

## 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:

○白川 知功(1)、曾田 繁利(1,2)、上田 宏(1,2)、関 和弘(3)、榊原 寛史(4)、Qinfang Zhang(4)、Robert Peters(4)、Beom-Hyun Kim(4)、柚木清司(1,2,3,4)

## 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) 計算科学研究センター・アプリケーション開発チーム、(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) 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

遷移金属酸化物、希土類-アクチノイドを含む  $f$  電子系化合物、および、分子性固体に代表される強相関系は、トンネル効果を介して電子が飛び回る hopping 項と、電子同士の斥力に起因する多体相互作用項の拮抗によって、予期せぬ多彩な性質の発現が期待される物質群である。こうした物質群の本質を捉えるためには、hopping 項と相互作用項の両者を取り扱う量子多体問題を考える必要があり、解析的に解ける問題は限られている。したがって、こうした問題の理論的解明には大規模な数値シミュレーションが大きな役割を果たしてきた。これまでも、第一原理バンド計算、量子モンテカルロ法、繰り込み群法、クラスター近似法など、様々な量子多体問題を解くための方法が考案され、発展してきたが、すべての問題に有効な万能な計算手法というものは現時点ではない。

そこで、本課題では、それぞれの量子多体計算手法を専門として研究を行ってきたメンバーを集め、これまで培ってきた計算手法をさらに発展させると同時に、それぞれの計算手法についての比較を行いながら、量子多体問題の統一的な理論解明を目指してきた。特に、前年度までは、量子多体系のダイナミクスに関連する方法論のコード開発などを行ってきた。

本年度はこれまでに開発・応用してきた計算手法に加え、最近の新たな研究動向として注目を集めている量子計算に関するシミュレーションも行った。特に、ゲート型やアニーリング型の量子計算機は、量子系のダイナミクスを制御的に扱う方法とみなすこともできるため、これまでに用いていた計算手法の知見を応用する事ができる課題となっていた。

## 2. 具体的な利用内容、計算方法

## ■量子回路計算の大規模並列古典シミュレータ開発

任意の 2-qubit ゲートだけで構成される量子回路を数値的厳密に取り扱う量子回路シミュレータの開発を行った。高速化のために Comput. Phys. Commun, **237**, 47 (2019) の MPI 通信手続きを参考に、Fortran90 にてプログラムを自作した。ベンチマーク計算の対象としては、一次元量子多体系の変分状態を効率よく記述可能な一次元行列積ユニタリ回路(図 2 左)とした。HOKUSAI Great Wave で最大 256 ノード並列の計算を実施し、じっさいに量子回路を作用させるのに必要な時間を計測した。

## ■多次元強相関系に適用可能な時間依存密度行列繰り込み群法の大規模並列化と量子コンピュータへの応用

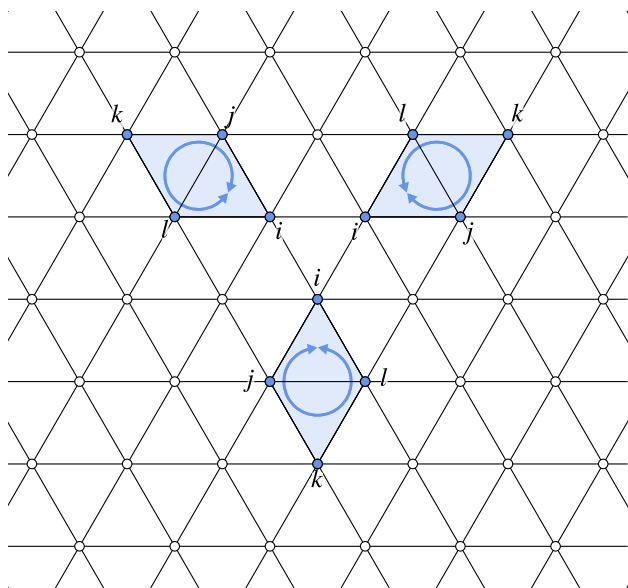
本研究では、これまで申請者らが開発してきた多次元強相関量子系に適用可能な時間依存密度行列繰り込み群法を応用した量子計算シミュレータの開発を行った。本研究で用いる多次元強相関量子系に対応した時間依存密度行列繰り込み群法は、これまでの鈴木・トロッター分解を用いた時間依存密度行列繰り込み群法とは異なり、時間発展演算子を直交多項式展開法により直接計算することにより実行される。これにより、これまでの時間依存密度行列繰り込み群法ではその適用に困難のあった多次元系への適用を容易にする。さらに、計算上取り扱われる異なる時刻の状態について、それぞれの状態に最適化された基底で張られるヒルベルト空間を用意することにより、計算コストの削減、および計算精度の向上に成功している。

本年度は、新たに時間依存密度行列繰り込み群法を元にしたアニーリング方式の量子計算シミュレータの開発、及びその大規模並列化を行った。開発した量子計算シミュレータについては HOKUSAI を用いた大規模並列計算により、計算結果、および性能の確認を行った。

## ■有限温度 Lanczos 法を用いたリング交換のある三角格子 Heisenberg 模型の解析

分子性結晶や遷移金属ダイカルコゲナイド  $1T\text{-TaS}_2$  等の Mott 絶縁体ではあるが金属絶縁体転移近傍にある物質のモデルとして、リング交換相互作用(図1参照)を取り入れた三角格子 Heisenberg 模型を用い、その比熱・エントロピー・帯磁率等を計算した。計算方法としては、有限温度 Lanczos 法 (finite-temperature Lanczos method, FTLM)を用いた。FTLM は以下の近似(i), (ii)を用いる; (i) 有限温度の計算で必要になる、ヒルベルト空間上の演算子の対角和の計算を、いくつかのランダムベクトルに関する演算子の期待値の平均値として確率的に計算する。(ii)密度行列(ハミルトニアン行列の指数関数)を Lanczos 法により近似的に計算する。

近似(i)に関して、ランダムベクトルとして乱雑位相ベクトルを用いた。近似(ii)に関して、block Lanczos 法を用いることで、行列・ベクトル積を効率的に行って計算を高速化することを提案した。ただしブロックサイズを  $M$ として  $2M$ 本のベクトルをメモリに保存する必要がある(通常の Lanczos 法は  $M=1$  に相当する)ので、通常の Lanczos 法に必要な分に加えてそれだけのメモリが確保できる範囲で高速化できるといことになる。この方法を用いて 36 スピン系までの計算を行った。



(図1)リング交換相互作用の模式図。三角格子上の最小の平行四辺形上(サイト  $i, j, k, l$ 上)にある4つのスピンの巡回置換により遷移するスピンの配位間のハミルトニアン行列要素としてリング交換相互作用が存在する。

## ■厳密対角化による強相関係の光励起シミュレーション

強相関物質における光励起状態の研究は、新しい量子状態を作り出す方法として近年注目を集めている。事実、こうした実験研究では、光励起による一時的な超伝導的振舞いや絶縁体-金属転移などが観測されている。さらに、これらの実験に触発され、理論研究においても強相関模型における光励起状態に注目した非平衡ダイナミクスの研究が行われている。

こうした研究を背景に、我々の研究グループでは、昨年度の HOKUSAI 利用を通じて、ハバード模型に対してパルス光を照射するシミュレーションを行った結果、 $\eta$ -pair と呼ばれる特殊な種類のクーパーペアが生成される機構を明らかにした。これは、光による摂動項が、ちょうど  $\eta$ -pair を生成する演算子になっている事に起因しており、これらの非線形効果によって多数の  $\eta$ -pair が生成されることに起因していることを突き止めた。

本年度は、この理論がより広く成り立つことを示すために、異なる具体例として、重い電子系 ( $f$  電子系)の有効模型としてよく議論されている近藤格子模型に対するパルス光照射のシミュレーションを行った。

## ■変分クラスター法を用いた $(t_{2g})^5$ ハニカム格子系のトポロジカル相の探索

$\text{Na}_2\text{IrO}_3$  や  $\alpha\text{-RuCl}_3$  などの  $t_{2g}$  に 5 つの電子が詰まったハニカム格子系は、強いスピン軌道相互作用の影響を受けて量子スピンホール状態や量子スピン液体が実現する可能性が有力な物質として研究が始まった。実験的には、こうした量子相は発見されていないが、理論的にもこうした相がパラメータ空間のどこに位置しているか、その全体像はわかっていない。そこで、本研究では、量子スピンホール状態が、電子運動や電子間相互作用のパラメータのどういう空間にあるのか、その相図を調べた。

計算方法には変分クラスター法を採用した。この方法は、無限系を小さなクラスターに分割し、分割したクラスターのグリーン関数(自己エネルギー)を用いて、元の無限系を計算する手法である。本研究では、このクラスターソルバーとして厳密対角化法を使用した。この時、分けたクラスターを解くのが、通常の Lanczos 法では収束が遅かったため、今回は band Lanczos 法を用いた方法を採用した。

## ■実空間動的平均場計算による磁場下でのトポロジカル近藤絶縁体の解析

最近、トポロジカル絶縁体において量子振動を確認したという実験結果が報告された。これは、現状での量子振動はフェルミ面上におけるランダウ準位を念頭においており、この実験事実を理論的に説明することは難しい。

そこで、本年度の HOKUSAI 利用では、この問題に対する知見を深めるため、強磁場下でのトポロジカル近藤絶縁体の振る舞いについて調べた。ここで、磁場の効果については、パイエルズ型の位相を実装する必要があり、これを解析するには大きなクラスターが必要となるため、本研究では実空間動的平均場計算を用いた。この方法では、各サイトの自己エネルギーを有効不純物問題のもので近似する。本研究では、この有効不純物模型を解く方法として数値繰り込み群法を採用した。さらに、これらの仮定で、各格子点上での有効不純物問題は独立な問題となるため、計算は並列化に適した方法となっている。

### ■新規層状ニッケル酸化物超伝導体の第一原理バンド計算に基づく理論研究

高温超伝導は層状銅酸化物で実現する、2次元且つシングルバンド的な特異な電子状態によって引き起こされる。長い期間、この特異な電子状態は銅酸化物に唯一だったために、銅以外の酸化物で似たような電子状態を再現できるかどうかについて物理的興味を持たれてきた。

その候補の一つとして、無限層構造を持つニッケル酸化物が20年以上にも渡って研究されてきたが、超伝導は実現していなかった。ところが、2019年の8月にStanford大学のHwang教授のグループによって無限層ニッケル酸化物薄膜で超伝導現象が新たに確認された。そこで、ニッケル酸化物で実現している超伝導状態と銅酸化物高温超伝導との比較を試みた。具体的には、ニッケル酸化物に対して第一原理バンド計算を実行し、得られた電子状態を有効モデルにダウンフォールドし、多体効果のモデル計算を行って超伝導ギャップ関数や転移温度を評価した。

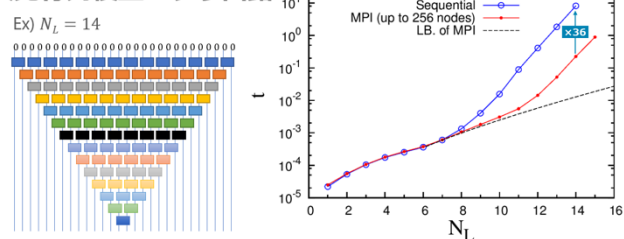
## 3. 結果

### ■量子回路計算の大規模並列古典シミュレータ開発

ベンチマーク計算の結果を図1右に示す(縦軸:計算時間、横軸:量子回路の深さ)。MPI 並列計算の効果は $N_L=8$ (16 qubits のシミュレーション)以上で現れ、 $N_L=14$ (28 qubits)のシミュレーションの際に逐次計算の時の計算時間と比較して36倍の高速化を達成することが出来た。

また、今回自作した量子回路シミュレータを利用して、無限に長い1次元量子ハイゼンベルグ模型の基底状態エネルギーの推定を行った結果、20 qubits までの結果を外挿すると約99.8%のエネルギー推定精度を得た。またそのエネルギー推定は qubit 数を増やしていくと系統的に改善できる様子も確認できた。

### 1次元行列積ユニタリ回路



28 qubit系で 256 ノード並列で約 36 倍速を達成

(図2)ベンチマーク用量子回路とシミュレーション時間

### ■多次元強相関系に適用可能な時間依存密度行列繰り込み群法の大規模並列化と量子コンピュータへの応用

時間依存密度行列繰り込み群法による量子アニーリングのシミュレーションは、量子アニーリングの準断熱過程において各時刻での基底状態となること、また終状態では量子効果を含まない古典的な Ising 模型となることから、比較的小さな密度行列繰り込み群法の打ち切り回数で高精度の計算が可能になることが期待される。したがって、計算上取り扱う行列サイズは比較的小規模なものとなるので、行列演算部分のノード間並列は効率的ではない。他方、量子アニーリングのシミュレーションを一般の問題に適用する場合には、ハミルトニアンを構成する項の数が、量子ビット数  $N$  に対して  $O(N^2)$ と大きくなるため、この部分についての並列化を行う事で良いパフォーマンスを得る事ができた。

さらに、今後の量子計算機のハードウェア開発の観点から、シミュレータにしかできない有用な情報を得る方法として、量子アニーリングの各時刻におけるエネルギーギャップの大きさを計算するための動的密度行列繰り込み群法を実装させた。

開発したシミュレータは HOKUSAI でその動作確認を行い、同時に D-Wave より得られた結果と比較し、その計算結果を確認した。また、開発したシミュレータの応用として、第一原理密度行列繰り込み群法における軌道順序の量子アニーリングによる最適化を試みた。特に、この応用ではそのコスト関数が全結合グラフに対応するため、大規模な並列計算が必要となり、HOKUSAI を有効利用する事ができた。その結果、得られた最適化後の軌道順序を用い

た場合、ランダムに決定された軌道順序の場合と比較して、同じ計算コストでその計算誤差が半分程度になることが確認された。

### ■有限温度 Lanczos 法を用いたリング交換のある 3 角格子 Heisenberg 模型の解析

種々の熱力学量を計算した結果、リング交換相互作用のために特徴的な振る舞いを得た。特に比熱の温度依存性は、リング交換相互作用のない三角格子 Heisenberg 模型が単一のピークを示すのに対し、リング交換相互作用のある場合はピークが二つ現れることを見出した。二つのピークを示す温度の分裂は、計算した範囲ではシステムサイズを大きくするほど大きくなることがわかった。一連の結果をまとめ、block Lanczos に拡張した FTLM の技術的な部分も詳述した内容はプレプリントとして arXiv にて公開した [Kazuhiro Seki and Seiji Yunoki, arXiv.1912.11240].

### ■厳密対角化による強相関係の光励起シミュレーション

シミュレーションは、新たに近藤格子模型用の厳密対角化コードをライブラリ形式で追加した。パルス照射前の状態は Lanczos 法によって求めた近藤模型の基底状態とした。光照射の効果は伝導電子に寄与するパイエルス型のベクトルポテンシャルの効果と考えた。このベクトルポテンシャルを取り入れたハミルトニアンは時間に依存するため、時間発展のシミュレーションではタイムステップのインターバルを短く取り、誤差を制御しつつ波動関数の時間発展演算を行う。小さくスライスされた微小時間の時間発展演算子は、行列の指数関数の演算で近似できる。今回、この指数関数については Euler 展開を採用し、許容誤差の範囲に収束するまでの高次項を逐次的に計算して取り入れる方法を採用した。こうしたシミュレーションの結果、ハバード模型と同様、近藤格子系においても光励起によって、 $\eta$ -pair が生成されている事が確認できた。また、新たに光励起後の磁気構造について調べ、その結果、磁気構造については in-situ キャリアドープと同じ効果として説明できる事がわかった。

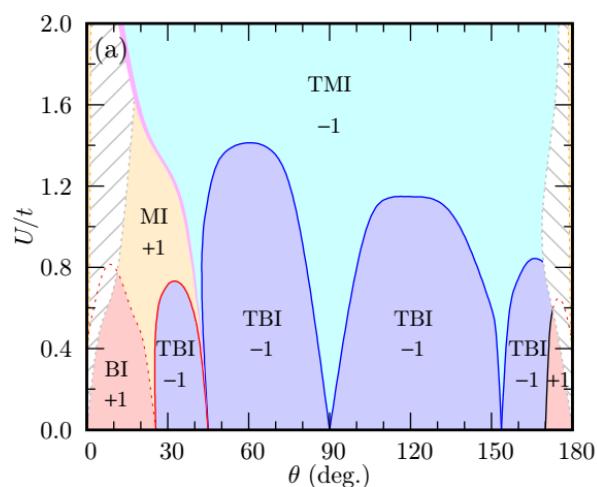
### ■変分クラスター法を用いたハニカム格子 5d 系のトポロジカル相の探索

変分クラスター法によって得られるグリーン関数を元に、スピン軌道相互作用  $\lambda$  や、クーロン相互作用  $U$ 、最近接の  $d$ - $d$  軌道間の direct hopping  $t_1$  やリガンドを介した indirect hopping  $t_1'$ 、次近接 hopping  $t_2$  など、様々なパ

ラメータを変化させて、パラメータ空間上でどのような場所にトポロジカル相があるか調べた。得られた相図の一例を図3に示す。相図からもわかる通り、量子スピンホール効果によって特徴付けられるトポロジカル相は、たった二つの異なる hopping 変数を変化させる事で制御できる事がわかった。さらに、これらのトポロジカル相は相互作用などの効果が入っても、広いパラメータ領域にわたって安定的に存在しうる事がわかった。

### ■実空間動的平均場計算による磁場下でのトポロジカル近藤絶縁体の解析

計算の結果、磁場がないときにあるフェルミ面上のギャップは、強い磁場を与えた時に閉じる事がわかった。さらに、ギャップが閉じる前においても、我々は量子振動が観測できる事がわかった。これは、強相関効果によってランダウ準位が自然な広がりがあるためと考えられる。さらに、この3次元物質上で起こる量子振動は、磁場方向で混成が消失する運動量によって決定されているため、実質2次元系で予想されるものと同様に振る舞う事がわかった。



(図3)トポロジカル相図。BI は自明なバンド絶縁体相、TBI はトポロジカルバンド絶縁体相(量子スピンホール相)、MI はモット絶縁体相、TMI はトポロジカルモット絶縁体相、斜線は金属相を示す。縦軸はクーロン相互作用  $U$  の強さ、横軸は最近接の direct hopping の強さを  $t_1 = \cos\theta$ , indirect hopping を  $t_1' = \sin\theta$  としたときの  $\theta$ 。

### ■新規層状ニッケル酸化物超伝導体の第一原理バンド計算に基づく理論研究

計算の結果、ニッケル酸化物の超伝導ギャップ対称性は  $d$  波が最も安定であり、対称性は銅酸化物高温超伝導体と同じであると期待される。だが超伝導転移温度については、

最高でも銅酸化物高温超伝導に比べ有意に低い値になることを示唆する計算結果が得られた。具体的には、第一原理的に評価した有効モデルの電子間相互作用の強さはニッケル系  $4\text{eV}$  程度、銅酸化物で  $2\text{-}3\text{eV}$  程度であり、この差が超伝導転移温度に直接寄与している事が多体効果の計算結果から示された。この相互作用の差の原因は、ニッケル系と銅系では遷移金属のd軌道と酸素の p 軌道との間の混成状況の違いである。

#### 4. まとめ

本年度はこれまでに開発した方法の拡張に加え、新たに量子回路計算の並列計算機用のシミュレータや、時間発展密度行列繰り込み群法を用いた量子アニーリングマシンのシミュレータなども行った。

また、これまでの HOKUSAI 利用を通じて開発した方法を強相関係の問題に適用する事で、非平衡状態や強相関係の有限温度の振る舞い、トポロジカル相、量子振動、超伝導体と言った問題について、新しい知見を得る事ができた。

#### 5. 今後の計画・展望

本年度の利用を通して、時間発展計算や量子計算機を用いた変分計算についての研鑽を得る事ができた。特に、変数を含む量子ゲートから構成される波動関数を変分波動関数とみなす方法は、産業的にも活発になってきている **Noisy Intermediate-Scale Quantum devices (NISQ)** の有効利用という観点で注目が集まっている新しい方法である。今後もこうした新しい方法論を取り入れていくと同時に、強相関係における新たな現象の探索や実験を解釈するための理論構築に役立てていきたい。

## 2019年度 利用研究成果リスト

## 【雑誌に受理された論文】

- [1] Yoshitaka Kawasugi, Kazuhiro Seki, Jiang Pu, Taishi Takenobu, Seiji Yunoki, Hiroshi M. Yamamoto, Reizo Kato, "Non-Fermi-liquid behavior and doping asymmetry in an organic Mott insulator interface", *Physical Review B* **100**, 11541 (2019).
- [2] Yoshitaka Kawasugi, Kazuhiro Seki, Satoshi Tajima, Jiang Pu, Taishi Takenobu, Seiji Yunoki, Hiroshi M. Yamamoto, Reizo Kato, "Two-dimensional ground-state mapping of a Mott-Hubbard system in a flexible field-effect device", *Science Advances* **10**, eaav7282 (2019).
- [3] Beom Hyun Kim, Kazuhiro Seki, Tomonori Shirakawa, and Seiji Yunoki, "Topological property of a  $t^{5_2g}$  system with a honeycomb lattice structure" *Phys. Rev. B* **99**, 155135 (2019).
- [4] Chia Cheng Chang, Arjun Gambhir, Travis S. Humble, Shigetoshi Sota, "Quantum annealing for systems of polynomial equations", *Science Report* **9**, 10258 (2019).
- [5] Kazuya Shinjo, Kazuhiro Sasaki, Satoru Hase, Shigetoshi Sota, Satoshi Ejima, Seiji Yunoki, Takami Tohyama, "Machine learning phase diagram in the half-filled one-dimensional extended Hubbard model", *Journal of Physical Society of Japan* **88**, 065001 (2019).
- [6] Abdelsalam, Hazem, Waleed Othman, Vasil Saroka, Nahed Teleb, Seiji Yunoki, and Qinfang Zhang. "Interaction of hydrated metals with chemically modified hexagonal boron nitride quantum dots: wastewater treatment and water splitting." *Physical Chemistry Chemical Physics* **22**, 2566 (2020).
- [7] Kazutaka Nishiguchi, Tomonori Shirakawa, Hiroshi Watanabe, Ryotaro Arita, Seiji Yunoki, "Possible superconductivity induced by a large spin-orbit coupling in carrier doped iridium oxide insulators: A weak coupling approach", *Journal of Physical Society of Japan* **88**, 094701 (2019).
- [8] Robert Peters, Tsuneya Yoshida, and Norio Kawakami, "Quantum oscillations in strongly correlated topological Kondo insulators", *Physical Review B* **100**, 085124 (2019).
- [9] Hirofumi Sakakibara, Takao Kotani, "Model-mapped phase approximation to evaluate superconductivity in the fluctuation exchange approximation from first principles", *Physical Review B* **99**, 195141 (2019).

## 【口頭発表】

- [10] Robert Peters, "Numerical renormalization group in DMFT: Application to topological Kondo insulators", 動的平均場近似計算に関する情報交流会、2019年12月2日、静岡(招待講演)。
- [11] 曾田繁利, "大規模並列密度行列繰り込み群法の開発と量子ダイナミクスへの応用", 物性研究所スパコン共同利用・CCMS 合同研究会「計算物質科学の新展開」, 2019年4月2日, 柏。
- [12] 上田宏、大塚雄一、中田真秀、「行列積ユニタリ状態を利用した変分法の開発」、日本物理学会 第75回年次大会(2020年)、2020年3月16日、名古屋大学。
- [13] Robert Peters, "Kondo effect and magnetism in non-centrosymmetric f-electron materials", J-Physics: Physics of Conductive Multipole Systems FY 2019 Annual Meeting、2020年1月8日、神戸。
- [14] Tomonori Shirakawa, "Simulations of dynamics in quantum many-body systems", The 190th R-CCS Café -part II, Feb. 3, 2020, Kobe.
- [15] Tomonori Shirakawa, Shohei Miyakoshi, Seiji Yunoki, "Photo-induced  $\eta$ -pairing in Kondo lattice", APS March Meeting, Mar. 2, 2020, Denver (USA).
- [16] Shigetoshi Sota, Tomonori Shirakawa, Seiji Yunoki, Takami Tohyama, "Dynamical DMRG study of spin excitation dynamics in triangular lattice spin-1/2 antiferromagnet", APS March Meeting, Mar. 2, 2020, Denver (USA).
- [17] Kazuya Shinjo, Shigetoshi Sota, Seiji Yunoki, Takami Tohyama, "Characterization of photoexcited states

in the half-filled one-dimensional extended Hubbard model assisted by machine learning”, APS March Meeting, Mar. 2, 2020, Denver (USA).

**【ポスター発表】**

[18] 曾田繁利, 柚木清司, “量子コンピュータによる直交多項式展開法”, 日本物理学会 2019 年秋季大会, 2019 年 9 月 10 日, 岐阜.

[19] Shigetoshi Sota, Tomonori Shirakawa, Seiji Yunoki, Takami Tohyama, “Dynamical DMRG Study of Spin Excitation Dynamics on the Triangular Lattice Antiferromagnetic Heisenberg model”, International Conference on Strongly Correlated Electron Systems 2019 (SCES2019), Sep. 23, 2019, Okayama.

[20] 曾田繁利, 柚木清司, “量子アニーリングによる第一原理密度行列繰り込み群法における軌道順序の最適化”, 日本物理学会第 75 回年次大会, 2020 年 3 月 16 日, 名古屋.

[21] Robert Peters, “Quantum oscillations in topological Kondo insulator”, Topological Phases and Functionality of Correlated Electron Systems 2019, Feb. 18, 2019, 東大物性研.

[22] Robert Peters, “Quantum oscillations in topological Kondo insulators”, Frontiers of Correlated Electron Science, May 30, 2019, 東大.

[23] Robert Peters, “Exceptional points in the Spectrum of a topological Kondo insulator”, SCES 2019, Sep 23, Okayama.

**【その他(著書、プレスリリースなど)】**

[24] Chia Cheng Chang, Shigetoshi Sota, “Is your Supercomputer Stumped? There May Be a Quantum Solution”, 2019 年 8 月, 理化学研究所数理創造プログラムプレスリリース,

<https://ithems.riken.jp/ja/news/is-your-supercomputer-stumped-there-may-be-a-quantum-solution>