

(دریافت مقاله: ۱۳۹۰/۵/۲۶؛ پذیرش: ۱۳۹۰/۷/۲۶)

( )

( )

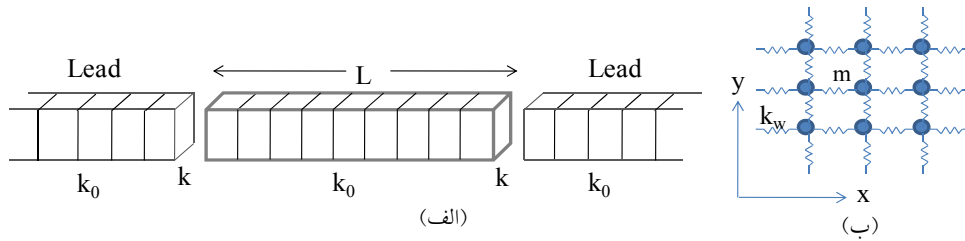
)

(

خود نشان می دهند. برای نمونه بلورهای یونی به دلیل داشتن یون‌های مثبت و منفی، دارای نقطه جوش بالا و ضریب رسانندگی الکتریکی بسیار خوبی هستند و در مقابل بلورهای مولکولی نقطه جوش پائین و رسانندگی الکتریکی کمتری دارند [۵].

به تازگی بررسی خواص فونونی و گرمایی نانو بلورها توجه محققان بیشتری را به خود جلب کرده است. از جمله موضوعات مهمی که زمینه ساز تحقیقات اخیر به شمار می روند، می توان به بررسی اثر تناوب جرم در لایه های شبکه، نوع مواد تشکیل دهنده نانو بلور، پراکندگی حامل های انرژی مانند الکترون و فونون و چگونگی انتقال انرژی توسط این حامل ها اشاره کرد [۶-۸].

در چند دهه گذشته نانو ساختارها به دلیل خواص فیزیکی و شیمیایی منحصر به فردی که دارند، بیش از پیش در کانون توجه دانشمندان قرار گرفته اند [۱ و ۲]. این ویژگی های خاص و جالب توجه، بیشتر به دلیل اندازه و ابعاد بسیار کوچک آنها است. بنابراین در مقایسه با اجسام کپه ای، خواص متفاوتی را از خود نشان می دهند [۳]. یکی از انواع این نانو ساختارها، نانو بلورها هستند که امروزه با پیشرفت دانش و فناوری، امکان استفاده از آنها در ساخت تراشه های الکترونیکی و ابزارهای ترمودینامیکی فراهم شده است [۴]. نانو بلورها ساختارهایی متشکل از دو یا چند ماده هستند و ویژگی های جالب توجهی از



شکل ۱. (الف) نانو بلور متناهی با سطح مقطع مربعی (ساختار مکعبی ساده) متصل به دو نانو بلور نیمه متناهی مشابه. (ب) نمای سطح مقطع بلور متشکل از جرم و فنر.

فونونی این نانو ساختار، ابتدا لازم است طیف بسامد فونونی نانو بلور را در شرایط مرزی باز محاسبه کنیم.

برای یک زنجیره  $N$  اتمی که در آن اتم‌های به جرم  $m$  به وسیله فنرهایی با ثابت  $k_w$  به یکدیگر متصل شده‌اند، انرژی پتانسیل کشسانی چنین است

$$U = \frac{1}{2} k_w \sum_n [(u_n - u_{n+1})^2 + (u_n - u_{n-1})^2], \quad (1)$$

که در آن  $u_n$  جابه‌جایی اتم  $n$ ام از مکان ترازمندی در راستای پیوند بین دو اتم است. با استفاده از انرژی پتانسیل این دستگاه یک بعدی می‌توان به‌سادگی با توجه به رابطه  $F_n = -\partial U / \partial u_n$ ، معادله‌های حرکت مستقل از زمان  $t$  مربوط به جابجایی ذرات از موقعیت ترازمندی‌شان را به شکل ماتریسی زیر به دست آورد

$$\begin{pmatrix} x-1 & -1 & 0 & \dots & 0 \\ -1 & x & -1 & \dots & 0 \\ 0 & \ddots & \ddots & \ddots & \vdots \\ \vdots & \ddots & -1 & x & -1 \\ 0 & \dots & 0 & -1 & x-1 \end{pmatrix}_{N \times N} \begin{pmatrix} \tilde{u}_1 \\ \tilde{u}_2 \\ \vdots \\ \tilde{u}_{N-1} \\ \tilde{u}_N \end{pmatrix}_{N \times 1} = 0, \quad (2)$$

که در آن  $\tilde{u}_n = u_n e^{i\omega t}$ ،  $x = 2 - (\omega^2 / \omega_0^2)$ ، بسامد فونونی و  $\omega_0 = \sqrt{k_w / m}$  بسامد نوعی اتم‌ها در شبکه (از مرتبه  $10^{11}$  Hz) هستند. همان‌طور که رابطه (۲) نشان می‌دهد، ماتریس ضرایب یا دینامیکی دستگاه یک ماتریس نوار قطری است. برای به دست آوردن بسامدهای ویژه باید دترمینان این ماتریس برابر صفر شود. بنابراین رابطه پاشندگی زنجیره اتمی، در شرایط مرزی باز به صورت  $(\omega_n = 2\omega_0 |\sin(n\pi / 2N)|)$  برای زنجیره یک بعدی به دست می‌آید [۱۲]؛ در اینجا  $n$  معرف مد ویژه فونونی است. اکنون با تعمیم رابطه پاشندگی زنجیره به ساختارهای سه بعدی همگن، طیف بسامد نانو بلور تحت

به‌عنوان یکی از نتایج مفید به‌دست آمده در این زمینه می‌توان به این مورد اشاره کرد که خواص حرارتی برخی از آنها، رفتاری مستقل از خواص الکتریکی از خود نشان می‌دهد. این ویژگی می‌تواند در بهبود کارایی ابزارهای ترمودینامیکی مؤثر باشد [۹ و ۱۰]. ما در این مطالعه با در نظر گرفتن شرایط مرزی باز، طیف بسامد فونونی یک نانو بلور جرم-فنر با ساختار مکعبی ساده و با سطح مقطع مربعی را به‌دست می‌آوریم. سپس به‌کمک طیف بسامد فونونی به دست آمده به کمک روش ماتریس انتقال [۱۱]، به بررسی چگالی حالت‌های فونونی، تراورد فونونی و در نهایت رسانندگی گرمایی نانو بلور در شرایط مختلف ساختاری و فیزیکی می‌پردازیم.

ساختاری که بررسی می‌کنیم مطابق شکل (الف)، از یک نانو بلور متناهی با طول  $L$  تشکیل شده که از هر طرف به‌وسیله فنرهایی با ثابت  $k$  به یک نانو بلور نیمه متناهی مشابه متصل است. شکل (ب) سطح مقطع این ساختار را نشان می‌دهد. همان‌طور که مشاهده می‌شود، سطح مقطع از اتم‌هایی با جرم  $m$ ، به‌تعداد  $N_x$  و  $N_y$  به‌ترتیب در هر دو راستای  $x$  و  $y$ ، تشکیل شده که توسط فنرهایی با ثابت  $k_w$  به یکدیگر متصلند و بسامد نوعی در سطح مقطع  $\omega_0 = \sqrt{k_w / m}$  است. لایه‌های واقع در طول این نانو بلور نیز توسط فنرهای با ثابت  $k_0$  به یکدیگر متصل شده‌اند. مطابق شکل (ب) فرض می‌شود اتم‌های مرزی سطح مقطع از یک طرف به دیگر اتم‌ها متصل بوده و از طرف دیگر کاملاً آزاد هستند، بنابراین باید شرایط مرزی در مسئله را باز در نظر گرفت. برای بررسی خواص

ایده آل خارج شود (شکل ۱)، با توجه به رابطه چگالی حالت‌ها بر حسب تابع گرین [۱۵] و با استفاده از روش ماتریس انتقال، می‌توان رابطه زیر را برای تمام مدهای فونونی (با جمع بستن روی تمام مدها) به دست آورد

$$\text{DOS}(\omega) = \frac{-1}{\pi} \sum_{l=1}^{n_x-1} \sum_{n=1}^{n_y-1} \text{Im} \frac{\partial \ln \left( M_{11} e^{-iqa} - M_{22} e^{+iqa} + M_{12} - M_{21} \right)}{\partial \omega} \quad (7)$$

بنابراین به کمک روابط (۵) تا (۷) می‌توان به ترتیب ضریب عبور فونونی، رسانندگی گرمایی و چگالی مدهای فونونی را محاسبه کرد.

در این بخش با استفاده از رابطه‌های به دست آمده در قسمت قبل، به بررسی خواص فونونی و گرمایی یک نانو بلور با سطح مقطع مربعی (ساختار مکعبی ساده)، در شرایط مختلف فیزیکی و ساختاری می‌پردازیم. فرض می‌کنیم در حالت ایده آل، یک بلور نامتناهی داریم که در هر لایه آن بیست و پنج اتم وجود دارد ( $N_x = N_y = 5$ ). شکل ۲ نمودار ضریب عبور و چگالی حالت‌های فونونی را برای چند مقدار مختلف بسامد اتم‌های سطح مقطع (قدرت فنرهای سطح مقطع بلور  $k_w$ ) نشان می‌دهد. مطابق شکل ۲ (الف)، مشاهده می‌شود که در حالت ایده آل نمودار ضریب عبور فونونی پله‌ای است (نمودار خط پر). پله‌ها بیانگر عبور موج فونونی از زنجیره‌های اتمی موجود در ساختار هستند. نکته مهم این است که با توجه به مقدار بسامد موج فونونی ورودی مقدار ضریب عبور تغییر می‌کند.

همان‌طور که شکل ۲ (الف) نشان می‌دهد کاهش قدرت فنرهای  $k_w$ ، ضریب عبور فونونی را به مقدار حداکثر می‌رساند ( $T_{\max} = N_x \times N_y$ ). با توجه به این که بیست و پنج زنجیره در ساختار وجود دارد، حداکثر مقدار برای ضریب عبور فونونی  $T = 25$  است. علاوه بر این مشاهده می‌شود که پنجره مجاز بسامد فونونی (ناحیه‌ای از بسامد که موج می‌تواند عبور کند) با کاهش بسامد نوعی سطح مقطع کاهش می‌یابد. با توجه به نمودار، این مقدار به سمت پنجره مجاز بسامد فونونی یک

شرایط مرزی باز چنین به دست می‌آید،

$$\omega_{ln}^2(q) = \omega_0^2 \left[ \sin^2 \left( \frac{l\pi}{2N_x} \right) + \sin^2 \left( \frac{n\pi}{2N_y} \right) + \sin^2 \left( \frac{qa}{2} \right) \right], \quad (3)$$

که در آن  $N_x$  و  $N_y$  به ترتیب تعداد اتم‌ها در راستای محورهای  $x$  و  $y$  واقع در سطح مقطع بلور،  $l$  و  $n$  معرف مدهای فونونی سطح مقطع،  $a$  ثابت شبکه و  $q$  عدد موج فونونی در راستای طول نانو بلور هستند. دو جمله اول رابطه (۳) معرف بسامد اتم‌های سطح مقطع و جمله سوم بیانگر بسامد نوسان لایه‌های جرم و فنر با بردار موج  $q$  در راستای طول بلور هستند. اکنون با داشتن طیف بسامد فونونی، می‌توان خواص فونونی و گرمایی ساختار را محاسبه کرد. در حالت کلی رابطه دقیق ضریب عبور فونونی یک نانو ساختار با استفاده از روش ماتریس انتقال برای یک مد فونونی سطح مقطع چنین است [۱۱]

$$\tau_{ln}(\omega) = \frac{\sqrt{|\det M|^2} \sin^2 qa}{\left| M_{11} e^{-iqa} - M_{22} e^{+iqa} + M_{12} - M_{21} \right|^2}, \quad (4)$$

که در آن  $M$  ماتریس انتقال و  $M_{ij}$  ها ( $i$  و  $j$  به ترتیب بیانگر شماره سطر و ستون ماتریس انتقال)، درایه‌های ماتریس انتقال دستگاه هستند. لازم به ذکر است که رابطه (۴) ضریب عبور را برای تک مد فونونی  $l$  و  $n$  به دست می‌دهد. بنابراین برای به دست آوردن ضریب عبور کل موجی که از دستگاه عبور می‌کند باید روی تمام مدهای سطح مقطع جمع بست،

$$\tau_{tot}(\omega) = \sum_{l=1}^{n_x-1} \sum_{n=1}^{n_y-1} \tau_{ln}(\omega). \quad (5)$$

به کمک ضریب عبور فونونی می‌توان رسانندگی گرمایی نانو ساختارها را محاسبه کرد [۱۳]

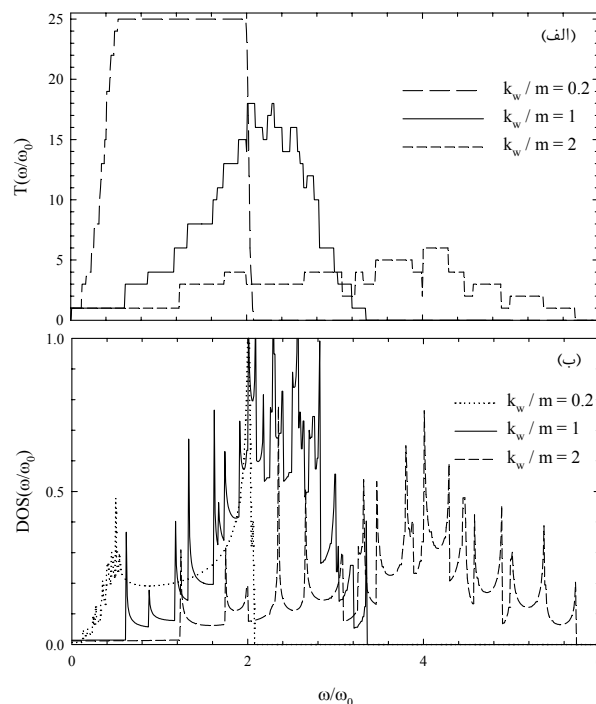
$$\kappa = \frac{\hbar^2}{k_B T^2} \sum_{l,n} \frac{1}{2\pi} \int_{\omega_{nl}}^{\omega} \tau_{ln}(\omega) \frac{\omega^2 e^{\beta\hbar\omega}}{(e^{\beta\hbar\omega} - 1)^2} d\omega, \quad (6)$$

که در آن  $T$  دما،  $\hbar$  ثابت پلانک،  $k_B$  ثابت بولتزمن و  $\beta = 1/k_B T$  است. همچنین به کمک طیف بسامد فونونی می‌توان چگالی حالت‌های فونونی یک نانو ساختار را بررسی کرد. در حالت ایده آل برای یک نانو بلور نامتناهی، می‌توان با مشتق‌گیری نسبت به  $\omega$  از رابطه پاشندگی، چگالی حالت‌ها را محاسبه کرد [۱۴]. در غیر این صورت، چنانچه دستگاه از حالت

شکل ۲(ب) تغییرات چگالی حالت‌های فونونی نانو بلور را با تغییر بسامد نوعی اتم‌های سطح مقطع نشان می‌دهد. در حالت ایده‌آل (نمودار خط پر) مشاهده می‌شود، در مقایسه با نمودار ضریب عبور فونونی، در محل پله‌ها چگالی مدها بسیار بزرگ می‌شود. با کاهش مقدار بسامد نوعی می‌بینیم که تعداد تشدیدها کاهش می‌یابد و یک نمودار  $U$  شکل ایجاد می‌شود که بسیار به نمودار چگالی حالت‌های زنجیره اتمی شبیه است (نمودار نقطه چین). همچنین دیده می‌شود که پنجره مجاز بسامد فونونی نیز کاهش می‌یابد؛ به طوری که تعدادی تشدید در بسامدهای کم رخ می‌دهد. بنابراین در حالت حدی (هنگامی که بسامد نوعی اتم‌های سطح مقطع به صفر میل کند)، نتیجه مربوط به زنجیره‌های اتمی به دست می‌آید. در مقابل، افزایش بسامد نوعی سطح مقطع نشان می‌دهد که چگالی حالت‌های فونونی کاهش یافته، در حالی که پنجره مجاز بسامد فونونی افزایش می‌یابد. لازم به ذکر است که منطبق بودن پنجره بسامد در هر دو نمودار (الف) و (ب) به این معنی است که در ناحیه‌ای از بسامد که موج فونونی نمی‌تواند عبور کند (در داخل گاف‌ها)، هیچ حالت فونونی نیز وجود نخواهد داشت.

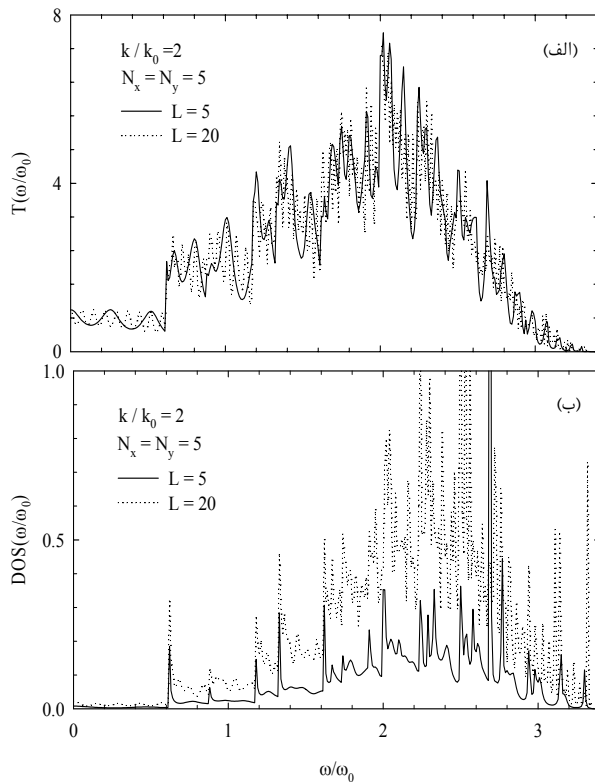
اکنون تعداد اتم‌های سطح مقطع بلور را در هر راستا تغییر داده، حالت گذار یک نانو بلور را به یک جسم انبوهه بررسی می‌کنیم. این نتیجه در شکل ۳ نشان داده شده است. در شکل ۳(الف) ضریب عبور فونونی برای سه سطح مقطع مختلف نشان داده است. مشاهده می‌شود که در تمام موارد نمودار ضریب عبور پله‌ای است؛ با این تفاوت که با بزرگتر شدن سطح مقطع، تعداد پله‌ها و در نتیجه مقدار ضریب عبور فونونی افزایش می‌یابد. با گذر از مقیاس نانو به حالت انبوهه (شبه یک بعدی به سه بعد)، مشاهده می‌شود که نمودارهای پله‌ای به منحنی‌های خمیده تغییر شکل یافته‌اند. افزایش هر چه بیشتر تعداد اتم‌ها در سطح مقطع باعث افزایش مقدار ضریب عبور فونونی می‌شود.

در ادامه دستگاه را از حالت ایده‌آل خارج می‌کنیم. یک بلور متناهی را در نظر می‌گیریم که از هر طرف توسط فترهایی با ثابت  $k$  مطابق شکل ۱ به یک بلور نیمه متناهی و مشابه متصل شده است. در شکل ۴ اثر تغییر طول ساختار بر ضریب عبور و



شکل ۲. (الف) ضریب عبور فونونی و (ب) چگالی حالت‌های فونونی یک نانو بلور نامتناهی با ساختار مکعبی ساده به صورت تابعی از بسامد فونونی، برای چند مقدار مختلف بسامد نوعی  $\omega_s = k_w / m$ ، در مقایسه با حالت ایده‌آل.

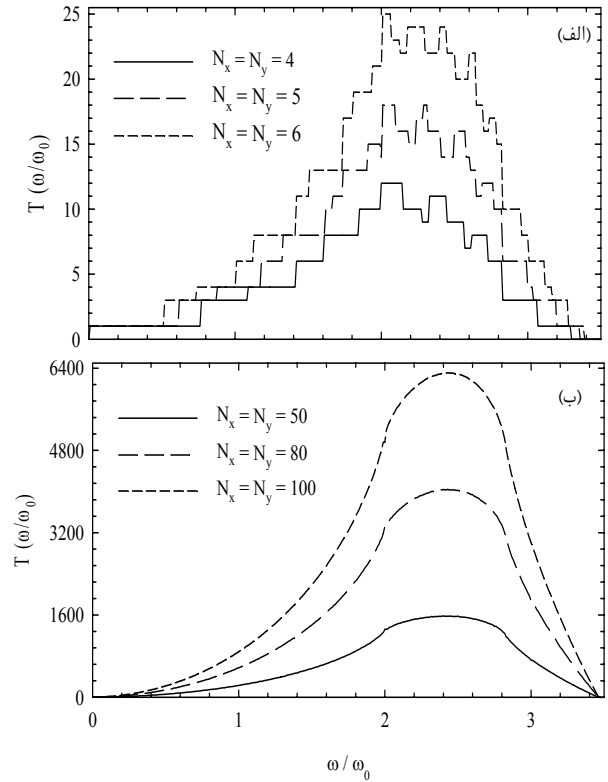
زنجیره اتمی ( $0 < \omega < 2\omega_0$ ) میل می‌کند (نمودار خط چین سمت چپ). به عبارت دیگر کاهش بسامد نوعی اتم‌های سطح مقطع با کاهش تعداد پله‌ها، پنجره بسامد را به سمت بسامدهای پایین‌تر میل می‌دهد. در این بازه، همپوشانی بین مدهای مختلف سطح مقطع بیشتر شده و مقدار حداکثر ضریب عبور به دست می‌آید؛ به طوری که در حالت حدی  $k_w \rightarrow 0$  مدهای فونونی به طور کامل هم‌پوشانی دارند و نتیجه مربوط به زنجیره‌های اتمی همگن ایده‌آل به دست می‌آید (یعنی نمودار ضریب عبور به صورت یک مستطیل می‌شود). بنابراین موج فونونی می‌تواند در بسامدهای پایین آسان‌تر عبور کند. در مقابل، افزایش بسامد نوعی اتم‌های سطح مقطع (افزایش قدرت فنر  $k_w$ ) در مقایسه با حالت ایده‌آل (نمودار خط پر)، ضریب عبور را کاهش می‌دهد. همچنین مشاهده می‌شود که پنجره مجاز بسامد فونونی نیز افزایش یافته، گاف‌هایی در نمودار ایجاد می‌شوند که پله‌ها (مدها) را از یکدیگر تفکیک می‌کنند.



شکل ۴. (الف) ضریب عبور فونونی و (ب) چگالی حالت‌های فونونی یک نانو بلور متناهی با ساختار مکعبی ساده متصل به دو نانو بلور مشابه و نیمه متناهی، به صورت تابعی از بسامد فونون فرودی، برای چند مقدار مختلف طول نانو بلور مرکزی.

را برای این دو ساختار در حالت اتصال ایده‌آل نشان می‌دهد. مطابق شکل ۵ (الف)، با متناوب شدن نانو بلور در مقایسه با حالت همگن، ضریب عبور فونونی کاهش یافته است. با اشاره به این نکته که در ابتدا نمودار ضریب عبور نانو بلور متناوب پله‌ای بوده و بر نمودار نانو بلور همگن منطبق است، مشاهده می‌شود در یک بسامد خاص، در محل پله‌ها تشدید رخ می‌دهد.

شکل ۵ (ب) نمودار رسانندگی گرمایی یک نانو بلور همگن و متناوب نامتناهی را در حالت ایده‌آل، با توجه به نتیجه به دست آمده برای ضریب عبور فونونی (شکل ۵ (الف)) نشان می‌دهد. لازم به ذکر است که مقدار  $T_0$  با توجه به مقادیر ثابت‌های پلانک و بولترمن و مقدار بسامد نوعی در بلورهای متعارف معادل با دمای  $7/6K$  است (رابطه (۶) را ببینید). با قرار دادن دو ساختار همگن و متناوب در گرایان دمایی مشاهده می‌شود

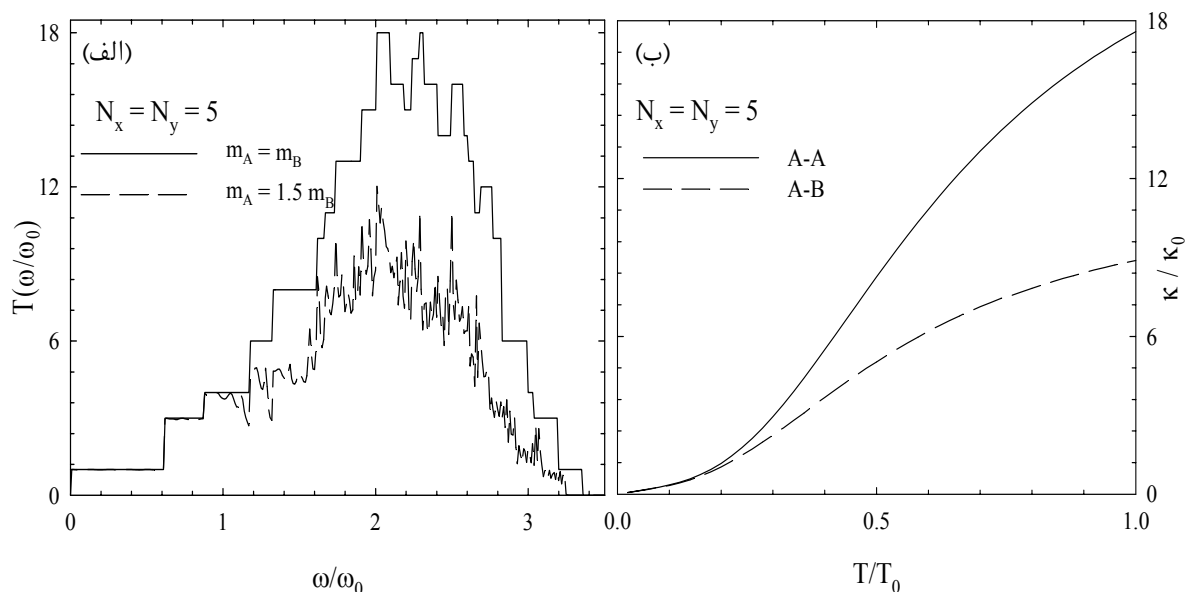


شکل ۳. ضریب عبور فونونی (الف) یک نانو بلور ایده‌آل نامتناهی با ساختار مکعبی ساده و (ب) یک حالت انبوهه، به صورت تابعی از بسامد فونون فرودی، برای سه سطح مقطع متفاوت.

چگالی حالت‌های فونونی برای مورد  $k=2k_0$  رسم شده است. در شکل ۴ (الف) مشاهده می‌شود افزایش طول نانو بلور مرکزی باعث افزایش تعداد تشدیدها می‌شود.

شکل ۴ (ب) چگالی حالت‌های فونونی را برای مورد  $k=2k_0$  و برای دو طول متفاوت نانو بلور مرکزی نشان می‌دهد. مشاهده می‌شود با افزایش طول نانو بلور، چگالی حالت‌های فونونی افزایش یافته است. همچنین تعداد تشدیدهای بیشتری نیز در پنجره مجاز بسامد فونونی رخ می‌دهد. به بیان دیگر، افزایش طول باعث می‌شود تعداد حالت‌های فونونی در یک بسامد خاص افزایش یابند. علاوه بر این، مشاهده می‌کنیم که برای دو مقدار مختلف طول، پنجره مجاز بسامد فونونی بدون تغییر مانده است.

همچنین می‌توان به کمک این فرمول‌بندی خواص فونونی و گرمایی نانو بلورهای مرکزی همگن و متناوب را با یکدیگر مقایسه کرد. شکل ۵، ضریب عبور فونونی و رسانندگی گرمایی



شکل ۵: مقایسه (الف) ضریب عبور فونونی، (ب) رسانندگی گرمایی یک نانو بلور همگن نامتناهی با یک نانو بلور متناوب نامتناهی با یک نسبت جرمی معین، به صورت تابعی از بسامد فونون فرودی.

نوعی اتم‌های سطح مقطع، تعداد حالت‌های فونونی افزایش می‌یابند. بررسی اثر تغییر طول یک نانو بلور متناهی متصل به دو نانو بلور مشابه و نیمه متناهی نشان می‌دهد، تغییر طول ساختار در مقدار متوسط ضریب عبور فونونی و پهنای پنجره بسامد بی تأثیر است و تنها افزایش طول ساختار، تعداد قله‌های بسامد را افزایش می‌دهد. به علاوه با افزایش تعداد اتم‌های سطح مقطع دستگاه، این نتیجه به دست می‌آید که با گذر از مقیاس نانو به انبوهه، نمودار ضریب عبور فونونی یک نانو بلور از شکل پله‌ای به منحنی خمیده تغییر شکل می‌دهد. همچنین از بررسی یک بلور با لایه‌های جرمی متناوب، این نتیجه به دست می‌آید که وجود تناوب در جرم لایه‌های دستگاه به صورت یکی در میان، ترابرد فونونی و در نتیجه رسانندگی گرمایی را کاهش می‌دهد.

بدین وسیله از حمایت‌های مالی معاونت پژوهشی دانشگاه شهرکرد قدردانی می‌شود.

که در حالت همگن نمودار رسانندگی گرمایی نانو بلور به صورت صعودی با افزایش دما افزایش می‌یابد (نمودار خط پر). در مقایسه با حالت همگن، منحنی رسانندگی گرمایی یک نانو بلور متناوب برای یک نسبت جرمی معین، آهنگ یکسانی دارد، اما به دلیل متناوب شدن ساختار، رسانندگی گرمایی کاهش قابل توجهی یافته است (نمودار خط چین). این نتیجه به دست می‌آید که کاهش ضریب عبور فونونی و رسانندگی گرمایی مربوط به وجود تناوب جرمی در لایه‌های متوالی در نانو ساختار است.

در این مقاله با ارائه یک مدل ساده، با استفاده از روش ماتریس انتقال و در تقریب هماهنگ، اثر عوامل ساختاری و فیزیکی بر خواص فونونی و گرمایی نانو بلورها بررسی شده است. نتایج نشان می‌دهند که با افزایش (کاهش) قدرت ثابت فنرهای سطح مقطع ساختار که معادل با بسامد نوعی اتم‌های سطح مقطع است، ترابرد فونونی کاهش (افزایش) می‌یابد. همچنین در همین شرایط، مشاهده می‌شود با افزایش بسامد

- Majumdar, *Physica B* **349** (2004) 270.
9. T Thonhauser and G D Mahan, *Phys. Rev. B* **69** (2004) 075213.
  10. N Mingo and L Yang, *Phys. Rev. B* **68** (2003) 245406.
  11. M Mardaani and A A Shokri, *Physica E* **28** (2005) 150.
  12. M Mardaani, K Esfarjani, *Physica E* **27** (2005) 227.
  13. L Nie, L Wang, L H Zhao and K Chen, *Phys. Lett. A* **364** (2007) 343.
  14. S Datta, "*Electronic Transport in Mesoscopic Systems*", Cambridge University Press (1997).
  15. J S Wang, J Wang, and N Zeng, *Phys. Rev. B* **74** (2006) 033408.
  1. D K Ferry and S M Goodnick, "*Transport in Nanostructures*", Cambridge University Press (1997).
  2. J S Wang, J Wang and J T Lu, *Eur. Phys. J. B* **62** (2008) 381.
  3. X J Wang, Z Q Gong, M D He, K Q Chen and L Wang, *Physica E* **40** (2008) 3014.
  4. Y Chen, D Li and J Yang, *Physica B* **349** (2004) 270.
  5. T M Tritt, "*Thermal Conductivity Theory, Properties and Applications*", Clemson University (2003).
  6. J Wang and J S Wang, *Phys. Rev. B* **74** (2006) 054303.
  7. A Chaudhuri, A Kund, D Roy, A Dhar, J L Lebowitz, and H. Spohn, *Phys. Rev. B* **81** (2010) 064301.
  8. Y Chen, D Li, J Yang, Y Wu, J R Lukes and A