



Doctoral Thesis

## Correlated Deformations in Graphene

**Author(s):**

Giordanelli, Ilario

**Publication Date:**

2017

**Permanent Link:**

<https://doi.org/10.3929/ethz-a-010867200> →

**Rights / License:**

[In Copyright - Non-Commercial Use Permitted](#) →

This page was generated automatically upon download from the [ETH Zurich Research Collection](#). For more information please consult the [Terms of use](#).

Diss. ETH No. 24117

# Correlated Deformations in Graphene

A thesis submitted to attain the degree of  
DOCTOR OF SCIENCES of ETH ZURICH  
(Dr. sc. ETH Zurich)

presented by  
ILARIO GIORDANELLI  
MSc ETH Physics, ETH Zurich

born on 07.04.1987  
citizen of Goldach SG, Switzerland

accepted on the recommendation of  
Prof. Dr. Hans J. Herrmann, examiner  
Prof. Dr. Manfred Sigrist, co-examiner

2017

# Zusammenfassung

In dieser Arbeit führen wir eine numerische Studie durch, die sich mit der konformen Invarianz, das Falten und den elektrischen Eigenschaften von suspendierten Graphen-Oberflächen befasst. Wir verwenden Molekular-dynamik-Simulationen zur Beschreibung der Bewegung der Kohlenstoffatome und ein Lattice-Boltzmann Modell, um den Elektronstrom im hydrodynamischen Formalismus zu berechnen. Wir stellen fest, dass Graphenmembranen korrelierte Deformationen aufweisen, die wir im Rahmen rauer Oberflächen genauer untersuchen und deren Hurst (Rauigkeits-) Exponent bestimmen. Wir zeigen auf, dass Graphenmembranen unabhängig von der Temperatur skaleninvariante Eigenschaften besitzen, die zum Beispiel in der fraktalen Dimension der Höhenlinien am Perkulationsübergang zum Ausdruck kommen. Darüber hinaus liefern wir numerische Hinweise dafür, dass die Höhenlinien konform invariant sind. Interessanterweise sind Höhenlinien anderer rauer Oberflächen nicht notwendigerweise konform invariant, auch wenn sie denselben Hurst-Exponenten aufweisen, z.B. zufällige Gaussche Oberflächen. Wir vergleichen unsere Graphen-Oberflächen mit zufälligen Gausschen Oberflächen, die den gleichen Hurst-Exponenten besitzen, und finden sowohl unterschiedliche Werte in der fraktalen Dimension der Höhenlinien, als auch in der Verteilung des Moduls der Fourierkoeffizienten. Die korrelierten Verformungen in Graphen sind für die Stabilität des zweidimensionalen Materials verantwortlich. Eine Analyse des zweidimensionalen Kristallproblems jenseits der harmonischen Näherung hat zu der Schlussfolgerung geführt, dass atomar dünne Membranen durch ihre Verformung in der dritten Dimension stabilisiert werden können. Im Gegensatz

dazu, neigen Graphenmembranen mit einer ausreichend hohen Lochdichte dazu, sich zu falten und weichen von der strikten Zweidimensionalität des Materials ab.

Wir untersuchen den Übergang von im wesentlichen flachen bis hin zu gefalteten, beschädigten Graphenmembranen. Wir beschädigen reine Graphenmembranen durch Entfernen von Kohlenstoffatomen und Hinzufügen von Wasserstoffatomen. Wir charakterisieren den Übergang durch den Streumassenradius, die Eigenwerte des Gyrationstensors und die fraktale Dimension. Darüber hinaus untersuchen wir die Rolle der nicht-kovalenten Wechselwirkungen im Faltvorgang. Wir finden heraus, dass gefaltete Membranen eine hohe fraktale Dimension aufweisen, wenn alle Wechselwirkungen zwischen Kohlenstoffatomen betrachtet werden, und eine kleine Dimension haben, wenn nicht-kovalente Wechselwirkungen unterdrückt werden. Der Übergang zwischen diesen beiden Werten, der durch Ein- und Ausschalten der nicht-kovalenten Wechselwirkungen von Gleichgewichtskonfigurationen erhalten wird, ist reversibel und unabhängig von der Thermalisierung. Wir vergleichen auch beschädigte Graphenmembranen mit anderen gefalteten Strukturen, wie zum Beispiel polymerisierten Membranen und Papierblättern, die ähnliche Skalierungseigenschaften aufweisen.

Im letzten Teil dieser Arbeit befassen wir uns mit der Frage, wie diese korrelierten Verformungen Dissipation in der elektronischen Strömung einführen und damit die Elektron-Phonon-Wechselwirkungen in Graphen effektiv nachahmen. Der elektronische Transport wird durch die relativistischen hydrodynamischen Gleichungen in Graphen beschrieben, die wir mit der Lattice-Boltzmann Methode lösen.

Anders ausgedrückt stellen wir ein Modell zur Beschreibung von Elektron-Phonon-Wechselwirkungen in Graphen vor, das auf Hydrodynamik in gekrümmten Räumen basiert ist. Vibrationen in den atomaren Anordnungen von kristallinen Strukturen sind durch Phononen gekennzeichnet, deren Wechselwirkungen mit Ladungsträgern den elektrischen Widerstand des Materials erhöhen. Unser Ansatz erfasst diese Gitterschwingungen als Änderungen in der Krümmung des Raumes, in dem sich Elektronen nach hydrodyna-

mischen Gleichungen bewegen. In diesem Bild treten Trägheitskorrekturen an der elektronischen Strömung auf, die das Vorhandensein von Elektron-Phonon-Wechselwirkungen nachahmen. Die Stärke der Wechselwirkung wird durch eine Kopplungskonstante gesteuert, die temperaturunabhängig ist. Mit diesem Modell sind wir in der Lage, das lineare Skalierungsgesetz für den bei hohen Temperaturen zu erwartenden spezifischen Widerstand zufriedenstellend wiederherzustellen. Unsere Ergebnisse eröffnen eine neue Perspektive zur Behandlung von Elektron-Phonon-Wechselwirkungen in Graphen und möglicherweise auch in anderen Materialien.

# Abstract

In this thesis, we perform a numerical study on the conformal invariance, crumpling, and electrical properties of suspended graphene sheets. We use molecular dynamics simulations for describing the motion of the carbon atoms, and a lattice Boltzmann model to calculate the electronic flow within the hydrodynamics formalism.

We find that graphene membranes exhibit correlated deformations which we study under the framework of rough surfaces and determine their Hurst (roughness) exponent. We show that, independent of the temperature, graphene membranes possess scale invariant properties, expressed for instance in a well-defined fractal dimension of the iso-height lines at the percolation threshold. Additionally, we provide numerical evidence that the iso-height lines are conformally invariant. Interestingly, iso-height lines of other rough surfaces are not necessarily conformally invariant even if they have the same Hurst exponent, e.g. random Gaussian surfaces. We compare our graphene sheets with random Gaussian surfaces with the same Hurst exponent and find not only a disagreement in the fractal dimension of the iso-height lines, but also a disagreement in the distribution of the modulus of the Fourier coefficients.

The correlated random deformations in graphene are responsible for the stability of the two-dimensional material. An analysis of the two-dimensional crystal problem beyond the harmonic approximation, has led to the conclusion that atomically thin membranes can be stabilised through their deformation in the third dimension. In contrast to it, graphene membranes with sufficiently high vacancy densities have the tendency to crumple, deviating

from the strict two-dimensionality of the material. We study the crumpling transition from essentially flat to a crumpled damaged graphene membranes. Pristine graphene membranes are damaged by adding random vacancies and carbon-hydrogen bonds. We characterize the transition through the radius of gyration, the eigenvalues of the gyration tensor and the fractal dimension. Additionally, we study the role of non-covalent interactions in the crumpling process. We find that crumpled membranes exhibit a high fractal dimension when all interactions between carbon atoms are considered and a strongly decreased one when non-covalent interactions are suppressed. The transition between these two values, obtained by switching on/off the non-covalent interactions of equilibrium configurations, is shown to be reversible and independent on thermalisation. We also compare damaged graphene membranes with other crumpled structures, as for instance, polymerised membranes and paper sheets, that share similar scaling properties.

In the last part of this thesis, we address the question whether these correlated deformations introduce energy dissipation in the electronic flow and thus effectively mimicking electron-phonon interactions in graphene. The electronic transport is described by the relativistic hydrodynamic equations in graphene, which we solve with the lattice Boltzmann method. In other words, we introduce a different perspective on describing electron-phonon interactions in graphene based on curved space hydrodynamics. Vibrations in the atomistic arrangements of crystalline structures are characterized by phonons, whose interactions with charge carriers increase the electrical resistivity of the material. Our approach captures these lattice vibrations as changes in the curvature of the space in which electrons move following hydrodynamic equations. In this picture, inertial corrections to the electronic flow arise naturally and mimic the presence of electron-phonon interactions. The strength of the interaction is controlled by a coupling constant, which is temperature independent. With this model we are able to recover satisfactorily the linear scaling law for the resistivity that is expected at high temperatures. Our findings open up a new perspective for looking at electron-phonon interactions in graphene, and possibly also in other materials.