

VQE-UCCSD/FMO計算の『不老』Type II での同時並行処理

○望月祐志^{1,2}, 土居英男¹, 杉崎研司^{3,4,5,6}, 中野達也⁷, 片桐孝洋⁸

立教大学 理学部化学科¹, 東京大学 生産技術研究所²,
慶應義塾大学 理工学部³, 慶應義塾大学 量子コンピューティングセンター⁴,
慶應義塾大学 サステイナブル量子AIセンター⁵, CQuERE TCG-Crest⁶,
(一般財団法人)高度情報科学技術研究機構⁷,
名古屋大学 情報基盤センター⁸

【謝辞】 本研究は、JHPCN課題jh230001/jh240001の下、「不老」Type II
を用いて実施しました。また、立教SFRの支援を受けました。

【注記】 内容はChem. Lett.にオープンアクセスで出版しました

“Concurrent processing of VQE-UCCSD calculations with the FMO scheme”

Chemistry Letters, 54 (2025) upaf145, <https://doi.org/10.1093/chemle/upaf145>

量子コンピュータ

- ・タイプ: 量子アニーリング型と量子ゲート型
- ・デバイス: 超電導、イオントラップ、中性原子、シリコン、光
- ・トレンド: NISQからFTQCへ移行中
- ・シミュレータ: 多数存在、GPUを使うものも
- ・応用: 各種の組み合わせ/最適化問題、量子化学



<https://www.ibm.com/>



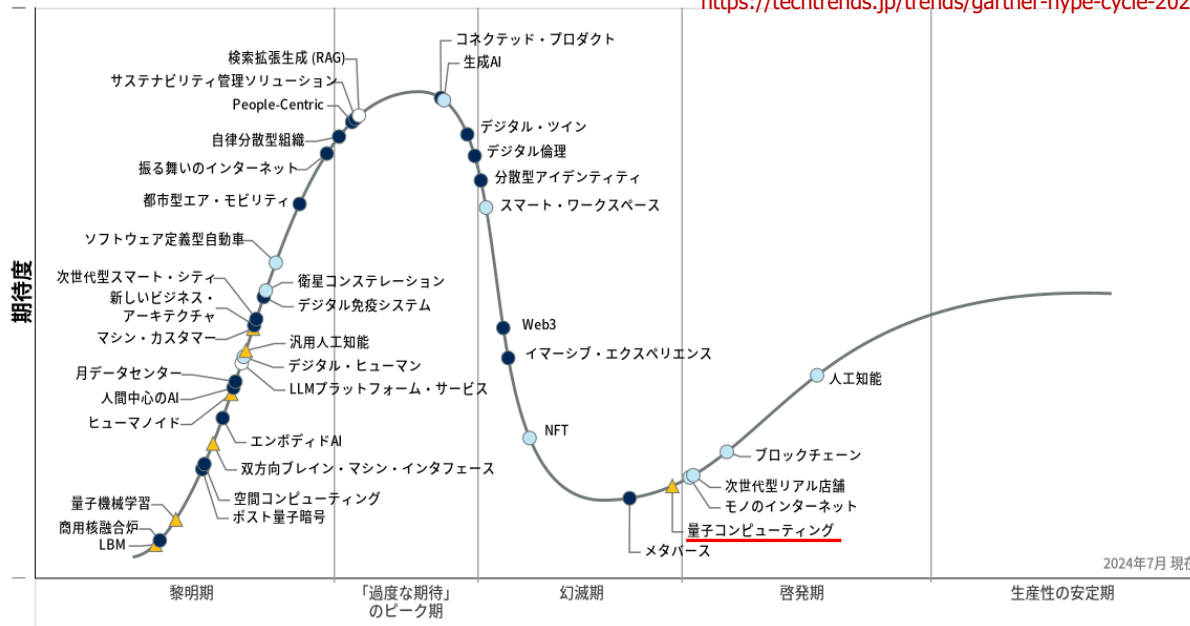
<https://ionq.com/>



<https://quera.com/>

日本における未来志向型インフラ・テクノロジーのハイプ・サイクル：2024年

<https://techtrends.jp/trends/gartner-hype-cycle-2024/>



主流の採用までに要する年数: ○ 2年未満 ● 2～5年 ● 5～10年 ▲ 10年以上 ✕ 安定期に達する前に陳腐化

Gartner

Googleによる誤り訂正チップの発表

Googleが新量子チップ「Willow」発表、10の25乗年かかる計算が5分未満に

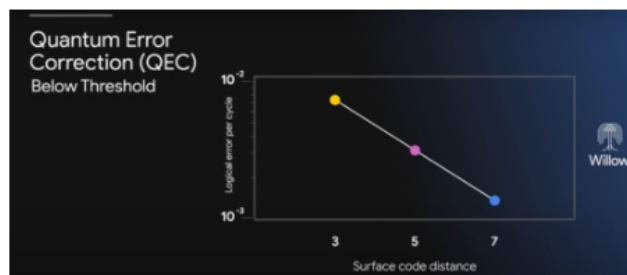
水 達哉 日経クロステック／日経コンピュータ

2024.12.11



米Google（グーグル）は2024年12月9日（米国時間）、105個の物理量子ビットを搭載する量子コンピューターチップ「Willow」を発表した。ベンチマークテストでは、最新のスーパーコンピューター「Frontier」で10の25乗年かかる計算を5分未満で実行したという。Willowによる成果は同日、科学誌「Nature」に掲載された。

Willowは超電導方式を採用した量子コンピューターの処理チップ。特徴は、誤り訂正に使用する量子ビット数を増やすほどエラー率を低減できる点だ。実験では、符号化する物理量子ビットを格子状に配列し、3×3格子、5×5格子、7×7格子の順にスケールアップして計測したところ、そのたびにエラー率がほぼ半減したことを確認した。T₁時間（量子ビットが励起状態から基底状態に緩和するまでの時間。量子状態が保たれるコヒーレンス時間に影響する）は100マイクロ秒に近づいたという。これは同社の前世代チップ「Sycamore」に比べて約5倍の改善に相当する。



Willowによるエラー率の推移

（出所：Google）

<https://www.nature.com/articles/s41586-024-08449-y>
nature

Explore content ▾ About the journal ▾ Publish with us ▾

[nature](#) > [articles](#) > article

Article | Published: 09 December 2024

Quantum error correction below the surface code threshold

[Google Quantum AI and Collaborators](#)

[Nature](#) (2024) | [Cite this article](#)

38k Accesses | 2 Citations | 1627 Altmetric | [Metrics](#)

We are providing an unedited version of this manuscript to give early access to its findings. Before final publication, the manuscript will undergo further editing. Please note there may be errors present which affect the content, and all legal disclaimers apply.

Abstract

Quantum error correction [1, 2, 3, 4] provides a path to reach practical quantum computing by combining multiple physical qubits into a logical qubit, where the logical error rate is suppressed exponentially as more qubits are added. However, this exponential suppression only occurs if the physical error rate is below a critical threshold. Here, we present two below-threshold surface code memories on our newest generation of superconducting processors, Willow: a distance-7 code, and a distance-5 code integrated with a real-time decoder. The logical error rate of our larger quantum memory is suppressed by a factor of $\Delta = 2.14 \pm 0.02$ when increasing the code distance by two, culminating in a 101-qubit distance-7 code with $0.143\% \pm 0.003\%$ error per cycle of error correction. This logical memory is also beyond break-even, exceeding its best physical qubit's lifetime by a factor of 2.4 ± 0.3 . Our system maintains below-threshold performance when decoding in real time, achieving an average decoder latency of 63 μ s at distance-5 up to a million cycles, with a cycle time of 1.1 μ s. We also run repetition codes up to distance-29 and find that logical performance is limited by rare correlated error events occurring approximately once every hour, or 3×10^9 cycles. Our results present device performance that, if scaled, could realize the operational requirements of large scale fault-tolerant quantum algorithms.

量子化学のコミュニティからの量子計算への「期待」

理論化学会のアンケートのまとめ

<https://www.rkk-web.jp/future/>

整理 No	テ ー マ	予測年	重要度
1101	量子コンピュータによる大規模計算を利用した材料開発が可能になる	2039	4.63
1102	量子コンピュータにおける化学反応の解析及び予測が可能になり、工業スケールの反応シミュレーションを担うようになる	2043	4.50
1103	量子化学計算に量子コンピュータが汎用的に使われる	2043	4.43
1104	理論計算において、量子コンピュータの利用者数が古典コンピュータの利用者数を超える	2050	4.17
1105	量子誤り訂正を実現した量子計算機が実現し、厳密に近い量子化学計算が可能となる	2039	4.00
1106	機械学習の記述子として量子コンピュータによる量子化学計算が用いられ、効率的かつ高精度な化合物探索が可能になる	2037	3.88
1107	古典的コンピュータでは実行不可能な量子化学計算を、量子コンピュータ実機を用いて実行でき、量子化学計算分野での量子超越性が実証される	2029	3.25

実用化は10年以上先 (FTQCが前提)

量子コンピュータ向けの量子化学手法

量子位相推定

変分的量子固有値求解

	Quantum Phase Estimation (QPE) ^[1]	Variational Quantum Eigensolver (VQE) ^[2]
Computation	Fully quantum except for preprocessing (HF, MOint, etc)	Quantum–Classical hybrid
Wave function	Full-CI or CAS-CI	UCC or heuristic ones
Energy	Eigenvalue	Expectation value
Quantum circuit	Deep	Shallow
Computational cost scaling against the energy precision ϵ	$1/\epsilon$	$ w_{\max} ^2/\epsilon^2$
Exponential speedup against classical counterpart	Yes	Unknown
	$\begin{aligned}U \Psi\rangle &= e^{-iHt} \Psi\rangle \\&= e^{-iEt} \Psi\rangle \\&= e^{-i2\pi\phi} \Psi\rangle\end{aligned}$	$\begin{aligned} \Psi(\theta)\rangle &= U(\theta) \Psi_0\rangle \\E(\theta) &= \langle\Psi(\theta) H \Psi(\theta)\rangle\end{aligned}$

[1] A. Aspuru-Guzik et al, *Science* **2005**, 309, 1704. [2] A. Peruzzo et al, *Nat. Comm.* **2014**, 5, 4213.

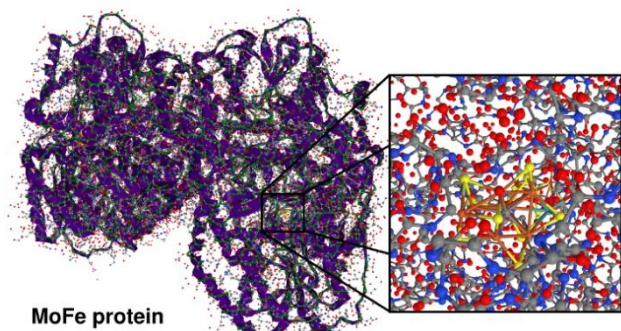
QPE(Quantum Phase Estimation)の推定例

Elucidating reaction mechanisms on quantum computers

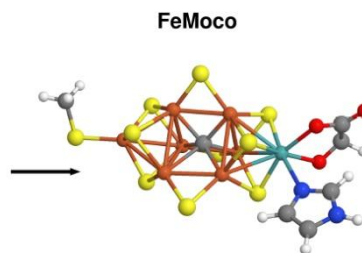
Markus Reiher^{a,1}, Nathan Wiebe^{b,1}, Krysta M. Svore^b, Dave Wecker^b, and Matthias Troyer^{b,c,2}

[PNAS 2017, 114, 7555–7560.](#)

Number of logical qubits



Active site of nitrogenase



		Error rate	10 ⁻⁶	10 ⁻³	
		Time for single gate operation	10 ns	100 ns	
Table 1. Simulation time estimates					
Structure	T gates	Cl. gates	Δ t (10 ns)	Δ t (100 ns)	Qubits
Quantitatively accurate simulation (0.1 mHa)					
Structure 1					
Serial	1.1 × 10 ¹⁵	1.7 × 10 ¹⁵	130 d	3.6 y	111
Nesting	3.5 × 10 ¹⁵	5.7 × 10 ¹⁵	15 d	4.9 mo	135
PAR	3.1 × 10 ¹⁶	3.1 × 10 ¹⁶	110 h	1.5 mo	1,982
Structure 2					
Serial	2.0 × 10 ¹⁵	3.1 × 10 ¹⁵	240 d	6.6 y	117
Nesting	6.5 × 10 ¹⁵	1.0 × 10 ¹⁶	27 d	8.9 mo	142
PAR	6.0 × 10 ¹⁶	6.0 × 10 ¹⁶	210 h	2.9 mo	2,024
Qualitatively accurate simulation (1 mHa)					
Structure 1					
Serial	1.0 × 10 ¹⁴	1.6 × 10 ¹⁴	12 d	3.9 mo	111
Nesting	3.3 × 10 ¹⁴	5.6 × 10 ¹⁴	1.4 d	14 d	135
PAR	3.0 × 10 ¹⁵	3.0 × 10 ¹⁵	11 h	4.6 d	1,982
Structure 2					
Serial	1.9 × 10 ¹⁴	3.0 × 10 ¹⁴	22 d	7.2 mo	117
Nesting	6.0 × 10 ¹⁴	9.9 × 10 ¹⁴	2.5 d	25 d	142
PAR	5.5 × 10 ¹⁵	5.5 × 10 ¹⁵	20 h	8.3 d	2,024

Structure 1: (54e,54o), trication, spin-singlet

Structure 2: (65e,57o), neutral, spin-doublet

Quantum circuit implementation methods

DMRGの方がベターという立場もあり

<https://doi.org/10.1063/1.5063376>

The electronic complexity of the ground-state of the FeMo cofactor of nitrogenase as relevant to quantum simulations

Cite as: J. Chem. Phys. 150, 024302 (2019); doi: 10.1063/1.5063376

Submitted: 26 September 2018 • Accepted: 10 December 2018 •

Published Online: 8 January 2019



View Online



Export Citation

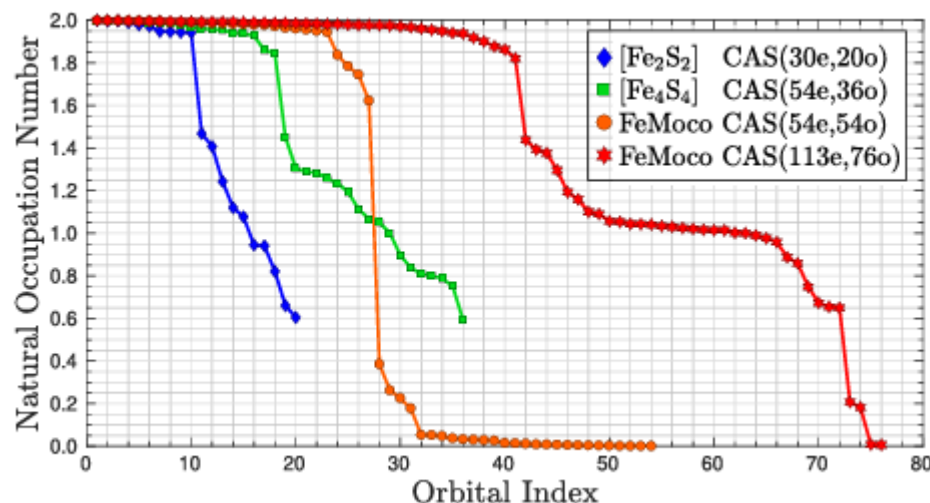


CrossMark

Zhendong Li,¹ Junhao Li,² Nikesh S. Dattani,^{3,4} C. J. Umrigar,²  and Garnet Kin-Lic Chan¹

ABSTRACT

We report that a recent active space model of the nitrogenase FeMo cofactor, proposed in the context of simulations on quantum computers, is not representative of the electronic structure of the FeMo cofactor ground-state. A more representative model does not affect much certain resource estimates for a quantum computer such as the cost of a Trotter step, while strongly affecting others such as the cost of adiabatic state preparation. Thus, conclusions should not be drawn from the complexity of quantum or classical simulations of the electronic structure of this system in this active space. We provide a different model active space for the FeMo cofactor that contains the basic open-shell qualitative character, which may be useful as a benchmark system for making resource estimates for classical and quantum computers.



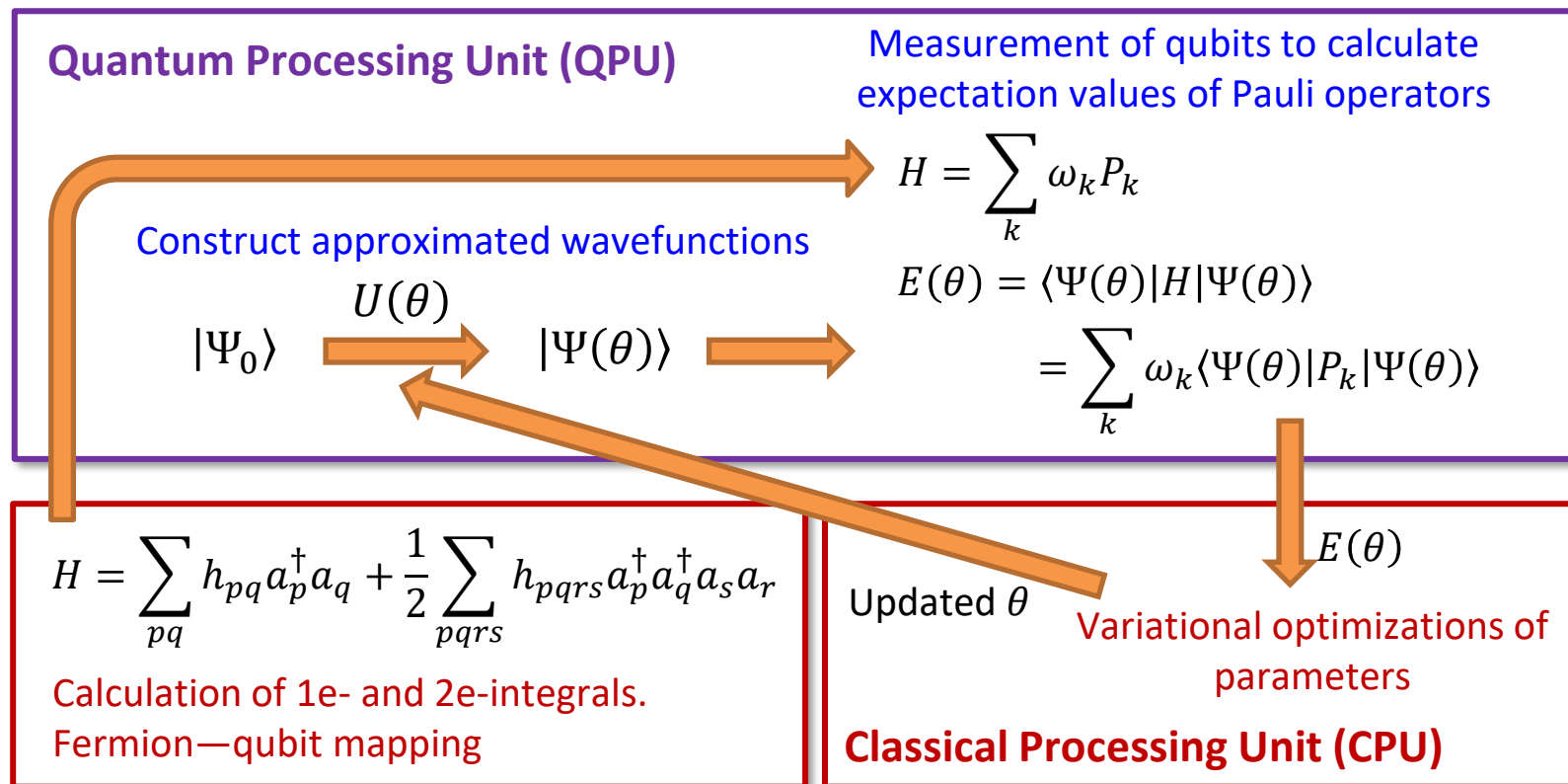
活性軌道空間を広く取れないのが問題

FIG. 2. Natural occupations obtained with DMRG for the $S = 0$ state of a $[\text{Fe}_2\text{S}_2]$ complex with CAS(30e, 20o) and $D = 8000$, the $S = 0$ state of a $[\text{Fe}_4\text{S}_4]$ complex with CAS(54e, 36o) and $D = 4000$, the $S = 0$ state of FeMoco with CAS(54e, 54o) reported in Ref. 7 and $D = 2000$, and the $S = 3/2$ state of FeMoco with CAS(113e, 76o) constructed in this work and $D = 2000$. In contrast to the other models, the CAS(54e, 54o) ground-state has no open shells.

描像が異なってしまう...

VQE(Variational Quantum Eigensolver)の求解

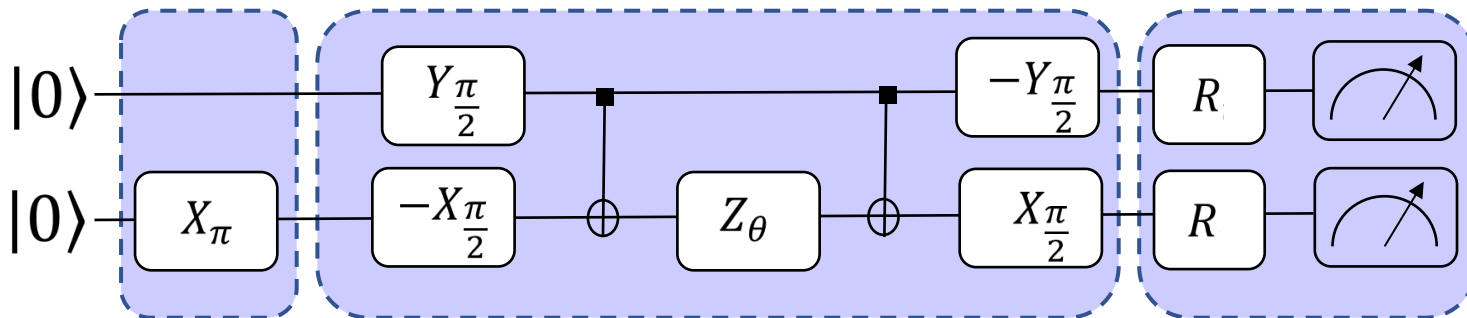
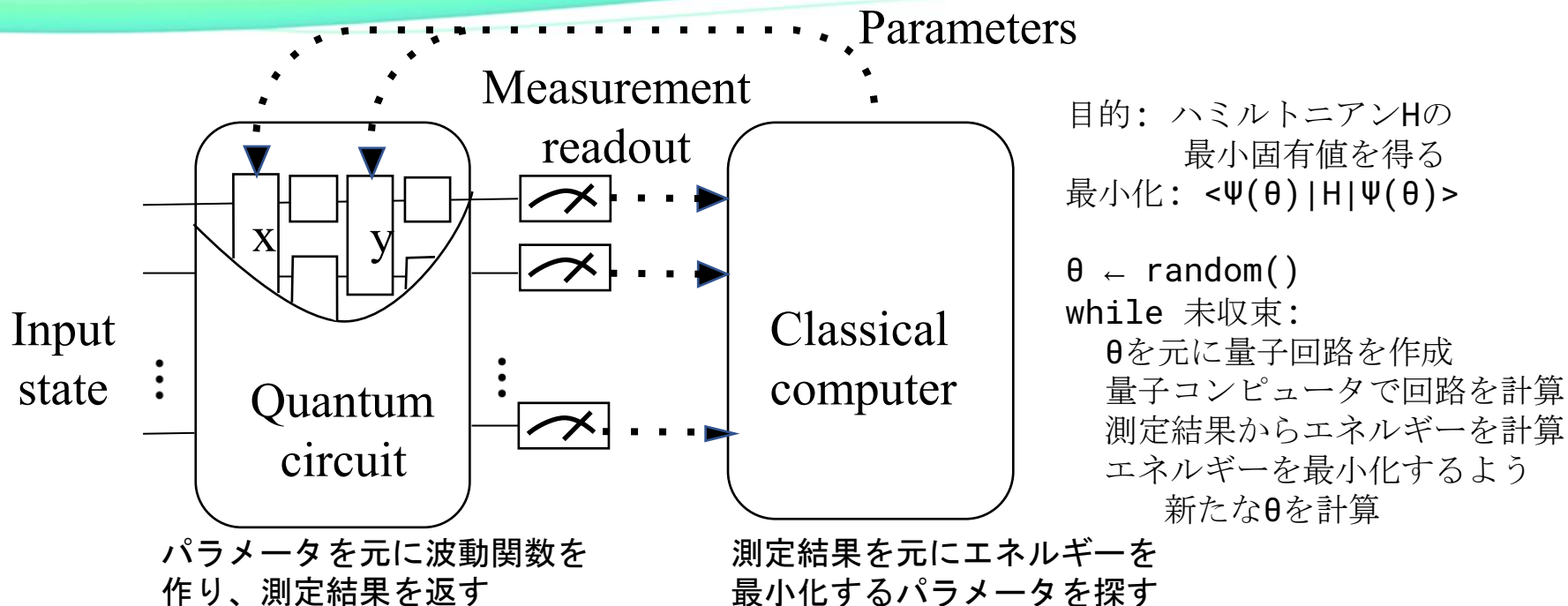
A quantum–classical hybrid approach that is executable on noisy intermediate-scale quantum (NISQ) devices



$$U(\theta)|\Psi_0\rangle = |\Psi(\theta)\rangle$$

Parametrized quantum circuits defined through “ansatzes” controls accuracy of the approximated wave function

VQEの量子回路の例



1. Prepare Hartree-Fock (mean-field) reference state.
2. Implement unitary coupled-cluster (UCC) ansatz.
3. Apply necessary post-rotations for energy estimation.

ユニタリー結合クラスター展開

<https://onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1002/qua.21198>

Taube&Bartlett, IJQC 106 (2006) 3393

It was shown long ago ([4–10]) that the exact wave function can be written in the form

$$|\Psi\rangle = \mathbf{U} |0\rangle, \quad \text{for } \langle\Psi|0\rangle \neq 0, \quad (5)$$

where $\mathbf{U}$ is a unitary transformation in the whole Hilbert space (not solely in the one-particle subspace that comprises basis set transformations). A unitary transformation can always be parameterized as the exponential of an anti-Hermitian operator. One choice of parameterization is closely related to the CC ansatz. Define

$$\mathbf{U} = e^{\tau} = e^{T-T^{\dagger}}, \quad (6)$$

where T is the conventional CC excitation operator and, therefore, $T^{\dagger}$ is a pure deexcitation operator. Clearly,

$$(e^{\tau})^{\dagger} = e^{\tau^{\dagger}} = e^{T^{\dagger}-T} = e^{-\tau} = (e^{\tau})^{-1}, \quad (7)$$

- ・規格化されており、変分的に求解
- ・size-extensive (connected terms)
- ・ $T=T_1+T_2$ が通例 (1,2電子励起:SD)

which verifies that this parameterization is, in fact, unitary. If the T and $T^{\dagger}$ operators include up to N excitations, then for N electrons this wave function is exact. Inserting this parameterization for $\mathbf{U}$ into the expectation value for the total energy, and using the norm-conserving properties of unitary transformations:

$$\begin{aligned} E &= \frac{\langle 0 | e^{T^{\dagger}-T} H e^{T-T^{\dagger}} | 0 \rangle}{\langle 0 | e^{T^{\dagger}-T} e^{T-T^{\dagger}} | 0 \rangle} \\ &= \langle 0 | e^{T^{\dagger}-T} H e^{T-T^{\dagger}} | 0 \rangle = \langle 0 | (H e^{T-T^{\dagger}})_C | 0 \rangle. \end{aligned} \quad (8)$$

Because this equation is an expectation value, it is, by the variational principle, an upper bound for the energy. The energy is also given by the expectation value of a connected operator $(H e^{T-T^{\dagger}})_C$; therefore, it is extensive [11].

The T amplitudes can be determined from this energy expression by enforcing the condition that

$$\frac{\partial E}{\partial t_K^{\dagger}} = 0 \quad (9)$$

for a given excited determinant $|K\rangle \in \{|_i^a\rangle, |_{ij}^{ab}\rangle, \dots\}$. Solving the coupled set of equations generated for a subset of $|K\rangle$ and enforcing the condition $T^{\dagger} = (T)^{\dagger}$ specifies all the amplitudes up to a given excitation.

分子積分の準備とスピン系ハミルトニアンへの転換

■第二量子化ハミルトニアン

ハミルトニアンを**生成/消滅演算子**で表現
参照配置の決定

- ⇒ 基底関数積分でHF計算
- ⇒ GAMESSやPySCFを使って実行
- 積分を求解後の**分子軌道の添字**に変換

$$\mathcal{H}_{elec(BO)} = - \sum_{i=1}^N \frac{1}{2} \nabla_i^2 - \sum_{i=1}^N \sum_{A=1}^M \frac{Z_A}{r_{iA}} + \sum_{i=1}^N \sum_{j>i}^N \frac{1}{r_{ij}}$$

↓

$$\mathcal{H}_{sq} = \sum_{p,q} h_{pq} c_p^\dagger c_q + \frac{1}{2} \sum_{p,q,r,s} G_{pqrs} c_p^\dagger c_q^\dagger c_s c_r$$

↓

$$\mathcal{H}_{BK} = h_0 I + h_1 X_0 Z_1 X_2 \dots + h_{13} Z_1 Z_3 + h_{14} Z_2 \dots$$

■スピン系のハミルトニアンに転換

ビット数の節約は重要、対称性の印加

- ⇒ BK(Bravyi-Kitaev)変換など
- ⇒ OpenFermionなどで実行

■VQE-UCCSDの実行

クラスター変数の反復計算による最適化

- ⇒ **Trotter分解** で指数因子を近似
- ⇒ COBYLAやPowell法
- ⇒ Cirqなどを利用

cuQuantumなどシミュレータで**GPU加速**

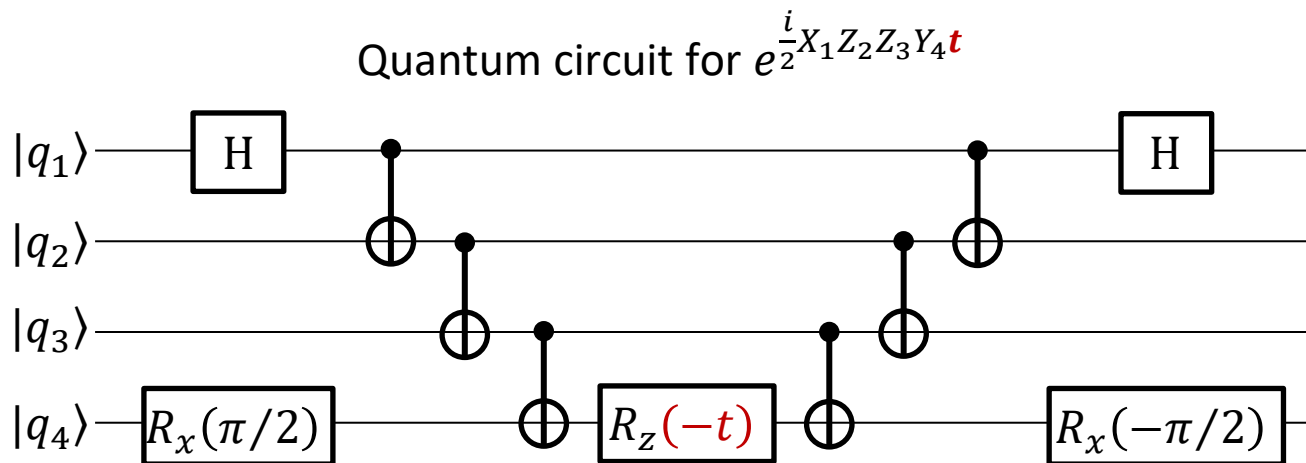
$$e^{x(A+B)} = \lim_{n \rightarrow \infty} (e^{\frac{x}{n}A} e^{\frac{x}{n}B})^n$$

- ・ A と B は実際は演算子なので非可換
- ・ n を無限にするのは不可能、打ち切り
- ・ 演算子の並び/順番にも注意
- ・ 被最適化変数の位相関係にも依存

Trotter分解によるエラー

Trotter decomposition (first-order)

$$e^{(A+B+\dots+Z)} \approx e^A e^B \dots e^Z$$



Difference in sign of excitation amplitude = Difference in rotating direction

The quantum states corresponding to the UCCSD wavefunction are not identical under Trotter decomposition!

量子計算に分割系のアプローチを導入する提案

<https://arxiv.org/abs/1806.01305>

Towards the Practical Application of Near-Term Quantum Computers in Quantum Chemistry Simulations: A Problem Decomposition Approach

Takeshi Yamazaki,^{*} Shunji Matsuura,[†] Ali Narimani,[‡] Anushervon Saidmuradov,[§] and Arman Zaribafiyani[¶]
1QB Information Technologies (1QBit), 458-550 Burrard Street, Vancouver, BC, Canada, V6C 2B5
(Dated: June 6, 2018)

With the aim of establishing a framework to efficiently perform the practical application of quantum chemistry simulation on near-term quantum devices, we envision a hybrid quantum–classical framework for leveraging problem decomposition (PD) techniques in quantum chemistry. Specifically, we use PD techniques to decompose a target molecular system into smaller subsystems requiring fewer computational resources. In our framework, there are two levels of hybridization. At the first level, we use a classical algorithm to decompose a target molecule into subsystems, and utilize a quantum algorithm to simulate the quantum nature of the subsystems. The second level is in the quantum algorithm. We consider the quantum–classical variational algorithm that iterates between an expectation estimation using a quantum device and a parameter optimization using a classical device. We investigate three popular PD techniques for our hybrid approach: the fragment molecular-orbital (FMO) method, the divide-and-conquer (DC) technique, and the density matrix embedding theory (DMET). We examine the efficacy of these techniques in correctly differentiating conformations of simple alkane molecules. In particular, we consider the ratio between the number of qubits for PD and that of the full system; the mean absolute deviation; and the Pearson correlation coefficient and Spearman’s rank correlation coefficient. Sampling error is introduced when expectation values are measured on the quantum device. Therefore, we study how this error affects the predictive performance of PD techniques. The present study is our first step to opening up the possibility of using quantum chemistry simulations at a scale close to the size of molecules relevant to industry on near-term quantum hardware.

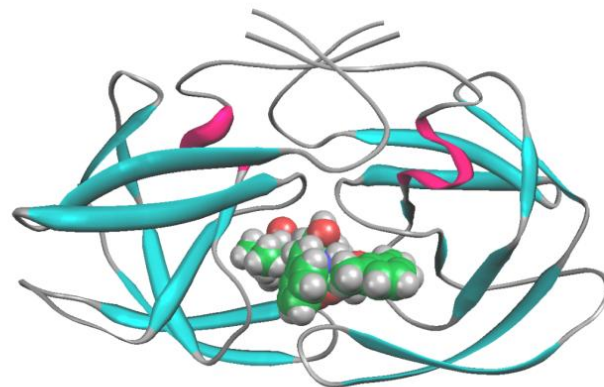
フラグメント分子軌道(FMO)法

◇巨大分子系

生体高分子や凝集系では一般的

⇒ タンパク質、DNA（水和状態）

数千～数万原子、数千～数十万軌道



【HIVプロテアーゼとロピナビル】

◇分割&統合系のアプローチの一つ

北浦らが1999年に2体展開で提案

⇒ フラグメントとその対で系のエネルギーを評価（FMO2）

⇒ 環境静電ポテンシャル（ESP）、直接結合切断（BDA）

⇒ 階層的な並列処理（フラグメントリスト&内部処理）

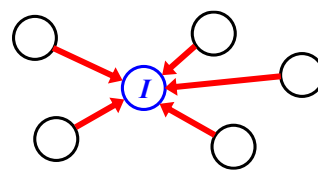
⇒ 定量性を高める電子相関の導入も直截

フラグメント間の相互作用エネルギー（IFIE）

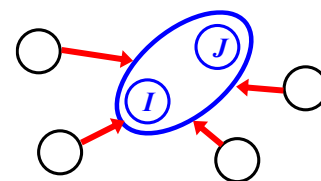
⇒ 計算対象の解析ツール

⇒ 生物物理や創薬に向く

⇒ 材料系にも適用可能



モノマー（アミノ酸単位など）



ダイマー

FMO計算のためのプログラム

◇GAMESS-US [米国Gordonグループ]; Fedorov、Gordon、北浦ら
GAUSSIANに抗し得る有力なフリーソフト、世界規模 (Fortran)
⇒ 様々な機能をFMO化、多彩な計算、GDDI並列

◇ABINIT-MP; 望月、中野ら

実用機能は十分、東大系PJ・CREST-PJなどで開発 (Fortran)

⇒ IOレス、MPI、OpenMP/MPI混成並列、スパコンと好相性

◇PAICS; 石川

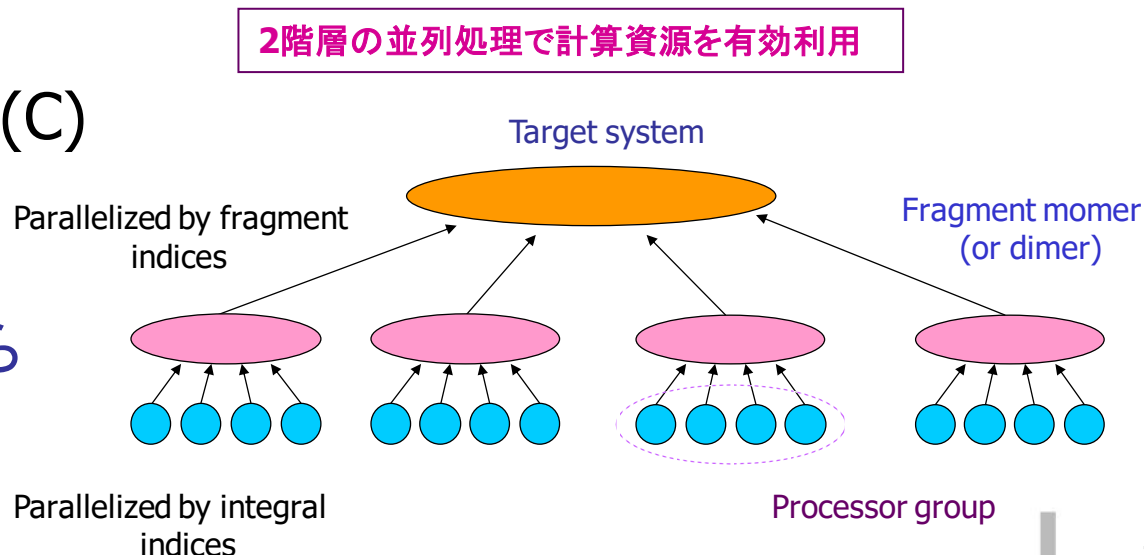
FMO-MP2(RI)に特化 (C)

⇒ MPI並列

◇OpenFMO; 稲富、鬼頭ら

FMO-HF (C)

⇒ 超並列指向



FMOと量子計算(VQE-UCCSD)の接続の最初の試み

<https://onlinelibrary.wiley.com/doi/full/10.1002/jcc.27438>



RESEARCH ARTICLE | Open Access |

Size-consistency and orbital-invariance issues revealed by VQE-UCCSD calculations with the FMO scheme

Kenji Sugisaki✉, Tatsuya Nakano, Yuji Mochizuki

First published: 25 May 2024 | <https://doi.org/10.1002/jcc.27438>

SECTIONS

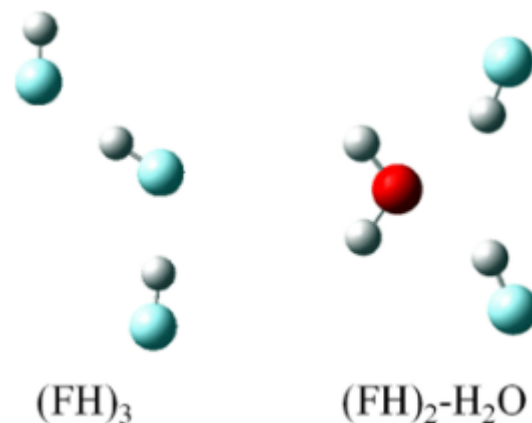
PDF TOOLS

Abstract

The fragment molecular orbital (FMO) scheme is one of the popular fragmentation-based methods and has the potential advantage of making the circuit shallow for quantum chemical calculations on quantum computers. In this study, we used a GPU-accelerated quantum simulator (cuQuantum) to perform the electron correlation part of the FMO calculation as unitary coupled-cluster singles and doubles (UCCSD) with the variational quantum eigensolver (VQE) for hydrogen-bonded (FH)₃ and (FH)₂-H₂O systems with the STO-3G basis set. VQE-UCCSD calculations were performed using both canonical and localized MO sets, and the results were examined from the point of view of size-consistency and orbital-invariance affected by the Trotter error. It was found that the use of localized MO leads to better results, especially for (FH)₂-H₂O. The GPU acceleration was substantial for the simulations with larger numbers of qubits, and was about a factor of 6.7–7.7 for 18 qubit systems.

2025/9/10

- ・「不老」タイプII上でcuQuantumを使用
- ・ 相関計算部分をUCCSD計算で置き換え
- ・ 2つの水素結合系でテスト、**STO-3G**基底
- ・ 積分と軌道はABINIT-MPから取得
- ・ cuQuantumシミュレータのGPU加速は7倍
- ・ 実はFMO-CCSD(T)より**数万倍遅い**
- ・ size-consistencyやorbital-invarianceの問題を提起
- ・ **Trotter分解のエラー**が顕在化
- ・ スライス幅を変えて外挿すると良い
- ・ 局在化軌道を使う方がベター



size-consistencyとorbital-invariance

■ size-consistencyとは？

- ・ $E[(H_2)_n] = n \cdot E[H_2]$ / 相互作用の無い H_2 の系
- ・ 電子相関エネルギーが電子数 N でスケールされる（同じ近似度）
- ・ 相互作用エネルギーや反応熱の評価に本質的な性質
- ・ クラスター展開(CC)や多体摂動論(MBPT)はOK

■ orbital-invarianceとは？

- ・ unitary-invarianceとも言う
- ・ 占有軌道空間、仮想軌道空間のユニタリー変換に対する不変性
- ・ 正準軌道(CMO)と局在化軌道(LMO)で同じエネルギーを与える

Sum of monomer energies

B $E^{\text{FMO}} = E_A + E_B + E_C$

A

C

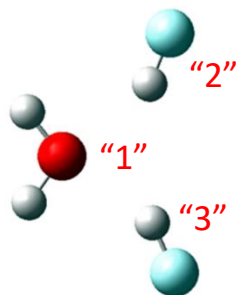
$+(E_{A+B} - E_A - E_B) + (E_{B+C} - E_B - E_C) + (E_{C+A} - E_C - E_A)$

Interaction energy for fragments A-B Interaction energy for fragments B-C Interaction energy for fragments C-A

FMOではどちらも満足しないと不可!!

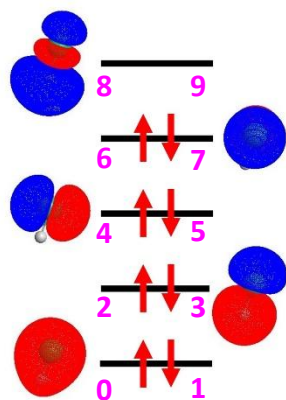
$$E = \sum_{I>J} E_{IJ} - (N_f - 2) \sum_I E_I$$

Trotter分解によるエラーの要因

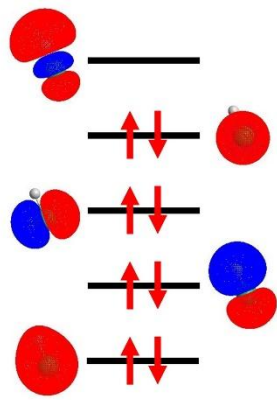


Calculated energies/Hartree

Method	"2"	"3"
RHF	-103.6952544	-103.6952544
MP2	-103.7130649	-103.7130649
UCCSD	-103.7219465	-103.7219137
UCCSD: MP2 amp	-103.7187982	-103.7187855
UCCSD: MP2 amp (w/o Trotter)	-103.7179121	-103.7179121



"2"



"3"

Selected MP2 amplitudes

Excitation operator	"2"	"3"
$a_8^\dagger a_2 a_9^\dagger a_3$	-0.1449	-0.1449
$a_8^\dagger a_0 a_9^\dagger a_3$	-0.0351	+0.0351
$a_8^\dagger a_2 a_9^\dagger a_5$	+0.0001	-0.0001

トロッター分解の外挿によるエラー低減

First-order Trotter decomposition

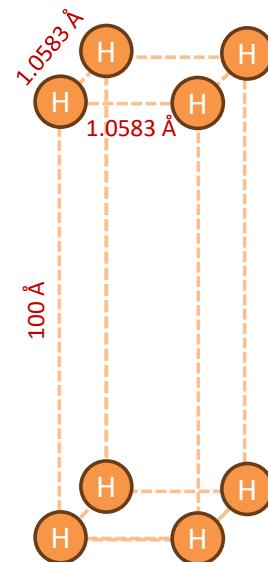
$$e^{\sum_{j=1}^J c_j P_j} = \left[\prod_{j=1}^J e^{\frac{c_j P_j}{M}} \right]^M$$

Second-order Trotter decomposition

$$e^{\sum_{j=1}^J c_j P_j} = \left[\prod_{j=1}^J e^{\frac{c_j P_j}{2M}} \prod_{j=J}^1 e^{\frac{c_j P_j}{2M}} \right]^M$$

$\Delta E_{\text{UCCSD-FCI}}/\text{kcal mol}^{-1}$

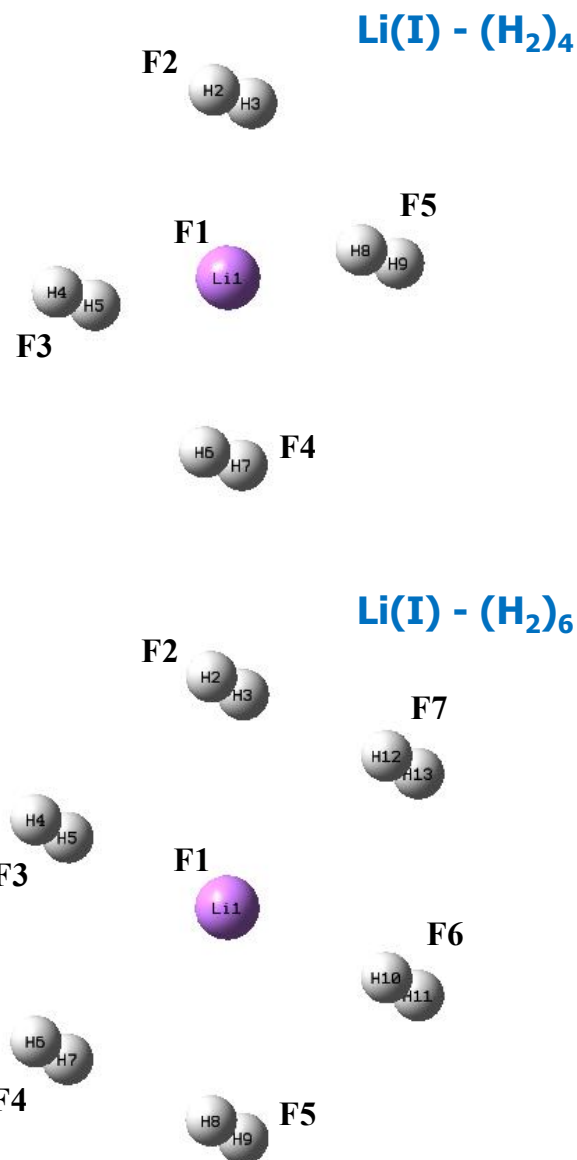
Unit	First-order					Second-order	w/o Trotter
	$M = 1$	$M = 2$	$M = 3$	$M = 4$	$M = 5$	$M = 1$	
Monomer	0.8102	0.8101	0.8099	0.8100	0.8100	0.8101	0.8118
Dimer (LMO)	1.6207	1.6200	1.6203	1.6204	1.6205	1.6206	1.6236
Dimer (CMO)	5.0319	1.9139	1.7141	1.6681	1.6496	2.0172	1.6234



FMOと量子計算(VQE-UCCSD)の接続の試み(続)#1

- ・ 相関計算部分をVQE-UCCSD計算で置き換え
- ・ Li(I)イオンに引き付けられたH₂分子のクラスターがモデル
- ・ 対称的な配置 (MP2(full)/6-31G(d',p')レベルで最適化)
- ・ FMO計算はABINIT-MP、その他は小規模コードで処理
- ・ **FMO-HF/STO-3G**計算の後で分子積分を調製 (CMO)
- ・ 局在化軌道でも調製、こちらの方が高精度?! (LMO)
- ・ VQE-UCCSDで相関計算、Li(I)の1s電子も相関導入
- ・ **Trotter分解の次数を1,2の両方で試行**
- ・ **スライス幅を{1,2,3,4,5}**と変えて相関エネルギーを外挿
- ・ フラグメントのモノマーとダイマーの処理は**同時並行処理**
- ・ トロッター次数の1→2で時間は2倍
- ・ LMOではCMOの1.4倍の時間 (最適化しきれない場合も)
- ・ **GPU加速は約4倍**
- ・ それでもなお、通常のFMO-CCSDより**数万倍遅い**
- ・ 古典の最適化部分の時間がかかっている?!
- ・ GPUのメモリ制限からSTO-3Gより基底関数を上げられない

- ・ 実用性の観点からはVQEは「厳しい」のが現状
- ・ とはいえ、「**HPCの威力**」があるのは明確な事実
- ・ HPCと量子計算の「**協調的な発展**」に今後も期待



VQE-UCCSDスクリプトのヘッダー部分

```
import os
import openfermion
import numpy as np
import scipy as sp
import datetime
import time
import math
import cirq
import itertools

from numpy import zeros, dot, conjugate, sqrt
from scipy.optimize import minimize

from openfermion.config import *
from openfermion.ops import *
from openfermion.transforms import *
from openfermion.utils import *
from openfermion.linalg import *

from cirq.ops import *
from cirq.circuits import *
from cirq.circuits import InsertStrategy
from cirq import Simulator

from scipy.stats import norm
import argparse

# intfile = "RESULT-monomer-1"
# #intfile = "RESULT-dimer-21"
# optimize_method = "Powell"
# use_gpu = True
# trotter_order = 1
# trotter_slices = 2
# thre_print = 0.001 # Controls UCCSD wave function printe))
```

```
# System specification and computational conditions
if __name__ == '__main__':
    parser = argparse.ArgumentParser(
        description=' VARIATIONAL QUANTUM EIGENSOLVER ',
        usage=""""
python3 ./VQE_UCCSD.py -intfile 'RESULT-monomer-1' ¥
                        -optimize_method 'Powell' (default:'Powell') ¥
                        -use_gpu True (default: True) ¥
                        -trotter_order 1 (default: 1) ¥
                        -trotter_slices 1 (default: 1) ¥
                        -thre_print 0.001 (default:0.001)
                        """)
    parser.add_argument('-intfile', default=None)
    parser.add_argument('-optimize_method', default='Powell')
    parser.add_argument('-use_gpu', default=True)
    parser.add_argument('-trotter_order', default=1)
    parser.add_argument('-trotter_slices', default=1)
    parser.add_argument('-thre_print', default=0.001)
    args = parser.parse_args()

    intfile = args.intfile
    optimize_method = args.optimize_method
    use_gpu = eval(args.use_gpu)
    trotter_order = int(args.trotter_order)
    trotter_slices = int(args.trotter_slices)
    thre_print = float(args.thre_print) # Controls UCCSD wave function print
# System specification end

if trotter_order != 1 and trotter_order != 2:
    raise ValueError(' Only 1st and 2nd order Trotter is supported')

start_time = time.time()
start_datetime = datetime.datetime.now()
print(" Quantum circuit simulation starts on {}".format(start_datetim
```

フラグメントに関する同時並行処理

```
#!/bin/bash
#PJM -L rscgrp=cx-single
#PJM -L elapse=24:00:00
#PJM -j
#PJM -S

function run {
    module load gcc/8.4.0 cuda/11.8.0 cmake/3.21.1
    eval "$(~/miniconda3/bin/conda shell.bash hook)"
    conda activate cirq3
    ulimit -s unlimited

    #    dimer 21 1 1
    echo ${1} ${2} ${3} ${4}
    out_file=${1}_result/${1}-${2}_VQE-UCCSD_STO-3G.tro_order_${3}.tro_slice_${4}.out

    if [ ! -e ${out_file} ]; then
        python3 /home/z44895z/bin/VQE_UCCSD.py -infile RESULT-${1}-${2} -use_gpu True -trotter_order ${3} -trotter_slices ${4} > ${out_file}
    fi
}

export -f run

mkdir -p monomer_result
mkdir -p dimer_result
cat args.list | xargs -n 4 -P 10 bash -c 'run ${0} ${1} ${2} ${3}'
```



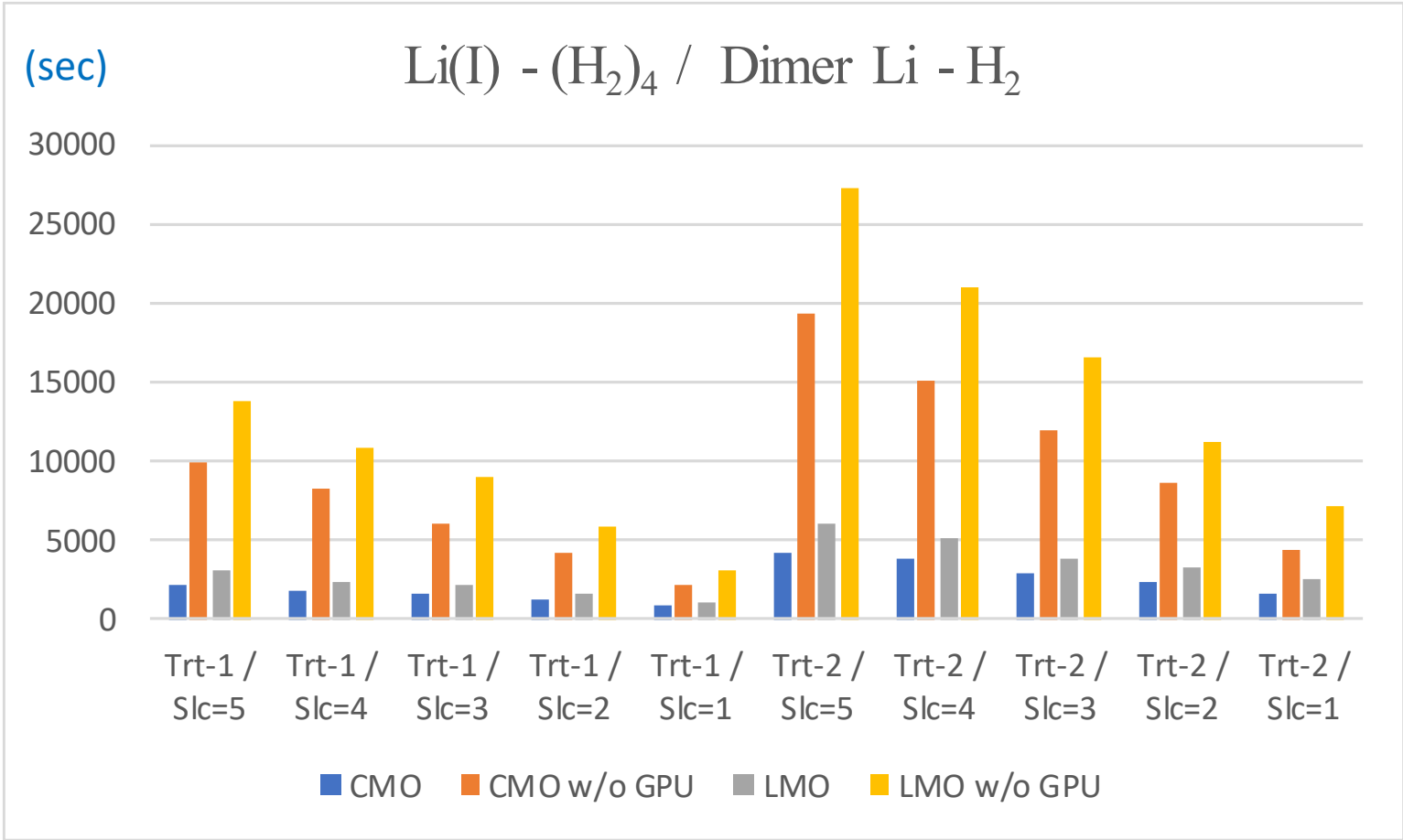
引数のリストをパイプで渡す: "dimer 21 1 2"など
xargsは"-n 4"で引数4つ、"-P 10"が10並行

FMOと量子計算(VQE-UCCSD)の接続の試み(続)#2

計算時間(平均): **Li(I)-(H₂)₄**

時間のかかるLi(I)-H₂のダイマーの結果をプロット

- ・ トロッター次数を1→2で2倍の時間増
- ・ スライス幅1→5で徐々に増加
- ・ LMOではCMOの1.4倍ほどの増加
- ・ GPUによる加速は約4倍
- ・ FMO-CCSDは全計算が0.1秒です

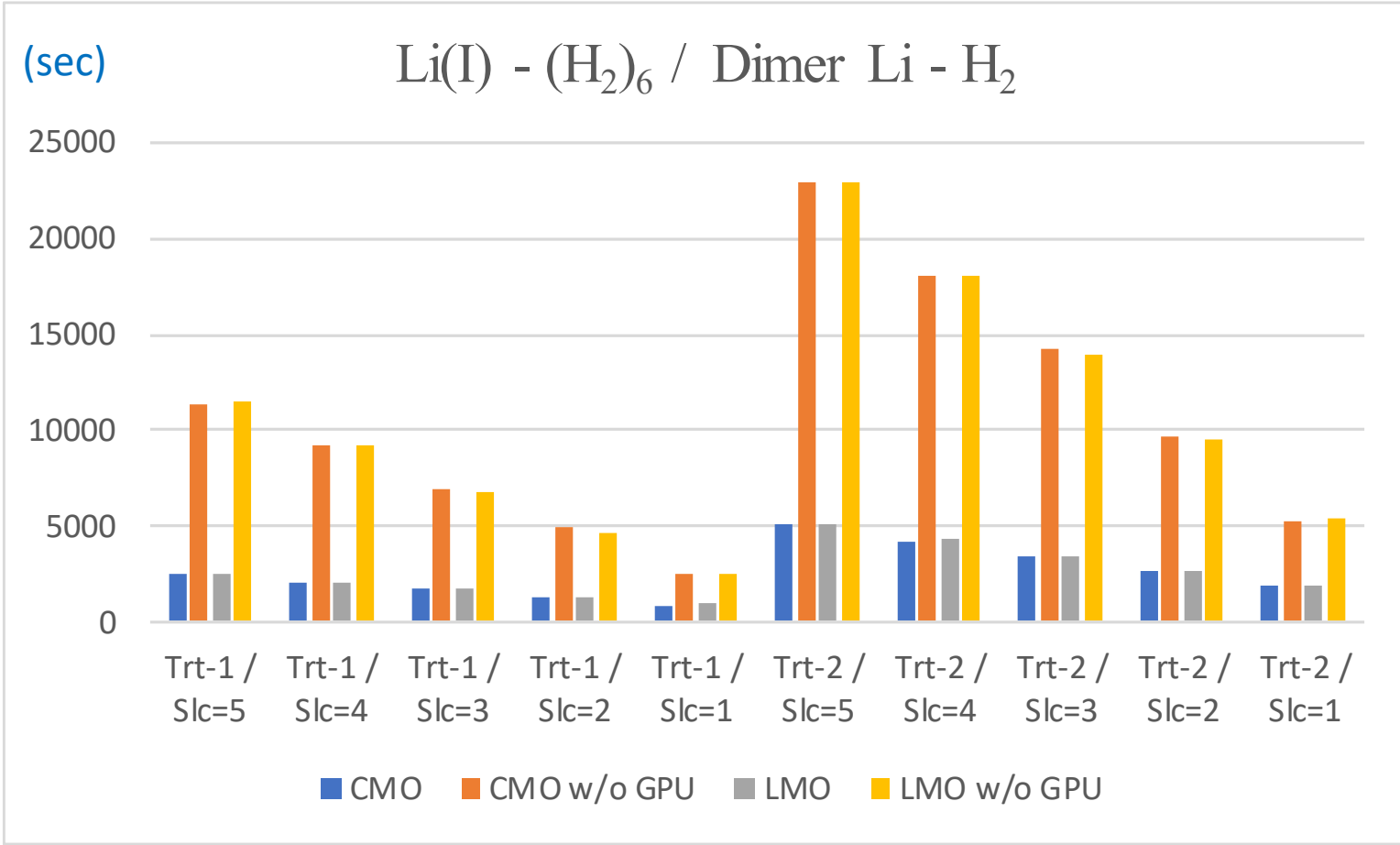


FMOと量子計算(VQE-UCCSD)の接続の試み(続)#3

計算時間(平均): **Li(I)-(H₂)₆**

時間のかかるLi(I)-H₂のダイマーの結果をプロット

- ・トロッター次数を1→2で2倍の時間増
- ・スライス幅1→5で徐々に増加
- ・LMOではCMOの1.4倍ほどの増加
- ・GPUによる加速は4倍超
- ・FMO-CCSDは全計算が0.2秒です



FMOと量子計算(VQE-UCCSD)の接続の試み(続)#4

相関エネルギー: **Li(I)-(H₂)₄**

- ・ スライス幅を変えて外挿すると10⁻⁵の一致が得られる
- ・ LMOの例外(赤字)は最適化が上手くいかなかった?!

Ecorr		MP2	CCSD	CMO	CMO	LMO	LMO
(au)	Ext-UCCSD (Trt-1)			Ext-UCCSD (Trt-2)	Ext-UCCSD (Trt-1)	Ext-UCCSD (Trt-2)	
Monomer							
1	Li(I)	-0.00023	-0.00021	-0.00021	-0.00021	-0.00021	-0.00021
2	H ₂	-0.01319	-0.02058	-0.02058	-0.02058	-0.02058	-0.02058
3	H ₂	-0.01319	-0.02058	-0.02058	-0.02058	-0.02058	-0.02058
4	H ₂	-0.01319	-0.02058	-0.02058	-0.02058	-0.02058	-0.02058
5	H ₂	-0.01319	-0.02058	-0.02058	-0.02058	-0.02058	-0.02058
Dimer							
21	Li(I) - H ₂	-0.01387	-0.02064	-0.02063	-0.02063	-0.02063	-0.02063
31	Li(I) - H ₂	-0.01387	-0.02064	-0.02063	-0.02063	-0.02063	-0.02063
32	H ₂ - H ₂	-0.02643	-0.04122	-0.04122	-0.04122	-0.04122	-0.04124
41	Li(I) - H ₂	-0.01387	-0.02064	-0.02065	-0.02063	-0.02063	-0.02048
42	H ₂ - H ₂	-0.02638	-0.04117	-0.04117	-0.04117	-0.04117	-0.04117
43	H ₂ - H ₂	-0.02643	-0.04122	-0.04122	-0.04122	-0.04122	-0.04123
51	Li(I) - H ₂	-0.01387	-0.02064	-0.02065	-0.02063	-0.02063	-0.02048
52	H ₂ - H ₂	-0.02643	-0.04122	-0.04122	-0.04122	-0.04122	-0.04123
53	H ₂ - H ₂	-0.02638	-0.04117	-0.04117	-0.04117	-0.04118	-0.04117
54	H ₂ - H ₂	-0.02643	-0.04122	-0.04122	-0.04122	-0.04122	-0.04124

FMOと量子計算(VQE-UCCSD)の接続の試み(続)#5

相関エネルギー: **Li(I)-(H₂)₆**

・ スライス幅を変えて外挿すると10⁻⁵の一致が得られる

Ecorr				CMO	CMO	LMO	LMO
(au)		MP2	CCSD	Ext-UCCSD (Trt-1)	Ext-UCCSD (Trt-2)	Ext-UCCSD (Trt-1)	Ext-UCCSD (Trt-2)
Monomer							
1	Li(I)	-0.00023	-0.00021	-0.00021	-0.00021	-0.00021	-0.00021
2	H ₂	-0.01314	-0.02051	-0.02051	-0.02051	-0.02051	-0.02051
3	H ₂	-0.01314	-0.02051	-0.02051	-0.02051	-0.02051	-0.02051
4	H ₂	-0.01314	-0.02051	-0.02051	-0.02051	-0.02051	-0.02051
5	H ₂	-0.01314	-0.02051	-0.02051	-0.02051	-0.02051	-0.02051
6	H ₂	-0.01314	-0.02051	-0.02051	-0.02051	-0.02051	-0.02051
7	H ₂	-0.01314	-0.02051	-0.02051	-0.02051	-0.02051	-0.02051
Dimer							
21	Li(I) - H ₂	-0.01329	-0.02019	-0.02018	-0.02019	-0.02018	-0.02018
31	Li(I) - H ₂	-0.01329	-0.02019	-0.02019	-0.02019	-0.02019	-0.02018
32	H ₂ - H ₂	-0.02640	-0.04117	-0.04118	-0.04117	-0.04117	-0.04118
41	Li(I) - H ₂	-0.01329	-0.02019	-0.02019	-0.02019	-0.02018	-0.02019
42	H ₂ - H ₂	-0.02629	-0.04103	-0.04103	-0.04103	-0.04103	-0.04103
43	H ₂ - H ₂	-0.02640	-0.04117	-0.04117	-0.04117	-0.04117	-0.04117
51	Li(I) - H ₂	-0.01329	-0.02019	-0.02019	-0.02018	-0.02019	-0.02019
52	H ₂ - H ₂	WO corr.	WO corr.	WO corr.	WO corr.	WO corr.	WO corr.

FMOと量子計算(VQE-UCCSD)の接続の試み(続)#6

続: 相関エネルギー: $\text{Li(I)}-(\text{H}_2)_6$

・ スライス幅を変えて外挿すると 10^{-5} の一致が得られる

53	$\text{H}_2 - \text{H}_2$	-0.02629	-0.04103	-0.04103	-0.04103	-0.04103	-0.04103
54	$\text{H}_2 - \text{H}_2$	-0.02640	-0.04117	-0.04117	-0.04117	-0.04117	-0.04117
61	$\text{Li(I)} - \text{H}_2$	-0.01329	-0.02019	-0.02019	-0.02019	-0.02019	-0.02019
62	$\text{H}_2 - \text{H}_2$	-0.02629	-0.04103	-0.04103	-0.04103	-0.04103	-0.04103
63	$\text{H}_2 - \text{H}_2$	WO corr.	WO corr.	WO corr.	WO corr.	WO corr.	WO corr.
64	$\text{H}_2 - \text{H}_2$	-0.02629	-0.04103	-0.04104	-0.04102	-0.04103	-0.04103
65	$\text{H}_2 - \text{H}_2$	-0.02640	-0.04117	-0.04118	-0.04117	-0.04117	-0.04118
71	$\text{Li(I)} - \text{H}_2$	-0.01329	-0.02019	-0.02019	-0.02019	-0.02019	-0.02019
72	$\text{H}_2 - \text{H}_2$	-0.02640	-0.04117	-0.04118	-0.04117	-0.04117	-0.04118
73	$\text{H}_2 - \text{H}_2$	-0.02629	-0.04103	-0.04103	-0.04103	-0.04103	-0.04103
74	$\text{H}_2 - \text{H}_2$	WO corr.	WO corr.	WO corr.	WO corr.	WO corr.	WO corr.
75	$\text{H}_2 - \text{H}_2$	-0.02629	-0.04103	-0.04103	-0.04103	-0.04103	-0.04103
76	$\text{H}_2 - \text{H}_2$	-0.02640	-0.04117	-0.04117	-0.04117	-0.04117	-0.04117

注記: 遠隔モノマーの組ではDimer-ES近似によってHF計算自体がスキップされる

まとめ

■量子コンピュータ(シミュレータ)による量子化学計算

- 重要な応用領域、QPE(量子位相推定)とVQE(変分的量子固有値求解)
- VQEはNISQ世代～FTQC移行過程の「実用的な手法」
- ユニタリー1,2電子結合クラスター(UCCSD)がVQEでの代表手法
- トロッター分解による近似
- 量子シミュレータでcuQuantumなどのGPU加速が効果的、メモリ制約アリ

■FMOとの連携

- 「問題分割」による計算資源量(回路深度など)の低減、同時並行性の導入
- シミュレータでは基底関数は最小のSTO-3Gが「現実的な制約」
- トロッター分解エラーの顕在化、外挿による漸近値推定の必要性
- 各フラグメントの軌道の位相関係で収束性/計算時間が依存
- 通常のFMO-CCSDより数万倍遅い
- 古典計算の最適化部分が「深刻なボトルネック」となっている

■今後の方向性

- 量子計算のシミュレーション(+実機)とHPCの接続に期待
- QPEなどの非VQEアプローチの検討、(擬似)量子アニーリングも視野

論文報告(オープンアクセス)

<https://doi.org/10.1093/chemle/upaf145>

CHEMISTRY LETTERS

Issues

Advance Articles

More Content ▼

Submit ▼

Purchase

About ▼

Chemistry Letters ▼



Volume 54, Issue 8
August 2025
(In Progress)

Article Contents

Abstract

Acknowledgments

Supplementary data

Funding

References

Author notes

Supplementary data

JOURNAL ARTICLE

Concurrent processing of VQE-UCCSD calculations with the FMO scheme

Hideo Doi , Kenji Sugisaki , Tatsuya Nakano , Takahiro Katagiri , Yuji Mochizuki 

Author Notes

Chemistry Letters, Volume 54, Issue 8, August 2025, upaf145,

<https://doi.org/10.1093/chemle/upaf145>

Published: 22 July 2025 **Article history ▼**



PDF

Split View

Cite

Permissions

Share ▼

Abstract

The fragmentation-based method has attracted interest as a way to reduce the computational cost of quantum chemical computations. Using the variational quantum eigensolver (VQE) of unitary coupled cluster singles and doubles (UCCSD), concurrent processing was used alongside the fragment molecular orbital scheme for the $\text{Li(I)}-(\text{H}_2)_n$ ($n = 4$ and 6) clusters on a supercomputer with a graphical processing unit (GPU)-accelerated quantum simulator. Energy and timing data of VQE-UCCSD are presented to highlight issues in practical applications.