

基于第一性原理计算单层 IrSCl 和 IrSI 的载流子迁移率*

张磊¹⁾²⁾ 陈起航¹⁾ 曹硕¹⁾ 钱萍^{1)†}

1) (北京科技大学, 北京市高精尖中心, 北京 100083)

2) (中科软科技股份有限公司, 北京 100190)

(2024 年 7 月 27 日收到; 2024 年 9 月 11 日收到修改稿)

基于密度泛函理论的第一性原理计算方法, 系统研究了单层 IrSCl 和 IrSI 材料的载流子输运特性. 声子谱计算无虚频, 表明材料结构稳定, 且分子动力学模拟验证了其在 300 K 下的热稳定性. 结果显示, 这两种材料均为间接带隙半导体, 且在不同泛函下的带隙计算结果分别为: 单层 IrSCl 在 PBE 和 HSE06 泛函下的带隙为 0.37 eV 和 1.58 eV, 单层 IrSI 的带隙为 0.23 eV 和 1.36 eV. 在双轴拉伸应变下, IrSCl 和 IrSI 的带隙逐渐减小. 在应变 6% 时, 带隙分别降至 0.05 eV 和 0.01 eV (PBE). 基于形变势理论预测, 室温下单层 IrSCl 和 IrSI 的最大载流子迁移率分别 $407.77 \text{ cm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$ 和 $202.64 \text{ cm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$. 同时, 基于玻尔兹曼输运方程的计算结果显示, 室温下单层 IrSCl 和 IrSI 的载流子迁移率最大值分别 $299.15 \text{ cm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$ 和 $286.41 \text{ cm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$. 这些结果表明, IrSCl 和 IrSI 单层材料在纳米电子器件领域具有潜在的应用价值.

关键词: 第一性原理计算, 迁移率, 二维材料

PACS: 72.10.-d, 72.20.Fr, 72.20.Jv

DOI: 10.7498/aps.73.20241044

CSTR: 32037.14.aps.73.20241044

1 引言

二维材料在微纳电子和光电器件制造中具有广泛应用前景. 自 2004 年首次成功合成石墨烯以来, 由于其高达 $10^6 \text{ cm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$ 的载流子迁移率, 引起了人们的广泛关注^[1]. 然而, 石墨烯零禁带宽度的特性限制了其应用. 在对石墨烯进行调整改进这项工作中, 人们尝试了很多种方法. Su 等^[2] 对石墨烯进行原子替换, 得到二维 BC_3 和 C_3N , 通过 GGA-PBE 泛函发现其带隙分别为 0.70 eV 和 0.41 eV. 进一步探究了其在 300 K 下的电子和空穴迁移率. BC_3 的电子迁移率为 $6.56 \times 10^2 \text{ cm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$, 空穴迁移率为 $9.60 \times 10^1 \text{ cm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$; C_3N 的电子迁移

率为 $8.54 \times 10^2 \text{ cm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$, 空穴迁移率为 $3.26 \times 10^3 \text{ cm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$. 虽然带隙被打开, 但载流子迁移率显著降低, 仍难以满足高性能器件的需求. 因此, 寻找具有高载流子迁移率的半导体材料成为研究重点. 例如, Qu 等^[3] 报道了同构型的二维 ZrNBr 不仅具有极高的载流子迁移率, 并在下一代高性能和低功耗 NMOS 和 PMOS 器件应用中表现出优异的性能. 此外, 作为第四代半导体材料的氧化镓, 其本征迁移率数值可达 $300 \text{ cm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$. Li 等^[4] 通过镓基液态金属掺杂铜的方式, 使用表面生长法制备了 P 型氧化镓, 并且打印设计了高功率同质结二极管. 在此基础上, 最近的研究还表明, 二维金属卤化物在超低功耗的新型 MOSFET 中同样具有巨大的应用潜力. Guo 等^[5] 研究了卤化硼烯

* 国家重点研发计划 (批准号 2021YFB3802100) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: qianping@ustb.edu.cn

(Br, $x = \text{F, Cl, Br}$) 在 5 nm 高性能 MOSFET 中的量子输运特性, 发现其高度各向异性的半导体电子结构可以在超缩尺度下实现优异的器件性能. Shi 等 [6] 对各向异性单层 GaS 的电子特性和输运性能进行了研究, 发现其在 10 nm 通道长度下的 p 型 FET 可实现高性能和低功耗的表现, 有望成为下一代高效 P 型通道材料.

Song 等 [7] 通过高通量筛选方法, 在替换 CrSBr 中发现得到了 340 多个 MXX' ($M = \text{Sc, Ti, V, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Cu, Zn, Y, Zr, Nb, Mo, Tc, Ru, Rh, Pd, Ag, Cd, Hf, Ta, W, Re, Os, Ir, Pt, Au}$; $X = \text{S, Se, Te}$; $X' = \text{F, Cl, Br, I}$) 化合物, 其中发现 45 种半导体, 并且在这些半导体中, 得到同时兼具好的热稳定性和较高的载流子迁移率的材料. 根据形变势理论 (DPT), 他们发现这些材料的载流子迁移率将近 $10^3 \text{ cm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$, 空穴在 y 方向的迁移率高达 $10^5 \text{ cm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$ (PBE 方法).

本文首先使用声子色散曲线和第一性原理分子动力学 (AIMD) 验证了材料在 300 K 下的稳定性. 利用形变势理论方法 [8-10], 通过计算单层 IrS 和 IrSe 的弹性模量、形变势和有效质量, 推导了其载流子迁移率. 进一步探索了双轴应变对 IrS 和 IrSe 能带宽度以及有效质量的影响 [11], 展示了应变工程在调控材料性能中的潜力. 最后, 基于玻尔兹曼方程精确计算了载流子迁移率, 发现迁移率结果与 DPT 结果在同一个数量级, 表明使用 DPT 计算迁移率具有一定参考价值.

2 计算方法

2.1 形变势模型

形变势模型是预测载流子迁移率的一种半经验模型. 这一模型最早由 Bardeen 和 Shockley 于 1950 年提出, 适用于各向同性的材料 [12], 对于各向异性二维材料, 迁移率公式修改为 [13]

$$\mu_x = \frac{e\hbar^3 C_x}{k_B T m_x^{*3/2} m_y^{*1/2} E_x^2}, \quad (1)$$

$$\mu_y = \frac{e\hbar^3 C_y}{k_B T m_x^{*3/2} m_y^{*1/2} E_y^2}, \quad (2)$$

式中 e 是电子电荷量; $\hbar$ 是约化普朗克常数; C_x , C_y 是弹性模量; k_B 是玻尔兹曼常数; T 是温度;

m^* 是有效质量; E 是形变势. 从 (1) 式可以看出, x 方向的迁移率仅与 x 方向的弹性模量和形变势有关. 实际上, 载流子会被声子往每个方向散射 [14], 如果考虑到弹性模量和形变势的各向异性, 则修正之后的迁移率公式为 [13,15]

$$\mu_x = \frac{e\hbar^3 \left(\frac{5C_x + 3C_y}{8} \right)}{k_B T m_x^{*3/2} m_y^{*1/2} \frac{9E_x^2 + 7E_x E_y + 4E_y^2}{20}}, \quad (3)$$

$$\mu_y = \frac{e\hbar^3 \left(\frac{5C_y + 3C_x}{8} \right)}{k_B T m_x^{*3/2} m_y^{*1/2} \frac{9E_y^2 + 7E_x E_y + 4E_x^2}{20}}. \quad (4)$$

在实际计算中, 二维材料的载流子迁移率可以简化为 [11]

$$\mu_{2D} = \frac{e\hbar^3 C_{2D}}{k_B T m_e^* m_d E_d^2}, \quad (5)$$

式中 m_e^* 是有效质量, 由公式 $m_e^* = \pm \hbar^2 \left(\frac{d^2 E_k}{dk^2} \right)^{-1}$ 可以得到, 其中 $\left(\frac{d^2 E_k}{dk^2} \right)$ 的值是通过能量 E_k 与倒易向量 $\mathbf{k}$ 二次拟合得到的. m_d 是平均有效质量, 由公式 $m_d = \sqrt{m_x^* m_y^*}$ 得到. 弹性模量 $C_{2D} = \frac{1}{S_0} \frac{\partial^2 (E - E_0)}{\partial \varepsilon^2}$, 其中 $E - E_0 = \Delta E$ 为总能量变化, ε 为单轴应变变量, S_0 是 x - y 平面的晶格面积. 可利用 E 的表达形式对弹性模量进行如下变形 [10,16]:

$$\Delta E = p \cdot \Delta V = pbh \Delta a = pbh (a_0 \Delta \varepsilon), \quad (6)$$

$$C_{2D} = \frac{1}{S_0} \frac{\partial^2 (E - E_0)}{\partial \varepsilon^2} = \frac{ab}{S_0} \cdot h \cdot \frac{\partial p}{\partial \varepsilon} = h \cdot \frac{\partial p}{\partial \varepsilon}, \quad (7)$$

式中 p 表示体系的压强; h 代表二维材料之间的真空层厚度; a 和 b 是二维材料的晶格常数; ΔV 代表体系的体积变化量; a_0 是初始状态下 a 方向的晶格常数; 应变 ε 定义为长度变化量与初始长度的比值, 即 $\varepsilon = l - l_0$, 其中 l 是变化后的长度, l_0 是初始长度; 形变势 $E_d = dE_{\text{edge}}/d\varepsilon$, 通过拟合能带边缘随形变一次函数得到. T 设置为 300 K.

2.2 解玻尔兹曼方程

玻尔兹曼输运方程 (BTE) 描述了载流子分布函数 f_{nk} 的时间演化. 从电场漂移并从晶格散射的载流子将倾向于偏离其平衡状态 (f_{nk}^0). 在稳定状态下, BTE 可以简化为如下公式 [17-19]:

$$\left(\frac{\partial f_{nk}}{\partial t}\right)_{\text{drift}} + \left(\frac{\partial f_{nk}}{\partial t}\right)_{\text{scatt}} = 0, \quad (8)$$

式中漂移项可以写为 $\left(\frac{\partial f_{nk}}{\partial t}\right)_{\text{drift}} = \frac{e}{\hbar} E \cdot \nabla_k f_{nk}$, 其中 E 表示电场. 散射项可以表示为 $\left(\frac{\partial f_{nk}}{\partial t}\right)_{\text{scatt}} = -\frac{f_{nk} - f_{nk}^0}{\tau_{nk}}$. 载流子迁移率可用下式计算 [20]:

$$\mu_\alpha = -\frac{2}{nN_k\Omega} \sum_{nk} \nu_{nk,\alpha} \partial f_{nk} / \partial E_\alpha, \quad (9)$$

式中, n 是载流子浓度, nk 表示第一布里渊区中 k 网格的数量, Ω 是单位晶胞的体积. 分布函数对电场的导数由下式给出:

$$\begin{aligned} \frac{\partial f_{nk}}{\partial E_\alpha} = & e \frac{\partial f_{nk}^0}{\partial \varepsilon_{nk}} \nu_{nk,\alpha} \tau_{nk} + \frac{2\pi\tau_{nk}}{\hbar N_q} \sum_{q\lambda m} |g_{mn\lambda}(k, q)|^2 \\ & \times [(n_{-q\lambda} + f_{nk}^0) \delta(\varepsilon_{nk} - \hbar\omega_{q\lambda} - \varepsilon_{mk+q}) \\ & + (1 + n_{q\lambda} - f_{nk}^0) \delta(\varepsilon_{nk} + \hbar\omega_{q\lambda} - \varepsilon_{mk+q})] \frac{\partial f_{mk+q}}{\partial E_\alpha}, \end{aligned} \quad (10)$$

式中 $\nu_{nk} = \hbar^{-1} \partial \varepsilon_{nk} / \partial k$ 是能量 ε_{nk} 下的电子速度; $1/\tau_{nk}$ 表示由声子散射引起的跃迁概率; $\hbar\omega_{q\lambda}$ 是 λ 模式的声子能量; q 网格是指在布里渊区内用来计算电声耦合矩阵元的一组离散 k 点, N_q 是第一布里渊区中 q 网格的数量; $n_{\pm q\lambda}$ 是由玻色-爱因斯坦分布确定的声子的平均数量, $+/-$ 表示声子的吸收/发射; $g_{mn\lambda}(k, q)$ 表示载流子通过模式为 λ 的声子从 nk 态到 m 态的跃迁概率, 可分为短程 (S) 和长程 (L) 部分 [21,22]. 在方程 (10) 中, $\frac{\partial f_{mk+q}}{\partial E_\alpha}$ 必须通过迭代方法求解, 也称为迭代玻尔兹曼输运方程 (IBTE). 如果弛豫时间取 Fan-Migdal 电子自能的虚部, 通过 $\frac{1}{\tau_{nk}} = 2\text{Im} \sum_{nk}^{FM}$, 则由自能弛豫时间近似 (SERTA) 得到的迁移率表达式可以描述为 [23]

$$\mu_\alpha = -\frac{2}{nN_k\Omega} \sum_{nk} \frac{\partial f_{nk}^0}{\partial \varepsilon_{nk}} \nu_{nk,\alpha}^2 \tau_{nk}. \quad (11)$$

3 结果和讨论

3.1 结构优化和弛豫

首先对结构进行优化计算, 使用 Norm-conserving (NC) 赝势 [24] 和 Perdew-Burke-Ernzerhof (GGA-PBE) 交换关联泛函 [25] 在 quantum espresso 软件 [26] 中进行. 设置平面波截断能为 70 Ry, 电荷

密度截断能为 280 Ry. 布里渊区采用 $8 \times 6 \times 1$ 的 k 点网格. 图 1(a) 给出了单层的 IrSCl 的晶胞结构, 由两个 Ir 原子、两个 S 原子和两个 Cl 原子组成. 将 x 轴定义为水平向右, y 轴定义为垂直向上. 在 z 轴方向设置 20 Å 的真空层以避免层间相互作用. 原子完全弛豫至每个原子上的力小于 10^{-3} Ry/Bohr. 计算得到单层 IrSCl 的晶格常数为 $a = 3.56$ Å, $b = 4.66$ Å, 与之前 Song 等 [7] 报道的结果一致. 图 1(b) 显示了单层 IrSI 的晶胞结构, 由两个 Ir 原子、两个 S 原子和两个 I 原子组成. 坐标轴和计算参数定义同上. 计算得到单层 IrSI 的晶格常数为 $a = 3.75$ Å, $b = 4.46$ Å, 与之前报道的结果一致 [7]. 布里渊区的高对称点选取 $\Gamma(0, 0)$, $X(0.50, 0)$, $M(0.50, 0.50)$, $Y(0, 0.50)$. 在此基础上, 使用密度泛函理论计算声子谱, 考虑了极化效应和自旋轨道耦合效应 [27]. 利用 Wannier 插值方法计算了电子-声子耦合矩阵元, 从而得到单层 IrSCl 和 IrSI 的载流子迁移率 [28].

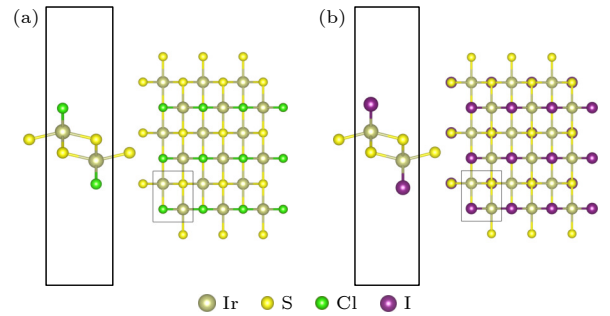


图 1 (a) 单层 IrSCl 的晶胞结构. 其中黄色原子表示 S, 金黄色原子表示 Ir, 绿色原子表示 Cl; (b) 单层 IrSI 的晶胞结构, 在该结构中, 黄色原子同样表示 S, 金黄色原子同样表示 Ir, 紫色原子表示 I. 将水平方向定义为 x 轴正方向, 垂直方向定义为 y 轴正方向

Fig. 1. (a) Unit cell structure of monolayer IrSCl, where the yellow atoms denote sulfur (S), the golden yellow atoms denote iridium (Ir), and the green atoms denote chlorine (Cl); (b) the unit cell structure of monolayer IrSI, with the yellow atoms again representing sulfur (S), the golden yellow atoms representing iridium (Ir), and the purple atoms representing iodine (I). In both figures, the horizontal direction is defined as the positive x -axis, and the vertical direction is defined as the positive y -axis.

3.2 稳定性验证

为了研究 IrSCl 和 IrSI 化合物的热稳定性, 本工作首先对两种化合物的弛豫后结构进行了分子动力学模拟. 模拟温度设为 300 K, 总步数为

5000 步, 时间步长为 1 fs, 截断能设为 500 eV, 收敛精度设置为 10^{-4} eV. 图 2(a) 和图 2(b) 显示, 在 5 ps 内, 两种化合物的总能量波动在 5 eV 范围内, 趋于稳定状态, 未出现大幅度能量变化. 图 2(c) 和图 2(d) 分别展示了 IrSCl 和 IrSI 在模拟的 1.25, 2.5, 3.75 和 5 ps 时刻的原子构型. 可以看出, 在 5 ps 时间内, 每个原子仅在其原位置附近振动, 未发生明显的原子重排, 表明在 300 K 下 IrSCl 和 IrSI 均具有良好的热稳定性. 上述分子动力学模拟结果证实, 在常温条件下, IrSCl 和 IrSI 化合物的原子结构具有热力学稳定性.

3.3 双轴应变下有效质量调控

基于 GGA-PBE 泛函理论, 本文探讨了单层 IrSCl 和 IrSI 在双轴应变作用下的能带结构变化, 具体结果如图 3 所示. 两种材料均为间接带隙半导

体, 价带顶 (VBM) 位于 Γ 点, 导带底 (CBM) 位于 Γ 点与 X 点之间, 且导带中存在一个与导带底相近的次级导带底 (CBM'). 在无应变条件下, GGA-PBE 计算得到 IrSCl 和 IrSI 的禁带宽度分别为 0.37 eV 和 0.23 eV, 与文献报道的值 (0.3 eV 和 0.2 eV) 符合较好^[7]. 由于 GGA-PBE 泛函通常低估半导体的禁带宽度, 因此这里进一步采用 HSE06 泛函对能带间隙进行了修正. 图 4 给出了基于 HSE06 泛函计算的 IrSCl 和 IrSI 的能带结构. 修正后, IrSCl 的能带间隙为 1.58 eV, IrSI 为 1.36 eV. HSE06 计算结果表明, 两种材料的能带间隙均大于 1 eV, 显示出在下一代电子器件中潜在的应用前景, 更符合实验结果和实际应用的需求.

在双轴应变作用下, IrSCl 和 IrSI 的禁带宽度随应变增大而逐渐减小. 对于 IrSCl, 当应变为 2%, 4% 和 6% 时, 禁带宽度分别降至 0.25, 0.14

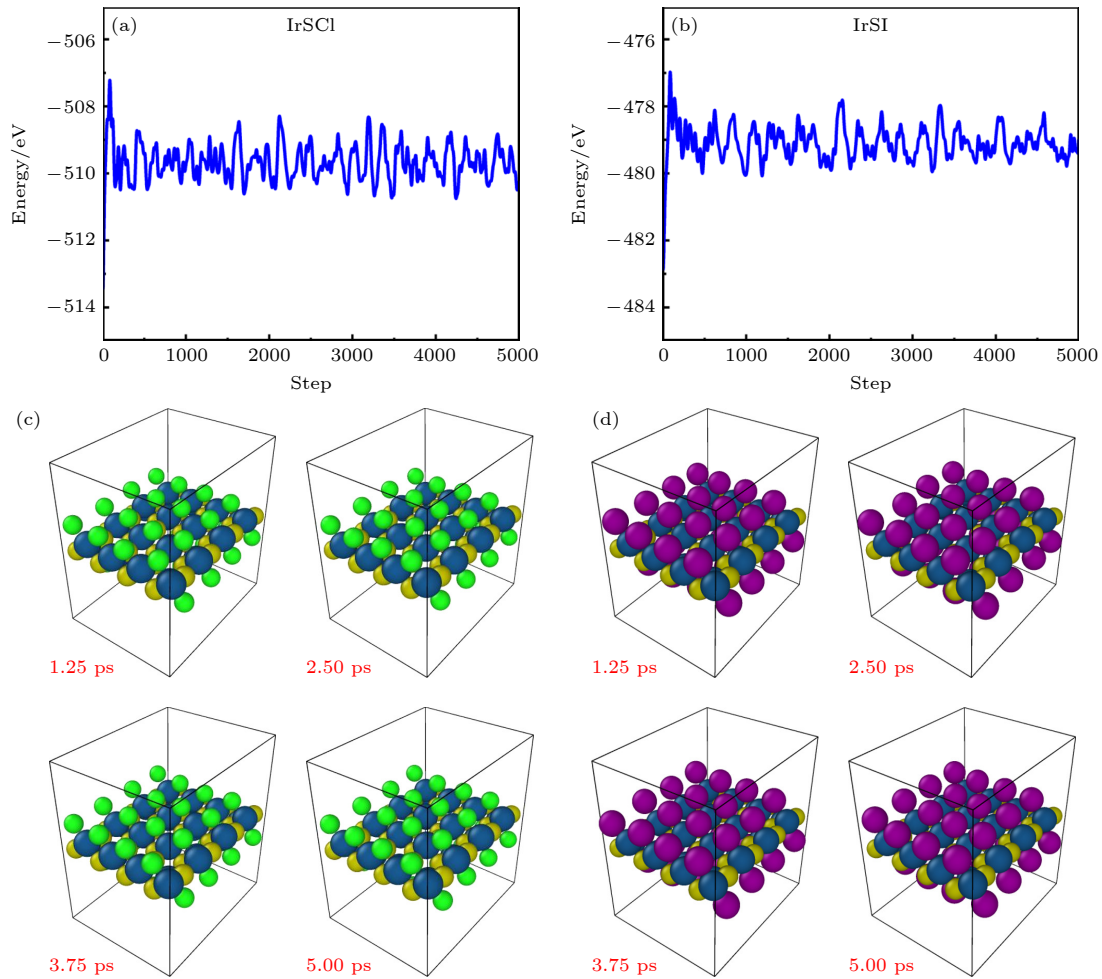


图 2 (a) IrSCl 的 AIMD 结果; (b) IrSI 的 AIMD 结果; (c), (d) IrSCl 和 IrSI 在第 1.25, 2.50, 3.75 和 5.00 ps 时的结构状态

Fig. 2. (a) The AIMD results for IrSCl; (b) the AIMD results for IrSI; (c), (d) the structural states of IrSCl and IrSI at 1.25, 2.50, 3.75 and 5.00 ps.

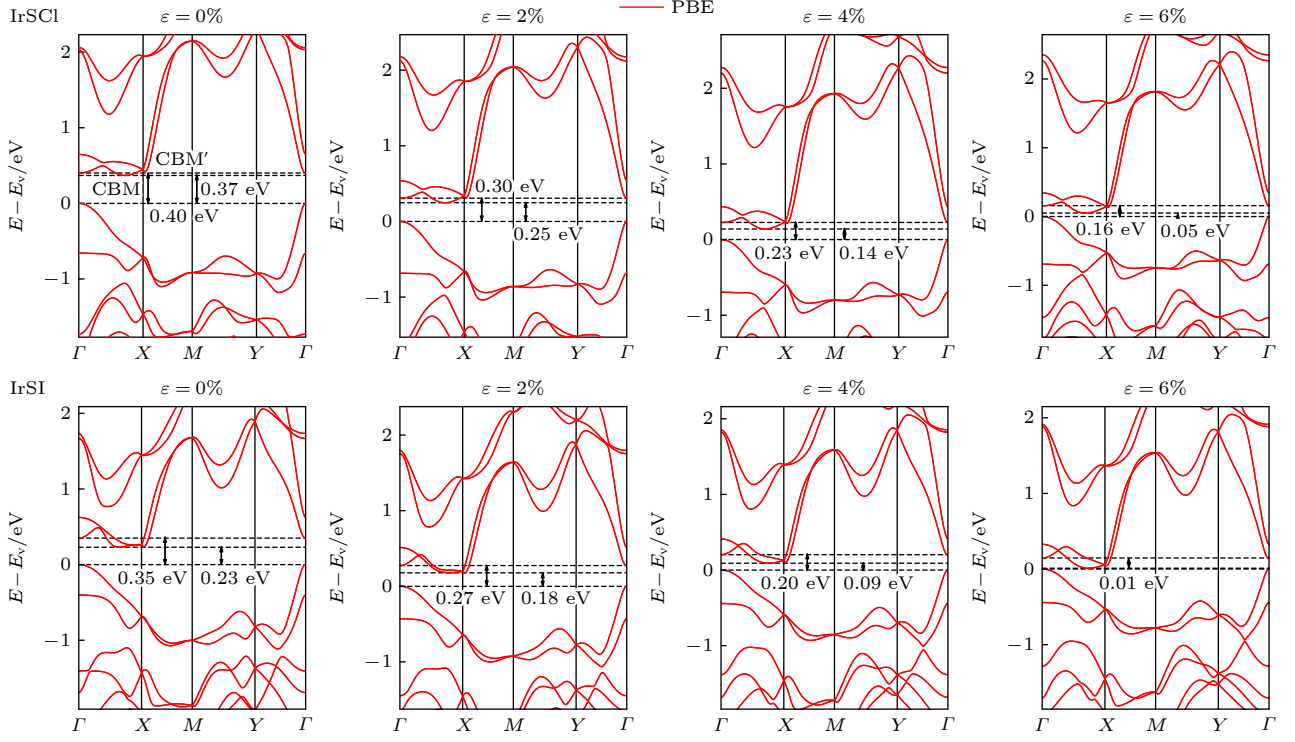


图 3 双轴拉伸下的能带结构图, 其中上面四幅图为 IrSCl, 下边四幅图为 IrSI, 应变范围为 0%—10%, 间隔为 2%

Fig. 3. Band structure under biaxial tensile strain. The top four panels are for IrSCl, and the bottom four panels are for IrSI, with strain ranging from 0% to 10% in 2% intervals.

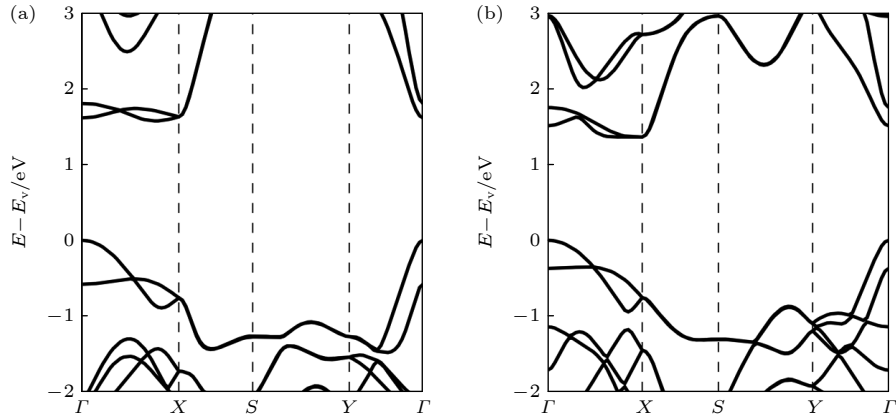


图 4 基于 HSE06 泛函计算的 IrSCl 和 IrSI 能带图 (a) IrSCl; (b) IrSI

Fig. 4. Band structure of IrSCl and IrSI based on HSE06 functional calculations: (a) IrSCl; (b) IrSI.

和 0.05 eV; 而对于 IrSI, 禁带宽度相应为 0.18, 0.09 和 0.01 eV. 结果表明, 双轴应变显著改变了 IrSCl 和 IrSI 的电子结构特性.

为了准确计算载流子有效质量, 本文通过对价带顶和导带底附近数据进行高密度采样的方法来进行计算. 根据有效质量公式 $m^* = \left(\hbar^2 / \frac{\partial^2 E}{\partial k^2} \right)$, 价带顶和导带底附近的数据可以拟合为 $E = Ak^2 + Bk + C$, 进而得到 $m^* = (\hbar^2 / 2A)$, A 为二次拟合的二次项系数. 可以计算 IrSCl 和 IrSI 在不同应变

条件下载流子的有效质量. 在无应变情况下, 二维 IrSCl 的价带顶空穴有效质量分为 $m_x = 1.839m_e$ 和 $m_y = 0.232m_e$; 导带底电子的有效质量为 $m = 2.081m_e$, 次级导带底电子的有效质量为 $m_x = 3.300m_e$ 和 $m_y = 0.179m_e$. 对于二维的 IrSI, VBM 空穴的有效质量为 $m_x = 2.295m_e$ 和 $m_y = 0.244m_e$; CBM' 电子的有效质量为 $m_x = 1.337m_e$ 和 $m_y = 0.238m_e$. 随着双轴应变的增加, IrSCl 中除 $m_{x,h}$ 外, 其他有效质量均有所增加. 在 $\varepsilon = 6\%$ 时, 分别

上升为 $m_{x,e} = 3.861m_e$, $m_{y,h} = 0.379m_e$, $m_{y,e} = 0.196m_e$. 而 IrSI 中, $m_{x,h}$ 和 $m_{y,e}$ 有效质量下降, $m_{x,e}$ 和 $m_{y,h}$ 有效质量上升, 在 $\varepsilon = 6\%$ 时分别为 $m_x = 2.134m_e$, $m_y = 0.205m_e$, $m_x = 1.512m_e$ 和 $m_y = 0.300m_e$. 不同应变下的有效质量列于表 1. 根据有效质量与迁移率的关系, 随着有效质量的增大, 载流子迁移率大概率呈现下降趋势. 综合考虑有效质量变化规律, 本文只计算了两种材料在原长条件下

表 1 双轴应变下 IrSbI 和 IrSI 的有效质量, 电子有效质量计算的是次级导带底的位置, 空穴有效质量计算的是价带顶位置

Table 1. Effective masses of IrSbI and IrSI under biaxial strain. The effective mass of electrons is at the CBM' point, and the effective mass of holes is at the VBM point.

	$\Delta\varepsilon$	$m_{x,h}(m_e)$	$m_{x,e}(m_e)$	$m_{y,h}(m_e)$	$m_{y,e}(m_e)$
IrSbI	0%	1.839	3.300	0.232	0.179
	2%	1.781	3.470	0.223	0.181
	4%	1.761	3.690	0.304	0.187
	6%	1.785	3.861	0.379	0.196
IrSI	0%	2.295	1.337	0.244	0.238
	2%	2.187	1.397	0.260	0.224
	4%	2.126	1.452	0.279	0.215
	6%	2.134	1.512	0.300	0.205

的迁移率. 上述计算结果表明, 双轴应变能显著调控二维 IrSbI 和 IrSI 的能带间隙.

3.4 形变势模型计算迁移率

根据形变势模型: $\mu_{2D} = \frac{e\hbar^3 C_{2D}}{k_B T m_e^* m_d E_d^2}$. 想要通过公式计算二维材料载流子迁移率, 首先需要知道该材料的形变势、弹性模量等参数. 本文通过对 IrSbI 和 IrSI 施加单轴微小应变, 获得了能带边缘随应变的变化关系, 应变范围设置为 $-0.2\% \sim 0.2\%$, 间隔为 0.1% , 具体结果如图 5 所示, 通过线性拟合的斜率得到形变势. 弹性模量可由 $C_{2D} = \hbar \frac{\partial p}{\partial \varepsilon}$ 得到. 对于 IrSbI 材料, 电子沿 x 方向和 y 方向的形变势分别为 2.93 eV 和 14.4 eV, 空穴沿 x 方向和 y 方向的形变势分别为 3.48 eV 和 7.6 eV; 弹性模量方面, x 方向和 y 方向的值分别为 114.6 J/m² 和 167.2 J/m². 对于 IrSI 材料, 导电电子沿 x 方向和 y 方向的形变势分别为 7.14 eV 和 13.66 eV, 空穴沿 x 方向和 y 方向的形变势分别为 4.86 eV 和 10.02 eV. 弹性模量方面, x 方向和 y 方向的值分别为 90 J/m² 和 173.8 J/m². 将以上参数代入形变势模型, 可以计算出二维材料的载流子迁移率. 这些结果对理解

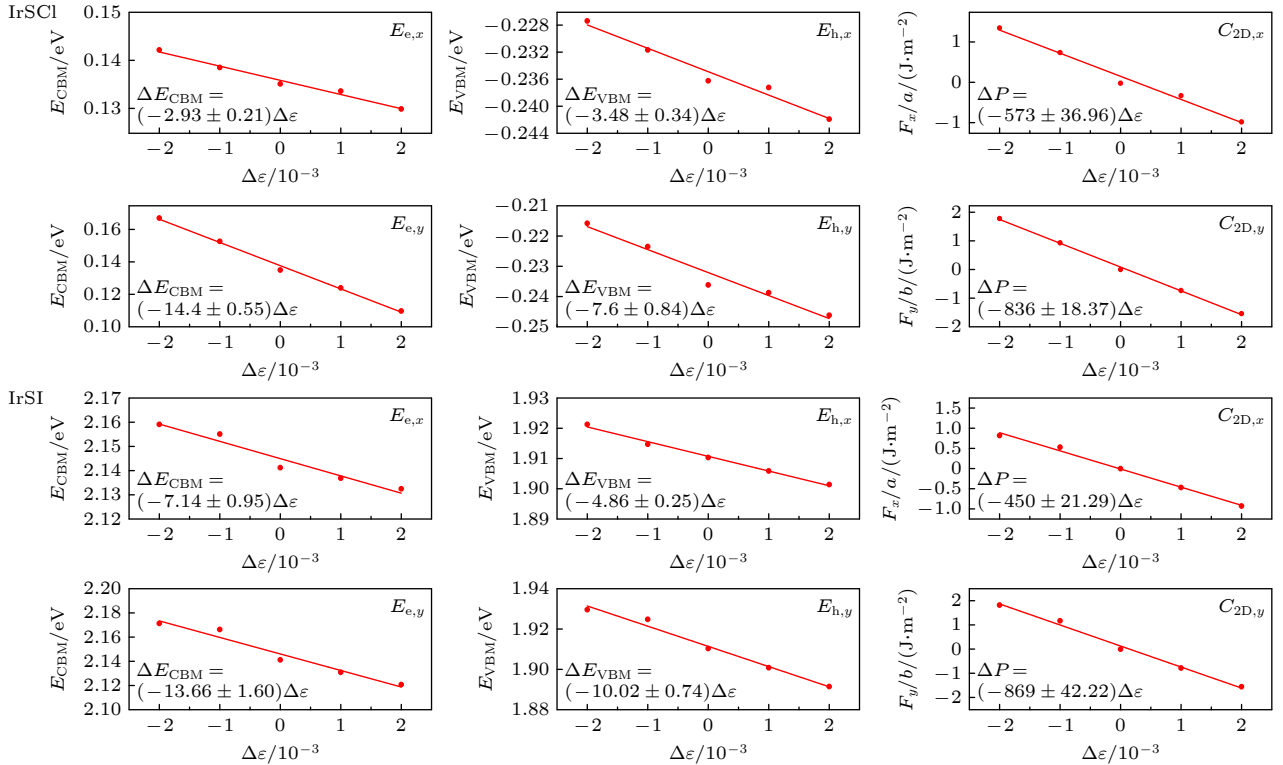


图 5 IrSbI 和 IrSI 形变势和弹性模量拟合

Fig. 5. Fitting of deformation potential (DPT) and elastic modulus for IrSbI and IrSI.

二维材料的电子输运性质和器件应用具有重要意义.

根据形变势模型的计算结果, 得到单层 IrSCl 和 IrSI 的载流子迁移率如表 2 所列. 由于次级导带底与导带底之间能量值相近, 且从能带图 (图 3) 的变化趋势来看, 次级导带底附近的有效质量明显更小, 因此本文仅计算了该部分的迁移率, 以评估迁移率上限值. 对于 IrSCl 材料, 其 x 方向和 y 方向的值分别为 $112.84 \text{ cm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$ 和 $161.88 \text{ cm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$. 空穴迁移率由 VBM 决定, x 方向和 y 方向的值分别为 $168.50 \text{ cm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$ 和 $407.77 \text{ cm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$. 对于 IrSI 材料, 电子迁移率由 CBM' 决定, 其 x 方向和 y 方向的值分别为 $50.14 \text{ cm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$ 和 $148.90 \text{ cm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$. 空穴迁移率由 VBM 决定, x 方向和 y 方向的值分别为 $47.49 \text{ cm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$ 和 $202.64 \text{ cm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$. 可以看出, 这两种二维材料均存在各向异性, y 方向上的载流子迁移率明显大于 x 方向.

3.5 电声耦合矩阵元计算迁移率

尽管形变势模型是一种广泛应用的半经验预测半导体材料性质的方法, 但其中不可避免存在一定的误差. 相比之下, 基于玻尔兹曼输运理论计算电子-声子耦合矩阵元的方法, 能够更加直接和准确地预测材料的载流子迁移率. 为了节省计算时间并获得可靠的结果, 本文采用 Wannier 函数插值

方法, 精确计算了所有电声耦合矩阵元, 并通过玻尔兹曼输运方程计算单层 IrSCl 和 IrSI 的载流子迁移率.

为确保计算的精确性, 采用精细的 k 点网格 ($16 \times 8 \times 1$) 和 q 点网格 ($8 \times 6 \times 1$). 首先, 将基于 Wannier 插值方法计算得到的能带结构和声子色散与 DFT 结果进行对比, 结果如图 6 所示. 可以发现, 两种方法所得的能带图和声子色散基本一致, 验证了计算的可靠性. 从声子谱中也可以看出, 该二维材料具有稳定的晶体结构.

随后, 以 IrSCl 为例进行了 Wannier 插值深度的测试, 结果如图 7(a) 所示. 对于插值深度的测试, 选取了 $0.2\text{--}0.6 \text{ eV}$ 的范围, 步长为 0.1 eV . 可以发现, 在进入深度为 0.4 eV 及以上时, 计算结果趋于稳定. 接下来测试了不同的插值密度, 范围从 70×70 到 110×110 , 步长为 10×10 , 如图 7(b) 所示. 结果表明, 在该范围内误差基在 1% 以内. 因此, 本文最终选择的能量深度为 0.4 eV , 插值密度设置为 100×100 .

基于玻尔兹曼输运方程, 计算了单层 IrSCl 和 IrSI 在 300 K 下的载流子迁移率, 结果如表 3 所列. 对于 IrSCl, 电子的迁移率为 $\mu_{e,x} = 7.57 \text{ cm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$, $\mu_{e,y} = 141.39 \text{ cm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$, 空穴的迁移率为 $\mu_{h,x} = 26.20 \text{ cm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$, $\mu_{h,y} = 299.44 \text{ cm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$.

表 2 基于形变势理论计算单层 IrSCl 和 IrSI 的弹性模量 (J/m^2)、形变势 (eV) 和载流子迁移率 ($\text{cm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$)

Table 2. Based on the deformation potential theory, the elastic modulus (J/m^2), deformation potential (eV), and carrier mobility ($\text{cm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$) of monolayer IrSCl and IrSI were calculated.

	$C_{2D,x}$	$C_{2D,y}$	$E_{h,x}$	$E_{e,x}$	$E_{h,y}$	$E_{e,y}$	$\mu_{h,x}$	$\mu_{e,x}$	$\mu_{h,y}$	$\mu_{e,y}$
IrSCl	114.6	167.2	3.48	2.93	7.6	14.4	168.5	112.84	407.77	161.88
IrSI	90	173.8	4.86	7.14	10.02	13.66	47.49	50.14	202.64	148.9

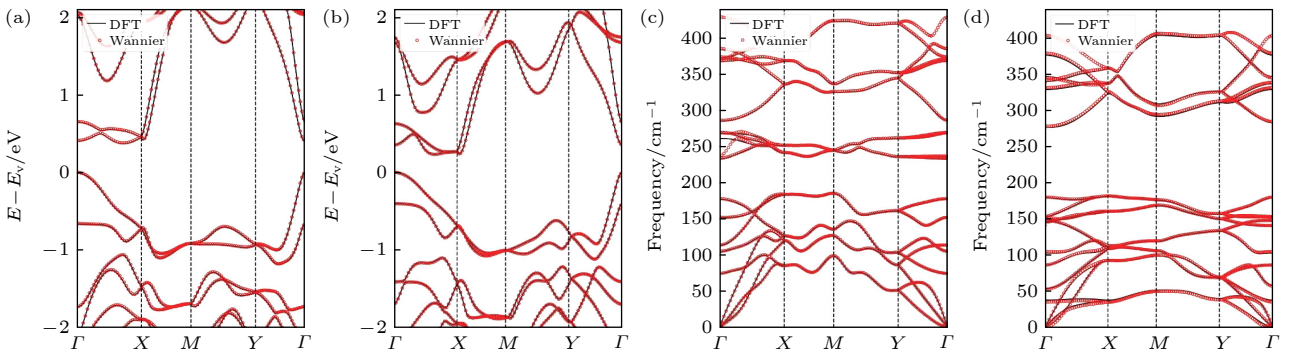


图 6 (a) IrSCl 能带插值前后对比; (b) IrSI 能带插值前后对比; (c) 声子谱 IrSCl 插值前后对比; (d) IrSI 声子谱插值前后对比

Fig. 6. (a) Comparison before and after band interpolation of IrSCl; (b) comparison before and after band interpolation of IrSI; (c) comparison before and after phonon spectrum interpolation of IrSCl; (d) comparison before and after phonon spectrum interpolation of IrSI.

而对于 IrSI, 电子的迁移率为 $\mu_{e,x} = 8.44 \text{ cm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$, $\mu_{e,y} = 94.75 \text{ cm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$, 空穴的迁移率为 $\mu_{h,x} = 8.44 \text{ cm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$, $\mu_{h,y} = 94.75 \text{ cm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$. 同时, 探究了在 200—600 K 不同温度下两种材料的载流子迁移率, 结果如图 8 所示. 可以看出, 随着温度的升高, 迁移率逐渐下降. 这两种材料在 y 方向上的迁移率明显高于 x 方向, 差别达到一个数量级, 可能的原因是 y 方向的有效质量远大于

x 方向的有效质量.

4 结 论

本文基于密度泛函理论, 系统地研究了单层 IrSCl 和 IrSI 的载流子迁移率. 在计算迁移率前, 首先验证了二维材料 IrSCl 和 IrSI 的稳定性. 通过计算两种材料的声子色散关系, 发现得到的声子频率

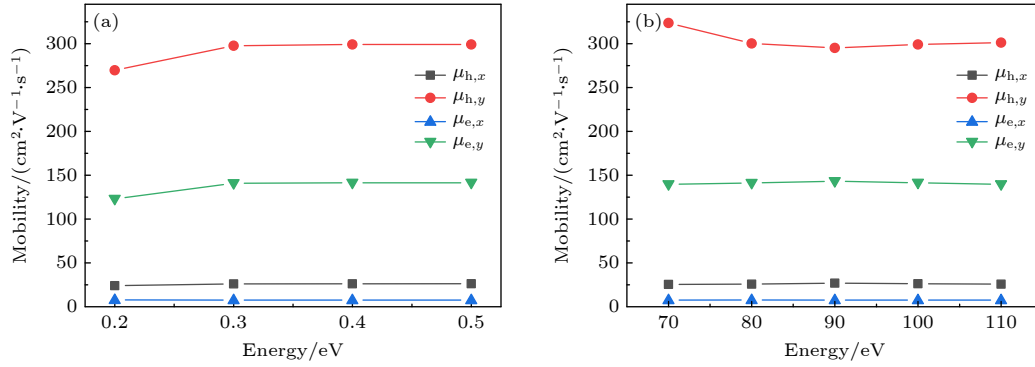


图 7 (a) Wannier 插值深度测试; (b) Wannier 插值密度测试

Fig. 7. (a) Testing the depth of Wannier function interpolation; (b) testing the density of Wannier function interpolation.

表 3 基于玻尔兹曼输运方程计算得到的不同温度下单层 IrSCl 和 IrSI 的载流子迁移率

Table 3. Calculated temperature-dependent carrier mobilities of monolayer IrSCl and IrSI by using the Boltzmann transport equation.

Temperature/K	IrSCl				IrSI			
	$\mu_{h,x}$	$\mu_{h,y}$	$\mu_{e,x}$	$\mu_{e,y}$	$\mu_{h,x}$	$\mu_{h,y}$	$\mu_{e,x}$	$\mu_{e,y}$
200	49.41	520.94	18.70	244.38	36.11	354.48	11.48	125.45
250	33.86	372.70	11.29	176.83	29.55	313.42	9.59	106.41
300	26.20	299.15	7.57	141.39	25.44	286.41	8.44	94.75
350	21.80	257.10	5.44	119.99	22.58	266.34	8.63	86.15
400	18.98	230.42	4.09	105.65	20.44	250.04	6.99	79.58
450	17.00	211.99	3.18	95.26	18.73	235.97	6.45	73.77
500	15.51	198.26	2.54	87.28	17.32	223.31	5.98	68.61
550	14.34	187.32	2.07	80.89	16.11	211.64	5.56	63.96
600	13.36	178.08	1.72	75.61	15.05	200.68	5.18	59.72

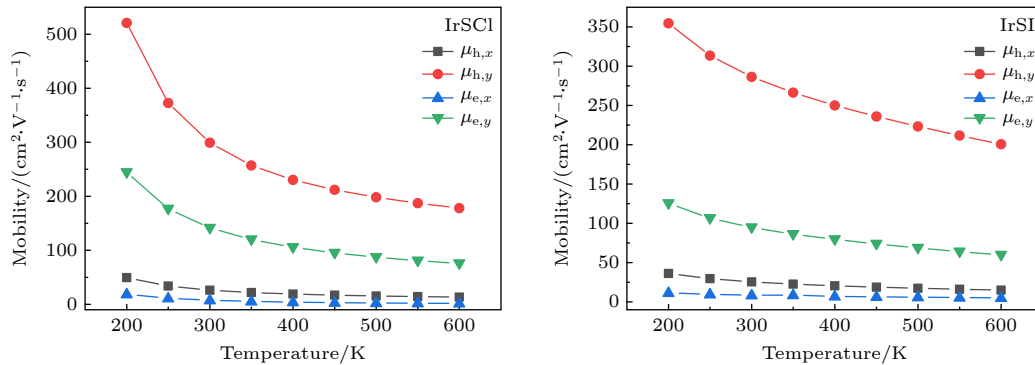


图 8 基于玻尔兹曼输运方程计算得到的不同温度下单层 IrSCl 和 IrSI 的载流子迁移率

Fig. 8. Calculated temperature-dependent carrier mobilities of monolayer IrSCl and IrSI by using the Boltzmann transport equation.

均大于 0, 证明材料在 0 K 下是稳定存在的. AIMD 模拟结果表明, 在 5 ps 内, 两种化合物的总能量波动在 5 eV 范围内, 未出现大幅能量变化并且每个原子仅在其原位置附近振动, 未发生明显的原子重排, 表明在 300 K 下 IrSCl 和 IrSI 均具有良好的热稳定性. 通过能带结构的计算, 发现 IrSCl 有着 0.37 eV 的禁带宽度, IrSI 有着 0.23 eV 的禁带宽度, 均为半导体材料. 通过双轴应变, 发现随着应变的增加, 能带间隙逐渐减小. 通过形变势理论模型计算了 IrSCl 和 IrSI 的载流子迁移率, IrSCl 在 x 方向和 y 方向的电子迁移率分别为 $112.84 \text{ cm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$ 和 $161.88 \text{ cm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$; x 方向和 y 方向的空穴迁移率分别为 $168.50 \text{ cm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$ 和 $407.77 \text{ cm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$. 对于 IrSI, x 方向和 y 方向的电子迁移率分别为 $50.14 \text{ cm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$ 和 $148.90 \text{ cm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$; x 方向和 y 方向的空穴迁移率分别为 $47.49 \text{ cm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$ 和 $202.64 \text{ cm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$. 从结果来看, y 方向的迁移率远大于 x 方向, 说明两种材料存在明显的各向异性. 接着通过求解电声耦合矩阵元的方法计算了 IrSCl 和 IrSI 的本征迁移率, 并探究了不同温度下载流子迁移率的变化. 在 300 K 时, 对于 IrSCl, $\mu_{e,x} = 7.57 \text{ cm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$, $\mu_{e,y} = 141.39 \text{ cm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$, $\mu_{h,x} = 26.20 \text{ cm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$, $\mu_{h,y} = 299.44 \text{ cm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$; 对于 IrSI, $\mu_{e,x} = 8.44 \text{ cm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$, $\mu_{e,y} = 94.75 \text{ cm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$, $\mu_{h,x} = 25.44 \text{ cm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$, $\mu_{h,y} = 266.34 \text{ cm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$. 根据本文研究发现, 二维 IrSCl 和 IrSI 在 300 K 下表现出良好的热稳定性, 并且具有较高的载流子迁移率及较为合适的能带宽度, 有望成为电子器件候选材料.

参考文献

- [1] Feng L P, Li A, Wang P C, Liu Z T 2018 *J. Phys. Chem. C* **42** 122
- [2] Su Y, Cao S, Shi L B, Qian P 2020 *Appl. Surf. Sci.* **531** 147341
- [3] Qu H Z, Zhang S L, Zhou W H, Guo S Y, Zeng H B 2020 *IEEE Electron Device Lett.* **41** 1029
- [4] Li Q, Du B D, Gao J Y, Liu J 2023 *Appl. Phys. Rev.* **10** 011402
- [5] Guo S Y, Wang Y, Qu H Z, Zhou W H, Ang Y S, Zhang S L, Zeng H B 2024 *Phys. Rev. Appl.* **21** 054016
- [6] Shi H, Yang S Y, Wang H P, Ding D P, Hu Y, Qu H Z, Chen C Y, Hu X M, Zhang S L 2024 *ACS Appl. Mater. Interfaces* **16** 39592
- [7] Song Y, Pan J B, Zhang Y F, Yang H T, Du S X 2021 *J. Phys. Chem. Lett.* **12** 6007
- [8] Whitfield G, Shaw P B 1980 *Phys. Rev. B* **21** 4349
- [9] Zunger A 2019 *Nature* **566** 447
- [10] Göser O, Paul W, Kahle H G 1990 *J. Magn. Magn. Mater.* **92** 129
- [11] Fei R X, Yang L 2014 *Nano Lett.* **14** 2884
- [12] Qiao J S, Kong X H, Hu Z X, Yang F, Ji W 2014 *Nat. Commun.* **5** 4475
- [13] Lang H F, Zhang S Q, Liu Z R 2016 *Phys. Rev. B* **94** 235306
- [14] Generazio E R, Spector H N 1979 *Phys. Rev. B* **20** 5162
- [15] Shi L B, Zhang Y Y, Xiu X M, Dong H K 2018 *Carbon* **134** 103
- [16] Zhang Y J, Cao S, Wang Y Z, Jian X D, Shi L B, Qian P 2021 *Phys. Lett. A* **401** 127340
- [17] Poncé S, Jena D, Giustino F 2019 *Phys. Rev. B* **100** 085204
- [18] Poncé S, Jena D, Giustino F 2019 *Phys. Rev. Lett.* **123** 096602
- [19] Poncé S, Li W, Reichardt S, Giustino F 2020 *Rep. Prog. Phys.* **83** 036501
- [20] Alidoosty-Shahraki M, Bashirpour M 2020 *IEEE Trans. Electron Devices* **67** 3459
- [21] Shi L B, Cao S, Yang M, You Q, Zhang K C, Bao Y, Zhang Y J, Niu Y Y, Qian P 2019 *J. Phys.: Condens. Matter* **32** 065306
- [22] Su Y, Li N, Shi L B, Wang L Z, Qian P 2022 *Comput. Mater. Sci.* **213** 111609
- [23] Wang X Y, Zhang H M, Song J J, Ma J L, Wang G Y, An J H 2011 *Acta Phys. Sin.* **60** 077205 (in Chinese) [王晓艳, 张鹤鸣, 宋建军, 马建立, 王冠宇, 安久华 2011 物理学报 **60** 077205]
- [24] Hamann D, Schlüter M, Chiang C 1979 *Phys. Rev. Lett.* **43** 1494
- [25] Perdew J, Burke K, Ernzerhof M 1996 *Phys. Rev. Lett.* **77** 3865
- [26] Baroni S, Giannozzi P 2009 *AGU Fall Meet. Abstr.* **21** 395502
- [27] Itvinov I V 2006 *Appl. Phys. Lett.* **89** 43
- [28] Noffsinger J, Giustino F, Malone B D, Park C H, Louie S G, Cohen M L 2010 *Comput. Phys. Commun.* **181** 2140

First-principles calculations of carrier mobility in monolayer IrSCl and IrSI*

Zhang Lei ¹⁾²⁾ Chen Qi-Hang ¹⁾ Cao Shuo ¹⁾ Qian Ping ^{1)†}

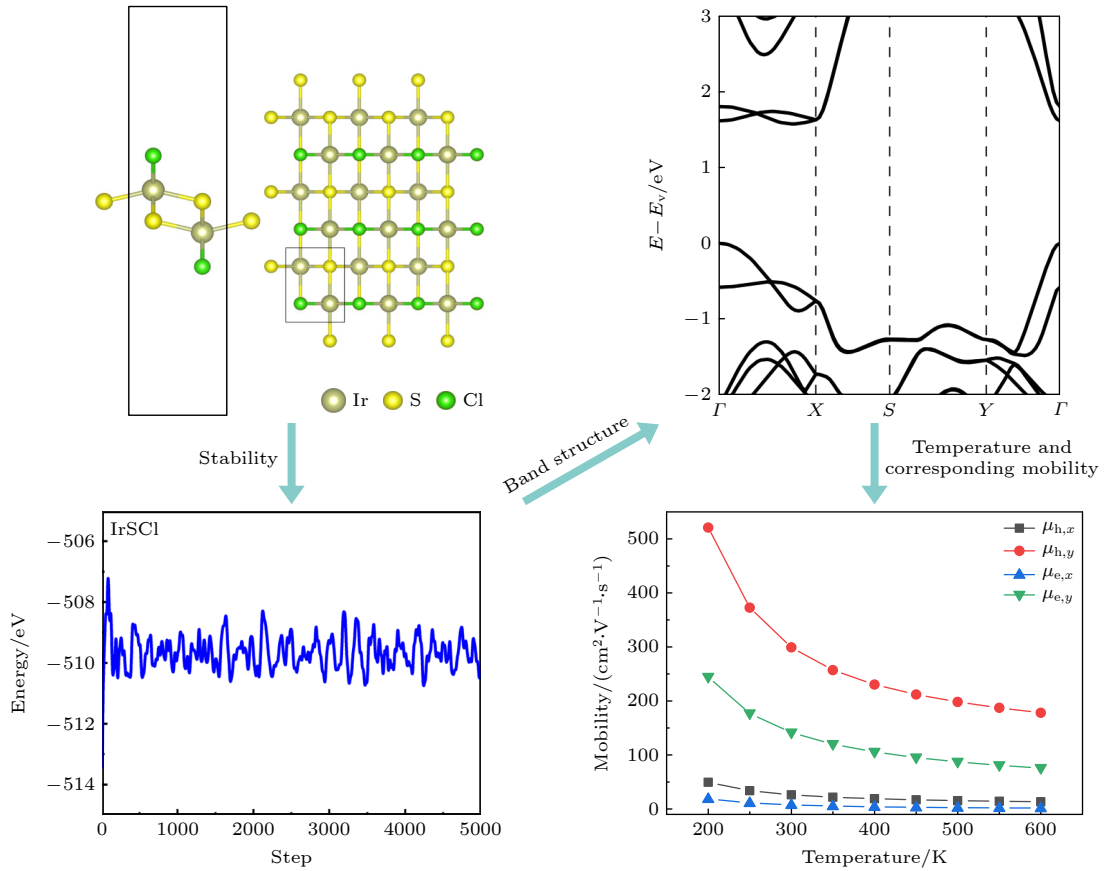
¹⁾ (*Beijing High Precision Center, University of Science and Technology Beijing, Beijing 100083, China*)

²⁾ (*Sinsoft Company Limited, Beijing 100190, China*)

(Received 27 July 2024; revised manuscript received 11 September 2024)

Abstract

Carrier mobility is a key parameter determining the response speed of charge carriers to electric fields in nanoelectronic devices. This study aims to investigate the charge carrier transport properties of monolayer IrSCl and IrSI. Using first-principles calculations based on density functional theory, we systematically investigate the electronic structure and transport properties of monolayer IrSCl and IrSI. The phonon dispersion calculations indicate that both IrSCl and IrSI exhibit no imaginary frequencies, confirming their structural stability. Furthermore, molecular dynamics simulations demonstrate that these materials maintain thermal stability at room temperature (300 K). The evaluation of the bandgap by using the Perdew-Burke-Ernzerhof (PBE) functional and the hybrid HSE06 functional shows that both IrSCl and IrSI are indirect bandgap



* Project supported by the National Key Research and Development Program of China (Grant No. 2021YFB3802100).

† Corresponding author. E-mail: qianping@ustb.edu.cn

semiconductors. The bandgap values for monolayer IrSCl are 0.37 eV and 1.58 eV under the PBE functional and the HSE06 functional, respectively, while those for monolayer IrSI are 0.23 eV and 1.36 eV under the PBE functional and the HSE06 functional, respectively. We further investigate the effects of biaxial tensile strain on the bandgap. The bandgap of IrSCl and IrSI decrease with the increase of strain, respectively reaching 0.05 eV and 0.01 eV under the PBE functional at a strain of 6%, indicating a strain-induced transition to metallic behavior. According to deformation potential theory and the Boltzmann transport equation, we calculate the carrier mobility for each of monolayer IrSCl and IrSI. The predicted maximum carrier mobility at room temperature is 407.77 cm²/(V·s) for monolayer IrSCl, and 202.64 cm²/(V·s) for monolayer IrSI. Additionally, the results from the Boltzmann transport equation show that the highest mobility is 299.15 cm²/(V·s) for IrSCl and 286.41 cm²/(V·s) for IrSI. These findings suggest that both IrSCl and IrSI possess favorable electronic and transport properties, thus they have become promising candidates for future applications in the field of two-dimensional nanoelectronic devices. Notably, the combination of a moderate bandgap and high carrier mobility at room temperature indicates their potential applications in the fields of transistors, sensors, and other electronic components. This study provides valuable insights into the material properties of IrSCl and IrSI, contributing to the design of novel two-dimensional materials for electronic applications.

Keywords: first-principles calculation, mobility, two-dimensional materials

PACS: 72.10.-d, 72.20.Fr, 72.20.Jv

DOI: [10.7498/aps.73.20241044](https://doi.org/10.7498/aps.73.20241044)

CSTR: [32037.14.aps.73.20241044](https://cstr.cn/32037.14.aps.73.20241044)

基于第一性原理计算单层IrSCl和IrSI的载流子迁移率

张磊 陈起航 曹硕 钱萍

First-principles calculations of carrier mobility in monolayer IrSCl and IrSI

Zhang Lei Chen Qi-Hang Cao Shuo Qian Ping

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 73, 217201 (2024) DOI: 10.7498/aps.73.20241044

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.73.20241044>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

原子尺度构建二维材料的第一性原理计算研究

First principles calculation of two-dimensional materials at an atomic scale

物理学报. 2021, 70(2): 027301 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20201636>

二维VOBr₂单层的结构畸变及其磁性和铁电性

Structural, magnetic and ferroelectric properties of VOBr₂ monolayer: A first-principles study

物理学报. 2022, 71(3): 037101 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20211516>

二维材料XTe₂ (X = Pd, Pt)热电性能的第一性原理计算

Thermoelectric transport properties of two-dimensional materials XTe₂ (X = Pd, Pt) via first-principles calculations

物理学报. 2021, 70(11): 116301 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20201939>

结构相变引起单层RuSe₂载流子迁移率的提高

Structural phase transition induced enhancement of carrier mobility of monolayer RuSe₂

物理学报. 2024, 73(14): 146302 <https://doi.org/10.7498/aps.73.20240557>

二维BeB₂作为镁离子电池阳极材料的理论研究

Theoretical study of two-dimensional BeB₂ monolayer as anode material for magnesium ion batteries

物理学报. 2024, 73(11): 118201 <https://doi.org/10.7498/aps.73.20240134>

铁原子吸附联苯烯单层电子结构的第一性原理

First-principles study of Fe atom adsorbed biphenylene monolayer

物理学报. 2022, 71(3): 036801 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20211631>