

令和 3 年 6 月 4 日現在

機関番号：82401

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2017～2020

課題番号：17K14336

研究課題名(和文) 強相関物質における格子自由度の役割解明とフォノンがもたらす機能物性の探索

研究課題名(英文) Investigation of roles of phonons and phonon-induced functional properties in strongly-correlated materials

研究代表者

野村 悠祐 (Nomura, Yusuke)

国立研究開発法人理化学研究所・創発物性科学研究センター・研究員

研究者番号：20793756

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,200,000円

研究成果の概要(和文)：磁性や超伝導などの様々な機能物性を示す強相関物質においては、電子自由度がフォノン(格子振動)自由度と密接に絡み合って物性を発現する。これまで電子自由度が作り出す非自明な物性は盛んに研究されているが、強相関物質におけるフォノンの役割に関しては未解明な部分が多い。本研究の目的は、強相関系における電子とフォノン自由度の絡み合いの理解を進展させることであった。本研究では、機械学習を用いた強力な電子格子結合モデルのソルバーを開発し、現実物質におけるフォノン自由度の理解のための礎を築いた。また、近年発見されたニッケル酸化物超伝導体において、格子構造制御により超伝導性能が向上する可能性を示す重要な成果を得た。

研究成果の学術的意義や社会的意義

強相関系においてフォノンの自由度を理解することは、格子自由度を制御することによって新たな機能物性の可能性を探るための重要な知見をもたらす。これまで、フォノン自由度を解析できる強力な数値手法は限られていたが、本研究によって強力な数値手法を開発することで、フォノンの役割をより詳細に解析できるようになった。またニッケル酸化物超伝導体における物質デザインは、実験による新ニッケル酸化物合成のための有用な指針を与えた。このように理論と実験が協力することによって、新たな超伝導体を探す試みを促進することができる。

研究成果の概要(英文)：In strongly correlated materials, which exhibit various functional properties such as magnetism and superconductivity, electronic degrees of freedom are closely intertwined with phonon (lattice vibration) degrees of freedom. However, the role of phonons in strongly correlated materials remains largely unexplored. The purpose of this study was to advance our understanding of the interplay between electron and phonon degrees of freedom in strongly correlated systems. In this study, we developed a powerful solver for electron-phonon-coupled models using machine learning, and laid the foundation for understanding the phonon degrees of freedom in real materials. In addition, we have obtained important implications showing the possibility of enhancing superconductivity by controlling the lattice structure in the recently discovered nickel oxide superconductors.

研究分野：物性理論

キーワード：電子格子相互作用 機械学習 ニッケル酸化物 物質デザイン 超伝導 第一原理計算 強相関電子系

1. 研究開始当初の背景

電子間のクーロン反発が重要な役割を果たす強相関物質では、高温超伝導、外場に対する巨大な応答（例:巨大磁気抵抗）、多彩な磁気構造など、様々な興味深い性質を示す。これらの現象はフェルミ準位近傍の低エネルギー電子が互いにクーロン相互作用で反発し合うだけでなく、格子振動の影響も受けながら集団運動することによって引き起こされる。例えば、遷移金属酸化物の金属絶縁体転移には格子構造が密接に関わっているほか、 SrTiO_3 基盤上の FeSe 薄膜における超伝導転移温度の上昇にフォノンが重要な役割を果たしているという報告[1]もある。また、フラーレン超伝導体ではフォノンと電子相関の特異的な協力という非従来型の機構により高温超伝導が引き起こされる[2]。電子自由度だけのモデルで解析されることの多い銅酸化物高温超伝導体においても、電子とフォノンの自由度が結合している明確な証拠が得られており[3]、強相関物質の真の物性理解のためには、フォノン自由度を無視することはできない。また、超伝導転移温度上昇に代表されるように、フォノンによって物質の機能性が向上する可能性がある。

このように、強相関系において、フォノン自由度が果たす役割は重要であるが、電子・格子自由度の絡み合いを正確に解析できる数値手法が限られていた。そのため、ハバードモデルやその拡張を用いた研究により電子自由度が作り出す非自明な物性は盛んに研究されているものの、強相関物質におけるフォノンの役割に関しては未解明な部分が多く残されている。

2. 研究の目的

本研究では、新たな手法の開発とその応用により、電子自由度とフォノン自由度の協奏・競合関係について明らかにし、格子自由度がもたらす新たな機能物性の可能性を探ることを目的とした。そのための第一歩として、まず電子と格子が結合したハミルトニアンを高精度に解析することのできる手法の開発を目指した。

3. 研究の方法

電子と格子が結合した系の自由度の運動は量子多体波動関数によって記述される。量子多体系における多数の自由度が複雑に絡み合う非自明な量子もつれは、指数関数的に大きな数の自由度の配置の重ね合わせで記述され、量子多体波動関数を厳密に求めることは一般に不可能である。これまで人間の手によって考案された試行波動関数を用いられてきたが、量子多体系が示す多彩な物性を定性的のみならず定量的に理解するには、人間の脳では限界がきている。本研究では、膨大なデータセットからその本質的なパターンを抽出することに長けている機械学習を用いることにより、指数関数的に大きな配置の重ね合わせである量子もつれの本質を学習させる。具体的には、人工ニューラルネットワークによる量子状態表現の手法開発・応用を推進することで、電子・格子結合系に対する新たな強力な波動関数法を確立する。

また、研究期間の途中で、ニッケル酸化物において新たな超伝導の報告があった。強相関系においては格子自由度と電子自由度が密接に絡み合っているため、格子構造を制御することによって超伝導物性を制御できる可能性がある。密度汎関数理論(DFT)に基づく第一原理計算を用いた層状ニッケル酸化物の系統的な物質デザインを行い、格子構造の安定性の調査と格子構造変化による電子状態の変化を調査する。

4. 研究成果

(1) 人工ニューラルネットワークを用いた電子格子結合系に対する強力な数値手法の開発

電子と格子が結合した系のハミルトニアンの固有量子状態を正確に求める機械学習手法の開発を行った。固有量子状態の中でも一番エネルギーの低い固有状態である基底状態（絶対零度で一番安定な状態で物質を冷やしていった時の性質を記述する）の波動関数を求めるための手法開発を行った。これまでの手法では主に何かしらの物理的直観に基づいた変分波動関数を使用していたが、様々な関数系を柔軟に表現することのできる学習機械を用いると、物理的

直観に頼ることなく、これまでよりも精度の高い基底状態計算が可能になることがわかってきている。

本研究では機械学習の分野で使われる関数の中でも、人工ニューラルネットワークの一種である制限ボルツマンマシン(Restricted Boltzmann Machine、略してRBM)に着目した。試行波動関数の形としては、まず電子系と格子系が相関を持つような波動関数を予め用意し、さらにそれよりも高度な相関をRBMによって取り組む形を採用した。この変分波動関数を1次元のホルシュタイン模型(代表的な電子と格子が結合した模型)に適用したところ、これまで提案されている変分波動関数よりも精度が大幅に向上することがわかった[4]。精度の高い計算は電子格子結合系の性質の理解には必須であり、この精度向上は電子格子結合系の理解を促進する重要な成果である。

(2) ニッケル酸化物における格子構造制御による物性制御の可能性の提案

2019年8月末に、ドーピングした無限層ニッケル酸化物 NdNiO_2 における超伝導の報告があった[5]。 NdNiO_2 は NiO_2 面と Nd 面が交互に積み重なった層状の構造をしており、 CuO_2 面が重要な役割を果たす銅酸化物高温超伝導体と構造が似ていることから注目を集めている。本研究では世界に先駆けて、 NdNiO_2 の電子構造を調べた[6]。その結果、 NiO_2 面上の電子が互いに強く相互作用しあう強相関電子系を形成しているという点で銅酸化物と似ているものの、Nd 層に存在する軌道がフェルミポケットを形成するために、 NiO_2 面が母物質の時点でホールドーピングされてしまっていることがわかった。この自己ドーピングは銅酸化物には存在しない。

ニッケル酸化物は層状構造をしているので、層の構造を変える(格子構造を制御することによって、電子状態を制御できる可能性がある。研究代表者らは、層の組成が変わった新たなニッケル酸化物を系統的に提案し、その格子構造の安定性と、格子構造が電子状態に与える影響を調べた。その結果、余計なフェルミ面が排除され、自己ドーピングの存在しない(バンド構造がより銅酸化物に近くなる)安定な層状ニッケル酸化物の提案に成功した[7]。これらの新物質は、ニッケル酸化物における高温超伝導を調べる格好の舞台となると期待される[8]。

<引用文献>

- [1] J. J. Lee *et al.*, *Nature* **515**, 245 (2014)
- [2] Y. Nomura *et al.*, *Sci. Adv.* **1**, e1500568 (2015)
- [3] M. Le Tacon *et al.*, *Nat. Phys.* **10**, 52 (2014)
- [4] Y. Nomura, *J. Phys. Soc. Jpn.* **89**, 054706 (2020) [Editor's choice]
- [5] D. Li *et al.*, *Nature* **572**, 624 (2019)
- [6] Y. Nomura *et al.*, *Phys. Rev. B* **100**, 205138 (2019) [Editor's suggestion]
- [7] M. Hirayama *et al.*, *Phys. Rev. B* **101**, 075107 (2020)
- [8] Y. Nomura *et al.*, *Phys. Rev. Research* **2**, 043144 (2020)

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計9件（うち査読付論文 9件/うち国際共著 3件/うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 Otsuki Junya, Yoshimi Kazuyoshi, Shinaoka Hiroshi, Nomura Yusuke	4. 巻 99
2. 論文標題 Strong-coupling formula for momentum-dependent susceptibilities in dynamical mean-field theory	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 165134-1 ~ 17
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.99.165134	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Tadano Terumasa, Nomura Yusuke, Imada Masatoshi	4. 巻 99
2. 論文標題 Ab initio derivation of an effective Hamiltonian for the La ₂ CuO ₄ /La _{1.55} Sr _{0.45} CuO ₄ heterostructure	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 155148-1 ~ 12
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.99.155148	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Shinaoka Hiroshi, Nomura Yusuke, Gull Emanuel	4. 巻 252
2. 論文標題 Efficient implementation of the continuous-time interaction-expansion quantum Monte Carlo method	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Computer Physics Communications	6. 最初と最後の頁 106826 ~ 106826
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.cpc.2019.06.016	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 Nomura Yusuke, Hirayama Motoaki, Tadano Terumasa, Yoshimoto Yoshihide, Nakamura Kazuma, Arita Ryotaro	4. 巻 100
2. 論文標題 Formation of a two-dimensional single-component correlated electron system and band engineering in the nickelate superconductor NdNiO ₂	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 205138-1 ~ 11
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.100.205138	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Pizzi Giovanni et al.	4. 巻 32
2. 論文標題 Wannier90 as a community code: new features and applications	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Physics: Condensed Matter	6. 最初と最後の頁 165902 ~ 165902
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1361-648X/ab51ff	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する

1. 著者名 Hirayama Motoaki, Tadano Terumasa, Nomura Yusuke, Arita Ryotaro	4. 巻 101
2. 論文標題 Materials design of dynamically stable d9 layered nickelates	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 075107-1 ~ 18
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.101.075107	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Darmawan Andrew S., Nomura Yusuke, Yamaji Youhei, Imada Masatoshi	4. 巻 98
2. 論文標題 Stripe and superconducting order competing in the Hubbard model on a square lattice studied by a combined variational Monte Carlo and tensor network method	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 205132-1-11
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.98.205132	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Carleo Giuseppe, Nomura Yusuke, Imada Masatoshi	4. 巻 9
2. 論文標題 Constructing exact representations of quantum many-body systems with deep neural networks	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Nature Communications	6. 最初と最後の頁 5322-1-11
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41467-018-07520-3	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する

1. 著者名 Yusuke Nomura, Andrew S. Darmawan, Youhei Yamaji, and Masatoshi Imada	4. 巻 96
2. 論文標題 Restricted Boltzmann machine learning for solving strongly correlated quantum systems	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Phys. Rev. B	6. 最初と最後の頁 205152-1-8
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.96.205152	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

[学会発表] 計22件 (うち招待講演 12件 / うち国際学会 11件)

1. 発表者名 Yusuke Nomura
2. 発表標題 Machine learning for solving quantum many-body Hamiltonians
3. 学会等名 International Conference on Frontiers of Correlated Electron Sciences (FCES19) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 野村悠祐
2. 発表標題 物性物理における機械学習
3. 学会等名 パリ異分野融合科学者の会 第1回研究会 (招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Yusuke Nomura
2. 発表標題 Machine learning for studying strongly correlated systems
3. 学会等名 The 5th Conference on Condensed Matter Physics (CCMP) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Yusuke Nomura
2. 発表標題 Machine learning solvers for strongly-correlated systems
3. 学会等名 Computational Approaches to Quantum Many-body Problems (CAQMP2019) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Yusuke Nomura
2. 発表標題 Machine learning for solving strongly-correlated systems
3. 学会等名 International Conference on Strongly Correlated Electron Systems (SCES2019) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 野村悠祐
2. 発表標題 ニッケル酸化物超伝導体NdNiO ₂ における強相関電子系形成とそのバンドエンジニアリング
3. 学会等名 基研研究会 「電子相関が生み出す超伝導現象の未解決問題と新しい潮流」
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Yusuke Nomura
2. 発表標題 Machine learning for analyzing strongly-correlated systems
3. 学会等名 International Workshop on High-Performance Computing and Programming on Quantum Chemistry and Physics 2020 (HPCQCP2020) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Yusuke Nomura
2. 発表標題 Nickelate superconductivity –Formation of self-doped 2D single-orbital correlated electron systems in NdNiO ₂
3. 学会等名 APS March Meeting (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Yusuke Nomura
2. 発表標題 Symmetry-adapted Wannier functions
3. 学会等名 School on Wannier90 v3.0: new features and applications (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 野村悠祐
2. 発表標題 機械学習を用いた量子多体系の基底状態計算
3. 学会等名 物性研究所スパコン共同利用・CCMS合同研究会「計算物質科学の今と未来」(招待講演)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Yusuke Nomura
2. 発表標題 Machine learning using Boltzmann machines for solving strongly correlated systems
3. 学会等名 Computational Approaches to Magnetic Systems (CAMS 2018) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Yusuke Nomura
2. 発表標題 Machine-learning solvers for quantum many-body systems
3. 学会等名 日本物理学会 2018度秋季大会 (招待講演)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Yusuke Nomura
2. 発表標題 Recent progress in machine-learning solvers: calculations of excited states and extensions to electron-phonon coupled systems
3. 学会等名 Mini-workshop on "Machine Learning in Physics" (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Yusuke Nomura
2. 発表標題 Solving quantum many-body Hamiltonians with artificial neural networks
3. 学会等名 Tensor Network States: Algorithms and Applications (TNSAA) 2018-2019 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 野村悠祐
2. 発表標題 制限付きボルツマンマシンを用いた量子多体系の機械学習ソルバーの開発
3. 学会等名 第八回「強相関電子系理論の最前線」(招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 野村悠祐
2. 発表標題 電子格子相互作用のある系に対する機械学習ソルバーの開発
3. 学会等名 日本物理学会 第74回年次大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 野村悠祐
2. 発表標題 強相関系の数値的研究: フラールン超伝導体の研究・機械学習の技術を使った多体系ソルバー
3. 学会等名 第38回kyutechセミナー・応用物理学会特別講演会(招待講演)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Giuseppe Carleo、野村悠祐(登壇者)、今田正俊
2. 発表標題 深層ボルツマンマシンを用いた量子多体系の基底状態波動関数の厳密な構築
3. 学会等名 日本物理学会 第73回年次大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Yusuke Nomura, Andrew S. Darmawan, Youhei Yamaji, Masatoshi Imada
2. 発表標題 Restricted-Boltzmann-Machine Learning for Solving Hubbard and Heisenberg Models
3. 学会等名 APS March meeting (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 野村悠祐
2. 発表標題 制限ボルツマンマシンを用いた量子多体系の機械学習ソルバー
3. 学会等名 強的秩序とその操作に関わる研究グループ 第6回研究会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 野村悠祐
2. 発表標題 制限付きボルツマンマシンを用いた量子多体系の機械学習ソルバーの開発
3. 学会等名 第七回「強相関電子系理論の最前線」(招待講演)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 野村悠祐、Andrew S. Darmawan、山地洋平、今田正俊
2. 発表標題 格子上の量子多体系のための、多変数変分モンテカルロ法を組み合わせたニューラル・ネットワーク法の開発
3. 学会等名 日本物理学会 2017年秋季大会
4. 発表年 2017年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

<p>Yusuke Nomura's Website https://sites.google.com/view/yusuke-nomuras-webpage-jp RIKEN Research highlights https://www.riken.jp/en/news_pubs/research_news/rr/20200313_1/</p>

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
--	---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関			
米国	ミシガン大学			
英国	オックスフォード大学	インペリアル・カレッジ・ロンドン		
スイス	EPFL			
米国	Flatiron Institute			
United States of America	Flatiron Institute			
France	Ecole Polytechnique			
Germany	University of Hamburg			