

4E10

カーボンナノチューブの熱伝導特性における積層構造依存性

(東大院・工) ○畑 智行, 河合 宏樹, 城野 亮太, 山下 晃一

Multi-wall effects on the thermal transport properties of nanotube structures

(Graduate School of Engineering, the University of Tokyo)

○Tomoyuki Hata, Hiroki Kawai, Ryota Jono, and Koichi Yamashita

背景・目的

カーボンナノチューブ(CNTs)は, その高比表面積及び高指向性からナノスケール伝導材料として有望視されている. ナノデバイスにおいては回路の安定性や熱効率が重要となるため, CNTs の熱伝導特性に関する研究が求められている. CNTs についてはこれまで, 比熱に着目した研究が主に行われてきた. 実験的に, 単層 CNTs(SWCNTs)の比熱は低温で温度に比例する一方, 多層 CNTs(MWCNTs)の場合は二次関数的な温度依存性を示すことが明らかになっている[1]. そのような積層構造と比熱の温度依存性の関係は, デバイモデルによる理論的研究によって, 半径方向の振動自由度の変化に起因するものであると示唆されている[2]. 本研究は, 非平衡 Green 関数(NEGF)法による二層 CNTs(DWCNTs)の熱伝導計算を通して, 熱伝導率と積層構造の関係を解明することを目的とした.

手法

熱伝導率計算のため, NEGF 法によるフォノン輸送計算を行った[3]. NEGF 計算に必要な force constant matrix 及び最適構造は, GROMACS を用いて計算した. 力場は OPLS 力場を採用した. DWCNT, 及びその構成要素である 2 つの SWCNT について計算し比較することで, 積層化による影響を調べた. Figure I に示した DWCNT (7, 7)@(12, 12)及び DWCNT (3, 3)@(7, 7)の二種類のモデルについて計算を行ったが, それらの積層化の影響は定性的に同じであったため, 以下では DWCNT (7, 7)@(12, 12)の結果のみについて議論を行う.

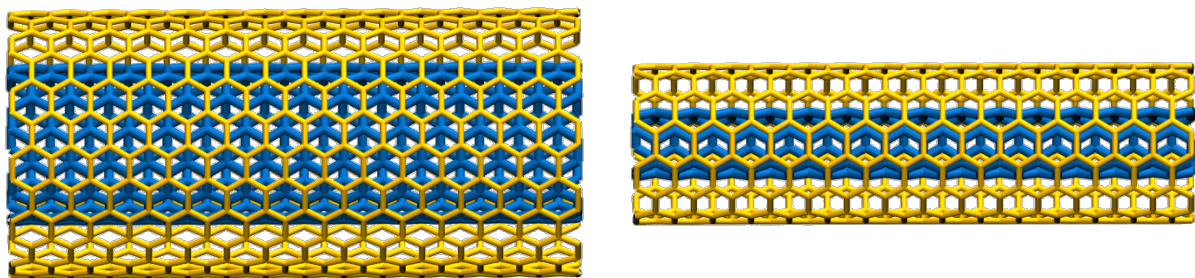


Figure I. DWCNT (7, 7)@(12, 12), DWCNT (3, 3)@(7, 7)の構造

結果

NEGF 計算から得られた, 各モデルにおける熱伝導率を Figure II に示す[4]. ここで, SWCNTs (7, 7)+(12, 12)とは SWCNT (7, 7)と(12, 12)の熱伝導率を加算したものであり, 二つの SWCNT により形成される並列回路の熱伝導率を表している. そのため, DWCNT (7, 7)@(12, 12)と SWCNTs (7, 7)+(12, 12)の熱伝導率の差異が積層化の影響を現している. 0-50 K の低温領域では, DWCNT (7, 7)@(12, 12)の熱伝導率は SWCNT(12, 12)とほぼ等しく, SWCNTs (7, 7)+(12, 12)と比べて(7, 7)に起因する分の熱伝導率が失われることが明らかになった. それに伴い, 50K 以上の温度領域においても DWCNT では熱伝導率が抑制されるという結果となった.

考察

積層による熱伝導率抑制の原因を特定するため, 振動モードの分布を調べた. その結果, 積層することにより低エネルギー領域(0-50 meV)の振動モードが高エネルギー側にシフトし, それによって熱伝導率が抑制されていることが分かった. シフトが発生しているエネルギー領域について基準振動解析を行ったところ, DWCNT の内外それぞれの CNT の振動が, 同位相もしくは逆位相で同期して振動しているモードが多く見つかった(Fig. III).

内外のレイヤーの振動のカップリングをモデル化するため, 連成振動モデルを用いて, DWCNT におけるエネルギーシフトについて考察した. その結果, 逆位相にカップルしたモードが高エネルギー側にシフトすることが分かった. これは, DWCNT の熱伝導率が抑制されるという結果をよく説明するものである. また, 同位相にカップルしたモードの振動エネルギーは, 外側のレイヤーに近い値に収束することが明らかになった. この結果より, 外側のレイヤーによって, 低温での積層構造の熱伝導率を制御できる可能性を示すことができた.

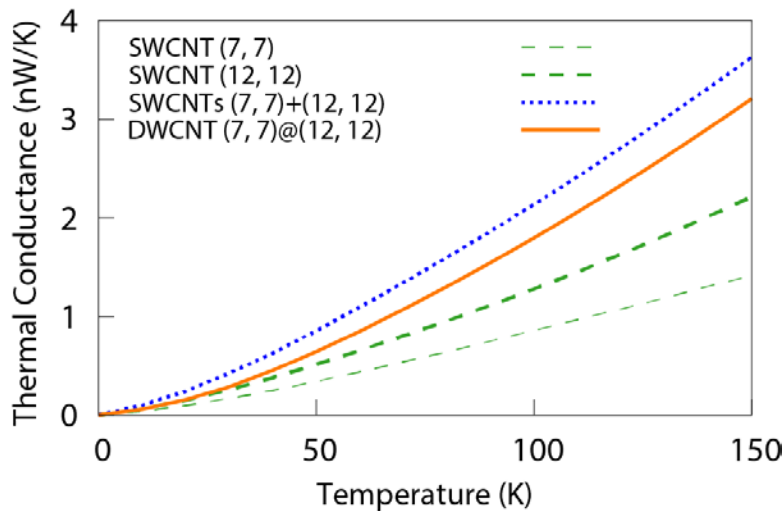


Figure II. NEGF 計算により得られた熱伝導率

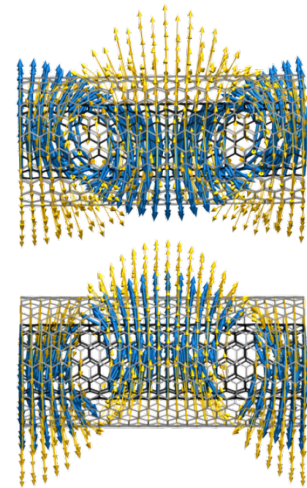


Figure III. 同期した振動

- [1] A. Mizel, L. X. Benedict, M. L. Cohen, S. G. Louie, A. Zettl, N. K. Budraa, W. P. Beyermann, *Phys. Rev. B* **60** 3264 (1999)
- [2] L. X. Benedict, S. G. Louie, and M. L. Cohen, *Solid State Comm.* **100** 177 (1996).
- [3] T. Hata, H. Kawai, T. Ohto and K. Yamashita, *J. Chem. Phys.* **139** 044711 (2013)
- [4] T. Hata, H. Kawai, R. Jono and K. Yamashita, *Nanotechnology* **25** 245703 (2014)