

Ordenamiento de bandas y efectos relativistas en la estructura electrónica del HgTe y CdTe

C.D. Hinostroza ^{*1} y P.H. Rivera¹

¹ Universidad Nacional Mayor de San Marcos, Facultad de Ciencias Físicas, Lima, Perú

Recibido 24 May 2021 – Aceptado 04 Oct 2021 – Publicado 16 Dic 2021

Resumen

Los aislantes topológicos permiten el transporte de cargas polarizadas a través de estados de borde y de superficie en sistemas 2D y 3D, respectivamente. Estos estados de borde y de superficie están protegidos por la simetría de orden topológico basada en el acoplamiento espín-órbita y en la invarianza por el operador reverso temporal. El propósito principal de este trabajo es analizar la evolución del estado de superficie en las aleaciones HgTe y CdTe observando la inversión de las bandas por la presencia de los orbitales atómicos d y el aumento de la intensidad del acoplamiento espín-órbita. Los resultados fueron obtenidos usando la teoría de funcionales de densidad usando la aproximación local de densidad de espín y la corrección de Hubbard (SLDA+U) considerando los efectos relativistas y la polarización de espines.

Palabras clave: Semiconductores, teoría de funcionales de densidad, estructura de banda, acoplamiento espín-órbita.

Band ordering and relativistic effects on HgTe and CdTe electronic structure

Abstract

In topological insulator materials, the polarized charges transport is through edge and surface states in 2D and 3D systems, respectively. These edge and surfaces states are protected by topological order symmetry, which is based in spin-orbit coupling and in the invariance under time reversal operator. The main purpose of this work is to analyze the evolution of the surface state from HgTe and CdTe alloys observing the band inversion by the presence of d atomic orbitals and the increase of the spin-orbit coupling intensity. Results were obtained using density functional theory with a local spin density approximation and the Hubbard correction (SLDA+U) considering relativistic effects and spin polarization.

Keywords: Semiconductors, density functional theory, band structure, spin-orbit coupling.

Introducción

Los aislantes topológicos son un nuevo estado de la materia que presenta estados de borde que transportan portadores de carga polarizados en sistemas 2D y estados de superficie en sistemas 3D, mientras los estados en el *bulk* se comportan como estados aislantes. Las propiedades de estos estados de borde o de superficie están relacionados con el intenso acoplamiento espín-órbita y a la invarianza de estos estados ante el operador reverso temporal que permiten la protección de un orden topo-

lógico de simetría, cuyo índice es el invariante topológico Z_2 . Estos estados de superficie conducen los portadores de carga sin ser perturbados por impurezas o defectos cristalinos o campos locales, lo que convierte a estos materiales en candidatos para posibles aplicaciones tecnológicas.

El primer aislante topológico observado experimentalmente fue propuesto por Bernevig, Hughes y Zhang (BHZ) [1] el año 2006. En su trabajo indicaron la posibilidad de obtener un estado de aislante topológico bidimensional en un pozo cuántico de HgTe/CdTe. Un año

*cristhian.hinoastroza2@unmsm.edu.pe

© Los autores. Este es un artículo de acceso abierto, distribuido bajo los términos de la licencia Creative Commons Atribución 4.0 Internacional (CC BY 4.0) que permite el uso, distribución y reproducción en cualquier medio, siempre que la obra original sea debidamente citada de su fuente original.



después, el equipo de König *et. al.* [2] logró obtener resultados experimentales que confirmaban dicha propuesta.

Una de las características que debe cumplir el material que posea un comportamiento de aislante topológico, según la propuesta de BHZ, es el poseer una estructura de bandas invertida. Esta inversión en las bandas garantiza la existencia de estados metálicos en la interface pozo-barrera, cuyo material posee un ordenamiento de bandas regular. Esto es, para pasar de un estado a otro el *gap* de energía debe cerrarse en el borde del material para poder cambiar al ordenamiento de bandas normal.

Por otro lado, entre las potenciales aplicaciones de este nuevo estado de la materia se encuentra la computación cuántica basada en *qubits* semiconductores, donde se busca obtener fermiones de Majorana en la unión entre un superconductor y un aislante topológico 3D, que sirvan para robustecer los estados cuánticos usados como *qubits* [3, 4].

En este sentido, este trabajo analiza el origen de la inversión de bandas del HgTe calculando la estructura electrónica del HgTe y CdTe en tres casos: sin efectos relativistas ni polarización de espín, con efectos relativistas sin polarización de espín, y con efectos relativistas y polarización de espín; con esta información se estudia la evolución de *gap* de energía y se calcula el aporte de los orbitales atómicos en el tercer caso.

Métodos teóricos

De acuerdo a Al-Rajoub y B. Hamad [5], la estructura electrónica del HgTe en las bandas de valencia cercanas a la energía de Fermi, interactúan con el orbital $5d$ de los átomos del Hg. Por este motivo es necesario considerar un modelo que tome en cuenta el aporte de los electrones fuertemente correlacionados, uno de los cuales es el LDA + U [6].

$$E_{LDA+U}[n(r)] = E_{LDA}[n(r)] + E_{Hub}[n_{mm'}^\sigma] - E_{dc}[n^\sigma].$$

El primer término corresponde a la energía de intercambio y correlación con la aproximación de densidad local, el segundo término es la energía de los electrones correlacionados dado por el modelo de Hubbard [7]. Debido a esto, es necesario quitar el doble conteo en la interacción electrón-electrón del término E_{LDA} . De esta forma:

$$E_{dc}[n^\sigma] = \sum_I \left(\frac{U^I}{2} n^I (n^I - 1) - \frac{J^I}{2} [n^{I\uparrow} (n^{I\uparrow} - 1) + n^{I\downarrow} (n^{I\downarrow} - 1)] \right). \quad (1)$$

El problema de este modelo es la obtención de los parámetros U y J , lo que en primera aproximación se puede

reducir usando $J = 0$ obteniendo resultados igualmente válidos según [6] usando la expresión:

$$E_U[n_{mm'}^{I\sigma}] = \sum_{I\sigma} \frac{U^I}{2} Tr[n^{I\sigma} (1 - n^{I\sigma})].$$

Por otro lado, la aproximación regular de orden cero (ZORA), que se obtiene de la expansión para bajas energías del hamiltoniano de la ecuación de Dirac, presenta la interacción espín-órbita en el tercer término [8]:

$$H^{ZORA} = V + \mathbf{p} \frac{c^2}{2c^2 - V} \mathbf{p} + \frac{c^2}{(2c^2 - V)^2} \boldsymbol{\sigma} \cdot (\nabla V \times \mathbf{p}).$$

La ventaja de usar esta forma es que puede ser expresada de forma variacional, a la vez que no posee singularidades en el punto $r \rightarrow 0$.

Detalles computacionales

Los teluros de cadmio y mercurio son semiconductores tipo II-VI. Estos materiales poseen una estructura tipo blanda de zinc con parámetros de red a temperatura ambiente de $a = 6.492 \text{ \AA}$ y $a = 6.467 \text{ \AA}$ para el CdTe y el HgTe, respectivamente [10]. Ambos semiconductores pertenecen al grupo espacial $F\bar{4}3m$ en la notación de Hermann-Mauguin, que corresponde a una red conformada por dos redes cúbicas de cara centrada, FCC por sus siglas en inglés, trasladadas $1/4$ en la dirección [111].

Para la realización de los cálculos numéricos se empleó la Teoría de Funcionales de Densidad [9] con la aproximación de densidad local de espín [12], como lo expresan Perdew y Wang [13], junto con la corrección de Hubbard (SLDA + U), como está implementado en el software `Exciting code` [14]. Los cálculos relativistas se realizaron resolviendo la aproximación de orden cero de la ecuación de Schrödinger escalar relativista incluyendo la polarización de espín.

Se consideró una red de puntos \mathbf{k} en la primera zona de Brillouin de $8 \times 8 \times 8$ de acuerdo a Monkhorst y Pack [15], un radio *muffin-tin* de $R_{MT} = 2$ Bohr, mientras que el número de funciones que sirven como base se consideró implícitamente usando la relación $R_{MT} \times |G + \mathbf{k}|_{Max} = 7$.

Debido a que los átomos considerados son pesados, los electrones de la capa d presentan una interacción más intensa con los electrones tipo p y s . Por esta razón se consideró necesario agregar la corrección de Hubbard sobre los orbitales tipo d . El valor de J se tomó como $J = 0$, ya que no altera el resultado final, mientras que U se escogió de tal forma que pueda replicar los resultados de la literatura, encontrando un valor óptimo de $U = 6$ Ha, el cual fue usado en todos los cálculos y en los átomos de Cd y Hg.

Por otro lado, la razón por la que se toma en cuenta los efectos relativistas se justifica al analizar el valor es-

perado de la velocidad radial para los electrones $1s$ [16], dada por la ecuación

$$\langle v_r \rangle \approx \left(\frac{Z}{137} \right) c,$$

cuyos valores para cada especie atómica utilizada se muestran en la tabla 1; y al verificar los aportes al acoplamiento espín-órbita de cada elemento presente en la aleación.

Para cada material se obtuvo la estructura de bandas considerando: (a) efectos relativistas y de interacción espín-órbita, (b) solo efectos relativistas, y (c) sin consi-

derar ninguno de los dos efectos, para evaluar la evolución de las bandas de energía.

	Z	v_r/c	Δ_j (eV)
Cd	48	0.35	0.1
Te	52	0.38	1.10
Hg	80	0.58	0.5

Tabla 1: Número atómico (Z), velocidad de los electrones tipo $1s$ (v_r), y la contribución al gap por acoplamiento espín-órbita (Δ_j), del Cd, Te y Hg.

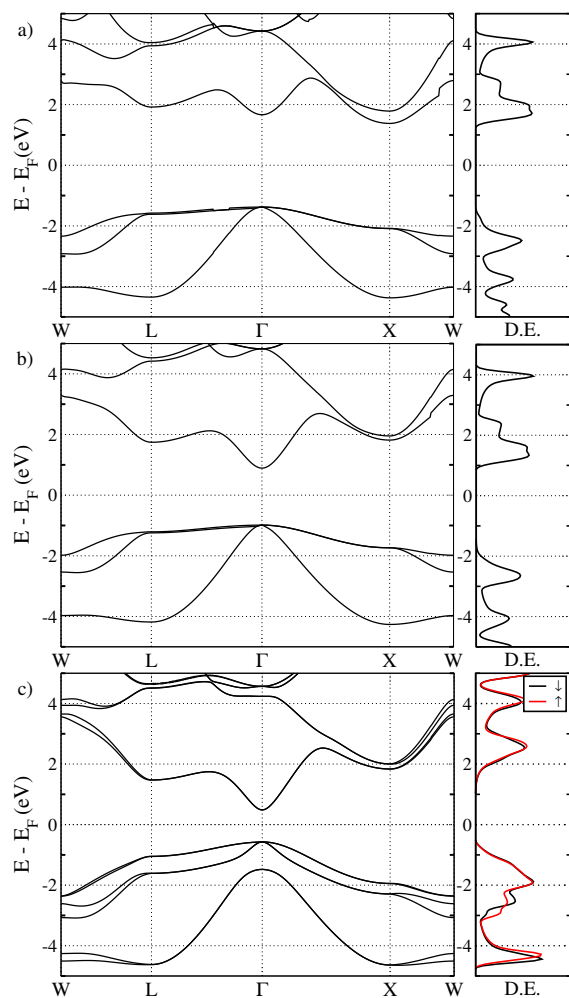


Figura 1: Estructura electrónica y densidad de estados del CdTe. a) sin considerar efectos relativistas, b) considerando efectos relativistas, c) considerando efectos relativistas con polarización de espín. La dirección de las flechas indican la dirección de espín.

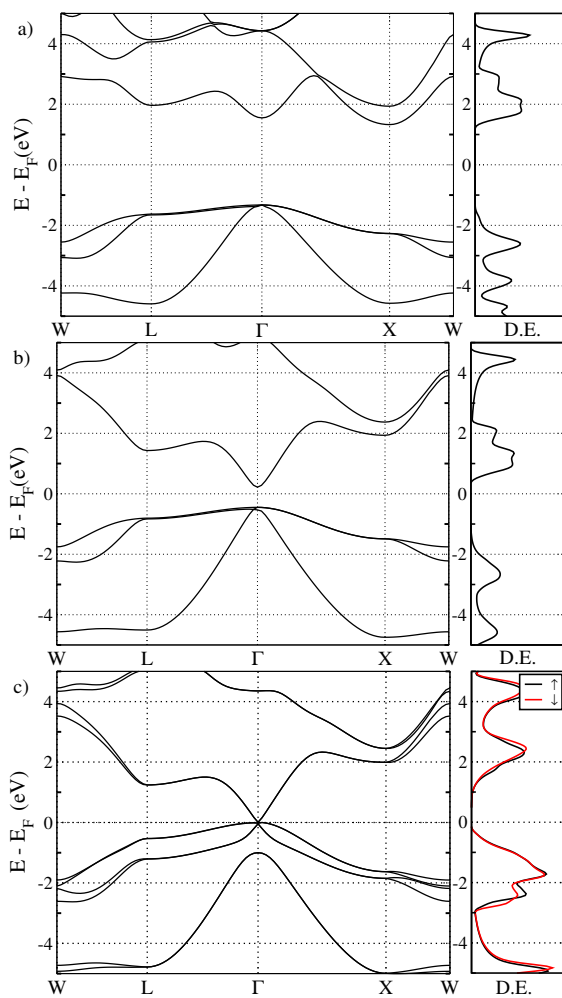


Figura 2: Estructura electrónica y densidad de estados del HgTe. a) sin considerar efectos relativistas, b) considerando efectos relativistas, c) considerando efectos relativistas con polarización de espín. La dirección de las flechas indican la dirección de espín.

Resultados y Discusión

Se puede notar que el máximo de la banda de valencia en todos los casos se ubica en el punto Γ , mientras que el mínimo de la banda de conducción cambia de posición del punto X, para los casos en los que no se considera ningún efecto relativista, hacia el punto Γ .

Como se esperaba al ver los valores de la tabla 1, los efectos relativistas en el HgTe son más fuertes que en el CdTe. Esto se puede observar en la disminución drástica del ancho del *gap* global de energía al considerar los efectos relativistas sin la interacción espín-órbita cuyos valores se muestran en la tabla 3.

En las figuras 1 y 2, además de la reducción del *gap* global de energía, se aprecia la apertura de un *gap* en la banda tipo *p* de la banda de valencia en ambos semiconductores. Esta apertura se debe a la interacción espín-órbita existente entre electrones, la cual rompe la simetría de los orbitales tipo *p* en los sistemas con geometría blenda de zinc. Dicho efecto no sucede en los cristales con geometría tipo diamante debido a la permanencia de la simetría de inversión, como se puede ver en el trabajo de Arrieta et. al. [17].

	$E_{SO}(\text{Theo.})$	$E_{SO}(\text{Exp.})$
CdTe	0.951	0.949 [18]
HgTe	1.012	1.15 [19]

Tabla 2: Gaps de energía generados por el acoplamiento espín-órbita en el HgTe y CdTe.

Al considerar la polarización de espín, y con ella la interacción espín-órbita, el *gap* global de energía se redujo aún más e incluso se cierra en el HgTe, lo que convierte a este material en un semimetal. Así, mientras en el CdTe las bandas mantienen un comportamiento casi parabólico cerca del *gap* global de energía, en el HgTe la relación de dispersión para la mínima banda de conducción va tomando un comportamiento casi lineal a medida que se van considerando los efectos relativistas, lo que muestra que los portadores de carga poseen una velocidad bastante alta.

	$E_g(\text{CdTe})$ (eV)	$E_g(\text{HgTe})$ (eV)
NR	3.06631	2.87284
R	1.89656	0.6602
RSO	1.05134	-0.10404
Exp.	1.513 [18]	-0.32 [19]

Tabla 3: Valores obtenidos para el caso No relativista (NR), relativista (R) y relativista con efecto espín-órbita (RSO), junto con los valores experimentales.

Otro resultado importante en el HgTe es la inversión de las bandas de energía. En las figuras 3 y 4 se puede

apreciar los aportes de los orbitales en las bandas de valencia y conducción cerca del *gap* global de energía para ambos materiales.

Se observa en ambos casos que la mínima banda de conducción posee un fuerte aporte del orbital tipo *s* del elemento del grupo IIB (Cd y Hg), mientras que el elemento del grupo VIA (Te) realiza su aporte a la máxima banda de valencia. Sin embargo, al acercarnos al punto Γ se aprecia una inversión en el aporte de los orbitales atómicos sobre las bandas de conducción y valencia, pasando de tener un orden *s-p* en el CdTe, a uno tipo *p-s-p* en el HgTe.

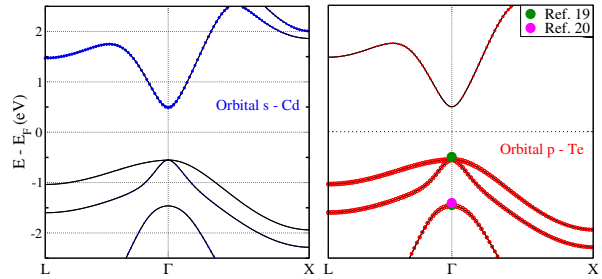


Figura 3: Proyección de los orbitales atómicos en la estructura electrónica del CdTe cerca del *gap* global de energía al considerar efectos relativistas y polarización de espín (Fig. 1c). Los círculos azules (rojos) representan la intensidad del aporte del Cd (Te). Los círculos verde y magenta son datos experimentales.

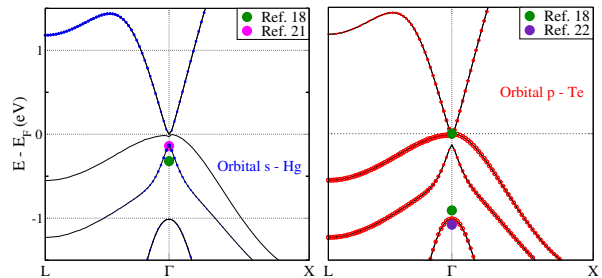


Figura 4: Proyección de los orbitales atómicos en la estructura electrónica del HgTe cerca del *gap* global de energía al considerar efectos relativistas y polarización de espín (Fig. 2c). Los círculos azules (rojos) representan la intensidad del aporte del Hg (Te). Los círculos verde, magenta y morado son datos experimentales.

Conclusiones

Uno de los conceptos clave al momento de estudiar los aislantes topológicos es la inversión de bandas debido al acoplamiento espín-órbita. Esta característica está presente en la estructura de bandas del HgTe, y es originada por los efectos relativistas, incluido el acoplamiento espín-órbita.

Por otro lado, la estructura electrónica invertida del HgTe indica la existencia de una aleación $\text{Hg}_{1-x}\text{Cd}_x\text{Te}$ que presenta un cruzamiento entre las bandas de valencia y conducción, donde se puedan encontrar los fermiones de Weyl, debido a la polarización de espín originada por los efectos relativistas de los portadores de carga.

Agradecimientos

Los autores agradecen el apoyo financiero del Vicerectorado de Investigación y Posgrado UNMSM, a través del proyecto de investigación B20130360a.

Referencias

-
- [1] B.A. Bernevig, T.L. Hughes y S.C. Zhang; *Science* **314**, 1757 (2006).
- [2] M. König, S. Wiedmann, C. Brüne, A. Roth, H. Buhmann, L. W. Molenkamp, X.L. Qi y S.C. Zhang; *Science* **318**, 766 (2007).
- [3] C. Kane y J. Moore; *Phys. World* **24**, 32 (2011).
- [4] W. Tian, W. Yu, J. Shi, y Y. Wang; *Materials* **10**, 814 (2017).
- [5] S. Al-Rajoub y B. Hamad; *Philos. Mag.* **95**, 2466 (2015).
- [6] M. Cococcioni; *The LDA+ U approach: a simple Hubbard correction for correlated ground states*, Verlag des Forschungszentrum, Jülich (2012).
- [7] W. Nolting; *Fundamentals of Many-body Physics*, Springer, Berlin (2008).
- [8] E. van Lenthe, E.J. Baerends, y J. G. Snijders, *J. Chem Phys.* **99**, 6 (1993).
- [9] P. Hohenberg y W. Kohn, *Phys. Rev.* **136**, 136 (1964).
- [10] P. Capper y J. Garland; *Mercury Cadmium Telluride: Growth, Properties and Applications*, John Wiley & Sons, West Sussex (2011).
- [11] R. Winkler, S. Papadakis, E. De Poortere y M. Shayegan; *Spin-Orbit Coupling in Two-Dimensional Electron and Hole Systems*, Springer-Verlag, Berlin (2003).
- [12] W. Kohn y L.J. Sham, *Phys. Rev.* **140**, A1133 (1965).
- [13] J.P. Perdew y Y. Wang, *Phys. Rev. B* **45**, 23 (1992).
- [14] A. Gulans, S. Kontur, C. Meisenbichler, D. Nabok, P. Pavone, S. Rigamonti, S. Sagmeister, U. Werner y C. Draxl; *J. Phys.: Condens. Matter* **26**, (2014).
- [15] H.J. Monkhorst y J.D. Pack; *Phys. Rev. B* **13**, 5188 (1976).
- [16] L.J. Norrb; *J. Chem. Educ.* **68**, 2 (1991).
- [17] D. I. Arrieta, M. C. Gutiérrez, R. A. Montalvo, P. H. Rivera y Y. E. Huamán. *Rev. Inv. Fis.* **17**, 141701101 (2014).
- [18] G. Fonthal, L. Tirado-Mejía, J. I. Marín-Hurtado, H. Ariza-Calderón y J. G. Mendoza-Alvarez; *J. Phys. Chem. Solids* **61**, 4 (2000).
- [19] N. Orłowski, J. Augustin, Z. Gołacki, C. Janowitz y R. Manzke; *Phys. Rev. B* **61**, R5058 (2000).
- [20] W. Niles y H. Höchst; *Phys. Rev. B* **43** (1492).
- [21] M. Cardona, K. L. Shaklee, and F. H. Pollak, *Phys. Rev.* **154**, 696 (1967).
- [22] G. L. Hansen, J. L. Schmitt, and T. N. Casselman, *J. Appl. Phys.* **53**, 7099 (1982).
- [23] A. Moritani, K. Taniguchi, C. Hamaguchi, and C. Nakai, *J. Phys. Soc. Jpn.* **34**, 79 (1973).