

# 古典コンピュータによる量子化学計算を利用した 高精度 VQE の計算加速

森田幹雄<sup>1,a)</sup> 高橋憲彦<sup>1</sup> 大島弘敬<sup>1</sup> 佐藤信太郎<sup>1</sup>

**概要:** VQE(Variational Quantum Eigensolver)は NISQ と呼ばれるエラー訂正の無い中規模の量子デバイスで実行可能なアルゴリズムの候補として期待されている。VQE の主要な構成要素である波動関数の表現部は ansatz と呼ばれ、様々な手法が提案されている。本稿では高精度な計算が可能な UCCSD(Unitary Coupled Cluster Singles and Doubles)をベースにゲートが削減された ansatz に古典的な量子化学計算 CISD(Configuration Interaction Singles and Doubles)の計算結果をもとにオペレータ・初期値を決定し、それによってゲート数のさらなる削減と最適化繰り返し回数を下げる手法を提案する。また、最大 20qubit までの VQE シミュレーションによりその評価を行い、設定閾値  $10^{-2}$  においてゲート数、最適化繰り返し回数について約 9 割の削減を確認した。

## 1. はじめに

量子コンピュータに関する研究はハードウェア・ソフトウェア双方の面からますます盛んに進められており、材料・化学計算や暗号などの特定分野では古典コンピュータより圧倒的に優れた性能をもつことを期待されている。中でも NISQ(Noisy Intermediate -Scale Quantum device)と呼ばれる中規模のエラー訂正機能のない量子デバイスは比較的早期に実現可能であると予想されており、NISQ 上で実行するアルゴリズムの研究が日々進展している。NISQ アルゴリズムの特徴として、そのハード特性のためにアルゴリズムに厳しい要求仕様が課せられる。主なものとして、量子ビット数が数百から多くても数千であること、またノイズの影響を避けるため、ゲート数が少量であることなどが必要とされる。

NISQ の実用化に向けて、期待を受けている候補の一つに VQE(Variational Quantum Eigensolver)と呼ばれるアルゴリズムがあり、これは材料・化学分野の計算を対象とするものである。VQE は量子コンピュータと、PC・サーバ・スパコンのような古典コンピュータを交互または同時に使用する量子・古典ハイブリッドアルゴリズムであり、量子デバイスによって求めた計算結果を古典計算部でパラメータの最適化などを行うことにより成り立つものである。

VQE の計算上では、量子デバイス上で初期波動関数 $|\phi_0\rangle$ が準備される。その後、ansatz と呼ばれる量子回路によりユニタリなゲート操作が与えられ、目的とする波動関数 $|\phi(\theta)\rangle$ を得る。ここで  $\theta$  は最適化ベクトルパラメータである。ユニタリな操作を  $U(\theta)$  と置いたとき、 $|\phi(\theta)\rangle$  を(1)式のように表す。

$$|\psi(\theta)\rangle = U(\theta)|\psi_0\rangle \quad (1)$$

対象とする問題から定義されたハミルトニアン  $H$  に対応する基底により、作成した波動関数 $|\phi(\theta)\rangle$ を測定すること

で以下の様な計算が実行でき、式(2)、式(3)のように問題分子のエネルギーを求めることが可能となる。

$$E(\theta) = \langle \psi(\theta) | H | \psi(\theta) \rangle \quad (2)$$

$$E_0 = \min \langle \psi(\theta) | H | \psi(\theta) \rangle \quad (3)$$

$E_0$  は  $E$  が最小になるようにパラメータ  $\theta$  を最適化したものであり、これを基底エネルギーとする。

VQE の波動関数 $|\phi(\theta)\rangle$ を実現するためのユニタリな操作のことを ansatz と呼び、VQE の量子回路の中でも必要なゲート数を考えるうえで大きな割合を占める。近年の先行研究により提案されている ansatz は大きく 2 種に分類[1]され、1 つは PHA (Physical Heuristic Ansatz) と呼ばれ効率的にハードウェア上に実装できるように考慮されたものである。PHA の一部は Hardware Efficient ansatz や Symmetry Preserving ansatz と呼ばれ、パラメータとして与えられる Y 軸回転ゲートのような回転ゲートの回転角のみ異なる、同一のゲートエレメントを定義した回路深さ(depth)の数だけ繰り返すという特徴を持つ。このゲートの配置法は比較的シンプルであり異なる問題に対する普遍性をもつなどのメリットを持つが、一方で精度を足すためには多数のパラメータが必要になり、最適化が難しいというデメリットも知られている。

もう 1 つは PMA(Physically Motivated Ansatz)であり、PMA は化学的に分子軌道に注目し、基底エネルギーを得るためにはどういった波動関数が取られやすいかを考慮したうえでゲート操作を行うものである。そのためパラメータが不必要に増えることを避けることができるが、欠点としてはゲート数が多くなる、ハードウェア実装が比較的難化することなどがある。

このように VQE の重要な構成要素である ansatz はそれぞれ様々なメリット・デメリットを持つ。本稿では PMA に分類される UCCSD (Unitary Coupled Cluster Singles and Doubles) ansatz からゲートを削減させ、古典計算を活用し計算を高速化する手法を紹介する。

<sup>1</sup> (株)富士通  
FUJITSU LTD.  
a) morita.mikio@fujitsu.com

## 2. 理論

### 2-1 UCCSD の表現

UCCSD ansatz は古典コンピュータによる計算手法 CCSD を量子アルゴリズムとして置き換えたものであり、実現するための量子操作は以下の式(4),(5),(6)で表す。 $\theta$  は最適化を行うためのパラメータであり、 $a^\dagger, a$  は生成演算子、消滅演算子である。

$$U(\theta) = \exp(T(\theta) - T(\theta)^\dagger) \quad (4)$$

$$T = T_1 + T_2 \quad (5)$$

$$T_1 = \sum_{\substack{p>vir \\ q>occ}} \theta_{pq} a_p^\dagger a_q \quad (6)$$

$$T_2 = \sum_{\substack{p>q>vir \\ r>s>occ}} \theta_{pqrs} a_p^\dagger a_q^\dagger a_r a_s \quad (7)$$

U を量子回路に実装する形にするためには、Trotter 分解が必要である。Trotter 数が大きいほどこの部分から発生するエラーは小さくなると考えられるが、それに応じてゲート数は増大する。VQE では一般に Trotter step は 1 で良いと考えられている。[2]

式(6),(7)で表現されているように、UCCSD では 1 電子励起オペレータを  $O(n^2)$ 個、2 電子励起オペレータを  $O(n^4)$ 個作用させることが求められる。生成・消滅演算子の式から量子ビットへのマッピングを行う形式を Jordan-Wigner 変換[3]とした場合、必要な 2 量子ビットゲート(この場合は CNOT)の数は 1 電子励起オペレータ 1 つあたり (8)式、2 電子励起オペレータ 1 つあたり (9)式で与えられる。[4]

$$4(p-q) \quad (p>q) \quad (8)$$

$$16(p-q+r-s) \quad (p>q, r>s) \quad (9)$$

上記式から、UCCSD ではオペレータあたりに必要な 2 量子ビットゲートの数は  $O(n)$ となり、オペレータ全体の数が  $O(n^4)$ であることを考慮すると、全体として  $O(n^5)$ の 2 量子ビットゲートの実装が必須になる。これはゲート操作に対し訂正できないエラーが発生し、またコヒーレント時間も限られる NISQ では大変厳しい条件だといえる。

UCCSD のゲート数を削減するため、オペレータを異なるゲートによって表現する手法が考案されている。[5] ここでは以下のように、Givens rotation を実現するゲートエレメントと、2 対の量子ビットに対して同時に Givens rotation のような振る舞いをするゲートエレメントを実装することを提案する。このような役割をもつゲートエレメントは既に QNPPX として紹介されている。[6]本稿では省略し PX と呼ぶことにする。Givens rotation の実装に必要なゲートを図 1 に、同様に PX について図 2 に示す。

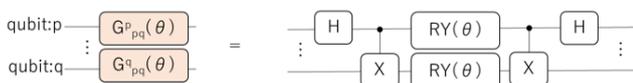


図 1 Givens rotation の量子回路

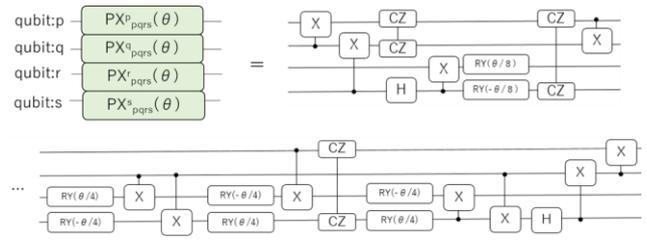


図 2 PX(QNPPX)の量子回路

上記実装方法を実施するとき、Givens rotation ではアダマールゲート、CNOT ゲート、回転角がパラメタライズされた Y 軸回転ゲートを使用する。同様に、PX では、CNOT ゲート、CZ ゲート、X ゲート、回転角がパラメタライズされた Y 軸回転ゲートを使用する。

図 1,2 に示される量子回路を作用させることは、量子回路上で図 3,4 のような行列操作を行うことに相当する。また数式的表現も図下方に併記する。

生成する計算基底

$$\begin{matrix} \wedge & \wedge & \wedge & \wedge \\ \vdots & \vdots & \vdots & \vdots \\ 0 & 1 & 0 & 1 \\ \vdots & \vdots & \vdots & \vdots \\ 0 & 0 & 1 & 0 \\ \vdots & \vdots & \vdots & \vdots \end{matrix}$$

作用する計算基底

$$\begin{matrix} | \dots 0 \dots 0 \dots \rangle \\ | \dots 0 \dots 1 \dots \rangle \\ | \dots 1 \dots 0 \dots \rangle \\ | \dots 1 \dots 1 \dots \rangle \end{matrix}$$

q p

$$G_{pq}(\theta) = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & \cos\theta & \sin\theta & 0 \\ 0 & -\sin\theta & \cos\theta & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 \end{pmatrix}$$

$$G_{pq}(\theta) = a_q a_p a_q^\dagger a_p^\dagger + a_q^\dagger a_p^\dagger a_q a_p + \cos\theta(a_q^\dagger a_p + a_q a_p^\dagger) + \sin\theta(a_q^\dagger a_p - a_q a_p^\dagger) = I_{pq} + (\cos\theta - 1)(a_q^\dagger a_p + a_q a_p^\dagger) + \sin\theta(a_q^\dagger a_p - a_q a_p^\dagger)$$

図 3 Givens rotation の行列的表現・数式的表現

生成する計算基底

$$\begin{matrix} \wedge & \wedge \\ \vdots & \vdots \\ \vdots & \vdots \\ 1 & 0 \\ \vdots & \vdots \\ 0 & 1 \\ \vdots & \vdots \\ 0 & 0 \\ \vdots & \vdots \\ 0 & 0 \\ \vdots & \vdots \\ 0 & 0 \\ \vdots & \vdots \\ 0 & 1 \end{matrix}$$

作用する計算基底

$$\begin{matrix} | \dots 0 \dots 0 \dots 1 \dots 1 \dots \rangle \\ | \dots 1 \dots 1 \dots 0 \dots 0 \dots \rangle \end{matrix}$$

r s p q

$$PX_{pqrs}(\theta) = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 \\ \ddots & \ddots & \ddots & \ddots \\ 0 & 0 & \cos\theta & \sin\theta \\ \vdots & \vdots & \vdots & \vdots \\ 0 & 0 & -\sin\theta & \cos\theta \\ \ddots & \ddots & \ddots & \ddots \\ 0 & \ddots & 0 & 0 \\ \ddots & \ddots & \ddots & \ddots \\ 0 & \ddots & 0 & 1 \end{pmatrix}$$

$$PX_{pqrs}(\theta) = I_{pqrs} + (\cos\theta - 1)(a_s^\dagger a_p^\dagger a_q a_r + a_s^\dagger a_r^\dagger a_q a_p) + \sin\theta(a_s^\dagger a_r^\dagger a_q a_p - a_s^\dagger a_p^\dagger a_q a_r)$$

図 4 PX の行列的表現・数式的表現

この実装方法により必要なゲート数は、1 電子励起オペレ

ータ1つあたり1量子ビットゲートが4個,2量子ビットゲートが2個であり,2電子励起オペレータ1つあたりに10個の1量子ビットゲート,14個の2量子ビットゲートが必要になる。

これは UCCSD で必要なゲート数と比べて明確に少なく済み,なおかつ量子ビット数  $n$  に対してその2量子ビットゲート数は  $O(1)$  であるため,  $O(n)$  である UCCSD と比べて量子ビット数が大きな問題に対してより有利に働くことが分かる。

ここまでで紹介した,初期波動関数  $|\phi_0\rangle$  に Givens rotation, PX を作用させる ansatz は,式(10)の様に表すことができる。

$$|\psi(\theta)\rangle = \prod_{\substack{p>q>vir \\ r>s>occ}}^{O(n^4)} PX_{pqrs}(\theta_{pqrs}) \prod_{\substack{p>q>vir \\ q>occ}}^{O(n^2)} G_{pq}(\theta_{pq}) |\psi_0\rangle \quad (10)$$

また,上記以外のゲートエレメントを使用する方法についても提案されている.[6]

## 2-2 古典コンピュータによる量子化学計算の利用

この章では,2-1で紹介した ansatz に対し,古典計算を利用することでオペレータの削減・初期値の設定を行い,ゲート数をさらに削減するとともに,最適化すべきパラメータのメリットを享受することで最適化回数についても大きく改善させる手法を紹介する.Naiveな UCCSD ansatz に対して2次の Møller–Plesset 摂動法(MP2)を使用してオペレータの削減を行う手法は先行研究で提案されている.[5]

本手法では,図5のように VQE の従来のプロセス[7]の事前計算として CISD (Configuration Interaction Singles and Doubles)を用いる.CISD では,基底エネルギーを達成するときの波動関数  $|\phi\rangle$  を形成するそれぞれの分子軌道に対する係数を求めることが可能である.本稿ではこの係数を CI 係数と呼ぶ。

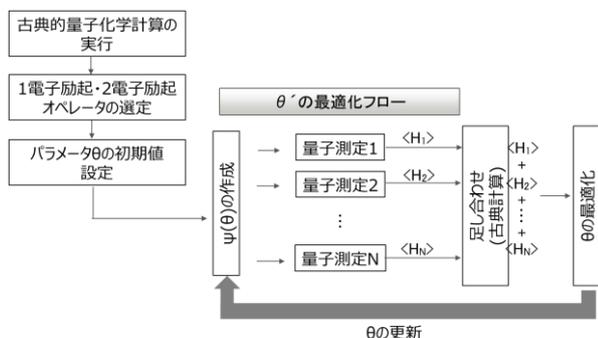


図5 事前計算含む VQE フロー

さて,図5に示すように CISD の計算を VQE の事前計算として用い,それにより得られた CI 係数と1度目の VQE 計算で作成する波動関数  $|\psi(\theta_0)\rangle$  を作成するためのパラメータ初期値を対応させる。

また,ハートリーフォック状態  $|\phi_0\rangle$  に作用させるオペレータ群として,得られた CI 係数の絶対値が設定した値以下の分子軌道に対応したオペレータを実装しない,という方針を立てることにより,実装するオペレータ数を削減することができる.オペレータの削減はゲート数の削減,パラメータの削減に直結する.オペレータとして実装要否を決める指標として閾値(Threshold)を設定する。

CISD を古典コンピュータで実行するにあたり,基底関数の数を  $m$  としたときその計算コストは  $O(m^6)$  であることが知られている.[8]比較して VQE の計算コストは ansatz やオプザバブルのグルーピング形式,最適化手法によって大きく変わるが,著者の先行研究により Jastrow Factor ansatz[9]と Commuting Pauli grouping[10],パウエル法による最適化を使用した際の計算コストは  $O(n^{7.7})$  がシミュレーションにより得られており[11],今後も  $O(n^6)$  を超えたものとなる可能性は十分にある.そういった状況下では CISD を使った事前計算は効果的である。

## 3. シミュレーション

この章ではシミュレーションにより前章で紹介した方式の VQE を実施し,その結果を示す.計算問題の量子ビット数は最大 20 とした。

### 3-1 ゲート数

ここでは,本手法による VQE と Naiveな UCCSD VQE についてゲート数の比較を行う.計算対象とその量子ビット数としては,水素化リチウム分子 12 量子ビット,水素分子 14 量子ビット,窒素分子 20 量子ビットを選択した.原子の位置情報として,水素化リチウム分子では結合長が 1.6Å,水素分子は O-H 結合長が 1.2Å,H-O-H の成す角度は 104.5°,窒素分子では結合長が 1.1Å である.これらは分子が平衡状態をとる位置関係に近くなるよう値を選択した。

CI 係数の閾値を  $10^{-20}$  から  $10^{-2}$  まで変動させたときの必要なゲート数を図 6,7,8,表 1,2 に示す.UCCSD,本手法共に量子マッピング法としては Jordan-Wigner 法を使用し,ここまでの計算式から導出を行った。

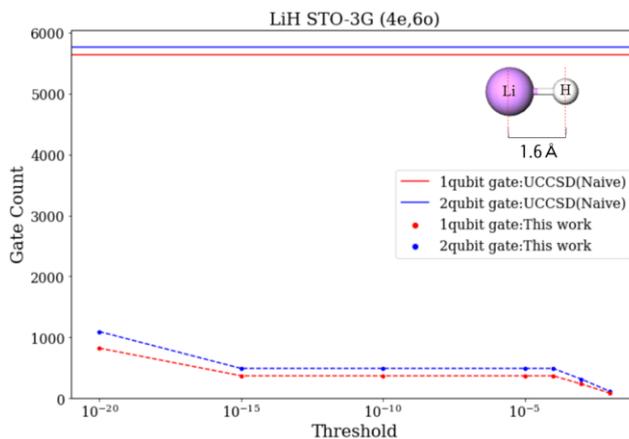


図6 LiH 12量子ビットゲート数

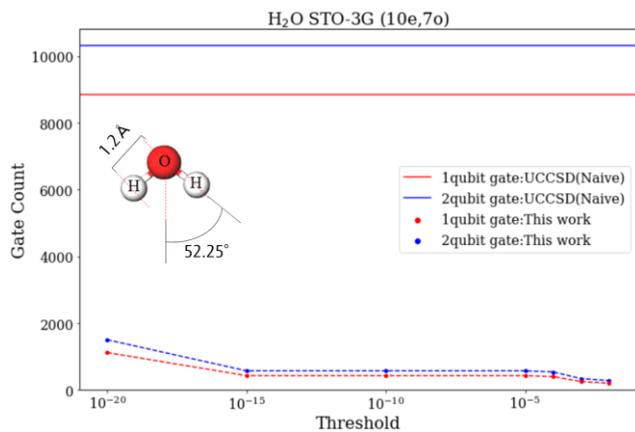


図 7 H<sub>2</sub>O 14 量子ビット ゲート数

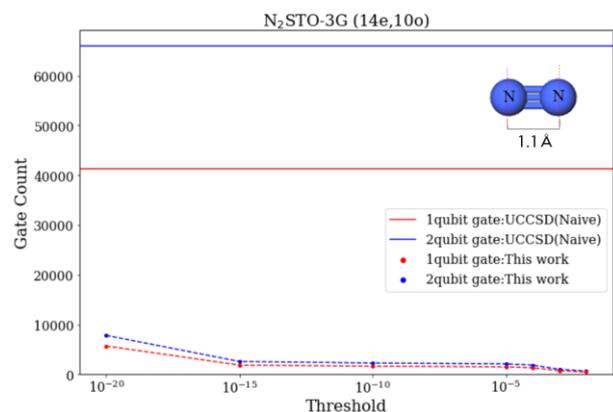


図 8 N<sub>2</sub> 20 量子ビット ゲート数

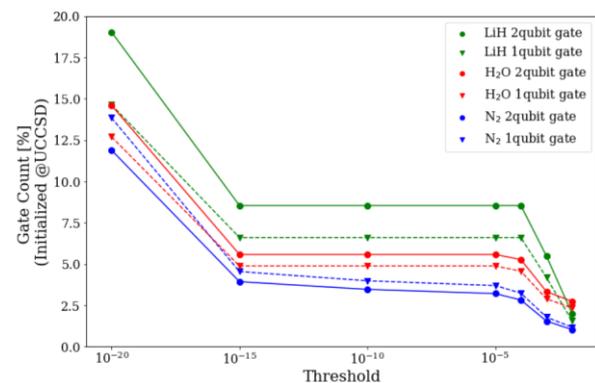


図 9 UCCSD と比較した場合のゲート数割合

表 1 実装に必要な 1 量子ビットゲート数

#1 qubit gate	This work					Naive UCCSD (JW)
	Th=1E-2	Th=1E-5	Th=1E-10	Th=1E-15	Th=1E-20	
LiH /12 qubit	88	372	372	372	824	5632
H <sub>2</sub> O /14 qubit	284	576	576	576	1506	8840
N <sub>2</sub> /20 qubit	490	1526	1646	1876	5708	41244

表 2 実装に必要な 2 量子ビットゲート数

#2 qubit gate	This work					Naive UCCSD (JW)
	Th=1E-2	Th=1E-5	Th=1E-10	Th=1E-15	Th=1E-20	
LiH /12 qubit	116	492	492	492	1096	5760
H <sub>2</sub> O /14 qubit	208	432	432	432	1122	10320
N <sub>2</sub> /20 qubit	686	2122	2290	2597	7840	65968

水素化リチウムの計算(図 6)において、閾値  $10^{-20}$  の設定では UCCSD と比較し 85.4% の 1 量子ビットゲート, 81.0% の 2 量子ビットゲートが削減された。閾値を  $10^{-2}$  まで大きくした場合, 98.4% の 1 量子ビットゲート, 98.0% の 2 量子ビット

ゲートが削減された。同様に水素分子(図 7)の計算において、閾値  $10^{-20}$  の設定では UCCSD と比較し 87.3% の 1 量子ビットゲート, 85.4% の 2 量子ビットゲートが削減された。閾値を  $10^{-2}$  まで大きくした場合, 97.6% の 1 量子ビットゲート, 97.2% の 2 量子ビットゲートの削減を達成した。窒素分子の計算(図 8)において、閾値  $10^{-20}$  の設定では UCCSD と比較し 86.2% の 1 量子ビットゲート, 88.1% の 2 量子ビットゲートが削減された。閾値を  $10^{-2}$  まで大きくした場合, 98.8% の 1 量子ビットゲート, 99.0% の 2 量子ビットゲートの削減を達成した。詳細な値については表 1, 表 2 に示す。

これら 3 種の分子に対する計算(図 9)について、UCCSD の実装に必要なゲート数に対する、本手法によって必要なゲート数の割合を示したものが図 9 である。対象分子の化学的な特性に影響を受けるが、傾向としては量子ビット数が大きいほど削減割合も大きい。これは単位オペレータに対するゲート数が UCCSD では  $O(n)$  なのに対し、本手法では  $O(1)$  であることに由来すると考えられる。

### 3-2 計算精度

この章では本手法において、閾値を変えたときの計算精度についてシミュレーション結果を示す。対象分子は前章と同様の水素化リチウム分子 12 量子ビット, 水素分子 14 量子ビット, 窒素分子 20 量子ビットである。精度の比較対象として、古典コンピュータで行う量子化学計算, Hartree-Fock 法 (HF), MP2, CCSD, CISD, 固有値問題の厳密解 (Exact) を用意した。

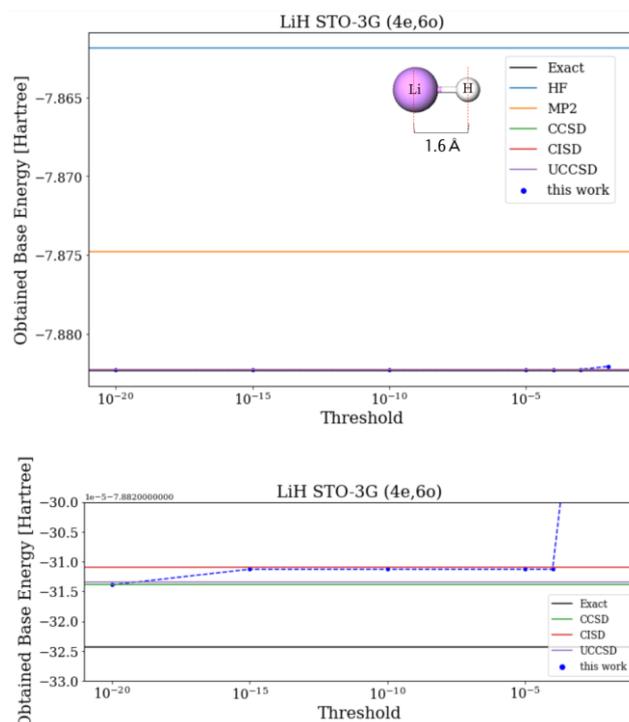


図 10 LiH 12 量子ビット 精度比較

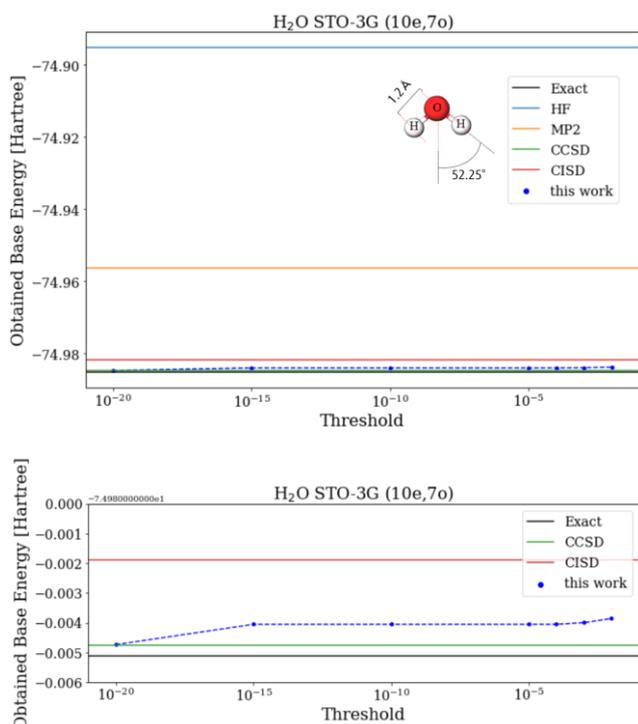


図 11 H<sub>2</sub>O 14 量子ビット 精度比較

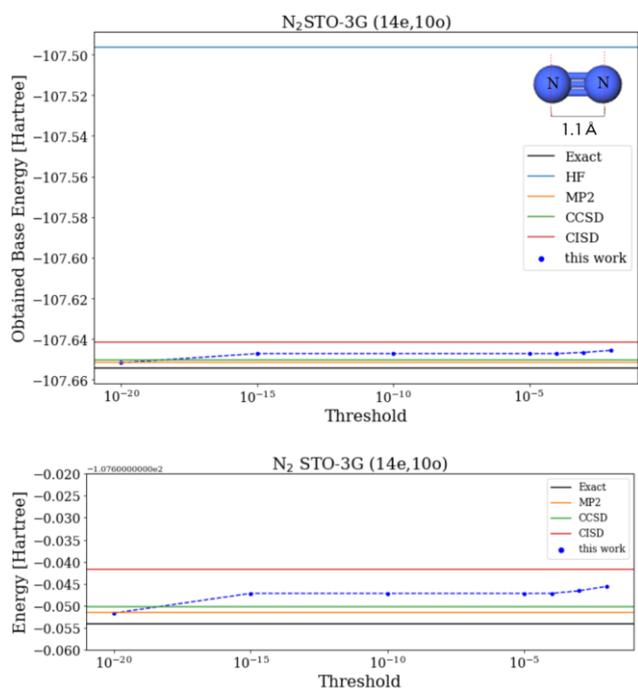


図 12 N<sub>2</sub> 20 量子ビット 精度比較

水素化リチウム(図 10)について,最も閾値を小さく取った  $10^{-20}$  では,厳密解を除く全ての参照値よりも高い精度が得られた.閾値  $10^{-15}$  から  $10^{-4}$  の範囲では CCSD,MP2 と比べると精度は悪化したが,CISD よりも良い精度が得られた.水素分子(図 11)について, $10^{-20}$  の閾値では他の量子化学計算手法と比較して最も良い結果が得られた.閾値が  $10^{-15}$  より大きい場合には,CISD よりも良い結果が得られた.窒素分子について,閾値  $10^{-20}$  では他の量子化学計算手法と比較して最

も良い結果が得られた.閾値が  $10^{-15}$  より大きい場合には,精度は劣化するが,CISD よりも良い結果が得られた.窒素分子(図 12)について, $10^{-20}$  の閾値では他の量子化学計算手法と比較して最も良い結果が得られた.閾値  $10^{-15}$  より大きい場合には,CISD よりも良い結果が得られた.窒素分子について,閾値  $10^{-20}$  では他の量子化学計算手法と比較して最も良い結果が得られた.閾値  $10^{-15}$  より大きい場合には,精度は劣化するが,CISD よりも良い結果が得られた.

それぞれの精度に比べると,閾値に対しての精度のふるまいは異なるところがある.共通点として, $10^{-20}$  の閾値では MP2,CISD,CCSD よりも優れた精度が得られ,閾値を大きくするほど精度は劣化していくが,少なくとも  $10^{-4}$  までは CISD よりも良い結果が得られた.

### 3-3 最適化

本章では最適化の過程の比較を行う.計算の対象とするのは前章と同じ水素化リチウム分子 12 量子ビット,水素分子 14 量子ビット,窒素分子 20 量子ビットに加え,水素化リチウム分子 8 量子ビットにおいて Jastrow Factor ansatz との比較を行った.オプティマイザとしては SciPy にライブラリとして用意されている minimize 関数を使用し,オプティマイザとしては SLSQP を選択した.

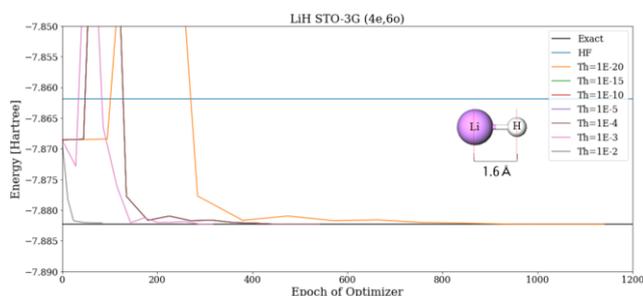


図 13 LiH 12 量子ビット 最適化

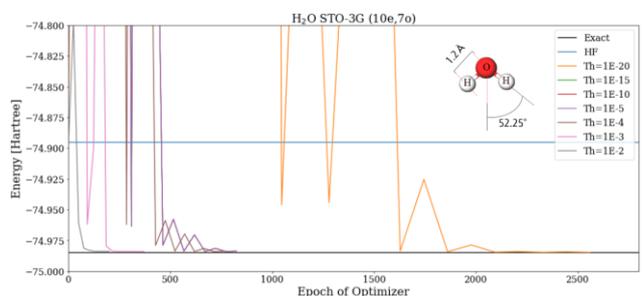


図 14 H<sub>2</sub>O 14 量子ビット 最適化

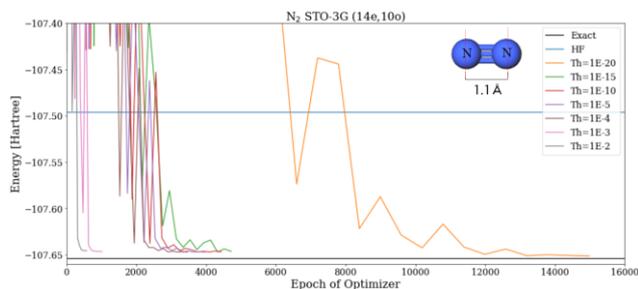


図 15 N<sub>2</sub> 20 量子ビット 最適化

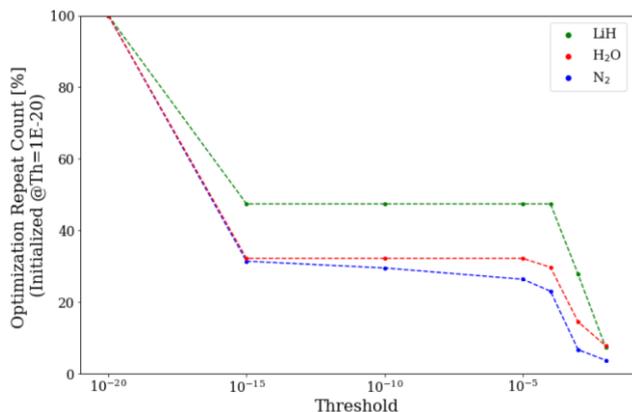


図 16 最適化繰り返し数 閾値 10<sup>-20</sup> で規格化

表 3 最適化繰り返し数

optimization repeat count	This work				
	Th=1E-2	Th=1E-5	Th=1E-10	Th=1E-15	Th=1E-20
LiH /12 qubit	84	541	541	541	1140
H <sub>2</sub> O /14 qubit	201	825	825	825	2559
N <sub>2</sub> /20 qubit	574	3961	4433	4716	14987

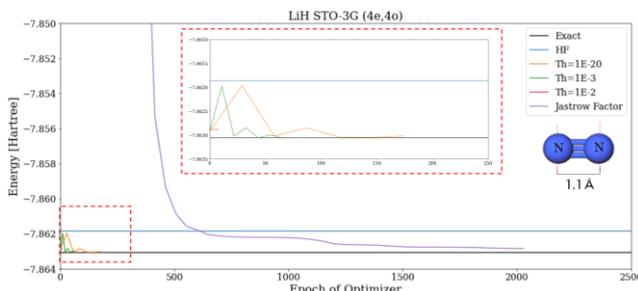


図 17 LiH 8 量子ビット Jastrow ansatz との比較

最適化のための繰り返し回数を図の横軸にとっている。水素化リチウム分子(図 13)では、閾値 10<sup>-20</sup>では 1140 回の量子回路実行繰り返しが必要だが、閾値 10<sup>-2</sup>では 84 回まで削減された。水分子(図 14)では、閾値 10<sup>-20</sup>では 2559 回の繰り返しが必要だが、閾値 10<sup>-2</sup>では 201 回まで削減された。窒素分子(図 15)では、閾値 10<sup>-20</sup>では 14987 回の繰り返しが必要だが、閾値 10<sup>-2</sup>では 574 回まで削減された。図 16 は 3 つのシミュレーション結果について、閾値 10<sup>-20</sup>での結果で規格化したものである。閾値 10<sup>-20</sup>から 10<sup>-15</sup>に向けて繰り返し回数は約半数程度に大きく改善し、10<sup>-15</sup>から 10<sup>-5</sup>までは変わらないか、わずかな改善を見ることが出来る。10<sup>-5</sup>から 10<sup>-2</sup>にかけて再び大きな繰り返し回数の減少を見せる。水素化リチウム、水分子、窒素分子の順に、閾値 10<sup>-2</sup>では、閾値 10<sup>-20</sup>に対して

7.7%,7.9%,3.8%まで減少した。また、全体の傾向としては、削減が大きかった順に窒素分子、水分子、水素化リチウムであり、量子ビット数が大きいほど高速化の割合が大きいと推測できる。詳細な値については表 3 に示す。

図 17 は Jastrow Factor ansatz との比較を表している。Jastrow Factor ansatz はデバイス上の量子ビットが full connection の構造をとる場合、必要なゲート数は O(n<sup>2</sup>)、パラメータ数も同じく O(n<sup>2</sup>)であるが、原理上パラメータと励起オペレータを 1 対 1 で対応させることが不可能なため、本手法と比べると差分が見られる。Jastrow Factor ansatz の結果と最も精度が近かった閾値は 10<sup>-2</sup>であり、このとき Jastrow Factor ansatz の必要繰り返し数が 2028 回なのに対し、本手法での必要数は 8 回であった。これは VQE 計算部の最適化の領域のみに着目した場合、実に約 250 倍の高速化ということができる。

### 3-4 ばらつき

本章では、本手法において初期値を設定することの重要性についてシミュレーション結果を示す。計算対象としては、窒素分子 12 量子ビット、水素化リチウム 12 量子ビットである。相関エネルギーが大きいものの例として窒素分子、小さいものの例として水素化リチウムを使用した。またそれぞれの分子について 2 種類の結合長でシミュレーションを実施した。窒素分子の 1.1 Å、水素化リチウムの 1.6 Å は基底エネルギーが得られる平衡状態の結合長に近い。同様に 2.3 Å、2.4 Å は原子同士が十分分離した状態として選択した。

図 18 ではプロット(左軸)でシミュレーションにより得られたエネルギーの厳密解からのずれ(ΔE)を表し、バー(右軸)により要した最適化回数を表している。青が本手法によるパラメータ初期化を行ったものであり、赤が初期値をそれぞれの独立したパラメータに対し 0 から 1 の間でランダムに取得したものである。エラーバーは 10 回行ったシミュレーションでの統計誤差 ±1σ を表している。

この結果から分かることは複数あり、1 つに結合長を長く取った位置関係でのシミュレーションにおいて、最適化に必要な繰り返し数は多くなるということである。窒素分子の計算においてその比は大きく、本手法による初期化ありでは約 13 倍、初期化なしのランダムスタートでは約 8 倍となる。2 つ目に、初期化を行わない場合計算により得られるエネルギー値、最適化繰り返し回数双方に大きなばらつきが生じるということである。最適化繰り返し回数に関しては 1σ のばらつきは約 ±50% に至る。3 つ目に、得られる基底エネルギーの精度のばらつきは結合長に対して相関が無いように見える。これは分子と原子種とその結合長に影響を受ける化学的特性、つまるところハミルトニアン、が大きく作用していると考えられる。

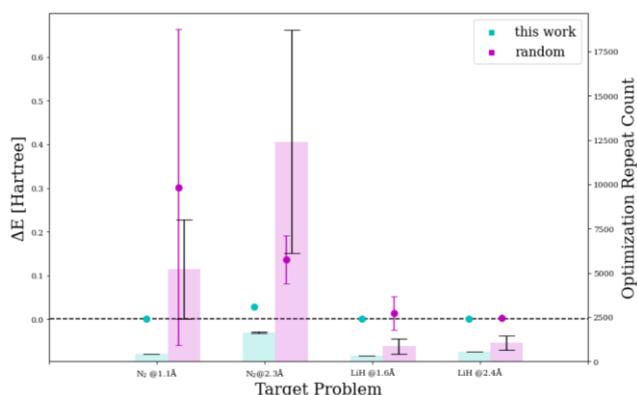


図 18 シミュレーション毎のばらつき

### 3-5 古典コンピュータによる事前計算

本章では、VQEにより PES(Potential Energy Surface)を作成するにあたって、VQE の事前計算としての古典計算をどのように組み込むのが適切であるかについて、シミュレーションにより検証を行った。対象分子は水素化リチウム 12 量子ビットとした結合長は 0.7Å から 2.3Å までを 0.4Å 刻みとした。シミュレーションの手法として、手法は大きく 3 つに分割した。手法 1 では、全ての原子間距離でのシミュレーションにおいて CISD を事前計算として実施し、実装するオペレータの選別、パラメータ初期化を行う。手法 2 では、原子同士が十分接近した結合長 0.7Å にて事前計算を実施し、以降原子間距離を 0.4Å ずつ大きくしていく。その際、オペレータは 0.7Å で選別したものを実装し、以降の結合長でのシミュレーションでは、初期値は 0.4Å 短い計算結果で  $E_0$  が得られたときのパラメータを使用することとする。手法 3 は、原子が十分離れた結合長 2.3Å においてプレ計算を実施し、初期値は手法 2 とは逆に 0.4Å 長い計算結果で  $E_0$  が得られたときのパラメータを使用する。それ以外は手法 2 と同様である。

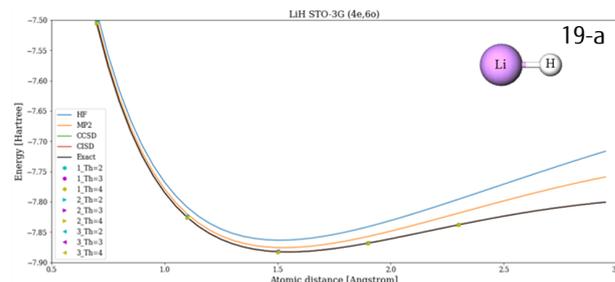
得られた結果を図 19 に示す。図 19 最上段は取得したシミュレーション結果をプロットで、古典コンピュータによる計算で得られた結果を曲線で表している。水素化リチウムのシミュレーションでは全体として古典コンピュータで計算を行った量子化学計算の結果と良い一致を示した。

二段目は事前計算、シミュレーション順について記載した表である。アスタリスクがついたものは事前計算を実施したことを表している。手法 1 はそれぞれのポイントにおいて事前計算を行い、初期値を得るためシミュレーション順に依らない。そのため any と表記した。

それ以下は得られたシミュレーション結果の精度と最適化繰返し回数を表している。前章と同様、プロットにて精度(厳密解からのずれ)を、バーにて最適化回数を表している。また上から順に閾値を  $10^{-2}$ ,  $10^{-3}$ ,  $10^{-4}$  に変えたものである。

精度に関しては、手法 1 と手法 2 がほぼ同程度で、結合長に依っては手法 2 の方が多少良い精度が得られた。手法 3 では事前計算した位置関係から離れるほどにその精度が悪

化していくのが見てとれる。最適化繰返し回数に関して、手法 3 では結合長が短い位置で他の手法と比べ少なくなっている。これは、結合長が長いポイントで選択したオペレータが、結合長の短いポイントでは計算影響を与えない(エネルギーを HF エネルギーより下げる効果を持たない)ためであろう。



Method	Calculation Order (*:including pre-calc.)					19-b
1	any*	any*	any*	any*	any*	any*
2	1*	2	3	4	5	
3	5	4	3	2	1*	

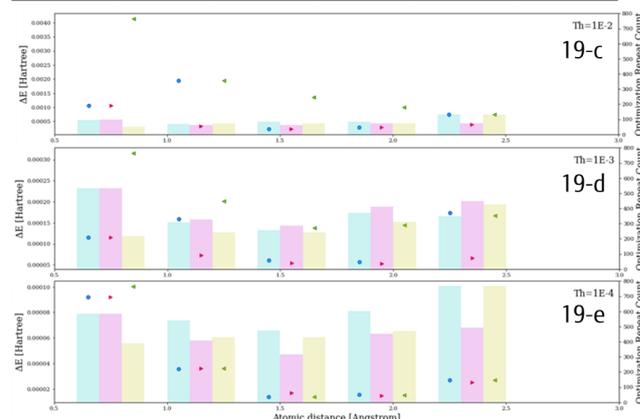


図 19 プレ計算ポイントとシミュレーション結果

19-a:PES, 19-b:計算順序, 19-c:閾値  $10^{-2}$  での精度(プロット左)と最適化繰返し数(右), 19-d:閾値  $10^{-3}$  での精度と最適化繰返し数, 19-e:閾値  $10^{-4}$  での精度と最適化繰返し数

## 4. 結論・議論

このように、古典コンピュータによる事前計算を行い、かつ特定のゲートエレメントによって励起オペレータを実装することにより高速に VQE を実行する手法を提案した。また、提案した VQE の手法において最大 20 量子ビットまでのシミュレーションを実施し、以下の特性を確認した。

1. Naïve な UCCSD ansatz による VQE と比較すると、本手法では閾値設定を厳しく取ることによって 90% から 99% の 1 量子ゲート、2 量子ゲートを削減することを可能にした。さらにこの削減割合は、取り扱う量子ビット数が大きいほど削減効果も大きくなる傾向をもつ。

2. 本手法の閾値を  $10^{-20}$  程度に十分小さくとした場合において、古典コンピュータで行う量子化学計算、Hartree-Fock 法、MP2、CISD、CCSD を上回る精度が得られた。

3. 最適化に必要な繰返し回数について、閾値を設定す

ることにより必要な最適化のための繰り返し数を大きく減少させることを可能にした。閾値の設定値として最も小さな  $10^{-20}$  と比較して、 $10^{-2}$  の設定値では水素化リチウムで約 93%、水分子で約 92%、窒素分子では約 96% の繰り返し回数の削減を達成した。また異なる ansatz との比較として、Jastrow Factor ansatz と比較し 97% の削減を可能にした。

4. 初期値を与えることにより、得られる精度、最適化繰り返し回数を大きく改善できるとともに、シミュレーションのばらつきを抑えることを可能にした。

5. 全ての VQE 測定について事前計算を行うことで精度・最適化繰り返し回数について上記 1-4 の特性を満足に得ることができる。次点としては、結合長が短いポイントでプレ計算を行うことでも事前計算に使用する計算リソースを抑えながら、精度・最適化繰り返し回数の観点である程度代用ができる可能性がある。

ここまでの結果から、CISD による事前計算と効果的なゲート配置により、UCCSD ベースで高精度を維持しながらゲート数や最適化繰り返し回数を大きく減らす結果が得られた。ゲート数の関係で実現がかなり困難と思われていた UCCSD に対し [12]、複数の VQE 改善技術を駆使することにより、実現可能性をある程度上昇させる良い結果が得られたと考えられる。

ただしそれでも窒素 20 量子ビットでの 2 量子ビットゲートの必要な数はおよそ 700 であり、将来的には数百量子ビットでの VQE の NISQ デバイスでの実行が求められていることから、さらなるゲート数の削減は必要だと考えられる。古典コンピュータによる事前計算は効果的であるが、最終的に実用化された際の VQE アルゴリズムの計算コスト、また量子デバイスの動作速度、用意できる古典コンピュータの演算速度などによって、どの程度の頻度で事前計算を行うのが良いかは最終的に決められるであろう。また、本手法に限らず、古典コンピュータを上手く駆使し NISQ アルゴリズムを補助・加速するさらなる手法の探索が期待される。

## 参考文献

- [1] Yi Fan et al., Circuit-Depth Reduction of Unitary-Coupled-Cluster Ansatz by Energy Sorting, arXiv preprint arXiv:2106.15210 (2021).
- [2] P. J. J. O'Malley et al., Scalable Quantum Simulation of Molecular Energies, PHYSICAL REVIEW X 6, 031007 (2016).
- [3] Whitfield JD, Biamonte J, and Aspuru-Guzik A. Simulation of Electronic Structure Hamiltonians Using Quantum Computers. Mol Phys 109:735–50 (2011).
- [4] Qing Guo and Ping-Xing, Optimization of VQE-UCC Algorithm Based on Spin State Symmetry Chen, Front. Phys. 9:735321 (2021).
- [5] Rongxin Xia and Sabre Kais, Qubit coupled cluster singles and doubles variational quantum eigensolver ansatz for electronic structure calculations, Quantum Sci. Technol. 6 015001 (2021).
- [6] Gian-Luca R. Anselmetti et al., Local, Expressive, Quantum-Number-Preserving VQE Ansatz for Fermionic Systems,

- New J. Phys. 23 113010 (2021).
- [7] A. Peruzzo et al., A variational eigenvalue solver on a photonic quantum processor, Nat. Commun. 5:4213 (2014)
- [8] K. Raghavachari, G. W. Trucks, J. A. Pople, and M. Head Gordon, A fifth order perturbation comparison of electron correlation theories, Chem. Phys. Lett. 157, 479 (1989).
- [9] Yuta Matsuzawa and Yuki Kurashige, A Jastrow-type decomposition in quantum chemistry for low-depth quantum circuits, J. Chem. Theory Comput., 16, 944–952 (2020).
- [10] Pranav Gokhale et al. Minimizing State Preparations in Variational Quantum Eigensolver by Partitioning into Commuting Families, arXiv preprint arXiv: 1907.13623, (2019).
- [11] 森田幹雄 et al., 低回路深さ同時測定型 VQE の計算コスト検証. 研究報告量子ソフトウェア (QS), 2021-QS-2, 11, 1-7.
- [12] Michael Kuhn et al., Accuracy and Resource Estimations for Quantum Chemistry on a Near term Quantum Computer J. Chem. Theory Comput., 15, 9, (2019).