



# 量子ダイナミクス最前線

理化学研究所

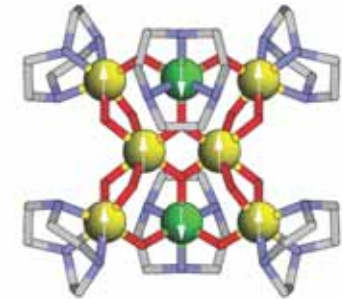
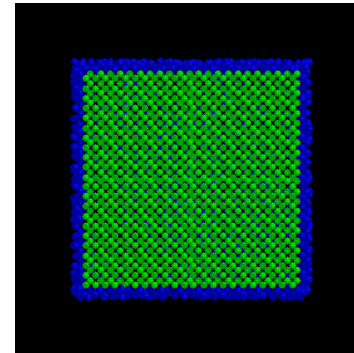
飯高敏晃

<http://www.iitaka.org/>

# 研究内容([www.iitaka.org](http://www.iitaka.org))

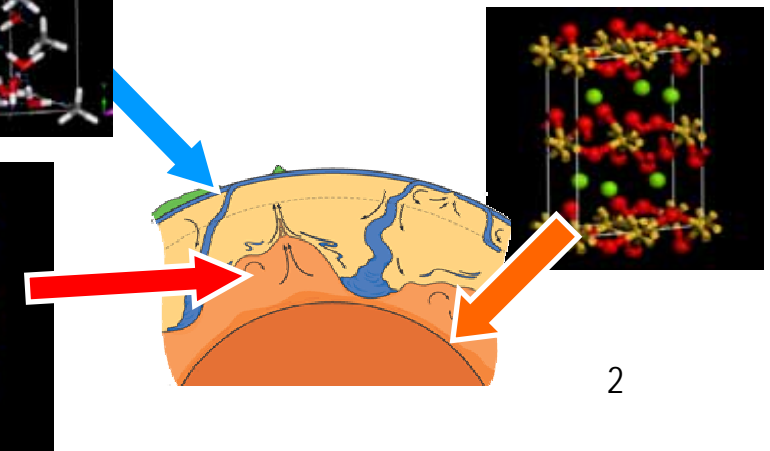
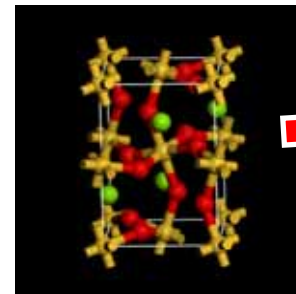
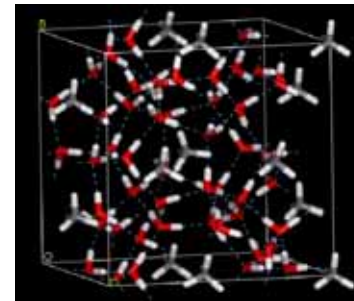
## 🐝 量子ダイナミクス

- ナノ結晶の光学特性
- ナノ分子磁石
- 量子計算機



## 🐝 第一原理計算

- 表面物理
- 高压物理、地球物理
  - メタンハイドレート
  - ポストペロブスカイト



# 量子ダイナミクスによる 線形応答関数の $O(N)$ 計算法

## ■ 特徴

- 有限温度の動的物理量を $O(N)$ で計算 対角化法 $O(N^3)$

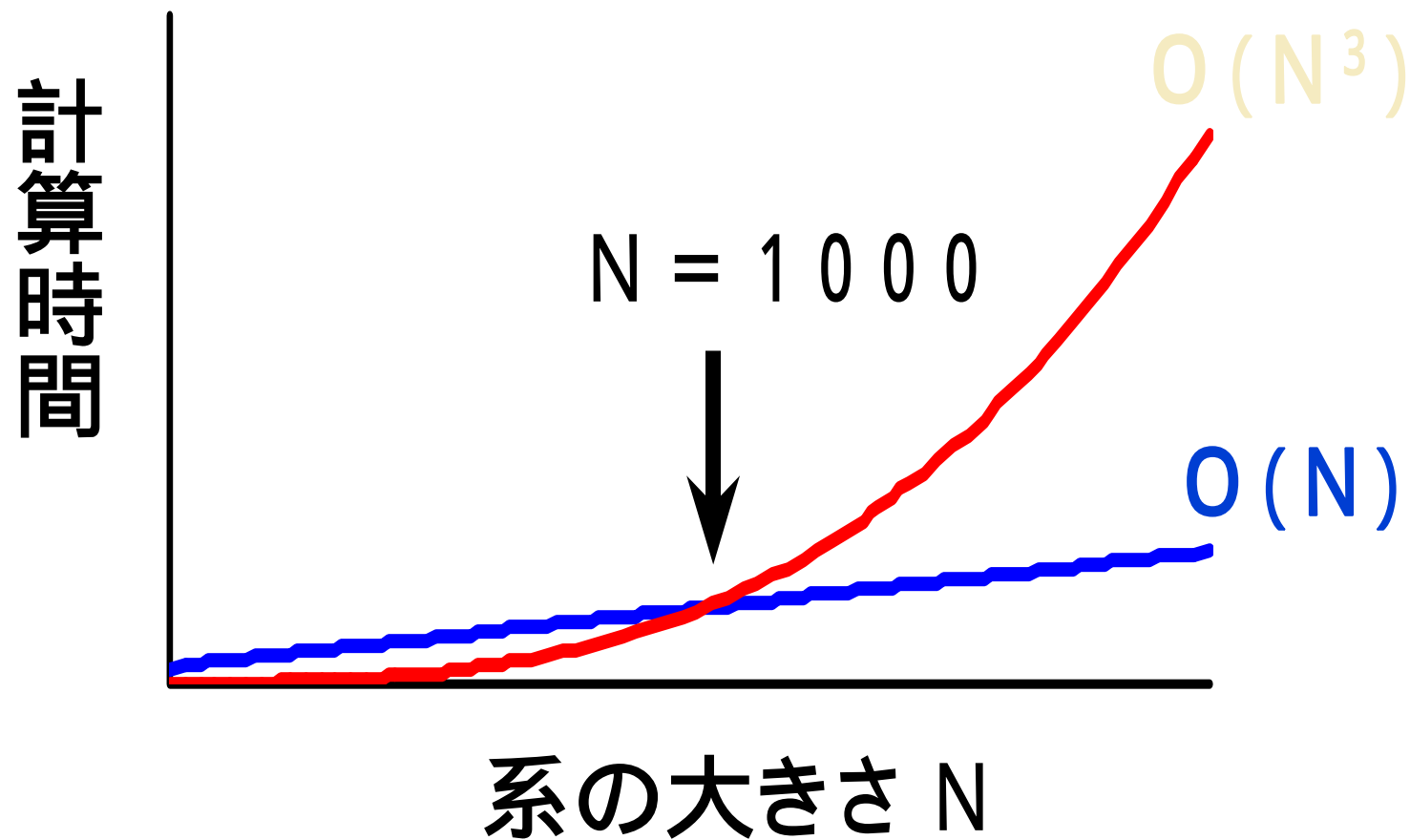
## ■ 原理

- 🐼 時間表示での久保公式
- 🐼 演算子のチェビシェフ多項式展開  
 $\text{Exp}(-iHt), \text{Exp}(-\beta H), (E_f - H), 1/(E - H)$
- 🐼 ランダムベクトルによるトレースの計算

## ■ 応用

- 🐼 微結晶の光吸収スペクトル
- 🐼 アンダーソン転移における ( )
- 🐼 量子スピン鎖、ナノ分子磁石

# Order(N) 計算法



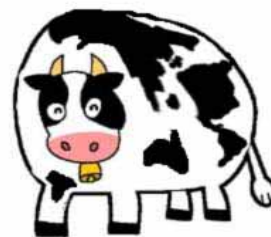
Pafnuty L. Chebyshev

Born: 16 May 1821 in Okatovo, Russia

Died: 8 Dec 1894 in St Petersburg, Russia



“To isolate *mathematics* from the practical demands of the *sciences* is to invite the sterility of a *cow* shut away from the *bulls*.”



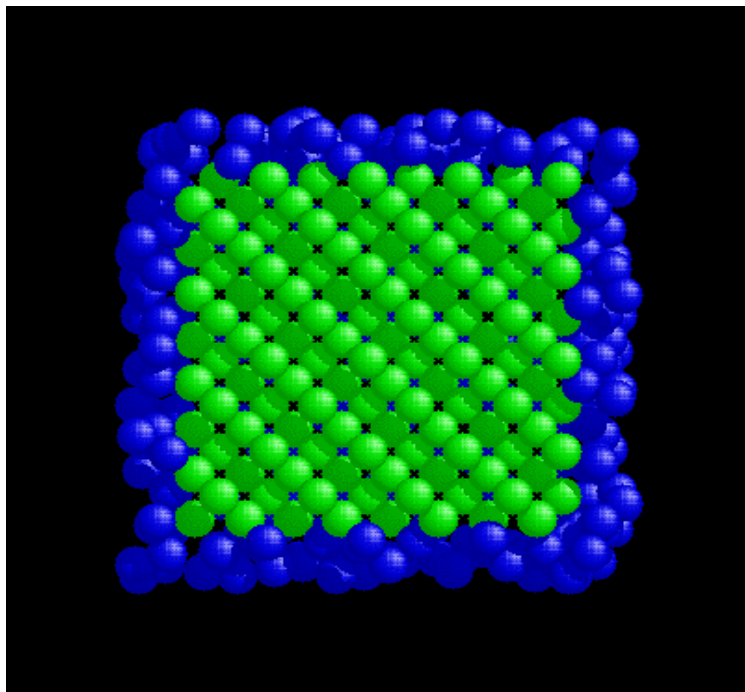
Nano Quantum Systems  
is a fertile field where cows meet bulls



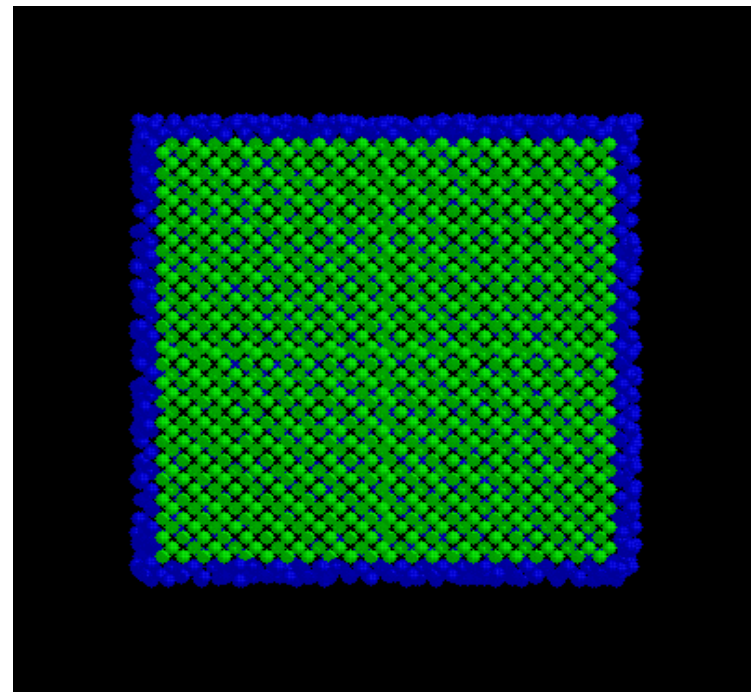


# ナノ微結晶の吸収スペクトル

🔦 1000 Si atoms



🔦 13824 Si atoms



S.Nomura et al. PRB56, R4348 (1997)  
S.Nomura et al. PRB59, 10309 (1999)



# Bull1: ナノ微結晶

13824 Si atoms

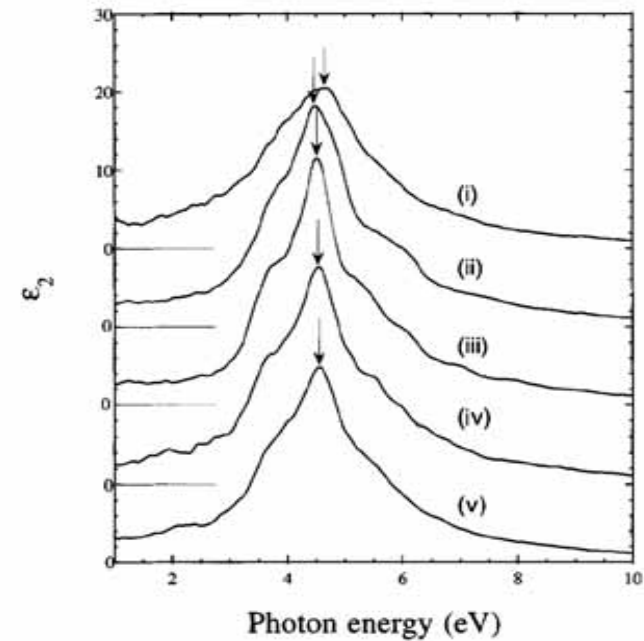
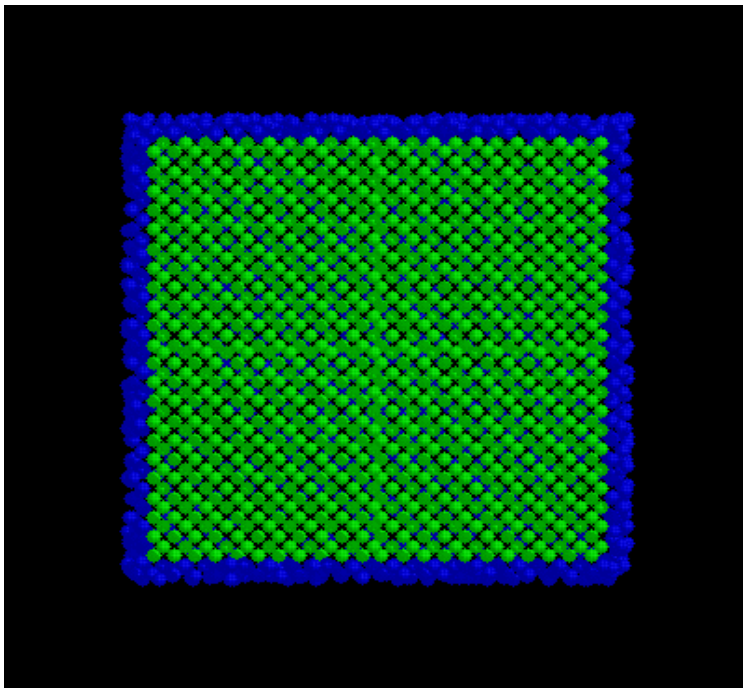


FIG. 1. Imaginary part of the dielectric function of nanocrystalline/amorphous mixed-phase Si with  $\{L_c, L\} = (i) \{5, 6\}$  (ii)  $\{7, 8\}$  (iii)  $\{11, 12\}$ , (iv)  $\{8, 12\}$ , and (v)  $\{7, 10\}$  inside the nanocrystalline region. Zero points of the y axis are shifted, as shown by the horizontal lines. The peaks discussed in the text are denoted by the arrows.

S.Nomura et al. PRB56, R4348 (1997)  
S.Nomura et al. PRB59, 10309 (1999)



# アモルファス中の微結晶の吸収スペクトル

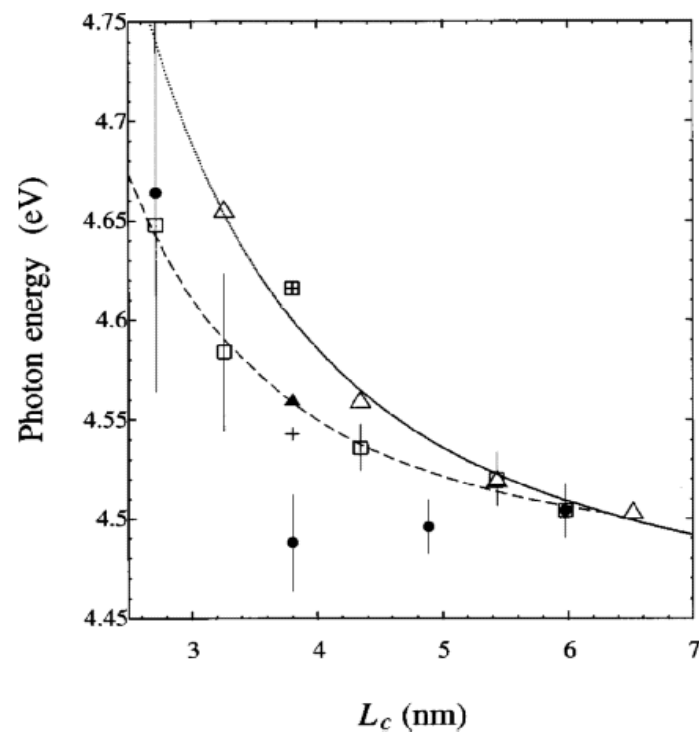


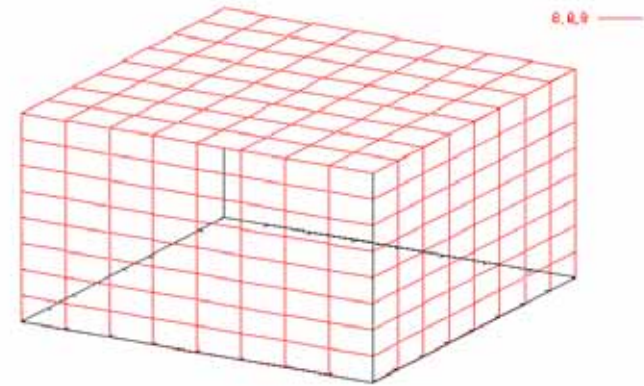
FIG. 2.  $L_c$  dependence of peak positions in  $\epsilon_2$  of nanocrystalline/amorphous mixed-phase Si inside the nanocrystalline region for models with  $L-L_c$  fixed to  $a_0$  (●);  $L$  fixed to  $12a_0$ . (□);  $\{L_c, L\} = \{7, 9\}$  (+);  $\{7, 10\}$  (▲); and  $\{7, 9\}R$  (⊞). A best-fitted curve following an empirical scaling law of  $L_c^{-2}$  is shown by a dashed curve for models with fixed  $L$ . The size dependence of peak positions in  $\epsilon_2$  of hydrogenated Si nanocrystallites is also shown (△) with a best-fitted curve following  $L_c^{-1.9}$ .



# Bull2: アンダーソンの不純物モデル

✪ 3次元 ( $L \times L \times L$ ) アンダーソンハミルトニアン

$$H = \sum_{\mathbf{R}} \epsilon_{\mathbf{R}} |\mathbf{R}\rangle \langle \mathbf{R}| - V \sum_{\mathbf{R}, \delta \mathbf{R}} |\mathbf{R}\rangle \langle \mathbf{R} + \delta \mathbf{R}|$$



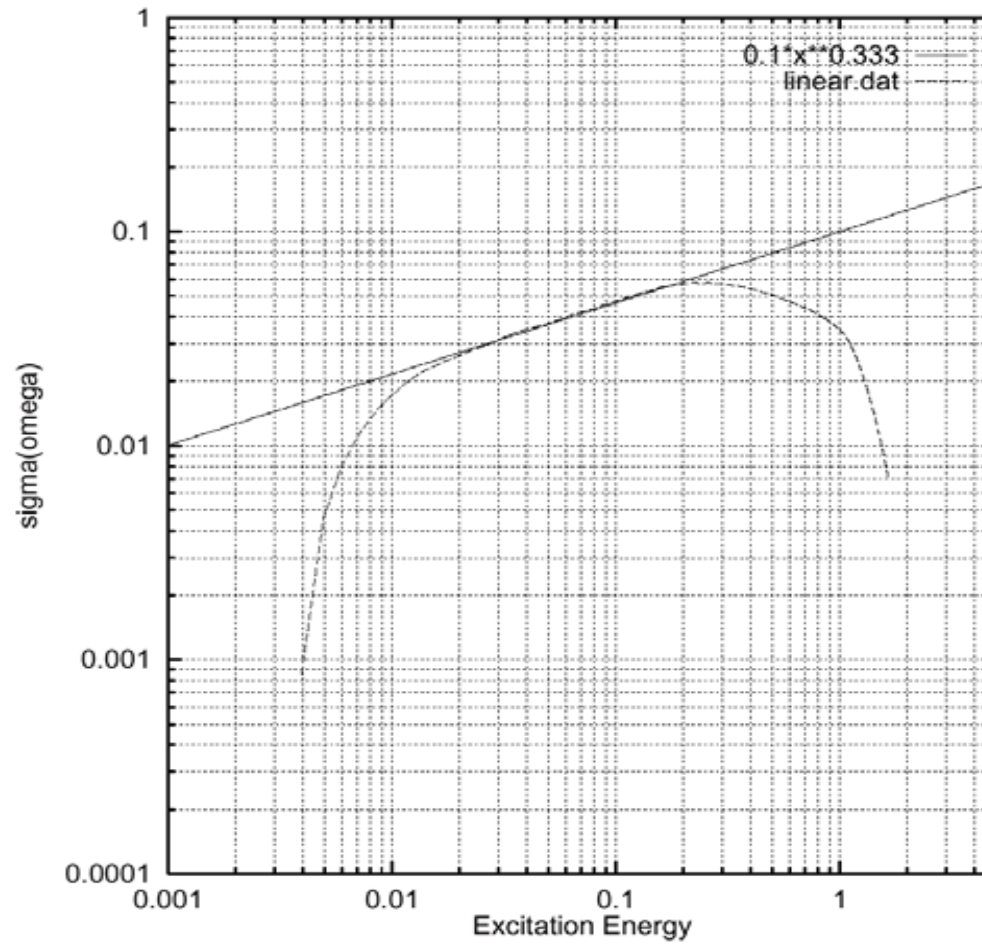


# アンダーソン転移の ( )

- ✪ スケーリング仮説による予想 Shapiro(1981)  
「 $c$ で ( ) が  $1/2$  から  $1/3$  へ変化」  
解析的、数値的に検証されていない
- ✪ これまでの数値計算  
Lambrianides (1994)  $L = 14$   
島、中山 (1998)  $L = 30$
- ✪ 今回の数値計算  $L = 256$   
 $c$ での変化の検証を目指す。



# Anderson転移点での ( )





# Bull3:量子スピン鎖

VOLUME 90, NUMBER 4

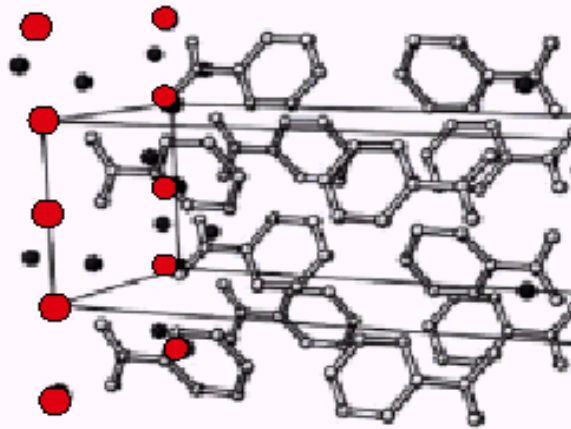
PHYSICAL REVIEW LETTERS

week ending  
31 JANUARY 2003

## Algorithm for Linear Response Functions at Finite Temperatures: Application to ESR Spectrum of $s = \frac{1}{2}$ Antiferromagnet Cu Benzoate

Toshiaki Iitaka\* and Toshikazu Ebisuzaki

### Copper Benzoate



$\text{Cu}^{2+}$

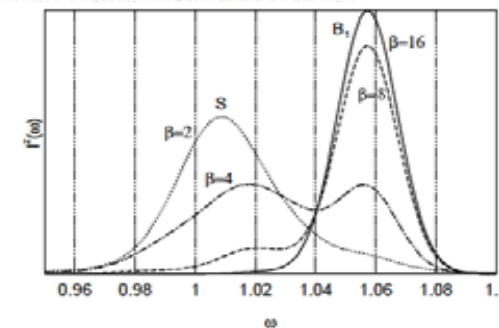
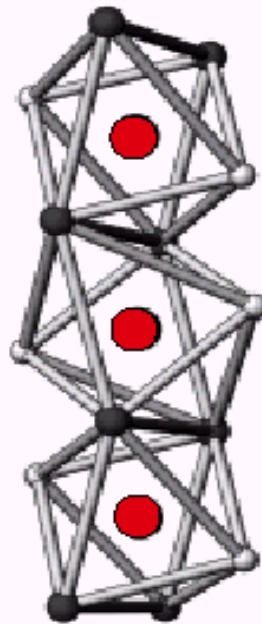
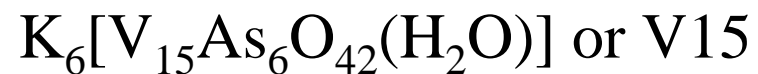
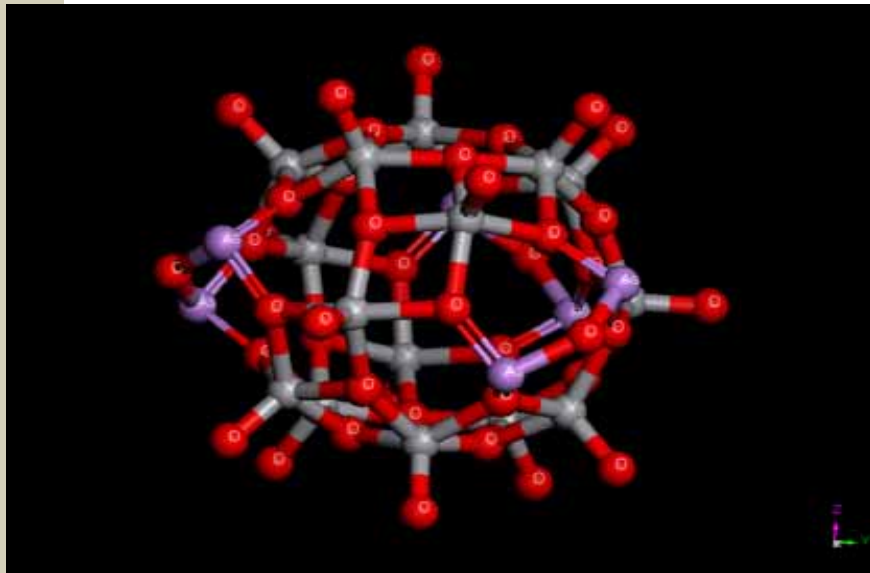


FIG. 1: ESR spectra of normal polarization,  $I^z(\omega)$ , calculated with  $\beta = 2 \sim 16$ ,  $H_x = 1.0$ ,  $N_{spin} = 16$ ,  $\eta = 0.01$  and  $N_{rand} = 16$ .  $S$  and  $B_1$  stand for spinon excitation and first breather excitation, respectively.



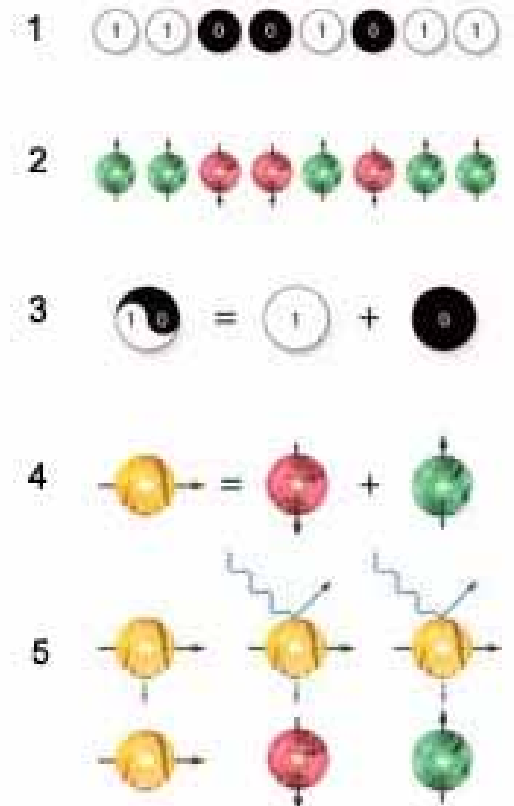
# Bull3: ナノ分子磁石

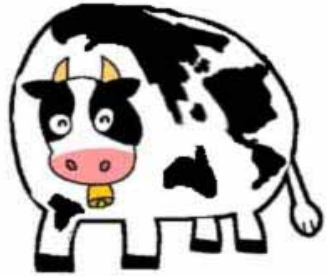


- **実験**: Sakon et al. (2003), Ajiro et al. (2003).
- Line width, Line shape, Intensity and DM/DD interaction.
- **理論**: Machida et al. (cond-mat/0501439)

# 量子情報科学への応用

- 🌟 相互作用するスピン系 qubitの集まり
- 🌟 時間発展 計算過程
- 🌟 有限温度での計算過程を研究できる。





# 対角化じゃだめ？

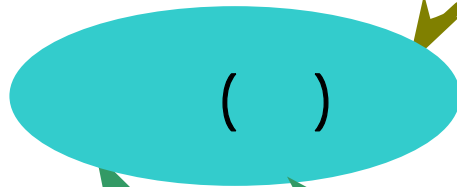
$$H | E_n \rangle = E_n | E_n \rangle$$

対角化:

正確な値、並列化難しい

$O(N^3)$

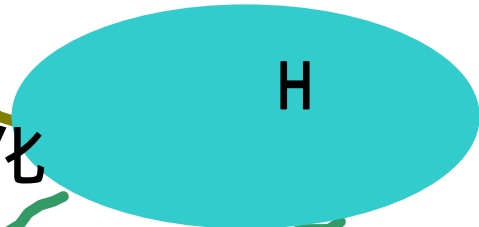
誘電率



$O(N)$

並列化、ベクトル化  
OK

ハミルトニアン行列



チェビシエフ多項式展開

時間発展

$$T_{n+1}(H) = 2HT_n(H) - T_{n-1}(H) \quad (n \geq 1)$$

$$i \frac{d}{dt} |\Psi; t\rangle = H |\Psi; t\rangle$$

# 対角化とは

💣 行列  $H_{ij} = \langle i | H | j \rangle$  が与えられたとき

$$H = \begin{bmatrix} H_{11} & H_{12} & \text{☹️} & H_{1N} \\ H_{21} & H_{22} & \text{☹️} & H_{2N} \\ \text{💣} & \text{💣} & \text{👉} & \text{💣} \\ H_{N1} & H_{N2} & \text{☹️} & H_{NN} \end{bmatrix}$$

# 対角化とは

✦ 固有値  $E_n$ 、固有ベクトル  $|E_n\rangle$  を求めること  
計算量 =  $O(N^3)$

$$H |E_n\rangle = E_n |E_n\rangle$$

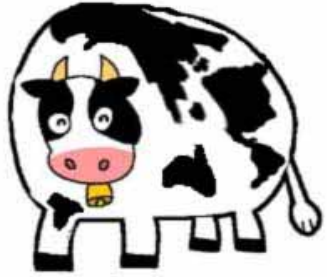
# 対角化とは

💡 基底変換  $\langle i | H | j \rangle = \sum_{E_m, E_n} \langle i | E_m \rangle \langle E_m | H | E_n \rangle \langle E_n | j \rangle$

$$H = U \tilde{H} U^\dagger$$

$$U = \begin{bmatrix} \langle 1 | E_1 \rangle & \langle 1 | E_2 \rangle & \text{☹️} & \langle 1 | E_N \rangle \\ \langle 2 | E_1 \rangle & \langle 2 | E_2 \rangle & \text{☹️} & \langle 2 | E_N \rangle \\ \text{💣} & \text{💣} & \text{🙅} & \text{💣} \\ \langle N | E_1 \rangle & \langle N | E_2 \rangle & \text{☹️} & \langle N | E_N \rangle \end{bmatrix}$$

$$\tilde{H} = \begin{bmatrix} E_1 & 0 & \text{☹️} & 0 \\ 0 & E_2 & \text{☹️} & 0 \\ \text{💣} & \text{💣} & \text{🙅} & \text{💣} \\ 0 & 0 & \text{☹️} & E_N \end{bmatrix}$$



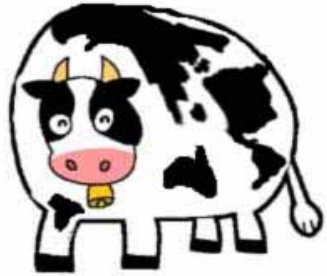
# 対角化法と時間依存法

## 🌟 対角化法

$$\chi_{BA}(\omega) = \sum_{c,v} \left\{ \frac{\langle v|B|c\rangle\langle c|A|v\rangle}{\omega + i\eta - \omega_{cv}} - \frac{\langle v|A|c\rangle\langle c|B|v\rangle}{\omega + i\eta + \omega_{cv}} \right\}$$

## 🌟 時間依存法

$$\chi_{BA}(\omega) = 2\Delta t \sum_{m=0}^M e^{+i(\omega + \omega_v + i\eta)m\Delta t} \text{Im} \langle v|B e^{-iHm\Delta t} \theta(H - E_f) A|v\rangle$$



# 相互作用しない電子の 線形応答関数

## ⚡ 時間領域での応答関数

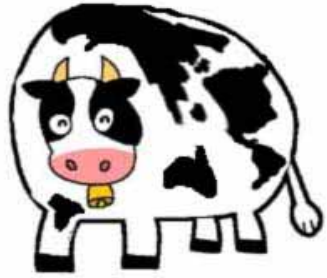
$$\delta B(t) = 2 \operatorname{Im} \langle \Phi | \theta(E_f - H) e^{+iHt} | B | e^{-iHt} \theta(H - E_f) A \theta(E_f - H) | \Phi \rangle$$

## ⚡ フーリエ変換

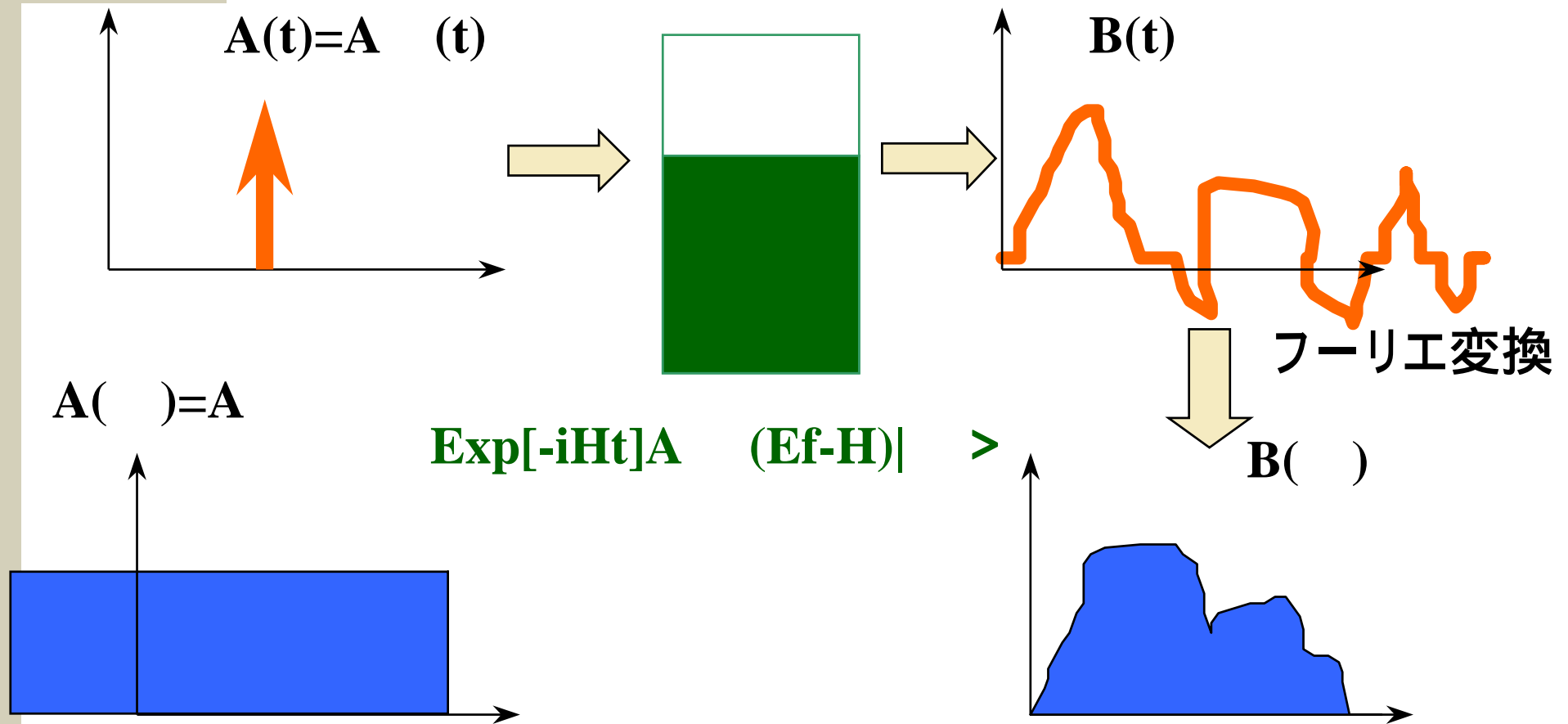
$$\chi_{BA}(\omega + i\eta) = \left\langle \left\langle \int_0^T dt e^{+i(\omega+i\eta)t} \delta B(t) \right\rangle \right\rangle$$

T.Iitaka et al., Phys. Rev. E56, 1222 (1997)

T.Iitaka et al., Phys. Rev. E61, R3314 (2000)

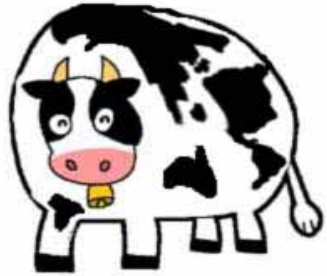


# 相互作用しない電子の 線形応答関数 (考え方)



T.Iitaka et al., Phys. Rev. E56, 1222 (1997)

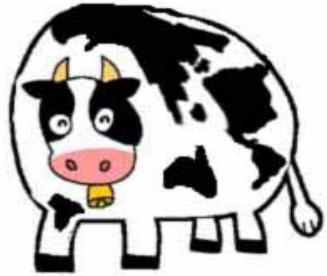
T.Iitaka et al., Phys. Rev. E61, R3314 (2000)



# 時間表示の久保公式

✪ 摂動  $A(t)$  がある時間発展方程式

$$i \frac{d}{dt} |\Psi; t\rangle = \{H + A\delta(t)\} |\Psi; t\rangle.$$



# 時間表示の久保公式

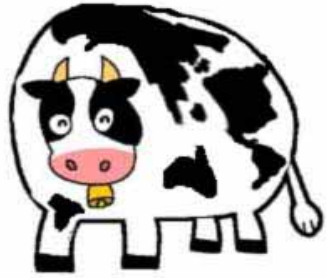
✨ 摂動  $A$  ( $t$ ) を受けた時の状態ベクトル

$$|\Psi; t\rangle = |\Psi^{(0)}; t\rangle + |\delta\Psi; t\rangle$$

ただし

$$|\Psi^{(0)}; t\rangle = e^{-iHt} |\Psi^{(0)}\rangle$$

$$|\delta\Psi; t\rangle = (-i)e^{-iHt} A |\Psi^{(0)}\rangle.$$



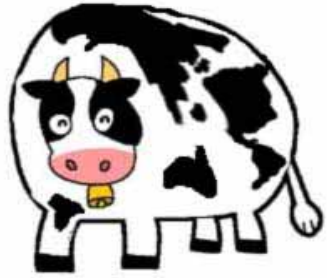
# 時間表示の久保公式

- 応答関数

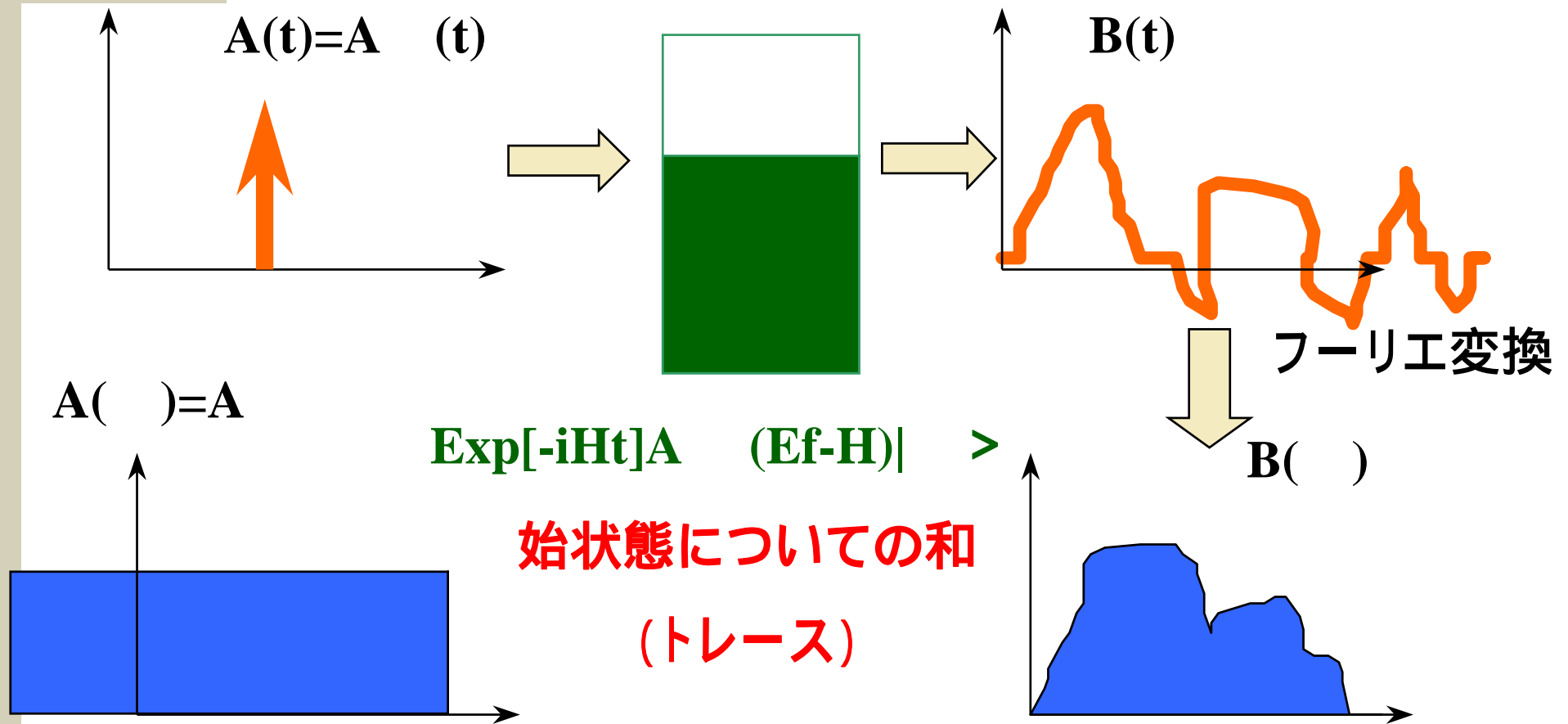
$$\begin{aligned}\delta B(t) &= \langle \Psi; t | B | \Psi; t \rangle \approx 2 \operatorname{Im} \langle \Psi^{(0)}; t | B | \delta \Psi; t \rangle \\ &= 2 \operatorname{Im} \langle \Psi^{(0)} | e^{+iHt} B e^{-iHt} A | \Psi^{(0)} \rangle\end{aligned}$$

- フーリエ変換

$$\chi_{BA}(\omega + i\eta) = \int_0^{T_{\max}} dt e^{+i(\omega + i\eta)t} \delta B(t)$$

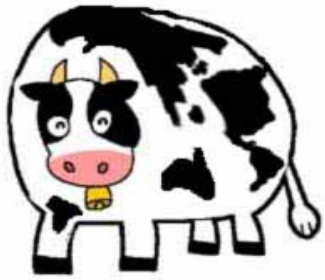


# 相互作用しない電子の 線形応答関数 (多電子系)



T.Iitaka et al., Phys. Rev. E56, 1222 (1997)

T.Iitaka et al., Phys. Rev. E61, R3314 (2000)



# 時間表示の久保公式 (多電子系)

- 応答関数

$$\begin{aligned}\delta B(t) &= \langle \Psi; t | B | \Psi; t \rangle \approx 2 \operatorname{Im} \langle \Psi^{(0)}; t | B | \delta \Psi; t \rangle \\ &= \sum_{E \leq E_f} 2 \operatorname{Im} \langle \Psi_E^{(0)} | e^{+iHt} B e^{-iHt} A | \Psi_E^{(0)} \rangle\end{aligned}$$

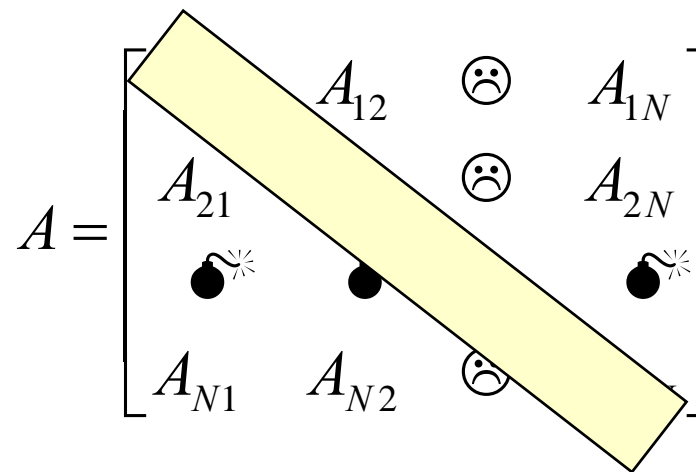
- フーリエ変換

$$\chi_{BA}(\omega + i\eta) = \int_0^{T_{\max}} dt e^{+i(\omega + i\eta)t} \delta B(t)$$

# トレースとは

💣 行列の対角成分の和

$$\text{tr}[A] = \sum_i A_{ii}$$



# トレースの性質

🌟 巡回置換しても値は同じ

$$\begin{aligned}\operatorname{tr}[ABC] &= \sum_i [ABC]_{ii} = \sum_i \sum_{jk} A_{ij} B_{jk} C_{ki} \\ &= \sum_k \sum_{ij} C_{ki} A_{ij} B_{jk} = \sum_k [CAB]_{kk} = \operatorname{tr}[CAB]\end{aligned}$$

# トレースの性質

✦ 基底によらない

基底変換

巡回置換

$$UU^+ = I$$

$$\text{tr}[A] = \text{tr}[U\tilde{A}U^+] = \text{tr}[U^+U\tilde{A}] = \text{tr}[\tilde{A}]$$

# トレースの例

💣 全エネルギー

$$E_{tot} = \sum_{n=1}^N E_n = \text{tr} \left[ \begin{pmatrix} E_1 & & & \\ & E_2 & & \\ & & \text{⋮} & \\ & & & E_N \end{pmatrix} \right] = \text{tr}[\tilde{H}]$$

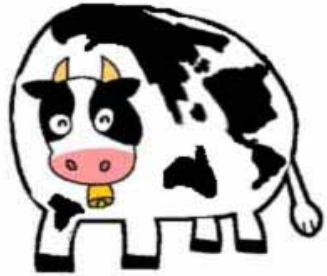
$$= \text{tr}[H] = \text{tr} \left[ \begin{pmatrix} H_{11} & H_{12} & \text{☹} & H_{1N} \\ H_{21} & H_{22} & \text{☹} & H_{2N} \\ \text{💣} & \text{💣} & \text{⋮} & \text{💣} \\ H_{N1} & H_{N2} & \text{☹} & H_{NN} \end{pmatrix} \right]$$

$$\beta = \frac{1}{kT}$$

# トレースの例

## 分配関数

$$Z = \sum_{n=1}^N e^{-\beta E_n} = \text{tr} \begin{bmatrix} e^{-\beta E_1} & & & \\ & e^{-\beta E_2} & & \\ & & \ddots & \\ & & & e^{-\beta E_N} \end{bmatrix}$$
$$= \text{tr}[\exp(-\beta \tilde{H})] = \text{tr}[\exp(-\beta H)] = \text{tr} \left[ \sum_{l=0}^{\infty} \frac{(-\beta H)^l}{l!} \right]$$



# トレースの計算

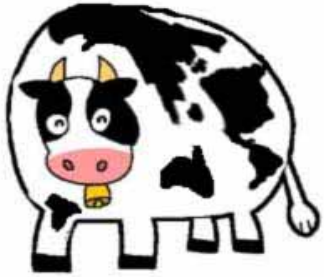
☀ 行列Aのトレース(定義に従った計算)

$$\text{Tr } A = \sum_{n=1}^N \langle n|A|n\rangle, \quad \{|n\rangle\} \text{ 任意の基底}$$

☀ ランダムベクトルを使った計算法  $|\Phi^{(p)}\rangle$

$$\text{Tr } A = \frac{1}{N_p} \sum_{p=1}^{N_p} \langle \Phi^{(p)}|A|\Phi^{(p)}\rangle$$

- $N_p \ll N$ ならば計算が速い
- 答えに乱数による揺らぎ



# ランダムベクトルとは

☀ Definition with basis set  $|n\rangle$

$$|\Phi^{(p)}\rangle \equiv \sum_{n=1}^N |n\rangle \xi_n^{(p)}$$

☀ Statistics of random coefficients

$$\langle\langle \xi_{n'}^* \xi_n \rangle\rangle = \lim_{N_p \rightarrow \infty} \frac{1}{N_p} \sum_{p=1}^{N_p} \xi_{n'}^{(p)*} \xi_n^{(p)} = \delta_{n'n}, \quad \langle\langle \xi_{n'} \xi_n \rangle\rangle = \langle\langle \xi_n \rangle\rangle = 0$$

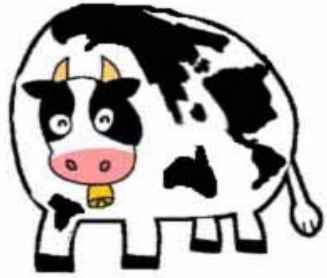
☀ Trace

$$\langle\langle \langle \Phi | A | \Phi \rangle \rangle\rangle = \sum_{n=1}^N \langle n | A | n \rangle + \sum_{n', n} \langle n' | A | n \rangle \langle\langle \xi_{n'}^* \xi_n - \delta_{n'n} \rangle\rangle$$

$$= \sum_{n=1}^N \langle n | A | n \rangle = \text{Tr} [A]$$

Detailed error analysis:

A.Hams and H.de Raedt, PRE62, 4365 (2000)



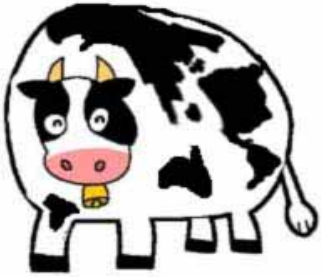
# ランダムベクトル

## 💡 計算用の基底での定義

$$|\Phi\rangle = \sum_{n=1}^N |n\rangle \xi_n = \sum_{n=1}^N |E_n\rangle \zeta_n$$

## 💡 乱数の統計的性質

$$\langle\langle \xi_{n'}^* \xi_n \rangle\rangle = \langle\langle \zeta_{n'}^* \zeta_n \rangle\rangle = \delta_{n'n}$$



# ランダムベクトル

- 基底変換

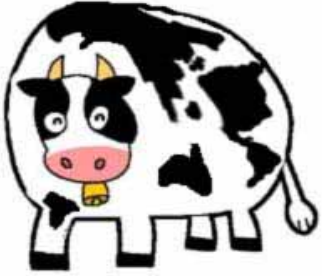
$$\sum_{m=1}^N |E_m\rangle \zeta_m = \sum_{l=1}^N |l\rangle \xi_l,$$

$$\sum_{m=1}^N \zeta_m^* \langle E_m| = \sum_{l=1}^N \xi_l^* \langle l|.$$

よって

$$\zeta_m = \sum_{l=1}^N \langle E_m|l\rangle \xi_l,$$

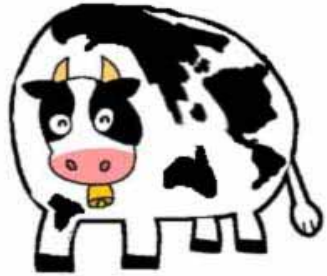
$$\zeta_m^* = \sum_{l=1}^N \xi_l^* \langle l|E_m\rangle.$$



# ランダムベクトル

- 統計的性質

$$\begin{aligned}\langle\langle \xi_{n'}^* \xi_n \rangle\rangle &= \sum_{l'=1}^N \sum_{l=1}^N \langle l' | E_{n'} \rangle \langle E_n | l \rangle \langle\langle \xi_{l'}^* \xi_l \rangle\rangle \\ &= \sum_{l=1}^N \langle E_n | l \rangle \langle l | E_{n'} \rangle \\ &= \langle E_n | E_{n'} \rangle = \delta_{n'n}.\end{aligned}$$



# 射影ランダムベクトル

## ✪ 射影ランダムベクトル

フェルミ縮退した占有状態を表す。

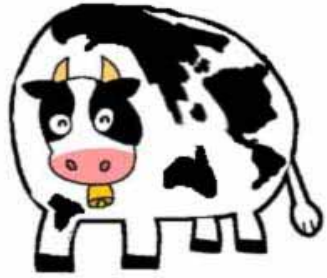
$$|\Phi_{E_f}\rangle \equiv \theta(E_f - H)|\Phi\rangle.$$

$$|\Phi_{E_f}\rangle = \sum_{E_n \leq E_f} |E_n\rangle \zeta_n,$$

ただし  $\theta(X)$  はステップ関数

$$\theta(X) = 1 \quad \text{for } X > 0$$

$$\theta(X) = 0 \quad \text{for } X < 0$$

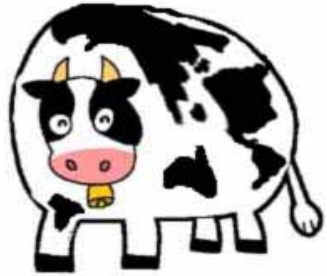


# 射影ランダムベクトル

## ✪ 占有状態に関する状態和

$$\begin{aligned} \langle\langle \langle \Phi_{E_f} | X | \Phi_{E_f} \rangle \rangle\rangle &= \sum_{E_n \leq E_f} \langle\langle \zeta_n^* \zeta_n \rangle\rangle \langle E_n | X | E_n \rangle \\ &+ \sum_{\substack{E_n, E_{n'} \leq E_f \\ n \neq n'}} \langle\langle \zeta_{n'}^* \zeta_n \rangle\rangle \langle E_{n'} | X | E_n \rangle, \quad (39) \end{aligned}$$

$$= \sum_{E_n \leq E_f} \langle E_n | X | E_n \rangle, \quad (40)$$



# 相互作用のない多電子系の 線形応答関数

## 🌟 時間応答

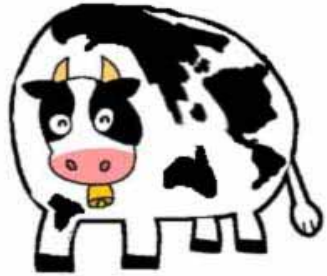
$$\delta B(t) = 2 \operatorname{Im} \langle \Phi_{E_f} | e^{+iHt} B e^{-iHt} \theta(H - E_f) A | \Phi_{E_f} \rangle.$$

## 🌟 フーリエ変換

$$\chi_{BA}(\omega + i\eta) = \left\langle \left\langle \int_0^T dt e^{+i(\omega + i\eta)t} \delta B(t) \right\rangle \right\rangle,$$

T.Iitaka et al., Phys. Rev. E56, 1222 (1997)

T.Iitaka et al., Phys. Rev. E61, R3314 (2000)



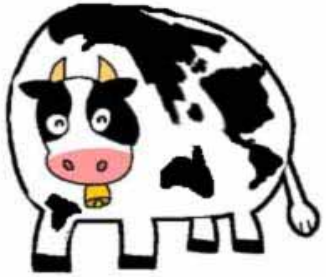
# 行列の関数

## 🌟 テーラー展開で定義

$$f(x) = \sum_{n=0}^{\infty} c_n x^n \qquad f(H) = \sum_{n=0}^{\infty} c_n H^n$$

## 🌟 固有ベクトルに作用させる

$$\begin{aligned} f(H)|E_i\rangle &= \sum_{n=0}^{\infty} c_n H^n |E_i\rangle = \sum_{n=0}^{\infty} c_n E_i^n |E_i\rangle \\ &= \left( \sum_{n=0}^{\infty} c_n E_i^n \right) |E_i\rangle = f(E_i)|E_i\rangle \end{aligned}$$



# チェビシエフ多項式による展開

展開:

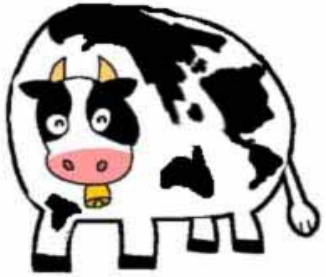
$$f(x) = \frac{1}{2}c_1T_0(x) + \sum_{k=2}^{N_k} c_kT_{k-1}(x)$$

$$c_k = \frac{2}{N_k} \sum_{l=1}^{N_k} f(x_l)T_{k-1}(x_l)$$

直交性 II:

$$\sum_{k=1}^m T_i(x_k)T_j(x_k) = \begin{cases} 0 & i \neq j \\ m/2 & i = j \neq 0 \\ m & i = j = 0 \end{cases}$$

Where  $x_k$  are the  $k$ -th zero of  $T_m(x)$  and  $i, j < m$



# 行列関数のチェビシエフ展開

行列関数: 
$$f(H) \equiv \frac{1}{2}c_1T_0(H) + \sum_{k=2}^{N_k} c_k T_{k-1}(H)$$

$$c_k = \frac{2}{N_k} \sum_{l=1}^{N_k} f(x_l) T_{k-1}(x_l)$$

行列版チェビシエフ多項式:

H, 規格化ハミルトニアン 固有値の範囲 [-1,+1]

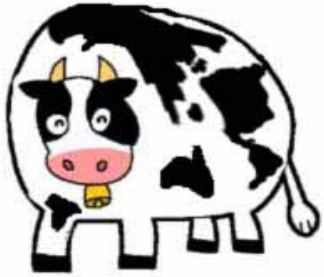
$$T_0(H) = I$$

$$T_1(H) = H$$

$$T_2(H) = 2H^2 - I$$

.....

$$T_{n+1}(H) = 2HT_n(H) - T_{n-1}(H) \quad (n \geq 1)$$



$$\text{Exp}(-H)$$

## ☀ ボルツマン因子

$$e^{-\beta H} = I_0(\beta) + 2 \sum_{n=1}^{\infty} I_n(\beta) T_n(H)$$

## ☀ 分配関数

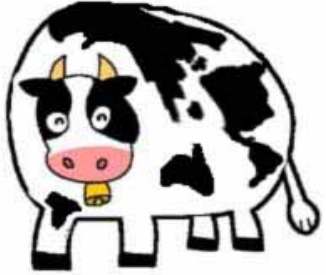
$$Z = \text{Tr} [e^{-\beta H}]$$

## ☀ 熱力学平均値

$$\langle A \rangle = \text{Tr} [A e^{-\beta H}] / Z$$

R.Kosloff and H.Tal-ezer, Chem.Phys.Lett. **127**,223 (1986).

R.N.Silver and H.Roeder, Internatnl. J. Mod. Phys.C **5**,735(1994)<sup>4</sup>



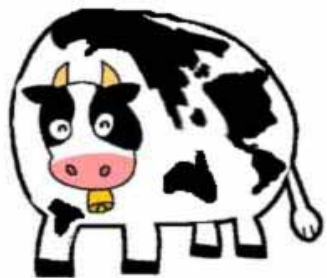
Exp (-iHt)

## ☀ 時間發展演算子

$$e^{-iHt} = J_0(t) + 2 \sum_{n=1}^{\infty} (-i)^n J_n(t) T_n(H)$$

$$|\phi, t_0 + t\rangle = e^{-iHt} |\phi, t_0\rangle = J_0(t) |\phi, t_0\rangle + 2 \sum_{n=1}^{\infty} (-i)^n J_n(t) T_n(H) |\phi, t_0\rangle$$

H.Tal-ezer and R.Kosloff, J.Chem.Phys. **81**,3967 (1984).  
Fortran Programs by T.Iitaka



# 時間発展演算子の他の計算法

## 💡 鈴木・トロッター分解

$$H = A + B$$

$$|\phi, t + \Delta t\rangle = e^{-iH\Delta t} |\phi, t\rangle = e^{-iA\Delta t/2} e^{-iB\Delta t} e^{-iA\Delta t/2} |\phi, t\rangle + O(\Delta t^3)$$

For higher order scheme: M.Suzuki, Phys. Lett. **A146**, 319 (1990)

## 💡 対称多段法

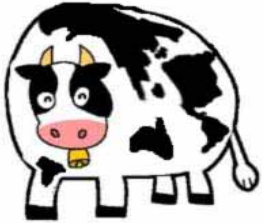
$$|\phi, t + \Delta t\rangle = -2i\Delta t H |\phi, t\rangle + |\phi, t - \Delta t\rangle + O(\Delta t^3)$$



For higher order scheme: T.Iitaka, Phys.Rev. **E49**, 4684 (1994)

Fortran Programs

(H- )



.N.Silver and H.Roeder, Int. J. Mod. Phys. C5, 735(1994).

κ.N.Silver et al., J.Comp.Phys.124,115(1996).

$$\rho(\varepsilon) = \frac{1}{\pi\sqrt{1-\varepsilon^2}} \left[ \mu_0 g_0 + 2 \sum_{m \geq 1} \mu_m g_m T_m(\varepsilon) \right]$$

$$\mu_m = \int d\varepsilon T_m(\varepsilon) \rho(\varepsilon) = \sum_i T_m(\varepsilon_i) = \text{Tr} [T_m(H)]$$

直交性 I:

$$\int_{-1}^1 dx \frac{T_i(x)T_j(x)}{\sqrt{1-x^2}} = \begin{cases} 0 & i \neq j \\ \pi/2 & i = j \neq 0 \\ \pi & i = j = 0 \end{cases}$$

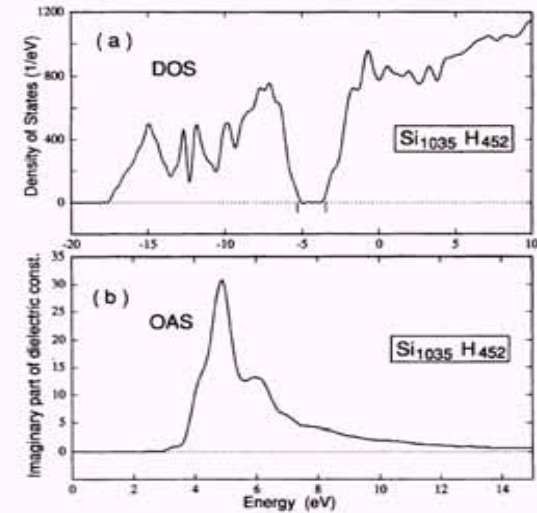


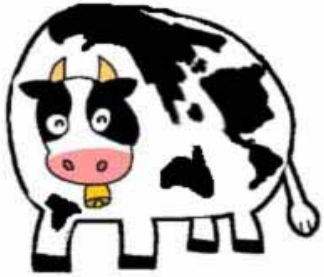
FIG. 3. The spectra of the  $\text{Si}_{1035}\text{H}_{452}$  quantum dot. The oscillatory broadening is used for both the DOS and OAS.  $N_c = 500$  and  $N_s = 20$ . It takes 3 Cray-YMP CPU hours. (a) Total density of states (only one portion of it is shown; the higher end of this DOS reaches 60 eV). The short vertical bars are the positions of band-edge states calculated in Refs. 3 and 15. The vacuum level is at 0 eV. Thus, the DOS above 0 eV has contributions for vacuum and should depend on the total volume of vacuum used in the calculation. (b)  $\varepsilon_2(E)$ , the imaginary part of the dielectric constant. Note that  $\varepsilon_2(E)$  does not depend on the total volume of vacuum used in the calculation.

L.W.Wang,PRB49,10154(1994)

# Acknowledgments

🌻 ご清聴ありがとうございました。





# Random Phase Vector

Definition with basis set  $|n\rangle$

$$|\Phi^{(p)}\rangle \equiv \sum_{n=1}^N |n\rangle \xi_n^{(p)} \quad \xi_n^{(p)} \equiv \exp(i\phi_n^{(p)}), \quad \phi_n^{(p)} \in [-\pi, \pi]$$

Statistics of random coefficients

$$\xi_n^* \xi_n = 1, \quad \langle\langle \xi_{n'}^* \xi_n \rangle\rangle = \lim_{N_p \rightarrow \infty} \frac{1}{N_p} \sum_{p=1}^{N_p} \xi_{n'}^{(p)*} \xi_n^{(p)} = \delta_{n'n}$$

Trace

$$\begin{aligned} \langle\langle \langle \Phi | A | \Phi \rangle \rangle\rangle &= \sum_{n=1}^N \langle n | A | n \rangle + \sum_{n' \neq n} \langle n' | A | n \rangle \langle\langle \xi_{n'}^* \xi_n - \delta_{n'n} \rangle\rangle \\ &= \sum_{n=1}^N \langle n | A | n \rangle = \text{Tr} [A] \end{aligned}$$

T.Iitaka et al., PRE 69, 057701 (2004).

# Error of Random Vector

## ✦ Fluctuation of the trace

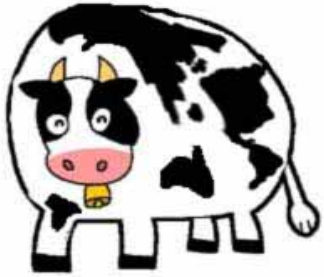
$$\delta X = \frac{1}{K} \sum_k \sum_{n1n2} (\xi_{n1}^{*(k)} \xi_{n2}^{(k)} - \delta_{n1n2}) X_{n1n2}$$

$$\langle\langle |\delta X|^2 \rangle\rangle = \frac{1}{K} \left\{ \left( \langle\langle |\xi_n|^4 \rangle\rangle - 1 \right) \sum_n |X_{nn}|^2 + \sum_{n1 \neq n2} |X_{n1n2}|^2 \right\}$$

## ✦ Fluctuation is minimum when

$$\langle\langle |\xi_n|^4 \rangle\rangle = 1, \quad \text{e.g., } \xi_n = \exp(i\phi_n)$$

Random phase vector



# Real Random Vector

Statistics of real random coefficients

$$\langle\langle \xi_n \rangle\rangle = 0 \quad \langle\langle \xi_{n'} \xi_n \rangle\rangle = \delta_{n'n}$$

Statistical Error

$$\langle\langle |\delta X|^2 \rangle\rangle = \frac{1}{K} \left\{ \left( \langle\langle |\xi_n|^4 \rangle\rangle - 1 \right) \sum_n |X_{nn}|^2 + 2 \sum_{n1 \neq n2} |X_{n1n2}|^2 \right\}$$

becomes minimal when

$$\xi_n = \pm 1$$

Random sign vector

T.Iitaka et al., PRE 69, 057701 (2004).

# Time-evolution Method

## ✦ Density of State

$$\begin{aligned}\rho(\varepsilon) &= \sum_{n=1}^N \delta(\varepsilon - E_n) \\ &= \frac{1}{\pi} \text{Tr} \text{Im} \frac{1}{\varepsilon - i\eta - H} \\ &= \frac{1}{\pi} \text{Tr} \text{Im} \int_{-\infty}^0 dt e^{i(\varepsilon - i\eta)t} e^{-itH}\end{aligned}$$

# 計算手順

✦ (非)摂動波動関数の時間発展を計算

$$|\Psi^{(0)}; t\rangle = e^{-iHt} |\Phi_{E_f}\rangle$$

$$|\delta\Psi; t\rangle = e^{-iHt} \theta(H - E_f) A |\Phi_{E_f}\rangle$$

✦ 各時刻ごとに応答  $B(t)$   
とそのフーリエ変換を計算

# Matrix Function on Vector

Matrix function: 
$$f(H)|\phi\rangle \equiv \frac{1}{2}c_1|T_0(H)\phi\rangle + \sum_{k=2}^{N_k} c_k|T_{k-1}(H)\phi\rangle$$

$$c_k = \frac{2}{N_k} \sum_{l=1}^{N_k} f(x_l) T_{k-1}(x_l)$$

Vector Chebyshev Polynomial:

$$|T_0(H)\phi\rangle = |\phi\rangle$$

$$|T_1(H)\phi\rangle = H|\phi\rangle$$

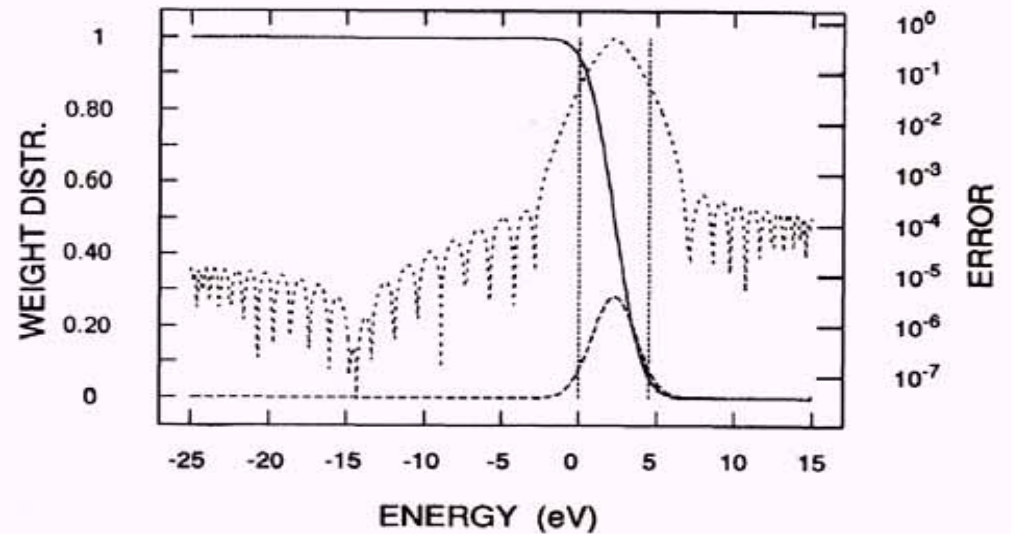
.....

$$|T_{n+1}(H)\phi\rangle = 2H|T_n(H)\phi\rangle - |T_{n-1}(H)\phi\rangle \quad (n \geq 1)$$

# Fermi Function

## 🔦 Fermi Function

$$\begin{aligned} f(H) &= \frac{e^{-\beta(H-\mu)}}{1+e^{-\beta(H-\mu)}} \\ &= \sum_{k=1}^{N_k} c_k T_k(H) \end{aligned}$$



S.Gedecker and L.Colombo,PRL73,122(1994).  
S.Gedecker and M.Teter,PRB51,9455(1995).



# ESR Spectrum

$$H = \sum_{j=1}^{N_{spin}} [J \mathbf{s}_j \cdot \mathbf{s}_{j+1} - g\mu_B H_x s_j^x + (-1)^j g\mu_B h s_j^y] \quad (1)$$

$$I^\mu(\omega) = \frac{H_R^2 \omega}{2} \chi''_{\mu\mu}(q=0, \omega) \quad (2)$$

$$\chi''_{\mu\mu}(q, \omega) = (1 - e^{-\beta\omega}) \text{Im} \lim_{\eta \rightarrow +0} \int_0^\infty dt e^{-i(\omega - i\eta)t} g_q^\mu(t) \quad (3)$$

$$g_q^\mu(t) = \text{Tr} [e^{-\beta H} M_{-q}^\mu e^{+iHt} M_{+q}^\mu e^{-iHt}] / \text{Tr} [e^{-\beta H}] \quad (4)$$

$$g_q^\mu(t) = \frac{\langle\langle \langle \Phi_{Boltz} | M_{-q}^\mu e^{+iHt} | M_{+q}^\mu e^{-iHt} | \Phi_{Boltz} \rangle \rangle\rangle}{\langle\langle \langle \Phi_{Boltz} | \Phi_{Boltz} \rangle \rangle\rangle} \quad (5)$$

応答の体導半  
化学反の  
光化導体

# 計算時間1/100に

## 理研 材料研究開発に有用

理化学研究所の研究グループは半導体の発光や太陽電池の発電など光化学反応を伴う物理現象をコンピュータで再現するシミュレーション(模擬実験)技術を開発した。光が物質に当たるときの化学反応を簡単に求める計算手法を開発

し、従来に比べて計算時間 径三十分の一(ナノ)は十億分の一に短縮した。複一(ナノ)の超微粒子にすると、雑な光反応の検証に威力を 照射した光を吸収して青色発揮し、機能性材料などの の光を放つ奇妙な現象を解 研究開発に役立つという。析するため開発を試みた。開発はナノ電子材料研究 チームと半導体工学研究室 吸収する光の波長の関係を の共同で進めた。シミュレ 求めるため、光を受けたと シミュレーションは、シリコンを直 きに変化する電子状態を調

べる計算式を作成 来は電子の状態を 計算したが、今回の 電子を一つの状態 して計算したため、 計算時間の短縮に した。

実際に直径三十分 シリコン微粒子を 吸収する光の波長を たところ、波長六十 ナノまで幅広い光を ることになり、実験 ほぼ一致した。また

# トレースの例

## 分配関数

$$Z = \sum_{n=1}^N e^{-\beta E_n} = \text{tr} \left[ \begin{pmatrix} e^{-\beta E_1} & & & \\ & e^{-\beta E_2} & & \\ & & \ddots & \\ & & & e^{-\beta E_N} \end{pmatrix} \right]$$
$$= \text{tr} \left[ \begin{pmatrix} 1 - \beta E_1 + \frac{(-\beta E_1)^2}{2!} + \ominus & & & \\ & 1 - \beta E_1 + \frac{(-\beta E_1)^2}{2!} + \ominus & & \\ & & & 1 - \beta E_1 + \frac{(-\beta E_1)^2}{2!} + \ominus \end{pmatrix} \right]$$