

# 理论探索二维 $X_2UO_4$ ( $X = K, Rb, Cs$ ) 的力学特征、电子结构和声子输运特征

程 钧

(湖北医药学院 研究生院, 十堰 442000)

**摘要:** 本文用基于密度泛函理论的第一性原理计算方法,研究了三种建议的二维材料  $X_2UO_4$  ( $X = K, Rb, Cs$ ) 的稳定性、弹性、电子结构和声子振动特性. 计算结果显示,三种材料同时具备较好的热力学、动力学和机械稳定性. 电子结构表明,三种材料属于宽禁带间接半导体,其计算能隙分别是 3.90、3.79 和 3.42 eV,并且在 300 K 时有着  $71.31 \sim 174.23 \text{ cm}^2/\text{Vs}$  的电子迁移率. 声子输运特性表明,三种材料的声子色散均没有虚频出现,声学模和低频光学模呈现强烈耦合,且有着低频率 low-lying 声子,这使得材料具备很强的声子非谐效应、低声子群速度和强声子散射率,从而表现出很低晶格热导率,在 300 K 温度下时仅为  $0.16 \sim 0.19 \text{ W/mK}$ . 这些特性表明,二维  $X_2UO_4$  ( $X = K, Rb, Cs$ ) 在纳米电子和热电器件领域具备应用潜力.

**关键词:** 二维材料; 能带; 迁移率; 声子; 热导率

中图分类号: O482.6

文献标志码: A

DOI: 10.19855/j.1000-0364.2025.026003

## Theoretical investigation of the mechanical properties, electronic structure and phonon transport characteristics of 2D $X_2UO_4$ ( $X = K, Rb, Cs$ )

CHENG Jun

(Graduate School, Hubei University of Medicine, Shiyan 442000, China)

**Abstract:** Based on the first principles of density functional theory, we proposed three novel two-dimensional materials,  $KU_2O_4$ ,  $RbU_2O_4$  and  $CsU_2O_4$ , and further investigated their stabilities, elastic, electronic structure and phonon vibration characteristics. The calculation results show that the three 2D materials are wide-gap indirect semiconductors, with band-gaps of 3.90, 3.79, and 3.42 eV, respectively, and deliver electron mobilities of  $71.31 \sim 174.23 \text{ cm}^2/\text{Vs}$  at 300 K. The phonon transport results show that all phonon dispersions have no virtual frequency, in which acoustic and low-frequency optical modes are strongly coupled, as well as low-frequencies for low-lying phonons, resulting in strong phonon-phonon anharmonic effect, low phonon group velocities and strong phonon scattering rates. As a result, they exhibit low lattice thermal conductivities of  $0.16 \sim 0.19 \text{ W/mK}$  at 300 K. All these properties indicate that 2D  $X_2UO_4$  ( $X = K, Rb, Cs$ ) have high potential applications in the field of nanoelectronics and thermoelectric devices.

**Key words:** Two-dimensional material; Band structure; Mobility; Phonon; Thermal conductivity

## 1 引言

随着科学技术的快速发展和人民生活水平的大幅度提升,新型电子产品和功能设备不断推陈

出新,逐渐走向多功能化和小尺寸方向发展. 例如,电脑芯片、集成电路和智能设备的高尖端技术都集中在微米甚至纳米尺寸. 自 2004 年石墨烯都被首次制备出来,二维材料因其独特的形貌、

收稿日期: 2023-08-01

基金项目: 湖北省教育厅科学研究计划项目(B2021159); 十堰社科思想库课题项目(sysk202330)

作者简介: 程钧(1985—),男,湖北黄冈人,硕士,从事核材料的第一性原理计算. E-mail: chengjun19850105@sina.cn

新颖的电子结构和量子限域效应等特征而备受关注，并在新材料、新器件和新技术领域显得非常重要。随后，一些列新型二维材料被陆续报道，例如过渡金属硫化物(TMDC)<sup>[1]</sup>、黑磷烯<sup>[2]</sup>、石墨烯和铊烯<sup>[3]</sup>和过渡金属氮化物<sup>[4]</sup>等。当前，仍然有新的二维材料被陆续挖掘，这使得二维材料大家族被不断完善与丰富。一般而言，新型二维材料需要具备如下特征：(1) 二维材料对应的块体材料属于层状结构，类似于石墨和 MoS<sub>2</sub>，且毗邻层之间由弱键和范德华力相连，以便于通过机械剥离方法获取<sup>[5]</sup>；(2) 新材料需具备高稳定性，稳定性是新型功能材料的应用前提，一般包括机械稳定性、热稳定性和动力学稳定性<sup>[6]</sup>。

最近，三种碱金属-铀氧化物，分别是 KU<sub>2</sub>O<sub>4</sub>、RbU<sub>2</sub>O<sub>4</sub>和 CsU<sub>2</sub>O<sub>4</sub>，因其独特的结构、简易的制备条件和特殊的电子结构引起了我们的兴趣。例如，Mark 等人<sup>[7]</sup>利用熔融氢氧化物助熔剂在密封的银管中制备出 K<sub>2</sub>UO<sub>4</sub>；这里选用熔融的 KOH 和 15% 的水，再加 0.25 mmol 的 U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>，然后封装在银管中加热到 750℃，保持 1 小时，并在一段时间内缓慢冷却到 650℃ 即可获得碱金属-铀氧化物单晶；该研究还发现 K<sub>2</sub>UO<sub>4</sub> 的对称群为 I4/mmm，即为典型的层状结构。Samir 等人<sup>[8]</sup>基于密度泛函理论研究了 K<sub>2</sub>UO<sub>4</sub> 的晶体结构和电子能带特征，发现 K<sub>2</sub>UO<sub>4</sub> 在面内成键较短，导致内聚能很强，有利于晶格稳定性；且 K<sub>2</sub>UO<sub>4</sub> 属于间接宽带隙半导体，带隙大于 2 eV。Volkovich 等人<sup>[9]</sup>测量了 9 种碱金属-铀氧化物的振动(拉曼和红外)光谱，通过观测和分辨出的谱带的数目与晶体对称性进行比较，推导出了晶体对称性为 I4/mmm。

虽然关于 X<sub>2</sub>UO<sub>4</sub> (X = K, Rb, Cs) 的实验和理论研究都已经报道，但是研究对象都是其块体结构，对应的二维结构尚未见报道。在本文中，我们提出三种二维碱金属-铀氧化物，分别是 KU<sub>2</sub>O<sub>4</sub>、RbU<sub>2</sub>O<sub>4</sub>和 CsU<sub>2</sub>O<sub>4</sub>。本文用基于密度泛函理论的第一性原理计算方法，研究了其晶体结构、稳定性、力学特征、电子结构和声子色散特征，并与常见的二维材料作比较，为实验研究提供前瞻性理论指导。

## 2 计算细节

文章中所有 DFT 模拟都是使用 Vasp5.4.4 软件包<sup>[10]</sup>进行的，采用广义梯度近似(GGA)结合 Perdew - Burke - Ernzerhof (PBE) 泛函<sup>[11]</sup>来处理

交换关联能。为了消除相毗层之间范德华力的影响，沿 *c* 轴建立了一个 20 Å 的真空层。另外，平面波截止能量设为 500 eV，每个原子的总能量和作用力的收敛准则分别为  $1.0 \times 10^{-8}$  eV 和  $-0.005$  eV。自洽场计算中，采用第一布里渊区  $\Gamma$  中心点  $19 \times 19 \times 1$  的 *k* 点网格求和。此外，由于 PBE 容易低估半导体的带隙，使用 HSE06 泛函<sup>[12]</sup>来准确描述能带结构。利用 Phonopy<sup>[13]</sup>模拟声子色散和群速度，采用 Phono3Py<sup>[14]</sup>计算声子散射率和晶格热导率。为了提升计算效率，利用 hipHive<sup>[15]</sup>提取二、三阶力常数。利用变形势理论(DPT)<sup>[16]</sup>计算载流子有效质量和迁移率。

## 3 结果与讨论

### 3.1 晶体结构与稳定性

如图 1 所示，块体 KU<sub>2</sub>O<sub>4</sub> 是一种层状结构，对称群为 I4/mmm，其中 U 原子被 X 和 O 原子包裹住，各原子相互嵌套，形成“牢笼”型结构。沿 *c* 轴方向逐渐减低维度，即可得到单层 KU<sub>2</sub>O<sub>4</sub>，这与二维 Ca<sub>4</sub>Sb<sub>2</sub>O 和 Ca<sub>4</sub>Bi<sub>2</sub>O 的结构相似<sup>[17, 18]</sup>。结构弛豫以后的晶格参数列于表 1，不难发现，由于原子半径满足  $K (2.35 \text{ \AA}) < Rb (2.50 \text{ \AA}) < Cs (2.72 \text{ \AA})$ ，三种材料的晶格常数与厚度都是逐渐递增的。首先通过分子动力学模拟(AIMD)验证了三种材料的热稳定性(如图 2 所示)，这里设置  $4 \times 4 \times 1$  的超胞，模拟时间 10000 fs，步长为 1 fs。计算结果显示，在 800 K 时超胞接近重构和键断裂现象，且能量不能很好

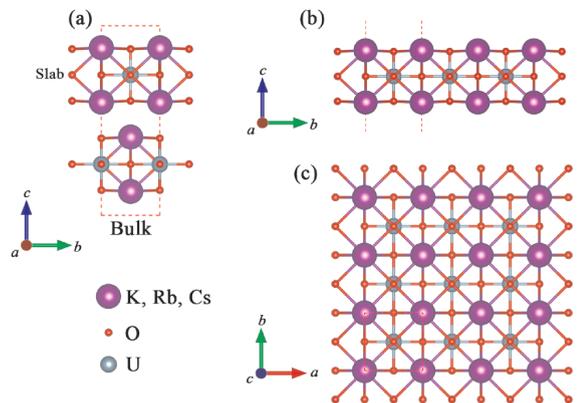


图 1 (a) 块体 X<sub>2</sub>UO<sub>4</sub> (X = K, Rb, Cs)；二维 X<sub>2</sub>UO<sub>4</sub> (X = K, Rb, Cs) (b) 侧视图和 (c) 俯视图

Fig. 1 (a) Bulk X<sub>2</sub>UO<sub>4</sub> (X = K, Rb, Cs)；(b) side views and (c) top views for two-dimensional X<sub>2</sub>UO<sub>4</sub> (X = K, Rb, Cs)

表 1 二维  $X_2UO_4$  ( $X = K, Rb, Cs$ ) 的晶格常数 ( $a/b, \text{\AA}$ )、厚度 ( $h, \text{\AA}$ )、计算带隙 ( $E_g, \text{eV}$ )、弹性常数 ( $C_{ij}, \text{N/m}$ )、最大杨氏模量 ( $Y, \text{N/m}$ ) 和泊松比 ( $\nu$ )

Table 1 The lattice constants ( $a/b, \text{\AA}$ ), thicknesses ( $h, \text{\AA}$ ), band-gaps ( $E_g, \text{eV}$ ), elastic constants ( $C_{ij}, \text{N/m}$ ), maximum Young's moduli ( $Y, \text{N/m}$ ) and Poisson's ratios ( $\nu$ ) of two-dimensional  $X_2UO_4$  ( $X = K, Rb, Cs$ )

Materials	$a/b$	$h$	$E_g$	$C_{11}$	$C_{12}$	$C_{22}$	$C_{66}$	$Y$	$\nu$
$K_2UO_4$	4.27	4.20	3.90	147.55	14.29	147.55	28.85	146.17	0.47
$Rb_2UO_4$	4.29	4.51	3.79	145.58	17.24	145.58	32.34	143.35	0.43
$Cs_2UO_4$	4.32	4.83	3.42	138.05	19.07	138.05	35.48	135.42	0.38

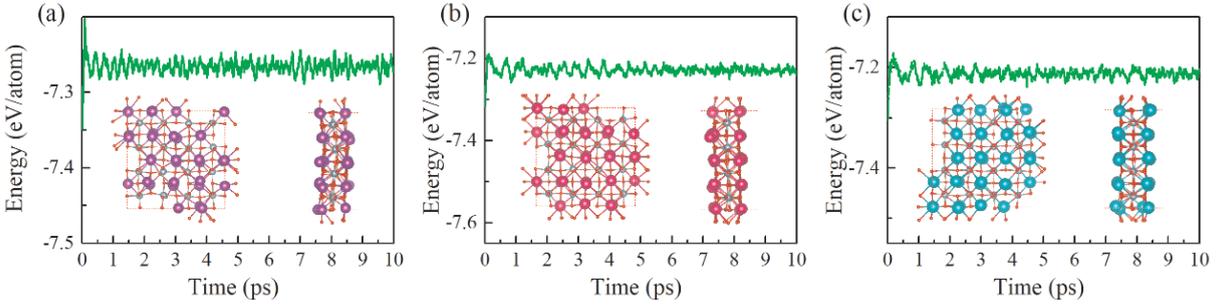


图 2 二维 (a)  $K_2UO_4$ 、(b)  $Rb_2UO_4$  和 (c)  $Cs_2UO_4$  在 700 K 温度下的分子动力学模拟; 插图为加热到 10 ps 后晶胞的构型

Fig. 2 The *ab initio* molecular dynamics (AIMD) of two-dimensional (a)  $K_2UO_4$ , (b)  $Rb_2UO_4$  and (c)  $Cs_2UO_4$  at 700 K; where the illustration shows the structure of the simulated supercell after heating to 10 fs

地收敛, 而在 700 K 时, 晶胞能量保持收敛且晶胞保持完整的形貌, 这说明三种材料具备很好的热稳定性.

此外, 还可以通过 Born - Huang 准则<sup>[4]</sup>来判断材料的机械稳定性, 即  $C_{11}C_{22} - C_{12}^2 > 0$  和  $C_{66} > 0$ , 这里  $C_{ij}$  表示弹性常数. 计算结果列于表 1,

可以发现三种材料都很好满足该准则, 因而具备很好的机械稳定性. 此外, 由于晶胞对称性, 使得  $C_{11} = C_{22}$ . 为表征材料面内的力学特征, 我们进一步计算了二维  $X_2UO_4$  ( $X = K, Rb, Cs$ ) 的杨氏模量和泊松比, 其计算方法如下<sup>[19]</sup>:

$$Y(\theta) = \frac{C_{11} C_{22} - C_{12}^2}{C_{11} \sin^4 \theta + \left( \frac{C_{11} C_{22} - C_{12}^2}{C_{66}} - 2 C_{12} \right) \sin^2 \theta \cos^2 \theta + C_{22} \cos^4 \theta} \quad (1)$$

$$\nu(\theta) = \frac{C_{12} \sin^4 \theta - \left( C_{11} + C_{22} - \frac{C_{11} C_{22} - C_{12}^2}{C_{66}} \right) \sin^2 \theta \cos^2 \theta + C_{12} \cos^4 \theta}{C_{11} \sin^4 \theta + \left( \frac{C_{11} C_{22} - C_{12}^2}{C_{66}} - 2 C_{12} \right) \sin^2 \theta \cos^2 \theta + C_{22} \cos^4 \theta} \quad (2)$$

这里  $\theta$  表示相对于  $a$  轴的夹角. 如图 3 所示, 三种材料有着相似的力学特征, 且沿  $a$  和  $b$  保持高度各向同性. 杨氏模量的最大值分别为 146.17、143.53 和 135.42 N/m, 这小于二维  $MoS_2$  (200 N/m)<sup>[20]</sup>、BN (270 N/m)<sup>[15]</sup> 和石墨烯 ( $350 \pm 3.15$  N/m)<sup>[21, 22]</sup>.

根据 Umklapp 散射模型<sup>[23]</sup>可知, 二维  $X_2UO_4$  ( $X = K, Rb, Cs$ ) 的杨氏模量偏低, 意味其热输运受到抑制, 晶格热导率偏低. 此外, 三种材料都是常见的正泊松比材料, 在沿  $45/135^\circ$  方向取最大值, 分别为 0.47、0.43、0.38, 这明显高于  $h -$

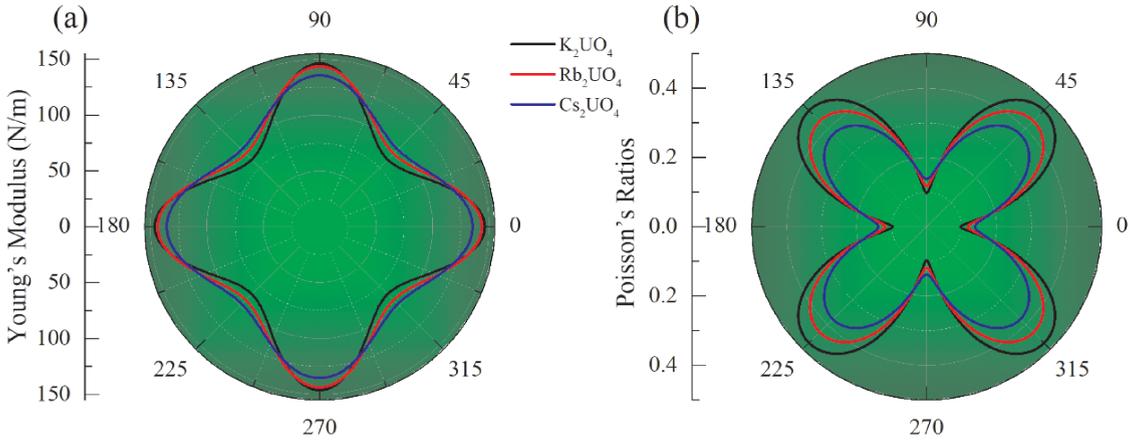


图3 二维  $X_2UO_4$  ( $X = K, Rb, Cs$ ) 的 (a) 杨氏模量和 (b) 泊松比

Fig. 3 The Young's moduli and Poisson's ratios of two-dimensional  $X_2UO_4$  ( $X = K, Rb, Cs$ )

BN (0.211)<sup>[24]</sup> 和石墨烯 (0.175)<sup>[25]</sup>.

### 3.2 电子结构

由于 PBE 泛函会普遍高估半导体的能隙<sup>[26]</sup>, 因此采取 HSE06 泛函来准确表征材料的电子能带结构, 如图4所示. 可以发现, 三种材料的价带顶(VBM)位于  $\Gamma$  点,  $K_2UO_4$  的导带底(CBM)位于 M 点, 而  $Rb_2UO_4$  和  $Cs_2UO_4$  的 CBM 则位于  $\Gamma$  点, 这说明  $K_2UO_4$  是间接半导体, 而后两者则为直接带隙半导体. 此外, 二维  $X_2UO_4$  ( $X = K, Rb, Cs$ ) 的带隙分别是 3.90、3.79 和 3.42 eV, 这稍大于锐钛矿 ZnO (3.3 eV)、碳化硅(3.4 eV)和氮化镓(3.3 eV), 但小于  $\beta$ -氧化镓 (4.5 eV)<sup>[27]</sup>, 这使得二维  $X_2UO_4$  ( $X = K, Rb, Cs$ ) 在紫外探测器、短波发光二极管等方面具备应用潜力. 载流子迁移是半导体材料的重要性能指标, 它可以通过形变势理论<sup>[28, 29]</sup> 来求解, 即  $\mu_{2D} = \frac{e\hbar^3 C^{2D}}{k_B T m^* m_l^* (E_l^i)^2}$ , 这里  $\mu_{2D}$ 、 $k_B$ 、 $T$ 、 $e$  和  $\hbar$  分别表示面内迁移率、玻尔兹曼常数、温度、电子电量和约化普朗克常数;  $m^*$  为载流子有效质量, 它可以通过求解能量( $E$ )对波矢( $k$ )二阶倒数得到, 即  $m^* = \hbar^2 / (\frac{\partial^2 E}{\partial k^2})$ ;  $C^{2D}$  是平面刚度, 它可以通过计算晶胞总能( $E_t$ )对应变量( $\varepsilon$ )的二阶微分获得, 即  $C^{2D} = (\partial E_t / \partial \varepsilon) / S_0$ , 这里  $S_0$  表示面内面积;  $E_l^i$  则表示形变势常数, 它表示 VBM 和 CBM 对应变量的变化率; 计算中, 设置应变范围 -2% -2%, 步长 1%, 通过设置 OPTCELL 选项对未作应变的方向做自由弛豫, 即采取固定轴优化的方式进行, 计算结果列于表 2. 结果显示, 二维  $X_2UO_4$  ( $X = K, Rb, Cs$ ) 的电子有效质量都要小

于空穴, 即它们属于轻电子重空穴型半导体, 这是因为 VBM 的能级色散较 CBM 更加平坦所导致的; 三种材料的平面刚度逐步递减, 这与它们的杨氏模量规律相吻合; 形变势常数取值 3.12 - 5.35 eV, 这与  $Ca_4Sb_2O$  (4.15 ~ 8.70 eV)<sup>[18]</sup> 和  $MgIn_2Se_4$  (4.32 ~ 5.28 eV)<sup>[5]</sup> 相当; 由于电子有效质量和对应的形变势常数更低, 电子迁移率显著高于空穴, 取值 71.31、174.23 和 83.57  $cm^2/Vs$ , 这小于  $MoS_2$  (~ 200  $cm^2/Vs$ )<sup>[30]</sup> 和硅烯 (1419  $cm^2/Vs$ )<sup>[31]</sup>.

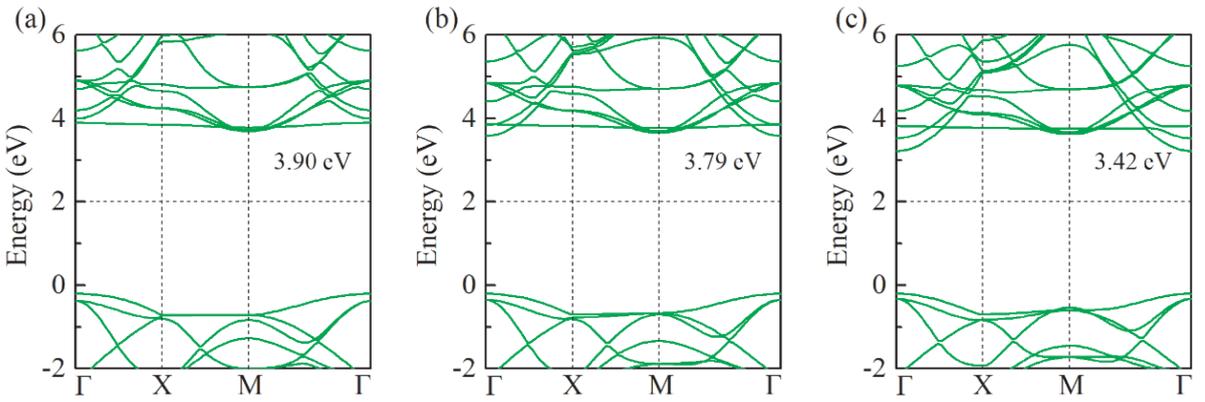
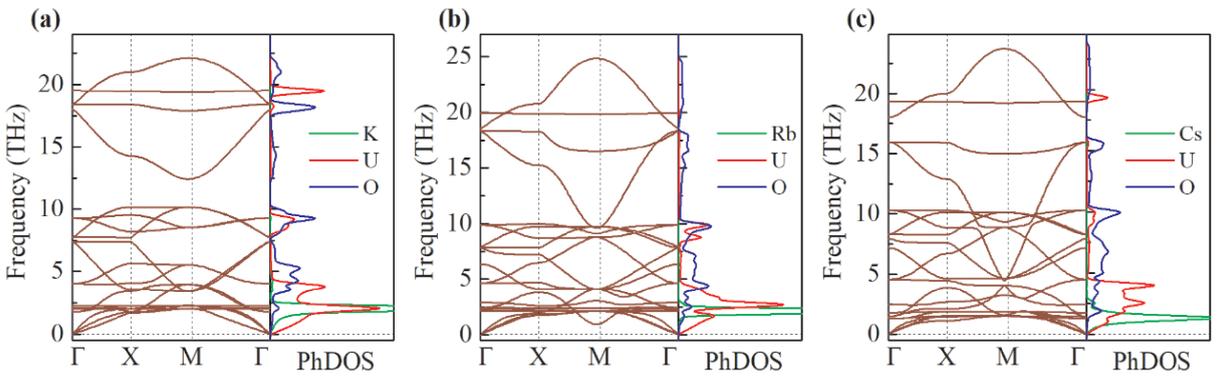
表2 二维  $X_2UO_4$  ( $X = K, Rb, Cs$ ) 在 300 K 温度下的载流子有效质量 ( $m^*$ ,  $m_0$ )、形变势常数 ( $E_l$ , eV)、平面刚度 ( $C^{2D}$ , N/m) 和迁移率 ( $\mu$ ,  $cm^2/Vs$ )

Table 2 The carrier effective masses ( $m^*$ ,  $m_0$ ), deformation potential constants ( $E_l$ , eV), plane stiffnesses ( $C^{2D}$ , N/m) and mobilities ( $\mu$ ,  $cm^2/Vs$ ) of  $X_2UO_4$  ( $X = K, Rb, Cs$ ) at 300 K

Materials	Carrier type	$m^*$	$C^{2D}$	$E_l$	$\mu$
$KU_2O_4$	electron	1.67	91.39	3.12	71.31
	hole	5.22	91.39	3.52	5.76
$RbU_2O_4$	electron	0.97	87.48	3.36	174.23
	hole	4.18	87.48	4.01	6.62
$CsU_2O_4$	electron	0.98	79.59	4.60	83.57
	hole	2.92	79.59	5.35	6.95

### 3.3 声子振动特征

二维  $X_2UO_4$  ( $X = K, Rb, Cs$ ) 的声子谱如图5所示, 不难发现三种材料的声子频率都没有虚频, 因此它们都具备较好的动力学稳定性. 此外, 所有的声子都表现出很大的色散, 且底部三支声学模和光学模呈现强烈耦合, 这种耦合容易导致强

图4 二维(a)  $\text{K}_2\text{UO}_4$ , (b)  $\text{Rb}_2\text{UO}_4$ 和(c)  $\text{Cs}_2\text{UO}_4$ 的能带结构Fig. 4 The band structures of two - dimensional (a)  $\text{K}_2\text{UO}_4$ , (b)  $\text{Rb}_2\text{UO}_4$  and (c)  $\text{Cs}_2\text{UO}_4$ 图5 二维(a)  $\text{K}_2\text{UO}_4$ 、(b)  $\text{Rb}_2\text{UO}_4$ 和(c)  $\text{Cs}_2\text{UO}_4$ 的声子色散(左)和声子态密度(右)Fig. 5 The phonon dispersions (left) and phonon densities of states (right) of (a)  $\text{K}_2\text{UO}_4$ , (b)  $\text{Rb}_2\text{UO}_4$  and (c)  $\text{Cs}_2\text{UO}_4$ 

声子非谐散射, 从而表现出低晶格热导率<sup>[32]</sup>. 一般而言, 低晶格热导率的材料往往具备很低频率的 low - lying 声子, 即低频光学模在  $\Gamma$  点的频率. 三种材料 low - lying 声子在  $\Gamma$  点的频率低至 1.78、2.12 和 1.28 THz, 这与 2D -  $\text{Bi}_2\text{Se}_3$  (1.59 THz)<sup>[33]</sup> 和  $\text{Pd}_2\text{Se}_3$  (1.44 THz)<sup>[34]</sup> 相当. 由声子态密度 (phDOS) 可以发现, 低频声子主要由质量更重的 U 和 K/Rb/Cs 原子提供, 而质量更轻的 O 原子则主要贡献高频光学声子. 值得注意的是, U 原子被束缚在“牢笼”结构中, 且其声子频率很低, 这说明 U 原子属于一种特殊的“Rattling”振动<sup>[35, 36]</sup>, 这会加剧声子 - 声子非谐散射, 抑制声子传输.

声子群速度 ( $v_{ph}$ ) 和声子散射率 ( $\zeta_{ph}$ ) 如图 6 所示, 其中群速度可以通过计算声子频率 ( $\omega_{ph}$ ) 对波矢 ( $q_{ph}$ ) 的一阶导数得到<sup>[37]</sup>, 即  $v_{ph} = \partial\omega_{ph}/\partial q_{ph}$ . 这里定义垂直平面方向、平面内横向和平面内纵向声学声子分别为 ZA、TA 和 LA 声子. 对比发现, 三种材料有着相似的声学模群速度, 最大值分别为 4.17、3.78 和 3.34 km/s, 这明显小于

$\text{MoS}_2$  ( $\sim 6.5$  km/s)<sup>[38]</sup> 和砷烯 ( $\sim 4.5$  km/s)<sup>[3]</sup>. 尽管如此,  $\text{Rb}_2\text{UO}_4$  和  $\text{Cs}_2\text{UO}_4$  在 10 THz 附近的光学声子表现出很大的群速度, 最大值甚至高达 8.20 和 10.11 km/s, 显著高于  $\text{K}_2\text{UO}_4$ . 与此同时, 三种材料有着极其相似的声子散射率, 主要分布在  $10^{-2} \sim 10^1$  ps<sup>-1</sup>, 这高于 Tellurene<sup>[39]</sup> 和  $\gamma$ -graphyne<sup>[40]</sup> 等许多常见的二维材料. 因此, 二维  $X_2\text{UO}_4$  ( $X = \text{K}, \text{Rb}, \text{Cs}$ ) 有着很低的晶格热导率 (如图 7 所示), 在 300 K 时仅为 0.17、0.18 和 0.19 W/mK, 这远低于 Tellurium (7.5 ~ 10.1 W/mK)<sup>[41]</sup>、SnTe (7.97 W/mK)<sup>[42]</sup> 和  $\gamma$ -GeS (1.07 W/mK)<sup>[43]</sup>, 与 NaCuSe (0.23 W/mK) 和 NaCuTe (0.10 W/mK) 相当<sup>[44]</sup>.

## 4 小结

基于密度泛函理论的第一性原理计算方法, 本文提出了三种新型二维材料, 分别是  $\text{K}_2\text{UO}_4$ 、 $\text{Rb}_2\text{UO}_4$  和  $\text{Cs}_2\text{UO}_4$ , 并系统探究了其稳定性、电子结构和声子输运特性. 计算结果表明, 三种材料都具有高机械稳定性、动力学稳定性和热稳定

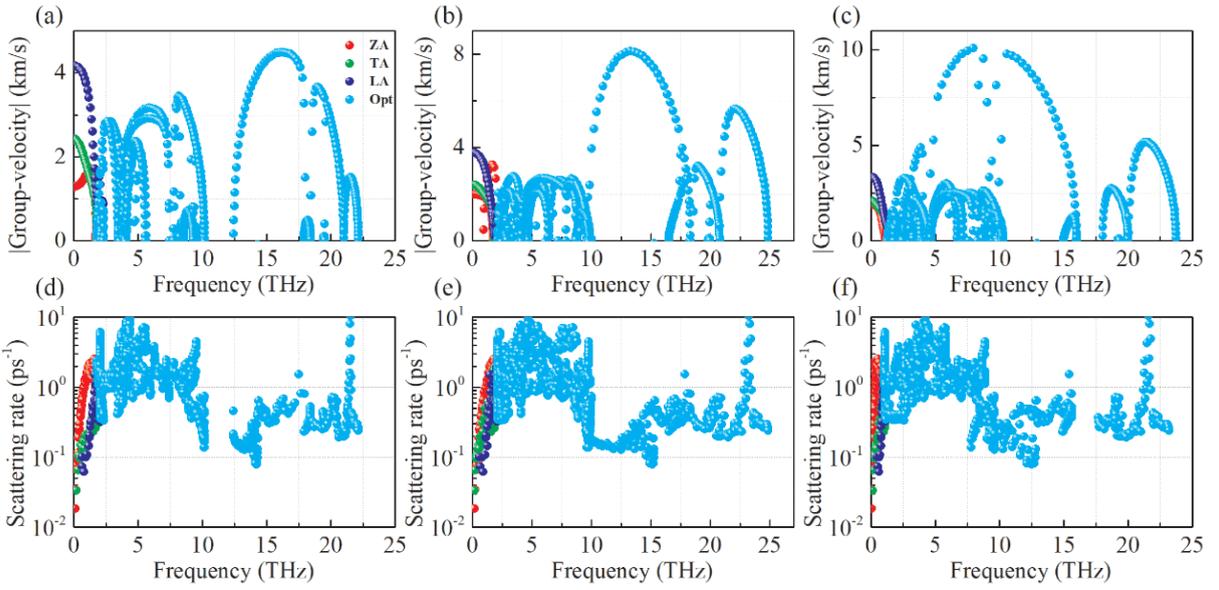


图6 二维(a, d)  $K_2UO_4$ 、(b, e)  $Rb_2UO_4$ 和(c, f)  $Cs_2UO_4$ 的声子群速度和声子散射率

Fig. 6 The group velocities and phonon scattering rates of two-dimensional (a, d)  $K_2UO_4$ , (b, e)  $Rb_2UO_4$  and (c, f)  $Cs_2UO_4$

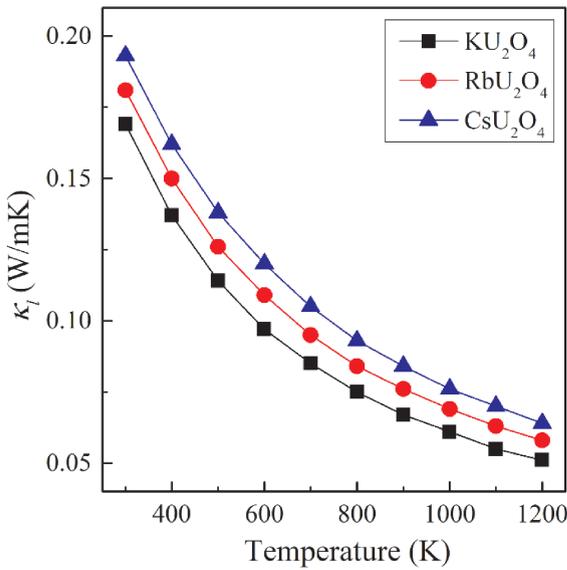


图7 二维  $X_2UO_4$  ( $X = K, Rb, Cs$ ) 在 300 ~ 1200 K 温度下的晶格热导率

Fig. 7 The lattice thermal conductivities of two-dimensional  $X_2UO_4$  ( $X = K, Rb, Cs$ ) at 300 ~ 1200 K

性,耐热温度高达 700 K. 电子结构表明,三种材料都输运间接宽带隙半导体,计算能隙分别是 3.90、3.79 和 3.42 eV,并且有着 71.31 ~ 174.23  $cm^2/Vs$  的电子迁移率和 5.76 ~ 6.95  $cm^2/Vs$  的空穴迁移率. 声子色散结果表明,三种材料的声子谱均没有出现虚频,声学模和低频光学模发生强烈耦合,有着低频率 low-lying 声子,且 U 原子还表现出一种特殊的“Rattling”振动,这使得

材料具备很强的声子非谐效应,从而表现出低声子群速度和强声子散射率. 因此二维  $X_2UO_4$  ( $X = K, Rb, Cs$ ) 表现出极低晶格热导率,在 300 K 时仅为 0.16 ~ 0.19 W/mK,这低于很多常见的二维材料. 以上研究表明,二维  $X_2UO_4$  ( $X = K, Rb, Cs$ ) 在纳米宽禁带半导体和热电器件领域具备应用潜力.

参考文献:

[1] Zhou M F, Wang W H, Lu J P, *et al.* How defects influence the photoluminescence of TMDCs [J]. *Nano Res.*, 2021, 14: 29.  
 [2] Fei R X, Yang L. Strain-engineering the anisotropic electrical conductance of few-layer black phosphorus [J]. *Nano Lett.*, 2014, 14: 2884.  
 [3] Sharma S, Kumar S, Schwingenschlöggl U. Arsenene and antimonene: two-dimensional materials with high thermoelectric figures of merit [J]. *Phys. Rev. Appl.*, 2017, 8: 044013.  
 [4] Sheng X F, Chen S, Kang W B, *et al.* Monolayer  $XN_2$  ( $X = Ti, Zr, Hf$ ): novel 2D materials with high stability, simultaneously high electron and hole mobilities from density functional theory [J]. *Mater. Today Commun.*, 2022, 31: 103313.  
 [5] Fang W, Kuang K, Xiao X, *et al.* *Ab initio* study of two-dimensional  $MgAl_2Se_4$  and  $MgIn_2Se_4$  with high stability, high electron mobility, and high thermoelectric figure of merit [J]. *J. Alloys Compd.*, 2023, 931:

- 167586.
- [6] Song Y Q, Yuan J H, Li L H, *et al.*  $\text{KTlO}$ : a metal shrouded 2D semiconductor with high carrier mobility and tunable magnetism [J]. *Nanoscale*, 2019, 11: 1131.
- [7] Roof I P, Smith M D, zur Loye H C. Crystal growth of  $\text{K}_2\text{UO}_4$  and  $\text{Na}_4\text{UO}_5$  using hydroxide fluxes [J]. *J. Cryst. Growth*, 2010, 312: 1240.
- [8] Matar S F. *Ab - initio* studies of the electronic structures of the hexavalent uranium compounds  $\text{K}_2\text{UO}_4$  and  $\text{Na}_4\text{UO}_5$  [J]. *Zeitschrift für Naturforschung B*, 2014, 69: 109.
- [9] Volkovich V A, Griffiths T R, Fray D J, *et al.* Vibrational spectra of alkali metal Li, Na and K uranates and consequent assignment of uranate ion site symmetry [J]. *Vib. Spectrosc.*, 1998, 17: 83.
- [10] Hafner J. *Ab - initio* simulations of materials using VASP: density - functional theory and beyond [J]. *J. Comput. Chem.*, 2008, 29: 2044.
- [11] You H J, Su B Y, Chiang Y T, *et al.* First - principles study on the thermoelectric properties of  $\text{Sr}_2\text{Si}$  and  $\text{Sr}_2\text{Ge}$  [J]. *Mater. Today Phys.*, 2023, 32: 101015.
- [12] Bahuguna B P, Saini L K, Sharma R O, *et al.* Hybrid functional calculations of electronic and thermoelectric properties of GaS, GaSe, and GaTe monolayers [J]. *Phys. Chem. Chem. Phys.*, 2018, 20: 28575.
- [13] Fang W Y, Xiao X L, Wei H R, *et al.* The elastic, electron, phonon, and vibrational properties of monolayer  $\text{XO}_2$  ( $X = \text{Cr}, \text{Mo}, \text{W}$ ) from first principles calculations [J]. *Mater. Today Commun.*, 2022, 30: 103183.
- [14] Liao B L, Zhou J W, Qiu B, *et al.* *Ab initio* study of electron - phonon interaction in phosphorene [J]. *Phys. Rev. B*, 2015, 91: 235419.
- [15] Eriksson F, Fransson E, Erhart P. Thehiphive package for the extraction of high - order force constants by machine learning [J]. *Adv. Theory Simul.*, 2019, 2: 1800184.
- [16] Bardeen J, Shockley W. Deformation potentials and mobilities in non - polar crystals [J]. *Phys. Rev.*, 1950, 80: 72.
- [17] Rahim W, Skelton J M, Scanlon D O.  $\text{Ca}_4\text{Sb}_2\text{O}$  and  $\text{Ca}_4\text{Bi}_2\text{O}$ : two promising mixed - anion thermoelectrics [J]. *J. Mater. Chem. A*, 2021, 9: 20417.
- [18] Sheng X, Fang W, Yao C, *et al.* The stability, mechanical, electronic and thermoelectric properties of unexplored monolayer  $\text{Ca}_4\text{Sb}_2\text{O}$  and  $\text{Ca}_4\text{Bi}_2\text{O}$  [J]. *Vacuum*, 2023, 212: 112008.
- [19] Fang W, Wei H, Xiao X, *et al.*  $\text{XTlO}$  ( $X = \text{K}, \text{Rb}, \text{Cs}$ ): novel 2D semiconductors with high electron mobilities, ultra - low lattice thermal conductivities and high thermoelectric figures of merit at room temperature [J]. *Appl. Surf. Sci.*, 2022, 599: 153924.
- [20] Fang W Y, Chen Y, Ye P, *et al.* Elastic constants, electronic structures and thermal conductivity of monolayer  $\text{XO}_2$  ( $X = \text{Ni}, \text{Pd}, \text{Pt}$ ) [J]. *Acta Phys. Sin.*, 2021, 70: 246301 (in Chinese) [方文玉, 陈粤, 叶盼, 等. 二维  $\text{XO}_2$  ( $X = \text{Ni}, \text{Pd}, \text{Pt}$ ) 弹性、电子结构和热导率 [J]. *物理学报*, 2021, 70: 246301]
- [21] Lajevardipour A, Neek - Amal M, Peeters F M. Thermomechanical properties of graphene: valence force field model approach [J]. *J. Phys.: Condens. Matter*, 2012, 24: 175303.
- [22] Efetov D K, Kim P. Controlling electron - phonon interactions in graphene at ultrahigh carrier densities [J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2010, 105: 256805.
- [23] Morelli D T, Jovic V, Heremans J P. Intrinsically minimal thermal conductivity in cubic  $\text{I} - \text{V} - \text{VI}_2$  semiconductors [J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2008, 101: 035901.
- [24] Kudin K N, Scuseria G E, Yakobson B I.  $\text{C}_2\text{F}$ , BN, and C nanoshell elasticity from *ab initio* computations [J]. *Phys. Rev. B*, 2001, 64: 235406.
- [25] Min K, Aluru N R. Mechanical properties of graphene under shear deformation [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2011, 98: 013113.
- [26] Ding G, Gao G Y, Huang Z, *et al.* Thermoelectric properties of monolayer  $\text{MSe}_2$  ( $M = \text{Zr}, \text{Hf}$ ): low lattice thermal conductivity and a promising figure of merit [J]. *Nanotechnology*, 2016, 27: 375703.
- [27] Khan M, Kadam V, Sant T, *et al.* Growth of  $\text{ZnO}/\text{Ga}_2\text{O}_3$  and  $\text{Ga}_2\text{O}_3/\text{ZnO}$  heterostructures on  $c - \text{Al}_2\text{O}_3$  substrate using pulsed laser deposition [J]. *Solid State Commun.*, 2023, 364: 115130.
- [28] Fang R H, Cui X Y, Stampfl C, *et al.* High mobility in alpha - phosphorene isostructures with low deformation potential [J]. *Phys. Chem. Chem. Phys.*, 2020, 22: 2276.
- [29] Lang H F, Zhang S Q, Liu Z R. Mobility anisotropy of two - dimensional semiconductors [J]. *Phys. Rev. B*, 2016, 94: 235306.
- [30] Cai Y Q, Zhang G, Zhang Y W. Polarity - reversed robust carrier mobility in monolayer  $\text{MoS}_2$  nanoribbons [J]. *J. Am. Chem. Soc.*, 2014, 136: 6269.
- [31] Shao Z G, Ye X S, Yang L, *et al.* First - principles calculation of intrinsic carrier mobility of silicene [J].

- J. Appl. Phys.*, 2013, 114: 093712.
- [32] Liu P F, Bo T, Xu J P, et al. First – principles calculations of the ultralow thermal conductivity in two – dimensional group – IV selenides [J]. *Phys. Rev. B*, 2018, 98: 235426.
- [33] Hung N T, Nugraha A R T, Saito R. Designing high – performance thermoelectrics in two – dimensional tetradymites[J]. *Nano Energy*, 2019, 58: 743.
- [34] Naghavi S S, He J, Xia Y, et al. Pd<sub>2</sub>Se<sub>3</sub> monolayer: A promising two – dimensional thermoelectric material with ultralow lattice thermal conductivity and high power factor[J]. *Chem. Mater.*, 2018, 30: 5639.
- [35] Matougui M, Bouadjemi B, Houari M, et al. Rattling-heusler semiconductors ’ thermoelectric properties: First – principles prediction [J]. *Chin. J. Phys.*, 2019, 57: 195.
- [36] Qi J, Dong B, Zhang Z, et al. Dimer rattling mode induced low thermal conductivity in an excellent acoustic conductor[J]. *Nat. Commun.*, 2020, 11: 5197.
- [37] Nag S, Saini A, Singh R, et al. Ultralow lattice thermal conductivity and anisotropic thermoelectric performance of AA stacked SnSe bilayer[J]. *Appl. Surf. Sci.*, 2020, 512: 145640.
- [38] Hong Y, Zhang J C, Zeng X C. Thermalconductivity of monolayer MoSe<sub>2</sub> and MoS<sub>2</sub> [J]. *J. Phys. Chem. C*, 2016, 120: 26067.
- [39] Sharma S, Singh N, Schwingenschlöggl U. Two – dimensional tellurene as excellent thermoelectric material[J]. *ACS Appl. Energy Mater.*, 2018, 1: 1950.
- [40] Jiang P H, Liu H J, Cheng L, et al. Thermoelectric properties of gamma – graphyne from first – principles calculations[J]. *Carbon*, 2017, 113: 108.
- [41] Gao Z, Liu G, Ren J. Highthermoelectric performance in two – dimensional tellurium: an *ab initio* study[J]. *ACS Appl. Mater. Interfaces*, 2018, 10: 40702.
- [42] Xu H, Wan H, Xu R, et al. Enhancing the thermoelectric performance of SnTe – CuSbSe<sub>2</sub> with an ultra – low lattice thermal conductivity[J]. *J. Mater. Chem. A*, 2023, 11: 4310.
- [43] Shu Z, Wang B, Cui X, et al. High – performance thermoelectric monolayer  $\gamma$  – GeSe and its group – IV monochalcogenide isostructural family[J]. *Chem. Eng. J.*, 2023, 454: 140242.
- [44] Sheng X, Rao X, Liu C, et al. NaCuX (X = Se, Te): novel 2D materials simultaneously with ultra – low thermal conductivity and high thermoelectric figure of merit [J]. *Mater. Today Commun.*, 2023, 35: 105987.