

# High-Precision and Reliable Thermal Conductivity Measurement for Graphene Films Based on an Improved Steady-State Electric Heating Method

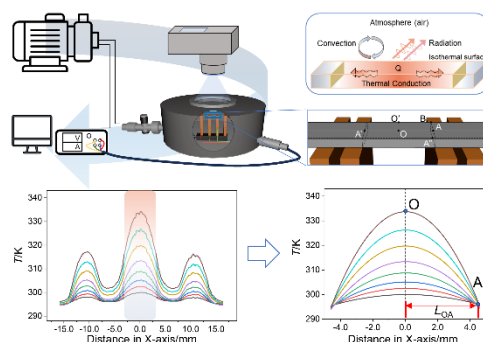
Jiahao Lu<sup>1</sup>, Xin Ming<sup>1</sup>, Yingjun Liu<sup>1,2,\*</sup>, Yuanyuan Hao<sup>1</sup>, Peijuan Zhang<sup>1</sup>, Songhan Shi<sup>1</sup>, Yi Mao<sup>1</sup>, Yue Yu<sup>1</sup>, Shengying Cai<sup>3</sup>, Zhen Xu<sup>1,2</sup>, Chao Gao<sup>1,2,\*</sup>

<sup>1</sup> MOE Key Laboratory of Macromolecular Synthesis and Functionalization, Department of Polymer Science and Engineering, Key Laboratory of Adsorption and Separation Materials & Technologies of Zhejiang Province, Zhejiang University, Hangzhou 310027, China.

<sup>2</sup> Shanxi-Zheda Institute of Advanced Materials and Chemical Engineering, Taiyuan 030032, China.

<sup>3</sup> Center for Healthcare Materials, Shaoxing Institute, Zhejiang University, Shaoxing 312000, Zhejiang Province, China.

**Abstract:** The graphene film with high thermal conductivity has garnered considerable attention in recent years as an ideal material for dissipating heat in high-power electronic devices. Thermal conductivity is a crucial parameter for evaluating its fundamental performance. High-precision measurement holds significant importance for understanding its basic properties, fabrication optimization, and industrial applications. However, it is difficult to simultaneously achieve efficient, accurate, and reliable measurements with existing commercial thermal conductivity testing methods. The development of a convenient, high-precision, and reliable measurement approach remains a great challenge. Here, we introduce a thermal conductivity testing methodology with superior accuracy and excellent efficiency based on an improved steady-state electric heating method, refined through the optimization of heat transfer principles, experimental operation, and data analysis, supported by finite element simulation. The accuracy of measurements is affected by four factors: heat loss calibration, sample size, device design, and data treatment. The experimental results show that the heat loss caused by heat radiation and heat convection affects the temperature distribution and the measurements of the sample, which should be strictly controlled by sample size and temperature rise. Reasonable screening and preprocessing of data are also necessary to improve measurement accuracy. Through the comparative analysis of the temperature distribution and thermal conductivity measurements of samples under different conditions, we propose feasible operational guidance and a standardized testing protocol to minimize measurement error. The measurement error is less than 3.0%, and uncertainty is reduced to 0.5%. Simulation results confirm that the response time of this method is down to milliseconds, correlating well with the experiment, which can effectively improve test efficiency. Considering the combined merits of high accuracy, repeatability, and fast response, the improved steady-state electric heating method offers useful guidance for the accurate evaluation of the thermal conductivity of materials and crucial technical support for research and application in thermal management.



**Key Words:** Graphene film; Thermal conductivity; Steady-state technology; Finite element simulation

Received: July 4 2024; Revised: August 22, 2024; Accepted: August 26, 2024; Published online: September 5, 2024.

\*Corresponding authors. Emails: yingjunliu@zju.edu.cn (Y.L.); chaogao@zju.edu.cn (C.G.)

The project was supported by the National Natural Science Foundation of China (52272046, 52090030, 52090031, 51973191, 52122301, 52303354), the Natural Science Foundation of Zhejiang Province (LR23E020003) and the Fundamental Research Funds for the Central Universities (226-2024-00074, 226-2023-00023, 226-2023-00082, 2023QZJH26), Shanxi-Zheda Institute of New Materials and Chemical Engineering (2022SZ-TD011, 2022SZ-TD012, 2021SZ-FR004).

国家自然科学基金(52272046, 52090030, 52090031, 51973191, 52122301, 52303354), 浙江省自然科学基金(LR23E020003), 中央高校基本科研业务费专项资金(226-2024-00074, 226-2023-00023, 226-2023-00082, 2023QZJH26)及山西浙大新材料与化工研究院(2022SZ-TD011, 2022SZ-TD012, 2021SZ-FR004)资助项目

# 基于稳态电热法的石墨烯膜导热系数的精确可靠测量

陆嘉灏<sup>1</sup>, 明鑫<sup>1</sup>, 刘英军<sup>1,2,\*</sup>, 郝媛媛<sup>1</sup>, 张佩娟<sup>1</sup>, 施淞瀚<sup>1</sup>, 毛艺<sup>1</sup>, 于悦<sup>1</sup>, 蔡盛赢<sup>3</sup>, 许震<sup>1,2</sup>, 高超<sup>1,2,\*</sup>

<sup>1</sup>浙江大学高分子科学与工程学系, 杭州 310027

<sup>2</sup>山西浙大新材料与化工研究院, 太原 030032

<sup>3</sup>浙江大学绍兴研究院, 浙江 绍兴 312000

**摘要:** 高导热石墨烯膜是近年来备受关注的高功率电子器件用散热材料。导热系数作为一项评价其基础性能的重要参数, 实现其精确测量对于理解材料基础物性、优化制备工艺以及实际工程应用都具有重要意义。然而, 现有的商业化导热测试设备, 囿于测试原理、样品尺寸等因素, 难以同时实现高效、准确、可靠的测量。开发操作简便、测试快捷、精度优异、可跨尺度的测量方案仍是一个重要挑战。本文提出基于稳态电热法的石墨烯膜导热系数的精确可靠测量方法, 结合实验测试与仿真模拟, 基于原理分析、测试优化、数据处理等三个方面, 显著提升导热测量的精度与效率。测量结果的准确性受到热损校正、样品尺寸、系统设计以及数据处理等四方面因素影响。实验结果表明, 热辐射和热对流引起的热损失会影响样品的温度分布和测量结果, 可通过控制样品尺寸和温升来控制。对实验数据进行筛选和预处理也可以有效提高测量精度。通过实验与仿真结合, 我们提出了可行的操作指南与标准化的测试方案。通过优化, 该方法测量误差低于3.0%, 不确定性降至0.5%, 响应时间达毫秒级。本工作为准确评估材料导热性能提供有益指导, 也为导热材料的热管理工程应用提供技术支撑。

**关键词:** 石墨烯膜; 导热系数; 稳态电热法; 有限元模拟  
**中图分类号:** O642

## 1 引言

人工智能时代随着对电子设备集成度和性能需求的不断提升<sup>1,2</sup>, 散热问题逐渐成为大功率便携式电子器件可靠运行和跨代发展的瓶颈<sup>3-5</sup>。石墨烯膜材料作为一种兼具耐弯折、低密度且可规模化制备的柔性高导热材料备受研究人员青睐<sup>6-10</sup>, 是一种解决高功率高热流密度电子器件散热难题的理想材料<sup>11-13</sup>。导热系数作为评价石墨烯膜的关键性能之一, 其测量结果的准确性将直接影响实际工程应用的产品设计优化<sup>14-16</sup>。

导热系数测量的常见方法根据测试原理可以分为稳态法和非稳态(瞬态)法<sup>17,18</sup>。稳态法如热流法、保护热板法等, 信号分析相对简单且符合实际应用场景, 可信度高。然而, 所需样品尺寸大, 测试时间长, 受到接触热阻的影响, 使得测试范围受限<sup>19,20</sup>。相对而言, 非稳态法如激光闪射法、平面热源法等, 所需样品尺寸小, 具有测试效率高、测量迅速等优点, 但数据处理复杂, 不确定度更高, 并且难以准确测量厚膜的面内导热系数<sup>21,22</sup>。总之, 现有的商业化热测量技术囿于测试原理、样品尺寸、装置结构等因素, 导致测试过程复杂、测试周期长、结果重现性差等问题, 并且适用范围有限。

稳态电热法作为一种常用的微纳材料导热测

量技术<sup>23,24</sup>, 其基本原理是施加电流产生焦耳热, 并通过样品的稳态温度分布计算出导热系数<sup>25</sup>。宏观样品的温度常用接触式测温装置如热电偶等测量, 但接触热阻的存在使得测试精度与导热系数测量范围受限, 特别是在测量高导热、小尺寸样品时受限更加明显<sup>26</sup>。近年来非接触式测温装置如红外显微镜或拉曼光谱等备受关注意<sup>27</sup>。基于碳基材料G峰随温升蓝移的特性, 可以通过拉曼位移来确定微纳材料的稳态温度分布。Balandin等人<sup>28</sup>采用共聚焦微拉曼光谱测量单层石墨烯的面内导热系数, 高达 $5300 \text{ W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$ , 不过结果偏差达到 $\pm 9\%$ 。Li等人<sup>29</sup>采用此方法测量碳纳米管的导热系数, 结果偏差也达到 $16.7\% - 17.9\%$ 。此外, 辐射、对流等热损的存在也会导致导热测试精度下降。Zhang等人<sup>30</sup>在非真空封闭环境下测量碳纳米管膜面内导热系数, 结果偏差高达 $10.1\% - 14.4\%$ 。真空环境中不存在热对流, 可以根据Stefan-Boltzmann公式计算悬浮样品的热损失<sup>31</sup>。研究发现当样品温升低于 $60 \text{ K}$ 时, 热量损失比热传导的热量低2-3个数量级<sup>25</sup>, 此时可忽略热损<sup>32,33</sup>。热量损失也受样品形貌尺寸影响, Wang等人<sup>34</sup>通过迭代法估算自然对流下的热损占比, 研究发现, 热损占比随着样品长度增加而迅速上升, 换热系数甚至高达 $4150 \text{ W}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{K}^{-1}$ 。针对稳态电热法目前尚无详细的研

究, 需厘清影响其测量准确性的因素, 从而实现高效稳定、偏差可控、重复性好的测量。

本文以石墨烯膜作为测试对象, 结合实验和有限元仿真, 对稳态电热法开展系统的研究, 形成可靠的稳态电热法导热系数测量方案。从测试原理分析、测试优化、数据处理等三个方面进行分析与误差修正, 将测试误差降低至3.0%, 测试不确定性降低至0.5%。该测试方法在准确性、重复性和测试效率方面表现良好, 为高导热碳材料研究提供重要的导热测试技术支撑。

## 2 实验

### 2.1 实验装置

本研究采用稳态电热法来测量石墨烯膜的面内导热系数。测试装置如图1a所示, 主要由控制单元、加热单元、真空单元、测温单元四个模块构成。控制单元包括位移台和热沉(铜块), 铜块1和2以及铜块3和4的间距保持一致, 通过调节铜块2和3之间的距离调整待测样品长度。采用导电银胶将样品固定在热沉上, 以降低接触电阻与热阻。加热单元采用数字源表(2460, Keithley, USA)施加恒定电流, 并采用四线法测量待测样品位于中间2和3铜块间的电势差, 并控制试样温升在3–40 K之间。真空单元包括真空泵(TwisTorr 84 FS AG, Agilent Technologies, USA)和真空腔体, 为提高测试精度可于高真空环境(约 $10^{-4}$  mbar)下测试以忽略热对流影响。测温装置可采用红外相机(T630sc, FLIR, USA), 透过真空腔体的红外窗口测量样品表面的温度分布(图1b)。样品表面应均匀喷涂一层薄的石墨层, 以确保样品的红外发射率稳定与测温准确性。

### 2.2 理论背景

稳态电热法的测试原理是通过对试样施加加热电流 $I$ , 待试样表面温度稳定后基于其温度分布

曲线计算试样导热系数。假设样品电阻为 $R$ , 待测长度为 $2L$ (四线法测量时, 设定铜块2和3之间的样品长度为 $2L$ , 后续简称为“样品长度”), 测量其电压为 $U$ 。对于 $x \rightarrow x + dx$ 微段上的样品, 在 $x$ 处端面的温度为 $T(x)$ , 通过热传导进入样品内部的热量 $Q_{in}$ 为:

$$Q_{in} = -\lambda(T(x))A_c \frac{dT(x)}{dx} \quad (1)$$

其中,  $\lambda(T(x))$ 为试样在温度 $T(x)$ 下的导热系数,  $A_c$ 为试样横截面积。在 $x + dx$ 处端面, 通过热传导传出样品的热量 $Q_{out}$ 为:

$$Q_{out} = -\lambda(T(x+dx))A_c \frac{dT(x+dx)}{dx} \quad (2)$$

展开后忽略 $dx$ 高阶项后,  $Q_{out}$ 可以表示为:

$$Q_{out} = -\lambda(T(x))A_c \frac{dT(x)}{dx} - \lambda(T(x))A_c \frac{d^2T(x)}{dx^2} dx - A_c \frac{d\lambda(T(x))}{dT} \left( \frac{dT(x)}{dx} \right)^2 dx \quad (3)$$

设样品的横截面周长为 $P$ , 则在 $x \rightarrow x + dx$ 微元段通过热辐射 $Q_r$ , 热对流 $Q_c$ , 热传导 $Q_{con}$ 的换热量分别为:

$$Q_r = \varepsilon\sigma P(T^4(x) - T_a^4) dx \quad (4)$$

$$Q_c = hP(T(x) - T_a) dx \quad (5)$$

$$Q_{con} = Q_{out} - Q_{in} \quad (6)$$

其中,  $\varepsilon$ 为发射率,  $\sigma$ 为Stefan-Boltzmann常数,  $\sigma = 5.67 \times 10^{-8} \text{ W}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{K}^{-4}$ ,  $h$ 为表面对流换热系数,  $T_a$ 为环境温度。在 $x \rightarrow x + dx$ 微段内部产生的焦耳热 $Q_j$ 为:

$$Q_j = \frac{UI}{2L} dx \quad (7)$$

在稳态条件下, 依据能量守恒定理, 由上面各式可得

$$Q_j = Q_{con} + Q_r + Q_c \quad (8)$$

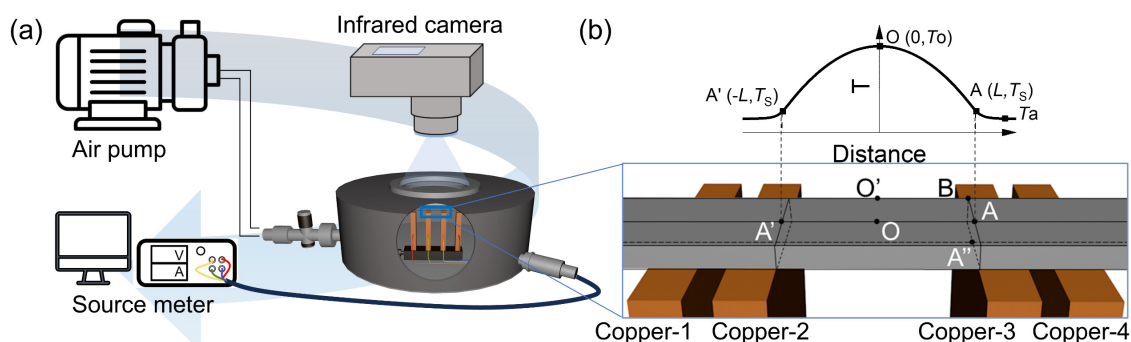


图1 稳态电热法测量石墨烯膜导热系数的装置图

Fig. 1 The instrument used to measure thermal conductivity of graphene film by steady state electric heating method.

(a) Test device, (b) Sample temperature distribution.

$$\lambda(T(x)) \frac{d^2T(x)}{dx^2} + \frac{d\lambda(T(x))}{dT} \left( \frac{dT(x)}{dx} \right)^2 + \frac{UI}{2A_cL} dx - \frac{P\varepsilon\sigma}{A_c} (T^4(x) - T_a^4) - \frac{hP}{A_c} (T(x) - T_a) = 0 \quad (9)$$

稳态电热法测试中存在两个假设前提, 首先, 要求样品均质完整, 确保电热均匀分布<sup>29</sup>。其次, 测试样品最大温升不应过高 ( $\Delta T_{\max} \leq 40$  K), 此时导热系数 $\lambda$ 视为保持不变, 即为被测样品在平均温度下的导热系数, 即  $\lambda(T(x))|_{T_a}^{T_0} \equiv K$ , 公式(9)第二项结果为0。由于温升较低, 热辐射占比远小于热传导, 因此第四项可被忽略。通过将测试环境置于高真空环境(约  $10^{-4}$  mbar), 第五项对流换热也可忽略。因此可简化为:

$$K \frac{d^2T(x)}{dx^2} + \frac{UI}{2A_cL} dx = 0 \quad (10)$$

$$\int_{-L}^L \int_{-L}^L \left( K \frac{d^2T(x)}{dx^2} + \frac{UI}{2A_cL} \right) dx dx = 0 \quad (11)$$

两边二次积分后化简得到:

$$T(x) = -\frac{UI}{4A_cLK} x^2 + C_1x + C_2 \quad (12)$$

其中 $C_1, C_2$ 为常数。以悬空样品中点为坐标原点O, 温度为 $T_0$ , 与热沉接触点为A、A', 温度均为 $T_s$ 。OA和OA'的长度均为 $L$ 。根据实验数据带入边界条件, 当 $T(0) = T_0$ 、 $T(-L) = T(L) = T_s$ , 得到 $C_1 = 0$ 、 $C_2 = T_0$ 。

$$T(x) = T_0 - \frac{UI}{4A_cLK} x^2 \quad (13)$$

因此, 导热系数计算公式为:

$$\lambda(T) = K = \frac{UIL}{4A_c(T_0 - T_s)} \quad (14)$$

### 3 结果和讨论

根据测试原理及式(9), 测量结果的准确性受到热量损失标定、尺寸性能匹配、测试系统设计以及数据分析处理等四方面因素影响。其中热量损失和尺寸性能基于原理误差, 与假设前提相关。测试系统设计为系统误差, 数据分析处理为人为误差。热量损失是由测试过程中的热辐射、热对流引起的, 应严格控制其影响。样品的尺寸以及导热性能会影响样品内焦耳热传导方向以及等温面分布, 为提高测试准确性, 应确保热流方向沿长度径向且等温面彼此平行。测试系统设计应保证四个模块测量准确与协同匹配。数据处理核心在于筛

选合理数据, 提高处理效率与计算精度。

#### 3.1 热量损失估定

固体内部热量传输往往由热传导主导, 伴随着热辐射和热对流(图2a)。由式(9)可知, 热辐射和热对流的存在易导致相同功率下样品中心与两侧温差减小, 导热系数计算结果偏大。为探究热损对导热测量的影响, 在强制对流、自然对流和封闭真空三种不同环境条件下测量尺寸分别为 $40.00 \text{ mm} \times 1.00 \text{ mm} \times 0.025 \text{ mm}$ 和 $40.00 \text{ mm} \times 1.00 \text{ mm} \times 0.1 \text{ mm}$ 石墨烯膜的导热系数。强制对流环境中试样表面温度波动较大, 难以达到稳态。与自然对流相比, 真空环境下测得的两种厚度样品导热系数的误差分别从8.38%和4.99%减小到3.97%和0.38%(图2b)。非真空环境下, 部分焦耳热以热对流和热辐射的形式耗散, 电功率不变时导致热传导的热量减少, 温差 $\Delta T_{OA} (= T_0 - T_s)$ 减小, 根据式(14)得到的导热系数偏高, 误差增大, 与推理一致。

根据式(9)可知, 试样的比表面积( $P/A_c$ )和温升( $\Delta T_{OA}$ )是影响辐射、对流占比的关键因素, 比表面积越大, 温升越高, 热损占比越大。基于自然空气对流的测试结果, 计算三种传热方式下的热流占比(图2c)。在 $100 \mu\text{m}$ 的厚膜中, 热辐射和热对流的占比仅占1.7‰和1.9‰, 比热传导小约2-3个数量级(图2e)。厚度为 $25 \mu\text{m}$ 的样品, 热辐射和热对流的占比分别上升到3.6‰和4.8‰(图2d)。因此封闭真空环境可有效消除热对流, 使热损减少40%, 特别是对于薄膜(大比表面积)样品。因此, 为进一步探究热损占比对测试误差影响, 通过放缩法确定真空环境下辐射热流占比的上限值与下限值,

$$4T_s^3(T - T_s)\varepsilon\sigma P \leq (T^4 - T_s^4)\varepsilon\sigma P \leq (T_0^4 - T_s^4)\varepsilon\sigma P \quad (15)$$

结果显示, 当样品宽度固定为 $1.00 \text{ mm}$ , 温升 $\Delta T_{OA}$ 低于 $40 \text{ K}$ 时,  $25 \text{ mm}$ 石墨烯膜热辐射造成的误差上限低于0.54%, 可忽略不计(图2f)。基于实验数据有限元模拟的结果显示, 当温升低于 $40 \text{ K}$ 时, 厚度大于 $31.6 \mu\text{m}$ (比表面积小于 $0.07 \text{ m}^{-1}$ )时, 测试误差上限将低于0.50%, 此时总热损可以忽略不计(图2g)。

综上所述, 为提高稳态电热法的测试精度, 测试样品比表面积应小于 $0.07 \text{ m}^{-1}$ , 控制样品最高温升低于 $40 \text{ K}$ , 并置于真空环境中进行测试。

#### 3.2 样品尺寸

样品尺寸不仅会通过比表面积影响热损占比, 同时对热流方向以及等温面分布产生影响。为探究尺寸对测试结果的影响, 分别针对不同尺寸的样品进行测试(图3a)。以样品长度方向为X轴,

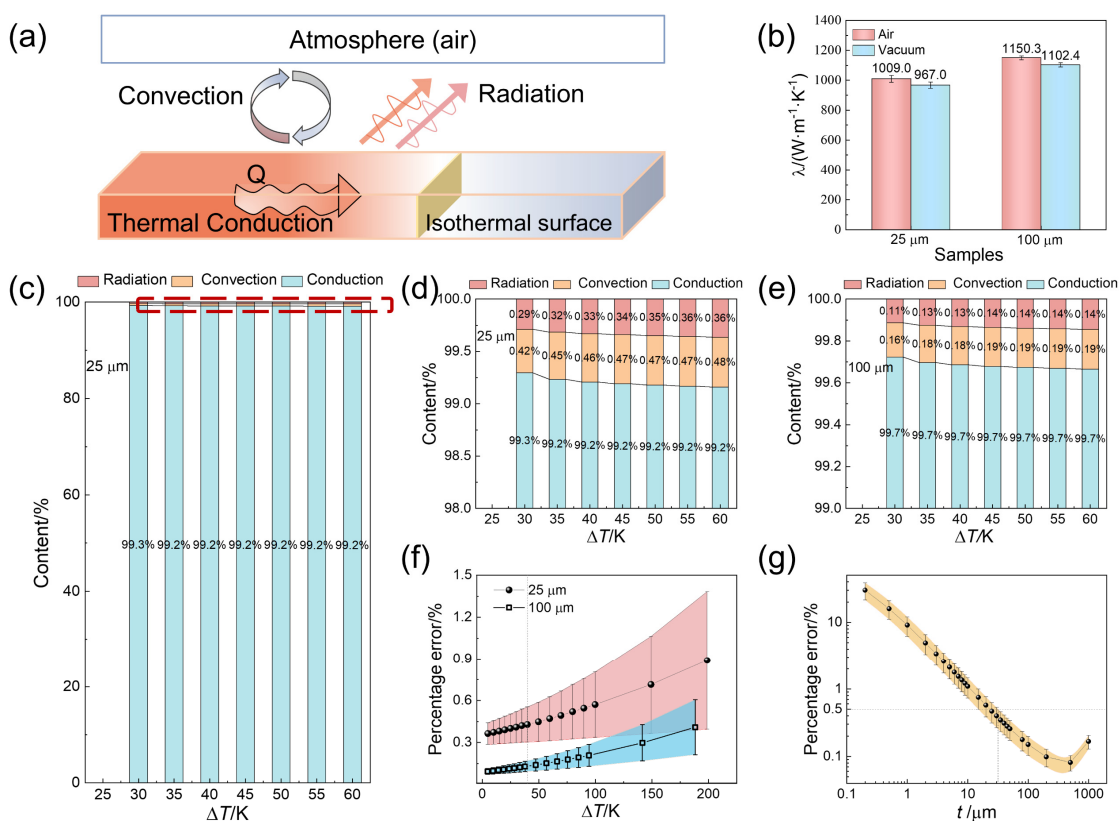


图2 三种传热方式的热损占比以及测试误差仿真结果图

**Fig. 2** The proportion of the three heat transfer methods and the test error simulation results.

(a) Heat transfer process diagram, (b) Thermal conductivity ( $\lambda$ ) of samples with different thicknesses in different environments, (c-e) Proportion of three heat transfer ways in samples of different thicknesses, 25  $\mu\text{m}$  (c-d) and 100  $\mu\text{m}$  (e), (f) Test error variation with temperature difference ( $\Delta T$ ), (g) Test error variation with thickness.

宽度方向为 $Y$ 轴, 厚度方向为 $Z$ 轴, 各个方向上的导热率分布为 $K_X$ 、 $K_Y$ 、 $K_Z$ 。

### 3.2.1 样品长度

样品长度( $2L$ )与比表面积( $P/A_c$ )无关, 对导热测量结果影响不大。图3b结果显示, 随着样品长度 $2L$ 从6.00 mm增加到10.00 mm, 导热测量结果几乎保持不变, 但测试偏差从5.9%减小至1.3%。因为测试系统误差随样品长度增加而降低。一方面, 恒定电流下样品电阻与电热功率随着样品长度增加而增加, 温升 $\Delta T_{OA}$ 也随之增大, 红外相机的测温相对误差减小, 测试精度升高; 另一方面, 随着样品长度增加, 红外相机的数据点数量增加, 温度曲线更接近实际分布, 使得测量结果更加准确, 后处理拟合的精度也随之提高, 计算误差减小。

### 3.2.2 样品宽度

随着样品宽度( $w$ )增加, 试样比表面积减小, 热损占比与误差减小, 但 $Y$ 轴方向温降 $\Delta T_Y$ 增加, 影响热流传递方向误差增加, 因此需要综合考虑。由图3c测试结果可知, 固定样品长度为10.00 mm时, 随着试样宽度从1.00 mm增加到2.50 mm, 测

得的导热系数减小17.3%, 测试误差从1.9%显著增加到18.8%。在真空环境中样品沿 $Y$ 轴方向热流( $Q_Y$ )由热辐射 $Q_r$ 主导, 远小于沿 $X$ 轴方向热传导主导的热流 $Q_{con}$ 。

$$Q_r = Q_Y = K_Y \times (2L \times t) \times 2\Delta T_Y / w \quad (16)$$

当样品宽度 $w$ 较小时, 样品沿 $Y$ 轴方向的温降( $\Delta T_Y = \Delta T_{OO}$ , 图3d)可忽略不计。随着宽度的增加,  $Y$ 轴温差( $\Delta T_Y$ )增大, 导致样品边缘温降 $\Delta T_{OB}$  ( $< \Delta T_{OA}$ )降低, 这与实验结果一致(图3e)。如图3f所示, 当样品长宽比 $2L/w$ 大于10时, 样品 $Y$ 轴方向的温度波动均小于0.75 K, 均方差小于0.40。此时可认为 $XY$ 平面内等温线平行于 $Y$ 轴, 才满足稳态电热法测量导热系数的测试条件。随着待测样品宽度 $w$ 增加, 等温线不再平行于 $Y$ 轴, 测得的温差 $\Delta T_{OA}$ 偏大, 计算得到的导热系数偏小, 误差增大。反之, 当样品长宽比增大时, 测试结果越准确。

### 3.2.3 样品厚度

样品厚度( $t$ )对测量准确性的影响与宽度近似。通常具有各向异性导热性能的纤维、膜类样品, 轴向/面内的导热性能( $K_X$ )远高于径向/垂直方

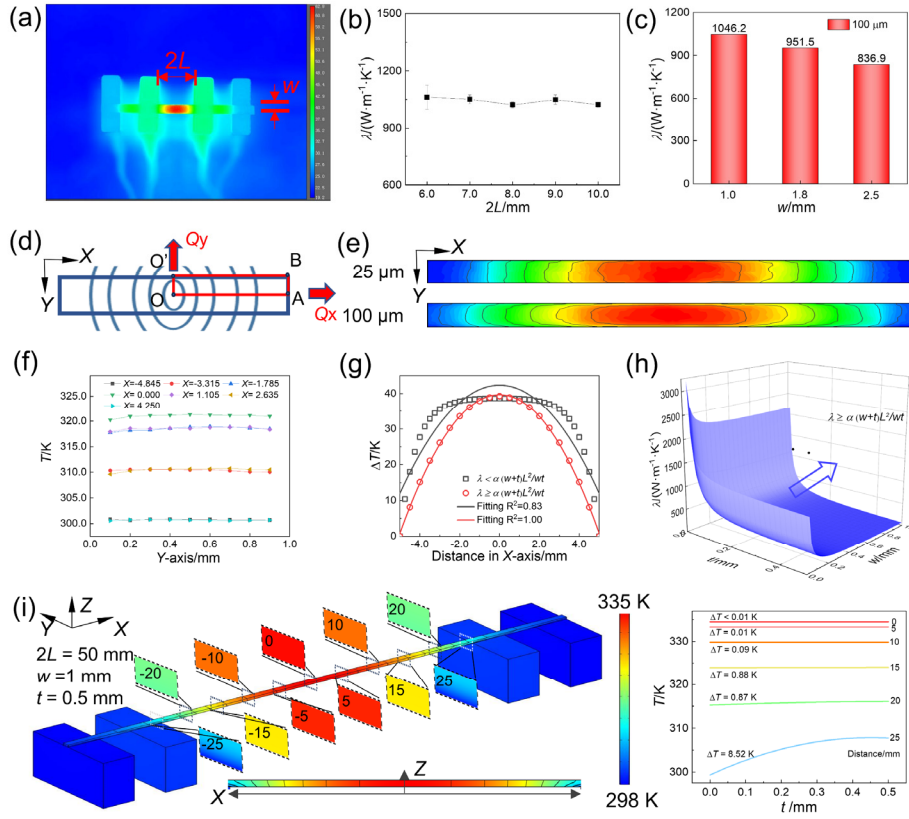


图3 样品尺寸对测试结果的影响

Fig. 3 Influence of sample size on measurement results.

(a) Infrared temperature measurement image, (b–c) Chart of thermal conductivity ( $\lambda$ ) with length (b) and width (c), (d) Schematic diagram of in-plane heat transfer in samples, (e) Infrared image of temperature distribution in the  $X$ - $Y$  plane of the sample with different thickness, (f) Temperature distribution curve along the  $Y$ -axis at different  $X$ -axis positions, (g) Sample surface temperature distribution curves under different conditions, (h) Above the threshold plane where the temperature curve is parabolic is satisfied, (i) Temperature distribution curve of 500  $\mu\text{m}$  thick film sample based on finite element simulation.

向( $K_z$ ), 因此测试过程中样品内部的热量传递过程可近似分为两个阶段, 先沿着面内横向传递, 再沿着垂直方向通过热沉传递到外界。若忽略热损失, 即:

$$0.5Q_j = K_x \frac{wt}{L} \Delta T_x = K_z \frac{wL}{t} \Delta T_z \quad (17)$$

$$\frac{\Delta T_x}{\Delta T_z} = \frac{K_z}{K_x} \times \frac{L^2}{t^2} \quad (18)$$

由式(18)可知, 样品长厚比 $L/t$ 越大或径向/垂直热导率 $K_z$ 越大, 最大垂直温降 $\Delta T_{z\max}$  (即 $\Delta T_{AA'}$ )减小, 导热测试误差随之减小。如图3i所示, 以石墨烯膜( $K_x/K_z = 100$ )为例, 当样品的长厚比 $2L/t$ 大于100时, 垂直温降 $\Delta T_{z\max}$ 小于水平温降 $\Delta T_x$ 的4%。利用有限元模拟结合实验数据对不同厚度样品的导热测试进行仿真模拟, 悬空部分样品的垂直温差低于0.9 K (图3i), 可忽略不计, 且 $YZ$ 平面内距离中心点 $O$ 约60% $L$  (甚至80% $L$ )范围内的等温线平行于 $Y$ 轴。

同时, 样品的长宽比与长厚比并非越大越好,

也受到导热性能的限制。根据3.1的结果, 样品的比表面积会影响热损占比, 进而影响测试结果。当样品导热系数较低、样品长宽比或长厚比过大时, 待测样品稳态温度分布将不呈现典型的“抛物线”形式, 反而呈现“几”型甚至“三角形”分布(图3g), 与式(14)的理论假设相悖, 不满足测试条件, 样品稳态温升 $\Delta T_{OA}$ 偏低, 导致测试结果偏大甚至数倍于实际值。此时试样表面热辐射所造成的热损不可忽略。为确定尺寸边界条件, 将试样表面温度以温升形式 $\Delta T(x)$ 表达, 即

$$\Delta T(x) \equiv T(x) - T_s \quad (19)$$

$$T^4(x) = (T_s + \Delta T(x))^4 = T_s^4 + 4T_s^3 \Delta T(x) \quad (20)$$

式(9)可进一步改写为:

$$\frac{d^2 \Delta T(x)}{dx^2} + \frac{UI}{2L \times K A_c} dx - \frac{P \varepsilon \sigma \times 4T_s^3 + hP}{K A_c} \Delta T(x) = 0 \quad (21)$$

为简化公式, 将常数项分别定义为 $C$ 、 $D$ , 其中 $C$ 代表测试过程中的热辐射和热对流所造成的

热损, 而 $D$ 代表电加热过程中样品的热传导相关参数<sup>35,36</sup>。

$$C = \frac{P\varepsilon\sigma \times 4T_s^3 + hP}{KA_c} \quad (22)$$

$$D = \frac{UI}{2L \times KA_c} \quad (23)$$

公式(21)可以简化为:

$$\Delta T''(x) - C\Delta T(x) + D = 0 \quad (24)$$

该式的特征方程为 $y^2 - C = 0$ , 即  $y = \pm\sqrt{C}$ , 因此对应齐次方程的通解为:

$$\Delta T(x) = C_1 e^{\sqrt{C}x} + C_2 e^{-\sqrt{C}x} \quad (25)$$

其中 $C_1$ 、 $C_2$ 为待定系数。该式(24)存在一个特解,  $\Delta T(x) = D/C$ , 因此对应齐次方程的解为,

$$\Delta T(x) = C_1 e^{\sqrt{C}x} + C_2 e^{-\sqrt{C}x} + \frac{D}{C} \quad (26)$$

代入方程的边界条件, 即

$$\Delta T(-L) = \Delta T(L) = 0$$

因此

$$C_1 = C_2 = -\frac{D}{C} \frac{1}{e^{\sqrt{C}L} + e^{-\sqrt{C}L}}$$

$$\Delta T(x) = \frac{D}{C} \left(1 - \frac{e^{\sqrt{C}x} + e^{-\sqrt{C}x}}{e^{\sqrt{C}L} + e^{-\sqrt{C}L}}\right) \quad (27)$$

式(27)显示样品表面温升曲线形状由常数项 $\sqrt{CL}$ 决定。

$$CL^2 \propto \frac{PL^2}{KA_c} = \frac{2(w+t)L^2}{Kwt} \quad (28)$$

基于灵敏度分析显示, 为满足样品表面温升曲线呈一元二次方程(抛物线)形式, 需满足 $PL^2/(KA_c) \leq 0.00228$  (式中各项均采用国际单位制), 此时拟合相关系数 $R^2 \geq 0.995$ , 样品稳态温度分布满足式(13), 符合测量原理要求(图3g)。以石墨烯膜等长方形样品为例, 此时阈值 $\alpha$ 为877.2, 当样品尺寸与导热性能( $w, t, \lambda$ )位于阈值曲面上端时(图3h), 即可使用稳态电热法测量导热系数。

综上所述, 应该控制样品的长度 $2L \in [100t, 0.0955(KA_c/P)^{1/2}]$  (式中各项均采用国际单位制), 样品宽度 $w$ 小于 $0.2L$ , 此时可保证热流沿 $X$ 轴径向方向传递, 且等温面与 $YZ$ 平面平行。以导热系数为 $1200 \text{ W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$ 的石墨烯膜为例, 当膜厚为 $25 \mu\text{m}$ , 样品长度 $2L$ 应大于 $2.5 \text{ mm}$ , 当样品宽度为 $1.0 \text{ mm}$ 时, 样品长度 $2L$ 应控制在 $[0.0100, 0.0116] \text{ m}$ , 若宽度不变, 厚度增加至 $500 \mu\text{m}$ , 样品长度上限可增加至 $0.0427 \text{ m}$ 。

### 3.3 测试系统设计

除了原理误差, 测试系统的测量准确性与装置匹配性同样会影响最终结果。根据计算公式(14)

可知, 提升结果准确性的关键在于温度与功率的精准测定。如装置图4a所示, 测试过程中物体发射率、腔体透过率、加电方式、接触界面对测量来说至关重要, 其中物体发射率与腔体透过率主要影响温度测量, 加电方式与接触界面则影响功率的确定。

#### 3.3.1 物体发射率

测温装置的测温准确性对导热测量结果至关重要。红外相机作为非接触式的测温装置, 需要提前进行测温校正, 关键在于样品表面发射率与相机使用发射率的匹配<sup>37</sup>。样品发射率通常受到温度和表面条件(如表面处理、粗糙度、氧化等)影响<sup>38</sup>(图4b)。为提高测温准确性需要提前校正, 联用 $k$ 型热电偶和红外相机对样品表面温度测量进行校正。在封闭环境中将样品放在加热台上加热至指定温度并保持稳定后, 用 $k$ 型热电偶和红外相机分别测量样品的表面温度。调整红外相机的使用发射率, 直至两种测量方法得到的样品表面温度相同。此时可将调整后的相机使用发射率近似视为样品表面发射率。

结果显示, 未喷涂薄石墨层的石墨烯膜样品表面发射率随着温度的升高呈现非线性降低<sup>39</sup>。当样品表面最高温度达 $348 \text{ K}$ 时, 发射率下降 $45\%$ 。相反, 喷涂薄石墨层的样品发射率在测试温度范围内( $\Delta T_{\text{OA}} \leq 40 \text{ K}$ )保持稳定, 偏移率低于 $0.02$ 。当红外相机的使用发射率不变时, 未喷涂石墨层的样品整体温度均偏低, 温差 $\Delta T_{\text{OA}}$ 偏小, 从而导致导热系数计算值 $K$ 偏大, 相比于喷涂石墨层样品高出两倍甚至更多(见图4c)。因此, 测量前需要提前校正红外相机的使用发射率。均匀喷涂薄的石墨层则可以有效提高测试精度, 降低测量误差。

#### 3.3.2 腔体透过率

在真空环境中进行红外测温时为保证真空度, 需要通过真空腔体上的红外窗口( $\text{CaF}_2$ 、 $\text{BaF}_2$ 、 $\text{ZnSe}$ 等)。不同材料的红外透过率不同<sup>40,41</sup>, 因此同样需要联用 $k$ 型热电偶(TT-K-30)与红外相机进行测温校正。以 $\text{BaF}_2$ 红外窗口为例, 保持加热功率不变时, 默认透过率为 $1.0$ , 则测量得到的温度会低于实际温度(图4d), 导致整体测量温度偏低。调整红外相机的透过率直至两种测量方法得到的样品表面温度相同。校正结果显示, 实际温度越高, 测量值降低越多, 当实际温度达到 $323.0 \text{ K}$ 时, 测量值降低 $7.1\%$ , 造成温升 $\Delta T_{\text{OA}}$ 偏小, 计算导热系数偏高 $8.32\%$ 。随着透过率设定值接近实际值, 测量温度逐渐接近实际温度。因此, 需要匹配红外窗口透过率以提高测试精度。同时, 红外相机需要重新

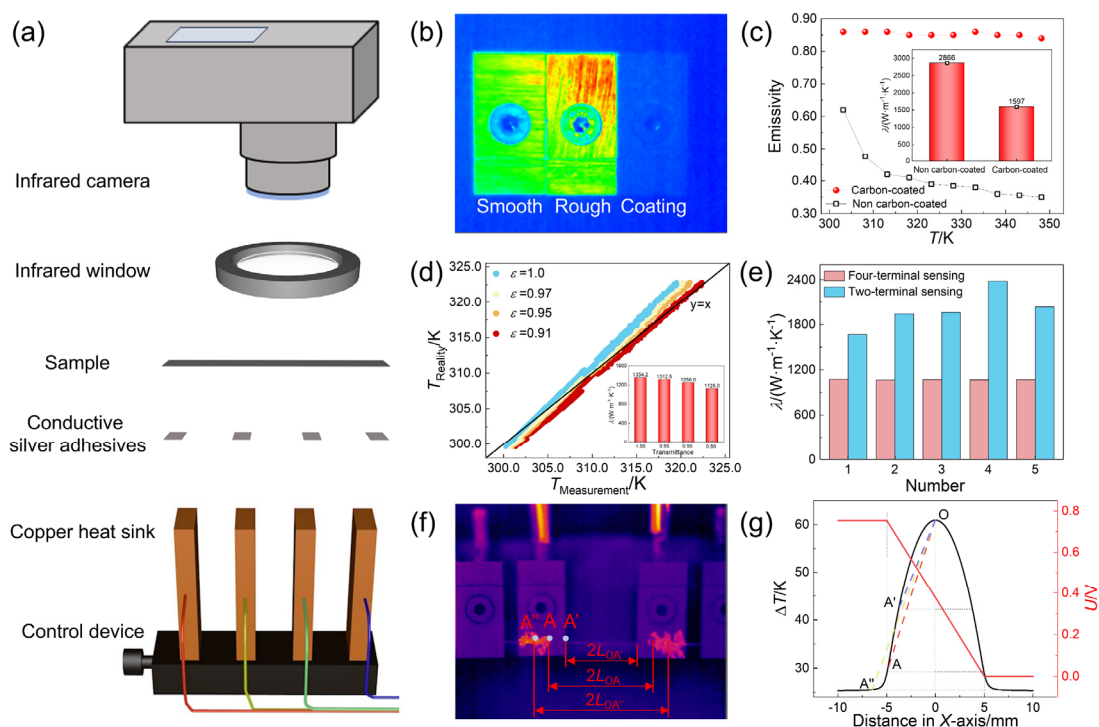


图 4 测试装置参数对测试结果的影响

Fig. 4 The influence of the test device parameters on the result.

- (a) Test equipment section diagram, (b) Infrared image of the same sample at different emissivity, (c) Emissivity versus temperature curves under different surfaces and calculated thermal conductivity, (d) The comparison between infrared temperature and actual temperature under different set transmittance and the calculated thermal conductivity variation of the same sample with different set transmittance, (e) Thermal conductivity ( $\lambda$ ) varies with the number of measurements under different power test methods, (f) Infrared image under poor coating of silver glue, (g) Temperature rise and voltage drop distribution on the sample surface.

调整焦距，以提高测试精度，减少系统误差。

### 3.3.3 加电方式

加电方式同样影响导热测量准确性<sup>23,28</sup>。如图4e所示，采用四线法测量所得到的导热系数波动相比于两线法(16.6%)，大幅降低至0.4%。因为四线法测量所得的功率相较于双线法，避免电路内部电阻(如导线、银胶、界面电阻等)的影响，因此具有更好的重复性和准确性。后续的实验中均采用四线法来测定电加热功率。

### 3.3.4 接触界面

样品通过高纯银胶与热沉连接，以减少样品与热沉之间的接触电阻与接触热阻(图4f)。若两侧接触热阻不同会导致样品的稳态温度分布曲线未呈对称抛物线状<sup>42</sup>，不符合测试原理以及式(13)，此时测试结果不应被采用。当样品均质完整且采用四线法恒流测试时，稳态电热法的导热计算公式(14)可改写为：

$$K = \frac{UIL}{4A_c(T_o - T_s)} = I\sigma \frac{2L}{A_c} \times \frac{IL}{4A_c(T_o - T_s)} \quad (29)$$

$$= \frac{\sigma L^2}{T_o - T_s} \times \frac{I^2}{2A_c^2} \propto \frac{L^2}{(T_o - T_s)}$$

其中 $\sigma$ 为样品电阻率。

根据式(29)导热系数 $K$ 与样品的电阻率 $\sigma$ 和样品半长 $L$ 直接相关，与样品半长的平方正相关。因此恒流输出时，样品长度( $2L$ )应与两端的电压降 $U$ 严格对应。传统稳态电热法测试时如果出现银胶层老化、涂布不均或未完全固化等情况(如图4f)导致两者不匹配将造成导热测试的误差显著增加。式(29)显示，导热系数 $K$ 与 $L^2 - \Delta T$ 曲线的斜率呈正比关系。无论选择 $L_{OA'}$ 还是 $L_{OA''}$ ，计算得到的导热系数均高于实际值(参见图4g)。因为当计算半长为 $L_{OA'}$ 时，由四线法测得的电压 $U$ 偏大(即样品长度 $2L_{OA}$ 两端的电压降)，因此测得的导热系数偏高。当长度设定为 $L_{OA''}$ 时，根据测试原理( $T_s = T_a$ )，温差 $\Delta T$ 不变， $L_{OA''}$ 偏大，故导致导热系数偏高。并且由于试样两端与热沉接触部分的温度 $T_s$ 稍大于环境温度 $T_a$ ，靠近接触界面处温差逐渐降低(图4g)，形成凹面的温度曲线 $L/\Delta T_{OA''} > L/\Delta T_{OA}$ ，从而 $L^2/\Delta T_{OA''} > L^2/\Delta T_{OA}$ ，导致测得导热系数偏大。因此，为减少接触热阻的影响，需要在样品与铜块之间均匀涂布导电银胶，从而确保电压降 $U$ 与样品长度 $2L$ 对应，提高测量的准确性。

### 3.4 数据处理分析

获取准确的实验数据之后,合理地处理分析同样重要。先前报道中<sup>24,25,33</sup>基于测得的温度曲线,通常选取最高点(中心O点)与样品两侧接近室温点(A点),根据公式(14)计算导热系数。如图5a所示,O点和A点的选择将直接决定测试结果的准确性,选点的偏差可能将直接导致测量结果比实际值高出7倍,或仅为实际值的一半(图5b)。由3.2.3可知,根据测量原理,公式(14)的计算前提是热流方向必须沿样品轴向,即样品的等温面应相互平行且垂直于X轴。当且仅当样品表面温度沿中心O点呈对称的抛物线分布时(式(13)),才能应用式(14)计算样品的导热系数。

与之前的研究不同,在本优化方案中通过最小二乘法采用一元二次方程拟合满足测试原理样品的原始稳态温度分布曲线来筛选与预处理数据。实验结果显示,当温升较低时,由于测温误差占比较大,温度分布并非总是呈抛物线分布(图5c), $R^2$ 仅为0.945。温升低于3 K时,测温误差较大,不确定度显著增加至3.0%–28.9%,且温度曲线的

拟合相关系数 $R^2$ 低于0.95(图5d)。然而温升升高至3 K之后,拟合结果表现出良好的一致性,相关系数 $R^2$ 高达0.997,可有效排除测温误差的影响,降低测试误差。

在数据处理方面(图5e),由3.3.4可知,从样品的稳态温度分布曲线中定位对应测量电压的样品长度至关重要。因此,选择以对称轴为中心,距离在60% $L$ (或80% $L$ )范围内的数据点(详见3.2.3节),采用一元二次方程进行拟合(图5f)。汇总不同功率下的温度分布曲线将交汇于A和A'两点,此时样品两端温度为 $T_s$ ,且样品半长 $L = L_{OA}$ (图5g)。最终,汇总不同功率( $q = UI$ )下的温差( $\Delta T_{OA}$ )数据,采用正比例函数拟合(图5h),根据斜率利用式(14)计算待测试样的导热系数,准确率相比于原始数据计算结果提高25%(图5i)。

### 3.5 测试稳定性与准确性分析

目前认可度高且商用的导热测试方法主要有激光闪射法、平面热源法和稳态热流法等。如图6a所示,稳态电热法的测试结果与其他主流的导热测试方法结果一致,误差小于3.0%,表现出优异的

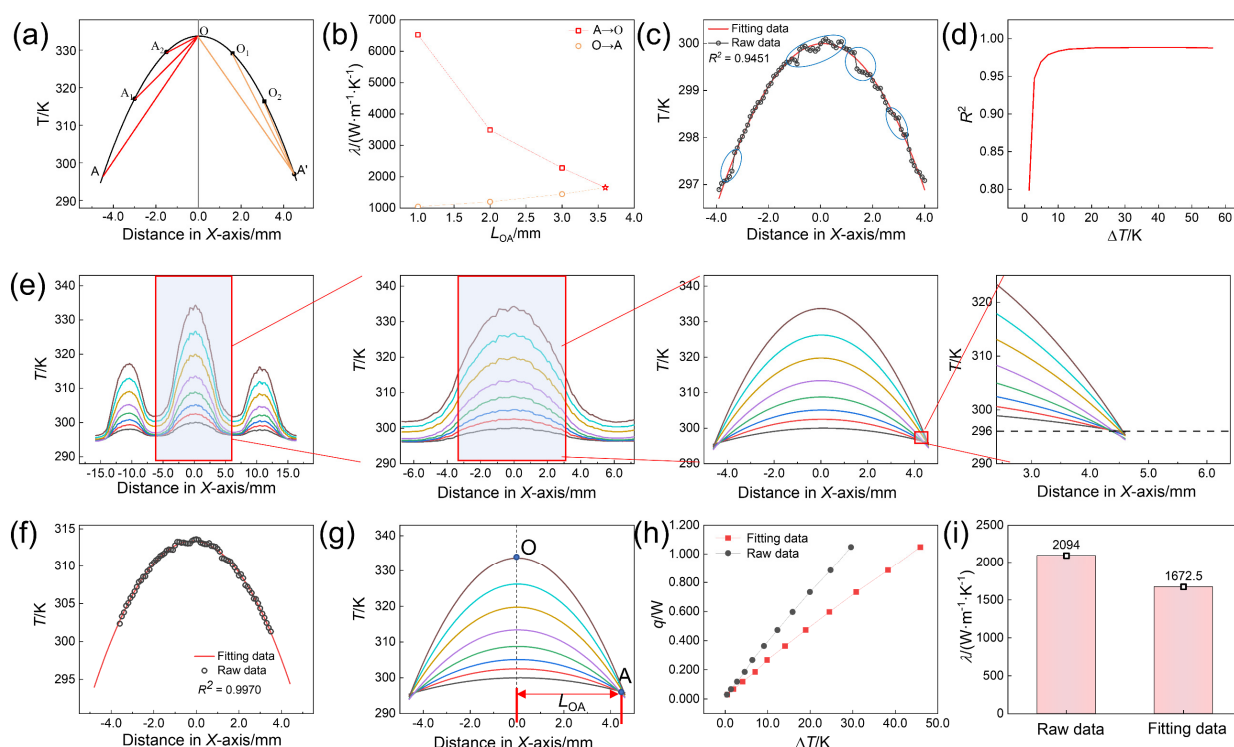


图5 数据分析对测试结果的影响

Fig. 5 The influences of data analysis on test results.

- (a) Schematic diagram of point selection offset by traditional method, (b) Thermal conductivity ( $\lambda$ ) calculated after the selected point offset, (c) Fitting of sample temperature distribution curve under low temperature rise, (d) The fit correlation coefficient ( $R^2$ ) changed with maximum temperature difference, (e) Data processing diagram of modified steady-state electric heating method, (f) Fitting diagram at a maximum temperature difference of 20 K, (g) Temperature distribution fitting diagram under different electric power, (h) temperature difference versus electric power, (i) Thermal conductivity ( $\lambda$ ) based on the original and fitted data.

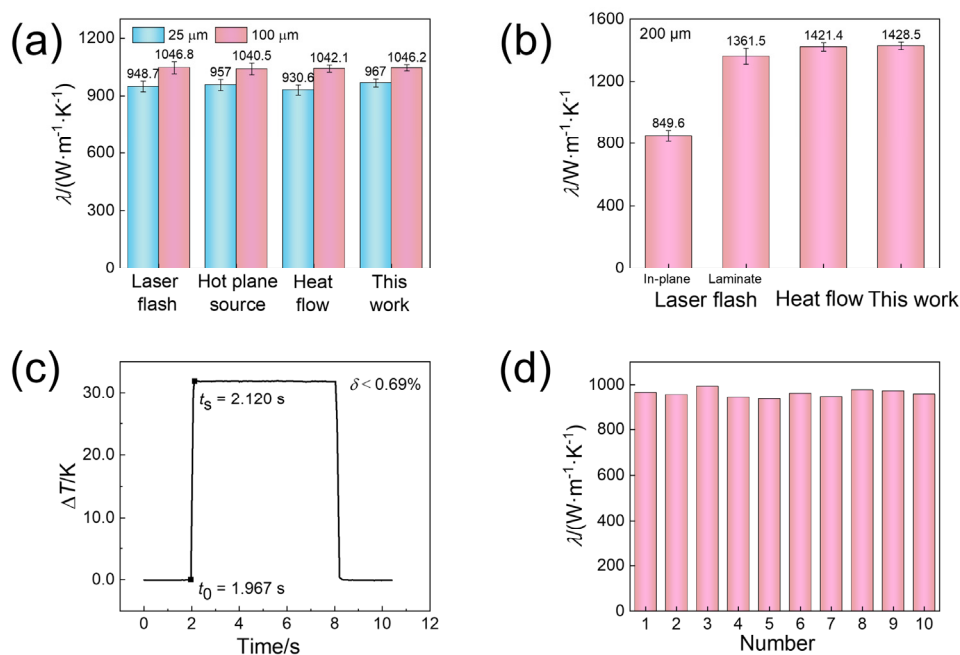


图6 稳态电热法性能展示图

**Fig. 6 Performance diagram of steady-state electric heating method.**

(a) Comparison chart of various thermal conductivity testing methods, (b) Thermal conductivity comparison for thick films (200 μm) under various methods, (c) Illustration of sample temperature response, (d) Thermal conductivity testing stability.

准确性。即使对于厚膜样品(> 100 μm), 稳态电热法的测量结果仍然表现出良好的准确性(图6b)。与非稳态法相比, 传统稳态测试法贴近服役环境, 具有更高的准确度和实际意义, 但单次测试需花费数个小时, 测试周期长, 效率低。然而, 稳态电热法实测中仅0.16 s即可达到稳态温度(图6c)。有限元仿真的结果同样证明这一结论。仿真结果显示: 样品厚度越大, 达到的相同温升 $\Delta T$ 所需的时间更长。即使是500 μm的厚膜样品, 达到稳态温度的时间仍小于0.2 s, 响应时间达毫秒级。以上结果表明稳态电热法具有高效率、快响应等特点。

测量的总不确定度可以根据导热计算公式(14)中各参数的不确定度(表1)估算而得。根据不确定度传递公式, 导热系数 $K$ 的总不确定度计算公式为:

$$\left(\frac{\delta K}{K}\right)^2 = \left(\frac{\delta U}{U}\right)^2 + \left(\frac{\delta I}{I}\right)^2 + \left(\frac{\delta L}{L}\right)^2 + \left(\frac{\delta w}{w}\right)^2 + \left(\frac{\delta t}{t}\right)^2 + \left(\frac{\delta(\Delta T)}{\Delta T}\right)^2 \quad (30)$$

导热系数 $K$ 的总不确定度计算结果仅为0.5%, 显著低于目前商用的激光导热仪1.8%–3%的不确定度<sup>43</sup>以及稳态热流法的3%–5%的不确定度<sup>44</sup>, 测试精度更高。稳态电热法针对单个样品的多次测量结果高度一致, 且由同一石墨烯膜制备的10个试样的导热测量结果偏差同样低于3.0% (如图6d

所示), 优于激光闪射法和稳态热流法的5.0%, 表现出良好的可重复性和测量稳定性。

综上所述, 为增强稳态电热法的测试操作可行性及其测试流程标准化, 并为导热膜材料研究领域的导热性质准确评估提供有效的指导。本研究提出以下具体建议:

(1) 测试样品应保持均匀、完整, 同时建议控制样品长度范围( $2L \in [100t, 0.0955(KA_c/P)^{1/2}]$ ), 且样品宽度应小于 $0.2L$ , 以满足测试原理假设。

(2) 红外相机测温前, 应预先进行测温校正(如测量样品发射率随温度变化曲线等)或在被测样品的上表面均匀喷涂一层薄的(< 30%样品厚度)石墨层, 并调节红外相机的使用发射率、透过率和

表1 各参数不确定度汇总  
Table 1 Summary of uncertainty.

Parameter	Range	Uncertainty
$L/\text{mm}$	0–10	0.0002
$w/\mu\text{m}$	0–1000	0.0001
$t/\mu\text{m}$	0–500	0.002
$I/\text{mA}$	0–7000	0.00015
$U/\text{mV}$	0–5000	0.0002
$\Delta T/\text{K}$	0–40	0.005

$L$  is the half-length of graphene film,  $w$  is the width of sample,  $t$  is the thickness of sample,  $I$  is the electric current,  $U$  is the voltage,  $\Delta T$  is the temperature difference between two points (O, A).

样品(石墨层)发射率、红外窗口透过率的实际值相匹配。同时,应确保红外相机准确聚焦于样品表面,以保证测温准确性与稳定性。

(3) 石墨烯膜应固定在涂抹均匀导电银胶的热沉上,通过四线法来测量电加热功率,确保样品长度与测量电压降对应。

(4) 推荐在真空环境下进行测试,控制最大温升  $\Delta T_{\max} \in [3.0, 40.0] \text{K}$ , 以最小化热辐射和热对流引起的热损失及测温误差。

(5) 数据处理时,首先应验证样品稳态温度分布是否以中心O点沿Y轴对称,并呈现抛物线形(一元二次方程)。然后以O点为中心,截取两侧0.6L(或0.8L)范围内的数据采用一元二次方程拟合(特别是对于宽度大或厚度高的样品),选择不同功率下的拟合曲线交点作为端点A,并使用正比例函数对不同功率与相应的温升数据进行拟合,以计算导热系数。

## 4 结论

综上所述,我们提出一种基于稳态电热法针对石墨烯膜导热性能的可靠测量方案。通过对不同测量条件下导热测试结果进行分析比较,结合实验数据与有限元模拟,从原理分析、操作改进、数据处理三个方面进行全方面优化,将测量误差控制在3.0%内,不确定性降至0.5%,稳态响应时间达毫秒级,展示其高准确性、可重复性、快响应性和广泛的样品尺寸适用性。为最大限度地减少测量误差,提出可行性的操作建议和标准化的测试流程。本工作希望通过建立可靠的导热系数测量方案,为高导热石墨烯膜材料导热性能的准确评估提供有益的指导,也为高导热材料的测量研究及导热应用提供重要的技术支撑。

**Author Contributions:** Conceptualization, J.H.L. and Y.J.L.; Methodology, J.H.L. and X.M.; Software, J.H.L. and S.H.S.; Validation, J.H.L., Y.Y.H. and P.J.Z.; Formal Analysis, J.H.L., Y.M., Y.Y. and S.Y.C.; Resources, Y.J.L.; Data Curation, J.H.L.; Writing - Original Draft Preparation, J.H.L.; Writing - Review & Editing, J.H.L. and Y.J.L.; Supervision, J.L.W. and Z.X.; Project Administration, G.C.; Funding Acquisition, Y.J.L., S.Y.C., Z.X. and C.G.

## References

- (1) Song, H.; Kang, F. *Acta Phys.-Chim. Sin.* **2022**, *38* (1), 2101013. [宋厚甫, 康飞宇. 物理化学学报, **2022**, *38* (1), 2101013.] doi: 10.3866/PKU.WHXB202101013
- (2) Li, S.; Zheng, Q.; Lv, Y.; Liu, X.; Wang, X.; Huang, P. Y.; Cahill, D. G.; Lv, B. *Science* **2018**, *361* (6402), 579. doi: 10.1126/science.aat8982
- (3) Peng, L.; Xu, Z.; Liu, Z.; Guo, Y.; Li, P.; Gao, C. *Adv. Mater.* **2017**, *29* (27), 1700589. doi: 10.1002/adma.201700589.
- (4) Liu, L.; Chang, D.; Gao, C. *Adv. Fiber Mater.* **2024**, *6* (1), 68. doi: 10.1007/s42765-023-00340-1
- (5) He, W.; Cheng, H.; Qu, L. *Acta Phys.-Chim. Sin.* **2022**, *38* (9), 2203004. [贺文娅, 程虎虎, 曲良体. 物理化学学报, **2022**, *38* (9), 2203004.] doi: 10.3866/PKU.WHXB202203004
- (6) Seol, J. H.; Jo, I.; Moore, A. L.; Lindsay, L.; Aitken, Z. H.; Pettes, M. T.; Li, X.; Yao, Z.; Huang, R.; Brodie, D.; et al. *Science* **2010**, *328* (5975), 213. doi:10.1126/science.1184014
- (7) Novoselov, K. S.; Fal'ko, V. I.; Colombo, L.; Gellert, P. R.; Schwab, M. G.; Kim, K. *Nature* **2012**, *490* (7419), 192. doi: 10.1038/nature11458
- (8) Moon, J.-Y.; Kim, M.; Kim, S.-I.; Xu, S.; Choi, J.-H.; Whang, D.; Watanabe, K.; Taniguchi, T.; Park, D. S.; Seo, J.; et al. *Sci. Adv.* **2020**, *6* (44), eabc6601. doi: 10.1126/sciadv.abc6601
- (9) Chen, Z.; Xie, C.; Wang, W.; Zhao, J.; Liu, B.; Shan, J.; Wang, X.; Hong, M.; Lin, L.; Huang, L.; et al. *Sci. Adv.* **2021**, *7* (47), eabk0115. doi: 10.1126/sciadv.abk0115
- (10) Xia, Z.; Shao, Y. *Acta Phys.-Chim. Sin.* **2022**, *38* (9), 2103046. [夏洲, 邵元龙. 物理化学学报, **2022**, *38* (9), 2103046.] doi: 10.3866/PKU.WHXB202103046
- (11) Zhang, X.; Guo, Y.; Liu, Y.; Li, Z.; Fang, W.; Peng, L.; Zhou, J.; Xu, Z.; Gao, C. *Carbon* **2020**, *167*, 249. doi: 10.1016/j.carbon.2020.05.051
- (12) Huang, H.; Ming, X.; Wang, Y.; Guo, F.; Liu, Y.; Xu, Z.; Peng, L.; Gao, C. *Carbon* **2021**, *180*, 197. doi: 10.1016/j.carbon.2021.04.090
- (13) Jia, H.; Kong, Q.-Q.; Yang, X.; Xie, L.-J.; Sun, G.-H.; Liang, L.-L.; Chen, J.-P.; Liu, D.; Guo, Q.-G.; Chen, C.-M. *Carbon* **2021**, *171*, 329. doi: 10.1016/j.carbon.2020.09.017
- (14) Chen, S.; Wang, Q.; Zhang, M.; Huang, R.; Huang, Y.; Tang, J.; Liu, J. *Carbon* **2020**, *167*, 270. doi: 10.1016/j.carbon.2020.06.030
- (15) Tong, Y.; Tao, Z.; Li, Y.; Liu, Z.; Jiang, L.; Yin, Y. *Chin. Space Sci. Technol.* **2022**, *42* (1), 131. [童叶龙, 陶则超, 李一凡, 刘占军, 江利锋, 殷亚州. 中国空间科学技术, **2022**, *42* (1), 131.] doi: 10.16708/j.cnki.1000-758X.2022.0015
- (16) Wang, F.; Fang, W.; Ming, X.; Liu, Y.; Xu, Z.; Gao, C. *Appl. Phys. Rev.* **2023**, *10* (1), 011311. doi: 10.1063/5.0128899.
- (17) Xie, Y.; Wang, X. *Green Carbon* **2023**, *1* (1), 47. doi: 10.1016/j.greenca.2023.08.004
- (18) Kerschbaumer, R. C.; Stieger, S.; Gschwandl, M.; Hutterer, T.; Fasching, M.; Lechner, B.; Meinhart, L.; Hildenbrandt, J.; Schrittmesser, B.; Fuchs, P. F.; et al. *Polym. Test.* **2019**, *80*, 106121.

- doi: 10.1016/j.polymertesting.2019.106121
- (19) Sánchez-Calderón, I.; Merillas, B.; Bernardo, V.; Rodríguez-Pérez, M. Á. *J. Therm. Anal. Calorim.* **2022**, *147* (22), 12523.  
doi: 10.1007/s10973-022-11457-7
- (20) Kim, D.; Lee, S.; Yang, I. *J. Korean Phys. Soc.* **2021**, *78* (12), 1196.  
doi: 10.1007/s40042-021-00177-0
- (21) Hay, B.; Filtz, J. R.; Hameury, J.; Rongione, L. *Int. J. Thermophys.* **2005**, *26* (6), 1883. doi: 10.1007/s10765-005-8603-6
- (22) Guo, J.; Wang, X.; Geohegan, D. B.; Eres, G.; Vincent, C. *J. Appl. Phys.* **2008**, *103* (11), 113505. doi: 10.1063/1.2936873
- (23) Ming, X.; Wei, A.; Liu, Y.; Peng, L.; Li, P.; Wang, J.; Liu, S.; Fang, W.; Wang, Z.; Peng, H.; *et al.* *Adv. Mater.* **2022**, *34* (28), 2201867.  
doi: 10.1002/adma.202201867
- (24) Xin, G.; Zhu, W.; Deng, Y.; Cheng, J.; Zhang, L. T.; Chung, A. J.; De, S.; Lian, J. *Nat. Nanotechnol.* **2019**, *14* (2), 168.  
doi: 10.1038/s41565-018-0330-9
- (25) Xin, G.; Yao, T.; Sun, H.; Scott, S. M.; Shao, D.; Wang, G.; Lian, J. *Science* **2015**, *349* (6252), 1083. doi:10.1126/science.aaa6502
- (26) Shen, S.; Henry, A.; Tong, J.; Zheng, R.; Chen, G. *Nat. Nanotechnol.* **2010**, *5* (4), 251. doi: 10.1038/nnano.2010.27
- (27) Liu, J.; Xu, Z.; Cheng, Z.; Xu, S.; Wang, X. *ACS Appl. Mater. Interfaces* **2015**, *7* (49), 27279. doi: 10.1021/acsami.5b08578
- (28) Balandin, A. A.; Ghosh, S.; Bao, W.; Calizo, I.; Teweldebrhan, D.; Miao, F.; Lau, C. N. *Nano Lett.* **2008**, *8* (3), 902.  
doi: 10.1021/nl0731872
- (29) Li, Q.; Liu, C.; Wang, X.; Fan, S. *Nanotechnology* **2009**, *20* (14), 145702. doi: 10.1088/0957-4484/20/14/145702.
- (30) Zhang, L.; Zhang, G.; Liu, C.; Fan, S. *Nano Lett.* **2012**, *12* (9), 4848.  
doi: 10.1021/nl3023274
- (31) Völklein, F.; Reith, H.; Cornelius, T. W.; Rauber, M.; Neumann, R. *Nanotechnology* **2009**, *20* (32), 325706.  
doi: 10.1088/0957-4484/20/32/325706
- (32) Xin, G.; Sun, H.; Hu, T.; Fard, H. R.; Sun, X.; Koratkar, N.; Borca-Tasciuc, T.; Lian, J. *Adv. Mater.* **2014**, *26* (26), 4521.  
doi: 10.1002/adma.201400951
- (33) Liu, Y.; Li, P.; Wang, F.; Fang, W.; Xu, Z.; Gao, W.; Gao, C. *Carbon* **2019**, *155*, 462. doi: 10.1016/j.carbon.2019.09.021
- (34) Wang, H.-D.; Liu, J.-H.; Zhang, X.; Song, Y. *Int. J. Heat Mass Transf.* **2014**, *70*, 40. doi: 10.1016/j.ijheatmasstransfer.2013.10.054
- (35) Pettes, M. T.; Ji, H.; Ruoff, R. S.; Shi, L. *Nano Lett.* **2012**, *12* (6), 2959. doi: 10.1021/nl300662q
- (36) Yang, J.; Kong, L.; Mu, B.; Zhang, H.; Li, Y.; Cao, W. *Rev. Sci. Instrum.* **2019**, *90* (11), 114902. doi: 10.1063/1.5124720
- (37) Salihoglu, O.; Uzlu, H. B.; Yakar, O.; Aas, S.; Balci, O.; Kakenov, N.; Balci, S.; Olcum, S.; Süzer, S.; Kocabas, C. *Nano Lett.* **2018**, *18* (7), 4541. doi: 10.1021/acs.nanolett.8b01746
- (38) Zhang, S. Y.; Li, Y.; Li, L. F. *IOP Conf. Ser.: Mater. Sci. Eng.* **2022**, *1241* (1), 012050. doi: 10.1088/1757-899X/1241/1/012050
- (39) Schiemann, M.; Gronarz, T.; Graeser, P.; Gorewoda, J.; Kneer, R.; Scherer, V. *Fuel* **2019**, *256*, 115889. doi: 10.1016/j.fuel.2019.115889
- (40) Holliday, T.; Kay, J. A. *IEEE Trans. Ind. Appl.* **2014**, *50* (4), 2403.  
doi: 10.1109/TIA.2013.2295000
- (41) Kobayashi, K. *J. Non-Cryst. Solids* **2003**, *316* (2), 403.  
doi: 10.1016/S0022-3093(02)01907-5
- (42) Deshpande, V. V.; Hsieh, S.; Bushmaker, A. W.; Bockrath, M.; Cronin, S. B. *Phys. Rev. Lett.* **2009**, *102* (10), 105501.  
doi: 10.1103/PhysRevLett.102.105501
- (43) Nishi, T.; Ohta, H.; Shibata, H.; Waseda, Y. *Int. J. Thermophys.* **2003**, *24*, 1735. doi: 10.1023/B:IJOT.0000004102.55688.c7
- (44) Pan, Y.; Zhou, Y.; Min, Q.; Li, J. *Metrolog. Meas. Tech.* **2022**, *49* (9), 107. [潘永泉, 周逸, 闵琪涛, 李峻. 计量与测试技术, **2022**, *49* (9), 107.] doi: 10.15988/j.cnki.1004-6941.2022.9.033