

Quantum Algorithms for Quantum Chemistry Calculations

Doctoral Thesis**Author(s):**

Barkoutsos, Panagiotis K.

Publication date:

2019

Permanent link:

<https://doi.org/10.3929/ethz-b-000365850>

Rights / license:

[In Copyright - Non-Commercial Use Permitted](#)

DISS. ETH NO. 25920

**QUANTUM ALGORITHMS FOR QUANTUM CHEMISTRY
CALCULATIONS**

A thesis submitted to attain the degree of
DOCTOR OF SCIENCES of ETH ZURICH
(Dr. sc. ETH Zurich)

presented by

PANAGIOTIS KL. BARKOUTSOS

MSc. ETH Zurich

born on 16.01.1990

citizen of
Athens (GR)

accepted on the recommendation of
Prof. Dr. Matthias Troyer, examiner
Dr. Ivano Tavernelli, co-examiner
Prof. Dr. Leonardo Guidoni, co-examiner

2019

Abstract

The solution of the many-electron Schrödinger equation in quantum chemistry is a hard problem for classical computing in the sense that the complexity of the solution scales exponentially with the number of electrons considered. On the other hand, the simulation of electronic structure problems has become one of the most promising candidates to demonstrate quantum advantage in the near term quantum computing. However, the effect of environmental noise and qubit/-gate errors impose important limitations to the simulations of quantum chemistry problems, which are still mainly confined to proof of principle demonstrations. Therefore, until fault-tolerant quantum computers with a large number of qubits become available the need to design ‘robust’ algorithms that can provide a form of quantum advantage in near-term error-prone quantum hardware is of paramount importance.

The main target of this thesis is the design of algorithms for the solution of problems in quantum chemistry that will be effective in the so called noisy intermediate quantum computers (NISQ), both for analog and digital quantum computations. To this end, we focused on methods for the optimization of the fermionic Hamiltonian and its mapping in the qubit space as well as for the enhancement of the sampling efficiency in the Hilbert space of all molecular wavefunctions with a defined number of electrons.

One of the main drawbacks that prevents from an efficient solution of electronic structure problems in analog-type quantum computers (AQC) is the implementation of the many-electron interaction terms. Currently, AQCs allow only for 2-body interaction terms and thus any physical Hamiltonian needs first to be approximately decomposed into series of 2-local terms in order to be mapped to the hardware. This approximation step requires the introduction of auxiliary qubits in an enlarged Hilbert space. State-of-the-art solutions developed so far generate a series of coupling coefficients which are magnitude larger than the ones in the original Hamiltonian making their implementation in quantum hardware very impractical. In this thesis we propose an optimization scheme that allows the decomposition of any many-body Hamiltonian into 2-local interactions without introducing significant complexity and keeping the size of the coupling coefficients

within a controllable range.

In the digital quantum computing (DQC), or gate model computation, the solution of electronic structure problems in the quantum chemistry is currently based on hybrid quantum/classical algorithms, where the computationally expensive part of measuring the expectation value of the quantum mechanical observables is done in a quantum circuit, whereas the classical optimization and the post-processing of the result is assigned to a classical computer through a feedback mechanism. This scheme named hybrid variational quantum eigensolver (VQE) consists of three main parts: the translation of the system Hamiltonian in the qubit space, the parametrization of the ansatz (trial wavefunction) and the optimization of the variational parameters in classical computer. In this thesis we propose new schemes to efficiently map the original electronic structure Hamiltonian in the particle-hole representation of the molecular Hamiltonian in second quantization. We also examine new trial wavefunctions (Ansätze) tuned to best match the physical properties of the selected systems. In particular, we designed strategies for the optimization of the Hilbert space sampling, for instance introducing particle-conserving bias potentials as well as specifically tuned particle-conserving exchange gates available in current hardware architectures. We also estimate the resource requirements for different molecules and demonstrate the efficiency of our algorithm for the calculation of the ground state properties of several one-, two- and three-atomic molecules, as well as of molecular hydrogen on a two-bit quantum computer. Our study provides clear indications about the future hardware requirements to perform quantum computer calculations of larger molecules (with 10-100 electrons) and highlights the potential scalability issues of these quantum/classical algorithms.

Finally, in the last part of this work we investigate the performance of this algorithm of the ground state wave function of a Fermi-Hubbard model Hamiltonian in a triangular lattice. This study helped to shed new light on the level of entanglement needed to optimally converge to the ground state energy of fermionic systems providing new strategies for the selection of the most effective quantum circuits.

Zusammenfassung

Die Lösung von viel-elektronen Schrödinger Gleichungen in der Quantum Chemie ist ein schwieriges Problem für klassische Computer im dem Sinne, dass die Komplexität der Lösung exponentiell mit der Anzahl der Elektronen skaliert. Andererseits ist die Simulation von elektronischen Strukturen einer der vielversprechendsten Kandidaten, um die Überlegenheit von Quantencomputern zu demonstrieren. Dennoch limitiert zurzeit das Rauschen und die Fehlern der Quantum Computer die Simulationen in der Quantenchemie auf einfache Probleme. Bis fehlertoleranten Quantencomputer mit einer grossen Anzahl von Qubits zur Verfügung stehen, besteht die Notwendigkeit Algorithmen zu entwickeln, welche in der Lage sind auf fehleranfälliger Quantenhardware eine Quantenüberlegenheit zu zeigen. In dieser Arbeit konzentrieren wir uns auf das Design von Algorithmen, die in den so genannten noisy intermediate quantum computers (NISQ) nützlich sein werden, sowohl für analoge als auch für digitale Quantenberechnungen. Um dies zu erreichen konzentrieren wir uns auf Methoden zur Optimierung des fermionischen Hamiltonians und sein Mapping in den Qubitraum, sowie die Verbesserung der Absuche des Hilbertraums aller molekularen Wellenfunktionen mit einer bestimmten Anzahl Elektronen.

Eins der grössten Probleme für analoge Quantencomputer, welches eine effiziente Lösung des Elektronen Struktur Problems verhindert, ist die Implementierung der viel-elektronen interaktionen Terme. Zurzeit erlauben AQC's nur 2-Körperinteraktionen und somit muss jeder physikalische Hamiltonian durch eine Reihe von 2-lokalen Hamiltonien approximiert werden, damit er auf die Hardware geladen werden kann. Dieser Annäherungsschritt basiert auf der Einführung von Ancillas in einem erweiterten Hilbertraum. Derzeitige Stand der Technik Lösungen erzeugen eine Reihe von Kopplungskoeffizienten, welche sich in Grössenordnungen unterscheiden, dies macht die eigentliche Umsetzung auf einen Quantencomputer sehr schwierig. In dieser Arbeit präsentieren wir ein numerisches Schema, das die Vereinfachung des viel-körper Hamiltonians zu 2-lokale Interaktionen vollzieht, wobei die Kopplungskoeffizienten in der selbe Grössenordnung gehalten werden.

Für digitale Quantencomputer und Gate Model Computation basiert die Lösung von Elektronen Struktur Problemen derzeit auf hybride Quanten-/Klassische

Algorithmen. In dieser Klasse von Algorithmen wird der rechenintensive Teil, das Messen eines Erwartungswertes von Operatoren von einem Quantencomputer (durch einen parametrisierten Ansatz) durchgeführt, während für die klassische Optimierung und Nachbearbeitung der Ausgabe ein klassischer Computer über einen Rückkopplungsmechanismus gebraucht wird. Ein solches Schema, welches auch hybrid variational quantum eigensolver (VQE) genannt wird besteht aus drei Teilen, die Generierung des Hamiltonian im Qubit Raum, die Parametrisierung des Ansatzes (Trial Wavefunction) und die Optimierung der Parameter in einem klassische Computer. In dieser Arbeit präsentieren wir eine neue effiziente Transformation des Elektronen Struktur Hamiltonians in das Partikel-Loch Bild des molekularen Hamiltonians in zweiter Quantisierung. Zusätzlich untersuchen wir neue Trial Wavefunctions Ansätze, die auf die physikalischen Eigenschaften des jeweiligen Systems zugeschnitten sind. Insbesondere haben wir Strategien zur Optimierung der Absuche des Hilbert-Raums entwickelt, z.B. die Einführung von teilchenerhaltenden Bias-Potenziale, sowie speziell abgestimmte teilchenerhaltenden *exchange gates* welche in aktuellen Hardware-Architekturen bereits verfügbar sind. Wir schätzen den Ressourcenbedarf für verschiedene Moleküle und zeigen die Effizienz unseres Algorithmus bei der Berechnung der grundzustands Eigenschaften von mehreren ein-, zwei- und drei- atomigen Molekülen, sowie bei der Berechnung von molekularem Wasserstoff auf einem zwei qubit quantum Computer. Unsere Studie zeigt die Ansprüche an zukünftige Quantenhardware um Quantencomputer-Berechnungen von grösserer Moleküle (mit 10-100 Elektronen) durchzuführen und hebt die potenziellen Skalierbarkeitsprobleme dieser quantum/-klassischen Algorithmen hervor.

Schließlich, im letzten Teil dieser Arbeit untersuchen wir die Performanz dieses Algorithmus für den Grundzustand der Wellenfunktion eines Fermi-Hubbard-Modell Hamiltonians in einem dreieckigen Gitter. Diese Studie lieferte neues Erkenntnisse über den Grad der Verschränkung, welcher notwendig ist, um die Energie der fermionischen Systeme optimal in den Grundzustand zu überführen, und führte zu neue Strategien für die Auswahl der effektivsten Quantenschaltungen.