

Table S1. Distinguishable stackings of two kaolinite layers.

An asterisk indicates the enantiomorph of a stacking

| Translation | Rotation | | | | | |
|-------------------------------|----------|---------|----------|--------|----------|----------|
| | 0 | $\pi/3$ | $2\pi/3$ | π | $4\pi/3$ | $5\pi/3$ |
| 0 | [K1] | [K2] | [K3] | [K4] | [K3]* | [K2]* |
| [2 a /3+ b /3] | [K5] | [K6] | [K7] | [K8] | [K10]* | [K9]* |
| [a /3+2 b /3] | [K5]* | [K9] | [K10] | [K8]* | [K7]* | [K6]* |
| [a /3] | [K11] | [K12] | [K13] | [K14] | [K16]* | [K15]* |
| [b /3] | [K11]* | [K15] | [K16] | [K14]* | [K13]* | [K12]* |
| [2 a /3+2 b /3] | [K17] | [K18] | [K19] | [K20] | [K19]* | [K18]* |

Space groups reached through repeated application of an operation:

| | 0 | $\pi/3$ | $2\pi/3$ | π | $4\pi/3$ | $5\pi/3$ |
|-------------------------------|----|-----------------|-----------------|-------------------|-----------------|-----------------|
| 0 | Cm | P6 ₁ | P3 ₁ | Cmc2 ₁ | P3 ₂ | P6 ₅ |
| (2 a + b) / 3 | P1 | P6 ₁ | P3 ₁ | P2 ₁ | P3 ₂ | P6 ₅ |
| (a +2 b) / 3 | P1 | P6 ₁ | P3 ₁ | P2 ₁ | P3 ₂ | P6 ₅ |
| a / 3 | P1 | P6 ₁ | P3 ₁ | P2 ₁ | P3 ₂ | P6 ₅ |
| b / 3 | P1 | P6 ₁ | P3 ₁ | P2 ₁ | P3 ₂ | P6 ₅ |
| 2 (a + b) / 3 | Cm | P6 ₁ | P3 ₁ | Cmc2 ₁ | P3 ₂ | P6 ₅ |

Space groups reached through repeated succession of operations [Kx] and then enantiomorph of [Kx]:

| | 0 | $\pi/3$ | $2\pi/3$ | π | $4\pi/3$ | $5\pi/3$ |
|-------------------------------|----|---------|----------|-------|----------|----------|
| 0 | - | Cc | Cc | - | Cc | Cc |
| (2 a + b) / 3 | Cc | Cc | Cc | Cc | Cc | Cc |
| (a +2 b) / 3 | Cc | Cc | Cc | Cc | Cc | Cc |
| a / 3 | Cc | Cc | Cc | Cc | Cc | Cc |
| b / 3 | Cc | Cc | Cc | Cc | Cc | Cc |
| 2 (a + b) / 3 | - | Cc | Cc | - | Cc | Cc |

Table S1.1. Repeated operation [K1]: rotation by 0, no translation.

Ideal model:

```
SPGNAM= Cm
CELEDG= 5.326700000 9.226115037 7.250000000
CELANG= 90.000000000 90.000000000 90.000000000
ATOM= 1 Si 4b 1 0.000000000 0.166666667 0.000000000
ATOM= 2 Al 4b 1 0.333333333 0.166666666 0.377202799
ATOM= 3 O 4b 1 0.000000000 0.166666667 0.222119420
ATOM= 4 O 4b 1 0.250000000 0.250000000 0.915954813
ATOM= 5 O 2a .m. 0.000000000 0.000000000 0.915954813
ATOM= 6 O 4b 1 0.166666666 0.333333333 0.517278110
ATOM= 7 O 2a .m. 0.166666667 0.000000000 0.517278110
ATOM= 8 O 2a .m. 0.000000000 0.500000000 0.221118882
ATOM= 9 H 4b 1 0.166666666 0.333333333 0.645346965
ATOM= 10 H 2a .m. 0.166666667 0.000000000 0.645346965
ATOM= 11 H 2a .m. 0.000000000 0.500000000 0.102054869
```

Optimized model:

```
SPGNAM= Cm
CELEDG= 5.131959294 8.814575038 7.009661696
CELANG= 90.000000000 92.544242527 90.000000000
ATOM= 1 Si 4b 1 0.000000000 0.169691675 0.000000000
ATOM= 2 Al 4b 1 0.326064539 0.164268838 0.391800578
ATOM= 3 O 4b 1 0.008790886 0.183989585 0.228683314
ATOM= 4 O 4b 1 0.217753400 0.277040015 0.904936227
ATOM= 5 O 2a .m. 0.041968910 0.000000000 0.915971330
ATOM= 6 O 4b 1 0.147865169 0.312241939 0.519313998
ATOM= 7 O 2a .m. 0.217492116 0.000000000 0.531500032
ATOM= 8 O 2a .m. 0.946673474 0.500000000 0.237231941
ATOM= 9 H 4b 1 0.166937121 0.322283262 0.657842055
ATOM= 10 H 2a .m. 0.106089523 0.000000000 0.639541076
ATOM= 11 H 2a .m. 0.136880015 0.500000000 0.252939020
```

Free energy: -115.382 eV.

Residual pressure = -0.043 GPa.

Table S1.2(a). Repeated operation [K2]: rotation by $\pi/3$, no translation.

Ideal model:

| | | | | | | | |
|---------|--------------|--------------|---------------|---|-------------|-------------|-------------|
| SPGNAM= | P61 | | | | | | |
| CELEDG= | 5.326700000 | 5.326700000 | 43.523400000 | | | | |
| CELANG= | 90.000000000 | 90.000000000 | 120.000000000 | | | | |
| ATOM= | 1 | Si | 6a | 1 | 0.333333333 | 0.666666666 | 0.000000000 |
| ATOM= | 2 | Si | 6a | 1 | 0.666666667 | 0.333333333 | 0.000000000 |
| ATOM= | 3 | Al | 6a | 1 | 0.000000000 | 0.333333333 | 0.062833333 |
| ATOM= | 4 | Al | 6a | 1 | 0.666666667 | 0.666666667 | 0.062833333 |
| ATOM= | 5 | O | 6a | 1 | 0.333333333 | 0.666666667 | 0.037000000 |
| ATOM= | 6 | O | 6a | 1 | 0.666666667 | 0.333333333 | 0.037000000 |
| ATOM= | 7 | O | 6a | 1 | 0.000000000 | 0.000000000 | 0.036833334 |
| ATOM= | 8 | O | 6a | 1 | 0.500000000 | 0.000000000 | 0.152666667 |
| ATOM= | 9 | O | 6a | 1 | 0.000000000 | 0.500000000 | 0.152666667 |
| ATOM= | 10 | O | 6a | 1 | 0.500000000 | 0.500000000 | 0.152666667 |
| ATOM= | 11 | O | 6a | 1 | 0.000000000 | 0.666666667 | 0.086166667 |
| ATOM= | 12 | O | 6a | 1 | 0.333333333 | 0.333333333 | 0.086166667 |
| ATOM= | 13 | O | 6a | 1 | 0.666666667 | 0.000000000 | 0.086166667 |
| ATOM= | 14 | H | 6a | 1 | 0.000000000 | 0.666666667 | 0.107500000 |
| ATOM= | 15 | H | 6a | 1 | 0.333333333 | 0.333333333 | 0.107500000 |
| ATOM= | 16 | H | 6a | 1 | 0.666666667 | 0.000000000 | 0.107500000 |
| ATOM= | 17 | H | 6a | 1 | 0.000000000 | 0.000000000 | 0.017000001 |

Optimized model:

| | | | | | | | |
|---------|--------------|--------------|---------------|---|--------------|-------------|--------------|
| SPGNAM= | P61 | | | | | | |
| CELEDG= | 5.116095978 | 5.116095978 | 42.006897965 | | | | |
| CELANG= | 90.000000000 | 90.000000000 | 120.000000000 | | | | |
| ATOM= | 1 | Si | 6a | 1 | 0.344419164 | 0.666450165 | 0.000000000 |
| ATOM= | 2 | Si | 6a | 1 | 0.684855779 | 0.348010660 | -0.000070940 |
| ATOM= | 3 | Al | 6a | 1 | -0.013792445 | 0.332997126 | 0.065149252 |
| ATOM= | 4 | Al | 6a | 1 | 0.658616756 | 0.677261173 | 0.065269946 |
| ATOM= | 5 | O | 6a | 1 | 0.327591094 | 0.628564237 | 0.038025135 |
| ATOM= | 6 | O | 6a | 1 | 0.703050347 | 0.380603933 | 0.037992522 |
| ATOM= | 7 | O | 6a | 1 | -0.054504399 | 0.005197861 | 0.038937366 |
| ATOM= | 8 | O | 6a | 1 | 0.554859983 | 0.012844562 | 0.150220518 |
| ATOM= | 9 | O | 6a | 1 | 0.005366776 | 0.566688704 | 0.150412153 |
| ATOM= | 10 | O | 6a | 1 | 0.445007821 | 0.452134894 | 0.154108689 |
| ATOM= | 11 | O | 6a | 1 | -0.052381274 | 0.628056413 | 0.086450039 |
| ATOM= | 12 | O | 6a | 1 | 0.324594646 | 0.383869806 | 0.086847831 |
| ATOM= | 13 | O | 6a | 1 | 0.701140821 | 0.005482242 | 0.087698882 |
| ATOM= | 14 | H | 6a | 1 | -0.009823650 | 0.661608909 | 0.109143217 |
| ATOM= | 15 | H | 6a | 1 | 0.327087547 | 0.339208378 | 0.109263673 |
| ATOM= | 16 | H | 6a | 1 | 0.618005158 | 0.006678450 | 0.108477612 |
| ATOM= | 17 | H | 6a | 1 | 0.135897563 | 0.004872853 | 0.040043851 |

Free energy: -115.433 eV/f.u.

Residual pressure = -0.221 GPa.

Table S1.2(b). Stacking [K2], then enantiomorph of [K2]: rotation by $\pi/3$, no translation; then rotation by $-\pi/3$, no translation.

Ideal model:

| | | | | | | |
|------------|--------------|--------------|--------------|---|-------------|-------------|
| SPGNAM= Cc | | | | | | |
| CELEDG= | 9.226115037 | 5.326700000 | 14.500000000 | | | |
| CELANG= | 90.000000000 | 90.000000000 | 90.000000000 | | | |
| ATOM= | 1 | Si | 4a | 1 | 0.000000000 | 0.000000000 |
| ATOM= | 2 | Si | 4a | 1 | 0.166666667 | 0.500000000 |
| ATOM= | 3 | Al | 4a | 1 | 0.333333333 | 0.333333333 |
| ATOM= | 4 | Al | 4a | 1 | 0.166666667 | 0.833333333 |
| ATOM= | 5 | O | 4a | 1 | 0.333333333 | 0.500000000 |
| ATOM= | 6 | O | 4a | 1 | 0.083333333 | 0.250000000 |
| ATOM= | 7 | O | 4a | 1 | 0.083333333 | 0.750000000 |
| ATOM= | 8 | O | 4a | 1 | 0.333333333 | 0.000000000 |
| ATOM= | 9 | O | 4a | 1 | 0.000000000 | 0.000000000 |
| ATOM= | 10 | O | 4a | 1 | 0.166666667 | 0.500000000 |
| ATOM= | 11 | O | 4a | 1 | 0.000000000 | 0.666666666 |
| ATOM= | 12 | O | 4a | 1 | 0.166666667 | 0.166666666 |
| ATOM= | 13 | O | 4a | 1 | 0.333333333 | 0.666666667 |
| ATOM= | 14 | H | 4a | 1 | 0.333333333 | 0.000000000 |
| ATOM= | 15 | H | 4a | 1 | 0.000000000 | 0.666666666 |
| ATOM= | 16 | H | 4a | 1 | 0.166666667 | 0.166666666 |
| ATOM= | 17 | H | 4a | 1 | 0.333333333 | 0.666666667 |

Optimized model:

| | | | | | | |
|------------|--------------|--------------|--------------|---|--------------|-------------|
| SPGNAM= Cc | | | | | | |
| CELEDG= | 8.860875792 | 5.104852414 | 14.001963187 | | | |
| CELANG= | 90.000000000 | 92.288521905 | 90.000000000 | | | |
| ATOM= | 1 | Si | 4a | 1 | -0.000710908 | 0.981296970 |
| ATOM= | 2 | Si | 4a | 1 | 0.169471874 | 0.493881075 |
| ATOM= | 3 | Al | 4a | 1 | 0.331987248 | 0.332761823 |
| ATOM= | 4 | Al | 4a | 1 | 0.167936291 | 0.840550492 |
| ATOM= | 5 | O | 4a | 1 | 0.329584242 | 0.565567027 |
| ATOM= | 6 | O | 4a | 1 | 0.104356392 | 0.236696363 |
| ATOM= | 7 | O | 4a | 1 | 0.050416243 | 0.731518936 |
| ATOM= | 8 | O | 4a | 1 | 0.307110777 | 0.024243600 |
| ATOM= | 9 | O | 4a | 1 | 0.998115586 | 0.956532297 |
| ATOM= | 10 | O | 4a | 1 | 0.185273463 | 0.521164177 |
| ATOM= | 11 | O | 4a | 1 | 0.005022218 | 0.712799492 |
| ATOM= | 12 | O | 4a | 1 | 0.194089357 | 0.147218752 |
| ATOM= | 13 | O | 4a | 1 | 0.317565685 | 0.648588037 |
| ATOM= | 14 | H | 4a | 1 | 0.402559617 | 0.928361061 |
| ATOM= | 15 | H | 4a | 1 | 0.006928742 | 0.680941568 |
| ATOM= | 16 | H | 4a | 1 | 0.143488705 | 0.198368124 |
| ATOM= | 17 | H | 4a | 1 | 0.331000581 | 0.655655822 |

Free energy: -115.422 eV/f.u.

Residual pressure = -0.050 GPa.

Table S1.3(a). Repeated operation [K3]: rotation by $2\pi/3$, no translation.

Ideal model:

```
SPGNAM= P31
CELEDG= 5.326700000 5.326700000 21.761700000
CELANG= 90.000000000 90.000000000 120.000000000
ATOM= 1 Si 3a 1 0.333333333 0.666666667 0.000000000
ATOM= 2 Si 3a 1 0.666666667 0.333333333 0.000000000
ATOM= 3 Al 3a 1 0.333333333 0.000000000 0.125666667
ATOM= 4 Al 3a 1 0.000000000 0.333333333 0.125666667
ATOM= 5 O 3a 1 0.333333333 0.666666667 0.074000000
ATOM= 6 O 3a 1 0.666666667 0.333333333 0.074000000
ATOM= 7 O 3a 1 0.000000000 0.500000000 0.305333333
ATOM= 8 O 3a 1 0.500000000 0.500000000 0.305333333
ATOM= 9 O 3a 1 0.500000000 0.000000000 0.305333333
ATOM= 10 O 3a 1 0.666666667 0.000000000 0.172333333
ATOM= 11 O 3a 1 0.000000000 0.666666667 0.172333333
ATOM= 12 O 3a 1 0.333333333 0.333333333 0.172333333
ATOM= 13 O 3a 1 0.000000000 0.000000000 0.073666667
ATOM= 14 H 3a 1 0.666666667 0.000000000 0.215000000
ATOM= 15 H 3a 1 0.000000000 0.666666667 0.215000000
ATOM= 16 H 3a 1 0.333333333 0.333333333 0.215000000
ATOM= 17 H 3a 1 0.000000000 0.000000000 0.034000000
```

Optimized model:

```
SPGNAM= P31
CELEDG= 5.116036141 5.116036141 20.738381673
CELANG= 90.000000000 90.000000000 120.000000000
ATOM= 1 Si 3a 1 0.323601491 0.652672060 0.000000000
ATOM= 2 Si 3a 1 0.666614133 0.312179989 -0.000012055
ATOM= 3 Al 3a 1 0.351197492 0.012325597 0.132275992
ATOM= 4 Al 3a 1 0.023939038 0.340909621 0.131844425
ATOM= 5 O 3a 1 0.304316822 0.670599585 0.077054229
ATOM= 6 O 3a 1 0.683401158 0.294272777 0.077214318
ATOM= 7 O 3a 1 0.015864559 0.467038777 0.300274636
ATOM= 8 O 3a 1 0.566148817 0.563138257 0.299374373
ATOM= 9 O 3a 1 0.463441410 0.012585154 0.308615692
ATOM= 10 O 3a 1 0.685807339 0.051108005 0.175396039
ATOM= 11 O 3a 1 0.059759579 0.674323672 0.175128420
ATOM= 12 O 3a 1 0.307721700 0.297060199 0.178302245
ATOM= 13 O 3a 1 0.063735103 0.051985986 0.079277642
ATOM= 14 H 3a 1 0.689742998 0.001313587 0.220212940
ATOM= 15 H 3a 1 0.031249338 0.662639069 0.221557790
ATOM= 16 H 3a 1 0.438168955 0.426595201 0.212368066
ATOM= 17 H 3a 1 0.872984275 0.861514300 0.080754132
```

Free energy: -115.332 eV/f.u.

Residual pressure = 0.042 GPa.

Table S1.3(b). Stacking [K3], then enantiomorph of [K3]: rotation by $2\pi/3$, no translation; then rotation by $-2\pi/3$, no translation.

Ideal model:

| | | | | | | | |
|---------|--------------|--------------|--------------|---|-------------|-------------|-------------|
| SPGNAM= | Cc | | | | | | |
| CELEDG= | 5.326700000 | 9.226115037 | 14.500000000 | | | | |
| CELANG= | 90.000000000 | 90.000000000 | 90.000000000 | | | | |
| ATOM= | 1 | Si | 4a | 1 | 0.000000000 | 0.166666667 | 0.000000000 |
| ATOM= | 2 | Si | 4a | 1 | 0.500000000 | 0.333333333 | 0.000000000 |
| ATOM= | 3 | Al | 4a | 1 | 0.666666667 | 0.166666667 | 0.188601399 |
| ATOM= | 4 | Al | 4a | 1 | 0.166666667 | 0.000000000 | 0.188601399 |
| ATOM= | 5 | O | 4a | 1 | 0.250000000 | 0.250000000 | 0.457977406 |
| ATOM= | 6 | O | 4a | 1 | 0.000000000 | 0.000000000 | 0.457977406 |
| ATOM= | 7 | O | 4a | 1 | 0.750000000 | 0.250000000 | 0.457977406 |
| ATOM= | 8 | O | 4a | 1 | 0.500000000 | 0.000000000 | 0.110559441 |
| ATOM= | 9 | O | 4a | 1 | 0.000000000 | 0.166666667 | 0.111059709 |
| ATOM= | 10 | O | 4a | 1 | 0.500000000 | 0.333333333 | 0.111059709 |
| ATOM= | 11 | O | 4a | 1 | 0.833333333 | 0.000000000 | 0.258639054 |
| ATOM= | 12 | O | 4a | 1 | 0.333333333 | 0.166666667 | 0.258639054 |
| ATOM= | 13 | O | 4a | 1 | 0.833333333 | 0.333333333 | 0.258639054 |
| ATOM= | 14 | H | 4a | 1 | 0.500000000 | 0.000000000 | 0.051027434 |
| ATOM= | 15 | H | 4a | 1 | 0.833333333 | 0.000000000 | 0.322673483 |
| ATOM= | 16 | H | 4a | 1 | 0.333333333 | 0.166666667 | 0.322673483 |
| ATOM= | 17 | H | 4a | 1 | 0.833333333 | 0.333333333 | 0.322673483 |

Optimized model:

| | | | | | | | |
|---------|--------------|--------------|--------------|---|-------------|-------------|-------------|
| SPGNAM= | Cc | | | | | | |
| CELEDG= | 5.108839549 | 8.880022652 | 13.839237724 | | | | |
| CELANG= | 90.000000000 | 91.377849569 | 90.000000000 | | | | |
| ATOM= | 1 | Si | 4a | 1 | 0.000000000 | 0.158972568 | 0.000000000 |
| ATOM= | 2 | Si | 4a | 1 | 0.513598250 | 0.329139926 | 0.000382079 |
| ATOM= | 3 | Al | 4a | 1 | 0.669152123 | 0.173330639 | 0.198778780 |
| ATOM= | 4 | Al | 4a | 1 | 0.176590638 | 0.009358084 | 0.197533118 |
| ATOM= | 5 | O | 4a | 1 | 0.226980173 | 0.279838250 | 0.449070508 |
| ATOM= | 6 | O | 4a | 1 | 0.047625832 | 0.005229716 | 0.450885024 |
| ATOM= | 7 | O | 4a | 1 | 0.727487518 | 0.229229145 | 0.463175297 |
| ATOM= | 8 | O | 4a | 1 | 0.480146541 | 0.029636186 | 0.119071463 |
| ATOM= | 9 | O | 4a | 1 | 0.981052842 | 0.150532274 | 0.115651776 |
| ATOM= | 10 | O | 4a | 1 | 0.549417130 | 0.338237876 | 0.115998287 |
| ATOM= | 11 | O | 4a | 1 | 0.865126077 | 0.027266822 | 0.262518168 |
| ATOM= | 12 | O | 4a | 1 | 0.366185565 | 0.151044660 | 0.267602794 |
| ATOM= | 13 | O | 4a | 1 | 0.801421962 | 0.340655663 | 0.263484567 |
| ATOM= | 14 | H | 4a | 1 | 0.075563465 | 0.434476369 | 0.121068997 |
| ATOM= | 15 | H | 4a | 1 | 0.868268599 | 0.013239831 | 0.332214640 |
| ATOM= | 16 | H | 4a | 1 | 0.301653234 | 0.216376700 | 0.317920052 |
| ATOM= | 17 | H | 4a | 1 | 0.857147399 | 0.343483358 | 0.330714110 |

Free energy: -115.345 eV/f.u.

Residual pressure = -0.043 GPa.

Table S1.4. Repeated operation [K4]: rotation by π , no translation.

Ideal model:

```
SPGNAM= Cmc21
CELEDG= 9.226115037 5.326700000 14.500000000
CELANG= 90.000000000 90.000000000 90.000000000
ATOM= 1 Si 8b 1 0.166666667 0.000000000 0.000000000
ATOM= 2 Al 8b 1 0.166666667 0.333333333 0.188601399
ATOM= 3 O 8b 1 0.166666667 0.000000000 0.111059709
ATOM= 4 O 8b 1 0.250000000 0.250000000 0.457977406
ATOM= 5 O 4a m.. 0.000000000 0.000000000 0.457977406
ATOM= 6 O 8b 1 0.166666667 0.666666667 0.258639055
ATOM= 7 O 4a m.. 0.000000000 0.166666667 0.258639055
ATOM= 8 O 4a m.. 0.000000000 0.500000000 0.110559440
ATOM= 9 H 8b 1 0.333333333 0.166666667 0.322673482
ATOM= 10 H 4a m.. 0.000000000 0.166666667 0.322673482
ATOM= 11 H 4a m.. 0.000000000 0.500000000 0.051027434
```

Optimized model:

```
SPGNAM= Cmc21
CELEDG= 8.827394136 5.116722706 14.013082393
CELANG= 90.000000000 90.000000000 90.000000000
ATOM= 1 Si 8b 1 0.170576954 0.010811608 -0.000092770
ATOM= 2 Al 8b 1 0.164200878 0.315534003 0.196031103
ATOM= 3 O 8b 1 0.187140166 0.009738656 0.113971356
ATOM= 4 O 8b 1 0.278548131 0.212812001 0.451390338
ATOM= 5 O 4a m.. -0.000000469 0.050424855 0.461237565
ATOM= 6 O 8b 1 0.187815669 0.629686528 0.259587427
ATOM= 7 O 4a m.. -0.000000469 0.194327513 0.264721915
ATOM= 8 O 4a m.. -0.000000469 0.439058383 0.117718569
ATOM= 9 H 8b 1 0.327915572 0.152038726 0.327885748
ATOM= 10 H 4a m.. -0.000000469 0.112175319 0.327102194
ATOM= 11 H 4a m.. 0.000000332 0.629547767 0.122177973
```

Free energy: -115.406 eV/f.u.

Residual pressure = -0.031 GPa.

Table S1.5(a). Repeated operation [K5]: rotation by 0, translation by $(2a+b)/3$.

Ideal model:

| | | | | | | |
|---------|--------------|--------------|---------------|---|-------------|-------------|
| SPGNAM= | P1 | | | | | |
| CELEDG= | 5.326700000 | 5.326700000 | 7.878894350 | | | |
| CELANG= | 90.000000000 | 70.242737791 | 120.000000000 | | | |
| ATOM= | 1 | Si | 1a | 1 | 0.000000000 | 0.000000000 |
| ATOM= | 2 | Si | 1a | 1 | 0.333333333 | 0.666666666 |
| ATOM= | 3 | Al | 1a | 1 | 0.415333333 | 0.541000000 |
| ATOM= | 4 | Al | 1a | 1 | 0.082000000 | 0.874333333 |
| ATOM= | 5 | O | 1a | 1 | 0.852000000 | 0.926000000 |
| ATOM= | 6 | O | 1a | 1 | 0.185333333 | 0.592666666 |
| ATOM= | 7 | O | 1a | 1 | 0.222666667 | 0.361333333 |
| ATOM= | 8 | O | 1a | 1 | 0.722666667 | 0.861333333 |
| ATOM= | 9 | O | 1a | 1 | 0.222666667 | 0.861333333 |
| ATOM= | 10 | O | 1a | 1 | 0.988666667 | 0.161000000 |
| ATOM= | 11 | O | 1a | 1 | 0.322000000 | 0.827666667 |
| ATOM= | 12 | O | 1a | 1 | 0.655333333 | 0.494333333 |
| ATOM= | 13 | O | 1a | 1 | 0.519333333 | 0.259666666 |
| ATOM= | 14 | H | 1a | 1 | 0.903333333 | 0.118333333 |
| ATOM= | 15 | H | 1a | 1 | 0.236666667 | 0.785000000 |
| ATOM= | 16 | H | 1a | 1 | 0.570000000 | 0.451666666 |
| ATOM= | 17 | H | 1a | 1 | 0.598666667 | 0.299333333 |

Optimized model:

| | | | | | | |
|---------|--------------|--------------|---------------|---|--------------|--------------|
| SPGNAM= | P1 | | | | | |
| CELEDG= | 5.080233202 | 5.072834054 | 7.453384000 | | | |
| CELANG= | 89.620407326 | 71.009949447 | 119.436332290 | | | |
| ATOM= | 1 | Si | 1a | 1 | 0.000000000 | 0.000000000 |
| ATOM= | 2 | Si | 1a | 1 | 0.342692493 | -0.001346901 |
| ATOM= | 3 | Al | 1a | 1 | 0.395774542 | 0.537549730 |
| ATOM= | 4 | Al | 1a | 1 | 0.063160556 | 0.879091186 |
| ATOM= | 5 | O | 1a | 1 | 0.835908803 | 0.884790747 |
| ATOM= | 6 | O | 1a | 1 | 0.218122627 | 0.644748164 |
| ATOM= | 7 | O | 1a | 1 | 0.138288246 | 0.362548245 |
| ATOM= | 8 | O | 1a | 1 | 0.733190516 | 0.817285849 |
| ATOM= | 9 | O | 1a | 1 | 0.290800540 | 0.930211579 |
| ATOM= | 10 | O | 1a | 1 | -0.000170688 | 0.165737734 |
| ATOM= | 11 | O | 1a | 1 | 0.275580005 | 0.794219499 |
| ATOM= | 12 | O | 1a | 1 | 0.645388767 | 0.534986545 |
| ATOM= | 13 | O | 1a | 1 | 0.445443705 | 0.260520093 |
| ATOM= | 14 | H | 1a | 1 | 0.900463298 | 0.100255186 |
| ATOM= | 15 | H | 1a | 1 | 0.253034649 | 0.808715706 |
| ATOM= | 16 | H | 1a | 1 | 0.642560336 | 0.346919521 |
| ATOM= | 17 | H | 1a | 1 | 0.645130723 | 0.261726569 |

Free energy: -115.314 eV/f.u.

Residual pressure = -0.280 GPa.

Table S1.5(b): Stacking operation [K5], then enantiomorph of [K5]: rotation by zero, translation by $(2a+b)/3$; then rotation by zero, translation by $(a+2b)/3$.

Ideal model:

| | | | | | | |
|---------|--------------|--------------|--------------|---|-------------|-------------|
| SPGNAM= | Cc | | | | | |
| CELEDG= | 5.326700000 | 9.226115037 | 14.500000000 | | | |
| CELANG= | 90.000000000 | 90.000000000 | 90.000000000 | | | |
| ATOM= | 1 | Si | 4a | 1 | 0.000000000 | 0.000000000 |
| ATOM= | 2 | Si | 4a | 1 | 0.000000000 | 0.666666667 |
| ATOM= | 3 | Al | 4a | 1 | 0.666666667 | 0.666666667 |
| ATOM= | 4 | Al | 4a | 1 | 0.666666667 | 0.000000000 |
| ATOM= | 5 | O | 4a | 1 | 0.000000000 | 0.000000000 |
| ATOM= | 6 | O | 4a | 1 | 0.000000000 | 0.666666667 |
| ATOM= | 7 | O | 4a | 1 | 0.750000000 | 0.583333333 |
| ATOM= | 8 | O | 4a | 1 | 0.750000000 | 0.083333333 |
| ATOM= | 9 | O | 4a | 1 | 0.000000000 | 0.833333333 |
| ATOM= | 10 | O | 4a | 1 | 0.833333333 | 0.500000000 |
| ATOM= | 11 | O | 4a | 1 | 0.833333333 | 0.166666667 |
| ATOM= | 12 | O | 4a | 1 | 0.833333333 | 0.833333333 |
| ATOM= | 13 | O | 4a | 1 | 0.000000000 | 0.333333333 |
| ATOM= | 14 | H | 4a | 1 | 0.833333333 | 0.500000000 |
| ATOM= | 15 | H | 4a | 1 | 0.833333333 | 0.166666667 |
| ATOM= | 16 | H | 4a | 1 | 0.333333333 | 0.333333333 |
| ATOM= | 17 | H | 4a | 1 | 0.000000000 | 0.333333333 |

Optimized model:

| | | | | | | |
|---------|--------------|--------------|--------------|---|--------------|--------------|
| SPGNAM= | Cc | | | | | |
| CELEDG= | 5.121938506 | 8.865146384 | 13.834594029 | | | |
| CELANG= | 90.000000000 | 88.325800251 | 90.000000000 | | | |
| ATOM= | 1 | Si | 4a | 1 | 0.000000000 | 0.000915946 |
| ATOM= | 2 | Si | 4a | 1 | -0.001284441 | 0.659415270 |
| ATOM= | 3 | Al | 4a | 1 | 0.678213709 | 0.665062124 |
| ATOM= | 4 | Al | 4a | 1 | 0.676973016 | -0.006154876 |
| ATOM= | 5 | O | 4a | 1 | -0.008596518 | 0.019040794 |
| ATOM= | 6 | O | 4a | 1 | -0.011702914 | 0.640544742 |
| ATOM= | 7 | O | 4a | 1 | 0.729788473 | 0.605503036 |
| ATOM= | 8 | O | 4a | 1 | 0.730467017 | 0.055973083 |
| ATOM= | 9 | O | 4a | 1 | 0.059279039 | 0.830084755 |
| ATOM= | 10 | O | 4a | 1 | 0.862318329 | 0.520154183 |
| ATOM= | 11 | O | 4a | 1 | 0.859400996 | 0.140531182 |
| ATOM= | 12 | O | 4a | 1 | 0.803430313 | 0.829653806 |
| ATOM= | 13 | O | 4a | 1 | 0.061920569 | 0.329253377 |
| ATOM= | 14 | H | 4a | 1 | 0.806285142 | 0.469019839 |
| ATOM= | 15 | H | 4a | 1 | 0.813701517 | 0.174421206 |
| ATOM= | 16 | H | 4a | 1 | 0.337131562 | 0.335509384 |
| ATOM= | 17 | H | 4a | 1 | -0.128573031 | 0.329555697 |

Free energy: -115.316 eV/f.u.

Residual pressure = -0.241 GPa.

Table S1.6(a). Repeated stacking [K6]: rotation by $\pi/3$, translation by $(2a+b)/3$.

Ideal model:

```
SPGNAM= P61
CELEDG= 5.326700000 5.326700000 43.500000000
CELANG= 90.000000000 90.000000000 120.000000000
ATOM= 1 Si 6a 1 0.000000000 0.000000000 0.000000000
ATOM= 2 Si 6a 1 0.333333333 0.666666667 0.000000000
ATOM= 3 Al 6a 1 0.666666667 0.666666667 0.062867133
ATOM= 4 Al 6a 1 0.333333333 0.000000000 0.062867133
ATOM= 5 O 6a 1 0.000000000 0.000000000 0.037019903
ATOM= 6 O 6a 1 0.333333333 0.666666667 0.037019904
ATOM= 7 O 6a 1 0.666666667 0.333333333 0.036853148
ATOM= 8 O 6a 1 0.833333334 0.666666667 0.152659136
ATOM= 9 O 6a 1 0.333333334 0.166666667 0.152659136
ATOM= 10 O 6a 1 0.833333334 0.166666667 0.152659136
ATOM= 11 O 6a 1 0.666666667 0.000000000 0.086213018
ATOM= 12 O 6a 1 0.000000000 0.666666667 0.086213018
ATOM= 13 O 6a 1 0.333333333 0.333333333 0.086213018
ATOM= 14 H 6a 1 0.666666667 0.000000000 0.107557827
ATOM= 15 H 6a 1 0.000000000 0.666666667 0.107557827
ATOM= 16 H 6a 1 0.333333333 0.333333333 0.107557827
ATOM= 17 H 6a 1 0.666666667 0.333333333 0.017009146
```

Optimized model:

```
SPGNAM= P61
CELEDG= 5.102847870 5.102847870 42.094278863
CELANG= 90.000000000 90.000000000 120.000000000
ATOM= 1 Si 6a 1 0.003296531 0.993112782 0.000000000
ATOM= 2 Si 6a 1 0.343626122 0.672891635 0.000094075
ATOM= 3 Al 6a 1 0.642910285 0.660667692 0.065155410
ATOM= 4 Al 6a 1 0.315101736 0.004713527 0.065137831
ATOM= 5 O 6a 1 0.985491845 0.959771876 0.037962404
ATOM= 6 O 6a 1 0.359098046 0.705951948 0.038105416
ATOM= 7 O 6a 1 0.602512787 0.332657798 0.038817627
ATOM= 8 O 6a 1 0.896448338 0.671436620 0.150580796
ATOM= 9 O 6a 1 0.338805258 0.229887972 0.150767282
ATOM= 10 O 6a 1 0.777572208 0.110809750 0.153694996
ATOM= 11 O 6a 1 0.600470707 0.951802100 0.086897795
ATOM= 12 O 6a 1 0.981162466 0.707210095 0.086286786
ATOM= 13 O 6a 1 0.347909311 0.332605753 0.087401902
ATOM= 14 H 6a 1 0.700743242 0.047454334 0.106614726
ATOM= 15 H 6a 1 0.980755263 0.676337964 0.109143811
ATOM= 16 H 6a 1 0.328515646 0.330037412 0.110431397
ATOM= 17 H 6a 1 0.793435924 0.332340999 0.039785930
```

Free energy: -115.376 eV/f.u.

Residual pressure = -0.082 GPa.

Table S1.6(b). Stacking [K6], then enantiomorph of [K6]: rotation by $\pi/3$, translation by $(2a+b)/3$; then rotation by $-\pi/3$, translation by $(a+2b)/3$.

Ideal model:

```

SPGNAM= Cc
CELEDG= 9.226115037 5.326700000 14.830177740
CELANG= 90.000000000 101.968420863 90.000000000
ATOM= 1 Si 4a 1 0.000000000 0.250000000 0.000000000
ATOM= 2 Si 4a 1 0.166666667 0.750000000 0.000000000
ATOM= 3 Al 4a 1 0.396166667 0.583333333 0.188500000
ATOM= 4 Al 4a 1 0.229500001 0.083333333 0.188500000
ATOM= 5 O 4a 1 0.319333334 0.250000000 0.458000000
ATOM= 6 O 4a 1 0.069333334 0.000000000 0.458000000
ATOM= 7 O 4a 1 0.069333334 0.500000000 0.458000000
ATOM= 8 O 4a 1 0.037000000 0.250000000 0.111000000
ATOM= 9 O 4a 1 0.203666667 0.750000000 0.111000000
ATOM= 10 O 4a 1 0.370166667 0.250000000 0.110500000
ATOM= 11 O 4a 1 0.419500000 0.916666667 0.258500000
ATOM= 12 O 4a 1 0.086166667 0.916666667 0.258500000
ATOM= 13 O 4a 1 0.252833334 0.416666667 0.258500000
ATOM= 14 H 4a 1 0.440833334 0.916666667 0.322500000
ATOM= 15 H 4a 1 0.107500000 0.916666667 0.322500000
ATOM= 16 H 4a 1 0.274166667 0.416666667 0.322500000
ATOM= 17 H 4a 1 0.350333334 0.250000000 0.051000000

```

Optimized model:

```

SPGNAM= Cc
CELEDG= 8.854742135 5.092801902 14.456744125
CELANG= 90.000000000 104.609408633 90.000000000
ATOM= 1 Si 4a 1 -0.000497001 0.243007685 0.000000000
ATOM= 2 Si 4a 1 0.170281204 0.754832217 0.000241459
ATOM= 3 Al 4a 1 0.399861856 0.592014182 0.196312508
ATOM= 4 Al 4a 1 0.235383336 0.099008367 0.196038788
ATOM= 5 O 4a 1 0.313259745 0.309815703 0.451812191
ATOM= 6 O 4a 1 0.093189068 0.970153767 0.451259429
ATOM= 7 O 4a 1 0.036471185 0.468496526 0.461649975
ATOM= 8 O 4a 1 0.037702446 0.218361134 0.114364979
ATOM= 9 O 4a 1 0.225085758 0.780036417 0.114557752
ATOM= 10 O 4a 1 0.347976648 0.282736307 0.117599820
ATOM= 11 O 4a 1 0.406073016 0.905452645 0.261565266
ATOM= 12 O 4a 1 0.094908166 0.970628948 0.260060739
ATOM= 13 O 4a 1 0.281954366 0.409373865 0.263206680
ATOM= 14 H 4a 1 0.455835817 0.930179701 0.329076392
ATOM= 15 H 4a 1 0.116323945 0.927332545 0.327631299
ATOM= 16 H 4a 1 0.273742844 0.434042015 0.328287744
ATOM= 17 H 4a 1 0.445205452 0.187115073 0.122385980

```

Free energy: -115.373 eV/f.u.

Residual pressure = -0.117 GPa.

Table S1.7(a). Repeated operation [K7]: rotation by $2\pi/3$, translation by $(2a+b)/3$.

Ideal model:

```
SPGNAM= P31
CELEDG= 5.326700000 5.326700000 21.761700000
CELANG= 90.000000000 90.000000000 120.000000000
ATOM= 1 Si 3a 1 0.666666667 0.666666667 0.000000000
ATOM= 2 Si 3a 1 0.000000000 0.333333333 0.000000000
ATOM= 3 Al 3a 1 0.666666667 0.000000000 0.125666667
ATOM= 4 Al 3a 1 0.333333333 0.333333333 0.125666667
ATOM= 5 O 3a 1 0.666666667 0.666666667 0.074000000
ATOM= 6 O 3a 1 0.000000000 0.333333333 0.074000000
ATOM= 7 O 3a 1 0.333333333 0.000000000 0.073666667
ATOM= 8 O 3a 1 0.000000000 0.833333333 0.305333333
ATOM= 9 O 3a 1 0.500000000 0.833333333 0.305333333
ATOM= 10 O 3a 1 0.500000000 0.333333333 0.305333333
ATOM= 11 O 3a 1 0.000000000 0.000000000 0.172333333
ATOM= 12 O 3a 1 0.333333333 0.666666667 0.172333333
ATOM= 13 O 3a 1 0.666666667 0.333333333 0.172333333
ATOM= 14 H 3a 1 0.000000000 0.000000000 0.215000000
ATOM= 15 H 3a 1 0.333333333 0.666666667 0.215000000
ATOM= 16 H 3a 1 0.666666667 0.333333333 0.215000000
ATOM= 17 H 3a 1 0.333333333 0.000000000 0.034000000
```

Optimized model:

```
SPGNAM= P31
CELEDG= 5.093121089 5.093121089 20.685366149
CELANG= 90.000000000 90.000000000 120.000000000
ATOM= 1 Si 3a 1 0.656109802 0.650405368 0.000000000
ATOM= 2 Si 3a 1 0.996718674 0.309251963 0.000743521
ATOM= 3 Al 3a 1 0.681927914 0.005030865 0.132334617
ATOM= 4 Al 3a 1 0.354446164 0.335333563 0.132700576
ATOM= 5 O 3a 1 0.633462084 0.667617773 0.077553861
ATOM= 6 O 3a 1 0.013879541 0.285675593 0.078125763
ATOM= 7 O 3a 1 0.396895096 0.049680642 0.079590083
ATOM= 8 O 3a 1 0.017078642 0.791072342 0.299666922
ATOM= 9 O 3a 1 0.572825309 0.900708470 0.300653126
ATOM= 10 O 3a 1 0.446438033 0.347147820 0.311650273
ATOM= 11 O 3a 1 0.017309232 0.040178904 0.176474517
ATOM= 12 O 3a 1 0.381804609 0.669018888 0.176491921
ATOM= 13 O 3a 1 0.654171170 0.305307075 0.178715232
ATOM= 14 H 3a 1 0.020187536 0.985061045 0.221407248
ATOM= 15 H 3a 1 0.389450724 0.685088636 0.223438153
ATOM= 16 H 3a 1 0.845159430 0.485438794 0.189657267
ATOM= 17 H 3a 1 0.205694600 0.860300581 0.075265286
```

Free energy: -115.334 eV/f.u.

Residual pressure = -0.015 GPa.

Table S1.7(b). Stacking [K7], then enantiomorph of [K7]: rotation by $2\pi/3$, translation by $(2a+b)/3$; then rotation by $-2\pi/3$, translation by $(a+2b)/3$.

Ideal model:

| | | | | | | | |
|---------|--------------|--------------|--------------|---|-------------|-------------|-------------|
| SPGNAM= | Cc | | | | | | |
| CELEDG= | 5.326700000 | 9.226115037 | 14.500000000 | | | | |
| CELANG= | 90.000000000 | 90.000000000 | 90.000000000 | | | | |
| ATOM= | 1 | Si | 4a | 1 | 0.000000000 | 0.000000000 | 0.000000000 |
| ATOM= | 2 | Si | 4a | 1 | 0.500000000 | 0.166666667 | 0.000000000 |
| ATOM= | 3 | Al | 4a | 1 | 0.666666667 | 0.000000000 | 0.188601400 |
| ATOM= | 4 | Al | 4a | 1 | 0.666666667 | 0.333333333 | 0.188601400 |
| ATOM= | 5 | O | 4a | 1 | 0.250000000 | 0.416666667 | 0.457977407 |
| ATOM= | 6 | O | 4a | 1 | 0.000000000 | 0.166666667 | 0.457977407 |
| ATOM= | 7 | O | 4a | 1 | 0.750000000 | 0.416666667 | 0.457977407 |
| ATOM= | 8 | O | 4a | 1 | 0.000000000 | 0.000000000 | 0.111059710 |
| ATOM= | 9 | O | 4a | 1 | 0.500000000 | 0.166666667 | 0.111059710 |
| ATOM= | 10 | O | 4a | 1 | 0.000000000 | 0.333333333 | 0.110559441 |
| ATOM= | 11 | O | 4a | 1 | 0.833333333 | 0.166666667 | 0.258639055 |
| ATOM= | 12 | O | 4a | 1 | 0.333333333 | 0.333333333 | 0.258639056 |
| ATOM= | 13 | O | 4a | 1 | 0.333333333 | 1.000000000 | 0.258639055 |
| ATOM= | 14 | H | 4a | 1 | 0.833333333 | 0.166666667 | 0.322673483 |
| ATOM= | 15 | H | 4a | 1 | 0.333333333 | 0.333333333 | 0.322673483 |
| ATOM= | 16 | H | 4a | 1 | 0.333333333 | 1.000000000 | 0.322673483 |
| ATOM= | 17 | H | 4a | 1 | 0.000000000 | 0.333333333 | 0.051027435 |

Optimized model:

| | | | | | | | |
|---------|--------------|--------------|--------------|---|-------------|-------------|--------------|
| SPGNAM= | Cc | | | | | | |
| CELEDG= | 5.111331514 | 8.787450710 | 13.798168069 | | | | |
| CELANG= | 90.000000000 | 90.523251610 | 90.000000000 | | | | |
| ATOM= | 1 | Si | 4a | 1 | 0.000000000 | 0.995366681 | 0.000000000 |
| ATOM= | 2 | Si | 4a | 1 | 0.510664985 | 0.165636240 | -0.000442970 |
| ATOM= | 3 | Al | 4a | 1 | 0.660898250 | 0.007239914 | 0.197400877 |
| ATOM= | 4 | Al | 4a | 1 | 0.667149328 | 0.344110082 | 0.198470714 |
| ATOM= | 5 | O | 4a | 1 | 0.226766577 | 0.446005428 | 0.450374591 |
| ATOM= | 6 | O | 4a | 1 | 0.058312251 | 0.168191056 | 0.448186389 |
| ATOM= | 7 | O | 4a | 1 | 0.718335777 | 0.382505749 | 0.466701923 |
| ATOM= | 8 | O | 4a | 1 | 0.974037313 | 0.983472511 | 0.115841936 |
| ATOM= | 9 | O | 4a | 1 | 0.545207327 | 0.174527331 | 0.115783501 |
| ATOM= | 10 | O | 4a | 1 | 0.972066938 | 0.364854458 | 0.118544384 |
| ATOM= | 11 | O | 4a | 1 | 0.794489364 | 0.174970024 | 0.263944915 |
| ATOM= | 12 | O | 4a | 1 | 0.348816186 | 0.357004652 | 0.263527112 |
| ATOM= | 13 | O | 4a | 1 | 0.349606460 | 0.994104677 | 0.267150614 |
| ATOM= | 14 | H | 4a | 1 | 0.852662543 | 0.175254525 | 0.331255693 |
| ATOM= | 15 | H | 4a | 1 | 0.336392291 | 0.361043365 | 0.333915447 |
| ATOM= | 16 | H | 4a | 1 | 0.267311200 | 0.090314038 | 0.284032521 |
| ATOM= | 17 | H | 4a | 1 | 0.064931154 | 0.268715091 | 0.112126485 |

Free energy: -115.340 eV/f.u.

Residual pressure = -0.027 GPa.

Table S1.8(a). Repeated operation [K8]: rotation by π , translation by $(2a+b)/3$.

Ideal model:

| | | | | | | |
|---------|--------------|---------------|--------------|---|-------------|-------------|
| SPGNAM= | P21 | | | | | |
| CELEDG= | 5.326700000 | 14.500000000 | 5.326700000 | | | |
| CELANG= | 90.000000000 | 120.000000000 | 90.000000000 | | | |
| ATOM= | 1 | Si | 2a | 1 | 0.000000000 | 0.000000000 |
| ATOM= | 2 | Si | 2a | 1 | 0.666666667 | 0.000000000 |
| ATOM= | 3 | Al | 2a | 1 | 0.333333333 | 0.188601400 |
| ATOM= | 4 | Al | 2a | 1 | 0.666666667 | 0.188601400 |
| ATOM= | 5 | O | 2a | 1 | 0.666666667 | 0.457977407 |
| ATOM= | 6 | O | 2a | 1 | 0.166666667 | 0.457977407 |
| ATOM= | 7 | O | 2a | 1 | 0.166666667 | 0.457977407 |
| ATOM= | 8 | O | 2a | 1 | 0.000000000 | 0.111059710 |
| ATOM= | 9 | O | 2a | 1 | 0.666666667 | 0.111059710 |
| ATOM= | 10 | O | 2a | 1 | 0.333333333 | 0.110559441 |
| ATOM= | 11 | O | 2a | 1 | 0.333333333 | 0.258639055 |
| ATOM= | 12 | O | 2a | 1 | 0.000000000 | 0.258639055 |
| ATOM= | 13 | O | 2a | 1 | 0.666666667 | 0.258639055 |
| ATOM= | 14 | H | 2a | 1 | 0.333333333 | 0.322673483 |
| ATOM= | 15 | H | 2a | 1 | 0.000000000 | 0.322673483 |
| ATOM= | 16 | H | 2a | 1 | 0.666666667 | 0.322673483 |
| ATOM= | 17 | H | 2a | 1 | 0.333333333 | 0.051027435 |

Optimized model:

| | | | | | | |
|---------|--------------|---------------|--------------|---|-------------|--------------|
| SPGNAM= | P21 | | | | | |
| CELEDG= | 5.112044769 | 13.984814481 | 5.102765262 | | | |
| CELANG= | 90.000000000 | 119.970322484 | 90.000000000 | | | |
| ATOM= | 1 | Si | 2a | 1 | 0.990926018 | -0.000035753 |
| ATOM= | 2 | Si | 2a | 1 | 0.650446069 | 0.000017161 |
| ATOM= | 3 | Al | 2a | 1 | 0.349686259 | 0.196057660 |
| ATOM= | 4 | Al | 2a | 1 | 0.677676607 | 0.196064095 |
| ATOM= | 5 | O | 2a | 1 | 0.677403375 | 0.451984544 |
| ATOM= | 6 | O | 2a | 1 | 0.229855184 | 0.449890130 |
| ATOM= | 7 | O | 2a | 1 | 0.114481615 | 0.462686867 |
| ATOM= | 8 | O | 2a | 1 | 0.006785618 | 0.114271805 |
| ATOM= | 9 | O | 2a | 1 | 0.632336034 | 0.114175987 |
| ATOM= | 10 | O | 2a | 1 | 0.390964494 | 0.116735192 |
| ATOM= | 11 | O | 2a | 1 | 0.391890319 | 0.260487546 |
| ATOM= | 12 | O | 2a | 1 | 0.011645069 | 0.261088197 |
| ATOM= | 13 | O | 2a | 1 | 0.643118505 | 0.262344560 |
| ATOM= | 14 | H | 2a | 1 | 0.315814623 | 0.324639988 |
| ATOM= | 15 | H | 2a | 1 | 0.011482485 | 0.327942141 |
| ATOM= | 16 | H | 2a | 1 | 0.682795740 | 0.330567846 |
| ATOM= | 17 | H | 2a | 1 | 0.200572025 | 0.119658362 |

Free energy: -115.401 eV/f.u.

Residual pressure = -0.031 GPa.

Table S1.8(b). Stacking operation [K8], then enantiomorph of [K8]: rotation by π , translation $(2a+b)/3$; then rotation by π , translation by $(a+2b)/3$

Ideal model:

```

SPGNAM= Cc
CELEDG= 9.226115037 5.326700000 14.822547384
CELANG= 90.000000000 101.974673248 90.000000000
ATOM= 1 Si 4a 1 0.000000000 0.250000000 0.000000000
ATOM= 2 Si 4a 1 0.166666666 -0.250000000 0.000000000
ATOM= 3 Al 4a 1 0.229533799 0.083333333 0.188601400
ATOM= 4 Al 4a 1 0.062867132 -0.416666666 0.188601400
ATOM= 5 O 4a 1 0.037019903 0.250000000 0.111059710
ATOM= 6 O 4a 1 0.203686569 -0.250000000 0.111059710
ATOM= 7 O 4a 1 0.069325802 0.000000000 -0.042022593
ATOM= 8 O 4a 1 0.069325802 -0.500000000 -0.042022593
ATOM= 9 O 4a 1 0.319325802 0.750000000 -0.042022593
ATOM= 10 O 4a 1 0.086213017 0.916666666 0.258639055
ATOM= 11 O 4a 1 0.252879684 0.416666667 0.258639056
ATOM= 12 O 4a 1 0.419546351 0.916666667 0.258639055
ATOM= 13 O 4a 1 0.370186480 0.250000000 0.110559441
ATOM= 14 H 4a 1 0.107557826 0.916666666 0.322673483
ATOM= 15 H 4a 1 0.274224493 0.416666667 0.322673483
ATOM= 16 H 4a 1 0.440891160 0.916666667 0.322673483
ATOM= 17 H 4a 1 0.350342478 0.250000000 0.051027435

```

Optimized model:

```

SPGNAM= Cc
CELEDG= 8.846995740 5.108213562 14.280344671
CELANG= 90.000000000 101.635564898 90.000000000
ATOM= 1 Si 4a 1 0.000000000 0.257669670 0.000000000
ATOM= 2 Si 4a 1 0.159116619 -0.241531729 0.000238568
ATOM= 3 Al 4a 1 0.229744721 0.063423424 0.196856054
ATOM= 4 Al 4a 1 0.057738602 -0.435816906 0.196358465
ATOM= 5 O 4a 1 0.055430969 0.257843918 0.114200065
ATOM= 6 O 4a 1 0.179268509 -0.241380985 0.114501728
ATOM= 7 O 4a 1 0.089444313 0.032459520 -0.049221344
ATOM= 8 O 4a 1 0.035657152 -0.465696243 -0.047775016
ATOM= 9 O 4a 1 0.317324305 0.693523897 -0.037163031
ATOM= 10 O 4a 1 0.104801609 0.875515043 0.260937103
ATOM= 11 O 4a 1 0.225821881 0.376969769 0.260564248
ATOM= 12 O 4a 1 0.415132868 0.933672464 0.262480384
ATOM= 13 O 4a 1 0.367622795 0.186523257 0.117179255
ATOM= 14 H 4a 1 0.088823890 0.917189098 0.324766845
ATOM= 15 H 4a 1 0.273103003 0.403990973 0.327298940
ATOM= 16 H 4a 1 0.441126522 0.901539908 0.330973888
ATOM= 17 H 4a 1 0.368432683 0.377406368 0.119158175

```

Free energy : -115.401 eV/f.u.

Residual pressure = 0.254 GPa.

Table S1.9(a). Repeated operation [K9]: rotation by $\pi/3$, translation by $(a+2b)/3$.

Ideal model:

```
SPGNAM= P61
CELEDG= 5.326700000 5.326700000 43.500000000
CELANG= 90.000000000 90.000000000 120.000000000
ATOM= 1 Si 6a 1 0.000000000 0.000000000 0.000000000
ATOM= 2 Si 6a 1 0.666666667 0.333333333 0.000000000
ATOM= 3 Al 6a 1 0.333333333 0.000000000 0.062867133
ATOM= 4 Al 6a 1 0.000000000 0.333333333 0.062867133
ATOM= 5 O 6a 1 0.166666666 0.333333333 0.152659135
ATOM= 6 O 6a 1 0.666666666 0.833333333 0.152659135
ATOM= 7 O 6a 1 0.166666666 0.833333333 0.152659135
ATOM= 8 O 6a 1 0.666666667 0.333333333 0.037019903
ATOM= 9 O 6a 1 0.000000000 0.000000000 0.037019903
ATOM= 10 O 6a 1 0.333333333 0.666666667 0.036853147
ATOM= 11 O 6a 1 0.333333333 0.333333333 0.086213019
ATOM= 12 O 6a 1 0.666666667 0.000000000 0.086213018
ATOM= 13 O 6a 1 0.000000000 0.666666667 0.086213018
ATOM= 14 H 6a 1 0.333333333 0.333333333 0.107557828
ATOM= 15 H 6a 1 0.666666667 0.000000000 0.107557827
ATOM= 16 H 6a 1 0.000000000 0.666666667 0.107557827
ATOM= 17 H 6a 1 0.333333333 0.666666667 0.017009145
```

Optimized model:

```
SPGNAM= P61
CELEDG= 5.109446078 5.109446078 41.966361549
CELANG= 90.000000000 90.000000000 120.000000000
ATOM= 1 Si 6a 1 0.015036927 0.009554997 0.000026889
ATOM= 2 Si 6a 1 0.674519479 0.327260894 0.000000000
ATOM= 3 Al 6a 1 0.316772373 0.998081320 0.065439554
ATOM= 4 Al 6a 1 0.987723950 0.341215981 0.065347338
ATOM= 5 O 6a 1 0.232287684 0.342761775 0.150557250
ATOM= 6 O 6a 1 0.674530422 0.896612589 0.150037787
ATOM= 7 O 6a 1 0.110081877 0.778490412 0.154475865
ATOM= 8 O 6a 1 0.658564072 0.293169806 0.038088601
ATOM= 9 O 6a 1 0.033937685 0.046229189 0.038050952
ATOM= 10 O 6a 1 0.272670826 0.669977471 0.039007670
ATOM= 11 O 6a 1 0.279075202 0.293847785 0.086490700
ATOM= 12 O 6a 1 0.655157455 0.050769394 0.086961554
ATOM= 13 O 6a 1 0.026277068 0.669435087 0.088064103
ATOM= 14 H 6a 1 0.315066386 0.334546918 0.109220095
ATOM= 15 H 6a 1 0.659866173 0.974720393 0.108094193
ATOM= 16 H 6a 1 0.979571856 0.668992140 0.110449890
ATOM= 17 H 6a 1 0.463388608 0.669735658 0.039765658
```

Free energy: -115.416 eV/f.u.

Residual pressure = -0.117 GPa.

Table S1.9(b). Stacking [K9], then enantiomorph of [K9]: rotation by $\pi/3$, translation by $(a+2b)/3$; then rotation by $-\pi/3$, translation by $(2a+b)/3$.

Ideal model:

| | | | | | | | |
|---------|--------------|---------------|--------------|---|-------------|-------------|-------------|
| SPGNAM= | Cc | | | | | | |
| CELEDG= | 9.226115037 | 5.326700000 | 14.822547385 | | | | |
| CELANG= | 90.000000000 | 101.974673247 | 90.000000000 | | | | |
| ATOM= | 1 | Si | 4a | 1 | 0.000000000 | 0.750000000 | 0.000000000 |
| ATOM= | 2 | Si | 4a | 1 | 0.333333333 | 0.750000000 | 0.000000000 |
| ATOM= | 3 | Al | 4a | 1 | 0.229533800 | 0.916666667 | 0.188601400 |
| ATOM= | 4 | Al | 4a | 1 | 0.396200467 | 0.416666667 | 0.188601400 |
| ATOM= | 5 | O | 4a | 1 | 0.152659136 | 0.250000000 | 0.457977407 |
| ATOM= | 6 | O | 4a | 1 | 0.402659136 | 0.500000000 | 0.457977407 |
| ATOM= | 7 | O | 4a | 1 | 0.402659136 | 0.000000000 | 0.457977407 |
| ATOM= | 8 | O | 4a | 1 | 0.037019903 | 0.750000000 | 0.111059710 |
| ATOM= | 9 | O | 4a | 1 | 0.370353236 | 0.750000000 | 0.111059710 |
| ATOM= | 10 | O | 4a | 1 | 0.203519814 | 0.250000000 | 0.110559441 |
| ATOM= | 11 | O | 4a | 1 | 0.252879685 | 0.583333333 | 0.258639055 |
| ATOM= | 12 | O | 4a | 1 | 0.086213019 | 0.083333333 | 0.258639056 |
| ATOM= | 13 | O | 4a | 1 | 0.419546351 | 0.083333333 | 0.258639055 |
| ATOM= | 14 | H | 4a | 1 | 0.774224495 | 0.083333333 | 0.322673483 |
| ATOM= | 15 | H | 4a | 1 | 0.107557828 | 0.083333333 | 0.322673483 |
| ATOM= | 16 | H | 4a | 1 | 0.440891161 | 0.083333333 | 0.322673483 |
| ATOM= | 17 | H | 4a | 1 | 0.183675812 | 0.250000000 | 0.051027435 |

Optimized model:

| | | | | | | | |
|---------|--------------|--------------|--------------|---|-------------|-------------|--------------|
| SPGNAM= | Cc | | | | | | |
| CELEDG= | 8.742953200 | 5.089968368 | 14.110970176 | | | | |
| CELANG= | 90.000000000 | 97.709116315 | 90.000000000 | | | | |
| ATOM= | 1 | Si | 4a | 1 | 0.004311365 | 0.769679476 | 0.000000000 |
| ATOM= | 2 | Si | 4a | 1 | 0.334603615 | 0.758638150 | -0.002115291 |
| ATOM= | 3 | Al | 4a | 1 | 0.225563070 | 0.924411282 | 0.194529312 |
| ATOM= | 4 | Al | 4a | 1 | 0.388377503 | 0.418992781 | 0.194961436 |
| ATOM= | 5 | O | 4a | 1 | 0.158973612 | 0.166678836 | 0.449995763 |
| ATOM= | 6 | O | 4a | 1 | 0.374000271 | 0.523397002 | 0.450629261 |
| ATOM= | 7 | O | 4a | 1 | 0.453840062 | 0.025534540 | 0.467048433 |
| ATOM= | 8 | O | 4a | 1 | 0.037729213 | 0.802565731 | 0.114291441 |
| ATOM= | 9 | O | 4a | 1 | 0.347212207 | 0.731779437 | 0.112850417 |
| ATOM= | 10 | O | 4a | 1 | 0.228462836 | 0.232964120 | 0.117118435 |
| ATOM= | 11 | O | 4a | 1 | 0.252815127 | 0.605945649 | 0.261504952 |
| ATOM= | 12 | O | 4a | 1 | 0.071427143 | 0.054273422 | 0.260414944 |
| ATOM= | 13 | O | 4a | 1 | 0.391281870 | 0.103513413 | 0.263609621 |
| ATOM= | 14 | H | 4a | 1 | 0.777894960 | 0.101487861 | 0.331144668 |
| ATOM= | 15 | H | 4a | 1 | 0.096717043 | 0.079147840 | 0.329420856 |
| ATOM= | 16 | H | 4a | 1 | 0.491399216 | 0.017141560 | 0.276615026 |
| ATOM= | 17 | H | 4a | 1 | 0.130164525 | 0.325363515 | 0.110259553 |

Free energy: -115.392 eV/f.u.

Residual pressure = -0.159 GPa.

Table S1.10(a). Repeated operation [K10]: rotation by $2\pi/3$, translation by $(a+2b)/3$.

Ideal model:

```
SPGNAM= P31
CELEDG= 5.326700000 5.326700000 21.750000000
CELANG= 90.000000000 90.000000000 120.000000000
ATOM= 1 Si 3a 1 0.000000000 0.666666667 0.000000000
ATOM= 2 Si 3a 1 0.333333333 0.333333333 0.000000000
ATOM= 3 Al 3a 1 0.000000000 0.000000000 0.125734266
ATOM= 4 Al 3a 1 0.666666667 0.333333333 0.125734266
ATOM= 5 O 3a 1 0.000000000 0.166666667 0.305318270
ATOM= 6 O 3a 1 0.500000000 0.166666667 0.305318270
ATOM= 7 O 3a 1 0.500000000 0.666666667 0.305318270
ATOM= 8 O 3a 1 0.000000000 0.666666667 0.074039806
ATOM= 9 O 3a 1 0.333333333 0.333333333 0.074039806
ATOM= 10 O 3a 1 0.666666667 0.000000000 0.073706294
ATOM= 11 O 3a 1 0.333333333 0.000000000 0.172426036
ATOM= 12 O 3a 1 0.666666667 0.666666667 0.172426036
ATOM= 13 O 3a 1 0.000000000 0.333333333 0.172426036
ATOM= 14 H 3a 1 0.333333333 0.000000000 0.215115655
ATOM= 15 H 3a 1 0.666666667 0.666666667 0.215115655
ATOM= 16 H 3a 1 0.000000000 0.333333333 0.215115655
ATOM= 17 H 3a 1 0.666666667 0.000000000 0.034018289
```

Optimized model:

```
SPGNAM= P31
CELEDG= 5.109356917 5.109356917 20.975515175
CELANG= 90.000000000 90.000000000 120.000000000
ATOM= 1 Si 3a 1 0.977781672 0.652221256 0.000037663
ATOM= 2 Si 3a 1 0.317458922 0.313636711 -0.000061500
ATOM= 3 Al 3a 1 0.009360878 0.016881994 0.130711927
ATOM= 4 Al 3a 1 0.682081894 0.345217565 0.130649473
ATOM= 5 O 3a 1 0.018507122 0.220896483 0.301779954
ATOM= 6 O 3a 1 0.462492471 0.109007509 0.301301777
ATOM= 7 O 3a 1 0.567850600 0.664655625 0.305614901
ATOM= 8 O 3a 1 0.968035336 0.672052514 0.076390972
ATOM= 9 O 3a 1 0.337391233 0.304962936 0.076258437
ATOM= 10 O 3a 1 0.715746768 0.050650502 0.078391877
ATOM= 11 O 3a 1 0.343505318 0.055823578 0.173025071
ATOM= 12 O 3a 1 0.724581451 0.678705873 0.174164495
ATOM= 13 O 3a 1 0.973121138 0.308764210 0.175305349
ATOM= 14 H 3a 1 0.349638646 0.015159895 0.218175809
ATOM= 15 H 3a 1 0.652652454 0.674963359 0.217252352
ATOM= 16 H 3a 1 0.017010206 0.345104566 0.220567169
ATOM= 17 H 3a 1 0.525742966 0.860870949 0.084088995
```

Free energy: -115.346 eV/f.u.

Residual pressure = -0.078 GPa.

Table S1.10(b). Stacking [K10], then enantiomorph of [K10]: rotation by $2\pi/3$, translation by $(a+2b)/3$; rotation by $-2\pi/3$, translation by $(2a+b)/3$.

Ideal model:

```

SPGNAM= Cc
CELEDG= 5.326700000 9.226115037 14.500000000
CELANG= 90.000000000 90.000000000 90.000000000
ATOM= 1 Si 4a 1 0.000000000 0.666666667 0.000000000
ATOM= 2 Si 4a 1 0.000000000 0.000000000 0.000000000
ATOM= 3 Al 4a 1 0.833333333 0.166666667 0.188601400
ATOM= 4 Al 4a 1 0.333333333 0.333333333 0.188601400
ATOM= 5 O 4a 1 0.250000000 0.416666667 0.457977407
ATOM= 6 O 4a 1 0.000000000 0.166666667 0.457977407
ATOM= 7 O 4a 1 0.750000000 0.416666667 0.457977407
ATOM= 8 O 4a 1 0.500000000 0.166666667 0.111059710
ATOM= 9 O 4a 1 0.000000000 0.000000000 0.111059710
ATOM= 10 O 4a 1 0.000000000 0.333333333 0.110559441
ATOM= 11 O 4a 1 0.666666667 0.000000000 0.258639055
ATOM= 12 O 4a 1 0.666666667 0.333333333 0.258639056
ATOM= 13 O 4a 1 0.166666667 0.166666667 0.258639055
ATOM= 14 H 4a 1 0.666666667 0.000000000 0.322673483
ATOM= 15 H 4a 1 0.666666667 0.333333333 0.322673483
ATOM= 16 H 4a 1 0.166666667 0.166666667 0.322673483
ATOM= 17 H 4a 1 0.000000000 0.333333333 0.051027435

```

Optimized model:

```

SPGNAM= Cc
CELEDG= 5.082250196 8.774299922 14.081943278
CELANG= 90.000000000 88.700271672 90.000000000
ATOM= 1 Si 4a 1 0.000000000 0.656839896 0.000000000
ATOM= 2 Si 4a 1 0.993737382 0.988857268 -0.000007650
ATOM= 3 Al 4a 1 0.834717419 0.144091323 0.194773844
ATOM= 4 Al 4a 1 0.329793393 0.307191481 0.194750914
ATOM= 5 O 4a 1 0.216701658 0.459033853 0.452992161
ATOM= 6 O 4a 1 0.064163033 0.176709325 0.453693354
ATOM= 7 O 4a 1 0.719486832 0.397704711 0.460187772
ATOM= 8 O 4a 1 0.517357015 0.160400295 0.114266126
ATOM= 9 O 4a 1 0.965641686 0.978650250 0.114404131
ATOM= 10 O 4a 1 0.023481605 0.290289894 0.117773794
ATOM= 11 O 4a 1 0.694941916 0.976950951 0.259478987
ATOM= 12 O 4a 1 0.639763436 0.290170201 0.262081612
ATOM= 13 O 4a 1 0.148550918 0.155154334 0.262202870
ATOM= 14 H 4a 1 0.689789329 0.980236683 0.329017258
ATOM= 15 H 4a 1 0.725838015 0.385070085 0.279468952
ATOM= 16 H 4a 1 0.142361121 0.161881936 0.331632461
ATOM= 17 H 4a 1 0.930219383 0.387446357 0.119303501

```

Free energy: -115.319 eV/f.u.

Residual pressure = -0.020 GPa.

Table S1.11(a). Repeated operation [K11]: rotation by 0, translation by $a/3$.

Ideal model:

| | | | | | | |
|---------|--------------|--------------|---------------|---|-------------|-------------|
| SPGNAM= | P1 | | | | | |
| CELEDG= | 5.326700000 | 5.326700000 | 7.468045407 | | | |
| CELANG= | 96.827330268 | 76.245911473 | 120.000000000 | | | |
| ATOM= | 1 | Si | 1a | 1 | 0.000000000 | 0.000000000 |
| ATOM= | 2 | Si | 1a | 1 | 0.333333333 | 0.666666667 |
| ATOM= | 3 | Al | 1a | 1 | 0.874333333 | 0.333333333 |
| ATOM= | 4 | Al | 1a | 1 | 0.541000000 | 0.666666667 |
| ATOM= | 5 | O | 1a | 1 | 0.194666667 | 0.333333333 |
| ATOM= | 6 | O | 1a | 1 | 0.694666667 | 0.833333333 |
| ATOM= | 7 | O | 1a | 1 | 0.194666667 | 0.833333333 |
| ATOM= | 8 | O | 1a | 1 | 0.926000000 | 0.000000000 |
| ATOM= | 9 | O | 1a | 1 | 0.259333333 | 0.666666667 |
| ATOM= | 10 | O | 1a | 1 | 0.593000000 | 0.333333333 |
| ATOM= | 11 | O | 1a | 1 | 0.161000000 | 0.333333333 |
| ATOM= | 12 | O | 1a | 1 | 0.494333333 | 0.000000000 |
| ATOM= | 13 | O | 1a | 1 | 0.827666667 | 0.666666667 |
| ATOM= | 14 | H | 1a | 1 | 0.118333333 | 0.333333333 |
| ATOM= | 15 | H | 1a | 1 | 0.451666667 | 0.000000000 |
| ATOM= | 16 | H | 1a | 1 | 0.785000000 | 0.666666667 |
| ATOM= | 17 | H | 1a | 1 | 0.632666667 | 0.333333333 |

Optimized model:

| | | | | | | |
|---------|--------------|--------------|---------------|---|-------------|-------------|
| SPGNAM= | P1 | | | | | |
| CELEDG= | 5.112079980 | 5.113179320 | 7.240016392 | | | |
| CELANG= | 95.659227444 | 74.141300845 | 119.824456162 | | | |
| ATOM= | 1 | Si | 1a | 1 | 0.000000000 | 0.000000000 |
| ATOM= | 2 | Si | 1a | 1 | 0.341957657 | 0.657560209 |
| ATOM= | 3 | Al | 1a | 1 | 0.863218114 | 0.330616943 |
| ATOM= | 4 | Al | 1a | 1 | 0.534875347 | 0.658671166 |
| ATOM= | 5 | O | 1a | 1 | 0.161060109 | 0.336751705 |
| ATOM= | 6 | O | 1a | 1 | 0.715455347 | 0.788328314 |
| ATOM= | 7 | O | 1a | 1 | 0.261083202 | 0.892895784 |
| ATOM= | 8 | O | 1a | 1 | 0.886726040 | 0.000027663 |
| ATOM= | 9 | O | 1a | 1 | 0.262143254 | 0.623232081 |
| ATOM= | 10 | O | 1a | 1 | 0.641809789 | 0.380655674 |
| ATOM= | 11 | O | 1a | 1 | 0.143111616 | 0.363617036 |
| ATOM= | 12 | O | 1a | 1 | 0.520559983 | 0.983253221 |
| ATOM= | 13 | O | 1a | 1 | 0.762940515 | 0.606686025 |
| ATOM= | 14 | H | 1a | 1 | 0.104450092 | 0.317948158 |
| ATOM= | 15 | H | 1a | 1 | 0.424975563 | 0.972988729 |
| ATOM= | 16 | H | 1a | 1 | 0.806192483 | 0.698677781 |
| ATOM= | 17 | H | 1a | 1 | 0.448805707 | 0.189910303 |

Free energy: -115.451 eV/f.u.

Residual pressure = -0.018 GPa.

Table S1.11(b). Stacking operation [K11], then enantiomorph of [K11]: translation by $a/3$, rotation by 0; then translation by $b/3$ rotation by 0.

Ideal model:

```

SPGNAM= Cc
CELEDG=      5.326700000      9.226115037      14.608307123 Angstroms
CELANG=      90.000000000      96.981277219      90.000000000 degrees.
ATOM=   1  Si   4a   1           0.000000000      0.250000000      0.066465529
ATOM=   2  Si   4a   1           0.500000000      0.083333333      0.066465529
ATOM=   3  Al   4a   1          -0.103799534      0.083333333      0.255066929
ATOM=   4  Al   4a   1          -0.103799534      0.750000000      0.255066929
ATOM=   5  O    4a   1           0.037019903      0.250000000      0.177525239
ATOM=   6  O    4a   1           0.037019903      0.583333333      0.177525239
ATOM=   7  O    4a   1           0.735992469      0.166666667      0.024442936
ATOM=   8  O    4a   1           0.235992468      0.166666667      0.024442936
ATOM=   9  O    4a   1          -0.014007531      0.416666667      0.024442936
ATOM=  10  O    4a   1           0.752879684      0.250000000      0.325104584
ATOM=  11  O    4a   1           0.252879685      0.083333333      0.325104585
ATOM=  12  O    4a   1           0.752879685      0.916666667      0.325104584
ATOM=  13  O    4a   1           0.036853147      0.916666667      0.177024970
ATOM=  14  H    4a   1          -0.225775507      0.250000000      0.389139012
ATOM=  15  H    4a   1          -0.225775506      0.583333333      0.389139012
ATOM=  16  H    4a   1          -0.225775506      0.916666667      0.389139012
ATOM=  17  H    4a   1           0.017009145      0.916666667      0.117492964

```

Optimized model:

```

SPGNAM= Cc
CELEDG=      5.128428471      8.841978466      14.118108926
CELANG=      90.000000000      99.257500705      90.000000000
ATOM=   1  Si   4a   1          -0.013361758      0.241960617      0.063900603
ATOM=   2  Si   4a   1           0.486196913      0.083714327      0.064197116
ATOM=   3  Al   4a   1          -0.121324954      0.078211059      0.261672010
ATOM=   4  Al   4a   1          -0.122165364      0.749525626      0.259573780
ATOM=   5  O    4a   1           0.036880928      0.225295798      0.178705723
ATOM=   6  O    4a   1           0.035983224      0.600950292      0.178758824
ATOM=   7  O    4a   1           0.737835104      0.137195586      0.015086883
ATOM=   8  O    4a   1           0.239628232      0.188905701      0.014078226
ATOM=   9  O    4a   1          -0.089763989      0.413165507      0.026172935
ATOM=  10  O    4a   1           0.717594598      0.224265465      0.325161782
ATOM=  11  O    4a   1           0.218334706      0.103696263      0.325013809
ATOM=  12  O    4a   1           0.786176001      0.913660896      0.328921540
ATOM=  13  O    4a   1          -0.032725837      0.914165255      0.181075968
ATOM=  14  H    4a   1          -0.238597400      0.254375244      0.392152514
ATOM=  15  H    4a   1          -0.228514456      0.582836682      0.393007368
ATOM=  16  H    4a   1          -0.269236953      0.909981851      0.391539221
ATOM=  17  H    4a   1           0.158947509      0.914124553      0.184741064

```

Free energy: -115.437 eV/f.u.

Residual pressure = -0.159 GPa.

Table S1.12(a). Repeated operation [K12]: rotation by $\pi/3$, translation by $a/3$.

Ideal model:

```
SPGNAM= P61
CELEDG= 5.326700000 5.326700000 43.523400000
CELANG= 90.000000000 90.000000000 120.000000000
ATOM= 1 Si 6a 1 0.666666667 0.666666667 0.000000000
ATOM= 2 Si 6a 1 0.000000000 0.333333333 0.000000000
ATOM= 3 Al 6a 1 0.333333333 0.333333333 0.062833333
ATOM= 4 Al 6a 1 0.000000000 0.666666667 0.062833333
ATOM= 5 O 6a 1 0.666666667 0.666666667 0.037000000
ATOM= 6 O 6a 1 0.000000000 0.333333333 0.037000000
ATOM= 7 O 6a 1 0.833333333 0.333333333 0.152666667
ATOM= 8 O 6a 1 0.333333333 0.833333333 0.152666667
ATOM= 9 O 6a 1 0.833333333 0.833333333 0.152666667
ATOM= 10 O 6a 1 0.333333333 0.666666667 0.086166667
ATOM= 11 O 6a 1 0.666666667 0.333333333 0.086166667
ATOM= 12 O 6a 1 0.000000000 0.000000000 0.086166667
ATOM= 13 O 6a 1 0.333333333 0.000000000 0.036833333
ATOM= 14 H 6a 1 0.333333333 0.666666667 0.107500000
ATOM= 15 H 6a 1 0.666666667 0.333333333 0.107500000
ATOM= 16 H 6a 1 0.000000000 0.000000000 0.107500000
ATOM= 17 H 6a 1 0.333333333 0.000000000 0.017000000
```

Optimized model:

```
SPGNAM= P61
CELEDG= 5.149883360 5.149883360 41.387766312
CELANG= 90.000000000 90.000000000 120.000000000
ATOM= 1 Si 6a 1 0.670913229 0.656638104 0.000000000
ATOM= 2 Si 6a 1 0.012917208 0.339884256 0.000484685
ATOM= 3 Al 6a 1 0.314031044 0.329756295 0.066737837
ATOM= 4 Al 6a 1 0.985177877 0.672831184 0.065912473
ATOM= 5 O 6a 1 0.654012169 0.624727290 0.038672781
ATOM= 6 O 6a 1 0.028352826 0.374456547 0.039046804
ATOM= 7 O 6a 1 0.272775144 0.002493313 0.039507085
ATOM= 8 O 6a 1 0.849970289 0.340204889 0.149936335
ATOM= 9 O 6a 1 0.344257022 0.849966250 0.149966054
ATOM= 10 O 6a 1 0.829062499 0.828389678 0.153679712
ATOM= 11 O 6a 1 0.270600480 0.621276563 0.087725440
ATOM= 12 O 6a 1 0.653006227 0.385028462 0.088049690
ATOM= 13 O 6a 1 0.029146555 0.000105383 0.089136968
ATOM= 14 H 6a 1 0.339987490 0.703847365 0.109200385
ATOM= 15 H 6a 1 0.670576734 0.322998341 0.109742816
ATOM= 16 H 6a 1 0.955162528 0.986894407 0.110962983
ATOM= 17 H 6a 1 0.461625373 0.001932766 0.041230541
```

Free energy: -115.410 eV/f.u.

Residual pressure = -0.066 GPa.

Table S1.12(b). Stacking [K12], then enantiomorph of [K12]: rotation by $\pi/3$, translation by $a/3$; rotation by $-\pi/3$, then translation by $b/3$.

Ideal model:

| | | | | | | | |
|---------|--------------|--------------|--------------|---|-------------|-------------|-------------|
| SPGNAM= | Cc | | | | | | |
| CELEDG= | 9.226115037 | 5.326700000 | 14.500000000 | | | | |
| CELANG= | 90.000000000 | 90.000000000 | 90.000000000 | | | | |
| ATOM= | 1 | Si | 4a | 1 | 0.000000000 | 0.333333333 | 0.000000000 |
| ATOM= | 2 | Si | 4a | 1 | 0.166666667 | 0.833333333 | 0.000000000 |
| ATOM= | 3 | Al | 4a | 1 | 0.333333333 | 0.666666667 | 0.188601400 |
| ATOM= | 4 | Al | 4a | 1 | 0.166666667 | 0.166666667 | 0.188601400 |
| ATOM= | 5 | O | 4a | 1 | 0.333333333 | 0.166666667 | 0.457977407 |
| ATOM= | 6 | O | 4a | 1 | 0.083333333 | 0.916666667 | 0.457977407 |
| ATOM= | 7 | O | 4a | 1 | 0.083333333 | 0.416666667 | 0.457977407 |
| ATOM= | 8 | O | 4a | 1 | 0.000000000 | 0.333333333 | 0.111059710 |
| ATOM= | 9 | O | 4a | 1 | 0.166666667 | 0.833333333 | 0.111059710 |
| ATOM= | 10 | O | 4a | 1 | 0.333333333 | 0.333333333 | 0.110559441 |
| ATOM= | 11 | O | 4a | 1 | 0.333333333 | 1.000000000 | 0.258639055 |
| ATOM= | 12 | O | 4a | 1 | 0.000000000 | 0.000000000 | 0.258639056 |
| ATOM= | 13 | O | 4a | 1 | 0.166666667 | 0.500000000 | 0.258639055 |
| ATOM= | 14 | H | 4a | 1 | 0.333333333 | 1.000000000 | 0.322673483 |
| ATOM= | 15 | H | 4a | 1 | 0.000000000 | 0.000000000 | 0.322673483 |
| ATOM= | 16 | H | 4a | 1 | 0.166666667 | 0.500000000 | 0.322673483 |
| ATOM= | 17 | H | 4a | 1 | 0.333333333 | 0.333333333 | 0.051027435 |

Optimized model:

| | | | | | | | |
|---------|--------------|--------------|--------------|---|--------------|-------------|-------------|
| SPGNAM= | Cc | | | | | | |
| CELEDG= | 8.894499933 | 5.111387596 | 13.918648440 | | | | |
| CELANG= | 90.000000000 | 91.512586885 | 90.000000000 | | | | |
| ATOM= | 1 | Si | 4a | 1 | -0.000339727 | 0.324508410 | 0.000000000 |
| ATOM= | 2 | Si | 4a | 1 | 0.169803357 | 0.833744761 | 0.999044906 |
| ATOM= | 3 | Al | 4a | 1 | 0.325937363 | 0.673189480 | 0.197548823 |
| ATOM= | 4 | Al | 4a | 1 | 0.161693237 | 0.181249800 | 0.196019950 |
| ATOM= | 5 | O | 4a | 1 | 0.333632475 | 0.124545323 | 0.450721006 |
| ATOM= | 6 | O | 4a | 1 | 0.060163713 | 0.943826453 | 0.450567682 |
| ATOM= | 7 | O | 4a | 1 | 0.104866420 | 0.443634538 | 0.458824056 |
| ATOM= | 8 | O | 4a | 1 | 0.994387763 | 0.304912950 | 0.114876965 |
| ATOM= | 9 | O | 4a | 1 | 0.179774789 | 0.858716451 | 0.114107771 |
| ATOM= | 10 | O | 4a | 1 | 0.305247673 | 0.363859655 | 0.118149193 |
| ATOM= | 11 | O | 4a | 1 | 0.306952727 | 0.986135819 | 0.260884908 |
| ATOM= | 12 | O | 4a | 1 | 0.998019362 | 0.057246346 | 0.260848943 |
| ATOM= | 13 | O | 4a | 1 | 0.186622943 | 0.487096290 | 0.265503931 |
| ATOM= | 14 | H | 4a | 1 | 0.333083630 | 0.020362263 | 0.328093520 |
| ATOM= | 15 | H | 4a | 1 | 0.005363573 | 0.996209507 | 0.327058118 |
| ATOM= | 16 | H | 4a | 1 | 0.151140381 | 0.515418292 | 0.329939582 |
| ATOM= | 17 | H | 4a | 1 | 0.399857136 | 0.268273395 | 0.126420014 |

Free energy: -115.419 eV/f.u.

Residual pressure = 0.023 GPa.

Table S1.13(a). Repeated operation [K13]: rotation by $2\pi/3$, translation by $a/3$.

Ideal model:

```
SPGNAM= P31
CELEDG= 5.326700000 5.326700000 21.750000000
CELANG= 90.000000000 90.000000000 120.000000000
ATOM= 1 Si 3a 1 0.444444444 0.222222222 0.000000000
ATOM= 2 Si 3a 1 0.777777778 0.888888889 0.000000000
ATOM= 3 Al 3a 1 0.444444444 0.555555556 0.125734266
ATOM= 4 Al 3a 1 0.111111111 0.888888888 0.125734266
ATOM= 5 O 3a 1 0.444444444 0.055555556 0.305318270
ATOM= 6 O 3a 1 0.944444444 0.055555556 0.305318270
ATOM= 7 O 3a 1 0.944444444 0.555555556 0.305318270
ATOM= 8 O 3a 1 0.444444444 0.222222222 0.074039806
ATOM= 9 O 3a 1 0.777777778 0.888888888 0.074039806
ATOM= 10 O 3a 1 0.111111111 0.555555556 0.073706294
ATOM= 11 O 3a 1 0.777777778 0.555555556 0.172426036
ATOM= 12 O 3a 1 0.111111111 0.222222222 0.172426036
ATOM= 13 O 3a 1 0.444444444 0.888888889 0.172426036
ATOM= 14 H 3a 1 0.777777778 0.555555556 0.215115655
ATOM= 15 H 3a 1 0.111111111 0.222222222 0.215115655
ATOM= 16 H 3a 1 0.444444444 0.888888889 0.215115655
ATOM= 17 H 3a 1 0.111111111 0.555555556 0.034018289
```

Optimized model:

```
SPGNAM= P31
CELEDG= 5.116962022 5.116962022 20.862607928
CELANG= 90.000000000 90.000000000 120.000000000
ATOM= 1 Si 3a 1 0.435270138 0.177554852 0.000735766
ATOM= 2 Si 3a 1 0.774618553 0.835188401 -0.000007190
ATOM= 3 Al 3a 1 0.461717646 0.538687458 0.132228915
ATOM= 4 Al 3a 1 0.132642747 0.865891882 0.131458637
ATOM= 5 O 3a 1 0.492908127 0.048857936 0.300538649
ATOM= 6 O 3a 1 0.041480246 0.149218558 0.301044338
ATOM= 7 O 3a 1 0.933003787 0.598095062 0.308402958
ATOM= 8 O 3a 1 0.418459643 0.195734130 0.077217575
ATOM= 9 O 3a 1 0.791076037 0.818128404 0.076674019
ATOM= 10 O 3a 1 0.174398049 0.578733319 0.078975745
ATOM= 11 O 3a 1 0.794970502 0.579654017 0.175637198
ATOM= 12 O 3a 1 0.173105719 0.199726079 0.173998381
ATOM= 13 O 3a 1 0.416428338 0.822233184 0.177529100
ATOM= 14 H 3a 1 0.804471102 0.557494074 0.221732586
ATOM= 15 H 3a 1 0.110508622 0.200114216 0.218106960
ATOM= 16 H 3a 1 0.500357003 0.920869754 0.218212412
ATOM= 17 H 3a 1 0.984684369 0.387320604 0.081032535
```

Free energy: -115.439 eV/f.u.

Residual pressure = -0.015 GPa.

Table S1.13(b). Stacking [K13], then enantiomorph of [K3]: rotation by $2\pi/3$, translation by $a/3$; rotation by $-2\pi/3$, translation by $b/3$.

Ideal model:

| | | | | | | | |
|---------|--------------|--------------|--------------|---|-------------|-------------|-------------|
| SPGNAM= | Cc | | | | | | |
| CELEDG= | 5.326700000 | 9.226115037 | 14.608307123 | | | | |
| CELANG= | 90.000000000 | 96.981277219 | 90.000000000 | | | | |
| ATOM= | 1 | Si | 4a | 1 | 0.000000000 | 0.250000000 | 0.000000000 |
| ATOM= | 2 | Si | 4a | 1 | 0.500000000 | 0.416666667 | 0.000000000 |
| ATOM= | 3 | Al | 4a | 1 | 0.896200466 | 0.416666667 | 0.188601400 |
| ATOM= | 4 | Al | 4a | 1 | 0.896200466 | 0.083333333 | 0.188601400 |
| ATOM= | 5 | O | 4a | 1 | 0.235992468 | 0.166666667 | 0.457977407 |
| ATOM= | 6 | O | 4a | 1 | 0.485992468 | 0.416666667 | 0.457977407 |
| ATOM= | 7 | O | 4a | 1 | 0.735992468 | 0.166666667 | 0.457977407 |
| ATOM= | 8 | O | 4a | 1 | 0.537019903 | 0.416666667 | 0.111059710 |
| ATOM= | 9 | O | 4a | 1 | 0.037019902 | 0.250000000 | 0.111059710 |
| ATOM= | 10 | O | 4a | 1 | 0.536853146 | 0.083333333 | 0.110559441 |
| ATOM= | 11 | O | 4a | 1 | 0.752879684 | 0.250000000 | 0.258639055 |
| ATOM= | 12 | O | 4a | 1 | 0.252879685 | 0.083333333 | 0.258639056 |
| ATOM= | 13 | O | 4a | 1 | 0.252879684 | 0.416666667 | 0.258639055 |
| ATOM= | 14 | H | 4a | 1 | 0.774224493 | 0.250000000 | 0.322673483 |
| ATOM= | 15 | H | 4a | 1 | 0.274224494 | 0.083333333 | 0.322673483 |
| ATOM= | 16 | H | 4a | 1 | 0.274224493 | 0.416666667 | 0.322673483 |
| ATOM= | 17 | H | 4a | 1 | 0.517009144 | 0.083333333 | 0.051027435 |

Optimized model:

| | | | | | | | |
|---------|--------------|--------------|--------------|---|-------------|-------------|-------------|
| SPGNAM= | Cc | | | | | | |
| CELEDG= | 5.114341298 | 8.866797032 | 13.964246946 | | | | |
| CELANG= | 90.000000000 | 94.515385296 | 90.000000000 | | | | |
| ATOM= | 1 | Si | 4a | 1 | 0.000000000 | 0.258325525 | 0.000000000 |
| ATOM= | 2 | Si | 4a | 1 | 0.513024262 | 0.428949708 | 0.999464281 |
| ATOM= | 3 | Al | 4a | 1 | 0.901211493 | 0.414174362 | 0.197536185 |
| ATOM= | 4 | Al | 4a | 1 | 0.892763856 | 0.078658618 | 0.196209154 |
| ATOM= | 5 | O | 4a | 1 | 0.272255838 | 0.132532638 | 0.450207905 |
| ATOM= | 6 | O | 4a | 1 | 0.446004124 | 0.406865071 | 0.450627332 |
| ATOM= | 7 | O | 4a | 1 | 0.777948965 | 0.186538611 | 0.461811828 |
| ATOM= | 8 | O | 4a | 1 | 0.562776467 | 0.436727038 | 0.114199358 |
| ATOM= | 9 | O | 4a | 1 | 0.998836905 | 0.249931288 | 0.114703049 |
| ATOM= | 10 | O | 4a | 1 | 0.567836811 | 0.057907043 | 0.117627960 |
| ATOM= | 11 | O | 4a | 1 | 0.789548528 | 0.247414032 | 0.262448434 |
| ATOM= | 12 | O | 4a | 1 | 0.219691024 | 0.057781857 | 0.260381386 |
| ATOM= | 13 | O | 4a | 1 | 0.222741439 | 0.436319901 | 0.265027071 |
| ATOM= | 14 | H | 4a | 1 | 0.773718282 | 0.243441909 | 0.331335513 |
| ATOM= | 15 | H | 4a | 1 | 0.266167734 | 0.091714065 | 0.325873865 |
| ATOM= | 16 | H | 4a | 1 | 0.289365380 | 0.399104658 | 0.327686749 |
| ATOM= | 17 | H | 4a | 1 | 0.471760883 | 0.152634598 | 0.121062897 |

Free energy: -115.443 eV/f.u.

Residual pressure = 0.019 GPa.

Table S1.14(a). Repeated operation [K14]: rotation by π , translation by $a/3$.

Ideal model:

```
SPGNAM= P21
CELEDG=      5.326700000      14.500000000      5.326700000
CELANG=      90.000000000     120.000000000     90.000000000
ATOM=   1  Si   2a   1           0.166666667      0.000000000      0.166666667
ATOM=   2  Si   2a   1           0.833333333      0.000000000      0.500000000
ATOM=   3  Al   2a   1           0.500000000      0.188601400      0.166666667
ATOM=   4  Al   2a   1           0.833333333      0.188601400      0.833333333
ATOM=   5  O    2a   1           0.500000000      0.457977407      0.666666667
ATOM=   6  O    2a   1           0.000000000      0.457977407      0.166666667
ATOM=   7  O    2a   1           0.000000000      0.457977407      0.666666667
ATOM=   8  O    2a   1           0.166666667      0.111059710      0.166666667
ATOM=   9  O    2a   1           0.833333333      0.111059710      0.500000000
ATOM=  10  O    2a   1           0.500000000      0.110559441      0.833333333
ATOM=  11  O    2a   1           0.500000000      0.258639055      0.500000000
ATOM=  12  O    2a   1           0.166666667      0.258639055      0.833333333
ATOM=  13  O    2a   1           0.833333333      0.258639055      0.166666667
ATOM=  14  H    2a   1           0.500000000      0.322673483      0.500000000
ATOM=  15  H    2a   1           0.166666667      0.322673483      0.833333333
ATOM=  16  H    2a   1           0.833333333      0.322673483      0.166666667
ATOM=  17  H    2a   1           0.500000000      0.051027435      0.833333333
```

Optimized model:

```
SPGNAM= P21
CELEDG=      5.113081614      13.897694906      5.108530059
CELANG=      90.000000000     119.640365618     90.000000000
ATOM=   1  Si   2a   1           0.132416201      0.000000000      0.120093331
ATOM=   2  Si   2a   1           0.790750597      0.000974262      0.460738862
ATOM=   3  Al   2a   1           0.493987632      0.198671076      0.151884167
ATOM=   4  Al   2a   1           0.822834175      0.197110386      0.823148324
ATOM=   5  O    2a   1           0.539180967      0.451953367      0.660022555
ATOM=   6  O    2a   1           0.993029250      0.451618059      0.212203833
ATOM=   7  O    2a   1           0.085357437      0.459902167      0.755910803
ATOM=   8  O    2a   1           0.151673548      0.115284586      0.109905663
ATOM=   9  O    2a   1           0.781173679      0.116065291      0.480326273
ATOM=  10  O    2a   1           0.528125657      0.119342813      0.857929676
ATOM=  11  O    2a   1           0.537245782      0.262785305      0.486482714
ATOM=  12  O    2a   1           0.156135726      0.262564406      0.865393729
ATOM=  13  O    2a   1           0.778111135      0.265983678      0.106709162
ATOM=  14  H    2a   1           0.503906584      0.330870697      0.504543738
ATOM=  15  H    2a   1           0.153896762      0.330854148      0.821643049
ATOM=  16  H    2a   1           0.880484705      0.325579172      0.201112383
ATOM=  17  H    2a   1           0.339483313      0.127354213      0.668714924
```

Free energy: -115.405 eV/f.u.

Residual pressure = -0.009 GPa.

Table S1.14(b). Stacking operation [K14, then enantiomorph of [K14]: Rotation by π , translation by $a/3$; then rotation by π , translation by $b/3$.

Ideal model:

```

SPGNAM= Cc
CELEDG=      9.226115037      5.326700000      14.822547384
CELANG=      90.000000000     101.974673248     90.000000000
ATOM=   1  Si   4a   1           0.000000000      0.083333333      0.000000000
ATOM=   2  Si   4a   1           0.166666667     -0.416666667      0.000000000
ATOM=   3  Al   4a   1           0.229533800      0.916666667      0.188601400
ATOM=   4  Al   4a   1           0.062867133      0.416666667      0.188601400
ATOM=   5  O    4a   1           0.037019903      0.083333333      0.111059710
ATOM=   6  O    4a   1           0.203686569     -0.416666667      0.111059710
ATOM=   7  O    4a   1           0.069325802      0.833333333     -0.042022593
ATOM=   8  O    4a   1           0.069325802      0.333333333      0.957977407
ATOM=   9  O    4a   1           0.319325802      0.583333333     -0.042022593
ATOM=  10  O    4a   1           0.086213018      0.750000000      0.258639055
ATOM=  11  O    4a   1           0.252879685      0.250000000      0.258639056
ATOM=  12  O    4a   1           0.919546351      0.250000000      0.258639055
ATOM=  13  O    4a   1           0.370186480      0.083333333      0.110559441
ATOM=  14  H    4a   1           0.107557827      0.750000000      0.322673483
ATOM=  15  H    4a   1           0.274224494      0.250000000      0.322673483
ATOM=  16  H    4a   1           0.940891160      0.250000000      0.322673483
ATOM=  17  H    4a   1           0.350342478      0.083333333      0.051027435

```

Optimized model: job kaolinite/0149

```

SPGNAM= Cc
CELEDG=      8.874199950      5.168566813      14.175604944
CELANG=      90.000000000     102.342755325     90.000000000
ATOM=   1  Si   4a   1           0.000000000      0.103326192      0.000000000
ATOM=   2  Si   4a   1           0.158322635     -0.396619524     -0.001081630
ATOM=   3  Al   4a   1           0.232234706      0.906199407      0.197924130
ATOM=   4  Al   4a   1           0.060944150      0.407901900      0.195714232
ATOM=   5  O    4a   1           0.054723194      0.098446678      0.115295738
ATOM=   6  O    4a   1           0.181622673     -0.399924123      0.114453394
ATOM=   7  O    4a   1           0.051741602      0.844729814     -0.049807469
ATOM=   8  O    4a   1           0.073165741      0.341897138      0.949679841
ATOM=   9  O    4a   1           0.315436109      0.622923560     -0.041533136
ATOM=  10  O    4a   1           0.109630067      0.716326695      0.261782843
ATOM=  11  O    4a   1           0.228870145      0.219346998      0.261576843
ATOM=  12  O    4a   1           0.920551012      0.288464581      0.264639128
ATOM=  13  O    4a   1           0.368211269      0.031465083      0.116774013
ATOM=  14  H    4a   1           0.096250338      0.733019915      0.327973980
ATOM=  15  H    4a   1           0.277451975      0.254809425      0.328464077
ATOM=  16  H    4a   1           0.948707387      0.208452062      0.328077766
ATOM=  17  H    4a   1           0.370958964      0.219542364      0.124378078

```

Free energy: -115.427 eV/f.u.

Residual pressure = 0.078 GPa.

Table S1.15(a). Repeated operation [K15]: rotation by $\pi/3$, translation by $b/3$.

Ideal model:

```
SPGNAM= P61
CELEDG= 5.326700000 5.326700000 43.500000000
CELANG= 90.000000000 90.000000000 120.000000000
ATOM= 1 Si 6a 1 0.333333333 0.000000000 0.000000000
ATOM= 2 Si 6a 1 0.666666667 0.666666667 0.000000000
ATOM= 3 Al 6a 1 0.000000000 0.666666667 0.062867133
ATOM= 4 Al 6a 1 0.666666667 0.000000000 0.062867133
ATOM= 5 O 6a 1 0.166666667 0.000000000 0.152659136
ATOM= 6 O 6a 1 0.666666667 0.500000000 0.152659136
ATOM= 7 O 6a 1 0.166666667 0.500000000 0.152659136
ATOM= 8 O 6a 1 0.333333333 0.000000000 0.037019903
ATOM= 9 O 6a 1 0.666666667 0.666666667 0.037019903
ATOM= 10 O 6a 1 0.000000000 0.333333333 0.036853147
ATOM= 11 O 6a 1 0.000000000 0.000000000 0.086213018
ATOM= 12 O 6a 1 0.333333333 0.666666667 0.086213019
ATOM= 13 O 6a 1 0.666666667 0.333333333 0.086213019
ATOM= 14 H 6a 1 0.000000000 0.000000000 0.107557827
ATOM= 15 H 6a 1 0.333333333 0.666666667 0.107557828
ATOM= 16 H 6a 1 0.666666667 0.333333333 0.107557828
ATOM= 17 H 6a 1 0.000000000 0.333333333 0.017009145
```

Optimized model:

```
SPGNAM= P61
CELEDG= 5.147891495 5.147891495 41.406002892
CELANG= 90.000000000 90.000000000 120.000000000
ATOM= 1 Si 6a 1 0.346582100 0.999954065 0.000000000
ATOM= 2 Si 6a 1 0.687852851 0.681953868 -0.000524803
ATOM= 3 Al 6a 1 0.984516929 0.663132391 0.065326035
ATOM= 4 Al 6a 1 0.656740190 0.006502617 0.066109979
ATOM= 5 O 6a 1 0.185722606 0.017906311 0.149432198
ATOM= 6 O 6a 1 0.674473674 0.526855564 0.149646901
ATOM= 7 O 6a 1 0.161140635 0.501096317 0.152939901
ATOM= 8 O 6a 1 0.326701936 0.962905520 0.038544170
ATOM= 9 O 6a 1 0.700939788 0.710909469 0.038163790
ATOM= 10 O 6a 1 0.943476691 0.334531514 0.038795099
ATOM= 11 O 6a 1 0.940588441 0.951643139 0.087370665
ATOM= 12 O 6a 1 0.321445117 0.715063608 0.087380567
ATOM= 13 O 6a 1 0.701703958 0.335619396 0.088351924
ATOM= 14 H 6a 1 0.022013490 0.017161616 0.108940001
ATOM= 15 H 6a 1 0.311825558 0.641507094 0.109179580
ATOM= 16 H 6a 1 0.641627955 0.352917839 0.110113019
ATOM= 17 H 6a 1 0.132518195 0.334338612 0.040600393
```

Free energy: 115.399 eV/f.u.

Residual pressure = -0.029 GPa.

Table S1.15(b). Stacking [K15], then enantiomorph of [K15]: rotation by $\pi/3$, translation by $b/3$; then rotation by $-\pi/3$, translation by $a/3$.

Ideal model:

| | | | | | | | |
|---------|--------------|---------------|--------------|---|-------------|-------------|-------------|
| SPGNAM= | Cc | | | | | | |
| CELEDG= | 9.226115037 | 5.326700000 | 14.822547384 | | | | |
| CELANG= | 90.000000000 | 101.974673248 | 90.000000000 | | | | |
| ATOM= | 1 | Si | 4a | 1 | 0.000000000 | 0.083333333 | 0.000000000 |
| ATOM= | 2 | Si | 4a | 1 | 0.166666667 | 0.583333333 | 0.000000000 |
| ATOM= | 3 | Al | 4a | 1 | 0.396200467 | 0.416666667 | 0.188601400 |
| ATOM= | 4 | Al | 4a | 1 | 0.229533800 | 0.916666667 | 0.188601400 |
| ATOM= | 5 | O | 4a | 1 | 0.319325802 | 0.416666667 | 0.457977407 |
| ATOM= | 6 | O | 4a | 1 | 0.069325802 | 0.166666667 | 0.457977407 |
| ATOM= | 7 | O | 4a | 1 | 0.069325802 | 0.666666667 | 0.457977407 |
| ATOM= | 8 | O | 4a | 1 | 0.037019903 | 0.083333333 | 0.111059710 |
| ATOM= | 9 | O | 4a | 1 | 0.203686570 | 0.583333333 | 0.111059710 |
| ATOM= | 10 | O | 4a | 1 | 0.370186481 | 0.083333333 | 0.110559441 |
| ATOM= | 11 | O | 4a | 1 | 0.419546352 | 0.750000000 | 0.258639055 |
| ATOM= | 12 | O | 4a | 1 | 0.086213018 | 0.750000000 | 0.258639056 |
| ATOM= | 13 | O | 4a | 1 | 0.252879685 | 0.250000000 | 0.258639055 |
| ATOM= | 14 | H | 4a | 1 | 0.440891161 | 0.750000000 | 0.322673483 |
| ATOM= | 15 | H | 4a | 1 | 0.107557828 | 0.750000000 | 0.322673483 |
| ATOM= | 16 | H | 4a | 1 | 0.274224495 | 0.200000000 | 0.322673483 |
| ATOM= | 17 | H | 4a | 1 | 0.350342478 | 0.083333333 | 0.051027435 |

Optimized model:

| | | | | | | | |
|---------|--------------|---------------|--------------|---|-------------|-------------|-------------|
| SPGNAM= | Cc | | | | | | |
| CELEDG= | 8.892464451 | 5.116699886 | 14.309188235 | | | | |
| CELANG= | 90.000000000 | 103.760440334 | 90.000000000 | | | | |
| ATOM= | 1 | Si | 4a | 1 | 0.000000000 | 0.050845272 | 0.000000000 |
| ATOM= | 2 | Si | 4a | 1 | 0.170562569 | 0.560398305 | 0.001015302 |
| ATOM= | 3 | Al | 4a | 1 | 0.394624924 | 0.401612376 | 0.197258961 |
| ATOM= | 4 | Al | 4a | 1 | 0.230446285 | 0.910401244 | 0.198588024 |
| ATOM= | 5 | O | 4a | 1 | 0.316711142 | 0.400455381 | 0.451751229 |
| ATOM= | 6 | O | 4a | 1 | 0.045259830 | 0.217679369 | 0.451321411 |
| ATOM= | 7 | O | 4a | 1 | 0.091915914 | 0.716102180 | 0.459840603 |
| ATOM= | 8 | O | 4a | 1 | 0.034676535 | 0.030380910 | 0.115319618 |
| ATOM= | 9 | O | 4a | 1 | 0.218936821 | 0.586241134 | 0.116011385 |
| ATOM= | 10 | O | 4a | 1 | 0.347165263 | 0.090652180 | 0.119251509 |
| ATOM= | 11 | O | 4a | 1 | 0.397640907 | 0.714403820 | 0.261396474 |
| ATOM= | 12 | O | 4a | 1 | 0.088568780 | 0.786125830 | 0.263277404 |
| ATOM= | 13 | O | 4a | 1 | 0.279669161 | 0.216209671 | 0.266512351 |
| ATOM= | 14 | H | 4a | 1 | 0.456010251 | 0.744866814 | 0.327294139 |
| ATOM= | 15 | H | 4a | 1 | 0.109104276 | 0.749969713 | 0.331900194 |
| ATOM= | 16 | H | 4a | 1 | 0.264950391 | 0.269738314 | 0.328817373 |
| ATOM= | 17 | H | 4a | 1 | 0.444372273 | 0.994318615 | 0.127499682 |

Free energy: -115.419 eV/f.u.

Residual pressure = -0.066 GPa.

Table S1.16(a). Repeated operation [K16]: rotation by $2\pi/3$, translation by $b/3$.

Ideal model:

```
SPGNAM= P31
CELEDG= 5.326700000 5.326700000 21.750000000
CELANG= 90.000000000 90.000000000 120.000000000
ATOM= 1 Si 3a 1 0.777777778 0.222222222 0.000000000
ATOM= 2 Si 3a 1 0.111111111 0.888888889 0.000000000
ATOM= 3 Al 3a 1 0.777777778 0.555555556 0.125734266
ATOM= 4 Al 3a 1 0.444444444 0.888888889 0.125734266
ATOM= 5 O 3a 1 0.444444444 0.388888889 0.305318270
ATOM= 6 O 3a 1 0.944444444 0.388888889 0.305318270
ATOM= 7 O 3a 1 0.944444444 0.888888889 0.305318270
ATOM= 8 O 3a 1 0.777777778 0.222222222 0.074039806
ATOM= 9 O 3a 1 0.111111111 0.888888889 0.074039806
ATOM= 10 O 3a 1 0.444444444 0.555555556 0.073706294
ATOM= 11 O 3a 1 0.111111111 0.555555556 0.172426036
ATOM= 12 O 3a 1 0.444444444 0.222222222 0.172426036
ATOM= 13 O 3a 1 0.777777778 0.888888889 0.172426036
ATOM= 14 H 3a 1 0.111111111 0.555555556 0.215115655
ATOM= 15 H 3a 1 0.444444444 0.222222222 0.215115655
ATOM= 16 H 3a 1 0.777777777 0.888888889 0.215115655
ATOM= 17 H 3a 1 0.444444444 0.555555556 0.034018289
```

Optimized model:

```
SPGNAM= P31
CELEDG= 5.116193866 5.116193866 20.891646661
CELANG= 90.000000000 90.000000000 120.000000000
ATOM= 1 Si 3a 1 0.765654341 0.215193646 0.000000000
ATOM= 2 Si 3a 1 0.107192493 0.874379492 0.000577743
ATOM= 3 Al 3a 1 0.795194263 0.575434855 0.131213209
ATOM= 4 Al 3a 1 0.467128414 0.903695047 0.132089636
ATOM= 5 O 3a 1 0.452532756 0.340118221 0.300740775
ATOM= 6 O 3a 1 0.004642249 0.442024138 0.300547396
ATOM= 7 O 3a 1 0.896240476 0.892229729 0.308384021
ATOM= 8 O 3a 1 0.748952319 0.232858813 0.076496125
ATOM= 9 O 3a 1 0.124920305 0.858167803 0.076959468
ATOM= 10 O 3a 1 0.508883089 0.618258271 0.078625205
ATOM= 11 O 3a 1 0.128353743 0.617202017 0.174516163
ATOM= 12 O 3a 1 0.508636591 0.237740601 0.174221308
ATOM= 13 O 3a 1 0.754162256 0.862293512 0.177233517
ATOM= 14 H 3a 1 0.116796006 0.549299345 0.218499292
ATOM= 15 H 3a 1 0.453941825 0.245563198 0.218556253
ATOM= 16 H 3a 1 0.815012887 0.916225648 0.221477995
ATOM= 17 H 3a 1 0.318340156 0.427681205 0.080982607
```

Free energy: -115.443 eV/f.u.

Residual pressure = 0.007 GPa.

Table S1.16(b). Stacking [K16], then enantiomorph of [K16]: rotation by $2\pi/3$, translation by $b/3$; then rotation by $-2\pi/3$, translation by $a/3$.

Ideal model:

```

SPGNAM= Cc
CELEDG= 5.326700000 9.226115037 14.608307123
CELANG= 90.000000000 96.981277219 90.000000000
ATOM= 1 Si 4a 1 0.000000000 0.083333333 0.000000000
ATOM= 2 Si 4a 1 0.000000000 0.416666667 0.000000000
ATOM= 3 Al 4a 1 0.396200467 0.083333333 0.188601400
ATOM= 4 Al 4a 1 0.896200467 0.250000000 0.188601400
ATOM= 5 O 4a 1 0.235992470 0.000000000 0.457977407
ATOM= 6 O 4a 1 0.485992470 0.250000000 0.457977407
ATOM= 7 O 4a 1 0.735992470 0.000000000 0.457977407
ATOM= 8 O 4a 1 0.037019904 0.083333333 0.111059710
ATOM= 9 O 4a 1 0.037019903 0.416666667 0.111059710
ATOM= 10 O 4a 1 0.536853147 0.250000000 0.110559441
ATOM= 11 O 4a 1 0.752879685 0.416666667 0.258639055
ATOM= 12 O 4a 1 0.252879687 0.250000000 0.258639056
ATOM= 13 O 4a 1 0.752879685 0.083333333 0.258639055
ATOM= 14 H 4a 1 0.774224494 0.416666667 0.322673483
ATOM= 15 H 4a 1 0.274224495 0.250000000 0.322673483
ATOM= 16 H 4a 1 0.774224494 0.083333333 0.322673483
ATOM= 17 H 4a 1 0.517009146 0.250000000 0.051027435

```

Optimized model:

```

SPGNAM= Cc
CELEDG= 5.110148256 8.873533894 14.030227206
CELANG= 90.000000000 96.643377742 90.000000000
ATOM= 1 Si 4a 1 0.000000000 0.091929553 0.000000000
ATOM= 2 Si 4a 1 0.987990156 0.421065614 0.999015913
ATOM= 3 Al 4a 1 0.408576240 1.077290515 0.195782776
ATOM= 4 Al 4a 1 0.901269466 0.241745851 0.197263502
ATOM= 5 O 4a 1 0.254097649 0.968801951 0.450040868
ATOM= 6 O 4a 1 0.427962209 0.244825796 0.450224909
ATOM= 7 O 4a 1 0.762210599 0.022849972 0.461512232
ATOM= 8 O 4a 1 0.062866492 0.100391796 0.114477546
ATOM= 9 O 4a 1 0.999897554 0.412658592 0.113753664
ATOM= 10 O 4a 1 0.569142894 0.220695613 0.117199256
ATOM= 11 O 4a 1 0.804676510 0.410953521 0.260712616
ATOM= 12 O 4a 1 0.234943758 0.220840989 0.260469579
ATOM= 13 O 4a 1 0.737607755 0.098383576 0.264947001
ATOM= 14 H 4a 1 0.765088942 0.416094652 0.326890894
ATOM= 15 H 4a 1 0.290916804 0.246438457 0.327244739
ATOM= 16 H 4a 1 0.784608879 0.065119490 0.330560087
ATOM= 17 H 4a 1 0.474321075 0.315644256 0.120819475

```

Free energy: -115.449 eV/f.u.

Residual pressure = -0.041 GPa.

Table S1.17. Repeated operation [K17]: rotation by 0, translation by $2(a+b)/3$.

Ideal model:

```
SPGNAM= Cm
CELEDG= 5.326700000 9.226115037 7.464257296
CELANG= 90.000000000 103.761206081 90.000000000
ATOM= 1 Si 4b 1 0.000000000 0.333333333 0.000000000
ATOM= 2 Al 4b 1 0.292400933 0.166666667 0.377202799
ATOM= 3 O 4b 1 0.221984937 0.250000000 0.915954813
ATOM= 4 O 2a .m. 0.471984937 0.000000000 0.915954813
ATOM= 5 O 4b 1 0.074039806 0.333333333 0.222119420
ATOM= 6 O 2a .m. 0.073706294 0.000000000 0.221118882
ATOM= 7 O 4b 1 0.005759370 0.166666667 0.517278110
ATOM= 8 O 2a .m. 0.005759369 0.500000000 0.517278110
ATOM= 9 H 4b 1 0.048448989 0.166666667 0.645346965
ATOM= 10 H 2a .m. 0.048448988 0.500000000 0.645346965
ATOM= 11 H 2a .m. 0.034018289 0.000000000 0.102054869
```

Optimized model:

```
SPGNAM= Cm
CELEDG= 5.039926440 8.789403056 7.182790836
CELANG= 90.000000000 100.700477036 90.000000000
ATOM= 1 Si 4b 1 0.000000000 0.330179355 0.000000000
ATOM= 2 Al 4b 1 0.292313027 0.164129444 0.388743838
ATOM= 3 O 4b 1 0.190835007 0.213941643 0.903412231
ATOM= 4 O 2a .m. 0.568639825 0.000000000 0.937199635
ATOM= 5 O 4b 1 0.056731348 0.309710385 0.227148268
ATOM= 6 O 2a .m. 0.128394868 0.000000000 0.235308718
ATOM= 7 O 4b 1 0.006530314 0.181394507 0.519425001
ATOM= 8 O 2a .m. 0.970549819 0.500000000 0.524391932
ATOM= 9 H 4b 1 0.056919140 0.184051112 0.657718492
ATOM= 10 H 2a .m. 0.167691002 0.500000000 0.547145236
ATOM= 11 H 2a .m. 0.932582682 0.000000000 0.221155272
```

Free energy: -115.379 eV/f.u.

Residual pressure = 0.025 GPa.

Table S1.18(a). Repeated operation [K18]: rotation by $\pi/3$, translation by $2(a+b)/3$.

Ideal model:

```
SPGNAM= P61
CELEDG= 5.326700000 5.326700000 43.500000000
CELANG= 90.000000000 90.000000000 120.000000000
ATOM= 1 Si 6a 1 0.333333333 0.000000000 0.000000000
ATOM= 2 Si 6a 1 0.666666667 0.666666667 0.000000000
ATOM= 3 Al 6a 1 0.333333333 0.333333333 0.062867132
ATOM= 4 Al 6a 1 0.000000000 0.666666667 0.062867133
ATOM= 5 O 6a 1 0.166666667 0.500000000 0.152659136
ATOM= 6 O 6a 1 0.166666667 0.000000000 0.152659136
ATOM= 7 O 6a 1 0.666666667 0.500000000 0.152659136
ATOM= 8 O 6a 1 0.333333333 0.000000000 0.037019903
ATOM= 9 O 6a 1 0.666666667 0.666666667 0.037019903
ATOM= 10 O 6a 1 0.000000000 0.333333333 0.036853147
ATOM= 11 O 6a 1 0.666666667 0.333333333 0.086213018
ATOM= 12 O 6a 1 0.000000000 0.000000000 0.086213018
ATOM= 13 O 6a 1 0.333333333 0.666666667 0.086213018
ATOM= 14 H 6a 1 0.666666667 0.333333333 0.107557827
ATOM= 15 H 6a 1 0.000000000 0.000000000 0.107557827
ATOM= 16 H 6a 1 0.333333333 0.666666667 0.107557827
ATOM= 17 H 6a 1 0.000000000 0.333333333 0.017009145
```

Optimized model:

```
SPGNAM= P61
CELEDG= 5.058392676 5.058392676 42.344630229
CELANG= 90.000000000 90.000000000 120.000000000
ATOM= 1 Si 6a 1 0.320546073 0.005866647 0.000000000
ATOM= 2 Si 6a 1 0.658420101 0.668831985 -0.000083836
ATOM= 3 Al 6a 1 0.351672150 0.369356782 0.064857338
ATOM= 4 Al 6a 1 0.020234533 0.696519362 0.064669121
ATOM= 5 O 6a 1 0.225152802 0.561155046 0.151146674
ATOM= 6 O 6a 1 0.080672270 0.988635004 0.150921379
ATOM= 7 O 6a 1 0.651993894 0.418022559 0.154228292
ATOM= 8 O 6a 1 0.310968329 0.027696508 0.037994192
ATOM= 9 O 6a 1 0.681518182 0.662632057 0.037950975
ATOM= 10 O 6a 1 0.055874259 0.401445286 0.039404760
ATOM= 11 O 6a 1 0.683791412 0.400402073 0.087006310
ATOM= 12 O 6a 1 0.049253086 0.029958706 0.086416388
ATOM= 13 O 6a 1 0.330246361 0.677415095 0.087294422
ATOM= 14 H 6a 1 0.676816544 0.208806974 0.092031976
ATOM= 15 H 6a 1 0.043125702 0.016339867 0.109499835
ATOM= 16 H 6a 1 0.318637712 0.659970380 0.110336068
ATOM= 17 H 6a 1 0.864522598 0.207245578 0.040142280
```

Free energy: -115.269 eV/f.u.

Residual pressure = -0.038 GPa.

Table S1.18(b). Stacking [K18], then enantiomorph of [K18]: rotation by $\pi/3$, translation by $2(a+b)/3$; then rotation by $-\pi/3$, translation by $2(a+b)/3$.

Ideal model:

| | | | | | | | |
|---------|--------------|---------------|--------------|---|-------------|-------------|-------------|
| SPGNAM= | Cc | | | | | | |
| CELEDG= | 9.226115037 | 5.326700000 | 14.822547385 | | | | |
| CELANG= | 90.000000000 | 101.974673247 | 90.000000000 | | | | |
| ATOM= | 1 | Si | 4a | 1 | 0.000000000 | 0.916666667 | 0.000000000 |
| ATOM= | 2 | Si | 4a | 1 | 0.333333333 | 0.916666667 | 0.000000000 |
| ATOM= | 3 | Al | 4a | 1 | 0.229533800 | 0.083333333 | 0.188601400 |
| ATOM= | 4 | Al | 4a | 1 | 0.396200467 | 0.583333333 | 0.188601400 |
| ATOM= | 5 | O | 4a | 1 | 0.152659136 | 0.083333333 | 0.457977407 |
| ATOM= | 6 | O | 4a | 1 | 0.402659136 | 0.333333333 | 0.457977407 |
| ATOM= | 7 | O | 4a | 1 | 0.402659136 | 0.833333333 | 0.457977407 |
| ATOM= | 8 | O | 4a | 1 | 0.037019903 | 0.916666667 | 0.111059710 |
| ATOM= | 9 | O | 4a | 1 | 0.370353236 | 0.916666667 | 0.111059710 |
| ATOM= | 10 | O | 4a | 1 | 0.203519814 | 0.416666667 | 0.110559441 |
| ATOM= | 11 | O | 4a | 1 | 0.252879685 | 0.750000000 | 0.258639055 |
| ATOM= | 12 | O | 4a | 1 | 0.086213018 | 0.250000000 | 0.258639055 |
| ATOM= | 13 | O | 4a | 1 | 0.419546351 | 0.250000000 | 0.258639055 |
| ATOM= | 14 | H | 4a | 1 | 0.274224495 | 0.750000000 | 0.322673483 |
| ATOM= | 15 | H | 4a | 1 | 0.107557828 | 0.250000000 | 0.322673483 |
| ATOM= | 16 | H | 4a | 1 | 0.440891161 | 0.250000000 | 0.322673483 |
| ATOM= | 17 | H | 4a | 1 | 0.183675812 | 0.416666667 | 0.051027435 |

Optimized model:

| | | | | | | | |
|---------|--------------|---------------|--------------|---|--------------|-------------|-------------|
| SPGNAM= | Cc | | | | | | |
| CELEDG= | 8.723557982 | 5.074295380 | 14.475486726 | | | | |
| CELANG= | 90.000000000 | 102.451901913 | 90.000000000 | | | | |
| ATOM= | 1 | Si | 4a | 1 | -0.000637262 | 0.928000476 | 0.000000000 |
| ATOM= | 2 | Si | 4a | 1 | 0.331872875 | 0.921445981 | 0.000599129 |
| ATOM= | 3 | Al | 4a | 1 | 0.249903830 | 0.077673921 | 0.194465617 |
| ATOM= | 4 | Al | 4a | 1 | 0.412686582 | 0.572418238 | 0.194333438 |
| ATOM= | 5 | O | 4a | 1 | 0.147773805 | 0.147573247 | 0.453269775 |
| ATOM= | 6 | O | 4a | 1 | 0.433969845 | 0.288812656 | 0.453216382 |
| ATOM= | 7 | O | 4a | 1 | 0.365838346 | 0.790336163 | 0.463299850 |
| ATOM= | 8 | O | 4a | 1 | 0.050261052 | 0.948417120 | 0.113955296 |
| ATOM= | 9 | O | 4a | 1 | 0.368730922 | 0.894890582 | 0.114475024 |
| ATOM= | 10 | O | 4a | 1 | 0.238561637 | 0.389313575 | 0.118763770 |
| ATOM= | 11 | O | 4a | 1 | 0.287633122 | 0.760860124 | 0.260694439 |
| ATOM= | 12 | O | 4a | 1 | 0.102928671 | 0.210279806 | 0.259746112 |
| ATOM= | 13 | O | 4a | 1 | 0.428144778 | 0.253144648 | 0.261927008 |
| ATOM= | 14 | H | 4a | 1 | 0.195778553 | 0.674440213 | 0.275345691 |
| ATOM= | 15 | H | 4a | 1 | 0.119913168 | 0.208437192 | 0.328809585 |
| ATOM= | 16 | H | 4a | 1 | 0.442619400 | 0.253901408 | 0.330907512 |
| ATOM= | 17 | H | 4a | 1 | 0.141405575 | 0.482161902 | 0.120763844 |

Free energy: -115.270 eV/f.u.

Residual pressure = -0.105 GPa.

Table S1.19(a). Repeated operation [K19]: rotation by $2\pi/3$, translation by $2(a+b)/3$.

Ideal model:

```
SPGNAM= P31
CELEDG= 5.326700000 5.326700000 21.750000000
CELANG= 90.000000000 90.000000000 120.000000000
ATOM= 1 Si 3a 1 0.777777778 0.555555555 0.000000000
ATOM= 2 Si 3a 1 0.111111111 0.222222222 0.000000000
ATOM= 3 Al 3a 1 0.777777778 0.888888889 0.125734266
ATOM= 4 Al 3a 1 0.444444444 0.222222222 0.125734266
ATOM= 5 O 3a 1 0.111111111 0.055555556 0.305318270
ATOM= 6 O 3a 1 0.611111111 0.055555556 0.305318270
ATOM= 7 O 3a 1 0.611111111 0.555555556 0.305318270
ATOM= 8 O 3a 1 0.777777778 0.555555556 0.074039806
ATOM= 9 O 3a 1 0.111111111 0.222222222 0.074039806
ATOM= 10 O 3a 1 0.444444444 0.888888889 0.073706294
ATOM= 11 O 3a 1 0.111111111 0.888888889 0.172426036
ATOM= 12 O 3a 1 0.444444444 0.555555556 0.172426036
ATOM= 13 O 3a 1 0.777777778 0.222222222 0.172426036
ATOM= 14 H 3a 1 0.111111111 0.888888889 0.215115655
ATOM= 15 H 3a 1 0.444444444 0.555555556 0.215115655
ATOM= 16 H 3a 1 0.777777778 0.222222222 0.215115655
ATOM= 17 H 3a 1 0.444444444 0.888888889 0.034018289
```

Optimized model:

```
SPGNAM= P31
CELEDG= 5.053982453 5.053982453 21.198348720
CELANG= 90.000000000 90.000000000 120.000000000
ATOM= 1 Si 3a 1 0.787913978 0.558459800 0.000098121
ATOM= 2 Si 3a 1 0.127423390 0.218091562 0.000000000
ATOM= 3 Al 3a 1 0.808167364 0.910281409 0.129144022
ATOM= 4 Al 3a 1 0.480004717 0.243049996 0.129299223
ATOM= 5 O 3a 1 0.109345888 0.995552249 0.301213556
ATOM= 6 O 3a 1 0.683179134 0.143449305 0.301499899
ATOM= 7 O 3a 1 0.524690539 0.569339703 0.312041758
ATOM= 8 O 3a 1 0.766180709 0.575563319 0.075715332
ATOM= 9 O 3a 1 0.142635476 0.194067585 0.075649761
ATOM= 10 O 3a 1 0.529214667 0.962291093 0.077344232
ATOM= 11 O 3a 1 0.141919551 0.937442326 0.172675243
ATOM= 12 O 3a 1 0.508178386 0.574989850 0.173992798
ATOM= 13 O 3a 1 0.790058044 0.222976324 0.173730042
ATOM= 14 H 3a 1 0.131369377 0.936820879 0.218790627
ATOM= 15 H 3a 1 0.315076778 0.570169062 0.181477815
ATOM= 16 H 3a 1 0.776753642 0.218338314 0.219826085
ATOM= 17 H 3a 1 0.338687154 0.773302471 0.069820061
```

Free energy: -115.344 eV/f.u.

Residual pressure = -0.064 GPa.

Table S1.19(b). Stacking [K19], then enantiomorph of [K19]: rotation by $2\pi/3$, translation by $2(a+b)/3$; then rotation by $-2\pi/3$, translation by $2(a+b)/3$.

Ideal model:

| | | | | | | | |
|---------|--------------|--------------|--------------|---|-------------|-------------|-------------|
| SPGNAM= | Cc | | | | | | |
| CELEDG= | 5.326700000 | 9.226115037 | 14.608307123 | | | | |
| CELANG= | 90.000000000 | 96.981277219 | 90.000000000 | | | | |
| ATOM= | 1 | Si | 4a | 1 | 0.000000000 | 0.250000000 | 0.000000000 |
| ATOM= | 2 | Si | 4a | 1 | 0.000000000 | 0.583333333 | 0.000000000 |
| ATOM= | 3 | Al | 4a | 1 | 0.396200467 | 0.250000000 | 0.188601400 |
| ATOM= | 4 | Al | 4a | 1 | 0.396200466 | 0.916666667 | 0.188601400 |
| ATOM= | 5 | O | 4a | 1 | 0.235992469 | 0.833333333 | 0.457977407 |
| ATOM= | 6 | O | 4a | 1 | 0.485992469 | 0.083333333 | 0.457977407 |
| ATOM= | 7 | O | 4a | 1 | 0.235992469 | 0.333333333 | 0.457977407 |
| ATOM= | 8 | O | 4a | 1 | 0.037019904 | 0.250000000 | 0.111059710 |
| ATOM= | 9 | O | 4a | 1 | 0.037019902 | 0.583333333 | 0.111059710 |
| ATOM= | 10 | O | 4a | 1 | 0.036853146 | 0.916666667 | 0.110559441 |
| ATOM= | 11 | O | 4a | 1 | 0.252879685 | 0.083333333 | 0.258639055 |
| ATOM= | 12 | O | 4a | 1 | 0.252879686 | 0.416666667 | 0.258639056 |
| ATOM= | 13 | O | 4a | 1 | 0.252879685 | 0.750000000 | 0.258639055 |
| ATOM= | 14 | H | 4a | 1 | 0.274224494 | 0.083333333 | 0.322673483 |
| ATOM= | 15 | H | 4a | 1 | 0.274224495 | 0.416666667 | 0.322673483 |
| ATOM= | 16 | H | 4a | 1 | 0.274224494 | 0.750000000 | 0.322673483 |
| ATOM= | 17 | H | 4a | 1 | 0.017009145 | 0.916666667 | 0.051027435 |

Optimized model:

| | | | | | | | |
|---------|--------------|--------------|--------------|---|-------------|-------------|-------------|
| SPGNAM= | Cc | | | | | | |
| CELEDG= | 5.072967707 | 8.712482610 | 14.188337571 | | | | |
| CELANG= | 90.000000000 | 95.436720358 | 90.000000000 | | | | |
| ATOM= | 1 | Si | 4a | 1 | 0.000582816 | 0.245731337 | 0.000000000 |
| ATOM= | 2 | Si | 4a | 1 | 0.990637233 | 0.576786380 | 0.000028003 |
| ATOM= | 3 | Al | 4a | 1 | 0.395392475 | 0.236388420 | 0.193997938 |
| ATOM= | 4 | Al | 4a | 1 | 0.392185965 | 0.899636953 | 0.193912037 |
| ATOM= | 5 | O | 4a | 1 | 0.271688475 | 0.802622125 | 0.451953089 |
| ATOM= | 6 | O | 4a | 1 | 0.410893015 | 0.090054699 | 0.452029605 |
| ATOM= | 7 | O | 4a | 1 | 0.281410302 | 0.382780678 | 0.468057529 |
| ATOM= | 8 | O | 4a | 1 | 0.059602884 | 0.256442406 | 0.113470496 |
| ATOM= | 9 | O | 4a | 1 | 0.989468950 | 0.568786364 | 0.113560576 |
| ATOM= | 10 | O | 4a | 1 | 0.065846930 | 0.875954839 | 0.116208554 |
| ATOM= | 11 | O | 4a | 1 | 0.273205925 | 0.069157096 | 0.259528645 |
| ATOM= | 12 | O | 4a | 1 | 0.227487116 | 0.386430613 | 0.260982676 |
| ATOM= | 13 | O | 4a | 1 | 0.235042015 | 0.744151994 | 0.260575215 |
| ATOM= | 14 | H | 4a | 1 | 0.299080421 | 0.075441184 | 0.328669687 |
| ATOM= | 15 | H | 4a | 1 | 0.320474514 | 0.483961942 | 0.272004675 |
| ATOM= | 16 | H | 4a | 1 | 0.258568064 | 0.752064779 | 0.329679694 |
| ATOM= | 17 | H | 4a | 1 | 0.970737476 | 0.972200656 | 0.105056517 |

Free energy: -115.339 eV/f.u.

Residual pressure = -0.029 GPa.

Table S1.20. Repeated operation [K20]: rotation by π , translation by $2(a+b)/3$.

Ideal model:

```
SPGNAM= Cmc21
CELEDG= 9.226115037 5.326700000 14.500000000
CELANG= 90.000000000 90.000000000 90.000000000
ATOM= 1 Si 8b 1 0.333333333 0.333333333 0.000000000
ATOM= 2 Al 8b 1 0.166666667 0.166666667 0.188601400
ATOM= 3 O 8b 1 0.250000000 0.916666667 0.457977407
ATOM= 4 O 4a m.. 0.000000000 0.166666667 0.457977407
ATOM= 5 O 8b 1 0.333333333 0.333333333 0.111059710
ATOM= 6 O 4a m.. 0.000000000 0.333333333 0.110559441
ATOM= 7 O 8b 1 0.166666667 0.500000000 0.258639055
ATOM= 8 O 4a m.. 0.000000000 0.000000000 0.258639055
ATOM= 9 H 8b 1 0.166666667 0.500000000 0.322673483
ATOM= 10 H 4a m.. 0.000000000 0.000000000 0.322673483
ATOM= 11 H 4a m.. 0.000000000 0.333333333 0.051027435
```

Optimized model:

```
SPGNAM= Cmc21
CELEDG= 8.783175462 5.051591854 14.136242776
CELANG= 90.000000000 90.000000000 90.000000000
ATOM= 1 Si 8b 1 0.330976485 0.360130503 0.000000000
ATOM= 2 Al 8b 1 0.164092650 0.164908815 0.194296324
ATOM= 3 O 8b 1 0.285179578 0.923981475 0.452763164
ATOM= 4 O 4a m.. 0.000000000 0.069429944 0.464174965
ATOM= 5 O 8b 1 0.314169351 0.353922553 0.113824446
ATOM= 6 O 4a m.. 0.000000000 0.302122931 0.119693756
ATOM= 7 O 8b 1 0.182837579 0.484235886 0.259810196
ATOM= 8 O 4a m.. 0.000000000 0.023941312 0.261728669
ATOM= 9 H 8b 1 0.186066480 0.473853021 0.328965063
ATOM= 10 H 4a m.. 0.000000000 -0.165643837 0.274812060
ATOM= 11 H 4a m.. 0.000000000 0.494840401 0.124280548
```

Free energy: -115.320 eV/f.u.

Residual pressure = -0.010 GPa.