科学家实现67种低维金属硫族磷硫族化合物的可控制备

作者：writer 来源：爱科学

本文原地址：https://www.iikx.com/news/progress/18956.html

本文仅供学习交流之用，版权归原作者所有，请勿用于商业用途！

科学家实现67种低维金属硫族磷硫族化合物的可控制备。近日，北京理工大学周家东教授、王业亮教授、姚裕贵教授和南洋理工大学刘政教授合作，实现了67种包括不同组分/不同相的（MX、MX2、MPX和MPX3）金属硫族化合物（TMCs）和金属磷硫化合物（TMPCs）及其合金与异质结的可控制备。

2022年6月23日，上述研究成果以 Composition and phase engineering of metal chalcogenides and phosphorous chalcogenides为题，发表于国际顶尖学术期刊Nature Materials。

随着集成电路技术的发展，延伸和超越摩尔定律或实现新型量子计算等需要研发新的材料体系。二维材料（2D）物理性质丰富，特别是二维磁性、二维超导、自旋电子学和多体激子等新奇物理特性，有助于引领电子、光电子、量子和信息等多个领域的发展。虽然二维材料的制备和性质研究在过去十年间取得了长足的发展，制备组分和相单一的二维材料日趋成熟，但对由相同元素不同组成比、同组成多相的可控生长方面仍然存在着巨大困难和挑战。主要原因在于，制备过程中难以保证单一组成单一相的化学反应发生同时不出现干扰组成或者相的产生。这一困境使得在物理上无法准确建立特征组成和相与物理性质的对应关系，因此也无法从电子结构等本征特性上对某一类二维材料的物理性质进行解释。因此，开发可控的方法，实现单一组成/单一物相的可控制备，是研究并调控其物理性质（如超导和铁磁）和实现应用的关键。

近日，北京理工大学周家东教授、王业亮教授、姚裕贵教授和南洋理工大学刘政教授联合提出了竞争化学反应动力学的生长机制，通过控制温度和蒸气压，实现了对化学气相沉积（CVD）过程单一相的成核和生长速率的控制，进而实现了67种包括不同组分/不同相的（MX、MX2、MPX和MPX3）金属硫族化合物（TMCs）和金属磷硫化合物（TMPCs）及其合金与异质结的可控制备。这是周家东教授继2018年开发二维材料库普适性方法（Nature 556, 355 (2018)）后提出的又一普适性制备策略，此工作将极大地推动二维材料合成的发展。

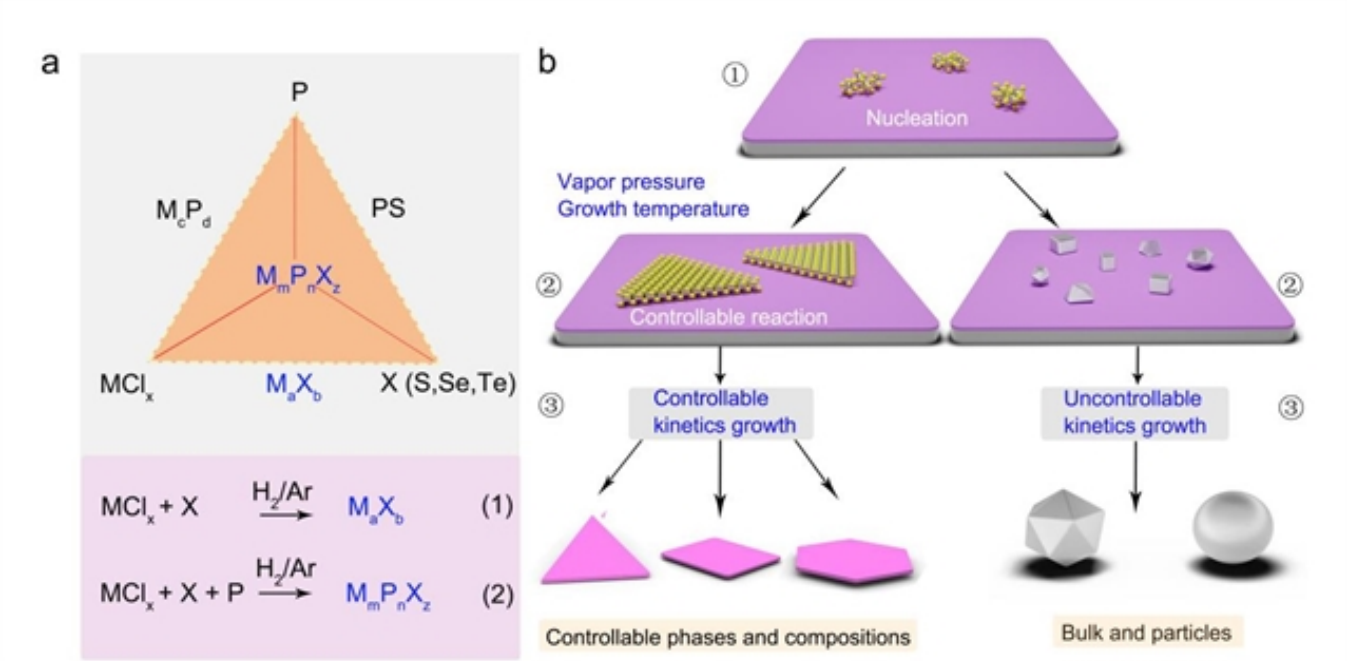


图1：可控合成具有不同相和组成的MaXb和MmPnXz的动力学生长模式

多种类2D材料的制备：以Fe基2D材料的制备为例，Fe基硫族二元化合物常见的包括FeX和FeX2，而FeX和FeX2又包括四方相和六方相等；三元磷硫化合物同样包括不同的组成如MPX、MPX3等。在成核生长过程中，不同组成和不同相之间相互竞争。同时，三元MmPnXz的生长过程更加复杂，其化学反应包括二元反应（MaXb、McPd和PS）和三元反应，MmPnXz的制备不仅需要控制三元成分生长的反应，同时需要避免形成二元MaXb、PX和McPd。另外，一些MaXb和MmPnXz具有非层状结构，非层状的外延生长和岛状生长模式之间相互竞争，为获得原子层厚度的二维材料，需要控制反应按照外延生长模式进行。

传统的生长方法侧重于提高前驱物的蒸气压，以促进产物的生成。然而，这种方法使得不同组分/不同相的物质在高温下均能发生反应并相互竞争，无法实现单一组成/单一相的可控制备。为了解决上述问题，需要控制化学反应使其只满足单一组分/单一相的生长能量。研究团队开创性地提出了一种基于竞争反应的动力学生长机制，使用大尺寸的金属氯化物作为前驱体，实现蒸气压的调控，进而调控其与S/Se/Te的温度，实现单一组成/纯相的生长。

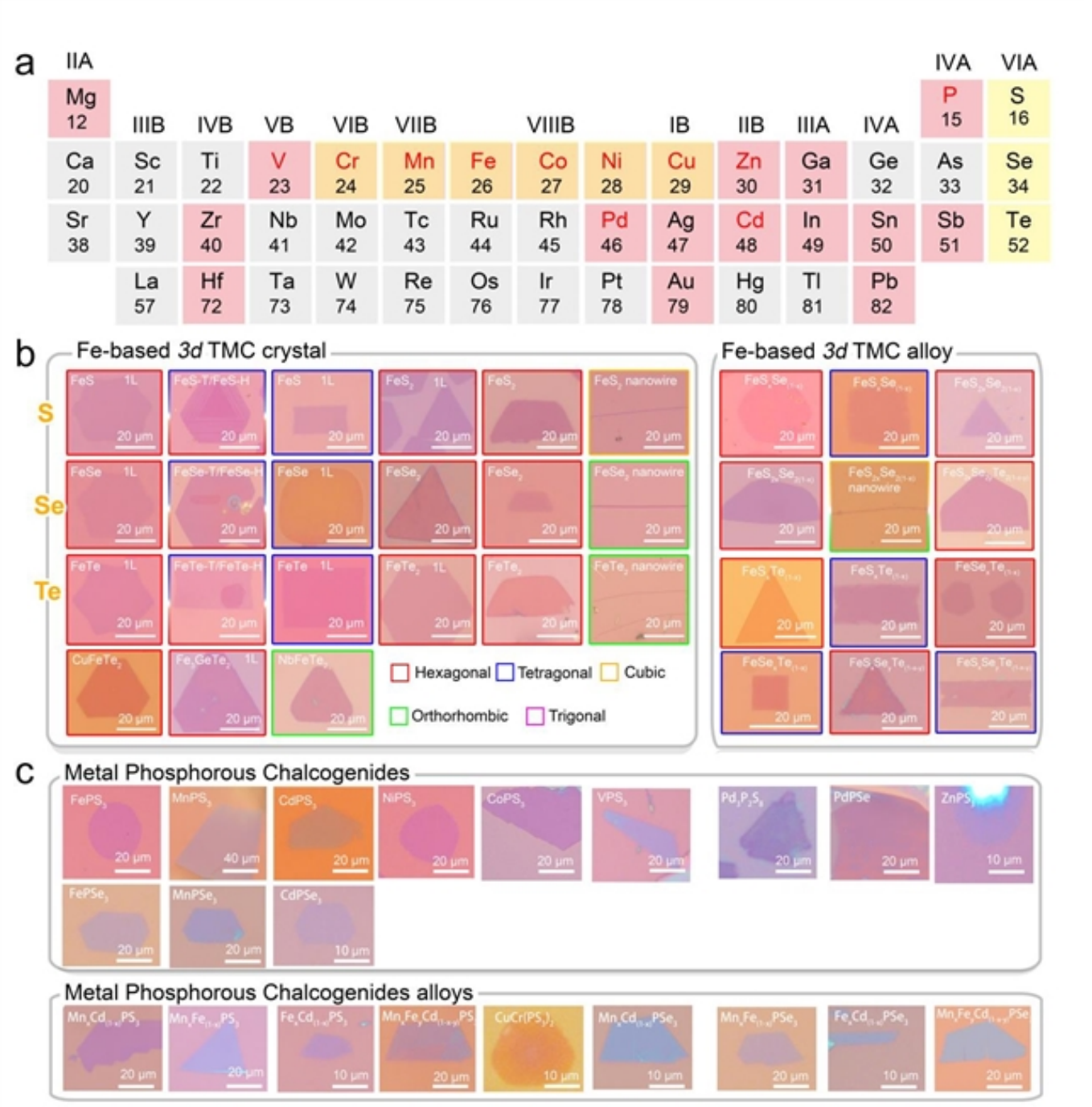


图2：所合成的2D TMCs和TMPCs库

基于该机制，成功实现了60多种类型的2D材料，其中TMCs 30种，TMPCs 21种。大多数材料尤其TMPCs，从未通过CVD法直接制备。此外，通过扩展该方法，成功合成了其它基于不同相的三元过渡金属（如Cr、Mn和Cu）硫族化合物，进一步证明了该生长方法的普适性。

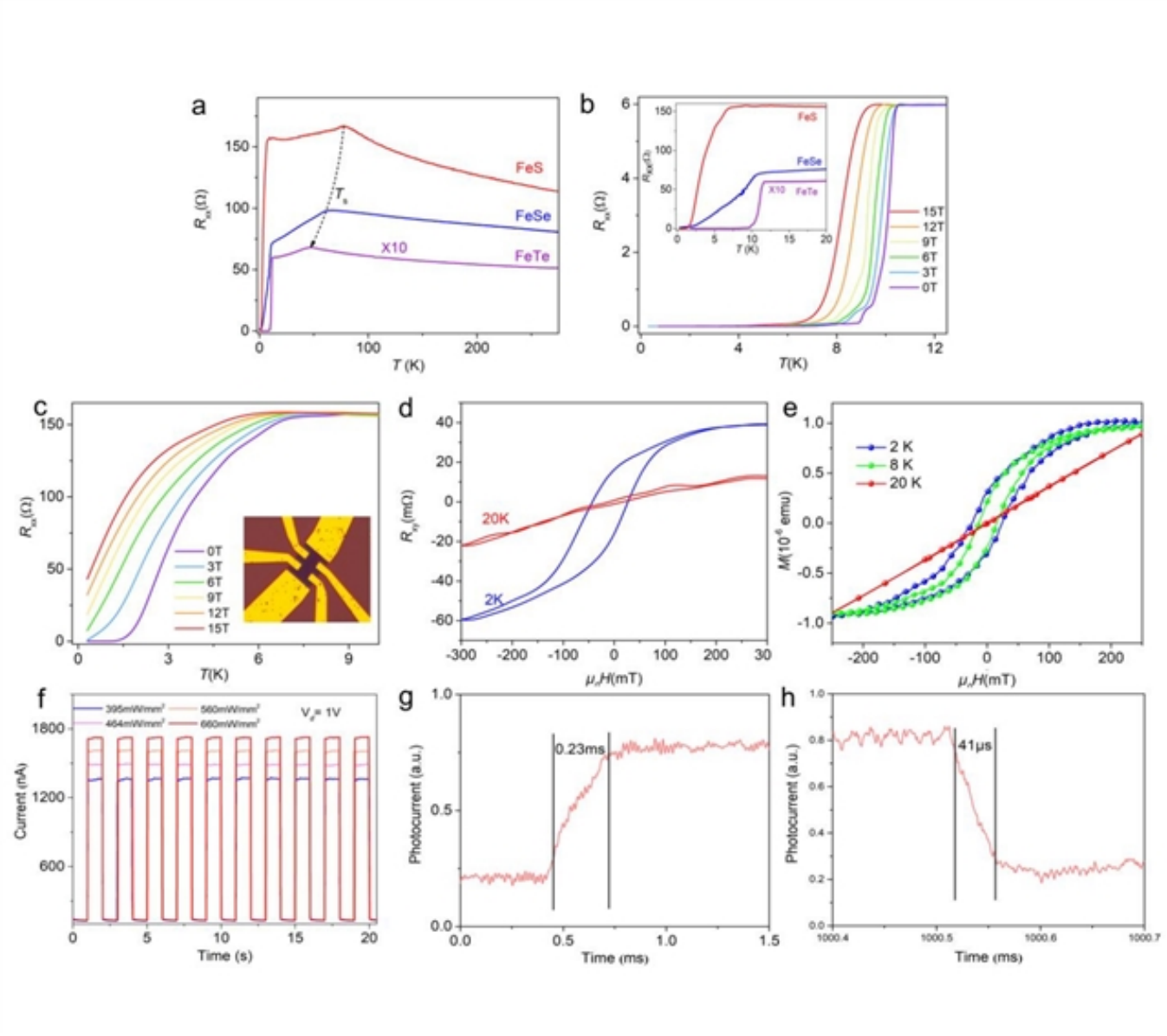


图3：组分可调的Fe基TMCs的物理性质研究

材料组成和相控制为研究2D材料的物理性质提供了较好的平台。基于高质量的材料，研究团队发现四方相FeX表现出超导特性。FeS、FeSe和FeTe的超导转变温度Tc值分别为3.3、7.3和11.0 K。不同于FeX，FeX2（FeS2）表现为铁磁特性，其Tc值约为15 K。半导体FeTe2红外探测器响应速度优于大多数已报道的二维材料，这些说明制备的二维材料具有较高的质量。

该工作不仅为原子级TMCs和TMPCs的合成开辟了一条新途径，还展示了一种新颖的生长机制，对全面理解二维材料的生长机制具有重要意义。基于所提出策略制备的具有可控相、组成和异质结构的晶体将为探索包括二维相变、铁磁与超导的调控，基于Fe基的马约拉纳束缚态、自旋电子学和多体激子在内的物理现象提供了新的可能。

该工作得到了科技部重点研发计划、国家自然科学基金和北京理工大学校创新基金等相关项目的支持。（来源：科学网）

相关论文信息：https://doi.org/10.1038/s41563-022-01291-5

作者：周家东等 来源：《自然-材料》

更多 科学进展 请访问 https://www.iikx.com/news/progress/

本文版权归原作者所有，请勿用于商业用途，爱科学iikx.com转发