

硅功能化石墨烯热导率的分子动力学模拟*

惠治鑫¹⁾²⁾ 贺鹏飞^{1)†} 戴瑛¹⁾ 吴艾辉¹⁾

1) (同济大学, 航空航天与力学学院, 上海 200091)

2) (宁夏师范学院, 物理与信息技术学院, 固原 756000)

(2013年11月7日收到; 2013年12月17日收到修改稿)

采用 Tersoff 势函数与 Lennard-Jones 势函数, 结合速度形式的 Verlet 算法和 Fourier 定律, 对单层和两层硅功能化石墨烯沿长度方向的热导性能进行了正向非平衡态分子动力学模拟. 通过模拟发现, 硅原子的加入改变了石墨烯声子的模式、平均自由程和移动速度, 使得单层硅功能化石墨烯模型的热导率随着硅原子数目的增加而急剧地减小. 在 300 K 至 1000 K 温度变化范围内, 单层硅功能化石墨烯的热导率呈下降趋势, 具有明显的温度效应. 对双层硅功能化石墨烯而言, 少量的硅原子嵌入, 起到了提高热导率的作用, 但当硅原子数目达到一定数量后, 材料的热导性能下降.

关键词: 硅功能化石墨烯, 分子动力学, 热导率, 势函数

PACS: 44.10.+I, 31.15.xv, 81.05.ue, 61.48.Gh

DOI: 10.7498/aps.63.074401

1 引言

锂离子电池因其诸多优点已成为移动通讯、笔记本电脑等便携式电子产品及电动汽车的主要电源之一, 探索具有容量高、充放电速度快和循环寿命长的新型负极材料已成为当前锂离子电池研究的热点^[1-4]. 负极材料的研究不但要重视材料的构形, 材料的热导性能对锂离子电池的安全使用也尤为重要^[5].

石墨烯^[6]因其优异的电学^[7-10]性能, 近年来成为锂离子电池负极材料研究的对象^[11-17]. Suzuki 等^[11]研究了纯石墨烯负极材料的插锂性能, 也有许多学者进行了石墨烯功能化后的负极材料研究^[12-15]. 根据文献报道, 单层石墨烯的热导率高达 5500 W/mK^[18,19], 杨平等^[20]利用氮掺杂和空位对石墨烯纳米带进行了改性, 采用非平衡态分子动力学方法研究了扶手椅型石墨烯纳米带中氮掺杂浓度、位置及空位缺陷对其热导率的影响, 并从理论上分析了热导率的变化原因. Yu 等^[21]

应用激光脉冲法研究了氧化石墨烯、碱土金属钙功能化石墨烯和镁功能化石墨烯的热导率, 分别为 3.91 W/(mK), 32.05 W/(mK) 和 61.38 W/(mK), 说明添加了碱土金属粒子后的氧化石墨烯的热导率得到了提升. Kim 等^[22]采用溶胶-凝胶法制备出了 Al(OH)₃ 功能化石墨烯, 并通过实验测定了该复合材料的热导率, 发现通过在 Al(OH)₃ 功能化石墨烯中增加填充剂可以提高其热导率. Williams 等^[23]对 TiO₂ 功能化石墨烯的热导率也进行了实验研究, 但截至目前, 还未曾看到有关硅功能化石墨烯负极材料热导性能研究的报道.

王珏等^[24]采用动态热线法装置测量了新型纳米多孔材料 SiO₂ 气凝胶的热导率与气压和温度的关系, 但实验研究不但会面临改变方案和调整参数等困难, 也会受到高费用和材料尺寸效应等的影响. 相比之下, 分子动力学无疑是最理想的手段和方法, 与试验方法相比有着明显的优点: 成本低、时间短、重复性高、灵活性强. 本文利用 LAMMPS 程序包^[25], 结合正向非平衡态分子动力学方法, 研究

* 中央高校基本科研业务费专项基金、上海市自然科学基金(批准号:11ZR1439100)、宁夏高等学校科学研究项目(批准号:宁教高[2012]336)和宁夏师范学院创新团队项目(批准号:ZY201211)资助的课题.

† 通讯作者. E-mail: ph232@tongji.edu.cn

了硅功能化石墨烯负极材料的导热性能,并分析了硅碳比和温度对其热导率的影响.

2 模型及其验证

势函数的选取直接影响着模拟结果的精确程度,本文选择多体 Tersoff 势函数^[26–28]来模拟石墨烯面内碳原子之间及碳原子和硅原子之间的相互作用,其表达式为

$$E = \frac{1}{2} \sum_i \sum_{j \neq i} V_{ij}, \quad (1)$$

$$V_{ij} = f_C(r_{ij})[f_R(r_{ij}) + b_{ij}f_A(r_{ij})], \quad (2)$$

$$f_C(r_{ij}) = \begin{cases} 1, & r < R - D, \\ \frac{1}{2} - \frac{1}{2} \sin\left(\frac{\pi r - R}{2D}\right), & R - D < r < R + D, \\ 0, & r > R + D, \end{cases} \quad (3)$$

$$f_R(r_{ij}) = A \exp(-\lambda_1 r), \quad (4)$$

$$f_A(r_{ij}) = -B \exp(-\lambda_2 r), \quad (5)$$

$$b_{ij} = (1 + \beta^n \zeta_{ij}^n)^{-\frac{1}{2n}}, \quad (6)$$

$$\zeta_{ij} = \sum_{k \neq i, j} f_C(r_{ik})g(\theta_{ijk}) \times \exp[\lambda_3^m(r_{ij} - r_{ik})^m], \quad (7)$$

$$g(\theta) = \gamma_{ijk} \left(1 + \frac{c^2}{d^2} - \frac{c^2}{[d^2 + (\cos \theta - \cos \theta_0)^2]} \right). \quad (8)$$

势能的计算包括了所有与第 i 个原子距离在截断半径 $R + D$ 内 j 和 k 原子,其中为 ij 和 ik 共价键之间的夹角.用 LJ(Lennard-Jones) 两体势函数^[29]模拟石墨烯片层之间碳原子的相互作用, LJ 势是 1924 年由 Jones 提出的原子间相互作用的对势函数,其表达式为

$$V(r) = 4\varepsilon \left[\left(\frac{\sigma}{r} \right)^{12} - \left(\frac{\sigma}{r} \right)^6 \right]. \quad (9)$$

式中 r 是连接 i 和 j 原子的位置矢量 $\mathbf{r}_{ij}$ 的模, $1/r^{12}$ 项是模拟原子间靠近时的相互排斥项, $1/r^6$ 项是描述原子间的吸引力和凝聚力,它用来模拟范德瓦尔斯型的力. σ 是基本尺度(碰撞直径)参数, ε 是基本能量标度参数.文中所涉及的碳元素的两个参数分别为 $\sigma = 4.000 \text{ \AA}$ 和 $\varepsilon = 0.0065 \text{ eV}$. 系统运动方程求解采用速度形式的 Verlet^[30,31] 算法,该方法通过对时间离散,由 t 时刻的变量及其时间导数推演得

到 $t + \Delta t$ 时刻的物理量,逐步计算即得到整个历史过程的物理量,具体的速度和加速度表达式如下:

$$r(t + \Delta t) = r(t) + v(t)\Delta t + a(t)\Delta t^2/2, \quad (10)$$

$$a(t + \Delta t) = -\Delta E(r(t + \Delta t))/m, \quad (11)$$

$$v(t + \Delta t) = v(t + \Delta t/2) + a(t + \Delta t)\Delta t/2. \quad (12)$$

由于硅原子的嵌入是随机分布的,可能存在原子叠加或原子间距太小等各种情况,所以模拟之前需要对模型用共轭梯度法进行体系能量最小化来反复调整原子坐标,使整个模型显现出来的能量最低.弛豫采用 Nose-Hoover 方法^[32–34]进行等温调节,该方法可以把任何数量的原子与一个热浴耦合起来,可以消除局域的相关运动和模拟宏观系统的温度涨落现象.

目前,关于用分子动力学方法模拟材料的导热性能有三种方法,分别是 Green-Kubo 平衡态分子动力学方法(EMD)^[35–40]、正向非平衡态分子动力学方法(NEMD)^[35,41–43]和 Muller-Plathe^[44]逆向非平衡态分子动力学方法(RNEMD).EMD 方法难以处理单质以外物质,通常模拟在微正则或正则系综下进行.微正则对热流时间相关的收敛过程是一个指数曲线,因此模拟时间和步长通常很长,收敛时间长且误差较大^[35].由于 Muller-Plathe 方法仅仅是交换原子的速度,如果交换原子的原子质量不同,那么会导致交换的时候能量不守恒,从而使得系统能量越来越低.

本文选则 NEMD 方法模拟研究单层石墨烯和硅功能化石墨烯的热传导性能,通过给热域和冷域同时增加或减少相同热量 $\Delta\varepsilon$ (如图 1),使系统在热流方向形成温度梯度,再利用 Fourier 定律计算热导率.温度梯度的 Fourier 定律表达式为

$$J_\mu = - \sum_v k_{uv} \frac{\partial T}{\partial v_x}, \quad (13)$$

其中, J_μ , k_{uv} 和 $\partial T/\partial v_x$ 分别是热流、热传导系数(张量)和温度梯度.每个原子的温度由能量均分定理给出,即

$$T = \frac{2E_k}{3k}, \quad (14)$$

其中 $k = 1.3806505 \times 10^{-23} \text{ J/K}$ 为 Boltzmann 常量, E_k 为原子的动能.

非金属材料中电子是被束缚的,不能成为导热载体,此时热能传递是靠晶格振动实现的.在晶体的热传导中晶格的振动具有波的形式,能级是量子化的,用声子表示格波的量子^[45].而影响其热导率

的主要因素是声子的平均自由程, 无论是薄膜的厚度尺寸, 还是长度尺寸特别是当薄膜的尺寸小到可以和声子的平均自由程相比拟的时候, 相对于声子之间的碰撞, 声子将更多的在界面处发生散射, 声子的平均自由程将受到限制, 从而降低了热流的传输. 但当尺寸很大以后, 声子运动的平均自由程基本不再受到界面的影响, 导热系数也将趋于稳定.

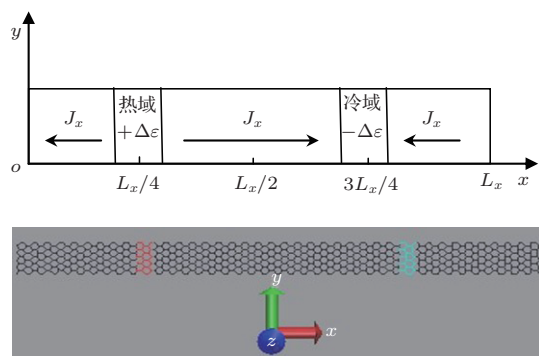


图1 热导率模拟示意图

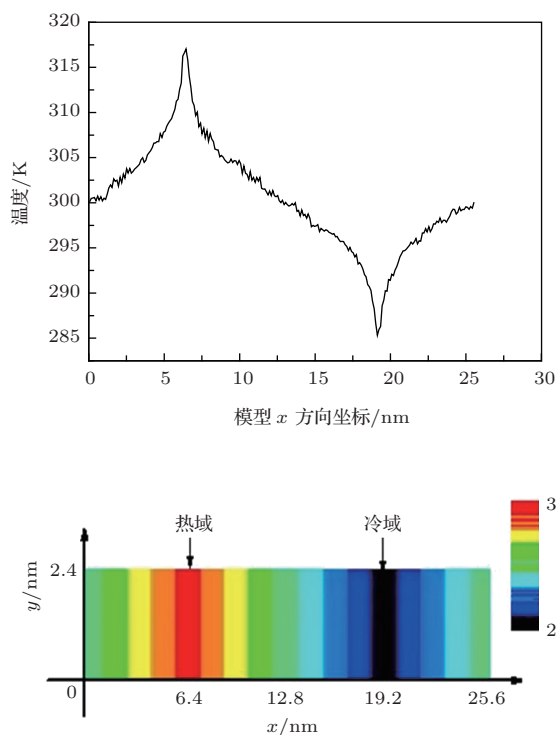


图2 (网刊彩色) 温度的梯度分布

在模拟过程中, 选取时间积分步长为0.2 fs. 为了得到一个稳定和能量最低的系, 首先对系统进行了能量最小化, 并在NVT系综下进行了 1×10^6 步的弛豫, 接着让系统在NVE系综下过渡运行 1×10^5 步, 在最后的 5×10^6 步长内, 每0.2 fs间

隔内, 在热域中增加一定的热流 q , 同时在冷域中减掉相同的热流 q , 最后统计一次各个微小区域在热平衡后的时间平均温度. 最后利用最小二乘法拟合模拟区域内的温度梯度, 利用(13)式计算模型的热导率.

图2给出了系统(单层石墨烯, 尺寸为 $255.78 \text{ \AA} \times 24.12 \text{ \AA}$)在整个模拟过程中的平均温度随着热流方向位置的分布情况, 从图中可以看出, 除了在热域和冷域附近区域温度出现了较大波动外, 在模拟结构的其他区域表现出了温度的线性分布. 热域和冷域附近的非线性分布是声子在该区域的强烈散射结果, 这种现象在非平衡态模拟中总是存在的, 模拟曲线也是相似的[35]. 在拟合温度梯度时, 截取温度分布曲线中的线性部分进行拟合, 如图3所示. 为了说明模拟曲线的惟一性, 对模型进行了不同时间积分的模拟, 结果如图4. 从图中可以清楚的看到, 模拟时间为0.1 ns和0.2 ns时, 温度起伏变化较大, 说明系统没有达到平衡稳定的状态. 当运行时间大于0.4 ns时, 所有温度变化曲线基本重合, 说明模拟时间足够长, 系统达到了稳定, 后期的模拟时间均为0.5 ns.

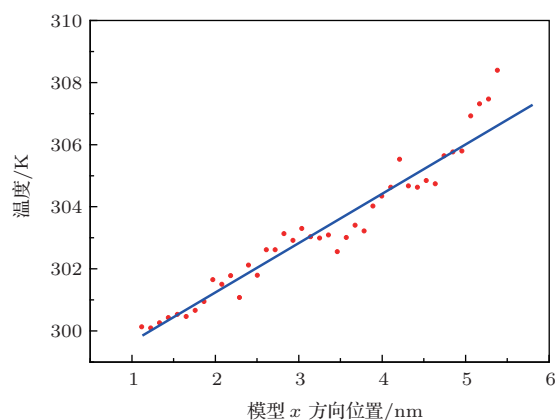


图3 温度梯度的线性拟合

为了验证模型的有效性, 分别模拟了宽为 $24.12 \text{ \AA}$ 的不同长度的单层石墨烯在室温300 K下的热导率, 计算结果和文献[23, 46]的模拟结果一致, 如图5所示. 图5给出了石墨烯在室温300 K时热导率随模型长度的变化关系. 在石墨烯长度为8.5 nm时, 热导率为 $46.3 \text{ W} \cdot (\text{m} \cdot \text{K})^{-1}$, 然而当模型尺寸增加到68.2 nm时, 热导率为 $287.4 \text{ W} \cdot (\text{m} \cdot \text{K})^{-1}$, 增加了5倍. 说明模型热流方向的长度小于石墨烯声子的平均自由程 775 nm [47]时, 石墨烯的热导率具有明显尺度效应. 随着模拟长度的

增加, 热导率会不断的增加, 这是由于模拟长度小于声子的平均自由程时, 声子的传输方式以弹道输运为主, 声子在界面处发生了散射、反射及声子模式转换, 导致声子的传热能力下降 [35,48].

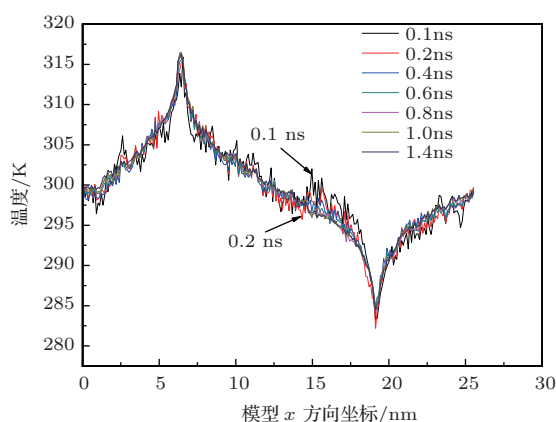


图4 (网刊彩色) 不同模拟时间的温度分布

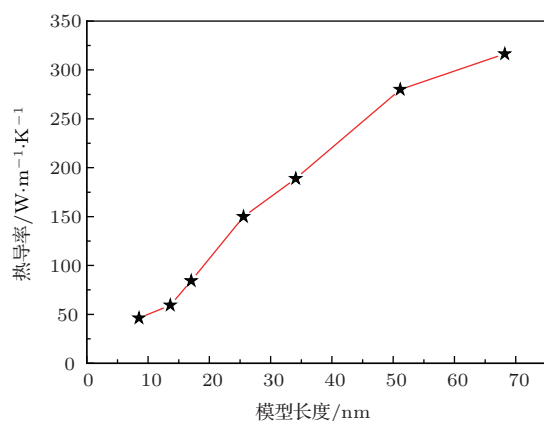


图5 石墨烯热导率随模型长度的变化关系

3 硅功能化石墨烯的热导率

采用非平衡态分子动力学方法(NEMD), 模拟了单层硅功能化石墨烯在不同Si/C比情况下的热导率. 模型如图6所示, 其中黄色原子为碳原子, 红色原子表示模型的热域, 黑色原子代表模型的冷域, 蓝色原子则为硅原子. 模型的盒子尺寸为 $255.78 \text{ \AA} \times 24.12 \text{ \AA} \times 3.35 \text{ \AA}$, 模拟温度为300 K, 时间步长为0.2 fs, 热流密度为1 eV/ps. 每次在热域中增加一定的热量, 同时在冷域中减去相同数值的热量, 使得在模拟的整个区域形成温度梯度. 在模型的长度和宽度方向施加了周期性边界条件.

图7给出了硅功能化石墨烯在Si/C比在0%和8.3%之间的热导率, 发现硅功能化石墨烯的

热导率随着硅原子数目的增多而急剧地减小, 在Si/C比为0%时, 模型的热导率为 $150 \text{ W} \cdot (\text{m} \cdot \text{K})^{-1}$, 然而到增加硅原子数目到200个(Si/C比为8.3%)时, 模型的热导率下降到 $11 \text{ W} \cdot (\text{m} \cdot \text{K})^{-1}$, 下降了92.6%. 分析其原因主要是石墨烯结构中声子的平均自由程和声子移动速度随着硅原子的浓度、位置的改变而发生了明显的变化. 由于硅原子和碳原子质量不同, 造成了晶格振动的非简谐效应, 该效应的产生降低了声子的频率, 移动速度, 减小了声子的平均自由程. 同时, 硅原子的散射导致部分石墨烯声子由扩展模式变为局域化模式, 减小了能量的传输 [42,45].

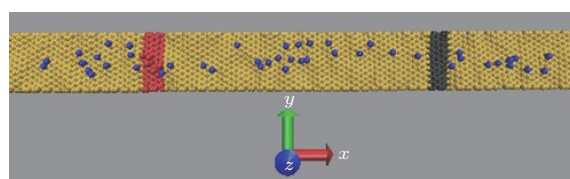


图6 (网刊彩色) 单层硅功能化石墨烯模型

同时模拟了长度为25.58 nm, 硅碳比为0.4%的硅功能化石墨烯在温度为300 K至1000 K时的热导率变化(如图8). 该模型在室温时的热导率为 $150 \text{ W} \cdot (\text{m} \cdot \text{K})^{-1}$, 当温度升高到1000 K时, 热导率下降到 $93 \text{ W} \cdot (\text{m} \cdot \text{K})^{-1}$, 下降了40%, 说明模型的热导率表现出了明显的温度依赖性, 热导率在整个温度变化范围内呈下降趋势. 这种现象是由于当温度升高时, 石墨烯结构中的传热声子的频率会增大, 声子的振动幅度也会变大, 以致高频声子在热传导过程中的作用会越来越大, 而高频声子的三声子倒逆散射过程(Umklapp过程或U过程)会增强, 散射作用的增强降低了数值的热效率 [23,46,49].

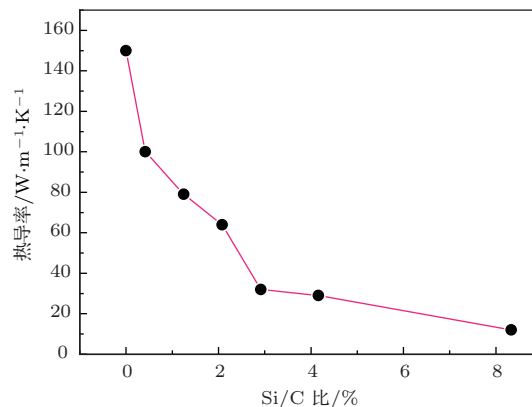


图7 单层硅功能化石墨烯热导率与Si/C比曲线

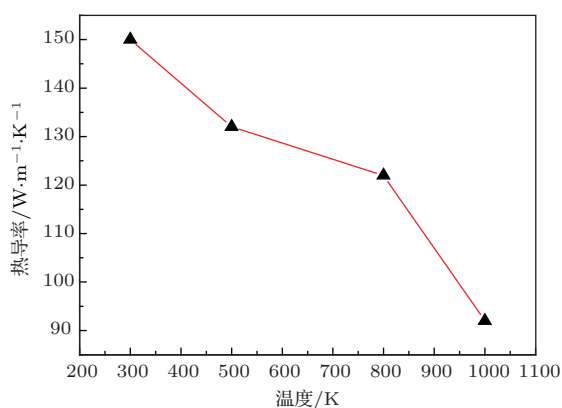


图8 单层硅功能化石墨烯热导率与温度关系

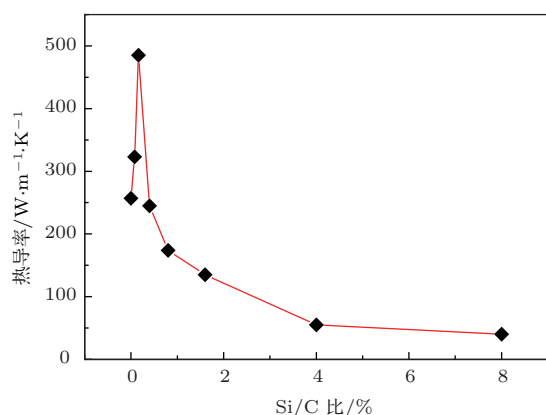


图9 两层硅功能化石墨烯热导率与Si/C比曲线

同时还建立了两层硅功能化石墨烯数值模型, 盒子尺寸为 $341.04 \text{ \AA} \times 49.2234 \text{ \AA} \times 3.35001 \text{ \AA}$, 碳原子数目为12800个. 在模拟过程中所设置的温度、步长、热流密度和模拟时间等均和模拟单层硅功能化石墨烯模型相同, 模拟了两层石墨烯间嵌入不同数目的硅原子后的热导率, 计算结果如图9所示. 结果显示, 随着硅原子数目的增加, 材料的热导率也在增加, 当Si/C大于0.16%时, 随着硅原子数目的增加, 模型的热导率急剧减小, 在Si/C为8%时, 模型的热导率只有Si/C为0.16%时模型热导率的8%. 说明少量硅原子嵌入, 使硅原子周围的晶格发生变化, 改变原子间的平衡位置, 进而引起声子的散射, 起到了催化作用, 使材料的热导率得到提高, 而过多的硅原子数量, 也会对材料的导热性能产生负作用, 对材料导热性能是不利的.

4 结 论

本文采用非平衡态分子动力学方法和Fourier定律, 通过模拟单层石墨烯纳米带的热导率验证了

模型的有效性. 通过对石墨烯热导率的计算发现石墨烯的热导率有着显著的尺寸效应, 热导率随着模型长度的增加而线性地增大. 通过对硅功能化的石墨烯负极材料热导率的模拟, 发现硅原子的加入改变了石墨烯声子的模式、平均自由程和移动速度, 使得单层硅功能化石墨烯模型的热导率随着硅原子数目的增加而急剧地减小. 通过对硅碳比为0.4%的单层硅功能化石墨烯模型在不同温度环境下的热导率模拟, 结果显示硅功能化石墨烯负极材料和其他晶体材料相似, 也存在着模型的温度相应, 热导率在整个温度变化范围(300—1000 K)内呈下降趋势对双层硅功能化石墨烯而言, 少量的硅原子嵌入, 起到了提高模型热导率的作用, 但当硅原子数目达到一定数量后, 材料的导热性能下降.

参考文献

- [1] Barpanda P, Chotard J N, Delacourt C, Reynaud M, Filinchuk Y, Armand M, Tarascon J M 2011 *Angew. Chem. Int. Ed.* **50** 2526
- [2] Kim H, Seo M, Park M H, Cho J 2010 *Angew. Chem. Int. Ed.* **49** 2146
- [3] Jafta C J, Ozoemena K I, Mathe M K, Roos W D 2012 *Electrochim. Acta.* **85** 411
- [4] Wang J M, Hu J P, Liu C H, Shi S Q, Ouyang C Q 2012 *Physics* **41** 02 (in Chinese) [王佳民, 胡军平, 刘春华, 施思齐, 欧阳楚英 2012 物理 **41** 02]
- [5] Song L, Evans J W 1999 *J. Electrochem. Soc.* **146** 869
- [6] Novoselov K, Geim K, Morozov S V, Jiang D, Zhang Y, Dubonos S V 2004 *Sci.* **306** 666
- [7] Bolotin K I, Sikes K J, Jiang Z, Klima M, Fudenberg G, Hone J, Stormer H L 2008 *Sol. Sta. Com.* **146** 351
- [8] Kim K S, Zhao Y, Jang H, Lee S Y, Kim J M, Kim K S, Hong B H 2009 *Nat.* **457** 706
- [9] Novoselov K S, Geim A K, Morozov S V, Jiang D, Grigorieva M K I, Dubonos S V, Firsov A A 2005 *Nature* **438** 197
- [10] Zhang Y, Tan Y W, Stormer H L, Kim P 2005 *Nat.* **438** 201
- [11] Suzuki T, Hasegawa T, Mukai S R, Tamon H 2003 *Carbon* **41** 1933
- [12] Paek S M, Yoo E, Honma I 2008 *Nano Lett.* **9** 72
- [13] Wang G, Shen X, Yao J, Park J 2009 *Carbon* **47** 2049
- [14] Lee J K, Smith K B, Hayner C M, Kung H H 2010 *Chem. Commun.* **46** 2025
- [15] Mai Y J, Wang X L, Xiang J Y, Qiao Y Q, Zhang D, Gu C D, Tu J P 2011 *Electrochim. Acta* **56** 2306
- [16] Zhao X, Hayner C M, Kung M C, Kung H H 2011 *Adv. Energy Mater.* **1** 1079
- [17] Lee J K, Smith K B, Hayner C M, Kung H H 2010 *Chem. Commun.* **46** 2025
- [18] Seol J H, Jo I, Moore A L, Lindsay L, Aitken Z H, Pettes M T, Shi L 2010 *Sci.* **328** 213

- [19] Balandin A A, Ghosh S, Bao W, Calizo I, Teweldebrhan D, Miao F, Lau C N 2008 *Nano Lett.* **8** 902
- [20] Yang P, Wang X L, Li P, Wang H, Zhang L Q, Xie F W 2012 *Acta Phys. Sin.* **61** 76501 (in Chinese) [杨平, 王晓亮, 李培, 王欢, 张立强, 谢方伟 2012 物理学报 **61** 76501]
- [21] Yu W, Xie H, Li F, Zhao J, Zhang Z 2013 *Appl. Phys. Lett.* **103** 141913
- [22] Kim J, Im H, Kim J M, Kim J 2012 *J. Mater. Sci.* **47** 1418
- [23] Williams G, Seger B, Kamat P V 2008 *ACS Nano* **2** 1487
- [24] Wang J, Wu W D, Shen J, Lu X P 1995 *Physics* **24** 1 (in Chinese) [王珏, 吴卫东, 沈军, 陆献平 1995 物理 **24** 1]
- [25] Plimpton S 1995 *J. Comput. Phys.* **7** 1
- [26] Tersoff J 1988 *Phys. Rev. B* **37** 6991
- [27] Tersoff J 1989 *Phys. Rev. B* **39** 5566
- [28] Tersoff J 1990 *Phys. Rev. B* **41** 3248
- [29] Baskes M I 1999 *Phys. Rev. Lett.* **83** 2592
- [30] Allen M P, Tildesley D J 1989 *Computer simulation of liquids* (London: Oxford university press) p233
- [31] Swope W C, Andersen H C, Berens P H, Wilson K R 1982 *J. Chem. Phys.* **76** 637
- [32] Nosé S 1984 *Mol. Phys.* **52** 255
- [33] Nosé S 1984 *J. Chem. Phys.* **81** 511
- [34] Hoover W G 1985 *Phys. Rev. A* **31** 1695
- [35] Schelling P K, Phillpot S R, Keblinski P 2002 *Phys. Rev. B* **65** 144306
- [36] Che J, Çağın T, Deng W, Goddard III W A 2000 *J. Chem. Phys.* **113** 6888
- [37] Li J, Porter L, Yip S 1998 *J. Nucl. Mater.* **255** 139
- [38] Ladd A J, Moran B, Hoover W G 1986 *Phys. Rev. B* **34** 5058
- [39] Lee Y H, Biswas R, Soukoulis C M, Wang C Z, Chan C T, Ho K M 1991 *Phys. Rev. B* **43** 6573
- [40] Volz S G, Chen G 2000 *Phys. Rev. B* **61** 2651
- [41] Oligschleger C, Schön J C 1999 *Phys. Rev. B* **59** 4125
- [42] Jund P, Jullien R 1999 *Phys. Rev. B* **59** 13707
- [43] Berber S, Kwon Y K, Tomanek D 2000 *Phys. Rev. Lett.* **84** 613
- [44] Muller-Plathe, 1999 *Phys. Rev. E* **59** 4894
- [45] Huang K, Han R Q 1998 *Solid State Physics* (Beijing: Beijing University Press) p143 (in Chinese) [黄昆, 韩汝琦 1998 固体物理学 (北京大学出版社) 第 143 页]
- [46] Wei Z Y, Bi K D, Chen Y F 2010 *Journal of Southeast University* (Natural Science Edition) **40** 306 (in Chinese) [魏志勇, 毕可东, 陈云飞 2010 东南大学学报 (自然科学版) **40** 306]
- [47] Ghosh S, Callizo I, Teweldebrhan D, Pokatilov E P, Nika D L, Balandin A A, Lau C N 2008 *Appl. Phys. Lett.* **92** 151911
- [48] Alexis R, Abramson, Chang-Lin T, Arun M 2002 *J. Heat Transfer* **124** 963
- [49] Chen S, Wu Q, Mishra C, Kang J, Zhang H, Cho K, Ruoff R S 2012 *Nat. Mater.* **11** 203

Molecular dynamics simulation of the thermal conductivity of silicon functionalized graphene^{*}

Hui Zhi-Xin¹⁾²⁾ He Peng-Fei^{1)†} Dai Ying¹⁾ Wu Ai-Hui¹⁾

1) (*School of Aerospace Engineering and Applied Mechanics, Tongji University, Shanghai 200091, China*)

2) (*School of Physics and Information Technology, Ningxia Normal College, Guyuan 756000, China*)

(Received 7 November 2013; revised manuscript received 17 December 2013)

Abstract

Direct non-equilibrium molecular dynamics (NEMD) was used to simulate the thermal conductivities of the monolayer and the bilayer silicon functionalized graphenes along the length direction respectively, with the Tersoff potential and the Lennard-Jones potential, based on the velocity Verlet time stepping algorithm and the Fourier law. Simulation results indicate that the thermal conductivity of the monolayer silicon functionalized graphene decreases rapidly with increasing amount of silicon atoms. This phenomenon could be primarily attributed to the changes of graphene phonon modes, mean free path, and motion speed after silicon atoms are embedded in the graphene layer. Meanwhile, the thermal conductivity of the monolayer graphene is declined in the temperature range from 300 to 1000 K. As for the bilayer silicon functionalized graphene, its thermal conductivity increases as a few silicon atoms are inserted into the layer, but decreases when the number of silicon atoms reaches a certain value.

Keywords: silicon functionalized graphene, molecular dynamics, thermal conductivity, potential

PACS: 44.10.+I, 31.15.xv, 81.05.ue, 61.48.Gh

DOI: 10.7498/aps.63.074401

^{*} Project supported by the Fundamental Research Funds for the Central Universities of Ministry of Education of China, the Natural Science Foundation of Shanghai, China (Grant No. 11ZR1439100), the Scientific Research Foundation of the Higher Education Institutions of Ningxia Province, China (Grant No. [2012]336), and the Innovative Research Team Project of Ningxia Normal College, China (Grant No.ZY201211).

[†] Corresponding author. E-mail: ph232@tongji.edu.cn