

令和3年度高性能汎用計算機高度利用事業

「富岳」成果創出加速プログラム

量子物質の創発と機能のための基礎科学—「富岳」と最先端

実験の密連携による革新的強相関電子科学」

成果報告書

令和4年5月30日

早稲田大学理工学術院総合研究所

今田 正俊

## 補助事業の名称

「富岳」成果創出加速プログラム

「量子物質の創発と機能のための基礎科学—「富岳」と最先端実験の密連携による革新的強相関電子科学」

### 1. 補助事業の目的

物理学の根元的な問いである、量子流体の本性は何か？という問いと、高温超伝導はどうやって生み出されるのか？という 2 つの未解決で深く関連しあう基礎科学の根本課題に、現代最高のスーパーコンピュータ「富岳」がどこまで答えられるか真っ向から挑戦する。「富岳」を用いて初めて可能となる強相関高温超伝導体およびトポロジカル物質の網羅的強相関第一原理計算と、本格実施課題(ポスト「京」重点課題 7 サブ課題 C)で追究し成果の出ている機械学習法とを、大規模な分光実験データを含む世界最高精度を実現してきた実験研究者との密な連携によって融合し、実験で直接測定できない隠れた物理量の解明を軸として、基礎物質科学の根源的な問いを革新してきた未来開拓課題である「強相関電子が生み出す量子流体と高温超伝導の機構と機能の解明」を目指す。

### 2. 令和3年度(報告年度)の実施内容

#### 2-1. 当該年度(令和3年度)の事業実施計画

(1) [高温超伝導体の第一原理電子状態解析] 各種の分光実験データが蓄積している多層型銅酸化物超伝導体である Bi 化合物の研究を推進し、第一原理有効ハミルトニアンの改良、および mVMC (多変数変分モンテカルロ計算) を用いて「富岳」による大規模解析を進める。特に 1 層型化合物 (Bi2201) と 2 層型化合物 (Bi2212) の物性の差、中でも超伝導転移温度の大きな差を生む原因を第一原理的に解明する。同じ有効ハミルトニアンをもとに、基底状態相図だけでなく、スペクトル関数、X 線散乱スペクトル、走査型トンネル分光 (特に準粒子干渉)、スピン相関なども解明し、進行中の実験結果との比較を行い物質設計に対する洞察を得る。以上について「富岳」を用いて初めて実行可能となる「京」での計算限界の数倍から十倍のサイズの (数千電子を超える) 大規模計算によって高精度かつ高信頼性の計算を継続して解析を進める。さらに水素ドーピングした鉄系超伝導体の謎となっている水素ドーピングによって生じる超伝導相の相図のメカニズムを解明する。また水銀系銅酸化物の 1 バンドと 3 バンドの有効ハミルトニアンの解を比較し多軌道性 (酸素 p 軌道と銅 d 軌道) の役割を解明する。

(2) [トポロジカル物質の第一原理電子状態解析] 新マヨラナ物質候補 RuBr<sub>3</sub> および RuI<sub>3</sub>、ならびにスピノン物質候補 R<sub>2</sub>Ir<sub>2</sub>O<sub>7</sub> (R=Pr, Y, Eu) について最高精度の第一原理有効ハミルトニアンを「富岳」を用いて網羅的に導出し、「富岳」が不可欠となる大規模計算によってそれらの有効ハミルトニアンの高精度な解析を行う。第一原理ハミルトニアンとパラメタ解析を組み合わせ、マヨラナ物質およびスピノン物質候補から、X 線散乱などの励起スペクトルを用いたトポロジカル相の構造的特徴の抽出を行う。また量子スピノン液体の形成が示唆されている dmit 型分子性結晶の第一原理有効ハミルトニアンを用いて、反強磁性相からスピノン液体相までの 4 つの化合物の異なるパラメタを用いた網羅的な解析を行ない、スピノン液体の性格を明らかにする。

(3) [強相関係実験データの機械学習解析] 本格実施課題(ポスト「京」重点課題7サブ課題C)において独自に開発し成果を上げてきた分光実験データから隠れた物理量を抽出する機械学習手法をさらに拡張、開発を進める。今年度は異なる角度分解光電子分光のデータを比較検討することにより、超伝導を生む自己エネルギーのピークの信頼度を検証し、ダークフェルミオンの存在の有無の検証を確実なものにする。また大規模な準粒子干渉のデータおよび共鳴 X 線非弾性散乱 (RIXS) のデータを、角度分解光電子分光のデータと合わせて統合解析を機械学習の手法を用いて行い、機構解明の精度を高めていく。

(4) [計算結果の国際的なクロスチェック] プロジェクト全体の密な連携と円滑な運営のために国外の研究協力機関の協力研究者と、高温超伝導体、トポロジカル物質モデル系について、各種の数値手法での計算結果による国際的な批判的クロスチェック体制を推進する。特に銅酸化物第一原理ハミルトニアンとハバード模型ハミルトニアンの精度検証を進める。

(5) [アウトリーチ・人材育成] 本プロジェクトで得られた成果はオープンアクセス論文の発表、シンポジウムや研究会の開催と支援、プレスリリースやホームページ、研究活動を通じて積極的に公表していく。若手研究員(ポスドク等)とともに、実験研究とも連携できる計算科学の担い手の育成を継続して行なっていく。

## 2-2. 実施内容(成果)

### (1) [高温超伝導体の第一原理電子状態解析]

多層型銅酸化物高温超伝導体、すなわち層の数の違いだけで超伝導転移温度が3倍以上も異なる、Bi系銅酸化物、および無限層化合物と呼ばれる  $\text{CaCuO}_2$  の第一原理計算を令和2年度から続け、令和3年度にはこれらの導出されたハミルトニアンを比較して、物質によるパラメタの違いの特徴も抽出した。ハミルトニアン導出について、成果として論文執筆を進めている。同時に複数の物質について量子多体ソルバーである mVMC を用いて解く作業もすすめ、 $\text{CaCuO}_2$  について超伝導相の再現に成功した。以前求めている Hg 系の超伝導との間に特徴的な違いがあり、この超伝導相の性格との比較吟味を進めている。第一原理計算によっていくつかの銅酸化物での安定な超伝導が再現されたが、それと激しく競合する反強磁性とストライプ秩序の性格もスピン相関、電荷相関の計算によって明らかとなった。また一定程度の「富岳」資源を投入して、Bi系超伝導体を含むそのほかの数種の酸化物及び関連物質の化合物のハミルトニアン導出と予備計算を進め、令和4年度の本格計算に備えた。一方第一原理計算で再現された d 波超伝導とストライプ状態の競合とそれを生む背景にある電子の分数化は、TCFM とよばれる有効ハミルトニアンによって記述できる。光電子分光から導かれるスペクトル関数を再現するように TCFM 有効ハミルトニアンを決めることができるが、同じハミルトニアンで共鳴非弾性 X 線散乱の強度を予測し、電子の分数化を原因として、強度が擬ギャップ相(常伝導相)に比べて超伝導相で増大することを予測して実験を提案し、実際に予測の通り実験で増幅が確認された(のちに詳述)。この増幅が、電子が分数化しているときだけ増幅することも示した。さらにこの分数化によって、トンネル分光での準粒子干渉が示す特徴の抽出を進めている。

一方、鉄系超伝導体  $\text{LaFeAsO}_{1-x}\text{H}_x$  の第一原理有効ハミルトニアンを量子多体ソルバーで解析し、 $x=0.0$  および  $0.5$  付近で、実験で観測された磁気構造を再現できることを示した。さらに中間相における超伝導安定性を精査している。

また Ni 酸化物の超伝導の第一原理計算についても GW 近似を用いて有効モデルを導出し、論文と総合報告が出版された[1]。さらに圧力下の高温超伝導について、室温超伝導の可能性が議論されている C-H-S 系について構造予測を行い、C がドーパされた H3S 以外に安定構造がないことを明らかにした上で、フォノン機構で期待される超伝導転移温度が室温に近くなることはないことを示した。

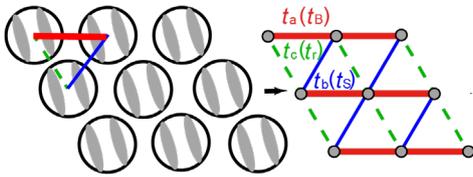


図 1: 量子スピ液体解明のために進めている dmit 塩の網羅計算に使われた化合物の結晶構造の模式図[3]。

(2) [トポロジカル物質の第一原理電子状態解析]

本研究の課題である量子スピ液体は20世紀後半からの基礎科学の難問の一つであり、また量子計算や量子通信を実現するための、量子纏れの基礎学理を解明するための主戦場でもあるという背景を持つ。

まず量子スピ液体が発現することで注目を集めている有機固体  $\beta' - X[\text{Pd}(\text{dmit})_2]_2$  ( $X$  はカチオンを表す) に対して網羅的な第一原理有効ハミルトニアン導出を行った。有効ハミルトニアンを厳密対角化で解析することで、量子スピ液体が発現している物質 ( $X=\text{EtMe}_3\text{Sb}$ ) で磁気秩序モーメントの顕著な抑制が起きることを見出した[2]。さらに令和2年度に行われた予備計算を発展させて、分子性導体 (分子性結晶) の5種類のカチオンの異なる dmit 塩に対して、第一原理計算によって導かれた図1に示すような格子構造を持つ2次元有効ハミルトニアンに高精度量子多体ソルバー-mVMC を適用し、「富岳」を活用した大規模計算で解いた。その結果、熱力学極限と考えられる大きな系での計算結果は4種類の化合物が反強磁性、1種類の化合物が量子スピ液体を基底状態に持つことを明らかにした(図2と3参照)[3]。

この結果は実験結果を正しく再現しており、さらに実験で観測される反強磁性転移温度の高低と、計算で得られた反強磁性状態の量子スピ液体に対する相対的エネルギーの大小の順序も、量子スピ液体である物質も含めて一致しており、この順序を決めている因子の主成分が、2次元的方向のワニエ軌道の2種類の重なり積分の差で特徴づけられる、幾何学的フラストレーションの大きさであることも明らかとなった。

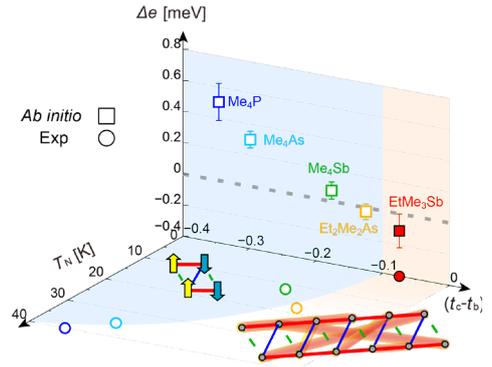


図 2: 分子結晶 dmit 塩における反強磁性と量子スピ液体の競合を示す実験相図 (底面) と第一原理計算結果 (壁面) の一致を示す比較[3]。

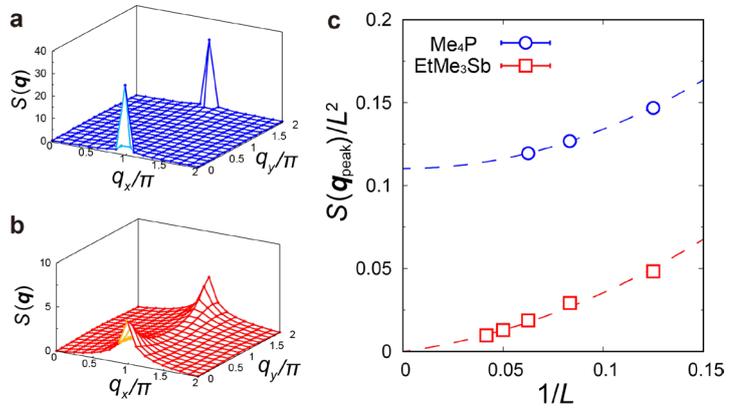


図 3: 反強磁性を示す物質 (Me4P) (a) と量子スピ液体を示す物質 (カチオン EtMe3Sb) (b) の  $16 \times 16$  格子でのスピ構造因子はピークの鋭さが顕著に異なり熱力学極限に外挿すると (c) のように反強磁性秩序の有無の差を生む[3]。

以上の実験結果との一致は、我々が採用している階層的第一原理強相関電子状態計算法、MACE という手法の信頼性を示している。量子スピン液体の領域が実験結果を再現することから、その性格を計算科学的に解明することが現実の化合物のメカニズムとして意味のあるものであることがわかったので、集中的にその物性を明らかにした。その結果、波動関数の性格は2次元的な性格を持ち、スピンの分数化したスピノンが基本励起を担うという点で、令和2年度までに明らかにしていた  $J_1$ - $J_2$  模型のスピ液体

の性格（この成果については令和3年度に出版され、国際会議招待講演、プレスリリースなどで成果発信も行なっている）との類似点が明らかとなった[3]。一方、物理量の相関、特にスピン相関は、ある方向（ $x$ 方向）では相関が代数的に減衰するのに対して、それに垂直な方向（ $y$ 方向）では指数関数的に減衰しており（図4参照）、次元低下と呼べる創発が生じている点が、 $J_1$ - $J_2$  模型とは大きく異なる。この点についてその起源を令和4年度にさらに追究することとなった。本課題の成果は論文として公表した[3]。

令和2年度に量子流体解明のプロジェクトの重要な一翼を占めるパイロクロア構造のスピ液体物質候補  $R_2Ir_2O_7$  の有効ハミルトニアンの前端的解析を行ない、トポロジカル量子スピン液体相実現の兆候が捉えられていたが、励起スペクトルの規約表現対称性に基づく解析を推し進め、実は本来等方3次元構造を持っているパイロクロア構造から、物理量の層間の相関が途切れ、次元低下した2次元的な量子スピン液体が創発することを見出した。この予想外の結果をさらに追求すべく、帰着される2次元の有効模型を大規模な系に拡大できるメリットを生かし、「富岳」も活用して、励起構造や基底状態での物理量の相関を精査した結果、物理量相関が代数的に減衰し、熱力学極限でギャップのない励起構造が示唆されることがわかった。しかしながらこの2次元的な量子スピン液体は、令和2年度までに明らかとなっていた  $J_1$ - $J_2$  模型の低エネルギー励起分散（運動量依存性）やその対称性とは大きな差があり、共通点と相違点を抽出することが、量子スピン液体の全体像解明に重要であるという理解に達している。

$J_1$ - $J_2$  模型も含めた3種類の量子スピン液体の解明から、量子スピン液体を特徴づけるスピンの分数化による基本励起としてのスピノンの創発という共通の特徴が浮かび上がってきていることは令和3年度の成果の特徴である。

またスピ液体候補物質  $RuH_3$  (H=Cl, Br, I) のハロゲン置換

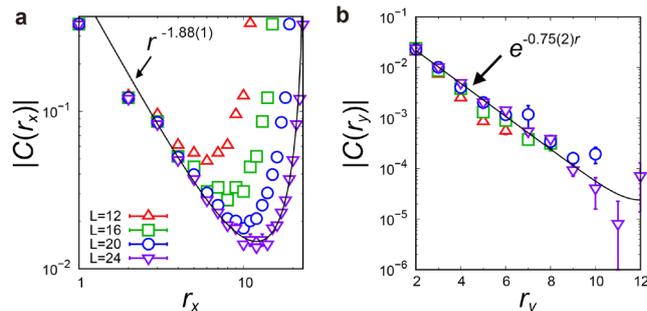


図4: dmit 塩の量子スピン液体では  $x$  方向のスピン相関が代数的に減衰し、 $y$  方向のスピン相関が指数関数的に減衰するという、異方的な液体が実現し、次元低下が生じている[3]。

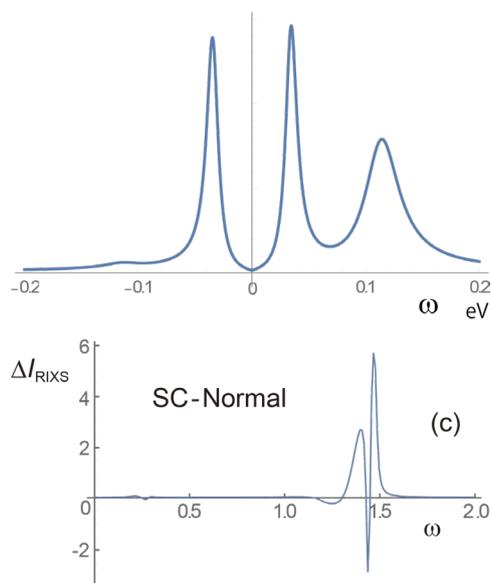


図5: ARPES の実験データを再現するようなスペクトル関数(上図)をもとにした電子の分数化を表す模型で、RIXS の励起子共鳴ピークの強度が超伝導相で常伝導相に比べて増加するという予測（下図）[5,6]。

による金属絶縁体転移の発現を令和 2 年度に物質合成グループに提案していたが、共同で論文として出版された。

さらに実空間で大きな磁気構造をもつスキルミオン系におけるトポロジカルホール効果を実空間で解析する方法を開発し、どのようなサイズでホール効果が最も大きくなるかについての考察をおこなった。

一方、パイロクロア型ルテニウム酸化物について、第一原理に基づく電子状態計算を行い、動的平均場理論によって電子相関効果を取り入れることで、光学伝導度等の実験結果を説明可能であることを示した。

### (3) [強相関係実験データの機械学習解析]

研究協力者である近藤（東京大学物性研究所（以下東大物性研と略記））が得た角度分解光電子分光 (ARPES) から得られるスペクトル関数を機械学習解析して一体の電子の自己エネルギーを正常部分と異常部分の寄与に分けて抽出してみると、a) それぞれに顕著なピーク構造があるが、b) 角度分解光電子分光ではその寄与が完全に相殺して隠れてしまうこと、c) またそれにもかかわらず異常部分の寄与が超伝導を引き起こす主因になっていることが令和 2 年度までに明らかになっており、これに散逸が超伝導転移温度を決定していることなど追加考察も加えた成果が令和 3 年度に公表され[4]、令和 3 年度の国際会議招待講演も行なっている。一方この機械学習に基づく光電子分光実験の解析結果をもとに抽出される、電子分数化を表現する 2 成分フェルミオン模型を用いた、共鳴非弾性 X 線散乱 (RIXS) の予測も令和 2 年度の成果として論文を投稿していた。この予測は電子が分数化していると、常伝導相と比べて超伝導相において励起子の共鳴ピーク強度が増大するが、分数化していなければ増大しないので、増大するかどうかで電子の分数化の存否を判定できるというものである(図 5 参照)。この成果は令和 3 年度に論文公表され[5]、同時に令和 3 年度には一連の電子分数化の特徴と機構、およびこれを解明するための統合分光を推進している我々の成果について、レビュー論文を公表し[6]、現状や課題を整理し、研究コミュニティのために寄与した。

さらに、RIXS 実験の予測は、本課題参加者の藤森（早稲田大学）と台湾の実験グループにより、台湾の RIXS 装置で実験が行われ、本プロジェクトの計算科学解析も合わせて検証され、予測通りに超伝導相での増幅が観測された。これは電子分数化という我々の提唱する新たな基礎概念の強い証拠が加わったことになる。成果は実験グループとの共同研究論文として論文投稿中である。

また研究協力者花栗（理化学研究所）のトンネル分光を用いた準粒子干渉(QPI)の実験データを参照しつつ、ARPES の機械学習解析から得られる電子分数化を表現する 2 成分フェルミオン模型と QPI 実験データとの突合せから、QPI データが電子の分数化に対する知見を提供できるかどうかの吟味を進めている。以上、本プロジェクトの重要な柱である世界最先端実験との密連携が順調に進んだ。

「富岳」での計算ももとに、(1)と(2)で一目全く異なる分数化がいくつもの例で確立しつつあるが、量子流体と高温超伝導で見られる分数化の底流を流れる普遍性や、統一理解が、励起子の量子纏れとスピンの量子纏れを統一的な枠組みで理解する可能性をもとに、重要な検討課題となった。

また、今後、実験-計算密連携で解析を行うための実験データの蓄積も進んだ。以下に列挙する。

- ・銅酸化物高温超伝導体において電荷秩序とともに起こるフォノンの異常なソフト化が、電荷の量子揺らぎによることを共鳴非弾性 X 線散乱実験が明らかにした[7]。
- ・セリウムアンチモンが示す「悪魔の階段」という複雑な磁気相転移現象で変化する伝導電子の振る舞い

をレーザー励起角度光電子分光を用いて高精度に調べた。その結果、「悪魔の階段」を通して結晶中で綺麗に整列した局在スピン・軌道と強く相互作用する新しい準粒子「多極子ポーラロン」を発見した[8]。

・高安定低温 STM を用いて銅酸化物高温超伝導体  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$  の準粒子干渉パターンの観測を行い、理論シミュレーションとの比較の基となる高精度データを取得した他、ノード準粒子に起因する新しい干渉信号の検出に成功した。

#### (4) [計算結果の国際的なクロスチェック]

令和 2 年の国際ミーティングももとに、量子多体ソルバーの精度の国際検証のプロジェクトが、Github 上で進み、我々からハバード模型、スピン模型に関してベンチマーク結果を示し、他グループのベンチマークとも合わせ公表の準備を進めた。将来の量子計算機設計における古典計算側からの検証データとしても有用な結果となると期待できる。

#### (5) [アウトリーチ・人材育成]

本プロジェクトで得られた成果は論文の公表、国際会議招待講演、シンポジウムや研究会の開催と支援、プレスリリースやホームページ、研究活動を通じて積極的に情報発信した。若手研究員（ポスドク等）を雇用し、実験研究とも連携できる計算科学の担い手の育成を行った。

#### (6) [コードの高度化、「富岳」へのチューニング]

3 週間から 1 か月程度の間隔で、定期的にコードの高度化や「富岳」へのチューニングのミーティングを開催し、情報交換と高度化のために役立てた。また mVMC の中核部分を占めるパフィアン計算について、パフィアンの持つ対称性に着目した、高速化効率化に成功し、その成果を論文として公開した[9]。この成果は公開ソフトにも反映させることを企画している。また、機械学習との組み合わせを取り入れた mVMC のソフトウェア整備および単精度・半精度実数計算の検討が進んでいる。また、canonical thermal pure quantum (cTPQ) state 法を実装した HPhi version 3.5.0 をリリースした。ctest 機能、Pfaffian の効率的な計算手法などを実装した mVMC version 1.2.0 もリリースした。

[1] Y. Nomura and R. Arita, Rep. Prog. Phys. 85 052501 (2022)

[2] K. Yoshimi, T. Tsumuraya, and T. Misawa, Phys. Rev. Research 3, 043224 (2021).

[3] K. Ido, K. Yoshimi, T. Misawa and M. Imada, npj Quantum Mater. 7, 48 (2022).

[4] Y. Yamaji, T. Yoshida, A. Fujimori, and M. Imada, Phys. Rev. Research 3, 043099 (2021).

[5] M. Imada, J. Phys. Soc. Jpn. 90, 074702 (2021).

[6] M. Imada, J. Phys. Soc. Jpn. 90, 111009 (2021).

[7] S. Ideta et al., Phys. Rev. Lett. 127, 217004(1-6) (2021).

[8] Y. Arai, R. Arita and Takeshi Kondo et al., Nature Materials 21, 410 (2022).

[9] R. Z. Xu, T. Okubo, S. Todo and M. Imada Compt. Phys. Commun. 277, 108375 (2022).

## 2-3. 活動（研究会の活動等）

(1) [高温超伝導体の第一原理電子状態解析]のためのミーティング

・銅酸化物ミーティング；令和 3/4/19、5/11、6/2、6/24、7/15、8/2、8/24、9/14、10/14、11/2、11/18、12/14、令和 4/1/12、1/26、2/24、3/23 計 16 回開催

・Bi2201 meeting；令和 3/4/13、4/19、4/21、4/27、5/10、5/18、5/26、6/2、6/9、6/16、6/28、7/5、7/12、7/19、7/27、8/3、8/10、8/19、8/26、9/2、9/9、9/15、9/24、9/30、10/8、10/12、10/14、10/19、10/28、11/8、11/17、11/25、12/3、12/10、12/16、12/21、12/27、令和 4/1/6、1/14、1/19、1/27、2/3、2/8、2/15、2/22、3/1、3/9、3/18、3/30 計 49 回開催

## (2) [トポロジカル物質の第一原理電子状態解析]のためのミーティング

・dmit meeting；令和 3/4/19、5/14、6/3、6/23、7/14、7/29、8/17、8/30、9/16、9/29、10/7、10/25、10/26、11/11、11/25、12/14、令和 4/1/6、1/25、2/9、2/28、3/24 計 21 回開催

## (3) [計算結果の国際的なクロスチェック]

量子多体ソルバーの精度の国際検証のプロジェクトが、Github 上で進み、我々からハバード模型、スピン模型に関してベンチマーク結果を示し、他グループのベンチマークとも合わせ公表の準備を進めた。

## (4) [アウトリーチ・人材育成]

・アウトリーチ

令和 3. 8. 13 プレスリリース 「機械学習手法により物理の難問「量子スピン液体」を解明ースーパーコンピュータ「富岳」も用いた最先端の計算により実現ー」 野村 悠祐（理化学研究所）、今田 正俊（早稲田大学）

令和 3. 9. 27 科学技術振興機構 研究開発戦略センター非公開セミナー「強相関電子物質の多体電子構と階層的な第一原理計算」（オンライン）

令和 3. 11. 9 プレスリリース「人工ニューラルネットワークで明らかになった高温超伝導の隠れた起源」 山地 洋平（物質・材料研究機構）、藤森 淳（早稲田大学）、今田 正俊（早稲田大学）

上記プレスリリースは令和 3. 11. 9 鉄鋼新聞(4 面)、令和 3. 11. 10 日刊工業新聞(23 面)、令和 3. 12. 3 科学新聞(1 面)の 3 紙に掲載された。

令和 4. 4. 22 プレスリリース 「有機固体で実現する量子スピン液体の特異な性質を解明 人工ニューラルネットワーク第一原理計算による量子物質設計へ」 井戸 康太（東京大学）、吉見 一慶（東京大学）、三澤 貴宏（北京量子情報科学研究院）、今田 正俊（早稲田大学）

・人材育成

早稲田大学にて 2 名、物質・材料研究機構にて 1 名の PD を雇用し、若手育成につとめた。

## (5) その他①

計算手法高度化および量子流体と高温超伝導の課題整理と課題参加者、協力者の成果を情報交換するミーティングを実施

・mVMC コードの高度化、「富岳」へのチューニングのためのミーティング；令和 3/6/15、6/30、7/13、7/27、8/18、9/6、9/30、10/19、11/16、12/7、12/28 令和 4/1/13、2/8、3/3、3/30 計 15 回開催

・QPI のデータ解析のためのミーティング；令和 3/12/28 令和 4/1/4、1/13、1/21、2/3、2/7、2/14、2/22、

3/2、3/7、3/18、3/30 計 12 回開催

- ・ QPI データの実験密連携、統合分光のためのミーティング；令和 4/3/8 計 1 回開催
- ・ 3 種の分光実験と「富岳」計算の密連携のための統合分光ミーティング；令和 3/12/15、令和 4/1/19、2/10、3/22 計 4 回開催

(6) その他②

オンラインワークショップ「物質・材料系課題 合同研究会プログラム」を共同開催（令和 3.12.8-9）2 日間に渡り、175 名（内、企業関係者：52 名）が参加し、理論、計算および実験物理学の国際的な協創を促進するため、高温超伝導の発現機構解明と量子流体の典型としての量子スピン液体の実現を目指した我々のプロジェクトの紹介を行なった。また「富岳」の他のプロジェクトとの共通課題について意見交換した。

(7) その他③

公開オンラインシンポジウム「計算科学と実験科学が導く量子物質研究の最先端」を開催（令和 4.2.16-17）

量子縛れが重要な役割を果たす量子物質（強相関高温超伝導体およびトポロジカル物質）における先端的分光学と大規模数値計算、並びに大規模数値計算を高精度高速化する機械学習手法による成果を発信した。さらに今後重要となる、量子縛れを高精度に取り扱える古典アルゴリズムと量子計算・量子アルゴリズムとの協奏について、最先端の研究動向を伝える招待講演を交えて緊密な意見交換を行った。本シンポジウムには国内外の研究機関ならびに企業 10 社からのべ 90 名の参加登録があり、各セッションで 40 名以上が議論に参加した。

2-4. 実施体制

| 業務項目                    | 担当機関  | 担当責任者  |
|-------------------------|---|--|
| (1) 高温超伝導体の第一原理電子状態解析   | 早稲田大学（東京都新宿区大久保 3-4-1）、物質・材料研究機構（茨城県つくば市並木 1-1）、東京大学（東京都文京区本郷 7-3-1、千葉県柏市柏の葉 5-1-5） | 今田正俊（早稲田大学・上級研究員）、山地 洋平（物質・材料研究機構・主任研究員）有田亮太郎（東京大学・教授）、井戸康太（東京大学・助教）                                     |
| (2) トポロジカル物質の第一原理電子状態解析 | 物質・材料研究機構（茨城県つくば市並木 1-1）  | 山地洋平（物質・材料研究機構・主任研究員）  |
| (3) 強相関系実験データの機械学習解析    | 理研、東京大学、物質・材料研究機構、早稲田大学、名古屋大学   | 花栗哲郎（理研・チームリーダー）、近藤猛（東京大学・准教授）、山地洋平（物質・材料研究機構・主任研究員）、藤森淳（早稲田大学・客員教授）、今田正俊（早稲田大学・上級研究員）、井本文裕（名古屋大学・博士研究員） |
| (4) 計算結果の国際的なクロスチェック    | 物質・材料研究機構、早稲田大学、Flatiron Institute 他（162 Fifth）                                     | 山地洋平（物質・材料研究機構・主任研究員）、今田正俊（早稲田大学・上級研究員）  |

|                          |   |   |
|--------------------------|---|---|
|                          | Avenue New York, New York 10010)、国際連携10機関               |   |
| (5) アウトリーチ・人材育成          | 物質・材料研究機構、早稲田大学   | 山地洋平(物質・材料研究機構・主任研究員)、今田正俊(早稲田大学・上級研究員) |
| (6) コードの高度化、「富岳」へのチューニング | 国立大学法人東京大学(東京都文京区本郷7丁目3-1)<br>学校法人早稲田大学(東京都新宿区大久保3-4-1) | 山地洋平(物質・材料研究機構・主任研究員)                   |

## 別添1 学会等発表実績

〔雑誌論文〕(総計 33 件すべて査読付き) 当該プロジェクト成果内容に関連するものに「#」を付す。

- (1) # Chun Lin, Masayuki Ochi, Ryo Noguchi, Kenta Kuroda, Masahito Sakoda, Atsushi Nomura, Masakatsu Tsubota, Peng Zhang, Cedric Barette, Kifu Kurokawa, Yosuke Arai, Kaishu Kawaguchi, Hiroaki Tanaka, Koichiro Yaji, Ayumi Harasawa, Makoto Hashimoto, Donghui Lu, Shik Shin, Ryotaro Arita, Satoshi Tanda, Takeshi Kondo, “Visualization of the strain-induced topological phase transition in a quasi-one-dimensional superconductor TaSe<sub>3</sub>”, Nat. Mater. 20, 1093 (2021).
- (2) # Yu Matsuzawa, Tomohiro Morita, Masashi Arita, Alessio Giampietri, Viktor Kandyba, Alexey Barinov, Akira Takahashi, Yusuke Nagakubo, Tadashi Adachi, Yoji Koike, Atsushi Fujimori, Naurang L. Saini, Takashi Mizokawa, J. Phys. Soc. Jpn 90, 054704 (2021).
- (3) # Masatoshi Imada, “Resonant Inelastic X-Ray Scattering Spectra of Cuprate Superconductors Predicted by Model of Fractionalized Fermions”, J. Phys. Soc. Jpn. 90, 074702 (2021).
- (4) # Masatoshi Imada, “Charge Order and Superconductivity as Competing Brothers in Cuprate High-Tc Superconductors”, J. Phys. Soc. Jpn. 90, 111009 (2021).
- (5) # Yusuke Nomura, Nobuyuki Yoshioka, and Franco Nori, “Purifying Deep Boltzmann Machines for Thermal Quantum States”, Phys. Rev. Lett. 127, 060601 (2021).
- (6) # Yusuke Nomura and Masatoshi Imada, “Dirac-type nodal spin liquid revealed by refined quantum many-body solver using neural-network wave function, correlation ratio, and level spectroscopy”, Phys. Rev. X 11, 031034 (2021).
- (7) # Maxime Charlebois, Jean-Baptiste Morée, Kazuma Nakamura, Yusuke Nomura, Terumasa Tadano, Yoshihide Yoshimoto, Youhei Yamaji, Takumi Hasegawa, Kazuyuki Matsuhira, and Masatoshi Imada, “Ab initio derivation of low-energy Hamiltonians for systems with strong spin-orbit interaction: Application to Ca<sub>5</sub>Ir<sub>3</sub>O<sub>12</sub>”, Phys. Rev. B 104, 075153 (2021).
- (8) # Fumihiro Imoto, Masatoshi Imada, and Atsushi Oshiyama, “Order-N orbital-free density-functional calculations with machine learning of functional derivatives for semiconductors and metals”, Phys. Rev. Research 3, 033198 (2021).
- (9) # Suguru Nakata, Masafumi Horio, Keisuke Koshiishi, Hagiwara, K, Chun Lin, Suzuki, M, Ideta, S, Kiyohisa TANAKA, Song, D, Yoshida, Y, Hiroshi Eisaki, Atsushi Fujimori, “Nematicity in a cuprate superconductor revealed by angle-resolved photoemission spectroscopy under uniaxial strain”, npj Quantum Mater. 6, 86 (2021).
- (10) # Youhei Yamaji, Teppei Yoshida, Atsushi Fujimori, and Masatoshi Imada, “Hidden self-energies as origin of cuprate superconductivity revealed by machine learning”, Phys. Rev. Research 3, 043099 (2021).
- (11) # Kazuhiro Nawa, Yoshinori Imai, Youhei Yamaji, Hideyuki Fujihara, Wakana Yamada, Ryotaro Takahashi, Takumi Hiraoka, Masato Hagihara, Shuki Torii, Takuya Aoyama, Takamasa

- Ohashi, Yasuhiro Shimizu, Hirotada Gotou, Masayuki Itoh, Kenya Ohgushi, and Taku J. Sato, “Strongly Electron-Correlated Semimetal RuI<sub>3</sub> with a Layered Honeycomb Structure”, *J. Phys. Soc. Jpn* 90, 123703 (2021).
- (12)# S. Ideta, S. Johnston, T. Yoshida, K. Tanaka, M. Mori, H. Anzai, A. Ino, M. Arita, H. Namatame, M. Taniguchi, S. Ishida, K. Takashima, K. M. Kojima, T. P. Devereaux, S. Uchida, and A. Fujimori, “Hybridization of Bogoliubov Quasiparticles between Adjacent CuO<sub>2</sub> Layers in the Triple-Layer Cuprate Bi<sub>2</sub>Sr<sub>2</sub>Ca<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>10+δ</sub> Studied by Angle-Resolved Photoemission Spectroscopy”, *Phys. Rev. Lett.* 127, 217004 (2021).
- (13)# H. Y. Huang, A. Singh, C. Y. Mou, S. Johnston, A. F. Kemper, J. van den Brink, P. J. Chen, T. K. Lee, J. Okamoto, Y. Y. Chu, J. H. Li, S. Komiya, A. C. Komarek, A. Fujimori, C. T. Chen, and D. J. Huang, “Quantum Fluctuations of Charge Order Induce Phonon Softening in a Superconducting Cuprate”, *Phys. Rev. X* 11, 041038 (2021).
- (14)# K. Hagiwara, M. Ishikado, M. Horio, K. Koshiishi, S. Nakata, S. Ideta, K. Tanaka, K. Horiba, K. Ono, H. Kumigashira, T. Yoshida, S. Ishida, H. Eisaki, S. Shamoto, and A. Fujimori, “Superconducting gap and pseudogap in the surface states of the iron-based superconductor PrFeAsO<sub>1-y</sub> studied by angle-resolved photoemission spectroscopy”, *Phys. Rev. Research* 3, 043151 (2021).
- (15)# Kazuyoshi Yoshimi, Takao Tsumuraya, and Takahiro Misawa, “ab initio derivation and exact-diagonalization analysis of low-energy effective Hamiltonians for  $\beta'$ -X[Pd(dmit)<sub>2</sub>]<sub>2</sub>”, *Phys. Rev. Research* 3, 043224 (2021).
- (16)# Ryo Noguchi, Kenta Kuroda, Mitsuaki Kawamura, Koichiro Yaji, Ayumi Harasawa, Takushi Iimori, Shik Shin, Fumio Komori, Taisuke Ozaki, and Takeshi Kondo, “Scaling law for Rashba-type spin splitting in quantum-well films”, *Phys. Rev. B* 104 104, L180409 (2021).
- (17)# Akira Matsui, Takuya Nomoto, and Ryotaro Arita, “Skyrmion-size dependence of the topological Hall effect: A real-space calculation”, *Phys. Rev. B* 104, 174432 (2021).
- (18) Kazuma Nakamura, Yoshihide Yoshimoto, Yusuke Nomura, Terumasa Tadano, Mitsuaki Kawamura, Taichi Kosugi, Kazuyoshi Yoshimi, Takahiro Misawa, and Yuichi Motoyama, “RESPACK: An ab initio tool for derivation of effective low-energy model of material”, *Comput. Phys. Commun.* 261, 107781 (2021).
- (19)# Yusuke Nomura, “Helping restricted Boltzmann machines with quantum-state representation by restoring symmetry”, *J. Phys.: Condens. Matter* 33, 174003 (2021).
- (20)# Chun Lin, Masayuki Ochi, Ryo Noguchi, Kenta Kuroda, Masahito Sakoda, Atsushi Nomura, Masakatsu Tsubota, Peng Zhang, Cedric Bareille, Kifu Kurokawa, Yosuke Arai, Kaishu Kawaguchi, Hiroaki Tanaka, Koichiro Yaji, Ayumi Harasawa, Makoto Hashimoto, Donghui Lu, Shik Shin, Ryotaro Arita, Satoshi Tanda and Takeshi Kondo, “Visualization of the strain-induced topological phase transition in a quasi-one-dimensional superconductor TaSe<sub>3</sub>”, *Nat. Mater.* 20, 1093 (2021).

- (21)# Akishi Matsugatani, Seishiro Ono, Yusuke Nomura, and Haruki Watanabe, “qeirreps: An open-source program for Quantum ESPRESSO to compute irreducible representations of Bloch wavefunctions”, *Comput. Phys. Commun.* 264, 107948 (2021).
- (22)# T. Wang, M. Hirayama, T. Nomoto, T. Koretsune, R. Arita, and J. Livas-Flores, “Absence of conventional room-temperature superconductivity at high pressure in carbon-doped H3S”, *Phys. Rev. B* 104, 064510 (2021).
- (23)# Y. Arai, Kenta Kuroda, T. Nomoto, Z. H. Tin, S. Sakuragi, C. Bareille, S. Akebi, K. Kurokawa, Y. Kinoshita, W.-L. Zhang, S. Shin, M. Tokunaga, H. Kitazawa, Y. Haga, H. S. Suzuki, S. Miyasaka, S. Tajima, K. Iwasa, R. Arita and Takeshi Kondo, “Multipole polaron in the devil’s staircase of CeSb”, *Nature Materials* 21, 410 (2022).
- (24)# Motoaki Hirayama, Yusuke Nomura, and Ryotaro Arita, “Ab Initio Downfolding Based on the GW Approximation for Infinite-Layer Nickelates”, *Front. Phys.* 10, 824144 (2022).
- (25)# Yuxuan Wan, Lihai Wang, Kenta Kuroda, Peng Zhang, Keisuke Koshiishi, Masahiro Suzuki, Jaewook Kim, Ryo Noguchi, Cédric Bareille, Koichiro Yaji, Ayumi Harasawa, Shik Shin, Sang-Wook Cheong, Atsushi Fujimori, and Takeshi Kondo, “Selective observation of surface and bulk bands in polar WTe<sub>2</sub> by laser-based spin- and angle-resolved photoemission spectroscopy”, *Phys. Rev. B* 105 105, 085421 (2022).
- (26)# Ryota Masuki, Takuya Nomoto, Ryotaro Arita, Terumasa Tadano, “Anharmonic Grüneisen theory based on self-consistent phonon theory: Impact of phonon-phonon interaction neglected in the quasi-harmonic theory”, *Phys. Rev. B* 105, 064112 (2022).
- (27)# Kenta Kuroda, Koichiro Yaji, Ryo Noguchi, Ayumi Harasawa, Shik Shin, Takeshi Kondo, and Fumio Komori, “Visualization of optical polarization transfer to photoelectron spin vector emitted from a spin-orbit coupled surface state”, *Phys. Rev. B* 105, L121106 (2022).
- (28)# H. Y. Huang, A. Singh, C. I. Wu, C. D. Xie, J. Okamoto, A. A. Belik, E. Kurmaev, A. Fujimori, C. T. Chen, S. V. Streltsov, and D. J. Huang, “Resonant inelastic x-ray scattering as a probe of  $J_{\text{eff}} = 1/2$  state in 3d transition metal oxides”, *npj Quantum Mater.* 7, 33 (2022).
- (29)# Yusuke Nomura and Ryotaro Arita, “Superconductivity in infinite-layer nickelates”, *Rep. Prog. Phys.* 85, 052501 (2022).
- (30)# M.-T. Huebsch, Y. Nomura, S. Sakai, and R. Arita, “Magnetic structures and electronic properties of cubic-pyrochlore ruthenates from first principles”, *J. Phys.: Condens. Matter* 34, 194003 (2022).
- (31)# Hiroaki Tanaka, Shota Okazaki, Kenta Kuroda, Ryo Noguchi, Yosuke Arai, Susumu Minami, Shinichiro Ideta, Kiyohisa Tanaka, Donghui Lu, Makoto Hashimoto, Viktor Kandyba, Mattia Cattelan, Alexei Barinov, Takayuki Muro, Takao Sasagawa, and Takeshi Kondo, “Large anomalous Hall effect induced by weak ferromagnetism in the noncentrosymmetric antiferromagnet CoNb<sub>3</sub>S<sub>6</sub>”, *Phys. Rev. B* 105, L121102 (2022).

- (32) # Kota Ido, Kazuyoshi Yoshimi, Takahiro Misawa, Masatoshi Imada, “Unconventional dual 1D-2D quantum spin liquid revealed by ab initio studies on organic solids family”, *npj Quantum Mater.* 7, 48 (2022).
- (33) # RuQing G. Xu, Tsuyoshi Okubo, Synge Todo, Masatoshi Imada “Optimized implementation for calculation and fast-update of Pfaffians installed to the open-source fermionic variational solver mVMC”, *Compt. Phys. Commun.* 277, 108375 (2022)

<学会発表> (以下の大規模会議での代表例を含めて主な国際会議招待講演だけで計 22 件)

- (1) “Machine learning methods for quantum many-body solver and experimental-data analyzer in physics”, M. Imada, International Conference on Quantum Artificial Intelligence (Shanghai, China, Jun 7, 2021).
- (2) “Ab initio and machine learning studies combined with spectroscopic data on cuprates superconductors as “integrated spectroscopy” ---electron fractionalization and superconducting mechanism”, M. Imada, 7th International Conference on Superconductivity and Magnetism (La Blanche Island, TURKEY/online/hybrid, Oct 22, 2021).
- (3) “Open issues in high-temperature superconducting cuprates and advanced spectroscopic studies,” A. Fujimori, Global Summit on Condensed Matter Physics (CONMAT2021) (Valencia, Spain - online, October 20, 2021).
- (4) “Origin of perpendicular magnetic anisotropy in 2D materials studied by angle-dependent XMCD”, A. Fujimori, Interdisciplinary Topics in Advanced Materials (ITAM2021) (Bangalore, India - online, July 29, 2021).
- (5) “Hidden self-energies as origin of cuprate superconductivity revealed by Boltzmann machine regression”, Y. Yamaji, The 12th International Conference on Advanced Materials and Devices (ICAMD 2021) (Jeju, Korea/online/hybrid, December 6, 2021).
- (6) “First-principles study on high T<sub>c</sub> superconductivity in superhydrides under high pressures”, R. Arita, Materials Research Meeting 2021 (December 13–December 17 2021, Yokohama, Japan)
- (7) “Ab initio Migdal-Eliashberg study on high T<sub>c</sub> superconductivity in hydrides under high pressure”, R. Arita, Superconducting Hybrids@Extreme, (June 28–July 2 2021 Online) (Zoom meeting)
- (8) “Quantum Effects in Superhydrides Under High Pressures”, R. Arita, Quantum Matter Seminar, (Ohio State Univ. April 20, 2021 Online) (Zoom meeting)
- (9) “Strain control of topological phases in quasi-1D stacked materials visualized by ARPES”, Takeshi Kondo, Korean Physical Society meeting (Online, April 21st, 2021)
- (10) “Observation of small Fermi pockets in high-T<sub>c</sub> cuprates”, Takeshi Kondo, Advanced Light Source workshop (Online, August 14th, 2021)

- (11) “Topological superconductivity emerging on the surface of iron-based superconductors” , Takeshi Kondo, International Workshop on Recent Progress in Superconductivity (Online, August 24th, 2021)
- (12) “Fermi pockets emerging in clean CuO<sub>2</sub> planes of high-T<sub>c</sub> cuprates” , Takeshi Kondo, 1st Asia-Pacific Conference on Condensed Matter Physics 2021 (Online, December 1st, 2021)
- (13) “Small Fermi pockets protected in extremely clean CuO<sub>2</sub> layers of high-T<sub>c</sub> cuprates” , Takeshi Kondo, The 12th International Conference on Advanced Materials and Devices (Online, December 7th, 2021)
- (14) “Aperiodic electronic superstructure in a misfit layered chalcogenide” , Y. Kohsaka, M. Shirata, T. Ueno, T. Hanaguri, K. Kobayashi, 2nd International Meeting on Thin Film Interfaces, Surfaces and Composite Crystals, (Online, November 9, 2021).
- (15) “Ultrahigh energy resolution scanning tunneling microscopy and its application to the search for Majorana quasiparticles” , T. Hanaguri, The 10th Vacuum and Surface Sciences Conference of Asia and Australia VASSCAA-10) & the Chinese Vacuum Conference 2021 (CVS 2021), (Online, October 12, 2021).
- (16) “Self-energy pole in doped Mott insulators and its relevance to high-T<sub>c</sub> cuprates” , S. Sakai, Conference On Condensed Matter Physics - Online (Ahmedabad, India, August 18, 2021)
- (17) “Artificial neural networks for quantum many-body problems” , Yusuke Nomura, APS March Meeting (Online, March 16, 2022).
- (18) “Artificial Neural Networks for Analyzing Quantum Many-Body Problems” , Yusuke Nomura, KMS 2021 Winter Conference (Online, November 25, 2021).
- (19) “Artificial neural networks for representing quantum many-body states” , Yusuke Nomura, Quantum Techniques in Machine Learning (QTML) 2021 (Online, November 11, 2021).
- (20) “Materials design of cuprate-analog nickelates and magnetic exchange coupling” , Yusuke Nomura, 2nd International Meeting on Thin Film Interfaces, Surfaces and Composite Crystals (Online, November 9, 2021).
- (21) “Purifying deep Boltzmann machines for thermal quantum states” , Yusuke Nomura, APW-RIKEN-Tsinghua-Kavli workshop “Highlights on condensed matter physics” 2021 (Online, October 23, 2021).
- (22) “Materials design of layered d<sub>9</sub> nickelates and magnetic exchange coupling” , Yusuke Nomura, Quantum Liquid Crystals 2021 (QLC2021) (Online, May 11, 2021).