

科学研究費助成事業（基盤研究（S））公表用資料
〔平成31年度（2019年度）研究進捗評価用〕

平成28年度採択分
平成31年3月12日現在

強相関物質設計と機能開拓 —非平衡系・非周期系への挑戦
Materials Design and Exploration of Functions for
Strongly Correlated Materials -Challenges to
Non-Equilibrium and Non-Periodic Systems

課題番号：16H06345

今田 正俊 (IMADA, MASATOSHI)

東京大学・大学院工学系研究科・教授



研究の概要（4行以内）

強相関電子系の学理解明と機能開拓を理論的、計算物理学的に、かつ第一原理的に推進する。階層的強相関第一原理手法（MACE）の高精度化、高度化を進め、適用範囲を拡張し、公開普及を進める。バルク熱平衡の困難な課題に挑戦するとともに、1.非平衡と2.非周期性（表面・界面・準結晶）が顕著な強相関物質の学理解明と機能発現というフロンティアを開拓する。

研究分野：物性物理学

キーワード：強相関系，非平衡，界面表面，第一原理計算，物質設計

1. 研究開始当初の背景

電子相関の大きな強相関物質群は基礎科学の革新と新概念の揺りかごととして、また21世紀の産業創成を担う新物質相の有力候補として世界的な研究競争が展開されている。20世紀産業革命を担った半導体に比べ、強相関物質は多くの理論的困難を抱えていた。しかしここ10年で強相関物質特有の階層構造を利用して、電子状態を第一原理的に解明する手法が確立し、応用が広がってきた。

2. 研究の目的

本研究では強相関電子系のバルク熱平衡の困難な課題に挑戦するとともに、1.非平衡と2.非周期性（表面・界面・準結晶）が顕著な強相関物質の学理解明と機能発現というフロンティアを開拓し、強相関物質の学理解明を推進し、第一原理的な「強相関物質の理論設計」をめざす。

3. 研究の方法

【手法の拡張】階層的強相関第一原理手法（MACE）の高精度化、高度化を進め、適用範囲も拡張するとともに、開発した計算コードの公開普及を進める。

【物質設計・機能開拓】拡張した手法を駆使して、スピントロニクス物質、超伝導、トポロジカル物質、永久磁石、熱電物質などを軸に、バルク熱平衡の挑戦課題、界面などの非周期系、非平衡系に見られる顕著な強相関多体現象の基礎学理解明、機能探究を進める。

4. これまでの成果

1. 手法開発（改良高度化・ソフトウェア公開）
MACEにおける低エネルギー有効ハミルト

ニアンの導出法を改良、高精度化し、銅酸化物超伝導体の第一原理計算に応用した。MACEを構成するソフトウェアRESPACK、多変数変分モンテカルロ法(mVMC)と、厳密対角化法のHΦコードを同一インターフェースで使えるよう公開、普及を進めた。mVMCにテンソルネットワーク法や人工ニューラル・ネットワーク法を組み合わせ、低エネルギーソルバーの高精度化に成功した。またHΦに線形応答関数や実験観測できる物理量の計算を可能にする機能拡張を行なった。このような拡張、高精度化、高度化は現実物質の定量的物性予測、実験検証になくはならない役割を果たした。

2. 低エネルギー有効ハミルトニアンの導出

銅酸化物の第一原理有効ハミルトニアンを水銀系とランタン系化合物に対し、上記の手法改良を踏まえて導出した。このような詳細な導出は世界的に初めてであり超伝導機構、異常金属の今後の研究の基礎となる。

またLa₂CuO₄/(La,Sr)₂CuO₄界面の第一原理有効ハミルトニアンを世界で初めて導出し、界面での格子緩和の効果を検証した。格子緩和によって層依存性がより緩やかになるという結果は、層間相分離による界面での超伝導高特性化を支持した。

3. 物理課題・展開

【バルク熱平衡挑戦課題】高温超伝導 銅酸化物超伝導体の理論模型であるハバード模型を高精度化手法を用いて解き、超伝導とストライプ相が激しく競合し、大半のキャリア濃度で僅かにストライプ相のエネルギーが低く、銅酸化物の相図と一致しないことを示した。

これと対照的に銅酸化物第一原理有効ハミルトニアンの場合、 La_2CuO_4 のモット絶縁相の電荷ギャップ(2eV)と反強磁性の秩序モーメント(0.6 μB)の実験値を再現し、また水銀系化合物 $\text{HgBa}_2\text{CuO}_4$ の第一原理計算で*d*波超伝導の実験相図を定量的に再現した。強相関係の典型として挑戦課題であった銅酸化物の実験相図を定量的に詳細再現した研究は世界的にも例がない。さらに超伝導発現機構に電荷のゆらぎが深く関わることも示した。

角度分解光電子分光法(ARPES)で得られたスペクトルから自己エネルギーをボルツマン機械による機械学習によって抽出する手法を開発し、銅酸化物高温超伝導体に適用した。自己エネルギーの正常(金属)成分と異常(超伝導)成分に互いに打ち消しあい、実験データからは直接見えないピーク構造が高温超伝導の起源であることを発見した。

トポロジカル相 トポロジカル量子スピン液体候補である、 $\alpha\text{-RuCl}_3$ において、量子スピンダイナミクスと古典ダイナミクスとの対応関係が存在することを発見した

永久磁石 RFe_{12} 型化合物に対して、低エネルギー有効ハミルトニアンを導出し、実験の示唆通り、 RFe_{12} に N をドーピングすると強い一軸異方性が発現することを示した。最強磁石の主相($\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$)を対象として有効ハミルトニアンを解いた結果は、飽和磁化や磁気異方性の温度依存性が実験とよく一致した。

【非平衡課題】 レーザー照射下の高温超伝導体で動的局在とストライプ秩序の抑制効果により超伝導秩序が増幅する新機構を提案した。

【非周期系課題】 銅酸化物界面で見られる超伝導転移温度がキャリア濃度によらないという優れた特性の起源が層間相分離であることを解明した。準結晶超伝導体の超伝導秩序がフラクタルな実空間構造をもつ新奇超伝導となることを見出した。 SrTiO_3 基板上の単層 FeSe が巨大熱電効果を示すことを発見した。トポロジカルディラック半金属と強磁性体絶縁体の接合界面で、磁化と電流やスピン流の交差相関が磁化スイッチなどの機能開拓につながる予言をした。 $\alpha\text{-Bi}_4\text{I}_4$ が「弱い」トポロジカル絶縁体であり、散逸のないスピン流の ON/OFF 制御ができることを発見したタリウム超伝導状態で、マヨラナエッジモードの存在を示した。

【非平衡かつ非周期系課題】 反強磁性体磁壁は強磁性に比べ動作速度が速くスピントロニクスへの応用が期待される。反強磁性磁壁の運動機構を解明するために磁気構造の群論的な分類をもとに第一原理的に運動方程式を導いて解き、 Mn_3Sn に適用した。運動の外場依存性などが予測可能になり、スピントロニクスへの応用が期待される。

5. 今後の計画

計画した研究は順調に進んでおり、さらに深化、展開していく。また計画外の成果とし

て、機械学習法が量子多体状態をうまく表すのに大変有効であることと、実験結果を直接解析して、陰に隠れている物理量やふるまいを引き出す能力を持つことが示されたので、機械学習と MACE の枠組みを組み合わせる手法を追求する。実験結果の機械学習による直接解析については、光電子分光の解析だけでなく、他の実験データも組み合わせた多様なデータ科学的展開を図る。モデル計算で、非平衡超伝導、磁壁のダイナミクスなどの強相関係の非平衡ダイナミクスに関する成果、非周期系研究では界面超伝導、 FeSe 単層の高熱電能、磁化スイッチ機能やマヨラナモードの予測などの興味深い成果が次々と出てきているが、今後非平衡、非周期系の第一原理的で定量的な研究を推進する。また高機能永久磁石の探求、ペロブスカイト化合物での高効率太陽電池の追究などを進める。ソフトウェアの公開普及は本プロジェクトで追究する重要なテーマであり、HF、mVMC、RESPACK の機能拡張、連携を強化する。

6. これまでの発表論文等(受賞等も含む)

1. Andrew S. Darmawan, Yusuke Nomura, Youhei Yamaji, and Masatoshi Imada, "Stripe and superconducting order competing in the Hubbard model on a square lattice studied by a combined variational Monte Carlo and tensor network method", Phys. Rev. B 98, 205132(1-11) (2018).

2. "Ab initio effective Hamiltonians for cuprate superconductors" Motoaki Hirayama, Youhei Yamaji, Takahiro Misawa, and Masatoshi Imada, Phys. Rev. B 98, 134501(1-19) (2018).

3. "Restricted Boltzmann machine learning for solving strongly correlated quantum systems", Y. Nomura, A. S. Darmawan, Y. Yamaji, and Masatoshi Imada, Phys. Rev. B.96, 205152(1-9) (2017).

4. "Correlation-induced superconductivity dynamically stabilized and enhanced by laser irradiation", Kota Ido, Takahiro Ohgoe, Masatoshi Imada, Sci. Adv. 3, e1700718 (1-6) (2017).

5. "Cluster multipole theory for anomalous Hall effect in antiferromagnets", M.-T. Suzuki, T. Koretsune, M. Ochi, and R. Arita, Phys. Rev. B.95, 094406(1-11) (2017).

6. 受賞:2018年3月、日本物理学会論文賞(三宅隆、中村和磨、有田亮太郎、今田正俊)

7. 2018年11月 Highly Cited Researchers 2018 (Clarivate Analytics)(有田亮太郎)

8. 受賞:2017年3月、日本物理学会 若手奨励賞(領域7)(野村悠祐)

9. 受賞:2017年3月、日本物理学会 若手奨励賞(領域4)(山地洋平)

7. ホームページ 該当なし