

課題名 (タイトル) :

大規模並列計算機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<sup>\*,\*\*,\*\*\*</sup>, Qinfang Zhang<sup>\*</sup>, 白川 知功<sup>\*</sup>, 曾田 繁利<sup>\*\*</sup>, 渡部 洋<sup>\*\*\*</sup>,  
大塚 雄一<sup>\*\*\*</sup>, Tao Li<sup>\*</sup>, Yan Sun<sup>\*</sup>, 段下 一平<sup>\*</sup>

所属 : \*和光研究所 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

\*\*\*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

固体材料において見られる磁性、超伝導、金属-絶縁体転移といった興味深く有用な量子現象は、クーロン斥力によって強く相互作用しながら運動する多数の電子の振る舞いによって決定されると考えられている。この状況をモデル化したのがハバード模型に代表される強相関格子模型であり、多くの現象を説明するのに成功している。近年では電子が持つ電荷・スピン・軌道といった自由度が複雑に絡み合った状況で起きる非自明な現象が次々と発見されているが、これを理論的に解明するには対応する複雑な強相関格子模型を扱う必要があり、大規模数値シミュレーションはその有力な手段の一つとして注目されている。そこで本研究では、RICC を活用した様々な数値シミュレーション技法を開発・改良し、強相関格子系に関する種々の問題の解明を目指す。

## 2. 具体的な利用内容、計算方法

## ■Time-evolving block decimation (TEBD) 法

Time-evolving block decimation (TEBD) 法は一次元量子格子系の基底状態と実時間ダイナミクスを厳密に計算する手法である。本研究では二種類のボース粒子が混合した系と調和振動子型トラップに閉じ込められたボース気体の中央に暗ソリトン励起を用意した際の量子ダイナミクスを調べるコードを開発して解析を行った。特に後者に関しては、従来の説と異なり、調和振動子型ポテンシャル中の暗ソリトンの振動周波数は量子揺らぎの影響をほとんど受けないことを明らかにした。

## ■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、強相関電子系の基底状態の

詳細な解析に用いられる計算手法の一つである。この手法は効率的な並列化が可能であるため、RICC を用いて大規模な並列計算を行った。まずは昨年度に引き続き、強いスピン軌道相互作用を持つ 5d 電子系遷移金属酸化物  $\text{Sr}_2\text{IrO}_4$  をモデル化した 3 軌道ハバード模型に変分モンテカルロ法を適用し、磁性・非磁性の両状態における金属-絶縁体転移を解析した。また、層状ダイカルコゲナイド物質  $\text{TaS}_2$  と  $\text{TiSe}_2$  における金属-絶縁体転移と電荷密度波の起源を調べるため、 $\text{TaS}_2$  に対しては電子構造を忠実に取り入れた 39 バンドハバード模型、 $\text{TiSe}_2$  に対しては単純化した 2 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を解析した。

## ■密度行列繰り込み群法の大規模並列化

密度行列繰り込み群法は、研究の目的に対応したターゲット状態に焦点を絞ることで効率的な計算を実現する計算手法である。本手法は一次元強相関電子系で多くの研究成果を挙げてきたが、そのアルゴリズムの単純な拡張で、二次元強相関電子系への応用も可能になる。しかしながら、この応用には非常に巨大な計算コストが要求されることも事実である。そこで、本研究では研究目的に対応したターゲット状態の収束を得るために用いられる、有限系アルゴリズムと呼ばれる手法の実空間並列化の導入と改良を行った。本アルゴリズムでは、完全な基底を持つサイトが系の中を動き回ることによって、ターゲット状態を最適に記述する基底を導き出す。さらにこの完全な基底を持つサイトを複数用意することで最適化を加速し、より効率的なアルゴリズムを開発することに成功した。具体的には  $6 \times 6$  サイトの二次元三角格子ハバード模型に対する密度行列繰り込み群法の大規模並列アルゴリズムの開発を行い、RICC を利用してその実証を行った。

## ■密度汎関数理論に基づく第一原理電子状態シミュレ

## ーション

密度汎関数理論に基づく第一原理電子状態シミュレーションは、様々な物質の詳細な電子状態を解析するのに有効な計算手法である。圧力や電場を印加したシミュレーションも可能であり、未だ合成されていない物質を理論的に提案する試みもさかんに行われている。本研究では、(1) RICC と商用ソフトウェア DMol<sup>3</sup> を用いて様々なナノ構造を持つ ZnO 材料に電場を印加した際の電子状態の変化を解析し、バンド幅の変化と半導体 - 金属転移を系統的に調べた。(2) RICC と商用ソフトウェア VASP を用いて SnSe と SnS におけるトポロジカル結晶絶縁体の可能性と、トポロジカル絶縁体と従来型絶縁体から成る超格子・ヘテロ接合におけるディラックコーンの安定性について調べた。

## 3. 結果

## ■Time-evolving block decimation (TEBD) 法

冷却気体系の実験では、二方向 (例えば xy 方向) から強力な光格子を冷却気体に照射することで気体を非常に細い形状に分断し、理想的な一次元量子多体系を作ることができる。そのような系において数多くの実験研究がなされている。本研究では、理論的に一次元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) 二成分ボース混合気体の超流動・モット絶縁体転移」と「(2) 調和振動子型ポテンシャル中の一次元ボース気体における暗ソリトンの運動」を調べ、以下の結果を得た。

(1) 二成分ボース混合気体の超流動・モット絶縁体転移に関しては、二次元以上の系において充填率が偶数であるモット絶縁体への転移が一次転移 (不連続転移) になりうる事が先行研究から知られていた。本研究では、TEBD 法を二成分ボース・ハバード模型に適用して、一次元系において一次転移が起こりうるかどうか厳密数値計算によって検証した。結果として、二次元以上の系とは対照的に、一次元系では一次転移は現れず常に転移は Berezinskii-Kosterlitz-Thouless (BKT) 的であることを明らかにした。

(2) ごく最近、量子揺らぎの非常に強い (粒子間相互作用が強い) とされるボース気体を調和振動子型ポテンシャル中に閉じ込めて、そこに暗ソリトンを生成してその振動ダイナミクスを観測するという実験が行われた。驚くべきことに、そのソリトンの振動数

は通常の弱く相互作用するソリトンに期待されるものに比べて 10 倍程度も小さくなるという結果が示された。実験グループはこの結果をソリトンの質量が量子揺らぎのために 100 倍程度も大きくなっているためだと解釈した。本研究では、量子揺らぎのソリトン振動に対する影響を調べるために、TEBD 法をボース・ハバード模型に適用して一次元ボース気体中のソリトン振動を厳密にシミュレーションした。それによって、ソリトンの振動数が量子揺らぎの強さにほとんど依存しないことを明らかにした。この計算結果は、量子揺らぎ以外の要素 (三次元性など) が振動数の増大により大きく寄与していることを示唆する。

## ■大規模並列化変分モンテカルロ法

(1) Sr<sub>2</sub>IrO<sub>4</sub> に対しては、適切な Gutzwiller-Jastrow 因子を用いることで、非磁性のモット金属 - 絶縁体転移を正しく記述することが出来た。また、電子相関の効果によって転移点の近傍で強く繰り返された金属状態が現れることを明らかにした。これは大規模な並列化によってフェルミ面の詳細な解析が可能になったことによる成果である。さらに、反強磁性絶縁体の内部でスレーター型絶縁体 (弱相関) からモット・ハバード型絶縁体 (強相関) へのクロスオーバーが起こることを、エネルギー利得機構の変化から明らかにした。これらの結果から、Sr<sub>2</sub>IrO<sub>4</sub> が両者の中間領域に位置する「中相関」電子系であることを提案した。

(2) TaS<sub>2</sub> に対しては、まずはスピン軌道相互作用と格子歪みの影響を系統的に調べ、これらが実験で見られている“star-of-David”型電荷密度波を再現するのに不可欠であることを確認した。また、電子相関の効果を取り入れると電荷密度波が不安定化することを明らかにし、従来考えられていた二次元格子模型では不十分であるという結論を得た。

(3) TiSe<sub>2</sub> に対しては、低温でエキシトン凝縮と呼ばれる特異な量子現象が起きていると提案されている。ただし、エキシトン凝縮の発現機構に関しては不明な点が多いため、まずは単純な二次元正方格子上の 2 軌道ハバード模型を用いた解析を行った。計算の効率化のため、エネルギーが低くほぼ完全に占有されている *p* 軌道に対して電子・ホール変換を行い、スレーター行列式の次元を大幅に減少させることが出来た。その結果、28×28 サイトまでの計算が可能になり、計算のサイズ依存性を系統的に調べることが出来た。これによ

り、軌道間相互作用によってエキシトニック絶縁体とバンド絶縁体が誘起されることを示した。また、軌道間相互作用の強弱によって引き起こされるエキシトンペアの BCS-BEC クロスオーバーも記述することが出来た。

#### ■密度行列繰り込み群法の大規模並列化

本研究で開発したアルゴリズムでは、利用するノード数を最適化に用いる完全な基底を持つサイトの数に対応させることで、ほぼ 100%の並列化効率を実現することが出来た。したがって、本アルゴリズムを大規模並列計算機で利用することで、これまで実現出来なかった非常に高い精度の計算結果を得ることが可能になった。具体的には  $6 \times 6$  サイトの二次元三角格子ハバード模型に対して本アルゴリズムを適用した結果、約 15,000 という非常に大きな状態数を取ることが可能になり、計算精度は  $10^{-5}t$  (電子のサイト間飛び移りエネルギーの 10 万分の 1 の精度) まで向上した。これにより、三角格子の幾何学的フラストレーションに起因するスピン液体状態の存在を強く示唆する結果を得ることが出来た。

#### ■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

(1) 近年の微細加工技術の発展により、様々な機能性を持つナノ構造物質の合成が可能になってきた。さらにこれらの物質に電場を印加することで興味深い物性が得られることも知られている。本研究では電場下での ZnO ナノワイヤーとナノチューブの電子状態を系統的に調べた結果、電場の増大によって両者のバンドギャップがスムーズに減少することが分かった。また、十分強い電場下で半導体-金属転移が起こることを見出した。このような電場によるバンド幅制御は、ナノ構造の直径や厚みを変化させるよりも効率が良く、実用的な方法として今後の発展が期待出来ると考えられる。

(2) 近年注目を集めているトポロジカル絶縁体は、内部ではギャップが開いた絶縁体を実現している一方、表面ではディラックコーンと呼ばれるエネルギー分散に基づく金属状態が実現している特異な物質であり、基礎と応用の両面から興味を持たれている。ただしトポロジカル絶縁体は構造欠陥や不純物に対して脆弱なため、これらに対して安定な物質を得ることが重要な課題となっている。それには新たなトポロジカル絶縁

体の探索や、従来のトポロジカル絶縁体を安定にする何らかの手段が不可欠である。本研究では特にトポロジカル結晶絶縁体と呼ばれる物質の探索と、トポロジカル絶縁体と従来型絶縁体から成る超格子・ヘテロ接合におけるディラックコーンの安定性について調べた。その結果、岩塩型構造を持つ SnSe と SnS がトポロジカル結晶絶縁体の候補であることを提案した。また、ディラックコーンのエネルギーが従来型絶縁体のバンドギャップ内に位置する時にはトポロジカル絶縁体・従来型絶縁体超格子においてディラックコーンが安定化することを見出した。具体的には  $\text{Bi}_2\text{Se}_3 \cdot \text{Bi}_2\text{O}_3$  超格子がこの状況に対応している。

#### 4. まとめ

冷却原子気体系に対しては、一次元ボース・ハバード模型に TEBD 法を適用することで、モット転移やソリトン振動を厳密に記述することが出来た。ソリトン振動に関しては従来考えられていた描像とは全く異なる結果が得られ、未解明の機構が存在することを提案した。この系では理想的な一次元状態を実験的に作る事が出来るため、厳密な理論の有効性は非常に大きく、今後の実験の発展に対しても重要な寄与を果たすと期待される。

電子系に対しては、大きく分けて 3 つの計算手法の開発、応用を行った。(1) 変分モンテカルロ法では、スピン・電荷・軌道の自由度を適切に取り扱うことで、電子相関に加えてスピン軌道相互作用が重要となる  $\text{Sr}_2\text{IrO}_4$  と  $\text{TaS}_2$  の詳細な電子状態の解析に成功した。また、アルゴリズムの改良によって大きなサイズでの計算を可能にし、 $\text{TiSe}_2$  で期待されるエキシトン凝縮を正しく記述することが出来た。(2) 密度行列繰り込み群法では、アルゴリズムの改良によって二次元三角格子ハバード模型に対して非常に精度の高い計算を行い、長年の問題であるスピン液体状態の存在を強く示唆する結果を得ることが出来た。(3) 第一原理電子状態シミュレーションでは、個々の物質の詳細な電子状態を網羅的に調べ、ZnO ナノ構造物質における電場によるバンド幅制御、SnSe と SnS に対するトポロジカル結晶絶縁体の可能性、トポロジカル絶縁体・従来型絶縁体超格子におけるディラックコーンの安定性の条件を明らかにした。

以上のように、本研究では強相関格子系の種々の問

題に対して適切な計算手法を用いて広範かつ大規模なシミュレーションを行い、多くの事象を明らかにすることが出来た。

## 5. 今後の計画・展望

これまで用いてきた **TEBD** 法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。今後の研究では、高次元を取り扱える **Gutzwiller** 近似や **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。特に **Truncated Wigner** 近似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。

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有効な手法である。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の問題に取り組み、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。

密度行列繰り込み群法は、元々は一次元系に対する厳密解を求める計算手法であったが、近年の目覚ましい進展によってより多くの対象を扱えるようになってきた。来年度以降は二次元系での動的性質と有限温度での物理量の解析を目標に計算手法の開発・改良を行っていききたいと考えている。これには必然的に大きな計算コストがかかるため、**RICC** の特徴を活かした大規模な並列化計算を行う必要があると考えられる。

第一原理電子状態シミュレーションは、一体近似の範囲であらゆる物質の電子状態を取り扱える強力な計算手法である。今後もこの特性を活かし、有用な固体材料の詳細な電子状態や輸送特性の解析をはじめ、理論の側から新物質の設計を行っていききたいと考えている。また、一体近似を超える解析を行う際に用いられる **tight-binding** 模型の構築にも第一原理計算は欠かせないため、上述した変分モンテカルロ法や密度行列繰り込み群法と組み合わせることでより多くの量子現象

の解明に役立てていききたいと考えている。

平成 25 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] Y. Sun, Z. Zhong, T. Shirakawa, C. Franchini, D. Li, Y. Li, S. Yunoki, and X.-Q. Chen, “Rocksalt SnS and SnSe: Native topological crystalline insulators”, *Phys. Rev. B* **88**, 235122 (2013).
- [2] Y. Wang, B. Wang, Q. Zhang, D. Shi, S. Yunoki, F. Kong, and N. Xu, “Tunable electronic properties of ZnO nanowires and nanotubes under a transverse electric field”, *J. Appl. Phys.* **113**, 034301 (2013).
- [3] I. Danshita, “Universal Damping Behavior of Dipole Oscillations of One-Dimensional Ultracold Gases Induced by Quantum Phase Slips”, *Phys. Rev. Lett.* **111**, 025305 (2013).
- [4] D. Yamamoto and I. Danshita, “Magnon supersolid and anomalous hysteresis in spin dimers on a triangular lattice”, *Phys. Rev. B* **88**, 014419 (2013).
- [5] D. Yamamoto, T. Ozaki, C. A. R. Sá de Melo, and I. Danshita, “First-order phase transition and anomalous hysteresis”, *Phys. Rev. A* **88**, 033624 (2013).
- [6] Y. Kato, D. Yamamoto, and I. Danshita, “Quantum Tricriticality at the Superfluid-Insulator Transition of Binary Bose Mixtures”, *Phys. Rev. Lett.* **112**, 055301 (2014).
- [7] D. Yamamoto, G. Marmorini, and I. Danshita, “Quantum Phase Diagram of the Triangular XXZ Model in a Magnetic Field”, to be published in *Phys. Rev. Lett.*

【国際会議などの予稿集、proceeding】

- [1] I. Danshita, “Quantum Phase Slips of Trapped Superfluid Bose Gases in One Dimension”, to be published in *J. Low Temp. Phys.*
- [2] D. Yamamoto, T. Ozaki, C. A. R. Sá de Melo, and I. Danshita, “First-Order Phase Transition and Anomalous Hysteresis of Binary Bose Mixtures in an Optical Lattice”, to be published in *J. Low Temp. Phys.*

【国際会議、学会などでの口頭発表】

- [1] T. Shirakawa and S. Yunoki, “Density-matrix renormalization group studies on a magnetic impurity in graphene”, American Physical Society March Meeting 2014, Denver, Colorado, USA, March 2014.
- [2] 渡部洋, 白川知功, 柚木清司, “半導体・半金属におけるエキシトン凝縮の可能性”, 第 3 回強相関電子系理論の最前線, 勝浦観光ホテル, 2013 年 12 月.
- [3] 白川知功, 柚木清司, “密度行列繰り込み群法を用いたグラフェン磁性不純物問題の解析”, 第 3 回強相関電子系理論の最前線, 勝浦観光ホテル, 2013 年 12 月.
- [4] 渡部洋, 関和弘, 柚木清司, “エキシトン凝縮に対する長距離クーロン相互作用とフェルミ面ネスティングの効果”, 日本物理学会第 69 回年次大会, 東海大学 (平塚), 2014 年 3 月.
- [5] 白川知功, 曾田繁利, Tao Li, 柚木清司, “2 次元密度行列繰り込み群法を用いた三角格子ハバード模型の解析”, 日本物理学会第 69 回年次大会, 東海大学 (平塚), 2014 年 3 月.
- [6] I. Danshita, “Binary Bose mixtures in optical lattices”, International Molecule-type Workshop on New Correlations in Exotic Nuclei and Advances of Theoretical Models, YITP, Kyoto, Japan, March 2014. (invited)
- [7] I. Danshita, D. Yamamoto, and Y. Kato, “Bright-like dark solitons and current-phase characteristics of

superfluid Bose mixtures near the first-order Mott transition”, American Physical Society March Meeting 2014, Denver, Colorado, USA, March 2014.

[8] I. Danshita, “Detecting superflow decay via quantum phase slips in damped dipole oscillations of one-dimensional ultracold gases”, Disorder in Condensed Matter and Ultracold Atoms, Villa Monastero, Varenna, Italy, June 2013.

[9] I. Danshita, “Damping of dipole oscillations of one-dimensional Bose gases induced by quantum phase slips”, 44th Annual Meeting of the Division of Atomic, Molecular, and Optical Physics, Quebec City, Quebec, Canada, June 2013.

[10] 段下一平, “二次元光格子系で期待される新奇な量子相転移”, 日本物理学会第 69 回年次大会, 東海大学 (平塚), 2014 年 3 月, 招待講演.

[11] 段下一平, “光格子中の一次元ボース気体における超流動流の崩壊”, 日本物理学会第 69 回年次大会, 東海大学 (平塚), 2014 年 3 月, 招待講演.

[12] 段下一平, 加藤康之, 山本大輔, “不連続モット絶縁体相転移近傍における超流動ボース混合気体の明的暗ソリトンと流れの位相特性”, 日本物理学会第 69 回年次大会, 東海大学 (平塚), 2014 年 3 月.

## 【その他】

### ポスター発表

[1] H. Watanabe, T. Shirakawa, and S. Yunoki, “Theoretical study of novel  $J_{\text{eff}}=1/2$  insulator and possible superconductivity in  $\text{Sr}_2\text{IrO}_4$ ”, Exotic States of Quantum Matter in Electronic Systems, Max Planck Institute, Dresden, Germany, July 2013.

[2] H. Watanabe, T. Shirakawa, and S. Yunoki, Novel insulating state and possible superconductivity in  $\text{Sr}_2\text{IrO}_4$ , The International Conference on Strongly Correlated Electron Systems, Ito international Research Center, Tokyo, Japan, August 2013.

[3] H. Watanabe, T. Shirakawa, K. Nishiguchi, and S. Yunoki, “Novel  $J_{\text{eff}}=1/2$  insulator and possible superconductivity in  $\text{Sr}_2\text{IrO}_4$  with large spin-orbit coupling”, FIRST-QS2C Workshop on “Emergent Phenomena of Correlated Materials”, Shinagawa Intercity Hall, Tokyo, Japan, November 2013.

[4] 渡部洋, 柚木清司, “1T-TaS<sub>2</sub>における Star-of-David 型 CDW と超伝導についての理論的研究”, 日本物理学会 2013 年秋季大会, 徳島大学, 2013 年 9 月.

[5] 白川知功, 柚木清司, “2 次元トポロジカル絶縁体 - モット絶縁体界面における朝永ラッティンジャー流体の振る舞い”, 日本物理学会 2013 年秋季大会, 徳島大学, 2013 年 9 月.

[6] I. Danshita, “Quantum phase slips in damped dipole oscillations of 1D ultracold gases”, The 11th US-Japan Joint Seminar on Quantum Electronics and Laser Spectroscopy “Ultimate Quantum Systems of Light- and Matter-Control and Applications”, Nara, Japan, April 2013.