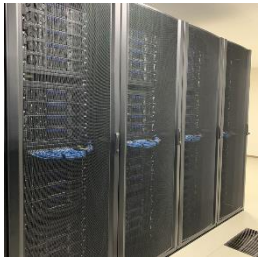


ABINIT-MP

FMOプログラムABINIT-MPの次世代化

課題代表者: 望月祐志(立教大)

fullmoon@rikkyo.ac.jp

共同研究者:中野達也(国立衛研)、坂倉耕太(FOCUS)、
片桐孝洋、星野哲也(名大)、大島聡史(九大)、森脇吉隆(東医歯大)、
滝沢寛之(東北大)、加藤季広(NEC)、
杉﨑研司、泰岡顕治、平野秀典、山本詠士、森義治(慶応大)、
土居英男、奥脇弘次(立教大)

謝辞: hp220352&hp230017&hp240030課題(「富岳」)
NECとの共同研究(SX-Aurora TSUBASA関係)

① FMO計算とABINIT-MPプログラム

FMO Original; K. Kitaura et al., *Chem. Phys Lett.* **313** (1999) 701. / General Ref.; M. Gordon et al., *Chem. Rev.* **112** (2012) 632.

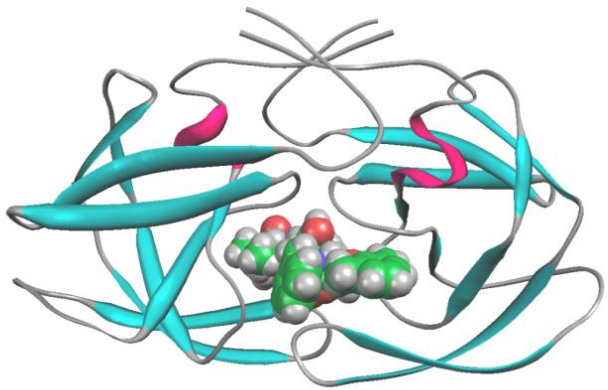
フラグメント分子軌道（FMO）法

◇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）

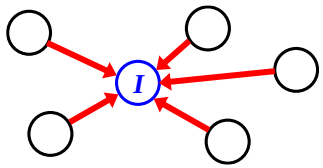
⇒ 定量性を高める電子相関の導入も直截

フラグメント間の相互作用エネルギー（IFIE）

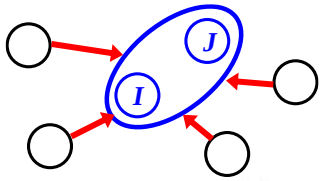
⇒ 計算対象の解析ツール

⇒ 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)

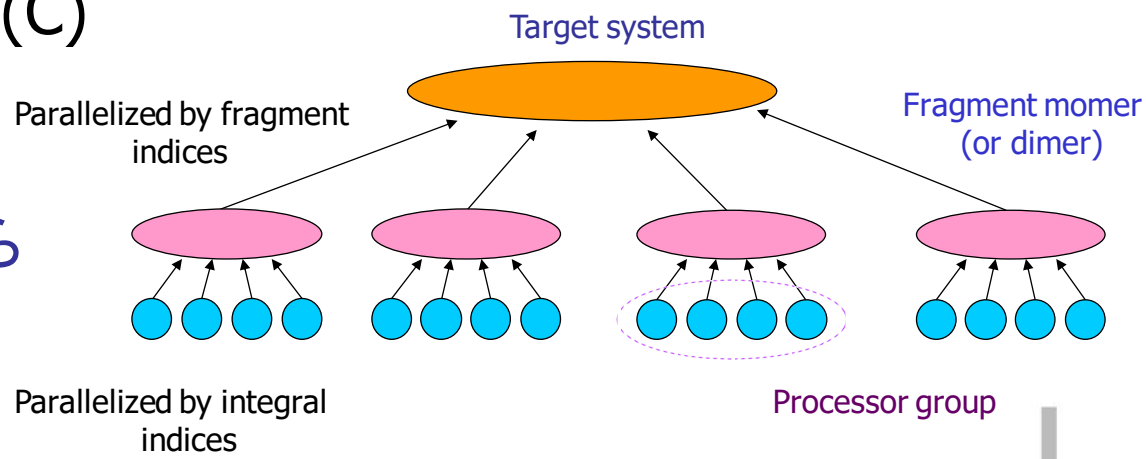
⇒ MPI並列

◇OpenFMO; 稲富、鬼頭ら

FMO-HF (C)

⇒ 超並列指向

2階層の並列処理で計算資源を有効利用



Ref.; “The ABINIT-MP program”, Y. Mochizuki et al. in “*Recent Advances of the Fragment Molecular Method*” (Springer, 2021).

ABINIT-MPの主な機能（オープンシリーズとして整備中）

http://www.cenav.org/abinit-mp-open_ver-2-rev-4/

- エネルギー
  - → FMO4：HF, MP2
  - → FMO2：HF～CCSD(T), LRD
  - → FMO2: CIS/CIS(D)
- エネルギー微分
  - → FMO4：HF, MP2
  - → FMO2：MP2構造最適化, MD
- その他機能
  - → SCIFIE, PB, sp2-BDA, α(ω)
  - → 電子密度生成, CAFI, FILM
- 並列化環境（PC~スパコン）
  - → MPI, OpenMP/MPI混成
  - → 最深部はBLAS処理

Open Ver. 1 （ポスト「京」のPJで整備）
- Rev. 5 (2016年12月)
- Rev. 10 (2018年2月)
- Rev. 15 (2019年3月)
- Rev. 22 (2020年6月)；当面は併存

Open Ver. 2 （「富岳」の時代に移行）
- Rev. 4 (2021年9月)
- Rev. 8 (2023年8月)
- Rev. 12 (2024年12月予定)

（注記：Ver. 2系では、BioStation Viewerへのデータファイルの書出しを廃止した）

リリース状況のまとめ（2024年6月時点）

◇Ver. 1系の最終リリース版はRev. 22（2020年6月3日）

f関数のサポート（直交10成分のみ）
MFMOによる指定領域のみでのMP2&MP3計算
加速されたPIEDA（「富岳」の新型コロナPJの中で改良）

◇「富岳」時代でVer. 1からVer. 2へ移行 - Open Ver. 2 Rev. 4（2021年9月16日）

単一構造サンプルでの可視化的解析の「限界」
統計的な相互作用解析の重要性 （MDベースで百～千サンプル構造を対象）
大規模系の扱いの必要性 （タンパク質の液滴モデルは数万フラグメントに）
可視化ツールによる解析を「諦め」（ダンプ用データがメモリを圧迫）
HPC分野の専門家とコラボしての高速化 （特に「富岳」などのA64FX向け）
基本のMP2計算ではVer. 1 Rev. 22比で1.2～1.4倍の加速

◇最新リリース版 - Open Ver. 2 Rev. 8（2023年8月25日）

PIEDA機能の強化 （分散力寄与の区別、静電相互作用のRESP評価）
MFMOでの励起エネルギーとイオン化エネルギーの算定
更なる高速化を実施、MP2計算はVer. 1 Rev. 22比で1.5～2倍の加速
素で2万フラグメントの液滴モデルの扱い （「富岳」では多サンプル処理が可）

更新による高速化（A64FXスパコン「不老」Type I上）

HIV-protease + Lopinavir = 203 frag.

Timing of FMO-MP2/cc-pVDZ job (24 threads / 204 process).

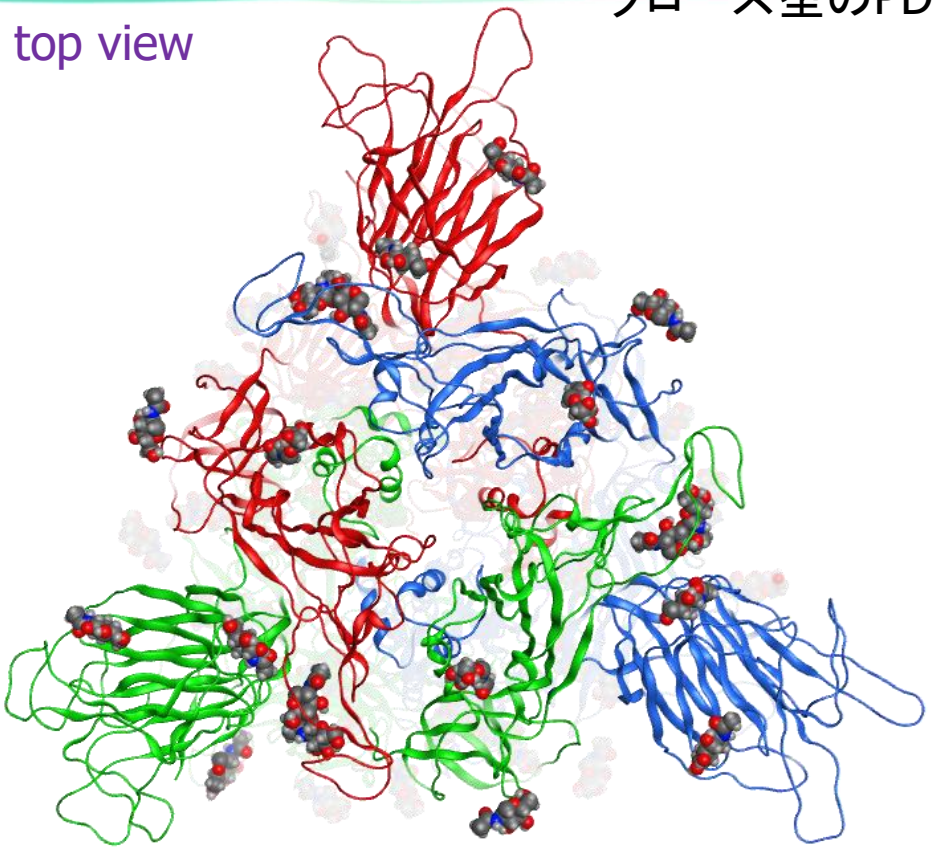
Timing in second	V1 R22	V2 R4	V2 R8
Elapsed time: Monomer SCF	864.9	617.8	387.4
Elapsed time: Monomer MP2	21.6	20.1	18.3
Elapsed time: Monomer (Total)	890.9	642.2	410.0
Elapsed time: Dimer ES	198.0	204.5	178.6
Elapsed time: Dimer SCF	421.8	344.0	260.8
Elapsed time: Dimer MP2	354.1	344.2	344.4
Elapsed time: Dimer (Total)	1205.6	1091.7	909.8
Elapsed time: FMO (Total)	2096.5	1733.9	1319.8
Total time	2101.4	1737.2	1323.2
Relative Acceleration	1.0	1.2	1.6

- 積分の高速化が奏功 （ダイマーSCFでも有効）
- モノマーSCC段階での積分バッファリングも効果的
- ダイマーES近似も若干の高速化

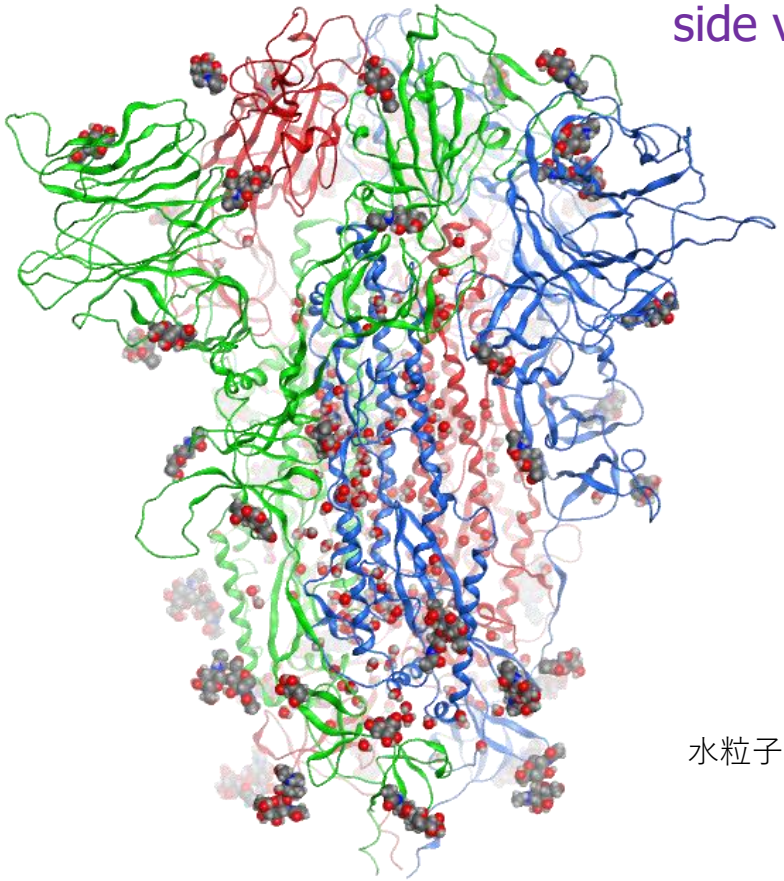
スパイクタンパク質の水和モデルの扱い

クローズ型のPDB-ID=6XLU

top view



side view



水粒子非表示

・液滴モデルの総数1.8万フラグメントを水のクラスタリングのスクリプトで1万弱に低減
・糖鎖部分も考慮、Glnとの結合もスクリプトで切断
・FMO-MP2/6-31G*ジョブ、8ラック（3072ノード）で約2時間で完走
・オープン型のPDB-ID=6XM0では対イオン周りのHF未収束が続発 （解決策は次コマ）

新SX-ATでのMP2の再評価

Ver. 2 Rev. 4のベクトル化対応例

Before

```
134:          allocate(xxxx_work(ngklmax,6,ncsp))
137:          klrs=0
138: +------>    do kl=1,ncsp
139: |V----->      do nrs=1,ngkl(kl)
140: ||             xxxx_work(nrs,1,kl) = xxxx(klrs+nrs,1,1,1,1)
141: ||             xxxx_work(nrs,2,kl) = xxxx(klrs+nrs,1,1,2,1)
142: ||             xxxx_work(nrs,3,kl) = xxxx(klrs+nrs,1,1,3,1)
143: ||             xxxx_work(nrs,4,kl) = xxxx(klrs+nrs,1,1,4,1)
144: ||             xxxx_work(nrs,5,kl) = xxxx(klrs+nrs,1,1,5,1)
145: ||             xxxx_work(nrs,6,kl) = xxxx(klrs+nrs,1,1,6,1)
146: |V-----      end do
147: |           klrs=klrs+ngkl(kl)
148: +------    end do
```

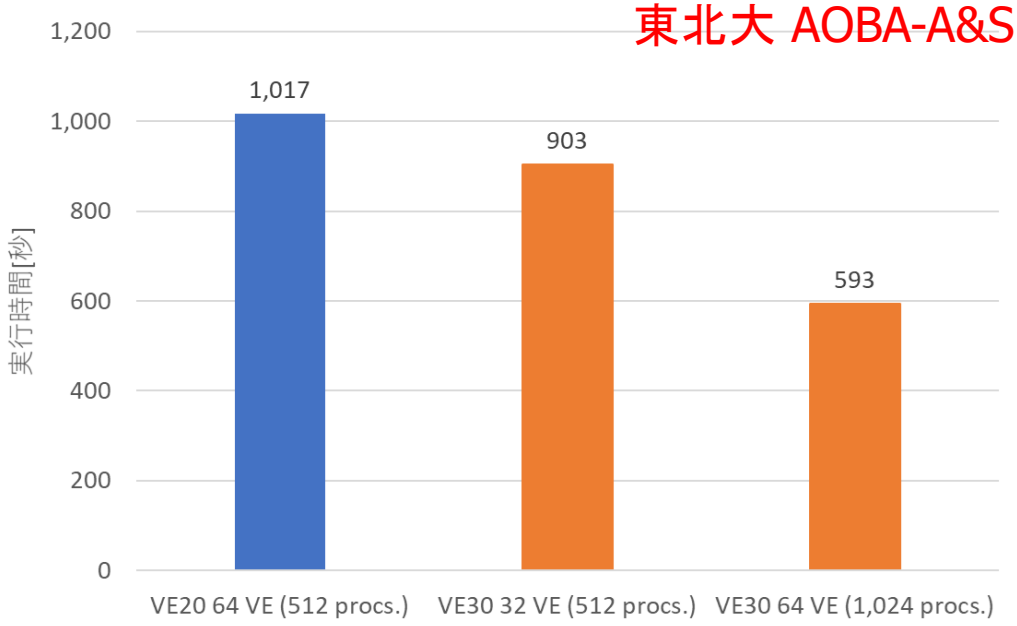
After

```
139:          allocate(xxxx_work(ncsp,ngklmax,6))
153: +------>    do nrs=1,ngklmax
154: |V----->      do kl=1,ncsp
155: ||             if(nrs .le. ngkl(kl)) then
156: ||             klrs = klrs_work(kl)
157: ||     G       xxxx_work(kl,nrs,1) = xxxx(klrs+nrs,1,1,1,1)
158: ||     G       xxxx_work(kl,nrs,2) = xxxx(klrs+nrs,1,1,2,1)
159: ||     G       xxxx_work(kl,nrs,3) = xxxx(klrs+nrs,1,1,3,1)
160: ||     G       xxxx_work(kl,nrs,4) = xxxx(klrs+nrs,1,1,4,1)
161: ||     G       xxxx_work(kl,nrs,5) = xxxx(klrs+nrs,1,1,5,1)
162: ||     G       xxxx_work(kl,nrs,6) = xxxx(klrs+nrs,1,1,6,1)
163: ||             endif
164: |V-----      end do
165: +------    end do
```

ループ入れ換えで1.4～2倍の加速

6LU7のFMO-MP2/6-31G*ジョブ

東北大 AOBA-A&S



Flat MPI / NP=4条件

- Flat MPI (NP=4)条件での実行
- 同一VE数ではVE30はVE20の1.7倍高速
- 同一プロセス数では1.1倍の改善
- L3キャッシュの効果

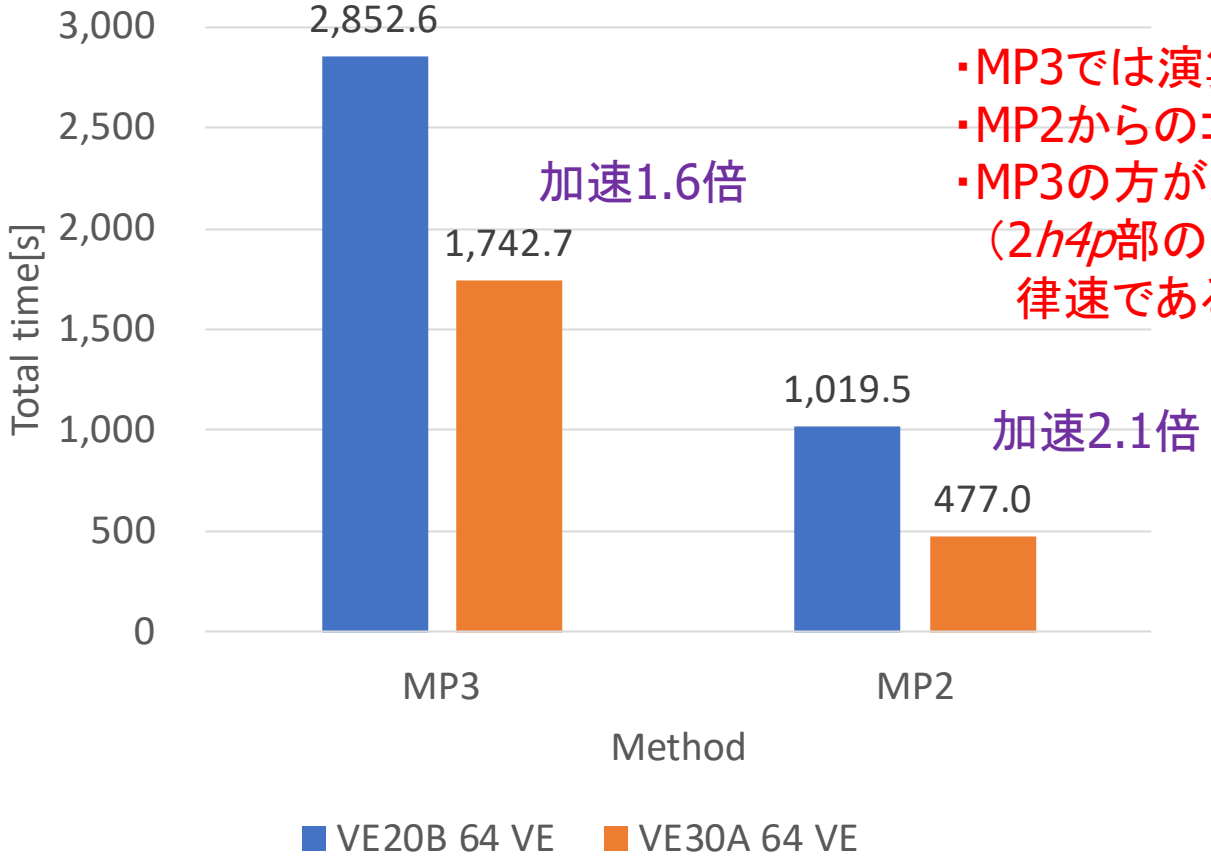
測定；加藤氏（NEC）

新SX-ATでのMP2とMP3の比較

同じVE数

NEC社内機

HW	Method	Memory	Total time[s]	GFLOPS	演算量[TFLOP]	メモリ[GB/VE]
VE20B 64 VE	MP3	40000	2,852.6	12,307.4	35,108.0	46.8
	MP2	40000	1,019.5	6,266.1	6,388.3	46.3
VE30A 64 VE	MP3	40000	1,742.7	20,169.6	35,149.6	92.3
	MP2	40000	477.0	13,478.2	6,429.1	91.4



・MP3では演算量が約6倍
・MP2からのコスト増は約3倍
・MP3の方が加速が低下
（2*h4p*部のFock的処理が律速であることが判明）

OpenMP/MPI
混成並列

HPCI拠点でのライブラリ整備（2024年6月時点）

赤:A64FX, 緑:SX-Aurora TSUBASA, 紫:Xeon

■登録サイトと版

- 北大「Grand Chariot」： Ver. 1 Rev. 22 & Ver. 2 Rev. 4
- 東北大「AOBA-A/S」： Ver. 1 Rev. 22 & Ver. 2 Rev. 4 & Ver. 2 Rev. 8 (vec.)
- 東大「Wisteria / Odyssey & Aquarius」： Ver. 1 Rev. 22 & Ver. 2 Rev. 4
- 分子研「RCCS」： Ver. 1 Rev. 22 & Ver. 2 Rev. 4
- 名大「不老 / Type I & II」： Ver. 1 Rev. 22 & Ver. 2 Rev. 4 & Ver. 2 Rev. 8
- 京大「Camphor3」： Ver. 1 Rev. 22 & Ver. 2 Rev. 8
- 阪大「SQUID」： Ver. 1 Rev. 22 & Ver. 2 Rev. 8 (vec.)
- R-CCS「富岳」： Ver. 1 Rev. 22 & Ver. 2 Rev. 4 & Ver. 2 Rev. 8
- 計算科学振興財団「FOCUSスパコン」： Ver. 1 Rev. 22 & Ver. 2 Rev. 4
- 九大「ITO Subsystem-A」： Ver. 1 Rev. 22 & Ver. 2 Rev. 4 (to be replaced)

- Ver. 1 Rev. 22はBioStation Viewerとの関係で当面は併存
- Ver. 2 Rev. 8も2024年度内に随時整備の予定
- HPCI拠点のスパコン機種更新に応じた対応も適宜行う方針（北大、東大、JAMESTEC、東工大（仕掛中）、分子研、九大）

GPU対応の必要性

■背景

・GPUスパコンの遍在化

⇒ 「Wisteria」Aquarius&Mercury、「不老」Type II、Oakforest PACS-II…

⇒ 使われている分野はAI、量子シミュレーション、MD…

・ネクスト「富岳」

⇒ 「アクセラレータ」の搭載は（ほぼ）確定

・MO系の計算がGPUに対応済

⇒ 高名なTeraChem、GAMESS-USも対応（GPU化FMO専用コードも在り!）

⇒ 国内でも先行例在り（安田ら、梅田ら、鬼頭ら）

■対応策

・ABINIT-MPも2電子積分生成などのGPU化が必要

⇒ FMO-HF計算をまず改良

⇒ MP2計算はDGEMM化で相対的には対応は容易と想定（?!）

・ABINIT-MP本体は巨大に過ぎる

⇒ HF計算のみを切り出したミニアプリを作成

⇒ NVIDIAの成瀬彰氏のチューニングで全体で6-8倍の加速を確認

・ABINIT-MPのGPU化を作業中

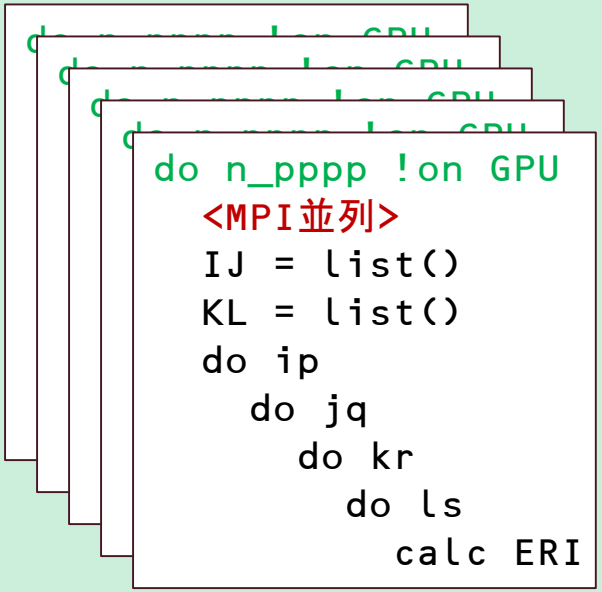
⇒ 積分ルーチン群の再構成（81種→21種へ低減）から着手

GPU化の擬似ループ（モノマー部分）

```
do SCC-iteration
  do monomer-Loop
    <MPI並列>
    do SCF-ieration
      do I-Shell
        do J-Shell
        <MPI/OpenMP並列>
          do K-Shell
            do L-Shell
              select case(ang-type)
              81通りの2電子積分計算
```

GPU化

```
do SCC-iteration
  do monomer-Loop
    set index table for GPU
    sort angluar momentum type ERI
    do SCF-ieration
      21通りの積分タイプに再編
```



軌道角運動量タイプ別に集約した
ループ構造に改変

測定；坂倉氏（FOCUS）

予備的な性能評価

Wisteria-A(Aquarius)
CPU:Intel Xeon Platinum 8360Y
GPU:NVIDIA A100
Profiler:NSIGHT SYSTEMS

FMO2/Chignolin/6-31G/HF

Chignolin：10残基（138原子）
（データ規模は小さいが、フラグメントサイズ大）

ルーチン名	GPU化	CPU1core+1GPU（秒）		CPU1core（秒）	備考
set_nshtable	未	20.0		-	INDEXテーブル作成
monomer_esp_ele	未	120.4		125.9	モノマー環境静電ポテンシャル
dimer_esp_ele	未	39.2		39.6	ダイマー環境静電ポテンシャル
dimer_oneint	未	9.1		9.2	ダイマー1電子積分
direct_scf_gmat	済	35.7	x61.7	2198.2	2電子積分＋FOCK生成
others	未	19.2		21.2	
Total		**243.6**		**2394.1**	

set_nshtableはGPU化、MPI化にてコストは極小になる

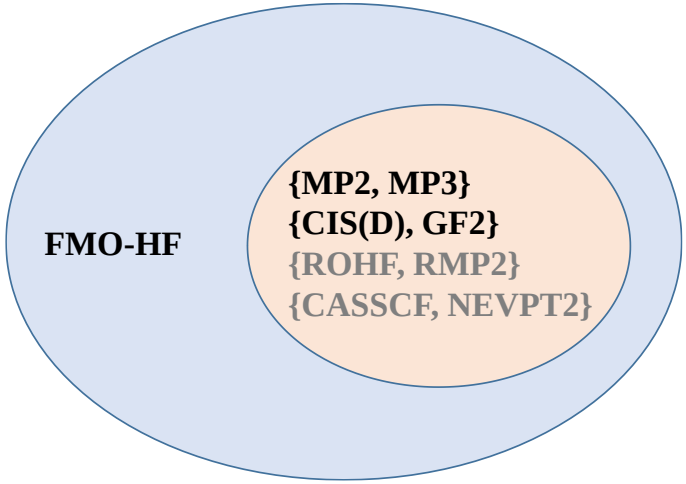
GPU化した「2電子積分＋FOCK生成」は60倍の高速化

個々の積分生成では30～70倍の加速

ABINIT-MPの改良・更新

- 汎用スパコン向け： 高速化と大規模（複雑）系対応
  ⇒ AT技術の導入、フラグメント情報の分散化
- GPU化の推進： 先ずFMO-HF計算
  ⇒ 1電子積分、静電ポテンシャル生成、ES近似なども対象
- サロゲート化： 低コスト計算から高コスト計算の結果を予測
  ⇒ 粗視化シミュレーション向けでは下準備済（hp240013）
- 開殻・多参照系の扱い： MFMOの注目領域に適用
  ⇒ ROHFはテスト中、相関計算はRMP2の予定
  ⇒ CASCIエンジンは開発済、軌道最適化は今後実装

MFMOでの開殻・多参照系の扱い



GPU化ループのスケッチ

```
do scc-iteration
  do 1,nf <MPI>
    do scf-iteration
      do one-int-loop
      do eri-loop with GPU
      do eri-loop (dddp,dddd)
  enddo
enddo
<mp2 processing>

do dimer-loop <MPI>
  do scf-iteration
    do one-int-loop
    do eri-loop with GPU
    do eri-loop (dddp,dddd)
  enddo
enddo
<mp2 processing>
```

② AlphaFold2関係
（タンパク質構造予測）

<https://icts.nagoya-u.ac.jp/ja/sc/news/general/2023-07-05-alphafold.html>.

「不老」Type IIでのライブラリ更新

整備; 大島氏、森脇氏

AlphaFold更新のお知らせとcxgfs-shareリソースグループのご案内「7月5日更新」

「導入履歴」

- 2021年11月　AlphaFold v2.1.1
- 2022年 2月　AlphaFold v2.1.2
- 2022年 3月　AlphaFold v2.2
- 2023年 4月　AlphaFold v2.3.1
- 2023年 7月　AlphaFold v2.3.2「7月5日更新」

このたびAlphaFoldの新バージョンv2.3.2の提供を開始いたしました。また、DBについてもたびたび更新を行ってきましたが、現在導入してあるDBをAlphaFold v2.1系で使おうとするとエラーが発生することがあることが確認されました。 v2.1系やv2.2系を使いたいという強い要求がある場合以外は是非v2.3.2をご利用ください。

また、AlphaFoldの実行時間短縮にはSSD(NVMesh)の利用が効果的である一方、 複数のGPUを使ってもあまり効果がないようですので、 NVMesh利用可能かつ1GPUのみ占有の**cxgfs-share**リソースグループも是非ご利用ください。 **cxgfs-share**リソースグループではインタラクティブジョブの実行も可能ですのであわせてご活用ください。 （例：pjsub --interact -L rscgrp=cxgfs-interactive）

AlphaFold v2.3.2の実行用ジョブスクリプト（サンプル）は以下に置いてあります。
monomeモデルとmultimerモデルを用意しました。

- /center/local/app/x86/AlphaFold/v2.3.2/samples/run_nvmesh_monomer.sh
- /center/local/app/x86/AlphaFold/v2.3.2/samples/run_nvmesh_multimer.sh

上記スクリプトの最終行で呼ばれるスクリプトは以下です。 実行時のオプションなどがご自身の想定実行とあわない場合はこのスクリプトをコピーし修正して活用してください。

- /center/local/app/x86/AlphaFold/v2.3.2/alphafold/bin/alphafold_nvmesh

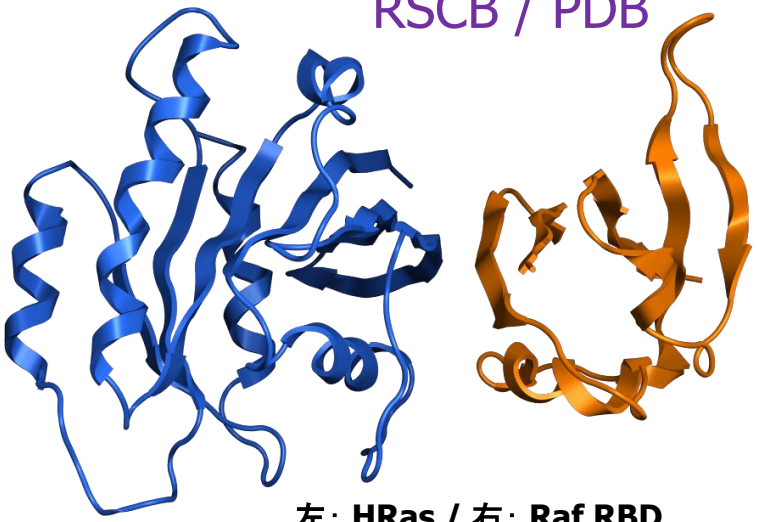
上記スクリプトが参照している最新のAlphaFold用DBは以下に置いてあります。

- /beegfs/share/alphafold/db-v2.3

DBを一部入れ替えて使いたい場合は、alphafold_nvmeshファイル末尾の引数を調整してご利用ください。

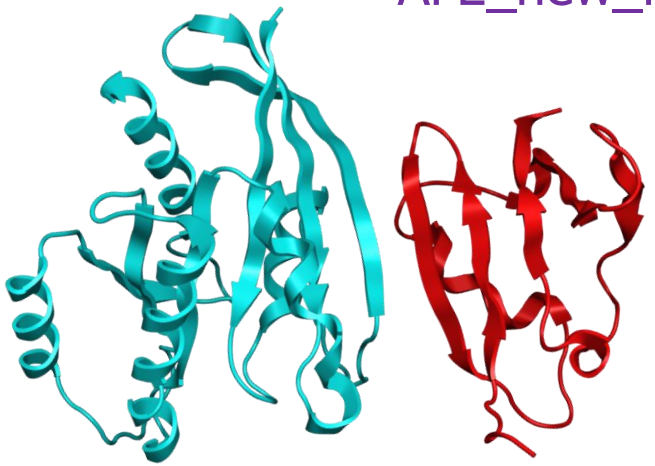
PIEDAによるAF2予測構造の検証例(PDB-ID=3KUD)#1

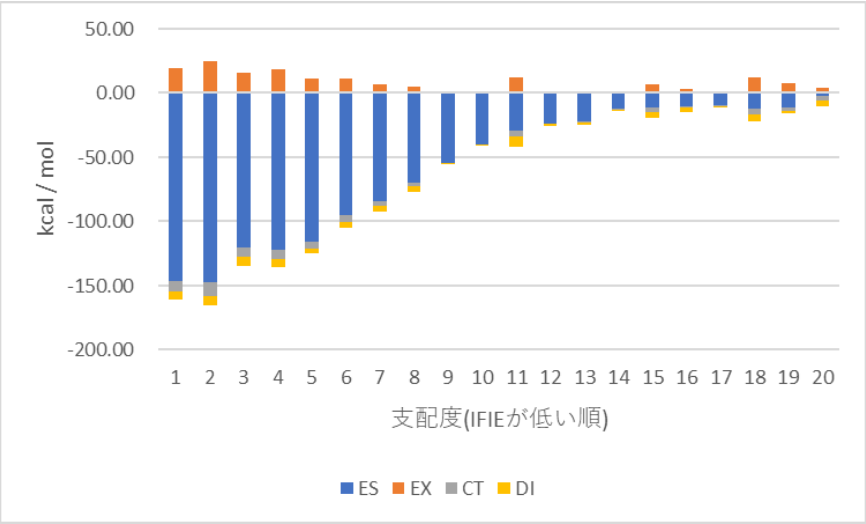
RSCB / PDB

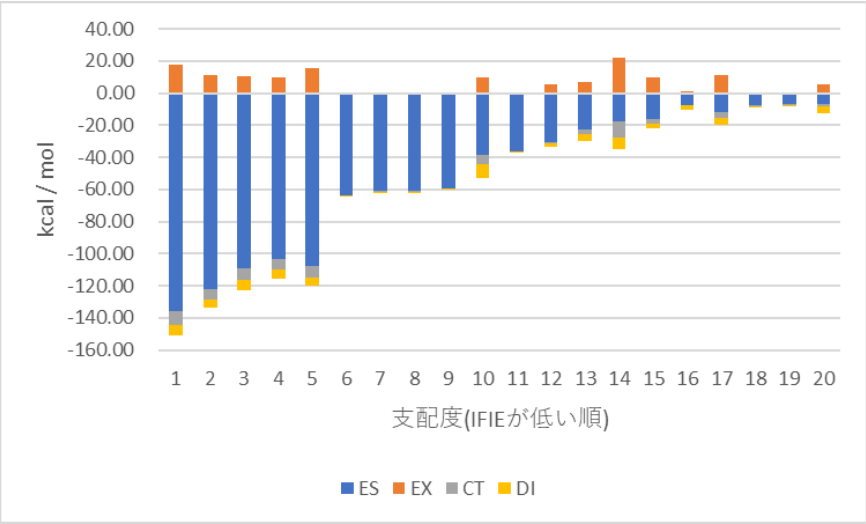


左：HRas / 右：Raf RBD

AF2_new_rank0



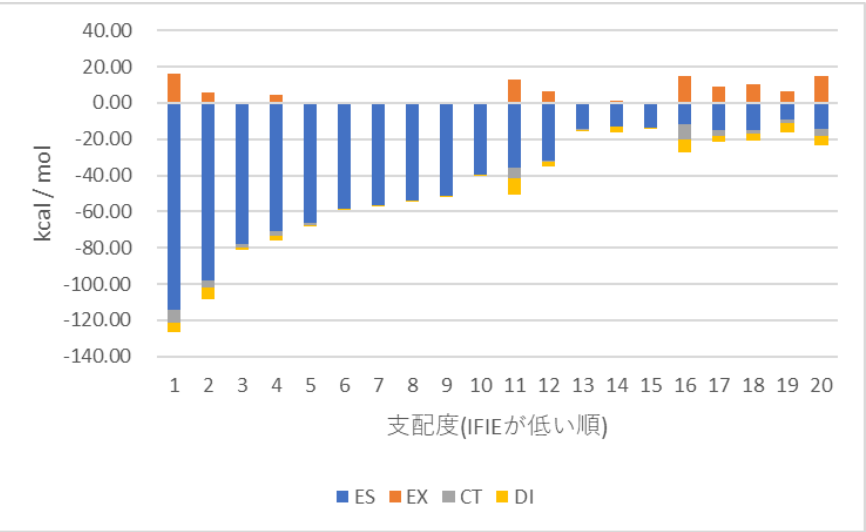


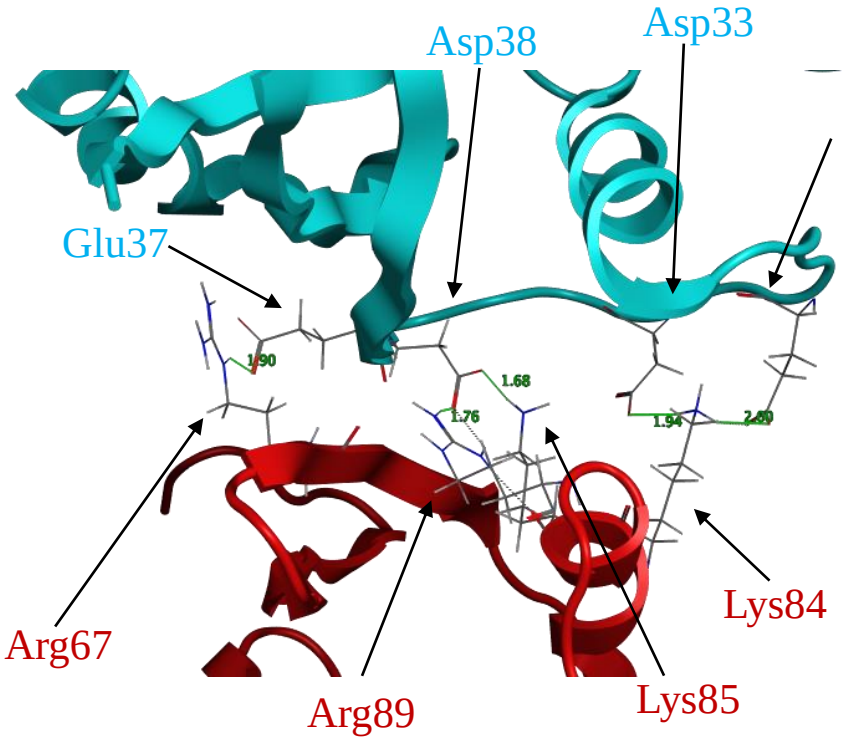


PIEDAによるAF2予測構造の検証例(PDB-ID=3KUD)#2

界面構造の予測には未だ課題…

ColabFold_rank1





・IFIEの低い20ペアのHRasとRCSBとの違い

失活　Pro34、Tyr40

増加　Thr35

・IFIEの低い20ペアのRafとRCSBとの違い

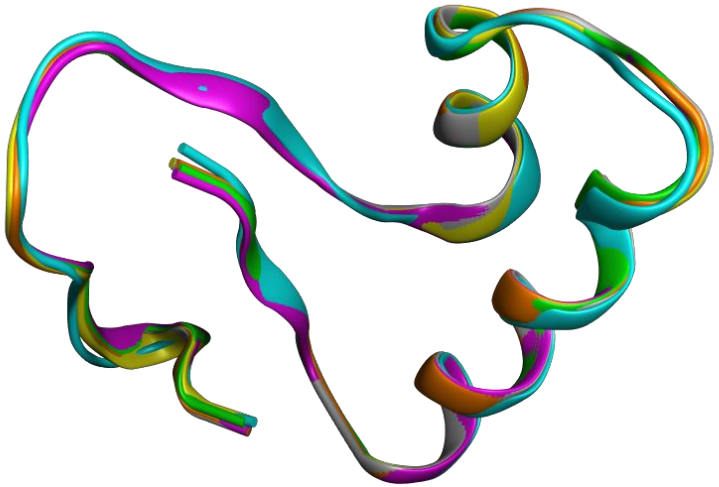
失活　なし

増加　Val69、Thr68、Asn64

AF2の予測構造の検証：側鎖に注目

- Crambinの重ね合わせ

構造の色：RCSB、AF2_rank0,1,2,3,4

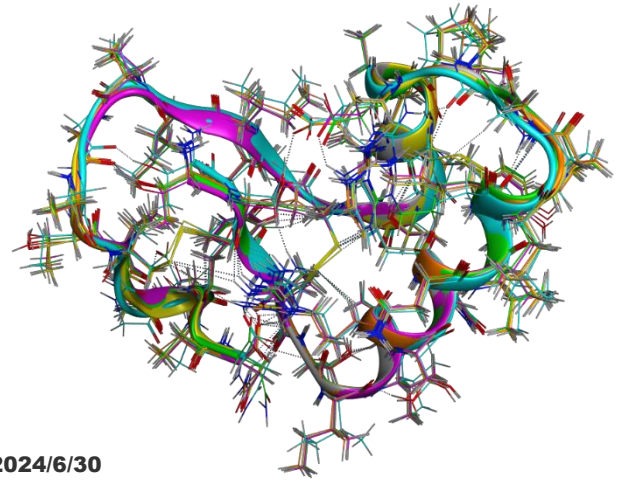


RCSBの構造を基準とした
RMSD（距離の平均二乗偏差）

Pairwise RMSD Matrix: RMSD = 0.345 A

	1	2	3	4	5	6
1: RCSB	0.00	0.50	0.46	0.52	0.57	0.53
2: ranked_0.A	0.50	0.00	0.18	0.20	0.22	0.16
3: ranked_1.A	0.46	0.18	0.00	0.23	0.29	0.15
4: ranked_2.A	0.52	0.20	0.23	0.00	0.17	0.23
5: ranked_3.A	0.57	0.22	0.29	0.17	0.00	0.24
6: ranked_4.A	0.53	0.16	0.15	0.23	0.24	0.00

4.0 3.5 3.0 2.5 2.0 1.5 1.0 0.5 0.0



- AF2が予測したCrambinの実構造とのズレはrank0～4を通して約0.5 Åであったため、主鎖の折り畳みは十分に再現されていた

③ cuQuantum関係
（量子シミュレーション）

Ref.; K. Sugisaki et al.,. *Electr. Struc.* **5** (2023) 035006.

B原子等電子系のスピン軌道分裂エネルギー算定

杉﨑氏

ベイス推定量子位相推定アルゴリズムの数値シミュレーションにかかった実時間/秒

# of qubits for wave function mapping	Workstation[a]	Supercomputer "Flow" Type II subsystem[b]	
	CPU only	CPU only	with GPU
8	628	731	177
10	2197	2267	588
16	73452	—	4830
18	387328	—	9081

x 4.13
x 3.86
x 15.2
x 42.7

[a] CPU: Intel Xeon-Gold 6134, GPU: None
[b] CPU: Intel Xeon-Gold 6230, GPU: NVIDIA Tesla V100

- WSでは1年かかる計算（≒無理）
- GPUスパコンでは1週間で完了

FMO計算と量子計算(UCCSD)の接続の試み#1

杉﨑氏

J. Comp. Chem.
https://onlinelibrary.wiley.com/doi/full/10.1002/jcc.27438

Journal of COMPUTATIONAL CHEMISTRY

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

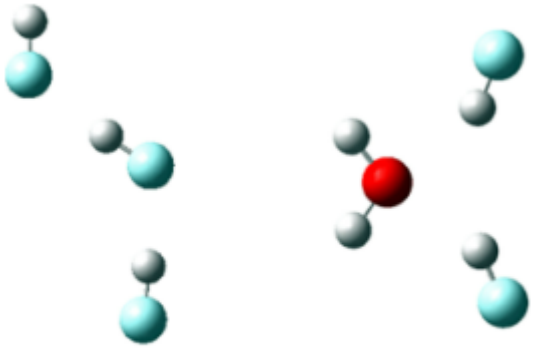
First published: 25 May 2024 | https://doi.org/10.1002/jcc.27438

SECTIONS PDF TOOLS

- 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
- cuQuantumシミュレータでのGPU加速
- 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
- 局在化軌道を使う方がベター
- 「基礎研究」の位置づけ

Abstract

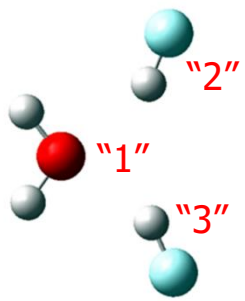
The fragment molecular orbital (FMO) scheme is one of the popular fragmentation-based methods and has the potential advantage of making the circuit shallow for quantum chemical calculations on quantum computers. In this study, we used a GPU-accelerated quantum simulator (cuQuantum) to perform the electron 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 $(FH)_2$-H_2O 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 $(FH)_2$-H_2O. 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.



$(FH)_3$ $(FH)_2$-H_2O

FMO計算と量子計算(UCCSD)の接続の試み#2

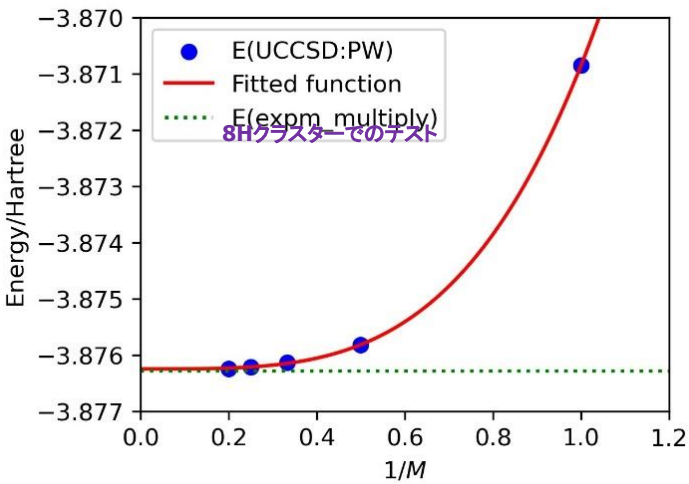
トロッター分解のエラーで対称性が壊れえる!
（正準軌道か局在化軌道にも依存）



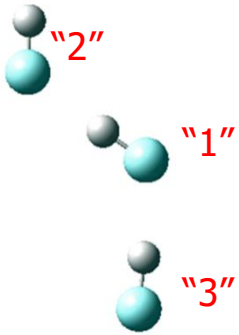
(C_{2v} point group)

Unit	UCCSD:PW	CAS-CI
Monomer		
"1"	−0.049231	−0.049445
"2"	−0.026692	−0.026705
"3"	−0.026659	−0.026705
Dimer		
"21"	−0.071421	−0.075600
"31"	−0.072544	−0.075600
"32"	−0.053207	−0.053549
Sum.	−0.094590	−0.101895

スライス幅を変えて極限値を予測
（スライスは同時並行処理可能）



GPUによる加速は7倍超



Unit	UCCSD:CB with GPU	UCCSD:CB without GPU	UCCSD:CB Acceleration	UCCSD:PW with GPU	UCCSD:PW without GPU	UCCSD:PW Acceleration
Monomer						
"1"	17.2	27.8	1.62	27.6	48.3	1.75
"2"	15.5	33.6	2.17	28.5	55.4	1.94
"3"	16.2	26.8	1.65	26.5	49.3	1.86
Dimer						
"21"	12767.5	93205.0	7.30	34153.3	260996.7	7.64
"31"	13947.1	94199.7	6.75	34397.3	237695.3	6.91
"32"	8805.9	59975.6	6.81	21129.0	156257.2	7.40

量子位相推定計算での検証

https://arxiv.org/abs/2406.09830

FeMocoなど生体内金属クラスターの扱いのための基礎研究

杉﨑氏

arXiv > quant-ph > arXiv:2406.09830

Search...

Help | Adva

Quantum Physics

[Submitted on 14 Jun 2024 (v1), last revised 17 Jun 2024 (this version, v2)]

Does the full configuration interaction method based on quantum phase estimation with Trotter decomposition satisfy the size consistency condition?

Kenji Sugisaki

QPEは配置爆発問題を回避して求解可能の潜在力アリ

Electronic structure calculations of atoms and molecules are expected to be a promising application for quantum computers, and two important algorithms, the quantum phase estimation (QPE) and the variational quantum eigensolver (VQE), have been widely studied. The condition that the energy of the dimer consisting of two monomers separated by a large distance should be twice of the energy of the monomer, known as a size consistency, is very important in quantum chemical calculations. Recently, we reported that the size consistency condition can be broken by the Trotterization in the unitary coupled cluster singles and doubles (UCCSD) ansatz in VQE, when the molecular orbitals delocalized to the dimer are used (K. Sugisaki et al., J. Comput. Chem., published online; DOI: https://doi.org/10.1002/jcc.27438). It is well known that the full configuration interaction (full-CI) energy is invariant with arbitrary rotations of molecular orbitals, and therefore the QPE-based full-CI in principle satisfies the size consistency. However, Trotterization of the time evolution operator has a chance to break the size consistency conditions. In this work, we investigated whether or not the size consistency condition can be maintained by the Trotterization of the time evolution operator in the QPE-based full-CI calculations. Our numerical simulations revealed that the size consistency of the QPE-based full-CI is not automatically violated by using the molecular orbitals delocalized to the dimer, but the use of an appropriate Trotter decomposition condition is crucial to satisfy the size consistency condition. Acceleration of the QPE simulations with sequential addition of ancillary qubits is also reported.

Comments: 7 pages, 7 figures. Revised Figure 3
Subjects: **Quantum Physics (quant-ph)**
Cite as: arXiv:2406.09830 **[quant-ph]**
(or arXiv:2406.09830v2 **[quant-ph]** for this version)
https://doi.org/10.48550/arXiv.2406.09830

将来的にはMFMOとの連携を想定

ABINIT-MPの開発に関する論文リスト（2024年6月）

（赤字: HPC分野の先生方 / 紫字: HPC分野の技術者方）

■英文

(1) "Electron-correlated fragment-molecular-orbital calculations for biomolecular and nano systems", S. Tanaka*, Y. Mochizuki*, Y. Komeiji, Y. Okiyama, K. Fukuzawa, *Phys. Chem. Chem. Phys.*, **16** (2014) 10310-10344.

(2) "The ABINIT-MP Program", Y. Mochizuki*, T. Nakano, K. Sakakura, Y. Okiyama, H. Watanabe, K. Kato, Y. Akinaga, S. Sato, J. Yamamoto, K. Yamashita, T. Murase, T. Ishikawa, Y. Komeiji, Y. Kato, N. Watanabe, T. Tsukamoto, H. Mori, K. Okuwaki, S. Tanaka, A. Kato, C. Watanabe, K. Fukuzawa (pp. 53-67) in *Recent Advances of the Fragment Molecular Orbital Method - Enhanced Performance and Applicability*, ed. Y. Mochizuki, S. Tanaka, K. Fukuzawa (January 2021, Springer).

■邦文

(1) "FMOプログラムABINIT-MPの開発状況と機械学習との連携", 望月祐志*, 坂倉耕太, 秋永宜伸, 加藤幸一郎, 渡邊啓正, 沖山佳生, 中野達也, 古明地勇人,奥沢明, 福澤薫, 田中成典, *J. Comp. Chem. Jpn.*, **16** (2017) 119-122.

(2) "FMOプログラムABINIT-MPのOakForest-PACS上での多層並列化と性能評価", 渡邊啓正*, 佐藤伸哉, 坂倉耕太, 齊藤天菜, 望月祐志, *J. Comp. Chem. Jpn.* **17** (2018) 147-149.

(3) "ABINIT-MP Openシリーズの最新の開発状況について", 望月祐志*, 秋永宜伸, 坂倉耕太, 渡邊啓正, 加藤幸一郎, 渡辺尚貴, 奥脇弘次, 中野達也, 福澤薫, *J. Comp. Chem. Jpn.*, **18** (2019) 129-131.

(4) "FMOプログラムABINIT-MPの整備状況2020", 望月祐志*, 坂倉耕太, 渡邊啓正, 奥脇弘次, 加藤幸一郎, 渡辺尚貴, 沖山佳生, 福澤薫, 中野達也, *J. Comp. Chem. Jpn.*, **19** (2020) 142-145.

(5) "FMOプログラムABINIT-MPの整備状況2021", 望月祐志*, 中野達也, 佐藤伸哉, 坂倉耕太, 渡邊啓正, 奥脇弘次, 大島聡史, 片桐孝洋, *J. Comp. Chem. Jpn.*, **20** (2021) 132-136.

(6) "FMOプログラムABINIT-MPの整備状況2022", 望月祐志*, 中野達也, 坂倉耕太, 渡邊啓正, 佐藤伸哉, 奥脇弘次, 秋澤和輝, 土居英男, 大島聡史, 片桐孝洋, *J. Comp. Chem. Jpn.*, **21** (2022) 106-110.

(7) "FMOプログラムABINIT-MPの整備状況2023", 望月祐志*, 中野達也, 坂倉耕太, 奥脇弘次, 土居英男, 加藤季広, 滝沢寛之, 成瀬彰, 大島聡史, 星野哲也, 片桐孝洋, *J. Comp. Chem. Jpn.*, **23** (2024) 4-8.

注記: (5)以降が、JHPCN課題を通じたHPC分野の方々とのコラボレーションによるVer. 2系の報告