

**Abschlussbericht**

**zum Teilvorhaben: VQE für Quantenchemie**

**im Verbundvorhaben**

**Hybrides Fermionisches Quantenrechnen für die Katalysatorentwicklung**

**Akronym: HFAK**

**Zuwendungsempfänger: Covestro Deutschland AG**

**Förderkennzeichen: 13N15630**

**Projektlaufzeit: 01.02.2021-31.07.2024**

**Autor: Dr. Christian Gogolin**

GEFÖRDERT VOM



**Bundesministerium  
für Bildung  
und Forschung**

*Die Verantwortung für den Inhalt dieser Veröffentlichung liegt beim Autor.*

**Leverkusen, 24.01.2025**

# Kurzbericht

## Aufgabenstellung

Dieses Teilvorhaben sollte die Entwicklung der Quanteninformatik auf NISQ Quantenrechnern für das Anwendungsfeld der Simulation von chemischen Substanzen und Prozessen vorantreiben.

Aussichtsreichstes Anwendungsfeld für die hier zu erarbeitenden Technologien ist die Entwicklung neuer Katalysatoren.

Angestrebt wurden die weitere Verbesserung der relevanten Quantenalgorithmen sowie das Erreichen eines besseren Verständnisses des wahren Potentials von Quantenrechnern für die chemische Industrie.

Konkret sollten die folgenden Outputs generiert bzw. Ziele erreicht werden:

- Erstellung eines Whitepapers, welches die technische Machbarkeit und die verbleibenden Hürden auf dem Weg zu einem Quantenvorteil durch atombasierte Quantenrechner zusammenfasst und eine erste Abschätzung des Business Cases für den Einsatz von Quantenrechnern in der chemischen Forschung liefert.
- Aufbau und Test eines Software-Stacks, welcher die Nutzung von Quantenrechnern für Anwendungen in der Computerchemie auf der universitären Hardware ohne tiefes Domänenwissen bezüglich der Hardwareimplementierung ermöglicht.
- Entwicklung neuer Ansätze, Optimierer und Messmethoden für hybride Quantenalgorithmen mit diesem Werkzeug.
- Benchmarken solcher Ansätze, Optimierer und Messmethoden an repräsentativen Use-Cases inspiriert durch industrierelevante chemische Problemstellungen.
- Spezialisierung solcher hybrider Variational Quantum Eigensolver (VQE) Algorithmen für die von den Projektpartnern entwickelte Quantenhardware basierend auf gefangenen Ionen und neutralen Atomen.

## Technischer Stand bei Start

Zum Start des Vorhabens war die Simulation von Chemie im Feld bereits als eine der vielversprechendsten Anwendungen von Quantenrechnern erkannt worden und es bestand allgemein großer Optimismus, dass innerhalb weniger Jahre ein Quantenvorteil für die Computerchemie mit Quantenrechnern erreicht werden könnte und zwar auch ohne Quantenfehlerkorrektur.

Gleichzeitig waren die Quantenrechner bei den universitären Partnern nicht über einen Programmierschnittstelle von außen ansprechbar und somit keine eigentlichen Computer sondern eher Physik-Experimente und es bestand kein ausreichendes Wissen über Computerchemie oder dem quanten-algorithmischen Stand der Technik. Bei Covestro fehlte Erfahrung im Umgang mit echter Hardware, insbesondere mit solcher basierend auf gefangenen Atomen und Ionen. In all diesen Gebieten konnte durch dieses Vorhaben erhebliches Know-How bei allen Partnern aufgebaut werden und am Ende des Projekts konnten Quantenrechnungen auf der universitären Hardware vom Covestro High Performance Computing (HPC) Cluster aus durchgeführt werden.

## Ablauf

Die Zusammenarbeit im Konsortium war durch intensiven Austausch gekennzeichnet, welcher nicht nur bei den halbjährigen Projekttreffen, sondern auch in häufigen, zeitweise mehrmals wöchentlich, durchgeführten Videokonferenzen stattfand. Mit beiden Konsortialpartnern wurden intensiv und gemeinsam über das Versionskontrollsystem Git an Computer Code für die Ansteuerung von Quantenhardware und -simulatoren gearbeitet. Es fand reger Austausch zur gemeinsamen Fehlersuche und Interpretation der Ergebnisse statt. Ebenso kollaborativ verlief das Schreiben einer gemeinsamen Publikation.

Das Teilvorhaben gliederte sich in drei Arbeitspakete. Im ersten Arbeitspaket (TV1.1) wurde der Brückenschlag zwischen den Brückenschlag von der experimentellen Quantenhardware-Forschung zur industriell angewandten Computerchemie geschaffen, eine gemeinsame Sprache gefunden, Fakten über Hardware und Computerchemie gesammelt und so die Projektteams der Partner ermächtigt miteinander eine produktive Zusammenarbeit zu beginnen. Bei Covestro fanden außerdem Workshops und regelmäßige interne Treffen zwischen dem Projektteam und den klassisch arbeitenden Computerchemikern statt.

Das zweite Arbeitspaket (TV1.2) konzentrierte sich auf die Entwicklung eines vielseitigen Software-Stacks für Quantenrechnen bei Covestro. Dieser wurde nahtlos in die bestehende computerchemische Simulationssoftware integriert und unter Anwendung professioneller Softwareentwicklungspraktiken erstellt. Verschiedene Fehlermittlungsmethoden und Optimierungsverfahren wurden implementiert, einschließlich des Quantum Natural Gradient und sogenannter Surrogate Model Optimierer. Methoden zur Komprimierung molekularer Hamiltonians wurden weiterentwickelt, was zu einer drastischen Reduzierung der nötigen Quantenrechenzeit für Molekülsimulationen führte. Zusätzlich wurde GPU-Beschleunigung und High-Performance Computing sowohl bei der Simulation als auch bei der Komprimierung von quantenchemischen Hamiltonians angewandt.

Im dritten Arbeitspaket (TV1.3) wurden fehlermitigierte Berechnungen auf der Hardware der Universität Mainz durchgeführt. Verschiedene Kombinationen von Ansätzen und Fehlermitigierungsmethoden wurden in Praxistests untersucht, um den Kompromiss zwischen Mitigierung und erhöhter Gattertiefe zu verstehen. Die Hyperparameter diverser Optimierer wurden unter Berücksichtigung von Schrotrauschen und Messfehlern optimiert und verschiedene Initialisierungsstrategien für VQE-Parameter wurden verglichen. Mit den Partnern vom MPQ wurden neuartige Methoden zur Realisierung von Quantenzahlerhaltenden Schaltkreisen und der Messung von molekularen Hamiltonians auf der dort in Entwicklung befindlichen Neutralatom-Hardware entwickelt und in einer wissenschaftlichen Publikation beschrieben.

Insgesamt wurden bedeutende Fortschritte in der Entwicklung und Anwendung von Quantencomputing-Methoden für die chemische Industrie erzielt. Allerdings zeigten sich auch Herausforderungen, insbesondere bei der praktischen Umsetzung auf realer Quantenhardware. Die Ergebnisse führten zu einer Revision einiger ursprünglicher Annahmen bezüglich der kurzfristigen Nützlichkeit von Quantenrechnen in der NISQ-Ära. Vorallem bleibt die große Anzahl von Wiederholungen, die für Berechnungen chemischer Eigenschaften von Molekülen nötig ist, eine Herausforderung für die aktuelle Quantenhardware.

#### Wesentlichen Ergebnisse und Zusammenarbeit im Konsortium

Alle unter Aufgabenstellung genannten Ziele konnten dank gut abgestimmter Zusammenarbeit im Konsortium erreicht werden. Die wesentlichen Ergebnisse des Vorhabens von bleibendem Wert sind die in enger Zusammenarbeit für die Quantenhardware an der Universität Mainz geschaffenen Programmierschnittstellen und die zugehörigen „Devices“, welche ein Ansprechen über die PennyLane Bibliothek ermöglichen. Mit den Partnern am MPQ konnte in einer wissenschaftlichen Veröffentlichung ein neuartiger Vorschlag zur digitalen Simulation von Chemie mittels Quantenzahlerhaltender fermionischer Gatter entwickelt werden. Weitere Ergebnisse bezüglich dem Benchmarking von Optimierungsstrategien für variationelle Quantenschaltkreise werden in einer Doktorarbeit veröffentlicht und drei weitere wissenschaftliche Arbeiten der Gruppe bei Covestro haben von der in diesem Teilvorhaben (weiter) entwickelten Software-Infrastruktur erheblich profitiert und/oder nutzen Beispiel-Use-Cases, die im Rahmen dieses Projekts identifiziert werden konnten.

## Eingehende Darstellung

Die in diesem Teilvorhaben durchgeführten Arbeiten folgten den im Antrag beschriebenen Arbeitspaketen TV1.1, TV1.2 und TV1.3, mit den bei einem so riskanten Forschungsvorhaben zu erwartenden Anpassungen. Im Einzelnen wurden folgende Arbeiten durchgeführt:

### TV1.1

Im ersten Arbeitspaket wurde der Brückenschlag von der experimentellen Quantenhardware-Forschung zur industriell angewandten Computerchemie geschaffen und Informationen zur besseren Abschätzung des realistischerweise erwartbaren wirtschaftlichen Nutzens von Quantenrechnen für die chemische Industrie gesammelt.

Für den Brückenschlag über die Grenzen von wissenschaftlichen Feldern hinweg war ein intensiver Austausch mit den Projektpartnern aber auch intern bei Covestro zwischen dem mit der Umsetzung des Vorhaben betrauten Teams und den vorwiegend an realen chemischen Problemen der Business Entities von Covestro arbeitenden Computerchemiker nötig. In Workshops wurden einige repräsentative Anwendungsfälle identifiziert, bei denen genauere Simulationstechniken, wie man sie sich von Quantencomputing verspricht, zu Durchbrüchen führen können. Eine quantitative Abschätzung des Impakts, wie ursprünglich angestrebt, wurde zwar versucht, schien aber in Anbetracht der noch großen Unsicherheiten bezüglich der Fähigkeiten von zukünftigen Quantenrechnern und der großen Abhängigkeit von hypothetischen Marktszenarien nicht sinnvoll durchführbar.

### TV1.2

In TV 1.2 wurde bei Covestro ein vielseitiger und flexibler Software-Stack für Quantenrechnen aufgebaut, bzw. weiterentwickelt. Dieser wurde für den Vergleich (Benchmarking) und die Entwicklung neuer Methodiken verwendet und so konkrete Pläne für Quantenrechnungen auf den beiden Hardware-Plattformen entwickelt. Die Software wurde dabei so gestaltet, dass sie sich nahtlos in die bei Covestro im Produktiveinsatz befindliche Software für computerchemische Simulationen einfügt. Dabei wurde auf die konsequente Anwendung von Best Practices der professionellen Softwareentwicklung (Agile Entwicklung mit Versionskontrolle und Unit Tests) geachtet, um die Komplexität des entstehenden Stacks unter Kontrolle zu halten und eine effiziente Fehlersuche zu ermöglichen.

Es wurden Softwarekomponenten zum Vorbereiten der Quantenrechnung entwickelt, welche das Einlesen und Modifizieren von Molekülgeometrien, sowie das Lösen der Self Consistent Field (SCF) Gleichungen und die Konstruktion von Molekülorbitalen ermöglichen. Dies dient der Berechnung des Quantenmechanischen Hamiltonians in zweiter Quantisierung, welcher den Input für die folgenden Rechnungen auf Quantenhardware darstellt. Insbesondere wurden auch Methoden zum (semi) automatischen Finden von über eine Reaktion hinweg konsistenten aktiven Räumen, welche Covestro mit HQS Quantum Simulations zusammen entwickelt, angebunden. Fortwährend wurden Referenzrechnungen mit klassischen Methoden der Computerchemie wie DFT, CASCI, CASSCF durchgeführt und Molekülgeometrien optimiert.

Mehrere Fehlermitigierungsmethoden wurden so implementiert, dass sie das Ausführen und Nachprozessieren von sehr allgemeinen Quantenschaltkreisen mit Fehlermitigierung erlauben. Die Implementierung in PennyLane stellt die Ausführbarkeit der Quantenschaltkreise auf diversen Simulatoren und Quantenhardware sicher. Verschiedene Quantenschaltkreise wurden auf ihre Eignung als Ansätze für VQE getestet und Methoden zu deren Initialisierung entwickelt. Eine ganze Reihe von Optimierungsverfahren wurden in kompatibler Weise implementiert bzw. mit einer einheitlichen Programmierschnittstelle versehen, einschließlich der Quantum Natural Gradient und sogenannten Surrogate Model Optimierern. Eine komplette Maschinerie zum automatischen Optimieren der

Hyperparameter solcher Optimierer wurde entwickelt, um dann einen fairen Vergleich der Performance verschiedener Ansätze durchführen zu können. Dabei wurden auch neue und verbesserte Optimierungsverfahren entwickelt. Leider muss insgesamt allerdings gesagt werden, dass immer noch zu viele Optimierungsschritte nötig sind, um variationelle Quantenalgorithmen zu optimieren.

Methoden zum Finden komprimierter Repräsentationen von molekularen Hamiltonians mittels Double Factorization wurden weiterentwickelt und mit anderen fortgeschrittenen Techniken wie der Fluid Fermionic Fragment Methodik (welche erst neu implementiert werden musste) verbunden. Dies dient dem Finden von optimalen Strategien zum Messen von molekularen Energien mit so wenigen Ausführungen der Quantenhardware wie möglich. Auf diese Weise konnten drastischen Reduzierungen der nötigen Quantenrechenzeit für die Simulation von Molekülen erreicht werden. Neue Methoden zum Realisieren von auf die Computerchemie angepassten VQE-Schaltkreisen auf der Neutralatom-Plattform des MPQ wurden erarbeitet und die Ergebnisse als Publikation veröffentlicht [„Simulating Chemistry with Fermionic Optical Superlattices“, Fotios Gkritis, Daniel Dux, Jin Zhang, Naman Jain, Christian Gogolin, Philipp M. Preiss, arXiv:2409.05663, accepted in PRX Quantum].

GPU-Beschleunigung und High-Performance Computing wurde sowohl bei der Simulation als auch bei der Komprimierung von Quantenchemischen Hamiltonians mittels Double Factorization angewandt.

### TV1.3

In diesem Arbeitspaket wurden fehlermitigierte Berechnungen von Hamiltonschen Termen, die in molekularen Hamiltonians vorkommen, auf der Hardware der Universität Mainz realisiert. Eine komplette Berechnung chemischer Eigenschaften von Molekülen auf der universitären Hardware war aufgrund der - trotz aller Optimierungen - großen Anzahl von Wiederholungen, die dafür nötig gewesen wären, und der gegebenen Wiederholungsfrequenz der Hardware nicht möglich. Diese Erkenntnis wurde beim Benchmarking in TV1.2 gewonnen. Dies führte auch zu einer Revision einiger im Antrag gemachten Vorhersagen bezüglich der zukünftigen Nützlichkeit und der zu erwartenden Auswirkungen von Quantenrechnen in der NISQ Ära.

Es wurden Praxistest verschiedener Kombinationen von Ansätzen und Fehlermitigierungsmethoden durchgeführt, um den Tradeoff zwischen Mitigierung und erhöhter Gattertiefe zu verstehen. Verschiedenen Zerlegungen der quantenzahlerhaltenden Gatter in die nativ von der Hardware an der Universität Mainz und dem MPQ unterstützten Gatter wurden gefunden und teilweise für reale Quantenrechnungen auf Hardware genutzt. Verschiedene Fehlermitigierungsstrategien wurden auf der Hardware der Universität Mainz getestet. Mit der in TV1.2 entwickelten Maschine wurden die Hyperparameter diverser Optimierer unter Berücksichtigung von Schrotrauschen und Messfehlern optimiert. Verschiedene deterministische und randomisierte Initialisierungsstrategien von VQE Parametern wurden verglichen. Die Ergebnisse der Hardwareexperimente wurden als nicht ausreichend beeindruckend angesehen, um eine dedizierte Publikation zu rechtfertigen, sie werden jedoch als Teil der Doktorarbeit von Fotios Gkritis (noch in Vorbereitung) veröffentlicht werden.

### Wichtigsten Positionen des zahlenmäßigen Nachweises

Die Vorkalkulation umfasste neben den weit überwiegenderen Personalkosten noch Reise- und Verwaltungsgemeinkosten. Reisekosten sind aufgrund der Coronapandemie und dem dadurch verursachten Übergang zu virtuellen Projekttreffen nur geringfügig angefallen. Die vorkalkulierten Personalkosten wurden annähernd ausgeschöpft.

## Notwendigkeit und Angemessenheit der geleisteten Projektarbeiten

Durch das Vorhaben wurde ein deutlicher Kenntnisgewinn hinsichtlich erzielt wie Computerchemie in der industriellen Forschung angewendet wird und welche Eigenschaften Quantenrechner haben müssen, um dort einen Mehrwert zu generieren. Die dafür erforderliche Kooperation längerfristige kontinuierliche Kooperation zwischen akademischen und industriellen Partner wäre ohne Förderung nicht möglich gewesen. Damit steht die Förderung aus unserer Sicht in einem angemessenen Verhältnis zu den geleisteten Projektarbeiten und den erzielten Projektergebnissen.

## Nutzen und Verwertbarkeit des Ergebnisses

Im Projekt wurden sowohl immaterielle als auch materielle Ergebnisse erarbeitet. Auf der immateriellen Seite wurde vor allem Know-How erworben und Beziehungen zwischen der Industrie und der akademischen Forschung in Deutschland gestärkt. Bei den Partnern wurde ein deutlich verbessertes Verständnis dafür entwickelt, wie Computerchemie in der industriellen Forschung angewendet wird und welche Eigenschaften ein Quantenrechner haben muss, um dort einen Mehrwert zu generieren. Dabei zeigt sich, dass zum Beispiel ein größerer Bedarf an schnelleren Methoden besteht als an solchen, die genauere Ergebnisse liefern als sie mit klassischen Rechnern erreichbar sind. Auch weniger beachtet in der akademischen Forschung ist, dass Berechnungen von molekularen Eigenschaften über die Energie hinaus wichtig sind, um eine Computerchemische Methode praktisch nutzbar zu machen. Covestro hat seit dem eine Reihe von Arbeiten veröffentlicht, die auf Methoden zur Berechnung von solchen Eigenschaften mittels Quantenalgorithmen abzielen. Außerdem wurde erheblicher Wissenstransfer bezüglich der neuesten Quantenalgorithmen für die Simulation von Chemie in die experimentell an Quantenhardware arbeitenden Gruppen erreicht. Die Zusammenarbeit an gemeinsamen Codebasen unter Versionskontrolle hat zu einer Professionalisierung der Fähigkeiten in der Softwareentwicklung bei allen Partnern geführt. Covestro konnte tiefe Einblicke in die Arbeit an Quantenhardware erhalten und kann somit den Technology Readiness Level von Quantencomputing nun deutlich besser einschätzen. Es wurden neue Erkenntnisse bezüglich der Realisierbarkeit von für die Simulation von Chemie entwickelten Quantenschaltkreisen erlangt und veröffentlicht (siehe Liste der Veröffentlichungen).

Auf der materiellen Seite wurden sogenannten Device-Plugins für die PennyLane Bibliothek entwickelt, welche es ermöglichen haben (oder nach Fertigstellung der Hardware ermöglichen werden) auf den an der Universität Mainz und dem MPQ entwickelten (bzw. in Entwicklung befindenden) Quantenrechnern aus der Ferne Rechnungen durchzuführen. Außerdem wurden Device-Plugins entwickelt, welche es ermöglichen, auf dem von der Universität Mainz gehosteten Simulator und mit der von Google entwickelten Fermionic Quantum Emulator Bibliothek Quantenschaltkreise aus PennyLane (und damit aus dem Covestro eigenen Quanten Stack) heraus zu simulieren. Damit wurde Infrastruktur von bleibendem Wert geschaffen, welche auch bei zukünftigen Forschungsvorhaben von Covestro verwendet werden wird. Diese Devices werden auch die Zusammenarbeit der experimentellen Gruppen mit anderen theoretischen Wissenschaftlern aus der Industrie und Akademia erheblich erleichtern und beschleunigen.

## Fortschritte Dritter auf dem Gebiet des Vorhabens

Während des Vorhabens wurden erhebliche Fortschritte im gesamten Feld des Quantenrechnens gemacht. Bei den hier betrachteten Quantenhardware-Technologien sind insbesondere die Arbeiten von AQT (siehe auch gemeinsame Publikation mit Covestro und QC Ware außerhalb des HFAK Projekts [<https://doi.org/10.1021/acscentsci.4c00058>]) und Quantinuum im Bereich gefangene Ionen und die Durchbrüche von QuEra sowie die Ausgründung von Planq aus dem MPQ zu nennen.

Diese Teilvorhaben konzentrierte sich hauptsächlich auf die theoretischen and algorithmischen Aspekte des Quantenrechnens. Hier lässt sich zusammenfassend sagen, dass der Optimismus im Feld, bezüglich der Aussichten, mit variationellen Algorithmen einen industriellen Quantenvorteil zu erreichen, deutlich zurückgegangen ist (siehe z.B. [<https://doi.org/10.1103/RevModPhys.94.015004>] für einen relativ neuen Übersichtsartikel). Diese Einschätzung teilt Covestro, teilweise auch aufgrund der Erfahrungen aus HFAK,

und sie wurde beim Aufsetzen weiterer Forschungsvorhaben berücksichtigt.

Eine besonders relevante Veröffentlichung Dritter während der Projektlaufzeit ist das Paper [<https://doi.org/10.1073/pnas.230429412>] der Arbeitsgruppe um Prof. Dr. Peter Zoller. In dieser Arbeit wurden (leider) einige auch von in der Kollaboration mit dem MPQ erarbeitete Ergebnisse bezüglich der Implementierung von quantenzahlerhaltenden Gattern auf Neutralatom-Hardware vorweggenommen. Gleichzeitig fehlte den Autoren das tiefe Wissen der Literatur zu Quantenalgorithmen für die Simulation von Chemie, insbesondere der Arbeit [<https://doi.org/10.1088/1367-2630/ac2cb3>] von Covestro und QC Ware, sodass es uns danach doch noch möglich war, weitere deutliche Verbesserungen zu erarbeiten und schließlich zu publizieren.

### Veröffentlichungen des Ergebnisses

In Zusammenarbeit mit der Gruppe am MPQ wurde das wissenschaftliche Papier „Simulating Chemistry with Fermionic Optical Superlattices“ veröffentlicht, welches die gemeinsam entwickelte Methode zur Realisierung von Quantenzahl-erhaltenden Variationellen Schaltkreisen auf der am MPQ in Entwicklung befindlichen Neutralatom-Plattform beschreibt. Das Paper enthält außerdem mit dem hier entwickelten Software Stack durchgeführte Simulationen und beschreibt detailliert die Compilierung der Schaltkreise auf die von der Hardware unterstützten Gatter. Außerdem ist eine umfassende Studie der Fehlertoleranz gegenüber kohärenter Fehler bei der Ausführung der Gatter enthalten.

Im Folgenden findet sich eine vollständige Liste aller Veröffentlichungen der Quantencomputing Gruppe bei Covestro mit Bezug zum Teilvorhaben:

- „Simulating Chemistry with Fermionic Optical Superlattices“, Fotios Gkritis, Daniel Dux, Jin Zhang, Naman Jain, Christian Gogolin, Philipp M. Preiss, arXiv:2409.05663, accepted in PRX Quantum.
- “Accelerating Quantum Computations of Chemistry Through Regularized Compressed Double Factorization”, Oumarou Oumarou, Maximilian Scheurer, Robert M. Parrish, Edward G. Hohenstein, Christian Gogolin, arXiv:2212.07957, Quantum 8, 1371 (2024).
- “Local, Expressive, Quantum-Number-Preserving VQE Ansätze for Fermionic Systems”, Gian-Luca R. Anselmetti, David Wierichs, Christian Gogolin, Robert M. Parrish, arXiv:2104.05695, New J. Phys. 23 113010 (2021).

Noch nicht veröffentlicht wurden:

- „Quantum computing for simulations in Quantum chemistry“, Doktorarbeit von Fotios Gkritis, Universität zu Köln, in Vorbereitung.