学生来找我, 希望能成为我的课题组一员时, 我都会告诉他们一个事实: “理论研究维艰, 而生命须臾, 更甚的是, 工作机会还很少”。而且, 在许多日本大学, 情况依然如此: 学生们必须自己支付学费和生活费。考虑到这一点, 我对他们说, 如果他们不介意在从事基础科学研究的同时过着悲惨的生活, 我欢迎他们。他们, 毫不畏惧我的这番预警, 加入了我的团队。从那以后, 甚至在我搬到京都大学之后, 我也一直对希望加入我的研究小组的学生说着同样的话。我发现这是甄别那些有志于从事基础科学研究的学生最有效的方法。

分子科学研究所的学生是从其他大学获得硕士学位后再进入研究项目的。我利用他们的不同背景扩大了我的研究范围。在计算机方向的学生丸山丰 (Yutaka Maruyama) 的帮助下, 多态量子福克-普朗克方程得以拓展至非马尔可夫情况下的泵探针 (pump-probe) 光谱的计算 (22)。在量子化学方向的学生今村穰 (Yutaka Imamura) 的帮助下, 一个基于有机超导体材料的物理模型得以建立 (39)。此外, 我们还与日野理 (Osamu Hino) 一起研究了计算关联电子态的有效方法 (50)。我对量子化学一无所知, 但天能精一郎 (Seiichiro Tenno) 从始至终帮助引领着我们进行研究。他拥有广博的科学知识, 是日本最优秀的量子化学家之一。从那时起, 他就成了我最亲密的朋友之一。

当时, 分子科学研究所是日本面向外国物理化学研究人员的门户。研究所主任伊藤光男 (Mitsuo Ito) 多次鼓励我组织国际研讨会和暑期学校等。通过这些活动, 我结识了许多实验学家, 包括格雷厄姆·弗莱明 (Graham Fleming)、安德烈·托克马克夫 (Andrei Tokmakoff)、托马斯·埃尔萨塞 (Thomas Elsaesser) 和彼得·哈姆 (Peter Hamm)。我意识到, 最好的实验学家往往也是优秀的理论学者, 他们可以使用简单的模型分析他们的结果, 而无需计算。我还接待了比曼·巴奇 (Biman Bagchi)、赵民亨 (Minhaeng Cho)、何塞·奥努奇克 (Jose Onuchic)、奥利弗·库恩 (Oliver Kühn) 和李億均 (Eok-Kyun Lee) 等客座教授。我和奥努奇克 (Onuchic) 一起爬过富士山, 后来又和李億均一起再去了一趟。在分子科学研究所, 我还结识了富永圭介

(Keisuke Tominaga)、田原太平 (Tahei Tahara)、斋藤真司 (Shinji Saito)、信贞克幸 (Katsuyuki Nobusada) 和大峰巖 (Iwao Ohmine)。

在分子科学研究所从事研究工作数年后，我意识到自己并没有充分利用在那里的机会，这促使我去了勃朗峰 (Mont Blanc)、德纳利峰 (Denali) 和其他几座山。我与秋山良 (Ryo Akiyama) 和住斋 (Hitoshi Sumi) 攀登了阿空加瓜山 (Mt. Aconcagua, 海拔 6961 米)。我在分子科学研究所过着优越的研究生活，但我的职位是为年轻研究人员保留的。此外，我还想把我的经验和知识传授给和我一样热爱基础科学的学生。于是，2003 年，43 岁的我离开了分子科学研究所，成为京都大学理学院化学系的教授。

● 京都大学

京都大学理学院的独特之处在于其对基础科学的坚守。那里的教授们有一个传统：他们从事“好奇心驱动”的研究，而不以结果为导向。例如，有一位教授在黑暗中饲养果蝇长达 50 年 (3000 代)，以此观察果蝇的变化。我曾为化学系本科生讲授为期一年的统计热力学课程，但在京都大学，既没有教学大纲，也不需要注册班级。因此，我教授高级统计力学，包括随机理论和久保的线性响应理论。

我到任后不久，就有几名来自校内外的学生加入了我的团队，尽管我曾警告过他们，他们的生活会很艰辛。其中包括石崎章仁 (Akihito Ishizaki)、永田勇树 (Yuki Nagata)、铃木洋一 (Yoichi Suzuki) 和长谷川太祐 (Taisuke Hasegawa)。这些学生大多一边从事研究工作，一

边在校外打工维持生计。不过，他们都是积极进取、勤奋好学的学生，是我的战友。

当时，我的研究包括两大支柱：HEOM 和多维光谱学。虽然它们涉及不同类型的方法，但都有广泛的应用。章仁（Aki）在应用 HEOM 处理低温系统方面取得了进展（62），勇树（Yuki）和太祐（Taisuke）通过拓展真司（Shinji）和托马斯-扬森（Thomas Jansen）的工作，开发出了直接从分子动力学（Molecular Dynamics）模拟计算二维光谱的方法（64、67、75）。我们启动分子动力学模拟工作的原因是，二维拉曼的测量非常困难，以至于除非我们估算出信号强度，否则实验人员便不会再关注我们的理论预测。这些 HEOM 和分子动力学研究为我们进一步开展研究奠定了基础。

调到京都大学后不久，我与平田文男（Fumio Hirata）的研究生步美（Ayumi）结婚了，并在东京迪斯尼乐园举办了婚礼。我的父母和朋友们惊喜交加，并向我们表示祝贺。后来，我们有了长子亮太（Ryota）和次子光一（Koichi）。我一直以来都把我的研究生当作自己的孩子，但不久，我发现我的孩子们可比我的研究生们可爱上百倍。

化学和物理专业的本科生也开始经常加入我的小组，寻找他们悲惨的生活。大多数研究生并不急于获得成果，而是喜欢把时间花在基础科学研究上。

我们小组的秘书，植野由美子（Yumiko Ueno）非常了不起！她全心全意地为小组成员和外国访客等提供支持。她对我们所有人的生

活都产生了深远的影响。去年夏天，她因癌症突然去世，我们为此深感悲痛。

HEOM

在章仁 (Aki) 和格雷厄姆 (Graham) 成功地将 HEOM 应用于能量转移研究之后，近 20 年以来一直默默无闻的 HEOM 也逐渐得到了认可。由于严以京、史强、曹建树、迈克尔·托斯 (Michael Thoss) 等优秀研究人员以及其他许多研究人员 (他们也是我的朋友) 的贡献，也多亏了计算机技术的进步，HEOM 可以处理的系统范围变得相当广泛(130)。我与樱井敦则 (Atsunori Sakurai)、加藤章仁 (Akihito Kato) 等人一起，重新研究了一些著名的问题，如共振隧穿二极管、量子棘轮和电子转移等领域中的问题。 这些问题以前只能用基于马尔可夫近似的方法研究，而马尔可夫近似方法不适用于低温系统。我们发现了各种奇特的效应，如共振隧穿二极管中的自激电流振荡 (99、102、112) 和量子隧道对棘轮电流的抑制效应 (100)。来自新西兰的博士后丹尼尔·帕克伍德 (Daniel Packwood) 探索了一种非高斯随机过程 (89)。当田中翠 (Midori Tanaka) 还是一名硕士生 (master student) 时，她推导出了低温下位移布朗振荡器系统的 HEOM (82, 85)。我将其命名为“真正的”硕士方程(master equation 一般译为主方程，这里将其与硕士生英文中的 master 相对应)。

二维光谱

HEOM 方法的特点是能够处理低温、非微扰、非马尔可夫的系统-环境相互作用，是计算二维光谱的理想方法。一般而言，基于微观哈密顿的分子动力学方法是自下而上的，而基于模型的 HEOM 方法是自上而下的。这两种方法是互补的：分子动力学方法有助于分析分子的微观运动，还能让我们确定系统-环境模型的参数(106)；而 HEOM 方法则有助于获得有关分子集体运动的宏观信息，还能让我们对二维测量进行量子模拟(87)，而这在分子动力学方法中是不可行的。

为了推进我们的研究，太祐 (Taisuke) 开发了一种水的势函数，用于分子间和分子内振动的光谱分析(88)。伊藤宏伸 (Nobuhiro Ito) 和赵周妍 (Ju-Yeon Jo) 随后模拟并分析了二维太赫兹-拉曼光谱 (104, 116)、二维红外-拉曼光谱 (113) 和单束二维拉曼光谱 (134)。通过分子动力学研究，我们与包括德韦恩 (Dwayne) (79) 和彼得·哈姆 (Peter Hamm) (95) 在内的实验人员进行了合作，尽管彼得 (Peter) 现在可能更适合被称为理论化学家。

随着 HEOM 的适用范围越来越广，我的好奇心也变得越来越强。与此同时，我组里的研究生人数也有所增加。我们开展了光诱导电子转移 (123) 和激子转移 (107) 的研究。张家骥结合二维光谱研究了质子转移和质子耦合电子转移过程 (129, 135)。岩元勇樹 (Yuki Iwamoto) 利用旋转不变的系统-环境模型计算了二维太赫兹光谱 (126)。池田龍志 (Tatsushi Ikeda) 通过计算非线性光谱并与 HEOM 得出的结果相比较，证明了势能面跃迁 (surface hopping) 方法的适

用性 (124)。

为了研究二维光谱, 植野正嗣 (Seiji Ueno) 使用机器学习技术, 根据分子动力学模拟和量子化学计算获得的微观轨迹, 创建了一个具有基态和激发态势能面的系统-环境模型 (127, 136)。该模型随后被用于 HEOM 计算, 得到各种二维振动和电子能谱, 提高了我们进行大尺度计算的能力。

通过计算非线性响应函数, 我们能够识别量子耗散动力学的奇特效应, 这些效应对应于二维光谱等实验上的可观测量。来自于荷兰的博士后 阿伦德·迪杰斯特拉 (Arend Dijkstra) 通过描述非马尔可夫 SB 相互作用在量子信息过程中的作用, 证明了这一点 (86, 92)。金賢得 (Hyeon-Deuk Kim) 对二维红外光谱中的模-模相互作用进行了解析分析。

量子统计热力学

2014 年, 我在德国弗莱堡高等研究院工作。我独自探索了 HEOM 的基础, 更加确信这个方法足以可靠地应用于解决物理学的基本问题 (103, 105)。加藤章仁 (Akihito Kato) 和坂本想一 (Souichi Sakamoto) 认为, 比起这个方法未来的应用潜力更为重要的是其哲学性。他俩在使用 HEOM 进行数值实验的基础上研究了量子热力学。HEOM 方法的显著特点是, 它能精确评估不止系统还有热浴和系统间相互作用的热量和熵变化 (117)。因此, 我们将非平衡条件下做的功视为准静态自由能的变化, 从而证明量子热力学可以在统计力学的框架内进行描

述，甚至在非平衡的情况下也是如此 (131, 133)。

固体物理问题

从我在美国伊利诺伊大学香槟分校工作那时起至今，我对将 HEOM 形式作为量子恒温器应用于解决固体物理问题很感兴趣。陈立鹏、毛罗·凯内利 (Mauro Cainelli) 和我已经推导出了应用于各种荷斯坦 (Holstein) 系统的 HEOM (109, 132)。我的目标是模拟一个随含时的外力实时变化的超导态。然而，目前中村清人 (Kiyoto Nakamura) 只能求解四位荷尔斯泰因-哈伯德 (Holstein-Hubbard) 系统的 HEOM (137)。我认为我们可能还需要再等 15 年才能取得必要的计算进展。

• 后记

来到京都后，我的国际友谊圈不断扩大。我访问了许多国家，参加各种会议、研讨会和讲座课程。我还接待了许多来自国外的客人。我总是带他们去我最喜欢的寿司店。格雷厄姆 (Graham)、弗拉基米尔 (Vladimir)、德韦恩 (Dwayne) 和托努-普勒里茨 (Tõnu Pullerits) 就是这样的贵宾。正因为如此，我作为“寿司教授”的名声传遍了全世界，客人的数量也在不断增加。

我与大卫·科克尔 (David Coker)、赵阳、马克西姆·盖林 (Maxim Gellin)、谭豪翔、弗兰克·格罗斯曼 (Frank Grossmann) 和拉斐尔·博雷利 (Raffaele Borrelli) 一起组织了“高峰会议”，这是一种自由组织、

自由组合的科学会议，在与会者特别希望访问的地方举行。在这些会议上报告的科研成果都是最高水平的，会议以山地徒步旅行收尾。

从我开始从事科学工作到现在已经 40 多年了。起初，我以为自己是在独自登山，看不到山顶。然而，事实上，许多朋友和学生一直在陪伴我前行——尽管我们仍然看不到顶峰。在我不断攀登的过程中，我的幸运值也与日俱增。现在，我很感谢自己的名字——吉隆。

Publications of Yoshitaka Tanimura

1-138

References

- (1) Tanimura, Y.; Takano, H.; Kubo, R. Second order optical process of a randomly modulated multi-level atom. *Journal of the Physical Society of Japan* **1986**, *55*, 4550–4565.
- (2) Tanimura, Y.; Kubo, R. Time evolution of a quantum system in contact with a nearly Gaussian-Markoffian noise bath. *Journal of the Physical Society of Japan* **1989**, *58*, 101–114.
- (3) Tanimura, Y.; Kubo, R. Two-time correlation functions of a system coupled to a heat bath with a Gaussian-Markoffian interaction. *Journal of the Physical Society of Japan* **1989**, *58*, 1199–1206.
- (4) Tanimura, Y.; Suzuki, T.; Kubo, R. Second order optical process of a three-level system in contact with a nearly Gaussian-Markoffian noise bath. *Journal of the Physical Society of Japan* **1989**, *58*, 1850–1859.
- (5) Tanimura, Y.; Kubo, R. Time-dependent spectrum of a two-level system coupled to a heat bath driven by pulsed laser. *Journal of the Physical Society of Japan* **1989**, *58*, 3001–3012.
- (6) Tanimura, Y. Nonperturbative expansion method for a quantum system coupled to a harmonic-oscillator bath. *Phys. Rev. A* **1990**, *41*, 6676–6687.
- (7) Tanimura, Y.; Wolynes, P. G. Quantum and classical Fokker-Planck equations for a Gaussian-Markovian noise bath. *Phys. Rev. A* **1991**, *43*, 4131–4142.
- (8) Tanimura, Y.; Wolynes, P. G. The interplay of tunneling, resonance, and dissipation in quantum barrier crossing: A numerical study. *The Journal of Chemical Physics* **1992**, *96*, 8485–8496.
- (9) Tanimura, Y.; Mukamel, S. Real-time path-integral approach to quantum coherence and dephasing in nonadiabatic transitions and nonlinear optical response. *Phys. Rev. E* **1993**, *47*, 118–136.
- (10) Tanimura, Y.; Mukamel, S. Temperature dependence and non-Condon effects in pump-probe spectroscopy in the condensed phase. *J. Opt. Soc. Am. B* **1993**, *10*, 2263–2268.
- (11) Tanimura, Y.; Mukamel, S. Two-dimensional femtosecond vibrational spectroscopy of liquids. *The Journal of Chemical Physics* **1993**, *99*, 9496–9511.
- (12) Tanimura, Y.; Mukamel, S. Description of nonlinear optical response using phase space wave packets. *The Journal of Physical Chemistry* **1993**, *97*, 12596–12601.
- (13) Tanimura, Y.; Mukamel, S. Optical Stark spectroscopy of a Brownian oscillator in intense fields. *Journal of the Physical Society of Japan* **1994**, *63*, 66–77.
- (14) Tanimura, Y.; Mukamel, S. Multistate quantum Fokker-Planck approach to nonadiabatic wave packet dynamics in pump-probe spectroscopy. *The Journal of Chemical Physics* **1994**, *101*, 3049–3061.
- (15) Palese, S.; Buontempo, J. T.; Schilling, L.; Lotshaw, W. T.; Tanimura, Y.; Mukamel, S.; Miller, R. J. D. Femtosecond two-dimensional Raman spectroscopy of liquid water. *The Journal of Physical Chemistry* **1994**, *98*, 12466–12470.
- (16) Tanimura, Y.; Mukamel, S. Femtosecond pump-probe spectroscopy of intermolecular vibrations in molecular dimers. *The Journal of Chemical Physics* **1995**, *103*, 1981–1984.

- (17) Okumura, K.; Tanimura, Y. Unified time-path approach to the generating functional of the Brownian oscillator system: The bilinearly corrected Feynman rule for nonequilibrium processes. *Phys. Rev. E* **1996**, *53*, 214–227.
- (18) Okumura, K.; Tanimura, Y. Unified time-path approach to the effect of anharmonicity on the molecular vibrational spectroscopy in solution. *The Journal of Chemical Physics* **1996**, *105*, 7294–7309.
- (19) Tomita, N.; Ten-no, S.; Tanimura, Y. Ab initio molecular orbital calculations by the resonating Hartree-Fock approach: superposition of non-orthogonal Slater determinants. *Chemical Physics Letters* **1996**, *263*, 687–690.
- (20) Okumura, K.; Tanimura, Y. The $(2n+1)$ th-order off-resonant spectroscopy from the $(n+1)$ th-order anharmonicities of molecular vibrational modes in the condensed phase. *The Journal of Chemical Physics* **1997**, *106*, 1687–1698.
- (21) Tanimura, Y.; Okumura, K. First-, third-, and fifth-order resonant spectroscopy of an anharmonic displaced oscillators system in the condensed phase. *The Journal of Chemical Physics* **1997**, *106*, 2078–2095.
- (22) Tanimura, Y.; Maruyama, Y. Gaussian-Markovian quantum Fokker-Planck approach to nonlinear spectroscopy of a displaced Morse potentials system: Dissociation, predissociation, and optical Stark effects. *The Journal of Chemical Physics* **1997**, *107*, 1779–1793.
- (23) Okumura, K.; Tanimura, Y. Femtosecond two-dimensional spectroscopy from anharmonic vibrational modes of molecules in the condensed phase. *The Journal of Chemical Physics* **1997**, *107*, 2267–2283.
- (24) Okumura, K.; Tanimura, Y. Two-time correlation functions of a harmonic system nonbilinearly coupled to a heat bath: Spontaneous Raman spectroscopy. *Phys. Rev. E* **1997**, *56*, 2747–2750.
- (25) Okumura, K.; Tanimura, Y. Interplay of inhomogeneity and anharmonicity in 2D Raman spectroscopy of liquids. *Chemical Physics Letters* **1997**, *277*, 159–166.
- (26) Okumura, K.; Tanimura, Y. Sensitivity of two-dimensional fifth-order Raman response to the mechanism of vibrational mode-mode coupling in liquid molecules. *Chemical Physics Letters* **1997**, *278*, 175–183.
- (27) Cho, M.; Okumura, K.; Tanimura, Y. Coherent two-dimensional Raman scattering: Frequency-domain measurement of the intra- and intermolecular vibrational interactions. *The Journal of Chemical Physics* **1998**, *108*, 1326–1334.
- (28) Tanimura, Y.; Takano, H.; Klafter, J. Spectral random walks and line broadening of impurity molecules in an Ising spin glass environment. *The Journal of Chemical Physics* **1998**, *108*, 1851–1858.
- (29) Tanimura, Y. Fifth-order two-dimensional vibrational spectroscopy of a Morse potential system in condensed phases. *Chemical Physics* **1998**, *233*, 217–229.
- (30) Gangopadhyay, G.; Tanimura, Y. Absorption line shape of impurity molecule driven by a fractal noise. *Chemical Physics Letters* **1998**, *289*, 97–104.
- (31) Okumura, K.; Tanimura, Y. Two-dimensional THz spectroscopy of liquids: non-linear vibrational response to a series of THz laser pulses. *Chemical Physics Letters* **1998**, *295*, 298–304.
- (32) Maruyama, Y.; Tanimura, Y. Pump-probe spectra and nuclear dynamics for a dissipative molecular system in a strong laser field: predissociation dynamics.

- Chemical Physics Letters* **1998**, *292*, 28–34.
- (33) Imamura, Y.; Ten-no, S.; Yonemitsu, K.; Tanimura, Y. Theoretical study on electron correlation of 1-D (DCNQI)₂M (M=Li, Ag) salts. *Chemical Physics Letters* **1998**, *298*, 15–20.
 - (34) Imamura, Y.; Ten-no, S.; Tanimura, Y. Ab Initio MO Studies on Electronic States of DCNQI Molecules. *The Journal of Physical Chemistry B* **1999**, *103*, 266–270.
 - (35) Suzuki, Y.; Tanimura, Y. Optimized perturbation approach with a Legendre transformation to a dissipative system: Correlation functions of a Morse oscillator. *Phys. Rev. E* **1999**, *59*, 1475–1488.
 - (36) Gangopadhyay, G.; Ghoshal, S.; Tanimura, Y. A thermal bath induced new resonance on the linear and nonlinear spectra of a two-level system. *Chemical Physics* **1999**, *242*, 367–385.
 - (37) Okumura, K.; Tokmakoff, A.; Tanimura, Y. Structural information from two-dimensional fifth-order Raman spectroscopy. *The Journal of Chemical Physics* **1999**, *111*, 492–503.
 - (38) Sethia, A.; Hirata, F.; Tanimura, Y.; Singh, Y. Polaron density matrix and effective mass at finite temperature. *Phys. Rev. B* **1999**, *60*, 7245–7251.
 - (39) Imamura, Y.; Ten-no, S.; Yonemitsu, K.; Tanimura, Y. Structures and electronic phases of the bis(ethylenedithio)tetrathiafulvalene (BEDT-TTF) clusters and κ -(BEDT-TTF) salts: A theoretical study based on ab initio molecular orbital methods. *The Journal of Chemical Physics* **1999**, *111*, 5986–5994.
 - (40) Imamura, Y.; Ten-no, S.; Tanimura, Y. Ab initio MO studies of DCNQI molecules. *Synthetic Metals* **1999**, *103*, 2099–2100, International Conference on Science and Technology of Synthetic Metals.
 - (41) Tanimura, Y.; Yamashita, K.; Anfinrud, P. A. Femtochemistry. *Proceedings of the National Academy of Sciences* **1999**, *96*, 8823–8824.
 - (42) Okumura, K.; Tokmakoff, A.; Tanimura, Y. Two-dimensional line-shape analysis of photon-echo signal. *Chemical Physics Letters* **1999**, *314*, 488–495.
 - (43) Okumura, K.; Bagchi, B.; Tanimura, Y. Cage Dynamics in the Third-Order Off-Resonant Response of Liquid Molecules: A Theoretical Realization. *Bulletin of the Chemical Society of Japan* **2000**, *73*, 873–884.
 - (44) Steffen, T.; Tanimura, Y. Two-dimensional spectroscopy for harmonic vibrational modes with nonlinear system-bath Interactions. I. Gaussian-white case. *Journal of the Physical Society of Japan* **2000**, *69*, 3115–3132.
 - (45) Tanimura, Y.; Steffen, T. Two-dimensional spectroscopy for harmonic vibrational modes with nonlinear system-bath Interactions.II. Gaussian-Markovian case. *Journal of the Physical Society of Japan* **2000**, *69*, 4095–4106.
 - (46) Okumura, K.; Jonas, D. M.; Tanimura, Y. Two-dimensional spectroscopy and harmonically coupled anharmonic oscillators. *Chemical Physics* **2001**, *266*, 237–250.
 - (47) Kato, T.; Tanimura, Y. Multi-dimensional vibrational spectroscopy measured from different phase-matching conditions. *Chemical Physics Letters* **2001**, *341*, 329–337.
 - (48) Suzuki, Y.; Tanimura, Y. Quantum theory of a two-dimensional rotator in a dissipative environment: Application to far-infrared spectroscopy. *Journal of the Physical Society of Japan* **2001**, *70*, 1167–1170.

- (49) Suzuki, Y.; Tanimura, Y. Nonequilibrium initial conditions of a Brownian oscillator system observed by two-dimensional spectroscopy. *The Journal of Chemical Physics* **2001**, *115*, 2267–2281.
- (50) Hino, O.; Tanimura, Y.; Ten-no, S. Biorthogonal approach for explicitly correlated calculations using the transcorrelated Hamiltonian. *The Journal of Chemical Physics* **2001**, *115*, 7865–7871.
- (51) Suzuki, Y.; Tanimura, Y. Probing a colored-noise induced peak of a strongly damped Brownian system by one- and two-dimensional spectroscopy. *Chemical Physics Letters* **2002**, *358*, 51–56.
- (52) Hino, O.; Tanimura, Y.; Ten-no, S. Application of the transcorrelated Hamiltonian to the linearized coupled cluster singles and doubles model. *Chemical Physics Letters* **2002**, *353*, 317–323.
- (53) Tanimura, Y.; Leite, V. B. P.; Onuchic, J. N. The energy landscape for solvent dynamics in electron transfer reactions: A minimalist model. *The Journal of Chemical Physics* **2002**, *117*, 2172–2179.
- (54) Suzuki, Y.; Tanimura, Y. Two-time correlation function of a two-dimensional quantal rotator in a colored noise. *Journal of the Physical Society of Japan* **2002**, *71*, 2414–2426.
- (55) Du, S.-d.; Tanimura, Y. On single-mode Λ - and V-type micromasers: quantum interference versus photon statistics. *Journal of Optics B: Quantum and Semiclassical Optics* **2002**, *4*, 402–410.
- (56) Kato, T.; Tanimura, Y. Vibrational spectroscopy of a harmonic oscillator system nonlinearly coupled to a heat bath. *The Journal of Chemical Physics* **2002**, *117*, 6221–6234.
- (57) Suzuki, Y.; Tanimura, Y. Two-dimensional spectroscopy for a two-dimensional rotator coupled to a Gaussian-Markovian noise bath. *The Journal of Chemical Physics* **2003**, *119*, 1650–1660.
- (58) K 端 hn, O.; Tanimura, Y. Two-dimensional vibrational spectroscopy of a double minimum system in a dissipative environment. *The Journal of Chemical Physics* **2003**, *119*, 2155–2164.
- (59) Okumura, K.; Tanimura, Y. Energy-level diagrams and their contribution to fifth-order Raman and second-order infrared responses: distinction between relaxation models by two-dimensional spectroscopy. *The Journal of Physical Chemistry A* **2003**, *107*, 8092–8105.
- (60) Kato, T.; Tanimura, Y. Two-dimensional Raman and infrared vibrational spectroscopy for a harmonic oscillator system nonlinearly coupled with a colored noise bath. *The Journal of Chemical Physics* **2004**, *120*, 260–271.
- (61) Ishizaki, A.; Tanimura, Y. Multidimensional vibrational spectroscopy for tunneling processes in a dissipative environment. *The Journal of Chemical Physics* **2005**, *123*, 014503.
- (62) Ishizaki, A.; Tanimura, Y. Quantum dynamics of system strongly coupled to low-temperature colored noise bath: Reduced hierarchy equations approach. *Journal of the Physical Society of Japan* **2005**, *74*, 3131–3134.
- (63) Kim, H.-D.; Tanimura, Y. Multidimensional infrared spectroscopy for molecular vibrational modes with dipolar interactions, anharmonicity, and nonlinearity of dipole moments and polarizability. *The Journal of Chemical Physics* **2005**, *123*, 224310.
- (64) Nagata, Y.; Tanimura, Y. Two-dimensional Raman spectra of atomic solids and liquids. *The Journal of Chemical Physics* **2006**, *124*, 024508.

- (65) Suzuki, Y.; Tanimura, Y. Free energy landscape analysis of two-dimensional dipolar solvent model at temperatures below and above the rotational freezing point. *The Journal of Chemical Physics* **2006**, *124*, 124508.
- (66) Nagata, Y.; Hasegawa, T.; Tanimura, Y. Analyzing atomic liquids and solids by means of two-dimensional Raman spectra in frequency domain. *The Journal of Chemical Physics* **2006**, *124*, 194504.
- (67) Hasegawa, T.; Tanimura, Y. Calculating fifth-order Raman signals for various molecular liquids by equilibrium and nonequilibrium hybrid molecular dynamics simulation algorithms. *The Journal of Chemical Physics* **2006**, *125*, 074512.
- (68) Tanimura, Y. Stochastic Liouville, Langevin, Fokker-Planck, and master equation approaches to quantum dissipative systems. *Journal of the Physical Society of Japan* **2006**, *75*, 082001.
- (69) Ishizaki, A.; Tanimura, Y. Modeling vibrational dephasing and energy relaxation of intramolecular anharmonic modes for multidimensional infrared spectroscopies. *The Journal of Chemical Physics* **2006**, *125*, 084501.
- (70) Suzuki, Y.; Tanimura, Y. Free energy landscapes of electron transfer system in dipolar environment below and above the rotational freezing temperature. *The Journal of Chemical Physics* **2007**, *126*, 054504.
- (71) Nagata, Y.; Tanimura, Y.; Mukamel, S. Two-dimensional infrared surface spectroscopy for CO on Cu(100): Detection of intermolecular coupling of adsorbates. *The Journal of Chemical Physics* **2007**, *126*, 204703.
- (72) Hyeon-Deuk, K.; Tanimura, Y.; Cho, M. Ultrafast exciton transfers in DNA and its nonlinear optical spectroscopy. *The Journal of Chemical Physics* **2008**, *128*, 135102.
- (73) Ishizaki, A.; Tanimura, Y. Dynamics of a Multimode System Coupled to Multiple Heat Baths Probed by Two-Dimensional Infrared Spectroscopy. *The Journal of Physical Chemistry A* **2007**, *111*, 9269–9276.
- (74) Ishizaki, A.; Tanimura, Y. Nonperturbative non-Markovian quantum master equation: Validity and limitation to calculate nonlinear response functions. *Chemical Physics* **2008**, *347*, 185–193, Ultrafast Photoinduced Processes in Polyatomic Molecules.
- (75) Hasegawa, T.; Tanimura, Y. Nonequilibrium molecular dynamics simulations with a backward-forward trajectories sampling for multidimensional infrared spectroscopy of molecular vibrational modes. *The Journal of Chemical Physics* **2008**, *128*, 064511.
- (76) Kim, H.-D.; Tanimura, Y.; Cho, M. Ultrafast exciton transfers in DNA and its nonlinear optical spectroscopy. *The Journal of Chemical Physics* **2008**, *128*, 135102.
- (77) Suzuki, Y.; Tanimura, Y. Exploring a free energy landscape by means of multidimensional infrared and terahertz spectroscopies. *The Journal of Chemical Physics* **2008**, *128*, 164501.
- (78) Joutsuka, T.; Tanimura, Y. Detecting the Dzyaloshinskii-Moriya interaction by means of pulsed EPR spectroscopy. *Chemical Physics Letters* **2008**, *457*, 237–240.
- (79) Li, Y. L.; Huang, L.; Dwayne Miller, R. J.; Hasegawa, T.; Tanimura, Y. Two-dimensional fifth-order Raman spectroscopy of liquid formamide: Experiment and Theory. *The Journal of Chemical Physics* **2008**, *128*, 234507.
- (80) Mukamel, S.; Tanimura, Y.; Hamm, P. Coherent Multidimensional Optical

- Spectroscopy. *Accounts of Chemical Research* **2009**, *42*, 1207–1209.
- (81) Tanimura, Y.; Ishizaki, A. Modeling, Calculating, and Analyzing Multidimensional Vibrational Spectroscopies. *Accounts of Chemical Research* **2009**, *42*, 1270–1279.
 - (82) Tanaka, M.; Tanimura, Y. Quantum dissipative dynamics of electron transfer reaction system: nonperturbative hierarchy equations approach. *Journal of the Physical Society of Japan* **2009**, *78*, 073802.
 - (83) Ueta, A.; Tanimura, Y.; Prezhdo, O. V. Distinct Infrared Spectral Signatures of the 1,2- and 1,4-Fluorinated Single-Walled Carbon Nanotubes: A Molecular Dynamics Study. *The Journal of Physical Chemistry Letters* **2010**, *1*, 1307–1311.
 - (84) Dijkstra, A. G.; Tanimura, Y. Correlated fluctuations in the exciton dynamics and spectroscopy of DNA. *New Journal of Physics* **2010**, *12*, 055005.
 - (85) Tanaka, M.; Tanimura, Y. Multistate electron transfer dynamics in the condensed phase: Exact calculations from the reduced hierarchy equations of motion approach. *The Journal of Chemical Physics* **2010**, *132*, 214502.
 - (86) Dijkstra, A. G.; Tanimura, Y. Non-Markovian entanglement dynamics in the presence of system-bath Coherence. *Phys. Rev. Lett.* **2010**, *104*, 250401.
 - (87) Sakurai, A.; Tanimura, Y. Does $\hbar$ play a role in multidimensional spectroscopy? Reduced hierarchy equations of motion approach to molecular vibrations. *The Journal of Physical Chemistry A* **2011**, *115*, 4009–4022.
 - (88) Hasegawa, T.; Tanimura, Y. A polarizable water model for intramolecular and intermolecular vibrational spectroscopies. *The Journal of Physical Chemistry B* **2011**, *115*, 5545–5553.
 - (89) Packwood, D. M.; Tanimura, Y. Non-Gaussian stochastic dynamics of spins and oscillators: A continuous-time random walk approach. *Phys. Rev. E* **2011**, *84*, 061111.
 - (90) Ueta, A.; Tanimura, Y.; Prezhdo, O. V. Infrared spectral signatures of surface-fluorinated graphene: A molecular dynamics study. *The Journal of Physical Chemistry Letters* **2012**, *3*, 246–250.
 - (91) Ueta, A.; Tanimura, Y.; Prezhdo, O. V. Infrared Spectral Signatures of Multilayered Surface-Fluorinated Graphene: A Molecular Dynamics Study. *The Journal of Physical Chemistry C* **2012**, *116*, 8343–8347.
 - (92) Dijkstra, A. G.; Tanimura, Y. Non-Markovianity: initial correlations and nonlinear optical measurements. *Philosophical Transactions of the Royal Society A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences* **2012**, *370*, 3658–3671.
 - (93) G. Dijkstra, A.; Tanimura, Y. System bath correlations and the nonlinear response of qubits. *Journal of the Physical Society of Japan* **2012**, *81*, 063301.
 - (94) Dijkstra, A. G.; Tanimura, Y. The role of the environment time scale in light-harvesting efficiency and coherent oscillations. *New Journal of Physics* **2012**, *14*, 073027.
 - (95) Hamm, P.; Savolainen, J.; Ono, J.; Tanimura, Y. Note: Inverted time-ordering in two-dimensional-Raman-terahertz spectroscopy of water. *The Journal of Chemical Physics* **2012**, *136*, 236101.
 - (96) Packwood, D. M.; Tanimura, Y. Dephasing by a continuous-time random walk process. *Phys. Rev. E* **2012**, *86*, 011130.
 - (97) Tanimura, Y. Reduced hierarchy equations of motion approach with Drude plus Brownian spectral distribution: Probing electron transfer processes by means of two-dimensional correlation

spectroscopy. *The Journal of Chemical Physics* **2012**, *137*, 22A550.

- (98) Ueno, S.; Tanimura, Y.; Ten-no, S. Molecular dynamics simulation for infrared spectroscopy with intramolecular forces from electronic properties of on-the-fly quantum chemical calculations. *International Journal of Quantum Chemistry* **2013**, *113*, 330–335.
- (99) Sakurai, A.; Tanimura, Y. An approach to quantum transport based on reduced hierarchy equations of motion: Application to a resonant tunneling diode. *Journal of the Physical Society of Japan* **2013**, *82*, 033707.
- (100) Kato, A.; Tanimura, Y. Quantum Suppression of Ratchet Rectification in a Brownian System Driven by a Biharmonic Force. *The Journal of Physical Chemistry B* **2013**, *117*, 13132–13144.
- (101) Gelin, M. F.; Tanimura, Y.; Domcke, W. Simulation of femtosecond "double-slit" experiments for a chromophore in a dissipative environment. *The Journal of Chemical Physics* **2013**, *139*, 214302.
- (102) Sakurai, A.; Tanimura, Y. Self-excited current oscillations in a resonant tunneling diode described by a model based on the Caldeira–Leggett Hamiltonian. *New Journal of Physics* **2014**, *16*, 015002.
- (103) Tanimura, Y. Reduced hierarchical equations of motion in real and imaginary time: Correlated initial states and thermodynamic quantities. *The Journal of Chemical Physics* **2014**, *141*, 044114.
- (104) Ito, H.; Hasegawa, T.; Tanimura, Y. Calculating two-dimensional THz-Raman-THz and Raman-THz-THz signals for various molecular liquids: The samplers. *The Journal of Chemical Physics* **2014**, *141*, 124503.
- (105) Tanimura, Y. Real-time and imaginary-time quantum hierarchal Fokker-Planck equations. *J. Chem. Phys.* **2015**, *142*, 144110.
- (106) Ikeda, T.; Ito, H.; Tanimura, Y. Analysis of 2D THz-Raman spectroscopy using a non-Markovian Brownian oscillator model with nonlinear system-bath interactions. *The Journal of Chemical Physics* **2015**, *142*, 212421.
- (107) Dijkstra, A. G.; Tanimura, Y. Linear and third- and fifth-order nonlinear spectroscopies of a charge transfer system coupled to an underdamped vibration. *The Journal of Chemical Physics* **2015**, *142*, 212423.
- (108) Tsuchimoto, M.; Tanimura, Y. Spins dynamics in a dissipative environment: Hierarchal equations of motion approach using a Graphics Processing Unit (GPU). *Journal of Chemical Theory and Computation* **2015**, *11*, 3859–3865.
- (109) Chen, L.; Zhao, Y.; Tanimura, Y. Dynamics of a one-dimensional Holstein polaron with the hierarchical equations of motion approach. *The Journal of Physical Chemistry Letters* **2015**, *6*, 3110–3115.
- (110) Kato, A.; Tanimura, Y. Quantum heat transport of a two-qubit system: Interplay between system-bath coherence and qubit-qubit coherence. *The Journal of Chemical Physics* **2015**, *143*, 064107.
- (111) Ito, H.; Jo, J.-Y.; Tanimura, Y. Notes on simulating two-dimensional Raman and terahertz-Raman signals with a full molecular dynamics simulation approach. *Structural Dynamics* **2015**, *2*, 054102.
- (112) Grossmann, F.; Sakurai, A.; Tanimura, Y. Electron pumping under non-Markovian dissipation: The role of the self-consistent field. *Journal of the Physical Society of Japan* **2016**, *85*, 034803.
- (113) Ito, H.; Tanimura, Y. Simulating two-dimensional infrared-Raman and Raman

- spectroscopies for intermolecular and intramolecular modes of liquid water. *The Journal of Chemical Physics* **2016**, *144*, 074201.
- (114) Zhou, N.; Chen, L.; Huang, Z.; Sun, K.; Tanimura, Y.; Zhao, Y. Fast, accurate simulation of polaron dynamics and multidimensional spectroscopy by multiple Davydov trial states. *The Journal of Physical Chemistry A* **2016**, *120*, 1562–1576.
- (115) Jo, J.-Y.; Ito, H.; Tanimura, Y. Full molecular dynamics simulations of liquid water and carbon tetrachloride for two-dimensional Raman spectroscopy in the frequency domain. *Chemical Physics* **2016**, *481*, 245–249.
- (116) Ito, H.; Hasegawa, T.; Tanimura, Y. Effects of intermolecular charge transfer in liquid water on Raman spectra. *The Journal of Physical Chemistry Letters* **2016**, *7*, 4147–4151.
- (117) Kato, A.; Tanimura, Y. Quantum heat current under non-perturbative and non-Markovian conditions: Applications to heat machines. *The Journal of Chemical Physics* **2016**, *145*, 224105.
- (118) Witt, B.; Rudnicki, L.; Tanimura, Y.; Mintert, F. Exploring complete positivity in hierarchy equations of motion. *New Journal of Physics* **2017**, *19*, 013007.
- (119) Ikeda, T.; Tanimura, Y. Probing photoisomerization processes by means of multi-dimensional electronic spectroscopy: The multi-state quantum hierarchical Fokker-Planck equation approach. *The Journal of Chemical Physics* **2017**, *147*, 014102.
- (120) Sakamoto, S.; Tanimura, Y. Exciton-coupled electron transfer process controlled by non-Markovian environments. *J. Phys. Chem. Lett.* **2017**, *8*, 5390–5394.
- (121) Nakamura, K.; Tanimura, Y. Hierarchical Schrödinger equations of motion for open quantum dynamics. *Phys. Rev. A* **2018**, *98*, 012109.
- (122) Ikeda, T.; Tanimura, Y. Phase-space wavepacket dynamics of internal conversion via conical intersection: Multi-state quantum Fokker-Planck equation approach. *Chemical Physics* **2018**, *515*, 203–213.
- (123) Iwamoto, Y.; Tanimura, Y. Linear absorption spectrum of a quantum two-dimensional rotator calculated using a rotationally invariant system-bath Hamiltonian. *The Journal of Chemical Physics* **2018**, *149*, 084110.
- (124) Ikeda, T.; Tanimura, Y. Low-temperature quantum Fokker-Planck and Smoluchowski equations and their extension to multistate systems. *Journal of Chemical Theory and Computation* **2019**, *15*, 2517–2534.
- (125) Ikeda, T.; Dijkstra, A. G.; Tanimura, Y. Modeling and analyzing a photo-driven molecular motor system: Ratchet dynamics and non-linear optical spectra. *The Journal of Chemical Physics* **2019**, *150*, 114103.
- (126) Iwamoto, Y.; Tanimura, Y. Open quantum dynamics of a three-dimensional rotor calculated using a rotationally invariant system-bath Hamiltonian: Linear and two-dimensional rotational spectra. *The Journal of Chemical Physics* **2019**, *151*, 044105.
- (127) Ueno, S.; Tanimura, Y. Modeling Intermolecular and Intramolecular Modes of Liquid Water Using Multiple Heat Baths: Machine Learning Approach. *Journal of Chemical Theory and Computation* **2020**, *16*, 2099–2108.
- (128) Takahashi, H.; Tanimura, Y. Open quantum dynamics theory of spin relaxation: Application to μ SR and low-field NMR spectroscopies. *Journal of the Physical Society of Japan* **2020**, *89*, 064710.

- (129) Zhang, J.; Borrelli, R.; Tanimura, Y. Proton tunneling in a two-dimensional potential energy surface with a non-linear system-bath interaction: Thermal suppression of reaction rate. *The Journal of Chemical Physics* **2020**, *152*, 214114.
- (130) Tanimura, Y. Numerically "exact" approach to open quantum dynamics: The hierarchical equations of motion (HEOM). *The Journal of Chemical Physics* **2020**, *153*, 020901.
- (131) Sakamoto, S.; Tanimura, Y. Numerically "exact" simulations of entropy production in the fully quantum regime: Boltzmann entropy vs von Neumann entropy. *The Journal of Chemical Physics* **2020**, *153*, 234107.
- (132) Cainelli, M.; Tanimura, Y. Exciton transfer in organic photovoltaic cells: A role of local and nonlocal electron-phonon interactions in a donor domain. *The Journal of Chemical Physics* **2021**, *154*, 034107.
- (133) Sakamoto, S.; Tanimura, Y. Open quantum dynamics theory for non-equilibrium work: Hierarchical equations of motion approach. *Journal of the Physical Society of Japan* **2021**, *90*, 033001.
- (134) Jo, J.-Y.; Tanimura, Y. Full molecular dynamics simulations of molecular liquids for single-beam spectrally controlled two-dimensional Raman spectroscopy. *The Journal of Chemical Physics* **2021**, *154*, 124115.
- (135) Zhang, J.; Borrelli, R.; Tanimura, Y. Probing photoinduced proton coupled electron transfer process by means of two-dimensional resonant electronic-vibrational spectroscopy. *The Journal of Chemical Physics* **2021**, *154*, 144104.
- (136) Ueno, S.; Tanimura, Y. Modeling and Simulating the Excited-State Dynamics of a System with Condensed Phases: A Machine Learning Approach. *Journal of Chemical Theory and Computation* **2021**, *17*, 3618–3628.
- (137) Nakamura, K.; Tanimura, Y. Optical response of laser-driven charge-transfer complex described by Holstein-Hubbard model coupled to heat baths: Hierarchical equations of motion approach. *The Journal of Chemical Physics* **2021**, *155*, 064106.
- (138) Iwamoto, Y.; Tanimura, Y. Open quantum dynamics theory on the basis of periodical system-bath model for discrete Wigner function. *Journal of Computational Electronics* **2021**, *1x*, xxxxx.

Colleagues of Yoshitaka Tanimura

Former Research and Visiting Students

Maruyama, Yutaka	Imamura, Yutaka	Hino, Osamu
Nagata, Yuki	Ishizaki, Akihito	Suzuki, Yoichi
Hasegawa, Taisuke	Joutsuka, Tatsuya	Ueta, Satoshi
Ono, Junichi	Sakurai, Atsunori	Tanaka, Midori
Ito, Hironobu	Kato, Akihito	Tsuchimoto, Masashi
Ikeda, Tatsushi	Jo, Ju-Yeon	Sakamoto, Souchi
Nakamura, Kiyoto	Steffen, Thomas	Chen, Lipeng
Sakumichi, Naoyuki	Otaki, Hiroki	Yoshimune, Seiji
Uchikoshi, Motonobu	Shimada, Arisa	Oosawa, Yu
Usui, Kota	Nawata, Haruchika	Hanaoka, Yoshiki
Li, Baiquing	Schumacher, Anne	Lee, Chee Kong
Ianto, Cannon	Sun, Shining	Kong, Fanchen
Simbananiye, Jordan		

Former Postdoctoral Research Fellows and Research Associates

Okumura, Ko	Suzuki, Yoko	Tomita, Kenichi
Gangopadhyay, Gautam	Okada, Akira	Miyazaki, Kunimasa
Kato, Tsuyoshi	Kim, Hyeon-Deuk	Kuninaka, Hiroto
Horikoshi, Atsushi	Dijkstra, Arend G.	Packwood, Daniel

Present Group Members

Ueno, Seiji	Iwamoto, Yuki	Umehara, Kazuki
Zhang, Jiaji	Cainelli, Mauro	Liu, Zifeng
Takahashi, Hideaki	Park, Kwanghee	Zhang, Yankai
Koyanagi, Shoki	Hoshino, Ryotaro	

Past and Present Collaborators

Kubo, Ryogo	Takano, Hiroshi	Wolynes, Peter G
Mukamel, Shaul	Miller, R. J. Dwayne	Ten-no, Seiichiro L.
Cho, Minhaeng	Tokmakoff, Andrei	Jonas, David M.
Bagchi, Biman	Yonemitsu, Kenji	Klafter, Joseph
Onuchic, Jose N	Leite, Vitor B. P.	Khün, Oliver
Du, Si-de	Hirata, Fumio	Sethia, Ashok
Ando, Koji	Prezhdo, Oleg V.	Hamm, Peter
Gelin, Maxim F.	Domcke, Wolfgang	Grossmann, Frank
Zhao, Yang	Mintert, Florian	Witt, Bjorn
Rudnicki, Łukas	Borrelli, Raffaele	Paquette, Glenn