

# 研究終了報告書

## 「量子-古典空間分離法を用いた量子多体系ソルバーの開発」

研究期間：2019年10月～2023年3月

研究者：倉重 佑輝

### 1. 研究のねらい

現在の電子計算機、すなわち“古典”計算機からの飛躍的な計算能力の向上が期待される量子計算機は、古典計算機とは全く異なる機構で動作するため、古典計算機にて確立されたアルゴリズムを単純に量子アルゴリズムへと置き換えることは難しく、適用する問題ごとに今までは全く異なるアルゴリズムや解法を考案する必要がある。本研究ではその例として、量子計算に適した量子化学計算アルゴリズムの開発を行なった。現代の量子化学の計算対象は水分子や二酸化炭素分子などの小分子から数十原子からなる中規模分子、ときにはタンパク質のような数千原子を超える大規模分子系へと広がっている。第二量子化のもとでは量子化学計算の波動関数は各一粒子関数への占有/非占有のエンタングル状態として表されることから、量子計算機で扱うためには一粒子関数と同数の論理量子ビットが必要となり、その数は中規模分子であっても優に1,000論理量子ビットを超える。そこで本研究では近い将来に使用可能になると期待される100論理量子ビット程度の量子計算機でも中規模分子～分子集合体の計算が実行可能なアルゴリズムとして、量子-古典空間分離法を開発する。

本分離法ではエンタングルメントの大きな一粒子関数により構成される空間に絞って量子計算機を用いて表現し、残りのエンタングルメントの小さな一粒子関数により構成される空間については古典計算機を用いて表現し、全体の波動関数をその直積空間で表現することにより、計算に必要な量子ビット数の大幅な削減を目指す。また量子表現空間を100論理量子ビットの規模を抑えられたとしても、そこでの量子多体系の固有値解法は発展途上の問題である。この問題に対しては量子変分固有値解法に新しい波動関数モデルを導入し、量子回路を圧倒的に短縮することで今後のスタンダードとなるような量子アルゴリズムの開発を行う。

さらに化学反応を起こすのに必要なエネルギーや分子がどのような波長のエネルギーを吸収または発光するのかなど実応用に耐えうる精度で計算予測するためには、量子-古典空間分離法で分離された量子計算機で扱う空間と古典計算機で扱う空間の間の相互作用も考慮する必要がある。本研究ではそのような相互作用を量子計算機から古典計算機への情報伝達によるポストプロセッシングと古典計算機から量子計算機への情報伝達によるプリプロセッシングを用いたそれぞれのアルゴリズム開発により実現する。くわえて、量子変分固有値解法における期待値計算に必要な膨大な数の観測回数を準粒子変換により大幅に削減する手法や、エネルギー期待値への各項の寄与率を事前に予想し、最適な観測回数を見積もる手法など種々の技術開発により、高効率な多体量子系ソルバーの開発を実現する。

### 2. 研究成果

#### (1) 概要

量子計算に適した量子化学計算アルゴリズムの開発を行なった。主に研究対象を水分子や二酸化炭素分子などの小分子から数十原子からなる中規模分子や分子の集合体へと拡大す

るために、量子計算を真に必要とするエンタングルメントの大きな部分のみに量子アルゴリズムを適用し、古典アルゴリズムと上手に連携させる量子-古典空間分離法の開発を行った。本手法の確立には複数の要素技術の開発が必要であった。まず、量子表現空間におけるシュレディンガー方程式の解法として高効率な量子変分固有値解法を開発した。本量子変分固有値解法ではテンソル分解に基づく新たな準粒子変換を導入した **ansatz** を考案し、これにより近似精度を担保しつつ、計算オーダ的には量子ビット数  $N$  に対して  $O(N)$  と限界まで量子回路を短くすることに成功した。量子変分固有値解法では一般に非線形性の強い最適化問題を解く必要があるため最適化の反復回数が膨大になるという問題があり、本手法も例外ではない。この困難を低減するために古典アルゴリズムで最適化可能なエンタングル状態を事前に古典計算機で準備し、それを短い量子回路で再現し初期状態として利用することで量子変分固有値解法の最適化を加速する手法を開発した。

次に、量子表現-古典表現の両空間の相関を平均場近似に基づく効果を越えて考慮するために、古典アルゴリズムを量子計算のポストプロセッシングまたはプリプロセッシングとして上手く連携させたアルゴリズムをそれぞれ開発した。前者のアルゴリズムでは、量子ビット上の量子状態から4体の縮約密度を観測により推定し、それを入力として2体レベルの相関までに限って古典計算機によるポストプロセッシングにより補正エネルギーを算出する。また後者のアルゴリズムでは、両空間の間の非対角ブロックの値が小さくなるようなブロック対角化の相似変換を施すことにより両空間の間のエンタングルメントを考慮した量子表現空間内の有効ハミルトニアンを古典計算によるプリプロセッシングにより構築する。後者の手法は、構築された有効ハミルトニアンの固有値を量子計算により計算することで全空間のハミルトニアンの真の固有値が求められるため、量子変分固有値解法に限らず量子位相推定アルゴリズムを適用可能である。また両手法により平均場近似に基づく量子-古典空間分離法では予測できなかった現象を正しく予測可能であることを実証した。さらに本研究で開発した手法を必要とする量子化学の問題を発掘するための研究として多重化学結合の結合開裂、分子集合系における分子同士のエンタングルメントの問題、時間発展問題において自由度間のエンタングルメントを低減するための基底変換についての研究を行い報告した。

## (2) 詳細

### I. 量子表現空間における少数サイトにたいする量子多体系ソルバーの開発

#### i. 粒子変換を用いた新たな **ansatz** に基づく量子変分法の開発

量子表現空間における高効率な量子変分固有値解法として粒子変換を用いた新たな **ansatz** を考案し、実装と検証を行なった。量子変分固有値解法では量子ビットで表現された初期状態に対して **ansatz** に対応した量子回路を作用させた終状態として近似固有状態を得る手法であり、変分的に良い近似解となるよう量子回路のパラメータを調整する。よって用いる **ansatz** によって量子回路の長さや得られる近似解の精度が決まり、精度とコストのバランスに優れた良質な **ansatz** が必要である。本研究ではテンソル分解に基づく新たな準粒子変換を導入した **ansatz** を考案し、これにより近似精度を担保しつつ、計算オーダ的には量子ビット数  $N$  に対して  $O(N)$  と限界まで量子回路を短くすることに成功した。(論文1, 学会発表 4,5)

量子相転移のモデル系として有名な水素鎖を対象にサイズを大きくしながら量子シミュレータを用いてベンチマーク計算を行ったところ、20 量子ビットを超えた時点からボトルネックは量子回路の量子状態への作用のシミュレーションではなく、量子ビット数に対して  $O(N^4)$  のオーダーで項が増大するハミルトニアン量子ビット演算子への変換に代わられた。これはもちろん本研究で開発した量子回路の低スケーリング化によるものである。将来の実機を用いた計算でも同様のクロスオーバーが想定されるため、後述のハミルトニアン分解の開発によりハミルトニアン低スケーリング化する手法を開発した結果、28 量子ビットまでベンチマーク計算を伸ばすことができた。ヒルベルト空間サイズが  $2^{30}$  次元と現在の古典計算機で行われる厳密対角化手法の限界とほぼ同等な 30 量子ビットの計算を目標としていたが、古典計算が  $\alpha$  スピンと  $\beta$  スピンを別に扱う Knowles-Handy のistringベースアルゴリズムなど量子化学専用の鍛え抜かれたアルゴリズムを使用しているのに対して、量子シミュレータでは汎用アルゴリズムが使用されるため、現行の古典計算機を用いた量子化学計算の限界に達することは出来なかった。これは量子シミュレータという古典計算機の限界でありこれ以上の計算には、近似的なアルゴリズムを許容した高速な量子シミュレータの開発が必要であり、同時に厳密な計算には量子計算機の実装が必要であることを示している。

#### ii. エンタングル状態を参照状態とした量子変分法の開発実装

量子変分固有値解法では量子計算によるエネルギー期待値とその勾配計算と、その結果に基づく変分パラメータの更新を繰り返す。量子回路により表現される指数関数型の ansatz はエネルギー期待値の変分パラメータに対する非線形性が強いいため、その最適化はノン-トリビアルな問題であり、現状、膨大な回数更新を必要とする。そこで最適化問題の困難を低減するために古典アルゴリズムで最適化可能なエンタングル状態を事前に古典計算機で準備し、それを短い量子回路で再現し初期状態として利用することで量子変分固有値解法を加速する手法を考案した。この手法により、同程度の表現力を保持するのに必要な変分パラメータの数が削減され、その結果として量子計算を必要とする反復計算の回数を削減することが出来た。(論文1, 学会発表 4)これにより、古典計算機を用いて事前準備するエンタングル状態の改良により更なる削減の可能性が示唆される。

## II. 量子-古典空間分離法の開発

#### i. 平均場近似に基づく量子-古典空間分離法の開発

基礎的な量子-古典空間分離法として、古典表現空間と量子表現空間内の間の相互作用を平均場理論により近似した量子表現空間内のハミルトニアンを導出し、量子化学計算の入力である分子構造とガウス型基底関数セットより定められた分子積分を用いて量子表現空間内ハミルトニアンを構築するプログラム実装を行った。これにより古典計算機を用いた量子化学計算と同じ形式のインターフェースを介して量子計算に用いるハミルトニアンの構築を可能にすると共に、エンタングルメントの大きな部分にのみ量子計算を適用することで分子の大きさにとまらぬ必要量子ビット数の増大の低減を実現した。(学会発表 3)また、従来は本手法のように平均場理論による取り扱いで十分な記述が可能と考えられていた分子集合系の分子同士の相互作用についても、三重項-三重項消滅におけるトリプレットダイマーのようなエンタングルメントの大きな分子間状態について、古典表現空間との相互作用も考慮した計

算により初めて定量的な計算が可能であることを示した。(論文 2)

## ii. 基礎的な空間分離を用いた量子計算をインプットとする対角化

上述の平均場近似に基づく量子-古典空間分離法では、量子表現空間内のエンタングルメントについてはほぼ厳密に考慮することで複雑な化学現象を引き起こす電子状態の変化について定性的には正しい記述を与える。一方で、古典表現空間との間のエンタングルメントについては無視していることから、化学現象の具体的な反応エネルギーや吸収・発光波長の定量には不十分であり、実際の分子設計への実応用に展開するためには両者の間のエンタングルメントについても算出する必要がある。この問題に対し、量子表現空間と古典表現空間との間のエンタングルメントが小さいことを利用し、2体レベルの相関までに限って古典計算機によるポストプロセッシングにより補正エネルギーを算出する手法を開発した。具体的には、2体レベルの相関を考慮するために、対象のハミルトニアンが2体演算子であることと合わせて、量子ビット上の量子状態から4体の縮約密度を観測により推定し、それを入力として摂動論に基づく補正エネルギーを古典計算機上で計算する。

この手法により例えば生体の酸化還元酵素活性部位のモデル化合物である複核銅錯体の異性化反応のポテンシャルエネルギー曲面を算出し、平均場近似に基づく量子-古典空間分離法では実現不可能なレベルの精度が実現されることを確認した。また、オプト-エレクトロニクス分野の代表的な分子素子であるポリアセン系分子のエネルギー準位についても光と強く相互作用するいわゆるブライト状態とそれにエネルギー的に近接したダーク状態について、平均場近似に基づく量子-古典空間分離法では予測できなかったエネルギー順序が、ポストプロセッシングによる補正エネルギーにより正しく予測可能であることを確認した。(学会発表 2,3)

## iii. 有効ハミルトニアン法に必要な、ハミルトニアンの古典変換

前述のポストプロセッシングによる量子表現空間と古典表現空間との間のエンタングルメントの算出を実際の量子計算機において実行する際には、量子ビット上の量子状態から3体もしくは4体の縮約密度を観測により推定する点がボトルネックとなることが予想される。すなわち、通常のエネルギー期待値計算に必要な2体の縮約密度に比べて個別に観測する必要のある非可換な項の数が何オーダーも増加してしまう問題がある。そこで、その代替となる手法として、古典計算機によるプリプロセッシングにより両空間のエンタングルメントを考慮した有効ハミルトニアンを構築し、それを入力とした量子計算により最終的なエネルギーを計算する手法を開発した。具体的には量子表現空間と古典表現空間を合わせた全空間のハミルトニアンについて、両空間の間の非対角ブロックの値が小さくなるようなブロック対角化の相似変換を施すことにより両空間の間のエンタングルメントを考慮した量子表現空間内の有効ハミルトニアンを古典計算によるプリプロセッシングにより構築する。これにより量子表現空間内の固有値により全空間のハミルトニアンの真の固有値を近似することができる。

量子計算を適用するためには量子表現空間内の有効ハミルトニアンは電子配置を基底とした行列表現ではなく第二量子化の演算子を用いた表現に帰着させる必要がある。そのためブロック対角化の相似変換として指数型演算子による変換を考案した。この理論に基づき、前述のポストプロセッシングによる手法と同じくオプト-エレクトロニクス分野の代表的な分子素子であるポリアセン系分子のエネルギー準位について適用し、本手法でもブライト状態と

それにエネルギー的に近接したダーク状態のエネルギー順序を正しく予測できることを確認した。また、有効ハミルトニアン<sup>1</sup>の指数型演算子によるハウストルフ展開を2体相互作用で打ち切った場合には、ポストプロセッシングに手法に比べて量子計算の観測回数を大幅に削減できることが示された。(学会発表 2)

### III. 量子-古典空間分離法の量子化学への実応用に向けた研究

#### i. 量子表現空間のサイト間エンタングルメントを低減するための基底変換の開発

量子ビットで表される量子表現空間は一粒子基底の変換に対して不変であるが量子変分固有値解法や虚時間発展手法など *ansatz* を利用した場合の時間発展シミュレーションの記述はヒルベルト空間における波動関数の構造を近似するため、近似精度もしくは一定の精度を担保するための計算量が一粒子基底の形に大きく依存する。この問題に対して、実空間上において局在した基底へ変換することで、一粒子自由度間のエンタングルメントを低減する手法を開発し、フェルミ共鳴現象やエネルギー緩和現象など多数の自由度が強くエンタングルすると考えられる現象を対象とした研究を行った。これにより *ansatz* を用いた場合に量子表現空間においてコンパクトな記述が可能であることが示唆された。(論文3)

#### ii. ハミルトニアンのテンソル分解による期待値計算に必要な観測回数の削減

本研究でもちいる量子変分固有値解法の欠点として、期待値の評価に観測回数の積算に基づく統計的な推定を必要とする問題がある。推定誤差を小さくするために必要な観測回数のオーダーもさることながら、ハミルトニアンが非可換なパウリ積の線形和により表されるため期待値の評価はパウリ積ごとに観測を行う必要があり、その回数は量子ビット数とともに急速に増大する。この問題に対し、量子化学のハミルトニアンをより少数のかつ可換なパウリ積のグループへと分解する新たなテンソル分解を考案した。本手法では、ハミルトニアンを準粒子の粒子数演算子の積和により展開する。粒子数演算子は互いに可換であることから全て同時観測可能である。また、準粒子のセットを増やすことで元のハミルトニアンを回復することが保証されている。実際に窒素分子の三重結合開裂の問題に適用し、少数の準粒子のセットでも元のハミルトニアンを十分良く近似することを確認した。量子シミュレータを利用した計算では線形代数演算により量子状態に対して自由に期待値を求めることが出来るため、当該問題を意識することは少ないが、実際の量子計算実機の利用では必ず行き当たる問題であり、非常に重要な技術である。(学会発表 1)

### 3. 今後の展開

本研究により、将来 100 論理量子ビットを超える量子計算機が実装された時点から、古典計算機では実現の難しい 100 以上のスピン軌道が強くエンタングルした複雑な電子状態の計算の実現が期待される。論理量子ビットの実機実装について公開されているロードマップとは別に、理論開発の観点から量子アルゴリズムに必要な発展として、第一に本手法に現れる非線形最適化問題の安定な最適化手法の確立があげられる。本研究で実施した量子シミュレータを用いた実証では、古典計算機の計算能力からくる制約により比較的小さな系の問題に限られていたため試行回数を上手く最適解にたどり着くことができたが、100 論理量子ビットを超えるような大規模な問題に対してはより安定な最適化手法の考案が必要である。これについては実機を用い

た試行錯誤が必要であり実機が実装されてから更に数年の研究開発が必要と考えられる。またエラー訂正の可能な実機が実装されたとしても、サンプリングによる統計的な推定からエネルギー期待値を評価する量子変分固有値解法には、高精度化に必要な観測回数が増大の問題が残る。この問題に対しては、本研究の古典計算機によるプリプロセッシングによる有効ハミルトニアン構築を進展させることにより量子位相推定アルゴリズムに置換することで解決可能と考える。ただし、いまだ高精度な有効ハミルトニアン構築はノン-トリビアルな問題であり、場合によっては理論の確立には実機の実装以上に時間を要する可能性も考えられる。

#### 4. 自己評価

当初の目的である、量子化学計算の広大なヒルベルト空間を上手く分割することで、量子計算を真に必要な部分空間にだけ量子アルゴリズムを適用し計算可能な分子サイズを飛躍的に高めるといふ、理論的手法の確立について計画通りに目的を達成できた。また、量子アルゴリズムの部分についても従来の **unitary coupled cluster** 法に比べて計算オーダ的に優れ、将来のスタンダードとなり得る **unitary cluster Jastrow** 法という新しい良質な手法を開発できたことは、今後のさらなる発展が見込めることから高く評価できる。研究遂行上、当理論を量子シミュレータ上でその有効性を実証するステップにおいて、本さきがけの研究費を使用して実際の量子計算では量子ビット上に保持されるはずの膨大な情報量スケールの波動関数を保持するために、1 TB に迫る大容量メモリと、それらの並列利用を可能とする計算機群を整備したことで、研究を一気に加速することが出来た。また計算機群を利用し大量の計算を必要とするベンチマークの解析は、研究補助員のサポートを得ることで効率的に時間を短縮することができた。本研究の成果の科学技術及び社会経済への波及効果として最も期待されることの一つは、植物光合成の水分解反応や窒素固定など自然界では実現されながら人工的には起こすことが困難な反応を実現するための触媒設計に寄与することである。自然界でこれらの反応を促進するのは多核金属錯体など電子が強くエンタングルした状態を有する分子系であり、古典計算機に対して量子計算機が大きなアドバンテージを示しうる系である。今後、100 論理量子ビットを超える量子計算機が実装された暁には、本研究を基礎にした量子計算機を用いた量子化学計算により、人工光合成をはじめとするエネルギー・環境問題を一掃するような革新的な技術の進展を後押しすることで、この科学技術イノベーションにより社会経済に大きな変革がもたらされる期待される。

#### 5. 主な研究成果リスト

##### (1) 代表的な論文（原著論文）発表

研究期間累積件数: 3件

1. Yuta Matsuzawa and Yuki Kurashige. Jastrow-type Decomposition in Quantum Chemistry for Low-Depth Quantum Circuits. *Journal of Chemical Theory and Computation*. 2020, 16, 944–952.

量子-古典分離法により切り分けられる、量子計算を真に必要な強くエンタングルした部分空間として多重結合の結合開裂を対象とした研究を行った。結合開裂では結合性軌道と反結合性軌道が強くエンタングルするため平均場近似をはじめとする一電子理論による取り扱いが困難である。この問題に対し、指数関数型の新たな波動関数 **ansatz** を開発

<p>し、量子シミュレータを用いた窒素分子の <math>\sigma</math> 結合 <math>\pi</math> 結合からなる三重結合開裂の量子化学計算により有効性を実証した。</p>
<p>2. Soichiro Nishio and Yuki Kurashige. Importance of dynamical electron correlation in diabatic couplings of electron-exchange processes. <i>The Journal of Chemical Physics</i>. 2022, 156, 114107 1–10.</p>
<p>量子-古典分離法により切り分けられる、量子計算を真に必要とする強くエンタングルした部分空間として三重項-三重項消滅により生成するトリプレットダイマーを対象とした研究を行った。トリプレットダイマーは Schockley-Queisser 限界を超える量子収率が得られる多重励起子生成の鍵となる中間状態と考えられているが分子間で強くエンタングルした電子構造を持つことから一電子理論による取り扱いが困難である。この問題において、トリプレットダイマー状態への状態遷移予測には強くエンタングルした部分の計算だけでは不十分であり、古典表現空間との弱いエンタングルメントが重要であることを明らかにした。</p>
<p>3. Kentaro Hino and Yuki Kurashige. Matrix Product State Formulation of the MCTDH Theory in Local Mode Representations for Anharmonic Potentials. <i>The Journal of Chemical Physics</i>. 2022, 18, 3347–3356.</p>
<p>量子-古典分離法により切り分けられる、量子計算を真に必要とする強くエンタングルした部分空間としてフェルミ共鳴現象やエネルギー緩和現象を対象とした研究を行った。これらの現象は複数の自由度が強くエンタングルメントに起因することから平均場近似による取り扱いが困難である。量子ビットで表される量子表現空間は一粒子基底の変換に対して不変であるが ansatz を利用した場合の時間発展シミュレーションの記述は一粒子基底の形に大きく依存する。この問題に対して、局在基底を用いることで自由度間のエンタングルメントを低減し量子表現空間においてコンパクトな記述が可能であることを示した。</p>

(2) 特許出願

該当なし

(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. Y. Kurashige, “Hybrid with classical quantum chemistry algorithms for real-world chemistry”, Q2B2022 Tokyo, Tokyo, Japan, July 14, 2022.
2. Y. Kurashige, “Break down the high-order tensors of quantum chemistry, for  $O(N)$ -depth circuit”, Quantum Innovation 2021, Online, Tokyo, Japan, December 9, 2021.
3. Y. Kurashige, “*Ab initio* modeling of electronic transition processes in molecular aggregates”, Pacificchem 2021, Online, Waikiki, USA, December 17, 2021.
4. Y. Kurashige, “Quantum chemistry meets quantum computer” Quantum Computational Materials Science Roundtable, Online, May 25, 2020.
5. Y. Kurashige, “Jastrow 型テンソル分解に基づく low-depth かつ Trotter-free な VQE の開発

～NISQ 時代の量子化学理論開発～”. Quantum Information and Quantum Biology Seminar, Osaka University, December 23, 2019.