arXiv:2303.04060v1 [cond-mat.mtrl-sci] 7 Mar 2023

掺杂–诱导的电子–声子耦合对二维半金属三磷化物热输运的显著调控*

Yongchao Rao[a]、C. Y. Zhao[a]、Lei Shen[b]和Shenghong Ju[a], *[a] China-UK Low Carbon College, Shanghai Jiao Tong University, Shanghai 201306, China[b] Department of Mechanical Engineering, National University of Singapore, 117575, Singapore（日期：2023年3月8日）

近期研究表明，新型二维三磷化物半导体具有较高的载流子迁移率和良好的热电性能，但此前尚未阐明二维半金属三磷化物中的载流子输运行为。本文采用第一性原理计算和玻尔兹曼输运理论，揭示电子–声子耦合可能很强，因而会显著抑制电子和声子输运。对于电子掺杂的 BP_3 和 CP_3，褶皱结构中弯曲声学声子模的本征热输运能力因强烈的面外声子散射而大幅减弱，使其在室温下的声子热导率分别低至 1.36 和 5.33 W/(mK)；在高掺杂水平下，电子引起的散射增强，使 BP_3 和 CP_3, 的声子热导率分别降低 71 % 和 54 %。相较之下，电子热导率随掺杂浓度增加呈非单调变化，这是电子–声子散射率与电子群速度相互竞争所致。值得注意的是，重–掺杂效应引起的强烈声子散射会大幅抑制电子输运，并使电子热导率降至与声子热导率相当的量级。本研究阐明了半金属三磷化物单层中的电子和声子输运性质，并为利用掺杂–诱导的电子–声子耦合效应调控载流子输运提供了有效途径。

一、引言

热输运是从热电模块、热屏障系统到热量管理系统等现代设备运行的基础–[1–4]。作为最引人关注的基础物理问题之一，有效调控材料中的热输运具有巨大的实际意义。电子和声子这两种热输运载流子之间的相互作用，在诸多物理现象中发挥着重要作用，例如电子配对–诱导的超导量子现象[5], 、拉曼光谱[6, 7], 和光发射光谱[8]。随着重度电子掺杂的可操作性不断提高，人们发现，掺杂–诱导的电子–声子耦合（EPC）对热输运的影响不可–忽视：在室温以上，它会影响声子热导率（$k_{\rm ph}$）。例如，Liao *et al.*[9] 通过第一性–原理研究发现，空穴–掺杂硅中的 $k_{\rm ph}$ 可出现出乎意料的显著降低；当载流子浓度达到10^{21} $\rm cm^{-3}$ 时，降幅可高达45%。这一结果随后通过改进的瞬态热光栅技术得到验证[10]。这启发了后续对3C–SiC[11],、纤锌矿ZnO[12], 和金属[13]中电子-声子耦合对声子输运影响的研究。随着纳米技术的快速发展，二维原子晶体在众多应用领域，尤其是电子输运器件中，引起了越来越多的关注。在这类系统中，二维–特性使人们能够精确调控通过栅极[14, 15]调控载流子密度。因此，掺杂–调控的电子-声子耦合对二维材料中电荷载流子动力学的影响也受到了广泛关注[16–20]。此外，由于费米能附近具有足够高的态密度，二维金属材料[21]中更容易出现强电子-声子耦合。

作为一种新型二维材料，三磷化物单层由磷和第III、IV和V族中的特定元素组成，可轻易从层状材料中剥离。实验上，典型层状材料 GeP_3 和 SnP_3 具有褶皱蜂窝状三重配位结构，最早于 20 世纪 70 年代合成[22–24]。后续理论研究报告了这类二维三磷化物具有较低的解理能，表明剥离块体材料是制备单层–和少层材料–的一种可行方法[25–28]。值得注意的是，其电子特性随层数变化，以及类似磷烯的高载流子迁移率，引起了研究人员的兴趣，促使他们进一步探索其在柔性太阳能电池[25, 26], 、离子电池[29,30], 、光电子器件[26], 和热电器件[31–33]中的潜在应用。近期研究表明，若干二维三磷化物具有较高的热电优值，这归因于其较低的 $k_{\rm ph}$[31]。如此低的 $k_{\rm ph}$ 可归因于较低的声学群速度以及强烈的声子–声子（ph–ph）散射。换言之，与石墨烯–类平面结构不同，在褶皱结构中，由于面外方向的强烈 ph–ph 散射，ZA模对面内热导率的贡献受到显著抑制。此外，对 CaP_3[34], 、GeP_3[35],和 AsP_3[36] 的研究也表明，它们有望成为

* shenghong.ju@sjtu.edu.cn

主要由于其较低的 k_{ph}，它们是应用于热电技术的有希望的替代材料。

受这些引人入胜的发现启发，一个显而易见的问题随之而来：元素周期表中短周期的元素能否存在于二维三磷化物中？如果可以，那么预期会有哪些性质和应用？对此，研究人员运用理论方法，努力拓展二维三磷化物家族。Kar $et\ al.$[37] 系统研究了二维 CP_3，的热稳定性、机械稳定性和动力学稳定性，并提出了一种通过在蓝磷烯中掺入碳原子来合成 CP_3 单层的方法。值得注意的是，CP_3 单层中的电子离域导致其呈现金属性质，这进一步促使我们研究二维半金属三磷化物中的电子-声子耦合效应。如前所述，费米能级附近存在电子态密度（el−DOS），可能会增强电子-声子（el−ph）相互作用。此外，Shojaei 和 Kang 也使用 CALYPSO[38]报道了与蓝磷烯类似的 BP_3 单层。事实上，为了从基础层面理解电子与声子之间的相互作用，研究人员已通过第一性原理计算，对半金属 W_2N_3[39] 和 Beryllonitrene [40] 开展了大量研究。针对平面结构，这些研究详细考察了电子-声子散射导致的输运性质。然而，对于 ZA 分支受到显著抑制的褶皱结构，考虑电子-声子耦合效应的二维半金属 BP_3 和 CP_3热输运仍未得到探索。

在本工作中，我们开展了全面的第一性原理计算，以研究电子掺杂诱导的电子–声子散射效应对二维半金属 BP_3 和 CP_3 热输运的影响。在褶皱结构中，声学挠曲声子之间的强耦合导致较低的 k_{ph}，而光学支主导声子输运。在高掺杂水平下，我们的计算明确表明，在高频区域，电子–声子散射的幅度与声子–声子散射相当，从而显著抑制了声子输运。由于电子–声子散射率与电子群速度之间的竞争，电子热导率（k_{e}）随掺杂浓度增加呈现异常变化。在重掺杂体系中，高频光学声子与电子之间的强散射使 k_{e}大幅降低至 k_{ph}的量级。玻尔兹曼输运方程（BTE）计算揭示了通过掺杂诱导的电子–声子散射调控半金属 BP_3 和 CP_3热输运的有效途径。

II. 计算细节

采用密度泛函理论(DFT)和密度泛函微扰理论 (DFPT) 计算使用 Quantum Espresso 程序包[41]完成。采用 Perdew−Burke−Ernzerhof 交换关联泛函[42] 和投影缀加波方法。为消除不同层间的相互作用，在模拟区域中引入厚度为 12 °A 的真空层。平面波截断能设为 100 Ry，电子结构和 DFPT 计算分别采用 $15\times15\times1k-$ 网格和 $5\times5\times1\ q-$ 网格。电子能量的收敛阈值设为 10^{-12} Ry。图 1 左图展示了二维三磷化物的晶体结构；该相与蓝磷烯相似，蓝磷烯的六方晶胞中有两个 P 原子被两个硼原子或碳原子取代。优化后的晶格参数分别为 BP_3 的 6.53 Å 和 CP_3，的 6.24 °Å，与先前的第一性原理计算结果一致（BP_3[38] 为 6.50 °Å，CP_3[37]为 6.22 °Å）。通过迭代求解玻尔兹曼输运方程，k_{ph} 张量可写为[43]

$$k_{ph}^{\alpha\beta}=\frac{1}{N_qV}\sum_{\lambda}\hbar\omega_{\lambda}\frac{\partial n_{\lambda}^{0}}{\partial T}v_{\lambda}^{\alpha}v_{\lambda}^{\beta}\tau_{\lambda}^{ph} \tag{1}$$

其中，N_q、V、$\hbar$、ω_{λ}和 n_{λ} 分别为第一布里渊区中的$q-$点数、原胞体积、约化普朗克常数、极化为v且波矢为 q的声子支模 $\lambda=$（q，v）的频率，以及玻色-爱因斯坦分布函数。v_{λ}^{α} 是声子群速度沿 α方向的投影。考虑声子-声子（ph−ph）散射和声子-电子（ph−el）散射时，弛豫时间 τ_{λ}可由马蒂森定则[43]、$1/\tau_{\lambda}=1/\tau_{\lambda,\ pp}+1/\tau_{\lambda,\ pe}$确定，其中$1/\tau_{\lambda,\ pp}$ 和$1/\tau_{\lambda,\ pe}$ 分别为三声子（3ph）散射率和ph−el散射率。

对于三声子散射过程，我们采用 thirdorder.py[44] 实现的有限差分法，使用一个 $3\times3\times1$超胞计算三阶−原子间力常数（3rd IFCs）。计算三阶 IFCs 时纳入了 18^{th}近邻，随后使用 ShengBTE[44] 计算三声子散射率和本征 k_{ph}，并在布里渊区中以 $q-$点进行 $60\times60\times1$采样。我们仔细讨论了 k_{ph}关于 IFC 截断以及布里渊区中采样点数 $q-$的收敛性（见图 S1）。$1/\tau_{\lambda,\ pe}$ 由基于 DFPT 和 Wannier 插值技术的完整 EPC 计算所得声子自−能虚部给出。通过 EPW 程序[45, 46]实现的最大局域 Wannier 函数，将 $15\times15\times1\ k-$网格和 $5\times5\times1\ q-$网格的粗网格插值至 $180\times180\times1k-$网格和 $60\times60\times1\ q-$网格的密网格。电子和声子的狄拉克 δ 函数分别用宽度为 20 和 0.2 meV 的高斯函数展宽。获得总声子散射 $1/\tau_{\lambda}$后，考虑 ph−el 效应的 k_{ph} 通过迭代方案求解方程（1）计算得出。对于二维体系的热输运值，沿

真空轴的有效厚度由单层薄片的厚度与顶层和底层原子的范德华半径之和确定。

基于通过 Wannier 插值技术获得的电子能带结构，利用电子玻尔兹曼输运方程和 Onsager关系[47]评估 k_{e} 和电导率（σ）

$$k_e(\mu,T) = \frac{1}{N_k V}\sum_{n,k} -\frac{(\epsilon_{nk}-\mu)}{T} v_{nk}^2 \tau_{nk}(\mu,T) \times \frac{\partial f_{ED}(\epsilon_{nk},\mu,T)}{\partial \epsilon} - TS^2(\mu,T)\sigma(\mu,T) \tag{2}$$

$$\sigma(\mu,T) = \frac{1}{N_k V}\sum_{n,k} -e^2 v_{nk}^2 \tau_{nk}(\mu,T)\frac{\partial f_{ED}(\epsilon_{nk},\mu,T)}{\partial \epsilon} \tag{3}$$

其中，μ、T、N_k和 e 分别为化学势、温度、k–点的总数和元电荷。ϵ_{nk} 和 v_{nk} 分别为能带指标 n 在状态 k下的能量本征值和群速度，f_{ED}为费米–狄拉克分布函数，S 为塞贝克系数。受 el–ph 散射限制的电子弛豫时间 τ_{nk}，可由电子自–能的虚部获得。

III. 结果与讨论

在图 1 的右侧面板中，我们利用电子局域函数（ELF）表征成键。显然，所有 P–P 和 P–B/C 键的中心处 ELF 最大，表明 BP_3 和 CP_3具有共价键合特征。这种强烈的面内键与共价键–驱动的金属响应类似，后者使 MgB_2超导体[48]具有较高的临界温度（T_c）。此外，这些键是能带穿越费米能级的唯一成因，使其成为具有强 el–ph 相互作用的理想候选材料。

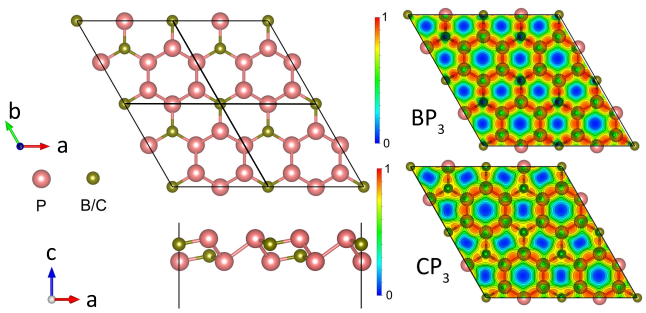

图 1. 左图展示了 BP_3 和 CP_3 的俯视图和侧视图。原胞由 2 个 B/C 原子和 6 个 P 原子组成。右图展示了平行于 (001) 面的 ELF。

图 2(a) 展示了 BP_3 和 CP_3，的声子色散及声子态密度–（DOS）–，二者声学模和光学模主要由 P 原子贡献，极高频率的光学模除外。由于不存在虚声子模，这两种三磷化物具有动力学稳定性。图 S4 和 S5 所示的 AIMD模拟也证实了二维 BP_3 和 CP_3 的热稳定性。值得注意的是，BP_3 和 CP_3 的最高频率模出现在约 25 THz，远高于金属三磷化物（14 THz）[31]，、硅烯（17 THz）[49]，、MoS_2 （14 THz）[50]，和磷烯（13.5 THz）[51]，，这表明这两种三磷化物具有机械稳健性。此外，低频声学支的频率远低于常见二维材料（$<$ 2.5 THz），包括石墨烯[52]，、氮化硼[53]，、过渡金属二硫化物[50, 54]，和磷烯[51]，，这表明二维三磷化物的声子简谐振动极弱，同时声子支的局域化程度较高，三声子散射强度也相当大，这是低 k_{ph}的标志。图 2(b) 绘出了电子能带结构和投影电子态密度–。BP_3 和 CP_3 均为半金属，其费米面上共存电子和空穴口袋，与二维金属三磷化物的半导体特性不同。进一步来看，穿过费米能级的能带主要由 P 原子的 p_z 轨道和 B/C 原子的 p_z 轨道构成。由此可知，半金属行为是由 π 类相互作用诱导的电子离域所致。

为了理解半金属 BP_3 和 CP_3 单层中的热输运机制，我们首先考察不考虑载流子掺杂时电子和声子对热导率的独立贡献。如图 3(a) 所示，300 K 时 BP_3 和 CP_3，的 k_{e} 分别为 17.40 和 13.41 W/(mK)。在半金属三磷化物中，费米能级处较小的态密度对热传导的电子贡献仍有不可忽视的作用。显然，CP_3 的k_{e} 几乎不随温度–变化，这是因为电子弛豫时间随 T降低，而电子热容随之增加，两者的贡献相互补偿。然而，BP_3 的数值随 T增加。如图 3(b) 所示，BP_3 费米能级附近的电子散射率随 T 增加而略有上升，这与 CP_3中的增幅不可同日而语。此外，BP_3 电子热容的增长率高于 CP_3 （见图 1(a) 插图）。这些特征导致 BP_3 和 CP_3的 k_{e} 随 T 变化时呈现差异。我们进一步计算了 σ，如图 3(c) 所示。σ 的量级为10^6 S/m，显著低于典型金属[16, 55]和二维碳同素异形体[56]，这也归因于费米能级附近较低的电子–态密度。

理论方法可以准确获得 k_{e}和 k_{ph}，而实验技术难以分别测量。尽管人们已经开发出一些用于直接 k_{ph} 测量的方法，包括磁热技术[57] 和合金化

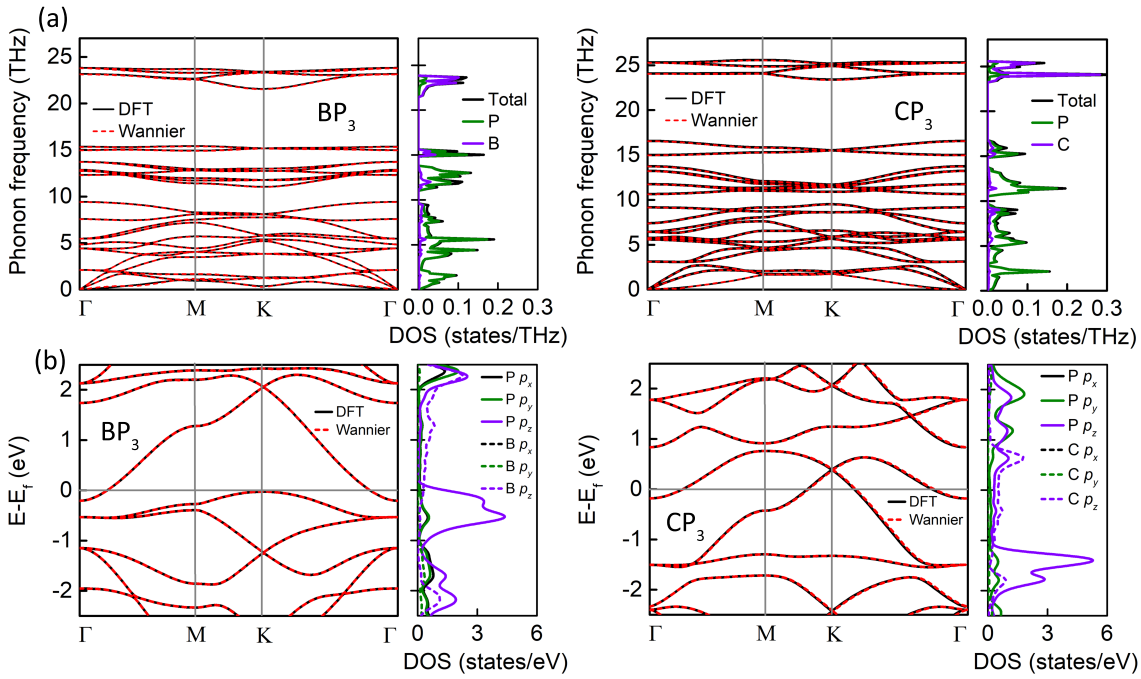

图 2. （a）BP_3 和 CP_3, 的声子色散；（b）分别对应的电子能带结构及态密度。黑线和红线分别表示通过密度泛函理论和 Wannier 插值技术计算得到的结果。电子能量设定为费米能。

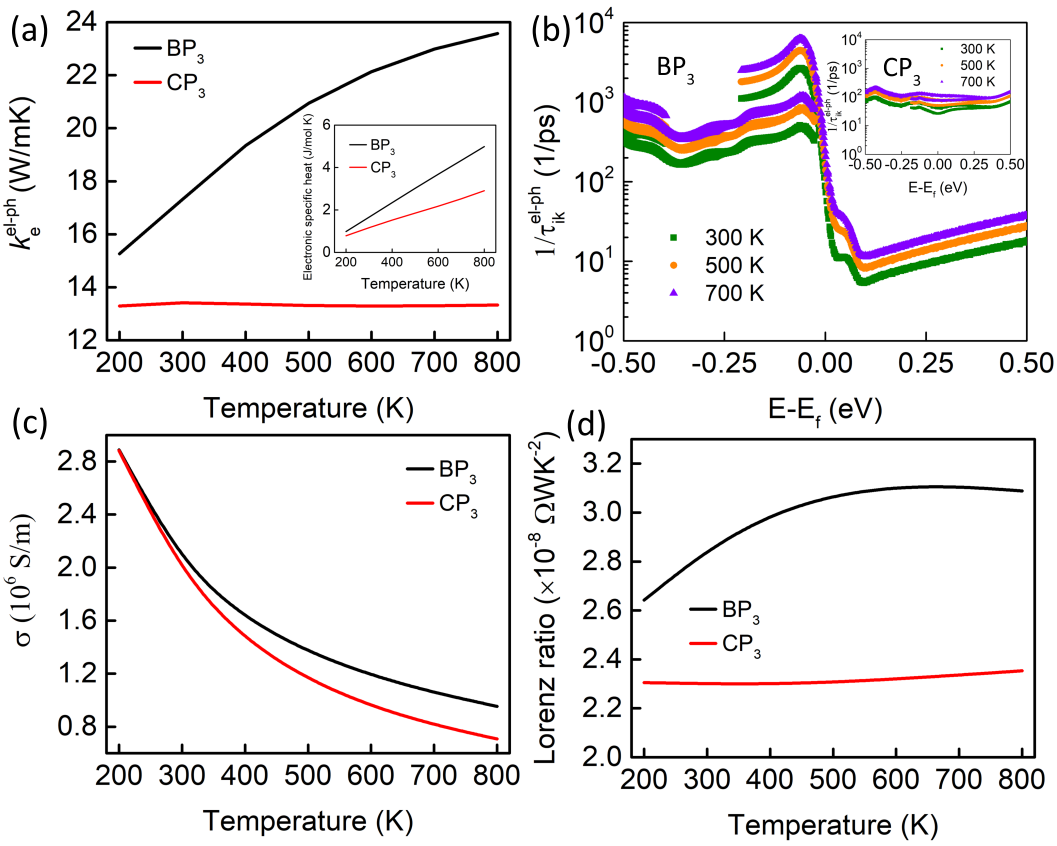

图 3. （a）电子热导率 k_e；（b）300、500 和 700 K 下的电子散射率 $1/\tau_{ik}$；（c）电导率 σ；以及（d）BP_3 和 CP_3, 分别对应的洛伦兹比 $versus\ T$。插图（a）表示电子比热随 T 的变化。

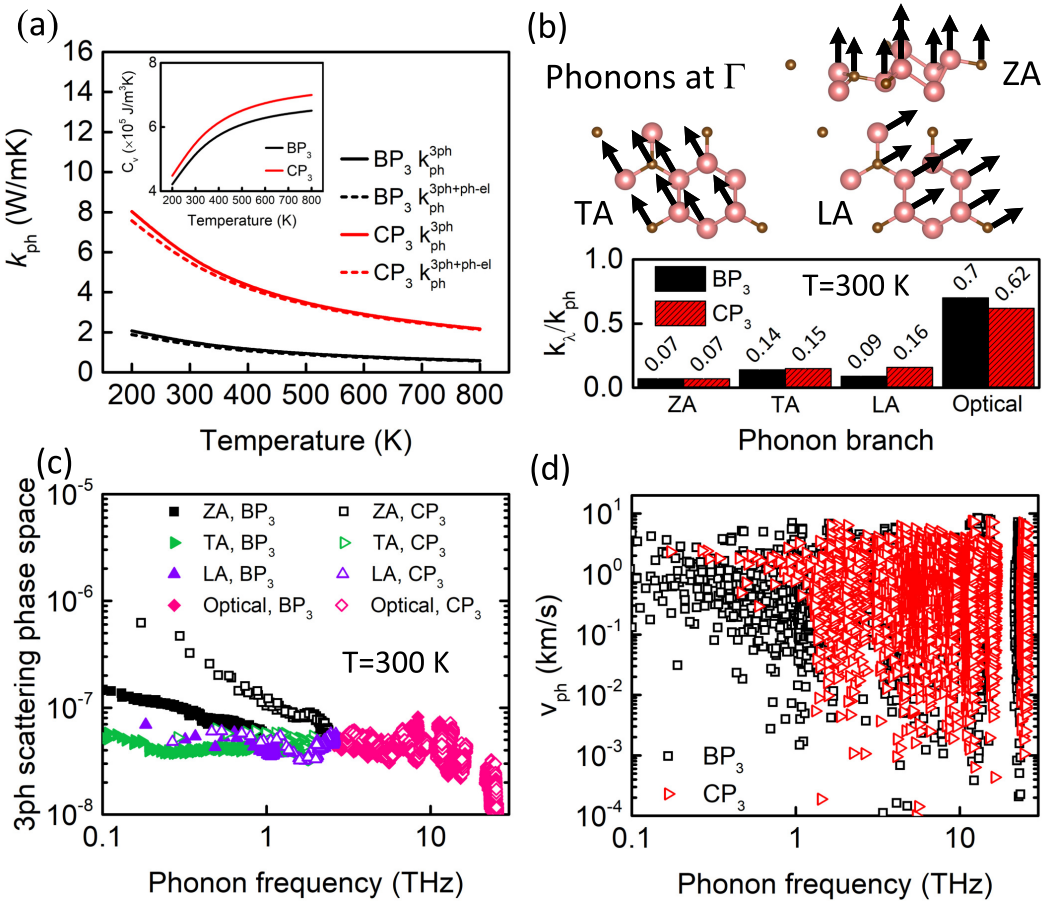

图4。（a） $k^{3\mathrm{ph}}{}_{\mathrm{ph}}$和 $k^{3\mathrm{ph}+\mathrm{ph}-\mathrm{el}}{}_{\mathrm{ph}}$ $versus$ T，插图为体积热容随 T的变化。（b） Γ点附近ZA、TA和LA声子模式的变分图样，柱状图为 $T = 300$ K时 $k_\lambda/k_{\mathrm{ph}}$的比值。（c）300 K时三声子散射过程的相空间。（d）BP_3和CP_3的声子群速度。

技术[58], ，但它们受到复杂操作流程和极低温度的限制。得益于电导率易于测量，采用近似公式 $k_{\mathrm{ph}} = k_{\mathrm{total}} - L\sigma T$来获得 k_{ph}。这里，假设洛伦兹比为索末菲值 $L_0 = 2.44 \times 10^{-8}$ ΩWK^{-2}[59]。当温度远低于德拜温度时，该近似并不准确，因为 L 是一个依赖于化学–势和温度–的量；这是由于费米能级附近的el–ph散射率并非相对于电子能量和温度的常数。因此，我们还在图3（d）中绘制了 L 随 T 变化的函数。BP_3 和 CP_3 中计算得到的L 均呈现出与 k_{e} $versus T$相似的趋势。BP_3 中的数值大于索末菲值，而CP_3 中的数值较小。两者 L 均随 T升高而增大，这与Bloch–Gr¨uneisen理论[60]一致。

接下来，我们讨论热导率中的声子贡献。图 4(a) 明确展示了本征体系的温度–依赖性 k_{ph} 。 k_{ph} 总体上遵循正常的 T^{-1} 趋势。正如预期， k_{ph} 仅为 1.48 和 5.60 W/(mK)，在 300 K，未考虑 BP_3和 CP_3, 中的 ph–el 散射。对于具有褶皱结构的磷烯–类化合物，ZA 模对 k_{ph} 的贡献相对较低，这是因为垂直于平面方向的 ph–ph 散射很强。与原子级平坦的平面材料（如典型的石墨烯[13] 和 BN [61], ）相比，ZA 模的贡献有所不同；在这些材料中，ZA 模对 k_{ph}贡献最大。为了定量分析，图 4(b) 展示了 300 K 时不同声子支对 k_{ph} 的贡献。声学模对k_{ph} 的贡献确实小于光学模，且 ZA 模贡献的热传导最少。通过绘制图 5(e) 和 (f) 中的本征 ph–ph 散射率，可以理解上述结果。低–频率范围内的声子模表现出较大的 ph–ph 散射率，表明其 ph–ph 散射强度更大、声子寿命更短，因此主要限制了声学模的有限热导率。此外，三声子散射强度也反映在声子相空间的倒数中。我们在图 4(c) 中绘制了 ZA、TA、LA 和光学支的散射相空间，证实了

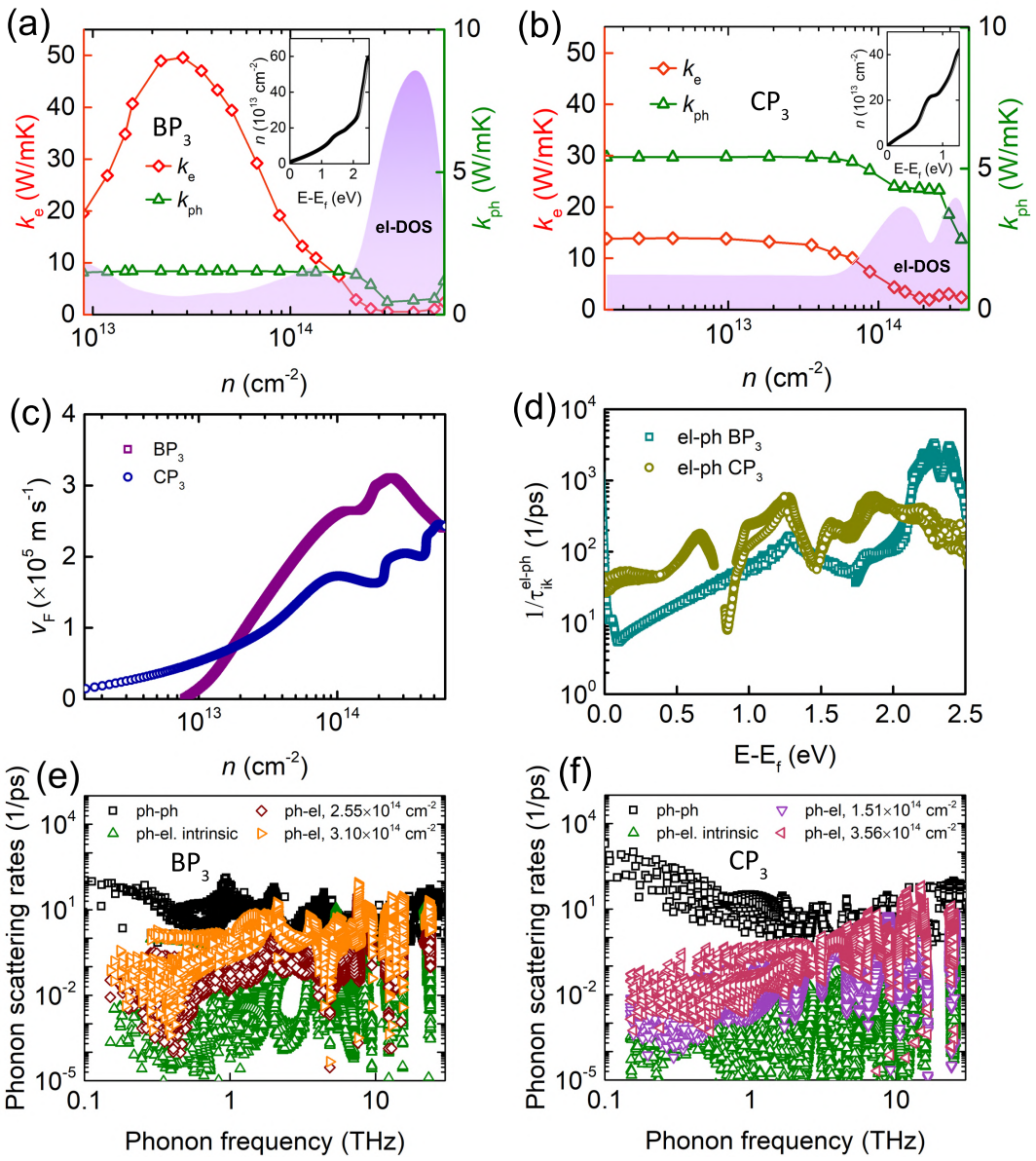

图 5. 电子–掺杂的 (a) BP_3 和 (b) CP_3中 k_e 和 k_{ph} 随 n 的变化。紫色阴影区域表示电子–态密度，插图展示了 n 随费米能偏移的变化。(c) v_F 和 (d) 电子–声子散射率分别随 n 和偏移后的费米能变化。(e) BP_3 和 (f) CP_3 在 T = 300 K 时，本征及具有不同 n 的电子–掺杂体系中三声子和声子–电子的计算散射率。

声学模具有丰富的散射通道，尤其是 ZA 模。此外，图 4(a) 和 (d) 的插图分别展示了随温度变化的体积热容和声子群速度。CP_3较大的体积热容是其 k_{ph} 高于 BP_3的关键原因之一。由于 BP_3 和 CP_3，的声子色散非常相似，这两个体系的群速度差异并不明显。此外，考虑 ph–el 散射后，k_{ph} 并未显著降低，这意味着二维三磷化物中的 ph–el 散射极弱，不同于金属碳化物[62]和氮化物[63] 体系。为了验证

据此，图 5(e) 和 (f) 分别对 BP_3 和 CP_3,中的声子–声子与声子–电子散射率进行了比较。可以看出，在整个频率范围内，声子–声子散射率明显高于声子–电子散射率，这意味着在未掺杂的三磷化物中，声子寿命主要由声子–声子散射决定。

原子–厚的结构赋予二维材料通过掺杂调控其性质的更大可能性。接下来，我们研究如何利用电子掺杂调节电子–声子相互作用，进而合理调控热输运性能。图 5(a) 和 (b) 展示了两种化合物在 300 K 时， k_e和 k_{ph} 随电子掺杂浓度变化的情况——

电子掺杂浓度（n）的变化情况。BP_3 的 k_e 随 n呈现出异常的非单调变化，而 CP_3 的 k_e 对 n （$< 10^{13}$ cm^{-2}）不敏感，超过 10^{13} cm^{-2}后才开始显著下降。与本征体系相比，BP_3 的 k_e 在 $n = 2.85\times10^{13}$ cm^{-2}时最多增加 185% （从 17.40 增至 49.58 W/(mK) ）；而当 n 进一步增至 4.20×10^{14} cm^{-2}时，k_e 则降至 0.51 W/(mK)。CP_3 的 k_e 在 $n = 2.18\times10^{14}$ cm^{-2}时从 13.41 降至 1.94 W/(mK)。–依赖的 k_e变化趋势可用德鲁德自由电子模型近似描述， $k_e = \pi^2 k_B^2 T N_F v_F \tau_e/3$。其中， N_F为费米态密度，在图 5(a) 和 (b) 中以紫色阴影标出。 v_F 为费米速度， τ_e 为电子弛豫时间，二者分别绘于图 5(c) 和 (d)。在低掺杂水平下，BP_3 中 k_e 的上升趋势主要源于电子–声子散射率急剧降低，因为电子–态密度的下降被增强的 v_F 和τ_e完全抵消。当 n 继续增加至（$> 2.85\times10^{13}$ cm^{-2}）时，逐渐增强的电子–声子相互作用导致 k_e 降至最低，尽管电子–态密度大幅上升且 v_F有所增加。低掺杂水平（$< 10^{13}$ cm^{-2}）下，CP_3 的 k_e 对 n 变化不敏感，这是增强的 v_F 与下降的 τ_e相互抵消所致。进一步增加 n 会显著增强电子与声子之间的相互作用，最终抑制电子热输运能力。对于这两种体系，电子-声子耦合强度通常随 n 增加而增大。此外，在较宽范围（$n< 1.05\times10^{14}$ cm^{-2}）内，电子主导整体热输运；然而，超过该掺杂水平后，电子-声子耦合的大幅增强会使 k_e 急剧降低，导致 k_{ph} 超过 k_e。

BP_3 和 CP_3 中的 k_{ph} 呈单调下降趋势，当掺杂水平达到高电子态密度（DOS）附近时，这一趋势更加显著。BP_3 和 CP_3 中的 k_{ph} 降幅分别可达 71%（ $n= 3.10\times10^{14}$ cm^{-2} ）和 54%（$n = 3.56\times10^{14}$ cm^{-2}）。重掺杂硅[9]、二维狄拉克硅烯[12] 和 Beryllonitrene[40] 中也能观察到类似现象。我们在图 5(e) 和 (f) 中绘制了声子-电子散射率，以定量比较声子-声子散射与声子-电子散射事件的重要性。可以清楚地看到，在轻掺杂体系中，声子-声子散射率远高于声子-电子散射率，这进一步证实了低掺杂水平下 k_{ph} 对 n 的依赖不敏感。然而，在高掺杂水平下，声子-电子散射率变得相当。特别是，高频声子与电子之间存在显著相互作用，这会大幅抑制光学模的热输运能力。如前所述，光学模主导褶皱状 BP_3 和 CP_3中的声子热输运。因此，高 n 下 k_{ph} 的下降趋势，是电子对声子的散射增强所致。总体而言，电子-声子耦合（EPC）可显著降低整体热导率。这种由掺杂–诱发的强电子-声子耦合所导致的反常热输运机制，为实验检测电子-声子耦合对热导率的影响提供了理论基础。

四、结论

通过采用第一性原理计算，我们系统地预测了二维半金属 BP_3 和 CP_3的 k_e 和 k_{ph} 。研究表明，电子掺杂–诱导的电子-声子耦合效应可大幅调控热导率。褶皱结构中 ZA 模声子模式的热输运受到抑制，导致 k_{ph} 较低，而电子主导热输运。此外，我们发现，高–频率光学声子模式容易散射至电子上。随着掺杂浓度增加，由于 v_F 与 τ_e之间的竞争，BP_3 和 CP_3 中的 k_e 呈现不同的变化趋势。然而，两种体系中的 k_{ph} 均单调下降，这是因为随着 n 增加，ph–el 相互作用逐渐增强；只有在较高掺杂水平（$n > 10^{14}$ cm^{-2}）下，其降幅才会变得显著。此外，当 $n > 1.05\times10^{14}$ cm^{-2}时，由于 el–ph 相互作用急剧增强，两种化合物的 k_e 开始低于 k_{ph} 。我们的研究揭示了二维半金属三磷化物中由掺杂–诱导的电子-声子耦合所导致的有趣热导率调控机制，而热导率的大幅调控范围表明其在热开关器件中的潜在应用价值。

补充材料

关于声子热导率计算中q–点和 IFC 截断的收敛性、Wannier 插值的验证，以及通过 $ab\ initio$ 分子动力学模拟进行的热稳定性测试，请参阅补充材料。

致谢

本研究得到国家自然科学基金（编号：52006134）和上海市基础研究重点项目（资助编号：21JC1403300）的支持。本文中的计算均在 π 2.0 集群上运行，该集群由上海交通大学高性能计算中心提供支持。

[1] L. E. Bell, Science 321, 1457 (2008). [2] A. Liu, H. Xie, Z. Wu, Y. Wang, 《碳中和》1, 20 2022( ). [3] D. R. Clarke, S. R. Phillpot, 《今日材料》8, 22 (2005). [4] L. F. Zhao, K. Roh, S. Kacmoli, K. A. Kurdi, S. Jhulki, S. Barlow,S. R. Marder, C. Gmachl, B. P. Rand, Adv. Mater. 32, 2000752 (2020). [5] J. Bardeen, L. N. Cooper, and J. R. Schrieffer, Phys. Rev. 108, 1175 (1957). [6] J. Yan, Y. Zhang, P. Kim, A. Pinczuk, Phys. Rev. Lett. 981, 66802 (2007). [7] N. Bonini, M. Lazzeri, N. Marzari, F. Mauri, Phys. Rev. Lett. 99, 176802 (2007). [8] A. Bostwick, T. Ohta, T. Seyller, K. Horn, E. Rotenberg, Nat. Phys. 3, 36 (2007). [9] B. Liao, B. Qiu, J. W. Zhou, S. Huberman, K. Esfarjani, G. Chen, Phys. Rev. Lett. 114, 115901 (2015). [10] J. Zhou, H. D. Shin, K. Chen, B. Song, R. A. Duncan, Q. Xu, A. A. Maznev, K. A. Nelson, G. Chen, Nat. Com- mun. 11, 6040 (2020). [11] T. Wang, Z. Gui, A. Janotti, C. Ni, Phys. Rev. Mater. 1, 034601 (2017). [12] T.-H. Liu, J. W. Zhou, Q. Xu, X. Qian, B. Song, R. G. Yang, *Mater. Today Phys.* **22**, 100598 (2022). [13] Z. Tong, S. Li, X. Ruan, H. Bao, Phys. Rev. B 100, 144306 2019( ). [14] D. K. Efetov, P. Kim, Phys. Rev. Lett. 105, 256805 (2010). [15] C.-L. Wu, H. Yuan, Y. Li, Y. Gong, H. Y. Hwang, Y. Cui, Nano Lett. 18, 2387 (2018). [16] B. Liao, J. Zhou, B. Qu, M. S. Dresselhaus, G. Chen, Phys. Rev. B 91, 235419 (2015). [17] S. Yue, R. Yang, B. Liao, Phys. Rev. B 100, 115408 (2019). [18] X. Yang, A. Jena, F. Meng, S. Wen, J. Ma, X. Li, W. Li, 《今日材料：物理》18, 100315 (2021). [19] Y. Wu, B. Hou, Y. Chen, J. Cao, H. Shao, Y. Zhang, C. Ma, H. Zhu, R. Zhang, H. Zhang, npj Comput. Mater. 7, 145 (2021). [20] Z. Zhou, X. Yang, H. Fu, R. Wang, X. Lu, G. Wang, X. Zhou, Adv. Funct. Mater. 32, 2206974 (2022). [21] Y. Huang, J. Zhou, G. Wang, Z. Sun, J. Am. Chem. Soc. 14, 8503 (2019). [22] J. Gullman, O. Olofsson, J. Solid State Chem. 5, 441 (1972). [23] P. Donohue, H. Young, J. Solid State Chem. 1, 143 (1970). [24] L. H¨aggstr¨om, J. Gullman, T. Ericsson, R. W¨appling, J. Solid State Chem. 13, 204 (1975). [25] S. Sun, F. Meng, H.Wang, H.Wang, Y. Ni, J. Mater. Chem. A 6, 11890 (2018). [26] Y. Jing, Y. Ma, Y. Li, and T. Heine, Nano Lett. 17, 1833 (2017). [27] L.-P. Feng, A. Li, P.-C. Wang, Z.-T. Liu, J. Phys. Chem. C 122, 24359 (2018). [28] B. Ghosh, S. Puri, A. Agarwal, S. Bhowmick, J. Phys. Chem. C 122, 18185 (2018). [29] C. Zhang, Y. Jiao, T. He, F. Ma, L. Kou, T. Liao, S. Bot- tle, A. Du, Phys. Chem. Chem. Phys. 19, 25886 (2017). [30] X. Deng, X. Chen, Y. Huang, B. Xiao, H. Du, J. Phys. Chem. C 123, 4721 (2019). [31] Z. Sun, K. Yuan, Z. Chang, S. Bi, X. Zhang, D. Tang, Nanoscale 12, 3330 (2020). [32] X.-L. Zhu, P.-F. Liu, J. Zhang, P. Zhang, W.-X. Zhou, G. Xie, B.-T. Wang, Nanoscale, 11, 19923 (2019). [33] S. Wei, C. Wang, S. Fan, G. Gao, J. Appl. Phys. 127, 155103 2020( ). [34] X.-L. Zhu, P.-F. Liu, Y.-Y. Wu, P. Zhang, G. Xie, B.-T. Wang, Mater. Adv. 1, 3322 (2020). [35] L. P. Campagna, M. V.-Alves, D. C. M. Rodrigues, M. F. C. A. Filho, P. Venezuela, W. L. Scopelc, R. G. Amorim, Mater. Adv. 3, 4641 (2022). [36] L. Fan, H. Yang, G. Xie, Front. Mech. Eng. 7, 702079 (2021). [37] M. Kar, R. Sarkar, S. Pal, P. Sarkar, Phys. Rev. B 101, 195305 2020( ). [38] F. Shojaei, H. S. Kang, J. Mater. Che m. C 5, 11267 (2017). [39] D. Campi, S. Kumari, N. Marzari, Nano Lett. 21, 3435 (2021). [40] Z. Tong, A. Pecchia, C. Yam, H. Bao, T. Dumitric˘a, T. Frauenheim, Adv. Funct. Mater. 32, 2111556 (2022). [41] P. Giannozzi, S. Baroni, N. Bonini, M. Calandra, R. Car, C. Cavazzoni, D. Ceresoli, G. L. Chiarotti, M. Cococ- cioni, I. Dabo, J. Phys.: Condens. Matter 21, 395502 (2009). [42] J. P. Perdew, K. Burke, M. Ernzerhof, Phys. Rev. Lett. 77, 3865 (1996). [43] G. D. Mahan, 《多粒子物理学》, Kluwer Academic/Plenum Publishers, 纽约, NY (2000). [44] W. Li, J. Carrete, N. A. Katcho, N. Mingo, Comput. Phys. Co mmun. 185, 1747 (2014). [45] J. Noffsinger, F. Giustino, B. D. Malone, C.-H. Park, S. G. Louie, M. L. Cohen, Comput. Phys. Commun. 181, 2140 2010( ). [46] S. Ponc´e, E. Margine, C. Verdi, F. Giustino, Comput. Phys. Commun. 209, 116 (2016). [47] G. K. H. Madsen, J. Carrete, M. J. Verstraete, Comput. Phys. Commun. 231, 140 (2018). [48] J. M. An, W. E. Pickett, Phys. Rev. Lett. 86, 4366 (2001). [49] S. Cahangirov, M. Topsakal, E. Akt¨urk, H. Sahin, S. Ciraci, Phys. Rev. Lett. 102, 236804 (2009). [50] A. Molina-Sanchez, L. Wirtz, Phys. Rev. B 84, 155413 (2011). [51] G. Qin, Q.-B. Yan, Z. Qin, S.-Y. Yue, M. Hu, G. Su, Phys. Chem. Chem. Phys. 17, 4854 (2015). [52] A. K. Geim, Science, 324, 1530 (2009). [53] K. H. Michel, B. Verberck, Phys. Rev. B 83, 115328 (2011). [54] Z. Zhang, Y. Xie, Y. Ouyang, Y. Chen, Int. J. Heat Mass Transfer, 108, 417 (2017). [55] D. Gall, J. Appl. Phys. 119, 085101 (2016). [56] Z. Tong, A. Pecchia, C. Yam, T. Dumitric˘a, T. Frauenheim, Adv. Energy Mater. 12, 2200657 (2022). [57] M. Yao, M. Zebarjadi, C. P. Opeil, J. Appl. Phys. 122, 135111 2017( ). [58] R. K. Williams, D. W. Yarbrough, J. W. Masey, T. K. Holder, R. S. Graves, J. Appl. Phys. 52, 5167 (1981). [59] (编者：T. M. Tritt), Thermal Conductivity: Theory, Properties, and Applications, Kluwer Academic/Plenum Publishers, 纽约 (2004).

[60] A. Lavasani、D. Bulmash、S. Das Sarma，Phys. Rev. B **99**，085104（2019）。[61] Q. Cai、D. Scullion、W. Gan、A. Falin、P. Cizek、S. Liu、J. H. Edgar、R. Liu、B. C. C. Cowie、E. J. G. Santos、L. H. Li，《Phys. Rev. Lett.》**125**，085902（2020）。[62] C. Li、N. K. Ravichandran、L. Lindsay、D. Broido，《Phys. Rev. Lett.》**121**，175901（2018）。[63] S. Li、A.Wang、Y. Hu、X. Gu、Z. Tong 和 H. Bao，《今日材料：物理》**15**，100256（2020）。