利用有限一维模型系统的热力学极限分析系综密度泛函理论中的带隙

Gregory G. V. Kenning，[1] Remi J. Leano，[2] 和 David A. Strubbe[3]1)机械工程与材料科学系，匹兹堡大学，美国宾夕法尼亚州匹兹堡第五大道 *4200* 号，邮编 *15260*2)化学与生物化学系，加利福尼亚大学默塞德分校，美国加利福尼亚州默塞德市北湖路 *5200* 号，邮编 *95343*3)物理系，加利福尼亚大学默塞德分校，美国加利福尼亚州默塞德市北湖路 *5200* 号，邮编 *95343*（*电子邮箱: dstrubbe@ucmerced.edu）（日期：2026 年 2 月 10 日）

arXiv:2602.07317v1 [cond-mat.mtrl-sci] 7 Feb 2026

系综密度泛函理论（EDFT）是密度泛函理论（DFT）的一种很有前景的扩展，可用于计算激发态。尽管科恩-沈本征值差会低估能隙，但研究表明，EDFT 能为原子、分子和孤立模型系统提供更准确的激发能。然而，EDFT 是否能够计算周期性体系的带隙，以及描述周期性体系的恰当理论形式是什么，目前尚不明确。我们通过对一维 Kronig-Penney（KP）周期模型不断增宽的有限版本进行计算，以估算热力学极限，探究了如何利用 EDFT 计算带隙。与我们先前的工作 [R. J. Leano等，《电子结构》**6**，035003（2024）]一样，我们使用 Octopus——一种从头算、开源的实空间密度泛函理论代码。在先前的工作中，我们借助“盒子中的粒子”模型发现，EDFT 能够为均匀电子气提供合理的有效质量修正。本研究则采用具有带隙的周期性参考体系。我们发现，对于三种有限系统截断方式，其科恩-沈能隙均趋近于相同的周期极限；不过，在每种情况下，都必须仔细辨识对应于价带顶和导带底的态。最后，我们采用简单的系综化局域密度近似进行的 EDFT 计算结果表明，在周期极限下，带隙修正合理且非零。这些结果表明，EDFT 在周期性体系中具有应用前景，可为进一步开发合适的理论形式提供动力。

I. 引言

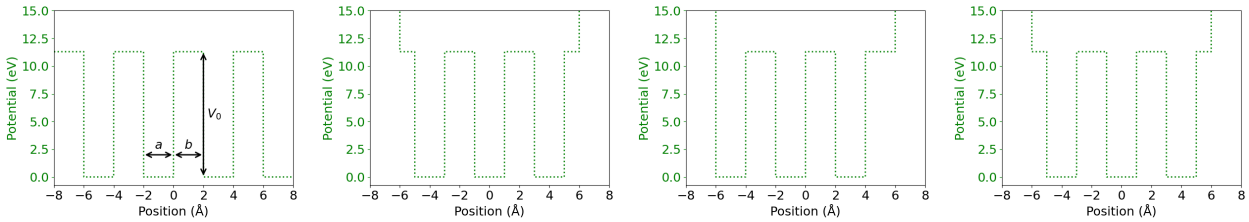
尽管基态密度泛函理论在预测各种电子结构性质方面极为有用，但其主要问题之一是低估光学带隙，[1] 即将其计算为最高占据和最低未占据 Kohn-Sham 能态之差。目前，密度泛函理论框架中有多种可用于改进带隙预测的方法，包括 Δ自洽场、杂化泛函和含时密度泛函理论。[2–4] 量子化学以及 GW/Bethe-Salpeter 方程方法也可用于此目的。目前，含时密度泛函理论是基于密度泛函理论计算激发能的主要方法。然而，含时密度泛函理论难以处理双重/多重激发和周期性体系。[5] 本文研究系综密度泛函理论，评估其计算半导体等周期性体系激发能的能力。我们采用与先前工作相同的策略，[6], 通过研究尺寸逐渐增大的有限系统来逼近周期极限。此前，我们分析了宽度逐渐增加的有限一维“盒中粒子”系统；在周期极限下，这些系统趋近于均匀电子气。我们发现，带隙修正（以及带隙）趋近于零，并根据有限带隙对应的修正推断出合理的有效质量。这些结果表明，系综密度泛函理论有望应用于金属系统。在本研究中，我们改用具有非零带隙的模型周期性系统，从而研究周期极限下带隙本身如何得到修正，并将结果与半导体和绝缘体联系起来。

克罗尼格-彭尼模型[7] 是一种周期性一维模型，其周期性有限矩形势垒在矩形势阱之间均匀间隔排列，如图 1 所示；它也是具有带隙的最简单模型之一。（有时也会研究含有狄拉克 δ 势垒的版本。）利用系综密度泛函理论处理克罗尼格-彭尼模型的带隙若能取得成功，将表明系综密度泛函理论有望应用于真实半导体。关于有限克罗尼格-彭尼模型的既有文献讨论了势能高度和势垒宽度等可变属性、[8] 有限克罗尼格-彭尼模型与激光的相互作用、[9] 拓扑态、[10] 由表面存在不同势所诱导的表面态，[11] 以及有限克罗尼格-彭尼势垒之间的隧穿。[12] 然而，文献中尚未探讨这些系统趋近无限极限的过程，以及含有相互作用电子的系统的电子结构。

II. 理论

A. 克罗尼格-彭尼模型

图 1：克罗尼格–彭尼模型的势能：周期情形，以及三种相对于区域边缘采用不同居中方式的有限变体。



(a) 周期性　(b) 势阱居中型　(c) 边缘居中型　（d）势垒居中型

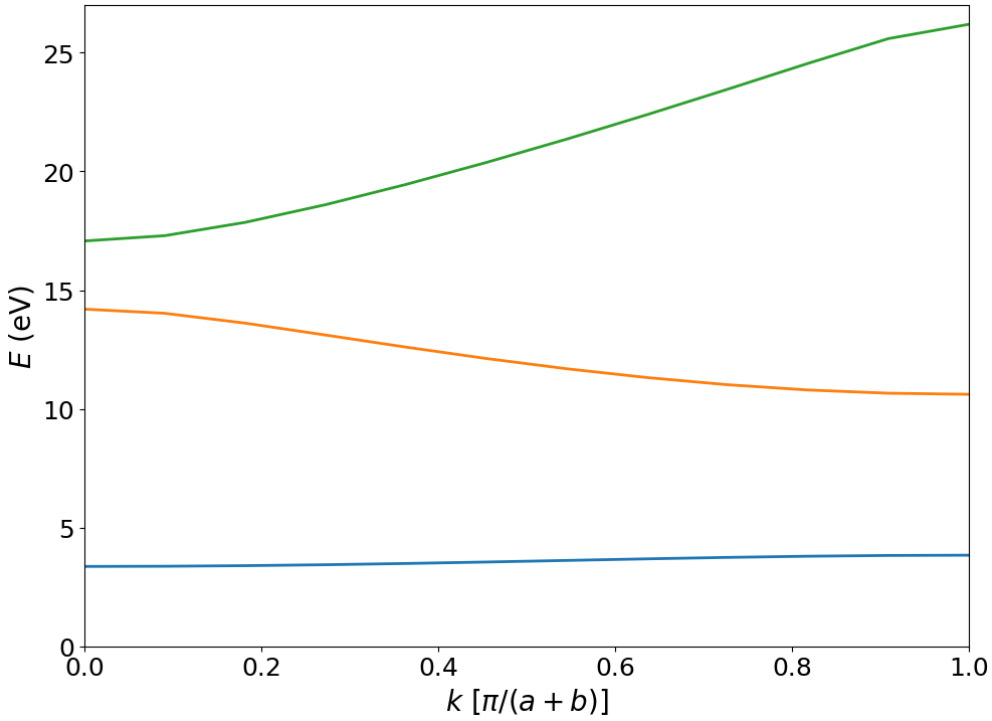


图 2：势垒宽度和阱宽分别为$a = b = 2.0$ Å、势垒高度为$V_0 = 11.3$ 电子伏特的克罗尼格-彭尼模型的能带结构。该模型前两个能带的带宽分别为 0.474 电子伏特和 3.589。

我们定义一个 K 势阱宽度和势垒宽度均为 2.0 Å 的 P 模型 ,

以及势垒高度为 11.3 电子伏特（图 1）。这会产生一个约为 6.78 电子伏特的带隙，处于宽带隙半导体或绝缘体的范围内。该模型的能带结构如图 2 所示。

我们通过选取一定数量的晶胞来构建有限版本的 KP 模型，并将其置于有限区域内，对波函数施加零边界条件；也可以将其理解为区域外的势趋于无穷大。我们考虑有限 KP 系统的三种形式：（1）以某个势阱的中心为中心（“势阱居中型系统”），因此系统在势垒中间终止；（2）以势阱与势垒之间的势不连续处为中心（“边缘中心系统”），因此系统一侧以势阱终止，另一侧以势垒终止；（3）以某个势垒的中心为中心（“势垒居中型系统”），因此系统在势阱中间终止。这些“居中方式”如图 1 所示。

B. 系综密度泛函理论

Gross-Oliveira-Kohn（GOK）将 Theophilou 和 Gidopoulos 针对由 KS态构成的等权系综提出的变分原理，推广到了权重单调递减且不相等的系综。[13,14] 我们考虑由M_I n电子态组成的系综，这些态可能是简并的，编号从 $m = 0$ 到 $M_I - 1$。我们将I重态的多重度记为 g_I。[14,15] I 是系综中能量最高的一组简并态，我们称之为第$M_I - 1$态。为了使系综定义良好，GOK 系综必须包含每个简并子空间中的所有态。考虑非相互作用单粒子波函数 φ_j^w，我们构造非相互作用系综KS方程：

$$\left\{-\frac{1}{2}\nabla^2 + v_{\mathrm{KS}}^w[\rho^w](r)\right\}\varphi_j^w(r) = \varepsilon_j^w \varphi_j^w(r). \tag{1}$$

由系综KS方程，即方程（1），可得到单粒子能量 ε_j，其来自 $\{\varphi_j(r)\}_{1\le j\le\infty}$ 波函数 φ_j^w定义为能够再现系综密度：

$$\rho^w(r) = \sum_{m=0}^{M_I-1} \mathtt{w}_m \left(\sum_{j=1}^{\infty} f_j^m |\varphi_j(r)|^2 \right), \tag{2}$$

其中，m个 KS 波函数 $\Psi_m^w[\rho^w]$ 中 $\varphi_j(r)$ 的占据数记为f_{mj}。[15] KS多体波函数 $\{\Psi_m^w[\rho]\}_{0\le m\le M_I-1}$ 由$\{\varphi_j(r)\}_{1\le j\le\infty}$构成，并假设为

斯莱特行列式，或斯莱特行列式的线性组合。科恩-沈势为

$$v_{\mathrm{KS}}[\rho](x,\sigma) = v_{\mathrm{ext}}(x) + e^2 \int \frac{\sum_{\sigma'=\alpha}^{\beta} \rho(x',\sigma')}{|x-x'|} dx' + \frac{\delta E_{\mathrm{xc}}[\rho]}{\delta \rho(x,\sigma)}, \tag{3}$$

可将其写成系综广义形式：

$$v^w_{\mathrm{KS}}[\rho^w](r) = v_{\mathrm{ext}}(r) + \frac{\delta E^w_{\mathrm{Hxc}}[\rho^w]}{\delta \rho^w(r)}. \tag{4}$$

Hartree、交换和关联（HXC）的系综泛函 E^w_{Hxc} 写作各项之和：

$$\frac{\delta E^w_{\mathrm{Hxc}}[\rho^w]}{\delta \rho^w(r)} = \int \frac{\rho^w(r')}{|r-r'|} dr' + \frac{\delta E^w_{\mathrm{x}}[\rho^w]}{\delta \rho^w(r)} + \frac{\delta E^w_{\mathrm{c}}[\rho^w]}{\delta \rho^w(r)}. \tag{5}$$

第m个多电子科恩-沈态的能量为

$$E_m = \sum_{j=1}^{\infty} f_j^m \varepsilon_j, \tag{6}$$

其中 m 为整数， $0 \le m \le M_{I-1}$。每个 ε_j 都是系统中某个态的非相互作用（科恩-沈）能量。对于一组 $\{w\} \equiv (\mathtt{w}_{m=0},\ldots,\mathtt{w}_{m=M_I-1})$ 单调非递增（$\mathtt{w}_{m=0} \ge \ldots \ge \mathtt{w}_{m=M_I-1}$）且满足以下条件的权重

$$\sum_{m=0}^{M_I-1} \mathtt{w}_m = 1, \tag{7}$$

我们为每个态指定一个权重 $\mathtt{w}_m$。要求态为离散态集，这正是该理论无法直接用于周期系统的原因，因为周期系统具有连续态谱。系综的权重定义为（GOK-I 系综通常采用的做法）[14]

$$\mathtt{w}_m = \begin{cases} \frac{1-\mathtt{w} g_I}{M_I - g_I} & m < M_I - g_I, \\ \mathtt{w} & m \ge M_I - g_I, \end{cases} \tag{8}$$

其中 $\mathtt{w} \in [0, 1/M_I]$。除$I$重多重态中的态外，所有态的权重均相等。根据这一设置，只需知道I重多重态中各态的权重 w，即可定义整个系综的权重。多重态I 相对于基态 GS 的激发能 Ω_I 可通过对系综总能量关于 w求微分得到：[16]

$$\Omega_I = E_I - E_0 + \left. \frac{\partial E^w_{\mathrm{Hxc}}[\rho]}{\partial \mathtt{w}} \right|_{\rho=\rho^w}. \tag{9}$$

非相互作用情况下，第I个 KS 态与基态之间的能量差所对应的“系综修正”由右侧最后一项给出。

III. 数值计算

我们首先对每个晶胞含有 2 个电子的一维有限系统进行自旋极化独立粒子计算。计算使用 Octopus 实空间密度泛函理论代码完成，该代码能够轻松处理一维系统和模型系统。[17,18] 我们采用基态自洽场（SCF）计算作为后续“单次”计算的输入，这些计算从基态密度开始。为分析较高态，我们额外计算了 10 个态。我们将收敛定义为：在 SCF 循环中连续两次迭代时，所有态的各自误差均小于 1e-7。求解 Kohn-Sham方程时，我们不使用任何预条件器。为实现快速收敛，在非相互作用计算中，我们不限制 SCF 迭代的最大次数，但将本征值计算迭代的最大次数限制为 50。半径用于定义有限系统的大小；因此，创建此类函数并定义变量 n（即系统中的电子数），便可将每次新的运行视为电子数的函数，从而分析不同电子数对应的结果。间距是能够收敛至正确数值的数据点之间的最大合理间距。这些计算通常在 300 到 900 次迭代之间收敛，使计算能够在合理的时间内完成，同时将结果收敛到彼此相差 1 毫电子伏以内。

对于给定的电子数，我们进行独立粒子计算，或称 Kohn-Sham 计算。接下来，我们进行一次单步计算，该计算使用独立粒子计算得到的波函数，但系综中每个态的 KS 态占据数是根据参考文献[6] 中的斯莱特行列式构建的，以便获得E_{H}、E_{x}和E_{c}，其对应的密度由给定的占据数构建。

IV. 结果

A. 非相互作用系统

对于初步结果，我们首先分析了非相互作用粒子数据。我们发现，对于非相互作用系统，随着N_{e} 增加，带隙会逐渐接近周期系统的带隙，如图 6 所示。我们还发现，带隙的计算取决于给定居中方式的节点数，而非电子数。如图 8 所示，$n/2$态在电子数从 $4m+2$ 转变

为电子数 $4m$ 时，会从最高占据分子轨道切换为最低未占分子轨道态。在此过程中，我们发现第二节 A 中所述的系统三种可能的居中方式，在极限下分别趋近于略有不同的带隙。根据居中方式的选择，计算系统带隙时需要采用不同的态。对于边缘中心系统，若考虑以 n为索引的电子态，则需要用$n/2-1$ 态减去$n/2+1$ 态，如图 3 所示。由此得到的周期性带隙为 6.784 电子伏特。对于边缘居中方式，这两个态分别含有 3 个和 1 个节点；无论电子数在趋近极限的过程中选择何种区间，带隙都会出现在该居中方式的这两个态之间。考察该系统中各态的波函数后可以发现，在每种居中方式下，某些态的归一化次数一致，从而得到相同的带隙。不过，还会发现其中包含一个边缘态。这个边缘态$n/2$ 正是系统中必须跳过一个态才能找到真实带隙的原因，而且它只存在于边缘中心系统中。

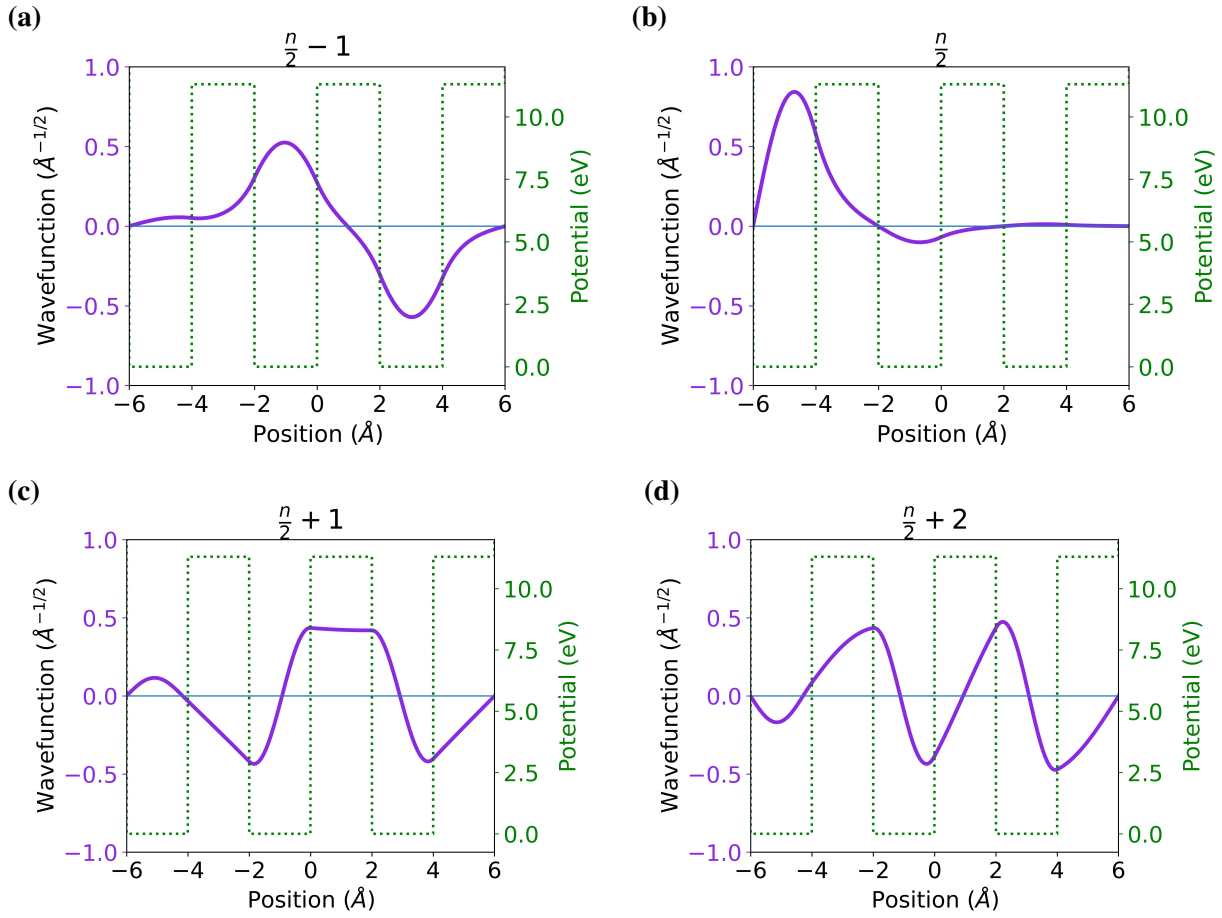


图 3：边缘居中型系统（6e）的波函数

对于势垒中心系统，使用含有2个节点的$n/2$态和含有1个节点的$n/2-1$态时会出现带隙。这些态可见于图4。将这两个态相减后，在趋于极限时得到6.773电子伏特的带隙。

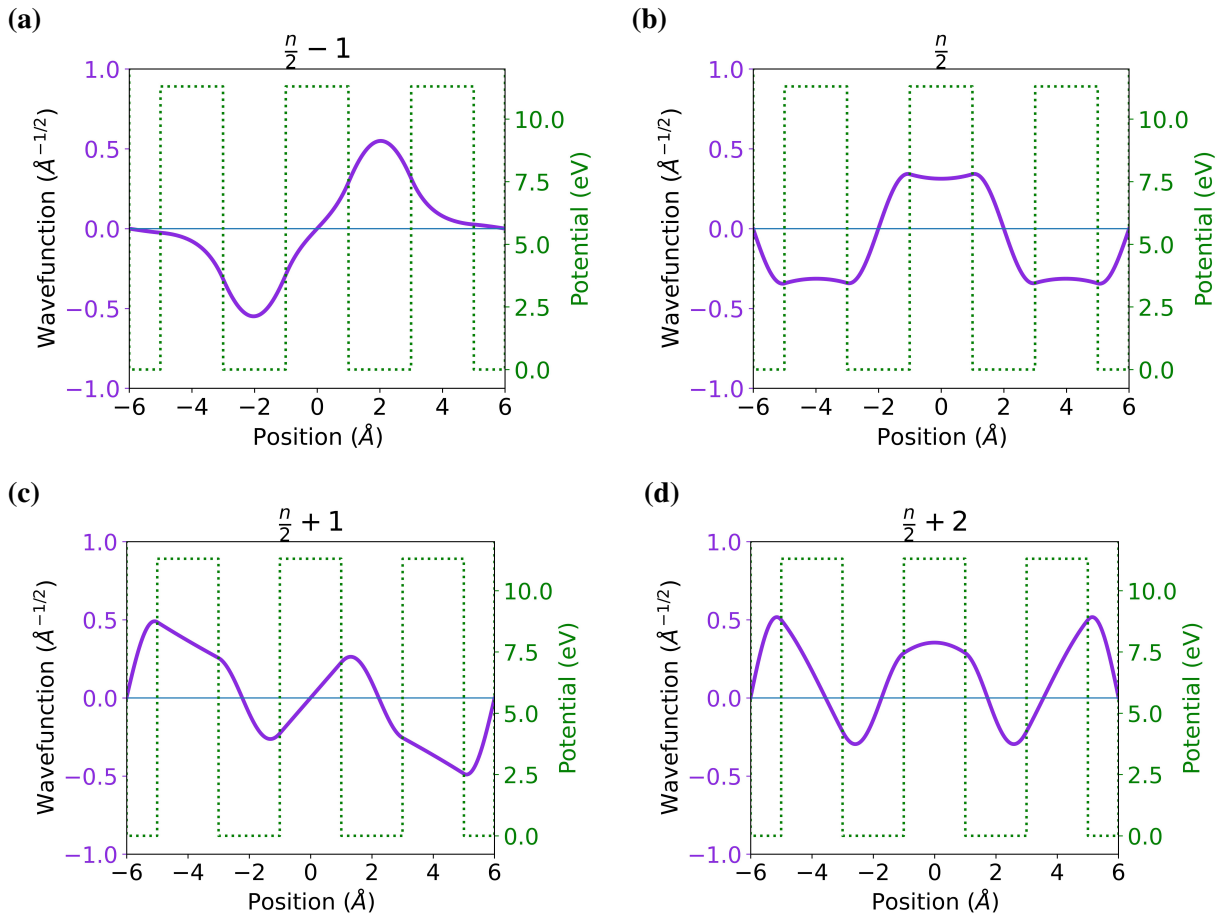


图4：势垒居中型系统的波函数（6e）

在本研究中，我们关注势阱中心系统；对于该系统，需要从含有2个节点的$n/2$态中减去含有3个节点的$n/2+1$态。这些态可见于图5，在趋于极限时得到6.793电子伏特的带隙。然而，该值略低于周期值。

我们采用势阱中心系统，因为它使用$n/2$和$n/2+1$态。我们也对势垒与边缘中心系统进行了这项分析，但得到了不同的结果。势垒中心系统的表现与势阱中心系统非常相似：当图案从 $4m+2$移动到

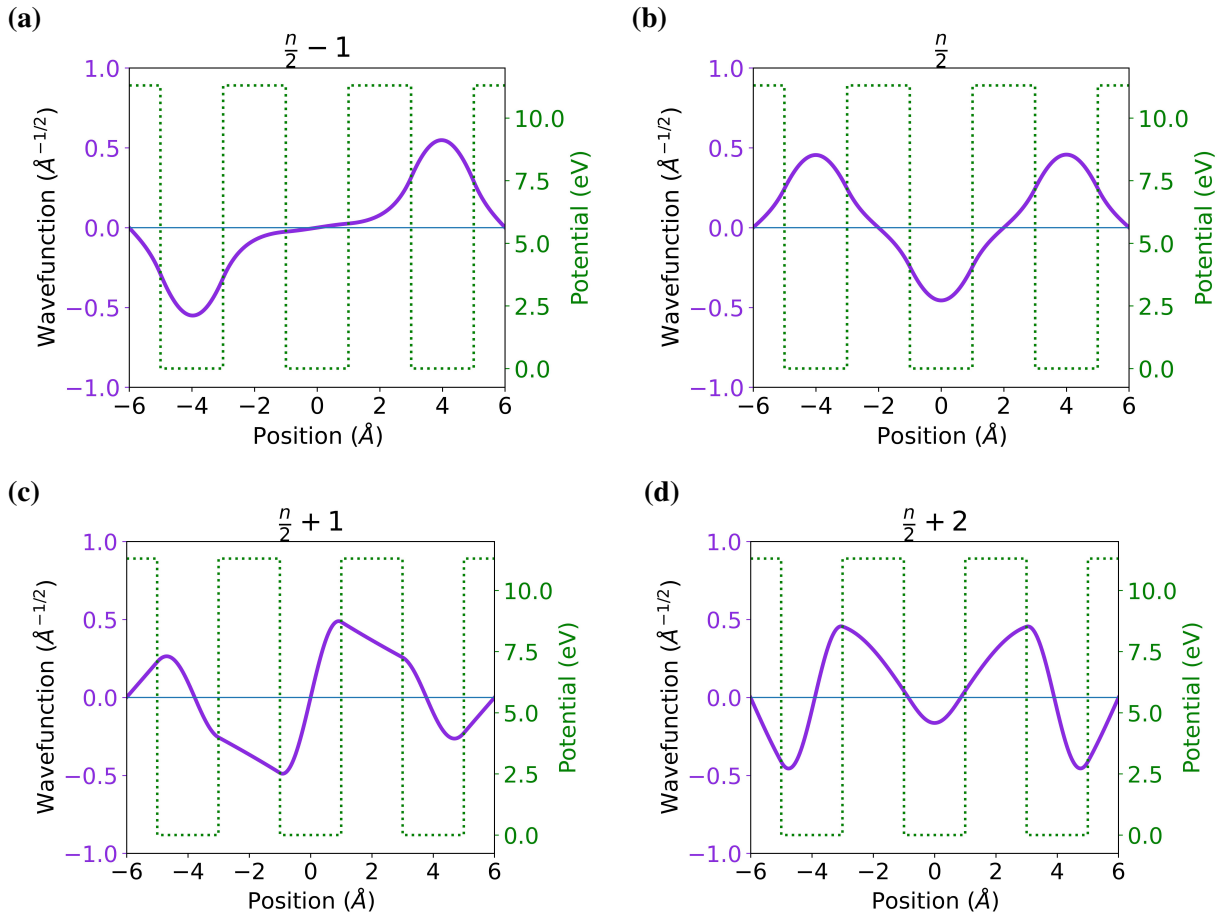


图5：势阱中心型系统的波函数（6e）

4m时，最高占据分子轨道和最低未占分子轨道会改变态，如图10所示。

然而，在边缘中心系统的情况下，这种情况并未发生。相反，尽管分别在 $4m+2$ 和 $4m$ 模式下进行了测试，最高占据分子轨道和最低未占分子轨道仍处于相同的态，如图12所示。

B. 相互作用系统

对于数据中的系综部分所产生的数据，XC 破缺对称性情形[19]似乎趋近于特定值 10.0 电子伏特。强制对称性值也是如此。参考文献[6] 中方程42之后的第一个对称性值如下。它似乎正在

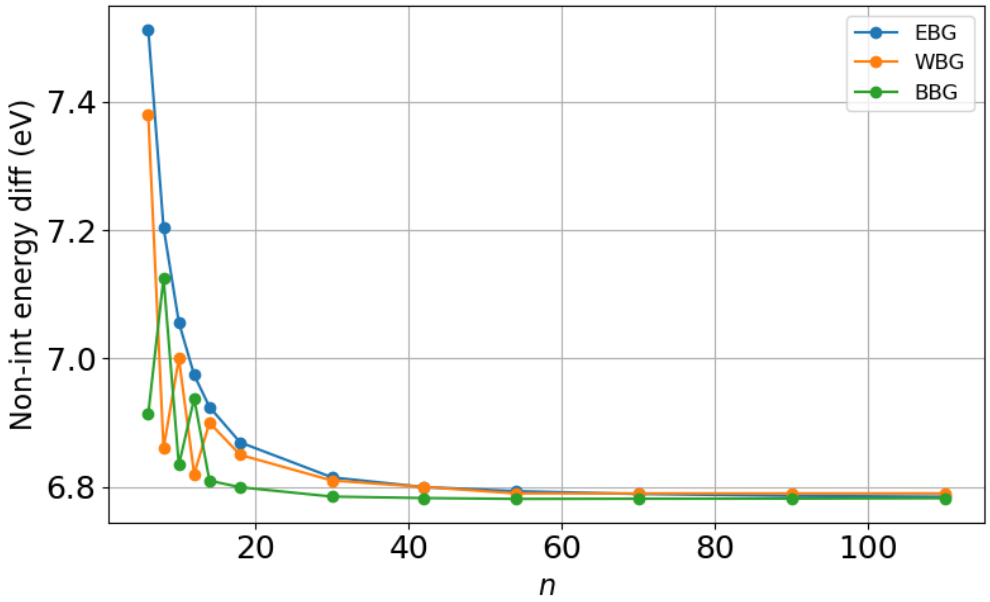


图6：非相互作用情况下，所有居中方式在趋近周期性时的带隙。其中EBG表示边缘中心带隙，BBG表示势垒中心带隙，WBG表示井中心带隙。

趋近于约 9.9 电子伏特。

$$\Omega_1^{\mathrm{e}} = \varepsilon_{n=N_e/2+1} - \varepsilon_{n=N_e/2} - E_{\mathrm{Hxc}}[\rho_{\mathrm{GS}}] + E_{\mathrm{Hxc}}[\rho_{\alpha\alpha}]. \tag{10}$$

第二个遵循破缺对称性体系的XC 对称性数值如下所示。它似乎也趋近于10电子伏特。

$$\Omega_1^{\mathrm{b}} = \varepsilon_{n=N_e/2+1} - \varepsilon_{n=N_e/2} - E_{\mathrm{Hxc}}[\rho_{\mathrm{GS}}] + \frac{2}{3}E_{\mathrm{Hxc}}[\rho_{\alpha\alpha}] + \frac{1}{3}E_{\mathrm{Hxc}}[\rho_{\alpha\beta\pm\beta\alpha}] \tag{11}$$

至于 HXC 对称性系统[5], ，它们似乎并未遵循相同的逻辑，也未能在周期性下趋近于一致的数值。如图 13 所示，它们不像 XC 那样一致，因此我们认为 HXC 并非适用于此类计算的良好近似方法。我们还注意到，对于 XC 和 HXC 系统，较低电子数下的结果似乎会突然升高或降低到不一致的数值。虽然这一现象值得研究，但它与我们的结论或结果无关，因为它似乎仅限于较低电子数的情况，因此我们不再进一步分析。最后，可以看到井中心系统和势垒中心系统的简并性存在突变。可以看出，当这两个系统从 $4m+2$ 转变为 $4m$ 系统时，最高占据分子轨道系统会.....

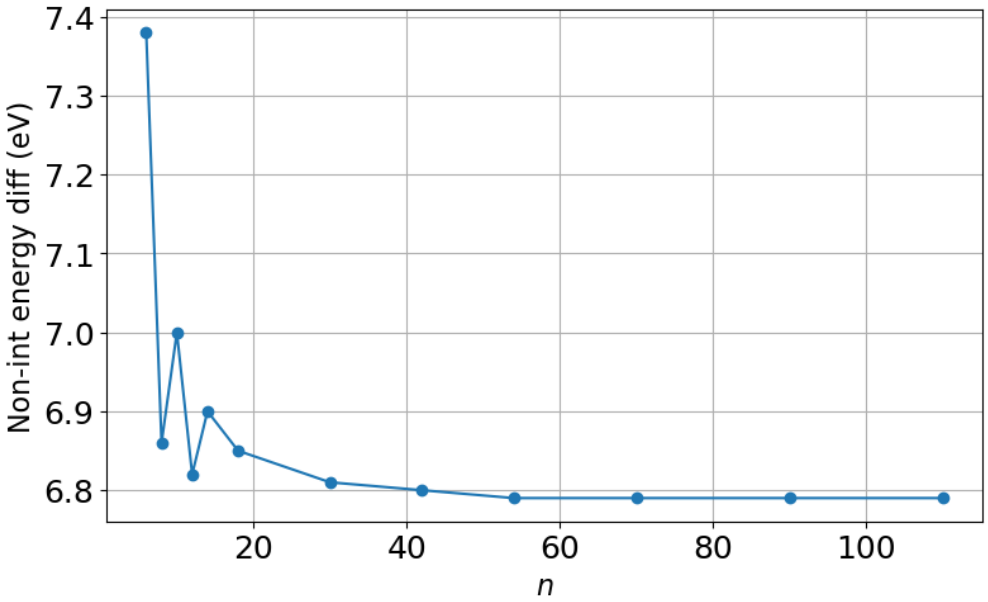


图 7：非相互作用井中心系统中趋近周期性的带隙

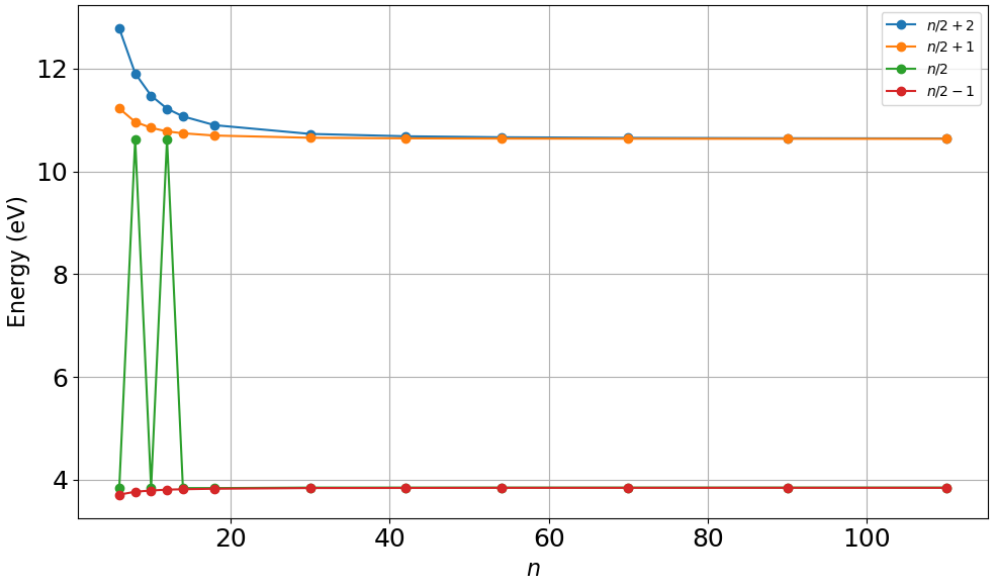


图 8：井中心非相互作用系统趋近周期性时的态能量。在两种电子数模式之间切换时会出现简并。

在井中心系统中变为最低未占分子轨道系统，或者在势垒中心系统中反之亦然。这些简并态出现的原因尚不清楚。我们分析了较低的态，以确定电子模式的变化是否会增加或减少一个额外的态，从而解释这一现象

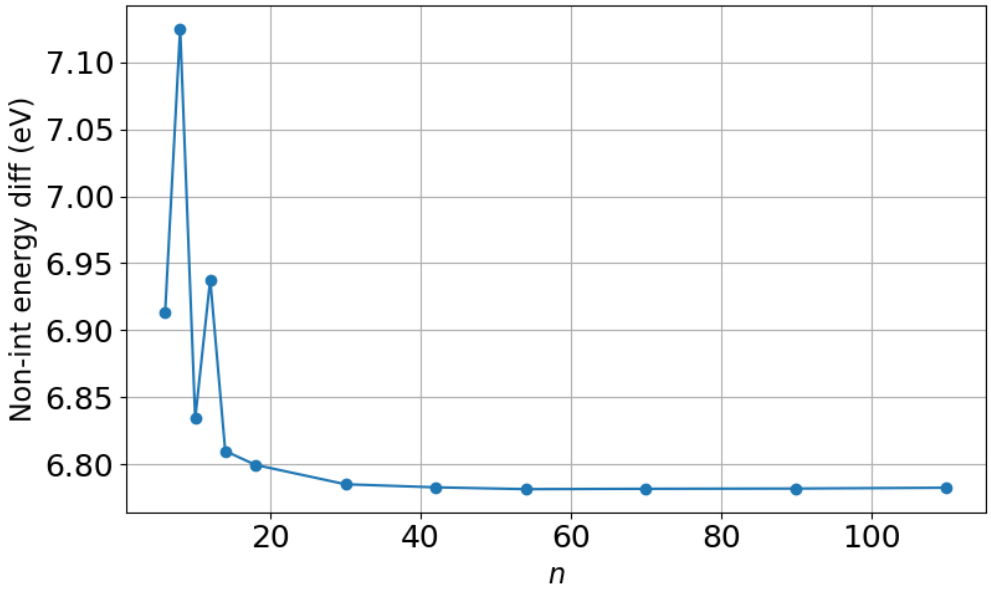


图9　　：非相互作用的势垒中心系统中趋近周期性的带隙

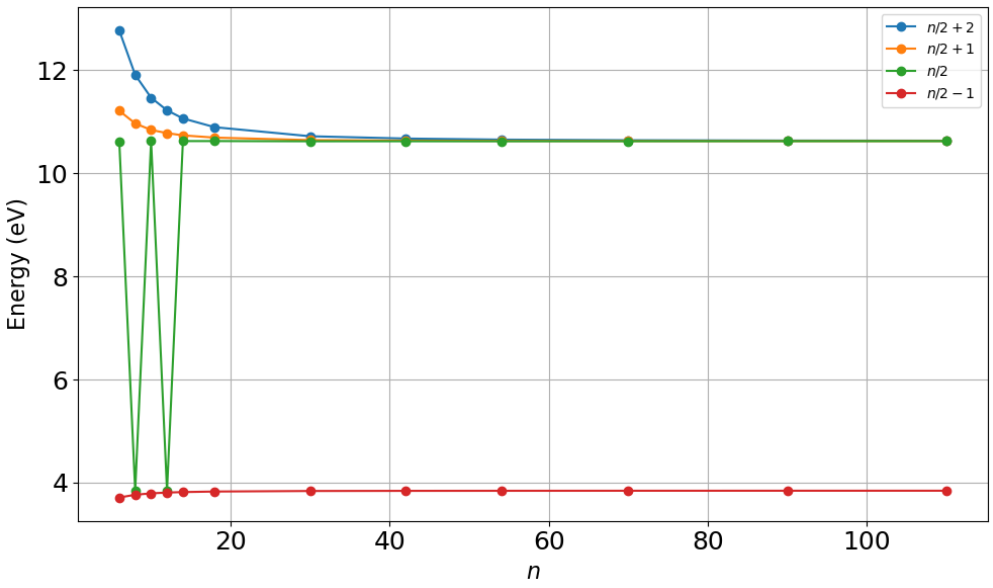


图10：非相互作用的势垒中心系统趋近周期性时的态能量。在两种电子数模式之间切换时发生简并。

偏移，但并未发现情况如此。

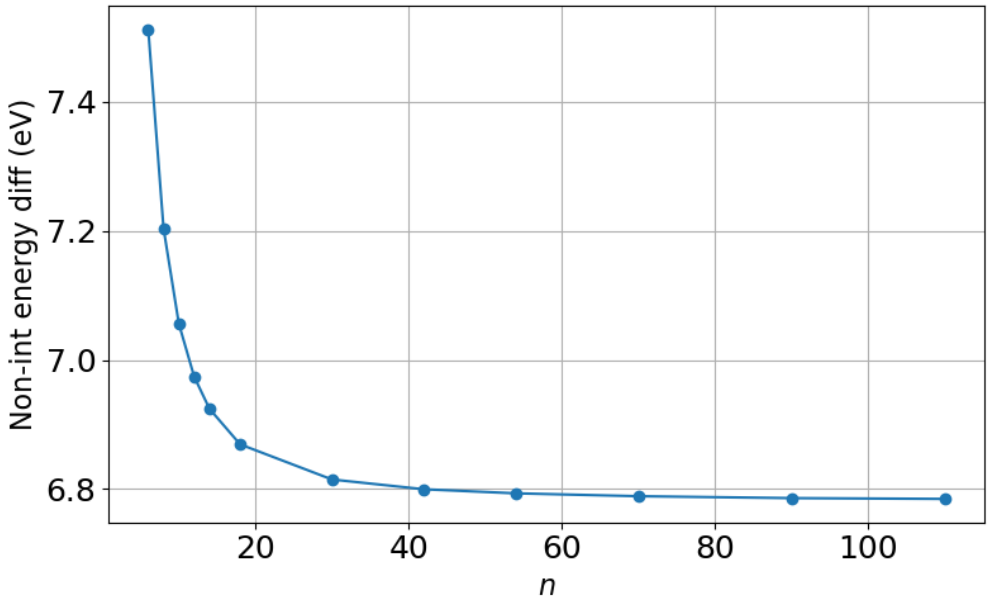


图 1　1：非相互作用边缘中心系统趋于周期性的带隙　m

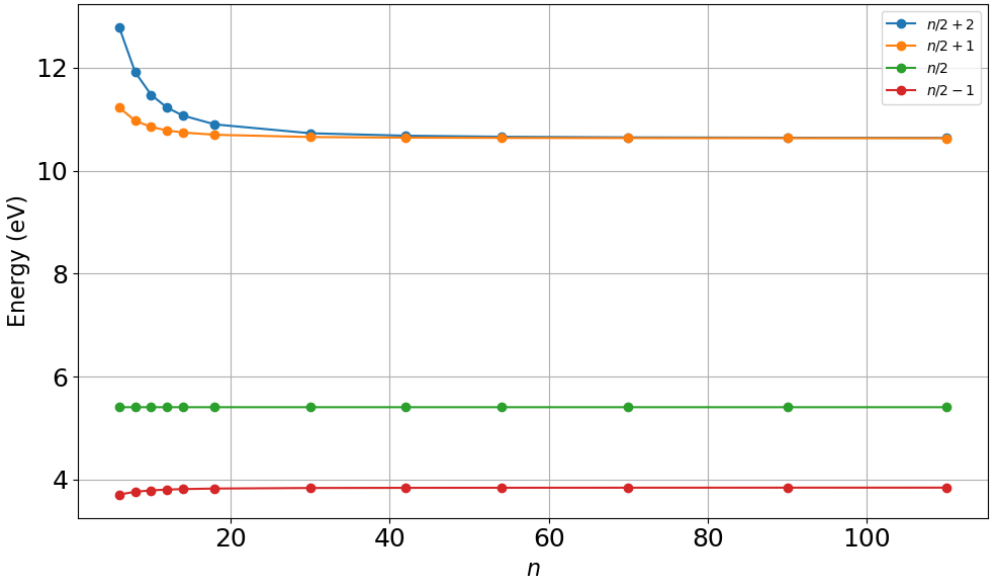


图 12：边缘中心系统中非相互作用系统趋于周期性时的态能量，其中$n/2$ 态作为边缘态。

V. 结论

由于系统的独立粒子（Kohn-Sham）版本与周期性版本的带隙在极限情况下相一致，我们知道，随着系统趋于无限大，

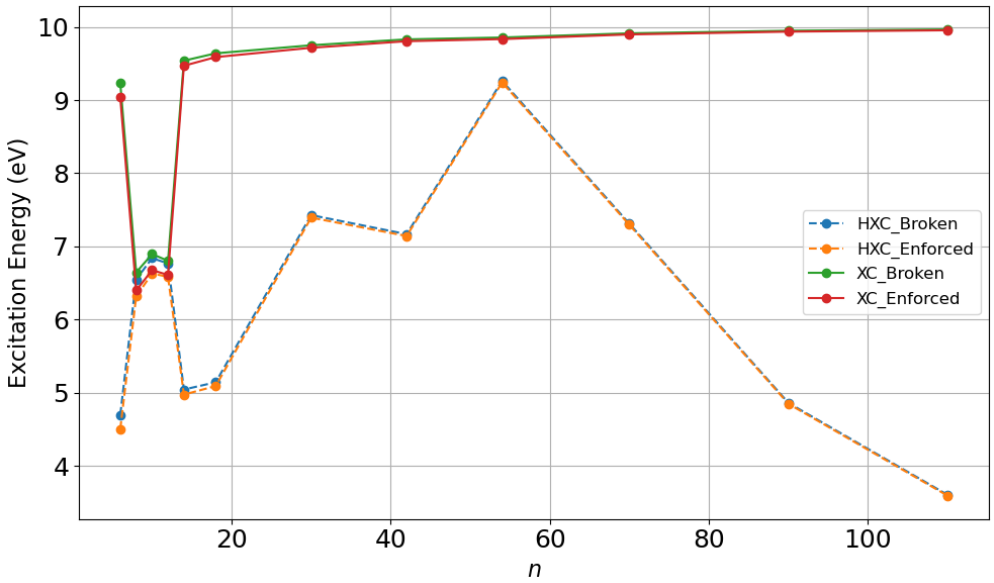


图 13：井中心系统在破缺对称性和强制对称性下，随着周期性增强，交换-相关带隙和 Hartree- 交换 - 关联带隙的变化。

可以确定哪些有限态对应于体能带边缘。我们还确认，无论使用 $4m$ 还是 $4m+2$ 居中方式，寻找带隙态的上下界时，节点数都保持一致；这意味着，对于采用不同电子数中心化方式的带隙计算，确定带隙取决于节点，而非态。

对于系综密度泛函理论的数据，由于两组交换-相关数据都趋向于一致的带隙，我们认为使用系综密度泛函理论研究半导体系统很有前景。系综密度泛函理论计算将带隙从 Kohn-Sham 值 6.8 电子伏特修正至 10 电子伏特，这符合系综密度泛函理论预测的带隙应大于 Kohn-Sham 带隙的预期；对于 Kohn-Sham 带隙的准粒子带隙修正而言，这一数值也处于合理范围。图中的不一致似乎仅限于较小的电子数，因此不会影响我们的最终结果。

VI. 致谢

G.K. 获得美国国家科学基金会（NSF）资助，资助编号为 2150531，用于加州大学默塞德分校物理研究本科生科研体验计划。R.J.L. 获得国家研究生培训计划“面向环境与可持续应用的纳米工程器件融合”（CON-DESA）的资助，项目编号为美国国家科学基金会 DGE-2125510。D.A.S. 获得美国能源部、

国家核安全管理局少数族裔服务院校合作计划的资助，资助编号为 DE-NA0003984。计算资源由加利福尼亚大学默塞德分校网络基础设施与研究技术（CIRT）的 Pinnacles 集群提供，该集群由美国国家科学基金会 OAC-2019144 号资助项目支持。

VII. 补充材料

Term	值
计算模式	gs
额外状态	10
周期性维度	0
维度	1
理论级别	独立粒子
自旋分量	自旋极化
从头开始	yes
n	电子数
特征值收敛误差	true
预条件器	no
特征求解器最大迭代次数	50
最大迭代次数	-1
半径	n*(a+b)/2
输出单位	电子伏特埃
间距	(a+b)/1000

表 I：独立粒子输入文件的定义。

参考文献

[1]A. K. Theophilou，《激发态的密度泛函理论》，载于物理学与化学中的单粒子密度，《物理学技术》，第 8 卷（学术出版社，伦敦，1987 年），第

```
CalculationMode = gs
ExtraStates = 10
PeriodicDimensions = 0
Dimensions = 1
TheoryLevel = independent_particles

a = 2.00*angstrom
b = 2.00*angstrom
V = 0.4153
SpinComponents = spin_polarized
n = 3

FromScratch = yes
ConvEigenError = true
preconditioner = no
EigensolverMaxIter = 50
MaximumIter = -1
Radius = n*(a+b)/2
UnitsOutput = ev_angstrom
Spacing = (a+b)/1000

%Species
 "A" | species_user_defined | potential_formula | "(floor(0.999*sin((pi/a)*x + (3*pi/2))+1))*V" | valence | 6
%

%Coordinates
 "A" | 0 |
%


ConvEigenError = true

%Output
 potential
 wfs
%
OutputFormat = axis_x
```

图14：中心对称6电子输入文件示例，供参考表1中使用的变量

态 $4m+2$	**阱（6e）** $4m$	**阱（8e）** $4m+2$	**边缘（6e）** $4m+2$	**势垒（6e）**	**周期性**
$n/2+2$	最低未占分子轨道 + 1	最低未占分子轨道 + 2	最低未占分子轨道 + 1	最低未占分子轨道 + 2	最低未占分子轨道 + 2
$n/2+1$	LUMO	最低未占分子轨道 + 1	LUMO	最低未占分子轨道 + 1	最低未占分子轨道 + 1
$n/2$	HOMO	LUMO	EDGE	LUMO	LUMO
$n/2-1$	最高占据分子轨道 - 1	HOMO	HOMO	HOMO	HOMO

表 II：势阱中心系统中各态的定义及其在电子数方面的含义

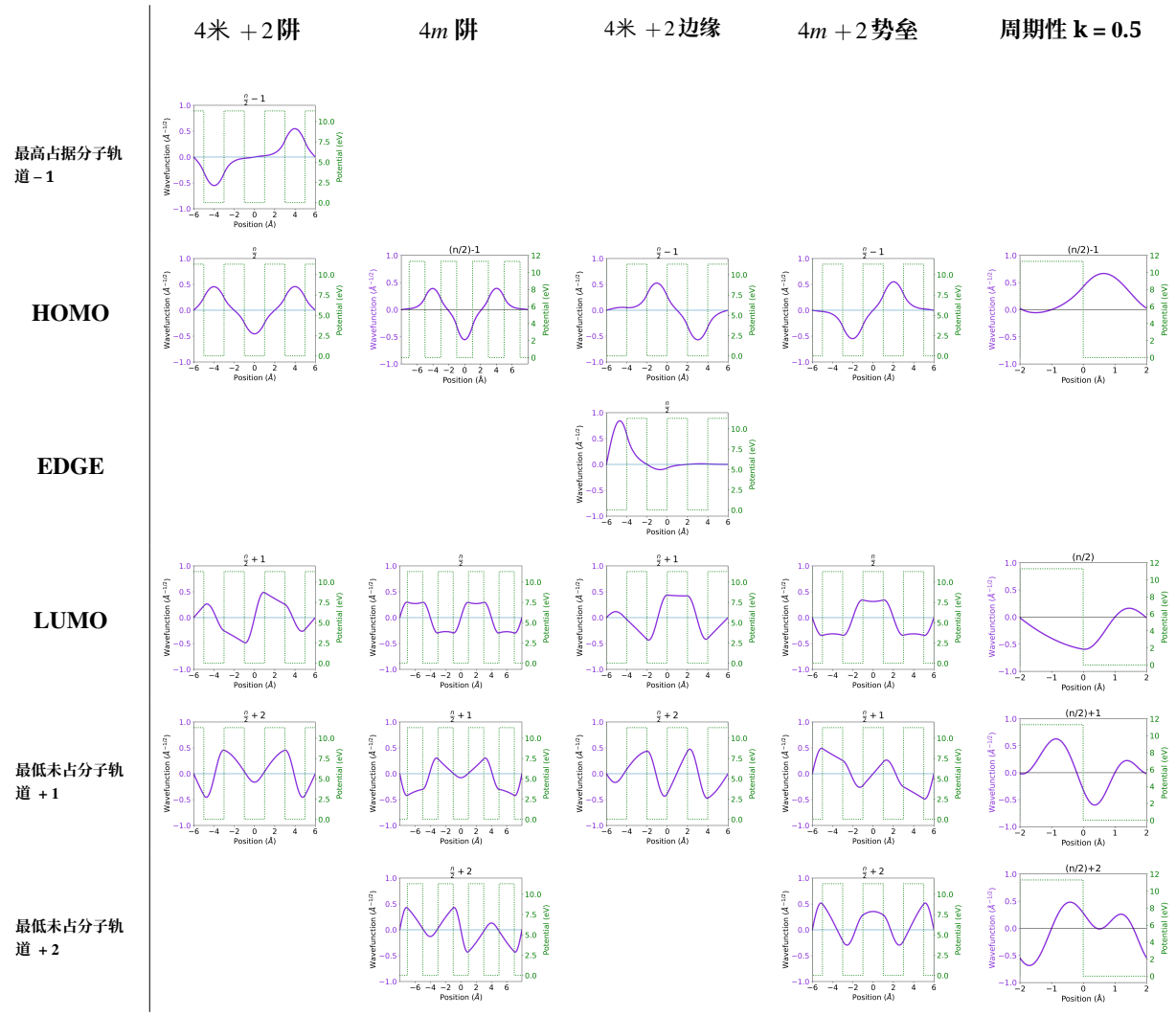
201–218。

[2]E. Runge 和 E. K. U. Gross，Physical Review Letters**52**，997–1000（1984）。

[3]C. Ullrich，含时密度泛函理论：概念与应用 （牛津大学出版社，纽约，2011）。

[4]M. A. L. Marques、N. T. Maitra、F. Nogueira、E. K. U. Gross 和 A. Rubio，含时密度泛函理论基础，《物理学讲义》，第 837 卷（施普林格，德国海德堡，2012 年）。

表 III：异中心系统的组合定义和波函数。每个最高占据分子轨道态在每个阱中有 0 个节点，而每个最低未占分子轨道态在每个阱中有 1 个节点。k 点 12 处的周期系统。



[5]M. E. Casida，“分子系统的含时密度泛函响应理论：理论、计算方法与泛函”，载于 现代密度泛函理论的最新发展与应用，《理论与计算化学》，第 4 卷（Elsevier Science BV，阿姆斯特丹，1996 年），第 11 章，第 391–434 页。[6]R. J. Leano、A. Pribram-Jones 和 D. A. Strubbe，《电子结构》**6**，1–30（2024）。[7]R. d. L. Kronig 和 W. G. Penney，《伦敦皇家学会会刊 A 辑》**130**，499–513（1931）。[8]J. M. Feldman 和 M. Fibich，《固态通信》**12**，245427（1973）。[9]Y. Wang，《科学与工程技术前沿》**61**，245427（2023）。

标签	带隙（电子伏特）
周期性	6.793
阱中心独立粒子	6.785
阱中心强制交换-关联	9.954
阱中心强制 Hartree-交换-关联	3.591
阱中心破缺交换-关联	9.966
阱中心破缺 Hartree-交换-关联	3.603
势垒中心独立粒子	6.782
边缘中心独立粒子	6.784

表 IV：不同居中型系统的带隙，包括周期性系统、独立粒子系统以及系综密度泛函理论计算，精确至千分位。注意：由于缺乏收敛，Hartree-交换-关联带隙的数值尚未收敛，而只是输出的数值

110 e

[10]I. Reshodko、A. Benseny、J. Romhanyi 和 T. Busch，New J. Phys.**21**，245427（2019）。[11]P. H. Meijer，Phys. B+C**79**，215（1975）。[12]F. Marsiglio 和 R. Pavelich，Sci. Rep.**7**，641（2017）。[13]A. K. Theophilou 和 N. I. Gidopoulos，Int. J. Quantum Chem.**56**，333–336（1995）。[14]E. K. U. Gross、L. N. Oliveira 和 W. Kohn，Phys. Rev. A**37**，2809（1988）。[15]C. Marut、B. Senjean、E. Fromager 和 P.-F. Loos，Faraday Discuss.**224**，402（2020）。[16]K. Deur 和 E. Fromager，J. Chem. Phys**150**，094106（2019）。[17]X. Andrade、D. A. Strubbe、U. De Giovannini、A. H. Larsen、M. J. T. Oliveira、J. Alberdi- Rodriguez、A. Varas、I. Theophilou、N. Helbig、M. J. Verstraete、L. Stella、F. Nogueira、A. Aspuru-Guzik、A. Castro、M. A. L. Marques 和 A. Rubio，Phys. Chem. Chem. Phys. **17**，31371–31396（2015）。[18]N. Tancogne-Dejean、M. J. T. Oliveira、X. Andrade、H. Appel、C. H. Borca、G. Le Breton、F. Buchholz、A. Castro、S. Corni、A. A. Correa、U. De Giovannini、A. Delgado、F. G. Eich、J. Flick、G. Gil、A. Gomez、N. Helbig、H. Hübener、R. Jestädt、J. Jornet-Somoza、A. H. Larsen、I. V. Lebedeva、M. Lüders、M. A. L. Marques、S. T. Ohlmann、S. Pipolo、M. Rampp、C. A. Rozzi、D. A. Strubbe、S. A. Sato、C. Schäfer、I.Theophilou、A. Welden 和 A.Rubio，“Octopus，一个 com-

用于探索扩展系统和有限系统中的光驱动现象与量子动力学的计算框架, 《化学物理学杂志》**152**, 124119 (2020).[19]N. Helbig, J. I. Fuks, M. Casula, M. J.Verstraete, M. A. L. Marques, I. V. Tokatly, and A. Rubio, Phys. Rev. A**83**, 032503 (2011).