
PASP Documentation

复旦大学 向红军教授/龚新高院士 团队

2023-08-04

1 软件简介	3
功能介绍	3
运行方法	4
2 功能介绍	7
简单磁性体系的有效哈密顿量方法	7
常用自旋哈密顿量模型	7
四态法	8
算法简介	8
找不等价代表对 (Model find_J_path_sym)	9
参数计算与后续处理	11
蒙特卡洛模拟与 CG 局域优化 (Model Spin_lattice_interaction)	11
设置初始构型与计算指定构型的能量	15
提供非矩阵形式参数的情形	15
一般性有效哈密顿量方法	16
一般性有效哈密顿量的形式和构建 (Model Invariant)	16
磁性-点乘形式	17
磁性-一般形式	21
铁电	22
确定哈密顿量参数的机器学习方法 (Model Fitting_one_order)	26
Method 1 (默认形式的 MLMCH 方法)	30
Method 2 (使用验证集的 MLMCH 方法)	33
Method 3 (使用测试集的 SFS 方法)	33
自定义初始模型	34
使用指定的模型拟合	34
强制保留部分参数	34
强制跳过部分参数	35
设定部分参数取值	35
设定部分参数的线性约束关系	35
蒙特卡洛模拟与 CG 局域优化 (Model atomic_effective_H)	36
设置初始构型与计算指定构型的能量	40
分子动力学模拟 (Model atomic_effective_H)	40
全局结构搜索方法	44
紧束缚模型方法	46
自定义紧束缚模型	46
Slater-Koster 紧束缚模型 (S-K TB)	48

手动加入哈密顿量的 Slater-Koster 紧束缚模型	52
自旋序诱导铁电性统一极化模型	53
自旋序诱导铁电极化的理论模型简介	53
自旋序诱导铁电极化的计算流程	54
铁电极化的纯电子贡献	54
极化的离子-晶格部分贡献	55
线性自旋波色散的计算	56
线性自旋波理论简介	56
线性自旋波色散的计算流程	56
3 输入文件、输出文件介绍	57
核心输入文件 PASP.input	57
PASP.input 文件读取规则	57
最常用设置项	58
Model	58
block SuperCell	58
block Z_values	59
block isaAB	59
自旋大小与外磁场设置	59
附属文件 cell.str: 晶胞信息	61
NumberOfAtoms	62
number_of_species	63
LatticeConstant	63
block LatticeVectors	63
AtomicCoordinatesFormat	64
block AtomicCoordinatesAndAtomicSpecies	64
用 POSCAR 文件代替 cell.str (READ_POSCAR)	65
利用原胞的 POSCAR 文件扩胞	65
附属文件 unit_cell.str: 原胞信息	66
unit_cell.na	67
block unit_cell_in_Ang	67
block Atoms_in_unit_cell_Ang	67
用 POSCAR_UC 文件代替 unit_cell.str (READ_POSCAR_UC)	68
附属文件 MC.input: 蒙特卡洛模拟与 CG 局域优化相关设置	68
自定义初态 (Read_init_spin)	69
PTMC 温度相关设置	69
PTMC 模拟步数与统计相关设置	70
MC 相关的其他设置	72
CG 局域优化的相关设置	75
MC 和 CG 中添加约束条件	76
附属文件 MD.input: 分子动力学模拟相关设置	78
有效哈密顿量方法常用设置项	82
展开体数 (fig.maxk)	82
截断距离 (block fig.mdist)	82
展开阶数相关设置	83
SOC 相关设置	85
自定义局域模式 (block local_mode.mode_definition)	86
读取已有相互作用信息 (local_mode.read_interaction)	89
随机生成构型或自定义构型的相关设置	90
Model find_J_path_sym 的其他设置	94
Model Invariant 的其他设置	94
全局结构搜索常用设置项	95
紧束缚模型方法常用设置项	102
自旋序诱导铁电性统一极化模型常用设置项	112

线性自旋波色散计算常用设置项	117
输入/输出文件 seed.in: 随机数种子	117
输入文件 spin_exchange.dat	118
输入文件 distortion.pos	120
输入文件 distortion.MAGMOM	121
输入/输出文件 local_mode_PM.dat	121
输入文件 J_best.dat	121
输入文件 Fitting_settings.txt	122
输入文件 Fitting_Set_Lambda.txt	124
输入文件 spin3.in	125
输入文件 amp_local_mode.in	125
输入文件 Zeff.dat	126
输入文件 elastic.dat	126
输入文件 spin_strain.dat	127
输入文件 DM_derivative.dat	127
输出文件 PASP.used_info	128
4 实例	129
BiFeO ₃ 结构搜索、海森堡模型及 MC 模拟	129
全局结构搜索	129
四态法计算海森堡模型参数	130
蒙特卡洛模拟	131
单层 NiCl ₂ 有效自旋哈密顿量构造及蒙特卡洛模拟	131
随机产生磁构型并分析不等价相互作用贡献	131
VASP 计算各构型的能量	132
MLMCH 方法构造有效自旋哈密顿量	132
蒙特卡洛模拟	133
5 问题与解决方案	135
为什么单进程可正常运行, 但多进程并行运算会报错?	135
超胞与原胞的相容性检查	135
6 PASP 试用说明	137
License 获取	137
web 端登录	137
PASP.x 运行	140
命令行运行	140
脚本提交运行	140

PASP (Property analysis and simulation package for materials) 是一款独立完整、特色鲜明、具有完全自主知识产权的材料计算软件包，尤其擅长处理磁性，铁电性，和多铁性（即同时包括多种铁性）体系，可用于计算模拟材料的基态、热力学和动力学性质，也可用于分析理解材料性质的微观机制。

一方面铁磁和铁电材料已经在信息存储领域应用广泛，另一方面新型磁性、铁电和多铁性材料可能在下一代信息存储和处理领域扮演重要角色，因此对这些材料的研究至关重要。PASP 可用于计算模拟这些材料的物理性质，理解其物理机制，并进一步设计和预言高性能材料，是研究这些材料的有效工具。

功能介绍

PASP (Property analysis and simulation package for materials) 是一款独立完整、特色鲜明、具有完全自主知识产权的材料计算软件包，尤其擅长处理磁性、铁电性、和多铁性（即同时包括多种铁性）体系，可用于计算模拟材料的基态、热力学和动力学性质，也可用于分析理解材料性质的微观机制。一方面铁磁和铁电材料已经在信息存储领域应用广泛，另一方面新型磁性、铁电和多铁性材料可能在下一代信息存储和处理领域扮演重要角色，因此对这些材料的研究至关重要。PASP 可用于计算模拟这些材料的物理性质，理解其物理机制，并进一步设计和预言高性能材料，是研究这些材料的有效工具。

本软件由复旦大学向红军教授/龚新高院士课题组开发，从 2006 年开始编写，最初命名为 Latticemodel（晶格模型）；之后不断扩充功能，于 2021 年正式命名为 PASP，并将相应工作发表于文献¹；2023 年与鸿之微公司合作，正式发布软件。

PASP 的开发理念是在一个软件包里尽可能包括更多更全的功能，能处理尽可能多的材料体系。为此，PASP 包括了完整的对称性群论分析（包括点群，空间群，磁群）模块。基于群论分析，不仅可以构建任何体系的哈密顿量（包括电子哈密顿量和原子层面哈密顿量），而且可以提升量子材料全局结构搜索的效率。PASP 的主要功能不受体系结构的限制，原理上可以处理任何体系。

PASP 软件目前集成了诸多功能，例如对称性分析、有效哈密顿量方法、蒙特卡洛（Monte Carlo，简称 MC）模拟、分子动力学模拟（MD）、自旋序诱导铁电极化的计算、紧束缚模型、全局结构搜索方法、线性自旋波方法等。通过将该软件包与 VASP² 等第一性原理计算软件结合使用，可以方便地模拟研究材料（特别是磁性、铁电、多铁性材料）的多种物理性质（如磁转变温度，铁电极化、电滞回线等），以及从微观相互作用的角度研究多种物性的物理机制。

目前 PASP 软件最常用的功能是一般性有效哈密顿量方法，其中主要涉及有效哈密顿量的构造（包括四态法和构造哈密顿量的机器学习方法³）、蒙特卡洛模拟和分子动力学模拟等模块。在磁性、铁电、多铁、电荷密度波等类型的材料中，涉及自旋、局域声子模式、晶格应变等自由度；在合金材料中，涉及元素种类的自由度；晶体材料中含有有机分子时，还可能涉及有机分子的取向、位移等自由度；此外还可以考虑电荷量、轨道序等自由度。除了有效哈密顿量方法外，PASP 另一主要功能是全局结构搜索。全局结构搜索模块主要

¹ LOU F, LI X Y, JI J Y, et al. Pasp: Property analysis and simulation package for materials [J]. Journal of Chemical Physics, 2021, 154(11):

² The vasp manual - vaspwiki [M]. https://www.vasp.at/wiki/index.php/The_VASP_Manual.

³ LI X-Y, LOU F, GONG X-G, et al. Constructing realistic effective spin hamiltonians with machine learning approaches [J]. New Journal of Physics, 2020, 22(5):

支持遗传算法⁴等，可以处理结构自由度和自旋自由度。将 PASP 的全局结构搜索方法与第一性原理计算相结合，可以预测复杂系统的结构基态和基态量子序。

PASP（包括之前的 Latticemodel 版本）已被国内外多个研究组采用，并在铁电、磁性研究等方面取得了重要进展⁵⁶⁷⁸。

PASP 软件的流程图如图 1.1 所示。在 PASP 涉及的几乎所有模块中，都会首先调用对称性分析模块，其后主要分为有效哈密顿量方法和全局结构搜索两大功能分支。在有效哈密顿量方法中，支持基于局域模式的有效哈密顿量方法和紧束缚方法；在全局结构搜索模块中，主要支持遗传算法等。其中，在基于局域模式的有效哈密顿量方法中，支持用四态法⁹¹⁰研究磁相互作用，或用 MLMCH 方法^{Page 3, 3}在多种可能的局域模式相互作用中筛选重要相互作用项；构造有效哈密顿量之后，还可进行蒙特卡洛模拟、CG（共轭梯度下降法）局域优化和分子动力学模拟，以研究体系的相关物理性质。

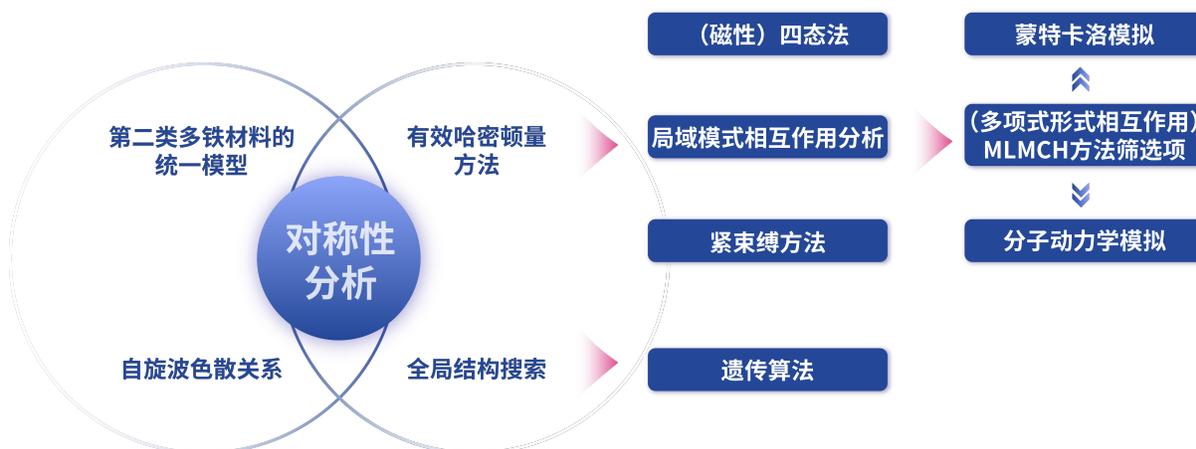


图 1: 图 1.1 PASP 软件流程图

运行方法

本软件支持在大部分 Linux 系统下使用。获取 *PASP.x* 之后，为其添加运行权限之后即可使用。添加运行权限的命令为：**chmod +x 路径名/PASP.x**

运行 PASP 时，需要在输入文件所在路径下运行 *PASP.x*。如：**路径名/PASP.x**

若需统计运行时长，可在运行命令前加 **time**。如：**time 路径名/PASP.x**

另外，PASP 也支持并行运算。以 8 线程并行为例：**mpirun -np 8 路径名/PASP.x**

可以在运行命令后面使用 **>**（覆盖）或 **>>**（追加）重定向标准输出，以及用 **2>** 或 **2>>** 重定向报错信息的输出。如：**路径名/PASP.x > log.out 2>> log.error**

⁴ XIANG H, WEI S-H, GONG X. Structures of [ag7 (sr) 4]- and [ag7 (dmsa) 4]- [J]. Journal of the American Chemical Society, 2010, 132(21): 7355-7360.

⁵ LU X-Z, RONDINELLI J M. Epitaxial-strain-induced polar-to-nonpolar transitions in layered oxides [J]. Nature materials, 2016, 15(9): 951-955.

⁶ WANG H, TANG F, STENGEL M, et al. Convert widespread paraelectric perovskite to ferroelectrics [J]. Physical review letters, 2022, 128(19): 197601.

⁷ BAYARAA T, XU C, BELLAICHE L. Magnetization compensation temperature and frustration-induced topological defects in ferrimagnetic antiperovskite mn_4n [J]. Physical Review Letters, 2021, 127(21): 217204.

⁸ LI X, WU X, YANG J. Room-temperature half-metallicity in $\text{la}(\text{mn}, \text{zn})\text{aso}$ alloy via element substitutions [J]. Journal of the American Chemical Society, 2014, 136(15): 5664-5669.

⁹ XIANG H J, KAN E J, WEI S-H, et al. Predicting the spin-lattice order of frustrated systems from first principles [J]. Physical Review B, 2011, 84(22):

¹⁰ XIANG H, LEE C, KOO H-J, et al. Magnetic properties and energy-mapping analysis [J]. Dalton Transactions, 2013, 42(4): 823-853.

值得注意的是，之所以需要在运行命令中添加“路径名”，是因为我们默认 *PASP.x* 和输入文件不在同一路径下。若 *PASP.x* 恰好在当前目录时，可用 ***.PASP.x*** 代替运行命令中的“路径名/*PASP.x*”。

本章将依次介绍 PASP 的常用功能。对于每种功能，将简要介绍使用方法，并提供一组示例输入文件（为节省篇幅，这些文件另附在 *example_public* 文件夹中；在下文提到示例输入文件时，会指出具体路径）。初次使用某个功能时，建议先用示例输入文件测试运行一次，确认能够得到与手册内容一致的结果后，再换到需要研究的体系进行计算。在更换体系重新计算时，通常需要相应地修改若干设置，这时通常需要仔细阅读示例输入文件中对各个设置项的注释，或者借助本手册第六章的“设置项索引”查看相应设置项的介绍。

简单磁性体系的有效哈密顿量方法

常用自旋哈密顿量模型

对于磁性体系而言，有效哈密顿量方法也称有效自旋哈密顿量方法。有效自旋哈密顿量最简单的形式为经典的海森堡模型（Heisenberg model，这里略去不重要的常数项 E_0 ）：

$$H_2 = \sum_{i,j>i} \tilde{J}_{ij} \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j = \sum_{i,j>i} J_{ij} \mathbf{e}_i \cdot \mathbf{e}_j = \sum_{m=1}^{m_{max}} J_m \sum_{\text{第 } m \text{ 类}(ij)} \mathbf{e}_i \cdot \mathbf{e}_j \quad (2.1)$$

其中 \mathbf{S}_i 与 \mathbf{S}_j 表示原子 i 与 j 的总自旋矢量，近似视为经典矢量； \mathbf{e}_i 与 \mathbf{e}_j 表示 \mathbf{S}_i 与 \mathbf{S}_j 对应的单位方向向量。最后的等号后面是将各组等价的相互作用合并后的结果，这里假定只考虑前 m_{max} 种最近邻的不等价海森堡相互作用。

上述模型还可以推广为矩阵形式：

$$\begin{aligned} H_{2,\text{soc}} &= \sum_i \mathbf{S}_i^T \tilde{\mathbb{A}}_i \mathbf{S}_i + \sum_{i,j>i} \mathbf{S}_i^T \tilde{\mathbb{J}}_{ij} \mathbf{S}_j = \sum_i \mathbf{e}_i^T \mathbb{A}_i \mathbf{e}_i + \sum_{i,j>i} \mathbf{e}_i^T \mathbb{J}_{ij} \mathbf{e}_j \\ &= \sum_{n=1}^{n_{max}} \sum_{\text{第 } n \text{ 类 } i} \mathbf{e}_i^T \mathbb{A}_n \mathbf{e}_i + \sum_{m=1}^{m_{max}} \sum_{\text{第 } m \text{ 类}(ij)} \mathbf{e}_i^T \mathbb{J}_m \mathbf{e}_j \end{aligned} \quad (2.2)$$

其中 \mathbb{A}_i 与 \mathbb{J}_{ij} （ $\tilde{\mathbb{A}}_i$ 与 $\tilde{\mathbb{J}}_{ij}$ ）都是 3×3 矩阵，分别称为单离子各向异性（single-ion anisotropy, SIA）矩阵与 J 矩阵。J 矩阵中包含了海森堡相互作用、Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用（DM 相互作用）和 Kitaev 相互作用的信息。最后的等号后面是将各组等价的相互作用合并后的结果。公式 (2.2) 相比于公式 (2.1) 多出来的项是由自旋轨道耦合（SOC）导致的。

除此之外，有时还需考虑更高阶的相互作用。为简单起见，这里仅补充考虑四阶的点乘形式相互作用：

$$\begin{aligned}
 H_4 &= \sum_{i,j>i} \tilde{B}_{ij} (\mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j)^2 + \sum_{\substack{i,j, \\ k>j}} \tilde{T}_{ijk} (\mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j) (\mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_k) + \sum_{\substack{i,j>i, \\ k>i, \\ l>k}} \tilde{Q}_{ijkl} (\mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j) (\mathbf{S}_k \cdot \mathbf{S}_l) \\
 &= \sum_{i,j>i} B_{ij} (\mathbf{e}_i \cdot \mathbf{e}_j)^2 + \sum_{\substack{i,j, \\ k>j}} T_{ijk} (\mathbf{e}_i \cdot \mathbf{e}_j) (\mathbf{e}_i \cdot \mathbf{e}_k) + \sum_{\substack{i,j>i, \\ k>i, \\ l>k}} Q_{ijkl} (\mathbf{e}_i \cdot \mathbf{e}_j) (\mathbf{e}_k \cdot \mathbf{e}_l) \\
 &= \sum_{m=1}^{m'_{max}} B_{m'} \sum_{\text{第 } m' \text{ 类}(ij)} (\mathbf{e}_i \cdot \mathbf{e}_j)^2 + \sum_{p=1}^{p'_{max}} T_p \sum_{\text{第 } p \text{ 类}(ijk)} (\mathbf{e}_i \cdot \mathbf{e}_j) (\mathbf{e}_i \cdot \mathbf{e}_k) + \\
 &\quad \sum_{q=1}^{q'_{max}} Q_q \sum_{\text{第 } q \text{ 类}(ijkl)} (\mathbf{e}_i \cdot \mathbf{e}_j) (\mathbf{e}_k \cdot \mathbf{e}_l)
 \end{aligned} \tag{2.3}$$

其中包含两体、三体 and 四体的贡献，这里分别用字母 B 、 T 、 Q 表示相应的参数。最后的等号后面是将各组等价的相互作用合并后的结果。

在不考虑 SOC 时，通常总的自旋哈密顿量可写成：

$$H_{\text{spin}} = E_0 + H_2 + H_4 \tag{2.4}$$

而在考虑 SOC 时，总的自旋哈密顿量写成：

$$H_{\text{spin,SOC}} = E_0 + H_{2,\text{SOC}} + H_4 \tag{2.5}$$

以上两式中的 E_0 为常数项。由于能量零点的选择并不影响物理性质，通常 E_0 项不重要，可以省略。

为了构造具体体系的有效自旋哈密顿量模型，需要设置适当的截断距离（对于不同类型的相互作用，可以设定不同的截断距离），分析截断距离以内的不等价的磁性原子对（pair）或磁性原子簇（cluster），然后相应地计算各个不等价的相互作用系数。

在相对简单的磁性体系中，我们可以采用向红军教授提出的四态法^{9,10}（见 2.1.2 节介绍）计算 H_2 或 $H_{2,\text{SOC}}$ 中涉及的所有二阶相互作用参数，另外还可用四态法计算二体四阶的点乘形式相互作用（即双二次相互作用）参数 $\{B_{m'}\}$ 。对于更复杂的体系，可能需要考虑更多类型的相互作用，这时需要更具通用性的方法，参见 2.2 节内容。

四态法

算法简介

要计算公式 (2.1) 中各向同性海森堡相互作用 J_{ij} ，需作四次“不考虑 SOC”的第一性原理计算：其中 i 与 j 原子处自旋矢量分别指向“ $\uparrow\uparrow$ ”、“ $\uparrow\downarrow$ ”、“ $\downarrow\uparrow$ ”、“ $\downarrow\downarrow$ ”（ \uparrow 和 \downarrow 分别指沿 z 轴正反方向），而其他原子自旋均任意并在四次计算中保持不变（建议沿 x 或 y 轴，以避免部分高阶相互作用干扰），则参数 J_{ij} 和 \tilde{J}_{ij} 可由下式计算：

$$J_{ij} = \frac{E_{ij,\uparrow\uparrow} + E_{ij,\downarrow\downarrow} - E_{ij,\uparrow\downarrow} - E_{ij,\downarrow\uparrow}}{4} \tag{2.6}$$

$$\tilde{J}_{ij} = \frac{J_{ij}}{S^2} = \frac{E_{ij,\uparrow\uparrow} + E_{ij,\downarrow\downarrow} - E_{ij,\uparrow\downarrow} - E_{ij,\downarrow\uparrow}}{4S^2} \tag{2.7}$$

式中 S 为自旋矢量的模长， $E_{ij,\alpha\beta}$ ($\alpha, \beta = \uparrow, \downarrow$) 与 j 原子处自旋方向分别 α 为 β 与时第一性原理计算所得体系的总能量。以下各参数计算公式仅以不带波浪号（tilde）的参数为例，带波浪号的参数计算式需要相应地除以 S^2 。

公式 (2.2) 的 \mathbb{J}_{ij} 与 \mathbb{A}_i 矩阵中任意一个非独立成分都可由四种指定自旋构型的总能量（由考虑 SOC 的第一性原理计算所得）解出。对于 $\mathbb{J}_{ij,ab}$ ($a, b = x, y, z$)，用 $E_{ij,ab,\alpha\beta}$ ($\alpha, \beta = \uparrow, \downarrow$) 表示如下构型的第一性原理

⁹ XIANG H J, KAN E J, WEI S-H, et al. Predicting the spin-lattice order of frustrated systems from first principles [J]. Physical Review B, 2011, 84(22):

¹⁰ XIANG H, LEE C, KOO H-J, et al. Magnetic properties and energy-mapping analysis [J]. Dalton Transactions, 2013, 42(4): 823-853.

计算所得能量：原子 i 的自旋平行 ($\alpha = \uparrow$) 或反平行 ($\alpha = \downarrow$) 于 a 方向、原子 j 的自旋平行 ($\beta = \uparrow$) 或反平行 ($\beta = \downarrow$) 于 b 方向、其他原子自旋采用沿 c （指平行或反平行）方向 ($c = x, y, z; c \neq a; c \neq b$) 可表达为

$$\mathbb{J}_{ij,ab} = \frac{E_{ij,ab,\uparrow\uparrow} + E_{ij,a,\downarrow\downarrow} - E_{ij,ab,\uparrow\downarrow} - E_{ij,ab,\downarrow\uparrow}}{4} \quad (2.8)$$

对于 \mathbb{A}_i 的非对角元 $\mathbb{A}_{i,ab}$ ($a, b = x, y, z; a \neq b$)，用 $E_{i,ab,\alpha\beta}$ ($\alpha, \beta = \uparrow, \downarrow$) 表示如下构型的第一性原理计算所得能量：原子 i 的自旋方向矢量的 α 分量为 $\pm\sqrt{2}/2$ （正负号对应于 $\alpha = \uparrow, \downarrow$ ）， b 分量为 $\pm\sqrt{2}/2$ （正负号对应于 $\beta = \uparrow, \downarrow$ ），剩下的 c 分量为 0 ($c = x, y, z; c \neq a; c \neq b$)；其余原子采用沿 c 方向的适当的构型并在四次计算中保持不变。则 $\mathbb{A}_{i,ab}$ 可表达为

$$\mathbb{A}_{i,ab} = \mathbb{A}_{i,ba} = \frac{E_{i,ab,\uparrow\uparrow} + E_{i,ab,\downarrow\downarrow} - E_{i,ab,\uparrow\downarrow} - E_{i,ab,\downarrow\uparrow}}{4} \quad (2.9)$$

而对于 \mathbb{A}_i 的对角元之差 ($\mathbb{A}_{i,aa} - \mathbb{A}_{i,bb}$) ($a, b = x, y, z; a \neq b$)，用 $E_{i,ab,\alpha\beta}$ ($\alpha, \beta = \uparrow, \downarrow, 0$) 表示如下构型的第一性原理计算所得能量：原子 i 的自旋方向矢量的 a 分量为 ± 1 或 0（对应于 $\alpha = \uparrow, \downarrow, 0$ ）， b 分量为 ± 1 或 0（对应于 $\beta = \uparrow, \downarrow, 0$ ），剩下的 c 分量为 0 ($c = x, y, z; c \neq a; c \neq b$)；其余原子采用沿 c 方向的适当的构型并在四次计算中保持不变。则 ($\mathbb{A}_{i,aa} - \mathbb{A}_{i,bb}$) 可表达为

$$\mathbb{A}_{i,aa} - \mathbb{A}_{i,bb} = \frac{E_{i,a,j,\uparrow 0} + E_{i,a,b,\downarrow 0} - E_{i,a,0\uparrow} - E_{i,a,0\downarrow}}{4} \quad (2.10)$$

双二次相互作用 $B_{ij}(e_i \cdot e_j)^2$ 的系数 B_{ij} 也可用四态法计算。令 S_i 总指向 $(1, 0, 0)$ 方向， S_j 依次指向 $(1, 0, 0)$ 、 $(-1, 0, 0)$ 、 $(1/\sqrt{2}, 1/\sqrt{2}, 0)$ 、 $(-1/\sqrt{2}, -1/\sqrt{2}, 0)$ 方向，其他自旋采用沿 z 方向的适当的构型并在四次计算中保持不变。这四种自旋构型的“不考虑 SOC”的第一性原理计算所得总能量依次记为 E_1 、 E_2 、 E_3 、 E_4 ，则 B_{ij} 可表达为

$$B_{ij} = E_1 + E_2 - E_3 - E_4 \quad (2.11)$$

找不等价代表对 (Model find_J_path_sym)

在四态法中，仅涉及单体和两体的参数。对于单体，我们仅需找出有几种环境不等价的磁性原子，每种类型仅需挑出一个原子作为代表，用四态法算出它的 \mathbb{A}_i ，而与之等价的各个原子的 $\{\mathbb{A}_i\}$ 都可通过对称性推出（在 PASP 软件内可以自动完成）。同理，对于两体，在指定的截断距离内，我们也需要找出有几种环境不等价的磁性原子对 (pair)，然后每种类型需要挑出一对原子作为代表，用四态法算出它们的 \mathbb{J}_{ij} （有时还需算出 B_{ij} ），而与之等价的原子对的相应参数也可通过对称性推出（在 PASP 软件内可以自动完成）。

单体的代表原子的选择容易通过观察确定，这里省略。对于两体的代表对，也可通过观察确定，但当考虑的近邻数较多时会有些困难，此时可以利用 PASP 的“Model find_J_path_sym”方便地找出各个不等价代表对。

这里以 $BiFeO_3$ 为例，使用空间群为 R3c 的原胞，暂时先假定使用 $2 \times 2 \times 2$ 超胞，所需的全部输入文件在 example_public/find_J_path_sym/BiFeO3_222cell/input 文件夹下，包括 unit_cell.str（原胞信息）、cell.str（超胞信息）和 PASP.input（主要输入文件）共 3 个输入文件。

备注：

- (1) 我们必须在 unit_cell.str 中提供真实的原胞信息（即在满足平移周期性条件下具有最小体积的胞，否则无法正确分析不等价相互作用）。
- (2) cell.str 文件需要提供适当大小的超胞信息——这个超胞将用于四态法的第一性原理计算，因此不能太大（否则第一性原理计算的计算量太大）；另外由于第一性原理计算时通常采用以超胞为边界的周期性边界条件，因此这个超胞必须足够大，才能够有效分辨我们所考虑的截断距离内的各个不等价相互作用的贡献。本节后面将会提到超胞是否足够大的测试方法。获取所需超胞的 cell.str 文件的方法参见 3.1.3.8 节（该节也是以 $BiFeO_3$ 为例的）。
- (3) 本模块因计算耗时短，暂不支持并行运算。

- (4) *PASP.input* 文件中一般需要根据不同体系修改的设置项包括“block Z_values”、“block isaAB”、“block Spin_values”、“block magnetic_or_ligand”和“block fig.midst”，相应的部分内容如下所示。

```

#####
Model find_J_path_sym

# 元素原子序数，对应于cell.str
%block Z_values
83 26 8
%endblock Z_values

# 相互作用的元素编号(顺序见block Z_values)
%block isaAB
2 2
%endblock isaAB

# 自旋量子数的二倍
%block Spin_values
0 3 0
%endblock Spin_values

# 1磁性原子，2配位原子，其他为0。Fe是磁性原子，O是配位原子。
%block magnetic_or_ligand
0 1 2
%endblock magnetic_or_ligand

# 截断距离（单位为Bohr）
%block fig.mdist
1 15
%endblock fig.mdist
#####

```

使用上述三个输入文件，运行 PASP，在标准输出中（可在运行命令后面添加“>log.out”使其输出到 log.out 文件中）可以找到如下内容（#号后面为解释说明）：

```

1 Atoms:   17   28 SE_SSE:  0 # 第1近邻的代表对是17和28号原子
pair_dist:    3.980978665681 # 第1近邻的距离（单位埃）
pair_coord:   0.101340529196   0.054885726174   0.037939863776   -0.
→165229314442   -3.212511228643   -2.220654565226 # 代表对原子的笛卡尔坐标

```

类似地，在设定的截断距离下共找到 5 种不等价相互作用，第二至五近邻的距离依次是 5.492259242233、5.764360513360、6.783295859701 和 6.783295859701。其中第四和第五近邻距离相等，这有两种可能的原因：第一种，是因为它们虽然距离相等但是环境不等价，这时分析的结果是正确的；第二种，是因为超胞取的不够大导致的错误。为了判断是哪种原因，需要再生成充分大超胞（例如 5×5×5）的 *cell.str*，再用相同的 *unit_cell.str* 和 *PASP.input* 作为输入文件，重新运行 PASP 软件进行测试（参见文件夹“**example_public/find_J_path_sym/BiFeO3_555cell**”内容）。用 5×5×5 超胞测试时，可发现第五近邻距离增大到 7.220732855773，这说明之前 2×2×2 超胞的结果是错误的，其原因是选取的超胞太小；反之，假如超胞足够大，而第四、第五近邻的距离值仍然相等，则结果是可靠的。经测试，3×3×3 超胞即可得到正确的分析结果，因此在使用四态法计算前五近邻的 *J* 值时，至少需要使用 3×3×3 超胞；为了稳妥起见，一般需要取的更大一些，例如取 4×4×4 或 4×4×5 超胞。

参数计算与后续处理

根据 2.1.2.2 节内容，选定合适大小的超胞后，可以获得不同近邻代表对的原子编号，这里的编号即为 *cell.str* 中的原子编号。注意这里原子编号顺序与利用 *post_VASP* 脚本扩胞时生成的 *POSCAR.multi* 一致（参见 3.1.3.8 节内容），而 *POSCAR.multi* 可直接重命名为 *POSCAR* 作为 *VASP*（常用的第一性原理计算软件）的输入文件之一。根据具体情况，自己写个脚本，在 *INCAR*（*VASP* 输入文件之一）的 *MAGMOM* 和 *M_CONSTR* 设置项中适当修改对应两个编号的原子的自旋取向，即可使用四态法计算得到所需的各个 J_m （或者 A_n 和 J_m ）值。

为了进行后续的蒙特卡洛模拟（MC），我们还需要根据这些参数信息以及各代表对的坐标信息，填写 *spin_exchange.dat* 文件（格式要求参见 3.3 节），这是在 MC 步骤中需要用到的输入文件。在本例中，如果保留前五近邻的 J_m 、前两近邻的 B_m 以及唯一的一种 A_n ，可以按如下格式填写 *spin_exchange.dat* 文件内容（# 号开头的首尾两行不算在文件内容之内）：

```
#####
6 #共几组相互作用 #以下三行提供unit_cell.str的晶格信息
5.76436036846 -0.001063269563 -0.00073498713
3.14874999168 4.82837706456 -0.00073498713
3.14874999168 1.7053535363 4.5171888309
1 矩阵(9个数) 2 2 0.10134 0.05489 0.03794 0.10134 0.05489 0.03794
2 矩阵(9个数) 2 2 0.10134 0.05489 0.03794 -0.16523 -3.21251 -2.22065
3 矩阵(9个数) 2 2 0.10134 0.05489 0.03794 -2.51427 4.88433 0.03794
4 矩阵(9个数) 2 2 0.10134 0.05489 0.03794 5.86570 0.05382 0.03720
5 矩阵(9个数) 2 2 0.10134 0.05489 0.03794 -5.39645 3.32335 2.29727
6 矩阵(9个数) 2 2 0.10134 0.05489 0.03794 6.13227 3.32122 2.29580
0 # no dJ/du, i.e., no spin-lattice interaction
0 # single site anisotropy
0 # DM
2 #共几组四阶点乘形式相互作用
1 1 值(1个数) 2 2
0.10134 0.05489 0.03794 -0.16523 -3.21251 -2.22065
2 1 值(1个数) 2 2
0.10134 0.05489 0.03794 -2.51427 4.88433 0.03794
#####
```

请务必参照 3.3 节内容理解本文件各项数据的含义。注意这里并没有给出各个参数的具体数据，需要根据实际计算结果逐项填写（单位 eV）。

蒙特卡洛模拟与 CG 局域优化 (Model Spin_lattice_interaction)

“Model Spin_lattice_interaction”是只适用于磁性体系的蒙特卡洛模拟模块，支持考虑公式 (2.4) 或公式 (2.5) 形式的相互作用；对于更复杂的相互作用形式，则需使用 2.2.3 节的“Model atomic_effective_H”。本节的“Model Spin_lattice_interaction”虽然通用性稍差，但因计算效率显著高于“Model atomic_effective_H”，因此经常用于处理不太复杂的磁性体系。

PASP 中使用 MC 时，通常采用并行退火蒙特卡洛（parallel tempering Monte Carlo, PTMC）方法¹¹¹²¹³。其中使用 M 个具有不同温度（即与不同热源接触）、彼此无相互作用的并行副本，并假定每个副本具有相同形式的哈密顿量 $H(X_m)$ ，这里用 X_m 表示第 m 个副本的全部自变量。为讨论方便起见，不妨设各副本温度降序排列，换言之， $\beta_m = 1/(K_b T_m)$ 按升序排列。

¹¹ HUKUSHIMA K, NEMOTO K. Exchange monte carlo method and application to spin glass simulations [J]. Journal of the Physical Society of Japan, 1996, 65(6): 1604-1608.

¹² EARL D J, DEEM M W. Parallel tempering: Theory, applications, and new perspectives [J]. Physical Chemistry Chemical Physics, 2005, 7(23): 3910-3916.

¹³ HANSMANN U H E. Parallel tempering algorithm for conformational studies of biological molecules [J]. Chemical Physics Letters, 1997, 281(1-3): 140-150.

在 PTMC 模拟过程中，交替完成以下两种操作：一、每个副本同时而独立地各自按 Metropolis 算法进行正则系综的马尔科夫过程模拟；二、相邻温度 β_m 与 β_{m+1} 的两副本按概率 $W(X_m, \beta_m | X_{m+1}, \beta_{m+1})$ 交换构型，要使得各副本都趋于平衡分布，可令

$$W(X_m, \beta_m | X_{m+1}, \beta_{m+1}) = \min\{1, \exp(\Delta_{mn})\} \quad (2.12)$$

其中

$$\Delta_{mn} = (\beta_m - \beta_{m+1}) [H(X_m) - H(X_{m+1})] \quad (2.13)$$

采用这种 PTMC 方法可更快地离开局域极小值，并且显著减少模拟达到热平衡所需的弛豫时间。

在 PTMC 方法中，各副本的温度设置至关重要。使用更多低温的副本有利于找到基态但会增加达到热平衡所需时间；而研究比热容、磁化率等随温度的变化情况从而研究相变性质时，则需要较多的高温副本。常用的两种副本温度取法是： $\{T_m\}$ 取为等差数列，或者 $\{\beta_m\}$ 取为等差数列（分别对应 *MC.input* 中“PT.Tmesh”取 2 和 1）。

本节换用 *MnGe* 作为例子，示例输入文件见文件夹“**example_public/Spin_lattice_interaction/MnGe/input**”。其中包括 5 个输入文件：*PASP.input*、*MC.input*、*cell.str*、*unit_cell.str* 和 *spin_exchange.dat*。

如果读者希望沿用 *BiFeO₃* 的例子，只需参照 2.1.2.3 节填写 *spin_exchange.dat* 文件，再仿照 *MnGe* 的例子填写其他输入文件即可，注意 MC 阶段的扩胞数通常大于计算相互作用参数时的扩胞数。

备注:

- (1) 当模型中假定自旋归一化或采用实际自旋大小时，除了 *spin_exchange.dat* 文件的数据会有成比例的变化外，*PASP.input* 文件中的“block Spin_values”以及 *MC.input* 中“block ExternalMagneticField”的设置方式也会有所不同。详见 3.1.2.5 节讨论。
- (2) 本模块支持并行，但须注意 *MC.input* 中 PT.M 必须是进程数的整数倍，否则软件会报错停止！
- (3) 应根据蒙特卡洛模拟的实际需要，利用“block SuperCell”扩胞（基于 *cell.str* 的结构扩胞）；而 *cell.str* 既可以取原胞，也可以取适当扩胞的结构；当需要较准确地计算热容等统计量时，需使用充分大的超胞（这里的充分大，可以通过逐渐增加扩胞数，查看统计量的收敛趋势判断）。
- (4) 扩胞数建议先取较小值测试，根据计算耗时和模拟所得物理量的收敛情况再酌情增加扩胞数。此外，初步测试时，*MC.input* 中 PT.nblk、nbeg_blk、nblk 不宜过大，否则测试时间可能过长。在初步测试顺利通过后，再酌情增加计算量。在增加到足够大的计算量时，这三个设置的推荐值是 4000、2000、500。
- (5) *MC.input* 中的“spin_lat.relax_str”设置项决定在 MC 之后是否执行 CG（共轭梯度下降法）局域优化。如果有特殊需要，也可以跳过 MC 步骤（“PT.nblk_T”设为 0），直接执行 CG 局域优化。CG 优化的意义在于，MC 过程中产生各个状态具有随机性，不能保证 MC 过程中的最低能量态就是真正的最低能量态，甚至不能保证是局域最优的；而 CG 步骤能够将 MC 过程中的最低能量态优化变成局域最优态，不过需要注意这仍然不能保证是全局最优的。
- (6) 默认情况下，初态是随机产生的。如需指定初态，请参见 2.1.3.1 节内容。
- (7) 本例中 *spin_exchange.dat* 文件采用的是更具通用性的矩阵形式的相互作用参数，如果需要采用更简洁的标量形式，格式与相应的设置项调整参见 2.1.3.2 节内容。特别注意，当需要使用 CG 功能时，只允许使用矩阵形式（否则会报错终止），且 SIA、DM 等相互作用信息也只能以矩阵形式提供（否则会报错终止），只有四阶点乘相互作用部分是不采用矩阵形式的！
- (8) *PASP.input* 和 *MC.input* 中经常修改的几个重要设置项列举如下。

```
#####  
Model Spin_lattice_interaction
```

(续下页)

(接上页)

```

#基于cell.str结构扩胞
%block SuperCell
  4 0 0
  0 4 0
  0 0 4
%endblock SuperCell

#各元素的原子序数
%block Z_values
25 32
%endblock Z_values

#各元素原子磁矩值(单位muB); 若模型中自旋归一化, 磁性原子需设为2
%block Spin_values
2 0
%endblock Spin_values

#研究哪两个编号的元素之间的磁相互作用, 必须提供
%block isaAB
1 1
%endblock isaAB

#截断距离(单位Bohr), 必须提供
%block fig.mdist
1 20
%endblock fig.mdist

Read_init_spin F #是否读取初始磁矩信息. 若T, 读取spin3.in构型
spin_lat.relax_str T #是否CG优化(仅Model Spin_lattice_interaction支持)

PT.M 64 #不同温度个数. 注意必须是并行计算进程数的整数倍!
PT.low_temp 0.000001 #最低温, Hartree单位, 0.00001约等于3.15 K
PT.high_temp 0.002 #最高温
PT.Tmesh 2 #温度值分布: 1反比(1/T均匀), 2正比(T均匀)

PT.nblk_T 400 # number of exchange steps
nbeg_blk 200 # number of exchange steps before measurement
nblk 50 # number of MC block steps. Default 10. 建议取10的整数倍

# 外磁场, 沿z方向添加1 T磁场时设置为0 0 1(若自旋归一化, 有效值为1/S)
%block ExternalMagneticField
#0 0 1
%endblock ExternalMagneticField

spin_lat.general_J T ### matrix form of J and SIA
spin_lat.LJmatSym T ### matrix form of J and SIA
#=====#

```

输出文件 *C_PTMK_K.dat* 给出不同温度（即设定的若干副本的温度）下的热容统计值，可用于判断相变温度。其中第一列为温度（单位 K），第二列为热容（某种约化后的单位，只有相对大小有意义）。如果热容呈先上升后下降的趋势，则拐点处温度为相变温度（误差导致的局域扰动不算）。

输出文件 *lowest_olyspin.xsf* 提供 MC 所得最低能量态的自旋组态信息，该文件可直接拖到 vesta 软件查看（可自动显示各个磁性原子的自旋矢量）。示例文件如下：

```
#=====#
```

(续下页)

```

CRYSTAL
PRIMVEC #以下给出超胞基矢
  20.209247418    0.000000000    0.000000000
    0.000000000    18.188322676    0.000000000
    0.000000000    0.000000000    18.188322676
PRIMCOORD
  256    1    #超胞中共256个磁性原子
    21    3.254138469    0.727989657    1.798169154    -0.541570455    -0.565704786
↪ -0.621835619 #21; 笛卡尔坐标; 自旋矢量
    21    0.727989657    1.798169154    3.254138469    -0.544990535    -0.564932114
↪ -0.619545821
    21    1.798169154    3.254138469    0.727989657    -0.544077591    -0.562272638
↪ -0.622759228
    21    4.324317965    4.324317965    4.324317965    -0.543560942    -0.564108032
↪ -0.621549379
    21    8.306447946    0.727989657    1.798169154    -0.541579971    -0.565689152
↪ -0.621841554
... .. (省略若干行)
    21    19.481246397    19.481246397    19.481246397    -0.543558958    -0.564116670
↪ -0.621543274
#####

```

该文件依次给出超胞中所有磁性原子的坐标和自旋矢量信息。每行开头的“21”是元素符号（代表 *Sc* 元素），这里总是输出“21”，与实际磁性原子的元素无关。另外，该文件中略去了所有的非磁性原子信息，这是为了在 *vesta* 中查看时排除干扰信息。输出的自旋矢量的模长正比于“*block spin_values*”中磁性原子设置值，该设置值为 2 时输出的自旋模长是归一化的。顺便一提，该输出文件的晶格常数以及相应的原子坐标可以整体乘一个系数，用关键词“*write_only_spin.scale*”设置，例如“*write_only_spin.scale 0.9*”，缺省值为 1.0（需要与 *Xcrysden* 软件搭配使用时，可能会需要设置成 0.9）。

输出文件 *spin3_lowest.out* 以另一种格式给出 MC 所得最低能量态的自旋组态信息，示例如下：

```

#####
  1 -0.54157046 -0.56570479 -0.62183562 #原子编号; 归一化的自旋矢量
  2 -0.54499053 -0.56493211 -0.61954582
  3 -0.54407759 -0.56227264 -0.62275923
  4 -0.54356094 -0.56410803 -0.62154938
  5 0.00000000 0.00000000 0.00000000
  6 0.00000000 0.00000000 0.00000000
  7 0.00000000 0.00000000 0.00000000
  8 0.00000000 0.00000000 0.00000000
  9 -0.54157997 -0.56568915 -0.62184155
... .. (省略若干行)
 508 -0.54355896 -0.56411667 -0.62154327
 509 0.00000000 0.00000000 0.00000000
 510 0.00000000 0.00000000 0.00000000
 511 0.00000000 0.00000000 0.00000000
 512 0.00000000 0.00000000 0.00000000
#####

```

该文件每行第一个数字为超胞中原子编号，第二至四个数为相应的自旋矢量。可以看到该文件中各磁性原子的出现顺序与 *lowest_onlyspin.xsf* 一致，只是该文件多出了非磁性原子的磁矩信息。该文件中输出的磁性原子自旋矢量总是归一化的（而非磁性原子的自旋矢量总是 0）。

如果采用了 CG 优化，则还会产生一组加了 **relax-**前缀的文件，提供相应的 CG 优化后的自旋组态信息。例如对应前面提到的 *lowest_onlyspin.xsf* 和 *spin3_lowest.out* 文件，会产生 CG 优化后的 *relax-lowest_onlyspin.xsf* 和 *relax-spin3_lowest.out* 文件。

此外，如果不止关心最低能量态，还关心不同温度下的随机状态，可以查看 T_*_final 。（*部分为温度值，单位 Hartree）开头的若干 xsf 文件，它们提供了各个温度副本的 MC 末态信息。文件名后半部分有两种，第一种是 *onlyspin.xsf*，仅提供磁性原子信息；第二种是 *all_atoms_spin.xsf*，会提供所有原子的自旋矢量信息。

设置初始构型与计算指定构型的能量

如需自定义蒙特卡洛模拟的初始构型，需要在 *MC.input* 中将如下设置项修改为 T:

Read_init_spin T # 是否读取初始磁矩信息。若 T，读取 spin3.in 构型

在本节所选 Model 中，通过 *spin3.in* 文件提供初始构型，即超胞中各原子的自旋矢量信息。该文件格式与输出文件 *spin3_lowest.out* 一致（参见前文示例），需要依次提供超胞中各个原子的编号和自旋矢量的三个分量。哪些编号的原子是磁性原子，哪些是非磁性原子，可以在 *spin3_lowest.out* 文件中查得；各磁性原子的坐标，可依次在 *lowest_onlyspin.xsf* 文件中查得（如果一开始缺少 *spin3_lowest.out* 和 *lowest_onlyspin.xsf* 文件，可以先不设置初始构型，用很少的步数完成一次蒙特卡洛模拟，以获得这两个输出文件）。

如果需要直接获取初始构型的能量（在 *spin_exchange.dat* 设定的有效哈密顿量模型下的预测能量），可以在 *MC.input* 中将 “PT.nblk_T” 设置为 0（即不进行蒙特卡洛模拟步骤），并且将 “spin_lat.relax_str” 设置为 F（即不进行 CG 优化），运行 PASP 时可以在标准输出（运行软件时可通过 “>log.out” 将标准输出的内容输出到 *log.out* 文件中）中找到如下相应内容：

```
Node:    0 Initial Energy (in Hartree) is:    -3.985021379812
Node:    0 Initial Energy (in eV) is:       -108.439015000000
```

其中依次给出了 Hartree 单位和 eV 单位的初态能量。

提供非矩阵形式参数的情形

前面的示例文件中假定两体相互作用参数都有矩阵形式提供。若体系不考虑 SOC，则两体相互作用可以简单地用各向同性的标量 J 描述，相当于 J 矩阵采用了对角元相等的对角化形式。此时，*PASP.input* 的以下两行设置项需要注释掉（使之无效，而缺省值为 F）：

```
#spin_lat.general_J T    ### matrix form of J and SIA
#spin_lat.LJmatSym T    ### matrix form of J and SIA
```

直接设置成 F 也是等效的：

```
spin_lat.general_J F    ### matrix form of J and SIA
spin_lat.LJmatSym F    ### matrix form of J and SIA
```

此时，参见 3.3 节内容，*spin_exchange.dat* 文件第一部分数据的“每行内容”中“J 矩阵（逐行填写矩阵元，共 9 个数）”简化为“J 值（仅 1 个数）”，其他部分内容都不变。本节（2.1.3 节）前面提到的 *MnGe* 的示例输入文件 *spin_exchange.dat* 在该情形下可以相应地改成：

```
#####
2 # 共几组相互作用 #以下三行提供unit_cell.str的晶格信息
5.0523118545661250    0.0000000000000000    0.0000000000000000
0.0000000000000000    5.0523118545661250    0.0000000000000000
0.0000000000000000    0.0000000000000000    5.0523118545661250
1 -0.02897 1 1 1.79817 3.25414 0.72799 0.72799 1.79817 3.25414
2  0.00622 1 1 0.72799 -3.25414 -1.79817 4.32432 -0.72799 -0.72799
0 # no dJ/du, i.e., no spin-lattice interaction
0 # single site anisotropy
0 # DM
0 # 共几组四阶点乘形式相互作用
#####
```

以上由矩阵形式化为标量形式时，是通过取对角元平均值得到的；也可直接通过无 SOC 的四态法直接计算得到。

一般性有效哈密顿量方法

一般性有效哈密顿量的形式和构建 (Model Invariant)

磁电体系的一般性有效哈密顿可以写为 $H = H_{spin} + H_{lat} + H_{spin-lat}$ ，其中 $H = H_{spin}$ 为有效自旋哈密顿， H_{lat} 为晶格部分的有效哈密顿，而 $H_{spin-lat}$ 为自旋-晶格耦合相互作用。只用 $H = H_{spin}$ 可以得到磁性体系的基态和有限温度性质，只用 $H = H_{lat}$ 可以研究非磁性铁电体系的基态和有限温度性质，而包含自旋-晶格耦合相互作用的完整哈密顿才可以用于研究多铁性体系。类似于合金研究里的团簇展开方法，有效自旋哈密顿可以表示成不同自旋团簇贡献的和： $H_{spin} = \sum_k H_k$ ， H_k 为 k -体相互作用贡献，如 $H_2 = \sum_{\langle i,j \rangle} J_{p_i, q_i, r_i, p_j, q_j, r_j}^{ij} S_{ix}^{p_i} S_{iy}^{q_i} S_{iz}^{r_i} S_{jx}^{p_j} S_{jy}^{q_j} S_{jz}^{r_j}$ ，其中 $p_i, q_i, r_i, p_j, q_j, r_j$ 为非负整数，且 $p_i + q_i + r_i \geq 1$ 和 $p_j + q_j + r_j \geq 1$ ，同时为了使能量在时间反演下 ($S_{i\alpha} \rightarrow -S_{i\alpha}$) 不变， $p_i + q_i + r_i + p_j + q_j + r_j$ 必须是偶数。可以看出 H_2 包含了通常的海森堡相互作用 $\tilde{J}^{ij} S_i \cdot S_j$ 。如果体系不存在自旋轨道耦合，或自旋轨道耦合可以忽略时，自旋相互作用项在所有可能的转动操作下不变，即只包含自旋-自旋点乘项，如 $S_i \cdot S_j$ 和 $(S_i \cdot S_j)(S_k \cdot S_l)$ 。另外，对于具体材料，由于空间群对称性，可能可以进一步简化，比如当自旋对的中心正好是空间反演中心时，该自旋对不存在 DM 相互作用。由于可能包含的项非常多，找出其中非零不等价的自旋相互作用项比较困难。PASP 采用系统的群论方法解决这个问题：对于某个选定的自旋团簇，先确定该自旋团簇的点群对称性；因为这个自旋团簇的非零不等价的自旋相互作用项一定是该自旋团簇点群的恒等表示的基，PASP 可以采用投影算符方法把这些非零不等价的自旋相互作用项找出来。

对于晶格部分的有效哈密顿，它一般可表示为局域声子模式 u 和应变 η （包括均匀应变和非均匀应变）的函数： $H_{lat} = H_{lat}(u, \eta)$ ，其中可能包括局域声子模式的自能项（如 u_i^2 和 u_i^4 ），短程的局域声子模式之间的相互作用（如 $u_i u_j$ 和 $u_i^2 u_j u_k$ ），长程的电偶极-电偶极相互作用，只与应变相关纯弹性能，以及局域声子模式和应变的相互作用项（如 $u_i \eta_i$ ）。一般而言，短程的局域声子模式之间的相互作用、局域声子模式和应变的相互作用可能存在的项非常多，同样，PASP 可以利用群论方法找出所有可能（给定阶数和相互作用距离内）不等价的相互作用项。

有效哈密顿的自旋-晶格耦合相互作用可表示为自旋 S ，局域声子模式 u 和应变的函数 η ，即 $H_{spin-lat} = H_{spin-lat}(S, u, \eta)$ ，比如， $H_{spin-lat}$ 可能包括 $(S_i \cdot S_j) u_m$ 和 $S_{ix} S_{jy} u_m^2 \eta$ 。为了使能量在时间反演下不变，其中自旋项的总阶数必须是偶数。若不考虑自旋轨道耦合效应，或由于点群对称性的存在，相互作用项还可进一步简化。同样，PASP 可利用群论方法找出 $H_{spin-lat}$ 中所有可能（给定阶数和相互作用距离内）不等价的相互作用项。

除此之外，在合金材料中，还可以涉及元素种类的自由度；当晶体材料中含有有机分子时，还可能涉及有机分子的取向、位移等自由度；此外还可以考虑电荷量、轨道序等自由度。一般地，总的有效哈密顿量可以采用这些变量的泰勒展开形式，再根据时间反演不变以及点群对称性等条件淘汰或合并一些项，从而给出所有可能（给定阶数和相互作用距离内）不等价的相互作用项。

总之，当我们采用各自由度的泰勒展开形式并适当淘汰、合并项之后，模型总可以抽象成如下线性组合的形式：

$$H_{eff} = \sum_{j=1}^{p_{max}} C_j h_j \quad (2.14)$$

其中 $\{h_j\}$ 为线性组合的基函数（basis function），这部分是构型的函数，对应于各种不等价相互作用形式，一般为多项式形式； $\{C_j\}$ 为线性组合的待定系数，这是与构型无关的相互作用参数。有效哈密顿量中不重要的常数项对应于 $h_1 \equiv 1$ 。

在 PASP 的“Model Invariant”模块中，可以自定义需要研究哪些自由度，然后通过相应的对称性分析，判断在指定的截断阶数和截断距离下有哪些不等价的相互作用，即给出各个 $\{h_j\}$ 的具体表达式。当指定具体构型（包含自旋组态、局域声子模式和应变等信息）时，可以计算得到 $\{h_j\}$ 的取值，再利用第一性原理计算可以计算体系总能量，作为 H_{eff} 的取值。当我们计算多组构型的数据时，用上标 ⁽ⁱ⁾ 表示构型的编号，则可以利用 PASP 以及第一性原理计算，得到多组 $\left\{ \left\{ h_j^{(i)} \right\}, H_{eff}^{(i)} \right\}$ 数据。我们后续将利用这些数据，筛选出重

要相互作用项（将不重要的若干 $\{C_j\}$ 取为 0），再拟合得到各个重要的 $\{C_j\}$ 值（详见 2.2.2 节），从而完成构建有效哈密顿量的步骤。之后即可利用这个有效哈密顿量进行蒙特卡洛模拟（2.2.3 节）、CG 局域优化（2.2.3 节）或者分子动力学模拟（2.2.4 节）。

备注:

- (1) 这里计算的 $\{h_j^{(i)}\}$ 是平均到“每个原胞”的效果，而 VASP 等第一性原理计算给出的总能量通常是平均到“每个超胞”的效果。为了解出正确的 $\{C_j\}$ 值，需要将第一性原理计算结果除以“超胞中所含原胞数”的结果视为 $H_{eff}^{(i)}$ 。在解出 $\{C_j\}$ 值后，对于任意给定的新构型，可以用 PASP 分析得到它的 $\{h_j\}$ ，根据公式 (2.14) 将其与 $\{C_j\}$ 点乘，得到平均到“每个原胞”的总能量预测值。
- (2) 在该 Model 中，软件总是假定自旋矢量模长为 1（无量纲），另外局域声子模式和应变的大小也作适当的无量纲化处理，从而使得所有相互作用系数单位均与能量的单位一致（默认 eV 单位）。
- (3) 自定义研究哪些自由度，主要通过 PASP.input 的“block local_mode.mode_definition”完成（详见 3.1.7.5 节），目前在本手册的示例中仅涉及自旋和局域声子模式两种自由度；另外应变自由度直接通过“Invariant.strain_power”和“Invariant.pure_strain_power”设定考虑到几阶，从而决定是否考虑该自由度（设为 0 阶即为不考虑该自由度）。以下将针对无 SOC 时的磁性体系（相互作用仅需考虑点乘形式）、考虑 SOC 时的磁性体系（相互作用采用一般形式）、铁电体系三种常见情形，依次给出三组示例（分别在 2.2.1.1 节、2.2.1.2 节和 2.2.1.3 节）。当需要综合考虑自旋、局域声子模式时，只需要在“block local_mode.mode_definition”中混合定义两类自由度即可。
- (4) 通常超胞不能太小，建议保证超胞的最短基矢不小于两倍截断距离，否则在周期性边界条件影响下，部分相互作用的贡献将混在一起难以分辨。为了避免大超胞导致过大的计算量，我们也可混合使用多种不同大小的超胞数据，以便在总计算量不太大的前提下仍然能够有效分辨各个相互作用的贡献。当混合使用多种不同大小的超胞时，需要注意，对于每个构型，除了要用第一性原理方法计算它的能量，还要在相同条件下计算它所采用的超胞的参考态的能量（通常取最简单、对称性最高的态作为参考态，如铁磁态、顺电态），用构型能量减去参考态能量，再除以超胞所含的原胞数，作为它的 $H_{eff}^{(i)}$ 数据。
- (5) 本模块暂不支持并行。

为了产生多组 $\{\{h_j^{(i)}\}, H_{eff}^{(i)}\}$ 数据，主要有两类思路。第一类思路是自己编写脚本，按自己指定的规则（通常是完全随机，或者在一些限制条件下随机）生成若干构型，再分别用 PASP 分析它们的 $\{h_j^{(i)}\}$ ，以及通过第一性原理计算得到它们的 $\{H_{eff}^{(i)}\}$ ，其中运行 PASP 时每次仅分析其中一种指定构型的 $\{h_j^{(i)}\}$ ，需要通过多次循环调用 PASP 来分析所有构型的 $\{h_j^{(i)}\}$ ；第二类思路是直接利用 PASP 随机生成若干构型（通常局域声子模式和应变自由度是在指定取值范围内完全随机，而自旋自由度总是完全随机取向），这时只需调用一次 PASP 就能产生所有的构型信息和 $\{h_j^{(i)}\}$ ，之后再利用这些构型信息完成多组第一性原理计算。第一类思路对应 PASP.input 中“local_mode.cal_para_method”设置值取 6（例如 2.2.1.1 节和 2.2.1.2 节示例）或 5，第二类思路则对应设置值取 1（例如 2.2.1.3 节示例）。三种设置值的含义和差别详见 3.1.7.7 节。实际使用时需要根据具体需求来决定采用哪种设置值。

磁性-点乘形式

这里先以“local_mode.cal_para_method”设置值为 6 的情形为例介绍使用方法及输出文件；对于其他设置值的情况，将在本节最后简单介绍。

本节以 $TbMnO_3$ 为例，保留到四阶的点乘相互作用项。为了计算某个给定的自旋组态对各种相互作用的贡献，所需的全部输入文件在 example_public/Magnetic_noSOC_TbMnO3/input 文件夹下，包括 unit_cell.str、cell.str、PASP.input、distortion.pos 和 distortion.MAGMOM 共 5 个输入文件。

备注:

- (1) 若在 *cell.str* 中提供的是原胞的信息，可略去 *unit_cell.str* 文件。例如在本组示例文件中 *unit_cell.str* 原则上可以省略。
- (2) *distortion.pos* 文件与 POSCAR 格式一致，提供超胞信息，本例中是 $2 \times 2 \times 2$ 的超胞。第一行作为备注信息不重要；第六行可以不写化学符号，直接写各元素原子个数，也可以先写一行化学符号再在下一行写各元素原子个数。参见 3.1.3.8 节内容，可以使用 *post_VASP* 脚本，基于 POSCAR 文件扩胞获得 *POSCAR.multi* 文件，再将其重命名为 *distortion.pos* 即可。
- (3) *distortion.MAGMOM* 文件，需按照 *distortion.pos* 中的原子顺序，依次给出超胞中各个原子的磁矩的 x、y、z 分量。磁矩大小不重要，软件内部会归一化处理。
- (4) *PASP.input* 中的几个经常修改的重要设置项列举如下。

```

#####
Model Invariant

#各元素的原子序数（无需额外补充Fe元素）
%block Z_values
65 25 8
%endblock Z_values

%block Spin_values #磁性原子写2(蒙卡时必须取2,这里暂无影响),其他写0
0 2 0
%endblock Spin_values

Invariant.power 4 #default 4, the max power of invariant, 最大阶数
Invariant.strain_power 0 #default 1, the power of strain, 应变部分最大阶数
Invariant.pure_strain_power 0 #default 2, the power of pure strain, 纯应变项最大阶数
fig.maxk 4 # the max power of many body interation. 最多几体

%block fig.mdist
1 15 15 15 ### Bohr单位, 不同体数的截断距离
%endblock fig.mdist

local_mode.cal_para_method 6 # 6 是从distortion.pos/MAGMOM中读取构型
local_mode.read_interaction F #是否从local_mode_PM.dat中读取相互作用信息

%block local_mode.mode_definition
2 # method, 2 is the general one, as below
12 # num of modes
1 spin
2
2.646572590 0.000000000 0.000000000 1.0 0.0 0.0
..... (本设置项行数过多, 此处略去部分内容)
%endblock local_mode.mode_definition

Invariant.SOC F ### default T. 是否考虑SOC
local_mode.GSM2lm_int T #采用点乘形式时需要此行
GSM.maxpower 2 #采用点乘形式时需要此行, 最大阶数为该设置值*2
#####

```

使用上述 5 个输入文件，运行 PASP 可得到输出文件 *distortion.ene_symbol*，以及 *spin_cluster.dat*、*all_interaction_type_Spin_xyzform.dat* 和 *local_mode_PM.dat* 等介绍各相互作用项的详细信息的文件。

其中输出文件 *distortion.ene_symbol* 给出了不等价相互作用个数（第一行“#npara”前面的数字）以及给定的自旋组态对各种相互作用的总贡献（平均到每个原胞，单位 eV）。例如内容如下：

```

#####
346 #npara      #总的等价相互作用个数
   1      0.243841635894    #第1种；自旋组态对该作用的贡献值（每原胞）
   2      1.379560781428    #第2种；自旋组态对该作用的贡献值（每原胞）
   3      0.550369143339
   ... ..（省略若干行）
  346     -1.060482829187
#####

```

每种不等价相互作用的含义可在 *all_interaction_type_Spin_xyzform.dat*、*local_mode_PM.dat* 和 *spin_cluster.dat* 中读到。其中 *spin_cluster.dat* 可读性最强，但仅适用于本节情形（采用点乘形式相互作用的磁性体系）；另外两个文件则适用于一般情形。

先介绍 *spin_cluster.dat* 输出文件，该文件中可查得每种不等价相互作用的表达式（以点乘形式描述）。例如第 12 种不等价相互作用的相关信息为：

```

#####
fractional coordination of the 6 cluster: #第6种代表簇（或代表对）
      0.500000017003      0.000000000000      0.000000000000
      0.500000017003      1.000000000000      0.000000000000
npair:      1
   1 :      1      2
nindep:      2
   11 -th independent parameter      2      6
   1 :      1
Readable term: (S1.S2)^1

   12 -th independent parameter      2      6 #第12种相互作用；2体第6种团簇
   2 :      2
Readable term: (S1.S2)^2 #第12种相互作用形式
#####

```

即第 12 种不等价相互作用是二体四阶相互作用项，代表的原子对的坐标在“fractional coordination of the 6 cluster”后面两行给出，注意这里的坐标是以“原胞基矢”作为单位的，即采用了分数坐标！

另外，*all_interaction_type_Spin_xyzform.dat* 输出文件的部分内容示例如下：

```

#####
icluster, #sites, which-cluster:      3      2      1
   1  2      u_{1,Sx} u_{2,Sx} +u_{1,Sy} u_{2,Sy} +u_{1,Sz} u_{2,Sz}
   2  4      u_{1,Sx}^2 u_{2,Sx}^2 + 2.0000u_{1,Sx} u_{1,Sy} u_{2,Sx} u_{2,Sy} + 2.
→0000u_{1,Sx} u_{1,Sz} u_{2,Sx} u_{2,Sz} +u_{1,Sy}^2 u_{2,Sy}^2 + 2.0000u_{1,Sy}u
→u_{1,Sz} u_{2,Sy} u_{2,Sz} +u_{1,Sz}^2 u_{2,Sz}^2
#####

```

其中第一行三个数字分别表示：第 3 种原子簇（cluster），该原子簇包含 2 个原子（即二体相互作用），在二体相互作用中编号为 1。第二行两个数字分别表示：第 1 种相互作用（与 *distortion.ene_symbol* 中的第几种一致），阶数为 2。第二行后面给出了相互作用的数学形式（展开式，未作合并同类项等处理），该例中实际为 $S_1 \cdot S_2$ ，即海森堡相互作用。类似地，第三行是第 2 种相互作用，4 阶，为双二次（biquadratic）相互作用 $(S_1 \cdot S_2)^2$ 。不过，在该文件中无法查看代表簇（这里为代表对）的坐标。

在 *local_mode_PM.dat* 输出文件中，第 3 种原子簇对应的部分相关内容如下：

```

1 #####
2 ===== #分段标志，每段为一种团簇
3      3  2  1  2  12  6  0 #Interaction, ik, inf, nint_para, nmode_all, nmode_
→cluster, nint_para_lamp
4      #第3种团簇：2体

```

(续下页)

```

5   #二体的第1种
6   #该团簇涉及的参数个数为2
7   #相关的总模式数
8   #不考虑应变的相关的模式数
9   #模式过大时的相关参数个数（这里总为0，不重要）
10  6 #max number of local modes per site #每个原子最多可能的相关模式数（不重要）
11 #cprd #代表簇（或代表对）的各原子坐标。注意是原胞基矢下的分数坐标！
12  1   0.0000000000000  0.499999991436  -0.4999999988788
13  2   0.0000000000000  0.499999991436   0.0000000000000
14 #mode_ind依次列出相关的每种模式信息，这部分行数等于“相关的总模式数”。
15  1   7   1   #代表簇的第1个原子，编号7的模式，该原子的第1个模式
16  1   8   2
17  1   9   3
18  2  10   1
19  2  11   2
20  2  12   3
21  0   1   1   #代表簇的第0个原子是指与应变相关的模式
22  0   2   2
23  0   3   3
24  0   4   4
25  0   5   5
26  0   6   6
27 #nmode_site 应变相关的模式数；各原子的相关模式数（几体就有几个数）
28  6   3   3
29 #mode_site
30  0 #atom #代表簇的第几个原子。0代表应变相关
31  1  2  3  4  5  6 #应变依次对应哪些编号的模式
32  1 #atom #代表簇的第1个原子
33  7  8  9 #第1个原子依次对应哪些编号的模式
34  2 #atom #代表簇的第2个原子
35 10 11 12
36
37 #int_para
38 1 1 2 3 12 0 F #ipara, ipara_gb, power, n, nmode, im_read, lonebody
39 #该代表簇的第1种参数
40 #总的参数编号1
41 #对应2阶相互作用
42 #表达式共3项
43 #与该参数可能相关的模式数为12（总是加上六种应变模式）
44 #后面的“0 F”不重要
45 #terms #以下依次给出各项的信息（共3项）。
46 1 #j #第1项信息。以下各位数字依次是1、2号原子的xyz，6种应变模式
47 1 0 0 1 0 0 0 0 0 0 0 #表示S1x*S2x
48 2 #j #第2项信息
49 0 1 0 0 1 0 0 0 0 0 0 #表示S1y*S2y
50 3 #j #第3项信息
51 0 0 1 0 0 1 0 0 0 0 0 #表示S1z*S2z
52 #coeff #依次给出各项的系数
53 1 1.000000000000 #j, value #第1项系数为1.0
54 2 1.000000000000 #j, value #第2项系数为1.0
55 3 1.000000000000 #j, value #第3项系数为1.0
56
57 2 2 4 6 12 0 F #ipara, ipara_gb, power, n, nmode, im_read, lonebody
58 #该代表簇的第2种参数
59 #总的参数编号2
60 #对应4阶相互作用

```

(接上页)

```

61  #表达式共6项
62  #与该参数可能相关的模式数为12
63  #terms #共6项
64  1  #j
65  2  0  0  2  0  0  0  0  0  0  0  0 #表示  $S_{1x}^2 * S_{2x}^2$ 
66  2  #j
67  1  1  0  1  1  0  0  0  0  0  0  0 # $S_{1x} * S_{1y} * S_{2x} * S_{2y}$ 
68  3  #j
69  1  0  1  1  0  1  0  0  0  0  0  0
70  4  #j
71  0  2  0  0  2  0  0  0  0  0  0  0
72  5  #j
73  0  1  1  0  1  1  0  0  0  0  0  0
74  6  #j
75  0  0  2  0  0  2  0  0  0  0  0  0
76  #coeff
77  1  1.000000000000 #j,value
78  2  2.000000000000 #j,value
79  3  2.000000000000 #j,value
80  4  1.000000000000 #j,value
81  5  2.000000000000 #j,value
82  6  1.000000000000 #j,value
83
84  --Block for symmetrically equivalent clusters-- #后面列举对称等价的团簇（原子对）
85  4 #neq #等价的团簇数
86  #后面的内容提供等价团簇的坐标，以及实际的相互作用形式，这里省略。
87  #=====#

```

可以看出，*local_mode_PM.dat* 文件中给出的表达式与 *all_interaction_type_Spin_xyzform.dat* 内容一致。但 *local_mode_PM.dat* 文件进一步给出了代表簇的各原子坐标，同时给出了等价的团簇信息。

备注：关于“*local_mode.cal_para_method*”的不同设置情形，建议仔细阅读 3.1.7.7 节的相应内容。本段补充介绍在该设置项的几种选项下，输出文件的差别。在本节示例中采用了“*local_mode.cal_para_method*”为 6 的设置，其优点是可以根据实际需要自定义构型，更具灵活性。在设置为 1 时，自动生成的随机构型由 **.vasp_MAGMOM_spin* 提供（* 表示编号，下同），其格式与 *distortion.MAGMOM* 一致，这两个文件中模长由“%block Spin_values”的设置值决定；另外 **.vasp_MAGMOM* 与 VASP 的 *INCAR* 相应设置项（*MAGMOM* 和 *M_CONSTR*）格式一致；第一性原理计算时所需的 *POSCAR* 由 **.vasp* 提供；与 *distortion.ene_symbol* 对应的输出文件名变为 **.ene_symbol*。在设置为 5 时，生成的文件名与设置为 1 时类似，只是 * 仅取 1，因为此时仅生成一种自定义的构型。

磁性-一般形式

如果考虑 SOC，则有效自旋哈密顿量的形式将不再局限于点乘的组合。本节沿用 2.2.1.1 节的例子（建议先仔细阅读 2.2.1.1 节再读本节），即以 *TbMnO₃* 为例，保留到四阶相互作用项，但因考虑 SOC 而不再局限于点乘形式相互作用。为了计算某个给定的自旋组态对各种相互作用的贡献，所需的全部输入文件在 *example_public/Magnetic_SOC_TbMnO3/input* 文件夹下。

此时大部分输入文件无需改变，只有 *PASP.input* 中需要设置“*Invariant.SOC T*”（缺省值即为 T），同时去掉点乘形式时用到的设置“*local_mode.GSM2lm_int T*”和“*GSM.maxpower 2*”（用 # 注释使之无效即可）。修改后的相应设置项如下所示：

```

#=====#
Invariant.SOC T      ### default T。是否考虑SOC

```

(续下页)

```
#local_mode.GSM2lm_int T #采用点乘形式时需要此行
#GSM.maxpower 2 #采用点乘形式时需要此行，最大阶数为该设置值*2
#=====
```

此时主要输出文件也与 2.2.1.1 节相同，只是不再产生 *spin_cluster.dat* 文件（因为该文件仅提供点乘形式的自旋相互作用信息）。经测试运行可发现共有 11086 种不等价相互作用，显著多于仅考虑点乘形式时的 346 种。

备注：如果需要更精确地指定哪几种相互作用考虑 SOC，而其他类型的相互作用不考虑 SOC（仅保留点乘形式），可以在“`block local_mode.special_SOC`”中具体设置，详见 3.1.7.4 节。

铁电

建议在读本节前，先熟悉 2.2.1.1 节内容。铁电体系与磁性体系在输入文件的主要差别在于“`block local_mode.mode_definition`”的内容，以及铁电体系常常需要考虑分析应变相关项。

关于“`local_mode.cal_para_method`”设置项，如果取 6（通过 *distortion.pos* 文件自定义构型），由于铁电体系不用考虑自旋模式，此时无需再提供 *distortion.MAGMOM* 文件。而 *distortion.pos* 文件所提供的结构应当是考虑到局域声子模式所导致的原子位移之后的结构；注意软件从自定义构型（由 *distortion.pos* 定义）解出各局域声子模式大小时可能会出现解不唯一的情况，这时软件会自动找出各模式大小的平方和最小的解。分析所得的各局域模式大小信息会列在输出文件 *distortion.str_mode_amp* 中，该构型对各种相互作用的贡献会输出到 *distortion.ene_symbol* 文件（平均到每个原胞）。如果采用“`local_mode.cal_para_method`”为 1 的设置，则可以根据“`block local_mode.mode_range`”设定的各模式取值范围随机生成指定数量的结构（数量由“`local_mode.nstr_random`”决定），各结构信息输出到 **.vasp*（* 为编号，下同）文件（可作为 VASP 的 POSCAR 使用），各局域模式大小信息输出到 **.str_mode_amp* 文件，各构型对各种相互作用的贡献输出到 **.ene_symbol* 文件（平均到每个原胞）。

本节以 $BaTiO_3$ 体系“`local_mode.cal_para_method`”取 1 的情形为例，用 PASP 直接生成 100 个随机构型（取 $2 \times 2 \times 2$ 超胞）。所需的全部输入文件在 `example_public/Ferroelectric_user_defined_mode_BaTiO3/input` 文件夹下。其中 *cell.str* 中提供的是原胞的信息，因此原则上可略去 *unit_cell.str* 文件。另外 *seed.in* 文件是为了固定随机数种子，以便重复结果，通常也可省略。

备注：

- (1) 相比于磁性体系，铁电体系常常需要考虑应变项，可通过“`Invariant.strain_power`”和“`Invariant.pure_strain_power`”设置含应变项与纯应变项分别最大考虑到几阶，两项都取 0 时可以忽略应变相关项。
- (2) 虽然理论上讲，把每个原子的 xyz 三个位移自由度都考虑到才是最严格、最全面的，但那样会导致有效哈密顿量过于复杂，也大大增加了拟合参数的难度。所以通常我们仅考虑几种典型的局域集体位移模式，但需注意其中各原子的位移比例应该是恰当的，以保证我们使用定义的少量自由度能够有效描述该体系的几种典型状态（如顺电和铁电态）。在本例中局域模式是按如下步骤确定的：使用顺电态的原胞，仅允许各原子在 z 方向弛豫，用 VASP 软件找到能量最低的铁电态结构（沿 001 方向，而非 111 方向铁电基态），我们这里是按这个 001 方向铁电态结构定义的局域模式；先算出该铁电态结构中各原子相对顺电态的位移；每个位移值减去原胞中所有原子位移量的平均值（去掉平移对称性的影响）；每个位移值再除以“该原子-局域模式中心原子（这里以 Ti 为中心原子）”的配位数（该例中 O-Ti 配位数为 2，Ba-Ti 配位数为 8，所以 O 的位移值除以 2，Ba 的位移值除以 8，而 Ti 的位移值不变）；最后再对局域模式定义中涉及的所有原子的位移值的“总矢量”归一化（即总的位移平方和为 1，单位 Bohr²），至此可以确定局域模式涉及的所有原子的位移量（在 *PASP.input* 的“`block local_mode.mode_definition`”部分需要用到这些数据）。其中最后的归一化是可以省略的，因为软件内部会自动归一化。这样处理的效果是，无论怎样扩胞，当所有的沿 z 方向的局域模式都取适当的相同值时，可以构造出 VASP 软件所找

到的 001 方向的铁电态结构。除了根据 VASP 弛豫结果构造局域模式外，也可以通过求解声子模式等方法构造。

- (3) 需要注意“`block local_mode.mode_range`”所需的行数应当是“局域模式数+6”，这里是 $3+6=9$ 。注意到在本例中“`block local_mode.mode_definition`”仅定义了一种局域声子模式，但是实际上分析出了 3 种局域声子模式（PASP 软件根据对称性自动添加等价的模式）。由于可能难以事先预测 PASP 软件分析后总共有多少种局域模式，“`block local_mode.mode_range`”的正确行数可能难以一次性写对。为此，可以先测试运行一次，在测试运行中，将“`block local_mode.mode_range`”的内容注释掉（使用缺省设置，可以避免因为行数错误而报错），并将“`local_mode.nstr_random`”暂设为 1，展开阶数、截断距离等可以暂取较小值，看产生多少 `local_mode-*.xsf` 文件（这些文件给出了各个局域模式涉及的原子的原子序数、笛卡尔坐标以及各原子位移），这就是实际的局域模式数，这个数加上 6 就是“`block local_mode.mode_range`”所需的行数。

- (4) `PASP.input` 中经常修改的重要设置项列举如下。

```
#####
Model Invariant

# local_mode.cal_para_method取1时，一般利用block SuperCell扩胞
%block SuperCell
2 0 0
0 2 0
0 0 2
%endblock SuperCell

#各元素的原子序数
%block Z_values
8 22 56
%endblock Z_values

Invariant.power 4          #default 4, the max power of invariant, 最大阶数
Invariant.strain_power 1   #default 1, the power of strain, 应变部分最大阶数
Invariant.pure_strain_power 2 #default 2, the power of pure strain, 纯应变项最大阶数
fig.maxk 4                # the max power of many body interation. 最多几体

%block fig.mdist
1 15.25 15.25 15.25      ### Bohr单位，不同体数的截断距离
%endblock fig.mdist

%block local_mode.mode_range #各模式的最大取值(常用); 分段数(不常用)
0.27592808 10
0.27592808 10
0.27592808 10
0.025 2
0.025 2
0.025 2
0.025 2
0.025 2
0.025 2
%endblock local_mode.mode_range

local_mode.cal_para_method 1 # 1随机生成; 6从distortion.pos等文件读取构型;
local_mode.nstr_random 100 #随机结构数(local_mode.cal_para_method取1时用)
local_mode.read_interaction F #是否从local_mode_PM.dat中读取相互作用信息

%block local_mode.mode_definition
2 # method, 2 is the general one, as below
```

(续下页)

(接上页)

```

1 # num of modes
15 lamp 0.0 2.76
2 1 1 1 1 1 1 3 3 3 3 3 3 3
 2.01665571 2.01665571 2.01665571 0.0 0.0 0.84914560 #Ti
 2.01665571 0.00000000 2.01665571 0.0 0.0 -0.12643559 #O1
 4.03331143 2.01665571 2.01665571 0.0 0.0 -0.12643559 #O1
 2.01665571 4.03331143 2.01665571 0.0 0.0 -0.12643559 #O1
 0.00000000 2.01665571 2.01665571 0.0 0.0 -0.12643559 #O1
 2.01665571 2.01665571 0.00000000 0.0 0.0 -0.31944756 #O2
 2.01665571 2.01665571 4.03331143 0.0 0.0 -0.31944756 #O2
 0.00000000 0.00000000 0.00000000 0.0 0.0 0.03693648 #Ba
 4.03331143 0.00000000 0.00000000 0.0 0.0 0.03693648 #Ba
 4.03331143 4.03331143 0.00000000 0.0 0.0 0.03693648 #Ba
 0.00000000 4.03331143 0.00000000 0.0 0.0 0.03693648 #Ba
 0.00000000 0.00000000 4.03331143 0.0 0.0 0.03693648 #Ba
 4.03331143 0.00000000 4.03331143 0.0 0.0 0.03693648 #Ba
 4.03331143 4.03331143 4.03331143 0.0 0.0 0.03693648 #Ba
 0.00000000 4.03331143 4.03331143 0.0 0.0 0.03693648 #Ba
%endblock local_mode.mode_definition
#=====#

```

使用示例的 3 个输入文件，运行 PASP 可得到 100 组随机构型的输出文件：**.vasp* 为结构信息（可作为 VASP 的 POSCAR 使用）；**.ene_symbol* 提供各构型对各种相互作用的贡献信息（平均到每个原胞，参见 2.2.1.1 节 *distortion.ene_symbol* 文件介绍）；**.str_mode_amp* 提供各局域模式大小信息，以下将举一例解释该文件含义。例如测试运行时，*seed.in* 文件内容为“644585526 151130088”（可用于复现随机结果），得到的 *1.str_mode_amp* 内容为：

```

#=====#
#undistorted structure #以下提供超胞的原始结构信息（所有局域模式为零）
 15.243706845086 0.000000000000 0.000000000000 #基矢1
 0.000000000000 15.243706845086 0.000000000000 #基矢2
 0.000000000000 0.000000000000 15.243706845086 #基矢3
#以下各行：原子编号；元素编号；分数坐标（超胞基矢）
 1 1 0.249999999602 0.249999999602 0.000000000000
 2 1 0.249999999602 0.000000000000 0.249999999602
 3 1 0.000000000000 0.249999999602 0.249999999602
 4 2 0.249999999602 0.249999999602 0.249999999602
 5 3 0.000000000000 0.000000000000 0.000000000000
 6 1 0.749999999602 0.249999999602 0.000000000000
 7 1 0.749999999602 0.000000000000 0.249999999602
 8 1 0.500000000000 0.249999999602 0.249999999602
 9 2 0.749999999602 0.249999999602 0.249999999602
10 3 0.500000000000 0.000000000000 0.000000000000
11 1 0.249999999602 0.749999999602 0.000000000000
12 1 0.249999999602 0.500000000000 0.249999999602
13 1 0.000000000000 0.749999999602 0.249999999602
14 2 0.249999999602 0.749999999602 0.249999999602
15 3 0.000000000000 0.500000000000 0.000000000000
16 1 0.749999999602 0.749999999602 0.000000000000
17 1 0.749999999602 0.500000000000 0.249999999602
18 1 0.500000000000 0.749999999602 0.249999999602
19 2 0.749999999602 0.749999999602 0.249999999602
20 3 0.500000000000 0.500000000000 0.000000000000
21 1 0.249999999602 0.249999999602 0.500000000000
22 1 0.249999999602 0.000000000000 0.749999999602
23 1 0.000000000000 0.249999999602 0.749999999602

```

(续下页)

(接上页)

```

24 2      0.249999999602      0.249999999602      0.749999999602
25 3      0.000000000000      0.000000000000      0.500000000000
26 1      0.749999999602      0.249999999602      0.500000000000
27 1      0.749999999602      0.000000000000      0.749999999602
28 1      0.500000000000      0.249999999602      0.749999999602
29 2      0.749999999602      0.249999999602      0.749999999602
30 3      0.500000000000      0.000000000000      0.500000000000
31 1      0.249999999602      0.749999999602      0.500000000000
32 1      0.249999999602      0.500000000000      0.749999999602
33 1      0.000000000000      0.749999999602      0.749999999602
34 2      0.249999999602      0.749999999602      0.749999999602
35 3      0.000000000000      0.500000000000      0.500000000000
36 1      0.749999999602      0.749999999602      0.500000000000
37 1      0.749999999602      0.500000000000      0.749999999602
38 1      0.500000000000      0.749999999602      0.749999999602
39 2      0.749999999602      0.749999999602      0.749999999602
40 3      0.500000000000      0.500000000000      0.500000000000

```

```

8 #nsite #共8个有局域模式的(中心)原子
1 4 1 3 #isite,isite2ia(isite),uc_site(isite),nmode
#第1个有局域模式的中心原子
#该原子在上述超胞中的编号为4
#该原子是原胞中第1个有局域模式的(中心)原子(以在local_mode-*.
→xsf中的出现顺序为准)
#该原子相关的局域模式数共3个(对应地,以下应列出3行数据)
1 1 0.081453051445
#该原子的第1种局域模式
#对应于local_mode-1.xsf的模式
#该模式的大小
2 2 0.142100422264
3 3 0.191733544595

2 9 1 3 #isite,isite2ia(isite),uc_site(isite),nmode
1 1 0.034895461810
2 2 -0.084312895260
3 3 -0.240252037953

3 14 1 3 #isite,isite2ia(isite),uc_site(isite),nmode
1 1 0.222075675504
2 2 -0.167235113016
3 3 0.138588431349

4 19 1 3 #isite,isite2ia(isite),uc_site(isite),nmode
1 1 -0.223240429075
2 2 0.187046512763
3 3 -0.214230248144

5 24 1 3 #isite,isite2ia(isite),uc_site(isite),nmode
1 1 0.263319144138
2 2 -0.148031542190
3 3 -0.267702750924

6 29 1 3 #isite,isite2ia(isite),uc_site(isite),nmode
1 1 0.107717267160
2 2 -0.244044246481
3 3 -0.200558481092

```

(续下页)

```

7  34  1  3 #isite,isite2ia(isite),uc_site(isite),nmode
1  1  -0.081994077120
2  2  0.043118831171
3  3  0.074635582067

8  39  1  3 #isite,isite2ia(isite),uc_site(isite),nmode
1  1  -0.263113832288
2  2  0.164899246181
3  3  0.057835567382

-0.007718100274  0.015755883075  0.011762573232 -0.003892679096 -0.003683198494  0.
↪024630625555 #strain
#最后给出六种应变模式的大小
#=====#

```

另外，提供各不等价相互作用信息的 *all_interaction_type_Spin_xyzform.dat* 文件部分内容示例如下：

```

#=====#
icluster, #sites, which-cluster: 1 0 1
1 1 e_1 +e_2 +e_3
2 2 e_1^2 +e_2^2 +e_3^2
3 2 e_1 e_2 +e_1 e_3 +e_2 e_3
4 2 e_4^2 +e_5^2 +e_6^2

icluster, #sites, which-cluster: 2 1 1
5 2 u_{1,x}^2 +u_{1,y}^2 +u_{1,z}^2
6 3 u_{1,x}^2 e_1 +u_{1,x}^2 e_2 +u_{1,y}^2 e_2 +u_{1,y}^2 e_3 +u_{1,z}^2 ↪
↪e_1 +u_{1,z}^2 e_3
#=====#

```

其中第一行三个数字分别表示：第 1 种团簇 (cluster)，该团簇包含 0 个原子（即纯应变项），在纯应变项中编号为 1。第二行两个数字分别表示：第 1 种相互作用（与 *distortion.ene_symbol* 中的第几种一致），阶数为 1。第二行后面给出了相互作用的数学形式（展开式，未作合并同类项等处理）。在各行的相互作用展开式中， e_1 表示第 1 种应变模式， $u_{\{1,x\}}$ 表示（代表簇中的）1 号原子的 x 方向的局域模式，以此类推。

代表簇的坐标信息等仍在 *local_mode_PM.dat* 文件中提供，该文件内容含义参见 2.2.1.1 节。

备注：最后补充强调一点，局域声子模式中的原子位移与晶格应变操作是不可对易的。在 PASP 软件内部是先完成应变操作再进行原子位移的。当模型涉及应变与局域声子模式的相互作用项时，为保证模型的合理性与准确性，需要满足局域声子模式导致的原子位移与晶格应变操作对易性所导致的差异是高阶小量而可以忽略不计，这要求原子位移和晶格应变都足够小。

确定哈密顿量参数的机器学习方法 (Model Fitting_one_order)

在 2.2.1 节中提到，当我们采用各自由度的泰勒展开形式并适当淘汰、合并项之后，有效哈密顿量模型可以抽象成如下线性组合的形式：

$$H_{eff} = \sum_{j=1}^{p_{\max}} C_j h_j$$

其中 $\{h_j\}$ 为线性组合的基函数 (basis function)，这部分是构型的函数； $\{C_j\}$ 为线性组合的待定系数，这是与构型无关的相互作用参数。有效哈密顿量中不重要的常数项对应于 $h_1 \equiv 1$ 。

当我们计算多组构型的数据时,用上标⁽ⁱ⁾表示构型的编号,则可以利用 PASP 以及第一性原理计算,得到多组 $\left\{ \left\{ h_j^{(i)} \right\}, H_{eff}^{(i)} \right\}$ 数据 (获取方法详见 2.2.1 节)。本节将介绍如何利用这些数据确定哈密顿量参数 $\{C_j\}$ 。

如果直接利用 $\left\{ \left\{ h_j^{(i)} \right\}, H_{eff}^{(i)} \right\}$ 数据,用最小二乘法拟合得到 $\{C_j\}$, 看似是很容易的。但是这样做有很多弊端。第一,拟合要求构型数大于待定参数个数,当待定参数有几千或几万个时,对于数据量的要求是很高的,这有时是不现实的。第二,若采用梯度下降、共轭梯度下降、拟牛顿法等方法最小化残差平方和 (即最小二乘法),最终模型几乎会保留所有项,导致模型过于复杂,物理图像不够清晰,也不利于后续蒙特卡洛模拟或分子动力学模拟的计算效率。第三,当待定参数个数很多时,很容易引起过拟合问题,也就是说,拟合时看似精度很高,但对新构型能量的预测能力显著更差。

我们采用的思路是,先筛选出公式 (2.14) 中重要项,把不重要项的系数取成 0,再拟合确定重要项的待定参数。也就是说,假定经过筛选共有个 p 重要项 (p 也是待定参数个数),对公式 (2.14) 各项的脚标重新编号后可以写成如下形式:

$$H_{eff} = \sum_{j=1}^p C_j h_j \quad (2.15)$$

这时再拟合就只需求解 p 个待定参数。这种筛选重要项的问题在计算机算法领域称为变量筛选 (variable selection) 问题,经典的算法有序列前向选择 (sequential forward selection, SFS)¹⁴ 算法等。SFS 算法是在初始模型中不含任何项的基础上,每次尝试在模型中增加一项,每一轮增加项都是挑选出能使拟合效果最好的项加到模型中。PASP 支持使用改进版本的 SFS 算法,这里所谓的改进是指引入了测试集以减小过拟合风险。流程图如图 2.2.1 所示 (图中 σ^2 为模型在训练集上的拟合方差, $\bar{\sigma}^2$ 为模型在测试集上的平均预测方差, p_c 是参数个数上限)。

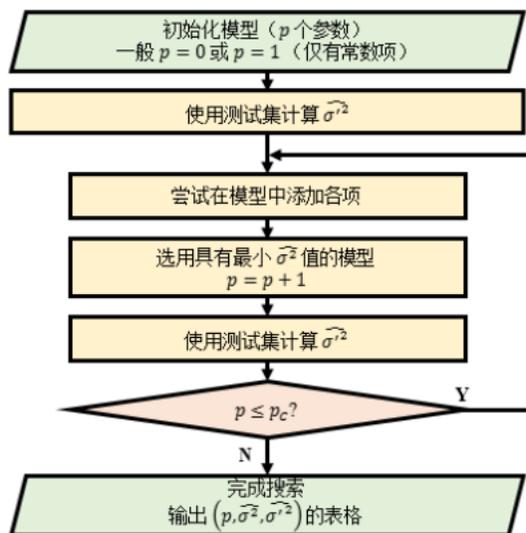


图 1: 图 2.2.1 使用了测试集的 SFS (序列前向选择) 算法流程图

我们设计了一套机器学习算法来高效可靠地处理我们遇到的这种变量筛选问题,我们称之为 MLMCH 方法 (全称为 Machine Learning Method for Constructing realistic effective Hamiltonian)³。这里所谓的机器学习方法与神经网络无关,因为神经网络所得的模型的简洁性和可解释性不足,而我们希望得到的是简洁、物理图像清晰的模型。我们之所以称之为机器学习方法,一是因为我们所处理的问题本身属于监督学习中的回归问题 (即构型能量作为标记信息的问题);二是我们采用了机器学习中常用的技巧,如利用训练集确定模型参数后在测试集上检验模型的预测能力 (以避免过拟合),采用了类似于 L_0 正则化项的技巧控制参数个数 (避免参数过多,以保证模型的简洁性);三是在尝试在模型中删除、增加或替换某个项的过程中,会根据模型的拟合效果的变化来“学习”该项的“重要性”,从而加速后续的搜索过程。

¹⁴ WHITNEY A W. Direct method of nonparametric measurement selection [J]. Ieee Transactions on Computers, 1971, C 20(9): 1100-1103.

³ LI X-Y, LOU F, GONG X-G, et al. Constructing realistic effective spin hamiltonians with machine learning approaches [J]. New Journal of Physics, 2020, 22(5):

传统的 SFS 方法只考虑在模型中不断增加项，因此一旦引入了不必要的项就无法再删去。我们为了弥补这个缺陷，在我们的 MLMCH 方法中还考虑了删除、替换项的可能性。虽然这样做增加了搜索的复杂度，但是我们通过改良算法，大幅提高搜索效率，使得我们的算法在即使考虑了删除、替换项之后仍然具有与 SFS 接近的效率（甚至在部分测试中具有更高的效率）。我们的算法在仅使用训练集和测试集时称为 Method 1，在额外引入验证集时称为 Method 2（根据我们的测试经验，Method 1 的表现通常优于 Method 2，所以我们最常用的方法是 Method 1 和 Method 3）。训练集、验证集、测试集三者的简单对比如表 2.2.1 所示；Method 1 的流程图如图 2.2.2 所示。图 2.2.2 中的 $\{x_j^{(i)}, y^{(i)}\}$ 对应于公式 (2.14) 的 $\{h_j^{(i)}, H_{eff}^{(i)}\}$ ，上标代表构型的编号；图中最后一行提到的 SBS（sequential backward selection，序列后向选择）搜索是指依次尝试在模型中减少一个参数，每次选出其中拟合效果最佳的方案。SBS 搜索步骤的主要目的是对某个给定模型的各个参数进行重要性排序，同时也为简化模型提供参考。SBS 步骤的示意图如 3.4.3 所示。以 Method 1 为例，图 2.2.2 中“发现更优的模型？”是以 $(\widehat{\sigma}^2 \cdot \lambda^p)$ 更小作为模型更优的判据的（这与采用 L_0 正则化项时以 $\widehat{\sigma}^2 + \lambda^p$ 更小作为模型更优的判据类似，之所以改成乘 λ^p 是为了更方便设置 λ 值）。其中 $\widehat{\sigma}^2$ 是指模型在训练集上的拟合方差， $\lambda \geq 1$ 是人为设定的参数（该值越大，则越倾向于选择参数较少的模型）。在我们的算法中，会依次使用若干个递减的 λ 值，对每个不同的 λ 值分别搜索当前判据 $(\widehat{\sigma}^2 \cdot \lambda^p)$ 下的最优模型。再在这些“最优模型”中挑出 $\widehat{\sigma'^2}$ （测试集上的预测方差）最小的模型，再在此基础上做一次 SBS 搜索（参数个数递减至 1）。在此过程中会遇到多个值得推荐的模型，它们的详细信息都会在输出文件中给出，输出文件还会给出两个最推荐的模型，分别是预测效果最好的模型，和“在过拟合风险足够低的前提下”预测效果最好的模型。关于如果选择确定最终用于后续 MC 或 MD 模拟的模型，后文还会再详细讨论。

表 2.2.1 拟合问题中训练集、验证集、测试集三者的异同点比较

数据集	训练集	验证集	测试集
是否必需	是	否	建议使用
可用于拟合参数	是	否	否
用于避免过拟合	否	是	是
在模型搜索过程中是否可用	是	是	否（最终测试用）
样本量	n_1	n_2	n'

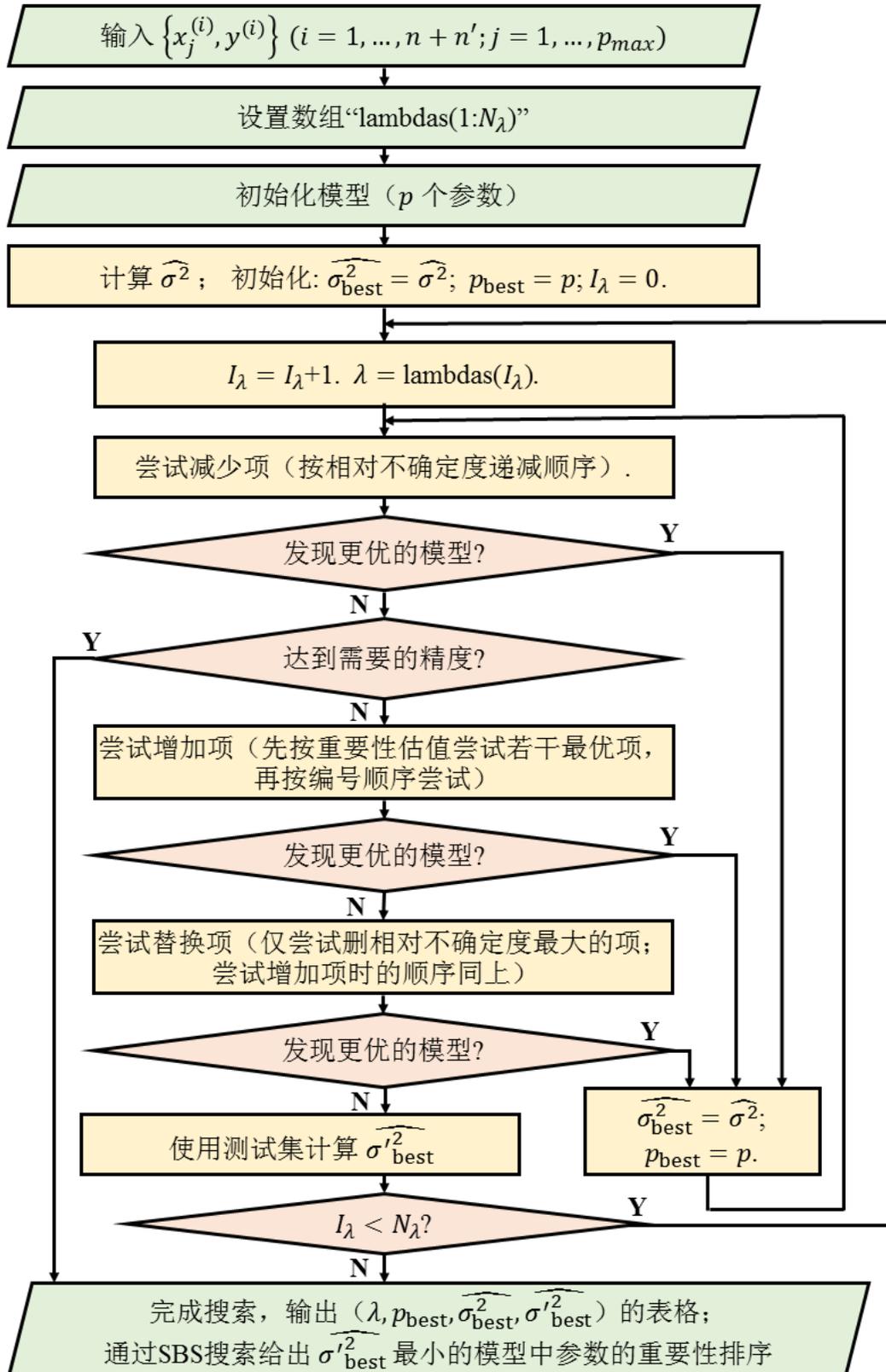


图 2: 图 2.2.2 MLMCH 算法流程图

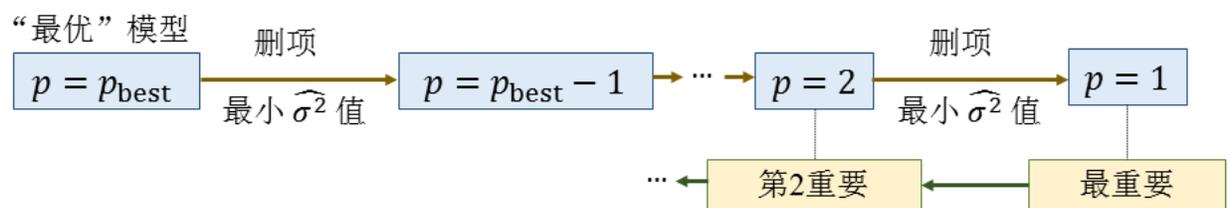


图 3: 图 2.2.3 通过 SBS 搜索对给定模型中的参数进行重要性排序的算法示意图

Method 1 (默认形式的 MLMCH 方法)

默认形式的 MLMCH 方法所需的全部示例输入文件在 “example_public/Fitting_one_order/input” 文件夹下, 包括 *Fitting_Data_for_prediction.txt*、*Fitting_Dataset.txt*、*Fitting_Settings.txt*、*Fitting_Set_Lambda.txt* 和 *PASP.input* 共 5 个输入文件。

备注:

- (1) *PASP.input* 中只需写两行, 一行选定模型 “Model Fitting_one_order”, 另一行写 “%include cell.str”。注意我们无需提供 *cell.str*, 只需要通过 “%include cell.str” 使软件自动生成的默认 *cell.str* 文件生效即可 (否则软件会因缺失部分设置而无法运行)。该 Model 实际上用不到 *cell.str* 中的任何设置, 因此我们也可以自己提供任意一个格式正确的 *cell.str* 文件, 这并不会影响结果。
- (2) *Fitting_Dataset.txt* (训练集数据) 和 *Fitting_Data_for_prediction.txt* (测试集数据) 分别需提供 n 行和 n' 行数据, n 是训练集的构型数, n' 是测试集的构型数。每行内容对应一种构型的数据。每行前面的若干数据是该构型对各种相互作用的贡献信息 $\{h_j^{(i)}\}$ (平均到每个原胞), 这些信息可在 *distortion.ene_symbol* 或 **.ene_symbol* 中获取, 例如根据 2.2.1.1 节中的 *distortion.ene_symbol* 内容, 该行前面的部分可写成 “0.243841635894 1.379560781428 0.550369143339 ……-1.060482829187” 共计 346 个数据 (有几种不等价相互作用就应该有几个数据); 此外每行最后要补充一个数据, 即第一性原理算出的 $H_{eff}^{(i)}$ (一般是该构型能量减去相同超胞的参考态能量, 再除以原胞数, 取 eV 单位)。因此每行的数据个数为 “不等价相互作用数 +1”。这两个文件实际上是提供了 $\{h_j^{(i)}, H_{eff}^{(i)}\}$ 构成的矩阵。
- (3) 软件并非以只读方式打开 *Fitting_Dataset.txt* 和 *Fitting_Data_for_prediction.txt* 两个文件, 恰恰相反, PASP 运行过程中经常改写这两个文件。所以请注意务必在运行前对这两个文件的初始版本做好备份。如需在相同条件下重新测试运行, 请从备份的版本重新拷贝一份作为输入文件, 不要直接使用被修改过的这两个文件 (直接使用容易导致推荐模型的相互作用编号错乱或参数值错误)。我们这里修改数据文件内容的本意是为了在反复调用该模块时节省时间成本, 但这需要非常细心严格地调整设置项以及需要后续数据处理, 此外这样做实际上节省的时间并不多, 因此为了稳妥起见, 我们强烈建议只使用未被软件改动过的训练集、测试集数据文件作为输入文件。
- (4) 示例文件中的 *Fitting_Settings.txt* 全部采用的是缺省设置, 换言之, 只需要默认版本的 MLMCH 方法时, 可以省略该输入文件。注意在该文件中, 仅在每行读取开头的的数据 (除了第三行需要读取 4 个数据外), 而后面的文字部分仅用于注释; 该文件是逐行读取相应设置内容的, 不允许任意调换两行顺序或增减行数等。决定使用 Method 1 的两项设置是 “1 !! SEARCH_TYPE” 和 “0 !! I_CHECK_SELF PREDICT”, 前者决定了使用 MLMCH 方法, 后者决定了不使用验证集。
- (5) 示例文件中的 *Fitting_Set_Lambda.txt* 全部采用的是缺省设置, 换言之, 只需要默认版本的 MLMCH 方法时, 可以省略该输入文件。该输入文件中第一行提供两个数据, 分别表示后续提供几行数据 (通常每行数据对应一个新的值, 对应一轮大的搜索循环), 以及从其中第几行开始使用。后面每行有三个有效数据, 分别是第几行数据、本轮循环中允许模型中包含的最大参数个数、本轮循环中采用的值。这里的示例文件中提供 20 行数据, 对应 20 个递减的值, 其中最后一个值恰好为 1.0。注意值取 1.0 的最后一轮循环可能会显著偏慢, 如果希望节省搜索时间, 可以考虑把第一行的第一个数据由 20 修改为 19 或者更小, 从而回避值取 1.0 的较慢的搜索过程。

(6) 本模块暂不支持并行。

输出文件 *Fitting_lambda_log.txt* 给出不同 λ 值下搜索得到的最优模型的拟合预测效果信息。各列数据的含义依次是：第几个 λ 值； λ 值；允许的参数个数上限；该 λ 值对应的最优模型的参数个数；模型的拟合标准差；预测值的平均不确定度；平均预测误差（这里实际是平均预测方差的算术平方根，下同）；模型的拟合标准差（梯度下降优化后）；预测值的平均不确定度（梯度下降优化后）；平均预测误差（梯度下降优化后）。最重要的两列是第 4 列（模型的参数个数）和最后一列（经梯度下降优化的平均预测误差）。一般设定的 λ 值是递减的，这导致第 4 列（参数个数）一般是递增的（也可能保持不变）；而最后一列（预测误差）通常先降后升，其中下降阶段是正常的（随参数个数增加，预测效果变好，其中各模型都可以被看作是最优模型），而上升阶段是过拟合的（随参数个数增加，预测效果反而变差，说明可能引入了冗余的参数）。各个 λ 值对应的不同参数个数的模型的详细信息将输出到名为“Report_fitting_function_MID_GRAD_%d*”（%d 是一个整数，表示模型的参数个数；* 表示任意内容，包括“.txt”、“_data.txt”、“_data2.txt”、“_LM.txt”共 4 种情形；本节后面出现“%d*”时，含义都与此相同）的系列文件中。而最后一列（预测误差）先降后升的拐点（极小值点）对应的模型，是具有较低过拟合风险的推荐模型，相应信息将输出到名为“Report_fitting_best_safe_function_GRAD_%d*”的一组文件中，该模型的预测误差可在“Report_fitting_best_safe_function_GRAD_%d.txt”的最后一行查到（例如“Average prediction error= 3.131095897621887E-003”）。

输出文件 *Report_fitting.txt* 给出最后的 SBS 搜索过程中不同参数个数的模型的拟合预测效果信息。各列数据的含义依次是：模型的参数个数；模型的拟合标准差；预测值的平均不确定度；平均预测误差（这里实际是平均预测方差的算术平方根，下同）；模型的拟合标准差（梯度下降优化后）；预测值的平均不确定度（梯度下降优化后）；平均预测误差（梯度下降优化后）。最重要的两列是第 1 列（模型的参数个数）和最后一列（经梯度下降优化的平均预测误差）。在 SBS 搜索过程中，不同参数个数的模型的详细信息将输出到名为“Report_fitting_function_GRAD_%d*”的系列文件中。在这些模型加上上一段提到的 *Fitting_lambda_log.txt* 中涉及的模型中，选出平均预测误差最小的模型，相应的信息输出到名为“Report_fitting_best_predict_function_GRAD_%d*”的一组文件中；该推荐模型的预测误差可在“Report_fitting_best_safe_function_GRAD_%d.txt”的最后一行直接查到（“Average prediction error”信息）。

通常来说，我们倾向于推荐“Report_fitting_best_safe_function_GRAD_%d*”所对应的模型（具有较低过拟合风险的推荐模型）；当更看重预测效果而忽略过拟合风险时，也可选用“Report_fitting_function_GRAD_%d*”对应的模型（平均预测误差最小的模型）。此外，根据实际需要，可能还会选用参数个数更少的模型，这时需要在 *Fitting_lambda_log.txt* 和 *Report_fitting.txt* 两个文件中，根据各模型的参数个数和预测误差来选择。需要注意的是，为了降低计算量，对于最优模型的搜索是不完备的，也就是说，搜索给出的最优模型可能是局部最优而非全局最优。偶尔 Method 3（见 2.2.2.3 节）也会给出表现优于 Method 1 的模型，所以我们一般建议 Method 3 和 Method 1 都做一遍，再在其中（依据参数个数和预测误差）选出最合适的模型。

前面三段多次提到含有星号的文件，其中星号包括“.txt”、“_data.txt”、“_data2.txt”、“_LM.txt”共 4 种情形，下面依次介绍这四种文件；这里将它们分别记为“*%d.txt”、“*%d_data.txt”、“*%d_data2.txt”、“*%d_LM.txt”（这里的*表示任意内容，%d 为整数，表示模型的参数个数）。

输出文件“*%d.txt”提供模型中各参数的原编号、拟合值以及不确定度等信息。示例如下：

```
#=====#
5 (Number of terms) #模型中参数个数（这里有5个参数）
  1                0 #第1个参数：原0号参数（即常数项）
  2                1 #第2个参数：原1号参数
  3                3
  4                5
  5                15 #至此为止，这部分内容可用作Fitting_Set_Init.txt内容
=====
INFORMATION OF TERMS:
XM(1,1)=1;
XM(2,1)=2;
XM(3,1)=4;
XM(4,1)=6;
XM(5,1)=16;
B(                1 )= -2.017205356211482E-002 +- 3.325125338423869E-005
```

(续下页)

(接上页)

```
#第1个参数，拟合值及不确定度约为-0.02017+-0.00003，以此类推
B(      2 )=  1.772080263938097E-003 +-  7.546948702774408E-005
B(      3 )= -8.077197635063232E-003 +-  8.533043259079341E-005
B(      4 )=  1.859024576895017E-003 +-  4.260197138682767E-005
B(      5 )=  1.540675214074116E-003 +-  1.916551545772804E-005
Np=      5 Sigma_square=  6.960348094825395E-007 #参数个数；拟合方差
Sigma=  8.342870066605014E-004 #拟合标准差
Average prediction error=  8.123935535626463E-004
#平均预测误差（新版本添加）
#=====
```

输出文件“`*%d_LM.txt`”提供模型中除常数项以外的参数编号及拟合值，该文件可用作后续蒙特卡洛模拟的 `J_best.dat` 文件内容（这里的 LM 是 Latticemodel 的缩写，即 PASP 软件的旧称）。示例如下：

```
#=====
287      4
#不等价相互作用数(与*.ene_symbol中的个数一致)；保留参数个数
  1  0.1772080263938097E-02 #保留原1号参数；1号参数值
  3 -0.8077197635063232E-02 #保留原3号参数；3号参数值
  5  0.1859024576895017E-02
 15  0.1540675214074116E-02
#=====
```

输出文件“`*%d_data.txt`”和“`*%d_data2.txt`”分别给出训练集和测试集中各构型对应的实际能量和预测能量的比较，前者是训练集，后者是测试集。各列内容依次是构型编号（即原来第几行的数据）、实际能量（一般为第一性原理计算结果）、模型给出的预测能量、能量预测值的不确定度、预测偏差（预测能量减去实际能量）。

有时还会产生名为“`Data_Variables_Mapping_(1st Reducing)_%d.txt`”（`%d`为整数，表示原始的不等价相互作用数）的输出文件。出现这样的输出文件时，意味着其中有些本该线性无关的相互作用的数据出现了明显线性相关的情形。遇到这种情况常见的原因包括但不限于以下情形：(1) 超胞过小或截断距离设置的过大，例如截断距离超过超胞最短边长的一半时，在周期性边界条件的影响下，较远距离相互作用的贡献可能会与较近距离相互作用的贡献合并，而无法分辨出各自的贡献。(2) 构型具有局限性，即如果不是完全随机采样，而是人为设置构型，有可能因为构型的局限性导致部分相互作用的贡献总是零。文件内容示例如下：

```
#=====
1:1 #第1种不等价相互作用，对应于原来的第1种
2:2
... (省略若干行)
525:556
526:557 #第526种不等价相互作用，对应于原来的第557种
#=====
```

可以看出，该文件列出了排除了明显冗余的相互作用项之后，实际有效的不等价相互作用个数，以及有效的不等价相互作用编号与原始编号的对应关系。这时，可以在“`Data_Special_Properties_%d.txt`”（`%d`为整数，表示原始的不等价相互作用数）文件中查到其中冗余相互作用项的更具体的信息。

```
#=====
24: Constant Variable
#原第24种相互作用贡献值为常数，即原第24列为常数列
59: Constant Variable
... (省略若干行)
29: Proportional to #16
#原第29种相互作用贡献值正比于第16种，即29、16列成正比
165: Proportional to #16
... (省略若干行)
```

(续下页)

(接上页)

```
Number of useless variables: 31
# 因常数列或正比列而判定为冗余列的总数为31
#=====#
```

备注：注意这里为了简单与高效起见，仅初步筛查常数列和正比列这两种简单的线性相关情形。对于多列之间线性相关的复杂情形，这里没有进行细致检查。当遇到这些明显线性相关的情形时，建议逐个核对各个冗余项线性相关的实际原因（是因为超胞过小，还是因为构型具有局限性等等），根据经验和物理直觉判断这些项是否真的可以直接舍弃；如果认为不能直接舍弃，则应通过调整超胞大小或修改构型产生方式来避免线性相关的问题。

Method 2 (使用验证集的 MLMCH 方法)

在 Method 2 中，会在 Method 1 的基础上附加一组验证集，在搜索最优模型过程中使用。当使用 *Method 2* 时，*Fitting_Dataset.txt*（训练集数据）的 n 组数据会分成两部分，前面的 n_1 组作为训练集，后面的 n_2 组作为验证集。

为了选用 Method 2，只需将 2.2.2.1 节示例文件中 *Fitting_Settings.txt* 文件（即“example_public/Fitting_one_order/input/Fitting_Settings.txt”，下同）的如下设置项修改为 1：

1 !! I_CHECK_SELFPREDICT: Try 0 and 1. Usually 0 is better (but not always).

默认情况下，训练集和验证集各占一半。如需调整训练集和验证集的分配比例，只需修改 Settings 文件的如下设置项（ n_2/n 的比值）：

0.500E+00 !! MAX_Nncheck_BY_Nn: Usually 0.5 (Not important if I_CHECK_SELFPREDICT=0).

由于 Method 2 在绝大部分情形下表现不如 Method 1，所以现已很少使用。

Method 3 (使用测试集的 SFS 方法)

在 Method 3 中，采用传统的 SFS 方法，但引入了测试集以避免过拟合。在使用 SFS 方法逐个添加参数之后，会再做一组 SBS 搜索逐个减少参数。

为了选用 Method 3，只需将 2.2.2.1 节示例文件中 *Fitting_Settings.txt* 文件的如下设置项修改为 3：

3 !! SEARCH_TYPE: 1:My(Usually)! 2:add(complete)&delete. 3:only add(complete). 4:My(complete when adding). 5:My(Accurate add). 6:My(Accurate del)

输出文件 *Fitting_lambda_log.txt* 给出 SFS 添加参数过程中各模型的拟合预测效果信息。相应的各模型的详细信息将输出到名为“Report_fitting_function_MID_GRAD_%d*”的系列文件中。其中具有较低过拟合风险的推荐模型的相应信息将输出到名为“Report_fitting_best_safe_function_GRAD_%d*”的一组文件中。输出文件 *Report_fitting.txt* 给出最后的 SBS 搜索过程中不同参数个数的模型的拟合预测效果信息。在 SBS 搜索过程中，不同参数个数的模型的详细信息将输出到名为“Report_fitting_function_GRAD_%d*”的系列文件中。在这些模型加上前述的:guilabel:‘Fitting_lambda_log.txt’中涉及的模型中，选出平均预测误差最小的模型，相应的信息输出到名为“Report_fitting_best_predict_function_GRAD_%d*”的一组文件中。这些文件的内容解释参见 2.2.2.1 节。

自定义初始模型

如需自定义初始模型，只需将 *Fitting_Settings.txt* 文件（例如采用 Method 1 时，可基于“example_public/Fitting_one_order/input/Fitting_Settings.txt”文件修改；采用 Method 2 或 3 时，参见 2.2.2.2 节和 2.2.2.3 节内容修改后再作下述修改。下同）的如下设置项修改为 5：

5 !! I_AUTOINIT: 1:Only constant term! 5: User-defined!(Use Fitting_Set_Init.txt) 2:Initially try each parameter to determine initial form.

默认的选项 1 是初始时只有常数项，而选项 5 是通过 *Fitting_Set_Init.txt* 文件自定义初始模型，*Fitting_Set_Init.txt* 的示例文件如下（# 后面的内容为注释部分，无需写出；注意这里 # 号需要用空格或制表符与数据隔开；此外 # 号开头的首尾两行不算在文件内容之内）：

```
#=====#
2  # 第一行指出初始模型包含几个参数
1 0  # 初始模型中的第1个参数 是编号为0的参数（即常数项）
2 1  # 初始模型中的第2个参数 是编号为1的参数
#=====#
```

如果该文件内容空白，则初始时无任何项。

使用指定的模型拟合

如果不想进行最优模型搜索，而直接用指定的若干参数进行拟合，则需要自定义初始模型（参见 2.2.2.4 节）的设置基础上，再将 *Fitting_Settings.txt* 文件的如下设置项修改为 1：

1 !! I_ONLY_PREDICT: Usually 0. Use 1 when finally giving reports(with I_AUTOINIT=5).

该项设置为 1 的效果是，跳过搜索最优模型阶段，直接进入最后的逐个减参数的 SBS 搜索过程。在所有输出文件中，参数个数最多的模型对应的文件给出了指定模型的拟合结果。而通过参数个数递减的 SBS 搜索过程，可以给出指定模型中各参数的重要性排序（参见图 2.2.3）。

强制保留部分参数

如需强制保留部分参数，需要将 *Fitting_Settings.txt* 文件的如下设置项修改为 1：

1 ! I_HAVE_KEEP_TERM: Usually 0. When 1, use Fitting_Set_Term_Keep.txt

同时，需要按如下示例文件的格式编辑输入文件 *Fitting_Set_Term_Keep.txt*（# 后面的内容为注释部分，无需写出；注意这里 # 号需要用空格或制表符与数据隔开；此外 # 号开头的首尾两行不算在文件内容之内）：

```
#=====#
4  # 共强制保留4个参数
1 0  # 强制保留的第1个参数 是编号为0的参数（即常数项）
2 1  # 强制保留的第2个参数 是编号为1的参数
3 2
4 5
#=====#
```

备注：如果 *Fitting_Settings.txt* 文件中 I_AUTOINIT 设置项取默认值 1，则在初始模型中会自动添加所有的强制保留的参数；但如果 I_AUTOINIT 设置项取 5，则需要人为在自定义时添加所有的强制保留的参数，而不会自动补充添加。如果某个参数设置为强制保留，但在初始时不在模型中，将按如下方式处理：在搜索最优模型过程中将该参数看作普通参数，根据表现决定是否加入模型中，但一旦符合要求而加入到模型中，该参数就不会再在减少参数或替换参数的步骤中被淘汰掉。

强制跳过部分参数

如需强制跳过部分参数，需要将 *Fitting_Settings.txt* 文件的如下设置项修改为 1:

1 ! I_HAVE_SKIP_TERM: Usually 0. When 1, use Fitting_Set_Term_Skip.txt

同时，需要按如下示例文件的格式编辑输入文件 *Fitting_Set_Term_Skip.txt* (# 后面的内容为注释部分，无需写出；注意这里 # 号需要用空格或制表符与数据隔开；此外 # 号开头的首尾两行不算在文件内容之内):

```
#=====#
2   #共强制跳过2个参数
1 0   #强制跳过的第1个参数 是编号为0的参数 (即常数项)
2 50  #强制跳过的第2个参数 是编号为50的参数
#=====#
```

备注：如果 *Fitting_Settings.txt* 文件中 I_AUTOINIT 设置项取默认值 1，则在初始模型中会自动避免添加强制跳过的参数，例如常数项；但如果 I_AUTOINIT 设置项取 5，则需要人为在自定义时避免添加所有的强制跳过的参数。如果某个参数设置为强制跳过，但在初始时已包含在模型中，将按如下方式处理：在搜索最优模型过程中将该参数看作普通参数，根据表现决定是否从模型中淘汰，但一旦被从模型中淘汰，该参数就不会再在后续步骤中被添加回模型。

设定部分参数取值

如需设定部分参数取值，需要将 *Fitting_Settings.txt* 文件的如下设置项修改为 1:

1 ! I_SET_TERM_VALUE: Usually 0. When 1, use Fitting_Set_Term_Value.txt

同时，需要按如下示例文件的格式编辑输入文件 *Fitting_Set_Term_Value.txt* (# 后面的内容为注释部分，无需写出；注意这里 # 号需要用空格或制表符与数据隔开；此外 # 号开头的首尾两行不算在文件内容之内):

```
#=====#
3   #共设置3个参数值
1 0 0.0 #设置的第1个参数值；编号为0的参数 (常数项)；设置为0.0
2 1 3.5 #设置的第2个参数值；编号为1的参数；设置为3.5
3 4 2.2
#=====#
```

备注：当设定部分参数取值时，软件实际的做法是，先将所设定的参数值对能量的贡献从总能量中扣除，再按正常流程搜索重要相互作用项。需要注意的是，默认情形下，即使是已经设置参数值的参数，仍然可能在搜索过程中被选中保留，这种情况意味着软件认为人为设定的参数值不够准确，需要修正。如果在设定参数值之后，需要禁止软件再修正相应的参数值，则应再另外设置“强制跳过相应的参数”(参见 2.2.2.7 节内容)。

设定部分参数的线性约束关系

在模型公式 (2.14) 中，若已知部分相互作用参数 $\{C_j\}$ 总是满足某种线性约束关系，如 $C_1 + C_2 + C_3 - 1 = 0$ ，这意味着 C_1 、 C_2 、 C_3 中必有一个冗余参数，可以由另外两个参数代替。例如 $C_2 = -C_1 - C_3 + 1$ ，代入公式 (2.14) 后可发现 C_2 的作用可完全由 C_1 、 C_3 代替。

需要设置这种参数之间的线性约束关系时，需要将 *Fitting_Settings.txt* 文件的如下设置项修改为 1:

1 ! I_SET_TERM_DEPENDENT: Usually 0. When 1, use Fitting_Set_Term_Dependent.txt

同时，需要按如下示例文件的格式编辑输入文件 *Fitting_Set_Term_Dependent.txt*（# 后面的内容为注释部分，无需写出；注意这里 # 号需要用空格或制表符与数据隔开；此外 # 号开头的首尾两行不算在文件内容之内）：

```
#=====#
1      #共设置1个冗余参数(1个关系式)
1 2 3  #第1个冗余参数：2号参数，相应关系式右边有3项(之后需要3行信息)
0 1.0 #0表示常数项；1.0为约束关系式中常数项的值
1 -1.0 #1表示1号参数；-1.0为约束关系式中1号参数的系数
3 -1.0 #3表示3号参数；-1.0为约束关系式中3号参数的系数
#=====#
```

如果有多项约束表达式，按上述格式继续往后依次填写即可，两个表达式的信息之间不空行。

备注：

- (1) 使用该设置时，软件一定会改写 *Fitting_Dataset.txt*（训练集数据）和 *Fitting_Data_for_prediction.txt*（测试集数据）两个输入文件内容，请特别注意备份原版文件。
- (2) 冗余参数的取值完全由其他参数值决定，因此不支持强制保留或跳过这些参数（参见 2.2.2.6 节、2.2.2.7 节；设定强制保留、跳过时不起作用），不支持设定这些参数值（参见 2.2.2.8 节；设定参数值时不起作用），也不支持在自定义初始模型时添加这些参数（参见 2.2.2.4 节；只需添加其他的非冗余参数，而冗余参数会根据约束条件自动计算并添加；特别注意，如果在自定义初始模型时添加了冗余参数，会导致程序运行错误！）。例如，在示例文件中，2 号参数设定为冗余参数后，它的取值完全由 1 号和 3 号参数决定；2 号参数是否保留在模型中，取决于根据约束关系式算出的参数值是否为零。不支持强制保留、跳过 2 号参数，不支持设定 2 号参数值，也不允许在自定义初始模型时添加 2 号参数！

蒙特卡洛模拟与 CG 局域优化 (Model atomic_effective_H)

PASP 中使用 MC 时，通常采用并行退火蒙特卡洛（parallel tempering Monte Carlo, PTMC）方法 Page 11, 11Page 11, 12Page 11, 13，参见 2.1.3 节介绍。

“Model atomic_effective_H”是适用于磁性、铁电、多铁等各种类型体系的通用的蒙特卡洛模拟模块。所需的输入文件可以比较容易地从“Model Invariant”阶段的输入文件修改得到。在 2.2.1 节中，我们曾分三种情况提供“Model Invariant”阶段的示例文件（即 2.2.1.1 节、2.2.1.2 节和 2.2.1.3 节内容）。这里仅以 2.2.1.3 节内容（铁电体系 $BaTiO_3$ ）为例，介绍如何进行后续的蒙特卡洛模拟计算。而对于 2.2.1.1 节和 2.2.1.2 节的情形（磁性体系），也按类似的方式修改输入文件即可。

以铁电体系 $BaTiO_3$ 为例，所需的全部输入文件在 `example_public/atomic_effective_H/MC&CG_Ferroelectric_user_defined_mode_BaTiO3/input` 文件夹下。本阶段所需的输入文件有 6 个：*PASP.input*、*MC.input*、*cell.str*、*unit_cell.str*、*J_best.dat* 和 *local_mode_PM.dat*。

备注：

- (1) *PASP.input* 内容与“Model Invariant”阶段（2.2.1 节）基本一致，只需在最前面添加一行“%include MC.input”。另外由于已经在“Model Invariant”阶段获得 *local_mode_PM.dat* 文件，可将“local_mode.read_interaction F”改为“local_mode.read_interaction T”，以直接从 *local_mode_PM.dat* 文件中读取不等价相互作用信息，节省计算时间。此外，需要根据蒙特卡洛模拟的需求，利用“block SuperCell”或 *cell.str* 文件扩胞；当需要计算热容等统计量时，需使用充分大的超胞（这里的充分大，可以通过逐渐增加扩胞数，查看统计量的收敛趋势判断），这通常大于“Model Invariant”阶段的超胞。
- (2) 扩胞数建议先取较小值测试，根据计算耗时和模拟所得物理量的收敛情况再酌情增加扩胞数。此外，初步测试时，*MC.input* 中 *PT.nblk*、*nbeg_blk*、*nblk* 不宜过大，否则测试时间可能很长。在初步测试顺利通过，如果能初步判断模型是合理的（例如能够给出符合预期的基态；或者虽然 MC 给出的最低能

量态不是基态，但根据有效哈密顿量模型，基态的能量确实更低，只是因为 MC 不够充分而没有找到基态)，再适当增加计算量。在增加到足够大的计算量时，这三个设置的推荐值是 4000、2000、500。

- (3) 本模块支持并行，但须注意 *MC.input* 中 *PT.M* 必须是进程数的整数倍，否则软件会报错停止！
- (4) 当我们使用 *MC.input* 文件时，习惯上在 *MC.input* 中提供实际的 *Model* 设置，即“*Model atomic_effective_H*”。为了让 *MC.input* 的“*Model atomic_effective_H*”设置生效（而 *PASP.input* 中的“*Model Invariant*”设置无效），最好将“*%include MC.input*”放在 *PASP.input* 的第一行（参见 3.1.1 节）。如果担心混淆，也可在 *PASP.input* 中将无效的 *Model* 设置行注释掉。
- (5) 采用该 *Model* 时，“*local_mode.cal_para_method*”设置项不起作用，所以与之相关的 *distortion.pos*、*distortion.MAGMOM* 等输入文件都不需要提供，以及相关的“*local_mode.nstr_random*”、“*local_mode.generate_ordered_str*”、“*block local_mode.mode_amp*”等设置项也不起作用。
- (6) 涉及自旋自由度时，在“*block Spin_values*”中，磁性原子的设置值必须取 2。原因是，在“*Model Invariant*”阶段中，软件对自旋矢量作归一化处理，所以所有的参数值都是基于归一化的自旋求出的，即采用 2.1.1 节各式中不带波浪号 (tilde) 的参数定义方式。
- (7) 在“*block local_mode.mode_definition*”中，“*15 lamp 0.0 2.76*”也可以只写“15”。当加上“*lamp 0.0 2.76*”内容时，表示在大的模式下采用指数形式的单体势函数使能量快速上升（详见 3.1.7.5 节）。如果加上了“*lamp 0.0 2.76*”内容但暂时不使用指数形式的单体势函数，不要直接用 # 注释（因为在 *block* 内部，# 不会被视为注释），建议在 *PASP.input* 或 *MC.input* 中添加行“*local_mode.non_polynomial_outer F*”（缺省值为 T）。
- (8) 如需给局域声子模式或应变自由度添加取值范围限制，或者其他约束条件，请参见 3.1.5.6 节内容。
- (9) *J_best.dat* 文件与 2.2.2.1 节输出文件“**%d_LM.txt*”的格式一致，用于提供模型中实际采用的各参数编号及其拟合值；另参见 3.7 节介绍。
- (10) *local_mode_PM.dat* 可使用 2.2.1 节的同名输出文件。如果缺少这个文件，也可在 *PASP.input* 中设置“*local_mode.read_interaction F*”，重新分析不等价相互作用（一般比较耗时，所以不建议反复计算）。
- (11) *MC.input*（提供与蒙特卡洛模拟相关的设置，参见 3.1.5 节）中值得注意的常修改的设置项列举如下。

```

#=====#
Model atomic_effective_H #实际使用的Model
Read_init_spin F #是否读取初始磁矩信息。若T, 读取amp_local_mode.in构型
atom_Heff.homogeneous_strain F #MC中是否开启strain自由度(均匀)
atom_Heff.inhomogeneous_strain F #MC中是否开启非均匀strain自由度
atom_Heff.relax_str T #是否CG优化

PT.M 64 #不同温度个数。注意必须是并行计算进程数的整数倍！
PT.low_temp 0.000001 #最低温, Hartree单位, 0.00001约等于3.15 K
PT.high_temp 0.002 #最高温
PT.Tmesh 2 #温度值分布: 1反比(1/T均匀), 2正比(T均匀)

PT.nblk_T 400 # number of exchange steps
nbeg_blk 200 # number of exchange steps before measurement
nblk 50 # number of MC block steps. Default 10. 建议取10的整数倍

# 外磁场, 沿z方向添加1 T磁场时设置为0 0 1(若自旋归一化, 有效值为1/S)
#%block ExternalMagneticField
#0 0 1
#%endblock ExternalMagneticField
#=====#

```

输出文件 *C_PTMC_K.dat* 给出不同温度（即设定的若干副本的温度）下的热容统计值。第一列为温度（单

位 K), 第二列为热容 (某种约化后的单位, 只有相对大小有意义)。如果热容呈先上升后下降的趋势, 则拐点处温度为相变温度 (误差导致的局域扰动不算)。

蒙卡所得最低能量态 (不一定恰好找到体系的基态) 信息由名为 “lowest_ene.*” 的一组文件提供。其中 *lowest_ene.pos* 给出 POSCAR 格式的超胞中各原子坐标信息; *lowest_ene.ene_symbol* 给出基态对于各种不等价相互作用的贡献值 (仅 *J_best.dat* 文件中涉及的相互作用给出非零贡献值, 其余取零值), 其格式和含义与 2.2.1 节的 *distortion.ene_symbol* 基本相同 (只是这里未考虑的相互作用项贡献取零); *lowest_ene.str_mode_amp* 给出基态的各个局域模式以及应变的大小, 其格式和含义参见 2.2.1.3 节的示例文件 *1.str_mode_amp*; *lowest_ene.amp_local_mode* 以另一种更简洁的格式给出基态的各个局域模式以及应变的大小, 示例如下:

```
#=====#
1      2.901785753659      -4.162823203431      3.369777246670
#第1个有局域模式的原子; 该原子各局域模式的大小
2      3.186716707285      -4.515955600339      3.587299249456
3      4.424829790741      3.383234868544      4.547196266060
... .. (省略若干行)
512    3.469348208439      -3.276650367835      -3.992938680425
0.000000000000      0.000000000000      0.000000000000      0.000000000000
↪0.000000000000      0.000000000000 #strain
#=====#
```

该文件中, 除了最后一行给出六个 *strain* 模式的大小外, 其他每行分别提供超胞中各个具有局域模式的原子的编号、各局域模式大小。为了更清晰地理解该文件的内容, 可以查看相应的 *lowest_ene.str_mode_amp* 内容, 如下所示:

```
#=====#
#undistorted structure #以下提供超胞的原始结构信息 (所有局域模式为零)
60.974827380343      0.000000000000      0.000000000000 #基矢1
0.000000000000      60.974827380343      0.000000000000 #基矢2
0.000000000000      0.000000000000      60.974827380343 #基矢3
#以下各行: 原子编号; 元素编号; 分数坐标 (超胞基矢)
1 1      0.062499999900      0.062499999900      0.000000000000
2 1      0.062499999900      0.000000000000      0.062499999900
3 1      0.000000000000      0.062499999900      0.062499999900
... .. (省略若干行)
2560 3      0.875000000000      0.875000000000      0.875000000000

512 #nsite #共512个有局域模式的 (中心) 原子
1 4      1      3
#isite,isite2ia(isite),uc_site(isite),nmode
#第1个有局域模式的中心原子
#该原子在上述超胞中的编号为4
#该原子是原胞中第1个有局域模式的 (中心) 原子 (以在local_mode-*.
↪xsf中的出现顺序为准)
#该原子相关的局域模式数共3个 (对应地, 以下应列出3行数据)
1 1      2.901785753659
#该原子的第1种局域模式
#对应于local_mode-1.xsf的模式; 该模式的大小
2 2      -4.162823203431
3 3      3.369777246670

2 9      1      3 #isite,isite2ia(isite),uc_site(isite),nmode
1 1      3.186716707285
2 2      -4.515955600339
3 3      3.587299249456

3 14     1      3 #isite,isite2ia(isite),uc_site(isite),nmode
1 1      4.424829790741
```

(续下页)

(接上页)

```

2    2    3.383234868544
3    3    4.547196266060

... .. (省略若干行)
512 2559    1    3 #isite,isite2ia(isite),uc_site(isite),nmode
1    1    3.469348208439
2    2    -3.276650367835
3    3    -3.992938680425

0.000000000000 0.000000000000 0.000000000000 0.000000000000 0.000000000000 0.
↪000000000000 #strain
#最后给出六种应变模式的大小
#=====#

```

以上 *lowest_ene.str_mode_amp* 文件中标为深红色加粗字体的内容，即为 *lowest_ene.amp_local_mode* 文件的内容。

最低能量态的能量取值（由模型估计，略去常数项，单位 Hartree）可在 *lowest_ene.ene* 中查得。

还有一组后缀名为 *xsf* 的输出文件。这些文件可以直接拖到 *vesta* 软件查看（可以自动显示各个磁性原子的自旋矢量，或原子的位移矢量）。示例文件参见 2.1.3 节的 *lowest_onlyspin.xsf* 文件内容及其解释。对于不同的 *xsf* 文件，矢量部分可能是自旋矢量信息，也可能是局域铁电模式导致的原子位移矢量信息。这组文件有以下几种：

第一种，原子坐标取平衡位置坐标：

```

lowest_ene.global_lowest.originalpos.all_atoms_spin.xsf #全部原子的磁矩
lowest_ene.global_lowest.originalpos.onlyspin.xsf      #磁性原子（非零磁矩）的磁矩
lowest_ene.global_lowest.originalpos.displacement_car.xsf
↪#全部原子的位移（笛卡尔坐标）
lowest_ene.global_lowest.originalpos.displacement_dir.xsf
↪#全部原子的位移（分数坐标）

```

第二种，原子坐标取实际坐标：

```

lowest_ene.global_lowest.actual.all_atoms_spin.xsf      #全部原子的磁矩
lowest_ene.global_lowest.actual.displacement_car.xsf
↪#全部原子的位移（笛卡尔坐标）

```

以上六种文件都是 MC 所得最低能量态的相关信息，当体系不考虑自旋模式或局域铁电模式时，会省略部分输出文件。若文件名中 *global* 替换为 *node**，表示相应编号的核遇到过的最低能量态信息。

如果还使用了 CG 优化步骤，则会生成加了前缀 *relax-* 的上述各个文件（包括各个 *xsf* 文件，以及前面提到的 *lowest_ene.amp_local_mode* 等文件），提供相应的 CG 优化之后的结构及自旋组态信息。

此外，如果不止关心最低能量态，还关心不同温度下的随机状态，可以查看 *T*_final_**（*部分为温度值，单位 Hartree）开头的若干 *xsf* 文件，它们提供了各个温度副本的 MC 末态信息。同样包含了前面提到的六种文件（可能会省略部分文件）。

设置初始构型与计算指定构型的能量

如需自定义蒙特卡洛模拟的初始构型，需要在 *MC.input* 中将如下设置项修改为 T:

Read_init_spin T # 是否读取初始磁矩信息。若 T，读取 *amp_local_mode.in* 构型

在本节所选 Model 中，通过 *amp_local_mode.in* 文件提供初始构型，即各个局域模式的大小以及各个 strain 模式的大小。该文件格式与输出文件 *lowest_ene.amp_local_mode* 一致（参见前文示例），需要依次提供超胞中各个具有局域模式的原子的编号、各局域模式大小。编号与原子坐标的对应关系，以及每个原子具有的局域模式数，可在 *lowest_ene.str_mode_amp* 文件中查得（如果一开始缺少该文件，可以先不设置初始构型，用很少的步数完成一次蒙特卡洛模拟，以获得该输出文件）。

另外注意，在“Model Invariant”分析指定构型或随机构型的 **.ene_symbol* 文件时，也会同时产生相应的 **.amp_local_mode* 文件，这种文件与此处需要的 *amp_local_mode.in* 文件格式是一致的，可以直接拿来使用（重命名即可）。

如果需要直接获取初始构型的能量（在 *J_best.dat* 设定的有效哈密顿量模型下的预测能量），可以在 *MC.input* 中将“PT.nblk_T”设置为 0（即不进行蒙特卡洛模拟步骤），运行 PASP 时可以在标准输出（运行软件时可通过“> log.out”将标准输出的内容输出到 *log.out* 文件中）中找到如下相应内容：

Initial energy is:	0.15741225 Hartree	4.28344747 eV
--------------------	--------------------	---------------

其中依次给出了 Hartree 单位和 eV 单位的初态能量。

分子动力学模拟 (Model atomic_effective_H)

在 PASP 软件中，选择“Model atomic_effective_H”，并设置变量“atom_Heff.MD T”，即可进行分子动力学模拟。分子动力学模拟的主要思想是采用数值方法求解以下 Newton 方程和 LLG 方程：

$$\frac{d\vec{v}_k}{dt} = \frac{1}{M_k} \left(\vec{F}_k + \vec{F}_k^{fl} \right) - v\vec{v}_k \quad (2.16)$$

$$\frac{d\vec{m}_i}{dt} = -\gamma_L \vec{m}_i \times \left(\vec{B}_i + \vec{B}_i^{fl} \right) - \gamma_L \frac{\alpha}{|\vec{m}_i|} \vec{m}_i \times \left[\vec{m}_i \times \left(\vec{B}_i + \vec{B}_i^{fl} \right) \right] \quad (2.17)$$

其中， \vec{v}_k 和 \vec{m}_i 分别表示第 k 个原子的速度和第 i 个自旋的磁矩； \vec{F}_k 和 \vec{B}_i 分别表示第 k 个原子的受力和第 i 个自旋处的有效磁感应强度（由有效哈密顿量模型所决定）； \vec{F}_k^{fl} 和 \vec{B}_i^{fl} 分别表示采用 Langevin 方法控温时的涨落力场和磁场。 γ_L 为等效旋磁比。 v 为 Newton 方程的阻尼系数； α 为 LLG 方程的阻尼系数（Gilbert damping constant）。

目前，软件中主要采用 velocity Verlet 方法积分 Newton 方程，采用 Mentink’ s SIB method 或 McLachlan’ s SMP method 积分 LLG 方程。关于如何选用不同的积分方法可以参见 3.1.6 节中的相关介绍。

以 $MnFe_2O_4$ 为例，所需的全部输入文件在 *example_public/atomic_effective_H/MD_MnFe2O4/input* 文件夹下。本阶段所需的输入文件有 7 个：*PASP.input*、*MD.input*、*cell.str*、*unit_cell.str*、*J_best.dat*、*local_mode_PM.dat* 和 *amp_local_mode.in*。

备注:

- (1) 对于动力学模拟，Read_init_spin 总应设为 T，从而读取 *amp_local_mode.in* 文件中的信息作为初始结构进行模拟演化；*amp_local_mode.in* 文件格式规则参见 2.2.3 节（特别是 2.2.3.1 节）。
- (2) 本模块支持并行，但须注意文件中 block SuperCell 扩胞的倍数必须是总进程数的整数倍，否则程序将报错。
- (3) 需要在“block atom_Heff.MASS_local_mode”中提供各局域模式的等效相对原子质量信息。提供的的质量数目即为局域模式的总数目（不计入应变模式，这与“Model Invariant”阶段产生的 *local_mode-*.xsf* 文件个数一致），顺序通常按照“block local_mode.mode_definition”中定义各局域模式时确定的先后顺序。

序（如果实际局域模式数大于定义中写出的局域模式数，这时顺序应当与 *local_mode-*.xsf* 文件的编号一致）。局域模式仅涉及一个原子时，取元素的相对原子质量；涉及多个原子时，则需要使用相应的有效质量（例如局域声子模式，常以模式定义中各原子位移的平方为权重取相对原子质量的加权平均值）。

(4) 值得注意的重要设置项列举如下（主要涉及 *PASP.input* 和 *MD.input* 两个文件）。

```
#####
Model atomic_effective_H # 有效哈密顿量方法
atom_Heff.MD T # T表示打开分子动力学模拟

%block SuperCell
6 0 0
0 8 0
0 0 5
%endblock SuperCell

%block Z_values
25 26 8
%endblock Z_values

%block Spin_values
2 2 0
%endblock Spin_values

Read_init_spin T #是否读取初始磁矩信息。若T, 读取amp_local_mode.in构型
local_mode.read_interaction T

Invariant.SOC F
# GSM.maxpower 1
# local_mode.GSM2lm_int T

fig.maxk 3

%block fig.mdist
1 11.0 6.7
%endblock fig.mdist

Invariant.power 3 # the max power of invariant
Invariant.strain_power 0 # the power of strain
Invariant.pure_strain_power 0 # the power of pure strain

%block local_mode.mode_definition
2 # method, 2 is the general one, as below
60 # num of modes
1 spin
1
4.246239888184 4.246239888184 4.246239888184 1.0 0.0 0.0

1 spin
1
4.246239888184 4.246239888184 4.246239888184 0.0 1.0 0.0

1 spin
1
4.246239888184 4.246239888184 4.246239888184 0.0 0.0 1.0

... (为节省篇幅, 省略中间部分内容)
```

(续下页)

(接上页)

```

1
3
  5.215531205855  5.215531205855  7.523188458697  1.0  0.0  0.0

1
3
  5.215531205855  5.215531205855  7.523188458697  0.0  1.0  0.0

1
3
  5.215531205855  5.215531205855  7.523188458697  0.0  0.0  1.0

%endblock local_mode.mode_definition

%block atom_Heff.MASS_local_mode
54.938 54.938 54.938 ... (省略中间部分数据) 15.999 15.999 15.999
%endblock atom_Heff.MASS_local_mode

MD.Delta_t 0.5 # fs
atom_Heff.MD_time 4.0d3 # fs
SLD.mode 2 # 1表示MD/2表示SD/3表示SLD
LLG.method 2 # 1表示RK4方法/2表示SIB方法/3表示SMP方法
LLG.damping 6.0d-3 # Alpha
MD.damping 4.0d-2 # Beta, unit: u/fs
MD.temperature 80.0 # unit: K
MD.aft_step 1
MD.int_step 20
MD.init_velocity_temp 0.0d0 # unit: K
MD.B_x 0.0d0 # unit: T
MD.B_y 0.0d0 # unit: T
MD.B_z 0.0d0 # unit: T
MD.output_amp_lm T # T表示输出中间过程
#=====#

```

动力学模拟的输出文件主要有4个：*amp_local_mode.out*、*temperature-t.dat*、*S_tot-t.dat*和*energy-t.dat*。如果设置“MD.output_amp_lm T”，则程序将生成一个名为**amp_local_mode.mid**的目录，其中包含多个*amp_local_mode.**文件，每个文件记录了当次观测时体系的构型信息。

输出文件*amp_local_mode.out*中包含体系在模拟结束时的构型信息，其格式与*amp_local_mode.in*文件完全一致，且目录**amp_local_mode.mid**下的每个文件的格式也与*amp_local_mode.in*文件完全一致。

输出文件*temperature-t.dat*记录了每次观测时体系的统计温度，示例如下：

```

#=====#
0.000000E+00  0.000000E+00
3.850483E+00  0.000000E+00
7.561680E+00  0.000000E+00
1.110774E+01  0.000000E+00
1.446748E+01  0.000000E+00
1.781564E+01  0.000000E+00
2.075857E+01  0.000000E+00
2.375723E+01  0.000000E+00
2.562883E+01  0.000000E+00
2.775630E+01  0.000000E+00
2.984838E+01  0.000000E+00
3.199036E+01  0.000000E+00
3.430230E+01  0.000000E+00

```

(续下页)

(接上页)

```

3.617140E+01  0.000000E+00
3.762378E+01  0.000000E+00
3.900152E+01  0.000000E+00
... .. (省略若干行)
#####

```

该文件中，左侧一列为自旋系统的温度，右侧一列为晶格系统的温度，单位统一为开尔文 (K)。

输出文件 *S_tot-t.dat* 记录了每次观测时体系的总自旋，示例如下：

```

#####
0.000000E+00  0.000000E+00 -1.920000E+03  1.920000E+03
-2.023891E+00  3.544137E+00 -1.917516E+03  1.917520E+03
-2.166884E+00  3.832520E+00 -1.915198E+03  1.915203E+03
-5.882759E+00  6.226149E+00 -1.912897E+03  1.912916E+03
-3.319592E+00  9.451351E+00 -1.910345E+03  1.910371E+03
-7.213153E+00  1.174391E+00 -1.908071E+03  1.908085E+03
-3.860357E+00  -3.671226E-01 -1.905609E+03  1.905613E+03
-2.071153E+00  -1.640835E+00 -1.903417E+03  1.903418E+03
-3.753091E+00  -1.277366E+00 -1.900741E+03  1.900745E+03
-4.627319E+00  3.103064E+00 -1.897576E+03  1.897584E+03
-2.723718E+00  1.580270E+00 -1.894612E+03  1.894615E+03
 2.186829E-01  3.012630E+00 -1.892574E+03  1.892576E+03
 4.373851E-01  3.151187E+00 -1.889818E+03  1.889821E+03
-2.191931E+00  3.873266E+00 -1.886974E+03  1.886980E+03
 1.348611E+00  8.513628E+00 -1.884661E+03  1.884681E+03
 2.830424E+00  1.170689E+01 -1.881422E+03  1.881460E+03
... .. (省略若干行)
#####

```

该文件中，从左到右四列分别为体系总自旋的 x 方向分量、y 方向分量、z 方向分量和模长大小，单位统一为约化普朗克常数 (\hbar)。

输出文件 *energy-t.dat* 记录了每次观测时体系的能量，示例如下：

```

#####
-2.389221E+01  0.000000E+00 -2.389221E+01
-2.383720E+01  0.000000E+00 -2.383720E+01
-2.378433E+01  0.000000E+00 -2.378433E+01
-2.373259E+01  0.000000E+00 -2.373259E+01
-2.368411E+01  0.000000E+00 -2.368411E+01
-2.363542E+01  0.000000E+00 -2.363542E+01
-2.359239E+01  0.000000E+00 -2.359239E+01
-2.354907E+01  0.000000E+00 -2.354907E+01
-2.351762E+01  0.000000E+00 -2.351762E+01
-2.348072E+01  0.000000E+00 -2.348072E+01
-2.344607E+01  0.000000E+00 -2.344607E+01
-2.341537E+01  0.000000E+00 -2.341537E+01
-2.337948E+01  0.000000E+00 -2.337948E+01
-2.334855E+01  0.000000E+00 -2.334855E+01
-2.332195E+01  0.000000E+00 -2.332195E+01
-2.329260E+01  0.000000E+00 -2.329260E+01
-2.326415E+01  0.000000E+00 -2.326415E+01
... .. (省略若干行)
#####

```

该文件中，从左到右三列分别为体系总的势能、动能和总能量，单位统一为哈特里 (Hartree)。

除上述输出文件外，在 PASP 程序的标准输出中，还将包含体系的温度、能量、热容、平均磁化强度、磁化率等测量结果，示例如下：

```
#####
atom_Heff_MD_main done

Spin Temperature      (Kelvin):  72.289

Lattice Temperature  (Kelvin):  0.000

Avg. Energy per Site   (eV):  -0.045740

Specific Heat         (k_B):  70.638472

Avg. Magnetization    (2muB * S):  0.132470

Susceptibility        (M^2/Hartree):  357.694190

MD used time          (minute):  11.201

Lattice model simulation is finished gracefully.
#####
```

全局结构搜索方法

晶体全局结构搜索可以在已知晶体化学式和外部条件的前提下找到体系的晶体结构，是其他物性分析的基础。接下来以 $BiFeO_3$ 为例来介绍全局结构搜索的方法。该体系空间群为 $R3c$ ，基态为 G 型反铁磁。

首先介绍微扰空间群法寻找钙钛矿的基态。例如，我们知道钙钛矿材料 ABO_3 的基态 ($R3c$ 空间群) 是高对称性结构 $Pm\bar{3}m$ 的子结构，空间群是 $Pm\bar{3}m$ 的子群。那么，我们可以在生成初始结构的时候，给高对称性 $Pm\bar{3}m$ 结构施加随机扰动，然后使用 $Pm\bar{3}m$ 的子群对称性对微扰后的结构做对称化，这样就得到了具有子群对称性的初始结构了。同样，在使用遗传算法生成子代的时候，对畸变模式本身做遗传演化，即对畸变子结构跟高对称性结构的结构差异做遗传演化，会比传统的切割拼接方法更有效。

接下来，我们以 $BiFeO_3$ 为例来介绍微扰空间群方法。首先我们不考虑磁性，只寻找基态结构。因此，在 VASP 的输入文件 INCAR 里，我们需要预先设定磁性，我们在 INCAR 中设定 G -AFM。全局结构搜索需要的输入文件包括 *PASP.input*，*cell.str*，*unit_cell.str*，*run_pvasp.sh*（用于批量提交 VASP 作业）和若干 VASP 计算相关的输入文件，全部示例输入文件见“**example_public/BiFeO3/1.GA/input**”文件夹下。

备注：

- (1) 初始结构文件建议采用具有较高对称性的结构。
- (2) 示例文件中 *run_pvasp.sh* 内容和用于提交任务的 *pasp.slurm*、*vasp.slurm* 文件内容与所用的集群相关。这里是以鸿之微内蒙 A 区为例，*pasp.slurm* 用于提交单次的 PASP 作业；在执行该 PASP 作业过程中，会调用 *run_pvasp.sh* 脚本，该脚本用于批量提交所有的 VASP 作业；在 *run_pvasp.sh* 脚本中，会建立多个文件夹，分别使用 *vasp.slurm* 脚本提交 VASP 作业；在本组示例文件的 *vasp.slurm* 中，连续调用了三次 VASP，依次采用了更高的精度，实际上 *vasp.slurm* 调用 VASP 的次数以及精度等设置细节，可根据用户实际使用需求进行修改。另外特别注意，这三个文件中涉及程序路径和用户名（如 *run_pvasp.sh* 中的 *df102708*）的设置，需要注意修改。
- (3) 示例文件中三组 *INCAR_** 和 *KPOINTS_** 是依次采用更高精度进行弛豫计算，实际上也可仅用一组 *INCAR* 和 *KPOINTS* 完成弛豫计算（此时需要相应修改 *vasp.slurm* 内容）。
- (4) *PASP.input* 文件部分关键设置项如下所示。

```

#####
Model GA # 全局结构搜索模块
GA.population_size 10 # Default 0, 每一代的种群大小
GA.max_generation 10 # Default 0, 遗传算法迭代次数
save_str.nsave_str 20 # 最终输出的低能结构数量
GA.perturbation T # Default F, 是否开启微扰方法
GA.Pher 0.85d0 # Default 0.85d0, 遗传算法交叉的概率
GA.Pmut 0.15d0 # Default 0.10d0, 遗传算法突变的概率
# Pperm=1.0d0-Pher-Pmut, 置换的概率
GA.lchk_mut T # Default T, 检查突变后的结构, 舍弃不合理结构
str.init_sym T # 结构初始对称性
GA.symmetrize_str T # Default F, T表示对结构做对称化
GA.parallel T # Default F, T表示使用并行方法
GA.useBCM T # Default T, 判断结构相似性时, 使用BCM方法
GA.tol_BCM 0.01d0 # Default 0.01d0, BCM方法的误差
GA.pressure 0.0d0 # Default 0.0d0 Gpa, 外界压力大小
#####

```

在运行过程中, 会产生若干 `POSCAR_*` 作为 VASP 的输入文件 `POSCAR`。主要的输出文件是 `Saved_*.POS` (*部分为编号), 个数与“`save_str.nsave_str`”的设定值一致, 这些即是经搜索找到的低能结构(后续处理参见 4.1 节)。

在以上讨论中, 我们使用微扰空间群方法来生成初始结构, 并且对畸变模式做遗传算法演化。当我们不知道体系基本框架时, 我们也可以使用随机空间群方法来生成初始结构, 使用传统的切割拼接方法来演化算法生成子代。此时, 我们需要关闭 `GA.perturbation`, 然后需要添加以下设置项, 这样我们就可以使用随机空间群方法来全局结构搜索:

```

#####
GA.gen_ran_str_sym T # Default 
↪F, T表示使用随机空间群方法来生成初始结构, 做全局结构搜索。生成空间群为GA.spg_
↪front到GA.spg_rear的随机结构
GA.spg_front 1 # Default 1, 起始空间群号
GA.spg_rear 230 # Default 230, 终点空间群号
# 修改下面这一行为F
GA.perturbation F # Default F, 是否开启微扰方法
#####

```

以上关于结构搜索的讨论中, 我们没有讨论磁性自由度。当我们在 PASP 中考虑磁性自由度时, 在 INCAR 中不需要预先设定磁性, 此时我们需要在 `PASP.input` 中添加以下关于磁性的命令:

```

#####
GA.magnetic T # Default F
# 自旋值, Fe的自旋值为3左右
%block Spin_values
0 3 0
%endblock Spin_values
GA.random_magnetic F # Default T. If T, generate magnetic configuration randomly, if 
↪F, generate magnetic configuration according to the magnetic space group
GA.lAFM_GA T # Default F. If T, we only consider AFM state
GA.lmut_mag_GA T # Default F, whether mute the magnetic configuration
GA.flip_spin_rate 0.25d0 # Default 0.2d0, the possibility of moment mutation
GA.ldiff_str_with_mag_GA T # Default F, define a same structure with same 
↪configuration and same mag
GA.lread_OUTCAR_mag F # Default F, read the magnetic from the OUTCAR, update the 
↪magnetic configuration
#####

```

以上所有讨论中, 晶格常数和原子位置都可以迭代优化。但当我们知道晶胞形状时, 我们可以只进行原

子位置的优化，而不改变晶胞形状。此时我们需要添加以下命令：

```
#####
GA.fixlattice F # Default F, 固定lattice
GA.fix_cell F # Default T, 固定cell
# when lfixlattice is T, lfix_cell is T
#####
```

当体系受到面内应力时，即面内晶格常数固定，面外晶格常数不固定时，可以加入以下命令行：

```
#####
GA.biaxial_strain T # Default F. If T, we apply in-plane strain
# 固定面内应力，面内晶格常数
%block GA.lat_fix_2D_Ang
5.5225 0.0 0.0
0.0 5.5225 0.0
%endblock GA.lat_fix_2D_Ang
#####
```

紧束缚模型方法

紧束缚模型 (Tight Binding Model, TB) 方法被广泛应用于能带分析、磁相互作用研究，磁电耦合等方面的研究中。其主要思想为将晶格格点附近的电子以原子束缚态的形式表示，借助原子轨道线性组合 (LCAO) 来表示共有化电子波函数，从而求解固体薛定谔方程。

PASP 中 TB 模块必要的两个输入文件为：*cell.str* 和 *PASP.input*，其中 *cell.str* 文件给出研究对象的结构信息，*PASP.input* 文件控制具体所采用的 TB 方法种类、模型内各参数大小、元素类别、磁性参数等相关信息。部分 TB 方法除了上述两输入文件外还需要其他额外文件，我们将在方法的具体介绍中给出。

自定义紧束缚模型

PASP 的自定义紧束缚模型方法支持手动输入哈密顿量矩阵中的所有在位能参数及跃迁参数，该方法仅需知道组成紧束缚哈密顿量的轨道数，并给相应矩阵元赋值，即可得到费米能级，能带结构，态密度等信息。

自定义紧束缚模型方法输入文件：

在自定义紧束缚模型模块中，输入文件包括主输入文件 *PASP.input* 和结构文件 *cell.str*。以石墨烯带为例，输入文件实例在 “*example_public/TB/TB_user_defined/input*” 文件夹下。

注意：

- (1) 建议在 *cell.str* 提供超胞信息，不建议用 “block SuperCell” 扩胞；
- (2) “Hop_Parameters_specified_using_site” 和 “Hop_Parameters_specified_using_dis” 必须一 T 一 F；
- (3) 在 TB 模块中，*z_values* 应取每个元素所考虑轨道的电子数，而非元素的原子序数。
- (4) *PASP.input* 值得注意的若干设置项如下（参见 3.1.9 节的设置项说明）。

```
#####
Model TB #使用TB模块

%block Orbitals #元素轨道数目及在位能信息，这里考虑石墨烯两带模型
```

(续下页)

(接上页)

```

1 1          #元素类型1, 考虑轨道数
0           #在位能, 石墨烯两带模型中设置为0
%endblock Orbitals

Different_hop_path 1 #考虑跃迁的路径数
Hop_Parameters_specified_using_site F #是否采用点位信息表示跃迁路径
Hop_Parameters_specified_using_dis T #是否采用距离信息表示跃迁路径
TB.complex_hop F #TB跃迁参数是否选用复数
%block Hop_Parameters #跃迁参数设置
1 1 2.67958 #跃迁的元素编号, 此处为C-C跃迁; 跃迁距离, 等于或略大于键长
-2.9 #跃迁参数, “类型1轨道数×类型2轨道数”的矩阵
%endblock Hop_Parameters

%block kgrid_Monkhorst_Pack #K点网格设置
100 0 0 0
0 1 0 0
0 0 1 0
%endblock kgrid_Monkhorst_Pack

%block DensityOfStates
#态密度计算设置, 最低能、最高能、展宽、能量区间内取点数以及单位 (eV或Hartree)
0.00 0.00 0.200 1000 Hartree
%endblock DensityOfStates

%block Z_values #每个原子参与跃迁的电子数
1
%endblock Z_values

BandLinesScale ReciprocalLatticeVectors #计算能带设置
%block BandLines
1 0.000000000 0.000000000 0.000000000 \Gamma
1000 0.500000000 0.000000000 0.000000000 X
%endblock BandLines
#=====#

```

自定义紧束缚模型方法输出文件:

输出文件 *band.agr*: 可利用 Xmgrace 软件生成能带图文件。

输出文件 *dos.dat*: 态密度文件, 给出能量与 DOS 的对应关系。

输出文件 *Eg.dat*: 带隙大小 (单位 eV)。

输出文件 *energy.dat*: 体系总能 (单位 eV)。

输出文件 *gnuplot.dat*/*plot.dat*: 用于通过 Gnuplot 软件生成能带图及 Photoshop 文件 *band.ps*。

输出文件 *TB.bands*: 给出能带路径点坐标及对应的本征值大小 (单位 eV)。

Slater-Koster 紧束缚模型 (S-K TB)

S-K TB 方法简介

S-K TB 方法由 J. C. Slater 和 C. F. Koster 于 1954 年提出¹⁵，使用两中心积分方法，对紧束缚模型中的矩阵元参数进行了推导，PASP 集成的 S-K TB 在原始的基础模型上加入了自旋轨道耦合（SOC）以及描述电子间库伦排斥作用的平均场近似形式下的 Hubbard 排斥作用¹。各项具体形式为：

$$H_{SK} = H_0 + H_{SOC} + H_{Hubbard} = \left(\sum_{im} \epsilon_{im} \hat{a}_{im}^+ \hat{a}_{im} + \sum_{im,jn} t_{im,jn} \hat{a}_{im}^+ \hat{a}_{jn} \right) + \sum_{ims,ins'} \langle \varphi_{ims} | \lambda_i \hat{L} \cdot \hat{s} | \varphi_{ins'} \rangle \hat{a}_{ims}^+ \hat{a}_{ins'} - \sum_{ims,ims'} \langle \varphi_{ims} | U \hat{m}_i \cdot \hat{s} | \varphi_{ims'} \rangle \hat{a}_{ims}^+ \hat{a}_{ims'} \quad (2.18)$$

指标 i 表示不同位点， m 表示不同轨道， s 表示不同自旋，其中第一项为各轨道在位能 (ϵ_{im}) 以及轨道之间跃迁 ($t_{im,jn}$) 的哈密顿量，第二项为 SOC 哈密顿量，第三项为 Hubbard 排斥作用哈密顿量，哈密顿量对应的波函数均为单电子波函数。

通过对模型内的各参数进行测试，可得到研究目标量随不同参数变化的变化情况，进而定性地从不同角度对问题进行分析。

S-K TB 方法输入文件：

在 S-K TB 模块中，输入文件仍为 *PASP.input* 和 *cell.str*，以下以 NiO_6 正八面体团簇为例，输入文件实例在 “**example_public/TB/SKTB/input**” 文件夹下。

备注：

- (1) 建议在 *cell.str* 提供超胞信息，不建议用 “block SuperCell” 扩胞；
- (2) “Hop_Parameters_specified_using_site” 和 “Hop_Parameters_specified_using_dis” 必须一个为 T，另一个为 F；
- (3) 在 TB 模块中，z_values 应取每个元素所考虑轨道的电子数，而非元素的原子序数。
- (4) 在 block “Slater_Koster_Hop_Parameters” 中，hopping 积分项的具体含义可参考原始文献^{Page 48, 15}；
- (5) 在 “block Orbitals” 中，原子在位能大小，对应了哈密顿量矩阵中的对角元，其数值可由 DFT 计算体系得到的 DOS 图中大致估计（主峰附近对应的能量值），轨道顺序为 p 轨道 (p_x, p_y, p_z)、d 轨道 ($d_{z^2-r^2}, d_{x^2-y^2}, d_{yz}, d_{zx}, d_{xy}$)、f 轨道 ($f_{xyz}, f_{x3}, f_{z3}, f_{x(y^2-z^2)}, f_{y(z^2-x^2)}, f_{z(x^2-y^2)}$)。
- (6) 在 “block Slater_Koster_Hop_Parameters” 中， V_{pd} 等数值的选取可参考 W.A.Harrison 所著 “Electronic structure and the properties of solids - The Physics of the Chemical Bond” 一书或其他文献，具体见 3.1.9 节参数 “block Slater_Koster_Hop_Parameters” 相关说明。
- (7) 输入文件中的 “magnitude_SOC” 为 SOC 强度系数，“TB.U” 为 Hubbard 排斥作用系数，分别对应于公式 (2.18) 哈密顿量中的 λ 与 U，单位为 eV，通常 λ 比 U 小一个数量级。其中参数 λ 可以根据其表达式 $(g_s - 1) \frac{1}{2} \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \frac{Ze^2}{r^3} \frac{1}{m_e^2 c^2}$ 进行大致估算；参数 U 值大小，通常与第一性原理计算中常用的 U 值一致即可。
- (8) “Sn_basis” 项决定了自旋量子化轴的 z 轴方向，若设置为 F，则其始终沿晶胞 c 轴方向，若设置为 T，则其为自旋所指方向。这一差异会导致在展开哈密顿量时，SOC 项的形式产生差异，进而使得哈密顿量矩阵形式产生差异。详见 3.1.9 节 “Sn_basis” 相关说明。
- (9) 模型中哈密顿量矩阵元的解析形式，可利用各轨道按球谐函数线性组合的形式，代入哈密顿量各项的表达式中求得。例如在 NiO_6 正八面体团簇示例中，Sn_basis 设置为 F，Ni 原子 3d 轨道的哈密顿量矩阵形式如下：

¹⁵ MIYATAKE Y, YAMAMOTO M, KIM J J, et al. On the implementation of the heat bath algorithms for monte-carlo simulations of classical heisenberg spin systems [J]. Journal of Physics C-Solid State Physics, 1986, 19(14): 2539-2546.

¹ LOU F, LI X Y, JI J Y, et al. Pasp: Property analysis and simulation package for materials [J]. Journal of Chemical Physics, 2021, 154(11):

	$d_z up$	$d_{x^2-y^2} up$	$d_{yz} up$	$d_{xz} up$	$d_{xy} up$	$d_z dn$	$d_{x^2-y^2} dn$	$d_{yz} dn$	$d_{xz} dn$	$d_{xy} dn$
$d_z up$	$e_1 + \frac{U}{2} m_z$	0	0	0	0	$\frac{U}{2} m_x - im_y$	0	$\sqrt{3}\lambda i$	$-\sqrt{3}\lambda$	0
$d_{x^2-y^2} up$	0	$e_1 + \frac{U}{2} m_z$	0	0	$-2\lambda i$	0	$\frac{U}{2} m_x - im_y$	λi	λ	0
$d_{yz} up$	0	0	$e_2 + \frac{U}{2} m_z$	λi	0	$-\sqrt{3}\lambda i$	$-\lambda i$	$\frac{U}{2} m_x - im_y$	0	$-\lambda$
$d_{xz} up$	0	0	$-\lambda i$	$e_2 + \frac{U}{2} m_z$	0	$\sqrt{3}\lambda$	$-\lambda$	0	$\frac{U}{2} m_x - im_y$	λi
$d_{xy} up$	0	$2\lambda i$	0	0	$e_2 + \frac{U}{2} m_z$	0	0	λ	$-\lambda i$	$\frac{U}{2} m_x - im_y$
$d_z dn$	$\frac{U}{2} m_x + im_y$	0	$\sqrt{3}\lambda i$	$\sqrt{3}\lambda$	0	$e_1 - \frac{U}{2} m_z$	0	0	0	0
$d_{x^2-y^2} dn$	0	$\frac{U}{2} m_x + im_y$	λi	$-\lambda$	0	0	$e_1 - \frac{U}{2} m_z$	0	0	$2\lambda i$
$d_{yz} dn$	$-\sqrt{3}\lambda i$	$-\lambda i$	$\frac{U}{2} m_x + im_y$	0	λ	0	0	$e_2 - \frac{U}{2} m_z$	$-\lambda i$	0
$d_{xz} dn$	$-\sqrt{3}\lambda$	λ	0	$\frac{U}{2} m_x + im_y$	λi	0	0	λi	$e_2 - \frac{U}{2} m_z$	0
$d_{xy} dn$	0	0	$-\lambda$	$-\lambda i$	$\frac{U}{2} m_x + im_y$	0	$-2\lambda i$	0	0	$e_2 - \frac{U}{2} m_z$

PASP.input 值得注意的若干设置项如下（参见 3.1.9 节的设置项说明）。

```
#=====#
Model TB #使用TB模块
USE_Slater_Koster_Model .TRUE. #若使用S-K TB, 则设置为TRUE
use_rotation_matrix T #用旋转矩阵处理角动量, 在使用S-K TB时此项必须设置为.TRUE.
#以下部分对应跃迁轨道信息及H_0部分
#===== Orbital & H_0 =====
Hop_Parameters_specified_using_site .FALSE.
Hop_Parameters_specified_using_dis .TRUE. #这两项决定采用位矢还是距离来表示跃迁路径
%block Z_values
8 6 #Ni的3d轨道有8个电子, O的2p轨道有6个电子
%endblock Z_values
#注意, 在TB模块中, 此处的Z_
->values指每个元素所考虑跃迁轨道的实际电子数, 而非元素的原子序数。

overlap.distance 4 # 交叠距离, 略大于原子间成键的长度即可。单位Bohr。

Different_hop_path 1 #考虑跃迁的壳层对的数目
%block Slater_Koster_Hop_Parameters
1 2 3.967974 #元素类型1, 元素类型2, 键长(单位Bohr)
1 #壳层对数目
3 2 2 1
#元素1所考虑轨道的主量子数
#元素1所考虑轨道的角量子数
#元素2所考虑轨道的主量子数
#元素2所考虑轨道的角量子数(本例对应3d、2p)
-2 3 #S-K TB对应的hopping积分项的数值(p轨道与p轨道间为V_ppσ V_ppπ, -
->p轨道与d轨道间为V_pdσ V_pdπ, p轨道与f轨道间为V_pfσ V_pfπ)
%endblock Slater_Koster_Hop_Parameters

%block Orbitals #轨道及在位能信息(单位eV), 可从DFT得到的DOS图大致判断
1 5 #元素1, 所考虑轨道的数目(本例Ni 3d轨道, 数目为5)
0.7 0.7 -0.2 -0.2 -0.2 #各轨道上的在位能大小(本例为Eg(d_x2-y2, d_r2)轨道与T2g(d_
->xy, d_yz, d_zx)轨道的在位能)
2 3 #元素2, 所考虑轨道的数目(本例O 2p轨道, 数目为3)
-1.7 -1.7 -1.7 #各轨道上的在位能大小(本例为2p(px, py, pz)轨道的在位能)
%endblock Orbitals
```

(续下页)

```

%block orbitals_n1 #考虑跃迁的壳层信息
1 1 #第一种元素 考虑一个轨道
3 2 #3d轨道的n l
2 1 #第二种元素 考虑一个轨道
2 1 #2p轨道的n l
%endblock orbitals_n1
#===== Orbital & H_0 =====
#以下部分对应自旋、H_SOC以及H_Hubbard
#===== Spin =====
%block Spin_values
2 0 #元素1的磁矩, 元素2的磁矩
%endblock Spin_values

spin_noncollinear T #是否开启非共线

Sn_basis F
# 若设置为F, 自旋z量子化轴为晶胞z轴
# 若设置为T, 自旋z量子化为与自旋方向共线的轴, 这一项会使哈密顿量矩阵形式不同。

nspin_directions_set 1 #设定自旋方向的原子数目 (本例为1个Ni原子)
%block spin_directions_set
1 -0.707107 0.707107 0.000000 #原子序数及其对应的自旋方向
%endblock spin_directions_set
#===== Spin =====

#===== H_SOC =====
nsites_SOC 1 #考虑SOC的原子数目 (本例考虑1个Ni原子)

%block magnitude_SOC
1 0.3 #原子序数, 对应的SOC强度λ (单位为eV)
%endblock magnitude_SOC
#===== H_SOC =====

#===== H_Hubbard =====
TB.U 2 #Hubbard排斥作用系数U大小, 单位为eV
#===== H_Hubbard =====
#=====#

```

S-K TB 方法输出文件

输出文件包括程序标准输出 (可指定输出到自定义文件中, 如 *log.out*); 哈密顿量矩阵文件: *H_2D.dat*, *H_I.dat*, *H_R.dat*, *H.dat*, *Hso.dat*, *Ht.dat*, *Htot.dat*, *HU.dat*; 本征值文件: *EIG_NSOC.dat*, *EIG.dat*; 波函数文件: *WF_I.dat*, *WF_NSOC.dat*, *WF_PROJ.dat*, *WF_R.dat*, *WF_SPIN.dat*, *WF.dat*; 密度矩阵文件: *DM_SOC_NSOC_diff.dat*, *DM.dat*; 运行信息文件 *out.fdf*。

程序标准输出: 因 NiO_6 输出矩阵过大, 此处以相同配位环境下的单个 Ni 原子 TB 模型为例, 介绍标准输出的部分内容, 如下所示。

```

#=====#
Orbitals # 第一列为轨道编号, 第二列为原子编号, 第三列为该原子内轨道编号
1 1 1
2 1 2
3 1 3
4 1 4
5 1 5
Total valence electrons number is: 8.00000

```

(接上页)

```

L,Theta,Phi: 2      0.000000000000      0.000000000000 #自旋矢量: 球坐标形式
SOC Matrix: #将输入文件中的参数代入所得SOC矩阵
z2 up,      x2-y2 up,    yz up,    zx up,    xy up,    z2 dn,    x2-y2 dn,    yz dn,    zx dn,
↪ xy dn
  0.000  0.000,    0.000  0.000,    0.000  0.000,    0.000  0.000,    0.000  0.000,
↪ 0.000  0.000,    0.000  0.000,    0.000  0.866,    -0.866  0.000,    0.000  0.000
..... (省略若干行)

TB+U WF: #考虑Hubbard排斥作用后的波函数矩阵
  z2 up,      x2-y2 up,    yz up,    zx up,    xy up,    z2 dn,    x2-y2 dn,    yz dn,    zx
↪ dn,      xy dn
  0.000000  0.000000  0.000000  0.707107  0.000000  0.000000  0.000000  0.000000  0.
↪ 707107  0.000000
..... (省略若干行)

TB+U+SO WF in terms of the TB+U WF:
#在上述基础上加入SOC的波函数
#第一列为矩阵元所在行
#第二列为矩阵元所在列
#第三列为该矩阵元实部大小
#第四列为虚部大小
  1  1 (      -0.362542236996      0.362542236996)
..... (省略若干行)

H in the NSOC WF basis:
#不考虑SOC波函数基下的哈密顿量矩阵, 每个括号内前一部分表示实部, 后一部分表示虚部。
(  -4.750  0.000)  0 (  -0.025  0.025) (   0.043  -0.043) (  -0.000  -0.035) (
↪ 0.035  -0.035)  0 (   0.025  0.025) (  -0.035  -0.000) (   0.043  0.043)
..... (省略若干行)

Eigenvalues: #上述矩阵的本征值
  1  -4.806103  0.000000
..... (省略若干行)

Wavefunctions: #波函数数值
Basis:      1,      2,      3,      4,      5,      ↪
↪ 6,      7,      8,      9,      10,
WF  1 -0.03 -0.03,  -0.01  0.01,  -0.26  0.26,  -0.26  0.26,   0.34  0.34,   0.04 -0.
↪ 00,  -0.00  0.02,   0.00 -0.36,  -0.00 -0.36,  -0.48  0.00,
..... (省略若干行)

Diagonal Part of Density matrix: #密度矩阵对角元
Occ_Orb in Atom  1  1.007532836291  1.003016275637  1.994961542172  1.994961542172 ↪
↪ 1.999527803728 #1号原子各轨道占据数
Spin up #1号原子各轨道自旋向上占据数
  0.503766418146  0.501508137819  0.997480771086  0.997480771086  0.999763901864
Spin down #1号原子各轨道自旋向下占据数
  0.503766418146  0.501508137819  0.997480771086  0.997480771086  0.999763901864
..... (省略若干行)
Total energy is:      -25.514138174039 #体系的能量
#####

```

备注: 体系的能量是将总的哈密顿量矩阵求解本征值后, 按照从小到大顺序对本征值进行选取求和, 选取本征值的数目等于轨道上实际的电子数, 例如对于 Ni, 考虑 SOC 后 3d 轨道共有十条, 对应哈密顿量矩阵为 10*10 矩阵, 有 10 个本征值, 实际上 3d 轨道有 8 个电子, 则总能量为由小到大排序的前八个本征值求和所

得。

哈密顿量矩阵输出文件：（行/列对应的轨道顺序：每原子内部轨道的顺序见 *log.out* 文件，不同原子间的轨道按照原子序数排序，所有的 spin up 轨道全部排在 spin down 轨道之前。以 NiO_6 为例排序：Ni:z2 up, x2-y2 up, yz up, zx up, xy up; O1:px up, py up, pz up; O2:px up, py up, pz up; Ni:z2 dn, x2-y2 dn, yz dn, zx dn, xy dn; O1:px dn, py dn, pz dn; O2:px dn, py dn, pz dn……）

1. *H_2D.dat* : 给出哈密顿量数值矩阵的整体形式，矩阵元为实部 + 虚部 *I 的形式。
2. *H.dat* : 将数值矩阵所有矩阵元按顺序排开的形式，文件开头表示轨道数，第一列为矩阵元所在行数，第二列为矩阵元所在列数，第三行为矩阵元实部大小，第四行为矩阵元虚部大小。
3. *H_I.dat* : *H_2D.dat* 文件中的虚部。
4. *H_R.dat* : *H_2D.dat* 文件中的实部。
5. *Hso.dat* : 只有 SOC 部分的哈密顿量数值矩阵，每一矩阵元由一小括号表示，括号内第一个数值为该矩阵元的实部，第二个数值为虚部。
6. *Ht.dat* : 只考虑在位能与跃迁能部分的哈密顿量数值矩阵，形式与 *Hso.dat* 相同。
7. *HU.dat* : 只考虑 Hubbard 排斥作用部分的哈密顿量数值矩阵，形式与 *Hso.dat* 相同。
8. *Htot.dat* : 将 *Hso.dat* , *Ht.dat* , *HU.dat* 三部分相加后得到的总哈密顿量数值矩阵

本征值文件：（本征值均按由小到大顺序自上而下排列）

1. *EIG_NSOC.dat* : 不考虑 SOC 矩阵的本征值。
2. *EIG.dat* : 总哈密顿量矩阵的本征值。

波函数文件：

1. *WF_I.dat* : 波函数虚部。
2. *WF_NSOC.dat* : 无 SOC 的波函数。
3. *WF_PROJ.dat* : 每个波函数在各个轨道的投影。
4. *WF_R.dat* : 波函数实部。
5. *WF_SPIN.dat* : 每个波函数的自旋矢量期望值。
6. *WF.dat* : 总波函数。

密度矩阵文件：

1. *DM_SOC_NSOC_diff.dat* : SOC 密度矩阵与无 SOC 密度矩阵差值。
2. *DM.dat* : 总密度矩阵。

手动加入哈密顿量的 Slater-Koster 紧束缚模型

PASP 的 S-K TB 方法支持在原来总哈密顿量的基础上，添加额外的数值哈密顿量矩阵，需要在原 *PASP.input* 基础上加入 “TB.additional_H T” 的标签设置。并在原来两个输入文件之外，增加一个描述所要添加矩阵的文件 “*Hmat_add.dat*”。以正八面体六配位环境下的单 Ni 原子示例，考虑 SOC 后，3d 共有 10 个轨道，因此添加的哈密顿量矩阵也是 10*10 矩阵（注意矩阵元为复数）。输入文件实例在 “*example_public/TB/SKTB_with_Hmat_add/input*” 文件夹下。其中 *Hmat_add.dat* 文件内容如下：

```
#=====#
(0,0) (0,0) (0,0) (0,0) (0,0) (0,0) (0,0) (0,1.732) (-1.732,0) (0,0)
(0,0) (0,0) (0,0) (0,0) (0,2) (0,0) (0,0) (0,1) (1,0) (0,0)
```

(续下页)

(接上页)

```
(0,0) (0,0) (0,0) (0,-0.5) (0,0) (0,-1.732) (0,-1) (0,0) (0,0) (-0.5,0)
(0,0) (0,0) (0,0.5) (0,0) (0,0) (1.732,0) (-1,0) (0,0) (0,0) (0,0.5)
(0,0) (0,-2) (0,0) (0,0) (0,0) (0,0) (0,0) (0.5,0) (0,-0.5) (0,0)
(0,0) (0,0) (0,1.732) (1.732,0) (0,0) (0,0) (0,0) (0,0) (0,0) (0,0)
(0,0) (0,0) (0,1) (-1,0) (0,0) (0,0) (0,0) (0,0) (0,0) (0,-2)
(0,-1.732) (0,-1) (0,0) (0,0) (0.5,0) (0,0) (0,0) (0,0) (0,0.5) (0,0)
(-1.732,0) (1,0) (0,0) (0,0) (0,0.5) (0,0) (0,0) (0,-0.5) (0,0) (0,0)
(0,0) (0,0) (-0.5,0) (0,-0.5) (0,0) (0,0) (0,2) (0,0) (0,0) (0,0)
#=====
```

备注:

- (1) 添加矩阵的大小应和 PASP 生成矩阵大小相同;
- (2) 添加矩阵时, 各轨道对应的矩阵元要注意按照 PASP 中 TB 的轨道顺序进行添加 (关于轨道顺序, 参见 2.4.2 节“哈密顿量矩阵输出文件”部分的相关内容);
- (3) 根据 Fortran 读取复数的语法规则, 括号内实部与虚部之间需要逗号隔开;
- (4) 添加的矩阵应是厄密的, PASP 会对矩阵的厄密性进行检查。

自旋序诱导铁电性统一极化模型

自旋序诱导铁电极化的理论模型简介

1994 年瑞士的 Schmid 明确提出了多铁性材料 (multi-ferroic) 的概念, 即具有两种或两种以上初级铁性体特征的单相化合物。磁致多铁材料是多铁性材料大家族中的后起之秀, 其特色在于其铁电性起源于特定的磁序, 因此其铁电与磁性紧密关联, 具有本征的强磁电耦合效应。Khomsii 根据物理机制对多铁性材料进行分类, 他将上述磁致多铁材料单独列为一类, 称为第二类 (type-II) 多铁体, 其余体系统统归为一类, 称为第一类 (type-I) 多铁体。

从对称性的角度看, 铁电性破坏空间反演对称性。如果晶体结构本身满足空间反演对称, 但其磁结构破坏了空间反演对称, 则该磁序则有可能导致铁电极化。2005 年以来, Nagaosa、Dagotto 等人提出一些微观模型部分解释了磁序诱导铁电性现象, 但是这些模型还存在一些问题。2011 年以来, 向红军等人提出了一个用来描述磁序诱导铁电性的统一极化模型。该模型认为自旋序诱导的铁电极化包含两部分: $\vec{P}_t \approx \vec{P}_e (\vec{S}_1, \vec{S}_2, \dots, \vec{S}_m; \vec{U} = 0; \Theta = 0) + \vec{P}_{ion,lattice} (\vec{U}; \Theta)$, 这里 \vec{S}_i 表示磁性离子的自旋, $\vec{U} = (\vec{u}_1, \vec{u}_3, \dots, \vec{u}_n)$ 表示离子相对参考结构 (一般是高温中心对称结构) 的位移, $\Theta = (\eta_1, \eta_2, \dots, X_6)$ 表示相对参考结构的应变。其中纯电子部分 \vec{P}_e 描述自旋序引起的电荷重新分布而诱导的铁电极化, 离子-晶格部分 $\vec{P}_{ion,lattice}$ 描述自旋-晶格耦合导致的离子位移和晶格形变而导致的铁电极化。对于自旋序诱导的铁电极化的纯电子部分, 一个磁性离子对诱导的电子极化是这两个磁性离子自旋的二次函数: $\vec{P}_e = \sum_{i=1}^2 \sum_{\alpha\beta} \vec{P}_i^{\alpha\beta} S_{i\alpha} S_{i\beta} + \sum_{\alpha\beta} \vec{P}_{12}^{\alpha\beta} S_{1\alpha} S_{2\beta}$, 其中第一项是由极化参数矩阵 $\vec{P}_i^{\alpha\beta}$ 决定的与单个自旋有关的单格点项 (intra-site), 而第二项是由极化参数矩阵 $\vec{P}_{12}^{\alpha\beta}$ 决定的与两个自旋都有关的格点间项 (inter-site)。

为了得到极化的离子-晶格部分贡献, 需要计算由于自旋序导致极性离子位移和晶格形变。一般地, 自旋-晶格耦合体系的总哈密顿包含两部分: $E(u_m, \eta_j, \vec{S}_i) = E_{PM}(u_m, \eta_j) + E_{spin}(u_m, \eta_j, \vec{S}_i)$ 。 $E_{PM}(u_m)$ 是与自旋无关的顺磁态的弹性能部分, $E_{PM} = E_0 + \sum_m A_m u_m + \sum_j A_j \eta_j + \frac{1}{2} \sum_{m,n} B_{mn} u_m u_n + \frac{1}{2} \sum_{j,k} B_{jk} \eta_j \eta_k + \sum_{m,j} B_{mj} u_m \eta_j + O(3)$ 。 E_0 是参考态 ($u_m = 0, \eta_j = 0$) 能量。通常假定参考态处于平衡态 (原子受力和应力为 0), $A_m = 0, A_j = 0$ 。

E_{spin} 是自旋相互作用哈密顿, 包含对称交换相互作用 E_H , 反对称 DM 相互作用 E_{DM} , 和单离子各向异性项: $E_{SIA} : E_{spin} = E_H + E_{DM} + E_{SIA}$ 。其中对称交换相互作用 $E_H = \sum_{i,i'} J_{i,i'}^0 \vec{S}_i \cdot \vec{S}_{i'} + \sum_{i,i'} \frac{\partial J_{i,i'}}{\partial u_m} \vec{S}_i \cdot$

$\vec{S}_{i'}u_m + \sum_{i,i'} \frac{\partial J_{i,i'}}{\partial \eta_j} \vec{S}_i \cdot \vec{S}_i \eta_j + O(3)$ (E_{DM} 和 E_{SIA} 的表达式与 E_H 类似), $J_{i,i'}^0, \frac{\partial J_{i,i'}}{\partial u_m}, \frac{\partial J_{i,i'}}{\partial \eta_j}$ 都可以利用四态法计算。通过求总能量极小值, 可以计算出特定磁序下的离子的极性位移:
$$\begin{cases} \frac{\partial E(u_m, \eta_j, \vec{S}_i)}{\partial u_m} = 0 \\ \frac{\partial E(u_m, \eta_j, \vec{S}_i)}{\partial \eta_j} = 0 \end{cases}$$
。然后利用玻恩有效电荷 $Z_{\alpha m}$ 和压电系数 $e_{\alpha j}$, 可以得到极化的离子位移贡献: $\mathbf{P}_\alpha = \sum_m Z_{\alpha m} u_m + \sum_j e_{\alpha j} \eta_j$ 。力常数 B_{mn} , 弹性常数 B_{jk} , internal displacement tensor B_{mj} , $z_{\alpha m}$, $e_{\alpha j}$ 可以利用密度泛函微扰理论或有效差分方法计算得到。

自旋序诱导铁电极化的计算流程

铁电极化的纯电子贡献

以下是计算铁电极化的纯电子贡献时, *PASP.input* 部分关键设置项的例子。完整示例输入文件见“**example_public/P_by_spin_order/pure_electronic/input**”文件夹。

```
#=====#
Model KNB

%block isaAB
2 2
%endblock isaAB

fig.maxk 2 #考虑自旋离子对
%block fig.mdist
1 11
%endblock fig.mdist

GKNB.symP T #是否在程序里根据晶体结构对称性来对称化极化参数

%block GKNB_inter_site
1 #不等价离子对的个数
6.184071509801 6.184071509801 6.184071509801 #Fe2
4.638053632351 6.184071509801 9.276107264702 #Fe35
1 0 0 #局域坐标系x轴
0 1 0 #局域坐标系y轴
0 0 1 #局域坐标系z轴
0.001254 0.00213 0.002374 #xx
0 0 0 #xy
0 0 0 #xz
0 0 0 #yx
0.001254 0.00213 0.002374 #yy
0 0 0 #yz
0 0 0 #zx
0 0 0 #zy
0.001254 0.00213 0.002374 #zz
%endblock GKNB_inter_site

%block GKNB_single_site
1
6.184071509801 6.184071509801 6.184071509801 #Fe2
1 0 0 #局域坐标系x轴
0 1 0 #局域坐标系y轴
0 0 1 #局域坐标系z轴
0 #Pxx
0 #Pyy
```

(续下页)

(接上页)

```

0 #Pzz
0 #Pxy=Pyx
0 #Pxz=Pzx
0 #Pyz=Pzy
%endblock GKNB_single_site
#=====#

```

其中，“Model KNB”表示采用了KNB模块。“block isaAB”设定磁性离子的元素种类，目前最多可以考虑两种磁性离子，这个例子表示第二种元素是磁性离子。“block fig.mdist”里第二个数（这里的11）表示考虑磁性离子对之间的最大距离（以Bohr为单位）。“block GKNB_inter_site”设定格点间项极化参数矩阵 $\vec{P}_{12}^{\alpha\beta}$ 。这个block里第一行给出了不等价离子对的个数。接下来需要对每一个不等价离子对给出离子位置的直角坐标（Å为单位），采用的局域坐标系（通常为单位矩阵），和 $\vec{P}_{12}^{\alpha\beta}$ 分量。单格点项极化参数矩阵 $\vec{P}_{12}^{\alpha\beta}$ 的输入方式与格点间项极化参数矩阵类似（对于目前例子为0，可以不设定）。另外，体系的磁序由`spin3.in`文件设定。

运行PASP以后，标准输出会给出极化大小，比如：

```

spin_FE: P is      0.000000019290      0.000000000000      0.000000000000 muC/m^2

```

极化的离子-晶格部分贡献

以下是计算铁电极化的离子-晶格部分贡献时，`PASP.input`部分关键设置项的例子。完整示例输入文件见“`example_public/P_by_spin_order/ion_strain/input`”文件夹。

```

#=====#
Model Spin_lattice_interaction
spin_lat.spin_force T #计算自旋序导致的离子受力
spin_lat.spin_int_stress T #计算自旋序导致的晶格应力
Read_init_spin T #从spin3.in文件读入磁序
phonopy_force_constant T #读入phonopy给出的力常数文件
phon.sym_born_chg T #是否对称化给定的波恩有效电荷张量
#=====#

```

除了需要准备通常的输入文件以外，还需要给出`spin_exchange.dat`（包含磁相互作用及海森堡磁相互作用对位移的偏导 $\frac{\partial J_{i,i'}}{\partial u_m}$ ，格式规则见3.3节），`SPOSCAR`（phonopy里计算力常数用的超胞），`FORCE_CONSTANTS`（phonopy给出的力常数），`Zeff.dat`（波恩有效电荷张量，见3.12节），`elastic.dat`（包含弹性常数，*internal displacement tensor*，压电张量，见3.13节），`spin_strain.dat`（包含海森堡磁相互作用对应变的偏导 $\frac{\partial J_{i,i'}}{\partial \eta_j}$ 文件设定DM相互作用对位移的偏导（见3.15节）。

运行PASP以后，标准输出会给出极化大小，比如：

```

Total P_{ion+lattice} (muC/m^2):      -4.578990691511      2.943211932078 -11595.
↪182705833875

```

线性自旋波色散的计算

线性自旋波理论简介

自旋波 (spin wave) 是由于电子自旋之间存在的交换作用, 在磁体中自发产生的一种元激发, 又称为磁振子 (magnon)。1936 年, 布洛赫 (F.Bloch) 提出自旋波理论, 用来解释低温下磁化强度随着温度变化的关系。在 20 世纪 50 年代, 通过磁共振和中子衍射方法, 从实验中证实了自旋波的存在。目前 PASP 可以计算一般性二次自旋哈密顿量的自旋波色散:

$$H = \sum_{mi,nj} \mathbf{S}_{mi}^T J_{mi,nj} \mathbf{S}_{nj} + \sum_{mi} \mathbf{S}_{mi}^T A_{mi} \mathbf{S}_{mi} + \mu_B \mathbf{H}^T \sum_{mi} g_i \mathbf{S}_{mi} \quad (2.19)$$

其中 m, n 是晶胞序号, i, j 代表晶胞中的磁性离子编号, J 和 A 分别代表自旋相互作用张量和单离子各向异性张量 (都用矩阵表示)。利用 Holstein-Primakoff 变换可以把自旋算符表示成玻色算符, 保留玻色算符最高到二阶项, 对玻色算符作傅里叶变换, 可以得到不同 q 点二阶玻色子哈密顿矩阵 h_q (具体可参考文献¹⁶)。利用 Colpa 提出的方法¹⁷, 可以对角化该二阶玻色子哈密顿矩阵, 从而得到自旋波色散。

线性自旋波色散的计算流程

以下是计算线性自旋波色散时, *PASP.input* 部分关键设置项的例子。完整示例输入文件见 “example_public/magnon/input” 文件夹。

```
#####
Model magnon
Read_init_spin T
spin_lat.general_J T
number_of_qpoints 100
%block qpoints.magnon
0.5      0.000000000000      0.
0.0000   0.00000000      0.
%endblock qpoints.magnon
#####
```

其中, “Model magnon” 代表采用计算线性自旋波色散的模块。“Read_init_spin T” 表示基态磁序 (可以是非共线磁基态) 从 *spin3.in* 文件中读取。自旋相互作用参数从 *spin_exchange.dat* 文件读取 (参见 3.3 节格式说明, 注意须采用矩阵形式。另外注意该模块暂未支持四阶点乘相互作用, 请勿添加这类相互作用信息)。“spin_lat.general_J T” 表示自旋相互作用采用了一般性的二次相互作用形式。目前 PASP 每次计算布里渊区 1 条线段上的自旋波色散, 其中 “number_of_qpoints” 代表这条线段上 q 点的数量, “block qpoints.magnon” 里第一行代表这条线段的起始 q 点 (q 用以倒格矢展开的系数 q_i 表示: $q = \sum_i q_i b_i$), 第二行代表这条线段的终末 q 点。

运行 PASP 以后, 输出文件 *spin_wave_E.dat* 会提供这条线段上 q 点对应的自旋波能量, 该文件可以用 xmgrace 等软件可视化。

¹⁶ TOTH S, LAKE B. Linear spin wave theory for single- q incommensurate magnetic structures [J]. Journal of Physics: Condensed Matter, 2015, 27(16): 166002.

¹⁷ COLPA J. Diagonalization of the quadratic boson hamiltonian [J]. Physica A: Statistical Mechanics and its Applications, 1978, 93(3-4): 327-353.

核心输入文件 *PASP.input*

PASP.input 文件读取规则

PASP 软件的核心输入文件是 *PASP.input*，一般在该文件中选定所用的功能模块，并提供研究对象的结构信息、设置相应的参数等；另外，对于某些功能模块，可能还需要其他的补充输入文件。所有的输入文件都应在同一文件夹下，并在相应的文件夹内调用 *PASP* 软件（调用方法参见 1.2 节）。

在 *PASP.input* 文件中将逐行读取内容。每行开头的若干空格和制表符（由 Tab 键生成）忽略不计，每行内的字符串（包括数据）之间由任意数量（但不少于一个）的空格或制表符隔开。

当某行的第一个字符串为软件指定的若干关键词（例如 `NumberOfAtoms` 等，不区分大小写）之一时，该行内容有效。例如，若某行内容为 “`numberofatoms 5`”，则该行内容有效。

当某行第一个字符串为 “`%block`” 时，将会读取该行的第二个字符串（记为 `strA`），这里要求第二个字符串必须是软件制定的若干 `block` 类型的关键词（例如 `SuperCell`, `fig.mdist` 等，不区分大小写）之一；这时软件将会连续读取多行内容，由 “`%block strA`” 开始，到 “`%endblock strA`” 结束。不同的关键词内容之间可以空任意行；但是 `block` 类型内容的内部不能随意空行，必须严格按照该 `block` 的格式填写内容。

井号（#）可用于备注信息，每行井号之后的内容不被软件读取。例如，若某行内容为 “`NumberOfAtoms 5#total`”，则该行的内容仍然是有效的，并且等价于 “`NumberOfAtoms 5`”。为了输入文件的美观与可读性，建议井号和有效的内容之间用若干空格或制表符隔开，例如 “`NumberOfAtoms 5 #total`”。

可以在 *PASP.input* 中用 “`%include 文件名`” 的格式添加其他输入文件。软件在读到该行内容时，会跳到相应的文件继续逐行读取，读完相应文件的内容后再回到 “`%include 文件名`” 的位置继续读取后面的内容。常用此格式添加的文件名包括 “`cell.str`”、“`unit_cell.str`” 和 “`MC.input`” 等，在本手册中我们称这些文件为（*PASP.input* 的）附属文件。这些额外添加的文件的内容格式与 *PASP.input* 一致。原则上可以将这些额外添加的输入文件的内容全部移到 *PASP.input* 文件中，而在 *PASP.input* 文件中删掉所有以 “`%include`” 开头的行（如需保证移动内容前后的设置完全等效，可将移动的内容放置在之前写 “`%include 文件名`” 的相应位置）。

若同一关键词在 *PASP.input* 及其通过 “`%include 文件名`” 调用的文件中出现两次或以上时，仅第一次出现关键词时对应的内容有效。这是因为软件在需要读取某项信息时，会在 *PASP.input* 及其调用文件中逐行搜索相应关键词，并且在首次发现关键词后停止继续搜索。例如，在 *PASP.input* 中出现 “`Model Invariant`” 和 “`%include MC.input`”，并且在 *MC.input* 中出现 “`Model atomic_effective_H`” 时，哪个 “`Model`” 设置行起

作用取决于 *PASP.input* 中 “**Model Invariant**” 和 “**%include MC.input**” 的先后顺序：若 “**%include MC.input**” 出现在前，则软件会先读到 *MC.input* 中的 “**Model atomic_effective_H**”，于是 “**Model atomic_effective_H**” 起作用，而 “**Model Invariant**” 无效；反之则效果相反。

为布尔型 (boolean) 变量赋值时，取 True 值时可写成 “T” 或 “.TRUE.”，取 False 值时可写成 “F” 或 “.FALSE.”，为简便起见，案例中均采用 “T” 或 “F” 的形式。

以下 3.1.2 节将介绍 *PASP.input* 中最常用的几个设置项，它们在多个不同模块中都可能用到。另外还有一些常用的设置项经常以 “**%include 文件名**” 的方式写在附属文件中，包括 “*cell.str*”、“*unit_cell.str*”、“*MC.input*” 和 “*MD.input*” 等文件，这些将在 3.1.3 至 3.1.6 节介绍。3.1.7 节及之后的各小节将补充介绍各个功能模块下常用的设置项。

最常用设置项

本节介绍输入文件 *PASP.input* 中最常用的一些设置项，这些设置项在大多数功能模块（主要由 Model 设置项决定）中都会用到。软件中实际要用到哪些设置项主要取决于功能模块的选择。

Model

- 参数名称：Model
- 默认值：Charge_ordering
- 选值：find_J_path_sym/Invariant/Spin_lattice_interaction/atomic_effective_H/GA/TB/KNB/magnon（这里仅列出本手册涉及的选项）。
- 描述：这是 PASP 软件最重要的一项设置，它决定了软件使用哪个功能模块，这通常决定了软件读取哪些设置项。因此建议将该设置放在足够醒目的位置，比如第一行。
- 案例：

```
Model find_J_path_sym
```

block SuperCell

- 参数名称：block SuperCell
- 默认值：不扩胞（1×1×1 胞）
- 可选值：3×3 可逆矩阵，矩阵元为整数。
- 描述：常用设置。提供扩胞信息，扩胞时以 *cell.str* 文件（参见 3.1.3 节）提供的结构信息为基础。在本软件中，我们习惯上称 *cell.str* 提供的结构为晶胞（即使它可能并不是晶胞），而用 “block SuperCell” 生成的胞为超胞。案例中为 2×2×2 扩胞。
- 案例：

```
%block SuperCell
2 0 0
0 2 0
0 0 2
%endblock SuperCell
```

block Z_values

- **参数名称:** block Z_values
- **默认值:** 缺省时根据 “%block AtomicCoordinatesAndAtomicSpecies” (参见 3.1.3.6 节) 的第五列所提供元素名称自动设定; 若仍缺失相应数据, 则全部赋值为 1。
- **可选值:** 有效的原子序数。
- **描述:** 常用设置。提供各元素的原子序数, 顺序应当按照 *cell.str* 文件 (参见 3.1.3 节) 提供原子坐标时各元素出现的先后顺序 (这样 *cell.str* 文件中元素编号才能与 “block Z_values” 的信息正确匹配)。案例以 *BiFeO₃* 为例。

备注: 在 TB 模块中, Z_values 应取每个元素所考虑轨道的电子数, 而非元素的原子序数。

- **案例:**

```
%block Z_values
83 26 8
%endblock Z_values
```

block isaAB

- **参数名称:** block isaAB
- **默认值:** 缺省时两个数都赋值为 0。
- **可选值:** 0 或原子编号。
- **描述:** 常用设置。需提供两个整数, 指出研究哪两种元素之间的相互作用。两个整数代表相互作用的两种元素的编号 (即在 “block Z_values” 中的排序)。案例以 *BiFeO₃* 为例, 需考虑 Fe 元素之间的磁相互作用, 该元素在 “block Z_values” 中排第二位, 因此填 “2 2”。
- **案例:**

```
%block isaAB
2 2
%endblock isaAB
```

自旋大小与外磁场设置

- **参数名称:** block Spin_values
- **默认值:** 缺省时全部赋值为 1。
- **可选值:** 非负实数。
- **描述:** 常用设置。常提供各元素原子的电子总自旋量子数的二倍, 常取整数 (因为总自旋量子数为半整数); 在采用自旋矢量归一化模型时, 需将磁性原子的对应值设为 2。通常原子磁矩 μ 主要由局域于过渡元素原子的 d 或 f 轨道电子的总自旋磁矩 μ_S 决定, 近似满足

$$\mu \approx \mu_S \approx -2\mu_B S \quad (3.1)$$

其中 $\mu_B = |e\hbar/(2m)$ 为玻尔磁子 (Bohr magneton), S 为局域于原子的电子的总自旋矢量, 其模长为电子的总自旋量子数。所以这里 “block Spin_values” 所提供的值也可以理解为原子磁矩的近似大小 μ_B (以为单位)。

备注：在有效自旋哈密顿量方法中（例如“Model Invariant”以及相应的蒙特卡洛模拟模块“Model atomic_effective_H”），经常假定自旋为1（自旋矢量归一化），从而使所有相互作用系数的单位均为能量单位（PASP软件中一般取eV单位）。当假定自旋为1时，这里的整数应为其二倍，即取2，此时原子磁矩假定为 $2\mu_B$ 。

案例以 $BiFeO_3$ 为例，仅Fe元素具有非零的自旋量子数，其磁矩大小约为 $3\mu_B$ ，因此可写成案例1形式；若采用自旋矢量归一化模型，则写成案例2形式。

- 案例 1:

```
%block Spin_values
0 3 0
%endblock Spin_values
```

- 案例 2（自旋矢量归一化模型）:

```
%block Spin_values
0 2 0
%endblock Spin_values
```

- 参数名称：block ExternalMagneticField

- 默认值：缺省时全部赋值为0。

- 可选值：实数。

- 描述：该设置项在蒙特卡洛模拟（以及CG局域优化）中可能用到，用于添加外磁场，单位T。由于在蒙特卡洛模拟阶段才用到，所以该设置也常放在MC.input中（通过在PASP.input中“%include MC.input”使其生效）。该设置项可以在蒙特卡洛模拟（以及可能用到的共轭梯度下降优化）中添加外磁场，单位为T。例如在z方向提供0.1T外磁场时，可以如案例1所示设置。

备注：在计算外磁场引起的能量变化（Zeeman项）时，需要乘上磁性原子的磁矩值，而这个磁矩值是从“block Spin_values”中读取的。当且仅当“block Spin_values”设置的是真实的磁矩值（以为单位）时，所计算得到的Zeeman项才是正确的。但是前面提到，在假定自旋为1时，“block Spin_values”中磁性原子需要设置为2（而非真实磁矩值），这时可以有以下两种处理方式：

(1) 参数值等各项设置不变，只按比例调整“block ExternalMagneticField”的设置值。当磁性原子的真实磁矩值为 μ （以 μ_B 为单位），真实自旋量子数大小为 $S = \frac{1}{2}\mu$ （等式中只考虑数值，不考虑单位，下同），而“block Spin_values”中磁性原子设置为2时，“block ExternalMagneticField”的磁场单位实际为 $\frac{2}{\mu}T = \frac{1}{S}T$ 。换言之，当“block ExternalMagneticField”设置为0.1时，有效的磁场是 $\frac{0.2}{\mu}T = \frac{0.1}{S}T$ ；如需得到0.1T的有效磁场，则需要将“block ExternalMagneticField”的相应分量取值设置为 $0.1S = 0.05\mu$ ，例如自旋量子数 $S = \frac{3}{2}$ 时，应取值0.15，如案例2所示。

(2) 按真实值设置“block Spin_values”和“block ExternalMagneticField”，这时需要按比例调整各参数值。自旋二次项的系数值需要除以 S^2 ，自旋四次项的系数值需要除以 S^4 ，以此类推。

- 案例 1:

```
%block ExternalMagneticField
0 0 0.1
%endblock ExternalMagneticField
```

- 案例 2（自旋矢量归一化模型，0.1T外磁场，自旋量子数为3/2情形）:

```
%block Spin_values
0 0.15 0
%endblock Spin_values
```

- 参数名称：MD.B_x、MD.B_y、MD.B_z
- 默认值：0.0
- 可选值：实数
- 描述：MD 的常用设置。分别用于设置在自旋动力学模拟过程中施加于体系的外磁场在 x、y、z 方向的分量，单位为 T。

备注：

- (1) 由于 MD 中已使用该组设置项来设定外磁场，此时 “block ExternalMagneticField” 的设置无效。
- (2) 由于 MD 对应的 “Model atomic_effective_H” 中常取自旋归一化模型，即 “block Spin_values” 中磁性原子需要设置为 2（磁矩大小为 $2\mu_B$ ）。关于 “block Spin_values” 取值对有效磁场的影响，参见上一组设置项 “block ExternalMagneticField” 的相关说明。

• 案例：

```
MD.B_x 0.0d0
MD.B_y 0.0d0
MD.B_z 0.0d0
```

附属文件 cell.str：晶胞信息

这个文件通常提供晶胞的信息（有时也可提供原胞或超胞信息）。如果在 *PASP.input* 中用到了 “%block SuperCell”（参见 3.1.2.2 节），则会在 *cell.str* 提供的结构基础上进行扩胞。有时我们也可以直接在 *cell.str* 中提供超胞，而省去利用 “%block SuperCell” 扩胞的步骤。为了称谓的统一起见，在本软件的手册中，我们将总是称 *cell.str* 提供的结构为晶胞，经 “%block SuperCell” 扩胞的结构为超胞，而 3.1.4 节将介绍的 *unit_cell.str* 提供的结构为原胞。

使用 *cell.str* 作为输入文件时，须在 *PASP.input* 中添加行 “%include cell.str”，否则 *cell.str* 文件无效。该文件的设置项也可以直接写在 *PASP.input* 文件中，并且在 *PASP.input* 文件中省略 “%include cell.str”。

若在运行 PASP 软件的文件夹中无 *cell.str* 文件（无论在 *PASP.input* 中是否存在 “%include cell.str”），在运行软件时会在相应文件夹下按照默认内容生成一个新的 *cell.str* 文件；但仅当 *PASP.input* 中存在 “%include cell.str” 时，按默认内容生成的 *cell.str* 文件内容才能被读取。

备注：注意：该文件中的部分设置项不可缺省。

默认的 *cell.str* 文件内容为：

```
NumberOfAtoms 1
number_of_species 1
LatticeConstant 1 Ang
```

(续下页)

(接上页)

```

%block LatticeVectors
1 0 0
0 1 0
0 0 1
%endblock LatticeVectors
%block AtomicCoordinatesAndAtomicSpecies
0 0 0 1 H 1
%endblock AtomicCoordinatesAndAtomicSpecies

```

以 BiTiO_3 为例, *cell.str* 文件可以写成:

```

#####
NumberOfAtoms    5
number_of_species 3
LatticeConstant   1 Ang
%block LatticeVectors
4.03331142642247 -0.0 -0.0
-0.0 4.03331142642247 -0.0
0.0 0.0 4.03331142642247
%endblock LatticeVectors
AtomicCoordinatesFormat NotScaledCartesianAng
%block AtomicCoordinatesAndAtomicSpecies
 2.01665571  2.01665571  0.00000000  1 O 1
 2.01665571  0.00000000  2.01665571  1 O 2
 0.00000000  2.01665571  2.01665571  1 O 3
 2.01665571  2.01665571  2.01665571  2 Ti 4
 0.00000000  0.00000000  0.00000000  3 Ba 5
%endblock AtomicCoordinatesAndAtomicSpecies
#####

```

以下 3.1.3.1 至 3.1.3.6 节将逐条解释各项设置的含义。软件也支持直接使用 *POSCAR* 文件代替或生成 *cell.str* 文件, 相关设置方式见 3.1.3.7 节。3.1.3.8 节将介绍如何利用已有的原胞结构文件 (以 *POSCAR* 文件为例) 扩胞得到相应的超胞的 *POSCAR* 和 *cell.str* 文件。

NumberOfAtoms

- 参数名称: NumberOfAtoms
- 默认值: 0
- 可选值: 非负整数
- 描述: 晶胞中原子数。
- 案例:

```
NumberOfAtoms    5
```

number_of_species

- 参数名称: number_of_species
- 默认值: 1
- 可选值: 非负整数
- 描述: 晶胞中元素种类数。
- 案例:

```
number_of_species 3
```

LatticeConstant

- 参数名称: LatticeConstant
- 默认值: 0.0 Bohr
- 可选值: 非负实数; Ang/Bohr
- 描述: 晶胞基矢的单位 (由数值和单位构成), 常用值为 “1 Ang”, 缺省值为 “0.0 Bohr”。“Ang” 为埃 (Å), “Bohr” 为玻尔单位 (1 Bohr 约等于 0.52917725 埃)。
- 案例:

```
LatticeConstant 1 Ang
```

block LatticeVectors

- 参数名称: block LatticeVectors
- 默认值: 单位矩阵
- 可选值: 3×3 可逆矩阵, 矩阵元为实数
- 描述: 晶胞基矢信息。三行分别提供三个基矢的信息, 每行的三个数据是基矢的三个笛卡尔坐标分量, 以 “LatticeConstant” (3.1.3.3 节) 的内容作为单位。
- 案例:

```
%block LatticeVectors
4.03331142642247 -0.0 -0.0
-0.0 4.03331142642247 -0.0
0.0 0.0 4.03331142642247
%endblock LatticeVectors
```

AtomicCoordinatesFormat

- 参数名称: AtomicCoordinatesFormat
- 默认值: NotScaledCartesianBohr
- 可选值: NotScaledCartesianAng/Ang/NotScaledCartesianBohr/Bohr/ScaledCartesian, ScaledByLatticeVectors/Fractional
- 描述: 晶胞中原子坐标的格式, 常用值为 “NotScaledCartesianAng ” , 缺省值为 “NotScaledCartesianBohr ”。

有以下四种选项:

- (1) “NotScaledCartesianBohr ” 或 “Bohr ”, 坐标按笛卡尔坐标输入, 单位为 Bohr;
- (2) “NotScaledCartesianAng ” 或 “Ang ”, 坐标按笛卡尔坐标输入, 单位为埃;
- (3) “ScaledCartesian ”, 坐标按笛卡尔坐标输入, 单位为 “LatticeConstant” 的内容。
- (4) “ScaledByLatticeVectors ” 或 “Fractional ”, 坐标按分数坐标输入 (具体地, 用晶胞的三个基矢和坐标原点构造仿射坐标系, 原子位置坐标用这个仿射坐标系下的坐标描述)。

- 案例:

```
AtomicCoordinatesFormat NotScaledCartesianAng
```

block AtomicCoordinatesAndAtomicSpecies

- 参数名称: block AtomicCoordinatesAndAtomicSpecies
- 默认值: 不可缺省 (缺省时报错 “coo: You must specify the atomic coordinates”)。
- 可选值: 详见 “描述”。
- 描述: 晶胞中原子坐标信息以及元素信息。每行对应原胞中的一个原子, 前三个数据是三个坐标分量 (格式由 “AtomicCoordinatesFormat” 内容指定), 第四个数据为元素的编号 (对于所研究体系中包含的元素, 从 1 开始编号), 第五个数据为元素的化学符号。软件只读取每行的前五个数据, 后面的数据无效。习惯上, 我们常在每行添加第六个数据, 这个数据是原子的编号 (对于所研究体系中的所有原子, 从 1 开始编号)。
- 案例:

```
%block AtomicCoordinatesAndAtomicSpecies
2.01665571 2.01665571 0.00000000 1 O 1
2.01665571 0.00000000 2.01665571 1 O 2
0.00000000 2.01665571 2.01665571 1 O 3
2.01665571 2.01665571 2.01665571 2 Ti 4
0.00000000 0.00000000 0.00000000 3 Ba 5
%endblock AtomicCoordinatesAndAtomicSpecies
```

用 POSCAR 文件代替 cell.str (READ_POSCAR)

- 参数名称：READ_POSCAR
- 默认值：F
- 可选值：T/F
- 描述：如果已有晶胞的 *POSCAR* 文件（VASP 软件的常用输入文件之一），也可以直接用它取代 *cell.str* 作为晶胞结构的输入文件。此时需要在 *PASP.input* 中将此项设为 **T**；该项设置为 **T** 时，还会自动生成相应的 *cell.str* 文件。这里需要提供的 *POSCAR* 文件兼容以下两种格式：**A**. 第一行提供任意内容，第五行提供各元素符号，第六行提供各元素的原子个数（参见 3.1.3.8 节格式 A 示例文件）；**B**. 第一行提供各元素符号，第五行直接提供各元素的原子个数（参见 3.1.3.8 节格式 B 示例文件）。
- 案例：

```
READ_POSCAR T
```

利用原胞的 POSCAR 文件扩胞

如果已有原胞 *POSCAR* 文件，想要生成相应的晶胞或超胞的 *POSCAR* 文件，可以利用脚本 *post_VASP* 实现。该脚本附在“**example_public/create_supercell**”文件夹下，使用前需要添加执行权限（例如“*chmod +x 路径/文件名*”）。若还需获取对应晶胞或超胞的 *cell.str* 文件，可参见 3.1.3.7 节内容。

例如，假设已有 *BiFeO₃* 原胞（空间群 R3c）的 *POSCAR*（格式 A）：

```
#####
BiFeO3
 1.0000000000000000
 5.7643603684609124 -0.0010632695629771 -0.0007349871303296
 3.1487499916792472 4.8283770645635444 -0.0007349871303221
 3.1487499916792459 1.7053535362982746 4.5171888309033719
Bi Fe O
 2 2 6
Direct
 0.2928365613303967 0.2928365613303967 0.2928365613303967
 0.7928365613303967 0.7928365613303967 0.7928365613303967
 0.0084017329201203 0.0084017329201203 0.0084017329201203
 0.5084017299201236 0.5084017299201236 0.5084017299201236
 0.6217457551533769 0.8807086125212393 0.2163073380748699
 0.3807086125212393 0.1217457771533788 0.7163073230748722
 0.8807086125212393 0.2163073380748699 0.6217457551533769
 0.1217457771533788 0.7163073230748722 0.3807086125212393
 0.2163073380748699 0.6217457551533769 0.8807086125212393
 0.7163073230748722 0.3807086125212393 0.1217457771533788
#####
```

如需获得该 *POSCAR*（原胞结构）所对应的超胞的 *POSCAR* 文件：首先需要删除第六行（在基矢信息和各元素原子数信息之间不加元素名的行）；第一行需要改成“**Bi Fe O**”，即提供各元素的化学符号。修改后 *POSCAR* 如下所示（格式 B）：

```
#####
Bi Fe O
 1.0000000000000000
 5.7643603684609124 -0.0010632695629771 -0.0007349871303296
 3.1487499916792472 4.8283770645635444 -0.0007349871303221
 3.1487499916792459 1.7053535362982746 4.5171888309033719
```

(续下页)

```

      2      2      6
Direct
  0.2928365613303967  0.2928365613303967  0.2928365613303967
  0.7928365613303967  0.7928365613303967  0.7928365613303967
  0.0084017329201203  0.0084017329201203  0.0084017329201203
  0.5084017299201236  0.5084017299201236  0.5084017299201236
  0.6217457551533769  0.8807086125212393  0.2163073380748699
  0.3807086125212393  0.1217457771533788  0.7163073230748722
  0.8807086125212393  0.2163073380748699  0.6217457551533769
  0.1217457771533788  0.7163073230748722  0.3807086125212393
  0.2163073380748699  0.6217457551533769  0.8807086125212393
  0.7163073230748722  0.3807086125212393  0.1217457771533788
#=====#

```

修改好 POSCAR 之后在相应文件夹下输入命令（Linux 系统）“路径名/*post_VASP*”（脚本在当前文件夹内时可用“*.post_VASP*”），在显示出列表后输入“1”选择扩胞功能，再输入“1 1 1”选择 1×1×1 的扩胞（如需在这步生成超胞，则输入相应的扩胞比例即可，例如输入“2 2 2”选择 2×2×2 的扩胞），可在相应路径下生成 *POSCAR.multi*（扩胞后的 POSCAR）、*POSCAR.multi.xyz*（扩胞后各原子的笛卡尔坐标）和 *xyz.dat*（也是扩胞后各原子的笛卡尔坐标，格式略有不同）三个文件。其中 *POSCAR.multi* 重命名为 POSCAR 即可作为超胞的结构文件（可参照 3.1.3.7 节内容获得相应的 *cell.str* 文件）。

附属文件 unit_cell.str: 原胞信息

这个文件通常提供原胞的信息。为叙述方便起见，以下总是将 *unit_cell.str* 中定义的“胞”称为原胞。需要注意的是，unit cell 这个术语的严格翻译是晶胞（也称单胞），但这里通常需要提供的是原胞（primitive cell）的信息。

使用 *unit_cell.str* 作为输入文件时，须在 *PASP.input* 中添加行“*%include unit_cell.str* 否则 *unit_cell.str* 文件无效。该文件的设置项也可以直接写在 *PASP.input* 文件中，并且在 *PASP.input* 文件中省略“*%include cell.str*”。

若 *unit_cell.str* 文件缺失（且在 *PASP.input* 等输入文件中未提供相应的设置信息），则原胞信息将与 *cell.str* 所定义的晶胞信息一致。因此，当 *cell.str* 提供的是原胞信息时，可以省略 *unit_cell.str* 的设置信息（此时原胞与晶胞相同）；否则一般不能省略 *unit_cell.str* 的相关设置内容（此时原胞与晶胞不同，需要另外定义原胞）。

通常，*unit_cell.str* 文件包含以下内容（以 *BiTiO₃* 为例）：

```

#=====#
unit_cell.na      5
%block unit_cell_in_Ang
4.03331142642247 -0.0 -0.0
-0.0 4.03331142642247 -0.0
0.0 0.0 4.03331142642247
%endblock unit_cell_in_Ang
%block Atoms_in_unit_cell_Ang
  2.01665571  2.01665571  0.00000000  1 O 1
  2.01665571  0.00000000  2.01665571  1 O 2
  0.00000000  2.01665571  2.01665571  1 O 3
  2.01665571  2.01665571  2.01665571  2 Ti 4
  0.00000000  0.00000000  0.00000000  3 Ba 5
%endblock Atoms_in_unit_cell_Ang
#=====#

```

以下 3.1.4.1 至 3.1.4.3 各节将逐条解释各项设置的含义。软件也支持直接使用 *POSCAR_UC* 文件代替或生成 *unit_cell.str* 文件，相关设置方式见 3.1.4.4 节。

unit_cell.na

- 参数名称: unit_cell.na
- 默认值: “NumberOfAtoms” 的取值 (3.1.3.1 节)。
- 可选值: 非负整数
- 描述: 原胞中原子数。
- 案例:

```
unit_cell.na    5
```

block unit_cell_in_Ang

- 参数名称: block unit_cell_in_Ang
- 默认值: 缺省时原胞基矢与晶胞基矢相同 (由 “block LatticeVectors” 设置, 参见 3.1.3.4 节)。
- 可选值: 3x3 可逆矩阵, 矩阵元为实数
- 描述: 原胞基矢信息。三行分别提供三个基矢的信息, 每行的三个数据是基矢的三个笛卡尔坐标分量, 只能以埃作为单位。
- 案例:

```
%block unit_cell_in_Ang
4.03331142642247 -0.0 -0.0
-0.0 4.03331142642247 -0.0
0.0 0.0 4.03331142642247
%endblock unit_cell_in_Ang
```

block Atoms_in_unit_cell_Ang

- 参数名称: block Atoms_in_unit_cell_Ang
- 默认值: 缺省时该部分信息与晶胞一致 (由 “block AtomicCoordinatesAndAtomicSpecies” 设置, 参见 3.1.3.6 节)。
- 可选值: 略, 详见 “描述”
- 描述: 原胞中原子坐标信息以及元素信息。每行对应原胞中的一个原子, 前三个数据是三个坐标分量 (只能采用笛卡尔坐标, 以埃为单位), 第四个数据为元素的编号 (对于所研究体系中包含的元素, 从 1 开始编号), 之后的数据不读取。为了与 cell.str 的相应内容保持格式一致, 习惯上在每行后面补充两个数据——第五个数据为元素的化学符号, 第六个数据为原子的编号 (对于所研究体系中的所有原子, 从 1 开始编号)。

备注: 注意:

- (1) 当软件用到 *unit_cell.str* 的相应内容时, 由于软件只允许以埃为单位输入原胞的笛卡尔坐标信息, 为了方便与统一起见, 我们强烈建议在 *cell.str* 中也以埃为单位输入晶胞的笛卡尔坐标信息。即在 *cell.str* 中采用 “LatticeConstant 1 Ang” 和 “AtomicCoordinatesFormat NotScaledCartesianAng” 两项设置。在 *unit_cell.str* 的原胞原子坐标部分也建议把每行的五个或六个数据写全 (虽然软件只读取每行的前四个数据), 使之与 *cell.str* 的晶胞原子坐标部分格式一致。在原胞与晶胞一致的简单情形下, *unit_cell.str* 的各项设置可以从 *cell.str* 的相应设置复制粘贴得到。

- (2) 在本软件中，晶胞和原胞必须采用同一套笛卡尔坐标系！换言之，晶胞任一基矢的信息（由坐标描述）必须是原胞三个基矢以整数为系数的线性组合。这里采用的笛卡尔坐标系通常是以晶胞的原点作为原点、以晶胞的 a 轴（第一个基矢）方向为 x 方向所建立的空间直角坐标系（右手系）。原胞的原点和晶胞的原点必须一致。特别注意，如果原胞的第一个基矢与晶胞 a 轴方向不一致，在描述原胞基矢和原胞内原子坐标时，千万不要利用原胞基矢重新建立一套新的笛卡尔坐标系。

- 案例：

```
%block Atoms_in_unit_cell_Ang
2.01665571 2.01665571 0.00000000 1 O 1
2.01665571 0.00000000 2.01665571 1 O 2
0.00000000 2.01665571 2.01665571 1 O 3
2.01665571 2.01665571 2.01665571 2 Ti 4
0.00000000 0.00000000 0.00000000 3 Ba 5
%endblock Atoms_in_unit_cell_Ang
```

用 POSCAR_UC 文件代替 unit_cell.str (READ_POSCAR_UC)

- 参数名称：READ_POSCAR_UC
- 默认值：F
- 可选值：T/F
- 描述：如果已有原胞的 *POSCAR* 文件（VASP 软件的常用输入文件之一），也可以直接用它取代 *unit_cell.str* 作为原胞结构的输入文件。此时需要在 *PASP.input* 中将此项设为 T；该项设置为 T 时，还会自动生成相应的 *unit_cell.str* 文件。这里需要提供的 *POSCAR_UC* 文件兼容以下两种格式：A. 第一行提供任意内容，第五行提供各元素符号，第六行提供各元素的原子个数（参见 3.1.3.8 节格式 A 示例文件 *POSCAR*）；B. 第一行提供各元素符号，第五行直接提供各元素的原子个数（参见 3.1.3.8 节格式 B 示例文件 *POSCAR*）。
- 案例：

```
READ_POSCAR_UC T
```

附属文件 MC.input: 蒙特卡洛模拟与 CG 局域优化相关设置

使用 *MC.input* 作为输入文件时，须在 *PASP.input* 中添加行 “%MC.input”，否则 *MC.input* 文件无效。该文件的设置项也可以直接写在 *PASP.input* 文件中，并且在 *PASP.input* 文件中省略 “%include *MC.input*”。

MC.input 文件的相关设置在 “Model spin_lattice_interaction”（2.1.3 节）和 “Model atomic_effective_H”（2.2.3 节）中都会用到。前者主要用于较简单的磁性体系的蒙特卡洛模拟和 CG（共轭梯度下降法）局域优化；后者功能类似，但适用范围更广（磁性、铁电、多铁等体系）。

自定义初态 (Read_init_spin)

- 参数名称: Read_init_spin
- 默认值: F
- 可选值: T/F
- 描述: 是否读取初始构型信息。若 T, 从相应文件中读取初始构型信息: “Model Spin_lattice_interaction” 时读取 *spin3.in* 文件, “Model atomic_effective_H” 时读取 *amp_local_mode.in* 文件。
- 案例:

```
Read_init_spin T
```

PTMC 温度相关设置

- 参数名称: PT.M
- 默认值: 2
- 可选值: 正整数。必须是并行计算进程数的整数倍!
- 描述: 不同温度的副本个数。注意必须是并行计算进程数的整数倍, 否则直接报错终止!
- 案例:

```
PT.M 64
```

- 参数名称: PT.low_temp
- 默认值: 0.1
- 可选值: 正实数
- 描述: 各温度副本中的最低温, Hartree 单位, 0.00001 约等于 3.15K。
- 案例:

```
PT.low_temp 0.000001
```

- 参数名称: PT.high_temp
- 默认值: 1.0
- 可选值: 正实数
- 描述: 各温度副本中的最高温, Hartree 单位。
- 案例:

```
PT.high_temp 0.002
```

- 参数名称: PT.Tmesh
- 默认值: 1
- 可选值: 1/2
- 描述: 各温度副本的温度分布: 1 为反比 ($1/T$ 均匀), 2 为正比 (T 均匀)。
- 案例:

```
PT.Tmesh 2
```

PTMC 模拟步数与统计相关设置

PTMC 的计算量与模拟步数近似成正比。决定 PTMC 步数的主要是 `nblk` 和 `PT.nblk_T` 两项设置 (总计算时间近似与二者乘积成正比)。具体地, 每轮 MCS (蒙特卡洛模拟的一步) 内, 会依次尝试对每个自由度取值进行修改; `nblk` 值是每两次温度副本交换步骤 (交换步) 之间有几轮 MCS; `PT.nblk_T` 是一个大循环步骤中包含几个交换步, 其中在 `nbeg_nblk` 个交换步之后的数据才会用于进行热力学统计 (包括能量、热容等统计量), 注意 `nbeg_nblk` 取值不能超过 PTMC 的计算量与模拟步数近似成正比。决定 PTMC 步数的主要是 `nblk` 和 `PT.nblk_T` 两项设置 (总计算时间近似与二者乘积成正比)。具体地, 每轮 MCS (蒙特卡洛模拟的一步) 内, 会依次尝试对每个自由度取值进行修改; `nblk` 值是每两次温度副本交换步骤 (交换步) 之间有几轮 MCS; `PT.nblk_T` 是一个大循环步骤中包含几个交换步, 其中在 `nbeg_nblk` 个交换步之后的数据才会用于进行热力学统计 (包括能量、热容等统计量), 注意 `nbeg_nblk` 取值不能超过 `PT.nblk_T`; `PT.niter` 是总共完成多少个循环步骤 (通常设为 1)。

一般建议先将 `PT.nblk_T`、`nbeg_nblk` 和 `nblk` 都取为较小的值, 测试运行不出错后, 再调成实际需要的设置值 (可能需要按比例预估总计算时间, 以防所需时间过长)。案例中提供的是比较推荐的设置值, 但对应的计算量较大 (对于复杂体系可能需要的计算时间较长); 对于计算精度要求不太高或者在测试阶段, 建议适当调小计算量 (`PT.nblk_T`、`nbeg_nblk` 和 `nblk` 三项设置大致等比例地减小即可)。

- 参数名称: `nblk`
- 默认值: 10
- 可选值: 非负整数。建议取 10 的整数倍。
- 描述: `nblk` 值是每两次温度副本交换步骤 (交换步) 之间有几轮 MCS (每轮 MCS 内, 会依次尝试对每个自由度取值进行修改)。
- 案例:

```
nblk 500
```

- 参数名称: `PT.nblk`
- 默认值: 10
- 可选值: 非负整数。
- 描述: `PT.nblk_T` 是一个大循环步骤中包含几个交换步 (温度副本交换步骤)。
- 案例:

```
PT.nblk_T 4000
```

- 参数名称: PT.niter
- 默认值: 1
- 可选值: 非负整数。
- 描述: PT.niter 是总共完成多少个大循环步骤 (每个大循环步骤中包含 PT.nblk_T 个交换步, 其中在 nbeg_nlk 个交换步之后的数据用于进行热力学统计)。一般取 1。
- 案例:

```
PT.niter 1
```

- 参数名称: nbeg_blk
- 默认值: 0
- 可选值: 非负整数。
- 描述: 在一个大循环步骤中, nbeg_nlk 个交换步之后的数据用于进行热力学统计 (包括能量、热容等统计量), 注意 nbeg_nlk 取值不能超过 PT.nblk_T。
- 案例:

```
nbeg_blk 2000
```

- 参数名称: PT.ninterval
- 默认值: 10
- 可选值: 正整数。
- 描述: 在进行热力学统计阶段, 每完成 PT.ninterval 轮 MCS 步骤统计一次数据。
- 案例:

```
PT.ninterval 1
```

- 参数名称: PT.nmeasure
- 默认值: 0
- 可选值: 非负整数。

- **描述:** 完成 PTMC 后, 再补充进行 PT.nmeasure 轮 MCS 步骤 (不涉及温度副本交换), 用于计算统计量。通常设为 0。
- **案例:**

```
PT.nmeasure 0
```

MC 相关的其他设置

- **参数名称:** MC
- **默认值:** F
- **可选值:** T/F
- **描述:** 是否开启 MC 功能 (本功能与 MD 功能不可同时开启, 参见 3.1.6 节)。MC 表示蒙特卡洛模拟。
- **案例:**

```
MC T
```

- **参数名称:** Parallel_Tempering
- **默认值:** F
- **可选值:** T/F
- **描述:** 在已开启 MC 功能的前提下, 是否开启 PTMC 功能。PTMC 表示并行退火蒙特卡洛模拟, 该方法中需用到多个不同温度的副本。
- **案例:**

```
Parallel_Tempering T
```

- **参数名称:** atom_Heff.homogeneous_strain
- **默认值:** T
- **可选值:** T/F
- **描述:** 是否开启整体的 (均匀) 应变自由度。
- **案例:**

```
atom_Heff.homogeneous_strain F
```

- **参数名称:** atom_Heff.inhomogeneous_strain
- **默认值:** F

- 可选值： T/F
- 描述：是否开启局域的（非均匀）应变自由度。
- 案例：

```
atom_Heff.inhomogeneous_strain F
```

- 参数名称： Temperature
- 默认值： 0.0
- 可选值： 非负实数
- 描述： MC 中的温度，Hartree 单位。在使用 PTMC 功能时，本设置项不起作用，温度由 3.1.5.2 节相应设置决定。
- 案例：

```
Temperature 0.1
```

- 参数名称： global.heat_bath
- 默认值： F
- 可选值： T/F
- 描述：是否采用 heat bath 方法，T 表示选用 heat bath 方法，F 表示采用默认的 Metropolis 方法。处理磁性体系时 heat bath 算法更为高效¹⁸；但该算法的使用条件较为局限，所以即使设置为 T，也是只有符合适用条件时才会采用这个较高效的算法，而不符合条件时仍采用默认方法。该算法目前仅在“Model Spin_lattice_interaction”中支持使用，而在更具通用性的“Model atomic_effective_H”中无法使用。
- 案例：

```
global.heat_bath T
```

- 参数名称： atom_Heff.auto_adjust_try_amp
- 默认值： T
- 可选值： T/F
- 描述：“Model atomic_effective_H”中每次随机修改局域模式或应变模式值时，最大程度的修改量，是否自动随时调整。通常取 T，不建议修改。
- 案例：

¹⁸ MIYATAKE Y, YAMAMOTO M, KIM J J, et al. On the implementation of the heat bath algorithms for monte-carlo simulations of classical heisenberg spin systems [J]. Journal of Physics C-Solid State Physics, 1986, 19(14): 2539-2546.

```
atom_Heff.auto_adjust_try_amp T
```

- 参数名称: atom_Heff.try_amp.change_rate
- 默认值: 1.5
- 可选值: T/F
- 描述: “Model atomic_effective_H” 中 “atom_Heff.auto_adjust_try_amp” 取 T 时, 每次随机修改局域模式或应变模式值时, 最大程度的修改量可自动随时调整, 每次自动调整时乘或除以该设置值。不建议修改。
- 案例:

```
atom_Heff.try_amp.change_rate 1.5
```

- 参数名称: spin_lat.general_J
- 默认值: F
- 可选值: T/F
- 描述: 在 “Model Spin_lattice_interaction” 中, 是否以矩阵形式提供 J 矩阵等参数。主要影响到输入文件 *spin_exchange.dat* 的格式。取 T 时, 每对原子间的相互作用参数需要提供 9 个数 (矩阵信息); 取 F 时, 每对原子间的相互作用参数仅需提供 1 个数 (即各向同性的 J 值)。参见 3.3 节。
- 案例:

```
spin_lat.general_J T
```

- 参数名称: spin_lat.LJmatSym
- 默认值: F
- 可选值: T/F
- 描述: 在 “Model Spin_lattice_interaction” 中, 以矩阵形式提供 J 矩阵等参数时 (即 “spin_lat.general_J” 取 T 时), 是否根据所涉及的原子所满足的空间对称性的要求, 将描述两体相互作用的 J 矩阵 (或描述单体项的 SIA 矩阵) 修正成符合对称性的形式。通常在 “spin_lat.general_J” 取 T 时也应取 T。
- 案例:

```
spin_lat.LJmatSym T
```

- 参数名称: spin_lat.Ising
- 默认值: F
- 可选值: T/F
- 描述: 在“Model Spin_lattice_interaction”中, 是否采用 Ising 模型 (即自旋仅上下两种取值)。
- 案例:

```
spin_lat.Ising F
```

CG 局域优化的相关设置

- 参数名称: atom_Heff.relax_str
- 默认值: F
- 可选值: T/F
- 描述: 在“Model atomic_effective_H”中是否开启 CG 局域优化。
- 案例:

```
atom_Heff.relax_str T
```

- 参数名称: spin_lat.relax_str
- 默认值: F
- 可选值: T/F
- 描述: 在“Model Spin_lattice_interaction”中是否开启 CG 局域优化。
- 案例:

```
spin_lat.relax_str T
```

- 参数名称: opt.NSW
- 默认值: 100
- 可选值: 非负整数
- 描述: CG 局域优化的最大步数。每一步 CG 需要相应地完成一次对尝试构型的能量估计 (使用相应的有效哈密顿量模型)。
- 案例:

```
opt.NSW      1000
```

- 参数名称: opt.EDIFFG
- 默认值: 1.0E-5
- 可选值: 正或负实数
- 描述: CG 精度设置, 达到精度时自动结束 CG 优化。设置值为正时用相邻两步 CG 优化 (对应两个不同优化方向) 的能量变化小于设置值作为达到精度的条件, 为负时要求所有自由度受力均小于设置值时作为达到精度的条件。
- 案例:

```
opt.EDIFFG      -0.1E-06
```

MC 和 CG 中添加约束条件

- 参数名称: block local_mode.MC_mode_range
- 默认值: 不限制取值范围
- 可选值: 实数
- 描述: 在使用“Model atomic_effective_H”的 MC 或 CG 功能时, 可能用到该设置。这里可以设置在 MC 或 CG 过程中各个局域模式和应变的取值范围 (硬边界), 共需“局域模式数 +6”行: 其中局域模式数应与测试运行时名为 local_mode-*.xsf (*处为编号) 的输出文件的个数一致, 而这个个数未必与“block local_mode.mode_definition”部分定义的局域模式数一致 (因为 PASP 软件可能会根据对称性分析补充对称等价的局域模式); “+6”部分对应应变的六个自由度。每行设置两个值, 依次是最大值和最小值, 用于限定各个模式的“硬边界”。这里所谓硬边界是指模式值超出边界值时会被强行拉回到边界值。相应地, 若采用能量指数上升等方法限制取值范围的方式, 我们称之为“软边界”, 局域模式的“软边界”设置参见 3.1.7.5 节类型二的相关内容, 应变模式的“软边界”设置将在下一条设置项提及。若希望完全固定某个模式的取值, 只需要将“硬边界”的最大值和最小值设置成相等, 例如案例中的最后两个模式。
- 案例:

```
%block local_mode.MC_mode_range #取值范围: 最大值, 最小值 (硬边界)
0.3 -0.3
-0.3 -0.5
0.4 0.3
0.1 0.1
0.1 0
0 -0.1
0.4 0.0
0 0.0
0.2 0.2
%endblock local_mode.MC_mode_range
```

- 参数名称: block local_mode.lamp_strain
- 默认值: 不限制取值范围, 左边界缺省时取右边界的相反数
- 可选值: 右边界为正实数, 左边界为负实数
- 描述: 在使用“Model atomic_effective_H”的 MC 或 CG 功能时, 可能用到该设置。这里可以设置在 MC 或 CG 过程中, 各个应变模式的“软边界” (参见 3.1.7.5 节类型二“lamp”的相关内容, 在那里可以设置各个局域声子模式的“软边界”)。这里软边界形式总是采用 3.1.7.5 节类型二中提到的形式二, 即

$A + Bu + \text{coef} * e^{\text{scale} * (u/u_c - 1)}$ 。其中, u 表示应变的幅度; u_c 为截断幅度, 当 $u > 0$ 时取 u_{c2} , 当 $u < 0$ 时取 u_{c1} ; $scale$ (大于 0) 为输入文件中用 “local_mode.non_polynomial.exp.scale” 设置的值 (缺省值为 6.0); $coef$ (大于 0) 是输入文件中用 “local_mode.non_polynomial.exp.coefficient” 设置的值 (缺省值为 1.0); 根据边界 $u = u_{c1} < 0$ 和 $u = u_{c2} > 0$ 处能量 (考虑应变的单体能量贡献即可) 及其导数连续的条件可以分别在两个边界处解出各自的 A 和 B , $u > 0$ 时采用 $u = u_{c2}$ 处解出的 A 和 B , 而 $u < 0$ 时采用 $u = u_{c1}$ 处解出的 A 和 B 。共需 6 行内容, 依次对应应变的六个自由度。每行内容需要先写右边界 u_{c2} (大于零), 后写左边界 u_{c1} (小于零); 左边界缺省时取右边界的相反数。

- 案例:

```
%block local_mode.lamp_strain #strain取值范围: 右边界>0(, 左边界<0)
0.1 -0.1
0.2 -0.1
0.1 -0.1
0.3 -0.4
0.1 -0.1
0.1 -0.1
%endblock local_mode.lamp_strain
```

- 参数名称: local_mode.non_polynomial.exp.scale
- 默认值: 6.0
- 可选值: 正实数
- 描述: 在使用 “Model atomic_effective_H” 的 MC 或 CG 功能时, 可能用到该设置。用于设置在 MC 或 CG 过程中, “软边界” (参见 3.1.7.5 节类型二 “lamp” 的相关内容) 中的 scale 参数。
- 案例:

```
local_mode.non_polynomial.exp.scale 6.0
```

- 参数名称: local_mode.non_polynomial.exp.coefficient
- 默认值: 1.0
- 可选值: 正实数
- 描述: 在使用 “Model atomic_effective_H” 的 MC 或 CG 功能时, 可能用到该设置。用于设置在 MC 或 CG 过程中, “软边界” (参见 3.1.7.5 节类型二 “lamp” 的相关内容) 中的 coef 参数。
- 案例:

```
local_mode.non_polynomial.exp.coefficient 1.0
```

- 参数名称: block local_mode.set_strain_equal
- 默认值: F

- 可选值： T/F
- 描述：在使用“Model atomic_effective_H”的 MC 或 CG 功能时，或者“Model Invariant”的随机生成构型功能时，可能用到该设置。这里可以设置某些应变模式的取值保持相等。用 $\eta_i (i = 1, 2, \dots, 6)$ 表示 6 种局域模式，则该 block 的六个数据 (T 或 F) 依次表示是否保持 $\eta_1 = \eta_2, \eta_1 = \eta_3, \eta_2 = \eta_3, \eta_4 = \eta_5, \eta_4 = \eta_6$ 和 $\eta_5 = \eta_6$ 。例如案例的设置会自动保持 $\eta_2 = \eta_3$ 和 $\eta_4 = \eta_5 = \eta_6$ 。注意如果需要有保持相等的若干模式所受的力不同，或受到的约束条件不一致（例如硬边界不一致），总是以编号小的模式的受力和取值为准。
- 案例：

```
%block local_mode.set_strain_equal
F F T T F T
%endblock local_mode.set_strain_equal
```

附属文件 MD.input: 分子动力学模拟相关设置

使用 *MD.input* 作为输入文件时，须在 *PASP.input* 中添加行“%MD.input”，否则 *MD.input* 文件无效。该文件的设置项也可以直接写在 *PASP.input* 文件中，并且在 *PASP.input* 文件中省略“%include MD.input”。

目前 PASP 仅在“Model atomic_effective_H”情形下支持 MD 模拟功能，参见 2.2.4 节介绍。这里补充介绍一些在 *MD.input* 中独有的设置项。

- 参数名称： atom_Heff.MD
- 默认值： F
- 可选值： T/F
- 描述：是否开启 MD 模拟功能（本功能与 MD 功能不可同时开启，参见 3.1.5.4 节）。MD 表示分子动力学模拟。
- 案例：

```
atom_Heff.MD T
```

- 参数名称： block atom_Heff.MASS_local_mode
- 默认值：缺省时全部赋值为 1.0
- 可选值：正实数
- 描述：MD 的常用设置。提供各局域模式的等效相对原子质量信息。提供的的质量数目即为局域模式的总数目（不计入应变模式，这与“Model Invariant”阶段产生的 *local_mode-*.xsf* 文件个数一致），顺序通常按照“block local_mode.mode_definition”中定义各局域模式时确定的先后顺序（如果实际局域模式数大于定义中写出的局域模式数，这时顺序应当与 *local_mode-*.xsf* 文件的编号一致）。局域模式仅涉及一个原子时，取元素的相对原子质量；涉及多个原子时，则需要使用相应的有效质量（例如局域声子模式，常以模式定义中各原子位移的平方为权重取相对原子质量的加权平均值）。
- 案例：

```
%block atom_Heff.MASS_local_mode
54.938 54.938 54.938 ... (省略中间部分数据) 15.999 15.999 15.999
%endblock atom_Heff.MASS_local_mode
```

- 参数名称: MD.Delta_t
- 默认值: 1.0
- 可选值: 正实数
- 描述: MD 的常用设置。用于设置动力学模拟的单步时长, 单位为飞秒 (fs), 一般设置在 0.1-1.0 范围内。若步长过小, 则会使得模拟所需的计算时间过长; 若步长过大, 则会使得模拟效果失真, 例如在 NVE 模拟中, 系统的总能量将无法很好地保持恒定。
- 案例:

```
MD.Delta_t 0.5
```

- 参数名称: atom_Heff.MD_time
- 默认值: 10 * MD.Delta_t
- 可选值: 正实数
- 描述: MD 的常用设置。用于设置动力学模拟的总时长, 单位为飞秒 (fs), 软件运行所需时间基本上与动力学模拟的总步数 (总时长除以单步时长) 成正比。
- 案例:

```
atom_Heff.MD_time 4.0d3
```

- 参数名称: SLD.mode
- 默认值: 3
- 可选值: 1/2/3
- 描述: MD 的常用设置。用于设置动力学模拟的模式, 1 表示仅考虑原子位移自由度的传统分子动力学模拟, 2 表示仅考虑自旋方向自由度的原子自旋动力学模拟, 3 表示同时考虑两类自由度的自旋晶格动力学模拟, 目前 MD 模拟部分尚不支持模拟除位移自由度和自旋自由度以外的其他自由度。
- 案例:

```
SLD.mode 2
```

- 参数名称: LLG.method
- 默认值: 1
- 可选值: 1/2/3

- **描述：** MD 的常用设置。用于选择积分 LIG 方程（参见 2.2.4 节）时采用的数值算法，1 表示 4th-order Runge-Kutta method，2 表示 Mentink' s SIB method，3 表示 McLachlan' s SMP method。其中，方法 1 尚不支持 NVT 模拟，方法 3 原则上保证积分过程能量守恒，尚不支持并行计算，因而目前最常用的是方法 2。

- **案例：**

```
LLG.method 2
```

- **参数名称：** LLG.damping
- **默认值：** 0.0
- **可选值：** 非负实数
- **描述：** MD 的常用设置。用于设置 LIG 方程（参见 2.2.4 节）的阻尼系数。该值非零时，程序将基于设定的“MD.temperature”参数做 NVT 模拟；当该值为零时，软件将执行 NVE 模拟。
- **案例：**

```
LLG.damping 1.0d-2
```

- **参数名称：** MD.damping
- **默认值：** 0.0
- **可选值：** 非负实数
- **描述：** MD 的常用设置。用于设置 Newton 方程（参见 2.2.4 节）的阻尼系数。该值非零时，程序将基于设定的“MD.temperature”参数做 NVT 模拟，当该值为零时，程序将执行 NVE 模拟。目前，PASP 软件尚不支持除 NVT 和 NVE 之外的其他系综模拟。
- **案例：**

```
MD.damping 4.0d-2
```

- **参数名称：** MD.temperature
- **默认值：** 0.0
- **可选值：** 非负实数
- **描述：** MD 的常用设置。用于设置在 NVT 模拟时希望体系达到并保持的热平衡温度，单位为开尔文 (K)。此外，该温度也将用于计算体系的热容和磁化率。
- **案例：**

```
MD.temperature 300.0
```

- 参数名称: MD.aft_step
- 默认值: 1
- 可选值: 非负整数
- 描述: MD 的常用设置。用于设置在经历初始多少步的模拟之后开始对体系做测量, 目前程序仅支持对体系的温度、能量、热容、平均磁化强度、磁化率等统计量做相应的测量计算。
- 案例:

```
MD.aft_step 1
```

- 参数名称: MD.int_step
- 默认值: 1
- 可选值: 正整数
- 描述: MD 的常用设置。用于设置相邻两次统计测量之间的间隔步数。
- 案例:

```
MD.int_step 10
```

- 参数名称: MD.init_velocity_temp
- 默认值: 0.0
- 可选值: 非负实数
- 描述: MD 的常用设置。以温度作为表征, 单位为开尔文 (K), 根据麦克斯韦速度分布律, 设置体系初始的原子速度分布。
- 案例:

```
MD.init_velocity_temp 0.0d0
```

- 参数名称: MD.output_amp_lm
- 默认值: F
- 可选值: T/F
- 描述: MD 的常用设置。用于设置是否输出 MD 模拟过程中的体系构型 (包括原子位移和自旋方向), 两次相邻输出之间的时间间隔由 MD.int_step 参数决定。
- 案例:

```
MD.output_amp_lm F
```

有效哈密顿量方法常用设置项

这里主要介绍使用“Model Invariant”构造有效哈密顿量阶段的常用设置项，其中多数设置项在后续的 MC 或 MD 模拟（“Model atomic_effective_H”）中也常继续使用；此外在“Model find_J_path_sym”（找不等价作用对）中需要用到的常用设置项也会在本节介绍。通常在 MC 或 MD 中需要额外补充的设置建议另外放在附属文件 *MC.input* 或 *MD.input* 中，并在 *PASP.input* 中添加行“%include MC.input”或“%include MD.input”使之生效。*MC.input* 和 *MD.input* 的常用相关设置项见 3.1.5 节和 3.1.6 节。

展开体数 (fig.maxk)

- 参数名称：fig.maxk
- 默认值：2
- 可选值：非负整数
- 描述：在有效哈密顿量方法模块中常用，在“Model find_J_path_sym”（找不等价作用对）中也会用到。在这里设定最多考虑到几体相互作用，缺省值为 2。案例为考虑到四体。
- 案例：

```
fig.maxk 4
```

截断距离 (block fig.mdist)

- 参数名称：block fig.mdist
- 默认值：不可缺省！（缺省时报错“read_fig_data: no fig.mdist block”）
- 可选值：第一位取 1，之后各位为正实数
- 描述：在有效哈密顿量方法模块中常用，在“Model find_J_path_sym”（找不等价作用对）中也会用到。在这里设定相互作用的截断距离，注意单位是 Bohr。第一位填 1，第二位填两体相互作用的截断距离，第三位填三体相互作用的截断距离（其中任意两个原子的距离都不超过截断距离），以此类推。例如，只考虑到两体相互作用，截断距离为 15 Bohr 时，只需要填两个数据，如案例所示。
- 案例：

```
%block fig.mdist
1 15
%endblock fig.mdist
```

展开阶数相关设置

本节提及的各设置项主要用于在有效哈密顿量方法的“Model Invariant”

- **参数名称:** GSM.maxpower
- **默认值:** 通常缺省值为 1; 少数情形读取“fitting.maxpower”的设置值作为缺省值, 而“fitting.maxpower”的缺省值为 2。这里少数情形仅包括“Model Fitting”和“Model Cluster_expansion”(使用蒙特卡洛模拟功能时), 这两种 Model 在本手册中均未涉及。鉴于不同 Model 情形下该项设置的缺省值不同, 当需要用到该项设置时, 强烈建议明确地写出设置值而不要缺省。
- **可选值:** 非负整数
- **描述:** 在有效哈密顿量方法模块中, 使用点乘形式的磁相互作用时, 常用该设置。本设置项用于设置点乘形式相互作用的最大展开阶数, 但须注意最大展开阶数是 GSM.maxpower 的二倍。例如, 展开到四阶点乘项时, 可取值为 2, 如案例所示。
- **案例:**

```
GSM.maxpower 2
```

- **参数名称:** Invariant.power
- **默认值:** 4
- **可选值:** 非负整数
- **描述:** 在有效哈密顿量方法模块中常用。在这里设置所有形式相互作用的最大展开阶数, 缺省值为 4。
- **案例:**

```
Invariant.power 4
```

- **参数名称:** Invariant.strain_power
- **默认值:** 1
- **可选值:** 非负整数
- **描述:** 在有效哈密顿量方法模块中常用。在这里设置在应变与局域模式的交叉项中应变贡献部分的最大阶数, 缺省值为 1。例如, 不考虑应变与局域模式交叉项时, 可设置为 0。
- **案例:**

```
Invariant.strain_power 0
```

- **参数名称:** Invariant.pure_strain_power
- **默认值:** 2

- **可选值：**非负整数
- **描述：**在有效哈密顿量方法模块中常用。在这里设置纯应变项的最大展开阶数，缺省值为2。例如，纯应变项展开到四阶项时，可如案例所示设置。
- **案例：**

```
Invariant.pure_strain_power 4
```

- **参数名称：**block local_mode.power
- **默认值：**由前述各设置项决定各种相互作用的阶数
- **可选值：**非负整数
- **描述：**在有效哈密顿量方法模块中可能用到该设置项。在此可以更具体地设置指定类型相互作用的最大展开阶数，本设置项的优先级高于前述的各个设置项，但本设置项未明确指出的相互作用类型的展开阶数仍由前述各设置项决定。在“block local_mode.power”中可以有两部分内容：第一部分设置不同体数的相互作用的最大展开阶数；第二部分可以设置具体到第几种几体相互作用的最大展开阶数。在以下各案例中，我们均假定已设置“Invariant.power 2”和“fig.maxk 2”（默认考虑到二阶，最多考虑两体）。案例1仅设置第一部分内容，即设置不同体数的相互作用的最大展开阶数；这里单体保留到6阶，二体仍保留到2阶。案例2仅设置第二部分内容，即设置不同体数的相互作用的最大展开阶数；这里设置第一类单体保留到6阶，前两类两体相互作用（一般是最近邻和次近邻）保留到4阶，而其他相互作用仍保留到2阶。案例3同时设置两部分内容；这里设置所有的单体保留到6阶，前三类（一般是前三近邻）的两体相互作用保留到4阶，而其他相互作用仍保留到2阶。

备注：注意：当单体相互作用的阶数大于6，或者二体（及以上）相互作用的阶数大于4时，软件常常慢的离谱。因此以目前PASP软件的优化程度，建议限制在上述阶数范围以内。

- **案例 1：**

```
%block local_mode.power
1  #以下需读取多少行设置（1行）
1 6  #1体 保留到6阶
%endblock local_mode.power
```

- **案例 2：**

```
%block local_mode.power
0      #第一部分：以下需读取多少行设置（0行，因为这里不设置第一部分）
3      #第二部分：以下需读取多少行设置（3行）
1 1 6  #1体 第1种 保留到6阶
2 1 4  #2体 第1种 保留到4阶
2 2 4  #2体 第2种 保留到4阶
%endblock local_mode.power
```

- **案例 3：**

```
%block local_mode.power
1  #第一部分：以下需读取多少行设置（1行）
1 6  #1体 保留到6阶
3      #第二部分：以下需读取多少行设置（5行）
2 1 4  #2体 第1种 保留到4阶
```

(续下页)

(接上页)

```
2 2 4 #2体 第2种 保留到4阶
2 3 4 #2体 第3种 保留到4阶
%endblock local_mode.power
```

SOC 相关设置

- 参数名称: Invariant.SOC
- 默认值: T
- 可选值: T/F
- 描述: 在有效哈密顿量方法模块中, 处理磁性体系时常用。用于设定是否考虑 SOC (自旋轨道耦合)。
- 案例:

```
Invariant.SOC T
```

- 参数名称: local_mode.GSM2lm_int
- 默认值: F
- 可选值: T/F
- 描述: 在有效哈密顿量方法模块中, 处理磁性体系时常用。用于设定在不考虑 SOC (自旋轨道耦合) 的前提下 (即 “Invariant.SOC F” 时), 各项是否统一采用自旋点乘 (或若干组点乘的乘积) 的形式。本项取 T 时, 需搭配使用 “GSM.maxpower” 设置项来设定展开阶数 (参见 3.1.7.3 节)。
- 案例:

```
local_mode.GSM2lm_int T
```

- 参数名称: block local_mode.special_SOC
- 默认值: 由 “Invariant.SOC” 决定
- 可选值: 非负整数
- 描述: 在有效哈密顿量方法模块中, 处理磁性体系时可能用到该设置。用于更具体地指定哪些相互作用考虑 SOC, 哪些不考虑。第一行数据用于指定后面读取多少行信息。后面每行信息有三个数据, 分别是几体、相应 “几体” 的第几种原子对 (或原子簇)、该原子对 (或原子簇) 考虑 SOC 的相互作用最多保留到几阶 (非 SOC 形式仍可以考虑到更高阶, 这由 3.1.7.3 节各项设置决定)。比如案例中, 实际上枚举了截断体数和截断距离内的所有的原子对和原子簇情形。并设置成仅单体项考虑 SOC, 保留到四阶; 其余相互作用项均不考虑 SOC。如果希望将最近邻的两体相互作用项保留二阶的 SOC 相互作用, 则将 “2 1 0” 改成 “2 1 2” 即可。如果一开始不确定每种体数涉及几种原子对或原子簇, 可以先省略该项设置运行一遍, 在输出文件 *all_interaction_type_Spin_xyzform.dat* 或 *local_mode_PM.dat* 文件中查得相应信息 (参考 2.2.1.1 节对这两种输出文件的介绍)。
- 案例:

```
%block local_mode.special_SOC
11
1 1 4
2 1 0
2 2 0
2 3 0
2 4 0
2 5 0
3 1 0
3 2 0
3 3 0
3 4 0
4 1 0
%endblock local_mode.special_SOC
```

自定义局域模式 (block local_mode.mode_definition)

- **参数名称:** block local_mode.mode_definition
- **默认值:** 需要用到该数据时, 通常不可缺省。
- **可选值:** 非负整数
- **描述:** 在有效哈密顿量方法模块中常用。在这里定义局域模式, 这里的局域模式可以是自旋模式, 也可以是局域声子模式等。以下分类型提供示例。
- **类型一:** 自旋模式。以 $TbMnO_3$ 为例, 一个原胞中包含 4 个 Mn 原子, 需要为原胞中的所有 Mn 原子 (必须提供笛卡尔坐标) 分别设置三个方向的自由度, 如案例 1 所示。
- **案例 1:**

```
%block local_mode.mode_definition
2 # method, 2 is the general one, as below (填2, 不需要改)
12 # num of modes (总模式数)
1 spin #该模式涉及1个原子, 为自旋模式
2 #原子的元素编号 (block Z_value排序)
2.646572590 0.000000000 0.000000000 1.0 0.0 0.0 #笛卡尔坐标; 自旋方向x
#两种模式之间必须空一行 (软件需要读取一个空行)

1 spin
2
2.646572590 0.000000000 0.000000000 0.0 1.0 0.0 #笛卡尔坐标; 自旋方向y

1 spin
2
2.646572590 0.000000000 0.000000000 0.0 0.0 1.0 #笛卡尔坐标; 自旋方向z

1 spin
2
0.000000000 2.919204950 0.000000000 1.0 0.0 0.0

1 spin
2
0.000000000 2.919204950 0.000000000 0.0 1.0 0.0

1 spin
2
0.000000000 2.919204950 0.000000000 0.0 0.0 1.0
```

(续下页)

(接上页)

```

1 spin
2
2.646572590 0.000000000 3.701255083 1.0 0.0 0.0

1 spin
2
2.646572590 0.000000000 3.701255083 0.0 1.0 0.0

1 spin
2
2.646572590 0.000000000 3.701255083 0.0 0.0 1.0

1 spin
2
0.000000000 2.919204950 3.701255083 1.0 0.0 0.0

1 spin
2
0.000000000 2.919204950 3.701255083 0.0 1.0 0.0

1 spin
2
0.000000000 2.919204950 3.701255083 0.0 0.0 1.0
    #最后可以继续空一行，也可以不空这行。
%endblock local_mode.mode_definition

```

备注:

- (1) 为了输出文件更具可读性，建议按 x、y、z 的顺序依次提供每个磁性原子的自旋自由度。
- (2) 虽然在具有高对称性的体系中，可能仅提供 x 方向的自旋自由度，软件就能自动补充分析出 y 和 z 方向的自由度；但是在对称性较低的情形下，是不能自动补充分析出 y 和 z 方向自由度的。因此，为了统一起见，建议总是写全 x、y、z 方向的自由度。

- **类型二：**局域声子模式。以 $BaTiO_3$ 为例，原胞中包含一个 Ti 原子，我们可以以 Ti 原子为中心定义局域声子模式（包含 Ti 及其周围原子共 15 个原子），如案例 2 所示。

• **案例 2:**

```

%block local_mode.mode_definition
2 # method, 2 is the general one, as below (填2, 不需要改)
1 # num of modes (总模式数)
15 # 该模式涉及15个原子, 默认为局域声子模式 (需读取15行坐标及位移)
2 1 1 1 1 1 1 3 3 3 3 3 3 3 3 #依次列出各原子的元素编号(block Z_value排序)
2.01665571 2.01665571 2.01665571 0.0 0.0 0.84914560 #Ti 坐标&位移, 下同
2.01665571 0.00000000 2.01665571 0.0 0.0 -0.12643559 #O1
4.03331143 2.01665571 2.01665571 0.0 0.0 -0.12643559 #O1
2.01665571 4.03331143 2.01665571 0.0 0.0 -0.12643559 #O1
0.00000000 2.01665571 2.01665571 0.0 0.0 -0.12643559 #O1
2.01665571 2.01665571 0.00000000 0.0 0.0 -0.31944756 #O2
2.01665571 2.01665571 4.03331143 0.0 0.0 -0.31944756 #O2
0.00000000 0.00000000 0.00000000 0.0 0.0 0.03693648 #Ba
4.03331143 0.00000000 0.00000000 0.0 0.0 0.03693648 #Ba
4.03331143 4.03331143 0.00000000 0.0 0.0 0.03693648 #Ba

```

(续下页)

(接上页)

```

0.00000000 4.03331143 0.00000000 0.0 0.0 0.03693648 #Ba
0.00000000 0.00000000 4.03331143 0.0 0.0 0.03693648 #Ba
4.03331143 0.00000000 4.03331143 0.0 0.0 0.03693648 #Ba
4.03331143 4.03331143 4.03331143 0.0 0.0 0.03693648 #Ba
0.00000000 4.03331143 4.03331143 0.0 0.0 0.03693648 #Ba
%endblock local_mode.mode_definition

```

备注:

- (1) 各原子的位移值只有相对大小是重要的，不需要关心单位。因为软件内部会对模式所包含的所有位移值的整体作归一化处理（归一化后各位移值的平方和为 1 Bohr^2 ）。后续在描述这个局域模式的大小时，例如 0.5 表示该模式涉及的所有原子都按上述归一化处理后的位移值乘 0.5 移动。
- (2) 在案例 2 中，第四行（有效内容为“15”）有时需要改写成“15 lamp 其他数据”的形式，其中 lamp 含义为 large amplitude，用于设置该模式幅度过大时的处理方式。具体的处理方式是，当某模式取值超出合理的范围 G 时，采用能量随模式幅度的绝对值指数上升的形式（代替原来的多项式形式），以避免因模型外推效果不佳而误认为模式幅度趋于无穷大时能量趋于负无穷。我们习惯上称 $u = u_{c1}$ 和 $u = u_{c2}$ 为软边界，因为实际上并没有严格地将模式取值限制在边界之内；相反，若希望严格限制模式的取值范围，可以参见 3.1.5.6 节内容。模式取值超出软边界时，对于该模式的单体项对能量的贡献，我们支持采用以下两种函数形式：形式一， G ；形式二， G 。其中， u 表示局域模式的幅度； u_c 为截断幅度，当 $u > 0$ 时取 u_{c2} ，当 $u < 0$ 时取 u_{c1} ； $scale$ （大于 0）为输入文件中用“local_mode.non_polynomial.exp.scale”设置的值（缺省值为 6.0）； $coef$ （大于 0）是输入文件中用“local_mode.non_polynomial.exp.coefficient”设置的值（缺省值为 1.0）；根据边界 $u = u_{c1}$ 和 $u = u_{c2}$ 处能量（考虑单体能量贡献即可）及其导数连续的条件可以分别在两个边界处解出各自的 A 和 B ， $u > 0$ 时采用 $u = u_{c2}$ 处解出的 A 和 B ，而 $u < 0$ 时采用 $u = u_{c1}$ 处解出的 A 和 B 。需要注意的是，形式一中不能保证解出的 $B > 0$ ，遇到 $B \leq 0$ 情形时，软件无法正常运行；而形式二总能保证指数函数项的系数为正，因此稳定性较高。此外还请注意，由于是采用指数函数形式控制幅度，蒙特卡洛模拟给出的基态结果仍然可能出现某些局域模式幅度的绝对值超出了“截断幅度”的情形，此时基态结果并不可靠（因为幅度超出截断值后的能量值是“非物理的”），出现这种情况的原因一般是模型不够准确或者截断距离的设置值不合适。

局域模式定义中采用“15 lamp 其他数据”形式时，有以下几种情形：

情形一，“15 lamp 1.3”，即 lamp 后面有一个数据。此时该数据表示 u_{c2} 值，同时自动设置 $u_{c1} = -u_{c2}$ 。此时采用函数形式一。

情形二，“15 lamp 0.0 1.3”，即 lamp 后面有两个数据。此时第一个数据建议总是填 0.0（用于增加函数分段，但通常没必要，所以设置成 0.0，表示不增加分段）；第二个数据表示 u_{c2} 值，同时自动设置 $u_{c1} = -u_{c2}$ 。此时采用函数形式一。

情形三，“15 lamp 0.0 1.3 1”，即 lamp 后面有三个数据。此时前两个数据与情形二相同；增加的第三个数据是函数形式选择，取 0 时采用函数形式一，取 1 时采用函数形式二。

情形四，“15 lamp 0.0 1.3 -0.8 1”，即 lamp 后面有三个数据。此时前两个数据与情形二相同；增加的第三个数据是 u_{c1} 值，注意该值需要小于 0；增加的第四个数据是函数形式选择，取 0 时采用函数形式一，取 1 时采用函数形式二。该形式是最具通用性的形式。

类型三：多种模式混合定义。格式与上述各类型一致，只是在定义各个模式时可以采用不同类型的定义。如案例 3 中混合定义了磁性原子的自旋模式和所有原子的位移模式。需要再次强调的是，不同模式的定义之间必须空一行！

- 案例 3:

```

%block local_mode.mode_definition
2 # method, 2 is the general one, as below
60 # num of modes
1 spin
1
4.246239888184 4.246239888184 4.246239888184 1.0 0.0 0.0

1 spin
1
4.246239888184 4.246239888184 4.246239888184 0.0 1.0 0.0

1 spin
1
4.246239888184 4.246239888184 4.246239888184 0.0 0.0 1.0

... (为节省篇幅, 省略中间部分内容)

1
3
5.215531205855 5.215531205855 7.523188458697 1.0 0.0 0.0

1
3
5.215531205855 5.215531205855 7.523188458697 0.0 1.0 0.0

1
3
5.215531205855 5.215531205855 7.523188458697 0.0 0.0 1.0

%endblock local_mode.mode_definition

```

读取已有相互作用信息 (`local_mode.read_interaction`)

- 参数名称: `local_mode.read_interaction`
- 默认值: F
- 可选值: T/F
- 描述: 在有效哈密顿量方法模块中常用 (包括后续的 MC 或 MD 模拟等)。在这里设置是否直接从 `local_mode_PM.dat` 文件中读取相互作用信息。这里用到的 `local_mode_PM.dat` 文件本来是分析不等价相互作用时的输出文件, 如果需要再次在相同的原胞结构 (参见 3.1.4 节)、局域模式定义、体数、截断距离、展开阶数、SOC 的保留阶数等设置下调用 PASP, 例如获取不同构型的 `*.ene_symbol` 文件 (允许处理不同的超胞) 时, 或进行后续的 MC 和 MD 模拟时, 就可以直接从已有的该文件中读取所需信息。特别是使用 MC 或 MD 功能时, 因为通常需要并行计算, 而使用 “Model Invariant” 获取 `local_mode_PM.dat` 文件的步骤暂不支持并行, 因此在 MC 或 MD 阶段常常必须设置该项为 T, 以便直接读取 `local_mode_PM.dat` 文件内容。
- 案例:

```
local_mode.read_interaction T
```

随机生成构型或自定义构型的相关设置

- 参数名称: Invariant.cal_para
- 默认值: F
- 可选值: T/F
- 描述: 在有效哈密顿量方法模块中常用。用于设置在分析完各种不等价相互作用项之后, 是否计算若干构型的 $\{h_j^{(i)}\}$ (定义见 2.2.1 节) 并输出到 **.ene_symbol* 文件中。这些构型可以是随机生成的, 也可以是自定义的, 这由 “local_mode.cal_para_method” 设置项决定。

- 案例:

```
Invariant.cal_para T
```

- 参数名称: local_mode.cal_para_method
- 默认值: 1
- 可选值: 1/4/5/6/9 等 (手册目前仅介绍最常用的 1、5、6)
- 描述: 在有效哈密顿量方法模块中常用。用于设置采用哪种方式定义构型, 可以自定义, 也可以随机生成。最常用的设置选项有 1、5 和 6。需要注意的是该项设置仅在 “Invariant.cal_para” 取 T 时生效; 而在 “Invariant.use_alamode_IFC” 取 T (缺省值为 F) 时将自动设置为 9 (全原子模型)。设置值 6 是用 *distortion.pos* (必要文件) 和 *distortion.MAGMOM* (无自旋自由度时可省略) 文件提供自定义的构型信息, 并在这两个文件内直接提供扩胞后的数据; 设置值 5 是在 *PASP.input* 文件中用 “block local_mode.mode_amp” 提供自定义的构型信息, 扩胞是利用 “block SuperCell” 设置项或 *cell.str* 文件完成的; 设置值 1 是自动随机生成 (也支持有序生成) 多组构型, 它也是通过 “block SuperCell” 设置项或 *cell.str* 文件完成扩胞。

- 案例:

```
local_mode.cal_para_method 1
```

- 参数名称: Invariant.use_alamode_IFC
- 默认值: F
- 可选值: T/F
- 描述: 在有效哈密顿量方法模块中可能用到 (目前不常用)。用于设置是否采用全原子模型。
- 案例:

```
Invariant.use_alamode_IFC F
```

- 参数名称: local_mode.nstr_random
- 默认值: 100
- 可选值: 非负整数
- 描述: 在“local_mode.cal_para_method”取1时, 用于设置随机产生的构型数。在随机生成时, 自旋自由度按模长为1随机生成方向, 而局域声子模式和应变需要在“block local_mode.mode_range”所设置的取值范围内随机取值。需要注意的是, 只有相互作用分析中考虑到应变相关项时才会在随机生成数据时产生随机的应变。
- 案例:

```
local_mode.nstr_random 150
```

- 参数名称: local_mode.generate_ordered_str
- 默认值: F
- 可选值: T/F
- 描述: 在“local_mode.cal_para_method”取1时, 用于设置是否自动补充产生若干有序构型(上一设置项提到的随机构型编号在前, 这里的有序构型编号在后)。取T时, 有序构型按如下规则产生, 实际产生的有序构型数常常难以事先估计: 首先产生仅单个模式有值的若干构型(即其他模式赋零值), 有值的模式大小为 $i * 1.5 * u_{max} / (num - 1)$ (u_{max} 和 num 为“block local_mode.mode_range”中设置的相应模式的“最大值”和“分段数”, i 取值从1到 $num - 1$); 另外也会产生两个、多个模式有值的情形, 有值的模式大小为 $i * u_{max} / (num - 1)$ (i 取值从1到 $num - 1$)。该功能有时会生成部分重复或等价构型, 因此并不是很常用。
- 案例:

```
local_mode.generate_ordered_str F
```

- 参数名称: local_mode.mode_range
- 默认值: 对于各模式, 最小值的缺省值为0(注意不是最大值的相反数); 最大值的缺省值一般为0.04, 但应变对应的最大值为0.02; 分段数缺省值为4。
- 可选值: 最大值、最小值为实数, 分段数为正整数
- 描述: 在“local_mode.cal_para_method”取1时, 用于设置随机构型的取值范围, 以及产生有序构型的相关设置信息。共需“局域模式数+6”行: 其中局域模式数应与测试运行时名为 local_mode-*.xsf (*处为编号)的输出文件的个数一致, 而这个个数未必与“block local_mode.mode_definition”部分定义的局域模式数一致(因为PASP软件可能会根据对称性分析补充对称等价的局域模式); “+6”部分对应变的六个自由度。每行内容可以有两种格式: 第一种, “最大值分段数”(此时最小值取缺省值0); 第二种, “最大值最小值分段数”。这两种格式可以混用。对于生成有序构型所需的“最大值”和“分段数”两个数据, 直接从这里获取, 产生有序构型的规则详见“local_mode.generate_ordered_str”设置项介绍。对于随机生成构型的部分, 各模式先从各自对应的[最小值, 最大值]均匀随机取值; 在“local_mode.randstr_randsign”为T(缺省值为T)时再随机取正负号, 否则不随机取正负号。

在案例 1 中，若 “local_mode.randstr_randsign ” 取 T，则前三种局域模式会在 [0,0.276] 均匀随机取值后再随机取正负号，这等价于在 [-0.276,0.276] 均匀随机取值；反之，若使用 “local_mode.randstr_randsign F ”，则前三种局域模式会在 [0,0.276] 均匀随机取值。对于案例 2，常搭配 “local_mode.randstr_randsign ” 取 F 来使用，以便更自由地设置各模式的取值范围，对于该例，第四至六种模式（对应前三种应变模式）会在 [-0.02,0.03] 均匀随机取值，而最后三种模式固定取值 0.0（需要固定某模式取值时，只需要将最大值和最小值设成相等）。

• 案例 1:

```
%block local_mode.mode_range
0.276 11
0.276 11
0.276 11
0.025 2
0.025 2
0.025 2
0.025 2
0.025 2
0.025 2
0.025 2
%endblock local_mode.mode_range
```

• 案例 2:

```
%block local_mode.mode_range
1.0 -1.0 2
1.0 -1.0 2
1.0 -1.0 2
0.03 -0.02 2
0.03 -0.02 2
0.03 -0.02 2
0.0 0.0 2
0.0 0.0 2
0.0 0.0 2
%endblock local_mode.mode_range
```

- 参数名称: local_mode.randstr_randsign
- 默认值: T
- 可选值: T/F
- 描述: 参见上一设置项，在 “local_mode.cal_para_method ” 取 1 时，对于随机生成构型的部分，各模式先从各自对应的 [最小值, 最大值] 均匀随机取值；在 “local_mode.randstr_randsign ” 为 T（缺省值为 T）时再随机取正负号，否则不随机取正负号。

• 案例:

```
local_mode.randstr_randsign T
```

- 参数名称: block local_mode.mode_amp

- **默认值:** 对所有自由度全部赋 0
- **可选值:** 实数
- **描述:** 当“local_mode.cal_para_method”设置值为 5 时, 可利用“block local_mode.mode_amp”生成自定义的构型, 如案例所示。

备注:

- (1) 这里需要提供“超胞”中所有相关局域模式的信息, 比如示例中实际上提供了 2*2*2 超胞中所有需考虑的局域模式的信息。这里超胞是通过“block SuperCell”设置项和 *cell.str* 文件决定的; 由于“block SuperCell”扩胞所得各原子坐标通常难以预先确定, 这里通常推荐直接在 *cell.str* 中提供超胞, 以便直接确定超胞中所有原子的坐标。
- (2) 案例注释中“第几种模式”指属于该原子的第几种模式 (比如属于某个原子的模式只有两种, 那么只能取值 1 或 2), 而不是所有模式中的第几种。对于局域声子模式, 可能某种模式中包含多个原子的位移信息, 我们规定在“block local_mode.mode_definition”的模式定义中第一行是哪一种原子, 就称这个模式属于这种原子; 考虑到扩胞等因素, 这种原子可能有多个等价的位置, 具体的某个模式应当属于某个具体等价位置的原子。
- (3) 对于自旋模式需特别注意, 软件将直接按照“block local_mode.mode_amp”的内容对模式大小赋值, 不会再额外作归一化处理; 为了内部逻辑统一, 当设置自旋模式大小时, 请务必确保每个自旋模式都是已经归一化的。

• 案例:

```
%block local_mode.mode_amp
24 #以下读取多少行含坐标的数据: 笛卡尔坐标; 第几种模式; 模式大小
2.016548011745 2.016548011745 2.016548011745 1 0.21225237
2.016548011745 2.016548011745 2.016548011745 2 0
2.016548011745 2.016548011745 2.016548011745 3 0
2.016548011745 2.016548011745 6.049644035234 1 0.21225237
2.016548011745 2.016548011745 6.049644035234 2 0
2.016548011745 2.016548011745 6.049644035234 3 0
2.016548011745 6.049644035234 2.016548011745 1 0.21225237
2.016548011745 6.049644035234 2.016548011745 2 0
2.016548011745 6.049644035234 2.016548011745 3 0
2.016548011745 6.049644035234 6.049644035234 1 0.21225237
2.016548011745 6.049644035234 6.049644035234 2 0
2.016548011745 6.049644035234 6.049644035234 3 0
6.049644035234 2.016548011745 2.016548011745 1 0.21225237
6.049644035234 2.016548011745 2.016548011745 2 0
6.049644035234 2.016548011745 2.016548011745 3 0
6.049644035234 2.016548011745 6.049644035234 1 0.21225237
6.049644035234 2.016548011745 6.049644035234 2 0
6.049644035234 2.016548011745 6.049644035234 3 0
6.049644035234 6.049644035234 2.016548011745 1 0.21225237
6.049644035234 6.049644035234 2.016548011745 2 0
6.049644035234 6.049644035234 2.016548011745 3 0
6.049644035234 6.049644035234 6.049644035234 1 0.21225237
6.049644035234 6.049644035234 6.049644035234 2 0
6.049644035234 6.049644035234 6.049644035234 3 0
0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 #额外的最后一行设置应变的值, 全取零时可以省略此行
%endblock local_mode.mode_amp
```

Model find_J_path_sym 的其他设置

- 参数名称: block magnetic_or_ligand
- 默认值: 0
- 可选值: 0/1/2
- 描述: 在“Model find_J_path_sym”中用到。这里需指出各元素原子是磁性原子还是配位原子。1 表示磁性原子, 2 表示配位原子, 其他原子用 0 表示。以 $BiFeO_3$ 为例, 由于 Fe 是磁性原子取 1, O 是配位原子取 2, Bi 是其他原子取 0, 按 Bi、Fe、O 的顺序 (顺序与 block Z_values 的内容一致) 应分别取 0、1、2。
- 案例:

```
%block magnetic_or_ligand
0 1 2v
```

Model Invariant 的其他设置

- 参数名称: Invariant.type
- 默认值: 1
- 可选值: 1/2/3/5/6
- 描述: 用于选定“Model Invariant”中分析不等价相互作用时的具体方法。本手册仅涉及选项 2, 即分析自定义的局域模式之间的不等价相互作用。其他选项不常用, 这里不展开介绍。
- 案例:

```
Invariant.type 2
```

- 参数名称: local_mode.general_model
- 默认值: F
- 可选值: T/F
- 描述: 用于设置“Model Invariant”中分析不等价相互作用时是否采用通用方法。常选 T。本手册仅涉及选 T 的情形; 选 F 时仅适用于钙钛矿 (perovskite) 情形, 现已不常用。
- 案例:

```
local_mode.general_model T
```

- 参数名称: local_mode.full_atomic
- 默认值: F
- 可选值: T/F

- **描述:** 用于设置“Model Invariant”中分析不等价相互作用时是否采用全原子模型（即考虑所有原子的全部位移自由度）。常选 F。此功能可以被自定义局域模式的方法代替。
- **案例:**

```
local_mode.full_atomic F
```

- **参数名称:** Invariant.debug
- **默认值:** F
- **可选值:** T/F
- **描述:** 用于设置“Model Invariant”中是否采用 debug 模式，debug 模式下会在标准输出中提供更多相关数据信息。T 和 F 都常选。追求计算效率时请设置成 F。
- **案例:**

```
Invariant.debug F
```

全局结构搜索常用设置项

本节介绍全局结构搜索中常用的独有设置项。由于目前用的最多的是 GA 方法（遗传算法），所以这里主要涉及 GA 的相关设置项。

- **参数名称:** GA.population_size
- **默认值:** 0
- **可选值:** 非负整数
- **描述:** 用于设置在遗传算法中每一代的种群大小。
- **案例:**

```
GA.population_size 20
```

- **参数名称:** GA.max_generation
- **默认值:** 0
- **可选值:** 非负整数
- **描述:** 用于设置遗传算法的迭代次数。
- **案例:**

```
GA.max_generation 10
```

- 参数名称: save_str.nsave_str
- 默认值: 10
- 可选值: 非负整数
- 描述: 用于设置程序最终输出的低能结构数量。
- 案例:

```
save_str.nsave_str 20
```

- 参数名称: GA.perturbation
- 默认值: F
- 可选值: T/F
- 描述: 用于设置是否开启微扰方法。
- 案例:

```
GA.perturbation T
```

- 参数名称: GA.Pher
- 默认值: 0.85
- 可选值: 0~1 之间的实数
- 描述: 用于设置遗传算法交叉的概率。
- 案例:

```
GA.Pher 0.85d0
```

- 参数名称: GA.Pmut
- 默认值: 0.10
- 可选值: 0~1 之间的实数
- 描述: 用于设置遗传算法突变的概率。
- 案例:

```
GA.Pmut 0.10d0
```

- 参数名称: GA.lchk_mut
- 默认值: T

- 可选值： T/F
- 描述：用于设置是否检查突变后的结果并舍弃其中不合理的结构。
- 案例：

```
GA.lchk_mut T
```

- 参数名称： str.init_sym
- 默认值： F
- 可选值： T/F
- 描述：用于设置结构的初始对称性。
- 案例：

```
str.init_sym T
```

- 参数名称： GA.symmetrize_str
- 默认值： F
- 可选值： T/F
- 描述：用于设置是否对结构做对称化处理。
- 案例：

```
GA.symmetrize_str T
```

- 参数名称： GA.parallel
- 默认值： F
- 可选值： T/F
- 描述：用于设置是否使用并行方法。
- 案例：

```
GA.parallel T
```

- 参数名称： GA.useBCM
- 默认值： T

- 可选值： T/F
- 描述：用于设置在判断结构相似性时是否使用 BCM 方法。
- 案例：

```
GA.useBCM T
```

- 参数名称： GA.tol_BCM
- 默认值： 0.01
- 可选值： 非负实数
- 描述：用于设置 BCM 方法中所能容忍的误差大小。
- 案例：

```
GA.tol_BCM 0.01d0
```

- 参数名称： GA.pressure
- 默认值： 0.0
- 可选值： 非负实数
- 描述：用于设置外界压力大小，单位为 GPa。
- 案例：

```
GA.pressure 0.0d0
```

- 参数名称： GA.gen_ran_str_sym
- 默认值： F
- 可选值： T/F
- 描述：用于设置是否使用随机空间群方法来生成初始结构，做全局结构搜索，并生成空间群为 GA.spg_front 到 GA.spg_rear 的随机结构。
- 案例：

```
GA.gen_ran_str_sym T
```

- 参数名称： GA.spg_front

- 默认值： 1
- 可选值： 1~230 之间的正整数
- 描述：用于设置结构搜索中的起始空间群号。
- 案例：

```
GA.spg_front 1
```

- 参数名称： GA.spg_rear
- 默认值： 230
- 可选值： 1~230 之间的正整数
- 描述：用于设置结构搜索中的终点空间群号。
- 案例：

```
GA.spg_rear 230
```

- 参数名称： GA.magnetic
- 默认值： F
- 可选值： T/F
- 描述：用于设置在结构搜索中是否考虑磁性自由度。
- 案例：

```
GA.magnetic T
```

- 参数名称： GA.random_magnetic
- 默认值： T
- 可选值： T/F
- 描述：如果参数值为 T，则随机生成磁构型；如果参数值为 F，则按照磁空间群生成磁构型。
- 案例：

```
GA.random_magnetic F
```

- 参数名称： GA.IAFM_GA

- 默认值： F
- 可选值： T/F
- 描述： 如果参数值设为 T，则程序仅考虑 AFM 态（反铁磁态）。
- 案例：

```
GA.lAFM_GA T
```

- 参数名称： GA.lmut_mag_GA
- 默认值： F
- 可选值： T/F
- 描述： 用于设置是否使体系的磁构型发生突变。
- 案例：

```
GA.lmut_mag_GA T
```

- 参数名称： GA.flip_spin_rate
- 默认值： 0.2
- 可选值： 0~1 之间的实数
- 描述： 用于设置磁矩发生突变的概率。
- 案例：

```
GA.flip_spin_rate 0.25d0
```

- 参数名称： GA.ldiff_str_with_mag_GA
- 默认值： F
- 可选值： T/F
- 描述： 如果参数值为 T，则仅当两个结构同时满足位置构型和磁构型的一致性时，程序才会视其为相同的结构。
- 案例：

```
GA.ldiff_str_with_mag_GA T
```

- 参数名称: GA.lread_OUTCAR_mag
- 默认值: F
- 可选值: T/F
- 描述: 用于设置是否从 *OUTCAR* 文件中读取磁性相关的信息并更新体系的磁构型。
- 案例:

```
GA.lread_OUTCAR_mag F
```

- 参数名称: GA.fixlattice
- 默认值: F
- 可选值: T/F
- 描述: 用于设置是否固定晶格。
- 案例:

```
GA.fixlattice F
```

- 参数名称: GA.fix_cell
- 默认值: T
- 可选值: T/F
- 描述: 用于设置是否固定晶胞。

备注: 注意: 当参数 *GA.fixlattice* 设为 T 时, 参数 *GA.fix_cell* 亦为 T。.

- 案例:

```
GA.fix_cell F
```

- 参数名称: GA.biaxial_strain
- 默认值: F
- 可选值: T/F
- 描述: 用于设置是否施加面内的应变, 即保持面内晶格常数固定。
- 案例:

```
GA.biaxial_strain T
```

- 参数名称: block GA.lat_fix_2D_Ang
- 默认值: 缺省时将自动设置该变量为“block LatticeVectors”(参见 3.1.3.4 节)中给出的前两行数据。
- 可选值: 6 个非负实数
- 描述: 用于设置固定的面内晶格常数。
- 案例:

```
%block GA.lat_fix_2D_Ang
5.5225 0.0 0.0
0.0 5.5225 0.0
%endblock GA.lat_fix_2D_Ang
```

紧束缚模型方法常用设置项

本节介绍紧束缚模型方法中常用的独有设置项。

- 参数名称: USE_Slater_Koster_Model
- 默认值: F
- 可选值: T/F
- 描述: 是否使用 Slater-Koster 模型得到 hopping 参数, 是则使用 T, 不使用 S-K 模型而直接手动输入所有 hopping 参数时选用 F。
- 案例:

```
USE_Slater_Koster_Model T
```

- 参数名称: overlap.distance
- 默认值: 100000
- 可选值: 正实数
- 描述: 交叠距离, 略大于考虑跃迁的成键键长即可。单位 Bohr。
- 案例:

```
overlap.distance 4.1
```

- 参数名称: Different_hop_path

- **默认值:** 在 S-K TB 中为 1, 自定义 TB 中手动输入 hopping 参数时为 0
- **可选值:** 非负整数
- **描述:** 在自定义 TB 中, 每对发生跃迁的元素为一条 hop_path; 在 S-K TB 中, 每对跃迁壳层组合为一条 hop_path。
- **案例:**

```

- 在自定义TB中, 考虑石墨烯中C-C跃迁, 则hop_path为1

    Different_hop_path 1

- 在S-K TB中, 考虑Ni 3d轨道与O 2p跃迁, 以及Ni 4s轨道与O 2p跃迁, 则hop_
  ↳path为2。

    Different_hop_path 2

```

- **参数名称:** Hop_Parameters_specified_using_site
- **默认值:** F
- **可选值:** T/F
- **描述:** 选用 T 则以位矢之差表示跃迁路径, 若该项选用 F, 则 Hop_Parameters_specified_using_dis 一项必须为 T。

备注: Hop_Parameters_specified_using_site 与 Hop_Parameters_specified_using_dis 二者必须一个为 T, 另一个为 F。使用 site 时跃迁信息以不同的原子编号作区分, 使用 distance 时以不同的元素编号作区分。推荐使用 Hop_Parameters_specified_using_dis。

- **案例:**

```
Hop_Parameters_specified_using_site T
```

- **参数名称:** Hop_Parameters_specified_using_dis
- **默认值:** F
- **可选值:** T/F
- **描述:** 选用 T 则以原子间距离表示跃迁路径, 若该项选用 F, 则 Hop_Parameters_specified_using_site 一项必须为 T。

备注: Hop_Parameters_specified_using_site 与 Hop_Parameters_specified_using_dis 二者必须一个为 T, 另一个为 F。使用 site 时跃迁信息以不同的原子编号作区分, 使用 distance 时以不同的元素编号作区分。推荐使用 Hop_Parameters_specified_using_dis。

- **案例:**

```
Hop_Parameters_specified_using_dis T
```

- 参数名称: TB.complex_hop
- 默认值: F
- 可选值: T/F
- 描述: TB 跃迁参数是否选用复数, 若选用复数则设置为 T, block Hop_parameters 中每个跃迁参数以 (r,i) 形式表示, 其中 r 为实部数值, i 为虚部数值。当使用 S-K TB 时缺省此项。
- 案例:

```
TB.complex_hop F
```

- 参数名称: block Hop_Parameters
- 默认值: 无默认值, 使用自定义 TB 时不可缺省
- 可选值: 见描述
- 描述: 输入自定义 TB 的 hopping 参数信息, 若 Hop_Parameters_specified_using_site 为 T (案例 1), 第一行依次输入发生跃迁的两个原子编号, 两原子间的位矢差的 xyz 分量; 另起一行输入跃迁矩阵, 两原子中第一个原子的轨道数作为行数, 第二个原子的轨道数作为列数 (注意这里的轨道数应当与 block Orbitals 中指定的各元素轨道数一致)。若 Hop_Parameters_specified_using_dis 为 T (案例 2), 第一行依次输入发生跃迁的元素在 cell.str 中对应编号, 以及元素间成键长度 (略微大于键长也可), 另起一行输入两元素间跃迁矩阵, 行数为前面元素轨道数, 列数为后面元素轨道数 (注意这里的轨道数也应当与 block Orbitals 中指定的各元素轨道数一致)。另注意, TB.complex_hop 为 T 时, 这里每个跃迁参数以 (r,i) 形式表示, 其中 r 为实部数值, i 为虚部数值。当使用 S-K TB 时缺省此项。
- 案例 1:

```
考虑一号原子轨道数为3, 二号原子为2, 则
Hop_Parameters_specified_using_site T
Hop_Parameters_specified_using_dis F
%block Hop_Parameters
1 2 0.2 0.3 0.5 # ia1,ia2, cell_diff
0 -1.5
2 0
0 1.3
%endblock Hop_Parameters
```

- 案例 2:

```
考虑一号元素轨道数为3, 二号元素为2, 则
Hop_Parameters_specified_using_site F
Hop_Parameters_specified_using_dis T
%block Hop_Parameters
1 2 2.1 # is1,is2,distance
0 -1.5
2 0
```

(续下页)

(接上页)

```
0 1.3
%endblock Hop_Parameters
```

- **参数名称:** block Slater_Koster_Hop_Parameters
- **默认值:** 无默认值, 使用 SK TB 时不可缺省
- **可选值:** 见描述
- **描述:** 输入 SK TB 的 hopping 参数信息, 若 Hop_Parameters_specified_using_site 为 T (案例 1), 第一行依次输入发生跃迁的两个原子编号, 两原子间的位矢差的 x y z 分量; 第二行输入跃迁壳层组合数, 数值等于 Different_hop_path 项; 第三行依次输入第一个原子跃迁壳层的主量子数、角量子数, 第二个原子跃迁壳层的主量子数、角量子数; 第四行输入相应的 S-K TB 跃迁积分项 (p 轨道与 p 轨道间为 $V_{pp}V_{pp}$, p 轨道与 d 轨道间为 $V_{pd}V_{pd}$, p 轨道与 f 轨道间为 $V_{pf}V_{pf}$) 等数值, 根据结构对称性, 表示跃迁的不同矩阵元是这些数值的不同线性组合形式, 这一组合过程将由程序完成。若 Hop_Parameters_specified_using_dis 为 T (案例 2), 则第一行依次输入原子种类序数, 原子间距离; 其余行不变。

根据 W.A.Harrison 所著 “Electronic structure and the properties of solids - The Physics of the Chemical Bond” 一书, 不同体系的 V_{pp} 等参数可进一步近似为轨道间普适量 除以跃迁距离的平方, 根据此可给出 V_{pp} 等参数的初始值。具体为: 对于 ss, sp, pp $V_{ll'm} = \eta_{ll'm} \frac{\hbar^2}{m_e d^2}$, 对于 sd, pd , $V_{ll'm} = \eta_{ll'm} \frac{\hbar^2 r_d^{3/2}}{m_e d^{7/2}}$, 对于 dd , $V_{ll'm} = \eta_{ll'm} \frac{\hbar^2 r_d^3}{m_e d^5}$, 式中 m_e 为电子质量, d 为跃迁原子间距离 (键长), r_d 为 d 态半径 (d-state radii)。 $\eta_{ss\sigma} = -1.40$, $\eta_{sp\sigma} = 1.84$, $\eta_{pp\sigma} = 3.24$, $\eta_{pp\pi} = -0.81$, $\eta_{sd\sigma} = -3.16$, $\eta_{pd\sigma} = -2.95$, $\eta_{pd\pi} = 1.36$, $\eta_{dd\sigma} = -16.2$, $\eta_{dd\pi} = 8.75$, $\eta_{dd\delta} = -2.39$; r_d 取值表如下, 其中 MTO 指 Anderson 与 Jepsen 使用 Muffin-Tin-Orbital 理论推导所得, ASM 指 Straub 与 Harrison 使用 Atomic-Surface Method 推导所得。

Z		r_0 (Å)	r_d (Å)	r_d (Å)	r_c (Å)	W_d (eV)	U_d (eV)
			MTO	ASM		MTO	Straub
3	Sc	1.80	1.332	1.163	0.86	5.27	5.3
4	Ti	1.60	1.159	1.029	0.83	6.26	5.4
5	V	1.49	1.060	0.934	0.80	6.83	5.3
6	Cr	1.41	0.963	0.939	0.74	6.75	5.1
7	Mn	1.42	0.925	0.799	0.67	5.78	5.6
8	Fe	1.41	0.864	0.744	0.57	4.88	5.9
9	Co	1.39	0.814	0.696	0.48	4.38	6.3
10	Ni	1.38	0.767	0.652	0.39	3.80	6.5
11	Cu	1.41	0.721	0.688	0.37	2.83	6.9
3	Y	1.98	1.696	1.602	1.08	6.76	1.9
4	Zr	1.77	1.515	1.415	1.02	8.43	2.4
5	Nb	1.61	1.370	1.328	0.93	10.02	2.7
6	Mo	1.55	1.285	1.231	0.84	9.99	3.0
7	Tc	1.50	1.197	1.109	0.71	9.52	3.4
8	Ru	1.48	1.127	1.083	0.57	8.49	3.7
9	Rd	1.49	1.066	1.020	0.42	6.95	4.0
10	Pd	1.51	1.012	1.008	0.21	5.56	4.3
11	Ag	1.59	0.960	0.889	0.23	3.67	4.6
3	Lu	1.92	1.693	1.603	1.00	7.84	4.0
4	Hf	1.75	1.553	1.455	0.99	9.62	2.8
5	Ta	1.61	1.433	1.346	0.87	11.46	3.0
6	W	1.56	1.361	1.268	0.75	11.50	3.1
7	Re	1.51	1.284	1.201	0.57	11.36	3.2
8	Os	1.49	1.219	1.142	0.33	10.39	3.4
9	Ir	1.49	1.159	1.085	0.26i	8.93	3.5
10	Pt	1.52	1.116	1.069	0.46i	7.22	3.5
11	Au	1.58	1.081	1.007	0.54i	5.41	3.6

备注：由上述数据推导出的跃迁参数数值可作为初步的大致合理值使用，对于具体体系，跃迁参数可根据初始值结果进一步优化。或者可以通过调节跃迁参数数值大小来理解不同轨道跃迁对各项性质的影响。

• 案例 1:

```
Hop_Parameters_specified_using_site T
Hop_Parameters_specified_using_dis F
%block Slater_Koster_Hop_Parameters
1 3 0.2 0.3 0.5 # ia1,ia2, cell_diff
1 # hop pairs
2 1 3 3 # n1 l1 n2 l2
0.1 0.2 # t(l1, l2, m)
%endblock Slater_Koster_Hop_Parameters
```

• 案例 2:

```
Hop_Parameters_specified_using_site F
Hop_Parameters_specified_using_dis T
%block Slater_Koster_Hop_Parameters
```

(续下页)

(接上页)

```

1 2 2.0 # is1, is2, distance
1      # nl pairs
2 1 3 3 # n1 l1 n2 l2
0.1 0.2 # t(l1, l2, m)
%endblock Slater_Koster_Hop_Parameters

```

- **参数名称:** block Orbitals
- **默认值:** 无默认, 不可缺省
- **可选值:** 略, 见描述
- **描述:** 此模块输入轨道在位能信息 (单位 eV), 使用自定义 TB 时 (案例 1), 第一行给出 *cell.str* 中的元素编号 1, 及其轨道数 (轨道数目及轨道的物理含义由研究者所使用的 TB 模型决定), 第二行给出这些轨道上在位能大小, 第三行给出元素编号 2 及其轨道数, 以此类推。使用 S-K TB 时 (案例 2), 第一行给出元素序号 1, 以及该元素考虑 hopping 壳层的轨道数, 第二行给出这些轨道上电子在位能的数值, 第三行给出元素序号 2, 以及该元素考虑 hopping 壳层的轨道数, 第四行给出这些轨道上电子在位能的数值。其它元素以此类推。输入时各轨道顺序为: p 轨道: p_x, p_y, p_z ; d 轨道: $d_{z^2-r^2}, d_{x^2-y^2}, d_{yz}, d_{zx}, d_{xy}$; f 轨道: $f_{xyz}, f_{x^3}, f_{y^3}, f_{z^3}, f_{x(y^2-z^2)}, f_{y(z^2-x^2)}, f_{z(x^2-y^2)}$ 。在位能数值可由各个轨道 PDOS 的主峰位置大致估计。
- **案例 1:**

```

#不使用 S-K TB
%block Orbitals
1 3
0.5 0.5 0.5
2 3
-1.2 -1.2 -1.2
%endblock Orbitals

```

- **案例 2:**

```

#使用 S-K TB
%block Orbitals
1 5
0.7 0.7 -0.2 -0.2 -0.2
2 3
-1.7 -1.7 -1.7
%endblock Orbitals

```

- **参数名称:** block orbitals_nl
- **默认值:** 无, 不可缺省
- **可选值:** 见描述
- **描述:** 壳层信息, 第一行为元素种类 1, 及其考虑的壳层数, 下面每行列举所考虑壳层对应的主量子数及角量子数, 再另起一行写元素种类 2, 及其考虑的壳层数, 以及所考虑壳层对应的主量子数及角量子数。
- **案例:** (Ni 3d 4s 轨道以及 O 2p 轨道)

```

%block orbitals_nl
1 2 #第一种元素 考虑两个轨道
3 2 #3d轨道的 n l
4 0 #4s轨道的 n l
2 1 #第二种元素 考虑一个轨道

```

(续下页)

(接上页)

```
2 1 #2p轨道的n l
%endblock orbitals_n1
```

- 参数名称: spin_noncollinear
- 默认值: F
- 可选值: T/F
- 描述: 是否开启非共线。
- 案例:

```
spin_noncollinear T
```

- 参数名称: Sn_basis
- 默认值: F
- 可选值: T/F
- 描述: Sn_basis 项决定了自旋量子化轴的 z 轴方向, 若设置为 F, 则其始终沿晶胞 c 轴方向, 若设置为 T, 则其为自旋所指方向。这一差异会导致在展开哈密顿量时, SOC 项的形式产生差异, 进而使得哈密顿量矩阵形式产生差异。具体如下。
- 若 Sn_basis 设置为 F, 则 SOC 哈密顿量展开为:

$$\begin{aligned}\hat{L}\hat{S} &= \hat{L}_x\hat{S}_x + \hat{L}_y\hat{S}_y + \hat{L}_z\hat{S}_z \\ &= \left(\frac{\hat{L}_+ + \hat{L}_-}{2}\right)\left(\frac{\hat{S}_+ + \hat{S}_-}{2}\right) + \left(\frac{\hat{L}_+ - \hat{L}_-}{2i}\right)\left(\frac{\hat{S}_+ - \hat{S}_-}{2i}\right) + \hat{L}_z \cdot \hat{S}_z \\ &= \frac{\hat{L}_+\hat{S}_+ + \hat{L}_-\hat{S}_-}{4} + \frac{\hat{L}_+\hat{S}_- + \hat{L}_-\hat{S}_+}{4} - \frac{\hat{L}_+\hat{S}_+ + \hat{L}_-\hat{S}_-}{4} + \frac{\hat{L}_+\hat{S}_- + \hat{L}_-\hat{S}_+}{4} \\ &= \frac{1}{2}(\hat{L}_+\hat{S}_- + \hat{L}_-\hat{S}_+) + \hat{L}_z\hat{S}_z\end{aligned}$$

- 若 Sn_basis 设置为 T, 则 SOC 哈密顿量展开为:

$$\begin{aligned}\hat{L}\hat{S} &= \hat{S}_n \left(\hat{L}_z \cos \theta + \frac{1}{2} \hat{L}_+ e^{-i\phi} \sin \theta + \frac{1}{2} \hat{L}_- e^{i\phi} \sin \theta \right) \\ &+ \frac{1}{2} \hat{S}_+ \left(-\hat{L}_z \sin \theta - \hat{L}_+ e^{-i\phi} \sin^2 \frac{\theta}{2} + \hat{L}_- e^{i\phi} \cos^2 \frac{\theta}{2} \right) \\ &+ \frac{1}{2} \hat{S}_- \left(-\hat{L}_z \sin \theta + \hat{L}_+ e^{-i\phi} \cos^2 \frac{\theta}{2} - \hat{L}_- e^{i\phi} \sin^2 \frac{\theta}{2} \right)\end{aligned}$$

- 案例:

```
Sn_basis F
```

- 参数名称: nspin_directions_set

- 默认值：0
- 可选值：正整数
- 描述：设定具有磁矩的原子数目。
- 案例：

```
nspin_directions_set 2
```

- 参数名称：block spin_directions_set
- 默认值：无
- 可选值：见描述
- 描述：当 nspin_directions_set 设置为 0 时，此项不设置，不为零时，每行按原子序号，输入其上自旋方向。
- 案例：

```
%block spin_directions_set
1  -0.707107  0.707107  0.000000  #1号原子及其自旋方向
2   1.000000  0.000000  0.000000  #2号原子及其自旋方向
%endblock spin_directions_set
```

- 参数名称：nsites_SOC
- 默认值：0
- 可选值：正整数
- 描述：开启 SOC 的原子的数目。
- 案例：

```
nsites_SOC 2
```

- 参数名称：block magnitude_SOC
- 默认值：无
- 可选值：见描述
- 描述：给每个开启 SOC 的原子设定 SOC 强度，数值可借由公式 $(g_s - 1) \frac{1}{2} \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \frac{Ze^2}{r^3} \frac{1}{m^2c^2}$ 进行估算。
- 案例：

```
%block magnitude_SOC
1 0.3 #1号原子, 对应的SOC强度 $\lambda$ 为0.3eV
2 0.03 #2号原子, 对应的SOC强度 $\lambda$ 为0.03eV
%endblock magnitude_SOC
```

- 参数名称: TB.U
- 默认值: 0
- 可选值: 正实数
- 描述: 描述 Hubbard 排斥作用的 U 值大小 (单位 eV), 与 DFT 计算中 U 值相近。
- 案例:

```
TB.U 3
```

- 参数名称: use_rotation_matrix
- 默认值: F
- 可选值: T/F
- 描述: 是否用旋转矩阵处理角动量, 在使用 SK TB 时此项必须设置为 T。
- 案例:

```
use_rotation_matrix T
```

- 参数名称: TB.additional_H
- 默认值: F
- 可选值: T/F
- 描述: 若需要额外手动加入哈密顿量 (如考虑外场时), 设置为 T, 并在原来两个输入文件之外, 增加要添加的数值矩阵文件 “*Hmat_add.dat*”, 以正-八面体六配位环境下的单 Ni 原子示例, 考虑 SOC 后, 3d 共有 10 个轨道, 因此添加的哈密顿量矩阵也是 10*10 矩阵, *Hmat_add.dat* 文件具体内容参见 2.4.2 节。

备注:

- (1) 添加矩阵的大小应和 PASP 生成矩阵大小相同;
 - (2) 添加矩阵时, 各轨道对应的矩阵元要注意按照 PASP TB 的轨道顺序进行添加;
 - (3) 由于 Fortran 读取复数的语法规则, 括号内实部与虚部之间需要逗号隔开;
 - (4) 添加的矩阵应是厄密的, PASP 会对矩阵的厄密性进行检查。
-

- 案例:

```
TB.additional_H T
```

- 参数名称: block kgrid_Monkhorst_Pack
- 默认值: 无
- 可选值: 见描述
- 描述: K 点网格设置, 前面 3*3 矩阵给出网格, 最后一列表示网格偏移量
- 案例:

```
%block kgrid_Monkhorst_Pack
4 0 0 0.2
0 4 0 0.2
0 0 1 0.2
%endblock kgrid_Monkhorst_Pack
#表示 4*4*1 的 K 点网格, 最后一列为各方向偏移 0.2
```

- 参数名称: block DensityOfStates
- 默认值: 无
- 可选值: 见描述
- 描述: 态密度计算设置, 输入按顺序为最低能、最高能、展宽、能量区间内取点数以及单位 (eV 或 Hartree)。
- 案例:

```
%block DensityOfStates
0.00 0.00 0.200 1000 Hartree
%endblock DensityOfStates
```

- 参数名称: BandLinesScale
- 默认值: 无
- 可选值: pi/a 或 ReciprocalLatticeVectors
- 描述: 能带计算时高对称点表示方式, pi/a 即用倒格矢指数上 pi/a 倍数表示, ReciprocalLatticeVectors 即用倒格矢的分数坐标表示。
- 案例:

```
BandLinesScale ReciprocalLatticeVector
```

- 参数名称: block BandLines
- 默认值: 无
- 可选值: 见描述
- 描述: 能带计算设置, 第一列表示路径上取点数目, 第二列至第三列分别表示所选高对称点的分数坐标, 最后一列为高对称点符号。使用时在 block 之前应添加 “BandLinesScale ” 输入来设置高对称点表示方法。
- 案例 1:

```
BandLinesScale ReciprocalLatticeVectors
%block BandLines
1 0.000000000 0.000000000 0.000000000 \Gamma
20 0.666666667 0.333333333 0.000000000 K
10 0.500000000 0.000000000 0.000000000 M
20 0.000000000 0.000000000 0.000000000 \Gamma
15 0.000000000 0.000000000 0.500000000 A
20 0.666666667 0.333333333 0.500000000 H
10 0.500000000 0.000000000 0.500000000 L
%endblock BandLines
#以倒格矢分数坐标表示高对称点, 能带绘制路径:  $\Gamma$ 点-- K点-- M点--  $\Gamma$ 点--
 $\rightarrow$ A点-- H点-- L点, 路径上分别取20、10、20、15、20、10个点
```

- 案例 2:

```
BandLinesScale pi/a
%block BandLines
1 0.000 0.000 0.000 \Gamma
20 2.000 0.000 0.000 H
15 1.000 1.000 0.000 N
15 0.000 0.000 0.000 \Gamma
20 1.000 1.000 1.000 P
10 1.000 1.000 0.000 N
10 1.000 1.000 1.000 P
20 2.000 2.000 2.000 H
%endblock BandLines
#以 $\pi/a$ 倍数表示高对称点, 能带绘制路径:  $\Gamma$ 点-- H点-- N点--  $\Gamma$ 点-- P点--
 $\rightarrow$ N点-- P点-- H点, 路径上分别取20、15、15、20、10、10、20个点
```

自旋序诱导铁电性统一极化模型常用设置项

本节介绍自旋序诱导铁电性统一极化模型中常用的独有设置项。

- 参数名称: GKNB.symP
- 默认值: F
- 可选值: T/F
- 描述: 是否在程序里根据晶体结构对称性来对称化极化参数。
- 案例:

```
GKNB.symP T
```

- 参数名称: block GKNB_inter_site
- 默认值: 分量全部为 0
- 可选值: 分量为实数
- 描述: 设定格点间项极化参数矩阵 $\vec{P}_{12}^{\alpha\beta}$ (定义见 2.5.1 节)。其中第一行给出了不等价离子对的个数。接下来需要对每一个不等价离子对给出离子位置的笛卡尔坐标 (Å 为单位), 采用的局域坐标系 (通常为 单位矩阵), 和 $\vec{P}_{12}^{\alpha\beta}$ 数据。 $\vec{P}_{12}^{\alpha\beta}$ 数据部分共 9 行, 第 1 行是 \vec{P}_{12}^{xx} 的三个分量 (案例中注释为 xx), 第 2 行是 \vec{P}_{12}^{xy} 的三个分量 (案例中注释为 xy), 以此类推。若有多组数据 (即第一行内容大于 1), 则换行继续添加其他组数据的内容即可, 两组数据之间不空行。
- 案例:

```
%block GKNB_inter_site
1 #不等价离子对的个数
6.184071509801 6.184071509801 6.184071509801 #Fe2
4.638053632351 6.184071509801 9.276107264702 #Fe35
1 0 0 #局域坐标系 x轴
0 1 0 #局域坐标系 y轴
0 0 1 #局域坐标系 z轴
0.001254 0.00213 0.002374 #xx
0 0 0 #xy
0 0 0 #xz
0 0 0 #yx
0.001254 0.00213 0.002374 #yy
0 0 0 #yz
0 0 0 #zx
0 0 0 #zy
0.001254 0.00213 0.002374 #zz
%endblock GKNB_inter_site
```

- 参数名称: block GKNB_single_site
- 默认值: 分量全部为 0
- 可选值: 分量为实数
- 描述: 设定单格点项极化参数矩阵 $\vec{P}_i^{\alpha\beta}$ (定义见 2.5.1 节)。其中第一行给出了不等价单格点的个数。接下来需要对每一个不等价单格点给出离子位置的笛卡尔坐标 (Å 为单位), 采用的局域坐标系 (通常为 单位矩阵), 和 $\vec{P}_i^{\alpha\beta}$ 数据。 $\vec{P}_i^{\alpha\beta}$ 数据部分共 6 行, 第 1 行是 \vec{P}_i^{xx} 的三个分量 (案例中注释为 xx), 第 2 行是 \vec{P}_i^{yy} 的三个分量 (案例中注释为 yy), 第 3 行是 \vec{P}_i^{zz} 的三个分量 (案例中注释为 zz), 第 4 行是 $\vec{P}_i^{xy} = \vec{P}_i^{yx}$ 的三个分量 (案例中注释为 xy=yx), 以此类推。若有多组数据 (即第一行内容大于 1), 则换行继续添加其他组数据的内容即可, 两组数据之间不空行。
- 案例:

```
%block GKNB_single_site
1
6.184071509801 6.184071509801 6.184071509801 #Fe2
1 0 0 #局域坐标系 x轴
0 1 0 #局域坐标系 y轴
```

(续下页)

(接上页)

```

0 0 1 #局域坐标系 z轴
0 #Pxx
0 #Pyy
0 #Pzz
0 #Pxy=Pyx
0 #Pxz=Pzx
0 #Pyz=Pzy
%endblock GKNB_single_site

```

- 参数名称: block GKNB_local_axis
- 默认值: 单位矩阵
- 可选值: 正交矩阵
- 描述: 设定新的局域坐标系 (通常为单位矩阵)。当与设定 $\vec{P}_{12}^{\alpha\beta}$ 、 $\vec{P}_i^{\alpha\beta}$ 时采用的局域坐标系不一致时, 将采用这里设定的坐标系, 并对 $\vec{P}_{12}^{\alpha\beta}$ 、 $\vec{P}_i^{\alpha\beta}$ 作适当变换 (分量变换到新坐标系下的形式)。
- 案例:

```

%block GKNB.local_axis
1 0 0
0 1 0
0 0 1
%endblock GKNB.local_axis

```

- 参数名称: block GKNB.spiral
- 默认值: F
- 可选值: T/F
- 描述: 是否对自旋序附加 spiral (螺旋)。选 T 时, 利用 “block GKNB.qvec” (定义 \mathbf{q} , 采用倒格子基矢下的分数坐标形式) 和 “block GKNB.spiral_plane_vec” (定义 \mathbf{e}_1 和 \mathbf{e}_2 , 采用笛卡尔坐标形式) 定义附加的螺旋序。此时位于 \mathbf{r} (分数坐标形式)、原自旋矢量为 \mathbf{S} 的磁性原子, 相位变为 $\varphi = \arccos\left(\frac{S_z}{|\mathbf{S}|}\right) + 2\pi\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}$, 附加螺旋序之后的自旋矢量变为 $|\mathbf{S}|(\mathbf{e}_1 \cos \varphi + \mathbf{e}_2 \sin \varphi)$
- 案例:

```
GKNB.spiral T
```

- 参数名称: block GKNB.qvec
- 默认值: 0
- 可选值: 分量为实数

- **描述：**采用倒格子基矢下的分数坐标形式。该矢量记为 q 。
- **案例：**

```
%block GKNB.qvec
0.004500000000    0.004500000000    0.000000000000
%endblock GKNB.qvec
```

- **参数名称：** block GKNB.spiral_plane_vec
- **默认值：** 需要用到时不可缺省
- **可选值：** 两行分别为相互正交的两个单位方向向量
- **描述：**采用笛卡尔坐标形式，提供相互正交的两个单位方向向量，分别记为 e_1 和 e_2 。
- **案例：**

```
%block GKNB.spiral_plane_vec
0 1 0
0 0 -1
%endblock GKNB.spiral_plane_vec
```

- **参数名称：** spin_lat.spin_force
- **默认值：** F
- **可选值：** T/F
- **描述：**是否计算自旋序导致的离子受力。
- **案例：**

```
spin_lat.spin_force T
```

- **参数名称：** spin_lat.Lspin_int_only
- **默认值：** T
- **可选值：** T/F
- **描述：**是否仅考虑自旋自由度。选 T 时，忽略离子位移自由度和应变自由度。
- **案例：**

```
spin_lat.Lspin_int_only F
```

- 参数名称: `spin_lat.Lstrain_only`
- 默认值: F
- 可选值: T/F
- 描述: 是否仅考虑晶格应变的影响。选 T 时, 忽略离子位移的影响。
- 案例:

```
spin_lat.strain_only T
```

- 参数名称: `spin_lat.spin_int_stress`
- 默认值: F
- 可选值: T/F
- 描述: 是否计算自旋序导致的晶格应力。
- 案例:

```
spin_lat.spin_int_stress T
```

- 参数名称: `phonopy_force_constant`
- 默认值: F
- 可选值: T/F
- 描述: 是否读入 `phonopy` 给出的力常数文件。
- 案例:

```
phonopy_force_constant T
```

- 参数名称: `phon.lasr`
- 默认值: F
- 可选值: T/F
- 描述: 是否依据 ASR (acoustic sum rule) 修正力常数。
- 案例:

```
phon.lasr F
```

- 参数名称: `phon.sym_born_chg`
- 默认值: `T`
- 可选值: `T/F`
- 描述: 是否对称化给定的波恩有效电荷张量。
- 案例:

```
phon.sym_born_chg T
```

线性自旋波色散计算常用设置项

本节介绍线性自旋波的色散计算中常用的独有设置项。

- 参数名称: `number_of_qpoints`
- 默认值: `1`
- 可选值: 正整数
- 描述: PASP 每次计算布里渊区 1 条线段上的自旋波色散, 本设置项代表这条线段上 q 点的数量。
- 案例:

```
number_of_qpoints 1
```

- 参数名称: `block qpoints.magnon`
- 默认值: 需要用到时不可缺省
- 可选值: 坐标分量为实数
- 描述: PASP 每次计算布里渊区 1 条线段上的自旋波色散, 本设置项第一行代表这条线段的起始 q 点 (q 用以倒格矢展开的系数 q_i 表示: $\mathbf{q} = \sum_i q_i \mathbf{b}_i$), 第二行代表这条线段的终末 q 点。
- 案例:

```
%block qpoints.magnon
0.5      0.0      0.0
0.0      0.0      0.0
%endblock qpoints.magnon
```

输入/输出文件 `seed.in`: 随机数种子

这是个非必要的输入文件, 用于提供随机数种子, 需要两个整型数据, 例如:

```
640183986 154385448
```

如果缺少该文件, 软件将自动随机生成随机数种子, 并输出到 `seed.in` 文件中。

这个文件的用处在于, 当软件运行过程中涉及随机数时 (例如蒙特卡洛模拟、随机生成构型等), 如果希望在两次计算中得到完全相同的结果, 可以通过使用相同的随机数种子实现。当软件运行遇到 `bug` 时, 有时需要此文件固定随机数种子。

输入文件 spin_exchange.dat

在“Model Spin_lattice_interaction”中用该文件提供相互作用参数的取值信息。

注意：该文件采用严格的逐行读取规则，不能任意空行或删除、添加行。

示例文件如下（#后面的内容为注释部分，无需写出；注意这里#号需要用空格或制表符与数据隔开；此外#号开头的的首尾两行不算在文件内容之内）：

```
#=====#
2 # 共几组相互作用 #以下三行提供unit_cell.str的晶格信息
5.0523118545661250 0.0000000000000000 0.0000000000000000
0.0000000000000000 5.0523118545661250 0.0000000000000000
0.0000000000000000 0.0000000000000000 5.0523118545661250
1 0.0 -0.00017 0.00017 -0.00017 0.0 0.00017 0.00017 0.00017 0.0 1 1 -1.79817 0.72799
→1.79817 -1.79817 0.72799 1.79817 #single ion
2 -0.02858 -0.0000255 0.00024 -0.00047 -0.0278 0.00059 0.0000033 0.0004984 -0.028 1 1
→1.79817 3.25414 0.72799 0.72799 1.79817 3.25414 #J1
0 # no dJ/du, i.e., no spin-lattice interaction
0 # single site anisotropy
0 # DM
2 #共几组四阶点乘形式相互作用
1 1 -0.005885 1 1
1.79817 3.25414 0.72799 0.72799 1.79817 3.25414
2 2 0.002435 1 1
1.79817 3.25414 0.72799 -0.72799 -0.72799 -0.72799 3.25414 0.72799 1.79817
#=====#
```

注意：在本文件中，相互作用参数取 eV 单位（假定自旋矢量无量纲）；坐标统一采用笛卡尔坐标形式，单位埃。

第一部分：第一行提供一个整数，表示第一部分（即 J 矩阵部分）共有几组相互作用。二到四行提供原胞矢量信息（与 *unit_cell.str* 的相应内容一致）。其后每行依次提供各组不等价对的相互作用信息，这部分总的行数应与本文件第一行设置的数字一致。每行的内容是“第几组相互作用；J 矩阵（逐行填写矩阵元，共 9 个数）；哪两个编号的元素之间相互作用（共 2 个数，一般是相同的）；代表对原子的笛卡尔坐标（共 6 个数）”。当提供的代表对原子坐标相同时，J 矩阵部分应填写 SIA 矩阵（单离子各向异性矩阵）。这里提到的 J 矩阵和 SIA 矩阵的定义参见 2.1.1 节。

第二部分：提供 dJ/du 的信息。这部分不常用，通常写 0。使用这部分的完整示例文件参见“[example_public/P_by_spin_order/ion_strain/input/spin_exchange.dat](#)”，该部分内容示例如下，这里仅支持非矩阵形式的各向同性的 J。第一行提供一个整数，表示后续有几组数据（每组数据对应一种 J 值对各个原子位移偏导的信息）。之后每组信息按如下格式填写：第几组 dJ/du 信息、对应第几种 J（编号与本文件第一部分定义顺序一致）；之后的 3×3 矩阵提供扩胞后的基矢（单位 Ang）；其后一行提供一个数字，表示对于当前 J，提供对于多少原子位置的偏导信息，例如 160 个原子（通常等于扩胞后胞内原子数）；之后提供这 160 个原子的坐标（笛卡尔坐标系，单位 Ang），再依次给出该 J 值对于各个原子坐标分量的偏导（eV/Ang）。

```
#=====#
3 # ndJ, 后续提供几组dJ/du信息
1 1 #第几组dJ/du信息、对应第几种J
-6.441774129000 11.157480082400 9.245866623200
-6.441774129000 -11.157480082400 9.245866623200
6.441774128900 0.000000000000 4.622933311600
160
0.000000000000 0.000000000000 0.000000000000
-3.220887064500 -5.578740041200 4.622933311600
... (省略若干行)
0.000003250000 -0.000050750000 -0.000006250000
```

(续下页)

(接上页)

```

2 2      #第几组dJ/du信息、对应第几种J
... .. (省略若干行)
3 3      #第几组dJ/du信息、对应第几种J
... .. (省略若干行)
#=====#

```

第三部分：提供 SIA（单离子各向异性）的信息，这部分内容可以用第一部分的 J 矩阵代替。不提供这部分数据时，写 0 即可。有数据时，先在这部分的第一行写这部分有几组数据，然后每组数据按如下格式写：第一行提供一个整数（可以写成编号，即这是第几组），一般为非负整数（但当提供负值的整数时，表示该代表原子的所有等价原子都采用完全相同的 SIA 矩阵，而不会根据实际情况作任何适当的旋转变换等操作，一般情况不会选用负值）；第二至四行提供能够使 SIA 矩阵对角化的局域坐标系（相应的坐标轴称为 x' y' z' 轴，这三行依次提供 x' 轴、 y' 轴和 z' 轴的信息），假定对角化后 SIA 矩阵为 $\text{diag}(E, -E, A)$ 的形式；第五行提供五个数，第一个数为 A 值（ z' 轴对应的对角元），第二个数为 E 值（ x' 轴对应的对角元，也是 y' 轴对应的对角元的相反数），第三至五个数为代表原子的笛卡尔坐标。不同组的数据之间只换行不空行。

第四部分：提供 DM（Dzyaloshinskii-Moriya）相互作用（定义参见 2.1.1 节）的信息，这部分内容也可以用第一部分的 J 矩阵代替。不提供这部分数据时，写 0 即可。有数据时，先在这部分的第一行写这部分有几组数据，然后每组数据写一行信息，其中包括 12 个数：第一个数写编号（这是第几组 DM 相互作用），第二至四个数写 DM 相互作用的矢量分量（在笛卡尔坐标系下），第五至六个数写这是哪两个编号的元素之间相互作用（一般是相同的），最后六个数写两个代表原子的笛卡尔坐标。

最后的第五部分：提供四阶点乘相互作用的信息。先提供一个整数，表示这部分共有几组四阶点乘相互作用。每组四阶点乘相互作用的信息分两行写，其中第一行依次写“第几组；第几种类型；参数值；哪两个编号的元素之间相互作用（共 2 个数，一般是相同的）”。其中“第几种类型”包括以下情形：第 1 种，二体四阶 $(S_1 \cdot S_2)^2$ ；第 2 种，三体四阶 $(S_1 \cdot S_2)(S_1 \cdot S_3)$ ；第 3 种，四体四阶 $(S_1 \cdot S_2)(S_3 \cdot S_4)$ 。每组的第二行填写涉及的代表簇（代表对）原子的坐标：第 1 种类型提供两个原子的坐标（共 6 个数）；第 2 种类型依次提供 S_1 、 S_2 和 S_3 对应的三个原子的坐标（共 9 个数）；第 3 种类型依次提供 S_1 、 S_2 、 S_3 和 S_4 对应的对应的四个原子的坐标（共 12 个数）。

注意：相互作用截断距离要取的足够大（由“block fig.mdist”设定，参见 3.1.7.2 节），以确保 *spin_exchange.dat* 文件中提供的相互作用信息都能生效。

另外注意，以上是该文件的常用格式之一，前提是采用了矩阵形式的两体相互作用。另外也可采用标量形式的两体相互作用，此时需要在 *PASP.input* 中设置“spin_lat.general_J F”和“spin_lat.LJmatSym F”，这时，第一部分数据的“每行内容”中“J 矩阵（逐行填写矩阵元，共 9 个数）”简化为“J 值（仅 1 个数）”，其他部分内容都不变。前面的例子在该情形下可以相应地改成：

```

#=====#
2 #共几组相互作用 #以下三行提供unit_cell.str的晶格信息
5.0523118545661250 0.0000000000000000 0.0000000000000000
0.0000000000000000 5.0523118545661250 0.0000000000000000
0.0000000000000000 0.0000000000000000 5.0523118545661250
1 0.0 1 1 -1.79817 0.72799 1.79817 -1.79817 0.72799 1.79817 #single ion
2 -0.02858 1 1 1.79817 3.25414 0.72799 0.72799 1.79817 3.25414 #J1
0 # no dJ/du, i.e., no spin-lattice interaction
0 # single site anisotropy
0 # DM
2 #共几组四阶点乘形式相互作用
1 1 -0.005885 1 1
1.79817 3.25414 0.72799 0.72799 1.79817 3.25414
2 2 0.002435 1 1
1.79817 3.25414 0.72799 -0.72799 -0.72799 -0.72799 3.25414 0.72799 1.79817
#=====#

```

输入文件 distortion.pos

“Model Invariant”中（参见 2.2.1 节），当“Invariant.cal_para”取 T 且“local_mode.cal_para_method”设置值为 6（参见 3.1.7.7 节）时，可利用 *distortion.pos*（和 *distortion.MAGMOM*）文件生成自定义的构型。

其中 *distortion.pos* 文件与 POSCAR 格式（VASP 的输入文件之一）基本一致，需要给定超胞的原子坐标信息。该文件兼容以下两种格式：A. 第一行提供任意内容，第五行提供各元素符号，第六行提供各元素的原子个数（参见 3.1.3.8 节格式 A 示例文件 *POSCAR*）；B. 第一行提供各元素符号，第五行直接提供各元素的原子个数（参见 3.1.3.8 节格式 B 示例文件 *POSCAR*）。

格式 A 示例文件（以 $2\times 2\times 2$ 超胞的 $TbMnO_3$ 为例）：

```
#=====#
TbMnO3
1.0000000000000000
  10.586290000000    0.000000000000    0.000000000000
  0.000000000000    11.676820000000    0.000000000000
  0.000000000000    0.000000000000    14.805020000000
  Tb Mn O
  32  32  96
Direct
  0.491570000000    0.041215000000    0.125000000000
  0.491570000000    0.041215000000    0.625000000000
  0.491570000000    0.541215000000    0.125000000000
... .. 中间省略若干行
  0.601970000000    0.586885000000    0.775510000000
#=====#
```

格式 B 示例文件（以 $2\times 2\times 2$ 超胞的 $TbMnO_3$ 为例，完整版可在 “[example_public/Magnetic_noSOC_TbMnO3/input](#)” 文件夹下找到）：

```
#=====#
Tb Mn O
1.0000000000000000
  10.586290000000    0.000000000000    0.000000000000
  0.000000000000    11.676820000000    0.000000000000
  0.000000000000    0.000000000000    14.805020000000
  32  32  96
Direct
  0.491570000000    0.041215000000    0.125000000000
  0.491570000000    0.041215000000    0.625000000000
  0.491570000000    0.541215000000    0.125000000000
... .. 中间省略若干行
  0.601970000000    0.586885000000    0.775510000000
#=====#
```

先介绍格式 A：第一行提供任意内容（常用于标注体系信息）；第二行写后续数据的整体放大倍数（scaling factor）；第三至五行分别提供三个基矢的 x、y、z（笛卡尔坐标）分量；第六行需要写各元素的化学符号；第七行写各元素个数。第八行选择后续坐标的填写格式，可选笛卡尔坐标形式（首字母为 C、c、K 或 k）或分数坐标形式（默认情形，习惯上写成“Direct”）。第九行及之后的内容为各个原子坐标，依次提供各元素的（超胞内）所有原子坐标。

格式 B：第一行写各元素的化学符号（之间用若干空格隔开）；第二行写后续数据的整体放大倍数（scaling factor）；第三至五行分别提供三个基矢的 x、y、z（笛卡尔坐标）分量；第六行写各元素个数。第七行选择后续坐标的填写格式。第九行及之后依次提供各元素的（超胞内）所有原子坐标。

输入文件 distortion.MAGMOM

“Model Invariant”中（参见 2.2.1 节），当“Invariant.cal_para”取 T 且“local_mode.cal_para_method”设置值为 6（参见 3.1.7.7 节）时，可利用 *distortion.pos* 和 *distortion.MAGMOM* 文件生成自定义的构型。其中 *distortion.MAGMOM* 文件仅在涉及自旋模式时需要提供。本文件需要逐行给出超胞中各个原子的磁矩的 x、y、z 分量，每行对应一个原子，顺序应当与 *distortion.pos* 中原子顺序一致；每行提供三个数据，依次是该原子的磁矩的 x、y、z 分量（非磁性原子三个数都填 0）。

对于非零的自旋模式，所填写数据的模长并不重要，因为在 PASP 软件内部会归一化处理。这里仍以 $2\times 2\times 2$ 超胞的 $TbMnO_3$ 为例，示例文件如下（完整版可在“[example_public/Magnetic_noSOC_TbMnO3/input](#)”文件夹下找到）：

```
#=====#
0 0 0
0 0 0
... (共计连续32行“0 0 0”)
0 0 0
-1.9464    -2.8302    2.0498
    2.6410    2.0453    -2.2005

... (共计连续32行非零随机向量)
-2.5616    -1.0720    -2.8791
0 0 0
0 0 0
... (共计连续96行“0 0 0”)
0 0 0
#=====#
```

输入/输出文件 local_mode_PM.dat

在“Model atomic_effective_H”中，为了避免反复重新分析不等价相互作用，通常会先用“Model Invariant”执行一次不等价相互作用分析（参见 2.2.1 节），获得 *local_mode_PM.dat* 输出文件，再将该文件作为后续 MC、MD 等模拟分析的输入文件。有时也会反复利用此文件执行“Model Invariant”，分别处理不同构型，获取后续步骤所需的 **.ene_symbol* 文件。

本文件通常不需要手动修改，用程序自身生成即可。需要将已有的 *local_mode_PM.dat* 文件作为输入文件时，注意在 *PASP.input* 中设置“local_mode.read_interaction T”。

输入文件 J_best.dat

在“Model atomic_effective_H”中用该文件提供相互作用参数的取值信息。

注意：该文件采用严格的逐行读取规则，不能任意空行。

示例文件如下（#后面的内容为注释部分，无需写出；注意这里 # 号需要用空格或制表符与数据隔开；此外 # 号开头的首尾两行不算在文件内容之内）：

```
287      4  #不等价相互作用数(与*.ene_symbol中的个数一致); 保留参数个数
1  0.1772080263938097E-02  #保留原1号参数; 1号参数值
3 -0.8077197635063232E-02  #保留原3号参数; 3号参数值
5  0.1859024576895017E-02
15 0.1540675214074116E-02
```

第一行提供两个数据：不等价相互作用分析给出的总相互作用数，可在名为 **.ene_symbol*（第一行数据）或 *all_interaction_type_Spin_xyzform.dat*（最后一行的第一个数据）的输出文件中查得；第二个数据是 MC 等模拟中采用的相互作用参数个数（不计常数项）。

后面逐行提供各相互作用参数的信息：先提供参数编号（与不等价相互作用分析所得的输出文件 *all_interaction_type_Spin_xyzform.dat* 或 *local_mode_PM.dat* 中的编号一致），再提供相互作用值。注意这里假定自旋矢量归一化，无量纲；因此相互作用量纲与能量量纲一致，取 eV 单位。

输入文件 *Fitting_settings.txt*

在“Model Fitting_one_order”中（MLMCH 方法确定哈密顿量参数，参见 2.2.2 节），需要用到该输入文件。注意在该文件中，仅在每行读取开头的数字（除了在第三行需要读取 4 个数据外），而后面的文字部分仅用于注释；该文件是逐行读取相应设置内容的，不允许任意调换两行顺序或增减行数等。

以下示例文件中的 *Fitting_Settings.txt* 全部采用的是缺省设置，缺省该文件时即按缺省设置决定各设置项。后面将逐行介绍各设置项含义（本文件中涉及是否的设置项，用 1 或其他非零整数表示是，0 表示否）。# 号开头的首尾两行不算在文件内容之内。注释信息中的感叹号或双感叹号用于标记设置项的重要程度。

```
#####
1 I_Read_Settings: 1
0 I_CONVERT_TO_ONE_ORDER: 0
30 0 30 1 N_UPBOUND_TOTAL,N_UPBOUND_X,N_UPBOUND_THETA,COMBINE_TYPE
1 I_GIVE_PREDICT: Usually 1.
0 !! I_ONLY_PREDICT: Usually 0. Use 1 when finally giving reports(with I_
↪AUTOINIT=5).
0 !! I_CHECK_SELFPREDICT: Try 0 and 1. Usually 0 is better (but not always).
0.500E+00 !! MAX_Nncheck_BY_Nn: Usually 0.5 (Not important if I_CHECK_SELFPREDICT=0).
0 ! I_SET_TERM_VALUE: Usually 0. When 1, use Fitting_Set_Term_Value.txt
0 ! I_HAVE_KEEP_TERM: Usually 0. When 1, use Fitting_Set_Term_Keep.txt
0 ! I_HAVE_SKIP_TERM: Usually 0. When 1, use Fitting_Set_Term_Skip.txt
0 ! I_CHANGE_WEIGHT: Usually 0(Do not set);1(set by Fitting_Weight.txt);
↪2(set by BETA_WEIGHT).
0 ! I_CHECK_SAMEDATA: Usually 0. If 1, delete the redundant row of data.
↪(DONNOT USE 1 WHEN I_SET_TERM_VALUE==1 or I_SET_TERM_DEPENDENT==1).
1 ! I_CHECK_DATA: Usually 1. (Sometimes 0 when dealing with the already_
↪checked data)
0.100E-07 ! CHECK_DATA_ACCURACY: Usually 0 or 1e-8. If Relative Error<=CHECK_DATA_
↪ACCURACY, data are regarded as the same.
0 !! I_RANDOM_CHANGE_DATA: Use 0 First. If errors occur, use 1 or block some_
↪parameters or try a LARGER CHECK_DATA_ACCURACY.
1 !! I_AUTOINIT: 1:Only constant term! 5: User-defined!(Use Fitting_Set_
↪Init.txt) 2:Initially try each parameter to determine initial form.
1 !! SEARCH_TYPE: 1:My(Usually)! 2:add(complete)&delete. 3:only_
↪add(complete). 4:My(complete when adding). 5:My(Accurate add). 6:My(Accurate del)
1 BetterType: 1 (Or 2, with different settings of lambdas, not recommended).
1 ! BetterType_subs1: 1 (or 2).
1 ! BetterType_check_del: 1 (or 2).
1 ! BetterType_check_add: 1 (or 2).
1 BetterType_check_subs1: 1
0 ! I_TRY_SUBSTITUTE2: Usually 0 (or 1). If 0, only use 1 for the
↪'BetterTypes' below.
1 ! BetterType_subs2: 1 (or 2).
1 ! BetterType_check_subs2a: 1 (or 2).
1 ! BetterType_check_subs2b: 1 (or 2).
0 ! I_SET_TERM_DEPENDENT: Usually 0. When 1, use Fitting_Set_Term_Dependent.
↪txt
```

(续下页)

(接上页)

```

0 ! SHOW_STDOUT: Usually 1(show more information but slower). Maybe 0 is_
↪better when using Lattice_model.
0.50000E+02 ! BETA_WEIGHT(Bw): IF I_CHANGE_WEIGHT=2,then weight proportional to exp(-
↪Bw*E). E(eV)→Bw=11588.74/T(K).

#####

```

I_Read_Settings: 是否读取 *Fitting_Settings.txt* 文件信息。

I_CONVERT_TO_ONE_ORDER: 是否先对各个自变量执行某种展开方式（支持泰勒展开、傅里叶展开等），再对展开所得的中间变量进行筛选参数及拟合步骤。由于通常利用“Model Invariant”分析得到中间变量，作为本文件的自变量，通常不需要在该步骤中再作任何展开处理。

N_UPBOUND_TOTAL,N_UPBOUND_X,N_UPBOUND_THETA,COMBINE_TYPE: 这四项在同一行设置，本行仅在前一行非零时生效。用于设定对自变量展开的方式和阶数。N_UPBOUND_TOTAL 为总的最大阶数，N_UPBOUND_X 为坐标类型变量（采用泰勒展开）的最大展开阶数，N_UPBOUND_THETA 为角度类型变量（采用傅里叶或球谐函数展开）的最大展开阶数，COMBINE_TYPE 本意用于选择函数形式（暂不起任何作用）。各个自变量看作坐标还是角度类型，以及对于角度类型变量如何处理，目前仅限于在代码内部修改设定，暂未支持利用外部文件设置。因此本行设置内容目前仅用于内部测试，对用户而言不起作用。

I_GIVE_PREDICT: 是否使用测试集数据。通常总是建议取 1。

I_ONLY_PREDICT: 是否直接使用初始模型，进行 SBS 搜索步骤（参见 2.2.2 节的图 2.2.3）。选 1 时会跳过搜索最优模型的环节，常用于针对已有的最优模型（作为初始模型），给出各参数重要性排序。

I_CHECK_SELF PREDICT: 是否从训练集数据（*Fitting_Dataset.txt* 文件）中分出一部分来作为验证集。选 1 时使用验证集；选 0 时不使用验证集。

MAX_Nncheck_BY_Nn: 使用验证集时，验证集占 *Fitting_Dataset.txt* 文件中数据量的比例。

I_SET_TERM_VALUE: 是否设定部分参数的取值（由 *Fitting_Set_Term_Value.txt* 文件设定，参见 2.2.2.8 节）。

I_HAVE_KEEP_TERM: 是否设定强制保留部分参数（由 *Fitting_Set_Term_Keep.txt* 文件设定，参见 2.2.2.6 节）。

I_HAVE_SKIP_TERM: 是否设定强制跳过部分参数（由 *Fitting_Set_Term_Skip.txt* 文件设定，参见 2.2.2.7 节）。

I_CHANGE_WEIGHT: 是否修改各数据的权重。0 为默认情形，所有数据取相同权重；1 是用 *Fitting_Weight.txt* 提供各数据权重（每行提供一个权重数据，训练集在前，测试集在后，依次写出各个数据的权重）；2 是根据后面 BETA_WEIGHT(Bw) 设置项，按正比于 $\exp(-Bw \cdot E)$ 的方式设定各数据权重，其中能量 E 即训练集和测试集最后一列的数据（通常为能量，单位为 eV）。

I_CHECK_SAMEDATA: 是否检测重复数据行。取 1 时，检测并删除多余的重复数据行。注意在 I_SET_TERM_VALUE 或 I_SET_TERM_DEPENDENT 非零时，本项需要取 0。

I_CHECK_DATA: 是否检测并删除明显的冗余数据列，主要涉及取值为常数的列，或者完全成正比例的两列。取 1 时，检测并删除明显的冗余数据列。注意在 I_SET_TERM_VALUE 或 I_SET_TERM_DEPENDENT 非零时，本项需要取 0。

CHECK_DATA_ACCURACY: 前一项设置非零时（检测并删除明显的冗余数据列），本项设置两项数据的相对误差小于多少时视为相等。

I_RANDOM_CHANGE_DATA: 是否随机对所有数据产生微扰。本意是用于避免出现不可逆情形，但该处理方式效果不好，现已不常用。建议总是取 0。

I_AUTOINIT: 控制初始模型的设定方式。选 1 表示初始只保留常数项；选 2 表示初始不含任何项（不推荐）；选 5 表示自定义初始模型（由 *Fitting_Set_Init.txt* 文件设定，参见 2.2.2.4 文件）。

SEARCH_TYPE: 搜索最优模型的算法。选 1 表示主要推荐使用的 MLMCH 方法（参见 2.2.2 节）；选 2 表示仅考虑加项、删项（不考虑替换项）的搜索方法，每轮加项搜索都是完整尝试各种可能性后选择拟合效果最优的方式；选 3 表示仅考虑加项的搜索方法，每轮加项搜索都是完整尝试各种可能性后选择拟合效果最优的方式（即 SFS 算法）；选 4 表示考虑加项、删项、替换项的搜索方法，每轮加项搜索都是完整尝试各种可能性后选择拟合效果最优的方式。现仅 1 和 3 常用，其他选项不推荐。

BetterType、BetterType_subs1、BetterType_check_del、BetterType_check_add、BetterType_check_subs1、I_TRY_SUBSTITUTE2、BetterType_subs2、BetterType_check_subs2a、BetterType_check_subs2b: 这些都是涉及 MLMCH 方法（参见 2.2.2 节）内部的算法逻辑细节的设置选项，强烈建议取默认值，不必尝试其他选项。这些设置项是为了测试不同算法逻辑的效果优劣而添加的选项，最后保留了效果最好的设置方式。

I_SET_TERM_DEPENDENT: 是否设定部分参数的线性约束关系（由 *Fitting_Set_Term_Dependent.txt* 文件设定，参见 2.2.2.9 节）。

SHOW_STDOUT: 是否在标准输出中提供搜索过程的细节。由于输出搜索细节会严重拖慢速度，一般强烈建议取 0。

BETA_WEIGHT(Bw): 参见前述设置项 I_CHANGE_WEIGHT 的相关内容。

另外注意，在运行 PASP 后，会自动生成输出文件 *Fitting_Settings_Save.txt*，它是按 *Fitting_Settings.txt* 格式写的，各设置项内容是运行 PASP 时它们的实际取值。如果一开始是缺省该文件运行的，可以如此获取填写了默认内容的示例文件。

输入文件 Fitting_Set_Lambda.txt

在“Model Fitting_one_order”中（MLMCH 方法确定哈密顿量参数，参见 2.2.2 节），可能需要用到该输入文件。示例文件如下：

```
#=====#
      20      1  N_LAMBDA, I_LAMBDA
1  158  0.1299999952E+01  I, Nc_p_s (I), LAMBDA (I)
2  158  0.1200000048E+01  I, Nc_p_s (I), LAMBDA (I)
3  158  0.1100000024E+01  I, Nc_p_s (I), LAMBDA (I)
4  158  0.1080000043E+01  I, Nc_p_s (I), LAMBDA (I)
5  158  0.1059999943E+01  I, Nc_p_s (I), LAMBDA (I)
6  158  0.1039999962E+01  I, Nc_p_s (I), LAMBDA (I)
7  158  0.1029999971E+01  I, Nc_p_s (I), LAMBDA (I)
8  158  0.1019999981E+01  I, Nc_p_s (I), LAMBDA (I)
9  158  0.1014999986E+01  I, Nc_p_s (I), LAMBDA (I)
10 158  0.1009999990E+01  I, Nc_p_s (I), LAMBDA (I)
11 158  0.1008000016E+01  I, Nc_p_s (I), LAMBDA (I)
12 158  0.1006000042E+01  I, Nc_p_s (I), LAMBDA (I)
13 158  0.1004999995E+01  I, Nc_p_s (I), LAMBDA (I)
14 158  0.1003999949E+01  I, Nc_p_s (I), LAMBDA (I)
15 158  0.1003000021E+01  I, Nc_p_s (I), LAMBDA (I)
16 158  0.1001999974E+01  I, Nc_p_s (I), LAMBDA (I)
17 158  0.1001500010E+01  I, Nc_p_s (I), LAMBDA (I)
18 158  0.1001000047E+01  I, Nc_p_s (I), LAMBDA (I)
19 158  0.1000499964E+01  I, Nc_p_s (I), LAMBDA (I)
20 158  0.1000000000E+01  I, Nc_p_s (I), LAMBDA (I)
#=====#
```

示例文件全部采用的是缺省设置，换言之，只需要默认版本的 MLMCH 方法时，可以省略该输入文件。该输入文件中第一行提供两个数据，分别表示后续提供几行数据（通常每行数据对应一个新的 λ 值，对应一轮大的搜索循环），以及从其中第几行开始使用。后面每行有三个有效数据，分别是第几行数据、本轮循环中允许模型中包含的最大参数个数、本轮循环中采用的 λ 值。这里的示例文件中共提供 20 行数据，对应 20 个递减的 λ 值，其中最后一个 λ 值恰好为 1.0。注意 λ 值取 1.0 的最后一轮循环可能会显著偏慢，如果希望节省

搜索时间，可以考虑把第一行的第一个数据由 20 修改为 19 或者更小，从而回避 λ 值取 1.0 的较慢的搜索过程。

另外注意，在运行 PASP 后，会自动生成输出文件 *Fitting_Set_Lambda_Save.txt*，它是按 *Fitting_Set_Lambda.txt* 格式写的，各设置项内容是运行 PASP 时它们的实际取值。如果一开始是缺省该文件运行的，可以如此获取填写了默认内容的示例文件。

输入文件 spin3.in

在“Model Spin_lattice_interaction”中，“Read_init_spin”取 T 时，从 *spin3.in* 中读取初始自旋构型。在“Model KNB”中，也需要用 *spin3.in* 指定自旋构型（无需设置“Read_init_spin”项）。另外，在“Model find_J_path_sym”中，也可使用 *spin3.in* 指定参考构型（无需设置“Read_init_spin”项），在四态法中将在参考构型的基础上适当调整部分原子的自旋取向，用于进行若干组第一性原理计算。

文件格式示例如下：

```
#=====#
 1 -0.54157046 -0.56570479 -0.62183562 #原子编号；归一化的自旋矢量
 2 -0.54499053 -0.56493211 -0.61954582
 3 -0.54407759 -0.56227264 -0.62275923
 4 -0.54356094 -0.56410803 -0.62154938
 5 0.00000000 0.00000000 0.00000000 #非磁性原子提供零向量
 6 0.00000000 0.00000000 0.00000000
 7 0.00000000 0.00000000 0.00000000
 8 0.00000000 0.00000000 0.00000000
 9 -0.54157997 -0.56568915 -0.62184155
... ..
508 -0.54355896 -0.56411667 -0.62154327
509 0.00000000 0.00000000 0.00000000
510 0.00000000 0.00000000 0.00000000
511 0.00000000 0.00000000 0.00000000
512 0.00000000 0.00000000 0.00000000
#=====#
```

该文件需要依次提供超胞中各个原子的编号和自旋矢量（归一化或零）的三个分量。原子顺序必须与基于 *cell.str* 结构、经“block SuperCell”扩胞所得超胞中原子的编号顺序一致。由于“block SuperCell”扩胞所得原子顺序难以事先预计，通常在使用 *spin3.in* 时，建议不通过“block SuperCell”扩胞，而直接在 *cell.str* 中提供超胞结构信息。这样 *spin3.in* 原子顺序只需要与 *cell.str* 中原子顺序一致即可。

输入文件 amp_local_mode.in

在“Model atomic_effective_H”中，“Read_init_spin”取 T 时，从 *amp_local_mode.in* 中读取初始构型（各个局域模式的大小以及各个 strain 模式的大小）。

该文件格式与“Model atomic_effective_H”运行 MC 时的输出文件 *lowest_ene.amp_local_mode* 一致（见 2.2.3 节），需要依次给出初态的各个局域模式以及应变的大小，示例如下：

```
#=====#
 1      2.901785753659      -4.162823203431      3.369777246670
↪ #第1个有局域模式的原子；该原子各局域模式的大小
 2      3.186716707285      -4.515955600339      3.587299249456
 3      4.424829790741      3.383234868544      4.547196266060
... ..
```

(续下页)

(接上页)

```

512      3.469348208439      -3.276650367835      -3.992938680425
      0.000000000000      0.000000000000      0.000000000000      0.000000000000      0.
↪000000000000      0.000000000000 #strain
#=====#

```

编号与原子坐标的对应关系，以及每个原子具有的局域模式数，可在“Model atomic_effective_H”运行MC时的输出文件 *lowest_ene.str_mode_amp* 文件中查得（见 2.2.3 节。如果一开始缺少该文件，可以先不设置初始构型，用很少的步数完成一次 MC 模拟，以获得该输出文件）。

另外注意，在“Model Invariant”分析指定构型或随机构型的 **.ene_symbol* 文件时，也会同时产生相应的 **.amp_local_mode* 文件，这种文件与此处需要的 *amp_local_mode.in* 文件格式是一致的，可以直接拿来使用（重命名即可）。

输入文件 Zeff.dat

在使用“Model Spin_lattice_interaction”计算自旋序诱导铁电极化时，可能用到此输入文件，用于提供 Born 有效电荷数据。完整示例文件参见“example_public/P_by_spin_order/ion_strain/input/Zeff.dat”，以下提供部分内容示例（含注释）：

```

#=====#
BORN EFFECTIVE CHARGES (in e, cummulative output)      #任意内容
-----#
↪#任意内容
ion      1      #离子编号：格式“空格ion空格I4（读取四位的整数）”
      1      4.88158      -0.18395      -0.00008      #dF/dEx的三个分量（读取格式I5，3F12.5）
      2      0.18406      4.88147      -0.00003      #dF/dEy的三个分量（读取格式I5，3F12.5）
      3      0.00000      0.00000      4.32870      #dF/dEz的三个分量（读取格式I5，3F12.5）
ion      2
      1      4.88158      0.18395      -0.00008
      2      -0.18403      4.88148      0.00009
      3      0.00000      0.00000      4.32870
... ..（省略若干行）
ion      10
      1      -2.87183      0.53177      -0.44983
      2      0.29963      -3.10349      -0.45424
      3      -0.42638      -0.57577      -2.63409
#=====#

```

注意读取的时候是严格按字符数读取的，如 I5 连读五个字符，F12.5 连读 12 个字符。

该文件内容通常是从 VASP 计算（DFPT 功能）所得 OUTCAR 中截取的。

输入文件 elastic.dat

在使用“Model Spin_lattice_interaction”计算自旋序诱导铁电极化时，可能用到此输入文件，用于提供应变张量信息、弹性常数、压电张量等信息。完整示例文件参见“example_public/P_by_spin_order/ion_strain/input/elastic.dat”，以下提供部分内容示例（含注释）：

```

#=====#
10      #原胞中原子个数
#INTERNAL STRAIN TENSORS FROM STRAINED CELLS (eV/Angst)

```

(续下页)

(接上页)

```

-1.93347    1.92110    -0.00000    2.08596    1.06465    2.21452
... (省略若干行内容)
-3.17730    -3.02813    -3.95397    2.59235    0.56302    -2.41944
#ion-clamped elastic constant (kBar)
  3220.8864   1498.2284   1222.7964     0.0000     0.0000   -109.5768
  1498.2284   3220.8864   1222.7964     0.0000     0.0000   109.5768
  1222.7964   1222.7964   2950.5556     0.0000     0.0000    -0.0000
  -0.0000     0.0000     0.0000    861.3290   109.5768     0.0000
  -0.0000     0.0000     0.0000   109.5768   893.9731     0.0000
  -109.5768   109.5768    -0.0000     0.0000     0.0000   893.9731
#ion-clamped piezoelectric tensor (e Angst)
  0.92044    -0.92089    -0.00046     0.00000     0.00000   -1.62125
 -0.00015     0.00033     0.00006    -0.92087    -1.62239   -0.00040
  1.12739     1.12739    -4.12861    -0.00000     0.00000     0.00000
#=====#

```

该文件第一行需手动填写，剩余内容通常是从 VASP 计算（DFPT 功能）所得 OUTCAR 中截取的。

输入文件 spin_strain.dat

在使用“Model Spin_lattice_interaction”计算自旋序诱导铁电极化时，可能用到此输入文件，用于提供海森堡相互作用参数 J 对应变的导数。示例文件如下：

```

#=====#
1  #以下读取几行数据
1 -0.0460396 -0.0951899 -0.0871019 -0.0761737 0.0272722 0.0321033 #d_J/d_eta
#=====#

```

该文件第一行指出后续读取几行数据。之后每行数据内容包括：第几个相互作用 J（对应 *spin_exchange.dat* 中第一部分内容信息），该 J 值对六个应变自由度的导数（单位 eV）。

输入文件 DM_derivative.dat

在使用“Model Spin_lattice_interaction”计算自旋序诱导铁电极化时，可能用到此输入文件，用于提供 DM 相互作用参数对离子位移的导数。完整示例文件参见“[example_public/P_by_spin_order/ion_strain/input/DM_derivative.dat](#)”，以下提供部分内容示例（含注释）：

```

#=====#
1  #共几组数据
1 1  #第1组数据；第1种DM相互作用
   -6.441774129000    11.157480082400    9.245866623200
   -3.220887064500    -5.578740041200    4.622933311600
   6.441774128900    0.000000000000    4.622933311600
80
   0.000000000000    0.000000000000    0.000000000000
   -3.220887064500    5.578740041200    4.622933311600
... (省略若干行)
-0.000020250000    0.000020750000    0.000018500000
#=====#

```

该文件第一行指出后续读取几组数据。之后每组数据中：先给出这是第几组数据，对应第几种 DM 相互作用（对应 *spin_exchange.dat* 中第四部分内容信息）；

该部分内容示例如下。第一行提供一个整数，表示后续有几组数据（每组数据对应一种 DM 相互作用对各个原子位移偏导的信息）。之后每组信息按如下格式填写：第几组数据、对应第几种 DM 相互作用（编号与 *spin_exchange.dat* 中第四部分定义顺序一致）；之后的 3×3 矩阵提供扩胞后的基矢（单位 Ang）；其后一行提供一个数字，表示对于当前 DM 相互作用，提供对于多少原子位置的偏导信息，例如 80 个原子（通常等于扩胞后胞内原子数）；之后提供这 80 个原子的坐标（笛卡尔坐标系，单位 Ang，共 80 行，每行 3 个数），再依次给出该 DM 相互作用的 x 分量对于各个原子坐标分量的偏导（eV/Ang，共 80 行，每行 3 个数），空一行后，依次给出该 DM 相互作用的 y 分量对于各个原子坐标分量的偏导（eV/Ang，共 80 行，每行 3 个数），再空一行后，依次给出该 DM 相互作用的 z 分量对于各个原子坐标分量的偏导（eV/Ang，共 80 行，每行 3 个数）。

输出文件 PASP.used_info

本输出文件提供了 PASP 运行时，相关的各设置项（其中有些输出的设置项其实与当前使用的功能无关）的实际取值。恰好采用默认值的设置项，会在相应取值信息后标注“# Default value”。部分内容示例如下：

```
#=====#
#FDF: Opened PASP.input
                                     for input. Unit: 11
↪
fdf-debug          0      # Default value
Model              Fitting_one_order
DFT.home_made      T      # Default value
SpinW_Toeh         F      # Default value
printlevel         1      # Default value
external_prog       VASP   # Default value
system.dimension    3      # Default value
write_info          1      # Default value
MC.measure          50     # Default value
number_of_species   1
LatticeConstant    1.889725989      Bohr
# Above item originally: LatticeConstant    1.000000000      Ang
... (中间省略若干行)
Rad.Max_scale      2.000000000      # Default value
Rad.Min_scale      0.700000000      # Default value
#=====#
```

BiFeO₃ 结构搜索、海森堡模型及 MC 模拟

全局结构搜索

$BiFeO_3$ 体系空间群为 $R3c$ ，基态为 G 型反铁磁。我们先采用微扰空间群方法（结合遗传算法）搜索它的低能结构。该步骤的全部输入文件在 “`example_public/BiFeO3/1.GA/input`” 文件夹下。相关的介绍说明和注意事项见 2.3 节。主要输出文件 `Saved_*.POS` 在 “`example_public/BiFeO3/1.GA/output`” 文件夹下。

之后可以对上述 `Saved_*.POS` 进一步优化，主要是利用 VASP 基于各结构作弛豫优化计算，该步骤的全部输入文件在 “`example_public/BiFeO3/2.opt/input`” 文件夹下。先调用 `opt.sh` 脚本（命令行输入 “`sh opt.sh`”）完成所需的 VASP 计算，然后再调用 `E.sh` 脚本获得优化后各结构的能量信息（命令行输入 “`sh E.sh >E_opt.dat`”，在标准输出重定向所得文件 `E_opt.dat` 中即可查看）。选出其中能量最低的结构，按 $R3c$ 空间群对称性将其对称化（这步可以借助 FindSym 等软件完成），再次用 VASP 弛豫优化，所得结构文件参见 “`example_public/BiFeO3/2.opt/output/CONTCAR`”。

初始的高对称性结构（ $Pm\bar{3}m$ ）以及优化所得 $R3c$ 空间群的结构（即最后的 CONTCAR 结构）示意图如图 4.1.1 所示。

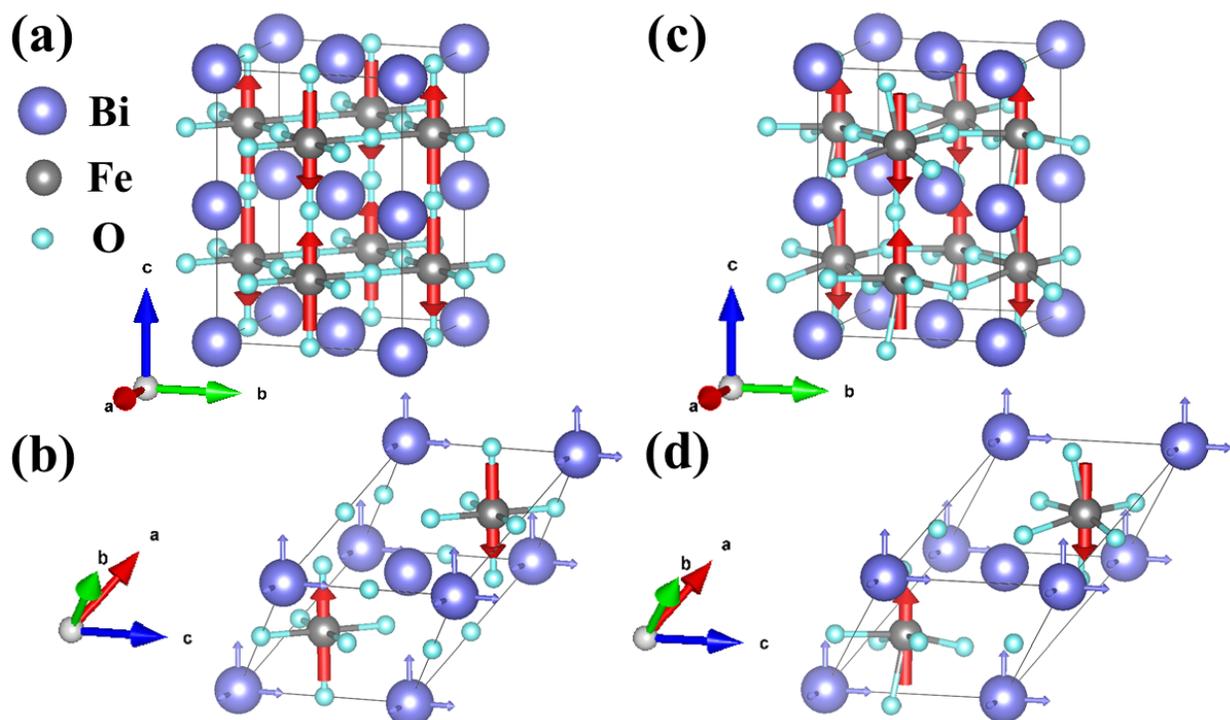


图 1: 图 4.1.1 BiFeO_3 结构示意图 (磁态取 G-AFM 态)。(a) 初始高对称性结构 ($Pm\bar{3}m$) 的晶胞 (三个基矢彼此垂直, a、b 相等), 体积为原胞的二倍。(b) 初始高对称性结构 ($Pm\bar{3}m$) 的原胞 (三个基矢彼此夹角相等, 三轴等长), 原胞各顶点的 Bi 原子处三个细箭头表示晶胞基矢方向。(c) 优化所得结构 (R3c) 的二倍胞 (三个基矢近似彼此垂直, a、b 近似相等), 它不是晶胞, 但可用于与图 (a) 对比。(d) 优化所得结构 (R3c) 的原胞 (三个基矢彼此夹角相等, 三轴等长), 原胞各顶点的 Bi 原子处三个细箭头表示二倍胞基矢方向。

四态法计算海森堡模型参数

为了针对上步所得结构文件 *CONTCAR*, 构造磁相互作用模型。我们在示例中采用最简单的海森堡模型, 保留前三近邻相互作用, 并采用四态法来计算。

第一步所需输入文件在 “*example_public/BiFeO3/3.four_state_method/input1*” 文件夹下。首先, 将上一步骤得到的 *CONTCAR* 重命名为 *POSCAR*, 利用 3.1.4.4 节方式得到 *unit_cell.str*, 利用 3.1.3.8 节方式扩胞, 再利用 3.1.3.7 节方式可得到 *cell.str*。参照 *cell.str* 结构编辑 *spin3.in* 文件 (例如在上述文件夹中附上了生成该 *spin3.in* 文件的 *gen_spin.sh* 脚本)。再参照 2.1.2.2 节内容编辑 *PASP.input* 内容。运行 *PASP* 并将标准输出重定向到 *log.out* 文件中 (参见 1.2 节)。

第二步所需文件在 “*example_public/BiFeO3/3.four_state_method/input2*” 文件夹下, 其中 *pair_POS.** (这里共 3 个)、*J.POS*、*log.out* 是上一步的输出文件。另外准备一组 VASP 计算所需的 *INCAR* (不含 *MAGMOM* 设置, 在 *run_DFT.sh* 脚本中再给 *INPUT* 文件补充相应设置项)、*KPOINTS*、*POSCAR*、*POTCAR* 文件, 提交 VASP 任务所需的 *vasp.slurm* 文件, 运行 *run_DFT.sh* 脚本即可 (根据具体情况可能要适当修改脚本内容)。

第三步所需文件在 “*example_public/BiFeO3/3.four_state_method/input3*” 文件夹下, 此外还需要第二步中产生的各个文件夹和相应的 *OUTCAR* 文件。这里在 *PASP.input* 中加了一项设置 “*cal_spin_exchange T*”, 这样可自动根据 *J%d* (*%d* 为数字 1、2 等) 文件夹内 *upup*、*updn*、*dnup*、*dndn* 四个文件夹内的 VASP 计算结果计算得到各向同性的 *J* 值并编辑生成相应的 *spin_exchange.dat* 文件 (目前此功能仅支持各向同性的 *J* 值, 对于更复杂的情形, 仍需自己编写脚本生成 *spin_exchange.dat* 文件或手动输入, 格式参见 3.3 节, 四态法计算公式参见 2.1.2.1 节)。将这些输入文件放在上一步运行 *run_DFT.sh* 的路径下, 运行 *PASP* 即可得到后续步骤所需的 *spin_exchange.dat* 文件。

蒙特卡洛模拟

本例采用“Model Spin_lattice_interaction”进行 PTMC 模拟（参见 2.1.3 节），该步骤的全部输入文件在“example_public/BiFeO3/4.PTMC/input”文件夹下。其中 *spin_exchange.dat* 文件是上一步的输出文件，这里是保留了前三近邻的各向同性海森堡相互作用。部分重要输出文件在“example_public/BiFeO3/4.PTMC/output”文件夹下，其中 *lowest_olyspin.xsf* 给出 PTMC 中的最低能量态信息，近似为 G-AFM 态（如果后续进行 CG 局域优化，可以得到更严格的 G-AFM 态）；*C_PTMC_K.dat* 给出热容随温度变化，根据热容取极大值时的温度，可判断相变温度约 480K。

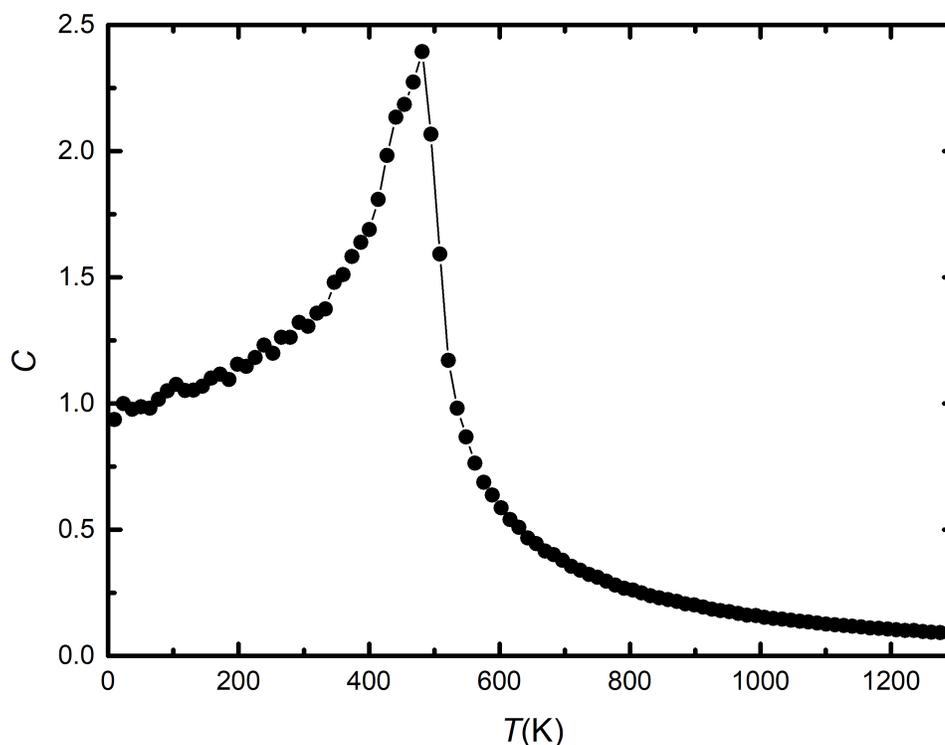


图 2: 图 4.1.2 PTMC 模拟所得 $BiFeO_3$ 热容随温度变化图

单层 $NiCl_2$ 有效自旋哈密顿量构造及蒙特卡洛模拟

随机产生磁构型并分析不等价相互作用贡献

首先准备优化之后的原胞的 *POSCAR* 文件（优化步骤通过 VASP 完成，这步的细节已省略）。为了准备 $5 \times 4 \times 1$ 超胞，参见 3.1.3.8 节内容，使用 *post_VASP* 得到扩胞后的 *POSCAR.multi* 文件。这步示例输入输出文件在“example_public/NiCl2/0.sc541”文件夹下。将输出文件 *POSCAR.multi* 重命名为 *POSCAR* 供下步使用，将扩胞前的原胞结构 *POSCAR* 文件重命名为 *POSCAR_UC* 供下步使用。

接下来利用 PASP 产生 200 个随机的磁构型（每个磁性原子的自旋随机取向），并分析相应的 $\{h_j^{(i)}\}$ 值（定义见 2.2.1 节或 2.2.2 节），得到相应的 **.ene_symbol* 文件（用于输出 $\{h_j^{(i)}\}$ 值信息）。这步的输入文件在“example_public/NiCl2/1.Invariant_200structures/input”文件夹下，这里采用了 3.1.3.7 节和 3.1.4.4

节的技巧，直接用 *POSCAR* 和 *POSCAR_UC* 文件代替了 *cell.str* 和 *unit_cell.str* 文件。主要输出文件在 “**example_public/NiCl2/1.Invariant_200structures/output**” 文件夹下，总共会产生 200 组随机构型的 **.ene_symbol* 文件和 **.vasp_MAGMOM* 文件（示例文件中省略）。

VASP 计算各构型的能量

对于上一步随机产生的磁构型，我们需要用 VASP（或其他第一性原理计算软件）计算它们各自的能量。为此，我们要先批量准备 *INCAR* 文件，每个 *INCAR* 文件包含相应的 *MAGMOM* 和 *M_CONSTRstr* 设置信息。这步的输入文件在 “**example_public/NiCl2/2.VASP/input1**” 文件夹下（另外还有若干 **.vasp_MAGMOM* 文件），其中 *INCAR* 文件提供 VASP 计算的主要设置信息（但不包含 *MAGMOM* 和 *M_CONSTRstr* 设置项内容；在本示例中为了方便测试，降低了 VASP 计算精度），*createINCAR.sh* 脚本用于从 **.vasp_MAGMOM*（上一步的输出文件）读取磁矩信息，写入 *INCAR_all* 文件夹下各个 *INCAR_** 的 *MAGMOM* 和 *M_CONSTRstr* 设置项中。运行 *createINCAR.sh* 脚本所得（*INCAR_all* 文件夹下）*INCAR_** 文件是在 *INCAR* 文件内容后面追加了 *MAGMOM* 和 *M_CONSTRstr* 设置项的文件。为了额外生成参考态（取铁磁态）的 *INCAR* 文件，事先准备好 *0.vasp_MAGMOM* 文件（模仿其他 **.vasp_MAGMOM* 文件，按铁磁态填写磁矩信息即可），这样输出文件会增加 *INCAR_all/INCAR_0*。

接下来，除了上一步所得 *INCAR_all* 文件夹外，还需另外准备的其他输入文件在 “**example_public/NiCl2/2.VASP/input2**” 文件夹下，这里 *KPOINTS* 文件也采用较低的精度（为了方便快速测试），先运行 *create_vasp_inputs.sh* 脚本生成各个第一性原理计算的文件夹（这里编号 0-200，其中编号 0 对应参考态，这里是铁磁态），再运行 *submit_vasp_jobs.sh* 脚本批量提交任务（示例中是 *each=5* 个文件夹为一组，每个提交的任务依次完成 5 个文件夹内的 VASP 计算）。最后再用 *getallenergy_r.sh* 脚本获取所有构型的能量信息（减去参考态能量），所得输出文件为 *Energy.dat*。

然后就可以准备下一步所需的训练集、测试集数据了。这里可以使用编译好的 Fortran 程序 *convert_data*（源代码文件为 *convert_data.f90*，用 “*mpifort convert_data.f90 -o convert_data*” 命令编译，再提供执行权限即可），在 *convert_info.txt* 中设置训练集数目、测试集数目（因为共 200 组随机构型，所以训练集和测试集应当共 200 个）和扩胞数（第一性原理计算所用超胞包含多少个原胞）即可。所需的其他输入文件包括 *ene_symbol* 文件夹（里面包含 4.2.1 节步骤产生的所有 **.ene_symbol* 文件）和 *Energy.dat* 文件（在上一步得到）。这步所需的全部示例输入文件在 “**example_public/NiCl2/3.prepare_dataset/input**” 文件夹下。这里使用的 **.ene_symbol* 和 *Energy.dat* 文件的数据实际上是文献¹⁹ 中原始计算所得数据（采用了更高的第一性原理计算精度），而非前述步骤的示例输入文件所得数据（示例文件中为了便于测试，降低了计算精度）。输出文件在 “**example_public/NiCl2/3.prepare_dataset/output**” 文件夹下，分别是训练集数据 *Fitting_Dataset.txt* 和测试集数据 *Fitting_Data_for_prediction.txt*。

MLMCH 方法构造有效自旋哈密顿量

接下来采用 MLMCH 方法（2.2.2 节）筛选重要相互作用项并拟合，构造后续 MC 所需的有效自旋哈密顿量。这步所需的全部示例输入文件在 “**example_public/NiCl2/4.MLMCH/input**” 文件夹下。其中 *Fitting_Dataset.txt* 和 *Fitting_Data_for_prediction.txt* 是上一步所得文件。再另外准备 *PASP.input*，运行 PASP 即可。所得主要输出文件在 “**example_public/NiCl2/4.MLMCH/output**” 文件夹下。程序自动推荐的是使用了 11 个参数的模型（包含常数项），但通过观察 *Report_fitting.txt* 中最后几行的最后一列数据，可以发现使用 4 个参数（包含常数项）的模型就已经达到很高的精度，因此我们在后续 MC 步骤中可以仅使用 3 个参数（去掉了常数项，保留的 3 个参数依次对应文献^{Page 132, 19} 中的、和）。该模型对应 *Report_fitting_function_GRAD_4_LM.txt* 文件，因此可将该文件复制成 *J_best.dat*，作为下一步 MC 的输入文件之一。

¹⁹ NI J, LI X, AMOROSO D, et al. Giant biquadratic exchange in 2d magnets and its role in stabilizing ferromagnetism of niCl 2 monolayers [J]. *Physical Review Letters*, 2021, 127(24): 247204.

蒙特卡洛模拟

本例采用“Model atomic_effective_H”进行 PTMC 模拟（参见 2.2.3 节），该步骤的全部输入文件在“example_public/NiCl₂/5.MC/input”文件夹下。其中 *J_best.dat* 文件是上一步所得；*local_mode_PM.dat* 是在 4.2.1 节步骤所得输出文件；*pasp.slurm* 仅用于提交 PASP 任务（这里给出提交任务的文件是为了提示注意提交任务时进程数设置，*PASP.input* 中 PT.M 必须是进程数的整数倍）。部分重要输出文件在“example_public/NiCl₂/5.MC/output”文件夹下，其中 *relax-lowest_onlyspin.xsf* 给出 PTMC 中的最低能量态经 CG 局域优化后的磁态信息，为铁磁态；*C_PTMC_K.dat* 给出热容随温度变化，根据热容取极大值时的温度，可判断相变温度约 23K。

为什么单进程可正常运行，但多进程并行运算会报错？

程序并非所有模块都支持并行运算，目前支持并行的模块（由 Model 设置项决定）主要是“Model atomic_effective_H”（蒙特卡洛模拟和分子动力学模拟，分别参见 2.2.3 节和 2.2.4 节）和“Model Spin_lattice_interaction”（简单磁性体系的蒙特卡洛模拟，参见 2.1.3 节）。而其他模块因相对耗时较短，暂未支持并行运算。

在使用 MC（蒙特卡洛模拟）的 PTMC（并行退火蒙特卡洛模拟）功能时，须注意设置项“PT.M”必须是总进程数的整数倍，否则无法正常运行。

在使用 MD（分子动力学模拟）功能时，需注意设置项“block SupellCell”的扩胞倍数必须是总进程数的整数倍，否则无法正常运行。

以上提到的总进程数与运行命令中“`mpirun -np`”后面的数字是一致的。

超胞与原胞的相容性检查

在 PASP 的大多数模块中，都会检查超胞与原胞的相容性（总是假定超胞由 3.1.3 节信息确定，常用文件名 *cell.str* 或 *POSCAR*；原胞由 3.1.4 节信息确定，常用文件名 *unit_cell.str* 或 *POSCAR_UC*），以确保超胞数据与原胞数据是匹配的。这项检查是非常必要的，因为实际使用过程中很容易出现超胞、原胞数据有错误的情形，如果不作该检查，那么在后续计算中很容易导致意外报错终止或计算结果错误。建议用户务必熟悉相容性检查的几类报错，以便在遇到相应报错时迅速锁定问题原因。

第一类报错 **“The number of atoms and the volume of supercell are not compatible!”**：该报错表示超胞晶格体积与原胞晶格体积之比（四舍五入取整），不等于超胞原子数与原胞原子数之比。常见的原因有：(1) 超胞晶格数据误用成原胞晶格数据；(2) 超胞很大而晶格常数精度太低。

第二类报错 **“The input supercell lattice is not compatible with the primitive lattice!”**：该报错表示超胞晶格基矢不能用原胞晶格基矢的整数倍线性组合表示。最常见的原因是：超胞和原胞没有采用同一套笛卡尔坐标系，这导致同一原子在两套坐标系下给出了不同的笛卡尔坐标。特别是当原胞的第一个基矢与晶胞 a 轴（即 *cell.str* 的第一个基矢）方向不一致时，很容易分别以原胞第一个基矢、晶胞第一个基矢为 x 轴各自建立笛卡尔坐标系，而这样是会导致相容性检查不通过的！

第三类报错 **“The input supercell structure is not compatible with the primitive structure!”**：该报错对应两种情形，第一种是超胞中某个原子的坐标无法精确匹配到原胞中的原子坐标（此时会在报错信息中指出无法匹配的超胞原子编号、坐标及其建议坐标值，最可能对应的原胞中原子编号、坐标。这里坐标单位默认为埃，下同。另外对于最可能的匹配方式，会输出笛卡尔坐标下的坐标误差值，单位埃；和基于原胞基矢的分数坐标下的坐标误差值），第二种是匹配后发现元素信息不一致（此时会在报错信息中提供相应的超胞中原子编号及元素序号，及其对应的原胞中原子编号及元素序号）。常见的错因有：(1) 部分原子坐标有过改动，而超胞原胞的坐标信息没有同步改动；(2) 晶胞和原胞的原点选取不一致。

第四类报错 **“These two atom coordinates overlap: 编号 1 编号 2. Please check your input file (cell.str or unit_cell.str)!”**：其中“编号 1 编号 2”是两个具体的整数，给出坐标重叠（或根据周期性边界条件位置等价）的两个原子编号。注意这个报错信息中的编号既可能是原胞中的原子编号，也可能是超胞中的原子编号（报错格式一样），二者都需要检查核对。

最后注意一点，无论遇到上述哪种错误，只要遇到任意一种错误，都会立即报错终止。因此只会报出检查发现的第一处错误，而不会报出所有错误。当用户遇到这类报错时，建议根据错误原因，仔细校对修正后再重新尝试运行。

License 获取

注册鸿之微云账号即可获得 PASP 的 License 试用权限，如仍无法使用或者有其他账号试用问题请咨询客户经理。

web 端登录

首先需要登录鸿之微云界面：<https://cloud.hzwtech.com/web/login>，在登录界面填入账号密码即可进入用户个人空间，从“计算中心”入口进入个人算力概览：



图 1: 图 6.1 鸿之微云登陆界面



图 2: 图 6.2 鸿之微云计算中心界面

点击“超算资源概览”查看超算个超算中心当前使用状况，鼠标悬停至欲使用超算，点击命令行工具进入 web-ssh。

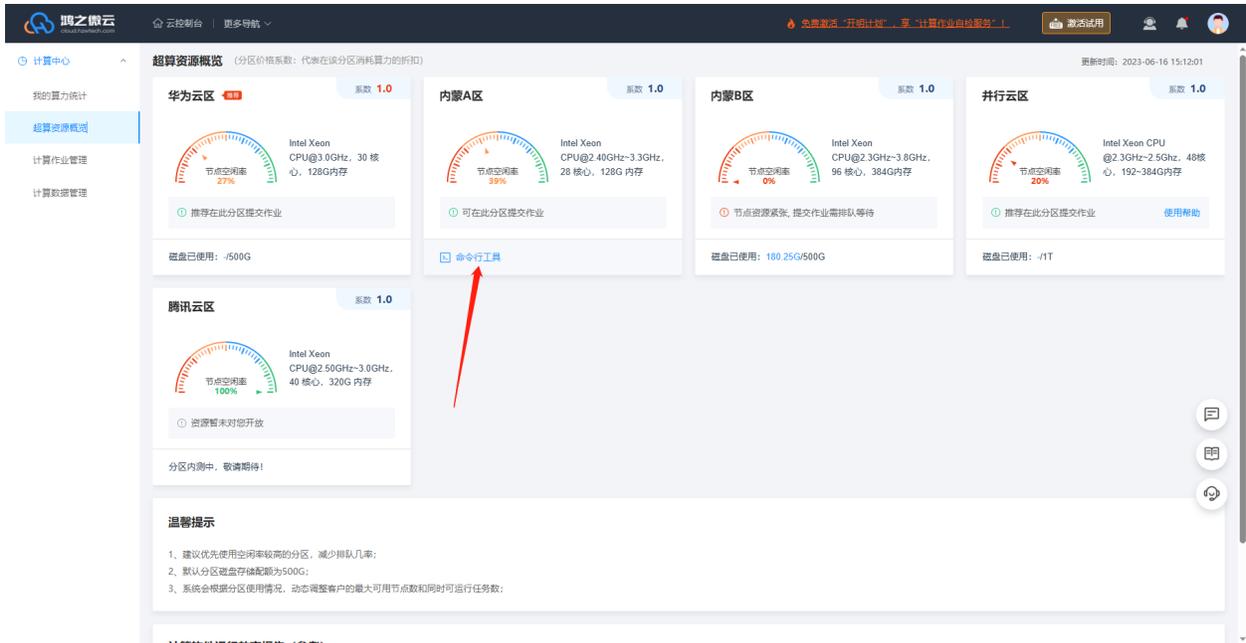


图 3: 图 6.3 鸿之微云超算资源概览界面

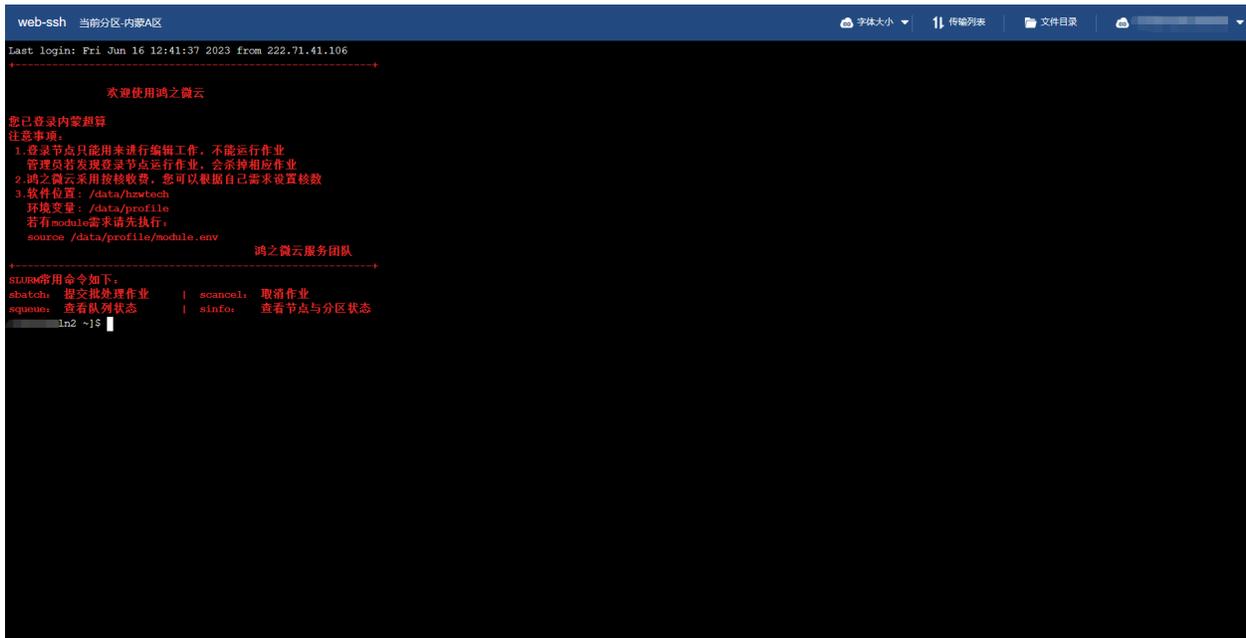


图 4: 图 6.4 鸿之微 web-ssh 界面

PASP.x 运行

PASP.x 可执行文件路径: /data/hzwtech/PASP/bin

PASP 案例路径: /data/hzwtech/PASP/example_public

命令行运行

将 PASP.x 可执行文件路径添加至环境变量:

```
export PATH=/data/hzwtech/PASP/bin:$PATH
```

串行执行: 进入到需要计算的目录下:

```
PASP.x > pasp.out
```

并行执行: 进入到需要计算的目录下:

```
mpirun -np 28 PASP.x > pasp.out #28为并行核数
```

脚本提交运行

若使用排队系统(例如 PBS、slurm 等)提交任务,只要配置完成相应的.pbs 或.slurm 脚本,之后使用 qsub xx.pbs 或 sbatch xx.slurm 提交任务即可。

如: 进入到需要计算的目录下:

```
pasp.slurm
```

```
sbatch pasp.slurm
```

备注: 计算过程中如需使用 vasp, 需要用户根据自己账号下的 vasp 执行程序路径自行更改。
