

論文の内容の要旨

論文題目

Effective Model Selection from Electronic Structural Calculations by Bayesian Inference

(ベイズ推論による電子状態計算からの有効モデル選択)

氏 名 竹中 光

これまでの物理学は、実験計測や理論計算によるデータと経験の積み重ねによって、目覚ましい発展を遂げてきた。しかし、近年注目されているような複雑な物理現象については、これまでのように人間の経験や直感に基づいてモデル化することが困難になるケースは少なくない。そこで、近年目覚ましい発展を続けている情報科学の手法を取り入れることが有用であることが示されつつあるが、同じ対象についての実験計測データと理論計算データの両方にデータ駆動的アプローチを適用し、それぞれで抽出されたモデルを比較・統合する枠組みが構築できれば、より系統的なモデル化が可能になるはずである。

このような実験計測と理論計算を統合するためのモデルケースになりうる一つが、交換相互作用 J により記述される古典スピンモデルであり、実験計測と理論計算の結果が同じモデルによって解釈されている。実験計測では、中性子散乱実験などの磁性実験で観測されたエネルギー分散関係をフィッティングすることにより、交換相互作用パラメータを求めている。一方、理論計算では、量子力学に基づく第一原理的な計算によって導出された電子状態のエネルギーをモデルでフィッティングすることによって交換相互作用パラメータを求めている。ただし、実験と理論ではフィッティングする際に考慮する交換相互作用が異なっているなど、そもそもモデルの立て方に違いがある場合もある。そのため、それぞれに対してデータ駆動的アプローチを適用することにより、モデルの立て方に関する恣意性を取り除いたうえでそれぞれの結果を比較することが重要である。特に古典スピンモデルにお

いては、電子スピン間の距離や多体効果等に応じて無限に分類されうる相互作用パラメータ J の中で、どれが実効的で、モデルに入れるべきパラメータであるかを評価するための客観的な指標を確立することができれば、実験計測と理論計算の統合を実現できる。

本論文では、そのような客観的な指標を確立するために、電子状態の数値計算データから、ベイズ推論を用いて有効な古典スピンモデルを自動抽出する枠組みを提案する。ベイズ推論とは、ベイズの定理から計算される事後確率に基づき、データから現象の背後にある原因を推論する枠組みである。本手法を適用する系として、基底状態においてスピン無秩序状態を示す二次元量子スピン系として知られている NiGa_2S_4 三角格子系を扱う[1]。そして、この系においてどのような交換相互作用が支配的であるかを、非制限ハートリー・フォック計算[2]のデータから自動抽出することを試みる。

第 2 章では、ベイズ推論に基づく有効モデル選択の基本的な枠組みを構築した[3]。ここでは、先行研究で問題になっていたスピン配列の恣意的な選択の問題を解決するため[2]、全スピン配列を計算できる系として Ni 16 サイトの 2 自由度スピン系(↑スピンと↓スピン)を扱った。その結果、これまで支配的であることが知られていた第三近接の交換相互作用 J_3 だけでなく、値が小さいとされていた最近接交換相互作用 J_1 、及び磁性実験[1]では考慮されなかった第二近接交換相互作用 J_2 もモデルに考慮すべきパラメータであることが推定された。さらに、ベイズ推論に基づく本手法には、最適なモデルを系統的に選択するだけでなく、各モデルが選択される確率も計算できるというメリットがあるため、この J_1, J_2, J_3 をすべて含むモデルは 98 %以上の確率で選択されることも分かった。そして各交換相互作用パラメータの値を求めた結果、反強磁性的な J_3 の大きさが J_1, J_2 と比較して大きい値になることが確認できた。

第 3 章では、第 2 章の枠組みをさらに拡張するための方策として、温度を導入した解析手法について述べた[4]。第 2 章では全てのスピン配列を等価に重みづけして計算を行っていたが、これは全状態が無秩序に入り混じった常磁性状態がみられるような高温極限で計算を行っていることに対応する。しかし、磁性実験[1]では低温で計測を行っているため、温度が異なる状況下で結果を比較していることになる。そこで第 3 章では、第 2 章の枠組みに温度を導入することにより、実験に近い描像を表現した有効モデル選択の手法を提案・実装した。その方策により、第一原理計算と実験を実温度で比較し、よりシームレスに繋ぐことのできる枠組みを構築した。さらに、交換相互作用の値だけでなく、そのパラメータの事後分布を求めることにより、各パラメータがどの程度の精度で得られたかを定量的に評価することを試みた。その結果、磁性実験[1]と同様に最近接の交換相互作用が正の値となることが確認された。以上の結果から、本手法には二つの利点があることがわかった。一つは、交換相互作用の大きさの違いから、モデルに考慮すべきかどうかを客観的に判断することができるということ、もう一つは交換相互作用の事後分布の標準偏差が大きな場合、すな

わちパラメータの値の不確かさが大きな場合にはモデルから取り除くことができるということである。つまり本研究では、経験的なモデル設計が困難な場合においても、ベイズ推論によって客観的にモデルを選択できることが確認できたといえる。

第4章では、第2章と第3章で構築した枠組みについて、計算量爆発が起こるような系でも適用可能にする手法について述べた。第3章まではスピンの自由度を2(↑スピンと↓スピン)に制限していたが、フラストレーションによって非共線方向のスピンが秩序の形成に関わる可能性があるため、スピンの自由度を大きくした計算も必要になることが予想される。ただしスピンの自由度を大きくすると、スピン配列の場合の数が指数関数的に増加するため、第3章までのようにすべてのスピン配列について計算を行うことが困難になる。そこで第4章では、マルコフ連鎖モンテカルロ法と呼ばれるサンプリング手法を用いることにより、全状態についての計算を行うことなく有効モデルを抽出することを目指した。サンプリングには、複数の温度により定義されるレプリカの交換を考えることにより比較的少数のサンプルでの緩和が期待できる交換モンテカルロ法を用いた[5]。また、電子状態のエネルギーと近接スピン構造を同時に含んだ状態密度を多次元マルチヒストグラム法で再構成することにより、さらに効率的なモデル選択を行う手法を提案した。その結果、第2章と第3章で扱った2自由度スピン系において、全状態を用いたモデル選択の結果を効率的に再現できた。また、さらに自由度を増やした6自由度スピン系において、全状態数と比べて非常に少ないサンプリングだけでも状態密度の概形をつかむことができ、磁性実験[1]とコンシステントなモデル選択結果が得られた。本手法は、本論文で扱ったスピン系に限らず、交換モンテカルロ法の拡張的手法として広く応用可能である。

今後の展望としては、冒頭で述べた実験計測と数値計算の統合を行う枠組みを構築するため、実験計測データに対しても本論文の手法を適用する。本論文では、ベイズ推論による有効モデル選択の枠組みを電子状態計算データへ適用した結果を示したが、実験計測データにも同様に本枠組みを適用することができる。なぜなら、中性子散乱などの実験計測データから有効な古典スピンモデルを求める際には、エネルギー分散関係をフィッティングしたときの誤差が定義できるため、この誤差をベイズ的に取り扱うことにより、電子状態計算の場合と同様に有効モデルを自動抽出することができるからである。このように実験計測データからベイズ推論によってモデル選択した結果と、本論文で議論した電子状態計算からモデル選択した結果を比較することにより、実験計測と数値計算のより系統的な比較と統合が可能になる。以上の実験計測データへの適用によって本手法の枠組みは完成するが、他の物質、格子系、モデルへ適用し、汎用性が確認できれば、結果として様々な物性の有効モデルを選択するアルゴリズムへと拡張できるようになると期待される。

参考文献

- [1] S. Nakatsuji, Y. Nambu, H. Tonomura, O. Sakai, S. Jonas, C. Broholm, H. Tsunetsugu, Y. Qiu, and Y. Maeno, *Science* **309**, 1697 (2005).
- [2] K. Takubo, T. Mizokawa, Y. Nambu, and S. Nakatsuji, *Physical Review B* **79**, 134422 (2009).
- [3] H. Takenaka, K. Nagata, T. Mizokawa, and M. Okada, *Journal of the Physical Society of Japan*, **83**, 124706 (2014).
- [4] H. Takenaka, K. Nagata, T. Mizokawa, and M. Okada, *Journal of the Physical Society of Japan*, **85**, 124003 (2016).
- [5] K. Hukushima and K. Nemoto, *Journal of the Physical Society of Japan* **65**, 1604 (1996).