



# 量子

数

レ

# 制御

野 健一

因する

物質創成先端科学専攻 日野・前島研究室  
光と物質の作り出す不思議なミクロの世界



**光を原子・分子に照射**

再散乱電子      直接電流

レーザー下の原子・分子

再散乱電子のエネルギー (eV)

**再散乱電子の応用**  
大強度超短パルスX線レーザーの開発  
新型電子顕微鏡  
波動関数の直接観測

**光を半導体に照射**

レーザー

レーザー下の半導体超格子構造 (GaAs/AlGaAs)

エネルギー (eV)      レーザー強度 (kV/cm)

**光の衣を纏った半導体**  
光の強さや波長を調整して、絶縁体、半導体、金属の性質を作り出す。  
電子はカオス的な運動をする。

**光を有機結晶に照射**

TCNQ(テトラシアノキノジメタン)分子

光

**光誘起相転移**  
光による分子のドミノ倒し  
光照射によって絶縁体が金属に転移する

グループメンバーの写真

http://www.bk.tsukuba.ac.jp/ion/main.html

筑波大学大学院 数理物質科学研究科  
物性・分子工学専攻 / 物質工学系

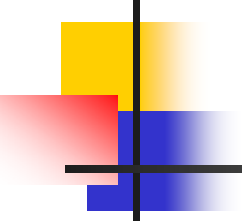
光と物質の作り出す不思議なミクロの世界

光 (レーザー)      スーパーコンピュータで理論計算      量子 (ミクロな世界の粒子)

光を原子・分子に照射      光を半導体に照射      光を有機結晶に照射

再散乱電子の応用      光誘起相転移

ハードウェア  
(半導体へ)



# メンバー

---

日野 健一（数理物質科学研究科、CCS学内共同研究員・量子多体分野）

全 暁民（数理物質科学研究科、CCS研究員・量子多体分野）

前島 展也（数理物質科学研究科、CCS研究員・量子多体分野）

白濱 丈詞（数理物質科学研究科・D院生）



# 発表内容

---

- 原子・分子

- [1] 超短パルス強レーザー場での原子の再散乱電子スペクトル (QD)
- [2] クーロン少数多体系の散乱問題の厳密計算 (QD)

- ハードマター(半導体ヘテロ構造)

- [3] 半導体Wannier-Stark ladderの非線形光学応答とFloquet状態 (QD, QC)
- [4] 類似系への適用: 交差する振動磁場中の原子のFloquet状態 (QC)

- ソフトマター(有機分子性結晶)

- [5] 光誘起相転移の電子状態と電子-格子ダイナミクス (QD, QC)



# 発表内容

---

- 原子・分子

- [1] 超短パルス強レーザー場での原子の再散乱電子スペクトル (QD)

- [2] クーロン少数多体系の散乱問題の厳密計算 (QD)

- ハードマター(半導体ヘテロ構造)

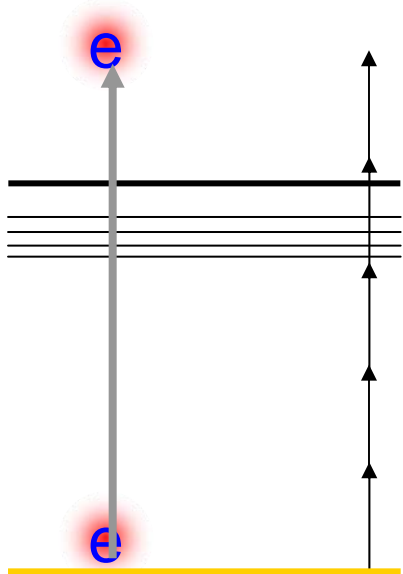
- [3] 半導体Wannier-Stark ladderの非線形光学応答とFloquet状態 (QD, QC)

- [4] 類似系への適用: 交差する振動磁場中の原子のFloquet状態 (QC)

- ソフトマター(有機分子性結晶)

- [5] 光誘起相転移の電子状態と電子-格子ダイナミクス (QD, QC)

# [1] 超短パルス強レーザー場での原子の再散乱電子スペクトル (QD)



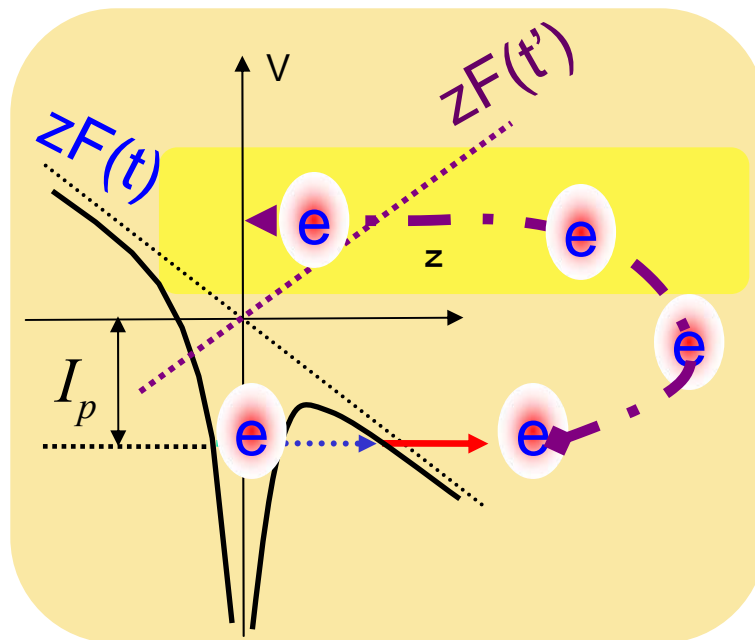
判定基準

Keldyshパラメータ:

$$\gamma = \sqrt{\frac{2I_p\omega^2}{I_0}}$$

$\gamma > 1$ で支配的:  
高周波数、低強度

多光子吸収電離:  
電子が原子核周辺に局在

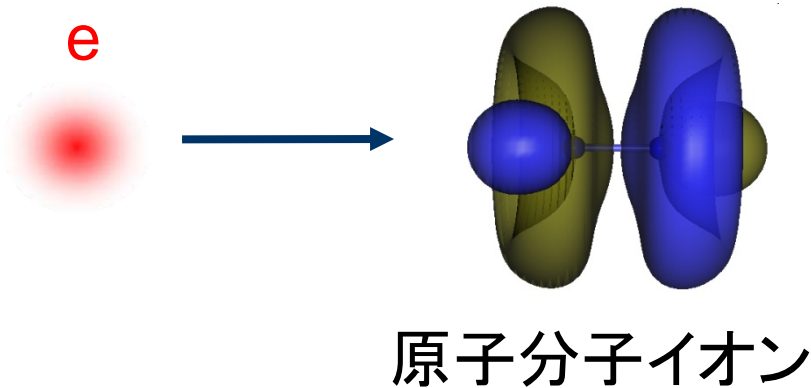


$\gamma < 1$ で支配的: 低周波数、高強度  
レーザーの強度:  $10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>

トンネル電離 + 再散乱:  
原子核から離れて運動

# 再散乱電子と原子分子イオンの衝突

コヒーレント電子ビーム:



1. 光電効果の逆過程

2. 原子分子の電離

3. 電子の(弾性、非弾性)散乱

1. X-線の発生  
HHG

2. 分子の解離  
分子時計

3. 原子分子の構造  
電子顕微鏡

コヒーレント電子ビームの生成ができる！

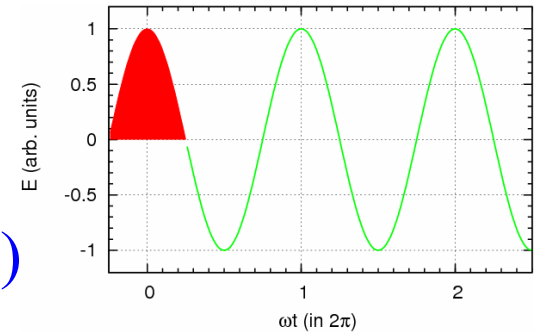
重要な物理量: 再散乱電子の運動量と時刻の分布。

# トンネル電離電子の波動関数の数値計算法

時間に依存した波動関数(Chew-Goldbergerタイプ)の時間分割

$$\Psi(t) = \sum_j -i \int_{t_{j-1}}^{t_j} e^{-i \int_{\tau}^t H(t') dt'} V(\tau) e^{-i H_0 \tau} \Phi_0 d\tau + e^{-i H_0 t} \Phi_0$$

トンネル電子の電離と伝播を分離する

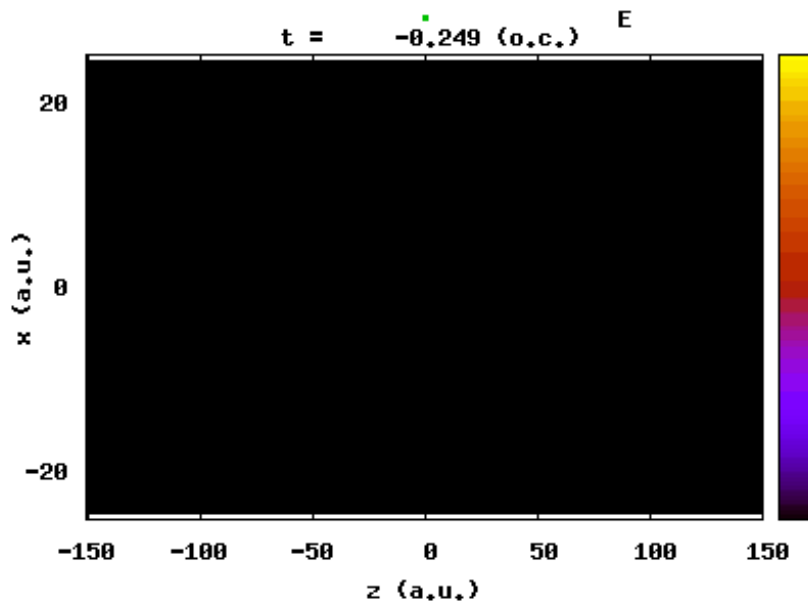


空間の離散化(GPS法) と 境界での吸収ポテンシャルの導入

# 再散乱過程の計算例

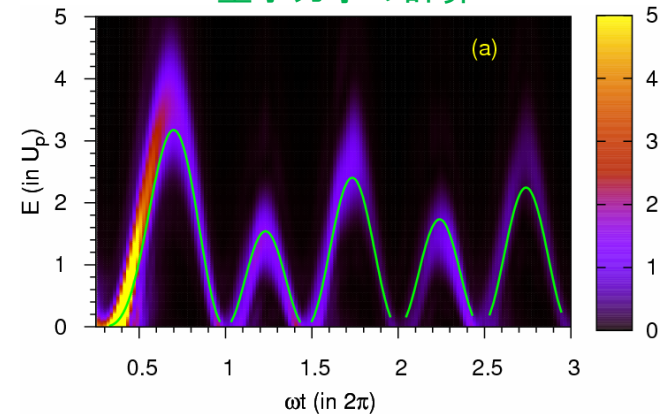
( $I_0 = 2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$   $\lambda = 800 \text{ nm}$ )

## 時間依存の波動関数

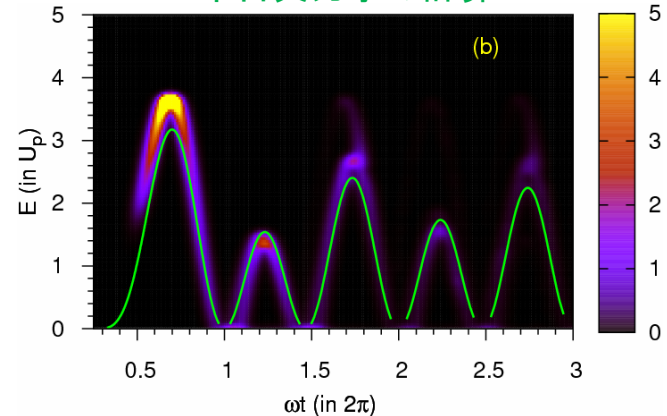


## 再散乱電子のエネルギー分布

### 量子力学の計算



### 半古典力学の計算







# 発表内容

---

- 原子・分子

- [1] 超短パルス強レーザー場での原子の再散乱電子スペクトル (QD)

- [2] クーロン少数多体系の散乱問題の厳密計算 (QD)

- ハードマター(半導体へテロ構造)

- [3] 半導体Wannier-Stark ladderの非線形光学応答とFloquet状態 (QD, QC)

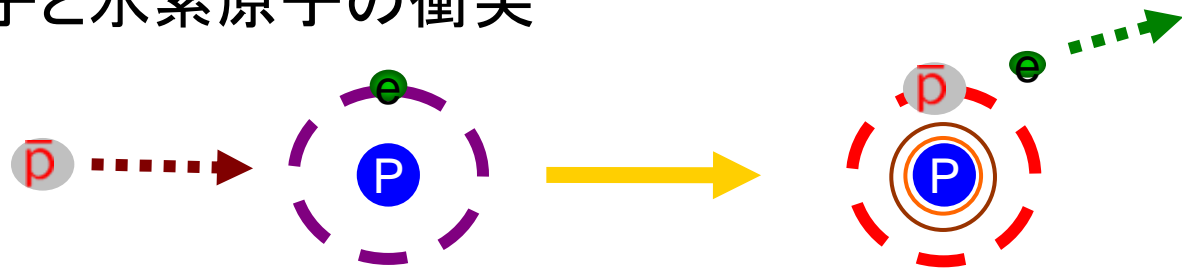
- [4] 類似系への適用: 交差する振動磁場中の原子のFloquet状態 (QC)

- ソフトマター(有機分子性結晶)

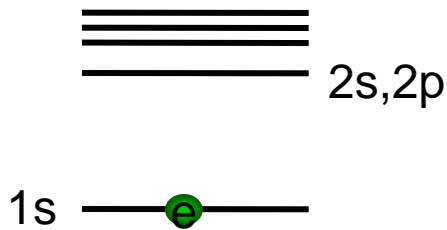
- [5] 光誘起相転移の電子状態と電子-格子ダイナミクス (QD, QC)

# [2] クーロン少数多体系の散乱問題の 厳密計算 (QD)

反陽子と水素原子の衝突

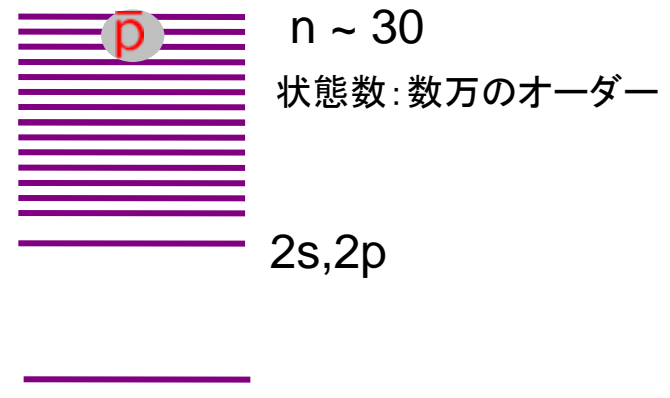


水素原子 : 1s



初期状態： 簡単

Protonium:  $n/l$

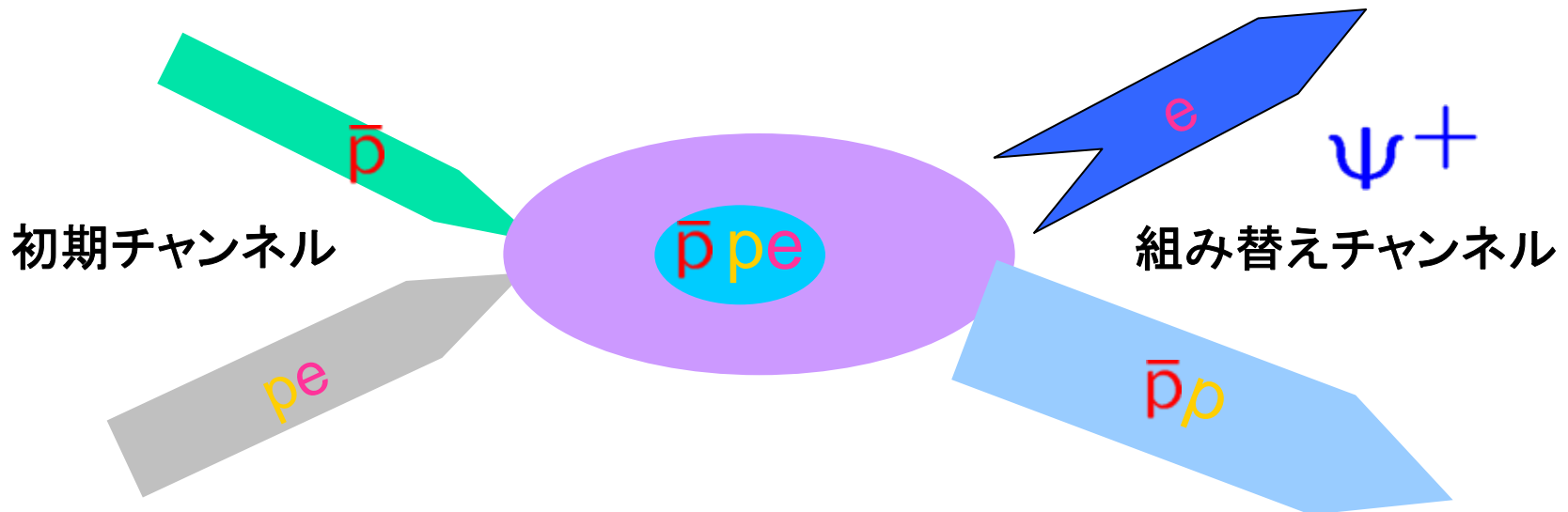


捕獲状態： 複雑

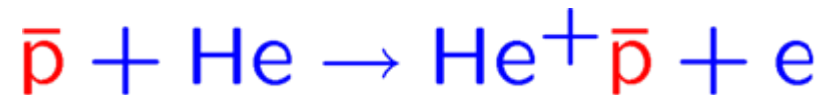
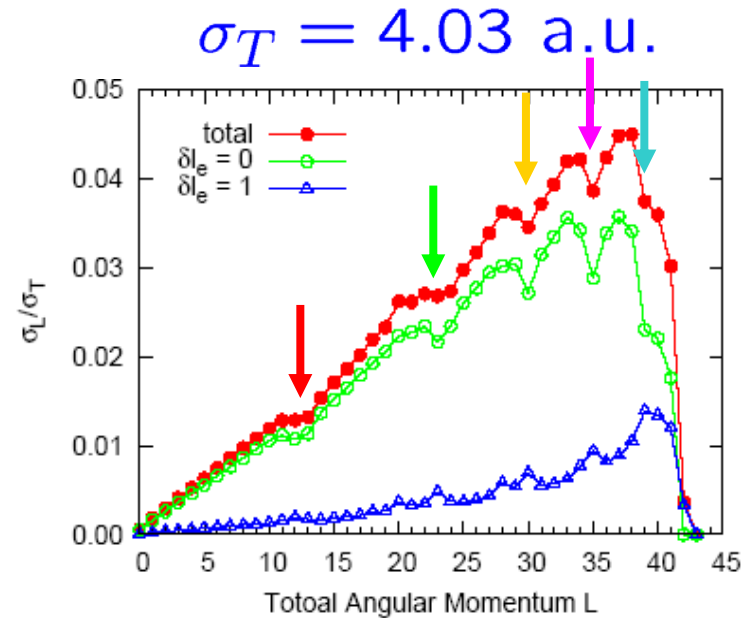
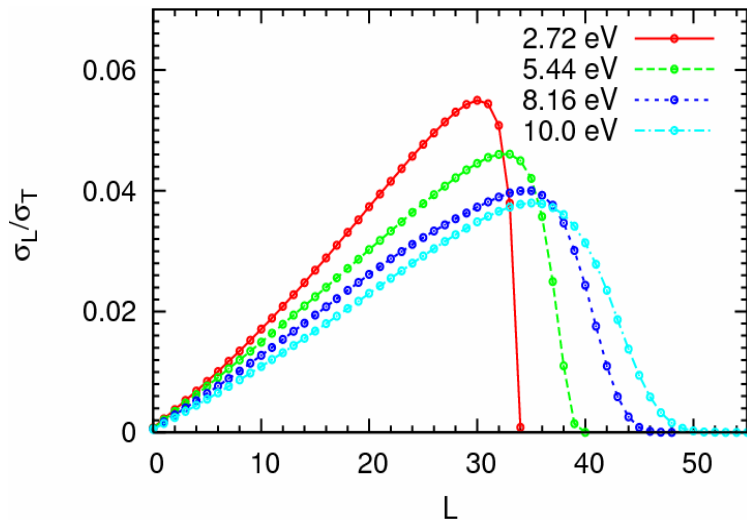
# 組み換え衝突の波動関数の数値計算法

Chew-Goldbergerの積分表示式

$$|\Psi^+ \rangle = |\Psi_0 \rangle - i \int_{-\infty}^0 e^{-i(E_0 - H)t} e^{\eta t} V_{in} |\Psi_0 \rangle dt$$



# 計算例: 全角運動量(L)分布



異常長寿命反陽子ヘリウム原子の生成



## PACS-CSによる計算の発展(原子・分子)

---

- 強レーザー場下の“多電子原子系、分子系”  
(平均場近似を越えた強電子相関)への適用
  - 最も単純なHe原子でも20年来の未解決問題
- クーロン少数多体系
  - より高エネルギー散乱系: より高次までの部分波展開が必要
  - 4体系の厳密解法



# 発表内容

---

- 原子・分子

- [1] 超短パルス強レーザー場での原子の再散乱電子スペクトル (QD)

- [2] クーロン少数多体系の散乱問題の厳密計算 (QD)

- **ハードマター(半導体ヘテロ構造)**

- [3] 半導体Wannier-Stark ladderの非線形光学応答とFloquet状態 (QD, QC)**

- [4] 類似系への適用: 交差する振動磁場中の原子のFloquet状態 (QC)

- ソフトマター(有機分子性結晶)

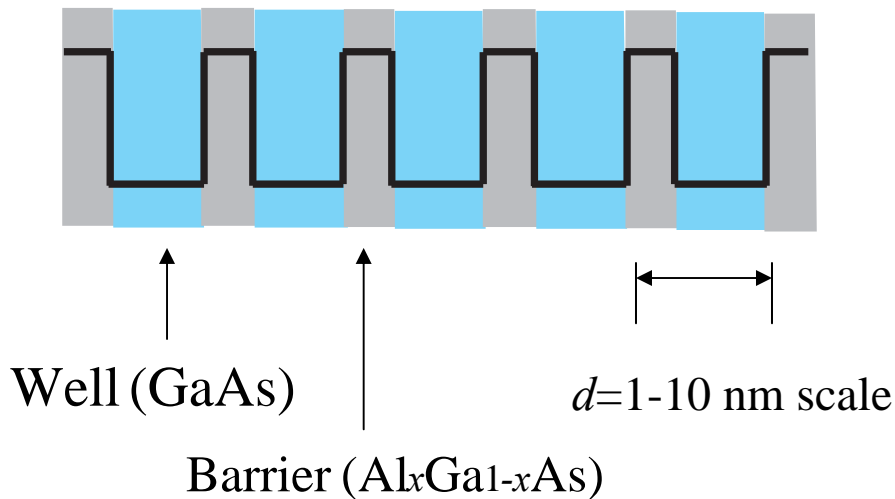
- [5] 光誘起相転移の電子状態と電子-格子ダイナミクス (QD, QC)

# [3] 半導体Wannier-Stark ladderの 非線形光学応答とFloquet状態 (QD, QC)

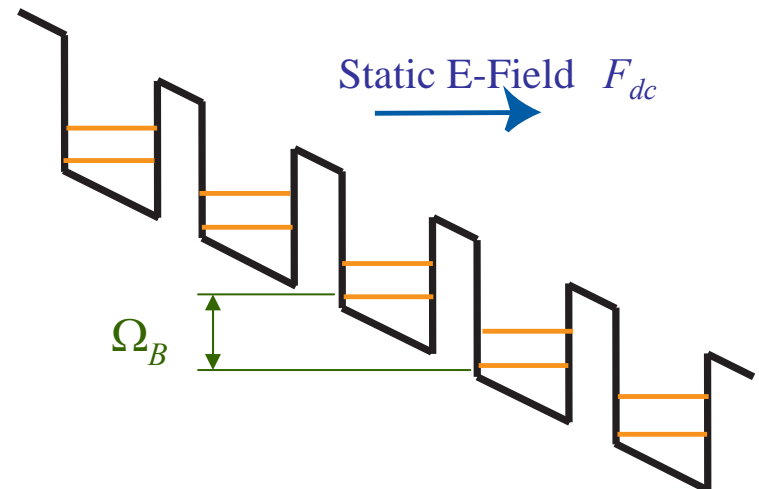
## 半導体Wannier-Stark ladder (WSL)

Esaki-Tsu Superlattices

(IBM J. Res.Dev.1970)

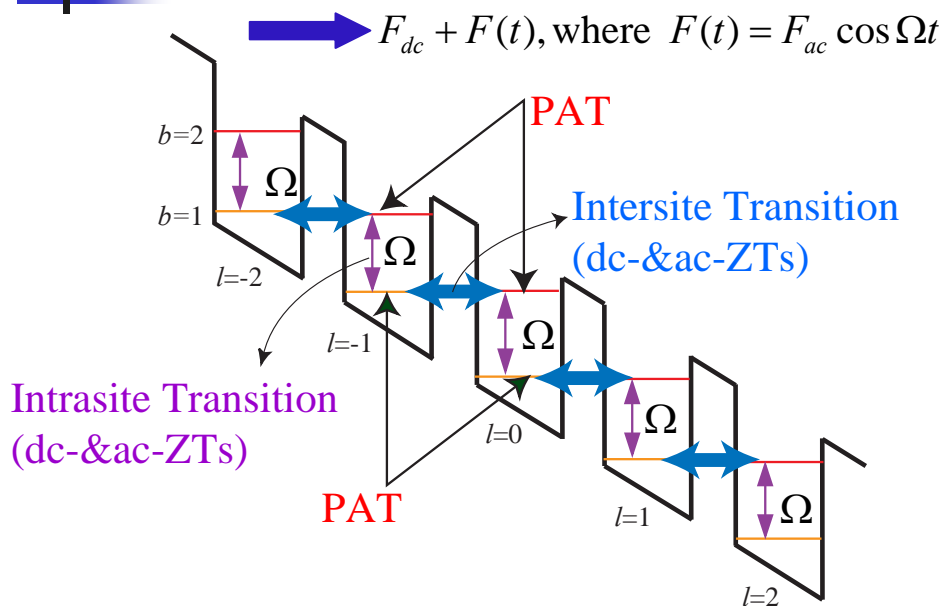


Semiconductor WSL



$$\text{Bloch Frequency: } \Omega_B = eF_{dc}d$$

# 動的WSL(DWSL)とFloquet状態



Photon Assisted Tunneling (PAT)  
ac-Zener Tunneling (ac-ZT)

Schematic Diagram of the Geometry of the DWSL

## Floquetの定理

時間周期性のある  
ハミルトニアンにおいて成立

$$H(r, t + T) = H(r, t)$$

$$\Psi(r, t) = \mathcal{U}(r, t) e^{-i\varepsilon t}$$

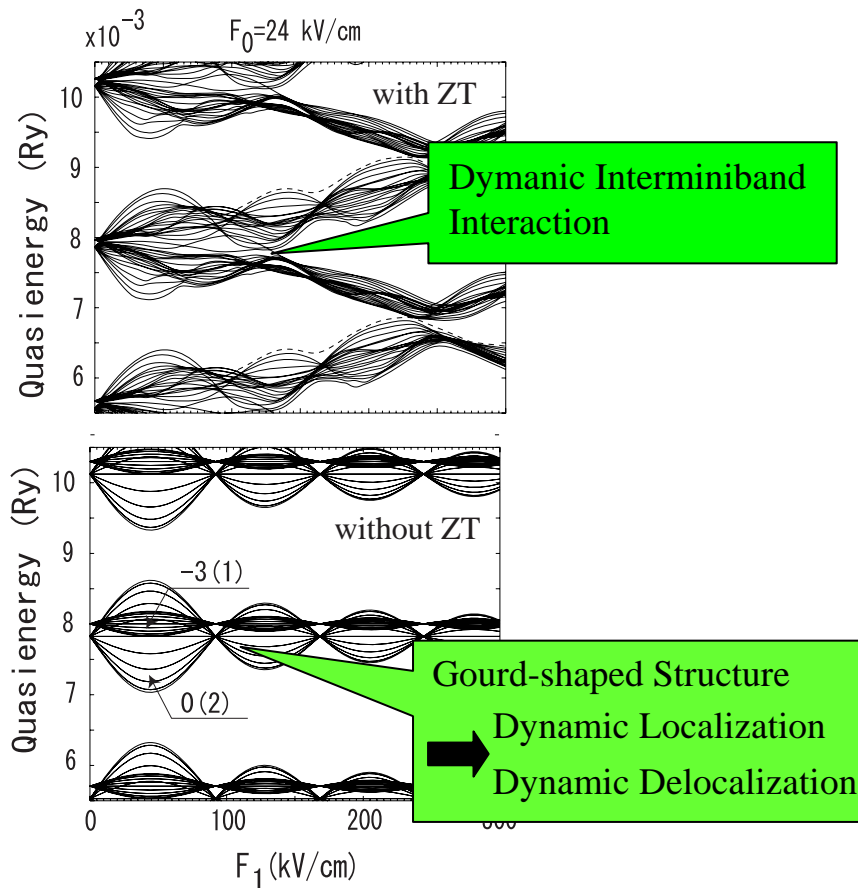
$$\mathcal{U}(r, t + T) = \mathcal{U}(r, t)$$

$\varepsilon$ : 擬エネルギー: 良い量子数

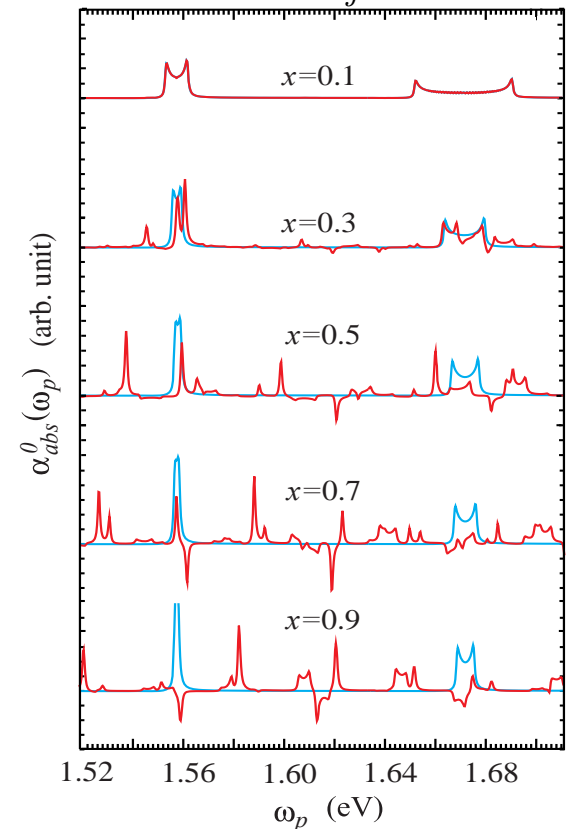
光の衣を纏った電子・正孔系の  
ダイナミクスと制御



# 計算例：擬エネルギーバンドと有効光吸収スペクトル



$$\alpha_{\text{abs}}^0(\omega_p; \omega) \propto \sum_J \text{Im} \chi_J^0(\omega_p; \omega)$$





# 発表内容

---

- 原子・分子

- [1] 超短パルス強レーザー場での原子の再散乱電子スペクトル (QD)

- [2] クーロン少数多体系の散乱問題の厳密計算 (QD)

- **ハードマター(半導体ヘテロ構造)**

- [3] 半導体Wannier-Stark ladderの非線形光学応答とFloquet状態 (QD, QC)

- [4] 類似系への適用: 交差する振動磁場中の原子のFloquet状態 (QC)**

- ソフトマター(有機分子性結晶)

- [5] 光誘起相転移の電子状態と電子-格子ダイナミクス (QD, QC)

# [4] 類似系への適用: 交差する振動磁場中の原子のFloquet状態 (QC)

**DWSL**

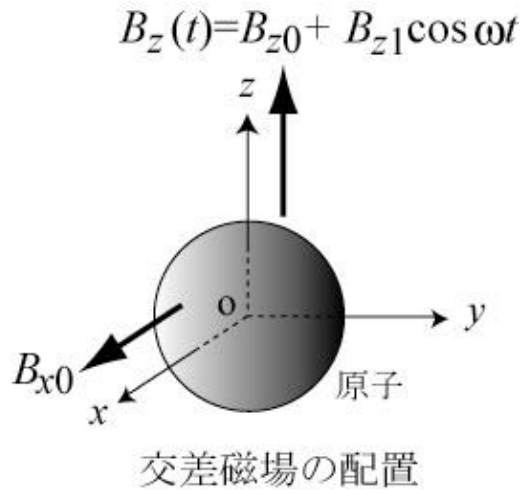
**DZS**

超格子系 ↔ 横静磁場による1次Zeeman項

静電場 ↔ 縦静磁場

レーザー場 ↔ 縦振動磁場

Zener結合 (サブバンド間結合) ? 2次Zeeman項 (角運動量(L)間結合)



**動的Zeeman分裂(DZP)**

古典的にはカオス系: 量子カオス?

# 計算例：擬エネルギーバンド (動的2次Zeeman項の効果)

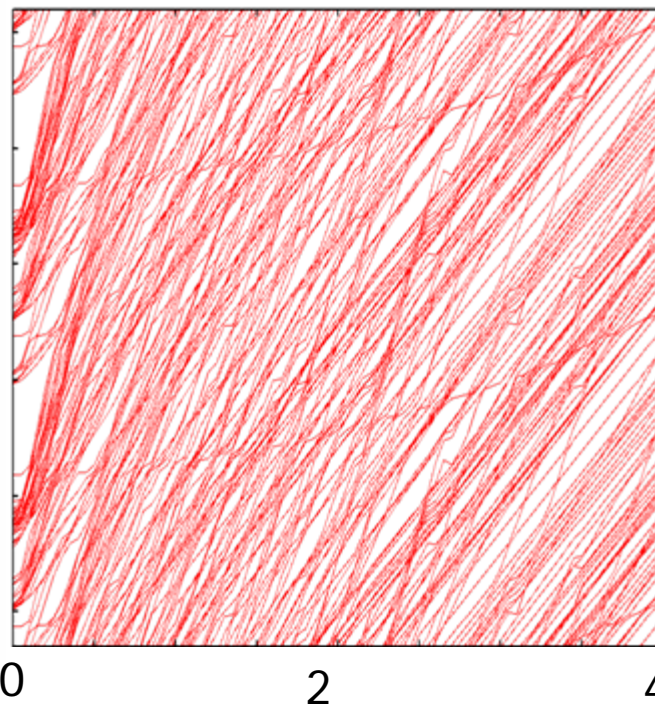
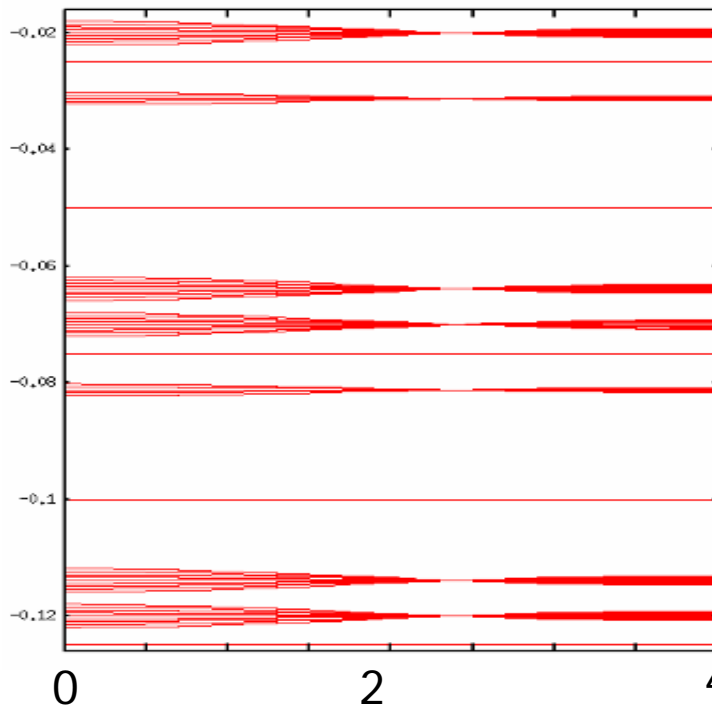
( 235 T )

$$B_0 = 10^{-3}$$
$$\omega = 0.05$$

1次効果  
のみ

2次効果  
あり

擬エネルギー  $\varepsilon$



$(\mu_B / \hbar \omega) B_1$



## PACS-CSによる計算の発展(ハードマター)

---

- 非効率的なFourier-Floquet展開法に替わる新しい解法の開発
  - 時間発展演算子を基礎とした解法
- 光・電子・正孔系のコヒーレントダイナミックスの統一的描像(多体相関)
  - 励起子、励起子分子、ポラリトン、励起子BEC、プラズマ、液滴
  - 高次相関を取り込んだ半導体Bloch方程式の高精度数値計算



# 発表内容

---

- 原子・分子

- [1] 超短パルス強レーザー場での原子の再散乱電子スペクトル (QD)
- [2] クーロン少数多体系の散乱問題の厳密計算 (QD)

- ハードマター(半導体ヘテロ構造)

- [3] 半導体Wannier-Stark ladderの非線形光学応答とFloquet状態 (QD, QC)
- [4] 類似系への適用: 交差する振動磁場中の原子のFloquet状態 (QC)

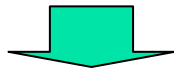
- ソフトマター(有機分子性結晶)

- [5] 光誘起相転移の電子状態と電子-格子ダイナミクス (QD, QC)

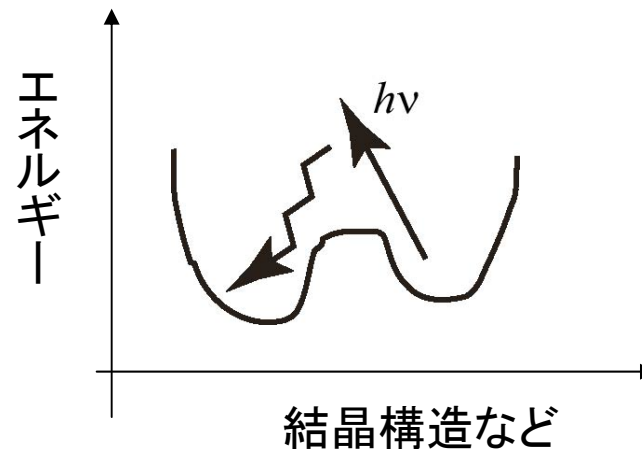
# [5] 光誘起相転移の電子状態と 電子-格子ダイナミクス (QD, QC)

## ■ 光照射 → 新しい物理相

光による電荷移動  
電荷分布の変化



新しい安定点

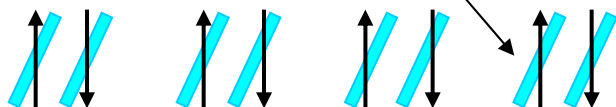


- 温度変化などでは実現できない相の可能性
- 光による相の制御(スイッチング)

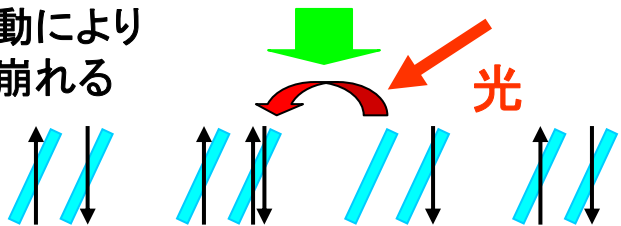
# 光誘起”相転移”の模式図

分子・原子

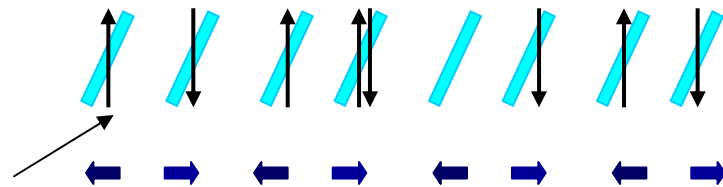
安定な熱平衡状態



電荷移動により  
平衡が崩れる



新たな安定点  
に移動

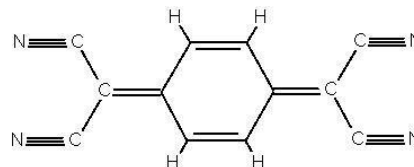


HOMO/LUMO  
の電子

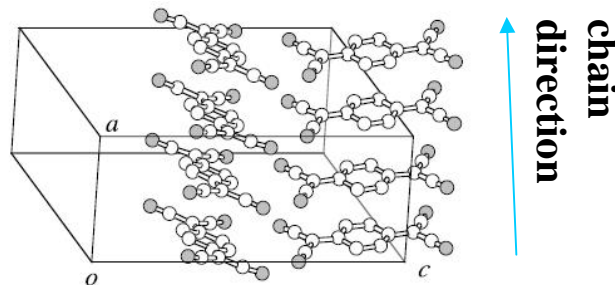
## K-TCNQ

One-dimensional (1D) dimerized Mott insulator

TCNQ molecule



Crystal structure



R. Kumai *et al.*, Science **284**, 1645 (1999)





# Model (electron-phonon)

---

## 1D Peierls-Hubbard model

with Holstein-type e-l coupling

- **Hamiltonian**

$$\mathcal{H} = - \sum_{l,\sigma} (t - u_l) (c_{l+1,\sigma}^\dagger c_{l,\sigma} + c_{l,\sigma}^\dagger c_{l+1,\sigma}) \\ + U \sum_l n_{l,\uparrow} n_{l,\downarrow} + V \sum_l n_l n_{l+1} - \sum_l v_l (n_l - 1) + \frac{K_\alpha}{2} \sum_l u_l^2 + \frac{K_\beta}{2} \sum_l v_l^2$$

- **Filling**

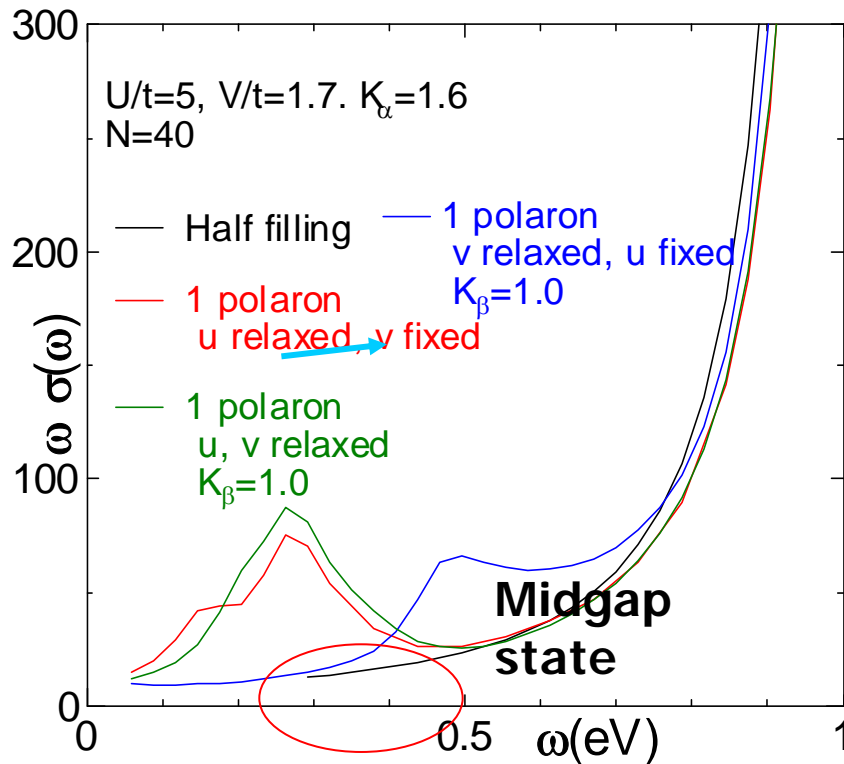
**Half filling + 1 electron**

- **Method**

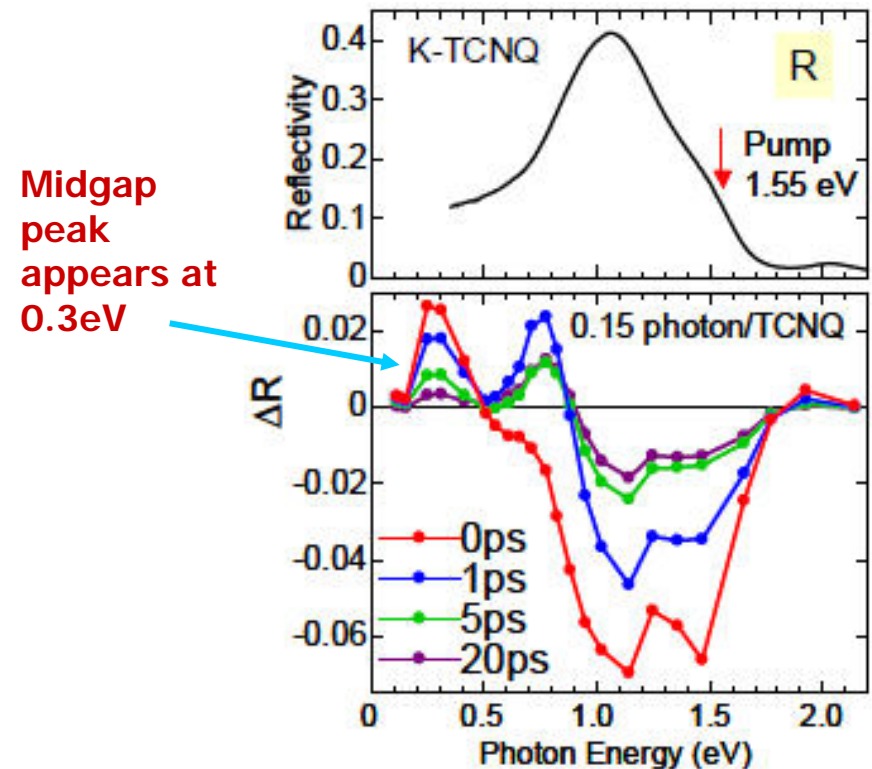
DMRG, adiabatic approximation for phonon

# 計算例: Photoinduced absorption

## calculation



## Experiment: Photoinduced midgap peak



H. Okamoto *et al.*,  
 Phys. Rev. Lett. **96**, 037405 (2006)



# PACS-CSによる計算の発展(ソフトマター)

---

- 量子ダイナミクスの直接計算による非平衡、過渡現象の解明

時間依存他電子・多自由度波動関数の直接計算

- より多数の電子・原子を取り込んだ計算

行列サイズ  $\approx S^N$

- S: 一原子あたり自由度
- N: 系のサイズ

- 自由度の正確な取り扱い

断熱近似の成り立たない状況でも正しく取り扱うことのできる計算