arXiv:2611.32265v1 [physics.comp-ph] 24 Nov 2026

单层 CrS_2 多晶型在双轴应变下的第一性原理相图及其对 Hubbard U 参数的敏感性

Rashmi Ranjan Routaray,[1,*] Ali Ghojavand,[1] 和 Eric Bousquet[1,†][1]比利时列日大学 *Q-MAT* 材料理论物理系，*B-4000 Sart-Tilman*(日期：2026年11月25日)

在关联型二维磁体中，竞争性电子相与磁相之间的平衡往往由位点库仑相互作用的强度决定，因此预测的基态可能取决于一个定义并不唯一的参数。单层 CrS_2 正处于这一范畴，其中存在若干能量相近的多晶型，其性质从非磁性半导体到磁有序金属不等。因此，我们采用广义梯度近似下的 DFT $+U$，研究单层 CrS_2 的 1H、1T、1T′和 1T″ 多晶型在不同 Hubbard 相互作用（$U = 0$–8 eV）及双轴应变（-10% 至 $+10\%$）下的结构、磁性和电子性质。衍生自 1T 相的结构始终保持金属性和磁性，其中 U 主要起到谱重整化的作用。1H 相则表现不同：它从非磁性半导体转变为反铁磁半导体，随后变为金属；随着 U 增大，带隙闭合，而局域 Cr 磁矩单调增大。在固定 U 时施加双轴拉伸应变，也会引发类似的转变序列。在这两种调控路径中，两个不等价的最近邻 Cr–Cr 交换通道逐渐分离并交叉，平行自旋通道逐渐占据主导，同时伴随呼吸型键歧化。采用局域轨道实现的独立计算重现了整体演化趋势，但得到的 U 临界值和应变临界值有所偏移，这证明了相图具有稳健性，同时也凸显了相变阈值对具体实现方式的依赖。

I. 引言

在原子级薄材料中控制、调节并进行空间图案化的电子相和磁相，是下一代纳米电子技术的一项关键目标。二维（2D）过渡金属二硫属化物为实现这一目标提供了灵活的平台，使人们能够在单个原子层内实现能带结构工程、自旋操控以及应变调控功能 [1,2]。除传统的单粒子能带工程之外 [3]，，电子–电子相互作用还引入了额外的自由度，从而能够产生金属–绝缘体转变 [4]，、竞争磁序 [5]，，以及电子、自旋与晶格自由度之间的强磁弹耦合 [6, 7]。这些效应之间的相互作用，为调控相变并稳定不同的电子态和磁态创造了机会，并有望应用于纳米尺度的自旋电子器件和电子器件 [8–10]。

单层二硫化铬（CrS_2）为探索这些效应提供了一个有趣的平台。作为一种具有部分占据3d态和强烈铬–硫杂化的铬基二硫属化物，它呈现出若干低能多晶型，其电子性质和磁性迥异，涵盖从非磁性（NM）半导体态到磁有序金属态的多种状态 [11, 12]。提出的结构包括三角棱柱型1H（也称为2H）相和八面体1T相，以及分别与铬子晶格二聚化和三聚化相关的1T′ 和1T″ 衍生相。近期还预测了一种额外的正交多晶型 [13]，；而在化学气相沉积的单层CrS_2 [11]中，实验观察到了1H、1T和1T′相共存。最近，有报道称通过无催化剂生长制备了层状1T-CrS_2，并发现其具有高于室温的铁磁性、面外磁易轴，以及低温下的拓扑霍尔响应 [14]。鉴于这些竞争相在能量上十分接近，较小的外部扰动就可能足以显著改变CrS_2的结构、电子性质和磁性基态。

早期的第一性原理研究确立了1H-CrS_2 为一种NM半导体，其PBE带隙为1.0–1.3 eV [15, 16]。Zhuang 等进一步发现，无论采用PBE、HSE06还是范德华泛函，1H结构的能量都低于1T结构；同时不存在虚声子频率，并且在600 K的分子动力学模拟中也未发生结构相变 [16]。后续研究在半局域和杂化水平上结论一致，但一旦加入在位库仑修正，结果便出现分歧；因此，CrS_2 的计算基态取决于如何处理该修正。Chen

等人在 PBE 和 HSE06 下都认为 1H 相能量最低：从 PBE 改用 HSE06 后，1T 和 1T′ 相相对于 1H 相的能量大致翻倍，从 0.37 和 0.34 eV/f.u. 升至 0.76 和 0.71 eV/f.u.，但相的判定不变：1H 相是带隙为 1.35 eV 的非磁性半导体，1T 相是反铁磁（AFM）金属，1T′ 相是铁磁（FM）半导体 [12]。据此，他们

* rrr.phy@gmail.com
† eric.bousquet@uliege.be

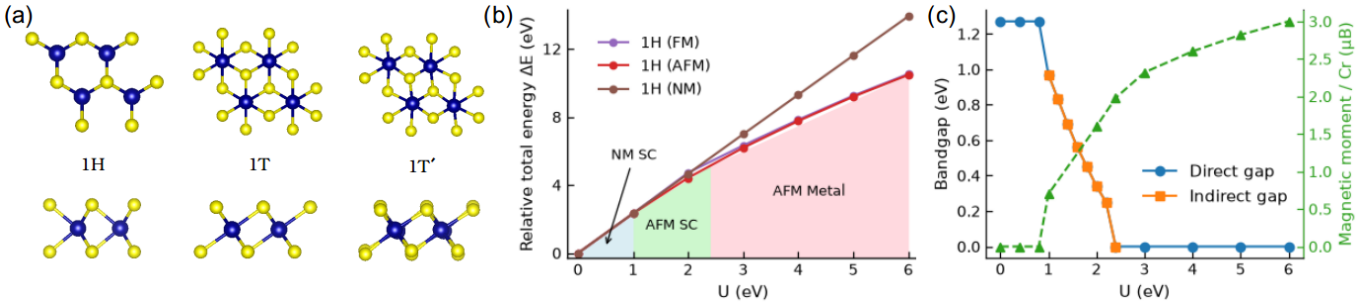


图 1. **(a)** 弛豫后单层 CrS_2 多晶型（1H、1T 和 1T′）的俯视图和侧视图，突出显示其不同的配位几何构型。由于在该尺度下与 1T 无法区分，省略了 1T″ 。**(b)** 不同磁构型下，1H 相的相对总能量随 Hubbard U 参数的变化。阴影区域表示依次出现的电子和磁态区间：非磁性半导体（NM–SC）、反铁磁半导体（AFM–SC）和反铁磁金属（AFM–M）。**(c)** 直接带隙和间接带隙（左轴）以及 Cr 局域磁矩（右轴）随 U 增大的演化，展示了带隙闭合与磁序出现之间的耦合。

认为，对于 CrS_2,， U_{eff} 应保持在约 1 eV 以下，因为更大的取值会颠倒相的能量排序 [12]。Habib等人采用第三种计算程序，得到了相同的规律：在 GGA 下，1T 和 1T′ 相相对于 1H 相的形成能分别为$+0.52$ 和 $+0.37$ eV/每个 CrS_2 ；在 HSE06 下则分别为 $+0.71$和 $+0.33$ eV。但当 $U = 2.8$ 取值为 eV 时，1T′相的能量降至 -0.02 eV，略低于 1H 相 [11]。Wang等人采用 PBE+U，在相同的 $U = 2.8$ eV 取值下得出了相反结论：他们发现，条纹型反铁磁 1T 相的能量比非磁性 1H 相低 20 meV/Cr 以上；在整个 $U = 1$–5 eV 范围内，能量排序均保持不变。他们据此认为，要重现实验推断出的铬硫属化物磁性基态，必须加入 Hubbard项 [17]。该化合物通常采用 2.8–3.0 eV 的取值 [13, 17, 18]。仅靠从第一性原理计算 U 并不能解决这一分歧，因为报道的 CrS_2,线性响应值为 1.5–2.5 eV，已处于 $+U$ 排序不同于 PBE 和 HSE06 结果的范围内 [17]。

各个相的电子性质已得到更好的确认。在包含自旋–轨道耦合的广义梯度近似PBE水平上，1H-CrS_2 是直接带隙为 0.95 eV 的半导体，1T 相具有金属性，而 1T′ 具有约 32 meV 的基本带隙，作者将其描述为半金属性；1H 相的带隙归因于已填充的 d_{z^2}能级低于未占据的 d_{xy} 和 $d_{x^2-y^2}$ 态 [11]。然而，1T 相在实际中并不稳定：在 300 K 下进行从头算分子动力学模拟表明，Cr 原子在 6 ps 内发生二聚化，使其转变为 1T′ [11],，这与该结构中发现的不稳定声子支相符 [19]。在 1H-CrS_2, 中，压缩应变会增大带隙，同时保持其直接带隙特征 [16],；单层在从 -6% 到 $+6\%$ 的应变范围内均保持动力学稳定，而在拉伸应变超过 2% 后会发生直接带隙到间接带隙转变 [20]。应变也被用于调控铬二硫属化物中的磁序。Lv等人发现，双轴拉伸应变超过 2% 时，1T-$CrSe_2$ 会从反铁磁转变为铁磁；低于 -1% 时，1T-$CrTe_2$ 则会从铁磁转变为反铁磁。他们将这种转变归因于反铁磁Cr–Cr直接交换与铁磁 $_2$ Cr–X–Cr 超交换之间的竞争，其中前者会随 Cr–Cr 距离增大而迅速减弱而后者则不会 [21]。对于 CrS_2本身，Kumari等人 在 $U = 2.8$ eV 下对 1T 相施加双轴应变，并报告了应变超过 2% 时发生反铁磁到铁磁的转变、易轴随应变变化，以及零应变和应变为 $+8\%$ 时的蒙特卡洛有序温度分别为 455 K 和 516 K；Cr 磁矩为 2.8–3 μ_B ，他们将其归因于 S→Cr 电荷转移 [18], 所产生的混合 Cr^{3+}/Cr^{4+} 价态。相比之下，预测的正交相在从 -5% 到 $+5\%$ 的整个范围内均保持其铁磁半金属性 [13]。因此，应变响应强烈依赖于多晶型。在非磁性的 MoS_2 和 WS_2 2D 材料中也有类似的应变诱导带隙减小和闭合现象报道 [22–25]。

在本工作中，我们对单层 CrS′、以及 1T″ 结构开展了第一性原理研究$_2$ ，考察其在不同 Hubbard U 和双轴应变下的性质，追踪所有相中结构对称性、磁序和电子特征的演化。尽管 1T 衍生结构表现出总体上较为常规的、随 U 增强的金属性，1H 相则经历了从 NM 半导体到 AFM 半导体态、最终转变为金属性的过程。解析相图随 U 的变化，使我们能够区分 CrS_2 基态中稳定的特征与由U的选取所导致的特征，从而直接比较文献 12 和 17中的归属。我们还提取了 1H 相的磁交换相互作用，并追踪伴随磁性转变出现的 Cr–Cr 键 disproportionation。

两项较早的研究与本文主题相近，因此有必要加以区分。Chen等人提出利用 CrS_2 多晶型之间的差异，在单片薄层中实现横向、应变控制的自旋电子学，研究对象是单轴应变下的 1H、1T 和 1T′ 相 [12]；而我们研究的是双轴而非单轴应变，厘清了他们搁置不论的相互作用参数依赖性，并提取出交换相互作用，因此我们能够说明多晶型差异的来源，而不是仅从能带结构中读出这种差异。Kumari 等人只研究了特定 U [18] 值下的 1T 相；而本文对

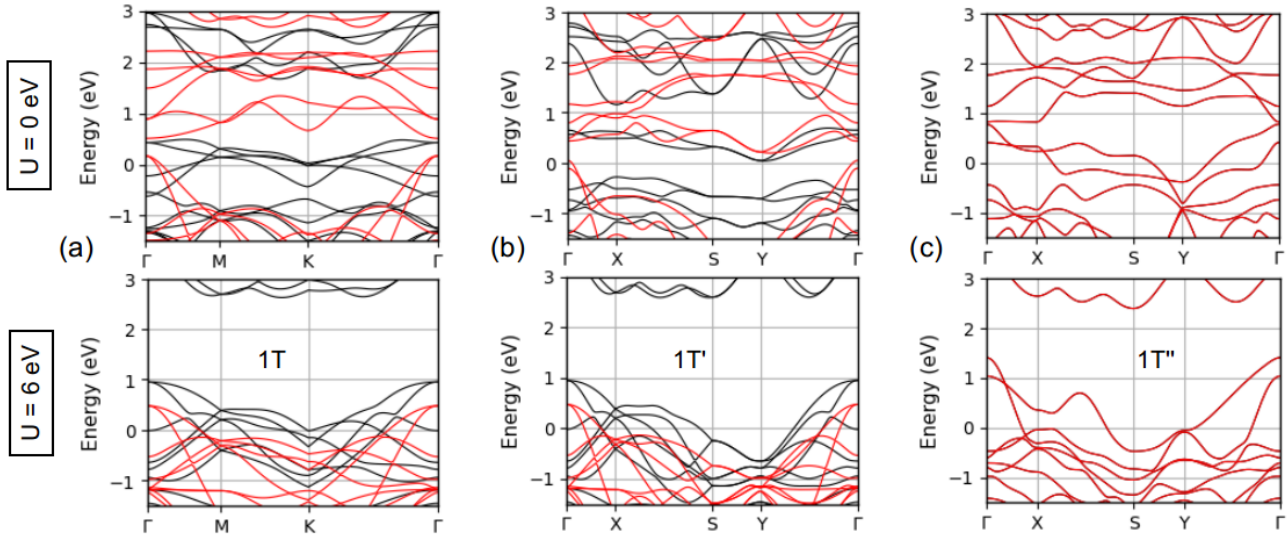


图 2. 代表性 Hubbard U值下 1T、1T′ 和 1T″ （分别对应 a、b、c）的自旋分辨能带结构（上图 U=0eV，下图 U=6eV）。增大 U 会增强交换劈裂，并使已占据和未占据的 Cr-d态分离，同时这些相的金属性和磁序保持不变。

多晶型之间的比较以及对 U 的依赖性本身就是研究对象，而响应最强的相是 1H 相。通过阐明应变如何支配相稳定性和电子重构，本研究确定了在二维材料中实现应变驱动相工程的实用途径，这与柔性自旋电子器件相关 [26–28]。

II. 结果与讨论

A. Hubbard U 参数对 CrS_2性质的影响

图 1a 展示了 1H、1T 和 1T′ 相的弛豫结构。它们的区别在于两个硫子层在 Cr平面两侧的堆叠方式。在 1H 相（$P\bar{6}m2$）中，两个硫层彼此正对，每个 Cr 原子与六个 S原子形成三棱柱配位；而在 1T 相（$P\bar{3}m1$）中，其中一层相对于另一层旋转了 $60°$ ，形成八面体配位。

在图 1b 中，我们展示了不同磁构型下，随着 Hubbard U 增大，1H 相的相对总能量变化。在低 U（$<$1 eV）时，1H 相的 NM 构型在能量上更有利，各自旋构型之间的能量差异很小，这与 NM 基态相符 [16, 29]。此处考察的 AFM 构型是磁性超胞中的共线反平行排列 2×1 。随着 U 增大，AFM 构型在能量上逐渐占优，表明增强的电子局域化驱动了磁有序的出现。这些趋势界定了依次出现的电子与磁态区间，包括 NM半导体（NM–SC）、AFM 半导体（AFM–SC）和 AFM 金属（AFM–M）。由于 FM 和 AFM 曲线之间的能量差相对较小（最高为 300 meV），与 U 变化范围内的整体能量变化相比微不足道，因此在此尺度下两条曲线几乎重叠。不同多晶型的总能量比较见补充材料 [30] 图 S1，其中在中间 U 区间（$\approx$ 1–1.5 eV）观察到相稳定性交叉，这与早期研究一致 [12, 17]。值得注意的是，所有相的能量均随 U 平滑且单调地变化，表明不存在突发的能量或结构不稳定性，并使得对相互作用驱动的电子趋势进行有意义的比较成为可能。

图 1c 展示了带隙（直接和间接）及 Cr 局域磁矩随 U 参数增大而变化的情况，清晰地 delineate 了依赖于 U 参数的不同区间。有限磁矩的出现早于带隙的缩小，这表明磁有序在电子带隙开始显著闭合之前便已形成。在较高的 U 参数下，带隙闭合，体系演变为金属性相，凸显了电子结构与磁序之间的强耦合。

1T 衍生多形体对不断增大的 Hubbard U 呈现出总体上常规且稳健的响应，如图2 所示（参见关于若干二维磁体所报道的类似行为 [31]）。对于 1T(FM) 和 1T″（反铁磁）相，增大 U 会增强已占据与未占据 Cr-d能带之间的分离，导致费米能级以上打开带隙，而穿越费米能的能带保持不变。因此，在整个 U范围内，这两个相均保持其金属性和磁序；Hubbard U 主要用于重整化较高能态，而不是诱导金属–

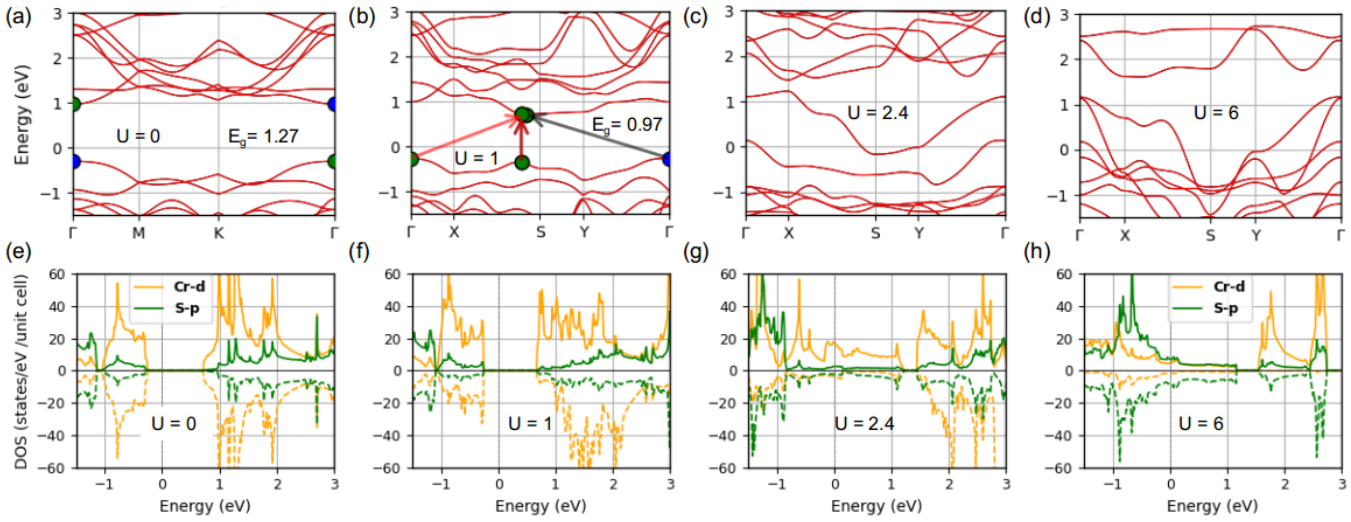


图3. (a–d) U = 0、1、2.4 和 6 eV 下 1H 相的能带结构，涵盖 NM–SC、AFM–SC 和 AFM–M 区域，显示了对称性降低、布里渊区折叠、带边迁移以及最终的能带重叠。(e–h) 对应的自旋分辨、 m投影的每晶胞态密度，展示了反铁磁性的出现以及 Cr 局域磁矩的增长。实线和虚线分别表示自旋向上和自旋向下通道。

绝缘体转变。

1T′（FM）相呈现出略为丰富但仍属常规的演化。在低 U 下，它是具有低载流子密度的自旋极化金属，其中一个自旋通道在费米能级附近占主导地位。随着 U 增大，自旋不对称性减弱，并出现额外的能带交叉，使体系平滑过渡到完全金属态，而其底层铁磁序保持不变。由于 DFT+U 计算可能表现出与不同占据矩阵相关的亚稳态解 [32], ，因此应当注意可能存在的亚稳性。总体而言，1T 衍生相保留了其底层磁序，而 U 主要改变电子谱，而非诱导定性的磁重构。

相比之下，随着 Hubbard U 增大，1H多形体呈现出显著不同的响应，如图3(a– h) 所示。在 U=0时，该系统是一个非磁性半导体，在 K 点具有约 1.27 eV 的直接带隙（图3(a,e)）。导带和价带主要具有 Cr-d特征，自旋极化可忽略，且自旋通道彼此分离。

当将 U参数 增大至 1 eV 时，反铁磁序开始形成，这一点可从投影态密度中自旋不对称性的出现（图 3(f)）以及能带结构中简并的解除（图 3(b)）中明显看出。这一转变伴随着带隙减小至约 0.97 eV，以及导带和价带极值显著偏离高对称点——这表明发生了对称性破缺、能区折叠以及新的d轨道杂化。该行为与 d轨道主导体系中的传统预期形成对比，在后者中，增大的 U参数 通常会使带隙增宽；而在此处，结构与磁对称性破缺占据主导地位，导致带隙减小 [33, 34]。

当 U=2.4 eV 时，带隙闭合，体系转变为反铁磁金属（图 3(c,g)），价带与导带在不同的 k 点处发生重叠。费米能级附近的态密度变得越来越不对称，且自旋极化的 Cr-d 态主导低能激发。随着 U 参数进一步增大，金属性变得更加明显；在所考察的最大数值下，体系仍保持金属性（图3(d,h)）。值得注意的是，这一演化过程平稳进行，没有出现任何突发的结构不稳定性或能带反转，凸显出这是一种连续的相互作用驱动的转变，而非不连续相变 [4, 35]。

在较低和中等 U参数下，硫的 p 态仍与费米能级充分分离，表明其演化由 Cr-d流形内部的重组所主导。费米能级附近自旋分裂的 d_{xy}、$d_{x^2-y^2}$和 d_{z^2} 态选择性增强，表明局域磁矩开始形成，并出现依赖轨道的自旋极化。值得注意的是，在较高 U参数下，硫的 p轨道开始在价带边缘附近发挥更显著的作用，尤其是在自旋向下通道中，这表明低能谱中的 $p-d$ 杂化和配体参与程度不断增加。这表明，金属态区间不仅由 Cr-d能带重组塑造，也受到共价性增强和依赖自旋的电荷重分布影响，这与低维材料中配体辅助的相互作用驱动转变相一致 [36, 37]。配体参与的另一项证据是，在较大的 U参数下，局域 Cr 磁矩超过 3 μ_B （图1c），高于 2 μ_B 一个 d^2 Cr^{4+} 离子预期的纯自旋值。这表明 Cr^{3+} 发生部分还原，同时硫子晶格上形成空穴；1T 相中也有类似报道 [18]。要判断这一趋势是否足以将金属态归

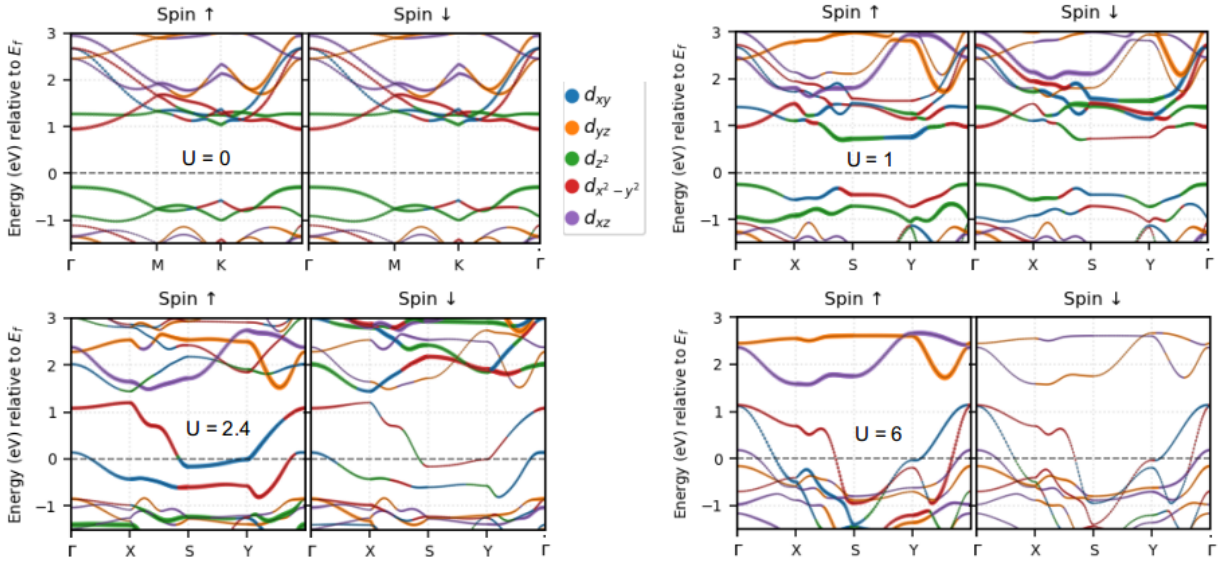


图 4. 1H 相在与图中相同临界 U 值下的轨道投影胖能带表示3，凸显带隙减小和闭合反映的是相互作用诱导的能带重组与轨道重排，而非传统的莫特型带隙开启。

入 Zaanen–Sawatzky– Allen 分类中的电荷转移侧 [35] ，需要对电荷转移能 $\Delta = \varepsilon_d - \varepsilon_p$ 进行明确评估，这超出了本研究的范围。本文报告的计算仅表明，随着 U参数增大，价带边缘处 S-p 权重逐渐增加。

图中的轨道分辨胖能带图进一步阐明了这些趋势4，追踪了 k 分辨的各个 Cr d 轨道贡献随 U 增大的变化。在低 U 下，价带与导带主要源自 t_{2g} 型轨道，轨道混合有限，自旋不对称性较弱。然而，随着 U 增大，尤其是超过磁序开始形成的临界值（约为 U ≈ 1 eV）后，自旋通道间出现显著不对称：自旋向上态在费米能级附近的权重增加，而自旋向下态则逐渐受到抑制。这一演变表明局域 Cr 磁矩的形成，以及谱权重分布日益呈现轨道依赖性，在 $d_{x^2-y^2}$ 和 d_{z^2} 轨道中尤为明显 [34]。与此同时，磁性和结构重排引起的对称性降低，使原先相互解耦的轨道之间出现能带折叠和杂化。这种折叠使价带与导带边缘在动量空间中彼此靠近，从而促使间接带隙缩窄。这一演变与图 1c 所示的带隙和磁矩变化趋势一致，其中带隙闭合与磁序的出现相伴。

这表明，在固定几何结构下改变 U参数，可以探究电子结构对轨道局域化的敏感性。在实际材料中，这种局域化受成键、配位和屏蔽等结构因素影响，而这些因素本质上取决于环境 [38–41]。

B. 外延应变的影响

现在，我们将双轴应变视为通过晶格调制调控电子结构的一种直接物理途径。双轴拉伸应变是一种实验上可行的方法，可通过改变原子间距和键角来调控跃迁振幅、带宽和磁交换路径 [42–44]。需要指出的是，零应变下的 1T 相作为自由悬空单层在动力学上不稳定，并倾向于重构为 1T′ 相 [11, 19]。尽管如此，我们仍将此处的应变 1T 结构作为参考构型，以追踪晶格形变对其电子和磁性性质的影响。本研究未对这些应变结构进行声子计算，因此尚未评估其动力学稳定性，尤其是超出已确定稳定范围 [20], 的情况。

为评估双轴应变下相稳定性的演变，我们考察了 U_2 参数为=0.6 eV 时四种 CrS多晶型的总能量变化，如图 5(a) 所示。在零应变下，1H 相是基态；然而，在压缩应变和拉伸应变下，其能量上升都比 1T 衍生相更陡。值得注意的是，当压缩应变超过 $\sim -8\%$ 时，1T 衍生相的能量低于 1H 相，表明发生了应变驱动的多晶型交叉。在 1H 相中，可见两次磁性转变：在接近 ∼2–3% 的拉伸应变下，从 NM 半导体态转变为 AFM 半导体态；随后带隙闭合，在约 7% 应变时形成 AFM 金属，这与上一节中随 U 参数增大而观察到的演变相似。对于 1H-CrS_2, , 我们的结果再现了此前报道的带隙应变依赖性和直接带隙到间接带隙的交叉 [20], , 同时将分析扩展至

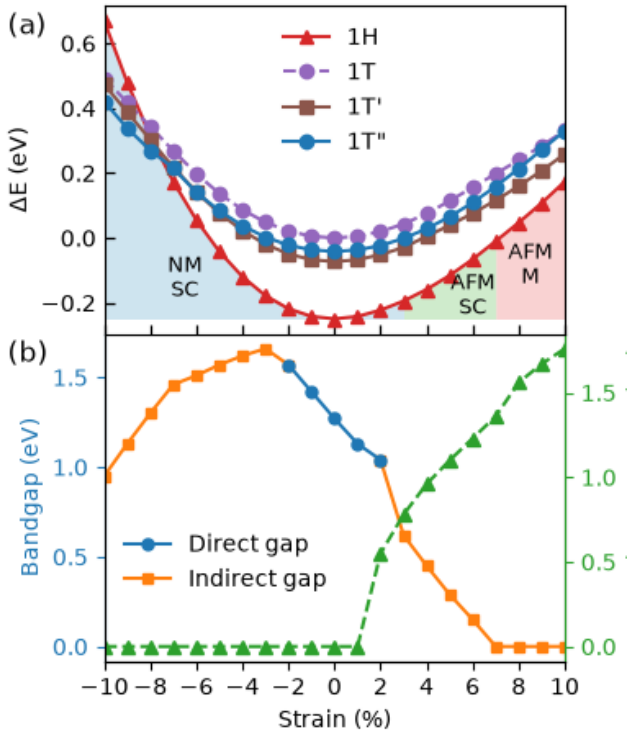


图 5。（a）所有四种 CrS_2 多晶型的每个化学式单元（f.u.）总能量随双轴拉伸应变的变化。1H 曲线上的彩色区域表示应变诱导的电子结构和磁相。（b）1H 相中带隙和磁矩的应变依赖性，展示了带隙闭合和磁性的出现。

更大的拉伸应变范围，并考察相应的磁性响应。

应变对电子结构的影响在图 5b 中得到了更直接的体现，我们在此跟踪 1H 相的直接带隙和间接带隙，以及 Cr 局域磁矩。在压缩应变下，直接带隙起初增大，在达到最大值后于更大压缩幅度下减小。当 U=0.6 eV 时，基本带隙在约 -2% 至 $+2\%$ 应变范围内保持为直接带隙，而在该范围之外变为间接带隙。压缩应变下带隙的增大总体上与 Zhuang 等人的结果一致。 [16]然而，我们的压缩应变结果与 Chen 等人的结果不同。 [20]，他们发现整个压缩应变范围内均为直接带隙，而在接近 $+2\%$ 拉伸应变处出现的直接带隙到间接带隙的交叉则与他们的发现一致。在拉伸应变下，间接带隙逐渐减小，并最终闭合，此时体系转变为反铁磁金属。有限的 Cr 磁矩在超过约 2–3% 拉伸应变后出现，并随后持续增加。

有趣的是，拉伸应变会产生与增大 U参数相同的演化序列。磁序首先出现，带隙变窄，系统最终转变为金属性。相关的 Cr 基单层材料中也报道了磁性和电子行为对拉伸应变与 Hubbard U 的类似双重敏感性 [45]。

如图 6 所示，在 0% 和 7% 拉伸应变下，所有四种多晶型的动量分辨能带结构都清晰呈现了应变驱动带隙闭合的微观起源。具体而言，应变会诱导能带平带化、导带和价带极值发生移动，并最终导致二者重叠。这些特征源于应变驱动的对称性破缺和布里渊区重构，增强了 Cr-d轨道之间的杂化，即使不引入额外的电子相互作用效应，也能实现带隙闭合 [43, 44]。

相比之下，1T 衍生多形体没有表现出显著的定性转变。在施加应变后，其金属性仍然稳定，主要表现为带宽和能带色散发生变化，而不会触发带隙打开或磁性重构。这种稳定性凸显了 1H 相在外部扰动下对应变驱动电子重组具有独特的增强敏感性。补充材料 [30]图 S2 展示了 Cr-d 派生态在费米能级附近发生的类似重组，这与图 4 中随 U参数增大而观察到的重组相似。在这两种情况下，能带极值都会在动量空间中发生移动，并且d_{xy}、d_{z^2}和 $d_{x^2-y^2}$ 态在系统趋近金属态区间时，都在费米能级附近获得更大的权重。结合图 5，这些结果表明，双轴应变能够驱动对称性破缺、电子相变和磁性重构，尤其是在 1H 多晶型中施加拉伸应变时。

在 1H 相中，应变通过调节带宽和交换路径，引发一系列磁性和电子转变，从而为调控局域化与巡游性电子特征之间的平衡提供直接途径。

C. 交换相互作用与磁弹耦合

为在相互作用和应变驱动的相变与其 underlying 磁性相互作用之间建立微观联系，我们使用以下海森堡自旋哈密顿量，提取 1H 相的有效交换参数：

$$\mathcal{H} = -\sum_{i \neq j} J_{ij}\, \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j, \qquad J_{ij} \in \{J_1, J_1', J_2, J_2', J_3, J_3'\}, \tag{1}$$

其中， J_{ij} 表示位于 i和 j处的 Cr 磁矩之间的交换相互作用。

由于电子相互作用（通过 U参数）和应变导致对称性降低，高对称相中晶体学上等价的 Cr–Cr 对

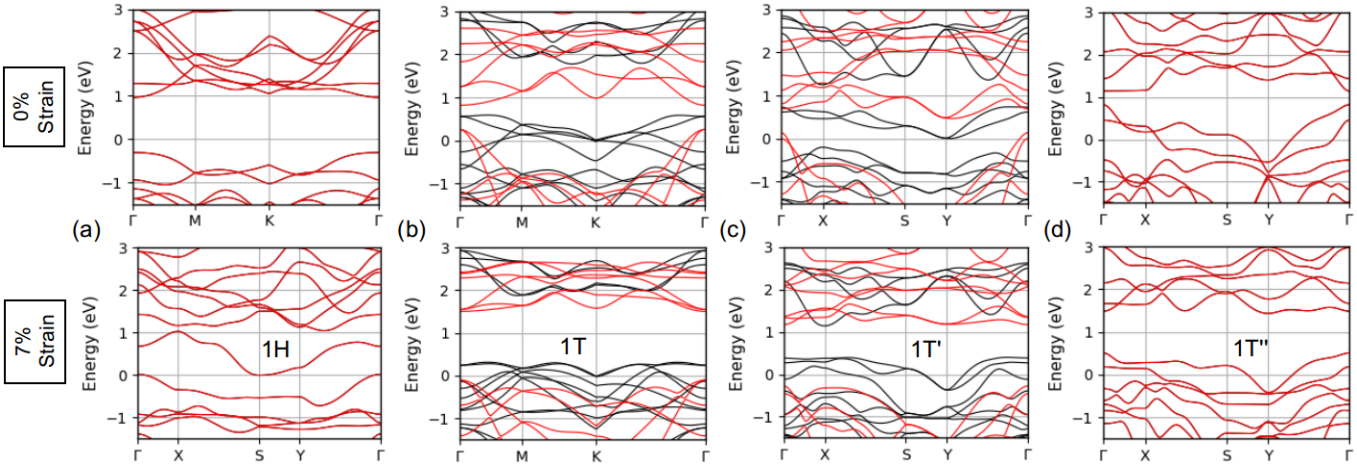


图 6. 四种 CrS_2 多晶型（1H(a)、1T(b)、1T′(c)、1T″(d)）的自旋分辨电子能带结构，分别显示（上图）无双轴应变和（下图）施加双轴应变（7%）的情况。适用时，红色和黑色分别表示自旋向上和自旋向下通道。

分裂为不等价的交换通道，分别记为J_1，J_1'，J_2，J_2'和J_3，J_3'对应不同的最近邻和次近邻路径 [31, 46]。

图 7(a) 展示了实空间中的 Cr–Cr 磁相互作用网络示意图：最近邻（J_1、J_1'）、次近邻（J_2、J_2'）和第三近邻（J_3、J_3'）路径，以及相应的键长R_1和R_2。电子相互作用（以 U 参数建模）和应变都会导致对称性降低，使这些交换通道变得不等价，并呈现磁各向异性 [46, 47]。

图 7(b) 展示了交换相互作用随 Hubbard U 增大而发生的演变。在较低 U 值下，1H 相为非磁性（NM），没有明确的局域磁矩，因此在此范围内不适用海森堡映射；据此，我们将交换参数 J_{ij}=0设定为零。在 SIESTA补充材料 [30] 所报告的数据中，则显式计算了相应的耦合，并发现局域磁矩消失时耦合也随之消失，从而证实了这一处理方式。当 U 超过 U≈ 1eV 后，有限磁矩开始出现，交换参数随之变得明确，并随 U 演变。当 U 超过反铁磁序的阈值（∼1 eV）后，J_1 和 J_1' 显著分化，其中 J_1'呈现出强烈的反铁磁性。高阶耦合（J_2、J_3及其带撇号的对应项）也随之演变，变得不等价，并因轨道再杂化和对称性降低而呈现非单调行为。值得注意的是，J_1 和 J_1' 在中间 U 值处交叉，表明主导交换路径发生了重新分配。

这种重组与电子相的变化顺序相对应：从非磁性态到反铁磁半导体，最终转变为反铁磁金属。我们在此先指出，一旦能隙闭合，局域海森堡描述便值得商榷，因此，对于超过 $U \approx 2.4$ eV 的耦合，应将其视为趋势的指示，而非定量的交换常数；本节末尾与 SIESTA 的比较将对此作进一步探讨。

交换相互作用的演变主要由相互作用诱导的电子重组驱动。随着 U参数 增大，轨道占据和杂化的变化会改变不同交换通道之间的竞争，从而导致观察到的交叉现象，J 即使在没有结构弛豫的情况下也是如此。结构弛豫通过 U参数 驱动的键歧化产生额外的协同效应，如图8所示。最初等价的 Cr–Cr 键分化为较短的（R_1）和较长的（R_2）两组，且 U参数 越大，这种差异越明显。这种呼吸型畸变与稀土镍酸盐中观察到的现象类似 [48–50], ，它增强了跃迁振幅的不等价性，并进一步区分了不同的交换路径。

随着 U参数 增大，局域磁矩的形成过程如图1c 所示，其中磁化强度的出现和增长遵循与带隙闭合及交换重组相同的、由 U参数 决定的阈值。

现在，我们转而考察应变这一独立的物理控制参数。图7(c) 显示了交换参数随双轴拉伸应变的变化（固定在 $U = 0.6$eV）。与由 U 驱动的情形类似，应变使 J_1 与 J_1'之间的差异逐渐增大，从而导致二者强度发生交叉。高阶相互作用（J_2、J_3 及其带撇号的对应项）也会随应变而演化，这表明仅靠晶格形变就能调控占主导地位的磁性通道。图 5(b) 中磁矩的应变依赖性与 Hubbard U 增大时观察到的趋势相似：超过 ≈ 2% 应变后，反铁磁序开始出现，且磁矩随后持续增大。

综上，这些结果凸显了 1H–CrS_2 中强烈的磁弹耦合：电子相互作用和

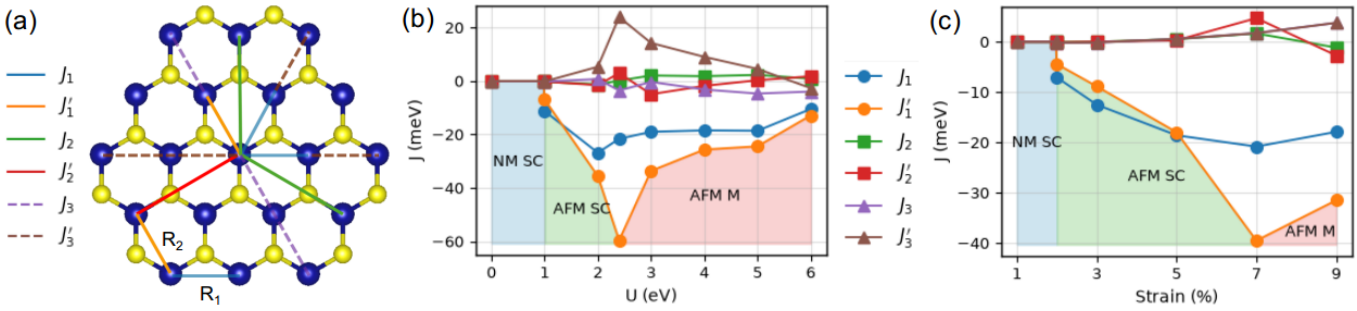


图 7. **(a)** 海森堡映射中使用的 Cr–Cr 交换路径和键长。**(b,c)** 分别展示了 1H 相中交换参数 J_i 随 Hubbard U 和双轴应变（U=0.6 eV 时）的变化，突显了键依赖反铁磁交换的出现以及 J_1 和 J_1'的交叉。彩色区域表示 NM–SC、AFM–SC 和 AFM–M 区域。

晶格应变通过不同但殊途同归的途径促进键畸变和磁有序。在两种扰动下，即使将原子位置和晶胞固定在 $U = 0$ 弛豫几何结构，磁有序也已形成，这表明相变源于电子不稳定性，而非结构弛豫。Hubbard U 直接增强位点内电子相互作用并促进局域化；应变则通过晶格变形扰动电子结构，实质上改变竞争性交换路径之间的平衡。尽管底层微观机制不同，应变和哈伯德U修正都会导致交换相互作用发生类似的重组，并引起磁对称性破缺。结构弛豫会进一步稳定有序相，但在其起始过程中只发挥次要作用。因此，应变和 U 参数可调控的交换格局使 CrS_2 成为磁相工程的多功能平台；在这些不同扰动下，交换相互作用的演变趋势相似。

为评估上述磁弹图景所依据的交换相互作用的稳健性，我们使用 TB2J直接对从SIESTA获得的局域轨道哈密顿量进行独立计算，未经过中间的 Wannier 化。这为ABINIT结果提供了独立的对比，尤其是在电子带隙闭合附近，此时 Wannier 表象更难以控制。完整对比见补充材料 [30] 第 S3 节。

在 2×1 磁性晶胞中，J_1 耦合反平行自旋，而 J_1' 沿 $\mathbf{a}_2$方向连接平行自旋。尽管这些键在未畸变的非磁性晶格中是等价的，但磁有序和结构弛豫会使其局部环境和 Cr–Cr 距离出现差异。

SIESTA 计算再现了主要的定性趋势：随着局域磁矩的形成，两种耦合均变为反铁磁，且 J_1' 的增幅快于 J_1，最终占据主导地位。交叉点位于 $U = 1.0$ 和 1.2 eV 之间，这与上文给出的 ABINIT 结果一致；同时位于+2 和 +3% 应变之间，即早于所采用的方法所得结果，ABINIT 计算。相应的键不等比例变形也得到了再现，Cr–Cr 距离分别趋近于约 3.20 和 3.34 Å。在应变作用下更早出现的转变，与局域轨道计算中磁性和电子阈值整体向更低 U 以及更低应变方向移动这一普遍现象相一致；这可能反映了两种实现方式在关联子空间表示及其他方面的差异，并表明转变阈值取决于所采用的方法。

对比还显示，在整个 U 范围内，最近邻耦合并非单调增强，而且两种通道并不同步转折。在 SIESTA 中，J_1 在 $U \approx 1.2$ eV 附近达到极值，J_1' 则在 $U \approx 1.5$ eV 附近达到极值，分别为 -28和 -49 meV（按照式 1 的约定，负 J 表示反铁磁耦合，如图7所示）；而在 ABINIT 计算中，$U \approx 2.0$ 和 2.4 eV 时的对应值为 -36 和 -60 meV。此后两者均减弱，尽管局域 Cr 磁矩仍持续单调增大。两个极值的差异源于结构而非磁性：在 $U \approx 1.5$ eV 以上，平行自旋键的长度增加超过 0.25 Å，而反平行自旋键基本保持不变，因此前者的配体介导耦合逐渐减弱；后者则仅缓慢减弱，并在带隙闭合时进一步下降。应变下也呈现相同的变化顺序，两种通道的绝对值均在 +5和 +6%附近达到最大。带隙闭合后，两种方法对平行自旋耦合的符号不再一致，这凸显了在金属态区间使用局域海森堡映射的局限性，因此我们将定量分析限于有带隙区域。这一局限同样适用于本节前文讨论的 ABINIT 耦合：图7(b)中带隙闭合后的数值仅为完整起见而列出，用于表明变化趋势，不应视为定量交换常数。SIESTA 计算还表明，压缩应变会完全抑制局域磁矩；应变低于约 -3%时，所有交换相互作用均减至可忽略的程度。

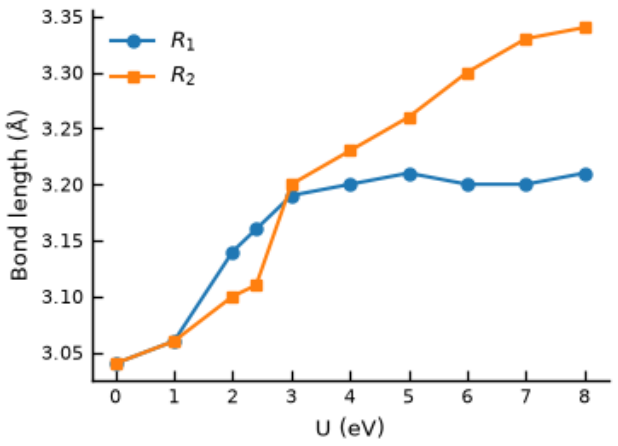


图 8. 不等价 Cr–Cr 键长 R_1 和R_2 随 U参数的变化，展示了相互作用驱动的键歧化（呼吸型畸变）。

最后，在有带隙区域，计入硫贡献仅使 J_1变化 1–6%，相比之下， J_1'约变化 10%，并增强其反铁磁特性。这种差异表明，J_1'的配体介导贡献更强，这与第 pIIA节讨论的价带边缘附近硫-特性增强相一致。完整的交换参数及配体修正分析见补充材料 [30]图 S5 和 S7。

III. 结论

我们证明，单层 CrS_2 是一种可调控的二维材料，其中电子相互作用、磁性和晶格自由度之间存在强耦合。通过系统地改变多个结构多晶型中的在位 Hubbard 相互作用和双轴拉伸应变，我们揭示了相互作用驱动效应 [5, 6]显著的相依赖性。

1T 衍生相（1T、1T′ 和 1T″）表现出大体上常规的行为，随着 Hubbard U 增大而保持金属性，同时交换劈裂增强 [51]。相比之下，1H 相经历了一系列转变，从非磁性半导体转变为反铁磁半导体，最终成为金属。这一演化由相互作用诱导的 Cr-d轨道衍生态的轨道与能带重构所驱动，并伴随着对称性降低和布里渊区重组，最终导致带隙逐渐减小并闭合，而非简单莫特情景中预期的常规局域化驱动的带隙打开 [52]。1H 相中观察到的金属化并不遵循简单的带宽控制的莫特情景，而是伴随着 Cr-d 态间谱权重的轨道依赖性重新分布。这是否与多轨道关联系统中讨论的轨道选择性行为有关系统 [53, 54] ，无法通过静态平均场处理（如 DFT+U）加以判断，因为这类方法无法提供轨道分辨的准粒子权重。

我们还发现，1H 相中存在强烈的磁弹耦合，其表现为静态的呼吸型 Cr–Cr 键歧化，这会重组磁交换相互作用，并伴随观测到的磁性和电子转变。值得注意的是，双轴应变通过改变电子结构和交换路径，能够再现类似的相演变；这表明，晶格扰动可通过不同的物理途径触及同一潜在不稳定性 [55]。

本文报告的磁性和电子转变序列，以及随之发生的交换相互作用重组，均通过一种独立的电子结构方法（SIESTA）得到了复现。这表明，尽管转变发生时的U参数和应变临界值并不具有可迁移性，但不同实现方案和近似方法所得的相图具有可迁移性（补充材料 [30] 第S3节）。

合成单层CrS_2, 时，要实现单一结构相在实验上可能颇具挑战，因为可能出现相混合、缺陷或生长诱导的扰动——实验中观察到ML CrS_2 的多种相共存，便是明证 [11]。尽管如此，我们的结果表明，1H 相在U 和应变诱导的相变中起主导作用，而1T 衍生多形体则相对不敏感。这说明，只要样品中存在1H 相，即使是混相样品，也仍可实现功能切换。

本文所报告的多晶型对比还揭示了一种我们尚未进行定量探究的可能性。由于 1H 相会在应变作用下改变其磁性和电子特性，而 1T 衍生相则不会，因此，空间上变化的应变或局部环境原则上可能使单层内部具有不同特性的共存畴得以稳定，并在半导体区域与金属区域之间形成原子级相干界面，而不引入化学掺杂所带来的无序 [56–58]。基于单轴应变，人们已提出此类单材料横向异质结构可用于 CrS_2 ； [12], 而本文得到的双轴相图表明，在双轴加载下，同样的途径仍然可行。要检验这一设想，需要进行明确的界面计算，包括畴壁本身的能量学和宽度，而这超出了本研究的范围。这些特性使 CrS_2 及相关铬二硫属化物成为柔性自旋电子器件的有前景候选材料，可用于利用清晰的相界和可调控的磁交换作用 [2, 59]。

此外，我们的研究结果从微观层面揭示了电子相互作用与晶格效应如何协同作用，为未来探索关联铬基二维系统中的掺杂、栅控及其他外部刺激奠定了基础。当前的发现——

结果$_2$,可能还具有超越 CrS [60, 61] 的更广泛意义，因为 C2DB =数据库报告称，至少有 82 种二维材料在 U = 4 0 eV 时具有非零带隙，而在 U = 4 eV 时带隙为零；此外，还有若干种材料的带隙会随 Hubbard U 增大而减小。因此，这里建立的微观图像或有助于阐明这一更广泛的关联材料家族中此类反常行为的起源。

IV. 计算细节

本文所述的第一性原理计算使用 ABINIT 软件包 [62, 63] （版本 10.3.6）完成。价电子与离子实之间的相互作用采用投影缀加波（PAW）方法 [64, 65], 描述，赝势取自 PseudoDojo 项目 [66]（版本 0.5），交换-相关泛函采用 Perdew–Burke–Ernzerhof（广义梯度近似 PBE）形式 [67]。本研究的计算中忽略了自旋–轨道耦合。对于单层 CrS_2, ，此前包含 SOC 的计算报告称，K 点处的价带劈裂为 69.8 meV [11]，约为 74 meV [17]。与本文考察的电子重构相比，这些能量尺度较小；电子重构涉及数百 meV 至 eV 的能量范围，因此本分析中忽略 SOC。为确保所有计算的一致性，所有系统均采用统一的布里渊区采样方案。平面波动能截断设为 36 Ha（约 980 eV），相应的 PAW 增广截断 pawecutdg 设为 72 Ha。所有研究材料的布里渊区积分均采用 $10 \times 20 \times 1$ Monkhorst–Pack k 点网格。结构弛豫持续进行，直至每个原子所受的残余 Hellmann–Feynman 力小于 10^{-8} Ha/Bohr（约 5.1×10^{-7} eV/Å）。沿面外方向设置了超过 15 Å 的真空层间距，以消除周期性映像之间的虚假相互作用。电子占据采用高斯展宽处理，展宽宽度为 0.002 Ha（约 0.054 eV）

电子相互作用采用 GGA+U 框架处理 [68, 69]。为系统评估结构、磁性和电子性质对 U 参数选择的敏感性，我们在较宽的 U=0–8 eV 范围内进行了计算。

我们发现，对于 U<1eV，计算得到的基态性质与先前报道的 1H 相的稳定性及其非磁性半导体特征一致 [11, 12]。1T′ 相仍为铁磁态，是一种具有低载流子密度的自旋极化金属，更接近文献 11报道的半金属性特征，而非文献 12报道的铁磁半导体态。只有当 U=0超过 U ≈ 0.8 eV 时，电子结构才会出现明显偏离。由于计算得到的性质在 U = 0–0.8 eV 范围内几乎没有定性变化，因此我们采用 U = 0.6 eV 作为低U区间内应变依赖计算的代表值。在所有多晶型中采用相同的 U 值，可以在保留零应变下 1H-CrS_2 的非磁性基态的同时，对它们的应变响应进行一致比较。

磁交换参数使用 TB2J [70]软件包计算。该软件包基于 Wannier函数，从第一性原理计算中提取海森堡交换相互作用。Wannier函数分别采用相同的轨道投影（Cr-d轨道和 S-p轨道）构造，同时针对不同的 U 参数和应变值调整解纠缠能窗与冻结能窗。在所有计算中，相对于费米能级，外部解纠缠能窗的下边界从 -7.2 至 -6.7 eV 不等，上边界从 3.2 至 4.3 eV 不等；相应的冻结能窗边界则分别从 -7.0 至 -6.65 eV 和 3.0 至 4.25 eV 不等。

由于 Hubbard 修正并未作用于一组明确定义的轨道，且上述讨论的若干相变所涉及的能量差仅为每个化学式单元几十 meV，因此我们通过使用第二种独立代码重复计算，验证了结果对电子结构方法的稳健性。这些补充计算采用 SIESTA [71, 72], 完成，该程序使用数值原子轨道而非平面波，并采用守恒范数赝势而非 PAW 方法 [64, 65], ，因此 Hubbard 项作用于局域原子轨道，而不是 PAW 部分波。由于两种情况下 Hubbard 修正的现场交换参数均设为零，这两种实现方案归结为相同的简化旋转不变泛函，因此，投影算符是处理 U时剩下的主要差异。整个计算采用相同的 PBE 泛函、相同的 2×1 磁性晶胞以及相同的 U 数值，并且仅对 Cr-3d壳层应用 U。相对论性守恒范数赝势取自 Pseudo-Dojo 数据库 [66] ，格式为 PSML [73]。采用双-ζ极化（DZP）基组、1000 Ry 的网格截断能以及 $12 \times 24 \times 1$ Monkhorst–Pack k点网格。所有结构均在该方案下重新弛豫。磁交换参数通过 LKAG 方法获得，该方法由 TB2J [70],实现，可直接应用于 SIESTA 哈密顿量，因此无需中间的 Wannier 构造；计算纳入 Cr 和 S，随后将配体贡献下折叠至 Cr–Cr 耦合。两种方法的完整比较见补充材料 [30] 第 S3 节。

致谢

作者感谢 Xavier Gonze 和 He Xu 提供的宝贵讨论。本研究是在以下计划框架内开展的:

Shapeable 2D Magnetoelectronics by Design（SHAPEme，EOS 项目编号 40007525）。该计划由比利时卓越科学计划（EOS）资助，并由科学研究基金（FWO）和 FRS-FNRS 提供支持。

计算资源由高性能计算设备联盟（CECI）的高性能计算设施提供，该联盟获FRS-FNRS资助，资助编号 2.5020.11。

[1] Q. H. Wang、K. Kalantar-Zadeh、A. Kis、J. N. Coleman和M. S. Strano，《自然·纳米技术》7，699（2012）。[2] S. Manzeli、D. Ovchinnikov、D. Pasquier、O. V. Yazyev和A. Kis，《自然评论：材料》2，17033（2017）。[3] D. N. Basov、R. D. Averitt和D. Hsieh，《自然·材料》16，1077（2017）。[4] M. Imada、A. Fujimori和Y. Tokura，《现代物理评论》70，1039（1998）。[5] B. Huang、Y. Zhang、R. Zhang和H. Ding，《物理评论：材料》5，104003（2021）。[6] S. Jang和J.-H. Lee，《npj量子材料》8，31（2023）。[7] A. Georges、G. Kotliar、W. Krauth和M. J. Rozenberg，《现代物理评论》68，13（1996）。[8] Y. Guo、X. Zhang、Z. Huang、J. Chen等，《npj自旋电子学》2，36（2024）。[9] Y. Xu、Y.-C. Wang、X. Jin、H. Liu等，《通讯物理》7，381（2024）。[10] S. Ryee、L. Klebl、G. Rai、A. Fischer等，《Physical Review B》113，L081106（2026）。[11] M. R. Habib、S. Wang、W. Wang、H. Xiao、S. M. Obaidulla、A. Gayen、Y. Khan、H. Chen和M. Xu，《纳米尺度》11，20123（2019）。[12] K. Chen、J. Deng、Y. Yan、Q. Shi等，《npj计算材料》7，79（2021）。[13] B. Lei、A. Li、W. Zhou、Y. Wang、W. Xiong、Y. Chen和F. Ouyang，《物理学前沿》19，43200（2024）。[14] S. M. Obaidulla、M. N. Hasan、D. Das、R. Alam、A. Supina、M. A. Aslam、S. Kamal、I. Šarić Jankovic、A. Matkovic、C. Teichert、A. N. Pal、H. C. Herper和M. Kralj，《在二维CrS_2中观测到关联驱动的拓扑输运和稳健铁磁性》（2026），预印本，arXiv:2607.23625 [cond-mat.mtrl-sci]。[15] C. Ataca、H. Şahin和S. Ciraci，《物理化学杂志C辑》116，8983 2012( )。[16] H. L. Zhuang、M. D. Johannes、M. N. Blonsky和R. G. Hennig，《应用物理快报》104，022116（2014）。[17] C. Wang、X. Zhou、Y. Pan、J. Qiao等，《Physical Review B》97，245409（2018）。[18] S. Kumari、M. U. Javed、H.-M. Ho、S.-C. Huang和C.-C. Kaun，《今日材料通讯》43，111633（2025）。[19] R. R. Routaray、E. Bousquet、M. Giantomassi和X. Gonze，《物理评论：材料》9，084003（2025）。[20] S.-B. Chen、Z.-Y. Zeng、X.-R. Chen和X.-X. Yao，《应用物理学杂志》128，125111（2020）。[21] H. Y. Lv、W. J. Lu、D. F. Shao、Y. Liu和Y. P. Sun，《Physical Review B》92，214419（2015）。[22] R. K. Sah、H. Tang、C. Shahi、A. Ruzsinszky和J. P. Perdew，《Physical Review B》110，144109（2024）。[23] H. J. Conley、B. Wang、J. I. Ziegler、R. F. Haglund、S. T. Pantelides和K. I. Bolotin，《Nano Letters》13，3626 3630 2013–（）。[24] K. He、C. Poole、K. F. Mak和J. Shan，《Nano Letters》13, 2931–2936 (2013). [25] P. Johari 和 V. B. Shenoy, ACS Nano 6, 5449 (2012). [26] X. Chen 和 W. B. Mi, Journal of Materials Chemistry C 9, 11118 (2021). [27] I. G. Serrano、J. Panda、F. Denoel、Ö. Vallin 和 O. Karis, Nano Letters 19, 7929 (2019). [28] C. Wang、Y. Du、Y. Zhao、Z. He 等，Nanomaterials 13, 3158 (2023). [29] J. Zhang、H. Zheng、R. Han、X. Du 和 Y. Yan，Journal of Alloys and Compounds 647, 75 (2015).[30] 参见补充材料：[出版商将在此插入 URL]，其中包含 CrS_2 多晶型的总能量随 Hubbard U参数的变化、双轴应变下的轨道分辨能带结构，以及与独立 SIESTA 计算的完整比较。[31] N. Sivadas、M. W. Daniels、R. H. Swendsen、S. Okamoto 和 D. Xiao, Physical Review B 91, 235425 (2015). [32] L. Ponet、E. Di Lucente 和 N. Marzari，npj Computational Materials 10, 151 (2024). [33] Y. Tan、V. Dobrosavljević 和 L. R. Rademaker，Crystals 12, 932 (2022). [34] L. de' Medici、J. Mravlje 和 A. Georges，Physical Review Letters 107, 256401 (2011). [35] J. Zaanen、G. A. Sawatzky 和 J. W. Allen，Physical Review Letters 55, 418 (1985). [36] M. C. Bennett、G. Hu、G. Wang、O. Heinonen 等，Physical Review Research 4, L022005 (2022). [37] M. N. Grisolia、J. Varignon、G. Sanchez-Santolino、A. Arora 等，Nature Physics 13, 647 (2017). [38] S. Ghosh、J. Ann、S.-H. Kang、D. Jeong 等，arXiv 预印本 arXiv:2408.03248 10.48550/arXiv.2408.03248 (2024). [39] F. Aryasetiawan、M. Imada、A. Georges、G. Kotliar、S. Biermann 和 A. I. Lichtenstein，Physical Review B 70, 195104 (2004). [40] F. Ricci、W. Chen、U. Aydemir、G. J. Snyder、G.-M. Rignanese、A. Jain 和 G. Hautier，Scientific Data 4, 170085 (2017). [41] E. Macke、I. Timrov、N. Marzari 和 L. C. Ciacchi，Journal of Chemical Theory and Computation 20, 4824 (2024). [42] X. Xu、T. Liang、D. Kong、B. Wang 和 L. Zhi，Materials Today Nano 14, 100111 (2021). [43] Y. Qi、M. A. Sadi、D. Hu、M. Zheng 等，Advanced Materials 35, 2205714 (2023). [44] S. C haudhuri、A. K. Das、G. P. Das 和 B. N. Dev，Physica B: Condensed Matter 655, 414701 (2023). [45] H. Zhu、Y. Gao、Y. Hou、Z. Gui 和 L. Huang，Physical Review B 108, 144404 (2023). [46] J. L. Lado 和 J. Fernández-Rossier, 2D Materials 4, 035002 (2017). [47] K. S. Burch、D. Mandrus 和 J.-H. Park，Nature 563, 47 (2018). [48] S. Johnston、A. Mukherjee、I. Elfimov、M. Berciu 和

G. A. Sawatzky，Physical Review Letters 112, 106404 (2014). [49] M. Hepting、Z. Li、C. J. Jia、H. Lu 等，Nature Materials 19, 381–385 (2020). [50] V. Bisogni、S. Catalano、R. J. Green、M. Gibert 等，《自然·通讯》7, 13017 (2016). [51] X. Li、Y. Cheng 和 Y. Liu，Journal of Materials Chemistry C 9, 11444 (2021). [52] Z. Wang、G. Liu 和 J. Zhang，Advanced Materials 35, 2207415 (2023). [53] R. Yu 和 Q. Si，Physical Review B 96, 125110 (2017). [54] Z.-Y. Song、X.-C. Jiang 和 Y.-Z. Zhang，Physical Review B 102, 245124 (2020). [55] C. Zhao、X. Zhang 和 Z. Liu，《今日材料：物理》30, 100964 (2023). [56] C. Gong 和 X. Zhang，《科学》363, eaav4450 (2019). [57] Y. Cheng、Y. Liu、Q. Wang、Z. Wang 和 X. Li，Advanced Functional Materials 32, 2204319 (2022). [58] Y. Liu、J. Liu、R. Wu、G. Zhang 和 Q. Li，npj Computational Materials 8, 65 (2022). [59] C. Zhao、Y. Yao、S. Du 和 Q. Zhang，《今日材料：物理》18, 100380 (2021). [60] S. Haastrup、M. Strange、M. Pandey、T. Deilmann 等，2D Materials 5, 042002 (2018). [61] M. N. Gjerding、A. Taghizadeh、A. Rasmussen、S. Ali，等，2D Materials 8, 044002 (2021). [62] X. Gonze, B. Amadon, G. Antonius, F. Arnardi，等，Computer Physics Communications 248, 107042 (2020). [63] A. H. Romero, D. C. Allan, B. Amadon, G. Antonius，等，《化学物理杂志》152, 124102 (2020). [64] P. E. Blöchl，Physical Review B 50, 17953 (1994). [65] M. Torrent, F. Jollet, F. Bottin, G. Zérah 和 X. Gonze，《计算材料科学》42, 337 (2008). [66] M. J. van Setten, M. Giantomassi, E. Bousquet，等，Computer Physics Communications 226, 39 (2018). [67] J. P. Perdew, K. Burke 和 M. Ernzerhof，Physical Re- view Letters 77, 3865 (1996). [68] V. I. Anisimov, J. Zaanen 和 O. K. Andersen，Physical Review B 44, 943 (1991). [69] V. I. Anisimov, F. Aryasetiawan 和 A. I. Lichtenstein，《物理学杂志：凝聚态》9, 767 (1997). [70] X. He, N. Helbig, M. J. Verstraete 和 E. Bousquet，Computer Physics Communications 264, 107938 (2021). [71] J. M. Soler, E. Artacho, J. D. Gale，等，Journal of physics: Condensed matter 14, 2745 (2002). [72] F. Gomez-Ortiz, N. Carral-Sainz, J. Sifuna，等，Co m- puter Physics Communications 286, 108684 (2023). [73] A. García, M. J. Verstraete, Y. Pouillon，等，Computer Physics Communications 227, 51 (2018).