

我院陈杰教授团队与华侨大学、新加坡高性能计算研究所合作综述论文发表在 Physics Reports 上



Size-dependent phononic thermal transport in low-dimensional nanomaterials

Zhongwei Zhang^a, Yulou Ouyang^a, Yuan Cheng^b, Jie Chen^{a,*}, Nianbei Li^{c,*}, Gang Zhang^{b,*}

^a Center for Phononics and Thermal Energy Science, China-EU Joint Lab for Nanophononics, School of Physics Science and Engineering, Tongji University, Shanghai 200092, People's Republic of China

^b Institute of High Performance Computing, A*STAR, Singapore 138632, Singapore

^c Institute of Systems Science and Department of Physics, College of Information Science and Engineering, Huaqiao University, Xiamen 361021, People's Republic of China

近日，同济大学博士生张忠卫（第一作者）、陈杰教授（共同通讯作者）与华侨大学李念北教授（共同通讯作者）以及新加坡高性能计算研究所张刚教授（共同通讯作者）合作在物理类顶级期刊《Physics Reports》发表了题为“Size-dependent phononic thermal transport in low-dimensional nanomaterials”的综述论文，系统地总结了低维纳米材料热传导领域的最新研究进展，集中介绍了其独特的尺寸效应。论文从一维纳米材料出发，从理论模型、计算模拟以及实验测量等多个方面详细介绍了尺寸依赖热传导的独特现象及其物理根源，并介绍了相应的严格理论证明。此外，论文还全面归纳了二维材料中的尺寸依赖热输运特性，以及在界面热传导和热整流方面的效应。最后，论文指出了低维纳米材料热输运研究领域的主要挑战，并提供了一些解决当前问题的可行方案，为未来该领域的研究指明了方向。

该论文于今年三月底在线发表在 Physics Reports, **in press** (2020)。

全文链接如下：<https://doi.org/10.1016/j.physrep.2020.03.001>

主要内容简介

一、一维纳米材料热导率的尺寸依赖关系

碳纳米管和纳米线，特别是硅纳米线是两种广受关注的一维纳米材料。最初，通过分子动力学模拟，Zhang 和 Li¹²发现单壁碳纳米管的热导率不会随着管长的增加而收敛，其随长度的变化为 $\kappa \sim L^b$ ， $b > 0$ 。如图 1(a)，这说明碳纳米管中的热传导不遵守傅立叶定律。其后，Shiomi 和 Maruyama¹³在长度达到 $1.6 \mu\text{m}$ 的碳纳米管中也发现了长度依赖的热导率。近期，

Chang 等人¹⁴通过实验测量进一步发现即使长度超过 1 毫米的单壁碳纳米管热导率还会随着长度的增加而发散。硅纳米线是另一种广受关注的一维纳米材料。与碳纳米管类似，Yang 等人⁶研究发现硅纳米线的热导率会随着长度增加而增加，如图 1(b)。近期 Anufriev 等人¹⁵实验观测到在低温下硅纳米线导热系数有着明显的长度依赖性，但在室温下被减弱了。

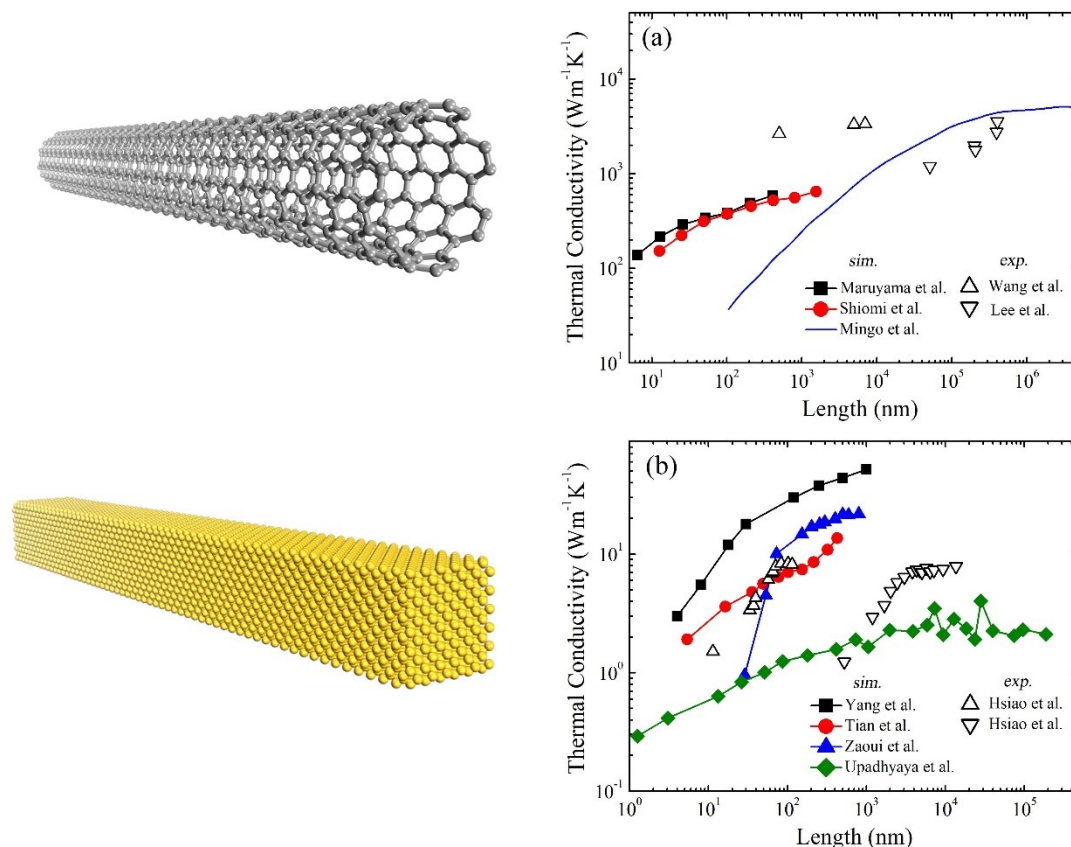


图 1. 一维纳米材料中热导率的尺寸依赖关系。(a) 碳纳米管中热导率随长度的依赖关系。数据分别来自 Maruyama et al.¹, Shiomi et al.², Mingo et al.³, Wang et al.⁴ 和 Lee et al.⁵。(b) 硅纳米线中热导率随长度的依赖关系。数据分别来自 Yang et al.⁶, Tian et al.⁷, Zaoui et al.⁸, Upadhyaya et al.⁹ 和 Hsiao et al.^{10, 11}。

Lindsay 等人¹⁶通过求解玻耳兹曼输运方程发现一维材料碳纳米管中长波弯曲 (flexural) 声子对其热导率长度依赖关系起到了主要的贡献。但是，当材料中存在其他散射机制时，比如纳米管中的空位缺陷与声子的散射，硅纳米线中的缺陷和表面散射等，或者散射被增强时，比如提高温度，都会影响长波声子的贡献从而消除长度依赖关系。这也可能是导致不同的文献报道中存在差异的原因。另外，基于 Mode-Coupling Theory 也有一些工作从理论的角度解释了热导率随尺寸发散的物理根源。

二、 二维材料面内热导率的长度依赖关系

二维材料因其奇异的结构性也吸引了许多研究兴趣，其中包括石墨烯，二硫化钼等。以单层石墨烯为例，Lindsay 等人²²发现其晶格热导率主要由平面外 (out-of plane) 或弯曲 (flexural) 声子模式贡献。该模式的贡献使得热导率随长度的增加而发散。这一结果同样在分子动力学模拟中得到了验证。Chen 和 Zhang 等人¹⁹模拟发现即使样品长度达到了 10 μ m

单层石墨烯仍然与长度呈对数关系,如图 2(a)。最近, Su 和 Zhang²¹ 将最大长度延长到 $14\mu\text{m}$, 仍然保留了对数律长度依赖性。实验上, Xu 等人²⁰ 提供了直接的实验数据证实了悬空单层石墨烯中与尺寸依赖的热传导。

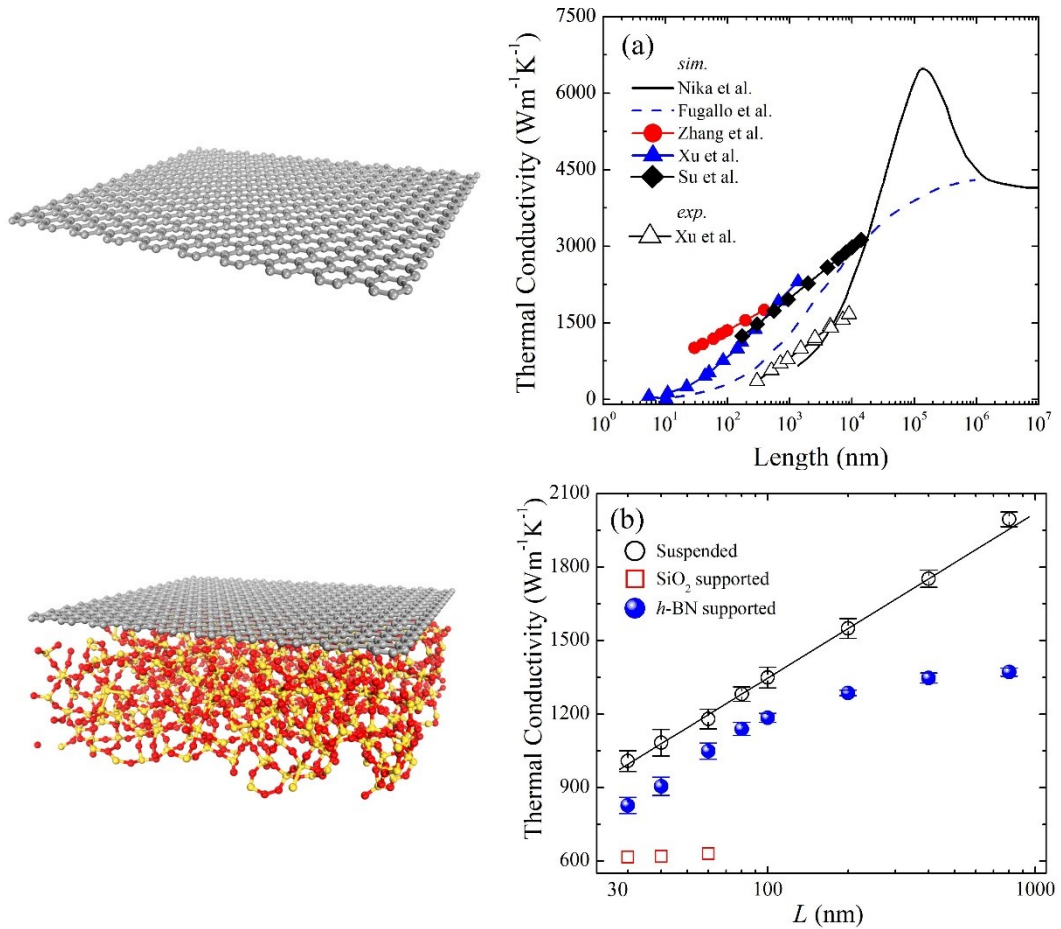


图 2. 二维材料中面内热导率的长度依赖关系。(a)悬空状态下以及(b)衬底上的单层石墨烯的热导率随长度的依赖关系。数据分别来自 Nika et al.¹⁷, Fugallo et al.¹⁸, Zhang et al.¹⁹, Xu et al.²⁰ 和 Su et al.²¹。

二维材料中与长度有关的导热率关系源自其独特的声子-声子散射。类似于一维材料中的声子局域效应,将尺寸从三维减小到二维也会引起声子受限并改变声子色散。Lindsay 等人²² 发现二维石墨烯中声子-声子散射额外遵守对称选择定则 (symmetry selection rule) 限制了低频声子的散射,同时长波极限下的 flexural 声子具有强烈的正则散射过程。这些机制导致石墨烯的热导率尺寸依赖关系。所以,当这些机制受到抑制时,比如受衬底支撑或缺陷散射影响时,热导率的长度依赖性将会收到极大的抑制,如图 2(b)。

三、 二维材料的横向尺寸效应

二维材料中横向的尺寸效应通常源自于声子-边界/表面的散射。通过分子动力学模拟, Zhong 等人²³ 发现石墨烯室温下的导热系数会随层数单调减少,在 5 层时收敛到一定的值。Singh 等人²⁴ 认为,在几层石墨烯中的弱层间耦合打开了更多的三声子散射通道,同时破坏

了面外模式的对称选择规则。结果，弱层间相互作用强烈地抑制了面内热导率。但是，不同材料的面外贡献不同会导致横向尺寸效应也不尽相同，比如二硫化钼等。

但是在存在衬底的情况下，则出现完全相反的趋势。Jang 等人²⁵的实验证明被包裹在二氧化硅中的石墨烯的热导率随着石墨烯层数而增加。通过分子动力学模拟，Chen 等²⁶发现在 SiO₂ 衬底上的多层石墨烯中，导热系数随层厚度迅速增加，约在三十层左右达到饱和。

四、 尺寸对界面热阻和热整流的影响

当电子设备的特征尺寸接近纳米量级时，系统中界面密度急剧增大，界面热阻也变得越来越重要。Chen 等人²⁷研究发现对非晶 SiO₂ 和晶体 Si 组成的异质结，在弱界面耦合下，界面热阻随着异质结长度的增加而单调减小。而在强界面耦合下，界面热阻对长度几乎不敏感。此外，Liang 等人²⁸通过分子动力学模拟发现当声子平均自由程大于薄膜厚度时，界面热阻取决于薄膜厚度以及薄膜表面粗糙度。具有光滑的外表界面热阻明显表现出与系统总长度的倒数成线性关系。

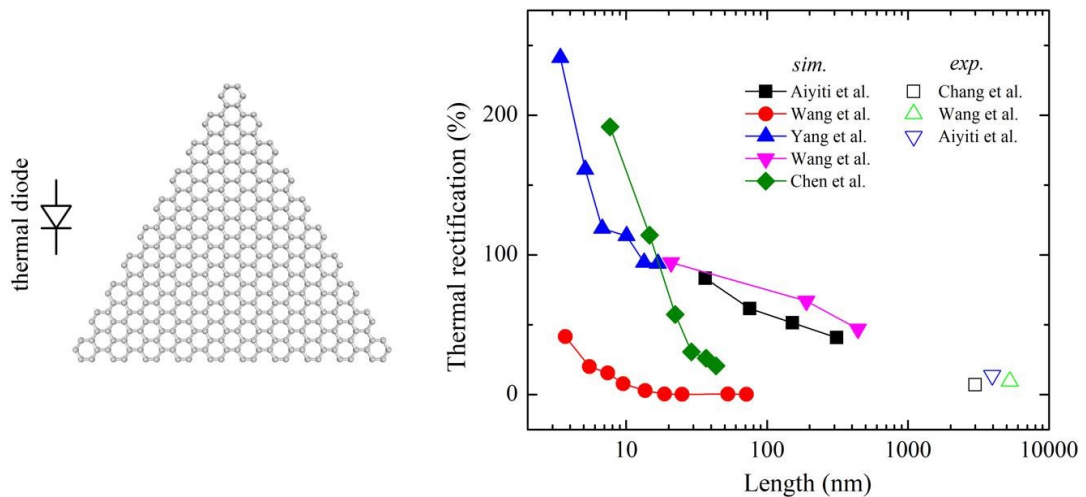


图 3. 低维材料中尺寸依赖的热整流效率。数据分别来自 Aiyiti et al.²⁹, Wang et al.³⁰, Yang et al.³¹, Wang et al.³², Chen et al.³³, Chang et al.³⁴ 和 Wang et al.³²。

此外，Li 等人³⁵证明不对称的界面热阻会导致独特的热整流现象。热整流效率展现了很强的尺寸依赖性，如图 3 所示。例如，Yang 和 Chen 等人^{31, 33}在石墨烯纳米带和石墨烯 / 六方氮化硼 (h-BN) 中发现，热整流效率随着系统长度的增加而迅速降低。因此，为实现高效率热整流器件，尺寸效应是必须要考虑的重要因素。

References

1. Maruyama, S. Phys. B: Condens. Matter **2002**, 323, 193-195.
2. Shiomi, J.; Maruyama, S. Phys. Rev. B **2006**, 73, 205420.

3. Mingo, N.; Broido, D. A. *Nano Lett.* **2005**, *5*, 1221-1225.
4. Wang, Z. L.; Tang, D. W.; Li, X. B.; Zheng, X. H.; Zhang, W. G.; Zheng, L. X.; Zhu, Y. T.; Jin, A. Z.; Yang, H. F.; Gu, C. Z. *Appl. Phys. Lett.* **2007**, *91*, 123119.
5. Lee, V.; Wu, C. H.; Lou, Z. X.; Lee, W. L.; Chang, C. W. *Phys. Rev. Lett.* **2017**, *118*, 135901.
6. Yang, N.; Zhang, G.; Li, B. *Nano Today* **2010**, *5*, 85-90.
7. Tian, Z.; Esfarjani, K.; Shiomi, J.; Henry, A. S.; Chen, G. *Appl. Phys. Lett.* **2011**, *99*.
8. Zaoui, H.; Palla, P. L.; Cleri, F.; Lampin, E. *Phys. Rev. B* **2017**, *95*.
9. Upadhyaya, M.; Aksamija, Z. *Phys. Rev. B* **2016**, *94*, 174303.
10. Hsiao, T. K.; Chang, H. K.; Liou, S. C.; Chu, M. W.; Lee, S. C.; Chang, C. W. *Nat. Nanotechnol.* **2013**, *8*, 534-538.
11. Hsiao, T. K.; Huang, B. W.; Chang, H. K.; Liou, S. C.; Chu, M. W.; Lee, S. C.; Chang, C. W. *Phys. Rev. B* **2015**, *91*, 035406.
12. Zhang, G.; Li, B. *J. Chem. Phys.* **2005**, *123*, 114714.
13. Shiomi, J.; Maruyama, S. *Jpn. J. Appl. Phys.* **2008**, *47*, 2005-2009.
14. Chang, C. W.; Okawa, D.; Garcia, H.; Majumdar, A.; Zettl, A. *Phys. Rev. Lett.* **2008**, *101*, 075903.
15. Anufriev, R.; Gluchko, S.; Volz, S.; Nomura, M. *ACS Nano* **2018**, *12*, 11928-11935.
16. Lindsay, L.; Broido, D. A.; Mingo, N. *Phys. Rev. B* **2009**, *80*, 125407.
17. Nika, D. L.; Askerov, A. S.; Balandin, A. A. *Nano Lett.* **2012**, *12*, 3238-3244.
18. Fugallo, G.; Cepellotti, A.; Paulatto, L.; Lazzeri, M.; Marzari, N.; Mauri, F. *Nano Lett.* **2014**, *14*, 6109-6114.
19. Zhang, Z.; Hu, S.; Chen, J.; Li, B. *Nanotech.* **2017**, *28*, 225704.
20. Xu, X.; Pereira, L. F.; Wang, Y.; Wu, J.; Zhang, K.; Zhao, X.; Bae, S.; Tinh Bui, C.; Xie, R.; Thong, J. T.; Hong, B. H.; Loh, K. P.; Donadio, D.; Li, B.; Ozyilmaz, B. *Nat. Commun.* **2014**, *5*, 3689.
21. Su, R.; Zhang, X. *Appl. Therm. Eng.* **2018**, *144*, 488-494.

22. Lindsay, L.; Broido, D. A.; Mingo, N. *Phys. Rev. B* **2010**, *82*, 115427.
23. Zhong, W.-R.; Zhang, M.-P.; Ai, B.-Q.; Zheng, D.-Q. *Appl. Phys. Lett.* **2011**, *98*, 113107.
24. Singh, D.; Murthy, J. Y.; Fisher, T. S. J. *Appl. Phys.* **2011**, *110*, 044317.
25. Jang, W.; Chen, Z.; Bao, W.; Lau, C. N.; Dames, C. *Nano Lett.* **2010**, *10*, 3909-3913.
26. Chen, J.; Zhang, G.; Li, B. *Nanoscale* **2013**, *5*, 532-536.
27. Chen, J.; Zhang, G.; Li, B. *J. Appl. Phys.* **2012**, *112*, 064319.
28. Liang, Z.; Sasikumar, K.; Koblinski, P. *Phys. Rev. Lett.* **2014**, *113*, 065901.
29. Aiyiti, A.; Zhang, Z.; Chen, B.; Hu, S.; Chen, J.; Xu, X.; Li, B. *Carbon* **2018**, *140*, 673-679.
30. Wang, Y.; Vallabhaneni, A.; Hu, J.; Qiu, B.; Chen, Y. P.; Ruan, X. *Nano Lett.* **2014**, *14*, 592-596.
31. Yang, N.; Zhang, G.; Li, B. *Appl. Phys. Lett.* **2009**, *95*, 033107.
32. Wang, H.; Hu, S.; Takahashi, K.; Zhang, X.; Takamatsu, H.; Chen, J. *Nat. Commun.* **2017**, *8*, 15843.
33. Chen, X.-K.; Hu, J.-W.; Wu, X.-J.; Jia, P.; Peng, Z.-H.; Chen, K.-Q. *J. Phys. D: Appl. Phys.* **2018**, *51*, 085103.
34. Chang, C. W.; Okawa, D.; Majumdar, A.; Zettl, A. *Science* **2006**, *314*, 1121.
35. Li, B.; Wang, L.; Casati, G. *Phys. Rev. Lett.* **2004**, *93*, 184301.