均质 MoS_2 堆叠结构中扭转角依赖的各向异性热导率

Wenwu Jiang[1#], Ting Liang[2#], Jianbin Xu[2], Wengen Ouyang[1*]

[1]武汉大学土木工程学院工程力学系，中国湖北武汉 430072[2]香港中文大学电子工程系与材料科学与技术研究中心，中国香港特别行政区新界沙田 999077

#: 这些作者贡献相同。

[*]电子邮箱：w.g.ouyang@whu.edu.cn（W. Ouyang）

关键词：扭转工程；二硫化钼；各向异性界面热输运；堆垛构型依赖的层间势；分子动力学模拟

摘要

本文采用先进的力场，通过非平衡分子动力学模拟研究均匀扭转二硫化钼（MoS_2）的热输运性质。模拟结果表明，面外热导率强烈依赖于界面扭转角，而界面扭转角对面内热导率的影响较小，呈现出高度各向异性。频率分解声子分析显示，MoS_2 的面外和面内热导率均由低于 15 THz 的低频声子主导。随着界面扭转角增大，这些低频声子会显著削弱声子跨界面输运，从而阻碍面外热输运。然而，面内声子输运几乎不受影响，因此能够保持较高的面内热导率。此外，我们的研究发现，由于MoS_2中的低频声子，面外和面内热导率都具有明显的尺寸依赖性。根据我们的模拟，扭转 MoS_2 的面内与面外热各向异性比最高可达 400，与近期实验结果（~900）处于同一数量级。我们的研究凸显了扭转工程作为调控层状材料热输运性质的一种潜在手段。

引言

扭转工程是指双层系统中的一层相对于另一层发生扭转，它为调控范德瓦耳斯二维材料的性质提供了丰富的自由度，例如电学性质、[1-3] 力学性质、[4, 5] 以及摩擦学性质。[6-8]扭转系统的蓬勃发展甚至催生了“扭转电子学”。[9-11]受“扭转电子学”的启发，人们也广泛研究了扭转角对二维材料热输运的影响，因为热问题对二维晶体管的寿命和稳定性至关重要。[12, 13] 如今，实验和计算研究已证明，可以通过多种方法调控二维材料的热输运性质，例如调节相邻层的扭转角、[14-17] 电调控、[18] 同位素工程、[19, 20] 引入原子空位、[21-23] 以及面内和面外应变工程。[22, 24- 27] 在这些方法中，扭转工程是一种可逆过程，不会破坏传热材料的内部结构，因此这种物理改性方法具有良好的可行性。近期研究结果表明，扭转双层范德瓦耳斯（vdW）异质结构的面内和面外热导率均可通过其界面扭转角得到有效调控。[28-34] 基于均匀扭转六方二维[illegible]层机制：扭转界面两侧的声子–声子耦合具有角度依赖性；在扭转石墨烯/六方氮化硼界面中也观察到了类似现象。[illegible]由于结构各向异性，二维层状材料具有较高的面内热导率，但面外热导率很低。[illegible]

实验报道了随机扭转 MoS_2 中创纪录的热导率各向异性比。其原因是扭转工程显著降低了 MoS_2 的面外热导率，而

面内热导率的变化极小。[19, 38, 39] 然而，近期的分子动力学（MD）模拟无法捕捉到这一特征。[17, 40]

在本研究中，我们开展了非平衡分子动力学（NEMD）模拟，以全面理解 MoS_2 的热输运性质。利用近期开发的配位依赖层间势（ILP）[41]，研究了具有不同扭转角的 MoS_2 的面外和面内热导率；该势已被证明能够很好地捕捉层状材料的摩擦性质和声子谱。[5, 7, 35] 我们的结果表明，扭转角使 12 层 MoS_2 的面外热导率从 0.094 $Wm^{-1}K^{-1}$ 显著降低至约 0.037 ~ 0.075 $Wm^{-1}K^{-1}$，这与实验值（0.057 ± 0.003 $Wm^{-1}K^{-1}$）吻合良好。[37]此外，计算结果表明，扭转 MoS_2 的面内热导率对界面扭转角不敏感，这与实验观测一致。为解释这一现象背后的机制，并量化频域中的声子贡献，采用谱热流分解法（SHC）捕捉不同界面扭转角下面外热导率降低的内在机理。最后，讨论了扭转角对均质 MoS_2 中热导率各向异性比的影响，强调扭转工程是调控二维层状材料热输运性质的有效工具。

模型

该模型系统由两个层数相同、呈 AA‘ 堆叠的 MoS_2 薄层组成，两者之间存在界面扭转角，从而形成莫尔超晶格，如**图 1a**所示。为获得可靠结果，我们通过构建周期性扭转 MoS_2 系统，仔细消除了边缘效应和应变效应（见方法）。**图 1b**和**c**展示了用于计算扭转 MoS_2 面外和面内热导率的非平衡分子动力学（NEMD）设置（

分别；详情见方法）。所有分子动力学模拟均使用 LAMMPS 软件包进行。[42]

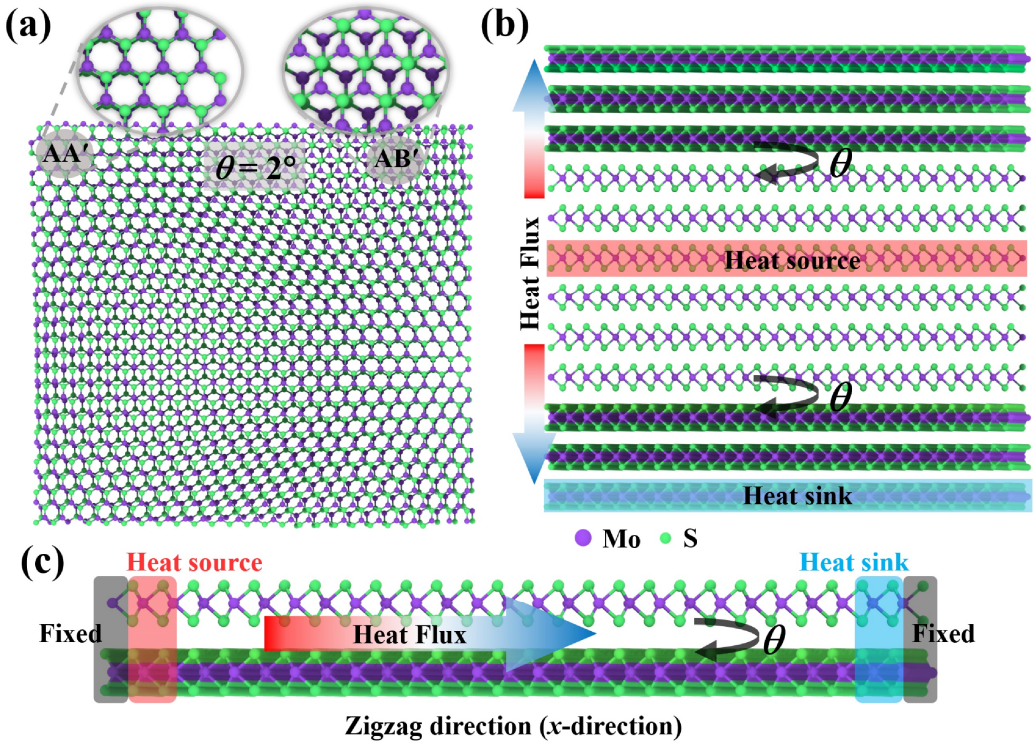


图1。 用于计算面外和面内热导率的扭转 MoS_2 示意模型。(a) 扭转角为 θ = 2° 的双层 MoS_2 俯视图，其中包含 AA′ 和 AB′ 堆垛畴。(b) 用于计算面外热导率的多层扭转 MoS_2 模型。通过对虚线红色（热源）和蓝色（热汇）矩形标记的两层施加朗之万恒温器来产生热偏置。箭头表示垂直热流的方向。在垂直方向施加周期性边界条件，从而形成两个扭转界面，热流沿相反方向通过这两个界面。(c) 扭转角为 θ 的双层 MoS_2 结构，用于计算面内热导率。将模型两端的原子速度和作用力均设为零，以模拟绝热壁。

为模拟 MoS_2, 的热输运行为，我们采用 REBO 势[43]和先进的各向异性层间 ILP[41] ，分别描述每个 MoS_2, 层内的相互作用

以及 MoS_2 层之间的层间相互作用。这些力场预测的块体 MoS_2 声子谱与实验数据吻合良好；相比之下，REBO 势与 Lennard-Jones（LJ）势的组合显著低估了面外声子能量（见 **图 S1**），这表明 ILP 更适合描述层状材料的热输运性质。[35] 为检验层内势对扭转 MoS_2, 热导率的影响，我们采用 Stillinger-Weber（SW）[44] 势并结合 ILP，计算扭转 MoS_2 的面外热导率，观察到类似的扭转角依赖性（见 **图 S2**）。

结果与讨论

扭转 MoS_2 的面外热导率

我们首先研究了扭转角对扭转 MoS_2 堆叠结构热输运性质的影响。**图 2a**展示了由 8 层（红色圆圈）和 12 层（黑色三角形）MoS_2组成的两个模型系统中，整个堆叠结构的面外热导率（$_{CP}$）对界面扭转角的显著依赖性。在这两个系统中，$_{CP}$ 在 0 ~ 5°范围内迅速下降，并在 5°以上趋于饱和，整体降低约 2–3 倍。多层扭转石墨烯和*h*-BN 系统中也观察到了类似结果。[35] 值得注意的是，随机扭转 MoS_2 的实验值 $_{CP}$ (0.057 ± 0.003 $Wm^{-1}K^{-1}$)[37] 处于我们的模拟结果之间（见**图 2a**中的蓝线），这表明各向异性层间势能够准确模拟多层 MoS_2 堆叠结构中的范德华相互作用。除扭转角依赖性外，$_{CP}$ 还呈现出随厚度减小而降低的趋势。非平衡分子动力学模拟中得到的这一尺寸效应，源于低频声子在二维层状材料层间具有较大的平均自由程，[38, 45, 46] 后文将对此进行详细讨论。

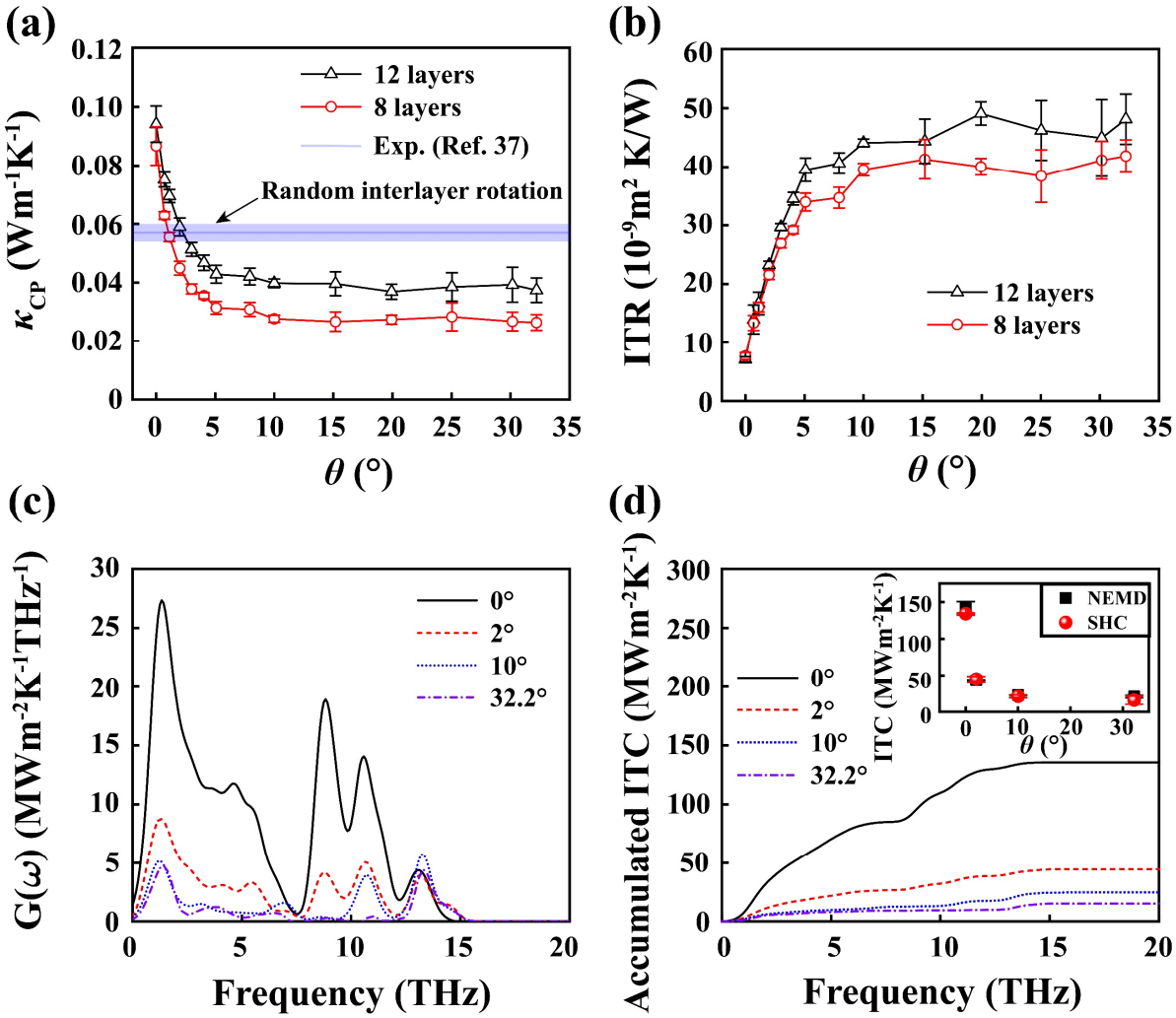


图 2。 整个体系面外热导率（CP）的扭转角依赖性 (a)

堆叠结构，以及扭转接触的界面热阻（b）；该扭转接触由 MoS_2最佳堆叠薄层形成。面板（a）中的蓝色实线标示了通过时域热反射测量获得的随机扭转界面多层 MoS_2 的实验值 $_{CP}$ 。[37] （c）采用 SHC 方法计算的扭转界面（见图 1b</style）声子谱热导 (), 对应不同的扭转角。（d）累积界面热导由 () 积分得到，插图展示了 SHC 计算与非平衡分子动力学模拟的对比。

为更全面地了解界面扭转角对CP 的影响，我们研究了界面热阻（ITR）。界面热阻用于衡量构成扭转界面的两个相邻层之间的热输运阻力（见**图 1b**），

如**图 2b**所示，我们可以得出结论：扭转界面的界面热阻对样品厚度的依赖较弱，但对界面扭转角的依赖较强；当扭转角从 0° 增至 10° 时，界面热阻整体增加了 6 倍。这种行为与六方二维材料中观察到的现象相似，[35] 这表明界面扭转角是调控和理解层状材料热输运性质的重要因素。

为进一步探究 $_{CP}$ 对扭转角的强依赖性背后的微观机制，我们对 12 层扭转 MoS_2 堆叠结构进行了谱热流分解分析（详情请参见方法）。具体而言，我们计算了四种界面扭转角（θ = 0°、2°、10° 和 32.2°）下的声子谱热导()。**图 2c** 和**d**显示，MoS_2 的 $_{CP}$ 主要来自相对低频的声子（<15 THz）。与高频声子相比，这些声子的波长更长、声子耦合更强，因此在层状 MoS_2 材料的面外热输运中占主导地位。[36, 47, 48] 此外，随着界面扭转角从 0° 增加到 32.2°，0–5 THz 和 7.5–12.5 THz 频段内的() 峰值显著降低，表明扭转工程主要削弱了这两个特定频段内声子的热输运能力。此外，我们使用 S HC 方法计算了扭转界面的界面热导（ITC）（如**图 2d**所示），并将其与 NEMD 结果进行比较（此处 ITC 定义为 ITC ≡ 1/ITR）。从**图 2d**的插图可以看出，对于所有研究的扭转角，SHC 方法计算的界面热导与非平衡分子动力学模拟结果高度吻合，这表明 SHC 方法能够可靠地捕捉声子的谱特征。[49, 50]

为使我们的计算结果更好地与实验值吻合，我们计算了不同堆叠厚度（8–56 层）的 MoS_2 系统（θ = 0°）的面外热导率。如**图3a**所示，面外热导率随厚度增加而单调上升，并且在层数较多时呈现出趋于收敛的趋势。界面热导也观察到了这种收敛特性。

热阻（**图3b**）。我们采用线性外推法计算块体 MoS_2，的面外热导率，约为 ~0.24 $Wm^{-1}K^{-1}$，接近实验报道的块体 MoS_2 面外热导率（~0.27 $Wm^{-1}K^{-1}$），该样品含有垂直晶粒。[51]然而，对于 pristine 块体 MoS_2，，文献报道的面外热导率值为 2–5 $Wm^{-1}K^{-1}$，[38, 51-53]显著高于我们的计算值。这种差异归因于 MoS_2 样品的厚度（最多 56 层）远小于其面外平均自由程（>200 纳米）。[38] 然而，扭转 MoS_2 堆叠结构的尺寸大于其面外平均自由程（~2 纳米），[37] 因此，我们对扭转 MoS_2 堆叠结构进行的非平衡分子动力学模拟与实验值吻合良好（见 **图2a**）。

接下来，我们通过将层数从 8 增至 56，计算未扭转 MoS_2 的声子谱热导()。如**图3c**所示，厚度变化主要影响低频声子，且对约 1 THz 处的峰值尤为敏感。当较厚的样品中允许长波长低频声子存在，并由其主导面内热传输时，就会出现这一现象。如**图3d**所示，不同层数的累积界面热导也随层数增加而增大，这与 MoS_2的层数依赖型面外热导率一致。此外，将 SHC 方法计算得到的界面热导与非平衡分子动力学模拟进行比较后，我们发现相应层数下的界面热导基本接近，并且呈现相似的层数依赖特性，如**图3d**插图所示。因此，不同层数下的()帮助我们确定，低频（长波长）声子（0–5 THz）是随着层数增加而导致 MoS_2 面外热导率升高的主要因素。

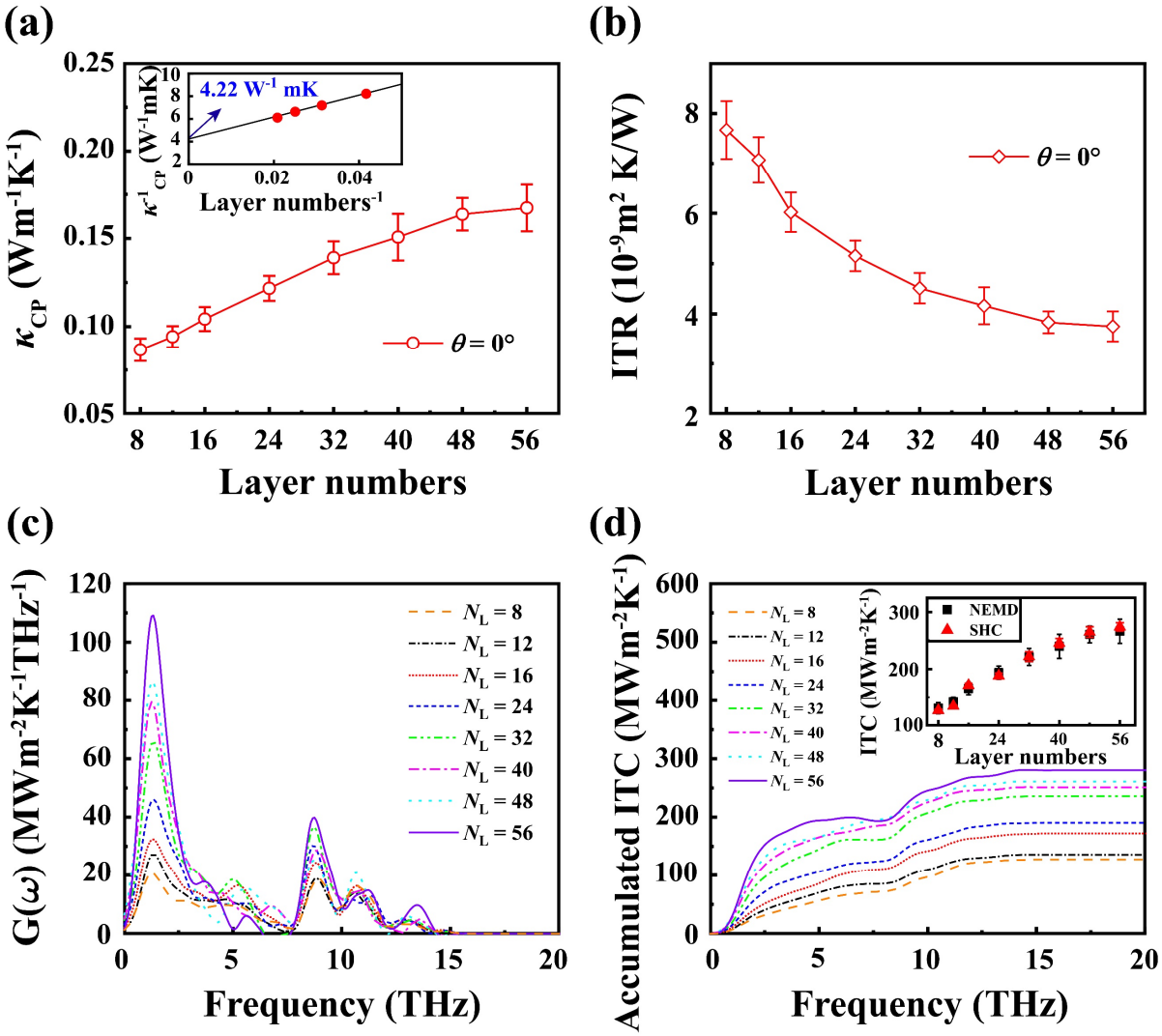


图3。 （a）面外热导率和（b）界面 al

未扭转 MoS_2 堆叠结构（θ = 0°）的热阻。（c）和（d）分别展示了未扭转 MoS_2 堆叠结构在不同厚度下，随频率变化的声子谱热导()和界面热导累积值。（a）中的插图展示了采用线性外推法得到的结果。（d）中的插图比较了 SHC 计算与非平衡分子动力学模拟的结果。$_L$ 表示均质 MoS_2 堆叠结构的层数。

扭转 MoS_2 的面内热导率

我们计算了扭转 MoS_2 的面内热导率（k_{IP}），其中热流沿 MoS_2 晶格的*x*-方向（锯齿型）流动，考察了一系列界面扭转角和样品尺寸（见 **图 4a-b**）。MoS_2 垂直于热流方向（即扶手椅方向）的宽度设为 13 纳米，该尺寸足以使 MoS_2 的 k_{IP} 收敛（见 **图S3**）。从**图 4a** 和**b**可以看出，k_{IP} 对扭转角和样品尺寸的依赖性分别较弱和较强。前者与近期对随机堆叠 MoS_2,[37] 的实验测量，以及采用 LJ 势对双层 MoS_2/$MoSe_2$ 异质结构进行的非平衡分子动力学模拟结果一致。[54] 对于后者，随着长度从 5 纳米增加到 100 纳米，k_{IP} 从 2.3 $Wm^{-1}K^{-1}$ 增至 12.8 $Wm^{-1}K^{-1}$ 。为阐明 MoS_2, 面内热导率对扭转角依赖性较弱、对尺寸依赖性较强的原因，我们采用 SHC 方法，针对四种界面扭转角（**图 4c**）和六种样品尺寸（**图 4d**），计算了面内谱声子热导 ()及相应的累积 k_{IP} 。计算所得的 ()几乎不受扭转角影响，但强烈依赖于样品尺寸，其主要贡献来自频率范围为 0-8 THz 的声子。

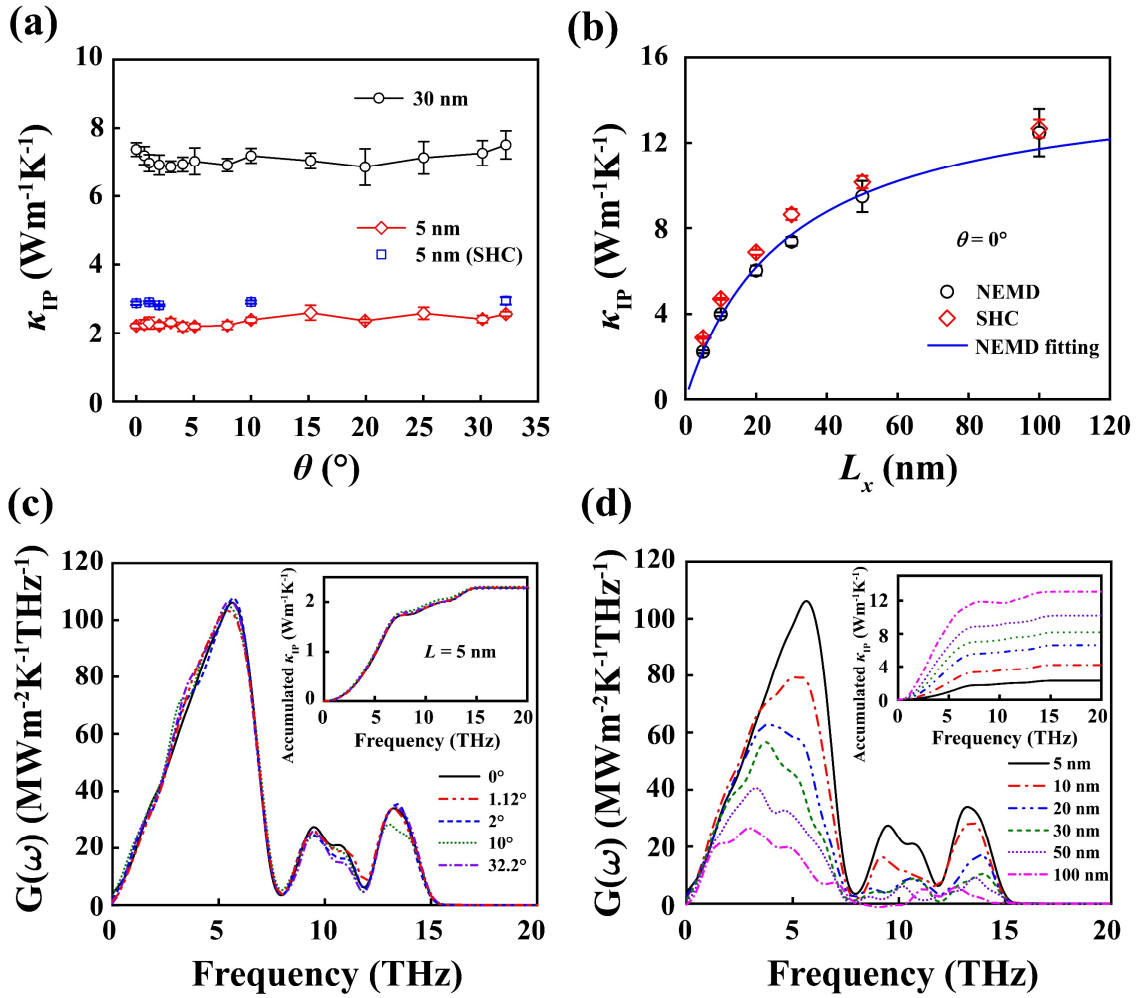


图 4。 双层 MoS_2 的面内热导率（k_{IP}）随扭转角的变化 st

角度 (a) 以及沿热流方向的长度 (b)。(b) 图中的蓝色实线是根据方程 (9) 对非平衡分子动力学模拟进行外推拟合得到的结果。(c) 和 (d) 图分别展示了相应的声子谱热导 () 随扭转角和长度的变化。

如**图 4d 所示，**对于频率大于 1 THz 的声子，() 显著依赖于样品长度，这归因于非谐效应。[55-57] 低频声子（<1 THz）的 () 尺寸依赖性较弱，表明该区域存在声子弹道输运。**图 4d**中的插图展示了计算得到的累积面内热导率 k_{IP} 的尺寸依赖性，其结果与非平衡分子动力学模拟所得结果一致。为评估体相极限下 MoS_2 的 k_{IP}，我们采用了以下简单的外推方程：[58]

$$\frac{1}{\kappa(L_x)} = \frac{1}{\kappa_0}\left(1 + \frac{\lambda}{L_x}\right) \quad (1)$$

其中，$_\infty$ = （$_x \to \infty$）表示无限长度极限下的外推热导率 k_P，而 表示有效平均自由程。**图 S5**显示，对非平衡分子动力学数据进行线性拟合，得到 $_\infty$ = 15.1 ±1.2 $Wm^{-1}K^{-1}$ 和 = 29.0 ± 3.0 纳米。而对于近期的实验测量，拟合值为 $_\infty$ = 44 ± 6 $Wm^{-1}K^{-1}$.[37] 在我们的非平衡分子动力学模拟中，热流方向上的长度从 5 纳米变化到 100 纳米，小于主导热输运的 MoS_2 声子的最大平均自由程，[54, 59, 60] 因此，双层 MoS_2 的外推 $_\infty$ 低于实验测得的值。然而，两个 $_\infty$值处于同一数量级，这表明 MoS_2 的平均自由程为几十纳米量级，这一范围可以通过非平衡分子动力学模拟实现。因此，通过非平衡分子动力学模拟计算得到的 MoS_2 的 k_P 在定性上与实验观测一致。

扭转 MoS_2 的热导率各向异性比

最后，我们讨论层间扭转角对面外（k_{CP}）和面内（k_{IP}）方向热导率各向异性比的影响。面外各向异性比定义为 $\eta_{\perp} = k_{IP}/k_{CP}$，面内各向异性比定义为 $\eta_{\parallel} = k_{IP}^{max}/k_{IP}^{min}$，其中 k_{IP}^{max} 和 k_{IP}^{min} 分别为面内热导率的最大值和最小值。在计算各向异性比之前，我们先比较已报道的双层扭转 MoS_2, 的面内热导率结果，如**图5a**所示。Mandal等[40] 采用 Müller-Plathe 方法进行的非平衡分子动力学模拟结果表明，随着扭转角增大，MoS_2 的 k_{IP} 先减小后增大；而 Nie等[17]利用 LJ 势得到的 k_{IP} 则呈现“*w*形”的扭转角依赖性。我们的基于 ILP 的非平衡分子动力学模拟显示，面内热导率对扭转角的依赖性较弱，这与近期实验数据一致（见**图5a**）。上述结果表明，层状材料的预测热输运性质对模拟方案和所采用的层间力场十分敏感，因此应进行仔细的基准测试，以获得可靠结果。[35]

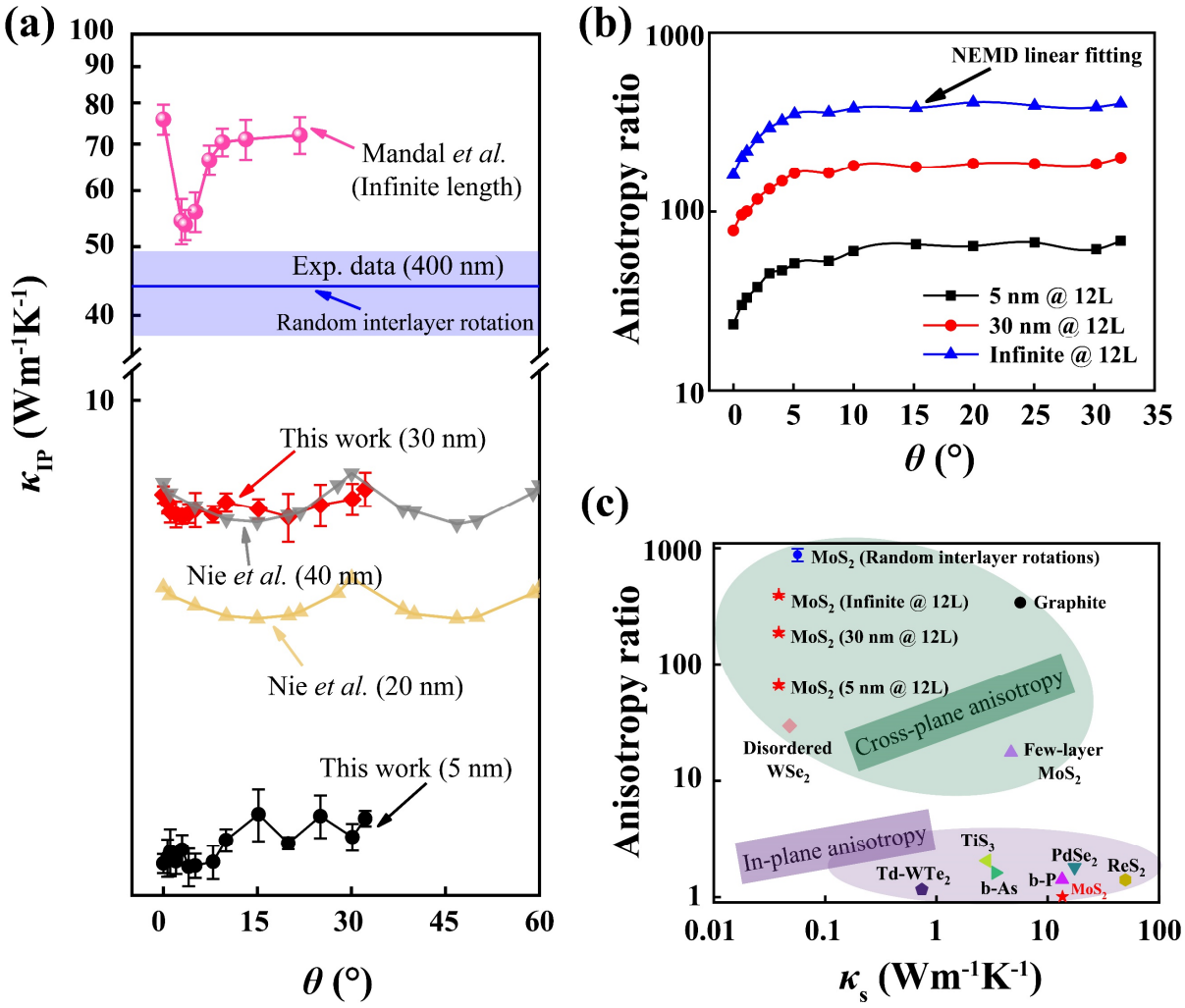


图 5. (a) 双层 MoS_2 的面内热导率随扭转角度的变化依赖关系

角。模拟数据取自参考文献17的图8和参考文献40的图2；实验结果则通过时域热反射法（TDTR）测量，测量对象为具有随机层间旋转的多层 MoS_2。[37] （b）根据我们的非平衡分子动力学模拟计算得到的12层 MoS_2 堆叠结构在不同扭转角下的热导率各向异性比。（c）不同各向异性热导体的各向异性比比较：ρ （y轴）、κ_s （x轴），其中κ_s 表示沿热流最慢方向的热导率。面内热导率各向异性比数据包括 Td-WTe_2,[61]、三硫化钛（TiS_3）、[62] 黑砷（b-As）、[63] 黑磷（b-P）、[64] 五边形 $PdSe_2$,[65]、二硫化铼（ReS_2）、[66] 以及扭转 MoS_2（我们的结果，见**图 S6**）。热导率各向异性比数据包括随机扭转的 MoS_2,[37] 、无序

WSe_2,[67] 少层 MoS_2,[53] 和石墨。[68]

图 5b展示了使用不同尺寸的非平衡分子动力学模拟计算得到的扭转 MoS_2 的面外热导率各向异性比。结果显示，该比值明显依赖于扭转角和尺寸（增强 ~3 倍），这分别源于 $_{CP}$ 的扭转角依赖性和$_{IP}$的尺寸依赖性。对于后一种情况，我们考虑了无限长度极限下由外推热导率 k_P 得到的各向异性比（见**图 5b**中的蓝色三角形）。结果清楚地表明，扭转工程能够有效调控 MoS_2的各向异性比。此外，我们将扭转 MoS_2的各向异性比ρ 与文献中报道的各种热导体的数值进行了比较。如**图 5c**所示，根据我们的模拟，扭转 MoS_2 的面内各向异性比接近 1，这与各种热导体的实验测量结果一致（该比值几乎都不超过 2）。而对于面外热导率各向异性比，我们发现扭转 MoS_2 的数值最高可达 400（对应**图 5c**中的“12 层无限大”），与世界纪录处于同一量级（~900）。[37] 与无序层状 WSe_2 （$\rho \approx 30$）[67] 和块体 MoS_2 （$\rho \approx 20$）相比，[53] 扭转 MoS_2 具有更大的ρ ，因为层间旋转会显著降低面外热导率，却对优异的面内热传输特性影响甚微。我们的结果表明，通过调节热流方向，扭转 MoS_2 堆叠结构可用作优异的热导体或热绝缘体。

结论

总之，我们基于采用最先进力场的非平衡分子动力学模拟，系统研究了均匀扭转 MoS_2 范德华结构的面外和面内热输运性质。面外热导率对扭转角表现出显著依赖性，而面内热导率则不受其影响。面外和面内热导率均表现出显著的尺寸效应，其体相极限分别为 ~0.24 和 ~15.1 $Wm^{-1}K^{-1}$。前者与近期实验测量结果（~0.27 $Wm^{-1}K^{-1}$）接近，表明为 MoS_2开发的层间力场具有较高精度。面内与面外热导率之间的巨大差异（比值最高可达 400）表明，扭转 MoS_2 范德华结构具有高度各向异性的热输运性质，并且该性质也显著依赖于扭转角。因此，我们认为扭转工程是一种有效且具有普适性的手段，可用于降低面外热导率，并有望调控各种二维材料的各向异性热性质。

方法

构建扭转 MoS_2 的公度结构。对于双层扭转 MoS_2，，超晶格仅在某些特殊角度下严格周期性，因为莫尔干涉图样无法与一般晶格周期完全匹配。这里，我们将底部 MoS_2 层的原始晶格矢量定义为 $_1 = (1,0)$ 和 $_2 = 1/2, \sqrt{3}/2$，其中 为单层 MoS_2 的晶格常数。于是，底部 MoS_2 层和顶部 MoS_2 层的晶格矢量分别可表示为 $_1 = ı_1 + ı_2$ 和 $_2 = ı_1 + ȷ_2$，其中 $_1$ 等于 $_2$，$ı_1$, $ı_2$ 和 $ȷ_1$, $ȷ_2$ 为整数。因此，精确的超晶格周期为：[69]

$$L = |i_1\boldsymbol{a}_1 + i_2\boldsymbol{a}_2| = a\sqrt{i_1^2 + i_2^2 + i_1 i_2} = \frac{|i_1 - i_2|a}{2\sin(\theta/2)} \quad (2)$$

其中，界面扭转角 θ等于两个晶格矢量之间的夹角$\boldsymbol{L}_1$ 和$\boldsymbol{L}_2$。在构建扭转 MoS_2, 的公度结构时，我们始终旋转超胞，使其晶格矢量为$\boldsymbol{L}_1 = L(1,0)$和$\boldsymbol{L}_2 = L\left(1/2, \sqrt{3}/2\right)$。用于构建具有各种界面扭转角的周期性超胞的参数可从文献 35 中提取。

用于计算热导率的非平衡分子动力学模拟。为计算扭转 MoS_2 的面外热导率（见 **图 1b**），所有方向均采用周期性边界条件，运动方程的积分时间步长设为 0.5 fs。采用时间常数为 0.25 ps 的 Nosé–Hoover 恒温器[70, 71] 来维持稳定的温度。我们首先在温度为 T = 300K、压力为零的 NPT 系综中对系统进行 500 ps 的平衡，以弛豫模拟盒，尽量减小残余应力的影响（见 **图 S4**）。热平衡后，在底层和中间层分别设置热源（T = 375 K）和热汇（T= 225 K），以建立温度梯度，并采用 Langevin 恒温器方法[72, 73] 。随后将系统切换至 NVE 系综，再平衡 750 ps。利用最后 500 ps 的分子动力学数据计算扭转 MoS_2 的面外热导率，并使用以 50 ps 为时间间隔计算得到的十组不同数据来估算统计误差。**图 1c**展示了用于研究面内热导率的双层 MoS_2 模型。在 x方向（锯齿型）和 z方向施加收缩包裹边界条件，在y方向（扶手椅型）施加周期性边界条件。双层 MoS_2 沿x方向划分为 N个薄层，并固定两端的薄层以模拟绝热壁。

为获得稳态系统，模型在 Nosé–Hoover 恒温器[70, 71] 中以 300 K 平衡 300 ps。随后，在与固定薄层相邻的热源区和热汇区，将系统分别耦合至 350 K 和 250 K 的 NVT 系综，以获得其他薄层中的温度分布，并在内部区域采用 NVE 系综。双层 MoS_2 的非平衡分子动力学模拟进行 2 ns。在获得稳态非-

模型中的平衡温度分布，即当温度梯度表明系统已经充分弛豫并达到稳态时（见 **图 S7**），随后即可根据热流方向上的一维傅里叶定律计算总热导率，如下所示：

$$\kappa_{\mathrm{tot}} = \frac{\dot{Q}/A}{dT/\mathrm{d}L} \tag{3}$$

其中，A为横截面积，$\dot{}$ 为计算得到的热流，d/d为沿热流方向的有效温度梯度。计算横截面积时，假设单层 MoS_2 的厚度为 0.621 纳米。根据卡皮查热阻的定义，[74] 界面热阻可计算为：[35]

$$\left(\frac{N}{2}-3\right)R_{\mathrm{AA}'} + R_{\theta} = \left[\left(\frac{N}{2}-3\right)d_{\mathrm{AA}'} + d_{\theta}\right]/\kappa_{\mathrm{CP}} \tag{4}$$

其中，$_{\theta}$ 为两个相邻 MoS_2 扭转层之间的层间距，N为整个体系的层数。对于 AA‘堆垛体系（$\theta = 0°$），$_{\mathrm{AA}'}$ 等于θ。

谱热流计算。为定量阐明扭转角对声子热输运的作用，研究了穿过扭转界面的谱热流分解。粒子间谱热流定义为：[55, 56]

$$q_{i\to j}(\omega) = -\frac{2}{\omega t_{\mathrm{sim}}}\sum_{\alpha,\beta\in\{x,y,z\}} \mathrm{Im}\left\langle \hat{v}_i^{\alpha}(\omega) * K_{ij}^{\alpha\beta}\hat{v}_j^{\beta}(\omega)\right\rangle, \tag{5}$$

其中，为声子频率，$_{\mathrm{sim}}$ 为总模拟时间。$_i^{\alpha}()$和$_j^{\beta}()$分别表示原子i沿α 方向和原子j沿β方向的傅里叶变换原子速度。$_{ij}^{\alpha\beta}$ 表示谐性原子间力常数矩阵。〈·〉表示系综平均，由于遍历性，假设其等于时间平均。我们使用 Python 代码通过有限位移法计算力常数，该代码已公开发布。[75] 原子i分别沿 ±x、 ±y和 ±z

方向移动一个较小的位移量Δ = 0.01 Å（其余所有原子保持在弛豫后的位置）。在每个原子沿三个方向完成位移后，可按如下方式计算力常数：

$$K_{ij}^{\alpha\beta} = \frac{F_j^{\beta-} - F_j^{\beta+}}{2\Delta} \tag{6}$$

其中，$_j^{\beta-}$ 和$_j^{\beta+}$ 分别表示当原子i沿-α 和+α 方向位移时，原子j在β方向上的力。将扭转界面中所有原子对的声子谱热导求和，再除以温差（Δ）和横截面积（A），即可得到声子谱热导()：

$$G(\omega) = \frac{1}{A\Delta T}\sum_{i\in L}\sum_{j\in R} q_{i\to j}(\omega) \tag{7}$$

在模型中部选取两个相邻区域，分别作为“L”组和“R”组。根据声子谱热导()，我们还计算了面内谱分解热导率：

$$\kappa(\omega) = G(\omega)\cdot L \tag{8}$$

因此，将不同频率下的值求和，$\kappa(\omega)$即可通过 SHC 方法计算对应长度L的热导率 k：

$$\kappa_{\mathrm{tot}} = \int_0^{\infty} \frac{d\omega}{2\pi}\kappa(\omega) \tag{9}$$

致谢

作者感谢国家自然科学基金委员会（编号：12102307）、湖北省自然科学基金（2021CFB138）、武汉大学启动基金、中华人民共和国科学技术部国家重点研发计划（项目编号：2022YFA1203100）以及香港研究资助局（项目编号：AoE/P-701/20）的支持。

参考文献

1. Cao, Y.; Chowdhury, D.; Rodan-Legrain, D.; Rubies-Bigorda, O.; Watanabe, K.; Taniguchi, T.; Senthil, T.; Jarillo-Herrero, P.，具有接近普朗克耗散的魔角石墨烯中的奇异金属。《物理评论快报》2020，124（7），076801。2. Cao, Y.; Fatemi, V.; Demir, A.; Fang, S.; Tomarken, S. L.; Luo, J. Y.; Sanchez-Yamagishi, J. D.; Watanabe, K.; Taniguchi, T.; Kaxiras, E.; Ashoori, R. C.; Jarillo-Herrero, P.，魔角石墨烯超晶格半填充状态下的关联绝缘体行为。《自然》2018，556（7699），80-84。3. Cao, Y.; Fatemi, V.; Fang, S.; Watanabe, K.; Taniguchi, T.; Kaxiras, E.; Jarillo-Herrero, P.，魔角石墨烯超晶格中的非常规超导性。《自然》2018，556（7699），43-50。4. Mandelli, D.; Ouyang, W.; Urbakh, M.; Hod, O.，公主与纳米豌豆：表面畸变向层状材料堆垛中的长程渗透。《ACS Nano》2019，13（7），7603-7609。5. Ouyang, W.; Hod, O.; Urbakh, M.，石墨烯/h- BN异质结构中的宇称依赖莫尔超晶格：通往力学可变超材料的路径。《物理评论快报》2021，126（21），216101。6. Hod, O.，刚性层状材料中的层间公度性与超润滑。《物理评论B》2012，86（7），075444。7. Mandelli, D.; Ouyang, W.; Hod, O.; Urbakh, M.，超润滑石墨-六方氮化硼异质结中的负摩擦系数。《物理评论快报》2019，122（7），076102。8. Wang, W.; Shen, J.; He, Q. C.，不同扭转角下石墨的微尺度超润滑。《物理评论B》2019，99（5），054103。9. Liu, C.; Li, Z.; Qiao, R.; Wang, Q.; Zhang, Z.; Liu, F.; Zhou, Z.; Shang, N.; Fang, H.; Wang, M.; Liu, Z.; Feng, Z.; Cheng, Y.; Wu, H.; Gong, D.; Liu, S.; Zhang, Z.; Zou, D.; Fu, Y.; He, J.; Hong, H.; Wu, M.; Gao, P.; Tan, P.-H.; Wang, X.; Yu, D.; Wang, E.; Wang, Z.-J.; Liu, K.，任意扭转角大面积双层石墨烯的定向生长。《自然·材料》2022，21（11），1263-1268。10. Liao, M.; Wei, Z.; Du, L.; Wang, Q.; Tang, J.; Yu, H.; Wu, F.; Zhao, J.; Xu, X.; Han, B.; Liu, K.; Gao, P.; Polcar, T.; Sun, Z.; Shi, D.; Yang, R.; Zhang, G.，大面积MoS_2 同质结构中层间扭转角的精确控制。《自然·通讯》2020，11（1），2153。11. Jorio, A.，扭转电子学与小角度魔角。《自然·材料》2022，21（8），844-845。12. Das, S.; Sebastian, A.; Pop, E.; McClellan, C. J.; Franklin, A. D.; Grasser, T.; Knobloch, T.; Illarionov, Y.; Penumatcha, A. V.; Appenzeller, J.; Chen, Z.; Zhu, W.; Asselberghs, I.; Li, L.-J.; Avci, U. E.; Bhat, N.; Anthopoulos, T. D.; Singh, R.，用于未来集成电路的二维材料晶体管。《自然·电子学》2021，4（11），786-799。13. Yalon, E.; McClellan, C. J.; Smithe, K. K. H.; Munoz Rojo, M.; Xu, R. L.; Suryavanshi, S. V.; Gabourie, A. J.; Neumann, C. M.; Xiong, F.; Farimani, A. B.; Pop, E.，单层MoS_2 电子器件中的能量耗散。《纳米快报》2017，17（6），3429-3433。14. Tran, V.-T.; Vu, T.-T.; Dollfus, P.; Saint-Martin, J.; Pala, M.，扭转层石墨纳米纤维的热导。《Carbon》2023，204，601-611。15. Wang, M.-H.; Xie, Y.-E.; Chen, Y.-P.，扭转少层石墨烯中的热输运。《中国物理B》2017，26（11），116503。16. Nie, X.; Zhao, L.; Deng, S.; Zhang, Y.; Du, Z.，层间扭转角如何影响多层石墨烯的面内和面外热传导：非平衡分子动力学研究。《国际传热与传质杂志》2019，137，161-173。17. Nie, X.; Xue, J.; Zhao, L.; Deng, S.; Xiong, H.，通过扭转角调控双层和三层二硫化钼热电材料的晶格热导率。

《国际传热与传质杂志》2022, 194, 123005。18. Li, Y.; Wu, F.; Zhang, H.; Wei, W.; Jiang, H.; Deng, C.，石墨烯/MoS_2 异质结界面热导的电调控：揭示电子的作用。《Carbon》2023, 203, 571-579。19. Li, X.; Zhang, J.; Puretzky, A. A.; Yoshimura, A.; Sang, X.; Cui, Q.; Li, Y.; Liang, L.; Ghosh, A. W.; Zhao, H.; Unocic, R. R.; Meunier, V.; Rouleau, C. M.; Sumpter, B. G.; Geohegan, D. B.; Xiao, K.，二维MoS_2热导率的同位素工程。《ACS Nano》2019, 13 (2), 2481-2489。20. Fugallo, G.; Cepellotti, A.; Paulatto, L.; Lazzeri, M.; Marzari, N.; Mauri, F.，石墨烯和石墨的热导率：集体激发与平均自由程。《纳米快报》2014, 14 (11), 6109-14。21. Chen, X. K.; Pang, M.; Chen, T.; Du, D.; Chen, K. Q.，非对称石墨烯/六方氮化硼范德华异质结构中的热整流。《ACS应用材料与界面》2020, 12 (13), 15517-15526。22. Yang, Y.; Ma, J.; Yang, J.; Zhang, Y.，石墨烯/六方氮化硼范德华异质结构面内热导率的分子动力学模拟。《ACS应用材料与界面》2022, 14 (40), 45742-45751。23. Ma, S.; Liu, N.; Qin, C.; Jiao, Z.，碳空位诱导的强声子模式促进SiC/MoS_2 异质结构中的空穴转移。《应用表面科学》2023, 617, 156554。24. Wu, X.; Han, Q.，多层石墨烯/六方氮化硼范德华异质结构中的声子热输运。《ACS应用材料与界面》2021, 13 (27), 32564-32578。25. Zeng, B.; Ding, Z.-K.; Pan, H.; Luo, N.; Zeng, J.; Tang, L.-M.; Chen, K.-Q.，双层石墨烯中强应变依赖的声子流体动力学窗口。《应用物理快报》2022, 121 (25), 252202。26. Ding, Z.; Pei, Q.-X.; Jiang, J.-W.; Zhang, Y.-W.，通过晶格缺陷与应变工程调控单层MoS_2 的热导率。《物理化学杂志C》2015, 119 (28), 16358-16365。27. Chen, J.; Walther, J. H.; Koumoutsakos, P.，少层石墨烯中卡皮查热阻的应变工程。《纳米快报》2014, 14 (2), 819-25。28. Li, H.; Ying, H.; Chen, X.; Nika, D. L.; Cocemasov, A. I.; Cai, W.; Balandin, A. A.; Chen, S.，扭转双层石墨烯的热导率。《Nanoscale》2014, 6 (22), 13402-8。29. Liu, W.; Hong, Y.; Zhang, J.; Yue, Y.，扭转双层石墨烯中的各向异性热输运。《物理化学化学物理》2022, 24 (36), 21722-21728。30. Li, C.; Debnath, B.; Tan, X.; Su, S.; Xu, K.; Ge, S.; Neupane, M. R.; Lake, R. K.，错取向双层石墨烯中依赖公度晶格常数的热导率。《Carbon》2018, 138, 451-457。31. Han, S.; Nie, X.; Gu, S.; Liu, W.; Chen, L.; Ying, H.; Wang, L.; Cheng, Z.; Zhao, L.; Chen, S.，单晶双层石墨烯中依赖扭转角的热传导。《应用物理快报》2021, 118 (19), 193104。32. Ren, W.; Chen, J.; Zhang, G.，扭转二维材料中的声子物理。《应用物理快报》2022, 121 (14), 140501。33. Cheng, Y.; Fan, Z.; Zhang, T.; Nomura, M.; Volz, S.; Zhu, G.; Li, B.; Xiong, S.，扭转双层石墨烯热导率中的魔角。《今日材料：物理》2023。34. Zhang, Y.; An, M.; Song, D.; Fan, A.; Chen, D.; Wang, H.; Ma, W.; Zhang, X.，二维褶皱同质结构中的声子魔角。《材料化学杂志C》2021, 9 (37), 12741-12750。35. Ouyang, W.; Qin, H.; Urbakh, M.; Hod, O.，石墨烯与六方氮化硼扭转同质界面中的可调控热导率。《纳米快报》2020, 20 10 7513 7518 ( )，-。36. Ren, W.; Ouyang, Y.; Jiang, P.; Yu, C.; He, J.; Chen, J.，层间旋转的影响

对石墨烯/六方氮化硼范德华异质结构热输运的影响。《纳米快报》2021, 21 (6), 2634-2641。37. Kim, S. E.; Mujid, F.; Rai, A.; Eriksson, F.; Suh, J.; Poddar, P.; Ray, A.; Park, C.; Fransson, E.; Zhong, Y.; Muller, D. A.; Erhart, P.; Cahill, D. G.; Park, J.，极端各向异性的范德瓦耳斯热导体。《自然》2021, 597 (7878), 660-665。38. Sood, A.; Xiong, F.; Chen, S.; Cheaito, R.; Lian, F.; Asheghi, M.; Cui, Y.; Donadio, D.; Goodson, K. E.; Pop, E.，MoS_2 薄膜中的准弹道热输运。《纳米快报》2019, 19 (4), 2434-2442。39. Xu, K.; Gabourie, A. J.; Hashemi, A.; Fan, Z.; Wei, N.; Farimani, A. B.; Komsa, H.-P.; Krasheninnikov, A. V.; Pop, E.; Ala-Nissila, T.，使用不同经验势进行分子动力学模拟研究 MoS_2 中的热输运。《物理评论B》2019, 99 (5), 054303。40. Mandal, S.; Maity, I.; Das, A.; Jain, M.; Maiti, P. K.，可调控的扭转双层MoS_2晶格热导率。《物理化学化学物理》2022, 24 (22), 13860-13868。41. Ouyang, W.; Sofer, R.; Gao, X.; Hermann, J.; Tkatchenko, A.; Kronik, L.; Urbakh, M.; Hod, O.，过渡金属二硫属化物的各向异性层间力场：以二硫化钼为例。《化学理论与计算杂志》2021, 17 (11), 7237-7245。42. Plimpton, S.，短程分子动力学的快速并行算法。《计算物理学杂志》1995, 117, 1-19。43. Liang, T.; Phillpot, S. R.; Sinnott, S. B.，Mo–S体系反应性多体势的参数化。《物理评论B》2009, 79 (24), 245110。44. Jiang, J.-W.，过渡金属二硫属化物横向异质结构的失配应变诱导屈曲：分子动力学研究。《固体力学学报》2018, 32 (1), 17-28。45. Saleta Reig, D.; Varghese, S.; Farris, R.; Block, A.; Mehew, J. D.; Hellman, O.; Wozniak, P.; Sledzinska, M.; El Sachat, A.; Chavez-Angel, E.; Valenzuela, S. O.; van Hulst, N. F.; Ordejon, P.; Zanolli, Z.; Sotomayor Torres, C. M.; Verstraete, M. J.; Tielrooij, K. J.，揭示悬空$MoSe_2$ 中的热输运与耗散：从块体到单层。《先进材料》2022, 34 (10), e2108352。46. Zhang, H.; Chen, X.; Jho, Y. D.; Minnich, A. J.，石墨沿C轴方向热声子的依赖温度的平均自由程谱。《纳米快报》2016, 16 (3), 1643-9。47. Chen, J.; Xu, X.; Zhou, J.; Li, B.，界面热阻：过去、现在与未来。《现代物理评论》2022, 94 (2), 025002。48. Liang, T.; Zhou, M.; Zhang, P.; Yuan, P.; Yang, D.，多层面内石墨烯/六方氮化硼异质结构：对界面热输运性质的认识。《国际传热与传质杂志》2020, 151, 119395。49. Yao, Y.; Ren, G.; Yu, Y.; Che, J.; Liang, T.; Li, L.; Liu, Y.; Yang, F.; Zhao, X.，具有玻璃态热导率的铁弹性Zr-Y-Yb-Ta-Nb-O高熵氧化物的热传导机制。《美国陶瓷学会杂志》2022, 105 (6), 4360-4374。50. Xu, K.; Deng, S.; Liang, T.; Cao, X.; Han, M.; Zeng, X.; Zhang, Z.; Yang, N.; Wu, J.，Mo_6S_6 纳米线声子热导率的高效机械调制。《Nanoscale》2022, 14 (8), 3078-3086。51. Sledzinska, M.; Quey, R.; Mortazavi, B.; Graczykowski, B.; Placidi, M.; Saleta Reig, D.; Navarro-Urrios, D.; Alzina, F.; Colombo, L.; Roche, S.; Sotomayor Torres, C. M.，多晶MoS_2 薄膜的创纪录低热导率：通过晶粒取向调控热导率。《ACS应用材料与界面》2017, 9 (43), 37905-37911。52. Liu, J.; Choi, G.-M.; Cahill, D. G.，利用时间分辨磁光克尔效应测量二硫化钼的各向异性热导率。《应用物理学杂志》2014, 116 (23), 233107。53. Jiang, P.; Qian, X.; Gu, X.; Yang, R.，利用时域热反射测量探测过渡金属二硫属化物MX_2 （M = Mo、W，X = S、Se）的各向异性热导率。《先进材料》2017, 29 (36), 1701068。54. Zheng, X.; Zhao, C. Y.; Gu, X.，MoS_2/$MoSe_2$ 异质结构的热导率：

晶格失配、层间旋转和物种混合的作用。《国际传热与传质杂志》2019年，143，118583。55. Sääskilahti, K.; Oksanen, J.; Tulkki, J.; Volz, S.，平面界面光谱分解热导中的非谐声子散射作用。《物理评论B》2014年，90 13 134312( )，。56. Sääskilahti, K.; Oksanen, J.; Volz, S.; Tulkki, J.，通过非平衡分子动力学研究碳纳米管中频率相关的声子平均自由程。《物理评论B》2015年，91 11 115426( )，。57. Xiong, S.; Saaskilahti, K.; Kosevich, Y. A.; Han, H.; Donadio, D.; Volz, S.，合金基纳米声子超材料中的结构共振阻碍声子输运，从而实现超低热导率。《物理评论快报》2016年，117（2），025503。58. Schelling, P. K.; Phillpot, S. R.; Keblinski, P.，用于计算热导率的原子级模拟方法比较。《物理评论B》2002年，65（14），144306。59. Sellan, D. P.; Landry, E. S.; Turney, J. E.; McGaughey, A. J. H.; Amon, C. H.，分子动力学热导率预测中的尺寸效应。《物理评论B》2010年，81（21），214305。60. Dong, H.; Fan, Z.; Shi, L.; Harju, A.; Ala-Nissila, T.，平衡与非平衡分子动力学热导率计算方法的等效性：从块体到硅纳米线。《物理评论B》2018年，97（9），094305。61. Chen, Y.; Peng, B.; Cong, C.; Shang, J.; Wu, L.; Yang, W.; Zhou, J.; Yu, P.; Zhang, H.; Wang, Y.; Zou, C.; Zhang, J.; Liu, S.; Xiong, Q.; Shao, H.; Liu, Z.; Zhang, H.; Huang, W.; Yu, T.，少层过渡金属二硫属化物Td-WTe_2的面内各向异性热导率。《先进材料》2019年，31（7），e1804979。62. Liu, H.; Yu, X.; Wu, K.; Gao, Y.; Tongay, S.; Javey, A.; Chen, L.; Hong, J.; Wu, J.，热载光学声子导致三硫化钛中极端的面内热导各向异性。《纳米快报》2020年，20（7），5221-5227。63. Chen, Y.; Chen, C.; Kealhofer, R.; Liu, H.; Yuan, Z.; Jiang, L.; Suh, J.; Park, J.; Ko, C.; Choe, H. S.; Avila, J.; Zhong, M.; Wei, Z.; Li, J.; Li, S.; Gao, H.; Liu, Y.; Analytis, J.; Xia, Q.; Asensio, M. C.; Wu, J.，黑砷：一种具有极端面内各向异性的层状半导体。《先进材料》2018年，30（30），e1800754。64. Lee, S.; Yang, F.; Suh, J.; Yang, S.; Lee, Y.; Li, G.; Sung Choe, H.; Suslu, A.; Chen, Y.; Ko, C.; Park, J.; Liu, K.; Li, J.; Hippalgaonkar, K.; Urban, J. J.; Tongay, S.; Wu, J.，温度高于100 K时黑磷纳米带的面内各向异性热导率。《自然·通讯》2015年，6，8573。65. Wei, B.; Liu, J.; Cai, Q.; Alatas, A.; said, A. H.; Hu, M.; Li, C.; Hong, J.，五边形$PdSe_2$中反常声子导致的巨大面内各向异性热传导。《今日材料：物理》2022年，22，100599。66. Jang, H.; Ryder, C. R.; Wood, J. D.; Hersam, M. C.; Cahill, D. G.，剥离二硫化铼的三维各向异性热导率。《先进材料》2017年，29（35），1700650。67. Chiritescu, C.; Cahill, D. G.; Nguyen, N.; Johnson, D.; Bodapati, A.; Keblinski, P.; Zschack, P.，无序层状WSe_2 晶体中的超低热导率。《科学》2007年，315（5810），351-353。68. Ho, C. Y.; Powell, R. W.; Liley, P. E.，元素的热导率。《物理化学参考数据杂志》1972年，1（2），279-421。69. Nam, N. N. T.; Koshino, M.，扭转双层石墨烯中的晶格弛豫和能带调制。《物理评论B》2017年，96（7），075311。70. Nosé, S.，恒温分子动力学方法的统一表述。《化学物理杂志》1984年，81（1），511-519。71. Hoover, W. G.，正则动力学：平衡相空间分布。《物理评论A：普通物理》1985年，31（3），1695-1697。72. Lepri, S.，经典低维晶格中的热传导。《物理报告》2003年，

377 (1), 1-80. 73. Dhar, A, 《低维系统中的热输运》。《物理学进展》**2008,** *57* (5), 457-537. 74. Pollack, G. L., 《卡皮查热阻》。《现代物理评论》**1969,** *41* (1), 48-81. 75. 参见 Https://Github.Com/Tingliangstu/New-Version-Spectral-Decomposition-Python-Tools 我们使用的 Shc 代码。**2022年**。

补充信息：

均质 MoS_2 堆叠结构中的扭转角依赖的各向异性热导率

Wenwu Jiang[1#]、Ting Liang[2#]、Jianbin Xu[2], Wengen Ouyang[1*]

[1]武汉大学工程力学系、土木工程学院，中国湖北武汉 430072[2]香港中文大学电子工程系和材料科学与技术研究中心，中国香港特别行政区新界沙田 999077，中华人民共和国

#: 这些作者贡献相同。*电子邮箱：
w.g.ouyang@whu.edu.cn（W. Ouyang）

关键词： 扭转工程；二硫化钼；各向异性界面热输运；堆垛构型依赖的层间势；分子动力学模拟

本补充信息文档包含以下章节：1. 使用 ILP 和 Lennard-Jones 势计算的声子谱比较 2. 层内势对扭转 MoS_2 堆叠结构 k_2 的影响 3. 收敛性测试 4. 根据非平衡分子动力学模拟外推体相极限下的 k_{inP} 5. 双层 MoS_2 的面内各向异性热导率 6. 温度分布

1. 使用 ILP 和 Lennard-Jones 势计算的声子谱比较

恰当地描述范德华相互作用，能够更准确地再现块体 MoS_2 的低频声子色散，这对于研究面外热输运性质非常重要。为了比较两种不同层间力场（ILP[1] 和 Lennard-Jones（LJ）[2] 势）的准确性，我们分别使用 REBO+ILP 和 REBO+LJ 力场计算了未扭转块体 MoS_2 的声子谱。这里，钼-钼、钼-硫和硫-硫的 LJ 参数（σ 和 ε）取自通用力场（UFF），[2] 具体列于**表 S1**，可用于描述两个 MoS_2 层之间的层间耦合。**图 S1a** 展示了计算所得的声子谱曲线；然而，层间势主要影响低能面外分支的色散（见**图 S1b**）。我们发现，与 ILP 相比，LJ 势显著低估了面外声子能量，而 REBO+ILP 计算得到的声子谱与实验数据吻合良好。本节结果支持使用 ILP 计算面外热导率的可靠性。

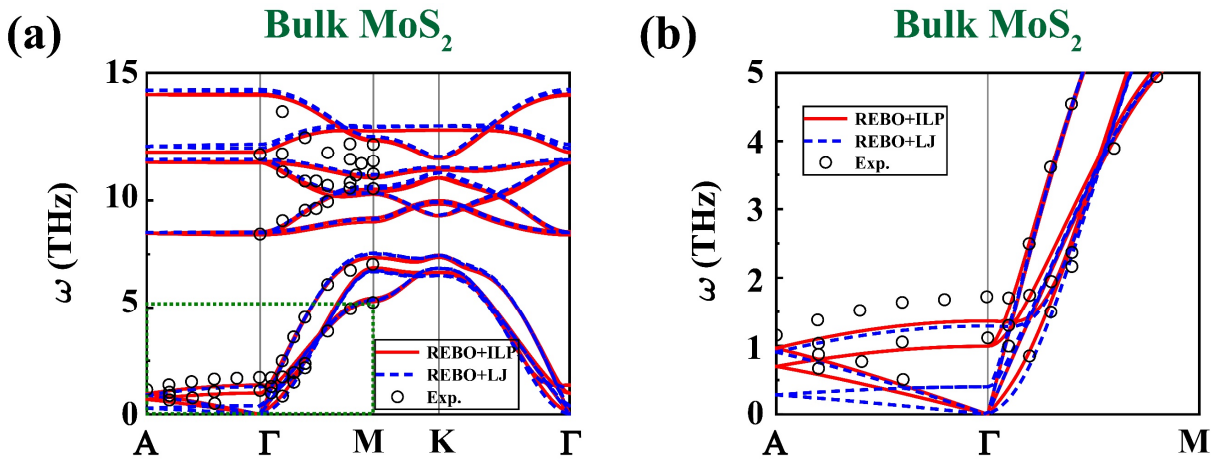


图 S1. (a) 块体 MoS_2 的声子谱。红色实线和块体虚线分别表示使用 REBO + ILP 和 REBO + LJ 力场计算得到的色散曲线。黑色圆圈表示块体 MoS_2 的实验结果。[3] (b) 展示了 (a) 图中绿色虚线矩形所示区域的放大图，呈现块体 MoS_2 在 Γ 点附近的低能声子模。

表 S1. MoS_2 层间相互作用的 Lennard-琼斯参数。LJ 参数取自

来自参考文献
2。

	钼-钼	**Mo-S**	**S-S**
σ (Å)	2.719	3.157	3.595
ε（毫电子伏特）	2.428	5.371	1.188

2. 层内势对扭转 MoS_2 堆叠结构κ_{CP} 的影响

准确描述层内相互作用对于研究热输运性质至关重要。正文中，我们仅展示了使用 REBO[4] 势计算得到的 MoS_2面外热导率（CP）结果。然而，SW[5] 势也广泛用于描述 MoS_2 体系中的层内相互作用。为研究层内势对 k_{CP}计算的影响，我们在保持 ILP 不变的情况下，分别使用 REBO 势和 SW 势计算了 k_p 的厚度依赖性和扭转角依赖性。结果如图 S2 所示。图 S2a 显示，使用 REBO 势和 SW 势得到的 MoS_2 体系（$\theta = 0°$）的 k_p 均随厚度增加而单调上升，并呈现出收敛趋势。通过线性外推法得到的无限厚度下拟合 k_{CP}分别为 ~0.24 $Wm^{-1}K^{-1}$ 和 ~0.47 $Wm^{-1}K^{-1}$，对应 REBO 势和 SW 势。使用 SW 势计算得到的 k_p 比使用 REBO 势计算得到的结果高 2 倍。随着扭转角增大，使用 REBO 势和 SW 势得到的扭转 MoS_2 堆叠结构的 k_p 差异显著减小，如图 S2b 所示。

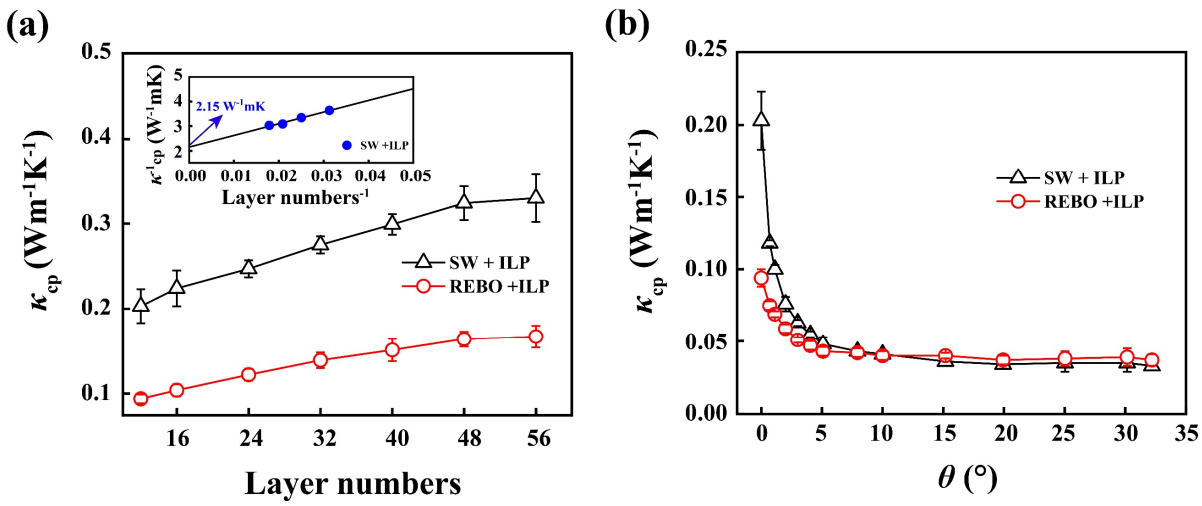
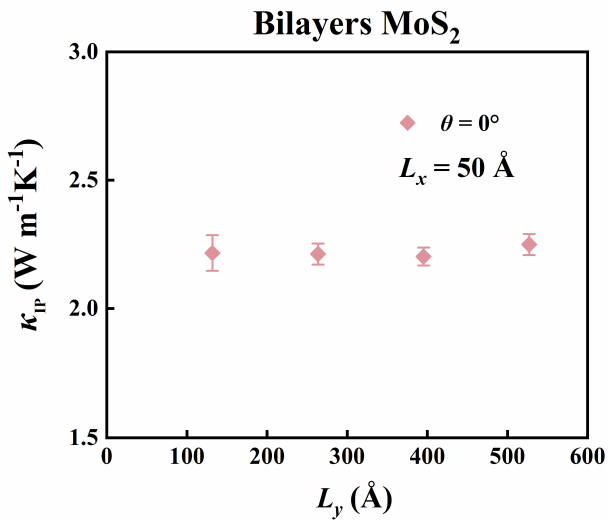


图 S2. MoS_2 体系面外热导率 k_p 的厚度依赖性 (a) 和扭转角依赖性 (b)。红色圆圈和黑色三角形分别表示使用 REBO[4] 势和 SW[5] 势得到的结果。

3. 收敛性测试

3.1 超胞宽度的收敛性测试

在本文正文中，计算未扭转 MoS_2 的面内热导率时，热流沿 x 方向（锯齿型）施加。为评估结果在 y 方向（扶手椅型）长度上的收敛性，我们对 $\theta = 0°$ 的对齐 MoS_2 双层进行了额外计算（见 **图S3**）。对于对齐（$\theta = 0°$）界面，采用扶手椅方向长度分别为 131.8 Å、263.5 Å、395.3 Å 和 527.1 Å 的超胞，同时将 x 方向的长度固定为 50 Å。相应计算得到的热导率分别为 2.217 ± 0.069 $Wm^{-1}K^{-1}$、2.213 ±0.040 $Wm^{-1}K^{-1}$、2.203 ± 0.034 $Wm^{-1}K^{-1}$ 和 2.249 ± 0.040 $Wm^{-1}K^{-1}$。这些结果表明，我们通过非平衡分子动力学模拟得到的扭转 MoS_2 面内热导率不受超胞宽度（扶手椅方向）选择的影响。



图S3。 当热流沿x方向（锯齿型）施加时，平行双层 MoS_2 的面内热导率随y方向（扶手椅型）尺寸的变化。

3.2 关于模拟时间的收敛性测试

为说明所有模型系统的非平衡分子动力学模拟均已达到稳态，我们在**图 S4**中展示了恒温层温度随时间的演化，清楚地表明稳态热流已经建立。我们还发现，恒温层之间的温差随扭转角增大而增大，这归因于界面热阻随扭转角增大而增大。[6]

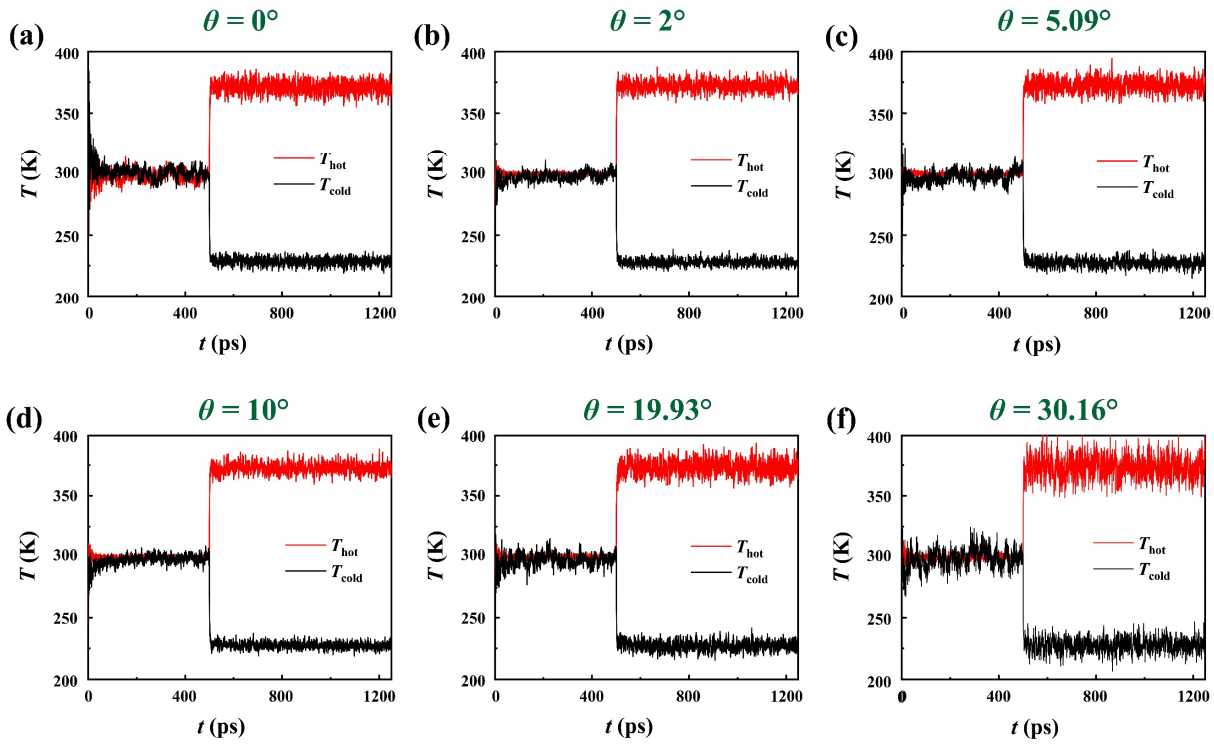


图 S4. 12 层扭转 MoS_2 中恒温层温度随时间的演化

错配角分别为 (a) $\theta = 0°$、(b) $\theta = 2°$、(c) $\theta = 5.09°$、(d) $\theta = 10°$、(e) $\theta = 19.93°$ 和 (f) $\theta = 30.16°$。

4. 通过非平衡分子动力学模拟外推体相极限下的κ_{IP} s

众所周知，非平衡分子动力学计算得到的热导率具有显著的尺寸依赖性，这是因为模拟中的声子平均自由程远大于样品尺寸。为了得到 MoS_2, 面内热导率的尺寸极限，我们采用了最直接的外推方程（见正文中的方程 (1)）。1/k 和 1/L 的拟合结果如**图 S5**所示，得到 $_{\infty}$ = 15.1 ± 1.2 $Wm^{-1}K^{-1}$ 和 = 29.0 ± 3.0 nm。

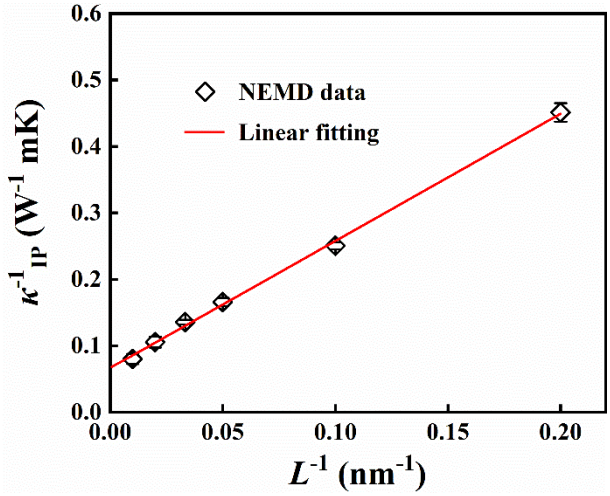


图 S5. 非平衡分子动力学模拟中，面内热导率的倒数 1/k_{IP} 随模拟长度倒数 1/ 的变化关系。通过在 1/L = 0 处进行线性外推，可以获得无限长扭转 MoS_2 的面内热导率。

5. 双层 MoS_2的面内各向异性热导率

本节计算了双层 MoS_2沿不同方向的面内热导率（k_{IP}），以研究其面内各向异性比。**图 S6a**展示了扭转双层 MoS_2 在热流沿*x*和*y*方向流动时的 k_{IP}，样品尺寸分别为 5 纳米和 30 纳米。在*x*和*y*方向上，k_{IP} 均表现出对扭转角极弱的依赖性。此外，面内各向异性比 k_x/k_y 接近 ~1，且几乎不随扭转角变化（**图 S6b**），这表明扭转双层 MoS_2 的面内热输运性质是各向同性的。

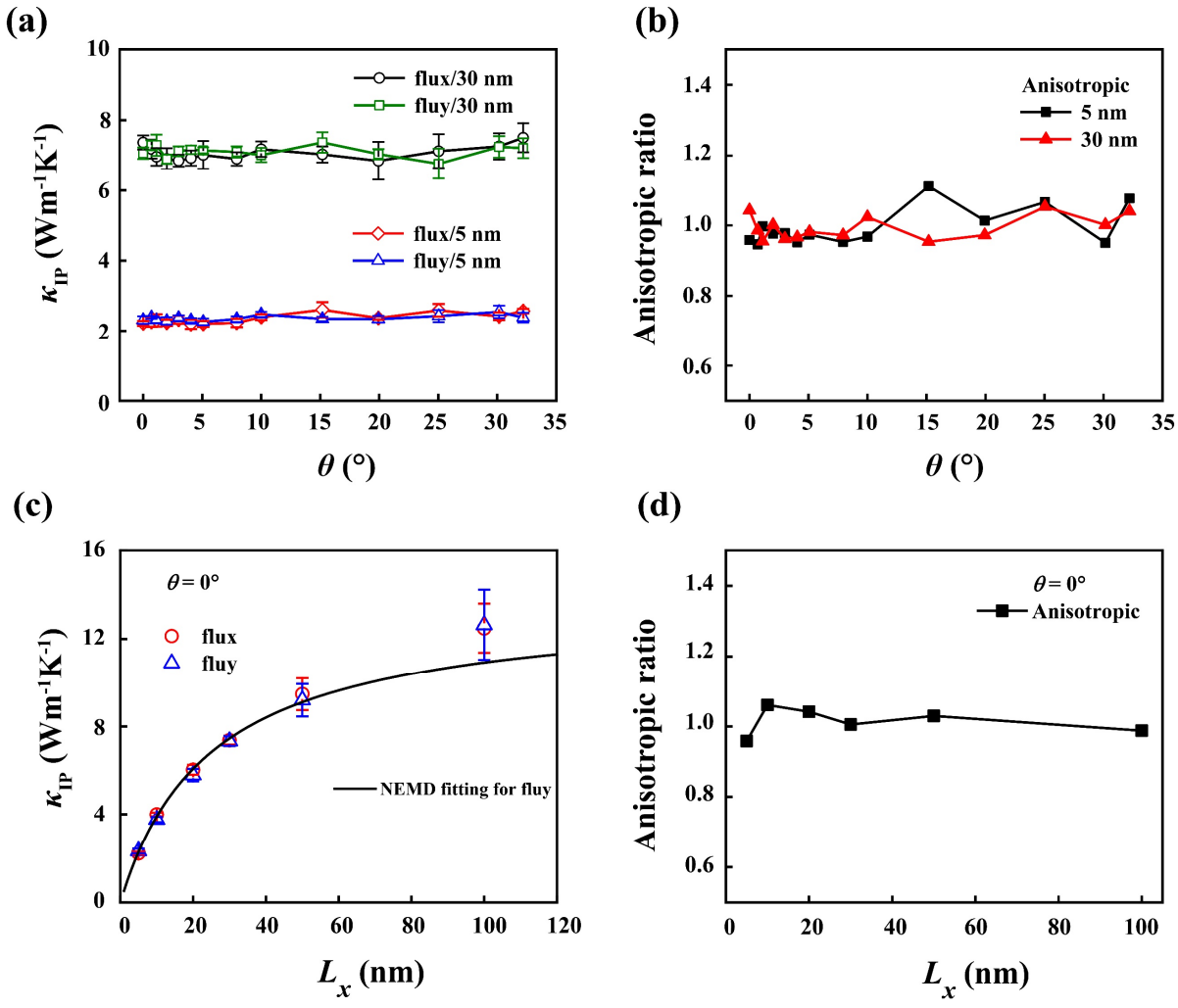


图 S6。（a）　　双层 MoS_2 的面内热导率（k_{IP}）随扭转角的变化。

黑色圆圈和红色菱形表示热流沿 x 方向流动时扭转 MoS_2 的结果，绿色方块和蓝色三角形表示扭转 MoS_2 在

热流沿 y 方向流动时的结果。(b) 面内热导率各向异性比的扭转角依赖性。(c) 相邻层之间扭转角为零时，MoS_2堆叠结构的面内热导率随长度的变化。黑色圆圈和红色三角形分别表示热流沿 MoS_2 晶格的锯齿型（x）和扶手椅型（y）方向流动时，未扭转 MoS_2 堆叠结构的结果。蓝色实线是根据正文中的方程 (1) 对非平衡分子动力学模拟结果（红色三角形）进行外推拟合得到的。(d) 面内热导率各向异性比随长度的变化。

为进一步探究各向异性比的尺寸效应，我们计算了未扭转双层 MoS_2 （$\theta = 0°$）在沿x-（锯齿型）和y-（扶手椅型）方向的所研究长度（$L = 5$ 纳米、10 纳米、20 纳米、30 纳米、50 纳米和 100 纳米）下的 k_P 。如**图S6c**所示，对于相同尺寸，沿x-和y-方向的 k_P 差异很小，因此各向异性较弱（见**图S6d**）。此外，我们还计算了沿扶手椅方向传输热流时的 \u0000∞ ，采用最直接的外推方程（正文中的方程（1）），[7] 对非平衡分子动力学数据进行线性拟合后得到 $\u0000_\infty = 13.6 \pm 0.8\ Wm^{-1}K^{-1}$ 和 $\lambda = 24.9 \pm 2.4$ 纳米。

6. 温度分布

图 S7展示了从多层和双层 MoS_2 体系的非平衡分子动力学模拟中提取的温度分布，用于计算面外（k_{CP}）和面内（k_{IP}）热导率。请注意，仅使用**图 S7**中温度分布的线性区域来计算 k_{CP} 和 k_{IP}。

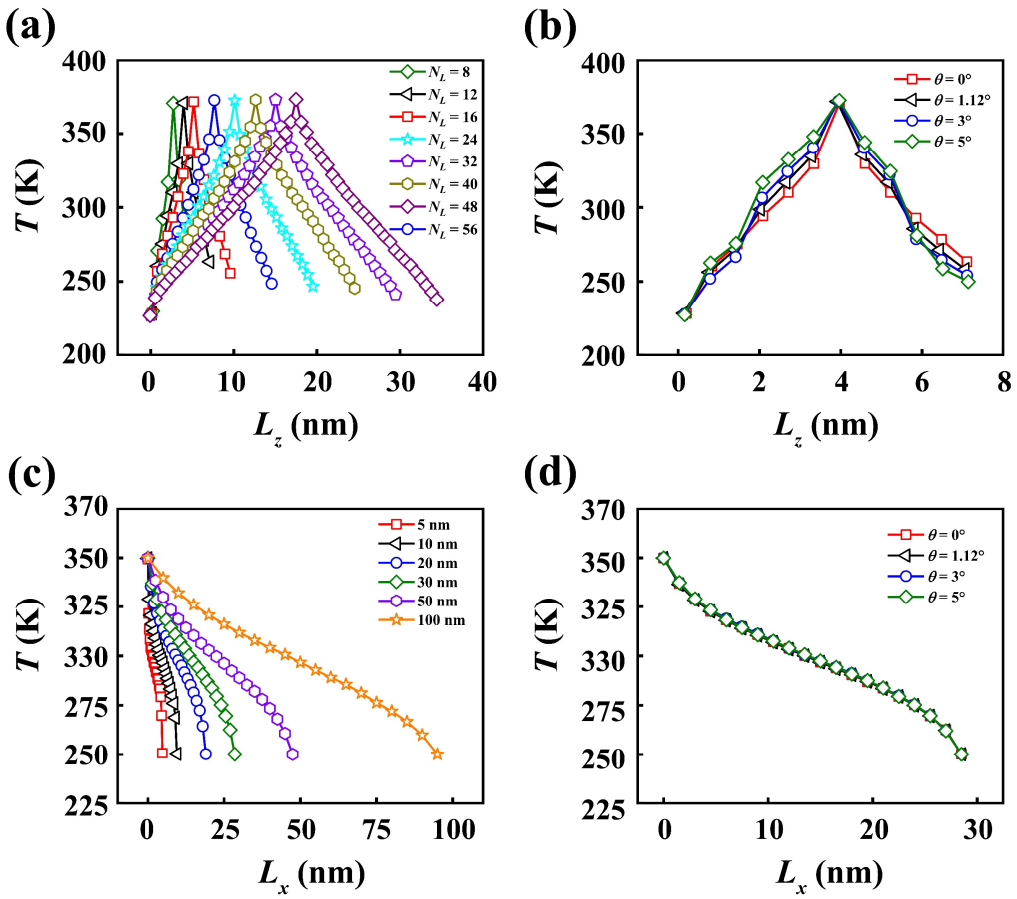


图 S7. 温度　　分布：多层和双层 MoS_2 体系的温度分布。(a) 面外温度不同堆叠厚度下对齐的 MoS_2 体系（θ = 0°）的温度分布。$_L$ 表示体系中的层数。(b) 具有若干典型错配角（θ = 0°、1.12°、 3°和5°）的扭转12层 MoS_2 体系的面外温度。(c) 对齐的双层 MoS_2体系（θ = 0°）在热流方向上具有不同长度（L = 5 纳米、10纳米、20纳米、30纳米、50纳米和100纳米）时的面内温度。(d) 具有若干典型错配角（θ = 0°、1.12°、 3°和5°）的扭转双层 MoS_2 体系的面内温度。

参考文献：

1. Ouyang, W.; Sofer, R.; Gao, X.; Hermann, J.; Tkatchenko, A.; Kronik, L.; Urbakh, M.; Hod, O., 《过渡金属二硫属化物的各向异性层间力场：以二硫化钼为例》。《化学理论与计算杂志》*2021, 17* (11), 7237-7245。2. Rappe, A. K., Casewit, C. J., Colwell, K. S., Goddard, W. A., and Skiff, W. M., 《UFF：用于分子力学和分子动力学模拟的全周期表力场》。《美国化学会志》*1992, 114*, 10024-10035。3. Wakabayashi, N.; Smith, H. G.; Nicklow, R. M., 《通过中子散射研究六方 MoS_2 的晶格动力学》。《物理评论B》*1975, 12* (2), 659-663。4. Liang, T.; Phillpot, S. R.; Sinnott, S. B., 《Mo–S体系反应性多体势的参数化》。《物理评论B》*2009, 79* (24), 245110。5. Jiang, J.-W., 《失配应变诱导过渡金属二硫属化物横向异质结构屈曲：一项分子动力学研究》。《固体力学学报》*2018, 32* (1), 17-28。6. Ouyang, W.; Qin, H.; Urbakh, M.; Hod, O., 《石墨烯和六方氮化硼扭转同质界面中的可调控热导率》。《纳米快报》*2020, 20* (10), 7513- 7518。7. Schelling, P. K.; Phillpot, S. R.; Keblinski, P., 《用于计算热导率的原子级模拟方法比较》。《物理评论B》*2002, 65* (14), 144306。