

H-Pb-Cl 中可调控的巨型 Rashba 自旋劈裂和量子自旋霍尔效应*

薛文明^{1)†} 李金^{2)‡} 何朝宇²⁾ 欧阳滔²⁾ 罗朝波²⁾ 唐超²⁾ 钟建新²⁾

1) (湖南工程学院计算科学与电子学院, 湘潭 411104)

2) (湘潭大学物理与光电工程学院, 湘潭 411105)

(2022 年 7 月 24 日收到; 2022 年 11 月 29 日收到修改稿)

具有巨型 Rashba 自旋劈裂和量子自旋霍尔效应的材料在自旋电子器件应用中具有重要意义. 基于第一性原理, 提出一种可以将巨型 Rashba 自旋劈裂和量子自旋霍尔效应实现完美共存的二维 (two dimension, 2D) 六角晶格材料 H-Pb-Cl. 由于系统空间反演对称性的破坏和本征电场的存在, H-Pb-Cl 的电子能带中出现了巨型 Rashba 自旋劈裂现象 ($\alpha_R = 3.78 \text{ eV}\cdot\text{\AA}$). 此外, H-Pb-Cl 的 Rashba 自旋劈裂是可以随双轴应力 (-16%—16%) 调控的. 通过分析 H-Pb-Cl 的电子性质, 发现在 H-Pb-Cl 费米面附近有一个巨大的带隙 (1.31 eV), 并且体系由于 Pb 原子的 s-p 轨道翻转使得拓扑不变量 $Z_2 = 1$, 这就表明 H-Pb-Cl 是一个具有巨大拓扑带隙的 2D 拓扑绝缘体. 我们的研究为探索 and 实现 Rashba 自旋劈裂和量子自旋霍尔效应的共存提供了一种优良的潜在候选材料.

关键词: 二维拓扑绝缘体, Rashba 自旋劈裂, 空间反演对称性, 自旋轨道耦合

PACS: 71.15.Mb, 73.20.-r, 73.21.-b, 73.90.+f

DOI: 10.7498/aps.72.20221493

1 引言

随着拓扑绝缘体 (topological insulator, TI) 的兴起与被广泛深入的研究^[1], 自旋轨道耦合 (spin-orbit coupling, SOC) 引起了人们极大的兴趣. SOC 来源于电子的自旋与其在电场中的运动之间的相互作用. 根据相对论理论, 当静止参考系中的电子在电场中运动时, 通过相对论的洛伦兹变换, 电子会感受到一个和电场以及电子运动有关的等效磁场. 这个等效磁场和电子自旋的 Zeeman 相互作用将电子的自旋和轨道运动耦合在一起, 即 SOC^[2,3]. SOC 作用的强度与构成材料原子的原子序数密切相关, 电子平均速度较高的重原子, SOC 的强度更

大. 对于研究电子自旋行为的自旋电子学, SOC 效应提供了控制电子自旋的可能性, 进而可以在具有强 SOC 作用的材料中诱发一系列新奇的特性, 如自旋弹道输运^[4]、电流诱导的自旋极化^[5]、自旋电流效应^[6]、超冷原子^[7-11]、量子电路^[12-15] 等等. 在所有的与 SOC 有关的现象中, 由结构空间反演对称性破缺导致的 Rashba 类型自旋劈裂和量子自旋霍尔效应 (quantum spin hall effect, QSHE) 最受关注.

对于 Rashba 类型的 SOC 劈裂, 由于其最容易被外电场调控^[3,16], 且经常与材料内部反演对称性破缺导致的 Dresselhaus 型的自旋轨道耦合纠缠在一起^[17-20], 在材料的电子性质上诱导出现各向异性的自旋劈裂, 进而出现一系列有趣的物理现

* 国家自然科学基金 (批准号: 11874316, 11404275, 11474244) 和湖南省自然科学基金 (批准号: 2016JJ3118) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: xuewm@hnie.edu.cn

‡ 通信作者. E-mail: lijn@xtu.edu.cn

象. 此外, Rashba 类型的 SOC 在实现无需外磁场作用的自旋电子器件方面具有很大的应用前景, 且巨型可调控的 Rashba 自旋劈裂更是对自旋场效应晶体管的实现具有重要意义. 在实际的操作中, 由于 SOC 诱导的 Rashba 效应和自旋电子器件的工作温度高度依赖于 SOC 的强度 [21,22], 因此, 实际的自旋电子应用对具有强 Rashba 自旋轨道耦合的材料有很高的需求. 早期的研究中, 人们发现可以在重金属的表面 [23–26] 或者合金表面 [27–31] 诱导出较大的 Rashba 效应 [32], 但它们由于缺乏带隙, 不能广泛应用于许多自旋电子学器件 [33]. 在体半导体和铁电体系统 [34–40] 中也发现了巨大的体 Rashba 效应, 这种效应甚至可以通过外部电场进行切换 [41], 但原子之间的强键作用使体系无法以稳定独立薄膜的形式存在, 这对于集成电路来说是非常不理想的. 因此, 寻找具有巨型可调控的 Rashba 自旋劈裂的材料依然是未来自旋电子学的核心问题.

对于 QSHE, 其实现不需要外加磁场, 但需要物质本身有强的 SOC, 以至于能在体系内形成能带翻转、产生带隙. 在 QSHE 中, 自旋方向相反的电子在沿着相反的方向运动, 在边缘出现自旋流, 但不存在电荷电流. 受时间反演对称性保护的自旋电流可以避免非磁性杂质的散射, 因此对于量子自旋霍尔系统, 时间反演对称性是不可或缺的. 所以对于能够实现 QSHE 的 2D TI, 由于其具有受时间反演对称性保护的一维拓扑边缘态而在拓扑自旋电子器件方面拥有着极大的潜在应用价值. 然而, 目前实验上通过 QSHE 对量化霍尔电导的观察仅在少量二维体系材料中报道, 如 HgTe/CdTe [42] (<10 K), InAs/GaSb [43], Bi_4X_4 ($X = \text{Br}$ 和 I) [44,45]. 尤其是近期姚裕贵团队 [44] 利用自助熔的方法制备高质量的 Bi_4Br_4 单晶样品, 并成功在 300 K 的室温下测得其受时间反演对称性保护的拓扑边缘态. 因此, 人们投入了大量精力来设计具有 QSHE 的新材料, 并提出了各种类型的 2D TI, 包括硅烯 [46]、锗烯 [47]、锡烯 [48]、铅烯 [49]、过渡金属卤化物 [50]、 ZrTe_5 / HfTe_5 [51], III-V 双层 [52], BiF_3 [53], X_2NaBi ($X = \text{K}, \text{Rb}$) [54], $\text{Ta}_2\text{M}_3\text{Te}_5$ ($M = \text{Pd}, \text{Ni}$) [55], MX_5 ($M = \text{Zr}, \text{Hf}$ 和 $X = \text{S}, \text{Se}, \text{Te}$) [56] 和 AM_2X_2 ($A = \text{Ca}, \text{Sr}, \text{Ba}; M = \text{Zn}, \text{Cd}; X = \text{Sb}, \text{Bi}$) [57] 等等, 但目前这些预测的材料除了都没有在实验中得到直接证实外, 极大部分材料都存在拓扑带隙较小和易受基底

的影响. 所以寻找具有巨大拓扑带隙且不受基底影响的 2D TI 至关重要.

Rashba 自旋劈裂和 QSHE 的研究是 2D 强 SOC 材料近年来研究的两个重要热点, 但是目前二者的研究大部分都是独立开展, 并未将两种性质进行共同研究. 然而因为这两种性质在本质上并不存在互斥情况, 因此若能在同一材料中成功实现两种奇异性质的完美共存, 即在该材料中获得巨型 Rashba 劈裂的同时, 保证体系也存在受时间反演对称性保护的巨大拓扑带隙, 将可以极为有效地拓宽和增加该材料在自旋电子器件应用方面的广度和深度. 在近年来的一些研究中虽然也发现了在同一材料中 Rashba 自旋劈裂与 QSHE 的共存现象 [58]. 但是这些材料中的共存现象并不十分理想. 通常情况下, 体系中的 Rashba 自旋劈裂现象和拓扑带隙都很小, 这大大地限制了其在自旋电子器件方面的潜在应用. 因此, 是否可以设计一个空间反演对称性破缺的强 SOC 2D 材料, 使得巨型 Rashba 自旋劈裂和 QSHE 能够在该结构中完美共存呢? 根据 Zhao 等 [49] 的结果, 我们注意到通过在强 SOC 的 2D 材料上吸附 X ($X = \text{H}, \text{F}, \text{Cl}, \text{Br}$) 原子可以极大地改变 2D 材料的电子性质, 甚至可以诱发拓扑相变. 而最近的研究报道显示, 已被实验成功制备的类石墨烯结构的铅烯 [59] 是一个具有强 SOC 作用的普通绝缘体 [49]. 因此, 本文基于第一性原理计算, 从理论上提出了一种具有空间反转对称破缺的 2D 层状材料 H—Pb—Cl . 根据计算结果, 注意到该材料在费米面附近有一个巨大的 Rashba 自旋劈裂 ($1.25 \text{ eV}\cdot\text{\AA}$), 并且在双轴应力 (-16%) 下, 劈裂可以进一步增强到 $3.78 \text{ eV}\cdot\text{\AA}$. 此外, 通过计算费米面附近的拓扑不变量和拓扑边态, 还发现该材料是一个具有巨大拓扑带隙 (1.31 eV) 的 2D TI. 因此, 我们的研究相对于其他理论提出的模型, 具有更大的拓扑带隙, 且更不容易被基底效应影响, 此外, 巨型可调控的 Rashba 自旋劈裂和 QSHE 在 2D H—Pb—Cl 材料中的完美共存, 对于该材料在无磁场作用下的自旋电子器件应用以及在常温下观测受时间反演对称性保护的拓扑边缘态均具有极其重要的意义.

2 计算方法

利用从头计算模拟程序包 VASP(Vienna *ab*

initio simulation package)^[60]进行了密度泛函理论计算. 计算中选用的交换关联能是带有范德瓦耳斯 (van der Waals) 修正的广义梯度近似 (GGA) 下的 optPBE-vdW^[61]. 价电子与离子实之间的相互作用采用过投影缀加平面波 (projected augmented wave, PAW) 方法来描述. 平面波函数的截断能取为 400 eV, 能量收敛标准设置为 10^{-6} eV. 采用 Monkhorst-Pack 方法, 布里渊区 K 点网格设置为 $9 \times 9 \times 1$. 为了避免相邻胞的相互作用, 在异质结构的 z 轴方向设置了 20 Å 的真空层. 利用共轭梯度方法对体系结构进行弛豫, 弛豫收敛条件为每个原子残余力小于 0.001 eV/Å. 由于 H—Pb—Cl 为强 SOC 材料, 在电子结构的计算过程中也考虑了原子的 SOC 合作用. 通过利用 wannier90^[62], wannier tools^[63] 和 PHONOPY^[64] 软件分别计算了 H—Pb—Cl 的拓扑不变量 Z_2 、拓扑边缘态以及声子谱.

3 结果和讨论

图 1(a) 表示的是 2D 层状材料 H—Pb—Cl 晶体结构的侧视图和俯视图. 从图 1(a) 中可以看到, 在一个单胞内, 铅烯中的两个铅原子并未处在同一平面, 而是具有褶皱的类硅烯结构. 铅烯的上下表面各吸附着一个 H 原子和 Cl 原子. 其中 H—Pb, Pb—Pb 和 Pb—Cl 之间的键长分别是 1.867 Å, 3.165 Å 和 2.479 Å, H—Pb—Pb 和 Pb—Pb—Cl 之间的夹角均为 100° , 两个铅原子在 z 方向的间隔距离为 0.82 Å. H—Pb—Cl 晶体结构的空间群为 $P3M1(156)$, 且晶格常数为 5.395 Å. H, Pb(H), Pb(Cl) 以及 Cl 原子在单胞中的原子坐标分别为

(0.333, 0.667, 0.656), (0.333, 0.667, 0.563), (0, 0, 0.535) 以及 (0, 0, 0.411). 此外, 为了验证 2D 层状材料 H—Pb—Cl 晶体结构的稳定性, 利用声子谱软件 PHONOPY 计算了它的声子谱, 如图 1(b) 所示. 从图 1(b) 中可以看到, 声学支和光学支的完美分离, 以及没有任何虚频的声子谱表明该结构是十分稳定的.

通过计算 H—Pb—Cl 电子性质, 如图 2(a)—(d), 发现在不考虑 SOC 作用情况下, H—Pb—Cl 在费米面附近的能带表现为半金属性质的闭合状态, 而当考虑 SOC 作用后, 体系在费米面附近打开了一个约为 1.04 eV 的巨大带隙. 由于 vasp+PBE 的计算很容易低估材料的带隙, 因此进一步考虑了杂化泛函 HSE06 的影响, 发现在考虑和不考虑 SOC 作用影响下, 体系基本和 vasp+PBE 的计算结果一致, 唯一不同的是体系在考虑 SOC 作用下的费米面附近的带隙增大至 1.31 eV. 这种考虑和不考虑 SOC 作用下能带的打开和闭合现象, 在 2D TI 中是十分常见的. 因此, 为了验证该材料的能带拓扑性质, 通过 vasp+wannier90 计算了材料的拓扑不变量 Z_2 , 如图 3(a). 很明显, 当演化曲线穿过具有奇数个点的参考线时, $Z_2 = 1$, 这表明 2D H—Pb—Cl 是一个非平庸的 TI. 另外, 2D TI 的另一个重要特征是受拓扑保护的无间隙边缘态. 因此, 通过使用格林函数方法和 vasp+wanniertools 计算了 2D H—Pb—Cl 半无限带的能带结构, 如图 3(b) 所示. 从图 3(b) 可以清楚地看到, 边缘态出现在体带隙中, 并在 Γ 点处线性交叉, 这意味着 H—Pb—Cl 是一个具有较大拓扑非平庸带隙的 2D TI.

为了了解 H—Pb—Cl 量子自旋霍尔态的物理起源, 接下来对单层的 H—Pb—Cl 在费米面附近

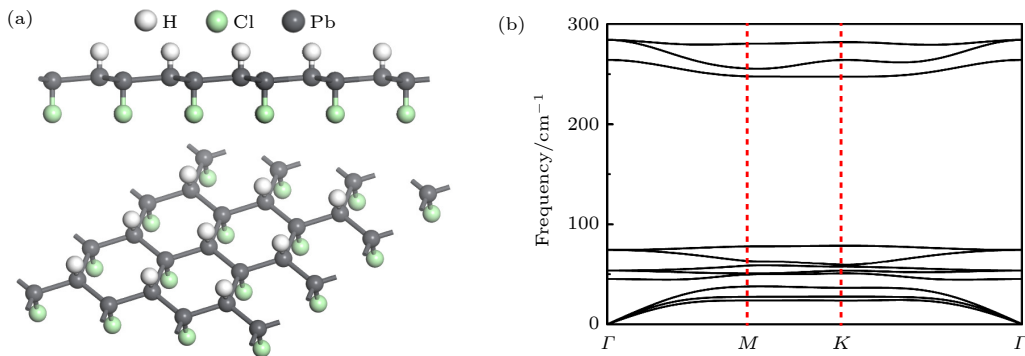


图 1 (a) 2D 层状材料 H—Pb—Cl 结构的侧视图和俯视图; (b) H—Pb—Cl 结构在布里渊区沿高对称点的声子谱

Fig. 1. (a) Side and top view of the crystal structure H—Pb—Cl; (b) phonon dispersion of 2D H—Pb—Cl along the high symmetry points in Brillouin zone.

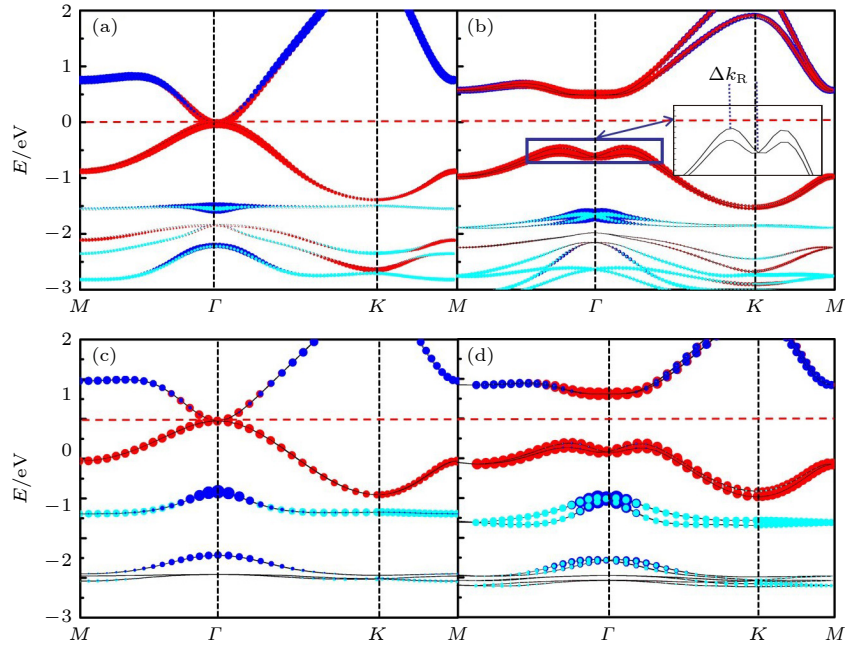


图 2 采用 PBE 和 HSE06 的 2D H-Pb-Cl 的能带结构 (a), (c) 不考虑 SOC; (b), (d) 考虑 SOC. 蓝点、红点和绿点分别表示 Pb 原子的 s, $p_{x,y}$ 和 p_z 轨道的投影权重. 图 (b) 中的插图表示的是费米面附近的能带劈裂现象

Fig. 2. The band structure of 2D H-Pb-Cl using PBE and HSE06: (a), (c) Without SOC; (b), (d) with SOC. Blue, red and green dots represent the contribution of s, $p_{x,y}$, p_z orbitals of Pb atoms, respectively. The illustration in Figure (b) shows the band splitting near the Fermi surface.

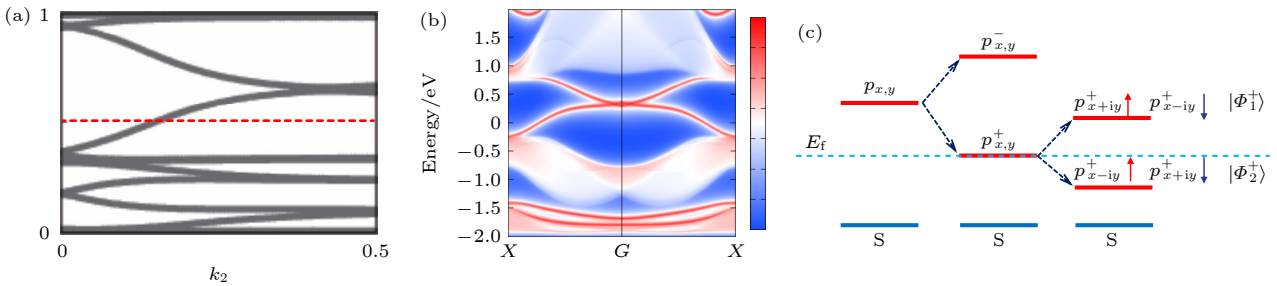


图 3 (a) 沿着 k_y 方向的瓦尼尔中心演化, 得到 $Z_2 = 1$; (b) H-Pb-Cl 沿着锯齿形边缘的边缘态; (c) H-Pb-Cl 在 Γ 点的能级演化

Fig. 3. (a) The evolutions of Wannier centers along k_y , yielding $Z_2 = 1$; (b) edge states of H-Pb-Cl on the zigzag edges; (c) evolution of energy bands at Γ for H-Pb-Cl.

做了轨道贡献分析. 如图 2(a)–(d) 所示, H—Pb—Cl 的能带在费米面的主要成分是由 Pb 的原子轨道贡献, 而由于原子轨道间的杂化作用, H 原子和 Cl 原子的轨道贡献主要集中在远离费米面的下方, 因此这里我们只做了 Pb 原子的 s, $p_{x,y}$ 和 p_z 轨道贡献. 从图 2 可以看到的是, 无论是在不考虑还是在考虑 SOC 作用下, H—Pb—Cl 的能带在费米面附近的组成成分都是 Pb 原子的 $p_{x,y}$ 轨道贡献, 且 s 轨道的贡献始终处于 $p_{x,y}$ 轨道下方. 此外, 由于 Pb—Pb 原子间的化学吸附和晶体场劈裂, 使得 $p_{x,y}$ 轨道劈裂成了成键态 p_{xy}^+ 和反键态 p_{xy}^- , 其中+和-分别代表的是对应的同等的态. 值得注意

的是, H—Pb—Cl 中的带序并未像之前的研究报道过的那样, p_{xy}^+ 处于 s 轨道下方, 进而在费米面附近诱导出能带翻转现象, 从而使得体系出现 QSHE. 这主要是因为铅烯表面功能化后带序的改变与键长和轨道劈裂有关. 2D 单层 H—Pb—Cl 的晶格常数高达 5.395 \AA , 这就导致了 s-p 轨道的杂化较弱, 使得 s 轨道始终处于了 $p_{x,y}$ 轨道的下方. 而当考虑 SOC 作用后, p_{xy}^+ 轨道发生进一步劈裂, 进而在费米面打开了带隙. 因此, 这种情况下 SOC 在整个能带演化过程中只是起到了一个打开带隙的作用, 并未诱导出能带翻转现象. 也就是说 SOC 与非平庸的带序形成是无关的. 事实上, 相似的情况

在之前的研究中也报道过, 像我们熟知的 2D TI 石墨烯^[65] 和硅烯^[66], 它们的非平庸的带序形成也跟 SOC 无关. 以石墨烯为例, 石墨烯的非平庸的 QSHE 主要是由于其本身具有的巨型狄拉克锥. 但是 H—Pb—Cl 中的非平庸 QSHE 是由于在高对称点 Γ 点处的 s-p 轨道翻转导致的, 这点和 Bi₂Se₃^[67] 或 HgTe^[68] 量子阱中的情况很像.

此外, 从图 2(b) 的插图中可以看到, 当考虑 SOC 作用后, H—Pb—Cl 在费米面附近的能带中出现了明显的劈裂现象. 因为 H—Pb—Cl 本身就是一个空间反演对称性破缺的强 SOC 材料, 所以进一步计算了体系的功函数, 如图 4(a). 从图 4(a) 可以看到, 在 H—Pb—Cl 的上下表面存在着明显的静电势差 ($\Delta\Phi = 1.65$ eV). 在一个体系中, 一个非 0 上下表面静电势差 $\Delta\Phi$ 意味着在沿着体系 z 方向上存在着一个本征电场. 而这个本征电场便是 Rashba 类型 SOC 的来源, 进而导致在体系电子能

带上出现 Rashba 自旋劈裂现象. 因此, H—Pb—Cl 在费米面附近的能带中出现的劈裂便是 Rashba 自旋劈裂. 进一步地, 通过利用公式 $\alpha_R \sim 2\Delta E_R/\Delta k_R$ 计算了体系在无应力作用下 H—Pb—Cl 的 Rashba 自旋劈裂常数, 其中 ΔE_R 和 Δk_R 分别表示的是能量差和动量差, Rashba 劈裂常数结果为 1.25 eV·Å.

为了探究 H—Pb—Cl 内部本征电场的大小与 Rashba 自旋劈裂程度之间的关系, 进一步研究了不同双轴应力 (-16% 到 16%) 作用下 H—Pb—Cl 内部的静电势差 $\Delta\Phi$, 发现 $\Delta\Phi$ 的变化是随着应力的增大而减小的, 如图 4(b). 这就表明随着应力的增大, H—Pb—Cl 内部的本征电场在逐渐减小. 这是因为随着双轴应力的增大, 2D 材料 H—Pb—Cl 的晶格拉伸时, 原子外部的电子云重叠减小, 原子间的相互作用减弱, 原子内部电荷的转移和重新分布, 导致材料内部电势差逐渐减小. 图 5(a) 表示的在双轴应力 (-16% 到 16%) 作用下 H—Pb—Cl 体系

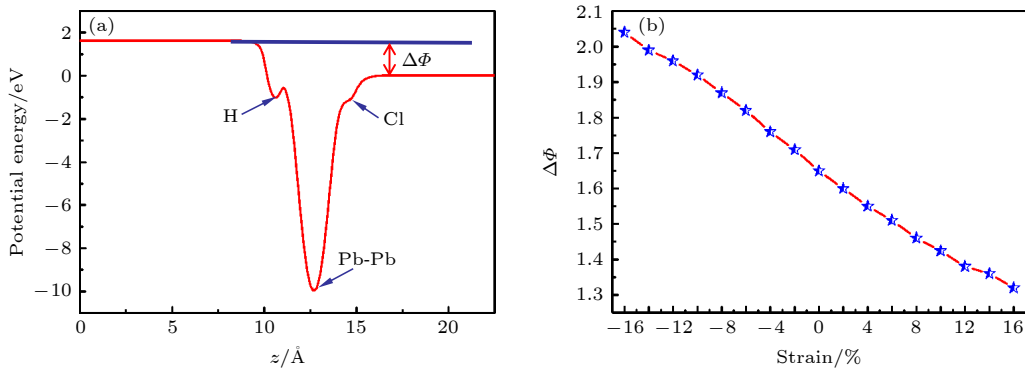


图 4 (a) 无双轴应力作用下 H-Pb-Cl 的功函数, $\Delta\Phi$ 表示的是静电势差; (b) H-Pb-Cl 的静电势差在双轴应力从 -16% 到 16% 作用下的变化图

Fig. 4. (a) Work functions of H-Pb-Cl under 0 biaxial stress, where $\Delta\Phi$ represents the electrostatic potential difference under different biaxial stresses; (b) the variations of electrostatic potential difference $\Delta\Phi$ of H-Pb-Cl with the biaxial stress of -16% to 16%.

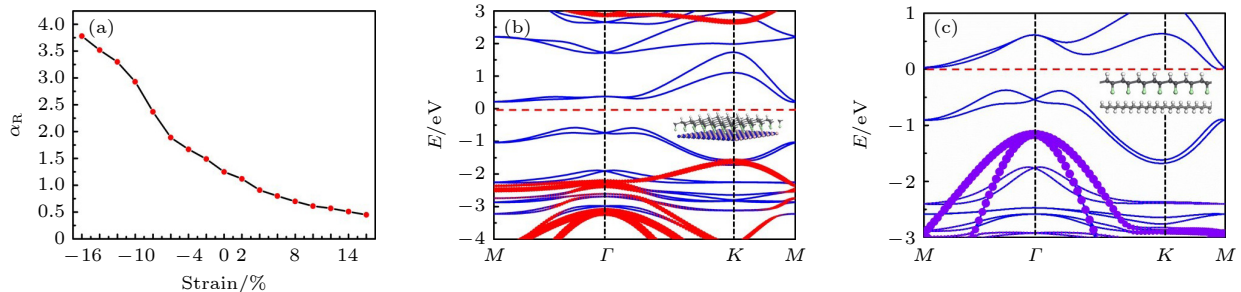


图 5 (a) 在双轴应力 (-16% 到 16%) 作用下 H-Pb-Cl 体系内的 Rashba 自旋劈裂系数 α_R 的变化图; (b) H-Pb-Cl (1×1)/BN (2×2) 的能带结构, 其中红色部分代表的是基底 BN 在能带中的贡献情况; (c) H-Pb-Cl (1×1)/石墨烷 (2×2), 其中紫色点线代表的是石墨烷在能带中的贡献情况

Fig. 5. (a) The variations of Rashba spin splitting α_R of H-Pb-Cl with the biaxial stress of -16% to 16%; (b) band structure of H-Pb-Cl (1×1)/BN (2×2), with the red stars-lines contributed by BN substrate; (c) band structure of H-Pb-Cl (1×1)/graphane (2×2), with the purple dotted line contributed by graphane substrate.

内的 Rashba 自旋劈裂系数 α_R 的变化图. 从图 5(a) 中可以明显地看出, 在双轴应力的影响下, Rashba 自旋劈裂也随着应力的增大而减弱. 显然地, 随着双轴应力的增大, H—Pb—Cl 体系内的本征电场减小, Rashba 自旋劈裂现象也跟着减弱. 这与先前研究报道的 Rashba 劈裂值的大小与体系内部本征电场的大小成正相关的结论是十分符合的^[6]. 另外更加值得注意的是, 在双轴应力为 -16% 作用下, H—Pb—Cl 体系内的 Rashba 自旋劈裂值高达到了 $3.78 \text{ eV}\cdot\text{\AA}$. 这一结果要大于甚至远大于理论或者实验上发现的其他大型 SOC 材料. 例如, 2D 单层材料 $\text{LaOBiS}_2(3.04 \text{ eV}\cdot\text{\AA})$ ^[69], $\text{HBi}_2\text{CH}_3(0.244 \text{ eV}\cdot\text{\AA})$ ^[70], $\text{PtXY}(X, Y = \text{S, Se, or Te})(0.746 - 1.333 \text{ eV}\cdot\text{\AA})$ ^[71], $\text{XGeSiP}_2\text{As}_2(X = \text{Mo, W})(0.52 \text{ eV}\cdot\text{\AA})$ ^[72] 和 $\text{O-PTI}(1.736 \text{ eV}\cdot\text{\AA})$ ^[73]; 2D 薄膜异质结材料 $\text{MoSTe/WSTe}(0.535 \text{ eV}\cdot\text{\AA})$ ^[74]、半氢化石墨烯/ $\text{Bi}_2\text{Se}_3(0.1 - 0.783 \text{ eV}\cdot\text{\AA})$ ^[75], $\text{MoS}_2/\text{Bi}_2\text{Te}_3(2.5 \text{ eV}\cdot\text{\AA})$ ^[33] 和 $\text{MoS}_2/\text{Bi}(1.097 \text{ eV}\cdot\text{\AA})$ ^[76], 以及重金属原子表面出现劈裂的三维块体材料 $\text{Bi}(111)(0.55 \text{ eV}\cdot\text{\AA})$ ^[26] 和 $\text{Au}(111)(0.33 \text{ eV}\cdot\text{\AA})$ ^[77]. 同时, 这也表明该材料在无外磁场作用下的自旋电子器件方面具有很大的潜在应用价值.

目前实验上对于 2D 材料的合成的主要问题就是基底效应的影响, 尤其对于 2D TI, 在合成的过程中很容易由于基底的影响, 使得合成出来的材料, 其优良性质被严重破坏. 因此, 接下来通过采用 H—Pb—Cl(1×1)/BN (2×2) 和 H—Pb—Cl(1×1)/石墨烷 (2×2) 体系分别研究了非磁性的 BN 基底和非磁性石墨烷基底对于 2D H—Pb—Cl 的拓扑性质和 Rashba 自旋劈裂的影响. 其中, BN(2.615 Å) 分别与石墨烷 (2.575 Å) 和 H—Pb—Cl(5.395 Å) 之间的晶格失配率为 3% 和 4.5% 左右. 从 H—Pb—Cl(1×1)/BN (2×2) 和 H—Pb—Cl(1×1)/石墨烷 (2×2) 的能带结构中可以看到, 如图 5(b) 和图 5(c), 费米面附近的能带主要还是由 H—Pb—Cl 贡献, 而 BN 和石墨烷在能带中的贡献处于远离费米面附近的上下, 且整个体系依然保留着 $Z_2 = 1$ 的非平庸拓扑带隙以及明显的 Rashba 自旋劈裂现象. 此外, 对于非磁性的 BN 和石墨烷基底, 在 2D 材料 H—Pb—Cl 的合成过程中, 即使出现 B, N 和 C 等原子的少量掺杂现象, 根据 QSHE 的性质, H—Pb—Cl 的拓扑性质也不会有任何实质性影响. 因此我们的结果表明 H—Pb—Cl 是一个很

有可能在实验中成功制备, 并且不受基底影响的 2D 材料.

4 结 论

本文基于第一性原理计算预测了一个稳定的 2D 六角晶格结构 H—Pb—Cl. 在 SOC 的影响下, 由于体系缺乏空间反转对称性, H—Pb—Cl 在费米表面附近出现了明显的 Rashba 自旋劈裂现象, 通过计算该材料在不同应力下 (-16%—16%) 的电子性质, 发现其在费米面附近的 Rashba 自旋劈裂是随着应力增大而减小的, 且 Rashba 自旋劈裂值最高可达 $3.78 \text{ eV}\cdot\text{\AA}$, 这一发现对于实验实现并获得可调控的 Rashba 自旋劈裂具有重要意义. 此外, 还注意到在不考虑 SOC 作用时, 体系在费米面表现为半金属性质, 而在考虑 SOC 作用后, 体系打开了 1.04 eV 的巨大带隙, 在进一步考虑杂化泛函 (HSE06) 后, 体系带隙可高达 1.31 eV. 进一步地, 通过计算其拓扑数 Z_2 和 2D 拓扑边缘态, 证明了该材料为 2D TI. 这一发现表明, 巨型可调控的 Rashba 自旋劈裂和 QSHE 在 2D H—Pb—Cl 材料实现了完美共存, 这对于该材料在无磁场作用下的自旋电子器件应用, 以及在常温下观测受时间反演对称性保护的拓扑边缘态均具有极其重要的意义, 并且巨型可调控 Rashba 自旋劈裂和 QSHE 在 2D H—Pb—Cl 材料的共存更是有效地拓宽和增加了该材料在自旋电子器件方面的应用广度和深度.

参考文献

- [1] Moore J E 2010 *Nature* **464** 194
- [2] Soumyanarayanan A, Reyren N, Fert A, Panagopoulos C 2016 *Nature* **539** 509
- [3] Feng Y, Jiang Q, Feng B J, Yang M, Xu T, Liu W J, Yang X F, Arita M, Schrier E F, Shimada K, Jeschke H O, Thomale R, Shi Y G, Wu X X, Xiao S Z, Qiao S, He S L 2019 *Nat. Commun.* **10** 4765
- [4] Lu J P, Yau J B, Shukla S P, Shayegan M 1998 *Phys. Rev. Lett.* **81** 1282
- [5] Kuhlén S, Schmalbuch K, Hagedorn M, Schlamme P, Patt M, Lepsa M, Guntherodt G, Beschoten B 2012 *Phys. Rev. Lett.* **109** 146603
- [6] Strecker K E, Partridge G B, Truscott A G, Hulet R G 2002 *Nature* **417** 150
- [7] Wang Z Y, Cheng X C, Wang B Z, Zhang J Y, Lu Y H, Yi C R, Niu S, Deng Y, Liu X J, Chen S, Pan J W 2021 *Science* **372** 271
- [8] Lu Y H, Wang B Z, Liu X J 2020 *Sci. Bull.* **65** 2080
- [9] Zezyulin D A, Konotop V V 2022 *Phys. Rev. A* **105** 063323

- [10] Xu Z C, Zhou Z, Cheng E H, Lang L J, Zhu S L 2022 *Sci. Chin. Phys. Mech. Astron.* **65** 283011
- [11] Zhao Q 2022 *Mod. Phys. Lett. B* **36** 2250070
- [12] Liu H, Zhang T, Wang K, Gao F, Xu G, Zhang X, Li S X, Cao G, Wang T, Zhang J, Hu X, Li H O, Guo G P 2022 *Phys. Rev. Appl.* **17** 044052
- [13] Smith L W, Chen H B, Chang C W, Wu C W, Lo S T, Chao S H, Farrer I, Beere H E, Griffiths J P, Jones G A C, Ritchie D A, Chen Y N, Chen T M 2022 *Phys. Rev. Lett.* **128** 027701
- [14] Dai X Y, Liu B Y 2022 *Phys. Rev. A* **105** 043313
- [15] Hai K, Wang Y F, Chen Q, Hai W H 2021 *Sci. Rep.* **11** 18839
- [16] Manchon A, Koo H C, Nitta J, Frolov S M, Duine R A 2015 *Nat. Mater.* **14** 871
- [17] Hong L, Ge J, Shuang S, Liu D Q 2022 *Acta. Phys. Sin.* **71** 016301 (in Chinese) [红兰, 戈君, 双山, 刘达权 2022 物理学报 **71** 016301]
- [18] Li Y, Ma X K, Zhai X K, Gao M N, Dai H T, Schumacher S, Gao T G 2022 *Nat. Commun.* **13** 3785
- [19] Ghosh D, Roy K, Maitra S, Kumar P 2022 *J. Phys. Chem. Lett.* **13** 5
- [20] Schlipf M, Giustino F 2021 *Phys. Rev. Lett.* **127** 237601
- [21] Zhu L, Zhang T, Chen G, Chen H 2018 *Phys. Chem. Chem. Phys.* **20** 30133
- [22] Awschalom D, Samarth N 2009 *Physics* **2** 50
- [23] Henk J, Hoesch M, Osterwalder J, Ernst A, Bruno P 2004 *J. Phys. Condens. Matter* **16** 43
- [24] Gong S J, Cai J, Yao Q F, Tong W Y, Wan X, Duan C G, Chu J H 2016 *J. Appl. Phys.* **119** 125310
- [25] Krupin O, Bihlmayer G, Starke K, Gorovikov S, Prieto J E, Dobrich K, Blügel S, Kaindl G R 2005 *Phys. Rev. B* **71** 201403
- [26] Koroteev Y M, Bihlmayer G, Gayone J E, Chulkov E V, Blugel S, Echenique P M, Hofmann 2004 *Phys. Rev. Lett.* **93** 046403
- [27] Vajna S, Simon E, Szilva A, Palotas K, Ujfalussy B, Szunyogh L 2012 *Phys. Rev. B* **85** 075404
- [28] Meier F, Dil H, Lobo-Checa J, Patthey L, Osterwalder J 2008 *Phys. Rev. B* **77** 089902
- [29] Ast C R, Henk J, Ernst A, Moreschini L, Falub M C, Pacile D, Bruno P, Kern K, Griioni M 2007 *Phys. Rev. Lett.* **98** 186807
- [30] Popović D, Reinert F, Hübner S, Grigoryan V G, Springborg M, Cercellier H, Fagot-Revurat Y, Kierren B, Malterre D 2005 *Phys. Rev. B* **72** 045419
- [31] Cercellier H, Didiot C, Fagot-Revurat Y, Kierren B, Moreau L, Malterre D, Reinert F 2006 *Phys. Rev. B* **73** 195413
- [32] Gong S J, Duan C G, 2015 *Acta. Phys. Sin.* **64** 187103 (in Chinese) [龚士静, 段纯刚 2015 物理学报 **64** 187103]
- [33] Peng Q, Lei Y, Deng X, Deng J, Wu G, Li J, He C, Zhong J 2022 *Physica E* **135** 114944
- [34] Sakano M, Bahramy M S, Katayama A, Shimojima T, Murakawa H, Kaneko Y, Malaeb W, Shin S, Ono K, Kumigashira H, Arita R, Nagaosa N, Hwang H Y, Tokura Y, Ishizaka K 2013 *Phys. Rev. Lett.* **110** 107204
- [35] Bahramy M S, Arita R, Nagaosa N 2011 *Phys. Rev. B* **84** 041202
- [36] Narayan A 2015 *Phys. Rev. B* **92** 220101
- [37] Xiang F X, Wang X L, Veldhorst M, Dou S X, Fuhrer M S 2015 *Phys. Rev. B* **92** 035123
- [38] Krempaský J, Volfava H, Muff S, Pilet N, Landolt G, Radovic M, Shi M, Kriegner D, Holy V, Braun J, Ebert H, Bisti F, Rogalev V A, Strocov V N, Springholz G, Minar J, Dil J H 2016 *Phys. Rev. B* **94** 205111
- [39] Di Sante D, Barone P, Bertacco R, Picozzi S 2013 *Adv. Mater.* **25** 509
- [40] Ishizaka K, Bahramy M S, Murakawa H, Sakano M, Shimojima T, Sonobe T, Koizumi K, Shin S, Miyahara H, Kimura A, Miyamoto K, Okuda T, Namatame H, Taniguchi M, Arita R, Nagaosa N, Kobayashi K, Murakami Y, Kumai R, Kaneko Y, Onose Y, Tokura Y 2011 *Nat. Mater.* **10** 521
- [41] Krempaský J, Muff S, Min'ar J, Pilet N, Fanciulli M, Weber A P, Guedes E B, Caputo M, Müller E, Volobuev V V, Gmitra M, Vaz C A F, Scagnoli V, Springholz G, Dil J H 2018 *Phys. Rev. X* **8** 021067
- [42] Bernevig B A, Hughes T L, Zhang S C 2006 *Science* **314** 1757
- [43] Knez I, Du R R, Sullivan G 2012 *Phys. Rev. Lett.* **109** 186603
- [44] Liu W J, Xiong X L, Liu M L, Xing X W, Chen H L, Ye H, Han J F, Wei Z Y 2022 *Appl. Phys. Lett.* **120** 053108
- [45] Yang M, Liu Y D, Zhou W, Liu C, Mu D, Liu Y N, Wang J O, Hao W C, Li J, Zhong J X, Du Y, Zhuang J C 2022 *ACS Nano* **16** 2
- [46] Ezawa M 2012 *New J. Phys.* **14** 033003
- [47] Zhang R W, Ji W X, Zhang C W, Li S S, Li P, Wang P J 2016 *J. Mater. Chem. C* **4** 2088
- [48] Xu Y, Yan B, Zhang H J, Wang J, Xu G, Tang P, Duan W, Zhang S C 2013 *Phys. Rev. Lett.* **111** 136804
- [49] Zhao H, Zhang C W, Ji W X, Zhang R W, Li S S, Yan S S, Zhang B M, Li P, Wang P J 2016 *Sci. Rep.* **6** 20152
- [50] Zhou L, Kou L, Sun Y, Felser C, Hu F, Shan G, Smith S C, Yan B, Frauenheim T 2015 *Nano Lett.* **15** 7867
- [51] Weng H, Dai X, Fang Z 2014 *Phys. Rev. X* **4** 011002
- [52] Li X, Ying D, Ma Y, Wei W, Lin Y, Huang B 2015 *Nano Res.* **8** 2954
- [53] Luo W, Xiang H 2015 *Nano Lett.* **15** 3230
- [54] Jiang J W, Guo X Q, Ma Z, Wang G, Xu Y G, Zhang X W 2022 *J. Mater. Chem. C* **10** 11329
- [55] Guo Z P, Yan D Y, Sheng H H, Nie S M, Shi Y G, Wang Z J 2021 *Phys. Rev. B* **103** 115145
- [56] Wang X, Wan W H, Ge Y F, Zhang K C, Liu Y 2022 *Physica E* **143** 115325
- [57] Perez M N R, Villaos R A B, Feng L Y, Maghirang A B, Cheng C P, Huang Z Q, Hsu C H, Bansil A, Chuang F C 2022 *Appl. Phys. Rev.* **9** 011410
- [58] Li J, He C Y, Xiao H P, Tang C, Wei X L, Kim J, Kioussis N, Stocks M, Zhong J X 2015 *Sci. Rep.* **5** 14115
- [59] Yuhara J, He B, Matsunami N, Nakatake M, Le Lay G 2019 *Adv. Mater.* **31** e1901017
- [60] Kresse G, Furthmüller J 1996 *Phys. Rev. B* **54** 11169
- [61] Perdew J P, Burke K, Ernzerhof M 1998 *Phys. Rev. Lett.* **77** 3865
- [62] Mostofi A A, Yates J R, Lee Y S, Souza I, Vanderbilt D, Marzari N 2008 *Comput. Phys. Commun.* **178** 685
- [63] Wu Q S, Zhang S N, Song H F, Troyer M, Soluyanov A A 2018 *Comput. Phys. Commun.* **224** 405
- [64] Togo A, Oba F, Tanaka I 2008 *Phys. Rev. B* **78** 134106
- [65] Kane C L, Mele E J 2005 *Phys. Rev. Lett.* **95** 226801
- [66] Kane C L, Mele E J 2005 *Phys. Rev. Lett.* **95** 146802
- [67] Zhang H J, Liu C X, Qi X L, Dai X, Fang Z, Zhang S C 2009 *Nat. Phys.* **5** 438
- [68] König M, Wiedmann S, Brüne C, Roth A, Buhmann H, W. Molenkamp L, Qi X L, Zhang S C 2007 *Science* **318** 766
- [69] Liu Q, Guo Y, Freeman A 2013 *Nano Lett.* **13** 5264
- [70] Gong Q, Zhang G L 2022 *Int. J. Mol. Sci.* **23** 7629
- [71] Sino P A L, Feng L Y, Villaos R A B, Cruzado N H, Huang Z Q, Hsu C H, Chuang F C 2021 *Nanoscale Adv.* **3** 6608
- [72] Hussain G, Samad A, Ur Rehman M, Guono G, Autieri C 2022 *J. Magn. Magn. Mater.* **563** 169897
- [73] Xue W M, Li J, Peng X Y, He C Y, Ouyang T, Zhang C X, Tang C, Li Z Q, Lu D L, Zhong J X 2020 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **53** 025302

- [74] Patel S, Dey U, Adhikari N P, Taraphder A 2022 *Phys. Rev. B* **106** 035125
 [75] Xue W M, Li J, Peng X Y, He C Y, Ouyang T, Zhang C X, Tang C, Li Z Q, Liu H T, Zhong J X 2019 *J. Phys. Condens. Matter* **31** 365002

- [76] Lee K, Yun W S, Lee J D 2015 *Phys. Rev. B* **91** 125420
 [77] LaShell S, McDougall B, Jensen E 1996 *Phys. Rev. Lett.* **77** 3419

Giant and tunable Rashba spin splitting and quantum spin Hall effect in H-Pb-Cl*

Xue Wen-Ming^{1)†} Li Jin^{2)‡} He Chao-Yu²⁾ Ouyang Tao²⁾
 Luo Chao-Bo²⁾ Tang Chao²⁾ Zhong Jian-Xin²⁾

1) (*School of Computational Science and Electronics, Hunan Institute of Engineering, Xiangtan 411104, China*)

2) (*School of Physics and Optoelectronics Engineering, Xiangtan University, Xiangtan 411105, China*)

(Received 24 July 2022; revised manuscript received 29 November 2022)

Abstract

Rashba spin splitting and quantum spin Hall effect have attracted enormous interest due to their great significance in the application of spintronics. According to the first-principles calculation, we propose a two-dimensional hexagonal lattice material H-Pb-Cl, which realizes the coexistence of giant Rashba spin splitting and quantum spin Hall effect. Owing to the break of space inversion symmetry and the existence of intrinsic electric field, H-Pb-Cl has a huge Rashba spin splitting phenomenon ($\alpha_R = 3.78 \text{ eV}\cdot\text{\AA}$), and the Rashba spin splitting of H-Pb-Cl ($-16\% \sim 16\%$) can be adjusted by changing the biaxial stress. By analyzing the electronic properties of H-Pb-Cl, we find that H-Pb-Cl has a huge band gap near the Fermi surface (1.31 eV), and the topological invariant $Z_2 = 1$ of the system is caused by the inversion of s-p orbit, which indicates that H-Pb-Cl is a two-dimensional topological insulator with a huge topological band gap, and the gap is large enough to observe the topological edge states at room temperature. In addition, we further consider the effect of BN and graphane substrates on the topological band gap of H-Pb-Cl by using the H-Pb-Cl (111)-(1 \times 1) /BN (111)-(2 \times 2) and H-Pb-Cl(1 \times 1)/ graphane (2 \times 2) system, and find that the lattice mismatch between H-Pb-Cl (5.395 \AA) and BN (2.615 \AA) and between H-Pb-Cl (5.395 \AA) and graphane (2.575 \AA) are about 3% and 4.5%, respectively. According to our calculation results, H-Pb-Cl still retains the properties of topological insulator under the effect of spin orbit coupling, and is not affected by BN nor graphane. Our results show that the nontrivial topological band gap of H-Pb-Cl can be well preserved under both biaxial stress effect and substrate effect. In addition, H-Pb-Cl can well retain the nontrivial topological band gap under the stress of $-16\% \sim 16\%$, and thus there are many kinds of substrate materials used to synthesize this material, which is very helpful in successfully realizing preparation experimentally. Our research provides a promising candidate material for exploring and realizing the coexistence of Rashba spin splitting and quantum spin Hall effect. And the coexistence of giant Rashba spin splitting and quantum spin Hall effect greatly broadens the scope of potential applications of H-Pb-Cl in the field of spintronic devices.

Keywords: two dimensional topological insulator, Rashba spin splitting, spatial inversion symmetry, spin orbit coupling

PACS: 71.15.Mb, 73.20.-r, 73.21.-b, 73.90.+f

DOI: 10.7498/aps.72.20221493

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11874316, 11404275, 11474244) and the Natural Science Foundation of Hunan Province, China (Grant No. 2016JJ3118).

† Corresponding author. E-mail: xuewm@hnie.edu.cn

‡ Corresponding author. E-mail: lijin@xtu.edu.cn



H-Pb-Cl中可调控的巨型Rashba自旋劈裂和量子自旋霍尔效应

薛文明 李金 何朝宇 欧阳滔 罗朝波 唐超 钟建新

Giant and tunable Rashba spin splitting and quantum spin Hall effect in H-Pb-Cl

Xue Wen-Ming Li Jin He Chao-Yu Ouyang Tao Luo Chao-Bo Tang Chao Zhong Jian-Xin

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 72, 057101 (2023) DOI: 10.7498/aps.72.20221493

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.72.20221493>

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

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

Rashba自旋轨道耦合下square-octagon晶格的拓扑相变

Topological phase transitions in square-octagon lattice with Rashba spin-orbit coupling

物理学报. 2018, 67(23): 237101 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20180624>

自旋轨道耦合系统中的整数量子霍尔效应

Integer quantum Hall effect in a spin-orbital coupling system

物理学报. 2019, 68(11): 117101 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190037>

一维对称非厄米自旋轨道耦合Su-Schrieffer-Heeger模型的拓扑性质

Topological properties of the one-dimensional γ -symmetric non-Hermitian spin-orbit-coupled Su-Schrieffer-Heeger model

物理学报. 2022, 71(17): 177302 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220796>

两体相互作用费米系统在自旋轨道耦合和塞曼场中的基态转变

Ground energy level transition for two-body interacting Fermionic system with spin-orbit coupling and Zeeman interaction

物理学报. 2021, 70(8): 083401 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20201456>

自旋轨道耦合量子点系统中的量子相干

Quantum coherence in spin-orbit coupled quantum dots system

物理学报. 2022, 71(7): 078502 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20212111>

自旋轨道耦合量子气体中的一些新进展

Some recent progresses on the study of ultracold quantum gases with spin-orbit coupling

物理学报. 2020, 69(1): 016701 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20191241>