arXiv:2603.08027v1 [cond-mat.mtrl-sci] 9 Mar 2026

超快声子动力学中的非马尔可夫热产生

Fredrik Eriksson,[1] Yulong Qiao,[1,*] Erik Fransson,[1] R. Matthias Geilhufe,[1,†] 和 Paul Erhart[1,‡]
[1] *Department of Physics, Chalmers University of Technology, SE-41296, Gothenburg, Sweden*（日期：2026年3月10日）

高强度太赫兹激光脉冲通过共振驱动选定的声子模式，实现对晶格振动的光介导调控。在超快时间尺度上，记忆效应会影响声子动力学，因此必须将其纳入考量，才能描述能量耗散相关的热产生。在此，我们通过推导控制受驱动声子模的噪声与耗散核，建立了非马尔可夫声子动力学的微观框架。利用大规模分子动力学模拟，我们直接从多体晶格动力学中重建这些核，并确定相应的热产生率。我们的结果定量描绘了皮秒时间尺度上马尔可夫动力学与非马尔可夫动力学之间的转变，并展示了驱动场的有限带宽如何限制在动力学上相关的热浴谱。此外，我们证明，热产生等热力学量可以直接从单个声子模式的动力学中推断，从而能够利用时间分辨光谱对其进行实验测量。

强太赫兹激光脉冲能够选择性地激发并相干控制光学声子模式 [1–3]。沿特定振动坐标驱动晶格，开辟了通往亚稳相[4–10], 、声子诱导磁性 [11–23], 和超快磁开关 [24, 25]的非热路径。这些进展引出了一个根本问题：当固体在皮秒时间尺度上被驱动至远离平衡态时，热是如何产生的?

近期的理论研究开始从随机热力学的角度描述激光驱动的声子，强调涨落与耗散在产生热和熵方面的相互作用 [26–28]。在这类描述中，受驱动的模式充当一个子系统，与由其余晶格自由度构成的有效热浴耦合。相干运动向该热浴的能量传递会增强涨落，并导致熵产生。然而，该热浴的微观结构以及强驱动下马尔可夫假设的有效性，仍基本未得到探究。

在此，我们建立了一个超快热力学的微观框架，能够在单个声子模式的层面解析热产生。通过结合大规模分子动力学（MD）模拟与模式分辨的理论描述，我们得以确定性地获取完整的多体晶格动力学，并将其投影到简正模坐标上。这种方法能够直接定量比较原子尺度模拟与随机有效理论。基于这一比较，我们推导出描述激光驱动声子模的非马尔可夫朗之万方程，并从模-模耦合的角度揭示记忆效应的微观起源。

我们表明，远离平衡的驱动会产生一个结构高度复杂的有效热浴，其谱密度由离散声子模主导，而非连续谱。尽管具有这种结构，只要将驱动场有限的频率分辨率考虑在内，马尔可夫近似仍可保持定量准确。我们的结果阐明了简化的随机描述何时能够捕捉超快热产生，以及何时真正的非马尔可夫效应变得至关重要。

作为一个具体实例，我们研究钙钛矿 STO 中的铁电软模。钙钛矿 STO 是一种典型的量子顺电体，具有强烈的非谐晶格动力学[9, 18, 26, 29]。它接近结构不稳定性，且软化呈现显著的温度依赖性，因此是探索非平衡声子热力学的理想平台（补充说明 1） [30–34]。尽管这里以该材料作为代表性实例，但本文发展的框架具有普适性，也适用于更广泛的受驱动晶格系统。

为捕捉超越谐模型的晶格不稳定性、涨落与耗散之间的相互作用，我们采用在神经进化势（NEP）框架下训练的机器学习原子间势（MLIP） [35–38] ，将其作为密度泛函理论（DFT）计算的高效模拟器 [39–41] ；这些计算使用具有一致交换项的范德华密度泛函 [42, 43]。该描述能够准确再现支配能量再分配的相关晶格动力学和非谐耦合。为研究光激发后铁电软模的非平衡动力学，并分析相关的耗散机制和热力学变化，我们进行了大规模的机器学习原子间势分子动力学模拟。在这些模拟中，激光脉冲被建模为直接作用于软模振幅的有效时变驱动力 $F_{\mathrm{L}}(t)$,

$$F_{\mathrm{L}}(t) = \beta Z E \exp\left(-\frac{1}{2}\frac{(t-t_0)^2}{\tau^2}\right)\cos\left(\omega_{\mathrm{L}} t\right). \qquad (1)$$

这里， Z 表示模有效电荷 [44], , 其值为$Z \approx 1.2\mathrm{e}^{+}/\sqrt{\mathrm{Da}}$（见补充说明 8）； β 则考虑了样品内部电场的屏蔽，近似为 $\beta = 0.215$ [29]。我们采用的力幅值为 $22.2\,\sqrt{\mathrm{Da}}\,^{\circ}\mathrm{A/ps}^2$, , 对应的电—

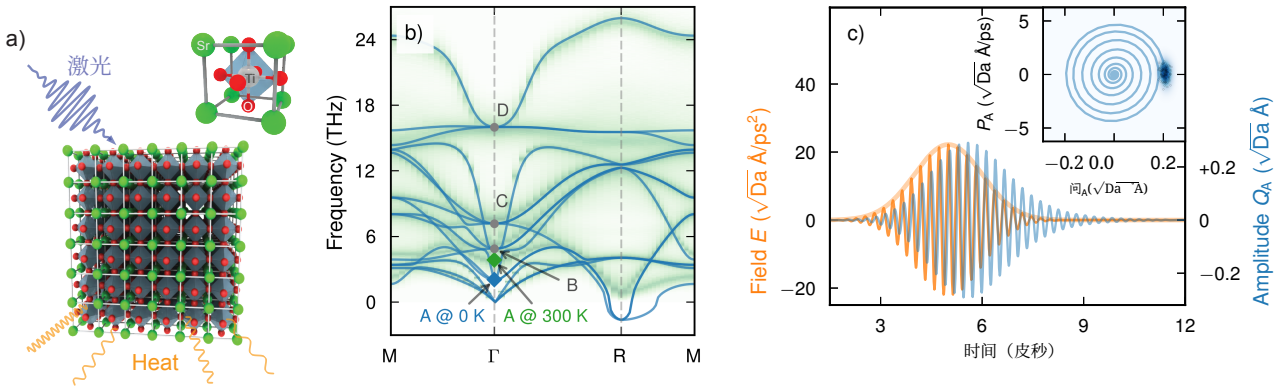


图 1。（a）示意图展示了太赫兹激光脉冲驱动钛酸锶，激发铁电模；铁电模衰减时会导致热的超快产生。插图显示了原胞。（b）沿布里渊区内一条高对称路径的声子能带结构。蓝色实线表示对应于零温极限的谐色散。绿色核密度图显示了代表 300开尔文下色散的谱能量密度。铁电模（标记为 A）具有显著的温度依赖性。其他 Γ 模标记为 B 至 D（其温度依赖性的更明确示意见图 S3）。（c）激光产生的激发场（橙色，标示了包络）以及铁电模的模振幅（蓝色）随时间的变化。插图以核密度图展示了驱动模相空间的采样，覆盖轨迹分布；标记表示约在 5.59 皮秒时进行的特定模拟，对应于最大振幅。曲线表示截至该时刻穿过相空间的平均路径。

场为 $E \approx 860\text{kV cm}^{-1}$，与近期实验中采用的数值相当 [2, 18, 20, 25, 29]。脉冲持续时间设为 $\tau = 1\text{ps}$，峰值中心位于 $t_0 = 5\text{ps}$（图 1c）；中心频率$\omega \approx 3.66$ THz 选取为接近共振的频率，与计算得到的室温软模频率（约 3.84 THz，表 S1）相近。

我们通过将每个分子动力学构型投影到相应的声子本征矢量 [45–47]上，获得声子模式 $\lambda = (\mathbf{k}\ n)$的含时模坐标 $Q_\lambda(t)$。对于 Γ点处的铁电软模$Q_\text{A} = Q_{\mathbf{0},1}$，该投影给出

$$Q_\text{A} = \frac{1}{\sqrt{N_c}} \sum_{\nu,\alpha} \sqrt{m_\nu}\, \mathbf{e}^A_{\nu\alpha}\, \tau^A_{\nu\alpha}, \tag{2}$$

其中 N_c 为晶胞数目，$\mathbf{e}^A_{\nu\alpha}$ 表示 Γ处软模的归一化本征矢量，ν 和 α 分别标记原子种类和笛卡尔方向。此处，m_ν 为原子质量，$\tau^A_{\nu\alpha}$ 为 Γ点处原子位移的傅里叶分量。因此，质量加权模坐标 Q_A 的单位为 $\sqrt{\text{Da}}\,\text{Å}$。

激光激发将软模驱动至接近 $0.3\,\sqrt{\text{Da}}\,\text{Å}$ 的最大振幅（图 1c 中的蓝线）。由于脉冲持续时间（1 ps）超过该模式的振荡周期，因此在驱动过程中会发生数次相干振荡。然而，铁电软模的强阻尼使其寿命仅与脉冲持续时间相当；驱动场消失后，振幅便迅速弛豫至平衡态。这种显著的阻尼反映了能量从受驱动模式向周围晶格自由度的传递。

为解释分子动力学模拟中观察到的声子动力学及相关能量转移过程，我们基于经典声子–热浴耦合模型构建了一个超快随机热力学框架。完整的量子力学处理在文献 [27]中讨论。这里我们聚焦于适用于本工作所考虑的大振幅有限温度动力学的经典极限。我们将声子系统划分为受驱动的铁电软模以及由所有其余晶格自由度构成的有效热浴，并用经典拉格朗日量 [48],描述它们的耦合动力学

$$\mathcal{L} = \frac{\dot{Q}_\text{A}^2}{2} - \frac{1}{2}\omega_\text{A}^2 Q_\text{A}^2 + F_\text{L}(t) Q_\text{A} + \sum_{i=1} \left[\frac{\dot{Q}_i^2}{2} - \frac{\omega_i^2}{2} \left(Q_i - \frac{\kappa_i}{\omega_i^2} Q_\text{A} \right)^2 \right]. \tag{3}$$

这里，$Q_\text{A}(t)$表示式(2)中所定义的铁电模的振幅，$\dot{Q}_\text{A}(t)$为其广义速度，ω_A 为其角频率。激光力 $F_\text{L}(t)$由式(1)给出。热浴由以 i为索引的大量谐振模式表示。尽管真实的声子–声子相互作用涉及各种多项式阶次的非谐耦合，线性模–热浴耦合项 $\kappa_i Q_\text{A} Q_i$ 在粗粒化动力学层面上有效描述了软模的耗散与能量传递。

消去浴自由度后，可得到软模的有效运动方程（详情见补充说明。

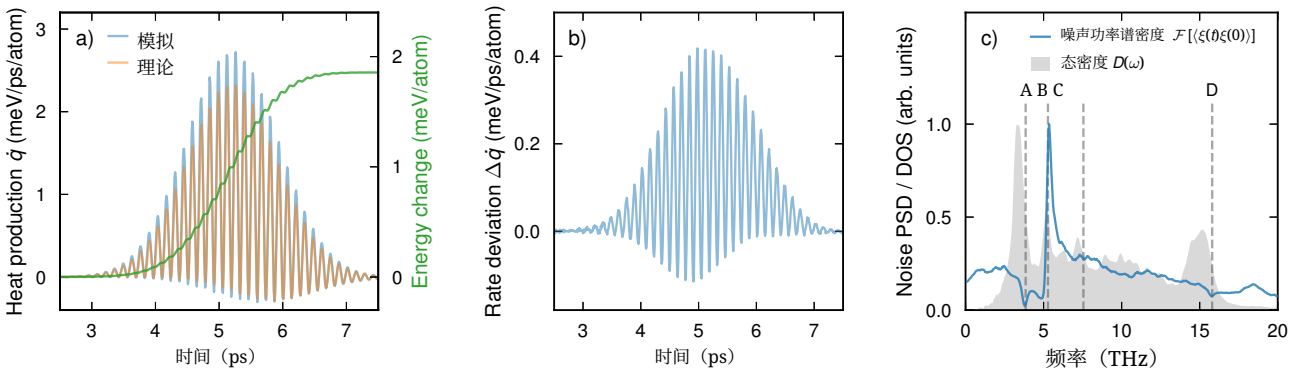


图 2。（a）脉冲期间的总能量和热产生率 $\dot{q}(t)$，其中 $\dot{q}(t)$ 由总能量对时间求导得到。（b）模拟与理论之间热产生率的偏差。（c）铁电模（图 1b 中的 A）的噪声功率谱密度 $\mathcal{F}[\langle\xi(t)\xi(0)\rangle]$，并与态密度（DOS）进行比较。竖直虚线表示 Γ 点模式的频率（所有模式的噪声功率谱密度见图 S4）。

补充说明 9），

$$\ddot{Q}_{\mathrm{A}} + \omega_{\mathrm{A}}^2 Q_{\mathrm{A}} + \int_{-\infty}^{t} \mathrm{d}s\, f(t-s)\, \dot{Q}_{\mathrm{A}}(s) = F_{\mathrm{L}}(t) + \xi_{\mathrm{A}}(t), \tag{4}$$

其形式为广义朗之万方程。耗散由卷积项中的记忆核 $f(t)$ 控制，其中

$$f(t) = \int_0^{\infty} \mathrm{d}\omega\, D(\omega) \frac{\kappa^2(\omega)}{\omega^2} \cos(\omega t), \tag{5}$$

并取决于声子态密度 $D(\omega)$ 和模-浴耦合强度 $\kappa(\omega)$。随机力 $\xi(t)$ 是高斯有色噪声，其相关函数 $\eta(t) = \langle\xi(t)\xi(0)\rangle$在傅里叶域中满足经典涨落耗散定理，

$$\mathcal{F}[\eta(t)] = k_{\mathrm{B}} T\, \mathcal{F}[f(t)], \tag{6}$$

其中，$\mathcal{F}[\cdots]$ 表示傅里叶变换。量 $\mathcal{F}[\eta(t)]$ 对应于随机力的功率谱密度（PSD），根据式（5）和式（6），它与 $D(\omega)\kappa^2(\omega)/\omega^2$ 成正比，比例因子为温度因子。

广义朗之万方程（4）由于卷积项中包含记忆核，描述了非马尔可夫动力学。然而在实际中，通常无法直接从模拟或实验中获取核 $f(t)$。如果 $f(t)$可以近似为时间局域形式，则运动方程可简化为

$$\ddot{Q}_{\mathrm{A}} + \omega_{\mathrm{A}}^2 Q_{\mathrm{A}} + \gamma_{\mathrm{A}} \dot{Q}_{\mathrm{A}} = F_{\mathrm{L}}(t) + \xi_{\mathrm{A}}(t), \tag{7}$$

其中，γ_{A} 表示阻尼率，ω_{A} 表示重整化后的软模频率。在此极限下，$Q_{\mathrm{A}}(t)$遵循马尔可夫动力学 [26]。

为从分子动力学模拟中提取随机力 $\xi_{\mathrm{A}}(t)$，我们将原子力（不包括激光力 $F_{\mathrm{L}}(t)$）投影到声子本征模上（补充说明 6）。对于 Γ处的模态，包括铁电软模 A，我们对总模态力进行最小二乘拟合，使其符合形式 $\omega_\lambda^2 Q_\lambda(t) + \gamma_\lambda \dot{Q}_\lambda(t)$，以确定重整化频率 ω_λ 和阻尼率 γ_λ。因此，非谐相互作用引起的频移被吸收到 ω_λ中，而向其他模态的能量耗散则由 γ_λ描述。随机力 $\xi_\lambda(t)$定义为扣除谐性贡献和摩擦贡献后的残差。经过这一拟合步骤，对软模坐标（图 1c 中的$Q_A(t)$）的动力学可由时间局域朗之万方程（式（7））完全描述，其中对零均值随机力取平均。参数为软模频率 $\omega_A = 3.84$ THz 和软模阻尼 $\gamma_A = 0.35$ THz（表 S1）。

系统总能量 $\Delta E(t)$相对于其脉冲前值的增加，可解释为激光做功后沉积到晶格中的净热。这一能量变化可以写成热产生率 $\dot{q}(t)$的积分，

$$\Delta E(t) = \int_{-\infty}^{t} \mathrm{d}\tau\, \dot{q}(\tau). \tag{8}$$

在分子动力学模拟中，通过对所有原子的动能和势能求和，得到 $\Delta E(t)$（图 2a 中的绿色线）。总能量在泵浦期间迅速增加，并在脉冲结束后不久达到饱和，这表明能量沉积过程基本在 3 ps 内完成。瞬时热产生率 $\dot{q}(t)$通过对总能量求时间导数计算得到。它在脉冲期间发生振荡，并在接近 5 ps 时达到最大值，与软模动力学一致（图 1c 中的蓝色线）。这一微小的负贡献

在 6 ps 左右出现，源于激光与软模之间轻微的频率失配。

在基于广义朗之万方程 (4) 的随机热力学描述中，可以解析地求得热产生率。对于单条轨迹，软模内能 $U_{\mathrm{A}}(t)$ 的时间导数为

$$\dot{U}_{\mathrm{A}}(t) = F_{\mathrm{L}}(t)\dot{Q}_{\mathrm{A}}(t) + \Delta\dot{Q}. \tag{9}$$

第一项表示激光对软模所做功的速率。第二项量化了从热浴流入软模的随机能量通量，

$$\Delta\dot{Q} = \left[\xi_A(t) - \int_{-\infty}^{t} \mathrm{d}s\, f(t-s)\, \dot{Q}_{\mathrm{A}}(s)\right] \circ \dot{Q}_{\mathrm{A}}. \tag{10}$$

这里，$\circ$ 表示 Stratonovich乘积 [49]。取系综平均并利用热力学第一定律关系，可得热产生率

$$\dot{q}(t) = \left\langle \dot{U}_{\mathrm{A}}(t) - \Delta\dot{Q}(t) \right\rangle = \left\langle F_{\mathrm{L}}(t)\dot{Q}_{\mathrm{A}}(t) \right\rangle, \tag{11}$$

其中，$\langle\cdots\rangle$ 表示对随机轨迹取系综平均。因此，热产生率由激光力与受驱动声子模速度之间的相关性决定。

方程 (11) 的形式具有普适性，而非马尔可夫效应则通过由含记忆核 $f(t)$ 的广义朗之万方程 (4) 所支配的 $Q_A(t)$ 动力学体现。结合方程 (7) 的马尔可夫近似与方程 (11)，可得图 2a 中橙色曲线所示的理论预测。与 MD 结果（蓝色曲线）比较可见，两者吻合良好，尽管理论略微高估了峰值（图 2b）。这一吻合证实，随机热力学描述捕捉到了超快晶格激发过程中能量传递的关键机制。

为阐明实际记忆核 $f(t)$的形式，我们利用自相关函数 $\langle\xi(t)\xi(0)\rangle$的傅里叶变换计算零均值随机力的功率谱密度。按照构造，功率谱密度在各模式相应的本征频率处为零。功率谱密度明显不均匀，表明有效噪声是有色的（图2c；图S4）。将铁电软模A的功率谱密度与声子态密度 $D(\omega)$进行比较，表明谱结构并非简单地遵循 $D(\omega)$，从而凸显了耦合强度 $\kappa(\omega)$的作用。特别是，模式A的功率谱密度在 $\omega_{\mathrm{B}} = 5.26$THz处呈现显著峰，揭示了其与模式B的强耦合。对其余 Γ点模式进行同样的分析表明，与模式D的耦合弱得多，且与模式C没有可观测的耦合，这与模式A和C分属不同的对称性表示（见表S1）。类似的谱特征此前已在时间分辨X射线散射实验中被观测到 [29]。

结构化功率谱密度表明存在非局域摩擦核，因此，根据式（6），原则上会呈现非马尔可夫动力学。然而，观测到的软模动力学可由马尔可夫方程式（7）很好地描述。考虑到激光脉冲的频率分辨率有限，这种表面上的矛盾便可以理解。该模式的受驱响应由频率响应函数 $\chi(\omega)$（定义见补充说明 9）与驱动场 $F_{\mathrm{L}}(\omega)$ 的光谱轮廓的乘积决定。由于脉冲持续时间 $\tau = 1$ps 远长于软模周期，驱动场的频谱会在 ω_{L} 附近形成窄峰。在这一受限的频率窗口内，响应函数变化很小，可以用其局部展开近似，从而有效地得到一个恒定的阻尼率γ。因此，在由脉冲决定的时间尺度上，非马尔可夫动力学会简化为有效的马尔可夫形式。对于频谱带宽更宽的较短脉冲，预计会观测到偏离马尔可夫行为的现象，如 [27]所示。

总之，我们将大规模分子动力学模拟与随机的模分辨理论描述相结合，建立了一个微观框架，用以量化超快声子动力学中的非马尔可夫热产生。我们采用精度接近密度泛函理论的机器学习原子间势，解析了真实固体的完整多体晶格动力学，将其投影到声子正则模上，并重构了支配激光驱动声子模的结构化有效热浴。该方法在确定性的原子尺度模拟与随机热力学之间搭建了直接桥梁，使得从第一性原理中提取记忆核和热浴谱密度成为可能。

由此得到的广义朗之万描述定量再现了模拟中观察到的超快动力学，并揭示了晶格内部具有强烈模式选择性的能量传递。我们表明，可以直接根据受驱动模的动力学推断热产生率，且结果与完整的原子尺度模拟高度吻合。我们的分析还进一步表明，远离平衡的驱动会产生具有非均匀功率谱密度的高度结构化热浴，这反映了离散的声子耦合，而非无特征的连续谱。尽管如此，驱动脉冲有限的频率带宽限制了动态相关的谱窗口，因此，有效的马尔可夫描述在皮秒时间尺度上仍然准确。

尽管这里以钛酸锶（STO）的铁电软模为例进行说明，但这一框架具有普适性，也适用于这种特定材料实现之外的受驱动晶格系统。我们的研究定量揭示了强驱动下耗散、热产生和涨落如何在各个模态中涌现。

在更广泛的层面上，本研究为第一性原理指导的超快热力学开辟了一条路径，使人们能够在量子材料实验中识别、量化并系统地探索非马尔可夫效应。

数据可用性

本研究生成的密度泛函理论数据和NEP模型可通过Zenodo公开获取：https://doi.org/ 10.5281/zenodo.18841778。

致谢

FE、EF和PE感谢瑞典研究理事会（项目编号：2020-04935和2025-03999）以及克努特与爱丽丝·瓦伦堡基金会（项目编号：2024.0042）的资助。RMG和YQ感谢瑞典研究理事会（VR青年研究员项目，项目编号：2022-03350）、奥勒·恩奎斯特基金会（项目编号：229-0443）、隆德皇家生理地理学会（Horisont）、克努特与爱丽丝·瓦伦堡基金会（项目编号：2023.0087）以及查尔姆斯理工大学通过物理系和纳米与材料重点发展领域提供的支持。计算工作使用了瑞典国家学术超级计算基础设施（NAISS）在PDC、C3SE和NSC提供的资源；该基础设施部分由瑞典研究理事会根据资助协议编号2022-06725提供资金。此外，还使用了NSC的Berzelius计算资源，该资源由克努特与爱丽丝·瓦伦堡基金会提供。

*yulong.qiao@chalmers.se † matthias.geilhufe@chalmers.se ‡ erhart@chalmers.se

[1] A. S. Disa、T. F. Nova 和 A. Cavalleri，《自然·物理》**17**，1087（2021）。[2] P. Sal´en、M. Basini、S. Bonetti、J. Hebling、M. Krasil- nikov、A. Y. Nikitin、G. Shamuilov、Z. Tibai、V. Zhauner- chyk 和 V. Goryashko，Physics Reports **836-837**，1（2019）。[3] D. Nicoletti 和 A. Cavalleri，Advances in Optics and Photonics **8**，401（2016）。[4] D. Fausti、R. I. Tobey、N. Dean、S. Kaiser、A. Dienst、M. C. Hoffmann、S. Pyon、T. Takayama、H. Takagi 和 A. Cavalleri，《科学》**331**，189（2011）。[5] A. Subedi，Physical Review B **95**，134113（2017）。[6] T. F. Nova、A. S. Disa、M. Fechner 和 A. Cavalleri，《科学》**364**，1075（2019）。[7] M. Buzzi、D. Nicoletti、S. Fava、G. Jotzu、K. Miyagawa、K. Kanoda、A. Henderson、T. Siegrist、J. A. Schlueter、M.-S. Nam、A. Ardavan 和 A. Cavalleri，Physical Re- view Letters **127**，197002（2021）。

[8] M. Budden, T. Gebert, M. Buzzi, G. Jotzu, E. Wang, T. Matsuyama, G. Meier, Y. Laplace, D. Pontiroli, M. Ricc`o, F. Schlawin, D. Jaksch, and A. Cavalleri, 《自然·物理》17, 611 (2021). [9] S. Latini, D. Shin, S. A. Sato, C. Sch¨afer, U. D. Giovannini, H. H¨ubener, and A. Rubio, 美国国家科学院院刊 118, 10 1073 2105618118 2021 . /pnas. ( ). [10] B. Cheng, P. L. Kramer, Z.-X. Shen, and M. C. Hoff- mann, Physical Review Letters 130, 126902 (2023). [11] D. M. Juraschek, M. Fechner, A. V. Balatsky, and N. A. Spaldin, Physical Review Materials 1, 014401 (2017). [12] D. M. Juraschek and N. A. Spaldin, Physical Review Ma- terials 3, 064405 (2019). [13] B. Cheng, T. Schumann, Y. Wang, X. Zhang, D. Bar- balas, S. Stemmer, and N. P. Armitage, 《纳米快报》20, 5991 (2020). [14] R. M. Geilhufe, V. Juriˇci´c, S. Bonetti, J.-X. Zhu, and A. V. Balatsky, 《物理评论研究》3, L022011 (2021). [15] Y. Ren, C. Xiao, D. Saparov, and Q. Niu, Physical Re- view Letters 127, 186403 (2021). [16] D. M. Juraschek, T. Neuman, and P. Narang, 《物理评论研究》4, 013129 (2022). [17] A. Baydin, F. G. G. Hernandez, M. Rodriguez-Vega, A. K. Okazaki, F. Tay, G. T. Noe, I. Katayama, J. Takeda, H. Nojiri, P. H. O. Rappl, E. Abramof, G. A. Fiete, and J. Kono, Physical Review Letters 128, 075901 (2022). [18] M. Basini, M. Pancaldi, B. Wehinger, M. Udina, V. Unikandanunni, T. Tadano, M. C. Hoffmann, A. V. Balatsky, and S. Bonetti, 《自然》628, 534 (2024). [19] R. M. Geilhufe and W. Hergert, Physical Review B 107, L020406 (2023). [20] J. Luo, T. Lin, J. Zhang, X. Chen, E. R. Blackert, R. Xu, B. I. Yakobson, and H. Zhu, 《科学》382, 698 (2023). [21] F. G. G. Hernandez, A. Baydin, S. Chaudhary, F. Tay, I. Katayama, J. Takeda, H. Nojiri, A. K. Okazaki, P. H. O. Rappl, E. Abramof, M. Rodriguez-Vega, G. A. Fiete, and J. Kono, 《科学进展》9, eadj407 (2023). [22] N. Shabala and R. M. Geilhufe, Physical Review Letters 133, 266702 (2024). [23] N. Shabala, F. Tietjen, and R. M. Geilhufe, arXiv:2511.03329 (2025). [24] A. S. Disa, M. Fechner, T. F. Nova, B. Liu, M. F¨orst, D. Prabhakaran, P. G. Radaelli, and A. Cavalleri, 《自然·物理》16, 937 (2020). [25] C. S. Davies, F. G. N. Fennema, A. Tsukamoto, I. Raz- dolski, A. V. Kimel, and A. Kirilyuk, 《自然》628, 540 (2024). [26] L. Caprini, H. L¨owen, and R. M. Geilhufe, 《自然通讯》15, 94 (2024). [27] Y. Qiao and R. M. Geilhufe, arXiv:2512.17669 (2025). [28] F. Tietjen and R. M. Geilhufe, 《PNAS Nexus》4 (2025). [29] M. Kozina, M. Fechner, P. Marsik, T. van Driel, J. M. Glownia, C. Bernhard, M. Radovic, D. Zhu, S. Bonetti, U. Staub, and M. C. Hoffmann, 《自然·物理》15, 387 (2019). [30] P. A. Fleury, J. F. Scott, and J. M. Worlock, Physical Review Letters 21, 16 (1968). [31] R. A. Cowley, Philosophical Transactions of the Royal Society of London. Series A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences 354, 2799 (1996).

[32] M. Holt, M. Sutton, P. Zschack, H. Hong 和 T.-C. Chi-ang, Physical Review Letters **98**，065501（2007）。[33] K. A. M ¨ **19**, uller 和 H. 3593 1979 Burkard，Physical Review B（）。[34] C. Verdi、L. Ranalli、C. Franchini 和 G. Kresse，Physical Review Materials **7**，L030801（2023）。[35] Z. Fan、Y. Wang、P. Ying、K. Song、J. Wang、Y. Wang、Z. Zeng、K. Xu、E. Lindgren、J. M. Rahm、A. J. Gabourie、J. Liu、H. Dong、J. Wu、Y. Chen、Z. Zhong、J. Sun、P. Erhart、Y. Su 和 T. Ala-Nissila，The Journal of Chemical Physics **157**，114801（2022）。[36] K. Xu、H. Bu、S. Pan、E. Lindgren、Y. Wu、Y. Wang、J. Liu、K. Song、B. Xu、Y. Li、T. Hainer、L. Svens-son、J. Wiktor、R. Zhao、H. Huang、C. Qian、S. Zhang、Z. Zeng、B. Zhang、B. Tang、Y. Xiao、Z. Yan、J. Shi、Z. Liang、J. Wang、T. Liang、S. Cao、Y. Wang、P. Ying、N. Xu、C. Chen、Y. Zhang、Z. Chen、X. Wu、W. Jiang、E. Berger、Y. Li、S. Chen、A. J. Gabourie、H. Dong、S. Xiong、N. Wei、Y. Chen、J. Xu、F. Ding、Z. Sun、T. Ala-Nissila、A. Harju、J. Zheng、P. Guan、P. Erhart、J. Sun、W. Ouyang、Y. Su 和 Z. Fan，Materials Genome Engineering Advances **3**，e70028（2025）。[37] E. Lindgren、M. Rahm、E. Fransson、F. Eriksson、N. ¨Osterbacka、Z. Fan 和 P. Erhart，Journal of Open Source Software **9**，6264（2024）。[38] T. Schaul、T. Glasmachers 和 J. Schmidhuber，发表于 *Proceedings of the 13th Annual Conference on Genetic and Evolutionary Computation*，GECCO '11（计算机协会，纽约，NY，美国，2011）第 845–852 页。[39] G. Kresse 和 J. Furth m ¨ **54**, uller，Physical Review B（）。[40] P. E. Bl¨ochl，Physical Review B **50**, 17953（1994）。[41] G. Kresse 和 D. Joubert，Physical Review B **59**, 1758（1999）。[42] M. Dion、H. Rydberg、E. Schr¨oder、D. C. Langreth 和 B. I. Lundqvist，Physical Review Letters **92**, 246401（2004）。[43] K. Berland 和 P. Hyldgaard，Physical Review B **89**, 035412（2014）。[44] X. Gonze 和 C. Lee，Physical Review B **55**, 10355（1997）。[45] T. Sun、X. Shen 和 P. B. Allen，Physical Review B **82**, 224304（2010）。[46] A. Rohskopf、R. Li、T. Luo 和 A. Henry，材料科学与工程建模与仿真 **30**, 045010（2022）。[47] E. Berger、E. Fransson、F. Eriksson、E. Lindgren、G. Wahnstr¨om、T. H. Rod 和 P. Erhart，Computer Physics Communications **316**, 109759（2025）。[48] G. Kemeny、S. D. Mahanti 和 T. A. Kaplan，Physical Review B **34**, 6288（1986）。[49] L. Dabelow、S. Bo 和 R. Eichhorn，Physical Review X **9**, 021009（2019）。