ISSN (Print) 1598-5385
ISSN (Online) 2233-6648
≪해설논문≫ Journal of the Korean Magnetics Society 36(5), 405-412 (2026) https://doi.org/10.4283/JKMS.2026.36.5.405

Self-Consistent Extended Hubbard Interactions and their Applications

Young-Woo Son* and Wooil Yang†
Korea Institute for Advanced Study, Seoul 02455, Korea
†Present Address: Oden Institute for Computational Engineering and Sciences and Department of Physics, The University of Texas at Austin, Austin, Texas 78712, USA

(Received 21 September 2026, Received in final form 26 October 2026, Accepted 27 October 2026)

Density functional theory is currently the most widely used tool for calculating material properties, but it suffers from self-interaction errors, the resulting underestimation of band gaps, and shortcomings in predicting various electrical and magnetic properties. This article introduces DFT+*U*, a first-principles method incorporating Hubbard interaction corrections to address these limitations, and its nonlocal extension, DFT+*U*+*V*. We first examine which physical quantities are corrected by Hubbard terms in density functional theory and summarize the key equations underlying the extended Hubbard correction. We then compare approaches for determining the on-site and intersite Hubbard interactions, *U* and *V*, using linear-response theory or Hartree-Fock-based methods, and introduce generalizations of their self-consistent determination to noncollinear spin configurations and spin-orbit coupling. Finally, we discuss why Hubbard correction terms are important for magnetic materials and review the advantages and limitations reported in previous studies.

Keywords : first-principles calculation methods, hubbard interactions, magnetic materials, Hartree-Fock Calculations

자기 일관된 확장 허바드 보정의 제일원리 계산 방법과 그 응용

손영우* · 양우일†
고등과학원, 서울시 동대문구 회기로 85, 서울 02455, 대한민국
†현재 주소: Oden Institute for Computational Engineering and Sciences and Department of Physics, The University of Texas at Austin, Austin, Texas 78712, USA

(2026년 9월 21일 받음, 2026년 10월 26일 최종수정본 받음, 2026년 10월 27일 게재확정)

밀도범함수 이론은 물질의 물성 계산에서 현재 가장 자주 쓰이는 도구이지만, 자체서로작용 오차와 이에 따른 띠틈 과소평가 문제 및 여러 전기적 자기적 물성 계산의 결함을 보여준다. 이 글은 이러한 한계를 보완하려 도입된 허바드 상호작용이 보정된 제일원리 계산방법인 DFT+*U* 방법과 이를 비국소 상호작용으로 확장한 DFT+*U*+*V* 계산 방법을 소개하고자 한다. 먼저 허바드 보정이 밀도범함수에서 어떤 물리량을 고치는지 살펴보고, 확장 허바드 보정에서 쓰이는 핵심 수식을 정리한다. 이어 국소, 비국소 허바드 상호작용 *U*와 *V*를 선형응답 이론 또는 하트리-폭 기반 계산 방법으로 구하는 접근을 비교하고, 본연구진이 개발한 자기 일관된 방법으로 이를 구하는 방법의 비공선 스핀 및 스핀-궤도 상호작용 일반화를 소개 하고자 한다. 마지막으로 자성 물질에서 허바드 상호작용 보정항이 왜 중요한지, 기존 연구에서 어떤 장점과 한계점이 보고되었는지를 살펴본다.

주제어 : 제일원리계산방법론, 허바드 상호작용, 자성물질, 하트리-폭 계산법

I. 문제 설정

밀도범함수 이론을 바탕으로 하는 제일원리계산법은 호헨버그-콘(Hohenberg-Kohn) 정리와 콘-샴(Kohn-Sham) 방정식에 뿌리를 둔다[1-3]. 오늘날 이 방법들은 물질의 여러가지 성질들을 계산하는 표준 방법으로 쓰이며, 고속 대용량 데이터 기반 연구의 기반이 되었다[4]. 그 이유는 분명하다. 한곳 밀도 어림(Local Density Approximation)이나 일반화 기울기

© The Korean Magnetics Society. All rights reserved.
*Corresponding author: Tel: +82-2-958-3720, e-mail: hand@kias.re.kr

어림(Generalized Gradient Approximation)처럼 비교적 단순한 바꿈-상관 범함수만 써도 수백 개에서 수천 개 원자를 포함한 계의 어림된 양자역학적 성질을 계산할 수 있기 때문이다[5]. 계산 비용이 낮다는 장점은 물질 탐색에서 결정적이다. 후보 구조를 하나씩 깊게 분석하는 연구와 달리, 고속 대용량 계산에서는 수천 개 물질의 안정성, 띠틈, 유효 질량, 자기 배열을 일정한 기준으로 비교해야 한다. 따라서 방법은 충분히 빠르면서도, 잘못된 물성 경향을 체계적으로 만들지 않아야 한다.

그러나 이 장점은 정확도와 맞바뀌는 경우가 많다. 대표적인 문제는 자체서로작용 오차이다[6]. 근사 범함수는 전자가 자기 자신과 상호작용하는 효과를 완전히 제거하지 못하고, 그 결과 전하를 실제보다 더 공간적으로 퍼뜨린다. 이 오차는 전체적으로 거의 모든 물질 계산에서 나타나고, d 또는 f 궤도처럼 원자 주변에 머무는 전자에서 특히 크게 나타난다. 정확한 범함수라면 총에너지 $E(N)$은 정수 전자 수 사이에서 선형으로 변해야 하지만, 많은 근사 범함수는 볼록한 곡률을 갖는다[7]. 이 곡률은 분수 점유를 지나치게 안정화하고, 띠틈과 자기 모멘트를 작게 만드는 방향으로 작용한다.

DFT+U 방법은 이 문제를 국소화된 부분공간에서 직접 보정한다[8,9]. 핵심 생각은 간단하다. 문제가 되는 원자 궤도에 대해 전자 점유가 0이나 1에 가까워지도록 에너지 항을 더한다. 이 보정은 전자를 더 국소화하고, 점유된 상태와 비어 있는 상태 사이의 에너지 간격을 넓힌다. 그래서 전이금속 산화물이나 희토류 화합물처럼 강한 국소 상관을 보이는 계에서 널리 쓰인다. 이 관점에서 DFT+U 방법은 모든 전자 상관을 해결하는 보편적 방법이라기보다, 근사 범함수가 특히 취약한 국소 궤도 부분공간에 곡률 보정을 넣는 실용적 방법으로 이해하는 편이 정확하다.

하지만 한 오비탈에만 국소적으로 작용하는 U만으로는 충분하지 않은 경우가 있다. 공유결합성이 강한 반도체, 전하 이동 산화물, 그리고 배위자(ligand)와 금속 궤도가 강하게 섞인 자성 물질에서는 서로 다른 원자 사이의 혼성이 물리의 핵심이 된다. 국소 상호작용 U는 보통 이 혼성을 줄이는 쪽으로 작용하므로, 띠틈은 고치더라도 전하 이동 에너지나 자기 바꿈 상호작용을 틀리게 만들 수 있다. 이때 필요한 항이 비국소 허바드 상호작용 V이다[10-12].

따라서 DFT+U+V 방법의 역할은 두 가지로 볼 수 있다. U는 한 원자 안에서 전자를 국소화하고, V는 이웃 원자 사이의 혼성을 물리적으로 조절한다. 두 항을 함께 쓰면 국소화와 공유결합성을 동시에 다룰 수 있다. 특히 기존 연구에서처럼 U와 V를 경험적으로 맞추지 않고 자기 일관적으로 계산할 때, 이 방법이 표준 밀도범함수 이론과 비슷한 규모의 계산 비용을 유지하면서도 훨씬 많은 계산 자원을 요구하는 혼성 범함수(hybrid functional)나 GW 어림 계산에 가까운 정확도를 줄 수 있음이 논의되었다[13-15]. 이 글의 나머지 부분은 이러한 연구 활동들을 세 단계로 정리한다. 먼저 DFT+U 방법의 에너지 보정이 어떤 수학적 구조를 갖는지 본다. 다음으로 비국소 항 V가 왜 같은 틀 안에 들어와야 하는지 설명한다. 마지막으로 U와 V를 선형응답 이론이나 하트리-폭 기반 계산 방법으로 계산한 문헌을 바탕으로, 여러 물질들의 물성 연구에 적용된예들과 자성 물질에서 보고된 장점과 주의점을 논의한다.

II. 표준 DFT+U 방법

허바드 보정은 먼저 콘-샴 상태를 국소 원자 궤도에 투영하는 데서 시작한다. I번째 원자의 궤도 $\left|\varphi_m^I\right\rangle$에 대해 점유 행렬은

$$n_{mm'}^{IJ\sigma} = \sum_{v\mathbf{k}} w_{\mathbf{k}} f_{v\mathbf{k}}^{\sigma} \left\langle \psi_{v\mathbf{k}}^{\sigma} \middle| \varphi_{m'}^{J} \right\rangle \left\langle \varphi_{m}^{I} \middle| \psi_{v\mathbf{k}}^{\sigma} \right\rangle \tag{1}$$

로 정의된다. 여기서 $w_{\mathbf{k}}$는 $\mathbf{k}$점 가중치, $f_{v\mathbf{k}}^{\sigma}$는 v번째 밴드에서 운동량 $\mathbf{k}$를 가지는 블로흐 상태 $\psi_{v\mathbf{k}}^{\sigma}$의 페르미-디랙 분포이고, m과 m'은 국소 궤도 지표, 그리고 σ는 스핀이다. 또한, $\left|\varphi_m^I\right\rangle$는 뢰딘(Löwdin) 직교규격화된 원자 투영기이다[14]. $I=J$이면 한 원자 안의 점유 행렬 $n_{mm'}^{I\sigma}$가 된다. DFT+U 방법의 총 에너지는

$$E_{\mathrm{DFT}+U} = E_{\mathrm{DFT}} + E_{\mathrm{Hub}} - E_{\mathrm{dc}} \tag{2}$$

처럼 쓴다. E_{Hub}는 국소 부분공간에서 전자 간 쿨롱 상호작용을 명시적으로 더한 항이고, E_{dc}는 이미 밀도범함수 이론 안에 평균적으로 들어 있는 몫을 빼는 이중 계산 보정이다. 회전 불변 정식화에서는 궤도 기저를 어떻게 돌려도 같은 물리가 나오도록 쿨롱 적분과 점유 행렬을 결합한다[16]. 이때 허바드 에너지는 같은 껍질 안의 네 궤도 쿨롱 적분과 점유 행렬의 곱으로 표현된다. 네 궤도 적분을 $C_{mm'm''m'''} = \left\langle mm'' \middle| V_{ee} \middle| m'm''' \right\rangle$로 쓰면,

$$E_{\mathrm{U}} = \frac{1}{2} \sum_{I,\sigma} \sum_{\{m\}} [C_{mm'm''m'''} n_{mm'}^{I\sigma} n_{m''m'''}^{I\bar{\sigma}} + \left(C_{mm'm''m'''} - C_{mm'''m''m'}\right) n_{mm'}^{I\sigma} n_{m''m'''}^{I\sigma}] \tag{3}$$

로 쓸 수 있다. 첫 항은 반대 스핀 사이의 집접 쿨롱 항이고, 둘째 항은 같은 스핀 사이에 직접항과 바꿈항이 함께 들어간 부분이다. 모든 쿨롱 적분을 그대로 쓰면 궤도 이방성까지 남지만, 계산이 복잡하고 실제 응용에서는 더 단순한 평균화가 흔히 쓰인다.

실제 계산에서는 두다레프(Dudarev)의 단순화된 형태가 널리 쓰인다[17]. 궤도 사이의 세부 이방성을 평균화하고 $n_{mm'}^{I\sigma}$

를 행렬형태 $n^{I\sigma}$로 쓰면, 보정 에너지는

$$E_U = \sum_{I,\sigma} \frac{U^I_{\text{eff}}}{2} \text{Tr}\left[n^{I\sigma} \left(1 - n^{I\sigma}\right) \right] \tag{4}$$

가 된다. 여기서 $U^I_{\text{eff}} = U^I - J^I$이고 J^I는 I 번째 원자에서 교환 상호작용의 크기이다. 이 식은 물리적으로 자명하다. 점유 고유값이 0이나 1이면 보정은 사라지고, 분수 점유에서는 양의 에너지 비용이 생긴다. 그래서 DFT+U 방법은 근사 범함수가 만든 잘못된 총에너지 곡률을 상쇄하고 정수 점유를 선호하게 만든다[18]. 또한 이 식은 이중 계산 문제를 다루는 한 가지 실용적 선택을 내포한다. 평균장 수준에서 이미 밀도범함수 이론에 포함되어 있다고 보는 부분을 빼고 나면, 남는 항은 점유 행렬이 $n^2 \neq n$인 경우 추가 에너지 벌칙을 주게 된다. 그래서 완전히 찬 궤도와 완전히 빈 궤도에서는 보정 에너지가 사라지고, 분수 점유 상태의 상대적 안정성만 낮춘다.

이에 대응하는 콘-샴 방정식에 들어갈 허바드 퍼텐셜은

$$\hat{V}^{\sigma}_{U} = \sum_{I} \sum_{mm'} U^I_{\text{eff}} \left(\frac{\delta_{mm'}}{2} - n^{I\sigma}_{mm'} \right) \left| \varphi^I_m \right\rangle \left\langle \varphi^I_{m'} \right| \tag{5}$$

이다. 대각 성분만 보면 점유된 상태는 대략 $-U_{\text{eff}}/2$만큼 내려가고, 비어 있는 상태는 $+U_{\text{eff}}/2$만큼 올라간다. 따라서 두 상태 사이의 간격이 커지고, 띠틈이 열리는 효과가 생긴다.

III. DFT+U+V 방법

DFT+U 방법은 한 원자 안의 점유만 다룬다. 그러나 많은 물질에서 중요한 것은 이웃 원자 사이의 궤도 혼성이다. 캄포(Campo)와 코코치오니(Cococcioni)가 제안한 DFT+U+V 방법은 확장 허바드 모형의 관점에서 이 효과를 에너지 범함수에 포함한다[11]. 단순화된 에너지 보정은

$$E_{U+V} = \frac{1}{2} \sum_{I,\sigma} \sum_{mm'} U^I \left(\delta_{mm'} - n^{II\sigma}_{mm'} \right) n^{II\sigma}_{m'm} - \frac{1}{2} \sum_{I} \sum_{J\neq I}^{*} \sum_{\sigma} \sum_{mm'} V^{IJ} n^{IJ\sigma}_{mm'} n^{JI\sigma}_{m'm}. \tag{6}$$

별표는 주어진 자름 거리 안에 있는 이웃 원자 J에 대한 합을 뜻한다. 첫째 항은 국소 허바드 상호작용만 다루는 DFT+U 방법과 같은 역할을 한다. 둘째 항은 비국소 점유 행렬이 클수록 에너지를 낮춘다. 즉 V 항은 U가 줄이려는 원자 간 혼성을 일정 부분 되살린다.

퍼텐셜도 같은 구조를 따른다. 국소 허바드 퍼텐셜에 더해,

$$\hat{V}^{\sigma}_{V} = -\sum_{I} \sum_{J\neq I}^{*} \sum_{mm'} V^{IJ} n^{IJ\sigma}_{mm'} \left| \varphi^I_m \right\rangle \left\langle \varphi^J_{m'} \right| \tag{7}$$

와 같은 비대각 비국소 투영기가 들어간다[19]. 이 항 때문에 전자는 한 원자에만 머물도록 강제되지 않고, 실제 결합에서 필요한 이웃 원자와의 섞임을 유지할 수 있다. 부호도 중요하다. 국소 항은 한 원자 안의 분수 점유를 줄이는 쪽으로 에너지를 낮추지만, 비국소 항은 서로 다른 원자에 걸친 점유 행렬이 커질수록 에너지를 낮춘다. 따라서 U와 V는 같은 "상관 보정"이라는 이름 아래 묶이지만, 전자 구조에는 서로 반대 방향의 압력을 줄 수 있다. 이 균형이 DFT+U+V 방법이 단순한 띠틈 보정 이상의 의미를 갖는 이유이다.

자성 물질에서는 이 차이가 특히 중요하다. 초바꿈 상호작용은 금속 d 궤도와 배위자 p 궤도의 건너뜀 과정에 민감하다. 대략적으로 바꿈 세기는 $t^4/(\Delta^2 U)$에 비례하며, 여기서 t는 건너뜀 적분이고 Δ는 전하 이동 에너지이다. 국소 상호작용 U만 키우면 d 상태가 내려가고 d–p 혼성이 약해져 바꿈 결합이 과소평가될 수 있다. 반면 V는 금속-배위자 혼성을 조절하여 띠틈과 자기 상호작용을 함께 맞출 가능성을 높인다[20-22].

IV. U와 V는 어떻게 정할 것인가

DFT+U+V 방법의 실제 예측력은 허바드 상호작용의 크기에 달려 있다. 그 값들을 경험적 방법이나 실험에 맞도록 임의로 정하면, 각각의 실험 혹은 계산에서 구하려는 특정 물성에는 잘 맞을 수 있지만, 다른 물질이나 다른 구조로 옮겨가면 그 값들의 예측성이 현저히 떨어진다. 그래서 최근 방법론의 핵심은 U와 V를 제일원리로, 가능하면 자기 일관적으로 정하는 데 있다.

가장 널리 쓰이는 방법 중 하나는 선형응답 이론을 이용한 계산법이다[11,18]. I 번째 원자의 국소 궤도에 작은 퍼텐셜 변화 λI를 주고, 그에 따른 점유수 변화를 계산한다. 가리기(screening)가 작동하기 전의 응답을 χ_0, 자기 일관 수렴 뒤의 응답을 χ라 하면

$$U^I = \left(\chi_0^{-1} - \chi^{-1} \right)_{II}, \; V^{IJ} = \left(\chi_0^{-1} - \chi^{-1} \right)_{IJ} \tag{8}$$

로 계산할 수 있다. 이 접근 역시 앞서와 같이 물리적으로 명확하다. 전자가 외부 교란을 얼마나 가리는지를 통해 유효 상호작용의 크기를 정한다. 하지만, 가리기 변화의 간섭을 줄이기 위해 매우 큰 초격자가 필요한 단점이 있었으나, 이후 밀도범함수 섭동 이론으로 재정식화되어, 큰 초격자가 필요없는 효율적 방법이 되었다[19,23,24]. 하지만, 이러한 선형응답 이론은, U와 V에 때문에 변화하는 전자의 밀도를 반영하지 않기 때문에 자기 일관성을 잃어버리는 단점이 있다. 이 단점을 보정하기 위해서, 처음 계산한 U와 V로 전자 밀도를 다시 계산하고, 바뀐 밀도에서 응답을 다시 구한 뒤, 더 이상

크게 변하지 않을 때까지 반복한다[25]. 이렇게 하면 선택한 구조와 자기 배열에 맞는 자기 일관된 값으로 수렴한다. 다만 선형응답 이론으로 얻은 값은 교란의 정의, 국소 부분공간, 바탕 범함수에 영향을 받으므로, 서로 다른 코드나 투영기를 비교할 때는 이 조건을 함께 기록해야 한다.

가리기를 다루는 또 다른 대표적 방법은 제한 무작위 위상 근사(cRPA)이다[26]. 이 근사방법은 특정 저에너지 부분공간을 제외한 나머지 전자 자유도가 만드는 가리기를 계산해 유효 쿨롱 상호작용을 만든다. 선형응답 이론과 cRPA는 모두 "가려진 상호작용"을 계산하지만, 어떤 자유도를 제외하고 어떤 응답을 포함하는지에 차이가 있다. 최근에는 선형응답 이론과 cRPA 사이의 관계를 정리하려는 작업도 진행되고 있다[27].

다른 축은 하트리-폭 적분에서 매개변수를 직접 계산하는 방법이다. 이 방법은 국소 궤도 기저에서 DFT+U 방법을 다시 쓴 피켓(Pickett) 등의 작업에서 출발했다[28]. 모지(Mosey)와 카터(Carter)는 고체를 끼워진 작은 덩어리 구조와 그 나머지로 임의로 나누고, 작은 구조만 따로 때내어 제한없는 하트리-폭 방법으로 덩어리의 전자구조 계산을 수행하고, 그 결과로부터 U와 J를 계산하는 방법을 제안했다[29,30]. 이 방법은 원리적으로 설득력이 있었지만, 작은 덩어리 구조를 물질마다 따로 만들고 수렴성을 확인해야 했기 때문에 여러가지 단점이 존재하였고, 널리 쓰이지 못하였다.

아가피토-쿠르타롤로-부온조르노 나르델리(Agapito-Curtarolo-Buongiorno Nardelli)의 방법(ACBN0 방법이라고 불린다)은 이러한 모지와 카터의 방법이 가지고 있는 한계를 극복하였다[13,31]. 이 방법은 별도의 작은 덩어리 구조 계산을 하지 않고, 주기적 밀도범함수 이론 계산에서 나온 블로흐(Bloch) 상태를 그대로 사용한다. 국소 부분공간은 유사원자궤도(Pseudo Atomic Orbital)로 표현하고, 그 위에서 가려지지 않은 하트리-폭 쿨롱 적분을 수행한다. 그런 다음 블로흐 상태가 해당 국소 부분공간에 얼마나 투영되는지에 따라 밀도 행렬을 되맞춤한다. 이 되맞춤이 이 계산 방법의 핵심이다. 가려지지 않은 쿨롱 상호작용을 그대로 쓰는 것이 아니라, 실제 물리적, 화학적 변화와 점유 상태가 반영된 유효 상호작용을 계산하기 때문이다. 따라서 ACBN0에서 매개변수는 외부 입력값이 아니라 밀도의 함수이다. 같은 원소의 같은 궤도라도 산화 상태, 배위 환경, 자기 질서가 바뀌면 투영된 점유와 되맞춤 인자가 달라지고, 그 결과 계산되는 U와 J도 달라진다. 이 점은 산화물, 결함, 표면처럼 국소 환경이 균일하지 않은 계에서 특히 유용하다. 한편 이 장점은 동시에 주의점이기도 하다. 사용한 유사원자궤도와 투영기 선택이 매개변수의 정량값을 규정하므로, ACBN0 결과를 보고할 때는 부분공간 정의를 명확히 밝혀야 한다.

V. 하트리-폭 기반 허바드 상호작용과 비공선 스핀 일반화

ACBN0 방법을 스핀-궤도 상호작용과 비공선 스핀 상태까지 확장하려면, 먼저 상대론적 유사퍼텐셜이 어떤 형태로 들어가는지를 분명히 해야 한다. 평면파 기저와 규격화보존 유사퍼텐셜을 쓰는 계산에서는 비국소 퍼텐셜을 스칼라상대론 성분과 스핀-궤도 상호작용 성분으로 나누어

$$V(\boldsymbol{r},\boldsymbol{r}') = V_{\mathrm{loc}} + \sum_l \left[V_l^{\mathrm{SR}}(\boldsymbol{r},\boldsymbol{r}') + \boldsymbol{L}\cdot\boldsymbol{S}\, V_l^{\mathrm{SO}}(\boldsymbol{r},\boldsymbol{r}') \right] \tag{9}$$

처럼 쓸 수 있다[32-35]. 여기서 $\boldsymbol{L}$과 $\boldsymbol{S}$는 각각 궤도각운동량과 스핀각운동량이고, l은 방위 양자수이다. 비국소 퍼텐셜의 두 성분은 총각운동량 $j = l \pm 1/2$에 대한 상대론적 퍼텐셜 V_j^{Rel}의 합과 차로부터

$$V_l^{\mathrm{SR}} = \frac{(l+1)V_{l+1/2}^{\mathrm{Rel}} + lV_{l-1/2}^{\mathrm{Rel}}}{2l+1},\quad V_l^{\mathrm{SO}} = 2\frac{V_{l+1/2}^{\mathrm{Rel}} - V_{l-1/2}^{\mathrm{Rel}}}{2l+1} \tag{10}$$

로 정해진다[32-35]. 실제 허바드 투영기에는 총각운동량 j로 구분된 원자 궤도를 쓰는 것이 원칙적으로 자연스럽지만, 실용적으로는 유사퍼텐셜에서 정의되는 j-평균 지름 방향 원자 파동함수에 스피너 표현을 부여한다[15,36].

이때 평균장 허바드 에너지는 국소 항과 비국소 항, 그리고 각각의 공선 및 비공선 기여로 나눌 수 있다. 즉

$$\mathcal{E}_{\mathrm{U+V}} = \mathcal{E}_U^{\mathrm{c}} + \mathcal{E}_U^{\mathrm{nc}} + \mathcal{E}_V^{\mathrm{c}} + \mathcal{E}_V^{\mathrm{nc}} = \sum_I \left(E_{U_I}^{\mathrm{c}} + E_{U_I}^{\mathrm{nc}} \right) + \sum_{\{I,J\}} \left(E_{V_{IJ}}^{\mathrm{c}} + E_{V_{IJ}}^{\mathrm{nc}} \right) \tag{11}$$

이다[11,14,15]. 여기서 $\{I, J\}$는 정해진 자름 거리 안에 있는 서로 다른 원자쌍을 뜻한다. 이 분해는 스핀-궤도 상호작용이 있는 비공선 상태에서도 국소, 비국소 허바드 상호작용 모두를 같은 에너지 범함수 안에서 다룰 수 있게 해 준다.

이 경우에는 앞서 식(1)에서 정의된 방식과는 다르게, 점유 행렬에 스핀 지표를 명시적으로 포함한다[36,37]. 일반화된 점유 행렬은

$$n_{ij}^{IJ\sigma\sigma'} = \sum_{n\boldsymbol{k}} w_{\boldsymbol{k}} f_{n\boldsymbol{k}} \left\langle \psi_{n\boldsymbol{k}}^{\sigma} \middle| \phi_{i\sigma}^{I} \right\rangle \left\langle \phi_{j\sigma'}^{J} \middle| \psi_{n\boldsymbol{k}}^{\sigma'} \right\rangle \tag{12}$$

로 쓸 수 있다. 되맞춤된 밀도 행렬은

$$P_{ij}^{IJ\sigma\sigma'} = \sum_{n\boldsymbol{k}} w_{\boldsymbol{k}} f_{n\boldsymbol{k}} N_{n\boldsymbol{k}}^{IJ} \left\langle \psi_{n\boldsymbol{k}}^{\sigma} \middle| \phi_{i\sigma}^{I} \right\rangle \left\langle \phi_{j\sigma'}^{J} \middle| \psi_{n\boldsymbol{k}}^{\sigma'} \right\rangle \tag{13}$$

이다. $N_{n\boldsymbol{k}}^{IJ}$는 해당 블로흐 상태가 원자 I와 J의 국소 궤도 공간에 얼마나 들어 있는지를 나타내는 되맞춤 인자이다. 이 인자는 가리기의 역할을 하므로 스핀 방향에 의존하지 않도록 스핀 대각합을 취해 정의한다[14,15,37]. 국소적인 경우

N^{II}_{nk}는 한 원자 주변의 선택된 궤도 공간에 대한 투영 가중치로 줄어든다. 비국소 상호작용에서는 원자 I와 J의 부분공간을 함께 보아야 하므로, 두 원자에 걸친 투영 가중치가 되맞춤에 들어간다. 이 구조는 직관적이다. 블로흐 상태가 관심 국소 공간에 거의 들어 있지 않으면 그 상태는 허바드 상호작용에 거의 기여하지 않고, 반대로 국소 궤도 성격이 강하면 더 크게 기여한다.

국소적인 쿨롱 및 바꿈 매개변수는 되맞춤된 밀도 행렬과 가려지지 않은 하트리-폭 쿨롱 상호작용의 평균으로 정한다. 이를 써보면,

$$\mathcal{U}_I = \sum_{ijkl,\sigma\sigma'} \frac{P^{I\sigma}_{ij} P^{I\sigma'}_{kl}}{\mathcal{N}_{U_I}} (Ii\sigma, Ij\sigma \,|\, Ik\sigma', Il\sigma') \tag{14}$$

이고,

$$\mathcal{J}_I = \sum_{ijkl,\sigma\sigma'} \frac{P^{I\sigma\sigma'}_{ij} P^{I\sigma'\sigma}_{kl}}{\mathcal{N}_{J_I}} (Ii\sigma, Il\sigma \,|\, Ik\sigma', Ij\sigma') \tag{15}$$

이다. 비국소 상호작용도 같은 방식으로 쓸 수 있다[14,15].

$$\mathcal{V}_{IJ} = \sum_{ijkl,\sigma\sigma'} \frac{P^{I\sigma}_{ij} P^{J\sigma'}_{kl} - P^{IJ\sigma\sigma'}_{il} P^{JI\sigma'\sigma}_{kj}}{\mathcal{N}_{V_{IJ}}} (Ii\sigma, Ij\sigma \,|\, Jk\sigma', Jl\sigma'). \tag{16}$$

여기서 각각의 규격화 인자는

$$\mathcal{N}_{U_I} = \sum_{i\neq j,\sigma} n^I_{i\sigma} n^I_{j\sigma} + \sum_{ij,\sigma} n^I_{i\sigma} n^I_{j\bar{\sigma}} - \sum_{i,\sigma} n^{I\bar{\sigma}\sigma}_{ii} n^{I\sigma\bar{\sigma}}_{ii},$$
$$\mathcal{N}_{J_I} = \sum_{i\neq j,\sigma} \left[n^I_{i\sigma} n^I_{j\sigma} + n^{I\sigma\bar{\sigma}}_{ii} n^{I\bar{\sigma}\sigma}_{jj} \right],$$
$$\mathcal{N}_{V_{IJ}} = \sum_{ij,\sigma\sigma'} \left[n^I_{i\sigma} n^J_{j\sigma'} - n^{IJ\sigma\sigma'}_{ij} n^{JI\sigma'\sigma}_{ji} \right].$$

로 주어진다[14,15]. 여기서 $\bar{\sigma}$는 σ와 반대인 스핀 성분이고, $n^I_{i\sigma} \equiv n^{II\sigma\sigma}_{ii}$이다. 이 규격화 인자들은 분자가 나타내는 되맞춤된 상호작용을 같은 점유 구조의 가려지지 않은 값으로 나누는 역할을 한다. 이 식의 장점은 국소 U와 비국소 V를 같은 원리로 계산한다는 데 있다. 두 상호작용들 모두 밀도와 점유 행렬의 함수이고, 밀도범함수를 바탕으로 둔 제일원리계산에서 자기 일관성을 충족하기 위한 순환 계산에서 동시에 자기 일관성을 확보하게 된다. 쿨롱 적분의 표기는 두 전하 밀도 사이의 상호작용을 뜻한다. 예를 들어 $(Ii\sigma, Ij\sigma \,|\, Jk\sigma', Jl\sigma')$는 원자 I의 궤도쌍 i, j가 만드는 전하 밀도와 원자 J의 궤도쌍 k, l이 만드는 전하 밀도 사이의 적분이다. 국소 상호작용 U에서는 두 밀도가 같은 원자에 있고, 비국소 상호작용 V에서는 서로 다른 원자에 있다.

DFT와 허바드 보정 사이에 겹쳐지는 이중 계산을 제거한 최종 에너지 보정은 다음처럼 정리된다.

$$E_{U_I} = \frac{\mathcal{U}_I - \mathcal{J}_I}{2} \left[\sum_{i,\sigma} n^I_{i\sigma} - \sum_{ij,\sigma\sigma'} n^{II\sigma\sigma'}_{ij} n^{II\sigma'\sigma}_{ji} \right], \tag{17}$$

$$E_{V_{IJ}} = -\frac{\mathcal{V}_{IJ}}{2} \sum_{ij,\sigma\sigma'} n^{IJ\sigma\sigma'}_{ij} n^{JI\sigma'\sigma}_{ji}. \tag{18}$$

여기서, $\mathcal{U}_I$, $\mathcal{J}_I$와 $\mathcal{V}_{IJ}$는 식(14), (15)와 (16)으로 각각 주어진다. 이 식은 스핀–궤도 상호작용이 없는 경우의 식(6)과 거의 비슷한 수학적 형식을 가진다. 달라지는 점은 스핀을 하나의 양자축에 고정하지 않고, 모든 스핀 성분을 함께 다룬다는 것이다. 이 일반화 덕분에 무거운 원소를 포함한 반도체와 위상 물질에서도 자기 일관된 U와 V를 스핀-궤도 상호작용과 같은 수준에서 다룰 수 있음이 보고되었다[37]. 특히 비공선 스핀 형식은 단순히 기술적 확장이 아니다. 스핀-궤도 상호작용이 큰 물질에서는 스핀과 궤도가 분리된 양자수가 아니므로, 스핀 대각 성분만으로 점유 행렬을 정의하면 상호작용 보정과 스핀-궤도 상호작용이 서로 다른 기저에서 작동할 수 있다. 스피너 점유 행렬을 쓰면 허바드 보정, 자기 질서, 스핀-궤도 상호작용이 같은 밀도 행렬 위에서 함께 변분된다.

VI. 응용: 띠틈, 격자동역학, 자성 및 다른 많은 장점들

자기 일관적 DFT+U 계산 방법의 가장 직접적인 성과는 띠구조 계산 문헌에서 보고되었다. TiO_2, MnO, NiO, ZnO 같은 대표 물질에서 이 방법들은 통상적인 일반화 기울기 어림보다 나은 띠틈과 띠 순서를 주는 것으로 보고되었고, 계산 비용은 대체로 표준 밀도범함수 이론 수준에 머물렀다[13]. 비국소 상호작용 V를 포함한 확장 형식을 가진, 자기 일관적 DFT+U+V 방법은 공유결합성 반도체와 절연체, 저차원 흑린, Si(111) 표면 등에서도 표준 밀도범함수 이론 계산에 가까운 비용으로 실험 및 GW 어림 결과와 잘 맞는 띠틈을 보인 것으로 보고되었다[14]. 이 결과가 중요한 이유는 보정의 방향이 물질마다 다르기 때문이다. 이온성이 강한 산화물에서는 주로 국소화된 전이금속 d 상태의 위치가 문제이고, 공유결합성이 큰 반도체에서는 원자 사이의 궤도 혼성과 전하 재분포가 함께 중요하다. DFT+U+V 방법은 같은 형식 안에서 두 경우를 모두 다룰 수 있어, 물질군이 섞여 있는 데이터베이스 계산에 잘 맞는다.

띠틈에 대한 결과뿐 아니라, 격자동역학, 열적 성질, 유전 특성, 전자-포논 결합으로 응용 범위가 확장되었다[38-40]. 앞서 언급한 것처럼, 스핀-궤도 상호작용까지 포함한 형식은 무거운 원소 기반 반도체와 위상 물질에도 적용되었으며[37], 위상 절연체 후보를 가려내는 데에도 쓸 수 있다. 리튬 이온 양극 물질, 전하 정렬계, 전도성 투명 반도체, 강유전체, 산소 빈자리

와 같은 문제에서도 DFT+*U*+*V* 방법이 전하 이동과 구조 안정성을 더 균형 있게 기술한다는 결과가 보고되었다[41-43].

마찬가지로, 자성 물질에서는 비국소 항 *V*의 의미가 더 선명하다. 자기 바꿈 상호작용은 금속-배위자-금속 경로의 혼성에 민감하기 때문에, 국소 상호작용 *U*만 쓰면 바꿈 세기를 작게 만들 수 있다. 문헌에서는 전이금속 산화물의 자기 일관된 허바드 상호작용이 자기 바꿈 상호작용 기술을 개선한 것으로 보고되었고[20], β-MnO_2에서는 비국소 항이 올바른 자기 바닥상태 기술에 중요하다고 논의되었다[21].

최근 이차원 자성체 $FePS_3$와 CrI_3에 대한 연구는 이 방법의 장점과 위험을 함께 보고했다[22]. $FePS_3$에서는 선형응답 이론으로 계산한 *U*와 *V*가 실험과 맞는 절연 상태, 결정 대칭성, 라만 진동수 재현에 도움이 된 것으로 논의되었다. 반면 CrI_3에서는 통상적인 허바드 보정이 스핀별 전도띠를 비물리적으로 갈라 놓으며, 스핀 분해 *U*가 더 타당한 결과를 준다고 보고되었다. 즉 DFT+*U*+*V* 방법은 강력하지만, 자성 물질에서는 스핀 처리 방식까지 함께 점검해야 한다.

다시 정리하면, DFT+*U*+*V* 방법의 가치는 표준 밀도범함수 이론과 거의 같은 정도의 계산 비용으로 정확도를 크게 끌어올릴 수 있다는 데 있다. 혼성 범함수, *GW* 어림 혹은 동적 평균장 이론 기반 계산방법들은 더 정교한 전자 구조를 줄 수도 있지만, 계산 자원을 한두 자릿수 이상, 경우에 따라 수백 배 이상 더 요구한다[43]. 이에 비해 자기 일관적 DFT+*U*+*V* 방법은 여러 스핀 배열을 비교해야 하는 자성 물질이나 결함이 포함된 초격자, 다공성 물질처럼 계산량이 빠르게 커지는 문제에서도 표준 밀도범함수 이론 계산의 규모를 크게 벗어나지 않는다[44]. 따라서 이 방법의 장점은 단순히 저렴한 근사에 머무는 것이 아니라, 더 높은 비용의 방법에 가까운 물성 경향을 훨씬 작은 계산 자원으로 얻을 수 있다는 점이다.

또 하나의 중요한 장점은 *U*와 *V*가 환경에 따라 달라질 수 있다는 점이다. 두 매개변수를 자기 일관적으로 계산하면 산화 상태, 배위자의 분포, 스핀 배열, 구조 왜곡이 확장된 허바드 값에 반영된다. 고정된 *U* 하나를 모든 구조에 쓰는 방식보다 물리적으로 자연스럽고, 대규모 데이터베이스 기반 계산에서도 임의성을 줄일 수 있다. 예를 들어 같은 전이금속 이온이라도 강자성 배열과 반강자성 배열에서는 주변 전하 분포와 궤도 점유가 달라질 수 있다. 고정된 *U*를 쓰면 두 상태의 에너지 차이에 인위적인 편향이 들어갈 수 있지만, 자기 일관된 매개변수는 각 자기 배열의 전자 구조에 맞게 조정된다. 여기에 힘과 응력, 밀도범함수 섭동 이론, 비공선 스핀, 스핀-궤도 상호작용, 마그논 계산으로 이어지는 최근의 확장까지 더해지면서 적용 범위도 계속 넓어지고 있다[24,36,45].

실제 계산 코드 구현 측면에서도 넓은 기반이 있다. ACBN0 및 관련 자기 일관된 허바드 매개변수 계산은 Quantum ESPRESSO, Octopus, CP2K, PAOFLOW 등 널리 쓰이는 제일원리 계산방법에 결합되어 있다[46-49].

VII. 한계점과 앞으로의 일들

이러한 장점에도 불구하고 DFT+*U*+*V* 방법의 해석에는 몇 가지 주의점이 남아 있다. 어떤 투영기와 국소 궤도를 쓰느냐에 따라 *U*, *V*, 띠틈, 자기 모멘트가 달라질 수 있으므로 부분공간 정의를 함께 밝혀야 하며[50-52], 자기 질서와 궤도 질서가 얽힌 계에서는 점유 행렬의 준안정 해도 체계적으로 비교해야 한다[53]. 또한 훈트(Hund)의 *J*, 이중 계산 보정, 스핀 밀도 처리에 따라 자기 모멘트와 바꿈 상수가 민감하게 달라질 수 있고[54-56], 준입자 무게나 진동수 의존 자체에너지처럼 동역학적 상관이 핵심인 현상에는 동적평균장 이론 기반 계산법 또는 동역학적 허바드 범함수와의 비교가 필요하다[57-59].

이러한 스핀 처리의 정교화는 자성 여기와 유한 온도 물성으로 자연스럽게 이어진다. 마그논 분산을 제일원리로 계산하는 방법이 보고되고 있으므로[45], 앞으로는 이를 바꿈 상수와 퀴리 또는 닐 온도 예측으로 연결하는 작업이 필요하다. 정적 자기 질서만 맞추는 단계에서 더 나아가, 여기 스펙트럼과 온도 의존 물성까지 현재 DFT+*U*+*V* 체계 안에서 설명할 수 있는지가 중요한 검증 기준이 될 것이다.

동시에 *U*와 *V*를 계산하는 서로 다른 방법들 사이의 관계도 더 분명히 정리되어야 한다. 선형응답 이론, 하트리-폭 기반 계산 방법, cRPA는 허바드 상호작용을 서로 다르게 정의한다[25,26]. 이 방법들이 언제 같은 물리를 주고 언제 다른 값을 주는지 이해해야, DFT+*U*+*V* 방법을 더 신뢰성 있는 표준 도구로 만들 수 있다. 최근에는 동일한 와니어 함수(Wannier function)를 투영기로 사용해 선형응답 이론과 cRPA를 비교하여, 두 방법으로 구한 허바드 상호작용이 어떤 조건에서 가까워지고 어떤 물리적 이유로 달라지는지를 파악하였다[27]. 이와 비슷하게 선형응답 이론과 하트리-폭 기반 계산 방법으로 구한 국소 및 비국소 확장 허바드 상호작용이 어떤 물질과 투영기 선택에서 같은 값을 주고, 어떤 경우에 달라지는지를 나누어 축적하는 일도 필요하다[25]. 이런 비교가 충분히 쌓이면, 어떤 물질군에는 어떤 매개변수 결정법이 더 안정적인지 판단할 수 있고, 고처리량 계산의 자동 선택 규칙도 만들 수 있다.

정리하면, DFT+*U*+*V* 방법은 단순히 DFT+*U* 방법에 비국소 상호작용 하나를 더한 방법이 아니다. 표준 밀도범함수 이론 계산과 비슷한 비용으로 국소화와 혼성을 함께 더 정확하게 다루고, 훨씬 비싼 방법에 가까운 물성 예측을 가능하게 하는 제일원리계산 방법론으로 이해할 수 있다. 특히 자성 물

질에서는 U와 V가 서로 다른 물리적 역할을 맡기 때문에, 두 매개변수를 자기 일관적으로 계산하고 스핀 처리까지 일관되게 관리하는 것이 중요하다. 이런 관점에서 앞으로는 지금까지 논의된 방법을 더 체계적으로 검증하고 광범위한 자성 물질군에 적용하는 작업이 필요하다[60].

감사의 글

본 논문은 고등과학원의 연구비 지원(Grant No. CG031509, No. 6P090103) 및 고등과학원 거대수치계산센터(KIAS CAC)의 계산 장비 지원을 받아 수행되어 이에 고마움을 표합니다.

References

[1] P. Hohenberg and W. Kohn, Phys. Rev. **136**, B864 (1964).
[2] W. Kohn and L. J. Sham, Phys. Rev. **140**, A1133 (1965).
[3] S. H. Rhim and S. C. Hong, J. Korean Magn. Soc. **27**, 190 (2017).
[4] R. O. Jones, Rev. Mod. Phys. **87**, 897 (2015).
[5] J. P. Perdew, K. Burke, and M. Ernzerhof, Phys. Rev. Lett. **77**, 3865 (1996).
[6] J. P. Perdew and A. Zunger, Phys. Rev. B **23**, 5048 (1981).
[7] J. P. Perdew, R. G. Parr, M. Levy, and J. L. Balduz, Phys. Rev. Lett. **49**, 1691 (1982).
[8] V. I. Anisimov, J. Zaanen, and O. K. Andersen, Phys. Rev. B **44**, 943 (1991).
[9] B. Himmetoglu, A. Floris, S. de Gironcoli, and M. Cococcioni, Int. J. Quantum Chem. **114**, 14 (2014).
[10] V. I. Anisimov, I. S. Elfimov, N. Hamada, and K. Terakura, Phys. Rev. B **54**, 4387 (1996).
[11] V. Leiria Campo Jr and M. Cococcioni, J. Phys.: Condens. Matter **22**, 055602 (2010).
[12] H. J. Kulik and N. Marzari, J. Chem. Phys. **134**, 094103 (2011).
[13] L. A. Agapito, S. Curtarolo, and M. Buongiorno Nardelli, Phys. Rev. X **5**, 011006 (2015).
[14] S.-H. Lee and Y.-W. Son, Phys. Rev. Res. **2**, 043410 (2020).
[15] N. Tancogne-Dejean and A. Rubio, Phys. Rev. B **102**, 155117 (2020).
[16] A. I. Liechtenstein, V. I. Anisimov, and J. Zaanen, Phys. Rev. B **52**, R5467 (1995).
[17] S. L. Dudarev, G. A. Botton, S. Y. Savrasov, C. J. Humphreys, and A. P. Sutton, Phys. Rev. B **57**, 1505 (1998).
[18] M. Cococcioni and S. de Gironcoli, Phys. Rev. B **71**, 035105 (2005).
[19] I. Timrov, N. Marzari, and M. Cococcioni, Comput. Phys. Commun. **279**, 108455 (2022).
[20] P. Gopal, R. De Gennaro, M. S. dos S. Gusmao, R. Al Rahal Al Orabi, H. Wang, S. Curtarolo, M. Fornari, and M. Buongiorno Nardelli, J. Phys.: Condens. Matter **29**, 444003 (2017).
[21] R. Mahajan, I. Timrov, N. Marzari, and A. Kashyap, Phys. Rev. Mater. **5**, 104402 (2021).
[22] F. Haddadi, E. Linscott, I. Timrov, N. Marzari, and M. Gibertini, Phys. Rev. Mater. **8**, 014007 (2024).
[23] I. Timrov, N. Marzari, and M. Cococcioni, Phys. Rev. B **98**, 085127 (2018).
[24] I. Timrov, N. Marzari, and M. Cococcioni, Phys. Rev. B **103**, 045141 (2021).
[25] W. Yang, I. Timrov, F. Aquilante, and Y.-W. Son, npj Comput. Mater. (2025).
[26] T. Miyake and F. Aryasetiawan, Phys. Rev. B **77**, 085122 (2008).
[27] A. Carta, I. Timrov, S. Beck, and C. Ederer, Phys. Rev. Lett. **137**, 046503 (2026).
[28] W. E. Pickett, S. C. Erwin, and E. C. Ethridge, Phys. Rev. B **58**, 1201 (1998).
[29] N. J. Mosey and E. A. Carter, Phys. Rev. B **76**, 155123 (2007).
[30] N. J. Mosey, P. Liao, and E. A. Carter, J. Chem. Phys. **129**, 014103 (2008).
[31] L. A. Agapito, A. Ferretti, A. Calzolari, S. Curtarolo, and M. Buongiorno Nardelli, Phys. Rev. B **88**, 165127 (2013).
[32] M. S. Hybertsen and S. G. Louie, Phys. Rev. B **34**, 2920 (1986).
[33] L. A. Hemstreet, C. Y. Fong, and J. S. Nelson, Phys. Rev. B **47**, 4238 (1993).
[34] D. R. Hamann, Phys. Rev. B **88**, 085117 (2013).
[35] K. F. Garrity, J. W. Bennett, K. M. Rabe, and D. Vanderbilt, Comput. Mater. Sci. **81**, 446 (2014).
[36] L. Binci and N. Marzari, Phys. Rev. B **108**, 115157 (2023).
[37] W. Yang and Y.-W. Son, Phys. Rev. B **110**, 155133 (2024).
[38] W. Yang, S.-H. Jhi, S.-H. Lee, and Y.-W. Son, Phys. Rev. B **104**, 104313 (2021).
[39] W. Yang, B. G. Jang, Y.-W. Son, and S.-H. Jhi, J. Phys.: Condens. Matter **34**, 295601 (2022).
[40] W. Yang, S. Tiwari, F. Giustino, and Y.-W. Son, Phys. Rev. B **112**, 075203 (2025).
[41] M. Cococcioni and N. Marzari, Phys. Rev. Mater. **3**, 033801 (2019).
[42] B. G. Jang, M. Kim, S.-H. Lee, W. Yang, S.-H. Jhi, and Y.-W. Son, Phys. Rev. Lett. **130**, 136401 (2023).
[43] M. C. Choi, W. Yang, Y.-W. Son, and S. Y. Park, npj Comp. Mater. **11**, 221 (2025).
[44] J.-H. Lee, S.-H. Lee, and Y.-W. Son, J. Chem. Theor. Comput. **21**, 6922 (2025).
[45] L. Binci, N. Marzari, and I. Timrov, npj Comput. Mater. **11**, 100 (2025).
[46] P. Giannozzi, S. Baroni, N. Bonini, M. Calandra, R. Car, C. Cavazzoni, D. Ceresoli, G. L. Chiarotti, M. Cococcioni, and I. Dabo, J. Phys.: Condens. Matter **21**, 395502 (2009).
[47] N. Tancogne-Dejean, M. J. T. Oliveira, and A. Rubio, SPhys. Rev. B **96**, 245133 (2017).
[48] M. B. Nardelli, F. T. Cerasoli, M. Costa, S. Curtarolo, R. De Gennaro, M. Fornari, L. Liyanage, A. R. Supka, and H. Wang,

Comput. Mater. Sci. **143**, 462 (2018).
[49] https://github.com/KIAS-CMT/DFT-U-V
[50] M. Kick, K. Reuter, and H. Oberhofer, J. Chem. Theory Comput. **15**, 1705 (2019).
[51] Y.-C. Wang, Z.-H. Chen, and H. Jiang, J. Chem. Phys. **144**, 144106 (2016).
[52] N. E. Kirchner-Hall, W. Zhao, Y. Xiong, I. Timrov, and I. Dabo, Appl. Sci. **11**, 2395 (2021).
[53] J. P. Allen and G. W. Watson, Phys. Chem. Chem. Phys. **16**, 21016 (2014).
[54] S. Ryee and M. J. Han, Sci. Rep. **8**, 9559 (2018).
[55] E. B. Linscott, D. J. Cole, M. C. Payne, and D. D. O'Regan, Phys. Rev. B **98**, 235157 (2018).
[56] L. MacEnulty, J. P. A. de Mendonça, R. Poloni, and D. D. O'Regan, J. Chem. Theory Comput. **22**, 240 (2026).
[57] G. Kotliar, S. Y. Savrasov, K. Haule, V. S. Oudovenko, O. Parcollet, and C. A. Marianetti, Rev. Mod. Phys. **78**, 865 (2006).
[58] A. Carta, I. Timrov, P. Mlkvik, A. Hampel, and C. Ederer, Phys. Rev. Res. **7**, 013289 (2025).
[59] T. Chiarotti, A. Ferretti, and N. Marzari, Phys. Rev. Res. **6**, L032023 (2024).
[60] Y. Cho, S. Yi, W. Yang, S. Kang, Y.-W. Son, J. Choo, J. Lee, S. K. Kim, and H. Yoon, The fourteenth international conference on learning representations (2026). https://openreview.net/forum?id=moBqB1CUym