

Resumen

En este estudio, investigamos la influencia de los estados de superficie en la estructura electrónica del 2D-InAs-N y analizamos los fenómenos de adsorción de este sistema con moléculas de H₂O y CO mediante cálculos de primeros principios en el formalismo de la DFT. Para analizar el fenómeno de adsorción se usó la corrección de Grimme-D3, la cual corrige la energía de las interacciones Van der Waals presentes en este tipo de moléculas. Los resultados exhiben la presencia de sitios de adsorción preferentes sobre la cara de átomos de Indio (In) respecto a los de Arsénico (As). Estos primeros avances ayudan a perfilar este sistema como futuro sensor de alta sensibilidad de moléculas de gas.

1. INTRODUCCIÓN

Los materiales bidimensionales (2D) presentan novedosas propiedades respecto a su contraparte 3D. Estos nuevos sistemas pueden diseñarse a partir de materiales convencionales, como los semiconductores del grupo III-V. En particular, el InAs exhibe alta movilidad de portadores de carga y *bandgap* estrecho (0.36 eV) [1], propiedades que son aprovechadas por la industria tecnológica. Estudios anteriores resaltan el interés de conocer las propiedades de adsorción del InAs, debido a la sensibilidad que tienen los estados de superficie frente a adsorbatos superficiales [2].

2. METODOLOGÍA

Los cálculos DFT se realizaron en **Quantum ESPRESSO** [3], considerando el funcional de XC **PBESol** y pseudopotenciales **PAW** [4]. Para describir correctamente la interacción molécula-superficie, se incluyeron correcciones de dispersión **DFT-D3** con amortiguamiento de Becke-Johnson (BJ) [5]. La relajación estructural se realizó mediante el algoritmo **BFGS** hasta alcanzar los criterios de convergencia listados en la Tabla 1.

Parámetro	Valor
E_{cut} (wfc / rho)	100 / 400 Ry
Conv. Energía	10^{-6} Ry
Conv. Fuerzas	10^{-4} Ry/Bohr
Malla k (2D-InAs)	$9 \times 9 \times 1$
Malla k (Sist. 331)	$3 \times 3 \times 1$

Tabla 1 – Parámetros computacionales.

Para analizar la adsorción de moléculas se determinó la energía de adsorción y la diferencia de densidad de carga:

Energía de Adsorción:

Diferencia de Densidad de Carga:

$$E_{ad} = E_{total} - (E_{sup} + E_{mol})$$

$$\Delta\rho(\mathbf{r}) = \rho_{total} - (\rho_{sup} + \rho_{mol})$$

Finalmente, para analizar la transferencia de carga se utilizó el cálculo de Bader [6].

4. RESULTADOS: Estados superficiales en la estructura electrónica de 2D-InAs-N capas sin impurezas.

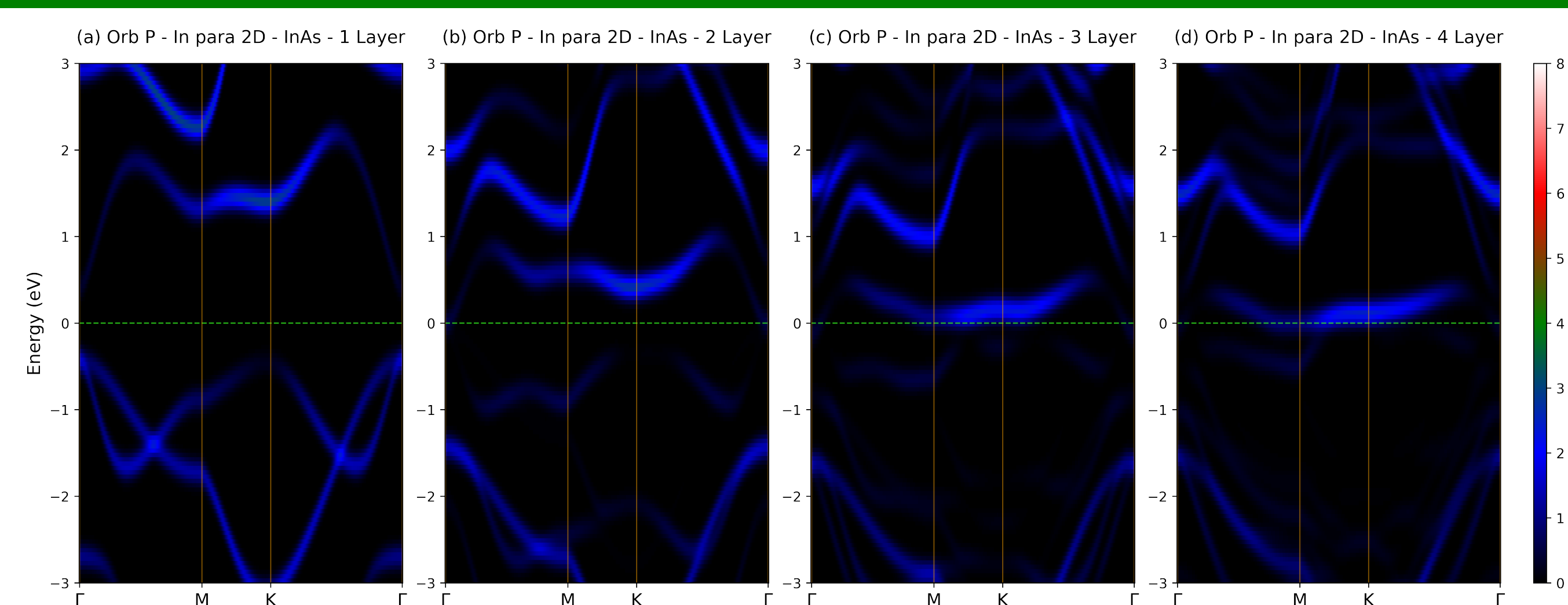


Figura 3 – K-resolved DOS proyectado en el orbital P de los átomos de Indio (In) de los sistemas 2D-InAs-N capas: (a) N = 1, (b) N = 2, (c) N = 3, (d) N = 4.

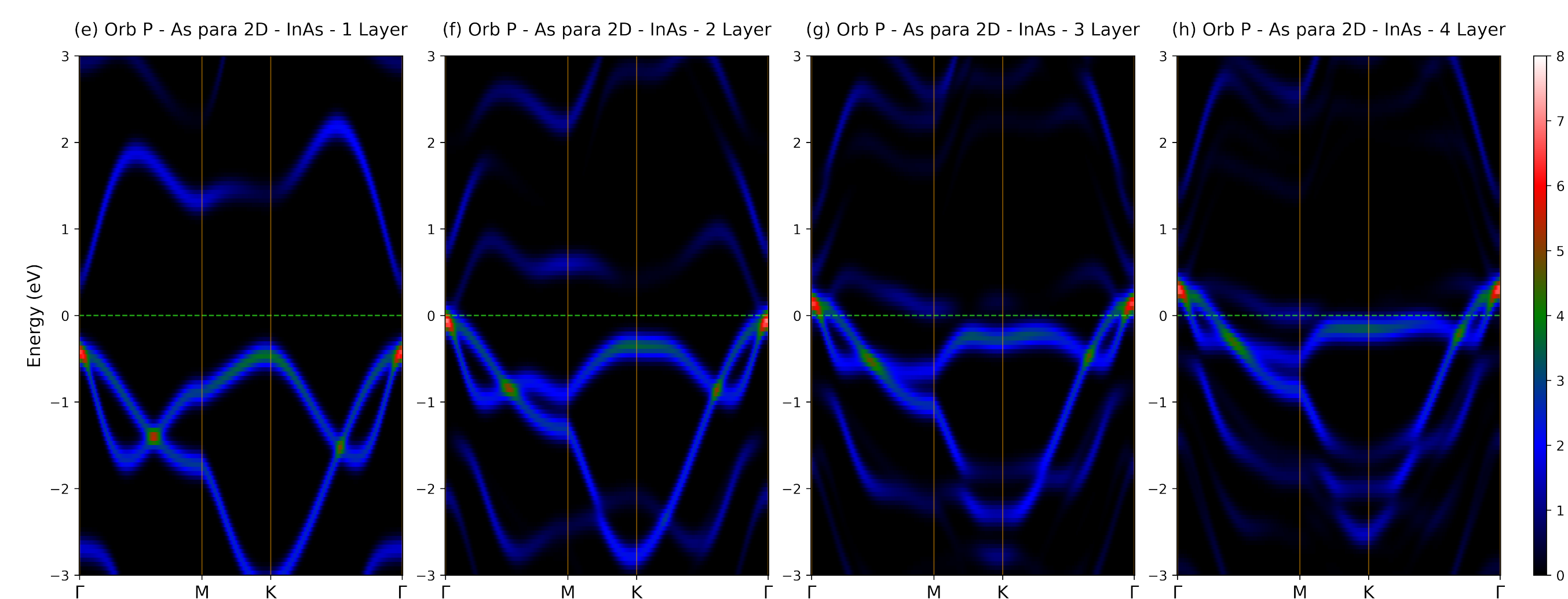


Figura 4 – K-resolved DOS proyectado en el orbital P de los átomos de Arsénico (As) de los sistemas 2D-InAs-N capas: (e) N = 1, (f) N = 2, (g) N = 3, (h) N = 4.

6. Conclusiones

- Los estados de superficie son de carácter orbital dominante tipo *p* de los átomos de indio y arsénico, situados en las posiciones superior e inferior, respectivamente, del sistema 2D-InAs-N.
- La densidad de estados proyectada en el espacio recíproco muestra que, alrededor del nivel de Fermi, los estados son de carácter orbital dominante tipo *p* del In de la superficie.
- Los orbitales *p* de los átomos de indio superficiales contribuyen a la hibridación de enlace con las dos moléculas.
- Se confirmó la adsorción sin disociación de especie molecular, donde el sitio de adsorción preferente correspondió al *top In*.
- Los mecanismos de transferencia de carga indican una naturaleza diversa en los enlaces: el átomo de indio enlazante redistribuye su carga en la superficie ante la presencia de la molécula de H₂O, en cambio, ante la molécula de CO este fenómeno es más complejo.

8. AGRADECIMIENTOS

B. Edward Zapata R. y Robert M. Guzmán Arellano agradecen al proyecto de investigación N° B22130781 VRIP-UNMSM.

3. Sistema 2D-InAs-N capas

El sistema 2D-InAs-N capas se diseñó a partir de la estructura fcc del InAs, recuperando los átomos que reconstruyen el plano (111). El diseño del sistema bidimensional y las estructuras resultantes se muestran en la Figura 1.

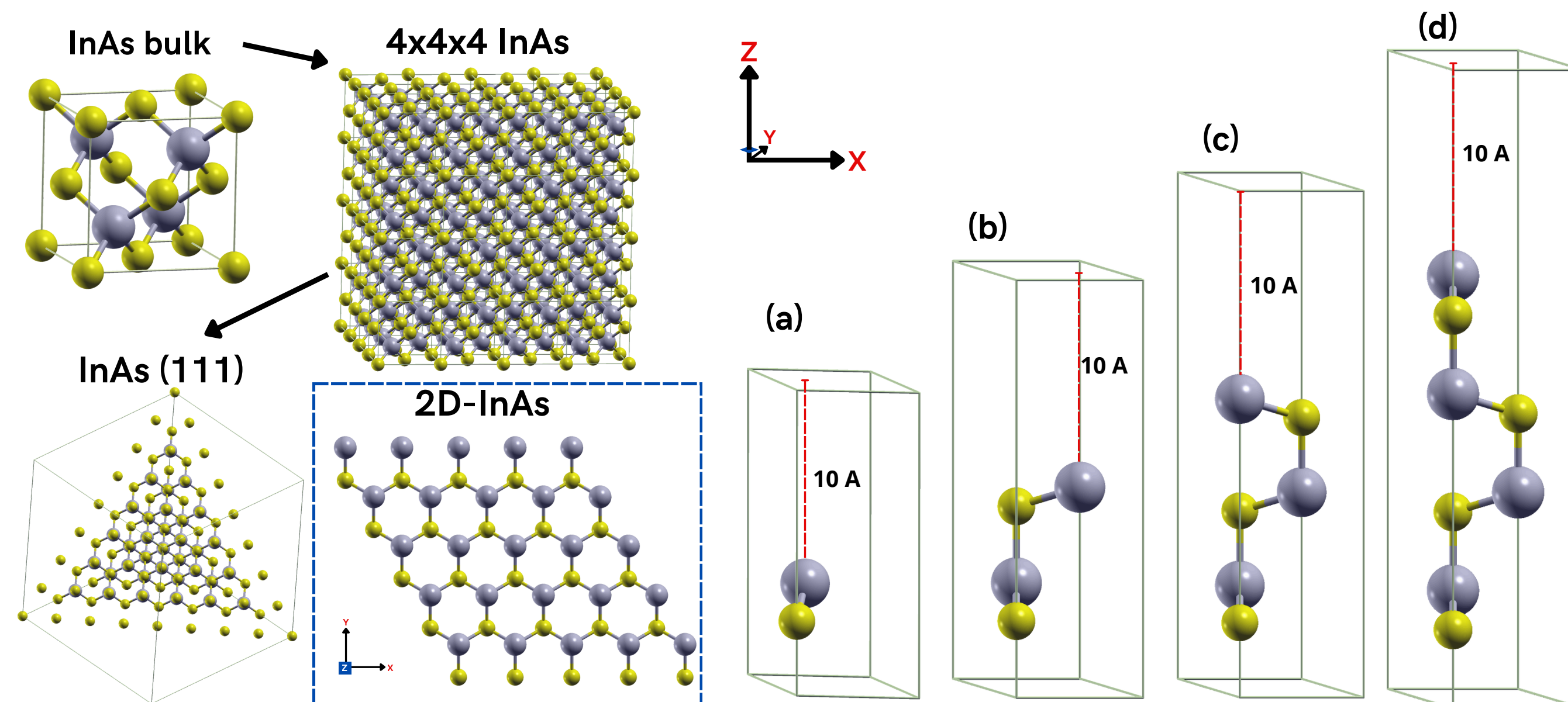


Figura 1 – Estructuras 2D basadas en el InAs: (a) 2D-InAs-1 capa, (b) 2D-InAs-2 capas, (c) 2D-InAs-3 capas, (d) 2D-InAs-4 capas.

El sistema 331 2D-InAs-3 capas fue estudiado para ver los fenómenos de adsorción con las moléculas de H₂O y CO. Se añadió un amplio vacío de 15 Å para minimizar las interacciones espurias entre imágenes periódicas.

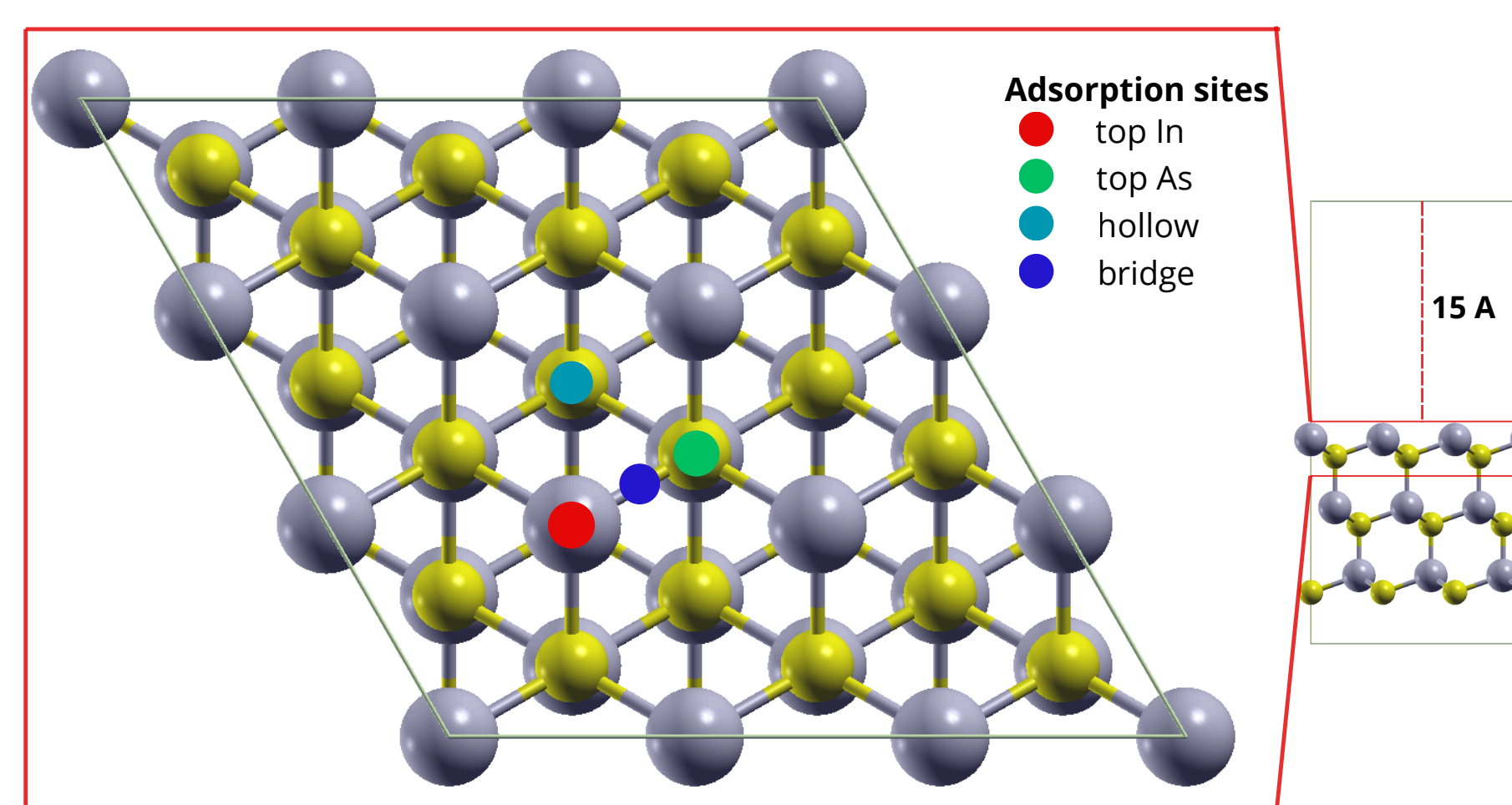


Figura 2 – Sitios de adsorción para la estructura 2D-InAs-3 capas en una extensión $3 \times 3 \times 1$.

5. RESULTADOS: Adsorción de moléculas sobre 2D-InAs-3 capas

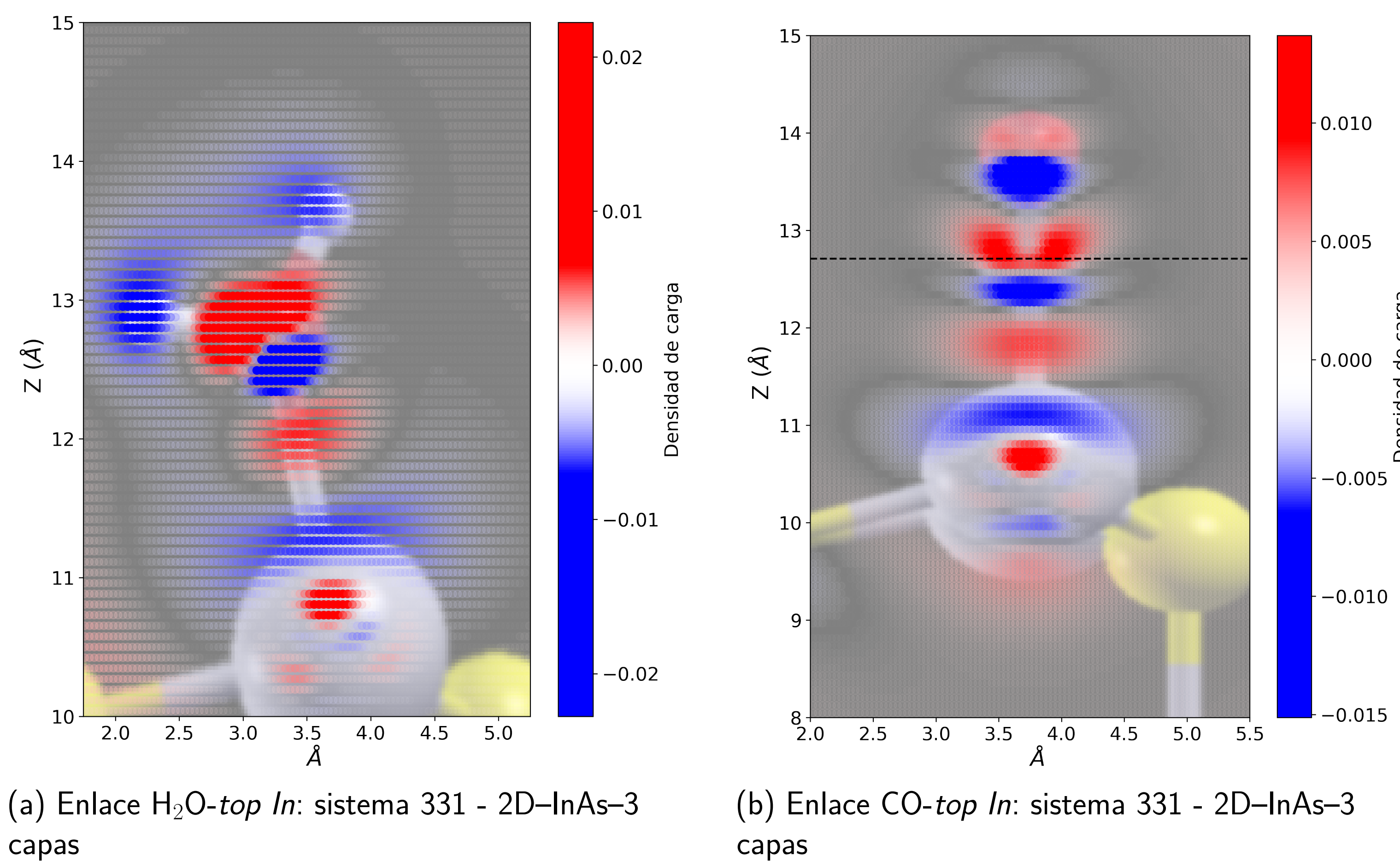


Tabla 2 – Energía de adsorción, distancia de enlace, transferencia de carga (Bader) y cambios geométricos para H₂O y CO adsorbidos sobre 2D-InAs-3L.

Sistema	E_{ads} (eV)	D (Å)	Mecanismo	Q_{Bader} (e)	Rol	Cambio geométrico
H ₂ O-InAs	-0.625	2.391	H ₂ O → In In → Sys	-0,02 (H ₂ O) -0,19 (In)	Donador	O-H: +0,017 Å ∠H ₂ O: +4,9°
CO-InAs	-0.368	2.414	In → CO → O In → Sys + CO	-0,09 (C), +0,16 (O) +0,08 (Sys), +0,07 (CO)	Aceptor	C-O: +0,011 Å

7. Referencias

- Z. Mi, H. H. Tan e I. H. Abidi. *Non-layered 2D materials*. Vol. 113. Elsevier, 2023.
- S. Jewett, D. Zemlyanov y A. Ivanisevic. «Characterization of peptide adsorption on InAs using X-ray photoelectron spectroscopy». En: *Langmuir* 27.7 (2011), págs. 3774-3782.
- P. Giannozzi et al. «Quantum ESPRESSO toward the exascale». En: *The Journal of chemical physics* 152.15 (2020).
- A. Dal Corso. «Pseudopotentials periodic table: From H to Pu». En: *Computational Materials Science* 95 (2014), págs. 337-350.
- S. Grimme et al. «A consistent and accurate ab initio parametrization of density functional dispersion correction (DFT-D) for the 94 elements H-Pu». En: *The Journal of chemical physics* 132.15 (2010).
- G. Henkelman, A. Arnaldsson y H. Jónsson. «A fast and robust algorithm for Bader decomposition of charge density». En: *Computational Materials Science* 36.3 (2006), págs. 354-360.