

Posudek doktorské dizertační práce
Tensor Network-based Computational Methods for Strongly Correlated
Molecular Quantum Mechanics
Jana Brandejse

Posuzovaná disertační práce je tvořena zhruba 80stránkovým textem, který uvádí čtenáře do problematiky a shrnuje výsledky pěti publikačních výstupů autora, které tvoří přílohu k tomuto textu. Čtyři publikace jsou původní články v mezinárodních impaktovaných časopisech (*Journal of Chemical Theory and Computation*, *Journal of Computational Chemistry* a *Journal of Chemical Physics*), a poslední je referát o metodě DMRG v českém časopise *Chemické listy*.

Práce spadá do oblasti vývoje kvantově chemických metod a jejich aplikací, konkrétně se zabývá různými rozšířeními metody renormalizační grupy matice hustoty (DMRG), která je vhodná pro popis silně korelovaných systémů, zejména takových, kde je nutné pracovat s velkými aktivními prostory. Jedná se o velmi důležité téma, protože přesný popis silně korelovaných molekul je komplexní problém, a i přes velké pokroky na tomto poli stále zůstává skutečnou výzvou. Problematické je zejména účinné skloubení popisu tzv. statické elektronové korelace (označované též jako nedynamická, "silná") a dynamické elektronové korelace. Dizertační práce se zabývá jak vývojem nových metod, tak také jejich efektivní implementací.

V první kapitole práce autor prezentuje masivně paralelní implementaci metody DMRG vyvinuté pro moderní superpočítače. Mgr. Brandejse je jeden ze tří hlavních vývojářů této implementace, která je schopná najednou efektivně využít stovky až tisíce procesorových jader. Taková implementace metody DMRG doposud nebyla dostupná. Testovací výpočty na systémech s velmi rozsáhlým aktivním prostorem, jako je FeMo kofaktor ukazují, že paralelizace škáluje s rostoucím množstvím jader efektivně. Pro účely doplnění dynamické korelace do popisu metody DMRG je využito její spojení s metodou spřažených klastrů. Toho je dosaženo pomocí externě korigované metody spřažených klastrů (tailored coupled clusters). V druhé kapitole je představena relativistická verze této metody a její aplikace na dvouatomové molekuly s těžkými kovy. Za účelem zefektivnění výpočtů pak byla nerelativistická verze tailored coupled clusters modifikována s využitím lokálních párových přirozených orbitalů, což otevírá možnosti téměř lineárního škálování s velikostí systémů a tedy výpočtů výrazně větších molekul. V neposlední řadě Mgr. Brandejse demonstruje využití veličin získaných kontrakcemi tenzorových sítí pro analýzu vazebné struktury molekul. V práci jsou prezentovány aplikace na molekuly s komplexní vazebnou strukturou vykazující elektronovou deficienci.

Dizertační práce Mgr. Brandejse obsahuje originální výsledky a je napsaná srozumitelně, na odborné úrovni. Grafická, jazyková a formální úroveň práce je rovněž dobrá, text obsahuje

přiměřeně překlepů. Rozsah práce je standardní, je však vyvážen odbornými publikacemi, na nichž je práce založena.

Celkově hodnotím práci pana Mgr. Brandejse jako výbornou.

Připomínky a podněty do diskuse:

1. V úvodu (Introduction), autor píše: „Notice that here we do not assume equivalence between quantum wave function collapse during measurement and quantum decoherence, as this is a subject of quite a heated debate ...“. Co tedy autor předpokládá? Nebo je tím míněno, že není třeba nic konkrétního předpokládat, neboť na tom výsledky této práce nezáleží?
2. Autor v sekci 1.2 na grafu 1.3 využívá výsledky numerické studie chyby energie metody DMRG v závislosti na chybě pramenící z renormalizace pro analýzu nejistoty metody. V práci ovšem není uvedeno, zda tyto empirické výsledky pro konkrétní systémy nebyly nahrazeny analytickým popisem, případně jaký je současný stav poznání v tomto směru.
3. V práci se uvádí, že pro zobecnění relativistické implementace tailored coupled clusters z grup s reálnou reprezentací do “komplexních” grup v současnosti již probíhá testování a příprava k publikaci. Autor zmiňuje, že pro příslušnou třídu systémů je dosud dostupných jen několik málo kvantově chemických metod. Čím je toto způsobeno? Jaké jiné metody jsou dostupné pro čtyřsložkové relativistické výpočty nesymetrických molekul?
4. V práci se uvádí, že nerelativistická verze externě korigované metody spřažených klastrů modifikována s využitím lokálních párových přirozených orbitalů umožňuje přesné výpočty na velkých molekulách. Byla tedy na takových systémech tato metoda vyzkoušena? Případně na kterých?
5. Jak je analýza vazebné struktury závislá na použité bázi molekulových orbitalů?

V Praze, 20. 2. 2022

Tomáš Mančal

MFF UK

Ke Karlovu 5

121 16 Praha 2