

FRAUNHOFER-INSTITUT FÜR ANGEWANDTE FESTKÖRPERPHYSIK IAF

KOMPETENZZENTRUM QUANTENCOMPUTING BADEN-WÜRTTEMBERG

VERBUNDFORSCHUNGSPROJEKT

ENTWICKLUNG UND BENCHMARKING EINES DIAMANT-BASIERTEN, SPINTRONISCHEN QUANTENREGISTERS FÜR EINEN AUFSKALIERBAREN QUANTENPROZESSOR (QC-4-BW II)

Abschlussbericht
März 2024

Koordinator:
Dr. Daniel Hähnel
Fraunhofer-Institut für Angewandte Festkörperphysik IAF
in Freiburg

Projektnummer: 005-220185
Projektpartner:

- Prof. Jörg Wrachtrup, 3. Physikalisches Institut, Universität Stuttgart (UNI-STU)
- Prof. Guido Burkard, Fachbereich Physik, Universität Konstanz (UNI-KON)
- Prof. Dr. Fedor Jelezko, Institut für Quantenoptik, Universität Ulm (UNI-ULM)
- Prof. Dr. Jörg Schmalian, Theorie der Kondensierten Materie, Karlsruher Institut für Technologie (KIT-TKM)
- Prof. Dr. Wolfgang Wernsdorfer, Physikalisches Institut, Karlsruher Institut für Technologie (KIT-PHI)
- Dr. Stefan Löbbecke, Fraunhofer-Institut für Chemische Technologie, (FhG-ICT)

Inhalt

1	Zusammenfassung der Ergebnisse	3
2	Meilensteine	7
3	Überblick der wissenschaftlichen Arbeiten	9
3.1	Farbzentren.....	9
3.1.1	Entwicklung optimaler Strategie für das Überwachsen zur Minimierung der oberflächenbedingten Dekohärenz.....	9
3.1.2	Erzeugung von NV-Paaren mit einem Abstand von weniger als 20 nm	9
3.1.3	Einzel-NV-Farbzentren in angepassten co-dotierten Diamant	
	mit optimiertem ¹² C/ ¹³ C Isotopenverhältnis	15
3.2	Skalierung NV-NV Kopplung und optische Adressierung	17
3.2.1	Realisierung von Verschränkung basierend auf dipolarer Kopplung	
	zwischen zwei NV-Zentren	17
3.2.2	Implementierung der Quantenfehlerkorrektur	18
3.3	Optimierung Quantenregister	19
3.3.1	Erweiterung der Anzahl der Qubits auf neun Qubits	19
3.3.2	Implementierung verbesserter Hardware für Gatteroperationen	20
3.3.3	Optimierung der Gatter- sowie Initialisierungs- Auslesegüte.....	20
3.3.4	Abschätzung von Fehlern für CROT-Gatter zwischen	
	Elektronspin und Stickstoff- sowie Kohlenstoff-Kernspins.....	20
3.3.5	Erarbeitung eines Protokolls zur Verbesserung der Gattergüte	
	durch Fehlerreduktion bei off-resonantem Treiben.....	23
3.4	Aufbau- und Kryotechnik.....	26
3.4.1	Aufbau des mK-Kryostat in Stuttgart.....	26
3.4.2	Aufbau des mK-Kryostat in Ulm	28
3.4.3	Integration optimierter Mikrowellenleiter und 3D-Vektor-Magneten	28
3.5	Algorithmen.....	29
3.5.1	Optimale Transpilation des Schaltkreises auf den IBM-Q Prozessor	29
3.5.2	Evaluation der maximalen Systemgröße mittels	
	Durchführung der Simulation auf dem Quantencomputer.....	31
3.5.3	Optimierung der Gatter- sowie Initialisierungs- Auslesegüte.....	32
3.6	Applikation	38
3.6.1	Weitere Untersuchung und Optimierung der Teilroutinen und Algorithmen für quantenmechanische Berechnungen an NISQ-Systemen	38
3.6.2	Quantenchemische Berechnungen größerer Moleküle	48
3.6.3	Transfer der Algorithmen auf den diamantbasierten Quantencomputer	56
3.6.4	Vergleich der Leistungsfähigkeit von Algorithmen auf verschiedenen Backends ... und Hardware-Architekturen	57
4	Anhang	59
4.1	Publikationen	59
4.2	Im Themenfeld Quantencomputing geschulte Personen	60
4.3	Patente	60
4.4	Anzahl an dem Projekt beteiligte Personen aus Forschungseinrichtungen.....	60
4.5	Konferenzen	61

1 Zusammenfassung der Ergebnisse

In der zweiten Phase des Förderprojekts des Kompetenzzentrums Baden-Württemberg lag der Fokus auf der Weiterentwicklung und Verbesserung der in der ersten Phase initiierten Arbeiten an einem spintronischen Quantenregister für einen skalierbaren Quantenprozessor (QC-Prozessor). Das Konsortium hat dabei erfolgreich die Qubitzahl erhöht und die Gattergüte optimiert, nachdem bereits ein Quantenregister mit vier Qubits in der ersten Phase erfolgreich demonstriert wurde. Der hier weiterentwickelte QC-Prozessor nutzt ein über ein NV-Farbzentrum adressierbares Quantenregister und nutzt dabei die Kernspins in Diamant, um bei Raumtemperatur Qubits mit hoher Güte bereitzustellen.

Die besonderen Merkmale des entwickelten Spin-basierten QC-Prozessors umfassen eine hohe Kohärenzzeit der Elektronen-Spins, hohe Güte der implementierten Ein- und Zwei-Qubit-Gatter, was die Grundlage für die Weiterentwicklung in den vier Hauptfokusgebieten bildete.

Schwerpunkt 1: Die Qubitzahl des QC-Prozessors wurde erfolgreich von vier auf neun erhöht und als Quantenregister oder Quantenspeicher weiterentwickelt.

Schwerpunkt 2: Die Möglichkeit der Skalierung mittels dipolarer Kopplung zwischen benachbarten NV-Zentren wurde untersucht und als erfolgreiche Alternative zu bisherigen optischen Kopplungsansätzen etabliert.

Schwerpunkt 3: Verbesserungen des Trotter-Algorithmus und des Bardeen-Cooper-Schrieffer (BCS)-Modells wurden erfolgreich implementiert, was zu einer exakteren Implementierung und erhöhten Leistung führte.

Schwerpunkt 4: Die implementierten Algorithmen für quantenmechanische Berechnungen wurden sowohl auf dem Spin-basierten Quantencomputer als auch auf dem IBM Q System One getestet. Dadurch konnten die jeweiligen Vor- und Nachteile unterschiedlicher Algorithmen auf den verschiedenen Hardware-Architekturen erfolgreich evaluiert werden.

Die Arbeiten im Rahmen von AP1 konzentrierten sich auf die Realisierung von NV-Farbzentren in Diamantfilmen mittels Techniken wie Implantation und lokalisierten Wachstumsprozessen. Mit der CVD-Reaktortechnologie des IAF wurde die Epitaxie von dünnen, präzise definierten Dotierprofilen erfolgreich umgesetzt, wodurch kontrolliert N-dotierte Schichten im Nanometerbereich erzeugt wurden. Dies ermöglichte eine in-situ Generierung von NV-Zentren während der Diamantepitaxie. Der Fokus lag auf der Weiterentwicklung von Epitaxiestrategien zur Verbesserung der Kohärenzeigenschaften von NV-Zentren, was erfolgreich zur Erfüllung des Meilensteins M1.1 führte.

Durch die Nutzung der Strukturierung der Oberfläche von Diamant und des lokalisierten Wachstums konnten NV-Ensembles präzise positioniert werden. Der Meilenstein M1.2, der die Erzeugung von positionierten NV-Paaren mit einem Abstand von wenigen nm, wurde erfüllt.

Die Realisierung von Einzel-NV-Farbzentren in angepassten, co-dotierten Diamant mit optimiertem $^{12}\text{C}/^{13}\text{C}$ Isotopenverhältnis wurde erfolgreich umgesetzt. Hierbei wurden dünne, isotonenkontrollierte Schichten gewachsen, um die Kohärenzzeit der NV-Zentren zu maximieren. Die Bereitstellung der angepassten Diamantschichten führte zur Erfüllung des Meilensteins M1.3.

Im Rahmen von AP2 wurden wichtige Entwicklungen im Bereich der Skalierung des spintronischen Quantenregister mittels dipolarer Kopplung von NV-Zentren erzielt. Der Fokus lag auf der Realisierung von Zwei-Qubit-Gatteroperationen, der Quantenzustands-Tomographie und der Entwicklung einer effizienten Spin-Photonen-Schnittstelle. Die wichtigsten Meilensteine wurden erreicht und es konnten folgende Arbeiten erfolgreich abgeschlossen werden: Eine automatisierte Messroutine wurde entwickelt, um NV-NV-Paar-Kandidaten hinsichtlich ihrer T_2 -Kohärenzzeiten und dipolaren Kopplung zu charakterisieren. Dies ermöglichte die Identifikation vielversprechender NV-NV-Paare für ein Quantenregister mit zwei elektronischen Spin-Qubits. Ein $\sqrt{\text{ZZ}}$ -Gatter mit zwei Qubits wurde implementiert, wobei eine schnelle und präzise konditionierte Rotation realisiert wurde. Durch Randomized Benchmarking konnte die Gatter-Güte analysiert und optimiert werden, wodurch eine Zwei-Qubit Gatter-Güte von 96,0 % und Einzel-Qubit Gatter-Güte von 99,5 % erreicht wurden. Eine neue Tomographiemethode wurde entwickelt, die die Adressierbarkeit im Mikrowellenbereich nutzt, um Informationen über den Quantenzustand der einzelnen Qubits zu erhalten. Numerische Simulationen zeigten, dass das $\sqrt{\text{ZZ}}$ -Gatter verwendet werden kann, um die

verschränkten Teile der Dichtematrix auszulesen. Dies bereitet den Weg für eine vollständige Tomographie verschränkter Zustände in naher Zukunft.

Zusammenfassend wurden im Rahmen von AP2 folgende wesentliche Fortschritte erzielt:

Zwei-Qubit-Quantengatteroperationen zwischen NV-Zentren wurden erfolgreich gezeigt (M2.1), die Quantenzustands-Tomographie an verschränkten Zuständen von NV-Zentren wurde abgeschlossen (M2.2) und eine hocheffiziente Spin-Photonen-Schnittstelle wurde demonstriert, wobei das Mapping von Photonenquantenzuständen auf langlebige Spin-Zustände noch weiterer Entwicklung bedarf (M2.3). Die gewonnen Erkenntnisse legen eine solide Grundlage für die Weiterentwicklung von diamant-basierten Quantencomputern.

Im Arbeitspaket AP3 wurden wesentliche Optimierungen des Quantenregisters vorangetrieben. Die Anzahl der funktionell ansprechbaren Qubits wurde erfolgreich auf neun erhöht (M3.1). Eine in diesem Projekt entwickelte Methode zur Adressierung der Qubits erhöhte die spektrale Auflösung und damit die Adressierbarkeit der Qubits im Register. Mit Erreichen des M3.2 wurde die verbesserte Hardware für Gatteroperationen implementiert, was Effizienz und Präzision der Gatteroperationen steigerte. Die Anzahl der benötigten optischen Zyklen konnte um ca. 20 % reduziert werden, was die Quantenfehlerkorrektur verbesserte.

Die Optimierung der Gatter- sowie Initialisierungs- und Auslesegüte (M3.3) führte zu signifikanten Fortschritten. Die Gattergüte um ca. 0,3 % für Ein-Qubit-Gatter verbessert werden, und die Initialisierungs- und Auslesegüte erreichte ca. 98 %.

Die Abschätzung von Fehlern für CROT-Gatter zwischen Elektronspin und Kernspins (M3.4) ermöglichte ein tiefes Verständnis der Fehlerquellen. Ein neues Protokoll zur Fehlerreduktion bei off-resonantem Treiben (M3.5) reduziert nahezu vollständig die off-resonanten Wechselwirkungen und verkürzte zudem die Gatterzeiten.

Diese Fortschritte legen eine solide Grundlage für die weitere Optimierung von NV-Zentren in skalierbaren Quantencomputern.

Im Rahmen von AP4 wurde ein milli-Kelvin-Kryostat erfolgreich aufgebaut und optimiert. Eine verbesserte Version wurde mit Unterstützung von Qinu entwickelt und sowohl in Stuttgart (M4.1) als auch in Ulm (M4.2) in Betrieb genommen. Beide Systeme ermöglichen die Untersuchung bei Temperaturen unter 40 milli-Kelvin und es können magnetische Felder von ca. 0,5 Tesla in allen Richtungen erzeugt werden. In Stuttgart wurde das System in einen optischen Tisch integriert, was den Strahlengang des Lasers vereinfachte und die Stabilität erhöhte. Ein hochauflösendes Konfokalmikroskop und piezoelektrische Translationsbühnen ermöglichen präzise Bewegungen und Untersuchungen der Proben. In Ulm wurde ein ähnliches System installiert, ebenfalls in den optischen Tisch integriert, mit speziellen Mikroskopen und Magneten, die starke Magnetfelder erzeugen können. Anschlüsse für piezoelektrische Translationsbühnen sorgen für eine genaue Positionierung der Proben. Das Design für Mikrowellen und Magnetfelder wurde weiterentwickelt, und die RF-Verkabelung ermöglicht nun rauscharme Gatteroperationen. Die angesprochene Integration optimierter Mikrowellenleiter und 3D-Vektor-Magneten erfüllt somit den angestrebten Meilenstein (M4.3) und steht nun der Weiterentwicklung diamant-basierter Quantencomputern zur Verfügung.

In Arbeitspaket 5 wurden wichtige Fortschritte bei der Implementierung und Optimierung von Algorithmen auf dem IBMQ System One erzielt. Der erste Meilenstein (M5.1) betraf die optimale Transpilation eines Trotter-Schaltkreises auf den IBM-Q Prozessor, welcher dazu dient die Dynamik des BCS-Modells abzubilden und zu simulieren. Durch eine verbesserte Kompilierungsmethode konnte die Anzahl der benötigten CNOT-Gatter reduziert werden. Zusätzlich konnte die Crosstalk Pauli Noise Tomographie eingesetzt werden, um die Rauschstruktur präzise zu charakterisieren und die Fehlerminderung zu optimieren.

Der zweite Meilenstein (M5.2) umfasste die Evaluierung der maximalen Simulationsgröße, welche auf den IBMQ System One sinnvoll ausgeführt werden kann. Dies ermöglichte eine genaue Bestimmung der Grenzen und Möglichkeiten der Implementierung des BCS-Modells. Der dritte Meilenstein (M5.3) konzentrierte sich auf die Implementierung von Quantum Error Mitigation Methoden wie die Rauschschätzschaltung (NEC), die Magic State Distillation und das Stochastic Depolarising Channel (SDC)-Protokoll. Die Methoden wurden entsprechend optimiert, um Rauscheinflüsse zu minimieren und die Fehlerminderung zu verbessern. Diese Arbeiten haben die Optimierung und Fehlerminderung von Quantenschaltungen auf IBM-Quantencomputern vorangebracht und eine solide Basis für zukünftige Anwendungen in der Quanteninformatik geschaffen.

AP6 konnte zentrale Fortschritte in der Optimierung und Anwendung quantenchemischer Algorithmen erzielen, was zu einer erheblichen Verbesserung der Genauigkeit und Effizienz von quantenchemischen Berechnungen führte. Dies ermöglichte die Erreichung der Meilensteine M6.1 bis M6.4. Die bestehenden Algorithmen und Teilroutinen für quantenchemische Berechnungen wurden optimiert, insbesondere durch die Implementierung von Fehlermitigationstechniken wie der Zero-Noise Extrapolation (ZNE) und der Auslesefehlermitigation. Diese Optimierungen führten zu einer erhöhten Genauigkeit und einer schnelleren Ausführungsgeschwindigkeit der Simulationen auf klassischen Computern. Das Softwarepaket »qc_on_qc« wurde erfolgreich auf größere Moleküle angewandt, darunter der MOF+CO₂-Komplex.

Die implementierten Verbesserungen bei Fehlermitigationstechniken und dem AdaptVQE-Algorithmus führten zu signifikanten Genauigkeitssteigerungen bei quantenchemischen Berechnungen. Die Einführung eines Warmstarts für den EfficientSU2-Ansatz verbesserte das Konvergenzverhalten und die Effizienz der Berechnungen erheblich. Die Implementierung und Weiterentwicklung des VHA, einschließlich des tVHA (truncated Variational Hamiltonian Ansatz), ermöglichte eine Reduktion der Schaltkreistiefe und der Anzahl an CNOT-Gattern, was die Berechnung größerer Molekülsysteme auf NISQ-Computern erleichtert. Durch den Einsatz von Active-Space-Methoden wurden detaillierte Untersuchungen von MOF-Systemen durchgeführt, die entscheidend zur CO₂-Abscheidung und -Speicherung beitragen können. Die durchgeführten quantenchemischen Untersuchungen sind nach wie vor von hoher industrieller Relevanz.

Die betrachteten Algorithmen wurden auf spinbasierte Quantencomputer übertragen und mithilfe von Noise Models konnte die Leistungsfähigkeit der Algorithmen auf diamantbasierten Quantencomputern mit höherer Qubit-Anzahl abgeschätzt werden. Ein detaillierter Vergleich der Algorithmenleistung auf verschiedenen Quantencomputer-Architekturen, insbesondere zwischen IBM Q System One und diamantbasierten NV-Quantencomputern, wurde durchgeführt. Die Ergebnisse zeigen, dass die NV-Architektur aufgrund der geringeren Anzahl an Zwei-Qubit-Gattern eine effizientere Plattform für größere Systeme darstellen kann.

Die Mitarbeitenden des Konsortiums beteiligten sich aktiv an Veranstaltungen im Bereich Quantencomputing, um über die neuesten Entwicklungen und Fortschritte zu informieren. Diese Veranstaltungen boten einen umfassenden Einblick in die aktuellen Trends und Entwicklungen im Bereich Quantencomputing und umfassten Konferenzen, Workshops und Symposien auf nationaler und internationaler Ebene. Besondere Multiplikator-Veranstaltungen wie die Quantum Effects 2023 in Stuttgart und die World of Quantum 2023 in München wurden genutzt, um die Projektergebnisse einem breiten Fachpublikum zu präsentieren und Kontakte zu knüpfen.

Zu nennen sind auch die Beteiligungen von Projektteilnehmenden in führenden Gremien wie dem Programmausschuss »Quantentechnologien« des BMBF, dem Fachverband Quanteninformation der DPG sowie dem Bitkom Arbeitskreis und der Fachgruppe Quantencomputing der Gesellschaft für Informatik. Diese Beteiligungen gewährleisteten eine breite Streuung der Projektergebnisse und eine aktive Mitgestaltung der Zukunft des Quantencomputings auch außerhalb des Kompetenzzentrums.

Die Durchführung von Industrieworkshops zeigte die Möglichkeiten zur Zusammenarbeit mit der Industrie auf und förderte die Entwicklung praktischer Anwendungsfälle im Bereich Quantencomputing. Diese Veranstaltungen trugen dazu bei, das technologische Verständnis und die Basis für die Skalierung von Quantensystemen in der Industrie zu vertiefen.

Die enge Vernetzung des Konsortiums in Forschung und Industrie, verbunden mit der Ausbildung von Fachkräften und dem Aufbau von Fachkompetenzen zur Absicherung patentfähiger Ergebnisse, wurde ebenfalls erfolgreich gestärkt. Dies zeigt sich eindrucksvoll im Austausch und in der Zusammenarbeit mit einer Vielzahl von Unternehmen (KMUs) während der Projektlaufzeit:

- HQS – Quantum Simulation: Im Rahmen des Austauschs mit HQS und der Teilnahme an Workshops von HQS wurden alternative nicht-variationelle Herangehensweisen für die Berechnung von molekularen Eigenschaften diskutiert. Darüber hinaus wurden alternative Use Cases der Quantenchemie und die Untersuchung der Fehler von Quantencomputern angesprochen.
- Quantum Brilliance – skalierbarer diamant-basierter Quantencomputer
- Quantum Machines – skalierbare Quantencomputer-Kontroll-Hardware
- QINU – Kryo-Technologie
- QAnt – photonisches Quantencomputing überlapp mit der optischen Initialisierung und dem Read-out der Farbzentren in Diamant
- XeedQ – skalierbarer diamant-basierter Quantencomputer, Hardware-Entwicklung in Ulm
- Diamond Materials – Erfahrung in der Bereitstellung diamantbezogener Prozesse

Die umfassenden Aktivitäten und Bemühungen im Rahmen des Projekts sind wesentlich für die Schaffung der notwendigen Voraussetzungen für die erfolgreiche Weiterentwicklung und Realisierung eines skalierbaren Quantencomputers. Diese Erfolge zeigen, dass die entwickelten Algorithmen und Methoden entscheidende Fortschritte in der Anwendung von Quantencomputern für die Forschung und Industrie darstellen.

Das Projekt wurde erfolgreich abgeschlossen und die erzielten Fortschritte und Ergebnisse in den sechs Arbeitspaketen werden im folgenden Text dargestellt.

2 Meilensteine

Das Projekt »QC-4-BW II« - Entwicklung und Benchmarking eines Diamant-basierten, spintronischen Quantenregisters für einen skalierbaren Quantenprozessor, wurde am 22.12.2022 mit einer Laufzeit vom 01.01.2023 – 31.03.2024 durch das Ministerium für Wirtschaft, Arbeit und Tourismus bewilligt.

AP 0	Koordination (FhG-IAF)		
	M0.1	Zwischenbericht	erfüllt
AP1	Farbzentren (FhG-IAF)		
	M1.1	Optimale Strategie für das Überwachen zur Minimierung der oberflächenbedingten Dekohärenz gefunden (M4)	erfüllt
	M1.2	Paare von NV-Zentren mit einem Abstand von weniger als 20 nm erzeugt (M6)	erfüllt
	M1.3	Einzel-NV-Farbzentren in angepassten co-dotierten Diamant mit optimiertem ¹² C/ ¹³ C Isotopenverhältnis (M12)	erfüllt
AP2	Skalierung NV-NV Kopplung und optische Adressierung (UNI-ULM)		
	M2.1	Zwei-Qubit-Quantengatteroperationen zwischen NV-Zentren gezeigt (M10)	erfüllt
	M2.2	Quantenzustands-Tomographie an verschränkten Zuständen von NV-Zentren abgeschlossen (M15)	erfüllt
	M2.3	Hocheffiziente Spin-Photonen-Schnittstelle auf der Basis optischer Resonatoren, Mapping von Photonenquantenzuständen auf langlebige Spin-Zustände demonstriert (M15)	erfüllt
AP3	Optimierung Quantenregister (UNI-STU)		
	M3.1	Erweiterung der Anzahl der Qubits auf neun ist erfolgt (M08)	erfüllt
	M3.2	Implementierung verbesserter Hardware für Gatteroperationen durchgeführt (M09)	erfüllt
	M3.3	Optimierung der Gatter- sowie Initialisierungs- Auslesegüte erreicht (M10)	erfüllt
	M3.4	Abschätzung von Fehlern für CROT-Gatter zwischen Elektronspin und Stickstoff- sowie Kohlenstoff-Kernspins durchgeführt (M11)	erfüllt
	M3.5	Protokoll zur Verbesserung der Gattergüte durch Fehlerreduktion bei off-resonantem Treiben erarbeitet (M15)	erfüllt

AP4	Aufbau- und Kryotechnik (KIT-PHI)		
	M4.1	Aufbau des mK-Kryostat in Stuttgart abgeschlossen (M06)	erfüllt
	M4.2	Aufbau des mK-Kryostat in Ulm abgeschlossen (M09)	erfüllt
	M4.3	Integration optimierter Mikrowellenleiter und 3D-Vektor-Magneten erfolgt (M15)	erfüllt
AP5	Algorithmen (KIT-TKM)		
	M5.1	Optimale Transpilation des Schaltkreises auf den IBM-Q Prozessor erreicht (M11)	erfüllt
	M5.2	Evaluation der maximalen Systemgröße mittels Durchführung der Simulation auf dem Quantencomputer durchgeführt (M15)	erfüllt
	M5.3	Implementierung der Quantum Error Mitigation auf IBM-Maschinen erfolgt (M13)	erfüllt
AP6	Applikation (FhG-ICT)		
	M6.1	Optimierung der Teilroutinen und Algorithmen (M6)	erfüllt
	M6.2	Erweiterung der Berechnungen auf größere Moleküle (M9)	erfüllt
	M6.3	Transfer der Algorithmen auf den spinbasierten QC (M13)	erfüllt
	M6.4	Vergleich IBM Q System One und NV-Quantencomputer (M15)	erfüllt

3 Überblick der wissenschaftlichen Arbeiten

Im Folgenden geben wir einen nach Arbeitspaketen gegliederten Überblick der erfolgten Arbeiten und den Projektergebnissen.

3.1 Farbzentren

3.1.1 Entwicklung optimaler Strategie für das Überwachsen zur Minimierung der oberflächenbedingten Dekohärenz

Durch die Integration von Stickstoff während des Diamant-Wachstumsprozesses wurden NV-Zentren in-situ, das heißt während der Diamantepitaxie, erfolgreich generiert. Dies ermöglichte das Wachstum von dünneren Diamantschichten mit reduzierter Stickstoffdotierung. Diese Schichten wurden anschließend zur Generierung von NV-Zentren mittels Elektronenbestrahlung verwendet.

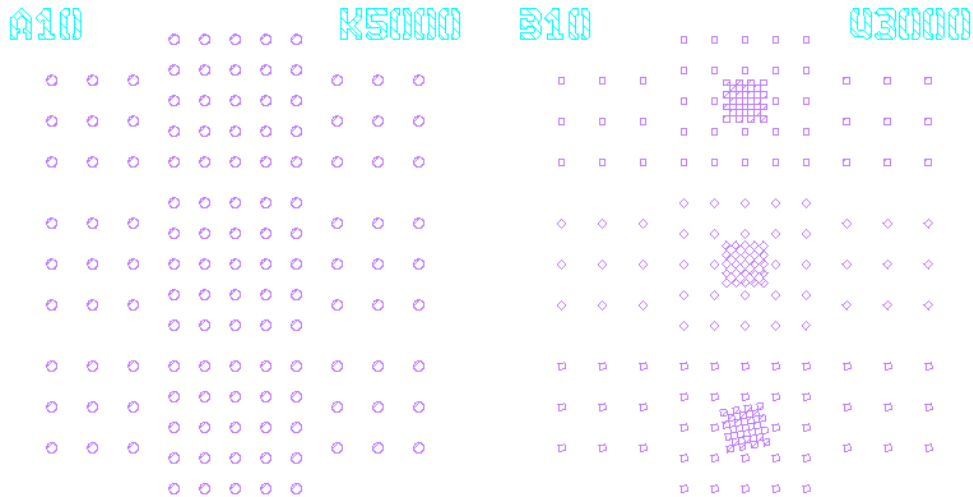
Die Reaktortechnologie des IAF ermöglichte die Fertigung von dünnen, präzise definierten Dotierprofilen mittels vertikaler Probenmanipulation, wodurch kontrolliert N-dotierte Schichten im Nanometerbereich erzeugt wurden. Zur Verbesserung der Spin-Eigenschaften der NV-Zentren und zur Minimierung dephasierender Oberflächeneffekte wurde eine intrinsische Capping-Schicht durch Epitaxie epitaktisch aufgebracht.

Der Fokus lag auf der Weiterentwicklung und Optimierung von Epitaxiestrategien, um die Capping-Schicht zu modifizieren und somit die Kohärenzeigenschaften zu erhöhen. Der Meilenstein MS1.1 wurde erreicht, und ein adäquates Prozessfenster durch Weiterentwicklung und Anpassung der Epitaxiestrategie wurde gefunden.

3.1.2 Erzeugung von NV-Paaren mit einem Abstand von weniger als 20 nm

Die Erzeugung von Farbzentren in Diamant kann, durch Zugabe von Dotierstoffen während des Diamantwachstumsprozesses, in-situ erfolgen. Auf diese Weise lassen sich Kristallschäden, die die Kohärenzeigenschaften der Farbzentren negativ beeinflussen, und dadurch notwendige Ausheilprozesse, vermeiden. Die in-situ-Erzeugung von Farbzentren eignet sich vor allem für gasförmige Dotanden, wie z.B. Stickstoff für die Erzeugung von Stickstoff-Vakanz-Zentren (NV-Zentren), aber auch die Zugabe von Feststoffen, wie z.B. Silizium für die Erzeugung von Silizium-Vakanz-Zentren (SiV-Zentren), ist möglich.

Für die Positionierung von in-situ-erzeugten Farbzentren ist eine vorherige Strukturierung der Oberfläche mittels fokussiertem Ionenstrahl (FIB) oder lithographisch mit Laser- oder E-beam-Lithographie und Plasmaätzung (ICP) notwendig (Abb.1). Die auf diese Art erzeugten Gräben dienen als Startpunkt für selektives Diamant-Wachstum bei dem das Wachstum in (111)-Richtung bevorzugt stattfindet, während das Wachstum in (100)-Richtung unterdrückt wird.



Überblick der wissenschaftlichen Arbeiten

Abbildung 1: Beispiel-Layout für die ICP-Ätzung von kreisförmigen und quadratischen Gräben mittels E-beam-Lithographie.

Die kreisförmigen und quadratischen Gräben haben Durchmesser bzw. Kantenlängen zwischen 300 nm und 5 µm.

In Abbildung 2 sind die einzelnen Herstellungsschritte schematisch im Querschnitt gezeigt, angefangen von der lithographisch geöffneten Ätzmaske (Abb. 2a), über die Ätzung der Strukturen (Abb. 2b) und dem selektiven, stickstoffdotierten Wachstumsprozess (Abb. 2c-d) in dem sich NV-Zentren bilden, bis hin zum fertigen Diamantplättchen mit eingebetteten NV-Zentren und polierter Oberfläche.

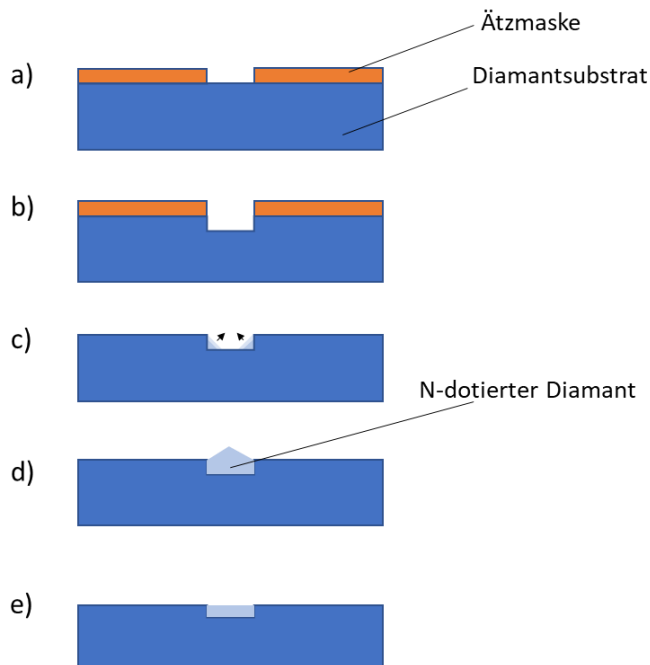


Abbildung 2: Schematische Darstellung des Herstellungsprozesses: a) Öffnung der Ätzmaske, b) Ätzung der geöffneten Bereiche, c) Beginn des selektiven, N-dotierten Wachstums von den Ecken aus in (111)-Richtung, d) Vollständiges Überwachsen der geätzten Strukturen mit möglicher Nukleation auf der gesamten Oberfläche e) Politur der Oberfläche.

Abbildung 3 zeigt Oberflächen von überwachsenen Strukturen, sowohl vor (Abb. 3a) als auch nach (Abb. 3c) einer Politur. Das strukturierte Substrat wurde mit einem Stickstoff/Kohlenstoffverhältnis von 5000 ppm N/C selektiv überwachsen. In beiden Fällen ist im Bereich der überwachsenen Strukturen ein deutliches Lumineszenz-Signal bei 638 nm erkennbar. Die aufgenommenen Spektren (Abb. 3e) belegen, dass es sich um NV-Zentren handelt, mit der Null-Phononen-Linie bei 638 nm und den Phononen-Seitenbanden bis 800 nm.

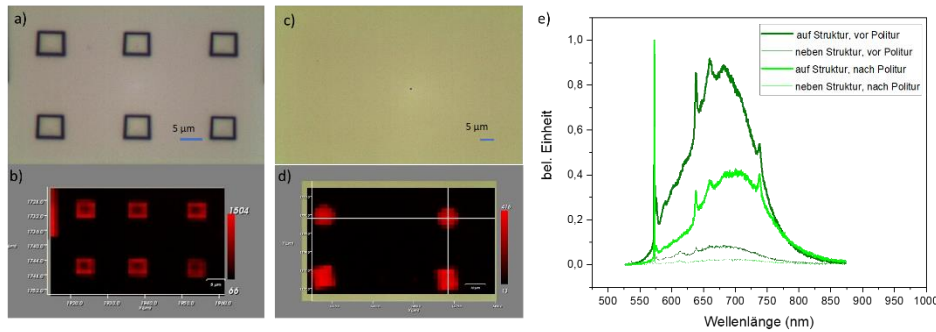


Abbildung 3: a) Optisches Mikroskopbild der überwachsenen Strukturen vor der Politur. b) Photolumineszenzaufnahme der in a) gezeigten Strukturen bei 638 nm. c) Optisches Mikroskopbild von überwachsenen Strukturen nach der Politur. d) Photolumineszenzaufnahme der in c) gezeigten Oberfläche bei 638 nm. e) Spektren, aufgenommen sowohl auf überwachsenen Strukturen vor (dunkelgrün) und nach (hellgrün) der Politur, als auch zwischen den überwachsenen Strukturen vor (dunkelgrün, gestrichelt) und nach (hellgrün, gestrichelt) der Politur.

Aufgrund einer hohen Countrate ist davon auszugehen, dass es sich um Ensembles von NV-Zentren handelt. Mit einer Änderung der Gaszusammensetzung lässt sich das Stickstoff-zu-Kohlenstoff-Verhältnis für jeden Wachstumsprozess anpassen, wodurch eine geänderte Konzentration der NV-Zentren einstellbar ist. Abbildung 4 zeigt Spektren von Strukturen von drei verschiedenen überwachsenen Substraten mit unterschiedlicher Stickstoffkonzentration: 5000 ppm N/C, 4000 ppm N/C und 3200 ppm N/C. Durch die Normierung der Spektren auf die Ramanlinie bei ca. 575 nm, ist die Änderung der NV-Konzentration erkennbar. Ein Einbau von Einzel-NVs durch weiteres Absenken der Stickstoffkonzentration ist auf diese Weise realistisch.

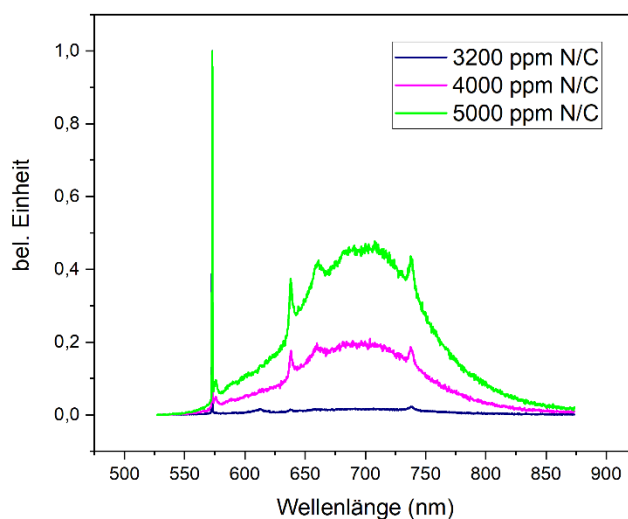


Abbildung 4: Photolumineszenzspektren an Strukturen vor der Politur, die mit unterschiedlichem Stickstoff/Kohlenstoff-Verhältnis hergestellt wurden (blau: 3200 ppm N/C, magenta: 4000 ppm N/C, grün: 5000 ppm N/C).

Eine Optimierung des Lithographieschritts hin zu kleineren Strukturen und geringeren Abständen zwischen den Strukturen wurde im Rahmen des Projekts durchgeführt. Es wurde versucht kreisförmige Löcher mit einem Durchmesser von minimal 26 nm abzubilden. Abbildung 5 a) zeigt einen Ausschnitt aus dem Layout für diese Optimierung. Zur besseren Orientierung werden die Strukturen, die aus Einzellöchern und Feldern von bis zu 4x4 Löchern bestehen, durch ein Kreuz-Raster getrennt platziert. Aufgrund von Rauheiten der Oberfläche und Belichtungseffekten entstanden in der Maske verbreiterte Löcher mit einem Durchmesser von 192 nm (Abb. 5 b). Nach Entfernung der Maske wiesen die Löcher mit ca. 120 nm einen geringeren, aber dennoch um den Faktor 4,5 vergrößerten Durchmesser auf. Dies führte dazu, dass zwei Kreise, die im Layout im Abstand von 100 nm platziert wurden, nicht getrennt voneinander aufgelöst werden konnten. Dieser Effekt der Verbreiterung wurde bei größeren Löchern, z.B. mit Durchmessern von 500 nm nicht beobachtet. Auch bei Kreisen mit 50 nm Durchmesser trat dieser Effekt deutlich schwächer auf, sodass Felder mit 100 nm Abstand teilweise aufgelöst werden konnten.

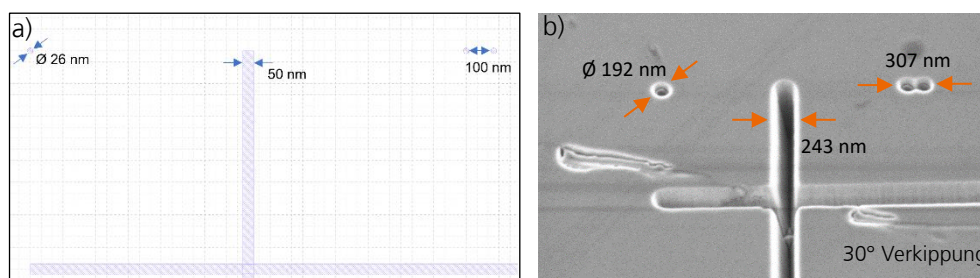


Abbildung 5: a) Ausschnitt aus Layout zur Optimierung der Strukturgröße und des Abstands benachbarter Löcher. b) Rasterelektronenmikroskopaufnahme (REM) der gleichen Stelle nach Strukturierung, vor Entfernung der SiN-Maske.

Abbildung 6 zeigt eine REM-Aufnahme mehrerer Felder nach Entfernung der SiN-Maske sowie nach dem Überwachsen mit einem Stickstoff-haltigen CVD-Prozess. Es ist klar zu erkennen, dass sowohl die Löcher, als auch die Kreuz-Raster komplett überwachsen wurden und deutlich hervorstehen. Die Löcher, die durch den Lithographieprozess nicht getrennt voneinander abgebildet wurden, sind im Wachstumsprozess zusammengewachsen. Einzelne Löcher (nominell 50 nm), konnten separat überwachsen werden (Abb 6c). Sobald die Löcher geschlossen sind, sinkt die Wachstumsrate aufgrund

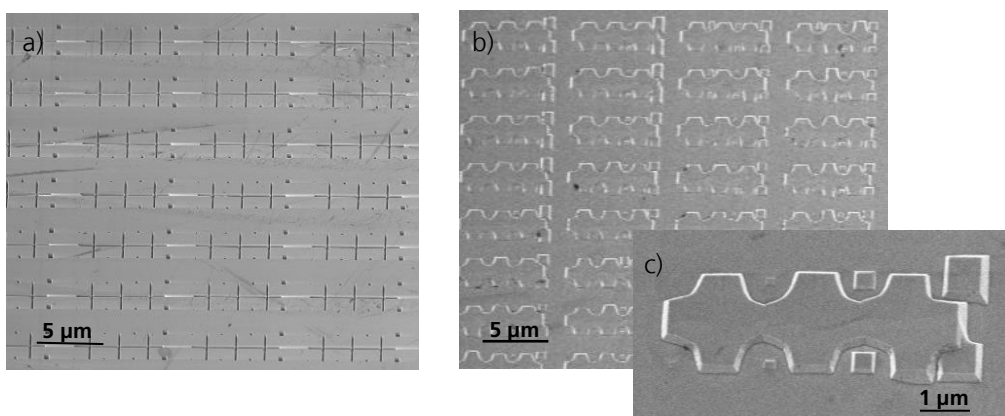


Abbildung 6: REM-Aufnahmen der Strukturen a) nach Strukturierung der Löcher und Entfernung der SiN-Maske und b) nach Überwachsen der Löcher im CVD-Prozess.

der selektiven Wachstumsbedingungen deutlich. Bei den komplexeren Geometrien wie den Kreuzrastern und den zusammengewachsenen Löchern bilden sich Facetten bzw. Pyramidenstümpfe aus, während die gefüllten einzelnen Löcher nahezu bündig mit der Oberfläche sind und es keine zusätzliche Aufweitung der Strukturen gibt. Somit konnte die Positionierung von N-dotierten überwachsenen Strukturen auf 100 nm optimiert werden.

Eine PL-Charakterisierung der Strukturen ist in Abbildung 7 gezeigt und sie bestätigt, wie zuvor bei den größeren Strukturen, dass Farbzentren fast ausschließlich in den selektiv überwachsenen Bereichen gebildet werden.

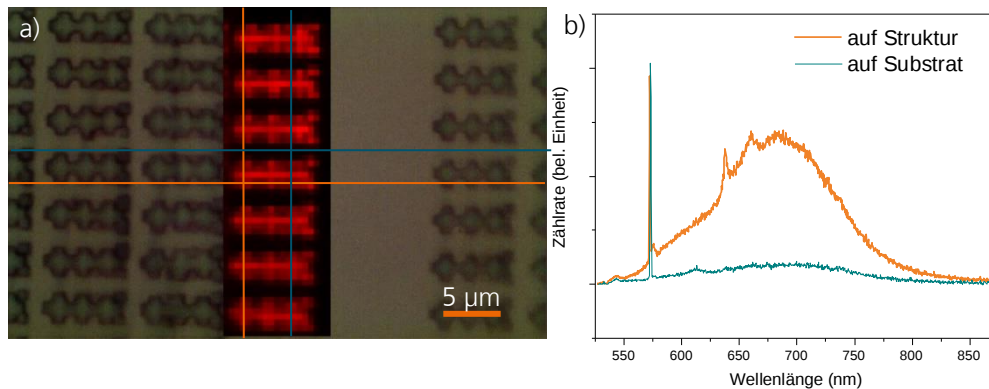


Abbildung 7: a) Optische Mikroskopaufnahme der Strukturen, überlagert mit einer Photolumineszenz-Karte, die die NV-Emissionen der ZPL bei 638 nm darstellt. Die Fadenkreuze in orange und türkis geben die Messpositionen auf bzw. neben der Struktur an, die Spektren sind in b) dargestellt.

Die Nutzung von gekoppelten NV-Zentren ist ein möglicher Weg zur Skalierung des Systems. Allerdings zeigen diese Paare in der Regel eine geringere Kohärenz als dies bei einzelnen NV-Zentren der Fall ist und der Auslesekontrast des Spinsignals ist reduziert. Die Arbeitsgruppe UNI-STU hat daher die Adressierung und das Ausleseverfahren von gekoppelten NV-Zentren untersucht und verbessert. Weiterhin hat UNI-STU die Kernspinumgebung von NV-Paaren untersucht und mittels Doppelresonanzverfahren die vorhandenen ungepaarten Elektronenspins vermessen.

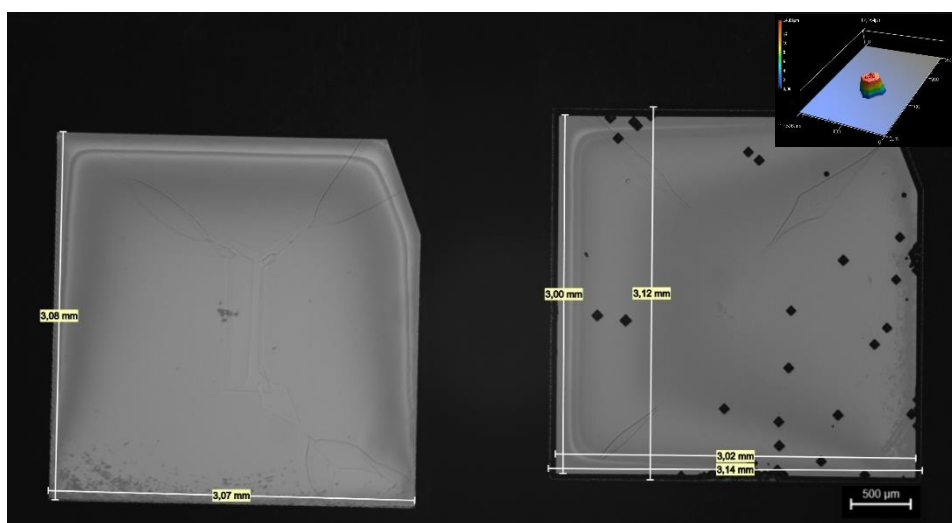


Abbildung 8: Optische Mikroskopaufnahme von HPHT-Substraten mit einer Epi-Schicht, links intrinsisch und rechts P-dotiert. Einsetz: 3D-Lasermikroskopaufnahme eines Hillocks mit einer Höhe von etwa 15 µm.

Um den erwünschten negativen Ladungszustand des NV-Zentrums zu stabilisieren, kann eine nahegelegene Donatorschicht dienlich sein. Zu diesem Zweck wurde im Rahmen des Projekts die Entwicklung von Phosphor-dotierten Schichten auf (100)- Substraten vorangetrieben.

Überblick der wissenschaftlichen Arbeiten

Bei CVD-Prozessen zur Phosphordotierung kann es leicht zur Ausbildung von Erhebungen (Hillocks) and Defekten kommen. Es wurden Parameter ermittelt, die eine hohe Reproduzierbarkeit, sowohl auf HPHT, als auch auf E-grade Substraten ermöglichen, bei denen ein Großteil der Substratoberfläche eine glatte Morphologie und nur vereinzelt Hillocks mit ca. 15 µm Höhe aufweisen (Einsatz in Abb. 8).

Auf E-grade Substraten treten diese Hillocks gehäuft in Bereichen von starken Verspannungen auf (Abbildung 9). In den glatten Bereichen dazwischen weist die Oberfläche eine Rauheit von 3,4 nm auf.

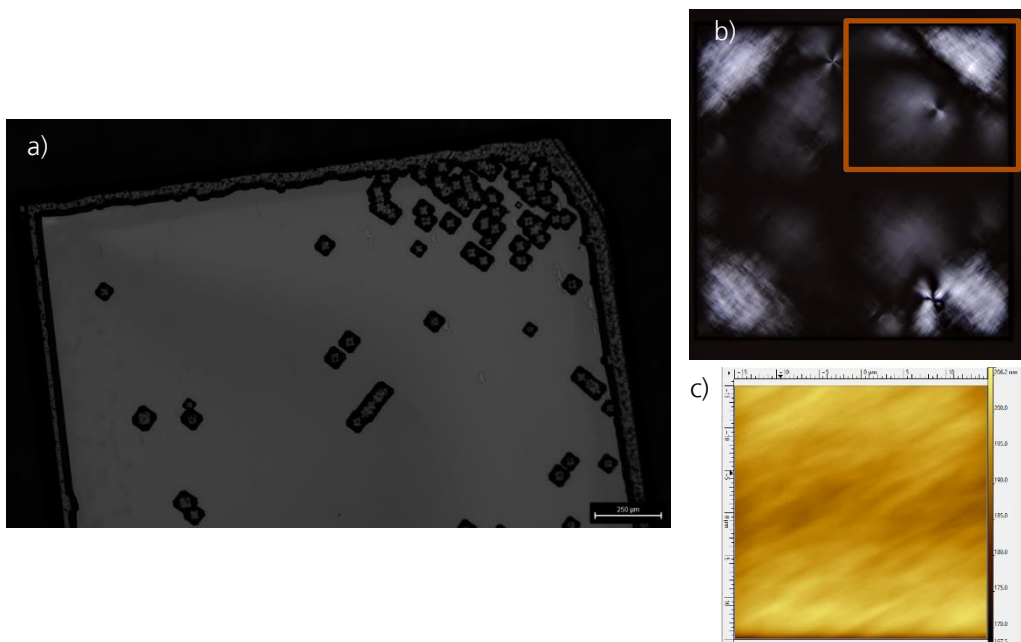


Abbildung 9: a) Optische Mikroskopaufnahme eines E-grade Substrates nach dem Überwachsen mit einer P-dotierten Epi-Schicht. b) Kreuzpolarisationsaufnahme, um die Verspannungen sichtbar zu machen. Der orange-farbene Kasten zeigt den Bereich, in dem das optische Mikroskopbild aufgenommen wurde c) Rasterkraftmikroskop-Aufnahme von einem glatten Bereich.

SIMS-Messungen bestätigen den Einbau von Phosphor. Für $P/C = 10000$ ppm mit Phosphin (PH_3) als Phosphorquelle, wurde eine Dichte von $1 \cdot 10^{16}$ atm/cm³ gemessen (Abb. 10). Der erhöhte Phosphor-Einbau an der Grenzschicht ist auf niedrigere Substrattemperaturen zu Beginn der Wachstumsphase zurückzuführen.

Die erreichte durchschnittliche Phosphorkonzentration entspricht den Erwartungen und ist gut geeignet, um als Donorschicht für die NV-Ladungsstabilisierung zu dienen.

Die Hillocks lassen sich durch eine nachfolgende Politur entfernen, so dass eine Prozessierung der Substrate und eine lokale Positionierung der Farbzentren durch selektives Wachstum möglich ist.

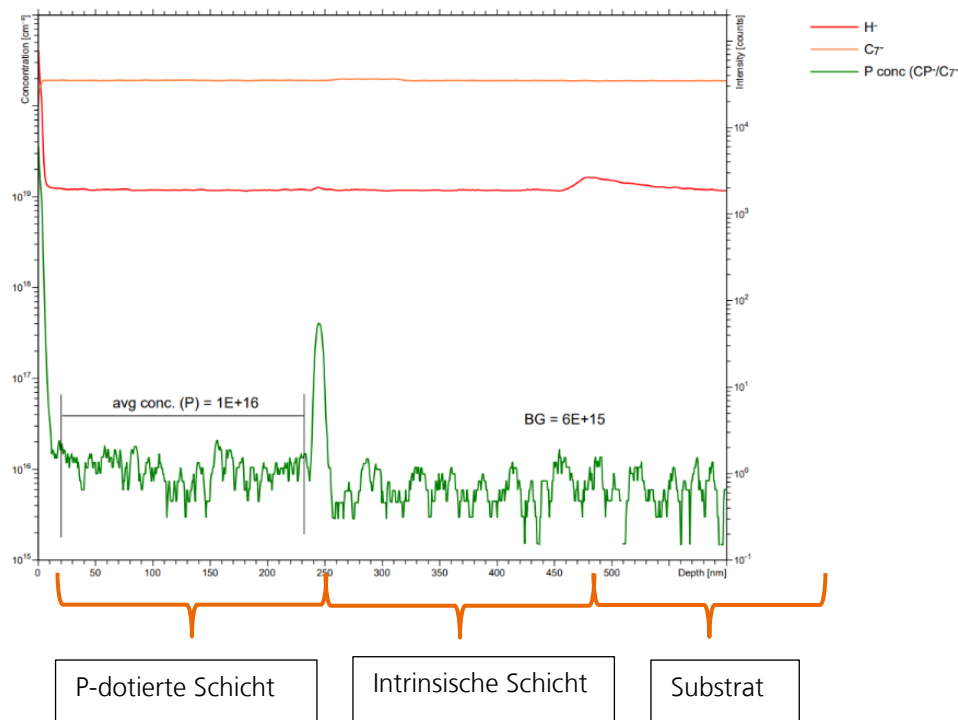


Abbildung 10: Die Sekundärionen-Massenspektrometrie-Messung (SIMS) eines Substrats mit intrinsischer und P-dotierter Schicht, jeweils ca. 250 nm dick. Die Messung zeigt, dass in der Phosphor-dotierten Schicht eine durchschnittliche Konzentration von $1 \cdot 10^{16} \text{ atm/cm}^3$ erzielt wird.

3.1.3 Einzel-NV-Farbzentren in angepassten co-dotierten Diamant mit optimiertem $^{12}\text{C}/^{13}\text{C}$ Isotopenverhältnis

Zur Realisierung von Diamantschichten, die einzelne NV-Farbzentren beinhalten, wurde die chemische Gasphasenabscheidung genutzt. In einem ersten Schritt wurde dabei eine Optimierung der Herstellung von isopenkontrollierten Schichten durchgeführt. Insbesondere relevant ist hier die Konzentration der ^{13}C Kernspins in der Umgebung des NV-Zentrums. Diese sind einerseits als langlebige Qubits nutzbar, andererseits tragen sie jedoch auch zur Dekohärenz der Umgebungsspins und damit auch zu Fehlern im Computing-Prozess bei.

Daher wurde die Konzentration dieses Isotops während des Diamantepitaxie-Prozesses, über die Mischung isopenkontrollierter Quellgase, kontrolliert. Abbildung 11 zeigt eine Sekundärionen-Massenspektroskopie (SIMS) Messung an einem Schichtverbund, der mit variiertem Isotopenkonzentration hergestellt wurde. Der Gehalt des ^{13}C -Isotops wurde in scharf voneinander abgegrenzten Schichten zwischen dem natürlichen Anteil von 1,1 % und 0,0 % variiert. Dabei wurden genau eingestellte Isotopenkonzentrationen erzielt. Dies ermöglicht eine Optimierung der Verfügbarkeit und Kohärenzzeit dieser relevanten Spinspezies.

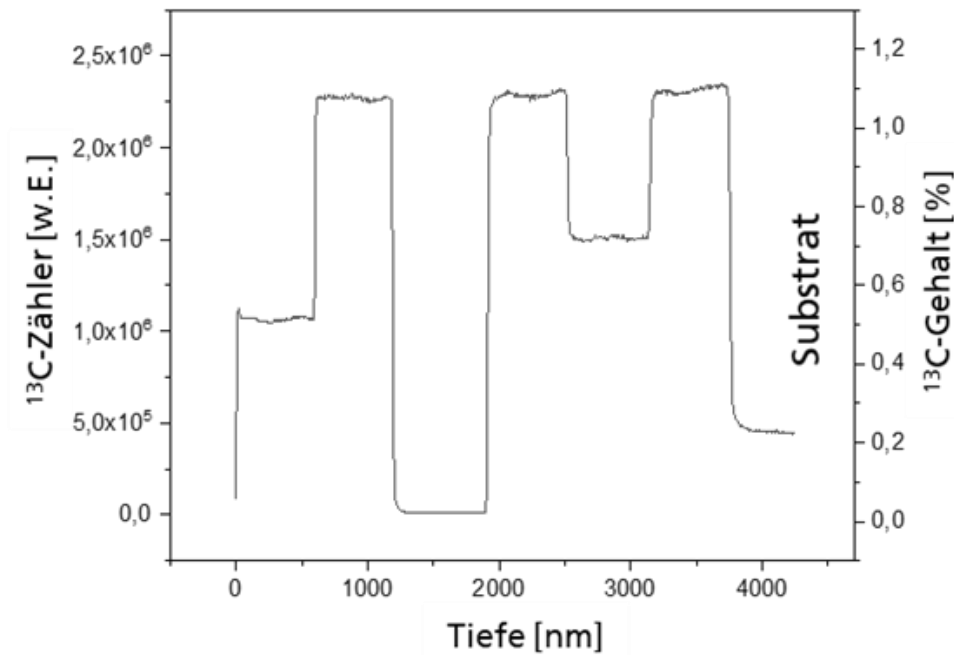


Abbildung 11: Schichtabfolge von intrinsischem Diamant mit variiertem ^{13}C -Isotopengehalt, ermittelt mittels SIMS. Kontrollierte Schichten wechseln sich mit Schichten mit natürlichem Isotopengehalt ab. Es wurden scharfe Konzentrationsgradienten zwischen den Schichten erzielt.

Um einzelne NV-Zentren zu realisieren, wurden stickstoffdotierte Dünnschichten mittels chemischer Gasphasenabscheidung hergestellt. Für eine gute Adressierbarkeit ist es dabei relevant, die Defektzentren lateral genau zu positionieren. Hierzu wurden Reaktorkonzepte zur Deltadotierung von Diamant entwickelt und angewandt, um die NV-Zentren, sowohl zur Oberfläche, als auch im Hinblick auf Isotopenkontrollierte Schichten genau zu positionieren. Zudem wurden Prozesse zur Herstellung von intrinsischem Diamant mit präziser Dickenkontrolle entwickelt, um durch Puffer- und Deckschichten eine Entkopplung zum Substrat und der Diamantoberfläche zu erreichen. Abbildung 12 zeigt SIMS-Messungen an Schichtverbünden, die mittels Deltadotierung und Isotopenkontrolle hergestellt wurden. Dabei wurden isotopenkontrollierte Schichten mit einer Dicke unter 6 nm hergestellt. Zudem konnte der Großteil des eingebauten Stickstoffs in einer Tiefenregion mit einer Breite von 2,5 nm begrenzt werden.

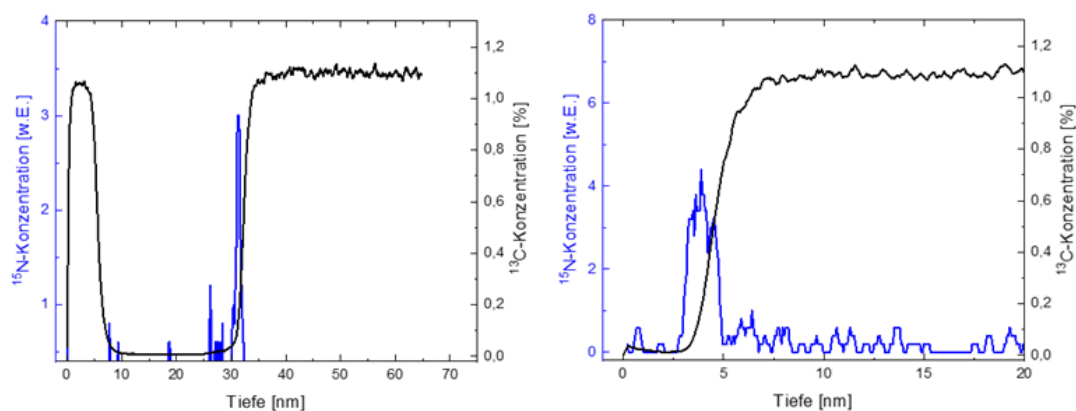


Abbildung 12: Tiefenprofil hergestellter Schichtverbünde. Die Profile zeigen oberflächennahe, stickstoffdotierte Dünnschichten in Diamant mit kontrollierten Isotopenkonzentrationen.

Um die Präsenz einzelner NV-Zentren nachzuweisen, wurde eine vergleichbare, dotierte Schicht mit einer Schichtdicke von ca. 25 nm hergestellt. Hierbei wurde ein Substrat genutzt, das selbst keine NV-Zentren enthält. Eine durchgeführte Hanbury Brown and Twiss Messung zeigt dabei, dass es sich bei den eingebauten NV-Zentren um einzelne Defektzentren handelt, die damit potentiell für das Quantencomputing geeignet sind.

Die Positioniergenauigkeit ermöglicht außerdem eine co-Dotierung des Diamanten zum Beispiel durch nahe gelegene phosphordotierte Schichten. Die Arbeitsgruppe UNI-STU hat numerische Simulationen mit Experimenten verglichen, um die Konversionseffizienz von NV Zentren zu optimieren¹

3.2 Skalierung NV-NV Kopplung und optische Adressierung

3.2.1 Realisierung von Verschränkung basierend auf dipolarer Kopplung zwischen zwei NV-Zentren

Eine automatisierte Messroutine wurde entwickelt, die es ermöglicht, Hunderte von NV-NV-Paar-Kandidaten hinsichtlich ihrer T2-Kohärenzzeiten und ihrer dipolaren Kopplung zu charakterisieren. Diese Methode ermöglichte die Identifizierung vielversprechender NV-NV-Paare in zwei Proben, die als Kandidaten für ein Quantenregister mit zwei elektronischen Spin-Qubits dienen könnten.

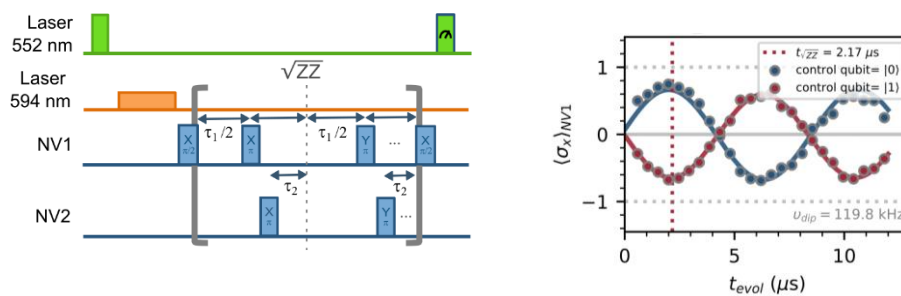


Abbildung 13: (a) Mikrowellen- und Lasersequenz mit Pulsen pro NV zur Realisierung einer $\sqrt{ZZ}$ -Operation auf dem Zwei-Qubit-Register. (b) Ergebnis der Sequenz in Form der σ_x -Komponente der kontrollierten Drehung geplottet gegen die Evolutionszeit (t_{evol}) auf dem Äquator der Bloch-Kugel des Ziel-Qubits. Durch Invertierung des Kontroll-Qubits zwischen seinen Grundzuständen wird die Richtung der Drehung bestimmt.

Auf einem solchen Register wurde ein $\sqrt{ZZ}$ -Gatter mit zwei Qubits implementiert, wie in Abbildung 13 gezeigt. Die Pulssequenz nutzt die dipolare Wechselwirkung der Spins um eine schnelle (Gatezeit = $1/(120 \text{ kHz})$) und präzise, konditionierte Rotation zu realisieren, wie der hohe Kontrast der Oszillation zeigt.

Um die Güte des verschränkenden Gatters genau zu bestimmen, wurde »Randomized Benchmarking« auf dem Register implementiert. Durch die Überlagerung der experimentellen Ergebnisse des Benchmarkings mit einer numerischen Simulation konnten die Fehlerquellen des Gatters detailliert quantifiziert werden (Abbildung 14b).

Diese Fehleranalyse ermöglichte auch die gezielte Optimierung verschiedener Designparameter. Nach dieser Optimierung konnte eine Zwei-Qubit-Güte von

¹ [S. Santonico et al. NV centers by vacancy trapping in irradiated diamond: experiments and modelling. New Journal of physics 26, 013054 (2024)]

96,0 (2.5) % und Einzel-Qubit-Güten von 99,5 (5) % experimentell im Randomized Benchmarking (Abbildung 14a) demonstriert werden. Die Zwei-Qubit-Güte übertrifft die Verschränkungsgatter vorheriger NV-NV-Experimente, die Zustands-Transfer-Optimierung mit optimaler Kontrolle verwendeten und daher deutlich weniger vielseitig einsetzbar sind.

Ein weiteres Ergebnis unserer Analyse ist, dass ein Großteil der Gatterfehler kohärenter Natur ist. Diese Fehler können prinzipiell durch geeignete Mikrowellen-Sequenzen umgekehrt werden. Bei gleichbleibender Kohärenz des Quantenregisters sollten wir die Zwei-Qubit-Güte in Zukunft auf 98,6 % steigern können.

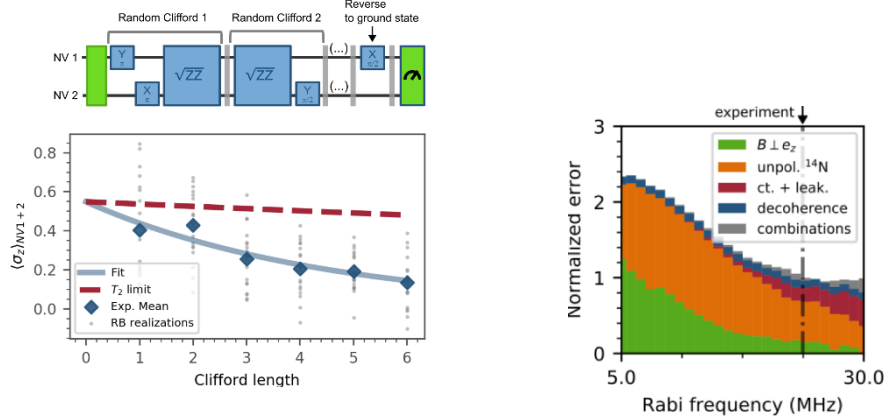


Abbildung 14: (a) Zwei Qubit Randomized Benchmarking. Hier wird die Clifford Länge randomisierter Quantenoperationen variiert und aus dem Fit des Zerfalls ergibt sich die zwei Qubit Fidelität $F = 96,0$ (2.5) %. (b) Simulierte, relative Fehlerbeiträge des Gatter Satzes. Bei der experimentell gewählten Mikrowellenleistung (Rabi Frequenz = 23,7 MHz) gehen 53 % auf die unpolarisierten ^{14}N Kernspins zurück, 15 % auf nicht axiale Komponenten des Magnetfelds, 18 % auf Mikrowellen-induziertes Überspringen und Zustand Leckage und lediglich 10 % auf Dekoherenz.

3.2.2 Implementierung der Quantenfehlerkorrektur

Quanten-Tomographie an NV-NV-Quantenregistern ist herausfordernd, da die etablierte optische Auslese bei Raumtemperatur nicht unterscheiden kann, welche Auslese-Photonen von welchem der NVs stammt. Wir haben eine Tomographietechnik implementiert, die die Adressierbarkeit im Mikrowellenbereich ausnutzt, um dennoch Informationen über den Quantenzustand der einzelnen Qubits zu erhalten. Aus Rabi-Experimenten an den Subsystemen konnten wir erfolgreich die nicht verschränkten Teile der 4×4 -Dichtematrix des Registers rekonstruieren, wie in Abbildung 15 zu sehen ist. Mittels numerischer Simulationen wurden Möglichkeiten untersucht, Zugang zur gesamten Dichtematrix der beiden verschränkten Spins zu erhalten. Unsere Simulationen zeigen, dass der vielversprechendste Ansatz unser $\sqrt{ZZ}$ -Gatter nutzt, um die verschränkten Teile der Dichtematrix auf Elemente abzubilden, die wir wie oben gezeigt auslesen können.

Mittels den optimierter zwei Qubit-Gattern ist es nun möglich eine vollständige Tomographie verschränkter Zustände durchzuführen.

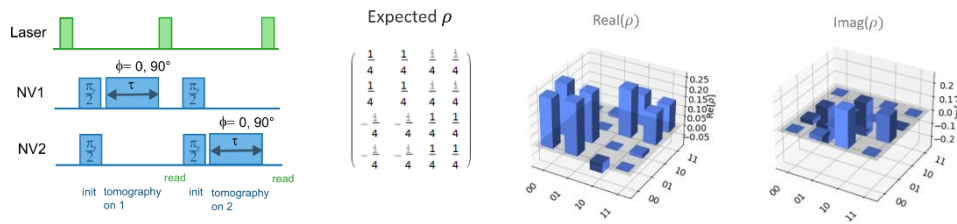


Abbildung 15: (a) Sequenz für Quantenzustands-Tomographie auf den unverschränkten Teilen der Dichtematrix. Der zu untersuchende Anfangszustand ist (b). Theoretisch erwartete Dichtematrix für einen perfekt präparierten Zustand. (c). Experimentell rekonstruierter Real- und Imaginärteil des Tomographieexperiments in (a). Man beachte, dass die Gegen-Diagonale experimentell nur mit einem sehr zuverlässigen Verschränkungsgatter zugänglich ist.

3.3 Optimierung Quantenregister

3.3.1 Erweiterung der Anzahl der Qubits auf neun Qubits

Im Berichtszeitraum konnte die Anzahl der Qubits auf neun gesteigert werden. Dazu wurde eine neue Methode implementiert, bei der sowohl das Qubit des Elektronenspins also auch die Kernspinqubits mit jeweils separaten Ansteuerungssequenzen adressiert werden. Auf diese Weise konnte die spektrale Auflösung und damit die Adressierbarkeit der Qubits verbessert werden. Die Abbildung 16 unten zeigt die spektrale Position der einzelnen Qubits und deren Frequenz (Tabelle 1), die in weiterführenden Experimenten zum gezielten Ansprechen der Qubits benötigt werden.

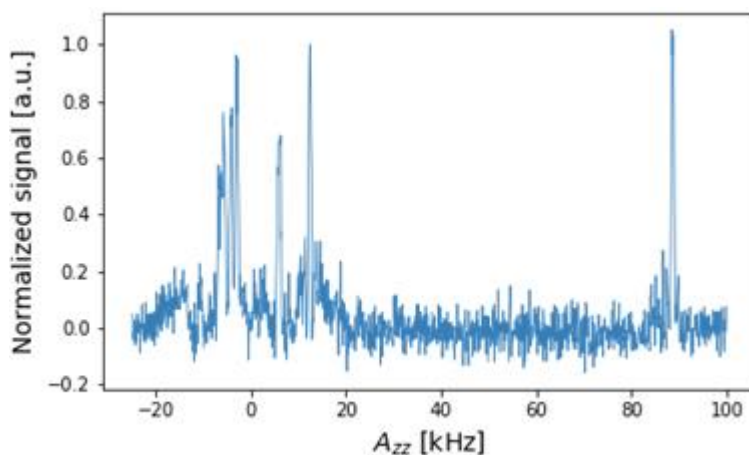


Abbildung 16: Spektrum der Kernspin Qubitfrequenzen. Dargestellt ist die Kopplungsstärke A_{zz} der Kernspins an den zentralen Elektronenspin.

Tabelle 1: Zeigt die spektrale Position (Frequenz) der einzelnen Qubits

Qubit	1	2	3	4	5	6	7	8	9
Frequenz	2.16 MHz	413 kHz	89 KHz	12 kHz	10 kHz	6 kHz	-3 kHz	-4 kHz	-6 kHz

3.3.2 Implementierung verbesserter Hardware für Gatteroperationen

Überblick der wissenschaftlichen
Arbeiten

Die Arbeitsgruppe UNI-STU hat eine verbesserte Qubitkontrolle und vor allem eine verbesserte Auslesetechnik implementiert. Durch diese Verbesserungen konnte die Anzahl von optischen Zyklen, die für die Ermittlung des Quantenzustandes der Qubits benötigt werden, um ca. 20 % reduziert werden. Da diese Operation die für die Fehlerkorrektur notwendige Feedbackkontrolle verbessert, ermöglicht sie eine verbesserte Quantenfehlerkorrektur. Die Ergebnisse wurden publiziert. Weiterhin hat die Gruppe eine generelle Beschreibung von optimalen Gattern für verschiedene Spinsysteme erarbeitet. Diese Beschreibung erlaubt es, bei gegebenem Elektronenspin und Hyperfeinwechselwirkung die jeweils beste Methode zur Kernspinkontrolle zu identifizieren. Die Methoden wurden publiziert².

3.3.3 Optimierung der Gatter- sowie Initialisierungs- Auslesegüte

Wie unter 3.3.2 beschrieben führt die verbesserte Hardware dazu, dass die Gattergüten abhängig vom Kernspin-Qubit gesteigert werden können. Die mittlere Verbesserung beträgt ca. 0,3 % für Ein-Qubit-Gatter. Die Auslese- und Initialisierungsgüte konnte durch die verbesserte Magnetfeldkontrolle um ca. 1 % gesteigert werden. Weiterhin wurde eine Methode implementiert, die bei gegebenen photophysikalischen – und Relaxationsparameter eine optimale Anregung der NV-Zentren ergibt. Dadurch konnte die Initialisierungs- und Auslesegüte weiter gesteigert werden. Insgesamt ergibt sich eine Verbesserung um ca. 5 %, sodass die Initialisierungsgüte ca. 98 % erreicht³.

3.3.4 Abschätzung von Fehlern für CROT-Gatter zwischen Elektronspin und Stickstoff- sowie Kohlenstoff-Kernspins

Während in der ersten Förderperiode des Verbundprojekts QC-4-BW die Stabilisierung von Quanteninformation auf dem NV-Zentrum als Quantenregister mittels Quantenfehlerkorrektur untersucht und umgesetzt wurde [Finsterhoelzl2022], sowie Algorithmen für die Quantensimulation auf dem NV-Zentrum ausgeführt wurden [Ruh2023], liegt der Schwerpunkt der zweiten Förderperiode auf dem Ziel der Verbesserung der Gattergüte. Denn für das fehlertolerante Verarbeiten von Quanteninformation auf den NV-spinbasierten Registern ist eine hohe Güte der Gatteroperationen unabdingbar. Während bei Einzel-Qubit Gattern bereits hohe Güten von bis zu 0,99995 gezeigt werden konnten^{4,5,6}, gehört gerade die Verbesserung der Güte von konditionellen Rotationen (CROT) – also die Adressierung eines Qubits bedingt auf dem Zustand eines weiteren Qubits – zu den derzeitigen zentralen Herausforderungen. CROT-Gatter innerhalb eines Registers existieren zwischen

² [V. Vorobyov et al. Applied Magnetic Resonance <https://doi.org/10.1007/s00723-022-01462-2> (Accepted: 19 Dezember 2021)

M. Zahedian et al. Blueprint for efficient nuclear spin characterization with color centers. ArXiv:2402.08107 (2024)]

³ [M. Zahedian et al. On readout and initialization fidelity by finite demolition single shot readout. Quantum Science and Technology, 9, 015023 (2024)]

⁴ van der Sar, T., Wang, Z., Blok, M. et al. Decoherence-protected quantum gates for a hybrid solid-state spin register. Nature 484, 82–86 (2012). <https://doi.org/10.1038/nature10900>.

⁵ Dolde, F., Bergholm, V., Wang, Y. et al. High-fidelity spin entanglement using optimal control. Nat Commun 5, 3371 (2014). <https://doi.org/10.1038/ncomms4371>

⁶ Rong, X., Geng, J., Shi, F. et al. Experimental fault-tolerant universal quantum gates with solid-state spins under ambient conditions. Nat Commun 6, 8748 (2015). <https://doi.org/10.1038/ncomms9748>.

Elektronen- und Kernspin^{7,4,5,6,8}. Basierend auf frequenz-selektierendem Rabi-Treiben des Ziel-Qubits in Resonanz mit seiner Übergangsfrequenz, die vom Zustand des Kontroll-Qubits abhängig ist, können so kontrollierte Rotationen realisiert werden; dies ist auch bei Halbleiter-Spinqubits möglich⁹.

Eine Fehlerquelle bei frequenz-selektierendem Rabi-Treiben ist jedoch, dass dabei auch Übergangsfrequenzen anderer Zustände nicht-resonant angeregt werden, was zu unerwünschten Spin-Flips führen kann.

In⁹ wurde gezeigt, dass die durch off-resonante Wechselwirkung entstehenden Fehler vollständig eliminiert werden können, indem mittels Amplitudenmodulation des treibenden Feldes die resonanten und off-resonanten Oszillationen synchronisiert werden. Das an der Uni Konstanz für Halbleiter-Spinqubits entwickelte Protokoll wurde bereits erfolgreich experimentell umgesetzt¹⁰.

In diesem Arbeitspaketabschnitt, mit den Meilenstein (M3.4) sowie dem folgenden Meilenstein (M3.5), wird über die erfolgreiche Erarbeitung von Protokollen berichtet, die – basierend auf den Vorarbeiten an der Uni Konstanz^{11,12,9,13} – eine hohe Gattergüte bei konditionellen logischen Operationen zwischen Elektronspin und Kernspins in NV-Zentren erzielen.

Zunächst wurden die Fehler für CROT-Gatter zwischen Elektronspin und Stickstoff- sowie Kohlenstoff-Kernspins für eine Rotation des Elektronenspins bedingt auf bestimmten Zuständen der gekoppelten Kernspins ($C_n\text{ROT}_e$ -Gatter)^{4,5,6} abgeschätzt. Hierfür wurde der Hamilton-Operator des Systems in ein geeignetes Bezugssystem transferiert (rotierendes Bezugssystem mit der Frequenz des treibenden Feldes) und schnell rotierende Terme vernachlässigt. Unter der Annahme eines treibenden Feldes mit der Frequenz des adressierten Übergangs kann nun der Fehler in Abhängigkeit der Stärke des Lasers im Mikrowellenbereich analysiert werden. Es zeigt sich, dass die Güte aufgrund der der Operation inhärenten freien Evolution des Systems zwischen 0 und 1 oszilliert, da die hyperfeine Kopplung zu einer verschränkenden Operation entlang der z-Achse führt (siehe Abbildung 17, betrachtet wird hier die gemittelte Güte der Gatteroperation $C_n\text{NOT}_e$). Für geringer werdende Feldstärken oszilliert die Güte mit hoher Frequenz. In gängigen Gatterprotokollen^{4,5,14,6} wird daher die freie Evolution des

⁷ Childress, L., Dutt, G., Taylor, J., Zibrov, A., Jelezko, F. Hemmer, P. and Lukin, M., Coherent Dynamics of Coupled Electron and Nuclear Spin Qubits in Diamond. Science 314 (2006), <https://www.science.org/doi/full/10.1126/science.1131871>.

⁸ Bradley et al. (2019). A Ten-Qubit Solid-State Spin Register with Quantum Memory up to One Minute. Phys. Rev. X, 9(3), 031045. <https://doi.org/10.1103/PhysRevX.9.031045>

⁹ Maximilian Russ, D. M. Zajac, A. J. Sigillito, F. Borjans, J. M. Taylor, J. R. Petta, and Guido Burkard, High-fidelity quantum gates in Si/SiGe double quantum dots, Phys. Rev. B 97, 085421 (2018), <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.97.085421>

¹⁰ Noiri, A., Takeda, K., Nakajima, T. et al. Fast universal quantum gate above the fault-tolerance threshold in silicon. Nature 601, 338–342 (2022). <https://doi.org/10.1038/s41586-021-04182-y>

¹¹ A. Auer and G. Burkard, Cavity-QED mit Kernspins: Long-range photon-mediated gate scheme between nuclear spin qubits in diamond, Phys. Rev. B 93, 035402 (2016), <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.93.035402>

¹² G. Burkard, V. O. Shkolnikov, and D. D. Awschalom, Designing a cavity-mediated quantum cphase gate between NV spin qubits in diamond, Phys. Rev. B 95, 205420 (2017), <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.95.205420>.

¹³ V. O. Shkolnikov, R. Mauch, and G. Burkard, All-microwave holonomic control of an electron-nuclear two-qubit register in diamond, Phys. Rev. B 101, 155306 (2020), <https://journals.aps.org/prb/abstract/10.1103/PhysRevB.101.155306>

¹⁴ Waldherr, G., Wang, Y., Zaiser, S. et al. Quantum error correction in a solid-state hybrid spin register. Nature 506, 204–207 (2014). <https://doi.org/10.1038/nature12919>

Systems mittels geeigneter Wahl des statischen, externen Magnetfeldes oder mittels einer Wartezeit zwischen aufeinander folgenden Gatteroperationen korrigiert. Damit ergibt sich für die Güte der Operation eine Abnahme der Qualität mit der Zunahme der Stärke des treibenden Feldes (siehe Abbildung 18, auch hier wird die gemittelte Güte der Gatteroperation $C_n\text{NOT}_e$ betrachtet).

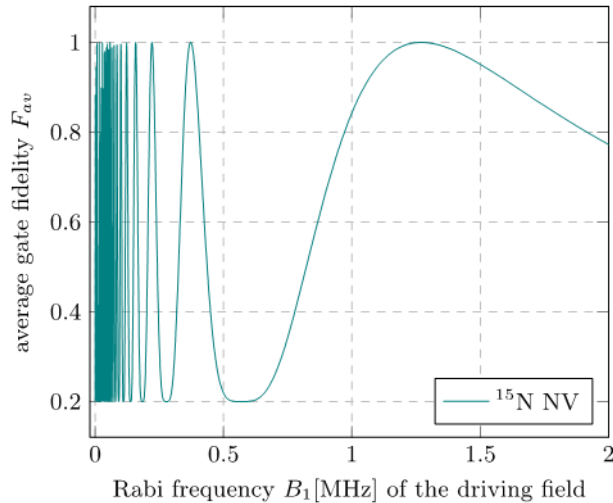


Abbildung 17: Gemittelte Güte der Gatteroperation $C_n\text{NOT}_e$, also einer kontrollierten Rotation des Elektronenspins konditionell am Zustand des Kernspins, in Abhängigkeit der Stärke des treibenden Feldes. Aufgrund der freien Evolution des Systems, die einer verschränkenden Phasenverschiebung entspricht, oszilliert sie zwischen 0 und 1.

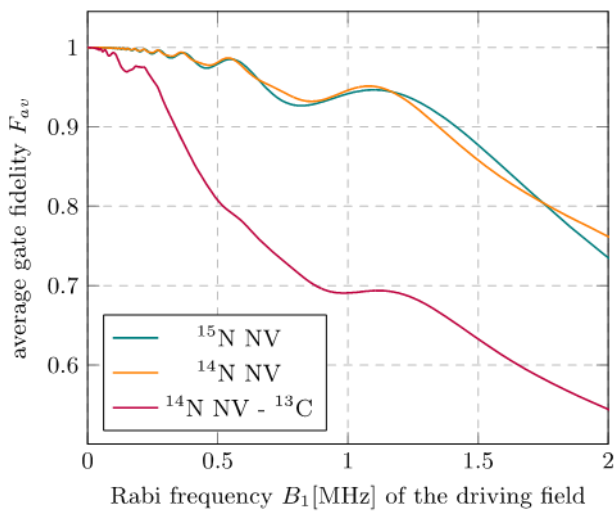


Abbildung 18: Gemittelte Güte der Gatteroperation $C_n\text{NOT}_e$ analog zu Abbildung 17. Hier wurde die freie Evolution des Systems korrigiert. Es wird deutlich, dass so im Regime des schwachen Treibens, also für geringe Rabi-Frequenzen, nahezu ideale Gattergüten erzielt werden können, während sich bei stärkerem Treiben ein deutlicher Fehler in der Operation zeigt. Unterschiedlich farbige Linien beziehen sich auf Systeme mit verschiedenen Stickstoff-Isotopen als Bestandteile der Fehlstelle sowie auf zusätzlich gekoppelte Spins der umliegenden Kohlenstoff-Atome.

Diese Analyse trifft ähnlich auf die Erweiterung des Systems um einen gekoppelten Kohlenstoff-Kernspin zu, wie ebenfalls in Abbildung 18 deutlich wird. Das durch die hyperfeine Wechselwirkung aufgespaltene Energiespektrum wird nun allerdings dichter, was sich, wie in der Beschreibung der Arbeiten zum folgenden Meilenstein 3.5 deutlich wird, auf die Formulierung der Synchronisationsprotokolle auswirkt.

Vergleicht man das Resultat der beiden Protokolle, so wird deutlich, dass mit Letzterem nur im schwach treibenden Regime hohe Güten von annähernd 1 erzielt werden können, während bei ersterem Verfahren für bestimmte Feld-Intensitäten, also der Rabi-Frequenz des treibenden Lasers, der Fehler völlig eliminiert werden kann.

Für eine konditionelle Rotation einer der gekoppelten Kernspins in Abhängigkeit des elektronischen Spin-Zustands ergibt sich ein ganz ähnliches Bild, wobei hier das derzeit führende Protokoll untersucht wurde, welches dynamische Entkopplungssequenzen mit Radiofrequenzpulsen kombiniert (DDRF)^{8, 15, 16}. Auch hier nimmt die Gattergüte mit zunehmender Laserintensität ab (siehe Abbildung 19), wobei in dem Schema die freie Evolution des Systems bereits mit den Entkopplungssequenzen korrigiert werden kann.

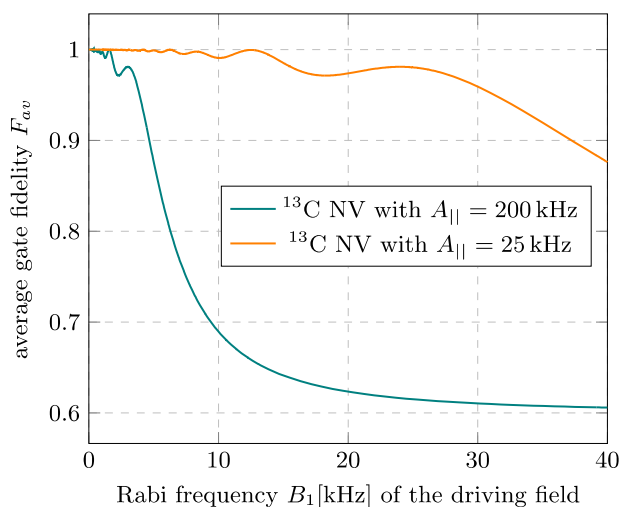


Abbildung 19: Gemittelte Güte der Gatteroperation $C_n\text{NOT}_n$, die mit dem DDRf Protokoll durchgeführt wird.

3.3.5 Erarbeitung eines Protokolls zur Verbesserung der Gattergüte durch Fehlerreduktion bei off-resonantem Treiben

In Anschluss an den Bericht zu Meilenstein M3.4 werden nun Protokolle erläutert, die den Fehler aufgrund off-resonanten Treibens teilweise völlig eliminieren und zudem das Verwenden hoher Feldstärken ermöglichen, was zu einer deutlichen Verringerung der Gatterzeiten führt – und wiederum für die sequenzielle Ausführung quantenlogischer Operationen auf dem Register einen enormen Vorteil erbringt. Diesen Protokollen liegt die Idee zugrunde, die Anregung nicht-erwünschter Übergänge nicht (mit schwachem Treiben) zu vermeiden, sondern in Kauf zu nehmen und somit Regime starken Treibens zugänglich zu machen. Dennoch wird mittels einer Synchronisation der Rotation der Blochvektoren der beiden in die Operation involvierten Qubits im Resultat eine

¹⁵ Takou, E., Barnes, E., & Economou, S. E. (2023). Precise Control of Entanglement in Multinuclear Spin Registers Coupled to Defects. *Phys. Rev. X*, 13(1), 011004. <https://doi.org/10.1103/PhysRevX.13.011004>

¹⁶ Takou et al. (2023). Precise Control of Entanglement in Multinuclear Spin Registers Coupled to Defects. *Phys. Rev. X*, 13(1), 011004. <https://doi.org/10.1103/PhysRevX.13.011004>

verschwindende Wahrscheinlichkeit für nicht erwünschte Spin-Flips aufgrund der Laseranregung erreicht, und zwar indem die Stärke des treibenden Feldes so gewählt wird, dass zum Ende der Gatterzeit, also des Laserpulses, die Rabi-Oszillation des off-resonanten Übergangs gerade eine volle Periode durchlaufen hat. Diese Werte können über das Lösen diophaner Gleichungen, die sich aus Bedingungen an den Zeitevolutions-Operator ergeben, ermittelt werden. Abbildung 20 zeigt mögliche Werte für die Operation $C_n\text{NOT}_e$ bei einem NV- ^{15}N -System, für welche der Fehler vollständig umgangen werden kann, und daraus resultierende Gatterzeiten.

Im Falle eines mit einem ^{14}N -Atom gebildeten NV-Zentrums ist der Kernspin ein Triplet und es ergeben sich zusätzliche Werte für das treibende Feld, welche zwar keine exakte Lösung der diophantischen Gleichungen darstellen, jedoch dennoch eine Güte $F > 0,99$ für kurze Gatterzeiten im Bereich weniger Mikrosekunden erzielen (siehe Abbildung 21).

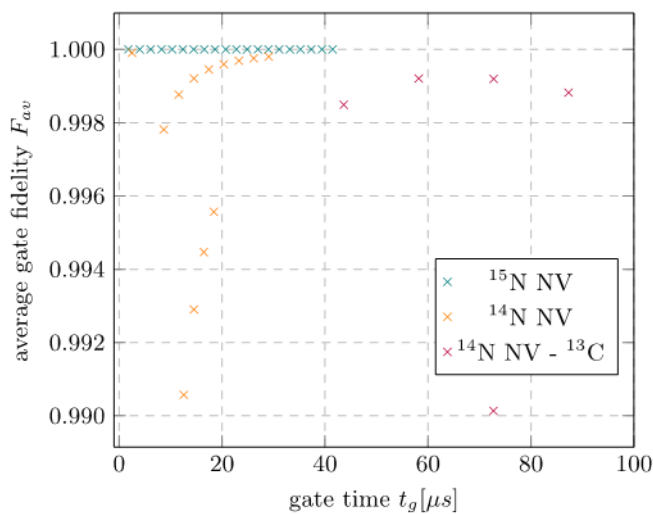


Abbildung 20: Demonstration hoher Gattergüten für eine $C_n\text{NOT}_e$ -Operation bei einem NV-Zentrum, das mit einem ^{14}N Stickstoff-Atom gebildet wird, und deren zugehörige Dauer der Operation (gelbe Kreuze). Es wird deutlich, dass diese in sehr vorteilhaften Gatterzeiten durchgeführt werden können. Zum Vergleich sind die Gatterzeiten für ein $^{15}\text{N NV}$ -Zentrum abgebildet, für das der Fehler durch off-resonantes Treiben unterdrückt werden kann (grüne Kreuze). Auch im Fall eines zusätzlich gekoppelten Kohlenstoff-Spins können hohe Güten erreicht werden (rote Kreuze).

Eine Erweiterung des Protokolls besteht zudem in der Einbeziehung der freien Evolution des Systems. Da dieser einer kontrollierten Rotation um die z-Achse entspricht, kann sie genutzt werden, um bei geeigneter Wahl einer Verzögerung zwischen zwei aufeinander folgenden Operationen eine Korrektur von Fehlern entlang der z-Achse zu erreichen. Daraus ergeben sich weitere Wertebereiche für das treibende B-Feld (siehe Abbildung 21).

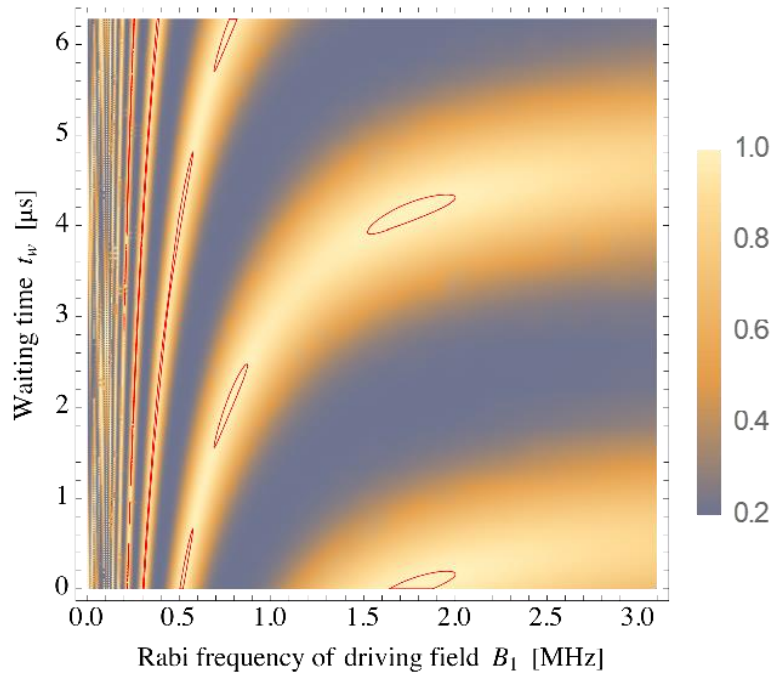


Abbildung 21: Gattergüte einer C_nNOT_e -Operation bei einem ^{15}N NV-Zentrum aufgetragen über der Stärke der Rabi-Frequenz und der Phase der korrigierenden z-Achsen Rotation. Weiße Gebiete bezeichnen eine Güte von 1, während dunkles Blau eine Güte von 0 bezeichnen. Rot markierte Gebiete sind solche mit einer Güte von $> 0,99$. Es wird deutlich, dass sich zusätzlich zu den voll synchronisierten Punkten weitere Wertebereiche ergeben, an denen der Fehler durch das off-resonante Treiben (fast) vollständig umgangen werden kann.

Diese Bilder ergeben sich auch analog für eine zusätzliche Kopplung eines ^{13}C Isotops an das NV-Zentrum (siehe Abbildung 20 und 22). In diesem Fall existiert allerdings keine exakte Lösung mit einer Güte von $F = 1$.

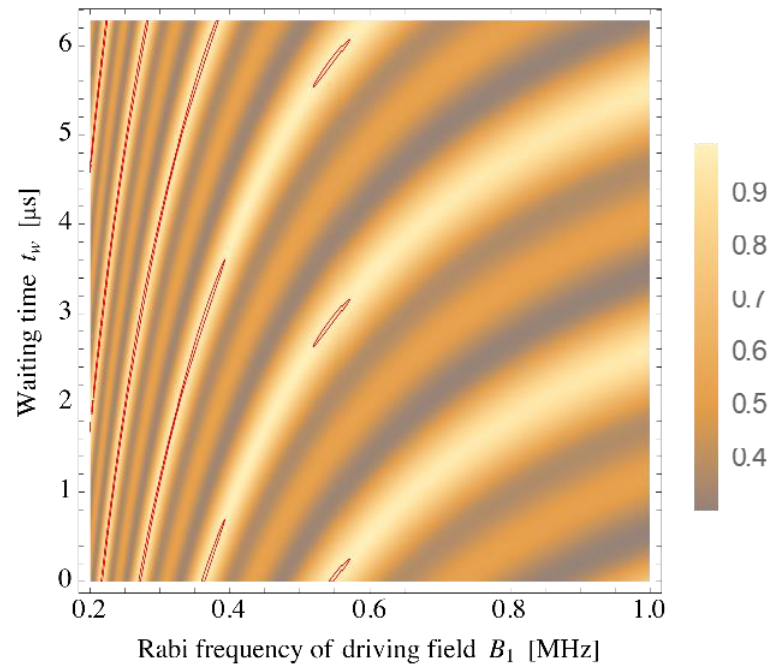


Abbildung 22: Gattergüte einer C_nNOT_e -Operation analog zu Abbildung 21, hier bei einem ^{14}N NV-Zentrum.

Für die Operation $C_e\text{NOT}_n$, also für eine konditionelle Rotation eines gekoppelten Kernspins, werden diese Protokolle mit dynamischen Entkopplungssequenzen verknüpft. In diesem Fall muss auch die Stärke des externen statischen Magnetfeldes angepasst werden (siehe Abbildung 23).

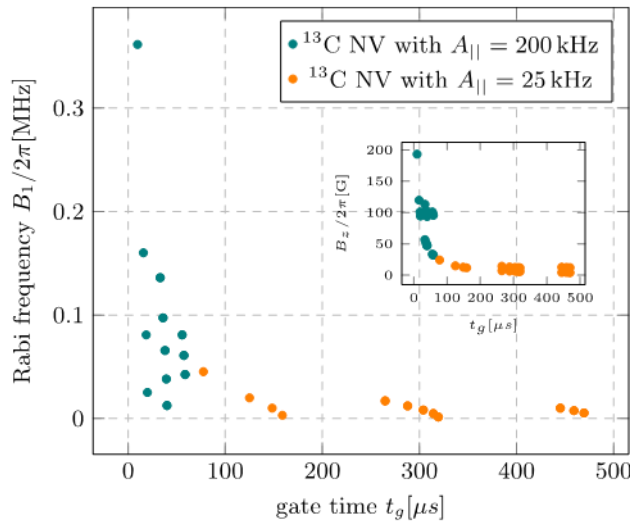


Abbildung 23: Demonstration hoher Gattergüten bei kurzen Gatterzeiten für eine $C_e\text{NOT}_n$ -Operation bei einem NV-Zentrum, die mittels eines DDrf Schemas durchgeführt wird. Beispielhaft werden die Zeiten für Kohlenstoff-Spins mit typischen Werten sowohl für starke als auch für schwache Kopplung gezeigt. Der Inset-Plot zeigt die Werte für das externe statische Magnetfeld, die für die Durchführung nötig sind.

Die Ergebnisse wurden bei einem hochrangigen Journal mit peer-review Verfahren eingereicht und wurden bereits als Preprint vorab veröffentlicht¹⁷.

3.4 Aufbau- und Kryotechnik

3.4.1 Aufbau des mK-Kryostat in Stuttgart

In der zweiten Förderperiode wurde eine überarbeitete Version der Prototypen entwickelt und anschließend am KIT in Betrieb genommen. Diese verbesserten Systeme wurden dann bei den Projektpartnern in Ulm und Stuttgart installiert (Abb. 24-27). Das Startup Qinu war maßgeblich an der Unterstützung des Aufbaus beteiligt.

Die neuen Systeme wurden in einen optischen Tisch integriert, was den Strahlengang des Lasers vereinfacht und die Gesamtstabilität erhöht hat (Abb. 25). Zusätzlich wurde ein hochauflösendes Konfokalmikroskop bei Temperaturen im Millikelvin-Bereich integriert.

Der Zugang zu den optischen Komponenten ist durch Fenster gewährleistet, der Laserstrahl wird mittels eines Objektivs direkt auf einen Diamanten fokussiert. Mit piezoelektrischen Translationsbühnen kann die zu untersuchende Probe präzise bewegt werden, wodurch die Oberfläche mit einer Genauigkeit im sub-Mikrometer-Bereich abgetastet werden kann.

¹⁷ Finsterhoelzl/Hannes/Burkard, <https://arxiv.org/abs/2403.11553> (2024).

Das System ist in der Lage, auf Temperaturen unterhalb von 40 Millikelvin heruntergekühlt zu werden. Darüber hinaus ist es mit einem 3D-Vektormagneten ausgestattet, der in der Lage ist, Magnetfelder von etwa 0,5 Tesla in allen Richtungen an die Probe anzulegen.

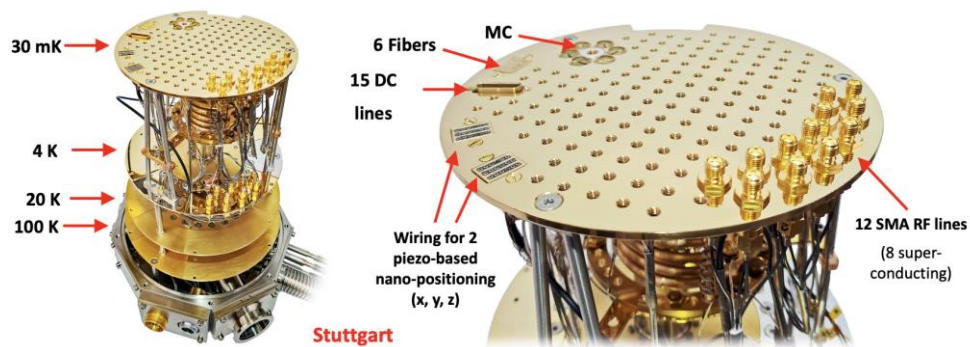


Abbildung 24: (links) mK-Kryostat installiert in Stuttgart. (rechts) Vergrößerung der 30 mK Platte mit der installierten Verkabelung.

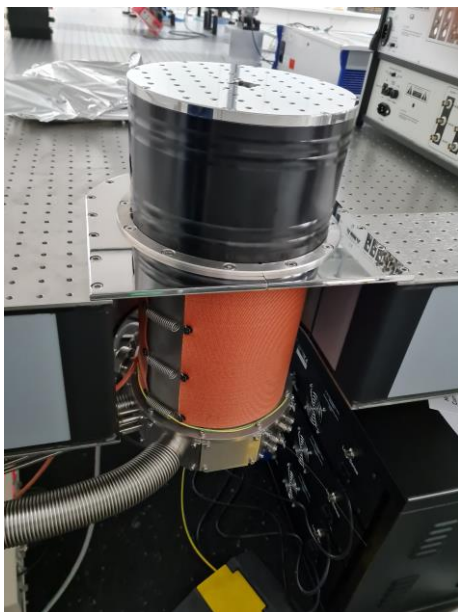


Abbildung 25: (links) mK-Kryostat installiert in Stuttgart und integriert in einem optischen Tisch, um das nötige sehr geringes Vibrationsniveau zu erreichen. (rechts) Gashandling System installiert in einen Nebenraum, um akustischen Lärm und Vibrationen zu entkoppeln.

3.4.2 Aufbau des mK-Kryostat in Ulm

Überblick der wissenschaftlichen
Arbeiten

In Ulm wurde, ähnlich wie in Stuttgart, ein fortschrittliches System aufgebaut. Hierbei wurde ein spezielles Kühlaggregat, der mK-Kryostat, direkt in den Arbeitstisch integriert. Dies erleichtert die Handhabung des Lasers und sorgt für eine stabilere Arbeitsumgebung.

Zudem wurde ein spezielles Mikroskop, das auch bei extrem niedrigen Temperaturen arbeiten kann, eingebaut, sowie spezielle Magneten, die in alle Richtungen ein starkes Magnetfeld erzeugen können. Diese Magneten können ein Magnetfeld von bis zu 0,5 Tesla erzeugen. Das gesamte System kann auf extrem niedrige Temperaturen, von weniger als 40 Millikelvin, abgekühlt werden.

Um die Proben genau bewegen zu können, wurden noch spezielle Anschlüsse für sogenannte piezoelektrische Translationsbühnen installiert. Das bedeutet, dass die Proben sehr genau positioniert werden können, um sie dann mit höchster Präzision zu untersuchen.



Abb. 26: mK-Kryostat installiert in Ulm und integriert in einem optischen Tisch, um das nötige sehr geringes Vibrationsniveau zu erreichen.

3.4.3 Integration optimierter Mikrowellenleiter und 3D-Vektor-Magneten

Das Design für Mikrowelle und Magnetfeld wurden weiterentwickelt und die Auswahl der zu verwendenden Kabel & Antennen wurde festgelegt. Es wurden unterschiedliche Charakterisierung durchgeführt, um Erkenntnisse zu gewinnen, wie Mikrowelle, Vektorfeld und Optik im mK-Kryostaten optimal eingesetzt werden. Hier lag das Augenmerk auf die RF-Verkabelung des Kryostaten. Diese Verkabelung erlaubt es nun, die erforderlichen Quantenoperationen am Quantenprozessor durchzuführen.

Darüber hinaus wurde ein 3D-Vektormagnet weiterentwickelt, der in der Lage ist, etwa 0,5 Tesla in allen Richtungen an die Probe anzulegen (siehe Abb. 27). Diese Entwicklungen und Installationen wurden ausgeführt und stehen zur Verfügung.

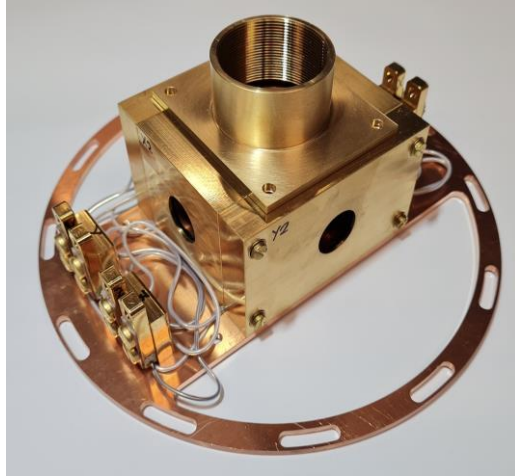


Abbildung 27: 3-Achsen Vektormagnetfeldspulen für Magnetfelder von (0,5;0,5;1,0) Tesla in (x,y,z).

3.5 Algorithmen

3.5.1 Optimale Transpilation des Schaltkreises auf den IBM-Q Prozessor

A) Trotter Quantenschaltkreis

Während der ersten Projektphase wurde die Dynamik des BCS-Modells auf IBM-Quantencomputern (QC) implementiert. Es wurde mit einem einfachen System aus drei Qubits begonnen und die Evolution einiger Observablen wurde verfolgt. Zur Implementierung des Evolutionsoperators des BCS-Modells in Bezug auf unitäre Basisgatter der IBM QC wurde der Trotter-Algorithmus verwendet. Dieser Algorithmus unterteilt die gesamte Evolutionsdynamik in kleine Zeitschritte. Jeder unitärer Evolutionsoperator für einen kleinen Zeitschritt wird dann durch einen auf IBM QC implementierbaren unitären Operator approximiert (siehe Abb. 28).

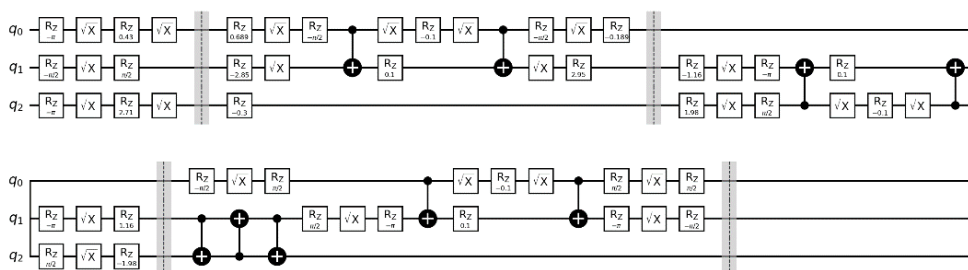


Abbildung 28: Exemplarischer Trotter-Quantenschaltkreis pro Zeitschritt, der den exakten Evolutionsoperator approximiert.

B) Verbesserte Neukompilierung

Überblick der wissenschaftlichen
Arbeiten

Um die Magic-Distillation Methode zur Fehlerminderung zu nutzen (siehe 3.5.3.B), müssen kontrollierte SWAP (CSWAP) Gatter auf dem IBM QC implementiert werden. Diese sind jedoch keine Basisgatter des IBM QC. Sie können mithilfe naiver Funktionen von Qiskit in einen Quantenschaltkreis zerlegt werden, welcher aus 21 CNOT-Gattern besteht (oberer Schaltkreis in Abb. 29). Um solch eine hohe Anzahl von CNOT-Gattern zu vermeiden, wird eine Neukompilierungstechnik verwendet, die auf der Tensorproduktmethode basiert. Damit kann ein CSWAP Gatter mit 10 CNOT-Gattern angenähert werden (siehe unteres rechtes Panel von Abb. 29). Die Fehler zwischen dem neukompilierten Gatter und der exakten Implementierung des CSWAP-Gatters liegt hierbei unter 10^{-7} .

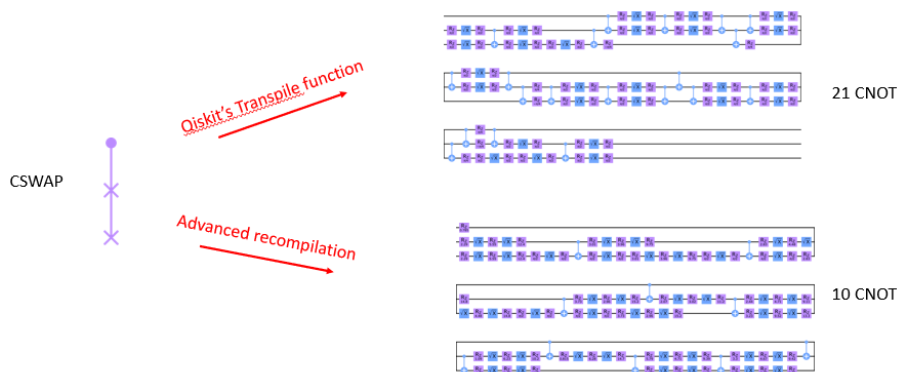


Abbildung 29: Das CSWAP-Gatter ist kein Basisgatter von IBM QC. Die naive Qiskit-Funktion transpilet es in 21 CNOT-Gatter (Schaltung oben rechts). Das hier verwendete Neukompilierungsschema, das die Tensor-Netzwerk-Methode verwendet, benötigt nur 10 CNOT-Gatter (Schaltung unten rechts).

C) Crosstalk Pauli Noise Tomographie

In diesem Abschnitt wird erläutert, wie ein Satz einfacher Quantenschaltungen genutzt wird, um die Bias-Struktur des Rauschkanals des CNOT-Gatters sowie dessen Effekt auf benachbarte Qubits (d.h. Crosstalk) präzise zu charakterisieren. Diese Tomographie ist erforderlich, wenn man die Fehlerminderungsschemata aus dem vorangegangenen Kapitel verwenden möchte.

Während der Tomographie wird die RC-Methode (siehe vorhergehendes Kapitel) verwendet, um sicherzustellen, dass jegliches kohärentes Rauschen in ein Pauli-Rauschen umgewandelt wird. Neun verschiedene Schaltungen kommen zum Einsatz, bei denen das CNOT-Gatter präpariert und in verschiedenen Richtungen gemessen wird, um den Pauli-Rauschkanal vollständig zu bestimmen. Die Arbeiten der ersten Projektphase deuten darauf hin, dass Crosstalk eine wesentliche Komponente des Rauschkanals ist. Daher wird die Crosstalk-RC-Methode angewendet und benachbarte Qubits gemessen (siehe Abb. 30). Die Tomographie der benachbarten Qubits muss nur in einer Richtung durchgeführt werden, da das Rauschen keine Vorzugsrichtung hat (ohne Bias). Daher skaliert die Anzahl der Schaltungen zur Realisierung der Tomographie des vollständigen Fehlerkanals nicht mit der Anzahl der benachbarten Qubits. Um die Genauigkeit der Tomographie zu erhöhen, wird auch der Parameter des Pauli-Rauschkanals verstärkt, indem CNOT-Gatter aufeinanderfolgend angewendet werden.

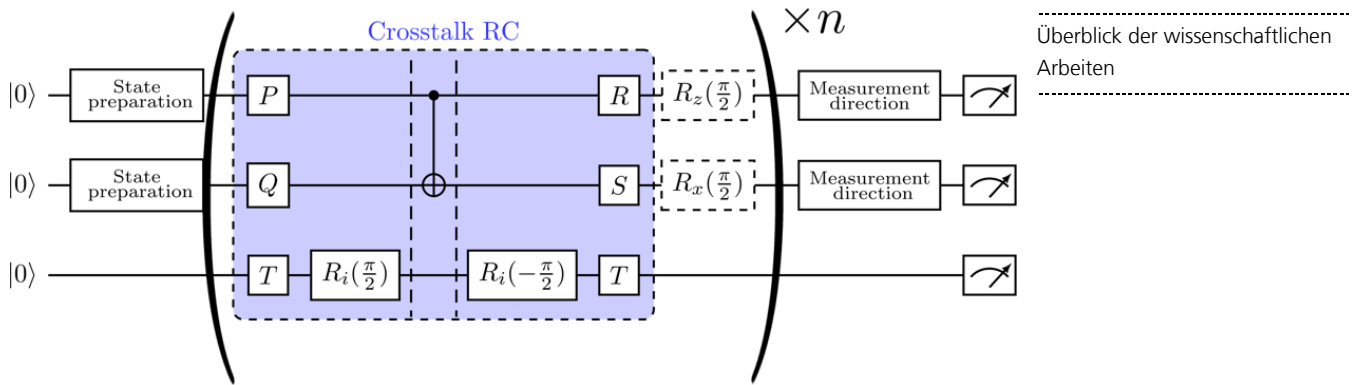


Abbildung 30: Pauli-Noise-Tomographie-Schaltungen. Das blau gestrichelte Feld stellt den Crosstalk-RC-Teil dar. Auf den Qubits des CNOT-Gatters werden 9 verschiedene Anfangszustände vorbereitet, die in bestimmten Richtungen gemessen werden. Für einige dieser Schaltungen ist nach dem Crosstalk-RC (gestricheltes weißes Feld) ein zusätzliches $\pi/2$ Rz-Gatter erforderlich. Die Parameter des Rauschkanals können für mehr Genauigkeit verstärkt werden, indem das CNOT-Gatter (mit dem Crosstalk-RC) n -mal angewendet wird. Zur Charakterisierung des Rauschverhaltens auf den benachbarten Qubits sind keine zusätzlichen Schaltungen notwendig, da das Rauschverhalten ungebaised ist.

3.5.2 Evaluation der maximalen Systemgröße mittels Durchführung der Simulation auf dem Quantencomputer

Der Meilenstein »Evaluation der maximalen Systemgröße mittels Durchführung der Simulation auf dem Quantencomputer« wurde erfolgreich erfüllt. Durch die zuvor beschriebenen Methoden, einschließlich der Implementierung des BCS-Modells auf IBM-Quantencomputern mit dem Trotter-Algorithmus und der verbesserten Neukompilierungstechnik, konnte die Anzahl der benötigten CNOT-Gatter erheblich reduziert werden.

Durch die Kombination dieser Methoden wurde die maximale Systemgröße evaluiert, indem die Simulation auf dem Falcon-Prozessor durchgeführt und die Qualität der Simulation unter dem Einfluss hardware-spezifischer Fehler untersucht wurde. Der Fehler-Schwellwert für die Simulation konnte ermittelt werden, was zur Erfüllung des Meilensteins führte.

Die Ergebnisse dieser Arbeiten haben direkte Implikationen für AP6, insbesondere für den Meilenstein 6.4, der den Vergleich der Leistungsfähigkeit von Algorithmen auf verschiedenen Backends und Hardware-Architekturen umfasst. Die Leistungsfähigkeit von Algorithmen wird maßgeblich durch die bei der Berechnung entstandenen Fehler beeinflusst, die hauptsächlich auf die Zwei-Qubit-Gatter zurückzuführen sind. Besonders die Sterntopologie der diamantbasierten Architektur erweist sich als vorteilhaft, da sie im Vergleich zur quasi-eindimensionalen Topologie der IBM-Ehningen Architektur weniger SWAP-Gatter erfordert. Dies reduziert die Anzahl der Zwei-Qubit-Gatter und damit die Fehlerquote erheblich.

Der Vergleich der NV-basierten und Transmon-basierten Architekturen für das Molekül CH_2 zeigte, dass die kleineren Gatterfehler bei IBM Ehningen zu genaueren Ergebnissen führen, obwohl die Topologie bei kleinen Molekülen eine geringere Rolle spielt. Diese Erkenntnisse unterstützen die Optimierung und Bewertung der Algorithmen in verschiedenen Architekturen und tragen somit zur Erreichung der Ziele in AP6 bei.

3.5.3 Optimierung der Gatter- sowie Initialisierungs- Auslesegüte

A) Methode der Rauschschätzschaltung (Noise Estimation Circuit, NEC)

Die Basisgatter der IBM Q Systeme bestehen aus drei Einzel-Qubit-Gattern: dem X-Gatter, dem SX-Gatter und dem parametrisierten $R_z(\theta)$ -Gatter, sowie einem Zwei-Qubit-Verschränkungsgatter: dem CNOT-Gatter. Diese Gatteroperation haben große Fehler, welche einen großen Einfluss auf das Ergebnis haben können. Fehler auf CNOT-Gattern stellen die hauptsächliche Rauschquelle dar. Sie sind 10-100-mal größer als Fehler von Einzel-Qubit-Gattern. Daher wird im Folgenden angenommen, dass die einzige Fehlerquelle von CNOT-Gattern herrührt. Um die Auswirkungen von Rauschen abzumildern, wurden verschiedene Fehlerminderungsprotokolle (Error Mitigation, EM) vorgeschlagen.

Jedes Fehlerminderungsprotokoll basiert auf einem speziellen Rauschmodell, welches normalerweise eine Vereinfachung des real auftretenden Rauschens auf Quantengeräten ist. Zum Beispiel wird oft angenommen, dass Rauschen inkohärent ist (Pauli-Rauschen). Jedoch kann kohärentes Rauschen durch unperfekte Kalibrierung von Pulsen auf den IBM Q Systemen entstehen. Glücklicherweise existiert eine Methode namens Randomized Compiling (RC), auch als Pauli Twirling bekannt (siehe Abb. 31), die entwickelt wurde, um jede kohärente Fehlerquelle in eine inkohärente umzuwandeln.

Diese Verfahren wurden auf die Untersuchung des BCS-Modells angewendet, jedoch wurde festgestellt, dass eine Erweiterung dieser Methode benötigt wurde, um Crosstalk-Fehler zu behandeln (siehe Abb. 32), die als Crosstalk RC bezeichnet wurde. Crosstalk-Fehler sind nicht-lokale Fehler, welche benachbarte Qubits während der Anwendung eines CNOT-Gatters beeinflussen. Es stellt sich heraus, dass Crosstalk RC jede Rauschquelle auf benachbarten Qubits in ein unvoreingenommenes inkohärentes Rauschen ohne Vorzugsrichtung umwandelt, welches als Depolarisationsrauschen bezeichnet wird.

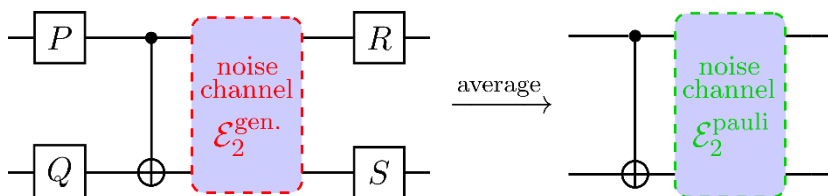


Abbildung 31: Veranschaulichung des verwendeten RC-Protokolls. P, Q, R und S-Gatter sind zufällige Pauli-Gatter, sodass ihre Gesamtwirkung in Verbindung mit dem CNOT-Gatter immer noch logisch äquivalent zu einem CNOT-Gatter ist. Ihre Wirkung besteht darin, den allgemeinen Rauschkanal, der mit dem CNOT-Gatter assoziiert ist, nach der Mittelwertbildung über verschiedene Realisierungen in einen inkohärenten Pauli-Rauschkanal zu verwandeln.

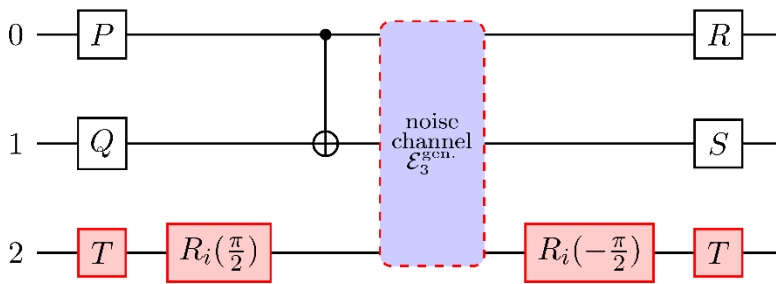


Abbildung 32: Veranschaulichung des Crosstalk-RC-Protokolls. Der Rauschkanal berücksichtigt Crosstalk, welcher benachbarte Qubits beeinflusst. P, Q, R, S-Gatter haben denselben Effekt wie in Abb. 31. Die roten Gatter stellen die Erweiterung dar, um Crosstalk-Rauschen zu bewältigen. T-Gatter sind zufällige Pauli-Gatter und $\pi/2$ -Drehgatter werden zufällig unter den drei verschiedenen Richtungen x, y und z ausgewählt.

Um als Nächstes die Auswirkungen von inkohärentem Rauschen zu reduzieren, wurde ein EM-Protokoll namens Rauschschätzungsschaltungen (Noise Estimation Circuits, NEC) getestet. Diese NEC werden aus der ursprünglichen Trotter-BCS-Schaltung erstellt, indem alle Einzel-Qubit-Gatter entfernt werden. Sie haben die gleiche Rauschintensität wie die ursprüngliche Schaltung, weil die Struktur der CNOT-Gatter erhalten bleibt, aber sie sind logisch äquivalent zum Identitätsoperator, was sie leicht mit dem rauschfreien Ergebnis vergleichbar macht. Daher werden sie verwendet, um die Menge an Rauscheintrag in der ursprünglichen Schaltung zu schätzen, d.h. die Güte der Schaltung. Das Ergebnis ist dann der Quotient des Outputs der Trotter-Schaltung (unter Verwendung von RC) durch die Güte der Schaltung (d.h. der NEC-Output unter Verwendung von RC). Ergebnisse für verschiedene Observablen werden in Abbildung 33 gezeigt. Eine detailliertere Version dieser Ergebnisse wird in [18] diskutiert.

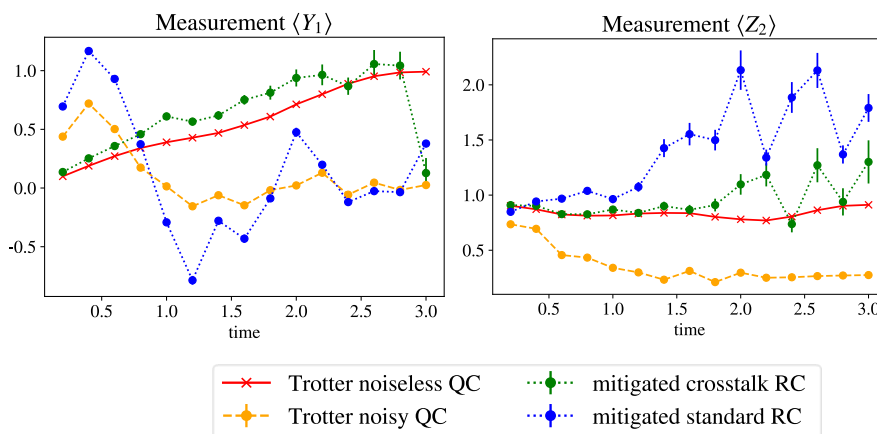


Abbildung 33: Entwicklung einiger Erwartungswerte unter dem BCS Trotter-Einheitsoperator. Das linke (bzw. rechte) Panel misst Qubit 1 (bzw. Qubit 2) in der y-Richtung (bzw. z-Richtung). Rote Kurven entsprechen dem rauschfreien Ergebnis auf einem idealen QC. Die orangefarbenen Kurven zeigen die verrauschten Ergebnisse ohne angewandtes EM. Die blauen (bzw. grünen) Kurven stellen die Ergebnisse mit der EM-Methode unter Verwendung von (bzw. mit Crosstalk) RC-Schemata dar.

¹⁸ «Mitigating crosstalk errors by randomized compiling: Simulation of the BCS model on a superconducting quantum computer », H. Perrin and al.

Die hier verwendete Methode ist exakt, wenn angenommen wird, dass das Pauli (inkohärente) Rauschen des CNOT-Gatters ungebiased ist (d. h. in alle Richtungen gleich, auch als entpolarisierend bekannt) und global (alle Qubits der Simulation werden auf die gleiche Weise beeinflusst, unabhängig davon wo das CNOT im Quantenschaltkreis angewendet wird). Ein solches Rauschen wird als globales entpolarisierendes Rauschen bezeichnet. Diese Annahmen vereinfachen jedoch die Komplexität des Rauschens auf den IBM Q Systemen. Eine genauere Beschreibung des Rauschens würde auf einem quasi-lokalen Fehlerkanal beruhen, bei dem nur die Qubits des CNOT-Gatters und seine benachbarten Qubits betroffen sind. Wenn ein solches quasi-lokales entpolarisierendes Rauschen angenommen wird, ist die NEC-Minderung nicht mehr exakt, verbessert aber dennoch das Ergebnis. Zudem wird angenommen, dass der Rauschkanal ungebiased und inkohärent ist, während RC nur inkohärentes Rauschen adressiert. Das Ergebnis ist dann sehr empfindlich gegenüber jeglichen Abweichungen zwischen der von NEC geschätzten Güte und der tatsächlichen Güte der Trotter-Schaltungen.

B) Magic State Distillation

In der zweiten Phase des Projekts wurde vorgeschlagen, andere EM-Protokolle zu untersuchen, die für allgemeine, inkohärente Fehlerkanäle gelten. Die untersuchte Technik, kann als Destillation von magischen Zuständen bezeichnet wird. Diese Methode beinhaltet das Erstellen mehrerer Kopien der zu verbessernden Quantenschaltkreise und das Mischen derselben, bedingt durch den Zustand eines Ancilla-Qubits, (siehe Abb. 34). Diese Operation wird durch den Derangement-Operator implementiert. Er ermöglicht die Umwandlung des ursprünglichen Tensorprodukts zwischen den Kopien in ein Produkt von Matrizen. Die Größe $\text{Tr}(\rho^n)$, wobei n die Anzahl der Kopien ist, kann dann zusammen mit der Größe $\text{Tr}(\rho^n \cdot O)$ ausgewertet werden, wobei O eine beobachtbare Größe ist, die nach dem Derangement-Operator mittels des Hadamard-Tests gemessen werden kann (siehe Abb. 34). Berechnungen zeigen, dass der Quotient $\text{Tr}(\rho^n \cdot O) / \text{Tr}(\rho^n)$ die inkohärenten Fehler, die während der Ausführung der Kopien aufgetreten sind, reduziert. Es ist anzumerken, dass diese Methode Fehler exponentiell unterdrückt, wenn gleichzeitig die Anzahl der Kopien erhöht wird.

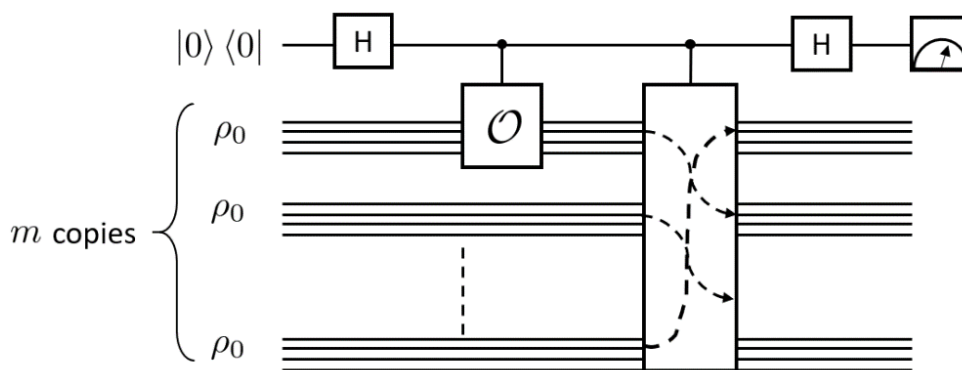


Abbildung 34: Gezeigt wird in dieser Abbildung das Protokoll zur Destillation magischer Zustände. m Kopien der ursprünglichen Schaltung ρ_0 werden initialisiert. Eine beobachtbare Größe O wird unter Verwendung der Hadamard-Testtechnik gemessen. Der Derangement-Operator wird anschließend implementiert, bedingt durch den Zustand des Hilfsqubits.

Die Anwendung des Derangement-Operators benötigt ein Hilfs-Qubit, das mit den Kopien verbunden ist. Die quasi-lineare Topologie der IBM Q Systeme macht diese Operationen in Bezug auf CNOT-Gates ressourcen-intensiv. Im Gegensatz dazu können bei der NV-basierten Variante die sternförmige Konnektivität genutzt werden, um eine solche Methode zu implementieren. Das zentrale Spin kann als das Hilfs-Qubit verwendet werden, während die Daten-Qubits der Kopien in den umliegenden ^{13}C Kernspins gespeichert werden. Daher ist zu erwarten, dass dieses EM-Schema bei NV-basierten QC sehr effizient ist.

Für eine lineare Kopplungstopologie wurden klassische Simulationen mit einem biased kohärenten Rauschkanal auf CNOT-Gates durchgeführt. Nach RC kann das Rauschen als ein biased inkohärenter Rauschkanal beschrieben werden. Abbildung 35 zeigt die Leistung des Protokolls zur Destillation magischer Zustände unter Verwendung des Derangement-Operators für zufällige 2-Qubit-Schaltungen. Das Hadamard-Label steht für das Ergebnis ohne EM. Das EM-Label zeigt die beste Verbesserung an, die mit diesem EM-Protokoll erzielt werden kann. Je höher die Anzahl der Kopien, desto genauer das Ergebnis. Diese Methode beruht jedoch auf der Annahme, dass der Derangement-Operator perfekt ohne Rauschen angewendet werden kann. Wenn diese Annahme gelockert wird, ergeben sich die über den Labels 2, 3, 4 und 5 Kopien gezeigten Ergebnisse. Die Anzahl der CNOT-Gates im Derangement-Operator steigt mit der Anzahl der Kopien. Irgendwann (rund um 3/4 Kopien für ein System von 2 Qubits) führt der Derangement-Operator mehr Rauschen ein, als er korrigieren kann, und die Ergebnisse werden nicht weiter verbessert.

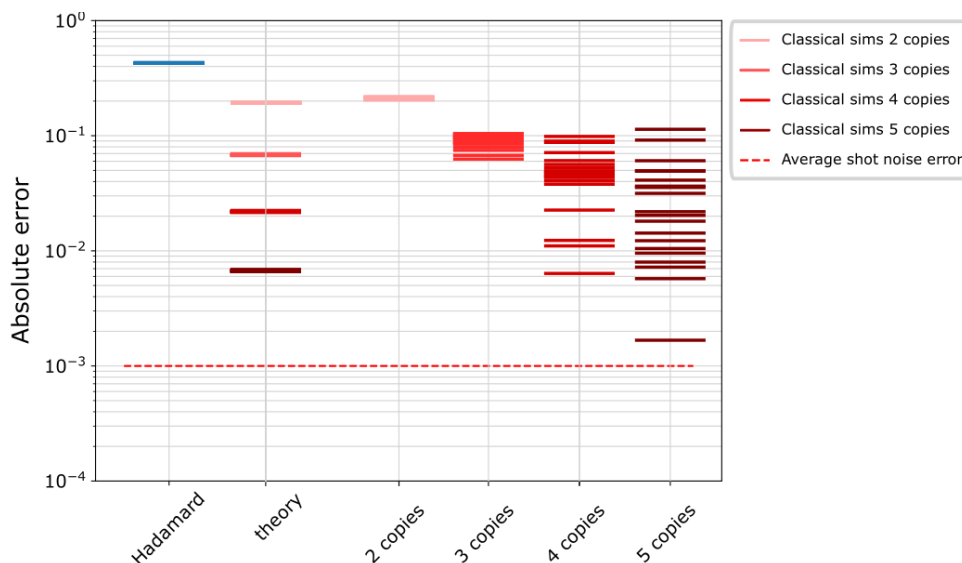


Abbildung 35: Die Abbildung zeigt die Performances (hier in absoluter Fehler gemessen) der Methode der Destillation magischer Zustände unter Verwendung des Derangement-Operators im Fall verschiedener zufälliger 2-Qubit-Schaltungen. Klassische Simulationen werden mit einem zufälligen kohärenten Rauschkanal auf jedem CNOT-Gate durchgeführt. Das Hadamard-Ergebnis ist das Ergebnis ohne EM. Die Ergebnisse werden erzielt, wenn angenommen wird, dass kein Rauschen auf dem Derangement-Operator für verschiedene Anzahlen von Kopien des ursprünglichen Systems vorhanden ist. Die Labels 2, 3, 4 und 5 Kopien nehmen Rauschen auf dem Derangement-Operator an.

Um die Methode zu verbessern, kann das Rauschen auf dem Derangement-Operator reduziert werden. Dafür wird ein EM-Protokoll, genannt Zero-Noise Extrapolation (ZNE), angewendet. Dieses besteht darin, die Rauschstärke auf jedem CNOT-Gatter künstlich zu erhöhen und dann das Ergebnis auf den Fall ohne Rauschen zu extrapolieren.

Dieses EM-Verfahren wird auf den Fall von zufälligen Drei- und Vier-Qubit-Schaltungen angewendet (siehe jeweils linkes und rechtes Panel von Abb. 36). Bei zwei Kopien, zusammen mit dem Ancilla-Qubit, besteht die gesamte Schaltung aus jeweils 7 und 9 Qubits. Eine genaue Formel für die ZNE auf dem Derangement-Operator kann daraus abgeleitet werden, und klassische Simulationen zeigen im Vergleich zu nicht reduzierten Ergebnissen eine erhebliche Verbesserung (siehe Abb. 36).

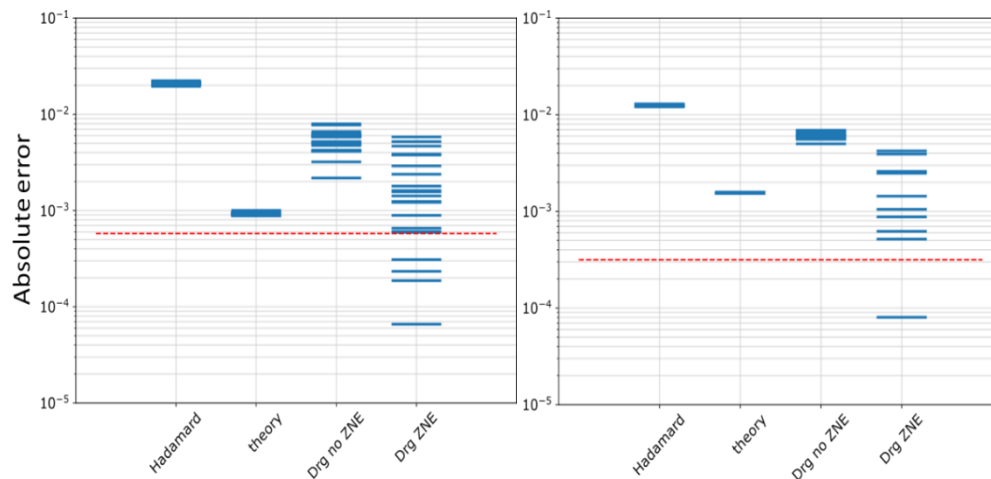


Abbildung 36: Die Abbildungen zeigen die Performances (hier in absoluter Fehler gemessen) der Methode der Magischen Zustandsdestillation unter Verwendung des Derangement-Operators mit 2 Kopien. Es wurde angestrebt, das Ergebnis von zufälligen Drei- (links) oder Vier- (rechts) Qubit-Schaltungen mit 40 CNOT-Gattern zu verbessern. Klassische Simulationen wurden mit einem zufälligen kohärenten Rauschkanal an jedem CNOT-Gatter durchgeführt. Das Hadamard-Ergebnis ist das rohe Ergebnis ohne EM. Die theoretischen Ergebnisse wurden erzielt, in dem angenommen wurde, dass durch die Anwendung des Derangements kein Rauschen auftritt. Zusätzlich wurde der Rauscheintrag auf den CNOT-Gattern des Derangement-Operators angenommen die Ergebnisse sind mit und ohne das ZNE-Schema dargestellt.

Die Ergebnisse zeigen, dass die Verwendung der Methode eine große Menge an Qubit-Ressourcen und Daten benötigt, welche gesammelt werden müssen. Erste Ergebnisse zeigen, dass die gezeigte Instabilität der IBM Q Systeme eine entscheidende Rolle für die Genauigkeit der Methode spielt und weiter verbessert werden muss.

C) Stochastic depolarising channel (SDC)

Das zuletzt untersuchte EM-Protokoll besteht darin, das Rauschverhalten der CNOT-Gatter in ein depolarisierendes Rauschverhalten umzuwandeln, um anschließend das NEC EM-Protokoll mit höherer Genauigkeit anzuwenden. Dafür wird die Tomographie des CNOT-Gatters durchgeführt, um die genaue Struktur seines Pauli-Rauschkanals zu kennen (siehe 4.5.1.C). Anschließend werden stochastische Pauli-Gates angewendet, um den voreingenommenen Kanal in einen ohne Bias zu korrigieren (siehe Abb. 37).

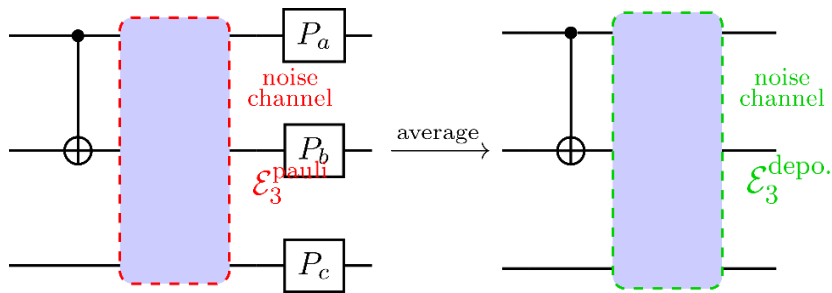
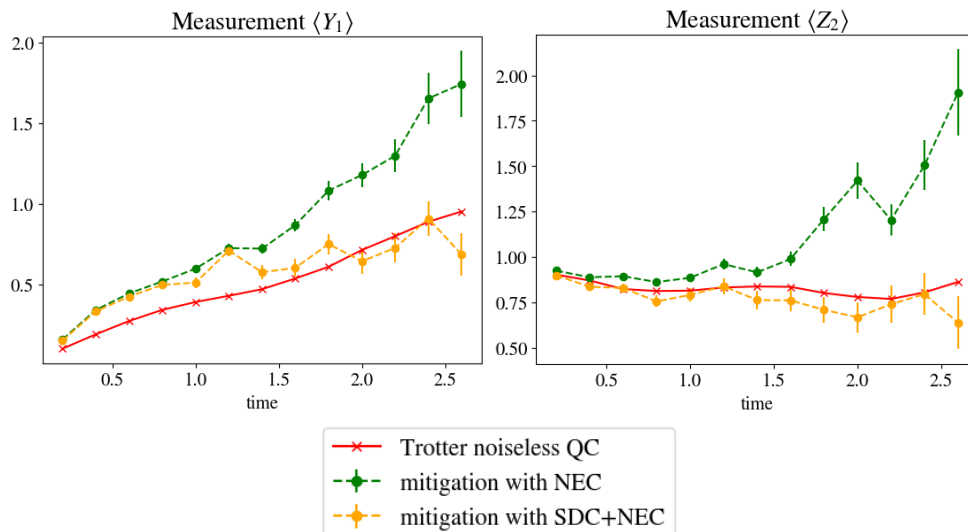


Abbildung 37: P_a , P_b und P_c sind Pauli-Gatter, welche aus einer Wahrscheinlichkeitsverteilung gezogen werden. Diese Verteilung ist vom ursprünglichen Pauli-Rauschkanal abhängig. Nachdem man über verschiedene Realisierungen gemittelt hat, kann man den Rauschkanal jedes CNOT-Gatters (Crosstalk-RC-Gatter werden nicht gezeigt) als einen entpolarisierenden Rauschkanal darstellen.

Um das Pauli-Rauschverhalten zu entzerren, werden nach den CNOT-Gattern zufällige Pauli-Gates angewendet, die aus einer durch die vorherige Tomographie bestimmten Wahrscheinlichkeitsverteilung gezogen werden. Die Parameter des resultierenden quasi-lokalen depolarisierenden Kanals sind vollständig kontrollierbar. Um einen depolarisierenden Rauschkanal mit niedriger Fehlerquote zu erzielen, muss in der Regel mit Quasi-Wahrscheinlichkeitsverteilungen für Pauli-Gatter umgegangen werden (d.h. negative Wahrscheinlichkeiten). Um solch einen Prozess zu simulieren, ist es zwar möglich, die Quasi-Wahrscheinlichkeiten in reelle Wahrscheinlichkeiten umzuwandeln, dies erfordert jedoch das Endergebnis mit einem Faktor zu multiplizieren, der größer als eins ist und exponentiell mit der Anzahl der CNOT-Gatter im Schaltkreis skaliert. Dies impliziert ein größeres Stichprobenrauschen in den Ergebnissen. Darüber hinaus ist dieser Faktor, und damit das Stichprobenrauschen, umso größer, je niedriger die Parameter des depolarisierenden Rauschens sind. Im Gegensatz zu dieser EM-Methode ist das Stichprobenrauschen, das aus dem NEC-Protokoll resultiert, geringer, wenn die Fehlerquote kleiner ist. Da beide Schemata verwendet werden, werden die depolarisierenden Parameter als diejenigen gewählt, die das gesamte Stichprobenrauschen minimieren.

Dank dieser neuen Methode kann der Rauschkanal jedes CNOT-Gates als quasi-lokaler depolarisierender Rauschkanal beschrieben werden. Die verrauschten Ergebnisse des Schaltkreises können mit dem NEC-Schema gemildert werden. In diesem Fall kann, da die Parameter des depolarisierenden Kanals bekannt sind, der Output des NEC effizient klassisch berechnet werden. Daher besteht keine Notwendigkeit, zusätzliche Schaltkreise auf IBM QC laufen zu lassen.

Diese neue EM-Methode wird auf die BCS-Schaltkreise angewendet und mit der früheren Methode der ersten Phase verglichen. Abb. 38 ist eine klassische Simulation mit realistischen Rauschparametern. Es wird Rauschen auf 2-Qubit-Gates sowie auf einzelnen Qubit-Gates berücksichtigt. Mit diesen klassischen Simulationen kann das Ergebnis des Quantencomputers aus dem vorhergehenden Abschnitt qualitativ reproduziert werden, indem Rauschen auf einzelne Qubit-Gates hinzugefügt wird. Die grünen Kurven (Methode der Fehler-Mitigation) weisen Abweichungen von der rauschfreien Kurve auf. Es wird jedoch beobachtet, dass die neue SDC-Methode zu wesentlich zuverlässigeren Ergebnissen führt, bei jedoch größerer Anzahl an Trotter-Schritten.



Überblick der wissenschaftlichen
Arbeiten

Abbildung 38: Klassische Simulation mit realistischen Rauschparametern für Zwei-Qubit-Gates sowie Einzel-Qubit-Gates. Die rote Kurve ist das Ergebnis ohne Rauschen. Die orangefarbenen Kurven sind die mitigierte Ergebnisse, die mit der in Abschnitt 3.5.3.C beschriebenen Methode erhalten wurden. Sie werden mit der in Abschnitt 3.5.3.A beschriebenen EM-Methode (grüne Kurven) verglichen.

3.6 Applikation

3.6.1 Weitere Untersuchung und Optimierung der Teilroutinen und Algorithmen für quantenmechanische Berechnungen an NISQ-Systemen

Im ersten Projektteil QC-4-BW wurden etliche Teilroutinen der quantenchemischen Berechnungen optimiert. Dazu gehört die Wahl von Mappern zwischen Repräsentation der Moleküle als Hamilton-Operator in zweiter Quantisierung und Qubit-Operatoren, die Erstellung eines geeigneten Ansatzes für den Schaltkreis, der die Wellenfunktion im VQE-Algorithmus approximiert, sowie die Entwicklung mehrerer AdaptVQE-Varianten. Details hierzu können im Abschlussbericht des ersten Projektteils nachgelesen werden.

Die erarbeiteten Erkenntnisse und entwickelten Algorithmen konnten die Ergebnisse quantenchemischer Berechnungen bereits signifikant verbessern. Im zweiten Projektteil QC4BW II liegt der Fokus bei der Optimierung der Teilroutinen auf folgenden Bereichen:

- A)** Fehlermitigation für VQE
- B)** AdaptVQE-Algorithmus mit Fehlermitigation
- C)** Warmstart für EfficientSU2-Ansatz
- D)** Implementierung des Variational Hamiltonian Ansatzes

Die Verbesserungen, die in diesen Bereichen erzielt wurden, werden in den nächsten Abschnitten erläutert.

A) Fehlermitigation für VQE

Für die quantenchemischen Berechnungen auf Quantencomputern wird die bereits etablierte Methode »Variational Quantum Eigensolver« (VQE), die im Abschlussbericht zum Teil I des Projekts vorgestellt wurde, verwendet. Bei der Ausführung von VQE-Berechnungen auf modernen Quantencomputern entstehen Fehler. Die Ursachen dieser Fehler können dabei vielfältig sein; sie reichen von ungenauer Kalibration von Quantengattern bis schlechte Qubit-Eigenschaften. Die bei den Berechnungen entstandenen Fehler können teilweise mithilfe von Fehlermitigationmethoden korrigiert

werden. Im Softwarepaket qc_on_qc, das im Zuge des ersten Teils des Projekts entstanden ist, wurden zwei dieser Mitigationismethoden implementiert, die Auslesefehlermitigation und Zero-Noise Extrapolation (ZNE).

Bei Arbeiten der zweiten Phase des Projekts, wurden Wege identifiziert, wie die oben genannte Implementierung von Fehlermitigationismethoden hinsichtlich der Genauigkeit und der Geschwindigkeit optimiert werden kann. Diese Optimierung wurden bereits in entsprechenden Python Klassen implementiert. Im Folgenden werden die Verbesserungen kurz erläutert:

- (1) Bessere Genauigkeit wurde durch die Verbesserung der ZNE-Implementierung erreicht, sodass die ZNE nun korrekt ausgeführt wird. Dazu wurde ein unnötiger Transpilationsschritt entfernt.
- (2) Eine verbesserte Ausführungsgeschwindigkeit auf Simulatoren wurde dadurch erreicht, dass die Parallelisierungsmöglichkeiten innerhalb des Softwarepakets Qiskit nun besser ausgenutzt werden. Somit können mehr Einzelschritte parallel ausgeführt werden. Diese Beschleunigung der Berechnung gilt nur für Simulationen auf klassischen Computern. Die Ausführungsgeschwindigkeit auf Quantencomputern bleibt davon unberührt.

B) AdaptVQE-Algorithmus mit Fehlermitigation

Die AdaptVQE Methode erlaubt die Ansätze für die VQE-Rechnung kompakt und dadurch auch die Anzahl der freien Parameter klein zu halten. Dafür wird innerhalb dieser Methode die Wichtigkeit von verschiedenen Möglichkeiten zum Aufbau des Ansatzes miteinander verglichen. Für diesen Vergleich muss ein Gradient berechnet werden.

Im ersten Teil des Projekts wurde eine Python Klasse erstellt, die den AdaptVQE-Algorithmus inklusive der Fehlermitigation implementiert. Bei detaillierter Betrachtung und umfangreichen Tests wurde festgestellt, dass bei der Berechnung der oben genannten Gradienten es einen Fehler bei der Wahl des Anfangszustandes gab, sodass die Methode nicht korrekt ausgeführt wurde und deshalb die Genauigkeit der Methode gering war. Dieser Fehler wurde nun korrigiert, wodurch die Genauigkeit der Ergebnisse verbessert wurde.

C) Warmstart für EfficientSU2-Ansatz

Zur Berechnung von quantenchemischen Systemen mit Quantencomputern wird eine Repräsentation der Wellenfunktion benötigt. Ein parametrisierter Quantenschaltkreis (Ansatz) übernimmt diese Funktion. Im VQE-Algorithmus werden die freien Parameter dieses Ansatzes variiert, bis ein Minimum erreicht wird, welches bei einer guten Wahl des Ansatzes die Grundzustandswellenfunktion des Molekülsystems approximiert¹⁹.

Bei UCC (Unitary Coupled Cluster) besteht die Möglichkeit, den parametrisierten Quantenschaltkreis mit einem Warmstart zu versehen. Dabei werden die Qubits bereits in einen Zustand gebracht, der dem Hartree-Fock-Zustand des Moleküls entspricht²⁰. Diese Methode des Warmstarts ist in den gängigen Quantencomputing-Programmen wie Qiskit bereits implementiert.

Aufgrund der Hardware-Beschränkungen wird jedoch meist ein Hardware-effizienter Ansatz, in Qiskit als EfficientSU2 bezeichnet, verwendet, da dieser kürzere

¹⁹ McArdle, Sam, et al. "Quantum computational chemistry." *Reviews of Modern Physics* 92.1 (2020): 015003.

²⁰ Romero, Jonathan, et al. "Strategies for quantum computing molecular energies using the unitary coupled cluster ansatz." *Quantum Science and Technology* 4.1 (2018): 014008.

Quantenschaltkreise erzeugt. Ein Benchmarking dieser beiden Methoden wurde bereits im ersten Projektteil durchgeführt.

Im Gegensatz zu UCC ist bei EfficientSU2 bisher keine Methode des Warmstarts verfügbar, obwohl der EfficientSU2-Ansatz deutlich häufiger für Berechnungen an aktueller Quantencomputing-Hardware verwendet wird. Diese Lücke wird durch unsere Implementierung eines Hartree-Fock-Warmstarts für EfficientSU2 geschlossen.

Überblick der wissenschaftlichen Arbeiten

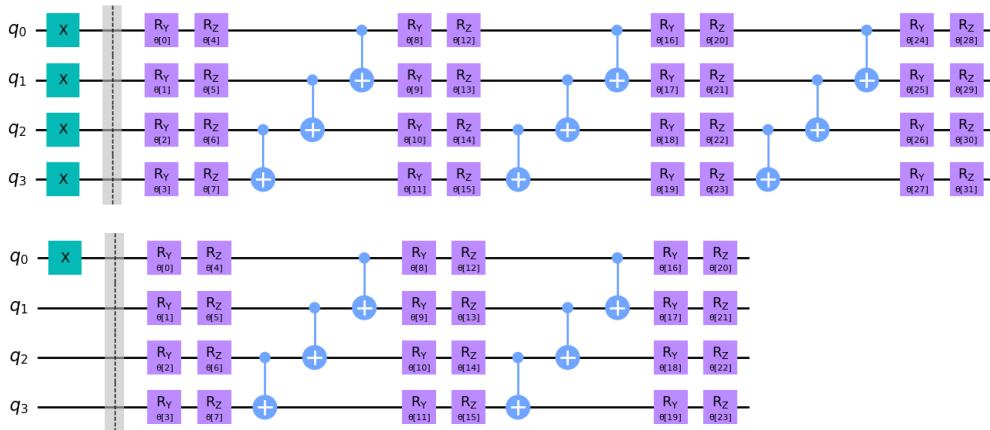


Abbildung 39: Schaltkreis des Warmstart-EfficientSU2-Ansatzes für 4 Qubits mit 3 *entanglement layers* wie er für unsere Berechnungen der Grundzustandsenergie von H_2 verwendet wurde (oben) sowie mit 2 *entanglement layers* (unten). Rechts der gestrichelten Linie ist der normale EfficientSU2-Ansatz aus Qiskit dargestellt, links die X-Gatter, die den Hartree-Fock-Zustand kodieren. Die Kodierung (d.h. welche Qubits mit einem X-Gatter versehen werden) ist abhängig von der Verschränkungsmethode der *entanglement layer* und deren Anzahl (*repetitions*) sowie der Anzahl an Qubits. Mit θ werden die Parameter bezeichnet, die vom Optimierungsalgorithmus variiert werden.

In Abbildung 39 ist der Schaltkreis unseres Ansatzes beispielhaft für ein 4-Qubit-System dargestellt. Der Grundgedanke dieser Implementierung besteht darin, dass ein Hartree-Fock-Anfangszustand erzeugt werden kann, indem der Hartree-Fock-Zustand des UCC-Ansatzes verwendet wird und um den invertierten EfficientSU2-Ansatz erweitert wird. Dadurch wird sichergestellt, dass die Qubitzustände bei einer Initialisierung aller Parameter mit Null genau denen des Hartree-Fock-Zustands entsprechen.

Diese erste Vorgehensweise hat jedoch den Nachteil, dass sich der gesamte Quantenschaltkreis inklusive der Anzahl freier Parameter verdoppelt. Deshalb werden die Parameter des invertierten EfficientSU2-Ansatzes (d.h. die Rotationsschichten *rotation layers*) entfernt. Die CNOT-Gatter der Verschränkungsschichten *entanglement layers* werden effizient klassisch ausgewertet und durch eine entsprechende Anzahl an NOT-Gattern ersetzt. Dies führt zu einem Overhead von maximal n NOT-Gattern gegenüber dem ursprünglichen EfficientSU2-Ansatz, wobei n die Anzahl der Qubits ist, sowie einer Tiefe, die um 1 Einzelqubitgatter erhöht ist. Der Overhead ist damit genauso groß wie der des Hartree-Fock-Anfangszustands von UCC und wie dieser komplett vernachlässigbar.

Während der Overhead vernachlässigbar ist, sind die Vorteile des Warmstart-Ansatzes signifikant. Um dies zu zeigen, wurden drei verschiedene Varianten des EfficientSU2-Ansatzes verglichen:

- A)** coldstart: Standardimplementierung aus Qiskit, wobei alle Parameter mit Null initialisiert werden. Dies entspricht einem Zustand des Moleküls, in dem alle Orbitale unbesetzt sind, also ein maximal positiv geladenes Ion, von dem alle Elektronen entfernt wurden. Theoretisch lässt sich dieser Zustand als Hartree-Fock-Zustand des maximal geladenen Kations interpretieren.
- B)** coldstart random: Standardimplementierung aus Qiskit, wobei alle Parameter mit zufälligen Zahlen zwischen $-\pi$ und π initialisiert werden. Aufgrund des zufälligen Charakters lässt sich keine Aussage über den Initialzustand treffen.
- C)** warmstart: Unsere Implementierung, wobei alle Parameter mit Null initialisiert werden. Dies entspricht dem Hartree-Fock-Zustand des Moleküls.

Zum Benchmarking der verschiedenen Varianten wurden die folgenden Optionen verwendet: Wasserstoffmolekül H_2 im Gleichgewichtsabstand von 0,74279 Å mit Jordan-Wigner-Mapper (d.h. 4 Qubits), EfficientSU2-Ansatz mit 3 *repetitions* (d.h. 4 Rotations- und 3 Verschränkungsschichten) und *reverse linear entanglement*. Als Optimierungsalgorithmus wird L_BFGS_B (Limited-memory Broyden-Fletcher-Goldfarb-Shanno Bound) mit einer maximalen Anzahl an Funktionsevaluierungen von 500 für die Statevector-Simulationen und SBPLX²¹ (basierend auf dem Subplex-Algorithmus, welcher eine Generalisierung des Nelder-Mead-Algorithmus darstellt) mit 500 Funktionsevaluierungen für den QASM-Simulator mit 10 000 Shots verwendet. Für jedes der Szenarien wurden 1000 Berechnungen durchgeführt, um gerade bei den zufälligen Initialisierungswerten eine hinreichend große Aussagekraft zu erhalten.

Die Anzahl der Funktionsevaluierungen für die Optimierungsalgorithmen wurde bewusst auf den geringen Wert von 500 gesetzt, um darzustellen wie schnell die Algorithmen von den jeweiligen Initialzuständen zum Grundzustand konvergieren. Dies ist besonders für Berechnungen auf der Quantencomputing-Hardware relevant sowohl um näher an den erwarteten Laufvorteil von Quantenalgorithmen zu gelangen als auch um die wenigen aktuell vorhandenen Quantencomputer besser ausnutzen zu können.

²¹ T. Rowan, "Functional Stability Analysis of Numerical Algorithms", Ph.D. thesis, Department of Computer Sciences, University of Texas at Austin, 1990.
(Implementierung in NLOpt: Steven G. Johnson, The NLOpt nonlinear-optimization package, <http://github.com/stevengj/nlopt>)

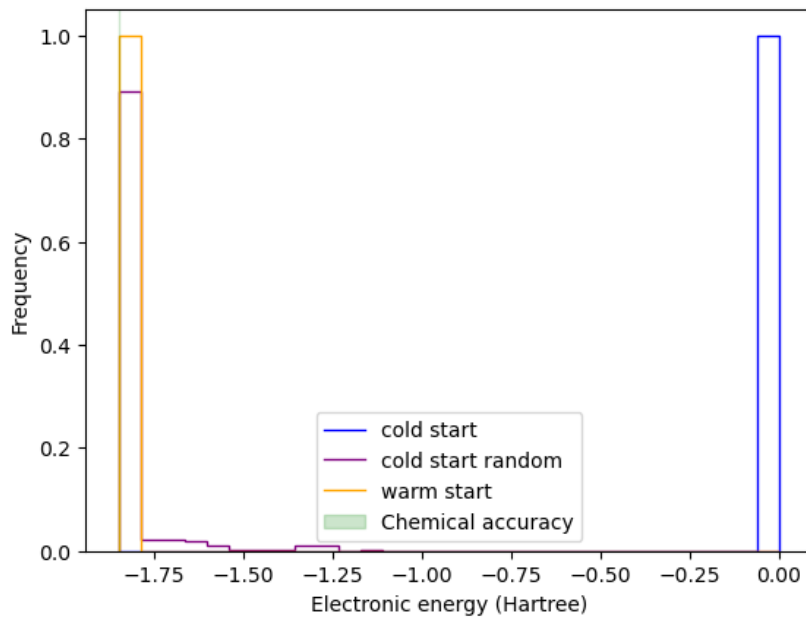


Abbildung 40: Verteilung der Energien von H_2 (ohne Kernabstoßungsterm) nach 500 Iterationen des VQE-Algorithmus mit dem Statevector-Simulator. Kaltstart (cold start), Kaltstart mit zufällig initialisierten Startparametern (cold start random) und Warmstart (warm start) wurden jeweils 1000mal gestartet, um die Verteilung der Energien zu erhalten. Die chemische Genauigkeit (chemical accuracy) von 0,0015 Hartree um den durch Matrixdiagonalisierung ermittelten exakten Wert ist in grün dargestellt.

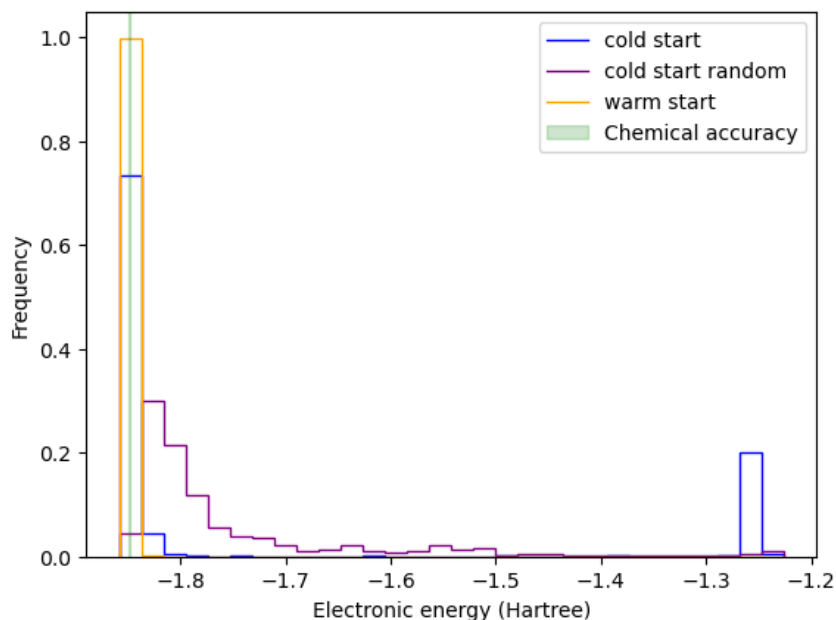


Abbildung 41: Verteilung der Energien von H_2 (ohne Kernabstoßungsterm) nach 500 Iterationen des VQE-Algorithmus mit dem QASM-Simulator mit je 10 000 Shots zur Bestimmung des Erwartungswert. Kaltstart (cold start), Kaltstart mit zufällig initialisierten Startparametern (cold start random) und Warmstart (warm start) wurden jeweils 1000mal gestartet, um die Verteilung der Energien zu erhalten. Die chemische Genauigkeit (chemical accuracy) von 0,0015 Hartree um den durch Matrixdiagonalisierung ermittelten exakten Wert ist in grün dargestellt.

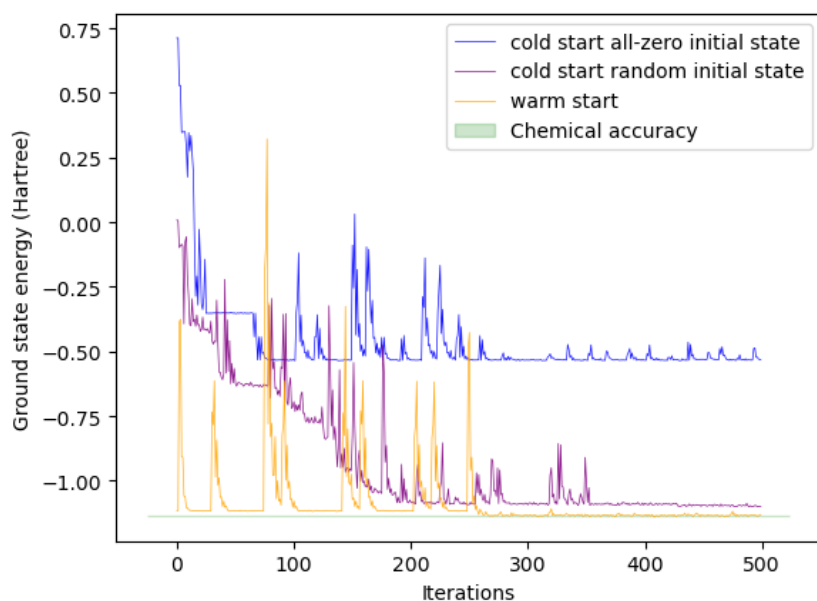


Abbildung 42: Konvergenzverhalten des SBPLX-Optimierungsalgorithmus mit dem QASM-Simulator. Dargestellt sind jeweils ein Optimierungsdurchgang für Kaltstart, Kaltstart mit zufälligen Startparametern sowie Warmstart. Nur beim Warmstart-Ansatz wird der Grundzustand von H_2 innerhalb der vorgegebenen 500 Iterationen erreicht.

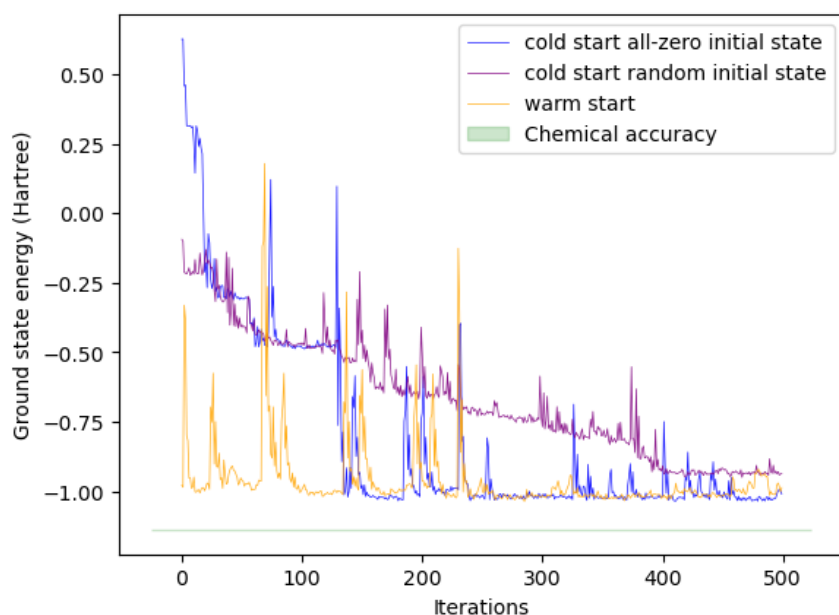


Abbildung 43: Konvergenzverhalten des SBPLX-Optimierungsalgorithmus auf dem Quantencomputer IBMQ Ehningen. Dargestellt sind jeweils ein Optimierungsdurchgang für Kaltstart, Kaltstart mit zufälligen Startparametern sowie Warmstart.

Die Ergebnisse der Statevector-Simulator-Berechnungen sind in Abbildung 40 dargestellt, die des QASM-Simulators in Abbildung 41. Für ein besseres Verständnis der Optimierungsroutine ist das Konvergenzverhalten jeweils einer Beispielberechnung in Abbildung 42 für den QASM-Simulator und in Abbildung 43 für den Quantencomputer IBMQ Ehningen zu sehen.

Bei den Statevector-Simulationen fällt besonders der Kaltstart auf. Hier terminiert der Optimierungsalgorithmus in einem lokalen Minimum, welches über 1,8 Hartree vom Grundzustand, dem globalen Minimum, entfernt ist. L_BFGS_B ist ein lokaler Optimierungsalgorithmus und kann dieses Minimum auch mit einer erhöhten Anzahl an Funktionsevaluierungen nicht verlassen. Insofern kann der Shot-Noise der QASM-Simulationen in einigen Fällen von Vorteil sein, um lokalen Minima zu entkommen, selbst wenn ein lokaler Optimierungsalgorithmus eigentlich dazu nicht fähig ist; davon könnte beispielsweise der lokale noise-resiliente SPSA-Algorithmus profitieren. In unserem Benchmark wurde der globale Optimierungsalgorithmus SBPLX für die QASM-Simulationen verwendet, welcher (auch ohne Shot-Noise) lokalen Minima entkommen kann, was sich darin zeigt, dass die Kaltstart-Simulationen mit einer Wahrscheinlichkeit von etwa 70 % innerhalb der gegebenen 500 Funktionsevaluierungen zum Grundzustand konvergieren.

Der Kaltstart mit zufällig initialisierten Parametern hat (besonders bei Statevector-Simulationen) den Vorteil, dass er lokale Minima vermeiden kann und es damit eine große Wahrscheinlichkeit (im Testsystem etwas über 80 % für die Statevector-Simulationen, aber weniger als 5 % für die QASM-Simulationen) gibt, dass Konvergenz zum Grundzustand innerhalb von 500 Funktionsevaluierungen stattfindet. Für den restlichen Teil lässt sich jedoch nicht vorhersagen, ob der Optimierungsalgorithmus in einem lokalen Minimum feststeckt oder mit einer größeren Anzahl an Funktionsevaluierungen das globale Minimum erreichen würde. Gerade bei einem Übergang zu größeren Molekülen mit entsprechend größerem Parameterraum ist zu erwarten, dass die Wahrscheinlichkeit, in einem lokalen Minimum festzustecken schnell gegen 100 % konvergiert solange keine zusätzlichen Maßnahmen ergriffen werden diesen Minima zu entkommen. Dadurch ist die Methode der zufälligen Initialisierung mit hinreichend vielen Wiederholungen zwar für kleine Systeme wie das Wasserstoffmolekül machbar, für größere Systeme ist diese Methode jedoch nicht skalierbar.

Der von uns implementierte Warmstart hat den Vorteil, bereits an einem Punkt im Parameterraum zu starten, der in der Nähe des Grundzustands ist, was sich auch in der hundertprozentigen Wahrscheinlichkeit, den Grundzustand zu erreichen, widerspiegelt. Anders formuliert: der Hartree-Fock-Zustand (bei dem Elektronenkorrelationen vernachlässigt werden) hat bereits einen großen Überlapp mit dem Grundzustand – sofern die Elektronenkorrelationen nicht zu stark sind. Selbst im Fall sehr starker Korrelationen bestünde gegenüber der Kaltstart-Methode mit Initialparametern von Null und der Kaltstart-Methode mit zufälliger Initialisierung der Vorteil, dass zumindest die richtige Anzahl an Elektronen gegeben ist, wodurch ein Teil des Parameterraums für den Initialzustand ausgeschlossen werden kann.

Das Konvergenzverhalten auf dem Quantencomputer IBMQ Ehningen, das in Abbildung 36 zu sehen ist, bestätigt die Aussagen der QASM-Simulationen. Aufgrund der hohen Fehlerraten der Quantencomputinghardware kann trotz Einsatz von ZNE (Zero Noise Extrapolation^{22,23}) der Grundzustand mit keinem der getesteten Ansätze innerhalb von 500 Iterationen erreicht werden. Der Verlauf des Konvergenzverhaltens lässt vermuten, dass auch eine größere Anzahl an Iterationen dies nicht ändert. Deutlich

²² K. Temme, S. Bravyi, and J. M. Gambetta, "Error Mitigation for Short-Depth Quantum Circuits," *Physical Review Letters*, vol. 119, p. 180509, 11 2017.

²³ Y. Li and S. C. Benjamin, "Efficient Variational Quantum Simulator Incorporating Active Error Minimization," *Physical Review X*, vol. 7, 6 2017.

sichtbar ist, dass die Erwartungswerte des Warmstarts von Beginn an im Bereich des noise-induzierten Plateaus liegen, während der Kaltstart dieses erst nach 150 Iterationen erreicht und der Kaltstart mit zufälligen Startparametern nicht einmal nach 500 Iterationen. Somit sind die mit dem QASM-Simulator erhaltenen Schlussfolgerungen auch auf die Quantencomputinghardware mit ihren deutlich größeren Fehlerraten verallgemeinerbar.

Am Beispielsystem des Wasserstoffmoleküls konnte somit gezeigt werden, dass der von uns implementierte Warmstart das Konvergenzverhalten des EfficientSU2-Algorithmus bei vernachlässigbarem Overhead signifikant verbessert und auch bei anderen Molekülsystemen zu erwarten ist, dass unsere Methode schneller und zuverlässiger konvergiert als die bisher verfügbaren Implementierungen.

D) Implementierung des Variational Hamiltonian Ansatzes

Während der EfficientSU2-Ansatz eine Hardware-effiziente Methode darstellt, eine parametrisierte Wellenfunktion auf Quantencomputern zu implementieren, gibt es etliche Methoden, die vermehrt theoretische Überlegungen in die Gestaltung des Ansatzes einfließen lassen. UCC (Unitary Coupled Cluster) beruft sich dabei auf die Coupled-Cluster-Theorie der Quantenchemie. VHA (Variational Hamiltonian Ansatz) hingegen verwendet Überlegungen aus der Festkörperphysik, um einen Ansatz zu erzeugen, der spezifisch auf dem Hamilton-Operator des (Molekül-)Systems aufbaut. Dazu wird das adiabatische Theorem verwendet, um ein bekanntes System im Grundzustand (naheliegenderweise der Hartree-Fock-Zustand für Molekülsysteme) mit einem Zeitentwicklungsoperator in den Grundzustand des Zielsystems zu überführen.

UCC lässt sich systematisch verbessern, indem weitere Anregungsoperatoren hinzugefügt werden, also Einzel-/Single- und Doppel-/Double-Anregungen (UCCSD) sowie Anregungen höherer Ordnung, welche jedoch schnell zu sehr langen Quantenschaltkreisen führen. Aus diesem Grund verwenden bisherige Anwendungen typischerweise nur UCCSD ohne Triplett- und höhere Anregungen. VHA hingegen lässt sich systematisch verbessern, indem statt einem einzigen Zeitentwicklungsschritt mehrere ausgeführt werden. Die Zeitentwicklung wird somit immer stärker der exakten adiabatischen Evolution angenähert. Für das H₂-Molekül reicht mit dem Statevector-Simulator bereits ein einzelner Zeitentwicklungsschritt zum Erreichen des exakten Grundzustands. Außerdem kann die Verwendung von Trotter-Entwicklungen höherer Ordnung zu weiteren systematischen Verbesserungen führen; im Rahmen dieses Projekts wird ausschließlich die Trotter-Entwicklung erster Ordnung betrachtet.

Der VHA-Algorithmus hat gegenüber UCCSD mehrere Vorteile: die Verwendung des Hamilton-Operators des Systems im Gegensatz zu generischen (d.h. systemagnostischen) Anregungsoperatoren von UCCSD erlaubt es, mehr Vorwissen zum Aufbau des jeweiligen (Molekül-)Systems zu Konstruktion des Schaltkreises einfließen zu lassen. Des Weiteren lässt sich die systematische Verbesserung des Ansatzes leichter skalieren – besonders aufgrund der geringeren Anzahl an freien Parametern für die Optimierungsroutine. Für weitere Details sei auf den Review von Wecker et al.²⁴ verwiesen.

²⁴ Wecker, Dave, Matthew B. Hastings, and Matthias Troyer. "Progress towards practical quantum variational algorithms." *Physical Review A* 92.4 (2015): 042303.

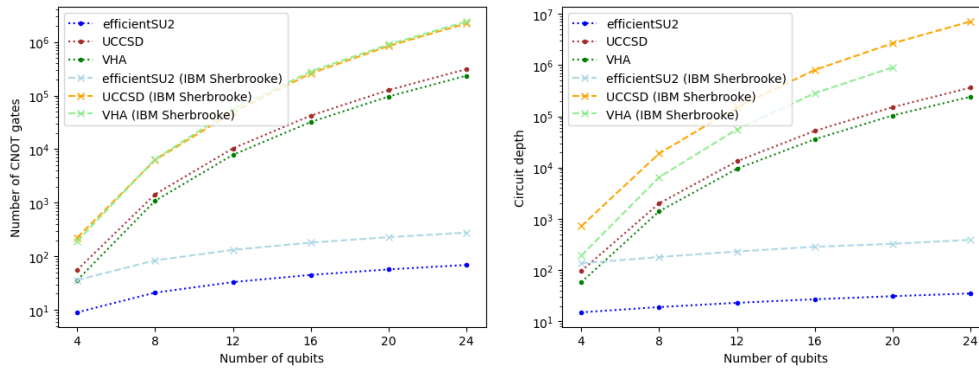


Abbildung 44: Skalierungsverhalten der Anzahl an CNOT-Gattern (links) und Tiefe des Schaltkreises (rechts) für die Ansätze efficientSU2, UCCSD und VHA. Als zugrundeliegendes Testsystem wurde eine Wasserstoffkette mit Jordan-Wigner-Mapper verwendet. Um die beschränkte Konnektivität der supraleitenden Quantencomputer einzubeziehen, werden Anzahl an CNOT-Gattern und Tiefe zusätzlich nach Transpilation für den Quantencomputer IBM Sherbrooke dargestellt.

Aufgrund dieser theoretischen Überlegungen wurde der VHA-Algorithmus implementiert und in einem späteren Schritt selbst-entwickelte Verbesserungen des Algorithmus hinzugefügt. Mit den implementierten Algorithmen lassen sich die verschiedenen Ansätze vergleichen (Benchmarking). Neben theoretischen Aspekten ist besonders bei aktueller Hardware die Anzahl an CNOT-Gattern und die Tiefe der Schaltkreise relevant. Diese sind in Abbildung 44 für die verschiedenen Ansätze dargestellt. Die Anzahl an CNOT-Gattern ist aufgrund der großen 2-Qubit-Gatter-Fehler aktueller Hardware wichtig, die Tiefe der Schaltkreise aufgrund der beschränkten Kohärenzzeit. Auffällig ist, dass VHA bei vergleichbarer Anzahl an CNOT-Gattern eine geringfügig reduzierte Tiefe als UCCSD aufweist, also kompaktere Schaltkreise erzeugt. Beide haben eine große Anzahl nicht-lokaler 2-Qubit-Gatter, welche durch SWAP-Gatter realisiert werden müssen, wodurch ein signifikanter Overhead bei den transpilierten Schaltkreisen entsteht. Dieser Overhead ist bei Ionenfallen-basierten Quantencomputern oder anderen Systemen mit all-to-all-Konnektivität nicht vorhanden. Sowohl VHA als auch UCCSD erzeugen bereits bei kleinen Systemen mit acht Qubits (in diesem Fall Wasserstoffkette mit vier H-Atomen) Schaltkreise, die an die Grenzen aktueller Hardware stoßen. EfficientSU2 hingegen hat eine deutlich größere Hardware-Effizienz, dafür treten bei größeren Systemen in diesem Ansatz andere Probleme besonders bezüglich des stark wachsenden Parameterraums auf, die die variationelle Optimierung enorm erschweren.

UCCSD und VHA basieren beide auf Single-Anregungsoperatoren (bzw. one-body terms in der Nomenklatur der Physiker) und Double-Anregungsoperatoren. Um die Anzahl an 2-Qubit-Gattern zu reduzieren, ist es gängig, nur einen Teil der Operatoren zu verwenden und weitere Operatoren zu vernachlässigen. Im Falle von UCCSD geschieht dies mithilfe von adaptiven Algorithmen wie AdaptVQE, das im Rahmen des Projekts in verschiedenen Ausführungen getestet wurde. Da beim Aufbau des UCCSD-Ansatzes keine wesentlichen Informationen über das Molekülsystem verwendet werden (können), muss die Auswahl der Operatoren iterativ über Versuch-und-Irrtum stattfinden. Der Vorteil von VHA liegt darin, dass ein einzelner statischer Schritt zur Auswahl der Operatoren genügt statt des aufwendigen iterativen Verfahrens. Da die Operatoren direkt mit dem Hamilton-Operator, der das Molekülsystem beschreibt, verbunden sind, ist es möglich, die Auswahl der Operatoren anhand ihrer Größe direkt bei der Konstruktion des Schaltkreises zu treffen. Hierdurch entstehen große Einsparungen in der Laufzeit des Algorithmus gegenüber AdaptVQE. Diese neu entwickelte Version des VHA-Algorithmus, bei der ein Teil der Operatoren anhand ihrer Größe im Hamilton-Operator des Moleküls abgeschnitten und verworfen wird, wird im Folgenden als truncated Variational Hamiltonian Ansatz (tvHA) bezeichnet.

Die Auswahl der Operatoren erfolgt im tvHA-Algorithmus wie folgt: die Operatoren zum Aufbau des Schaltkreises werden aus dem Hamilton-Operator des Molekülsystems extrahiert. Single-Anregungsoperatoren (der Form $c_{ij}a_i^\dagger a_j$) und die der Coulomb-Abstoßung entsprechende Double-Anregungsoperatoren ($c_{ij}a_i^\dagger a_j^\dagger a_i a_j$) werden direkt für die Konstruktion des Schaltkreises verwendet. Die komplexeren Double-Anregungsoperatoren ($c_{ijkl}a_i^\dagger a_j^\dagger a_k a_l$) werden in absteigender Reihenfolge der Vorfaktoren c_{ijkl} sortiert. Von dieser Liste werden die Operatoren mit den größten Vorfaktoren so ausgewählt, dass die Summe der ausgewählten Vorfaktoren ein fester Anteil der Summe aller Vorfaktoren ist. Dieser Anteil wird als Schwellwert (truncation threshold) bezeichnet. Diese Operatoren werden für die Konstruktion des Schaltkreises verwendet, während die restlichen Operatoren vernachlässigt werden.

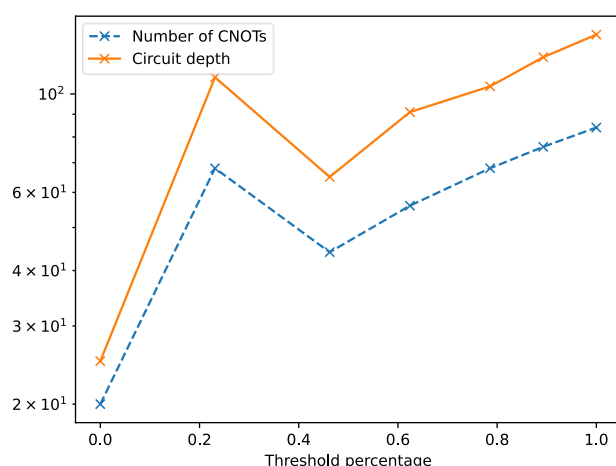


Abbildung 45: Anzahl an CNOT-Gattern und Schaltkreistiefe in Abhängigkeit vom Schwellwert (Truncation Threshold) des tvHA für das CH₂-Molekül mit einem Active Space von 4 Orbitalen/Qubits. Bei einem Schwellwert von 50 % der Operatoren kann die Schaltkreistiefe und Anzahl an CNOT-Gattern gegenüber dem ursprünglichen VHA ohne Schwellwert auf die Hälfte reduziert werden.

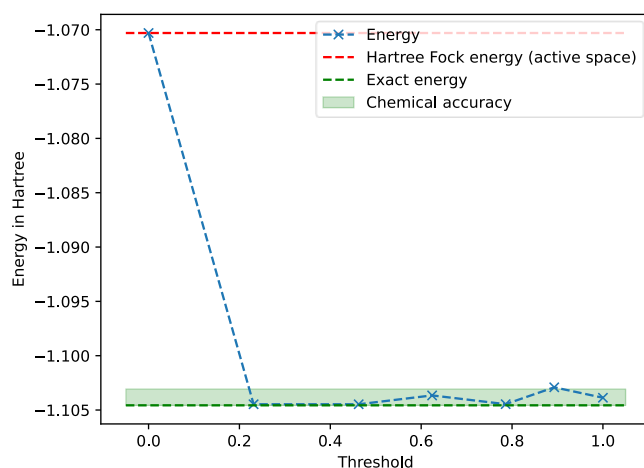


Abbildung 46: Energie des CH₂-Moleküls mit der tvHA-Methode in Abhängigkeit vom Schwellwert (Truncation Threshold) für die Auswahl der verwendeten Operatoren. Bereits bei einem Schwellwert von etwas über 20 % der Operatoren können korrelierte Effekte in CH₂ abgebildet und die chemische Genauigkeit (chemical accuracy) erreicht werden. Bei geringerer Anzahl an Operatoren kann nur die Hartree-Fock-Energie wiedergegeben werden, welche auf klassischer Hardware einfach berechnet werden kann.

In Abbildung 45 ist zu sehen, dass die Anzahl an 2-Qubit-Gattern mittels geeigneter Wahl des Schwellwerts für die Operatoren (Truncation Threshold) auf weniger als die Hälfte reduziert werden kann, während die Genauigkeit unverändert bleibt wie in Abbildung 45 beispielhaft für das CH_2 -Molekül gezeigt ist. Ähnliche Ergebnisse konnten auch bei den Molekülen H_2 , H_4 , LiH und CH (letzteres mit Active Space von sechs Orbitalen) beobachtet werden. Während AdaptVQE für solche Einsparungen in der Anzahl an 2-Qubit-Gattern etliche zeitaufwendige Iterationen benötigt, kann dieser Schritt bei tvHA sehr schnell in einem einzigen vorbereitenden Schritt vor den eigentlichen Berechnungen auf dem Quantencomputer durchgeführt werden. Mit dieser Weiterentwicklung von VHA zu tvHA kann die Größe der Schaltkreise verkleinert werden, sodass bei vergleichbarer Genauigkeit kleinere Schaltkreise als bei UCCSD entstehen. Dadurch sind potenziell größere Molekülsysteme auf NISQ-Computern berechenbar. Jedoch sind selbst mit tvHA die Schaltkreise deutlich größer als die des efficientSU2-Ansatzes wie in Abbildung 46 zu sehen ist. So beträgt beispielsweise bei 8 Qubits die Anzahl an CNOT-Gattern bei efficientSU2 16, während sie bei UCCSD und VHA jeweils über 100 beträgt und bei tvHA abhängig vom jeweiligen Molekül auf unter 50 CNOT-Gatter reduziert werden kann.

Auch wenn die Eigenschaften von UCCSD und VHA für die aktuelle Hardware mit ihren hohen Fehlerraten aufgrund der großen Schaltkreise unvorteilhaft sind und efficientSU2 derzeit die bessere Option darstellt (besonders in seiner verbesserten Warmstart-Version), ist efficientSU2 aufgrund der großen Anzahl an Parametern nicht auf größere Molekülsysteme skalierbar. Für diese Systeme bietet VHA und besonders unsere weiterentwickelte Variante tvHA eine gute Alternative zu UCCSD und ist mit unserer Implementierung verfügbar.

Unsere Implementierungen von VHA, tvHA und Warmstart-EfficientSU2 sind kompatibel mit den Active-Space-Methoden, die wir zur Berechnung größerer Moleküle (siehe 3.6.2) verwenden.

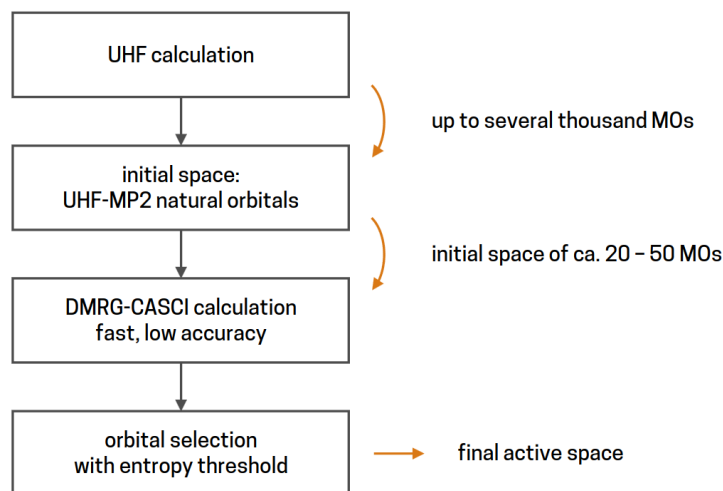
3.6.2 Quantenchemische Berechnungen größerer Moleküle

A) Detaillierte Untersuchung des Active Space des MOF-Systems:

Metallorganische Gerüstverbindungen (MOF) haben sich bei der Kohlenstoffdioxidabscheidung/-speicherung als erfolgreich erwiesen. Ein Vertreter der MOFs, welcher in der Lage ist CO_2 zu binden, ist MOF-74. MOF-74 kann verschiedene monometallische Zentren wie Mn, Co, Ni, Zn oder sogar bimetallische Zentren wie Mn und Co enthalten. Die Feinabstimmung dieser porösen Materialien für eine bessere CO_2 Absorption/Desorption ist Gegenstand laufender Forschungsarbeiten. Eine Möglichkeit, dies zu erreichen, ist die Simulation des Abscheidungsprozesses mit klassischen Computern und Quantencomputern. Quantencomputer können auf große Systeme angewandt werden, indem man sich die in der theoretischen Chemie regelmäßig verwendeten Methoden des vollständigen aktiven Raums (active-space) zunutze macht. Bei diesen Methoden wird der Molekülraum (Orbitale) in aktive und inaktive Regionen unterteilt. Das vollständige CI-Problem wird für die aktiven Orbitale gelöst, während der inaktive Bereich in einer Mean-Field-Methode behandelt wird. Hier verwenden wir den Active Space Finder (ASF), um den *active-space* für mehrere Systeme auszuwählen, darunter MOF-74 mit Co als zentrales Metallion und atomares Kobalt. Aufgrund der begrenzten Anzahl von Qubits, die auf aktuellen Quantencomputern zur Verfügung stehen, wird der Auswahl kleinerer *active-spaces* zusätzliche Aufmerksamkeit geschenkt. Die ausgewählten *active-spaces* werden dann mit verschiedenen Methoden analysiert. Schließlich wird die Spin-Flip-Übergangsenergie unter Verwendung aller ausgewählten *active-spaces* berechnet.

Active-Space-Finder Vorgehen

Der ASF-Arbeitsablauf beginnt mit einer UHF-Berechnung (Unrestricted Hartree-Fock). Das Verfahren des selbstkonsistenten Feldes (self-consistent field, SCF) sollte ordnungsgemäß konvergiert sein. Eine MP2-Berechnung wird auf der konvergierten UHF-Wellenfunktion durchgeführt. Durch Diagonalisierung der unentspannten reduzierten Einkörper-Dichtematrix des MP2 erhält man natürliche Orbitalbesetzungen (Eigenwerte) und Orbitale (Eigenvektoren). Auf der Grundlage der natürlichen Orbitalbesetzungen wird ein anfänglicher *active-spaces* ausgewählt. Der anfängliche *active-space* enthält alle einfach besetzten Orbitale und eine große Anzahl von Orbitalen mit hoher Besetzungsabweichung von Hartree-Fock (natürliche Besetzungen sind gebrochen, während Hartree-Fock-Besetzungen in diesem Zusammenhang 0, 1 oder 2 sind). Für den anfänglichen *active-space* wird eine DMRG-Berechnung (Dichtematrixrenormierungsgruppe) mit niedriger Auflösung durchgeführt. Einzelorbitale Von-Neumann-Entropien werden unter Verwendung der berechneten DMRG-Matrizen für reduzierte Einkörper- und Zweikörperdichte berechnet. Die Entropien werden verwendet, um eine endgültige Auswahl des *active-space* vorzuschlagen.



Dabei wird folgende Terminologie verwendet:

- ursprünglicher *active-space*: Der größere *active-space*, der auf der Grundlage der natürlichen Belegung des MP2 ausgewählt wird. Diese aktive Fläche wird in der DMRG-Berechnung verwendet.
- Endgültiger *active-space*: Der endgültige vorgeschlagene *active-space*, der auf der Grundlage der von DMRG berechneten Einzelorbitalentropien zwischen den anfänglichen aktiven Raumorbitalen ausgewählt wird.

Analyse der ausgewählten *active-spaces*

Neben dem vorgeschlagenen ASF-Aktivraum haben wir mehrere weitere *active-spaces* ausgewählt. Insbesondere die aktiven Orbitale der Größen 3, 4 und 5. Zum Vergleich wird, sofern verfügbar, auch ein von Experten vorgeschlagener *active-space* getestet.

An dieser Stelle ist ein Hinweis angebracht: Der minimale *active-space* für unsere Systeme besteht aus drei aktiven Orbitalen. Denn das hier untersuchte Kobalt hat drei ungepaarte Elektronen, die sich in drei Orbitalen befinden.

Die folgenden Konzepte werden verwendet, um verschiedene *active-spaces* zu bewerten:

Neuberechnung der Entropien zwischen den endgültigen active-space-Orbitalen

Im Allgemeinen wird erwartet, dass alle aktiven Orbitale außer den einfach besetzten eine große Entropie haben (standardmäßig größer als ~0,14). Wenn die Neuberechnung der Entropien die Entropie eines Orbitals im endgültigen *active-space* deutlich verringert, bedeutet dies, dass dem Orbital einer seiner wichtigen Korrelationspartner im endgültigen *active-space* fehlt. Mit anderen Worten, der Korrelationspartner (oder die Korrelationspartner) des Orbitals mit reduzierten Entropien wird während des Auswahlprozesses des endgültigen *active-space* aus dem anfänglichen *active-space* entfernt. Orbitale mit niedrigen Entropien profitieren nicht davon, in den *active-space* aufgenommen zu werden. Diese Orbitale können auch zu Konvergenzproblemen bei der CASSCF-Orbitaloptimierung führen. Da sie nicht mit anderen Orbitalen im *active-space* korrelieren und ziemlich willkürlich in den *active-space* hinein- oder aus ihm herausgedreht werden können.

CASSCF natürliche Orbitale

Für alle Orbitale mit Ausnahme der einfach besetzten Orbitale erwarten wir eine signifikante Abweichung von den Besetzungswerten des mittleren Feldes (0, 2). Ist dies nicht der Fall, stehen diese Orbitale nicht in Wechselwirkung mit anderen aktiven Orbitalen. Einfach ausgedrückt: Es bringt nichts, nicht einfach besetzte Orbitale mit natürlichen CASSCF-Besetzungswerten nahe bei 0 oder 2 in den *active-space* zu setzen.

Vergleich der CASSCF-optimierten Orbitale mit den anfänglichen natürlichen MP2-Orbitalen

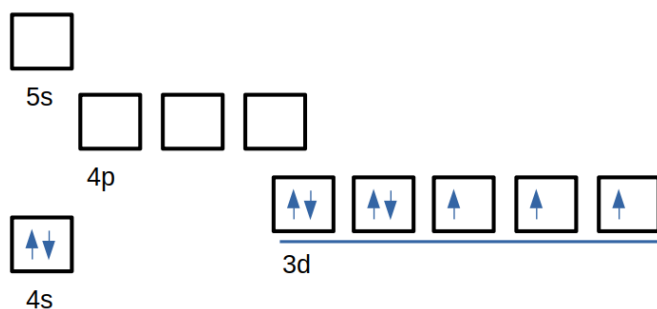
Während der CASSCF-Konvergenz können sich Orbitale signifikant weiterentwickeln oder vollständig aus dem aktiven Raum herausrotieren. Sie können die Funktion `asf.utility.compare_active_spaces` verwenden, um die Übereinstimmung zwischen den anfänglichen und endgültigen CASSCF-Orbitalen zu überprüfen. Diese Funktion gibt einen singulären Wert zurück. Als Faustregel gilt: Wenn der Singulärwert unter 0,7 liegt, hat sich mindestens eines der Molekülorbitale während des CASSCF-Verfahrens erheblich verändert. Das bedeutet, dass CASSCF eine Reihe von aktiven Orbitalen mit mindestens einem anderen Orbital gefunden hat, das einer gleichen oder niedrigeren Energie entspricht. Im Allgemeinen möchten wir, dass die anfänglichen und endgültigen CASSCF-Orbitale konsistent sind. So sollte z. B. ein π -Orbital, das um die Atome 1 und 2 zentriert ist, immer noch ein π -Orbital sein, das um die gleichen Atome zentriert ist.

Die folgenden Systeme werden untersucht:

- Co (Kobaltatom)
- Co^{2+} (Kobaltkation mit 2+ Ladung)
- Monomer Co-MOF (ein monomer-Cluster, der aus einem metallorganischen Gerüst auf Kobaltbasis, bekannt als Co-MOF-74, geschnitten wurde)
- $\text{Co}^{2+} + \text{CO}_2$ (ein Komplex, der durch Wechselwirkung des Kobaltkations mit Kohlendioxid gebildet wird)
- Monomer Co-MOF + CO_2 (ein Komplex, der durch die Wechselwirkung des Monomers Co-MOF mit Kohlendioxid entsteht)

Im Folgenden werden wir die Ergebnisse für das Kobaltatom diskutieren. Aufgrund des größeren Umfangs der Ergebnisse werden die Ergebnisse anderer Systeme in den Anhang verschoben.

Die Elektronenkonfiguration eines Kobaltatoms ist in der nachstehenden Abbildung dargestellt. Das zweifach positive geladene Kobaltion besitzt drei ungepaarte Elektronen, die 3d-Orbitale besetzen (hohe Spinbildung im Grundzustand). Im Falle von Co^{2+} werden zwei Elektronen aus dem 4s-Orbital entfernt.



Co-MOF ist ein Cluster, der ein einzelnes Kobaltatom enthält. Ähnlich wie bei atomarem Kobalt hat Co-MOF 3 ungepaarte Elektronen, die 3d-Orbitale besetzen. Innerhalb des organischen Gerüsts hat es eine Oxidationszahl von +2.

Active-space eines neutralen Kobaltatoms.

Da es sich um ein atomares System handelt, wird zur besseren Verdeutlichung jedes Orbital mit seiner Hauptquantenzahl und seinem Drehimpuls bezeichnet. Die ASF-Berechnung mit den Standardeinstellungen ergibt einen anfänglichen *active-space* mit 9 Elektronen in 11 Orbitalen. In der computergestützten Chemie wird dies üblicherweise als (9, 11) (Anzahl der Elektronen, Anzahl der Orbitale) notiert. Die endgültige Wahl des *active-space* ist (5, 4).

Berechnete Entropien mit Standardeinstellungen:

MO	w()	w(↑)	w(↓)	w(↑↓)	S	sel	orb
9	0.002	0.005	0.003	0.990	0.066		3d
10	0.002	0.005	0.003	0.990	0.066		3d
11	0.050	0.005	0.004	0.941	0.256	a	4s
12	0.001	0.999	0.000	0.000	0.011	a	3d
13	0.001	0.999	0.000	0.000	0.010	a	3d
14	0.001	0.999	0.000	0.000	0.011	a	3d
15	0.979	0.001	0.001	0.019	0.112		4p
16	0.979	0.001	0.001	0.018	0.113		4p
17	0.979	0.002	0.002	0.018	0.115		4p
18	0.994	0.002	0.002	0.002	0.046		4d
19	0.994	0.002	0.002	0.002	0.046		4d

Wie bereits erwähnt, berechnet DMRG die Entropien der einzelnen Orbitale in den anfänglichen *active-space*-Orbitalen. Wenn also der anfängliche *active-space* zu klein ist oder einige der wichtigen Orbitale fehlen, weichen die berechneten Entropien ab. Um die Qualität des von MP2 bereitgestellten anfänglichen *active-space* zu demonstrieren, haben wir den anfänglichen *active-space* manuell erweitert, um 5s und 3p Orbitale einzubeziehen. Die sich daraus ergebenden Entropien sind in der nachstehenden Tabelle aufgeführt.

Entropien berechnet für eine größere Anzahl von Orbitalen:

MO	w()	w(↑)	w(↓)	w(↑↓)	S	sel	orb
6	0.000	0.002	0.000	0.998	0.017		3p
7	0.000	0.002	0.000	0.998	0.017		3p
8	0.000	0.002	0.000	0.998	0.017		3p
9	0.002	0.005	0.004	0.989	0.072		3d
10	0.002	0.005	0.004	0.989	0.072		3d
11	0.049	0.007	0.009	0.934	0.290	a	4s
12	0.001	0.997	0.001	0.001	0.024	a	3d
13	0.001	0.997	0.001	0.001	0.023	a	3d
14	0.001	0.997	0.001	0.001	0.024	a	3d
15	0.977	0.003	0.003	0.017	0.125		4p
16	0.978	0.002	0.002	0.018	0.116		4p
17	0.977	0.003	0.003	0.017	0.124		4p
18	0.992	0.003	0.003	0.002	0.054		4d
19	0.992	0.003	0.003	0.002	0.054		4d
20	0.993	0.005	0.000	0.001	0.047		5s

Eine Vergrößerung des anfänglichen *active-space* erhöht die Entropien nur geringfügig, aber die Auswahl des endgültigen *active-space* bleibt konsistent. Der endgültige *active-space* umfasst die drei einfach besetzten 3d-Orbitale und die vollständig besetzten 4s-Orbitale (siehe Abbildung 47).

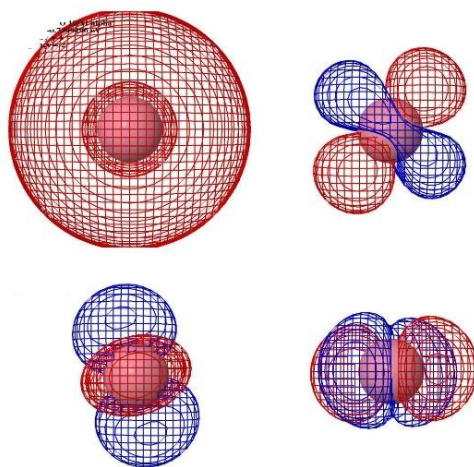


Abbildung 47: Orbitale im endgültigen *active-space* von Co. Geordnet von links nach rechts (11-14).

Vergleich verschiedener möglicher *active-space* -Selektionen

Aufgrund der begrenzten Anzahl verfügbarer Qubits auf Quantencomputern wurden mehrere Auswahlmöglichkeiten unterschiedlicher Größe entwickelt. Selektionen mit 3, 4, 5 und einer empfohlenen Anzahl von aktiven Orbitalen werden vorgeschlagen und auf der Grundlage der oben genannten Konzepte analysiert.

Entropien berechnet für 3 Orbitalen Auswahl:

Überblick der wissenschaftlichen
Arbeiten

MO	w()	w(↑)	w(↓)	w(↑↓)	S	sel
12	0.000	1.000	0.000	0.000	0.000	a
13	0.000	1.000	0.000	0.000	0.000	a
14	0.000	1.000	0.000	0.000	0.000	a

CASSCF natürliche Besetzung: [1.0, 1.0, 1.0]

Kleinster Singulärwert: 0,999

Entropien berechnet für 4 Orbitalauswahlen:

MO	w()	w(↑)	w(↓)	w(↑↓)	S	sel
11	0.000	0.000	0.000	1.000	0.000	
12	0.000	1.000	0.000	0.000	0.000	a
13	0.000	1.000	0.000	0.000	0.000	a
14	0.000	1.000	0.000	0.000	0.000	a

Natürliche CASSCF-Orbitale: [2.0, 1.0, 1.0, 1.0]

Kleinster Singulärwert: 0,999

Entropien berechnet für 5 Orbitalauswahl:

MO	w()	w(↑)	w(↓)	w(↑↓)	S	sel
11	0.023	0.001	0.000	0.977	0.113	
12	0.000	1.000	0.000	0.000	0.000	a
13	0.000	1.000	0.000	0.000	0.003	a
14	0.000	1.000	0.000	0.000	0.002	a
15	0.977	0.000	0.000	0.023	0.110	

Natürliche CASSCF-Orbitale: [1.95, 1.0, 1.0, 1.0, 0.05]

Kleinster Singulärwert: 0,788

Entropien berechnet für 7 Orbitale:

MO	w()	w(↑)	w(↓)	w(↑↓)	S	sel
11	0.051	0.002	0.000	0.947	0.218	a
12	0.001	0.999	0.000	0.000	0.006	a
13	0.001	0.999	0.000	0.000	0.006	a
14	0.001	0.999	0.000	0.000	0.006	a
15	0.982	0.000	0.000	0.017	0.094	
16	0.982	0.001	0.001	0.017	0.096	
17	0.982	0.000	0.000	0.018	0.094	

Natürliche CASSCF-Orbitale: [1.89, 0.99, 0.99, 0.99, 0.037, 0.037, 0.037]

Kleinster Singulärwert: 0,999

Schlussfolgerung:

- Eine CASSCF-Berechnung mit einem *active-space*, der nur einfach besetzte Orbitale enthält, liefert die gleichen Ergebnisse wie eine ROHF-Berechnung (restricted open-shell Hartree-Fock).
- Das 4s-Orbital interagiert nicht mit einfach besetzten 3d-Orbitalen (0 Entropie bei 4 aktiven Orbitalen).
- Das 4s-Orbital ist mit den 4p-Orbitalen korreliert (die Tabelle mit 7 aktiven Orbitalen).
- Die Addition von nur einem der 4p-Orbitale ist nicht sinnvoll, da sie die räumliche Symmetrie bricht (kleiner Singulärwert). Ein geeigneter *active-space* sollte alle 4p-Orbitale enthalten, um diesen künstlichen Symmetriebruch zu vermeiden.
- Ein von einem Experten ausgewählter *active-space* wird 4s und 4p Orbitale enthalten. Dieses System scheint jedoch nur einen Bezug zu haben.

B) Berechnung der Energien der ausgewählten Active Spaces des MOF-Systems

Im vorigen Abschnitt wurde im Detail darauf eingegangen, wie der Active Space mithilfe des Active Space Finders semi-automatisiert für die einzelnen Systeme ausgewählt wurde. Dieser Active Space wird nun verwendet, um VQE-Berechnungen der Spin-Flip-Energien durchzuführen und somit die Übertragbarkeit der Methodik auf den Quantencomputer zu demonstrieren. Während im vorigen Schritt verschiedene mögliche Active Spaces betrachtet wurden, werden die Berechnungen mit dem VQE-Algorithmus ausschließlich für den optimalen Active Space ausgeführt.

Bei den Spin-Flip-Berechnungen wird der Active Space der High-Spin-Konfiguration mit dem in PySCF implementierten CASCI-Algorithmus durchgeführt während die Low-Spin-Konfiguration mit dem UCCSD-Ansatz berechnet wird. Die Differenz der beiden ergibt die Spin-Flip-Energie.

Die Berechnungen wurden mit folgenden Einstellungen durchgeführt:

- VQE-Algorithmus mit UCCSD-Ansatz
- Parity-Mapper
- Anfangszustand Hartree-Fock-Zustand
- Statevector-Simulationen:
 - o entspricht einem »perfekten« Quantencomputer ohne hardware-basierte Fehler
 - o Optimierungsalgorithmus SLSQP mit 1000 Iterationen
- Noise-Simulationen mit Shot-Noise
 - o Entspricht einem realen Quantencomputer ohne hardware-basierte Fehler
 - o 10 000 Shots
 - o Optimierungsalgorithmus NFT mit 1000 Iterationen
- Noise-Simulationen mit dem Noise-Modell des IBM-Quantencomputers »Sherbrooke«
 - o Vereinfachtes Modell des Quantencomputers »Sherbrooke«, das Hardware-Fehler (insbesondere Cross-Talk der Qubits) tendenziell unterschätzt
 - o 1000 Shots
 - o Optimierungsalgorithmus NFT mit 1000 Iterationen

	Co	Co ²⁺ + CO ₂	Co-MOF	Co-MOF + CO ₂
CASCI	3,1499 eV	3,0148 eV	2,4393 eV	2,4610 eV
VQE	3,1499 eV			
Abweichung	<0,1 meV			
VQE (Shot Noise)	4,2 eV	6,1255 eV		
Abweichung	1,0501 eV	3,1107 eV		
VQE (Sherbrooke)	4,2 eV			
Abweichung	1,0501 eV			
Active Space	(5, 4)	(7, 7)	(11, 11)	(15, 15)

Tabelle 2: Spin-Flip-Energien der MOF-Systeme. Die Berechnungen wurden mit dem angegebenen Active Space durchgeführt; (5, 4) bedeutet hierbei ein Active Space von 5 Elektronen in 4 Orbitalen. Die »VQE«-Berechnungen wurden mit dem Statevector-Simulator durchgeführt, die »VQE (Sherbrooke)«-Rechnungen mit dem Noise-Modell des IBM-Quantencomputers Sherbrooke. Die Abweichung von der CASCI-Energie ist jeweils in der darunterliegenden Zeile angegeben. Zum Vergleich der Abweichungen sei die chemische Genauigkeit von 40 meV genannt innerhalb derer eine Berechnung als hinreichend exakt gilt.

In Tabelle 2 sind die Ergebnisse dieser Berechnungen der Spin-Flip-Energien zu sehen. Die CASCI-Berechnungen sind dabei die Berechnungen, die typischerweise in der Quantenchemie auf klassischen Rechnern durchgeführt werden, die VQE-Rechnungen bezeichnen die mit Qiskit durchgeführten Simulationen eines Quantencomputers mit verschiedenen Noise-Modellen (kein Noise/»perfekter« Quantencomputer sowie Shot-Noise und Hardware-Noise des IBM-Systems Sherbrooke). Aufgrund der schnell wachsenden Größe der Systeme – ein Active Space von (15, 15) entspricht in unserem Fall $2 \times 15 - 2 = 28$ Qubits – fehlen für die größeren Systeme einzelne Datenpunkte, da diese etliche Tage bis Wochen an Rechenzeit auf HPC-Systemen erfordern. Die vorhandenen Daten zeigen, dass mit dem Statevector-Simulator, also der Simulation eines perfekten Quantencomputers, die Ergebnisse der CASCI-Berechnungen reproduziert werden können und sich somit unser Workflow verifizieren lässt. Unter Hinzunahme von Noise weichen die Ergebnisse teils stark von den zu erwartenden Ergebnissen ab; hier werden die Probleme der Optimierungsalgorithmen ersichtlich, in fehleranfälligen Umgebungen verlässlich zum globalen Minimum zu konvergieren – verstärkt durch die große Anzahl an Parametern des hier verwendeten UCCSD-Ansatzes.

Dies zeigt, dass unser Workflow geeignet ist, quantenchemische Berechnungen mit der erforderlichen hohen Genauigkeit auf dem Quantencomputer durchzuführen, jedoch Probleme der Konvergenz – gerade bei NISQ-Quantencomputern mit ihren hohen Fehlerraten – adressiert werden müssen, um diese Genauigkeit zu erreichen. Einige Lösungsmöglichkeiten wurden in den anderen Kapiteln dargestellt. Dazu gehören die Auswahl eines geeigneteren Ansatzes wie AdaptVQE und tvHA, um die Größe der Schaltkreise zu reduzieren und die Anzahl an Parametern zu verringern, Fehlermitigationsmethoden zur software-seitigen Verringerung der Fehlerquellen, sowie die Nutzung von Optimierungsalgorithmen, die für diesen Einsatzzweck geeignet sind. Jedoch ist weitere Forschung in diesen Bereichen in Kombination mit verbesserter Hardware nötig, um quantenchemische Berechnungen mit hoher Genauigkeit verlässlich auf Quantencomputern durchführen zu können.

3.6.3 Transfer der Algorithmen auf den diamantbasierten Quantencomputer

Der Transfer der Algorithmen auf den diamantbasierten Quantencomputer wurde zunächst durch die Verwendung eines Noise Models durchgeführt. Ein Noise Model ist eine detaillierte Nachbildung eines echten Quantencomputers. Mit dieser Nachbildung können die Algorithmen auf der entsprechenden nachgeahmten Hardware simuliert werden. Ein Noise Model enthält unter anderem Informationen bezüglich der Fehler der Einzel- und Zweiqubitgatter sowie der Wechselwirkung zwischen den Qubits.

Zunächst wurden mithilfe eines Noise Models für diamantbasierte Quantencomputer verschiedene Ansätze für quantenchemische Berechnungen untersucht (siehe Sektion 3.6.4). Ferner wurden mit Hilfe dieses Noise Models drei Moleküle mit stark korrelierten Elektronen untersucht, um die Leistungsfähigkeit von modernen NV-basierten Quantencomputern bewerten zu können. Die ausgewählten Moleküle sind CH_2 , CH und NO_3 . Die dabei untersuchten Eigenschaften sind die Spin-Flip Energien, d.h., die Energiedifferenz zwischen dem Grundzustand und dem durch die Anregung eines Spins entstandenen Zustand. Da für die Berechnung des Grundzustands und der entsprechenden Energie klassische Methoden verwendet werden können, weil im Grundzustand keine starken Korrelationen vorliegen. Deshalb fokussieren wir uns im Folgenden auf die Berechnung der angeregten Zustände.

In der Tabelle 3 werden die Ergebnisse der VQE-Berechnungen mit und ohne Berücksichtigung der Fehler der NV-basierten Quantencomputer mit exakten Werten verglichen. Jede Rechnung wurde 10-mal wiederholt. Bei den Rechnungen ohne Noise wird der dabei erhaltene kleinste Wert angegeben und bei Rechnungen mit Noise wird der Durchschnittswert in der Tabelle angegeben. Der verwendete Ansatz für die Wellenfunktion ist der UCCSD Ansatz. Die Anzahl der Shots ist 10^6 . Der klassische Optimierungsalgorithmus ist SPSA. Beim ZNE wurden die Skalierungsfaktoren 1,2 und 3 verwendet, wobei nur 2-Qubit Gatter vervielfältigt wurden. Beim Molekül CH_2 wurde anschließend mit einer linearen Funktion gefittet, bei den anderen Molekülen mit einem Polynom zweiten Grades.

	CH_2	CH	NO_3
CASCI	-38,8430076	-38,251487	-278,59189
VQE (ohne Noise)	-38,8430068	-38,250627	-278,59142
Abweichung	<0,00001	<0,001	<0,0005
VQE (mit Noise)	-38,8354302	-38,280837	-278,483287
Abweichung	<0,01	<0,03	<0,2
Active Space	(2,2)	(3, 3)	(3, 3)

Tabelle 3: Energien der Spin-angeregten Zustände der Moleküle CH_2 , CH und NO_3 in Hartree. Die Berechnungen wurden mit dem angegebenen Active Space durchgeführt; (3, 2) bedeutet hierbei ein Active Space von 3 Elektronen in 2 Orbitalen. Die VQE-Berechnungen ohne Noise wurden mit dem Statevector-Simulator durchgeführt, die VQE-Rechnungen mit dem Noise-Modell wurden mit dem Noise Model für den NV-basierten Quantencomputer durchgeführt. Die Abweichung von der CASCI-Energie ist jeweils in der darunterliegenden Zeile angegeben. Alle Rechnungen wurden 10-mal wiederholt. Zum Vergleich der Abweichungen sei die chemische Genauigkeit von 0,0016 Hartree genannt innerhalb derer eine Berechnung als hinreichend exakt gilt.

Die Ergebnisse ohne Fehler weisen eine hohe Genauigkeit auf, wobei diese Genauigkeit weiter verbessert werden kann, indem dieselbe Rechnung öfter wiederholt wird. Da die Ergebnisse einer Rechnung ohne Fehler nicht unter das exakte Ergebnis rutschen kann, kann hier immer der kleinste berechnete Wert verwendet werden. Bei den Ergebnissen mit Fehler kommt es zu einer Abweichung, die größer als die chemische Genauigkeit ist. Das ist der Einfluss der Fehler im Quantencomputer. Diese Abweichungen könnten im Prinzip weiter verringert werden, wenn die Parameter der Fehlermitigation optimiert werden. Allerdings wird diese Verbesserung kaum über eine Größenordnung gehen.

3.6.4 Vergleich der Leistungsfähigkeit von Algorithmen auf verschiedenen Backends und Hardware-Architekturen

Die Leistungsfähigkeit von Algorithmen wird maßgeblich durch die bei der Berechnung entstandenen Fehler beeinflusst. Diese Fehler können viele verschiedene Ursachen haben und sich in unterschiedlichen Realisierungen manifestieren, jedoch sind die bei Weitem dominante Fehlerquelle die Zwei-Qubit-Gatter. Dies gilt für viele Hardware-Architekturen, insbesondere für die IBM-Ehningen Architektur und die diamantbasierte Architektur. Zum Beispiel ist der Fehler der Zwei-Qubit-Gatter oft um eine Größenordnung höher als der Fehler der Ein-Qubit-Gatter.

Um die Leistungsfähigkeit von Algorithmen auf verschiedenen Backends zu vergleichen, ist deshalb die Anzahl der benötigten Zwei-Qubit-Gatter bei verschiedenen Architekturen ein erster guter Anhaltspunkt. Folglich wurden Ansätze für die quantenchemischen Berechnungen auf verschiedenen Architekturen transpiliert und die Zwei-Qubit-Gatter für die IBM-Ehningen Architektur und die diamantbasierte Architektur gezählt. Die Ergebnisse für den EfficientSU2 Ansatz, bei dem CNOT Gatter zwischen allen möglichen Qubitpaaren durchgeführt werden, sind im folgenden Bild gezeigt.

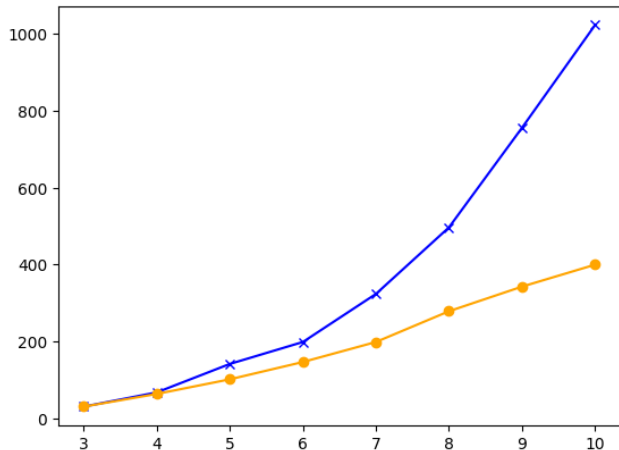


Abbildung 48: 1Anzahl der CNOT-Gatter als Funktion der verwendeten Qubits für den EfficientSU2 Ansatz für den IBM-Ehningen Quantencomputer (blau) und einen diamantbasierten Quantencomputer (gelb). Durch die veränderte Topologie muss im Fall des diamantbasierten Quantencomputers der SWAP Gate deutlich weniger oft durchgeführt werden um eine CNOT Gate durchzuführen als auf der IBM-Ehningen Plattform, weshalb die Anzahl der Zwei-Qubit-Gatter beim diamantbasierte Quantencomputer kleiner ist. Für die freien Parameter im EfficientSU2 Ansatz wurden zufällig gewählt und über mehrere Rechnungen gemittelt.

Aus Abbildung 48 wird klar, dass bei mehr als vier Qubits die Zahl der Zwei-Qubit-Gatter auf diamantbasierten Quantencomputern kleiner ist. Der Grund dafür ist, dass bei der diamantbasierten Architektur der Abstand zwischen einem beliebigen Qubitpaar aufgrund der Sterntopologie zwei ist. Die Qubittopologie des IBM-Systems in Ehningen ist hingegen quasi-eindimensional. Deshalb sind die Abstände zwischen beliebigen Qubitpaaren groß, sodass viele SWAP Gatter durchgeführt werden müssen um ein CNOT Gatter für ein gegebenes Qubitpaar durchzuführen. Da ein SWAP Gatter wiederum selbst aus drei CNOT Gatter besteht, müssen bei diamantbasierten Quantencomputern die CNOT Gatter weniger oft durchgeführt werden.

Um die Leistungsfähigkeit der NV-basierten Architektur und der Transmon-basierten Architektur zu vergleichen, wurde die Rechnung aus dem letzten Abschnitt für das Molekül CH_2 mit Hilfe des Noise Models für das IBM System Q in Ehningen durchgeführt. Die Ergebnisse sind der folgenden Tabelle zu entnehmen.

	NV-basiert	IBM Ehningen
VQE mit Noise für CH_2	-38,8354302	-38,8425238
Abweichung von exaktem Wert	0,0076	0,000484

Tabelle 4: Energien der Spin-angeregten Zustände des Moleküls CH_2 in Hartree berechnet mit dem Noise Model eines NV-basierten Quantencomputers und des IBM System Q in Ehningen. Die Berechnungen wurden mit dem Active Space (2,2) durchgeführt. Alle Rechnungen wurden 10-mal wiederholt. Zum Vergleich der Abweichungen sei die chemische Genauigkeit von 0,0016 Hartree genannt innerhalb derer eine Berechnung als hinreichend exakt gilt.

Aufgrund der relativ kurzen Schaltkreise für dieses kleine Molekül (2 CNOT Gatter insgesamt) spielt die oben diskutierte Qubit Topologie eine geringe Rolle. Entscheidend für das genauere Resultat bei IBM Ehningen sind die kleineren Gatterfehler. Deshalb unterbietet das Resultat von IBM Ehningen in diesem Fall auch die chemische Genauigkeit, wohingegen das Resultat für den NV-basierten Quantencomputer rund eine Größenordnung weiter vom exakten Wert liegt.

4.1 Publikationen

Uni Stuttgart:

- V. Vorobyov et al. Applied Magnetic Resonance <https://doi.org/10.1007/s00723-022-01462-2> (Accepted:19 Dezember 2021)
- S. Santonico et al. NV centers by vacancy trapping in irradiated diamond: experiments and modelling. New Journal of physics 26, 013054 (2024)
- M. Zahedian et al. On readout and initialization fidelity by finite demolition single shot readout. Quantum Science and Technology, 9, 015023 (2024)
- M. Zahedian et al. Blueprint for efficient nuclear spin characterization with color centers. ArXiv:2402.08107 (2024)

Uni Ulm:

- «Rapid transform optimisation strategy for decoherence-protected quantum register in diamond », Jiazhao Tian et al., eingereicht Physical Review A
- Rossignolo, M., T. Reisser, A. Marshall, P. Rembold, A. Pagano, P. J. Vetter, R. S. Said, M. M. Müller, F. Motzoi, T. Calarco, F. Jelezko and S. Montangero (2023). "QuOCS: The quantum optimal control suite." Computer Physics Communications 291
- Senkalla, K., G. Genov, M. H. Metsch, P. Siyushev and F. Jelezko (2024). "Germanium Vacancy in Diamond Quantum Memory Exceeding 20 ms." Physical Review Letters 132(2)
- Wang, P., L. Kazak, K. Senkalla, P. Siyushev, R. Abe, T. Taniguchi, S. Onoda, H. Kato, T. Makino, M. Hatano, F. Jelezko and T. Iwasaki (2024). "Transform-Limited Photon Emission from a Lead-Vacancy Center in Diamond above 10 K." Physical Review Letters 132(7)

Uni Konstanz:

- «Digital quantum simulation of the BCS model with a central-spin-like quantum processor», Jannis Ruh, Regina Finsterhoelzl, and Guido Burkard Phys. Rev. A 107, 062604 – eingereicht 2. Juni 2023
- «High-Fidelity Entangling Gates for Electron and Nuclear Spin Qubits in Diamond», Regina Finsterhoelzl, Wolf-Ruediger Hannes, and Guido Burkard, <https://arxiv.org/abs/2403.11553> (2024).

KIT-TKM:

- «Mitigating crosstalk errors by randomized compiling:Simulation of the BCS model on a superconducting quantum computer », Hugo Perrin, Thibault Scoquart, Alexander Shnirman, Jörg Schmalian, and Kyrlo Snizhko
- Phys. Rev. Research 6, 013142 (2024), <https://arxiv.org/abs/2305.02345>

4.2 Im Themenfeld Quantencomputing geschulte Personen

FhG-ICT: 3

Uni Ulm: 5

Uni Konstanz: 2

KIT-TKM: 2

KIT-PHI: 2

FhG-IAF: 3

Uni Stu: 17

4.3 Patente

Es wurden im Berichtszeitraum keine Patentanmeldungen durchgeführt.

4.4 Anzahl an dem Projekt beteiligte Personen aus Forschungseinrichtungen

FhG-ICT: 5

Uni Ulm: 5

Uni Konstanz: 2

KIT-TKM: 3

KIT-PHI: 6

FhG-IAF: 9

Uni Stu: 4

4.5 Konferenzen

Uni Ulm

- The OIST Workshop in Feedback in Quantum Machines 2023, Nov 27th to Dec 1st 2023, OIST, Okinawa. Presentation on coherent control of spins in diamond
- The Conference on Quantum Technologies in European collaboration with QuantERA and the Quantum Flagship 22-23 November 2023, Madrid as an event of the Spanish Presidency of the EU.

Uni Konstanz

- Regina Finsterhölzl, Posterpräsentation auf der Tagung in Bad Honnef, Coping with Errors in Scalable Quantum Systems, 8.-11.Januar 23
- Regina Finsterhölzl, Benchmarking error correcting codes on near-term devices, Jahrestagung der American Physical Society (APS March Meeting) in Las Vegas, 5.-10.3.2023
- Regina Finsterhölzl, Posterpräsentation auf der Jahrestagung des Munich Center for Quantum Science and Technology, Sonthofen, 20-23.Juni 23.
- Regina Finsterhölzl, 'Benchmarking error correcting codes on near-term devices', Workshop Quantum Computing, Deutsche Gesellschaft für Informatik, 29.9.2023
- Regina Finsterhölzl, 'Quantencomputing und Quantenkryptographie, Potential, Anwendungen, Akteure', Annual meeting of the Femtec Alumnae e.V., Würzburg, 22.3./23.3.2024 (together with Fenja Drauschke)
- Regina Finsterhölzl, 'High-Fidelity Entangling Gates for a Register based on a Nitrogen-Vacancy Center in Diamond', Annual meeting of the American Physical Society (APS March Meeting), 4.-8.3.2024
- Guido Burkard, eingeladener Vortrag Semiconductor spin qubits and how to connect them to photons IQST mini workshop 4 July 2023, ZAQuant, University of Stuttgart, Germany
- Guido Burkard, eingeladener Vortrag, High-fidelity quantum gates for spin qubits and spin-photon interfaces IQST Day 16 Feb 2023, University of Ulm, Germany
- Guido Burkard, eingeladener Vortrag, Spin-Photon interfaces and Quantum memories: a theoretical approach German-Hungarian Quantum Technology Workshop, ZAQuant, University of Stuttgart, 3 June 2022, Stuttgart, Germany

Fraunhofer

- Walter Hahn, eingeladener Vortrag, Quantum Chemistry Simulations on HPC systems for Noisy Quantum Devices, QBN Meeting „Applications of Quantum Computing“, BSC, Barcelona, 06.2023

- Walter Hahn, eingeladener Vortrag, „Quantum Chemistry on Quantum Computers“, QBN Meeting on Quantum Computing for Chemistry, Materials Science and Pharma, 2023, IBM, Ehningen
- Walter Hahn, eingeladener Vortrag, „Diamond-based Quantum Technologies“, QBN Meeting on Applications of diamond-based Quantum Technologies, 2023, Freiburg

Anhang

KIT

- Ioannis Karatzakakis et al., Coherent control of Tin-Vacancy centers in diamond using superconducting waveguides at 50 mK, Posterbeitrag QUANTUMMatter2024, San Sebastian, Spanien
- Ioannis Karatzakakis et al., Vortrag, Coherent control of the Tin-Vacancy center with superconducting waveguides at mK temperatures, DPG-Frühjahrstagung SAMOP, 2024, Freiburg