

自旋零能隙半導體特性的第一性原理探討

何亞倫(S12210055)

指導教師 吳桂光 教授

Email: s12210055@gmail.com

摘要

本研究以自旋零能隙半導體 (spin-gapless semiconductors, SGS) 為主題，著重其能帶結構特徵、典型材料系統與在自旋電子學及拓撲量子材料中的潛在應用。SGS 的關鍵在於：一個自旋通道的導帶底與價帶頂在費米能處相接而呈現零帶隙，另一自旋通道則維持有限能隙，因此在極小能量激發下即可產生高度自旋極化的電子或電洞，兼具零帶隙材料與半金屬的優點。文獻顯示，Heusler 合金、二維過渡金屬鹵化物以及 p 軌域碳氮網格等多種材料，透過密度泛函理論預測或部分實驗驗證為 SGS 候選，部分體系在引入自旋-軌道耦合後更有望轉變為具拓撲邊界態的絕緣體，並實現量子反常霍爾效應。然而，目前能同時被完整證實具有 SGS 與拓撲特性的實際材料仍相對有限，顯示理論預測與實驗之間存在明顯落差。本研究即在此背景下，進一步探討 SGS 之能帶結構與自旋極化機制，並整理代表性材料實例與其應用前景。

研究計畫內容

(一) 研究動機與研究問題

研究動機：

自旋電子學的核心需求是高效率、自旋極化的載子與低能耗輸運通道，但傳統半金屬與自旋結構在室溫穩定性與能耗方面仍有限制。

我想以基於第一性原理的計算程式，計算出 SGS 性質在能帶結構與自旋極化上的本質差異，並比較出與傳統半導體、半金屬，及其結構如何激發載子及磁性行為。

研究問題：

預測 Heusler 合金系中尚未被細算的結構進行分析，計算其能帶結構與態密度圖，根據文獻[1]中已知的 SGS 類型比對，給定其所屬 SGS 哪種類型。

(二) 文獻回顧與探討

Heuslers合金系：

Mn₂CoAl為首先被驗證為SGS合金之一，幾乎與溫度無關的電導率，及高速低耗能的潛力。

二維SGS與Dirac/ nodal-line :

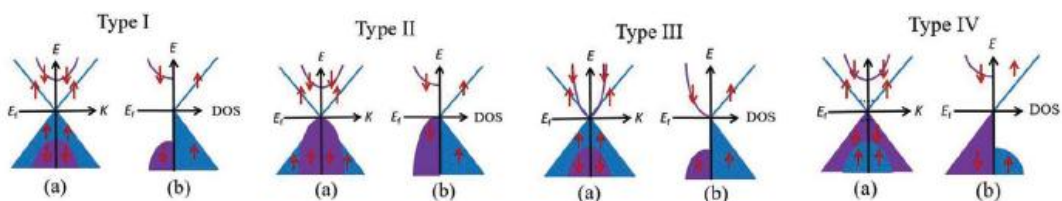
文獻[1]中討論 SGS 概念，將其定義為一類在一個自旋通道具有零能隙、另一自旋通道仍有有限能隙，且可實現完全自旋極化載子的零能隙材料，並隨後發展出拋物型與 Dirac 型、Type I-IV 等不同能帶分類。文獻[2]中使用 Quantum ESPRESSO 掃描一整族 FeCr 型四元 Heusler 合金，找出哪些是穩定、具半金屬或自旋零能隙特性的候選材料，可作為此研究的範本對照，為後續設計與篩選 Heusler 型自旋電子材料提供完整的計算流程，並對我所計算出的數據做比對驗證是否準確。文獻[3]中系統性研究 Co_2YPb ($Y = \text{Tc}, \text{Ti}, \text{Zr}, \text{Hf}$) full Heusler 合金的結構、電子、磁性與熱電性，並評估其在車用嵌入式熱電元件與自旋電子元件中的潛力。

Type I: 某自旋 (\uparrow) 導帶與價帶在 E_F 接觸，另一自旋 (\downarrow) 有正常能隙。

Type II、III: 只有導帶或價帶是完全自旋極化，另一側帶為非極化或部分極化。

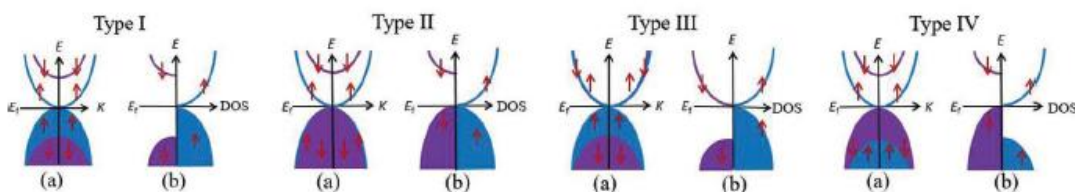
Type IV: 兩個自旋通道都有能隙，但上下帶在不同自旋通道交錯，導致在 E_F 有零隙且高度自旋選擇性。

Dirac型:



(圖1)a: SGS能帶結構 b:狄拉克色散關係的SGS態密度

拋物線型:



(圖2) a: SGS能帶結構 b: 拋物線形色散關係的SGS態密度

(三) 研究方法及步驟

依據理論:

密度泛函理論(DFT): 以「電子密度」來研究多電子系統的基態電子結構的量子力學方法，實際計算時使用Kohn-Sham方程式 (Kohn-Sham Equations): 建立一組類似於單電子薛丁格方程式的方程組，提供外加勢場使電子在系統中運動，再利用局部密度近似(LDA)或廣義梯度近似(GGA)，透過迭代計算找出基態的電子密度。

使用程式:

第一原理程式 Quantum ESPRESSO (QE):基於密度泛函理論(Density Functional Theorem, DFT) 計算 Heusler 合金中自旋零帶隙半導體之電子結構與磁性質。透過將多電子問題轉換為以電子密度為變數的 Kohn-Sham 方程,可求得基態能量、電子分佈與能帶結構,適合作為研究磁性合金與自旋極化能帶的主要工具。

1. 結構建模:

文獻與資料庫取得目標 Heusler 合金的晶體結構與晶格常數,並確認空間群與原子位置正確,在 QE 網站可安裝不同元素的UPF(Unified Pseudopotential Format, 統一價勢資訊),檔案裡會包含:不同元素價電子組態、能量截斷建議、局域/非局域勢、必要的輔助函數等。

2. 自旋極化自洽場 (SCF) 計算:

啟用自旋極化計算 (nspin=2),為過渡金屬原子設定合適的初始參數,執行 pw.x 計算反覆更新電子密度與有效勢,到總能量與電荷密度都收斂,得到穩定的基態電荷密度與 Fermi 能。

3. 非自洽 (NSCF) 計算與能帶/態密度分析:

使用 SCF 得到的收斂電荷密度與勢能,固定不變,在新的 k 點網格或路徑上重算本徵值與波函數,因此不做密度迭代。

bands.x: 讀取 pw.x 做完 nscf 計算後的資料裡,把各 k 點的本徵能量讀出,輸出成容易拿去畫能帶圖的檔案 (.dat 或 .gnu)

dos.x: 讀取 pw.x 計算產生的 prefix.save,依你設定的能量範圍與展寬參數計算總 DOS(也可以分自旋),輸出成可以畫 DOS 的數據檔。

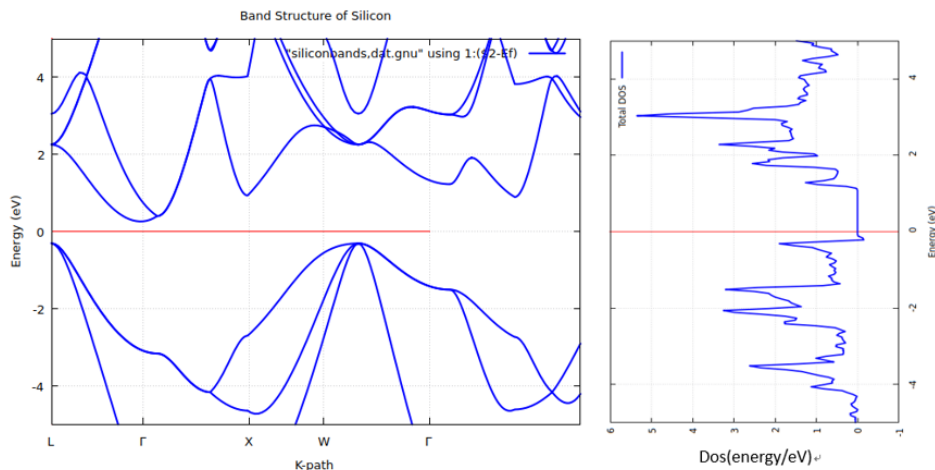
4. 利用內建gnuplot繪圖軟體讀取數據檔並繪製能帶結構與總/部分態密度。

優點:降低多體問題的計算複雜度,以同時計算出晶格常數、結構穩定性、能帶、DOS、磁矩等物理量,且可以直接算金屬、半導體、Heusler 合金等真實材料,而不是只停在模型原子或小分子。

缺點:所有多體效應都被包裹在交換-關聯泛函裡,沒有一個完美的解析形式,所以選擇不同泛函 (LDA、PBE、PBEsol、meta-GGA...) 結果會有系統性差異,需要透過測試和文獻比較來判斷哪一種比較適合目標的測量系統,若使用精度較高的泛函,計算量也變更加龐大。

(四) (現有)結果及討論

單一元素(矽)所模擬出來的能帶分布與態密度(截取部分範圍),但能帶結構預測與實際值仍有偏差。



(圖3)在QE中對矽做計算 左:能帶結構圖 右:態密度圖

目前利用[1-3]已知的Heusler合金做挑選，在處理兩種元素以上的金屬上所需考慮的參數更多，在計算上有時需花十幾個小時運行，若繪製出來一圖不符合文獻預期的則要在更正參數並重跑，所以必須同時設計不同參數同時運行，加上pw.x的計算結果直接關係到後續的計算及繪圖的精準度及正確與否，因此這裡也是我目前所遇到的難題。

(五) 個人貢獻主要項目及比重

在電腦計算上都為自己操作與老師指導（程式輸入法）

(六) 預期結果

對Heusler金屬預測的方向及結果:

1. 對文獻上已知的金屬做預測，並做出合理的bands、dos圖，驗證所設定的input是有效且可參考的。
2. 預測未知金屬，清楚分出「金屬/半導體/半金屬」三種情況，能隙大小、費米能位置看起來合理。

(七) 結論

以 Heusler 合金為主要材料，比對文獻中各類 SGS 能帶型態，建立出一套可重現已知結果、並具預測能力的計算流程。在單一元素與文獻中合金的測試中，雖然目前能帶與態密度仍與文獻存在差距，但已確認計算架構與流程可行，後續持續優化輸入參數，最好的情況是能模擬出多種不同材料結構並區分金屬、半導體、半金屬及各型 SGS，並進一步了解其應用潛力。

(八) 參考文獻

- [1]Zengji Yue,Zhi Li, Lina Sang, Xiaolin Wang, Small 16, 1905155, (2020)
- [2]R. Dhakala, S. Nepala, I. Galanakisc, R. P. Adhikarib, G. C. Kaphlea, Journal of Alloys and Compounds 882, 160500, (2021)
- [3]N. Saidi , A. Abbad, W. Benstaali, K. Bahnes, Condens. Matter Phys 28, 43701, (2025)