مطالعه یکسوسازی گرمایی در گرافین هیدروژن‌دار شده به روش دینامیک مولکولی

شویکلو، معصومه[۱]؛ اسمعیلی، اصغر[۱]؛ ولیزاده، علیرضا[۲]؛ مددی اصل، مجتبی[۳]

[۱] *دانشکده فیزیک، دانشکده علوم، دانشگاه ارومیه، ارومیه*

[۲] *گروه فیزیک، دانشگاه تحصیلات تکمیلی علوم پایه، زنجان*

[۳] *مدرسه علوم زیستی، پژوهشگاه دانش‌های بنیادی، تهران*

چکیده

در مطالعه حاضر، تلاش کرده‌ایم تا با استفاده از روش شبیه‌سازی دینامیک مولکولی غیر تعادلی، یکسوسازی گرمایی در ورقه گرافنی پاره‌هیدروژنه حاوی مرز دانه را مورد بررسی قرار دهیم. به این منظور، از پتانسیل AIREBO برای برهمکنش بین اتم‌ها استفاده شد. نتایج بدست آمده نشان می‌دهد که مرز دانه در پراکنش فونون‌ها نقش مهمی دارد. همچنین مشاهده شد که دما در مرز دانه به طور قابل توجهی افت می‌کند که دلیلی بر وجود مقاومت گرمایی است. همچنین نشان دادیم که یکسوسازی گرمایی در سیستم مورد مطالعه، به اختلاف دمای دو طرف سیستم بستگی دارد. برای تنظیم مقدار یکسوسازی گرمایی، می‌توان از حذف درصدی از هیدروژن ها استفاده کرد.

Thermal rectification in partially hydrogenated graphene with grain boundary: A molecular dynamics simulation

Shavikloo, Masoumeh[1]; Esmaeili, Asghar[1]; Valizadeh, Alireza[2]; Madadi Asl, Mojtaba[3]

[1] *Department of Physics, Faculty of Science, Urmia University, Urmia*
[2] *Department of Physics, Institute for Advanced Studies in Basic Sciences (IASBS), Zanjan*
[3] *School of Biological Sciences, Institute for Research in Fundamental Sciences (IPM), Tehran*

Abstract

In the present study, we have tried to investigate thermal rectification in the partially hydrogenated graphene sheet with grain boundary through non-equilibrium molecular dynamics simulation method. To this end, the 3-body AIREBO potential were employed. The results revealed that the grain boundary plays an important role in phonon scattering, which flows to the other side of grain boundary. It was observed that temperature drops significantly across a grain boundary that leads to the thermal resistance. It has been also proved that thermal rectification depends on the temperature difference between two ends of the system. Also in such a system, a tuning factor for the tuning of the thermal rectification has been introduced by randomly removing hydrogen atoms of the partially hydrogenated graphene sheet with grain boundary.

PACS No.

مقدمه

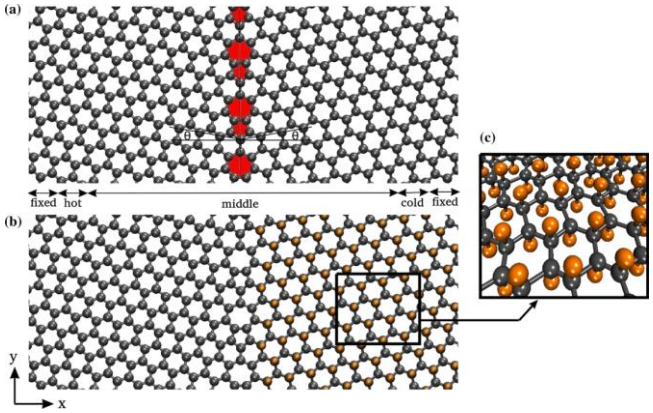
گرافین [1] یک مولکول دو بعدی به شکل لانه‌زنبوری است که از اتم‌های کربن تشکیل شده است. اتم‌های کربن با پیوند کوالانسی sp^2 در کنار هم قراردارند. در دهه گذشته، توجه زیادی به ویژگی های منحصر به فرد گرافین مانند ویژگی های مکانیکی، الکترونیکی و حرارتی شده است. بعنوان مثال، گرافین در بین موادهای شناخته شده دارای استحکام مکانیکی بالا و همچنین دارای هدایت گرمایی بزرگتری است. به همین جهت، گرافین می‌توند در حوزه‌های مختلف به کار گرفته شود. یکی از کاربردهای گرافین در مدیریت گرما در تراشه‌ها، سیستم‌های فونونیکی، اصلاح هدایت

گرمایی مواد دیگر نظیر پلیمرها می‌باشد. گرافین همچنین می‌تواند در ترکیب با سایر مواد دو بعدی تبدیل به یک یکسوساز گرمایی شود. یکسوساز گرمایی به پدیده‌ای گفته می شود که در آن گرما در یک جهت نسبت به جهت مخالف بطور موثرتری منتقل می‌شود. این پدیده با اعمال گرادیان دما در یک جهت و بار دیگر در جهت مخالف قابل مشاهده است.

منشاء فیزیکی یکسوسازی را می‌توان در پراکندگی فونون‌ها در مرز دانست. بعضی از حالتهای فونونی در که در یک سمت مرز قراردارند نمی توانند از مرز عبور کرده و وارد سمت دیگر شوند. مقدار این پراکندگی وابسته به جهت گرادیان دمای اعمالی است. بنابراین در دو گرادیان دمایی مخالف، یکسوسازی دیده می‌شود.

روش محاسباتی

در این پژوهش، تمامی شبیه‌سازی‌ها با بسته نرم افزار لمپس[2] انجام شده است. سیستم شبیه‌سازی شده از دو قطعه گرافین که با زاویه عدم همجهتی ۳۲/۲ درجه به هم متصل شده اند، تشکیل شده است. محل اتصال دو گرافین را مرز دانه از نوع ۵–۷ تشکیل داده است. گرافین سمت راست را طبق شکل ۱ بطور کامل هیدروژن‌دار می‌کنیم. هیدروژن‌ها بصورت یک در میان رو و پشت صفحه گرافین قرار گرفته اند.



شکل ۱: الف) سیستم شبیه سازی شده دارای دو گرافین به هم متصل شده است. ب) گرافین سمت راست هیدروژن‌دار می باشد. ج) بزرگنمایی از بخش کوچکی از گرافین هیدروژن دار. نوع مرزدانه ۵–۷ است.

برای مدل کردن برهمکنش بین اتمهای کربن و هیدروژن از پتانسیل سه جسمی ایربو[3] استفاده می‌کنیم. از الگوریتم ورله سرعتی با گام زمانی $1fs$ به منظور یافتن مکان و سرعت در گام بعدی استفاده می‌نماییم. شرط مرزی آزاد را در هر سه جهت در نظر می‌گیریم. در ابتدا سیستم را با استفاده از هنگرد NVE به همراه ترموستات لانژوین به مدت 500ps به تعادل ترمودینامیکی می‌رسانیم. بعد از آن، به منظور ایجاد یک شار گرمایی در طول سیستم، یک گرادیان دمایی به سیستم اعمال می‌کنیم. بنابراین، دو ناحیه در دو انتهای سیستم به پهنای 1nm انتخاب و اتمهای داخل آن را در طول شبیه سازی ثابت و بدون حرکت نگه می‌داریم. دو ناحیه دیگر که در شکل ۱ (الف) دیده می‌شود، در نزدیکی نواحی ثابت به عنوان نواحی گرم و سرد انتخاب می‌کنیم. دمای نواحی گرم و سرد را به ترتیب برابر با $T + \Delta T$ و $T - \Delta T$ در نظر می‌گیریم که در آن T دمای متوسط سیستم و $2\Delta T$ اختلاف دمای دو ناحیه گرم و سرد می باشد. دمای این نواحی را با ترموستات نوز–هوور ثابت نگه می‌داریم. ترموستات نوز–هوور با افزودن یا کاهش دادن انرژی جنبشی می‌تواند دما را کنترل کند. ناحیه میانی را هم تحت هنگرد NVE قرار می دهیم تا یک گرادیان دمایی در طول سیستم ایجاد گردد. در این وضعیت، شارش گرما شروع می‌شود و بعد از یک مدتی به حالت پایا می‌رسد. در این حالت است که ما می توانیم داده‌های مورد نظر خود را استخراج و گزارش نماییم. برای محاسبه شار گرمایی عبوری از سیستم از رابطه ۱ استفاده می‌کنیم،

$$J = \frac{1}{V}\left[\sum_i e_i \mathbf{v}_i - \sum_i S_i \mathbf{v}_i\right] \qquad (۱)$$

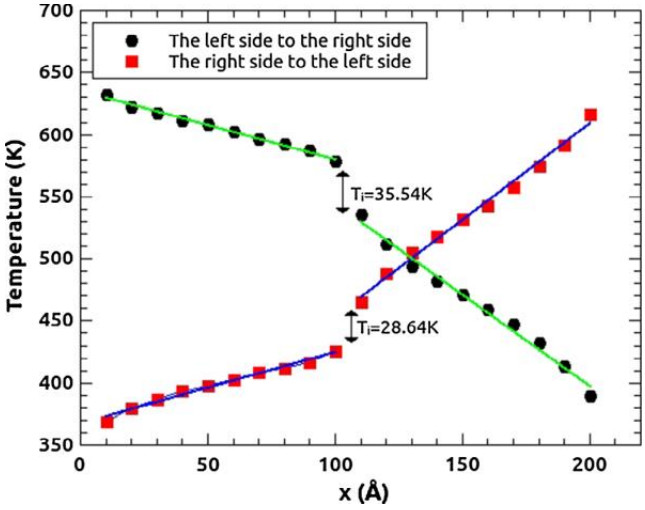
که در آن V حجم سیستم است. e_i انرژی کل، S_i تانسور استرس و $\mathbf{v}_i$ سرعت ذره‌ی i–ام می باشد. این محاسبه را برای ناحیه میانی که بین ناحیه گرم و ناحیه سرد است انجام می‌دهیم. همچنین برای بدست آوردن یکسوسازی گرمایی از رابطه ۲ استفاده می کنیم[4]،

$$TR(\%) = \frac{J_{R\to L} - J_{L\to R}}{J_{L\to R}} \times 100 \qquad (۲)$$

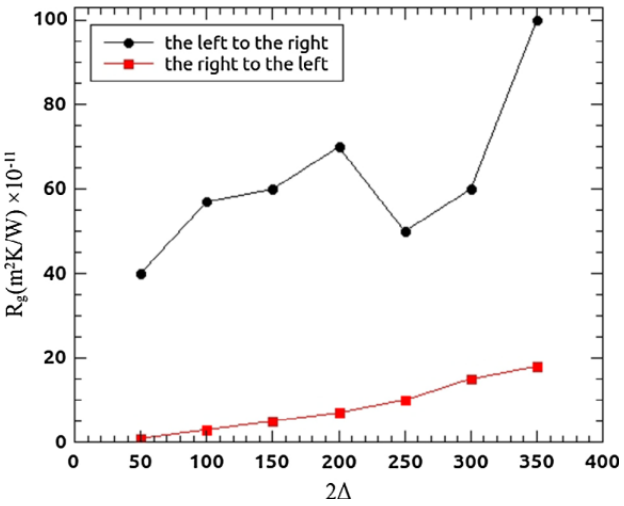
که در آن مقدار $J_{R\to L}$ نشان دهنده‌ی جریان گرما از سمت راست (گرافین هیدروژن‌دار) به سمت چپ (گرافین) را نشان می‌دهد و $J_{L\to R}$ مقدار شار از سمت چپ به راست را نشان می‌دهد.

نتایج و بحث‌ها

تمامی نتایج با استفاده از روش دینامیک مولکولی غیرتعادلی مورد بررسی قرار گرفته است. در ابتدا پروفایل دما را در این سیستم تحت گرادیان دما در دو جهت مخالف هم بررسی می‌کنیم. شکل ۲ پروفایل را نشان می‌دهد.



شکل ۲: پروفایل دما در دو گرادیان مثبت (رنگ قرمز) و گرادیان منفی (رنگ سیاه). افت دما در مرزدانه قابل مشاهده است.

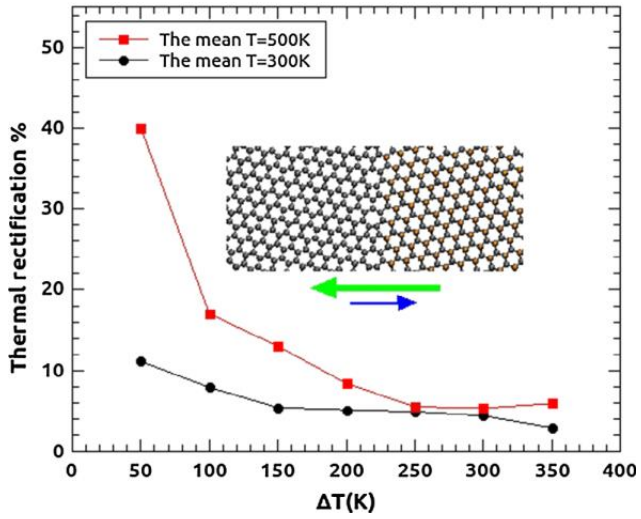


شکل ۳: مقاومت کاپیتزا بر حسب اختلاف دمای بین منبع گرم و منبع سرد در دو گرادیان مثبت و منفی.

همانطور که در شکل ۲ دیده می‌شود در مرزدانه یک افت دما (T_i) تجربه می‌کنیم که ناشی از پراکندگی فونون‌ها در مرزدانه است. پراکندگی فونون‌ها نشان‌دهنده این است که در مرزدانه یک مقاومت گرمایی وجود دارد که به مقاومت کاپیتزا مشهور است. مقدار مقاومت کاپیتزا بستگی به جهت گرادیان گرمایی دارد. مقدار کاپیتزا با رابطه ٤ داده می‌شود،

$$R_g = \frac{T_i}{J} \qquad (٤)$$

مقدار مقاومت کاپیتزا بر حسب اختلاف دمای دو سر $2\Delta T$ محاسبه و در شکل ۳ آورده‌ایم. مقاومت کاپیتزا در بازه ۵۰ تا ۳۵۰ کلوین اختلاف دما، به شکل صعودی در حال تغییر است. این مقاومت برای دو گرادیان مثبت و منفی محاسبه شده و نشان دهنده این است برای گرادیان منفی مقدار مقاومت کاپیتزا بیشتر از حالتی است که گرادیان مثبت باشد. مقادیر مقاومت کاپیتزا نشان می‌دهد که جهت راست به چپ یک جهت ارجح برای شارش گرماست. این موضوع، مفهوم یکسو سازی را نشان می‌دهد که در آن یک جهت برای شارش گرما ارجحیت دارد.



شکل ٤: یکسو سازی گرمایی بر حسب اختلاف دمای دو سر منبع گرم و سرد. نمودار سیاه و قرمز رنگ به ترتیب نشان‌دهنده شبیه سازی در دمای متوسط ۳۰۰ و ۵۰۰ کلوین است.

در این اینجا می‌خواهیم مقدار یکسو سازی را برای سیستم مورد مطالعه، محاسبه نماییم. با توجه به رابطه ۳، یک بار در حالت گرادیان مثبت و بار دیگر در گرادیان منفی، شار گرمایی را طبق رابطه ۱ محاسبه می‌کنیم.

در شکل ٤، مقدار یکسوسازی بر حسب اختلاف دمای دو منبع گرم و سرد رسم شده است. این محاسبه در دو دمای متوسط ۳۰۰ و ۵۰۰ کلوین انجام گرفته است. رفتار یکسوسازی در این نمودار کاهشی است. این به این معنی است که با افزایش اختلاف دمای دو منبع، مقدار دو شار تحت دو گرادیان مثبت و منفی به هم نزدیک می‌شوند و در نتیجه طبق رابطه ۳، صورت کسر کوچکتر و مقدار یکسوسازی کمتر می‌شود. در شکل ٤ می‌بینیم مقدار یکسوسازی در اختلاف دمای کمتر دارای مقادیر بزرگ بوده و از حدود ۲۰۰ کلوین به بعد به یک مقدار اشباع رسیده است. مقدار هیدروژن در سمت راست سیستم، روی مقدار یکسوسازی تاثیر می‌گذارد (شکل ۵). بنابراین مقدار هیدروژن می تواند یک عامل تنظیم کننده یکسوسازی استفاده شود. اما برای توضیح بنیادی می توانیم طیف فونونی را در دو سوی مرزدانه رسم کنیم. اختلاف در طیف فونونی نشان دهنده پراکندگی فونونی در مرزدانه است. در شکل ٦ طیف فونونی در دو جهت گرادیان دمایی رسم شده است.

نتیجه گیری

یکسوسازی گرمایی در سیستم ترکیبی گرافین و گرافین هیدروژن‌دار با استفاده از دینامیک غیر تعادلی مورد بررسی قرار گرفت. دیده شد که در مرزدانه یک مقاومت گرمایی (کاپیتزا) وجود دارد که ناشی از پراکندگی فونونی است. مقاومت کاپیتزا وابسته به جهت گرادیان دمایی اعمال شده در سیستم دارد و همین نکته باعث می شود که گرما یک جهت ارجح برای شارش پیدا کند. همینطور دیدیم که یکسوسازی گرمایی با افزایش اختلاف دمای دو منبع گرم و سرد کاهش می یابد و با افزایش مقادیر حذف شده هیدروژن از سیستم ابتدا افزایش و سپس کاهش می‌یابد.

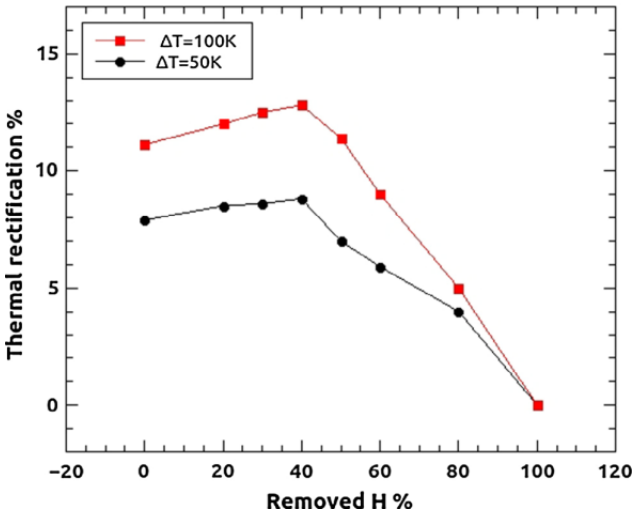
مرجع‌ها

[1] A.K. Geim, K.S. Novoselov, "The rise of graphene", *Nat. Mater*. **6** (2007) 183–191.

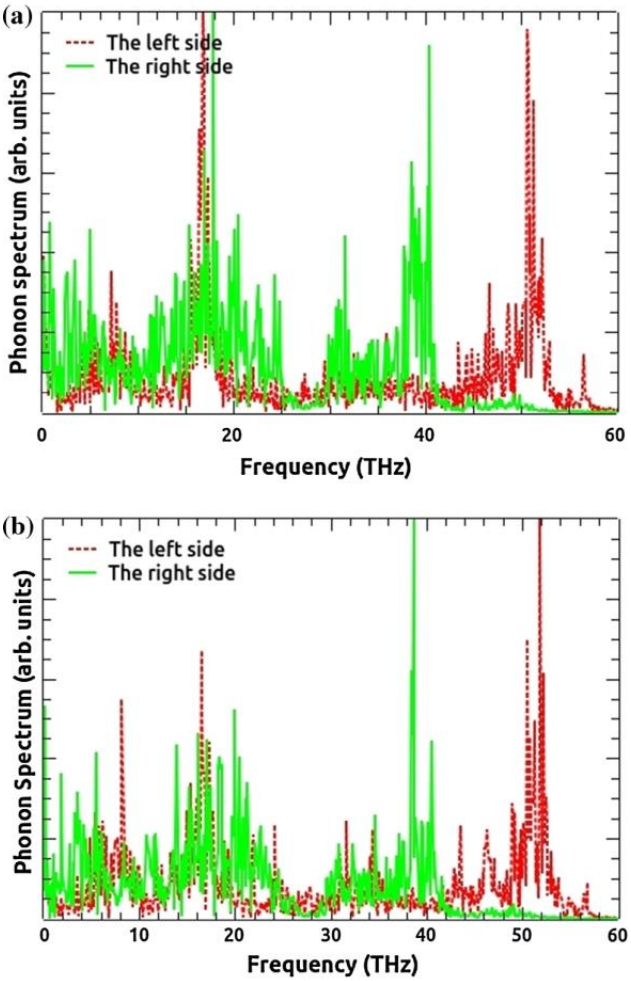
[2] S. Plimpton, "Fast Parallel Algorithms for Short-Range Molecular Dynamics", *J. Comput. Phys*. **117** (1995) 1–19.

[3] S.J. Stuart, A.B. Tutein, J.A. Harrison, "A reactive potential for hydrocarbons with intermolecular interactions", *J. Chem. Phys*. **112** (2000) 6472–6486.

[4] B. Mortazavi, M.E. Madjet, M. Shahrokhi, S. Ahzi, X. Zhuang, T. Rabczuk, "Nanoporous graphene: A 2D semiconductor with anisotropic mechanical, optical and thermal conduction properties", *Carbon N. Y.* **147** (2019) 377–384.



شکل ۵: مقدار یکسوسازی گرمایی بر حسب درصد هیدروژن‌های حذف شده از سمت راست سیستم. اختلاف دمای ۵۰ و ۱۰۰ کلوین به ترتیب با رنگ‌های سیاه و قرمز نشان داده شده است.



شکل ٦: طیف فونونی در دو سوی مرزدانه، الف) برای گرادیان مثبت و ب) برای گرادیان منفی.