



Science, Engineering and Business

6-ая Межвузовская конференция аспирантов, соискателей и молодых ученых

РАСЧЕТ ТЕПЛОФИЗИЧЕСКИХ СВОЙСТВ ГРАФЕНА ИЗ ПЕРВЫХ ПРИНЦИПОВ

Лю Шисян

Аспирант 1 года обучения
кафедры «Теплофизика» (Э-6) МГТУ им. Н.Э. Баумана

Москва, 2024



СОДЕРЖАНИЕ

CONTENTS

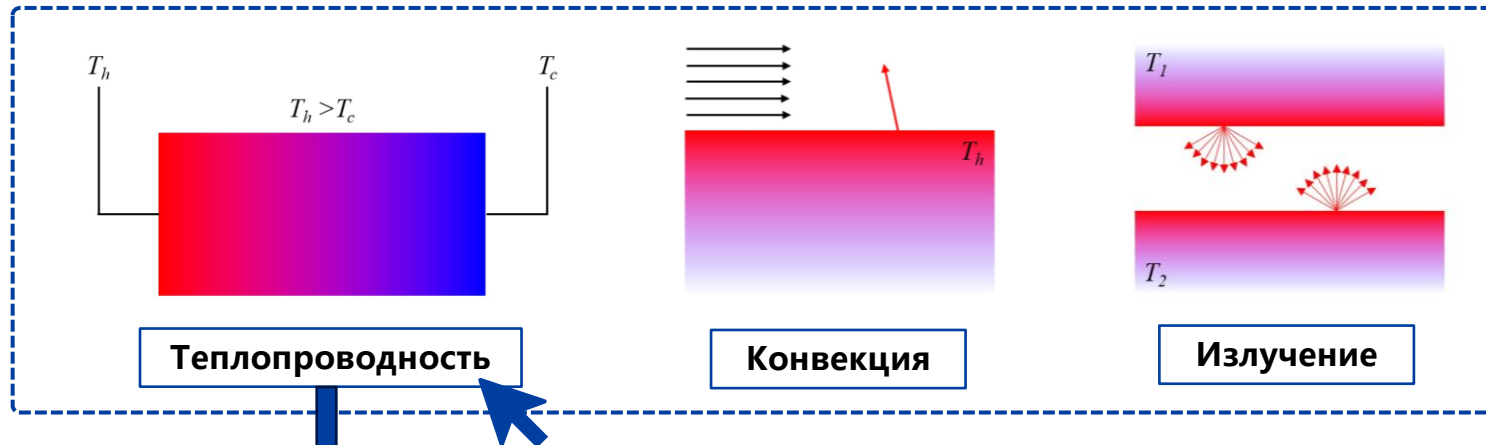


1. Введение и актуальность
2. Основы теории и методы
3. Алгоритм расчета
4. Полученные результаты
5. Заключение



■ Введение

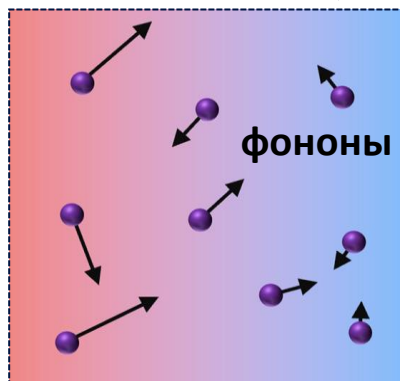
Три способа передачи тепла



Согласно **закону Фурье**, эффективность теплопередачи материала определяется коэффициентом теплопроводности.

$$q = -\kappa \cdot \nabla T$$

Плотность теплового потока q
Коэффициент теплопроводности κ
Градиент температуры ∇T

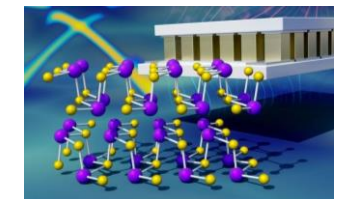


Полупроводник & изолятор

- ◆ Фононы рассеиваются **часто**
- ◆ Длина свободного пробега **короткая**
- ◆ Коэффициент теплопроводности **низкий**

PbTe, Bi₂Te₃, SnSe, и т.д.

$$\kappa \sim 1 \frac{\text{Вт}}{\text{м} \cdot \text{К}}$$

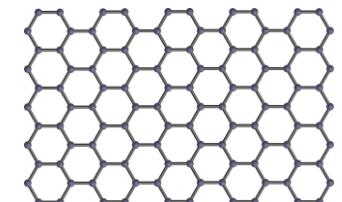


SnSe

- ◆ Фононы рассеиваются **нечасто**
- ◆ Длина свободного пробега **большая**
- ◆ Коэффициент теплопроводности **высокий**

Графен, углеродные нанотрубки, и т.д.

$$\kappa \sim 10^3 \frac{\text{Вт}}{\text{м} \cdot \text{К}}$$



Графен

Введение и актуальность

Основы теории и методы

Алгоритм расчета

Полученные результаты

Заключение



■ Актуальность

- ✓ Сверхвысокая подвижность электронов ($15\,000\text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$)
- ✓ Кандидат на подложку для электронных компонентов нового поколения

Электрические свойства

Оптические свойства

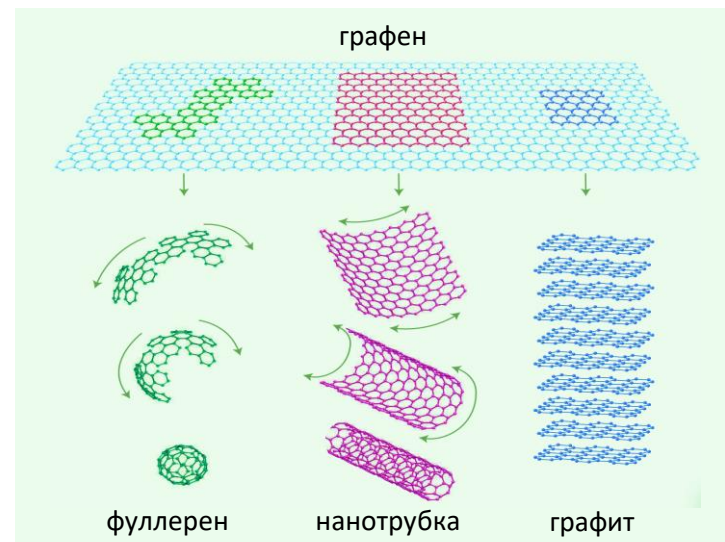
- ✓ Высокая светопроницаемость
- ✓ Прозрачная проводящая пленка, фотоэлектрическая пленка и т. д.

Механические свойства

Тепловые свойства

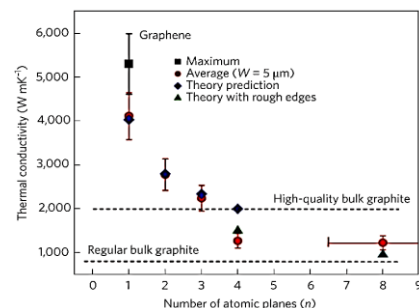
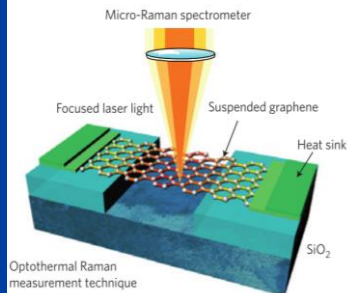
- ✓ Самый тонкий и прочный материал в мире
- ✓ Модуль упругости (жесткость) $150\,000\,000\text{ psi}$

- ✓ Высокая теплопроводность ($2000\sim5000\text{ Вт/м}\cdot\text{К}$)
- ✓ кандидатный материал для отвода тепла в очень крупных наноинтегральных схемах.

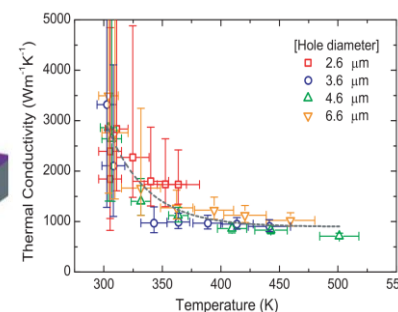
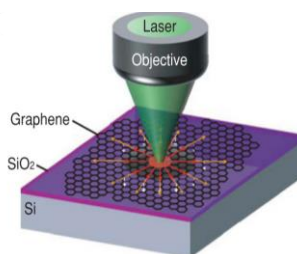


[1] Geim et. al. *Nat. Mater.* 6 (2007)

Теплопроводность взвешенного графена



[2] Balandin et. al. *Nat. Mater.* 10 (2011)



[3] Lee et. al. *Phys. Rev. B* 83 (2011)

Форма	T [K]	κ [Вт/м·К]	Ссылка
Прямоугольник	RT	~5000	[2]
Круговая	~300	~2800	[3]
Круговая	~400	~1900	[4]

[4] Sullivan et. al. *Nano Lett.* 17 (2017)

Результаты находятся в **широком** диапазоне, что отражает **неопределенность**.

В целом, разработка достоверных и надежных методов расчета и прогнозирования свойств графена является актуальной задачей.



■ Кинетическая модель расчета теплопроводности

Уравнения переноса Больцмана

Стационарный режим $\frac{\partial f}{\partial t} = 0$

Малый градиент температуры $v_g \nabla_r f = v_g \frac{\partial f_0}{\partial T} \nabla_r T$

Приближение времени релаксации $\left[\frac{\partial f}{\partial t} \right]_{\text{coll}} = -\frac{f - f_0}{\tau}$

Распределение Бозе-Эйнштейна $f_0(\omega, T) = \left[\exp \frac{\hbar \omega}{kT} - 1 \right]^{-1}$

Возмущение, вызванное градиентом температуры $f = f_0 - \tau \cdot v_g \frac{\partial f_0}{\partial T} \nabla T$

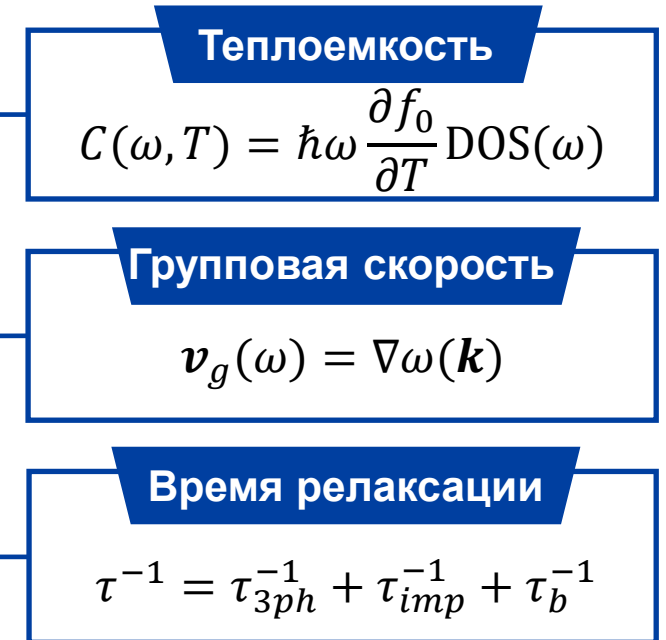
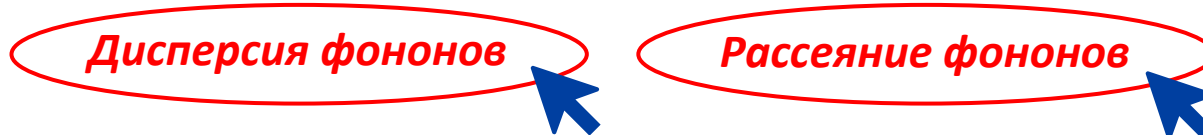
Плотность теплового потока

$$q = \sum_{j,k} \hbar \omega f v_g = - \sum_{j,k} \hbar \omega \frac{\partial f_0}{\partial T} \nabla T v_g v_g \tau = -\kappa \cdot \nabla T$$

Закон Фурье

Теплопроводность

$$\kappa = \sum_{j,k} \frac{1}{3} C v_g^2 \tau = \frac{1}{3} \sum_j \int_{\omega_{\min,j}}^{\omega_{\max,j}} C_j(\omega, T) v_{g,j}^2(\omega) \tau_j(\omega, T) d\omega$$





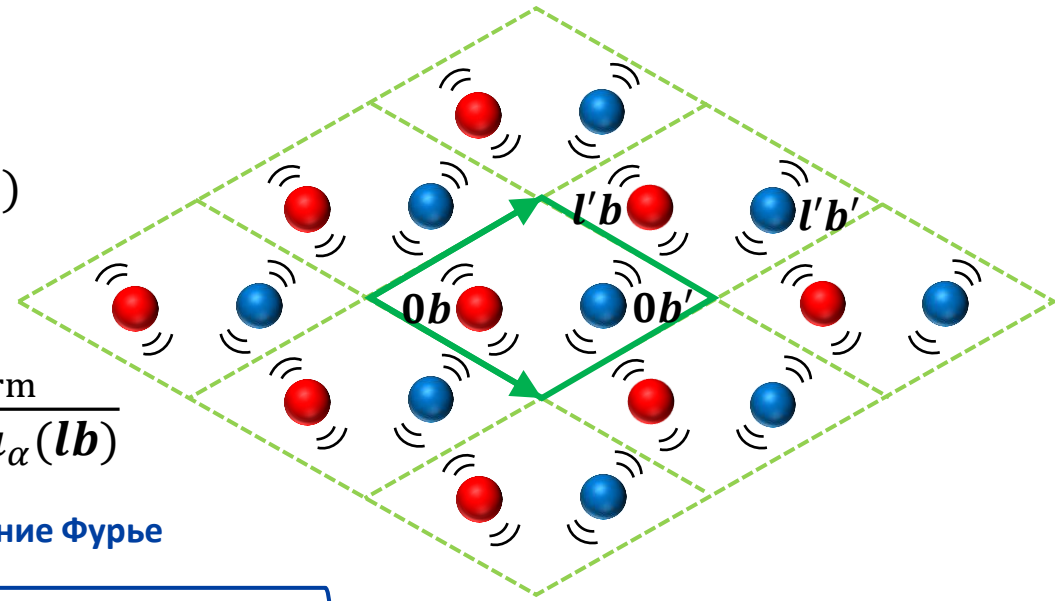
■ Дисперсия фононов

Гамильтониан в гармоническом приближении

$$H_{\text{harm}} = T + \frac{1}{2} \sum_{lb, l'b'} \sum_{\alpha\beta} \Phi_{\alpha\beta}(lb, l'b') u_{\alpha}(lb) u_{\beta}(l'b')$$

Элемент тензора **межатомных силовых констант** между атомом lb и атомом $l'b'$

$$\Phi_{\alpha\beta}(lb, l'b') = \frac{\partial^2 H_{\text{harm}}}{\partial u_{\alpha}(lb) \partial u_{\beta}(l'b')}$$



Динамическая матрица

Преобразование Фурье

$$D_{\alpha\beta}(bb'|k) = \frac{1}{\sqrt{m_b m_{b'}}} \sum_{l'} \Phi_{\alpha\beta}(0b, l'b') \exp[ik \cdot R(l')]$$

Трансляционная инвариантность

Характеристическое уравнение

$$\omega^2(ks) e(k) = D(k) e(k)$$

Находим собственные значения с помощью компьютера

Matlab: eigvals = `eig(dynmat)`
Python: eigvals = `numpy.linalg.eigh(dynmat)`

$$D(k) = \begin{pmatrix} D_{xx}(1,1,k) & D_{xy}(1,1,k) & D_{xz}(1,1,k) & \cdots & D_{xx}(1,N,k) \\ D_{yx}(1,1,k) & D_{yy}(1,1,k) & D_{yz}(1,1,k) & \cdots & D_{yz}(1,N,k) \\ D_{zx}(1,1,k) & D_{zy}(1,1,k) & D_{zz}(1,1,k) & \cdots & D_{zz}(1,N,k) \\ \vdots & \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ D_{zx}(N,1,k) & D_{zy}(N,1,k) & D_{zz}(N,1,k) & \cdots & D_{zz}(N,N,k) \end{pmatrix}$$

$$\omega(k) = (\omega_1(k) \quad \omega_2(k) \quad \omega_3(k) \quad \cdots \quad \omega_{3N}(k))^T$$



■ Рассеяние фононов

Время релаксации
однофонового режима
(SMRT)

$$\begin{aligned} f_{\lambda} &= f_{\lambda}^0 + \delta_{\lambda}; \\ f_{\lambda'} &= f_{\lambda'}^0; \\ f_{\lambda''} &= f_{\lambda''}^0 \end{aligned}$$

Итеративное решение

$$\begin{aligned} f_{\lambda} &= f_{\lambda}^0 + \delta_{\lambda}; \\ f_{\lambda'} &= f_{\lambda'}^0 + \delta_{\lambda'}; \\ f_{\lambda''} &= f_{\lambda''}^0 + \delta_{\lambda''} \end{aligned}$$

SMRT:

$$\frac{1}{\tau_{\lambda,3ph}^0} = \sum_{\lambda',\lambda''} \Gamma_{\lambda,\lambda',\lambda''}^{(+)} + \frac{1}{2} \sum_{\lambda',\lambda''} \Gamma_{\lambda,\lambda',\lambda''}^{(-)}$$

Итеративное решение:

$$\tau_{\lambda,3ph} = \tau_{\lambda,3ph}^0 (1 + \Delta_{\lambda})$$

$$\Delta_{\lambda} = \sum_{\lambda',\lambda''} \Gamma_{\lambda,\lambda',\lambda''}^{(+)} (\xi_{\lambda\lambda''} \tau_{\lambda''} - \xi_{\lambda\lambda'} \tau_{\lambda'}) + \frac{1}{2} \sum_{\lambda',\lambda''} \Gamma_{\lambda,\lambda',\lambda''}^{(-)} (\xi_{\lambda\lambda''} \tau_{\lambda''} + \xi_{\lambda\lambda'} \tau_{\lambda'})$$

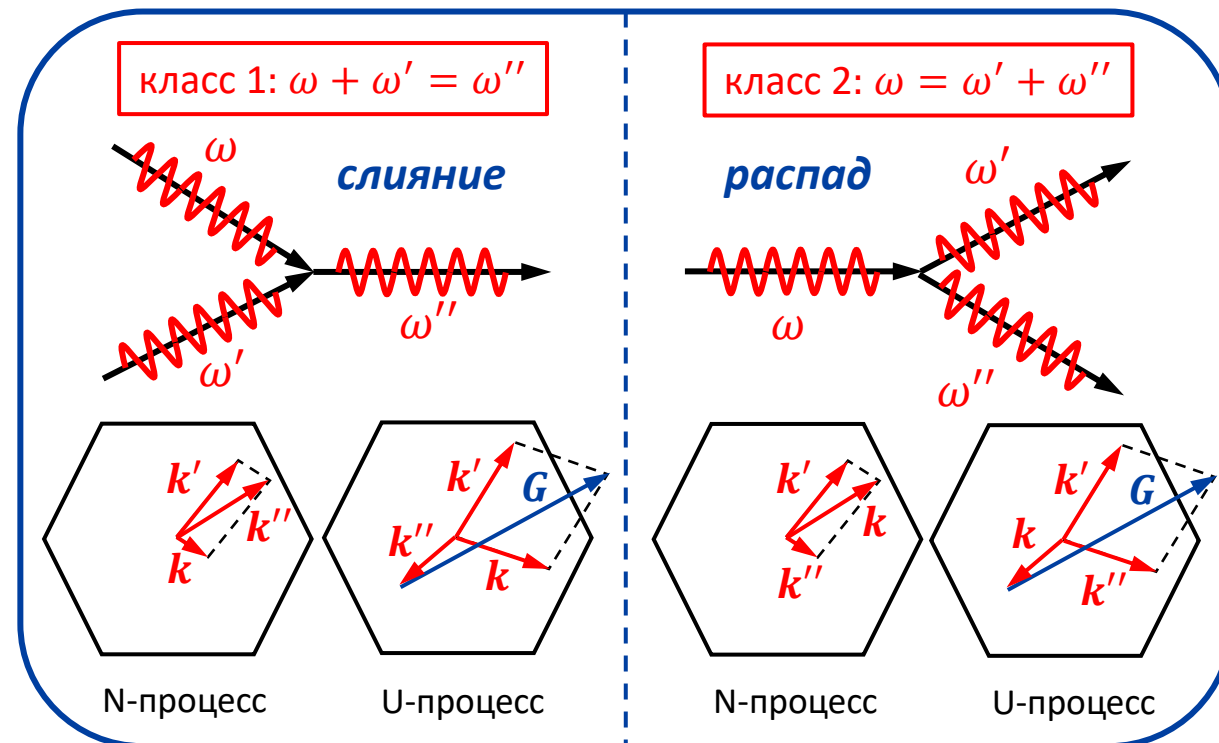
$\Gamma_{\lambda,\lambda',\lambda''}^{(\pm)}$ --- Вероятность перехода
для трехфононных процессов

$$\Gamma_{\lambda,\lambda',\lambda''}^{(\pm)} = \frac{\hbar\pi}{4} \left\{ \frac{f_{\lambda'}^0 - f_{\lambda''}^0}{1 + f_{\lambda'}^0 + f_{\lambda''}^0} \right\} \frac{\delta(\omega \pm \omega' - \omega'')}{\omega\omega'\omega''} |V_{\lambda,\lambda',\lambda''}^{(\pm)}|^2$$

$V_{\lambda,\lambda',\lambda''}^{(\pm)}$ --- Матрица
рассеяния фононов

$$V_{\lambda,\lambda',\lambda''}^{(\pm)} = \sum_{\alpha\beta\gamma} \sum_{b,l'b',l''b''} \Phi_{0b,l'b',l''b''}^{\alpha\beta\gamma} \frac{e_{\lambda}^{\alpha}(0b)e_{\lambda'}^{\alpha}(l'b')e_{\lambda''}^{\alpha}(l''b'')}{\sqrt{m_b m_{b'} m_{b''}}}$$

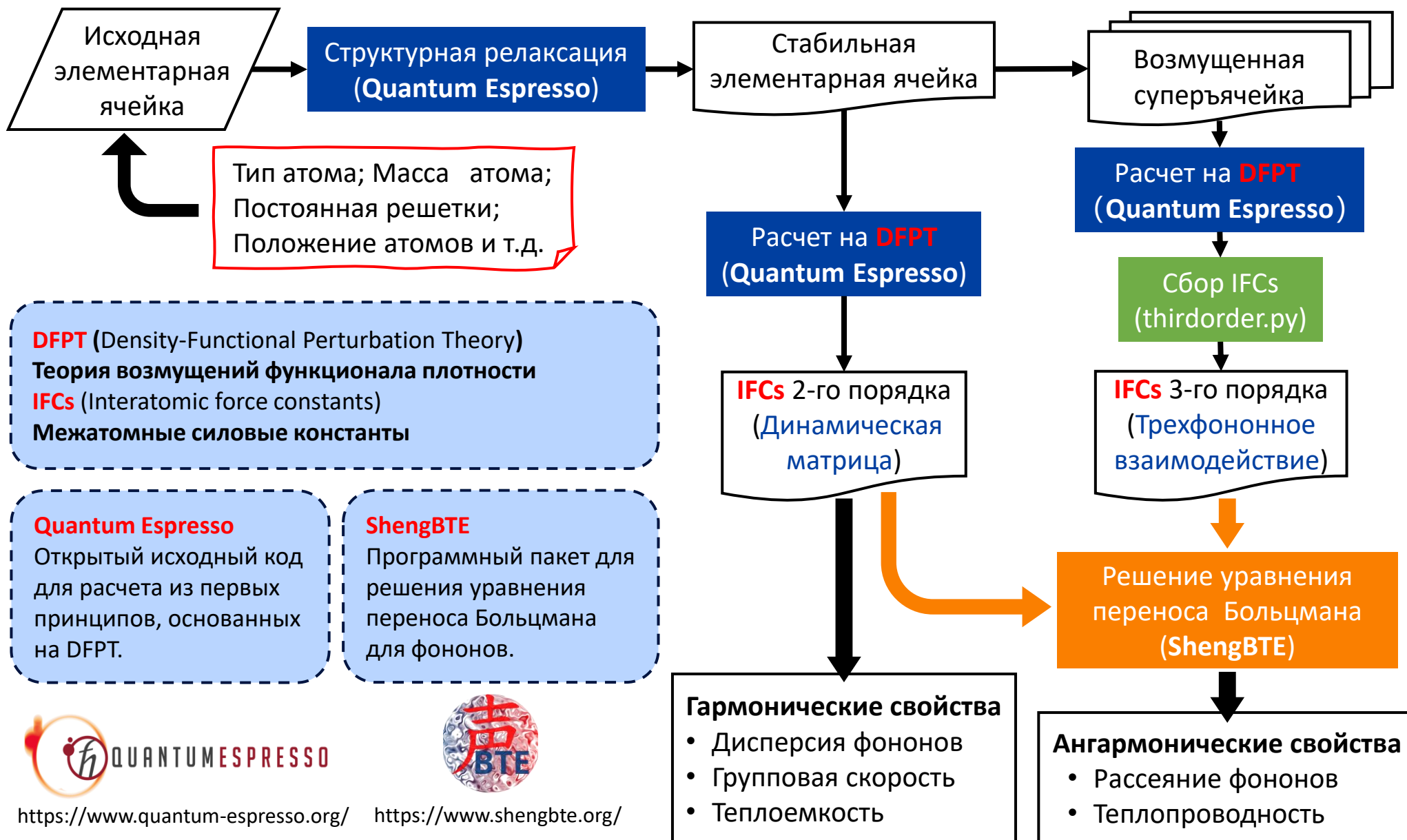
Элемент тензора
межатомных
силовых констант
третьего порядка



Правило Ферми



■ Алгоритм расчета



Введение и актуальность

Основы теории и методы

Алгоритм расчета

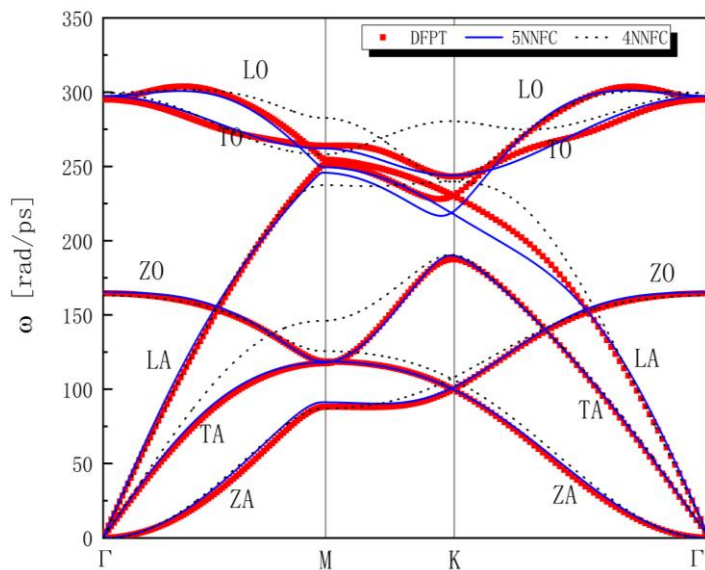
Полученные результаты

Заключение



■ Полученные результаты

Дисперсия фононов



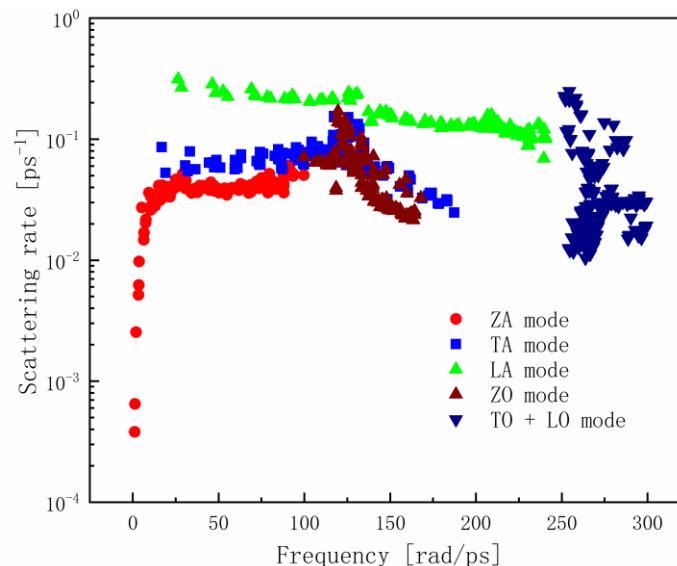
Дисперсионные кривые графена по основным направлениям.

- метод DFPT;
- модель четырех соседей (4NNFC) [1];
- модель пяти соседей (5NNFC) [2].

[1] Zimmermann et. al. *Phys. Rev. B* **78** (2008)

[2] Mohr et. al. *Phys. Rev. Lett.* **76** (2007)

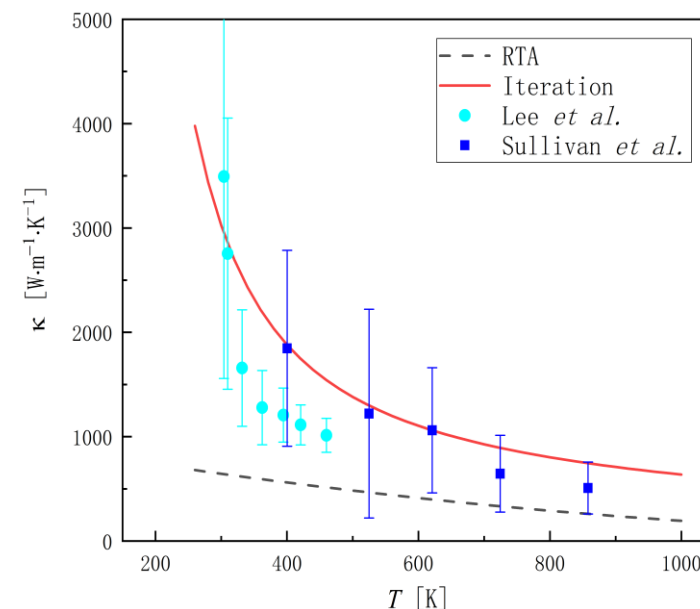
Рассеяние фононов



Интенсивность рассеяния фононов в зависимости от частоты при температуре 300K различных мод:

ZA --- out-of-plane transverse acoustic mode
TA --- in-plane transverse acoustic mode
LA --- in-plane longitudinal acoustic mode
ZO --- out-of-plane transverse optical mode
TO --- in-plane transverse optical mode
LO --- in-plane longitudinal optical mode

Теплопроводность



Теплопроводность графена в зависимости от температуры.

- результаты итеративного решения BTE;
- - - результаты на SMRT;
- экспериментальные данные из [3];
- экспериментальные данные из [4].

[3] Lee et. al. *Phys. Rev. B* **83** (2011)

[4] Sullivan et. al. *Nano Lett.* **17** (2017)

Введение и актуальность

Основы теории и методы

Алгоритм расчета

Полученные результаты

Заключение



Введение и
актуальность

Основы теории
и методы

Алгоритм
расчета

Полученные
результаты

Заключение

■ Заключение

01

Интенсивность рассеяния фононов моды ZA меньше чем у других мод в низкочастотной области, что оказывает большое влияние на теплопроводность графена.

02

Применение модели времени релаксации одномодового режима (SMRT) приводит к снижению теплопроводности графена.

03

Для достоверного прогнозирования теплопроводности необходимо использовать надежные методы численного решения и более точно рассматривать процессы взаимодействия фононов.



Science, Engineering and Business

6-ая Межвузовская конференция аспирантов, соискателей и молодых ученых

Спасибо за внимание!

Лю Шисян

Аспирант 1 года обучения
кафедры «Теплофизика» (Э-6) МГТУ им. Н.Э. Баумана

Москва, 2024