

3P131

低温における単層カーボンナノチューブの熱コンダクタンスについての理論的研究

(東大院・工) ○畑 智行, 河合 宏樹, 大戸 達彦, 山下 晃一

Chirality Dependence of Quantum Thermal Transport in Carbon Nanotubes at Low Temperatures: A First-Principles Study

(Graduate School of Engineering, the University of Tokyo)

○Tomoyuki Hata, Hiroki Kawai, Tatsuhiko Ohto, and Koichi Yamashita

【研究背景】

単層カーボンナノチューブ(SWCNT)は室温付近でも、1 μm という長い平均自由行程を持つことから、ナノスケールの熱電素子としての利用が注目されている。SWCNT を熱電素子として利用する上では、そのナノ構造が熱伝導特性にどのような影響を与えるのかを精査する必要があり、実験、理論の両面から研究がなされてきた。

近年、極低温において、SWCNT の熱コンダクタンスが一定となる温度領域(0~40K)、量子化プラトーが観測された[1]。Landauer 公式と zone-folding model から作成した phonon band を用いた計算により、理論的にも量子化プラトーは確認できた[2]が、その温度幅は最大でも 20K ほどで、実験結果との乖離が問題視されている。

また、モデルによる phonon バンド計算などから SWCNT の鎖長依存性や半径依存性が評価されているが、カイラリティ依存性は存在しないとされてきた。しかし、graphene シートの熱伝導度がシートの方向により大きく影響を受けることが、第一原理計算により発見されたことから[3]、SWCNT のカイラリティ依存性についても、より厳密な手法による評価が必要であると考えられる。

【目的】

上述の研究背景を受けて、本研究では第一原理的に SWCNT の熱コンダクタンスを計算し、低温での量子化プラトーの温度幅の再現を図るとともに、実験との乖離の原因を考察する。また、カイラリティ依存性についても、第一原理計算に基づいた、より厳密な評価を行う。カイラリティには半径依存性の影響を可能な限り排除すべく、半径の近い(3, 3)、(5, 0)、(4, 2)を採用した(表 1)。

表 1 : SWCNT の構造情報と第一光学モードの比較

	直径	周期長	第一光学モード	カップリング
	(Bohr)	(Bohr)	(meV)	(meV)
(3, 3)	7.97	70.21	19.96	2.36
(5, 0)	7.75	72.38	16.74	4.70
(4, 2)	8.04	64.33	15.75	6.24

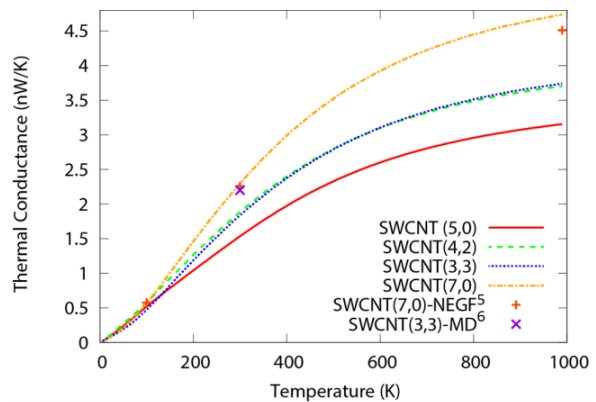
【手法】

本研究では密度汎関数法と非平衡 Green 関数法(NEGF)を用いて、熱コンダクタンスの計算を行った。まず、SWCNT の force constant matrix を既存の密度汎関数法パッケージを用いて計算した。次に、NEGF に基づいた phonon transport プログラムを開発し、それを用いて force constant から透過係数、及び熱コンダクタンスを計算した[4]。

【結果と考察】

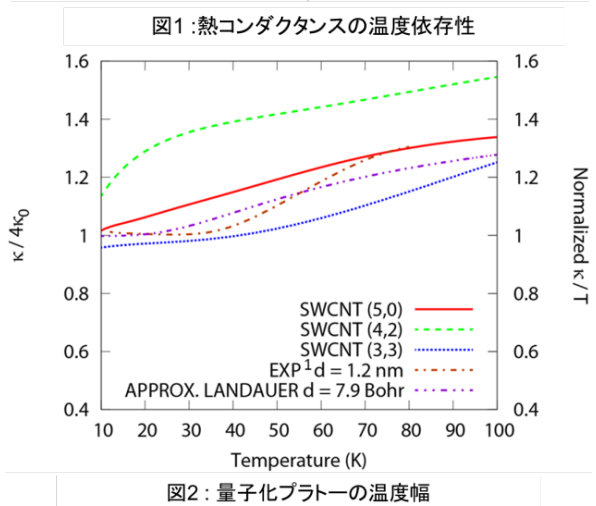
I カイラリティ依存性

熱コンダクタンスの計算結果を、先行の結果[5,6]と共に図 1 にまとめた。室温以上で SWCNT(3, 3)と(4, 2)がよく一致している一方で、(3, 3)の低温部分での二次曲線的な立ち上がりや(5, 0)の 150K 以上での抑制された挙動など、カイラリティ依存性が存在することが分かった。透過係数から(3, 3)が低温部分で曲率を持つのは、低温での光学モードが伝導に寄与し始める温度が、他の二つと比較して遅いことに起因していることが分かった。これは、(3, 3)の第一光学モードの励起エネルギーが高いことに起因していると考えられる(表 1)。また、(5, 0)における熱コンダクタンスの 150K 付近からの抑制は、透過係数が 50-70meV 付近で大きく減少することに起因することが分かった。



II 量子化プラトーの温度幅

量子化プラトーの温度幅を、実験結果[1]及びモデル計算の結果と比較した(図 2)。第一原理による結果は、モデル計算と比較して温度幅が長くなり、実験結果と比較しても整合性の高いものとなった。また、カイラリティに依存してプラトーの温度幅が大きく異なることを発見した。実験と同様の半径を持ち、適切なカイラリティの SWCNT を選ぶことで、実験を再現できる可能性を示唆できた。



【参考文献】

- [1]J. Hone, M. C. Llaguno, M. J. Biercuk, A. T. Johnson, B. Batlogg, Z. Benes, J. E. Fischer, Appl. Phys. A **74** 339 (2002).
- [2]T. Yamamoto, K. Watanabe, Phys. Rev. Lett. **96** 255503 (2006).
- [3]Z. W. Tan, J.-S. Wang, C. K. Gan, Nano Lett. **11** 214 (2011)
- [4]T. Hata, H. Kawai, T. Ohto, K. Yamashita, J. Chem. Phys. **139** 044711 (2013)
- [5]N. Mingo, D. A. Stewart, D. A. Broido, and D. Srivastava, Phys. Rev. B **77** 033418 (2008)
- [6]T. Yamamoto, S. Konabe, J. Shiomi, S. Maruyama, Appl. Phys. Express **2** 095003 (2009)