

Tytuł pracy doktorskiej: **Advancement of the pair coupled cluster doubles-based molecular property calculations with quantum embedding**

Autor: **Rahul Chakraborty**

Promotor: **dr hab. Paweł Tecmer, prof. UMK**

Streszczenie pracy doktorskiej

Badania naukowe przedstawione w niniejszej rozprawie doktorskiej mają na celu rozszerzenie zakresu zastosowań teorii opartych na metodzie sprzężonych klastrów z podwójnie wzbudzonymi parami – pCCD (ang. pair Coupled Cluster Doubles). Metoda pCCD dostarcza wiarygodnych wyników dla układów chemicznych charakteryzujących się silną korelacją elektronową i wykazuje wyższą wydajność obliczeniową niż wiele tradycyjnych metod chemii kwantowej. Jednak osiągnięcie wyższej dokładności wymaga wprowadzenia poprawek do modelu pCCD, co znacząco zwiększa nakład obliczeniowy i ogranicza jej powszechne zastosowanie w praktyce. Aby przezwyciężyć te ograniczenia, w pracy zastosowano podejścia oparte na osadzaniu kwantowym (ang. quantum embedding). Strategia ta polega na rezerwowaniu dokładnych, lecz kosztownych obliczeniowo metod dla aktywnego obszaru układu kwantowo-chemicznego, podczas gdy pozostałe części opisywane są za pomocą metod bardziej przybliżonych. W ramach niniejszej rozprawy zaimplementowano i przetestowano dwie nowe formułacje osadzania oparte na pCCD: metodę pCCD-in-DFT oraz pCCDin- pCCD. Obie metody zapewniają wiarygodne wyniki w szerokim zakresie oddziaływań międzycząsteczkowych. W szczególności metoda pCCD-in-pCCD wykazuje znacznie lepszą wiarygodność do modelowania dużych układów, ponieważ nie opiera się na przybliżonych funkcjonalach gęstości elektronowej. Ponadto w pracy przeanalizowano obliczanie właściwości molekularnych w ramach metody pCCD. Ponieważ tradycyjne podejście oparte na teorii odpowiedzi (równania Lambda) nie spełniło oczekiwań pod względem dokładności, wdrożono alternatywne podejście wykorzystujące wartości oczekiwane dla metod pCCD i post-pCCD. Nowe podejście zapewnia doskonałą zgodność z danymi referencyjnymi przy istotnie niższych kosztach obliczeniowych, ponieważ eliminuje konieczność rozwiązywania równań odpowiedzi. W rezultacie metoda osadzania oparta na schemacie pCCD-in-pCCD oraz podejście oparte na wartościach oczekiwanych stanowią obiecujące ścieżki umożliwiające symulacje na dużą skalę trudnych, silnie skorelowanych układów chemicznych.