KS方程可通过自洽的方式求解. 式2.4表明, 在求解KS方程之前必须使用一组初始的基函数, 由这些基函数确定初始的电荷密度. 由电荷密度确定KS方程中的各种势(式2.5), 从而确定KS方程的哈密顿量, 解哈密顿量的本征方程式2.7, 即可确定一组非收敛的本征波函数(以及本征能量). 将该组本征函数重新作为输入, 继续求解式2.7直到体系能量收敛. 由收敛后波函数和电荷密度即可确定该体系基态的总能以及其他物理量算符的期待值.

虽然KS方程的自洽过程虽然简单, 但是KS方程的实际求解过程却十分复杂, 此处只简要概述一些需要特别注意的关键步骤.

1. 交换关联泛函的选取. 对于一般的氢原子体系和很多金属, GGA泛函相比于比LDA泛函可以给出更精确的解, 所以一般使用GGA泛函即可, 如PW91和PBE泛函. 对于一些要求更加精确的计算, 亦可使用杂化泛化, 但是要十分注意精度与时间消耗的权衡.

2. 基组, 赝势, 计算方案. 基函数的选取不是随意的, 必须保证其在迭代的过程中不会发散, 收敛迅速, 并且在保证精度的前提下其使用数目必须尽可能的小等, 从而可以使用最小的计算量拟合最终的KS轨道. 最简单的基函数是平面波函数(自由电子气的本征函数)和原子轨道. 平面波只适合描述价电子的波函数, 而不适合描述内层电子的波函数(无法描述内层电子波函数的震荡性), 所以晶体中的基函数并不能使用单一类型的平面波函数, 而必须构造一种同时适合内外电子的赝波函数. 赝波函数可通过以确定的赝势与KS方程来计算, 赝势可简单的认为是离子实对内外电子的势. 根据离子势和基函数构造的不同, DFT计算方案可分为LCAO(原子轨道线性组合), PP-PW(赝势平面波), LMTO(线性MT轨道), LAPW(线性缀加平面波)等.

3. K空间求解KS方程.