



2022年7月25日

大阪公立大学

科学技術振興機構 (JST)

量子コンピュータ上での量子化学計算の効率向上へ！ 分子の波動関数を生成する ASP 法の実用化に大きな一歩

<ポイント>

- ◇量子位相推定^{※1}アルゴリズムによる量子化学計算では、求めたい電子状態の真の波動関数^{※2}にできるだけ近い近似波動関数を事前に準備することが計算効率を上げる鍵となる。
- ◇断熱量子計算アルゴリズムの一種である断熱状態生成法 (ASP 法) を用い、求めたい電子状態の真の波動関数を効率的に生成するための実用的な計算条件を明らかにした。
- ◇今後、量子化学の分野において ASP 法と量子位相推定を組み合わせる研究が広く展開されることが期待される。

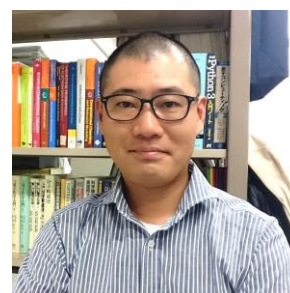
<概要>

大阪公立大学大学院 理学研究科の杉崎 研司(すぎさき けんじ) 特任講師(科学技術振興機構・さががけ専任研究者)、佐藤 和信(さとう かずのぶ) 教授、工位 武治(たくい たけじ) 大阪市立大学名誉教授らの研究チームは、量子コンピュータ上で原子・分子の波動関数の精度を向上させることができる断熱状態生成法 (adiabatic state preparation, ASP 法) の実用的な計算条件を、初めて明らかにしました。

ASP 法は、複雑な電子構造を持つ分子の量子化学計算を量子コンピュータ上で効率的に行うための有力手法の 1 つであると考えられていましたが、具体的な計算条件がほとんど調べられておらず、実用的な手段とは言えない状況でした。ASP 法の実用的計算条件を初めて明らかにした本研究成果は、量子コンピュータによる量子化学計算を実際の化学研究に役立てるための大きな一歩と言えます。

本研究成果は、オープンアクセス国際学術誌『Communications Chemistry』に 2022 年 7 月 25 日 (日本時間) にオンライン掲載予定です。

量子コンピュータで精密な量子化学計算を効率的に実行するには「良い近似波動関数を事前準備」する必要があります。断熱状態生成法はこの事前準備の有力手段ですが、具体的にどのような計算条件を用いればよいか不明でした。本研究で、ようやく ASP 法が実用的な手段となり得たと思います。



杉崎 研司 特任講師

<研究の背景>

近年、暗号に利用する大きな桁数の素因数分解など、スパコンなどの古典コンピュータでは「問題サイズ」に対して指数関数的に計算時間が増えてしまう特定の課題に対して、多項式時間内の計算を可能にする量子コンピュータの研究が活発に行われています。これらの課題のなかでも、原子・分子のシュレーディンガー方程式^{*3}を近似的に解き、電子状態を明らかにする精密な量子化学計算は、量子コンピュータの近い将来の計算ターゲットとして注目されています。

量子化学計算の主な手法として、**全配置間相互作用法**^{*4} (full configuration interaction; full-CI 法) と呼ばれる計算法があります。古典コンピュータで full-CI 法を採用した場合、分子サイズに対して計算コストが指数関数的に増大します。一方、量子コンピュータでは量子位相推定という量子アルゴリズムを用いることにより、計算コストが分子サイズに対して多項式時間内の増大で収まるようになることが理論的に示されています。量子位相推定を用いた full-CI 計算では「射影測定^{*5}」と呼ばれる測定を行い、インプットとして用いた近似波動関数を真の波動関数に射影する方法によって求めたい電子状態の波動関数とエネルギーを計算します。量子位相推定でどの電子状態の波動関数が得られるかは近似波動関数と真の波動関数がどれだけ似ているかに依存します。もしも事前に準備した近似波動関数が真の波動関数から大きく異なっていれば、求めたい電子状態のエネルギーを得るまで同じ計算を何回も実行する必要があります。量子コンピュータによる計算高速化の利点が損なわれてしまいます。そのため、近似波動関数の精度を上げる手法開発は、量子位相推定に基づく量子化学計算の実用化に必須な研究課題と言えます。

これまで、量子コンピュータ上に生成した近似波動関数の精度を上げる手法はさまざまなものが研究されていますが、本研究グループは ASP 法に注目しました。ASP 法は固有関数が簡単に準備できるシンプルなハミルトニアン^{*6}から真のハミルトニアンへと徐々に変化させていくことにより真の波動関数を得る手法です。ASP 法はハミルトニアンを変化させるスピードを十分に遅くすることにより良い近似波動関数が得られる、求めたい電子状態に関する詳細な事前知識を必要としないなどの大きな利点があります。しかし、どれくらいの時間をかけてハミルトニアンを変化させればよいか、ハミルトニアンの時間変化をどのような関数形で表現すればよいか、ASP 法のスタート時の波動関数としてどのようなものを用いればよいかなど、これまで ASP 法の具体的な計算条件がほとんど調べられておらず、実用的な手段とは言えない状況でした。

<研究の内容>

同研究グループは ASP 法の実用的な計算条件を探るために、①ハミルトニアンの時間変化を表現する関数として、従来用いられてきた一次関数だけでなく、三角関数などの非線形関数を試す、②ハミルトニアンを変化させる時間の長さを、分子軌道エネルギーから推定する、③ASP 法の初期波動関数として、従来用いられてきた **Hartree-Fock (HF) 波動関数**^{*7} だけでなく、**broken-symmetry (BS) 波動関数**^{*8} と呼ばれる波動関数を用いる、など、ASP 法に汎用性を持たせるために、計算条件をさまざまに変えて数値シミュレーションを行いました。

その結果、以下の4点が明らかになりました。

- | |
|--|
| <p>(I) HF 波動関数からスタートしたとき、ハミルトニアンの時間変化はサイン関数を用いて表現することで最も良い近似波動関数が得られる。</p> <p>(II) HF 波動関数からスタートしたときはハミルトニアンを変化させる時間の長さは HOMO-LUMO エネルギー差^{*9} に反比例するように設定すればよい。</p> <p>(III) 共有結合が切れた構造では BS 波動関数を用いることでより少ないステップ数で良い波動関数を生成できる。</p> <p>(IV) BS 波動関数を用いた場合、ハミルトニアンを変化させる時間の長さは分子構造によらず一定でよい。</p> |
|--|

さらに、初期波動関数として HF 波動関数と BS 波動関数のどちらを用いればよいかを簡単に判定する手法も提案しました (図)。これらの研究成果により、ASP 法の実用的計算条件が初めて明らかになりました。

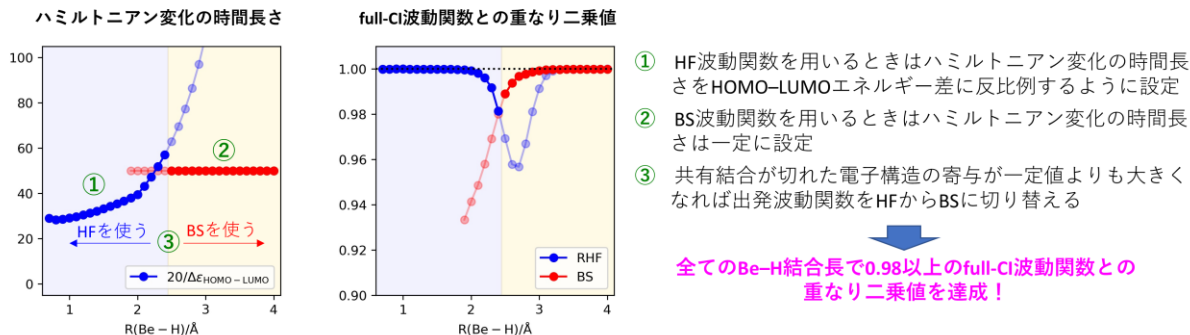


図: BeH₂分子の2つのBe-H結合を同時に伸長した構造でのASP法の数値シミュレーション結果。左図はASP法でハミルトニアンを変化させる時間の長さを、右図はfull-CI波動関数との重なり二乗値(重なり二乗値は1に近ければ近いほど波動関数の近似精度が高いことを表す)を示す。図の横軸はBe-H結合長を表す。左図中の領域①、②、及び境界③に対する設定の説明を、右端に示す。

<期待される効果・今後の展開>

精密な量子化学計算は創薬や材料開発など、さまざまな関連分野でも非常に重要な役割を担っています。これまで報告されてきた量子位相推定によるfull-CI計算に関する理論的研究のほとんどは、良い近似波動関数が簡単に得られることを前提条件としていましたが、この前提条件をいかにして満足させるかは自明ではありません。本研究により、ASP法を用いて良い近似波動関数を生成するための実用的な道筋が初めて示されました。今後、精密な量子化学の分野においてASP法と量子位相推定を組み合わせる研究が広く展開され、量子コンピュータを用いた理論計算に基づく新たな材料設計などへ応用されることが期待されます。

<資金情報>

本研究は、JST さきがけ「量子化学計算の高効率量子アルゴリズムの開発」(JPMJPR1914)、JSPS 科研費基盤研究C(18K03465, 21K03407)の対象研究です。

<用語解説>

- ※1 **量子位相推定** … 量子コンピュータを用いて、波動関数が時間とともにどのように変化するかを記述する時間発展演算子など、ユニタリー演算子の固有値を古典コンピュータよりも指数関数的に速く計算できる量子アルゴリズム。量子化学計算だけでなく、線形方程式を解く量子アルゴリズムなど、さまざまな問題に応用されている。
- ※2 **波動関数** … 量子力学において粒子の状態を記述する関数。量子化学計算では一般に、原子・分子内での電子の空間分布および電子間の相対配置の情報を含んだ複素関数のことを指す。
- ※3 **シュレーディンガー方程式** … 量子力学的な状態を表す波動関数の時間的変化を規定する微分方程式で、量子力学の基礎となるもの。
- ※4 **全配置間相互作用法** … 波動関数展開において、可能な全ての電子配置を考慮する方法。分子軌道展開に用いた基底関数の張る空間の中での数値的最適解を与える。
- ※5 **射影測定** … 量子状態 $|\Psi\rangle$ が、 $|\Psi\rangle = \sum_j c_j |\varphi_j\rangle$ のように物理量Aの固有関数 $\{|\varphi_j\rangle\}$ の線形結合で書かれるとき、物理量Aを測定すると $|\varphi_j\rangle$ にかかる係数 c_j の二乗に比例した確率で量子状態が $|\varphi_j\rangle$ に収縮すること。
- ※6 **ハミルトニアン** … 分子を構成する電子や原子核間の運動および相互作用など、物理量を定義する演算子。固有値としてエネルギーを与える。
- ※7 **Hartree-Fock (HF) 波動関数** … N 個の電子から成る分子系の波動関数を、 $(N-1)$ 個の電子が形成する電子雲のなかを運動する1個の電子の問題と近似して求める手法。平均場近似に相当し、高精度量子化学計算の出発波動関数としてしばしば用いられる。

※8 **broken-symmetry (BS) 波動関数** …たとえば分子内にペア（電子対）を作らない電子が2つあり、この2つの電子の電子スピンの反平行に整列しているとき、波動関数は単一電子配置ではなく2つの電子配置の線形結合で近似される。しかしスピン状態の異なる2つの波動関数の線形結合をとると単一電子配置が得られる。このような波動関数をBS波動関数と呼ぶ。BS波動関数はスピン状態が異なる波動関数の線形結合なのでスピンに関する対称性（symmetry）が破壊されており、これがBSの名前の由来である。

※9 **HOMO-LUMO エネルギー差** …HF法を解いて得られる分子軌道のうち、電子が占有していない分子軌道のなかで最もエネルギーが低いもの（LUMO）と電子が占有している分子軌道のなかで最もエネルギーが高いもの（HOMO）の軌道エネルギー差。

<掲載誌情報>

【発表雑誌】 Communications Chemistry

【論文名】 Adiabatic state preparation of correlated wave functions with nonlinear scheduling functions and broken-symmetry wave functions

【著者】 Kenji Sugisaki, Kazuo Toyota, Kazunobu Sato, Daisuke Shiomi, and Takeji Takui

【掲載URL】 <https://doi.org/10.1038/s42004-022-00701-8>

【研究内容に関する問い合わせ先】

大阪公立大学大学院 理学研究科
特任講師：杉崎 研司（すぎさき けんじ）

TEL : 06-6605-2555

E-mail : [sugisaki\[at\]omu.ac.jp](mailto:sugisaki[at]omu.ac.jp)

または、

大阪市立大学名誉教授：工位 武治（たくい たけじ）

TEL : 06-6605-2605

E-mail : [takui\[at\]omu.ac.jp](mailto:takui[at]omu.ac.jp)

【報道に関する問い合わせ先】

大阪公立大学 広報課 國田（くにだ）

TEL : 06-6605-3411

E-mail : [koho-list\[at\]ml.omu.ac.jp](mailto:koho-list[at]ml.omu.ac.jp)

科学技術振興機構 広報課

TEL : 03-5214-8404

FAX : 03-5214-8432

E-mail : [jstkoho\[at\]jst.go.jp](mailto:jstkoho[at]jst.go.jp)

【JSTの事業に関するお問い合わせ】

科学技術振興機構 戦略研究推進部 グリーンイノベーショングループ

鳴林 ゆう子（しまばやし ゆうこ）

TEL : 03-3512-3526 FAX : 03-3222-2066 E-mail : [presto\[at\]jst.go.jp](mailto:presto[at]jst.go.jp)