

# CuMnI<sub>3</sub>单层的载流子诱导磁相变与双极磁性 半导体行为

王 旋, 李洁雪, 张加永\*

苏州科技大学物理科学与技术学院, 江苏 苏州

收稿日期: 2026年4月30日; 录用日期: 2026年6月3日; 发布日期: 2026年6月10日

## 摘 要

性能可调控的二维磁性材料是自旋电子学应用的重要候选平台。本文采用第一性原理计算方法, 系统研究了CuMnI<sub>3</sub>单层的电子结构与磁学性质, 发现其为一种本征稳定的锯齿形反铁磁(AFM)间接带隙半导体, 且磁基态对应变具有很强的鲁棒性。电子或空穴掺杂均可诱导该材料发生反铁磁-铁磁(FM)相变, 其居里临界温度最高可达约100 K。这种掺杂诱导的磁有序态转变使CuMnI<sub>3</sub>单层成为一种双极磁性半导体: 空穴掺杂可实现完全自旋向上极化导电, 电子掺杂则可实现完全自旋向下极化导电。这种电控自旋极化特性为自旋场效应晶体管的设计提供了新的思路。此外, 在载流子掺杂诱导的铁磁态CuMnI<sub>3</sub>单层中, 自旋轨道耦合会在 $\Gamma$ 点的非狄拉克带简并处打开能隙, 从而产生显著的反常霍尔电导率。研究结果表明, 反铁磁CuMnI<sub>3</sub>单层是发展二维反铁磁基自旋电子器件、探索新型低维磁学现象的极具潜力的候选材料。

## 关键词

二维磁性材料, 双极磁性半导体, 双轴应变, 载流子掺杂, 磁相变

# Carrier-Driven Magnetic Phase Transition and Bipolar Magnetic Semiconductor Behavior in CuMnI<sub>3</sub> Monolayer

Xuan Wang, Jiexue Li, Jiayong Zhang\*

School of Physical Science and Technology, Suzhou University of Science and Technology, Suzhou Jiangsu

Received: April 30, 2026; accepted: June 3, 2026; published: June 10, 2026

\*通讯作者。

文章引用: 王旋, 李洁雪, 张加永. CuMnI<sub>3</sub>单层的载流子诱导磁相变与双极磁性半导体行为[J]. 应用物理, 2026, 16(6): 635-646. DOI: 10.12677/app.2026.166058

## Abstract

Two-dimensional magnetic materials with tunable properties are important candidate platforms for spintronic applications. In this work, we systematically investigate the electronic structure and magnetic properties of monolayer  $\text{CuMnI}_3$  using first-principles calculations. It is found that it is an intrinsically stable zigzag antiferromagnetic (AFM) semiconductor with an indirect band gap, and its magnetic ground state exhibits strong robustness against strain. Both electron and hole doping can induce an antiferromagnetic-ferromagnetic (FM) phase transition in this material, with the Curie critical temperature reaching up to approximately 100 K. This doping-induced magnetic order transition makes monolayer  $\text{CuMnI}_3$  a bipolar magnetic semiconductor: hole doping enables fully spin-up polarized conduction, while electron doping enables fully spin-down polarized conduction. This electrically controllable spin polarization property provides a new idea for the design of spin field-effect transistors. In addition, in the carrier-doped ferromagnetic monolayer  $\text{CuMnI}_3$ , spin-orbit coupling (SOC) opens an energy gap at the non-Dirac band degeneracy near the  $\Gamma$  point, resulting in a significant anomalous Hall conductivity. These results indicate that the antiferromagnetic monolayer  $\text{CuMnI}_3$  is a highly promising candidate material for the development of two-dimensional antiferromagnet-based spintronic devices and the exploration of novel low-dimensional magnetic phenomena.

## Keywords

Two-Dimensional Magnetic Materials, Bipolar Magnetic Semiconductor, Biaxial Strain, Carrier Doping, Magnetic Phase Transition

Copyright © 2026 by author(s) and Hans Publishers Inc.

This work is licensed under the Creative Commons Attribution International License (CC BY 4.0).

<http://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>



Open Access

## 1. 引言

二维(2D)材料因其原子级厚度带来的独特量子限域效应, 在高性能电子器件与下一代自旋电子器件领域展现出广阔的应用前景, 已成为凝聚态物理与材料科学交叉领域的前沿研究方向。自石墨烯被首次剥离并展现出优异的输运特性以来[1], 二维材料家族得到了极大的丰富与拓展, 先后涌现出硅烯[2]、六方氮化硼(h-BN) [3]、黑磷[4]、铋烯[5]以及过渡金属二硫族化合物  $\text{MX}_2$  (TMDs) [6] [7]等一系列具有代表性的新型低维体系。然而, 在已发现的众多二维材料中, 绝大多数本征上不具备长程磁有序, 这极大限制了其在自旋电子学领域的应用。近年来, 本征二维磁性材料的突破性发现, 凭借其独特的低维磁学特性以及在高密度磁存储、自旋逻辑器件等方面的潜在应用[8] [9], 迅速成为二维材料研究领域的核心热点。在自旋电子学材料体系中, 半金属[10]因具有 100%自旋极化的导电通道, 成为构建高效自旋注入器件的核心金属材料; 而双极磁性半导体(BMSs) [11]和半磁性半导体(HMSs) [8]则兼具半导体的可调控性与磁性材料的自旋特性, 是两类极具发展潜力的理想磁性半导体材料。上述三类材料凭借其独特的本征物理性质, 为突破传统电子器件的性能瓶颈提供了新的可能, 是未来自旋电子学领域的重点研究对象。

迄今为止, 基于第一性原理计算的理论研究已成功预测了大量具有本征磁性的二维材料体系。其中, 过渡金属三硫族化合物  $\text{ABX}_3$  [12]-[14]、过渡金属三卤化物  $\text{MX}_3$  [15]-[20]、功能化蜂窝状原子单层[21]-[26]、过渡金属硫(硒)代磷酸盐[27]-[29]以及新兴的  $\text{MA}_2\text{Z}_4$  族材料[30]-[32], 因其丰富的磁有序构型和新奇的物理效应, 受到了研究人员的广泛关注。这些材料被预言具有诸多引人注目的物理性质, 例如  $\text{CrI}_3$

[15]和  $\text{CrGeTe}_3$  [12]中的二维本征铁磁(FM)半导体特性、层状  $\text{MnBi}_2\text{Te}_4$  [31] [32]中可调控的磁性拓扑非平庸态等。尤为重要的是, 单层  $\text{CrI}_3$  [33]和双层  $\text{CrGeTe}_3$  [34]已通过实验成功制备, 并被证实具有本征长程铁磁有序, 为二维磁性材料的实验研究奠定了基础。随后, 研究人员在层状  $\text{MnBi}_2\text{Te}_4$  [35]中首次观测到了本征量子反常霍尔效应, 进一步验证了理论预测的准确性与可靠性。这些突破性进展不仅深化了人们对低维磁学物理的理解, 也为二维磁性材料的实际应用铺平了道路。在此基础上, 通过应变工程、载流子掺杂[13] [36]-[39]等外部手段对材料的磁学性质进行精准调控, 已成为设计新型功能自旋电子器件的重要研究策略。

本文基于密度泛函理论的第一性原理计算方法, 系统研究了双轴应变与载流子掺杂对  $\text{CuMnI}_3$  单层的电子结构、磁有序特性及自旋电子学特性的调控作用。计算结果表明,  $\text{CuMnI}_3$  单层的基态为锯齿形反铁磁(AF-Zigzag)有序, 是一种间接带隙半导体。虽然 AF-Zigzag 基态在较宽的应变范围内保持稳定, 但载流子掺杂能够有效改变体系的磁有序构型。无论是电子掺杂还是空穴掺杂, 都可以诱导体系发生从 AF-Zigzag 态到 FM 态的磁相变, 且体系的居里临界温度( $T_c$ )随载流子掺杂浓度的增加呈线性上升趋势。特别值得注意的是, 载流子掺杂能够使反铁磁  $\text{CuMnI}_3$  单层转变为双极磁性半导体: 空穴掺杂会诱导体系进入具有完全自旋向上极化导电通道的铁磁半金属(FMHM)态, 而电子掺杂则会使体系呈现出具有完全自旋向下极化导电通道的 FMHM 特性。此外, 在铁磁有序的载流子掺杂  $\text{CuMnI}_3$  单层中, 自旋轨道耦合(SOC)效应会在  $\Gamma$  点的非狄拉克型能带简并点周围打开能隙, 进而产生显著的反常霍尔电导。

## 2. 计算方法

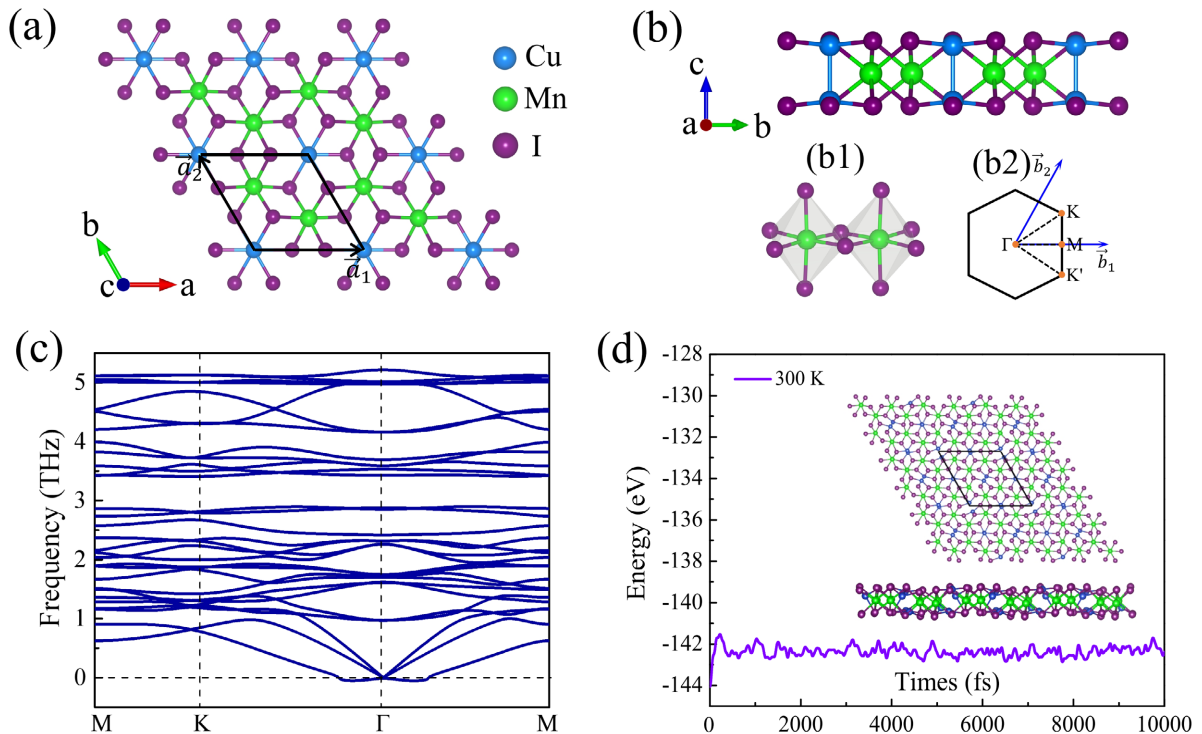
本文采用基于密度泛函理论(DFT)的第一性原理计算方法, 通过 Vienna Ab initio Simulation Package (VASP) [40]软件包结合投影缀加波(PAW) [41]赝势来研究材料的晶体结构、磁性、电子结构及自旋电子学特性。计算中使用了 Perdew-Burke-Ernzerhof 广义梯度近似(GGA-PBE)处理交换关联作用[42]。针对 Mn 原子 3d 轨道强关联效应引入了 GGA + U 方法[43]进行修正, Mn 原子的 Hubbard 参数 U 分别设定为 4.0 eV, 交换参数 J 均设定为 1.0 eV。计算中平面波基组的截断能取为 550 eV, 采用投影缀加平面波(PAW)赝势, 自洽迭代的能量收敛标准设为  $10^{-6}$  eV, 为消除周期性边界层间的相互作用, 沿垂直二维平面方向设置了厚度大于 18 Å 的真空层。针对原胞( $\text{Cu}_2\text{Mn}_2\text{I}_6$ )和矩形超胞( $\text{Cu}_4\text{Mn}_4\text{I}_{12}$ )的计算, 使用  $9 \times 9 \times 1$  和  $9 \times 5 \times 1$  的  $\Gamma$  中心 Monkhorst-Pack 的 k 点网格。在结构优化过程中, 所有原子位置均允许弛豫, 直至每个原子上的赫尔曼-费曼力(Hellmann-Feynman)力小于  $0.01 \text{ eV}/\text{\AA}$ 。利用 PHONOPY 软件包[44]结合 VASP 计算声子谱, 来检验材料的动力学稳定性。为了模拟不同载流子浓度效应, 我们在自洽计算中通过增/减电子数来模拟电子/空穴掺杂, 并引入均匀电荷背景以保持系统电中性。最后, 通过 Wannier90 软件包[45]构建最局域瓦尼尔函数(MLWFs) [46] [47], 计算贝里曲率和反常霍尔电导[48]。

## 3. 结果与讨论

### 3.1. $\text{CuMnI}_3$ 单层的晶体结构与稳定性

$\text{CuMnI}_3$  单层的原子构型如图 1(a)、图 1(b)所示, 其结构中每个 I-Cu 亚层内的 Cu 原子呈二维三角晶格有序排列。该单层以  $\text{MnI}_3$  骨架为基础构建, 在原胞上下两侧 I 原子层围成的六角形间隙位各嵌入一个 Cu 原子, 整体晶体构型与单层  $\text{CrGeTe}_3$  具有高度相似性。本文采用广义梯度近似下的 PBE 泛函(GGA-PBE)对  $\text{CuMnI}_3$  单层进行全原子结构弛豫, 优化后得到其平衡晶格常数为  $a = 7.28 \text{ \AA}$ 。为系统评估  $\text{CuMnI}_3$  单层的结构稳定性, 我们分别从热力学形成能力、晶格动力学稳定性及室温热稳定性三个维度开展了计算研究。首先计算了体系的形成能, 定义式为:  $E_{\text{form}} = E(\text{CuMnI}_3) - 2E(\text{Cu}) - 2E(\text{Mn}) - 3E(\text{I}_2)$ 。式中,  $E(\text{CuMnI}_3)$  为  $\text{CuMnI}_3$  单层原胞的总能量,  $E(\text{Cu})$  和  $E(\text{Mn})$  分别为面心立方 Cu、体心立方 Mn 晶体中单个

原子的结合能,  $E(I_2)$ 为气相碘分子的总能量。计算得到  $\text{CuMnI}_3$  单层的形成能为 $-8.76$  eV/原胞, 显著为负的形成能表明体系内部形成了强共价-离子混合键, 具有优异的本征结构稳定性。



**Figure 1.** Structure and stability of  $\text{CuMnI}_3$  monolayer. (a) Top view of the atomic structure; (b) Side view of the atomic structure; (b1) Structure of the Mn-I coordinated octahedron; (b2) First Brillouin zone with high-symmetry points and paths; (c) Phonon dispersion spectrum; (d) *Ab initio* molecular dynamics (AIMD) simulation

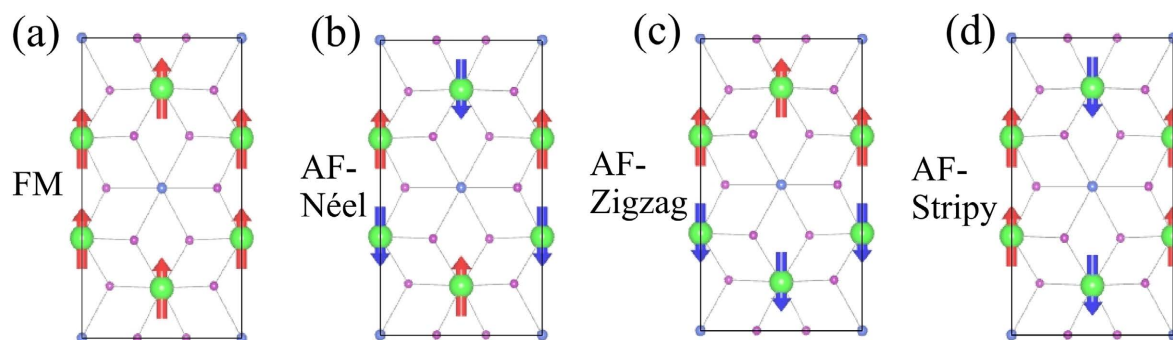
**图 1.**  $\text{CuMnI}_3$  单层的结构及稳定性。(a) 原子结构顶视图; (b) 原子结构侧视图; (b1) Mn-I 配位八面体结构; (b2) 第一布里渊区及高对称点路径; (c) 声子色散谱; (d) 从头算分子动力学模拟

在此基础上, 我们基于密度泛函微扰理论(DFPT)计算了声子色散谱以验证其动力学稳定性。如图 1(c) 所示,  $\text{CuMnI}_3$  单层的声子谱在整个第一布里渊区内无任何虚频振动模式, 证明其晶格振动处于稳定状态。为进一步确认其室温下的热稳定性, 我们开展了 300 K 下的从头算分子动力学(AIMD)模拟。图 1(d)给出了模拟过程中体系总能量随时间的演化曲线, 插图展示了模拟时长达到 10.0 ps 时体系的原子构型(顶视图与侧视图)。可以观察到, 整个模拟过程中体系总能量仅在平衡值附近小幅波动, 且 10.0 ps 后  $\text{CuMnI}_3$  单层仍能保持完整的晶体结构, 未出现明显的键断裂或原子重构现象, 充分证实了其在室温条件下具有良好的热力学稳定性。此外, 为进一步探究  $\text{CuMnI}_3$  单层通过机械剥离法制备的可行性, 本文基于密度泛函理论计算了  $\text{CuMnI}_3$  单层的剥离能。  $\text{CuMnI}_3$  单层的剥离能约为  $0.27 \text{ J}\cdot\text{m}^{-2}$ , 该数值低于  $\text{CrSiTe}_3$  的  $0.35 \text{ J}\cdot\text{m}^{-2}$  和  $\text{CrGeTe}_3$  的  $0.38 \text{ J}\cdot\text{m}^{-2}$  等同类型晶体材料[49] [50], 也低于石墨烯的  $0.36 \text{ J}\cdot\text{m}^{-2}$ , 表明  $\text{CuMnI}_3$  层间结合力较弱, 预示着  $\text{CuMnI}_3$  单层极有可能通过机械剥离块材的方式成功获得。

### 3.2. 应变与掺杂对 $\text{CuMnI}_3$ 单层的磁性调控

为揭示  $\text{CuMnI}_3$  单层的本征磁有序特性, 我们系统考察了二维三角晶格体系中四种经典磁构型: 铁磁(FM)态、奈尔反铁磁(AF-Néel)态、锯齿形反铁磁(AF-Zigzag)态及条纹形反铁磁(AF-Stripy)态, 各构型的原子自旋排布如图 2(a)~(d)所示。计算结果表明, 铁磁态下 Mn 原子的局域磁矩约为  $5.0 \mu_B$ , 呈现出强局

域磁性特征, 体系总磁矩为  $10.0 \mu_B$ /原胞。能量对比分析显示, AF-Zigzag 态在四种构型中能量最低, 为  $\text{CuMnI}_3$  单层的本征磁基态, 各磁态间的相对能量差如图 3(a)所示。为探究外场对该材料磁有序的调控潜力, 我们首先研究了双轴应变对其磁基态稳定性的影响。图 3(a)给出了不同双轴应变下, AF-Néel、AF-Zigzag 及 AF-Stripy 三种反铁磁态相对于 FM 态的能量差  $\Delta E$ 。在  $-8.0\%$  至  $+10.0\%$  的宽应变范围内,  $E_{\text{AF-Zigzag}} - E_{\text{FM}}$  始终为负值, 且其绝对值随压缩应变的增大而单调递增, 说明压缩应变会进一步提升 AF-Zigzag 态的热力学稳定性。上述结果充分证明,  $\text{CuMnI}_3$  单层的 AF-Zigzag 磁基态对应变具有极强的鲁棒性, 在较宽的应变区间内均可维持其本征磁有序结构。



**Figure 2.** The four different magnetic configurations of  $\text{CuMnI}_3$  monolayer: FM (a); AFM-Néel (b); AFM-Zigzag (c); AFM-Stripy (d). The red (blue) arrows denote the up (down) spins

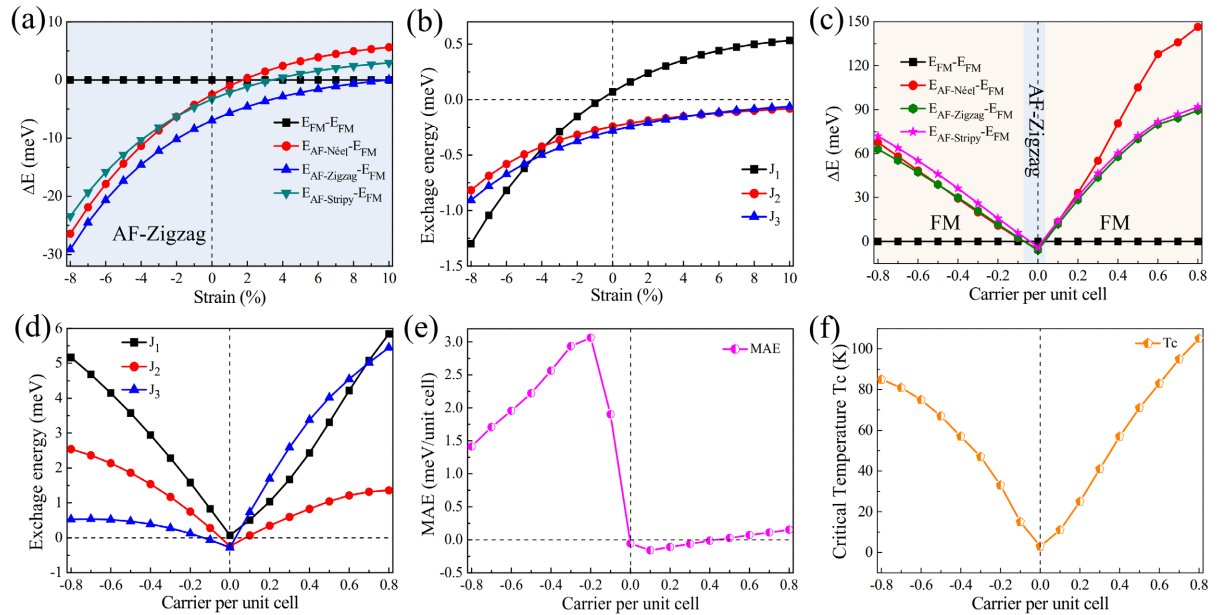
**图 2.**  $\text{CuMnI}_3$  单层的四种不同磁构型: 铁磁(FM) (a); 奈尔反铁磁(AF-Néel) (b); 锯齿形反铁磁(AF-Zigzag) (c); 条纹形反铁磁(AF-Stripy) (d)。图中的红色(蓝色)箭头表示自旋向上(向下)

上述分析表明, 双轴应变仅能微调各磁态间的能量差, 无法诱导磁基态的根本性转变。鉴于此, 我们进一步采用载流子掺杂的手段对  $\text{CuMnI}_3$  单层的磁有序进行调控。本工作中考虑的最大掺杂浓度为每单胞 0.8 个空穴/电子, 对应的载流子掺杂浓度约为  $1.74 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$ , 这一数值低于当前实验上已成功实现的  $10^{15} \text{ cm}^{-2}$  量级的载流子浓度[51] [52], 表明我们预测的掺杂效应完全处于现有实验技术的可控范围内, 具有现实可行性。在实际实验中, 常可以采取静电与化学掺杂互补的实验方案: 静电调控可通过常规  $\text{SiO}_2$  背栅[53]、铁电衬底[54]或固态聚合物电解质[55]实现; 化学掺杂方面, 可通过将  $\text{CuMnI}_3$  超胞中的部分 Cu 替换为 Ni 或 Mn 替换为 Cr 来实现 p 型(空穴)掺杂, 另外可通过将超胞中的部分 Cu 替换为 Zn 或将 Mn 替换为 Fe 来实现 n 型(电子)掺杂。

在本文中, 我们系统计算了无应变条件下, 不同载流子掺杂浓度对各磁态相对能量的影响, 结果如图 3(c)所示。定量分析表明, 当空穴掺杂浓度为 0.1 h/u.c.时, AF-Néel、AF-Zigzag 和 AF-Stripy 态相对于 FM 态的能量差分别为 9.2 meV、7.0 meV 和 11.1 meV; 而当电子掺杂浓度为 0.1 e/u.c.时, 上述能量差分别变为 14.9 meV、11.9 meV 和 5.2 meV。此时所有反铁磁态的能量均高于 FM 态, 说明体系的磁基态已发生明显转变。进一步的磁相图分析可得, 该磁相变的临界掺杂浓度极低: 电子掺杂浓度超过 0.04 e/u.c.或空穴掺杂浓度超过 0.07 h/u.c.时, 体系即可从 AF-Zigzag 反铁磁态转变为 FM 铁磁态。这一结果清晰表明, 仅需极低浓度的载流子掺杂即可实现  $\text{CuMnI}_3$  单层磁有序的有效调控, 为在自旋电子器件中的实际应用提供了可行的技术途径。

磁各向异性(MAE)是决定二维磁性材料长程磁有序稳定性和器件应用潜力的核心参数, 其符号与大小直接对应材料的易磁化方向和磁各向异性强度。本文采用能量差法计算单个 Mn 原子的 MAE, 计算公式为:  $\text{MAE} = (E_{[100]} - E_{[001]})/2$ , 其中  $E_{[100]}$ 和  $E_{[001]}$ 分别代表自旋沿[100]面内方向和[001]面外方向取向时体系的总能量。对于无应变(0.0%)下的 AF-Zigzag 基态  $\text{CuMnI}_3$  单层, 计算得到的 MAE 值为  $-55.8 \mu\text{eV}/\text{Mn}$ 。

根据 MAE 的符号判定规则，负值表明体系的易磁化轴沿面内方向。可见，本征 AF-Zigzag 态下的 CuMnI<sub>3</sub> 单层磁各向异性较弱，且呈现典型的面内磁化特征。当空穴掺杂浓度达到 0.4 h/u.c.时，体系转变为铁磁有序态，此时计算得到的 MAE 大幅提升至 2.563 meV/Mn，且符号由负转正。这一结果表明，空穴掺杂不仅能诱导反铁磁 - 铁磁相变，还能成功实现易磁化轴从面内向面外的翻转，同时使磁各向异性提升近两个数量级。面外易磁化轴的形成有利于维持长程铁磁有序，显著增强了材料的磁稳定性。与空穴掺杂的显著调控效果不同，电子掺杂对 MAE 的影响较为有限。即使在电子掺杂诱导的铁磁态中，体系的易磁化轴仍维持在面内方向，未发生明显的取向转变。从图 3(e)可以清晰观察到，MAE 的突变点恰好对应磁相变的临界掺杂浓度，说明磁各向异性的显著变化与体系磁有序构型的转变直接相关。因此，CuMnI<sub>3</sub> 单层的磁各向异性具有极强的载流子依赖性：空穴掺杂能够同时实现磁相变诱导和易磁化轴翻转，且诱导的铁磁态具有较大的面外 MAE，这一独特特性凸显了空穴载流子工程在调控二维磁性材料性能方面的巨大潜力。



**Figure 3.** Strain and doping effects on the magnetic properties of CuMnI<sub>3</sub> monolayer: (a) Energy difference  $\Delta E$  between different magnetic states referenced to the FM state; (b) Strain dependence of exchange parameters  $J_1$ ,  $J_2$  and  $J_3$ ; (c)~(f) Doping concentration dependence of magnetic parameters: (c) Energy difference  $\Delta E$ ; (d) Exchange parameters; (e) Magnetic anisotropy energies (MAEs); (f) Critical temperature  $T_c$  of CuMnI<sub>3</sub> monolayer

**图 3.** CuMnI<sub>3</sub> 单层磁学性质的应变与掺杂调控：(a) 不同磁态间以铁磁态为参考的能量差  $\Delta E$ ；(b)  $J_1$ 、 $J_2$ 、 $J_3$  交换作用参数随双轴应变的变化；(c)~(f) 掺杂浓度对各磁学参数的影响：(c) 能量差  $\Delta E$ ；(d) 交换作用参数；(e) 磁各向异性能(MAEs)；(f) CuMnI<sub>3</sub> 单层的临界温度  $T_c$

为了分析二维单层 CuMnI<sub>3</sub> 的磁结构特征，我们采用了基于二维蜂窝状晶格的自旋海森堡模型，表示为：

$$H = -J_1 \sum_{\langle ij \rangle} \vec{S}_i \cdot \vec{S}_j - J_2 \sum_{\langle\langle ij \rangle\rangle} \vec{S}_i \cdot \vec{S}_j - \sum_{\langle\langle\langle ij \rangle\rangle\rangle} \vec{S}_i \cdot \vec{S}_j - D \sum_i |S_i^z|^2 \quad (1)$$

其中  $J_1$ 、 $J_2$  和  $J_3$  分别为最近邻、次近邻、和第三近邻自旋之间的交换作用， $D$  为磁各向异性能。我们采用第一性原理计算和自旋海森堡模型相结合的方法求解参数  $J_1$ 、 $J_2$ 、 $J_3$  和  $D$ 。由以下方程式推导出  $J_1$ 、 $J_2$ 、 $J_3$  和  $D$  参数：

$$E_{\text{FM/AF-Neel}} = E_0 - (\pm 6J_1 + 12J_2 \pm 6J_3) |\vec{S}|^2 \quad (2)$$

$$E_{\text{AF-zigzag/AF-stripy}} = E_0 - (\pm 2J_1 + 4J_2 \mp 6J_3) |\vec{S}|^2 \quad (3)$$

$$D = \frac{\text{MAE}}{|\vec{S}|^2} \quad (4)$$

其中, 自旋 $|\vec{S}|^2$  设置为 1.0。如图 3(b)所示, 我们计算了 CuMnI<sub>3</sub> 单层的三个磁交换作用参数: 最近邻(NN) $J_1$ 、次近邻(NNN) $J_2$  和第三近邻(3NN) $J_3$ 。无应变条件下,  $J_1$ 、 $J_2$  和  $J_3$  的值分别为 0.07 meV、-0.24 meV 和 -0.28 meV。尽管  $J_1$  为铁磁耦合, 但  $J_2$  和  $J_3$  均表现为反铁磁耦合, 且其耦合强度大于  $J_1$  的铁磁耦合, 因此体系的基态为 AF-Zigzag 态。图 3(d)展示了  $J_1$ 、 $J_2$ 、 $J_3$  随载流子掺杂浓度的变化关系。随着掺杂浓度的增加, 反铁磁耦合逐渐减弱, 铁磁耦合逐渐增强, 最终诱导体系从 AF-Zigzag 态转变为 FM 态。此外, 我们基于二维海森堡模型, 利用计算得到的  $J_1$ 、 $J_2$ 、 $J_3$  和磁各向异性能  $D$ , 通过蒙特卡洛模拟估算了体系的居里临界温度  $T_c$ 。模拟采用  $50 \times 50 \times 1$  的超胞, 共进行了  $1 \times 10^5$  步计算。结果如图 3(f)所示, 铁磁态的  $T_c$  随空穴或电子掺杂浓度的增加线性上升, 最高可达到约 100 K, 显著大于 CrI<sub>3</sub> 的居里温度 45 K, 且大于液氮的温度 77 K, 在实际应用中具有一定的潜力和可行性。综上可知, 载流子掺杂对 CuMnI<sub>3</sub> 单层的磁有序和临界温度具有显著的调控作用。

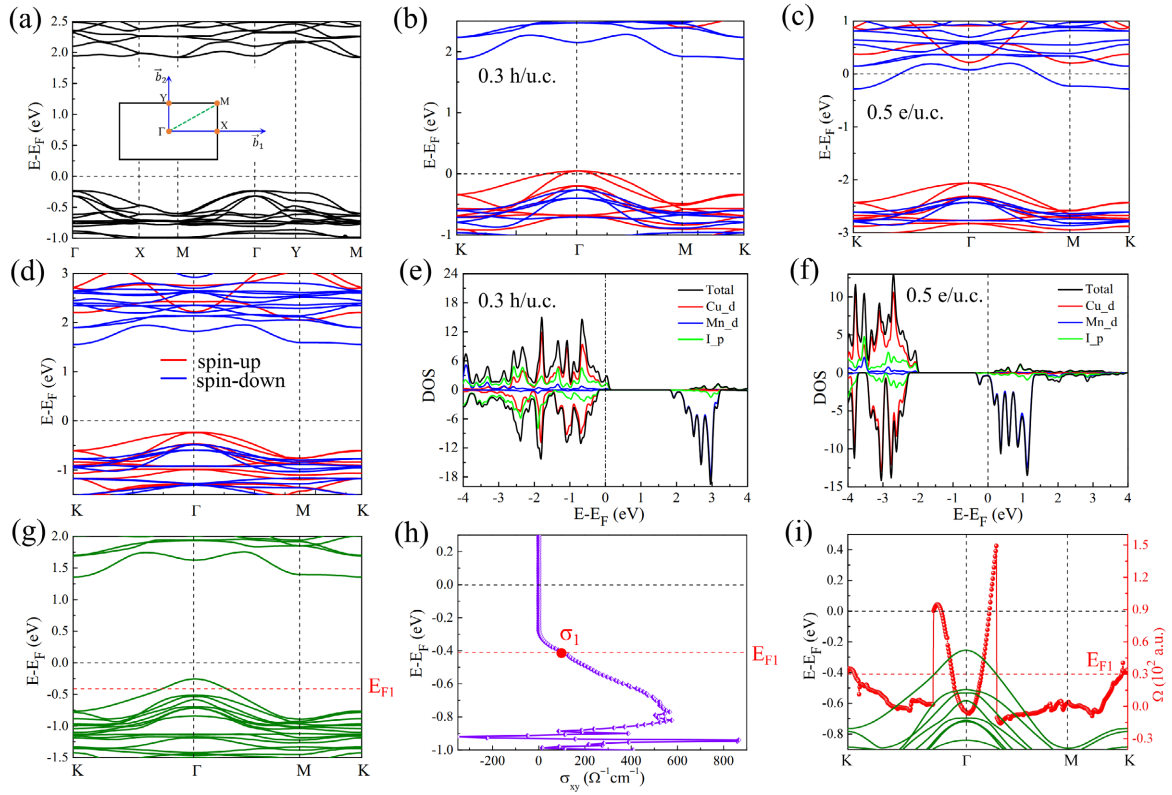
### 3.3. CuMnI<sub>3</sub> 单层的电子结构和双极磁性半导体特性

双极磁性半导体(BMS)作为一类可通过载流子类型调控自旋极化方向的理想自旋电子材料, 近年来受到了广泛关注。本征 CuMnI<sub>3</sub> 单层的能带结构如图 4(a)所示, 其 AF-Zigzag 磁基态下呈现典型的半导体特征。图 4(d)的自旋分辨能带进一步表明, 本征态下体系的价带顶(VBM)和导带底(CBM)分别由完全自旋极化的自旋向上和自旋向下态贡献。前文磁相图分析(图 3(c))已证实, 电子或空穴掺杂均可诱导 CuMnI<sub>3</sub> 单层发生从 AF-Zigzag 反铁磁态到 FM 铁磁态的磁相变, 这必然会导致其电子结构发生根本性改变, 也使得该材料成为极具潜力的新型 BMS 候选体系。图 4(b)和图 4(c)分别给出了空穴掺杂浓度为 0.3 h/u.c. 和电子掺杂浓度为 0.5 e/u.c. 时的自旋极化能带结构。计算结果显示, 空穴掺杂后的体系仅自旋向上通道穿过费米能级, 而电子掺杂后的体系仅自旋向下通道呈现金属性, 二者均实现了 100% 的载流子自旋极化, 呈现出典型的半金属特征。与图 4(b)和图 4(c)对应的总态密度(DOS)分别绘制于图 4(e)和图 4(f)中, 态密度结果进一步佐证了相反自旋方向上完全自旋极化导电通道的形成。

图 4(a)~(c)的能带演化规律清晰揭示了反铁磁 CuMnI<sub>3</sub> 单层中载流子掺杂诱导的 BMS 行为机制。本征态下, 体系处于反铁磁有序, 导带和价带均保持自旋简并。当载流子掺杂浓度低于磁相变临界值时, CuMnI<sub>3</sub> 单层仍维持 AF-Zigzag 磁有序, 费米能级位于自旋简并的带隙范围内, 未表现出宏观自旋极化。而当掺杂浓度达到临界值时, 体系发生反铁磁-铁磁相变, 磁有序转变诱导能带发生自旋劈裂, 同时费米能级的移动使得单一自旋通道穿过费米能级, 最终形成完全自旋极化的导电通道。这一发现不仅证实了反铁磁体系中 BMS 行为的存在, 也为探索其他反铁磁材料的自旋极化输运特性提供了新的理论思路。

铁磁态下 CuMnI<sub>3</sub> 单层的自旋分辨能带结构如图 4(d)所示, 在布里渊区  $\Gamma$  点附近, 完全自旋极化的自旋向上能带呈现出抛物线型二次非狄拉克色散特征, 并存在能带简并点。当引入自旋轨道耦合(SOC)效应后(图 4(g)), 该非狄拉克简并被解除, 在  $\Gamma$  点周围打开了一个拓扑非平庸的能隙, 这一特征预示着该体系具有潜在的拓扑输运特性。当费米能级  $E_F$  被调控至该 SOC 诱导的能隙范围内时, 体系会在  $\Gamma$  点附近产生显著的贝里曲率  $\Omega(\mathbf{k})$ , 进而诱发可观的反常霍尔电导率  $\sigma_{xy}$ 。结合前文图 3(c)的磁相图与图 4(b)~(c)的能带演化结果可知, 无论是电子掺杂还是空穴掺杂, 只要将 CuMnI<sub>3</sub> 单层调控至铁磁有序态, 体系均会转

变为铁磁金属相，且其 SOC 修正后的能带结构与图 4(g)所示的特征完全一致。特别地，空穴掺杂可灵活地将费米能级  $E_F$  精确调控至价带内的目标位置。



**Figure 4.** Electronic structure and transport properties of CuMn<sub>3</sub> monolayer: (a) Band structure of the zigzag antiferromagnetic (AF-Zigzag) state under 0.0% strain, with the inset showing the first Brillouin zone; (b)~(c) Spin-polarized band structures corresponding to 0.3 holes per unit cell and 0.5 electrons per unit cell doping, respectively; (d) Spin-resolved band structure of the ferromagnetic (FM) state, where red and blue curves represent the spin-up and spin-down channels, respectively; (e)~(f) Density of states (DOS) corresponding to (c) and (d), respectively; (g) Band structure of the FM state with spin-orbit coupling (SOC) included, where the red dashed line marks the reference Fermi level  $E_{F1}$  as a function of the Fermi level  $E_F$  position, where  $\sigma_1$  denotes the calculated value when  $E_F = E_{F1}$ ; (h) Anomalous Hall conductivity  $\sigma_{xy}$  as a function of the Fermi level  $E_F$ , with the olive curve showing the SOC-corrected band structure

**图 4.** CuMn<sub>3</sub> 单层的电子结构与输运性质: (a) 0.0% 应变下锯齿形反铁磁(AF-Zigzag)态的能带, 插图为第一布里渊区; (b)~(c) 每原胞 0.3 个空穴和 0.5 个电子掺杂对应的自旋极化能带; (d) 铁磁(FM)态自旋分辨能带, 红、蓝曲线分别表示自旋向上和自旋向下通道; (e)~(f) 分别对应(c)、(d)的态密度(DOS); (g) 考虑自旋轨道耦合(SOC)后的铁磁态能带, 红色虚线标记参考费米能级  $E_{F1}$ ; (h) 反常霍尔电导率  $\sigma_{xy}$  随费米能级  $E_F$  的变化曲线,  $\sigma_1$  为  $E_F = E_{F1}$  时的计算值; (i)  $E_F = E_{F1}$  时的贝里曲率分布, 橄榄色曲线为 SOC 修正后的能带

图 4(h)给出了反常霍尔电导率  $\sigma_{xy}$  随费米能级  $E_F$  位置的演化曲线, 可以看出, 反常霍尔电导在价带附近呈现出显著的单调增长趋势, 其中红色标记点代表费米能级取图 4(g)中  $E_{F1}$  时的计算值  $\sigma_1$ 。图 4(i)展示了  $E_F = E_{F1}$  时的贝里曲率空间分布, 结果表明, 贝里曲率在  $\Gamma$  点附近由 SOC 诱导的局部能隙区域呈现出显著的正峰值。对整个第一布里渊区的贝里曲率进行积分计算, 得到该费米能级下的反常霍尔电导率  $\sigma_1 = 116.1 \Omega^{-1} \cdot \text{cm}^{-1}$ , 大于已报道的本征二维铁磁体单层 VS<sub>2</sub> 的  $32.95 \Omega^{-1} \cdot \text{cm}^{-1}$  和 VSe<sub>2</sub> 的  $59.43 \Omega^{-1} \cdot \text{cm}^{-1}$  [56]。这一结果证实, 空穴掺杂的 CuMn<sub>3</sub> 单层可实现具有显著反常霍尔效应的铁磁金属态。CuMn<sub>3</sub> 单层是一种具有独特双极磁性半导体(BMS)行为的新二维材料: 一方面可通过载流子类型调控实现不同自旋极化方向的单自旋导通金属态; 另一方面, 空穴掺杂还可诱导其进入具有大反常霍尔电导率的铁

磁半金属相, 在低功耗自旋电子器件领域具有潜在应用价值。

对于反常霍尔效应的物理起源, 除本文重点计算的内禀贝里曲率贡献外, 还需考虑外禀机制的重要作用。外禀反常霍尔效应主要源于电子在输运过程中受到杂质、缺陷或晶格畸变的非对称散射, 主要包括斜散射(Skew-scattering)和边带散射(Side-jump)两类, 其幅值通常与纵向电导密切相关, 在强无序或高载流子浓度体系中往往占据主导地位。尽管本文聚焦于由能带拓扑决定的内禀响应, 但在实际制备的CuMnI<sub>3</sub>样品中, 外禀机制将与内禀效应相互竞争或协同, 共同决定最终观测值。明确这一点有助于构建更完整的物理图像, 并为未来实验中解耦散射与拓扑贡献提供理论指导。

#### 4. 结论

本文采用第一性原理计算方法, 系统研究了CuMnI<sub>3</sub>单层的磁性、电子结构及自旋电子学行为。研究发现, CuMnI<sub>3</sub>单层的本征磁基态为AF-Zigzag态, 属于间接带隙半导体。虽然双轴应变无法改变其AF-Zigzag磁基态, 但载流子掺杂可有效诱导体系发生从AF-Zigzag态到FM态的磁相变, 并实现对其自旋电子学特性的精准调控。随着掺杂浓度的增加, FM态的稳定性显著提升, 居里临界温度T<sub>c</sub>可调节至约100 K, 有利于实际应用。值得注意的是, CuMnI<sub>3</sub>单层表现出新颖的双极磁性半导体(BMS)行为: 空穴掺杂可使其转变为具有完全自旋向上极化的铁磁半金属(FMHM)态, 而电子掺杂则会形成具有完全自旋向下极化导电通道的FMHM态。这种独特的BMS特性使其在自旋电子学领域具有潜在应用价值。研究结果表明, CuMnI<sub>3</sub>单层的磁结构能够被有效调控, 是一种性能优异的新型二维自旋电子材料。

#### 参考文献

- [1] Geim, A.K. and Novoselov, K.S. (2007) The Rise of Graphene. *Nature Materials*, **6**, 183-191. <https://doi.org/10.1038/nmat1849>
- [2] Cahangirov, S., Topsakal, M., Aktürk, E., Şahin, H. and Ciraci, S. (2009) Two- and One-Dimensional Honeycomb Structures of Silicon and Germanium. *Physical Review Letters*, **102**, Article ID: 236804. <https://doi.org/10.1103/physrevlett.102.236804>
- [3] Dean, C.R., Young, A.F., Meric, I., Lee, C., Wang, L., Sorgenfrei, S., *et al.* (2010) Boron Nitride Substrates for High-Quality Graphene Electronics. *Nature Nanotechnology*, **5**, 722-726. <https://doi.org/10.1038/nnano.2010.172>
- [4] Li, L.K., Yu, Y.J., Ye, G.J., Ge, Q.Q., Ou, X.D., Wu, H., *et al.* (2014) Black Phosphorus Field-Effect Transistors. *Nature Nanotechnology*, **9**, 372-377. <https://doi.org/10.1038/nnano.2014.35>
- [5] Reis, F., Li, G., Dudy, L., Bauernfeind, M., Glass, S., Hanke, W., *et al.* (2017) Bismuthene on a Sic Substrate: A Candidate for a High-Temperature Quantum Spin Hall Material. *Science*, **357**, 287-290. <https://doi.org/10.1126/science.aai8142>
- [6] Mak, K.F., Lee, C., Hone, J., Shan, J. and Heinz, T.F. (2010) Atomically Thin MoS<sub>2</sub>: A New Direct-Gap Semiconductor. *Physical Review Letters*, **105**, Article ID: 136805. <https://doi.org/10.1103/physrevlett.105.136805>
- [7] Wang, Q.H., Kalantar-Zadeh, K., Kis, A., Coleman, J.N. and Strano, M.S. (2012) Electronics and Optoelectronics of Two-Dimensional Transition Metal Dichalcogenides. *Nature Nanotechnology*, **7**, 699-712. <https://doi.org/10.1038/nnano.2012.193>
- [8] Li, X.X. and Yang, J.L. (2016) First-Principles Design of Spintronics Materials. *National Science Review*, **3**, 365-381. <https://doi.org/10.1093/nsr/nww026>
- [9] Guo, Y.L., Wang, B., Zhang, X.W., Yuan, S.J., Ma, L. and Wang, J.L. (2020) Magnetic Two-Dimensional Layered Crystals Meet with Ferromagnetic Semiconductors. *InfoMat*, **2**, 639-655. <https://doi.org/10.1002/inf2.12096>
- [10] de Groot, R.A., Mueller, F.M., Engen, P.G.V. and Buschow, K.H.J. (1983) New Class of Materials: Half-Metallic Ferromagnets. *Physical Review Letters*, **50**, 2024-2027. <https://doi.org/10.1103/physrevlett.50.2024>
- [11] Li, X.X., Wu, X.J., Li, Z.Y., Yang, J.L. and Hou, J.G. (2012) Bipolar Magnetic Semiconductors: A New Class of Spintronics Materials. *Nanoscale*, **4**, 5680-5685. <https://doi.org/10.1039/c2nr31743e>
- [12] Li, X.X. and Yang, J.L. (2014) CrxTe<sub>3</sub>(X = Si, Ge) Nanosheets: Two Dimensional Intrinsic Ferromagnetic Semiconductors. *Journal of Materials Chemistry C*, **2**, 7071-7076. <https://doi.org/10.1039/c4tc01193g>
- [13] Sivadas, N., Daniels, M.W., Swendsen, R.H., Okamoto, S. and Xiao, D. (2015) Magnetic Ground State of

- Semiconducting Transition-Metal Trichalcogenide Monolayers. *Physical Review B*, **91**, Article ID: 235425. <https://doi.org/10.1103/physrevb.91.235425>
- [14] Chittari, B.L., Park, Y., Lee, D., Han, M., MacDonald, A.H., Hwang, E., *et al.* (2016) Electronic and Magnetic Properties of Single-Layer  $\text{As}_2\text{S}_3$  Phosphorous Trichalcogenides. *Physical Review B*, **94**, Article ID: 184428. <https://doi.org/10.1103/physrevb.94.184428>
- [15] Zhang, W.B., Qu, Q., Zhu, P. and Lam, C.H. (2015) Robust Intrinsic Ferromagnetism and Half Semiconductivity in Stable Two-Dimensional Single-Layer Chromium Trihalides. *Journal of Materials Chemistry C*, **3**, 12457-12468. <https://doi.org/10.1039/c5tc02840j>
- [16] Sun, Q. and Kioussis, N. (2018) Prediction of Manganese Trihalides as Two-Dimensional Dirac Half-Metals. *Physical Review B*, **97**, Article ID: 094408. <https://doi.org/10.1103/physrevb.97.094408>
- [17] Sheng, X.L. and Nikolic, B.K. (2017) Monolayer of the 5D Transition Metal Trichloride  $\text{OsCl}_3$ : A Playground for Two-Dimensional Magnetism, Room-Temperature Quantum Anomalous Hall Effect, and Topological Phase Transitions. *Physical Review B*, **95**, Article ID: 201402. <https://doi.org/10.1103/physrevb.95.201402>
- [18] He, J.J., Li, X., Lyu, P.B. and Nachtigall, P. (2017) Near-Room-Temperature Chern Insulator and Dirac Spin-Gapless Semiconductor: Nickel Chloride Monolayer. *Nanoscale*, **9**, 2246-2252. <https://doi.org/10.1039/c6nr08522a>
- [19] Wang, Y.P., Li, S.S., Zhang, C.W., Zhang, S.F., Ji, W.X., Li, P. and Wang, P.J. (2018) High-Temperature Dirac Half-Metal  $\text{PdCl}_2$ : A Promising Candidate for Realizing Quantum Anomalous Hall Effect. *Journal of Materials Chemistry C*, **6**, 10284-10291. <https://doi.org/10.1039/c8tc02500b>
- [20] You, J.Y., Zhang, Z., Gu, B. and Su, G. (2019) Two-Dimensional Room-Temperature Ferromagnetic Semiconductors with Quantum Anomalous Hall Effect. *Physical Review Applied*, **12**, Article ID: 024063. <https://doi.org/10.1103/physrevapplied.12.024063>
- [21] Zhang, M.H., Zhang, C.W., Wang, P.J. and Li, S.S. (2018) Prediction of High-Temperature Chern Insulator with Half-Metallic Edge States in Asymmetry-Functionalized Stanene. *Nanoscale*, **10**, 20226-20233. <https://doi.org/10.1039/c8nr07503d>
- [22] Liang, Y., Ma, Y.D., Zhao, P., Wang, H., Huang, B.B. and Dai, Y. (2020) High-Temperature Quantum Anomalous Hall Insulator in Two-Dimensional  $\text{Bi}_2\text{O}_3$ . *Applied Physics Letters*, **116**, Article ID: 162402. <https://doi.org/10.1063/1.5144064>
- [23] Wu, S.C., Shan, G.C. and Yan, B.H. (2014) Prediction of Near-Room-Temperature Quantum Anomalous Hall Effect on Honeycomb Materials. *Physical Review Letters*, **113**, Article ID: 256401. <https://doi.org/10.1103/physrevlett.113.256401>
- [24] Zhou, T., Zhang, J.Y., Zhao, B., Zhang, H.S. and Yang, Z.Q. (2015) Quantum Spin-Quantum Anomalous Hall Insulators and Topological Transitions in Functionalized  $\text{Sb}(111)$  Monolayers. *Nano Letters*, **15**, 5149-5155. <https://doi.org/10.1021/acs.nanolett.5b01373>
- [25] Zhou, T., Zhang, J.Y., Jiang, H., Žutić, I. and Yang, Z.Q. (2018) Giant Spin-Valley Polarization and Multiple Hall Effect in Functionalized Bismuth Monolayers. *npj Quantum Materials*, **3**, Article ID: 39. <https://doi.org/10.1038/s41535-018-0113-4>
- [26] Xu, G.F., Zhou, T., Scharf, B. and Žutić, I. (2020) Optically Probing Tunable Band Topology in Atomic Monolayers. *Physical Review Letters*, **125**, Article ID: 157402. <https://doi.org/10.1103/physrevlett.125.157402>
- [27] Qi, J.S., Wang, H., Chen, X.F. and Qian, X.F. (2018) Two-Dimensional Multiferroic Semiconductors with Coexisting Ferroelectricity and Ferromagnetism. *Applied Physics Letters*, **113**, Article ID: 043102. <https://doi.org/10.1063/1.5038037>
- [28] Hua, C.Q., Bai, H., Zheng, Y., Xu, Z.A., Yang, S.Y.A., Lu, Y.H. and Wei, S.H. (2021) Strong Coupled Magnetic and Electric Ordering in Monolayer of Metal Thio(Seleno)Phosphates. *Chinese Physics Letters*, **38**, Article 077501. <https://doi.org/10.1088/0256-307x/38/7/077501>
- [29] Duan, X.K., Wang, H., Chen, X.F. and Qi, J.S. (2022) Multiple Polarization Phases and Strong Magnetoelectric Coupling in the Layered Transition Metal Phosphorus Chalcogenides  $\text{TMP}_2\text{X}_6$  ( $\text{T} = \text{Cu, Ag}$ ;  $\text{M} = \text{Cr, V}$ ;  $\text{X} = \text{S, Se}$ ) by Controlling the Interlayer Interaction and Dimension. *Physical Review B*, **106**, Article ID: 115403. <https://doi.org/10.1103/physrevb.106.115403>
- [30] Wang, L., Shi, Y.P., Liu, M.F., Zhang, A., Hong, Y.L., Li, R.H., *et al.* (2021) Intercalated Architecture of  $\text{MA}_2\text{Z}_4$  Family Layered Van Der Waals Materials with Emerging Topological, Magnetic and Superconducting Properties. *Nature Communications*, **12**, Article ID: 2361. <https://doi.org/10.1038/s41467-021-22324-8>
- [31] Li, J.H., Li, Y., Du, S.Q., Wang, Z., Gu, B.L., Zhang, S.C., *et al.* (2019) Intrinsic Magnetic Topological Insulators in Van Der Waals Layered  $\text{MnBi}_2\text{Te}_4$ -Family Materials. *Science Advances*, **5**, eaaw5685. <https://doi.org/10.1126/sciadv.aaw5685>
- [32] Zhang, D.Q., Shi, M.J., Zhu, T.S., Xing, D.Y., Zhang, H.J. and Wang, J. (2019) Topological Axion States in the Magnetic

- Insulator  $\text{MnBi}_2\text{Te}_4$  with the Quantized Magnetoelectric Effect. *Physical Review Letters*, **122**, Article ID: 206401. <https://doi.org/10.1103/physrevlett.122.206401>
- [33] Huang, B., Clark, G., Navarro-Moratalla, E., Klein, D.R., Cheng, R., Seyler, K.L., *et al.* (2017) Layer-Dependent Ferromagnetism in a Van Der Waals Crystal down to the Monolayer Limit. *Nature*, **546**, 270-273. <https://doi.org/10.1038/nature22391>
- [34] Gong, C., Li, L., Li, Z., Ji, H.W., Stern, A., Xia, Y., *et al.* (2017) Discovery of Intrinsic Ferromagnetism in Two-Dimensional Van Der Waals Crystals. *Nature*, **546**, 265-269. <https://doi.org/10.1038/nature22060>
- [35] Deng, Y., Yu, Y., Shi, M.Z., Guo, Z., Xu, Z., Wang, J., *et al.* (2020) Quantum Anomalous Hall Effect in Intrinsic Magnetic Topological Insulator  $\text{MnBi}_2\text{Te}_4$ . *Science*, **367**, 895-900. <https://doi.org/10.1126/science.aax8156>
- [36] Zhang, J.Y., Zhao, B., Ma, C.L. and Yang, Z.Q. (2021) Bipolar Ferromagnetic Semiconductors and Doping-Tuned Room-Temperature Half-Metallicity in Monolayer  $\text{MoX}_3$  ( $X=\text{Cl, Br, I}$ ): An HSE06 Study. *Physical Review B*, **103**, Article ID: 075433. <https://doi.org/10.1103/physrevb.103.075433>
- [37] Wang, Y.J., Lou, C.C., Zhao, B., Ma, C.L. and Zhang, J.Y. (2023) Doping- and Strain-Tuned High Curie Temperature Half-Metallicity and Quantum Anomalous Hall Effect in Monolayer  $\text{MnBi}_2\text{Te}_4$  with Non-Dirac and Dirac States. *Physical Review B*, **107**, Article ID: 085416. <https://doi.org/10.1103/physrevb.107.085416>
- [38] Li, X.X., Wu, X.J. and Yang, J.L. (2014) Half-Metallicity in  $\text{MnPS}_3$  Exfoliated Nanosheet with Carrier Doping. *Journal of the American Chemical Society*, **136**, 11065-11069. <https://doi.org/10.1021/ja505097m>
- [39] Wang, H.B., Fan, F.R., Zhu, S.S. and Wu, H. (2016) Doping Enhanced Ferromagnetism and Induced Half-Metallicity in  $\text{CrI}_3$  Monolayer. *EPL (Europhysics Letters)*, **114**, Article 47001. <https://doi.org/10.1209/0295-5075/114/47001>
- [40] Kresse, G. and Furthmüller, J. (1996) Efficient Iterative Schemes for *Ab Initio* Total-Energy Calculations Using a Plane-Wave Basis Set. *Physical Review B*, **54**, 11169-11186. <https://doi.org/10.1103/physrevb.54.11169>
- [41] Blöchl, P.E. (1994) Projector Augmented-Wave Method. *Physical Review B*, **50**, 17953-17979. <https://doi.org/10.1103/physrevb.50.17953>
- [42] Perdew, J.P., Burke, K. and Ernzerhof, M. (1996) Generalized Gradient Approximation Made Simple. *Physical Review Letters*, **77**, 3865-3868. <https://doi.org/10.1103/physrevlett.77.3865>
- [43] Dudarev, S.L., Botton, G.A., Savrasov, S.Y., Humphreys, C.J. and Sutton, A.P. (1998) Electron-Energy-Loss Spectra and the Structural Stability of Nickel Oxide: An LSDA + U Study. *Physical Review B*, **57**, 1505-1509. <https://doi.org/10.1103/physrevb.57.1505>
- [44] Togo, A., Oba, F. and Tanaka, I. (2008) First-Principles Calculations of the Ferroelastic Transition between Rutile-Type and  $\text{CaCl}_2$ -Type  $\text{SiO}_2$  at High Pressures. *Physical Review B*, **78**, Article ID: 134106. <https://doi.org/10.1103/physrevb.78.134106>
- [45] Mostofi, A.A., Yates, J.R., Lee, Y., Souza, I., Vanderbilt, D. and Marzari, N. (2008) Wannier90: A Tool for Obtaining Maximally-Localized Wannier Functions. *Computer Physics Communications*, **178**, 685-699. <https://doi.org/10.1016/j.cpc.2007.11.016>
- [46] Marzari, N. and Vanderbilt, D. (1997) Maximally Localized Generalized Wannier Functions for Composite Energy Bands. *Physical Review B*, **56**, 12847-12865. <https://doi.org/10.1103/physrevb.56.12847>
- [47] Souza, I., Marzari, N. and Vanderbilt, D. (2001) Maximally Localized Wannier Functions for Entangled Energy Bands. *Physical Review B*, **65**, Article ID: 035109. <https://doi.org/10.1103/physrevb.65.035109>
- [48] Wang, X.J., Yates, J.R., Souza, I. and Vanderbilt, D. (2006) *Ab Initio* Calculation of the Anomalous Hall Conductivity by Wannier Interpolation. *Physical Review B*, **74**, Article ID: 195118. <https://doi.org/10.1103/physrevb.74.195118>
- [49] Lin, M.W., Zhuang, H.L., Yan, J., Ward, T.Z., Puzos, A.A., Rouleau, C.M., *et al.* (2016) Ultrathin Nanosheets of  $\text{CrSiTe}_3$ : A Semiconducting Two-Dimensional Ferromagnetic Material. *Journal of Materials Chemistry C*, **4**, 315-322. <https://doi.org/10.1039/c5tc03463a>
- [50] He, J., Ma, S., Lyu, P. and Nachtigall, P. (2016) Unusual Dirac Half-Metallicity with Intrinsic Ferromagnetism in Vanadium Trihalide Monolayers. *Journal of Materials Chemistry C*, **4**, 2518-2526. <https://doi.org/10.1039/c6tc00409a>
- [51] Yuan, H., Shimotani, H., Tsukazaki, A., Ohtomo, A., Kawasaki, M. and Iwasa, Y. (2009) High-Density Carrier Accumulation in  $\text{ZnO}$  Field-Effect Transistors Gated by Electric Double Layers of Ionic Liquids. *Advanced Functional Materials*, **19**, 1046-1053. <https://doi.org/10.1002/adfm.200801633>
- [52] Dhoot, A.S., Israel, C., Moya, X., Mathur, N.D. and Friend, R.H. (2009) Large Electric Field Effect in Electrolyte-Gated Manganites. *Physical Review Letters*, **102**, Article ID: 136402. <https://doi.org/10.1103/physrevlett.102.136402>
- [53] Novoselov, K.S., Geim, A.K., Morozov, S.V., Jiang, D., Zhang, Y., Dubonos, S.V., *et al.* (2004) Electric Field Effect in Atomically Thin Carbon Films. *Science*, **306**, 666-669. <https://doi.org/10.1126/science.1102896>
- [54] Zheng, Y., Ni, G., Bae, S., Cong, C., Kahya, O., Toh, C., *et al.* (2011) Wafer-Scale Graphene/Ferroelectric Hybrid

Devices for Low-Voltage Electronics. *EPL (Europhysics Letters)*, **93**, Article 17002.  
<https://doi.org/10.1209/0295-5075/93/17002>

- [55] Efetov, D.K. and Kim, P. (2010) Controlling Electron-Phonon Interactions in Graphene at Ultrahigh Carrier Densities. *Physical Review Letters*, **105**, Article ID: 256805. <https://doi.org/10.1103/physrevlett.105.256805>
- [56] Fuh, H.R., Yan, B., Wu, S.C., Felser, C. and Chang, C.R. (2016) Metal-Insulator Transition and the Anomalous Hall Effect in the Layered Magnetic Materials VS<sub>2</sub> and VSe<sub>2</sub>. *New Journal of Physics*, **18**, Article 113038.  
<https://doi.org/10.1088/1367-2630/18/11/113038>