

令和 6 年 6 月 5 日現在

機関番号：14401

研究種目：挑戦的研究（萌芽）

研究期間：2021～2023

課題番号：21K18933

研究課題名（和文）「量子インスパイアード」アルゴリズムによる相対論的量子化学の開拓

研究課題名（英文）Exploring relativistic quantum chemistry with 'quantum inspired' algorithms

研究代表者

水上 渉（Mizukami, Wataru）

大阪大学・量子情報・量子生命研究センター・准教授

研究者番号：10732969

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 4,900,000円

研究成果の概要（和文）：量子情報科学の知見を活用した「量子インスパイアード」アルゴリズムにより、相対論的量子化学のための電子状態理論の開発を行った。ニューラルネットワーク量子状態とスタビライザー状態の利用という2つのアプローチを軸に研究を進め、制限ボルツマンマシンを用いたニューラルネットワーク波動関数の実装と、クリフォード回路を用いた量子化学計算の実装の2つに取り組んだ。また、派生研究としてフェルミオン影法によるMRCI計算やTIC技術の開発などの新たな理論的アプローチを提案した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究の意義は、量子情報科学の知見を活用した新たな理論的アプローチを相対論的量子化学計算に持ち込むことを提案した点にある。ニューラルネットワーク量子状態やスタビライザー状態を用いた手法は、電子配置が複雑な系に有効であると考えられ、重元素を含む分子の複雑な電子状態計算を切り開く可能性を持っている。フェルミオン影法を用いたMRCIやTIC技術などの派生研究は、いずれも基礎的な研究であるが、前者は量子計算における測定の問題を考える好事例であり、後者は実用的な相対論的量子化学計算につながるものとなっている。一連の成果は、将来的に重元素を含む材料の精密なシミュレーションに貢献するものと期待される。

研究成果の概要（英文）：We have worked on developing electronic state theories for relativistic quantum chemistry using "quantum-inspired" algorithms that utilize insights from quantum information science. Focusing on two approaches, namely the use of neural network quantum states and stabilizer states, we worked on implementing neural network wave functions using restricted Boltzmann machines and quantum chemistry calculations using Clifford circuits. Additionally, as derivative research, we proposed new theoretical approaches such as MRCI calculations using Fermionic Shadows and the development of the TIC technique. These advancements contribute to the progress of relativistic quantum chemistry by introducing novel algorithmic techniques inspired by quantum information science, laying the foundation for more efficient and accurate simulations of complex quantum systems involving heavy elements.

研究分野：計算化学

キーワード：量子インスパイアードアルゴリズム クリフォード回路 スタビライザー 相対論的量子化学 Fermionic Shadows

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

1. 研究開始当初の背景

化学の電子状態を理解するには、特殊相対性理論も考慮した理論が必要となることは古くから知られている。通常われわれが電子状態計算で用いるシュレディンガー方程式は、光速度が十分に速いと仮定した場合の方程式であり、この仮定が崩れる場合はディラック方程式(多電子系ではディラック・クーロン方程式やディラック・クーロン・ブライト方程式)を解かなくてはならない。これは、価電子は通常光速と比べて遅いのだが、内核の電子は強いクーロン引力により、特に重元素の場合、光速から見ても無視できない速度で動くことに由来する。ディラック方程式とシュレディンガー方程式の間の違いは相対論効果と呼ばれているが、相対論効果のうち軌道の収縮や膨張といったスピンの依存しない相対論効果を取り扱う技術は既に確立しており、成熟の域に達している。つまり難しさはないといっている。実際、こうした相対論効果は擬ポテンシャルでも実用上十分に扱うことができている。しかしながら、スピン依存する相対論効果は、時として電子相関(多体効果)と絡み合い複雑な電子状態を産み出すことがわかってきている。例えば、ウランは二量体が5重結合を持つと高精度計算で予測されていたが(Nature 2005)、昨年に電子相関とスピン軌道相互作用を同時に考慮すると結合が一つ切れて4重結合になることが示されている(Nature Chem. 2019)。厄介なことにスピン対称性の消滅と複素数出現によりスピン依存の相対論効果は数値シミュレーションを格段に難しくする。このようにU2という単純な物質の化学結合の数の算定にすら苦戦しているのが量子化学理論の現状である。ここに従来の方法論の限界を打破するアルゴリズムが求められている。

さて、スピンの依存した相対論効果によりなぜ電子状態計算が難しくなるかということ、それはスピン対称性がなくなることにより微妙にエネルギーのことなる多くの電子配置が密に相互作用しあうからである。この結果、スピンの依存した相対論効果では往々にして、複数の電子配置の重ね合わせをうまく考慮する必要がでてくる。こうした複数の電子配置の重ね合わせを考慮するためのアプローチとして近年注目を集めているのが量子コンピューティングである。量子コンピュータは、例えば50量子ビットがあれば、25空間軌道でとりうるすべての電子配置の重ね合わせを取り扱うことができる。本研究申請前の2019年にはGoogleが53量子ビットを用いて特殊なタスクに対してではあるが量子コンピュータがスパコンよりも高速に動作しうることを示し大きな話題になるなど、量子コンピュータの開発が急速に進んでいた。この量子コンピュータの進歩にともない、量子情報と化学・金融・物性物理・数理最適化など様々な領域が相互作用し互いの知見の共有が促進されていた。こうした背景のもと、量子コンピューティングの知見を従来のコンピューティングに役立てようといういわゆる量子インスパイアードアルゴリズムの開発も注目を集めるようになっていた。相対論的量子化学においても、近年発展の著しい量子情報の知見を導入・援用することで、相対論的量子化学の現状を打破できるのではないかと期待のもと本研究を開始した。

2. 研究の目的

近年発展の著しい量子情報の知見を導入・援用した量子「インスパイアード」アルゴリズムにより、相対論的量子化学の現状を打破し、強いスピン軌道相互作用により誘起される重原子化合物の複雑な電子状態の効率的記述法を確立することが本研究の目的であった。そのために先行して存在した量子インスパイアードアルゴリズム(と捉えることができる)ニューラルネットワーク量子状態と、量子誤り訂正などの量子コンピューティングにおいて重要な役割を果たすスタビライザー状態の2つを導入することとした。

3. 研究の方法

本研究では、量子コンピューティングの技術の応用により相対論的量子化学への2つの新しい技術の導入を試みた。1つ目は、量子コンピュータを用いた量子化学計算で不可欠な電子系から量子ビット系への変換の技術を使うことで、ニューラルネットワークの高い表現能力を利用したニューラルネットワーク量子状態(NQS)を相対論的量子化学に向けて実装することである。もう一つは、多数の計算基底(電子配置)の重ね合わせを表現できるにも関わらず古典コンピュータでも効率よく取り扱うことができるスタビライザー状態の使用である。

では、NQS自体の簡単な説明について述べる。NQSは、ニューラルネットワーク(NN)の高い記述能に注目し、量子状態を表現しようとする試みである(Carleo&Troyer, Science 2017)。NNのなかでも制限型ボルツマンマシン(RBM)というものがよく用いられ、スピン系では複雑な量子状態を記述できることが示されている。パラメータ数も少なく、密度行列繰り込み群のような次元の制約もないスケラブルで汎用性のある波動関数モデルである。NQSも量子モンテカルロでパラメータ決定をする必要があるが、サンプリングのコストが大幅に下げられる可能性が示唆

されている(Choo et al., Nature Comm. 2020)。

スタビライザー状態は「可換なパウリからなる群の同時固有値」として定義される。スタビライザー状態からなる状態は古典コンピュータで効率よく書けることが示されているが、量子エンタングルメントを記述できることでも知られている。スタビライザー状態は量子コンピュータの誤り訂正符号にも使われる量子情報に不可欠な存在であるが、化学・物性物理側での応用・検討は本研究申請時には知る限り存在しなかった。

4. 研究成果

NQS は物性物理のスピンの系に対して提案されたが、量子コンピューティングで高度に発展している電子系からスピン系への変換技術を利用することで電子状態にも応用が可能であり、この技術を本研究では用いることとした。スピンのための NQS のソフトウェアとしては、Calreo らによる NetKet が存在し、これを用いることとした。第一原理電子状態のハミルトニアンからスピンのハミルトニアンへの変換には、Google を中心に開発されている OpenFermion を用いた。OpenFermion 自体は非相対論的ハミルトニアンにしか対応していなかったが、それを拡張して BAGEL の 4 成分相対論計算がおこなえるソフトを作って生成した(拡張) FCIDUMP フォーマットのハミルトニアンを変換するコードを作成した。BAGEL を使用した理由は、代表的な 4 成分相対論のソフトウェアである DIRAC などと比べ高速だからである。作成した変換ツールの妥当性は、変分量子固有値法 (VQE) と CASCI との一致を見て確認している。この検証の際は、Kramers 制限を導入した Unitary Coupled Cluster を実装して用いた(図 1)。基礎ツールとして必要な実装はすんだものの、NQS を用いた重原子系の計算は期間中に完了しなかったため、今後の課題となっている。

次に、スタビライザー状態の研究については、量子化学計算をスタビライザー状態だけで計算するプログラムの実装から着手した。このための手法としては期間中の 2022 年 2 月に発表された CAFQA (arXiv:2202.12924) という方法を検討した。CAFQA は、VQE を Clifford 回路で実行するアルゴリズムとなっている。Clifford 回路は、Clifford ゲートというアダマルゲート、位相ゲート、CNOT ゲートのみで分解できるゲート(回路)のことである。Clifford 回路の特徴は、エンタングルメントを持ちながらも Gottesman-Knill の定理により効率的に古典コンピュータで計算できる点にある。このため 1000 量子ビットもの系であっても、Clifford 回路は古典コンピュータでエミュレートすることが可能である。そして、この Clifford 回路だけでかける状態がスタビライザー状態となっている。問題は、可能な Clifford 回路が無数にあり、最適な Clifford 回路を見つけることが困難な点にある。特に、CAFQA のオリジナルの論文で使われていた回路は容易に粒子数保存などを破るものであったため、この問題を解決するために Gate Fabric や UCCSD といった粒子数対称性を保存するような量子回路を出発とした Clifford 回路を使った CAFQA を実装した(図 2)。

また、派生研究として、フェルミオン影法という技術により、量子コンピュータ上の波動関数から効率的に高次の RDM を構築し、MRCI のような多参照理論に基づく量子多体計算を実行する方法も提案した。フェルミオン影法は、Classical Shadows とよばれる Clifford 回路が古典計算可能な特性を活かして、量子状態の情報を効率的に復元するための手法の一種となっている。加えて、相対論的 2 成分変換と基底関数の短縮を組み合わせた Two-component transformation inclusive contraction (TIC) という手法も新たに提案し、原子・分子における数値検証により、TIC が相対論的分子軌道計算の高速化において有力なアプローチであることを明らかにした。

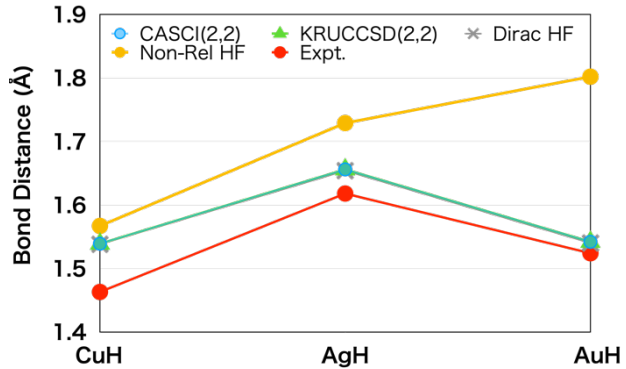


図 1. 相対論的量子化学ハミルトニアンをスピンハミルトニアンに変換するルーチンの確認としての VQE 計算 (KRUCCSD) と CASCI 法などの比較。

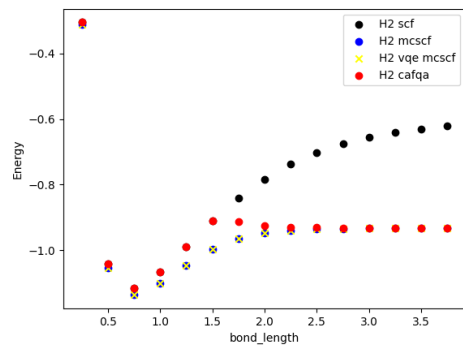


図 2. CAFQA の実装。原論文でも報告されているように単一のスタビライザー状態でも H₂ の解離が定性的には記述できていることが見て取れる。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計8件（うち査読付論文 4件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Inoue Nobuki, Watanabe Yoshihiro, Nakano Haruyuki	4. 巻 160
2. 論文標題 Response to “Comment on ‘Theoretical examination of QED Hamiltonian in relativistic molecular orbital theory’” [J. Chem. Phys. 160, 187101 (2024)]	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 The Journal of Chemical Physics	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1063/5.0189066	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Luca Erhart, Yuichiro Yoshida, Viktor Khinevich, and Wataru Mizukami	4. 巻 6
2. 論文標題 Coupled cluster method tailored with quantum computing	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 Phys. Rev. Research	6. 最初と最後の頁 23230
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevResearch.6.023230	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

1. 著者名 Tsuzuki Ippei, Inoue Nobuki, Watanabe Yoshihiro, Nakano Haruyuki	4. 巻 840
2. 論文標題 Two-component transformation inclusive contraction scheme in the relativistic molecular orbital theory	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 Chemical Physics Letters	6. 最初と最後の頁 141146 ~ 141146
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.cplett.2024.141146	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Yoshida Yuichiro, Mizukami Wataru, Yoshida Norio	4. 巻 20
2. 論文標題 Solvent Distribution Effects on Quantum Chemical Calculations with Quantum Computers	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 Journal of Chemical Theory and Computation	6. 最初と最後の頁 1962 ~ 1971
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1021/acs.jctc.3c01189	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Takemori Nayuta, Teranishi Yusuke, Mizukami Wataru, Yoshioka Nobuyuki	4. 巻 2312.17452
2. 論文標題 Balancing error budget for fermionic k-RDM estimation	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 arXiv	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.48550/arXiv.2312.17452	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Shiota Tomoya, Ishihara Kenji, Mizukami Wataru	4. 巻 2402.18433
2. 論文標題 Universal neural network potentials as descriptors: Towards scalable chemical property prediction using quantum and classical computers	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 arXiv	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.48550/arXiv.2402.18433	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Nakagawa Yuya O., Kamoshita Masahiko, Mizukami Wataru, Sudo Shotaro, Ohnishi Yu-ya	4. 巻 2311.01105
2. 論文標題 ADAPT-QSCI: Adaptive Construction of Input State for Quantum-Selected Configuration Interaction	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 arXiv	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.48550/arXiv.2311.01105	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Erhart Luca, Yoshida Yuichiro, Khinevich Viktor, Mizukami Wataru	4. 巻 2312.11012
2. 論文標題 Coupled cluster method tailored with quantum computing	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 arXiv	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.48550/arXiv.2312.11012	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計1件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 竹森 那由多, 吉岡 信行, 水上 渉
2. 発表標題 フェルミオン影像法によるk-RDM推定を用いた量子部分空間展開法
3. 学会等名 第47回量子情報技術研究会 (QIT47)
4. 発表年 2022年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
---------	---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------