

研究終了報告書

「多様な電子状態計算を実現する包括的量子アルゴリズムの開発」

研究期間:2020 年 10 月～2024 年 3 月

研究者:土持 崇嗣

1. 研究のねらい

量子化学計算は量子コンピューターの性能が発揮される特に有力な応用先として注目されてきた。本研究では、エラー耐性のない NISQ (Noisy Intermediate-Scale Quantum) コンピューターを実際に量子化学に活用する段階にまで視野を広げ、そこであらわれる問題点と課題を解決することで、量子コンピューターの社会実装を近づけ、研究領域の目標達成に貢献することを目的とした。特に、限られた量子資源の中でいかに量子計算の性能を有効に引き出し、現実的サイズの分子や化学反応に対する大規模量子計算をどのように取り扱うのかという挑戦的な問いに答えるために、研究目的を以下の3項目に絞った。

(i)フェルミ粒子である電子の波動関数が持つ強い量子もつれによって引き起こされる強電子相関を取り扱う量子計算手法の構築

(ii)光反応などにおいて基底状態と強くもつれる励起状態を精度良く扱う量子回路の開発

(iii)小規模量子計算のデータから大規模量子計算結果を抽出する量子-古典融合アプローチの構築

これらの目的を達成するためには、NISQ デバイスの制限を正しく理解し、量子コンピューターが持つ古典コンピューターに対する大きなアドバンテージを最大限に引き出す必要がある。そこで、古典コンピューターでは計算困難なタスクに対して量子計算を賢く利用するような量子-古典ハイブリッドアルゴリズムを複数提案することで、問題解決に当たった。特に、量子化学についてのみではなく、多岐に渡る量子計算分野に対して応用が可能である

ような考え方を根底に持ったアルゴリズムとして開発することで、研究領域全体へ広く浸透し量子情報処理技術の飛躍的成長につながることを目指した。また、このようなアルゴリズムがノイズを含んだ現実的な量子コンピュータ上でどのように振る舞い、既存アルゴリズムに比べてどのような利点が見られるのかについて、量子ノイズとエラーミティゲーションを組み合わせた数値シミュレーションによって明らかにすることを目指した。さらに、本研究から得られる成果を相互にリンクさせるために、オープンソース量子計算シミュレータ「Quket」を独自に立ち上げ、これによって強電子相関系や励起状態を含む多様な電子状態計算を実現する包括的量子アルゴリズムの開発を行い、実在系の化学への応用を目指した。

2. 研究成果

(1)概要

(i) 古典計算が特に苦手とする強電子相関の取り扱いは、量子計算では量子ビットの量子もつれ状態として直接記述できると期待される。しかし実際にそのような量子もつれ

状態をうまく作り出すためには、強電子相関の本質をついた最小限の量子回路とアルゴリズムを構築することが極めて重要となり、これによって初めて量子計算の強みを最大限に活かすことができる。本研究では、エラーに脆弱な一つの長い量子回路を用いるかわりに、複数の短い量子回路の最後に異なるゲートをほどこし、これらの量子状態の重ね合わせを古典的に作り出すことで量子もつれを効率的に表現する手法を提案し、これによってアダプティブに回路設計していくアルゴリズムを提案した。

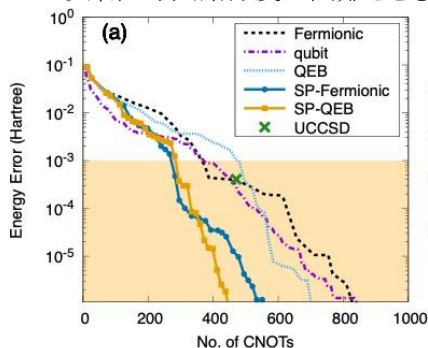
(2) 一般的に、励起状態は基底状態よりもさらに強くもつれる。特に光化学反応で重要となる円錐交差では、基底状態と励起状態の波動関数同士が接近し、量子状態が複雑に混ざり合う。こうした問題に対して、複数の状態を平等にかつ同時に計算する量子アルゴリズム「モデル空間量子虚時間発展アルゴリズム」とその拡張である「モデル空間量子ランチョス法」を提案した。さらに、「量子逆べき乗アルゴリズム」と、その近傍の固有状態を同時に求める「量子逆べき乗部分空間展開法」を提案し、与えられたターゲットエネルギーに近い固有(励起)状態を量子ビット上に創り出す量子回路をアダプティブに生成することに初めて成功した。

(3) NISQ デバイスの限られた量子ビット数で実行可能な計算は、どうしてもモデル化された小規模な計算にとどまり、問題サイズの一部を切り取った定性的な結果しか与えない。そこから得られる科学的知見やその活用手段は、実在系の分子に対しては限定的である。また、NISQ デバイスを用いる限り、得られる結果は近似にならざるを得ない。そこで小規模な量子計算の実行結果に対して、古典マシンを用いて適切なポストプロセスを行うことで、大規模量子計算と同等の定量的結果を導くようなボトムアップ型の枠組みを提案し、その有効性を検証した。

(2) 詳細

研究テーマ(i) 強電子相関に対する量子回路生成技術

強電子相関系では量子ビット間の相互作用が強く、初期状態と真の量子状態の重なりが小さい。形の定まった量子回路では一般的な状態に発展させることが困難であるため、よりフレキシブルな量子回路が求められる。このような強電子相関問題に対して有効であると考えられる ADAPT-VQE は、ゲートをアダプティブに選択し更新するが、本研究による検証の結果、ADAPT-VQE はフェルミオン系におけるスピンの対称性の情報を必ず破壊し、これによって収束性や回路深度に困難さをもたらすことが研究代表者らによって明らかになった。こ



うした問題点に対して、スピン対称性を満足するような射影演算子を ADAPT-VQE の量子回路導入することによって改善を行うことで、量子回路の大幅な短縮に成功した[1]。

さらに、射影演算子の存在下におけるエネルギー微分の導出および実装を展開し、これを用いて分子の構造予測を可能にした。低深度なアルゴリズムを想定して CNOT 数を固定した回路をそれぞれのアルゴリズムごとに用意し、シミュレーションを行ったところ、既存のアル

図 1. N_2 分子における CNOT ゲート数に対するエネルギー誤差。
Fermionic, qubit, QEB は ADAPT-VQE の一種、SP はスピン射影。

ゴリズムでは O-O 結合距離を過小評価する傾向がある一方で、スピン射影アルゴリズムでは安定した結果が得られることがわかった。本研究によって化学への

応用を目指した量子アルゴリズムにおけるスピン対称性の取り扱いの重要性が明らかとなった[1]。

研究テーマ(ii) 励起状態計算を可能にする量子アルゴリズム開発

励起状態計算手法について、本研究では主に虚時間発展を用いた計算アルゴリズムの開発に取り組んできた。基礎的な考察を行い、独自に理論を再導出することで、Motta らのアルゴリズムの修正を行い、従来のものと比較して素早い解の収束を与えることを示した。つづいて、励起状態計算を目指し、Folded-spectrum のアイデアをもとにしたプロパゲータを用いた FSQITE 法と、ゼロ次の直交したモデル空間を用意し、全体を虚時間発展させるモデル空間 (MS) QITE[3]を提案した。FSQITE は原理的に正しい励起状態を得ることができるものの著しく遅い収束が見られ、実用的でないことが強く示唆される結果となった。一方で MSQITE では基底状態を含めて正しい状態を素早く得ることに成功している。さらに、部分空間法へ発展させた MS-QLanczos についても提案を行い、さらなる収束性の加速を得ることに成功した。特に、MSQITE についてはノイズシミュレーションを行い、QITE と比較することで現実的な量子コンピュータでの振る舞いや利点を探ったところ、ノイズの影響下でも MSQITE の QITE に対する計算精度の優位性は全く失われないことが明らかとなった[3]。

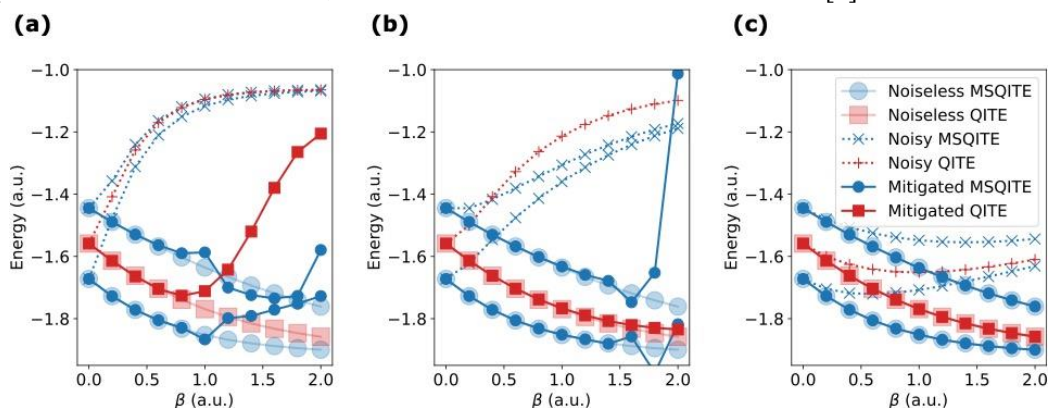


図 2. 強相関 H_4 分子に対する QITE, MSQITE を用いた基底状態と励起状態計算シミュレーション結果。

また、これとは別に逆べき乗法を量子アルゴリズムに拡張した QInverse を開発し、検証した。QInverse ではエネルギーを指定することによってそのエネルギーに最も近い固有値を持つ励起状態へと収束させる。このとき解く線形方程式は変分的な量子計算によって行うことが可能であるが、ハミルトニアン逆べき乗状態を記述するためには十分に柔軟な量子回路が必要となる。そこで本研究では ADAPT-VQE に着想を得て、アダプティブに線形方程式の量子回路を生成するアルゴリズム ADAPT-VQLS を提案した[2]。ADAPT-VQLS を繰り返し用

いることで、QInverse を実行するアルゴリズムを完成させた。しかし、QInverse では、指定エネルギーが隣り合う 2 つの真の固有値から同等に離れている場合、理論的に収束しないという問題に直面した。そこで、部分空間法を適用することによってこの問題の解決を試みた。本手法は、近傍の固有状態を同時に得つつ、QInverse 自体を加速度的に収束させることに成功した[2]。

研究テーマ(iii) ポストプロセスによって不完全な量子計算を補正するアプローチの開発

定量性達成のためのアルゴリズムとして提案した多体展開法は、ベースとなる近似量子状態を小さな活性空間を用いた VQE によって得る。こうした状態に対して外場の影響を摂動的に与えて補正するために、補助量子ビットを用いて高エネルギー軌道の効果を段階的に取り込む。本提案手法を用いて古典計算では困難であることが知られている N_2 分子などの解離曲線の再現を行った。本来 112 量子ビット及び 100 万以上の VQE パラメータが必要となることが予測されるが、多体展開法では 3 次オーダーの計算でも用いる量子ビット数は 18、VQE パラメータ数は 120 程度であるにも関わらず、非常に高精度な結果を達成することに成功した。また、励起状態に対しても、変分量子減次 (VQD) と多体展開法を融合することで同様に高精度結果を得ることに成功している。ただし、多体展開法では微小なエネルギー差を取り扱うため、統計誤差やノイズの影響が大きいという課題も浮き彫りとなった。

また、研究テーマ(i)との融合として、NISQ で実現可能な量子回路を想定し、得られる不正確な量子状態を摂動展開したものを古典計算機で後処理するための理論定式化及びその実装を行った。得られる方程式に現れる行列やベクトルは縮約密度行列の複雑な関数であり、アルゴリズム実装が人力では困難であることがわかった。そこで本研究では、こうしたプログラムを自動生成するプログラムを作成し、この問題を解決に導いた。 N_2 分子などに対する数値検証の結果、ADAPT-VQE で取り逃した電子相関効果を大きく補正し、計算精度を向上させることに成功した。

最後に、本研究ではこうした種々のアルゴリズムを包括的に取り扱うシミュレータ「Quket」を開発した。Quket は拡張と改良を重ね、VQE のノイズレスシミュレーションでは世界最高速度を誇り、また MPI やスレッド並列に対応しているためスーパーコンピュータを用いた量子アルゴリズムの大規模シミュレーションが可能である。ノイズシミュレーションも、IBM-Q のエミュレータ Qiskit と連結させることで可能になった。Quket は本研究の成果物としてオープンソースのコードが公開されるに至った (<https://github.com/quket/quket>)。

3. 今後の展開

これまでの研究によって、NISQ コンピュータの実用性は限定的であることが明らかになりつつあり、今後は early FTQC を目指した研究がますます重要となると考えられる。その一方で、NISQ 時代のアルゴリズムや前処理・後処理のアプローチはこうした新たなステージでも活用できるものや拡張できるものが多くある。本研究成果の多くは、NISQ における既存アプローチの有効性をさらに改

善しているものの、これらが真の意味で社会実装につながるためには、early FTQC 時代の到来を待つ必要があると考えられるため、10 数年の長いスパンが必要となる。しかしながら、これは基礎的な研究を怠って良いということではなく、将来に向けてソフトウェアの開発側面においても基礎理論やアルゴリズム開発検証による十分な準備が必要である。そこで、今後はこうした背景を踏まえて、Ten-no による新たな Transcorrelated 法 [J. Chem. Phys. in press (2023).] の量子計算への適用およびこれを多体展開法と組み合わせる展開や、変分原理によらない QInverse のさらなる拡張、そして VQE における観測数の問題を排除する新たなアルゴリズム開発などを引き続き行っていく予定である。

4. 自己評価

本研究目的の達成状況を振り返ると、研究が思わぬ方向に発展することがあり、当初計画していた研究目的とは異なる成果も得られたが、研究計画で提案したすべてのテーマにおいて一定の成果を得られた。しかしながら、計画変更に伴って、研究実施体制や必要な研究費が大きく変化することがあり、研究開始当初の見通しが十分でなかった可能性がある。研究成果は、原著論文発表論文数が 4 件、投稿中論文数が 1 件、投稿準備中論文数が 2 件あり、いずれも責任著者、複数は同時に筆頭著者であることを考えれば概ね良好と自己評価する。また、招待講演数は国内 6 件・海外 4 件であり、本研究が国際的にも認知される機会に恵まれたため、大変良好と自己評価する。また、「今後の展開」で記したように、本研究成果は、長いスパンが必要であると考えられるものの、今後の量子科学技術発展のシーズを生み出すことに貢献できていると考える。

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: 4件

1. T. Tsuchimochi, M. Taii, T. Nishimaki, and S. L. Ten-no, "Adaptive construction of shallower quantum circuits with quantum spin projection for fermionic systems", Phys. Rev. Research, 2022, Vol. 4, p.p. 033100.

本論文では、NISQ コンピュータのためのアダプティブな VQE アルゴリズムは強電子相関分子に対しては、本来持つべき対称性の破れが容易に起こり、量子回路の収束性が大幅に悪化する原因になることを示した。そこで、簡単なユニタリ演算子の線形結合で構成されたスピン射影演算子を導入し、スピン対称性を保存するような量子回路を提案した。一定の量子もつれ効果を量子計算機ではなく古典計算機で後処理することで、量子回路において必要となる CNOT 数を大幅に削減することに成功した。また、スピン射影された VQE エネルギーの微分を導出し、構造最適化や物性計算においてスピン対称性が重要であることを示した。

2. T. Yoshikura, S. L. Ten-no, and T. Tsuchimochi, "Quantum Inverse Algorithm via Adaptive Variational Quantum Linear Solver: Applications to General Eigenstates", J. Phys. Chem. A,

2023, Vol. 127, p.p. 6577-6592.

本論文では、指定したターゲットエネルギーに隣接した固有状態を決定する量子逆べき乗アルゴリズムを提案した。本アルゴリズムでは必要な線形方程式を解くための量子回路をアダプティブに生成していくため、複雑な量子もつれを起こした励起状態も容易に計算可能であることがわかった。さらに、部分空間法を組み合わせることによってターゲット解の収束向上や近傍の擬縮退した固有状態を同時に決定する拡張を行った。これによって高エネルギー励起状態を直接かつ安定的に求める量子アルゴリズムの開発に世界で初めて成功した。

3. T. Tsuchimochi, Y. Ryo, S. C. Tsang, and S. L. Ten-no, "Multi-state quantum simulations via model-space quantum imaginary time evolution", npj Quantum Inf., 2023, in press.

本論文では、量子虚時間発展アルゴリズム (QITE) を拡張し、モデル空間をもちいることによって基底状態と励起状態を同時に虚時間発展させる MSQITE アルゴリズムを提案した。有効ハミルトニアンモデルをもちいることから、モデル空間内の各状態に対するハミルトニアン相互作用の算出が必要であり、アダマールテストを用いた効率的な量子回路を開発した。これによって CNOT 数の増加が抑えられ、量子ノイズがある状況においても MSQITE は QITE と同程度のエラー耐性を持ち、特に強電子相関係では QITE に比べ飛躍的に大きなアドバンテージが得られることを示した。

(2) 特許出願

研究期間全出願件数: 0 件 (特許公開前のものは件数にのみ含む)

(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)

代表的な招待講演

1. "量子コンピュータの化学への応用を目指したアルゴリズム開発"
2023 年度 情報処理学会関西支部 定期講演会『量子コンピューティング技術とその応用』
(オンライン) 2023 年 11 月
2. "Recent developments of quantum algorithms for excited states"
17th International Congress of Quantum Chemistry (ICQC), Bratislava, Slovakia 2023 年 6 月
3. "Quantum Imaginary Time Evolution for Ground and Excited States"
The 10th conference of the Asia-Pacific Association of Theoretical and Computational Chemists, Quy Nhon, Vietnam 2023 年 2 月
4. "Hybrid Classical-Quantum Algorithms for Quantum Chemistry"
The 5th China-Japan-Korea Workshop on Theoretical and Computational Chemistry (オンライン)
5. "Quantum spin-projection in variational quantum computing"
Pacifichem 2021 ("Quantum Monte Carlo and Quantum Information" session) 2021,

Honolulu, Hawaii (オンライン)

その他国内招待講演 5 件、国内学会発表 10 件

受賞

1. 2022 年 11 月 10 日 優秀若手研究者賞(神戸大学)
2. 2022 年 7 月 7 日 前之園記念若手優秀論文賞(神戸大学)