

## ベイズ推論による量子計算データからの有効モデル選択

Bayesian inference of effective model from quantum calculation

竹中光<sup>\*1</sup> 永田賢二<sup>\*1\*2</sup> 溝川貴司<sup>\*3</sup> 岡田真人<sup>\*1</sup>  
 Hikaru Takenaka Kenji Nagata Takashi Mizokawa Masato Okada

<sup>\*1</sup>東京大学 大学院新領域創成科学研究科 <sup>\*2</sup>JST さきがけ研究員  
 Graduate School of Frontier Sciences, The University of Tokyo PRESTO Researcher, JST

<sup>\*3</sup>早稲田大学 先進理工学部  
 School of Advanced Science and Engineering, Waseda University

A novel method is described for extracting effective classical spin models from quantum calculations of electronic states by means of the Bayesian inference with the Boltzmann factor. This method may enable quantum calculations and magnetic experiments to be compared seamlessly because the Boltzmann factor takes into account the finite temperature effect. The method is applied to a triangular lattice in NiGa<sub>2</sub>S<sub>4</sub> with a spin disordered ground state. Unrestricted Hartree-Fock calculations for the spin configurations of 16 Ni sites led to the estimation that the superexchange interaction between the nearest neighbor sites is ferromagnetic, which is consistent with magnetic experiment results.

## 1. 序論

電子間に強い相関があるような系は強相関電子系と呼ばれ、その磁気的振る舞いは複雑で興味深い現象を引き起こす。しかし複雑な磁気的性質を理論的に解明することはしばしば困難になるため、系の有効なモデリングをどのように行うかが重要となり、様々なアプローチによって盛んに研究されている。そのような状況では、どのモデルがより系を表現できるのかを評価するための客観的な指標が必要になる。本研究では、相互作用  $J$  により記述される古典スピンモデルに着目する。古典スピンモデルでは、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重要である。

フラストレートした量子スピン系は最も複雑な系の一つであり、極低温におけるスピン無秩序状態などの興味深い現象を理解するために古典スピンモデルが解析に用いられてきた。このようなスピンが無秩序に結合した状態は量子スピン液体と呼ばれている。低温までスピン無秩序状態を示す NiGa<sub>2</sub>S<sub>4</sub> も三角格子構造 (Ni 層) を持つ層状物質の 1 つであり、第三近接サイト間での交換相互作用が支配的になるなどの特異な性質を持つ事が知られている [Nakatsuji 05, Mazin 07, Takubo 09, Stock 10]。磁性実験 [Nakatsuji 05, Stock 10] においては第三近接交換相互作用が反強磁性、最近接交換相互作用が強磁性であることが確認されており、この二つの相互作用の競合がスピン無秩序状態の要因の一つであることが示唆されている。しかし理論研究 [Mazin 07, Takubo 09] においてはその二つの相互作用がともに反強磁性となる結果が報告されている。

そこで先行研究 [Takenaka 14] では、量子系における非制限ハートリー・フォック (HF) 近似による電子状態の数値計算データから、実効的な交換相互作用をベイズ推論により自動抽出する方法が提案された。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。そして NiGa<sub>2</sub>S<sub>4</sub> 三角格子スピン系に適用した結果、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だけでなく、最近接と第二近接の交換相互作用も考慮すべきであると推定された。しかし理論の先行研究 [Mazin 07, Takubo 09] と同様、最近接交換相互作用の符号が磁性実験と一致していなかった。

そこで本研究では、量子系における電子状態の数値計算データと磁性実験をシームレスに繋ぐため、先行研究 [Takenaka 14] の枠組みをさらに拡張する。つまりボルツマン因子によって温度を導入することにより、実験に近い描像を表現した新しい有効モデル選択の手法を提案・実装する。今回は先行研究 [Takenaka 14] と同様 NiGa<sub>2</sub>S<sub>4</sub> の NiS<sub>2</sub> 三角格子スピン系に適用し、Ni16 サイト系における非制限 HF 計算データを用いる。

## 2. モデル

非制限 HF 計算では、近似した波動関数に以下のようなハミルトニアンを作用させることで、NiGa<sub>2</sub>S<sub>4</sub> の電子状態のエネルギーを数値的に求めることができる [Takubo 09]。

$$H = H_p + H_d + H_{pd} \quad (1)$$

$$H_p = \sum_{\mathbf{k}, l, \sigma} \epsilon_{\mathbf{k}}^p p_{\mathbf{k}, l, \sigma}^\dagger p_{\mathbf{k}, l, \sigma} + \sum_{\mathbf{k}, l > l', \sigma} V_{\mathbf{k}, ll'}^{pp} p_{\mathbf{k}, l, \sigma}^\dagger p_{\mathbf{k}, l', \sigma} + \text{H.c.} \quad (2)$$

$$\begin{aligned} H_d = & \epsilon_d^0 \sum_{i, m, \sigma} d_{i, m, \sigma}^\dagger d_{i, m, \sigma} + u \sum_{i, m} d_{i, m, \uparrow}^\dagger d_{i, m, \uparrow} d_{i, m, \downarrow}^\dagger d_{i, m, \downarrow} \\ & + u' \sum_{i, m \neq m'} d_{i, m, \uparrow}^\dagger d_{i, m, \uparrow} d_{i, m', \downarrow}^\dagger d_{i, m', \downarrow} \\ & + (u' - j') \sum_{i, m > m', \sigma} d_{i, m, \sigma}^\dagger d_{i, m, \sigma} d_{i, m', \sigma}^\dagger d_{i, m', \sigma} \\ & + j' \sum_{i, m \neq m'} d_{i, m, \uparrow}^\dagger d_{i, m, \uparrow} d_{i, m', \downarrow}^\dagger d_{i, m', \downarrow} \\ & + j \sum_{i, m \neq m'} d_{i, m, \uparrow}^\dagger d_{i, m, \uparrow} d_{i, m', \downarrow}^\dagger d_{i, m', \downarrow} \end{aligned} \quad (3)$$

$$H_{pd} = \sum_{\mathbf{k}, l, m, \sigma} V_{\mathbf{k}, lm}^{pd} d_{\mathbf{k}, m, \sigma}^\dagger p_{\mathbf{k}, l, \sigma} + \text{H.c.} \quad (4)$$

連絡先: 岡田真人, okada@k.u-tokyo.ac.jp

ただし  $\sigma \in \{\uparrow, \downarrow\}$  とし, H.c. は直前の項のエルミート共役項である.  $p_{\mathbf{k},l\sigma}^{(1)}$  は  $l$  番目の  $p$  軌道の波数ベクトル  $\mathbf{k}$  のスピン生成 (消滅) 演算子,  $d_{i,m\sigma}^{(1)}$  はサイト  $i$  の  $m$  番目の  $d$  軌道のスピン生成 (消滅) 演算子である. また  $\epsilon$  はエネルギー単位,  $u, u', j, j'$  は原子内クーロン相互作用を表す金森パラメータである.  $3d$  軌道と  $3p$  軌道間の移動積分  $V_{\mathbf{k},lm}^{pd}$  はスレーター・コスターパラメータ ( $pd\sigma$ ) と ( $pd\pi$ ) により与えられる.  $3p$  軌道間の移動積分  $V_{\mathbf{k},ll'}^{pp}$  は ( $pp\sigma$ ) と ( $pp\pi$ ) により与えられる. 金森パラメータやスレーター・コスターパラメータなどのパラメータ値は [Takubo 09] から引用した.

以上のようにモデルハミルトニアンによって量子系のエネルギー (HF エネルギー) を数値的に求められるが, 古典スピンモデルを用いると交換相互作用によってエネルギーを記述できる. 本論文では先行研究 [Takenaka 14] と同様, 表 1 に定義した 7 つのイジングモデルから最適なモデルを選択することを考える.  $\mathbf{J}_{\mathbf{K}}$  はそれぞれのイジングモデルで考慮される交換相互作用パラメータで,  $\mathbf{K}$  をモデルパターンとして定義する. 例えばモデルパターンが  $\mathbf{K} = (1, 1, 1)$  で定義されるイジングモデルは以下ようになる.

$$f(\boldsymbol{\sigma}_n; \mathbf{J}_{\mathbf{K}}) = -J_1 \sum_{\langle i,j \rangle_1} \sigma_{n,i} \cdot \sigma_{n,j} - J_2 \sum_{\langle i,j \rangle_2} \sigma_{n,i} \cdot \sigma_{n,j} \quad (5)$$

$$- J_3 \sum_{\langle i,j \rangle_3} \sigma_{n,i} \cdot \sigma_{n,j}$$

ここで  $n \in \{1, \dots, N\}$  はスピン配列  $\boldsymbol{\sigma}_n = \{\sigma_{n,1}, \dots, \sigma_{n,16}\}$  のラベルで,  $\sigma_{n,i} \in \{\uparrow, \downarrow\}$  は  $n$  番目のスピン配列のサイト  $i$  のスピンを表す.  $N$  はスピン配列の数であり, 本論文では先行研究 [Takenaka 14] と同様, Ni16 サイト系における全てのスピン配列を考慮するため  $N = 2^{16} = 65,536$  となる. 和の  $\langle i, j \rangle_1, \langle i, j \rangle_2$  および  $\langle i, j \rangle_3$  はそれぞれ最近接, 第二近接, 第三近接のペアに対する和を表す.

### 3. 手法

#### 3.1 ベイズ推論による有効モデル選択

統計力学の枠組みにおいて磁性体を議論する際に重要なのは温度の概念である. 高温ではスピンの揺らぎが大きく, さまざまなエネルギーをもつ状態が無秩序に入り混じったような常磁性状態がみられる. そして低温ではスピンの揺らぎが抑えられ, 基底状態に秩序化していくようなふるまいがみられる. このようなふるまいは逆温度  $\beta = 1/k_B T$  によって定義されるボルツマン分布

$$p(\boldsymbol{\sigma}) = \frac{1}{Z(\beta)} \exp[-\beta h(\boldsymbol{\sigma})] \quad (6)$$

表 1: 各イジングモデルで考慮される交換相互作用パラメータ  $\mathbf{J}_{\mathbf{K}}$  とモデルパターン  $\mathbf{K}$  の定義

$\mathbf{J}_{\mathbf{K}}$	$\mathbf{K}$
$\{J_1\}$	(1,0,0)
$\{J_2\}$	(0,1,0)
$\{J_3\}$	(0,0,1)
$\{J_1, J_2\}$	(1,1,0)
$\{J_2, J_3\}$	(0,1,1)
$\{J_3, J_1\}$	(1,0,1)
$\{J_1, J_2, J_3\}$	(1,1,1)

によって記述できる. ここで  $k_B$  はボルツマン定数,  $h(\boldsymbol{\sigma})$  はエネルギー,  $Z(\beta)$  は規格化因子であり,

$$Z(\beta) = \sum_{n=1}^N \exp[-\beta h(\boldsymbol{\sigma}_n)] \quad (7)$$

のように定義される. このボルツマン分布では, 高温になるにつれて一様分布に近づいていくため, 全てのスピン配列がエネルギーにかかわらず等価にサンプリングされる. 一方, 低温では基底状態まわりの低エネルギーをもつスピン配列がサンプリングされやすくなる. 以上のような実験に近い描像を表現するため, 本節ではスピン配列がボルツマン分布に従うことを仮定することにより, 温度を導入した有効モデル選択手法の定式化を行う.

まずスピン配列  $\boldsymbol{\sigma}_n$  がそれぞれの HF エネルギー  $h(\boldsymbol{\sigma}_n)$  によって決まるボルツマン分布 (6) によってサンプリングされる. 各スピン配列の HF エネルギー  $h(\boldsymbol{\sigma}_n)$  は非制限 HF 計算によって近似的に計算されるので, イジングモデルで表現されるエネルギー  $f(\boldsymbol{\sigma}_n; \mathbf{J}_{\mathbf{K}})$  に近似誤差  $\epsilon(\boldsymbol{\sigma}_n)$  を乗せた以下のような形で表す.

$$h(\boldsymbol{\sigma}_n) = f(\boldsymbol{\sigma}_n; \mathbf{J}_{\mathbf{K}}) + \epsilon(\boldsymbol{\sigma}_n) \quad (8)$$

この近似誤差  $\epsilon(\boldsymbol{\sigma}_n)$  を平均 0 かつ分散  $s^2$  の正規分布に従う乱数とみなすと, HF エネルギー  $h(\boldsymbol{\sigma}_n)$  の確率分布は  $\boldsymbol{\sigma}_n$  と  $\mathbf{J}_{\mathbf{K}}$  が与えられたもとの条件付き確率として以下のように表せる.

$$p(h(\boldsymbol{\sigma}_n)|\boldsymbol{\sigma}_n, \mathbf{J}_{\mathbf{K}}) = \frac{1}{\sqrt{2\pi s^2}} \exp\left\{-\frac{[h(\boldsymbol{\sigma}_n) - f(\boldsymbol{\sigma}_n; \mathbf{J}_{\mathbf{K}})]^2}{2s^2}\right\} \quad (9)$$

ここで  $h(\boldsymbol{\sigma}_n)$  が独立に計算されるため, 全 HF エネルギー  $\mathbf{h}$  の確率分布は以下のように  $p(h(\boldsymbol{\sigma}_n)|\boldsymbol{\sigma}_n, \mathbf{J}_{\mathbf{K}})$  の積の形で表せる.

$$p(\mathbf{h}|\{\boldsymbol{\sigma}_n\}_{n=1}^{N'}, \mathbf{J}_{\mathbf{K}}) = \prod_{n=1}^{N'} p(h(\boldsymbol{\sigma}_n)|\boldsymbol{\sigma}_n, \mathbf{J}_{\mathbf{K}})$$

$$= \frac{1}{(2\pi s^2)^{N'/2}} \exp\left[-\frac{N'}{s^2} E(\mathbf{J}_{\mathbf{K}})\right] \quad (10)$$

ここで  $\{\boldsymbol{\sigma}_n\}_{n=1}^{N'}$  はボルツマン分布 (6) から得られた  $N'$  個のスピン配列集合,  $E(\mathbf{J}_{\mathbf{K}})$  は以下のような形で定義される二乗和誤差関数である.

$$E(\mathbf{J}_{\mathbf{K}}) = \frac{1}{2N'} \sum_{n=1}^{N'} [h(\boldsymbol{\sigma}_n) - f(\boldsymbol{\sigma}_n; \mathbf{J}_{\mathbf{K}})]^2 \quad (11)$$

ここでボルツマン分布から得られたスピン配列の数  $N'$  が十分大きい場合, この二乗和誤差関数は熱平均

$$E(\mathbf{J}_{\mathbf{K}}) \approx \left\langle \frac{1}{2} [h(\boldsymbol{\sigma}_n) - f(\boldsymbol{\sigma}_n; \mathbf{J}_{\mathbf{K}})]^2 \right\rangle_{p(\boldsymbol{\sigma})}$$

$$= \frac{1}{2Z(\beta)} \sum_{n=1}^N \exp[-\beta h(\boldsymbol{\sigma}_n)] [h(\boldsymbol{\sigma}_n) - f(\boldsymbol{\sigma}_n; \mathbf{J}_{\mathbf{K}})]^2 \quad (12)$$

で近似でき,  $N$  個の全てのスピン配列がボルツマン因子によって重みづけされた形となっている. この誤差関数には逆温度が陽に入っており, 低温ではエネルギーの小さいスピン配列がボルツマン因子によって重み付けされるようになる.

本手法ではここからさらにベイズの定理を用いることにより、最適なモデルを選択するための評価関数を計算する。まず HF エネルギー  $\mathbf{h}$  が与えられたもとで最適なモデルパターンが  $\mathbf{K}$  である事後確率  $p(\mathbf{K}|\mathbf{h})$  をベイズの定理を用いて計算すると

$$\begin{aligned} p(\mathbf{K}|\mathbf{h}) &= \frac{p(\mathbf{h}|\mathbf{K})p(\mathbf{K})}{p(\mathbf{h})} \\ &= \frac{p(\mathbf{K})}{p(\mathbf{h})} \int p(\mathbf{h}, \mathbf{J}_{\mathbf{K}}|\mathbf{K})d\mathbf{J}_{\mathbf{K}} \\ &= \frac{p(\mathbf{K})}{p(\mathbf{h})} \int p(\mathbf{h}|\mathbf{K}, \mathbf{J}_{\mathbf{K}})p(\mathbf{J}_{\mathbf{K}})d\mathbf{J}_{\mathbf{K}} \\ &\propto \frac{1}{(2\pi s^2)^{N/2}} \int \exp\left[-\frac{N}{s^2}E(\mathbf{J}_{\mathbf{K}})\right]p(\mathbf{J}_{\mathbf{K}})d\mathbf{J}_{\mathbf{K}} \quad (13) \end{aligned}$$

のように誤差関数  $E(\mathbf{J}_{\mathbf{K}})$  を仮想的なエネルギーと考えた場合の分配関数と等価な形になることが分かる。ここで事前確率  $p(\mathbf{K}), p(\mathbf{J}_{\mathbf{K}})$  は一様分布とする。以上の議論により事後確率  $p(\mathbf{K}|\mathbf{h})$  を最大化するような  $\mathbf{K}$  が最も確からしいモデルとして選択できるが、 $p(\mathbf{K}|\mathbf{h})$  の負の対数をとった

$$F(\mathbf{K}) = -\log \left\{ \frac{1}{(2\pi s^2)^{N/2}} \int \exp\left[-\frac{N}{s^2}E(\mathbf{J}_{\mathbf{K}})\right]p(\mathbf{J}_{\mathbf{K}})d\mathbf{J}_{\mathbf{K}} \right\} \quad (14)$$

のようなベイズ自由エネルギーを評価関数として用いることにより、エントロピー、つまりモデルが複雑になることに対するペナルティが組み込まれ、パラメータ数に関わらず全てのモデルを定量的に評価することが可能になる。具体的には、分配関数が交換相互作用パラメータの集合  $\mathbf{J}_{\mathbf{K}}$  についての積分で与えられるため、考慮する交換相互作用パラメータの数を増やすことでモデルが複雑になると、次元性により積分の値が小さくなるというペナルティが生じる。以上のようにベイズの枠組みを用いることで、HF エネルギー  $\mathbf{h}$  を与えるだけでどのモデルが最も確からしいかを推定することができる。

### 3.2 先行研究との対応

先行研究 [Takenaka 14] では Ni16 サイト系における全てのスピン配列 ( $N=2^{16}=65,536$  通り) を等しい重みで考慮していた。つまり一様なスピン配列の事前分布

$$p(\boldsymbol{\sigma}) = \frac{1}{N} \sum_{n=1}^N \delta(\boldsymbol{\sigma} - \boldsymbol{\sigma}_n) \quad (15)$$

を考えていたため、二乗誤差の熱平均は

$$\begin{aligned} E'(\mathbf{J}_{\mathbf{K}}) &= \left\langle \frac{1}{2} [h(\boldsymbol{\sigma}_n) - f(\boldsymbol{\sigma}_n; \mathbf{J}_{\mathbf{K}})]^2 \right\rangle_{p(\boldsymbol{\sigma})} \\ &= \frac{1}{2N} \sum_{n=1}^N [h(\boldsymbol{\sigma}_n) - f(\boldsymbol{\sigma}_n; \mathbf{J}_{\mathbf{K}})]^2 \quad (16) \end{aligned}$$

となり、一般的な二乗和誤差関数と一致する。この形は前節まで用いてきた誤差関数 (12) の高温極限 ( $\beta \rightarrow 0$ ) と一致しており、ボルツマン分布が高温極限で一様分布になることに対応している。したがって先行研究 [Takenaka 14] の定式化は、全ての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をみていたことに対応するといえる。

また、本論文で提案した温度を導入した定式化は確率論や情報理論等で用いられる KL (カルバック・ライブラー) 距離 [Kullback 51] 最小化と等価であることが確認できる。真のエ

ネルギー値  $y_n$  が、非制限 HF 計算で求めた量子系のエネルギー (HF エネルギー)  $h(\boldsymbol{\sigma}_n)$  に平均 0、分散  $s^2$  のノイズ  $\varepsilon(\boldsymbol{\sigma}_n)$  を加えたものになっているとすると、

$$y_n = h(\boldsymbol{\sigma}_n) + \varepsilon(\boldsymbol{\sigma}_n) \quad (17)$$

となり、以下のような分布が定義できる。

$$p(y_n|\boldsymbol{\sigma}_n) = \frac{1}{\sqrt{2\pi s^2}} \exp\left\{-\frac{[y_n - h(\boldsymbol{\sigma}_n)]^2}{2s^2}\right\} \quad (18)$$

同様に真のエネルギー値  $y_n$  が、イジングモデルで表現される古典系のエネルギー  $f(\boldsymbol{\sigma}_n; \mathbf{J}_{\mathbf{K}})$  に平均 0、分散  $s^2$  のノイズ  $\varepsilon(\boldsymbol{\sigma}_n)$  を加えたものになっているとすると、

$$y_n = f(\boldsymbol{\sigma}_n; \mathbf{J}_{\mathbf{K}}) + \varepsilon(\boldsymbol{\sigma}_n) \quad (19)$$

となり、以下のような分布が定義できる。

$$q(y_n|\boldsymbol{\sigma}_n, \mathbf{J}_{\mathbf{K}}) = \frac{1}{\sqrt{2\pi s^2}} \exp\left\{-\frac{[y_n - f(\boldsymbol{\sigma}_n; \mathbf{J}_{\mathbf{K}})]^2}{2s^2}\right\} \quad (20)$$

ここで KL 距離の定義より、分布  $p(y_n, \boldsymbol{\sigma}_n)$  と分布  $q(y_n, \boldsymbol{\sigma}_n|\mathbf{J}_{\mathbf{K}})$  の間の距離が

$$\text{KL}(p||q) = \sum_{n=1}^N \int p(y_n, \boldsymbol{\sigma}_n) \log \frac{p(y_n, \boldsymbol{\sigma}_n)}{q(y_n, \boldsymbol{\sigma}_n|\mathbf{J}_{\mathbf{K}})} dy_n \quad (21)$$

のように表すことができる。つまり、この距離を最小化することは、量子系のエネルギー分布と古典系エネルギー分布間の距離を最小化することに対応する。ここで量子系エネルギーの事前分布  $p(\boldsymbol{\sigma}_n)$  と古典系エネルギーの事前分布  $q(\boldsymbol{\sigma}_n)$  が等しくボルツマン分布 (6) であるとする、KL 距離は

$$\begin{aligned} \text{KL}(p||q) &= \sum_{n=1}^N \int p(y_n, \boldsymbol{\sigma}_n) \log \frac{p(y_n, \boldsymbol{\sigma}_n)}{q(y_n, \boldsymbol{\sigma}_n|\mathbf{J}_{\mathbf{K}})} dy_n \\ &= \sum_{n=1}^N \int p(\boldsymbol{\sigma}_n) p(y_n|\boldsymbol{\sigma}_n) \log \frac{p(\boldsymbol{\sigma}_n) p(y_n|\boldsymbol{\sigma}_n)}{q(\boldsymbol{\sigma}_n) q(y_n|\boldsymbol{\sigma}_n, \mathbf{J}_{\mathbf{K}})} dy_n \\ &= \frac{1}{2s^2 Z(\beta)} \sum_{n=1}^N \exp[-\beta h(\boldsymbol{\sigma}_n)] [h(\boldsymbol{\sigma}_n) - f(\boldsymbol{\sigma}_n; \mathbf{J}_{\mathbf{K}})]^2 \\ &= \frac{1}{s^2} E(\mathbf{J}_{\mathbf{K}}) \quad (22) \end{aligned}$$

となるため、この KL 距離を最小化することは誤差関数 (12)、つまり全スピン配列をボルツマン因子で重み付けした誤差関数を最小化することと等価であることが確認できた。

## 4. 結果

図 1 (上) は誤差関数 (12)、つまり全スピン配列をボルツマン因子で重み付けした誤差関数を最小化して求めた交換相互作用パラメータ  $J_1, J_2, J_3$  と温度の関係である。赤線が  $J_1$ 、青線が  $J_2$ 、緑線が  $J_3$  に対応している。エラーバーは各パラメータの事後分布の標準偏差を表す。この結果から、まず  $J_1, J_2, J_3$  全てのパラメータが高温になるにつれて、先行研究 [Takenaka 14] の結果 (高温極限の場合) に収束していることが確認できた。さらに低温でのパラメータの値をみたところ、 $J_1$  が正になるという磁性実験の結果 [Nakatsuji 05, Stock 10] と一致するような結果を確認できた。そしてこの温度領域は量子スピン液

体が実現するとされている範囲 ( $2 < T < 8.5$ ) と整合して [Nakatsuji 05], 温度を導入したことで実験に対応したパラメータを高精度に計算できたと考えられる。

また, 図 1 (下) に各モデルが選ばれる確率と温度の関係を示す。まず高温領域 ( $100 < T$ ) においては,  $J_1, J_2, J_3$  全て考慮するモデルが選択されているため, 先行研究 [Takenaka 14] の結果 (高温極限の場合) に一致していることが確認できた。  $T = 30$  付近まで温度を下げると,  $J_3$  のみ考慮するモデルが選ばれた。この温度領域は高温で負の値だった  $J_1, J_2$  が低温で正の値へと変わるポイント, つまり値が最も 0 に近いポイントとなっているために  $J_1, J_2$  が考慮されなかったと考えられる。さらに温度を下げていくと,  $1.5 < T < 10$  の低温領域でも  $J_1, J_2, J_3$  モデルが選択された。この理由は,  $J_3$  モデルが選択される温度領域で 0 に近い値となっていた  $J_1, J_2$  が, さらに温度を下げていくと正の値で大きくなることによるものと考えられる。この結果は, 強磁性的  $J_1$  と反強磁性的  $J_3$  が競合することによって量子スピン状態が実現されるという実験からの示唆と一致している [Nakatsuji 05]。そして  $T = 1.5$  付近では再び  $J_3$  モデルが選択された。この理由は, 図 1 (上) からわかるように, 極低温になるにつれて  $J_1, J_2$  の事後分布の標準偏差が指数関数的に増大することによるものと考えられる。さらに温度を下げていくと  $J_3$  が 0 に近づいていくため, 0 モデルが選択されるようになる。

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る。一つは,  $J_1, J_2$  の大きさの非常に微妙な違いから, 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  $J_1, J_2$  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。これまでの先行研究ではモデルで考慮するパラメータは経験的に決められていたため, 研究対象が同じでも, 研究者によってモデルが変わってしまうケースも少なくなかった。特にパラメータの大きさが非常に小さい場合や, 分散が大きな場合は, モデルを経験的に設計することが困難になりうる。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。

## 5. まとめ

本研究では, ベイズ推論による古典的有効スピンモデル自動抽出の枠組みに対し, ボルツマン因子によって温度を導入することにより, 実験に近い描像を表現した新しい手法を提案・実装した。それにより, 量子系における電子状態の数値計算データと磁性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つくった。今回は, 基底状態においてスピン無秩序状態を示す  $\text{NiGa}_2\text{S}_4$  の  $\text{NiS}_2$  三角格子スピン系に適用し,  $\text{Ni}16$  サイト系における非制限 HF 計算データを用いた。その結果, 最近接交換相互作用の符号が強磁性となり, 磁性実験と一致することが確認できた。さらに, 本手法によってモデルの中で考慮すべきパラメータを自動的に, 客観的に選択できた。

これまで研究者の経験に基づいて物質の合成・評価を行ってきた材料科学においては, 統計学的手法を取り入れることにより, 物性を支配する法則を記述する説明変数を抽出しようという「マテリアルズ・インフォマティクス」の考え方が近年注目を集めている。このような状況において,  $\text{NiGa}_2\text{S}_4$  三角格子系に対して適用した一連の手法を他の物質, 格子系, モデルに適用して汎用性が確認できれば, 結果として様々な物性の説明変数を抽出するアルゴリズムへと拡張できると期待される。

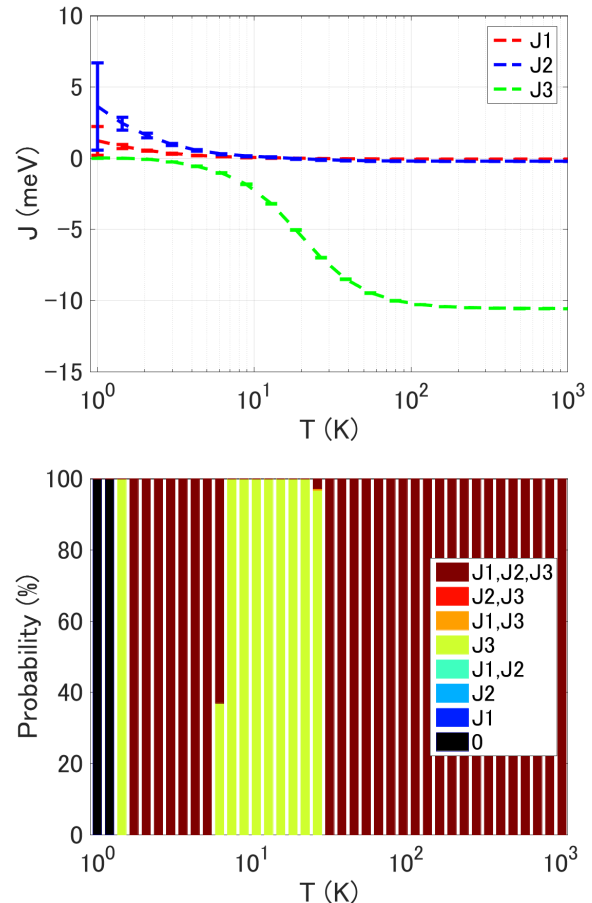


図 1: 交換相互作用 (上) と有効モデル (下) の温度依存性

## 謝辞

本研究は, 特別研究員奨励費 (15J07765, 竹中), 新学術領域研究 (25120009, 岡田, 永田; 26106504, 永田) の助成を受けたものである。

## 参考文献

- [Nakatsuji 05] S. Nakatsuji, Y. Nambu, H. Tonomura, O. Sakai, S. Jonas, C. Broholm, H. Tsunetsugu, Y. Qiu, and Y. Maeno, *Science* **309**, 1697 (2005).
- [Mazin 07] I. I. Mazin, *Phys. Rev. B* **76**, 140406(R) (2007).
- [Takubo 09] K. Takubo, T. Mizokawa, Y. Nambu, and S. Nakatsuji, *Phys. Rev. B* **79**, 134422 (2009).
- [Stock 10] C. Stock, S. Jonas, C. Broholm, S. Nakatsuji, Y. Nambu, K. Onuma, Y. Maeno, and J.-H. Chung, *Phys. Rev. Lett.* **105**, 037402 (2010).
- [Takenaka 14] H. Takenaka, K. Nagata, T. Mizokawa, and M. Okada, *J. Phys. Soc. Jpn.* **83**, 124706, (2014).
- [Kullback 51] S. Kullback and R. A. Leibler, *Ann. Math. Statist.* **22**, 79 (1951).