

应变与关联效应调控单层 CeBr₂ 谷极化行为的研究*

王一丁¹⁾²⁾ 陈相¹⁾²⁾ 李勇¹⁾ 余彦超^{1)2)‡} 张蔚曦^{1)†}

1) (铜仁学院物理与电子工程系, 铜仁 554300)

2) (吉首大学物理与机电工程学院, 吉首 416000)

摘要

谷自由度作为电子内禀自由度之一, 在低功耗信息器件中具有重要应用前景。实现稳定的谷极化是谷电子学发展的关键, 其中铁谷材料因其本征磁有序可自发产生谷极化而备受关注。本文基于密度泛函理论, 系统研究了二维 CeBr₂ 单层的结构稳定性、磁学性质、电子结构及其谷极化行为。计算表明, 单层 CeBr₂ 具有良好的热力学和动力学稳定性, 其磁基态为铁磁序, 居里温度高于室温, 且表现出明显的面内磁各向异性 ($MAE \approx 111 \text{ meV}$)。自旋-轨道耦合作用引起 K 与 K' 能谷退简并, 在价带顶产生约 38.7 meV 的自发能谷劈裂, 显著高于室温热涨落能量, 具备室温下稳定的谷极化能力。此外, 计算揭示了该材料在能谷附近具有非零的反常霍尔电导与自旋霍尔电导, 支持反常谷霍尔效应的实现。通过调控 Hubbard U 参数与施加双轴应变, 研究发现电子关联强度有利于增强磁各向异性与谷极化; 而在 $\pm 5\%$ 的应变范围内, 谷极化与磁各向异性均可被连续调控, 且铁磁基态保持稳定。本工作不仅为二维铁谷材料体系提供了一个具有大谷极化、高稳定性的新成员, 也为多场调控的谷自旋电子器件设计提供了理论依据。

关键词: 谷极化、磁各向异性、多场调控、反常谷霍尔效应

PACS: 75.30.Gw, 71.70.Ej, 73.22.-f, 75.70.Ak

*贵州省科技厅基础研究项目 (批准号: ZK [2023] 467、MS[2026] 804), 铜仁市科技局科学技术基金项目 (批准号: 铜市科研(2023) 41、(2025) 52、(2025) 53 号)

‡通讯作者 E-mail: sheyanchao316@163.com

†通讯作者 E-mail: zhangwxxx@sina.com

1 引言

谷自由度作为电子电荷与自旋之外的重要内禀自由度，因其在动量空间具有高鲁棒性和可选择调控的特点，已成为发展超快、低功耗非易失性信息器件的关键研究方向之一，推动了谷电子学在凝聚态物理和材料科学领域的研究热潮^[1-3]。实现稳定的谷极化是谷电子学走向应用的核心前提，通常依赖于对称性破缺的调控手段。其中，铁谷材料凭借其本征磁性打破时间反演对称性，无需外场即可产生自发谷极化，被认为是实现谷电子学与自旋电子学融合的理想载体^[4-6]。

二维磁性材料以其原子级厚度、高柔韧性和易集成等优势，为铁谷体系的构筑提供了理想平台^[7-10]。然而，传统二维铁磁材料普遍面临居里温度偏低、磁各向异性弱以及谷极化调控方式有限等问题；反铁磁材料虽具有净磁矩为零、抗干扰能力强等优点，却因保持空间反演与时间反演联合对称性而难以实现自发谷极化，制约了其实际应用^[11-13]。

近年来，稀土基卤化物因局域 f 电子所带来的强磁各向异性和显著谷极化，成为铁谷材料研究的重要体系^[14-16]。其中 Ce 基卤化物表现尤为突出：例如 CeI₂ 单层为室温铁谷半导体，谷极化可达 208 meV，居里温度达 374 K^[6]；Janus 结构的 2H-CeXY 单层不仅居里温度高达 511–540 K，同时具有 29.1–78.7 meV 的谷极化，且其磁各向异性可通过应变进行调控^[17,18]。这些材料的铁磁性主要源于 Ce 原子与卤素原子之间的 $d-p-d$ 间接交换作用，谷极化则由自旋轨道耦合与磁有序共同诱导，并可通过外场进一步调控^[19-21]。

尽管 CeBr₂ 与上述已报道的铁谷材料具有相似的层状六角晶格，同为稀土基卤化物家族的重要成员，但其结构稳定性、磁基态、谷极化行为以及外场调控规律等方面仍缺乏系统性研究，相关物理机制尚不明确^[22]。与交错磁体中依赖元素替换或异质结实现物理性质调控的策略^[23]、Janus LuCl₂ 中依赖压电效应实现谷极化调控的策略^[24]不同，CeBr₂ 作为本征稀土基二维材料，其强磁各向异性、室温铁磁序及谷极化行为有望通过应变、电子关联等多种外场直接调控，无需复杂材料工程。这一特性使其成为谷电子学材料体系扩充的理想候选。为此，本研究基于密度泛函理论计算，系统研究 CeBr₂ 的结构稳定性、磁学性质、电子结构及谷极化特性，通过声子谱确认其稳定性，揭示其磁基态、居里温度、磁各向异性及轨道贡献机制，阐明自旋轨道耦合诱导的谷极化与能谷劈裂行为，并进一步探究

Hubbard U 、应变等条件对磁性与谷极化的调控规律，验证该体系中可能存在的反常谷霍尔效应与自旋霍尔效应。本研究旨在扩充二维铁谷材料体系，深入揭示 CeBr_2 中谷、自旋与轨道之间的耦合机制，为未来多场调控的低功耗谷自旋电子器件提供理论依据与材料选择。

2 研究方法

本文基于密度泛函理论 (Density functional theory, 简称 DFT) 开展第一性原理计算，所有计算均采用维也纳从头算模拟软件包 VASP (Vienna *ab-initio* Simulation Package) [25,26] 完成，并使用投影增强波 (Projector augmented-wave, PAW) 赝势描述离子实与价电子之间的相互作用。电子交换关联作用采用广义梯度近似 (Generalized gradient approximation, 简称 GGA) 下的 Perdew–Burke–Ernzerhof (PBE) 泛函进行处理[27]。平面波基组的截断能设置为 600 eV 。结构优化过程中，体系的几何构型通过完全弛豫获得，其收敛判据设定为每个原子所受残余力小于 $0.005 \text{ eV}/\text{\AA}$ ，总能量变化小于 10^{-6} eV 。为消除周期性边界条件在面外方向引入的人为层间相互作用，在垂直于二维材料平面的 c 轴方向设置了厚度为 20 \AA 的真空层。考虑到 Ce 原子 $4f$ 电子存在显著的强关联效应，计算中引入 GGA+ U 方法进行修正，其中有效哈伯德参数 $U_{\text{eff}} = U - J$ 取值为 7.0 eV [28]。布里渊区积分采用 Monkhorst–Pack 方法生成的 k 点网格，并通过收敛性测试以确保计算结果的可靠性。为进一步验证所研究结构的动力学稳定性，基于有限位移法并借助 PHONOPY 软件包[29]，在 $3 \times 3 \times 1$ 超胞模型下计算了体系的声子色散关系。霍尔电导率均通过 WANNIER90 软件包中编码的最大局域化 Wannier 函数计算[30]。

3 结果与讨论

3.1 晶体结构及稳定性

单层 CeBr_2 的晶体结构如图 1(a)所示，其空间群为 $P\bar{6}m2$ ，属于典型的六方晶系结构。该体系呈现出“Br–Ce–Br”三明治式层状构型，其中 Ce 原子层位于中间，并在面内形成蜂窝状排列；上下两层 Br 原子分别位于 Ce 原子层的两侧，与 Ce 原子共同构成三角棱柱型配位环境。这种层状配位结构为体系中磁交换相互作用及能谷相关物理行为的产生提供了必要的几何基础。经过结构优化后，单

层 CeBr_2 的平衡晶格常数为 4.08 \AA ， Ce-Br 键长为 3.03 \AA ，对应的 Ce-Br-Ce 键角约为 84.6° 。上述结构参数与稀土卤化物体系中常见的局域配位特征一致，表明该结构在几何构型上具有良好的合理性与稳定性。为进一步分析体系的成键特性，计算了其电子局域函数（Electron localization function, 简称 ELF），结果如图 1(b)所示。可以看到，电子主要局域分布在 Br 原子周围，而 Ce 与 Br 原子之间的 ELF 值相对较低，表明电子从 Ce 原子向 Br 原子发生明显转移， Ce-Br 键呈现出以离子键为主的成键特征。这一结果与稀土基卤化物中常见的电荷转移行为相一致，也反映了 Ce 原子 $4f$ 电子的高度局域化特性。为验证单层 CeBr_2 的动力学稳定性，进一步计算了其声子色散关系，如图 1(c)所示。在整个布里渊区范围内未观察到虚频模式，表明该体系在动力学上是稳定的。声子谱中高频振动模式主要来源于质量较轻的 Br 原子，而低频区域则对应于 Ce 原子的面内振动模式，这与体系中不同原子质量及其配位环境密切相关。

此外，图 1(e)给出了 CeBr_2 体系中 Ce 原子的轨道能级分布情况。可以看出，在晶体场作用及强电子关联效应的共同影响下， Ce^{2+} 离子的 $4f$ 与 $5d$ 轨道发生了明显的能级分裂。其中， $4f$ 轨道（如 $f_{x^2-3y^2}$ 、 $f_{3x^2y-y^3}$ 、 f_{xyz} 、 $f_{zx^2-zy^2}$ 等）表现出复杂的多重分裂特征，反映了其在低对称配位环境中的强关联本征性质； $5d$ 轨道（包括 d_{xy} 、 d_{xz} 、 d_{yz} 、 $d_{x^2-y^2}$ 轨道对以及 d_{z^2} 单轨道）同样在晶体场作用下产生能级差异。图中箭头标注了各轨道电子占据数的变化情况，整体揭示了 Ce^{2+} 不同轨道在局域配位场中的分裂规律及其电子填充特征，为后续磁性与谷相关物理性质的分析提供了微观能级基础。

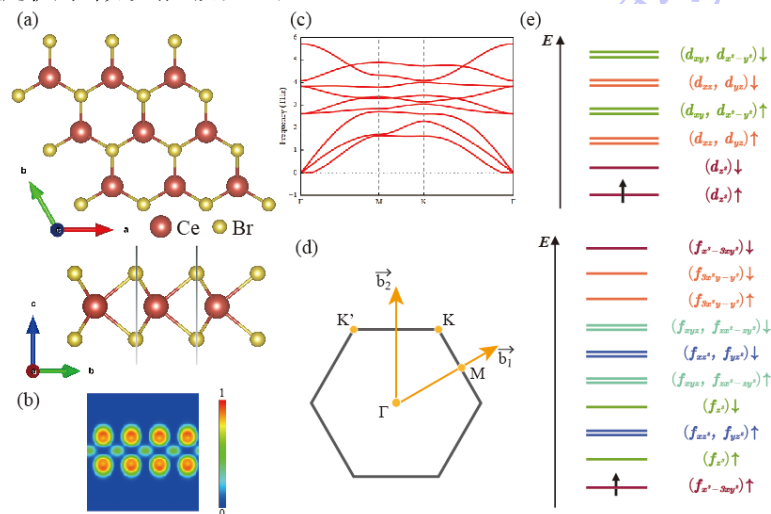


图 1. (a) 单层 CeBr_2 晶体结构的俯视图和侧视图；(b) 单层 CeBr_2 的电子局域函数 (ELF)；

(c) 沿着第一布里渊区高对称路径计算的单层 CeBr₂ 的声子色散曲线；(d) 具有倒易晶格矢量 \vec{b}_1 和 \vec{b}_2 的蜂窝状晶格的第一布里渊区；(e) 单层 CeBr₂ 的 Ce 原子轨道能级分布示意图。

Figure 1.(a) Top and side views of the crystal structure of monolayer CeBr₂; (b) Electron localization function (ELF) of monolayer CeBr₂; (c) Phonon dispersion curves of monolayer CeBr₂ calculated along the high-symmetry paths in the first Brillouin zone; (d) First Brillouin zone of the honeycomb lattice with reciprocal lattice vectors \vec{b}_1 and \vec{b}_2 ; (e) Schematic illustration of the orbital energy-level distribution of Ce atoms in monolayer CeBr₂.

3.2 磁性及磁各向异性

单层 CeBr₂ 的磁性主要起源于 Ce 原子的电子组态及其 4*f* 电子的强关联特性。孤立 Ce 原子的价电子组态为 4*f*¹5*d*¹6*s*²。在形成单层 CeBr₂ 的过程中，每个 Ce 原子向周围六个 Br 原子转移两个电子，从而形成 Ce²⁺ 离子，其对应的电子组态为 4*f*¹5*d*¹6*s*⁰。在三角棱柱型晶体场作用下，Ce 原子的 4*f* 与 5*d* 轨道发生能级分裂，其中半填充的 4*f*_{*x*²-*y*²} 与 5*d*_{*z*²} 轨道共同贡献了体系的局域磁矩，使得每个 Ce 原子产生约 2*μ_B* 的理论磁矩。计算结果进一步显示 Ce 原子的局域磁矩仅为 1.47*μ_B*，即 Ce-4*f* 壳层的磁矩为约 1*μ_B*，Ce-5*d* 壳层的磁矩为约 0.4*μ_B*。相比之下，Br 原子的磁矩贡献可以忽略不计。这表明体系的净磁矩主要来源于 Ce 原子的 *f* 轨道电子，其通过间接交换机制在晶格中建立长程磁有序。

为确定单层 CeBr₂ 的磁基态，构建了 2×2×1 超胞，并分别考虑铁磁 (Ferromagnetic, FM) 和反铁磁 (Antiferromagnetic, AFM) 两种磁构型，如图 2(a) 所示。参考已有稀土基卤化物体系 (如 CeI₂) 中关于强关联参数的取值经验，采用 GGA+U 方法 (*U_{eff}* = 7.0eV) 计算了两种磁态的总能。结果表明，FM 态相较于 AFM 态能量低约 285.54meV，明确指示单层 CeBr₂ 的磁基态为铁磁序。

对于二维磁性材料而言，易磁化方向在决定其磁矩稳定取向及潜在自旋电子学应用中起着关键作用。为此，进一步计算了体系的磁各向异性 (Magnetic anisotropy energy, 简称 MAE)，其定义为 $MAE = E_{001} - E_{100}$ ，其中 *E*₀₀₁ 和 *E*₁₀₀ 分别表示磁矩沿面外 [001] 方向和面内 [100] 方向取向时的总能。当 MAE > 0 时，表明

易磁化轴位于面内；反之， $MAE < 0$ 则对应易磁化轴在面外。计算得到的 MAE 为 111 meV ，表明体系的易磁化方向位于面内，即 $[100]$ 方向。结合 Ce 原子所处的三角棱柱晶体场对称性，随磁矩取向角的变化磁各向异性性能 $MAE_{(\theta)}$ 可用下式进行拟合^[31]：

$$MAE_{(\theta)} = K_1 \cos^2 \theta + K_2 \cos^4 \theta \quad (1)$$

其中 θ 为磁矩方向与面外 z 轴之间的夹角， K_1 和 K_2 为磁各向异性常数。如图 2(b) 所示，曲线最小值对应 $\theta=90^\circ$ 即磁矩沿面内方向，最大值对应 $\theta=0^\circ$ 即磁矩沿面外方向。MAE 在 xz 平面内呈现明显的各向异性特征，其数值对磁矩在平面内的具体取向表现出显著依赖性。

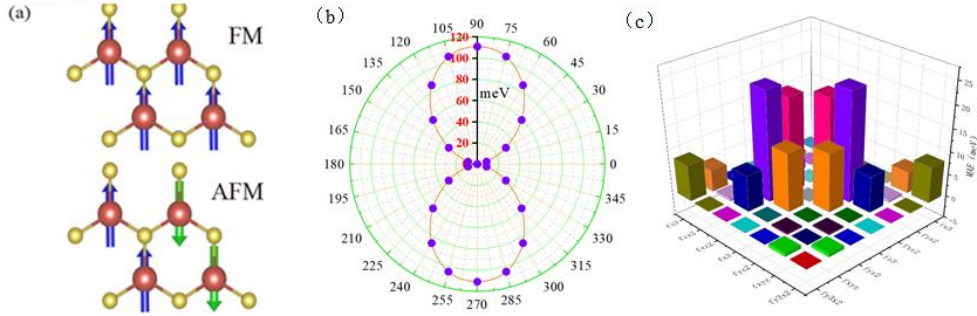


图 2. (a) 单层 CeBr_2 的 FM、AFM 自旋构型；(b) 磁化方向位于 xz 平面上的单层 CeBr_2 的 MAE 的角度依赖性；(c) 单层 CeBr_2 的 MAE 不同 f 轨道贡献 3D 柱状图。

Figure 2. (a) FM and AFM spin configurations of monolayer CeBr_2 ; (b) Angular dependence of the MAE of monolayer CeBr_2 with the magnetization direction confined to the xz plane; (c) Three-dimensional bar chart showing the f -orbital-resolved contributions to the MAE of monolayer CeBr_2 .

由于 f 轨道的自旋轨道耦合 (Spin-Orbit Coupling, 简称 SOC) 远远强于 d 轨道，所以针对 f 轨道，我们探究了其在 MAE 调控中的核心作用。我们聚焦 f 轨道间的相互作用矩阵，提取主导 MAE 的非对角矩阵元并构建轨道分辨三维柱状图 (图 2 (c))。正方向表示倾向于面内 (x) 贡献，负方向表示倾向于面外 (z) 贡献。从柱状图分布可见，不同 f 轨道组合的 MAE 贡献呈现明显分化：高幅值正贡献柱体集中分布于特定轨道组合 (如 $f_{xz^2} - f_{z^3}$ 、 $f_{xz^2} - f_{yz^2}$)，对应非对角矩

阵元绝对值最大，是决定体系 MAE 大小的主导通道；而部分轨道组合呈现负贡献，柱体幅值显著低于正贡献通道。这一分布特征直接反映出 Ce 原子 f 轨道间自旋-轨道耦合的非均匀性， f 轨道相较于 d 轨道更复杂的能级分裂与轨道重叠模式，进一步塑造了各轨道组合贡献的差异化，最终共同决定了体系的磁各向异性能特征。

为进一步定量评估单层 CeBr₂ 铁磁基态的热稳定性，基于海森堡模型与平均场理论估算了其居里温度 T_c 。考虑到体系的磁基态为铁磁序，且最近邻 Ce 原子间的磁交换作用占主导，可采用仅包含最近邻交换相互作用的哈密顿量：

$$H = -J \sum_{\langle i,j \rangle} S_i \cdot S_j \quad (2)$$

其中 J 为最近邻磁交换耦合常数， S_i 和 S_j 为分别为格点 i 和格点 j 上 Ce 原子的自旋算符。由 DFT 计算得到的铁磁与反铁磁构型能量差 $\Delta E = E_{AFM} - E_{FM} = 284.54 meV$ 可推导出 J 的表达式。对于六角蜂窝晶格，铁磁与反铁磁态的能量差满足：

$$\Delta E = 2zJS^2 \quad (3)$$

其中 $z = 3$ 为最近邻配位数， S 为 Ce 离子的自旋量子数。由 Ce 原子的局域磁矩 $m = 1.47 \mu_B$ ，结合 $m = gS\mu_B$ （取朗德因子 $g \approx 2$ ），可得 $S \approx 0.735$ 。代入上式解得：

$$J = \frac{\Delta E}{2zJS^2} \approx 8.8 meV \quad (4)$$

在平均场近似下，二维六角晶格的居里温度可表示为：

$$T_C^{MF} = \frac{zJS(S+1)}{3k_B} \quad (5)$$

计算得到 $T_C^{MF} \approx 390K$ ，该值显著高于室温，与实验可实现的室温应用需求相吻合。

3.3 能带结构和反常霍尔效应

为深入揭示单层 CeBr₂ 的铁谷特性及其输运行为，系统研究了其电子能带结构、自发谷劈裂以及反常谷霍尔效应。图 3 (a) 展示了未考虑 SOC 时的自旋分辨能带结构。单层 CeBr₂ 表现为双极磁性半导体，具有间接带隙 ($\sim 0.44 eV$)，价带顶 (Valence Band Maximum, 简称 VBM) 位于 K 与 K' 点且保持自旋简并，而导带底 (Conduction Band Minimum, 简称 CBM) 位于 M 点。费米能级附近的自旋向上与自旋向下能带呈现显著劈裂，自旋极化率接近 100%，这源于 Ce

原子局域磁矩与电子态的强耦合，为谷与自旋自由度的协同调控奠定了基础。

引入 SOC 后（图 3（b）），时间反演对称性与空间反演对称性被同时打破，导致 K 与 K' 点的能谷发生退简并。价带顶处出现约 38.7meV 的能谷劈裂，该值超室温热扰动能（ $\sim 26\text{meV}$ ），表明 CeBr_2 具备室温下稳定的自发能谷极化能力。轨道投影分析表明，费米能级附近的能带主要由 $\text{Ce-}5d$ 轨道（ d_{xy} 、 d_{xz} 、 d_{yz} 、 $d_{x^2-y^2}$ 及 d_{z^2} ）贡献， $\text{Br-}p$ 轨道贡献微弱，体现了 $\text{Ce-}5d$ 轨道在低能电子结构中的主导作用。

由于单层 CeBr_2 的铁磁性打破了自旋向上能带和自旋向下能带之间的自旋简并，SOC 哈密顿量仅涉及相同自旋态的相互作用。为描述能谷劈裂的物理起源，构建了有效 SOC 哈密顿量模型^[6]：

$$\hat{H}_{\text{SOC}} = \lambda \hat{S}_{Z'} \left(\hat{L}_Z \cos \theta + \frac{1}{2} \hat{L}_+ e^{-i\phi} \sin \theta + \frac{1}{2} \hat{L}_- e^{+i\phi} \sin \theta \right) \quad (6)$$

其中 λ 为自旋-轨道耦合相关常数，决定耦合强度， $\hat{S}_{Z'}$ 和 \hat{L}_Z 分别是自旋和轨道角动量的 Z'/Z 分量。 $\theta \in [0, \pi)$ 和 $\phi \in [0, 2\pi)$ 两者定义自旋取向，其分别对应于极角和方位角， $\hat{L}_+ = \hat{L}_x + i\hat{L}_y$ ， $\hat{L}_- = \hat{L}_x - i\hat{L}_y$ 。考虑到 Ce 原子 d 轨道在费米能级附近的主导作用，且 d_{z^2} 轨道的轨道角动量为零、对能谷劈裂贡献可忽略，模型聚焦于 d_{xy} 、 $d_{x^2-y^2}$ 两类轨道的耦合效应，SOC 为微扰项。因此，价带能谷劈裂由下式给出^[6]：

$$E_v^K - E_v^{K'} = i \langle d_{x^2-y^2} | \hat{H}_{\text{SOC}} | d_{xy} \rangle - i \langle d_{xy} | \hat{H}_{\text{SOC}} | d_{x^2-y^2} \rangle \quad (7)$$

该劈裂源于 SOC 诱导下 K 与 K' 点轨道波函数的不对称耦合：在 K 点， d_{xy} 与 $d_{x^2-y^2}$ 轨道的杂化强度显著高于 K' 点，而 d_{xz} 与 d_{yz} 轨道的耦合则呈现相反趋势，这种轨道杂化的空间不对称性最终导致能谷能级分裂，与图 1（e）中 Ce 原子轨道能级分裂规律形成自洽关联。

为探究 CeBr_2 在谷电子学器件中的应用潜力，本文通过 wannier 函数进一步计算了其 AHC 与 SHC。对于三维铁磁系统，第 n 个能带的贝利曲率可以写为^[32]：

$$\Omega_n^z(k) = -\sum_{n \neq n'} \frac{2 \operatorname{Im} \langle nk | v_x | n'k \rangle \langle n'k | v_y | nk \rangle}{(E_{n'} - E_n)^2}. \quad (8)$$

从 Kubo 公式导出的总 Berry 曲率是所有占据态的总和^[32]:

$$\Omega^z(k) = \sum_n f_{nk} \Omega_n^z(k), \quad (9)$$

f_{nk} 为费米-狄拉克分布, $v_{x/y}$ 是速度算符, 通过在 2D 布里渊区 (BZ) 上积分 Berry 曲率计算二维本征反常霍尔电导 σ_{xy} ^[32]:

$$\sigma_{xy} = -\frac{e^2}{\hbar} \int_{BZ} \frac{d^2k}{(2\pi)^2} \Omega^z(k). \quad (10)$$

图 3(c) 为采用 3.87 Å 材料厚度 3D 化处理后的等效反常霍尔电导, AHC 随能量变化呈现明显的谷依赖特征: 在费米能级附近 -0.5 eV 处出现约 8 S/cm 的极大值, 随后在 0.5 eV 附近降至约 -13 S/cm 的极小值, 之后逐渐回升。该结果表明单层 CeBr₂ 在费米能级附近具有非零的反常霍尔电导, 预示着可观测的反常谷霍尔效应, 为谷极化电荷的输运调控提供了物理依据。图 3(d) 为计算得到的自旋霍尔电导 (Spin Hall conductivity, 简称 SHC) 随能量变化的曲线, 其能量轴与图 3(b) 的能带结构完全对应。在能隙区间 (费米能级附近, 能量约为 0 eV 处), 自旋霍尔电导呈现明显的平台状特征, 且在整个带隙范围内保持稳定、无明显波动。这一结果表明单层 CeBr₂ 在能隙区间具有显著的自旋霍尔响应, 为其在自旋输运器件中的应用提供了物理依据。

综上, 单层 CeBr₂ 具有由 SOC 诱导的价带谷劈裂 (38.7 meV), 并同时展现出明显的反常霍尔与自旋霍尔响应, 实现了谷、自旋、轨道与电荷自由度的多重耦合, 为其在低功耗、多场调控的谷自旋电子器件中的应用提供了理论基础。

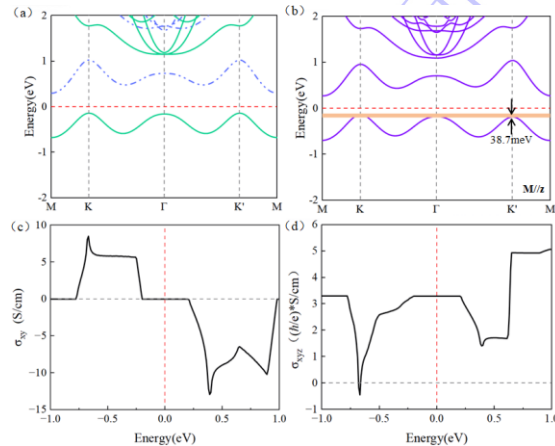


图 3. (a) 单层 CeBr₂ 在无自旋轨道耦合 (SOC) 下的能带结构。绿色实线与蓝色虚线分别代表自旋向上和自旋向下的能带。(b) 有 SOC 效应的单层 CeBr₂ 的能带图像。(c) 和 (d) 分别为单层 CeBr₂ 的反常霍尔电导率和自旋霍尔电导率图像。

Figure 3. (a) Band structure of monolayer CeBr₂ without spin-orbit coupling (SOC). The green solid lines and blue dashed lines represent the spin-Up and spin-down energy bands, respectively. (b) Projected band structure of monolayer CeBr₂ with SOC. (c) Anomalous Hall conductivity. (d) Spin Hall conductivity.

为系统考察电子关联作用对 CeBr₂ 物理性质的调控规律，开展了 Hubbard U 参数 ($U = 4-8 \text{ eV}$) 的依赖性计算。结果表明，电子关联强度对体系的磁学性质与电子结构均具有显著影响。

在磁学性质方面，FM 与反铁磁 AFM 态的能量差 ΔE_{AFM-FM} 随 U 值的变化呈现明显的双向极值特征，如图 4(a)所示： $U=5 \text{ eV}$ 时能量差降至约 -0.72 eV 的极小值(表明此时 AFM 磁态相对 FM 的稳定性最强)，随后在 $U=6 \text{ eV}$ 时跃升至约 0.27 eV 的极大值 (表明此时 FM 磁态相对 AFM 的稳定性最强)，且在 $U=6\sim 8 \text{ eV}$ 区间保持正值，说明该关联强度范围内两种磁态的稳定性差异显著，电子关联强度的变化可实现磁基态在 AFM 与 FM 之间的翻转。磁各向异性 (MAE) 则随着 U 的增大而增大，如图 4(b)所示，反映出关联强度有利于增强磁各向异性；当 U 增大至 $7\sim 8 \text{ eV}$ 时，MAE 的增长逐渐趋于饱和，说明过强的电子关联对磁各向异性的进一步增强作用有限。

在电子结构方面，如图 4(c)和 4(d)所示，价带的谷劈裂随 U 增大单调上升。这一非对称调控行为主要源于 Ce-4f 与 Br-p 轨道在不同关联强度下的杂化演化：增强的电子关联使 4f 轨道更局域，进而调制其与 Br-p 轨道的杂化强度，从而影响不同能谷的轨道组成与能量顺序。与此同时，体系的带隙随 U 增大而持续减小 (见图 4(d)) 这主要是因为，在强关联电子体系中，Hubbard U 参数的增大通常对应局域电子-电子库仑排斥作用的增强，这将对体系的能带结构产生显著影响。一方面，关联修正会引起占据态 (价带) 与未占据态 (导带) 之间的能量重排，表现为占据态能级下移、未占据态能级上移，从而在静态平均场层面上倾向于扩大单粒子能隙。另一方面，对于以窄带 f/d 电子为主导的强关联体系，增强

的电子关联效应往往伴随着能带宽度的压缩以及有效质量的增大,从而削弱能级分裂对能隙扩大的贡献。在这种情况下,价带顶与导带底在能量空间中的相对位置可能出现重新靠近,导致计算得到的有效带隙随 U 的增大反而减小。这种由关联效应引起的能隙重整化行为在多种稀土及过渡金属化合物中均已有报道。在本文的计算中,单 CeBr_2 的带隙随 Hubbard U 参数的增大呈现持续减小的趋势,表明在该体系中,关联增强所引发的能带窄化效应占据主导地位。该结果反映了强关联区域内价带与导带在能量上的相对接近,预示着体系电子跃迁特性及低能电子结构将发生显著重构。

综上所述,Hubbard U 作为调控 CeBr_2 电子关联强度的关键参数,可有效调节其磁基态稳定性、磁各向异性、能谷劈裂及带隙大小,当 $U = 7\text{eV} \sim 8\text{eV}$ 时体系展现出最优的磁性与谷极化特性。该结果为后续基于关联强度的材料设计与器件调控提供了清晰的理论依据。

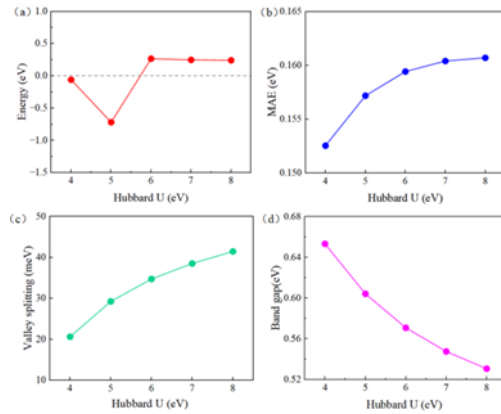


图 4. (a) 单层 CeBr_2 AFM 与 FM 磁态的能量差 ΔE_{AFM-FM} 随 Hubbard U 的变化关系; (b) 单层 CeBr_2 的 MAE 随 Hubbard U 的变化关系; (c) 单层 CeBr_2 价带谷劈裂随 Hubbard U 的变化关系; (d) 单层 CeBr_2 带隙随 Hubbard U 的变化关系。

Figure 4. (a) Energy difference between AFM and FM states as a function of Hubbard U . (b) MAE versus Hubbard U . (c) Valley splitting at the valence band maximum and conduction band minimum as a function of Hubbard U . (d) Band gap versus Hubbard U .

3.4 应变调控的磁学性质与能谷劈裂

应变作为调控二维材料物理性质的有效外场手段,在 CeBr_2 中展现出对磁序、磁各向异性、谷极化及轨道磁矩的连续调控能力。本文系统研究了双轴应变

($\varepsilon = (a - a_0) / a_0 \times 100\%$, a_0 为平衡晶格常数) 在 $\pm 5\%$ 范围内对单层 CeBr_2 多物理性质的调控行为。在未施加双轴应变时, FM 态为体系的磁基态。在 $\varepsilon = -5\% \sim +5\%$ 的应变范围内 (图 5(a)), FM 态始终保持能量最低, 表明其磁基态在该应变区间内具有良好稳定性, 为应变可调自旋器件的磁态保持提供了基础。

MAE 随双轴应变呈现单调变化 (图 5(b)): 从 $\varepsilon = -5\%$ 时的 169meV 减小至 $\varepsilon = +5\%$ 时的 153meV , 说明压缩应变可增强体系的磁各向异性。这一变化源于应变引起的晶格畸变对 Ce 原子 f 轨道晶体场及自旋-轨道耦合强度的调制, 为通过应变实现磁化方向切换提供了可能。

价带能谷劈裂值始终为正, 并且在无应变时达到最大值, 施加双轴应变 (无论是压缩还是拉伸) 均导致谷劈裂减小。这一行为源于应变对 Ce- $5d$ 轨道晶体场环境的扰动: 无应变时, Ce 原子处于最优配位构型, $5d$ 轨道在 K 与 K' 点的杂化不对称性最强, 自旋-轨道耦合诱导的谷劈裂最大; 施加应变后, 晶格畸变破坏这一最优构型, 削弱轨道杂化不对称性, 导致谷劈裂降低。该结果表明, 双轴应变工程可在一定范围内连续调控谷极化强度, 但无应变状态对应最优谷劈裂性能。

此外, Ce 原子的轨道磁矩随双轴应变发生细微但系统的变化 (图 5(d)), 从 $-0.974\mu_B$ ($\varepsilon = -5\%$) 逐渐变化至 $-0.982\mu_B$ ($\varepsilon = +5\%$)。这一变化反映了双轴应变对 Ce 局域电子结构的微扰, 其趋势与 MAE 的双轴应变响应相呼应, 共同揭示了双轴应变通过调制轨道自由度来调控磁性与谷相关的物理微观机制。综上, 双轴应变可在一定范围内连续调节 CeBr_2 的磁各向异性、谷极化及轨道磁矩, 且不改变其铁磁基态, 展现出该体系在多功能应变调控器件中的应用潜力。

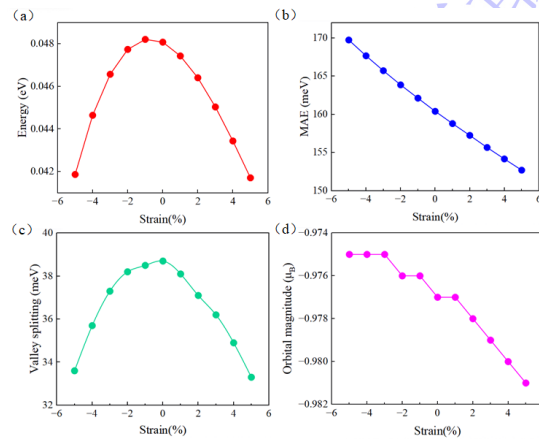


图 5 (a) 单层 CeBr₂ AFM 与 FM 磁态的能量差 ΔE_{AFM-FM} 随双轴应变的变化关系。(b) 单层 CeBr₂ 的 MAE 随双轴应变的变化关系。(c) 单层 CeBr₂ 价带谷劈裂随双轴应变的变化关系。(d) 单层 CeBr₂ 的 Ce 原子轨道磁矩随双轴应变的变化关系。

Figure 5. (a) The Energy difference between AFM and FM states as a function of strain. (b) MAE as a function of strain. (c) Valley splitting as a function of strain. (d) Orbital magnetic moment of the Ce atom as a function of strain.

4 结果与讨论

本文基于第一性原理计算，系统研究了单层 CeBr₂ 的结构稳定性、磁学性质、电子结构及其谷极化与输运特性。研究表明，单层 CeBr₂ 为一种新型的本征二维铁谷材料，具有良好的结构、热力学和动力学稳定性。其铁磁基态由 Ce-4f/5d 与 Br-p 轨道的超交换作用所主导，并表现出明显的面内磁各向异性 ($MAE = 111\text{meV}$)。在自旋-轨道耦合作用下，体系在价带顶 K 与 K' 点处产生约 38.7meV 的自发能谷劈裂，该值超室温热涨落能量，保障了谷极化在室温下的稳定性。计算同时揭示了该材料在能谷附近具有非零的反常霍尔电导与自旋霍尔电导，预示着其可观测的电荷与自旋输运效应，支持反常谷霍尔效应的实现。此外，本研究通过调节 Hubbard U 参数与施加双轴应变，系统考察了电子关联与外部应变对物性的调控规律。结果表明，适当的电子关联强度 ($U = 7\text{eV} \sim 8\text{eV}$) 能够实现磁各向异性与谷极化的最优化；而在 $\pm 5\%$ 的双轴应变范围内，谷极化与磁各向异性均可被连续调控，且铁磁基态保持稳定，展现出多物理场协同调控的潜力。本工作不仅为二维铁谷材料家族提供了一个具有大谷极化、高稳定性的新成员，而且从轨道耦合、电子关联及外场调控等多个维度，深化了对稀土基卤化物中谷、自旋、轨道与电荷自由度之间耦合机制的理解。这些结果为设计基于 CeBr₂ 的多场调控、低功耗谷自旋电子器件提供了可靠的理论依据与材料平台。

-
- [1] Schaibley J R, Yu H Y, Clark G, Rivera P, Ross J S, Seyler K L, Wang Y, Xu X D 2016 *Nat. Rev. Mater.* **1** 16055
 [2] Xiao D, Chang M C, Niu Q 2010 *Rev. Mod. Phys.* **82** 1959
 [3] Tong W Y, Gong S J, Wan X G, Duan C G 2016 *Nat. Commun.* **7** 13612
 [4] Huang B, Clark G, Navarro Moratalla E, Klein D R, Cheng R, Seyler K L, Zhong D, Schmidgall E, McGuire M A, Cobden D H, Wang Y, Xu X D, Jarillo Herrero P, Xu X 2017 *Nature* **546** 270

- [5] Gong C, Li Z L, Li Z, Ji H W, Stern A, Xia Y, Cao T, Bao W, Wang C Z, Wang Y, Qiu Z Q, Cava R J, Louie S G, Xia J, Zhang X 2017 *Nature* **546** 265
- [6] Sheng K, Chen Q, Yuan H K, Wang Z Y 2022 *Phys. Rev. B* **105** 075304
- [7] Sun H B, Ren Y W, Wu C, Dong P Q, Zhang W X, Wu Y Z, Li P 2025 *Phys. Rev. Appl.* **23** 034032
- [8] Wang Y D, Sun H B, Wu C, Zhang W X, Guo S D, She Y C, Li P 2025 *Phys. Rev. B* **111** 085432
- [9] She Y C, Wang Y D, Sun H B, Wu C, Zhang W X, Li P 2026 *Phys. Rev. B* **113** 035420
- [10] Sun Z H, Guan H M, Fu L, Shen B, Tang N 2021 *Acta Phys. Sin.* **70** 027302 (in Chinese) [孙真昊, 管鸿明, 付雷, 沈波, 汤宁 2021 物理学报 **70** 027302]
- [11] Mermin N D, Wagner H 1966 *Phys. Rev. Lett.* **17** 1133
- [12] Jungwirth T, Sinova J, Manchon A, Marti X, Wunderlich J, Felser C 2018 *Nat. Phys.* **14** 200
- [13] Guo S D, Zhang L G, Zhang Y W, Li P, Wang G Z 2024 *Phys. Rev. B* **110** 024416
- [14] Hedjar H, Meskine S, Boukortt A, Bennacer H, Benzidane M R 2022 *Comput. Condens. Matter.* **30** e00632
- [15] Cheng H X, Zhou J, Ji W, Zhang Y N, Feng Y P 2021 *Phys. Rev. B* **103** 125121
- [16] Sheng K, Yuan H K, Wang Z Y 2022 *Phys. Chem. Chem. Phys.* **24** 3865
- [17] Wu H F, Yan R F, Chen Y K, An Y K 2024 *J. Magn. Magn. Mater.* **611** 172600
- [18] Chen Y K, Zhao X S, An Y K 2024 *Phys. Rev. B* **109** 125421
- [19] Anderson P W 1950 *Phys. Rev.* **79** 350
- [20] Dong L, Lou J, Shenoy V B 2017 *ACS nano* **11** 8242
- [21] Lang H F, Zhang S Q, Liu Z R 2016 *Phys. Rev. B* **94** 235306
- [22] Zhao P, Ma Y D, Lei C A, Wang H, Huang B B, Dai Y 2019 *Appl. Phys. Lett.* **115** 261605
- [23] Xie W F, Wang L B, Xu X, Yue Y L, Xia H Y, He L H, Wang H 2025 *Acta Phys. Sin.* **74** 227502 (in Chinese) [谢伟锋, 王利波, 许雄, 岳云亮, 夏华艳, 何龙辉, 王辉 2025 物理学报 **74** 227502]
- [24] Zhu J X, Guo S D 2025 *J. At. Mol. Phys.* **42** 026005 (in Chinese) [朱靖欣, 郭三栋 2025 原子与分子物理学报 **42** 026005]
- [25] Blöchl P E 1994 *Phys. Rev. B* **50** 17953
- [26] Kresse G, Furthmüller J 1996 *Phys. Rev. B* **54** 11169
- [27] Perdew J P, Burke K, Ernzerhof M 1996 *Phys. Rev. Lett.* **77** 3865
- [28] Li S J, Hou Y F, Zhou M, Zheng F W, Shao X H, Zhang P 2023 *J. Appl. Phys.* **134** 213901
- [29] Togo A, Tanaka I 2015 *Scr. Mater.* **108** 1
- [30] Marzari N, Mostofi A A, Yates J R, Souza I, Vanderbilt D 2012 *Rev. Mod. Phys.* **84** 1419
- [31] Li P, Wu C, Peng C, Yang M, Xun W 2023 *Phys. Rev. B* **108** 195424
- [32] Thouless D J, Kohmoto M, Nightingale M P, den Nijs M 1982 *Phys. Rev. Lett.* **49** 405

Strain and correlation effects modulate the valley polarization behavior in monolayer CeBr₂ *

Wang Yi-Ding ¹⁾²⁾ Chen Xiang ¹⁾²⁾ Yong Li¹⁾ She Yan-Chao ¹⁾²⁾ ‡ Zhang Wei-Xi¹⁾²⁾ †

1) (Department of Physics and Electronic Engineering, Tongren University, Tongren 554300, China)

2) (School of Physics and Mechatronics Engineering, JishoU University, JishoU 416000, China)

Abstract

The valley degree of freedom, as an intrinsic electronic property analogous to charge and spin, has emerged as a promising carrier of information in next-generation low-power and high-efficiency electronic devices. Achieving robust and controllable valley polarization is a central challenge in the development of valleytronics. Ferrovalley materials, characterized by intrinsic magnetic ordering that breaks time-reversal symmetry, are particularly attractive because they can generate spontaneous valley polarization without the need for external fields. In this work, based on first-principles calculations within the framework of density functional theory, we systematically investigate the structural stability, magnetic properties, electronic structure, and valley polarization behavior of a two-dimensional CeBr₂ monolayer.

Our results demonstrate that monolayer CeBr₂ possesses excellent thermodynamic and dynamical stability, as confirmed by total energy analysis and phonon dispersion calculations. The system exhibits a ferromagnetic ground state with a Curie temperature exceeding room temperature, indicating its suitability for practical applications. In addition, a pronounced in-plane magnetic anisotropy is identified, which plays a crucial role in stabilizing long-range magnetic order in two-dimensional systems. When spin-orbit coupling is taken into account, the

*Project supported by the Science and Technology Department of Guizhou Province, China (ZK [2023] 467 and MS[2026] 804), the NSF of Tongren Science and Technology Bureau (Grants No. [2023]41, Grants No.[2025]52 and[2025]53).

‡ Corresponding author E-mail: sheyanchao316@163.com

† Corresponding author E-mail: Zhangwwxx@sina.com.

degeneracy between the K and K' valleys is lifted, leading to a spontaneous valley splitting at the valence band maximum. The magnitude of this splitting is significantly larger than the thermal fluctuation energy at room temperature, ensuring robust valley polarization under ambient conditions. Furthermore, Berry curvature calculations reveal the presence of nonzero anomalous Hall conductivity and spin Hall conductivity near the valley regions, indicating that monolayer CeBr₂ can host the anomalous valley Hall effect and related spin-dependent transport phenomena. These features highlight the coexistence and coupling of multiple degrees of freedom, including charge, spin, orbital, and valley, in this system.

To explore the tunability of its physical properties, we further investigate the effects of electron correlation and external strain. By varying the Hubbard U parameter, we find that enhanced electron correlation strengthens both magnetic anisotropy and valley polarization, reflecting the important role of localized 4f electrons of Ce atoms. Meanwhile, the application of biaxial strain within a range of $\pm 5\%$ enables continuous modulation of valley splitting and magnetic anisotropy without altering the ferromagnetic ground state, demonstrating excellent mechanical and functional robustness. Overall, this study identifies monolayer CeBr₂ as a promising two-dimensional ferrovalley material with large valley polarization, high thermal stability, and strong tunability. The results provide valuable insights into the interplay between electron correlation, spin-orbit coupling, and lattice deformation, and offer theoretical guidance for the design and optimization of multifunctional valleytronic and spintronic devices based on rare-earth halide systems.

Keywords: Valley polarization, Magnetic anisotropy, Multifield control, Anomalous valley hall effect

PACS: 75.30.Gw, 71.70.Ej, 73.22.-f, 75.70.Ak

Graphical Abstract

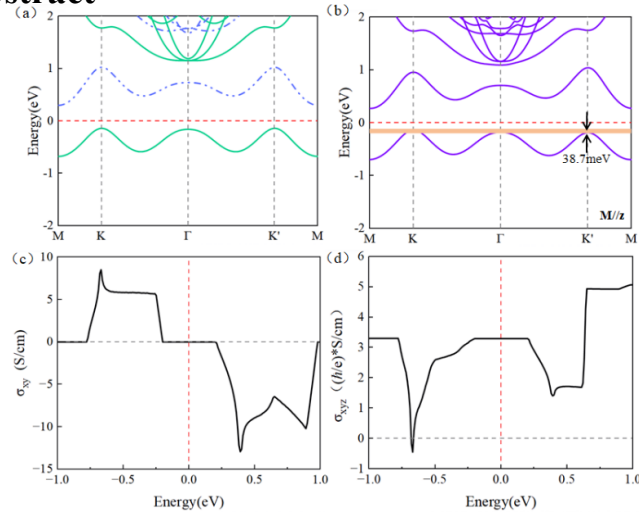


Figure presents the electronic structure and transport properties of monolayer CeBr₂: (a) band structure without spin-orbit coupling (SOC), where the green solid and blue dashed curves represent spin-up and spin-down bands, respectively; (b) band structure with SOC; (c) anomalous Hall conductivity; (d) spin Hall conductivity.

Spin-orbit coupling (SOC) in monolayer CeBr₂ lifts the degeneracy between the K and K' valleys, giving rise to a sizable spontaneous valley splitting at the valence band maximum, as revealed by the band structure. This intrinsic ferrovalley characteristic originates from the interplay between ferromagnetic ordering and orbital-dependent SOC. The asymmetric Berry curvature distribution near the valleys further leads to finite anomalous Hall conductivity (AHC) and spin Hall conductivity (SHC), indicating coupled charge-spin-valley transport. These results demonstrate that monolayer CeBr₂ hosts robust valley polarization and nontrivial transport responses without external fields. The coexistence of valley splitting and Hall effects highlights the strong coupling among spin, orbital, and valley degrees of freedom, establishing CeBr₂ as a promising platform for multifunctional valleytronic and spintronic devices.