

海外特別研究員最終報告書

独立行政法人 日本学術振興会 理事長 殿

採用年度 平成 29 年度

受付番号 446

氏 名 関 和 弘

(氏名は必ず自署すること)

海外特別研究員としての派遣期間を終了しましたので、下記のとおり報告いたします。
なお、下記及び別紙記載の内容については相違ありません。

記

1. 用務地 (派遣先国名) 用務地：トリエステ (国名：イタリア)

2. 研究課題名 (和文)

超並列補助場量子モンテカルロ法に基づく量子クラスタ法の開発と強相関電子系への応用3. 派遣期間：平成 29 年 4 月 1 日 ～ 平成 31 年 3 月 31 日

4. 受入機関名及び部局名

トリエステ国際高等研究スクール Condensed Matter

5. 所期の目的の遂行状況及び成果

本研究計画の目的は、強相関電子系分野の電子状態研究に利用できる計算手法として、補助場量子モンテカルロ法を用いた量子クラスター法を開発し、強相関電子系へ応用することである。この目的のために、物性物理学分野において、補助場量子モンテカルロ法をはじめとする各種量子モンテカルロ法の専門家である SISSA の Sandro Sorella 教授のもとで研究を実施した。

第一年は計算プログラムの開発および計算の定式化といった準備を主な目的としていた。実際、第一年では、補助場量子モンテカルロ法の改良およびスーパーコンピュータ上での計算の実行と、量子クラスター法的一种である変分クラスター近似の有限温度における効率的な計算方法の定式化および実装・実行を行なった。なお、補助場量子モンテカルロ法については Sorella 教授が開発していた計算プログラムを基に機能の拡張を行い、変分クラスター近似法については自身が作成した計算プログラムの開発を続けた。

第二年は第一年で行った定式化に基づき量子モンテカルロ法計算プログラムと変分クラスター近似法計算プログラムを統合して所期の目的を達成する予定であった。結果としては、計算プログラムの統合には至らず、所期の目的は達成できなかった。

しかし、所期の目的の遂行の過程で行なった補助場量子モンテカルロ法と変分クラスター近似法それぞれの計算プログラムの開発・改良により出来るようになった、または改善された計算があり、その成果を論文として発表した。以下で補助場量子モンテカルロ法と変分クラスター近似法を用いた研究成果について報告する。

■補助場量子モンテカルロ法の改良およびスーパーコンピュータ上での計算の実行

補助場量子モンテカルロ法は、基底状態と直交しない任意の試行波動関数に虚時間発展演算子を作用させることで、目的としている相互作用している系の基底状態を求

める手法である。補助場量子モンテカルロ法では一般的に、試行関数として相互作用のない系のハミルトニアン（平均場ハミルトニアン）の固有関数を用いる。

派遣期間中に出版された論文の一つ[Phys. Rev. B **99**, 144407 (2019)]では Hirsch による離散的な Hubbard-Stratonovich 変換を一般化し、空間的非一様な磁気秩序や電荷秩序を持つ試行関数を用いた計算に適した、シフトした離散 Hubbard-Stratonovich 変換を提案した。そして数値計算を実行することでその有用性を検証した。ここで、具体的な空間的非一様な試行関数としては、Hubbard 模型に対して一般化された Hartree-Fock 法を適用することで得られる、スピンとホール空間的配置が縞模様を作る、いわゆるストライプ秩序状態を想定した。シフトとは、試行波動関数を持つ局所的な磁化または電荷の分だけスピン演算子または密度演算子をシフトして補助場と結合させることを意味する。Hubbard 模型とは強相関電子系分野で電子相関効果を調べるために用いられる典型的な模型であり、銅酸化物高温超伝導体や有機モット絶縁体などの重要な物質群が示す磁性や超伝導といった物理を内包しているか否かが興味を持たれている。ストライプ秩序は、ある銅酸化物にキャリアドーピングした際に超伝導状態の近くに現れる電子状態の一つであり、関連する理論模型である Hubbard 模型においても、その基底状態としてストライプ秩序状態・超伝導状態・相分離等の可能性のうちどの状態が実現するのか、またストライプ秩序状態が安定化する場合のストライプのパターンがどうなるか等の研究が続いている。

有用性の検証の結果、純虚数の補助場の場合はシフトなしの場合と比べて符号の期待値が大きくなること、ただし符号の期待値は実数の補助場の場合と比べると小さいことがわかった。実数の補助場の場合はシフトなしの場合と比べてアクセプタンスが大きくなることがわかった。また、フィリングや計算したい物理量などに応じて適切に補助場を選ぶことが計算を効率的に行うために重要であることがわかった。具体的には、キャリアドーピングした場合は負符号問題が生じるため、実数の補助場を用いた計算が適している。システムサイズは 16×16 サイトとしてストライプ秩序を仮定した試行関数を用いた計算によりエネルギー期待値を計算した場合、先行研究の多変数変分モンテカルロ法により得られていたエネルギーよりも低いエネルギーを得ることができた。また、ハーフフィリングの場合は純虚数の補助場でも実数の補助場でも負符号問題が生じないが、反強磁性秩序変数を計算する場合には、純虚数の補助場を用いたほうが、実数の補助場を用いるよりも、平衡化時間と自己相関時間を大幅に小さくすることがわかった。この効果はとくに電子間相互作用パラメタ U/t が 8 程度以上の強相関領域で顕著である。実際、純虚数の補助場を用いることで、実数の補助場を用いた先行研究よりも、Hubbard 模型の交代磁気モーメントの熱力学極限への外挿をスムーズに行うことができ、精度よく交代磁気モーメントを見積ることができた。

ハーフフィリングでも U/t が小さい ($U/t < 4$ 程度) 場合は、 U/t が大きい場合と比べて、物理量の境界条件への依存性が大きく、熱力学極限への外挿がより難しくなる。そこで、システムの境界条件を通常の周期境界条件だけでなく、任意のひねられた境界条件のもとで物理量を計算し、境界条件について平均を取ることで、システムサイズが有限であることから現れる有限サイズ効果のうち、境界条件に依存する部分、特にフェルミ面に近い運動量をシステムが有しているか否かからくる有限サイズ効果を取り除くことができるようにした。この方法は厳密対角化法等の他の計算手法でもすでに用いられてきていたが、数百サイト系を扱える補助場量子モンテカルロ法でも境界条件の依存性が無視できないことがわかっていたので、この方法によって Hubbard 模型のスピン相関関数の熱力学極限への外挿が、弱相関 (U/t が小さい) 場合も含めて系統的に行うことができた[Phys. Rev. B **98**, 075156 (2018)]。

また、ハニカム格子上のハバード模型について補助場量子モンテカルロ法を用いた基底状態の研究を行った[Phys. Rev. B **99**, 125145 (2019)]。ハニカム格子上のハバード模型を扱った先行研究では、半金属-絶縁体転移は絶縁体側で有限の交代磁気モーメントが発生する(すなわち自発的時間反転対称性の破れを伴う)連続転移であることが 1992

年の量子モンテカルロ法による研究ですでに議論されていた。当時の研究で扱ったハバード模型のシステムサイズは最大で 128 電子系であったが、その後計算手法と計算機の進歩によって最大 2592 電子系の大規模計算がなされ、1992 年の半金属-絶縁体転移の議論の正当性がより説得力を持つようになった。さらに、連続転移である場合、相転移の臨界現象は系の次元や対称性によって決まる普遍性クラスで記述されることが知られている。ハニカム格子上の反強磁性絶縁体転移では、この普遍性クラスは場の理論で古くから知られていた Gross-Neveu 模型における chiral-Heisenberg クラスに相当し、実際に大規模計算に基づく詳細な解析により、普遍性クラスの存在と臨界指数の定量的評価が行われた。

これまでの量子モンテカルロ法による半金属-絶縁体転移の研究は、絶縁体相を特徴付ける秩序変数 (交代磁気モーメントまたはその発生に伴う一粒子励起ギャップ) の計算を行っていた。一方、Landau により提唱されたフェルミ液体論 (相互作用するフェルミ粒子系の低エネルギー励起を、自由フェルミ粒子と同じ量子数を持ちかつ異なる速度・質量で運動する新たな粒子 -準粒子- により記述する理論) によれば、相互作用している電子系の金属相において準粒子の存在を特徴付け、かつ絶縁体相においては消失する、準粒子重み Z と呼ばれる量が最も重要な指標となる。本研究では長距離の密度行列の非対角成分から準粒子重み Z を計算できることを示し、実際にその定式化を用いて、10952 サイト 10952 電子系までを含めた大規模計算を行った。実際、半金属相で準粒子重み Z が有限であることが確かめた。

10952 サイトという大きなシステムサイズを扱うにあたり、以下に記すように、虚時間発展演算子を実空間表示した時にその行列が疎行列の積で表せることを利用した計算の工夫を行った。虚時間発展は、Suzuki-Trotter 分解により、ハミルトニアン¹の運動エネルギーに対応する項の指数関数と、ハミルトニアン²のポテンシャルエネルギーに対応する項の指数関数を、交互に試行関数に演算することで行われる。このうちポテンシャルエネルギーに対応する項の行列の指数関数は、実空間表示で対角化される。運動エネルギーに対応する項の指数関数は、通常、スペクトル分解を用いて密行列として扱われる。本研究では、ハミルトニアン³の運動エネルギーに対応する項を実空間表示すると、非ゼロ要素は一行あたり 3 つ (ハニカム格子の場合：隣接サイト数が 3 つのため) しかない疎行列であることを利用して、Chebyshev 多項式展開に基づく疎行列の指数関数の計算法を用いることで計算コスト削減を図った。今回の補助場量子モンテカルロ計算では、 N_{site} をサイト数として、 N_{site} 行 N_{site} 列の行列演算が必要になる。密行列同士の積は $O(N_{\text{site}}^3)$ だが、疎行列と密行列の積は $O(N_{\text{site}}^2)$ なので、サイト数が大きい場合に疎行列として扱った方が有利になると予想される。本研究を行った数値計算の環境では、2048 サイト以上で疎行列として扱う方が有利になり、サイト数が大きいほどスピードアップの効果が大きいことがわかった。10952 サイトを扱うときに通常の場合と比べて 3 倍程度のスピードアップを得た。ただし、補助場量子モンテカルロ計算では、波動関数を虚時間発展させる過程で、計算の安定化のために波動関数を表す行列の規格直交化 $O(N_{\text{site}}^3)$ が必要なので、補助場量子モンテカルロ計算の演算量の次数が N_{site} に関して 3 乗から 2 乗になるわけではない。

■変分クラスター近似法の有限温度における効率的な計算方法の定式化、実装と実行

量子クラスター法⁴の一種である変分クラスター近似は、少数サイトから成るクラスターの厳密な一粒子グリーン関数の計算を必要とする手法である。派遣中に出版された論文の一つ[Phys. Rev. B **98**, 205114 (2018)]では、これまで主に絶対零度の計算が行われてきた変分クラスター近似において、有限温度における効率の良い計算を可能にする定式化の提案および実装を行なった。有限温度では、変分クラスター近似計算で自由エネルギーを計算する際に、一粒子グリーン関数の行列式を複素関数としてみたときの解析的性質が問題になる。なぜなら、自由エネルギーの計算にはグリーン関数を行列要素にもつ行列の行列式の対数関数を積分する必要がある、この積分を行う際に分岐点が複素平面 (複素周波数平面) 上にどのように現れるかが問題になるからである。本研究では問

題となる関数の解析的性質を注意深く考察することで、被積分関数のブランチカットが実軸上の有限区間に現れることを示して、被積分関数のそのような性質に基づいた効率の良い計算の定式化を示すことができた。また、変分クラスター近似計算で計算時間（または消費演算時間）を小さくするには、クラスターの 一粒子グリーン関数を効率的に計算することが重要となる。これに関して本研究では、厳密対角化法の範囲で、Block Lanczos 法を用いてグリーン関数行列の対角要素と非対角要素を一挙に計算する方法を記述した。この定式化を用いた有限温度変分クラスター近似計算を応用することで、反強磁性体の有限温度における振る舞い、すなわち弱結合の Slater 型絶縁体と強結合の Mott 型絶縁体の有限温度における振る舞いの違いとその2つの間の移り変わり（クロスオーバー）を、熱力学的性質の振る舞いから論じた。さらに、強相関電子系分野における基本的問題である、電子間相互作用により誘起される金属絶縁体転移についても、常磁性状態における金属絶縁体転移の有限温度における性質を調べて相図をまとめた。

上述の有限温度の変分クラスター近似計算プログラムの強相関電子系への応用として、分子性結晶の電子状態計算を行った。分子性結晶 κ -(BEDT-TTF)₂Cu[N(CN)₂]Cl は、Cu[N(CN)₂]Cl 層と BEDT-TTF 分子層から成る層状物質である。物性物理学において、電子物性を議論する場合には、低エネルギー励起が可能なフェルミ準位付近の電子状態を考慮した計算を行う。この物質では、BEDT-TTF 層の分子軌道の重なりがフェルミ準位付近の電子状態を構成することが知られている。BEDT-TTF 層内では、BEDT-TTF 分子2つが二量体化し、二量体たちが三角格子を構成する。分子性結晶は電子間相互作用パラメタやホッピングの空間的異方性パラメタが制御でき、これまでハーフフィルドの状況における金属絶縁体転移、磁気秩序の有無の探索、超伝導絶縁体転移などが研究されてきた。近年、この Mott 絶縁体に対し、電気二重層トランジスタ(EDLT)デバイスを用いることで、有機 Mott 絶縁体に対する両極性キャリアドーピング（電子ドーピングまたはホールドーピング）が実現した。有機 Mott 絶縁体の物性を記述する最小モデルは異方的三角格子ハバードモデルである。本研究ではこのモデルに対し、計算手法として電子相関効果を取り込んだ上で一粒子励起スペクトル関数（電子相関の入ったバンド構造）や自発的対称性の破れを議論するための自由エネルギーを計算できる、変分クラスター近似により異方的三角格子ハバードモデルの基底状態における反強磁性秩序・超伝導秩序・相分離の有無や低エネルギー一粒子励起を計算し、電子物性を議論した[Science Advances 誌に出版受理]。