

単層MoS₂における多原子空孔の研究

Theoretical Study of Multiatomic Vacancies in Single Layer MoS₂

浦崎 柁, 影島 博之 (島根大総合理工)

Syu Urasaki, Hiroyuki Kageshima (Shimane University)

E-mail: s159607@matsu.shimane-u.ac.jp

[はじめに] 単層の二硫化モリブデン(MoS₂)は1.8 eVのバンドギャップを有する直接遷移型の二元半導体であり, 近年の研究により, 電界効果トランジスタや光電素子への応用が試みられている[1-3]. MoS₂の最も有力な合成法はCVD法であるが, CVD法により作成した試料には, 電子的性質や光学的性質に強い影響を与える原子空孔が存在すると報告がなされている[4]. したがって, その発生メカニズムや物理的性質を理解することは応用にあたり重要である. 本研究では, 主に実験により観察された原子空孔について, 形成エネルギーの化学ポテンシャル依存性および帯電依存性を第一原理計算により解析し, バンド構造との関連性を考察した.

[計算方法] 計算対象はFig. 1の初期構造を持つ原子空孔である. スーパーセル法により, 8×8のスーパーセルにおける原子空孔を計算モデルに採用し, セルから電子を流入・流出させることで電子化学ポテンシャルを変化させ, 帯電を行った. スーパーセルの真空層は10 Åとした. 計算に使用したコードは, 密度汎関数理論に基づく擬ポテンシャル法による平面波基底の第一原理電子状態計算プログラム“PHASE”である[5]. 交換相関ポテンシャルは一般化密度勾配近似(GGA-PBE)とした. 平面基底のカットオフエネルギーは32 Ryとし, 擬ポテンシャルはVanderbilt ultrasoft型を使用した. k点のメッシュはプリミティブセルに対して16×16×1とした.

[結果] 形成エネルギーの化学ポテンシャル依存性を Fig. 2 に示す. 図は Mo の化学ポテンシャルを bcc 構造の結晶から計算し, 欠陥のない MoS₂の化学ポテンシャルと平衡するように S の化学ポテンシャルを定めた Mo-rich における結果を表している. いずれの原子空孔も正にはほとんど帯電せず, 負に帯電しやすい結果となった. また, 電子化学ポテンシャル μ_e が伝導帯の上端のエネルギー E_g に近づくのに伴い, 形成エネルギーが減少し, 原子空孔が安定化することが明らかとなった. さらに Mo-rich では, μ_e が E_g のときに, エッジ原子が Mo である原子空孔が S である原子空孔と比べて安定化した. 一方, Mo-rich から化学ポテンシャルを平衡条件に従って変えた S-rich では, 安定性がエッジ原子の種類で逆転した. 当日は形成エネルギーの帯電依存性とバンド構造を比較し, 両者の関連性についても議論する.

[謝辞] 本研究の一部は科研費(26289107)により助成を受けて行われました. また, 計算の一部は東京大学物性研究所スーパーコンピュータセンターにて行われました. Fig. 1はVESTAにより作成しました[6].

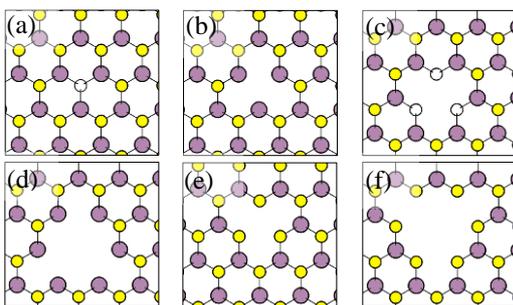


Fig. 1 Initial atomic structures of vacancies of (a) V_S , (b) V_{S_2} , (c) V_{MoS_3} , (d) V_{MoS_6} , (e) V_{Mo} , and (f) V_{MoS_2} . The white and violet circles denote sulfur and molybdenum atoms, respectively. The yellow circles denote sulfur atoms pairs. The atoms in these figures are located at ideal positions.

[1] A. Splendiani et al., *Nano Lett.*, **10**, 1271 (2010).

[2] Z. Yin et al., *ACS Nano*, **6**, 74 (2012).

[3] B. Radisavljevic et al., *Nature Nanotech.*, **6**, 147 (2011).

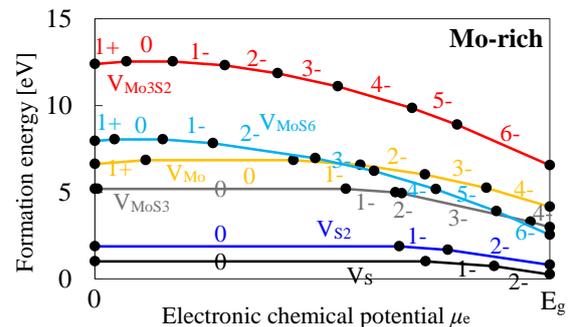


Fig. 2 Formation energies of various vacancies as the functions of the electronic chemical potential under the Mo-rich condition. Numbers denote the charge states q of vacancies. Electronic chemical potential μ_e ranges $\epsilon_v + 0 \leq \mu_e \leq \epsilon_v + E_g$, where E_g is the bandgap of 1.92 eV according to our calculation.

[4] W Zhou et al., *Nano Lett.*, **13**, 2615 (2013).

[5] <https://azuma.nims.go.jp/software/phase>

[6] K. Momma et al, *J. Appl. Crystallogr.*, **44**, 1272 (2011).