# DeepH-pack：用于深度学习电子结构计算的通用神经网络软件包

Yang Li[a,b,1]，Yanzhen Wang[a,e,1]，Boheng Zhao[a,b,1]，Xiaoxun Gong[a,f,g]，Yuxiang Wang[a,b,c]，Zechen Tang[a,b]，Zixu Wang[a,b]，Zilong Yuan[a,b]，Jialin Li[a,b]，Minghui Sun[a,b]，Zezhou Chen[a,b]，Honggeng Tao[a,b]，Baochun Wu[a,b]，Yuhang Yu[a,b]，He Li[a,b,c]，Felipe H. da Jornada[e,**]，Wenhui Duan[a,b,c,d,*]，Yong Xu[a,b,d,*]

[a]清华大学物理系，北京，北京，*100084*，中国[b]清华大学低维量子物理国家重点实验室，北京，北京，*100084*，中国[c]清华大学高等研究院，北京，北京，*100084*，中国[d]清华大学量子信息前沿科学中心，北京，北京，*100084*，中国[e]斯坦福大学材料科学与工程系，斯坦福，*94305*，加利福尼亚州，美国[f]加州大学伯克利分校物理系，*94720*，加利福尼亚州，美国[g]劳伦斯伯克利国家实验室材料科学部，伯克利，*94720*，加利福尼亚州，美国

arXiv:2601.02938v1 [cond-mat.mtrl-sci] 6 Jan 2026

**摘要**

在计算物理和材料科学领域，第一性原理方法，尤其是密度泛函理论，已成为电子结构预测和材料设计的核心工具。近年来，人工智能（AI）的迅速发展开始重塑研究格局，并催生了深度学习电子结构计算这一新兴领域。尽管已有许多开创性研究，该领域仍处于起步阶段；现有软件实现往往彼此分散，缺少广泛推广应用所需的统一框架和标准化接口。本文介绍 DeepH-pack，这是一个全面且统一的软件包，可将第一性原理计算与深度学习相结合。通过将近视性原理和等变性原理等基本物理原理融入神经网络设计，DeepH-pack 实现了稳健的跨尺度、跨材料泛化能力。这使得在小尺度结构上训练的模型能够泛化到大尺度结构和此前未见过的材料。该工具包在保持第一性原理精度的同时，将电子结构计算加速了数个数量级，为大规模材料模拟、高通量材料数据库构建和人工智能驱动的材料发现建立了一种高效、智能的计算范式。

**程序摘要**

程序名称：DeepH-pack
许可条款：GPLv3
编程语言：*Python*
问题性质： 利用深度学习开发高效、智能的第一性原理方法。
解决方法： DeepH-pack 使用基于深度学习框架 JAX 实现的神经网络，对第一性原理计算的输入—输出关系进行建模，并将基本物理约束融入网络设计，以提升深度学习方法的泛化能力和计算效率。

补充评论，包括限制和特殊特征：该代码定义了一套统一的数据规范，用于以标准化格式存储关键物理量（如哈密顿量、重叠矩阵、电荷密度和密度矩阵）。该规范与主流密度泛函理论软件包对接，使 DeepH-pack 与这些第三方代码之间能够直接、高效地交换数据。

## 1. 引言

密度泛函理论（DFT）已成为第一性原理计算的标准方法，发挥着在理解复杂量子材料和设计新型器件方面发挥关键作用 [1，2]。尽管取得了成功，传统密度泛函理论的计算成本会随电子数量呈立方级增长，对于大型系统而言变得难以承受。这种计算复杂性从根本上限-制了密度泛函理论在大规模分子动力学、电子结构模-拟以及跨越海量材料数据库的高通量筛选等高要求任务中的适用性 [3]。因此，准确性与效率 之间的权衡对现实器件

*通讯作者地址：清华大学物理系，中国北京市北京 100084。电子邮箱：yongxu@mail.tsinghua.edu.cn, du- anw@tsinghua.edu.cn

**通讯作者地址：斯坦福大学材料科学与工程系，美国加利福尼亚州斯坦福 94305。电子邮箱：jornada@stanford.edu[l]这些作者贡献相同。

建模和材料发现。为应对这一挑-战，人工智能（人工智能），尤其是深度学习，已成为一种变革性范式。通过利用第一性原理计算生成的高-质量数据进行训练，深度神-经网络能够捕捉从原子结构到物理性质的潜在量子力学映射，从而有望以显著降低的计算成本，实现可与参考第一性原理方法相媲美的预测准确率。

深度学习在不同科学领域取得的显著成功，加速了其在从头算材料模拟 [4, 5, 6, 7, 8, 9]中的应用。尽管早期研究主要致力于开发用于预测能量和力的 [10, 11, 12, 13]，机器学习原子间势（MLIP），研究前沿近期已扩展到对电子结构量的直接预测 [14, 15]。人们越来越关注利用神经网络重现源于量子力学的高维、多面向性质，包括电荷密度 [16, 17], 密度矩阵 [18, 19], 波函数 [20, 21], 和能带结构 [22]。这些发展使机器学习辅助模拟能够超越热力学和力学性质，进而研究更广泛的电子、磁学和光学现象。

在这些电子量中，密度泛函理论哈密顿量占据着核心地位。作为支配量子材料系统的基本算符，密度泛函理论哈密顿量编码了有关电子结构性质的关键信息。一旦确定了哈密顿量，原则上，密度泛函理论层面的所有物理可观测量，例如能带结构、响应函数和输运性质，都可以通过标准的后处理计算得到 [3, 23]。受这一能力启发，深度学习密度泛函理论哈密顿量（DeepH）方法开创了通过深度学习直接预测密度泛函理论哈密顿量的先河 [9]。作为该领域中首个能够从小规模材料体系推广到大规模材料体系，并实现严格量子力学保真的方法，DeepH ejemplifies the 物理赋能人工智能 范式：它利用包括电子物质的近视性原理和等变性原理在内的基本物理学原理，指导神经网络架构的设计以及深度学习目标量的选择。正如其原始工作所展示的，这种物理信息引导设计确保了DeepH方法具有高数据效率和非凡的泛化能力；该工作还提供了首个解决这一问题的开源代码 [9]。目前，已经开发出若干相关算法，包括DeepH算法系列 [24, 25], QH-Net [26], HamGNN [27, 28], Hot-Ham [29], 等 [30]。通过成功将物理先验嵌入深度学习模型，DeepH建立了良性循环，将人工智能作为可靠工具来加速并拓展物理学研究的前沿，从而推动了其在电子结构分析中的多种应用 [31, 32, 33, 34, 35]。

在这一方法学基础上，DeepH 已发展为一个通用的算法框架，具有很强的通用性和可扩展性。它能够模拟不同尺度的系统，从小分子到包含数万个原子的复杂固体，同时处理自旋轨道耦合（SOC）和磁有序等复杂物理效应。此外，该框架的适用范围远不止于预测密度泛函理论哈密顿量。结合相应的数据流，DeepH 方法可推广用于预测各种标量或张量形式的物理量，包括能量和原子力 [36], 密度矩阵 [19], 实空间 Kohn-Sham 势 [37]，电荷密度，以及广义 Kohn-Sham 框架 [38]和密度泛函微扰理论 [39]中的物理量。在实际应用中，该方法可与现有的密度泛函理论软件生态系统无缝集成，预测结果可作为高质量初始猜测，加速自洽场（SCF）收敛，也可直接用于后处理任务。由此形成了一种协同工作流，将深度学习的高效率与第一性原理计算的严谨形式体系相结合。

尽管算法层面已经取得了显著进展，[9, 24, 25, 36, 38, 39, 40, 41], 要实现人工智能驱动的材料发现，仍需要在软件和实现方面开展大量基础工程工作。弥合方法学进展与实际应用之间的鸿沟，所需要的不仅仅是理论和算法上的精深：这在很大程度上取决于是否具备高性能、可扩展且用户友好的软件实现。尽管用于预测关键电子性质的有前景方法不断涌现，但如果能够开发出一个统一的深度学习框架，使其在多样化的材料体系和长度尺度上兼具通用性、可扩展性与易用性，将极大地促进科研群体的发展。这样的框架有望显著加速这些先进方法在实际从头算模拟中的应用。

本文介绍 DeepH-pack，这是一款软件包，集成了用于预测原子系统密度泛函理论哈密顿量的神经网络模型。DeepH-pack 实现了 DeepH 方法，该方法利用先进的图神经网络（GNN）架构和对称性感知方法，根据原子构型预测密度泛函理论哈密顿量矩阵。该方法的时间复杂度随原子数线性增长，相较于传统密度泛函理论方法通常具有的三次复杂度有了显著改进。此外，即使对于仅含数十个原子的小型系统，DeepH-pack 预测哈密顿量的速度也比标准密度泛函理论计算快两到三个数量级。尽管速度大幅提升，DeepH-pack 仍保持极高的精度，其电子能带结构与传统密度泛函理论方法的结果相差不到 1 meV。为确保广泛兼容性，DeepH-pack 为主要 DFT 软件包提供了自动化接口，包括 FHI-aims [42, 43], Quantum ESPRESSO [44], SIESTA [45], ABA-CUS [46], 和 OpenMX [47]。这种兼容性使用户能够轻松将 DeepH-pack 集成到现有的计算工作流中。DeepH-pack 同时支持晶体固体和分子系统，是计算材料科学领域用途广泛且功能强大的工具。DeepH-pack 的计算工作流示意图如下所示

见图1。

## 2. 方法

### 2.1. 理论背景

DeepH-pack 的主要功能是预测密度泛函理论哈密顿量 $\hat{H}_{\mathrm{DFT}}$，这是 Kohn-Sham 形式体系 [1]中的核心物理量。在该理论中，$\hat{H}_{\mathrm{DFT}}$ 是一个有效的单电子算符，可作为通往许多密度泛函理论层面相关性质的简洁途径。根据其本征值 $\{\mathcal{E}_n\}$ 和本征态 $\{|\psi_n\rangle\}$，可以计算电子密度、总能量、Hellmann-Feynman力，以及对于周期性晶体而言的能带结构和态密度（DOS）。实际上，$\hat{H}_{\mathrm{DFT}}$ 是推导许多相关性质的基石，包括电荷和自旋密度、力和应力，以及各种输运和响应函数 [48, 49, 50]。因此，DeepH-pack 专注于预测密度泛函理论哈密顿量，以此作为实现准确且高效电子结构建模的基础步骤（图 2(a)）。

在常规密度泛函理论计算中，要获得哈密顿量，需要自洽求解 Kohn-Sham方程

$$\hat{H}_{\mathrm{DFT}}|\psi_n\rangle = \mathcal{E}_n|\psi_n\rangle \tag{1}$$

但由于其计算复杂度随原子数呈立方增长，且自洽迭代过程繁琐，因此耗时较长。不过，借助人工智能可以采用更直接的方法。根据Hohenberg-Kohn定理，$\hat{H}_{\mathrm{DFT}}$ 由材料结构唯一确定，即由原子种类 $\{Z_i\}$ 和原子位置$\{\mathcal{R}_i\}$ [1]决定。因此，DeepH-pack旨在利用深度学习建立直接映射 $\{Z_i, \mathcal{R}_i\} \mapsto \hat{H}_{\mathrm{DFT}}(\{Z_i, \mathcal{R}_i\})$。为了充分利用局域性原理，DeepH-pack沿用Li等人 [9] 的原始工作，预测矩阵元。设原子$i$ 和$j$ 分别位于各自晶胞内的位置 $\mathcal{R}_i$ 和 $\mathcal{R}_j$，其晶胞分别由晶格矢量$\boldsymbol{R}_i$ 和$\boldsymbol{R}_j$平移，则哈密顿矩阵元定义为：

$$H_{i\alpha,j\beta}(\boldsymbol{R}_j - \boldsymbol{R}_i) = \int d^3\boldsymbol{r} d^3\boldsymbol{r}' \phi^*_{i\alpha}(\boldsymbol{r} - \mathcal{R}_i)\hat{H}_{\mathrm{DFT}}\phi_{j\beta}(\boldsymbol{r}' - \mathcal{R}_j) \tag{2}$$

在局域原子轨道函数 $\{\phi_{i\alpha}\}$的基组下。这里，$\alpha$和$\beta$ 表示这些原子上的轨道。当存在自旋轨道耦合时，$\alpha$ 和$\beta$ 还具有额外的自旋自由度。在本文余下的部分中，我们用 $H^{ij}$ 表示与原子对$i$和$j$相关的哈密顿矩阵元子块。

得到密度泛函理论哈密顿量后，可以求解非自洽 Kohn-Sham方程（1），获得其本征谱以供进一步研究。对于周期性系统，式（1）可写为广义本征值问题 [51]:

$$\sum_{j\beta\in\mathrm{uc}} H_{i\alpha,j\beta}(\boldsymbol{k})c_{n,j\beta}(\boldsymbol{k}) = \mathcal{E}_n(\boldsymbol{k}) \sum_{j\beta\in\mathrm{uc}} S_{i\alpha,j\beta}(\boldsymbol{k})c_{n,j\beta}(\boldsymbol{k}),\ i\alpha \in \mathrm{uc}, \tag{3}$$

$\mathcal{E}_n(\boldsymbol{k})$ 称为电子能带结构，而 $c_{n,j\beta}(\boldsymbol{k})$ 是给定基组中的波函数系数。这里，“uc”表示晶胞，而倒易空间中的矩阵元

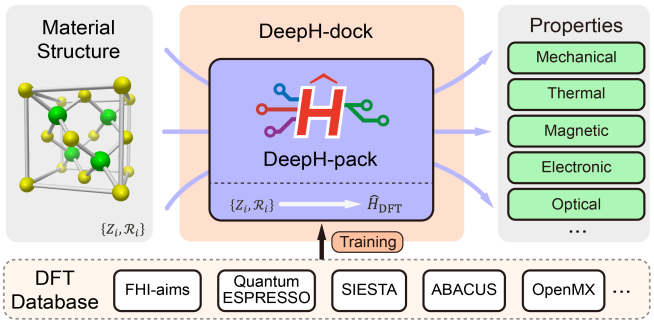


图1：DeepH计算工作流程示意图。从原子结构出发，DeepH-pack预测材料的密度泛函理论哈密顿量，从而能够以第一性原理精度预测各种材料性质。DeepH-dock作为标准化数据接口，可转换来自各种计算软件包（例如FHI-aims [42], Quantum ESPRESSO [44],SIESTA [45],ABACUS [46], OpenMX [47],等。）的数据，以用于模型训练。DeepH-pack是软件的核心算法组件，负责模型训练以及利用现有模型进行推理。

通过傅里叶变换由实空间哈密顿量和重叠矩阵构造而成：

$$O_{i\alpha,j\beta}(\boldsymbol{k}) = \sum_{\boldsymbol{R}} e^{i\boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{R}} O_{i\alpha,j\beta}(\boldsymbol{R}), \quad O \in \{H, S\}, \tag{4}$$

其中$\boldsymbol{R}$ 表示连接晶胞的晶格矢量。实空间重叠矩阵元$S_{i\alpha,j\beta}(\boldsymbol{R})$定义如下：

$$S_{i\alpha,j\beta}(\boldsymbol{R}_j - \boldsymbol{R}_i) = \int d^3\boldsymbol{r} \phi^*_{i\alpha}(\boldsymbol{r} - \mathcal{R}_i)\phi_{j\beta}(\boldsymbol{r} - \mathcal{R}_j), \tag{5}$$

其中，$\phi_{i\alpha}$ 表示位于$\mathcal{R}_i$ 晶胞内的第$i$个原子的第 $\alpha$个轨道。

对于非周期系统，式（3）自然退化为晶胞足够大、不存在轨道与周期镜像重叠的情形，此时 $\boldsymbol{k}$ 依赖性消失。

### 2.2. 神经网络算法

DeepH-pack通过利用消息传递图神经网络来预测密度泛函理论哈密顿量，其中原子结构被映射为图数据。在这种表示中，节点对应原子，边连接具有非零哈密顿矩阵元的原子。该图神经网络架构自然体现了哈密顿量的局域性，并符合电子物质的近视性原理 [52]。通过多层消息传递操作，汇总邻近原子的信息以更新节点和边特征。这一过程有效捕捉了哈密顿矩阵子块$H^{ij}$的复杂局部环境，使模型即使面对空间上相隔较远、但在量子力学上相互耦合的原子，也能准确预测它们之间的相互作用。

预测物理量的一个基本要求，是遵循系统在三维空间的全局欧几里得变换（$E(3)$ 群）下的对称性。哈密顿矩阵块 $H^{ij}$ 具有平移不变性和旋转等变性 [9, 13]。为保证平移不变性，网络输入仅依赖相对坐标矢量 $\mathcal{R}_{ij} = \mathcal{R}_j - \mathcal{R}_i$，而非绝对位置。关于

旋转，如果原子坐标通过旋转矩阵 $R \in SO(3)$ 进行旋转，其中 $SO(3)$ 表示三维空间中的正旋转群，则哈密顿量按以下方式变换

$$H_{ij}(\{R \cdot \mathcal{R}_k\}) = D_i(R) H_{ij}(\{\mathcal{R}_k\}) D_j^{\dagger}(R), \tag{6}$$

其中，$D_i(R)$ 和 $D_j(R)$分别是与以原子$i$和$j$为中心的原子轨道基组相关联的表示矩阵，由 Wigner $D$- 矩阵 [9, 53]的直和构造。为满足这一约束，DeepH-pack 将目标哈密顿量分解为在$SO(3)$ 群 [24]的不可约表示（irrep）下变换的向量。对于包含 SOC 的系统，自旋自由度会引入半整数表示，但可以将其转换回适用于等变神经网络框架的整数表示（例如，$1/2 \otimes 1/2 = 0 \oplus 1$） [24], , 确保预测量严格遵循物理变换定律。

为满足输出所受的对称性约束，DeepH-pack 采用等变神经网络架构 [54], , 并将神经网络的内部特征构造为 $SO(3)$-等变向量。这些特征具有 $SO(3)$ 群的特定不可约表示，并遵循 Wigner $D$-矩阵进行变换。网络中的核心运算是这些特征向量与球谐函数 $Y_{lm}(\mathcal{R}_{ij})$ 的张量积，用以编码键方向的几何信息。通过层层堆叠这些等变运算，网络能够自动保留从几何输入到哈密顿量映射中的复杂对称模式。最后，通过逆克莱布什-戈丹分解 [24], , 将高维等变特征映射回哈密顿量的物理基组，完成预测过程。

DeepH-pack 提供两种不同的模型架构，以平衡准确性与计算成本：Normal 和 Accurate。Normal 模型是一种轻量级架构，基于改进的 DeepH-E3 [24], , 并针对标准任务优化了推理速度和准确性。对于需要更高精度或更大基组的场景，Accurate 模型具有更强的表达能力。Normal 模型中标准等变张量积（TP）的计算复杂度通常随最大角动量阶数$L$按$O(L^6)$增长。Accurate 模型基于改进的 DeepH-2 架构 [40] , 并集成了 eSCN 方法 [55]中的速度与内存优化算法。该算法建立半局域坐标系，使$z'$轴与边向量 $\mathcal{R}_{ij}$ 对齐，而$x'$ 轴和$y'$ 轴不固定。在这个半局域坐标系中，$SO(3)$ TP 可简化为$SO(2)$运算，将复杂度降低至$O(L^3)$。得益于这一效率提升，Accurate 网络能够扩展至更大、更复杂的架构，为构建准确性和泛化能力更强的模型铺平道路。此外，Accurate 模型还集成了经过优化的张量积参数化、注意力机制和激活函数，以适中的内存消耗实现卓越性能。

上述架构创新确立了

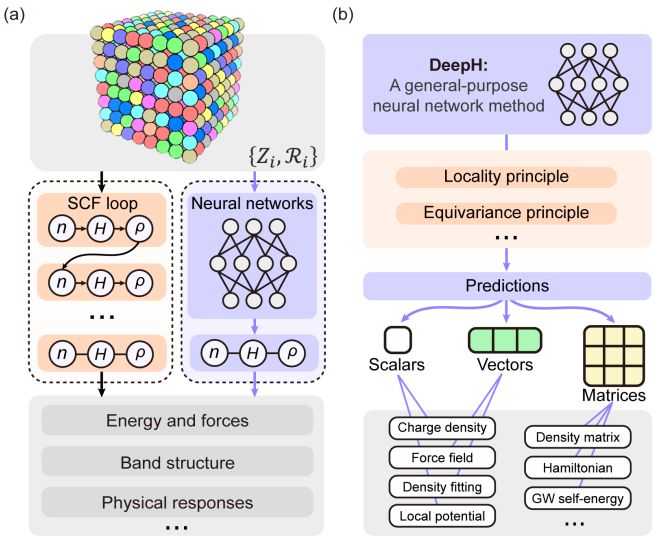


图 2：作为通用神经网络方法的 DeepH。(a) DeepH 与第一性原理计算的集成。DeepH 模型直接从收敛的密度泛函理论（DFT）数据中学习，以预测电子结构。这些预测发挥双重作用：既能以第一性原理精度高效计算材料性质，又能提供高质量的初始猜测（如电荷密度 $n$、哈密顿量 $H$ 和密度矩阵 $\rho$），从而加速 DFT 自洽场（SCF）收敛。(b) 具有物理约束的基本电子结构预测。DeepH 输出标量和张量数据，这些数据天然满足物理约束，从而支持对多种电子性质进行系统学习。其设计确保了该方法在不同材料体系和性质类型中的广泛适用性，使 DeepH 成为通用的电子结构算法。

DeepH 是一种通用、高效且高精度的算法框架（图 2（b））。其一项关键优势在于，学习过程不受第一性原理计算中所采用的具体交换-相关泛函影响。因此，只要训练数据集保持一致，该模型就能够预测由广泛交换-相关泛函推导出的 DFT哈密顿量。此外，DeepH 的适用范围还超越了典型的 DFT哈密顿量。通过调整输出表示以匹配特定的张量阶数，该框架能够预测任何按 $E$（3）等变标量或张量变换的物理量。这种通用性涵盖了多种电子结构性质，包括电子-声子耦合矩阵元、原子力和总能量、电荷密度、密度矩阵，以及 $GW$ 近似下的准粒子自能。

## 3. 工作流支持

如图 3所示，DeepH 框架中的典型研究工作流依次包括数据集生成和图构建、模型训练、推理以及性质后处理。该平台支持广泛的材料体系，从体相体系到复杂的缺陷结构，并提供多种网络架构，以平衡准确性与计算成本。为满足不同专业水平用户的需求，DeepH-pack 实现了一个由易用性逐步迈向可扩展性的分层接口框架。

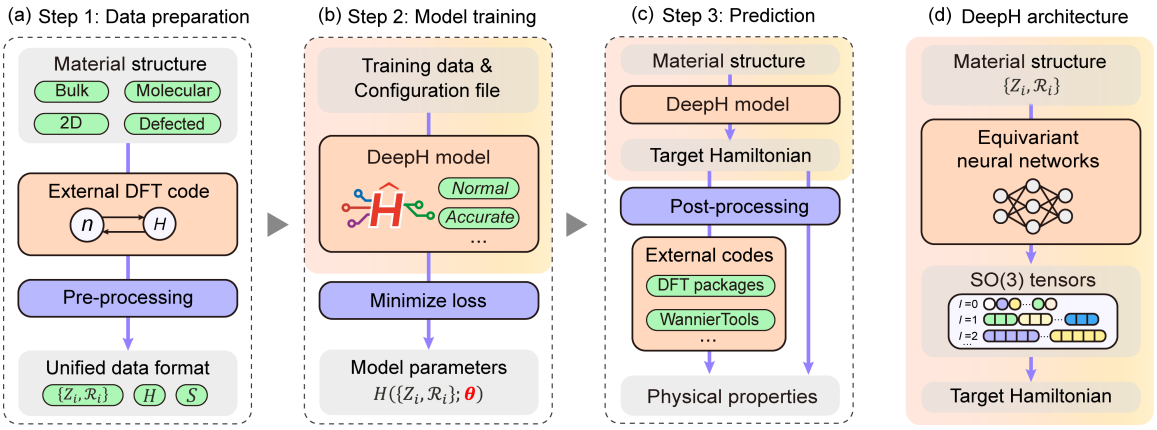


图 3：DeepH 工作流程示意图。DeepH 工作流程包含三个核心阶段：(a) 数据准备：使用 DFT 软件处理用户定义的原子结构，以计算电子结构。随后，DeepH 模块构建图表示，对原子位置（$\{Z_i, \mathcal{R}_i\}$）、重叠矩阵（$S$）和哈密顿量标签（$H$）进行编码。(b) 模型训练：使用合适的架构和超参数，通过图数据训练 DeepH 模型。该过程通过最小化损失函数得出最优参数 $\theta$。(c) 预测，包括模型推理和哈密顿量后处理：训练完成的模型为新结构预测哈密顿量。DeepH-dock 作为接口，将哈密顿量数据传递给 DFT 软件以继续计算，或传递给后处理工具进行性质分析。(d) DeepH 模型的内部机制：将原子结构编码为 $SO(3)$ 等变神经表示。随后通过逆克莱布什-戈丹分解将这些表示转换为哈密顿量。

首先，配置驱动模式使普通用户能够通过易于阅读的配置文件部署预定义的架构和训练工作流，使 DeepH-pack 成为面向计算材料一站式解决方案的多功能生态系统。其次，面向对象的 Python 接口将工作流分解为模块化抽象（数据图、模型块、训练循环等），通过类继承和组合，便于灵活组装自定义架构。最后，底层插件系统支持开发者通过基于 MPI 的通信跨语言（Julia/C/Fortran）注入内存数据，从而能够介入 GPU 训练并修改网络中间状态（例如扰动线性层输出），还可无缝集成外部代码（例如 DFT 计算器），如文中所示

f

DeepH-Zero [41]。DeepH-pack 利用 JAX 的函数式编程范式，实现高效且可微分的电子结构方法 [56]。该软件借助加速线性代数（XLA）编译器，可在包括 CPU、GPU 和 TPU 在内的多种计算架构上实现与硬件无关的运行。该框架采用优化的即时（JIT）编译策略，以处理运行时可变的数组形状，从而显著降低梯度反向传播期间的内存用量，并大幅提高计算吞吐量。

作为核心训练包的补充，DeepH-dock 是一款配套工具包，旨在管理端到端工作流程 [57]。DeepH-pack 专注于模型优化和推理等计算密集型任务，而 DeepH-dock 则负责数据准备和后处理等必要工作。它支持内部数据标准与外部 DFT 代码之间的双向转换，包括 FHI-aims、Quantum ESPRESSO、SIESTA、ABACUS 和 OpenMX，使用户能够将神经网络预测无缝集成到现有研究流程中。这两个软件包共同构成了一个完整的系统，可用于数据集生成、哈密顿量学习以及后续物理性质的计算。

### *3.1.* 预处理模块 *3.1.1.* 输入/输出数据标准

DeepH-pack 的训练或测试数据按单个材料结构进行组织。为确保高效存储和高通量并行输入/输出性能，我们采用基于层次数据格式第5版（HDF5）的统一数据格式。具体而言，哈密顿量和重叠矩阵采用稀疏分块表示进行存储，其中每个分块对应于特定原子对关联的矩阵元。这种设计能够自然地适应 $SO(3)$ 等变张量所需的数学运算。对于单个数据样本，原子坐标和晶格矢量记录在标准 POSCAR 文件中。核心电子结构数据，即重叠矩阵和 DFT 哈密顿量，分别存储在名为 overlap.h5 和 hamiltonian.h5 的两个文件中。这些文件采用相同的稀疏格式。在 HDF5 结构中，非零矩阵元被展平为名为 entries 的一维数组。为了根据 entries 逻辑重构完整矩阵，稀疏分块结构由名为 atom_pairs 的辅助数据集定义。atom_pairs 的每一行由五个整数（$i$、$j$、$k$、$n_1$,$n_2$）组成，表示中心晶胞中的第$n_1$个原子与由晶格矢量索引（$i$、$j$、$k$）指定的像晶胞中的第$n_2$个原子之间的耦合。为便于重构矩阵，entries 数组中每个分块的起始位置和几何维度分别记录在名为 chunk_boundaries 和 chunk_shapes 的辅助数据集中。哈密顿量的能量单位为电子伏特（eV）。除这些矩阵文件外，还需要一个

info.json 文件，用于提供必要的元数据。该 JSON 文件定义了体系的全局属性，包括原子数、原子轨道的角动量、自旋极化设置以及以 eV 为单位的费米能级。这种标准化格式使 DeepH-pack 模型能够高效处理不同材料体系中的复杂哈密顿量结构。

#### *3.1.2.* 结构准备

在专门的应用中，用户通常需要准备针对特定物理系统定制的数据集。例如，在模拟非晶材料的大型超胞时，可以从较小且具有代表性的非晶结构中构建训练集。对于莫尔系统，可以通过生成未扭转的层状范德华结构，再施加层间位移和扰动来构建数据集。第 4 节和第 5 节将进一步讨论此类训练集设计策略。

训练通用材料模型时，原子结构通常取自成熟的材料数据库，例如 Materials Project [58], ICSD [59], AFLOW [60],和 Alexandria [61], 这些数据库提供经过整理的实验观测构型和计算优化构型。或者，也可以采用传统的结构搜索算法，包括 CA- LYP SO [62] 和 AIRSS [63]，并结合 VASP 等 DFT 软件 [64], ，系统地探索高质量原子构型。近年来，MatterGen 等现代生成式神经网络 [5], 与 Mattersim 等通用机器学习力场 [65]以及 CHGNet [66], 相结合，已能高效且广泛地探索结构空间。总之，这些方法为获取多样、高质量且稳定的原子结构，以训练机器学习模型，提供了实用且易于采用的途径。

#### *3.1.3.* 数据转换

DeepH-dock 支持将多种 DFT 代码的输出文件转换为标准格式的哈密顿量数据。执行 dock␣convert 命令后，软件会通过在不同计算节点上的多个核心之间进行并行化来完成这一转换。

此外还值得一提的是，在提供兼容的原子轨道基组时，DeepH-dock 能够使用 [67], 中提出的 HPRO 方法，将平面波（PW）DFT 哈密顿量投影到原子轨道上，从而支持基于 PW 数据进行训练。

#### *3.1.4.* 重叠计算

DeepH-dock 集成了一个专门用于计算重叠矩阵的独立模块，而重叠矩阵是 DeepH-pack 预测流程的必要输入。该模块采用 HPRO 软件包中使用的高效网格插值方案 [67], ，该方案最初由 Sankey 和 Niklewski 提出 [68]。通过利用数值原子轨道的有限支撑范围以及高效的样条插值算法，该算法的计算复杂度随系统规模呈线性增长。在我们的基准测试中，该流程在单个 CPU 核心上用两分钟计算出一个包含 11,164 个原子的魔角扭转双层石墨烯系统（使用 SIESTA 的 DZP 基组）的重叠矩阵。用户可以在 DeepH-dock 中使用 dock␣compute␣overlap 命令计算重叠矩阵，也可以使用外部密度泛函理论代码生成的重叠数据。

除内置模块外，DeepH-dock 还支持导入由兼容的第三方 DFT 软件包直接生成的重叠矩阵。例如，使用 FHI-aims 时，用户可以将控制参数 sc_iter_limit 设置为零，以获取所需数据。而使用 ABACUS 时，用户应将选项 calculation 设置为 get_S。这些配置会执行单步初始化，而不会进入自洽循环，从而以极低的计算开销提取重叠矩阵。

### *3.2.* 模型训练与推理

#### *3.2.1.* 训练神经网络

DeepH-pack 旨在处理各种训练场景，从仅包含数百个结构的专用数据集，到包含数十万条 entries 的大型材料数据库。为满足不同的计算资源和精度要求，该软件包提供两种不同的神经网络架构，分别称为 Normal 和 Accurate；二者在参数规模和表达能力方面有所不同。架构的详细说明见第 2 节。训练流程支持灵活的数据管理，用户既可以将数据集完整加载到 CPU 内存中以提高速度，也可以从磁盘流式读取数据以处理超大规模数据集。此外，该实现支持在单个或多个计算节点上高效进行多 GPU 并行。

训练过程首先根据 overlap.h5 或 hamiltonian.h5 中定义的稀疏模式，构建晶体结构的局部坐标图表示。在该图中，节点代表单个原子，边对应于原子对之间非零的哈密顿量子块。每个节点都赋予相应原子的原子序数，每条有向边（$i$，$j$）则携带从原子 $i$ 到原子$j$的相对位置向量 $\mathcal{R}_{ij}$。这些图特征作为基于 JAX 的等变图神经网络的输入，该网络能够保持底层量子相互作用的物理对称性。对于每一对相连的原子$i$ 和$j$，网络都会输出预测的哈密顿矩阵子块$H^{ij}$。

网络参数通过最小化损失函数 $\mathcal{L}$ 进行优化，该损失函数量化了预测的哈密顿量与存储在 hamiltonian.h5 中的真实标签之间的差异。DeepH-pack 允许用户选择均方误差（MSE）或平均绝对误差（MAE）作为优化目标。以均方误差为例，一个批次数据的损失计算如下：

$$\mathcal{L} = \frac{1}{N_b}\sum_{k=1}^{N_b}\frac{1}{|\mathcal{N}_k|}\sum_{(i,j)\in\mathcal{N}_k}\frac{1}{N_{ij}}\left\|\hat{H}_{ij}^{(k)} - H_{ij}^{(k)}\right\|^2, \tag{7}$$

其中，$N_b$ 表示批次大小，$|\mathcal{N}_k|$表示$i$-$j$ 对的数量，$N^{ij}$ 表示矩阵子块$H^{ij}$中的矩阵元总数，$\mathcal{N}_k$ 表示第$k$个结构中的相互作用原子对集合，$\|\cdot\|$ 表示弗罗贝尼乌斯范数。

为简化工作流程，整个训练过程都封装在一个命令行界面 deeph-train 中。训练会话的配置由 TOML 输入文件控制，与标准 JSON 格式相比，该文件的语法更加便于用户使用。在此文件中，用户可以指定关键超参数，包括模型架构（例如 Normal 或 Accurate）、学习率调度、批次大小以及训练步数总量。这种设计使用户无需具备丰富的编程知识，也能使用 JAX 框架底层复杂的操作。

#### *3.2.2.* 超参数选择的辅助功能

DeepH 的训练和推理工作流主要通过结构化的 TOML 配置文件进行控制。该文件将所有必要设置组织为四个核心部分：系统部分指定计算环境，包括硬件声明和资源分配。数据部分定义数据集，包括文件路径、特征规范和元数据处理。模型部分配置神经网络架构及其组件、目标物理量和相应的损失函数。流程部分管理执行工作流，涵盖训练/推理流程、收敛标准、数据加载器设置、优化器和重启配置。

受篇幅所限，本文无法全面介绍所有 TOML 配置选项。以下概述模型设置中的几个核心参数；完整文档请参阅 DeepH-pack 文档 [69]。硬件资源通过 system.device 指定，语法为 <type>*<num>:<id>，用于选择后端类型（如 CPU、CUDA、TPU、ROCm）并分配计算设备。神经网络架构由 model.net_type 选择，标准版本提供两种主要预设：轻量级的 Normal 网络（通常具有 <1M 个参数）适用于中等规模的哈密顿量学习任务，而更先进的 Accurate 架构（具有 >5M 个参数）则用于对复杂系统进行高精度建模。另一个关键参数 model.advanced.net_irreps 以 e3nn.Irreps 字符串 [70], 的形式定义网络特征的不可约表示，从而确保严格的等变性。对于哈密顿量预测，指定的最大角动量量子数 $l_{max}$ 至少应为哈密顿量基组中最高 l 值的两倍，以便正确地从直积基变换到直和基。例如，如果系统包含 f轨道（$l = 3$），则 $l_{max}$ 不得小于 6。启用自旋轨道耦合（SOC）时，$l_{max}$还需进一步增加 1，以纳入自旋自由度。

#### *3.2.3.* 预测 *DFT* 哈密顿量

训练阶段完成后，可以部署优化后的模型，为未见结构预测 DFT 哈密顿量。DeepH-pack 专为高通量推理任务而设计，并能高效利用多GPU加速来处理大批量材料。预测工作流通过 TOML 配置文件进行管理，并通过单行命令 deeph-infer 启动。

对于特定的目标材料，推理引擎需要三个必要输入：POSCAR 文件中定义的原子结构、info.json 中的元数据，以及预先计算的重叠矩阵。这些输入文件可以通过 DeepH-dock 界面便捷地准备。最终输出是预测得到的哈密顿量矩阵，以第 3.1.1 节所述的标准化稀疏 HDF5 格式存储，文件名为 hamiltonian_pred.h5。

### *3.3.* 后处理模块

#### *3.3.1.* 能带结构与态密度

方程（$\mathcal{E}_n$）中定义的电子能带结构$\boldsymbol{k}$）描述了周期性晶体中电子的单粒子能级，是从密度泛函理论哈密顿量中提取的最重要物理量之一。对于中等尺寸的系统（< 1000），DeepH-dock 可以直接求解方程（3）中的广义本征值问题，从而根据 DeepH-pack 预测的哈密顿量生成能带结构。此外，DeepH-dock 可以根据电子占据数确定费米能，并根据能级计算电子态密度。图4 展示了双层黑磷的能带结构和态密度，这些结果是在后处理中根据 DeepH-pack 预测的哈密顿量得到的。

#### *3.3.2.* 波函数

波函数是密度泛函理论计算能够提供的另一项关键量。它们描述了各能级电子的空间分布，是许多后续物性计算所必需的，例如电子电导率 [48], 光学光谱 [49], 以及多体微扰理论修正 [71]。布洛赫波函数定义为

$$\psi_{n\boldsymbol{k}}(\boldsymbol{r}) = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{\boldsymbol{R}} \sum_{j\beta \in \mathrm{uc}} e^{i\boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{R}} c_{n,j\beta}(\boldsymbol{k}) \phi_{j\beta}(\boldsymbol{r} - \boldsymbol{R} - \mathcal{R}_j), \quad (8)$$

其中，$\boldsymbol{R}$ 表示晶格平移矢量，$N$ 表示玻恩–冯·卡门超胞的大小。请注意，此处仅考虑晶胞内的原子位置 $\mathcal{R}_j$。

求解方程（3）后，DeepH-dock 可以将波函数系数 $c_{n,j\beta}(\boldsymbol{k})$ 导出到 HDF5 文件。此外，DeepH-dock 还可以通过以下方式计算并输出布洛赫波函数在实空间中的周期部分

$$u_{n\boldsymbol{k}}(\boldsymbol{r}) = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{\boldsymbol{R}} \sum_{j\beta \in \mathrm{uc}} e^{-i\boldsymbol{k}\cdot(\boldsymbol{r}-\boldsymbol{R})} c_{n,j\beta}(\boldsymbol{k}) \phi_{j\beta}(\boldsymbol{r} - \boldsymbol{R} - \mathcal{R}_j). \quad (9)$$

#### *3.3.3.* 电荷密度和密度矩阵

DeepH-dock 可在原子轨道基组下计算单粒子密度矩阵，其定义如下：

$$\rho_{i\alpha,j\beta}(\boldsymbol{k}) = \sum_n f_{n\boldsymbol{k}} c_{n,i\alpha}(\boldsymbol{k}) c^*_{n,j\beta}(\boldsymbol{k}), \quad (10)$$

其中$i$、$j$ 表示晶胞中的原子索引， $\alpha$，$\beta$ 表示每个原子上的轨道索引，$f_{n\boldsymbol{k}}$ 表示状态（$n$，$\boldsymbol{k}$）的费米-狄拉克占据因子，求和遍历所有能带。DeepH-dock 提供了两种构建算法：(i) 当波函数系数可用时，根据式（10）直接计算；(ii) 基于 PEXSI方法 [72], 的免对角化方法，无需显式求解完整的能带结构本征值问题即可计算密度矩阵，并且其计算复杂度随原子数呈低于立方的增长。

*3.3.4.* 与 *DFT* 软件对接

DeepH-dock 支持用户以兼容多种 DFT 代码的格式导出预测数据，包括哈密顿矩阵、重叠矩阵和密度矩阵。目前支持的界面包括：

1) SIESTA 界面：*.HSX 哈密顿量/重叠矩阵文件和 *.DM 密度矩阵文件。*.HSX 文件以紧凑的二进制格式存储哈密顿矩阵和重叠矩阵。该文件可用于能带结构计算和能带展开分析，从而研究超胞和界面中的电子性质。*.DM 文件包含密度矩阵，这对重启 SCF 计算以及电荷密度和电子布居分析等后处理分析至关重要。

2) Quantum ESPRESSO 界面：电荷密度 HDF5 文件。该 *.h5 格式文件存储 Quantum ESPRESSO 计算输出的电荷密度。它是重启 SCF 计算的关键输入，也可用于后续电子性质计算，包括静电势分析和电荷转移研究。

3) FHI-aims 接口：FHI-aims 的 hamiltonian.out 和 overlap-matrix.out 文件。这些纯文本文件分别包含哈密顿量和重叠矩阵数据。目前，这些文件仅适用于 Γ点处的团簇计算。对于周期性晶体性质和预测，则需要使用 FHI-aims原子模拟接口 (ASI) [73]，该接口目前正在 DeepH-dock 中进行 beta 测试。

4) OpenMX 接口：*.scfout 文件，其中包含哈密顿量、重叠矩阵、密度矩阵和位置矩阵。*.scfout 文件是一种综合性输出文件，包含哈密顿量、重叠矩阵、密度矩阵和位置矩阵数据。此文件格式支持多种后处理任务，例如能带结构计算、拓扑性质分析（如贝里曲率和陈数）、光学/响应性质计算，以及其他高级电子结构计算。

5）ABACUS 接口：*.csr 稀疏格式文件，包含哈密顿量、重叠矩阵、密度矩阵和位置矩阵。这些文件以压缩稀疏行（CSR）格式存储哈密顿量、重叠矩阵、密度矩阵和位置矩阵。CSR格式可高效存储和处理稀疏矩阵，便于进行能带结构计算、后续拓扑性质分析以及光学/响应性质计算。

借助这些接口，用户可以将 DeepH-pack 的预测结果加载到自己偏好的密度泛函理论工作流中，从而探索更广泛的物理性质和材料现象。

## 4. 基准测试

为严格评估 DeepH-pack 的准确性和效率，我们采用了一套涵盖不同维度和化学环境的综合基准测试。测试系统涵盖从分子系统（乙醇）到二维（2D）材料（单层 $MoS_2$, 双层 $Bi_2Se_3$）以及块体晶体（石墨、碳化硅和碳同素异形体）。尤为重要的是，这些数据集旨在应对关键的物理挑战，包括 $Bi_2Se_3$，中的相对论自旋轨道耦合效应、碳化硅中的缺陷态以及碳中的结构多晶型。我们对 DeepH-pack 中实现的网络，即 Normal 和 Accurate 架构，进行了评估，包括训练/推理时间和内存使用情况。同时还提供了与先前 DeepH-E3 实现的比较。所有训练和推理过程均在配备 AMD EPYC 7502 处理器的 NVIDIA RTX 4090 GPU 上完成。模型准确性基于下列标准化指标进行评估。预测的哈密顿量 $H_{i\alpha,\ j\beta}$ 与基准结果之间的误差被作为衡量模型准确性的最直接指标。此外，还评估了可观测量的准确性，包括能带能量的平均绝对误差（MAE）（$\mathcal{E}_{n(\boldsymbol{k})}$）、态密度的 MAE（$D(\varepsilon)$）以及 Γ点处本征态的均方根误差（RMSE）（$\psi_{n(\boldsymbol{k})}$）。具体指标定义如下。

$$\mathrm{MAE}_H = \frac{\sum_{i\alpha,j\beta} |H^{\mathrm{pred}}_{i\alpha,j\beta} - H^{\mathrm{bm}}_{i\alpha,j\beta} - \Delta\mu_H S_{i\alpha,j\beta}|}{N_H}, \tag{11}$$

$$\mathrm{MAE}_{\mathrm{band}} = \frac{\int d^n\boldsymbol{k} \sum'_n |\mathcal{E}^{\mathrm{pred}}_{n(\boldsymbol{k})} - \mathcal{E}^{\mathrm{bm}}_{n(\boldsymbol{k})} - \Delta\mu_{\mathrm{band}}|}{\int d^n\boldsymbol{k}\ N'_{\mathrm{band}(\boldsymbol{k})}}, \tag{12}$$

$$\mathrm{MAE}_{\mathrm{DOS}} = \frac{\int_{\varepsilon_{\min}}^{\varepsilon_{\max}} |D^{\mathrm{pred}}_{(\varepsilon+\Delta\mu_{\mathrm{band}})} - D^{\mathrm{bm}}_{(\varepsilon)}| d\varepsilon}{\int_{\varepsilon_{\min}}^{\varepsilon_{\max}} D^{\mathrm{bm}}_{(\varepsilon)} d\varepsilon}, \tag{13}$$

$$\mathrm{RMSE}_{\psi,\boldsymbol{k}=\boldsymbol{0}} = \left( \frac{\sum'_n (1 - \sum''_g |\langle \psi^{\mathrm{bm}}_{g(\boldsymbol{k}=\boldsymbol{0})} | \psi^{\mathrm{pred}}_{n(\boldsymbol{k}=\boldsymbol{0})} \rangle|^2)}{N'_{\mathrm{band}(\boldsymbol{k}=\boldsymbol{0})}} \right)^{1/2}. \tag{14}$$

对倒易空间进行充分采样，以计算能带和态密度。对于乙醇，仅包含 Γ 点。对于周期性晶体，使用相对密集的网格对布里渊区进行采样，$k$点间距为 0.02– 0.07Å$^{-1}$。采用高斯展宽计算态密度，展宽宽度为 0.01~0.08 eV。为滤除费米能级附近的信息，在能量窗口（$\varepsilon_{\min}$, $\varepsilon_{\max}$）内计算能带、态密度和本征态的误差。该窗口由 $\sum'$ 表示，意为 $\sum'_n = \sum_{n,\ s.t.\ \varepsilon_{\min}<\mathcal{E}^{\mathrm{bm}}_{n(\boldsymbol{k})}<\varepsilon_{\max}}$。能量窗口最初以费米能 $\varepsilon_F$ 为中心，宽度为

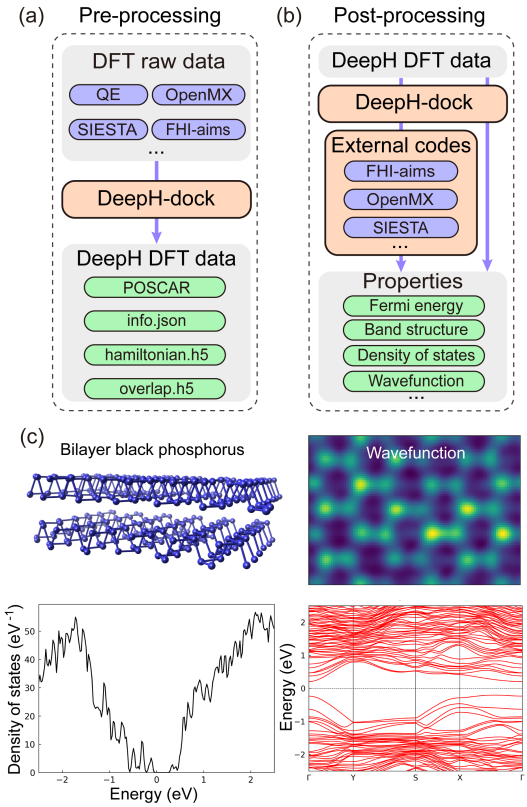


图 4：DeepH-dock 功能示意图。(a) 作为 DeepH-pack 的接口，DeepH-dock 将多个常用 DFT 软件包的数据转换为与 DeepH-pack 兼容的统一格式。(b) 无论是由 DeepH-pack 预测得到，还是由其他 DFT 软件转换而来的 DeepH 格式数据，都可以进一步处理以计算目标材料性质。(c) DeepH-pack 预测哈密顿量，使 DeepH-dock 能够直接输出受扰动双层磷烯的关键电子性质（态密度、 Γ 点处价带顶的波函数可视化以及能带结构）。

总宽度为 6.0 eV，并逐渐扩展，直至至少包含 10 条能带（对于水分子则例外，其中包含 4 个占据能级和 7 个最低未占据能级）。在分母中，$N_H$ 是哈密顿矩阵中元素的总数，N′ band(k) 是能量窗口内的能级数。RMSE$_\psi$ 表达式中的注记 $\sum''$ 表示求和仅限于与 $\psi_n$相关的近简并子空间，该子空间通过能量间距阈值 $\varepsilon_{\text{th}}$ （默认为 5 meV）来确定。本征态之间的内积计算为$\langle\psi_{m(\boldsymbol{k})}|\psi_{n(\boldsymbol{k})}\rangle = \mathrm{c}^{\dagger}\,\mathrm{m(k)S\,(k)c}_{\,n(\boldsymbol{k})}$，其中 S$(\boldsymbol{k})$ 是重叠矩阵的傅里叶变换，$\mathrm{c}^{n(\boldsymbol{k})}$ 是经对角化得到的本征向量。哈密顿矩阵、能带能量和态密度的误差在规范修正 Δμ [40]后定义。

$$\Delta\mu_H = \frac{\sum_{i\alpha,j\beta}(H^{\text{pred}}_{i\alpha,j\beta} - H^{\text{bm}}_{i\alpha,j\beta})S_{\,i\alpha,j\beta}}{\sum_{i\alpha,j\beta} S^2_{i\alpha,j\beta}} \tag{15}$$

$$\Delta\mu_{\text{band}} = \text{median}\{\mathcal{E}^{\text{pred}}_{n(\boldsymbol{k})} - \mathcal{E}^{\text{bm}}_{n(\boldsymbol{k})} \mid \varepsilon_{\min} < \mathcal{E}^{\text{bm}}_{n(\boldsymbol{k})} < \varepsilon_{\max}\} \tag{16}$$

结果见表 1，每项指标中表现最佳的数值均以粗体突出显示。

我们选取水分子作为小分子的代表。该数据集包含来自 MD17 数据集 [74], 的 4999 个水分子构型；MD17 数据集由从分子动力学轨迹中采样得到的结构组成。密度泛函理论计算由 AI2DFT [41] 执行，采用守恒范数（NC）赝势 [75] 和双ζ极化（DZP）基组 [76]。交换-相关泛函采用 Perdew-Burke-Ernzerhof（PBE）形式的广义梯度近似（GGA）[77]。Normal 模型和 Accurate 模型经过 8 小时训练后收敛，并在相同的测试集上评估性能。Normal 模型和 Accurate 模型均优于 DeepH-E3，推理速度快 3 至 5 倍，误差降低了 50~70%。Accurate 模型预测的哈密顿矩阵和能级最准确，而 Normal 模型仅使用少得多的参数、耗费更短的推理时间，便达到了相当的准确度。能量 MAE 和本征态均方根误差分析仅纳入 4 个占据态和 7 个最低未占据态，因为较高的未占据态与大多数性质计算和实验的实际相关性不大。需要注意的是，本研究所用的软件和计算设置与已发布的 MD17 数据集不同，因此哈密顿矩阵误差无法与其他研究直接比较 [13, 26]。

单层 $MoS_2$ 和双层 $Bi_2Se_3$ 被选作具有代表性的二维材料。二者都是范德华材料，可以生长为薄层 [78, 79]。密度泛函理论计算使用 OpenMX [47] 进行，采用守恒范数（NC）赝势 [80] 和多重ζ极化基组 [81]。这些数据集已用于 DeepH-E3 [24]的研究。$MoS_2$ 属于过渡金属二硫属化物（TMD）家族，具有出色的电子和光学特性，尤其是高载流子迁移率和强激子效应 [82, 83, 84]。这些特性使其有望应用于晶体管和光探测器。该数据集由 $5 \times 5$ 个超胞构建而成，原子位置经过随机扰动，共包含 500 个结构。DeepH-pack 在这些数据集上表现稳健。Normal 网络的准确度显著更高（平均绝对误差降低 ~ 70%），且训练和推理过程所需时间最短。与 Normal 网络相比，Accurate 网络在内存消耗更低的同时，准确度进一步提升约 3 倍。四项准确度指标呈现出相同趋势：Accurate 网络表现最佳，Normal 网络居中，二者均优于 DeepH-E3。$Bi_2Se_3$ 以高热电效率和非平庸拓扑性质 [85], 著称，是具有显著自旋轨道耦合效应的典型材料。该数据集包含 576 个结构，每个结构均为 $3 \times 3$ 个超胞；两层之间施加面内层间位移，并沿各个方向对原子进行 0.1 Å 的随机扰动。由于自旋轨道耦合在能带反转中发挥关键作用，并会导致非平庸的能带拓扑，因此 OpenMX 计算中纳入了自旋轨道耦合。为了处理 $1/2 \otimes 1/2 = 0 \oplus 1$ 的额外自旋角动量，网络中的最大角动量需要设为基组轨道最大角量子数的两倍再加 1，即本例中的 $l_{\max} = 2 \times 2 + 1 = 5$。Normal 和 Accurate 网络表现出

表 1：DeepH-pack 在基准数据集上的效率和准确性。粗体标出的项目表示所测试模型中的最佳结果。

| | | 水分子 | 单层 $MoS_2$ | 双层 $Bi_2Se_3$ | 石墨 | 有缺陷的 SiC | 碳 同素异形体 |
|---|---|---|---|---|---|---|---|
| 原子数 | | 3 | 75 | 90 | 108 | 64 | 3~58 |
| 每个晶胞 | | | | | | | |
| 训练集大小 | | 3000 | 300 | 460 | 240 | 300 | 342 |
| 批次大小 | | 30 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 |
| 哈密顿矩阵 | DeepH-E3 [24] | 0.25 | 0.43 | 0.27 | 0.36 | 0.20 | 1.8 |
| 平均绝对误差 | Normal | 0.11 | 0.13 | 0.077 | 0.21 | 0.058 | 0.69 |
| (meV) ↓ | Accurate | **0.077** | **0.041** | **0.044** | **0.13** | **0.037** | **0.53** |
| 能带能量平均绝对误差 | DeepH-E3 | 2.4 | 0.74 | 0.97 | 12 | 0.50 | 45 |
| (meV) ↓ | Normal | 1.3 | 0.22 | **0.29** | 12 | 0.24 | 17 |
| | Accurate | **0.71** | **0.060** | 0.31 | **8.7** | **0.20** | **10** |
| 态密度平均绝对误差 | DeepH-E3 | – | 8.5 | 1.8 | 17 | 0.61 | 27 |
| ($\times 10^{-3}$, 无量纲) ↓ | Normal | – | 2.4 | **0.65** | 16 | 0.27 | 17 |
| | Accurate | – | **0.70** | 0.70 | **12** | **0.21** | **11** |
| 本征态均方根误差 | DeepH-E3 | 0.22 | 7.2 | 5.1 | 7.0 | 2.0 | 11 |
| ($\times 10^{-2}$, 无量纲) ↓ | Normal | 0.13 | 1.8 | **2.9** | 7.9 | 0.76 | 5.2 |
| | Accurate | **0.12** | **0.61** | 3.5 | **3.9** | **0.70** | **2.2** |
| 训练时间 | DeepH-E3 | 0.63 | 1.0 | 1.3 | 0.63 | 1.1 | 0.92 |
| (秒/批次) ↓ | Normal | **0.052** | **0.12** | **0.23** | **0.14** | **0.21** | 0.23 |
| | Accurate | 0.076 | 0.19 | **0.23** | 0.23 | 0.31 | **0.17** |
| 推理时间 | DeepH-E3 | 0.12 | 0.17 | 0.24 | 0.11 | 0.21 | 0.19 |
| （秒/结构） ↓ | Normal | **0.02** | **0.03** | **0.05** | **0.04** | **0.06** | **0.06** |
| | Accurate | 0.03 | 0.07 | 0.13 | 0.13 | 0.14 | 0.08 |
| 推理内存 | Normal | **0.9** | 7.9 | 13 | 6.5 | 13 | 22 |
| （MB/原子） ↓ | Accurate | **0.9** | **6.4** | **9.1** | **5.9** | **12** | **7.9** |
| 参数规模 | DeepH-E3 | 0.68 | 0.77 | 1.46 | 0.42 | 0.72 | 0.84 |
| （百万） | Normal | 1.36 | 2.06 | 1.29 | 0.57 | 1.98 | 3.48 |
| | Accurate | 3.58 | 8.39 | 7.52 | 3.64 | 8.39 | 2.62 |

在该数据集上的整体性能相当。具体而言，Accurate 网络的哈密顿量平均绝对误差更小，而 Normal 网络在能带、态密度和本征态上的误差略小。即使是拥有 7~8 百万个参数的庞大 Accurate 模型，也能在 48 小时内完成两个数据集上的训练，这极大地方便了超参数优化，并加快了研究进程。

石墨、碳化硅和碳同素异形体被选作体相体系的代表。石墨和碳同素异形体的训练数据由 OpenMX 计算得出，而碳化硅的训练数据由 SIESTA [45] 使用守恒范数（NC）赝势 [75] 和双ζ极化（DZP）基组 [76]计算得出。石墨具有类似于上文提到的 $MoS_2$ 的层状结构，是三维范德华材料的代表。此外，多种堆垛模式（例如 AA、AB、ABC）决定了不同的力学性质和电学电子结构，例如菱方石墨中的强关联效应 [86, 87]。该数据集通过对 AB堆垛石墨进行$3 \times 3 \times 6$ 胞扩展构建而成。随后加入原子位置的随机扰动，得到 300 种不同结构。碳化硅（SiC）是一种具有宽带隙和高热导的半导体，本文选作含缺陷材料的代表 [37]。为应对本征点缺陷对器件性能造成的挑战，我们生成了一个包含 500 种结构的数据集，用于模拟反位缺陷。每种结构均通过在一个 $2 \times 2 \times 2$ 超胞中随机替换碳原子和硅原子来生成。石墨和 SiC 数据集上的网络相对性能与此前在 $MoS_2$ 数据集上的观察结果一致：Normal 网络在时间开销方面表现更优，而 Accurate 网络的模型精度更高。请注意，SiC 系统的每原子内存开销大于 $MoS_2$ 数据集，因为

块体材料中的邻居数（~130 对于 SiC 数据集）大于二维材料中的邻居数（~60 对于单层 $MoS_2$）。最后一个数据集包含来自萨马拉碳同素异形体数据库的 427 种碳同素异形体 [88], , 它们均为稳定结构。该数据集以有限的数据点对广阔的构型空间进行稀疏采样，这给模型泛化带来了重大挑战。在这一复杂的案例研究中，`Accurate` 网络展现出优于其他网络的表达能力和泛化能力。`Accurate`网络的能带平均绝对误差低至 10 meV，态密度和本征态的相对误差分别约为 0.01 和 0.02。这些高精度结果有力地支持了基于预测哈密顿量开展后续性质计算（例如光学性质和响应性质）的可靠性。在石墨数据集上训练需要 60 小时才能完全收敛。不过，通过在学习率调度器中采用较小的耐心值，可大幅缩短耗时，同时精度下降不到 10%。对于 SiC 和碳同素异形体数据集，训练过程均在 48 小时内完成，完全可以接受。

得益于 e3nn_jax [70] 和 DeepH-pack 中经过优化的代码工程，与 DeepH-E3 架构相同的 Normal 网络优于 DeepH-E3，误差降低了 ~ 40% 至 ~ 70%，效率提高了 100% 至 800%。凭借先进的架构设计和更大的参数规模，Accurate 网络的误差进一步降低了 ~ 20% 至 ~ 40 %，在碳同素异形体数据集等通用数据集上的表现尤为突出。Accurate 模型专为大容量通用材料建模而设计，通过采用半局域坐标系，实现了比 Normal 模型更高的内存效率，从而支持更大规模的训练。

## 5. 应用示例

为展示 DeepH-pack 的实用价值和工作流程的多样性，我们介绍三个具有代表性的应用示例。这些示例展现了该框架在不同软件生态系统中的适应能力，以及其应对物理学和材料研究中各种计算挑战的能力，包括对大型系统进行可行的第一性原理计算、高精度表征低能物理、高效建模复杂的局部环境，以及建立可泛化的基础模型。

### *5.1.* 扭转双层 $MoTe_2$

扭转双层TMD已成为凝聚态物理和材料科学领域的重要研究方向 [89, 90, 91, 92]。通过精确调控层间扭转角，可以有效调控其电子结构，从而产生丰富多样的关联电子态和拓扑性质。其中，扭转双层$MoTe_2$ 因可能出现关联绝缘态、拓扑非平庸能带以及超导行为而备受关注，这些现象可能在

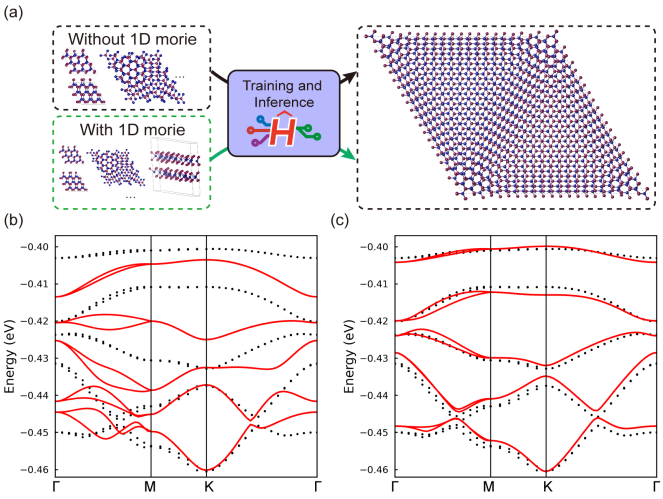


图 5：训练集组成对 DeepH 在大规模扭转双层 $MoTe_2$ 系统中预测准确性的影响。(a) 两种训练集生成策略的示意图。策略 I 包含层间位移双层结构和扭转双层结构。策略 II 则加入多种专门设计的准一维莫尔结构。(b) 使用策略 I 训练的 DeepH 模型（红色实线）预测的 1,986 原子扭转双层 $MoTe_2$ 能带结构，并与密度泛函理论参考结果（黑色虚线）进行比较。能带能量的平均绝对误差为 4.64 meV。(c) 使用策略 II 训练的模型预测的同一体系的能带结构（红色实线），与密度泛函理论参考结果（黑色虚线）吻合得更好。平均绝对误差降至 1.26 meV。

特定的“魔角”附近出现，使其成为探索二维强关联物理和拓扑量子现象的理想平台。然而，对这类系统进行完整的第一性原理计算极具挑战，因为随着扭转角减小，莫尔超晶格的尺寸会急剧增大。传统密度泛函理论（DFT）的计算成本随原子数呈立方增长，因此，系统地扫描不同角度在计算上难以承受。因此，开发既能保持第一性原理精度又具备高计算效率的方法尤为迫切。这为机器学习方法创造了重要的应用场景，尤其是DeepH 框架，它能够直接根据原子结构高效预测DFT哈密顿量。通过构建具有高度迁移性的哈密顿量模型，DeepH有望实现高通量计算，并快速筛选扭转角和堆垛顺序等多个自由度，从而系统揭示莫尔材料中的结构-性质关系。

利用 DeepH 对超胞结构的哈密顿量进行高精度预测，通常始于在一组较小尺度的构型上训练专用模型。由于 DeepH 直接预测原子对之间的哈密顿矩阵元，因此从较小体系中学习到的局域相互作用知识可以有效迁移到更大结构，从而以密度泛函理论精度快速实现电子结构预测。在构建专用模型时，训练结构的选择至关重要。其指导原则是：训练集中出现的成键环境应全面覆盖目标大型体系中的成键环境。为

展示 DeepH 从小尺度推广到大尺度的能力，我们选取一个经过弛豫的扭转双层 $MoTe_2$ 体系作为预测目标，该体系包含 1,986 个原子。此处忽略 SOC，以使参考密度泛函理论计算在计算成本上可行。为说明训练集设计对模型性能的显著影响，我们比较了两种不同的训练集生成策略（图 5(a)）。策略 I 建立了一个由 304 个双层 $MoTe_2$结构组成的基准数据集，并将其分为两类。第一类包含 256 个含有 54 个原子的超胞，这些超胞通过在均匀网格上系统采样面内层间平移生成。对于这些结构，层间距在 6.9 Å 至 7.9 Å 之间均匀采样，以捕捉弛豫扭转双层中固有的层间起伏；同时施加范围为 16 × 16 的随机原子位移 ±0。1 Å，以增强结构多样性。第二类针对扭转体系中出现的特定堆垛构型，包括 48 个源自弛豫扭转双层的结构，其晶胞大小分别为 42、114 和 222 个原子，自然覆盖了混合 AA 和 AB 堆垛区域。受文献 [93], 中提出的机器学习原子间势验证方案启发，策略 II 在策略 I 的基础上，额外加入了 64 个准一维莫尔结构，每个结构包含 93 个原子。这些结构通过相对于另一层对一层施加单轴应变构建而成。该构建方法能够在中等大小的超胞内形成丰富的莫尔干涉图样，使模型能够高效学习复杂的长程调制 efficiently。两种策略采用相同的模型架构和超参数：一个使用 8.0 Å 高斯展宽的嵌入层、中间表示“64×0e+48×1e +32×2e+32×3e+16×4e”，以及一个包含 4 层、每层具有 2 个注意力头的图神经网络，共产生 12,099,170 个可训练参数。所有模型均在单个 RTX 4090 GPU 上以 FP32 精度进行训练，批次大小为 1，采用 AdamW 优化器（初始学习率 =0.001, $\beta$ = （0.9，0.999））， 并使用耐心值为 60 个训练轮数的 ReduceLROnPlateau 调度器。对于策略 I，可用的 304 个结构被划分为 228 个训练结构、38 个验证结构和 38 个测试结构。训练在 1,111 个训练轮数后收敛（耗时 11.1 小时），最终在训练集、验证集和测试集上分别取得 0.091 meV、0.105 meV 和 0.085 meV 的平均绝对误差。相比之下，策略 II 使用了 368 个结构，分别划分为 276 个训练结构、46 个验证结构和 46 个测试结构。该模型在 1,148 个训练轮数后收敛（耗时 15.6 小时），最终平均绝对误差分别为 0.084 meV（训练集）、0.115 meV（验证集）和 0.120 meV（测试集）。

对于含有 1,986 个原子的扭转双层 $MoTe_2$, 策略 II 显著提升了模型相较于策略 I 的精度：哈密顿矩阵元的平均绝对误差从 0.42 meV 降至 0.29 meV。这一提升也体现在能带结构预测中。如图5 (b,c) 所示，策略 I 和策略 II 的能带平均绝对误差分别为 4.64 meV 和 1.26 meV，其中莫尔平带的精度提升尤为显著。图5(b) 中观察到的偏差在图5(c) 的增强数据集下得以消除，这证明 DeepH 模型具有很强的表达能力。这一对比表明，性能限制往往归因于

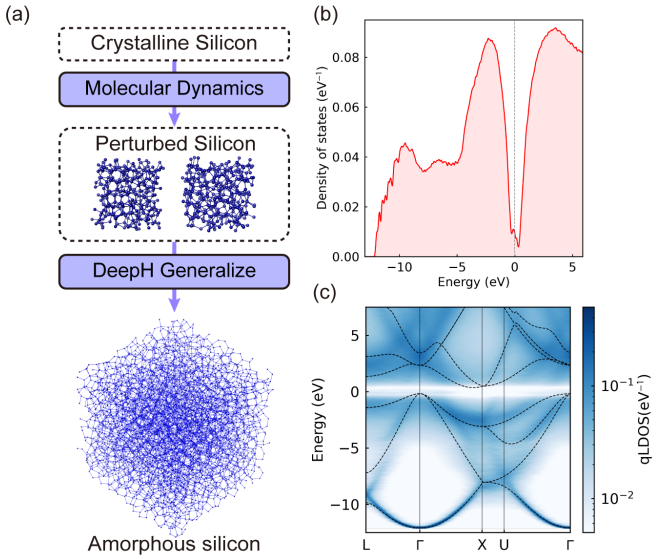


图 6：基于 DeepH 对大规模非晶硅（a-Si）的电子结构进行预测。(a) 生成训练数据的流程。通过使用 Stillinger-Weber 势进行熔融淬火分子动力学，生成了 256 个相互独立的非晶硅构型，每个构型包含 216 个原子。对应的密度泛函理论计算哈密顿量用作训练标签。(b) DeepH 对包含 4,096 个原子的非晶硅系统预测的态密度（DOS）。(c) 将包含 4,096 个原子的非晶硅系统的有效能带结构展开到面心立方晶体硅的布里渊区。图中以倒易空间局域态密度（qLDOS）的热图形式呈现，表示动量分辨谱权重。黑色虚线表示单晶硅的能带结构。

数据覆盖度，而非模型容量；因此，通过系统地将具有代表性的局部环境纳入训练集，是解决潜在精度瓶颈的可靠途径。

### *5.2.* 非晶硅

非晶硅（a-Si）是非晶半导体这一庞大家族的典型代表，在薄膜晶体管和太阳能电池中有着重要应用 [94,95]。与晶体硅不同，a-Si 不具备长程平移对称性，但保留了刚性的短程四面体网络。这种结构上的双重性给计算建模带来了独特挑战。密度泛函理论能够准确描述局域成键，但研究无序诱导现象需要包含数千个原子的大型超胞，才能获得具有统计意义的结果。对于标准密度泛函理论而言，这种规模通常难以计算，阻碍了对结构—性质关系的系统研究。然而，由于 a-Si 的电子结构主要由局域化学环境和短程共价相互作用决定，因此该材料是应用 DeepH 方法的理想候选体系。DeepH 能够从规模适中的训练样本中准确捕捉局域物理特性，提供兼具可扩展性与量子力学精度的解决方案，从而有效推动更广泛的非晶和无序材料实现高效电子结构计算。

为展示这一能力，我们建立了一套工作流程，用于模拟大规模 a-Si 体系的电子性质。为训练 DeepH 模型，我们首先通过熔融淬火分子动力学流程采样小型 a-Si 结构，以构建训练集。我们使用了 Stillinger-Weber 势 [96]，并在 LAMMPS 软件包中实现 [97]。模拟采用 NPT 系综，时间步长为 1 fs，并遵循四阶段方案：在 30 ps 内将系统从 300 K 加热至 2500 K，在 2500 K 下平衡 1 ns，在 2.2 ns 内冷却至 300 K，最后在 300 K 下平衡 150 ps。通过这一流程生成了 300 个独立的非晶硅构型，每个构型包含 216 个原子，以确保全面采样无序网络中多样的局域原子环境。对于训练数据，我们使用 Quantum ESPRESSO，采用 PBE 泛函和优化的守范 Vanderbilt 赝势（ONCVPSP），对这些结构进行了自洽 DFT 计算 [75]。平面波波函数截断能设为 60 Ry，k 点密度设为 $3 \times 3 \times 3$。随后，将所得哈密顿量从平面波基组投影到 SIESTA 的双 ζ极化（DZP）基组上。如图 6（a）所示，这些带标签的数据集用于训练 DeepH 模型。该网络基于 `Accurate`架构，并在该数据集上进行训练。300 个结构分为 240 个训练样本、30 个验证样本和 30 个测试样本。模型使用 FP32 精度，在四块 RTX 4090 GPU 上训练了 11.3 小时。主要超参数包括：嵌入高斯展宽为 7.0 Å，中间表示为“48x0e +48x1e+40x2e+16x3e+8x4e”，采用每层有 2 个注意力头的 4 层图神经网络，共计 6,073,554 个参数。批次大小设为 4（每批 4 种材料），使用 AdamW 优化器，初始学习率为 0.001，$\beta$ 参数 = 设为 (0.9, 0.999)，并使用 ReduceLROnPlateau 调度器，耐心值为 60 个训练轮数，缩减因子为 0.5。模型训练了 377 个训练轮数，最终训练平均绝对误差为 0.58 meV，验证平均绝对误差为 0.99 meV，哈密顿矩阵元的测试损失为 0.94 meV。

模型训练完成后，我们将其用于预测一个含有 4096 个原子、规模大得多的超胞的哈密顿量。该大规模结构取自参考文献 [98]。为验证预测的物理准确性，我们分析了这一大规模体系的谱性质。图 6(b) 展示了预测的态密度，图 6(c) 展示了利用 SIESTA [99, 45]和能带展开技术得到的有效能带结构。结果成功再现了非晶硅电子结构的特征，包括无序导致的能带展宽，从而证实了模型具有出色的迁移能力，并能弥合非晶材料模拟中的尺度鸿沟。我们的工作流程集成了一系列计算工具：使用 LAMMPS 生成结构，使用 Quantum ESPRESSO 生成训练集，使用 DeepH-pack 进行模型训练，并使用 SIESTA 进行后处理。这展现了 DeepH 框架在不同软件生态系统之间实现无缝互操作的灵活性。这项工作彰显了朝着构建更加统一、紧密协作的计算材料科学共同体迈出的一步。

### *5.3.* 通用材料模型

准确确定电子结构是从微观层面理解材料物理化学性质的基础。传统第一性原理方法虽能提供高精度结果，但其计算量会随体系规模急剧增长，往往导致计算成本高得难以承受，从而限制了其在高通量筛选和大规模模拟中的应用。前文介绍的应用体现了 DeepH 框架中的“专用模型”方法。这些模型针对特定材料体系量身定制，能够在固定的组成空间内，对由复杂结构变化引起的精细物理性质进行高精度研究。与这些聚焦特定体系的应用并行，通用电子结构材料模型则代表了另一种互补范式，着重于广泛的迁移能力。其目标是建立从原子构型到电子哈密顿量的通用映射，适用于任意元素组合。因此，单个训练完成的模型不仅能够快速预测多种材料的性质，还可作为稳健的预训练基础，经高效微调后用于下游任务。若其准确性和化学覆盖范围足够，这种模型有望从根本上改变计算材料科学的格局。它无需反复进行从头算，便能对广阔的化学空间开展高通量虚拟筛选，并为逆向材料设计以及复杂缺陷体系或界面体系的模拟提供高效工具。最终，这一方法将成为一种变革性的计算工具，加速新型材料的发现与设计。

DeepH算法全面支持电子结构通用材料模型的训练。为展示这一能力，我们构建了一个示例通用材料模型，适用于前四周期的元素，重点针对不含自旋轨道耦合的非磁性体系。训练数据来源于 Materials Project 数据库，我们从中选取了 9,510 个由前四周期元素组成的非磁性晶体结构。相应的密度泛函理论哈密顿量标签使用计算科学工作流管理器 Ai-iDA [100, 101] 与 OpenMX [47] 结合计算得到。有关数据集配置的详细信息，请参阅 DeepH 通用材料模型论文 [102]。该数据集在元素类型、化学计量比、晶体结构类型和成键特征方面具有高度多样性，确保模型能够充分学习不同化学环境下原子间相互作用与电子哈密顿量之间的复杂关系 [102]。

模型的核心架构专为统一处理不同元素类型和不同大小的原子体系而设计。其学习目标是根据输入的原子坐标和元素类型直接推断密度泛函理论哈密顿量，并据此推导出各种电子性质。该网络采用 Accurate 架构，并在该数据集上进行训练。9,510 个结构分为 5,692 个训练集样本、1,927 个验证集样本和 1,891 个测试集样本。模型采用 FP32 精度，在四块

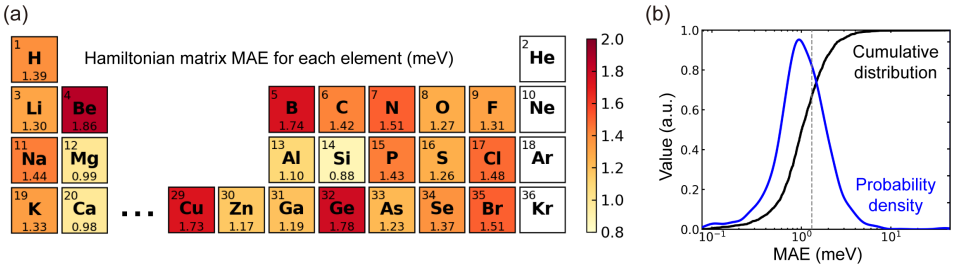


图7：电子结构通用材料模型的预测性能。(a) 测试集中各元素的哈密顿矩阵预测平均绝对误差（MAE）。(b) 整个测试集的预测误差分布，平均误差为 1.31 meV。

RTX 4090 GPU 上训练了 99.6 小时。主要超参数包括：嵌入层采用 9.0 Å 的高斯展宽，中间表示为“96x0e+96x1e+80x2e+40x3e+20x4e+8”，采用每层有 2 个注意力头的 6 层图神经网络，共有 47,761,367 个参数。批次大小设为 1（每批一个材料），使用 AdamW 优化器，初始学习率为 0.0004，$\beta$参数 = (0.9, 0.999)，并采用包含 10,000 个预热步数的 WarmupAnd-CosineDecay 调度器。模型训练了 151 轮，最终训练平均绝对误差为 0.59 meV，验证平均绝对误差为 1.27 meV，哈密顿矩阵元的测试损失为 1.31 meV。观察到的过拟合表明，模型仍有进一步改进的空间。通过在这个大规模、多样化的数据集上训练，模型并非只是记忆特定的材料实例，而是内化了连接原子序数、几何构型和量子力学算符的基本物理规律，从而获得了对先前未见过的材料结构进行泛化并预测其性质的能力。

为验证所构建的通用材料模型的有效性并展示其强大潜力，我们将其用于预测一系列结构各异、未曾见过的材料体系。该通用材料模型成功预测了跨越元素周期表前四个周期、具有各种形貌的材料的 DFT 哈密顿量。如图7（a）所示，对于测试集中的所有元素，该模型的预测精度均优于 2 meV。图7（b）表明，测试集的平均预测误差低至 1.31 meV。预测结果与第一性原理基准计算高度吻合，证实该模型已成功捕捉不同材料电子结构的普适规律。本研究表明，基于深度学习的电子结构通用材料模型已具备实用价值。该模型无需针对结构重新训练，即可推广至广泛的材料体系，为构建新一代材料科学智能计算平台奠定了坚实基础，并朝着实现高效、准确、全面的材料设计与发现这一最终目标迈出了关键一步。高效、准确、全面的材料设计与发现。

## 6. 结论

本研究介绍了 DeepH-pack，这是一套统一的软件工具包，可将第一性原理 DFT 与深度学习相结合，从而实现准确、高效且具有良好泛化能力的电子结构计算。通过将局域性和等变性等基本物理原理融入神经网络架构，DeepH-pack 在实现从头算精度的同时，将计算速度提升了数个数量级。该工具包为主流 DFT 代码提供标准化接口，支持灵活指定哈密顿量及相关物理量的数据格式，并提供模型训练和性质预测的端到端工作流。因此，它为大规模材料模拟和人工智能驱动的发现奠定了坚实的计算基础。

DeepH-pack 的开发建立在深度学习电子结构领域一系列方法学进展的基础之上。从 DeepH 框架开始，该框架利用密度泛函理论数据学习哈密顿矩阵，以预测材料性质[9]，DeepH 团队沿着两个相互关联的方向系统地推进了这一方法：提高智能化程度和增强通用性。我们通过等变神经网络引入了考虑对称性的变体 DeepH-E3 [24] 和 xDeepH [25]，开发了基于 Transformer 的 DeepH-2，以增强迁移能力 [40]，，并构建了通用 DeepH 材料模型 [102]。近期的 DeepH-Zero 方法进一步证明，通过直接编码物理约束 [41]，无需训练数据即可实现哈密顿量优化。与此同时，该框架已扩展至支持密度泛函微扰理论计算 [39]，、杂化泛函预测 [38]，、平面波程序接口 [67],和密度矩阵学习 [19]，；此外，还在莫尔扭转材料 [103]，中得到了广泛应用，显著拓宽了其适用范围并增强了物理完备性。更广泛的 DeepH 社群也通过推动该方法应用于非绝热动力学 [31]，、莫尔异质结构 [32]，、复杂纳米管结构 [33]，和缺陷体系 [34]，，并新增与其他密度泛函理论程序的接口 [35]，进一步拓展了其应用范围。

展望未来，DeepH 有望发展成为一个日益智能且通用的第一性原理电子结构模拟平台。作为核心实现，DeepH-pack 将持续改进，以更好地服务学界，并重点提升易用性、互操作性和计算可扩展性。这一持续开发旨在赋能

研究人员，助力他们无缝迈入人工智能驱动的计算物理时代。DeepH-pack 致力于让高精度电子结构建模兼具高效性、通用性和易用性，从根本上重塑材料研究生态系统，加速不同尺度功能材料的发现与设计。

**致谢**

Yang Li、Boheng Zhao、Xiaoxun Gong、Yuxiang Wang、Zechen Tang、Zixu Wang、Zilong Yuan、Jialin Li、Minghui Sun、Zezhou Chen、Honggeng Tao、Baochun Wu、He Li、Wenhui Duan 和 Yong Xu 获得了国家自然科学基金委员会基础科学中心项目（批准号：52388201）、国家重点基础研究发展计划（批准号：2024YFA1409100 和 2023YFA1406400）、国家自然科学基金委员会（批准号：12334003、12421004 和 12361141826）、中国教育部基础学科与交叉学科突破计划（批准号：JYB2025XDXM408）、上海科技大学 AI4S 计划 SHTAI4S202504、国家杰出青年科学基金（批准号：12025405）、中国博士后科学基金会（批准号：2025M773367）以及国家自然科学基金博士生基础研究项目（批准号：124B2072）的资助。Yanzhen Wang 和 Felipe H. da Jornada 感谢美国国家科学基金会（NSF）通过 DMR-2238328 号 CAREER 奖提供的支持。

**参考文献**

[1] P. Hohenberg, W. Kohn, 《非均匀电子气》, 《物理评论》136 (1964) B864。[2] W. Kohn, L. J.Sham, 《包含交换与关联效应的自洽方程》, 《物理评论》140 (1965) A1133。[3] R. M. Martin, 《电子结构：基础理论与实用方法》, 剑桥大学出版社, 2020年。[4] A. Merchant, S. Batzner, S. S. Schoenholz, M. Aykol, G. Cheon, E. D. Cubuk, 《面向材料发现的深度学习扩展》, 《自然》624 (2023年) 80。[5] C. Zeni, R. Pinsler, D. Zügner, A. Fowler, M. Horton, X. Fu, Z. Wang, A. Shysheya, J. Crabbé, S. Ueda, 等, 《无机材料设计的生成模型》, 《自然》639 (2025) 624。[6] N. J. Szymanski, B. Rendy, Y. Fei, R. E. Kumar, T. He, D. Milsted, M. J. McDermott, M. Gallant, E. D. Cubuk, A. Merchant, 等, 《用于加速新型材料合成的自主实验室》, 《自然》624 (2023年) 86。[7] O. T. Unke, S. Chmiela, H. E. Sauceda, M. Gastegger, I. Poltavsky, K. T. Schutt, A. Tkatchenko, K.-R. Muller, 《机器学习力场》, 《化学评论》121 (2021) 10142。

[8]K. T. Schütt, M. Gastegger, A. Tkatchenko, K.-R. Müller, R. J. Maurer, 利用深度神经网络统一机器学习与量子化学以处理分子波函数, Nature Communications 10 (2019年) 5024。[9]H. Li, Z. Wang, N. Zou, M. Ye, R. Xu, X. Gong, W. Duan, Y. Xu, 面向高效从头算电子结构计算的深度学习密度泛函理论哈密顿量, Nature Computational Science 2 (2022) 367。[10] T. Xie, J. C. Grossman, 用于准确且可解释地预测材料性质的晶体图卷积神经网络, Phys. Rev. Lett. 120 (2018) 145301。[11]K. T. Schütt, H. E. Sauceda, P.-J. Kindermans, A. Tkatchenko, K.-R. Müller, Schnet——面向分子和材料的深度学习架构, 《化学物理杂志》148 (2018)。[12] L. Zhang, J. Han, H. Wang, R. Car, W. E, 深度势能分子动力学：兼具可扩展性与量子力学精度的模型, Phys. Rev. Lett. 120 (2018) 143001。[13]O. Unke, M. Bogojeski, M. Gastegger, M. Geiger, T. Smidt, K.-R. Müller, 分子波函数和电子密度的 SE (3) 等变预测, 《神经信息处理系统进展》34 (2021) 14434。[14] Z. Tang, H. Chen, Y. Li, Y. Qian, Y. Wang, W. Fu, J. Li, C. Si, W. Duan, J. Chen 等, 深度学习电子结构计算, Nature Computational Science 5 (2025年) 1133–1146。[15] Y. Li, X. Zhang, L. Shen, 机器学习原子间势和哈密顿量的批判性综述, npj Computational Materials 5 (4) (2025年) 43。[16]A. Grisafi, A. Fabrizio, B. Meyer, D. M. Wilkins, C. Corminboeuf, M. Ceriotti, 可迁移的电子密度机器学习模型, ACS Central Science 5 (2018) 57。[17] T. Koker, K. Quigley, E. Taw, K. Tibbetts, L. Li, 用于材料电荷密度预测的高阶等变神经网络, npj Computational Materials 10 (2024年) 161。[18] X. Shao, L. Paetow, M. E. Tuckerman, M. Pavanello, 基于单电子约化密度矩阵的机器学习电子结构方法, Nature Communications 14 (2023年) 6281。[19] Z. Tang, N. Zou, H. Li, Y. Wang, Z. Yuan, H. Tao, Y. Li, Z. Chen, B. Zhao, M. Sun 等, 通过深度学习改进密度矩阵电子结构方法, arXiv 预印本 arXiv:2406.17561 (2024年)。

[20]D. Pfau, J. S. Spencer, A. G. Matthews, W. M. C. Foulkes，利用深度神经网络从头求解多电子薛定谔方程，《物理评论研究》2 (2020年) 033429。

[21] J. Hermann、Z. Schätzle、F. Noé，电子薛定谔方程的深度神经网络求解，《Nature Chemistry》12（2020年）891。

[22] M. Nuñez，利用无监督机器学习探索材料能带结构空间，Computational Materials Science 158（2019年）117。

[23] B. Holst、M. French、R. Redmer，利用从头算模拟获得电子输运系数及其在致密液态氢中的应用，《物理评论B》83（2011年）235120。

[24] X. Gong、H. Li、N. Zou、R. Xu、W. Duan、Y. Xu，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，Nature Communications 14（2023年）2848。[25] H. Li、Z. Tang、X. Gong、N. Zou、W. Duan、Y. Xu，磁性超结构的深度学习电子结构计算，Nature Computational Science 3（2023年）321。[26] H. Yu、Z. Xu、X. Qian、X. Qian、S. Ji，用于预测量子哈密顿量的高效等变图网络，载于：国际机器学习会议，PMLR，2023年，第40412页。[27] M. Su、J.-H. Yang、H.-J. Xiang、X.-G. Gong，利用具有完备局部坐标的图神经网络高效确定哈密顿量和电子性质，Machine Learning: Science and Technology 4（2023年）035010。[28] Y. Zhong、H. Yu、M. Su、X. Gong、H. Xiang，用于分子和固体哈密顿量的可迁移等变图神经网络，npj Computational Materials 9（2023年）182。[29] Z. Liang、Y. Wang、C. Ding、J. Wang、H.-T. Wang、D. Xing、J. Sun，Hot-Ham：一种准确高效的 E（3）等变机器学习电子结构计算框架，中国物理快报（2025年）。[30] S. Yin、X. Pan、X. Zhu、T. Gao、H. Zhang、F. Wu、L. He，迈向SO(3)等变性与表达能力的协调：用于电子结构哈密顿量预测的混合深度学习框架，Machine Learning: Science and Technology 5（4）（2024年）045038。[31] D. Liu、B. Wang、Y. Wu、A. S. Vasenko、O. V. Prezhdo，通过局部描述符机器学习突破凝聚态物质系统中非绝热分子动力学的尺寸限制，美国国家科学院院刊121（36）（2024年）e2403497121。[32] S. Yang、J. Chen、C.-F. Liu、M. Chen，$MoSe_2$/$WSe_2$莫尔晶格中平带的演化：结合机器学习与能带展开方法的研究，《物理评论B》110（23）（2024年）235410。

[33] J. Huang, S. Zhao, J. Gao, R. Xiang, W. Li, 《深度学习揭示的 MoS2 纳米管手性依赖电子结构图谱》，ACS Nano (2025).[34] X. Zhu, P. Rinke, D. A. Egger, 《利用等变神经网络预测半导体缺陷的热行为》，arXiv:2511.18398 (2025).[35] Y. Ke, X. Qin, W. Hu, J. Yang, 《结合 DeepH 与 honpas，实现对一万个原子的准确、高效杂化泛函电子结构计算》，Digit. Discov. 4 (9) (2025) 2627–2638.[36] Z. Yuan, Z. Xu, H. Li, X. Cheng, H. Tao, Z. Tang, Z. Zhou, W. Duan, Y. Xu, 《用于磁性材料的等变神经网络力场》，Quantum Front. 3 (2024) 8.[37] Z. Yuan, Z. Tang, H. Tao, X. Gong, Z. Chen, Y. Wang, H. Li, Y. Li, Z. Xu, M. Sun, 等, 《实空间中的深度学习密度泛函理论哈密顿量》，arXiv 预印本 arXiv:2407.14379 (2024).[38] Z. Tang, H. Li, P. Lin, X. Gong, G. Jin, L. He, H. Jiang, X. Ren, W. Duan, Y. Xu, 《利用深度学习进行高效杂化密度泛函计算》，arXiv 预印本 arXiv:2302.08221 (2023).[39] H. Li, Z. Tang, J. Fu, W.-H. Dong, N. Zou, X. Gong, W. Duan, Y. Xu, 《深度学习密度泛函微扰理论》，Phys. Rev. Lett. 132 (2024) 096401.[40]Y. Wang, H. Li, Z. Tang, H. Tao, Y. Wang, Z. Yuan, Z. Chen, W. Duan, Y. Xu, 《DeepH-2：通过等变局部坐标变换器增强深度学习电子结构计算》，arXiv 预印本 arXiv:2401.17015 (2024).[41] Y. Li, Z. Tang, Z. Chen, M. Sun, B. Zhao, H. Li, H. Tao, Z. Yuan, W. Duan, Y. Xu, 《基于变分能量最小化的神经网络密度泛函理论》，Phys. Rev. Lett. 133 (2024) 076401.[42]V. Blum, R. Gehrke, F. Hanke, P. Havu, V. Havu, X. Ren, K. Reuter, M. Scheffler, 《利用数值原子中心轨道进行从头算分子模拟》，Comput. Phys. Commun. 180 (2009) 2175.[43] J. W. Abbott, C. M. Acosta, A. Akkoush, A. Ambrosetti, V. Atalla, A. Bagrets, J. Behler, D. Berger, B. Bieniek, J. Björk, 等, 《FHI-aims 软件包进展路线图》，arXiv 预印本 arXiv:2505.00125 (2025).[44] P. Giannozzi, S. Baroni, N. Bonini, M. Calandra, R. Car, C. Cavazzoni, D. Ceresoli, G. L. Chiarotti, M. Cococcioni, I. Dabo, 等, 《QUANTUM ESPRESSO：用于材料量子模拟的模块化开源软件项目》，《凝聚态物理杂志》21 (2009) 395502.

[45] J. M. Soler, E. Artacho, J. D. Gale, A. García, J. Junquera, P. Ordejón, D. Sánchez-Portal, 《SIESTA 方法：用于从头算 O(N) 材料模拟》，《凝聚态物理杂志》14 (2002) 2745.

[46] W. Zhou, D. Zheng, Q. Liu, D. Lu, Y. Liu, P. Lin, Y. Huang, X. Peng, J. J. Bao, C. Cai 等，ABACUS：面向人工智能时代的电子结构分析软件包，J.Chem.Phys.163 (2025)。

[47] T. Ozaki，适用于大规模电子结构的变分优化原子轨道，《物理评论B》67(2003) 155108。

[48] T. Scheidemantel, C. Ambrosch-Draxl, T. Thonhauser, J. Badding, J. O. Sofo，基于第一性原理计算输运系数，《物理评论B》68(2003)125210。

[49]M. Gajdoš, K. Hummer, G. Kresse, J. Furthmüller, F. Bechstedt，投影缀加波方法中的线性光学性质，《物理评论B》73 (2006) 045112。

[50] M. Rohlfing, S. G. Louie，基于第一性原理的电子-空穴激发与光学谱，《物理评论B》62（2000）4927。

[51] C. Wang, S. Zhao, X. Guo, X. Ren, B.-L. Gu, Y. Xu, W. Duan，基于非正交局域轨道的光学响应第一性原理计算，New J. Phys. 21（2019年）093001。

[52] E. Prodan, W. Kohn，电子物质的近视性，美国国家科学院院刊102（2005）11635。

[53] E. Wigner，《群论及其在原子光谱量子力学中的应用》，第5卷，Elsevier，2012年。

[54]S. Batzner, A. Musaelian, L. Sun, M. Geiger, J. P. Mailoa, M. Kornbluth, N. Molinari, T. E. Smidt, B. Kozinsky，用于数据高效且准确的原子间势的 E(3) 等变图神经网络，Nature Communications 13（2022）2453。

[55] S. Passaro, C. L. Zitnick，将 SO(3)卷积简化为 SO(2)，用于高效等变图神经网络，载于：国际机器学习会议，PMLR，2023年，第 27420 页。

[56] J. Bradbury, R. Frostig, P. Hawkins, M. J. Jo hnson, C. Leary, D. Maclaurin, G. Necula, A. Paszke, J. Van- derPlas, S. Wanderman-Milne 等，JAX：Python+NumPy 程序的可组合变换（2018）。[57] Y. Li、Y. Wang、B. Zhao、W. Duan、Y. Xu，DeepH-dock 仓库，https://github.com/kYangLi/DeepH-dock （2026）。

[58] A. Jain、S. P. Ong、G. Hautier、W. Chen、W. D. Richards、S. Dacek、S. Cholia、D. Gunter、D. Skinner、G. Ceder 等，评论：材料项目：以材料基因组方法加速材料创新，APL Mater. 1（2013年）。

[59] D. Zagorac、H. Müller、S. Ruehl、J. Zagorac、S. Rehme，无机晶体结构数据库的最新进展：理论晶体结构数据及相关特征，J. Appl. Crystallogr. 52（2019年）918。[60] S. Curtarolo、W. Setyawan、G. L. Hart、M. Jahnatek、R. V.Chepulskii、R. H.Taylor、S. Wang、J. Xue、K. Yang、O. Levy 等，AFLOW：用于高通量材料发现的自动化框架，Computational Materials Science 58（2012）218。

[61]J. Schmidt, N. Hoffmann, H.-C. Wang, P. Borlido, P. J. Carriço, T. F. Cerqueira, S. Botti, M. A. Mar- ques，机器学习辅助确定材料的全局零温相图，《先进材料》35（2023年）2210788。

[62] Y. Wang, J. Lv, L. Zhu, Y. Ma，通过粒子群优化预测晶体结构，《物理评论 B》82（2010年）094116。

[63] C. J. Pickard, R. Needs，从头算随机结构搜索，《凝聚态物理杂志》23（2011年）053201。

[64] G.Kresse、J. Furthmüller，《利用平面波基组对金属和半导体进行从头算总能量计算的效率》，Computational Materials Science 6（1996年）15。

[65] H. Yang、C. Hu、Y. Zhou、X. Liu、Y. Shi、J. Li、G. Li、Z. Chen、S. Chen 等，《Mattersim：一种适用于不同元素、温度和压力的深度学习原子模型》，arXiv 预印本 arXiv:2405.04967（2024年）。

[66] B. Deng、P. Zhong、K. Jun、J. Riebesell、K. Han、C. J. Bartel、G.Ceder，《Chgnet：一种用于电荷信息驱动原子建模的预训练通用神经网络势》，《自然·机器智能》5（2023年）1031。

[67] X. Gong, S. G. Louie, W. Duan, Y. Xu，将深度学习电子结构计算推广至平面波基组，《自然·计算科学》4 (2024年) 752。

[68] O. F. Sankey, D. J. Niklewski，用于分子动力学模拟及共价体系中其他应用的从头算多中心紧束缚模型，《物理评论B》40 (1989) 3979。

[69]Y. Li, Y. Wang, B. Zhao, W. Duan, Y. Xu, DeepH-pack 文档，https://github.com/kYangLi/DeepH-pack-docs (2026年)。

[70] M. Geiger, T. Smidt，e3nn：欧几里得神经网络，arXiv 预印本 arXiv:2207.09453 (2022)。

[71] M. S. Hybertsen, S. G. Louie，半导体和绝缘体中的电子关联：带隙与准粒子能量，《物理评论B》34 (1986) 5390。

[72] L. Lin、A. García、G. Huhs、C. Yang，《SIESTA-PEXSI：一种无需矩阵对角化、用于高效且准确的从头算材料模拟的大规模并行方法》，《凝聚态物理杂志》26（2014）305503。

[73] P. V. Stishenko、T. W. Keal、S. M. Woodley、V. Blum、B. Hourahine、R. J. Maurer、A. J. Logsdail, 《原子模拟接口（ASI）：电子结构代码的应用程序编程接口》，《开放源代码软件期刊》8（2023年）5186。

[74] S. Chmiela、A. Tkatchenko、H. E. Sauceda、I. Poltavsky、K. T. Schütt、K.-R. Müller，机器学习能量守恒分子力场，《科学进展》3（2017年）e1603015。

[75]D. Hamann，优化范数守恒 Vanderbilt 赝势，《物理评论B》88（2013年）085117。

[76] J. Junquera、O. Paz、D. Sánchez-Portal、E. Artacho, 用于线性标度计算的数值原子轨道，《物理评论B》64（23）（2001年）235111。

[77] J. P. Perdew、K. Burke、M. Ernzerhof，简明的广义梯度近似，《物理评论快报》77（1996年）3865。

[78] K. S. Novoselov, A. Mishchenko, A. Carvalho, A. Cas- tro Neto，《二维材料与范德华异质结构》，《科学》353（2016年）aac9439。

[79] Y. Liu, N. O. Weiss, X. Duan, H.-C. Cheng, Y. Huang, X. Duan，《范德华异质结构与器件》，Nat. Rev. Mater. 1（2016年）1。

[80] I. Morrison，D. Bylander，L. Kleinman，《非局域厄米范德比尔特型守范赝势》，《物理评论B》47（1993年）6728。

[81] T. Ozaki, H. Kino，《从氢到氪的数值原子基组轨道》，《物理评论B》69（2004）195113。

[82] D. Xiao, G.-B. Liu, W. Feng, X. Xu, W. Yao，《$MoS_2$及其他第六族二硫属化物单层材料中的自旋与谷耦合物理学》，Phys. Rev. Lett. 108（2012）196802。

[83] M. M. Ugeda、A. J. Bradley、S.-F. Shi、F. H. Da Jornada、Y. Zhang、D.Y. Qiu、W. Ruan、S.-K. Mo、Z. Hussain、Z.- X. Shen 等，《单层过渡金属二硫族化物半导体中的巨大带隙重整化和激子效应》，《自然·材料》13（2014）1091。

[84] Y. Liu、X. Duan、H.-J. Shin、S. Park、Y. Huang、X.Duan，《二维晶体管的前景与潜力》，《自然》591（2021）43。

[85] H. Zhang、C.-X. Liu、X.-L. Qi、X. Dai、Z. Fang、S.-C. Zhang，《Bi2Se3、Bi2Te3 和 Sb2Te3 中表面具有单个狄拉克锥的拓扑绝缘体》，《自然·物理》5（2009）438。

[86] I. Hagymási、M. S. Mohd Isa、Z. Tajkov、K. Márity、L. Oroszlány、J. Koltai、A. Alassaf、P. Kun、K. Kandrai、A. Pálinkás 等，《菱方石墨平带中竞争性关联基态的观测》，Sci.Adv. 8 (2022) eabo6879。

[87] T. Han、Z. Lu、G. Scuri、J. Sung、J. Wang、T. Han、K. Watanabe、T. Taniguchi、H. Park、L. Ju，《五层菱方堆垛石墨烯中的关联绝缘体和陈绝缘体》，Nat. Nanotechnol. 19 (2024年) 181。

[88] R. Hoffmann, A. A. Kabanov, A. A. Golov, D. M. Pros-erpio，《Homo citans and carbon allotropes: for an ethics of citation》，Angew. Chem. Int. Ed. 55（2016年）10962。

[89] C. Jin, E. C. Regan, A. Yan, M. Iqbal Bakti Utama, D. Wang, S. Zhao, Y. Qin, S. Yang, Z. Zheng, 等，《在 WSe2/WS2 异质结构超晶格中观测到莫尔激子》，《自然》567（2019年）76。

[90] L. Wang, E.-M. Shih, A. Ghiotto, L. Xian, D. A. Rhodes, C. Tan, M. Claassen, D. M. Kennes, Y. Bai, B. Kim, 等，《扭转双层过渡金属二硫属化物中的关联电子相》，《自然·材料》19（2020年）861。

[91] A. Ghiotto、E.-M. Shih、G. S. Pereira、D. A. Rhodes、B. Kim、J. Zang、A. J.Millis、K. Watanabe、T. Taniguchi、J. C. Hone 等，扭曲过渡金属二硫族化物中的量子临界性，《自然》597（2021）345。

[92] H. Park、J. Cai、E. Anderson、Y. Zhang、J. Zhu、X. Liu、C. Wang、W. Holtzmann、C. Hu、Z. Liu 等，分数量子化反常霍尔效应的观测，《自然》622（2023年）74。

[93] J. D. Georgaras、A. Ramdas、C. H. Shan、E. Halsted、T. Li、F. H. da Jornada 等，适用于层状材料的准确、可迁移且可验证的机器学习原子间势，arXiv 预印本 arXiv:2503.15432（2025年）。

[94]M. Stuckelberger, R. Biron, N. Wyrsch, F.-J. Haug, C. Ballif，《氢化非晶硅太阳能电池的进展》，Renew. Sust.Energ. Rev. 76 (2017年) 1497。

[95] M. J. Mirshojaeian Hosseini，R. A. Nawrocki，柔性电子薄膜晶体管及其技术进展综述，《微机器》12（2021）655。[96]R. L. Vink，G. T. Barkema，W. Van der Weg，N. Mousseau，将 Stillinger–Weber 势拟合于非晶硅，《非晶态固体杂志》282（2001）248。[97] A. P. Thompson，H. M. Aktulga，R. Berger，D. S. Bolintineanu，W. M. Brown，P. S. Crozier，P. J. In't Veld，A. Kohlmeyer，S. G. Moore，T. D. Nguyen 等，LAMMPS——一种用于原子、介观和连续尺度上基于粒子的材料建模的灵活模拟工具，Comput. Phys. Commun. 271（2022）108171。[98] K. Zongo，H. Sun，C. Ouellet-Plamondon，N. Mousseau，L. K. Béland，利用矩张量势和激活弛豫技术 nouveau 生成的非晶硅结构，《物理评论B》111（2025）214209。

[99] S. G. Mayo，F. Yndurain，J. M. Soler，简化能带展开，《凝聚态物理杂志》32（2020）205902。[100] S. P. Huber，S. Zoupanos，M. Uhrin，L. Talirz，L. Kahle，R. Häuselmann，D. Gresch，T. Müller，A. V. Yakutovich，C. W. Andersen 等，AiiDA 1.0：一种可扩展的计算基础设施，用于自动化、可复现的工作流和数据溯源，《科学数据》7（2020）300。[101] M. Uhrin，S. P. Huber，J. Yu，N. Marzari，G. Pizzi，AiiDA 中的工作流：为稳健且模块化的计算工作流构建一种高通量、事件驱动引擎，Computational Materials Science 187（2021）110086。[102] Y. Wang，Y. Li，Z. Tang，H. Li，Z. Yuan，H. Tao，N. Zou，T. Bao，X. Liang，Z. Chen 等，深度学习密度泛函理论哈密顿量的通用材料模型，《科学通报》69（2024）2514。[103] T. Bao，R. Xu，H. Li，X. Gong，Z. Tang，J. Fu，W. Duan，Y. Xu，扭曲材料密度泛函理论哈密顿量的深度学习数据库，arXiv:2404.06449（2024）。