

遷移金属ダイカルコゲナイドのピエゾ抵抗・熱電変換に関する 第一原理シミュレーション

¹京大学際セ, ²エジプト日本科技大院工

○中村康一^{1,2}

First-Principles Simulation on Piezoresistivity and Thermoelectricity in Transition Metal Dichalcogenide

○Koichi Nakamura^{1,2}

¹ Center for the Promotion of Interdisciplinary Education and Research, Kyoto University,
Japan

² Department of Materials Science and Engineering, Egypt-Japan University of Science and
Technology, Egypt

【Abstract】 Piezoresistive and thermoelectric properties in transition metal dichalcogenide (TMDC) monolayers have been simulated on the basis of first-principles calculation. The electronic structures of TMDC monolayer models MX_2 ($\text{M} = \text{Mo}, \text{W}, \text{Zr}, \text{Hf}$; $\text{X} = \text{S}, \text{Se}, \text{Te}$) were calculated with consideration of the spin-orbit coupling. TMDCs with Group 6 elements (6-TMDCs; $\text{M} = \text{Mo}$ and W) have the trigonal prismatic structure, while TMDCs with Group 4 elements (4-TMDCs; $\text{M} = \text{Zr}$ and Hf) take the octahedral structure. For 6-TMDCs, uniaxial tensile strain causes a significant change in electrical conductivity through the carrier redistribution in conduction-band valleys and valence-band peaks. The simulated Seebeck coefficients of 6-TMDC heterojunction are suitable for application to thermoelectric elements. On the other hand, a small piezoresistivity has been observed in 4-TMDCs.

【序】

層状物質である遷移金属ダイカルコゲナイド (TMDC) は新しい機能性材料として大きな注目を集めており、とりわけ単層の TMDC は“ポスト・グラフェン”二次元ナノ材料としての今後の活用が期待されている[1,2]. TMDC は遷移金属やカルコゲン原子を変えることによって Fig. 1 のようなヘテロ接合界面構造を設計でき、さまざまなデバイスへの応用が研究されている[3]. 本研究ではいくつかの組み合わせの単層 TMDC について第一原理計算を行って電子構造を明らかにするとともに、そのピエゾ抵抗特性や熱電変換特性をシミュレートし、新規デバイス素子への可能性やヘテロ接合におけるマッチングについて議論する.

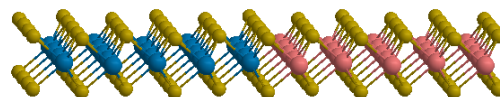
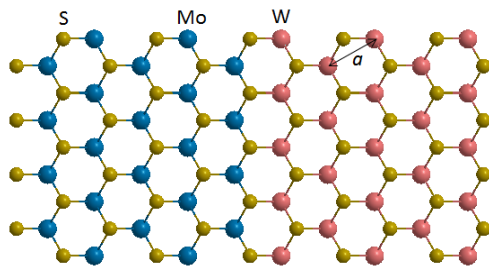


Fig. 1. Image of MoS_2/WS_2 heterojunction by trigonal prismatic TMDC monolayer: top and side views.

【方法】

本研究では単層 TMDC の遷移金属 M として第 6 族金属 (Mo および W) または第 4 族金属 (Zr および Hf) を取り扱い、 MX_2 ($\text{X} = \text{S}, \text{Se}, \text{Te}$) の二次元周期境界モデルを導入して、PAW 法による第一原理電子状態計算を行った。密度汎関数は GGA-PW91

を用い、すべての計算でスピン軌道相互作用の影響を考慮した。

得られた単層 TMDC の最適化構造や1%の単軸ひずみを含んだ構造の電子状態をもとに電子構造のひずみ応答を解析するとともに、著者らが開発したシミュレーション手法[4,5]により縦方向ゲージファクタを導出した。また、単層 TMDC のヘテロ接合界面構造を想定して各領域のキャリア濃度をフェルミ準位から見積もり、著者が開発したシミュレーション手法[6,7]を用いてゼーベック係数を導出した。

【結果・考察】

同じカルコゲン原子 X の第 6 族金属 TMDC (6-TMDC) では、 MoX_2 と WX_2 の格子定数 a の計算値は 10^{-3} \AA のオーダーの差となり、X が共通ならばヘテロ接合界面構造でもひずみは十分に小さくなると予想される。Fig. 2 に示すようにバンド構造は K 点で直接バンドギャップを持ち、K 点付近の価電子帯頂上では強いスピン軌道相互作用による明瞭なバンド分裂が得られた。伝導帯では Γ -K 間、価電子帯では Γ 点に、それぞれ K 点とエネルギーが近いバンド谷や頂上があるため、 $[1100]$ または $[1120]$ 方向への引張単軸ひずみを加えるとキャリア再分配による有意な電気伝導率の変化が確認された。X が共通のヘテロ接合界面では、 MoX_2 領域にキャリア電子、 WX_2 領域にホールがそれぞれ存在し、その濃度はカルコゲン原子に応じて $\text{Te} > \text{Se} > \text{S}$ の順となった。各領域におけるゼーベック係数計算値の温度依存性を Fig. 3 に示す。

一方、第 4 族金属 TMDC (4-TMDC) は Fig. 1 のような三角柱型よりも八面体型のほうが安定な単層構造になった。バンド構造ではスピン軌道相互作用の影響は見られず、伝導帯の谷が M 点、価電子帯の頂上が Γ 点である間接バンドギャップが得られた。ひずみに対するキャリア再分配はほとんど生じないためピエゾ抵抗特性は非常に小さくなるなど、得られる物性は 6-TMDC と対照的であった。シミュレーションの数値や熱伝導率のフォノン拡散寄与項の見積もりなど、詳細は当日に発表する。

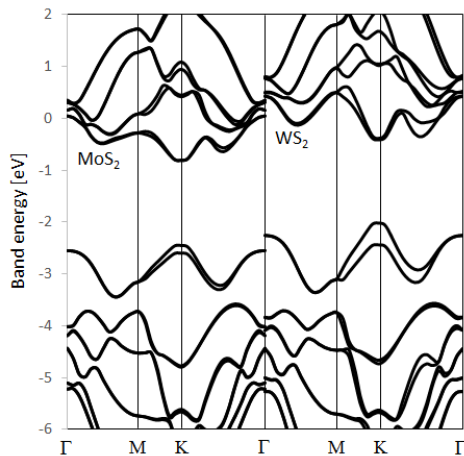


Fig. 2. Band diagrams of MoS_2 and WS_2 monolayers.

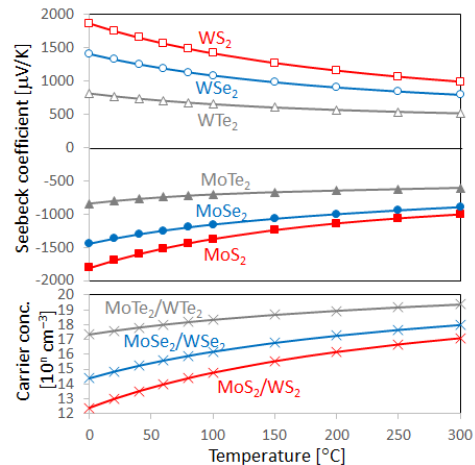


Fig. 3. Temperature dependence of carrier concentration and Seebeck coefficient for MoX_2 and WX_2 regions in the MoX_2/WX_2 heterojunction structure (X = S, Se, Te).

【参考文献】

- [1] J. A. Wilson and A. D. Yoffe, *Adv. Phys.* **18**, 193 (1969).
- [2] L. F. Mattheiss, *Phys. Rev. B* **8**, 3719 (1973).
- [3] S. Yoshida *et al.*, *Sci. Rep.* **5**, 14808 (2015).
- [4] K. Nakamura, Y. Isono, and T. Toriyama, *Jpn. J. Appl. Phys.* **47**, 5132 (2008).
- [5] K. Nakamura, Y. Isono, T. Toriyama, and S. Sugiyama, *Phys. Rev. B* **80**, 045205 (2009).
- [6] K. Nakamura, *Jpn. J. Appl. Phys.* **55**, 06GJ07 (2016).
- [7] K. Nakamura, *Solid State Phenom.* **258**, 77 (2017).