

$\delta$ -(Zn, Cr)S(111)表面上的Dzyaloshinsky- Moriya作用: 第一性原理计算

李小影 黄灿 朱岩 李晋斌 樊济宇 潘燕飞 施大宁 马春兰

Dzyaloshinsky-Moriya interaction in  $\delta$ -(Zn, Cr)S(111) surface: First principle calculations

Li Xiao-Ying Huang Can Zhu Yan Li Jin-Bin Fan Ji-Yu Pan Yan-Fei Shi Da-Ning Ma Chun-Lan

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 67, 137101 (2018) DOI: 10.7498/aps.67.20180342

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.67.20180342>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2018/V67/I13>

---

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

第一性原理计算 Co/h-BN 界面上的微弱 Dzyaloshinsky-Moriya 相互作用

First principle study of weak Dzyaloshinsky-Moriya interaction in Co/BN surface

物理学报.2018, 67(11): 117102 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.67.20180337>

石墨烯纳米结构的制备及带隙调控研究

Fabrication of graphene nanostructure and bandgap tuning

物理学报.2017, 66(21): 217301 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.217301>

石墨烯吸附 Li 团簇的第一性原理计算

The first-principle calculation on the Li cluster adsorbed on graphene

物理学报.2017, 66(5): 057301 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.057301>

双势垒抛物势阱磁性隧道结隧穿磁阻及自旋输运性质的研究

Study on tunneling magnetoresistance effects in parabolic well magnetic tunneling junction with double barriers

物理学报.2016, 65(15): 157301 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.157301>

等价电子数组元 Heusler 合金  $\text{Fe}_2\text{RuSi}$  中的原子占位

Site preference in isoelectronic Heusler alloy  $\text{Fe}_2\text{RuSi}$

物理学报.2016, 65(14): 147102 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.147102>

专题: 磁斯格明子

# $\delta$ -(Zn, Cr)S(111) 表面上的 Dzyaloshinsky-Moriya 作用: 第一性原理计算\*

李小影<sup>1)</sup> 黄灿<sup>1)</sup> 朱岩<sup>1)†</sup> 李晋斌<sup>1)</sup> 樊济宇<sup>1)</sup> 潘燕飞<sup>1)</sup>  
施大宁<sup>1)</sup> 马春兰<sup>2)</sup>

1) (南京航空航天大学理学院物理系, 南京 210006)

2) (苏州科技大学数理学院物理科学与技术系, 苏州 215009)

(2018年2月20日收到; 2018年4月21日收到修改稿)

根据密度泛函理论的第一性原理计算了具有非中心反演对称的异质结  $\delta$ -(Zn, Cr)S(111) 体系的原子结构和电子结构. Cr 原子之间通过第一层 S 原子传递磁性相互作用. 结合广义布洛赫条件, 又进一步计算了反方向的自旋螺旋能量与波矢的色散关系  $E(\mathbf{q})$  与  $E(-\mathbf{q})$ .  $E(\mathbf{q})$  与  $E(-\mathbf{q})$  能量之差反映了  $\delta$ -(Zn, Cr)S(111) 的 S 层与 Cr 层之间空间反演对称性破缺引起的 DMI 的大小. 通过海森伯相互作用 (HBI) 模型与 Dzyaloshinsky-Moriya 作用 (DMI) 模型拟合第一性原理计算值, 得到了 Cr 原子间各近邻的 HBI 参数  $J_1$ - $J_4$  与 DMI 参数  $d_1$ ,  $d_2$ . 在  $\delta$ -(Zn, Cr)S(111) 中, Cr 原子间的耦合为  $M$  型反铁磁. DMI 参数  $d_1$  为  $-0.53$  meV, 为顺时针手性 DMI, 在  $\delta$ -(Zn, Cr)S(111) 界面上有可能会产生斯格明子. 本文计算表明, 磁性和非磁性半导体界面有可能存在 DMI, 为理论研究和磁存储技术的进步开拓一个新的方向.

关键词: 第一性原理, Dzyaloshinsky-Moriya 相互作用, 异质结, 斯格明子

PACS: 71.15.Nc, 73.20.At, 73.61.Ey

DOI: 10.7498/aps.67.20180342

## 1 引言

磁性斯格明子是一种具有拓扑保护的磁畴结构, 因其小尺寸、易被电流驱动、低能耗等优点成为磁信息存储和自旋电子学器件的理想材料之一. 近年来, 在磁性块材、薄膜和纳米线<sup>[1-4]</sup>中都发现了磁性斯格明子<sup>[5]</sup>. 由于重金属强自旋轨道耦合以及为了与半导体技术发展更好地兼容, 铁磁与非磁性重金属之间的界面上出现的 Néel 型斯格明子引起了广泛关注<sup>[6-12]</sup>. 实际上在磁性体系中产生斯格明子的机理有很多种<sup>[13]</sup>, 通常是多种机理同时存在. 研究最多的是 Heisenberg 相互作用 (HBI) 一个修正项 Dzyaloshinskii-Moriya 相

互作用 (DMI)<sup>[14-18]</sup>, 即手性磁相互作用<sup>[14,15,19]</sup>. DMI 的存在关键在于磁体的非中心对称或磁性薄膜界面的空间反演对称性破缺性<sup>[1,2,20-23]</sup>. 非中心对称材料中的 DMI 可以使螺旋磁体或者斯格明子自旋结构稳定. Dai 等<sup>[24]</sup>通过计算发现, 六角结构的 Co/Ru/Co 纳米盘可以产生斯格明子. 同样, CoPt 薄膜也可以产生斯格明子<sup>[25]</sup>. 这些材料 (再例如 Co/Ir, Fe/W, Ta/CoFeB/TaO, Ir/Co/Pt, Pt/Co/MgO, Pt/CoFeB/MgO 等) 都是利用过渡金属与贵金属之间的界面来实现空间对称性破缺和有效的自旋轨道耦合确保非平庸拓扑自旋结构的形成<sup>[6-12,26-30]</sup>.

石墨烯丰富的自旋性质在自旋电子学的研究中引起了极大的关注, 其与过渡金属形成的界面由

\* 国家自然科学基金 (批准号: 11204131, 11374159)、江苏省高等学校自然科学研究重大项目 (批准号: 17KJA140001) 和江苏省“六大人才高峰”高层次人才项目 (批准号: XCL-078) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: yzhu@nuaa.edu.cn

于空间反演对称性的破缺理论上也可以产生拓扑保护的斯格明子. 通过自旋极化电子显微镜实验和第一性原理计算表明, 石墨烯/钴 (Co/Gra) 界面的DMI可以具有与重金属界面相同的量级. 第一性原理计算得到Co/Gra界面上最近邻Co原子间存在每原子1.14 meV的DMI<sup>[31]</sup>. 这项工作为基于二维材料的自旋轨道运动指引了更广泛的研究方向. 美国加州大学圣巴巴拉分校的Stefano Sanvito教授在GaAs掺杂Mn的稀磁半导体 (diluted magnetic semiconductor, DMS) 中提出了二维 $\delta$ 层概念, 即MnAs作为GaAs的夹层使得该DMS具有二维长程铁磁性<sup>[32]</sup>. 如果MnAs层生长在GaAs表层, 那么就可以形成磁性和非磁性材料界面的异质结.

掺杂过渡金属的宽带隙ZnS也是一种性能良好的DMS, 这类DMS材料具有优异的磁光和磁电性能, 将半导体的信息处理和磁性材料的信息存储功能、半导体的优点和磁性材料的非易失性两者融合在一起, 从而受到人们的广泛关注<sup>[33]</sup>. 近年来, 在大量实验研究的基础上, 发现对硫化锌进行合适的掺杂可以改变其能带结构, 从而使硫化锌材料的光电性能及结构性能得到改善, 在光电学领域具有巨大的应用潜力<sup>[34]</sup>. Cr是一种很有应用前景的过渡元素, 对ZnS(111)面的表面外延生长Cr原子, 形成单层Cr原子的 $\delta$ -(Zn,Cr)S(111)异质结, 从而改善体系的光学和磁性性能. 作为异质结的 $\delta$ -(Zn,Cr)S(111), ZnS与Cr的界面形成反演对称性破缺, 所以在异质结的界面是否会有DMI的存在呢? 这将是一个非常有趣的课题. 如果异质结界面也具有DMI, 那么就可以开辟半导体表面覆盖过渡金属原子层形成斯格明子的研究领域. 这需要首先通过第一性原理结合模型来研究 $\delta$ -(Zn,Cr)S(111)界面的DMI, 为将来斯格明子的研究奠定坚实的基础.

## 2 计算方法与理论模型

我们采用基于密度泛函理论 (density functional theory) 的第一性原理赝势平面波方法<sup>[35]</sup>的VASP软件进行计算. VASP是利用赝势方法和平面波基组进行量子力学从头计算的软件包. 在VASP计算中, 我们采用了VASP自带的Perdew-Burke-Ernzerhof势<sup>[36]</sup>. VASP采用平面波基矢通过自洽迭代方式来求解Kohn-Sham方程, 通过计

算的波函数计算出力与张量. 计算体系中的原子再通过受力分析, 逐渐弛豫到基态上, 力的收敛条件是 $10^{-2}$  eV/Å. 平面波截断能选取为380 eV, 初始截断能设定为280 eV用来延展平面波函数, 电子步自洽计算收敛条件为 $1.0 \times 10^{-6}$  eV. ZnS的晶格常数计算得到5.45 Å, 倒格空间的K点分布设置为 $25 \times 25 \times 1$ . 真空层取作15 Å, 大于一般计算中10 Å的取值, 足够模拟表面.

以往磁性原子间的磁交换能的VASP研究只计算了最近邻原子间的作用 $J_1$ , 并没有得到其他更远近邻间HBI参量 $J_i$ <sup>[37-40]</sup>. 实际上在2002年, Marsman和Hafner<sup>[41]</sup>就首次通过广义布洛赫条件在VASP中计算了 $\gamma$ -Fe自旋螺旋 (spin spiral) 色散关系, 得到了各个近邻的 $J_i$ , 并用来解释 $\gamma$ -Fe磁性结构. 本文尝试通过非线性计算<sup>[42]</sup>, 考虑自旋轨道耦合, 利用广义布洛赫条件<sup>[43,44]</sup>, 计算自旋螺旋的能量波矢色散关系, 并通过自旋螺旋能量波矢的色散关系得到各个近邻的 $J_i$ 和DMI的参数 $d_i$ .

具有DMI的海森伯模型系统的哈密顿量可以表示为

$$E = \sum_{\langle i,j \rangle} \frac{1}{2} [J_{ij}(1 - \mathbf{s}_i \cdot \mathbf{s}_j) + \mathbf{d}_{ij} \cdot (\mathbf{s}_i \times \mathbf{s}_j)], \quad (1)$$

式中,  $E$ 是体系的总能量; 第一项是HBI, 设置铁磁态为基态且能量为0, 磁矩旋转导致的HBI能量变化是与铁磁态的相对值; 第二项是DMI,  $\mathbf{s}_i$ 是归一化了的磁矩;  $\mathbf{d}_{ij} = d_{ij}(\mathbf{z} \times \mathbf{u}_{ij})$ 是DMI作用矢量, 其中 $\mathbf{u}_{ij}$ 是连接两个磁性原子 $i$ 与 $j$ 的基矢,  $\mathbf{z}$ 垂直于界面,  $d_{ij}$ 是各近邻间DMI的大小. 如果设置磁矩在垂直于二维界面的平面内变化形成自旋螺旋, 且 $d_{ij}$ 的值不为零, 那么DMI就打破了自旋螺旋的空间反演简并性, 导致自旋螺旋色散关系的空间不对称性. 我们通过VASP计算反方向的自旋螺旋的色散关系 $E(\mathbf{q})$ 与 $E(-\mathbf{q})$ , 其中 $\mathbf{q}$ 为自旋螺旋的方向矢量. 则 $\Delta DMI(\mathbf{q}) = E(\mathbf{q}) - E(-\mathbf{q})$ 为所计算自旋螺旋体系两倍DMI能量随 $\mathbf{q}$ 的变化. 一般来说, 同一波矢 $\mathbf{q}$ 下, DMI的绝对值越大, 则 $d_{ij}$ 越大, 斯格明子越小, 更便于实际应用.

## 3 结果与讨论

### 3.1 结构性质

$\delta$ -(Zn, Cr)S(111)面的结构如图1(a)所示, 左图是 $\delta$ -(Zn, Cr)S(111)的侧视图, 整个表面由6层

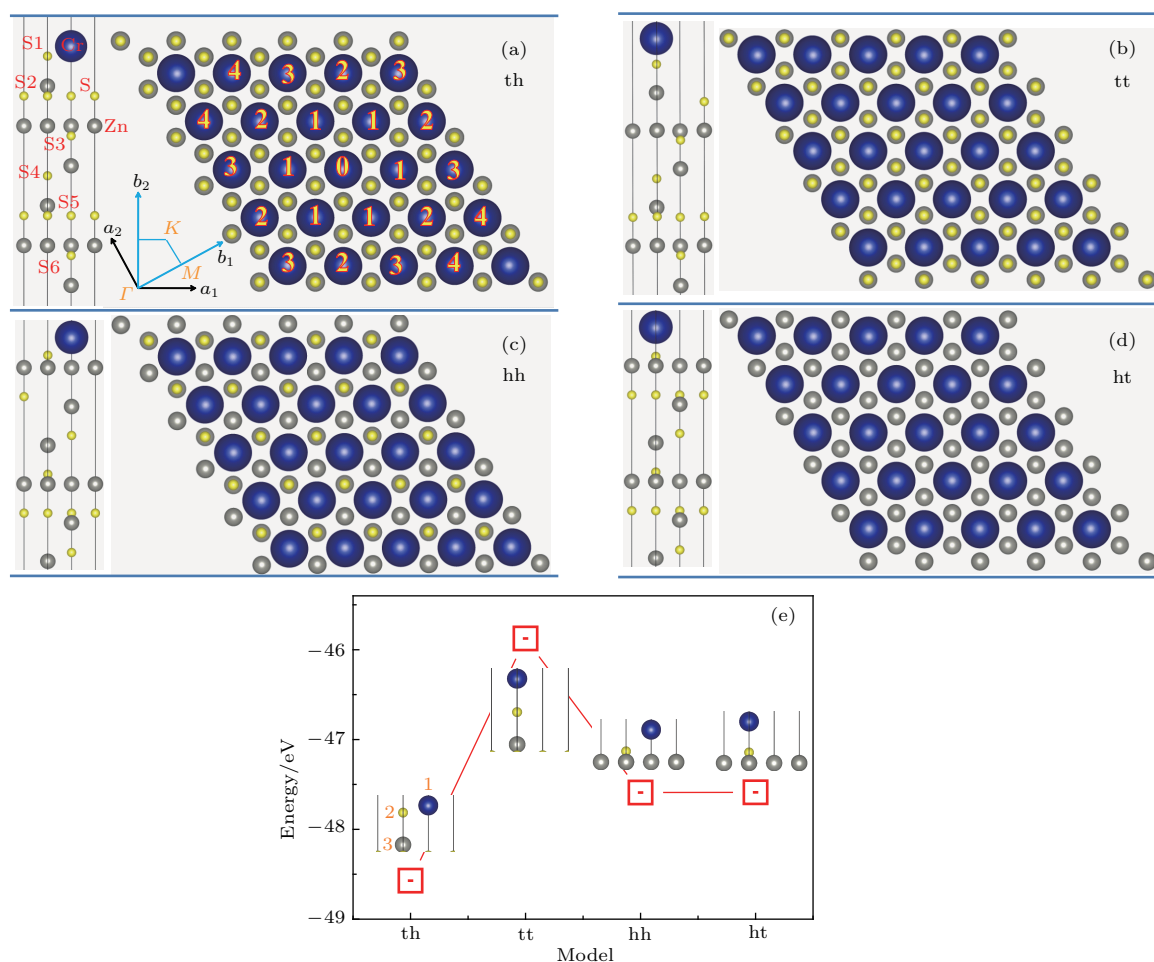


图1 (a) 左侧是 th 型  $\delta$ -(Zn, Cr)S(111) 面的原子结构侧视图, 右侧是扩展后的  $5 \times 5$  超胞俯视图, 用来描述 Cr 原子间的 HBI 和 DMI 相互作用, 其中最中间的 Cr 原子标记为 0, 其他 Cr 原子与中间 Cr 原子的近邻数也标记在原子上; 蓝色大球表示 Cr 原子, 黄色的小球表示 S 原子, 灰色的中球表示 Zn 原; 其中  $a_1$  和  $a_2$  是基矢,  $b_1$  和  $b_2$  是倒易点阵矢量. S1—S6 是不同层 S 原子的标记; (b), (c), (d) 分别是 tt, hh, ht 型  $\delta$ -(Zn, Cr)S(111) 面的原子结构侧视图与俯视图 (e) 为  $\delta$ -(Zn, Cr)S(111) 的四种模型的原子结构以及能量; 为方便讨论, 最上层的 Cr 原子标为序号 1, 距离 Cr 原子最近的 S 原子标为序号 2, 距离 Cr 原子最近的 Zn 原子标为序号 3; 带点的红色方框表示四种结构的能量

Fig. 1. (a) Left part is the side view of atomic structure of th-type  $\delta$ -(Zn, Cr) S (111) surface. Different atoms are labeled: big blue, middle grey and little yellow balls are for Cr, Zn and S atoms, respectively. Right part is the top view of extended  $5 \times 5$  supercell which is used to describe the HBI and DMI between different neighbors of Cr in  $\delta$ -(Zn, Cr)S(111), as shown the yellow numbers on the atom. (b), (c) and (d) are side view and top view of atomic structures tt-type, hh-type and ht-type  $\delta$ -(Zn, Cr)S(111) surfaces, respectively. The labeled  $a_1$  and  $a_2$  is basis vector and  $b_1$  and  $b_2$  is reciprocal lattice vector;  $\Gamma$ ,  $M$  and  $K$  are the high symmetry  $k$ -points in first Brillouin zone. S atom at different layer is labeled, shown as S1—S6. (e) The energy of  $\delta$ -(Zn, Cr)S(111) system is shown as a function of different adsorption sites of Cr, as labeled in the insert part in the figure.

ZnS 和一层表面的 Cr 组成, ZnS 与 Cr 之间形成界面. 右图是  $\delta$ -(Zn, Cr)S(111) 的俯视图, 原胞扩展成  $5 \times 5$  超胞. 俯视图中, Cr 原子在 3 个 S 原子形成的三角格子的中间 (另外 3 个 S 原子在下一层). 中心的 Cr 原子标记为 0, 其他数字表示与此原子的近邻数, 总共标记到第四近邻. 第一到第三近邻的原子个数各有 6 个, 第四近邻原子个数是 12 个. 本文所研究的  $\delta$ -(Zn, Cr)S(111) 有四种结构, 分别如图 1(a)—(d) 所示, 尤其 Cr 层以及与之近邻的两

层原子局部结构如图 1(e) 中插图所示. 表面结构的不同体现在两点: ZnS(111) 表面本身的非对称性 (即靠近 Zn 原子层的 S 原子层上下不对称, 如图 1(a)—(d) 左边侧视图所示, 可以形成两种 S 表面) 与 Cr 原子在 S 层的吸附位置不同. 在 ZnS(111) 表面, 第二层的 S 原子可以占据第三层 Zn 原子层的空位 (hollow, h) 和顶位 (top, t) 两个位置. 综合在图 1(e) 嵌入的示意图中, 左边两个就是 t 位, 称之为 t 表面; 右边两个就是 h 位, 称之为 h 表面.

两种表面各用横坐标的第一个字母表示. ZnS层确定下来后, 第一层的Cr在S层的位置也有两种, t位和h位, 用横坐标的第二个字母表示. 如在th结构里, 2S处在3Zn的t位, 1Cr处在2S的h位. 则图1(a)—(d)分别是 $\delta$ -(Zn, Cr)S(111)面的th, tt, hh, ht表面. 各表面的侧视图与俯视图基本上都不一样. 自旋螺旋计算该选取哪一种结构呢? 我们可以从表面体系的稳定性出发, 选取最稳定的一种结构. 如图1(e)所示, 四种结构里, hh与ht能量几乎一样, 即h表面对Cr原子的吸附位置没有选择; 而在t表面, tt结构能量远远大于其他三种结构, 是最不可能存在的表面结构; th结构能量则远远小于其他结构, 比hh和ht要小约1 eV, 所以th表面结构最稳定. 我们下面的计算也选取该结构, 而图1(a)中就是th表面完整的结构示意图.

### 3.2 自旋电荷密度与态密度分析

首先计算了th结构的自旋电荷密度分布. 如图2插图自旋电荷密度等面图所示, 磁矩主要集中在Cr原子的周围. 图3中, Cr轨道分态态密度图显

示s电子与p电子的态密度几乎趋近于0, Cr原子的态密度磁矩主要来自Cr的d电子, 即Cr的磁矩

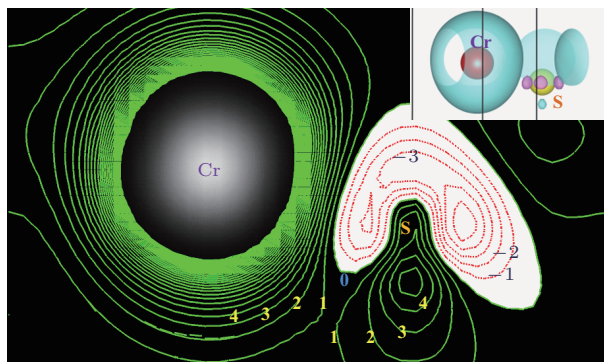


图2 通过Cr与最靠近它的S原子的二维自旋电荷密度分布图 等高线的等高值是 $\rho_n = 0.001 \times n e/a_0^3$ , 其中n是图中等高线的标记值,  $a_0$ 是玻尔半径; 插入部分为 $\delta$ -(Zn, Cr)S(111)的三维自旋电荷密度等面分布图, 青色和粉色曲面分别是自旋向上和向下等自旋电荷密度面  
Fig. 2. This figure is the spin charge density contours plotted across Cr and S1 atom. Contour values are  $\rho_n = 0.001 \times n e/a_0^3$ , where n is the number labeled on the contour lines and  $a_0$  is the Bohr radius. The insert part is spin charge density around Cr and S1 atom and the cyan and pink curved surfaces are for spin up and spin down channels respectively.

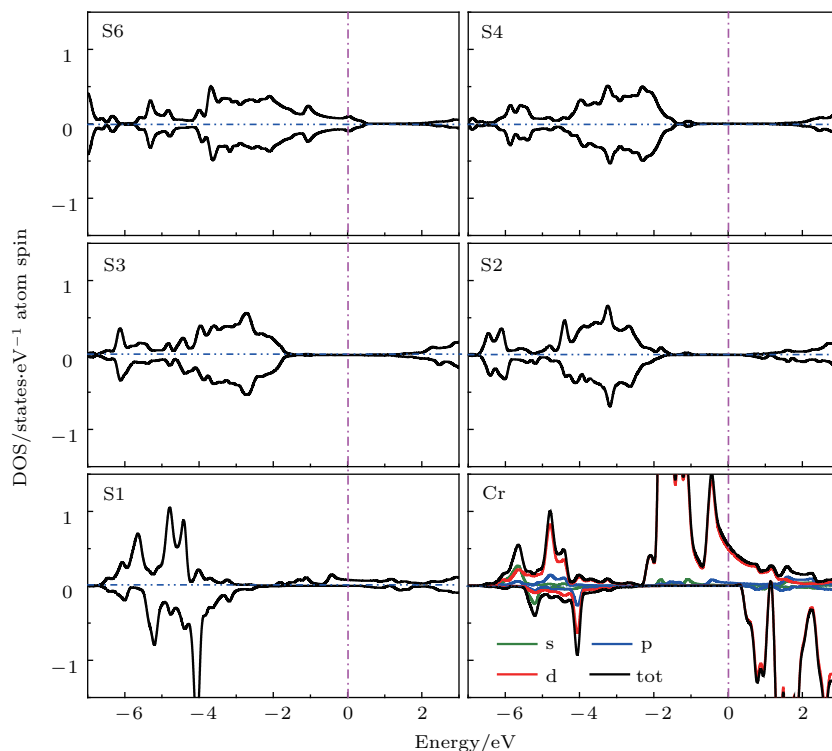


图3 图为 $\delta$ -(Zn, Cr)S(111)的Cr和S原子的分态态密度以及Cr各轨道的分态态密度 其中各层S原子如图1(a)所示; 纵坐标正值表示上自旋的态密度, 负值表示下自旋态密度; 紫色的虚线表示态密度为0处; 能量为0处的粉色虚线是费米面  
Fig. 3. The partial density of states (DOS) of the Cr atom and selected S atom in Fig. 1(a). The partial DOS of orbital of Cr atom are also shown. The purple dashed line at zero energy is the position of the Fermi level. Positive and negative values of partial DOS are for the spin-up and spin-down channels, respectively.

主要是由d轨道自旋劈裂形成的. 靠近Cr原子的S原子的磁矩也因此受较大的影响. 通过二维自旋电荷密度分布图可以发现, 在铁磁排布下, Cr原子需要通过在S原子的上方诱导出向下的磁矩与另一个磁矩向上的Cr原子形成相互作用. 这也显示在图3的态密度图中: 在-6 eV—-2 eV的能量区间内, S1原子的态密度分布与Cr原子的态密度分布几乎完全一致, 即Cr原子的掺杂对S1的态密度产生了巨大的影响. 可以看到S1的上自旋态主要集中在-4.5 eV附近, 下自旋态主要集中在-4 eV, 原先无磁矩的S原子的态密度被Cr原子诱导出了较大的磁矩. 同样, S1对表层的Cr原子的态密度也影响较大. S3的态密度类似体态的态密度, 主要集中在-5 eV—-1.5 eV区间, 上下自旋的态密度几乎完全对称. 而S2的态密度基本上与S3类似, 但并不是完全对称, 即Cr原子能稍微影响到第二层S原子, 并主要通过第一层S传递Cr原子间的相互作用. 而薄膜的另一个表面的S原子, S6的态密度上下自旋也是一样的, 但与S3不同的是, S6的态密度延展到了费米能级以上, 产生了空穴态. 此空穴态显示了S6原子的表面态. 纯 $\delta$ -(Zn, Cr)S(111)的表面没有磁矩, 再次说明S1的磁矩是Cr原子诱

导出来的. S4的表面态几乎消失不见, 其态密度和S3类似. 即S6的表面态对S3几乎没有影响, 所以就更不能影响Cr原子. 所以我们所选取的这个薄膜已经足够模拟 $\delta$ -(Zn, Cr)S(111)的表面, 为下面的计算构建好了结构.

### 3.3 自旋螺旋 $E(\mathbf{q})$ 与DMI的大小

首先根据HBI与DMI模型, 推导出三角结构薄膜中波矢为 $\mathbf{q}$ 的自旋波能量与波矢的色散关系. 三角结构中, 我们选择一个磁矩作为零点(命名为 $\mathbf{S}(0)$ ), 位置 $j$ 处的磁矩位置用 $\mathbf{R}_j = m\mathbf{a}_1 + n\mathbf{a}_2$ 表示, 其中 $\mathbf{a}_1$ 和 $\mathbf{a}_2$ 是基矢. 自旋螺旋的方向描述为 $\mathbf{q} = q_1\mathbf{b}_1 + q_2\mathbf{b}_2$ , 其中 $\mathbf{b}_1$ 和 $\mathbf{b}_2$ 是倒易点阵矢量. 在VASP计算中, 所有的磁矩都设置在 $xz$ 平面上, 而 $\mathbf{S}(0)$ 在 $z$ 轴上. 在广义布洛赫条件下, 波矢为 $\mathbf{q}$ 的自旋波中, 第 $j$ 个相邻Cr原子的磁矩 $\mathbf{S}(\mathbf{R}_j)$ 为

$$\begin{aligned}
 \mathbf{S}(\mathbf{R}_j) &= S(0) \sin(\mathbf{q} \cdot \mathbf{R}_j) \mathbf{i} + S(0) \cos(\mathbf{q} \cdot \mathbf{R}_j) \mathbf{j} \\
 &= S(0) \sin 2\pi(mq_1 + nq_2) \mathbf{i} \\
 &\quad + S(0) \cos 2\pi(mq_1 + nq_2) \mathbf{j}.
 \end{aligned}$$

然后根据(1)式, 只考虑到第四近邻,  $\mathbf{S}(0)$ 与第 $j$ 近邻的磁矩 $\mathbf{S}(\mathbf{R}_j)$ 之间的HBI之和 $E_{J_j}(\mathbf{q})$ 分别如下:

$$\begin{aligned}
 E_{J_1}(\mathbf{q}) &= \frac{1}{2} J_1 [6 - 2 \cos 2\pi q_1 - 2 \cos 2\pi(q_1 + q_2) - 2 \cos 2\pi q_2], \\
 E_{J_2}(\mathbf{q}) &= \frac{1}{2} J_2 [6 - 2 \cos 2\pi(q_1 + 2q_2) - 2 \cos 2\pi(2q_1 + q_2) - 2 \cos 2\pi(q_1 - q_2)], \\
 E_{J_3}(\mathbf{q}) &= \frac{1}{2} J_3 [6 - 2 \cos 4\pi q_1 - 2 \cos 4\pi(q_1 + q_2) - 2 \cos 4\pi q_2], \\
 E_{J_4}(\mathbf{q}) &= \frac{1}{2} J_4 [12 - 2 \cos 2\pi(2q_1 + 3q_2) - 2 \cos 2\pi(q_1 + 3q_2) - 2 \cos 2\pi(3q_1 + 2q_2) \\
 &\quad - 2 \cos 2\pi(q_1 - 2q_2) - 2 \cos 2\pi(3q_1 + q_2) - 2 \cos 2\pi(2q_1 - q_2)].
 \end{aligned}$$

那么, 总的HBI为

$$\begin{aligned}
 E_{\text{HBI}}(\mathbf{q}) &= E_{J_1}(\mathbf{q}) + E_{J_2}(\mathbf{q}) + E_{J_3}(\mathbf{q}) \\
 &\quad + E_{J_4}(\mathbf{q}), \quad (2)
 \end{aligned}$$

其中 $J_1$ — $J_4$ 是HBI参数, 包含 $\mathbf{S}(0)^2$ ;

$\mathbf{S}(0)$ 和 $\mathbf{S}(\mathbf{R}_j)$ 之间的DMI之和 $E_{d_j}(\mathbf{q})$ 为

$$\begin{aligned}
 E_{d_1}(\mathbf{q}) &= \frac{1}{2} d_1 [2 \sin 2\pi q_1 + \sin 2\pi(q_1 + q_2) \\
 &\quad - \sin 2\pi q_2], \\
 E_{d_2}(\mathbf{q}) &= \frac{\sqrt{3}}{2} S^2 d_2 [\sin 2\pi(2q_1 + q_2) \\
 &\quad + \sin 2\pi(q_1 - q_2)];
 \end{aligned}$$

$$+ \sin 2\pi(q_1 - q_2)];$$

总的DMI为

$$E_{\text{DMI}}(\mathbf{q}) = E_{d_1}(\mathbf{q}) + E_{d_2}(\mathbf{q}), \quad (3)$$

其中 $d_1$ 和 $d_2$ 是DMI参数, 也包含 $\mathbf{S}(0)^2$ .

自旋螺旋 $E(\mathbf{q})$ 的总能量包含HBI和DMI

$$E(\mathbf{q}) = E_{\text{HBI}}(\mathbf{q}) + E_{\text{DMI}}(\mathbf{q}), \quad (4)$$

显然,  $E_{\text{HBI}}(\mathbf{q})$ 是 $\mathbf{q}$ 的偶函数, 而 $E_{\text{DMI}}(\mathbf{q})$ 是 $\mathbf{q}$ 的奇函数. 因此

$$\Delta \text{DMI}(\mathbf{q}) = E(\mathbf{q}) - E(-\mathbf{q}) = 2E_{\text{DMI}}(\mathbf{q}). \quad (5)$$

如图4(a)所示, 离散的点是VASP计算的 $\delta$ -(Zn, Cr)S(111)界面上反方向的自旋螺旋的能量波矢色散关系 $E(\mathbf{q})$ 与 $E(-\mathbf{q})$ . 自旋螺旋的波矢 $\mathbf{q}$ 选取了图1(a)所示的简约布里渊区的边界 $K\Gamma$ ,  $\Gamma M$ ,  $-K-\Gamma$ ,  $-\Gamma-M$ . 在HBI中,  $K\Gamma$ ,  $\Gamma M$ 与 $-K-\Gamma$ ,  $-\Gamma-M$ 是分别彼此等价的. 但DMI的作用使这种对称性发生了破缺, 如图4(a)所示,  $E(\mathbf{q})$ 与 $E(-\mathbf{q})$ 显然不一样. 图4(a)中,  $E(\mathbf{q})$ 与 $E(-\mathbf{q})$ 利用(4)式, 通过最小二乘法拟合出的实线与离散点非常符合. 图4(b)所示的 $E(\mathbf{q})$ 与 $E(-\mathbf{q})$ 的能量差即 $\Delta DMI(\mathbf{q})$ 表示 $\mathbf{S}(0)$ 与其他磁矩之间的总的DMI的两倍. 利用(5)拟合出的实线也与离散点符合得非常好.  $E(\mathbf{q})$ 曲线最高点在 $\Gamma$ 点, 即 $\delta$ -(Zn, Cr)S(111)的铁磁态是最不稳定的状态. 三角反铁磁态即 $\mathbf{q}$ 在 $K$ 点的态也只比 $\Gamma$ 点低了不到5 meV, 也是一个非常不稳定的态. 最低点出现在 $M$ 处,  $\mathbf{q} = \mathbf{b}_1/2$ . 该点的自旋波示意图如图4(a)中的插图所示(为更清楚地显示, 此示意图的磁矩安排在平面内). 由示意图可以看出, 沿着 $\mathbf{a}_2$ 方向的同一列磁矩彼此平行, 而相邻两列之间彼此反平行, 该磁有序状态命名为 $M$ 型是反铁磁态. 该反铁磁的任意一个磁矩在同列内有两个最近邻的方向相同的磁矩, 在两旁有四个最近邻的反方向的磁矩, 这反映了三角结构一种特殊的磁矩排布.  $\delta$ -(Zn,Cr)S(111)界面是是 $M$ 型反铁磁, 反铁磁体与重金属之间的界面也可以诱导DMI, 如图4(b)所示,  $\Delta DMI(\mathbf{q})$ 为负值, 按照Emori等[45]的定义, 显示为顺时针手性的DMI. 在具有自旋轨道耦合的反铁磁体中, 即使在低温下DMI也不被抑制[46,47]. 因此,  $\delta$ -(Zn, Cr)S(111)是很值得研究的一种异质结类型的DMI.

图4(a)和图4(b)中的计算值 $E(\mathbf{q})$ 通过最小二乘法拟合公式(4)和(5), 得到如图5所示的HBI参数 $J_1-J_4$ 和DMI参数 $d_1-d_2$ . 其中 $J_2$ 为-9.04 meV, 在所有参量中绝对值最大;  $J_1$ 为-3.52 meV, 和 $J_1$ 一样, 也为负值; 而 $J_3$ 为2.32 meV;  $J_4$ 趋近于0. 起绝对主导作用的就是第二近邻的 $J_2$ .  $J_2$ 为负值, 与 $J_1, J_3$ 一起决定了Co原子间的耦合为 $M$ 型反铁磁, 这与图4(a)中 $E(\mathbf{q})$ 在 $M$ 点能量最低相呼应.

DMI的 $d_1$ 为-0.53 meV,  $d_2$ 为0.07 meV. 虽然DMI的 $d$ 值在 $d_2$ 上保留了一些值, 但相比 $d_1$ , 仅考虑第一和第二近邻就足够了. DMI的大小相比于

$J_2$ 很小, 在考虑HBI的时候基本上不用考虑DMI. 但是 $d_1$ 的值已经和典型的Pt3/Co界面的值相比拟[39,48], 也大约是Co/Gra的DMI值的一半不到[31]. 所以很有可能在 $\delta$ -(Zn, Cr)S(111)的异质结表面上能测量到斯格明子, 这需要实验上进一步的研究. 本文为界面磁性研究提供了一个新的方向[49,50].

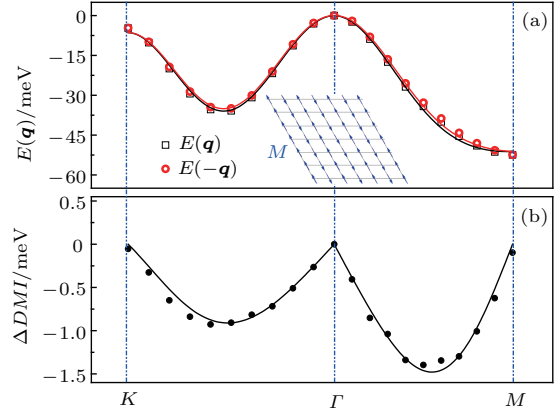


图4 (a) 离散点是 $\delta$ -(Zn, Cr)S(111)体系计算得到的自旋螺旋能量色散关系 $E(\mathbf{q})$ 与 $E(-\mathbf{q})$ , 其中 $\mathbf{q}$ 是自旋螺旋的波矢; 实线是拟合曲线; 插图是波矢 $\mathbf{q}$ 在 $M$ 点的自旋螺旋示意图; (b) 离散点是计算得到的 $E(\mathbf{q})$ 与 $E(-\mathbf{q})$ 之间的能量差 $\Delta DMI(\mathbf{q})$ , 实线是拟合曲线;  $K, \Gamma, M$ 是如图1所示第一布里渊区的特殊 $K$ 点

Fig. 4. (a) The scattered symbols are calculated energy dispersion  $E(\mathbf{q})$  and  $E(-\mathbf{q})$  of spin spirals in  $\delta$ -(Zn, Cr)S(111) as a function of the spiral wave vector  $\mathbf{q}$ ; the insert part is the spin spiral with wave vector  $\mathbf{q}$ ; (b) the scattered symbols are  $\Delta DMI(\mathbf{q})$ , gotten from the energy differences between  $E(\mathbf{q})$  and  $E(-\mathbf{q})$ . In (a) and (b), lines are fitted ones.  $K, \Gamma$  and  $M$  are special  $K$ -points in first Brillouin zone show in Fig. 1.

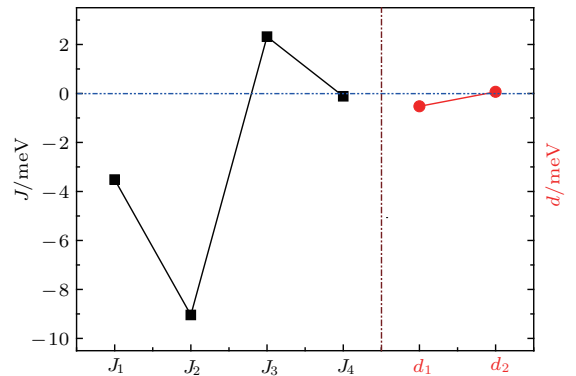


图5 拟合得到的HBI的 $J$ 值和DMI的 $d$ 值, 其中,  $J$ 值考虑到第四近邻,  $d$ 值考虑到第二近邻

Fig. 5. Fitted HBI  $J$  and DMI  $d$ .  $J$  is considered to the fourth neighbor and  $d$  is considered to the second neighbor.

## 4 结 论

根据密度泛函理论的第一性原理计算了具有中心反演对称破缺的异质结  $\delta$ -(Zn, Cr)S(111) 体系的原子结构和电子结构. 分析了薄膜平面内的自旋电荷密度分布以及各层原子的分态密度, 发现最靠近 Cr 原子的 S 原子产生了 Cr 诱导的磁矩. Cr 原子与 S 原子也通过该 S 原子传递磁性相互作用.  $\delta$ -(Zn, Cr)S(111) 不吸附 Cr 原子层的表面对 Cr 原子层几乎没有影响. 结合广义布洛赫条件, 又进一步计算了反方向的自旋螺旋能量与波矢  $\mathbf{q}$  的色散关系  $E(\mathbf{q})$  与  $E(-\mathbf{q})$ .  $E(\mathbf{q})$  与  $E(-\mathbf{q})$  能量之差反映了  $\delta$ -(Zn, Cr)S(111) 的 S 层与 Cr 层之间空间对称性破缺引起的 DMI 的大小. 通过 HBI 模型与 DMI 模型拟合第一性原理计算值, 得到了 Cr 原子间各近邻的 HBI 参数  $J_1$ — $J_4$  与 DMI 参数  $d_1$ ,  $d_2$ , 再用这些参数形成的色散曲线与原计算点非常符合. 在  $\delta$ -(Zn, Cr)S(111) 中,  $J_2$  为负值起主导作用,  $J_1$  为负值,  $J_3$  为正值, 大小比  $J_1$  小三倍左右,  $J_4$  接近于 0, 前三个参量决定了 Cr 原子间的耦合为  $M$  型反铁磁. DMI 参数  $d_1$  为  $-0.53$  meV, 在  $\delta$ -(Zn, Cr)S(111) 界面上有可能会产生斯格明子. 计算表明, 磁性和非磁性半导体界面有一定存在 DMI 的概率, 可以形成丰富的磁学现象, 为理论研究和存储技术的进步开拓了一个新的方向.

## 参考文献

- [1] Mühlbauer S, Binz B, Jonietz F, Pfleiderer C, Rosch A, Neubauer A, Georgii R, Böni P 2009 *Science* **323** 915
- [2] Yu X Z, Kanazawa N, Onose Y, Kimoto K, Zhang W Z, Ishiwata S, Matsui Y, Tokura Y 2011 *Nat. Mater.* **10** 106
- [3] Yu X Z, DeGrave J P, Hara T, Hara Y, Jin S, Tokura Y 2013 *Nano Lett.* **13** 3755
- [4] Du H F, DeGrave J P, Xue F, Liang D, Ning W, Yang J Y, Tian M L, Zhang Y H, Jin S 2014 *Nano Lett.* **14** 2026
- [5] Skyrme T H R A 1962 *Nucl. Phys.* **31** 556
- [6] Honolka J, Lee T Y, Kuhnke K, Enders A, Skomski R, Bornemann S, Mankovsky S, Minár J, Staunton J, Ebert H, Hessler M, Fauth K, Schütz G, Buchsbaum A, Schmid M, Varga P, Kern K 2009 *Phys. Rev. Lett.* **102** 067207
- [7] Heinze S, von Bergmann K, Menzel M, Brede J, Kubetzka A, Wiesendanger R, Bihlmayer G, Blügel S 2011 *Nat. Phys.* **7** 713
- [8] Romming N, Hanneken C, Menzel M, Bickel J, Wolter B, Bergmann K V, Kubetzka A, Wiesendanger R 2013 *Science* **341** 636
- [9] Sun L, Cao R X, Miao B F, Feng Z, You B, Wu D, Zhang W, Hu A, Ding H F 2013 *Phys. Rev. Lett.* **110** 167201
- [10] Pollard S D, Garlow J A, Yu J, Wang Z, Zhu Y, Yang H 2017 *Nat. Commun.* **8** 14761
- [11] Wells A W J, Shepley P M, Marrows C H, Moore T A 2017 *Phys. Rev. B* **95** 054428
- [12] Hellman F, Hoffmann A, Tserkovnyak Y, Beach G S D, Fullerton E E, Leighton C, MacDonald A H, Ralph D C, Arena D A, Dürr H A, Fischer P, Grollier J, Heremans J P, Jungwirth T, Kimmel A V, Koopmans B, Krivorotov I N, May S J, Petford-Long A K, Rondinelli J M, Samarth N, Schuller I K, Slavin A N, Stiles M D, Tchernyshyov O, Thiaville A, Zink B L 2017 *Rev. Mod. Phys.* **89** 025006
- [13] Nagaosa N, Tokura Y 2013 *Nat. Nanotech.* **8** 899
- [14] Dzyaloshinskii I 1958 *J. Phys. Chem. Solids* **4** 241
- [15] Moriya T 1960 *Phys. Rev.* **120** 91
- [16] Shu L, Chen Y G, Chen H 2002 *Acta Phys. Sin.* **51** 902 (in Chinese) [姜蕾, 陈宇光, 陈鸿 2002 物理学报 **51** 902]
- [17] Cai Z, Lu W B, Liu Y J 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 7267 (in Chinese) [蔡卓, 陆文彬, 刘拥军 2008 物理学报 **57** 7267]
- [18] Zhang Y L, Zhou B 2011 *Acta Phys. Sin.* **60** 120301 (in Chinese) [张丽英, 周斌 2011 物理学报 **60** 120301]
- [19] Luo Y M, Zhou C, Won C, Wu Y Z 2014 *AIP Adv.* **4** 047136
- [20] Fert A, Cros V, Sampaio J 2013 *Nat. Nanotech.* **8** 152
- [21] Münzer W, Neubauer A, Adams T, Mühlbauer S, Franz C, Jonietz F, Georgii R, Böni P, Pedersen B, Schmidt M, Rosch A, Pfleiderer C 2010 *Phys. Rev. B* **81** 041203
- [22] Tonomura A, Yu X, Yanagisawa K, Matsuda T, Onose Y, Kanazawa N, Park H S, Tokura Y 2012 *Nano Lett.* **12** 1673
- [23] Miao B F, Sun L, Wu Y W, Tao X D, Xiong X, Wen Y, Cao R X, Wang P, Wu D, Zhan Q F, You B, Du J, Li R W, Ding H F 2014 *Phys. Rev. B* **90** 174411
- [24] Dai Y Y, Wang H, Tao P, Yang T, Ren W J, Zhang Z D 2013 *Phys. Rev. B* **88** 054403
- [25] Xie K X, Sang H 2014 *J. Appl. Phys.* **116** 223901
- [26] Jiang W J, Upadhyaya P, Zhang W, Yu G Q, Pear J E 2015 *Science* **349** 283
- [27] Luchaire C M, Moutafis C, Reyren N, Sampaio J, Vaz C A F, van Horne N, Bouzehouane K, Garcia K, Deranlot C, Warnicke P, Wohlhüter P, George J M, Weigand M, Raabe J, Cros V, Fert A 2016 *Nat. Nanotech.* **11** 444
- [28] Boule O, Vogel J, Yang H X, Pizzini S, Chaves D D S, Locatelli A, Mentş T O, Sala A, Buda-Prejbeanu L D, Klein O, Belmeguenai M, Roussigné Y, Stashkevich A, Chérif S M, Aballe L, Foerster M, Chshiev M, Auffret S, Miron I M, Gaudin G 2016 *Nat. Nanotech.* **11** 449
- [29] Woo S, Litzius K, Krüger B, Im M Y, Caretta L, Richter K, Mann M, Krone A, Reeve R M, Weigand M, Agrawal P, Lemesh I, Mawass M A, Fischer P, Kläui M, Beach G S D 2016 *Nat. Mater.* **15** 501

- [30] Fert A, Reyren N, Cros V 2017 *Nat. Rev. Mater.* **2** 17031
- [31] Yang H X, Chen G, Cotta A A C, Alpha T, Diaye N, Nikolaev S A, Soares E A, Macedo W A A, Schmid A K, Fert A, Chshiev M 2017 *ArXiv* **1704** 09023
- [32] Sanvito S, Hill N A 2001 *Phys. Rev. Lett.* **87** 267202
- [33] Fan S W, Yao K L, Liu Z L 2009 *Appl. Phys. Lett.* **94** 152506
- [34] Saito H, Zayets V, Yamagata S, Ando K 2003 *Phys. Rev. Lett.* **90** 207202
- [35] Kresse G, Joubert D 1999 *Phys. Rev. B* **59** 1758
- [36] Perdew J P, Burke K, Ernzerhof M 1996 *Phys. Rev. Lett.* **77** 3865
- [37] Yang H X, Boule O, Cros V, Fert A, Chshiev M 2016 *ArXiv* **1603** 01847
- [38] Zhu Y, Ma C L, Shi D N, Zhang K C 2014 *Phys. Lett. A* **378** 2234
- [39] Yang H, Thiaville A, Rohart S, Fert A, Chshiev M 2015 *Phys. Rev. Lett.* **115** 267210
- [40] Pan Y, Zhu Y, Shi D N, Wei X Y, Ma C L, Zhang K C 2015 *J. Alloys Compd.* **644** 341
- [41] Marsman M, Hafner J 2002 *Phys. Rev. B* **66** 224409
- [42] Hobbs D, Kresse G, Hafner J 2000 *Phys. Rev. B* **62** 11556
- [43] Mryasov O N, Lichtenstein A I, Sandratskii L M, Gubanov V A 1991 *J. Phys. Condens. Matter* **3** 8565
- [44] Knöpfle K, Sandratskii L M, Kübler J 2000 *Phys. Rev. B* **62** 5564
- [45] Emori S, Bauer U, Ahn S M, Martinez E, Beach G S 2013 *Nat. Mater.* **12** 611
- [46] Zhang X, Zhou Y, Ezawa M 2016 *Sci. Rep.* **6** 24795
- [47] Barker J, Tretiakov O A 2016 *Phys. Rev. Lett.* **116** 147203
- [48] Dupé B, Hoffmann M, Paillard C, Heinze S 2014 *Nat. Commun.* **5** 4030
- [49] Hu X X, Zhao J, Gao W 2017 *Chin. Phys. B* **26** 079101
- [50] Shang J X, Liu K, Wang F H 2017 *Acta Phys. Sin.* **66** 216801

SPECIAL TOPIC — Magnetic skyrmions

# Dzyaloshinsky-Moriya interaction in $\delta$ -(Zn, Cr)S(111) surface: First principle calculations\*

Li Xiao-Ying<sup>1)</sup> Huang Can<sup>1)</sup> Zhu Yan<sup>1)†</sup> Li Jin-Bin<sup>1)</sup> Fan Ji-Yu<sup>1)</sup>  
Pan Yan-Fei<sup>1)</sup> Shi Da-Ning<sup>1)</sup> Ma Chun-Lan<sup>2)</sup>

1) (College of Science, Nanjing University of Aeronautics and Astronautics, Nanjing 210006, China)

2) (School of Mathematics and Physics, Suzhou University of Science and Technology, Suzhou 215009, China)

( Received 20 February 2018; revised manuscript received 21 April 2018 )

## Abstract

According to density functional theory calculations, we elucidate the atomic and electronic structure of  $\delta$ -(Zn, Cr)S(111) surface. The magnetic interaction between Cr atoms is via S atoms close to the Cr layer. This interaction is shown by the analysis of spin charge contour plot and partial density of states (DOS) of each atom. The DOSs of other S atoms are non magnetic and have no magnetic exchange with the Cr layer.  $E(\mathbf{q})$  and  $E(-\mathbf{q})$  are the dispersions between energy  $E$  and wave vector  $\mathbf{q}$  of spin spiral in the opposite directions. They are calculated with generalized Bloch equations and all the magnetic moments of Cr atoms are arranged in the plane perpendicular to the  $\delta$ -(Zn, Cr)S(111) film. The differences between  $E(\mathbf{q})$  and  $E(-\mathbf{q})$  are caused by the interface of  $\delta$ -(Zn, Cr)S(111), where the symmetry of space perpendicular to the film is broken. Effective Heisenberg exchange interaction (HBI) and Dzyaloshinsky-Moriya interaction (DMI) parameters between different neighbors ( $J_i$  and  $d_i$ ) are derived by well fitting the ab initio spin spiral dispersion  $E(\mathbf{q})$  to HBI with DMI model and  $E(\mathbf{q})-E(-\mathbf{q})$  to DMI model, respectively. The  $J_2$  plays a major role with a large negative value of  $-9.04$  meV. The  $J_1$  is about  $2/5$  of  $J_2$ , and  $J_3$  is about  $1/4$  of  $J_2$  with positive value. The DMI  $d_1$  is  $-0.53$  meV, and  $d_2$  is  $0.07$  meV. With these HBI parameters,  $E(0)$  is the largest one at which  $\delta$ -(Zn, Cr)S(111) has no ferromagnetic interface. The  $E(\mathbf{q})$  has its lowest energy with the  $\mathbf{q}$  at  $M = \mathbf{b}_1/2$  in the first Brillouin zone. Hence,  $\delta$ -(Zn, Cr)S(111) is an  $M$ -type antiferromagnetic (AFM) material. In this type of AFM configuration, magnetic moments of Cr atom in a line along  $\mathbf{b}_2$  are parallel to each other, and antiparallel to the magnetic moments in adjacent lines. The  $E(\mathbf{q})$  at  $K = \mathbf{b}_1/2 + \mathbf{b}_2/2$  is almost as large as that at  $\Gamma$  point. The value of DMI parameter  $d_1$  is about  $1/5$  of that on Co/Pt3 interface and  $1/2$  of Co/graphene. However, it is a negative number, which shows the clockwise chirality. The  $\delta$ -(Zn, Cr)S(111) interface has obvious DMI, and skyrmion may be formed at this transition-metal/semiconductor (TM/S) interface. It is a good option to search for DMI in different kinds of TM/S heterojunctions. The material that combines the advantage of heterojunction, and DMI may have new magnetic phenomenon, which is useful for the magnetic storage. This paper enriches the research on DMI.

**Keywords:** first principles, Dzyaloshinsky-Moriya interaction, heterojunction, skyrmion

**PACS:** 71.15.Nc, 73.20.At, 73.61.Ey

**DOI:** 10.7498/aps.67.20180342

\* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11204131, 11374159), NSF of Jiangsu Higher Education Institutions, China (Grant No. 17KJA140001), and Six Talent Peaks Project of Jiangsu, China (Grant No. XCL-078).

† Corresponding author. E-mail: [yzhu@nuaa.edu.cn](mailto:yzhu@nuaa.edu.cn)