TẠP CHÍ KHOA HỌC VÀ CÔNG NGHỆ ĐẠI HỌC DUY TÂN
DTU Journal of Science and Technology 02(69) (2025) 82-92
ĐẠI HỌC DUY TÂN
DUYTAN UNIVERSITY

Ảnh hưởng của hiệu ứng tương tác spin-orbit lên các tính chất điện tử và độ linh động của hạt tải trong đơn lớp Janus $SiGeSe_2$

Influence of spin-orbit coupling effect on electronic properties and carrier mobility in Janus $SiGeSe_2$ monolayer

Nguyễn Phạm Quỳnh Anh[a*]
Nguyen Pham Quynh Anh[a*]

[a]Khoa Kỹ thuật và Công nghệ, Trường Đại học Sài Gòn, 273 An Dương Vương, phường 2, quận 5, thành phố Hồ Chí Minh, Việt Nam
[a]Faculty of Engineering and Technology, Saigon University, 273 An Duong Vuong street, Ward 2, District 5, Ho Chi Minh city, Viet Nam

(Ngày nhận bài: 27/12/2024, ngày phản biện xong: 05/03/2025, ngày chấp nhận đăng: 02/04/2025)

Tóm tắt

Vật liệu hai chiều có cấu trúc bất đối xứng theo phương thẳng đứng (thường được gọi là vật liệu Janus hai chiều) có nhiều tính chất vật lý nổi trội mà không tồn tại trong các vật liệu đối xứng tương ứng của chúng. Bằng phương pháp lý thuyết phiếm hàm mật độ, chúng tôi khảo sát một cách có hệ thống các đặc trưng cấu trúc, các tính chất điện tử và truyền dẫn của đơn lớp Janus $SiGeSe_2$. Đơn lớp Janus $SiGeSe_2$ có cấu trúc tinh thể bất đẳng hướng với các hằng số mạng lần lượt là a = 7.03 Å và b = 4.01 Å. Đặc biệt, Janus $SiGeSe_2$ sở hữu các đặc trưng cơ học dị hướng độc đáo với tỉ số Poisson âm. Kết quả tính toán chỉ ra rằng Janus $SiGeSe_2$ là bán dẫn có vùng cấm năng lượng thẳng và ảnh hưởng của hiệu ứng tương tác spin-orbit lên cấu trúc vùng năng lượng điện tử của Janus $SiGeSe_2$ là đáng kể. Hiệu ứng tương tác spin-orbit không chỉ làm cho các mức năng lượng bị tách ra mà còn làm giảm bề rộng vùng cấm của vật liệu. Janus $SiGeSe_2$ có các đặc trưng truyền dẫn bất đẳng hướng và có độ linh động của điện tử cao phù hợp cho các ứng dụng trong các thiết bị điện tử và quang điện tử thế hệ mới.

Từ khóa: Vật liệu Janus hai chiều; hiệu ứng tương tác spin-orbit; độ linh động của hạt tải; lý thuyết phiếm hàm mật độ.

Abstract

Two-dimensional asymmetric materials (also known as two-dimensional Janus materials) have many outstanding physical properties that do not exist in their corresponding symmetrical counterparts. By using density functional theory, we systematically investigate the structural characteristics, electronic and transport properties of Janus $SiGeSe_2$ monolayer. Janus $SiGeSe_2$ monolayer has an anisotropic crystal structure with lattice constants of a = 7.03 Å và b = 4.01 Å. In particular, Janus $SiGeSe_2$ possesses unique anisotropic mechanical properties with negative Poisson's ratio. The calculated results indicate that Janus $SiGeSe_2$ is a direct bandgap semiconductor and the influence of spin-orbit coupling effect on the energy band structure of Janus $SiGeSe_2$ is significant. The spin-orbit coupling effect not only causes the energy level spliting but also reduces the bandgap of the studied material. Janus $SiGeSe_2$ has anisotropic transport characteristics and high electron mobility, which is suitable for applications in next generation electronic and optoelectronic devices.

Keywords: Two-dimensional Janus materials; spin-orbit coupling effect; carrier mobility; density functional theory.

[*]*Tác giả liên hệ:* Nguyễn Phạm Quỳnh Anh
Email: npqanh@sgu.edu.vn

1. Giới thiệu

Trong suốt gần hai thập kỷ qua, vật liệu hai chiều có cấu trúc lớp là một trong những đối tượng được cộng đồng nghiên cứu, cả lý thuyết lẫn thực nghiệm, tập trung nghiên cứu với quy mô lớn [1]. Nhiều vật liệu mới liên tục được thực nghiệm chế tạo thành công và một số lượng rất lớn các mô hình vật liệu hai chiều có cấu trúc lớp mới được đề xuất dựa trên các nghiên cứu lý thuyết [2]. Năm 2017, vật liệu hai chiều có cấu trúc bất đối xứng theo phương thẳng đứng là Janus MoSSe được thực nghiệm chế tạo thành công [3]. Việc chế tạo thành công Janus MoSSe đã làm phong phú thêm họ vật liệu hai chiều có cấu trúc lớp vốn đã rất phong phú kể từ khi graphene được tổng hợp thành công. Sự phá vỡ cấu trúc đối xứng trong các vật liệu Janus đã làm xuất hiện nhiều hiệu ứng vật lý đặc biệt và khác biệt so với các vật liệu đối xứng tương ứng của chúng [4]. Với các tính chất vật lý hấp dẫn, vật liệu hai chiều có cấu trúc bất đối xứng Janus ngày càng được quan tâm trong thời gian gần đây [5].

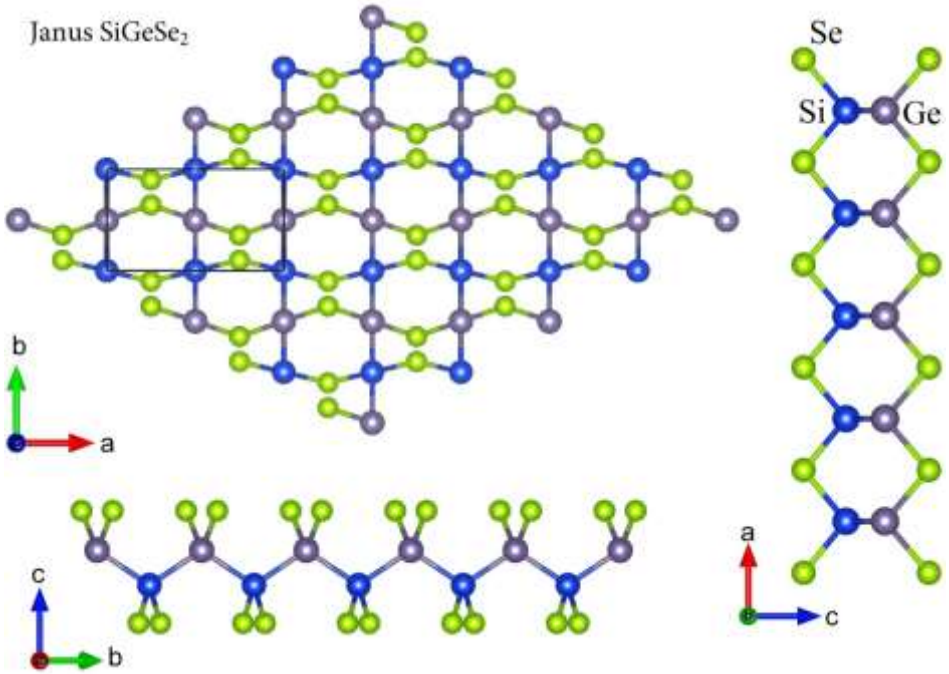
Trong số các vật liệu hai chiều có cấu trúc lớp được nghiên cứu gần đây, vật liệu nhóm IV monochalcogenide là những vật liệu không độc hại và có giá thành thấp. Nhiều vật liệu nhóm IV monochalcogenide đã được thực nghiệm chế tạo thành công, như SnS [6], SnSe [7], GeS hay GeSe [8]. Vật liệu nhóm IV chalcogenide cũng được tiên đoán là có nhiều triển vọng ứng dụng trong nhiều lĩnh vực khác nhau của công nghệ, chẳng hạn như ứng dụng trong pin mặt trời [8] hay trong các thiết bị quang-điện tử [9]. Cũng như nhiều họ vật liệu hai chiều khác, các hợp chất được hình thành từ các kim loại nhóm IV và nguyên tố chalcogen có thể tồn tại bền vững ở nhiều dạng thù hình với cấu trúc đối xứng khác nhau. Gần đây, SiS với đối xứng *Pma*2 [10] đã được đề xuất và được tiên đoán là có cấu trúc bền vững hơn một số thù hình khác của nhóm vật liệu này, chẳng hạn như như α-SiS hay β-SiS [11]. Một số cấu trúc bất đối xứng Janus hai chiều dựa trên SiX (X = S, Se, Te) cũng đã được đề xuất và nghiên cứu bằng phương pháp lý thuyết phiếm hàm mật độ [12, 13]. Các kết quả tính toán cho thấy rằng những cấu trúc Janus này có nhiều tính chất vật lý nổi trội với nhiều triển vọng ứng dụng trong công nghệ.

Trong bài báo này, chúng tôi sử dụng phương pháp lý thuyết phiếm hàm mật độ để nghiên cứu các tính chất vật lý của đơn lớp Janus $SiGeSe_2$, bao gồm các đặc trưng cấu trúc, tính chất cơ học, tính chất điện tử và độ linh động hạt tải. Ảnh hưởng của hiệu ứng tương tác spin-orbit lên các đặc trưng điện tử của Janus $SiGeSe_2$ cũng đã được nghiên cứu và thảo luận trong bài báo này. Kết quả tính toán đem lại nhiều thông tin chi tiết về các đặc trưng vật lý cơ bản cũng như triển vọng ứng dụng của Janus $SiGeSe_2$ trong công nghệ.

2. Phương pháp tính toán

Trong bài báo này, chúng tôi sử dụng phần mềm Vienna ab initio simulation package (VASP) [14, 15] để thực hiện các tính toán bằng lý thuyết phiếm hàm mật độ. Để khảo sát tương tác trao đổi tương quan trong hệ, chúng tôi sử dụng phương pháp gần đúng gradient suy rộng (GGA) với phiếm hàm PBE (Perdew, Burke và Ernzerhof) [16]. Bên cạnh đó, chúng tôi sử dụng phiếm hàm lai HSE06 [17] để hiệu chỉnh cấu trúc vùng năng lượng. Tương tác spin-orbit (SOC) đã được thêm vào trong các tính toán tự hợp để khảo sát ảnh hưởng của hiệu ứng SOC lên các đặc trưng điện tử của vật liệu. Để khảo sát vật liệu có cấu trúc bất đối xứng, chúng tôi cũng đã sử dụng các hiệu chỉnh lưỡng cực để xử lý các lỗi sinh ra cho các điều kiện biên tuần hoàn. Phương pháp chia lưới Monkhorst-Pack [18] đã được sử dụng để chia lưới vùng Brilloui và lưới với kích thước 12×12×1 k-mesh đã được sử dụng cho các tính toán về tối ưu hóa cấu trúc và tính toán cấu trúc điện tử. Năng lượng ngưỡng được sử dụng trong phương pháp sóng phẳng là

500 eV. Ngưỡng hội tụ về năng lượng và lực được thiết lập lần lượt là 10^{-6} eV và 10^{-3} eV/A. Một khoảng chân không với kích thước 15 Å đã được chèn vào theo phương thẳng đứng để triệt tiêu các tương tác giữa các lớp lân cận. Chúng tôi thực hiện các mô phỏng động học phân tử nguyên lý đầu (AIMD) với tập hợp chính tắc ở nhiệt độ T = 300 K để kiểm tra độ bền nhiệt của vật liệu. Mô phỏng AIMD được thực hiện trong 8000 bước với mỗi bước là 1 fs. Độ bền cơ học của vật liệu được kiểm tra dựa trên việc phân tích các hằng số đàn hồi và đối chiếu với tiêu chuẩn Born–Huang về độ bền cơ học. Chúng tôi sử dụng phương pháp thế biến dạng [19] để tính toán độ linh động của hạt tải trong đó các tham số truyền dẫn được tính toán bằng lý thuyết phiếm hàm mật độ.



Hình 1. Cấu trúc tinh thể của vật liệu hai chiều đơn lớp Janus $SiGeSe_2$ nhìn theo các hướng khác nhau.

3. Kết quả và thảo luận

3.1. Cấu trúc tinh thể

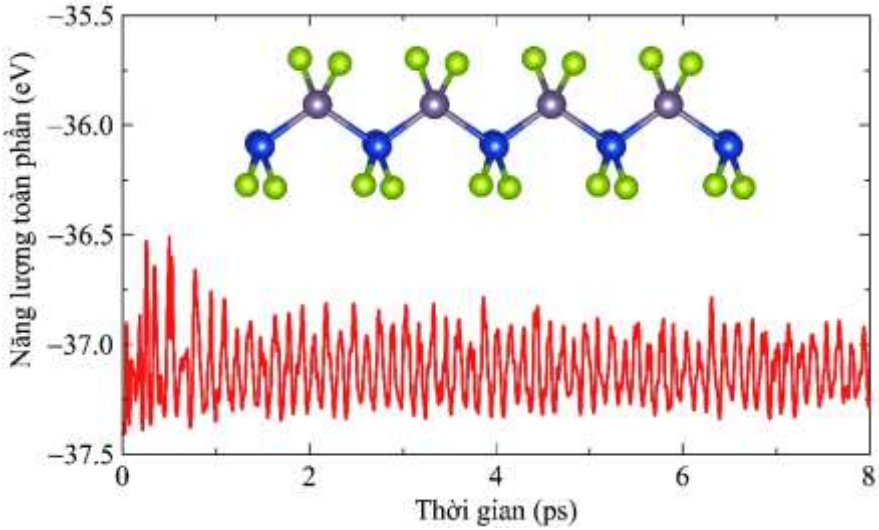
Janus $SiGeSe_2$ là vật liệu có cấu trúc bất đối xứng theo phương thẳng đứng có thể được hình thành từ SiSe hoặc GeSe bằng cách thay thế một lớp nguyên tử Si bằng một lớp nguyên tử Ge và ngược lại. Cấu trúc tinh thể của Janus $SiGeSe_2$ được trình bày ở Hình 1. Ô đơn vị của Janus $SiGeSe_2$ là hình chữ nhật có chứa tám nguyên tử, bao gồm hai nguyên tử Si, hai nguyên tử Ge và bốn nguyên tử Se. Ở trạng thái cân bằng, Janus $SiGeSe_2$ có các hằng số mạng là a = 7.03 Å và b = 4.01 Å. So với SiS (a = 6.62 Å và b = 3.96 Å) [20], Janus $SiGeS_2$ có hằng số mạng lớn hơn. Liên kết giữa các nguyên tử Si và Ge trong Janus $SiGeSe_2$ có chiều dài là $d_{Si–Ge}$ = 2.41 Å. Các liên kết Si–Se và Ge–Se có chiều dài lần lượt là $d_{Si–Se}$ = 2.32 Å và $d_{Ge–Se}$ = 2.39 Å. Mặc dù chênh lệch giữa $d_{Si–Se}$ và $d_{Ge–Se}$ là không lớn nhưng cũng đã làm phá vỡ cấu trúc đối xứng gương trong $SiGeSe_2$ và khi đó nó trở thành một vật liệu có cấu trúc bất đối xứng theo phương thẳng đứng.

Chúng tôi thực hiện tính toán năng lượng cố kết để đánh giá độ bền của các liên kết bên trong vật liệu. Năng lượng cố kết được tính toán dựa trên năng lượng của các nguyên tử cấu thành vật liệu. Năng lượng cố kết E_{coh} của Janus $SiGeSe_2$ có thể xác định thông qua biểu thức [12]:

$$E_{coh} = \frac{(N_{Si}E_{Si}+N_{Ge}E_{Ge}+N_{Se}E_{Se})-E_{tot}}{N_{Si}+N_{Ge}+N_{Se}}, \qquad (1)$$

trong đó E_{tot} là năng lượng toàn phần của đơn lớp Janus $SiGeS_2$; E_{Si}, E_{Ge} và E_S lần lượt là năng lượng của các đơn nguyên tử cô lập Si, Ge và S. N_{Si}, N_{Ge} và N_S lần lượt là số nguyên tử Si, Ge và S trong ô đơn vị.

Năng lượng cố kết của Janus $SiGeSe_2$ là 4.59 eV/nguyên tử, tương đồng với giá trị năng lượng cố kết của một số cấu trúc cùng nhóm, chẳng hạn như Si_2SeTe (4.66 eV/nguyên tử) hay Si_2STe (4.85 eV/nguyên tử) [12]. Với năng lượng cố kết lớn, các liên kết nội nguyên tử trong Janus $SiGeSe_2$ được cho là vững chắc. Đây là một thông tin quan trọng trong việc đánh giá sự bền vững cấu trúc của vật liệu.



Hình 2. Mô phỏng AIMD về sự thăng giáng năng lượng toàn phần theo thời gian ở nhiệt độ phòng của Janus $SiGeSe_2$. Hình chèn bên trong là cấu trúc tinh thể của Janus $SiGeSe_2$ ở cuối quá trình mô phỏng.

Tiếp theo, chúng tôi tiến hành mô phỏng AIMD để đánh giá độ bền nhiệt của đơn lớp Janus $SiGeS_2$. Các mô phỏng AIMD được thực hiện ở nhiệt độ phòng (T = 300 K) trong thời gian đủ dài (8 ps) để có thể đánh giá một cách chính xác độ bền nhiệt của vật liệu. Hình 2 trình bày kết quả mô phỏng AIMD về độ thăng giáng năng lượng toàn phần của Janus $SiGeSe_2$ ở nhiệt độ phòng theo thời gian. Kết quả mô phỏng cho thấy năng lượng toàn phần của Janus $SiGeSe_2$ chỉ thay đổi nhỏ trong suốt thời gian mô phỏng (biên độ dao động chỉ cỡ khoảng 0.5 eV). Cấu trúc tinh thể của Janus $SiGeSe_2$ cuối quá trình mô phỏng bị biến dạng không đáng kể. Các liên kết hóa học vẫn bền vững và không xảy ra sự chuyển pha cấu trúc. Điều này chứng tỏ rằng Janus $SiGeSe_2$ có cấu trúc bền vững ở nhiệt độ phòng.

3.2. Độ bền cơ học và tính chất cơ học

Chúng tôi tiếp tục tính toán các hệ số đàn hồi để đánh giá độ bền cơ học của Janus $SiGeSe_2$. Đối với vật liệu hai chiều, chúng ta cần tính toán bốn hệ số đàn hồi độc lập C_{11}, C_{12}, C_{22} và C_{66}. Các hệ số đàn hồi được tính toán thông qua mối liên hệ giữa năng lượng biến dạng và biến dạng trục. Janus $SiGeSe_2$ có các hệ số đàn hồi tương đối thấp với C_{11} = 62.20 N/m, C_{12} = –7.03 N/m, C_{22} = 60.01 N/m và C_{66} = 7.07 N/m. Đặc biệt, hệ số C_{12} của Janus $SiGeSe_2$ có giá trị âm nên có thể xuất hiện hiệu ứng "auxetic" (vật liệu có tỉ số Poisson âm) trong Janus $SiGeSe_2$. Quan trọng hơn cả, điều kiện độ bền cơ học của Janus $SiGeSe_2$ được đảm bảo do các hệ số đàn hồi của nó thỏa mãn điều kiện Born–Huang về độ bền cơ học ($C_{11}C_{22} - C_{12}^2 > 0$ và $C_{66} > 0$) [3].

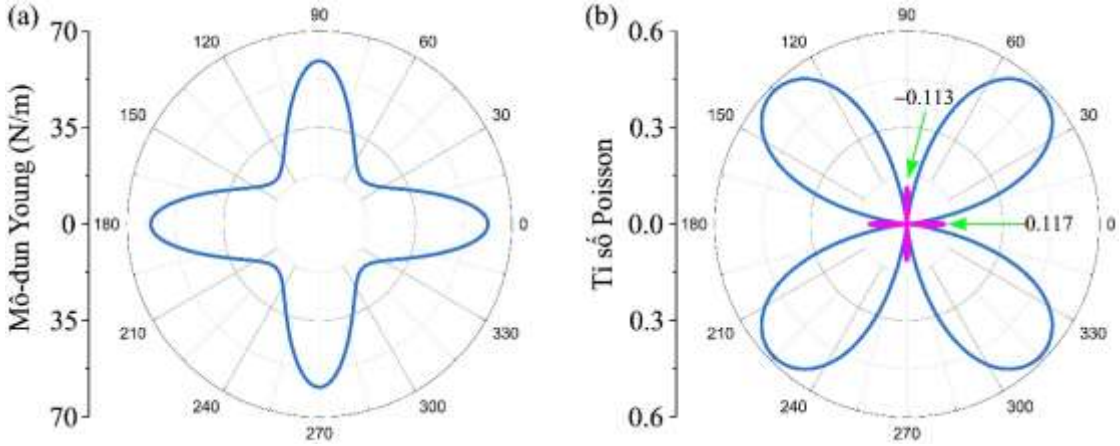
Dựa trên kết quả tính toán các hệ số đàn hồi, chúng ta có thể phân tích sâu hơn về các đặc trưng cơ học của vật liệu thông qua tính toán mô-

đun Young và tỉ số Poisson. Mô-đun Young và tỉ số Poisson của Janus $SiGeSe_2$ là những đại lượng phụ thuộc vào hướng khảo sát do cấu trúc bất đẳng hướng trong mặt phẳng hai chiều của nó ($a \neq b$). Biểu thức mô-đun Young $Y_{2D}(\alpha)$ và tỉ số Poisson $\vartheta(\alpha)$ được cho bởi [21]:

$$Y_{2D}(\alpha) = \frac{C_{11}C_{22}-C_{12}^2}{C_{11}\mathrm{Sin}^4\alpha+C_{22}\mathrm{Cos}^4\alpha+A\mathrm{Sin}^2\alpha\mathrm{Cos}^2\alpha}, \quad (2)$$

$$\vartheta(\alpha) = \frac{C_{11}\mathrm{Sin}^4\alpha+C_{22}\mathrm{Cos}^4\alpha-B\mathrm{Sin}^2\alpha\mathrm{Cos}^2\alpha}{C_{11}\mathrm{Sin}^4\alpha+C_{22}\mathrm{Cos}^4\alpha+A\mathrm{Sin}^2\alpha\mathrm{Cos}^2\alpha}, \quad (3)$$

với $A = (C_{11}C_{22} - C_{12}^2)/C_{66} - 2C_{12}$; $A = C_{11} + C_{22} - (C_{11}C_{22} - C_{12}^2)/C_{66}$ và α là góc giữa hướng khảo sát và trục *x*.



Hình 3. Mô-đun Young (a) và tỉ số Poisson (b) của đơn lớp Janus $SiGeSe_2$.

Mo-đun Young $Y_{2D}(\alpha)$ và tỉ số Poisson $P(\alpha)$ được biểu diễn ở Hình 3. Kết quả tính toán cho thấy rằng Janus $SiGeSe_2$ có đặc trưng cơ học bất đẳng hướng rất mạnh với cả mô-đun Young và tỉ số Poisson phụ thuộc lớn vào hướng khảo sát. Điều này là phù hợp với cấu trúc tinh thể bất đối xứng lớn của Janus $SiGeSe_2$ với tỉ số bất đối xứng ($\gamma = a/b$) lên đến 1.75. Mô-đun Young của đơn lớp Janus $SiGeSe_2$ cực đại theo hướng tương ứng với $\alpha = 0^o$ (trục *x*) và đạt giá trị $Y_{2D}(0^o)$ = 61.37 N/m như biểu diễn trong Hình 3(a). Giá trị mô-đun Young dọc theo trục *y* cũng lớn xấp xỉ giá trị cực đại, $Y_{2D}(0^o)$ = 59.21 N/m. Điều này có nghĩa là Janus $SiGeSe_2$ dọc theo các trục *x* và *y* là cứng hơn so với các hướng khác. Tại $\alpha = 45^o$ và $\alpha = 135^o$ Janus $SiGeSe_2$ có mô-đun Young nhỏ nhất, cỡ 22.50 N/m. Đây là hướng mềm nhất của Janus $SiGeSe_2$.

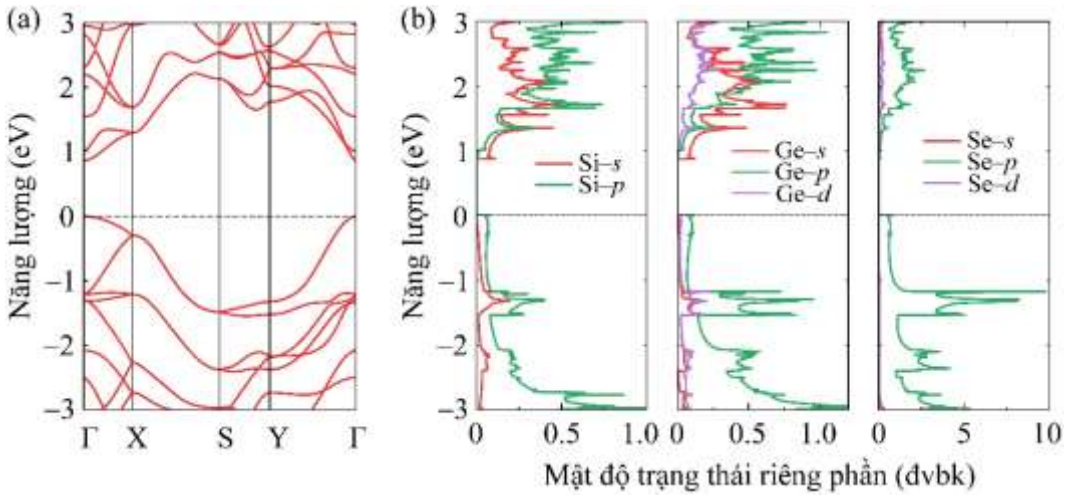
Hình 3(b) biểu diễn sự phụ thuộc của tỉ số Poisson vào góc α. Chúng ta thấy rằng tỉ số Poisson của Janus $SiGeSe_2$ có tính chất bất đẳng hướng mạnh. Tỉ số Poisson có giá trị lớn dọc theo hướng $\alpha = 45^o$ và $\alpha = 135^o$ và đặc biệt là nó có tỉ số Poisson âm với giá trị khá lớn theo hướng $\alpha = 0^o$ và $\alpha = 90^o$, $\vartheta(0^0) = -0.117$ và $\vartheta(90^0) = -0.113$. Vật liệu có chứa tỉ số Poisson âm như thế này còn có thể được gọi là vật liệu "auxetic". Một số vật liệu nhóm IV–VI khác cũng tồn tại hiệu ứng "auxetic" như SiS hay SiSe [20]. Đơn lớp δ-phosphorene cũng là một vật liệu "auxetic" với tỉ số Poisson âm lên đến −0.267 [22]. Tỉ số Poisson âm trong Janus $SiGeSe_2$ có thể được giải thích là do cấu trúc của nó giống như dạng bản lề nên chiều ngang có thể giãn nở ra khi kéo căng theo chiều dọc và ngược lại. Vật liệu "auxetic" được ứng dụng nhiều trong các công nghệ lưu trữ năng lượng cũng như các ứng dụng liên quan đến khả năng chống đứt gãy của nó.

3.3. Tính chất điện tử

Tính chất điện tử là một trong những tính chất quan trọng của vật liệu. Hiểu rõ các tính chất điện tử sẽ giúp chúng ta thấy rõ hơn các triển vọng ứng dụng vật liệu vào trong công nghệ, đặc biệt là công nghệ điện tử và quang-điện tử. Trên Hình 4, chúng tôi biểu diễn cấu trúc vùng năng

lượng điện tử và mật độ trạng thái riêng phần của Janus $SiGeSe_2$ được tính toán bằng lý thuyết phiếm hàm mật độ với phiếm hàm trao đổi tương quan PBE. Ở trạng thái cơ bản, Janus $SiGeSe_2$ là vật liệu bán dẫn có vùng cấm khá nhỏ, 0.86 eV (theo phiếm hàm PBE). Trong cấu trúc vùng năng lượng như biểu diễn ở Hình 4(a), cả cực đại vùng hóa trị (VBM) và cực tiểu vùng dẫn (CBM) đều nằm tại điểm Γ và hình thành nên vùng cấm thẳng của Janus $SiGeSe_2$. Cấu trúc vùng năng lượng của Janus $SiGeSe_2$ được hình thành với sự đóng góp chính của các orbitan *p* của các nguyên tử như biểu diễn trong Hình 4(b). Đóng góp của các orbitan Si–*s* và Ge–*s* cho sự hình thành vùng dẫn cũng rất đáng kể trong miền năng lượng mà chúng tôi khảo sát, tức từ –3 eV đến 3 eV.

Đối với các hợp chất có chứa các nguyên tử có bán kính nguyên tử lớn, chẳng hạn như Se hay Ge, ảnh hưởng của tương tác spin-orbit (SOC) lên các tính chất điện tử của vật liệu là rất đáng kể. Để khảo sát ảnh hưởng của tương tác spin-orbit lên các tính chất điện tử của Janus $SiGeSe_2$, chúng tôi tiến hành tính toán cấu trúc vùng năng lượng điện tử của nó bằng cách sử dụng phương pháp PBE+SOC. Khi hiệu ứng SOC được tính đến, các suy biến trong cấu trúc vùng năng lượng tại các điểm đối xứng cao bị loại bỏ và xuất hiện sự tách mức năng lượng. Các tính toán của chúng tôi đã cho thấy rằng đã có sự tách mức năng lượng trong cấu trúc vùng năng lượng của Janus $SiGeSe_2$ khi có mặt của hiệu ứng tương tác spin-orbit như biểu diễn ở Hình 5(a). Hiệu ứng tương tác spin-orbit không chỉ làm tách các mức năng lượng mà còn làm giảm độ rộng vùng cấm của đơn lớp Janus $SiGeSe_2$. Độ rộng vùng cấm của Janus $SiGeSe_2$ được tính bằng phương pháp PBE+SOC là 0.75 eV, nhỏ hơn độ rộng vùng cấm được tính bằng phương pháp PBE (0.86 eV).



Hình 4. Cấu trúc vùng năng lượng điện tử (a) và mật độ trạng thái riêng phần (b) của đơn lớp Janus $SiGeSe_2$ được tính bằng phiếm hàm PBE.

Phiếm hàm PBE là một trong những phiếm hàm được sử dụng rộng rãi trong việc tính toán cấu trúc vùng năng lượng điện tử của vật liệu do sự đơn giản và tốn ít tài nguyên tính toán. Tuy vậy, độ rộng vùng cấm của các bán dẫn và điện môi được tính bằng phiếm hàm PBE được cho là không chính xác. Phiếm hàm lai HSE06 được xem là một giải pháp hợp lý để khắc phục nhược điểm này của phiếm hàm PBE. Cấu trúc vùng năng lượng điện tử của Janus $SiGeSe_2$ được tính bằng phiếm hàm HSE06 được biểu diễn ở Hình 5(b). Kết quả tính toán cho thấy có sự tương đồng giữa vùng năng lượng điện tử được tính bằng phiếm hàm HSE06 và PBE. Tuy vậy, năng lượng vùng cấm của Janus $SiGeSe_2$ được tính bằng phiếm hàm HSE06 là 1.70 eV, lớn hơn nhiều so với năng lượng vùng cấm tính bằng phiếm hàm PBE. Năng lượng vùng cấm của bán

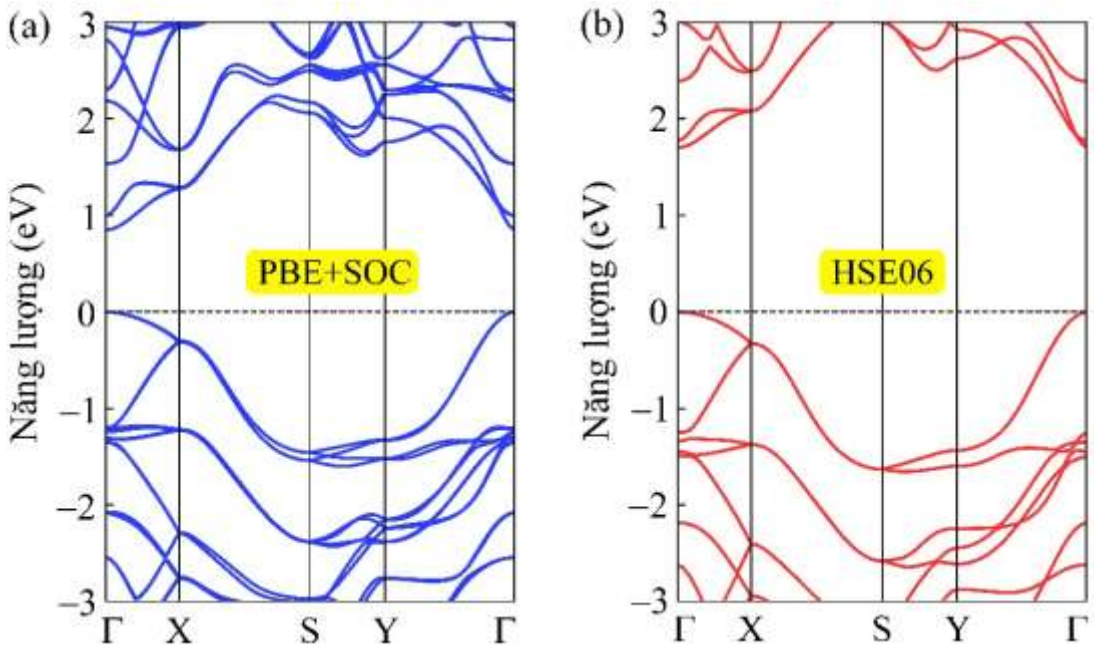
dẫn và điện môi tính bằng phiếm hàm HSE06 được cho là phù hợp hơn với các giá trị đo đạc bằng thực nghiệm.

Công thoát điện tử cũng là một đặc trưng quan trọng của điện tử trong vật liệu. Đây là đại lượng dùng để đánh giá khả năng thoát hoàn toàn ra bên ngoài bề mặt vật liệu của các điện tử. Chúng ta có thể xác định được công thoát điện tử thông qua việc phân tích thế năng tĩnh điện của vật liệu. Với các cấu trúc bất đối xứng, chúng ta cần sử dụng hiệu chỉnh lưỡng cực để xử lý các sai lệch sinh ra do việc áp dụng điều kiện biên tuần hoàn. Với cấu trúc bất đối xứng theo phương thẳng đứng, bên trong Janus $SiGeSe_2$ tồn tại một điện trường nội theo phương thẳng đứng (do sự chênh lệch độ âm điện giữa các lớp nguyên tử ở hai bên). Điều này ảnh hưởng đáng kể đến các tính chất vật lý của vật liệu. Hình 6 biểu diễn thế năng tĩnh điện của đơn lớp Janus $SiGeSe_2$. Từ Hình 6, chúng ta thấy rằng có sự chênh lệch nhỏ của hai mức chân không giữa các bề mặt của Janus $SiGeSe_2$ với giá trị là $\Delta\Phi$ = 0.17 eV. Điều này là do có sự khác nhau về độ âm điện giữa các lớp nguyên tử ở hai phía của Janus $SiGeSe_2$. Sự khác nhau giữa mức chân không giữa hai bề mặt sẽ làm cho công thoát điện tử ở hai bề mặt sẽ khác nhau. Công thoát điện tử được tính theo biểu thức:

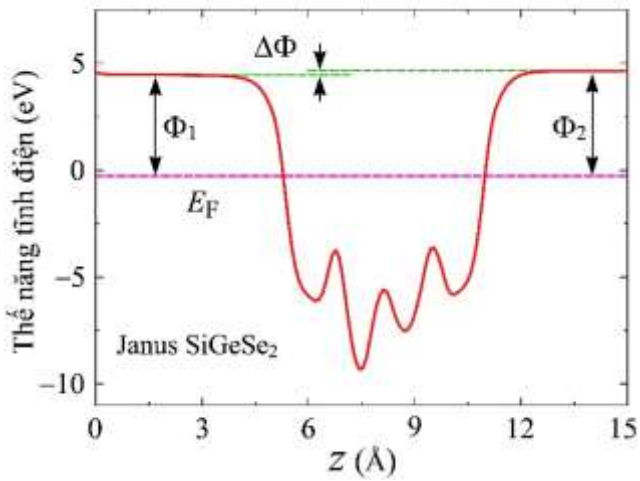
$$\Phi = E_{vac} - E_{F,} \quad (4)$$

trong đó E_{vac} và E_F lần lượt là mức chân không và mức Fermi.

Kết quả tính toán cho thấy công thoát điện tử ở hai bề mặt Φ_1 (mặt dưới Se–Si) và Φ_2 (mặt trên Ge–Se) lần lượt là 7.35 eV và 7.52 eV. Với giá trị công thoát như vậy, các điện tử sẽ dễ dàng thoát ra khỏi bề mặt Si–Se hơn so với bề mặt Ge–Se.



Hình 5. Cấu trúc vùng năng lượng của đơn lớp Janus $SiGeSe_2$ được tính bằng phiếm hàm HSE06 (a) và PBE+SOC (b).



Hình 6. Thế năng tĩnh điện của đơn lớp Janus $SiGeSe_2$. E_F là mức Fermi, $\Phi_{1,2}$ là công thoát điện tử ở hai bề mặt của đơn lớp và $\Delta\Phi$ là độ chênh lệch mức chân không giữa hai bề mặt.

3.4. Độ linh động của hạt tải

Độ linh động của hạt tải (điện tử và lỗ trống) là một trong những đại lượng quan trọng trong tính chất truyền dẫn của vật liệu. Giá trị của độ linh động của hạt tải, đặc biệt là độ linh động của điện tử, là một thông số có ý nghĩa quan trọng trong việc đánh giá khả năng ứng dụng vật liệu vào trong công nghệ. Phương pháp thế biến dạng là một trong những phương pháp thông dụng được dùng để tính toán độ linh động của hạt tải [19]. Với vật liệu hai chiều, công thức tính độ linh động của hạt tải theo lý thuyết thế biến dạng là [23]:

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

trong đó e, $\hbar$ và k_B lần lượt là điện tích nguyên tố, hằng số Plank rút gọn và hằng số Boltzmann; T là nhiệt độ của hệ; C_{2D} là mô đun đàn hồi và E_d là hằng số thế biến dạng; m^* là khối lượng hiệu dụng và $\bar{m} = \sqrt{m_x m_y}$ là khối lượng hiệu dụng trung bình của hạt tải.

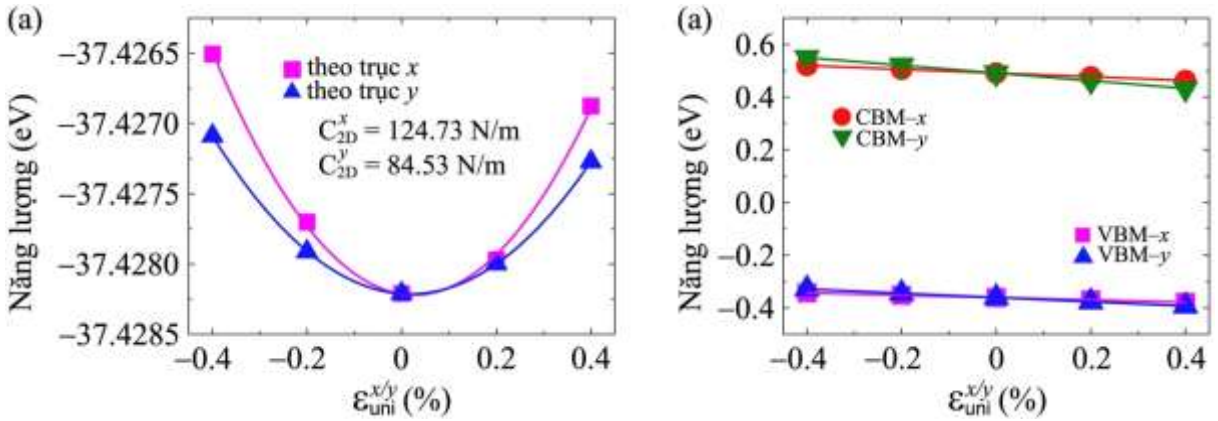
Chúng ta tính toán các tham số truyền dẫn m^*, C_{2D} và E_d được tính bằng phương pháp lý thuyết phiếm hàm mật độ dựa trên các biểu thức [23]:

$$\frac{1}{m^*} = \frac{1}{\hbar^2}\left|\frac{\partial^2 E(k)}{\partial k^2}\right|, \quad (6)$$

$$C_{2D} = \frac{1}{V_0}\frac{\partial^2 E}{\partial \varepsilon_{uni}^2}, \quad (7)$$

$$E_d = \frac{\Delta E}{\varepsilon_{uni}}, \quad (8)$$

với $E(k)$ là năng lượng phụ thuộc vectơ sóng k; E là năng lượng toàn phần của hệ; V_0 là diện tích ô đơn vị, ε_{uni} là độ biến dạng trục dọc theo các hướng truyền dẫn x và y; ΔE là độ lệch năng lượng của cực tiểu vùng dẫn (CBM) (đối với điện tử) hoặc cực đại vùng hóa trị (VBM) (đối với lỗ trống) so với mức chân không do biến dạng trục gây nên.



Hình 7. Sự phụ thuộc của (a) năng lượng toàn phần và (b) năng lượng cực tiểu vùng dẫn (CBM)/cực đại vùng hóa trị (VBM) của đơn lớp Janus $SiGeSe_2$.

Bảng 1. Khối lượng hiệu dụng của hạt tải m^* (m_0), mô-đun đàn hồi C_{2D} (N/m), hằng số thế biến dạng E_d (eV) và độ linh động hạt tải μ_{2D} ($cm^2V^{-1}s^{-1}$) dọc theo các hướng truyền dẫn x và y của đơn lớp $SiGeSe_2$. m_0 là khối lượng điện tử tự do.

	m_x^*	m_y^*	C_{2D}^x	C_{2D}^y	E_d^x	E_d^y	μ_{2D}^x	μ_{2D}^y
Điện tử	0.66	0.14	124.73	84.53	–7.07	–14.61	264.56	197.94
Lỗ trống	2.26	0.44	124.73	84.53	–4.46	–8.07	59.18	62.92

Khối lượng hiệu dụng của hạt tải phụ thuộc lớn vào hình dáng của cấu trúc vùng năng lượng ở lân cận điểm CBM (đối với điện tử) và VBM (đối với lỗ trống). Cấu trúc vùng năng lượng lân cận CBM/VBM càng phẳng thì khối lượng càng lớn do bình phương vi phân $\partial^2 E/\partial \varepsilon_{uni}^2$ càng nhỏ như biểu diễn ở công thức (6). Khối lượng hạt tải có ý nghĩa quan trọng trong việc xác định độ linh động của hạt tải. Khối lượng hạt tải càng nhỏ thì khả năng phản ứng của hạt tải với trường ngoài càng nhanh và hạt tải có khả năng có độ linh động cao. Tuy vậy, độ linh động của hạt tải còn phụ thuộc vào mô-đun đàn hồi C_{2D} và thế biến dạng E_d. Mô-đun đàn hồi C_{2D} và thế biến dạng E_d có thể được tính toán bằng cách khảo sát sự phụ thuộc của năng lượng toàn phần và năng lượng của CBM/VBM vào độ biến dạng trục như biểu diễn ở Hình 6. Để tính toán mô-đun đàn hồi C_{2D} và thế biến dạng E_d, chúng tôi sử dụng các biến dạng nhỏ từ –0.4% đến +0.4% dọc theo các hướng truyền dẫn x và y (ở đây dấu "+" và dấu "–" lần lượt dùng để biểu diễn biến dạng kéo và biến dạng nén).

Trong Bảng 1, chúng tôi trình bày các kết quả tính toán các tham số truyền dẫn m^*, C_{2D}, E_d và độ linh động của các hạt tải μ_{2D} (điện tử và lỗ trống) dọc theo các hướng truyền dẫn x và y. Kết quả tính toán cho thấy Janus $SiGeSe_2$ có các đặc trưng truyền dẫn bất đẳng hướng dọc theo các hướng truyền dẫn x và y. Mặc dù Janus $SiGeSe_2$ có các điện tử với khối lượng hiệu dụng nhỏ nhưng do có thế biến dạng $|E_d|$ khá lớn nên làm ảnh hưởng đáng kể đến giá trị của độ linh động. Độ linh động của điện tử dọc theo các hướng truyền dẫn x và y lần lượt là $\mu_{2D}^x = 264.56\ cm^2V^{-1}s^{-1}$ và $\mu_{2D}^y = 197.94\ cm^2V^{-1}s^{-1}$ như trình bày trong Bảng 1. Độ linh động của lỗ trống nhỏ hơn nhiều so với độ linh động của điện tử. Dọc theo các hướng truyền dẫn x và y, độ linh động của lỗ trống trong Janus $SiGeSe_2$ lần lượt là $59.18\ cm^2V^{-1}s^{-1}$ và $62.92\ cm^2V^{-1}s^{-1}$. Các nghiên cứu trước đây đã chỉ ra rằng, các vật liệu có độ linh động điện tử cỡ $200\ cm^2V^{-1}s^{-1}$ có thể được sử dụng trong các thiết bị quang điện tử thế hệ mới, chẳng hạn như transitor hiệu ứng trường [24].

4. Kết luận

Trong bài báo này, chúng tôi đã sử dụng phương pháp lý thuyết phiếm hàm mật độ để tính toán các tham số cấu trúc, các tính chất điện tử và các tham số truyền dẫn của vật liệu hai chiều đơn lớp Janus $SiGeSe_2$. Các tính toán cho thấy Janus $SiGeSe_2$ là một bán dẫn với các đặc trưng cấu trúc và các tham số truyền dẫn có tính dị hướng cao. Janus $SiGeSe_2$ có các tính chất cơ học dị hướng bất thường với tỉ số Poisson âm. Do cấu trúc bất đối xứng theo phương thẳng đứng, bên trong Janus $SiGeSe_2$ tồn tại một điện trường thẳng đứng và dẫn đến công thoát điện tử ở các bề mặt của vật liệu khác nhau. Ảnh hưởng của hiệu ứng tương tác spin-orbit lên các tính chất điện tử cũng đã được tính toán và thảo luận trong bài báo này. Đơn lớp Janus $SiGeSe_2$ có độ linh động của điện tử khá cao, dọc theo các hướng truyền dẫn x và y tương ứng là $\mu_{2D}^{x} = 264.56\ \mathrm{cm^2V^{-1}s^{-1}}$ và $\mu_{2D}^{y} = 197.94\ \mathrm{cm^2V^{-1}s^{-1}}$. Với tính chất vật lý đa dạng, Janus $SiGeSe_2$ có nhiều triển vọng ứng dụng vào trong các lĩnh vực khác nhau của công nghệ.

Lời cảm ơn: Bài báo này là sản phẩm của đề tài nghiên cứu mã số CSB2024-07 được tài trợ bởi Trường Đại học Sài Gòn.

Tài liệu tham khảo

[1] D.L. Duong, S.J. Yun, Y.H. Lee. (2017). "Van der Waals Layered Materials: Opportunities and Challenges", *ACS Nano*, 11, 11803-11830.

[2] Y.-C. Lin, R. Torsi, R. Younas, C.L. Hinkle, A.F. Rigosi, H.M. Hill, K. Zhang, S. Huang, C.E. Shuck, C. Chen, Y.-H. Lin, D. Maldonado-Lopez, J.L. Mendoza-Cortes, J. Ferrier, S. Kar, N. Nayir, S. Rajabpour, A.C.T. van Duin, X. Liu, D. Jariwala, J. Jiang, J. Shi, W. Mortelmans, R. Jaramillo, J.M.J. Lopes, R. Engel-Herbert, A. Trofe, T. Ignatova, S.H. Lee, Z. Mao, L. Damian, Y. Wang, M.A. Steves, K.L. Knappenberger, Jr., Z. Wang, S. Law, G. Bepete, D. Zhou, J.-X. Lin, M.S. Scheurer, J. Li, P. Wang, G. Yu, S. Wu, D. Akinwande, J.M. Redwing, M. Terrones, J.A. Robinson. (2023). "Recent Advances in 2D Material Theory, Synthesis, Properties, and Applications", *ACS Nano*, 17, 9694-9747.

[3] W. Fang, H. Wei, X. Xiao, Y. Chen, M. Li, Y. He. (2022). "Monolayer SnX (X = O, S, Se): Two-Dimensional Materials with Low Lattice Thermal Conductivities and High Thermoelectric Figures of Merit", *ACS Applied Energy Materials*, 5, 7802-7812.

[4] T.V. Vu, N.P.Q. Anh, H.V. Phuc, A.I. Kartamyshev, N.N. Hieu. (2023). "Strong out-of-plane piezoelectricity and Rashba-type spin splitting in asymmetric structures: first-principles study for Janus γ-Sn2OX (X = S, Se, Te) monolayers", *New Journal of Chemistry*, 47, 11660-11668.

[5] N.P.Q. Anh, N.T. Hiep, D.V. Lu, C.Q. Nguyen, N.N. Hieu, V.T.T. Vi. (2023). "Crystal lattice and electronic and transport properties of Janus ZrSiSZ2 (Z = N, P, As) monolayers by first-principles investigations", *Nanoscale Advances*, 5, 6705-6713.

[6] S.S. Shinde, A. Sami, D.-H. Kim, J.-H. Lee. (2015). "Nanostructured SnS-N-doped graphene as an advanced electrocatalyst for the hydrogen evolution reaction", *Chemical Communications*, 51,15716-15719.

[7] L. Li, Z. Chen, Y. Hu, X. Wang, T. Zhang, W. Chen, Q. Wang. (2013). "Single-Layer Single-Crystalline SnSe Nanosheets", *Journal of the American Chemical Society*, 135, 1213-1216.

[8] P. Ramasamy, D. Kwak, D.-H. Lim, H.-S. Ra, J.-S. Lee. (2016). "Solution synthesis of GeS and GeSe nanosheets for high-sensitivity photodetectors", *Journal of Materials Chemistry C*, 4, 479-485.

[9] N. Koteeswara Reddy, Y.B. Hahn, M. Devika, H.R. Sumana, K.R. Gunasekhar. (2007). "Temperature-dependent structural and optical properties of SnS films", *Journal of Applied Physics*, 101, 093522.

[10] J.-H. Yang, Y. Zhang, W.-J. Yin, X.G. Gong, B.I. Yakobson, S.-H. Wei. (2016) "Two-Dimensional SiS Layers with Promising Electronic and Optoelectronic Properties: Theoretical Prediction", *Nano Letters*, 16, 1110-1117.

[11] Z. Zhu, J. Guan, D. Liu, D. Tománek. (2015). "Designing Isoelectronic Counterparts to Layered Group V Semiconductors", *ACS Nano*, 9, 8284-8290.

[12] N.T. Hiep, C.Q. Nguyen, N.N. Hieu. (2023). "Negative Poisson's ratio and anisotropic carrier mobility in ternary Janus Si_2XY (X / Y = S, Se, Te): First-principles prediction", *Applied Physics Letters*, 123, 092102

[13] N.P.Q. Anh, N.A. Poklonski, V.T.T. Vi, C.Q. Nguyen, N.N. Hieu. (2024). "Two-dimensional Janus Si_2OX (X = S, Se, Te) monolayers as auxetic semiconductors: theoretical prediction", *RSC Advances*, 14, 4966-4974.

[14] G. Kresse, J. Furthmüller. (1996). "Efficient iterative schemes for ab initio total-energy calculations using a plane-wave basis set", *Physical Review B*, 54, 11169-11186.

[15] G. Kresse, J. Furthmüller. (1996). "Efficiency of ab-initio total energy calculations for metals and

semiconductors using a plane-wave basis set", *Computational Materials Science*, 6, 15-50.

[16] J.P. Perdew, K. Burke, M. Ernzerhof. (1996). "Generalized Gradient Approximation Made Simple", *Physical Review Letters*, 77, 3865-3868.

[17] J. Heyd, G.E. Scuseria, M. Ernzerhof. (2003). "Hybrid functionals based on a screened Coulomb potential", *The Journal of Chemical Physics*, 118, 8207-8215.

[18] H.J. Monkhorst, J.D. Pack. (1976). "Special points for Brillouin-zone integrations", *Physical Review B*, 13, 5188-5192.

[19] J. Bardeen, W. Shockley. (1950). "Deformation Potentials and Mobilities in Non-Polar Crystals", *Physical Review*, 80, 72-80.

[20] T. Jing, D. Liang, M. Deng, S. Cai. (2020). "Two-dimensional IV–VI materials with in-plane negative Poisson's ratio and anisotropic carrier mobility", *Journal of Materials Chemistry C*, 8, 10382-10389.

[21] N.T. Hung, A.R.T. Nugraha, R. Saito. (2018). "Two-dimensional MoS2 electromechanical actuators", *Journal of Physics D: Applied Physics*, 51, 075306.

[22] H. Wang, X. Li, P. Li, J. Yang. (2017). "δ-Phosphorene: a two dimensional material with a highly negative Poisson's ratio", *Nanoscale*, 9, 850-855.

[23] W. Wan, S. Zhao, Y. Ge, Y. Liu. (2019). "Phonon and electron transport in Janus monolayers based on InSe", *Journal of Physics: Condensed Matter*, 31, 435501.

[24] B. Radisavljevic, A. Radenovic, J. Brivio, V. Giacometti, A. Kis. (2011). "Single-layer MoS2 transistors", *Nature Nanotechnology*, 6, 147-150.