

Investigation of thermal properties of polycrystalline graphene

Gh. Ansaripour¹
Z. Bagheri²

Received: 2015.2.28
Accepted: 2015.11.24

Abstract

Single-layer graphene as a semiconductor without band gap and linear energy spectrum is a two dimensional system of massless Dirac fermions which is of crucial importance towards understanding of unusual electronic properties. In this work, the thermal conductivity of polycrystalline graphene in the low and high temperature ranges, (0-100) K and (250-450) K respectively, has been theoretically investigated. Using a model to take into account the contribution of three branches of acoustic phonons due to scattering on grain boundaries, point defects, sample borders (for low temperatures) and the umklapp processes of phonon-phonon scattering (for high temperatures), the thermal conductivity is calculated. We have shown that at low temperatures, due to the reduction of phonon-phonon scattering, the temperature dependence of thermal conductivity is as T^n ($n < 2$) and at high temperature it behaves as T^{-n} ($1.8 \leq n < 2$) which is in agreement with recent reported data.

Keywords: Thermal conductivity, poly crystalline graphene, grain boundaries, phonon scattering

¹ Associate Professor of Physics, Bu-Ali Sina University, gansaripour@basu.ac.ir

² Department of Physics, Yazd University

بررسی خواص گرمایی گرافین چند بلوری

قاسم انصاری پور^۱
زهرا باقری^۲

تاریخ دریافت: ۹۳/۱۲/۹۷

تاریخ تصویب: ۹۴/۹/۳

چکیده

گرافین تک لایه‌ای به صورت نیم رسانا بدون گاف انرژی و طیف انرژی خطی، دستگاه دو بعدی از فرمیون‌های بدون جرم دیراک است که در فهم ویژگی‌های غیر عادی الکترونی بسیار مهم است. در این پژوهش، رسانندگی گرمایی گرافین چند بلوری را در گستره دماهای پایین $K(0-100)$ و دماهای بالا $K(250-450)$ به طور نظری مورد بررسی قرار داده‌ایم. با استفاده از یک مدل و با در نظر گرفتن سهم سه شاخه فونون صوتی در آن ناشی از پراکندگی روی مرز دانه‌ها، کاستی‌های نقطه‌ای، مرزهای نمونه (در دماهای پایین) و فرایندهای واگرد پراکندگی فونون-فونون (در دماهای بالا)

^۱ دانشیار فیزیک، دانشکده علوم، دانشگاه بوعلی سینا؛ gansaripour@basu.ac.ir

^۲ دانشکده فیزیک، دانشگاه یزد

رسانندگی گرمایی را محاسبه کرده‌ایم. نشان داده‌ایم که در دماهای پایین به علت کاهش پراکندگی فونون-فونون وابستگی رسانندگی گرمایی به دما به صورت T^n ($n < 2$) و در دماهای بالا به صورت T^{-n} ($1.8 \leq n < 2$) است که با داده‌های گزارش شده اخیر سازگار است.

واژه‌های کلیدی: رسانندگی گرمایی، گرافین چند بلوری، مرزدانه‌ها، پراکندگی فونون

۱. مقدمه

خواص شیمیایی، مکانیکی و الکتریکی گرافین آن را برای کاربردهای الکترونیکی قابل انعطاف^۱ جذاب ساخته است. گرچه تلاش‌ها به لحاظ فقدان روش‌های مؤثر در سنتز انتقال و آلایش گرافین در کیفیت و مقیاس لازم برای کاربرد در ساخت لایه‌های نازک هادی شفاف گرافینی با مشکلاتی همراه است، اما اخیراً با روش انباشت شیمیایی بخار و با استفاده از متان لایه‌های نازک گرافین، GF^۲ با مساحت زیاد از مرتبه چند سانتیمتر روی بسترهای مسی رشد داده شده است [1]. در مرجع [2]، گزارش سنتز مستقیم GF بزرگ مقیاس روی لایه‌های نازک نیکل و ارائه دو روش متفاوت انتقال الگوی GF به بسترهای دلخواه آمده است. شفافیت، رسانندگی و مشخصات انتقالی دو قطبی لایه‌های نازک گرافینی حاکی از قابلیت و پتانسیل آن‌ها به عنوان مواد دیگری است که نامزد کاربردهای الکترونیکی و اپتو-الکترونیکی هستند [3]. همچنین در مرجع [4] جزئیات ساخت الکترودهای شفاف گرافینی با مقاومت صفحه‌ای ۳۰ اهم بر مربع آمده است که در قالب یک افزاره صفحه-لمسی با قابلیت تحمل بالای کرنش به کار رفته است.

خواص گرمایی هم در گرافین تک لایه ای و هم در گرافین چندلایه‌ای از لحاظ نظری و تجربی جالب توجه بوده است. مشاهدات اخیر نشان می‌دهد که فیلم‌های گرافینی بزرگ

¹ flexible electronics

² graphene films

مقیاس، نوعاً چند بلوری و متشکل از دانه‌های تک بلور بوده و توسط مرز دانه‌ها از یکدیگر جدا شده‌اند. اندازه دانه‌ها به شرایط رشد بستگی دارد و در گستره صدها نانومتر تا ده‌ها میکرون گزارش شده‌اند [5-8]. پراکندگی فونون القایی مرز دانه‌ها، GB¹ تأثیر قابل توجهی بر رسانندگی گرمایی κ در دماهای پایین دارد [9].

در کاری که در سال ۲۰۱۲ توسط نیکا و بلندین [5] انجام گرفت انتقال گرما در گرافین در دمایی نزدیک به دمای اتاق مورد پژوهش قرار گرفت. همچنین گزارش ساخت، مشخصه یابی و باز یخت تک لایه‌های گرافینی خود جمع شده آروماتیک پیوند عرضی القایی به روش تابش الکترونی^۲ در مرجع [10] آمده است.

اتم‌های کربن از نظر ترتیب پر شدن اوربیتال‌ها، دارای ساختار الکترونی $1s^2 2s^2 2p^2$ هستند. بنابراین چهار الکترون آزاد دارند که امکان تشکیل چهار پیوند را برای این اتم‌ها مهیا می‌سازد. پیوندهایی که این اتم‌ها تشکیل می‌دهند در ترکیبات گوناگون به شکل‌های متفاوتی دیده می‌شود و بنابراین خواص متفاوتی نیز ایجاد می‌کند. سیستم‌هایی که پایه کربنی دارند به خاطر تنوع هیبریداسیون‌هایشان ساختارهای متفاوت نامحدودی را نشان می‌دهند که هر کدام از آن‌ها ویژگی‌های فیزیکی متفاوتی به خود می‌گیرند. این تنوع در ویژگی‌های فیزیکی اغلب ناشی از متفاوت بودن بُعد این ساختارهاست.

تا سال ۱۹۸۰ فقط سه نوع آلوتروپ سه بعدی کربن شناخته شده بود که معروف‌ترین آن‌ها الماس، گرافیت و نوع بی‌شکل کربن است. در الماس که از سخت‌ترین اجسام طبیعی است هر اتم کربن با چهار اتم کربن دیگر پیوند دارد و هیبریداسیون اتم‌های کربن در این ساختار به شکل sp^3 می‌باشد. در گرافیت اتم‌های کربن دارای هیبریداسیون sp^2 بوده و شش گوشه‌های منتظم کربن صفحاتی را ایجاد می‌کنند که هر کدام از این صفحات از طریق پیوند ضعیف واندروالس به صفحات زیرین متصل می‌شوند. این تک صفحات موجود در گرافیت که گرافین نامیده می‌شوند، توجه زیادی را به خود جلب کرده‌اند.

انتقال گرما یکی از فرآیندهای مهم انتقال انرژی در آینده است. فونون‌ها حامل‌های اصلی انرژی گرمایی در نیم‌رساناها و مواد دی‌الکتریک هستند. شبیه قانون اهم برای

¹ grain boundaries

² electron-radiation induced cross-linking of aromatic self-assembled monolayers

رسانندگی الکتریکی، قانون فوریه یک قانون اساسی برای انتقال گرما در جامدات است. برای فهم بسیاری از خواص بنیادی جامدات باید انرژی گرمایی را به خوبی بشناسیم. گرچه گرافین از شبکه‌های لانه زنبوری تشکیل شده است، اما مشاهدات نشان می‌دهند که ساختار گرافین واقعی همیشه دارای نقص است. در واقع یکی از این نقص‌ها این است که ساختار کربن را به بی‌نهایت شبکه لانه زنبوری می‌شکند. بنابراین انواع اختلالات را در مرزها و مرز دانه‌ها داریم. مقدار و ماهیت نقص به نحوه رشد بستگی داشته و از نمونه‌ای به نمونه دیگر متفاوت است. نتایج تجربی نشانگر این است که وجود مرز دانه‌ها بر روی برخی خواص الکتریکی، مکانیکی و حرارتی گرافین اثر دارد. از جمله می‌توان کاهش تحرک الکترونیکی [4-1]، رسانندگی گرمایی [11] و کاهش مقاومت الکتریکی [12] را ذکر کرد. از آن جا که گرافین دو بعدی است و به اندازه یک اتم کربن ضخامت دارد، مرز دانه‌ها در گرافین هویت یک بعدی دارند. فونون‌های صوتی و اپتیکی حاملان گرما در بلور بوده، مرز دانه‌ها سبب پراکندگی فونون‌ها شده و به این ترتیب یکی از عوامل مؤثر در تغییر میزان رسانندگی گرمایی هستند.

۲. مبانی نظری

۲-۱. اساس انتقال فونون

رسانندگی گرمایی جامدات طبق قانون فوریه، به صورت زیر بیان می‌شود [13,14]:

$$\Phi = -\kappa \nabla T \quad (1)$$

که Φ شار گرمایی، ∇T گرادیان دمایی و $\kappa = (\kappa_{\alpha\beta})$ تانسور رسانندگی گرمایی است. معمولاً رسانندگی گرمایی به جریان گرمایی وابسته نبوده و رفتار κ ثابت است. در یک بازه دمایی وسیع، رسانندگی گرمایی تابعی از دماست و $\kappa = \kappa(T)$. به طور کلی در جامدات، گرما توسط فونون‌ها و الکترون‌ها منتقل می‌شود، بنابراین داریم $\kappa = \kappa_e + \kappa_p$ که κ_e و κ_p به ترتیب مربوط به سهم فونون و الکترون است. در فلزات κ_e غالباً متناسب با چگالی حامل‌هایی است که آزادانه حرکت می‌کنند و با استفاده از محاسبه رسانندگی الکتریکی با قانون ویدمان فرانتز به دست می‌آید:

$$\frac{\kappa_e}{\sigma T} = \frac{\pi^2 k_B^2}{3e^2} \quad (2)$$

فونون‌ها معمولاً حامل‌های اساسی در انتقال گرما در مواد کربنی هستند. رسانندگی گرمایی فونون‌ها با رابطه زیر داده می‌شود [15]:

$$\kappa_p = \sum_j \int C_j(\omega) v_j^2(\omega) \tau_j(\omega) d\omega \quad (3)$$

در این رابطه جمع بر روی شاخه‌های فونون قطبیده است، که یکی مربوط به شاخه ی فونون صوتی طولی و دیگری مربوط به دو شاخه فونون عرضی است. $\tau_j(\omega)$ زمان واهلش فونون، $C_j = \hbar\omega_j \partial N_0(\hbar\omega_j/k_B T)/\partial T$ که ظرفیت گرمایی مربوط به شاخه j ام است، v سرعت گروه فونون و $N_0(\frac{\hbar\omega_j}{k_B T}) = [\exp(\frac{\hbar\omega_j}{k_B T}) - 1]^{-1}$ تابع پخش تعادلی فونونی بوز-اینشتین می‌باشد.

پراکندگی فونون‌های مرزی از رابطه زیر محاسبه می‌شود [15]:

$$\frac{1}{\tau_{B,j}} = \frac{v_{x,j}}{D} \frac{1-p}{1+p} \quad (4)$$

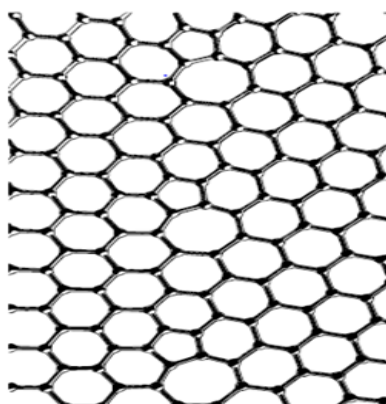
که D اندازه دانه‌ها و p پارامتر احتمال پراکندگی در مرز است. اگر $p=1$ باشد، آنگاه مقاومت گرمایی نداریم و چنانچه $p=0$ باشد، تغییرات اندازه حرکت زاویه ای به مسیر آزاد فونون محدود می‌شود.

۲-۲. رسانندگی گرمایی گرافین چند بلوری

گرچه رسانندگی گرمایی گرافین مورد بررسی قرار گرفته، اما هنوز فهم کاملی از سازوکار آن در گرافین چند بلوری در دسترس نیست. برای نخستین بار مطالعه رسانندگی گرمایی گرافین چند بلوری، بر اساس نوع مرزدانه‌ها و اندازه دانه‌ها در یک دستگاه، نشان داد که رسانندگی گرمایی فوق العاده ای در سرتاسر مرزدانه‌ها وجود دارد، در حالی که برای ناحیه ای با نقص آزاد دانه، صرف نظر از نوع دانه و اندازه آن، با کاهش رسانندگی گرمایی روبرو هستیم. این تغییرات در دماهای بالا و برای دانه‌های کوچک‌تر بیشتر حائز اهمیت است.

۲-۳. رسانندگی گرمایی گرافین چند بلوری در دمای پایین

در این جا با استفاده از مدلی که توسط [9] ارائه شده κ را در دماهای پایین محاسبه می‌کنیم. به طور کلی شش شاخه فونونی در رسانندگی گرمایی سهم‌اند (سه شاخه فونون صوتی و سه شاخه فونون اپتیکی). با این حال در دمای پایین تنها سه شاخه فونون صوتی مهم هستند که عبارتند از: فونون صوتی طولی (LA)، فونون صوتی عرضی (TA) با بسامد زاویه ای $\omega_s = v_s q$ ($s = LA, TA$) و فونون منطقه مرزی (ZA) با $\omega_{ZA} = q^2/2m$ که در $m = 2\sqrt{\rho_{2D}/K}$ چگالی جرم گرافین دویبعدی و K ثابت خمیدگی است [16]. در دمای پایین فرآیندهای واگرد ناشی از پراکندگی فونون-فونون اصولاً یخ زده است. در شکل (۱) نمودار یک مرز دانه در گرافین چند بلوری مشاهده می‌شود. مشخص شده است که می‌توان مرز دانه‌ها را به طور طبیعی در گرافین با ساختار پنج گوش-هفت گوش توصیف کرد [17,18]. در شکل (۱) مرز دانه‌ای به طول L متشکل از ۵ تا ۷ جفت حلقه را در نظر می‌گیریم.



شکل ۱. تکه مرز دانه گرافینی چند بلوری به طول L [9]

حال با در نظر گرفتن متغیر $x = \hbar\omega/(k_B T)$ برای فونون‌های صوتی طولی و عرضی، رابطه رسانندگی گرمایی به صورت زیر خواهد بود؛ که در آن ϑ_D دمای دبای و

$$C_S = \frac{k_B^3 l_0}{4\pi \hbar^2 v_s} \text{ می‌باشد:}$$

$$\kappa_s = \frac{C_s T^2}{h_{eff}} \int_0^{g_b/T} \lambda_s(x, T) \frac{x^3 e^x dx}{(e^x - 1)^2} \quad (5)$$

$$\lambda_s^{-1}(x, T) = 1 + (x \frac{T}{T_{PD}})^3 + x \frac{T}{T_{GB}} g(x \frac{T}{T_0}) \quad (6)$$

$$g(z) = J_0^2(z) + J_1^2(z) - J_1(z)J_0(z) / z \quad (7)$$

$J_i(z)$ توابع بسل هستند. دمای مربوط به پراکندگی ناشی از نقص نقطه ای از رابطه زیر به دست می آید:

$$T_{PD} = \frac{\hbar v_s}{k_B} \left(\frac{4}{S_0 \Gamma l_0} \right)^{1/3} \quad (8)$$

دمای مربوط به پراکندگی ناشی از ناهمواری مرزی عبارت است از :

$$T_0 = \frac{\hbar v_s}{L k_B}$$

دمای مربوط به پراکندگی فونون ناشی از نقص نقطه ای از رابطه زیر به دست می آید؛ فاصله بین مرزدانه‌ها، a در نظر گرفته شده است:

$$T_{GB} = \frac{\hbar v_s}{(2D^2 v^2 L^2 k_B l_0 n_i)} \quad (9)$$

برای روشن شدن نقش مرزدانه‌ها در پراکندگی از بخش دوم معادله (6) که مربوط به پراکندگی نقص نقطه ای PD¹ است صرف نظر می کنیم و برای $T_0 > T_{GB}$ و $xT \gg T_0$ داریم $l_s \approx l_0 (1 + 2 \frac{T_0}{\pi T_{GB}}) + O(\frac{T_0^3}{T_{GB} T^2})^{-1}$ بنابراین T_0 معرف دمای آستانه؛ دمایی که در آن پراکندگی فونون‌های GB قابل توجه است. T_0 در زمانی که طول موج فونون قابل مقایسه با اندازه مرزدانه باشد مقدار مشخصی دارد. با در نظر گرفتن چگالی دانه‌ها به صورت $n_i = (a + L)^{-2}$ رابطه (9) به صورت $T_{GB} = \frac{\hbar v_s (1 + a/L)^2}{2D^2 v^2 k_B l_0}$ تعریف می شود. در این رابطه وابستگی دما به اندازه مرز دانه‌ها به خوبی نمایش داده می شود.

¹ point defect

رابطه رسانندگی گرمایی برای فونون‌های ZA از رابطه زیر محاسبه می‌شود:

$$\lambda_Z^{-1}(x, T) = 1 + \gamma_{ZA}^2(x, T) \left(\left(x \frac{T}{T_{PD}} \right)^{3/2} + \sqrt{x \frac{T}{T_{GB}}} g \left(\sqrt{x \frac{T}{T_0}} \right) \right) \quad (10)$$

$$\kappa_{ZA} = \frac{C_{ZA} T^{3/2}}{h_{eff}} \int_0^{g_{ZA}/T} \lambda_{ZA}(x, T) \frac{x^{5/2} e^x dx}{(e^x - 1)^2} \quad (11)$$

$$C_{ZA} = \frac{\sqrt{2mk_B^{5/2}} l_0}{(4\pi\hbar^{3/2})} \quad (12)$$

برای فونون‌های ZA داریم:

$$T_{PD} = \frac{1}{m} \left(\frac{4\sqrt{2}}{S_0 \Gamma l_0} \right)^{2/3} \frac{\hbar}{k_B}, \quad T_0 = \frac{\hbar}{(2L^2 m k_B)}, \quad T_{GB}' = \frac{\hbar(1+a/L)^4}{8mk_B [D'^2 v^2 l_0]^2},$$

$$D' = \pi(1-2\sigma)/(1-\sigma)$$

ثابت گرونایزن برای فونون ZA به بردار موج q وابسته [19] و برابر است با $\gamma_{ZA} = -1 - 80(q/q_D - 1)^2$ در حالی که برای فونون‌های LA و TA بردار موج ثابت است.

۲-۴. رسانندگی گرمایی گرافین چند بلوری در دمای بالا

برای رسانش هر شاخه فونون قطبیده، پارامتر گرونایزن γ_S (که مستقل از بردار موج فونون است)، سرعت و فرکانس خاصی را در نظر می‌گیریم. پارامتر γ_S با میانگین گیری $\gamma(q)$ برای همه فونون‌ها به دست می‌آید (q بردار موج فونون است). برای سه شاخه فونون ناشی از پراکندگی‌های واگرد [20,21] روابط را پیگیری می‌کنیم. طول عمر فونون‌های LA و TA از رابطه زیر محاسبه می‌شود:

$$\tau_{U,S} = \frac{1}{\gamma_S^2} \frac{M v_S^2}{k_B T} \frac{\omega_{S,max}}{\omega^2} \quad (13)$$

v_S سرعت متوسط فونون، T دمای خالص، $\omega_{S,max}$ ماکزیمم فرکانس برای یک شاخه فونون و M جرم سلول واحد گرافینی است. رسانندگی گرمایی به طور کلی با رابطه زیر بیان می‌شود:

$$\kappa = \frac{1}{4\pi k_B T^2 h} \times \sum_S \int_{q_{\min}}^{q_{\max}} \{[\hbar \omega_S(q) \frac{d\omega_S(q)}{dq}]^2 \tau_{U,S} \frac{e^{\hbar \omega_S / k_B T}}{(e^{\hbar \omega_S / k_B T} - 1)^2} q\} dq \quad (14)$$

در این جا می توانیم $\omega_S(q) = v_S q$ را در نظر گرفته و معادله (1) را به صورت زیر بازنویسی کنیم:

$$\kappa = \frac{M}{4\pi Th} \sum_S \frac{\omega_{S,\max} v_S^2}{\gamma_S^2} F(\omega_{S,\min}, \omega_{S,\max}) \quad (15)$$

$$F(\omega_{S,\min}, \omega_{S,\max}) = \int_{\hbar \omega_{S,\min} / k_B T}^{\hbar \omega_{S,\max} / k_B T} x \frac{e^x}{[e^x - 1]^2} dx = \left\{ \ln[e^x - 1] + \frac{x}{1 - e^x} - x \right\} \Big|_{\hbar \omega_{S,\min} / k_B T}^{\hbar \omega_{S,\max} / k_B T} \quad (16)$$

در روابط بالا $x = \hbar \omega / (k_B T)$ ، فرکانس ماکزیمم از پراکندگی فونون در منطقه بریلوئن و فرکانس می نیمم طبق رابطه زیر به دست می آید:

$$\omega_{S,\min} = \frac{v_S}{\gamma_S} \sqrt{\frac{M v_S \omega_{S,\max}}{k_B T L}} \quad (17)$$

در صورتی که داشته باشیم $\hbar \omega_{S,\max} > k_B T$ ، معادله (۱۶) به صورت زیر داده می شود:

$$F(\omega_{S,\min}) \approx -\ln[\exp(\hbar \omega_{S,\min} / k_B T) - 1] + \frac{\hbar \omega_{S,\min}}{k_B T} \frac{\exp(\hbar \omega_{S,\min} / k_B T)}{\exp(\hbar \omega_{S,\min} / k_B T) - 1} \quad (18)$$

۳. نتایج و محاسبات نظری

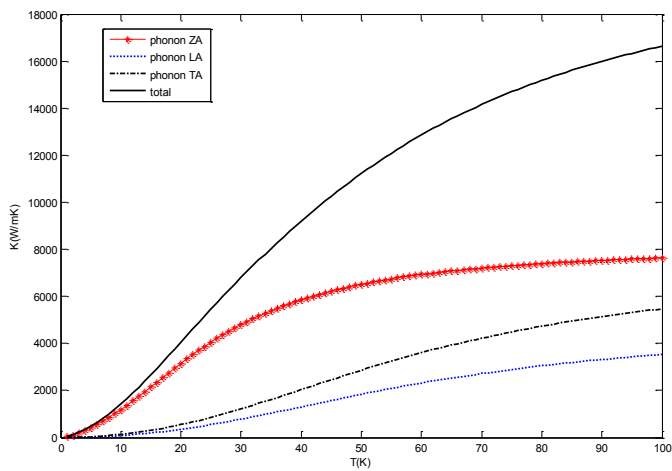
۳-۱. بررسی وابستگی رسانندگی گرمایی به دما

از آن جا که در رسانندگی گرمایی κ در دمای پایین هر سه شاخه فونون صوتی مؤثر هستند، به منظور درک بهتر تأثیر دما بر رسانندگی گرمایی، با استفاده از معادلات (۵) و (۱۱) و اطلاعات موجود در جدول (۱) نمودار تغییرات رسانندگی گرمایی را بر حسب دما به ترتیب برای شاخه های فونونی LA (نقطه چین)، TA (خط نقطه)، ZA (نشانه) و مجموع هر سه شاخه (خط توپر) برای نسبت $a/L = 50 \text{ nm}$ در شکل (۲) رسم می کنیم. این شکل نشان می دهد که هر سه شاخه فونون اکوستیکی در κ به طور مساوی مشارکت نداشته و سهم فونون منطقه مرزی بیشتر است. شکل های (۳) و (۴) مانند شکل (۲) بوده ولی به

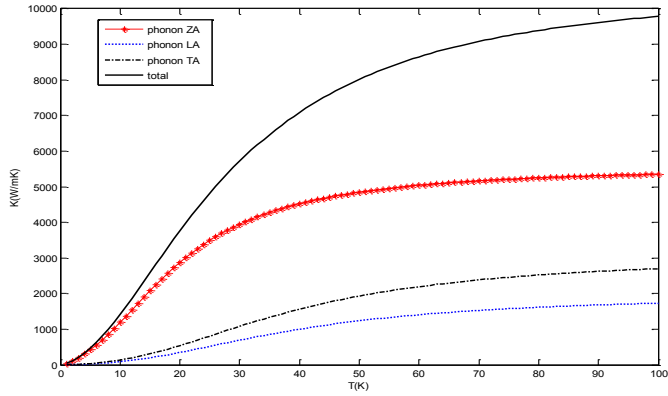
ترتیب برای نسبت‌های $a/L=20\text{ nm}$ و $a/L=2\text{ nm}$ رسم شده‌اند. شکل‌های (۲-۴) نشان می‌دهند که با کوچکتر بودن دانه‌ها و افزایش فاصله بین مرز دانه‌ها κ افزایش می‌یابد، زیرا در این حالت پراکندگی فونون‌ها کمتر است.

جدول ۱. داده‌های مورد نیاز برای رسم نمودارها

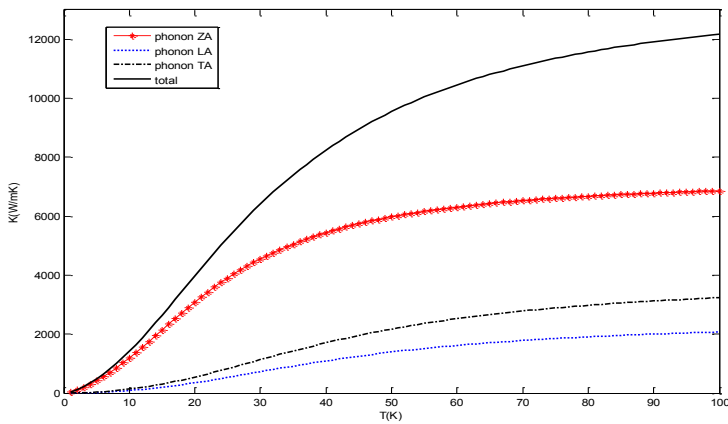
S_0	Γ	P	D	L	h_{eff}
$4.3 \times 10^{-22}\text{ m}^{-2}$	2×10^{-4}	0.9	$5\mu\text{m}$	2.46 nm	0.69 nm
M	v_s	ϑ_D	Q	γ_s	σ
10^6 s/m^2	$V_{LA}=21.3 \times 10^3\text{ m/s}$ $V_{TA}=13.6 \times 10^3\text{ m/s}$	$\vartheta_{LA} = 1950\text{K}$ $\vartheta_{TA} = 902\text{K}$ $\vartheta_{ZA} = 685\text{K}$	2 nm	$\gamma_{LA} = 1.8$ $\gamma_{TA} = 0.75$ $\gamma_{ZA} = 1$	0.15



شکل ۲. نمودار رسانندگی گرمایی بر حسب دما برای جمع سه شاخه فونونی به ازای $a/L=50\text{ nm}$

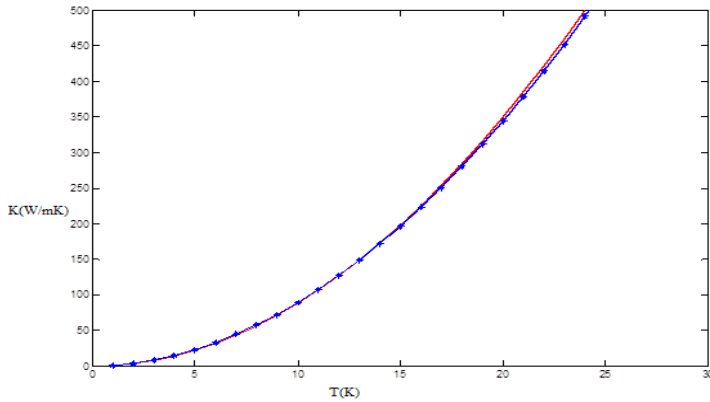


شکل ۳. نمودار رسانندگی گرمایی بر حسب دما برای جمع سه شاخه فونونی به ازای $a/L=2$ nm

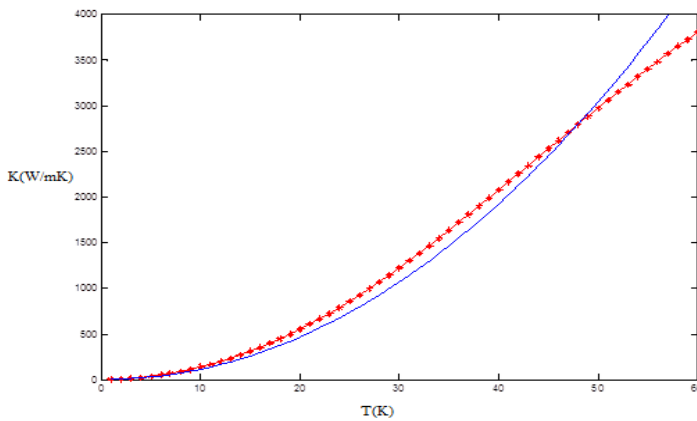


شکل ۴. نمودار رسانندگی گرمایی بر حسب دما برای جمع سه شاخه فونونی به ازای $a/L=20$ nm

برای بررسی بیشتر رفتار بر حسب دما می توان با توجه به شکل های (۲-۴) تغییرات κ را بر حسب دما برای فونون های صوتی طولی و عرضی در دماهای پایین به صورت $\kappa \sim T^n$ در نظر گرفت. شکل های (۵) و (۶) مقدار $n < 2$ را نشان می دهند که شبیه نتیجه [9] می باشد.



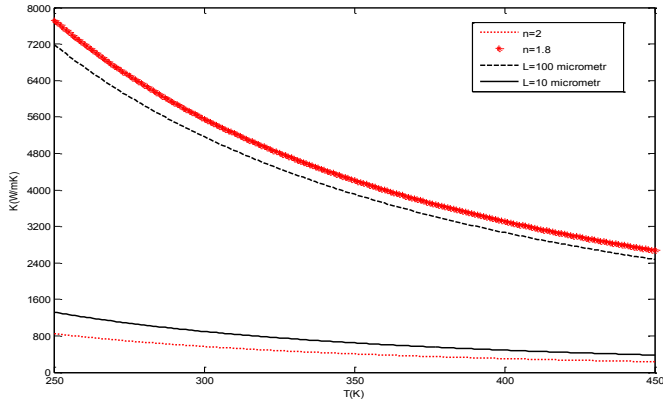
شکل ۵. نمودار رسانندگی گرمایی بر حسب دما برای $T^{1.95}$ برای فونون‌های طولی



شکل ۶. مقایسه نمودار رسانندگی گرمایی و نمودار T^2 برای فونون‌های عرضی برای $a/L=2 \text{ nm}$

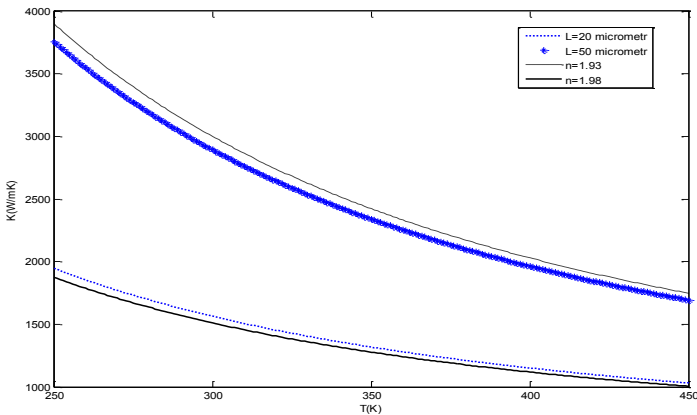
برای مطالعه وابستگی رسانندگی گرمایی به دما در دماهای بالا، در شکل (۷) منحنی تغییرات κ در گستره دمای $(250-450) \text{ K}$ برای $L=10, 100 \mu\text{m}$ همراه با تغییرات $\kappa \sim T^{-n}$ برای $n=1.8, 2$ به ترتیب (نشانه نقطه چین) نمایش داده شده است. شکل (۸) مانند شکل (۷) ولی برای $L=20, 50 \mu\text{m}$ همراه با تغییرات $\kappa \sim T^{-n}$ برای $n=1.93, 1.98$ به ترتیب (خط چین، خط توپر) رسم شده است. با توجه به شکل‌های (۷) و

(۸) می توان دریافت که برای مقادیر بزرگتر L رسانندگی گرمایی با توان های کوچکتری از معکوس دما متناسب است، البته برای ورقه هایی با بزرگی $(5-100) \mu m$ در دماهای نسبتاً بالا κ با T^{-n} ($1.8 \leq n \leq 2$) متناسب است.



شکل ۷. مقایسه تغییرات رسانندگی گرمایی برای $L=10,100 \mu m$

تغییرات $\kappa \sim T^{-n}$ برای $n = 1.8, 2$

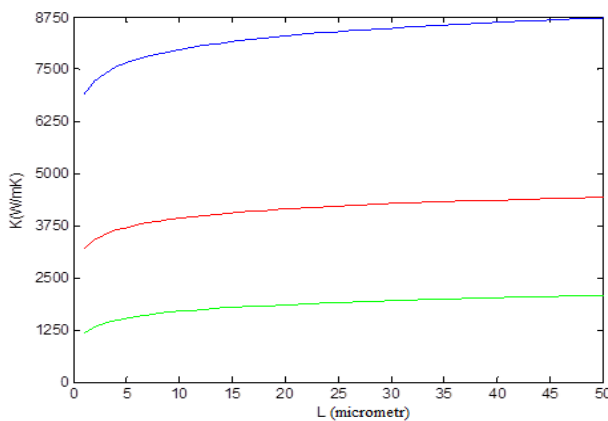


شکل ۸. مقایسه تغییرات رسانندگی گرمایی برای $L=20,50 \mu m$

تغییرات $\kappa \sim T^{-n}$ برای $n=1.93, 1.98$

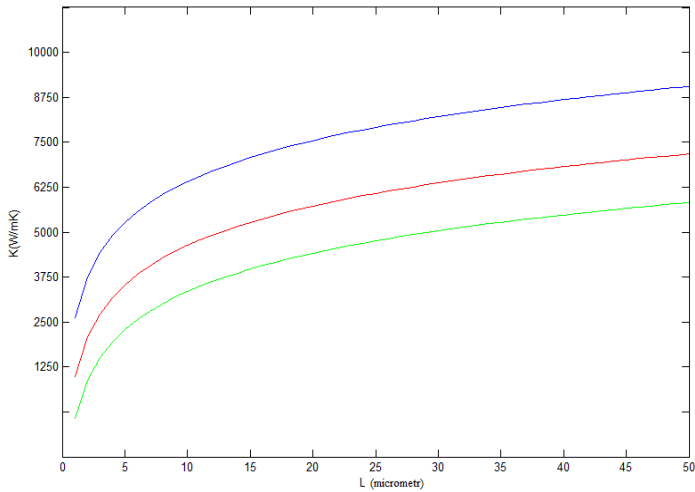
۲-۳. بررسی وابستگی رسانندگی گرمایی به اندازه ورقه گرافین

با استفاده از روابط (۱۵) و (۱۶) نمودار تغییرات رسانندگی گرمایی را بر اساس اندازه‌های متفاوت ورقه‌های گرافین، رسم نموده‌ایم. شکل (۹) نمودار تغییرات κ بر حسب اندازه دانه‌ها برای ثابت گرونایزن طولی $\gamma_{LA} = 1.8$ و ثابت‌های گرونایزن عرضی متفاوت $\gamma_{TA} = 0.6, 0.7, 0.9$ به ترتیب از پایین به بالا را نشان می‌دهد. شکل (۱۰) نیز مانند شکل (۹) ولی برای ثابت‌های گرونایزن طولی متفاوت $\gamma_{LA} = 1.6, 1.8, 2$ و ثابت گرونایزن عرضی $\gamma_{TA} = 0.7$ می‌باشد. مشاهده می‌شود که κ به ثابت گرونایزن برای امواج صوتی طولی و عرضی وابسته بوده و با افزایش مقدار L رسانندگی گرمایی نیز افزایش می‌یابد، و از آن جا که در رابطه (۱۵) جمع بر روی شاخه فونون قطبیده طولی و عرضی صورت می‌گیرد، با جمع پارامتر گرونایزن برای امواج صوتی طولی و عرضی، κ افزایش می‌یابد. نتایج تجربی نشان می‌دهند که برای مقادیر کوچک L ، رسانندگی گرمایی وابستگی شدیدی به اندازه ورقه داشته، اما برای مقادیر $L > 10\text{nm}$ میزان این وابستگی کمتر می‌شود [22,23]. از مقایسه شکل‌های (۹) و (۱۰) دیده می‌شود که تغییر در ثابت گرونایزن برای فونون‌های صوتی عرضی سبب ایجاد تغییرات بزرگ‌تری در مقدار رسانندگی گرمایی می‌شود.



شکل ۹. تغییرات رسانندگی گرمایی بر اساس اندازه دانه‌ها با تغییر در ثابت گرونایزن $\gamma_{LA} = 1.8$ و

$\gamma_{TA} = 0.6, 0.7, 0.9$ به ترتیب از پایین به بالا



شکل ۱۰. تغییرات رسانندگی گرمایی بر اساس اندازه دانه ها با تغییر در ثابت گرونایزن $\gamma_{LA} = 1.6, 1.8, 2$ و $\gamma_{TA} = 0.7$ به ترتیب از پایین به بالا

۴. نتیجه گیری

محاسبات نشان می دهند، رسانندگی گرمایی در دماهای پایین متناسب با T^n ($n < 2$) و در دماهای بالا متناسب با T^{-n} ($1.8 \leq n < 2$) است. منحنی رسانندگی گرمایی در دماهای پایین (0-100K) با افزایش دما، به صورت صعودی است اما در دماهای نسبتاً بالا (250-450K) شاهد روند نزولی در رسانندگی گرمایی هستیم. چنین رفتاری نشان دهنده تغییر در ساختار بلوری گرافین و تغییر در اندازه طول موج فونون های منتقل کننده گرماست. در دماهای پایین به علت کاهش پراکندگی فونون-فونون، رسانندگی گرمایی با افزایش دما روند صعودی دارد. با افزایش اندازه ورقه گرافینی، رسانندگی گرمایی افزایش می یابد.

۵. منابع

- [1] X. Li, W. Cai, J. An, S. Kim, J. Nah, D. Yang, R. Piner, A. Velamakanni, I. Jung, E. Tutuc, S. K. Banerjee, L. Colombo, and R. S. Ruoff; *Science* **324**, No. 5932 (2009) 1312–1314.
- [2] K. S. Kim, Y. Zhao, H. Jang, S. Y. Lee, J. M. Kim, K. S. Kim, J. H. Ahn, P. Kim, J.Y. Choi, and B.H. Hong; *Nature* **457**, No. 7230 (2009) 706–710.

- [3] A. Reina, X. Jia, J. Ho, D. Nezich, H. Son, V. Bulovic, M.S. Dresselhaus, and J. Kong; *Nano Lett.* **9**, No.1 (2009) 30–35.
- [4] S. Bae, H. K. Kim, Y. Lee, X. Xu, J. S. Park, Y. Zheng, J. Balakrishnan, T. Lei, H. R. Kim, and Y. I. Song; *Nat Nanotechnol.* **5**, No. 8 (2010) 574–578.
- [۵] D. L. Nika and A. A. Balandin; *J. Phys. Conden. Matter.* **24** (2012) 233203.
- [6] J. da Silva Araujo and R. W. Nunes; *Phys. Rev. B* **81** (2011) 073408.
- [7] P. Y. Huang, C. S. Ruiz-Vargas, A. M. van der Zande, W. S. Whitney, M. P. Levendorf, J.W. Kevek, S. Garg, J. S. Alden, C.J. Hustedt, Y. Zhu, J. Park, P.L. McEuen, and D.A. Muller; *Nature* **469** (2011) 389–392.
- [8] K. Kim, Z. Lee, W. Regan, C. Kisielowski, M.F. Crommie, and A. Zettl; *ACS Nano* **5** (2011) 2142.
- [9] D.V. Kolesnikov and V.A. Osipov; *Euro. Phys. Lett.* **100** (2012) 26004.
- [10] A. Turchanin, D. Weber, M. Büenfeld, C. Kisielowski, M.V. Fistul, K.B. Efetov, T. Weimann, R. Stosch, J. Mayer, and A. Götzhäuser; *ACS Nano* **5**, No. 5 (2011) 3896–3904.
- [11] W. Cai, A.L. Moore, Y. Zhu, X. Li, S. Chen, and L. Shi; *Nano Lett.* **10** (2010) 1645–1651.
- [12] R. Grantab, V.B. Shenoy, and R.S. Ruoff; *Science* **330**, No. 6006 (2010) 946-948.
- [13] G. P. Srivastava; “*The Physics of Phonons*”, Taylor and Francis, Bristol (1990).
- [14] A.F. Mills; “*Basic Heat and Mass Transfer*”, Prentice Hall, U.S.A. (1999).
- [15] J. Maultzsch, S. Reich, C. Thomsen, H. Requardt, and P. Ordejon; *Phys. Rev. Lett.* **92** (2004) 075501.
- [16] J.-U. Lee, D. Yoon, H. Kim, S. W. Lee, and H. Cheong; *Phys. Rev. B* **83** (2011) 081419.
- [17] X. S. Li, Y. W. Zhu, and W. W. Cai; “*Transfer of large-area 16rapheme films for high performance transparent conductive electrodes*”; *Nano Lett.* **9**, No. 12 (2009) 4359–436.

[18] A.K. Geim and K.S. Novoselov; “*The rise of 17rapheme*”; *Nature Materials* **6**, No. 3 (2007) 183–191.

[19] D.L. Nika, E.P. Pokatilov, A.S. Askerov, and A.A. Balandin; *Phys. Rev. B* **79** (2009) 155413.

[20] N. Mounet and N. Marzari; *Phys. Rev.* **71** (2005) 205214.

[21] L. Wirtz and A. Rubio; *Solid State Commun.* **131** (2004) 141-142.

[22] A.A. Balandin, and K.L. Wang; “*Significant decrease of the lattice thermal conductivity due to phonon confinement in a free-standing semiconductor quantum well*”; *Phys. Rev. B* **58** (1998) 1544.

[23] P. K. Schelling, S. R. Phillpot, and P. Keblinski; *J. Appl. Phys.* **95**, No. 11 (2004) 6082–6091.