

# 研究報告書

## 「強相関第一原理電子状態計算と分光実験データの統合によるトポロジカル物質の理論物質設計手法創出」

研究タイプ: 通常型

研究期間: 27年12月～31年3月

研究者: 山地 洋平

### 1. 研究のねらい

本研究課題では、多数の電子が強く相互作用することで発現する高温超伝導や強相関トポロジカル絶縁体といった特異な量子力学的な相を示す物質を設計するための指針を、理論科学、計算科学、及び実験科学を、データ科学的知見に基づいて統合し、導き出すことを目指しました。

固体中の1立法cmあたりアボガドロ数程度にも及ぶ多数の電子の振る舞いを理解することが、エレクトロニクスの礎です。単一金属元素からなる金属や合金、シリコン結晶などのバンド絶縁体の性質の多くが、自由フェルミ粒子系に基づいて有効的に記述できることが知られています。1920年代のゾンマーフェルトらの研究に始まり、ランダウら東西の偉大な物理学者によって精緻な理論が構築されてきました。その成果は、発見以来半世紀の間謎であった超伝導現象の、機構解明を導いたバーディーン-クーパー-シュリーファー(BCS)理論の基礎ともなりました。

その成功の一方、自由粒子に基づく描像では理解できない現象が1980年代から報告され始めました。磁場下の清浄な半導体界面で観測された分数量子ホール効果によって、電子間相互作用が、電子の電荷自由度が分割された奇妙な粒子、分数励起を生み出すことが明らかになりました。さらに、BCS理論では理解できない高温超伝導が不良導体である銅酸化物で見つかり、電子間の相互作用が重要となる強相関電子系が一躍注目を集め始めました。

しかしながら、その後の急速な実験科学、理論科学、そして計算科学の進展を持ってしても、望む性質を示す強相関電子系を実現することは困難なままです。2次元系で実現した分数量子ホール効果を雛形として、一般の空間次元でも強相関トポロジカル絶縁体と呼ばれる分数励起を示す多体電子系が存在しうることが理論的に提案され、国際的な注目を集めています。しかし、現実の物質では未だその実現が確認されていません。銅酸化物における高温超伝導の発現機構についても、未だ議論が続いています。

本課題では、実験科学・理論科学・計算科学をデータ科学によって統合し、強相関トポロジカル絶縁体の母物質として期待されるイリジウム酸化物の理論物質設計を目指しました。この目的を達成するための方法論を確立すべく、これまで豊富な実験科学・理論科学・計算科学的成果が蓄積されてきた強相関電子系の典型である高温超伝導の超伝導発現機構の解明に挑みました。

## 2. 研究成果

### (1) 概要

強相関トポロジカル絶縁体の理論物質設計指針を目指し、実験科学・理論科学・計算科学をデータ科学によって統合した方法論を導くため、本課題では以下のように段階を踏みながら成果を上げてきました。本研究課題では、電子が他の電子や不純物、格子欠陥によって散乱される様子を記述する、自己エネルギーと呼ばれる物理量に着目しています。自己エネルギーを知ることで、計算科学による固体中の電子状態の記述法として標準的な密度汎関数理論の結果がどれほど現実の強相関電子系と異なるかを知ることができます。

現在の計算科学的手法による自己エネルギーの記述は日進月歩ですが、それでも強相関トポロジカル絶縁体の候補物質であるイリジウム酸化物や、銅酸化物高温超伝導体の、自己エネルギーの高精度な記述には至っていません。そこで、i) 計算科学による『順解法』を用いた自己エネルギー計算手法の整備、ii) 機械学習を用いた非線形逆問題解法による実験データからの自己エネルギー抽出、それらの成果を統合した iii) データ同化による自己エネルギーの高精度化を推進してきました。

i)においては、筆者らが開発を行ってきた汎用の量子格子モデルの数値解法プログラムパッケージ[論文発表 1.]による強相関トポロジカル絶縁体相の研究[論文発表 3., 4., 5.]と自己エネルギー計算の推進[参考文献 1]、およびその入力情報となる電子状態を定義づけるハミルトニアンを導出のために、科研費プロジェクトとの連携による密度汎関数理論に基づくイリジウム酸化物及び銅酸化物高温超伝導体の第一原理有効ハミルトニアンの導出に取り組んできました[参考文献 2.]。

ii)においては、現状では実験データの蓄積で勝る銅酸化物高温超伝導体に着目し、実験科学者との連携の元、ボルツマン機械を用いた機械学習[論文発表 2.]による自己エネルギーの抽出法を構築し、超伝導状態における銅酸化物高温超伝導体の自己エネルギーを得ることに成功しました[参考文献 3.]。高温超伝導の起源に迫る隠された自己エネルギーのピーク構造を発見しています。

以上の成果を統合し、現在、i) 計算科学による知見を事前知識として ii) で得られた機械学習手法を高精度化し、iii) データ同化手法として展開を進めています。

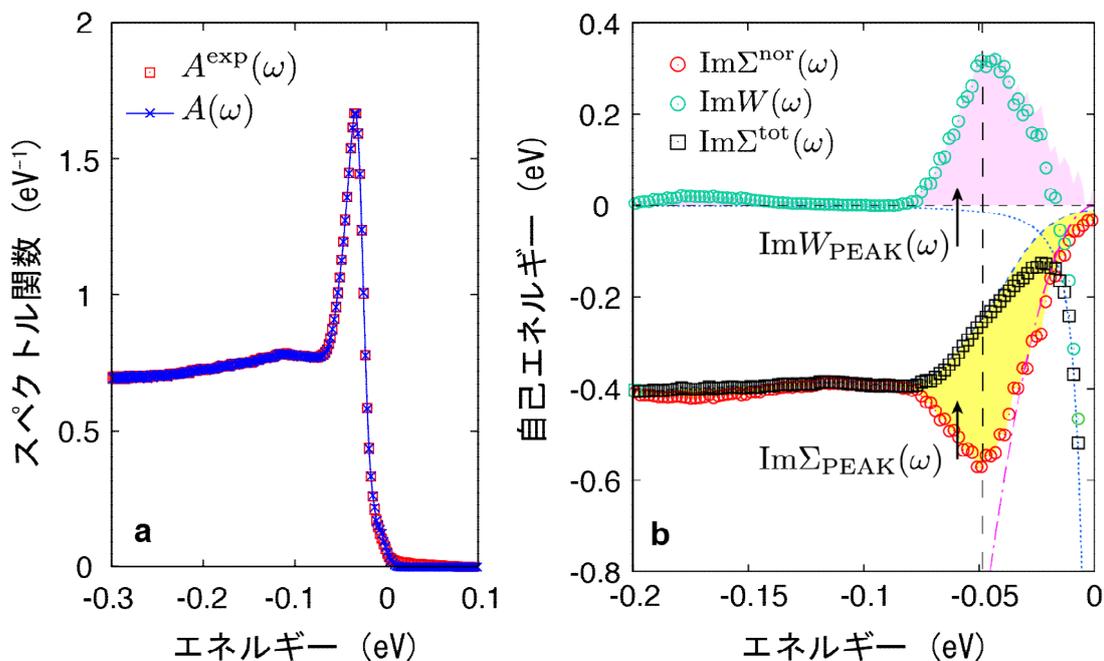
### (2) 詳細

#### **研究テーマ A「 $R_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ (R:希土類元素)の自己エネルギー導出の順解法の整備」**

強相関電子系の高精度自己エネルギー導出法として、オープンソース・ソフトウェアパッケージ HΦ のバージョン 2 に、物性研究所『ソフトウェア開発・高度化プロジェクト』との連携の元、動的グリーン関数計算機能の実装を行い公開しました[参考文献 1]。また、科研費基盤研究(S)『強相関物質設計と機能開拓-非平衡系・非周期系への挑戦-』との連携の元、密度汎関数理論に基づく多体摂動論による有効ハミルトニアンおよび自己エネルギー導出法の適用を進めてきました。(概要 i)に対応。)

### 研究テーマ B「走査型トンネル分光法および角度分解光電子分光法の実験データからの自己エネルギー推定」

分光実験データから自己エネルギーを抽出する方法論を確立するために、未だ実験データが多くはない  $R_2\text{Ir}_2\text{O}_7$  から、純良な試料および実験データが豊富な銅酸化物高温超伝導体へと対象を修正しました。ボルツマン機械を用いた機械学習によって、特定の運動量  $k$  およびエネルギー  $\omega$  における電子状態の密度を表すスペクトル関数から自己エネルギーを再構成する方法論を開発し、典型的な銅酸化物高温超伝導体  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  の角度分解光電子分光法の実験データに適用した。下図 a には、超伝導転移温度が 90K である  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  の  $T=11\text{K}$  における、もっとも超伝導ギャップが大きな運動量  $k$  でのスペクトル関数を示している (□: 実験データ, ×: 推定された自己エネルギーから得られたスペクトル関数)。このデータから再構成した自己エネルギー(下図 b)を解析すると、常電導成分(○:  $\text{Im}\Sigma^{\text{nor}}$ )および超伝導成分(○:  $\text{Im}W$ )に見られるピーク構造(網掛け部分)が互いに打ち消し合い、スペクトル関数と直接対応する全自己エネルギー(□:  $\text{Im}\Sigma^{\text{tot}}$ )にはその痕跡が残らないことがわかりました。さらに。高温超伝導状態を生み出している原因がこの打ち消されたピーク構造であることを突き止めました[参考文献 3]。



### 研究テーマ C「A の成果をフィードバックした $R_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ の自己エネルギー推定」

順解法によって得られた電子状態(研究テーマ A の成果)を事前知識として、研究テーマ B で得られた分光データから自己エネルギーを推定する機械学習に取り入れ、自己エネルギー推定を高精度化すべく、現在研究を進めています。(概要 iii)に対応。)

### 研究テーマ D「分光学データから得られた自己エネルギーの解析と物質設計」

上記、研究テーマ B ですすでに述べたように、分光学データから機械学習によって推定された自己エネルギーの解析から高温超伝導の起源に迫る成果を得ました。今後、 $R_2\text{Ir}_2\text{O}_7$  への自己エネルギー推定の適用と物質設計へと研究を進めていきます。(概要 ii)に対応。)

### 研究テーマ E「順解法の改良」

前述の基盤研究(S)との連携のもと、研究テーマ B で得られた銅酸化物の自己エネルギーと順解法の計算結果との比較およびそこから順解法へのフィードバックを現在推進しています。

### 研究テーマ F「非周期系への拡張」

研究テーマ A および B で得られた強相関電子系に対する方法論を、材料科学の方法論へと拡張すべく、格子欠陥や結晶粒界などの非周期環境での自己エネルギーに着目して、基盤研究(S)における磁石材料研究およびスピントロニクスの実験研究者との連携を現在推進しています。

[参考文献 1] <http://issp-center-dev.github.io/HPhi/index.html>

[参考文献 2] M. Hirayama, Y. Yamaji, T. Misawa, and M. Imada, Phys. Rev. B 98, 134501(1-19) (2018).

[参考文献 3] Y. Yamaji, T. Yoshida, A. Fujimori, and M. Imada, submitted.

[参考文献 4] T. Kondo, *et al.*, Nature 457, 296-300 (2009).

## 3. 今後の展開

銅酸化物高温超伝導体に止まらず鉄系超伝導体やBCS超伝導体として知られているMgB<sub>2</sub>などの超伝導体にも本研究課題によって得られた自己エネルギー推定を適用し、高温超伝導の起源の普遍性と物質固有の性質を解明していくことが期待されます。また、R<sub>2</sub>Ir<sub>2</sub>O<sub>7</sub>を始めとするトポロジカル物質の設計のみならず、遍歴磁性体や希土類磁石、およびそれらの粒界・界面における電子状態へと迫る手法へと展開し、スピントロニクス材料・磁石材料の磁気異方性などの応用上重要な性質と、電子間相互作用および局所的な原子環境との関係を明らかにし、材料特製の制御法の開拓へと展開することも期待されます。

## 4. 自己評価

本研究課題における目標の達成は、後述のように重要な成果に到達したとはいえ、まだ道半ばと言わざるを得ません。銅酸化物高温超伝導体の自己エネルギーの高精度な推定によって、高温超伝導の起源に迫る成果を挙げたものの、当初の目的である物質設計、高温超伝導体であれば転移温度の制御、さらにいえば強相関トポロジカル物質への適用が途上であるためです。

研究実施体制については、人材確保の問題から、当初の計画よりも人的な支援が受けられませんでした。研究費の順調な執行状況により十分な計算機環境が整備できたことによって、銅酸化物高温超伝導体の自己エネルギー推定を実施することができました。

本研究課題で得られた機械学習手法は、これまで分光実験法を一変させ、従来高精度な観測が現実的ではなかった非占有状態の運動量分解のスペクトル関数、引いては自己エネルギー観測を可能とするものです。従来の3つの科学と第4の科学、データ科学が融合した革新的な手法となる可能性があり、今後順調に研究が進展していけば、国外の後追いではない独創性の高い材料研究分野創出に貢献することが期待されます。また、当初の研究目的の通り、新たに得られた観測データから物性を制御するための鍵となる物質パラメータを抽出し、強相関物質の理論機能設計の可能性を拓くことが期待できます。欧米におけるマテリアルズインフォマティクス

が、強相関物質の取り扱いを不得手とする密度汎関数理論に基礎を置くものであることを鑑みても、独自性が高い研究へと進展することが予想されます。

## 5. 主な研究成果リスト

### (1) 論文(原著論文)発表

1. M. Kawamura, K. Yoshimi, T. Miasawa, <u>Y. Yamaji</u> , S. Todo, and N. Kawashima, <i>Compt. Phys. Commun.</i> 217, 180–192 (2017).
2. Y. Nomura, A. S. Darmawan, <u>Y. Yamaji</u> , and M. Imada, <i>Phys. Rev. B</i> 96, 205152(1–8) (2017).
3. A. Catuneanu, <u>Y. Yamaji</u> , G. Wachtel, Y. B. Kim, and H.-Y. Kee, <i>npj Quantum Materials</i> 3, 23(1–6) (2018).
4. M. Gohlke, G. Wachtel, <u>Y. Yamaji</u> , F. Pollmann, and Y. B. Kim, <i>Phys. Rev. B</i> 97, 075126(1–14) (2018).
5. A. M. Samarakoon, G. Wachtel, <u>Y. Yamaji</u> , D. A. Tennant, C. D. Batista, and Y. B. Kim, <i>Phys. Rev. B</i> 98, 045121(1–16) (2018).

### (2) 特許出願

研究期間累積件数: 0 件(公開前の出願件名については件数のみ記載)

### (3) その他の成果(主要な学会発表、受賞、著作物、プレスリリース等)

- (国際会議での招待講演)“Origin of high-temperature superconductivity as a non-linear inverse problem studied by machine learning”  
Y. Yamaji, 3rd International Symposium on Research and Education of Computational Science, Koshiba Hall, The University of Tokyo, Tokyo, Japan, September 21, 2018.
- (国際会議での招待講演)“Spin and Thermal Excitations in Kitaev-type Frustrated Magnets”  
Y. Yamaji, KIAS-KAIST Workshop on Topology and Correlation, Korea Institute for Advanced Study, Seoul, Korea, June 8, 2018.
- (国際会議での招待講演)“Metallicity and Topology in Iridate Domain Walls”  
Y. Yamaji, APS March Meeting 2018, Los Angeles Convention Center, Los Angeles, California, USA, March 8, 2018.
- (国際会議での招待講演)“Topological Domain-Wall Metals in Pyrochlore Iridates”  
Y. Yamaji, APS March Meeting 2016, Baltimore Convention Center, Baltimore, Maryland, USA, March 15, 2016.
- 第 11 回(2017 年)日本物理学会若手奨励賞