

深層学習を用いたOrbital-Free DFTの新手法開発

山本 舜* 西原 慧径*

Development of a Novel Orbital-Free DFT Method Using Deep Learning

Shun Yamamoto* and Satomichi Nishihara*

材料シミュレーションにおいて最も広く用いられる手法の 1 つである Kohn-Sham 密度汎関数理論 (KS-DFT) は、その高い精度の代償として膨大な計算コストを要し、大規模系への応用が課題である。この課題を解決すべく提案されてきた手法の 1 つとして、Orbital-Free DFT (OF-DFT) がある。これは、KS-DFT における計算コストの主な要因である電子の軌道を使用しないことで計算を大幅に高速化する手法であるが、その精度に大きく寄与する運動エネルギーの厳密な汎関数は知られておらず、実用化には至らなかった。そこで当社は、新規に開発した汎グラフと呼ばれる深層学習モデルを運動エネルギー汎関数に適用して、高速な OF-DFT を実用に耐えうる高い精度で実行する手法を開発した。本稿では、本手法およびその計算機能を実装したソフトウェア Advance/OF-DFT について紹介する。

<https://doi.org/10.69290/j.001224-vol33>

Keywords: Density Functional Theory, Machine Learning Functional, Electronic Structure Analysis

1. KS-DFT と OF-DFT の課題

Kohn-Sham 密度汎関数理論 (KS-DFT) [1]は、系を構成する原子の座標と原子番号から、基底状態の電子密度分布およびトータルエネルギーを計算する手法であり、この結果を用いて様々な物理量を計算することが可能である。例えば、電子密度分布からは材料の極性やスピン状態を知ることができ、トータルエネルギーからは触媒の吸着エネルギーやイオン脱離前後の電極のエネルギー差など種々の安定性指標を得ることができる。さらに、エネルギーの微分から力を計算して、構造最適化計算や分子動力学計算を実行することも可能である。また、それらの結果は実験に十分近い高い精度で得られることから、KS-DFT は材料シミュレーションの現場で広く用いられ続けている。

一方で、KS-DFT の抱える課題は、その膨大な

計算コストにより中~大規模系への適用が困難なことである。KS-DFT では、電子の運動エネルギーの計算のために Kohn-Sham 軌道と呼ばれるものを導入しているが、これにより計算コストが原子数 N の 3 乗に比例、つまり $O(N^3)$ となるのである。系が大きくなるにつれて計算時間は爆発的に増大し、現実的な時間での計算は不可能となる。

この課題を解決するためにこれまで様々な手法が提案されてきたが、その 1 つに、運動エネルギーの計算に Kohn-Sham 軌道ではなく電子密度を直接用いて計算コストを削減する Orbital-Free DFT (OF-DFT) [2]という手法がある。OF-DFT は、計算時間が原子数 N に比例する $O(N)$ の高速な計算を実現したが、一方でその運動エネルギーの厳密な汎関数は知られておらず、近似により開発された種々の運動エネルギー汎関数は、いずれもその精度・汎用性の低さから実用化には至っていない。近年では機械学習を用いた運動エネルギー汎関数の開発[3-5]による精度向上が図られているが、精度および汎用性の面で実用に耐えうる性能には達していない。

*アドバンスソフト株式会社 第 6 事業部

6th Computational Science and Engineering Group,
AdvanceSoft Corporation

2. 汎グラフの開発と OF-DFT への適用

OF-DFT の低い計算コストと機械学習運動エネルギー汎関数による精度向上の可能性に着目した当社は、独自の深層学習アルゴリズムとして汎グラフというモデルを開発し、これを運動エネルギー汎関数に適用して、高速かつ高精度な OF-DFT 計算を実現した。

2.1. 従来の機械学習運動エネルギー汎関数の課題

既報の機械学習運動エネルギー汎関数としては、座標 $\mathbf{r}$ における電子密度 $\rho(\mathbf{r})$ の勾配 $\nabla\rho(\mathbf{r})$ とラプラシアン $\Delta\rho(\mathbf{r})$ を特徴ベクトルに用いる準局所モデル[3,4]や、あらかじめ定義した非局所の特徴量をそれらに加えた非局所モデル[5]が提案されている。しかし、準局所モデルは座標 $\mathbf{r}$ のごく近傍の情報しか持たず、幅広い範囲の様々な材料に使用できるように学習することは困難である。また、非局所モデルは、準局所モデルに比べると座標 $\mathbf{r}$ 周辺の広い範囲の情報を取り入れることができ精度は改善するが、その性能は非局所特徴量の定義に依存するところが大きい。以上のような理由から、いずれのモデルも十分な精度や汎用性が担保されていない。

2.2. 汎グラフの開発

当社では、従来の機械学習運動エネルギー汎関数の課題を解決するために、あらかじめ非局所特徴量などを定義することなく、任意の場の汎関数を再現可能な深層学習モデルの「汎グラフ」という手法を新たに開発した。

汎グラフの開発に当たっては、従来のいわゆるグラフニューラルネットワーク (GNN) 力場から着想を得た。GNN 力場では、グラフ理論を応用して隣接原子間の相互作用を模した学習可能な特徴ベクトルを使用することで成功を遂げていたが、このグラフを連続多変数空間に拡張したものが汎グラフである。

離散化されたデータに対するグラフ畳み込みネットワーク (GCN) において、あるノード i 上の特徴ベクトル $h_{\mu i}$ は、隣接行列 a_{ij} でつながれたノード j の特徴ベクトル $h_{\mu j}$ の畳み込みでアップデート

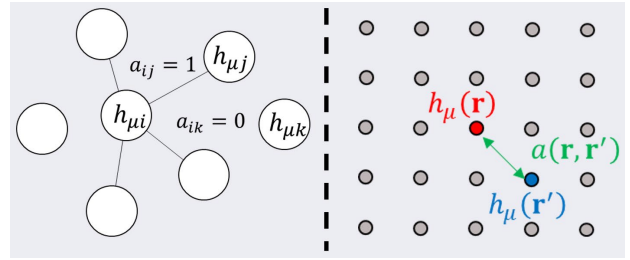


図 1 (左) 離散 GCN の模式図
(右) 連続 GCN (汎グラフ) の模式図

される(図 1 左)。汎グラフでは、この離散化されたノード i, j を連続多変数の座標 $\mathbf{r}, \mathbf{r}'$ に置き換えたのである。隣接行列 a_{ij} を隣接相関 $a(\mathbf{r}, \mathbf{r}')$ に拡張すると、これは座標 $\mathbf{r}'$ から $\mathbf{r}$ に向かうベクトル $\mathbf{R}$ をエッジとしたデルタ関数 $\delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}' - \mathbf{R})$ に相当する(図 1 右)。任意の $\mathbf{R}$ について $a(\mathbf{r}, \mathbf{r}')$ を保持するのは数値計算上不可能であるため、これを有限の幅 κ を持つガウス関数の球平均 $a(|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|)$ に置き換え、種々の $\mathbf{R}_i, \kappa_i$ について $a_i(|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|)$ を用意することで、空間全体をカバーできる。最終的に、汎グラフにおける特徴ベクトル $h_{\mu}^{(n)}$ のアップデートは式 (1, 2) のように定式化できる。ここで、 f_i は適当なカットオフ関数、 σ は活性化関数、 n は畳み込みの回数、 $w_{\nu, \mu i}^{(n)}$ は学習可能な重みである。

$$x_{\mu i}^{(n)}(\mathbf{r}) = f_i \int d\mathbf{r}' a_i(|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|) h_{\mu}^{(n)}(\mathbf{r}') \quad (1)$$

$$h_{\nu}^{(n+1)}(\mathbf{r}) = h_{\nu}^{(n)}(\mathbf{r}) + \sigma \left(\sum_{\mu i} w_{\nu, \mu i}^{(n)} x_{\mu i}^{(n)}(\mathbf{r}) \right) \quad (2)$$

汎グラフは、分野を問わず様々な連続場に対して応用可能であるが、現段階では特に深層学習運動エネルギー汎関数への適用に焦点を当てて開発を進めている。

2.3. 汎グラフの OF-DFT への応用

当社は、汎グラフを OF-DFT に応用すべく、汎グラフによる深層学習運動エネルギー汎関数 AdvanceSoft25(AS25) を定義した。具体的には、汎グラフに入力する特徴ベクトル $h_{\mu}^{(0)}$ は、電子密度の勾配、ラプラシアンおよびそれらの積の 3 成分とし、出力は、従来の解析的な運動エネルギー密

度汎関数の TF モデル $\tau^{\text{TF}}(\mathbf{r})$ と vW モデル $\tau^{\text{vW}}(\mathbf{r})$ [2] それぞれに対する補強因子 $F_{\text{TF}}^{\text{NN}}[\rho](\mathbf{r}), F_{\text{vW}}^{\text{NN}}[\rho](\mathbf{r})$ とした (式 (3))。

$$T_{\text{AS25}}[\rho] = \int d\mathbf{r} \{ \tau^{\text{TF}}(\mathbf{r}) F_{\text{TF}}^{\text{NN}}[\rho](\mathbf{r}) + \tau^{\text{vW}}(\mathbf{r}) F_{\text{vW}}^{\text{NN}}[\rho](\mathbf{r}) \} \quad (3)$$

このように定義した AS25 に対して、KS-DFT によって計算した約 4,000 件の結晶構造の運動エネルギー T とのその汎関数微分 $\delta T / \delta \rho$ を教師データとして与え、学習を行った。KS-DFT はオープンソースの Quantum ESPRESSO[6]を用いて実行している。教師データとする結晶構造は、材料データベースの Material Project[7]からランダムに取得した約 3,000 件の構造とそれをスラブ化したものおよび孤立原子を用いている。また、教師データは学習/テストデータに 9:1 で分割して使用している。

教師データに含まれる元素は半導体・金属を中心とする 27 種に限定されるが、これは OF-DFT で使用可能な擬ポテンシャルの種類が限定的であることに由来する。というのも、OF-DFT では軌道に依存した非局所項の計算ができないため、局所項のみで構成された局所擬ポテンシャルを使用する必要があるが、全元素に対応した局所擬ポテンシャルは未だに開発されていないのである。AS25 の学習の際には 27 元素に対応した OEPP 局所擬ポテンシャル[8]を使用している。なお、第 4 節にて紹介するように、当社では局所擬ポテンシャルを必要としない全元素対応の新手法 AOF-DFT を開発中であり、この課題の解決の目的はすでに立っている。

学習を行った AS25 による推論結果の、学習/テストデータに対する平均絶対誤差 (MAE) を表 1 に示す。また、比較のために、AS25 における畳み込みを 1 回または 0 回として学習を行った非局所/準局所のモデルである NonLocal25(NL25)/SemiLocal25(SL25)の誤差も併せて表 1 に示す。場の深層化を行った AS25 では、非局所/準局所のモデルに比べて明らかに誤差が小さいことが分かる。

表 1 運動エネルギー汎関数モデルの推論誤差

	T の MAE (%)		$\delta T / \delta \rho$ の MAE (%)	
	学習	テスト	学習	テスト
AS25	1.9	1.5	6.9	7.1
NL25	2.7	2.4	11.3	11.6
SL25	4.1	3.8	33.2	34.5

3. Advance/OF-DFT のベンチマークと計算事例

当社では、汎グラフを適用した深層学習運動エネルギー汎関数 AS25 による OF-DFT 計算機能を実装したソフトウェア Advance/OF-DFT を開発した。Advance/OF-DFT における AS25 を用いた OF-DFT 計算が、 $O(N)$ の計算コストを維持しつつ、高い精度と汎用性を持つことを示すベンチマーク結果と応用的な計算事例を紹介する。なお、ベンチマークおよび計算事例のより詳細な内容については、Web 上の解析事例記事[9]をぜひご覧いただきたい。

3.1. Advance/OF-DFT の実装

Advance/OF-DFT は、Python/Pytorch で実装されており、OpenMP 並列および GPU での計算に対応している。材料シミュレーション分野で広く用いられるオープンソースソフトウェアである ASE (Atomic Simulation Environment)[10]の Calculator クラスを継承した AOFDFTCalculator によって、通常の ASE における計算と同様にして、AS25 を用いた OF-DFT 計算が実行可能となっている。AOFDFTCalculator の内部では、オープンソースの OF-DFT ソフトウェアである DFTpy[11]の当社改修版を利用している。ただし、第 4 節にて紹介する、当社が新たに開発した AOF-DFT の実装は DFTpy には依存していない。

3.2. Advance/OF-DFT の精度ベンチマーク

汎グラフを適用した深層学習運動エネルギー汎関数 AS25 が高精度な OF-DFT 計算を実現することを示すために、精度に関するベンチマーク計算を行った。

対象とする構造は、教師データのうちテストデ

ータとして分離した、金属・絶縁体・スラブを含む 129 個の結晶構造である。各構造に対して KS-DFT および OF-DFT を実行し、電子密度分布、トータルエネルギー、形成エネルギー、表面エネルギーの KS-DFT に対する誤差を算出した。KS-DFT には Quantum ESPRESSO を使用している。また、OF-DFT では、Advance/OF-DFT で使用可能な運動エネルギー汎関数のうち、AS25、NL25、SL25 に加え、既存のよく知られている近似モデルである TFAvW、LKT、HC[2]を使用した。

電子密度分布 $\rho(\mathbf{r})$ の予測精度は、以下の式 (4) で定義される、規格化された平均絶対誤差 (Normalized MAE) を用いて評価した。

$$\text{Normalized MAE} = \frac{\sum_i^n |\rho^{\text{OF-DFT}}(\mathbf{r}_i) - \rho^{\text{KS-DFT}}(\mathbf{r}_i)|/n}{\sum_i^n \rho^{\text{KS-DFT}}(\mathbf{r}_i)/n} \quad (4)$$

材料系ごとに平均をとった Normalized MAE を以下の図 2 に示す。

全系 (total) についての結果を見ると、AS25 の Normalized MAE が約 3% と最も小さく、従来のいずれの運動エネルギー汎関数よりも優れた電子密度予測精度を持つことが分かる。また、場の深層化を行っていないモデルの NL25、SL25 と比較すると AS25 の誤差はおおよそ半分以下であり、場の深層化が精度向上に大きく寄与していることが分かる。

従来の運動エネルギー汎関数では、バンドギャ

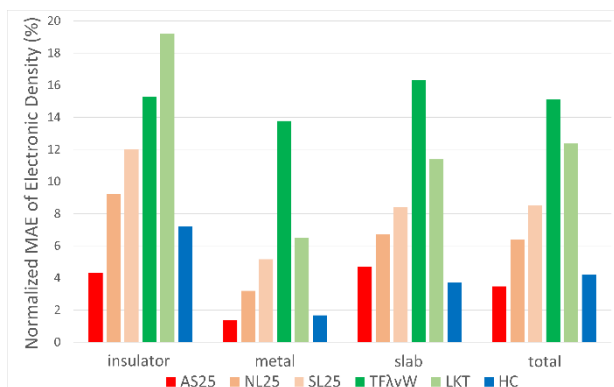


図 2 OF-DFT による予測電子密度分布の Normalized MAE

ップを持つ絶縁体に対しては金属に比べて計算精度が低いことが知られている。実際に今回の結果にもその傾向があり、従来の運動エネルギー汎関数の中で最も優れている HC でも約 7% の誤差がある。一方 AS25 の結果を見ると、同様の傾向はあるものの、絶縁体における誤差は HC のおよそ半分程度になっており、圧倒的に高い精度で電子密度を予測できていることが分かる。

また、金属系についても同様に AS25 が最も高精度である。スラブ系については、AS25 は HC にやや劣るものの、誤差が約 5% という十分に高い精度での電子密度分布予測を達成している。

次に、エネルギーの予測精度を比較するため、1 原子当たりのトータルエネルギーの KS-DFT の結果に対する誤差を運動エネルギー汎関数ごとに算出した。その結果を図 3 の Violin プロットに示す。Violin プロットは、バイオリン型のプロット内の各点が実際のデータ点を表し、バイオリンの横幅がデータの密度を表している。図 3 からは、AS25 が最も高精度なトータルエネルギー予測を達成していることが分かる。また、AS25 による予測トータルエネルギーの、KS-DFT の結果に対する MAE は 2.47×10^{-1} eV/atom である。

さらに、他のエネルギー予測精度の指標として形成エネルギーおよび表面エネルギーを計算した。AS25 による形成エネルギーおよび表面エネルギーの KS-DFT の結果に対する MAE は、それぞれ 3.99×10^{-1} eV、 1.75×10^{-2} eV/Å² となり、いずれも高精度に予測できていることが示された。

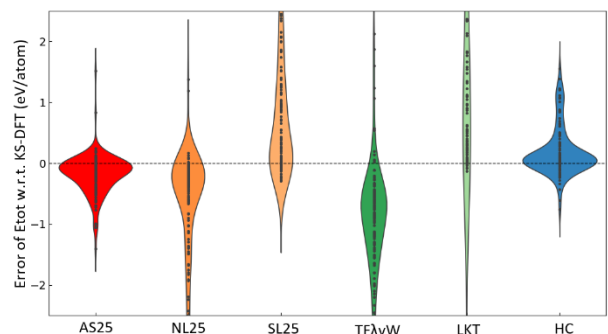


図 3 OF-DFT によるトータルエネルギーの誤差

3.3. Advance/OF-DFT の速度ベンチマーク

深層学習運動エネルギー汎関数 AS25 による OF-DFT 計算が、従来 OF-DFT 計算と同様に $O(N)$ の高速な計算速度を実現することを示すために、速度に関するベンチマークを行った。

対象とする構造は、FCC 構造の Al ユニットセル[7]を等方的にスケーリングしたスーパーセルモデルである。使用した CPU は Intel Xeon Gold 6330 (2.00 GHz, 28 cores)である。また、KS-DFT、TF λ W、LKT および HC においては MPI 並列 (24 プロセス)、AS25 においては OpenMP 並列 (24 スレッド) を用いている。

各スーパーセルについて KS-DFT および OF-DFT を実行して計算時間を計測した結果を図 4 に示す。図 4 の点線は、KS-DFT および OF-DFT それぞれについて、計算時間が原子数の 3 乗および 1 乗に比例するとしてフィッティング曲線である。

KS-DFT では、原子数を増加させると計算時間が $O(N^3)$ で爆発的に増大していることが分かる。フィッティング曲線から計算時間を見積もると、864 原子で約 1 日、5324 原子で 244 日となり、大規模系の計算は実質的に不可能となる。

一方、AS25 では、原子数に対して計算時間は $O(N)$ で線形に増大しており、KS-DFT に比べて圧倒的に高速である。計算時間は 864 原子で約 160 秒、5324 原子で約 900 秒となることが予測され、大規模系での計算を十分短い時間で実行可能である。

3.4. 従来の機械学習モデルと AS25 の比較

汎グラフを適用して深層学習が可能になったことのメリットを示すために、従来の機械学習運

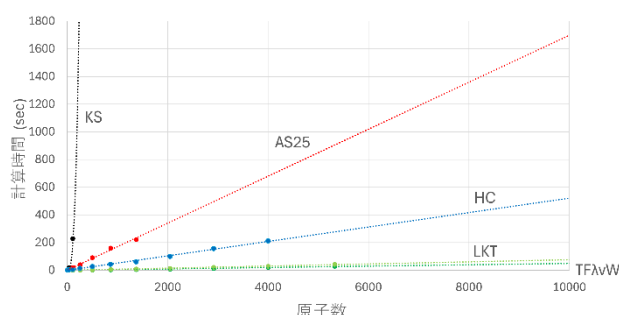


図 4 KS-DFT および OF-DFT の計算時間

動エネルギー汎関数との比較を行った。比較対象とするのは、近年報告されている機械学習運動エネルギー汎関数のうち最も優れているものの 1 つの、Chen らによる CPN5[5]である。

CPN5 は、電子密度の勾配およびラプラシアンに非局所カーネルをかけて積分したものを特徴ベクトルに追加した非局所モデルである。10 種の典型的な立方晶半導体についてのみ学習されており、それらに対応する 10 種の六方晶半導体についての電子密度分布予測精度の検証が行われている。このとき、予測精度の指標としては KS-DFT の結果に対する電子密度の平均絶対相対誤差 (MARE) が用いられている。

CPN5 による 10 種の六方晶半導体についての MARE の平均は 7.59 % であることが報告されている。一方、AS25 にて、同じ 10 種の六方晶半導体[7]について OF-DFT を実行して MARE を算出すると、その平均は 3.61 % となった。つまり、AS25 では CPN5 のおよそ倍の高い精度で電子密度分布予測を実行できている。CPN5 では六方晶半導体に対応する 10 種類のみの構造で学習しているのに対し、AS25 はそれとは無関係に合計約 4,000 件の教師データについて学習しているにもかかわらず、その高い汎用性から、より高精度な計算を実現しているのである。

3.5. Advance/OF-DFT の計算事例

Advance/OF-DFT による応用的な計算事例を 2 点紹介する。

3.5.1. エネルギー-体積曲線と体積弾性率

1 つ目は、エネルギー-体積曲線およびそこから得られる体積弾性率の計算である。エネルギー-体積曲線は、結晶の体積を変化させながらトータルエネルギーを計算し、その値をプロットしたものである。また、体積弾性率は、エネルギー-体積曲線の平衡体積 V_0 におけるエネルギーの 2 階微分 d^2E/dV^2 と平衡体積 V_0 との積として求めることができる。

典型的な半導体材料である Wurtzite 構造の GaP[7] について、Quantum ESPRESSO および

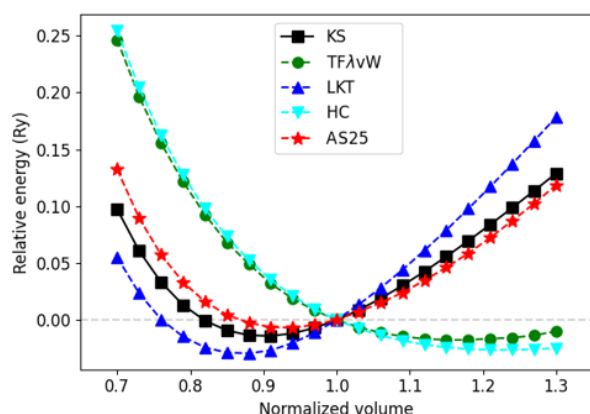


図 5 GaP のエネルギー-体積曲線

Advance/OF-DFT にて計算したエネルギー-体積を図 5 に示す。図 5 の横軸および縦軸は、それぞれ体積を変化させる前の構造を基準として規格化した体積、トータルエネルギーの相対値に対応している。AS25 が最も精度よく KS-DFT のエネルギー-体積曲線を再現できている一方で、従来運動エネルギー汎関数の中で最も高精度なものの 1 つである HC は、KS-DFT の結果を全く再現できていない。これは、精度がパラメータに強く依存し、構造ごとに最適化を行わなければならない HC の汎用性の低さを示しているといえる。AS25 は、このような従来運動エネルギー汎関数の抱える汎用性の低さという課題も解決することができる。

さらに、Manzhos らがベンチマークに用いたデータセット[12]の約 400 構造[7]について、Quantum ESPRESSO および Advance/OF-DFT にて体積弾性率を計算した。AS25 による体積弾性率の KS-DFT の結果に対する MAE および MARE はそれぞれ 3.05 GPa および 8.26% となった。つまり、AS25 では体積弾性率についても定量的に精度よく計算することが可能である。

3.5.2. 吸着による仕事関数変化の計算

2 つ目は、金属表面の仕事関数 ϕ の、分子の吸着前後での変化量 $\Delta\phi$ の計算である。金属の仕事関数は、表面から十分に離れた位置での静電ポテンシャルの値として求められる真空準位 E_{vac} と系のフェルミエネルギー E_F との差分により得られる。軌

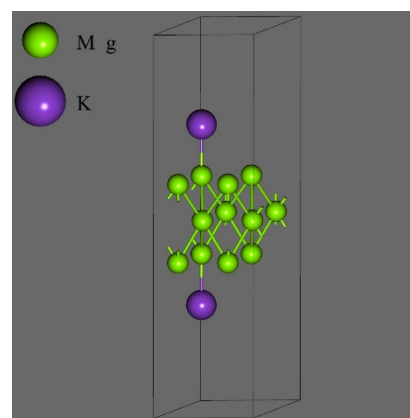


図 6 Mg(0001)/K 吸着モデル

表 2 Mg および Mg/K の仕事関数 ϕ とその変化 $\Delta\phi$

	$\phi(\text{Mg})$ (eV)	$\phi(\text{Mg/K})$ (eV)	$\Delta\phi$ (eV)
KS	3.762	2.111	-1.650
AS25	3.804	2.058	-1.746
TFLvW	3.236	2.228	-1.008
LKT	4.673	2.424	-2.249
HC	3.653	1.577	-2.076

道を用いない OF-DFT では E_F を直接的には計算できないが、電荷のドーピングは可能なため、電子数 N を変化させたときのトータルエネルギー E の変化量、つまりエネルギーの電子数微分で E_F を計算することができる。

HCP 構造の Mg の(0001)スラブモデル (図 6) における K 原子吸着前後の仕事関数とその変化量を、Quantum ESPRESSO および Advance/OF-DFT にて計算した結果を表 2 に示す。AS25 は、Mg および Mg/K の仕事関数 ϕ 、そしてその変化量 $\Delta\phi$ の全てにおいて、誤差が 0.1 eV 以下という最も高い精度で KS-DFT の結果を再現している。OF-DFT では電子密度を用いるからこそ、電荷のドーピングによってフェルミエネルギー E_F や仕事関数などの物理量が計算可能であり、これは電子密度の情報を持たない GNN 力場にはない強みである。

4. より汎用的な AOF-DFT の開発

2.3 節で述べたように、一般に OF-DFT で使用可能な擬ポテンシャルは、対応元素範囲の狭い局所擬ポテンシャルであることから、その汎用性の

低さも課題であった。この課題を解決するために、当社では新たに Atomic Orbital Facilitated (AOF-) DFT という新手法の開発を行っている。AOF-DFT では、原子軌道を用いてブロック対角化された密度行列にて系の電子状態を規定しつつ、運動エネルギーについては OF-DFT と同様に密度汎関数として扱う。このようにして定義された AOF-DFT では、OF-DFT と同様に $O(N)$ での計算速度を実現しつつ、各原子に局在化した密度行列を用いることで、非局所擬ポテンシャルの非局所項の計算が可能となる。つまり、従来の KS-DFT で使用されていたノルム保存非局所擬ポテンシャルがそのまま使用可能となり、全元素に適用可能な汎用性を獲得したのである。もちろん、汎グラフを適用した深層学習運動エネルギー汎関数を使用可能であり、計算コスト・計算精度・汎用性の全てにおいて優れた手法となっている。

AOF-DFT は既に Advance/OF-DFT に実装済みであり、AS25 に対してファインチューニングを行ったモデルを用いて、スラブモデルの分子吸着エネルギー等を高速・高精度に計算可能であることを検証済みである。なお、Advance/OF-DFT では、オープンソースの KS-DFT ソフトウェアである OpenMX[13]にて利用可能な擬原子軌道および擬ポテンシャルに対応している。

現在では、全元素を含む大量の教師データにて新たな深層学習運動エネルギー汎関数の学習を行っており、このモデルが完成すれば、ファインチューニングなしにどんな材料系についても AOF-DFT を実行可能となることが期待される。

5. まとめ

電子状態解析を伴う材料シミュレーションにおいて広く用いられる KS-DFT には、膨大な計算コストという課題があり、その計算コストを低減するために提案された OF-DFT はその精度の低さに課題があった。OF-DFT の低い精度の要因である運動エネルギー汎関数を機械学習モデルによって代替する近年の研究も、実用化に耐えうる性能には達していない。当社ではこの状況を打開するべく、汎グラフという連続多変数の場に対して

も深層学習が可能な機械学習モデルを新たに開発し、これを独自の運動エネルギー汎関数 AS25 に適用した。AS25 を実装したソフトウェア Advance/OF-DFT によって、 $O(N)$ の低い計算コストのもとで、実用に耐えうる高い精度での OF-DFT 計算を実現したのである。

さらに、現在開発中の AOF-DFT では、OF-DFT の計算可能元素の制限を取り除き、深層学習運動エネルギー汎関数が全元素に適用可能となった。深層学習により獲得した高い汎用性から、単一のモデルで任意の材料系についての電子状態解析が可能となることが期待できる。

参考文献

- [1] W.Kohn and L.J.Sham *Phys. Rev.* **140** A1133 (1965)
- [2] Xu Q *et al. WIREs Comput Mol Sci.* 2024;14(3):e1724.
- [3] F.Imoto *et al. Phys. Rev. Research* **3**, 033198 (2021)
- [4] Johann Lüder *et al. 2024 Electron. Struct.* **6** 045002
- [5] Liang Sun and Mohan Chen 2024 *Electron. Struct.* **6** 045006
- [6] Giannozzi *et al., J. Phys.: Condens. Matter* **21**, 395502 (2009)
- [7] <https://next-gen.materialsproject.org>
- [8] Mi W *et al. J. Chem. Phys.* **144**, 134108 (2016)
- [9] <http://case.advancesoft.jp>
- [10] Ask Hjorth Larsen *et al. 2017 J. Phys.: Condens. Matter* **29** 273002
- [11] Shao X *et al. WIREs Comput Mol Sci.* 2021;11:e1482.
- [12] Sergei Manzhos *et al. 2025 Mach. Learn.: Sci. Technol.* **6** 035002
- [13] T. Ozaki and H. Kino, *Phys. Rev. B* **69**, 195113 (2004)

※ 技術情報誌アドバンスシミュレーションは、それぞれの文献タイトルの下に記載した DOI から、PDF ファイル（カラー版）がダウンロードできます。また、本雑誌に記載された文献は、発行後に、JDREAMIII（日本最大級の科学技術文献情報データベース）に登録されます。