反铁磁 CrS_2 到铁磁 $\text{MoSe}_2/\text{CrS}_2$ 磁性转变研究

蒋宇^{1,2}, 黄灿^{1,2}, 朱岩^{1,2*}, 潘燕飞^{1,2}, 樊济宇^{1,2}, 马春兰^{3*}

1. 南京航空航天大学理学院应用物理系, 南京 210006;

2. 南京航空航天大学空天信息材料与物理工信部重点实验室, 南京 210006;

3. 苏州科技大学物理科学与技术学院, 苏州 215009

*联系人, 朱岩, E-mail: yzhu@nuaa.edu.cn; 马春兰, E-mail: wlxmcl@mail.usts.edu.cn

收稿日期: 2021-05-21; 接受日期: 2021-07-12; 网络出版日期: 2021-12-20

国家自然科学基金(编号: 11204131, 11374159)资助项目

摘要 通过第一性原理研究了二维单层 CrS_2 与双层 $\text{CrS}_2/\text{MoSe}_2$ 体系的原子结构和磁性结构. 利用广义布洛赫条件计算了自旋螺旋的能量与自旋螺旋波矢之间的色散关系 $E(\mathbf{q})$, 并通过海森堡模型拟合该曲线, 分别得到了单层 CrS_2 体系和 $\text{CrS}_2/\text{MoSe}_2$ 双层体系的多近邻海森堡作用(HBI)参数 J_1-J_6 . 然后通过拟合得到的HBI参数作出全布里渊区的 $E(\mathbf{q})$. 研究发现, 非磁性单层 MoSe_2 与单层 CrS_2 形成异质结后改变了单层 CrS_2 的磁性结构, 使其从层内反铁磁排布转变成层内铁磁排布. MoSe_2 层使得Cr原子的态密度更延展, 并且 $\text{CrS}_2/\text{MoSe}_2$ 中电子气从金属性的 CrS_2 转移到半导体的 MoSe_2 中, 这导致 CrS_2 中反铁磁作用的RKKY相互作用的减小, 最终使得 $\text{CrS}_2/\text{MoSe}_2$ 呈现铁磁性. 本文为更好地探索二维磁性材料的各种相互作用机制, 如双交换、超交换和RKKY交换, 设计、寻找高居里温度磁性材料和分析各种二维磁性体系奠定了一定的基础.

关键词 第一性原理, HBI, $\text{CrS}_2/\text{MoSe}_2$, 二维磁性体系

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

1 引言

自2004年Novoselov等人^[1]制备出单层石墨烯后, 人们对石墨烯及类石墨烯二维材料的研究热情空前高涨. 近期, 人们在光学、力学、能源等领域获得了一些具有新奇特性的原子级厚度的二维材料^[2-9], 这些材料在光伏器件、光电子学、薄膜太阳能等领域得到了应用并受到广泛关注^[10-13]. 但是之前二维材料的研究主要集中在光学或者电学性质领域, 直到最近几年, 二

维材料磁性的研究才开展起来^[14,15]. 来自美国加州大学伯克利分校的张翔课题组^[16]和华盛顿大学的许晓栋课题组^[17], 利用磁光克尔测试技术首次观察到了少层 $\text{Cr}_2\text{Ge}_2\text{Te}_6$ 中本征长程铁磁序和单层 CrI_3 中Ising本征铁磁性能, 在实验上证实了二维材料本征磁性的存在. 不久之后, 复旦大学的张远波课题组^[18]证实另一种范德瓦尔斯层状材料 Fe_3GeTe_2 中也存在二维室温本征铁磁性. 此外, 他们还借助锂离子插层技术, 将少层 Fe_3GeTe_2 的铁磁转变温度提高至室温以上. 单层铁磁

引用格式: 蒋宇, 黄灿, 朱岩, 等. 反铁磁 CrS_2 到铁磁 $\text{MoSe}_2/\text{CrS}_2$ 磁性转变研究. 中国科学: 物理学 力学 天文学, 2022, 52: 226811

Jiang Y, Huang C, Zhu Y, et al. Magnetic transition from antiferromagnetic CrS_2 to ferromagnetic $\text{MoSe}_2/\text{CrS}_2$ (in Chinese). Sci Sin-Phys Mech Astron, 2022, 52: 226811, doi: 10.1360/SSPMA-2021-0157

材料已经是二维材料家族中的一个重要成员, 在自旋电子学方面的应用具有很大的潜力.

为探索二维磁性材料的磁相互作用机制, 我们可以尝试改变二维材料中磁性原子的环境来考察磁交换能的变化, 如形变、施加电场等. 最近有课题组计算得到 WSe_2 衬底的电荷转移和 CrSe_2 的层间耦合可以强烈影响单层 CrSe_2 层内的磁序排布^[19], 因此衬底可以是调节二维磁性材料磁相互作用的一个有效方式. 我们选择单层 CrS_2 来计算和分析相邻Cr原子之间的相互作用. CrS_2 是一个非常有趣的材料, 有相关课题组^[20,21]对单层 CrS_2 的稳定性进行了研究, 结果表明单层 CrS_2 在动力学和热力学两个方面都是稳定的. 对于单层 CrS_2 而言, 它表现出层内反铁磁态, 但是两层或更多层的 CrS_2 则表现出层内和层间铁磁态. 也就是说, 随着层数的增加, 磁性形成相变. 这种磁性状态容易改变的性质可归因于材料的磁性对磁矩之间的相互作用的敏感性. 由于 CrS_2 这种容易调制的性质, 我们考虑可不可以通过增加一层其他材料来改变其性质. MoSe_2 晶格常数与 CrS_2 相近(单层 MoSe_2 晶格常数计算值为 $3.32 \text{ \AA}$, 单层 CrS_2 晶格常数计算值为 $3.31 \text{ \AA}$), 且 MoSe_2 本身是半导体, 原则上 MoSe_2 可以与 CrS_2 形成异质结, 并对金属性的 CrS_2 单层形成保护. 这就为我们提供了一种很好的材料来测试和掌握磁相互作用的机理, 并实现二维材料磁性能的调控.

2 计算方法与理论模型

本文用第一性原理计算了 $\text{CrS}_2/\text{MoSe}_2$ 双层结构的自旋螺旋的能量与波矢之间的色散关系 $E(\mathbf{q})$. 第一性原理计算是指不依赖任何经验参数, 从最基本的物理常数出发, 基于量子力学的基本原理计算体系各种性质的方法. 我们采用基于赝势平面波方法^[22]软件模拟程序Vasp^[23]进行计算. 赝势采用Vasp自带的Perdew-Burke-Ernzerhof势. Vasp可以用平面波基矢量自洽迭代法求解密度泛函方程, 并用波函数计算力和张量. 力的收敛条件是 $10^{-2} \text{ eV/\AA}$, 平面波截断能设置为 380 eV . 电子步自洽计算的总能量收敛标准为 $1.0 \times 10^{-6} \text{ eV}$. $\text{CrS}_2/\text{MoSe}_2$ 的晶格常数计算结果为 $3.31 \text{ \AA}$, 且计算过程中考虑了层与层之间的范德瓦尔斯作用. K点设置为 $25 \times 25 \times 1$, 运用半宽为 0.02 eV 的高斯展宽进行弛豫和静态计算, 并考虑体系的自旋轨道

耦合作用. 采用平板周期模型(Slab Model)来模拟 $\text{CrS}_2/\text{MoSe}_2$ 双层结构. 我们对Cr d电子间的库仑作用施加一个Hubbard U , 这里选择 $U=2.0 \text{ eV}$, 符合前人报道的数值($2-4 \text{ eV}$)^[24,25].

过去大部分的Vasp计算中, 磁性原子之间的交换耦合参数只考虑了最近邻原子之间的作用 J_1 , 并没有得到其他更远近邻间HBI磁交换能 J_i ^[26-29], 本文可以考虑到第六近邻耦合并且尝试通过广义布洛赫条件^[30,31]并利用非线性计算^[32]方法计算 $E(\mathbf{q})$. 通过拟合 $E(\mathbf{q})$ 得到各个近邻的 J_i 参数. 为了描述 Cr_0 和相邻的Cr原子之间的相互作用, 我们使用了经典的海森堡模型:

$$E = \sum_i \frac{1}{2} [J_i (1 - \mathbf{s}_0 \cdot \mathbf{s}_i)], \quad (1)$$

式中, E 是体系的总能量. 与之前的海森堡模型相比^[25,26], 为了讨论方便, 铁磁态的基态能量作为参考点被设置为零, 其中 $\mathbf{s}_0$ 和 $\mathbf{s}_i$ 是 Cr_0 和 Cr_i 归一化了的磁矩, J_i 是 Cr_0 与 Cr_i 之间的交换耦合能量.

3 结果与讨论

3.1 结构性质

$\text{CrS}_2/\text{MoSe}_2$ 原子结构的侧视图如图1(a)所示, 共分为上下两层, 分别由一层1T相 CrS_2 和一层2H相 MoSe_2 所构成. 一般情况下二维体系是1T或者2H结构^[33], 它们分别对应于六角晶格和三角晶格的对称性. 我们计算得到 CrS_2 的1T相的能量低于2H相, 且1T相具有磁性, 与先前的研究符合. 而 MoSe_2 的1T相的能量则高于2H相, 2H相稳定. $\text{CrS}_2/\text{MoSe}_2$ 中, 我们也计算了四种组合结构: 1T/2H, 1T/1T, 2H/1T, 2H/2H. 最后表明, 1T/2H最稳定, 如图1(a)所示. 在此双层结构中, 上下两层S原子所处环境不同, 我们把上下层S原子分别标记为 S_1 和 S_2 , 同理, 也有了 Se_1 和 Se_2 之分. 图1(b)是 CrS_2 层原子结构的俯视图, 为标记不同近邻, 原胞拓展成 5×5 超胞. 在俯视图中, 左下角的Cr原子被标记为 Cr_0 , 距离 Cr_0 的第 i 个最近邻的Cr原子用 Cr_i 表示, 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. 从原子结构来看, Cr_0 , Cr_1 , Cr_3 , Cr_5 , Cr_8 在一条链上, 但是 Cr_2 , Cr_4 , Cr_6 , Cr_7 不在一条链上, 因此前者相互之间可能是超交换作用, 而后者与 Cr_0 之间应该是由电子气传导的间接RKKY作用.

图 1 (网络版彩图) (a) $\text{CrS}_2/\text{MoSe}_2$ 原子结构的侧视图, (b) 扩展后的 5×5 超胞俯视图, 用来描述 Cr 原子间的 HBI 相互作用, 其中左下角的 Cr 原子标记为 0, 其他 Cr 原子与 Cr_0 原子的近邻数也标记在原子上; 蓝色的球表示 Cr 原子, 淡黄色的球表示 S_1 原子, 深黄色的球表示 S_2 原子, 淡绿色的球表示 Se_1 原子, 深绿色的球表示 Se_2 原子, 紫灰的球表示 Mo 原子; 其中 $\mathbf{a}_1$ 和 $\mathbf{a}_2$ 为基本矢量, $\mathbf{b}_1$ 和 $\mathbf{b}_2$ 为倒格子矢量; Γ , M, K 为第一布里渊区的高对称 k 点

Figure 1 (Color online) (a) A side view of the atomic structure of $\text{CrS}_2/\text{MoSe}_2$; (b) the top view of extended 5×5 supercell which is used to describe the HBI between different neighbors of Cr atoms, where the Cr atom in the lower left corner is labeled as 0, the nearest neighbors of the other Cr and Cr_0 atoms are also labeled on the atom. The blue ball represents Cr atom, the light yellow ball represents S_1 atom, the dark yellow ball represents S_2 atom, the light green ball represents Se_1 atom, the dark green ball represents Se_2 atom, and the purple gray ball represents Mo atom; where $\mathbf{a}_1$ and $\mathbf{a}_2$ are the basic vectors, $\mathbf{b}_1$ and $\mathbf{b}_2$ are reciprocal lattice vectors; and Γ , M, K are highly symmetry k-points in the first Brillouin zone.

3.2 态密度分析

CrS_2 单层结构和 $\text{CrS}_2/\text{MoSe}_2$ 双层结构各原子的态密度如图 2 所示. 可以看到, 单层结构中 S_1 和 S_2 的态密度分布几乎一致, 即 S_1 和 S_2 是等价的. 与单层结构相比, 双层结构 S 费米面的态密度分布非局域化程度更高, 并且 S_1 和 S_2 的态密度稍有不同, 说明 MoSe_2 对 CrS_2 层是有影响的. 在费米能级附近, 双层结构中各下自旋态密度稍有增加. MoSe_2 对 CrS_2 层的影响在 Cr 态密度上更显著, 单层结构中 Cr 的态密度很局域, 而双层结构中更延展. 费米能级上, 双层结构的上自旋的态密度几乎减少为单层结构的 1/2. 不管是双层结构还是单层结构 S 在费米能级上都具有一定的 DOS, 所以 Cr 原子间的相互作用有部分是通过对 Cr-S-Cr 间接传递, 还有部分通过电子气进行 Cr-Cr 之间的 RKKY 传递. 单层 MoSe_2 具有半导体性质, 在费米能级处有个带隙, 但和 CrS_2 层叠加在一起后, Mo 原子和内层的 Se 原子在费米能级

处都被诱导出了较小的磁矩, 而外层的 Se 基本没什么影响. 由于 MoSe_2 本身是没有磁性的, 显然费米能级位置以上的磁矩是被 Cr 原子诱导出来的, 说明 CrS_2 中的载流子在双层结构中由于 MoSe_2 的作用而重新分布, 使得在 CrS_2 中态密度更延展, Cr 原子间的作用会因此有所增强.

3.3 自旋螺旋 $E(\mathbf{q})$ 的大小

本文使用自旋螺旋模型计算 HBI^[34,35]. 首先根据海森堡模型, 推导出波矢为 $\mathbf{q}$ 的自旋波能量与波矢的色散关系. 如图 1(b) 所示, 在六角形薄膜中, 我们把 Cr_0 位置的磁矩安排在 y 方向, Cr_i 位置可以用 $\mathbf{R}_i = m\mathbf{a}_1 + n\mathbf{a}_2$ 来表示, 自旋螺旋的方向用 $\mathbf{q} = q_1\mathbf{b}_1 + q_2\mathbf{b}_2$ 来描述, 其中 $\mathbf{a}_1$ 和 $\mathbf{a}_2$ 是基矢, $\mathbf{b}_1$ 和 $\mathbf{b}_2$ 是倒格矢. 在我们的 Vasp 计算中, 所有的磁矩都设置在 xy 平面上, 在广义布洛赫条件下, 波矢为 $\mathbf{q}$ 的自旋波中, 第 j 近邻的 Cr 原子的磁矩 $\mathbf{S}(\mathbf{R}_j)$ 为

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

将它代入式(1)且在仅考虑第一至第六近邻的情况下, 那么 $S(0)$ 与第 j 近邻的磁矩 $\mathbf{S}(\mathbf{R}_j)$ 之间的 HBI 之和 $E_H(\mathbf{q})$ 分别为

$$\begin{aligned}
 E_{J1}(\mathbf{q}) &= 1/2J_1[6 - 2\cos 2\pi q_1 - 2\cos 2\pi(q_1 + q_2) - 2\cos 2\pi q_2], \\
 E_{J2}(\mathbf{q}) &= 1/2J_2[6 - 2\cos 2\pi(q_1 + 2q_2) - 2\cos 2\pi(2q_1 + q_2) - 2\cos 2\pi(q_1 - q_2)], \\
 E_{J3}(\mathbf{q}) &= 1/2J_3[6 - 2\cos 4\pi q_1 - 2\cos 4\pi(q_1 + q_2) - 2\cos 4\pi q_2], \\
 E_{J4}(\mathbf{q}) &= 1/2J_4[12 - 2\cos 2\pi(2q_1 + 3q_2) - 2\cos 2\pi(q_1 + 3q_2) - 2\cos 2\pi(3q_1 + 2q_2) \\
 &\quad - 2\cos 2\pi(q_1 - 2q_2) - 2\cos 2\pi(3q_1 + q_2) - 2\cos 2\pi(2q_1 - q_2)], \\
 E_{J5}(\mathbf{q}) &= 1/2J_5[6 - 2\cos 6\pi q_1 - 2\cos 6\pi q_2 - 2\cos 6\pi(q_1 + q_2)], \\
 E_{J6}(\mathbf{q}) &= 1/2J_6[6 - 2\cos 4\pi(q_1 + 2q_2) - 2\cos 4\pi(2q_1 + q_2) - 2\cos 4\pi(q_1 - q_2)],
 \end{aligned}$$

那么总的HBI为

$$E_{\text{总}} = E_{J1}(\mathbf{q}) + E_{J2}(\mathbf{q}) + E_{J3}(\mathbf{q}) + E_{J4}(\mathbf{q}) + E_{J5}(\mathbf{q}) + E_{J6}(\mathbf{q}), \quad (3)$$

其中 J_1 - J_6 为HBI参数并且包含 $S(0)^2$.

图 2 (网络版彩图)单层 CrS_2 、 MoSe_2 和双层 $\text{CrS}_2/\text{MoSe}_2$ 结构的各原子的分态态密度, 各个原子如图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, 用水平的黑色虚线加以区分; 红色和蓝色的实线分别代表的是 CrS_2 和 MoSe_2 单层结构的各原子的分态态密度图, 黑色的实线代表的是 $\text{CrS}_2/\text{MoSe}_2$ 双层结构的各原子分态态密度图; 黑色的垂线即零能量处表示费米能级的位置

Figure 2 (Color online) The partial density of states (DOS) of the states of 1L CrS_2 , 1L MoSe_2 and $\text{CrS}_2/\text{MoSe}_2$ atoms are shown in the figure. The individual atoms are shown in Figure 1(a). The positive ordinate values represent the DOS of upper spin and negative ordinate values represent the DOS of lower spin, which are distinguished by a horizontal black dotted line; the red and blue solid lines represent the DOS of atoms in 1L CrS_2 and 1L MoSe_2 , respectively. The black solid lines represent the DOS of atoms in $\text{CrS}_2/\text{MoSe}_2$ bilayers; the black vertical line at zero energy represents the position of Fermi level.

如图3(a)所示, 利用Vasp计算了 CrS_2 与 $\text{CrS}_2/\text{MoSe}_2$ 自旋螺旋的能量与波矢 $\mathbf{q}$ 之间的色散关系 $E(\mathbf{q})$, 其中, Γ 点、M点和K点为第一布里渊区的高对称 k 点, 它们的坐标分别是(0, 0, 0), (1/2, 0, 0), (1/3, 1/3, 0). 自旋螺旋的波矢 $\mathbf{q}$ 选取了图1(b)所示的第一布里渊区的边界 $\text{K}\Gamma$, ΓM . 从图中可以看出对于单层 CrS_2 , 代表M型反铁磁的M点能量与铁磁态的 Γ 点能量基本相同, 体系可能处于双稳态. 而双层 $\text{CrS}_2/\text{MoSe}_2$ 中, Γ 点能量单独最小, 体系完全处于铁磁态, 说明 MoSe_2 确实改变了 CrS_2 中的磁性性质.

利用 $E(\mathbf{q})$ 与式(3), 如K点是(1/3, 1/3), 则 $q_1=1/3$, $q_2=1/3$, $E(\text{K})=32.58 \text{ meV}$, 都代入式(3), 可以得到一个关于 $J_1, J_2, J_3, J_4, J_5, J_6$ 为变量的线性方程. 我们把选取的各个 $\mathbf{q}$ 点和 $E(\mathbf{q})$ 都代入式(3), 就可以得到方程组, 通过最小二乘法分别求得如图3(b)所示的 CrS_2 单层结构和 $\text{CrS}_2/\text{MoSe}_2$ 双层结构的HBI参数 J_1 - J_6 . 利用 J 值拟合的实线与计算的离散点具有良好的吻合度, 证明计算的可靠性. 单层结构中 $J_1=-7.22 \text{ meV}$, $J_2=4.11 \text{ meV}$, $J_3=7.52 \text{ meV}$, 与前人推导得出的单层 CrS_2 结构中 $J_1=-47.7 \text{ meV}$, $J_2=38.9 \text{ meV}$, $J_3=-9.6 \text{ meV}$ 相比, 我们的结果明显更加自然^[25], J_4, J_5, J_6 的绝对值较小所以起辅助作用. 负值的 J_1 使体系的磁矩趋向于反铁磁排布, 正值的 J_2 和 J_3 使体系的磁矩呈现铁磁排布, 系统的磁性状态主要由 J_1 与 J_2, J_3 之间的竞争共同决定. 在单层 CrS_2 结构中, J_1 的绝对值比 J_2 更大, 且接近于 J_3 , 这使得其磁性状态更复杂. 如图3(c)所示, 在全 $\mathbf{q}$ 空间的 $E(\mathbf{q})$ 值等高图可以看到, 和图3(a)一样, Γ 点、M点的 $E(\mathbf{q})$ 相近, 但显然M点附近低能量 $E(\mathbf{q})$ 区域要远远大于 Γ 点, 这使

图 3 (网络版彩图) (a) 离散点分别是 CrS_2 和 $\text{CrS}_2/\text{MoSe}_2$ 体系计算得到的自旋螺旋能量色散关系 $E(\mathbf{q})$, 其中 $\mathbf{q}$ 是自旋螺旋的波矢; 黑色的实线和红色的虚线是拟合曲线; K, Γ , M是第一布里渊区的特殊 k 点; (b) CrS_2 和 $\text{CrS}_2/\text{MoSe}_2$ 第一到第六近邻 J 值的变化趋势; (c), (d) CrS_2 和 $\text{CrS}_2/\text{MoSe}_2$ 在第一布里渊区内所有 $\mathbf{q}$ 点的 $E(\mathbf{q})$ 等值线图, 特殊 k 点也得以标注

Figure 3 (Color online) (a) The discrete points are the calculated energy dispersion relation $E(\mathbf{q})$ of the spin helix, where $\mathbf{q}$ is the wave vector of the spin helix. The black solid line and the red dotted line are the fitting curves; and K, Γ , M are the special k points of the first Brillouin region; (b) the trend of the first to sixth nearest neighbor J values of CrS_2 and $\text{CrS}_2/\text{MoSe}_2$; (c), (d) the $E(\mathbf{q})$ contour diagrams of all $\mathbf{q}$ points of CrS_2 and $\text{CrS}_2/\text{MoSe}_2$ in the first Brillouin region, special k points are also marked.

得单层 CrS_2 呈现反铁磁的概率要远远大于铁磁态。也就是说, 单层 CrS_2 是反铁磁态, 与前人研究相同, 但我们的各近邻作用参数更合理。在单层 CrS_2 上增加一层 MoSe_2 后, 如图3(d)所示, 双层结构就明显呈现铁磁性。

通过比较单层 CrS_2 和双层 $\text{CrS}_2/\text{MoSe}_2$ 的 J 值, 可以看到 J_1 的增加在磁性转变中起了决定作用。从态密度图2可以看到, 加入 MoSe_2 后, CrS_2 中Cr原子的态密度延展开来, 这有助于通过Cr-S-Cr通道增加磁性原子间的铁磁性耦合。同时, CrS_2 把部分载流子传递给 MoSe_2 , 这可以减小Cr-Cr原子间通过载流子传递的RKKY相互作用。这两者都有助于增加 J_1 。因此, 可以通过增加 MoSe_2 层来改变 CrS_2 的磁性, 即增加半导体二维层来增加磁性层的铁磁性。

4 结论

我们利用广义布洛赫条件计算了第一布里渊区边界的 $E(\mathbf{q})$, 并通过海森堡模型拟合了该曲线, 分别得到了单层 CrS_2 体系和 $\text{CrS}_2/\text{MoSe}_2$ 双层体系的多近邻HBI参数 J_1-J_6 。然后通过拟合得到的HBI参数作出全布里渊区的 $E(\mathbf{q})$ 。研究发现, 非磁性 MoSe_2 层改变了 CrS_2 的磁性结构, 使其从层内反铁磁排布转变成层内铁磁排布。其机制可以归纳如下: MoSe_2 使得Cr原子的态密度延展开来; 并且 $\text{CrS}_2/\text{MoSe}_2$ 中电子气从金属性的 CrS_2 转移到半导体的 MoSe_2 中, 这导致 CrS_2 中反铁磁作用的RKKY相互作用的减小, 这两者使得最近邻负值 J_1 的绝对值变小, 最终使得 $\text{CrS}_2/\text{MoSe}_2$ 呈现铁磁性。本文为更好地探索二维磁性材料奠定了一定的基础。

参考文献

- Novoselov K S, Geim A K, Morozov S V, et al. Electric field effect in atomically thin carbon films. *Science*, 2004, 306: 666–669, arXiv: cond-

mat/0410550

- 2 Koppens F H L, Mueller T, Avouris P, et al. Photodetectors based on graphene, other two-dimensional materials and hybrid systems. *Nat Nanotech*, 2014, 9: 780–793
- 3 Sangwan V K, Hersam M C. Electronic transport in two-dimensional materials. *Annu Rev Phys Chem*, 2018, 69: 299–325, arXiv: 1802.01045
- 4 Bhuvaneswari P V, Ramamurthi K, Ramesh Babu R, et al. Structural, morphological, optical and electrical properties of $\text{Cu}_{0.87}\text{Se}$ thin films coated by electron beam evaporation method. *Appl Phys A*, 2015, 120: 1113–1120
- 5 Wang W, Wu X, Zhang J. Graphene and other 2D material components dynamic characterization and nanofabrication at atomic scale. *J Nanomater*, 2015, 2015: 1–6
- 6 Zhang X, Hou L, Ciesielski A, et al. 2D materials beyond graphene for high-performance energy storage applications. *Adv Energy Mater*, 2016, 6: 1600671
- 7 Chen X, Zhou Z, Deng B, et al. Electrically tunable physical properties of two-dimensional materials. *Nano Today*, 2019, 27: 99–119
- 8 Gatensby R, McEvoy N, Lee K, et al. Controlled synthesis of transition metal dichalcogenide thin films for electronic applications. *Appl Surf Sci*, 2014, 297: 139–146
- 9 Ou W, Pan J, Liu Y, et al. Two-dimensional ultrathin MoS_2 -modified black Ti^{3+} - TiO_2 nanotubes for enhanced photocatalytic water splitting hydrogen production. *J Energy Chem*, 2020, 43: 188–194
- 10 Roldán R, Silva-Guillén J A, López-Sancho M P, et al. Electronic properties of single-layer and multilayer transition metal dichalcogenides MX_2 ($M = \text{Mo}, \text{W}$ and $X = \text{S}, \text{Se}$). *Annalen Der Physik*, 2014, 526: 347–357, arXiv: 1410.2154
- 11 Heine T. Transition metal chalcogenides: Ultrathin inorganic materials with tunable electronic properties. *Acc Chem Res*, 2015, 48: 65–72
- 12 Ganatra R, Zhang Q. Few-layer MoS_2 : A promising layered semiconductor. *ACS Nano*, 2014, 8: 4074–4099
- 13 Mohamed R B, Nasina M R, Shaik K, et al. Structural and magnetic properties of Co diffused CdTe nanocrystalline thin films deposited by electron beam evaporation. *J Supercond Nov Magn*, 2014, 27: 2147–2152
- 14 Manzeli S, Ovchinnikov D, Pasquier D, et al. 2D transition metal dichalcogenides. *Nat Rev Mater*, 2017, 2: 17033
- 15 Nicolosi V, Chhowalla M, Kanatzidis M G, et al. Liquid exfoliation of layered materials. *Science*, 2013, 340: 1226419
- 16 Gong C, Li L, Li Z, et al. Discovery of intrinsic ferromagnetism in two-dimensional van der Waals crystals. *Nature*, 2017, 546: 265–269, arXiv: 1703.05753
- 17 Huang B, Clark G, Navarro-Moratalla E, et al. Layer-dependent ferromagnetism in a van der Waals crystal down to the monolayer limit. *Nature*, 2017, 546: 270–273, arXiv: 1703.05892
- 18 Deng Y, Yu Y, Song Y, et al. Gate-tunable room-temperature ferromagnetism in two-dimensional Fe_3GeTe_2 . *Nature*, 2018, 563: 94–99, arXiv: 1803.02038
- 19 Li B, Wan Z, Wang C, et al. Van der Waals epitaxial growth of air-stable CrSe_2 nanosheets with thickness-tunable magnetic order. *Nat Mater*, 2021, 20: 818–825
- 20 Çakır D, Peeters F M, Sevik C. Mechanical and thermal properties of $h\text{-MX}_2$ ($M = \text{Cr}, \text{Mo}, \text{W}$; $X = \text{O}, \text{S}, \text{Se}, \text{Te}$) monolayers: A comparative study. *Appl Phys Lett*, 2014, 104: 203110
- 21 Zhuang H L, Johannes M D, Blonsky M N, et al. Computational prediction and characterization of single-layer CrS_2 . *Appl Phys Lett*, 2014, 104: 022116
- 22 Kresse G, Joubert D. From ultrasoft pseudopotentials to the projector augmented-wave method. *Phys Rev B*, 1999, 59: 1758–1775
- 23 Kresse G, Hafner J. *Ab initio* molecular dynamics for liquid metals. *Phys Rev B*, 1993, 47: 558–561
- 24 Aykol M, Wolverton C. Local environment dependent GGA+U method for accurate thermochemistry of transition metal compounds. *Phys Rev B*, 2014, 90: 115105
- 25 Wang C, Zhou X, Pan Y, et al. Layer and doping tunable ferromagnetic order in two-dimensional CrS_2 layers. *Phys Rev B*, 2018, 97: 245409, arXiv: 1706.10213
- 26 Yang H, Boule O, Cros V, et al. Controlling dzyaloshinskii-moriya interaction via chirality dependent atomic-layer stacking, insulator capping and electric field. *Sci Rep*, 2018, 8: 12356
- 27 Zhu Y, Ma C L, Shi D N, et al. Shape deformation induced enhancement of ferromagnetism in $\delta\text{-(Ga, Mn)As}$. *Phys Lett A*, 2014, 378: 2234–2238
- 28 Yang H, Thiaville A, Rohart S, et al. Anatomy of Dzyaloshinskii-Moriya interaction at Co/Pt interfaces. *Phys Rev Lett*, 2015, 115: 267210, arXiv: 1501.05511

- 29 Pan Y, Zhu Y, Shi D N, et al. Enhancement of ferromagnetism in δ -(Zn,Mn,Li)Se by shape deformation: Based on Zener's double exchange. *J Alloys Compd*, 2015, 644: 341–345
- 30 Sandratskii L M. Symmetry analysis of electronic states for crystals with spiral magnetic order. I. General properties. *J Phys-Condens Matter*, 1991, 3: 8565–8585
- 31 Knöpfle K, Sandratskii L M, Kübler J. Spin spiral ground state of γ -iron. *Phys Rev B*, 2000, 62: 5564–5569
- 32 Hobbs D, Kresse G, Hafner J. Fully unconstrained noncollinear magnetism within the projector augmented-wave method. *Phys Rev B*, 2000, 62: 11556–11570
- 33 Wang S, Robertson A, Warner J H. Atomic structure of defects and dopants in 2D layered transition metal dichalcogenides. *Chem Soc Rev*, 2018, 47: 6764–6794
- 34 Li X Y, Huang C, Zhu Y, et al. Dzyaloshinsky-Moriya interaction in δ -(Zn, Cr)S(111) surface: First principle calculations (in Chinese). *Acta Phys Sin*, 2018, 67: 137101 [李小影, 黄灿, 朱岩, 等. (Zn, Cr)S(111)表面上的Dzyaloshinsky-Moriya作用: 第一性原理计算. 物理学报, 2018, 67: 137101]
- 35 Huang C, Li X Y, Zhu Y, et al. First principle study of weak Dzyaloshinsky-Moriya interaction in Co/BN surface (in Chinese). *Acta Phys Sin*, 2018, 67: 117102 [黄灿, 李小影, 朱岩, 等. 第一性原理计算Co/h-BN界面上的微弱Dzyaloshinsky-Moriya相互作用. 物理学报, 2018, 67: 117102]

Magnetic transition from antiferromagnetic CrS₂ to ferromagnetic MoSe₂/CrS₂

JIANG Yu^{1,2}, HUANG Can^{1,2}, ZHU Yan^{1,2*}, PAN Yan-Fei^{1,2},
FAN Ji-Yu^{1,2} & MA Chun-Lan^{3*}

¹ Department of Applied Physics, College of Science, Nanjing University of Aeronautics and Astronautics, Nanjing 210006, China;

² MIIT Key Laboratory of Aerospace Information Materials and Physics, Nanjing University of Aeronautics and Astronautics, Nanjing 210006, China;

³ School of Physical Science and Technology, Suzhou University of Science and Technology, Suzhou 215009, China

We studied the atomic and magnetic structures of the two-dimensional (2D) single-layer CrS₂ and double-layer MoSe₂/CrS₂ systems based on the first principles. In this paper, the generalized Bloch condition was used to calculate the dispersion relationship $E(\mathbf{q})$ between the energy of the spin spiral and spin spiral wave vector $\mathbf{q}$. The curve was fitted by the Heisenberg model, and the multiple nearest neighbor Heisenberg interaction (HBI) parameters J_1 – J_6 of the single-layer CrS₂ and MoSe₂/CrS₂ double-layer systems were obtained. The fitted HBI parameters were used to derive the $E(\mathbf{q})$ over the full Brillouin zone. The paper found that the nonmagnetic MoSe₂ layer changes the magnetic structure of CrS₂ from an intralayer antiferromagnetic arrangement to an intralayer ferromagnetic arrangement. The mechanism can be summarized as follows: the MoSe₂ layer expands the density of states of the Cr atoms, and the electron gas in MoSe₂/CrS₂ is transferred from the metallic CrS₂ to the semiconductor MoSe₂, resulting in a reduction in the Ruderman-Kittel-Kasuya-Yosida (RKKY) interaction of the antiferromagnetic effect in CrS₂. Finally, MoSe₂/CrS₂ exhibits ferromagnetism. This article lays the foundation to explore the various interaction mechanisms of 2D magnetic materials, such as double exchange and RKKY exchange, for the design and search for high-Curie-temperature magnetic materials and analysis of various 2D magnetic systems.

first principles, HBI, CrS₂/MoSe₂, 2D magnetic system

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

doi: 10.1360/SSPMA-2021-0157