

令和 5 年 6 月 22 日現在

機関番号：82108

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2020～2022

課題番号：20H01850

研究課題名（和文）計算・実験科学の融合による有効ハミルトニアン構築と強相関トポロジカル物質への応用

研究課題名（英文）Effective hamiltonian construction through combining numerical simulation with experimental approaches and its application to strongly correlated topological materials

研究代表者

山地 洋平（Yamaji, Youhei）

国立研究開発法人物質・材料研究機構・エネルギー・環境材料研究拠点・主任研究員

研究者番号：00649428

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 13,700,000円

研究成果の概要（和文）：磁化曲線の実験データと量子物質シミュレータH、ベイズ最適化プログラムPHYSBOを用い、Ruハロゲン化合物の有効ハミルトニアンHの決定を進めた。またキタエフ物質の物質合成と物性測定を進め、結晶構造・磁気構造・磁化率・磁気輸送係数・ラマン分光学スペクトルなどの実験データを収集した。これらのデータに基づき、 $-RuCl_3$ 、 $RuBr_3$ 、および $RuI_3$ の第一原理計算との比較を進め、混晶系におけるモット転移の機構を提案した。これらの成果により、量子スピン液体探索に向けた物質空間が拡張された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

磁性や超伝導に代表される固体中の低エネルギー電子物性を理解する上で重要な役割を果たすのは、シュレディンガー方程式に現れる裸の電子質量や真空中のクーロン相互作用ではなく、結晶格子や高エネルギーからの影響を繰り込んだ有効質量や有効相互作用、ひいてはそれらによって特徴付けられる低エネルギー有効ハミルトニアンである。また、有効ハミルトニアン空間の中で現実物質を位置付けることで、所望の物性を示す物質へ近づくための指針を得ることができる。本研究で得られた実験データから有効ハミルトニアンを構成する手法は、従来の第一原理計算が困難な量子物質の理解と物質設計を推進する上で重要な役割を果たすことが期待される。

研究成果の概要（英文）：An effective low energy hamiltonian for a prototypical Kitaev material,  $-RuCl_3$ , is derived by combining a numerical quantum materials simulator H and experimental data on magnetization of  $-RuCl_3$  through a Bayesian optimization program package PHYSBO. Synthesis and characterization of newly found Kitaev materials have been done. The crystal structures, magnetic orders, magnetization, magneto-transport, and Raman spectra were observed. From these data, the ab initio electronic structure calculations and theoretical studies on these Kitaev materials were carried out and the Mott transition mechanism of  $Ru(Br,I)_3$  is clarified. The present results provide us wider variety of materials to realize a quantum spin liquid phase.

研究分野：強相関量子物質の理論と数値シミュレーション

キーワード：量子スピン液体 機械学習 ルテニウムハロゲン化合物

## 1. 研究開始当初の背景

分子や固体に閉じ込められた多体電子系は、分子や固体の骨格となるイオンからの影響と、電子質量に基づく運動エネルギー項ならびに真空におけるクーロン相互作用項からなるハミルトニアン  $H$  によって記述される。しかし、磁性や超伝導に代表される固体中の低エネルギー電子物性を理解する上では、 $H$  に現れる裸の電子質量や真空中のクーロン相互作用ではなく、結晶格子や高エネルギーからの影響を繰り込んだ有効質量や有効相互作用、ひいてはそれらによって特徴付けられる低エネルギー有効ハミルトニアンが重要となる。こうした有効ハミルトニアンは、物性に寄与する自由度を浮かび上げ、それらの自由度がどのように相互作用するかを記述するため、強相関電子系の磁性や高温超伝導を研究する上で、中心的な役割を果たしてきた。

**[理論と実験に基づくアプローチ]** 従来、実験データと物理量の理論予測とを比較することで、有効ハミルトニアンが推定されてきた。フェルミ液体論によれば、金属の比熱の温度依存性から多体電子系の有効質量  $m^*$  が、モット絶縁体の磁気感受率の温度依存性から得られたキュリー-ワイス温度は、局在スピン間の支配的な交換相互作用  $J$  の見積もりを与えてきた。しかし、有効質量  $m^*$  には結晶格子による効果と相互作用効果が混在している。また、キュリー-ワイス則から見積もられた交換相互作用  $J$  がどの磁性イオン間の相互作用なのかは一般には明らかではない。

そこで、フェルミ液体論やキュリー-ワイス則のような普遍的な法則だけに頼るのではなく、より化合物の個性に迫るための研究が展開されてきた。磁性イオンの種類や局所的な環境からスピン間の相互作用を知るすべを教えてくれるグッドイナフ・金森則やジャロシンスキー守谷相互作用の導出は、その典型例である。また、銅酸化物において高温超伝導の担い手となるキャリアとそれらの間の相互作用を明らかにした Zhang-Rice の一重項の理論は、複雑な結晶構造を有する一群の銅酸化物から高温超伝導を担う自由度を抽出して有効ハミルトニアンを構成した例の一つである。

**[計算科学に基づくアプローチ]** 2000 年前後から、計算機と計算科学手法の発達により、結晶構造から第一原理電子状態計算に基づいて有効ハミルトニアンを構成する手法が急速に発展してきた。加えて、有効ハミルトニアンから物理量を計算して実験と比較するという有効ハミルトニアンの妥当性を検証するために不可欠なプロセスも洗練されてきている。

**[データ科学に基づくアプローチ]** 本研究開始から遡ること数年前、実験・理論・計算科学に続く第 4 の科学と目されるデータ科学を取り入れることで、有効ハミルトニアン導出に新たな発展をもたらされた。従来、有効ハミルトニアンに含まれるパラメータから重要なものを少数選出し、実験データを再現するように最適化することが広く行われてきた。しかし、近年の第一原理計算による有効ハミルトニアン導出の研究例を鑑みるに、物質の個性を反映するためには多数のパラメータを導入することが避けられない。パラメータ数が増えると、過学習によって未知の物理量に対する予測能力が著しく低下してしまうことが危惧されるため、過学習を避ける工夫が必要不可欠となる。

これら、高次元のパラメータ空間内での効率的な最適化や過学習を避ける手法の研究は、データ科学や機械学習の研究において長年注目を集めてきた課題である。これらの知見を取り入れることによって、物理量から有効ハミルトニアンを推定する研究が進み始めていた。しかしながら、有効ハミルトニアンから物理量を計算する過程の計算コストが障壁となり、本研究計画開始以前の研究では、古典近似や平均場近似が用いられていた。

**[量子多体シミュレータ]** 古典近似や平均場近似だけでは捉え難い多彩な量子相やダイナミクスが創発することが、量子多体問題を解く難しさの典型例である。裏を返せば、量子多体系の複雑さ、内包されている膨大な情報を圧縮したものが、有効ハミルトニアンに他ならない。計算科学によって有効ハミルトニアンから物理量を計算し予測する『情報の展開』、そして、データ科学によって実験データから有効ハミルトニアンを導く『推定を伴う情報圧縮』、これら圧縮・展開双方の鍵を握る量子多体系の数値シミュレータは、古典計算機とともに絶え間なく発展を続けてきた。

**[有効ハミルトニアンに基づく物質設計]** 以上の背景に加え、近年ある物質群について、定量的な有効ハミルトニアン導出が待ち望まれている。絶対零度においても自発的な対称性の破れを示さず、粒子が同時に反粒子でもある『マヨラナ粒子』が準粒子として現れる「キタエフの量子スピン液体」と呼ばれる量子相の研究が急速に進んでいる。この量子スピン液体相を結晶固体で実現するために、イリジウム酸化物やルテニウム化合物の研究が進んできた。特に  $\alpha$ - $\text{RuCl}_3$  が注目を集めているが、残念ながら、この物質の実験データを全て説明できる第一原理有効ハミルトニアンは存在していない。 $\alpha$ - $\text{RuCl}_3$  の定量的な有効ハミルトニアンの導出に加えて研究開始当時には、量子スピン液体相が基底状態となる物質を設計したいという要求が高まってきていた。

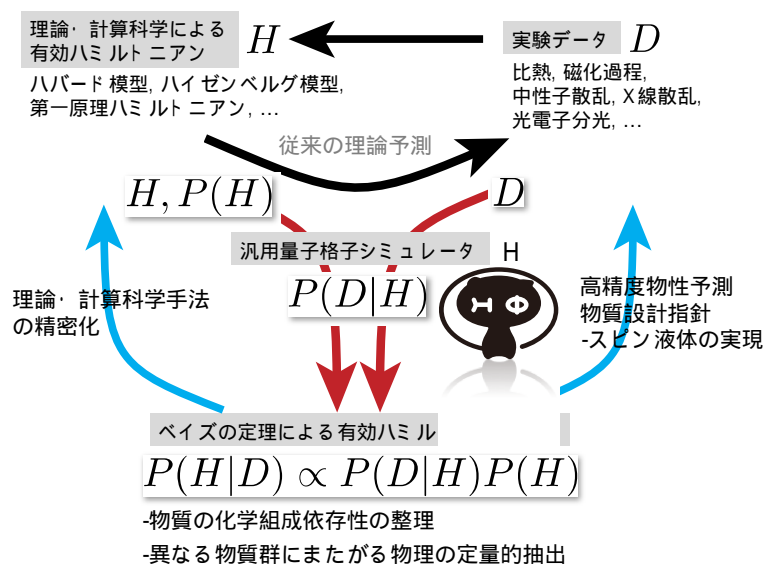
## 2. 研究の目的

本研究では、実験・理論・計算科学的アプローチを、データ科学的知見によって統合し、有効ハミルトニアンの導出に革新をもたらすことに挑戦した。本計画の中核を担う研究者が開発を主導してきた独自の量子多体系シミュレータ H を用い、理論あるいは第一原理電子状態計算に

基づく有効ハミルトニアンを事前知識、実験データを入力データとして、有効ハミルトニアンのベイズ最適化を行うワークフローの開発・実装・公開を目指した。さらに、開発された有効ハミルトニアン推定手法を、研究分担者らが発見した新物質 RuBr<sub>3</sub> を含む量子スピン液体候補物質(以下ではキタエフ物質と呼ぶ)に適用することで、その有効ハミルトニアンの決定と物理量の定量的な比較を行う。これらの研究を通して、量子スピン液体を実現する物質設計指針の抽出と物質開発へのフィードバックを目指した。

### 3. 研究の方法

実験データと第一原理計算に基づいて強相関量子物質の有効ハミルトニアンを決定するため、量子多体問題ソルバーとベイズ最適化を組み合わせたワークフローを構築する。このワークフローを用いてキタエフ物質群の有効ハミルトニアン  $H_{\text{eff}}$  を決定し、量子スピン液体相を実現するための物質設計指針を抽出する。有効ハミルトニアン  $H_{\text{eff}}$  の最尤推定のみならず、有効ハミルトニアンが従う確率分布  $P(H|D)$  を構成するため、第一原理計算の結果への近さを測る事前確率  $P(H)$  と、所与の  $H$  に基づいて計算した物理量と対応する実験データ  $D$  との2乗誤差に基づく尤度  $P(D|H)$  を求める。前者の計算には、第一原理計算を出発点に強相関有効モデルを構築可能なオープンソースソフトウェア RESPACK を活用する。



理論研究と並行して、研究分担者らによって新たに発見されたキタエフ物質 RuBr<sub>3</sub> および RuI<sub>3</sub> の物質合成と物性測定を進め、結晶構造・磁気構造・磁化率・比熱・中性子散乱スペクトルなどの実験データを収集する。これらの実験データを有効ハミルトニアン決定するためのインプットとするとともに、 $H\Phi$  を用いて計算した各種物理量と比較する。なお、プログラムは研究と並行し整備を進め、成果発表後に順次公開することを予定している。

### 4. 研究成果

磁化曲線の実験データと第一原理計算に基づいて強相関物質の有効ハミルトニアンの決定を行った。ガウス過程に基づくベイズ最適化プログラム PHYSBO を使い、擬2次元のモット絶縁体である Ru ハロゲン化物  $\alpha$ -RuCl<sub>3</sub> の面間および面直方向の磁化過程から、スピン系に対する有効ハミルトニアン  $H_{\text{eff}}$  の決定を進めた。得られたガウス過程回帰分析の結果から、有効ハミルトニアンを特徴付ける結合定数の確率分布が得られ、各々の交換相互作用の尤もらしさが決定された。成果について出版論文の準備を進めている。また本研究で開発応用を行ったベイズ最適化を用いた有効ハミルトニアン推定ツールは、日本物理学会 2023 年春季大会[吉見一慶, 田村亮, 山地洋平, 三澤貴宏, “ベイズ最適化を用いた有効モデル推定ツール(BEEMs)の開発”]で発表するとともに公開した。

上記手法の開発・応用と並行して、キタエフ物質の物質合成と物性測定を進め、結晶構造・磁気構造・磁化率・磁気輸送係数・ラマン分光学スペクトルなどの実験データを収集した。これらのデータに基づき、 $\alpha$ -RuCl<sub>3</sub>, RuBr<sub>3</sub>, および RuI<sub>3</sub> の第一原理計算との比較を進め、混晶系におけるモット転移の機構を提案した。また磁場を印加することによる電気抵抗の変化から、RuI<sub>3</sub> における質量の無いディラック電子発現可能性についても提案した。これらの成果は論文として出版するとともに、総説[今井良宗, 大串研也, 那波和宏, 佐藤卓, 清水康弘, 山地洋平, “キタエフスピン液体に着目した新物質開発-高圧合成法を用いた新しいルテニウムハライド RuBr<sub>3</sub>, RuI<sub>3</sub> の発見-” 固体物理 57(11), 725-744 (2022)]にまとめられている。以上の研究成果により、量子スピン液体探索に向けた物質空間が拡張された。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計8件（うち査読付論文 8件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Ido Kota, Motoyama Yuichi, Yoshimi Kazuyoshi, Misawa Takahiro	4. 巻 92
2. 論文標題 Data Analysis of Ab initio Effective Hamiltonians in Iron-Based Superconductors ? Construction of Predictors for Superconducting Critical Temperature	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Journal of the Physical Society of Japan	6. 最初と最後の頁 1-13
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7566/JPSJ.92.064702	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 Choi Youngsu, Lee Je-Ho, Lee Seungyeol, Wulferding Dirk, Fujihara Hideyuki, Sato Fuki, Imai Yoshinori, Ohgushi Kenya, Seong Maeng-Je, Choi Kwang-Yong	4. 巻 106
2. 論文標題 Magnetic and spin-orbit exciton excitations in the honeycomb lattice compound RuBr3	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 1-6
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.106.174430	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 Amano T., Kawakami Y., Itoh H., Konno K., Hasegawa Y., Aoyama T., Imai Y., Ohgushi K., Takeuchi Y., Wakabayashi Y., Goto K., Nakamura Y., Kishida H., Yonemitsu K., Iwai S.	4. 巻 4
2. 論文標題 Light-induced magnetization driven by interorbital charge motion in the spin-orbit assisted Mott insulator $\alpha$ -RuCl <sub>3</sub>	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physical Review Research	6. 最初と最後の頁 1-6
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevResearch.4.L032032	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 Misawa Takahiro, Yamaji Youhei	4. 巻 4
2. 論文標題 Zeros of Green functions in topological insulators	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physical Review Research	6. 最初と最後の頁 1-19
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevResearch.4.023177	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 Iwano Akito, Yamaji Youhei	4. 巻 91
2. 論文標題 Superconductivity in Bilayer $t$ - $J$ Hubbard Models	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of the Physical Society of Japan	6. 最初と最後の頁 1-16
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7566/JPSJ.91.094702	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 Motoyama Yuichi, Tamura Ryo, Yoshimi Kazuyoshi, Terayama Kei, Ueno Tsuyoshi, Tsuda Koji	4. 巻 278
2. 論文標題 Bayesian optimization package: PHYSBO	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Computer Physics Communications	6. 最初と最後の頁 108405 ~ 108405
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.cpc.2022.108405	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 Imai Yoshinori, Nawa Kazuhiro, Shimizu Yasuhiro, Yamada Wakana, Fujihara Hideyuki, Aoyama Takuya, Takahashi Ryotaro, Okuyama Daisuke, Ohashi Takamasa, Hagihala Masato, Torii Shuki, Morikawa Daisuke, Terauchi Masami, Kawamata Takayuki, Kato Masatsune, Gotou Hirotsada, Itoh Masayuki, Sato Taku J., Ohgushi Kenya	4. 巻 105
2. 論文標題 Zigzag magnetic order in the Kitaev spin-liquid candidate material RuBr <sub>3</sub> with a honeycomb lattice	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 L041112 (1-6)
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.105.L041112	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 Nawa Kazuhiro, Imai Yoshinori, Yamaji Youhei, Fujihara Hideyuki, Yamada Wakana, Takahashi Ryotaro, Hiraoka Takumi, Hagihala Masato, Torii Shuki, Aoyama Takuya, Ohashi Takamasa, Shimizu Yasuhiro, Gotou Hirotsada, Itoh Masayuki, Ohgushi Kenya, Sato Taku J.	4. 巻 90
2. 論文標題 Strongly Electron-Correlated Semimetal Ru <sub>1</sub> 3 with a Layered Honeycomb Structure	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of the Physical Society of Japan	6. 最初と最後の頁 123703 (1-5)
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7566/JPSJ.90.123703	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5件（うち招待講演 2件 / うち国際学会 1件）

1. 発表者名 山地洋平
2. 発表標題 人工ニューラルネットワークと数値計算による銅酸化物高温超伝導体の自己エネルギー解析
3. 学会等名 日本物理学会2023年春季大会 シンポジウム講演
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 吉見一慶, 田村亮, 山地洋平, 三澤貴宏
2. 発表標題 ベイズ最適化を用いた有効模型推定ツール(BEEMs)の開発
3. 学会等名 日本物理学会2023年春季大会 ポスター発表
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 山地 洋平
2. 発表標題 数値解析と分光測定による高温超伝導および自己エネルギーの解析
3. 学会等名 日本放射光学会 第14回若手研究会「次世代放射光で切り拓く軟X線科学」
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Youhei Yamaji
2. 発表標題 Neural-network and numerical analysis of self-energy and superconductivity in copper oxides
3. 学会等名 International Workshop on Correlations and Angle-Resolved Photoemission Spectroscopy (CORPES22) <a href="https://www.bnl.gov/corpesworkshop/">https://www.bnl.gov/corpesworkshop/.</a> (招待講演) (国際学会) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 山地 洋平
2. 発表標題 キタエフ量子スピン液体候補物質の電子状態
3. 学会等名 キタエフ量子スピン液体研究の新展開 ~マヨラナ励起の創出と制御によるトポロジカル量子計算の実現に向けて~ (招待講演)
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

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
研究分担者	吉見 一慶 (Yoshimi Kazuyoshi)  (10586910)	東京大学・物性研究所・特任研究員  (12601)	
研究分担者	田村 亮 (Tamura Ryo)  (20636998)	国立研究開発法人物質・材料研究機構・国際ナノアーキテクトニクス研究拠点・主任研究員  (82108)	
研究分担者	大串 研也 (Ohgushi Kenya)  (30455331)	東北大学・理学研究科・教授  (11301)	
研究分担者	三澤 貴宏 (Takahiro Misawa)  (10582687)	早稲田大学・理工学術院・主任研究員(研究院准教授)  (32689)	計画執行(2020年度前半)当時の所属。現在は中国北京のBAQIS所属。

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
---------	---------