双轴应变对单层 Janus 过渡金属硫族化合物 热输运和热电性能的影响^{*}

张敏1) 唐桂华1)† 史晓磊2) 李一斐1) 赵欣1) 黄滇1) 陈志刚2)

(西安交通大学能源与动力工程学院,热流科学与工程教育部重点实验室,西安 710049)
(昆士兰科技大学化学物理系,澳大利亚研究理事会零排放发电碳中和研究中心,布里斯班 4000)

(2025年3月7日收到; 2025年4月7日收到修改稿)

Janus 过渡金属硫族化物单分子层具有独特的晶体结构和物理化学性质,在微纳尺度电子器件及热电转换领域具有巨大的应用潜力. 深入探索其热输运和热电性能对于实际应用至关重要.本文采用基于密度泛函理论的第一性原理计算,研究了拉伸应变对 Janus 过渡金属硫族化合物单分子层 (PtSSe, PtTeSe, MoSSe, MoTeSe, WSSe 和 WTeSe) 声子热输运性能和热电性能的影响.对于热输运性能,在 0—10% 的拉伸应变范围内, PtSSe, MoSSe 和 WSSe 单分子层的晶格热导率单调减小; PtTeSe, MoTeSe 和 WTeSe 单分子层的晶格热导率的晶格热导率在拉伸应变下变化的主导因素. 对于热电性能,本研究发现 PtTeSe 单分子层表现出极佳的热电性能,室温下其热电优值为 0.91,在 10% 的拉伸应变下,热电优值达 1.31.700 K下,p型 PtTeSe 单分子层的热电优值高达 3.96,n型 PtTeSe 单分子层的热电优值高达 2.38.本研究表明 PtTeSe 单分子层是具有潜力的热电材料,应变工程是调控 Janus 过渡金属硫族化物单分子层热输运和热电性能的有效策略.

关键词: Janus 过渡金属硫族化合物, 热电性能, 应变, 第一性原理
PACS: 72.15.Jf, 73.50.Lw, 63.22.-m, 63.20.dk
CSTR: 32037.14.aps.74.20250295

1 引 言

近年来, 过渡金属硫族化合物 (TMDCs) 单分子层因其独特的晶体结构和物理化学性质在纳米科技和能源应用领域得到广泛研究和探索^[1-4]. 随着材料科学的进步, 特别是在原子层沉积和化学气相沉积等合成技术的帮助下, 多种 Janus TMDCs单分子层被发现并成功合成^[5-10]. 这些 Janus TMDCs单分子层通过改变上下层硫族元素的种类来打破材料的结构对称性, 在热电、光电、传感器以及量子设备等领域具有很大的应用潜力^[11-15].

已有的工作对 Janus TMDCs 在电子结构^[14,16]、 声子输运^[16-20]和热电性能^[18,21-23]等方面都进行 了广泛的研究. Patel 等^[23]报道 WSTe 单分子层 在 1200 K下具有 2.56 的热电优值,提出 Janus TMDCs 单分子层是有潜力的热电材料. Han 等^[24] 发现 WSSe 单分子层纳米带在近室温下的热电优 值高达 4.13, 远高于 WS₂和 WSe₂单分子层纳米 带的热电性能. 应变在材料实际应用中普遍存在, 并且对热输运性能和热电性能具有显著影响^[4,25]. 由于独特的晶体结构, 二维 TMDCs 通常展现出较 高的拉伸应变极限. 在模拟研究方面, Zhang 等^[15] 利用分子动力学模拟研究了 MoSSe 单分子层的力

^{*} 国家自然科学基金 (批准号: 52130604) 资助的课题.

[†] 通信作者. E-mail: ghtang@mail.xjtu.edu.cn

^{© 2025} 中国物理学会 Chinese Physical Society

学性能,发现在1-800 K的温度范围内, MoSSe 单分子层沿扶手椅型和锯齿形方向的极限应变均 高于10%. 在实验研究方面, 采用具有圆形微孔的 SiO2 基底结合原子力显微镜技术, Zhang 等^[26] 发 现二维 WSe2 能承受至少 7.3% 的拉伸应变而不破 裂; Bertolazzi 等^[27] 报道 MoS₂ 单分子层的拉伸极 限应变高达 11%. 关于热输运性能, Pan 等^[28] 基于 第一性原理的晶格动力学计算研究了拉伸应变对 PtSTe 单分子层晶格热导率的影响,发现晶格热导 率在 8% 的拉伸应变下由 25.71 W·m⁻¹·K⁻¹ 降低到 3.21 W·m⁻¹·K⁻¹. 关于电输运性能, Cui 等^[13] 发现双 轴应变可以有效调控 PtSSe, PtSTe 和 PtTeSe 的能带结构,从而影响其带隙;Ahmad 等^[29,30]基 于第一性原理计算发现应变对 ZrSSe, HfSSe, PtSSe 及其异质双分子层能带结构和带隙具有显著影响. 在热电性能方面, Wang 等^[31] 采用第一性原理研 究了应变对 MoSSe-WSeTe 异质结的影响,发现适 量的应变可以显著提高异质结的热电性能; Rajneesh 等^[32] 发现拉伸应变可以降低 WSSe 单分子层的 晶格热导率,提高其热电性能. 尽管 Janus TMDCs 单分子层的性能已有一定程度的研究,但应变对 Janus TMDCs 单分子层热输运性能、内在声子行 为和热电性能的影响尚未完全明晰,亟需揭示应变 作用下的 Janus TMDCs 单分子层的微纳尺度热 电输运机理.

本文以 Janus TMDCs单分子层为研究对象, 其晶体结构如图 1 所示,包含具有 1 T 相晶体结构 的 PtSSe 和 PtTeSe,以及具有 1 H 相晶体结构的 MoSSe, MoTeSe, WSSe 和 WTeSe.采用基于第一 性原理的晶格动力学计算,研究了拉伸应变对声子 输运行为的影响;采用形变势理论,研究了拉伸应 变对热电性能的影响,为应变调控 Janus TMDCs 单分子层的热输运和热电性能提供了理论依据. 2 计算方法

材料的热电转换效率由热电优值 (ZT) 表征:

$$ZT = \frac{S^2 \sigma T}{\kappa_{\rm l} + \kappa_{\rm e}} \,, \tag{1}$$

其中 S为塞贝克系数, σ 为电导率, T表示温度, κ_{l} 表示晶格热导率, κ_{e} 为电子热导率.

声子输运性质和晶格热导率由基于第一性原 理的晶格动力学和 Boltzmann 方程迭代求解获得. 密度泛函理论 (DFT) 和密度泛函微扰理论 (DFPT) 计算由开源软件 Quantum Espresso^[33] 完成. 采用 模守恒赝势,交换关联泛函采用广义梯度近似下 的 Perdew-Burke-Ernzerhof (PBE) 方法^[34]. 在 z方 向设置 2 nm 的真空层以消除周期性导致的模 拟误差. 动力学矩阵由 DFPT 计算获得, 采用 14× 14×1 的电子波矢网格及 6×6×1 的声子波矢网格, 平面波截断能为160 Rv, 电荷密度截断能设置为 640 Ry, 自洽计算收敛阈为 10-18 Ry. 非简谐力常 数由有限差分方法获得,构建超胞大小为4×4×1, 考虑到第8近邻原子,电子波矢网格为1×1×1,自 治计算收敛阈为 10-12 Ry. 晶格热导率通过 Sheng-BTE 软件^[35] 迭代求解 Boltzmann 输运方程获得, 声子波矢网格为120×120×1. 通过计算 Born 有效 电荷和介电张量,对动力学矩阵进行长程修正.所 有计算参数均进行了收敛性测试. α 方向的晶格热 导率 ($\kappa_{l\alpha}$) 可以表示为

$$\kappa_{l\alpha} = \sum_{\lambda} C_{\mathbf{V},\lambda} v_{\mathbf{g}\alpha,\lambda} v_{\mathbf{g}\alpha,\lambda} \tau_{\alpha,\lambda}, \qquad (2)$$

式中, C_V 为声子体积比热容, v_g 为声子群速度, τ 为声子寿命, λ 表示不同的声子模式.

电输运性能在 BoltzTraP2 软件^[36] 中采用基 于弛豫时间近似的 Boltzmann 输运方程计算. 电子 弛豫时间 (τ_e) 基于有效质量近似的形变势理论获得



图 1 晶体结构的俯视图和侧视图 (a) PtXY单分子层; (b) MoXY和WXY单分子层 (X = S/Te, Y = Se) Fig. 1. Top view and side view of crystal structures: (a) PtXY monolayers; (b) MoXY and WXY monolayers (X = S/Te, Y = Se).

$$\tau_{\rm e} = \mu m^* / e, \tag{3}$$

其中 μ 为载流子迁移率; m*为输运方向的有效质量. 载流子迁移率计算公式如下:

$$\mu = \frac{e\hbar^3 C}{k_{\rm B}Tm^*m_{\rm d}E_1^2} , \qquad (4)$$

式中, $m_{\rm d}$ 为平均有效质量, C 为弹性常数, E_1 为形 变势常数, 详细计算方法见 Zhao 等^[4] 报道的研究. σ 和 S 的具体计算参见 Li 等^[37] 报道的研究. 电子 热导率根据 Wiedemann-Franz 定律^[38] 计算:

$$\kappa_{\rm e} = L\sigma T , \qquad (5)$$

式中, L 为洛伦兹常数.

3 结果与讨论

3.1 热输运性能

图 2 为室温下 Janus TMDCs 单分子层在未施加应变、施加 5% 拉伸应变以及施加 10% 拉伸 应变下的晶格热导率. 由图 2 可以看出, *M*SSe (*M* = Mo, W 和 Pt) 单分子层的晶格热导率普遍高于 *M*TeSe 单分子层. 在未施加应变时, PtSSe 的晶格 热导率最高, 为 104 W·m⁻¹·K⁻¹, 与 Liu 等^[17] 报道 的计算结果接近; WTeSe 的晶格热导率最低, 为 18.71 W·m⁻¹·K⁻¹. 在 0—10% 的应变范围内, MSSe 单分子层的热导率单调递减,在 10% 拉伸应变下, PtSSe, MoSSe 和 WSSe 热导率分别下降了 67%, 75% 和 63%.在 0—10% 拉伸应变作用下, MTeSe 单分子层的热导率先增大后减小,在 10% 拉伸应变 作用下, MoTeSe 的晶格热导率仅为 10.39 W·m⁻¹·K⁻¹. 应变对 Janus TMDCs 单分子层的热导率影响显 著,研究应变对其热导率影响的内部机理可以进一 步提高 Janus TMDCs 单分子层的应用潜力.



图 2 不同应变下 Janus TMDCs 单分子层的室温热导率 Fig. 2. Thermal conductivity of Janus TMDCs monolayers under different strains at room temperature.

Janus TMDCs 单分子层在不同应变作用下的 声子色散关系如图 3 所示. 声子色散不存在虚频, 说明体系结构稳定. 每个单分子层的原胞包含三个



图 3 不同应变作用下 Janus TMDCs单分子层的声子色散关系 (a) PtSSe; (b) MoSSe; (c) WSSe; (d) PtTeSe; (e) MoTeSe; (f) WTeSe

Fig. 3. Phonon dispersions of Janus TMDCs monolayers under different strains: (a) PtSSe; (b) MoSSe; (c) WSSe; (d) PtTeSe; (e) MoTeSe; (f) WTeSe.

原子,因而其色散关系有九条分支,频率较低的三 条分支为声学分支,频率较高的六条分支为光学分 支.声子色散曲线的斜率表示声子群速度,声学分 支比较陡峭,具有较大的声子群速度,光学分支比 较平坦,声子群速度较小.在拉伸应变的作用下, 所有单分子层的光学分支明显软化,声学分支变化 不显著.本文研究的6种单分子层的晶格热导率均 主要由声学分支贡献(声子分支贡献超过95%), 因此需要进一步研究声子模层面的输运性质,以明 晰应变对晶格热导率影响的内部机理.

根据声子动理论, 晶格热导率与声子体积比热 容、声子群速度和声子寿命有关. 图 4 展示了不同 应变作用下的体积比热容. 在拉伸应变作用下, 所 有单分子层的体积比热容均单调减小. 不同应变作 用下的声子群速度如图 5 所示. 在拉伸应变作用 下, 声子群速度呈现降低趋势. 图 6 为不同应变作 用下的声子寿命. 随着拉伸应变的作用, *M*SSe 的 声子寿命单调降低; *M*TeSe 的声子寿命在 5% 拉 伸应变的作用下增大, 当拉伸应变增加到 10% 后, 声子寿命又轻微降低. 声子寿命的变化趋势与晶格 热导率的变化趋势类似, 因此声子寿命可能是影响 晶格热导率的主导因素. 为了验证这一猜想, 后续 对比热容、声子群速度和声子寿命对晶格热导率的 影响进行了定量评估.此外,声子群速度和非简谐 散射率是影响晶格热导率的主要因素^[39,40].由声子 模层面的分析,可以明晰 *M*SSe 单分子层的晶格热 导率普遍高于 *M*TeSe 单分子层的内在机理.由声 子色散关系和声子群速度可知,Te 原子替换 S 原 子后,体系的声子群速度明显降低,这是由于重原 子降低了声子色散曲线的斜率及原子的振动频率.



图 4 不同应变作用下 Janus TMDCs 单分子层的体积比 热容



Fig. 4. Heat capacity of Janus TMDCs monolayers under different strains.

图 5 不同应变作用下 Janus TMDCs 单分子层的声子群速度 (a) PtSSe; (b) MoSSe; (c) WSSe; (d) PtTeSe; (e) MoTeSe; (f) WTeSe Fig. 5. Phonon group velocity of Janus TMDCs monolayers under different strains: (a) PtSSe; (b) MoSSe; (c) WSSe; (d) PtTeSe; (e) MoTeSe; (f) WTeSe.



物理学报 Acta Phys. Sin. Vol. 74, No. 13 (2025) 137202



此外,由声子寿命可知,Te原子替换S原子后,体系的非简谐散射率,尤其是声学声子的非简谐散射率 率显著增强.与 MSSe单分子层相比,MTeSe单分子层具有更低的声子群速度和更高的非简谐散射率,因此 MTeSe具有更低的晶格热导率.

为了定量评估体积比热容、声子群速度和声子 寿命的变化对晶格热导率的影响,本文在(2)式中 采用不同应变作用下的值替换未施加应变状态下 的值进行交叉计算[4]. 例如, 研究体积比热容的变 化对晶格热导率的影响时,热导率的计算采用不同 应变作用下的体积比热容和未施加应变状态下的 声子群速度和声子寿命.图7展示了交叉计算的热 导率结果. 黄色曲线表示采用不同应变作用下的声 子寿命交叉计算的热导率,黑色曲线表示实际热导 率.采用不同应变下的声子寿命交叉计算获得的热 导率与实际热导率的变化趋势一致且数值大小接 近.因此,声子寿命是 Janus TMDCs 单分子层晶 格热导率随拉伸应变变化的主导因素. 热导率在应 变作用下的非单调变化在多种材料体系中已被广 泛报道^[41-45],为了进一步探究应变作用下 MTeSe 单分子层的声子寿命非单调变化的内在机理,本工 作对应变作用下三声子散射相空间(散射概率)和 格林爱森参数(散射强度)的变化进行了分析,发 现 MSSe单分子层在拉伸应变作用下散射强度和 散射概率均单调增加,因此其热导率单调降低; *M*TeSe单分子层在拉伸应变作用下散射概率单调 增加,但散射强度先减小后增加,所以*M*TeSe单 分子层热导率的非单调变化来源于声子散射强度 和散射概率的竞争机制.

3.2 电输运性能

不同应变作用下 Janus TMDCs 单分子层的 能带结构如图 8 所示. 未施加应变时, 6 种单分子 层均为半导体,随着拉伸应变的增加,带隙逐渐减 小.在 10% 拉伸应变下, PtSSe 和 PtTeSe 单分子 层仍为半导体,其带隙分别为 0.85 eV 和 0.56 eV; 而 MoSSe, WSSe, MoTeSe 和 WTeSe 单分子层的 带隙闭合,表现为金属性.优异的热电性能需适宜 的带隙,因此后续电输运性能和热电性能的研究主 要针对半导体型 Janus 单分子层.

不同应变作用下 Janus TMDCs 单分子层的 室温塞贝克系数和电导率分别如图 9 和图 10 所



图 7 采用不同应变作用下的比热容、声子群速度和声子寿命交叉计算的 Janus TMDCs 单分子层热导率 (a) PtSSe, MoSSe 和 WSSe; (b) PtTeSe, MoTeSe 和 WTeSe

Fig. 7. Cross-calculated thermal conductivity with heat capacity, phonon group velocity, and phonon lifetime replaced by values under different strains for Janus TMDCs monolayers: (a) PtSSe, MoSSe, and WSSe; (b) PtTeSe, MoTeSe, and WTeSe.



图 8 不同应变作用下 Janus TMDCs 单分子层的能带结构 (a) PtSSe; (b) MoSSe; (c) WSSe; (d) PtTeSe; (e) MoTeSe; (f) WTeSe Fig. 8. Band structures of Janus TMDCs monolayers under different strains: (a) PtSSe; (b) MoSSe; (c) WSSe; (d) PtTeSe; (e) MoTeSe; (f) WTeSe.

示.随着载流子浓度增加,电导率增大,塞贝克系数 减小.大部分 Janus 单分子层的塞贝克系数随拉伸应 变而减小,这源于价带顶 (VBM)和导带底 (CBM) 的移动和变形. VBM 对应 p 型热电材料性能, CBM 对应 n 型热电材料性能. 在拉伸应变作用下, VBM 和 CBM 变得更加陡峭, 导致载流子有效质量减小, 塞贝克系数降低. 在低载流子浓度下, p 型 PtTeSe 的塞贝克系数受拉伸应变影响较小, 应变使其 VBM

物理学报 Acta Phys. Sin. Vol. 74, No. 13 (2025) 137202



图 9 300 K下塞贝克系数随载流子浓度的变化 (a) PtSSe; (b) MoSSe; (c) WSSe; (d) PtTeSe; (e) MoTeSe; (f) WTeSe Fig. 9. Seebeck coefficient as a function of carrier concentration at 300 K: (a) PtSSe; (b) MoSSe; (c) WSSe; (d) PtTeSe; (e) MoTeSe; (f) WTeSe.



图 10 室温下电导率随载流子浓度的变化 (a) PtSSe; (b) MoSSe; (c) WSSe; (d) PtTeSe; (e) MoTeSe; (f) WTeSe Fig. 10. Electrical conductivity as a function of carrier concentration at 300 K: (a) PtSSe; (b) MoSSe; (c) WSSe; (d) PtTeSe; (e) MoTeSe; (f) WTeSe.

从 Γ 点转移至 Γ-M 和 Γ-K, 提升能带兼并度 (增强 塞贝克系数)的同时 VBM 陡峭化 (降低载流子有 效质量, 削弱塞贝克系数), 两者共同作用使塞贝克 系数基本保持不变. p型 WTeSe 的塞贝克系数随 拉伸应变增大, 这源于 5% 应变下 VBM 从 K 点 至 Γ 点的转移使得载流子有效质量增加. 电导率 也与载流子有效质量相关, 有效质量越小, 迁移率 越高, 电导率越大. 在 10% 应变下 PtTeSe 电导率 略增, 这源于陡峭的 VBM 降低有效质量, 提升载 流子迁移率.

3.3 热电性能

综合热输运性能和电输运性能的计算结果,应 变作用下 Janus TMDCs单分子层的室温热电性 能如图 11 所示.结果显示,这6种单分子层的p 型热电性能普遍优于n型.MoSSe,WSSe,MoTeSe 和WTeSe的ZT值较低,而PtSSe和PtTeSe的 ZT值较高.在最佳载流子浓度下,PtSSe和PtTeSe 的室温ZT值分别为0.39和0.91.PtSSe和PtTeSe 的热电性能在5%拉伸应变下降低,在10%拉伸 应变下升高.在拉伸应变影响下,PtSSe和PtTeSe 的塞贝克系数轻微降低,且在5%与10%应变下 接近; 电导率在 5% 拉伸下降低, 而在 10% 拉伸下 由于 VBM 的变化,导致载流子迁移率显著提升, 电导率略有增加.同时, PtSSe和 PtTeSe 的晶格 热导率在 5% 拉伸应变下增加, 在 10% 拉伸应变 下减小.因此,电子能带结构和声子输运性能的协 同作用导致 PtSSe 和 PtTeSe 在拉伸应变下 ZT 值 的非单调变化. 在 10% 拉伸应变下, PtTeSe 单分 子层室温 ZT 值高达 1.31. 在 TMDCs 热电材料中 极具竞争力.不同温度下的热电性能如图 12 所示. 除 10% 拉伸应变下的 p 型 PtSeTe 单分子层外, 所 有体系的热电优值均随温度升高而单调增加,高温 下应变对 ZT 值的影响和室温下的规律相同. 10% 拉伸应变下的 p型 PtTeSe 比较特殊,在 300 K 和 500 K 下, 10% 拉伸应变可以提高 PtTeSe 的热 电性能,并且 ZT 随温度升高而增大,700 K 时, p型PtTeSe的ZT值在10%拉伸应变的作用下降 低,且700 K的ZT值低于500 K的ZT值.对于10% 拉伸应变的 p 型 PtTeSe, 当温度由 500 K 升高到 700 K 时, 电导率几乎不变的同时塞贝克系数显著降 低,这可能与高温下 10% 拉伸应变作用下 PtTeSe



图 11 300 K下热电优值随载流子浓度的变化 (a) PtSSe; (b) MoSSe; (c) WSSe; (d) PtTeSe; (e) MoTeSe; (f) WTeSe Fig. 11. ZT value as a function of carrier concentration at 300 K: (a) PtSSe; (b) MoSSe; (c) WSSe; (d) PtTeSe; (e) MoTeSe; (f) WTeSe.



图 12 热电优值随温度的变化 (a) p 型热电; (b) n 型热电 Fig. 12. ZT value as a function of temperature: (a) p-type; (b) n-type.

单分子层的能带结构变化有关. 700 K下, 未施加 应变 p型 PtTeSe 的 ZT 值高达 3.96, n型 PtTeSe 的 ZT 值高达 2.38.

最后,对本工作中使用的模型和近似方法的 有效性进行讨论. 本文采用形变势理论对 Janus TMDCs 单分子层的电输运性能进行预测, 需要注 意的是形变势理论仅考虑了长声学波声子与载流 子之间的相互作用,没有考虑其他声子与载流子之 间的散射,这不可避免地导致载流子弛豫时间和 ZT 值的高估. 但是通过对 Janus TMDCs 单分子层 的性质进行分析,形变势理论的计算结果仍然具有 重要的参考价值.首先,形变势理论在二维热电材 料的研究中广泛应用并且具有可接受的准确性[46,47]. 尤其是在中等载流子浓度和中低温度范围内, 声学 声子散射通常是电声输运的主要限制因素^[48].其 次,已有研究表明在 Janus TMDCs 单分子层中, 声学声子散射是主要的电子散射机制之一,符合形 变势理论的适用范围. Liu 等^[17] 通过电声耦合计算 发现在 PtSSe 单分子层中, 由于结构对称性的打 破,三种声学声子模式都表现出较高的电声散射 率.因此,在Janus TMDCs单分子层中采用形变势 理论近似电子-声子散射不会颠覆性地偏离材料的 实际输运行为. 第三, 本工作侧重于 Janus TMDCs 在应变工程下热电性能的比较,而非绝对值的精确 预测. 本文中所有的体系均在统一理论框架下进行 计算,虽然形变势理论可能整体上高估 ZT 的绝对 值,但对 ZT 的变化趋势及不同材料之间 ZT 的相 对高低并无影响.因此,尽管形变势方法相对于电 声耦合计算存在近似,但是在本工作中,形变势方 法仍然具有有效性,其结论仍然具有参考价值.

4 结 论

本文基于第一性原理研究了应变对 6 种 Janus TMDCs 单分子层声子热输运性能和热电性能的 影响. 声子热输运性能方面, PtSSe 具有最高的晶格 热导率,为104 W·m⁻¹·K⁻¹. PtSSe, MoSSe 和 WSSe 单分子层的热导率普遍高于 PtTeSe, MoTeSe 和 WTeSe. 在 0-10% 的应变范围内, PtSSe, MoSSe 和 WSSe 单分子层的热导率单调下降, 而 PtTeSe, MoTeSe 和 WTeSe 单分子层的热导率先升高后降 低. 声子模层面的分析与热导率的交叉计算表明声 子寿命是 Janus TMDCs 单分子层晶格热导率随 拉伸应变变化的主导因素. 热电性能方面, 室温下, 未施加应变时 PtTeSe 的热电优值为 0.91, 而在 10% 拉伸应变下可提升至 1.31; 700 K 下, p 型 PtTeSe 单分子层的热电优值高达 3.96, n 型 PtTeSe 单分 子层的热电优值高达 2.38, 显示其作为热电材料的 高潜力. 应变作用下 PtTeSe 热电性能的提升来源 于晶格热导率的降低及能带结构的调整. 本研究 为 Janus TMDCs 单分子层热输运性能和热电性 能的调控提供了理论基础.

参考文献

- Zhang Y, Lü Q, Wang H, Zhao S, Xiong Q, Lü R, Zhang X 2022 Science 378 169
- [2] Wu P, Tan L, Li W, Cao L W, Zhao J B, Qu Y, Li A 2023 Acta Phys. Sin. 72 118101 (in Chinese) [武鹏, 谈论, 李炜, 曹 立伟, 赵俊博, 曲尧, 李昂 2023 物理学报 72 118101]
- [3] Manzeli S, Ovchinnikov D, Pasquier D, Yazyev O V, Kis A 2017 Nat. Rev. Mater. 2 17033
- [4] Zhao X, Tang G H, Li Y F, Zhang M 2021 Journal of

Engineering Thermophysics **42** 2455 (in Chinese) [赵欣, 唐桂 华, 李一斐, 张敏 2021 工程热物理学报 **42** 2455]

- [5] Zhang J, Jia S, Kholmanov I, Dong L, Er D, Chen W, Guo H, Jin Z, Shenoy V B, Shi L, Lou J 2017 ACS Nano 11 8192
- [6] Lu A Y, Zhu H, Xiao J, Chuu C P, Han Y, Chiu M H, Cheng C C, Yang C W, Wei K H, Yang Y, Wang Y, Sokaras D, Nordlund D, Yang P, Muller D A, Chou M Y, Zhang X, Li L J 2017 Nat. Nanotechnol. 12 744
- [7] Lin Y C, Liu C, Yu Y, Zarkadoula E, Yoon M, Puretzky A A, Liang L, Kong X, Gu Y, Strasser A, Meyer H M, III, Lorenz M, Chisholm M F, Ivanov I N, Rouleau C M, Duscher G, Xiao K, Geohegan D B 2020 ACS Nano 14 3896
- [8] Trivedi D B, Turgut G, Qin Y, Sayyad M Y, Hajra D, Howell M, Liu L, Yang S, Patoary N H, Li H, Petrić M M, Meyer M, Kremser M, Barbone M, Soavi G, Stier A V, Müller K, Yang S, Esqueda I S, Zhuang H, Finley J J, Tongay S 2020 Adv. Mater. 32 2006320
- [9] Sant R, Gay M, Marty A, Lisi S, Harrabi R, Vergnaud C, Dau M T, Weng X, Coraux J, Gauthier N, Renault O, Renaud G, Jamet M 2020 npj 2D Mater. Appl. 4 41
- [10] Qin Y, Sayyad M, Montblanch A R P, Feuer M S G, Dey D, Blei M, Sailus R, Kara D M, Shen Y, Yang S, Botana A S, Atature M, Tongay S 2022 Adv. Mater. 34 2106222
- [11] Huang S J, Zhang T, Zeng Z Y, Geng H Y, Chen X R 2024 Vacuum 224 113143
- [12] Liu J, Shen T, Wang L, Ren J C, Liu W, Li S 2024 Adv. Funct. Mater. 34 2401737
- [13] Cui H, Yang T, Peng X, Zhang G 2022 J. Mater. Res. Technol. 18 1218
- [14] Zhang D H, Zhou W Z, Li A L, Ouyang F P 2021 Acta Phys. Sin. 70 096301 (in Chinese) [张德贺, 周文哲, 李奥林, 欧阳方 平 2021 物理学报 70 096301]
- [15] Zhang Y H, Li X B, Zhan C X, Wang M Q, Pu Y X 2023 Acta Phys. Sin. 72 046201 (in Chinese) [张宇航, 李孝宝, 詹春 晓, 王美芹, 浦玉学 2023 物理学报 72 046201]
- [16] Tao W L, Yi M, E. H C, Yan C, Ji G F 2019 *Philos. Mag.* 99 1025
- [17] Liu C, Yao M, Yang J, Xi J, Ke X 2020 Mater. Today Phys. 15 100277
- [18] Bera J, Betal A, Sahu S 2021 J. Alloys Compd. 872 159704
- [19] Guo S D 2018 Phys. Chem. Chem. Phys. 20 7236
- [20] Han D, Qin H, Tu H, Chen Y, Sun H, Xue Y, Zeng X 2025 J. Electron. Mater. 54 2180
- [21] Tao W L, Lan J Q, Hu C E, Cheng Y, Zhu J, Geng H Y 2020 J. Appl. Phys. 127 035101
- [22] Guo S D, Li Y F, Guo X S 2019 Comput. Mater. Sci. 161 16
- [23] Patel A, Singh D, Sonvane Y, Thakor P B, Ahuja R 2020 ACS Appl. Mater. Interfaces 12 46212
- [24] Han D, Wang M, Yang X, Du M, Cheng L, Wang X 2022 J. Alloys Compd. 903 163850
- [25] Zhang M, Tang G H, Li Y F, Fu B, Wang X Y 2020 Int. J. Thermophys. 41 57

- [26] Zhang R, Koutsos V, Cheung R 2016 Appl. Phys. Lett. 108 042104
- [27] Bertolazzi S, Brivio J, Kis A 2011 ACS Nano 5 9703
- [28] Pan L, Carrete J, Wang Z 2022 J. Phys. Condens. Mater. 34 015303
- [29] Ahmad S, Idrees M, Khan F, Nguyen C V, Ahmad I, Amin B 2021 Chem. Phys. Lett. 776 138689
- [30] Ahmad S, Khan F, Amin B, Ahmad I 2021 J. Solid State Chem. 299 122189
- [31] Wang C, Chen Y-X, Gao G, Xu K, Shao H 2022 Appl. Surf. Sci. 593 153402
- [32] Chaurasiya R, Tyagi S, Singh N, Auluck S, Dixit A 2021 J. Alloys Compd. 855 157304
- [33] Giannozzi P, Baroni S, Bonini N, Calandra M, Car R, Cavazzoni C, Ceresoli D, Chiarotti G L, Cococcioni M, Dabo I, Dal Corso A, de Gironcoli S, Fabris S, Fratesi G, Gebauer R, Gerstmann U, Gougoussis C, Kokalj A, Lazzeri M, Martin-Samos L, Marzari N, Mauri F, Mazzarello R, Paolini S, Pasquarello A, Paulatto L, Sbraccia C, Scandolo S, Sclauzero G, Seitsonen A P, Smogunov A, Umari P, Wentzcovitch R M 2009 J. Phys. Condens. Mater. 21 395502
- [34] Hamann D R 2013 Phys. Rev. B 88 085117
- [35] Li W, Carrete J, A. Katcho N, Mingo N 2014 Comput. Phys. Commun. 185 1747
- [36] Madsen G K H, Carrete J, Verstraete M J 2018 Comput. Phys. Commun. 231 140
- [37] Li Y F, Tang G H, Zhang M, Zhao X 2022 Journal of Engineering Thermophysics 43 479 (in Chinese) [李一斐, 唐桂 华, 张敏, 赵欣 2022 工程热物理学报 43 479]
- [38] Han D, Yang X, Du M, Xin G, Zhang J, Wang X, Cheng L 2021 Nanoscale 13 7176
- [39] Tang Z, Wang X, Li J, He C, Chen M, Tang C, Ouyang T 2023 Phys. Rev. B 108 214304
- [40] Bhojani A K, Kagdada H L, Singh D K 2025 *Phys. Rev. B* 111 085419
- [41] Yuan K, Zhang X, Tang D, Hu M 2018 Phys. Rev. B 98 144303
- [42] Tang Z Y, Wang X X, Li J, He C Y, Tang C, Wang H M, Chen M X, Ouyang T 2023 Appl. Phys. Lett. **122** 172203
- [43] Tang Z, Wang X, He C, Li J, Chen M, Tang C, Ouyang T 2024 Phys. Rev. B 110 134320
- [44] Lindsay L, Broido D A, Carrete J, Mingo N, Reinecke T L 2015 Phys. Rev. B 91 121202
- [45] Zhang M, Tang G, Li Y 2021 ACS Omega 6 3980
- [46] Wang Y, Chen N D, Yang C, Zeng Z Y, Hu C E, Chen X R 2021 Acta Phys. Sin. 70 116301 (in Chinese) [王艳, 陈南迪, 杨 陈, 曾召益, 胡翠娥, 陈向荣 2021 物理学报 70 116301]
- [47] Li Y F, Tang G H, Fu B, Zhang M, Zhao X 2020 ACS Appl. Energy Mater. 3 9234
- [48] Wang N, Li M, Xiao H, Gao Z, Liu Z, Zu X, Li S, Qiao L 2021 npj Comput. Mater. 7 18

Influence of biaxial strain effects on thermal transport and thermoelectric performance of Janus transition metal dichalcogenide monolayers^{*}

ZHANG Min¹⁾ TANG Guihua^{1)†} SHI Xiaolei²⁾ LI Yifei¹⁾

ZHAO Xin¹⁾ HUANG Dian¹⁾ CHEN Zhigang²⁾

1) (MOE Key Laboratory of Thermo-Fluid Science and Engineering, School of Energy and Power Engineering, Xi'an Jiaotong University, Xi'an 710049, China)

2) (School of Chemistry and Physics, ARC Research Hub in Zero-emission Power Generation for Carbon Neutrality, and Centre for Materials Science, Queensland University of Technology, Brisbane 4000, Australia)

(Received 7 March 2025; revised manuscript received 7 April 2025)

Abstract

Janus transition metal dichalcogenide monolayers, characterized by antisymmetric crystal structures and unique physical properties, show great potential applications in micro/nano-electronic devices and thermoelectrics. In this work, the strain-tuned phonon thermal transport and thermoelectric performance of six Janus transition metal dichalcogenide monolayers are systematically investigated by first-principles calculations. This study focuses on monolayers of PtSSe and PtTeSe with a 1T-phase crystal structure, as well as monolayers of MoSSe, MoTeSe, WSSe, and WTeSe with a 1H-phase crystal structure. For all these monolayers, firstprinciples calculations are performed using the open-source software Quantum ESPRESSO. The lattice thermal conductivity is obtained based on lattice dynamics and iterative solutions of the Boltzmann transport equation. The thermal conductivities of PtSSe, MoSSe, and WSSe monolayers are generally higher than those of PtTeSe, MoTeSe, and WTeSe. Acoustic phonons are responsible for the majority of thermal transport, contributing over 95%. Under unstrained conditions, monolayer PtSSe demonstrates a superior thermal conductivity of $104 \text{ W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$, making it advantageous for thermal management applications in electronic devices. Under tensile strain, the thermal conductivities of PtSSe, MoSSe, and WSSe monolayers exhibit a monotonic decrease trend; however, for PtTeSe, MoTeSe, and WTeSe monolayers, their thermal conductivities initially show an increase trend, followed by a subsequent decrease trend. Under a 10% tensile strain, the thermal conductivities of these six Janus monolayers all demonstrate a reduction exceeding 60%. Furthermore, this work provides a comprehensive analysis of the influences of strain on specific heat capacity, phonon group velocity, and phonon lifetime. The phonon mode-level analysis and cross-calculated thermal conductivity (with specific heat capacity, phonon group velocity, and phonon lifetime replaced by values under different strain conditions) reveal that phonon lifetime is the dominant factor governing thermal conductivity under strain. For electrical transport properties, calculations are performed using the Boltzmann transport equation based on deformation potential theory. At room temperature, the thermoelectric figure of merit (ZT) for PtTeSe is 0.91 without strain, which can be improved to 1.31 under 10% tensile strain. The ZT value reaches as high as 3.96 for p-type PtTeSe and 2.38 for n-type PtTeSe at 700 K, indicating that the PtTeSe monolayer is a highly promising thermoelectric material. Strain-induced enhancement in the thermoelectric performance of PtTeSe is facilitated by reducing lattice thermal conductivity and reconfigurating the band structure. This work demonstrates that strain engineering is an effective strategy for adjusting the thermal transport and thermoelectric properties of Janus transition metal dichalcogenide monolayers.

Keywords: Janus transition metal dichalcogenides, thermoelectric, strain, first-principles

PACS: 72.15.Jf, 73.50.Lw, 63.22.-m, 63.20.dk

DOI: 10.7498/aps.74.20250295

CSTR: 32037.14.aps.74.20250295

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 52130604).

[†] Corresponding author. E-mail: ghtang@mail.xjtu.edu.cn

物理学报Acta Physica Sinica





Institute of Physics, CAS

双轴应变对单层Janus过渡金属硫族化合物热输运和热电性能的影响 张敏 唐桂华 史晓磊 李一斐 赵欣 黄滇 陈志刚 Influence of biaxial strain effects on thermal transport and thermoelectric performance of Janus transition metal dichalcogenide monolayers ZHANG Min TANG Guihua SHI Xiaolei LI Yifei ZHAO Xin HUANG Dian CHEN Zhigang 引用信息 Citation: Acta Physica Sinica, 74, 137202 (2025) DOI: 10.7498/aps.74.20250295 CSTR: 32037.14.aps.74.20250295 在线阅读 View online: https://doi.org/10.7498/aps.74.20250295 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

新型双过渡金属MXene热电输运性能第一性原理计算

First principle calculation of thermoelectric transport performances of new dual transition metal MXene 物理学报. 2024, 73(14): 146301 https://doi.org/10.7498/aps.73.20240432

应变诱导单层NbSi2Na材料磁转变的第一性原理研究

First principles study of magnetic transition of strain induced monolayer ${\rm NbSi_2N_4}$

物理学报. 2022, 71(20): 206303 https://doi.org/10.7498/aps.71.20220939

单层Crl3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 CrI₃ monolayer

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

应变对(Ga, Mo)Sb磁学和光学性质影响的理论研究

First-principles study of strain effect on magnetic and optical properties in (Ga, Mo)Sb 物理学报. 2022, 71(9): 096103 https://doi.org/10.7498/aps.71.20212316

单层Cu,X的热电性质

Thermoelectric properties of monolayer $\mathrm{Cu}_2 X$

物理学报. 2023, 72(8): 086301 https://doi.org/10.7498/aps.72.20222015

GaS/Mg(OH),异质结电子结构的第一性原理研究

First–principles study on electronic structure of $GaS/Mg(OH)_2$ heterostructure

物理学报. 2024, 73(13): 137103 https://doi.org/10.7498/aps.73.20231979