



大阪科学・大学記者クラブ 御中
(同時提供先: 科学記者会)

【報道解禁日時】(日本時間)
2019年1月2日(水) 22時

2018年12月28日
大阪市立大学

「量子コンピュータの常識」を覆す成果

化学反応経路解析や分子デバイス設計などを 簡単かつ高速に計算できる量子アルゴリズムの開発に成功

<概要>

大阪市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、佐藤 和信(さとう かずのぶ) 教授、工位 武治(たくい たけじ) 特任教授らの研究チームは、これまで不可能とされてきた量子コンピュータによる化学反応経路解析や分子デバイス設計などに向けた高精度量子化学計算について、化学反応過程で発生する分子の基底状態が高い確率で得られるような良い近似波動関数である多配置波動関数を簡単かつ高速に生成することができる新規な量子アルゴリズムを開発し、それらの計算が量子コンピュータ上で効率的に実行できることを初めて示しました。

量子コンピュータによる量子化学計算は、化学反応途中の分子など、複雑な電子構造を解明するために量子化学計算が必要とされるような分子系で効率的に計算できないというジレンマ(「量子コンピュータの量子化学計算ジレンマ」)を抱えてきましたが、本研究成果によってこのジレンマは解消されました。

本研究成果は、国際学術誌 ACS Central Science に、2019年1月2日(水) 22時(日本時間)にオンライン掲載される予定です。

<掲載誌情報>

雑誌名: ACS Central Science

論文名: Quantum Chemistry on Quantum Computers: A Method for Preparation of Multiconfigurational Wave Functions on Quantum Computers without Performing Post-Hartree-Fock Calculations

著者: Kenji Sugisaki, Shigeaki Nakazawa, Kazuo Toyota, Kazunobu Sato, Daisuke Shiomi, Takeji Takui

掲載 URL: <http://dx.doi.org/10.1021/acscentsci.8b00788>

<研究背景>

近年、スーパーコンピュータを含めた従来のコンピュータ(古典コンピュータという)を凌駕する性能を持つ量子コンピュータの研究が国内外で盛んに行われています。特に、化学・物理分野における究極目標の1つである原子や分子の Schrödinger 方程式を正確に解く問題は、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を集めています。Schrödinger 方程式の数値的厳密解を与えうる全配置間相互作用法(full configuration interaction 法; full-CI 法)は、古典コンピュータを使うと計算時間が分子サイズに対して指数関数的に増加しますが、量子コンピュータを用いることで現実時間内に計算が可能となるアルゴリズムが2005年に提案されています。しかし、量子コンピュータを使った full-CI 計算で正しい答えを得るためには、Schrödinger 方程式の解である波動関数とよく似た、良い近似波動関数を準備する必要があります。近似波動関数が Schrödinger 方程式の解である波動関数と酷似していれば1回で正しい解が得られますが、近似波動関数の精度が悪くと、正しい計算結果が得られるまで繰り返し計算を行う必要があります。量子コンピュータを使うことによる計算高速化のメリットが失われてしまいます。

一般的な分子が平衡構造にあるとき、分子内の全ての電子は電子対を形成して、閉殻電子構造をとっていると言います。このとき、波動関数は1つの電子配置で近似することができ、

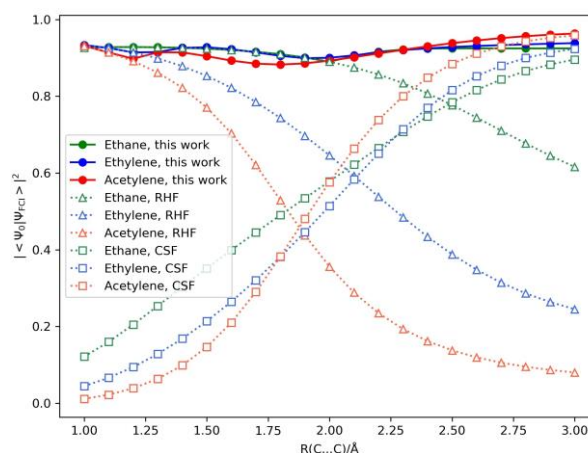
Hartree–Fock 波動関数と呼ばれる波動関数が良い近似波動関数となることが知られています。また、共有結合が解離し、分子内に不対電子と呼ばれる電子対を作っていない電子を持つ開殻電子構造をとったときには、配置状態関数 (configuration state function; CSF) と呼ばれる近似波動関数が良い近似波動関数となることを同研究グループが報告しています。しかし、Hartree–Fock 波動関数も配置状態関数も、共有結合の解離途中などでは良い近似波動関数となっておらず、近似波動関数の精度を上げるためには古典コンピュータまたは量子コンピュータ上で時間のかかる計算を追加で行う必要がありました。このため、化学反応進行途中にある分子など、複雑な電子構造を解明するために量子化学計算が必要とされるような分子系で、量子コンピュータでの量子化学計算が効率的に行えないというジレンマを長年抱えてきました。

<研究内容>

共有結合が解離しかけた分子構造では、Hartree–Fock 波動関数も配置状態関数も良い近似波動関数とならない理由は、分子が閉殻電子構造でも開殻電子構造でもない、中間的な電子構造をとっているためであることはわかっています。このような分子の電子構造を良く近似する波動関数を得るためには、閉殻電子構造の波動関数と開殻電子構造の波動関数の線形結合をとった多配置波動関数を構築するという困難な問題を解決する必要があります。このとき、波動関数の線形結合をとるときの展開係数、すなわち、閉殻電子構造と開殻電子構造をどのくらいの比率で混ぜ合わせるかが重要となりますが、この展開係数を決定するには、ポスト Hartree–Fock 計算と呼ばれる追加の量子化学計算を行う必要があるというのが量子化学の常識でした。このため、たとえ full-CI 計算が量子コンピュータ上で超高速に実行できても、結局、良い近似波動関数を準備するためのポスト Hartree–Fock 計算に長い時間がかかり、量子コンピュータを用いる高速化の利点が損なわれてしまうという深刻な問題がありました。

同研究グループは、分子の開殻電子構造の寄与を測る尺度として量子化学で用いられているジラジカル因子に注目しました。ジラジカル因子 y は 0 から 1 までの値をとり、完全な閉殻電子構造では $y=0$ 、完全な開殻電子構造では $y=1$ 、共有結合解離途中など中間的な電子構造では $0 < y < 1$ となります。ジラジカル因子 y は、波動関数の一電子密度行列を対角化して得られる自然軌道の電子占有数から求めることができ、配置間相互作用 (configuration interaction; CI) 波動関数において、最もエネルギーが高い電子占有軌道 (HOMO) から最もエネルギーが低い電子非占有軌道 (LUMO) への二電子励起配置の重み (波動関数の展開係数の二乗) の 2 倍に相当するという性質を持っています。同研究グループは、ジラジカル因子が持つこれらの性質を利用し、Hartree–Fock 波動関数からジラジカル因子 y を計算し、得られたジラジカル因子を用いて HOMO から LUMO への二電子励起配置の展開係数を推定することで、閉殻電子構造と開殻電子構造を適切な比率で混ぜ合わせた多配置波動関数を生成する手法を考案するとともに、多配置波動関数を量子コンピュータ上に生成することができる新規な量子論理回路と量子アルゴリズムを初めて開発しました。

図には、炭素–炭素間の共有結合次数が異なるエタン ($\text{H}_3\text{C}-\text{CH}_3$)、エチレン ($\text{H}_2\text{C}=\text{CH}_2$)、アセチレン ($\text{HC}\equiv\text{CH}$) について、 $\text{C}\cdots\text{C}$ 結合長を変化させたときの近似波動関数と full-CI 波動関数との重なり二乗値を示し



図：エタン、エチレン、アセチレンの C–C 結合長 (横軸) を変化させたときの種々の近似波動関数と full-CI 波動関数の重なり二乗値 (縦軸)

ています。量子コンピュータを用いた量子化学計算で基底状態のエネルギーが得られる確率は、近似関数と full-CI 波動関数の重なり二乗に比例するので、この値が大きいほど良い近似波動関数であることを示しています。白抜き三角で示した Hartree-Fock 波動関数 (RHF) は、C…C 結合長が短く、平衡構造に近いときに full-CI 波動関数と大きな重なりを持ち、良い近似波動関数になっていますが、C…C 結合長が伸びていくと急速に full-CI 波動関数との重なりが小さくなってしまいます。白抜き四角で示した配置状態関数 (CSF) は Hartree-Fock 波動関数とは逆の傾向を示し、C…C 結合長が長く、共有結合が完全に解離した状態では良い近似波動関数となっていますが、平衡構造近傍では full-CI 波動関数との重なりは小さくなっています。これらの結果に対して、丸印で示す、ジラジカル因子を用いて準備した多配置波動関数は全ての C…C 結合長で full-CI 波動関数と大きな重なりを持ち、共有結合解離途中のような、複雑な電子状態を持つ分子系に対しても非常に良い近似波動関数となっていることが分かります。また、アセチレンの C≡C 三重結合解離が起こると 6 個の対電子が生成しますが、このように多くの対電子が関与する場合にも本手法によって良い近似波動関数が準備できることが数値計算から証明されました。

本手法は、方法論的には従来の多配置波動関数生成法とは異なり、計算時間のかかるポスト Hartree-Fock 計算を必要とせず、Hartree-Fock 波動関数から容易に多配置波動関数を生成しています。しかも、量子コンピュータ上で量子化学計算を行う際には、近似波動関数を生成し、分子積分を計算するために Hartree-Fock 計算は必ず実行されるので、本手法を適用しても Hartree-Fock 波動関数を近似波動関数として用いた場合と計算時間は変わりません。本手法によって、計算時間を増やすことなく、Hartree-Fock 波動関数よりも格段に精度の高い近似波動関数を準備できるようになり、化学反応過程で生じる複雑な電子構造を持つ分子系についても量子コンピュータでの量子化学計算が現実時間内で効率的に実行できるようになりました。

<今後の展開と応用について>

量子コンピュータを用いた量子化学計算に関する研究はこれまで、量子コンピュータ上での full-CI 計算超高速化や計算エラーの最小化などについて活発に研究がされてきましたが、電子構造が複雑で、量子化学計算が威力を発揮するような分子系の電子状態を効率的に計算することができる手法の開発が積年の課題として残っていました。化学反応機構の解明は、化学をはじめ、生化学・生物学・医学・薬学分野における普遍的な課題の 1 つです。本研究成果によって、量子コンピュータを用いた量子化学計算による化学反応経路解明も効率的に行えることが示されました。物質の複雑な電子構造の存在、共有結合解離などの化学反応の他にも、例えば次世代の半導体デバイス開発などで注目されているグラフェンナノリボンも基底状態で開殻電子状態の寄与が無視できないことが知られています。また、 π 共役系に対電子が分布した安定ラジカルは、ラジカル分子間で π 軌道の重なりを生じ、多中心結合と呼ばれる新しい分子間化学結合を生成し、中間的な開殻電子構造を持つことがあり、新規な分子機能発現の関連でその電子構造に興味を持っています。本研究で開発した手法はこれら化学的に興味深い、重要な分子系の電子構造解明にも量子コンピュータが寄与できることを初めて示したものであり、量子コンピュータを実際の化学の問題へと適用するための道筋を開拓したものとと言えます。

<資金・共同研究者・特許等について>

本研究は、AOARD Scientific Project on “Quantum Properties of Molecular Nanomagnets” (Award No. FA2386-13-1-4029, 4030, 4031), AOARD Project on “Molecular Spins for Quantum Technologies” (Grant No. FA2386-17-1-4040), JSPS KAKENHI Grant Numbers 17H03012, 18K03465 の対象研究です。また、JSPS KAKENHI Grant Number 23350011, Grants-in-Aid for Scientific Research on Innovative Areas (Quantum Cybernetics), FIRST Quantum Information Processing Project の一部対象研究です。

大阪市立大学大学院理学研究科 特任教授 工位 武治 (たくい たけじ)
TEL : 06-6605-2605 または 3049 E-mail: takui@sci.osaka-cu.ac.jp