

专题: 热传导及其相关交叉领域研究

SnS 纳米薄膜厚度和温度依赖性热电性能研究

陈立齐¹⁾ 王子扬¹⁾ 李东皓¹⁾ 王景晔¹⁾ 赵宁²⁾周俊²⁾ 祝捷^{1)†} 唐大伟¹⁾

1) (大连理工大学能源与动力学院, 大连 116000)

2) (南京师范大学物理与科学技术学院, 南京 210023)

(2025 年 12 月 30 日收到; 2026 年 2 月 15 日收到修改稿)

硫化亚锡 (SnS) 作为一种环境友好、成本低廉且储量丰富的窄带隙半导体材料, 在中温热电转换领域展现出巨大的应用潜力. 然而, 其块体材料固有的点缺陷 (如空位) 和特定的能带结构, 在一定程度上限制了其热电性能的进一步提升. 低维化已被证明是改善材料热电性能的有效策略之一. 本工作通过时域热反射法 (TDTR) 和薄膜热电参数测量系统 (ZEM-3), 系统研究了不同厚度 (82 nm, 199 nm, 616 nm 和 813 nm) 的 SnS 纳米薄膜在 300—600 K 温度范围内的热电性能. 结果表明, 薄膜厚度对 SnS 的热电性能具有显著影响. 本工作不仅为优化 SnS 纳米薄膜的热电性能提供了实验依据和理论参考, 而且为开发高效、环保的中温热电材料奠定了基础, 具有重要的科学指导意义和实际应用价值.

关键词: 纳米薄膜, 热电材料, 时域热反射法

DOI: 10.7498/aps.75.20251794

CSTR: 32037.14.aps.75.20251794

1 引言

面对日益严峻的全球能源危机和环境问题, 热电材料因其能够将废热直接转化为电能独特优势, 已成为一种备受关注的可持续能源技术^[1,2]. 作为一种全固态能量转换介质, 热电材料利用内部载流子的定向迁移, 能够实现热能与电能的直接相互转换^[3]. 凭借其独特的转换机制、多功能性以及环境友好性的优势, 热电材料已被广泛应用于如汽车制造产业、太空探测器^[4]、太阳能热系统^[5]以及植入式或可穿戴设备^[6]等前沿领域. 然而, 现有热电材料的转换效率与制备成本仍是制约其大规模商业化应用的关键因素, 因此寻找低成本、高性能的新型热电材料是当前研究的重点^[7-9]. 评估材料热电转换效率的核心指标是无量纲热电优值 (ZT)^[10], 其表达式为

$$ZT = S^2 \sigma T / \kappa, \quad (1)$$

其中, S 是 Seebeck 系数, σ 是电导率, T 是绝对温度, κ 是热导率. 功率因子 PF 通常用来综合表征材料的电输运性能.

$$PF = S^2 \sigma. \quad (2)$$

为了实现高效的热电转换, 理想的热电材料应同时具备高 Seebeck 系数、高电导率和低热导率, 以获得更高的 ZT 值^[11]. 然而, 这些参数之间往往存在强的耦合关系, 例如高电导率通常伴随着高热导率, 这为热电材料的优化带来了挑战^[12].

IV-VI 族半导体材料 (如 GeTe 和 PbTe 等) 因其适宜的带隙宽度和电子结构, 在特定的温度范围内往往表现出较高的 Seebeck 系数和电导率, 因此长期以来是热电研究的重点体系^[13]. 此外, 通过掺杂或合金化等手段, 可以精确调控该族化合物的载流子浓度^[14]和能带结构^[15], 从而进一步优化其电输运性能. 然而, 该类材料中 Te, Ge 等地壳丰度

† 通信作者. E-mail: zhuji@dlut.edu.cn

较低,且Pb具有毒性,限制了其大规模商业应用.近年来,SnSe因其强非谐性、多价带结构以及“三维电荷、二维声子”输运机制而展现出卓越的热电性能,迅速成为了学界的关注焦点^[12].作为SnSe的类似物,SnS不仅具有相同的正交晶系结构和极为相似的能带特征,且S元素储量丰富、环境友好、成本低廉,更符合可持续绿色能源材料的发展方向^[12].同时,SnS本身固有的较低热导率和较高Seebeck系数也证实了其作为优质热电候选材料的巨大潜力^[8].因此,围绕SnS的热电性能展开多维度的研究,不仅具有重要意义,也为推动材料科学与能源技术领域的实际应用提供了可能路径.

为了进一步优化热电性能,通过结构设计实现材料的“低维化”成为了近年来的主流策略之一^[16].在过去的几十年里,低维热电材料的研究已经取得了长足进展^[17].在热输运方面,研究表明低维材料可通过尺寸效应引入额外的界面散射,有效降低声子平均自由程,从而抑制晶格热导率.在电输运方面,低维结构引发的量子限域效应会导致电子能级离散化,并使费米能级附近的电子态密度发生畸变^[18].这种电子结构的改变有利于在保持较高电导率的同时显著提升Seebeck系数^[9].正是因为其对热学性能和电学性能的双重调控,低维材料在热电性能方面表现出优于块状材料的潜力^[18,19].对于薄膜材料而言,其热电性能往往表现出显著的厚度依赖性^[20].此外,温度作为影响载流子输运的关键因素,对热电优值具有决定性影响^[21-23].因此,系

统探究厚度与温度对SnS薄膜热电性能的协同影响,对于开发高效、稳定的热电转换器件具有重要的指导价值^[24].

本工作利用磁控溅射的方式制备了4种不同厚度(82 nm, 199 nm, 616 nm和813 nm)的SnS薄膜材料.利用时域热反射法(TDTR)和薄膜热电参数测量系统(ZEM-3)系统表征了4种不同厚度的SnS薄膜在300—600 K温度范围内的热电性能.TDTR对纳米薄膜材料的热导率进行准确表征.ZEM-3用于综合测量薄膜的Seebeck系数和电导率.同时利用扫描电子显微镜(SEM)和能量色散X射线光谱(EDS)对其厚度和元素组成成分进行表征.结合以上表征,分析了厚度和温度影响Seebeck系数、电导率、热导率及 ZT 值的物理机制,旨在阐明低维化对SnS材料热电性能提升的潜在机制及其在实际应用中的指导意义.

2 实验方法

利用SEM对SnS薄膜截面形貌进行表征,结果如图1所示,确认样品厚度分别为82 nm, 199 nm, 616 nm和813 nm.

为确定样品中的元素组成成分,本研究利用SEM和EDS对其元素组成成分进行表征,图2为199 nm样品的EDS图像,表明样品组成为Sn元素和S元素.

ZEM-3是一种专为热电材料研究而设计的高

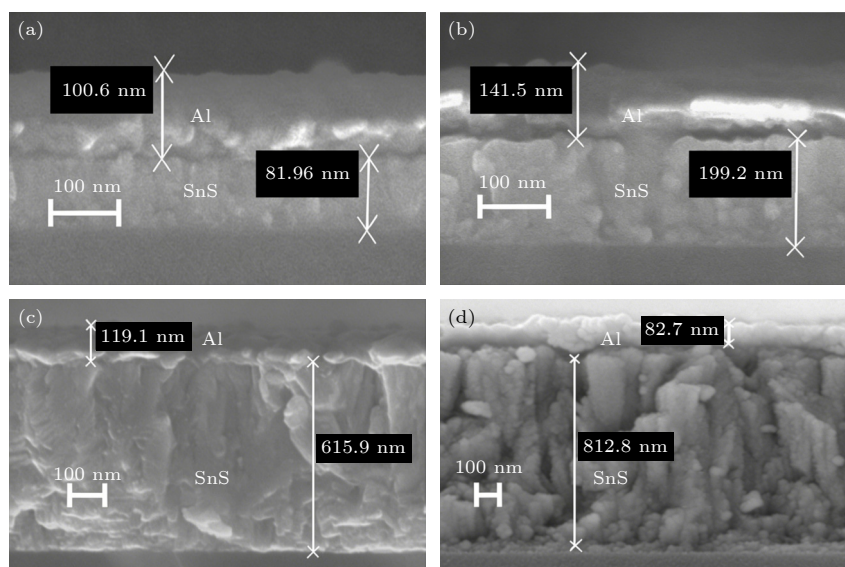


图1 不同厚度SnS薄膜SEM断面图

Fig. 1. SEM cross-sectional images of SnS thin films with different thicknesses.

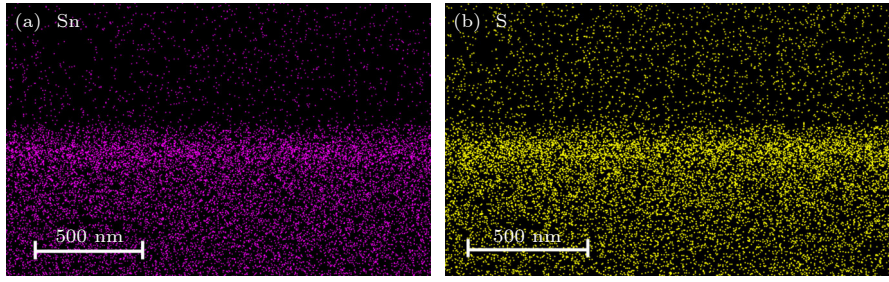


图 2 199 nm 厚度 SnS 样品 EDS 元素分布图像
Fig. 2. EDS elemental mapping of the 199 nm-thick SnS sample.

精度综合测量仪器, 其核心功能在于能够同步、准确地测定材料的关键电输运和热电性能参数, 特别是电导率 (或电阻率) 和 Seebeck 系数 (Seebeck coefficient). 其核心工作原理是在精确控温的环境中, 通过“静态直流法”与“直流四电极法”同步测量材料的 Seebeck 系数与电阻率. 该系统将样品置于上下两个温控探针之间, 主加热炉将样品加热至设定温度后, 由集成微型加热器施加一个稳定的微小温差 (ΔT); 利用 4 根多功能探针 (通常两两配对) 与样品侧面接触, 其中一对探针作为热电偶同步采集该点的温度与由温差产生的热电势 (ΔV), 从而基于公式 $S = -\Delta V / \Delta T$ 直接计算 Seebeck 系数. 在测量电阻率时, 这组探针则作为电压探针, 配合外侧电极向样品通入已知恒定电流 (I), 并测量内部两点间的电压降 (V), 根据欧姆定律 $R = V / I$ 计算电阻, 再结合样品的几何尺寸换算得到电阻率 (ρ) 及电导率 ($\sigma = 1 / \rho$). 整个测量过程通常在低压氦气环境中进行, 以确保温度均匀并防止样品氧化, 系统通过自动检测欧姆接触、消除寄生热电势及计算机全程序控制, 来保障从室温至约 800 °C 宽温区内数据的高精度与可靠性.

热导率测量采用时域热反射法 (TDTR), 该方法基于光热反射原理, 是一种高精度、高分辨的热物性测量技术, 可以用于测量纳米薄膜材料的热导率和界面热导等热输运性质 [25–27]. TDTR 技术测量材料热物理性质的基本原理是: 一束脉冲激光被分为两束, 其中一束激光用于加热样品 (抽运光), 另一束激光用于监测样品表面反射率的变化 (探测光) [28]. 温升较小时样品表面反射率与温度成线性关系, 进而可以获得样品表面温度变化. 样品表面温度的变化与样品结构和热物理性质相关, 通过拟合实验数据与热扩散模型可以获得待测热物性参数 [29].

在 TDTR 系统中, 系统总体误差可以通过传

递方程得到:

$$E_r = \sqrt{\sum_{\xi} (S_{\xi} \sigma_{\xi})^2}, \quad (3)$$

其中, E_r 为误差, S 为敏感度, ξ 为任何可能影响结果的输入物理参数, 包括各层样品参数设置的最大不确定度、光斑大小和温度的误差以及信号波动引起的拟合误差等.

3 结果与讨论

图 3 展示了不同厚度 SnS 薄膜的 Seebeck 系数随温度的变化关系. 首先, 从导电类型来看, 在整个测试温度范围内, 所有样品的 Seebeck 系数均为正值, 表明制备的 SnS 薄膜表现为 p 型半导体特性 [30,31]. 与未掺杂的块体 SnS 材料相比 [32], 本研究中 SnS 薄膜的 Seebeck 系数整体更高, 这主要归因于低维材料独特的能量过滤效应: 薄膜中大量的晶界和界面形成了势垒, 能够有效散射或过滤掉低能量载流子, 使得通过的载流子具有更高的平均能量, 从而提升 Seebeck 系数 [33]. 此外, 量子限域效应重塑了电子能带结构, 在费米能级附近产生的态密度峰 (DOS peak) 增加了载流子在能带边缘的能量导数, 进一步增大了 Seebeck 系数 [34].

薄膜的微观结构, 包括晶粒尺寸、晶界特性以及晶粒取向, 对费米能级附近的电子态密度有显著影响 [35]. 在多晶薄膜中, 晶界本身可以作为潜在的势垒, 实现能量过滤效应 [36]. 晶界处的原子排列不规则性和局域缺陷可能导致电子能带弯曲或形成局域态, 从而改变费米能级附近的态密度分布 [37]. 这些局域态或势垒可以像量子点一样, 形成量子限域效应, 在费米能级附近引入尖锐的态密度特征, 增强 Seebeck 系数. 此外, 缺陷本身可以引入额外的电子态, 如果这些态恰好位于费米能级附近并呈

现出尖锐特征, 同样能够增强 Seebeck 系数 [38].

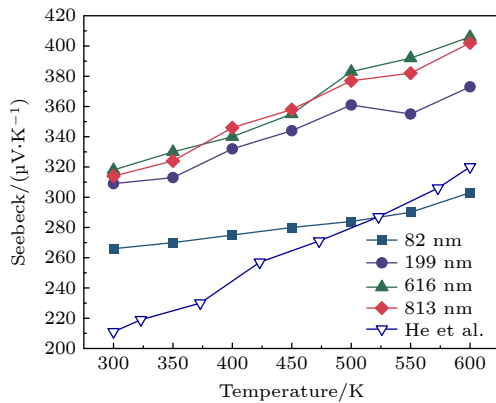


图 3 不同厚度 SnS 薄膜样品 Seebeck 系数随温度变化关系
Fig. 3. Temperature dependence of the Seebeck coefficient for SnS thin film samples with different thicknesses.

电子结构变化与 Seebeck 系数增强之间的内在联系可以用玻尔兹曼输运理论和莫特公式来阐明. Seebeck 系数的物理本质是电荷载流子所携带的熵, 或者更准确地说, 其反映了费米能级附近输运性质的能量不对称性. 当量子限域效应或能量过滤效应导致费米能级附近的态密度出现尖锐特征时, 例如共振峰或能带边缘的陡峭变化, 会使得能量略高于和略低于费米能级的电子的输运性质截然不同. 高能量的载流子 (例如, 在能量过滤中成功通过势垒的载流子) 携带更多的热能, 其参与电荷输运的效率更高, 而低能量载流子则被抑制. 这种对载流子能量的选择性, 使得净输运电流由高能载流子主导, 从而显著增大了每个载流子平均携带的熵, 导致 Seebeck 系数的提升. 此外, 量子限域效应还可以通过能带简并来增强 Seebeck 系数. 当多个能谷在能量上汇聚时, 总的电子态密度会显著增大, 导致态密度有效质量增大, 而 Seebeck 系数与态密度有效质量正相关 [39]. 综上所述, 多晶薄膜中量子限域效应和能量过滤效应通过在费米能级附近引入尖锐的态密度特征, 并选择性地改变载流子的平均能量, 从根本上增强了材料的 Seebeck 系数. 这些效应并非独立存在, 而是通过复杂的耦合机制共同作用 [40].

关于厚度对热电性能的影响, 观察图 3 可知, SnS 薄膜的 Seebeck 系数整体随厚度的增大而逐渐增大. 这一现象可以用载流子浓度变化解释: 通常情况下, 较薄的薄膜往往存在更多的晶格缺陷, 从而引入额外的电子或空穴, 导致载流子浓度升

高 [41]; 而 Seebeck 系数与载流子浓度通常呈负相关 ((4) 式) [42,43], 因此厚度增大带来的结晶质量改善和载流子浓度降低, 有利于 Seebeck 系数的提升:

$$S = \frac{8\pi^2 m^* k_B^2 T}{3eh^2} \left(\frac{\pi}{3n}\right)^{2/3}, \quad (4)$$

式中, m^* 为态密度有效质量, k_B 为玻尔兹曼常数, h 为普朗克常数, n 为载流子浓度.

随着温度的升高, 不同厚度 SnS 薄膜与块体 SnS [32] 的 Seebeck 系数呈上升趋势, 这是由于晶界在降低载流子迁移率的同时, 也由于能量过滤现象而影响了 Seebeck 系数 [9]. 然而, 在高温区域, Seebeck 系数的变化趋势出现了转折. 随着温度升高, 82 nm 样品的上升速率放缓, 而 199 nm 样品在 550 K 后甚至出现了下降. 这说明在高温下, 载流子获得了足够的动能, 足以跨越晶界势垒, 削弱了晶界对低能载流子的过滤作用 [9]. 同时, 高温下窄带隙材料易发生的双极扩散效应 (bipolar effect) [44], 即少数载流子 (电子) 的激发抵消了部分 Seebeck 电压, 也是导致高温下 Seebeck 系数下降的重要原因. 800 nm 厚度的 SnS 薄膜样品在中低温区间增长速率相对平缓, 随温度进一步升高, 增长速率略有加快, 未出现明显的峰值或下降拐点. 该曲线与 616 nm 曲线的变化趋势高度吻合, 且数值始终非常接近, 说明在较厚的两种薄膜样品中, 厚度对 Seebeck 系数的影响相对较弱, 二者的载流子输运机制更为接近块体材料的特征. 最终, 在 600 K 时, 616 nm 厚度的 SnS 薄膜样品获得了最大 Seebeck 系数, 达到 406 $\mu\text{V}/\text{K}$.

图 4 为不同厚度 SnS 薄膜与相应块体材料 [32] 的电导率随温度的变化关系. 从整体数值上看, 所有薄膜样品的电导率均低于块体材料, 根据电导率 (5) 式, 这种显著差异主要源于薄膜材料的微观结构: 薄膜中受限的晶粒尺寸和高密度的晶格缺陷对载流子产生了强烈的散射作用, 导致其载流子迁移率远低于块体材料, 从而显著降低了电导率 [30]. 从温度依赖性来看, 在 300—600 K 的测试范围内, 块体及所有厚度 (82 nm, 199 nm, 616 nm 和 813 nm) 的 SnS 薄膜样品均表现出典型的类金属导电行为 [45], 即电导率随温度的升高而呈现下降趋势. 这是因为随着温度升高, 晶格振动加剧, 声子散射增强, 声子会与材料中的载流子 (电子或空穴) 发生相互作用, 导致载流子平均自由程减小、迁移率降低 [46-48]. 当迁移率的衰减速率超过载流子浓度的

变化时,宏观上即表现为电导率的降低.具体而言,616 nm厚度的SnS薄膜对温度变化最为敏感,其电导率从 34.2×10^3 S/m大幅下降至 11.8×10^3 S/m.而199 nm样品在600 K时电导率达到最小值,为 10.9×10^3 S/m.

$$\sigma = ne\mu, \quad (5)$$

式中 n 为载流子浓度, μ 为载流子迁移率, e 为单位电荷.由(5)式可知,载流子浓度和载流子迁移率与电导率成正相关.

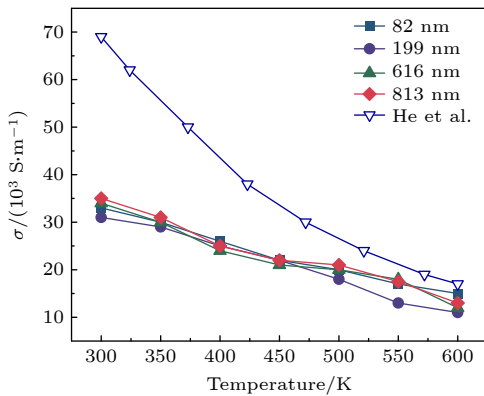


图4 不同厚度SnS薄膜样品电导率随温度变化关系
Fig. 4. Temperature dependence of the electrical conductivity for SnS thin film samples with different thicknesses.

图5展示了不同厚度SnS薄膜与块体材料^[32]的PF随温度的变化情况.从整体趋势来看,块体SnS的功率因子随温度升高而单调降低.薄膜样品也表现出类似的下降趋势:82 nm和199 nm厚度SnS薄膜在600 K时分别降至最小值 $13.8 \mu\text{W}\cdot\text{cm}^{-1}\cdot\text{K}^{-2}$ 和 $15.2 \mu\text{W}\cdot\text{cm}^{-1}\cdot\text{K}^{-2}$.值得注意的是,800 nm薄膜虽然整体呈下降趋势,但在500 K附近表现出优异的性能维持,其PF值高达 $29.8 \mu\text{W}\cdot\text{cm}^{-1}\cdot\text{K}^{-2}$.PF值随温度的变化呈现先下降后回升再下降的非单调演变规律,本质上是Seebeck系数与电导率之间的竞争关系随温度演变的结果.在低温阶段,电导率的衰减速率快于 S^2 的增长速率,导致PF值下降;在中温阶段, S^2 增长暂时超过电导率的衰减,推动PF值回升;而在高温阶段,电导率的加速衰减再次成为主导,最终导致PF值的持续降低.

这种变化趋势反映了Seebeck系数与电导率之间的竞争机制.尽管电导率随温度升高而下降,但不同厚度样品中Seebeck系数的提升在一定程度上缓解了PF值的降低.最为关键的是,如图5所示,199 nm,616 nm和813 nm的SnS薄膜PF

值在300—600 K范围内整体高于块体材料,表明通过低维化手段带来的Seebeck系数的大幅提升,成功补偿甚至超越了由晶界散射导致的电导率损失.这证实了在纳米尺度下,通过优化能带结构^[49]和能量过滤效应^[50],可以有效打破热电参数间的竞争关系,从而获得优于块体材料的热电性能.

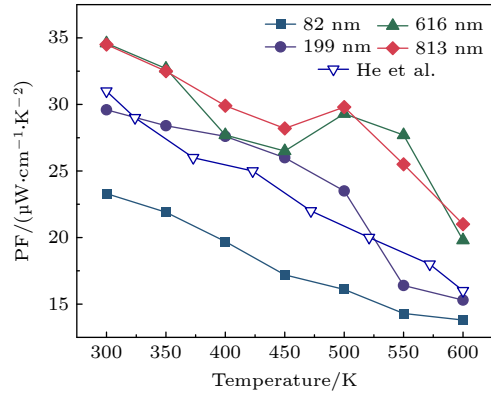


图5 不同厚度SnS薄膜样品功率因子随温度变化关系
Fig. 5. Temperature dependence of the power factor for SnS thin film samples with different thicknesses.

图6展示了4种不同厚度SnS薄膜在300—600 K温度范围内的热扩散实验信号与理论拟合曲线.可以看出,实验数据与理论模型吻合度极高,证实了所采用的热传输模型及所提取热导率的可靠性.

从微观机制来看,样品的总热导率由电子热导率和声子热导率两部分组成.根据Wiedemann-Franz定律,电子热导率与电导率成正比.由于本研究中SnS薄膜的电导率相对较低(如图4所示),电子热导率对总热导率的贡献很小^[51],且随厚度呈现出微弱的非单调变化.因此,薄膜总热导率的变化主要由声子热导率主导.

图7为热导率随温度的变化关系.结果表明,薄膜热导率明显低于块体值,且随薄膜厚度的减小而显著下降,这主要归因于经典的声子尺寸效应:随着厚度减小,受薄膜多晶特性的影响^[52],增强了声子的边界散射.这种强烈的散射效应显著缩短了声子平均自由程,从而大幅抑制了晶格热导率^[53,54].值得指出的是,尽管厚度调控显著降低了热导率,但从功率因子的表现来看(图5),电学性能并未受到同等程度的破坏.这说明在纳米尺度下,电输运与热输运可实现一定程度的“去耦合”,为高性能热电材料的设计提供了新思路.

此外,图7显示SnS薄膜的热导率随温度的

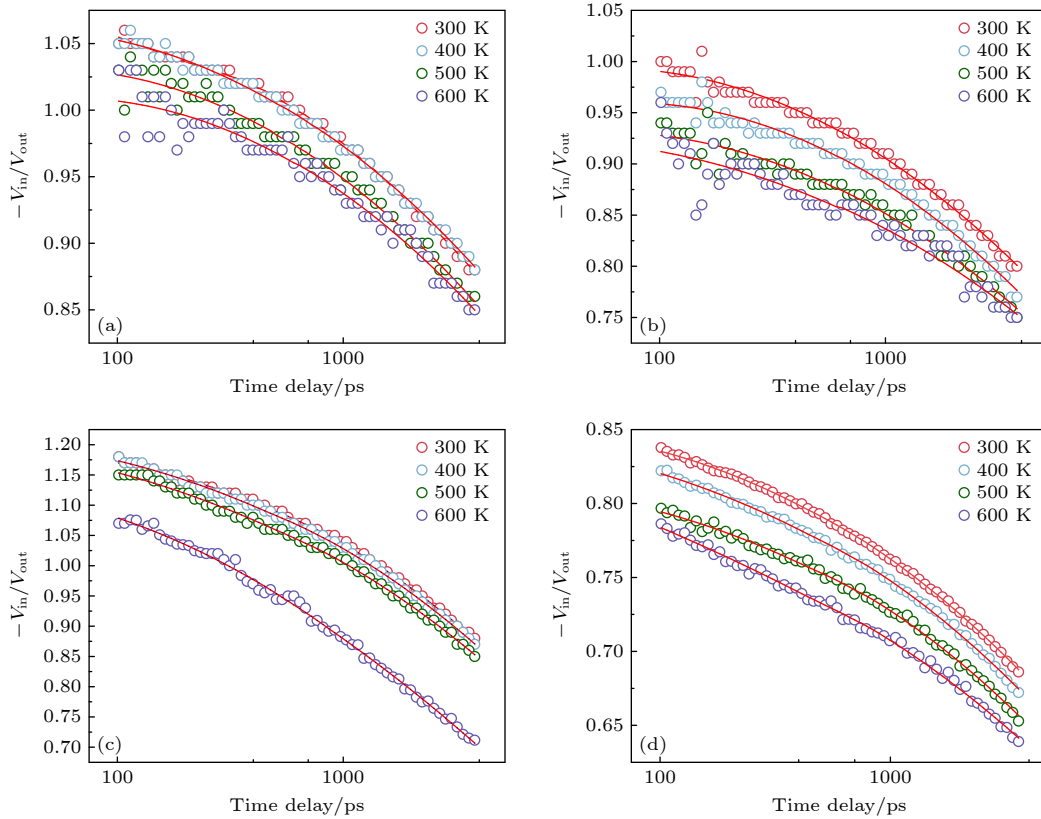


图 6 4 种厚度的 SnS 薄膜在 300—600 K 温度下实验信号和拟合结果. 空心圆圈代表实验测试数据, 实线为理论拟合曲线 (a) 82 nm; (b) 199 nm; (c) 616 nm; (d) 813 nm

Fig. 6. Experimental signals and fitting results for SnS films with four thicknesses at temperatures ranging from 300 to 600 K. Hollow circles represent experimental test data, while solid lines denote theoretical fitting curves: (a) 82 nm; (b) 199 nm; (c) 616 nm; (d) 813 nm.

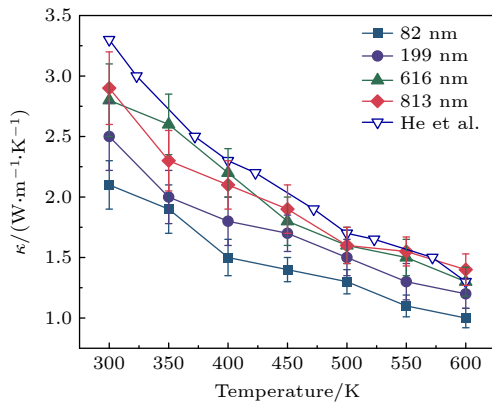


图 7 不同厚度 SnS 薄膜样品热导率随温度变化关系

Fig. 7. Temperature dependence of the thermal conductivity for SnS thin film samples with different thicknesses.

升高呈现出下降趋势, 这是由于温度升高加剧了声子-声子散射, 导致声子平均自由程被有效截断, 从而阻碍了晶格热流的传输^[55]. 值得注意的是, 虽然纳米薄膜中存在的界面和尺寸效应使得声子散射机制更为复杂, 但在高温下, 声子-声子散射的增强效应更为显著, 因此材料仍遵循晶格热导率随温度

衰减的普遍规律^[15].

值得注意的是, SnS 材料中对热导率贡献最大的声子, 其平均自由程主要分布在 10—300 nm 范围内, 峰值通常集中在 50—150 nm 之间. 具体而言, 室温下 SnS 的热导率约 70%—80% 由声子平均自由程小于 200 nm 的声子贡献, 其中声子平均自由程在 50—150 nm 区间的声子贡献最为显著 (单点贡献密度最大)^[56]. 在本工作中, 82 nm 已小于 SnS 主要贡献声子的平均自由程峰值区域的上限, 甚至低于典型主导传热声子的特征平均自由程. 这意味着对于 82 nm 厚的薄膜, 对热导率贡献较大的长平均自由程声子会受到强烈的边界散射^[57,58]. 当材料的特征尺寸 (如薄膜厚度) 与声子平均自由程相当或更小时, 边界散射将成为主导机制, 显著降低材料的热导率^[51]. 这导致长平均自由程的声子的输运受到显著抑制, 从而解释了其热导率的显著下降. 而 616 nm 和 813 nm 已远超 SnS 绝大多数传热声子的平均自由程. 这意味着对于 616 nm 和 813 nm 厚的薄膜, 声子在到达薄膜边

界之前更有可能经历内部散射(如声子-声子散射、缺陷散射等),而不是边界散射^[59].因此,边界对声子运输的限制作用相对较弱,其热导率接近块体材料的极限值.

综上所述,本研究中 SnS 薄膜的热导率随厚度减小而降低的现象,并非简单的“尺寸效应”,而是声子平均自由程分布与薄膜特征尺寸之间复杂相互作用的结果.82 nm 的薄膜厚度有效地截断了对热导率贡献最大的部分声子,导致热导率显著下降;而 616 nm 和 813 nm 的薄膜厚度则已足够大,使得大部分传热声子能够进行扩散运输,热导率接近块体值.

基于测得的电运输和热运输的实验数据,我们计算了 SnS 薄膜的热电优值,结果如图 8 所示.虽然 PF 值和热导率均随温度升高呈现下降趋势,但由于热导率的下降更为显著,导致 ZT 值呈现上升趋势.这表明,在本研究的温度范围内,热学性质相比电学性质表现出更强的温度敏感性,从而主导了 ZT 值的整体提升趋势.如图 8 所示,本研究制备的所有 SnS 薄膜样品的 ZT 值在整体上均显著优于传统块体材料.其中,616 nm 薄膜样品在 550 K 时获得了 1.01 的 ZT 值,较块体材料提升了约 1.5 倍.在高温段,616 nm 和 813 nm 的 SnS 薄膜 ZT 值维持在 0.9 左右的较高水平,反映出该厚度薄膜在高温下仍能保持良好的热电性能.这一性能提升证实了“低维化”策略的有效性,其物理机制主要包括两方面:在电运输优化方面,通过降维引入的量子限域效应重塑了电子能带结构,有效提升了 Seebeck 系数;在热运输抑制方面,通过纳米尺度下的界面与边界增强了声子散射,显著降低了晶

格热导率^[55].综上所述,通过协同优化电子与声子输运特性,降低材料维度被证实是突破 SnS 热电性能瓶颈的一条高效途径.

4 结 论

本工作对 4 种厚度 (82 nm, 199 nm, 616 nm 和 813 nm) 的 SnS 薄膜的结构和热电性能进行了全面的表征.研究表明,低维化是提升 SnS 热电性能的有效策略,且其热电优值 (ZT) 表现出显著的厚度与温度依赖性.主要研究结果如下: 1) 与块体材料相比,4 种不同厚度的 SnS 薄膜均展现出更为优异的热电性能.性能提升主要源于低维结构导致的量子限域效应、能量过滤效应及增强的声子散射. 2) 随着温度升高,Seebeck 系数由于能量过滤效应而增大,电导率因声子散射增强而下降,热导率则因声子-声子散射加剧而降低,三者共同作用导致 ZT 值总体上随着温度的升高而增大.本研究深化了对 SnS 薄膜热电运输机制的理解,为优化 SnS 薄膜的材料设计与制备提供了重要的理论依据和实验参考,对其在废热回收、固态制冷等相关领域的潜在应用和进一步发展具有重要的科学指导意义.

参考文献

- [1] Choudhary C S, Dhass A D, Krishna R, Patel D 2025 *J. Inf. Syst. Eng. Manage.* **10** 919
- [2] Artini C, Isotta E, Demontis V, Pennelli G, Castellero A, Ferrario A, Rossella F 2024 *Nanotechnology* **35** 100201
- [3] Zhang X, Zhao L D 2015 *J. Materiomics* **1** 92
- [4] Yang J H, Caillat T 2006 *MRS Bull.* **31** 224
- [5] Tian Y Q, Yang X Y, Li K R, Zhang Q H, Li Y G, Wang H Z, Hou C Y 2023 *Mater. Today Energy* **36** 101342
- [6] Long Q, Jiang G Y, Zhou J H, Zhao D W, Jia P Y, Nie S X 2023 *Nano Energy* **120** 109130
- [7] Peng P P, Wang C, Li L W, Li S Y, Chen Y Q 2021 *Chin. Phys. B* **31** 047307
- [8] Tan Q, Zhao L D, Li J F, Wu C F, Wei T R, Xing Z B, Kanatzidis M G 2014 *J. Mater. Chem. A* **2** 17302
- [9] Zhu J, Fan X H, Zhang K W, Zhou J, Tang D W 2024 *Mater. Res. Lett.* **12** 140
- [10] Snyder G J, Toberer E S 2008 *Nat. Mater.* **7** 105
- [11] Chen G 2015 *J. Phys. : Conf. Ser.* **660** 012066
- [12] Zhao L D, Lo S H, Zhang Y S, Sun H, Tan G J, Uher C, Wolverton C, Dravid V P, Kanatzidis M G 2014 *Nature* **508** 373
- [13] Wang J, Yin Y G, Che C W, Cui M Y 2025 *Energies* **18** 2122
- [14] Wei S T, Ji Z, Li W H, Zheng S Q, Wang Q, Li Z L, Yu L, Luo S T, Song W Y 2024 *J. Materiomics* **10** 339
- [15] Ghafari A, Janowitz C 2024 *Mater. Today Commun.* **38** 107483

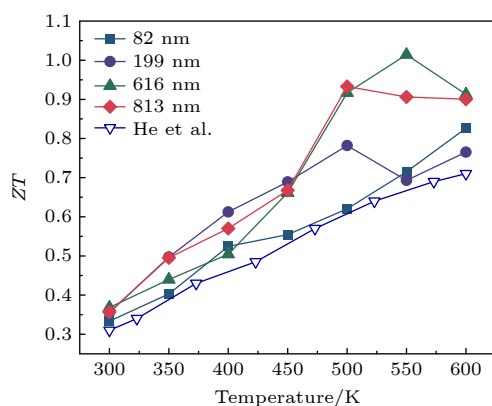


图 8 SnS 薄膜在 300—600 K 温度下 ZT 值

Fig. 8. ZT value of SnS thin films in the temperature range of 300–600 K.

- [16] Biswas K, He J, Blum I D, Wu C I, Hogan T P, Seidman D N, Dravid V P, Kanatzidis M G 2012 *Nature* **489** 414
- [17] Lv Y H, Chen J K, Zheng R K, Shi X, Song J Q, Zhang T S, Li X M, Chen L D 2015 *Ceram. Int.* **41** 7439
- [18] Hung N T, Hasdeo E H, Nugraha A R T, Dresselhaus M S, Saito R 2016 *Phys. Rev. Lett.* **117** 036602
- [19] Markov M, Zebarjadi M 2019 *Nanoscale Microscale Thermophys. Eng.* **23** 117
- [20] Akaltun Y, Astam A, Cerhan A, Çayır T 2016 *AIP Conf. Proc.* **1722** 220001
- [21] Bennaji N, Fadhli Y, Ghribi F, Yacoubi N 2022 *J. Electron. Mater.* **51** 6770
- [22] Hakami J, Ashfaq A, Abd-Elwahed A R, Alshahrani M D, Shokralla E A, Ragab I, Arayro J, Almufarij R S, Fahmy M A, Somaily H H 2025 *Int. Commun. Heat Mass Transfer* **169** 109759
- [23] Guo Z J, Zhang C, Zhou J H, Tan F Y Y, Yang C Y, Li S L, Lou Y, Zhu E N, Li Z J, Qu Y, Li L 2025 *Coatings* **15** 1041
- [24] Al Bouzieh N, Sattar M A, Benkraouda M, Amrane N 2023 *Nanomaterials* **13** 2084
- [25] Zhu J, Wu X W, Lattery D M, Zheng W, Wang X J 2017 *Nanoscale Microscale Thermophys. Eng.* **21** 177
- [26] Mohan R, Khan S, Wilson R B, Hopkins P E 2025 *Nat. Rev. Methods Primers* **5** 55
- [27] Sun B, Koh Y K 2016 *Rev. Sci. Instrum.* **87** 064901
- [28] Zhong H, Peng Y, Lin F, Niyikiza A B, Pan F J, Qin C Z, Chen J H, Hadjiev V G, Deng L Z, Ren Z F, Bao J M 2025 *Research* **8** 0971
- [29] Grauby S, Montes B V, Zenji A, Rampnoux J M, Dilhaire S 2022 *ACS Photonics* **9** 3734
- [30] Selestina A, Sudha L, Vijay V, Karunagaran N, Navaneethan M 2023 *J. Mater. Sci. : Mater. Electron.* **34** 255
- [31] Kaymura K, Takeda M 2011 *IOP Conf. Ser. : Mater. Sci. Eng.* **20** 012007
- [32] He W K, Wang D Y, Wu H J, Xiao Y, Zhang Y, He D S, Feng Y, Hao Y J, Dong J F, Chetty R, Hao L J, Chen D F, Qin J F, Yang Q, Li X, Song J M, Zhu Y C, Xu W, Niu C L, Li X, Wang G T, Liu C, Ohta M, Pennycook S J, He J Q, Li J F, Zhao L D 2019 *Science* **365** 1418
- [33] Meng X F, Liu Z H, Cui B, Qin D D, Geng H Y, Cai W, Fu L W, He J Q, Ren Z, Sui J H 2017 *Adv. Energy Mater.* **7** 1602582
- [34] Wu G X, Yu X 2020 *Eur. Phys. J. Plus* **135** 472
- [35] Kulovits A, Zhong R, Wiezorek J M K, Leonard J P 2009 *Thin Solid Films* **517** 3629
- [36] Romo-De-La-Cruz C O, Chen Y, Liang L, Paredes-Navia S A, Wong-Ng W K, Song X Y 2023 *Renew. Sust. Energ. Rev.* **175** 113186
- [37] Peng W B, Liu S Y, Xiao H B, Zhang C S, Shi M J, Zeng X B, Xu Y Y, Kong G L, Yu Y D 2009 *Acta Phys. Sin.* **58** 5716 (in Chinese) [彭文博, 刘石勇, 肖海波, 张长沙, 石明吉, 曾湘波, 徐艳月, 孔光临, 俞育德 2009 *物理学报* **58** 5716]
- [38] Ahmad S, Rahman A U, Azam S, Khan A Z 2026 *J. Phys. Chem. Solids* **208** 112937
- [39] Tan X Y, Dong J F, Jia N, Zhang H X, Ji R, Suwardi A, Li Z L, Zhu Q, Xu J W, Yan Q Y 2022 *Rare Met.* **41** 3027
- [40] Meng T, Zhang X W, Yao J S, Zhang W W, Zhong H M, Zhu H D, Zhang Y Y, Zhang H, Zhang P, Lu H, Zhao Y 2024 *Appl. Phys. Lett.* **125** 044003
- [41] Ding Y W, Liang X J, Luo L X, Hu W Y, Long Y S, Song Y M, Kang K Y 2023 *Mater. Today Commun.* **37** 107449
- [42] Xiao C, Li Z, Li K, Huang P C, Xie Y 2014 *Acc Chem. Res.* **47** 1287
- [43] Shakouri A 2011 *Annu. Rev. Mater. Res.* **41** 399
- [44] Gong J J, Hong A J, Shuai J, Li L, Yan Z B, Ren Z F, Liu J M 2016 *Phys. Chem. Chem. Phys.* **18** 16566
- [45] Zhang L, Liu F 2024 *npj Comput. Mater.* **10** 47
- [46] Park O, Heo M, Lee S W, Park S J, Kim H S, Kim S I 2023 *Mater. Sci. Semicond. Process.* **165** 107694
- [47] Choudhari S, Kedia D K, Yadav M, Ram P 2024 *J. Indian Chem. Soc.* **101** 101351
- [48] Jiang J, Pan Y, Zhou T, Niu Y, Kong X G, Song J, Yang C C, Yu Y, Wang C 2020 *Mater. Today Commun.* **24** 101167
- [49] Chen R C, Wang Y X, Jiang L F, Min R A, Kang H J, Chen Z N, Guo E Y, Yang X, Jiang X, Wang T M 2023 *Mater. Today Phys.* **30** 100957
- [50] Zhang X L, Li S, Zou B, Xu P F, Song Y L, Xu B A, Wang Y F, Tang G D, Yang S 2022 *J. Alloys Compd.* **901** 163686
- [51] Goyal M 2024 *Physica B* **677** 415727
- [52] Chen Q Y, Hao Q 2023 *J. Appl. Phys.* **134** 045103
- [53] Zhu J, Feng T L, Mills S, Wang P P, Wu X W, Zhang L Y, Pantelides S T, Du X, Wang X J 2018 *ACS Appl. Mater. Interfaces* **10** 40740
- [54] Lepri S, Livi R, Politi A 2003 *Phys. Rep.* **377** 1
- [55] Shu L, Xia Y J, Li B, Peng L, Shao H Z, Wang Z X, Cen Y, Zhu H Y, Zhang H 2024 *npj Comput. Mater.* **10** 2
- [56] Li W T, Yang C X 2023 *Physica E* **145** 115521
- [57] Gireesan S, Torres P, Alvarez F X, Bobbert P A 2020 *Phys. Rev. B* **101** 024307
- [58] Paterson J, Mitra S, Liu Y Q, Boukhari M, Singhal D, Lacroix D, Hadji E, Barski A, Tainoff D, Bourgeois O 2024 *Appl. Phys. Lett.* **124** 181902
- [59] Yuan P F, Liu Z F, Xie Y X, Meng Y F, Li M D, Chen K K 2024 *J. Math. Chem.* **62** 1209

SPECIAL TOPIC—Heat conduction and its related interdisciplinary areas

Studies on the thickness and temperature dependent thermoelectric properties of SnS nanofilms

CHEN Liqi¹⁾ WANG Ziyang¹⁾ LI Donghao¹⁾ WANG Jingye¹⁾
ZHAO Ning²⁾ ZHOU Jun²⁾ ZHU Jie^{1)†} TANG Dawei¹⁾

1) (*School of Energy and Power Engineering, Dalian University of Technology, Dalian 116000, China*)

2) (*School of Physics and Technology, Nanjing Normal University, Nanjing 210023, China*)

(Received 30 December 2025; revised manuscript received 15 February 2026)

Abstract

SnS as an environmentally friendly, cost-effective, and earth-abundant narrow-bandgap semiconductor material, has demonstrated significant application potential in the field of medium-temperature thermoelectric conversion. However, the thermoelectric performance of its bulk counterpart is inherently constrained by intrinsic point defects (e.g., vacancies) and the material's specific band structure. Low-dimensional engineering has emerged as a pivotal strategy for overcoming these limitations and enhancing thermoelectric performance. In this work, we systematically investigate the thermoelectric properties of SnS nanofilms with distinct thicknesses (82 nm, 199 nm, 616 nm, and 813 nm) across a temperature range of 300–600 K. Measurements were conducted using time-domain thermoreflectance (TDTR) and a dedicated thin-film thermoelectric parameter test system (ZEM-3). Our results confirm that low-dimensionalization effectively boosts the thermoelectric performance of SnS, with the thermoelectric figure of merit (ZT) displaying a pronounced dependence on both film thickness and temperature. All four SnS thin films exhibit thermoelectric performance that is markedly superior to that of bulk SnS. This enhancement is primarily attributed to the quantum confinement effect, energy filtering effect, and intensified phonon scattering, all of which are induced by the low-dimensional structural characteristics. This work provides not only experimental evidence and theoretical insights for the performance optimization of SnS nanofilms but also establishes a foundational framework for the development of high-efficiency, eco-friendly medium-temperature thermoelectric materials, thereby holding significant scientific value and practical implications.

Keywords: nano-film, thermoelectric material, time-domain thermoreflectance method

DOI: [10.7498/aps.75.20251794](https://doi.org/10.7498/aps.75.20251794)

CSTR: [32037.14.aps.75.20251794](https://cstr.net.cn/ipac/32037.14.aps.75.20251794)

† Corresponding author. E-mail: zhujie@dlut.edu.cn



SnS纳米薄膜厚度和温度依赖性热电性能研究

陈立齐 王子扬 李东皓 王景晔 赵宁 周俊 祝捷 唐大伟

Studies on the thickness and temperature dependent thermoelectric properties of SnS nanofilms

CHEN Liqi WANG Ziyang LI Donghao WANG Jingye ZHAO Ning ZHOU Jun ZHU Jie TANG Dawei

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 75, 070709 (2026) DOI: 10.7498/aps.75.20251794

CSTR: 32037.14.aps.75.20251794

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.75.20251794>

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

纳米SiO₂复合对Mg₃Sb₂基材料热电性能的影响

Effects of nano-SiO₂ on thermoelectric properties of Mg₃Sb₂-based materials

物理学报. 2023, 72(11): 117102 <https://doi.org/10.7498/aps.72.20230176>

熔融旋甩制备Co掺杂TiNiCo_xSn合金的热电性能

Thermoelectric properties of Co doped TiNiCo_xSn alloys fabricated by melt spinning

物理学报. 2024, 73(10): 107201 <https://doi.org/10.7498/aps.73.20240112>

应变增强Nb掺杂SrTiO₃薄膜热电性能

Strain-enhanced thermoelectric properties of Nb-doped SrTiO₃ thin films

物理学报. 2023, 72(9): 096803 <https://doi.org/10.7498/aps.72.20222301>

层状Bi_{1-x}Sb_xSe纳米薄膜的制备及其热电性能研究

Preparation and thermoelectric properties of layered Bi_{1-x}Sb_xSe nanocrystalline films

物理学报. 2022, 71(19): 197301 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220834>

并联模型研究双层热电薄膜热电性能

Study of parallel models for thermoelectric properties of double-layer thermoelectric thin films

物理学报. 2023, 72(22): 228401 <https://doi.org/10.7498/aps.72.20231259>

复杂晶格动力学与能源材料的中子散射研究

Neutron scattering studies of complex lattice dynamics in energy materials

物理学报. 2025, 74(1): 012801 <https://doi.org/10.7498/aps.74.20241178>