

研 究 報 告 書

「強相関電子系に対する機械学習を用いた高精度量子多体計算の新たな数理アプローチの開拓」

研究タイプ: 通常型

研究期間: 2016 年 10 月～2020 年 3 月

研 究 者: 辻直人

1. 研究のねらい

本研究では、高精度量子多体計算に機械学習の手法を取り入れて計算効率を最適化する新たな数理手法を開発し、強相関電子系の物性予測・物質設計の汎用的フレームワークを確立する。それによりこれまで解析することができなかった物質群に対する高精度計算の道を拓き、また計算効率を最適化する高次元パラメーターの学習モデルによる表現を得ることで強相関電子系の本質に迫るような新知見を得ることを目指す。

高精度量子多体計算の中でも動的平均場理論は電子相関効果を取り入れられる有力な手法であり、有限サイズクラスターの問題に帰着させることができる。これは高精度な量子モンテカルロ法によって解かれるが、負符号問題という本質的な困難を抱えており、現状では軌道数やクラスターサイズに厳しい制限がある。負符号の出やすさ、つまり計算効率はクラスターの 1 粒子基底の選び方に鋭敏に依存し、問題ごとに最適な基底が存在する。これまでは人間が知恵を絞って計算効率を向上させる基底を探す努力がなされてきた。最適な基底は一般に平面波基底とも局在基底とも異なり、人間が直観的に理解しにくいものとなっている。計算効率を最大化する基底を探す問題は一種の最適化問題とみなすことができる。

そこで、機械学習の手法を利用して、低エネルギー有効モデルのパラメーターが与えられたときに計算効率が最もよくなる基底を推定する学習モデルを構築する。量子モンテカルロ法の計算効率の指標として、符号の期待値を用いる。この量は、物理量の期待値と比較して高速で計算することができるため、様々な基底に対して符号の期待値を計算し、大量の訓練データを蓄積させることができる。そこから符号の期待値の分布を観測データとして得ることができる。この分布になるべく近くなるような確率分布を生成する学習モデルを設計する。

構築された学習モデルの基底状態を求めることで、量子モンテカルロ法の計算効率を最大化する基底が得られる。実際、計算効率がどの程度改善されたかは量子モンテカルロ法自身によって自己判定することができる。これを様々な学習モデルの候補について試すことで、最も効率よく最適化基底を選び出せる学習モデルを導く。それを動的平均場理論に組み込むことで、軌道数やクラスターサイズの制限を緩和した汎用的な高精度量子多体計算手法を確立することをねらう。

2. 研究成果

(1) 概要

強相関電子系のシミュレーションに使われる連続時間量子モンテカルロ法において、計算効率を左右する負符号問題の度合いは展開に用いる 1 粒子基底の取り方に大きく依存する。本研究では、負符号を抑えて計算効率を最大化するような基底を推定するモデルを構築し

た。具体的には、推定モデルとして対応するフェルミハバードモデルと(ハードコア)ボースハバードモデルの自由エネルギー差をとった ΔF 指標というものを提案した。量子モンテカルロ法の負符号問題は、電子がフェルミオンであることを反映してフェルミオンの反交換関係に起因する。 ΔF 指標はちょうどフェルミオンの反交換関係をボソンの交換関係に置き直した際の影響の度合いを定量化したものになっている。また、 ΔF 指標だけでは不十分な場合、フェルミハバードモデルとボースハバードモデルの間の Kullback-Leibler (KL) 情報量を相補的に用いることで、最適基底の推定精度が上がる。 ΔF 指標と KL 情報量を様々なサイト数・軌道数のクラスターモデルに適用し、選んだ基底が最適かどうかをすばやく判定することができることを示した。また、ベイズ最適化を用いて量子モンテカルロ法の計算効率を最大化するような基底の探索を行った。

量子モンテカルロ法には、負符号問題以外にも、軌道の数が多くなると確率の重みを計算するコストが指数関数的に増大する困難がある。強結合展開型の量子モンテカルロ法において、モンテカルロが生成する大量の情報を機械学習して、効率よくサンプリングを行う手法を開発した。モンテカルロの確率分布を学習するモデルとして、虚時間軸上を相互作用する古典粒子が配置された学習モデルを考えた。多軌道アンダーソン模型に対してテストした結果、フント結合が大きい場合に精度よくモンテカルロの確率分布を推定できることがわかった。得られた学習モデルを使ってモンテカルロのアップデートを行うことで、計算コストを大幅に削減させることができた。また、学習モデルによるアップデートを繰り返した後、真の確率分布を計算してアップデートを行うことで、バイアスをかけることなく数値的に厳密にモンテカルロの自己相関時間を短くすることができる。これによって、動的平均場理論のソルバーとして広く使われる強結合展開型の量子モンテカルロ法の計算効率が格段に向上した。

(2) 詳細

研究テーマ A「量子モンテカルロ法の最適基底選択問題」

固体電子系において、電子相関効果に起因して超伝導や磁性など様々な物理的性質をもった量子相が現れる。しかし、電子相関効果を正しく考慮したマテリアルシミュレーションは容易ではなく(例えば密度汎関数理論はモット絶縁体を金属と予測してしまう)、平衡系・非平衡系を含めて様々なアプローチがとられている(発表論文[1-5])。その中でも、動的平均場理論は局所的な電子相関効果を厳密に取り込む手法として第一原理計算と組み合わせで強相関物質に対して広く用いられ、成功を収めている。

動的平均場理論は、電子系の格子モデルを 1 サイトの不純物ないし有限サイズのクラスターモデルに置き換えて自己無撞着に解く手法である。クラスターモデルを解くための汎用的かつ高精度な量子多体計算手法として、連続時間量子モンテカルロ法がある。量子モンテカルロ法は一般に、確率の重みが負になってしまう負符号問題という困難を抱えていて、動的平均場理論を使ったマテリアルシミュレーションのボトルネックになっている。負符号問題の度合いは量子モンテカルロ法の展開に使う 1 粒子基底の選び方に大きく依存することが知られている。3 サイトクラスターモデルの場合に、符号の期待値が基底のパラメーター空間上でどのように分布しているかを図 1 左に示した。

本研究では、量子モンテカルロ法の計算効率を最大化する基底を見つけるための推定モデ

ルを構築した(学会発表[2-4])。負符号問題は、電子がもつフェルミ統計性に起因する。このフェルミ統計性を、負符号が発生しないボース統計性に置き換えたとき、その「差」が負符号の影響の大きさを表していると考えられる。そこで、フェルミオンのクラスターモデルと対応するボソンのクラスターモデルの間の自由エネルギー差(ΔF 指標)を推定モデルに用いた。3 サイトクラスターに対して、平面波基底・局在基底・中間基底をとったときの ΔF 指標の振る舞いを図1右に示した。この結果は、実際の量子モンテカルロ法の計算効率を決める符号の期待値の振る舞いと定量的に合致する。特に中間基底は ΔF 指標の値が厳密に1になっており、この基底を選ぶことで負符号を厳密にキャンセルすることができる。このように、推定モデルを使うことで選んだ基底が最適かどうかをすばやく判定することができるようになった。 ΔF 指標と相補的に、フェルミオンのクラスターモデルとボソンのクラスターモデルの間の Kullback-Leibler (KL) 情報量も用いた。また、ベイズ最適化によって、計算効率を最大化する基底の探索を行った。

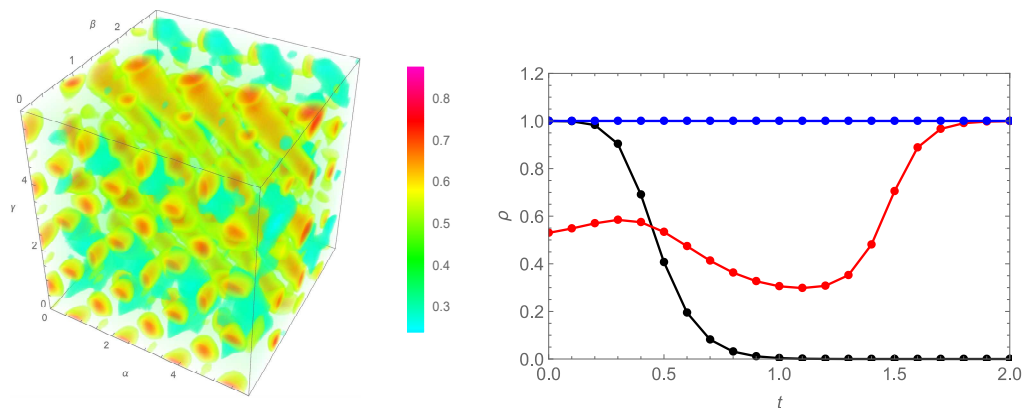


図1. (左) 3 サイトクラスターに対して、量子モンテカルロ法の計算効率を表す符号の期待値を基底のパラメータ空間でプロットしたもの。(右) 3 サイトクラスターにおいて、平面波基底(赤)・局在基底(黒)・中間基底(青)に対する推定モデルによる計算効率の予測値。横軸は電子のホッピングパラメーター。その他のパラメーターはクーロン相互作用 $U=5$ 、逆温度 $\beta=10$ 。

研究テーマ B「機械学習を用いた強結合展開型の連続時間量子モンテカルロ法」

連続時間量子モンテカルロ法の中でも多軌道の強相関系に威力を発揮するのが、強結合展開型のアルゴリズムである。この方法は、局所的な相互作用項を厳密に取り入れる代わりに、非局所的な運動項を摂動展開によって扱う。1 サイトクラスターの場合には負符号問題が抑制される特徴があるが、多軌道系において軌道の数が増えると、確率の重みを計算するコストが指数関数的に増大してしまうという困難がある。

そこで、機械学習の手法を用いて、強結合展開型量子モンテカルロ法において確率の重みを計算するコストを緩和するアルゴリズムを開発した(学会発表[1,3-5])。強結合展開型では、確率の重みは行列式の部分と局所的なトレースの部分に分離する。行列式の部分は、虚時間軸上で粒子が相互作用する古典的なモデルを学習モデルとして用いた。局所トレース部分は、相互作用の形が密度・密度型の場合にセグメント表示というものができるところを参考にして、各相互作用点において状態が変化していくとして状態ごとにエネルギーが与えられた古

典モデルを学習モデルとして採用した。量子モンテカルロ法を走らせながら訓練データを蓄積し、得られたデータから線形回帰によって学習モデルに含まれるパラメーターを最適化した。2軌道のアンダーソンモデルに対して機械学習を行った結果を図2に示した。フント結合が小さいと相互作用は密度・密度型に近づくので、精度良く学習できていることがわかる。フント結合が大きくなると、一般に学習精度は落ちる。

機械学習の結果を用いて、量子モンテカルロ法の確率重みを計算することに応用した。まず、学習モデルを使ってモンテカルロのアップデートを繰り返す。学習モデルは古典モデルになっていて計算コストが非常に低い。そのため高速でアップデートを繰り返すことができる。一定回数のアップデートを行った後、真の確率重みを計算し、重みの比率からアップデートを採用するかどうかを判定する。この方法の利点は、真の確率重みを使うため近似やバイアスが入ることなく数値的に厳密なアルゴリズムになっていること、学習モデルによるアップデートを繰り返すことでモンテカルロサンプル間の自己相関時間を劇的に減らすことができることが挙げられる。自己相関時間が減少するとサンプルの独立性が高まり、少ない数のサンプルでも統計誤差を抑えることができるようになる。自己相関時間が十分長いシステムの場合、計算コストを $O(N^3 + N \cdot 2^{6N_{\text{orb}}})$ から $O(N^2 + N)$ に落とすことができた (N は強結合展開の次数、 N_{orb} は軌道数)。以上の結果によって、強相関係の材料シミュレーションに用いる強結合展開型の量子モンテカルロ法の計算コストが大幅に緩和された。

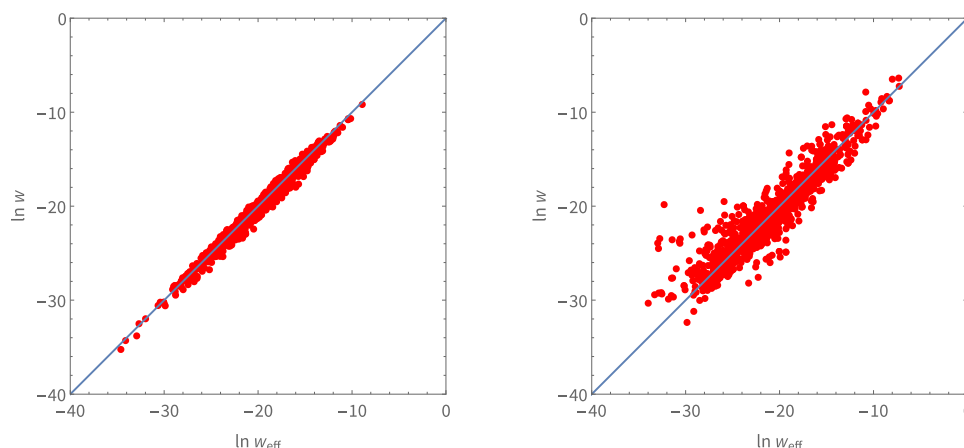


図2. 2軌道アンダーソンモデルに対して、強結合展開型量子モンテカルロ法の確率の重みの分布を機械学習した結果。縦軸が真の確率重みの値、横軸が学習モデルによる予測値である。(左) フント結合 $J=0$ の場合。 R^2 値は 0.977。(右) $J=1$ の場合。 R^2 値は 0.841。その他のパラメーターは、クーロン相互作用 $U=4$ 、化学ポテンシャル $\mu=2$ 、逆温度 $\beta=10$ 、バンド幅 $W=4$ 。

3. 今後の展開

本研究で開発した機械学習を用いた強結合展開型量子モンテカルロ法に残る課題として、学習モデルを訓練する計算コストをいかに削減するかが課題である。一度学習してしまえば計算コストは軽減されるが、学習するための訓練データを蓄積するのに結局量子モンテカルロ法をまわさなければならない。訓練を行う際には確率重みだけを計算すればよく、計算コストの高い物理量の計算は必要ないが、それでも軌道の数が多くなると訓練プロセスで多大な

時間がかかってしまう。できれば、システムごとに毎回学習しなくても最初からある程度学習パラメーターが予測できていることが望ましい。例えば確率重みの局所トレース部分は、密度・密度型の相互作用に近似すれば学習パラメーターの値がわかる。この方向で今後研究を展開していくことが考えられる。

また、フント結合の値が大きいときに学習精度が落ちてしまうという問題も残っている。これは、相互作用の形が密度・密度型から離れてしまうために、密度・密度型の相互作用をよく表すように作られた学習モデルでは確率重みをうまく表現できなくなることが原因と考えられる。多くの物質群ではフント結合の値はそれほど大きくないので問題にならない場合が多いが、大きなフント結合をもつ強相関物質(Sr_2RuO_4 など)もあるのでそれらにも適用できるようにしたい。密度・密度型ではない、スピンフリップ項やペアホッピング項を精度よく表現できるように学習モデルを改善していくことが今後の方向性として考えられる。

4. 自己評価

本研究の目的であった、量子モンテカルロ法の計算効率を最大化する展開基底を推定する課題については、精度のよい推定モデルを構築することができた。これによって、選択した展開基底が最適のものであるかどうかを素早く判定することが可能になった。さらに、なぜ平面波基底や局在基底などの人間にとって理解しやすい基底ではなく中間的な基底が最適であるかについて、理由を理解することができた。この部分に関しては本研究の目的を達成しており、評価できる。さきがけ領域会議でいただいたコメントやアドバイスの中で、量子モンテカルロ法を走らせている最中に得られる大量のデータを機械学習に利用できないかという提案があり、当初の想定にはなかった方向に研究を発展させることができた。その結果、機械学習を用いた強結合展開型の量子モンテカルロ法の開発が進み、確率重みを計算するコストを大幅に削減する方法が確立した。この成果は、今後動的平均場理論と組み合わせることで強相関電子系のマテリアルシミュレーションに大いに役立つことが期待される。本研究結果はすでに各種学会において発表済みであるが、論文執筆が当初の予定より遅れており、この部分はマイナスの評価である。強相関電子系や超伝導体のマテリアルシミュレーションを使った非平衡ダイナミクスの研究を並行して進めており、Annual Review of Condensed Matter Physics 誌から招待されて総説論文が出版されたり、Nature Communications 誌に論文が受理された等の成果があった。研究実施体制については、基本的に個人研究の形で研究を進めてきたが、量子モンテカルロ法の専門家であるフribourg大学の Philipp Werner 教授と国際共同研究を行うことができた。研究費の執行状況はおおむね計画通り進み、クラスター計算機を導入して量子モンテカルロ法の研究に用いることができた。

5. 主な研究成果リスト

(1) 論文(原著論文)発表

1. L. Schwarz, B. Fauseweh, N. Tsuji, N. Cheng, N. Bittner, H. Krull, M. Berciu, G. S. Uhrig, A. P. Schnyder, S. Kaiser, D. Manske, “Classification and characterization of nonequilibrium Higgs modes in unconventional superconductors”, Nature Communications, 11, 287 (2020).

2. R. Shimano, N. Tsuji, “Higgs mode in superconductors”, Annu. Rev. Condens. Matter Phys. (2020), in press. (Online publication: doi: 10.1146/annurev-conmatphys-031119-050813)
3. S. Sayyad, N. Tsuji, A. Vaezi, M. Capone, M. Eckstein, H. Aoki, “Momentum-dependent relaxation dynamics of the doped repulsive Hubbard model”, Phys. Rev. B 99, 165132 (2019).
4. R. Iwazaki, N. Tsuji, S. Hoshino, “Nature of the superconducting fluctuations in photoexcited systems”, Phys. Rev. B 100, 104521 (2019).
5. K. Katsumi, N. Tsuji, Y. I. Hamada, R. Matsunaga, J. Schneeloch, R. D. Zhong, G. D. Gu, H. Aoki, Y. Gallais, R. Shimano, “Higgs Mode in the d -Wave Superconductor $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+x}$ Driven by an Intense Terahertz Pulse”, Phys. Rev. Lett. 120, 117001 (2018).

(2)特許出願

研究期間累積件数:0 件

(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)

1. 辻直人、Philipp Werner、「機械学習を用いた強結合展開型の連続時間量子モンテカルロ法」、日本物理学会秋季大会、岐阜大学、2019 年 9 月.
2. 辻直人、「動的平均場理論に対する量子モンテカルロ法の最適基底選択問題」、日本物理学会秋季大会、同志社大学、2018 年 9 月.
3. Naoto Tsuji, “Self-learning continuous-time quantum Monte Carlo and optimization of the single-particle basis”, PRESTO International Symposium on Materials Informatics, Tokyo, February 2019.
4. 辻直人、「非平衡動的平均場理論の最近の進展」、招待講演、第 2 回動的平均場近似計算に関する情報交流会、埼玉大学、2018 年 6 月.
5. Naoto Tsuji, “Machine learning quantum Monte Carlo simulations for strongly correlated electron materials”, Materials Research Meeting 2019 (MRM2019), Yokohama, December 2019.