

DCDFTBMD

Divide-and-Conquer Density Functional Tight-Binding Molecular Dynamics

ユーザーマニュアル

バージョン 2.0

2019年12月

Nakai Group

Department of Chemistry and Biochemistry,

School of Advanced Science and Engineering, Waseda University

概要

DCDFTBMD は、分割統治型密度汎関数強束縛 (DC-DFTB) 法に基づく量子分子動力学 (MD) シミュレーションを実行するためのプログラムである。DC-DFTB 計算は線形に近いスケーリングを達成し、大規模分子の取り扱いに適している。また、MPIとOpenMPを用いたハイブリッド並列実装により、高速な量子MDシミュレーションが可能である。さらに、本プログラムは、プロパティ計算、構造最適化計算、および振動数計算の機能を持つ。

DCDFTBMDウェブサイト

開発背景、ダウンロード、マニュアル、および論文一覧を含むDCDFTBMDに関する一般的な情報は、以下のウェブサイトをご参照ください。

<http://www.chem.waseda.ac.jp/dcdftbmd/>

更新履歴

バージョン2.0での機能強化

- メタダイナミクス計算
- Quick-minあるいはFIRE法による構造最適化
- LSQ法による初期Mulliken電荷予測
- 数値微分によるHessian計算の中断と再開
- 数値微分によるエネルギー勾配計算
- 拡張パラメータファイルとf電子の取り扱い
- SCC計算におけるDFTB+U補正
- SCC計算におけるonsite補正
- D3H5法のF原子への拡張

以下の機能は、MPI/OpenMP版のみ利用可能

- MPI通信を用いたBroyden法
- Orbitally resolved SCC計算の高速化
- Orbitally resolved SCC計算におけるspline補間法

バージョン1.0からのデフォルト設定の変更

- 温度一定MD計算における温度の許容振れ幅
変更前: 100 K → 変更後: 10000 K
- DFTB電荷非依存項の微分計算における数値微分刻み幅
変更前: 固定値 (0.01 atomic unit) → 変更後: オプション化
- D3のHessian計算における数値微分刻み幅
変更前: 固定値 (0.0001 atomic unit) → 変更後: オプション化
- Damped γ -function計算におけるH原子識別のための参照Hubbard値
変更前: 固定値 (0.4195 atomic unit) → 変更後: オプション化

以下の変更は、serial, OpenMP版のみ適用

- 中間データに対するディスクI/Oの使用の無効化

バージョン1.0からの不具合修正

- DFTB3計算における原子エネルギー分割
- 開殻系における全原子中性とみなす初期電荷推測

以下の修正は、MPI/OpenMP版のみ適用

- Orbitally resolved SCC計算におけるHubbard derivativeパラメータ値の確認

目次

1	DCDFTBMDの入力	1
1.1	Keywordセクション	2
1.1.1	概要	2
1.1.2	SCC	3
	基本設定	3
	電荷密度混合	3
	初期電荷推測	4
	固有値問題ソルバー	4
	3次補正	5
	修正γ関数	5
	開殻系とスピン分極補正	6
	外場効果	6
	DFTB+U補正	7
	Onsite補正	7
	電子プロパティ評価	7
	MPI/OpenMP版のみの追加オプション	8
1.1.3	NCC	10
	固有値問題ソルバー	10
	開殻系	10
	電子プロパティ評価	10
1.1.4	DC	11
	基本設定	11
	詳細オプション	11
	MPI/OpenMP版のみの追加オプション	12
1.1.5	DISP/DISPERSION	14
	基本設定	14
	Grimme's DFT-D2の詳細オプション	15

	<u>Slater-Kirkwoodの詳細オプション</u>	15
	<u>Lennard-Jonesの詳細オプション</u>	15
	<u>Grimme's DFT-D3の詳細オプション</u>	15
	<u>Řezáč's D3H4の詳細オプション</u>	16
	<u>DFT-ulqの詳細オプション</u>	17
	<u>dDMCの詳細オプション</u>	17
	<u>Řezáč's D3H5の詳細オプション</u>	17
	<u>Kubillus's D3Xの詳細オプション</u>	18
	<u>振動数計算に対する詳細オプション</u>	19
	<u>MPI/OpenMP版のみの追加オプション</u>	19
1.1.6	<u>PBC</u>	21
	<u>基本設定</u>	21
	<u>Ewald和の詳細オプション</u>	21
	<u>多重極展開の詳細オプション</u>	22
	<u>MPI/OpenMP版のみの追加オプション</u>	22
1.1.7	<u>OPT/OPTIMIZE</u>	23
	<u>基本設定</u>	23
	<u>制約付き最適化</u>	24
	<u>格子ベクトル最適化</u>	24
	<u>SCC収束の高速化</u>	25
	<u>BFGSの詳細オプション</u>	25
	<u>Steepest descentの詳細オプション</u>	25
	<u>Conjugate gradientの詳細オプション</u>	26
	<u>Quick-minの詳細オプション</u>	26
	<u>FIREの詳細オプション</u>	26
1.1.8	<u>FREQ/FREQUENCY</u>	27
	<u>基本設定</u>	27
	<u>詳細オプション</u>	28
	<u>MPI/OpenMP版のみの追加オプション</u>	29
1.1.9	<u>MD</u>	30

<u>基本設定</u>	30
<u>エネルギー一定アンサンブル</u>	30
<u>温度一定アンサンブル</u>	31
<u>温度制御の詳細オプション</u>	32
<u>圧力一定アンサンブル</u>	32
<u>圧力制御の詳細オプション</u>	33
<u>乱数生成</u>	33
<u>ソフトポテンシャル</u>	34
<u>RATTLE法を用いた拘束動力学</u>	36
<u>SCC収束の高速化</u>	36
<u>アニーリング</u>	37
<u>メタダイナミクス</u>	37
<u>メタダイナミクスの詳細オプション</u>	38
1.1.10 <u>MISC</u>	40
<u>追加解析とプロパティ評価</u>	40
<u>グローバルオプション</u>	41
<u>Serial, OpenMP版のみの追加オプション</u>	42
1.2 <u>Titleセクション</u>	43
1.3 <u>Parameterセクション</u>	44
1.3.1 <u>概要</u>	44
1.3.2 <u>定数パラメータの追加指定</u>	45
1.3.3 <u>定数パラメータ追加指定ファイルの形式</u>	47
<u>スピン定数ファイル</u>	47
<u>U-Jパラメータファイル</u>	47
<u>Onsiteパラメータファイル</u>	48
<u>Slater-Kirkwood分散力補正用パラメータファイル</u>	48
<u>Lennard-Jones分散力補正用パラメータファイル</u>	49
1.4 <u>Geometryセクション</u>	50

1.4.1	概要	50
1.4.2	追加情報の指定	52
1.4.3	DC-DFTBにおける部分系の手動指定	53
1.5	補助インプットファイル	54
1.5.1	バイナリ形式ファイル	54
1.5.2	ASCII形式ファイル	56
	SCC計算における初期電荷の読み込み	56
	振動数計算におけるHessian行列の読み込み	58
	MD計算における初期速度の読み込み	58
	RATTLE法における結合距離拘束の手動指定	59
	アニーリングにおける温度スケジュールの設定	60
	メタダイナミクスにおけるCVの設定	61
	メタダイナミクスにおけるバイアスポテンシャルの読み込み	74
	メタダイナミクスにおけるポテンシャル障壁の設定	75
2	DCDFTBMDの実行	76
3	DCDFTBMDの出力	77
3.1	標準アウトプットファイル	77
3.2	詳細データファイル	80
3.3	その他の出力	85
3.3.1	DFTB計算における出力	85
3.3.2	振動数計算における出力	86
3.3.3	MD計算における出力	87
3.3.4	メタダイナミクスにおける出力	89
	参考文献	91

1 DCDFTBMDの入力

DCDFTBMDの実行には、インプットファイルとDFTBのパラメータ (Slater-Koster ファイル) が必要である。インプットファイルは、“dftb.inp” をデフォルトのファイル名とし、主として以下の4つのセクションから構成される。

- Keywordセクション: 計算条件の指定 ([1.1節](#))
- Titleセクション: 計算についてのコメントを記述 ([1.2節](#))
- Parameterセクション: DFTBパラメータの指定 ([1.3節](#))
- Geometryセクション: 分子構造の指定 ([1.4節](#))

各セクションの終わりには空行が挿入される (本マニュアルでは、記号`␣`で示す)。以下は、水分子に対するSCC-DFTBエネルギー一点計算のインプットファイルの例である。

SCC=TRUE_DC=FALSE␣	Keywordセクション
␣	
TITLE␣	Titleセクション
␣	
2␣	Parameterセクション
O_2␣	
oo.spl_oh.spl␣	
H_1␣	
ho.spl_hh.spl␣	
␣	
3_0_1␣	Geometryセクション
O _ 0.06275391_ 0.06275391_ 0.00000000␣	
H _ 1.01910555_ -0.08185946_ 0.00000000␣	
H _ -0.08185946_ 1.01910555_ 0.00000000␣	
␣	

DC計算で系を手動分割する場合は、Geometryセクションの後に追加の情報を入力する ([1.4.3節](#)を参照)。空白領域 (本マニュアルでは、記号`␣`で示す) は、半角スペースで入力する必要がある (**タブは不可**)。

1.1 Keywordセクション

1.1.1 概要

```
SCC=TRUE_DC=FALSE.↓
```

SCC・DCキーワードの有効化・無効化

この例では、1行に2つのキーワードが指定される。以下のように、2行に分けた指定も可能である。

```
SCC=TRUE.↓
```

SCCキーワードの有効化

```
DC=FALSE.↓
```

DCキーワードの無効化

現在利用可能なキーワードは以降の節で説明される。いずれのキーワードも未指定の場合、SCCとDCのキーワードが有効化される。その他のキーワードは以下の形式で有効化できる。

```
keyword=TRUE.↓
```

この指定方法では、波かっこ内に記述されたデフォルト値が各オプションに用いられる。いくつかのキーワードは、計算条件を指定するためのオプションをもつ。丸かっこ内の斜体での記述は、オプションのデータ型を表す。オプションは、以下の形式で指定できる。

```
keyword=(option1=value1_option2=value2_...)↓
```

option1・option2を1行で指定

```
keyword=(option1=value1)↓
```

option1・option2を2行に分けて

```
keyword=(option2=value2_...)↓
```

指定

オプションが赤字もしくは青字で記述されている場合、そのオプションはserial, OpenMP版もしくはMPI/OpenMP版でのみ機能する。

1.1.2 SCC

SCCキーワードは、SCC計算 (Mulliken電荷を自己無撞着に決定) するか否かを指定する。既に記述した通り、デフォルトはSCC=TRUEである。すなわち、SCC-DFTB (DFTB2) [1] 計算が実行される。

基本設定

- MAXITER (*integer*) {200}
SCCサイクルの最大数
- ENERGYCONV/ECONV (*real*) {1.0e-09}
エネルギー変化の収束条件 (Hartree)
- DENSITYCONV/DCONV (*real*) {1.0e-06}
密度変化の収束条件 (atomic unit)

電荷密度混合

- MIXER (*integer*) {1}
電荷密度混合法
解析的Hessian計算におけるcoupled perturbed DFTB計算ではBroyden法を使用
 - 1: Modified Broyden [2]
 - 2: Simple mixing
 - 3: Modified Anderson [3]
 - 4: DIIS [4]
- ALMIX (*real*) {2.0e-01}
電荷密度混合割合
0より大きく1以下の値を指定
- BROYITER/MAXBROYDEN (*integer*) {70}
Broyden法による電荷密度混合の最大数
- NGEN (*integer*) {4}
Anderson, DIIS法を開始するサイクル数
この値に到達するまではsimple mixingを使用

初期電荷推測

- READCHARGE (*method*) {NONE}
電荷密度ファイルの読み込み
 - NONE: 読み込みなし (価電子数から電荷密度を決定)
 - BINARY: 計算時に生成される "chrgfile" ファイルの使用
ファイルが見つからない場合は価電子数から電荷密度を決定
 - ASCII: "charge.dat" ファイルによる手動指定 (形式は[1.5.2節](#)を参照)
ファイルが見つからない場合は価電子数から電荷密度を決定
- ZEROCHARGE (*logical*) {FALSE}
SCC計算の初期電荷を常に中性原子の値に指定
ZEROCHARGE=FALSEの場合、前ステップで収束した電荷を初期電荷に使用

固有値問題ソルバー

- SOLVER (*integer*) {1}
Hamiltonian行列に対する固有値と固有ベクトルの計算 (対角化) 法
 - 1: DSYGVD
 - 2: DSYGV
- PSEUDODIAG/PDIAG (*logical*) {FALSE}
擬対角化 [\[5\]](#)
SCC収束後に通常の対角化を一度実行
- PDIAGTHRESH (*real*) {1.0e-02}
擬対角化を開始する密度変化の閾値
- PDIAGKAPPA (*real*) {4.0e-02}
擬対角化におけるパラメータ

3次補正

- THIRDDIAG (*logical*) {FALSE}
SCC Hamiltonianに対する3次補正 (対角成分のみ) [6]
Hubbard derivativeをParameterセクションに指定 ([1.3.2節](#)を参照)
- THIRDFULL (*logical*) {FALSE}
SCC Hamiltonianに対する3次補正 [7]
Hubbard derivativeをParameterセクションに指定 ([1.3.2節](#)を参照)
DFTB3モデル [7] では、DAMPXH=TRUEを追加指定

修正γ関数

- DAMPXH (*logical*) {FALSE}
X-Hペアに対するSCC相互作用の短距離でのダンピング [6-8]
- DAMPXHZETA (*real*) {4.0e+00}
DAMPXH=TRUEでのダンピング関数を制御するパラメータ
- DAMPXHREFU (*real*) {4.195e-01}
DAMPXH=TRUEにおけるH原子識別のための参照Hubbard値
- UDERIVGAUSS (*logical*) {FALSE}
THIRDDIAG=TRUEにおけるガウス関数によるHubbard derivativeへの
電荷依存項の導入 [9]
- UDERIVGAUSSD0 (*real*) {-9.0e-02}
UDERIVGAUSS=TRUEにおけるガウス関数中のパラメータ (高さ)
- UDERIVGAUSSG0 (*real*) {1.61e+01}
UDERIVGAUSS=TRUEにおけるガウス関数中のパラメータ (幅)
- UDERIVGAUSSQ0 (*real*) {7.5e-01}
UDERIVGAUSS=TRUEにおけるガウス関数中のパラメータ (中心位置)

- GAMMASPLINE (*logical*) {FALSE}
3次spline補間を用いたSCC相互作用の短距離項の計算 (詳細は参考文献 [10] を参照)
MPI/OpenMP版では、RUNTYPE=SHELL0との組み合わせ不可
- GAMMASPLINEGRID (*real*) {4.0e-02}
GAMMASPLINE=TRUEにおけるグリッド点の間隔 (atomic unit)

開殻系とスピン分極補正

- SPIN (*logical*) {FALSE}
スピン分極補正の適用 [11, 12]
スピン定数を含むファイルをParameterセクションに指定 ([1.3.2](#), [1.3.3節](#)を参照)
- SPINRELAX (*logical*) {FALSE}
スピン分極における全スピンの最適化
- NELECTHRESH (*real*) {1.0e-06}
SPINRELAX=TRUEにおける全電子数保存の閾値
- UNPAIREDELEC (*real*) {0.0e+00}
不対電子数 (正の実数で指定可能)
正の値の場合はGeometryセクションで指定されたスピン多重度を棄却 ([1.4.1節](#)を参照)
- RESTRICT (*logical*) {FALSE}
制限開殻アプローチによる二重項の計算
RESTRICT=FALSEは非制限開殻アプローチによる計算

外場効果

- POINTCHARGE (*logical*) {FALSE}
点電荷の導入
点電荷の座標と値は原子座標の後に "PC" から始まる行で指定 ([1.4.1節](#)を参照)

- NUMPC (*integer*) {0}
点電荷の導入数
- EFIELD (*logical*) {FALSE}
外部静電場の導入
クラスターモデルのみ計算可能
電場ベクトルは原子座標の後に “EF” から始まる行で指定 ([1.4.1節](#)を参照)

DFTB+U補正

- PLUSU (*logical*) {FALSE}
DFTB+U補正の適用 [[13](#)]
U-Jパラメータを含むファイルをParameterセクションに指定 ([1.3.2](#), [1.3.3節](#)を参照)
- PLUSUTYPE (*integer*) {1}
DFTB+U補正の方法
 - 1: Fully localized limit (FLL)
 - 2: Pseudo self-interaction correction (pSIC)

Onsite補正

- ONSITE (*logical*) {FALSE}
Onsite補正の適用 [[14](#)]
Onsiteパラメータを含むファイルをParameterセクションに指定 ([1.3.2](#), [1.3.3節](#)を参照)
- STOREBLOCKPOP (*logical*) {TRUE}
PLUSU=TRUE, ONSITE=TRUEで収束した電荷密度をメモリに格納

電子プロパティ評価

- MAYER (*logical*) {FALSE}
Mayer結合次数の解析 [[15](#)]

- **CM3** (*logical*) {FALSE}
CM3電荷の計算 [\[16, 17\]](#)
- **ORBITALPOP/ORBPOP** (*logical*) {FALSE}
Mulliken密度解析の結果を各原子minimal basis毎に出力
- **POLAR** (*logical*) {FALSE}
外部静電場を用いた双極子モーメントと静的分極率計算
クラスターモデルのみ計算可能
- **POLEFSTR** (*real*) {2.0e-03}
POLAR=TRUEにおける外部静電場の強さ

MPI/OpenMP版のみの追加オプション

- **RUNTYPE** (*method*) {ATOM}
DFTB計算の解き方のベース
Serial, OpenMP版はRUNTYPE=ATOMに相当
 - **SHELLO**: 原子価軌道
THIRDFULL=TRUE, THIRDDIAG=TRUEの指定不可
 - **SHELL**: 原子価軌道
THIRDDIAG=TRUEの指定不可
 - **ATOM**: 原子
ORSCC=TRUEの指定不可
- **ORSCC** (*logical*) {FALSE}
異なる軌道角運動量に対して異なるHubbard/パラメータを使用 [\[12, 18\]](#)
RUNTYPE=SHELLのみ指定可
- **BROYPARALLEL** (*logical*) {FALSE}
Broyden法に対するMPI通信の使用
- **MIXERSAVEMEMORY** (*logical*) {FALSE}
RUNTYPE=ATOMかつ閉殻系の計算において電荷密度混合計算時のメモリ使用量を削減

- **GSSAVEMEMORY** (*logical*) {FALSE}
GAMMASPLINE=TRUEかつ周期系の計算においてSCC相互作用の短距離項計算時のメモリ使用量を削減
- **GSDOMAIN** (*logical*) {FALSE}
GAMMASPLINE=TRUEにおける連結リスト [19, 20] を用いたSCC相互作用の短距離項の計算
- **GSDOMAINBLOCKXYZ/GSDOMAINBLOCK** (*integer*) {5}
GSDOMAIN=TRUEで系をセル分割する際のx, y, z方向のブロック数
- **GSDOMAINBLOCKX** (*integer*) {5}
GSDOMAIN=TRUEで系をセル分割する際のx方向のブロック数
- **GSDOMAINBLOCKY** (*integer*) {5}
GSDOMAIN=TRUEで系をセル分割する際のy方向のブロック数
- **GSDOMAINBLOCKZ** (*integer*) {5}
GSDOMAIN=TRUEで系をセル分割する際のz方向のブロック数
- **GSDOMAINNEIGHBOR** (*integer*) {1}
GSDOMAIN=TRUEでリンクするセルの隣接参照数

1.1.3 NCC

NCCキーワードは、non-SCC (NCC-DFTBあるいはDFTB1) [\[21, 22\]](#) 計算するか否かを指定する。NCC=TRUEはSCC=FALSEによる指定も可能である。

固有値問題ソルバー

- SOLVER (*integer*) {1}
Hamiltonian行列に対する固有値と固有ベクトルの計算 (対角化) 法
 - 1: DSYGVD
 - 2: DSYGV

開殻系

- RESTRICT (*logical*) {FALSE}
制限開殻アプローチによる二重項の計算
RESTRICT=FALSEは非制限開殻アプローチによる計算

電子プロパティ評価

- PRINTMULLIKEN (*logical*) {FALSE}
Mulliken電荷密度解析の実行
- MAYER (*logical*) {FALSE}
Mayer結合次数の解析 [\[15\]](#)
PRINTMULLIKEN=TRUEの指定が必要
- CM3 (*logical*) {FALSE}
CM3電荷の計算 [\[16, 17\]](#)
PRINTMULLIKEN=TRUEの指定が必要
DFTB2で用いられるパラメータを計算に使用
- ORBITALPOP/ORBPOP (*logical*) {FALSE}
Mulliken密度解析の結果を各原子minimal basis毎に出力
PRINTMULLIKEN=TRUEの指定が必要

1.1.4 DC

DCキーワードは、分割統治電子状態計算 [\[23, 24\]](#) を適用するか否かを指定する。SCCキーワードと同様、このキーワードは未指定の場合有効化される。DC-DFTB計算を無効化したい場合、DC=FALSEと指定する必要がある。

基本設定

- BETA (*real*) {8.0e+02}
Fermi関数における温度の逆数のパラメータ (atomic unit)
- BUFRAD/BUFFERRADIUS (*real*) {5.0e+00}
球状バッファ領域の半径 (Å)
- SUBTYPE (*method*) {AUTO}
部分系の構築法
 - ATOM: 1原子
 - SPECIFY: 手動指定 ([1.4.3節](#)を参照)
 - SYSTEM: 全原子
 - AUTO: 格子状空間に分割し自動決定
デフォルトは一辺5.0 Åの立方体領域
 - AUTOXH: SUBTYPE=AUTOで自動決定する部分系においてH原子を含む共有結合を切断しないように調整
 - SEMIAUTO: 一部の部分系を手動指定し、残りを自動決定 ([1.4.3節](#)を参照)
 - SEMIAUTOXH: SUBTYPE=SEMIAUTOで自動決定する部分系においてH原子を含む共有結合を切断しないように調整

詳細オプション

- DELTARXYZ/DELTAR (*real*) {5.0e+00}
SUBTYPE=AUTOで分割する際のグリッド一辺の長さ (Å)
- DELTARX (*real*) {5.0e+00}
SUBTYPE=AUTOで分割する際のグリッドのx成分の長さ (Å)

- DELTARY (*real*) {5.0e+00}
SUBTYPE=AUTOで分割する際のグリッドのy成分の長さ (Å)
- DELTARZ (*real*) {5.0e+00}
SUBTYPE=AUTOで分割する際のグリッドのz成分の長さ (Å)
- SUBXHSCALE (*real*) {1.1e+00}
SUBTYPE=AUTOXHとSUBTYPE=SEMIAUTOXHでH原子を含む共有結合を判定する際の共有結合半径 [25] の和のスケールリングファクター
- TRANSCoord (*logical*) {TRUE}
SUBTYPE=AUTO, SUBTYPE=SEMIAUTO, SUBTYPE=AUTOXH, SUBTYPE=SEMIAUTOXHで系を自動分割する際の座標系
 - TRUE: 標準配向に変換
 - FALSE: 入力構造をそのまま使用
- NOFERMI (*logical*) {FALSE}
共通のFermi準位計算を省略

MPI/OpenMP版のみの追加オプション

- FERMITYPE (*method*) {PARALLEL}
Fermi準位計算の方法 (詳細は参考文献 [26] を参照)
 - PARALLEL: CRI (compute-reduce-interpolate) アルゴリズム
 - SERIAL: GSS (gather-sort-solve) アルゴリズム
- DOMAIN (*logical*) {FALSE}
連結リスト [19, 20] を用いた部分系の局在化領域への割り当て
- DOMAINBLOCKXYZ/DOMAINBLOCK (*integer*) {5}
DOMAIN=TRUEで系をセル分割する際のx, y, z方向のブロック数
- DOMAINBLOCKX (*integer*) {5}
DOMAIN=TRUEで系をセル分割する際のx方向のブロック数
- DOMAINBLOCKY (*integer*) {5}
DOMAIN=TRUEで系をセル分割する際のy方向のブロック数

- **DOMAINBLOCKZ** (*integer*) {5}
DOMAIN=TRUEで系をセル分割する際のz方向のブロック数
- **DOMAININDEXTYPE** (*method*) {ATOM}
DOMAIN=TRUEでリンクする粒子の定義
 - **SUBSYSTEM**: 部分系の全構成原子が同一領域に存在する時にインデックスを付与
 - **ATOM**: 全原子についてインデックスを付与
- **DOMAINNEIGHBOR** (*integer*) {1}
DOMAIN=TRUEでリンクするセルの隣接参照数
- **SINGLEPREC** (*logical*) {FALSE}
局在化領域決定における単精度浮動小数点の使用
- **XHDOMAIN** (*logical*) {FALSE}
SUBTYPE=AUTOXHでH原子を含む共有結合の判定に連結リスト [\[19, 20\]](#) を使用
- **XHDOMAINBLOCKXYZ/XHDOMAINBLOCK** (*integer*) {5}
XHDOMAIN=TRUEで系をセル分割する際のx, y, z方向のブロック数
- **XHDOMAINBLOCKX** (*integer*) {5}
XHDOMAIN=TRUEで系をセル分割する際のx方向のブロック数
- **XHDOMAINBLOCKY** (*integer*) {5}
XHDOMAIN=TRUEで系をセル分割する際のy方向のブロック数
- **XHDOMAINBLOCKZ** (*integer*) {5}
XHDOMAIN=TRUEで系をセル分割する際のz方向のブロック数
- **XHDOMAINNEIGHBOR** (*integer*) {1}
XHDOMAIN=TRUEでリンクするセルの隣接参照数

1.1.5 DISP/DISPERSION

DISP/DISPERSIONキーワードは、非共有結合性相互作用 (分散力・水素結合・ハロゲン結合) を経験的に補正するか否かを指定する。

基本設定

- DISPTYPE (*integer*) {1}
非共有結合性相互作用補正法
 - 1: Grimme's DFT-D2 [\[27\]](#)
 - 2: Slater-Kirkwood [\[28\]](#)
計算に必要なパラメータを含むファイルをParameterセクションに指定 ([1.3.2](#), [1.3.3節](#)を参照)
 - 3: Lennard-Jones [\[29\]](#)
デフォルトのLennard-JonesパラメータはUFF力場 [\[30\]](#) の値
READUFF=TRUEによる手動指定も可能
 - 4: Grimme's DFT-D3 (zero-damping) [\[31\]](#)
 - 5: Grimme's DFT-D3(BJ) (Becke and Johnson damping) [\[31\]](#), [\[32\]](#)
 - 6: Řezáč's D3H4 [\[33\]](#)
水素結合を経験的に補正するため、SCCキーワードにおいて
DAMPXH=FALSEの指定を想定 (例えば、参考文献 [\[34\]](#) を参照)
 - 7: DFT-ulg [\[35\]](#)
 - 8: dDMC [\[36\]](#)
 - 9: Řezáč's D3H5 [\[37\]](#)
H5補正はもとのSCC相互作用項を変更するため、SCCキーワードに
おいてDAMPXH=FALSEの指定を想定
NCC=TRUE (あるいはSCC=FALSE) との組み合わせ不可
 - 10: Kubillus's D3X [\[38\]](#)

Grimme's DFT-D2 (DISPTYPE=1)の詳細オプション

- S6 (*real*) {1.0e+00}
Grimme's DFT-D2におけるスケーリングファクター

Slater-Kirkwood (DISPTYPE=2)の詳細オプション

- UPDATESKPARAMS (*logical*) {FALSE}
Slater-Kirkwood分散力パラメータをDFTB計算毎に更新
UPDATESKPARAMS=FALSEの場合、初期構造から得られる値を常に使用

Lennard-Jones (DISPTYPE=3)の詳細オプション

- READUFF (*logical*) {FALSE}
Lennard-Jonesパラメータを手動指定 ([1.3.2](#), [1.3.3節](#)を参照)

Grimme's DFT-D3 (DISPTYPE=4, 5)の詳細オプション

- ZEROS8 (*real*) {6.73e-01}
Grimme's DFT-D3における r^{-8} 項のスケーリングファクター
- ZERORS6 (*real*) {1.235e+00}
Grimme's DFT-D3における減衰関数中のパラメータ
- BJS8 (*real*) {5.883e-01}
Grimme's DFT-D3(BJ)における r^{-8} 項のスケーリングファクター
- BJA1 (*real*) {5.719e-01}
Grimme's DFT-D3(BJ)におけるパラメータ
- BJA2 (*real*) {3.6017e+00}
Grimme's DFT-D3(BJ)におけるパラメータ
- THREEBODY (*logical*) {FALSE}
Grimme's DFT-D3とDFT-D3(BJ)における3体補正項の取り込み

Řezáč's D3H4 (DISPTYPE=6)の詳細オプション

- D3H4S6 (*real*) {1.0e+00}
Řezáč's D3H4におけるD3分散力に対するパラメータ
- D3H4RS6 (*real*) {1.215e+00}
Řezáč's D3H4におけるD3分散力に対するパラメータ
- D3H4ALPHA (*real*) {3.0e+01}
Řezáč's D3H4におけるD3分散力に対するパラメータ
- D3H4SHH (*real*) {3.0e-01}
Řezáč's D3H4におけるH-H反発に対するパラメータ
- D3H4EHH (*real*) {1.431e+01}
Řezáč's D3H4におけるH-H反発に対するパラメータ
- D3H4R0HH (*real*) {2.35e+00}
Řezáč's D3H4におけるH-H反発に対するパラメータ
- D3H4CNN (*real*) {2.01e+00}
Řezáč's D3H4におけるH4補正に対するパラメータ
- D3H4CNO (*real*) {8.0e-01}
Řezáč's D3H4におけるH4補正に対するパラメータ
- D3H4CON (*real*) {2.58e+00}
Řezáč's D3H4におけるH4補正に対するパラメータ
- D3H4COO (*real*) {1.11e+00}
Řezáč's D3H4におけるH4補正に対するパラメータ
- D3H4CWAT (*real*) {1.32e+00}
Řezáč's D3H4におけるH4補正に対するパラメータ
- D3H4CSNHR3 (*real*) {2.33e+00}
Řezáč's D3H4におけるH4補正に対するパラメータ
- D3H4CSCOO (*real*) {1.22e+00}
Řezáč's D3H4におけるH4補正に対するパラメータ

DFT-ulg (DISPTYPE=7)の詳細オプション

- *ULGS (real) {7.012e-01}*
DFT-ulgにおけるパラメータ
デフォルトはPBE汎関数に対する値
- *ULGB (real) {6.966e-01}*
DFT-ulgにおけるパラメータ
デフォルトはPBE汎関数に対する値

dDMC (DISPTYPE=8)の詳細オプション

- *DDMCA (real) {1.018e+00}*
dDMCにおけるパラメータ
- *DDMCB0 (real) {1.857e+00}*
dDMCにおけるパラメータ
- *DDMCS (real) {4.6e+01}*
dDMCにおけるパラメータ

Řezáč's D3H5 (DISPTYPE=9)の詳細オプション

- *D3H5S6 (real) {1.0e+00}*
Řezáč's D3H5におけるD3分散力に対するパラメータ
- *D3H5S8 (real) {4.9e-01}*
Řezáč's D3H5におけるD3分散力に対するパラメータ
- *D3H5RS6 (real) {1.25e+00}*
Řezáč's D3H5におけるD3分散力に対するパラメータ
- *D3H5ALPHA (real) {2.961e+01}*
Řezáč's D3H5におけるD3分散力に対するパラメータ
- *D3H5SHH (real) {3.0e-01}*
Řezáč's D3H5におけるH-H反発に対するパラメータ

- D3H5EHH (*real*) {1.431e+01}
Řezáč's D3H5におけるH-H反発に対するパラメータ
- D3H5R0HH (*real*) {2.35e+01}
Řezáč's D3H5におけるH-H反発に対するパラメータ
- D3H5SR (*real*) {7.14e-01}
Řezáč's D3H5におけるH5補正に対するパラメータ
- D3H5SW (*real*) {2.5e-01}
Řezáč's D3H5におけるH5補正に対するパラメータ
- D3H5KNH (*real*) {1.8e-01}
Řezáč's D3H5におけるH5補正に対するパラメータ
- D3H5KOH (*real*) {6.0e-02}
Řezáč's D3H5におけるH5補正に対するパラメータ
- D3H5KFH (*real*) {6.0e-02}
Řezáč's D3H5におけるH5補正に対するパラメータ
- D3H5KSH (*real*) {2.1e-01}
Řezáč's D3H5におけるH5補正に対するパラメータ

Kubillus's D3X (DISPTYPE=10)の詳細オプション

- D3XS8 (*real*) {3.209e+00}
Kubillus's D3XにおけるD3分散力に対するパラメータ
- D3XA1 (*real*) {7.46e-01}
Kubillus's D3XにおけるD3分散力に対するパラメータ
- D3XA2 (*real*) {4.191e+00}
Kubillus's D3XにおけるD3分散力に対するパラメータ
- D3XC1 (*real*) {7.761e+00}
Kubillus's D3XにおけるX補正に対するパラメータ
- D3XC2 (*real*) {5.0e-02}
Kubillus's D3XにおけるX補正に対するパラメータ

- D3XC3 (*real*) {4.518e+00}
Kubillus's D3XにおけるX補正に対するパラメータ
- D3XDNCL (*real*) {1.526e+00}
Kubillus's D3XにおけるX補正に対するパラメータ
- D3XDNBR (*real*) {1.349e+00}
Kubillus's D3XにおけるX補正に対するパラメータ
- D3XDNI (*real*) {1.521e+00}
Kubillus's D3XにおけるX補正に対するパラメータ
- D3XDOCL (*real*) {1.237e+00}
Kubillus's D3XにおけるX補正に対するパラメータ
- D3XDOBR (*real*) {1.099e+00}
Kubillus's D3XにおけるX補正に対するパラメータ
- D3XDOI (*real*) {1.313e+00}
Kubillus's D3XにおけるX補正に対するパラメータ

振動数計算に対する詳細オプション

- D3STEPSIZE (*real*) {1.0e-04}
解析的 Hessian 計算 (FREQ/FREQUENCY キーワードにおける FREQTYPE=1) で Grimme's DFT-D3 (DISPTYPE=4-6, 9, 10) の解析的1次微分を用いた Hessian 計算における数値微分刻み幅 (atomic unit)

MPI/OpenMP版のみの追加オプション

- H4IDOMAIN (*logical*) {FALSE}
Řezáč's D3H4 (DISPTYPE=6) の H4補正計算で H原子の索引に連結リスト [19, 20] を使用
- H4IDOMAINBLOCKXYZ/H4IDOMAINBLOCK (*integer*) {5}
H4IDOMAIN=TRUEで系をセル分割する際の x, y, z方向のブロック数
- H4IDOMAINBLOCKX (*integer*) {5}
H4IDOMAIN=TRUEで系をセル分割する際の x方向のブロック数

- [H4IDOMAINBLOCKY](#) (*integer*) {5}
H4IDOMAIN=TRUEで系をセル分割する際のy方向のブロック数
- [H4IDOMAINBLOCKZ](#) (*integer*) {5}
H4IDOMAIN=TRUEで系をセル分割する際のz方向のブロック数
- [H4IDOMAINNEIGHBOR](#) (*integer*) {1}
H4IDOMAIN=TRUEでリンクするセルの隣接参照数
- [H4VDOMAIN](#) (*logical*) {FALSE}
Řezáč's D3H4 (DISPTYPE=6) のH4補正計算で原子価の計算に連結リスト [\[19, 20\]](#) を使用
- [H4VDOMAINBLOCKXYZ/H4VDOMAINBLOCK](#) (*integer*) {5}
H4VDOMAIN=TRUEで系をセル分割する際のx, y, z方向のブロック数
- [H4VDOMAINBLOCKX](#) (*integer*) {5}
H4VDOMAIN=TRUEで系をセル分割する際のx方向のブロック数
- [H4VDOMAINBLOCKY](#) (*integer*) {5}
H4VDOMAIN=TRUEで系をセル分割する際のy方向のブロック数
- [H4VDOMAINBLOCKZ](#) (*integer*) {5}
H4VDOMAIN=TRUEで系をセル分割する際のz方向のブロック数
- [H4VDOMAINNEIGHBOR](#) (*integer*) {1}
H4VDOMAIN=TRUEでリンクするセルの隣接参照数

1.1.6 PBC

PBCキーワードは、周期境界条件に関する計算条件を指定する。Geometryセクションで3つの並進ベクトルが検出された場合 (1.4.1節を参照)、系は周期系とみなされ、PBC=TRUEの明記がなくても本キーワードは有効化される。

基本設定

- STRESS (*logical*) {FALSE}
応力テンソルと格子ベクトルの微分計算
- COULOMBTYPE (*integer*) {1}
Coulomb相互作用の計算法
 - 1: Ewald和
 - 2: 多重極展開 [39] (詳細は参考文献 [10] を参照)
以下の制限が存在
 - ✓ 応力テンソル計算は不可 (STRESS=FALSE)
 - ✓ 点電荷ありの計算は不可 (SCC キーワードにおいて POINTCHARGE=FALSE)
 - ✓ 全エネルギーの原子分割解析は不可 (MISCキーワードにおいて PRINTATOME=FALSE)
 - ✓ MPI/OpenMP版で原子価軌道ベースの計算は不可 (SCC キーワードにおいて RUNTYPE=ATOM)
 - ✓ 立方体セルのみ動作確認

Ewald和 (COULOMBTYPE=1)の詳細オプション

- EWALDALPHA (*real*) {0.0e+00}
Ewald和における実空間と逆格子空間の計算割合
0より大きく1より小さい場合、指定した値を (一点計算でのみ) 使用
それ以外の場合、自動決定される値を使用 (デフォルトかつ推奨)
- MAXGAMMA (*integer*) {7}
Ewald和におけるユニットセルの繰り返し回数

多重極展開 (COULOMBTYPE=2)の詳細オプション

- FMMP (*integer*) {8}
多重極展開における展開次数
- FMMN (*integer*) {3}
多重極展開におけるグループ化されるセル数
- FMMK (*integer*) {5}
多重極展開における階層数

MPI/OpenMP版のみの追加オプション

- EWALDSAVEMEMORY (*logical*) {FALSE}
Ewald和逆格子空間計算時のメモリ使用量を削減
計算コストは増加
- EWALDMEMORYGB (*real*) {8.0e+00}
Ewald和逆格子空間計算時に使用する一時配列の最大メモリ使用量 (GB)
指定した値以上のメモリ使用量が見込まれる場合は、
EWALDSAVEMEMORY=FALSEの指定によらずメモリ使用量を削減する
方法で計算を実行
- FMMSAVEMEMORY (*logical*) {FALSE}
多重極展開体球調和関数計算時のメモリ使用量を削減
計算コストは増加

1.1.7 OPT/OPTIMIZE

OPT/OPTIMIZEキーワードは、構造最適化計算を実行するか否かを指定する。

基本設定

- MAXITER (*integer*) {50}
構造最適化サイクルの最大数
- GRADCONV/GCONV (*real*) {1.0e-04}
エネルギー勾配変化の収束条件 (atomic unit)
- OPTTYPE (*integer*) {1}
構造最適化の方法
 - 1: Broyden-Fletcher-Goldfarb-Shanno (BFGS)
 - 2: Steepest descent
 - 3: Conjugate gradient
 - 4: Quick-min [\[40\]](#)
 - 5: Fast inertial relaxation engine (FIRE) [\[41\]](#)
- MAXMOVE (*real*) {3.0e-01}
OPTTYPE=2-5における原子の最大移動サイズ (Å)
- PRINTCOORD (*logical*) {TRUE}
構造最適化各ステップの原子座標を標準アウトプットファイルに出力
PRINTCOORD=FALSEの場合、最終ステップの原子座標のみ標準アウトプットファイルに出力
- PRINTGRAD (*logical*) {TRUE}
構造最適化各ステップのエネルギー勾配を標準アウトプットファイルに出力
PRINTGRAD=FALSEの場合、各ステップの力の最大成分と根二乗平均値のみ標準アウトプットファイルに出力

制約付き最適化

- CONSTRAINT (*logical*) {FALSE}
x, y, z成分に対する制約つき構造最適化 (指定方法は[1.4.2節](#)を参照)

格子ベクトル最適化

- LATTICEOPT (*logical*) {FALSE}
格子ベクトルの最適化
格子ベクトルの最適化 (CONSTRAINT=TRUE) および点電荷の使用 (SCCキーワードにおけるPOINTCHARGE=TRUE in SCC keyword) との組み合わせ不可
OPTTYPE=1 (BFGS) の場合、conjugate gradientのルーチンを使用
- EXTPRESSURE (*real*) {0.0e+00}
格子ベクトル最適化における外圧 (atomic unit)
値が0以外の場合、系のエンタルピー ($E + pV$) を追加出力
- ISOSCALING (*logical*) {FALSE}
等方的なセルサイズ変化による格子ベクトル最適化
FIXANGLE=TRUEと同時指定不可
- FIXANGLE (*logical*) {FALSE}
セルの角度を固定した状態での格子ベクトル最適化
ISOSCALING=TRUEと同時指定不可
- FIXANGLE1 (*logical*) {FALSE}
FIXANGLE=TRUEにおいて1つ目の格子ベクトルを固定
- FIXANGLE2 (*logical*) {FALSE}
FIXANGLE=TRUEにおいて2つ目の格子ベクトルを固定
- FIXANGLE3 (*logical*) {FALSE}
FIXANGLE=TRUEにおいて3つ目の格子ベクトルを固定

- LATTICEONLY (*logical*) {FALSE}
原子座標は固定し格子ベクトルのみ最適化
全ての原子座標後に記号*を指定することでも指定可能 ([1.4.2節](#)を参照)

SCC収束の高速化

- LSMULLIKEN (*logical*) {FALSE}
原子座標の最小二乗フィッティングによるMulliken電荷初期値の予測
[\[42, 43\]](#)
DFTB+U補正 (SCCキーワードにおけるPLUSU=TRUE) およびonsite補正 (SCCキーワードにおけるONSITE=TRUE) を含む場合は非対応
- LSGEN (*integer*) {5}
LSMULLIKEN=TRUEにおけるデータ数の最大値
- LSFITGEOM (*logical*) {FALSE}
LSMULLIKEN=TRUEで過去のステップの原子座標の予測するステップの原子座標への重ね合わせ
クラスターモデルのみ使用可能
本オプションの有効化は不要

BFGS (OPTTYPE=1)の詳細オプション

- BFGSSOLVER (*integer*) {1}
BFGSのHessian行列に対する固有値と固有ベクトルの計算 (対角化) 法
 - 1: DSYEVD
 - 2: DSYEV

Steepest descent (OPTTYPE=2)の詳細オプション

- STEPSIZE/STEPSTDC (*real*) {1.0e+02}
Steepest descentにおける変位を制御するパラメータ (atomic unit)

Conjugate gradient (OPTTYPE=3)の詳細オプション

- STEPCGRATOM (*real*) {1.0e-01}
Conjugate gradientにおける原子位置の変位を制御するパラメータ (atomic unit)
- STEPCGRLATTICE (*real*) {1.0e-01}
Conjugate gradientにおける格子ベクトルの変位を制御するパラメータ (atomic unit)

Quick-min (OPTTYPE=4)の詳細オプション

- DELTATQMIN/DELTASTEPQMIN (*real*) {1.0e-15}
Quick-minにおける時間刻み (s)

FIRE (OPTTYPE=5)の詳細オプション

- DELTATFIRE/DELTASTEPFIRE (*real*) {1.0e-15}
FIREにおける時間刻み (s)
- FIREMAXDELTA/FIREMAXDELTASTEP (*real*) {1.0e-14}
FIREにおける最大時間刻み (s)
- FIRENMIN (*integer*) {5}
FIREにおけるパラメータ
- FIREFINC (*real*) {1.1e+00}
FIREにおけるパラメータ
- FIREFDEC (*real*) {5.0e-01}
FIREにおけるパラメータ
- FIREALPHASTART (*real*) {1.0e-01}
FIREにおけるパラメータ
- FIREFALPHA (*real*) {9.9e-01}
FIREにおけるパラメータ

1.1.8 FREQ/FREQUENCY

FREQ/FREQUENCYキーワードは、調和振動解析を実行するか否かを指定する。構造最適化計算 (OPT=TRUEあるいはOPTIMIZE=TRUE) と同時に有効化された場合、構造最適化最終構造に対する振動数計算がなされる。この計算は、クラスターモデルのみ実行可能である。

基本設定

- FREQTYPE (*integer*) {1}
Hessian行列の構築法
 - 1: 解析的2次微分
以下の場合には使用不可
 - ✓ 開殻系の計算
 - ✓ 点電荷ありの計算 (SCC キーワードにおいて POINTCHARGE=TRUE)
 - ✓ 3次spline補間を用いたSCC相互作用の短距離項の計算 (SCC キーワードにおいてGAMMASPLINE=TRUE)
 - ✓ DFTB+U 補正を含む計算 (SCC キーワードにおいて PLUSU=TRUE)
 - ✓ Onsite 補正を含む計算 (SCC キーワードにおいて ONSITE=TRUE)
 - ✓ MPI/OpenMP版で原子価軌道ベースの計算 (SCCキーワードにおいてRUNTYPE=SHELL, SHELL0とORSCC=TRUE)
 - 2: 1次微分の数値微分
- STEPSIZE (*real*) {1.0e-04}
FREQTYPE=2における数値微分刻み幅 (atomic unit)
- PRINTHESS (*logical*) {FALSE}
Hessian行列の下三角部分を標準アウトプットファイルに出力
リスタートファイル "**restart_hess**" の出力
- PRECFORMAT (*logical*) {FALSE}
通常出力に加えて高精度フォーマットでも結果を出力

- READHESS (*method*) {NONE}
Hessian行列ファイルの読み込み
 - NONE: 読み込みなし (解析的あるいは数值的に計算)
 - BINARY: PRINTHESS=TRUEで生成される “restart_hess” ファイルの使用
 - ASCII: “hess.dat” ファイルによる手動指定 (形式は[1.5.2節](#)を参照)

詳細オプション

- HESSSOLVER (*integer*) {1}
Hessian行列に対する固有値と固有ベクトルの計算 (対角化) 法
 - 1: DSYEVD
 - 2: DSYEV
- CPCONV (*real*) {1.0e-06}
SCCを用いた解析的Hessian計算におけるcoupled perturbed DFTB計算の収束条件 (atomic unit)
- EFSTR (*real*) {2.0e-03}
SCCを用いたIR, Raman強度計算における外部静電場の強さ
- PROJECTION (*logical*) {TRUE}
並進・回転モードを振動解析から分離して計算
PROJECTION=FALSEの場合、Hessian行列をそのまま対角化
- READISOTOPE (*logical*) {FALSE}
同位体質量の指定 (詳細は[1.4.2節](#)を参照)
- THERMOTEMP (*real*) {2.9815e+02}
熱化学解析における温度 (K)
- THERMOPRES (*real*) {1.0e+00}
熱化学解析における圧力 (atm)
- THERMOSCALE (*real*) {1.0e+00}
熱化学解析における振動数のスケールリングファクター

- INTERRUPTCP (*logical*) {FALSE}
SCCを用いた解析的Hessian計算におけるcoupled perturbed DFTB計算の
中断
部分的に構築されたHessian行列は "**hess.dat**" ファイルに出力
- CPSTART (*integer*) {1}
INTERRUPTCP=TRUEにおける部分的なHessian行列構築を開始する原
子インデックス
- CPEND (*integer*) {1}
INTERRUPTCP=TRUEにおける部分的なHessian行列構築を終了する原
子インデックス
- INTERRUPTSEMINUM (*logical*) {FALSE}
FREQTYPE=2におけるHessian行列構築の中断
部分的に構築されたHessian行列は "**hess.dat**" ファイルに出力
- SEMINUMSTART (*integer*) {1}
INTERRUPTSEMINUM=TRUEにおける部分的なHessian行列構築を開
始する原子インデックス
- SEMINUMEND (*integer*) {1}
INTERRUPTSEMINUM=TRUEにおける部分的なHessian行列構築を終
了する原子インデックス

MPI/OpenMP版のみの追加オプション

- **SAVEMEMORYANA** (*logical*) {FALSE}
SCCを用いた解析的Hessian計算時のメモリ使用量を削減
計算コストは増加

1.1.9 MD

MDキーワードは、速度Verlet法 [44] に基づく分子動力学 (MD) 計算を実行するか否かを指定する。

基本設定

- NSTEP/MAXSTEP (*integer*) {10000}
MD計算のステップ数
- DELTAT/DELTASTEP (*real*) {1.0e-15}
MD計算における時間刻み (s)
- PRINT (*integer*) {1}
MD計算中の原子座標、速度、Mulliken電荷の "**traject**", "**velocity**", "**mulliken**" ファイルへの出力頻度
- CHECKPOINT (*integer*) {100}
第2リスタートファイル "**restart_chk**" の出力頻度
- RESTART (*logical*) {FALSE}
リスタートファイル "**restart**" を読み込んでMD計算を再開
- READVELOCITY (*logical*) {FALSE}
初期速度ファイルの読み込み
 - TRUE: "**veloc.dat**" ファイルによる手動指定 (形式は[1.5.2節](#)を参照)
 - FALSE: 読み込みなし

エネルギー一定アンサンブル

- NVE (*logical*) {TRUE}
NVEアンサンブル計算
NVE=FALSEの場合、NVTアンサンブル計算
- INITTEMP (*real*) {2.9815e+02}
初期速度生成における目標温度 (K)
初期速度はMaxwell-Boltzmann分布に従ってランダムに生成

温度一定アンサンブル

- NVT (*logical*) {FALSE}
NVTアンサンブル計算
NVT=FALSEの場合、NVEアンサンブル計算
- BATHTEMP/TEMPERATURE (*real*) {2.9815e+02}
温度一定MD計算における熱浴温度 (K)
- NVTTYPE (*integer*) {3}
温度制御法
 - 1: Velocity scaling [45]
 - 2: Nosé-Hoover chain [46]
 - 3: Nosé-Hoover chain [46]
NVTTYPE=2と比較して、いくつかの熱浴設定を変更可能
 - 4: Berendsen [47]
 - 5: Andersen [48]
- ERRORTEMP (*real*) {1.0e+04}
BATHTEMP/TEMPERATUREで指定した熱浴温度からの瞬間温度の許容振れ幅 (K)
NVTTYPE=2–5において振れ幅を超えると速度スケーリングを実行
- RMROTATION (*logical*) {FALSE}
重心の回転運動を除去
クラスターモデルのみ使用可能
- RMSTEP (*integer*) {10000}
NVTTYPE=1–4において重心の並進 (RMROTATION=TRUEの場合、回転) 運動を除去する頻度
- CALCPRESSURE (*logical*) {FALSE}
NVEおよびNVTアンサンブルにおける圧力計算
周期境界条件を課したモデルのみ計算可能

温度制御の詳細オプション

- SCALESTEP (*integer*) {20}
Velocity scaling (NVTTYPE=1) における速度スケーリングの頻度
- NOSECLEAN (*logical*) {FALSE}
Nosé-Hoover chain (NVTTYPE=2, 3) においてMD計算再開時に熱浴パラメータを初期化
- NBATH (*integer*) {3}
Nosé-Hoover chain (NVTTYPE=3) における熱浴の数
- COUPLINGSTR (*real*) {1.5e+03}
Nosé-Hoover chain (NVTTYPE=3) におけるカップリングの強さ (cm^{-1})
- TAUTEMP (*real*) {1.0e-13}
Berendsen (NVTTYPE=4) における緩和時間 (s)
- COLLISIONFREQ (*real*) {1.0e-02}
Andersen (NVTTYPE=5) における仮想熱浴との衝突頻度 (fs^{-1})
- MASSIVE (*logical*) {FALSE}
Andersen (NVTTYPE=5) における速度スケーリングの方法
 - TRUE: 各原子の速度をある確率で同時にスケーリング
 - FALSE: 原子毎に速度をある確率でスケーリング

圧力一定アンサンブル

- NPH (*logical*) {FALSE}
NPHアンサンブル計算
NPH=FALSEの場合、NVEアンサンブル計算
- NPT (*logical*) {FALSE}
NPTアンサンブル計算
NPT=FALSEの場合、NVEアンサンブル計算

- EXTPRESSURE (*real*) {1.01325e+05}
圧力一定MD計算における目標圧力 (Pa)
- NPHTYPE (*integer*) {1}
圧力制御法
 - 1: Berendsen [\[47\]](#)
- NPTTYPE (*integer*) {1}
(等方的) NPTアンサンブル計算法
 - 1: Hoover-Andersen [\[46\]](#)
- ISOSCALING (*logical*) {FALSE}
等方的なセルサイズ変化による圧力一定MD計算
デフォルトは異方的なセルサイズ変化

圧力制御の詳細オプション

- TAUPRESS (*real*) {2.0e-12}
Berendsen (NPHTYPE=1) における緩和時間 (s)
- COUPLINGSTRLAT (*real*) {1.5e+01}
Hoover-Andersen (NPTTYPE=1) における熱浴のカップリングの強さ (cm^{-1})

乱数生成

- RANDTYPE (*integer*) {1}
乱数生成方法
 - 1: Fortran組み込み手続き
 - 2: 参考文献 [\[49\]](#) の乱数生成アルゴリズムに従った手続き
- SEEDTYPE (*integer*) {1}
速度のための初期乱数の指定
 - 1: 初期構造に依存した乱数
 - 2: 現在時刻から乱数を作成
 - 3: RANDOMSEEDオプションにより任意の乱数を作成

- RANDOMSEED (*integer*) {0}
SEEDTYPE=3における変位のための乱数作成のための番号 (正の整数)

ソフトポテンシャル

- SOFT/SOFTPOT (*logical*) {FALSE}
ソフトポテンシャルの使用
- SOFTK (*real*) {1.5e+00}
ソフトポテンシャルの硬さ (kcal/(mol·Å²))
- SOFTCENTERTYPE (*method*) {ATOM}
ソフトポテンシャルの中心位置
 - ATOM: 手動指定した原子
 - SPECIFY: 手動指定した座標
 - COC: 系の座標中心
 - COM: 系の重心
- SOFTATOMNO (*integer*) {1}
SOFTCENTERTYPE=ATOMにおけるソフトポテンシャルの中心となる原子のラベル
- SOFTPOINTXYZ/SOFTPOINT (*real*) {0.0e+00}
SOFTCENTERTYPE=SPECIFYにおけるソフトポテンシャルの中心となるxyz座標 ($x = y = z$) (Å)
- SOFTPOINTX (*real*) {0.0e+00}
SOFTCENTERTYPE=SPECIFYにおけるソフトポテンシャルの中心となるx座標 (Å)
- SOFTPOINTY (*real*) {0.0e+00}
SOFTCENTERTYPE=SPECIFYにおけるソフトポテンシャルの中心となるy座標 (Å)
- SOFTPOINTZ (*real*) {0.0e+00}
SOFTCENTERTYPE=SPECIFYにおけるソフトポテンシャルの中心となるz座標 (Å)

- SOFTSHAPETYPE (*method*) {SPHERE}
ソフトポテンシャルの形状
 - SPHERE: 球
 - SQUARE: 立方体あるいは直方体
 - ELLIPSOID: 楕円体
- SOFTRANGE (*real*) {1.0e+01}
SOFTSHAPETYPE=SPHEREにおけるソフトポテンシャルの半径 (Å)
- SOFTSIDEXYZ/SOFTSIDE (*real*) {1.0e+01}
SOFTSHAPETYPE=SQUAREにおけるソフトポテンシャルのグリッド
一辺の長さ (Å)
- SOFTSIDEX (*real*) {1.0e+01}
SOFTSHAPETYPE=SQUAREにおけるソフトポテンシャルのグリッド
のx成分の長さ (Å)
- SOFTSIDEY (*real*) {1.0e+01}
SOFTSHAPETYPE=SQUAREにおけるソフトポテンシャルのグリッド
のy成分の長さ (Å)
- SOFTSIDEZ (*real*) {1.0e+01}
SOFTSHAPETYPE=SQUAREにおけるソフトポテンシャルのグリッド
のz成分の長さ (Å)
- SOFTSEMIAXISX (*real*) {1.0e+01}
SOFTSHAPETYPE=ELLIPSOIDにおけるソフトポテンシャルの径のx成
分の長さ (Å)
- SOFTSEMIAXISY (*real*) {1.0e+01}
SOFTSHAPETYPE=ELLIPSOIDにおけるソフトポテンシャルの径のy成
分の長さ (Å)
- SOFTSEMIAXISZ (*real*) {1.0e+01}
SOFTSHAPETYPE=ELLIPSOIDにおけるソフトポテンシャルの径のz成
分の長さ (Å)

RATTLE法を用いた拘束動力学

- RATTLE (*method*) {NONE}
RATTLE法 [50] に基づく原子間距離に対する拘束動力学
 - NONE: 拘束条件なし
 - COVALENTXH: X-Hペアの原子間距離を共有結合半径 [25] の和に拘束
 - INITGEOMXH: X-Hペアの原子間距離を初期構造の値に拘束
 - SPECIFY: "**rattle.dat**" ファイルによる手動指定 (形式は[1.5.2節](#)を参照)
- RATTLEXH (*real*) {1.2e+00}
RATTLE=COVALENTXHとRATTLE=INITGEOMXHにおけるX-Hペアに対する共有結合の判定基準 (Å)
- RATTLEITER (*integer*) {100}
RATTLE法における拘束条件を満たすための反復サイクルの最大数
- RATTLECONV (*real*) {1.0e-06}
RATTLE法における拘束条件に対する収束条件 (atomic unit)

SCC収束の高速化

- LIMULLIKEN (*logical*) {FALSE}
Lagrange補間によるMulliken電荷初期値の予測 [43, 51]
DFTB+U補正 (SCCキーワードにおけるPLUSU=TRUE) およびonsite補正 (SCCキーワードにおけるONSITE=TRUE) を含む場合は非対応
- LIDEGREE (*integer*) {0}
LIMULLIKEN=TRUEにおけるLagrange補間多項式の次数
デフォルトは前ステップの値のみから予測

- LIMINDEG (*logical*) {FALSE}
LIMULLIKEN=TRUEでLagrange補間多項式の次数を毎ステップ最適化
0以上LIDEGREEオプションの値以下の整数値が探索範囲
Nステップ目における収束電荷と予測電荷の絶対誤差が最小となる次数
をN + 1ステップ目に使用
- LSMULLIKEN (*logical*) {FALSE}
原子座標の最小二乗フィッティングによるMulliken電荷初期値の予測
[\[42, 43\]](#).
DFTB+U補正 (SCCキーワードにおけるPLUSU=TRUE) およびonsite補
正 (SCCキーワードにおけるONSITE=TRUE) を含む場合は非対応
- LSGEN (*integer*) {5}
LSMULLIKEN=TRUEにおけるデータ数の最大値
- LSFITGEOM (*logical*) {FALSE}
LSMULLIKEN=TRUEで過去のステップの原子座標の予測するステップ
の原子座標への重ね合わせ
クラスターモデルのみ使用可能
本オプションの有効化は不要

アニーリング

- ANNEAL (*logical*) {FALSE}
アニーリング計算の実行
温度のスケジュールは "**anneal.dat**" ファイルで最大99個まで手動指定
(形式は[1.5.2節](#)を参照)

メタダイナミクス

- METAD/METADYNAMICS (*logical*) {FALSE}
メタダイナミクス計算 [\[52\]](#) の実行
集団変数 (CV) は "**metacv.dat**" ファイルで指定 (形式と実装済みCVは
[1.5.2節](#)を参照)

- METAMAXCV (*integer*) {10}
メタダイナミクス計算におけるCVの最大数
- METAFREQ (*integer*) {100}
メタダイナミクス計算におけるガウス関数の堆積頻度
- METAMAXGAUSS (*integer*) {10000}
メタダイナミクス計算におけるガウス関数の最大堆積数
- METAHEIGHT (*real*) {4.0e-04}
メタダイナミクス計算におけるガウス関数の高さ (Hartree)
- METARESTART (*logical*) {FALSE}
リスタートファイル "**restart_meta**" を読み込んでメタダイナミクス計算を再開
- METAREADBIAS (*logical*) {FALSE}
メタダイナミクス計算におけるガウス関数堆積履歴ファイルの読み込み
 - TRUE: "**bias.dat**" ファイルによる手動指定 (形式は[1.5.2節](#)を参照)
 - FALSE: 読み込みなし

メタダイナミクスの詳細オプション

- WTMETAD/WTMETADYNAMICS (*logical*) {FALSE}
Well-temperedメタダイナミクス計算 [\[53\]](#) の実行
- WTMETABIASTEMP (*real*) {1.2e+03}
Well-temperedメタダイナミクス計算におけるバイアス温度 (K)
- METAPBCMIC (*logical*) {TRUE}
周期系のメタダイナミクス計算でCVの原子間距離計算に対して minimum image conventionを適用
系の座標中心と重心および一部のCVの計算には不適用 (詳細は[1.5.2節](#)を参照)

- METAPRINTFES (*logical*) {TRUE}
メタダイナミクス計算において自由エネルギー面のデータをガウス関数堆積毎に “**fes.dat**” ファイルに出力
自由エネルギー面のグリッド情報を “**metacv.dat**” ファイルに指定 (詳細は[1.5.2節](#)を参照)
Well-temperedメタダイナミクス計算ではスケーリングファクター [\[53\]](#) 適用後の結果を出力
- METAWALL (*logical*) {FALSE}
メタダイナミクス計算においてCVのサンプリング範囲を拘束するポテンシャル障壁の適用
ポテンシャル障壁の定義を “**metacv.dat**” ファイルに指定 (詳細は[1.5.2節](#)を参照)

1.1.10 MISC

MISCキーワードは、プログラム実行に関するその他の条件を指定する。

追加解析とプロパティ評価

- PRINTFORCE/FORCE (*logical*) {FALSE}
エネルギーと力の計算
点電荷ありの計算 (SCCキーワードにおいてPOINTCHARGE=TRUE)
では点電荷の力も出力
応力テンソル計算 (PBCキーワードにおいてSTRESS=TRUE) では応力
テンソル、格子ベクトルの微分、体積、圧力も出力
- PRINTRESOLVEDFORCE (*logical*) {FALSE}
全力に対する各成分の寄与 (electronic, repulsive, dispersionが含まれる
場合はdispersion項) を出力
応力テンソル計算 (PBCキーワードにおいてSTRESS=TRUE) では全応
力テンソルに対する各成分の寄与も出力
全力は標準アウトプットファイル、各成分の寄与は詳細データファイル
に出力
- PRINTMO (*logical*) {FALSE}
分子軌道係数を出力
部分系の数が1の場合のみ出力可能
- PRINTDENSITY (*logical*) {FALSE}
密度行列の下三角部分を標準アウトプットファイルに出力
- PRINTATOME (*logical*) {FALSE}
全エネルギーに対する各原子の寄与 (electronic, repulsive, dispersionが
含まれる場合はdispersion項) を出力
各成分の寄与は詳細データファイルに出力

グローバルオプション

- **FORCETYPE** (*integer*) {1}
エネルギー勾配の計算方法
 - 1: 解析的1次微分
 - 2: 全エネルギーの数値微分
- **FORCESTEP**SIZE (*real*) {1.0e-04}
FORCETYPE=2における数値微分刻み幅 (atomic unit)
- **HSSTEP**SIZE (*real*) {1.0e-02}
DFTB電荷非依存項の微分計算における数値微分刻み幅 (atomic unit)
- **WRITEDAT** (*method*) {APPEND}
詳細データファイルの書き込み
 - NONE: 書き込みなし
 - APPEND: 各DFTBステップの情報を追加書き込み
 - REPLACE: 各DFTBステップの情報を新規書き込み
- **WRITECHRGFILE** (*logical*) {TRUE}
電荷密度ファイルの読み込み (SCCキーワードにおける
READCHARGE=BINARY) で用いる "**chrgfile**" ファイルの書き込み
- **PRINTLAPTIME** (*logical*) {FALSE}
DFTB計算の各手続きとプログラム実行にかかった経過時間の出力
- **PRINTLOCALREGION** (*logical*) {FALSE}
局在化領域に含まれる部分系、原子、基底関数の数を標準アウトプット
ファイルに出力
出力後はプログラムが直ちに終了
- **PRINTHS** (*logical*) {FALSE}
DFTB電荷非依存な0次Hamiltonianと重なり行列の下三角部分を標準ア
ウトプットファイルに出力
部分系の数が1の場合のみ出力可能
出力後はプログラムが直ちに終了

Serial, OpenMP版のみの追加オプション

- **USESCRATCH** (*logical*) {FALSE}
中間データに対するディスクI/Oの使用
USESCRATCH=FALSEの場合、中間データをメモリに格納

1.2 Titleセクション

TITLE」

コメント行

Titleセクションは、化合物名、分子の対称性、電子状態といった計算に関する情報を付記するために用いられる。1行あたり128文字まで入力可能である。全コメント行は標準アウトプットファイルにそのまま出力される ([3.1節](#)を参照)。

1.3 Parameterセクション

1.3.1 概要

2↓	原子の種類の数
O_2↓	原子1の名前と原子価軌道のサイズ
oo.spl_oh.spl↓	原子1-原子1と原子1-原子2のパラメータ
H_1↓	原子2の名前と原子価軌道のサイズ
ho.spl_hh.spl↓	原子2-原子1と原子2-原子2のパラメータ

Parameterセクションは、入力構造に含まれる原子の種類の数から始まる。水分子の例では、O原子とH原子の合計で2となる。次の行では、1つ目の原子の種類 (原子1) について原子の種類の記事と原子価軌道のサイズを指定する。後者の指定で用いる整数値1, 2, 3, 4は順にs, p, d, f軌道まで考慮することに対応する。改行後、原子1を含むパラメータファイルのパスをこのセクションで指定する原子の種類を厳守して列挙する。すなわち、原子1-原子1のパラメータ、原子1-原子2 (2つ目の原子の種類) のパラメータ、原子1-原子3 (3つ目の原子の種類) のパラメータ、... のように指定する。原子1についての入力後、同様の入力を原子2、原子3、... について繰り返す。この例では、4つのパラメータファイル (**oo.spl**, **oh.spl**, **ho.spl**, **hh.spl**) がインプットファイルと同じディレクトリに格納されていることを想定している。カレントディレクトリを明記した入力は以下ようになる。

```
2↓
O_2↓
./oo.spl_./oh.spl↓
H_1↓
./ho.spl_./hh.spl↓
```

f電子を取り扱う場合、関連するパラメータファイルは拡張フォーマットであることを確実にする必要がある。

1.3.2 定数パラメータの追加指定

いくつかのオプションは、プログラムのソースコードあるいはパラメータファイルに記述されていない原子の種類に依存する定数パラメータを必要とする。定数パラメータは、以下の2つの方法で指定される。

- 原子価軌道のサイズの後定数パラメータを直接指定

この方法は、SCC Hamiltonianに対する3次補正 (SCCキーワードにおける THIRDFULL=TRUE あるいは THIRDDIAG=TRUE) で Hubbard derivativeパラメータを指定する場合に必要となる。MPI/OpenMP版で orbitally resolved SCC計算 (SCCキーワードにおけるORSCC=TRUE) の場合、*s, p, d, f*原子価軌道に対する値を別々に指定する。

```
O_2_-0.1575_
```

原子ベースの場合 (通常指定)

```
Cu_3_-0.20_-0.0575_-0.0575_
```

原子価軌道ベースの場合 (順番は(f), d, p, s)

- 定数パラメータを含むファイルを追加指定

この方法は、以下の5つで定数パラメータを指定する場合に必要となる。

- スピン分極を含む場合のスピンド数 (SCCキーワードにおける SPIN=TRUE)
- DFTB+U補正を含む場合のU-Jパラメータ (SCCキーワードにおける PLUSU=TRUE)
- Onsite補正を含む場合のonsiteパラメータ (SCCキーワードにおける ONSITE=TRUE)
- Slater-Kirkwood分散力補正を含む場合の計算に必要なパラメータ (DISP/DISPERSIONキーワードにおけるDISPTYPE=2)
- Lennard-Jones分散力補正を含む場合のLennard-Jonesパラメータ (DISP/DISPERSION キーワードにおける DISPTYPE=3 かつ READUFF=TRUE)

追加指定するファイルのパスは、原子価軌道のサイズの後 (Hubbard derivativeパラメータがある場合はその後) に記述する。複数のファイルを指定する場合、分散力補正用パラメータ、スピンド数、U-Jパラメータ、そしてonsiteパラメータを含むファイルの順に記述する。

O原子に対する指定例を以下に示す。

O_2_o.wll↓	スピン定数ファイルのみ指定
O_2_o.dispsk↓	分散力補正用パラメータファイルのみ指定
O_2_o.uj↓	U-Jパラメータファイルのみ指定
O_2_o.oc↓	Onsiteパラメータファイルのみ指定
O_2_o.dispsk_o.wll↓	スピン定数と分散力補正用パラメータを含む ファイルを指定
O_2_o.dispsk_o.uj↓	分散力補正用パラメータとU-Jパラメータを含む ファイルを指定
O_2_o.dispsk_o.oc↓	分散力補正用パラメータとonsiteパラメータを 含むファイルを指定
O_2_o.wll_o.uj↓	スピン定数とU-Jパラメータを含むファイルを 指定
O_2_o.wll_o.oc↓	スピン定数とonsiteパラメータを含むファイル を指定
O_2_o.uj_o.oc↓	U-Jパラメータとonsiteパラメータを含むファ イルを指定
O_2_o.dispsk_o.wll_o.uj↓	分散力補正用パラメータ、スピン定数、U-Jパ ラメータを含むファイルを指定
O_2_o.dispsk_o.wll_o.oc↓	分散力補正用パラメータ、スピン定数、onsite パラメータを含むファイルを指定
O_2_o.dispsk_o.ud_o.oc↓	分散力補正用パラメータ、U-Jパラメータ、 onsiteパラメータを含むファイルを指定
O_2_o.wll_o.ud_o.oc↓	スピン定数、U-Jパラメータ、onsiteパラメータ を含むファイルを指定
O_2_o.dispsk_o.wll_o.ud_o.oc↓	分散力補正用パラメータ、スピン定数、U-Jパ ラメータ、onsiteパラメータを含むファイルを 全て指定

1.3.3 定数パラメータ追加指定ファイルの形式

[1.3.2節](#)に記述した定数パラメータを指定するためのファイルは、それぞれ異なる形式を持つ。C原子に対する指定例を以下に示す。

スピン定数ファイル

```
-0.031,↓
-0.025,↓
-0.025,↓
-0.023,↓
```

スピン定数ファイルの行数は、原子価軌道のサイズに依存する (s, p, d , 軌道に対して1, 4, 9, 16)。各行では、原子のスピン定数 (atomic unit) を以下の順番で指定する。

- s : ss
- p : ss, sp, ps, pp
- d : $ss, sp, sd, ps, pp, pd, ds, dp, dd$
- f : $ss, sp, sd, sf, ps, pp, pd, pf, ds, dp, dd, df, fs, fp, fd, ff$

参考までに、DFTB+のマニュアル [\[54\]](#) にまとめられたH, C, N, O, S, Fe, Ni原子に対するPBEの値を含む拡張子 ".wll" のファイルがslkoディレクトリに格納されている。

U-Jパラメータファイル

```
0.178371875,1,↓
0.178371875,1,↓
```

U-Jパラメータファイルの行数は、原子価軌道のサイズに依存する (s, p, d , 軌道に対して1, 2, 3, 4)。各行は2列からなり、第1列はon-site Coulomb相互作用に関するパラメータ (atomic unit)、第2列は原子価軌道の属するグループのインデックスを指定する。例えば、 s 軌道と p 軌道を異なるグループとして扱う場合、第2行第2列は "1" から "2" へ変更する。ある原子の種類に対してDFTB+U補正を適用しない場合であっても、第1列の値を0としてこのファイルを準備する必要がある。

Onsiteパラメータファイル

```
0.00000_0.00000_↓
0.04973_0.10512_↓
0.04973_0.10512_↓
-0.01203_0.02643_↓
```

Onsiteパラメータファイルの行数は、原子価軌道のサイズに依存する (s, p, d, f 軌道に対して1, 4, 9, 16)。各行は2列からなり、第1列は同じスピンに対するパラメータ (atomic unit)、第2列は異なるスピンに対するパラメータ (atomic unit) を以下の順番で指定する。

- s : ss
- p : ss, sp, ps, pp
- d : $ss, sp, sd, ps, pp, pd, ds, dp, dd$
- f : $ss, sp, sd, sf, ps, pp, pd, pf, ds, dp, dd, df, fs, fp, fd, ff$

参考までに、参考文献 [14] あるいはDFTB+のマニュアル [54] にまとめられたH, C, N, O, S原子に対するPBEの値を含む拡張子 “.oc” のファイルがslkoディレクトリに格納されている。

Slater-Kirkwood分散力補正用パラメータファイル

```
1.382_1.382_1.382_1.064_3.8_3.8_3.8_3.8_2.5_↓
```

このファイルは1行9列からなり、第1–4列は原子分極率 (\AA^3)、第5–8列はvan der Waals半径 (\AA)、第9列は有効電荷を指定する。原子分極率とvan der Waals半径の値は、配位数0, 1, 2, 3に対して順番に指定される。参考までに、DFTB+のマニュアル [54] にまとめられたH, C, N, O, S原子に対する分散力補正用パラメータを含む拡張子 “.dispsk” のファイルがslkoディレクトリに格納されている。

Lennard-Jones分散力補正用パラメータファイル

3.851_0.105.」

このファイルは1行2列からなり、第1列は非結合性距離 (Å)、第2列は非結合性エネルギー (kcal/mol) を指定する。参考までに、参考文献 [30] にまとめられたH, C, N, O, S, Fe, Ni原子に対する分散力補正用パラメータを含む拡張子 “.displj” のファイルがslkoディレクトリに格納されている。

1.4 Geometryセクション

1.4.1 概要

```
3_0_1_↓
```

```
O  0.06275391_ 0.06275391_ 0.00000000_↓
```

```
H  1.01910555_-0.08185946_ 0.00000000_↓
```

```
H  -0.08185946_ 1.01910555_ 0.00000000_↓
```

原子数、電荷、スピン

多重度

原子ラベル1の座標

原子ラベル2の座標

原子ラベル3の座標

Geometryセクションは、入力構造の原子数、電荷、スピン多重度という3つの整数値の指定から始まる。改行後、原子の位置を小数表記のデカルト座標 (Å) で指定する (**整数表記は不可**)。

入力構造の全ての原子の位置を指定した後、ラベルTVを用いて3つの並進ベクトルを指定すると周期境界条件を課したモデルとなる (TVは大文字)。以下は、ダイヤモンド結晶構造 (基本単位格子) に対する指定例である。

```
2_0_1_↓
```

```
C  0.00000000_ 0.00000000_ 0.00000000_↓
```

```
C  0.89169750_ 0.89169750_ 0.89169750_↓
```

```
TV 0.00000000_ 1.78339500_ 1.78339500_↓
```

```
TV 1.78339500_ 0.00000000_ 1.78339500_↓
```

```
TV 1.78339500_ 1.78339500_ 0.00000000_↓
```

外部静電場を導入する場合 (SCCキーワードにおけるEFIELD=TRUE) 、入力構造の全ての原子の位置を指定した後、ラベルEFを用いて電場ベクトルを指定する (EFは大文字) 。以下は、水分子に対して外部静電場 (0.001, -0.001, 0.000) を与える例である。

```
3_0_1_↓  
O _ 0.06275391_ 0.06275391_ 0.00000000_↓  
H _ 1.01910555_-0.08185946_ 0.00000000_↓  
H _-0.08185946_ 1.01910555_ 0.00000000_↓  
EF_ 0.00100000_-0.00100000_ 0.00000000_↓
```

外部静電場を導入する場合 (SCCキーワードにおけるPOINTCHARGE=TRUE) 、入力構造の全ての原子の位置を指定した後、ラベルPCを用いて点電荷の座標と値を指定する (PCは大文字) 。以下は、水分子に対して電荷+1の点電荷を位置 (5.0, 5.0, 5.0) (Å) に与える例である。

```
3_0_1_↓  
O _ 0.06275391_ 0.06275391_ 0.00000000_↓  
H _ 1.01910555_-0.08185946_ 0.00000000_↓  
H _-0.08185946_ 1.01910555_ 0.00000000_↓  
PC_ 5.00000000_ 5.00000000_ 5.00000000_ 1.00000000_↓
```

1.4.2 追加情報の指定

以下のようにシミュレーション中に原子位置に制約をかけたい場合や、調和振動解析で同位体質量を指定したい場合には、原子のデカルト座標の後に列を追加する。

- 構造最適化あるいはMD計算において原子位置を固定
アスタリスク記号*を指定すると、原子位置は固定される。
- 制約付き構造最適化 (OPT/OPTIMIZE キーワードにおける CONSTRAINT=TRUE)
 x, y, z 成分に対する制約は、値0.0 (変位不可) あるいは1.0 (変位可) を用いて指定する。例えば、制約ベクトル "0.0_0.0_1.0" を課された原子は、 z 座標のみ値が更新される。制約ベクトル "0.0_0.0_0.0" は、アスタリスク記号の指定と同義である。
- 調和振動解析における原子質量の変更 (FREQ/FREQUENCYキーワードにおける READISOTOPE=TRUE)
パラメータファイルに記述された原子質量の初期設定値は、形式 "ISO=value" により値valueへ変更される (ISO=とvalueの間の空白領域はなし)。質量を変更する原子の位置に制約をかける場合、アスタリスク記号あるいは制約ベクトルの後にこの形式を指定する。

以下は、水分子に対して上記の指定方法が混在した例である。

```
3_0_1_
O _ 0.06275391_ 0.06275391_ 0.00000000_
H _ 1.01910555_-0.08185946_ 0.00000000_0.0_1.0_0.0_
H _-0.08185946_ 1.01910555_ 0.00000000_*_ISO=2.014102_
```

制約付き構造最適化の場合、原子ラベル2のH原子は y 座標のみ値が更新される。また、原子ラベル3のH原子の位置はシミュレーション中に更新されない。FREQ=(READISOTOPE=TRUE)が追加指定された場合、原子ラベル3のH原子の質量は2.014102に変更される。すなわち、HOD分子の調和振動数と熱力学量が得られる。

1.4.3 DC-DFTBにおける部分系の手動指定

本節では、DCキーワードにおいてSUBTYPE=SPECIFYあるいはSUBTYPE=SEMIAUTOを用いて部分系を指定する方法を補足する。Geometryセクションの終わりに挿入された空行の後で部分系のインデックスを列挙する。

以下は、22原子からなる入力構造に対してSUBTYPE=SPECIFYを用いて5つの部分系を指定する例である。

1_1_1_1_1_↓	原子ラベル1, 2, 3, 4, 5に対する部分系のインデックス
2_2_2_2_↓	原子ラベル6, 7, 8, 9に対する部分系のインデックス
3_3_3_3_↓	原子ラベル10, 11, 12, 13に対する部分系のインデックス
4_4_4_4_↓	原子ラベル14, 15, 16, 17に対する部分系のインデックス
5_5_5_5_↓	原子ラベル18, 19, 20, 21, 22に対する部分系のインデックス

この例の1行目は、原子ラベル1-5の原子は部分系1に属することを指定する。2, 3行目では、原子ラベル6-9, 10-13の原子は部分系2, 3に属することが指定され、同様の指定がさらに続く。指定に用いる行数は部分系の数と同じである必要はない。プログラムは、指定された部分系のインデックスの数が入力構造の原子数に到達するまで新しい行の読み込みを試みる。

SUBTYPE=SEMIAUTOの場合、部分系を自動決定させる原子のインデックスとして“0”を用いる。以下は、22原子からなる入力構造に対する指定例である（上記との比較のため、指定形式を揃えている）。

1_1_1_1_1_↓	原子ラベル1, 2, 3, 4, 5に対する部分系のインデックス
0_0_0_0_↓	原子ラベル6, 7, 8, 9に対する部分系のインデックス
0_0_0_0_↓	原子ラベル10, 11, 12, 13に対する部分系のインデックス
0_0_0_0_↓	原子ラベル14, 15, 16, 17に対する部分系のインデックス
2_2_2_2_2_↓	原子ラベル18, 19, 20, 21, 22に対する部分系のインデックス

この例では、原子ラベル1-5, 18-22の原子は部分系1, 2に属する。原子ラベル6-17の原子は、部分系3-Xに自動的に割り当てられる（Xの値は入力構造と自動決定で用いるグリッドの長さに依存する）。全てのインデックスが0あるいは正の整数の場合、SUBTYPE=AUTOあるいはSUBTYPE=SPECIFYと同義である。

1.5 補助インプットファイル

インプットファイル、パラメータファイル、および[1.3.3節](#)に示した定数パラメータ追加指定ファイルに加えて、いくつかの補助インプットファイルが計算条件に依存して必要となる。各補助インプットファイルは、固定ファイル名でインプットファイルと同じディレクトリに格納して使用する。その方法には、(i) 前回のプログラム実行で出力されたバイナリファイルの使用と (ii) 固定形式のASCIIファイルの準備という2種類がある。

1.5.1 バイナリ形式ファイル

バイナリ形式ファイルは、計算再開時の情報を提供する目的で用いられる。各ファイルの内容については、[3.3節](#)あるいは関連するオプションの説明に譲る。バイナリ形式ファイルは、異なるバージョン間で互換性を持たない ((i) **OpenMP (serial) 版とMPI/OpenMP版**や (ii) **バージョン1.0と2.0の間での流用不可**) 。

- **"chrgfile"**
SCC=(READCHARGE=BINARY)が指定された場合に必要
前回のプログラム実行でSCC=TRUEとMISCキーワードにおけるWRITECHRGFILE=TRUEの指定が必要
- **"restart_hess"**
FREQ=(RESTARTHESS=BINARY)が指定された場合に必要
前回のプログラム実行でFREQ/FREQUENCYキーワードにおけるPRINTHESS=TRUEの指定が必要
- **"restart"**
MD=(RESTART=TRUE)が指定された場合に必要
"restart" ファイルに加えて **"restart_chk"** ファイルをリネーム後に使用可能

- **"restart_meta"**

MD=(METARESTART=TRUE)が指定された場合に必要

"restart_meta" ファイルに加えて "restart_meta_chk" ファイルをリネーム後に使用可能

前回と今回のプログラム実行でMDキーワードにおけるMETAD=TRUE, METADYNAMICS=TRUE, WTMETAD=TRUE, あるいは WTMETADYNAMICS=TRUEの指定が必要

1.5.2 ASCII形式ファイル

ASCIIファイル形式は、主に入力構造に依存する詳細情報を提供する目的で用いられる。

SCC計算における初期電荷の読み込み

● “charge.dat”

SCC=(READCHARGE=ASCII)が指定された場合に必要

前回のプログラム実行でSCC=TRUEとSCC=TRUEの指定が必要

以下は、O原子の原子ラベルが1、H原子の原子ラベルが2, 3の場合の水分子に対する指定例である。

Serial, OpenMP版では、“charge.dat”ファイルの1行目は“ALLATOM”か“ATOMSPECIES”のいずれかである。

➤ ALLATOMでは、2行目以降に正味電荷の値を原子毎に指定する。

```
ALLATOM┆
```

```
-0.6┆
```

```
0.3┆
```

```
0.3┆
```

O原子 (原子ラベル1) のMulliken電子密度: 6.6

H原子 (原子ラベル2) のMulliken電子密度: 0.7

H原子 (原子ラベル3) のMulliken電子密度: 0.7

➤ ATOMSPECIESでは、2行目以降の第1列に原子の種類記号、第2列に正味電荷の値を指定する。プログラムは、空行を検出するまで新しい行の読み込みを試みる。

```
ATOMSPECIES┆
```

```
O┆-0.6┆
```

```
H┆ 0.3┆
```

O原子 (原子ラベル1) のMulliken電子密度: 6.6

H原子 (原子ラベル2, 3) のMulliken電子密度: 0.7

MPI/OpenMP版では、“**charge.dat**” ファイルの1行目は “**ALLSHELL**” か “**SHELLSPECIES**” のいずれかである。

- **ALLSHELL**では、2行目以降に正味電荷の値を原子価軌道毎に指定する。

```
ALLSHELL┘
```

```
0.2┘
```

```
-0.8┘
```

```
0.3┘
```

```
0.3┘
```

O原子 (原子ラベル1) s軌道のMulliken 電子密度: 1.8

O原子 (原子ラベル1) p軌道のMulliken 電子密度: 4.8

H原子 (原子ラベル2) s軌道のMulliken 電子密度: 0.7

H原子 (原子ラベル3) s軌道のMulliken 電子密度: 0.7

- **SHELLSPECIES**では、2行目以降の第1列に原子の種類の記事、第2列に原子価軌道の記号 (s/p/d/f) 、第3列に正味電荷の値を指定する。プログラムは、空行を検出するまで新しい行の読み込みを試みる。開殻系の場合、 α/β スピンを区別する記号 (a/b) を第4列に追加指定する必要がある。

```
SHELLSPECIES┘
```

```
O_s_ 0.2┘
```

```
O_p_-0.8┘
```

```
H_s_ 0.3┘
```

O原子 (原子ラベル1) s軌道のMulliken 電子密度: 1.8

O原子 (原子ラベル1) p軌道のMulliken 電子密度: 4.8

H原子 (原子ラベル2, 3) s軌道のMulliken 電子密度: 0.7

振動数計算におけるHessian行列の読み込み

● "hess.dat"

FREQ=(RESTARTHESS=ASCII)が指定された場合に必要

前回のプログラム実行で解析的あるいは数値的Hessian計算 (FREQ/FREQUENCY キーワードにおける FREQTYPE=1 あるいは FREQTYPE=2) において INTERRUPTCP=TRUE あるいは INTERRUPTSEMINUM=TRUEの指定が必要

各行は3列からなり、第1,2列はHessian行列要素のインデックス、第3列はHessian行列要素の値を指定する。非対角要素は、ファイル中で1度だけ指定する。すなわち、プログラムはN原子からなる入力構造に対して $3N(3N + 1)/2$ 行のファイル読み込みを想定している。

```
1_1_ -0.000171_
```

Hessian行列要素 (H)₁₁: -0.000171

```
2_1_ 0.000000_
```

Hessian行列要素 (H)₂₁ と (H)₁₂: 0.000000

```
3_1_ 0.000083_
```

Hessian行列要素 (H)₃₁ と (H)₁₃: 0.000083

```
...
```

MD計算における初期速度の読み込み

● "veloc.dat"

MD=(READVELOCITY=TRUE)が指定された場合に必要

各行は3列からなり、速度のx, y, z成分 (Å/fs) を原子毎に指定する (原子の種類の記事は不要)。

```
0.00154193_ -0.00142221_ -0.00058536_
```

原子ラベル1の速度成分

```
-0.02998618_ 0.02026292_ 0.00706185_
```

原子ラベル2の速度成分

```
0.00549584_ 0.00232603_ 0.00223541_
```

原子ラベル3の速度成分

```
...
```

RATTLE法における結合距離拘束の手動指定

● "rattle.dat"

MD=(RATTLE=SPECIFY)が指定された場合に必要

各行は最低3列からなり、第1, 2列は距離を拘束する原子ラベル、第3列は結合距離の拘束方法を表すアルファベット大文字を指定する。プログラムは、ファイルの最終行まで空行なくデータがあることを想定している。

- C: 結合距離を共有結合半径 [25] の和に拘束
 - I: 結合距離を初期構造の値に拘束
 - S: 結合距離を第4列で指定する値 (Å) に拘束
- 第4列が未指定の場合、共有結合半径の和に拘束

1_2_C_」

原子ラベル1-2間の結合距離を共有結合半径の和に拘束

2_3_I_」

原子ラベル2-3間の結合距離を初期構造の値に拘束

1_3_S_0.95_」

原子ラベル1-3間の結合距離を0.95 Åに拘束

アニーリングにおける温度スケジュールの設定

● "anneal.dat"

MD=(ANNEAL=TRUE)が指定された場合に必要

各行は最低3列からなり、第1列は温度の変化方法を表すアルファベット大文字、第2列は当該スケジュールを使用するステップ数、第3列は当該スケジュールの最終ステップにおける目標温度 (K) を指定する。プログラムは、ファイルの最終行まで空行なくデータがあることを想定している。

- C: 温度は一定値を維持
- L: 温度は前スケジュールの値から線形に変化
- G: 温度は前スケジュールの値から等比級数的に変化
- E: 温度は前スケジュールの値から指数関数的に変化
指数関数の形状は第4列に指定する値により変更可能
第4列が未指定の場合、値5.0を使用
- S: 温度は前スケジュールの値からシグモイド関数的に変化
シグモイド関数の形状は第4列に指定する値により変更可能
第4列が未指定の場合、値3.0を使用

C_ 1_ 300.0_	最初のステップを300 Kに指定 INITTEMPオプションの値を上書き
L_1000_1000.0_	1000ステップかけて300 Kから1000 Kへ線形に昇温
C_1000_1000.0_	1000ステップの間1000 Kを維持 (平衡化)
E_1000_ 500.0_3.0_	1000ステップかけて1000 Kから500 Kへ減衰因子3.0 を用いて指数関数的に降温
C_1000_ 500.0_	1000ステップの間500 Kを維持 (平衡化)
S_1000_ 300.0_2.0_	1000ステップかけて500 Kから300 Kへゲイン2.0を 用いてシグモイド関数的に降温

メタダイナミクスにおけるCVの設定

● “metacv.dat”

MD=(METAD=TRUE), MD=(METADYNAMICS=TRUE),
 MD=(WTMETAD=TRUE), MD=(WTMETADYNAMICS=TRUE)が指定された場合に必要

第1行では、第1列にCVの種類を指定した後にガウス関数の幅と付随するオプションを指定する。自由エネルギー面のデータを計算中に出力する場合 (MDキーワードにおけるMETAPRINTFES=TRUE) 、グリッド情報を下限、上限、間隔の順番で3列追加指定する (単位はガウス関数の幅と同じである) 。いくつかのCVでは、原子集団のインデックスを第2, 3行に指定する。複数のCVを指定する場合、2番目以降のCVは1つ前の指定の次行から指定する。

実装済みCVの種類と原子数10の場合の指定例を以下に示す。

➤ ABSOLUTEPOSITION

原子あるいは原子集団の中心の絶対位置

周期系では、METAPBCMIC=TRUEの指定によらずminimum image conventionは不適用

```
ABSOLUTEPOSITION_0.1_1_Z_LABELS_COC_」
```

```
5_」 原子ラベル5のz座標をCVに指定
```

第1行第2-6列は以下の値を指定

- ✓ 第2列: ガウス関数の幅 (Å)
- ✓ 第3列: 原子集団の原子数
- ✓ 第4列: CVとする座標方向 (X/Y/Z)
- ✓ 第5列: 原子の指定方法

LABELS ... 原子ラベル

SPECIES ... Parameterセクションにおける原子の種類の指定順番

- ✓ 第6列: 原子集団の中心の指定方法

COC ... 座標中心

COM ... 重心

➤ BONDDISTANCE

2原子で定義される距離 (原子1-原子2)

BONDDISTANCE_0.1_1_2_」

原子ラベル1-2の距離をCVに指定

第2-4列は以下の値を指定

- ✓ 第2列: ガウス関数の幅 (Å)
- ✓ 第3列: 原子1の原子ラベル
- ✓ 第4列: 原子2の原子ラベル

➤ BONDANGLE

3原子で定義される角度 (原子1-原子2-原子3)

BONDANGLE_0.1_1_2_3_」

原子ラベル1-2-3の角度をCVに指定

第2-5列は以下の値を指定

- ✓ 第2列: ガウス関数の幅 (deg)
- ✓ 第3列: 原子1の原子ラベル
- ✓ 第4列: 原子2の原子ラベル
- ✓ 第5列: 原子3の原子ラベル

➤ BONDDIHEDRAL

4原子で定義される二面角 (原子1-原子2-原子3-原子4)

BONDDIHEDRAL_0.1_1_2_3_4_」

原子ラベル1-2-3-4の二面角をCVに指定

第2-6列は以下の値を指定

- ✓ 第2列: ガウス関数の幅 (deg)
- ✓ 第3列: 原子1の原子ラベル
- ✓ 第4列: 原子2の原子ラベル
- ✓ 第5列: 原子3の原子ラベル
- ✓ 第6列: 原子4の原子ラベル

➤ BONDDISTANCEDIFFERENCE

2原子で定義される距離の差

$$r_{atom1-atom2} - r_{atom3-atom4}$$

BONDDISTANCEDIFFERENCE_0.1_1_2_3_4_↓

距離 $r_{12} - r_{34}$ をCVに指定

第2-6列は以下の値を指定

- ✓ 第2列: ガウス関数の幅 (Å)
- ✓ 第3列: 原子1の原子ラベル
- ✓ 第4列: 原子2の原子ラベル
- ✓ 第5列: 原子3の原子ラベル
- ✓ 第6列: 原子4の原子ラベル

➤ BONDDISTANCEADDITION

2原子で定義される距離の和

$$r_{atom1-atom2} + r_{atom3-atom4}$$

BONDDISTANCEADDITION_0.1_1_2_3_4_↓

距離 $r_{12} + r_{34}$ をCVに指定

第2-6列は以下の値を指定

- ✓ 第2列: ガウス関数の幅 (Å)
- ✓ 第3列: 原子1の原子ラベル
- ✓ 第4列: 原子2の原子ラベル
- ✓ 第5列: 原子3の原子ラベル
- ✓ 第6列: 原子4の原子ラベル

➤ MINIMUMDISTANCE

以下の式で定義される原子間距離 r_{ij} の最小値

$$\frac{\beta}{\ln \sum_{i \in \text{group1}}^{\text{atoms}} \sum_{j \in \text{group2}}^{\text{atoms}} \exp\left(\frac{\beta}{r_{ij}}\right)}$$

MINIMUMDISTANCE_0.1_3_2_500_LABELS_↓

1_2_3_↓

原子集団1は原子ラベル1, 2, 3の3原子から構成

4_5_↓

原子集団2は原子ラベル4, 5の2原子から構成

第1行第2-6列は以下の値を指定

- ✓ 第2列: ガウス関数の幅 (Å)
- ✓ 第3列: 原子集団1の原子数
- ✓ 第4列: 原子集団2の原子数
- ✓ 第5列: 正の実数パラメータ β
- ✓ 第6列: 原子の指定方法

LABELS ... 原子ラベル

SPECIES ... Parameterセクションにおける原子の種類指定順番

➤ MEANDISTANCE

以下の式で定義される2つの原子集団間の平均距離

$$\left[\frac{1}{N_{group1} N_{group2}} \sum_{i \in group1}^{atoms} \sum_{j \in group2}^{atoms} \left(\frac{1}{r_{ij}} \right)^n \right]^{\frac{1}{n}}$$

MEANDISTANCE_0.1_3_2_6_LABELS_↓

1_2_3_↓

原子集団1は原子ラベル1, 2, 3の3原子から構成

4_5_↓

原子集団2は原子ラベル4, 5の2原子から構成

第1行第2-6列は以下の値を指定

- ✓ 第2列: ガウス関数の幅 (Å)
- ✓ 第3列: 原子集団1の原子数
- ✓ 第4列: 原子集団2の原子数
- ✓ 第5列: 正の整数パラメータ n
- ✓ 第6列: 原子の指定方法

LABELS ... 原子ラベル

SPECIES ... Parameterセクションにおける原子の種類指定順番

➤ ATOMPOINTPLANEDISTANCE

1原子で定義される点 (原子1) と3原子で定義される平面 (原子2, 原子3, 原子4) 間の距離

周期系では、METAPBCMIC=TRUEの指定によらずminimum image conventionは不適用

ATOMPOINTPLANEDISTANCE_0.1_1_2_3_4_↓

原子ラベル1の点と原子ラベル2, 3, 4の平面間の距離をCVに指定

第2-6列は以下の値を指定

- ✓ 第2列: ガウス関数の幅 (Å)
- ✓ 第3列: 点を指定する原子1の原子ラベル
- ✓ 第4列: 平面を指定する原子2の原子ラベル
- ✓ 第5列: 平面を指定する原子3の原子ラベル
- ✓ 第6列: 平面を指定する原子4の原子ラベル

➤ ATOMPLANEPLANEANGLE

3原子で定義される平面 (原子1, 原子2, 原子3と原子4, 原子5, 原子6) 間の角度

周期系では、METAPBCMIC=TRUEの指定によらずminimum image conventionは不適用

ATOMPLANEPLANEANGLE_0.1_1_2_3_4_5_6」

原子ラベル1, 2, 3と4, 5, 6の平面間の角度をCVに指定

第2-8列は以下の値を指定

- ✓ 第2列: ガウス関数の幅 (deg)
- ✓ 第3列: 1番目の平面を指定する原子1の原子ラベル
- ✓ 第4列: 1番目の平面を指定する原子2の原子ラベル
- ✓ 第5列: 1番目の平面を指定する原子3の原子ラベル
- ✓ 第6列: 2番目の平面を指定する原子4の原子ラベル
- ✓ 第7列: 2番目の平面を指定する原子5の原子ラベル
- ✓ 第8列: 2番目の平面を指定する原子6の原子ラベル

➤ MIDPOINTDISTANCE
原子集団の中心間距離

MIDPOINTDISTANCE_0.1_3_3_LABELS_COC_」

1_2_3_」

1番目の点は原子ラベル1, 2, 3の3原子を用いて計算

4_5_6_」

2番目の点は原子ラベル4, 5, 6の3原子を用いて計算

第1行第2–6列は以下の値を指定

- ✓ 第2列: ガウス関数の幅 (Å)
- ✓ 第3列: 1番目の点の指定に用いる原子数
- ✓ 第4列: 2番目の点の指定に用いる原子数
- ✓ 第5列: 原子の指定方法
LABELS ... 原子ラベル
SPECIES ... Parameterセクションにおける原子の種類指定順番
- ✓ 第6列: 原子集団の中心の指定方法
COC ... 座標中心
COM ... 重心

➤ GYRATIONRADIUS
原子集団の断面回転半径

GYRATIONRADIUS_0.1_10_LABELS_COC」

10原子全てを用いて断面
回転半径を計算

第2-5列は以下の値を指定

- ✓ 第2列: ガウス関数の幅 (Å)
- ✓ 第3列: 原子集団の原子数
全原子を用いる場合、第2行の指定は不要
- ✓ 第4列: 原子の指定方法
LABELS ... 原子ラベル
SPECIES ... Parameterセクションにおける原子の種類指定順番
- ✓ 第5列: 原子集団の中心の指定方法
COC ... 座標中心、以下の式で定義される非質量荷重断面回転半径を計算 (\mathbf{R} は原子座標)

$$\left[\frac{1}{N_{group1}} \sum_{i \in group1}^{atoms} (\mathbf{R}_i - \mathbf{R}_{COC})^2 \right]^{\frac{1}{2}},$$

COM ... 重心、以下の式で定義される質量荷重断面回転半径を計算 (m は原子質量)

$$\left[\frac{1}{\sum_{i \in group1}^{atoms} m_i} \sum_{i \in group1}^{atoms} m_i (\mathbf{R}_i - \mathbf{R}_{COM})^2 \right]^{\frac{1}{2}},$$

➤ INERTIAMOMENT
原子集団の慣性モーメント

INERTIAMOMENT_0.1_10_LABELS_COC」

10原子全てを用いて慣性
モーメントを計算

第2-5列は以下の値を指定

- ✓ 第2列: ガウス関数の幅
- ✓ 第3列: 原子集団の原子数
全原子を用いる場合、第2行の指定は不要
- ✓ 第4列: 原子の指定方法
LABELS ... 原子ラベル
SPECIES ... Parameterセクションにおける原子の種類指定順番
- ✓ 第5列: 原子集団の中心の指定方法
COC ... 座標中心、以下の式で定義される非質量荷重慣性モーメントを計算 (\mathbf{R} は原子座標)

$$\sum_{i \in \text{group1}}^{\text{atoms}} (\mathbf{R}_i - \mathbf{R}_{\text{COC}})^2,$$

ガウス関数の幅は \AA^2 単位

COM ... 重心、以下の式で定義される質量荷重慣性モーメントを計算 (m は原子質量)

$$\sum_{i \in \text{group1}}^{\text{atoms}} m_i (\mathbf{R}_i - \mathbf{R}_{\text{COM}})^2,$$

ガウス関数の幅は $\text{AMU} \cdot \text{\AA}^2$ 単位

➤ RATIONALCOORDINATIONNUMBER

以下の式で定義される有利関数形の配位数

$$c \sum_{i \in \text{group1}}^{\text{atoms}} \sum_{j \in \text{group2}}^{\text{atoms}} \frac{1 - \left(\frac{r_{ij}}{r_0}\right)^n}{1 - \left(\frac{r_{ij}}{r_0}\right)^m}$$

RATIONALCOORDINATIONNUMBER_0.1_3_2_6_12_2.0_LABELS_AVERAGE_↓

1_2_3_↓

原子集団1は原子ラベル1, 2, 3の3原子から構成

4_5_↓

原子集団2は原子ラベル4, 5の2原子から構成

第1行第2-9列は以下の値を指定

✓ 第2列: ガウス関数の幅

配位数は無次元量

✓ 第3列: 原子集団1の原子数

✓ 第4列: 原子集団2の原子数

✓ 第5列: 正の整数パラメータ n

✓ 第6列: 正の整数パラメータ m

✓ 第7列: 正の実数パラメータ r_0 (Å)

✓ 第8列: 原子の指定方法

LABELS ... 原子ラベル

SPECIES ... Parameterセクションにおける原子の種類指定順番

✓ 第9列: 規格化因子 c

SUM ... $c = 1$

AVERAGE ... $c = \frac{1}{N_{\text{group1}}}$

➤ FERMICOORDINATIONNUMBER

以下の式で定義されるFermi関数形の配位数

$$c \sum_{i \in \text{group1}}^{\text{atoms}} \sum_{j \in \text{group2}}^{\text{atoms}} \frac{1}{1 + \exp[\beta(r_{ij} - r_0)]}$$

FERMICOORDINATIONNUMBER_0.1_3_2_8.0_2.0_LABELS_AVERAGE_↓

1_2_3_↓

原子集団1は原子ラベル1, 2, 3の3原子から構成

4_5_↓

原子集団2は原子ラベル4, 5の2原子から構成

第1行第2-8列は以下の値を指定

✓ 第2列: ガウス関数の幅

配位数は無次元量

✓ 第3列: 原子集団1の原子数

✓ 第4列: 原子集団2の原子数

✓ 第5列: 正の実数パラメータ β

✓ 第6列: 正の実数パラメータ r_0 (Å)

✓ 第7列: 原子の指定方法

LABELS ... 原子ラベル

SPECIES ... Parameterセクションにおける原子の種類指定順番

✓ 第8列: 規格化因子 c

SUM ... $c = 1$

AVERAGE ... $c = \frac{1}{N_{\text{group1}}}$

➤ RMSD

原子集団の平均二乗偏差 (RMSD)

RMSD_0.1_10_LABELS_COC_FIT_ref.xyz ↵

ref.xyzに含まれる構造に
対するRMSDをCVに指定

第2-7列は以下の値を指定

- ✓ 第2列: ガウス関数の幅 (Å)
- ✓ 第3列: 原子集団の原子数
全原子を用いる場合、第2行の指定は不要
- ✓ 第4列: 原子の指定方法
LABELS ... 原子ラベル
SPECIES ... Parameterセクションにおける原子の種類指定順番
- ✓ 第5列: 原子集団の中心の指定方法
COC ... 座標中心、以下の式で定義される非質量荷重RMSDを計算 (\mathbf{R} は原子座標)

$$\left[\frac{1}{N_{group1}} \sum_{i \in group1}^{atoms} (\mathbf{R}_i - \mathbf{R}_i^{ref})^2 \right]^{\frac{1}{2}},$$

COM ... 重心、以下の式で定義される質量荷重RMSDを計算 (m は原子質量)

$$\left[\frac{1}{\sum_{i \in group1}^{atoms} m_i} \sum_{i \in group1}^{atoms} m_i (\mathbf{R}_i - \mathbf{R}_i^{ref})^2 \right]^{\frac{1}{2}},$$

- ✓ 第6列: RMSDの計算方法
AS-IS ... 原子座標をそのまま使用
FIT ... 現在のステップの原子座標の参照する原子座標への重ね合わせ
クラスターモデルのみ使用可能
- ✓ 第7列: 参照構造を含むxyzファイル名

メタダイナミクスにおけるバイアスポテンシャルの読み込み

● “bias.dat”

MD=(METAREADBIAS=TRUE)が指定された場合に必要

前回と今回のプログラム実行でMDキーワードにおけるMETAD=TRUE, METADYNAMICS=TRUE, WTMETAD=TRUE, あるいは WTMETADYNAMICS=TRUEの指定が必要

ファイル形式は、メタダイナミクス計算におけるガウス関数堆積の履歴を含む “biaspot” ファイルと同じである (3.3.4節も参照)。

以下は、距離をCVとする場合の出力例である。

```
GAUSSIAN_BIAS_POTENTIAL:_____1_↓
***_AT_T=_____10.00_FSEC, _THIS_RUN'S_STEP_NO.=_____20_↓
____Gaussian_height____=_____0.0040000000_a.u.↓
____Collective_variable_=_____1
____Coordinate_____ =_____1.6146539213_Angstrom_↓
____Gaussian_width____=_____0.1000000000_Angstrom_↓
...
```

以下の点に注意

- ガウス関数のインデックス (第1行) はMETAMAXGAUSSオプションで指定した値を超えないこと
- シミュレーション時間やステップ数 (第2行) はファイル読み込み時に無視される情報
- ガウス関数の高さ (第3行) は普通のメタダイナミクスでは一定値 (METAHEIGHTオプションで指定した値)、well-temperedメタダイナミクスでは値が徐々に減少
- “metacv.dat” ファイルで複数のCVが指定された場合、CVのインデックスと値、ガウス関数の幅 (第4-6行) は繰り返し出力

メタダイナミクスにおけるポテンシャル障壁の設定

MD=(METAWALL=TRUE)が指定された場合に必要
以下の偶関数多項式をCVのサンプリング範囲を拘束するポテンシャル障壁として適用可能

$$\kappa(s_i - s_0)^n$$

式中のパラメータは、ポテンシャル障壁を課す方向とともに“metacv.dat”ファイルで指定する。以下は、2次元のメタダイナミクス計算において1番目のCVの値が2.0より大きくなる場合に2次のポテンシャル障壁を適用する例である。

<Description of first CV>

<Description of second CV>

↓

U_1_1.0_2.0_2↓

詳細は[メタダイナミクスにおけるCVの設定を参照](#)

詳細は[メタダイナミクスにおけるCVの設定を参照](#)

CVとポテンシャル障壁の指定を分離する空行

ポテンシャル障壁に関する記述

最終行第1-5列は以下の値を指定

- 第1列: ポテンシャル障壁を課す方向
L ... 下限
U ... 上限
- 第2列: CVのインデックス*i*
- 第3列: 係数 κ (kcal/(mol·Å²))
- 第4列: CVの上限・下限値 s_0
ガウス関数の幅と同じ単位
- 第5列: 正の偶数パラメータ*n*

複数のポテンシャル障壁を課す場合、2番目以降のポテンシャル障壁に関する記述は1つ前の指定の次行から指定する。

2 DCDFTBMDの実行

インプットファイル “**dftb.inp**” を作成したら、パラメータファイルや補助インプットファイルといった計算の実行に必要なファイルを適切なディレクトリに格納する。例えば、[1節](#)に示した水分子に対するSCC-DFTBエネルギー一点計算では、4つのパラメータファイル (**oo.spl**, **oh.spl**, **ho.spl**, **hh.spl**) をインプットファイルと同じディレクトリに準備する。実行バイナリファイルは引数なしで使用する。

Serial版	<installation path>/dftb_serial.00.x┘
OpenMP版	<installation path>/dftb_openmp.00.x┘
MPI/OpenMP版	mpexec_np_(number of processes)_<installation path>/dftb_mpiomp.00.x┘

インプットファイルの拡張子部分以外のファイル名は、第1引数を用いて任意に指定できる。以下は、“**file.inp**” ファイルを用いる例である。

Serial版	<installation path>/dftb_serial.00.x file┘
OpenMP版	<installation path>/dftb_openmp.00.x file┘
MPI/OpenMP版	mpexec_np_(number of processes)_<installation path>/dftb_mpiomp.00.x file┘

OpenMP並列計算では、使用するスレッド数を計算の実行前に設定する。

bash	export_OMP_NUM_THREADS=(number of threads)┘
csh, tcsh	setenv_OMP_NUM_THREADS_(number of threads)┘

大規模計算が止まる場合、スタックサイズの増加により解決する場合がある。

bash	ulimit_s_unlimited┘
	export_OMP_STACKSIZE=(stack size value)┘
csh, tcsh	unlimit┘
	setenv_OMP_STACKSIZE_(stack size value)┘

Serial, OpenMP版における基底関数の数の上限は16384である。

3 DCDFTBMDの出力

計算が正常に終了した場合、標準アウトプットファイルと詳細データファイルが通常出力される。入力に **"dftb.inp"** ファイルを用いた場合、標準アウトプットファイルと詳細データファイルのファイル名はそれぞれ **"dftb.out"** と **"dftb.dat"** となる。拡張子部分以外のファイル名を変更した場合 (例: [2節](#)の **"file.inp"**)、標準アウトプットファイルと詳細データファイルのファイル名も適切に変更される (例: **"file.out"** と **"file.dat"**)。以下では、[1節](#)に示した水分子に対するSCC-DFTBエネルギー一点計算のserial, OpenMP版の標準アウトプットファイルと詳細データファイルを概説する。部分系の情報やMulliken電荷の出力形式が多少異なるものの、MPI/OpenMP版の対応するファイルはserial, OpenMP版の出力に類似する。なお、改行 (␣) と空白領域 () の記号は今後省略される。

3.1 標準アウトプットファイル

標準アウトプットファイルは、プログラムのヘッダーから始まる。バージョン番号は公開中の実行バイナリファイルに依存する。プログラム実行開始時刻の出力後、Titleセクションに記述されたコメント行が表示される ([1.2節](#)を参照)。

```
*****
DDDDDD   CCCCCC  DDDDDD  FFFFFFFF TTTTTTTTTT BBBBBBBB  MM      MM DDDDD
DDDDDDDD CCCCCCCC DDDDDDDD FFFFFFFF TTTTTTTTTT BBB   BBB MMM  MMM DDDDDDD
DDD  DDD CCC      DDD  DDD FF          TTT  BBB  BBB MM  M M  MM DDD  DDD
DDD  DDD CCC      DDD  DDD FFFFFFFF   TTT  BBBBBBBB MM  M  MM DDD  DDD
DDD  DDD CCC      DDD  DDD FFFFFFFF   TTT  BBB  BBB MM      MM DDD  DDD
DDDDDDDD CCCCCCCC DDDDDDDD FF          TTT  BBB  BB MM      MM DDDDDDD
DDDDDD   CCCCCC  DDDDDD  FF          TTT  BBBBBBBB MM      MM DDDDD
VERSION 2.0 (Dec 2019)
*****
Execution of DCDFTBMD begun %a %b %d %H:%M:%S %Y
-----
TITLE
-----
```

次に、パラメータファイルのパスと計算条件の要約が出力される。

```
2 kinds of elements will be used

Pair of element 1 and element 1 : {path}/oo.spl
Pair of element 1 and element 2 : {path}/oh.spl
Pair of element 2 and element 1 : {path}/ho.spl
Pair of element 2 and element 2 : {path}/hh.spl

SCC      = True
-----

Max cycle      = 200
Energy convergence = 1.0E-09
Density convergence = 1.0E-06
Charge mixing method = Broyden
  Broyden iteration = 70
Mixing parameter = 2.0E-01
Eigensolver    = DSYGVD
...

DC      = False
-----

DISP    = False
-----

PBC     = False
-----

OPT     = False
-----

FREQ    = False
-----

MD      = False
-----

MISC    = False
-----
```

次に、系に依存する量が出力される。

```
Total number of basis set shells = 4
Number of basis functions      = 6
Number of electrons            = 8
Charge of system               = 0
Spin multiplicity              = 1
Number of occupied orbitals    = 4
Total number of atoms         = 3
```

原子数、電荷、スピン多重度はGeometryセクションで指定した値に対応する(1.4.1節を参照)。原子価軌道数、基底関数の数、電子数は水分子に対して以下のように計算される。

- 原子価軌道数: $O(s) + O(p) + H(s) + H(s) = 4$
- 基底関数の数: $O(s) + O(p_x) + O(p_y) + O(p_z) + H(s) + H(s) = 6$
- 電子数: $O(s^2p^4) + H(s^1) + H(s^1) = 8$

これらの量は使用するパラメータファイルに依存するため、minimal basisと価電子を考慮する化学的直感から異なった値となる可能性がある。

最後に、SCC-DFTBエネルギー一点計算の結果が出力される。

```
*** Start single point energy calculation ***
*****

*** Start SCC-DFTB calculation ***
*****

Iter.  Total energy      Energy diff.    Density diff.   Fermi level
-----
  1    0.0726464067      0.0726464067   2.0000000000    0.0025000000
  2   -4.0712418245     -4.1438882313   0.0200187809    0.0025000000
  3   -4.0741988428     -0.0029570183   0.0590590622    0.3564583333
  4   -4.0779379555     -0.0037391127   0.0004103232    0.3525000000
  5   -4.0779381355     -0.0000001800   0.0000024570    0.3525000000
  6   -4.0779381355     0.0000000000    0.0000000001    0.3562500000

Final SCC-DFTB Energy = -4.0779381355 Eh after 6 iterations
Execution of DCDFBMD terminated normally %a %b %d %H:%M:%S %Y
```

SCC収束後の全エネルギーは-4.0779381355 Hartreeである。

3.2 詳細データファイル

詳細データファイルは、入力構造に関連するプロパティ情報を含む。始めに、構築された部分系と局在化領域が出力される。この計算はDC=FALSEであるため、3原子全てが部分系1に属する。

```
SUBSYSTEM : 1
-----
  1   2   3
LOCALIZATION REGION : 1
-----
  1
```

MPI/OpenMP版では、MISCキーワードにおいてPRINTLOCALREGION=TRUEの場合を除き簡潔な表示となる。

```
SUBSYSTEM
-----
  1   1   1
```

次に、分子軌道のエネルギー (Hartree) と電子占有数が第1, 2列に出力される。

```
EIGENVALUES [Eh] AND OCCUPANCIES
-----
-0.8489865909    2.0000000000
-0.4143390336    2.0000000000
-0.3137537414    2.0000000000
-0.2591755518    2.0000000000
 0.3992760730    0.0000000000
 0.5583952222    0.0000000000
```

MISCキーワードにおいてPRINTMO=TRUEの場合、分子軌道係数が追加出力される。占有軌道と仮想軌道はそれぞれOCC.とVIRT.で区別される。

EIGENVALUES [Eh], OCCUPANCIES, AND MO COEFFICIENTS

```
-----  
1   OCC.   -0.8489865909   2.0000000000  
1   O   S   0  -0.8522740053  
   P  -1   0.0017546133  
   P   0   0.0000000000  
   P   1   0.0017546133  
2   H   S   0  -0.1530727458  
3   H   S   0  -0.1530727458  
2   OCC.   -0.4143390336   2.0000000000  
1   O   S   0  -0.0000000000  
   P  -1   0.4626963766  
   P   0   0.0000000000  
   P   1  -0.4626963766  
2   H   S   0  -0.3908041098  
3   H   S   0   0.3908041098  
...
```

次に、原子毎のMulliken電荷密度と正味電荷の値が第2, 3列に出力される。

MULLIKEN POPULATIONS AND NET ATOMIC CHARGES

```
-----  
1   6.5926170634   -0.5926170634  
2   0.7036914683   0.2963085317  
3   0.7036914683   0.2963085317
```

SCCあるいはNCCキーワードにおいてORBITALPOP=TRUEの場合、原子軌道毎のMulliken電荷密度が追加出力される。

MULLIKEN POPULATIONS AND NET ATOMIC CHARGES

```
-----  
1   O   6.5926170634   -0.5926170634  
    S  0  1.7342141199  
    P -1  1.4292014718  
    P  0  2.0000000000  
    P  1  1.4292014718  
2   H   0.7036914683    0.2963085317  
    S  0  0.7036914683  
3   H   0.7036914683    0.2963085317  
    S  0  0.7036914683
```

MPI/OpenMP版では、原子価軌道毎のMulliken電荷密度が出力される。

MULLIKEN POPULATIONS

```
-----  
1.73421412   4.85840294   0.70369147   0.70369147
```

次に、Mulliken電荷を用いて計算された双極子モーメントの x , y , z 成分とノルムがatomic unitとDebye単位で表示される。周期境界条件を課したモデルではこの情報は出力されない。

DIPOLE MOMENT [a.u.]

```
-----  
      x           y           z  
0.4545263289   0.4545263289   0.0000000000  
NORM :    0.6427972988
```

DIPOLE MOMENT [Debye]

```
-----  
      x           y           z  
1.1552906835   1.1552906835   0.0000000000  
NORM :    1.6338277531
```

SCCあるいはNCCキーワードにおいてMAYER=TRUEの場合、原子価とMayer結合次数が行列の対角と非対角要素として表示される。

ATOMIC VALENCIES AND MAYER BOND ORDERS

```
-----  
      1      2      3  
1  1.796085  0.898042  0.898042  
2  0.898042  0.912201  0.014159  
3  0.898042  0.014159  0.912201
```

SCCあるいはNCCキーワードにおいてCM3=TRUEの場合、CM3電荷とそれを用いて計算された双極子モーメントが追加出力される。

CM3 NET ATOMIC CHARGES

```
-----  
1  -0.5833492665  
2   0.2916746332  
3   0.2916746332
```

CM3 DIPOLE MOMENT [a.u.]

```
-----  
      x      y      z  
0.4474181000  0.4474181000  0.0000000000
```

NORM: 0.6327447451

CM3 DIPOLE MOMENT [Debye]

```
-----  
      x      y      z  
1.1372233679  1.1372233679  0.0000000000
```

NORM: 1.6082767104

最後に、全エネルギーに対する各成分の寄与 (Hartree) が表示される。MPI/OpenMP版では、MISCキーワードにおけるPRINTATOME=TRUEの指定が対応する情報を取得するために必要である。

```
ENERGY CONTRIBUTION [Eh]
-----
ENERGY H0           = -4.1689461692
ENERGY SCC          =  0.0183616273
TOTAL ELECTRONIC ENERGY = -4.1505845420
REPULSIVE ENERGY   =  0.0726464065
TOTAL ENERGY       = -4.0779381355
```

MISCキーワードにおいてPRINTATOME=TRUEの場合、全エネルギー、electronicエネルギー、repulsiveエネルギーに対する各原子の寄与 (Hartree) が追加出力される。

```
ATOM RESOLVED ENERGY CONTRIBUTION [Eh]
-----
      TOTAL      ELECTRONIC      REPULSIVE
1  -3.3763986686  -3.4127218718  0.0363232032
2  -0.3507697335  -0.3689313351  0.0181616016
3  -0.3507697335  -0.3689313351  0.0181616016
```

3.3 その他の出力

その他の出力は、計算条件に依存して追加生成される。

3.3.1 DFTB計算における出力

- **"chrgfile"**
SCC=TRUEかつMISC=(WRITECHRGFILE=TRUE)が指定された場合に生成
Mulliken密度解析の結果をバイナリ形式で格納
SCCキーワードにおいてREADCHARGE=BINARYの場合、初期電荷設定に使用 ([1.5.1節](#)を参照)

以下のファイルは、serial, OpenMP版のみ生成

- **"zacaz", "zbcbz", "zszsz"**
MISC=(USESCRATCH=TRUE)が指定された場合に生成
局在化領域の軌道係数 (**zacaz**, **zbcbz**は α, β スピンの対応) と重なり行列 (**zszsz**) のデータをバイナリ形式で格納
一時ファイルであり、解析不要

3.3.2 振動数計算における出力

- **“restart_hess”**
FREQ=(PRINTHESS=TRUE)が指定された場合に生成
Hessian行列要素の計算結果をバイナリ形式で格納
FREQ/FREQUENCYキーワードにおいてRESTARTHESS=BINARYの場合、
Hessian行列設定に使用 ([1.5.1節](#)を参照)
- **“hess.dat”**
解析的あるいは数值的Hessian計算 (FREQ/FREQUENCYキーワードにお
ける FREQTYPE=1 あるいは FREQTYPE=2) で
FREQ=(INTERRUPTCP=TRUE) あ る い は
FREQ=(INTERRUPTSEMINUM=TRUE)が指定された場合に生成
Hessian行列要素のインデックスと値を出力 (形式は[1.5.2節](#)を参照)
FREQ/FREQUENCYキーワードにおいてRESTARTHESS=ASCIIの場合、
Hessian行列設定に使用 ([1.5.2節](#)を参照)
- **“dftb_vib.out”**
FREQ=TRUEが指定された場合に生成
調和振動解析の結果をGaussian出力形式で格納

3.3.3 MD計算における出力

- **“restart”**
MD=TRUEが指定された場合に生成
MD計算の直近のステップに関する情報をバイナリ形式で格納
MDキーワードにおいてRESTART=TRUEの場合、計算の再開に使用
([1.5.1節](#)を参照)
- **“restart_chk”**
MD=TRUEが指定された場合に生成
MD計算の直近のチェックポイントステップに関する情報をバイナリ形式で格納
MDキーワードにおいてRESTART=TRUEの場合、“restart” にファイル名をリネーム後計算の再開に使用可能 ([1.5.1節](#)を参照)
- **“traject”**
MD=TRUEが指定された場合に生成
MD計算における原子座標をステップ毎にxyzファイル形式で出力
- **“velocity”**
MD=TRUEが指定された場合に生成
MD計算における速度 (Å/fs) をステップ毎にxyzファイル形式で出力

- “mulliken”

MD=TRUEが指定された場合に生成

MD計算におけるMulliken正味電荷をステップ毎に以下の形式で出力

- Serial, OpenMP版

- ✓ 第1行: 原子数 (N_{atom})
- ✓ 第2行: コメント (シミュレーション時間とステップ数)
- ✓ 第3-($N_{\text{atom}} + 2$)行: 原子ラベル (第1列) 、原子の種類記号 (第2列) 、原子のMulliken正味電荷 (第3列)

- MPI/OpenMP版

- ✓ 第1行: 原子価軌道数 (N_{shell} , 第1列) と N_{atom} (第2列)
- ✓ 第2行: コメント (シミュレーション時間とステップ数)
- ✓ 第3-($N_{\text{shell}} + 2$)行: 原子ラベル (第1列) 、原子の種類記号 (第2列) 、原子価軌道の記号 (第3列) 、原子価軌道のMulliken正味電荷 (第4列)

3.3.4 メタダイナミクスにおける出力

MD計算における出力 ([3.3.3節](#)を参照) からの追加出力を列挙する。

- **“restart_meta”**
MD=(METAD=TRUE), MD=(METADYNAMICS=TRUE),
MD=(WTMETAD=TRUE), あ る い は
MD=(WTMETADYNAMICS=TRUE)が指定された場合に生成
メタダイナミクス計算におけるガウス関数堆積の履歴をバイナリ形式
で格納
MDキーワードにおいてMETARESTART=TRUEの場合、計算の再開に使用 ([1.5.1節](#)を参照)
- **“restart_meta_chk”**
MD=(METAD=TRUE), MD=(METADYNAMICS=TRUE),
MD=(WTMETAD=TRUE), あ る い は
MD=(WTMETADYNAMICS=TRUE)が指定された場合に生成
メタダイナミクス計算の直近のチェックポイントステップでのガウス
関数堆積の履歴をバイナリ形式で格納
MDキーワードにおいてMETARESTART=TRUEの場合、**“restart_meta”**
にファイル名をリネーム後計算の再開に使用可能 ([1.5.1節](#)を参照)
- **“biaspot”**
MD=(METAD=TRUE), MD=(METADYNAMICS=TRUE),
MD=(WTMETAD=TRUE), あ る い は
MD=(WTMETADYNAMICS=TRUE)が指定された場合に生成
メタダイナミクス計算におけるガウス関数堆積の履歴を出力 (形式は
[1.5.2節](#)を参照)
MDキーワードにおいてMETAREADBIAS=TRUEの場合、**“bias.dat”** に
ファイル名をリネーム後計算の再開に使用可能 ([1.5.2節](#)を参照)

- **"fes.dat"**

MD=(METAPRINTFES=TRUE)が指定された場合に生成

自由エネルギー面のデータを以下の形式で格納

- 第1-(CV数)列: CVのグリッド点 (単位はガウス関数の幅と同じ)
- 最終列: 自由エネルギー (Hartree)

参考文献

- [1] M. Elstner, D. Porezag, G. Jungnickel, J. Elsner, M. Haugk, T. Frauenheim, S. Suhai, G. Seifert, *Phys. Rev. B* **58**, 7260 (1998).
- [2] D. D. Johnson, *Phys. Rev. B* **38**, 12807 (1988).
- [3] V. Eyert, *J. Comput. Phys.* **124**, 271 (1996).
- [4] P. Pulay, *J. Comput. Chem.* **3**, 556 (1982).
- [5] J. J. P. Stewart, P. Császár, P. Pulay, *J. Comput. Chem.* **3**, 227 (1982).
- [6] Y. Yang, H. Yu, D. York, Q. Cui, M. Elstner, *J. Phys. Chem. A* **111**, 10861 (2007).
- [7] M. Gaus, Q. Cui, M. Elstner, *J. Chem. Theory Comput.* **7**, 931 (2011).
- [8] M. Elstner, *J. Phys. Chem. A* **111**, 5614 (2007).
- [9] Y. Yang, H. Yu, D. York, M. Elstner, Q. Cui, *J. Chem. Theory Comput.* **4**, 2067 (2008).
- [10] Y. Nishimura, H. Nakai, *J. Comput. Chem.* **39**, 105 (2018).
- [11] C. Köhler, G. Seifert, U. Gerstmann, M. Elstner, H. Overhof, T. Frauenheim, *Phys. Chem. Chem. Phys.* **3**, 5109 (2001).
- [12] C. Köhler, G. Seifert, T. Frauenheim, *Chem. Phys.* **309**, 23 (2005).
- [13] B. Hourahine, S. Sanna, B. Aradi, C. Köhler, T. Niehaus, T. Frauenheim, *J. Phys. Chem. A* **111**, 5671 (2007).
- [14] A. Domínguez, T. A. Niehaus, T. Frauenheim, *J. Phys. Chem. A* **119**, 3535 (2015).
- [15] I. Mayer, *Chem. Phys. Lett.* **97**, 270 (1983).
- [16] J. A. Kalinowski, B. Lesyng, J. D. Thompson, C. J. Cramer, D. G. Truhlar, *J. Phys. Chem. A* **108**, 2545 (2004).
- [17] S. Kaminski, M. Gaus, M. Elstner, *J. Phys. Chem. A* **116**, 11927 (2012).
- [18] M. Gaus, H. Jin, D. Demapan, A. S. Christensen, P. Goyal, M. Elstner, Q. Cui, *J. Chem. Theory Comput.* **11**, 4205 (2015).
- [19] B. Quentrec, C. Brot, *J. Comput. Phys.* **13**, 430 (1973).
- [20] W. Mattson, B. M. Rice, *Comput. Phys. Commun.* **119**, 135 (1999).
- [21] D. Porezag, T. Frauenheim, T. Köhler, G. Seifert, R. Kaschner, *Phys. Rev. B* **51**, 12947 (1995).
- [22] G. Seifert, D. Porezag, T. Frauenheim, *Int. J. Quantum Chem.* **58**, 185 (1996).
- [23] W. Yang, T.-S. Lee, *J. Chem. Phys.* **103**, 5674 (1995).
- [24] M. Kobayashi, H. Nakai, in *Linear-Scaling Techniques in Computational Chemistry and Physics*, R. Zalesny, M. G. Papadopoulos, P. G. Mezey, J. Leszczynski, Eds.; Springer: Dordrecht, pp. 97–127 (2011).
- [25] B. Cordero, V. Gómez, A. E. Platero-Prats, M. Revés, J. Echeverría, E. Cremades, F. Barragán, S. Alvarez, *Dalton Trans.* **21**, 2832 (2008).

- [26] H. Nishizawa, Y. Nishimura, M. Kobayashi, S. Irle, H. Nakai, *J. Comput. Chem.* **37**, 1983 (2016).
- [27] S. Grimme, *J. Comput. Chem.* **27**, 1787 (2006).
- [28] M. Elstner, P. Hobza, T. Frauenheim, S. Suhai, E. Kaxiras, *J. Chem. Phys.* **114**, 5149 (2001).
- [29] L. Zhechkov, T. Heine, S. Patchkovskii, G. Seifert, H. A. Duarte, *J. Chem. Theory Comput.* **1**, 841 (2005).
- [30] A. K. Rappé, C. J. Casewit, K. S. Colwell, W. A. Goddard III, W. M. Skiff, *J. Am. Chem. Soc.* **114**, 10024 (1992).
- [31] S. Grimme, J. Antony, S. Ehrlich, H. Krieg, *J. Chem. Phys.* **132**, 154104 (2010).
- [32] S. Grimme, S. Ehrlich, L. Goerigk, *J. Comput. Chem.* **32**, 1456 (2011).
- [33] J. Řezáč, P. Hobza, *J. Chem. Theory Comput.* **8**, 141 (2012).
- [34] V. M. Miriyala, J. Řezáč, *J. Comput. Chem.* **38**, 688 (2017).
- [35] H. Kim, J.-M. Choi, W. A. Goddard III, *J. Phys. Chem. Lett.* **3**, 360 (2012).
- [36] R. Petraglia, S. N. Steinmann, C. Corminboeuf, *Int. J. Quantum Chem.* **115**, 1265 (2015).
- [37] J. Řezáč, *J. Chem. Theory Comput.* **13**, 4804 (2017).
- [38] M. Kubillus, T. Kubař, M. Gaus, J. Řezáč, M. Elstner, *J. Chem. Theory Comput.* **11**, 332 (2015).
- [39] C. G. Lambert, T. A. Darden, J. A. Board Jr., *J. Comput. Phys.* **126**, 274 (1996).
- [40] H. Jónsson, G. Mills, K. W. Jacobsen, in *Classical and Quantum Dynamics in Condensed Phase Simulations*, B. J. Berne, G. Ciccotti, D. F. Coker, Eds.; World Scientific: Singapore, pp. 385–404 (1998).
- [41] E. Bitzek, P. Koskinen, F. Gähler, M. Moseler, P. Gumbsch, *Phys. Rev. Lett.* **97**, 170201 (2006).
- [42] T. Atsumi, H. Nakai, *Chem. Phys. Lett.* **490**, 102 (2010).
- [43] Y. Nishimura, H. Nakai, *J. Comput. Chem.* **40**, 1538 (2019).
- [44] W. C. Swope, H. C. Andersen, P. H. Berens, K. R. Wilson, *J. Chem. Phys.* **76**, 637 (1982).
- [45] L. V. Woodcock, *Chem. Phys. Lett.* **10**, 257 (1971).
- [46] G. J. Martyna, M. E. Tuckerman, D. J. Tobias, M. L. Klein, *Mol. Phys.* **87**, 1117 (1996).
- [47] H. J. C. Berendsen, J. P. M. Postma, W. F. van Gunsteren, A. DiNola, J. R. Haak, *J. Chem. Phys.* **81**, 3684 (1984).
- [48] H. C. Andersen, *J. Chem. Phys.* **72**, 2384 (1980).
- [49] G. Marsaglia, A. Zaman, W. W. Tsang, *Stat. Probab. Lett.* **8**, 35 (1990).
- [50] H. C. Andersen, *J. Comput. Phys.* **52**, 24 (1983).
- [51] T. Atsumi, H. Nakai, *J. Chem. Phys.* **128**, 094101 (2008).
- [52] A. Laio, M. Parrinello, *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* **99**, 12562 (2002).
- [53] A. Barducci, G. Bussi, M. Parrinello, *Phys. Rev. Lett.* **100**, 020603 (2008).
- [54] <http://www.dftbplus.org/fileadmin/DFTBPLUS/public/dftbplus/latest/manual.pdf>