

Abschlussbericht

Teil 1: Kurzbericht

zum Verbundnamen

„Effiziente Materialsimulation auf NISQ Quantencomputern“

Akronym: MANIQU

Teilvorhaben: Variationelle Algorithmen für Einbettungsmethoden zur Grundzustandsapproximation

Förderkennzeichen	13N15577
Zuwendungsempfänger	Friedrich-Alexander Universität Erlangen
Vorhaben	Effiziente Materialsimulation auf NISQ Quantencomputern, - Teilvorhaben: Variationelle Algorithmen für Einbettungsmethoden zur Grundzustandsapproximation
Laufzeit des Vorhabens	01.03.2021 – 30.06.2024

Teilprojektleiter:

Prof. Dr. Michael J. Hartmann
Lehrstuhl für Theoretische Physik II
Universität Erlangen - Department Physik

Das Ziel des Gesamtvorhabens war es NISQ Quantenalgorithmen zu implementieren und für quantenchemische und festkörperbezogene Rechenprobleme nutzbar zu machen. Dazu entwickelte die FAU variationelle Quantenalgorithmen für die Präparation von Grundzuständen und für die effizienten Berechnung von Zeitentwicklung. Damit gelang es im Projekt eine industriell relevante Anwendung von Quantencomputing für die Chemische Industrie zu bearbeiten und dabei auf real existierender Quantenhardware Ergebnisse in chemischer Genauigkeit zu erlangen. Weiterhin wurden Anwendungen von Dynamischer Molekularfeldtheorie auf echter Quantenhardware ermöglicht.

FAU hat zu diesem Ziel zunächst Variational Quantum Eigensolver (VQE) Algorithmen weiterentwickelt. Zuerst hat FAU, dazu Spingittermodelle mit starken Korrelationen betrachtet und gezeigt, dass VQE Algorithmen in der Lage sind deren Grundzustände gut zu approximieren. Die Ergebnisse dieses Arbeitsteils sind in *Physical Review B* 106.14 (2022): 144426 publiziert.

Darauf aufbauend hat FAU VQEs so weiterentwickelt, dass sie auf realer Quantenhardware auf Quantenchemieprobleme angewendet werden können. Insbesondere hat FAU dazu die Optimierung der Gattersequenz nur aufgrund von Messungen in der Z-Basis durchgeführt. Dies reduziert zum einen die Anzahl der notwendigen Messungen und erlaubt zum anderen ein effizientes Aussortieren der Messergebnisse mit falscher Teilchenzahl. Beide Aspekte sind entscheidende Verbesserungen des VQE Algorithmus und haben es erlaubt eine industriell Relevante Anwendung des Partners BASF auf echter Quantenhardware zu behandeln und dabei Chemische Genauigkeit zu erreichen. Das betrachtete Anwendungsbeispiel stellt dabei eines der komplexesten Moleküle dar, die bisher auf Quantencomputern berechnet wurden. Die Ergebnisse erscheinen in Kürze in *Quantum Science and Technology* und sind in *arXiv:2408.10801* (2024) publiziert.

Um auch dynamische Szenarien für Quantenalgorithmen zugänglich zu machen, hat FAU variationelle Algorithmen zur Optimierung von möglichst kompakten Gattersequenzen zur Berechnung von Dynamik entwickelt. Die Herausforderung ist hier, Gattersequenzen zu finden, die kürzer als eine Trotter Sequenz sind. FAU hat dazu Optimierungen in klassischer Rechnung für kleine Systeme eingesetzt, die dann unter Verwendung von Translationsinvarianz auf große Systeme, die nicht mehr klassisch rechenbar sind, erweitert werden. Die Ergebnisse dieses Zugangs sind in *Quantum Science and Technology* 8.2 (2023): 025006 publiziert.

Um die Dynamikberechnungen für einen Dynamical Mean-Field Theorie Zugang in der Materialwissenschaft nutzbar zu machen, hat FAU zudem Optimierungszugänge Entwickelt, in denen die Gattersequenzen auf echter Quantenhardware trainiert werden. In Zusammenarbeit mit Partner Bosch wurden diese auch auf supraleitenden Qubits erfolgreich implementiert und getestet.

Insgesamt wurden somit von FAU Algorithmen bereitgestellt, die auf Anwendungsfälle der Industriepartner BASF und Bosch angewandt werden können und in den Softwarestack von Partner HQS integrierbar sind.

Abschlussbericht

Teil 2: Eingehende Darstellung

zum Verbundnamen

„Effiziente Materialsimulation auf NISQ Quantencomputern“

Akronym: MANIQU

Teilvorhaben: Variationelle Algorithmen für Einbettungsmethoden zur Grundzustandsapproximation

Förderkennzeichen	13N15577
Zuwendungsempfänger	Friedrich-Alexander Universität Erlangen
Vorhaben	Effiziente Materialsimulation auf NISQ Quantencomputern, - Teilvorhaben: Variationelle Algorithmen für Einbettungsmethoden zur Grundzustandsapproximation
Laufzeit des Vorhabens	01.03.2021 – 30.06.2024

Teilprojektleiter:

Prof. Dr. Michael J. Hartmann
Lehrstuhl für Theoretische Physik II
Universität Erlangen - Department Physik

Eingehende Darstellung des Abschlussberichts

FAU hat wichtige Ergebnisse in allen geplanten Beitragsbereichen erzielt und einen entscheidenden Beitrag dazu geleistet, dass in dem Projekt ein industriell relevante Use Cases auf echter Quantenhardware gerechnet werden konnte. Die Beiträge von FAU umfassen:

- Die Entwicklung von „Variational Quantum Eigensolver“ Algorithmen für Spingittermodelle und Quantenchemie Anwendungen.
- Die Entwicklung von variationellen Algorithmen für Zeitentwicklung, die zunächst für Zeitentwicklungen von Spingittermodellen erforscht, und dann auf Störstellenmodelle in der Materialwissenschaft erweitert wurden.

Insbesondere hat FAU folgende Beiträge zu den jeweiligen Arbeitspaketen geleistet.

AP 1: Variational Quantum Eigensolver (VQE)
Ergebnisse von FAU: Es wurden VQE Algorithmen entwickelt und implementiert, insbesondere für für Spingitter Modelle, einen industriell relevanten Quantenchemie Use Case und das Anderson Impurity Modell zur Einbindung in einen Dynamical Mean-Field Theory Zugang, siehe Abschnitte 1, 2 und 4.
AP 2: Quantum Natural Gradient Optimizer mit effizienten Schätzverfahren
Ergebnisse von FAU: Nachdem der Natural Gradient Optimierungsalgorithmus für den VQE Algorithmus verfügbar war wurde an Verfahren gearbeitet um die notwendige Anzahl der Messungen durch effiziente Schätzverfahren zu reduzieren.
AP 3: Interface zwischen VQE Algorithmus mit QNG Optimizer und Softwarepaket von HQS
Ergebnisse von FAU: VQE Algorithmus und QNG Optimizer wurden erfolgreich kombiniert.
AP 4: Erweiterung des VQE Algorithmus mit Density Matrix Embedding
Ergebnisse von FAU: Diese Methode wurde nicht weiterverfolgt, da eine direkte Implementierung von Dynamical Mean-Field Zugängen mit vergleichbarem Aufwand möglich wurde.
AP 5: Variationelle Simulation von Zeitentwicklung
Ergebnisse von FAU: Die variationelle Zerlegung des Zeitentwicklungsoperators wurde erfolgreich umgesetzt, siehe Abschnitt 3.
AP 6: Integration von Zeitentwicklungssimulation in Dynamical Mean-Field Algorithmus.
Ergebnisse von FAU: Die variationelle Optimierung der Zeitentwicklung wurde erfolgreich in einen Dynamical Mean-Field Algorithmus integriert, siehe Abschnitt 4.
AP 7: Testdurchlauf des DMFT Solvers auf Quantenhardware
Ergebnisse von FAU: Dieser Testlauf wurde erfolgreich durchgeführt, siehe Abschnitt 4.

Im Folgenden beschreiben wir die einzelnen Beiträge von FAU im Detail.

1. Variational Quantum Eigensolver für Spin Modelle

FAU hat einen Variational Quantum Eigensolver (VQE) Algorithmus für Quanten-Spin-Systeme entwickelt und auf das sogenannte Regime $J_1 - J_2$ -Modell angewandt. Dieses Modell beschreibt ein zweidimensionales System, das durch antiferromagnetische Wechselwirkungen charakterisiert ist, sowohl zwischen nächste-Nachbar Spins durch die J_1 -Interaktion, als auch übernächste Nachbarn durch die J_2 -Interaktion. Dieses System ist stark frustriert, insbesondere im Regime $0.4 < J_1/J_2 < 0.6$, wo Quantenfluktuationen die klassische Anordnung der Spins destabilisieren. Dieses Regime ist schwer mit klassischen Methoden zu beschreiben, da der Grundzustand am Punkt höchster Frustration äußerst komplex ist. FAU schlug in der Veröffentlichung [Phys. Rev. B 106, 144426 \(2022\)](#), einen VQE vor, um die Vorteile von Quantenhardware für derartige Systeme zu nutzen. Für den VQE-Ansatz werden zu Beginn des Quantenschaltkreises parametrisierte X- und Y-Gatter eingesetzt, um den stark verschränkten Zustand einer Quantenspinflüssigkeit nachzubilden. Die Gatter zur Verschränkung des Systems werden in Blöcken angewandt. Um die Interaktionen im Hamiltonian nachzuempfinden, werden

für jede Interaktion im System gegenseitig kommutierende XX-, YY- und ZZ-Gatter verwendet. Diese Zwei-Qubit Gatter sind parametrisiert.

Im letzten Schritt des VQEs werden die Energieerwartungswerte simuliert und die Gatterparameter mithilfe einer klassischen Optimierung mit dem Algorithmus COBYLA optimiert. In einigen Fällen bleibt der Optimierer jedoch in lokalen Minima stecken. Um dieses Problem zu umgehen, wurde zusätzlich der Basinhopping-Algorithmus eingesetzt, der die Startparameter variiert und so die Wahrscheinlichkeit minimiert, in einem lokalen Minimum zu landen.

Zur Validierung des Ansatzes wurden rechteckige Anordnungen von 12, 16 und 20 Spins mit den $J_1 - J_2$ -Interaktionen am Punkt größter Frustration $J_1/J_2 = 0.5$ betrachtet. Mit diesem Ansatz wurde eine hohe Fidelität mit dem exakten Grundzustand erreicht. In nahezu allen Fällen lagen die Fehler unter 20% der Spektrallücke (dem Abstand zwischen der Grundzustandsenergie und der Energie des ersten angeregten Zustands).

FAU konnte zeigen, dass es durch diesen Ansatz möglich ist, die Gatter für die diagonalen Interaktion wegzulassen. Dies reduziert die Anzahl benötigter Gatter erheblich, was besonders relevant für Prozessoren mit supraleitenden Qubits in einer rechteckigen Anordnung ist. In solchen Prozessoren entfällt dadurch die Notwendigkeit, zwei zusätzliche SWAP-Gatter zu verwenden, um die diagonalen Interaktionen zu implementieren. Das Weglassen der diagonalen Gatter erleichtert zusätzlich die Optimierung durch den verkleinerten Parameterraum, was zu besseren Ergebnissen bei der Simulation führt.

Weiter wurden die anderen Regime $J_1/J_2 = 0$. Und $J_1/J_2 = 2$ des Systems, sowie ein 12-Qubit-Gitter mit periodischen Randbedingungen simuliert. Auch in diesen Fällen funktioniert der beschriebene Ansatz. Zusätzlich hat FAU die Spin-Spin Korrelationen und deren Abweichung von exakten Berechnungen untersucht, wobei eine hohe Übereinstimmung festgestellt wurde. Abschließend wurde untersucht, wie die Anzahl der Blöcke und damit die Anzahl der Zwei-Qubit-Gatter mit der Größe der Systeme skaliert. Eine lineare Extrapolation zeigt, dass die derzeitige Quantenhardware noch nicht in der Lage ist, diese Anzahl an Gattern mit ausreichend hoher Fidelität umzusetzen. Mit den aktuellen Fortschritten in der Quantenhardwareentwicklung könnte dies jedoch bald realisierbar sein.

Zusammenfassend hat FAU demonstriert, dass ein Variational Quantum Eigensolver mit dem vorgeschlagenen Ansatz gut geeignet ist, um das $J_1 - J_2$ -Modell zu beschreiben und Einblick in die Eigenschaften dessen Grundzustands zu liefern. Das Weglassen der diagonalen Interaktionsgatter vereinfacht die Implementierung auf Quantenhardware erheblich.

2. Industriell relevante Chemieprobleme auf Quantenhardware

Berechnungen in der Chemie gelten als eine der vielversprechendsten Anwendungen von Quantencomputern. Die erforderlichen Berechnungen stellen für klassische Rechner eine große Herausforderung dar, da die Zahl der Freiheitsgrade exponentiell mit der Zahl der zu berücksichtigenden Molekülorbitale steigt. Für Quantencomputer sind solche Probleme mit stark korrelierten Elektronen eine natürliche Anwendung, da die zu berechnenden Mechanismen von Natur aus quantenmechanisch sind. Bisherige Forschungsergebnisse für variationelle Quantenalgorithmen in der Quantenchemie, die auf realer Quantenhardware ausgeführt wurden, waren beschränkt auf schwach korrelierte oder industriell irrelevante Moleküle.

FAU hat einen neuen Quantenalgorithmus für die Bestimmung von Grundzustandsenergien stark korrelierter Moleküle entwickelt, für welche Quantencomputer den größten Vorteil im Vergleich zu klassischen Computern haben sollten. Im Speziellen betrachtete FAU in Kooperation mit BASF und TUHH (HHU) Metall-Chelatkomplexe, welche in häuslichen und industriellen Anwendungen benutzt werden.

Mit diesem Ansatz konnten Ergebnisse mit Hilfe eines Quantencomputers mit sog. chemischer Genauigkeit bestimmt werden, der Genauigkeit, die für quantenchemische Rechnungen benötigt wird. Die resultierende Arbeit [\[arXiv:2408.10801\]](https://arxiv.org/abs/2408.10801) erreicht daher einen signifikanten Meilenstein in der Verwendung von Quantencomputern in der Quantenchemie und stellt, nach Wissen der Autoren, den ersten vollumfänglichen Workflow zur Bestimmung der chemisch interessanten Gibbs Freien Energien industriell relevanter Moleküle unter Verwendung von realer Quantenhardware dar.

Der neue Quantenalgorithmus greift drei Problematiken variationeller Algorithmen in der Quantenchemie auf: das Finden eines effizienten variationellen Quantenschaltkreises, die Optimierung variationeller Parameter auf fehleranfälliger Hardware und das Sampling-Problem für Erwartungswerte in der Quantenchemie. Diese Aspekte werden im Folgenden näher erläutert.

Variationeller Quantenschaltkreis: Bei der Wahl eines Quantenschaltkreises muss meist zwischen einem effizient implementierbarem und einem symmetrie-respektierendem Schaltkreis abgewägt werden. Effizient implementierbare Schaltkreise benötigen zwar nur kurze Gattersequenzen, berücksichtigen aber keinerlei Symmetrien des zu lösenden Problems. Das erschwert die Optimierung der Parameter, da viele der präparierten Quantenzustände eigentlich von vornherein nicht in Frage kommen würden. Symmetrie-respektierende Schaltkreise umgehen dieses Problem indem sie auf algorithmischer Ebene nur jene Zustände präparieren können die tatsächlich relevant sind, enden aber meist in sehr langen Gattersequenzen. Unser Ansatz bietet einen Mittelweg indem nur Quantengatter verwendet werden, die die Teilchenzahlerhaltung quantenchemischer Systeme berücksichtigen und zeitgleich sehr effizient und mit relativ kurzer Schaltkreistiefe zu implementieren sind. Um die langreichweitigen Wechselwirkungen innerhalb stark korrelierter Moleküle gut abzubilden, lässt der Ansatz alle Qubits miteinander interagieren und bietet sich daher besonders für Hardware mit all-to-all Konnektivität, wie z.B. Ionenfallen, an.

Optimierung auf fehleranfälliger Hardware: Um die Parameter im Quantenschaltkreis zu optimieren wird in der Literatur meistens der Erwartungswert der Energie minimiert. Das bedeutet, dass bei jedem Parameter-Update der Energieerwartungswert des präparierten Zustandes auf dem Quantencomputer bestimmt werden muss. Zum einen besteht die Problematik, dass die Bestimmung eines einzelnen Erwartungswertes mit chemischer Genauigkeit bei 10 Qubits bereits über eine Million Ausführungen des Schaltkreises benötigt. Dieses sog. Sampling-Problem wird im nächsten Unterabschnitt behandelt. Ein weiteres Problem ist gleichzeitig, dass aktuelle Quantenhardware sehr fehleranfällig ist. Bei der Präparation eines Zustandes treten ungewollte Fehler auf und verfälschen den Energieerwartungswert. Die Arbeit von FAU entgegnet dieser Tatsache, indem FAU nicht den Energieerwartungswert, sondern nur dessen Diagonaleil bestimmt und optimiert. Dies hat zur Folge, dass nur Messungen in der Z-Basis benötigt werden, und dadurch die Teilchenzahl bei jeder Messung überprüft werden kann. Da der Quantenschaltkreis auf algorithmischer Ebene nur Superpositionen aus Zuständen mit einer definierten Teilchenzahl präparieren kann, können fehlerhafte Ausführungen des Schaltkreises leicht identifiziert werden. Durch Weglassen dieser fehlerhaften Ergebnisse kann der Diagonaleil der Energie mit wesentlich höherer Genauigkeit und weniger Messungen bestimmt, und eine Approximation des Grundzustandes präpariert werden.

Sampling-Problem: Die im vorherigen Schritt beschriebene Annäherung des Grundzustandes wird im letzten Schritt verwendet, um die tatsächliche Grundzustandsenergie zu bestimmen. Die Quantenchemie schreibt vor, dass Energien mit einer Genauigkeit von 1,5 mHa bestimmt werden müssen. Da die Anzahl der abzuschätzenden Terme des Hamiltonians mit N^4 skaliert, wobei N die Anzahl der Qubits ist, sind bereits bei einem 10 Qubit System wie unserem mehr als eine Million Samples nötig um die Energie mit geeigneter Präzision zu bestimmen. Erschwerend kommt hinzu, dass Messungen in verschiedenen Basen benötigt werden, was die

bisher verwendete Fehlerbehebung erschwert. Um dieses Problem zu umgehen, sampelte FAU den optimierten Quantenzustand 10.000 mal in der Z-Basis, behielt dabei aber sowohl korrekte als auch fehlerhafte Ergebnisse. Mit einer iterativen Methode aus [arXiv:2405.05068 (2024)] können dann fehlerhafte Ergebnisse korrigiert werden, und am Ende erhält man ein Set aus korrekten Basiszuständen die den Grundzustand aufspannen. Erzeugt man nun den Hamiltonian im Unterraum der korrekten Basiszustände erhält man eine numerisch genaue Abschätzung der Grundzustandsenergie, ohne die einzelnen Terme des Hamiltonians messen zu müssen. In unserem Fall ist es dadurch gelungen, die Grundzustandsenergie mit chemischer Genauigkeit zu bestimmen.

3. Variationelle Quantensimulation translationsinvarianter Systeme mittels klassischer Optimierung

Die Simulation von Hamilton'schen Systemen ist ein wichtiger Anwendungsbereich in der Quanteninformatik, der die Erforschung physikalischer Systeme ermöglicht und als erster Kandidat für praktische Vorteile von Quanten- über klassischen Computern gilt. Ziel ist es, das Matrixexponential eines gegebenen Hamiltonians als Quantenschaltung zu implementieren. Ein etabliertes Werkzeug für die Kompilierung dieser normalerweise komplexen Unitären sind sogenannte Produktformeln, wie die Suzuki-Trotter Zerlegung (oder oft nur Trotter Zerlegung). Diese macht es möglich, eine global wirkende Unitäre approximativ als Produkt von lokalen Gattern zu schreiben. Eine umfangreiche Serie von Arbeiten studierte bereits das asymptotische Verhalten der Gatterkomplexität von Trotter-Formeln. So ist es mittlerweile bekannt, dass die Trotter Zerlegung in einigen Fällen sogar asymptotisch optimal in der Anzahl der Gatter ist.

Auf modernen Quantenchips mit stark eingeschränkten Ressourcen, wie zum Beispiel limitierten Tiefen für Quantenschaltungen, ist andererseits bekannt, dass Trotter-Formeln Raum für Optimierung bieten. Das bedeutet, dass es andere Produktformeln gibt, welche für ein festes Budget von Gattern im Quantenschaltkreis, eine bessere Approximation bieten. Anders als bisherige Arbeiten, welche optimale Schaltungen für einen festgelegten Anfangszustand mithilfe von hybrider Quanten-klassischer Optimierung suchen, stellt die Arbeit von FAU [*Quantum Science and Technology* 8.2 (2023): 025006] eine rein klassische Optimierungsstrategie für den gesamten Zeitentwicklungsoperator für translationsinvariante Systeme vor. Sie löst damit eine Reihe von Problemen, die die Involvierung des Quantencomputers in die Optimierungsschleife mit sich bringt, wie zum Beispiel große Samplezahlen aus Quantenmessungen wegen "Barren Plateaus" oder wegen Observablen mit stark-verschränkter Eigenbasis.

Die klassisch effiziente Kostenfunktion, welche in der Arbeit von FAU für die Optimierung herangezogen wird, ist ein Fehlermaß im Raum der Unitären, welche die exakte Zeitentwicklung eines kleinen, klassisch lösbaren Systems mit einer parametrisierten Unitären vergleicht. Findet ein Optimierer einen Satz von Parametern, die diesen Fehler minimieren, können diese Parameter unter Ausnutzung der Translationsinvarianz für Produktformeln größerer Systeme wiederverwendet werden. Während der Zeitentwicklungsoperator selbst ab einer bestimmten Systemgröße nicht mehr lösbar ist, konnte FAU aufzeigen, dass die Verbesserung des Approximationsfehlers der optimierten Produktformeln gegenüber den Trotter-Formeln in der Systemgröße konstant bleibt. Auch in Fällen, in denen die Translationssymmetrie, zum Beispiel auf einem zweidimensionalen Gitter durch offene Randbedingungen, gebrochen ist, lässt sich die Skalierungsstrategie fruchtbringend anwenden. Hierzu muss zusätzlich zu den Parametern, welche für die Zeitentwicklung der (approximativ translationsinvarianten) Qubits im Inneren des Gitters verantwortlich sind, separat auch der Rand mit potenziell asymmetrischen Parametern optimiert werden. Diese beiden Parametersätze definieren dann zusammengefügt eine gute Approximation für Produktformeln beliebiger Größe, da der translationsinvariante Teil wie zuvor hochskaliert werden kann. Zusätzlich zur Skalierung in der Systemgröße, diskutiert FAU ebenfalls eine mögliche Skalierung in der Simulationszeit. Da die Produktformel eine akkurate Approximation auf dem gesamten Hilbertraum darstellt, kann sie wiederholt eingesetzt werden und damit längere Simulationszeiten darstellen. Eine substantielle Verbesserung des Fehlers

für einen einzelnen Zeitschritt skaliert auch auf mehrere Zeitschritte, obgleich der Verbesserungsfaktor mit der Anzahl der Wiederholungen immer kleiner wird und für sehr lange Simulationszeiten irgendwann verschwindet.

Das Optimierungsprotokoll und das Skalierungsverhalten wurden schließlich von FAU in numerischen Experimenten auf einem Ising Modell und einem XY Modell, jeweils mit transversalem Magnetfeld getestet. Dort konnten Trotter-Formeln um einen Faktor 1000 (für eindimensionale Gitter) bzw. 100 (für zweidimensionale Gitter) in Präzision verbessert werden. Um einen realistischen Vergleich in Fällen mit fehlerbehafteten Chips zu vergleichen, wurde das Zusammenspiel aus Gatterfehlern und Fehlern der Approximation ("algorithmische Fehler") untersucht. Damit die Verbesserung des algorithmischen Fehlers nicht im Rauschen des Chips untergeht, muss die Schrittweite (Simulationszeit pro Layer) adäquat gewählt werden. Damit zeigen wir Anwendungsfälle, in denen die, im Rahmen der fehlerbehafteten Ressourcen mögliche, maximale Simulationszeit mithilfe von klassisch optimierten Produktformeln signifikant erhöht werden.

Klassisch optimierte Produktformeln sind ein Impuls in Richtung Quantensimulationen langer Simulationszeiten. Sie ebnen den Weg für klassisch unberechenbare Quantensimulationen von Spin-Modellen auf modernen ("NISQ") Geräten und versprechen ähnliche Impulse auch für Probleme in der Materialforschung und Quantenchemie.

4. Dynamical Mean Field Theory auf einem Quantencomputer mit realer Zeit

Die Analyse von physikalischen Systemen mit stark korrelierten Elektronen erfolgt aufgrund ihrer hohen Komplexität durch die Untersuchung von vereinfachten Modellen. Das Geläufigste ist hierbei das Hubbard-Modell, bei dem angenommen wird, dass sich die Elektronen auf einem Gitter durch Springen auf benachbarte Gitterplätze bewegen. Nur wenn zwei Elektronen mit unterschiedlichem Spin auf demselben Gitterplatz landen, stoßen sie sich aufgrund der Coulombkraft ab. Allerdings gestaltet sich das Finden einer Lösung auch für dieses einfache Modell als schwierig.

Eine weitere Möglichkeit bietet Dynamical Mean Field Theory. Hierbei wird ein einzelner Gitterplatz isoliert (Impurity) und die verbleibenden Gitterplätze auf ein Bad abgebildet, mit dem die Impurity dann Elektronen austauschen kann. Ein Modell, das dieses System beschreibt, ist das Single Impurity Anderson Modell (SIAM). In einem iterativen Prozess werden die Parameter dieses Systems aktualisiert, bis es zu einer Lösung konvergiert ist. Auch wenn diese Lösung nur dann exakt identisch mit der Lösung des Hubbard Modells ist, wenn ihm ein Gitter mit unendlich hoher Koordinatenzahl zugrunde liegt, so stellt sie auch bei weniger Dimensionen eine gute Annäherung dar. Innerhalb einer Iteration der DMFT-Schleife ist es erforderlich die Green's Funktion in Abhängigkeit der Zeit zu berechnen. In diesem Projekt wurde diese auf einem Quantencomputer bestimmt und das Ergebnis für die Aktualisierung der SIAM-Parameter verwendet. Hierfür muss der Grundzustand auf der Quantenhardware vorbereitet werden und dann in der Zeit entwickelt werden. Letzteres wird im Allgemeinen durch eine sogenannte Trotterisierung, d. h. eine Entwicklung des Zeitentwicklungsoperators in ein Produkt aus einzelnen Operationen für einen sehr kurzen Zeitschritt (Trotter-Schritt genannt), bewerkstelligt. Eine wiederholte Anwendung des Trotter-Schritts ermöglicht es dann, das System zu einem Zeitpunkt, der ein Vielfaches des Zeitschritts darstellt, zu entwickeln. Dies führt allerdings zu einem zunehmend tieferen Schaltkreis, sodass, aufgrund der aktuell verfügbaren Quantenhardware, ein immer größerer Fehler auftritt.

Um dieses Problem zu umgehen, trainieren wir eine parametrisierte Version des Trotter-Schritts (d. h. die Gatterstruktur ist identisch zu der des Trotter-Schritts, allerdings mit anderen Gatterparametern) mit einer iterativen Methode, um die Zeitentwicklung mit einem Schaltkreis mit konstanter Tiefe zu approximieren. Hierfür wird der Grundzustand zunächst durch zwei Trotter-Schritte in der Zeit vorwärtsentwickelt und anschließend durch den Schaltkreis, der trainiert werden soll, zurück entwickelt. Befindet sich das System anschließend wieder im

Grundzustand, so wurde eine gute Annäherung für den Zeitpunkt gefunden, der zwei Trotter-Schritten entspricht. Das Training für jeden weiteren Zeitschritt erfolgt dann iterativ, indem man das System mit der bereits gefunden Annäherung und einem zusätzlichen Trotter-Schritt vorwärtsentwickelt. So erhält man für jeden Zeitpunkt ein Set an Parametern für einen Schaltkreis mit konstanter Tiefe. Dieses Training kann, sofern die Fehlerraten der Gatter gering genug sind, auch auf dem Quantencomputer durchgeführt werden. Die so approximierte Zeitentwicklung kann dann genutzt werden um die Green's Funktion auf dem Quantencomputer zu messen.

Für die Vorbereitung des Grundzustands wird ein variationeller Algorithmus (VQE) verwendet, der sich ebenfalls der parametrisierten Version des Trotter Schritts als Ansatz bedient. Dieser Ansatz, ein sogenannter Hamiltonian Variational Ansatz, hat den Vorteil, dass er die Symmetrien des SIAM-Modells erhält und gegen ein häufig auftretendes Optimierungsproblem, dass durch eine flache Kostenfunktionslandschaft erzeugt wird, resistenter ist. Bezüglich des Trainings der Zeitentwicklung wird letzteres zusätzlich durch eine lokale Kostenfunktion und durch einen „warmen Start“ verhindert, d. h. man befindet sich bereits nahe am Minimum der Kostenfunktion, indem man die Parameter für der vorhergegangenen Zeitschritt als Startpunkt für die Optimierung verwendet. Die notwendige Tiefe der Ansätze, d. h. die Anzahl der parametrisierten Trotter-Schritte („Layers“), wird durch die Anzahl der Badplätze (B) im SIAM-Modell und durch die SIAM-Parameter bestimmt. Hierbei konnte durch Simulationen festgestellt werden, dass die Anzahl der Layer für die Vorbereitung des Grundzustands mit einem relativen Fehler von 10^{-4} in der Grundzustandsenergie linear mit der Anzahl der Badplätze ansteigt, vgl. Abbildung 1. Auch für die Anzahl an Layern für die Approximation der Zeitentwicklung mit einem Fehler von 10^{-3} konnte ein in der Anzahl an Badplätzen polynomieller (zwischen linear und quadratisch) Zusammenhang für bis zu drei Badplätzen gefunden werden, vgl. Abbildung 2. Die hier gezeigten Werte beziehen sich auf Zeitpunkte, für die normalerweise tausende Trotter-Schritte notwendig wären, um sie zu erreichen.

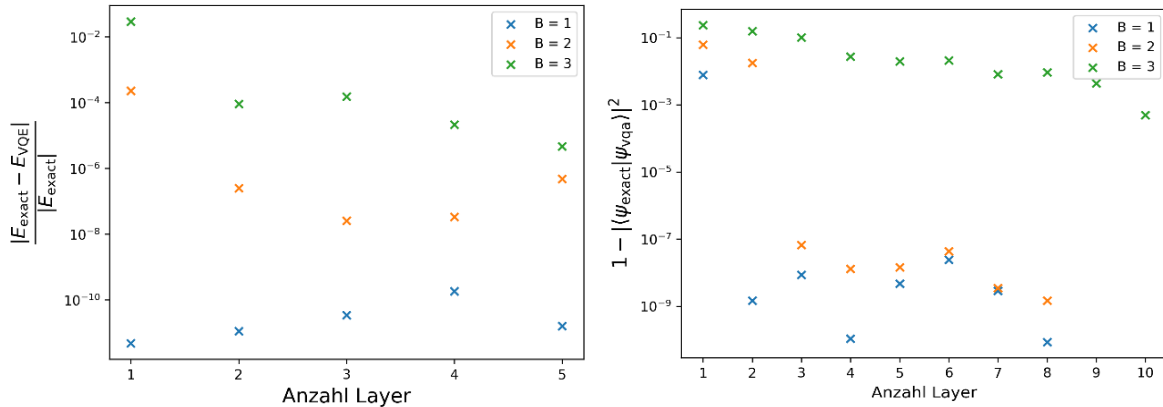


Abbildung 1: Relativer Fehler in der Grundzustandsenergie Coulombstärke von $U = 4$ (links) und Fehler in der Approximation der Zeitentwicklung bei der Zeit $t = 500 U$ (rechts) in Abhängigkeit der verwendeten Layer im Ansatz für eins bis drei Badplätzen. Die Anzahl der Layer bezieht sich hierbei auf die Trotterisierung zweiter Ordnung.

In Kooperation mit dem Partner Bosch wurde der Algorithmus für eine „One-Shot“ DMFT-Berechnung auf realer Quantenhardware angewendet. Als Ausgangspunkt wurde eine DFT-Berechnung für CaCuO_2 durchgeführt. Dadurch konnte das System auf ein Hubbard Modell mit einer Coulombstärke von $U = 3.11 \text{ eV}$ abgebildet werden. Für dieses Hubbard-Modell wurde dann die DMFT-Schleife mit zwei Badplätzen auf einem klassischen Rechner durchgeführt. Die so erhaltenen SIAM-Parameter wurden dann für eine letzte DMFT-Iteration, deren zeitabhängige Green's Funktion auf dem Quantencomputer berechnet werden soll, genutzt. Durch eine Fourier Transformation erhält man dann die sogenannten Lehmann-Parameter, die für die Berechnung der Zustandsdichte von CaCuO_2 benötigt werden.

Das notwendige variationelle Training für den Grundzustand und für die Zeitentwicklung musste allerdings klassisch durchgeführt, da die Fehlerraten des verwendeten Heron Quantenprozessor von IBM für den tiefen Schaltkreis, der für das Training notwendig war, zu groß sind. Aus demselben Grund war es ebenfalls nicht möglich, die notwendige Anzahl an Layern für eine fehlerfreie Zeitentwicklungsapproximation zu nutzen. Die geringe Anzahl an Layern führt dazu, dass die mit der Approximation berechnete Green's Funktion unabhängig von den Fehlerraten der Hardware ab einem gewissen Zeitpunkt von ihrem tatsächlichen Wert abweicht.

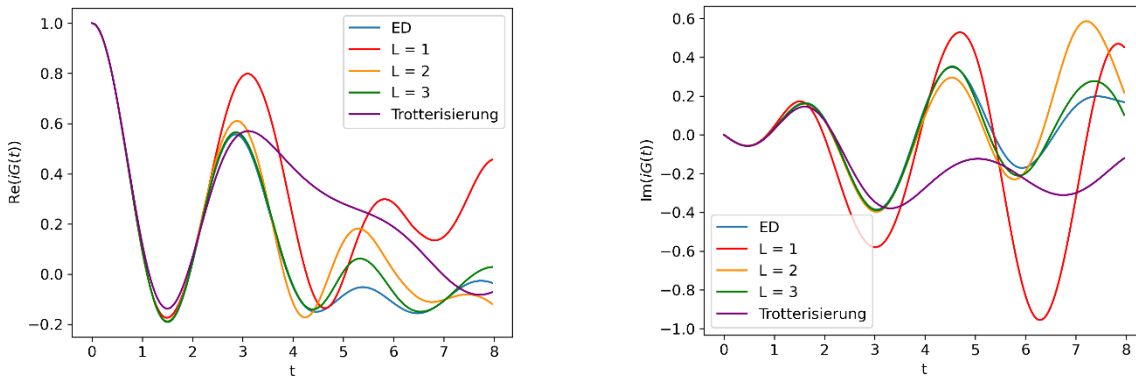


Abbildung 2: Simulierte Ergebnisse für den Real- (links) und Imaginärteil (rechts) der Green's Funktion in Abhängigkeit der Layer-Anzahl (L) im Vergleich mit dem Ergebnis durch exakte Diagonalisierung („ED“) und einer Trotterisierung mit der gleichen Gatteranzahl wie für $L = 3$ („Trotterisierung“). Im Gegensatz zur vorherigen Grafik bezieht sich hier und im Folgenden ein Layer auf eine Trotterisierung erster Ordnung, sodass hier zwei Layer einem Layer in Figur 1 gleichgesetzt sind.

Da aufgrund der nicht perfekten Quantenhardware das gemessene vom simulierten Ergebnis abweicht, wurde eine Form der Fehlerbehebung durchgeführt, um das Messergebnis nachträglich zu verbessern. Hierfür wurde auch die zeitabhängige Green's Funktion für das SIAM-Modell mit $U = 0$ aber ansonsten gleichbleibenden Parametern auf dem Quantencomputer für unterschiedliche Anzahlen von Layern gemessen. In diesem Fall kann die Green's Funktion analytisch berechnet werden und zusammen mit dem Messergebnis für eine Berechnung einer Layer-abhängigen Dämpfungskorrektur herangezogen werden. Diese kann dann auf das eigentliche Messergebnis angewandt werden und es somit verbessern, vgl. Abbildung 3.

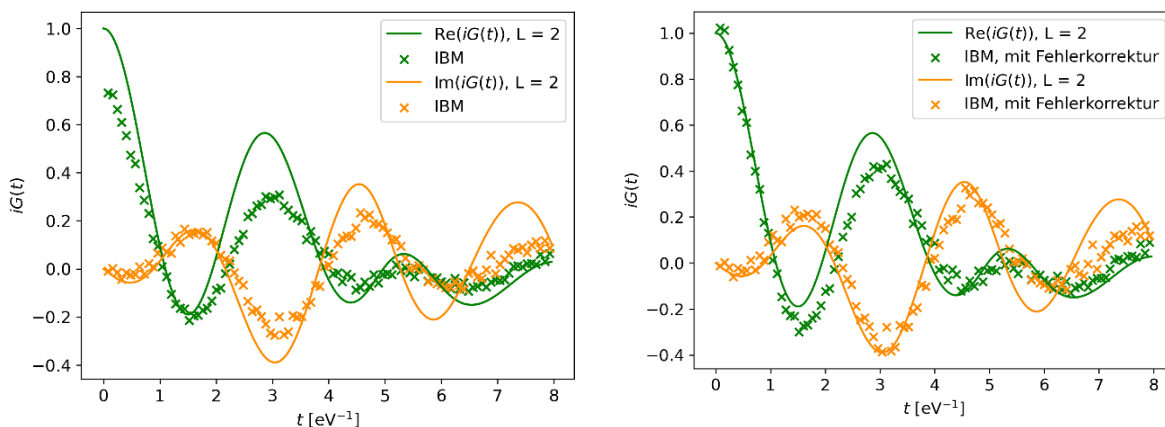


Abbildung 3: Messergebnis der Green's Funktion auf dem IBM Quantenchip „Heron“, ohne (links) und mit Fehlerkorrektur (rechts) im Vergleich zum simulierten Ergebnis für drei Layer (Trotterisierung erster Ordnung)

Da die weitere Berechnung der Lehmann-Parameter eine Fourier Transformation benötigt und diese somit nur für einige wenige Punkte der Green's Funktion durchgeführt werden kann, ist die Auflösung der Zustandsdichte eingeschränkt. Um dieses Problem zu mindern, verwendet man die Lehmann-Repräsentation der zeitabhängigen Green's Funktion als Fit-Funktion für das Messergebnis, sodass die Lehmann-Parameter dementsprechend die Fit-Parameter darstellen. Dadurch und durch die Verwendung weiterer Kriterien, die die Lehmann-Parameter erfüllen müssen, können mehr Lehmann-Parameter mit besserer Genauigkeit aus dem Messergebnis extrahiert werden, als es allein durch eine Fourier Transformation möglich ist. Dieses Verfahren hat weiterhin den Vorteil, dass die verbleibenden Abweichungen vom Messergebnis zur exakten Green's Funktion weniger stark ins Gewicht fallen, vgl. Abbildung 4.

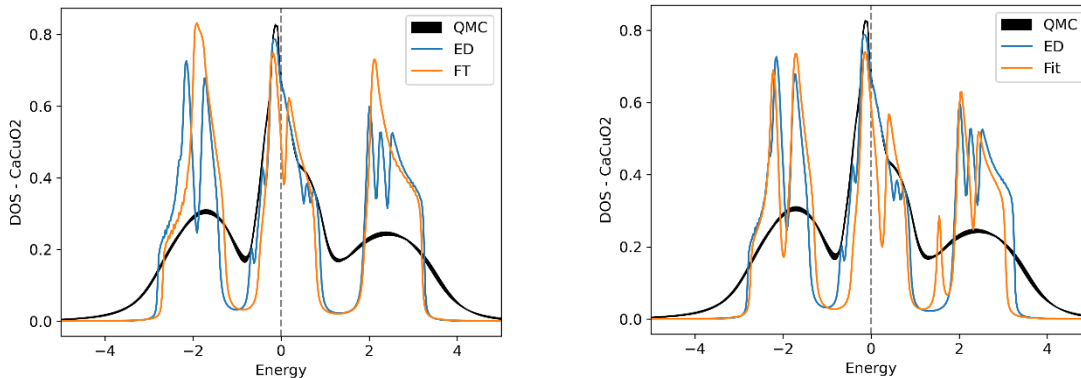


Abbildung 4: Zustandsdichte von CaCuO_2 mit Lehmann-Parametern gewonnen aus der Fourier Transformation (links, „FT“) und durch die Fitting-Prozedur (rechts, „Fit“) im Vergleich zur exakten Diagonalisierung („ED“) und Quantum Monte Carlo („QMC“)

5. Ergänzende Angaben

Wichtigste Positionen des zahlenmäßigen Nachweises

Die Hauptkosten des Projekts waren Personalausgaben für die Wissenschaftler, die am Projekt gearbeitet haben. Weiterhin fielen Ausgaben für den Zugang zu Quantenhardware an, diese wurden eingesetzt, um die entwickelten Algorithmen zu testen.

Notwendigkeit und Angemessenheit der geleisteten Projektarbeiten

Die, im Projekt erreichten, Ergebnisse haben die Grenzen der realisierbaren, industriell relevanten Anwendungen von Quantencomputern verschoben. Insbesondere wurde chemische Genauigkeit in der Berechnung eines stark korrelierten Moleküls erreicht, das Grundlage vielfältiger industrieller Anwendungen erreicht. Dazu waren vielfältige Weiterentwicklungen von Quantenalgorithmen und auch klassischen Algorithmen-Blöcken notwendig. Die Arbeiten tragen damit einen entscheidenden Anteil dazu bei, in Deutschland internationale Spitzenexpertise für diesen Bereich zu etablieren.

Voraussichtlicher Nutzen im Sinne des fortgeschriebenen Verwertungsplans

Die Entwickelten Algorithmen werden für die Partner BASF, Bosch und HQS von erheblichem Nutzen in der Entwicklung von Software für die Anwendung von Quantencomputern in der Chemie und Materialsimulation sein.

Fortschritte bei anderen Stellen

Nennenswerte Fortschritte in den Anwendungsbereichen des Projekts wurden international auch von IBM und Riken gemacht, in Projekten, die

Unterraumdiagonalisierungen in Quantenchemieberechnungen mit Quantencomputern integriert haben, beispielsweise [arXiv:2405.05068 (2024)].

Erfolge und geplante Veröffentlichungen von Ergebnissen

Bisher wurden drei Arbeiten mit Ergebnissen des Projekts publiziert:

- Nützel, Ludwig, et al. "Solving an Industrially Relevant Quantum Chemistry Problem on Quantum Hardware." *arXiv preprint arXiv:2408.10801* (2024).
- Mansuroglu, Refik, et al. "Variational Hamiltonian simulation for translational invariant systems via classical pre-processing." *Quantum Science and Technology* 8.2 (2023): 025006.
- Feulner, Verena, and Michael J. Hartmann. "Variational quantum eigensolver ansatz for the J1-J2-model." *Physical Review B* 106.14 (2022): 144426.

Weiterhin befinden sich zwei Veröffentlichungen in Vorbereitung. Eine, die die Theorie hinter dem Dynamical Mean-Field Algorithmus und seine Grenzen im Detail beschreibt und eine weitere mit den Ergebnissen für das Dynamical Mean-Field Algorithmus Experiment mit der realen Hardware.