新型二维原子晶体硒化铜的制备及其拓扑物性研究获进展(Nature Materials,SCI影响因子:39.235)

作者：writer 来源：中国科学院

本文原地址：https://www.iikx.com/news/progress/2018.html

本文仅供学习交流之用，版权归原作者所有，请勿用于商业用途！

二维过渡金属硫族化合物以其优异性能在光电、催化、新能源和传感器等领域展现出巨大应用潜能。与层状结构的过渡金属二硫化物不同，过渡金属单硫化物的体相都是非层状结构。因此，相比于二维过渡金属二硫化物，二维过渡金属单硫化物的制备比较困难，关于其物性研究也鲜有报道。去年，中国科学院物理研究所/北京凝聚态物理国家研究中心研究员、中科院院士高鸿钧领导的研究团队在二维过渡金属单硫化物的制备方面取得进展。他们通过直接硒化Cu(111)单晶表面，首次成功构筑了新型二维过渡金属单硫化物——单层硒化铜(CuSe)，该单层硒化铜具有由晶格失配引起的周期排列的三角形纳米孔洞，相关工作发表在《自然-材料》(SCI影响因子:39.235)(Nature Materials, 10.1038/nmat4915, 2017)上。然而，第一性原理计算显示具有纳米孔洞的单层硒化铜脱离基底后并不稳定，而没有纳米孔洞的单层硒化铜是稳定的。因此，通过第一性原理计算和实验相结合进一步研究单层硒化铜的物性以及探索没有纳米孔洞的硒化铜的制备条件具有十分重要的意义。

最近，该研究组的博士生高蕾、卢建臣在研究员杜世萱、中国科学院大学教授林晓、物理所副研究员孙家涛指导下，与极端条件实验室博士生李航、研究员钱天和丁洪开展合作，将第一性原理计算与分子束外延、扫描隧道显微镜学和角分辨光电子能谱学等实验手段相结合，在理论预测的基础上成功制备出高质量的样品，并系统地研究了具有蜂窝状结构的单层硒化铜的拓扑物性，在新型二维过渡金属单硫化物硒化铜的研究方面又取得新进展。

对单层具有蜂窝状结构的CuSe(图1(a))进行第一性原理计算发现平面蜂窝状结构的单层硒化铜可以稳定存在(图1d)，且在费米面附近具有受镜面对称保护的围绕着Γ点的两个闭合的狄拉克Nodal-line费米子(图2a和2b)。构成这两个闭合的狄拉克Nodal-line的三条能带中，两条开口向下的能带和一条开口向上的能带分别由硒化铜的平面内轨道(Sepx/py和Cudxy/dx2-y2)和平面外轨道(Sepz和Cudxz/dyz)贡献。对于镜面对称操作Mxy，平面内的轨道表现为偶函数，平面外的轨道表现为奇函数。在不考虑自旋轨道耦合时，奇偶性不同的开口向上的能带与两条开口向下的能带相交，从而形成两个闭合的狄拉克Nodal-line。若考虑自旋轨道耦合，上述的镜面对称保护被破坏，两个狄拉克Nodal-line不再受到镜面对称保护，从而打开能隙(图2c)。进一步计算显示半无限大硒化铜平面具有拓扑非平庸的边界态(图2d)，证实了单层硒化铜的狄拉克Nodal-line拓扑物性。

基于理论计算得到的纯平蜂窝状的CuSe能够稳定存在的结论及其新颖的拓扑物性，实验上通过调节硒的沉积量，在Cu(111)基底上成功生长出了没有周期性纳米孔洞的单层硒化铜材料。其高分辨扫描隧道显微镜(STM)和低能电子衍射(LEED)结果显示，该单层硒化铜呈现稍有扭曲的蜂窝状结构，硒化铜的蜂窝状结构沿着Cu(111)高对称方向拉伸，与基底形成了一维摩尔条纹(图3)。

其角分辨光电子能谱(ARPES)结果与单层硒化铜在Cu(111)上的第一性原理计算结果完全吻合(图4)，进一步说明生长出来的二维单原子层结构确实是单层硒化铜。但是由于单层硒化铜与基底间的耦合太强，使得构成狄拉克Nodal-line的由平面外轨道贡献的开口向上的特征能带消失。因此，角分辨光电子能谱只观测到了两条由平面内轨道贡献的开口向下的能带，并没有观测到由平面外轨道贡献的开口向上的能带。换言之，Cu(111)上的单层硒化铜由于与基底耦合太强，其本征的拓扑性质没有保持。因此，研究人员通过第一性原理计算研究了弱耦合基底石墨烯上的单层硒化铜的电子结构。结果证实，弱耦合基底上的单层硒化铜的拓扑性质可以被很好地保持下来，是研究二维狄拉克Nodal-line拓扑物性的新平台。

相关工作发表在近期《先进材料》(Adv. Mater.30, 1707055 (2018))上。该研究受到科技部(2016YFA0202300)、国家自然科学基金委(61390501)、中科院(XDB07030100, XDPB08-1)的资助。

文章链接

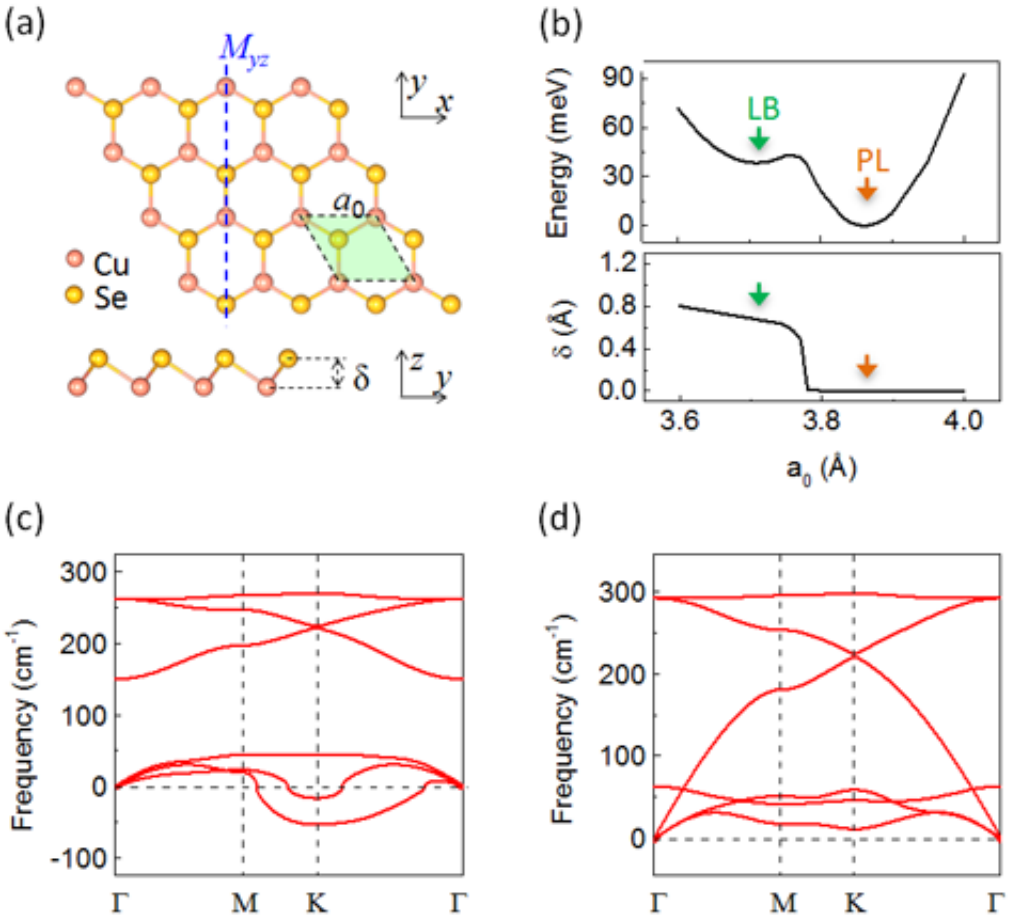


图1.单层硒化铜的原子结构和稳定性。

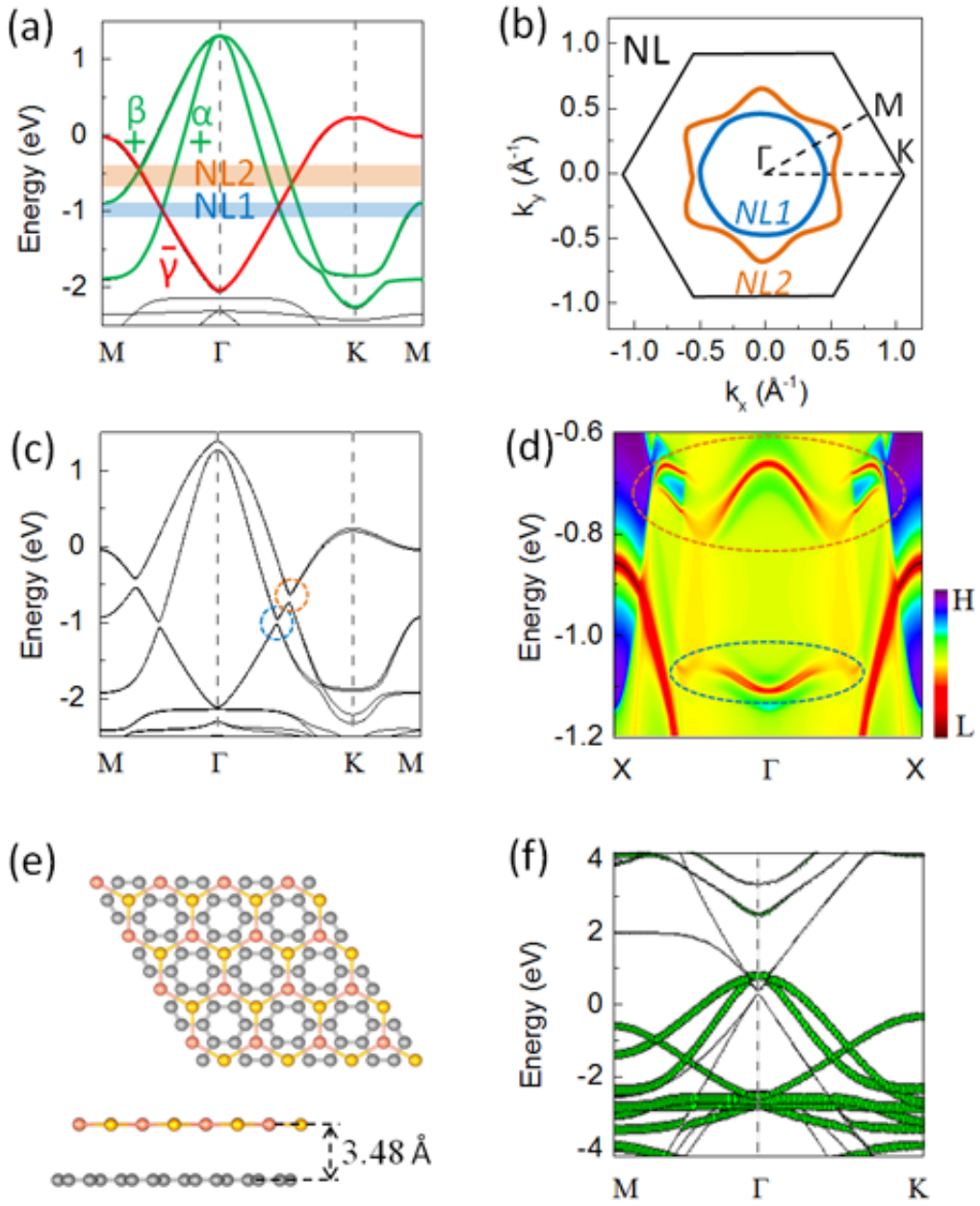


图2.单层硒化铜的电子结构和拓扑边界态，以及单层硒化铜在石墨烯上的原子结构和电子结构。

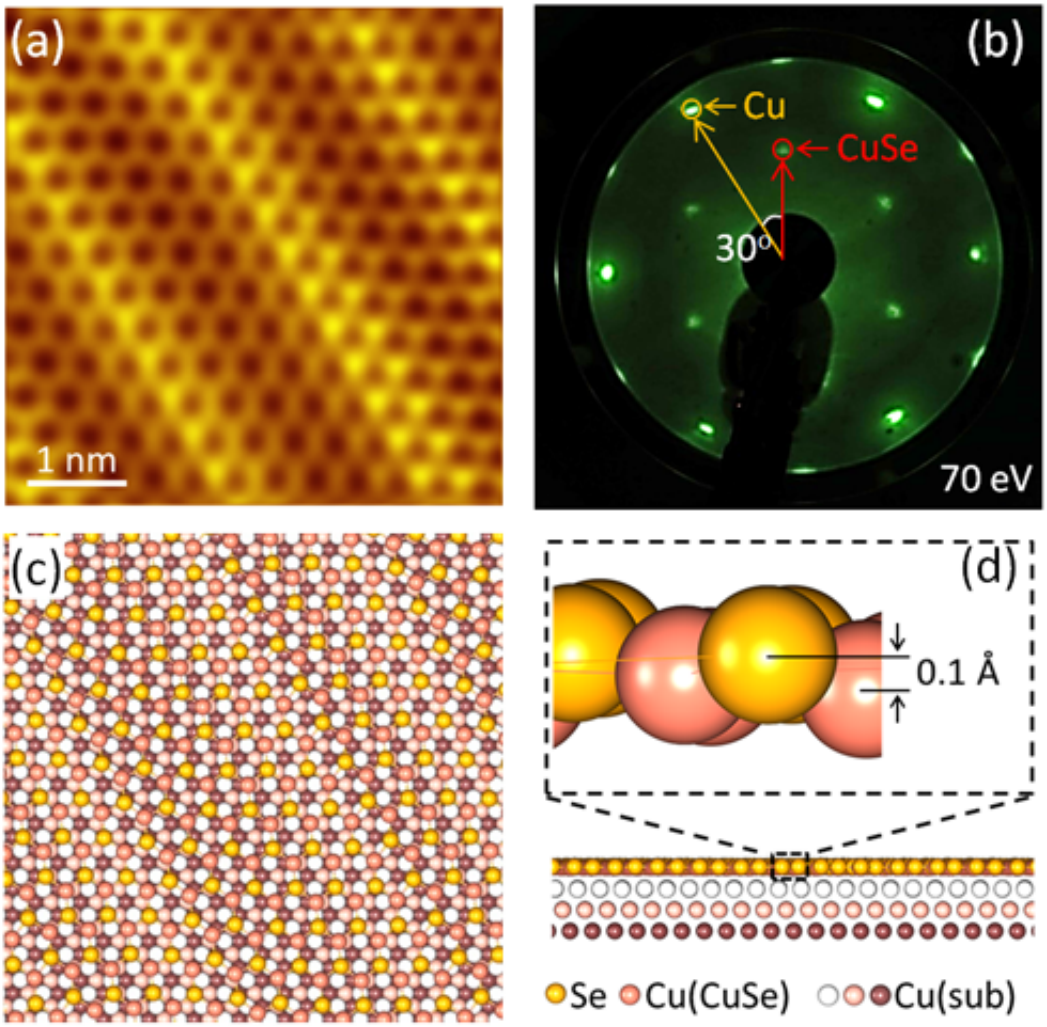


图3. 单层硒化铜在Cu(111)上的STM、LEED和原子结构图。

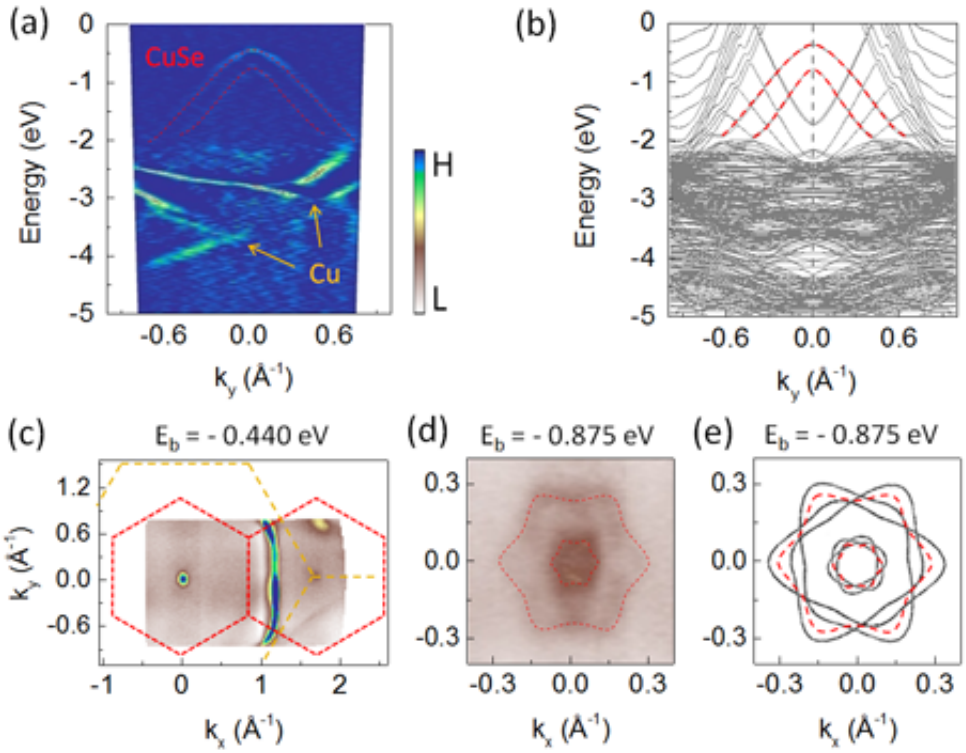


图4. 单层硒化铜在Cu(111)上的ARPES结果和第一性原理计算结果的对比图。

新型二维原子晶体硒化铜的制备及其拓扑物性研究获进展(Nature Materials,SCI影响因子:39.235)

更多 科学进展 请访问 https://www.iikx.com/news/progress/

本文版权归原作者所有，请勿用于商业用途，爱科学iikx.com转发