arXiv:2304.05287v1 [cond-mat.mtrl-sci] 11 Apr 2023

非磁性手性材料中的共线 Rashba-Edelstein 效应

Karma Tenzin,[1,2] Arunesh Roy,[1] Frank T. Cerasoli,[3] Anooja Jayaraj,[4] Marco Buongiorno Nardelli,[4,5] 和 Jagoda S lawi´ńska[1]
[1] *Zernike Institute for Advanced Materials, University of Groningen, Nijenborgh 4, 9747AG Groningen, Netherlands*
[2] *Department of Physical Science, Sherubtse College,Royal University of Bhutan, 42007 Kanglung, Trashigang, Bhutan*
[3] *Department of Chemistry, University of California, Davis, Davis, CA 95616, USA*
[4] *Department of Physics, University of North Texas, Denton, TX 76203, USA*
[5] *The Santa Fe Institute, Santa Fe, NM 87501, USA*
（日期：2023年4月12日）

在不借助外部磁性的情况下，如何在特定材料中高效地产生和操控自旋信号，仍是自旋电子学面临的挑战之一。自旋霍尔效应（SHE）和 Rashba-Edelstein效应（REE）是利用电学方式在具有强自旋轨道耦合（SOC）的材料中产生自旋积累的著名机制，但 SOC 的强度和类型究竟发挥何种作用，尤其是在低对称性晶体中，仍有待阐明。本研究采用基于密度泛函理论（密度泛函理论）的研究方法，考察了两类不同的非磁性手性材料中的 REE：元素半导体（Te 和 Se）以及半金属二硅化物（$TaSi_2$ 和 $NbSi_2$）。通过分析整个布里渊区内的自旋纹理，并将其与按化学势计算的 REE 大小进行比较，我们将电子结构中的特定特征与诱导自旋积累的效率联系起来。研究结果表明，以下因素可以增强 REE：(i) 存在纯径向（Weyl 型）自旋纹理，表现为平行的自旋-动量锁定；(ii) 能带沿某一特定晶体学方向具有较高的自旋极化；(iii) 能带速度较低。通过比较晶体结构相同但 SOC 强度不同的材料，我们得出结论：较强的 SOC 可能间接促进 REE 增强。它会使能带沿特定晶体学方向产生更大的自旋劈裂，从而在更宽的能量范围内避免自旋极化方向相反的能带贡献相互抵消，并有助于维持较大的 REE。我们认为，这些结果将有助于自旋电子学器件的设计，也可能为进一步开展计算研究提供帮助，以便在对称性和 SOC 强度各异的材料中寻找高效的 REE。

I. 引言

晶体的许多性质由其结构和对称性决定，这不仅有助于解释已有现象，也有助于预测结构相同的一系列材料中尚未探索的效应或功能。自然界中最引人入胜的对称性之一是手性，它描述的是无法通过旋转和平移与其镜像重合的物体，如同人的双手。[1] 手性分子和晶体存在两种能量等价的构型，称为对映异构体，它们互为镜面反射。这些构型对外场的响应可能各不相同，因而产生了各种引人入胜的性质和现象，例如非常规超导，[2] Kramers–Weyl费米子，[3] 磁结构（斯格明子），[4,5] 以及表现为有机分子中手性诱导自旋选择性（CISS）的手性依赖自旋输运，[6–8] 或手性材料中的共线 Rashba-Edelstein 效应（REE）。[9–11]这些效应的观测引发了关于决定其定量特征的基本因素的热烈讨论，例如手性与自旋轨道耦合（SOC）的相互作用，而后者的确切作用仍有待探究。

在我们之前的研究中，我们对手性碲进行了第一性原理计算，并使用经典玻尔兹曼输运理论估算自旋积累通过REE产生。我们展示了电流诱导自旋积累具有手性依赖性，并且与所施加的电荷电流平行，[11,12] 这与近期关于碲纳米线中栅极可调的电荷-自旋转换的实验研究结果一致。[10] 手性二硫属化物和金属二硅化物中也研究了类似的效应，在电场作用下，巡游电子会在宏观距离上获得自旋极化。[13–15] 尽管其中一些研究认为，观测到的自旋积累是 CISS的表现形式，类似于在手性分子中测得的自旋信号，但固态材料中的共线 REE 与分子系统中的 CISS 之间的联系尚未建立。因此，理解促成这些效应的关键因素至关重要。

在这里，我们报告了对两类手性化合物的计算研究：元素半导体碲和单质 Se，以及金属二硅化物 $TaSi_2$ 和 $NbSi_2$，以比较具有相同晶体结构但自旋轨道耦合（SOC）强度不同的材料中的电流诱导自旋积累。通过分析碲和单质 Se 的晶体对称性与电子结构，我们确定了可能增强手性材料中电流诱导自旋积累的三个主要因素：(i) 存在纯径向自旋轨道场（SOF）；(ii) 非简并能带的自旋完全沿特定晶向极化；(iii) 能带速度较低，表现为平带。同时，我们发现更强的 SOC 会拓宽

具有较大REE的能量区域，而不是增加其幅度。随后，我们将这些结果推广到金属二硅化物的情形。本文组织如下：在第二节中，我们介绍密度泛函理论（DFT）计算，以及在玻尔兹曼输运理论框架下REE 实现的细节。在第三节中，我们对碲和硒中的电子结构与自旋输运进行了扩展分析。第四节描述了金属二硅化物$TaSi_2$ 和$NbSi_2$, 的类似性质，第五节总结全文。

II. 计算细节

我们的第一性原理计算使用 Quantum Espresso (QE) 模拟软件包完成。[16,17] 我们采用全相对论赝势处理离子-电子相互作用，[18] 除 Se 外，各材料均使用 Perdew、Burke 和 Ernzerhof (PBE) 版本的广义梯度近似（GGA）泛函；对于 Se，则采用固体 PBE（PBEsol）。[19,20] 所有结构均采用六方晶胞构建，元素半导体的晶胞含三个原子，金属二硅化物的晶胞含九个原子。我们采用先前研究报道的实验晶格常数 a=4.80 (4.78) °A 和 c = 6 59 6 57 °. (.) A，分别对应 $NbSi_2$ ($TaSi_2$)。[15,21] 对于半导体，我们对结构进行了充分弛豫，并将晶格常数优化为 Te（Se）对应的 a=4.52 (4.50) °A 和 c = 5.81 (5.05) °A。原子位置弛豫所采用的能量和力收敛标准分别设为 10^{-5} Ry 和 10^{-4} Ry/bohr。对 $TaSi_2$ 和 $NbSi_2$，在 k 网格上进行布里渊区（BZ）积分；而 Te 和 Se 则分别采用 $22\times22\times16$ 和 $16\times16\times14$。轨道占据方案采用高斯展宽：$NbSi_2$/$TaSi_2$ 为 0.002 Ry，Te 为 0.001 Ry，Se 为 0.05 Ry。通过加入使用 ACBN0 方法计算得到的 Hubbard 参数，对半导体的电子结构进行了修正。[22]Te 和 Se 的 U 值分别设为 3.81 eV 和 3.56 eV。除弛豫计算外，所有计算均自洽地纳入了自旋轨道耦合（SOC）。

费米面、自旋纹理和自旋积累是使用开源 Python 软件包 PAOFLOW 计算的。该软件包将从头算自洽计算得到的波函数投影到赝原子轨道上，以构建紧束缚（TB）哈密顿量。[23,24] 随后，将这些哈密顿量插值到更密集的 k 网格上，其中 $NbSi_2$/$TaSi_2$采用 $80\times80\times60$, $200\times200\times180$用于 Te, $200\times200\times200$用于 Se，从而充分收敛积分量。虽然费米面、自旋纹理和自旋输运的后处理计算在 PAOFLOW 中完全自动化，但我们将在此简要介绍本研究中使用的电流诱导自旋积累的最新实现。

让我们考虑描述态占据情况的概率分布函数 $f(\boldsymbol{r},\boldsymbol{p},t)$ $= f$。dy- 该函数在实空间和动量空间中的动力学可通过经典玻尔兹曼输运理论进行描述。在稳态下并采用弛豫时间近似，玻尔兹曼方程写为：[25–27]

$$\boldsymbol{v}\cdot\nabla_{\boldsymbol{r}}f_o+\boldsymbol{F}\cdot\nabla_{\boldsymbol{k}}f_o=-\frac{\delta f(\boldsymbol{k})}{\tau_{\boldsymbol{k}}} \tag{1}$$

其中 $\boldsymbol{v}$, $\boldsymbol{F}$, 以及 $\tau_{\boldsymbol{k}}$ 分别表示速度、广义力和弛豫时间。我们进一步假设系统是各向同性的，并且在式1中仅考虑弹性散射。由于电子分布由费米–狄拉克函数描述，该方程的解可写为：

$$\delta f(\boldsymbol{k})=\tau_{\boldsymbol{k}}\left(-\frac{\partial f_o}{\partial E}\right)\boldsymbol{v}\cdot\boldsymbol{F} \tag{2}$$

净自旋积累，即系统中诱导产生的磁矩密度，在平衡态下为零，因为方向相反的自旋彼此抵消。如果施加外部电场 $\boldsymbol{E}$ ，系统中就会产生净自旋积累：

$$\delta\boldsymbol{s}=\sum_{\boldsymbol{k}}\langle\boldsymbol{S}\rangle\delta f_{\boldsymbol{k}} \tag{3}$$

代入广义力 $\boldsymbol{F}=-q\boldsymbol{E}$，我们得到：

$$\delta\boldsymbol{s}=\sum_{\boldsymbol{k}}\langle\boldsymbol{S}\rangle_{\boldsymbol{k}}\tau_{\boldsymbol{k}}(\boldsymbol{v}_{\boldsymbol{k}}\cdot\boldsymbol{E})\frac{\partial f_{\boldsymbol{k}}}{\partial E_{\boldsymbol{k}}} \tag{4}$$

如果我们假设弛豫时间为常数，就可以将上述方程写成紧凑形式，

$$\delta s^j=\chi^{ji}j_i^A \tag{5}$$

其中， j_i^A是施加的电荷电流， χ^{ji} 定义为：

$$\chi^{ji}=-\frac{\sum_{\boldsymbol{k}}\langle\boldsymbol{S}\rangle_{\boldsymbol{k}}^j\boldsymbol{v}_{\boldsymbol{k}}^i\frac{\partial f_{\boldsymbol{k}}}{\partial E_{\boldsymbol{k}}}}{e\sum_{\boldsymbol{k}}(\boldsymbol{v}_{\boldsymbol{k}}^i)^2\frac{\partial f_{\boldsymbol{k}}}{\partial E_{\boldsymbol{k}}}} \tag{6}$$

张量元χ^{ji} 通过TB哈密顿量计算，而张量的允许分量则通过对称性分析确定。[11,12,28]

III. 单质碲和硒

几何结构与电子结构。单质 Te 和 Se 具有三方晶体结构，其空间群分别为 $P3_121$ （152）和 $P3_221$ （154），分别对应右手性和左手性对映异构体。原子沿着从 c 轴上各角点延伸出的螺旋链排列，并通过较弱的范德华力相互作用（见图1（a））。两种对映异构体都具有三个旋转对称性 C_2 ，其旋转轴位于

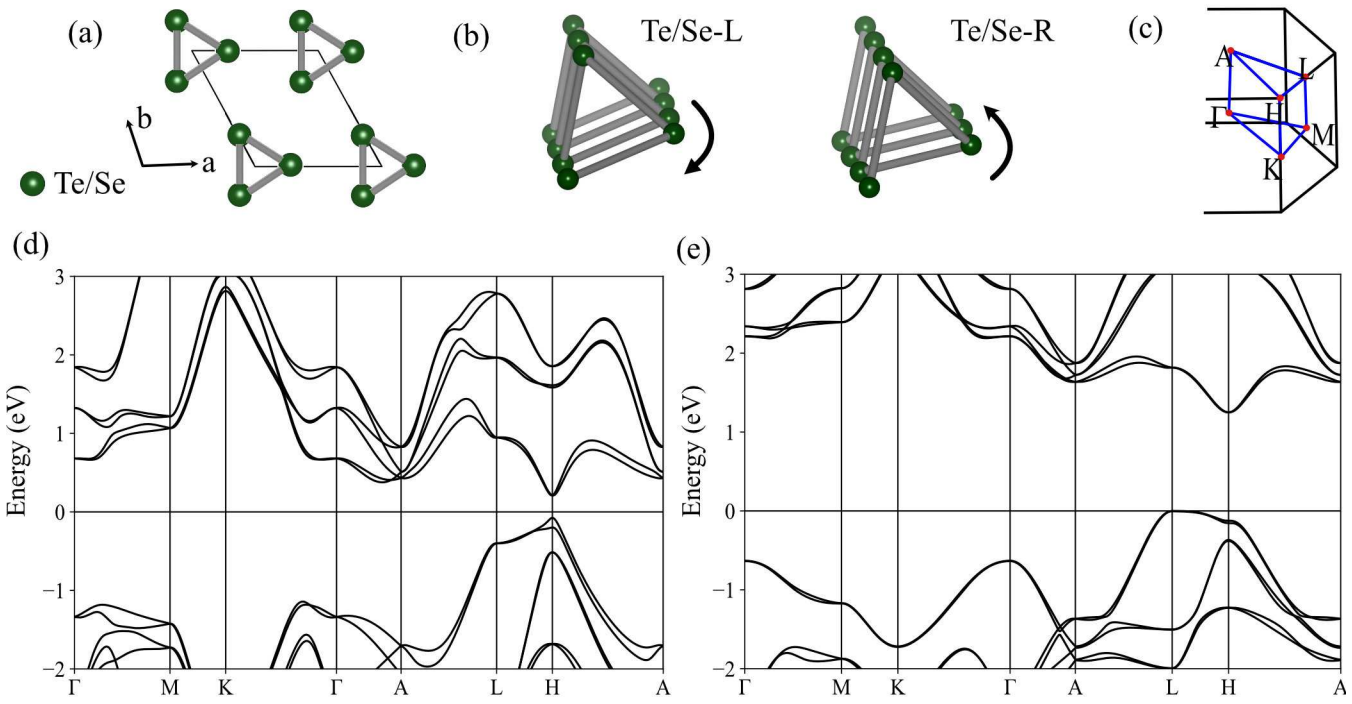

图 1. (a) 三方 Te/Se 晶体结构的俯视图。(b) 左手性和右手性 Te/Se 晶胞某个顶角处三个 Te/Se 原子的放大图。手性由沿 c 轴的三重螺旋对称性决定。(c) 布里渊区（BZ）的高对称线。(d) 沿 (c) 中所示高对称线计算的 Te 电子结构。费米能级设定在价带顶（VBM）处。(e) Se 的结果，与 (d) 相同。

a-b 平面内；右手性和左手性结构则可通过沿 3_1 和 3_2 的三重螺旋对称性加以区分c轴（图1（b））。

计算得到的能带结构如图 1(d)和1(e)所示，表明单质Te和硒分别是带隙为0.28 eV和 1.25 eV 的半导体。碲的电子结构与先前的研究结果[9–11,29–31] 吻合良好，包括带隙值也与测量值（330 meV）非常接近。[32] 硒的实验带隙（$\sim$ 1.9 eV）[33–35] 则更难通过标准DFT+U计算重现。[29] 然而，由于这两种半导体本质上都是 p型掺杂的，[36–38] 因此只有价能带会对电荷和自旋输运作出贡献，而我们的电子结构已足够精确，可以用于评估REE。能带显示出 SOC 的强烈影响，主要表现为能带的自旋劈裂。这些特征在碲中更加明显，例如，在 H点处最顶端价能带的劈裂超过100meV，比硒中的（$\sim$ 10meV）大一个数量级。虽然确切的劈裂取决于 k矢量，但材料之间的差异可以部分地由SOI的强度解释（与硒原子相比，碲的 p 轨道的 SOI 强度大约高 2.7 倍）。[39,40]

费米面和自旋纹理。 图2 显示了在费米能级（E_F）以下几十毫电子伏处计算得到的费米面（FS）和自旋纹理（ST），这对应于观测到的轻微 p型掺杂在实验中。[36–38] 在图2(a)中，我们展示了碲的FS，其在布里渊区的每个角落都由哑铃形空穴口袋组成。[11] 硒的FS更为复杂，在 L点处由两个相交的椭圆状形状组成，如图 2(b)所示。由于电子输运和自旋输运主要由这些口袋决定，我们进一步分析了碲（硒）的 H （L）点周围自旋轨道场的对称性。利用毕尔巴鄂晶体学服务器（BCS），[41,42] 我们发现SGP3_121 和P3_221的H点由 D_3波矢点群对称性（WPGS）描述，该对称性只能支持 Weyl 型自旋轨道耦合。[43] 这与 DFT结果一致，后者表明H点周围存在径向自旋纹理图样，如图2(c) 中所绘制的自旋轨道场在 $k_y - k_z$ 平面上的投影所示。[11,12] 类似地，我们发现硒的 L点由 D_2点群对称性描述，该对称性允许 Weyl和Dresselhaus 自旋轨道场的组合。[43] 自旋纹理在口袋平面上的投影（图2(d)）表明，其自旋取向主要呈径向，与碲的情况类似。此外，两种材料都呈现出准持久自旋纹理，这可能会减少自旋散射，从而延长自旋寿命，并在较长距离上产生稳健的自旋积累。[11,44,45]

自旋积累。我们再次使用 BCS 进行了对称性分析，发现 REE 张量仅含对角元素 $\chi_{xx} = \chi_{yy} \neq \chi_{zz}$.[12] 其大小随化学势变化的曲线

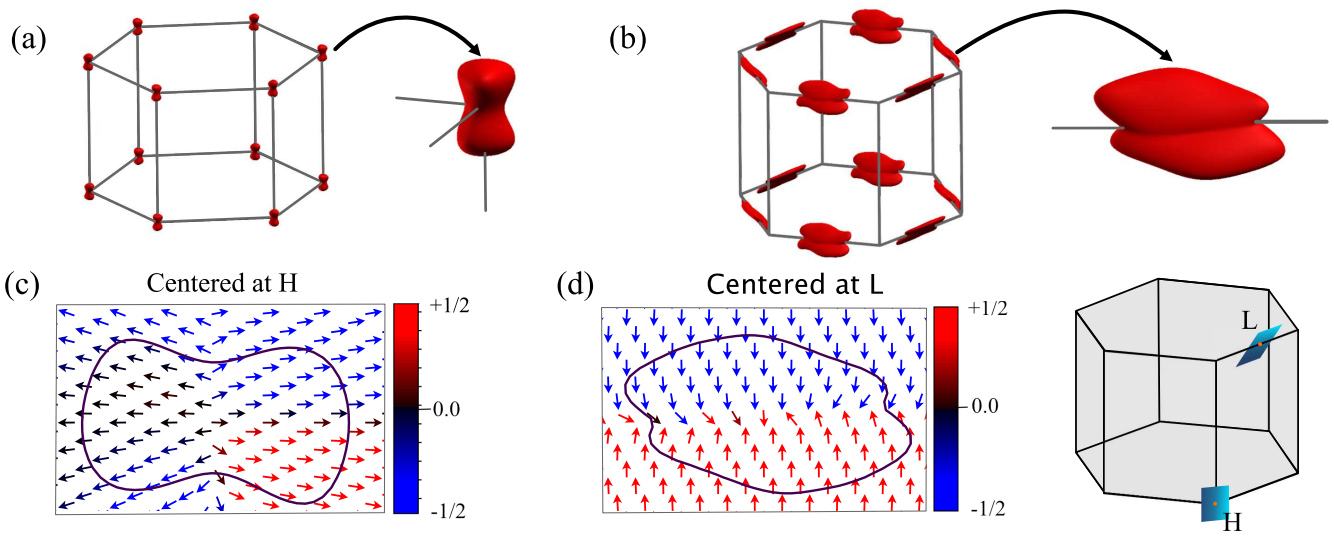

图 2. (a) 碲在价带顶（VBM）以下 $E = -30$ meV 处的费米面。放大图展示了哑铃形空穴口袋的细节，这些口袋位于布里渊区的各个 H 点。(b) 硒在 $E = -10$ meV 处的费米面。所有这些口袋都以 L 点为中心。(c) 将 (a) 中所示碲的费米面自旋纹理投影到 $k_y - k_z$ 面上，中心为 H 点（见图 (e)）。(d) 将 (b) 中所示硒的费米面自旋纹理投影到口袋所在的平面上（见图 (e)）。(e) 示意图展示了 (c) 和 (d) 中投影所用的平面。

如图所示。3(a) 和 3(b) 分别展示了左手性碲和硒的结果。由于左手性和右手性对映异构体的电子结构相同，仅 ST 的符号相反，因此 REE 的大小恰好相反，这意味着给定电荷电流所诱导的自旋积累取决于手性。对于碲，估算得到的 REE 在 z 轴方向最大，在低于费米能级 $E \approx -20$meV 处达到 8.00 $\times 10^{10}$ $\frac{\hbar}{e}$ ^{1} eVcm 。沿 x 轴和 y 轴流动的电荷电流所诱导的数值明显较低，但仍处于同一数量级，在低于 VBM $E \approx -90$ meV 处达到最大值 2.52 $\times 10^{10}$ $\frac{\hbar}{e}$ ^{1} eVcm 。硒中较弱的自旋轨道耦合意味着其 REE 整体较小，但 χ（E）的行为与碲不同，表明具体的电子结构也起着重要作用。例如，在 $E \approx -10$ meV 处，最大值 $\chi_{zz} = -4.19 \times 10^{10}$ $\frac{\hbar}{e}$ ^{1} eVcm为负值。此外，χ_{xx} 在接近 E_F时会改变符号，而碲中不会出现这种情况。这意味着可以通过改变所施加电场的方向来调控自旋积累的符号。

为了进一步深入了解这些独特的 $\chi(E)$图，我们分析了沿连接不可约布里渊区中高对称点的可能路径的能带的自旋极化和速度（见图 1(c)）。对于图 3 所考虑的能量范围，只有 H-点（碲）和 L-点（硒）附近的能带对自旋输运有贡献。我们首先关注碲，其中能带沿三条高对称路径 $\Gamma - H$、$K - H$ 和 $M - H$ 存在。它们的自旋极化如图 4(a) 所示，我们可以注意到，自旋主要沿 z 方向取向。这解释了沿该轴增强的自旋积累，如张量分量 χ_{zz} 与 z 分量的自旋期望值之和成正比。另一条具有相反自旋极化的能带在 $\sim$ -0.13 eV处出现，导致所产生的自旋密度部分抵消，这表现为从该能级附近开始并延伸至更低能量处的 χ_{zz}下降。张量的 χ_{xx} 分量主要由 $\Gamma - H$ 路径决定，部分由 $M - H$路径决定；注意，沿 $K - H$ 线，自旋纹理的 S_x 分量可以忽略不计。 S_x 的强度从零逐渐增加，直至下一条能带开始，从而使 χ_{xx} 几乎保持不变，在-0.09 eV处出现轻微最大值，随后在-0.13 eV以下下降。

对图 5(a) 中绘制的能带速度进行分析，可进一步阐明 $\chi(E)$ 的行为。碲的 v_z 分量在整个考察的能量窗口以及所有路径上都很大且相当均匀。最有趣的特征出现在价带顶以下 -20 至 -35 meV 的能量范围内沿 $M - H$ 路径的部分。在该区域，速度 v_z 非常低，这似乎是 χ_{zz}（见式 6）出现尖锐极大的原因。相比之下，分量 v_x 似乎不会对 χ_{xx} 分量产生显著影响，后者几乎不随 E 变化。此处的主要贡献来自 H点处的能带顶端，在该处 v_x 非常低，导致 χ_{xx} 分量在 E_F以下迅速增大，尽管该区域的 S_x 相当弱（见图 4(a)）。

Se中共线 REE的行为可以采用类似的方法解释。与碲相比，主要差异在于，由于较弱的自旋轨道相互作用，价带的自旋劈裂非常小；在L-点处，能带仅相隔几 meV（见图 4（b））。此外，能带的自旋极化是

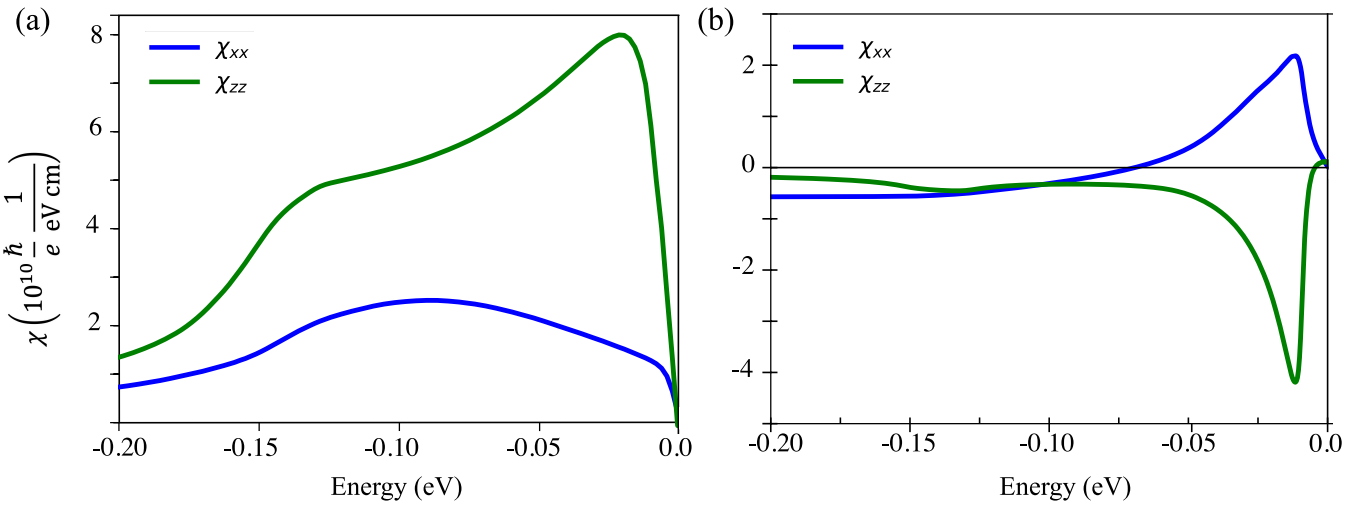

图 3. (a) 左手性碲的电流诱导自旋积累随化学势的变化。绿色和蓝色曲线分别表示 χ_{zz} 和 χ_{xx} 分量的逆自旋霍尔效应张量。元素 χ_{yy} 未列出，因为它与 χ_{xx}相同。[12] (b) 与 (a) 相同，但计算对象为硒。 $\chi(E$右手性对映异构体的分量（未显示）因对称性而恰好相反。

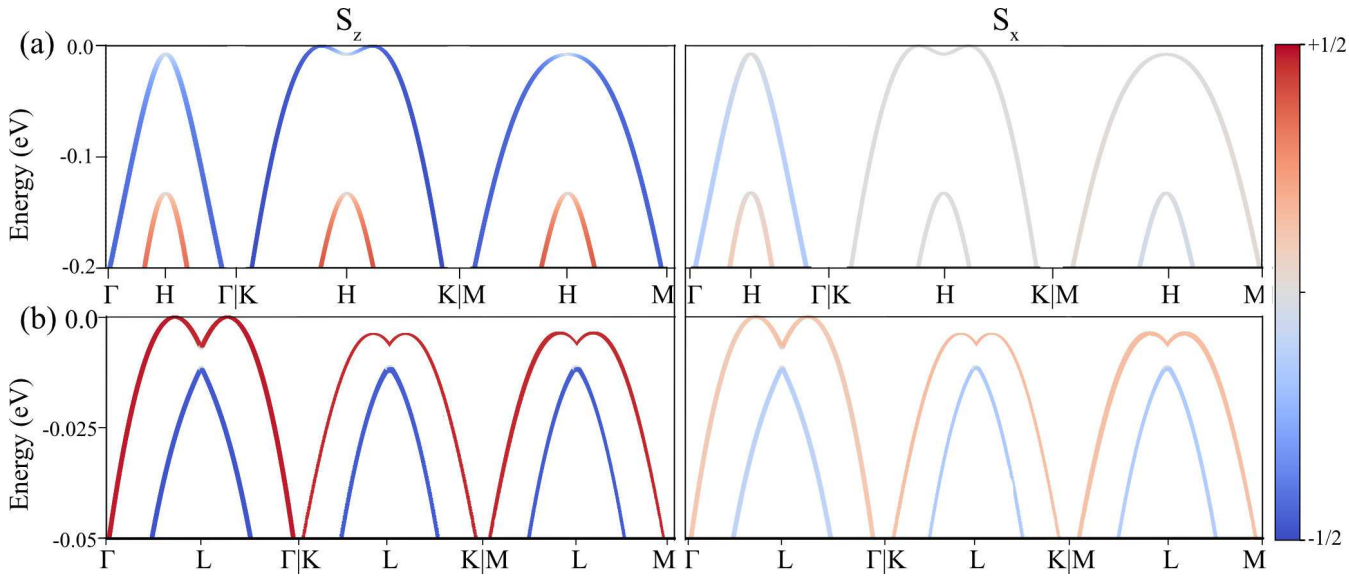

图 4. (a) 沿相关高对称线计算的左手性碲自旋分辨能带结构。能带的自旋极化主要沿 z轴。用颜色表示 S_z 和 S_x 分量的大小（见图例）。(b) 左手性硒的相同计算结果。自旋纹理既不沿 x轴，也不沿 z轴极化，这也可从图2(b) 推断。注意，硒能带的自旋劈裂小于碲。相应右手性对映异构体的自旋纹理因对称性而恰好相反（未显示）。

与碲相反，这解释了 χ_{zz} 分量符号相反的原因。硒和碲中的能带速度 v_z 相似（图 5(a-b)），但前者在价带顶附近缺少低数值，且χ_{zz} 的最高值比碲中低一半。尽管在更高的束缚能处会出现v_z 低值，尤其沿着 $\Gamma - L$ 线，但由于存在极化方向相反的下一条价带，其影响受到抑制，导致 χ_{zz}快速下降。另一方面，

其行为 χ_{xx} 似乎由能带速度（v_x）决定。虽然 E_F 周围自旋积累的符号为正，无法用能带的自旋极化来解释，v_z 和 v_x 沿图5(b)所示的所有路径的符号都恰好相反，这解释了 χ_{zz} 和 χ_{xx}符号不同的原因。 χ_{xx} 的大小通常较小，因为自旋纹理的 S_x 分量弱于 S_z （图4(b)）。

总体而言，对碲和硒的分析使我们能够得出一个

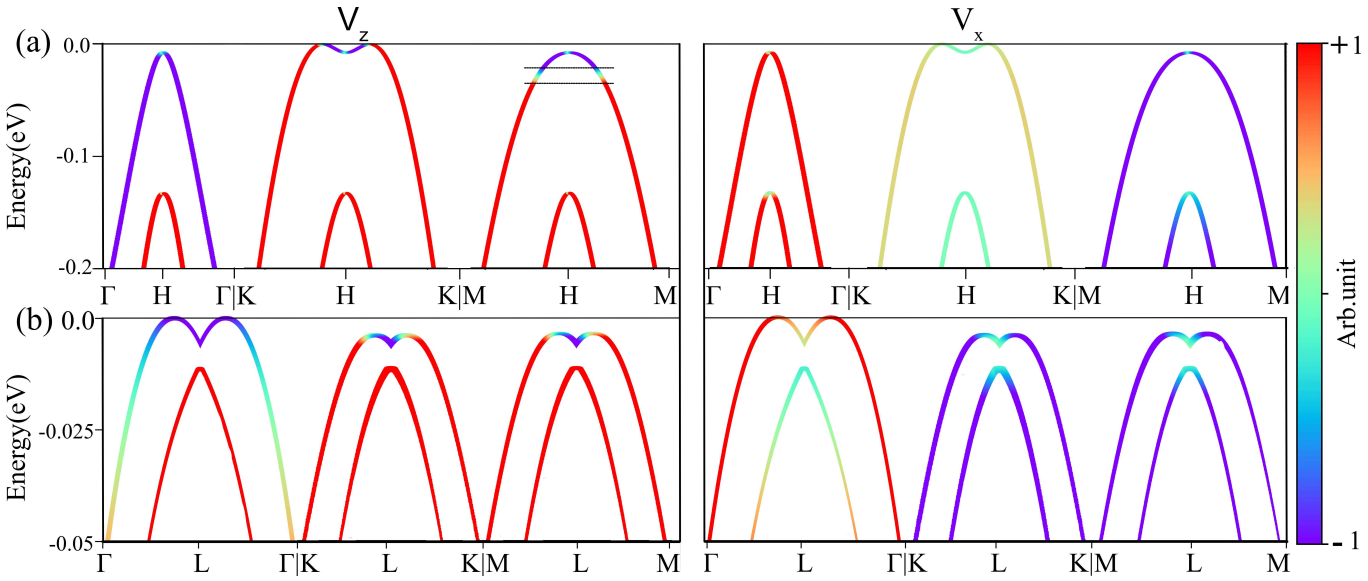

图 5。（a）沿选定路径计算得到的碲-L 速度分辨能带结构。左图和右图分别展示了以颜色图表示的 v_z 和 v_x 分量的强度。（b）与（a）相同，但计算对象为硒-L。

几个重要结论。与费米面具有混合自旋纹理图样的材料相比，纯径向自旋纹理虽然会产生更大的 REE，但[12]曲线的确切特征 $\chi(E)$同时取决于自旋极化方向和能带速度。若存在一条平均自旋极化沿某一特定方向的能带，则该方向上的自旋积累会增强。此外，低速度能带或理想的平坦区域对 $\chi(E)$的贡献最大。这意味着，即使是自旋轨道耦合相对较弱的材料，只要能带（近乎）平坦，也可能表现出显著的 REE。不过我们注意到，更强的自旋轨道耦合会使自旋极化方向相反的能带之间产生更大的分裂，例如硒的情况，因此较大的 χ 区域覆盖的能量范围更宽。在下一节中，我们将展示，具有更复杂费米面和自旋纹理的手性半金属中的自旋积累基本遵循相同的趋势，从而进一步佐证这些结论。

IV. 手性二硅化物

结构和电子性质。 现在我们将考虑两种结构相同的金属二硅化物，$NbSi_2$和 $TaSi_2$ ，其右手性和左手性晶体分别由空间群 $P6_222$(180) 和 $P6_422$(181) 描述。这些结构如图 6 所示，具有 6 个二重（C_2）旋转对称性，其旋转轴位于a-b 平面内。晶体的两种对映异构体可通过沿 c 轴延伸的 X-Si-M（X ＝ Ta/Nb）链对的相反螺旋性加以区分，如图 6 (b) 所示。针对.....计算得到的能带结构

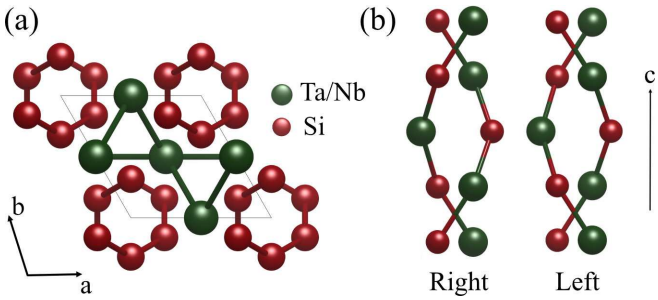

图 6。（a）$TaSi_2$ 和 $NbSi_2$ 晶体结构的俯视图。（b）其右手性和左手性对映异构体的侧视图。手性由沿 c轴延伸的一对螺旋链相反的螺旋性决定（空间群 180 和 181）。

$TaSi_2$ 和 $NbSi_2$ 分别显示在图 7(a)-(b) 中，结果证实这两种材料都是韦尔半金属，与先前的研究一致。[11, 47–49] 费米面分别显示在图 8(a)-(d) 和图 9(a)-(d) 中，由两对自旋分裂的费米片组成。我们注意到，$TaSi_2$ 中的分裂能量超过 $NbSi_2$, 的两倍，这与先前的计算以及德哈斯-范阿尔芬效应的测量结果一致。[48] 这一结果并不令人意外，因为这些材料中 SOC 的主要贡献来自 Ta-5d 和 Nb-4d 电子。我们还可以观察到，在 E_F 附近的高对称点 M 和 K处，能带分裂最大，这表明 SOC 对能带的影响随布里渊区位置变化显著。

自旋纹理。与这些费米面片对应的自旋纹理可视化于图8(e)-(h)和

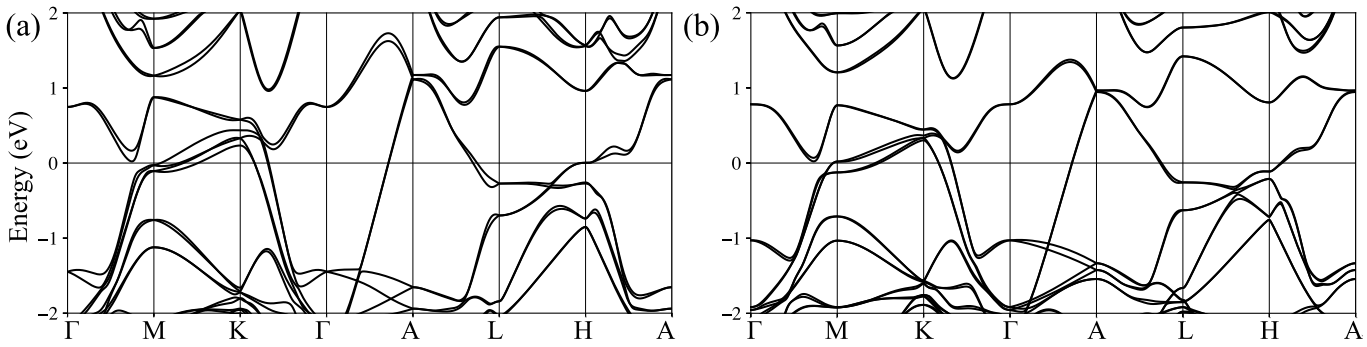

图 7. (a) 能带结构 $TaSi_2$ 沿图 1(c) 中示意的高对称线的能带结构。(b) $NbSi_2$的能带结构，与 (a) 相同 .

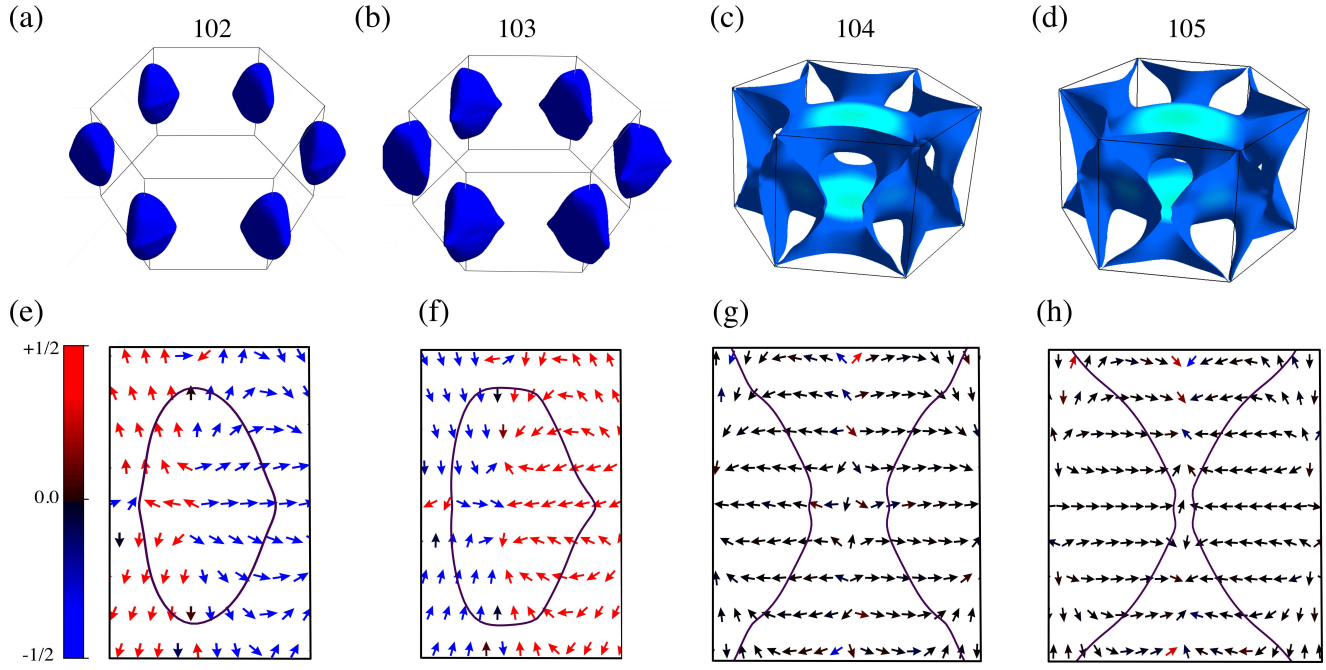

图 8. (a)-(d) 在费米能级处计算得到的 $TaSi_2$ 费米面。编号为 102 和 103 的能带是以 K 点为中心的椭球面，而能带 104 和 105 是开放表面，其在每个侧面（矩形）布里渊区面的投影为围绕 M 点的双曲线形等高线（见 (e) 和 (f) 图）。(e) 能带 102 的自旋纹理在布里渊区侧面的投影，以 K 点为中心。等高线对应于 $E = E_F$。(f) 对能带 103 绘制的相同内容。(g) 对能带 104 计算并以 M 点为中心的相同内容，如 (e)-(f) 所示。(h) 对能带 105 绘制的相同内容，如 (g) 所示。 K 点周围的自旋纹理遵循纯粹的 Weyl 型自旋轨道耦合，而 M 点周围的自旋纹理则呈现 Weyl-Dresselhaus 自旋轨道场。箭头颜色表示垂直于平面的自旋分量。费米面使用 FermiSurfer 可视化。[46]

图9(e)-(h)分别展示了 $TaSi_2$ 和 $NbSi_2$, 的结果。为方便起见，我们将它们投影到以 K 和 M为中心的布里渊区侧面（侧壁）所在平面上，这与 Te 和 Se 的情况类似。为了理解自旋构型，我们利用 BCS 服务器对高对称点进行了群论分析。我们发现， Γ， A， H，K 可由 D_6 或 D_3 点群对称性描述，这种对称性仅允许 Weyl 型自旋纹理。[43]另外两个点， M 和 L，由小点群 D_2, 描述，因此可以同时具有 Weyl 型和 Dresselhaus 型自旋轨道耦合。[43] 这些发现与第一性原理计算结果一致； K点附近的自旋构型呈径向分布，在随后两个能带102和103之间交替呈向外和向内的取向。位于 M点的能带自旋纹理也主要呈径向分布（图8(e)-(f)以及图9(e)-(f)），仅在TaSi图中曲线图的角落附近可见切向分量$_2$ （图8(g)-(h)）以及NbSi的M点周围$_2$ （图9(g)-(h)）。

电流诱导自旋积累。对手性依赖的金属二硅化物自旋输运的实验研究揭示了由沿手性轴流动的电流产生的自旋信号。[15] 在我们最近的研究中，我们提出此类结果可归因于

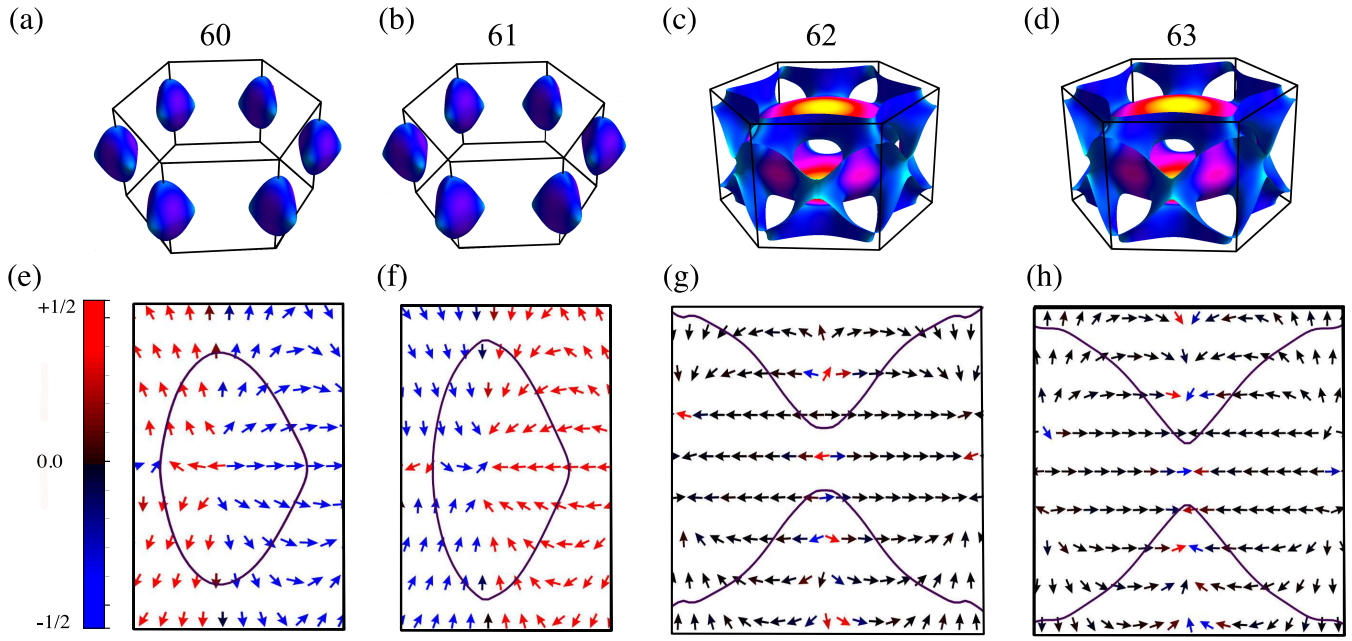

图 9。与图 8相同，但计算对象为 $NbSi_2$。

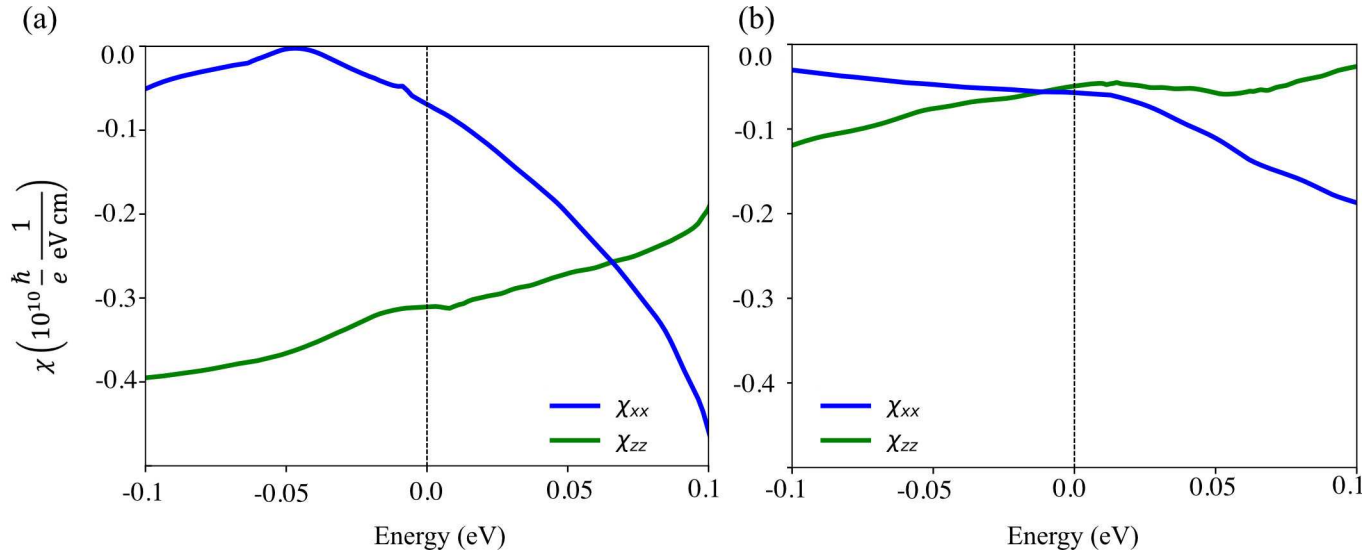

图 10。（a）左手性 $TaSi_2$ 的 CISP 张量随化学势变化的计算结果。不同的张量分量以不同颜色区分。（b）与（a）相同，但计算对象为左手性 $NbSi_2$。分量 χ_{yy} 被省略，因为它们等于 χ_{xxo}

由于存在占主导地位的韦尔型自旋轨道场，$TaSi_2$, 中出现了共线 REE。[11] 然而，与元素半导体类似，REE 张量有三个（两个独立的）分量 $\chi_{xx} = \chi_{yy}$ 和 χ_{zz}，[12] 而前者尚未经过实验研究。

不同分量的 χ 张量随化学势变化的大小绘于图 10(a)-(b)，分别对应 $TaSi_2$ 和 $NbSi_2$, 。令人惊讶的是，在 $TaSi_2$ 中，我们观察到其数值甚至高于 χ_{xx} 在 χ_{zz} 费米能级处的数值；而在 $NbSi_2$ 这两个分量几乎相等。根据图8 和图9所示的自旋纹理，可以解释这一结果；我们注意到，径向自旋分布相当各向同性。这与碲的自旋纹理不同，在碲中，自旋几乎完全沿螺旋轴取向，从而增强了 χ_{zz}分量。此外，各个方向上的能带速度都很高，这或许可以解释为什么E_F 处的 REE 数值比碲中低近两个数量级。

两种二硅化物的 REE 相近，因为它们的

费米面及其对应的、产生自旋积累的自旋纹理总体上十分相似。χ 大小的差异可归因于 $TaSi_2$ 中的能带自旋劈裂大于 $NbSi_2$。在图 7(a)-(b) 中可以看到这一点：在 E_F 附近，以及沿着决定 χ_{xx} 和 χ_{yy} 张量分量大小的晶体学方向ΓM、 AH、 AL和 MK。$NbSi_2$ 中较弱的自旋轨道耦合导致能带近乎简并，其对有效自旋累积的贡献彼此抵消，这与 Se 的情况类似。因此，我们关于手性二硅化物的结果与针对元素半导体得出的结论一致。

五、结论

总之，我们研究了几种代表性材料中的手性依赖的共线反 Edelstein 效应，重点关注自旋轨道耦合的作用。我们发现，在具有纯 Weyl（径向）自旋轨道场、从而产生平行自旋-动量锁定的晶体中，非传统的自旋积累更容易出现。我们观察到，诱导产生的自旋密度大小取决于动量空间中能带的自旋极化以及能带速度。例如，碲的能带沿螺旋轴高度自旋极化，这意味着沿该方向的自旋积累最大；而硒中的自旋纹理则更加各向同性，因此沿不同轴向的 χ 大小几乎相同。自旋积累随化学势变化的数值还会受到能带速度的调制；较低的速度可能会增加沿特定轴向产生的自旋积累，即使能带沿该方向的自旋极化较弱。

分析自旋轨道耦合（SOC）强度的影响更为微妙。[50] 一方面，自旋轨道相互作用会解除非中心对称晶体结构的能量简并和自旋简并，这是 REE 出现的必要条件。[12] 另一方面，高 SOC 本身并不会导致较大的 REE；值得注意的是，两种 SOC 强度不同的手性二硅化物表现出相似的 χ 约 E_F。我们的结果表明，更强的自旋轨道相互作用会增大能带的自旋劈裂，并且往往会阻止源自自旋极化方向相反的能带的自旋积累相互抵消。因此，它可以间接增大 REE，但仅限于能带劈裂显著的能量区域。

我们对手性材料中共线 REE 的研究，可实际应用于自旋电子器件的设计，这类器件在非常规构型中利用自旋-电荷转换。此外，这项研究也为寻找高效电荷-自旋转换材料的计算研究提供了有价值的参考。尽管不计算电子结构就难以预测 REE 的大小，但这项研究将为高通量模拟提供指导，并有助于分析模拟结果。最后，我们阐明了 SOC 的作用；人们认为 SOC 对固态材料中可观测到的 REE 至关重要。我们还强调了平带的重要性，它可能有助于产生这种效应。这与未来对手性诱导自旋选择性（CISS）的研究有关，因为弱 SOC 系统中也会出现 CISS。

[1] L. D. Barron，《真正与虚假的手性及绝对不对称合成》，《美国化学会志》108，5539（1986）。[2] C. Kallin 和 J. Berlinsky，《手性超导体》，《物理学进展报告》79，054502（2016）。[3] G. Chang、B. J. Wieder、F. Schindler、D. S. Sanchez、I. Belopolski、S.-M. Huang、B. Singh、D. Wu、T.-R. Chang、T. Neupert、 *et al.*，《手性晶体的拓扑量子性质》，《自然·材料》17，978（2018）。[4] Y. Tokunaga、X. Yu、J. White、H. M. Rønnow、D. Morikawa、Y. Taguchi 和 Y. Tokura，《一种在室温以上承载磁性斯格明子的手性材料新类别》，《自然·通讯》6，1（2015）。[5] A. Chacon、L. Heinen、M. Halder、A. Bauer、W. Simeth、S. M¨uhlbauer、H. Berger、M. Garst、A. Rosch 和 C. Pfleiderer，《在手性磁性材料中观察到两个相互独立的斯格明子相》，《自然·物理》14，936（2018）。[6] K. Ray、S. Ananthavel、D. Waldeck 和 R. Naaman，《手性分子有序有机薄膜对偏振电子的非对称散射》，《科学》283，814（1999）。[7] R. Naaman 和 D. H. Waldeck，《自旋电子学与手性：手性电子输运中的自旋选择性》分子，《物理化学年度评论》**66**，263（2015）。[8] S.-H. Yang、R. Naaman、Y. Paltiel 和 S. S. Parkin，手性自旋电子学，《自然·综述：物理》**3**，328（2021）。[9] T. Furukawa、Y. Shimokawa、K. Kobayashi 和 T. Itou，单质碲中电流诱导体磁化的观测，《自然·通讯》**8**，954（2017）。[10] F. Calavalle、M. Su´arez-Suárez-Rodríguez´ıguez´ín-Martín-Garc´ía，A. Johansson、D. C. Vaz、H. Yang、I. V. Maznichenko、S. Ostanin、A. Mateo-Alonso、A. Chuvilin， *et al.*，碲纳米线中栅极可调且依赖手性的电荷自旋转换，《自然·材料》**21**，526（2022）。[11] A. Roy、F. T. Cerasoli、A. Jayaraj、K. Tenzin、M. Buon-giorno Nardelli 和 J. S lawi´nska，手性晶体中的长程电流诱导自旋积累，《npj 计算材料》**8**，243（2022）。[12] K. Tenzin、A. Roy、H. Jafari、B. Banas、F. T. Cera-soli、M. Date、A. Jayaraj、M. Buongiorno Nardelli 和 J. S lawi´nska，基于密度泛函理论的 Rashba-Edelstein 效应类似现象，arXiv:2211.13693 （2022）。[13] A. Inui、R. Aoki、Y. Nishiue、K. Shiota、Y. Kousaka、H. Shishido、D. Hirobe、M. Suda、J.-i. Ohe、J.-i. Kishine、H. M. Yamamoto 和 Y. Togawa，手性诱导

手性晶体 $CrNb_3S_6$, 中的自旋极化态，《物理评论快报》124, 166602（2020）。[14] H. Shishido、R. Sakai、Y. Hosaka 和 Y. Togawa，在手性二硅化物 $NbSi_2$ 和 $TaSi_2$, 的多晶块体样品中检测到跨越毫米尺度的手性诱导自旋极化，《应用物理快报》119，182403（2021）。[15] K. Shiota、A. Inui、Y. Hosaka、R. Amano、Y. ¯Onuki、M. Hedo、T. Nakama、D. Hirobe、J.-i. Ohe、J.-i. Kishine，*et al.*，手性二硅化物晶体中跨越宏观距离的手性诱导自旋极化，《物理评论快报》127，126602（2021）。[16] P. Giannozzi、S. Baroni、N. Bonini、M. Calandra、R. Car、C. Cavazzoni、D. Ceresoli、G. L. Chiarotti、M. Cococ-cioni、I. Dabo、A. D. Corso、S. de Gironcoli、S. Fabris、G. Fratesi、R. Gebauer、U. Gerstmann、C. Gougoussis、A. Kokalj、M. Lazzeri、L. Martin-Samos、N. Marzari、F. Mauri、R. Mazzarello、S. Paolini、A. Pasquarello、L. Paulatto、C. Sbraccia、S. Scandolo、G. Sclauzero、A. P. Seitsonen、A. Smogunov、P. Umari 和 R. M. Wentz-covitch，《QUANTUM ESPRESSO：用于量子模拟的模块化开源软件项目》，《物理学杂志：凝聚态》21，395502（2009）。[17] P. Giannozzi、O. Andreussi、T. Brumme、O. Bunau、M. Buongiorno Nardelli、M. Calandra、R. Car、C. Cavaz-zoni、D. Ceresoli、M. Cococcioni、N. Colonna、I. Carn-imeo、A. Dal Corso、S. De Gironcoli、P. Delugas、R. A. DiStasio Jr、A. Ferretti、A. Floris、G. Fratesi、G. Fu-gallo、R. Gebauer、U. Gerstmann、F. Giustino、T. Gorni、J. Jia、M. Kawamura、H.-Y. Ko、A. Kokalj、E. Kucuk-benli、M. Lazzeri、M. Marsili、N. Marzari、F. Mauri、N. L. Nguyen、H.-V. Nguyen、A. Otero-de-la Roza、L. Paulatto、S. Ponc´e、D. Rocca、R. Sabatini、B. Santra、M. Schlipf、A. P. Seitsonen、A. Smogunov、I. Timrov、T. Thon-hauser、P. Umari、N. Vast、X. Wu 和 S. Baroni，《QUANTUM ESPRESSO 材料建模的高级功能》，《物理学杂志：凝聚态》29，465901（2017）。[18] A. D. Corso，《赝势元素周期表：从 H 到 Pu》，《计算材料科学》95，337（2014）。[19] J. P. Perdew、K. Burke 和 M. Ernzerhof，《简明广义梯度近似》，《物理评论快报》77，3865（1996）。[20] J. P. Perdew、A. Ruzsinszky、G. I. Csonka、O. A. Vydrov、G. E. Scuseria、L. A. Constantin、X. Zhou 和 K. Burke，《恢复固体与表面中交换作用的密度梯度展开》，《物理评论快报》100，136406（2008）。[21] H. Sakamoto、A. Fujii、K. Tanaka 和 H. Inui，《采用新型会聚束电子衍射方法鉴定 C40结构过渡金属二硅化物的对映异构体（空间群为 p6222 和 p6422）》，《材料学报》53，41（2005）。[22] L. A. Agapito、S. Curtarolo 和 M. Buongiorno Nardelli，《将 DFT+U 重新表述为用于加速材料发现的赝杂化哈伯德密度泛函》，《物理评论X》5，011006（2015）。[23] M. Buongiorno Nardelli、F. T. Cerasoli、M. Costa、S. Cur-tarolo、R. D. Gennaro、M. Fornari、L. Liyanage、A. R. Supka 和 H. Wang，《PAOFLOW：一种基于电子波函数在原子轨道基上的投影构建并处理第一性原理哈密顿量的工具，亦可用于拓扑材料的表征》，《计算材料科学》143, 462 (2018)。[24] F. T. Cerasoli、A. R. Supka、A. Jayaraj、M. Costa、I. Siloi、J. S lawi´nska、S. Curtarolo、M. Fornari、D. Ceresoli 和 M. Buongiorno Nardelli，《利用 PAOFLOW 2.0 进行材料高级建模：新功能与软件设计》，《计算材料科学》200, 110828 (2021)。[25] N. W. Ashcroft 和 N. D. Mermin，《金属导电的半经典理论》，载于 *Solid State Physics*（Holt, Rinehart and Winston，纽约，1976 年）第 13 章，第 243–262 页。[26] P. L. Taylor 和 O. Heinonen，《金属电导率的半经典理论》，载于 *A Quantum Approach toCondensed Matter Physics*（剑桥大学出版社，剑桥，2002 年）第 8 章，第 285–339 页。[27] J. M. Ziman，《输运性质》，载于 *Principles of Theory of Solids*（剑桥大学出版社，剑桥，1972 年）第 7 章，第 211–254 页。[28] A. Roy、M. H. D. Guimar˜aes 和 J. S lawi´nska，《非磁性固体中的非常规自旋霍尔效应》，《物理评论：材料》6, 045004 (2022)。[29] M. Hirayama、R. Okugawa、S. Ishibashi、S. Murakami 和 T. Miyake，《三方碲和硒中的外尔节点与自旋纹理》，《物理评论快报》114, 206401 2015( )。[30] G. Gatti、D. Gos´albez-Mart´ınez、S. S. Tsirkin、M. Fan- ciulli、M. Puppin、S. Polishchuk、S. Moser、L. Testa、E. Martino、S. Roth、P. Bugnon、L. Moreschini、A. Bost- wick、C. Jozwiak、E. Rotenberg、G. Di Santo、L. Petaccia、I. Vobornik、J. Fujii、J. Wong、D. Jariwala、H. A. Atwa- ter、H. M. Rønnow、M. Chergui、O. V. Yazyev、M. Grioni 和 A. Crepaldi，《手性碲中外尔费米子的径向自旋纹理》，《物理评论快报》125, 216402 (2020)。[31] M. Sakano、M. Hirayama、T. Takahashi、S. Akebi、M. Nakayama、K. Kuroda、K. Taguchi、T. Yoshikawa、K. Miyamoto、T. Okuda、K. Ono、H. Kumigashira、T. Ideue、Y. Iwasa、N. Mitsuishi、K. Ishizaka、S. Shin、T. Miyake、S. Murakami、T. Sasagawa 和 T. Kondo，《具有手性晶体结构的单质碲中的径向自旋纹理》，《物理评论快报》124, 136404 (2020)。[32] V. Anzin、M. Eremets、Y. V. Kosichkin、A. Nadezhdin- skii 和 A. Shirokov，《压力下碲中能隙的测量》，physica status solidi (a) 42, 385 1977( )。[33] E. Streltsov、S. Poznyak 和 N. Osipovich，《硒上铅的光诱导与暗态欠电位沉积》，《电分析化学杂志》518, 103 (2002)。[34] A. Bhatnagar、K. V. Reddy 和 V. Srivastava，《非晶硒的光学能隙：退火的影响》，《物理学杂志 D：应用物理》18, L149 (1985)。[35] S. Tutihasi 和 I. Chen，《三方硒的光学性质与能带结构》，《物理评论》158, 623 (1967)。[36] N. Zhang、G. Zhao、L. Li、P. Wang、L. Xie、B. Cheng、H. Li、Z. Lin、C. Xi、J. Ke、M. Yang、J. He、Z. Sun、Z. Wang、Z. Zhang 和 C. Zeng，《单质半导体碲中外尔物理与离散尺度不变性的磁输运特征》，《美国国家科学院院刊》117, 11337 (2020)。[37] T. Ideue、M. Hirayama、H. Taiko、T. Takahashi、M. Murase、T. Miyake、S. Murakami、T. Sasagawa 和 Y. Iwasa，压力诱导的拓扑相变

非中心对称元素碲，《美国国家科学院院刊》116，25530（2019）。[38] A. Stoliaroff、C. Latouche 和 S. Jobic，点缺陷对硒电学性质的影响：结合熵项讨论的密度泛函理论研究，《物理评论B》103，094111（2021）。[39] U. Fano 和 W. Martin，自旋轨道耦合的 Z 依赖性，《现代物理学专题》，147（1971）。[40] W. Martin，中性原子（核）np 构型中 p电子的自旋轨道能量表，《美国国家标准局研究杂志》A辑：物理与化学75，109（1971）。[41] M. I. Aroyo、J. M. Perez-Mato、C. Capillas、E. Kroumova、S. Ivantchev、G. Madariaga、A. Kirov 和 H. Wondratschek，毕尔巴鄂晶体学服务器：I. 数据库与晶体学计算程序，《Zeitschrift für Kristallographie - Crystalline Materials》221，15（2006）。¨M. I. Aroyo、A. Kirov、C. Capillas、J. M. Perez-Mato 和 H. Wondratschek，毕尔巴鄂晶体学服务器：II. 晶体学点群和空间群的表示，《Acta Crystallographica Section A》62，115（2006）。[42] C. M. Acosta、L. Yuan、G. M. Dalpian 和 A. Zunger，自旋纹理的不同形状：穿越布里渊区的旅程，《物理评论B》104，104408（2021）。[44] L. L. Tao 和 E. Y. Tsymbal，持久自旋纹理由对称性所强制，《自然·通讯》9，2763（2018）。[45] J. S lawi´nska、F. T. Cerasoli、P. Gopal、M. Costa、S. Cur- tarolo 和 M. Buongiorno Nardelli，《超薄SnTe薄膜：通向一体化自旋电子学器件的途径》，《2D材料》7，025026（2020）。[46] M. Kawamura，FermiSurfer：提供多种表示方案的费米面查看器，《计算物理学通讯》239，197（2019）。[47] C. A. Garcia、D. M. Nenno、G. Varnavides 和 P. Narang，手性外尔半金属中的各向异性声子介导的电子输运，《物理评论材料》5，L091202（2021）。[48] Y. ¯Onuki、A. Nakamura、T. Uejo、A. Teruya、M. Hedo、T. Nakama、F. Honda 和 H. Harima，$TaSi_2$, $NbSi_2$, 和 VSi_2, 中由手性结构驱动的分裂费米面性质，《日本物理学会杂志》83，061018（2014）。[49] J. Zhang、Y.-H. Chan、C.-K. Chiu、M. G. Vergniory、L. M. Schoop 和 A. P. Schnyder，六方材料中的拓扑能带交叉，《物理评论材料》2，074201（2018）。[50] M.-H. Liu、S.-H. Chen、C.-R. Chang、 *et al.*，自旋轨道耦合电子系统中的电流诱导自旋极化，《物理评论B》78，165316（2008）。