利用机器学习方法加速电子-声子耦合的计算

Yang Zhong[1,2], Zhiguo Tao[1,2], Weibin Chu[1,2], Xingao Gong[1,2], Hongjun Xiang[1,2*]

[1]计算物理科学重点实验室（教育部）、计算物理科学研究所、表面物理国家重点实验室和复旦大学物理系，中国上海，200433[2]上海启智研究院，中国上海，200030 *电子邮箱：hxiang@fudan.edu.cn

摘要

电子-声子耦合（EPC）在许多基础物理现象中发挥着重要作用，但电子-声子耦合矩阵的高计算成本阻碍了对这些现象的理论研究。本文推导出一个解析公式，可利用非正交原子轨道基组中的哈密顿量及其梯度计算电子-声子耦合矩阵。我们采用近期开发的E(3)等变神经网络，直接预测公式所需的哈密顿量及其梯度，从而绕过密度泛函理论中的昂贵自洽迭代。通过对水分子和 MoS_2 晶体的测试，验证了所提出的电子-声子耦合计算公式的正确性，并展示了该网络预测的电子-声子耦合值的准确性。

引言

声子是周期性固体中的一种基本准粒子，由原子核的集体振动产生[1]。电子-声子耦合（EPC）普遍存在于固体材料中，并在多种物理现象中发挥重要作用[2, 3]。在金属和半导体材料中，声子引起的低能电子激发会显著影响其输运性质和热力学性质[3-5]。间接带隙的光吸收

半导体的光吸收可通过与声子的动量交换得到促进。在巴丁-库珀-施里弗（BCS）超导体中[6]，，电子-声子耦合可在电子之间产生微弱的吸引作用，使其形成库珀电子对，从而引发超导量子相变。尽管电子-声子耦合与材料的许多基本物理性质密切相关，但由于计算成本高昂，准确计算电子-声子耦合矩阵仍是一项挑战。尤其是在使用 HSE 泛函或自旋轨道耦合（SOC）修正时，电子-声子耦合矩阵的计算量将大到难以承受。

电子-声子耦合矩阵可通过密度泛函微扰理论（DFPT）[7],直接计算，但该方法计算复杂度高，且随着系统规模增大，其扩展性较差。近年来，基于Wannier基计算电子-声子耦合矩阵的方法得到了广泛应用[8-11]，例如著名的EPW[10] 和Perturbo[8] 软件包。实空间中的局域Wannier函数可通过傅里叶变换转换为倒空间中的布洛赫波函数，从而减少倒空间中密度泛函理论的计算量。然而，这些密度泛函理论方法在计算电子-声子耦合矩阵时仍会消耗大量计算资源。

凝聚态物理中机器学习（ML）的发展提供了一条捷径，可绕过密度泛函理论[12-14]的高昂计算成本。核岭回归（KRR）和高斯过程回归（GPR）方法最初被用于学习紧束缚哈密顿量[15-17]。为获得更强的多元素泛化能力，随后提出了一些基于消息传递神经网络（MPNN）的哈密顿量预测模型，其精度高于传统的基于核的方法[18-21]。最近，E(3)等变消息传递神经网络被用于建立从结构到从头算

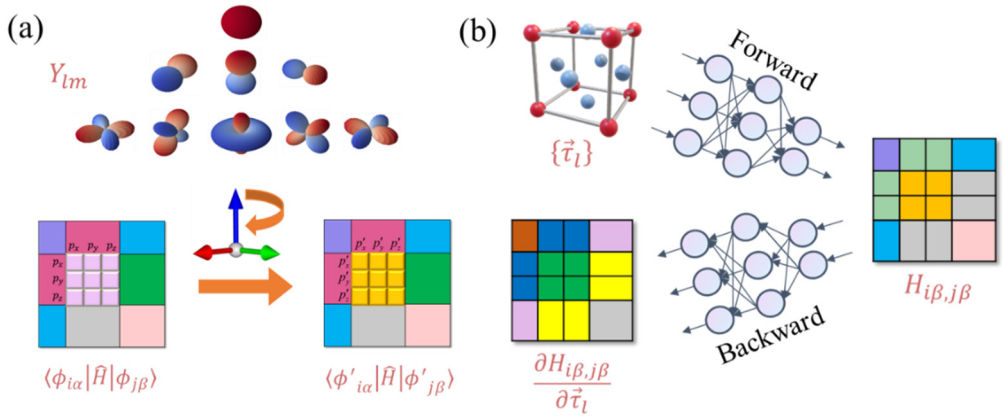

图 1。哈密顿矩阵的等变性以及哈密顿矩阵元导数预测的示意图。(a) 哈密顿矩阵等变性的示意图。由于原子轨道基组中的球谐函数部分，紧束缚哈密顿矩阵会随坐标系的旋转而等变变换。(b) 哈密顿矩阵元导数预测的示意图。神经网络的前向传播可以建立从原子坐标到哈密顿矩阵的等变映射。通过梯度逐层反向传播，可以在输入端获得哈密顿矩阵元相对于各原子坐标的梯度。

哈密顿矩阵的直接映射，并展现出最先进的精度和泛化能力[22, 23]。不同于能量和带隙等不变量标量性质，哈密顿矩阵在旋转（见图 1(a)）、空间反演和时间反演操作下会发生等变变换。作为哈密顿矩阵对声子扰动的响应，电子-声子耦合矩阵也应满足哈密顿矩阵的所有等变性。因此，我们基于此前工作提出的 E(3)等变HamGNN（先前称为“HamNet”）模型，开发了电子-声子耦合预测框架[22]。由于深度神经网络能够将哈密顿矩阵解析地表示为原子坐标的非线性函数，因此可以通过网络的反向传播计算哈密顿矩阵元素关于原子坐标的导数（见图 1(b)）。此外，通过 E(3)等变

消息传递神经网络（MPNNs）也能自动满足哈密顿矩阵的所有基本 等变性。在获得哈密顿量及其导数后，结合晶格振动的信息即可计算电子-声子耦合矩阵。

本研究推导了非正交原子轨道基组下电子-声子耦合矩阵的解析公式，并将其表示为哈密顿矩阵及其相对于原子坐标的梯度的函数。我们使用 E(3) 等变 HamGNN 网络预测公式所需的哈密顿矩阵及其梯度。对水分子和 MoS_2 超胞的测试表明，我们预测的电子-声子耦合矩阵与密度泛函理论计算值非常接近，说明这是一种有望用于高效计算电子-声子耦合矩阵的方法。

结果

非正交原子轨道基组下电子-声子耦合矩阵的公式

电子-声子耦合矩阵定义为[2,9]:

$$g\left(\mu\vec{k}_1,\nu\vec{k}_2,b\vec{q}\right)=\left\langle\psi_{\mu}^{\vec{k}_1}\left|\frac{\partial\hat{H}}{\partial\eta_b^{\vec{q}}}\right|\psi_{\nu}^{\vec{k}_2}\right\rangle, \tag{1}$$

其中，$\psi_{\mu}^{\vec{1}\ k}$ 是能带指标为 μ 、晶体动量为$_1\vec{k}$ 且位于布里渊区中的布洛赫波函数，$\psi_{\upsilon}^{\vec{2}\ k}$ 是能带指标为 υ 、晶体动量为$_2\vec{k}$ 且位于布里渊区中的布洛赫波函数，H 是系统的哈密顿量，而$_{q\ b}\eta^{\vec{}}$ 是布里渊区中晶体动量为$\vec{q}$ 、声子能带指标为b的声子模的正则坐标。计算晶格振动时通常会使用超胞。这里我们考虑一个包含N_p 个原胞的超胞（记为 Cell$_p$），并将每个原胞的位置记为$_p\vec{R}$ （$=1,2,\cdots,\ _pp\ N$）。每个原胞包含M个原子，其笛卡尔坐标为$\tau_{\sigma,}^{\ \ \ \

位置，即第p个超胞中原子l的位置；$\Delta\tau_{l_\sigma,\vec{R}_p}$ 表示相对于平衡位置的位移，σ 表示x、y和z方向。

在谐波近似下，原子振动可用正则坐标表示：

$$\Delta\tau_{l_\sigma,\vec{R}_p}=\frac{1}{\sqrt{M_l}}\sum_{b\vec{q}}\xi_{l_\sigma}^{b\vec{q}}\eta_b^{\vec{q}}e^{i\vec{q}\cdot\vec{R}_p}, \tag{2}$$

其中 $\xi_{l_\sigma}^{b\vec{q}}$ 是能带指标为 b、声子晶体动量为 $\vec{q}$的声子模的本征矢量。根据公式（2），电子-声子耦合矩阵可表示为：

$$g\left(\mu\vec{k}_1,\nu\vec{k}_2,b\vec{q}\right)=\sum_{l\sigma p}\frac{\xi_{l_\sigma}^{b\vec{q}}e^{i\vec{q}\cdot\vec{R}_p}}{\sqrt{M_l}}\left\langle\psi_\mu^{\vec{k}_1}\left|\frac{\partial\hat{H}}{\partial\tau_{l_\sigma,\vec{R}_p}}\right|\psi_\nu^{\vec{k}_2}\right\rangle. \tag{3}$$

电子-声子耦合矩阵计算的核心是计算哈密顿量梯度算符的矩阵 $\left\langle\psi_\mu^{\vec{k}_1}\left|\frac{\partial}{\partial\tau_{l_\sigma,\vec{R}_p}}\right|\psi_\nu^{\vec{k}_2}\right\rangle$，$H_{k_1k_2}$ 的期望值。在许多涉及大型系统的情形下，计算电子-声子耦合矩阵只需考虑 Γ 点声子（即$\vec{q}=0$）。在下面的讨论中，我们只考虑 Γ 点处的电子-声子耦合矩阵，并在非正交原子轨道基组中推导 $H_{k_1k_2}\psi_\mu^{\vec{k}_1}\frac{\partial}{\partial\tau_{l_\sigma,\vec{R}_p}}\psi_\nu^{\vec{k}_2}$ 的公式。为使公式更简洁，我们省略 $\vec{\tau}_{l_\sigma,\vec{R}_p}$ 中的下标 $\vec{R}_p$，改用 $\vec{\tau}_l$ 表示。在非正交原子轨道基组中，晶胞p的哈密顿算符可表示为：

$$\left\langle\ \left|\text{———}\right|\ \right\rangle$$

$$\hat{H}^{\vec{k}}=\sum_{i'j'\alpha'\beta'}\tilde{H}_{i'\alpha',j'\beta'}^{\vec{k}}\left|\varphi_{i'\alpha'}^{\vec{k}}\right\rangle\left\langle\varphi_{j'\beta'}^{\vec{k}}\right|, \tag{4}$$

其中 $\varphi_{i'\alpha'}^{\vec{k}}=\frac{1}{\sqrt{N}}\sum_{i'}\phi_{i'\alpha'}^{\vec{k}}\left(\vec{\tau}_{i'}-\vec{\tau}_{i'}\right)e^{i\vec{k}\cdot\vec{R}_{i'}}$ 和 $\varphi_{j'\beta'}^{\vec{k}}=\frac{1}{\sqrt{N}}\sum_{j'}\phi_{j'\beta'}^{\vec{k}}\left(\vec{\tau}_{j'}-\vec{\tau}_{j'}\right)e^{i\vec{k}\cdot\vec{R}_{j'}}$ 是实空间原子轨道经傅里叶变换得到的晶体周期性基函数 $\phi_{i'\alpha'}$ 和 $\phi_{j'\beta'}$。$n_{i'}l_{i'}m_{i'}\alpha'\equiv\ '\ '\ '$ 和 $n_{j'}l_{j'}m_{j'}\beta'\equiv\ '\ '\ '$ 表示量子数。根据 $\left\langle\hat{\varphi}_\alpha^{\vec{k}}\left|\hat{\varphi}_\beta^{\vec{k}}\right\rangle=\delta_{\alpha\beta}\right.$，$H_{k_1k_2}\tilde{H}_{i'\alpha',j'\beta'}^{\vec{k}}$ 是 $\left(\ \right)^{-1}\left(\ \right)^{-1}$ $H_{k_1k_2}S_{k_1k_2}\tilde{S}_{k_1k_2}=$ 的矩阵元，其中

$$\left\langle\ \left|\ \right|\ \right\rangle$$

$S^{\vec{k}}_{i\alpha,j\beta}=\left\langle \varphi^{\vec{k}}_{i\alpha}\middle|\varphi^{\vec{k}}_{j\beta}\right\rangle$ 是重叠矩阵。式（4）对原子坐标 $\vec{\tau}_l$ 的梯度为：

$$\frac{\partial \hat{H}^{\vec{k}}}{\partial \vec{\tau}_l}=\sum_{i'j'\alpha'\beta'}\left(\frac{\partial \tilde{H}^{\vec{k}}_{i'\alpha',j'\beta'}}{\partial \vec{\tau}_l}\left|\varphi^{\vec{k}}_{i'\alpha'}\right\rangle\left\langle\varphi^{\vec{k}}_{j'\beta'}\right|+\tilde{H}^{\vec{k}}_{i'\alpha',j'\beta'}\left|\frac{\partial \varphi^{\vec{k}}_{i'\alpha'}}{\partial \vec{\tau}_l}\right\rangle\left\langle\varphi^{\vec{k}}_{j'\beta'}\right|+\tilde{H}^{\vec{k}}_{i'\alpha',j'\beta'}\left|\varphi^{\vec{k}}_{i'\alpha'}\right\rangle\left\langle\frac{\partial \varphi^{\vec{k}}_{j'\beta'}}{\partial \vec{\tau}_l}\right|\right). \tag{5}$$

Ac根据公式（5），Bloch 态之间的哈密顿量梯度矩阵元

态 $\left|\psi^{\vec{k}}_{i\alpha}\right\rangle=C^{\vec{k}}_{i\mu}\left|\varphi^{\vec{k}}_{\alpha}\right\rangle$ 与 $\left|\psi^{\vec{k}}_{j\beta}\right\rangle=C^{\vec{k}}_{j\nu}\left|\varphi^{\vec{k}}_{\beta}\right\rangle$ 如下：

$$\left\langle\psi^{\vec{k}}_{\mu}\left|\frac{\partial \hat{H}^{\vec{k}}}{\partial \vec{\tau}_l}\right|\psi^{\vec{k}}_{\nu}\right\rangle=\sum_{ii'jj'\alpha\alpha'\beta\beta'}C^{\vec{k}\mu*}_{i\alpha}C^{\vec{k}\nu}_{j\beta}\left(\frac{\partial \tilde{H}^{\vec{k}}_{i'\alpha',j'\beta'}}{\partial \vec{\tau}_l}S^{\vec{k}}_{i\alpha,i'\alpha'}S^{\vec{k}}_{j'\beta',j\beta}+\tilde{H}^{\vec{k}}_{i'\alpha',j'\beta'}\left\langle\varphi^{\vec{k}}_{i\alpha}\left|\frac{\partial \varphi^{\vec{k}}_{i'\alpha'}}{\partial \vec{\tau}_l}\right\rangle\right.S^{\vec{k}}_{j'\beta',j\beta}+\tilde{H}^{\vec{k}}_{i'\alpha',j'\beta'}S^{\vec{k}}_{i\alpha,i'\alpha'}\left\langle\frac{\partial \varphi^{\vec{k}}_{j'\beta'}}{\partial \vec{\tau}_l}\middle|\varphi^{\vec{k}}_{j\beta}\right\rangle\right). \tag{6}$$

定义 $A^{\vec{k}l}_{i\alpha,i'\alpha'}$ 和 $A^{\vec{k}l*}_{j\beta,j'\beta'}$ 为

$$A^{\vec{k}l}_{i\alpha,i'\alpha'}=\begin{cases}\left\langle\varphi^{\vec{k}}_{i\alpha}\left|\frac{\partial \varphi^{\vec{k}}_{i\alpha'}}{\partial \vec{\tau}_i}\right\rangle\right. & i'=l=i\\ 0 & i'=l\neq i,\\ -\frac{\partial S^{\vec{k}}_{i\alpha,i'\alpha'}}{\partial \vec{\tau}_l} & i'\neq l\end{cases}\quad A^{\vec{k}l*}_{j\beta,j'\beta'}=\begin{cases}\left\langle\varphi^{\vec{k}}_{j\beta}\left|\frac{\partial \varphi^{\vec{k}}_{j\beta'}}{\partial \vec{\tau}_j}\right\rangle\right.^{*} & j'=l=j\\ 0 & j'=l\neq j\\ -\frac{\partial S^{\vec{k}*}_{j\beta,j'\beta'}}{\partial \vec{\tau}_l} & j'\neq l\end{cases}. \tag{7}$$

由此可得以下两个方程

$$\left\langle\varphi^{\vec{k}}_{i\alpha}\left|\frac{\partial \varphi^{\vec{k}}_{i'\alpha'}}{\partial \vec{\tau}_l}\right\rangle\right.=\frac{\partial S^{\vec{k}}_{i\alpha,i'\alpha'}}{\partial \vec{\tau}_l}+A^{\vec{k}l}_{i\alpha,i'\alpha'},\quad \left\langle\frac{\partial \varphi^{\vec{k}}_{j'\beta'}}{\partial \vec{\tau}_l}\middle|\varphi^{\vec{k}}_{j\beta}\right\rangle=\frac{\partial S^{\vec{k}*}_{j\beta,j'\beta'}}{\partial \vec{\tau}_l}+A^{\vec{k}l*}_{j\beta,j'\beta'}. \tag{8}$$

根据矩阵求导法则，矩阵 $\tilde{H}=S^{-1}HS^{-1}$ 关于

变量 $\vec{\tau}_l$ 的梯度展开如下：

$$\frac{\partial \tilde{H}}{\partial \vec{\tau}_l}=-S^{-1}\frac{\partial S}{\partial \vec{\tau}_l}S^{-1}HS^{-1}+S^{-1}\frac{\partial H}{\partial \vec{\tau}_l}S^{-1}-S^{-1}HS^{-1}\frac{\partial S}{\partial \vec{\tau}_l}S^{-1} \tag{9}$$

将式（8）和式（9）代入式（6），然后

$$\left\langle\psi^{\vec{k}}_{\mu}\left|\frac{\partial \hat{H}^{\vec{k}}}{\partial \vec{\tau}_l}\right|\psi^{\vec{k}}_{\nu}\right\rangle=\sum_{i\alpha,j\beta}C^{\vec{k}\mu*}_{i\alpha}C^{\vec{k}\nu}_{j\beta}\left[\frac{\partial H^{\vec{k}}}{\partial \vec{\tau}_l}+\left(A^{\vec{k}l}\left(S^{\vec{k}}\right)^{-1}H^{\vec{k}}\right)+\left(H^{\vec{k}}\left(S^{\vec{k}}\right)^{-1}\left(A^{\vec{k}l}\right)^{*}\right)\right]_{i\alpha,j\beta} \tag{10}$$

$\vec{A}_{kl}$ 和 $\vec{S}_k$ 是已知的，因为它们可以在原子基函数中解析计算。哈密顿矩阵 $\vec{H}_k$ 可以通过网络的前向传播直接预测，而哈密顿矩阵元的梯度 $\frac{\partial}{\partial\vec{\tau}}\vec{H}_{kl}$ 可以通过反向传播或对预测值哈密顿矩阵进行有限差分获得。因此，可以根据式（10）和式（3）预测 Γ 点处的电子-声子耦合矩阵。

——

当 μ ≠ υ 时，$\left\langle\psi_\mu^{\vec{k}}\left|\frac{\partial}{\partial\vec{\tau}_l}\right|\psi_\nu^{\vec{k}}\right\rangle\vec{H}_{kl}$ 可由以下方程确定[24, 25]:

$$\left\langle\psi_\mu^{\vec{k}}\left|\frac{\partial\hat{H}^{\vec{k}}}{\partial\vec{\tau}_l}\right|\psi_\upsilon^{\vec{k}}\right\rangle=\left(\varepsilon_\upsilon^{\vec{k}}-\varepsilon_\mu^{\vec{k}}\right)\vec{d}_{\mu\nu,l}^{(\vec{k})},\quad \vec{d}_{\mu\nu,l}^{(\vec{k})}=\left\langle\psi_\mu^{\vec{k}}\left|\frac{\partial\psi_\upsilon^{\vec{k}}}{\partial\vec{\tau}_l}\right.\right\rangle, \tag{11}$$

其中 $\vec{d}_{\mu\nu,kl}^{(\vec{k})}$ 称为非绝热耦合矢量（NACV）。在下一节中，我们仅使用方程（11）来验证方程（10）的正确性，并将其与机器学习得到的解析梯度进行比较。

实际测试

声子谱的精确计算是一项成熟的技术，可以使用著名的 phonopy[26] 软件包完成。这里我们假设已经获得每个声子模的本征矢量 $\vec{\xi}_{bq\sigma}$ 。我们仅测试方程（10）在 Γ 点处预测值的准确性。测试对象为一个水分子和一个由 MoS_2 晶体构成的 2×2×1 超胞。

我们首先分别使用包含500个水分子和500个受扰动MoS_2 结构的哈密顿量数据集训练了两个HamGNN模型。随后分别从测试集中选取一个水分子和一块MoS_2 晶体，以检验哈密顿量梯度算符期望值预测值的准确性。我们首先比较了密度泛函理论（DFT）

计算值 $\frac{\partial H_{i,kj}}{\partial \vec{\tau}^{\alpha\beta}}$ 采用有限差分法得到的结果与HamGNN的预测值。如图2所示，密度泛函理论计算值与HamGNN预测值的哈密顿矩阵元梯度吻合良好。对于测试用水分子和MoS_2预测值，$\frac{\partial H_{i,kj}}{\partial \vec{\tau}^{\alpha\beta}}$ 在Γ 点处的平均绝对误差（MAE）均小于~10^{-5} 哈特里/玻尔。表1和表2分别列出了水分子和MoS_2晶体的$\left\langle \psi_\mu \left| H \frac{\partial}{\partial \vec{\tau}} \right| \psi_\upsilon \right\rangle$ 的密度泛函理论计算值和HamGNN预测值。除可忽略的低于10^{-3} 的矩阵元外，HamGNN网络预测值与使用方程（10）和（11）通过密度泛函理论计算得到的值吻合良好，这表明方程（10）是正确的，且预测精度可与密度泛函理论相媲美。

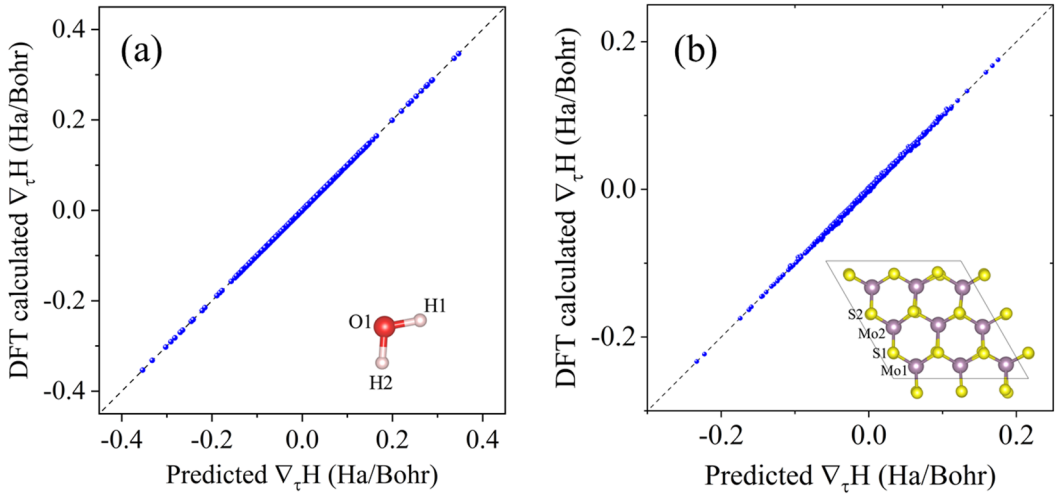

图 2。测试用的（a）水分子和（b）MoS_2 晶体在 Γ 点处哈密顿量矩阵元导数的计算值与预测值对比。

表1。密度泛函理论计算值和 HamGNN 预测值 $\left\langle \psi_{\mu} \left| \frac{\partial \hat{H}}{\partial \vec{\tau}_I} \right| \psi_{\upsilon} \right\rangle$ 用于测试的水分子（eV/Å）。

μ	N	原子	计算值 EPC[a]	计算值 EPC[b]	预测值 EPC
LUMO	最低未占分子轨道+1	H1	-5.52 -1.13 -9.60×10^{-3}	-5.53 -1.13 -1.17×10^{-2}	-5.52 -1.14 -1.23×10^{-2}
		H2	-0.48 -5.60 8.87×10^{-3}	-0.49 -5.60 1.10×10^{-2}	-0.49 -5.61 8.73×10^{-3}
		O1	5.64 6.32 -1.23×10^{-3}	5.64 6.31 -3.83×10^{-5}	5.64 6.32 -1.13×10^{-3}

[a]由方程（10）计算得出。
[b]由方程（11）计算得出。

^**表2**。密度泛函理论计算值和 HamGNN 预测值 $\left\langle \psi_{\mu} \left| \frac{\partial \hat{H}}{\partial \vec{\tau}} \right| \psi_{\upsilon} \right\rangle$ 用于测试 MoS_2 晶体（eV/Å）。表中仅列出了 Mo1、Mo2、S1 和 S2 坐标的梯度。

μ	N	原子	计算值 EPC[a]	计算值 EPC[b]	预测值 EPC
LUMO	最低未占分子轨道+1	Mo1	-4.78×10^{-2} -8.78×10^{-2} -6.28×10^{-2}	-4.76×10^{-2} -9.09×10^{-2} -6.44×10^{-2}	-5.10×10^{-2} -8.83×10^{-2} -6.80×10^{-2}
		Mo2	9.16×10^{-2} 1.50×10^{-1} 2.62×10^{-2}	9.03×10^{-2} 1.50×10^{-1} 2.78×10^{-2}	9.71×10^{-2} 1.57×10^{-1} 2.44×10^{-2}
		S1	-6.18×10^{-2} 4.34×10^{-2} 3.42×10^{-3}	-6.19×10^{-2} 4.13×10^{-2} 2.43×10^{-3}	-5.35×10^{-2} 3.11×10^{-2} 6.43×10^{-3}
		S2	3.28×10^{-2} 3.04×10^{-2} 9.57×10^{-3}	3.05×10^{-2} 2.99×10^{-2} 9.55×10^{-3}	2.00×10^{-2} 2.37×10^{-2} 1.53×10^{-2}

[a]由方程（10）计算得出。
[b]由方程（11）计算得出。

讨论

在本研究中，我们推导了非正交原子轨道基组下的电子-声子耦合计算公式，该公式可表示为哈密顿矩阵及其导数的函数。后两者分别可通过 E(3)等变HamGNN 模型的前向传播和反向传播获得。通过在水分子和 MoS_2 晶体上的测试，我们验证了所提出的电子-声子耦合公式的正确性，以及训练所得模型预测值的高精度。我们提出的方法为加速电子-声子耦合矩阵的计算提供了一条捷径。

致谢

我们 感谢中国科学院 Honghui Shang 教授进行的有益讨论。我们感谢中华人民共和国科学技术部（编号：2022YFA1402901）、国家自然科学基金委员会（项目编号：11825403、11991061、12188101）以及广东省基础与应用基础研究重大项目（极端条件下的未来功能材料——2021B0301030005）提供的经费支持。

参考文献

1. Baroni, S., de Gironcoli, S., Dal Corso, A. & Giannozzi, P. 基于密度泛函微扰理论的声子及相关晶体性质。*Rev. Mod. Phys.* **73**, 515-562 (2001). 2. Giustino, F. 第一性原理电子-声子相互作用。*Rev. Mod. Phys.* **89**, 015003 (2017). 3. Hao, S., Dravid, V. P., Kanatzidis, M. G. & Wolverton, C. 纳米结构热电材料设计与发现的计算策略。*npj Comput. Mater.* **5**, 58 (2019). 4. Gutiérrez Moreno, J. J., Cao, J., Fronzi, M. & Assadi, M. H. N. 通过计算方法研究热电材料近期进展的综述。*Mater. Renew. Sustain. Energy***9**, 16 (2020). 5. Fischetti, M. V., Vandenberghe, W. G., Put, M. L. V., Gaddemane, G. & Fang, J. 半导体与纳米结构电子输运的从头算方法。载于 *SpringerHandbooks*，2023；第1515-1558页。6. Bardeen, J., Cooper, L. N. & Schrieffer, J. R. 超导理论。*Phys. Rev.* **108**,1175-1204 (1957). 7. Shang, H., Carbogno, C., Rinke, P. & Scheffler, M. 基于实空间密度泛函微扰理论的晶格动力学计算。*Comput. Phys. Comm.* **215**, 26-46

(2017). 8. Zhou, J.-J. 等。Perturbo：用于从头算电子-声子相互作用、电荷输运和超快动力学的软件包。Comput. Phys. Comm. 264, 107970 (2021). 9. Ye, Y. 等。电子-声子耦合矩阵的计算：理论介绍、代码开发与初步应用。Sci. China Tech. Sci. 204–214 (2022). 10. Noffsinger, J. 等。EPW：使用最大局域化Wannier函数计算电子-声子耦合的程序。Comput. Phys. Comm. 181, 2140-2148 (2010). 11. Giustino, F., Cohen, M. L. & Louie, S. G. 使用Wannier函数研究电子-声子相互作用。Phys. Rev. B 76, 165108 (2007). 12. Fedik, N. 等。将机器学习扩展至原子间势之外以预测分子性质。Nat. Rev. Chem. 6, 653-672 (2022). 13. Lv, C. D. 等。机器学习：锂离子电池材料开发与状态预测的先进平台。Adv. Mater. 2101474 (2021). 14. Pollice, R. 等。加速材料设计的数据驱动策略。Acc. Chem. Res. 54, 849-860 (2021). 15. Hegde, G. & Bowen, R. C. 密度泛函理论哈密顿量的机器学习近似。Sci. Rep. 7, 42669 (2017). 16. Nigam, J., Willatt, M. J. & Ceriotti, M. 分子哈密顿量和N中心原子尺度性质的等变表示。J. Chem. Phys. 156, 014115 (2022). 17. Zhang, L. 等。将第一性原理哈密顿量等变解析映射为精确且可迁移的材料模型。npj Comput. Mater. 8, 158 (2022). 18. Schutt, K. T., Gastegger, M., Tkatchenko, A., Muller, K. R. & Maurer, R. J. 利用深度神经网络预测分子波函数，实现机器学习与量子化学的统一。Nat. Commun. 10, 5024 (2019). 19. Unke, O. T. 等。分子波函数和电子密度的SE(3)等变预测。预印本，见https://ui.adsabs.harvard.edu/abs/2021arXiv210602347U (2021). 20. Li, H. 等。密度泛函理论哈密顿量的深度神经网络表示。预印本，见 https://doi.org/10.48550/arXiv.2104.03786 (2021). 21. Su, M., Yang, J.-H., Xiang, H.-J. & Gong, X.-G. 使用具有完整局部坐标的图神经网络高效确定哈密顿量和电子性质。预印本，见https://ui.adsabs.harvard.edu/abs/2022arXiv220505475S (2022). 22. Zhong, Y., Yu, H., Su, M., Gong, X. & Xiang, H. 分子与固体哈密顿量的可迁移E(3)等变参数化。预印本，见https://ui.adsabs.harvard.edu/abs/2022arXiv221016190Z (2022). 23. Gong, X. 等。密度泛函理论哈密顿量的E(3)等变神经网络表示通用框架。预印本，见https://ui.adsabs.harvard.edu/abs/2022arXiv221013955G (2022). 24. Nelson, T. R. 等。非绝热激发态分子动力学：扩展分子材料光物理建模的理论与应用。Chem. Rev. 120, 2215-2287 (2020). 25. Fiedler, S. L. & Eloranta, J. 基于平均场和表面跳跃方法的非绝热动力学：能量守恒考量。Mol. Phys. 108, 1471-1479 (2010). 26. Togo, A. & Tanaka, I. 材料科学中的第一性原理声子计算。Scr. Mater. 108, 1-5 (2015).