

令和元年6月19日現在

機関番号：12401

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2016～2018

課題番号：16K17735

研究課題名（和文）第一原理計算による5dパイロクロア酸化物超格子系の物性解明

研究課題名（英文）First-principle studies of superlattice systems of 5d pyrochlores

研究代表者

品岡 寛 (Shinaoka, Hiroshi)

埼玉大学・理工学研究科・助教

研究者番号：40773023

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 2,800,000円

研究成果の概要（和文）：強相関遷移金属化合物界面の電子構造計算を実現するため、その基盤技術である量子モンテカルロ法に基づく量子不純物ソルバーの開発を行った。特に、混成項展開法（CT-HYB）、相互作用展開法（CT-INT）の2つの異なる原理に基づいたC++コードを開発した。また、スパースモデリングと呼ばれるデータ科学の手法を利用して、量子モンテカルロデータからのスペクトル関数の推定、温度グリーン関数のデータサイズ圧縮が可能であることを示した。並行して、強相関化合物の物性を計算するためのオープンソースソフトウェアDCoreを開発した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

電子間の強い斥力から非自明な量子多体現象が生じる。遷移金属酸化物は、その舞台として近年精力的に研究されている。本研究計画では、その物性を第一原理計算から明らかにする基礎技術が成果として得られた。特に、動的平均場近似法に基づく計算において必須となる高性能な量子不純物ソルバーの開発、スペクトル関数の推定技術が開発された。また、温度グリーン関数をコンパクトに表現する新しい方法論が開発された。現実の物質の物性の効率的な計算や実験との比較において重要な技術である。

研究成果の概要（英文）：We developed open-source softwares implementing continuous-time quantum impurity solvers based on the interaction-expansion and hybridization-expansion algorithms. We developed a new algorithm for numerical analytic continuation of quantum Monte Carlo data to spectral functions. We found a new basis set for representing imaginary-time dependence of Matsubara Green's functions. The new basis greatly reduces memory footprints of quantum many-body calculations. We developed an open-source software for computing properties of strongly correlated electronic systems "DCore" based on dynamical mean-field theory.

研究分野：第一原理計算、量子多体系

キーワード：第一原理計算 量子多体系 量子モンテカルロ法

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

化学置換などで系統的に物性がコントロールできる点で、パイロクロア酸化物  $A_2Ir_2O_7$  ( $A=Y, Pr, \text{etc.}$ ) はスピン軌道相互作用と電子相関の競合現象を調べるのに理想的な系である。低温状態は、常磁性金属から反強磁性絶縁体まで  $A^{3+}$  イオン半径によって系統的に変化し、反強磁性相では Ir 磁気モーメントが all-in/all-out 型の非線型磁気構造をとる。近年、次元性をコントロールすることで、バルク系とは異なる量子相を実現することが提案されている。例えば、 $Y_2Ir_2O_7$  の超格子系で、非自明なチャーン数を持つ量子相等の存在の可能性が第一原理計算から示された (X. Hu et al., Scientific Reports, 2015)。また、薄膜、超格子系における巨大な異常ホール効果が理論的に議論されている (B.-J. Yang and N. Nagaosa, PRL, 2014)。

超格子系に対する今後の実験の進展が期待される中、第一原理計算による物性解明が急務である。しかし、当物質に対する従来の第一原理計算では、強相関効果が十分取り込まれない LDA や LDA+ $U$  法が用いられてきた (LDA は局所密度近似)。一方、強相関効果を取り扱う手法として、LDA+DMFT 法が多くの遷移金属酸化物に近年適用されている (DMFT=動的平均場近似)。しかし、非線型磁気構造の取り扱いが難しく、当物質への適用は長年行われなかった。その中、2015 年に、品岡等が先進的な LDA+DMFT 法による計算結果を初めて報告した。その結果、金属相で準粒子バンド幅が LDA の結果に比べて顕著に繰り込まれるなど、従来の手法による記述の不十分さが露になった。そのため、魅力的な物性が期待される超格子・薄膜系においても、実空間に拡張された LDA+DMFT 法を使い、電子状態を明らかにする必要がある。一方、5d3 の電子配置を持つオスmium  $Cd_2Os_2O_7$  酸化物の実験が進展している (S. Tardif et al., PRL, 2015 等)。5d5 の電子配置を持つイリジウム系との比較研究から、軌道占有度による物性の変化を系統的に調べることができる。

### 2. 研究の目的

パイロクロアイリジウム酸化物  $A_2Ir_2O_7$  ( $A=Y, Pr, \text{etc.}$ ) は、スピン軌道相互作用と電子相関の競合による非自明な量子現象を探索する理想的な舞台である。特に、薄膜、超格子系ではバルク系とは異なる量子相 (トポロジカル相) の存在が理論的に予言されており、実験および第一原理計算による検証が望まれている。本研究では、強相関効果を考慮した相対論的第一原理計算を用いて、パイロクロアイリジウム酸化物の薄膜、超格子系の電子状態を明らかにする。それに伴う計算手法の開発も目的とする。さらに、異なる 5d 軌道占有度を持つオスmiumパイロクロア酸化物との比較研究を通し、物性の軌道占有度依存性や多軌道効果を明らかにする。

### 3. 研究の方法

5d 強相関化合物の LDA+DMFT 計算を実現するため、以下の方法を採用した。

1. 連続時間量子モンテカルロ法に基づく量子不純物ソルバーの実装と高速化  
大規模な系の計算には、高速な量子不純物ソルバーの開発が不可欠である。
2. 実周波数スペクトルの推定法の開発  
実験データ (角度分解光電子分光など) との比較には、虚時間で計算されたデータから実周波数のスペクトルを効率的に推定する必要がある。
3. 温度グリーン関数法の圧縮技術の開発  
2 粒子グリーン関数を用いた感受率の高速な計算には、温度グリーン関数をコンパクトに表現する必要がある。
4. LDA+DMFT 計算ソフトウェアの開発と公開  
バンド計算から出発し、複雑な結晶の計算を行い、結果の再現性を担保するには、オープンソースソフトウェアとして LDA+DMFT 計算コードを整備する必要が生じた。

### 4. 研究成果

1. 連続時間量子モンテカルロ法に基づく量子不純物ソルバーの実装と高速化  
品岡等は、混成項展開に基づく連続時間量子モンテカルロ法を C++ で実装した。独自開発した高速化技術を盛り込んだ。開発成果は、オープンソースソフトウェアおよび学術論文 (雑誌論文 8) として公開した。また、相互作用展開に基づく連続時間量子モンテカルロ法コードも開発し、現在論文の投稿中である。
2. 実周波数スペクトルの推定法の開発  
データ科学手法「スパースモデリング」を量子多体系に応用し、虚時間グリーン関数データから実周波数スペクトル関数を推定する手法を開発した (雑誌論文 7)。この推定問題は、悪条件問題として知られ、長年未解決問題であった。共同研究者と品岡等は、グリーン関数データをコンパクトに表現する基底に射影した後、逆問題に正則化

を施すことで、入力データに含まれる有意な情報だけを用いて、スペクトル関数を推定することに成功した。

### 3. 温度グリーン関数法の圧縮技術の開発

上記の研究において、任意の温度（虚時間）グリーン関数をコンパクトに表現する新しい物理的な直交基底系を発見した。この基底は、虚時間と実周波数データを結び積分方程式の積分核から得られることから、中間表現(Intermediate representation=IR)と名付けられた。この基底を利用することで、量子モンテカルロ法による計算を大幅に高速化できることを示した（雑誌論文 6）。

品岡等は、IR 基底は、2 粒子グリーン関数をコンパクトに表現することであることを示した（雑誌論文 5）。この基底を使うことで、LDA+DMFT 法による磁気秩序計算を高速化することができる。また、この基底を使って、2 粒子グリーン関数を高速に量子モンテカルロ計測する手法を開発した（学会発表 1, 2）。この手法では、テンソル学習理論に基づく 2 粒子グリーン関数の低ランク近似法を用いている。

共同研究者と品岡は、IR 基底関数を高精度に計算するアルゴリズムを開発した（雑誌論文 4）。得られた基底関数を解析することにより、データを表現するのに必要な基底関数の数は逆温度に対して高々対数的にしか増大しないことを示した。これは従来の基底系では、データサイズが冪的に増大することから定性的な改善になっている。さらに、基底関数のデータと量子多体計算に向けたライブラリを `irbasis` という名前のオープンソースソフトウェアとして公開した（雑誌論文 1）。Python および C++ から利用可能である。

### 4. LDA+DMFT 計算ソフトウェアの開発と公開

超格子系など複雑な構造を持つ系の計算には、十分整備された LDA+DMFT 計算ソフトウェアが必要であることが分かった。そのため、共同研究者と品岡等は、DCore と呼ばれるオープンソースソフトウェアを共同開発した。このソフトウェアを使うことで、バンド計算の結果から直ちに、LDA+DMFT 計算が可能である。また、前述の量子モンテカルロ法に基づく量子不純物ソルバーを利用可能である。DCore は github 上で世界中に公開されており、招待講演を行った（学会発表 5）。

### 5. その他の業績

LDA+DMFT 計算では、低エネルギー近傍の有効自由度に射影した有効モデルを構築する必要がある。特に、有効相互作用を見積もる方法として、近年制限乱雑位相近似に基づく計算が用いられている。雑誌論文 3 では、その精度を評価し、制限乱雑位相近似は、遮蔽の効果を過大評価する傾向にあることを明らかにした。その誤差は、制限汎関数繰り込み群を用いることでキャンセルすることができることを示した。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 11 件)

1. Chikano Naoya, Yoshimi Kazuyoshi, Otsuki Junya, [Shinaoka Hiroshi](#), `irbasis`: Open-source database and software for intermediate-representation basis functions of imaginary-time Green's function, *Computer Physics Communications* (2019) [in press], 10.1016/j.cpc.2019.02.006 [査読有]
2. Otsuki Junya, Yoshimi Kazuyoshi, [Shinaoka Hiroshi](#), Nomura Yusuke, Strong-coupling formula for momentum-dependent susceptibilities in dynamical mean-field theory, *Physical Review B* 99, 165134(1-17)(2019), 10.1103/PhysRevB.99.165134 [査読有]
3. Honerkamp Carsten, [Shinaoka Hiroshi](#), Assaad Fakhri F., Werner Philipp, Limitations of constrained random phase approximation downfolding, *Physical Review B* 98, 235151(1-9) (2018), 10.1103/PhysRevB.98.235151 [査読有]
4. Chikano Naoya, Otsuki Junya, [Shinaoka Hiroshi](#), Performance analysis of a physically constructed orthogonal representation of imaginary-time Green's function, *Physical Review B* 98, 035104(1-11)(2018), 10.1103/PhysRevB.98.035104 [査読有]
5. [Shinaoka Hiroshi](#), Otsuki Junya, Haule Kristjan, Wallerberger Markus, Gull Emanuel, Yoshimi Kazuyoshi, Ohzeki Masayuki, Overcomplete compact representation of two-particle Green's functions, *Physical Review B* 97, 205111(1-14)(2018), 10.1103/PhysRevB.97.205111 [査読有]
6. [Shinaoka Hiroshi](#), Otsuki Junya, Ohzeki Masayuki, Yoshimi Kazuyoshi, Compressing Green's function using intermediate representation between imaginary-time and real-frequency domains, *Physical Review B* 96, 035147 (1-8) (2017), 10.1103/PhysRevB.96.035147 [査読有]
7. Otsuki Junya, Ohzeki Masayuki, [Shinaoka Hiroshi](#), Yoshimi Kazuyoshi, Sparse modeling

- approach to analytical continuation of imaginary-time quantum Monte Carlo data, Physical Review E 95, 061302(1-6) (2017), 10.1103/PhysRevE.95.061302 [査読有]
8. Shinaoka Hiroshi, Emanuel Gull, Philipp Werner, Continuous-time hybridization expansion quantum impurity solver for multi-orbital systems with complex hybridizations, Computer Physics Communications 215, 128-136 (2017), 10.1016/j.cpc.2017.01.003 [査読有]

[学会発表](計 18 件)

1. 品岡寛, Dominique Geffroy, Markus Wallerberger, Jan Kune, Emanuel Gull, 吉見一慶, 大槻純也, 量子モンテカルロ法における二粒子グリーン関数の圧縮計測, 日本物理学会第 74 回年次大会(2019 年)
2. Dominique Geffroy, Hiroshi Shinaoka, Jan Kunes, Junya Otsuki, Markus Wallerberger, Emanuel Gull, Kazuyoshi Yoshimi, Dynamical susceptibility in DMFT: a sparse QMC sampling approach, ドイツ物理学会 March meeting 2019(国際学会), 2019 年
3. 品岡寛, 大槻純也, 大関真之, 吉見一慶, 多体グリーン関数の自然な疎表現と計算物理学への応用, 日本物理学会第 73 回年次大会 (2018)
4. 近野直也, 品岡寛, 大槻純也, 多体グリーン関数の疎表現を与える基底とその性質, 日本物理学会第 73 回年次大会 (2018)
5. 品岡寛, 河村光晶, 吉見一慶, 加藤岳生, 大槻純也, 量子格子模型プログラムパッケージ DCore (integrated DMFT software for CORrelated Electrons)の開発、物性研スパコン 共同利用・CCMS 合同研究会 (2018)

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。