

# 単層カーボンナノチューブと周辺物質の熱コンダクタンス

## Thermal conductance between SWNT and other materials

○学 五十嵐 康弘 (東大院) 正 塩見 淳一郎 (東大院)  
正 丸山 茂夫 (東大院)

Yasuhiro IGARASHI, Junichiro SHIOMI and Shigeo MARUYAMA

Molecular dynamics simulations of heat transfer between carbon nanotubes in a bundle and between a carbon nanotube and surrounding Lennard-Jones fluid were performed. The Brenner potential with the simplified form is employed as the potential function between carbon and carbon within a nanotube. The heat transfer rate can be well expressed by employing the thermal boundary resistance (TBR). The value of thermal boundary resistance is compared for the bundle and nanotube-LJ cases.

*Key Words:* carbon nanotubes, molecular dynamics method, thermal conductance

### 1. 背景・目的

1993年に飯島によって発見されたSWNT (single-walled carbon nanotube)<sup>(1)</sup>は、その機械的特性や熱伝導性などの優れた物性で注目されており、数多くの研究がなされている。SWNTはその軸方向に各種金属に匹敵するほどの熱伝導率を持つことが報告されており、熱デバイスや半導体デバイス、混合材料などとしての応用が期待されている。これまでの研究ではその軸方向の熱伝導率に注目が集まり、他物質との間の伝熱など、SWNTを応用する際に支配的な熱抵抗を持つであろう部分に関する報告は多くはなかった。

本研究では、分子動力学シミュレーションを用いて、SWNTバンドル(束)におけるSWNT-SWNT間の熱コンダクタンスとSWNT-Lennard Jones流体間の熱コンダクタンスを測定した。

### 2. 分子動力学シミュレーション

SWNTを構成する炭素原子の共有結合を表現するポテンシャルとして、Brennerがダイヤモンド薄膜のCVDシミュレーションに用いたポテンシャル<sup>(2)</sup>を用いた。また、ことなるSWNT内に含まれる炭素原子間にはvan der Waals力として、Lennard-Jonesポテンシャルを適用した。Lennard-Jonesポテンシャルのパラメータには

$$\sigma = 0.337[\text{nm}], \quad \varepsilon = 3.845 \times 10^{-22}[\text{J}]$$

を用いた。



Figure 1 SWNTバンドルのシミュレーションの初期配置

運動方程式の積分法には、速度 Verlet 法を採用し、時間刻みは 0.5 fs とした。温度制御法には、Velocity Scaling 法を用いて各原子の温度を制御することで、各 SWNT または、水分子、Lennard-Jones 流体分子をそれぞれ制御した。

### 3. SWNT バンドルのシミュレーション

#### 3.1 計算条件

シミュレーションセル内に長さ 5 nm の(5, 5)を六角柱状に配置した(Figure 1)。なお、各 SWNT 間の距離は 0.32 nm としてシミュレーションを開始した。

まず、シミュレーションの開始から 190 ps の間は温度制御を行い系全体を 300 K に保持した。次の 10 ps で中央の SWNT のみを加熱した。加熱温度は 400 K ~ 1000 K の間 100K 刻みで設定した。その後温度制御を止めて、中央の SWNT (高温) と周囲の 6 本の SWNT (低温) の温度を観察した。

#### 3.2 計算結果

Figure 2 から分かるように、温度制御を停止した直後から、各 SWNT 間で熱の授受があり、数百 ps 程度で全体の温度が一定に落ち着いている。中央の SWNT と周囲の SWNT の温度差をとったところ、温度差の時間変化が下記の指数関数でよく近似されることがわかった。

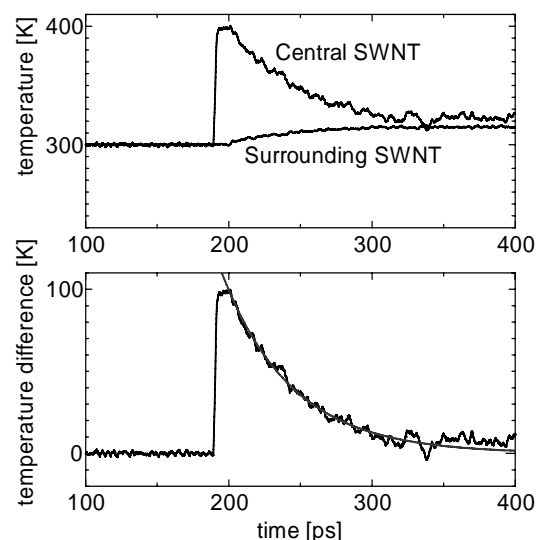


Figure 2 加熱温度が 300K の場合の、中央の SWNT と周囲の SWNT の温度変化

TABLE 1 Parameters for thermal conductance of a bundle

S[nm <sup>2</sup> ]	$\rho_{\text{hot}}V_{\text{hot}}$ [kg]	$c_{\text{hot}}$ [J/Kkg]	$\rho_{\text{hot}}V_{\text{cold}}$ [kg]	$c_{\text{cold}}$ [J/Kkg]
18	$7.97 \times 10^{-24}$	1038.9	$4.78 \times 10^{-23}$	1038.9

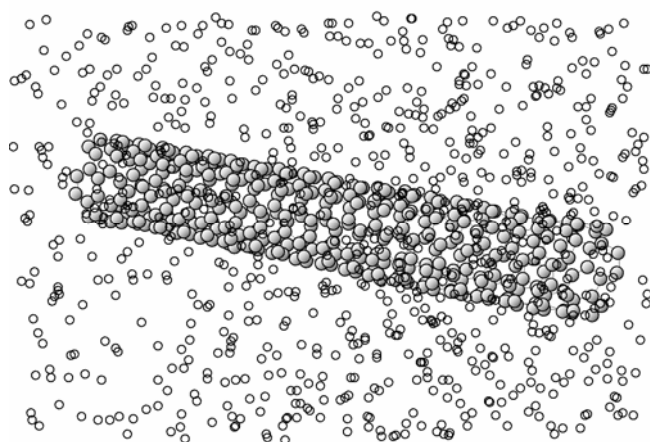


Figure 3 SWNT-Lennard Jones 流体の初期配置

$$T_{\text{hot}} - T_{\text{cold}} = T_0 \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right) \quad \tau = 48.7[\text{ps}]$$

SWNT 程度のスケールでの伝熱は分子間の熱の授受と、分子内の熱の授受に大きな差があるため、集中熱容量法を用いて、伝熱特性を知ることができる。そこで集中容量法の式

$$T_{\text{hot}} - T_{\text{cold}} = A \exp\left[-\left(\frac{1}{\rho_{\text{hot}}c_{\text{hot}}V_{\text{hot}}} + \frac{1}{\rho_{\text{cold}}c_{\text{cold}}V_{\text{cold}}}\right)KSt\right]$$

と比較することで、SWNT-SWNT 間の熱コンダクタンス  $K$  を算出したところ、 $K=8.11$  [MW/m<sup>2</sup>K]と求められた。計算に用いた各パラメータを TABLE 1 に示す。

また、中央の SWNT の加熱温度を 400 K~1000 K の間 100 K 刻みで測定した結果  $K=8.11 \sim 11.4$  [MW/m<sup>2</sup>K]の範囲に分布しており、SWNT-SWNT 間の熱コンダクタンスは約 10 [MW/m<sup>2</sup>K]程度で、明確な温度依存性は認められなかった。

熱コンダクタンスに関しては、単一の SWNT の中で C<sup>12</sup> で作られた SWNT と C<sup>13</sup> で作られた SWNT を接続した際の接続面の熱コンダクタンスが報告されており<sup>(3)</sup>、 $10^5$  [MW/m<sup>2</sup>K]程度と見積もられている。それに比べると、SWNT-SWNT 間の熱コンダクタンスは非常に低いということが分かった。

#### 4. SWNT-Lennard Jones 流体のシミュレーション

##### 4.1 計算条件

長さ 5 nm の SWNT を 1 本置き、その周囲に密度が 1.047 ~ 505.4[kg/m<sup>3</sup>]となるようにアルゴン分子を配置した (Figure 3)。SWNT バンドルの場合と同様の温度制御でアニールをした後、SWNT のみを 600 K に加熱した。アルゴン分子の密度は 300 K において圧力 0.1 MPa~50 MPa に相当する値である。

##### 4.2 計算結果

Figure 4 は各々の初期条件での熱コンダクタンスの値をまとめたものである。アルゴン分子の密度が高いほど、

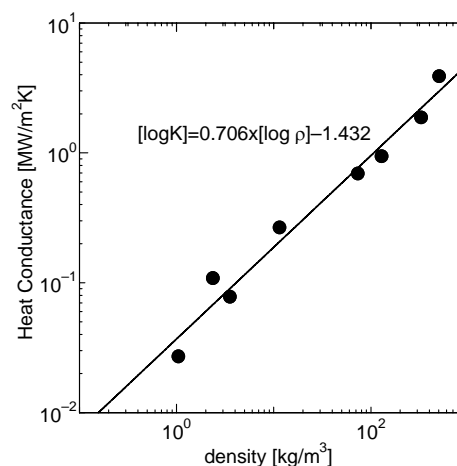


Figure 4 SWNT-Lennard Jones 流体間の熱コンダクタンスの温度依存性

SWNT との衝突回数が増え、熱の授受が多くなり熱コンダクタンスが高くなると予想されるが、その通り傾向となった。密度、熱コンダクタンスを各々対数にしてプロットすると直線上に並ぶ。この傾きから熱コンダクタンスが密度の約 0.7 乗に比例していることがわかる。

また、大気圧程度のアルゴンにおいては熱コンダクタンスの値はアルゴンが気相・液相・固相であるかによって、熱の移動がアルゴン分子の移動に依るか、アルゴン格子の振動に依るかが変化するため、相変化とともに、傾向が変化すると思われるが、現在のサンプル数ではそれを示すまでには至らず、さらなるシミュレーションが必要と思われる。

#### 5. まとめ

分子動力学を用いたシミュレーションにより、SWNT-SWNT 間、SWNT-Lennard Jones 流体間の熱コンダクタンスを計算した。

その結果、SWNT-SWNT 間においては、10 [MW/m<sup>2</sup>K]程度、SWNT-Lennard Jones 流体間においては密度に依存して 0.01~数 [MW/m<sup>2</sup>K]程度となることが分かった。

これらの値は、SWNT の軸方向のコンダクタンスと比較して非常に小さい値であるため、SWNT の高い伝熱特性を期待して応用する際には、伝熱のボトルネックは SWNT と他の物質の間の界面に存在することになる。

#### 参考文献

- (1) S. Iijima *et al.*, *Nature*, **363** (1993), 603.
- (2) D. W. Brenner, *Phys. Rev. B*, **42** (1990), 9458.
- (3) S. Maruyama *et al.*, *Micro. Thermophys. Eng.*, 投稿中.