

МОДЕЛИРОВАНИЕ ФОТОХИМИЧЕСКИХ ПРОЦЕССОВ В AS₂S₃ ПРИ ОБЛУЧЕНИИ СВЕТОМ ИК И УФ ДИАПАЗОНОВ

Смирнов С.А.¹

Научный руководитель – кандидат физико-математических наук Орехов Н.Д.¹

¹МФТИ, Физтех

segakarel@icloud.com

Введение

В работе представлен детальный анализ экспериментальных исследований по фоторасслоению As₂S₃. Так, впервые представлен протокол построения направлений межслоевых сил для двумерных материалов по результатам первопринципных расчётов с решением GW@BSE и анализом частичных волновых функций с локализацией максимального перехода в обратном пространстве ячейки. Разработанный протокол был валидирован на материалах MoS₂, WS₂, гетероплёнках MoS₂/WS₂, MoSe₂/WSe₂ и успешно применён к As₂S₃.

Основная часть

При облучении As₂S₃ происходит два вида фотохимических превращений, которые можно разделить по энергии облучения: при облучении с длиной волны 408 нм наблюдается фоторасслоение; при облучении же с длиной волны 785 нм наблюдается эффект гигантского фоторасширения [1]. Подход расчёта сил описывается следующим алгоритмом: для полученного расчёта PBE-D3/G0W0@BSE строится энергии перехода, соответствующего образованию разделения заряда; для полученных значений переходов извлекаются частичные волновые функции в заданной локализации в обратном пространстве в приближении, что в образовании экситона задействовано лишь одно состояние с максимальной частотой осциллятора. Частичные волновые функции аппроксимируются по схеме расчёта заряда по Vader. Межслоевые силы рассчитываются как кулоновское взаимодействие двух слоёв с суммарными зарядами слоёв. Расчёт выполнены в программном пакете VASP с использованием метода PBE-D3/G0W0@BSE, с энергией обрезки 400 эВ, k-сеткой 4×4×2 и 256 состояниями (200 виртуальных) для стадии G0W0, а также 20 валентными и 20 состояниями зоны проводимости для стадии расчёта BSE [2]. Моделирование проведено в программном пакете LAMMPS [3] с использованием универсального высокопроизводительного потенциала молекулярной динамики PETMAD [4].

Выводы

При облучении с длиной волны 785 нм имеет место двухфотонный процесс, приводящий к разрушению с образованием точечных дефектов [1]. Эти точечные дефекты интеркалируются в межслоевое пространство, вызывая расширение кристалла на 5% [1].

Также, материалы MoS₂, WS₂ имеют тенденцию расслаиваться, гетероплёнки MoS₂/WS₂, MoSe₂/WSe₂ стягиваться, что подтверждается литературными данными, и данный подход успешно применён к As₂S₃, который также фотораслаивается.

Литература

1. Minnekhanov, A.A., Ermoplaev G.A., Tsapenko A.P. et al. Giant photorefractive and photoexpansion effects in a van der Waals semiconductor // Research Square Preprint. 2025. <https://doi.org/10.21203/rs.3.rs-6463506/v1>.

2. G. Kresse, J. Furthmüller. Efficient iterative schemes for ab initio total-energy calculations using a plane-wave basis set // *Physical Review B*. 1996. Vol. 54. P. 11169–11186. <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.54.11169>.
3. A.P. Thompson, H.M. Aktulga, R. Berger et al. LAMMPS-a flexible simulation tool for particle-based materials modeling at the atomic, meso, and continuum scales // *Computational Physics Communications*. 2022. Vol. 271. P. 108171. <https://doi.org/10.1016/j.cpc.2021.108171>.
4. A. Mazitov, F. Bigi, M. Kellner et al. PET-MAD as a lightweight universal interatomic potential for advanced materials modeling // *Nature Communications*. Vol. 16. P. 10653. <https://doi.org/10.1038/s41467-025-65662-7>.