

課題名 (タイトル) :

大規模並列計算機を利用し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*, Qinfang Zhang*, 山本 篤史**, 奥村 雅彦*, 段下 一平*
白川 知功*, 曾田 繁利**, 渡部 洋*, 挽野 真一*, 大塚 雄一*, Tao Li*

所属 : *和光研究所 基幹研究所 柚木計算物性物理研究室

**計算科学研究機構 量子系物質科学研究チーム

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

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、単純な行列の対角化を用いるだけではせいぜい数 10 サイト程度の格子模型しか扱う事が出来ない。このサイズでは適切な結果を得るには不十分であることが多い。

そこで、本研究では、これを解決する為の方法として密度行列繰り込み群法・厳密対角化法・変分モンテカルロ法といった計算手法を駆使し、様々な強相関量子系の問題に適用した。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、幾何学的フラストレーションの強い系におけるスピン液体状態、デバイスへの応用が期待されるナノ構造を持つ物質、ボース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

■ 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。昨年度に準備した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

めの計算コードを用いて解析を行った。特に後者に関しては、この系で現れると期待した 4 つの複合粒子からなる対向流超流動相という新奇な状態を特定するために、多点の相関関数の計算ルーチンを開発した。

■ 分散メモリ並列化厳密対角化法

厳密対角化法では、ハミルトニアンは疎行列として表現され、その最低固有値を与える固有ベクトルが、物質の性質を特徴付ける基底状態となる。量子多体問題の場合、ハミルトニアン行列のサイズは、電子・格子の数に対して指数関数的に増大するため、大きな系を扱う為には、より膨大なメモリを必要とする。そこで、本研究ではハミルトニアン行列を各計算ノードのメモリに分散して格納し、その疎行列×ベクトル演算の並列化を実装し、これの動的物理量計算への応用を試みた。

■ 大規模並列化変分モンテカルロ法

変分モンテカルロ法は強相関電子系の解析に対して有効な計算手法の一つである。本研究では近年注目を集めている 5d 電子系遷移金属酸化物 Sr_2IrO_4 を 3 軌道ハバード模型を用いてモデル化し、その基底状態の解析に変分モンテカルロ法を適用した。具体的にはスピン軌道相互作用を含む一部分に Gutzwiller 因子と Jastrow 因子を作用させた試行波動関数を構成し、最大 80 個程度の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。多数の変分パラメータと大きな格子サイズの取り扱いを可能にするため、MPI 並列を用いたコードを開発・改良し、大規模な計算を実行した。また、幾何学的フラストレーションの強い二次元三角格子ハイゼンベルク模型におけるスピン液体相を記述するため、ボソン RVB 状態に基づく試行波動関数を導入し、基底状態における安定性を調べた。この試行導関数は、従来のフェルミオン RVB 状態に比べて多くの計算コストを必要とするため、MPI 並列を用いたコードを開発し、計算を実行した。

■密度汎関数理論をもとにした第一原理電子状態シミュレーション

近年の微細加工技術の発展によって、ナノリボンやナノワイヤーといったナノ構造を持つ物質が数多く合成されるようになった。さらにこれらに電場を印加することで、様々な興味深い現象が誘起されることが分かっている。本研究では密度汎関数理論をもとにした第一原理電子状態シミュレーションを用いて、**ZnO** ナノチューブに電場を印加した時の影響について調べた。計算には **DMol³** パッケージを用いた。

3. 結果

■Time-evolving block decimation (TEBD)法

近年、冷却原子（分子）気体系では、低次元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)** 光格子中の一次元超流動体における量子位相スリップ」、**(2)** ボース・フェルミ混合気体の対向流超流動相」に注目し、以下の結果を得た。

(1) 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輸送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。この輸送の抑制の原因として、量子位相スリップという一次元超流動体に特有の量子揺らぎによる散逸機構が先行研究によって提案されていたが、この提案はこれまでのところ確証されていなかった。本研究では、厳密な **TEBD** 法のシミュレーションによって量子位相スリップの生成率と実験での観測量である二重極振動の減衰率を関係づけることに成功した。この関係式を用いて、実験で観測された輸送の抑制が実際に量子位相スリップによることを示した。**(2)** 2011 年に京都大学のグループがイッテルビウム原子を用いた光格子中のボース・フェルミ混合気体のモット絶縁体という新しい状態を実現した。この実験を念頭に、本研究では、このような混合モット絶縁体の量子相を調べるために、**TEBD** 法を用いて一次元系を解析し、絶対零度の相図を描いた。その結果から、先行研究の数値計算結果とは対照的に、二つのフェルミ

オンと二つのボソンの正孔が複合粒子を組んだ対向流超流動相が非常に幅広いパラメータ領域にわたって存在することを明らかにした。さらに、¹⁷⁴Yb-¹⁷³Yb 混合気体の混合モット絶縁体では **PP-CFSF** 相が低温で実現されると予想した。

■分散メモリ並列化厳密対角化法

行列の格納形式については、ハミルトニアン行列生成時の並列化との相性から **Compressed sparse column (CSC)**を採用した。また、行列×ベクトル演算については **OpenMP** および **MPI** を用いたハイブリッド並列化を採用した。開発したコードは、**5d** 遷移金属酸化物における磁気励起スペクトル計算に応用した。この系では、**5d** 遷移金属 **Ir** のスピン軌道相互作用と配位子場の影響を考えると、有効角運動量 $J_{\text{eff}}=|S-L|$ が比較的良い量子数になると考えられる。ここで、**S**はスピン、**L**は軌道角運動量を表す。磁気励起スペクトルはこれを反映し、 $J_{\text{eff}}=1/2$ 内で起こる励起と $J_{\text{eff}}=3/2$ 粒子を生成する励起がエネルギー的に分離している事が、我々の計算から明らかとなった。これは、近年測定された共鳴非弾性散乱実験の結果と一致する。

■大規模並列化変分モンテカルロ法

Sr₂IrO₄に関しては、スピン軌道相互作用とクーロン相互作用が協力的に働いて $J_{\text{eff}}=1/2$ という特異な電子状態が支配的になっていることが分かった。これによりスピンと軌道が結び付いた「擬スピン」が秩序化した絶縁体を実現していることを示し、実験結果とも整合する結論を得た。また、この物質に電子・ホールをドーピングした際の基底状態相図を明らかにし、未だ実現していない「**d** 波擬スピン一重項超伝導」の実現可能性について議論した。また、**MPI** 並列を用いた計算コードの改良により、**20×20** サイト正方格子という大きなサイズでの計算を可能にした。これにより、超伝導の計算に対する信頼性が大きく向上した。

幾何学的フラストレーションのある二次元ハイゼンベルク模型に関しては、ボソン **RVB** 状態を用いることで従来のフェルミオン **RVB** 状態より厳密計算に近い、適切な波動関数を得ることが出来た。これにより、二つの磁気秩序相の中間に現れると期待されるスピン液体相に対する理解が進んだ。

■密度汎関数理論をもとにした第一原理電子状態シミュレーション

Dmol³ パッケージを用いたシミュレーションの結果、

電場を印加した **ZnO** ナノチューブは **Zn** と **O** の電気陰性度の違いにより電場方向に引き伸ばされた構造を取ることが分かった。これに伴って絶縁体のバンドギャップが電場の増加に伴って一様に増大することが分かった。さらに半径やカイラリティーを変えた様々な構造のナノチューブに対して同様の計算を行い、この傾向が構造に依らないユニバーサルなものであることを示した。これにより、**ZnO** ナノチューブがバンドギャップ制御可能なデバイスとして応用可能であることを提案した。

4. まとめ

冷却原子（分子）気体系においては、**TEBD** 法をハバード型の格子模型に適用して、量子位相スリップや対向流超流動という興味深い現象を厳密に記述した。ハバード型の模型は実験状況から微視的に導出されるので、本研究の結果は実験に対する第一原理的な解析になっており、その意味で今後のこの系の実験に重要な示唆を与えたといえる。

電子系においては、多軌道ハバード模型に対する並列化厳密対角化法・変分モンテカルロ法のコードを作成した。開発したコードは、**5d** 遷移金属酸化物における基底状態の記述・磁気励起スペクトル計算・新奇超伝導物質の提案に応用され、その特異な物性を総合的に明らかにすることに成功した。スピン液体相に関しては、従来の枠組みを超えたボソン **RVB** 状態を用いることで一定の理解を得ることが出来た。

以上のように、本研究課題によって強相関格子系の広範かつ大規模なシミュレーションを行い、多くのことを明らかにすることが出来た。

5. 今後の計画・展望

これまでの解析では、主として **TEBD** 法を用いてきたが、この数値計算手法には二次元以上の系や高エネルギー状態の長時間のダイナミクスを解析できないという難点がある。近年、粒子間相互作用などのパラメータや系の次元を急峻に変化させることで高エネルギーの非平衡状態を用意し、その長時間のダイナミクスを観測するという実験が盛んになされている。今後の研究では、このような領域にアクセスするための手法として、**Truncated Wigner** 近似を採用し、コード開発と物理問題への応用を計画している。この手法では、

超流動秩序変数を記述する時間発展方程式を解く際に、**Wigner** 分布関数に従う揺らぎを初期状態に持たせて独立に多数回計算し、その統計平均から物理量を計算する。このように、独立かつ多数回の計算を持つアルゴリズムは並列化に適しており、**RICC** を用いれば数十万個の粒子からなる実験を非常に精密に記述できると考えられる。

厳密対角化法は、限られたサイズのクラスターしか取り扱えないものの、幅広い汎用性と数値的厳密解を与える点で、依然として有用な計算手法の一つである。特に、フラストレーションの大きい 2 次元強相関係への応用が期待される。計算に用いられる非常に大きな次数の行列の扱いについてはまだ改善の余地があり、より大規模で有用な計算が可能であると考えられる。

変分モンテカルロ法は、厳密性では他の手法に劣るものの、自由度の高さ・汎用性の広さは大きなアドバンテージであり、強相関電子系における新奇な状態の探索にはまさに打ってつけの手法である。今後もこの点を活かして、他の手法では計算が難しい多軌道電子系、フラストレーション系、モット絶縁体などに対して幅広く適用していく予定である。既存の物質の理論的裏付けや発現機構の解明に止まらず、未だ実現されていない新物質創製の提案も積極的に行っていきたいと考えている。また、**MPI** 並列と非常に相性の良い計算手法であるため、多数のコアを有する **RICC** の利点を最大限に活かせると期待される。

平成 24 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] H. Watanabe, T. Shirakawa, and S. Yunoki, “Monte Carlo study of an unconventional superconducting phase in Ir-oxide $J_{\text{eff}}=1/2$ Mott insulators induced by carrier doping”, *Phys. Rev. Lett.* **110**, 027002 (2013).
- [2] I. Danshita and A. Polkovnikov, “Quantum phase slips in one-dimensional superfluids in a periodic potential”, *Phys. Rev. A* **85**, 023638 1-10 (2012).
- [3] T. Saito, I. Danshita, T. Ozaki, and T. Nikuni, “Detecting the superfluid critical momentum of Bose gases in optical lattices through dipole oscillations”, *Phys. Rev. A* **86**, 023623 1-11 (2012).
- [4] D. Yamamoto, A. Masaki, and I. Danshita, “Quantum phases of hardcore bosons with long-range interactions on a square lattice”, *Phys. Rev. B* **86**, 054516 1-17 (2012).
- [5] I. Danshita and L. Mathey, “Counterflow superfluid of polaron pairs in Bose-Fermi mixtures in optical lattices”, *Phys. Rev. A* **87**, 021603(R) 1-5 (2013).

【国際会議などの予稿集、proceeding】

- [1] H. Watanabe, T. Shirakawa, and S. Yunoki, “Variational Monte Carlo study for superconductivity in multi-orbital systems”, *J. Phys.: Conf. Ser.* **400**, 022134 (2012).
- [2] H. Watanabe, T. Shirakawa, and S. Yunoki, “Variational Monte Carlo study for the insulating mechanism of Sr_2IrO_4 : from the viewpoint of energy gain”, to be published in *J. Phys.: Conf. Ser.*
- [3] 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”, *J. Phys.: Conf. Ser.* **400**, 032088 (2012).
- [4] T. Shirakawa, H. Watanabe, and S. Yunoki, “Theoretical studies of a three-band Hubbard model with a strong spin-orbit coupling for 5d transition metal oxides Sr_2IrO_4 ”, to be published in *J. Phys.: Conf. Ser.*
- [5] V. Badaut, T. Shirakawa, and S. Yunoki, “A Haldane-Anderson impurity model study for the spin- and charge-states of iron in heme proteins”, *J. Phys.: Conf. Ser.*, **400**, 032006 (2012).

【国際会議、学会などでの口頭発表】

- [1] 渡部洋, 白川知功, 柚木清司, “エネルギー利得機構から見た Ir 酸化物の絶縁体・超伝導状態”, 日本物理学会第 2012 年秋季大会, 横浜国立大学, 2012 年 9 月 18-21 日.
- [2] 渡部洋, 白川知功, 柚木清司, “ Sr_2IrO_4 における強いスピン軌道相互作用下での新奇な絶縁体と超伝導の可能性”, 第 6 回物性科学領域横断研究会, 東京大学武田ホール, 2012 年 11 月 27-28 日.
- [3] 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新奇な絶縁体と超伝導の可能性”, 第 2 回強相関電子系理論の最前線, 勝浦観光ホテル, 2012 年 12 月 13-15 日.
- [4] 白川知功, 大西弘明, J. C. Xavier, 渡部洋, 柚木清司, “スピン軌道相互作用を含む梯子格子 3 軌道ハバード模型におけるクーパー対の束縛エネルギー”, 日本物理学会 2012 年秋季大会, 横浜国立大学, 2012 年 9 月 18-21 日.
- [5] 白川知功, “イリジウム酸化物における磁氣的性質”, 第 2 回強相関電子系理論の最前線, 勝浦観光ホテル, 2012 年 12 月 13-15 日.
- [6] I. Danshita, “Dipolar bosons in optical lattices: critical velocity and anomalous hysteresis”, *Research Frontiers in Ultra-Cold Atoms and Molecules: Unequal Mass Mixtures and Dipolar Molecules*, Harvard University, Cambridge, Massachusetts, USA, April (2012) 招待講演

- [7] I. Danshita, “Quantum nucleation of phase slips studied with TEBD”, Density Matrix Renormalization Group 101 Winter School, National Taiwan University, Taipei, Taiwan, December (2012)
- [8] I. Danshita, “Time-evolving block decimation applied to ultracold gases in optical lattices”, Workshop on Computational Approaches to Nuclear Many-Body Problems and Related Quantum Systems, RIKEN, Wako, Saitama, Japan, February (2013) 招待講演
- [9] 段下一平, L. Mathey, “ボース・フェルミ混合気体におけるポーラロンペアを持つ対向流超流動相”, 日本物理学会秋季大会, 横浜国立大学, 横浜, 9 月 (2012)

【その他】

ポスター発表

- [1] H. Watanabe, T. Shirakawa, and S. Yunoki, “A novel superconductivity in Ir oxides with a large spin-orbit coupling”, The International Conference on Magnetism 2012, BEXCO, Busan, Korea, July 8-13, 2012.
- [2] H. Watanabe, T. Shirakawa, and S. Yunoki, “Theoretical study of novel insulating and superconducting states in Ir oxides with large spin-orbit coupling”, Conference on Computational Physics (CCP2012), Nichii Gakkan, Kobe, Japan, October 14-18, 2012.
- [3] H. Watanabe, T. Shirakawa, and S. Yunoki, “Theoretical study of novel insulating and superconducting states in Ir oxides with large spin-orbit coupling”, QS2C Theory Forum: International Symposium on “Strongly Correlated Quantum Science”, Ito International Research Center, The University of Tokyo, Tokyo, Japan, January 26-29, 2013.
- [4] 渡部洋, 白川知功, 柚木清司, “多軌道系におけるスレーター型絶縁体からモット絶縁体へのクロスオーバーの理論的研究: Sr_2IrO_4 に対する解析”, 日本物理学会第 68 回年次大会, 広島大学, 2013 年 3 月 26-29 日.
- [5] T. Shirakawa, H. Watanabe, and S. Yunoki, “Effective exchange interaction in 5d transition metal oxides”, The International Conference on Magnetism 2012, BEXCO, Busan, Korea, July 8-13, 2012.
- [6] T. Shirakawa, H. Watanabe, and S. Yunoki, “Theoretical studies of a three-band Hubbard model with a strong spin-orbit coupling for 5d transition metal oxides Sr_2IrO_4 ”, Conference on Computational Physics (CCP2012), Kobe, Japan, October 14-18, 2012.
- [7] 白川知功, 渡部洋, 柚木清司, “5d 遷移金属酸化物における低エネルギー磁気励起の理論的研究”, 日本物理学会第 68 回年次大会, 広島大学, 2013 年 3 月 26-29 日.
- [8] I. Danshita, “Superflow decay via quantum nucleation of phase slips in one-dimensional Bose gases”, Conference on Frontiers of Cold Atoms and Related Topics, Chinese University of Hong Kong and Hong Kong University of Science and Technology, Hong Kong, China, May (2012)
- [9] I. Danshita and L. Mathey, “Counterflow superfluid in one-dimensional Bose-Fermi mixtures in optical lattices”, Workshop on Quantum Simulations with Ultracold Atoms, International Center for Theoretical Physics, Trieste, Italy, July (2012)
- [10] I. Danshita and A. Polkovnikov, “Strong suppression of transport due to quantum phase slips in 1D Bose gases”, The 23 International Conference on Atomic Physics, Ecole Polytechnique, Palaiseau, France, July (2012)
- [11] I. Danshita and L. Mathey, “Polaron-paired counterflow superfluid of Bose-Fermi mixtures in optical lattices”, 5th International Workshop on Ultracold Group II Atoms, National Institute of Information and Communications Technology, Koganei, Tokyo, September (2012)