

# 第一原理電子状態計算手法による二次元系材料の研究

課題責任者

奈良 純 国立研究開発法人物質・材料研究機構

著者

奈良 純、濱田 智之、山崎 隆浩、甲賀 淳一郎、大野 隆央

国立研究開発法人物質・材料研究機構

TMDC、グラフェンなどの二次元系物質は、積層の組合せ・層間の方位の違い（ツイスト）などによって、その物性を大きく変えることが知られており、非常に精力的に研究が進められている。ここでは、GaAs(111)B 上の MoTe<sub>2</sub> 単層膜について複数のモデルを構築し、そのエネルギー的安定性、構造について第一原理密度汎関数法を用いて調べた。最も吸着エネルギーの大きい 4 つのモデルの内、3 つが周期性、モアレの角度、ツイスト角などから実験的に見つかっている 3 種類のモアレ模様該当することが分かった。実験的に見つかっている 3 つのモアレの領域の大きさ、吸着エネルギーが大きいものの実験的に見つかっていないモデルの考察から、モアレの向き、ツイスト角の小さい系が優先的に現れる可能性を指摘した。この知見は今後の TMDC 系デバイス設計に大きく寄与すると考えられる。

キーワード：TMDC、二次元系物質、格子ミスマッチ、ツイストロニクス、第一原理計算

## 1. 研究の目的・背景

地球温暖化が言われて久しいが、その主な原因物質と言われている二酸化炭素の排出量削減に対して物質科学研究から出来ることは多い。例えば、太陽電池、風力発電などの自然エネルギー利用や、グラフェンなどの次世代半導体デバイス、燃料電池、リチウム二次電池などによる省エネルギー技術などによって化石燃料の利用そのものを削減する方法や、ガスハイドレート構造を利用した二酸化炭素固定技術などが考えられているが、これらの技術の基礎には環境エネルギー材料や次世代デバイス材料などの新規開発・改良が非常に重要な位置を占めている。そこで、本研究課題では、低炭素社会実現のために物質材料科学研究分野の研究を推進すべく、密度汎関数法に基づいた第一原理電子状態計算プログラム PHASE<sup>0</sup> の開発・改良を進めると共に、様々な省電力デバイスへの応用が期待される新物質系である遷移金属ダイカルコゲナイド (Transition Metal Dichalcogenide, TMDC)、グラフェンに関する研究を行う。グラフェンは炭素 (C) 原子がハニカム構造を持つように平面的に結合した、原子 1 層分の厚さを持つ 2 次元的な物質である。ディラックコーンと呼ばれるバンド構造に起因する極めて高い電子移動度などの特異な電子的性質を持ち、単層だけでなく多層膜についても幅広く研究されている。グラフェンはそのものの興味深い性質から様々な研究が行われているが TMDC については少々興味の方向が異なる。TMDC には金属とカルコゲンの組合せにより多数の構造が存在することが知られている。それらを組み合わせて多層膜を作成することで単一の物質では実現出来ないバンドギャップや井戸型ポテンシャルなどの電子状態などの形成が期待され、研究が進められている[1]。また、グラフェンや TMDC に代表される二次元系物質は上述したように物質の組合せによる物性変化以外にも、積層させた物質の方位を変え

る（ツイストさせる）ことが出来ることが近年、報告されている。例えば、グラフェン二層膜の上下の膜を 1.1 度回転させることで超伝導性を発現したり[2]、大面積の MoS<sub>2</sub> の二層膜を作成しその上下の方位を 0 度から 30 度まで連続的かつ精密に変えたところ、フォトルミネッセンスの波長が連続的に変えることが出来たことなどが報告されている[3]。このように層間の方位を変えて（ツイストさせて）物性エンジニアリングを行うことはツイストロニクスと呼ばれ近年非常に精力的に研究が進められている分野となっている。

このような背景のもと、本年度は特に TMDC の一つである MoTe<sub>2</sub> の単層膜について調べた。Te 系の TMDC はエネルギー的な安定性の近い 2 つの構造 (2H 構造、及び 1T' 構造) を取る事が出来るため、単一の相 (構造) から出来た薄膜を作成することが難しいことが知られている。一方で S 系、Se 系ではそれらの構造にエネルギー差があるために単一の相からなる薄膜は比較的作成されており研究も進められている。Te 系の単一相はいくつかの方法で作成されているが、近年、Ohtake らによって分子線エピタキシー法によって GaAs(111)B 表面上に 2H 構造のみから形成される MoTe<sub>2</sub> 単層膜が作成され、その構造が詳細に調べられた[4]。作成された MoTe<sub>2</sub> 膜は走査線顕微鏡によって複数のモアレ模様で形成されていることが分かった。それぞれのモアレ模様中の MoTe<sub>2</sub> は全て同じ 2H 構造のため、これらのモアレ模様の起源は GaAs(111)B 表面に対する 2H- MoTe<sub>2</sub> の方位の違いによる。特に 2 つのモアレ模様が多く見られ、それらのモアレ模様の大きさ (周期)、GaAs 基板を基準にしたモアレ模様の角度、GaAs(111)B 表面と MoTe<sub>2</sub> 膜の間の角度 (ツイスト角) はそれぞれ、2.8nm、0 度、0 度、及び 3.0nm、7 度、0.77 度であった (それぞれモアレ 1、モアレ 2 とする)。さらにわずかに別の周期も見られ、その大きさは上記 2 つの間

model	(n×n)	(m×m)	a (nm)	ε (%)	θ (deg.)	φ (deg.)	E <sub>ad</sub> (meV/Å <sup>2</sup> )	Δh (Å)
A	√48×√48	√61×√61	2.748	-0.775	30	3.671	19.73	0.75
B	7×7	√63×√63	2.793	-0.196	21.787	2.680	20.41	0.82
C	7×7	8×8	2.815	0.593	0	0	20.49	0.86
D	7×7	8×8	2.815	0.593	21.787	21.787	17.90	0.04
E	√52×√52	√67×√67	2.880	-0.089	13.898	1.682	20.50	0.84
F	√57×√57	√73×√73	3.007	-0.391	6.857	0.769	20.44	0.86
G	√61×√61	√79×√79	3.128	0.167	26.330	9.333	19.17	0.28
H	8×8	9×9	3.167	-0.979	0	0	19.74	0.86

表1 MoTe<sub>2</sub>単層膜がGaAs(111)B上に成長した構造モデルの物性値 構築した17のモデルのうち格子ミスマッチが1%以下で、周期性2.5nm~3.3nmのものについて掲載している。左端のA-Hはモデル名である。(n×n)、(m×m)はそれぞれGaAs(111)B、MoTe<sub>2</sub>について基本周期である(1x1)の対する大きさを示す。Aは超格子(モアレ模様)の周期である。θはモアレ模様の角度、φはMoTe<sub>2</sub>、GaAs(111)Bの間の方角の差(ツイスト角)である。E<sub>ad</sub>は単位面積あたりの吸着エネルギー、ΔhはMoTe<sub>2</sub>膜のたわみの大きさである。

であったと報告されている(モアレ3とする)。ここでは、GaAs(111)B上に成長したMoTe<sub>2</sub>単層膜について様々なモデルを構築してその結合エネルギー、構造の特徴などを調べた。

## 2. 計算手法

PHASE/0 [5] は、東京大学大生産技術研究所、及び物質・材料研究機構が中心となって開発されてきた、密度汎関数理論(DFT)に基づいた擬ポテンシャル法による平面波基底の第一原理分子動力学法のプログラムである。この手法では電子状態を計算することから、原子間結合の切断・再結合などが非常に精度良く計算出来るため、今回のような結合の組み換え(化学反応)のある複雑な過程をシミュレーションするには有力な手法である。PHASE/0はベクトル化率、並列化率が高く、またMathKeisanなどのライブラリを非常に有効に利用しているため地球シミュレータ(ES)における実行性能が非常に高い。

## 3. 結果・議論

GaAs(111)B上のMoTe<sub>2</sub>単層膜については格子ミスマッチのあまり大きくない17のモデルを構築し調べた。格子ミスマッチの大きな系ではMoTe<sub>2</sub>が非常に強く圧縮/伸張されることによってエネルギー的に不安定になることから実現可能性は低いものとしてモデル構築からは除いた。表1に17のモデルの内、格子ミスマッチが1%以下で、周期性2.5nm~3.3nmのものについて纏めた。図1に構造モデルの例を記す。これはモデルC及びFを示している。断面図の上部はMoTe<sub>2</sub>で下部がGaAs(111)B基板である。見た目が大きく異なって見えるが、それはモデル内でのMoTe<sub>2</sub>膜、GaAs(111)B基板の方角が異なるためであり、基本構造は同じである。図2は、それぞれのモデルの吸着エネルギーをツイスト角の関数としてプロットしたものである。ツイスト角が大きくなると吸着エネルギーが小さくなる傾向があることが分かる。また、同じようなツイ

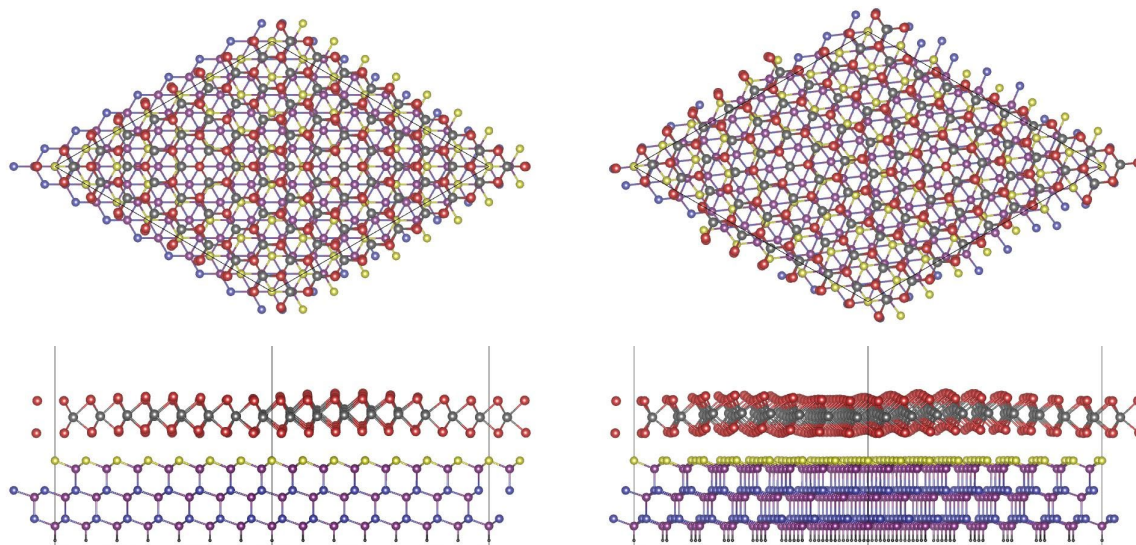


図1 MoTe<sub>2</sub>単層膜がGaAs(111)B上に成長した構造(モデル) 右がモデルC、左がモデルFである(表1参照)。上図が俯瞰図、下図が断面図となっている。赤、黒、黄色、紫、青、黒の丸はそれぞれTe、Mo、Se、Ga、As、H原子を表す。黒線はユニットセルを表しており、表示範囲はほぼ1周期分である(俯瞰図を参照)。

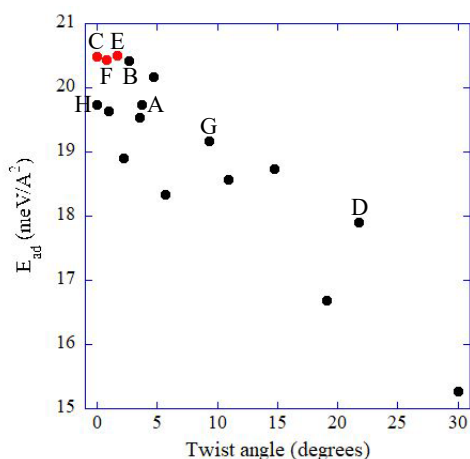


図2 吸着エネルギーのツイスト角依存性 赤丸は実験で観測された3つのモアレ模様に対応する。A-Hは表1のモデルA-Hである。

ツイスト角でも吸着エネルギーの大きく異なるモデルがあることが分かるが、それらは格子ミスマッチの違いによって生じる差である。一般に格子ミスマッチの小さいモデルは吸着エネルギーが大きくなり、格子ミスマッチの大きいモデルはMoTe<sub>2</sub>膜が圧縮/伸張されることによりエネルギー的に不利になり、吸着エネルギー小さくなる。例えばモデルCとHはどちらもツイスト角が0度だが、格子ミスマッチがそれぞれ0.59%、-0.98%であることから後者の方が絶対値が大きくMoTe<sub>2</sub>膜の不安定性を内包することにより吸着エネルギーが小さくなっている。

表1から、モデルCは周期性(a)が2.815nm、モアレの向き(θ)が0度、ツイスト角(φ)が0度となっており、実験におけるモアレ1に該当すると考えられる。また、モデルFはa=3.007nm、θ=6.857度、φ=0.769度であり、モアレ2に該当する。モデルEはa=2.880nmでモアレ1とモアレ2の間の値であり、モアレ3に該当すると考えられる。これらの3つのモデルは図2で赤く表示している。この3つは明らかに最も吸着エネルギーの大きなモデルであることから実験をよく説明していると考えられる。一方、表1、図2から、モデルBはこれら3つのモデルに匹敵する吸着エネルギーを持つことが分かる。しかし、このモデルに該当するモアレ模様は実験では見つかっていない。その理由について断定は出来ないが、ツイスト角(φ)、モアレの向き(θ)が関係しているかもしれない。φ、θの大きさで考えると、モデルC、F、E、Bの順番で大きくなっていく。モデルC、Fが主なモアレ模様で、Eは少なく、Bが観測されていないということから、出現頻度の順番と同じと考えることが出来る。このことから何らかの理由でφ、θの小さい方が吸着エネルギーとは異なる理由で有利となっていることが考えられる。一つの仮説としては、核形成の段階ではφ、θの小さい方がエネルギー的に有利で形成されやすく、それが成長しても残っているということなのかも知れない。また別の仮説としては、モアレ模様間の境界の形成に関係している

かもしれない。φ、θの差が大きいと境界を形成するためのエネルギーが大きくなってしまいうために、小さいφ、θのみが現れるということなのかもしれない。これらの仮説については計算負荷の問題から現状の手法ではアプローチが出来ないため、検証するならば別のアプローチが必要である。例えば、大規模かつ高速な計算が可能なMD計算を用いる方法である。近年では第一原理計算の結果を教師データとしてMD計算に用いる原子間ポテンシャルを構築する方法が様々な分野で使われてきている。今後可能であれば考えたい。

図1の断面図を見ると、MoTe<sub>2</sub>膜が完全に平らではなく、波打っていたわんでいることが分かる。MoTe<sub>2</sub>膜のたわみ構造の大きさとしてMo原子のz方向(表面に垂直な方向)の最大値と最小値の差を表1の右端に示す。また、その値をツイスト角(φ)の関数として図3に示した。図から明らかなように、ツイスト角が0度でたわみが一番大きく、ツイスト角が小さくなるにつれてほぼ単調に小さく(平らに)なっていくことが分かる。その大きさは0度~15度までは大きく変化するものの、15度を超えると十分小さくなり、ほぼ一定値になるような傾向となっている。MoTe<sub>2</sub>膜、GaAs(111)B基板の構造から30度を越えたツイスト角については(60度-φ)とほぼ同じ構造になるために、このツイスト角依存性も30度を越えた後は45度までは0.1Å以下で同じように推移し、45度を越えて60度までは大きく変化する、60度では0度と同じく0.8Å以上のたわみとなると考えられる(ここには掲載しないが、別の系ではこのことは確認済みである)。二次元系物質の層間の引力はファンデルワールス力が主である。このたわみの大きさは、ファンデルワールス力による吸着エネルギーに大きな影響を及ぼす。たわみの大きな系(ツイスト角の小さな系)では、MoTe<sub>2</sub>膜の下方のTe原子とGaAs(111)B表面のSe原子との距離が万遍なく小さくな

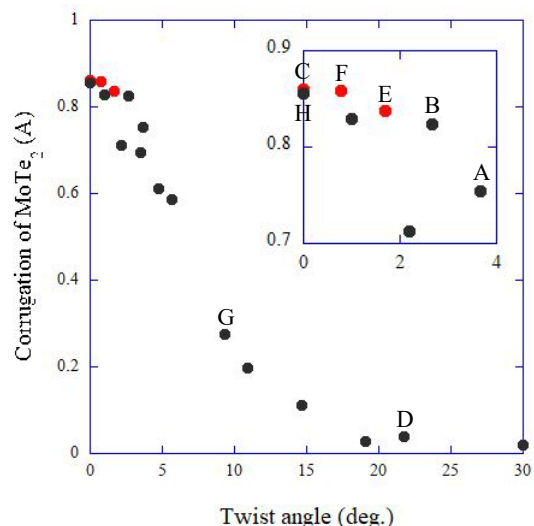


図3 MoTe<sub>2</sub>膜のたわみの大きさのツイスト角依存性 内挿図はツイスト角の小さい領域を拡大したものである。赤丸は実験で観測されたモアレ模様に対応する。A-Hは表1のモデルA-Hである。

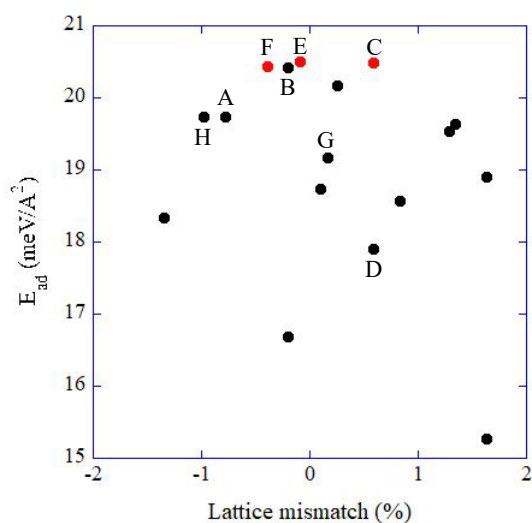


図4 吸着エネルギーの格子ミスマッチ依存性 赤丸は実験で観測されたモアレ模様に対応する。A-Hは表1のモデルA-Hである。

る一方で、たわみの小さな系（ツイスト角の大きい系）では一部の Te-Se 原子間距離は小さくなるものの、距離が大きくなってしまふ箇所も多い。そのために前者では吸着エネルギーが大きくなり、後者では吸着エネルギーが小さくなると考えられる。

図4に吸着エネルギーの格子ミスマッチ依存性を示す。格子ミスマッチが小さいと吸着エネルギーが大きくなり、格子ミスマッチが大きいと其の正負に依らず吸着エネルギーが小さくなる傾向がある。同程度の格子ミスマッチでも吸着エネルギーに違いが生じるのはツイスト角の違いのためである。表1、図2に示したようにツイスト角の小さい系ほど吸着エネルギーが大きくなる。一方で、モデルGのように格子ミスマッチが0.17%と小さくても吸着エネルギーが小さくなる例もある。表1から、モデルGはツイスト角が9.3度あることが効いていると考えられる。図2、4のツイスト角と格子ミスマッチを合わせて考えると、ツイスト角が2度以下、格子ミスマッチの絶対値が0.6%以内の系が実験的に観測されるという結果になっている。この数値はGaAs(111)B上のMoTe<sub>2</sub>膜の場合であ

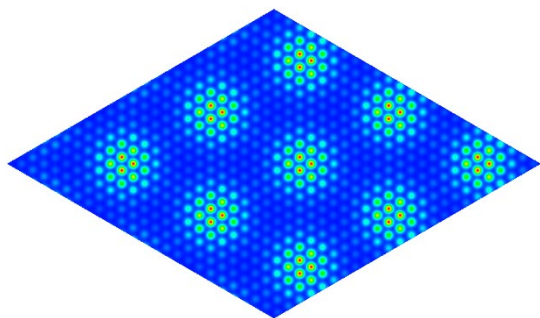


図5 モデルCの計算STM像 超格子の3x3の大きさを表示している。赤い領域では電荷密度が高く、青い領域では電荷密度が低い。

って、一般化するのは難しい。しかし、多くの系でこのような閾値が存在するのではないかと考えられる。

次にSTM像をシミュレーションした。図5にモデルCの計算STM像を示す。この像の様子は文献[4]を良く再現している。その高さの変化の様子はMoTe<sub>2</sub>層の上部のTe原子の高さをよく反映していることから、この系のモアレ模様は電子状態の変化というよりはMoTe<sub>2</sub>層のたわみに起因していることが考えられる。

#### 4. まとめ

GaAs(111)B上のMoTe<sub>2</sub>単層膜について複数のモデルを構築し、そのエネルギー的安定性、構造について第一原理密度汎関数法を用いて調べた。実験的に見つかった3つのモアレの領域の大きさ、吸着エネルギーが大きいものの実験的に見つからないモデルの考察から、モアレの向き、及びツイスト角の小さい系が優先的に現れる可能性を指摘した。この知見は今後のTMDC系デバイス設計に大きく寄与すると考えられる。

#### 謝辞

本研究の一部は、防衛装備庁が実施する安全保障技術研究推進制度JPJ004596の支援を受けて行った。ここで用いた図の作成にはVESTAソフトを使用した[6]。

#### 文献

- [1] S. Masubuchi, M. Morimoto, S. Morikawa, M. Onodera, Y. Asakawa, K. Watanabe, T. Taniguchi, and T. Machida, “Autonomous robotic searching and assembly of two-dimensional crystals to build van der Waals superlattices”, *Nat. Commun.* **9**, 1413 (2018).
- [2] Y. Cao, V. Fatemi, S. Fang, K. Watanabe, T. Taniguchi, E. Kaxiras, and P. Jarillo-Herrero, “Unconventional superconductivity in magic-angle graphene superlattices”, *Nature* **556**, 43 (2018).
- [3] M. Lao et al., “Precise control of the interlayer twist angle in a large scale MoS<sub>2</sub> homostructures”, *Nature Comm.* **11**, 2153 (2020).
- [4] A. Ohtake, X. Yang, and J. Nara, “Structure and morphology of 2H-MoTe<sub>2</sub> monolayer on GaAs(111)B grown by molecular-beam epitaxy”, *npj 2D materials and applications* **6**, 35 (2022).
- [5] T. Yamasaki, A. Kuroda, T. Kato, J. Nara, J. Koga, T. Uda, K. Minami, and T. Ohno, “Multi-axis decomposition of density functional program for strong scaling up to 82,944 nodes on the K computer: Compactly folded 3D-FFT communicators in the 6D torus network”, *Comp. Phys. Comm.* **244**, 264-276 (2019).
- [6] K. Momma and F. Izumi, “VESTA 3 for three-dimensional visualization of crystal, volumetric and morphology data”, *J. Appl. Crystallogr.* **44**, 1272-1276 (2011).



# First-principles Study on MoTe<sub>2</sub> Monolayer on GaAs(111)B Substrate

## Project Representative

Jun Nara                      National Institute for Materials Science

## Authors

Jun Nara, Tomoyuki Hamada, Takahiro Yamasaki, Junichiro Koga, and Takahisa Ohno

National Institute for Materials Science

We theoretically investigated the energetical stability of 2H-MoTe<sub>2</sub> monolayer on GaAs(111)B substrate by the first-principles density functional theory calculation. Our calculation shows that a structure model with a small lattice mismatch and a small twist angle between MoTe<sub>2</sub> and GaAs(111)B have a large adsorption energy, while that with a large mismatch and/or a large twist angle have a small adsorption energy. We found that the three structure models with a larger adsorption energy correspond to the experimentally observed three types of moiré patterns, based on the comparison of lattice size, twist angle, and rotation angle. This knowledge must be useful for the design of TMDC-based electronic/optical devices.

**Keywords :** TMDC, two-dimensional materials, lattice mismatch, twistrionics, DFT

## 1. Introduction

To stop the global warming, the decrease of the amount of carbon dioxide in atmosphere is one of the urgent issues. For it, materials science can play roles through the development of new materials such as solar battery, fuel cell, and low energy device systems.

Transition metal dichalcogenides (TMDCs) have attracted great attentions due to the wide variety of electronic and optical properties. Two-dimensional (2D) materials, such as TMDCs and well-known graphene, can be stacked flexibly due to the weak inter-layer interaction mainly coming from the van der Waals interactions. Stacked 2D materials has another flexibility i.e., a twist between neighboring layers, which can also change their materials properties. Materials engineering due to a twist between neighboring layers in stacked 2D materials is called “Twistrionics” and the relevant research fields are growing larger recently. Among TMDCs, XS<sub>2</sub> and XSe<sub>2</sub> (X = transition metal) are well studied, while Te group is not, because Te group has two types of stable structures/phases (2H and 1T’), and it is difficult to grow large scale films consisting of only one phase. Recently, large size MoTe<sub>2</sub> monolayer consisting of 2H phase was experimentally fabricated on GaAs(111)B substrate [1]. It is found that most of the surface is covered with two types of moiré patterns, and another pattern appears in very small areas of the surface. The former two have lattice sizes (*a*) of 2.8 nm and 3.0 nm and rotation angles of moiré pattern (*θ*) of 0 and 7°. The last one has *θ* = 14° and its lattice size is between the former two. Here, we theoretically investigate the stability of 2H-MoTe<sub>2</sub> monolayer on GaAs(111)B substrate to see why the three moiré patterns were observed in the experiments.

## 2. Calculation method

For the simulation, we employed the PHASE/0 code, an

electronic structure calculation program, which has been developed by Institute of Industrial Science (IIS), the University of Tokyo, and National Institute for Materials Science (NIMS) [2]. This program is based on the density functional theory (DFT) and the pseudopotential scheme. This code can calculate electronic structures and then describe the bonding state between atoms quite well. This is important for the simulations on complicated systems such as stacked 2D materials studied in this work. PHASE/0 has been tuned for parallel vector machines and exhibits high performance on the Earth Simulator (ES).

## 3. Results and discussions

We totally studied seventeen structure models, and the results for eight models among them, whose lattice mismatches (*ε*) are less than 1% and supercell sizes (*a*) are 2.5 nm ~ 3.3 nm, are summarized in Table I. The structure of the model C is shown in Figure 1. For all the seventeen models, the adsorption energies

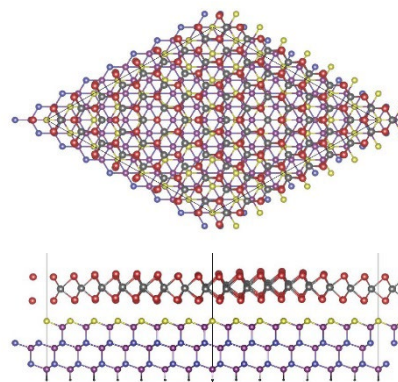


Figure 1 Structure of MoTe<sub>2</sub>/GaAs(111)B supercell (C in Table I). Red, grey, yellow, purple, blue, and black balls indicate Mo, Te, Se, Ga, As, and H atoms, respectively.

model	(n×n)	(m×m)	a (nm)	$\varepsilon$ (%)	$\theta$ (deg.)	$\varphi$ (deg.)	$E_{ad}$ (meV/Å <sup>2</sup> )	$\Delta h$ (Å)
A	$\sqrt{48} \times \sqrt{48}$	$\sqrt{61} \times \sqrt{61}$	2.748	-0.775	30	3.671	19.73	0.75
B	7×7	$\sqrt{63} \times \sqrt{63}$	2.793	-0.196	21.787	2.680	20.41	0.82
C	7×7	8×8	2.815	0.593	0	0	20.49	0.86
D	7×7	8×8	2.815	0.593	21.787	21.787	17.90	0.04
E	$\sqrt{52} \times \sqrt{52}$	$\sqrt{67} \times \sqrt{67}$	2.880	-0.089	13.898	1.682	20.50	0.84
F	$\sqrt{57} \times \sqrt{57}$	$\sqrt{73} \times \sqrt{73}$	3.007	-0.391	6.857	0.769	20.44	0.86
G	$\sqrt{61} \times \sqrt{61}$	$\sqrt{79} \times \sqrt{79}$	3.128	0.167	26.330	9.333	19.17	0.28
H	8×8	9×9	3.167	-0.979	0	0	19.74	0.86

Table I Properties of representative structure models for MoTe<sub>2</sub>/GaAs(111)B supercell. (n×n) and (m×m) indicate the size of supercells of GaAs and MoTe<sub>2</sub>, respectively. a is the lattice constant of the supercell,  $\varepsilon$  is the lattice mismatch between GaAs and MoTe<sub>2</sub> supercells,  $\theta$  is the rotation angle of the moiré pattern,  $\varphi$  is the twist angle between GaAs and MoTe<sub>2</sub>,  $E_{ad}$  is the adsorption energy, and  $\Delta h$  is the fluctuation of MoTe<sub>2</sub> layer along the normal to the surface.

are plotted as a function of a twist angle in Figure 2. We found that the four models B, C, E, and F have a large adsorption energy, i.e., 20.41, 20.49, 20.50, and 20.44 meV/Å<sup>2</sup>. It is considered that C ( $a = 2.8$  nm,  $\theta = 0^\circ$ ) and F ( $a = 3.0$  nm,  $\theta = 6.9^\circ$ ) correspond to the majority two moiré patterns found in the experiment and E ( $a = 2.9$  nm,  $\theta = 13.9^\circ$ ) corresponds to the minority one, based on the lattice size and the rotation angle. This result explains the experiments well. B ( $a = 2.8$  nm,  $\theta = 21.8^\circ$ ) is not found in the experiments, although it has an adsorption energy comparable to C, E, and F. It is noted that for a twist angle, the experimentally found three models C, E and F have  $\varphi = 0^\circ$ ,  $1.7^\circ$  and  $0.8^\circ$ , respectively, while B has  $\varphi = 2.7^\circ$ . Namely, the dominant two moiré patterns C ( $\theta = 0^\circ$ ,  $\varphi = 0^\circ$ ) and F ( $\theta = 6.9^\circ$ ,  $\varphi = 0.8^\circ$ ) have smaller  $\theta$  and  $\varphi$ , followed by the minority one E ( $\theta = 13.9^\circ$ ,  $\varphi = 1.7^\circ$ ) and then B ( $\theta = 21.8^\circ$ ,  $\varphi = 2.7^\circ$ ), which is not found in the experiments. This result indicates that moiré patterns with smaller  $\theta$  and  $\varphi$  are dominant in the experiments, while those with larger  $\theta$  and  $\varphi$  are rare or are not found. This may mean that moiré patterns with small  $\theta$  are preferable, irrespective of the adsorption energy. We have no definitive answer at this stage, but we have some hypotheses: (i) a boundary between areas with a

largely different twist angle ( $\varphi$ ) and/or rotation angle ( $\theta$ ) is unstable and (ii) a quite small twist angle and/or rotation angle is preferable during the growth process. We also found the flatness of MoTe<sub>2</sub> layer depends on the twist angle. The fluctuation of MoTe<sub>2</sub> layer along the normal to the surface ( $\Delta h$ ) almost monotonically decreases as the twist angle increases. The protrusion spots of the moiré patterns in the experimentally obtained scanning tunneling microscopy images comes from the structural fluctuation of MoTe<sub>2</sub> layer.

#### 4. Summary

We theoretically investigated the energetical stability of 2H-MoTe<sub>2</sub> monolayer on GaAs(111)B substrate. The obtained results well explain the experimental observations and this knowledge must be useful for the design of TMDC-based electronic/optical devices.

#### Acknowledgement

This work was partly supported by Innovative Science and Technology Initiative for Security Grant Number JPI004596, ATLA, Japan. The atomic models were illustrated by using the software VESTA [3].

#### References

- [1] A. Ohtake, X. Yang, and J. Nara, "Structure and morphology of 2H-MoTe<sub>2</sub> monolayer on GaAs(111)B grown by molecular-beam epitaxy", *npj 2D Mat. and Appl.* **6**, 35 (2022).
- [2] T. Yamasaki, A. Kuroda, T. Kato, J. Nara, J. Koga, T. Uda, K. Minami, and T. Ohno, "Multi-axis decomposition of density functional program for strong scaling up to 82,944 nodes on the K computer: Compactly folded 3D-FFT communicators in the 6D torus network", *Comp. Phys. Comm.* **244**, 264-276 (2019).
- [3] K. Momma and F. Izumi, "VESTA 3 for three-dimensional visualization of crystal, volumetric and morphology data", *J. Appl. Crystallogr.* **44**, 1272-1276 (2011).

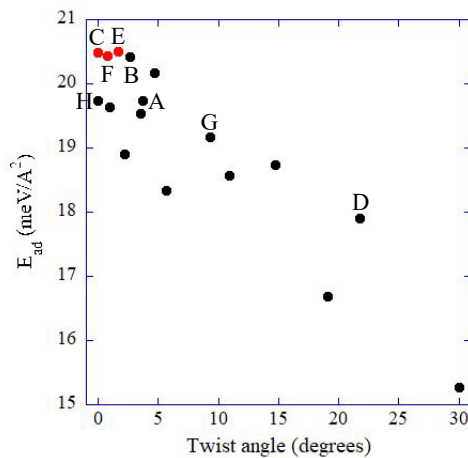


Figure 2 Adsorption energy ( $E_{ad}$ ) for seventeen structure models as a function of a twist angle. A-H indicate the models A-H in Table I. Red closed circles correspond to the moiré patterns observed in the experiment.