

MoS₂/SiO₂ 界面黏附性能的尺寸和温度效应*

段聪^{1) #} 刘俊杰^{1) #} 陈永杰¹⁾ 左慧玲¹⁾ 董健生^{1) †} 欧阳钢^{2) ‡}

1) (吉首大学物理与机电工程学院, 吉首 416000)

2) (湖南师范大学物理与电子科学学院, 低维量子结构与调控教育部重点实验室, 长沙 410006)

(2023 年 10 月 14 日收到; 2023 年 11 月 25 日收到修改稿)

探索二维材料与其衬底之间的黏附性能对于二维材料的制备、转移以及器件性能的优化至关重要. 本文基于原子键弛豫理论和连续介质力学方法, 系统研究了尺寸和温度对 MoS₂/SiO₂ 界面黏附性能的影响. 结果表明, 由于表面效应引起的热膨胀系数、晶格应变和杨氏模量的变化, MoS₂/SiO₂ 界面黏附能随 MoS₂ 厚度的减小而增大, 而热应变使 MoS₂/SiO₂ 界面黏附能随温度的升高而逐渐降低. 此外, 预测了在不同尺寸和温度下 MoS₂ 在 SiO₂ 衬底上的“脱落”条件, 系统阐述了 MoS₂ 与 SiO₂ 衬底之间黏附性能的物理机制, 为基于二维材料电子器件的优化设计提供了理论基础.

关键词: MoS₂, 尺寸和温度效应, 界面黏附性能, 原子键弛豫理论

PACS: 68.35.Np, 68.65.-k, 64.60.an, 73.43.Cd

DOI: 10.7498/aps.73.20231648

1 引言

二维过渡金属硫化物由于原子级平整表面、独特的能带结构和优异的机械性能, 在高集成度的柔性电子和光电器件等诸多领域展现了巨大的应用潜力^[1-3]. 作为二维过渡金属硫化物的典型代表, 二硫化钼 (MoS₂) 带隙是在 1—2 eV 范围内的本征半导体材料, 单层对入射光的吸收率高达 5%—10%, 具有强的光与物质相互作用^[1,4]. 单层 MoS₂ 可以承受约 11% 的双轴应力, 且带隙漂移表现出对应变的高灵敏性^[2,5]. 通常二维材料的制备过程需要在衬底间转移, 而界面黏附性能对于制备高质量的二维材料具有重要的影响^[6,7]. 另外, 实际器件的制造、集成等是将材料放置于衬底之上, 二维材料与

衬底之间的相互作用也直接关系到纳米器件的稳定性和应用性^[8,9]. 对于柔性电子器件, 二维材料的应变是通过衬底的形变实现, 但是二维材料与衬底之间的任何滑移都会削弱衬底向二维材料的应变传递, 从而限制柔性电子器件性能的可调性. 当衬底形变时, 二维材料与衬底之间的滑移也可能引起二维材料形成褶皱或脱落, 从而导致器件性能退化^[10]. 因此, 系统研究二维材料与衬底之间黏附性能对于制备高质量的二维材料 and 设计性能优异的纳米器件至关重要.

目前, 实验和理论对 MoS₂ 与衬底之间黏附性能的研究已经取得了一些进展^[11-16]. Deng 等^[11] 利用机械剥离方法测量了 MoS₂/SiO₂ 的界面黏附能, 发现 MoS₂/SiO₂ 的界面黏附能为 (0.17 ± 0.033) J/m². Lloyd 等^[12] 利用气泡法测得了 MoS₂/

* 国家自然科学基金 (批准号: 12364007)、湖南省教育厅项目 (批准号: 21B0502)、国家级大学生创新创业训练项目 (批准号: 202210531007) 和湖南省大学生创新创业训练项目 (批准号: S202310531036) 资助的课题.

同等贡献作者.

† 通信作者. E-mail: jsdong@jsu.edu.cn

‡ 通信作者. E-mail: gangouy@hunnu.edu.cn

SiO₂ 界面黏附能为 $(0.22 \pm 0.035) \text{ J/m}^2$. 而且, 衬底的粗糙程度和材料类型以及二维材料层数等也会影响界面黏附性能^[17-20]. 此外, 在器件实际运行中伴随的热效应是影响器件稳定性的重要因素. 考虑热效应对二维材料与衬底之间黏附性能的影响也引起了研究者的广泛关注. 当温度改变时, 二维材料的热膨胀系数、杨氏模量以及和衬底的失配应变等会发生变化, 进而影响二维材料与衬底之间的界面黏附性能^[21,22]. 通常当材料的尺寸降低到纳米尺度, 表面和界面原子由于配位缺陷和高的体表面积将诱导体系产生新奇的物理和化学性质, 如热膨胀系数^[23] 和杨氏模量^[5] 等.

虽然已经有部分实验和理论研究了 MoS₂ 与衬底之间的黏附能, 但是由于测量方法的差异等, 得到的结论仍存在争议. 此外, 关于尺寸和温度协同作用下 MoS₂ 界面黏附性能的变化机理还不清楚. 因此, 为了探索 MoS₂ 与衬底的界面黏附性能, 本文基于原子键弛豫理论和连续介质力学方法^[24-26], 研究了尺寸和温度对 MoS₂ 热膨胀系数、晶格应变

和杨氏模量的影响, 进而探索了 MoS₂/SiO₂ 界面黏附性能和分离能的变化规律, 并从原子尺度阐明了其中的物理机制.

2 理论模型

考虑 MoS₂ 薄膜与 SiO₂ 衬底组成的系统, 假设 SiO₂ 衬底的厚度要远远大于 MoS₂ 薄膜, 界面晶格失配应变主要集中在 MoS₂ 薄膜材料中. 图 1(a) 表示 MoS₂/SiO₂ 的晶体结构示意图. 在平衡状态下, MoS₂ 薄膜与衬底的总自由能 U_{total} 主要由 MoS₂ 薄膜中的应变能 U_e 和 MoS₂ 薄膜与衬底间的范德瓦耳斯 (van der Waals, vdW) 相互作用能 U_v 两部分组成^[27]:

$$U_{\text{total}} = U_{\text{vdw}} + U_e. \quad (1)$$

对于 MoS₂/SiO₂, 由于晶格常数的差异, 在界面处形成错配应变, 即 $\varepsilon_m = (a_s - a_f)/a_f$ ^[27,28], 其中 a_f 和 a_s 分别表示 MoS₂ 薄膜和 SiO₂ 衬底的晶格常数. 因此, MoS₂ 薄膜与衬底之间的应变关系可

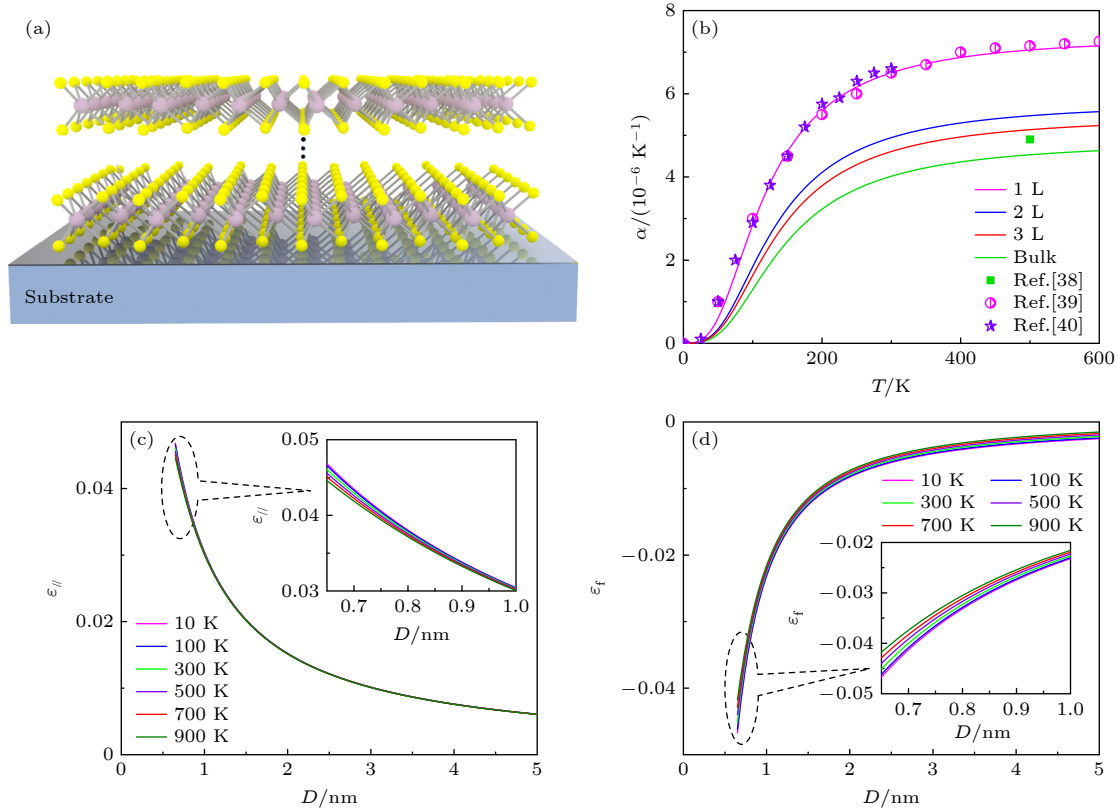


图 1 (a) 附着于 SiO₂ 衬底上的 MoS₂ 薄膜晶格结构示意图; (b) MoS₂ 热膨胀系数随尺寸和温度的变化规律; MoS₂/SiO₂ (c) 界面应变和 (d) 总应变与尺寸和温度间的关系

Fig. 1. (a) Schematic illustration of a multilayer MoS₂ on the SiO₂ substrate; (b) thermal expansion coefficient of MoS₂ as a function of size and temperature; dependence of (c) in-plane strain of MoS₂/SiO₂ as well as (d) the total strains in MoS₂ membranes on size and temperature.

以表示为 $\varepsilon_f - \varepsilon_m = \varepsilon_s$ [27,28], 其中 ε_f 和 ε_s 分别是 MoS₂ 和 SiO₂ 衬底的应变. 当材料的尺寸降低到纳米级, 体表面积增大, 晶格周期性在表面处终止, 需要考虑表面效应引起的应变: $\varepsilon_{\text{suf}} = \sum_{i \leq n} \varepsilon_i d_i / D$ [24,25], 其中 n 和 d_i 分别是 MoS₂ 薄膜表面原子的层数和第 i 层原子的键长, $\varepsilon_i = c_i - 1$ 是表面第 i 层原子的应变, $c_i = 2 / \{1 + \exp[(12 - z_i)/(8z_i)]\}$ 和 z_i 分别为第 i 层原子的键收缩系数和配位数, D 为 MoS₂ 薄膜的厚度. 考虑到 MoS₂ 薄膜在平面内和平面外各向异性的弹性模量, 可以将 MoS₂ 薄膜的应变分为平面内应变 $\varepsilon_{//}$ 和平面外应变 ε_{\perp} . 根据界面处力平衡条件, 即

$$M_f \left(\sum_{i \leq n} \varepsilon_i d_i + \varepsilon_{//} \left(D - \sum_{i \leq n} d_i \right) \right) + M_s \varepsilon_s D_s = 0,$$

其中 M_f 和 M_s 分别为 MoS₂ 和 SiO₂ 衬底的双轴弹性模量, D_s 是 SiO₂ 衬底的厚度. 因此, MoS₂ 薄膜在平面内的应变为

$$\varepsilon_{//} = \left[\frac{M_s \varepsilon_m D_s D}{M_f D + M_s D_s} - \sum_{i \leq 3} \varepsilon_i d_i \right] / \left(D - \sum_{i \leq n} d_i \right). \quad (2)$$

同时, 平面外应变为

$$\varepsilon_{\perp} = -\frac{2\nu_f}{1 - \nu_f} \varepsilon_{//}, \quad (3)$$

式中 ν_f 为 MoS₂ 薄膜的泊松比. 假设 SiO₂ 衬底的厚度远大于 MoS₂ 薄膜的厚度, 体系的界面晶格应变随尺寸的变化可以近似为

$$\varepsilon_{//} = \left(\varepsilon_m D - \sum_{i \leq n} \varepsilon_i d_i \right) / \left(D - \sum_{i \leq n} d_i \right).$$

考虑界面处晶格失配应变和表面弛豫的自平衡应变, 在 MoS₂ 薄膜内与尺寸有关的总应变可以

推导为 [27,29]

$$\varepsilon_f(D) = \frac{1}{D} \left[\sum_{i \leq n} \varepsilon_i d_i + (\varepsilon_{//} + \varepsilon_{\perp}) \left(D - \sum_{i \leq n} d_i \right) \right]. \quad (4)$$

当温度改变时, 晶格发生热膨胀, 温度依赖的热应变为 $\varepsilon(\Delta T) = \int_0^T \alpha(D, T) dT$, 其中 $\alpha(D, T)$ 和 T 分别是与晶体结构有关的热膨胀系数和温度. 根据热膨胀系数的定义 $\alpha = (1/d_0) (\partial d / \partial T)$, 其中 d 和 d_0 分别是纳米尺度下的平均键长和块体的键长. 在考虑尺寸和温度效应协同作用下, MoS₂ 的热膨胀系数为 [30]

$$\alpha(D, T) = \frac{1}{d_0} \frac{\partial d}{\partial T} = \frac{1}{d_0} \frac{\partial U / \partial T}{\partial U / \partial d} = \frac{\langle \eta(D, T) \rangle}{[\varsigma(d) E_b]}, \quad (5)$$

其中

$$\begin{aligned} \langle \eta(D, T) \rangle &= \frac{C_V}{\langle z \rangle N_a} \\ &= 9 \frac{k_B}{\langle z \rangle} \left(\frac{T}{\Theta_D} \right)^3 \int_0^{\Theta_D/T} \frac{x^4 e^x}{(e^x - 1)^2} dx, \end{aligned}$$

式中 U , $\langle \eta \rangle$, N_a , C_V , k_B 和 Θ_D 分别代表相邻两个原子的势函数、单键比热、阿伏伽德罗常数、热容、玻尔兹曼常数和德拜温度, $\langle z \rangle = \gamma_i (z_i - z_b) + z_b$ 和 z_b 分别表示平均配位数和块体配位数, $\gamma_i = \sum_{i \leq n_s} \frac{2c_i d_0}{D}$ 为体表面积, $x = \hbar \omega / k_B$, 其中 \hbar 和 ω 分别为约化普朗克常数和晶格振动频率. 由于回复力 $F(d) = -\partial U / \partial d$, 可以假定 $-F(d) d_0 = \varsigma(d) E_b$, 其中 $\varsigma(d)$ 是依赖于键长的参数, E_b 是平衡态下的单键能. 因此, 可以得到界面失配应变:

$$\varepsilon_m(T) = [a_s (1 + \varepsilon_T^s) - a_f (1 + \varepsilon_T^f)] / a_f (1 + \varepsilon_T^f),$$

其中 ε_T^f 和 ε_T^s 分别代表 MoS₂ 薄膜和 SiO₂ 衬底的热膨胀应变. 结合 (4) 式和 (5) 式, 在表面和温度效应协同作用下 MoS₂ 薄膜总的应变为

$$\varepsilon_f(D, T) = \frac{1}{D} \left[\sum_{i \leq n} (\varepsilon_i + \varepsilon_T^f) (c_i + \varepsilon_T^f) d_0 + (\varepsilon_{//} + \varepsilon_{\perp} + \varepsilon_T^f) \left(D - \sum_{i \leq n} d_i \right) \right]. \quad (6)$$

此外, 由于尺寸和温度效应引起纳米体系结合能、体积模量等发生改变, 可以得到 MoS₂ 薄膜的杨氏模量随尺寸和温度的变化规律:

$$Y(D, T) = \frac{z_b}{\langle z \rangle} \left[\sum_{i < n} \gamma_i (z_{ib} c_i^{-m} (1 + \Delta_{iT}) - (1 + \Delta_T)) + (1 + \Delta_T) \right] Y_b (1 + \varepsilon_f)^{-3}, \quad (7)$$

其中

$$\Delta E_{iT} = \frac{\Delta E_{iT}}{E_i}, \quad \Delta E_T = \frac{\Delta E_T}{E_b},$$

$$\Delta E_{iT} = -\int_0^T \eta_{1i}(t) dt, \quad \Delta E_T = -\int_0^T \eta_1(t) dt,$$

式中 $z_{ib} = z_i/z_b$ 为表层原子配位数与块体配位数的比值, Y_b 是块体的杨氏模量, $\eta_{1i}(T)$ 和 $\eta_1(T)$ 分别为第 i 层原子单键比热和块体单键比热, E_i 和 E_b 分别表示第 i 个原子层和块体材料的单键能, ΔE_{iT} 和 E_T 分别是表面原子和内部原子吸收的热能. 根据连续介质力学理论, 当厚衬底的应变可以忽略时, 应变全部集中在 MoS_2 薄膜中, 则弹性薄膜单位面积内的应变能为

$$U_e = \frac{Y(D, T) D \varepsilon_f^2}{1 - \nu_f}. \quad (8)$$

对于层状材料, 层间相互作用主要用 Lennard-Jones 势描述: $W_{LJ} = -C_1/r^6 + C_2/r^{12}$ [31], 其中 C_1 和 C_2 分别为吸附项和排斥项常数, r 为两个原子之间的距离. 通常在计算过程中, 只考虑 MoS_2 第一层 S 原子与衬底之间的 vdW 相互作用能, 因为衬底与其他 MoS_2 层的相互作用能非常弱以至于可以忽略不计. 通过对第一层 S 原子和衬底上所有的原子积分, 从而得到 MoS_2 薄膜与衬底总的相互作用能: $W = \int_{A_g} \int_{V_s} W_{LJ} \rho_s \rho_g dV_s dA_g$, 其中 ρ_s 是衬底单位体积上的原子个数, ρ_g 是单层 S 原子单位面积上的原子个数, V_s 是衬底的体积. 因此, MoS_2 薄膜与衬底的界面势能可以表示为 [32,33]

$$U_{\text{vdw}} = -\Gamma_0 \left[\frac{3}{2} \left(\frac{r_0}{r} \right)^3 - \frac{1}{2} \left(\frac{r_0}{r} \right)^9 \right], \quad (9)$$

其中 r_0 和 $\Gamma_0 = \pi \rho_s \rho_g C_1 / (9r_0^3)$ 分别表示块体 MoS_2 与衬底之间的层间距和单位面积的黏附能.

通过考虑表面键弛豫、界面晶格错配和温度效应对晶格应变的影响, 以及 MoS_2 薄膜与衬底间的 vdW 相互作用, 整个 MoS_2 薄膜将处于自平衡状态. 因此, MoS_2 薄膜和衬底在自平衡态下的临界分离条件可以由下式确定: $\partial U_{\text{total}} / \partial (D+r) = \partial U_{\text{vdw}} / \partial r + \partial U_e / \partial D = 0$, 进而可以推导为

$$\left(\frac{r_0}{r^*} \right)^{10} - \left(\frac{r_0}{r^*} \right)^4 = \frac{2r_0}{9\Gamma_0} \frac{\partial U_e(D, T)}{\partial D}, \quad (10)$$

其中 r^* 代表 MoS_2 薄膜与衬底在自平衡应变下的层间距.

综合考虑 MoS_2 薄膜的界面 vdW 相互作用能和应变能, 可以给出体系在自平衡态下单位面积内

总自由能的表达式:

$$\tilde{U} = -\Gamma_0 \left[\frac{3}{2} \left(\frac{r_0}{r} \right)^3 - \frac{1}{2} \left(\frac{r_0}{r} \right)^9 \right] - \frac{Y(D, T) D \varepsilon_f^2}{1 - \nu}. \quad (11)$$

3 结果与讨论

本计算中, 块体 MoS_2 的晶格常数、泊松比和杨氏模量分别为 0.316 nm, 0.21 和 238 GPa [5,34,35], SiO_2 的晶格常数为 0.499 nm [36], 平衡态下块体 $\text{MoS}_2/\text{SiO}_2$ 的层间距和单位面积的界面黏附能分别为 0.26 Å 和 0.17 J/m² [11,37]. 首先, 计算了 MoS_2 热膨胀系数的尺寸和温度效应, 如图 1(b) 所示. 对于单层 (1L)、双层 (2L)、三层 (3L) 以及块体 (bulk) MoS_2 , 热膨胀系数随温度的升高而增大, 且当温度接近德拜温度时热膨胀系数趋于一个常数, 其热膨胀系数的变化规律与温度依赖的热容变化规律相似. 本文对热膨胀系数的计算结果与现有的实验和理论结果一致 [23,38-41]. 当材料的尺寸降低到纳米尺度, 表面原子配位缺陷会诱导体系的键收缩, 且键变强, 体系的结合能会随尺寸的减小而减小, 使德拜温度也随尺寸的减小而减小, 且可以通过 $\Theta_D \propto (E_c)^{1/2}$ 描述, 其中 E_c 表示材料的结合能. 因此, 当 MoS_2 由块体减小至单层时, 在高温下其热膨胀系数从 4.9×10^{-6} 增大至 $7.2 \times 10^{-6} \text{ K}^{-1}$.

图 1(c), (d) 描绘了不同尺寸和温度下 MoS_2 薄膜平面内应变和总应变的变化规律. 在实际计算中假设 SiO_2 的厚度远远大于 MoS_2 , 则应变主要集中在 MoS_2 薄膜中. 由于小的热膨胀系数, 温度对 SiO_2 热应变可近似忽略. 由图 1(c) 可知, MoS_2 薄膜受到衬底材料的拉伸应变, 这是由于 SiO_2 (0.499 nm) 的晶格常数大于 MoS_2 (0.316 nm) 的晶格常数. 根据原子键弛豫理论 [25,26], 当 MoS_2 的尺寸减小时, 体表比增大, 表面效应诱导的压缩应变会进一步减小 MoS_2 的晶格常数. 因此, 在温度固定不变时, 界面应变随尺寸减小而增大, 如图 1(c) 所示. 对于 MoS_2 薄膜, 其具有正的热膨胀系数 (如图 1(b) 所示), 温度升高会增大 MoS_2 的晶格常数. 因此, 界面应变随温度的升高而降低, 如图 1(c) 中的插图所示. 另外, 考虑 MoS_2 薄膜表面效应引起的应变, 当 MoS_2 尺寸减小, 表面原子的配位缺陷引起的应变随着尺寸的减小而增大, 通过 (6) 式可以计算得到 MoS_2 薄膜总应变的变化规律, 发现随着尺寸不断变小, 负应变不断增大, 如图 1(d) 所

示. 此外, 温度也会引起热应变的产生, 且为正值. 因此, 温度升高会略微的减小总应变, 如图 1(d) 中的插图所示.

利用 (7) 式可以得到 MoS_2 薄膜的杨氏模量随尺寸的变化规律, 发现随着尺寸的减小 MoS_2 的杨氏模量不断增大, 如图 2 所示. 实验上测量了不同层数 MoS_2 的杨氏模量, 发现单层、双层 MoS_2 的杨氏模量为 (270 ± 100) GPa 和 (200 ± 60) GPa, 表现出明显的尺寸效应 [5]. 当厚度一定时, 计算结果表明随着温度的升高 MoS_2 的杨氏模量会略微减小, 这可归因于热应变使 MoS_2 的原子间距增大, 原子之间的相互作用减弱, 杨氏模量随之减小.

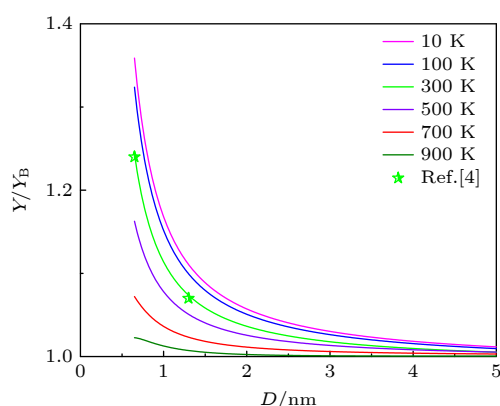


图 2 MoS_2 薄膜的杨氏模量随尺寸和温度的变化规律

Fig. 2. The Young's modulus of MoS_2 as a function of thickness and temperature.

此外, 由于 MoS_2 薄膜的杨氏模量以及应变的改变, 将会影响 $\text{MoS}_2/\text{SiO}_2$ 的应变能和总自由能. 对于 $\text{MoS}_2/\text{SiO}_2$, 总自由能可以从两个部分考虑, 一个是应变能, 另一个是层间的 vdW 相互作用能. 图 3 描述了应变能和 vdW 相互作用能随尺寸和温度的变化. 由图 3 可知, 应变能与 vdW 相互作用能随尺寸的变化表现出相反的趋势. 其中, 应变能随尺寸的减小而增大, 这可归因于杨氏模量和总应变的增大. 而在 vdW 相互作用中, 原子间距在其中起到了决定性的作用, 在我们的计算中主要考虑了最近邻层间原子的贡献. 对于块体和多层 MoS_2 , 层间 vdW 相互作用能基本保持不变. 当厚度减小至单层时, vdW 相互作用能略有增大, 这主要归因于层间距会随尺寸减小而减小, 如图 4(a)–(f) 中的插图所示. 当厚度不变时, 温度升高, MoS_2 单位面积内的原子数目以及总应变减小都会削弱层间 vdW 相互作用能和应变能 (如图 3 所示).

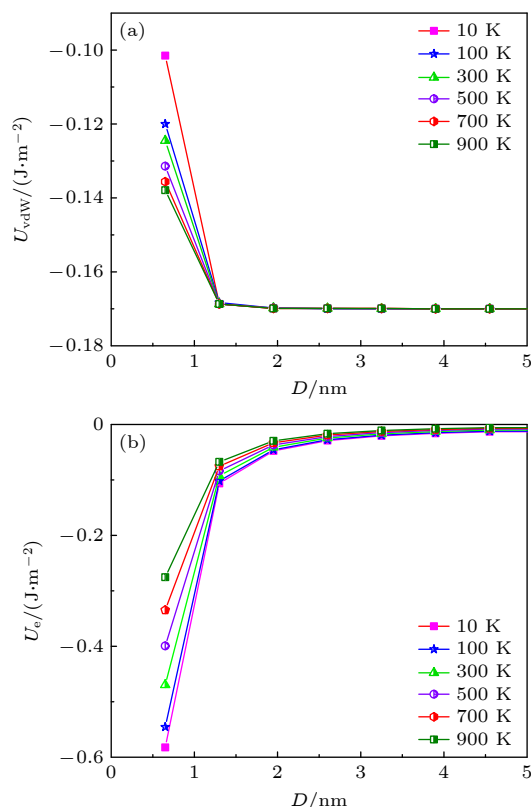


图 3 $\text{MoS}_2/\text{SiO}_2$ (a) vdW 相互作用能和 (b) 应变能随温度和尺寸的变化规律

Fig. 3. (a) The interface vdW interaction of $\text{MoS}_2/\text{SiO}_2$ and (b) elastic strain energy of MoS_2 as a function of thickness and temperature.

图 4(a)–(f) 描述了在不同尺寸和温度下 $\text{MoS}_2/\text{SiO}_2$ 总自由能 U_{total} 与相对界面间距 r/r_0 之间的关系. 由图 4 可知, 总自由能的最小值随层数的减小而增大, 同时在自平衡态下层间距也随之减小. 图 4(a)–(c) 中的插图为层间距随 MoS_2 尺寸的变化. 在自平衡态下, MoS_2 与 SiO_2 的层间距随尺寸的增大而略微减小, 且当 MoS_2 的厚度趋于块体时, 则 $r^* \rightarrow r_0$. 当尺寸不变时, 升高温度可以减小 MoS_2 与 SiO_2 之间的层间距, 这可归因于温度升高增大了 MoS_2 的晶格常数, 实现新的平衡态需要通过减小层间距. 温度对应变能和 vdW 相互作用能的影响, 也使平衡态的总自由能随着温度的升高不断减小.

最后, 根据 MoS_2 薄膜平衡态下总自由能和黏附能的关系 $\Gamma = -U_{\text{total}}$, 得到了尺寸和温度依赖的黏附能, 如图 5 所示. 当尺寸增大时, $\text{MoS}_2/\text{SiO}_2$ 界面黏附能减小, 同时温度升高, $\text{MoS}_2/\text{SiO}_2$ 黏附能也随之减小. 在单层 MoS_2 附着于其他二维材料表面时, 实验测量发现随着温度的升高, MoS_2 界面

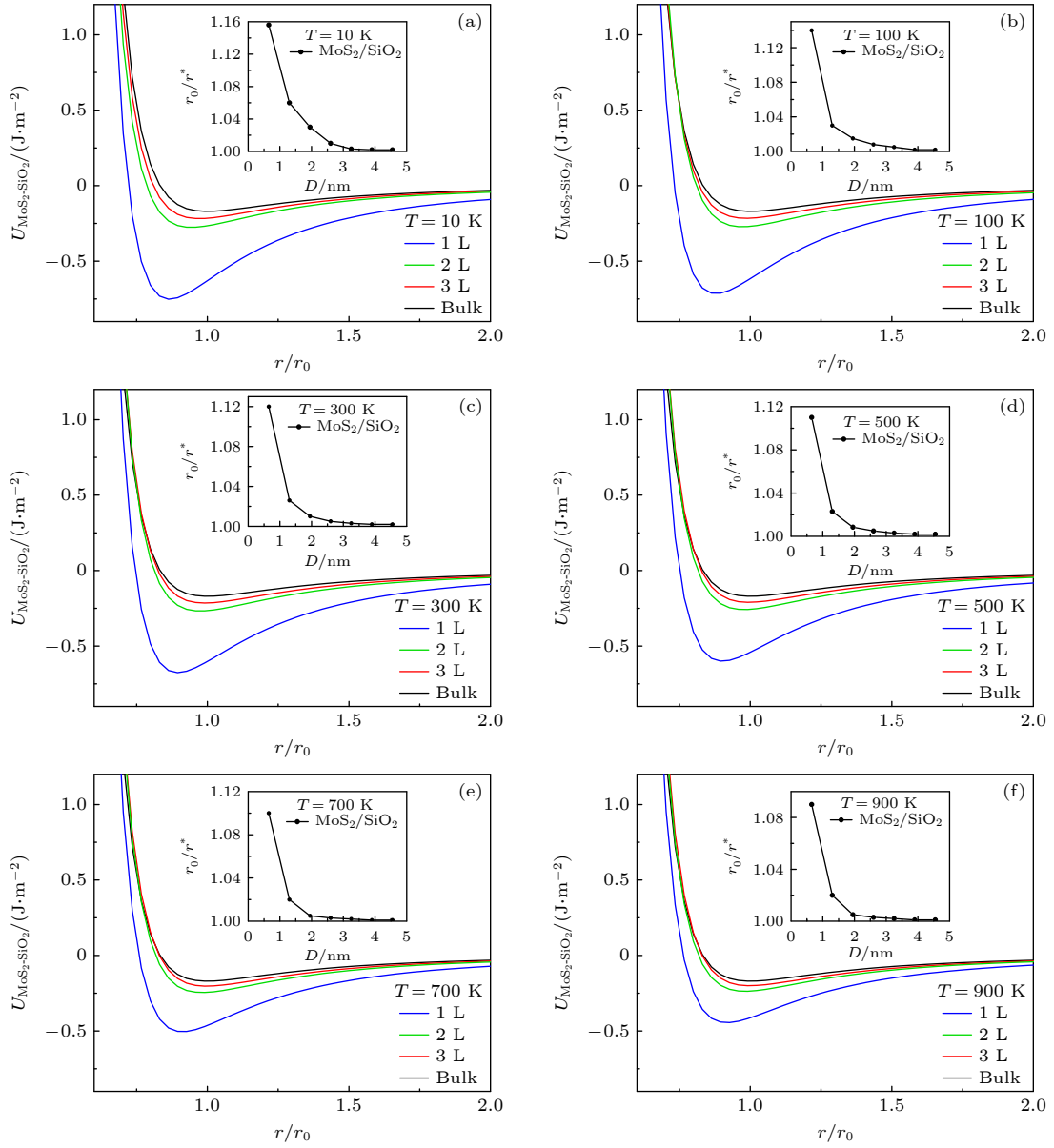
图 4 (a)–(f) $\text{MoS}_2/\text{SiO}_2$ 在不同尺寸和温度下总自由能与相对层间距的关系

Fig. 4. (a)–(f) Relationship between the total free energy and distance of $\text{MoS}_2/\text{SiO}_2$ under various sizes and temperature.

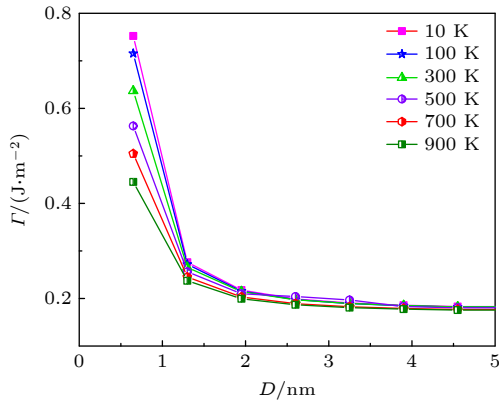
图 5 $\text{MoS}_2/\text{SiO}_2$ 界面粘附能随尺寸和温度的变化规律

Fig. 5. Size- and temperature-dependent interface adhesion energy in $\text{MoS}_2/\text{SiO}_2$ system.

黏附能随之减小^[22]. 另外, 在石墨烯/ SiO_2 体系中, 实验测量发现单层石墨烯与 SiO_2 黏附能的大于多层石墨烯与 SiO_2 黏附能^[20].

4 结 论

基于原子键弛豫理论和连续介质力学方法, 建立了 $\text{MoS}_2/\text{SiO}_2$ 界面黏附性能与尺寸和温度之间的理论关系, 并给出了 MoS_2 从 SiO_2 衬底上“脱落”的物理条件. 结果表明, 当温度一定时, 尺寸减小, 体表比增大, 表面效应导致 MoS_2 的热膨胀系数、杨氏模量和总应变增大, 使 $\text{MoS}_2/\text{SiO}_2$ 有更大

的界面黏附能; 当尺寸不变时, 温度引起的热应变会减小 MoS_2 的杨氏模量和总应变, 从而导致 $\text{MoS}_2/\text{SiO}_2$ 界面黏附能随温度的升高而降低. 此外, 计算了不同尺寸和温度下 $\text{MoS}_2/\text{SiO}_2$ 在平衡态的总自由能和层间距, 发现在温度不变时, MoS_2 从衬底 SiO_2 上“脱落”的能量随尺寸的减小而增大, 且层间距也略有增大; 在尺寸不变时, MoS_2 从衬底 SiO_2 上“脱落”的能量随温度的升高而降低, 而层间距略有减小. 这一结果对于理解和探索二维材料与衬底之间界面黏附性能的物理机制及其调控提供了新思路.

参考文献

- [1] Wang Q H, Kalantar-Zadeh K, Kis A, Coleman J N, Strano M S 2012 *Nat. Nanotechnol.* **7** 699
- [2] Li Y H, Dong Y Y, Dong H, Zheng X J 2022 *Acta Phys. Sin.* **71** 194601 (in Chinese) [李耀华, 董耀勇, 董辉, 郑学军 2022 物理学报 **71** 194601]
- [3] Li N, Wang Q Q, Shen C, Zheng W, Yu H, Zhao J, Lu X B, Wang G L, He C L, Xie L, Zhu J Q, Du L J, Yang R, Shi D X, Zhang G Y 2020 *Nat. Electron.* **3** 711
- [4] Duan X D, Wang C, Pan A L, Yu R Q, Duan X F 2015 *Chem. Soc. Rev.* **44** 8859
- [5] Bertolazzi S, Brivio J, Kis A 2011 *ACS Nano* **5** 9703
- [6] Liao J Y, Wu J X, Dang C H, Xie L M 2021 *Acta Phys. Sin.* **70** 028201 (in Chinese) [廖俊懿, 吴娟霞, 党春鹤, 谢黎明 2021 物理学报 **70** 028201]
- [7] Tao Q Y, Wu R X, Li Q Y, Kong L G, Chen Y, Jiang J Y, Lu Z Y, Li B L, Li W Y, Li Z W, Liu L T, Duan X D, Liao L, Liu Y 2021 *Nat. Commun.* **12** 1825
- [8] Song S, Sim Y, Kim S Y, Kim J H, Oh I, Na W, Lee D H, Wang J, Yan S L, Liu Y N, Kwak J, Chen J H, Cheong H, Yoo J W, Lee Z, Kwon S Y 2020 *Nat. Electron.* **3** 207
- [9] Li T T, Guo W, Ma L, Li W S, Yu Z H, Han Z, Gao S, Liu L, Fan D X, Wang Z X, Yang Y, Lin W Y, Luo Z Z, Chen X Q, Dai N X, Tu X C, Pan D F, Yao Y G, Wang P, Nie Y F, Wang J L, Shi Y, Wang X R 2021 *Nat. Nanotechnol.* **16** 1201
- [10] Chang H Y, Yang S X, Lee J H, Tao L, Hwang W S, Jena D, Lu N S, Akinwande D 2013 *ACS Nano* **7** 5446
- [11] Deng S K, Gao E L, Xu Z P, Berry V 2017 *ACS Appl. Mater. Interfaces* **9** 7812
- [12] Lloyd D, Liu X H, Boddeti N, Cantley L, Long R, Dunn M L, J. Bunch S 2017 *Nano Lett.* **17** 5329
- [13] Torres J, Zhu Y S, Liu P, Lim S C, Yun M H 2018 *Phys. Status Solidi A* **215** 1700512
- [14] Megra Y T, Suk J W 2019 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **52** 364002
- [15] Calis M, Lloyd D, Boddeti N, Bunch J S 2023 *Nano Lett.* **23** 2607
- [16] Ke J, Ying P H, Du Y, Zou B, Sun H R, Zhang J 2022 *Phys. Chem. Chem. Phys.* **24** 15991
- [17] Brennan C J, Nguyen J, Yu E T, Lu N S 2015 *Adv. Mater. Interfaces* **2** 1500176
- [18] Li Y, Chen P J, Liu H, Peng J, Luo N 2021 *J. Appl. Phys.* **129** 014302
- [19] Li B W, Yin J, Liu X F, Wu H R, Li J D, Li X M, Guo W L 2019 *Nat. Nanotechnol.* **14** 567
- [20] Koenig S P, Boddeti N G, Dunn M L, Bunch J S 2011 *Nat. Nanotechnol.* **6** 543
- [21] Rokni H, Lu W 2020 *Nat. Commun.* **11** 5607
- [22] Polfus J M, Muñiz M B, Ali A, Barragan-Yani D A, Vullum P E, Sunding M F, Taniguchi T, Watanabe K, Belle B D 2021 *Adv. Mater. Interfaces* **8** 2100838
- [23] Hu X, Yasaei P, Jokisaari J, Ögüt S, Khojin A S, Klie R F 2018 *Phys. Rev. Lett.* **120** 055902
- [24] Sun C Q 2007 *Prog. Solid State Chem.* **35** 1
- [25] Ouyang G, Wang C X, Yang G W 2009 *Chem. Rev.* **109** 4221
- [26] Dong J S, Zhao Y P, Ouyang G, Yang G W 2022 *Appl. Phys. Lett.* **120** 080501
- [27] He Y, Chen W F, Yu W B, Ouyang G, Yang G W 2013 *Sci. Rep.* **3** 2660
- [28] Freund L B, Nix W D 1996 *Appl. Phys. Lett.* **69** 173
- [29] Zhu Z M, Zhang A, He Y, Ouyang G, Yang G W 2012 *AIP Adv.* **2** 042185
- [30] Gu M X, Zhou Y C, Sun C Q 2008 *J. Phys. Chem. B* **112** 7992
- [31] Liang T, Phillpot S R, Sinnott S B 2009 *Phys. Rev. B* **79** 245110
- [32] Aitken Z H, Huang R 2010 *J. Appl. Phys.* **107** 123531
- [33] Zhang L, Ouyang G 2018 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **52** 025302
- [34] Li T S 2012 *Phys. Rev. B* **85** 235407
- [35] Feldman J L 1976 *J. Phys. Chem. Solids* **37** 1141
- [36] Dmitriev V, Torgashev V, Toledano P, Salje E K H 1997 *Europhys. Lett.* **37** 553
- [37] Su X Y, Cui H L, Ju W W, Yong Y L, Li X H 2017 *Mod. Phys. Lett. B* **31** 1750229
- [38] El-Mahalawy S H, Evans B L 1976 *J. Appl. Crystallogr.* **9** 403
- [39] Sevik C 2014 *Phys. Rev. B* **89** 035422
- [40] Hu Y W, Zhang F, Titze M, Deng B W, Li H B, Cheng G J 2018 *Nanoscale* **10** 5717
- [41] Zhang L N, Lu Z M, Song Y, Zhao L, Bhatia B, Bagnall K R, Wang E N 2019 *Nano Lett.* **19** 4745

Adhesion properties of MoS₂/SiO₂ interface: Size and temperature effects*

Duan Cong^{1) #} Liu Jun-Jie^{1) #} Chen Yong-Jie¹⁾ Zuo Hui-Ling¹⁾

Dong Jian-Sheng^{1) †} Ouyang Gang^{2) ‡}

¹⁾ (Department of Physics, Jishou University, Jishou 416000, China)

²⁾ (Key Laboratory of Low-Dimensional Quantum Structures and Quantum Control of Ministry of Education, School of Physics and Electronics, Hunan Normal University, Changsha 410006, China)

(Received 14 October 2023; revised manuscript received 25 November 2023)

Abstract

The interface adhesion properties are crucial for designing and fabricating two-dimensional materials and related nanoelectronic and nanomechanical devices. Although some progress of the interface adhesion properties of two-dimensional materials has been made, the underlying mechanism behind the size and temperature dependence of interface adhesion energy and related physical properties from the perspective of atomistic origin remain unclear. In this work, we investigate the effects of size and temperature on the thermal expansion coefficient and Young's modulus of MoS₂ as well as interface adhesion energy of MoS₂/SiO₂ based on the atomic-bond-relaxation approach and continuum medium mechanics. It is found that the thermal expansion coefficient of monolayer MoS₂ is significantly larger than that of its few-layer and bulk counterparts under the condition of ambient temperature due to size effect and its influence on Debye temperature, whereas the thermal expansion coefficient increases with temperature going up and almost tends to a constant as the temperature approaches the Debye temperature. Moreover, the variations of bond identity induced by size effect and temperature effect will change the mechanical properties of MoS₂. When the temperature is fixed, the Young's modulus of MoS₂ increases with size decreasing. However, the thermal strain induces the volume expansion, resulting in the Young's modulus of MoS₂ decreasing. Furthermore, the size and temperature dependence of lattice strain, mismatch strain of interface, and Young's modulus will lead the van der Waals interaction energy and elastic strain energy to change, resulting in the change of interface adhesion energy of MoS₂/SiO₂. Noticeably, the interface adhesion energy of MoS₂/SiO₂ gradually increases with MoS₂ size decreasing, while the thermal strain induced by temperature causes interface adhesion energy of MoS₂/SiO₂ to decrease with temperature increasing. In addition, we predict the conditions of the interface separation of MoS₂/SiO₂ under different sizes and temperatures. Our results demonstrate that increasing both size and temperature can significantly reduce the interface adhesion energy, which is of great benefit in detaching MoS₂ film from the substrate. Therefore, the proposed theory not only clarifies the physical mechanism regarding the interface adhesion properties of transition metal dichalcogenides (TMDs) membranes, but also provides an effective way to design TMDs-based nanodevices for desirable applications.

Keywords: MoS₂, size and temperature effects, interface adhesion properties, atomic-bond-relaxation approach

PACS: 68.35.Np, 68.65.-k, 64.60.an, 73.43.Cd

DOI: 10.7498/aps.73.20231648

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 12364007), the Scientific Research Fund of Education Department of Hunan Province, China (Grant No. 21B0502), the National Students' Platform for Innovation and Entrepreneurship Training Program (Grant No. 202210531007), and the Students' Platform for Innovation and Entrepreneurship Training Program of Hunan Province, China (Grant No. S202310531036).

These authors contributed equally.

† Corresponding author. E-mail: jsdong@jsu.edu.cn

‡ Corresponding author. E-mail: gangouy@hunnu.edu.cn

MoS₂/SiO₂界面黏附性能的尺寸和温度效应

段聪 刘俊杰 陈永杰 左慧玲 董健生 欧阳钢

Adhesion properties of MoS₂/SiO₂ interface: Size and temperature effects

Duan Cong Liu Jun-Jie Chen Yong-Jie Zuo Hui-Ling Dong Jian-Sheng Ouyang Gang

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 73, 056801 (2024) DOI: 10.7498/aps.73.20231648

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.73.20231648>

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

二维MoS₂压痕过程异质界面范德瓦耳斯力引起的撕裂行为

Tearing behavior induced by van der Waals force at heterogeneous interface during two-dimensional MoS₂ nanoindentation

物理学报. 2022, 71(19): 194601 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220875>

基于磁圆二向色谱的单层MoS₂激子能量和线宽温度依赖特性

Temperature dependent excitonic transition energies and linewidths of monolayer MoS₂ probed by magnetic circular dichroism spectroscopy

物理学报. 2018, 67(14): 147801 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20180615>

V掺杂二维MoS₂体系气体吸附性能的第一性原理研究

First-principles investigations on gas adsorption properties of V-doped monolayer MoS₂

物理学报. 2021, 70(8): 080701 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20202043>

CuPc/MoS₂范德瓦耳斯异质结荧光特性

Photoluminescence properties of CuPc/MoS₂ van der Waals heterostructure

物理学报. 2022, 71(12): 128103 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220132>

(Cu,N)共掺杂TiO₂/MoS₂异质结的电子和光学性能:杂化泛函HSE06

Electronic and optical performances of (Cu, N) codoped TiO₂/MoS₂ heterostructure photocatalyst: Hybrid DFT (HSE06) study

物理学报. 2018, 67(23): 233101 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20181520>

原子错位堆栈增强双层MoS₂高次谐波产率

Enhancing high harmonic generation in bilayer MoS₂ by interlayer atomic dislocation

物理学报. 2021, 70(13): 134207 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210731>