

課題名 (タイトル) :

CPU 及び GPU を用いた強相関格子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 : ○柚木 清司, 奥村 雅彦, 白川 知功, 段下 一平, 山際 伸一, 渡部 洋,
挽野 真一, Qinfang Zhang, Vivien Badaut, Jose Riera, Shixun Zhang,
Xingqiu Cehn, Sun Yan, Jose Candido Xavier,

所属 : 和光研究所 基幹研究所・柚木計算物性物理研究室

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

磁性や超伝導などの奇妙かつ有用な性質を示す固体材料や一部の生体関連物質は、結晶格子を組む原子の間を強く相互作用しながら電子が飛び移るという強相関格子模型によって説明されると考えられている。また、強相関格子模型は、光学格子中の冷却原子の量子状態を記述する模型としても知られている。したがって、各電子間（冷却原子系の場合は、フェルミオン、ボソン間）の相互作用を正しく取り扱うためには、すべての電子（あるいはフェルミオン、ボソン）を考慮した量子多体問題を解く必要がある。しかしながら、このとき扱うべきヒルベルト空間の大きさは、格子数に対して指数関数的に増大するため、数 10 サイト程度の格子模型しか扱う事ができない。

そこで、本研究では、これを打開する為の方法として開発された密度行列繰り込み群法等を適用し、様々な強相関量子系の問題に応用した。その中でも、スピン軌道相互作用が重要な 5d 遷移金属酸化物のモット絶縁体状態と超伝導の可能性、鉄系超伝導体、3d 遷移金属酸化ヘテロ構造体の界面電子状態、超伝導/常伝導接合のスピン伝導、ボーズ粒子とフェルミ粒子が混在する系の実時間ダイナミクス等を中心的に調べた。

2. 具体的な利用内容、計算方法

■ 動的密度行列繰り込み群法

動的密度行列繰り込み群法では、密度行列繰り込み群法で基底状態を計算すると同時に、励起状態の波動関数の情報を取り入れるために、ある汎関数を定義し、その汎関数の最小化問題を解く。本研究では、この汎関数の最小化するための方法として、準ニュートン法を採用した。このときの勾配ベクトルは、行列×ベクトル演算で得ることができる。基底状態計算について

は、ダビッドソン法を用いた。ダビッドソン法も行列×ベクトルの計算が主要な計算である。そこで、本研究では、この行列×ベクトル演算の部分のスレッド並列化を行った。さらに、スピンサイト、ハバードサイト、 t - J サイトとして格サイトの基底を指定できるような、汎用的密度行列繰り込み群法のアプリケーションを開発も行った。

■ 変分モンテカルロ法

層状ペロブスカイト構造を有する遷移金属酸化物である Sr_2IrO_4 を記述する 3 軌道ハバード模型を構築し、変分モンテカルロ法を用いて基底状態の性質を解析した。スピン・軌道相互作用を含んだ一体部分にグッツヴィラー因子と電荷に関するジャストロー因子を作用させた試行波動関数を用い、変分パラメータを最適化することで基底状態の波動関数を決定した。これには数十個のパラメータを同時に最適化する必要があり、一般には困難であるが、stochastic reconfiguration という計算手法を用いてこれを可能にした。さらにこの波動関数を用いて軌道・スピン・電荷の構造因子、自発磁化などを計算することで電子状態を明らかにし、実験結果との比較を行いながら理論の妥当性を検証した。同様の手法を鉄系超伝導体にも適用し、2 軌道ハバード模型を構築して期待される超伝導対称性とその発現メカニズムを詳細に調べた。

また、計算の効率化のために並列化変分モンテカルロ法のプログラムを作成し、大規模な計算を可能にすることを目指した。

■ Time-evolving block decimation (TEBD) 法

Time-evolving block decimation (TEBD) 法を用いて強相関格子模型の基底状態と実時間量子ダイナミクスを計算した。昨年度に施した計算の効率化に加え、今年度は不純物が存在する系とボース粒子とフェルミ粒子が混合した系を取り扱うための拡張を行った。特に後者に関しては、考えうる全ての保存量を計算に組み込

むことで、取り扱う行列のサイズを劇的に小さくした。

■ 非平衡グリーン関数法

常伝導／超伝導接合体における量子輸送係数（スピン伝導）のシミュレーションでは、非平衡グリーン関数法を用いた。そこで現れる数値積分には、2重指数型積分法および4次のルンゲ・クッタ法を用いた。

■ 密度汎関数理論にもとづく第一原理電子状態シミュレーション

遷移金属酸化物や酸化物接合界面の電子状態計算に密度汎関数理論にもとづく第一原理電子状態シミュレーションを、商用ソフトウェア VASP を用いて行った。さらに、その結果をもとに第一原理量子輸送係数シミュレーションをおこなった。

本研究で用いられた計算機コードはVASPをのぞき全て自前で開発したものを用いた。

3. 結果

■ 動的密度行列繰り込み群法と強相関電子模型

行列×ベクトル積の計算部分については、OpenMP をもちいたスレッド並列コードを作成した。作成したコードは、スピン・軌道相互作用のある8サイト3軌道ハバード模型の計算に応用した。その結果、状態数を3000程度取った計算でも、5時間程度で計算可能となった。

また、スピンサイト、ハバードサイト、 $t-J$ サイトなど導入については、全スピンの z 方向の量子数と、電子数が保存する場合のみ完成した。完成したコードは、テスト計算として、グラフェン上に磁性不純物おいた場合の、磁性不純物上での状態密度の計算に応用した。磁性不純物を2つにし、バスサイトの数を128サイトとしたときの計算に要する時間は、各振動数に対して、1～3時間程度となった。

■ 変分モンテカルロ法と多軌道ハバード模型およびスピン・軌道相互作用

Sr_2IrO_4 においては、相対論的なスピン・軌道相互作用がクーロン相互作用と協力的に働いて、新たなタイプのモット絶縁体の実現していることがわかった。また、この系が強いスピン軌道相互作用下で期待される $J_{\text{eff}}=1/2$ と呼ばれるユニークな量子状態に近いことが分かった。これは実験結果とよく一致している。さらに絶縁相に電子をドーピングすることで、擬スピンのゆら

ぎを用いた新たな超伝導状態が期待されることを示した。

また、鉄系超伝導体においては、母物質で見られるストライプ型反強磁性相の近傍で期待される $s+$ 波対称性が安定化することを示した。これは先行研究とも一致しており、強相関的な計算手法によるものとしては先駆的なものとなった。

プログラムに関しては、非常に並列化効率の高いものを作成出来たため、計算時間の大幅な短縮と大規模な計算が可能になった。

■ Time-evolving block decimation (TEBD)法と冷却原子・分子気体系への応用

近年、冷却原子（分子）気体系では、低次元ボース気体の量子相及び非平衡量子ダイナミクスを調べる実験において高次元系では見られない特異な振る舞いが実験で観測され注目を集めている。そのような実験を背景に、本研究では理論的に強相関ボース気体の量子相転移及び非平衡量子ダイナミクスを調べた。特に、(1)「超流動絶縁体転移」、(2)「量子位相スリップ」に注目し、以下の結果を得た。

(1) 近年、光格子中のボース気体系においては超流動とモット絶縁体間の量子相転移が実験理論両面から活発に研究されている。この系はボース・ハバード模型で定量的に記述することができ、充填率（格子サイトあたりの粒子数）が整数のときには、相互作用が運動エネルギーに対して増大するにつれて系が超流動から絶縁体へ転移する。本研究では、一次元系において任意の充填率に対する転移点を数値的に精密に計算した。このために、昨年度の研究で発展させた高い充填率を扱うための数値計算技法を用い、さらに転移点の新しい評価法を導入した。転移点が充填率に対して簡明な冪関数で近似されることを示し、一次元超流動絶縁体転移のベンチマークを与えた。

(2) 光格子中の一次元ボース気体における興味深い問題の一つとしてその輸送特性が挙げられる。実験では、超流動相においてさえもトランスポートが顕著に抑制されるといった特異な輸送特性が見いだされている。本研究では、周期ポテンシャル中の一次元超流動ボース気体の輸送特性をインスタントン法とTEBDで解析した。流速が増大するにつれて超流動流の減衰率が冪的に増大することを見だし、その冪を解析的に求めた。

■ 非平衡グリーン関数法と超伝導体接合系における量子輸送係数

(1)超伝導/常伝導接合におけるスピントロニクス伝導度
本研究で考察したデバイス構造の超伝導/常伝導(SN)接合において、S から N へ超伝導準粒子を注入した場合の N 側のスピントロニクス伝導度を調べた。side jump 機構および skew 散乱機構によるスピントロニクス伝導度を計算したところ、S のギャップ付近の準粒子を注入した場合、スピントロニクス伝導度が著しく増加する結果を得た。この結果は、例えば、金属系の S を用いた場合、スピントロニクス伝導度は、数 meV 程度で制御することが出来るために、S を利用した新しいスピントロニクスデバイスへの応用の可能性を示唆している。

(2)超伝導/強磁性細線/超伝導接合におけるジョセフソン効果

本研究では、強磁性細線(FW)を 2 つの超伝導体(S)で挟んだ強磁性ジョセフソン接合(FJJ)において、FW 中の磁壁が振動している場合のジョセフソン効果を考察した。FW の磁壁が静止している場合、FJJ における電流-電圧特性は、従来の絶縁体を 2 つの S で挟んだ場合のジョセフソン接合における電流-電圧特性と同じ結果となることが分かった。しかしながら、磁壁が振動している場合、電流-電圧特性は、磁壁が静止している場合とは著しく異なり、階段構造を示すことを明らかにした。更に、この電流-電圧特性の階段構造が現れる電圧が分かると、素電荷およびプランク定数を用いて磁壁の振動数が高精度に分かることも分かった。この結果から FJJ は、FW の磁壁のダイナミクスを高精度に測定することが出来る新しい素子となりうることを示唆している。

■ 密度汎関数理論にもとづく第一原理電子状態シミュレーション

強磁性金属/常伝導金属接合においてスピントロニクスはスピントロニクスによって生成される。また、その大きさはスピントロニクス伝導度 (SMC) に比例している。そこで、本研究では、より効率的なスピントロニクス生成のための接合体設計を目指し、Pt/Permalloy ($\text{Ni}_{81}\text{Fe}_{19}$, Py)に対して SMC の第一原理計算を実行した。得られた結果は、実験的に見積もられている値と非常に近い値が得られた。

4. まとめ

密度行列繰り込み群法を用いたシミュレーションでは、汎用的なスレッド並列化動的密度行列繰り込み群法を開発し、それをスピントロニクス相互作用のある 3 軌道ハバード模型の問題と、グラフェン上にある磁性不純物の問題に応用した。それぞれの模型について、十分な性能向上が確認できた。

また、変分モンテカルロ法および密度行列繰り込み群法を用いて多軌道ハバード模型を解析し、多軌道系におけるモット絶縁体と超伝導に関して新たな知見を得ることが出来た。本研究結果は、強相関電子系における軌道自由度の役割を明らかにし、さらなる進展に貢献すると期待される。

超伝導/常伝導接合体に対する研究では、スピントロニクスへの応用を視野に入れた、超伝導体(S)および常伝導体または強磁性体から構成されるナノ複合構造体の量子輸送現象を理論的に研究した。そして S を用いることで初めて得られる新現象の提案を行った。本研究で得られた物理現象は、新しいスピントロニクスデバイスへの応用に有効であることを理論的に示すことが出来た。

5. 今後の計画・展望

今回開発した動的密度行列繰り込み群法の計算機コードは、非常に広い汎用性を持っているため、様々な模型に適用できる。特に、来年度は、(1)ヘムタンパク質の電子状態、(2)ディラックフェルミオン系/トポロジカル絶縁体における磁性不純物とスペクトル関数の振る舞い、(3)動的平均場理論のためのソルバー、(4)5d 遷移金属酸化物の電子状態などの研究テーマに応用したい。

例えば、ひとつの重要な研究課題としては、多軌道系において重要となる軌道自由度を利用した、新たな超伝導状態を理論的に探索し、実験グループへの新規物質創成を提案することがあげられる。そのためには超伝導相と磁気秩序相との競合をより詳細に解析する必要がある。このような解析が可能になれば、多軌道強相関電子系に対する理解が一層深まり、その進展に大きく貢献出来ると考えている。

スピントロニクスの現状は、いかに効率よくそして遠くまで大きなスピントロニクスを伝播させるかが主要課題となっている。今後は、効率よく長距離まで伝播することがスピントロニクスを生成させるための基礎理論の構築とそ

れにもとづいたスシミュレーションを行う予定である。

6. RICC の継続利用を希望の場合は、これまで利用した状況（どの程度研究が進んだか、研究においてどこまで計算出来て、何が出来ていないか）や、継続して利用する際に行う具体的な内容

■ 動的密度行列繰り込み群法（白川）

今回開発した動的密度行列繰り込み群法の計算機コードでは、スピンは $1/2$ のみであり、ボゾン系などには対応していない。そこで、これらの基底も導入したい。また、さらなる計算性能向上のためには、分散メモリ型並列化が必要となるが、この点は実装できていない。さらに、今回行った並列化は、（行列） \times （ベクトル）演算のみであり、他の部分についてはシングルスレッドとなっているため、アプリケーション全体で並列化を行う必要がある。

さらに、多軌道系における金属－絶縁体転移に関しては、これまでに一定の成果を上げることができたが、超伝導状態に関してはより詳細で大規模な計算が必要になると考えられる。そのためにも RICC の利用は不可欠であり、今後も活用させて頂きたいと考えている。

Time-evolving block decimation (TEBD)法の開発と冷却原子・分子気体系への応用では、当初「一次元有限温度」と「二次元絶対零度」を取り扱うためのコードを開発する予定であったが、研究の優先順位を考慮した結果、「不純物問題」と「ボース粒子気体とフェルミ粒子気体の混合系」のコードを開発する方針に切り替えた。その変更に伴い、利用時間は当初の見積もりであった 1,152,000 コア時間には及ばなかった。来年度以降の研究では「一次元有限温度」と「二次元絶対零度」の平衡状態と実時間ダイナミクスの解析ができるように計算コードを開発し、興味深い現象の説明と予言に利用する。そのために、来年度以降も継続して RICC を利用することを強く希望する。

7. 一般利用で演算時間を使い切れなかった理由

グループの中で一番のヘビーユーザ（奥村雅彦）が 4 月 30 日をもって理研を退職したため、その分に割り当てていた演算時間が必要でなくなった。

平成 23 年度 RICC 利用研究成果リスト

【論文、学会報告・雑誌などの論文発表】

- [1] D. Yamamoto, I. Danshita, and C. A. R. Sá de Melo, “Dipolar bosons in triangular optical lattices: Quantum phase transition and anomalous hysteresis”, *Phys. Rev. A* **85**, 021601(R) 1-5 (2011).
- [2] I. Danshita and A. Polkovnikov, “Superfluid-to-Mott-insulator transition in the one-dimensional Bose-Hubbard model for arbitrary integer filling factors”, *Phys. Rev. A* **84**, 063637 1-6, 28 (2011).
- [3] A. Hu, L. Mathey, E. Tiesinga, I. Danshita, C. J. Williams, and C. W. Clark, “Detecting paired and counterflow superfluidity via dipole oscillations”, *Phys. Rev. A*, **84** 041609(R) 1-4, (2011).
- [4] S. Hikino and S. Yunoki, “Anomalous enhancement of spin Hall conductivity in a superconductor/normal metal junction”, *Phys. Rev. B* **84**, 020512(R) (2011).
- [5] Q. Zhang, S. Hikino, and S. Yunoki, “First-principles study of the spin-mixing conductance in Pt/Ni₈₁Fe₁₉ junctions”, *Appl. Phys. Lett.* **99**, 172105 1-3 (2011).

【国際会議などの予稿集、proceeding】

- [1] T. Shirakawa, H. Watanabe, and S. Yunoki, “Variational cluster approximation study of Mott transition with strong spin-orbit coupling”, *J. Phys.:Conf. Ser.* **273**, 012148 (4 pages) (2011).
- [2] H. Watanabe, T. Shirakawa, and S. Yunoki, “Variational Monte Carlo study of two-dimensional strong spin-orbit coupling system: Novel Mott insulating state in Ir Oxide”, *J. Phys.: Conf. Ser.* **273**, 012143 (4 pages) (2011).
- [3] T. Shirakawa, H. Watanabe, and S. Yunoki, “Microscopic Study of Electronic and Magnetic Properties for Ir Oxides”, *J. Phys. Soc. Jpn.* **80** Suppl. B, SB010 (4 pages) (2011).
- [4] H. Watanabe, T. Shirakawa, and S. Yunoki, “Variational Monte Carlo study of two-dimensional strong spin-orbit coupling system: Novel Mott insulating state in Ir oxides”, *J. Phys. Soc. Jpn.* **80** Suppl. B, SB006 (3 pages) (2011).
- [5] T. Shirakawa, H. Watanabe, and S. Yunoki, “Theoretical study of $J_{\text{eff}}=1/2$ Mott insulator in Ir oxides: a strong spin-orbit coupling vs local electron correlations”, accepted in *J. Phys.: Conf. Ser.*
- [6] H. Watanabe, T. Shirakawa, and S. Yunoki, “Variational Monte Carlo study for superconductivity in multi-orbital systems”, accepted in *J. Phys.: Conf. Ser.*
- [7] V. Badaut, T. Shirakawa, and S. Yunoki, “A Haldane-Anderson impurity model study for the spin- and charge-states of iron in heme proteins”, accepted in *J. Phys.: Conf. Ser.*
- [8] S. Hikino and S. Yunoki, Spin Hall effect in a superconductor/normal metal junction, *Physica Procedia* (In Press, 2012)

【国際会議、学会などでの口頭発表】

- [1] T. Shirakawa, H. Watanabe, and S. Yunoki, “Microscopic Study of Electronic and Magnetic Properties for Ir Oxides”, International Workshop on Neutron Applications on Strongly Correlated Electron System 2011 (NASCES11), Ibaraki Quantum Beam Research Center (IQBRC), Feb. 23-25, 2011.
- [2] T. Shirakawa, H. Watanabe, and S. Yunoki, “Theoretical study of $J_{\text{eff}}=1/2$ Mott insulator in Ir oxides: cooperation of a strong spin-orbit coupling and local electron correlations”, 26th International Conference on Low Temperature Physics (LT26), Beijing, Aug 10-17, 2011.
- [3] 白川知功、渡部洋、柚木清司、“スピン軌道相互作用誘起モット絶縁体Sr₂IrO₄の理論的研究”、日本物理学会 2011 年秋季大会、富山大学、2011 年 9 月 21 日～24 日
- [4] 白川知功、渡部洋、柚木清司、“Sr₂IrO₄の金属絶縁体転移と超伝導”、新学術領域研究「重い電子系の形成と秩序化」ワークショップ～多自由度強相関係の新しい量子相～、新潟大学、2011 年 1 月 11 日～12 日（招待講演）
- [5] 白川知功、渡部洋、柚木清司、“変分クラスター近似を用いたIr酸化物の理論的研究”、強相関電子系理論の

平成 23 年度 RICC 利用報告書

最前線—若手によるオープン・イノベーション、勝浦観光ホテル、2011年12月21日～23日（招待講演）

[6] Hiroshi Watanabe, Tomonori Shirakawa, and Seiji Yunoki:

“Variational Monte Carlo study for superconductivity in multi-orbital systems”

26th international conference on Low Temperature Physics, 15P-B023 (poster session), Beijing International Convention Center, Beijing, China, August 10-17, 2011.

[7] 渡部洋, 白川知功, 柚木清司:

「Ir 酸化物におけるスピン軌道相互作用誘起超伝導の可能性」

日本物理学会 2011 年秋季大会, 24pGD-6 (口頭発表), 富山大学, 2011 年 9 月 21~24 日.

[8] 渡部洋, 白川知功, 柚木清司:

「Ir 酸化物における強いスピン軌道相互作用下でのモット絶縁体と超伝導」

強相関電子系理論の最前線, 口頭発表, 勝浦観光ホテル, 2011 年 12 月 21 日~12 月 23 日.

[9] 段下 一平, 『量子位相スリップによる一次元ボース気体の二重極振動の減衰』, 日本物理学会年次大会, 関西学院大学 (西宮), 2012 年 3 月 25 日

[10] 段下 一平, A. Polkovnikov, 『Supercurrent decay via quantum phase slips in one-dimensional Bose gases』, Workshop on Ultracold Gases: Superfluidity and Strong Correlations, 東京理科大学 (西宮), 2012 年 1 月 11 日 (招待講演)

[11] 段下 一平, 『光格子と超流動』, 第 4 回基礎物理セミナー合宿, 関西学院大学 (西宮), 2012 年 3 月 25 日 (招待講演)

[12] 段下 一平, 『光格子中の一次元ボース気体の輸送特性』, 日本物理学会年次大会, 富山大学 (西宮), 2011 年 9 月 21 日

[13] I. Danshita and A. Polkovnikov, 『Supercurrent decay via quantum nucleation of phase slips in one-dimensional lattice bosons』, American Physical Society March Meeting, Boston, USA, 2 March 2012.

[14] S. Hikino and S. Yunoki, Amplification of spin Hall effect in superconductor/normal metal junction, 24th International Symposium on Superconductivity (ISS2011), October 24-26, Japan.

[15] M. Mori, S. Hikino, S. Takahashi, and S. Maekawa, Influences of magnetic-fluctuation, resonance, and oscillation on Josephson current in superconductor/ferromagnet/superconductor junction, Vortex matter in nanostructured superconductors(VORTEX VII), September 10-17 (2011), Rhodes, Greece.

【その他】

ポスター発表

[1] 渡部洋, 白川知功, 柚木清司:

「変分モンテカルロ法による鉄系超伝導体の対称性の解析」

京大基研短期研究会, P8, 京都大学基礎物理学研究所, 2011年6月16~17日.

[2] 渡部洋, 白川知功, 柚木清司:

「変分モンテカルロ法による強いスピン軌道相互作用下での超伝導の理論的研究」

第 5 回物性科学領域横断研究会, P1-26, 東北大学片平キャンパス, 金属材料研究所, 2011 年 11 月 19 日~11 月 20 日.