

# 二维单层 $\text{FeGa}_2\text{S}_4$ 电子结构及光学性质调控研究\*

宋蕊<sup>1)†</sup> 程润<sup>1)</sup> 冯凯<sup>1)</sup> 姚佳<sup>1)</sup> 王必利<sup>1)</sup> 鲁梦洁<sup>1)</sup> 安明<sup>2)‡</sup>

1) (陆军工程大学基础部, 南京 211101)

2) (东南大学物理学院, 南京 211189)

(2025 年 8 月 31 日收到; 2025 年 10 月 9 日收到修改稿)

针对高速电子器件与光电器件的发展需求, 探索并设计具有优异载流子输运特性的二维半导体材料已成为该领域的核心科学问题. 本文基于密度泛函理论, 采用第一性原理计算系统地探究了面内应力对单层  $\text{FeGa}_2\text{S}_4$  材料输运性质及光学性质的调控规律. 结果表明,  $\text{FeGa}_2\text{S}_4$  易于剥离, 其单层结构具有较好的动力学、热力学稳定性和面内各向同性的机械性能, 较低的杨氏模量使其在外部应力下易于形变. 与母相块材相似, 单层  $\text{FeGa}_2\text{S}_4$  也是一种间接带隙半导体 (能隙为 1.65 eV), 在单轴应力 (应变范围  $\pm 5\%$ ) 调控下, 空穴迁移率基本保持不变 (约  $10^3 \text{ cm}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$ ), 电子迁移率 (+5% 应变) 则提升超过一个数量级. 双轴拉伸应力则能够有效提升材料在可见光范围内的光捕获能力. 研究结果表明单层  $\text{FeGa}_2\text{S}_4$  在高速电子和柔性光电器件领域具有较大的应用前景.

**关键词:** 第一性原理, 电子结构, 光学性质, 应变工程**DOI:** 10.7498/aps.75.20251180**CSTR:** 32037.14.aps.75.20251180

## 1 引言

自 2004 年石墨烯被成功剥离制备以来<sup>[1]</sup>, 二维材料因其独特的量子限域效应和不同于母相块体的物理性质引发了持续的研究热潮. 作为典型代表, 石墨烯载流子迁移率高达  $3.5 \times 10^5 \text{ cm}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$  (优于传统硅基材料两个数量级)<sup>[2]</sup>, 1.0 TPa 的杨氏模量接近金刚石的理论极限<sup>[3]</sup>,  $5000 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$  的室温热导率更是超越绝大多数已知材料<sup>[4]</sup>, 同时在宽光谱范围内具有可调控的光学响应<sup>[5-8]</sup>. 这些特性不仅推动了基础物理研究, 更催生了以黑磷 (BP)<sup>[9]</sup>、六方氮化硼 (h-BN)<sup>[10]</sup>, III-VI 族半导体 (InSe, GaS)<sup>[11,12]</sup> 和过渡金属硫化物 (TMDs)<sup>[13]</sup> 为代表的二维材料体系发展. 近年来, 随着计算材料

学的突破, 研究者通过第一性原理计算结合高通量筛选技术, 成功地预测了多种具有独特电子结构、优异力学性能和光学性质的新型二维材料<sup>[14-18]</sup>. 随着实验技术快速发展, 二维材料体系已突破石墨烯为代表的单质烯类材料范畴, 逐步向多元化合物方向拓展. 以 TMDs<sup>[19,20]</sup> 和 MXenes<sup>[21]</sup> 为代表的多元二维材料相继被成功制备. 通过机械剥离、电化学插层及液相剥离等创新工艺, 实现了从块体材料到少层乃至单层结构的精准解理, 极大地丰富了二维材料的种类与性能调控维度.

近期, Victorin 团队<sup>[22]</sup> 在二维多元硫族化合物领域取得重要突破, 通过改进的机械剥离技术成功制备出双层  $\text{NiGa}_2\text{S}_4$  纳米片, 并对其结构和光学性质进行了研究. 目前, 与  $\text{FeGa}_2\text{S}_4$  具有相同结构的范德瓦耳斯层状材料  $\text{FeGa}_2\text{S}_4$  早已被成功合成<sup>[23]</sup>,

\* 国家自然科学基金 (批准号: 12274070) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: snoopysr@163.com

‡ 通信作者. E-mail: amorn@seu.edu.cn

但其单层结构的电子特性与光学性质尚未阐明; 如何借助应变工程实现对其物性的优化调控仍缺乏系统研究.

本文针对上述问题, 基于密度泛函计算方法对单层  $\text{FeGa}_2\text{S}_4$  的结构稳定性、电子结构及光学性质进行了系统研究. 重点探究  $-5\%$ — $5\%$  面内应变对材料输运性质、能带结构和光学性质的调控规律. 研究结果将为设计及制备高性能柔性光电器件提供理论依据.

## 2 计算方法

本研究基于密度泛函理论, 采用 VASP 软件包 [24,25] 开展第一性原理计算. 计算中选用广义梯度近似下的 Perdew-Burke-Ernzerhof (PBE) 泛函 [26] 处理电子交换关联作用, 平面波截断能设为 500 eV. 针对单层  $\text{FeGa}_2\text{S}_4$  体系, 布里渊区积分采用  $\Gamma$  点中心的 Monkhorst-Pack 方法 [27], 设置  $7 \times 7 \times 1$  的  $K$  网格进行采样. 由于单层  $\text{FeGa}_2\text{S}_4$  不具有磁性 [28], 故不考虑自旋极化. 结构弛豫时原子力的收敛判据为  $0.01 \text{ eV}/\text{\AA}$ , 自洽能量收敛值小于  $1.0 \times 10^{-5} \text{ eV}$ . 计算剥离能时, 层间范德瓦耳斯力通过 Grimme 方案的 DFT-D3 校正 [29]. 对于单层材料, 模型沿  $c$  轴方向构建了  $20 \text{ \AA}$  的真空层, 以便有效避免层间相互作用对结果的影响. 为精确描述材料的能带结构, 采用 Heyd-Scuseria-Ernzerhof (HSE06) 杂化泛函, 其中包含 25% 的 Hartree-Fock 交换作用. 材料的声子谱计算采用密度泛函微扰理论 (density functional perturbation theory, DFPT) 方法 [27], 后处理和分析部分借助 Phonopy 程序完成 [30].

## 3 结果及讨论

### 3.1 结构及稳定性分析

层状  $\text{FeGa}_2\text{S}_4$  晶体属于三方晶系, 对应的空间群是  $P\bar{3}m1$  (No.164), 其晶体结构如图 1(a) 所示. 首先, 优化计算得到的体相晶格参数为  $a = b = 3.649 \text{ \AA}$  和  $c = 12.189 \text{ \AA}$ , 与 Myoung 等 [31] 报道的实验值 ( $a = b = 3.669 \text{ \AA}$  和  $c = 12.096 \text{ \AA}$ ) 高度吻合. 该三元层状化合物以 S-Ga-S-Fe-S-Ga-S 七分子层为基本结构单元, 通过范德瓦耳斯力沿  $c$  轴方向堆叠形成三维晶体结构. 在块体材料中,  $\text{FeGa}_2\text{S}_4$  相邻范德瓦耳斯层间 S-S 间距为  $3.76 \text{ \AA}$ , 略大于硫原子的范德瓦耳斯半径之和 ( $3.60 \text{ \AA}$ ), 表明层间仅存在较弱的范德瓦耳斯相互作用. 鉴于  $\text{FeGa}_2\text{S}_4$  晶体结构表现出的准二维特性, 我们采用 5 层厚板模型计算其剥离能, 以评估机械剥离法制备二维单层的可行性. 计算结果如图 1(b) 所示,  $\text{FeGa}_2\text{S}_4$  单层的剥离能为  $20 \text{ meV}/\text{\AA}^2$  ( $0.30 \text{ J}/\text{m}^2$ ), 低于石墨烯剥离能实验值 ( $0.37 \text{ J}/\text{m}^2$ ) [32]. 这一结果进一步表明,  $\text{FeGa}_2\text{S}_4$  晶体层间相互作用较弱, 通过机械剥离技术可较容易地获得高质量二维纳米片, 这为其在二维材料领域的应用提供了重要的理论依据.

单层  $\text{FeGa}_2\text{S}_4$  结构俯视图和侧视图如图 2(a) 和图 2(b) 所示. 结构弛豫后, 面内晶格常数为  $a = b = 3.599 \text{ \AA}$ , 与体相晶格参数 ( $a = b = 3.649 \text{ \AA}$ ) 高度接近. 二维材料的实际应用需以结构稳定性为前提. 通过声子谱分析 (图 2(c)) 可见, 单层  $\text{FeGa}_2\text{S}_4$  在整个布里渊区内均无虚频模式, 表明其具备优异的动力学稳定性. 为考察室温稳定性, 我们采用从头算分子动力学 (*ab initio* molecular dynamics,

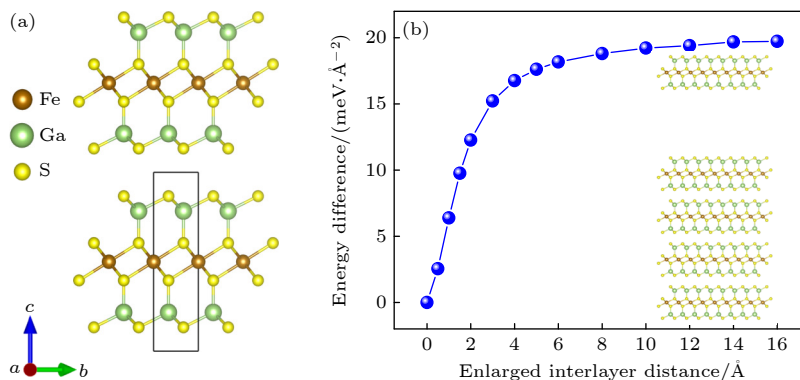


图 1 (a) 体相  $\text{FeGa}_2\text{S}_4$  晶体结构的侧视图, 黑框内为其块材的一个原胞; (b)  $\text{FeGa}_2\text{S}_4$  的剥离能

Fig. 1. (a) Side view of  $\text{FeGa}_2\text{S}_4$  bulk, its primitive cell is marked with a black frame; (b) the exfoliation energy of  $\text{FeGa}_2\text{S}_4$ .

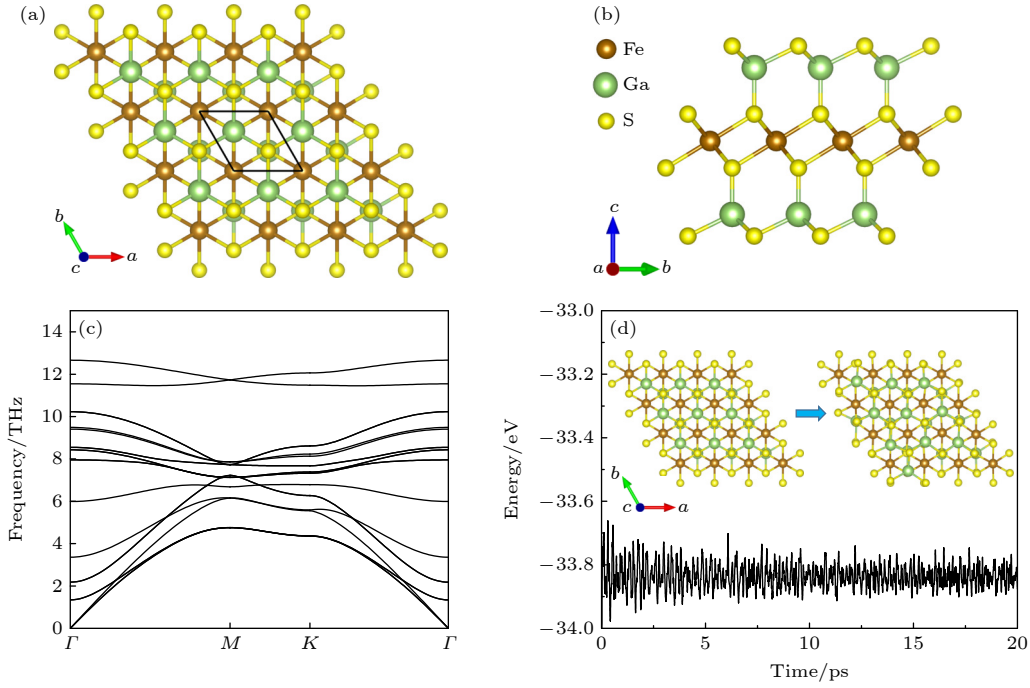


图 2 单层  $\text{FeGa}_2\text{S}_4$  的 (a) 俯视图和 (b) 侧视图; (c) 单胞的声子谱; (d)  $3 \times 3 \times 1$  超晶胞结构分子动力学模拟

Fig. 2. (a) Top and (b) side views of  $\text{FeGa}_2\text{S}_4$  monolayer; (c) phonon dispersion curves of  $\text{FeGa}_2\text{S}_4$  monolayer unit cell; (d) evolution of total energy and snapshots of  $\text{FeGa}_2\text{S}_4$  monolayer  $3 \times 3 \times 1$  supercell from AIMD simulations.

AIMD) 对  $3 \times 3 \times 1$  超胞在 300 K 下进行 20 ps 的演化模拟<sup>[33]</sup>. 如图 2(d) 所示, 原子仅在平衡位置附近发生小幅热振动, 未出现键断裂或结构重构现象, 证实其在室温下具有较好的热力学稳定性. 机械稳定性通过弹性常数表征, 计算得到:  $C_{11} = 58.559$  GPa,  $C_{12} = 14.361$  GPa,  $C_{13} = -0.507$  GPa,  $C_{14} = -0.222$  GPa,  $C_{33} = 2.400$  GPa,  $C_{44} = 21.682$  GPa,  $C_{66} = 0.598$  GPa. 这些参数满足 Born-Huang 准则 ( $C_{11} > C_{12}$ ,  $C_{44} > 0$ ,  $2C_{14}^2 < C_{44}(C_{11} - C_{12})$  且  $2C_{13}^2 < C_{33}(C_{11} + C_{12})$ )<sup>[34]</sup>, 表明单层  $\text{FeGa}_2\text{S}_4$  具备本征机械稳定性. 上述计算结果表明单层  $\text{FeGa}_2\text{S}_4$  在动力学、热力学及机械稳定性方面均表现优异, 为其实验制备和器件应用提供了理论基础.

### 3.2 机械性质及电子结构

单层  $\text{FeGa}_2\text{S}_4$  的晶体结构对称性预示着材料在面内将呈现各向同性的弹性响应. 为验证这一结构特性对力学行为的影响, 我们采用 Cadelano 的方法, 通过弹性常数张量描述  $ab$  面内相对于  $a$  轴正方向的夹角  $\theta$  方向的杨氏模量  $Y(\theta)$  和泊松比  $\nu(\theta)$ , 具体表达式为<sup>[35]</sup>

$$Y(\theta) = \frac{\Delta}{C_{11}s^4 + C_{22}c^4 + (\Delta/C_{44} - 2C_{12})c^2s^2},$$

$$\nu(\theta) = \frac{C_{12}s^4 - (C_{11} + C_{22} - \Delta/C_{44})s^2c^2 + C_{12}c^4}{C_{11}s^4 + C_{22}c^4 + (\Delta/C_{44} - 2C_{12})s^2c^2}, \quad (1)$$

其中,  $\Delta = C_{11}C_{22} - C_{12}^2$ ,  $s = \sin\theta$ ,  $c = \cos\theta$ .

图 3 弹性性能计算结果表明, 单层  $\text{FeGa}_2\text{S}_4$  展现出显著的各向同性力学特征: 其杨氏模量在平面内各方向保持  $(151.6 \pm 0.8)$  GPa 的恒定值, 较石墨烯的典型值 (约 1 TPa)<sup>[3]</sup> 降低约一个数量级; 泊松比稳定在  $0.248 \pm 0.002$ , 较石墨烯的 0.165<sup>[3]</sup> 提升 52%. 这种独特的力学参数组合, 即相对较低的弹性模量配合较高的泊松比, 表明该材料在承受面内变形时具有更好的应力分散能力, 这一特性为其在柔性电子器件、可穿戴传感器等领域的应用提供了重要的性能基础.

单层  $\text{FeGa}_2\text{S}_4$  的电子能带结构及分波态密度 (projected density of states, PDOS) 如图 4 所示. 结果显示, 该材料为间接带隙半导体, 其导带底 (conduction band minimum, CBM) 和价带顶 (valence band maximum, VBM) 均分布于  $\Gamma$ -M 点之间. 我们利用杂化泛函 (HSE06) 对能带结构进行了验算, 带隙宽度为 1.65 eV, 能带特征与 PBE 的结果基本一致. 相较于  $\text{NiGa}_2\text{S}_4$  纳米片<sup>[22]</sup> (1.5 eV) 的带隙十分接近, 单层  $\text{FeGa}_2\text{S}_4$  非常有望被应用于光电器件领域. 基于离子模型假设 ( $\text{S}^2$  和

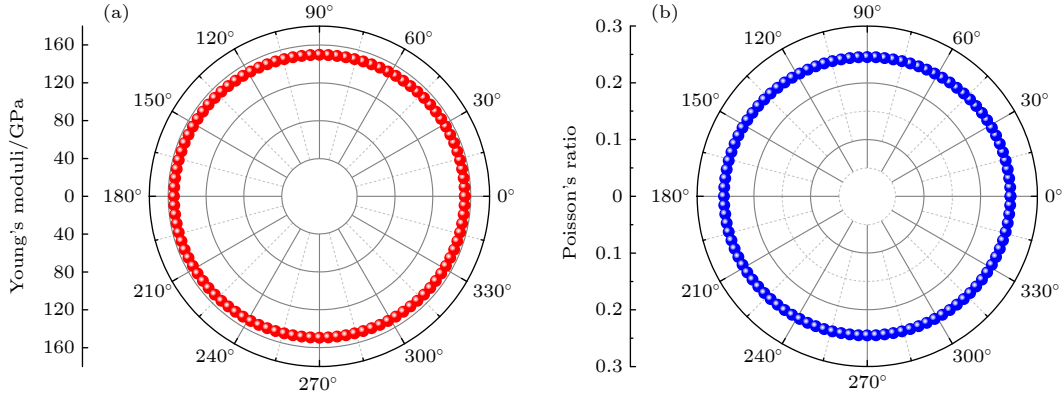

 图 3 FeGa<sub>2</sub>S<sub>4</sub> 单层面内杨氏模量 (a) 和泊松比 (b)

 Fig. 3. Young's moduli (a) and Poisson's ratio (b) of FeGa<sub>2</sub>S<sub>4</sub> monolayer.

Ga<sup>3+</sup>的电荷分布), 铁元素以 Fe<sup>2+</sup>形式存在, 对应 d<sup>6</sup> 电子构型. PDOS 分析进一步表明: VBM 由 Fe-3d 轨道主导; 而 CBM 则主要源自 Fe-3d, Ga-4s 和 S-3p 轨道的贡献.

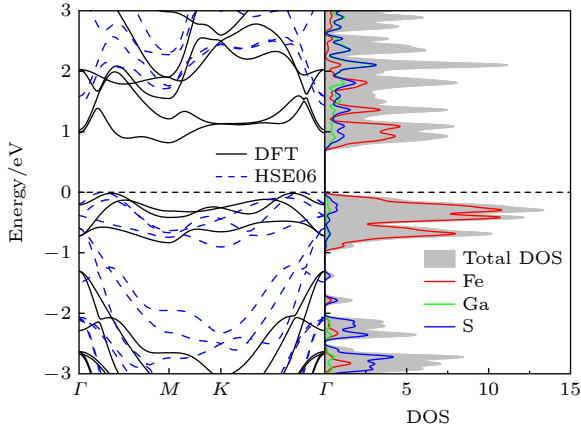

 图 4 FeGa<sub>2</sub>S<sub>4</sub> 单层的电子能带结构和分波态密度

 Fig. 4. Band structure and PDOS of monolayer FeGa<sub>2</sub>S<sub>4</sub>.

### 3.3 应变对电子输运性质的调控

应变工程作为调控二维材料物性的有效手段, 通过精准调控化学键的几何构型 (键长、键角、键强) 及电子轨道杂化作用, 可实现材料性能的定向优化<sup>[36]</sup>. 本研究中, 应变参数  $\varepsilon = (l - l_0)/l_0 \times 100\%$ , 其中  $l_0$  为弛豫态晶格常数,  $\varepsilon > 0$  和  $\varepsilon < 0$  分别对应拉伸与压缩应变. 根据 Bardeen 等<sup>[37]</sup> 提出的形变势理论, 二维材料面内载流子迁移率的计算公式为

$$\mu = \frac{e\hbar^3 C_{2D}}{k_B T m^* m_d (E_{DP})^2},$$

其中,  $k_B$  是玻尔兹曼常数,  $T$  是温度,  $m^*$  是载流子 (电子或空穴) 传输方向上的有效质量,  $m_d =$

$\sqrt{m_x^* m_y^*}$  为载流子的平均有效质量,  $E_{DP}$  表示形变势常数,  $C_{2D}$  是材料面内弹性模量. 根据有效质量近似, 有效质量为

$$\frac{1}{m^*} = \frac{1}{\hbar^2} \frac{\partial^2 E(k)}{\partial k^2},$$

$m^*$  可由能带极值点附近的二次函数拟合确定:

$$E(k) = Ak^2 + Bk + C,$$

其中, 二次项系数  $A$  与有效质量满足  $m^* = \hbar^2/(2A)$ , 通过高密度采样可精确获取不同应变条件下的载流子有效质量.

基于单层 FeGa<sub>2</sub>S<sub>4</sub> 材料的机械稳定性, 本研究系统考察了沿  $x/y$  晶轴方向 (图 5(a)) 施加  $\pm 5\%$  单轴应变的调控效应. 结合第一性原理计算与形变势理论, 构建了载流子迁移率-应变响应关系 (图 5(b)). 计算结果表明: 空穴迁移率在  $\pm 5\%$  应变范围内保持约  $1.0 \times 10^3 \text{ cm}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$  的稳定值 (和单层 InSe 迁移率接近<sup>[11]</sup>, 比单层 MoS<sub>2</sub> 迁移率高出 3 个数量级<sup>[20]</sup>), 展现出优异的应变鲁棒性; 而电子迁移率在应变超过 3% 时呈现显著增长, 当施加 +5% 拉伸应力时,  $x/y$  方向分别增至  $5402.4 \text{ cm}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$  /  $4164.0 \text{ cm}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$ , 较本征值 ( $225.4 \text{ cm}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$ ) 提升达 25/18 倍. 为揭示其内在机制, 我们进一步计算了不同应变下体系的 CBM 局域电荷密度分布.

图 6 通过对比分析单层 FeGa<sub>2</sub>S<sub>4</sub> 超晶胞在无应力状态及沿  $x, y$  晶轴方向分别施加 +3% 和 +5% 拉伸应力时的 CBM 局域电荷密度图及轨道投影能带图, 揭示了应变调控对电子结构的显著影响. 结果显示, 在应变不高于 +3% 时, 体系 CBM 附近的电子分布主要局域于 Fe 原子周围, 该现象与轨

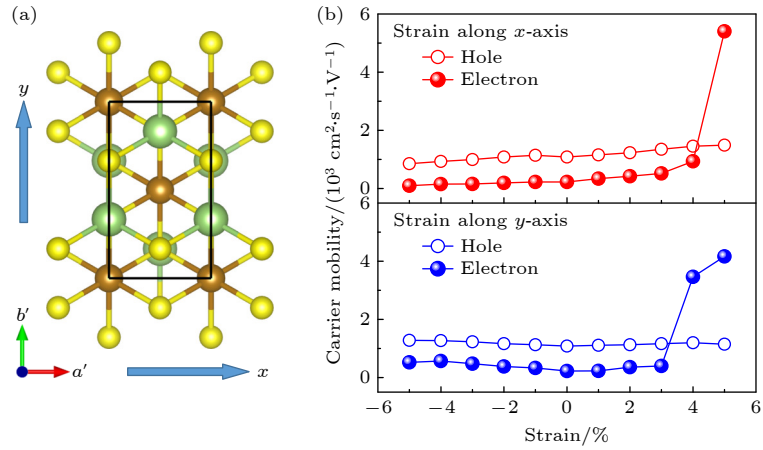


图 5 (a)  $x$  和  $y$  运输方向的定义; (b) 单层 FeGa<sub>2</sub>S<sub>4</sub> 的载流子迁移率应变响应特性

Fig. 5. (a) Definition of transport directions  $x$  and  $y$ ; (b) carrier mobility of monolayer FeGa<sub>2</sub>S<sub>4</sub> under uniaxial strain.

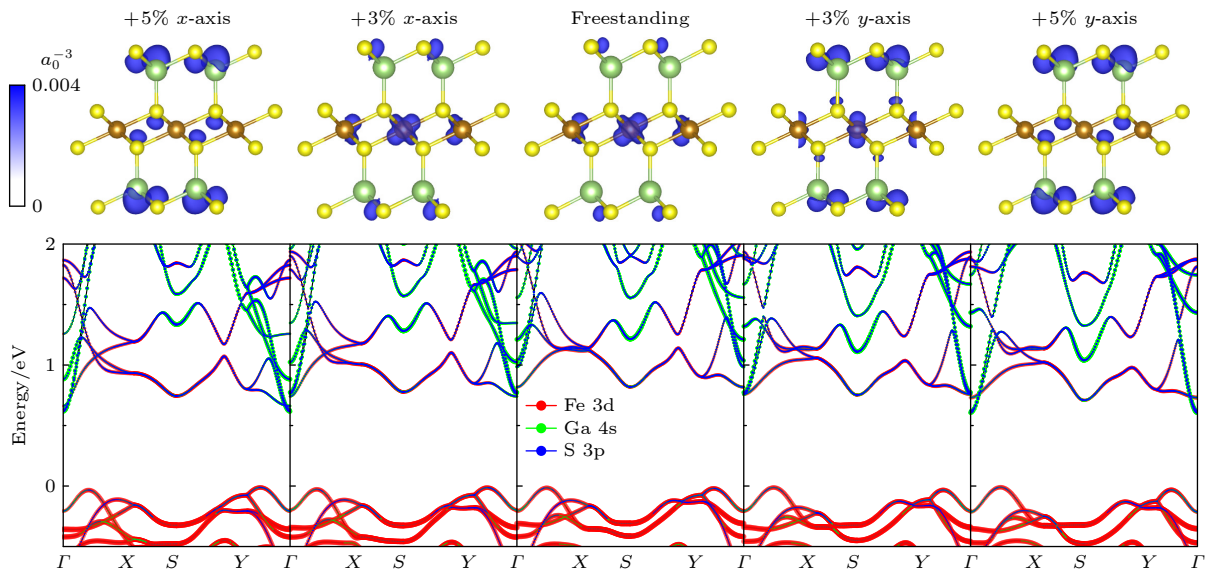


图 6 单层 FeGa<sub>2</sub>S<sub>4</sub> 超胞的导带底局域电荷密度示意图及轨道投影能带图

Fig. 6. Partial charge densities of the conduction band minimum and projected band structure of FeGa<sub>2</sub>S<sub>4</sub> monolayer supercell.

道投影能带中 Fe-3d 轨道占据主导的特征相吻合。当拉伸应变增至+5%时, CBM 的电子结构发生本质性转变, Ga-4s 与 S-3p 轨道杂化成为主导. 这种结构演变源于拉伸应变引起的轨道局域性弱化效应, 进而显著增强了能带色散程度. 值得注意的是, 应变增大还导致  $\Gamma$  点附近 CBM 曲率明显增加, 电子有效质量从  $0.754m_0$  降低至  $0.211m_0$ , 与前文所述的电子迁移率显著提升相印证.

### 3.4 应变对光学性质的调控

图 7 揭示了在-5%—5% 的应变范围内, 材料带隙的变化规律. 在面内单轴应力作用下, 材料带隙随  $a'$  和  $b'$  单轴应力调控走势基本一致, 印证了材料的面内各向同性特征. 值得注意的是, 双轴应力

诱导的带隙演化呈现显著增强的抛物线性响应, 调控幅度是单轴模式的 3 倍. 理论分析表明, 单轴应

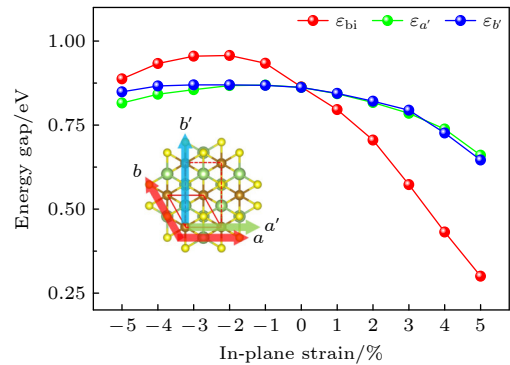


图 7 单层 FeGa<sub>2</sub>S<sub>4</sub> 带隙随面内单双轴应变变化曲线

Fig. 7. Variation of band gap of FeGa<sub>2</sub>S<sub>4</sub> monolayer with various in-plane strain.

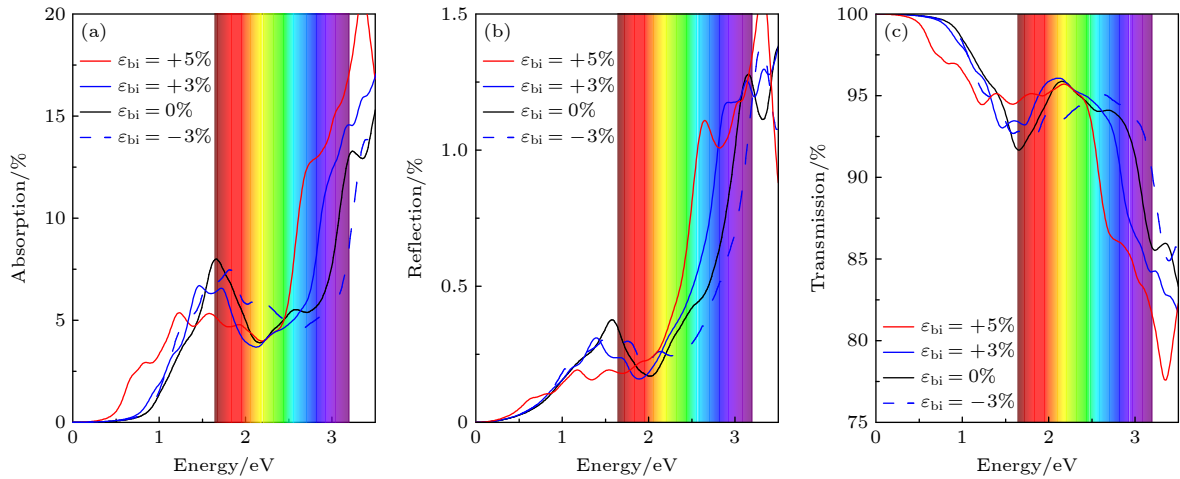

 图 8 双轴应变  $\varepsilon_{bi} = 0\%$ ,  $\pm 3\%$  和  $+5\%$  时, 单层  $\text{FeGa}_2\text{S}_4$  的吸收率、反射率和透射率

 Fig. 8. Absorption, reflectance and transmission of monolayer  $\text{FeGa}_2\text{S}_4$  under  $\varepsilon_{bi} = 0\%$ ,  $\pm 3\%$  and  $+5\%$ .

力虽引发局部晶格畸变, 但受限于材料的各向同性弹性响应, 其形变势效应仅能在有限范围内调节电子结构 (调控区间  $\Delta E < 0.22$  eV). 相较而言, 双轴应变通过对称性匹配的晶格协同形变, 诱导了更显著的电子轨道杂化重构效应, 成功将带隙调控范围扩展至  $0.30\text{--}0.96$  eV, 展现出更优异的性能可调性. 基于此显著差异, 后续研究将聚焦双轴应力对单层  $\text{FeGa}_2\text{S}_4$  光响应行为的调控.

在双轴应变作用下, 二维单层  $\text{FeGa}_2\text{S}_4$  仍保持其晶格对称性, 其沿  $a$  轴与  $b$  轴方向的光吸收特性呈现完全各向同性. 图 8 展示了不同双轴应变条件下单层  $\text{FeGa}_2\text{S}_4$  沿  $a$  轴方向的光吸收率、反射率及透射率随光子能量变化的规律. 计算结果显示, 随着双轴应变的增强, 可见光波段内 ( $1.64\text{--}3.19$  eV) 吸收率、反射率及透射率的特征峰均呈现红移现象. 随着面内拉伸应力的增大, 费米面附近能带结构的变化导致材料呈现出由间接带隙向直接带隙转变的趋势. 此外, 当应变达到  $+5\%$  时, 导带底附近  $sp$  轨道杂化为光电子跃迁提供了新的通道. 上述因素共同作用导致吸收率提升至  $17.5\%$  (单层  $\text{MoS}_2$  吸收率约为  $10\%$ , 石墨烯吸收率约为  $2\%$ <sup>[38]</sup>), 而反射率和透射率则分别下降至  $1.4\%$  和  $81.1\%$ . 这一现象证实拉伸应变可有效增强材料对可见光的捕获能力.

值得注意的是, 结合前期研究发现的  $+5\%$  应变下电子迁移率显著提升的结论, 说明双轴应变调控策略能够协同优化单层  $\text{FeGa}_2\text{S}_4$  的光电性能, 为其在光电器件领域的应用提供了重要理论依据.

## 4 结 论

本文利用第一性原理计算对  $\text{FeGa}_2\text{S}_4$  块材的剥离能及其单层材料的结构稳定性和机械性能进行了系统研究. 理论计算结果表明, 该二维单层材料为各向同性间接带隙半导体 ( $E_g = 1.65$  eV), 兼具低刚度 (杨氏模量  $151.6$  GPa) 与高柔韧特性 (泊松比  $0.248$ ), 同时展现出优异的热力学稳定性. 通过应变工程分析发现, 在  $-5\%\text{--}5\%$  单轴应力作用下, 空穴迁移率表现出良好的鲁棒性; 而电子迁移率在  $+5\%$  拉伸应变时沿  $x/y$  方向分别达到  $5402.4\text{ cm}^2\cdot\text{V}^{-1}\cdot\text{s}^{-1}/4164.0\text{ cm}^2\cdot\text{V}^{-1}\cdot\text{s}^{-1}$ , 提升至空穴迁移率的  $5$  倍. 特别值得关注的是, 双轴应力对带隙的调控显著优于单轴应力, 展现出更强的能带调控能力. 同时, 双轴应力的引入可诱导材料吸收谱、反射谱和透射谱的特征峰发生系统性红移, 从而显著增强其在可见光波段的太阳光谱捕获效率. 本工作不仅揭示了单层  $\text{FeGa}_2\text{S}_4$  作为高迁移率光吸收材料在新型太阳能电池和光电子器件中的应用潜力, 更为二维半导体材料的应力调控和光电性能优化提供了理论依据, 对后续实验探索和器件设计具有重要指导意义.

## 参考文献

- [1] Novoselov K S, Geim A K, Morozov S V, Jiang D, Zhang Y, Dubonos S V, Grigorieva I V, Firsov A A 2004 *Science* **306** 666
- [2] Banzerus L, Schmitz M, Engels S, Dauber J, Oellers M, Haupt F, Watanabe K, Taniguchi T, Beschoten B, Stampfer

- C 2015 *Sci. Adv.* **1** e1500222
- [3] Lee C, Wei X D, Kysar J W, Hone J 2008 *Science* **321** 385
- [4] Balandin A A, Ghosh S, Bao W Z, Calizo I, Teweldebrhan D, Miao F, Lau C N 2008 *Nano Lett.* **8** 902
- [5] Berger C, Song Z M, Li T B, Li X B, Ogbazghi A Y, Feng R, Dai Z T, Marchenkov A N, Conrad E H, First P N, de Heer W A 2004 *J. Phys. Chem. B* **108** 19912
- [6] Liu M, Yin X B, Ulin-Avila E, Geng B S, Zentgraf T, Ju L, Wang F, Zhang X 2011 *Nature* **474** 64
- [7] Withers F, Dubois M, Savchenko A K 2010 *Phys. Rev. B* **82** 073403
- [8] Liu B, Zhou K 2019 *Prog. Mater. Sci.* **100** 99
- [9] Cai Y Q, Zhang G, Zhang Y W 2014 *Sci. Rep.* **4** 6677
- [10] Dean C R, Young A F, Meric I, Lee C, Wang L, Sorgenfrei S, Watanabe K, Taniguchi T, Kim P, Shepard K L, Hone J 2010 *Nat. Nanotechnol.* **5** 722
- [11] Bandurin D A, Tyurnina A V, Yu G L, Mishchenko A, Zolyomi V, Morozov S V, Kumar R K, Gorbachev R V, Kudrynskyi Z R, Pezzini S, Kovalyuk Z D, Zeitler U, Novoselov K S, Patané A, Eaves L, Grigorieva I V, Fal'ko V I, Geim A K, Cao Y 2017 *Nat. Nanotechnol.* **12** 223
- [12] Hu P A, Wang L F, Yoon M, Zhang J, Feng W, Wang X N, Wen Z Z, Idrobo J C, Miyamoto Y, Geohegan D B, Xiao K 2013 *Nano Lett.* **13** 1649
- [13] Chhowalla M, Shin H S, Eda G, Li L J, Loh K P, Zhang H 2013 *Nat. Chem.* **5** 263
- [14] Ataca C, Sahin H, Ciraci S 2012 *J. Phys. Chem. C* **116** 8983
- [15] Song Y, Pan J B, Zhang Y F, Yang H T, Du S X 2021 *J. Phys. Chem. Lett.* **12** 6007
- [16] Zhang S L, Xie M Q, Li F Y, Yan Z, Li Y F, Kan E, Liu W, Chen Z F, Zeng H B 2016 *Angew. Chem. Int. Ed.* **55** 1666
- [17] Guo Z L, Zhou J, Zhua L G, Sun Z M 2016 *J. Mater. Chem. A* **4** 11446
- [18] Song R, Wang B L, Feng K, Wang L, Liang D D 2022 *Acta Phys. Sin.* **71** 037101 (in Chinese) [宋蕊, 王必利, 冯凯, 王黎, 梁丹丹 2022 物理学报 **71** 037101]
- [19] Du Z G, Yang S B, Li S M, Lou J, Zhang S Q, Wang S, Li B, Gong Y J, Song L, Zou X L, Ajayan P M 2020 *Nature* **577** 492
- [20] Kim Y, Woo W J, Kim D, Lee S, Chung S M, Park J, Kim H 2021 *Adv. Mater.* **33** 2005907
- [21] Rong C, Su T, Li Z K, Chu T S, Zhu M L, Yan Y B, Zhang B W, Xuan F Z 2024 *Nat. Commun.* **15** 1566
- [22] Victorin J, Razpopov A, Higo T, Dziobek-Garrett R, Kempa T J, Nakatsuji S, Valentí R, Drichko N 2024 *Sci. Rep.* **14** 28040
- [23] Dogguy-Smiri L, Dung N H, Pardo M P 1980 *Mater. Res. Bull.* **15** 861
- [24] Kresse G, Furthmüller J 1996 *Phys. Rev. B* **54** 11169
- [25] Perdew J P, Burke K, Ernzerhof M 1996 *Phys. Rev. Lett.* **77** 3865
- [26] Monkhorst H J, Pack J D 1976 *Phys. Rev. B* **13** 5188
- [27] Gonze X, Lee C 1997 *Phys. Rev. B* **55** 10355
- [28] Sharan A, Sajjad M, Singh D J, Singh N 2022 *Phys. Rev. Mater.* **6** 094005
- [29] Grimme S 2006 *J. Comput. Chem.* **27** 1787
- [30] Togo A, Tanaka I 2015 *Scr. Mater.* **108** 1
- [31] Myoung B R, Kim S J, Kim C S 2008 *J Korean Phys. Soc.* **53** 750
- [32] Zacharia R, Ulbricht H, Hertel T 2004 *Phys. Rev. B* **69** 155406
- [33] Pavone P, Karch K, Schiütt O, Strauch D, Windl W, Giannozzi P, Baroni S 1993 *Phys. Rev. B* **48** 3156
- [34] Mouhat F, Coudert F X 2014 *Phys. Rev. B* **90** 224104
- [35] Cadelano E, Palla P L, Giordano S, Colombo L 2010 *Phys. Rev. B* **82** 235414
- [36] Huang Z, Lu N, Wang Z F, Xu S H, Guan J, Hu Y W 2022 *Nano Lett.* **22** 7734
- [37] Bardeen J, Shockley W 1950 *Phys. Rev.* **80** 72
- [38] Xia F N, Wang H, Xiao D, Dubey M, Ramasubramanian A 2014 *Nat. Photonics* **8** 899

# Electronic structure and optical property regulation of two-dimensional monolayer FeGa<sub>2</sub>S<sub>4</sub>\*

SONG Rui<sup>1)†</sup> CHENG Run<sup>1)</sup> FENG Kai<sup>1)</sup> YAO Jia<sup>1)</sup>  
WANG Bili<sup>1)</sup> LU Mengjie<sup>1)</sup> AN Ming<sup>2)‡</sup>

1) (*Department of General Education, Army Engineering University of People's Liberation Army, Nanjing 211101, China*)

2) (*School of Physics, Southeast University, Nanjing 211189, China*)

(Received 31 August 2025; revised manuscript received 9 October 2025)

## Abstract

This study aims to explore two-dimensional semiconductor materials with superior carrier transport properties to meet the growing demands of high-speed electronics and optoelectronic devices, focusing on evaluating the feasibility of monolayer FeGa<sub>2</sub>S<sub>4</sub> as a candidate material through systematic theoretical investigations. First-principles calculations are used to analyze the exfoliation energy of FeGa<sub>2</sub>S<sub>4</sub> bulk crystal, as well as the structural stability, mechanical properties, and strain-dependent optoelectronic behavior of its monolayer counterpart. Strain engineering strategies, including uniaxial and biaxial strain, are used to assess carrier mobility modulation and spectral response. Our calculation results indicate that monolayer FeGa<sub>2</sub>S<sub>4</sub> is an indirect bandgap semiconductor ( $E_g = 1.65$  eV) with low stiffness (Young's modulus up to 151.6 GPa) and high flexibility (Poisson's ratio less than 0.25), demonstrating exceptional thermodynamic stability. Under +5% uniaxial tensile strain, its electron mobilities along  $x$  and  $y$  directions dramatically increases to 5402.4 cm<sup>2</sup>·V<sup>-1</sup>·s<sup>-1</sup> and 4164.0 cm<sup>2</sup>·V<sup>-1</sup>·s<sup>-1</sup>, fivefold higher than its hole mobility. Biaxial strain outperforms uniaxial strain in bandgap modulation and induces a systematic redshift in optical spectra, significantly enhancing visible-light harvesting efficiency. This work reveals that monolayer FeGa<sub>2</sub>S<sub>4</sub> is a promising high-mobility photoactive material for next-generation solar cells and optoelectronics. The strain-mediated control of electronic and optical properties provides a theoretical framework for optimizing 2D semiconductors and critical guidance for experimental synthesis and device engineering. These findings highlight the potential of materials in advancing energy conversion technology and photonic applications.

**Keywords:** first-principles, electronic structure, optical properties, strain engineering

DOI: [10.7498/aps.75.20251180](https://doi.org/10.7498/aps.75.20251180)

CSTR: [32037.14.aps.75.20251180](https://cstr.cn/32037.14.aps.75.20251180)

\* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 12274070).

† Corresponding author. E-mail: [snoopysr@163.com](mailto:snoopysr@163.com)

‡ Corresponding author. E-mail: [amorn@seu.edu.cn](mailto:amorn@seu.edu.cn)



## 二维单层 $\text{FeGa}_2\text{S}_4$ 电子结构及光学性质调控研究

宋蕊 程润 冯凯 姚佳 王必利 鲁梦洁 安明

### Electronic structure and optical property regulation of two-dimensional monolayer $\text{FeGa}_2\text{S}_4$

SONG Rui CHENG Run FENG Kai YAO Jia WANG Bili LU Mengjie AN Ming

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 75, 010703 (2026) DOI: 10.7498/aps.75.20251180

CSTR: 32037.14.aps.75.20251180

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.75.20251180>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

### 您可能感兴趣的其他文章

#### Articles you may be interested in

应力调控对单层 $\text{TiOCl}_2$ 电子结构及光学性质的影响

Effect of stress regulation on electronic structure and optical properties of  $\text{TiOCl}_2$  monolayer

物理学报. 2022, 71(7): 077101 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20212023>

单层缺陷碲烯电子结构与光学性质的第一性原理研究

First-principles study of electronic structure and optical properties of monolayer defective tellurene

物理学报. 2021, 70(16): 166301 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210271>

Ti, V, Co, Ni掺杂二维 $\text{CrSi}_2$ 材料的电学、磁学及光学性质的第一性原理研究

First-principles study of electronic structure, magnetic and optical properties of Ti, V, Co and Ni doped two-dimensional  $\text{CrSi}_2$  materials

物理学报. 2021, 70(22): 227301 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20211023>

电场对 $\text{GaN/g-C}_3\text{N}_4$ 异质结电子结构和光学性质影响的第一性原理研究

First-principles study of influence of electric field on electronic structure and optical properties of  $\text{GaN/g-C}_3\text{N}_4$  heterojunction

物理学报. 2022, 71(9): 097301 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20212261>

单层 $\text{CrI}_3$ 电荷输运性质和光学性质应变调控的第一性原理研究

First-principles study of strain-tunable charge carrier transport properties and optical properties of  $\text{CrI}_3$  monolayer

物理学报. 2022, 71(20): 207102 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20221019>

应力调控 $\text{BlueP/XTe}_2$  ( $X = \text{Mo}, \text{W}$ )范德瓦耳斯异质结电子结构及光学性质理论研究

Tunable electronic structure and optical properties of  $\text{BlueP/XTe}_2$  ( $X = \text{Mo}, \text{W}$ ) van der Waals heterostructures by strain

物理学报. 2021, 70(6): 067101 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20201728>