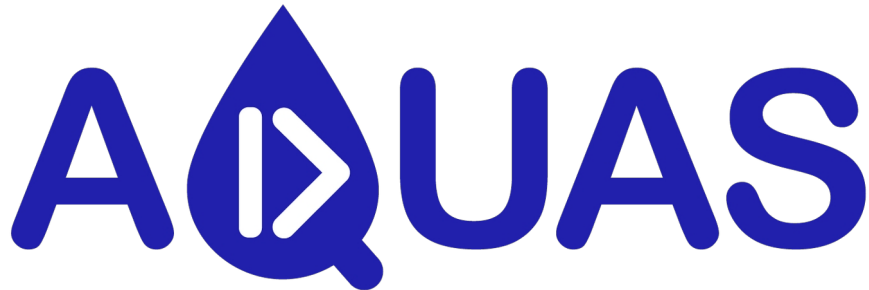


# Konsortialbericht 2022-2024

## Verbundvorhaben AQUAS

Anwendung von Quantensimulationen in der Wasserstoffforschung



Gefördert durch das Bundesministerium für Wirtschaft und Klimaschutz  
(BMWK)

Konsortialführer:		Förderkennzeichen:	
HQS Quantum Simulations GmbH		01MQ22003A	
Projektleiter:	Tel.: +49 178 1862341		
Dr. Michael Marthaler	Fax: -		
	E-mail:		
	michael.marthaler@quantumsimulations.de		
Laufzeit des Vorhabens:			
von: 01.01.2022 bis: 31.12.2024			
Berichtszeitraum:		Datum:	
von: 01.01.2022 bis: 31.12.2024		30.06.2025	

### Projektpartner:

1.	HQS Quantum Simulations GmbH
2.	Deutsches Zentrum für Luft- und Raumfahrt e.V.-Institut für Technische Thermodynamik (DLR TT) und Institut für Softwaretechnologie (DLR SC)
3.	Universität Ulm
4.	Fraunhofer-Institut für Produktionstechnik und Automatisierung IPA

## **Kurzdarstellung**

### **Aufgabenstellung**

Das Hauptziel des AQUAS-Projekts ist es, den Weg für den Einsatz von Quantencomputern in der Wasserstoffforschung zu ebnen, die für die Energiewende in Deutschland unverzichtbar ist. Für die Konkurrenzfähigkeit der Technologie sind weitere Effizienzsteigerungen entscheidend. Diese können durch eine Untersuchung des elektrochemischen Grenzflächenprozesses, durch die Wasserstoff erzeugt wird, erreicht werden. Quantencomputer können einen Beitrag zur Modellierung von diesen Prozessen leisten und so die Material- und Prozessentwicklung beschleunigen. Der Schlüssel zur Modellierung solcher elektrochemischer Prozesse ist die Elektronenstrukturtheorie. Aufgrund der Quantenbeschaffenheit von Elektronen lässt sie sich auf natürliche Weise auf Quantencomputerarchitekturen abbilden und ist besonders vielversprechend für einen Quantenvorteil. Die erfolgreiche Anwendung des Quantencomputings ist hier jedoch bei weitem nicht einfach. Um den Weg für die industrielle Nutzung zu ebnen, müssen mehrere Teilaufgaben gelöst werden.

Zunächst müssen relevante Materialien und Prozesse für die Pilotentwicklungen zur Anwendung von Quantencomputern in der Wasserstoffforschung identifiziert werden. Die Komplexität der Modellierung ist in der Tat so hoch, dass selbst perfekt funktionierende Quantencomputer das Problem ohne Vereinfachungen durch Expertenwissen aus den Bereichen Chemie und Materialwissenschaften nicht lösen könnten. Die nächsten Schritte umfassen die Identifizierung und Auswahl klassisch-quantenmechanischer Multiskalen-Methoden, deren Erprobung, Verfeinerung und Implementierung. Im Zeitgeist kann die quantenmechanische Modellierung molekularer Systeme durch den Einsatz von maschinellem Lernen erheblich verbessert werden. Die Entwicklung von Methoden des quantenmaschinellen Lernens und deren Anwendung auf die Daten aus den atomistischen Simulationen war ein weiteres Ziel des Projekts.

Die Fortschritte bei der Entwicklung der entsprechenden Quantenalgorithmen sollen durch Effizienzsteigerungen auf der Ebene der Kompilierung von Quantenschaltungen verstärkt werden. Schließlich soll eine hochentwickelte Benutzeroberfläche geschaffen werden. Eine solche IT-Infrastruktur, die die Verwaltung des Hardwarezugriffs, den Datenaustausch, die Softwareverteilung, die Automatisierung von Arbeitsabläufen und grafische Schnittstellen umfasst, wird übertragbar sein und nachhaltige Fortschritte in der Forschung und Entwicklung im Bereich der Molekularsimulation für industrielle und akademische Zwecke ermöglichen.

### **Voraussetzungen**

Das Konsortium wurde gegründet, um die erfolgreiche Umsetzung des vielschichtigen Plans zu ermöglichen. Zu diesen Kompetenzen gehören klassische und quantenmechanische Molekularsimulationen elektrochemischer Prozesse, allgemeine Quantenchemie, quantenmechanisches maschinelles Lernen, Optimierung quantenmechanischer Algorithmen und Softwareentwicklung. Um den Besonderheiten des BMWK-Förderprogramms gerecht zu werden, das die Anwendung von Grundlagenforschung auf industrielle Probleme vorsieht, wurde das Konsortium bewusst aus Einrichtungen unterschiedlicher Art zusammengesetzt: klassische Universität, angewandte Forschungseinrichtungen und Privatwirtschaft.

Insbesondere die fundierten Kenntnisse und umfangreichen Erfahrungen der Universität Ulm (Prof. A. Gross) in der Modellierung elektrochemischer Systeme sind für die Auswahl der Anwendungen und deren klassische Charakterisierung unerlässlich. Quantensimulationen elektrochemischer Materialien wurden von DLT TT (Prof. B. Horstmann) geleitet, dessen Gruppe herausragende Leistungen auf diesem Gebiet vorweisen kann. Die Zusammenarbeit dieser beiden in Ulm ansässigen Gruppen ist insbesondere in der Anfangsphase des Projekts von großer Bedeutung. Quantum Machine Learning wird vom Fraunhofer IPA (Dr. rer. nat. M. Roth) vertreten, der in diesem schnell voranschreitenden Bereich einen soliden Ruf genießt. Kompetenzen in der Optimierung und Kompilierung von Quantenalgorithmien werden vom DLR-SC (Dr. rer. nat. M. Epping) in das Konsortium eingebracht. Die Zusammenarbeit der beiden DLR-Einrichtungen, die sich mit der Entwicklung und Optimierung von Algorithmen befassen, ist für den Gesamtfortschritt von Vorteil.

Schließlich verfügt HQS über fundierte Kompetenzen in den Bereichen Quantenchemie, Quantencomputing und Softwareentwicklung, die das Kerngeschäft des Unternehmens ausmachen. Durch die enge Zusammenarbeit mit deutschen Chemie- und Materialunternehmen in der Vergangenheit und Gegenwart hat HQS ein tiefes Verständnis für die Marktanforderungen entwickelt. All dies bildet eine solide Grundlage für eine erfolgreiche Konsortialführung.

## **Planung und Ablauf des Vorhabens**

Die Arbeit wurde in drei große Pakete unterteilt: Verwaltung (AP1), Weg zum Quantencomputing (AP2) sowie Implementierung und NISC-Optimierung (AP3). Sechs Meilensteine wurden definiert.

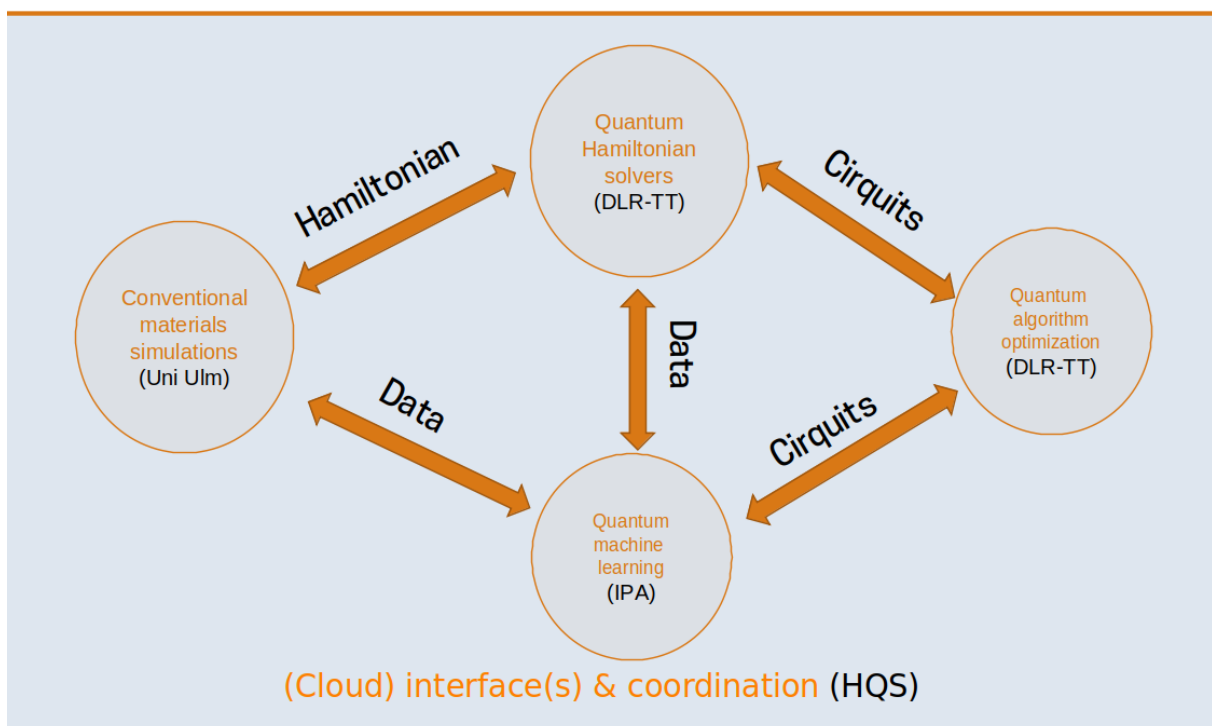
Im Rahmen von AP1 wurde eine kontinuierliche Kommunikation zwischen den Partnern organisiert, um die Zusammenarbeit zu steuern und aufrechtzuerhalten. Darüber hinaus fanden drei jährliche offizielle persönliche Treffen in Ulm (2022) und Karlsruhe (2023, 2024) statt. Darüber hinaus wurde AP1 für die Vorbereitung von Veröffentlichungen und die Teilnahme an Tagungen und Konferenzen genutzt. Darüber hinaus wurden einige Ressourcen für die Erstellung der AQUAS-Webseite und die Verbreitung der Ergebnisse über soziale Medien verwendet.

Innerhalb von AP2 wurde das relevante elektrochemische System (Wasserstoff auf Borphenfolie) für weitere Untersuchungen ausgewählt und klassisch umfassend charakterisiert. Es wurden verschiedene multiskalige Einbettungsmethoden ausgewählt (mechanistische Einbettung, dichtefunktionale Einbettung) und allgemein sowie für ein ausgewähltes System verfeinert. Gleichzeitig wurden alternative Einbettungsansätze auf der Grundlage der Spinsphysik vorgeschlagen und geprüft. Allgemeine Überlegungen zu hybriden Einbettungsansätzen für klassische und Quantencomputer ermöglichten es, den späten Beginn der Arbeiten zur Systemauswahl zu kompensieren. Ein wichtiger Teil von AP2 war die Erstellung einer hochgradig agnostischen (und damit übertragbaren) Schnittstelle. Die gut ausgearbeiteten allgemeinen Arbeiten ermöglichten einen reibungslosen und schnellen Übergang zur Durchführung spezifischer elektrochemischer Anwendungen.

AP 3 konzentrierte sich auf die Kompilierung und Optimierung von Quantenalgorithmien mit besonderem Schwerpunkt auf Quanten-Maschinellem Lernen (QML). Wie in AP2 führte die Verzögerung beim Beginn der Arbeiten zur klassischen Charakterisierung elektrochemischer Systeme dazu, dass der Schwerpunkt zunächst auf allgemeineren Aspekten lag. Dazu gehörten Verbesserungen der Quantenalgorithmien und der Kompilierung sowie die

Konzentration auf vorhandene Datensätze und allgemeine Implementierungen in QML. Diese Arbeit umfasste grundlegende Arbeiten zur Kompilierung, zum Benchmarking mehrerer Kernel-Methoden in QML sowie zur Entwicklung von Softwarebibliotheken. Dennoch erleichterte diese übertragbare Arbeit spezifische Anwendungen für molekulare Systeme zur Wasserstoffherzeugung erheblich, als die Daten und Algorithmen verfügbar wurden. In einem sich rasch entwickelnden Bereich der QML wurden Ideen untersucht, die zum Zeitpunkt der Planung noch nicht verfügbar waren, nämlich maschinelles Lernen der mit Quantenalgorithmen berechneten Wellenfunktionen (Variational Quantum Eigensolver, VQE, Ansatz).

Insgesamt bewerten wir den Plan als vollständig und alle Meilensteine wurden innerhalb der notwendigen Abweichungen, die sich aus den Entwicklungen innerhalb und außerhalb des Konsortiums ergaben, erreicht. Der Hauptgrund für die Verzögerungen war ein objektives Problem bei der rechtzeitigen Einstellung von Mitarbeitern für AP2 an der Universität Ulm. Wir haben darauf vor allem mit einer teilweisen Verlagerung des Schwerpunkts auf allgemeinere Probleme reagiert. Dennoch konnten relevante Daten zu elektrochemischen Systemen generiert und an die entsprechenden Partner weitergeleitet werden, die an hybriden klassisch-quantenmechanischen Simulationsmethoden und QML arbeiten und ihre entsprechenden anwendungsspezifischen Ergebnisse liefern konnten. Wichtig ist, dass QML und die elektronische Struktur elektrochemischer Systeme auf verfügbarer Quantenhardware getestet wurden.



**Abbildung 1.** Wechselwirkungen und Synergien innerhalb des AQUAS Projekts.

## Wissenschaftlicher und Technischer Stand

Das grundlegende Funktionsprinzip von Elektrolyseuren ist die elektrochemische Umwandlung zwischen Wasser und Sauerstoff/Wasserstoff [Nei12]. Die zentrale Herausforderung ist die Auswahl geeigneter Katalysatoren, die auf der Kathodenoberfläche bei geringen Energieverlusten selektiv Sauerstoff/Wasserstoff reduzieren und oxidieren [Iru19]. Heutige Katalysatoren führen die Sauerstoff-Redoxchemie unter großen Verlusten durch. So liegt die Energieeffizienz von Brennstoffzellen, Elektrolyseuren und Metall-Luft Batterien bei unter 70%. Die Quantenphysik bestimmt die Struktur und Wechselwirkung einzelner Atome im Nanobereich. So beschäftigt sich die Quantenchemie mit der numerischen Berechnung von Atom- und Molekülbindungen und der Simulation elektrochemischer Grenzflächeneffekte, z.B. der Wasserstoffkatalyse. Atombindungen werden durch Elektronen vermittelt, die in vielen unterschiedlichen Quantenzuständen vorliegen können. Die exponentielle Vielzahl möglicher Quantenzustände kann nur näherungsweise auf klassischen Computern abgebildet werden. Nur mit einer Kombination verschiedener Simulationstechniken kann die Elektrokatalyse an den Elektrodenoberflächen realitätsnah abgebildet werden [Sak20, EH14]. Diese Kombination verschiedener Simulationstechniken begrenzt aber die Vorhersagekraft. Das Design neuer Katalysatoren und Elektrodenstrukturen ist so nur im ständigen Abgleich mit aufwendigen Experimenten möglich. Hier könnte die Simulation auf Quantencomputern aufgrund der exponentiell besseren Skalierung, d.h. des linearen Wachstums der Qubitanzahl mit der Orbitalanzahl, erhebliche Vorteile bringen.

Gleichzeitig ist die Simulation solcher komplexer Systeme selbst für fehlerkorrigierte Quantencomputer eine große Herausforderung, sodass der Einsatz von Multiskalen-Einbettungsmethoden unumgänglich ist. In der Literatur gibt es eine große Auswahl an solchen Methoden, aber die optimalen müssen noch gefunden und verfeinert werden. Allein für den Teil Quantencomputing ist ein wichtiger Parameter für die Leistungsfähigkeit für Quantencomputer, mindestens so wichtig wie die Zahl der Qubits, die Fidelity. Quantenbits zeigen im Allgemeinen nicht die selbstkorrigierenden Eigenschaften klassischer Digitalelektronik und sind darum deutlich anfälliger für akkumulierende kleine Fehler. Im Prinzip lässt sich dies durch aktive Fehlerkorrektur beheben, jedoch trotz großen Fortschritts in dem Gebiet um den Preis einer erheblichen erhöhten Anzahl der benötigten Qubits. Erreichbare Anwendungen sollten darum zunächst ohne vollständig entwickelte Fehlerkorrektur betrachtet werden (NISQ Anwendungen). In diesem Bereich können Quantenalgorithmen dann relevante Ergebnisse liefern, wenn die Zahl der kritischsten Operationen geringer als das Inverse von deren Fehlerrate ist. Während diese Anforderung viele Anwendungen wie z.B. die Quanten-Fouriertransformation unwahrscheinlich macht, wurde in den letzten Jahren eine Klasse von potenziell NISQ-tauglichen Quantenalgorithmen entwickelt. Dabei handelt es sich um die sogenannten Variationsalgorithmen. HQS hat Variationsalgorithmen zur Simulation von Molekülen in einem Projekt zusammen mit der BASF getestet [Küh19]. Zusammen mit Bosch hat HQS an dem Einsatz von Variationsalgorithmen in der Festkörperphysik gearbeitet [VZR21]. Gleichzeitig legen die bekannten Probleme der Variationsansätze nahe, nach Alternativen zu suchen. Ein solcher Ansatz ist die Simulation beobachtbarer Eigenschaften mittels Spindynamik, die sich auf aktuelle

Quantenhardwarearchitekturen natürlich abbilden lässt. Unter Berücksichtigung der ungekoppelten Elektronen in molekularen Systemen (wie Hydroxylradikale und Sauerstoffmoleküle) erscheint es plausibel, Spin-Freiheitsgrade zu elektrochemischen Anwendungen zuzuordnen, die der Spinphysik entsprechen.

Anwendung von Techniken des maschinellen Lernens Die optimale Nutzung begrenzter Mengen molekularer Daten, die durch teure quantenchemische Simulationen generiert werden, ist in der Molekularwissenschaft mittlerweile Standard [Unk2021]. AQUAS bietet ein hervorragendes Anwendungsbeispiel für eine solche Strategie. Eingebettete Modelle, die mit hybriden Methoden der Quantenchemie untersucht werden sollen, eignen sich perfekt für die Bewertung sich weiterentwickelnder QML-Techniken und sind zudem realistischer als typische Standarddatensätze. Die rasante Entwicklung von Quantenmaschinentechniken bietet zusätzliche Möglichkeiten, wie beispielsweise das Erlernen von Quanteneigenschaften mit Quantenalgorithmen.

Die Schaffung einer IT-Infrastruktur für hybride klassisch-quantenmechanische Molekularsimulationen ist eine bekannte Herausforderung, da es sich hierbei um weitgehend Neuland handelt. Trotz der Fortschritte bei der Verbindung von klassischer und Quanten-Software, bei Cloud-Technologien, Molekulardaten und Visualisierung gibt es keine fertigen Lösungen auf dem Markt. Diese können nur in einem iterativen Prozess unter Berücksichtigung der Anwendungsfälle entwickelt werden.

### **Zusammenarbeit mit anderen Stellen**

Da das AQUAS-Konsortium relativ in sich geschlossen ist, fand der Großteil der Zusammenarbeit innerhalb der Partner statt. Der wissenschaftlich-technische Austausch zwischen verschiedenen Einheiten der Partner (z. B. unterschiedliche HQS-Stacks) war begrenzt.

## Eingehende Darstellung

### Verwendung der Zuwendung und erzielte Ergebnisse

Wir gliedern diesen Abschnitt nach AQUAS Partnern und deren Beiträgen zu den entsprechenden Aufgaben.

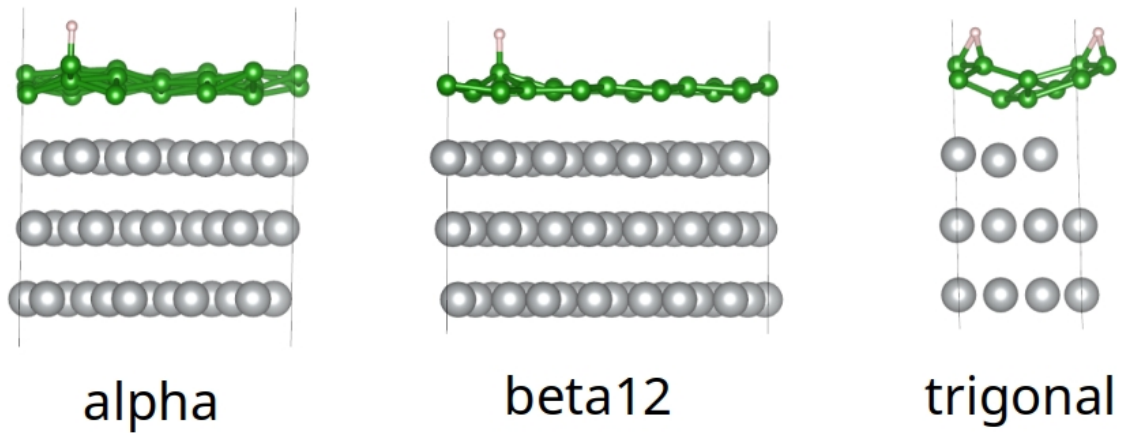
#### Universität Ulm

Zunächst wurde eine Literaturrecherche durchgeführt, um vielversprechende Referenzsysteme zu identifizieren, die einerseits eine effektive Wasserstoffentwicklung ermöglichen, andererseits aber eine handhabbare Implementierung auf Quantencomputern ermöglichen. Dabei wurden ausgedehnte planare Bor-Katalysatoren, sogenannte Borophene, als geeignetes System identifiziert. Daraufhin wurden explorative DFT-Studien durchgeführt, um stabile planare Borophen-Strukturen zu identifizieren. Im Gegensatz zum vierwertigen Kohlenstoff bildet das dreiwertige Bor keine geschlossene planare Schicht wie Graphen. Um möglichst viele Bindungen abzusättigen, müssen Leerstellen in die Schicht eingefügt werden, wodurch die Suche nach stabilen planaren Strukturen erschwert wird. Vier stabile und relativ kompakte Strukturen konnten identifiziert werden, die als Kandidatsysteme für Wasserstoffentwicklungskatalysatoren ausgewählt wurden.

Bei der Wasserstoffentwicklungsreaktion nach dem sogenannten Langmuir-Hinshelwood-Mechanismus in der heterogenen Katalyse, der dem Volmer-Tafel-Mechanismus in der Elektrokatalyse entspricht, müssen die beiden Wasserstoffatome, die rekombinativ molekularen Wasserstoff bilden, auf der Katalysatoroberfläche adsorbiert werden. Geeignete Wasserstoffentwicklungskatalysatoren zeichnen sich dadurch aus, dass die Adsorptionsenergie thermoneutral bezüglich des zu erzeugenden molekularen Wasserstoffs ist, d.h., thermodynamisch kein großer Energieaufwand nötig ist, um aus zwei adsorbierten Wasserstoffatomen desorbierten molekularen Wasserstoff zu bilden. In der Tat wurden solche Adsorptionszustände bei den vier untersuchten planaren Bor-Katalysatoren gefunden, die damit in der Tat vielversprechende Wasserstoffentwicklungskatalysatoren darstellen. Weiterhin wurde die Wechselwirkungsenergie eines Wasserstoffatoms mit Borophen als Funktion des Abstands von der Oberfläche berechnet. Diese Potentialenergiekurve wurde zugleich auf einem Quantencomputer von der Gruppe von Prof. Horstmann berechnet, wobei eine gute und zufriedenstellende Übereinstimmung erzielt wurde.

In praktischen Anwendungen können keine isolierten, freistehenden Borophen-Schichten als Katalysator benutzt werden. Stattdessen müssen sie auf einem geeigneten Träger aufgebracht werden, wobei die Wechselwirkung des Borophens mit diesem Träger die katalytischen Eigenschaften der Schicht beeinflussen kann. Um den Effekt eines Trägermaterials zu untersuchen, wurde eine Borophen-Schicht auf einem silbernen Substrat (Ag(111)-Oberfläche) aufgebracht (**Abbildung 2**). Die Rechnungen ergaben, dass die Wechselwirkung mit dem Ag-Träger Verzerrungen im Borophen verursachen kann. Außerdem wurden die Wasserstoffadsorptionsenergien auf den geträgerten Borophen-Schichten berechnet. In allen betrachteten Systemen führte die Berücksichtigung des Ag-Trägers zu weniger thermoneutralen Adsorptionsenergien, was bedeutet, dass die katalytische Aktivität leicht abgesenkt wird. Dennoch stellen auch diese geträgerten Schichten immer noch vielversprechende Katalysatoren für die Wasserstoffentwicklung dar. Damit könnte das kritische Rohmaterial Graphit für planare Katalysatoren ersetzt werden, allerdings ist Bor selbst auch ein kritisches Rohmaterial. Die Ergebnisse

dieses Teilvorhabens bilden eine sehr gute Grundlage für wissenschaftliche Projekte, die sich mit quantenchemischen Implementierungen auf Quantencomputern und/oder quantenchemischen Projekten zur Identifizierung verbesserter Wasserstoffentwicklungskatalysatoren beschäftigen.

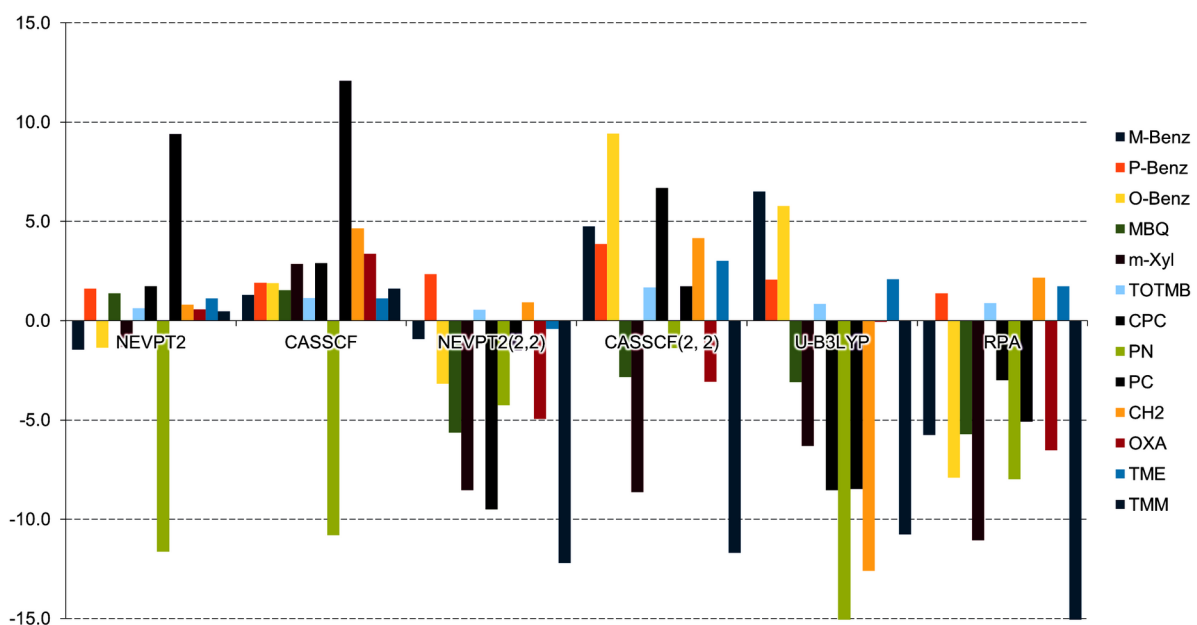


**Abbildung 2.** Die optimierten Strukturen von H-adsorbierten Borophenen auf Silbersubstrat.

## HQS Quantum Simulations GbmH

Radikale sind chemische Spezies mit ungekoppelten Elektronen, die unter normalen Bedingungen in den meisten Molekülen nicht vorkommen, jedoch in chemischen und elektrochemischen Reaktionen häufig anzutreffen sind. Die Spaltung von Wasserstoffatomen wird als Radikal betrachtet, was zur Bildung von molekularem Wasserstoff  $H_2$  über die Reaktion  $H_2 = H^* + H^*$  führt. Hierbei bezeichnet  $H^*$  ein Wasserstoffatom mit einem ungekoppelten Elektron. Solche radikalen Prozesse sind typisch für Elektroden bei der Wasserelektrolyse und viele chemische Reaktionen, die Radikale wie molekularen und atomaren Sauerstoff sowie Hydroxylradikale beinhalten. Das Verständnis und die effiziente Berechnung von Radikalen sind für die elektrochemische Modellierung von großer Bedeutung. HQS hat vorgeschlagen, ungekoppelte Elektronen als Spins zu behandeln. Solche Spin-Freiheitsgrade können von anderen getrennt werden, was zu Einbettungsmodellen führt, die Spins in der Umgebung anderer Elektronen betrachten. Der Ausgangspunkt für solche Modelle ist die Identifizierung des Spin-Freiheitsgrades anhand von Molekülorbitalen, basierend auf konventioneller Quantenchemie, was die klassischen Methoden des aktiven Raums (CASSCF) vereinfacht. Diese Effizienz wird mit dem HQS Spin Mapper erreicht, der innerhalb von AQUAS umfassend getestet wurde.

Die getrennten Spin-Freiheitsgrade der Elektronen ermöglichen eine effiziente Behandlung der elektronischen Struktur von Radikalen, entweder durch exakte Lösungen im begrenzten Spinkorrelationsraum oder durch die random-phase-approximation (RPA). Letztere betrachtet nicht-spinähnliche Orbitale als bosonische Moden, hat jedoch bei Anwendung auf alle Elektronen ungünstige Skalierungen zur Folge. Daher wird die RPA als Korrektur für nicht-spinbezogene Freiheitsgrade bei Radikalen verwendet, was besonders vielversprechend für Quantencomputer ist, da es spinähnliche Orbitale auf Qubits abbildet. Diradikale, Systeme mit zwei ungekoppelten Elektronen, sind für elektro- und photochemische Anwendungen wichtig, insbesondere wegen der Singulett-Triplett-Lücke,  $\Delta E_{ST}$ . Im Projekt wurde die RPA auf Diradikale angewendet und mit klassischen quantenchemischen Methoden verglichen, wobei die RPA vielversprechende Ergebnisse mit angemessener Genauigkeit und geringen Rechenkosten lieferte (**Abbildung 3**), was Verbesserungen und den Transfer auf Quantencomputer ermöglicht.

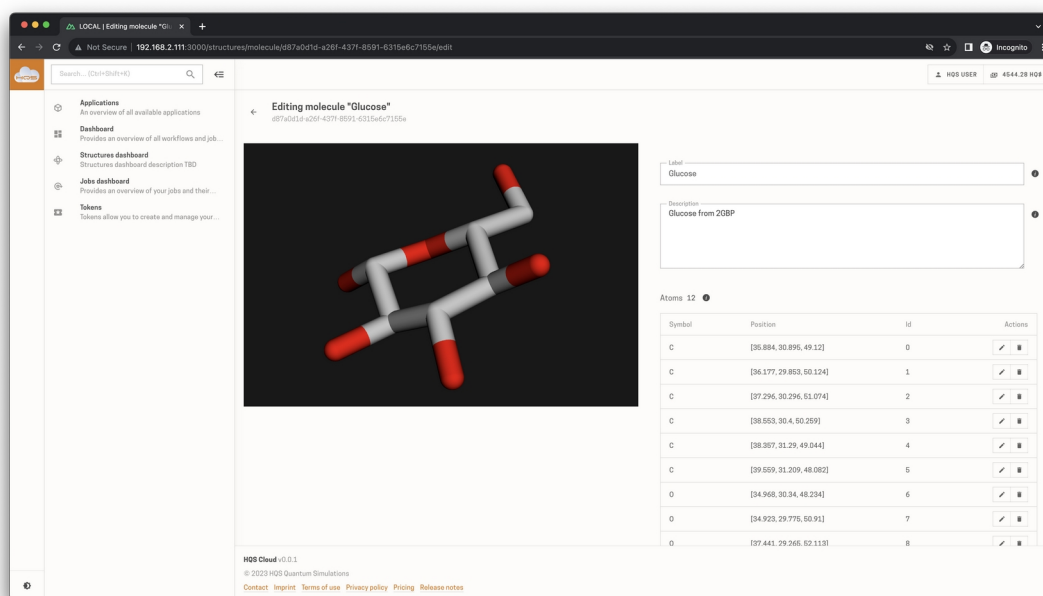


**Abbildung 3.** Fehler bei der Singulett-Triplett-Aufspaltung in kcal/mol im Vergleich zum aktuellen Stand der Theorie. NEVPT2 und CASSCF sind ab initio-Methoden für viele

Teilchen, während U-B3LYP eine DFT-Näherung ist. Unsere neue Methode wird als RPA bezeichnet. Molekülnamen und Abkürzungen sind rechts aufgeführt.

Unsere Bemühungen zielten darauf ab, den aktuellen Status des Quanten Machine Learning (QML) zu verstehen und Probleme innerhalb von AQUAS zu identifizieren, was zu einer Veröffentlichung über die Anpassung von potenziellen Energieoberflächen für chemische Reaktionen führte. Eine detaillierte Untersuchung der Bergman-Cyclisierung, die ein ikonisches Radikal umfasst, zeigt unser mehrstufiges Protokoll, das die anfänglichen Reaktionspfade mit der Nudged Elastic Band (NEB)-Methode abtastet. Die Kräfte werden mit einer maschinellen Lerntechnik (sGDML) neu berechnet, um eine semi-lokale reaktive Potentialenergiefläche (PES) zu erzeugen, die Reaktanten, Produkte und Übergangsstufen umfasst. Unser Protokoll kann leicht automatisiert werden und ist sowohl für klassische als auch für Quantencomputeralgorithmen anwendbar, wobei nur 50 bis 150 Energie-Kraft-Bewertungen benötigt werden, um qualitativ hochwertige Ergebnisse zu erzielen.

Um eine funktionale Cloud-Schnittstelle für Endbenutzer zu schaffen, hat HQS mehrere essentielle Komponenten entwickelt und integriert, wobei das zentrale Element die HQS-Cloud Prototyp (<https://cloud.quantumsimulations.de/>) ist. Der Kern dieser Infrastruktur ist die hqs-core Bibliothek, die den einheitlichen Zugriff auf Rechenleistung von lokaler oder cloudbasierter Hardware ermöglicht und Funktionen zur Ressourcenverwaltung, Fehlerbehandlung sowie zum Starten und Abbrechen von Jobs bietet. HQS hat ein Automatisierungssystem namens HQStasks (<https://quantumsimulations.de/hqs-tasks>) entwickelt, das die Ausführung von Jobs über die Cloud-Schnittstelle und lokale Notebooks ermöglicht. Die kontinuierlichen Verbesserungen des Cloud-Frontends umfassen die Visualisierung molekularer Daten (**Abbildung 4**) und verbesserte Eingaben. Ein weiterer wichtiger Schritt war die Entwicklung des HQStage-Prototyps, der die Bereitstellung von Software über eine benutzerfreundliche Oberfläche in Form von webbasierten Jupyter-Notebooks ermöglicht, wodurch das Hinzufügen und Verwenden neuer Softwarekomponenten vereinfacht wird.



**Abbildung 4.** Visualisierung und Bearbeitung eines Moleküls in der HQS-Cloud.

## Fraunhofer IPA

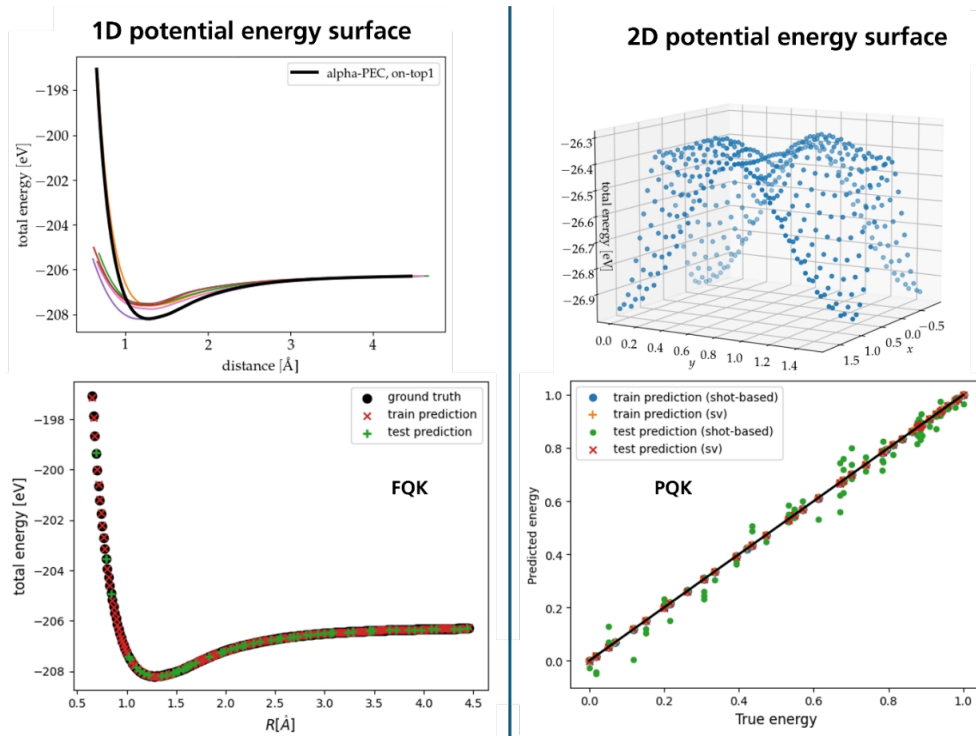
In der Katalyse von Wasserstoff fokussiert sich die Forschung auf die Regression molekularer Potential-Hyperflächen, wobei die atomare Konfiguration als Eingabedaten dient und die Grundzustandsenergie als Zielwert dient. Die Energie für gegebene molekulare Konfigurationen wird mit klassischen und quantenmechanischen Methoden simuliert. Das Teilprojekt zum quantenbeschleunigten maschinellen Lernen (QML) untersucht, ob QML zur Interpolation von Energien aus wenigen Datenpunkten sinnvoll eingesetzt werden kann, um kostenintensive Simulationen zu reduzieren. Zudem wird erforscht, ob Informationen über angeregte Zustände aus der Grundzustandswellenfunktion abgeleitet werden können. Für die QML-Modelle wurden geeignete Eingabedaten aus quantenchemischen Simulationen benötigt, wobei das  $\text{H}_2\text{Pt}$ -Molekül als System gewählt wurde. Da keine passenden Datensätze verfügbar waren, wurden  $\text{H}_2\text{X}$ -Systeme ( $\text{X}$  = beliebiges Atom) als Alternativen verwendet. Die Daten sind im xyz-Format verfügbar, wobei die Transformation in interne Koordinaten die Anzahl der Features reduziert. Ensemble Learning Methoden wie RandomForest, ExtraTrees, AdaBoost und XGB wurden für die Interpolation von  $\text{H}_2\text{O}$ -Potentialenergieflächen eingesetzt. Die Ergebnisse zeigen, dass die Verwendung interner Koordinaten die Interpolationsqualität verbessert. Tests mit Kernelmethoden (KRR, SVR) und Sparse Gaussian Process Regression (SGPR) wurden ebenfalls durchgeführt, wobei der ExtraTrees-Regressor die besten Resultate lieferte.

In einem weiteren Schritt wurden verschiedene neuronale Netze zur Vorhersage von Potentialflächen eingesetzt. Zunächst wurde ein klassisches Multi-Layer-Perzeptron mit zwei versteckten Schichten und 1024 Neuronen verwendet, optimiert mit dem Adam-Optimierer. Graphenbasierte neuronale Netze (GNNs) wurden ebenfalls untersucht, da sie die inneren Molekülsymmetrien berücksichtigen und dateneffizienter sowie genauer sind. Ein einfaches GNN mit zwei Graphenschichten und einer vollvernetzten Schicht wurde auf dem  $\text{H}_2\text{O}$ -Datensatz trainiert. Für die Experimente wurde die Dimenet++-Architektur gewählt, die in Python über pytorch-geometric implementiert ist. Das Modell wurde sowohl neu trainiert als auch auf dem vortrainierten QM9-Datensatz basierend auf den  $\text{H}_2\text{O}$ -Daten feinjustiert. Das schlechtere Abschneiden von Dimenet++ im Vergleich zu klassischen neuronalen Netzen könnte an der gewählten Regressionsaufgabe liegen, da es ursprünglich für die Vorhersage von Molekülenergien entwickelt wurde, nicht für die Interpolation von Energien desselben Moleküls. Zusammenfassend zeigen die Ergebnisse, dass klassische ML-Methoden die Interpolation von Molekülpotentialflächen mit hoher Genauigkeit ermöglichen und somit aufwendige numerische Simulationen reduzieren oder ersetzen können. Spezialarchitekturen konnten bei kleinen Molekülen keinen Performancegewinn erzielen, was die Analyse und Bewertung der Performance von QML-Methoden ermöglicht.

Eine umfassende initiale Evaluation geeigneter QML-Methoden zur Ergänzung quantenmechanischer Simulationen ergab, dass Quanten-Kernel-Methoden in der NISQ-Ära vielversprechend sind. Diese Methoden berechnen die Kernelmatrix quantenmechanisch, entweder über den „fidelity quantum kernel“ (FQK) oder den „projected quantum kernel“ (PQK), und integrieren diese in konventionelle Kernel-Methoden wie KRR oder SVM. Quanten-Kernel-Methoden bieten viele Freiheitsgrade im Modelldesign, einschließlich der Auswahl der „data encoding circuits“ und der Optimierung der Hyperparameter. Im zweiten Förderjahr wurden der FQK- und PQK-Ansatz sowie die Quantenkernel-Methoden QSVM, QKRR und QKRR implementiert und veröffentlicht. Eine umfangreiche Benchmarking-Studie wurde durchgeführt, um die Designmöglichkeiten zu klären und universelle Strukturen zu identifizieren. Diese Studie umfasst Klassifikations- und Regressionsprobleme aus verschiedenen

Datensatzfamilien und betrachtet exemplarisch die Regression einer Potentialfläche eines kleinen Moleküls. Zur Unterstützung dieser Studie wurde das Open-Source-Tool QKMTuner entwickelt, das auf sQLearn, optuna und scikit-learn basiert. Die wichtigsten Resultate der Arbeit umfassen: FQK und PQK in QKRR und QSVMs mit verschiedenen encoding circuits. Drei Regressionsdatensätze und zwei Klassifikationsdatensätze wurden untersucht. Die Datensatzauswahl erfolgte nach Kriterien, die für QML-Anwendungen geeignet sind, mit moderater Featuredimension und variabler Komplexität. Die mittlere Spearman-Korrelation der Merkmale zu den Labels wurde als Maß für die Datensatzkomplexität verwendet. Schlüsselfaktoren für gute Modell-Performance sind Datenvorverarbeitung, bandwidth-tuning und sorgfältige Optimierung der klassischen Hyperparameter. Die Anzahl der Qubits und Layer der Data-Encoding-Circuits ist nur relevant bei hoher Datensatzkomplexität. Die Wahl der äußeren Kernelfunktion und des Messoperators bei PQK ist wichtig für die optimale Modell-Performance. Es wurden keine signifikanten Unterschiede im Performance Score zwischen QKRR und QSVM sowie zwischen FQK und PQK festgestellt. Data-Encoding-Circuits ohne Verschränkungs-Gatter performen ebenso gut oder besser als solche mit. Die Studie trägt zum besseren Verständnis von Quanten-Kernel-Methoden bei und zeigt die Herausforderungen auf, wie quantenspezifische Vorteile im Modelldesign genutzt werden können. Die Erkenntnisse, insbesondere die automatisierte Hyperparameter-Optimierungs-Pipeline QKMTuner, wurden erfolgreich auf Potentialflächen-Daten der Universität Ulm angewendet, die für die Erforschung der Wasserstoffkatalyse relevant sind. Die gewonnenen Einblicke konnten beim Aufsetzen der Quanten-Kernel-Modelle berücksichtigt und optimiert werden.

Die Erkenntnisse der Studie, insbesondere die automatisierte Hyperparameter-Optimierungs-Pipeline QKMTuner, wurden erfolgreich auf Potentialflächen-Daten der Universität Ulm angewendet. Diese Daten beschreiben das System eines Wasserstoffatoms, dessen Position relativ zu einer Boron-Oberfläche variiert wird. Es wurden eindimensionale und zweidimensionale Potentialkurven zur Verfügung gestellt. Die gewonnenen Einblicke konnten beim Aufsetzen der Quanten-Kernel-Modelle berücksichtigt und optimiert werden (**Abbildung 5**). Im Projekt wurden auch Quantenkernel-Methoden für ausgewählte Molekül-Datensätze auf IBM-Quantenhardware ausgeführt. Die Erkenntnisse sind aufgrund des niedrigen Reifegrades der Technologie beschränkt. Wichtige Einblicke umfassen die Notwendigkeit einer optimalen Transpilation der Schaltkreise und Fehlermitigation sowie die Robustheit des PQK-Ansatzes gegenüber Fehlern. Zusammenfassend sind Quanten-Kernel-Methoden grundsätzlich geeignet, um quantenmechanische Simulationen zu ergänzen. Die Benchmarking-Studie zeigte, dass die passende Datenvorverarbeitung und Regularisierungsparameter entscheidend für ein akkurates Modelldesign sind. Mit zunehmender Datensatzkomplexität werden auch die Anzahl der Qubits und Layer des Data-Encoding-Circuits relevant. Es bleibt jedoch zu klären, welche Molekülsysteme quantenspezifische Eigenschaften benötigen. Aufgrund der besseren Skalierungseigenschaften von PQK wird erwartet, dass PQK-basierte Quantenkernel-Methoden für kompliziertere Moleküle besser geeignet sind. Die Studie liefert wertvolle Einblicke in die Einflussfaktoren für ein erfolgreiches PQK-Modelldesign. Für die Optimierung sollten sowohl die Form des äußeren Kernels als auch des Messoperators als Hyperparameter berücksichtigt werden. Obwohl der Vergleich mit klassischen Methoden keinen Quantenvorteil zeigte, spielen Ergebnisse aus quantenmechanischen Simulationen eine bedeutende Rolle für die Entwicklung von QML-Algorithmen. Im Projekt konnten optimierte Quantenkernel-Methoden für die Potentialflächen der H-Atom-Bewegung parallel zur Boron-Oberfläche generiert werden.



**Abbildung 5:** Ergebnisse aus der Anwendung von Quantenkernel-Methoden auf die Katalysesysteme der Universität Ulm. Links sind FQK-QKRR Resultate angewendet auf den 1D Potentialkurven Datensatz (oben) dargestellt. Rechts zeigt Ergebnisse mit PQR-QKRR basierend auf dem oben dargestellten 2D Potentialflächen-Datensatz. Neben statevector Simulationen sind hier auch Ergebnisse mit shot-noise gezeigt.

Zusätzlich wurde im Rahmen des Projekts ein Modell entwickelt, das die quantenmechanische Wellenfunktion des Grundzustands eines Moleküls als Input erhält und angeregte Zustandseigenschaften ableitet. Diese Zustände sind entscheidend für die Modellierung chemischer Prozesse. Geeignete Moleküle wurden ausgewählt, deren aktive Räume klein genug sind, um sie auf Qubits zu projizieren. Anregungsenergien und Übergangsdipolmomente wurden bestimmt. Verschiedene Machine Learning Architekturen wurden analysiert, wobei die leistungsfähigste Architektur ein klassisches neuronales Netz (NN) mit einem Quanten neuronalen Netz (QNN) kombiniert. Für den QNN-Ansatz wurden verschiedene Architekturen getestet, wobei Quantum Convolutional Neural Networks (QCNNs) am vielversprechendsten waren. Diese ermöglichen effizientes Training und umgehen die Problematik von Barren-Plateaus. Eine modulare Implementierung wurde als Open Source bereitgestellt, um eine zeiteffiziente Nutzung zu ermöglichen. Die Implementierung optimierte die Struktur des QCNNs und berücksichtigte Symmetrieeigenschaften der Wellenfunktion. Das entwickelte siQNN kombiniert mit dem NN ergibt das siQNN-NN, das den Hamiltonian diagonalisieren soll. Zur Überprüfung des quantenbasierten Anteils wurden klassische Machine Learning Methoden (SVR, GPR, NN) verwendet, die nur die Molekülgeometrie als Input erhielten. Der Vergleich zeigte, dass das entwickelte Modell signifikant bessere Testdaten Mean Squared Errors (MSE) erreichte. Diese Ergebnisse deuten darauf hin, dass die Ergänzung von Simulationen molekularer Zustände einen großen Mehrwert bieten kann. Zusätzlich zur Interpolation könnten zwei weitere Einsatzgebiete identifiziert werden: die Erhöhung der Genauigkeit der Simulationen durch parametrisierte Optimierung und die Ableitung weiterer physikalischer Größen aus den simulierten Grundzuständen. Die Qualität der Quantencomputer war im Projektzeitraum noch nicht ausreichend für den direkten Einsatz in der Katalyse, jedoch bieten die Vorarbeiten eine vielversprechende Grundlage für zukünftige Untersuchungen.

## DLR (TT und SC)

Eine genaue Beschreibung des Reaktionszentrums und die unendliche Natur der Elektrode sind beide entscheidend. Wir haben eine Methodik entwickelt, um genaue Berechnungen der Orbitale des Reaktionszentrums durchzuführen, wobei deren Wechselwirkung mit der Umgebung berücksichtigt wird. Dies umfasst die Auswahl und Vorbereitung der Orbitale, die je nach unseren Einbettungsmethoden in gefrorene, aktive oder virtuelle Orbitale kategorisiert werden. Die Wahl aktiver Orbitale ist herausfordernd und erfolgt oft manuell durch visuelle Inspektion, wobei auf chemische Intuition zurückgegriffen wird. Diese Methode kann jedoch zu willkürlichen und nicht reproduzierbaren Ergebnissen führen, da es an einem allgemeinen Verfahren mangelt. Die manuelle Auswahl ist nur für kleine Moleküle möglich, was einen automatisierten Algorithmus für periodische Systeme mit größeren Elektronenzahlen erforderlich macht. Die Ergebnisse zeigen unseren Erfolg bei der Erreichung dieses Ziels für sowohl molekulare als auch periodische Systeme. Mit den ausgewählten aktiven Räumen und den Einbettungstechniken konnten wir mehrere molekulare Systeme erfolgreich mit geräuschlosen Simulatoren berechnen. Wir haben auch kleine Moleküle auf dem IBM-Quantencomputer in Ehningen getestet und werden Ergebnisse aus verschiedenen Milderungstechniken berichten. Die Fertigstellung der Implementierung dieser Algorithmen für periodische Systeme ist der Schwerpunkt für das letzte Jahr des Projekts.

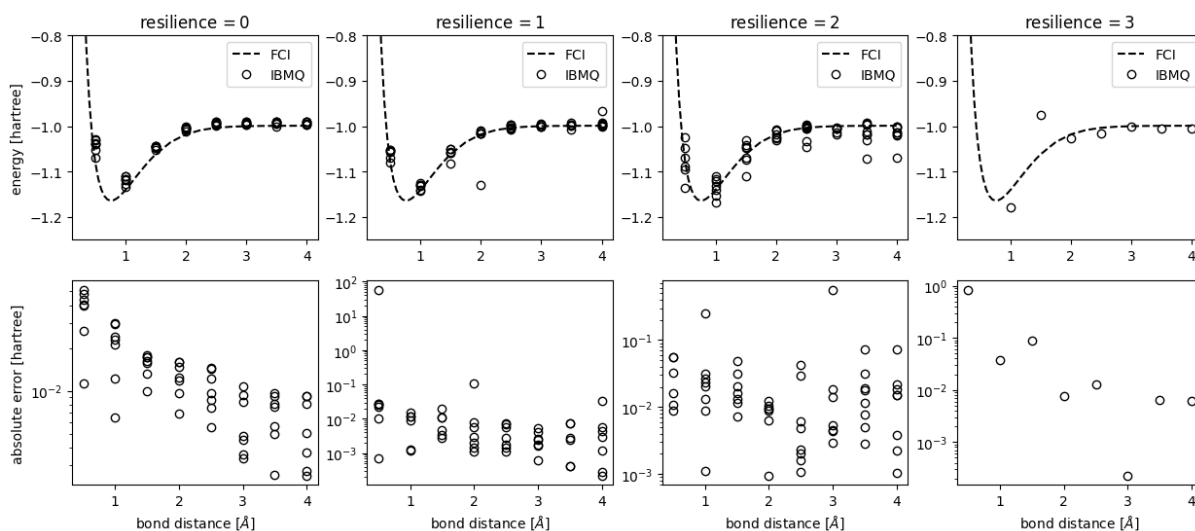
Für das Studium des katalytischen Zentrums in molekularen und periodischen Systemen wurden die Lokalisierungstechniken angewendet. Wie zuvor erwähnt, ist es für die Implementierung dieser Berechnungen auf rauschenden Quantencomputern von großer Bedeutung, Hamiltonoperatoren  $H_{sq}$  zu erstellen, die kompakt in der Größe und gleichzeitig beschreibend für die Korrelationen zwischen den aktiven Orbitalen sind. Um dieses Ziel zu erreichen und diesen Teil des Projekts abzuschließen, wurden die kanonischen Orbitale der Hartree-Fock (HF)-Berechnungen in eine Menge natürlicher Orbitale (NO) umgewandelt, die mit der Coupled-Cluster-Methode (CCSD, einschließlich einfacher und doppelter Anregungen) erhalten wurden. Diese post-HF-Methode gilt als der Stand der Technik in der Quantenchemie und ermöglicht es, chemische Genauigkeit zu erreichen, während weniger Rechenressourcen benötigt werden als bei anderen multikonfiguralen Methoden.

Zunächst wurden mehrere kleine Moleküle unterschiedlicher Größen, wie  $Li_2$ ,  $H_2$ ,  $H_4$  und  $H_6$ , verwendet. Zur Analyse der Qualität der verschiedenen Orbitalsätze wurden die CASCI-Energie und verschiedene Eigenschaften des Hamiltonoperators (Pauli-Gewicht, Ein-Norm  $\lambda Q$  usw.) herangezogen. Zum Vergleich wurde die gleiche Anzahl von Orbitalen verwendet, wobei die Auswahl auf den molekularen Energien der HF-Orbitale und den Besetzungszahlen der NO-Orbitale basierte. Die Lokalisierung des letzten Satzes erfolgte unter Verwendung nur der aktiven Orbitale, wobei eine Mischung aus besetzten und unbesetzten Orbitalen erlaubt wurde, um die Ein-Norm des Hamiltonoperators zu minimieren. Aktive Räume, die mit den NO konstruiert wurden, verbessern die Genauigkeit der Ergebnisse, während die Lokalisierungstechniken dazu beitragen, Hamiltonoperatoren mit geringerer Gate-Komplexität zu konstruieren und die besten Orbitaltypen bereitzustellen. Diese Methodologie zur Konstruktion der Orbitale für die aktiven Räume erweist sich als robust genug, um gute Ergebnisse für alle untersuchten Moleküle zu erzielen, selbst bei unterschiedlichen atomaren Abständen und unterschiedlichen Wechselwirkungen zwischen den Orbitalen.

Um relevante Reaktionen in einer realistischen Umgebung zu simulieren, ist es wichtig, die periodische Natur des Elektrodenmaterials explizit einzubeziehen. Daher nutzt die in diesem Teil des Projekts gewählte Methodik verschiedene Techniken, wie Einbettung, Lokalisierung von Orbitalen und Auswahl des aktiven Raums. Das gesamte System (adsorbiertes Molekül + Substrat) wird mit einer Niedrigstufen-periodischen Methode untersucht, während einige ausgewählte Orbitale mit höhergenauen multikonfiguralen Methoden berechnet werden. In Zusammenarbeit mit einem Partner (Universität Ulm) wurde ein geeigneter Prozess entwickelt, um Reaktionen in periodischen Systemen mithilfe hybrider Materialsimulationen zu untersuchen. Das Modell umfasst drei Hauptbestandteile, die es sehr machbar machen, Korrelationen zu chemischen Reaktionen auf periodischen Oberflächen hinzuzufügen. Zunächst wird die Energie des periodischen Systems unter Verwendung der Twist-Avg-Approximation berechnet, die darin besteht, unabhängige Energiewerte zu mitteln, die an verschiedenen Punkten in der ersten Brillouin-Zone erhalten wurden. Dadurch wird das elektronische Problem auf unabhängige Probleme reduziert. Im Vergleich zur Berücksichtigung nur des  $\Gamma$ -Punkts in größeren Superzellen erreichen Berechnungen mit Twist-Avg schneller das thermodynamische Limit bei demselben theoretischen Niveau. Das zweite Element des Modells verbessert die Auswahl der virtuellen Orbitale. Hierbei werden verschiedene Eigenschaften der natürlichen Orbitale aus CCSD-Berechnungen verwendet, um die virtuellen Orbitale auszuwählen, die am stärksten mit den wichtigsten besetzten Orbitalen interagieren. Drittens werden zwei Einbettungsmethoden verwendet: eine, die auf der mechanischen Einbettung basiert, die von Sauer vorgeschlagen wurde, und die sogenannte Frozen-Core-Einbettung (auch bekannt als HF- oder Ein-Körper-Einbettung). Die mechanische Einbettung ist eine subtraktive Methode, die Niedrigstufen-periodische Berechnungen mit Hochstufen-Simulationen eines kleinen Clusters kombiniert, das im größeren System eingebettet ist. Inspiriert von dieser Annäherung und nach der Sortierung der Orbitale in aktive und inaktive wird die Energie dieses hybriden Ansatzes berechnet. Wenn HF als Niedrigstufenmethode verwendet wird, ist die hybride Energie gleich, wobei die Wechselwirkung zwischen aktiven und inaktiven Orbitalen ein konstanter Term ist, der proportional zu den zweikörperlichen elektronischen Integralen ist. In ähnlicher Weise nimmt der Hamiltonoperator der zweiten Quantisierung in der Frozen-Core-Approximation die Form an, wobei die Orbitale, die zur Konstruktion jedes Terms verwendet werden, aus einer Niedrigstufenberechnung stammen und die Wechselwirkung zwischen aktivem und inaktivem Raum als Mittelwertpotential zu den aktiven Orbitalen hinzugefügt wird. Die Hochstufenberechnung wird dann unter Verwendung des Hamiltonoperators der zweiten Quantisierung durchgeführt. Wenn die Wechselwirkung gemäß der HF-Methode definiert wird, kann die resultierende Hochstufenenergie in einer bestimmten Form dargestellt werden.

Die Methodik wurde erfolgreich zur Berechnung der CASCI-Energie der untersuchten Moleküle eingesetzt. Die Ergebnisse für das  $H_6$ -Molekül zeigen, dass die Frozen-Core-Einbettung mit denselben drei Orbitalarten wie zuvor verwendet wurde. Die gefrorenen Orbitale entsprechen solchen mit niedrigerer Energie oder geringeren Besetzungszahlen, und das Ergebnis der Einbettung hängt erheblich vom ursprünglichen Orbitalensatz ab. Natürliche Orbitale bieten im Allgemeinen genauere Lösungen mit kleineren aktiven Räumen, während die Lokalisierung hilfreich ist, um die Größe des eingebetteten aktiven Raums zu reduzieren. Bei Systemen mit Elektronen in inneren Schalen, wie im  $Li_2$ -Molekül, führt die FC-Einbettung zu Fehlern unterhalb der chemischen Genauigkeit. Bei der Berechnung periodischer Systeme wurde die Genauigkeit der Twist-Avg-Approximation für die Adsorption von Wasserstoff auf dem trigonal boron sheet (TBS) untersucht. Eine (2x2)-Superzelle wurde gewählt, um Wechselwirkungen zwischen benachbarten Wasserstoffatomen

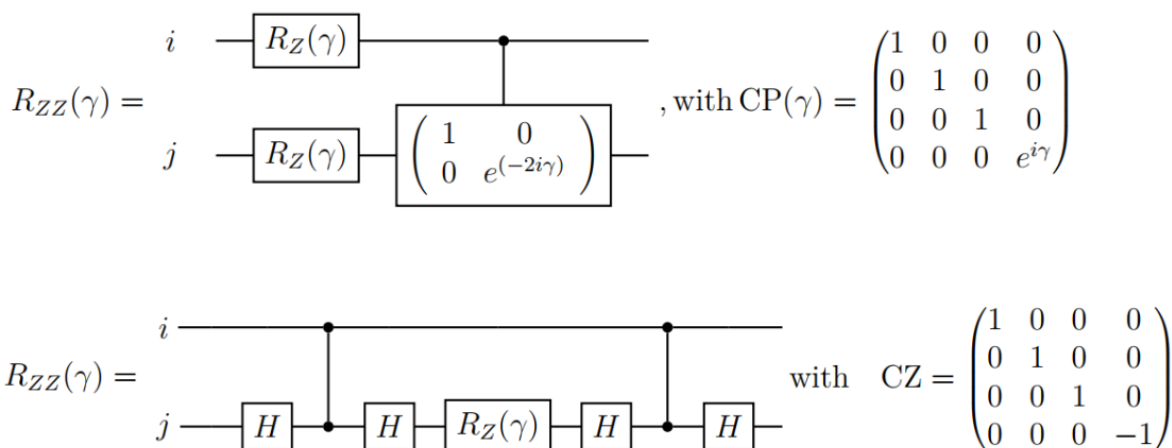
zu vermeiden. Die Korrelationsenergie, berechnet als Differenz zwischen CCSD- und HF-Energien, zeigt, dass diese Energie am  $\Gamma$ -Punkt gut beschrieben wird, was auch den Vorteil hat, dass der Hamiltonoperator und seine Wellenfunktion reell werden. Zur Auswahl eines aktiven Raums wurden Eigenschaften der natürlichen Orbitale aus CCSD-Simulationen verwendet. Höhere Entropieebenen liegen nahe dem Wendepunkt in den Besetzungszahlen, jedoch sind nur wenige mit der Bindung zwischen Wasserstoff und TBS verbunden. Die Berechnung der Energie des aktiven Raums zeigt, dass die Auswahlkriterien oft die schlechtesten Ergebnisse liefern. Die besten Ergebnisse werden in der Regel mit der Ein-Orbital-Entropie oder den Amplituden der ersten Anregungen der CCSD-Wellenfunktion erzielt. Zusätzlich wurden die Eigenschaften des Quantencomputers IBMQ System One in Ehningen untersucht. Berechnungen des Wasserstoffmoleküls wurden unter Verwendung von VQE und VQSE durchgeführt (**Abbildung 6**). Eine generische Transpilierung und Optimierung der Quantenschaltungen wurde mit der IBM-Plattform Qiskit durchgeführt. Verschiedene Fehlermitigationsalgorithmen wurden getestet, darunter TREX, ZNE und PEC. Die Ergebnisse zeigen, dass die konsistentesten Resultate ohne Fehlermitigation erzielt wurden, während TREX die besten, aber auch die größten Ausreißer lieferte. ZNE ergab die schlechtesten Resultate, und die Datenlage für PEC reicht bisher nicht aus, um signifikante Aussagen zu treffen. Insgesamt sind die Ergebnisse ernüchternd, da selbst bei einem einfachen System mit nur 2 Qubits keine zuverlässigen Ergebnisse in chemischer Genauigkeit erzielt werden konnten. Für die katalytischen Systeme müssen größere Berechnungen mit mehr Qubits durchgeführt werden, weshalb leistungsstarke Quantensimulatoren als Vergleichsgröße herangezogen werden müssen.



**Abbildung 6:** Berechnungen von VQSE des Wasserstoffmoleküls bei verschiedenen Atomabständen in der cc-pVDZ Basis für verschiedene Fehlermitigationsstufen (resilience) auf dem IBMQ System One in Ehningen. Die Einergien werden mit der exakten FCI Lösung verglichen und die absolute Differenz als Fehler dargestellt.

Die Arbeiten zur Optimierung und Kompilierung von Quantenalgorithmen konzentrierten sich auf theoretische Aspekte der Verbesserung von Variationalalgorithmen, die für Berechnungen der elektronischen Struktur auf Quantenhardware von zentraler Bedeutung sind. Die ZZ-Interaktion erzeugt typischerweise das primitive Zwei-Qubit-Gatter in solchen Algorithmen, die über eine Zeit angewendet werden, die typischerweise ein variationaler Parameter,  $\gamma$ , ist. Es gibt verschiedene Kompilierungstechniken hinsichtlich der Implementierung von Zwei-Qubit-Gattern. Aufgrund der Bedeutung des ZZ-Gatters wird eine Fehleranalyse präsentiert, die das kontinuierliche Winkel-gesteuerte Phasengatter (CP) mit dem festwinkligen, gesteuerten Z-Gatter (CZ) vergleicht (**Abbildung 7**). Beide Techniken werden unter dem Einfluss von kohärenter Überrotation und depolarisierendem Rauschen analysiert. Es wird gezeigt, dass die CP- und CZ-Kompilierungstechniken vergleichbare ZZ-Gatter-Fidelitäten erreichen, wenn der inkohärente Fehler unter 0,03 % und der kohärente Fehler unter 0,8 % liegt. Daher wird argumentiert, dass für kleine kohärente und inkohärente Fehler ein nicht-parametrisiertes Zwei-Qubit-Gatter wie CZ in Kombination mit virtueller Z-Zerlegung für Einzel-Qubit-Gatter zu einer signifikanten Reduzierung der erforderlichen Kalibrierung führen könnte und somit ein weniger fehleranfälliges Quanten-Gerät ermöglicht. Es wird gezeigt, dass die CZ-Gatter-Fidelität bei einem kohärenten Fehler von über  $0,04\pi$  (2%) signifikant von  $\gamma$  abhängt.

Gleichzeitig konnten trotz vielversprechender Ergebnisse für den Quanten-Approximations-Optimierungsalgorithmus (Quantum Approximate Optimization Algorithm, QAOA) im allgemeinen Kontext keine wesentlichen Verbesserungen für verwandte VQE/VQSE-Ansätze erzielt werden, die in elektronischen Struktursimulationen verwendet werden.



**Abbildung 7.** Beispiel für eine Algorithmusoptimierung: Rotation ZZ-Gate in CP- und CZ-Zerlegung.

## **Wichtigste Positionen des Zahlenmäßigen Nachweises**

Die Hauptkosten des Projekts waren Personalkosten mit einigen Mitteln, die für die Teilnahme an Konferenzen und Tagungen bereitgestellt wurden. Darüber hinaus wurde eine Open-Source-Artikelveröffentlichungsgebühr (von HQS) von AQUAS übernommen. Wichtig ist, dass aufgrund der Verzögerung bei der Einstellung des Mitarbeiters an der Universität Ulm die Forschungsstelle nur für die letzten zwei Jahre statt wie ursprünglich geplant für drei Jahre von AQUAS finanziert wurde.

## **Notwendigkeit und Angemessenheit der geleisteten Arbeit**

Quantencomputertechnologien befinden sich noch in der Entwicklung und sind noch weit von einer stabilen industriellen Nutzung entfernt. Daher ist es notwendig, industrielle Anwendungsfälle zu identifizieren und zu bewerten, um die Bemühungen zur Erreichung des Quantenvorteils zu lenken. Im Rahmen des AQUAS-Projekts haben wir einen solchen Anwendungsfall untersucht: die elektrochemische Wasserstofferzeugung. Von entscheidender Bedeutung war es, diesen komplexen Prozess auf eine Reihe kleinerer, einfacherer Aufgaben zu reduzieren, die innerhalb der Projektlaufzeit lösbar und dennoch relevant sind.

Da sich die Quantenhardware noch in einem frühen Entwicklungsstadium befindet, halten wir es für die Ziele des AQUAS-Projekts für notwendig, mehrere mögliche Lösungswege zu identifizieren: Es ist kaum möglich, mit kleiner und verbrauchter Hardware die am besten geeignete Lösung auszuwählen. Aus diesem Grund hat das Konsortium eine Reihe unterschiedlicher Ansätze vorgeschlagen: von der mechanischen Einbettung bis zum Spin-Bath-Ansatz. Die gleiche Logik gilt für die Erforschung mehrerer Methoden des Quanten-Maschinellen Lernens. Sie bilden die Grundlage für die zukünftige Forschung auf diesem Gebiet.

Gleichzeitig ist es unmöglich, einen Quantenvorteil zu erzielen, ohne auch die Grenzen der klassischen Datenverarbeitung zu erweitern. Dies rechtfertigt umfangreiche klassische quantenchemische und maschinelle Lernstudien.

Es wurden umfangreiche Arbeiten an den Standardmodellen und Datensätzen durchgeführt, die nicht direkt mit dem Umfang von AQUAS zusammenhängen. Dies lässt sich teilweise durch Verzögerungen bei der Generierung klassischer Daten erklären, ist aber auch durch die begrenzten Möglichkeiten zur Durchführung von Quantensimulationen gerechtfertigt, die in der Fachwelt als Standard gelten.

wie die Entwicklung neuer Methoden ist der Aufbau einer IT-Infrastruktur. Dazu gehören nicht nur Quanten-Software-Stacks, sondern auch Schnittstellen zu klassischer Hardware und Software, Workflow-Automatisierung, Datenstrukturen, Hardware-Steuerung und Benutzeroberflächen. Diese sollten auf industrielle Anwendungsfälle zugeschnitten sein und ohne Verzögerungen einsatzbereit sein, sobald industriell nutzbare Hardware verfügbar ist. Die Schaffung einer HQS-Cloud-zentrierten Software-Infrastruktur, die von AQUAS finanziert wurde, zielte darauf ab, diesem Zustand näher zu kommen.

Zusammenfassend lässt sich sagen, dass wir im Rahmen des Projekts AQUAS wichtige Schritte zum Verständnis der Anforderungen an den Einsatz von

Quantencomputern für die elektrochemische Modellierung unternommen und die Grundlagen für unsere Lösungsvorschläge gelegt haben, einschließlich der Schaffung der erforderlichen Software-Infrastruktur.

### **Voraussichtlichen Nutzens, insbesondere der Verwertbarkeit des Ergebnisses im Sinne des fortgeschriebenen Verwertungsplans**

Die Erprobung und Entwicklung von Methoden zur Einbettung der Spinphysik für Radikale hat HQS zu dem Schluss geführt, dass diese Methoden über die Elektrochemie hinaus in weiteren Bereichen der Chemie kommerziell genutzt werden können. Allein die Ermittlung spinähnlicher Freiheitsgrade ist ein vielversprechendes Instrument für die Analyse der chemischen Reaktivität. Diese Erkenntnis und die im Rahmen von AQUAS erzielten technischen und wissenschaftlichen Fortschritte bilden die Grundlage für ein potenzielles Produkt, das sowohl auf Quanten- als auch auf klassischer Datenverarbeitung basiert ist. Wissenschaftliche Ergebnisse, die im Bereich der Anwendung der Spinphysik auf Berechnungen von Elektronikstrukturen erzielt wurden, haben das allgemeine Profil von HQS gestärkt und sind von immenser Bedeutung für alternative Geschäftsrichtungen, vor allem für Spinresonanzspektroskopien wie NMR. Von immenser Bedeutung ist die Erfahrung, die bei der Entwicklung von Workflow-Automatisierungen und Schnittstellen gesammelt wurde und direkt auf Anwendungen in weiteren Bereichen der Chemie, Pharmazie und Materialwissenschaften übertragbar ist. Insbesondere Software für die effiziente Nutzung verfügbarer Rechenressourcen, die Ausführung von Aufgaben sowie die Visualisierung molekularer Strukturen und Eigenschaften wird als zuverlässige Grundlage für zukünftige Geschäftsanwendungen dienen. Der HQS-Cloud-Prototyp dient als Grundlage für unsere Softwaretests, die Bereitstellung und den zukünftigen Vertrieb.

Die im Projekt erarbeiteten Methoden fließen in ein Leistungsangebot des Fraunhofer IPA ein. Im Wesentlichen sind zwei Aspekte zu nennen: die modularisierten und in SQLearn paketierte Quantenkernmethoden werden in vielfältigen weiteren Projekten eingesetzt. So fließt die Implementierung in ein Schulungsprogramm der Fraunhofer Academy ein und ist direkter Bestandteil in einem Forschungsprojekt, das im Rahmen des HNFIZ (siehe unten) mit der Firma Rigetti Quantum Computing Anfang des Jahres 2025 gestartet wurde. Der zweite Aspekt ist die Methode der Prozessierung der quantenmechanischen Wellenfunktion und der Ergänzung von Simulationen mit dieser Methode. Dies findet Eingang in ein vom IPA erarbeitetes Leistungsangebot (Website derzeit in Arbeit) und kann frühzeitig Unternehmen aus den Branchen der Chemie und Pharmaindustrie als Vorausentwicklungsprojekt angeboten werden. Die Forschungsarbeit zum Lernen quantenmechanischer Wellenfunktionen wird in der Folgephase des Kompetenzzentrum Baden-Württemberg weiterverfolgt. Die Folgephase wird voraussichtlich in der zweiten Jahreshälfte 2025 beginnen. Zusammen mit den bereits erfolgten Arbeiten im Projekt AQUAS, wird dies einen wesentlichen Teil der Promotion eines Mitarbeiters.

Im Rahmen des Projekts konnte die Universität durch quantenchemische Rechnungen auf klassischen Rechnern zeigen, dass Quantencomputer geeignet sind, um quantenchemische Rechnungen korrekt durchzuführen. Damit wird es möglich, durch ein vertikales Einbettungsverfahren quantenchemische Rechnungen auf klassischen Rechnern und Quantencomputern effizient zu koppeln. Inhaltlich wurde es gefunden, dass geträgerte Borophen-Schichten geeignete Wasserstoffentwicklungskatalysatoren darstellen. Um die erzielten Ergebnisse nutzen zu können, muss die Zusammenarbeit mit experimentellen Kollegen genutzt

werden. Außerdem dauert es gewöhnlicherweise mehrere Jahre, bis neue Katalysatoren zur Marktreife gelangen. Nachdem in diesem Projekt gezeigt werden konnte, dass Quantencomputer geeignet sind, um quantenchemische Simulationen zur Wasserstoffentwicklung durchzuführen, könnten nun weiterführende Projekte bei Forschungsförderungsinstitutionen beantragt werden, um die Effizienz der Quantensimulationen zu verbessern, die katalytische Leistungsfähigkeit der Borophene weiter zu steigern und die Ergebnisse der Simulationen in technologische Entwicklungen einfließen zu lassen.

#### **Während der Durchführung des Vorhabens bekannt gewordener Fortschritt auf dem Gebiet des Vorhabens**

Quantencomputing ist ein sich enorm schnell entwickelndes Feld. Wir haben die Ergebnisse anderer jedoch stets verfolgt und in unsere Arbeit einfließen lassen, dadurch sind wir auch davon überzeugt, dass unsere Arbeitsergebnisse originell sind. Besonders rasante Fortschritte wurden im Bereich des Quanten-Maschinellen Lernens erzielt. Viele der neuen Entwicklungen konnten erfolgreich für Anwendungen innerhalb von AQUAS genutzt werden. Ebenso gab es vielversprechende Methodenentwicklungen im Bereich der Quanten-Einbettung für die Elektronenstrukturtheorie, die bei der Entwicklung unserer multiskaligen Ansätze berücksichtigt und genutzt wurden.

## Erfolgte Veröffentlichungen

### Artikel in referierten Fachzeitschriften:

1. T. Piskor, P. Pinski, T. Mast, V. V. Rybkin, *Multi-Level Protocol for Mechanistic Reaction Studies Using Semi-Local Fitted Potential Energy Surfaces*, Int. J. Mol. Sci. 25, 8530 (2024). DOI: 0.3390/ijms25158530
2. R. G. Shirazi, V. V. Rybkin, M. Marthaler, D. S. Golubev, *Efficient Random Phase Approximation for Diradicals*, J. Chem. Phys. 161, 114110 (2024). DOI: 10.1063/5.0227556,
3. J. Schnabel and M. Roth, *Quantum kernel methods under scrutiny: a benchmarking study*, Quantum Mach. Intell. 7, 58 (2025). DOI: <https://doi.org/10.1007/s42484-025-00273-5>
4. M. Hagelueken, M. F. Huber, M. Roth, *Data Efficient Prediction of excited-state properties using Quantum Neural Networks*, New J. Phys. 27, 054508 (2025), DOI: 10.1088/1367-2630/add203.

### Als Preprint veröffentlichte Werke:

1. R. Shirazi, B. M. Schoenauer, P. Schmitteckert, M. Marthaler, V. V. Rybkin, *Understanding Radicals via Orbital Parities*, arXiv:2404.18787
2. B. Schoenauer, N. Enenkel, F. G. Eich, V. V. Rybkin, M. Marthaler, S. Zanker, P. Schmitteckert, *A method to derive material-specific spin-bath model descriptions of materials displaying prevalent spin physics (for simulation on NISQ devices)*, arXiv:2504.01859.
3. T. Mueller, T. Stollenwerk, D. Headley, M. Epping, and F. K. Wilhelm, *Coherent and non-unitary errors in ZZ-generated gates*, arXiv:2304.14212

## Literaturverzeichnis

**[Nei12]** J. P. Neidhardt et al., Journal of the Electrochemical Society 159, 9 A1528 (2012)

**[Iru19]** E. Iruin et al., Electrochimica Acta 320, 134557 (2019)

**[Sak20]** S. Sakong et al., J. Phys. Chem. C, 124, 27604 (2020)

**[EH14]** D. Eberle, B. Horstmann, Electrochimica Acta 137, 714 (2014)

**[Küh19]** M. Kühn, S. Zanker, P. Deglmann, M. Marthaler, H. Weiß, J. Chem. Theory Comput. 15, 4764 (2019)

**[VZR21]** N. Vogt et al., Quantum Sci. Technol. 6, 035003 (2021)

**[Unk2021]** O. T. Unke, Chem. Rev. 121, 10142 (2021)