

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(1,2,3)、上田 宏(4)、関 和弘(5)、榊原 寛史(4)、Qinfang Zhang(4)、Beom-Hyun Kim(4)、柚木 清司(1,3,4,5)

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 利用環境技術ユニット
- (3) 計算科学研究センター アプリケーション開発チーム
- (4) 開拓研究本部 柚木計算物性物理研究室
- (5) 創発物性科学研究センター 計算量子物性研究チーム

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

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量子多体系は、トンネル効果を通じて電子が飛び回る 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、こうした量子多体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。

昨年度に引き続き、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大きな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、厳密対角化法や各種テンソルネットワーク法などのこれまでの知見を有効活用できる研究課題となっていた。

なお、後述する具体的な利用内容における【テンソルネットワーク法の開発と応用】に関しては【テンソルネットワーク法による多体模型の解析】(課題番号:Q20458)との連携研究である。

2. 具体的な利用内容、計算方法

【厳密対角化法を用いた手法開発と量子計算への応用】

厳密対角化法および有限温度 Lanczos 法を用いて、三角格子上のリング交換相互作用を含む量子スピン系の有限温度物性の計算を行なった。また、厳密対角化法を用いた少量量子スピン系の特定の縮約密度行列と熱的密度行列との比較を行なった。さらに、変分量子固有値解法 (variational quantum eigensolver, VQE) 等の量子古典ハイブリッド計算のシミュレーション等にも利用した。

【テンソルネットワーク法の開発と応用】

テンソルネットワーク法の一つである iTEBD 法、iDMRG 法、CTMRG 法に関して MPI 並列化などの高度化を施し、幾何学的にフラストレート量子スピン鎖の基底状態解析や多自由度古典統計模型の臨界性の同定を行った。

【大規模並列密度行列繰り込み群法の高度化】

これまでに開発した大規模並列密度行列繰り込み群 (DMRG) 法プログラムについて、計算のバックアップとリスタート機能についての高度化を行った。ここでの目的は、長時間の実行を要する計算への対応、密度行列繰り込み群法によりターゲット状態を表現するために最適化された基底を再利用した物理量の計算、また耐障害性等が挙げられる。必要最小限の記憶容量、およびディスク I/O とするため、DMRG 法で必要とされる変換行列を保存し、またその変換行列の情報から計算に必要なとされる演算子等を復元するアルゴリズムを開発し本プログラムに実装した。

【第一原理計算1: ニッケル酸化物超伝導の圧力効果】

近年発見された層状ニッケル酸化物超伝導体 (Ni,Sr)NiO₂ について研究を行った。この物質は銅酸化物高温超伝導体と類似の電子構造を持つが、超伝導転移温度は一桁程度低いためその原因に興味を持たれている。これまでの研究成果から、バンド幅の大きさに比して強すぎる電子間相互作用パラメータが転移温度を低下させる機構が示されていた[業績リスト 2]。そこで本研究では、静水圧力の超伝導転移温度に対する効果を調べた。方法としては、第一原理バンド計算を用いて有効モデルを導出し、得られた有効モデルを用いて多体効果のシミュレーションを行った。有効モデルの導出には最局在ワニエ軌道法を用い、フェルミ準位近傍のバンド構造を再現するために最低限必要な7つの軌道自由度からなるモデルを得た。また、電子間相互作用のパラメータは制限RPA法を用いて評価した。第一原理計算コードは独自コードである `ecalj`、及び汎用の Quantum Espresso を用い、希土類元素の f 電子の取り扱い依存性についても詳細に調べた。圧力下の結晶構造は商用の VASP コードを用いたエネルギー最適化計算に基づき決定した。また、多体効果のシミュレーションには多軌道揺らぎ交換近似による計算を実行するための独自コードを用いた。

【第一原理計算2:バーテックス補正の計算】

Quasi-particle Self-consistent GW 法(以下, QSGW 法)は従来型の密度汎関数理論に基づく局所密度近似(LDA)よりも優れた手法であるが、バーテックス補正の効果が取り込まれていないためバンドギャップの大きさや誘電率の値などを過大評価する。本研究では電場応答の理論に基づきバーテックス補正を数値的に取り込む手法を開発し実装した。NaCl などの単純な物質を用いて新手法のベンチマークを行った。

【第一原理計算3:新基底関数法の開発】

第一原理バンド計算に基づき、低エネルギーのバンド構造を再現する有効モデルを構築するためには、最局在ワニエ軌道法が一般的に用いられている。だが、最局在ワニエ軌道法には実用上の様々な問題がある。本研究では最局在ワニエ軌道法よりも優れた手法として、マフィンティン基底関数を応用した新手法を開発した。マフィンティン基底自体は原子局在性の高い第一原理基底関数であるため有効モデルへのマッピングがスムーズ行える一方、平面波などに代表される電子運動の遍歴的自由度の記述に難がある。そこで、ハイブリッド基底関数法を利用してその効果を効率よく取り込む新アルゴリズムを考案し実装した。

3. 結果

【厳密対角化法を用いた手法開発と量子計算への応用】

量子スピンの有限温度物性の計算については、適当な大きさのリング交換相互作用が入ると、比熱に特徴的な2ピーク構造が現れることがわかった。少数量子スピンの特定の縮約密度行列と熱的密度行列との定量的な比較は、2つの密度行列のフィデリティやそれぞれの密度行列における物理量の計算により行い、類似点と相違点を明らかにした。量子古典ハイブリッド計算のシミュレーションでは、VQE の試行波動関数構築の段階で破れた量子系の対称性を、射影演算子を用いて回復する方法(symmetry-adapted VQE)の提案や、ハミルトニアンへのべき乗を近似的に計算する方法の提案を行なった。

【テンソルネットワーク法の開発と応用】

フラストレート量子スピン鎖に現れる対称性に守られたトポロジカル相転移の同定に成功した[7, 8]。また、正方格子上の正多面体模型(20自由度模型)に非自明な臨界性が現れること数値的に示すことに成功した[9]。

【大規模並列密度行列繰り込み群法の高度化】

本研究開発において導入された必要最小限の記憶容量、およびディスク I/O での大規模並列 DMRG 法プログラムのバックアップ・リスタート機能は大規模並列計算においても正常に機能することが確認された。本 DMRG 法プログラムは長時間の計算を必要とする量子多体系の実時間シミュレーション、また基底状態のより詳細な解析に応用され、その研究成果を論文、また学会において発表した。

【第一原理計算1:ニッケル酸化物超伝導の圧力効果】

多体効果によって得られた結果から、圧力効果によってニッケル超伝導体の超伝導転移温度が上昇すると結論付けた。また、圧力下の電子状態の解析から、格子定数が短縮することでバンド幅が増大し、且つその場合でも電子間相互作用はほぼ一定である事が判明した。その結果、超伝導引力が維持されつつ電子運動のダンピングが抑制され、超伝導に有利に働く事が分かった。また、f 電子の第一原理的取り扱い依存性については、(1)コア的に扱う場合は d 電子間に働く電子間相互作用の値を増加させ、(2)遍歴的に扱う場合は相互作用を減少させる、という傾向を見出した。

【第一原理計算2:バーテックス補正の計算】

NaCl などの複数のイオン結晶でバーテックス補正取り込んだ場合の光学誘電率 $\epsilon(\infty)$ を計算した結果、実験結

果を誤差 1%以内で再現することに成功した[業績リスト 1].
これは QSGW 法にバーテックス補正を考慮することによって、かなり正確に物質の電子状態を計算できる可能性を示唆する。また、LDA にも同様の方法を適用したが、その場合はバーテックス補正の追加によってむしろ精度が低下する事も明らかになった。

【第一原理計算3:新基底関数法の開発】

新手法についてシリコン結晶及びシリコン酸化物結晶を用いてベンチマークを行った。シリコン結晶の場合は spd 軌道を考慮した 9 軌道モデルを構築し、低エネルギー領域のバンド構造を 0.02eV 程度の精度で再現できることを確認した。次にシリコン酸化物でもベンチマークを行った。この場合は結晶中の大きな空位領域に仮想的なマフィンティン基底を考慮する必要があることが分かった。

4. まとめ

本年度は、厳密対角化法を用いた量子計算機の利用方法やテンソルネットワーク法を主体とする種々の数値計算手法の開発及び高度化を行なった。特に、量子計算機に関する研究では、現在量子計算機の有効活用方法として注目度の高い Variational Quantum Algorithm (VQA) の精度を向上させるものや、知見、及び、変分原理を用いない新たな研究の方向性を提示した。他方、テンソルネットワーク法については大規模並列計算機上でのさらなる高度化を行い、パフォーマンスの向上に努めた。さらに、現実物質を調べるための新しい方法論の開発を行った。

5. 今後の計画・展望

巨大 IT 企業などの参入により、量子計算機実機の開発が急ピッチで進められているが、現在利用可能な量子計算機は量子誤り耐性を持たない、いわゆる、Noisy Intermediate-Scale Quantum (NISQ) デバイスと呼ばれるものである。こうした NISQ デバイス上でも有用な量子計算機の有効利用方法の探索は、極めて重要な課題である。また、現在利用可能な量子計算機は限られており、本研究のような数値計算を主体とする研究が極めて重要な位置を占めている。従って、本研究課題で開発した計算手法や知見は、今後、さらに多くの応用研究が進める上で有益であり、更なる進展が期待できる。

2020年度 利用研究成果リスト

【雑誌に受理された論文】

- [1] Kazuhiro Seki, Seiji Yunoki, “Quantum Power Method by a Superposition of Time-Evolved States”, PRX Quantum **2**, 010333 (2021) [45 pages].
- [2] Tomonori Shirakawa, Kazuhiro Seki, Seiji Yunoki, “Discretized quantum adiabatic process for free fermions and comparison with the imaginary-time evolution”, Physical Review Research **3**, 013004 (2021) [32 pages].
- [3] Kazuhiro Seki, Seiji Yunoki, “Emergence of a thermal equilibrium in a subsystem of a pure ground state by quantum entanglement”, Physical Review Research **2**, 043087 (2020) [19 pages].
- [4] Kazuhiro Seki, Seiji Yunoki, “Thermodynamic properties of an $S = 1/2$ ring-exchange model on the triangular lattice”, Physical Review B **101**, 235115 (2020) [16 pages].
- [5] Kazuhiro Seki, Tomonori Shirakawa, Seiji Yunoki, “Symmetry-adapted variational quantum eigensolver”, Physical Review A **101**, 052340 (2020) [15 pages].
- [6] Tomonori Shirakawa, Shohei Miyakoshi, Seiji Yunoki, “Photoinduced eta pairing in the Kondo lattice model”, Physical Review B **101**, 174307 (2020) [12 pages].
- [7] Hiroshi Ueda, S. Onoda, Y. Yamaguchi, T. Kimura, D. Yoshizawa, T. Morioka, M. Hagiwara, M. Hagihala, M. Soda, T. Masuda, T. Sakakibara, K. Tomiyasu, S. Ohira-Kawamura, K. Nakajima, R. Kajimoto, M. Nakamura, Y. Inamura, N. Reynolds, M. Frontzek, J. S. White, M. Hase, Y. Yasui, “Emergent spin-1 Haldane gap and ferroelectricity in a frustrated spin-1/2 ladder”, Phys. Rev. B **101**, 140408(R) (2020) [6 pages] <Editors’ Suggestion>.
- [8] Hiroshi Ueda, S. Onoda, “Roles of easy-plane and easy-axis XXZ anisotropy and bond alternation in a frustrated ferromagnetic spin-1/2 chain”, Phys. Rev. B **101**, 224439 (2020) [16 pages].
- [9] Hiroshi Ueda, Kouichi Okunishi, Seiji Yunoki, Tomotoshi Nishino, “Corner transfer matrix renormalization group analysis of the two-dimensional dodecahedron model”, Phys. Rev. E **102**, 032130 (2020) [8 pages].
- [10] H. Sakakibara, T. Kotani, M. Obata, T. Oda, “Finite electric-field approach to evaluate the vertex correction for the screened Coulomb interaction in the quasiparticle self-consistent GW method”, Phys. Rev. B **101**, 205120 (2020) [7 pages].
- [11] H. Sakakibara, H. Usui, K. Suzuki, T. Kotani, H. Aoki, K. Kuroki, “Model Construction and a Possibility of Cupratelike Pairing in a New d9 Nickelate Superconductor (Nd,Sr)NiO₂”, Phys. Rev. Lett. **125**, 077003 (2020) [6 pages] <Editors’ Suggestion>.
- [12] B. H. Kim, S. Sota, T. Shirakawa, S. Yunoki, Y. W. Son, “Proximate Kitaev system for an intermediate magnetic phase in in-plane magnetic fields”, Phys. Rev. B **102**, 140402 (Rapid Communication) (2020) [5 pages].
- [13] T. Tohyama, S. Sota, S. Yunoki, “Spin dynamics in the $t\text{-}t'\text{-}J$ model: Dynamical density-matrix renormalization group study”, J. Phys. Soc. Jpn. **89**, 124709 (2020) [7 pages].
- [14] K. Shinjo, S. Sota, T. Tohyama, “The effect of phase string on single-hole dynamics in two-leg Hubbard ladder”, Phys. Rev. B **103**, 035141 (2021) [12 pages].

【口頭発表】

- [15] 上田宏, “テンソルネットワークによる量子状態圧縮技術の高度化”, さきがけ「革新的な量子情報 処理技術基盤の創出」研究領域 第2回領域会議 2020年4月15日, オンライン.
- [16] 上田宏, “量子計算機に適合したテンソルネットワーク法”, 物性研究所短期研究会「量子多体計算と第一原理計算の新展開」2020年7月9日, オンライン [招待講演].

2020年度 利用報告書

- [17] 上田宏, 奥西巧一, 柚木清司, 西野友年, “正方格子上の正 12 面体模型に現れる相転移現象の解析”, 日本物理学会 2020 年秋季大会 2020 年 9 月 10 日, オンライン.
- [18] 上田宏, “テンソルネットワークによる量子状態圧縮技術の高度化”, さきがけ「革新的な量子情報 処理技術基盤の創出」研究領域 第 3 回領域会議 2020 年 12 月 18 日, オンライン.
- [19] 上田宏, “量子コンピュータのためのテンソルネットワーク入門”, 第 6 回 Q-LEAP 量子 AI セミナー 2021 年 2 月 9 日, オンライン.
- [20] 上田宏, 柚木清司, 下川統久朗, “飽和磁化近傍系の物性解析に特化した量子スピンソルバー QS³”, 日本物理学会 第 76 回年次大会(2021 年) 2021 年 3 月 15 日, オンライン.
- [21] 榊原寛史, “新ニッケル系超伝導体 NdNiO₂ の有効モデルの構築と d 波超伝導発現の可能性”, 日本物理学会 2020 年秋季大会, 2020 年 9 月 10 日
- [22] 榊原寛史, “第一原理バンド計算に基づいたニッケル酸化物超伝導体の転移温度の理解(招待講演)”, 京都大学基礎物理学研究所研究会「高温超伝導・非従来型超伝導研究最前線:多様性と普遍性」, 2020 年 10 月 26 日
- [23] 榊原寛史, “PMT 基底関数法を用いた低エネルギーモデルの導出”, 日本 MRS 第 30 回年次大会, 2020 年 12 月 10 日
- [24] 榊原寛史, “第一原理バンド計算からの有効モデル導出の新技术(招待講演)”, 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 2020」, 2020 年 12 月 22 日
- [25] 榊原寛史, “第一原理バンド計算に基づく低エネルギー有効モデル構築のための基底関数法 MLO の開発”, 日本物理学会第 76 回年次大会, 2020 年 3 月 15 日
- [26] 曾田繁利, 柚木清司, “密度行列繰り込み群法によるランダムな Ising 模型の計算手法と D-Wave との比較”, 日本物理学会 2020 年秋季大会, 10pL2-10, 2020 年 9 月 10 日, オンライン.
- [27] 新城一矢, 曾田繁利, 遠山貴己, “時間依存密度行列繰り込み群法による梯子格子拡張ハバード模型の光学応答の研究”, 2020 年秋季大会, 11aL3-3, 2020 年 9 月 11 日, オンライン.
- [28] 曾田繁利, “Research and development for quantum dynamics simulation by quantum computer”, JST さきがけ「量子情報処理」領域第 3 回領域会議, 2020 年 12 月 19 日, オンライン.
- [29] 新城一矢, 玉城善貴, 曾田繁利, 遠山貴己, “二次元拡張ハバード模型の光学伝導度の時間依存密度行列繰り込み群法による研究”, 日本物理学会第 76 回年次大会, 2020 年 3 月 12 日, オンライン.

【その他(著書、プレスリリースなど)】

- [30] 鳥取大学プレスリリース「新たに発見された層状ニッケル酸化物超伝導体の電子状態を数値シミュレーションにより解明! 高温超伝導を示す新物質のヒントになる可能性も!」 <https://www.tottori-u.ac.jp/item/17752.htm>