

課題名(タイトル):

大規模並列計算機を用いた強相関量子多体系数値  
シミュレーションコードの開発とその応用

利用者氏名:

○曾田 繁利(1,4)、柚木 清司(1,2,3,4)、白川 知功(1)、Qinfang Zhang(2)、Robert Peters(2)、Beom Hyun Kim(2)、  
関 和弘(1,2)、正木 晶子(1,2)、榊原 寛史(2)、上田 宏(1,4)、獅子堂達也(1)

理研における所属研究室名:

(1)計算科学研究センター・量子系物質科学研究チーム、(2)柚木計算物性物理研究室、(3)創発物性科学研究  
センター・計算量子物性研究チーム、(4)計算科学研究センター・アプリケーション開発チーム

1. 本課題の研究の背景、目的、関係するプロジェクトと  
の関係

強相関電子系は、電子間の強いクーロン相互作用のため特有の集団的量子効果を示す。この強相関電子系では、電子が格子間を飛び回る運動項と、電子間同士の斥力に起因する多体相互作用項の両者を精密に取り扱う事が要請される。したがって、平均場近似に基づく解析的理論による解析は困難であり、理論的解明には大規模な数値シミュレーションを用いた解析が不可欠となっている。現実的な物質科学の計算手法として、最も成功しているものに、密度汎関数理論に基づく第一原理バンド計算手法が挙げられる。ただし、第一原理バンド計算手法では、単一スレーター行列式で表現できる状態を仮定するため、物質の個性を反映した詳細な運動項が得られるが、例えばモット絶縁体のような多体相互作用項に起因する電子状態を精密に記述することは原理的にできない。そこで継続課題である本研究課題では、昨年度までに量子モンテカルロ法や密度行列繰り込み群法、厳密対角化による直接解法や、動的平均場理論に代表されるような量子クラスター近似法などの、多様な多体格子模型計算手法を整備してきた(次ページの図参照)。これら各々の計算手法には長所・短所があり、全ての問題に有効な万能な計算手法というものには存在おらず、相補的に取り扱うことにより、様々な強相関電子系の解析が可能となってきた。

本研究課題は、強相関電子系に対する数値的研究手法の開発から、それらを用いた応用研究により構成される。そのため、多体量子格子模型計算手法の専門とする研究者と第一原理計算手法と最局在ワニエ軌道法を専門として研究を行ってきた者を集め、メンバーがこれまで培ってきた計算手法をさらに発展させ、より詳細で信頼性の高い結果を得ると同時に、一つの計算手法では不十分な点を補い合う

ことで統一的理解を深めることを目指す。各人の努力、工夫とHOKUSAIの能力を如何なく発揮することで、この困難な問題に立ち向かうのが本研究課題の意義である。

前年度までのHOKUSAI利用で、それまでに開発した手法をさらに発展させると同時に、物性物理分野における課題に対する理論的・数値的研究を行う。さらに、より高精度・高信頼度の結果、また量子ダイナミクス計算等への拡張のための大規模計算に対応するため、これまで開発してきた強相関電子系に対する数値的計算手法の大規模並列化のためのプログラム開発を行う。これらの独自に開発された数値的手法、およびそのプログラムを用いた計算をHOKUSAIで行うことにより、最先端の科学的成果の創出を目指す。

2. 具体的な利用内容、計算方法

■ 多次元強相関量子系に対応した時間依存密度行列繰り込み群法の開発と改良

密度行列繰り込み群法は、一次元強相関量子系の基底状態の研究に対して最も有効な計算手法として知られている。さらに、密度行列繰り込み群法は、量子ダイナミクスの計算手法として拡張されており、これは動的密度行列繰り込み群法や時間依存密度行列繰り込み群法として知られている。密度行列繰り込み群法は、計算の目的となる状態に着目し、その表現に重要な任意の数の基底のみを取り扱うことで、厳密対角化を超えた系のサイズに対する取扱いが可能となる。その計算精度としても、ターゲット状態に対して厳密対角化に匹敵するほどの高精度な計算を可能にする。このような密度行列繰り込み群法の多次元強相関量子系への適用は一次元系に適用する場合と比較してはるかに巨大な計算コストを必要とする。ただし、近年の計算機科学の発展により二次元強相関量子系に対する密度行

列繰り込み群法の適用も十分現実的となっている。

そこで、本研究では強相関量子系の実時間ダイナミクスの計算手法である時間依存密度行列繰り込み群法について、多次元強相関量子系への拡張を試みた。これまで、課題参加者らは、本手法のターゲット状態となる各時刻の状態について、その時間発展演算子を直交多項式展開法で計算することで多次元強相関量子系への対応を可能にした。本研究では、この計算手法の計算コスト、および計算精度の観点から、より小さい密度行列繰り込み群法の打ち切り回数でも計算可能な手法への改良を試みる。

#### ■ 時間依存行列積状態を用いた光励起状態の解析

近年、物質にパルス光を照射することにより、物理量が時間に依存して変化する非平衡状態の研究が盛んに行われている。こうした光によって励起された状態(光誘起状態)の研究は、非平衡ダイナミクスの基礎学理として非常に重要である。しかし、そのほとんどは、ある状況下の平衡状態を、別の状況下の平衡状態から光励起によって誘起したものが多かった。

そこで、我々はハバード模型で実現しているモット絶縁体に、パルス光を照射した場合に現れる状態について、厳密対角化、および時間依存行列積状態を用いた解析を行った。

#### ■ 第一原理量子モンテカルロ法のコード開発

強相関電子系などを調べる際に用いられている格子模型は、物質内で起こる様々な現象に対して、理想的な数理的モデルを与える意味で、その発現機構などを理解するために非常に重要である。対比して、複雑な物質の状況を全て考慮した直接的な数値シミュレーションを行い、こうした格子模型の理想化された現象が、現実の問題として発現しているか否かを調べることも非常に重要である。後者型の数値シミュレーションは第一原理計算と呼ばれており、密度汎関数法に基づく第一原理バンド計算などが使われている。ただし、こうした第一原理バンド計算では、Kohn-Sham 方程式を利用する一歩近似を用いることが多く、多体量子系特有の状態を記述できない。これを解決するための試みの一つが変分波動関数法に基づく第一原理量子モンテカルロ法である。

変分モンテカルロ法に基づく第一原理量子モンテカルロ法では、これまで anti-symmetrized germinal power 波動関数を用いたシミュレーションを行ってきた。これに対し、磁気

揺らぎの効果を取り入れるには、より一般的な pfaffian 波動関数を導入した方が良い事が格子系の計算から知られている。第一原理量子モンテカルロ法での pfaffian 波動関数の報告例は少ないので、これの導入を試みた。

#### ■ 第一原理モンテカルロシミュレーションによる伸長したグラフェンの半金属絶縁体転移

グラフェンは炭素が蜂の巣格子を組んだ物質である。一般に物質の電子物性の決定には、フェルミ準位付近の電子の分散関係が重要な役割を果たす。グラフェン中の電子はフェルミ準位付近の電子が線型分散(結晶中の電子の運動量と1電子励起エネルギーが比例関係にあること)を示し、一般的な金属とも半導体とも異なる特徴を持っている。近年、グラフェンに対して力学的に張力を加えることで電子物性を制御しようという試みが行われている。張力下の電子物性に関する計算は、密度汎関数理論に基づく第一原理バンド計算はこれまで複数報告されていたものの、電子相関効果をより精密に取り込んだ第一原理計算は行われていなかった。

本研究では、強相関物質に対する第一原理量子モンテカルロ法計算プログラム「TurboRVB」を用いて、グラフェンを引き伸ばしたときに期待される電子間相互作用により誘起される金属-絶縁体転移を解析した。TurboRVB は Sandro Sorella (SISSA 教授, 理研 客員主管研究員)らが中心となって開発しているプログラムパッケージである。密度汎関数理論に基づく第一原理バンド計算と比べた本研究で用いる手法の利点は、明示的に相関した多体電子系の変分波動関数を構成し量子モンテカルロ法により多電子・多原子核シュレーディンガー方程式を解くことで、従来の第一原理バンド計算を越えて多体効果を取り込み、電子状態を定性的・定量的かつ系統的に改善できる点にある。

試行波動関数の形としては反対称化したペア積状態(antisymmetrized germinal power, AGP)に Jastrow 因子を作用させた Jastrow-AGP 状態を用いた。結晶構造最適化を導入することで、引き伸ばしによる飛び移り積分の減少によって Mott 絶縁体転移が起こるのか、あるいは構造相転移を伴った Peierls 型の絶縁体相が新たに実現するかを検証した。Peierls 型の歪みのパターンとしては、先行研究 [Frank and Lieb, Phys. Rev. Lett. **107**, 066801, (2011)]でハバード模型について調べられた許される歪みのパターンを考慮し、ユニットセルに6炭素原子を含むものとした。図1に可能な電子状態の模式図を示す。

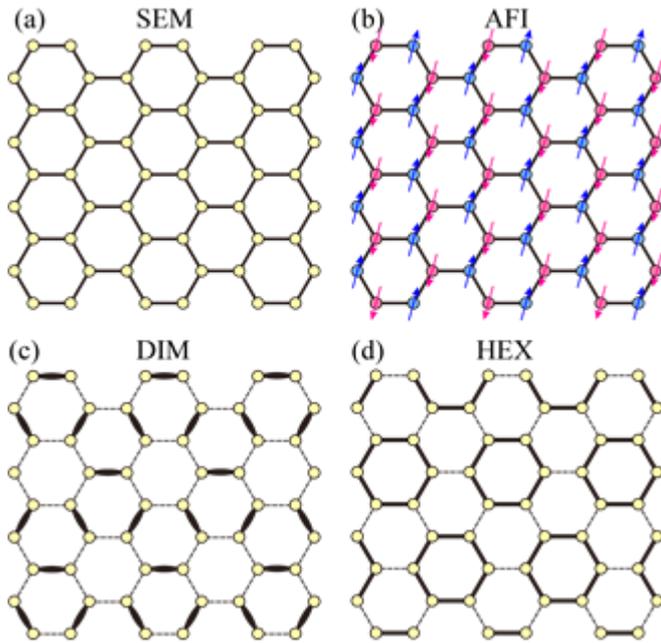


図 1：本研究で考慮した、等方的に引き伸ばしたグラフェンの電子状態の模式図。(a)半金属状態、(b)反強磁性絶縁体状態、(c)ケクレ型ダイマー状態、(d)六角形歪み状態。

#### ■ 第一原理計算に基づく電子間相互作用パラメータの評価

第一原理バンド計算は一般に膨大な数の基底を必要とする。これは電子間相互作用の高次の寄与を計算する場合に、大きな障害になる。従って、第一原理バンド計算の結果を有効モデルに一度ダウンフォールドし、得られた有効モデルを数値的に高精度に解く、という戦略がしばしば取られる。

電子間相互作用をダウンフォールディングにより求める方法として、榊原は共同研究によって model-mapped RPA 法(mRPA)を開発した。mRPA はモデル計算と第一原理計算の間で起こる、相互作用に対する遮蔽効果の2重カウントを防ぐ方法である。また、mRPA は従来手法である制限 RPA 法(cRPA)の問題点を改善した方法でもある。

本年度の研究では、mRPA を用いて銅酸化物高温超伝導体  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  及び  $\text{HgBa}_2\text{CuO}_4$  の相互作用パラメータを導いた。これらの超伝導物質では電子間相互作用によって生み出されるスピンの揺らぎが重要であることが知られているため、相互作用の大きさには興味を持たれ続けてきた。また、比較のために cRPA を用いて同様のパラメータを計算した。

さらに、得られたモデルに対し、揺らぎ交換近似を適用し

た。それにより、スピンの揺らぎ及び電荷の揺らぎによる電子相関の効果(自己エネルギー)を数値的に評価した。また、超伝導転移温度を評価するため、線形化エリアシュベルグ方程式に自己エネルギーで繰り込まれた電子のグリーン関数を代入して解くという計算を行った。

#### ■ 第一原理計算モデルハミルトニアンに含まれる相互作用効果の二重カウント問題の改善と超伝導物質設計

第一原理バンド計算から有効ハミルトニアンを導出する場合、電子間相互作用の効果の内、非摂動項に帰着される部分が存在する。すなわち、全ハミルトニアンを  $H = H_0 + H_1$  とするとき、この非摂動項  $H_0$  は電子間相互作用を部分的に含む。ここで、 $H_1$  は摂動項である。一方、一般に用いられている最局在ワニエ軌道で得られるハミルトニアンは  $H_0$  そのものであり、mRPA/cRPA などの手法で得られる相互作用ハミルトニアンとの間で2重カウントを引き起こす場合がある。

本年度の研究では、この二重カウント部分をハートリーフォック近似(HFA)によって評価できると予想し、数値計算によって検証した。方法としては、まず局所密度近似(LDA)を用いて第一原理計算を実行し、最局在ワニエ軌道+mRPA の方法で  $H_0$  を導いた。続いて、モデルに HFA を適用して得られる解が  $H_0$  と一致するように、すなわち  $H_0 = H_0 + H_{DC}$  となるように、真の非摂動項  $H_0$  を逆算により求めた ( $H_{DC}$  は2重カウント部分)。得られた有効モデル  $H = H_0 + H_1 = H_0 - H_{DC} + H_1$  に対し、揺らぎ交換近似を適用することで自己エネルギーを数値的に評価した。また、先行研究との比較も行った。具体的には、最低松原エネルギーにおける自己エネルギー  $\Sigma(\mathbf{k}, i\omega_n=0)$  を  $H_{DC}$  の代わりに差し引く方法を実行し、結果の比較を行なった。

#### ■ 変分クラスター近似を用いた分子性結晶 $\kappa$ -(BEDT-TTF) $_2$ Cu[N(CN) $_2$ ]Cl における金属絶縁体転移及び超伝導についての理論計算

分子性結晶  $\kappa$ -(BEDT-TTF) $_2$ Cu[N(CN) $_2$ ]Cl (以下では  $\kappa$ -Cl と略記)は擬2次元強相関物質として知られている。 $\kappa$ -Cl は、電子のエネルギーバンド構造計算からはバンドが半充填された金属であることが予期されるが、実験的には常圧下では絶縁体となっている。近年、この物質に関して実験的にキャリアを注入することが可能になった[Y. Kawasugi *et al.*, Nature Communications **7**, 12356 (2016)].

$\kappa$ -Cl はドーブされたモット絶縁体の研究の舞台を提供する物質の一つとして、特に単一の物質で電子ドーブもホールドーブも可能であることが、注目される。本研究では、バンドフィリングとバンド幅の二つのパラメータに関して、磁性や超伝導がどのように現れるかを調べることを目的とした。

この目的のために、 $\kappa$ -Cl のフェルミ準位近くの電子構造を異方的三角格子上の単一軌道ハバード模型としてモデル化し、変分クラスター近似を用いた解析を行った。変分クラスター近似法は、Luttinger-Ward の熱力学ポテンシャル汎関数に関する変分原理に基づく変分計算法である。変分の試行関数として少数サイトからなるクラスターの自己エネルギーを採用する。クラスターのハミルトニアンを任意の一体部分を適当な変分パラメータとして、変分パラメータの変化を通して自己エネルギーを変化させ、変分パラメータに関する熱力学ポテンシャル汎関数の停留点を探す。つまり変分クラスター近似では、与えられた物理的モデルのパラメータに対して熱力学ポテンシャル汎関数の停留値が求まるまで、変分パラメータを変えながらクラスターのハミルトニアンのエネルギーおよびクラスターの一粒粒子グリーン関数を繰り返し計算することが必要である。

計算結果のクラスターサイズ依存性を調べるために、4 サイト・8 サイト・12 サイトクラスターで計算を行った。クラスターのハミルトニアンの固有値問題の解法とグリーン関数の計算には、4 サイトクラスターについては完全対角化を行い、8 サイトと12 サイトクラスターについては Block Lanczos 法に基づく厳密対角化法を用いた。Block Lanczos 法に基づく厳密対角化法は、ハミルトニアン行列の次元と同じ次元のベクトル(1次元配列)を通常の Lanczos 法のブロックサイズ倍確保する必要があるものの、グリーン関数行列の対角項と非対角項をまとめて計算できるので、Lanczos 法と比べてグリーン関数行列の計算に要する演算時間が 1/ブロックサイズ倍程度で済むという利点がある。つまり必要なメモリが確保できれば演算時間を節約できる。今回用いたクラスターサイズでは、Block Lanczos 法に必要な配列を1ノード内で確保できるサイズだったので Block Lanczos 法を選択した。計算は GWMP と BWMP で行った。

#### ■ 動的平均場理論による磁気スキルミオンの研究

スピン-軌道相互作用は、電子のスピンと運動量との相互作用であり、与えた電場によってスピン編曲を操作するスピントロニクスを可能にする。とりわけ興味深いのは反転対称性のない格子の場合であり、反転対称性のスピン-軌

道相互作用が魅力的な輸送特性を与える。フェルミ液体理論による解析では、このような反転対称性のない相互作用を持つ系において、電気磁気効果(ME 効果)が高められることを示した。これは、f電子系にとって特に重要である。重い原子によって引き起こされるスピン-軌道相互作用が大きくなり得る一方、部分的に満たされたf電子バンドにおける電子相関が非常に強くなり得る。したがって、f電子系は大きな ME 効果を引き起こす可能性が考えられる。

本研究の目的は、CeRhSi<sub>3</sub>、CeIrSi<sub>3</sub>、CePt<sub>3</sub>Si などの強い相関を持つ非中心対称 f 電子系における ME 効果、特に Edelstein 効果の解析である。動的平均場理論(DMFT)を使用することにより近藤効果を完全に取り入れる、つまり重い準粒子の形成と局在電子と遍歴電子との交差を完全に解析に取り入れる。さらに、DMFT と数値繰り込み群(NRG)を組み合わせることで、解析接続を行うことなく、実振動数のグリーン関数を使用した高精度の輸送特性の計算を可能にした。

#### ■ 数値的厳密な手法による $\alpha$ -RuCl<sub>3</sub> の解析

本研究では  $\alpha$ -RuCl<sub>3</sub> の解析を目的に、まず 24 サイトの周期的なハニカム格子量子スピン模型を導入し、ランチョス法による基底状態計算を行う。またスピン-スピン相関関数の計算は連分数展開により行う。さらに、有限温度ランチョス法により、この系の比熱を計算する。本研究で取り扱うプログラムは openMP によるスレッド並列化が行われており、各パラメータセットに対するアレイジョブにより計算を実行した。

#### ■ 2次元フラストレート量子多体系における磁化プラトー状態の数値的研究

異方的三角格子物質 Cs<sub>2</sub>CuBr<sub>4</sub> の磁場誘起量子相転移を説明する空間異方性のある三角格子上的スピン 1/2 反強磁性ハイゼンベルグ模型の磁化プラトー状態の探索を、大規模並列化された密度行列繰り込み群法によって行った。実験的にプラトー状態の発現が示唆されている 2/3 飽和磁化近傍の磁気構造を解析するため、量子化軸を Sz 軸としたときに、全 Sz 毎での最低固有エネルギーと対応する固有状態における局所磁化の空間配位のクラスター形状依存性を評価した。詳細な計算条件は以下のとおりである: 三角格子の端をジグザグに切り取りシリンダー形状に巻いた(Lx, Ly)=(21, 6), (56, 6), (56, 4), (91, 4) のクラスターを取り扱った。密度行列繰り込み群の打ち切り次元 m=2000

を採用し、1/2 飽和磁化から 4/5 飽和磁化の領域に対応する磁化曲線および局所磁化の計算を行った。空間異方性の強度は厳密対角化による予備的な結果から磁化プラトーが最も発現しそうな領域に絞った。

### 3. 結果

#### ■ 多次元強相関量子系に対応した時間依存密度行列繰り込み群法の開発と改良

本研究では、これまで課題参加者らが開発してきた多次元強相関量子系に対応した時間依存密度行列繰り込み群法について、その手法自体の改良を行った。

手法の改良としては、計算コストの削減、および計算精度の向上の立場から、より小さい密度行列繰り込み群法の打ち切り次数  $m$  で計算が可能になるよう、密度行列繰り込み群法のアルゴリズムの見直しを行った。特に密度行列繰り込み群法の計算時間は  $O(m^3)$  で与えられることから、この  $m$  を削減できることは計算コストを削減する立場からは非常に有効であると考えられる。これまでの手法では、系の時間発展の計算に必要な時間発展演算子がかかる前の下の時刻の状態と、時間発展させた後の状態の状態を精密に表現できるよう、両者をマルチターゲットで取り扱うことで計算を行っていた。本研究の改良では、二つのヒルベルト空間の表現を導入し、それぞれ時間発展させる前の状態と時間発展した後の状態に最適化された基底で張られるよう計算を行う。そのため、各ヒルベルト空間に対する密度行列繰り込み群法の手続きはシングルターゲットで実行される。また、系の時間発展を計算するためには、時間発展前後の両方の状態が必要である。これについては、双方のヒルベルト空間を行き来するための変換行列を導入することで、時間発展の計算を可能にする。本手法を導入することで、これまでのマルチターゲットによる多次元強相関量子系に対応した時間依存密度行列繰り込み群法と比較して、同制度の計算を行う場合に必要とする  $m$  の値は半分以下となり、大幅な計算コストの削減に成功した。

#### ■ 時間依存行列積状態を用いた光励起状態の解析

厳密対角化を用いた解析から、パルス光を照射すると、超伝導相関の符号が隣接サイトで交互に振動しながら非常に大きくなる事がわかった。そこで、これがより大きな系で実現するかどうかを、行列積状態を用いて調べた。その結果、系のサイズが大きくなっても、依然としてこの超伝導相関が長距離秩序を示す事がわかった。

超伝導相関の位相の振幅は、クーパー対の運動量が  $\pi$  ずれていることを示しており、このクーパー対はハバード模型の厳密な  $SU(2)$  対称性に保存された「 $\eta$  ペア」と呼ばれるクーパー対である事がわかる。そこで、対角化を用いてエネルギー固有状態を調べてみたところ、事実、この超伝導相関が伸びた状態では  $\eta$  ペアが複数できている事がわかった。

これについて理解するために、申請者らは時間依存摂動展開法を用いて、光照射によって現れる摂動各項の遷移行列について調べた。光照射によって現れる遷移行列は、カレント演算子  $J$  と運動量演算子  $K$  が現れる。この二つの演算子は、 $\eta$  ペアを記述する演算子に対して、それぞれ rank 1 と rank 0 のテンソル演算子となっている事が示せる。これにより、摂動展開全ての項についてテンソル演算子に対する Wigner-Eckert の定理を用いる事ができ、特に始状態がモット絶縁体の場合には、照射した光の振動数  $\omega$  の整数倍の位置に励起が現れる事、さらに、そのうち  $\omega$  の奇数倍のエネルギー励起状態はすべて奇数個の  $\eta$  ペアリング状態となり、 $\omega$  の偶数倍のエネルギー励起状態はすべて偶数個の  $\eta$  ペアリング状態となるという、遷移に関する選択則があることを見出した。

#### ■ 第一原理量子モンテカルロ法のコード開発

第一原理量子モンテカルロ法に使う変分波動関数として Jastrow 射影 pfaffian 状態 (JPF) を使った変分モンテカルロ計算 (VMC) を窒素分子  $N_2$  に対する全電子計算を行い、エネルギーを求めた。また、これと比較するものとして、Jastrow 射影 anti-symmetrized germinal power 状態 (JAGP) の計算も行った。Pfaffian を記述するための基底は 11 個の Gaussian 基底、および、3 体と 4 体の Jastrow 因子の記述するための基底としても 11 個の Gaussian 基底を用いた。これらの状態をさらに改善する計算として、格子正則化拡散モンテカルロ法 (DMC) をそれぞれに対して行い、各エネルギーを得られている厳密な値 (exact)、および先行研究の Jastrow 射影 Slater 行列式状態 (JSD) と選択的に基底を取ってきた射影 full valence complete active space multideterminant 状態 (JVCAS) のものと比較した。得られたエネルギーを表にまとめる。

VMC 計算、DMC 計算の両方に関して、JPF は最も良い結果を与える事がわかった。用いている基底の数は今回の計算の方が先行研究のものより少ない。最終的な DMC 計算についても、単一の pfaffian で、multi-Slater 行列式の

結果に匹敵する結果が得られる点は非常に興味深い結果である。

表:射影波動関数の N<sub>2</sub> 分子に対する計算結果。エネルギーの単位は Hartree。

N <sub>2</sub>	VMC	DMC
JSD*	-109.4520	-109.5039
JAGP	-109.4869	-109.5164
JPf	-109.4938	-109.5204
JFVCAS*	-109.4851	-109.5206
Exact*	-109.5427	-109.5427

\* は J. Toulouse and C. J. Umrigar, J. Chem. Phys. **128**, 174101 (2008) より引用。

■ 第一原理モンテカルロシミュレーションによる伸長したグラフェンの半金属絶縁体転移

絶対零度で張力一定の条件下でのグラフェンの安定性を調べるために、エンタルピーを計算した(図2)。

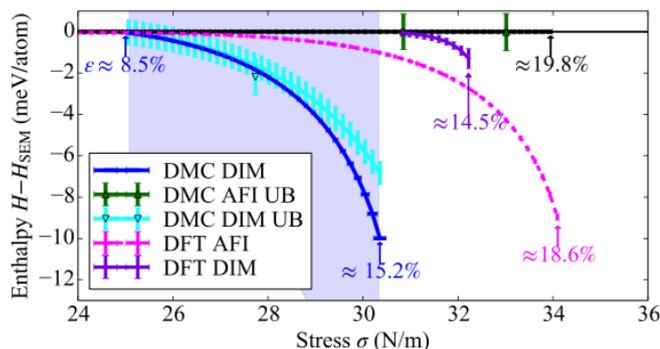


図 2 : 張力 (横軸) の関数として、半金属状態を基準としたエンタルピー (縦軸) の計算結果。DMC は拡散量子モンテカルロ、DFT は密度汎関数理論を表す。

その結果、従来の密度汎関数理論に基づく第一原理計算で予想されていた反強磁性状態は安定にならず、隣り合う炭素原子が互いに対を作って規則的に並んだケクレ型ダイマー状態が安定になることがわかった(図3)。さらにこのケクレ型ダイマー状態は、格子系に対する先行研究で提案されていたタイプの、対称性に保護されたトポロジカル相に属する可能性も示した。

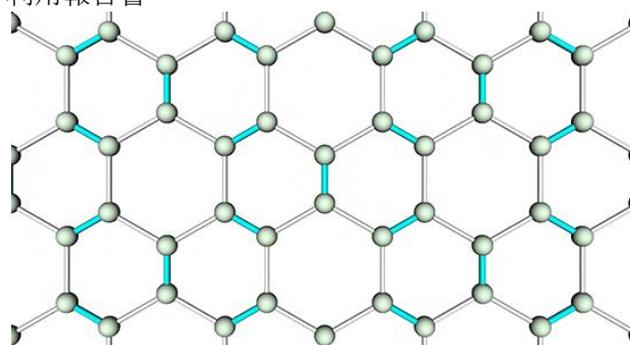


図 3 : ケクレ型ダイマー状態の模式図。丸は炭素原子を表す。水色の棒で結ばれた炭素原子同士は、白色の棒で結ばれた炭素原子同士よりも距離が近い。

■ 第一原理計算に基づく電子間相互作用パラメータの評価

La<sub>2</sub>CuO<sub>4</sub> 及び HgBa<sub>2</sub>CuO<sub>4</sub> についてそれぞれ得られたオンサイト相互作用の値を U<sub>La</sub>、U<sub>Hg</sub> とするとき、cRPA では U<sub>La</sub> > U<sub>Hg</sub> となったのに対し、mRPA では U<sub>La</sub> < U<sub>Hg</sub> となり、逆の傾向が得られた。原因は、cRPA ではワニエ関数の連続空間(実空間)での広がり効果が二重カウント部分として取り込まれるのに対し、mRPA ではその効果が無視されるためである。通常のハバードモデルを用いた計算では連続空間の効果は入らないため、二重カウントを防ぐ意味において、mRPA の方法が原理的により適切であると考えられるが、今後さらに詳しく調べる必要性も感じられる。

また、cRPA/mRPA より得られた U を用いて、揺らぎ交換近似を用いた超伝導転移温度の解析を行った。その結果、La<sub>2</sub>CuO<sub>4</sub> (T<sub>c</sub> ~ 40K) と HgBa<sub>2</sub>CuO<sub>4</sub> (T<sub>c</sub> ~ 100K) の間の T<sub>c</sub> の実験結果を再現する事が示された。これは、cRPA/mRPA で得られた U の値が妥当であると解釈できる。

■ 第一原理計算モデルハミルトニアンに含まれる相互作用効果の二重カウント問題の改善と超伝導物質設計

銅酸化物超伝導体 La<sub>2</sub>CuO<sub>4</sub> 及び HgBa<sub>2</sub>CuO<sub>4</sub> から導出した有効モデルに揺らぎ交換近似を適用し、自己エネルギーを求めた。自己エネルギーによって繰り込まれたスペクトル密度を計算し、比較を行った。解析の結果、従来手法である Σ(k, i, ω<sub>n</sub>=0) を引く方法が HFA を用いた方法よりも適切であると解釈できる結果を得た。原因は、HFA の場合にはクーロン相互作用が遮蔽される効果が考慮されないためである。すなわち、相互作用の遮蔽効果は LDA でも考慮され

ているが、もしこの効果を二重カウントとして引く場合には、有効モデルを LDA で解いた結果を用いる必要があるということである。それは現実的には不可能なので、従来手法の優位性が認められる。

#### ■ 変分クラスター近似を用いた分子性結晶 $\kappa$ -(BEDT-TTF) $2\text{Cu}[\text{N}(\text{CN})_2\text{Cl}]$ における金属絶縁体転移及び超伝導についての理論計算

$\kappa$ -Cl を異方的三角格子上的単一軌道ハバード模型としてモデルする際、Kandpal et al., Phys. Rev. Lett. **103**, 067004 (2009)に従い、ホッピングの異方性を表すパラメータを  $|t'/t|=0.44$  とした。ここで  $|t'/t|$  について、例えば  $|t'/t|=0$  ならば正方格子であり、 $|t'/t|=1$  ならば(等方的)三角格子である。

ハーフフィリングで  $U/t$ (バンド幅  $t$  に対するオンサイト電子間反発の大きさ  $U$ )が 4 程度より大きいときは反強磁性状態が現れた。ハーフフィリングで  $U/t$ が 4 程度より小さいときは超伝導状態が現れた。電子ドーピングを行うと反強磁性と超伝導の共存・または超伝導状態が現れた。ホールドーピングを行うと反強磁性状態・反強磁性と超伝導の共存・または超伝導状態が現れた。さらに、電子ドーピングかつ  $U/t$ が 4-5 程度のときは、化学ポテンシャルの関数として一時転移(電子の充填率の関数として相分離)が起こることがわかった。これらの結果は、定性的には調べた範囲のクラスターのサイズにはよらなかった。以上のように電子ドーピング時とホールドーピング時では電子相の違いがあるという結果を得た。図4にドーピング  $\delta$  の関数として反強磁性秩序変数  $M$  と超伝導秩序変数  $D$  の結果を示す。 $\delta=0$  がハーフフィリングに対応する。

また、変分クラスター近似法を Lanczos 法および Block Lanczos 法に基づくクラスターソルバーで、絶対零度の場合と同程度のクラスターサイズを扱いながら有限温度で計算する方法を確立した。有限温度の変分クラスター近似法の応用として、正方格子上で定義されたハバード模型のハーフフィリングにおける反強磁性の Slater-Mott クロスオーバーと、磁性を仮定しない場合の金属絶縁体転移について調べた結果をまとめ、計算法の詳細とともに論文として取りまとめて出版した。

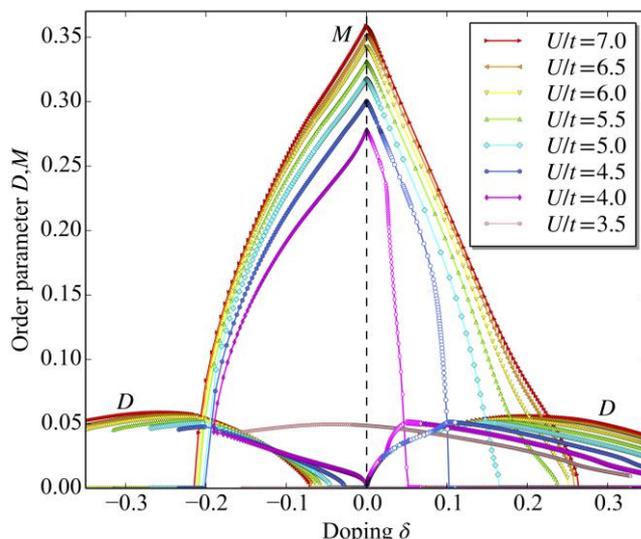


図4：ドーピング  $\delta$  の関数としてのいくつかの  $U/t$  の値についての反強磁性秩序変数  $M$  と超伝導秩序変数  $D$  の計算結果。1 2 サイトクラスターを用いた変分クラスター近似の結果。

#### ■ 動的平均場理論による磁気スキルミオンの研究

本研究の主な結果は以下の通りである：

- (i) ME 効果は f 電子系で強く増強され、局在電子と遍歴電子の交差温度で最大となる。この増強はフェルミ液体理論からの予測を超える。
- (ii) ME 効果の増強は、伝導電子と局在した f 電子による。これは、重い準粒子の形成を超える高温でも伝導電子の運動量に依存したスピン偏極を発生させる伝導電子と局在化した f 電子との間の結合から生じる。伝導電子のスピン分極は、伝導電子軌道と f 電子軌道との間の仮想ホッピングによって生成される。したがって、ME 効果の増強に対する主な寄与は伝導電子からもたらされる。

#### ■ 数値的厳密な手法による $\alpha$ - $\text{RuCl}_3$ の解析

本研究では Kitaev スピン液体状態の安定性について数値的手法による解析を行った。次に、追加の Heisenberg 相互作用、対称異方性相互作用、または外部磁場に関して、KSL からの磁気相転移についての解析を行った。また、本研究では様々なパラメータ領域におけるスピン励起についての分数化によって決定される熱的性質を実証した。本研究により、我々は Kitaev スピン液体の候補物質である  $\alpha$ - $\text{RuCl}_3$  のスピン励起挙動についての洞察を得た。

#### ■ 2次元フラストレート量子多体系における磁化プラトー状態の数値的研究

厳密対角化の計算から三角格子の空間的な異方性を特徴付ける二つの反強磁性的ハイゼンベルグ相互作用の比が  $J_2/J_1=0.35$  において 5/7 磁化プラトーが発現しうる兆候を得た。この際に磁化プラトー上で期待される磁気構造とマッチするように三角格子の端をジグザグに切り取りシリンダー形状に巻いた  $(L_x, L_y)=(21, 6), (56, 6), (56, 4), (91, 4)$  のクラスターを用意して密度行列繰り込み群を実施した。シリンダーの長さが短いクラスター ( $L_x=21, 56$ ) では対角化の結果を反映して、5/7 磁化プラトーの存在が優位に観測され、同時に実空間的に特徴的な磁気構造の発現が確認できた。しかしながら  $L_x=91$  のクラスターの計算において磁化プラトー幅は急激に減少し、同時にそれまで観測されていた磁気構造も消失することが確認された。また  $L_y$  の増大に関してもプラトー幅は減少傾向にあることが確認できた。これらのことから、プラトー状態の建設的な解析のためには、まず境界条件の効果を対角化の範囲でより詳細に検証し、その後、大規模系へと駒を進めることが肝要であるという知見を得た。

#### 4. まとめ

本年度の本研究課題としては、新たな数値的手法の開発から、これまでに開発された数値的手法を用いた物性物理の研究に至る研究を実施した。数値的研究手法の開発としては、多次元強相関量子系に適用可能な時間依存密度行列繰り込み群法や第一原理量子モンテカルロ法のコード開発、また第一原理計算に二重カウント問題の改善が挙げられる。ここで開発されたプログラムは、本報告書で述べた新調したグラフェンの半金属絶縁体転移等にとどまらず、他の研究での応用も期待される。また、応用研究としては、上述の新たに開発した計算プログラムによる計算のみではなく、継続してこれまでに開発されたプログラム等を用いた第一原理計算や量子格子模型に対する解析などが行われた。本研究の結果は論文、および学会等で発表され、プレスリリースでも報告されている。HOKUSAI を利用することにより、その利点を生かした最新鋭の研究が可能となった。

#### 5. 今後の計画・展望

本研究課題で開発した新たな数値的手法は申請者が専門とする物質科学の様々な研究に対して応用が期待され、今後、これらのプログラム資源を生かした研究活動を進めていきたい。さらに、ここで開発された数値的手法は、物質科学分野にとどまらず、量子コンピュータの基礎科学的

理解への応用などの他分野への応用も期待される。さらに、今後も例えば機械学習の手法を用いた研究手法等、あらたな数値的手法の開発を継続していきたい。また、応用研究については、今後もこれまでに開発したプログラム等を用いた研究も今後も継続し、物質科学分野における理解を深めていくことを目指す。

## 平成 30 年度 利用研究成果リスト

## 【雑誌に受理された論文】

- (1) T. Tohyama, M. Mori, and S. Sota, “Dynamical DMRG study of spin and charge excitations in the four-leg t-t'-J ladder”, *Phys. Rev. B* **97**, 235137 (2018).
- (2) R. Peters and Y. Yanase, “Strong enhancement of the Edelstein effect in f-electron systems”, *Phys. Rev. B* **97**, 11512 (2018).
- (3) M. Kishimoto, K. Morita, Y. Matsubayashi, S. Sota, S. Yunoki, and T. Tohyama, “Ground state phase diagram of Kitaev-Heisenberg model on honeycomb-triangular lattice”, *Phys. Rev. B* **98**, 054411 (2018).
- (4) F. Lange, S. Ejima, T. Shirakawa, S. Yunoki, and H. Fehske, “Spin transport through a spin-1/2 XXZ chain connected to fermionic leads”, *Phys. Rev. B* **97**, 245124 (2018).
- (5) K. Seki, T. Shirakawa, and S. Yunoki, “Variational cluster approach to thermodynamic properties of interacting fermions at finite temperatures: A case study of the two-dimensional single-band Hubbard model at half filling”, *Phys. Rev. B* **98**, 205114 (2018).
- (6) S. Sorella, K. Seki, O. O. Brovko, T. Shirakawa, S. Miyakoshi, S. Yunoki, and E. Tosatti, “Correlation-Driven Dimerization and Topological Gap Opening in Isotropically Strained Graphene”, *Phys. Rev. Lett.* **121**, 066402 (2018).
- (7) R. Peters, T. Yoshida, and N. Kawakami, “Magnetic states in a three-dimensional topological Kondo insulator”, *Phys. Rev. B* **98**, 075104 (2018).
- (8) T. Sato, T. Shirakawa, and S. Yunoki, “Spin-orbital entangled excitonic insulator with quadrupole order”, accepted 11 Jan. 2019 in *Phys. Rev. B*.
- (9) T. Kaneko, T. Shirakawa, S. Sorella, and S. Yunoki, “Photoinduced  $\eta$ -pairing in the Hubbard Model”, accepted 29 Jan. 2019 in *Phys. Rev. Lett.*

## 【口頭発表】

- (1) 曾田繁利, 新城一矢, 遠山貴己, 柚木清司, “多次元強相関量子系のための時間依存密度行列繰り込み群法の改良と応用”, 日本物理学会2018年秋季大会, 2018/9, 京都.
- (2) 曾田繁利, 白川知功, 柚木清司, 遠山貴己, “三角格子量子スピン系Ba<sub>3</sub>CoSb<sub>2</sub>O<sub>9</sub>の非弾性中性子散乱の解析”, H30年度ポスト「京」重点課題(7)第3回CDMSI研究会, 2018/7, 東京.
- (3) 榊原寛史, “モデルマップRPA法の開発と多軌道系への適用”, 02-4, 物性研究所スパコン共同利用・CCMS 合同研究会-計算物質科学の今と未来, 東京大学物性研究所, 2018年4月(招待講演).
- (4) 榊原寛史, S. W. Jang, 木野日織, M. J. Han, 黒木和彦, 小谷岳生, “mRPA法による多軌道相互作用パラメータの導出及びそれを用いた超伝導物質の解析”, 22aK404-10, 日本物理学会73回年次大会, 東京理科大学, 2018年3月.
- (5) 榊原寛史, 小谷岳生, “オフサイト相互作用パラメータを含む拡張ハバード模型の第一原理計算による導出”, 14aS301-7, 日本物理学会74回年次大会, 九州大学, 2019年3月.
- (6) B. H. Kim, "Electronic and excitation properties of 4d/5d transition-metal compounds with a honeycomb lattice", 14th KIAS Electron Structure Calculation Conference, Seoul (Korea), June 2018
- (7) B. H. Kim, "Numerical study on electronic and spin-orbital excitation of Mott insulators with strong spin-orbit coupling", Computational Approaches to Magnetic Systems 2018, Pohang (Korea), August 2018
- (8) T. Shirakawa, “Ab-Initio Quantum Monte Carlo Simulations for Single Vacancy Graphene and Isotropically-Strained Graphene”, The Platform for Advanced Scientific Computing (PASC18) Conference, Basel, Switzerland, July 2-4 (2018).

- (9) R. Peters, “Magnetotransport in strongly correlated non-centrosymmetric f-electron materials”, Annual Meeting of J-Physics, 仙台, 2018/5.

#### 【ポスター発表】

- (1) 榊原寛史, S.W. Jang, 木野日織, M. J. Han, 黒木和彦, 小谷岳生, “mRPA法多軌道ハバード模型への拡張”, P15, 京都大学基研研究会「電子相関が生み出す新規な秩序と超伝導現象: トポロジー、液晶状態、動的現象」, 京都大学基礎物理学研究所, 2018 年 5 月.
- (2) H. Sakakibara, S.W. Jang, H. Kino, M.J. Han, K. Kuroki, T. Kotani, “Model- mapped RPA to determine a model Hamiltonian from first-principles”, W13-11, International Conference on Magnetism(ICM2018), サンフランシスコ, 2018年6月.
- (3) H. Sakakibara, S.W. Jang, M.J. Han, T. Kotani, “Model mapped RPA: first- principles method to determine a Hubbard model Hamiltonian”, PO-88, The 21st asian workshop on first-principles electronic structure calculations, October 2018, Daejeon (Korea). <sup>[1]</sup><sub>SEP</sub>
- (4) 榊原寛史, 小谷岳生, “mRPA を用いた銅酸化物超伝導体のハバード型相互作用の研究”, CSRN シンポジウム, 東北大学, 2019 年 2 月.
- (5) R. Peters, “Magnetic states in topological Kondo insulators” Gordon Research Conference on Correlated Electron Systems held, マサチューセッツ, 2018 年 6 月.

#### 【その他(著書、プレスリリースなど)】

- (1) 「引っ張ったグラフェンの運命を「京」により予想 -絶縁体化の新たなシナリオ-」、理化学研究所 プレスリリース(研究成果)、2018 年 8 月 22 日、[http://www.riken.jp/pr/press/2018/20180822\\_2/](http://www.riken.jp/pr/press/2018/20180822_2/)
- (2) Riken Research “New insulating state found in stretched grapheme: Quantum simulations reveal that graphene undergoes an unexpected and potentially useful change in state when stretched”  
[http://www.riken.jp/en/research/rikenresearch/highlights/20181109\\_FY20180033/](http://www.riken.jp/en/research/rikenresearch/highlights/20181109_FY20180033/)
- (3) 「新しい光誘起超伝導メカニズムの発見 -パルス光照射による「 $\eta$  ペアリング状態」の実現を予言-」、理化学研究所 プレスリリース(研究成果)、掲載予定