arXiv:2602.02695v1 [quant-ph] 2 Feb 2026

将变分量子算法集成到原子模拟工作流中

Wilke Dononelli[1], *

[1] 不来梅大学物理与理论化学研究所、不来梅计算材料科学中心及MAPEX材料与过程中心，Leobener Str. 6，D-28359不来梅，德国。 * 通讯至wido@uni-bremen.de

摘要

在这项工作中，我们介绍了将 Qiskit Nature 的量子化学求解器集成到原子模拟环境（ASE）中，从而实现用于力驱动原子模拟的混合量子-经典工作流。这种耦合使变分量子本征求解器（VQE）及其自适应变体（ADAPT–VQE）不仅可用于基态能量计算，还可通过 ASE 的计算器接口管理几何优化、振动频率分析、应变评估和分子动力学。将 ADAPT–VQE 应用于 BeH_2，等多电子系统后，我们获得的振动和结构性质与在相同最小基组下通过高精度经典 CCSD 计算得到的结果高度一致。这些结果表明，自适应变分量子算法能够在原子建模工作流中提供稳定且具有化学意义的力，从而支持分子动力学和主动学习加速模拟等下游应用。



1 引言

量子算法的进展引发了人们对其补充经典电子结构问题求解方法潜力的浓厚兴趣，尤其是在高精度方法的陡峭计算复杂度变得难以承受的情况下。在原子建模中，催化设计、电池材料发现和分子光谱学等广泛应用，都依赖于对电子薛定谔方程的精确求解 [1, 2, 3, 4, 5, 6]。单重激发与双重激发耦合簇（CCSD）以及包含微扰三重激发的 CCSD(T) [等高精度经典方法，], 通常被视为量子化学的黄金标准 [7], ，能够达到接近化学精度的结果，但其计算成本随系统规模迅速增长，通常分别为 $\mathcal{O}(N^6)$ 和 $\mathcal{O}(N^7)$。这种增长趋势大幅限制了这些方法在实际中应用于小分子以外的体系。

早期用于化学的量子算法，例如量子相位估计（QPE）[8,9], ，虽有望获得精确本征值，但所需的电路深度远超含噪中等规模量子（NISQ）设备的能力[10]。变分量子本征求解器（VQE）[11] 作为一种量子—经典混合策略应运而生，通过结合量子处理器上的态制备与测量，以及对参数化波函数拟设的经典优化，大幅降低了电路深度。化学驱动的拟设，例如单重激发与双重激发幺正耦合簇（UCCSD）[12, 7] ，已得到广泛采用；此外还有硬件高效形式 [13] ，以及 k-UpCCGSD [14]等低深度推广形式。量子子空间展开 [15]和量子比特耦合簇 [16] 等进一步改进，则在表达能力与电路资源之间取得平衡。

然而在实践中，许多演示仅限于所谓的“玩具系统”——针对极小分子进行的最小基组计算——在这些计算中，量子测量是精确的，参数也很容易收敛。这类示例验证了实现方案，却未能展现化学层面的实用价值。对于面向工作流程的应用，必须在有限采样（测量次数）、噪声测量和具有挑战性的经典优化等条件下，获得多电子系统中准确且*稳定*的力与振动性质。尤其是，分子动力学和结构探索对不同几何构型下力的一致性要求严格，因此，相较于单点能量精度，力的稳健性才是原子建模中量子算法面临的核心瓶颈。对于更大的系统，基于期望值的变分算法 [17] 所需的大量测量开销，以及高维参数景观 [18] 中的贫瘠高原等优化问题，还会进一步加剧这些挑战。

NISQ时代近期的算法进展着重于减少所需的量子资源，并改善现实量子化学问题的收敛性。自适应拟设构造是颇具前景的工具之一，例如自适应导数组装伪Trotter VQE（ADAPT–VQE）[19, 20], ，它根据能量梯度选择最重要的激发算符，迭代构建拟设。这种方法可生成紧凑且针对特定系统的量子线路，在精度和收敛性方面均表现出改进，尤其是在强关联区域[19, 20, 21, 22]。与此同时，研究人员也致力于进一步压缩量子线路并提高波函数表示的准确性，例如采用经变换的哈密顿量（TC） [21], ，通过Jastrow因子变换 [23, 24, 25]显式纳入电子-电子相关。近期研究 [21]表明，将TC方法与AVQITE、VQE等自适应量子算法相结合，可以

显著降低量子线路的深度和宽度、加快收敛并增强抗噪性，从而有助于将这些方法应用于需要反复、可靠地评估力的迭代原子级工作流。

在软件生态系统层面，Qiskit Nature [26], 作为 Qiskit SDK [27], 的一部分，提供了 VQE、ADAPT–VQE 及相关算法的稳健实现，并可与 PySCF 等经典量子化学软件包提供的分子积分进行对接。

然而，其当前适用范围仅限于孤立的量子化学计算；它并未直接提供更广泛的原子建模功能——几何优化、振动分析和分子动力学，而这些功能是材料与分子模拟工作流程的基础。相关研究曾探索将变分量子算法与原子级环境对接，主要聚焦于单点能或力评估，但未涉及长时间动力学模拟的需求。此前的研究探索了将变分量子本征求解器与原子级模拟环境对接，包括在 ASE 框架中进行力评估 [28, 29]。相比之下，本研究着重于结合 ADAPT-VQE 力与在线主动学习，实现计算上可行的分子动力学。Nishida [29]提出了一种量子电路学习方法，以预训练前馈模型取代变分优化；而本研究则保留变分量子算法，并通过经典主动学习在工作流程层面解决其计算成本问题。

在此，我们将 Qiskit Nature 的量子—经典求解器集成到广泛使用的原子模拟环境（ASE） [30] 中，作为基于变分量子算法的力驱动原子级工作流的支持层。这样一来，ASE 的几何优化、振动频率分析、应变评估和分子动力学中的电子结构计算步骤便可使用变分量子本征求解器（VQE）或 ADAPT–VQE 完成，并将模拟器所得结果返回 ASE 的性质接口。该集成支持以量子对应项直接替换经典电子结构计算器，同时保留周边的原子级工作流。先前研究探索了将变分量子本征求解器与原子级模拟环境对接，包括在 ASE 框架内进行力评估 [28, 29]。这些工作主要聚焦于概念验证性质的几何优化或单点力评估，未涉及长时间分子动力学或力驱动工作流所带来的挑战。相比之下，本研究着重将自适应变分量子算法与在线主动学习相结合，以实现计算上可行的分子动力学模拟。

通过将通用工作流程集成与 ADAPT–VQE 等先进量子算法相结合，我们旨在展示，在混合量子–经典框架下，可以为多电子多原子体系获得稳定且具有化学意义的力。进而，这使几何优化、振动分析和分子动力学等下游应用成为可能，而非将量子算法局限于孤立的单点计算。以下章节将详细介绍实现方法、与经典 CCSD 的基准测试结果，以及从简单双原子分子、三原子分子到力驱动动力学模拟等代表性应用。不过请注意，本研究中的所有计算仍是在使用最小基组的条件下进行的。但这一发现应可推广至更大的基组大小，因此，本文所述工作流程未来可用于更大规模的体系。在此背景下，嵌入与分区方法仅对化学相关的子系

统进行量子力学处理，而以经典方法处理环境，为将此类工作流程扩展至更大、更复杂的体系提供了一条很有前景的途径 [31],，尽管这超出了本研究的范围。

尽管该代码能够以混合模式在真实的 NISQ 设备上运行，但此处我们聚焦于模拟设备以及变分量子本征求解器和 ADAPT–VQE 算法。这一选择使我们能够系统研究与动力学模拟相关的收敛行为和力的稳定性，而未来的工作可将该框架扩展到更先进的算法以及真实设备上的执行。

该代码已在 https://github.com/thequantumchemist/ase_quantum_vqe/ 公开提供，可供使用和修改。

2 计算方法

本工作的核心是一个自定义 ASE 计算器，它将 Qiskit Nature 电子结构计算封装在 ASE 的 [30] 标准接口中。在该实现中，由 ASE Atoms 对象描述的几何结构被传递给 PySCFDriver [32] （Qiskit Nature 中） [26], ，后者使用指定的高斯基组计算体系的单电子和双电子积分。所得的二次量子化费米子哈密顿量通过 Jordan–Wigner 映射 [33]映射为量子比特算符。

随后，使用包含单激发和双激发的酉耦合簇拟设（UCCSD） [12, 7], 并结合 Hartree–Fock 参考态来准备变分量子本征求解器（VQE）。除固定的 UCCSD 拟设外，该计算器还支持通过 ADAPT–VQE 构建自适应拟设，其中根据能量梯度迭代选择激发算符并将其附加到变分量子电路中。变分参数由经典优化器（若无另行说明，本文采用 SLSQP）进行优化，其代价函数由从 Qiskit Estimator 获得的期望值给出。该计算器具有灵活性，既可使用 qiskit-aer 的态矢量模拟器 *Aer* 模拟器 ，也可通过 Qiskit Runtime 服务连接到 IBMQ 后端，从而允许在运行时指定令牌和后端选择。详细工作流程见图 1。

以原子单位计算的总能量被转换为电子伏特，以供 ASE 使用。力通过中心有限差分以数值方式确定：将每个原子坐标位移一小步并重新计算能量。为确保力在几何优化、振动分析和分子动力学中的一致性，一次力评估中所有位移后的几何结构均复用相同的电子结构设置和收敛阈值，从而尽量减少连续力调用之间的数值噪声。偶极矩以原子单位从 Qiskit Nature 的内部辅助算符中提取，并转换为德拜，以便与 ASE 的偶极矩属性兼容，从而可直接使用红外模块计算红外光谱。

ASE 中的集成支持预定义的默认设置。下面展示两个示例输入脚本：一个简单示例演示如何对 H_2分子进行黑箱几何优化，另一个更高级的示例演示对 H_3^+ 进行全局优化，随后进行局部优化、振动分析和应变评估。

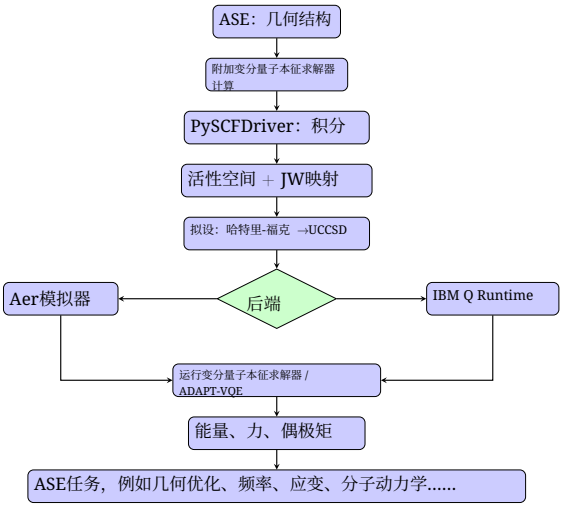


图1：ASE–QiskitVQECalculator的紧凑工作流程：ASE将几何结构传递给Qiskit Nature，以便在选定后端上执行变分量子本征求解器/ADAPT-VQE，并将能量、力和性质返回给ASE。

H_2 分子几何优化的最简示例：

```
从 ase.build 导入 molecule
从 ase.optimize.bfgs 导入 BFGS
从 ase_quantum_vqe.qiskit_vqe_calculator 导入 QiskitVQECalculator

原子 = molecule('H₂')
原子.calc = QiskitVQECalculator()

opt = BFGS(原子, trajectory='opt.traj')
opt.run()
```

该算法采用默认参数，例如在 *Aer* 模拟器上运行，而非使用真实后端。也可根据需要指定更高级的参数。下方展示了一个对 H_3^+ 分子进行频率计算和应变分析的示例：

在上述示例中，使用 ASE [34, 35] 中实现的能量分布判断法（*JEDI*）进行应变分析。在进行振动分析或 *JEDI* 分析之前，使用 ASE 中实现的 BFGS [36, 37]（Broyden–Fletcher–Goldfarb–Shanno）算法进行结构优化，最大作用力的收敛判据为 0.005 eV/Å。分子动力学模拟采用 ASE 的朗之万动力学 [38]。由于直接进行 VQE 力评估的计算成本对于扩展的分子动力学而言过高，因此采用 FALCON 框架 [39]进行在线主动学习。在此方法中，模拟过程中会训练高斯过程代理模型，并有选择地通过 VQE 计算进行查询，从而在保持量子力学力保真度的同时，实现稳定且计算上可行的分子动力学轨迹。

除非另有说明，所有计算均采用 STO-3G 基组。尽管该基组不足以实现化学精度的绝对预测，但它允许在固定表示内对量子与经典方法进行可重复的基准测试，并保持电路规模

```
from ase import Atoms
from ase.optimize.bfgslinesearch import BFGSLineSearch as BFGS
from ase_quantum_vqe.qiskit_vqe_calculator import QiskitVQECalculator
from ase.vibrations import Vibrations
from strainjedi.jedi import Jedi
from ase.optimize.minimahopping import MinimaHopping
from ase_quantum_vqe.qiskit_vqe_calculator.utils import /
        random_positions_with_min_distance as random_pos

# 创建分子
位置 = random_pos(n_原子=3, min_dist=0.6, box_size=3.0)
原子 = Atoms("H3", 位置=位置)

# 设置计算器
计算器 = QiskitVQECalculator(
    基组='最小基组 STO-3G',
    后端='Aer 模拟器'，
    n_任务=18,
    电荷=1,
    自旋=0,
    增量=0.01 ，
    测量次数=2000 ，
    弹性 -级别=0 ，
    优化器_名称='COBYLA',
    核心轨道=0，
    最大迭代次数=100)

原子.calc = calc

# 全局优化
跳跃 = 最小值跳跃(atoms, Ediff0=2.5, T0=4000.0)
跳跃(totalsteps=50)

# 局部优化
dyn = BFGS(原子, 轨迹='h3_vqe.traj')
dyn.run(fmax=0.005)

# 振动分析 vib = 振动(atoms, name='vibvqe',nfree
=2) vib.run() vib.summary() 海森矩阵 = vib.get_
vibrations()


# 位移结构 atomsb =atoms.copy()
atomsb.positions[1][2] += 0.1
atomsb.calc = calc atomsb.get_
potential_energy()


# 应变分析 j =Jedi(原子, atomsb, 海森矩阵)
j.set_ 键 _params(covf=2.0, vdwf=0.9)
j.run() j.vmd_gen()
```

与当前模拟器兼容。
代码可在 https://github.com/thequantumchemist/ase_quantum_vqe/ 公开获取，并可使用和修改。

3 结果

3.1 原理验证

本研究的一个关键目标是超越针对单电子和双电子体系的概念验证单点计算，证明量子-经典混合算法，尤其是变分量子本征求解器（VQE）及其自适应变体 ADAPT–VQE，能够在原子建模工作流中提供具有化学意义的性质。除非另有说明，所有电子结构计算均采用最小 STO-3G 高斯基组，以使量子比特数和量子线路维度与当前模拟器及早期量子硬件相兼容。需要注意的是，该基组远小于达到光谱精度所需的基组：由于基组不完备性，与实验相比，绝对振动频率会系统性地偏高。然而，在这一固定基组下，对传统 CCSD、VQE–CCSD 和 ADAPT–VQE–CCSD 进行一致比较，可直接反映量子算法的内在行为。

3.1.1 H_2

作为基准，我们将 ASE–Qiskit 变分量子本征求解器计算器应用于最简单的双原子分子 H_2。从 0.90 Å 的初始键长开始，使用 qiskit-aer 状态向量模拟器上的 UCCSD 拟设进行几何优化，最终收敛至 0.735 Å 的平衡键长，计算得到的总能量为 -30.948 电子伏特。在相同的 STO-3G 基组下进行经典精确计算（直接使用 PySCF 执行），所得键长和能量与上述结果相同，误差在 10^{-5} 电子伏特以内，验证了实现的正确性。谐振振动分析得出，VQE 的伸缩频率为 5002 cm^{-1}，而经典计算结果为 5000 cm^{-1}，相对偏差不到 0.04%。然而，正如预期的那样，使用 $cc\text{-}pVQZ$ 等合适的基组会使键长增加至 0.742 Å，随后频率降至 4409 cm^{-1}。这表明，当前量子设备上的电子结构计算，其主要误差来源并非算法，而是基组截断。

3.1.2 F_2

对于一个更具挑战性的案例，我们考察了氟分子 F_2,，原则上它具有大得多的相关空间。然而，作为简单测试，我们在计算的相关部分采用了冻结芯近似，并仅保留一个双占据轨道作为活性轨道。以 PySCF 中使用 STO-3G 基组的 CCSD 结果作为经典参考值，我们得到的伸缩频率为 1673.2 cm^{-1}，总能量为 –198.365 电子伏特。相比之下，使用固定酉耦合簇单、双激发拟设进行直接的 VQE–CCSD 计算，得到的频率为

7317.2 cm^{-1}，这反映出由于高维拟设中的变分参数难以收敛，以及有限差分力中的数值噪声，频率被严重高估。这个结果令人意外，因为价轨道的数量与 H_2 示例中的相近。

在 VQECalculator 中，力是对略微位移后的几何结构的 VQE 能量进行有限差分得到的。如果在计算每个发生位移的几何结构的能量之前，变分参数尚未完全收敛，有限差分就会引入较大的数值误差。 $+\delta$ 和 $\breve{}\delta$ 位移之间优化质量的任何变化都会加剧噪声。目前，许多 VQE 计算器的实现都会针对每个几何结构（以及力计算中的每个位移）从头开始初始化变分参数。这种冷启动会大幅减慢收敛速度。在经典几何优化中，我们会复用前一个几何结构的分子轨道初猜（波函数延续）。然而，采用这种热启动，从已收敛的参数开始，数值噪声仅略有降低。此外，VQE 中的经典优化器（例如 SLSQP、COBYLA）在这个高维空间中可能从远离真实最小值的位置开始，因此初始状态可能具有较高的能量和较差的力。尽管如此，我们测试了三种不同的优化器，但没有一种能够完全消除数值噪声。然而，即使在模拟器上，如果使用采样（测量次数），测量噪声也会增加不确定性，使数值梯度更加不稳定。在真实设备上，噪声和漂移会进一步放大这一影响。

采用 ADAPT–VQE 流程显著改善了结果。仅经过 10 次自适应迭代，频率即降至 1675.6 cm^{-1}；迭代至 100 次时，该值为 1673.2 cm^{-1}，在振动计算的分辨率范围内与经典 CCSD 参考值已无法区分。相对误差由固定拟设变分量子本征求解器的 $\approx 337\%$ 降至 ADAPT–VQE 的 0.1% 以下，表明对于非平凡体系，自适应拟设对于在近期量子硬件上提取准确的力常数和振动光谱至关重要。基于这一发现，计算器中的默认方法已设置为 ADAPT-VQE。

3.1.3 BeH_2

二氢化铍进一步提高了电子数和空间自由度，对参数优化构成了更大挑战。再次使用 STO-3G 基组的经典 CCSD 预测出三个振动模式，频率分别为 780.4、2303.5 和 2573.8 cm^{-1}。VQE–CCSD 再次产生高度离散的结果，伸缩与弯曲模式偏移达数百 cm^{-1}，例如 1026.5、1444.4 和 2303.2 cm^{-1}，反映出有限位移下数值梯度不稳定（见表 1）。

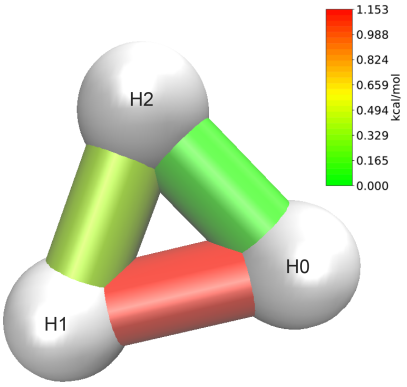
方法	v1	v2	v3
传统耦合簇单、双激发方法	780.4	2303.5	2573.8
变分量子本征求解器耦合簇单、双激发方法	1026.5	1444.4	2303.2
自适应导数辅助变分量子本征求解器耦合簇单、双激发方法	725.7	2303.5	2580.3

表1： BeH_2 振动模式从经典量子化学计算到变分量子本征求解器及ADAPT-VQE结果的比较

在仔细收紧收敛阈值、增加测量次数并延长经典优化器运行后，ADAPT–VQE使光谱趋于稳定，得到725.7、2303.5和2580.3 cm^{-1}。与CCSD基准相比，最大偏差现为最低频率振动模式的 $\approx 7\%$，而高频模式的恢复误差在0.3%以内。这些结果表明，尽管多原子系统中的弯曲振动模式仍对残余试探波函数不完备性和噪声敏感，但与固定拟设 VQE相比，自适应方法在与经典计算结果的一致性上实现了阶跃式提升。

3.2 高级应用

3.2.1 H_3^+：全局优化、振动与应变分析 s



		传统 CCSD	ADAPT-VQE
振动模式（cm^{-1}）	v1	2113.9	2125.9
	v2	2118.7	2127.1
	v3	3446.0	3446.1
应变（kcal/mol）	索引		
bond	H_0 H_1	1.0954471	1.0912963
bond	H_0 H_2	0.0000000	0.0000000
bond	H_1 H_2	0.2352117	0.2350237
键角	H0 H1 H_2	0.1084832	0.1075360
键角	H0 H_2 H1	0.1704137	0.1687706
键角	H1 H0 H_2	0.0069441	0.0068524

图 2： H_3^+ 的振动模式和应变能

为测试超越光谱性质的完整混合工作流，我们通过 ASE 的最小值跳跃算法对三原子阳离子 H_3^+进行了全局极小值搜索。搜索找到了已知的等边最小结构。随后使用 ADAPT–VQE 进行局部几何结构优化和振动分析，得到的振动模式为 2125.9、2127.1 和 3446.1 cm^{-1}，与经典 CCSD 结果 2113.9、2118.7 和 3446.0 cm^{-1}分别吻合良好（参见图 2 中的表格）。接下来，我们通过 JEDI 方法测试了机械应变。沿分子平面方向移动一个氢原子，引入的总应变能为 1.091 kcal mol^{-1}（ADAPT-VQE），而 CCSD 的结果为 1.095 kcal mol^{-1}。键局域应变能的差异在 0.004 kcal mol^{-1}以内，表明 ADAPT-VQE 拟设能够再现与微小几何结构扭曲相关的细微能量变化。

3.3 由使用 VQE 能量与力即时训练的机器学习势增强的分子动力学

作为最后一项演示，我们测试了数值计算得到的 ADAPT–VQE 力是否足够稳健，能否用于长时间分子动力学（MD）模拟。在探讨多电子多原子体系的分子动力学之前，我们首先在最简单的设定下评估力驱动分子动力学的稳定性和效率：H_2

分子。尽管该体系看似简单，却已能检验基于变分量子本征求解器的分子动力学所面临的关键挑战，即如何在长轨迹中保持力的一致性，以及如何尽量减少昂贵的量子计算评估次数。

图 3 展示了使用 ADAPT–VQE 力并结合在线主动学习框架 FALCON 进行的代表性 H_2 分子动力学模拟。上图显示了一条代表性轨迹上的总能量，红色标记表示触发额外 VQE 计算以重新训练机器学习力模型的时间步。中图显示相应的氢—氢键长随时间的变化，表明在整个模拟时间范围内振动运动稳定。下图比较了四次独立的分子动力学运行；这些运行采用相同的模拟参数，但主动学习历史不同，突显了所需量子计算评估次数的差异。

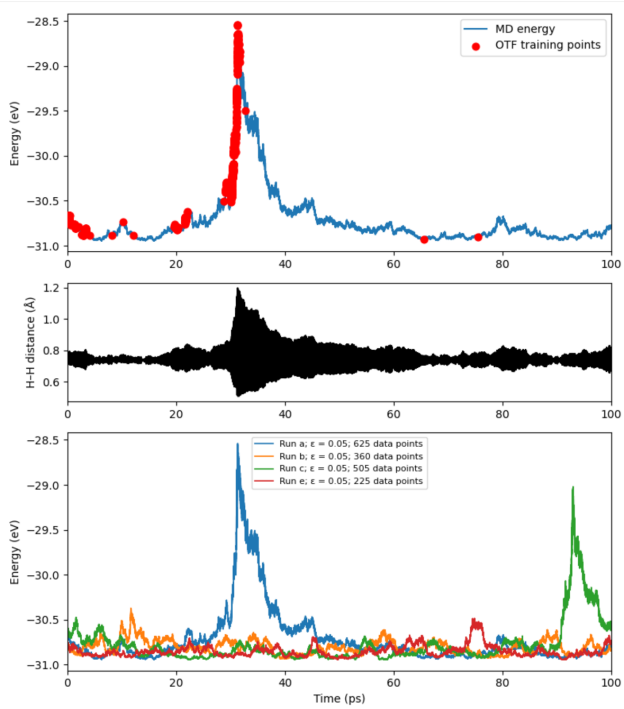


图 3：使用 ADAPT–VQE 力并结合在线主动学习（FALCON）进行的 H_2 分子动力学模拟。上：代表性轨迹上的总能量；红色标记表示为重新训练模型而进行额外 VQE 力评估的时间步。中：相应的氢—氢键长随时间的变化。下：四次独立分子动力学运行的比较，并标注了每种情况下所需的 VQE 计算总次数。

在所有运行中，只需进行有限次数的 VQE 力评估，大多数力调用均由主动训练的代理模型提供。上方面板中的红色标记表明，重新训练事件集中在键显著拉伸的构型空间区域，也就是局部力景观与先前学习的模型偏差最大的区域。对这些区域进行采样后，分子动力学便可稳定进行，无需进一步的量子查询。

这些结果表明，即使对于最小系统，直接分子动力学

若完全由变分量子本征求解器的力驱动，计算开销也会大到难以承受；而将自适应变分量子算法与在线主动学习相结合，则能够实现稳定且高效的轨迹。因此，H_2 示例为力驱动的量子—经典分子动力学提供了原理验证，在拓展至更复杂的系统之前验证了这一工作流程。

在建立了稳定的主动学习加速分子动力学后，我们接下来研究 BeH_2, ，它引入了更多电子、振动模式和非谐力分量，为结合使用 ADAPT–变分量子本征求解器与 FALCON 框架提供了要求高得多的测试。

以优化几何结构下的 BeH_2 为对象，使用我们此前发表的主动学习机器学习算法（FALCON） [39] 运行了 500 fs 的 NVT 模拟，以加速力评估。图 4 展示了该轨迹的示意图。

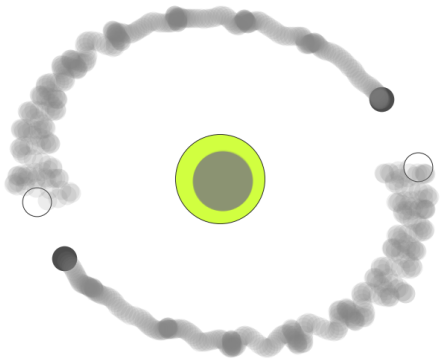


图 4： 室温下 BeH_2 分子动力学运行的轨迹。黑色原子表示起始位置，灰色原子表示中间位置。最终构型中的 H 原子和 Be 原子分别以白色和绿色显示。

该分子在室温下发生旋转。模拟进行 250 fs 后，可以观察到对称伸缩振动。

—

在这些复杂程度逐步提高的系统中，即使基组限制主导了绝对数值，ADAPT-变分量子本征求解器拟设的引入对于实现与高水平经典理论的定量一致仍然至关重要。从 BeH_2 进一步拓展到具有明确几何结构和振动的多电子及多原子系统，使 ASE–Qiskit集成稳稳进入现实应用领域，并表明混合量子-经典原子建模如今已能够在熟悉的模拟环境中实现。

4 结论与展望

本手稿展示了将 Qiskit Nature 的变分量子化学求解器集成到原子模拟环境（ASE）中，从而实现由变分量子算法驱动的原子模拟混合量子-经典工作流。通过

将 ADAPT–VQE 作为可直接替换使用的 ASE 计算器，便可在几何结构优化、振动分析、应变评估和分子动力学等成熟的模拟任务中直接获取电子结构能量、力及其衍生性质。

在小基组和模拟量子硬件所带来的限制下，我们证明了自适应变分拟设对于在多电子系统中获得稳定且具有化学意义的力至关重要。具体而言，在重现双原子和多原子分子的 CCSD 参考几何结构及振动光谱方面，ADAPT–VQE 的表现始终优于固定拟设 VQE。

本研究的一项核心成果是证明，结合在线主动学习后，基于变分量子算法的力驱动分子动力学在计算上变得可行。我们以 H_2 为最简测试案例，证明只需大幅减少显式 VQE 力评估次数，便能生成稳定的分子动力学轨迹；而 BeH_2 则作为要求更高的案例，凸显了 ADAPT–VQE 与 FALCON 结合的工作流程在多电子系统中的稳健性。

这些结果表明，即使直接进行量子计算评估仍然代价高昂，也可以通过面向工作流程的方式，将混合量子-经典原子建模嵌入熟悉的模拟环境中。该方法并非依赖孤立的单点计算，而是通过将自适应量子算法与经典加速技术相结合，实现持续的力驱动模拟。

未来的工作将着重于引入解析梯度、针对特定化学类别的定制拟设，以及适用于真实量子硬件的改进误差缓解策略。除了独立的分子系统，本框架还天然适用于嵌入和多尺度方法，例如量子力学/分子力学或基于子系统的处理方法；在这些方法中，量子资源有选择地用于化学相关区域，而周围环境则以经典方式处理。随着量子硬件在量子比特数量和保真度方面不断发展，本文所展示的集成为将变分量子算法嵌入大规模原子模拟工作流提供了一条切实可行的途径。

5 数据可用性

本研究生成和分析的数据集以及所用脚本均可在 GitHub 上获取，网址为 https://github.com/thequantumchemist/ase_quantum_vqe。FALCON代码可在 GitHub 上获取，网址为 https://github.com/thequantumchemist/ falcon，并可通过 $pip\ install\ falcon\text{-}md$ 安装。

6 作者贡献

WD 完成了所有研究、编码、数据分析和写作工作。

7 利益冲突

作者声明不存在利益冲突。

8 致谢

WD感谢不来梅联邦州和不来梅大学资助的“火星上的人类”倡议中APF项目“按需材料”所提供的资金支持。此外，我们衷心感谢不来梅大学中央研究发展基金的资助。WD感谢Rahel Weiß对代码进行测试。

参考文献

[1] J. K. Nørskov、F. Abild-Pedersen、F. Studt 和 T. Bligaard。表面化学与催化中的密度泛函理论。美国国家科学院院刊，108(3):937–943，2011。[2] Gerbrand Ceder 和 Kristin A. Persson。梦想的材料。《科学美国人》，309(5):36–41，2013。[3] Garnet K.-L. Chan 和 Sandeep Sharma。量子化学中的密度矩阵重整化群。《物理化学年度评论》，62:465–481，2011。[4] Christopher J. Cramer。计算化学基础：理论与模型。威利出版社，第2版，2004。[5] Dominik Marx 和 Jürg Hutter。从头算分子动力学：基础理论与高级方法。剑桥大学出版社，2009。[6] Stefano Curtarolo、Wahyu Setyawan、Gus L. W. Hart、Marco Buongiorno Nardelli、Richard M. Blum、James M. Chem 和 Lucas V. Gibbs。通往计算材料设计的高通量高速公路。《自然·材料》，12(3):191–201，2013。[7] Rodney J. Bartlett 和 Monika Musial。量子化学中的耦合簇理论。《现代物理评论》，79(1):291–352，2007。[8] Alán Aspuru-Guzik、Anthony D. Dutoi、Peter J. Love 和 Martin Head-Gordon。分子能量的模拟量子计算。《科学》，309(5741):1704–1707，2005。[9] Seth Lloyd。通用量子模拟器。《科学》，273(5278):1073–1078，1996。[10] P. J. J. O’Malley、Ryan Babbush、Ian D. Kivlichan、Jonathan Romero、Jarrod R. McClean、James H. Platt、Eunseok Ismail、Nicholas C. Linke、Travis M. Kothari、Bryan Neyenhuis 等。分子能量的可扩展量子模拟。《物理评论*X*》，6(3):031007，2016。[11] Alberto Peruzzo、Jarrod McClean、Peter Shadbolt、Man-Hong Yung、Xiao-Qiang Zhou、Peter J. Love、Alán Aspuru-Guzik 和 Jeremy L. O’Brien。光子量子处理器上的变分本征值求解器。《自然·通讯》，5:4213，2014。

[12] Andrew G. Taube 和 Rodney J. Bartlett。幺正耦合簇理论的新视角。《国际量子化学杂志》，106(15):3393–3401，2006。[13] Abhinav Kandala、Antonio Mezzacapo、Kristan Temme、Maika Takita、Markus Brink、Jerry M. Chow 和 Jay M. Gambetta。面向小分子和量子磁体的硬件高效变分量子本征求解器。《自然》，549(7671):242–246，2017。[14] Joonho Lee、W. J. Huggins、Martin Head-Gordon 和 K. Birgitta Whaley。用于量子计算的广义幺正耦合簇波函数。《化学理论与计算杂志》，15(1):311–324，2019。[15] J. I. Colless、V. V. Ramasesh、D. D. Blokhin、M. S. Blok、S. T. Flammia、J. M. Martinis、J. Kelly、R. Barends、A. G. Fowler、B. Campbell 等。使用抗差错算法在量子处理器上计算分子光谱。《物理评论*X*》，8(1):011021，2018。[16] Ilya G. Ryabinkin、Ting-Chen Yen、Sergey N. Genin 和 Alexey F. Izmaylov。量子比特耦合簇方法：在量子计算机上进行量子化学计算的系统方法。《化学理论与计算杂志》，14(12):6317–6326，2018。[17] Jérôme F. Gonthier、Maxwell D. Radin、Corneliu Buda、Eric J. Doskocil、Clena M. Abuan 和 Jhonathan Romero。测量是近期化学实用量子优势的障碍：资源分析。《物理评论研究》，4(3):033154，2022。[18] Jarrod R. McClean、Sergio Boixo、Vadim N. Smelyanskiy、Ryan Babbush 和 Hartmut Neven。量子神经网络训练景观中的贫瘠高原。《自然·通讯》，9:4812，2018。[19] Harper R. Grimsley、Sophia E. Economou、Edwin Barnes 和 Nicholas J. Mayhall。一种用于在量子计算机上进行精确分子模拟的自适应变分算法。《自然·通讯》，10:3007，2019。[20] Haoyu L. Tang、Vadim Shkolnikov、Tate Markov、Nicholas J. Mayhall、Edwin Barnes 和 Sophia Economou。Qubit-adapt-vqe：一种在量子处理器上构建硬件高效拟设的自适应算法。《*PRX*量子》，2(2):020310，2021。[21] Erika Magnusson、Aaron Fitzpatrick、Stefan Knecht、Martin Rahm 和 Werner Dobrautz。迈向高效量子化学量子计算：通过经变换相关方法和自适应拟设技术降低电路复杂度。《法拉第讨论》，254:402–419，2024。[22] Harper R. Grimsley、G. S. Barron、Edwin Barnes、Sophia E. Economou 和 Nicholas J. Mayhall。自适应、针对问题定制的变分量子本征求解器可缓解崎岖参数景观和贫瘠高原。《*npj*量子信息》，9:19，2023。[23] S. F. Boys 和 N. C. Handy。具有完整电子相关时能量与波函数的确定。《皇家学会会刊*A*辑》，310:43–61，1969。

[24] Joseph O. Hirschfelder. 从多电子哈密顿量中消除电子-电子极点。《化学物理学杂志》，39(12):3145–3156，1963。[25] Werner Dobrautz、Hao Luo 和 Ali Alavi。通过非幺正相似变换获得二维排斥型哈伯德模型的紧凑数值解。《物理评论*B*》，99:075119，2019。[26] Qiskit项目。Qiskit Nature 0.7+，2023。https://qiskit.org/ecosystem/nature/.[27] Qiskit项目。Qiskit，2023。https://qiskit.org/.[28] Shampa Sarkar、Manoj Nambiar 等。面向原子模拟环境（ASE）的变分量子本征求解器能量（vqe-e）和力（vqe-f）计算器接口。*arXiv*预印本 *arXiv:2209.13876*，2022。[29] Y. Nishida。分子动力学模拟用量子电路学习模型的研究。《物理化学杂志*A*》，129(40):9434–9452，2025。[30] Ask Hjorth Larsen、Jens Jørgen Mortensen、Jakob Blomqvist、Ivano E. Castelli、Rasmus Christensen、Marcin Dulak、Jesper Friis、Michael N. Groves、Bjørk Hammer、C. Hargus、Eric D. Hermes、Peter Christian Jennings、Per B. Jensen、James Kermode、John Kitchin、Esben Leonhard Kolsbjerg、Joachim Kubal、Kasper Kaasbjerg、S. Lysgaard、J. B. Maronsson、Timothy Maxson、Thomas Olsen、Lars Pastewka、Andrew Peterson、Carsten Rostgaard、Jakob Schiøtz、Ole Schütt、M. Strange、Kristian S. Thygesen、Tejs Vegge、Lasse Vilhelmsen、Michael Walter、Z. Zeng 和 Karsten W. Jacobsen。原子模拟环境——用于处理原子的 Python 库。《物理学杂志：凝聚态物质》，29(27):273002，2017。[31] Christian Vorwerk、Nan Sheng、Marco Govoni、Benchen Huang 和 Giulia Galli。用于在量子计算机上模拟凝聚态系统的量子嵌入理论。《自然·计算科学》，2(7):424–432，2022。[32] Qiming Sun、Xing Zhang、Samragni Banerjee、Peng Bao、Marc Barbry、Nick S. Blunt、Nikolay A. Bogdanov、George H. Booth、Jia Chen、Zhi-Hao Cui、Janus J. Eriksen、Yang Gao、Sheng Guo、Jan Hermann、Matthew R. Hermes、Kevin Koh、Peter Koval、Susi Lehtola、Zhendong Li、Junzi Liu、Narbe Mardirossian、James D. McClain、Mario Motta、Bastien Mussard、Hung Q. Pham、Artem Pulkin、Wirawan Purwanto、Paul J. Robinson、Enrico Ronca、Elvira R. Sayfutyarova、Maximilian Scheurer、Henry F. Schurkus、James E. T. Smith、Chong Sun、Shi-Ning Sun、Shiv Upadhyay、Lucas K. Wagner、Xiao Wang、Alec White、James Daniel Whitfield、Mark J. Williamson、Sebastian Wouters、Jun Yang、Jason M. Yu、Tianyu Zhu、Timothy C. Berkelbach、Sandeep Sharma、Alexander Yu. Sokolov 和 Garnet Kin-Lic Chan。PySCF程序包的最新进展。《化学物理学杂志》，153(2):024109，2020年7月。

[33] P. Jordan 和 E. Wigner。《论泡利等价禁戒》。《物理学杂志》，47(9-10):631–651，1928年。

[34] Tim Stauch 和 Andreas Dreuw。用于定量分析分子中机械力分布的量子化学工具。《化学物理学杂志》，140(13):134107，2014年4月。[35] Henry Wang、Sanna Benter、Wilke Dononelli 和 Tim Neudecker。Jedi：一种用于分析形变下分子和周期性系统应变的多功能代码。《化学物理学杂志》，160(15):152501，2024年4月。[36] William H Press。《C语言数值方法》。剑桥大学出版社，剑桥，1992年。[37] Jorge Nocedal 和 Stephen J Wright。《数值优化》。施普林格，柏林/海-德尔堡，1999年。[38] Michael P Allen 和 Dominic J Tildesley。《液体的计算机模拟》。克拉伦登出版社，牛津，1987年。[39] Noah Felis 和 Wilke Dononelli。FALCON：用于原子尺度和从头算 分子动力学模拟中机器学习势的快速主动学习。《npj计算材料》，12:1，2026年。