

AI 预测电子密度的研究进展

- **ML替代DFT预测电荷密度**：近期多项工作提出用深度学习预测材料体系的电子密度或电势分布。Fiedler 等 (NPJ CM 2023) 开发了线性缩放的ML框架 (MALA)，可在任意尺度上以三量级提速预测体系的电子结构¹。Del Rio 等 (NPJ CM 2023) 构建端到端神经网络，将原子结构映射到电子密度并进一步预测能带结构、能量和力等²。Koker 等 (NPJ CM 2024) 提出ChargE3Net，对 E(3) 对称的图神经网络进行高阶张量扩展，能高精度预测晶体和分子体系的电荷密度³。上述模型训练数据多样，其中部分工作特别包含了电池材料：如 ChargE3Net 在材料基因组库 (Materials Project) 的 10 万+体系上训练，其中包括锂离子电池阴极正极材料 (NMC) 数据集⁴；另有 Equivariant DeepDFT 模型 (NPJ CM 2022) 使用了锂离子电池材料数据集 (混合过渡金属层状氧化物阴极) 作为训练集⁵，并已展示该模型能够以良好精度捕获拆锂过程中的电荷转移 (红氧化)⁶。此外，Jørgensen 等人 (ChemRxiv 2023) 利用等变图神经网络预测 NASICON 钠离子电池正极 $\text{Na}_3\text{V}_2(\text{PO}_4)_3$ 的电子密度、原子力和能量等，实现了数百原子体系纳秒级 MD 模拟⁷。上述研究表明，AI 模型可以以远低于 DFT 的开销获得接近 DFT 精度的电子密度分布和相关物性，为大规模虚拟表征奠定基础。
- **电荷密度数据库与工具**：还有一些公开框架和数据库支持 ML 电子密度预测研究，例如 Ramprasad 实验室推出的“DeepDFT”代码库 (开源) 可直接生成体系的电子密度和态密度；此外，各种 GNN 框架 (如 SchNetPack、NequIP 等) 也可用于此类任务。在工具层面，abTEM 等开源 TEM/STEM 多层切片仿真工具能够直接读取用户提供的电荷密度数据并计算相应的散射电势。根据 abTEM 文档说明，用户可使用 `ChargeDensityPotential` 类将任意给定的电子电荷密度 (NumPy 数组) 输入，用以生成投影电势并进行多层切片传播⁸。

STEM 仿真工具和框架

- **abTEM**：abTEM 是一个用于电子显微镜模拟的 Python 库，支持普通多层切片和 PRISM 算法。该工具可直接整合 ASE (原子模拟环境) 构建的结构模型，并允许将第一性原理计算 (如 GPAW DFT) 得到的电荷密度或电势用于仿真⁹。GitHub 示例指出，abTEM 可在 Python 环境中方便调用，实现任意原子模型的 (S)TEM 图像模拟⁹。
- **Dr. Probe 等软件**：类似地，Dr. Probe 是一个 GUI 化的多层切片仿真程序，可生成 HAADF/STEM 图像¹⁰。尽管 Dr. Probe 主要基于原子散射因子和幂级数模型，但也可结合输入电势使用。其他工具如 QSTEM、TEMSIM、Prismatic 等也提供 (S)TEM 图像仿真功能，可以利用 DFT 或经验势计算的散射电势进行计算。

电池材料领域应用现状

- **已有案例**：尽管目前未见文献完整报道将 AI 生成的电荷密度直接输入 abTEM 或同类软件以批量生成电池材料的 STEM 图像，但相关研究工作可为此提供基础。例如，ChargE3Net 的训练数据集中包含锰镍钴三元锂电池阴极 (NMC) 材料⁴；DeepDFT 模型针对 NMC 正极构建了超胞 (含 12 个过渡金属、12 个 Li/空位点) 数据集⁵，并验证了模型对拆锂过程 (Li 迁出) 下电荷密度变化的捕捉能力⁶。这些模型的高效预测能力意味着未来可结合 TEM 仿真工具，用 ML 预测的密度生成大规模虚拟微观结构图像。例如 DeepDFT 已被提出用于筛选最优 NMC 配方⁶，相当于通过电荷密度预测间接辅助材料设计。此外，图神经网络生成的 $\text{Na}_3\text{V}_2(\text{PO}_4)_3$ 正极电子密度和动力学数据⁷ 也为钠电池材料中电荷输运机理研究提供了新路径。总体来看，相关框架 (如 DeepDFT、ChargE3Net、MALA 等) 均可应用于电池材料的原子尺度设计与表征，只是目前尚未看到公开工作将其与 abTEM 等 (S)TEM 仿真结合起来进行虚拟表征或缺陷筛选。

结论

综上，已有多项研究利用 AI/ML 模型预测材料的电子密度或相关物性（如电势、态密度、能量等）^{1 2 3}。同时，开源 TEM/STEM 仿真工具（如 abTEM ^{9 8}）可以接受用户提供的电荷密度进行图像模拟。尽管目前文献中尚无完整报道将前者与后者相结合的案例，但所需各环节技术均已存在：未来可设想将 AI 生成的高保真电荷密度用于 abTEM，多尺度快速生成大量 STEM 图像，以支持电池材料的虚拟表征和高通量筛选。

参考资料： 我们检索到的相关文献和工具包括：Fiedler et al. ¹、del Rio et al. ²、Koker et al. ³、Gupta et al. (DeepDFT) ^{5 6}、Jørgensen 等 ChemRxiv 预印本 ⁷ 等；工具方面可参考 abTEM 文档 ⁸ 及其示例 ⁹。以上资料均指向公开发表或开源资源，可提供更深入信息。

¹ Predicting electronic structures at any length scale with machine learning | npj Computational Materials

https://www.nature.com/articles/s41524-023-01070-z?error=cookies_not_supported&code=e28ba942-42a7-4381-8c18-f6a495efd27e

² A deep learning framework to emulate density functional theory | npj Computational Materials

https://www.nature.com/articles/s41524-023-01115-3?error=cookies_not_supported&code=f135bb02-3c0b-43a6-b614-29260cb7e8f9

^{3 4} Higher-order equivariant neural networks for charge density prediction in materials | npj Computational Materials

https://www.nature.com/articles/s41524-024-01343-1?error=cookies_not_supported&code=0e265b1a-30ca-4479-b8d4-077f7b6a7fdf

^{5 6} Equivariant graph neural networks for fast electron density estimation of molecules, liquids, and solids | npj Computational Materials

https://www.nature.com/articles/s41524-022-00863-y?error=cookies_not_supported&code=1739136d-9d76-483b-a6db-a1ac080c57ee

⁷ Nanosecond MD of battery cathode materials with electron density description | Energy | ChemRxiv | Cambridge Open Engage

<https://chemrxiv.org/engage/chemrxiv/article-details/64832b1fbe16ad5c57b1ee91>

⁸ charge_density

https://abtem.readthedocs.io/en/latest/reference/api/_autosummary/abtem.potentials.charge_density.html

^{9 10} GitHub - realitychemist/tem_simulation_examples: Example files for (S)TEM simulation w/ Dr Probe and abTEM

https://github.com/realitychemist/tem_simulation_examples