



Reviewer's report on the doctoral thesis of Mgr. Matyáš Novák

The main motivations of scientific research. On the basis of quantum-mechanical, so called first principles calculations this area has been raised to a new level during the last decades. In particular the reliability and feasibility of calculations has increased to such a degree that it is getting possible to predict or design properties new materials. Most of the first principle calculations of solids are based on the density functional theory (DFT) which is solved typically by making use of the Bloch theorem, e.g. 3D periodicity of the lattice. Nowadays, there are only few real space approaches available. This gap is filled up by the PhD thesis of Mgr. Matyáš Novák who proposed, formulated and implemented real space electronic structure code using the general finite element method (FEM) and an isogeometric analysis (IGA) basis. **The thesis of Mgr. Matyáš Novák is certainly interdisciplinary and brings significance into the field of solid state physics as well as in the field of mechanics where FEM found its primary applications. In addition, novelty of this approach is the possibility to calculate electronic properties of the materials which are not charge neutral.**

The thesis of Mgr. Novák is written in English and is structured into seven chapters. The first and second chapter gives clearly written overview of various electronic structure methods and the DFT method. In this chapter author proposed new charge density and potential mixing scheme to achieve self consistency within the DFT. This new Adaptive Anderson mixing scheme is carefully compared to the available mixing schemes. The performance of this scheme has been carefully analyzed and compared for two codes, newly developed FENAIEC and multiple scattering Green function based SPRKKR method.

In the third and fourth chapter of this thesis summarize FEM/IGA methodology, new choice of the separable pseudo potentials and its application to solve Kohn-Sham equations. In both chapters very detailed analysis of the results are presented and form the basis for the newly developed code and clearly summarize the original contributions of Mgr. Novák in this field.

In the Chapter 5 from my point of view the main and very important methodological contribution to the field is presented. Mgr. Novák formulated the new way of calculating Hellmann-Feynman forces for the nonlocal potentials. The verification and convergence analysis of the new expression is based on various and properly chosen test cases.

Finally, in the Chapter 5, author present newly developed FENAIEC software package, its architecture, parallelization and details of solving main computationally difficult tasks as e.g. eigenvalue problem. The code is primarily written in the Python interpreter and computationally expensive parts are written in C++ and Fortran languages. The last Chapter 7, clearly demonstrates the applicability of this code on the example of the deformation study of 2D graphene flake. The summary of all results and broader perspectives are shown in the last chapter.

Conclusions:

To conclude, the submitted work of Mgr. M. Novák is very well written and he formulated, discussed and solved several important aspects relevant in the field of solid state physics using algorithms developed in the field of mechanics. All together, Mgr. M. Novák published 5 manuscripts (2 of them as a first author) in the journals from Q1 and Q2. In addition, he was coauthor of 6 proceedings. The submitted content-rich thesis undoubtedly reflects his great competence and also proves his achieved scientific independence.

Accordingly, I suggest the submitted PhD thesis to be accepted.

V Plzni dne 29. 12. 2020

prof. Dr. Ján Minár

Comments and questions:

- Minor comment: It is matter of taste, but when reading the thesis I was bit struggling with the choice of the format of the thesis. In particular, results of various calculations are presented at the end of each theoretical chapter but in some cases even before the corresponding formalism and code implementation was presented.
- Author shows how to solve KS-equations using FEM for the pseudopotentials. Could you please comment if it is possible and applicable to use the same approach for all-electron case?
- What are the numerical limitations of proposed FEM method? Does the choice of the FEM and IGA method depend only on the geometry or it also depend on the energy for which the wave functions are calculated?
- Could you please comment on the use of FEG/IGA method to solve the KS equations for non-local potentials?
- In the code open source? Is it possible to use it for any molecule or material already now?

Oponentní posudek

na disertační práci s názvem: „Implementace kvantově-mechanických výpočtů elektronové struktury a vlastností neperiodických materiálových struktur“, jejímž autorem je Mgr. Matyáš Novák.

Práce se zabývá vývojem a testováním softwarového balíku pro kvantově mechanické výpočty vlastností nanočástic. Toto téma má velkou praktickou relevanci, jelikož teoretické zvládnutí predikce vlastností nanočástic vede k značné úspoře času a nákladů při jejich laboratorní realizaci. Zároveň je toto téma teoreticky žádoucí, jelikož většina dnes rutinně používaných softwarových balíků pro kvantově-mechanické výpočty je vhodná pro prostorově neohraničené periodické systémy, kdežto jejich použití pro „malé“ soustavy, jako jsou právě nanočástice, je zatíženo řadou krkolomných kroků. Softwarový balík, který bere od začátku v úvahu prostorovou ohraničenost a „malost“ systému, je tudíž velmi důležitý. Proto je volba tématu práce slibná a užitečná.

Práce začíná představením tří základních elementů, na nichž softwarové řešení stojí. Tím je především Kohn-Shamova teorie funkcionalu hustoty, která je základem prakticky všech dnešních kvantově-mechanických výpočtů. Dále je to metoda pseudopotenciálů, která je nezbytná k tomu, aby se výpočet nemusel potýkat se singularitami pocházejícími od Coulombovské interakce elektronů s jádry atomů. A nakonec je to metoda konečných prvků, jako způsob převedení problému parciálních rovnic na problém lineární algebry.

V práci se nejprve detailně popisují základy i konkrétní postupy spojené s těmito třemi elementy. Zde je zřejmé, že student šel skutečně do hloubky a rozhodl se stavět své softwarové řešení na solidní teoretický základ. Následně se práce zabývá vlastními výsledky testování různých variant, a to zejména různé tvorby sítě a tvaru elementů v metodě konečných prvků (respektive v izogeometrické analýze). Tato část je samozřejmě klíčová pro vývoj spolehlivého softwarového řešení s reprodukovatelnými výsledky. Podobně se testují různé varianty pseudopotenciálů. I zde je vidět velmi pečlivá práce studenta, ovšem problém volby pseudopotenciálu je sám o sobě natolik komplexní, že se nedá očekávat, že v disertační práci bude vyřešen, zvláště když v práci hraje jen roli služebného nástroje, nikoli jádra problému.

Za nejcennější z obecných partií práce považují kapitolu o Hellmann-Feynmanově metodě výpočtu atomárních sil. Toto téma má velmi široký dopad v kvantové materiálové fyzice (nebudu zde dělat seznam aplikací) a přitom je notoricky výpočetně náročné. Student přispívá k problematice vlastní formulací, kterou pak následně také úspěšně testuje.

Další část práce detailně popisuje strukturu vyvinutého softwarového balíku, který je složen z velkého počtu stavebních bloků, z nichž pro jádro vlastního programování je použit jazyk Python, kdežto výpočetně náročné solvery jsou napsány v jazyce C. Volbu jazyka Python jsem pochopil tak, že byla předem dána tím, že se používá modul SfePy vyvinutý na Západočeské univerzitě. Jak student sám poměrně obsírně rozebírá, je tato volba poněkud na újmu možné paralelizaci, která je dnes pro výpočty tohoto typu nepostradatelná. Možná by student při obhajobě mohl toto téma znovu otevřít a nastínit, jaké klady a zápory by se daly očekávat, kdyby byl celý projekt napsán v jazyce C++.

Nakonec přichází aplikace vyvinutého softwaru na konkrétní problém, totiž grafenovou membránu, na kterou v jejím středu působí lokální síla. Výpočty krásně ukazují,

jak se grafen prohýbá v závislosti na působící síle. Tento příklad názorně ukazuje možnosti vyvinutého softwaru na systému čítajícím zhruba 40 atomů. Otázkou zůstává, jak velké systémy by ještě byly zvládnutelné.

Z předchozího mého shrnutí je doufám zřejmé, že význam předložené disertace hodnotím výrazně kladně, a to zejména příspěvek k výpočtu Hellmann-Feynmanových sil. Je také zřejmé, že stanovený cíl práce dovedl student až do úspěšného konce, jak dokazuje řešení nového netriviálního problému (deformace grafenu). Vyvinutí spolehlivého programu pro materiálové výpočty vyžaduje mnoho testů a voleb mezi alternativními algoritmy a zde pracoval student s velkou systematičností.

Práce je napsána pečlivě a přehledně, angličtina je – nakolik jsem schopen to posoudit – bezchybná. Matematické detaily jsou dostatečně vysvětleny, bez zabíhání do zbytečných detailů. Poněkud mi scházel hlubší vhled do fyzikální podstaty řešených problémů, vše působí jako čistě matematická úloha. Přitom například lehké a těžké atomy si vyžadují jiný přístup, který by se měl projevit i v algoritmu.

Ačkoli to nebylo cílem práce a nevyčítám to studentovi jako opomenutí, přesto se domnívám, že by bývalo žádoucí alespoň zmínit aproximaci, které se obecně říká „teorie dynamického středního pole“. Je to metoda dnes zcela běžná při popisu materiálů s přechodovými kovy a zmínka o tom, zda by bylo možné ji propojit s algoritmy vyvinutými studentem, by hodnotu práce zvýšilo.

Pokud jde o vlastní publikace studenta, považuji jejich počet a tituly periodik, v nichž vyšly, za zcela odpovídající úrovni vyžadované od doktoranda přistupujícího k obhajobě.

Při obhajobě chci položit následující dotazy, z nichž některé jsem již naznačil v textu.

- 1. Jak velké systémy by software byl ještě schopen zvládnout v přijatelném čase? Dokázal by například vypočítat vlastnosti jednoduchého syntetického molekulárního motoru?*
- 2. Jaké klady a záporny by vznikly, kdyby se místo v Pythonu napsal program v C++? Zlepšila by se výrazně možnost paralelního výpočtu na velkém počtu procesorových jader?*
- 3. Bylo by možné zpracovat i postupy teorie dynamického středního pole?*
- 4. Nakonec otázka, kterou kladu vždy: Kohn-Shamův teorém platí striktně jen v případě, že základní stav není degenerovaný. V přítomnosti spinu elektronu ale tato degenerace vždy existuje. Jak jste se s tímto rozporem vyrovnal?*

Závěrem shrnuji, že předložená práce splňuje všechny požadavky kladené na doktorskou disertační práci. Proto tuto práci **doporučuji** k obhajobě.

V Praze dne 19. prosince 2020

František Slanina

Fyzikální ústav AVČR, v.v.i.