

卒業論文

カーボンナノチューブ内の
流れと熱伝達の分子動力学

通し番号 1-49 ページ完

平成 20 年 2 月 1 日提出

指導教員 丸山 茂夫教授

60213 島 洸一

目次

第一章	序論	4
1.1	研究の背景	5
1.2	SWNT の構造	7
1.3	SWNT 内の流れ	9
1.4	研究の目的	10
第二章	計算方法	11
2.1	シミュレーションの方針	12
2.2	Brenner ポテンシャル	13
2.3	Lennard-Jones ポテンシャル	15
2.4	SPC/E モデル	16
2.5	温度計算とその制御	17
2.6	数値積分法	18
2.7	周期境界条件	20
第三章	Lennard-Jones 分子のシミュレーション	21
3.1	計算の指針	22
3.2	ポテンシャルエネルギーと密度	23
3.2.1	計算条件	23
3.2.2	計算結果	23
3.3	流れのシミュレーション	24
3.3.1	計算条件	24
3.3.2	温度と速度の関係	25
3.3.3	密度, 速度, 温度の分布	25
3.3.4	界面熱抵抗	29
3.3.5	管内の摩擦力	30
第四章	水のシミュレーション	32
4.1	計算の指針	33
4.2	ポテンシャルエネルギーと密度	34
4.2.1	計算方法	34
4.2.2	計算結果	34
4.3	流れのシミュレーション	36
4.3.1	計算方法	36

4.3.1	温度と速度の関係	37
4.3.2	密度, 速度, 温度の分布	38
4.3.3	界面熱抵抗	42
4.3.4	管内の摩擦力	43
第五章 結論		44
5.1	結論	45
5.2	今後の課題	46
謝辞		47
参考文献		48

第一章 序章

1.1 研究の背景

炭素は様々な混成軌道を持つため、多くの同素体が存在する。sp²混成軌道によって結合した2次元構造のグラファイトや、sp³混成軌道によって結合した3次元的構造のダイヤモンドなどが古くから知られている。また、1985年にはKroto, Smalley, Curlらの研究グループの炭素クラスター質量分析によって、炭素60個からなるクラスターC₆₀が発見された[1]。その後C₇₄やC₈₀といったクラスターも発見され、これらはフラーレンと名付けられた(Fig.1.1(a))。

1990年にはKrätschmer, Huffmanらの研究グループがフラーレンの大量合成法を開発した[2]。この合成法はヘリウムガスで満たされた容器中でグラファイトの棒に電流を通じて、発熱により生成する炭素の微粒子からフラーレンを採取する方法である。これを機にフラーレンの研究者数は増え、その合成法の研究が盛んに行われるようになった。

1991年、Iijimaはフラーレン合成法のひとつであるアーク放電法の実験装置における陰極上の堆積物に注目し、多層カーボンナノチューブ(MWNT, multi-walled nanotube)を発見した[3]。多層カーボンナノチューブは、グラフェンシートが筒状に丸まり、何層にも入れ子になった構造を持っている(Fig.1.1(b))。また1993年、Iijimaらによりグラフェンシート1枚が筒状になった単層カーボンナノチューブ(SWNT, single-walled nanotube)も発見された[4]。MWNTやSWNTに加え、2層の筒からなる構造を持った2層カーボンナノチューブ(DWNT, double-walled carbon nanotube)を総称してカーボンナノチューブ(CNT, carbon nano tube)と呼ぶ。またSWNTの内部にフラーレンを内包したピーポッドなどの新たな素材が次々に発見されている。

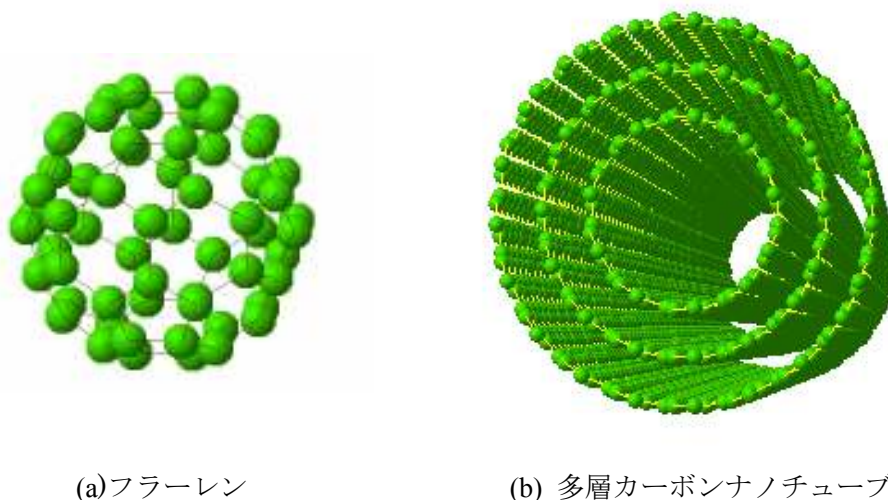


Fig.1.1 フラーレンとカーボンナノチューブ

SWNT は直径が 1nm から 3nm 程度, 長さは数 μm 程度である. また非常に長い SWNT では, 長さが数 cm ほどのものも存在している. また SWNT はその大きさや幾何学的構造により様々な性質を示すことがその後の研究により明らかになった. 全ての原子が炭素の sp^2 結合で結合していることから引っ張り強度が強く軽い素材であることや, グラフェンシート of の巻き方により電氣的性質が変化すること, 軸方向への高い熱伝導性を持つこと, 筒に分子を内包することや内部に流体を流すことが可能であることなどが例として挙げられる. そのため, 電子素子や光学素子, 高強度材, ナノ流れなどの幅広い分野において利用するために, 研究が行われている.

現在すでに, SWNT の内部に流体を入れる技術の研究も行われているが[5], マイクロナノスケールでの物理現象はマクロスケールと異なっているため, SWNT 内での流体の挙動は理解されていないことが多い. そのため, SWNT 内に流体を通す技術を応用につなげるためにも, マイクロナノスケールでの流体特性を解明することは必要となってくる.

1.2 SWNT の構造

SWNT はグラフェンシート of の巻き方により、太さや螺旋の度合いなどが変化する。そういった様々な構造の SWNT は、カイラリティ (n,m) と呼ばれる 2 つの値を使い特徴付けることができる[6].

円筒状の SWNT を平面に展開した時に、円筒時には重なっている 2 点を結ぶベクトルをカイラルベクトル \mathbf{C} と呼ぶ。このカイラルベクトル \mathbf{C} はグラフェンシート of の六角格子の基本並進ベクトル \mathbf{a}_1 と \mathbf{a}_2 を用いて

$$\mathbf{C} = n\mathbf{a}_1 + m\mathbf{a}_2 \quad (1.1)$$

と表すことができる。この 2 つの整数 (n,m) がカイラリティである。またカイラリティ of の 2 つの整数を入れ替えても、同じ形状 of の SWNT を表すので通常 n は m より大きいものとする。例えば、Fig.1.2 は SWNT(10,5) を展開したものである。カイラリティを用いると、SWNT of の様々な基本的構造を表すことができる。SWNT of の直径 d_t 、カイラル角(螺旋角度) θ は n と m を用いて、

$$d_t = \frac{\sqrt{3}l_{c-c}\sqrt{n^2 + nm + m^2}}{\pi} \quad (1.2)$$

$$\theta = \tan^{-1}\left(-\frac{\sqrt{3}m}{2n+m}\right) \quad \left(|\theta| \leq \frac{\pi}{6}\right) \quad (1.3)$$

と表すことができる。(但し、 l_{c-c} は炭素原子間の最近接距離である)

また、SWNT of の軸方向 of の基本並進ベクトル $|\mathbf{T}|$ は、

$$\mathbf{T} = \frac{\{(2m+n)\mathbf{a}_1 - (2n+m)\mathbf{a}_2\}}{d_R} \quad (1.4)$$

但し、 d_R は n と m of の最大公約数 d を用いて

$$d_R = \begin{cases} d & \text{if } (n-m) \text{ is mutiple of } 3d \\ 3d & \text{if } (n-m) \text{ is not mutiple of } 3d \end{cases} \quad (1.5)$$

と表すことができる。

SWNT はカイラリティにより形状を 3 種類に分類することができ、カイラリティが $n = m$ ($\theta = \pi/6$) of のものをアームチェア型 (armchair)、 $m = 0$ ($\theta = 0$) of のものをジグザグ (zigzag) 型と呼び、それ以外 of のものをカイラル (chiral) 型と呼ぶ。また、 $n-m$ of の値が 3 of の倍数 of のものは金属的な性質を持ち、それ以外 of のものは半導体的性質を持つこともわかっている。Fig.1.3 にそれぞれの形状を示す。

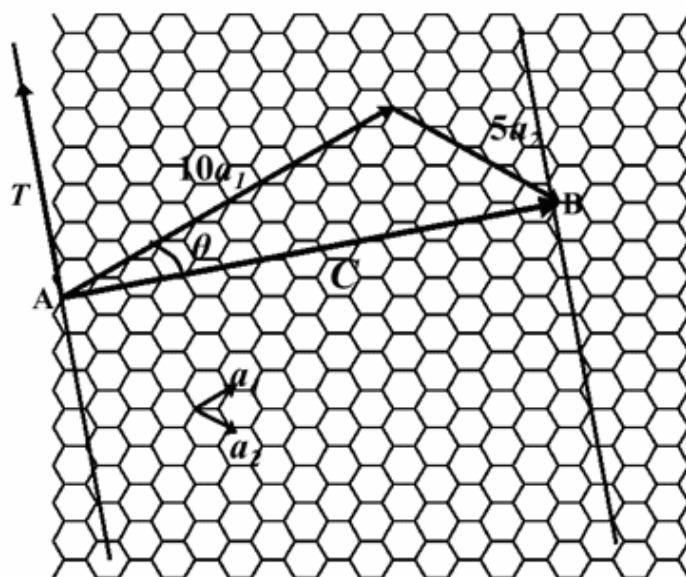
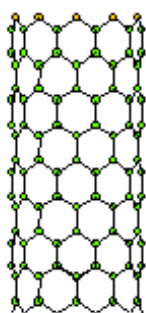
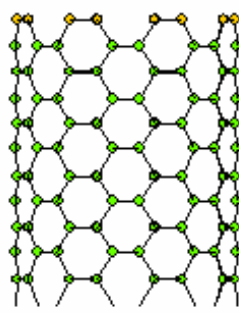


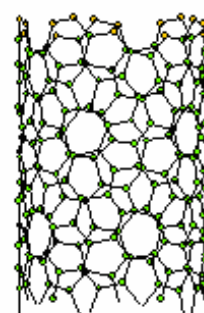
Fig. 1.2 SWNT (10,5)のカイラルベクトル



(a) ジグザグ型(10,0)



(b) アームチェア型(8,8)



(c) カイラル型(10,5)

Fig. 1.3 カイラリティによる分類

1.3 SWNT 内の流れ

SWNT の内部での流体の挙動は、バイオ分野などマイクロナノスケールでの流体技術を必要とする様々な分野で注目を浴び、すでに SWNT 内に流体を入れる技術の研究なども進められている[6].

SWNT に流体を入れる技術を工業的に応用するには、マイクロナノスケールでの流体の挙動を詳しく知る必要がある。SWNT の運動を無視した上での、SWNT の内部での水の挙動などがすでに計算され、マイクロナノスケールではマクロスケールでの流れと全く違った現象が起こることが報告されている[7]. このように、SWNT 内での流体の挙動は、マクロスケールとは全く違った物理現象が起こると考えられるために、工業的な応用面だけでなく流体の学問的観点からも興味を持たれている。

しかし、SWNT 内部の流体の挙動の研究は初期段階であり、実験により解明することは困難である。そのため、シミュレーションにより流体の挙動を解明することも進められている。しかし、SWNT を固定し運動を考慮していないなど条件を簡略化されており、厳密な条件のもとでのシミュレーションが行われていない。流れにおける発熱について分析するには、SWNT の運動も考慮したシミュレーションを行う必要がある。

1.4 研究の目的

先に述べたように、SWNT 内での流体の挙動についての研究はまだ解明されていないことが多く、特に SWNT 内の流体に関する熱の挙動については、ほとんど研究されていない。そのため本研究では、SWNT 内の Lennard-Jones 分子と水の挙動について、熱特性、密度分布、速度分布、摩擦の大きさなどを解明することを目的とし、SWNT の運動も考慮したシミュレーションを行う。

第二章 計算手法

2.1 シミュレーションの方針

SWNT 内の流れについての分析において、ナノスケールでの流速分布、密度分布などを計測することは非常に困難であるため、実験による解析は難しい。そこで本研究では分子動力学法により解析を進める。

分子動力学法には、電子状態を考慮する量子分子動力学法と、電子状態を考慮しない古典分子動力学法がある。量子分子動力学法には第一原理分子動力学、タイトバインディング分子動力学などの方法があり電子状態を考慮する分、古典分子動力学より精密であるといえる。一方、古典分子動力学法には計算時間が少ないという利点がある。本研究では分子の電子状態が SWNT にほとんど影響しないことから、計算負荷の少ない古典分子動力学法を採用した。古典分子動力学では、全ての原子をニュートンの運動方程式に従う質点であるとし、与えられたポテンシャル関数から力、速度、位置を計算する。

本研究では、炭素間共有結合のポテンシャルにはBrennerポテンシャル[8][9]を用い、アルゴン間、アルゴン-炭素間は、Lennard-Jones(L-J)ポテンシャルを適用した[10]。また、水分子にはSPC/Eモデル[11]を適用し、水-炭素間のポテンシャルに関しては、酸素原子-炭素原子間のL-Jポテンシャルで表現した。

2.2 Brenner ポテンシャル

Brenner は CVD によるダイヤモンド薄膜の成長シミュレーションのために、 Tersoff のポテンシャルについて π 結合に関して改良を加え、炭化水素系の原子間相互作用を表現した。そのため Brenner ポテンシャルは Brenner-Tersoff ポテンシャルと呼ばれることもある。本研究ではこの Brenner ポテンシャルを SWNT の炭素原子間のポテンシャルとして採用している。このポテンシャルでは、カットオフ関数により遠距離の炭素原子間の力は無視し、各炭素原子に対する配位数によって結合エネルギーが変化する事を考慮して、小型の炭化水素、グラファイト、ダイヤモンド構造など多くの構造を表現できるよう改良されている。

系全体のポテンシャル E_b は各原子間の結合エネルギーの総和により次のように表される。

$$E_b = \sum_i \sum_{j(i>j)} [V_R(r_{ij}) - B_{ij}^* V_A(r_{ij})] \quad (2.1)$$

ここで、 $V_R(r)$, $V_A(r)$ はそれぞれ斥力項、引力項であり、以下に示すようにカットオフ関数 $f(r)$ を含む Morse 型の指数関数が用いられている。

$$V_R(r) = f(r) \frac{D_e}{S-1} \exp\{-\beta\sqrt{2S}(r-R_e)\} \quad (2.2)$$

$$V_A(r) = f(r) \frac{D_e S}{S-1} \exp\{-\beta\sqrt{2/S}(r-R_e)\} \quad (2.3)$$

$$f(r) = \begin{cases} 1 & (r < R_1) \\ \frac{1}{2} \left(1 + \cos \frac{r-R_1}{R_2-R_1} \pi \right) & (R_1 < r < R_2) \\ 0 & (r > R_2) \end{cases} \quad (2.4)$$

B^* は結合 ij と隣り合う結合 ik との角度 θ_{ijk} の関数であり、結合状態を表すように引力項の係数となっている。

$$B_{ij}^* = \frac{B_{ij} + B_{ji}}{2} + F(N_i, N_j, N_{ij}^{conj}) \quad (2.5)$$

$$B_{ij} = \left(1 + \sum_{k(\neq i,j)} [G_c(\theta_{ijk}) f(r_{ik})] \right)^{-\delta} \quad (2.6)$$

$$G_c(\theta) = a_0 \left(1 + \frac{c_0^2}{d_0^2} - \frac{c_0^2}{d_0^2 + (1 + \cos\theta)^2} \right) \quad (2.7)$$

ここで $F_{ij}(N_i, N_j, N_{ij}^{conj})$ は、 π 共役結合系に関する補正項であり以下のように定義される。

$$N_i = \sum_{k(\neq j)} f(r_{ik}) \quad (2.8)$$

$$N_{ij}^{conj} = 1 + \sum_{k(\neq i,j)} f(r_{ik}) F(r_{ik}) + \sum_{l(\neq i,j)} f(r_{jl}) F(r_{jl}) \quad (2.9)$$

$$F_{ij} = \begin{cases} 1 & (x_{ik} \leq 2) \\ \frac{1 + \cos\{\pi(x_{ik} - 2)\}}{2} & (2 \leq x_{ik} \leq 3) \\ 0 & (3 \leq x_{ik}) \end{cases} \quad (2.10)$$

$$x_{ik} = \sum_{m(\neq k)} f(r_{im}) \quad (2.11)$$

この補正項は炭化水素分子などの π 共役結合系に関して最適化して得られたもので、ダイヤモンド構造を安定に存在させるべく追加されていると考えられる。しかし、本研究における SWNT のシミュレーションには不要であり、計算負荷を削減するために補正項を省略している。ここで用いたパラメータを Table 2.1 に示す。

Table 2.1 Potential parameters for Brenner potential.

D_e [eV]	S	β [1/Å]	R_e [Å]	R_1 [Å]	R_2 [Å]	δ	a_0	c_0	d_0
6.325	1.29	1.5	1.315	1.7	2.0	0.80469	0.011304	19	2.5

2.3 Lennard-Jones ポテンシャル

アルゴン間，アルゴン－炭素間，酸素－酸素間，酸素－炭素間の van der Waals 力を表すために Lennard-Jones ポテンシャルを用いた．水分子のポテンシャルには，Lennard-Jones ポテンシャルだけでなく，クーロンポテンシャルも作用するため，詳しくは次項で述べる．Lennard-Jones ポテンシャルは，2 原子間の距離 r の関数として以下のように表される．

$$\phi(r) = 4\varepsilon \left\{ \left(\frac{\sigma}{r} \right)^{12} - \left(\frac{\sigma}{r} \right)^6 \right\} \quad (2.12)$$

ε はエネルギーの次元のパラメータで，ポテンシャルの谷の深さを， σ は長さの次元のパラメータで見かけの分子径を表す．Figure 2-1 にポテンシャルの概形を示す．このポテンシャルでは，原子間の距離が大きくなると原子間力は無視できるほど小さくなる．計算負荷の軽減のため Lennard-Jones ポテンシャルに対してあるカットオフ距離 r_c を設定し，それ以上距離の離れた原子間については力の計算を行わないこととする．

Table 2. 2. Parameter of Lennard-Jones Potential

	ε [J]	σ [Å]	r_c [Å]
Ar - Ar	1.654×10^{-21}	3.40	11.9
C - Ar	7.975×10^{-22}	3.385	11.8475
O - C	5.191×10^{-22}	3.19	10.0

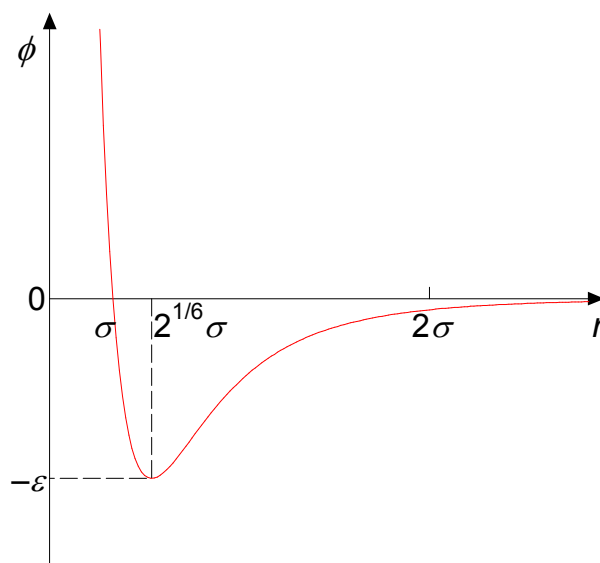


Figure2-1 Lennard-Jones ポテンシャル

2.4 SPC/E モデル

SWNT 内に流す水のポテンシャルには, Berendsen らが発展させてきた Fig.2.2 のような SPC/E モデルを用いた. SPC/E モデルは分子内の振動を無視し, 水分子を剛体回転子とし, OH 間の距離を 0.1nm, $\angle\text{HOH}$ の角度を正四面体角とする. また, 酸素原子の位置に負の電荷を, 水素原子の位置に正の電荷を置く.

水分子間のポテンシャルは, 前項で述べた Lennard-Jones ポテンシャルにクーロンポテンシャルを加えて表す.

$$\phi(r_{ij}) = 4\epsilon \left\{ \left(\frac{\sigma}{r} \right)^{12} - \left(\frac{\sigma}{r} \right)^6 \right\} + \sum_i \sum_j \frac{q_i q_j e^2}{4\pi\epsilon_0 r_{ij}} \quad (2.13)$$

クーロンポテンシャルは距離に反比例し, r を大きくしたときの収束が Lennard-Jones ポテンシャルと比べ遅い. また本研究では, 太い SWNT でもシミュレーションを行うため, 全系に対する水の割合が増え, 誤差が大きくなる可能性がある. そのため酸素原子間のカットオフは長めに取る必要がある.

Table 2. 3. Parameter of SPC/E mode

$r_{OH}[\text{nm}]$	$\angle\text{HOH}[^{\circ}]$	$q_O [\text{C}]$	$q_H [\text{C}]$	$\epsilon [\text{J}]$	$\sigma [\text{\AA}]$	$r_c [\text{\AA}]$
0.1	109.47	-0.876e	0.4238e	1.080×10^{-21}	3.17	31.0

Charge of electron $e=1.60219 \times 10^{-19}$

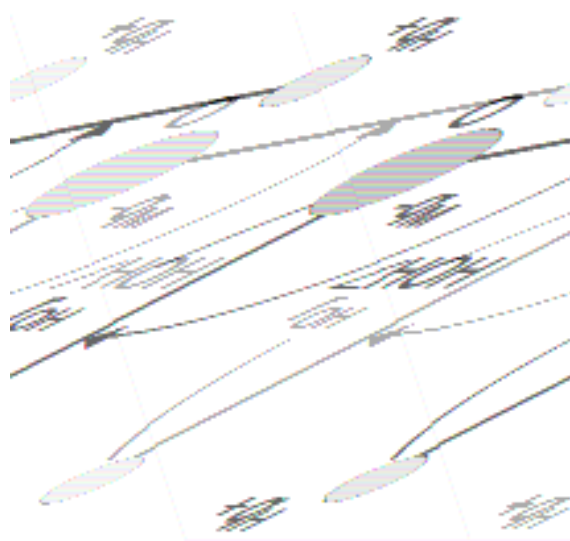


Fig.2.2 SPE/C モデル

2.5 温度計算とその制御

物質の全運動エネルギーは系全体の巨視的な運動エネルギーと、内部エネルギーとなる微視的な運動エネルギーからなる。この内部エネルギーから温度を求めることができる。温度を求めたい分子に対して、内部エネルギーは分子の平均速度を用いて

$$E_k = \sum_i \frac{1}{2} m_i (v_i - \bar{v}_i)^2 \quad (2.14)$$

と求められる。内部エネルギーの和と温度 T の関係は Boltzmann 定数 k_B を用いて以下のよう表すことができる。

$$\frac{n_f}{2} k_B T = E_k \quad (2.15)$$

ここで $k_B = 1.380662 \times 10^{-23}$ [J/K], n_f は自由度の数である。1 原子あたり 3 の自由度を持つため、原子数の 3 倍となる。温度が速度の関数として表されるため、速度を制御することで温度制御を行うことができる。制御前の温度を T , 制御したい目標の温度を T_c として、温度を制御する各分子の速度に

$$v' = v \times \sqrt{\frac{rT_c + (1-r)T}{T}} \quad (2.16)$$

という計算を行うことで目的の温度に近づける。ここで r ($0 < r < 1$) は温度制御の強さを決めるパラメータである。 r の値を大きくするほど温度制御は強くなる代わりに、系全体の構造が不自然になる。そのため本研究では、 $r = 0.6$ を用い、温度制御の頻度は 0.5 ps ごとに行った。

2.6 数値積分法

古典分子動力学法では、各分子の位置に依存するポテンシャルエネルギー関数を仮定し、各分子の挙動を Newton の運動方程式に従う質点の運動として扱う。このとき分子 i に関する運動方程式は

$$\mathbf{F}_i = -\frac{\partial E}{\partial \mathbf{r}_i} = m_i \frac{d^2 \mathbf{r}_i}{dt^2} \quad (2.17)$$

となる。系の全自由度に対する連立微分方程式を解析的に解くことは不可能であるため、時間に沿って微小時間 Δt ごとに、逐一数値的に求める必要がある。Newton の運動方程式を解くだけの場合には差分近似法のひとつである Verlet がよく用いられる。以下に Verlet アルゴリズムを示す。

微小時間 Δt について、Newton の運動方程式の 2 階導関数を 2 次精度の中央差分で近似すると、次のようになる。

$$\mathbf{r}_i(t + \Delta t) = 2\mathbf{r}_i(t) - \mathbf{r}_i(t - \Delta t) + (\Delta t)^2 \frac{\mathbf{F}_i(t)}{m_i} \quad (2.18)$$

速度は位置の時間微分を中央差分で近似した式より得られる。

$$\mathbf{v}_i(t) = \frac{1}{2\Delta t} \{\mathbf{r}_i(t + \Delta t) - \mathbf{r}_i(t - \Delta t)\} \quad (2.19)$$

出発値 $\mathbf{r}_i(0)$, $\mathbf{r}_i(\Delta t)$ を適当に与えれば、式(2.19)より質点の位置を追跡していくこともできるが、式(2.18)と式(2.19)から $\mathbf{r}_i(t - \Delta t)$ を消去して、

$$\mathbf{r}_i(t + \Delta t) = \mathbf{r}_i(t) + \Delta t \mathbf{v}_i(t) + (\Delta t)^2 \frac{\mathbf{F}_i(t)}{2m_i} \quad (2.20)$$

とすることで、初期状態として質点の位置 $\mathbf{r}_i(0)$ と速度 $\mathbf{v}_i(0)$ を与えることでシミュレーションを開始することも可能である。Verlet アルゴリズムは初期状態以外ではまったく速度を用いないで質点を移動させることが特徴である。また速度は式(2.19)から得られるが、この式では微小時間間隔での位置の差を計算するので、数値計算上の桁落ちに注意しなくてはならない。そこで、本研究では Verlet アルゴリズムを速度制御に適用でき、また桁落ちを防ぐことができるように改良した Velocity Verlet アルゴリズムを用いる。

Velocity Verlet アルゴリズムでは、質点の位置と速度を 2 次までのテイラー級数展開し、速度の展開式の 1 階微分を前進差分で近似して、次式を得る。

$$\mathbf{r}_i(t + \Delta t) = \mathbf{r}_i(t) + \Delta t \cdot \mathbf{v}_i(t) + (\Delta t)^2 \frac{\mathbf{F}_i(t)}{2m} \quad (2.21)$$

$$\mathbf{v}_i(t + \Delta t) = \mathbf{v}_i(t) + \frac{\Delta t}{2m} \{\mathbf{F}_i(t + \Delta t) + \mathbf{F}_i(t)\} \quad (2.22)$$

計算アルゴリズムの主要手順は以下のようになっている。

- 1.初期位置 $\mathbf{r}_i(0)$ および初期速度 $\mathbf{v}_i(0)$ を与える
- 2.力 $\mathbf{F}_i(0)$ を計算する
- 3.時間ステップ $(n+1)$ の $\mathbf{r}_i((n+1) \Delta t)$ を計算する
- 4.時間ステップ $(n+1)$ の $\mathbf{F}_i((n+1) \Delta t)$ を計算する
- 5.時間ステップ $(n+1)$ の $\mathbf{v}_i((n+1) \Delta t)$ を計算する
6. $(n+1)$ を n としてステップ 3 の操作から繰り返す

1 ステップあたりの微小時間 Δt を小さくすると桁落ちの累積誤差が大きくなったり, 計算負荷も重くなる. そのため Δt の値は, エネルギー保存の条件を満たす範囲でできるだけ大きくとるのが望ましい. そこで本研究では $\Delta t=0.5$ という値を用いた.

2.7 周期境界条件

物質の諸性質を考えると、現実の物質系はアボガドロ数のオーダー (10^{23} 個) の分子が含まれることになる。しかし、シミュレーションにおいてこれらすべてを取り扱うのは不可能である。計算時間の観点から、実際の物質系と比べ極端に少ない分子数で計算を行うこととなる。そのため周期境界条件と呼ばれる近似法を用いる[10]。周期境界条件では、計算領域として直方体のセルを取り、実際に計算を行う系の周りにそれと全く同じセルが並んでいるものと近似する。(Fig.2.3 は 2 次元平面運動の場合の周期境界条件を表す)。中央のセルを基本セル、周辺のセルをイメージセルと呼ぶ。

基本セルから飛び出した分子は反対側のイメージセルから同じ速度で入ってくる。また基本セルの分子には基本セルだけではなくイメージセルの分子からの力の寄与も加え合わせる。このような境界条件を課すと計算領域が無限に並ぶ事になり、小さな計算領域で現実のマクロスケールを表すことができる。計算を行う基本セルの直方体の辺の長さは力を計算するときに用いるポテンシャルのカットオフ距離の二倍以上になるように決めなければならない。

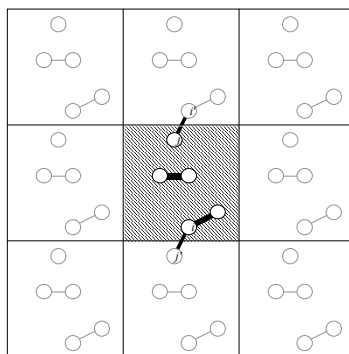


Figure 2.3 周期境界条件

第三章 Lennard-Jones 分子のシミュレーション

3.1 計算の指針

SWNT 内の流れの特性を見る一例として, その対象に Lennard-Jones 分子と水分子を用いた. 本章では Lennard-Jones 分子での計算について, 次章では水分子の計算について述べる. 通常, SWNT は 1 本が単独に存在するのではなく束状になっている. また現実の物質系では SWNT の外部は真空ではなく, 分子が存在している. 外部の影響は無視できると仮定し, 本研究では真空中の 1 本の SWNT の内部の流れを仮定して計算する. 本研究では Lennard-Jones 分子のパラメータをアルゴン分子としてシミュレーションを行った.

本研究においては流体の熱特性を知ることも目的としている. そのため, 流れの解析においては, 構造が不自然にならないように SWNT 内の分子には温度制御を行わず, SWNT のみに温度制御を行った. また, SWNT 内の分子の密度は, Lennard-Jones 分子が液体として存在できるもののうち, 流れを与えていない時の 1 分子あたりのポテンシャルエネルギーが最も低くなる密度を用いた.

周期境界条件を課したシミュレーションセルの大きさは $(100.0\text{\AA} \times 100.0\text{\AA} \times 62.873\text{\AA})$ と設定し, 隣り合う SWNT の影響は無視できるように軸方向以外のセルサイズを十分大きくした. 初期配置の C-C の距離は 1.452\AA とし, SWNT のカイラリティは(20,20), 長さは 62.873\AA とした. 含まれる炭素原子数は SWNT 1 本あたり 2000 個である.

3.2 ポテンシャルエネルギーと密度

3.2.1 計算条件

計算を行う系を設定するにあたって、SWNT の炭素原子の数と Lennard-Jones 分子の数の比をどのようにするかということが、ひとつの問題となる。本研究では最適な分子の比を見つけるために、Lennard-Jones 分子が液体として存在できるもののうち、1つあたりに働くポテンシャルが最小になるものを安定な密度とした。

アルゴンが液体である温度として、温度 120 K のもとでポテンシャルエネルギーの計算を行った。シミュレーションの開始から 25 ps は SWNT と Lennard-Jones 分子の両方に温度制御をかけ 120K で安定するようにした。温度制御は分子の速度をスケールリングするため系全体の構造が不自然になる恐れがある。そのため 25~50 ps までの間は Lennard-Jones 分子の温度制御を止め、SWNT のみに温度制御をかけた。ポテンシャルエネルギーが十分安定していることを確認し、45~50 ps の間のデータをポテンシャルエネルギーの計算に用いた。Lennard-Jones 分子の数を変えてシミュレーションを繰り返した結果は次に述べる。

3.2.2 計算結果

安定状態でのポテンシャルと Lennard-Jones 分子の数の関係を Fig.3.1 に示す。横軸が Lennard-Jones 分子の数、縦軸がポテンシャルエネルギーである。Lennard-Jones 分子の数が 750 個の時にポテンシャルエネルギーは最小となることが分かる。しかし、Lennard-Jones 分子の数が 700 個を超えると、Lennard-Jones 分子は固体的になってしまうので、次項以降の計算には、Lennard-Jones 分子が液体として存在するもので最小のポテンシャルとなる 650 個の分子を SWNT に配置した上でシミュレーションを行うこととする。

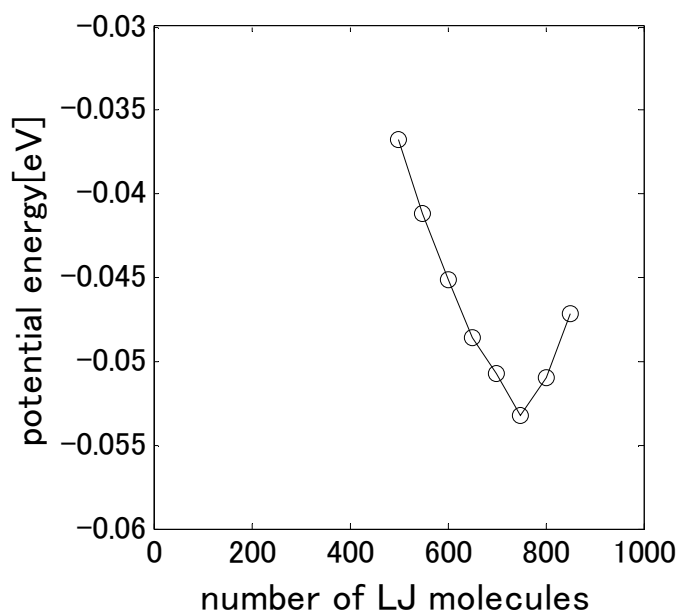


Fig.3.1 (20,20)SWNT における Lennard-Jones 分子の数と
単位分子数あたりのポテンシャルエネルギー

3.3 流れのシミュレーション

3.3.1 計算条件

マイクロナノスケールでの流れを与える方法は DCV-GCMD 法[12]や重力場[13][14]を与える方法などが代表的である。本研究では重力場により流れを与える方法を採用した。マイクロナノスケールでの流れを作るには重力の 10^{11} 倍程度の加速度を与える必要がある。

計算に用いた Lennard-Jones 分子の数は 3.2 の計算で求めた結果を利用し、650 個とした。Lennard-Jones 分子に与える加速度は 1×10^{10} , 5×10^{10} , 1×10^{11} , 1.5×10^{11} , 2×10^{11} , 2.5×10^{11} , 3×10^{11} , 3.5×10^{11} , 4×10^{11} [G] の 9 通りを試した。速度と温度が十分に安定することが確認できるまでシミュレーションを行った。シミュレーション時間は 1000ps とし、平衡状態が十分に確認できた最後の 300ps をデータとして採用した。温度制御は SWNT のみに設定し、その温度は 120K とした。シミュレーションのスナップ画像を Fig.3.2 に示す。

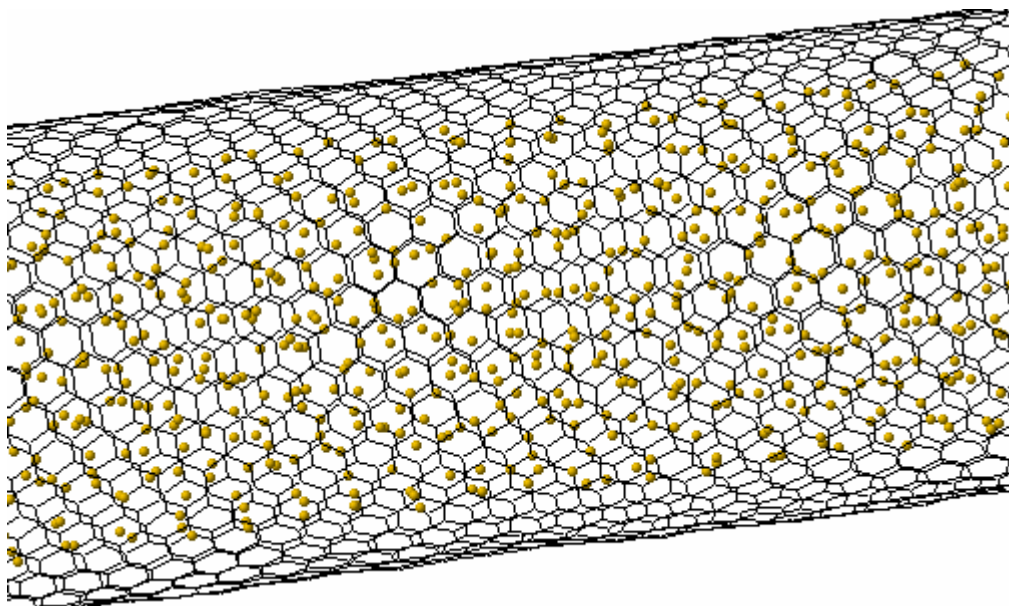


Fig.3.2 (20,20)SWNT 内部の Lennard-Jones 分子の流れのスナップ画像

3.3.2 温度と速度の関係

本研究では、指定した加速度により速度は決まり、速度の値をあらかじめ指定することはできない。Fig.3.3 に Lennard-Jones 分子の加速度と速度の関係を表す。横軸が加速度、縦軸が速度である。 2×10^{11} [G]の加速度までは、速度はあまり変化しなかった。しかし、それ以上の加速度になると加速度が大きくなるにつれ、速度も大きくなった。Fig.3.4 は Lennard-Jones 分子の速度と温度の関係を表す。横軸が速度、縦軸が温度である。速度と温度の間には一次関数に類似した関係が見られた。

3.3.3 密度、速度、温度の分布

求められた計算結果から SWNT の内部の密度、速度、温度の分布を求めた。SWNT を円筒状に区切り各区間における平均の値を計算した。計算に用いた円筒の幅は 0.1nm とし、円筒には重複を許し中心からの距離 0.01nm ごとに分布を求めた。これはサンプル数をより多く取り、ノイズを除去するためである。分割方法のイメージ図を Fig.3.5 に示す。中心から r_r 離れた位置での値を求めるために、外側と中央部の領域の平均の値を、中心から r_b 離れた位置での値を求めるために内側と中央部の領域の平均の値を求めた。中央部の領域が重複部分となる。

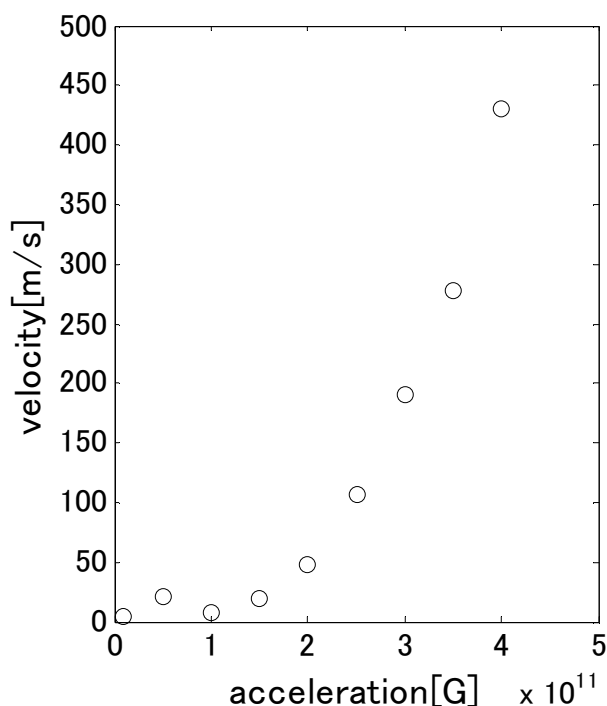


Fig.3.2 (20,20)SWNT における
Lennard-Jones 分子の加速度と速度

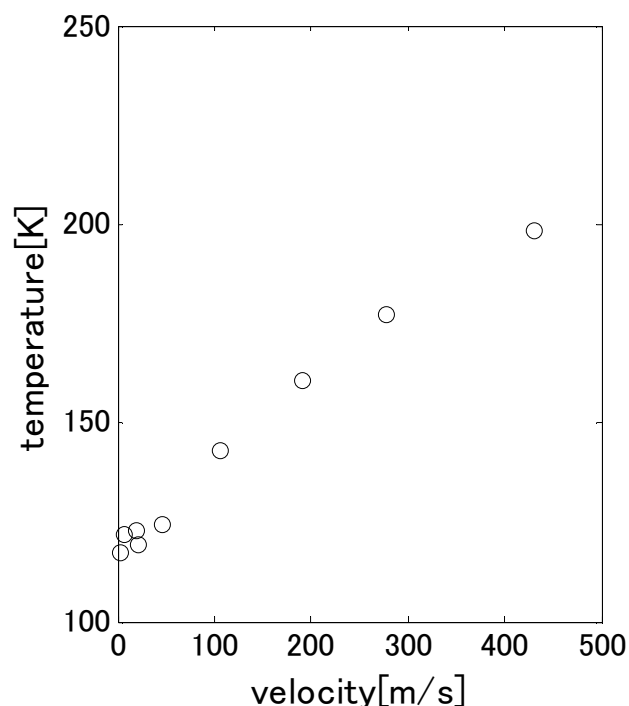


Fig.3.3 (20,20)SWNT における
Lennard-Jones 分子の速度と温度

マクロスケールとの比較と流速による分布の違いを見ていく．SWNT の半径は 1.386nm である．密度分布を Fig.3.6 に示す．密度分布では流速が最大である 4×10^{11} [G]での流れと、加速度を与えていないものの密度を比較した．横軸が SWNT の中心からの距離、縦軸が密度である．通常のマクロスケールの流体では密度はあらゆる点において一定であるとしているのに対し、マイクロナノスケールの SWNT 内の流れでは、密度の粗密が観察された．

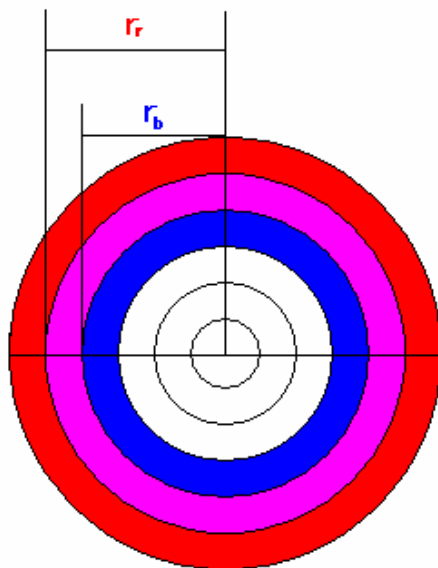


Fig.3.5 分割方法イメージ図

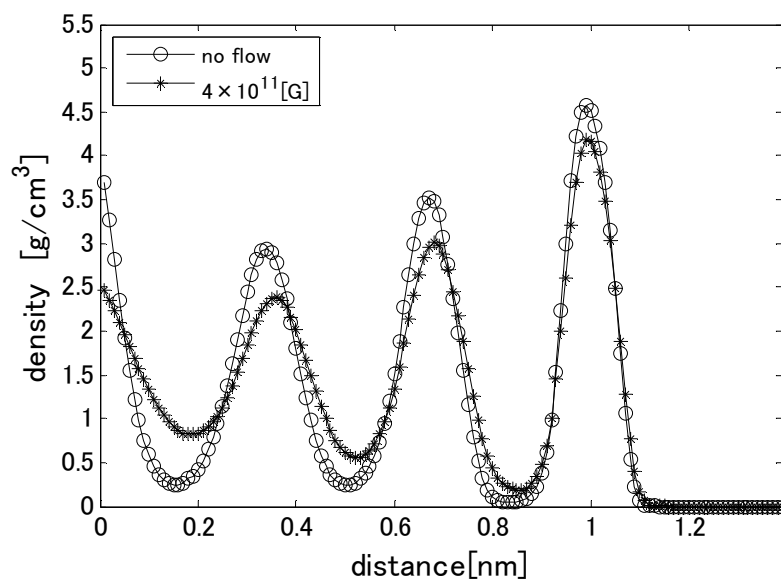


Fig.3.6 (20,20)SWNT における Lennard-Jones 分子の密度分布

これは SWNT の壁面付近のポテンシャルエネルギーが低い位置に、Lennard-Jones 分子が集まることで第一層目ができ、第一層付近のポテンシャルエネルギーが低い位置に同様に Lennard-Jones 分子が集まり第二層目が、第三層、第四層も同様にして層ができたと考えられる。この壁面の影響による密度の粗密は、マイクロナノスケールで面積支配の現象が強く現れることと一致する。また加速度 4×10^{11} [G] の元での流れの方が流速のないものと比べ、粗密は緩やかになったもののほとんど相違は見られない。緩やかになった理由としては、速度が原因であるのか温度が原因であるのかを判断できないが、分子の運動が激しくなったことが起因していると思われる。

速度分布と温度分布では、例として 2×10^{11} , 3×10^{11} , 4×10^{11} [G] での流れをプロットした。速度分布を Fig.3.7 に示す。壁面付近では、非常に密度が小さく、計算に用いた分子数が少なくなってしまうためにノイズが出てしまっている。(b)のグラフは中心部の流速で速度を無次元化したものである。流速が非常に遅いものでは、流速の大きさに対し誤差が大きいためノイズが出てしまっている。横軸は SWNT の中心からの距離、縦軸が速度である。密度が 0 の場所では、分子が存在せず、速度の定義ができないためにプロットしていない。マクロスケールでの滑りのない円管内の流れの速度分布では、

$$v = 2u(a^2 - r^2) \quad (3.1)$$

で表される放物線型の Poiseuille 流れとなる。ここで u 平均流速、 a は管の半径である。それに対し、SWNT 内の流れでは、わずかに壁面方向に向かって速度が下がる傾向はあるが、速度分布はほぼ一定の値を示した。

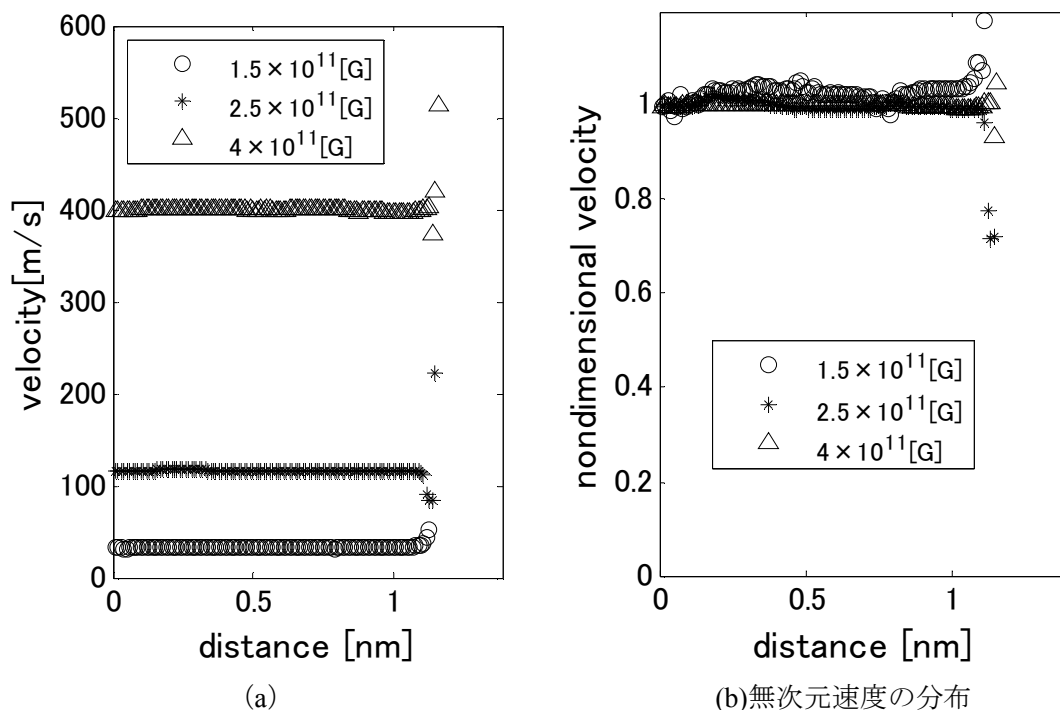


Fig.3.7 SWNT(20,20)における Lennard-Jones 分子の速度分布

速度分布が一定の値を示したことが、全分子に加速度を与えたことが原因でないことを確認するために、加速度制御を止め流速が落ちていく様子を Fig.3.8 にプロットした。加速度を与えていない場合も流速は同じように一様な分布を示した。速度分布が一様になった原因は流体内の速度勾配に比べ、壁面の滑りが強く現れたことが原因と考えられる。また、速度の大きさの差による変化を見ると、速度の絶対値が大きいものでは誤差が大きくでてしまっているが形状に差はないと考えられる。

温度分布の様子を Fig.3.9 に示す。SWNT と Lennard-Jones 分子の間に温度差があるにも関わらず、ほぼ一定の温度分布を示した。これは Lennard-Jones 分子間での熱の流れに比べ、Lennard-Jones 分子と SWNT 間の界面の熱の流れの方が、抵抗が大きいことが原因と考えられる。この界面熱抵抗については次項で詳しく述べる。

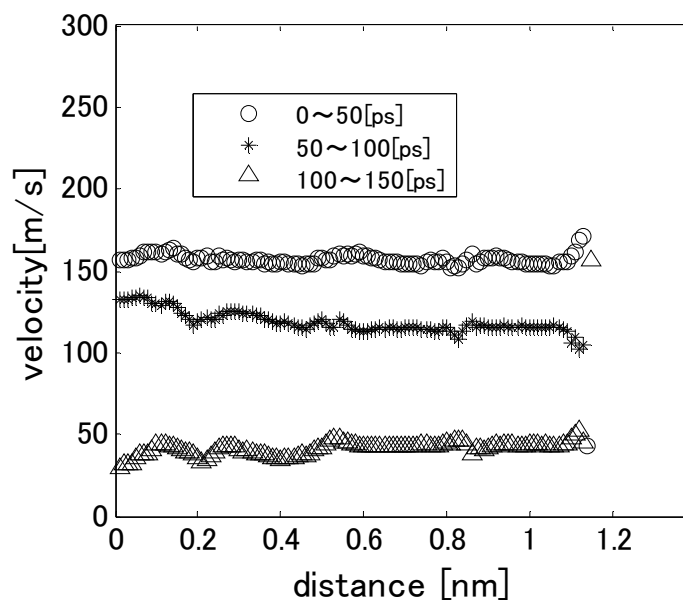


Fig3.8 加速度制御なしでの流速分布

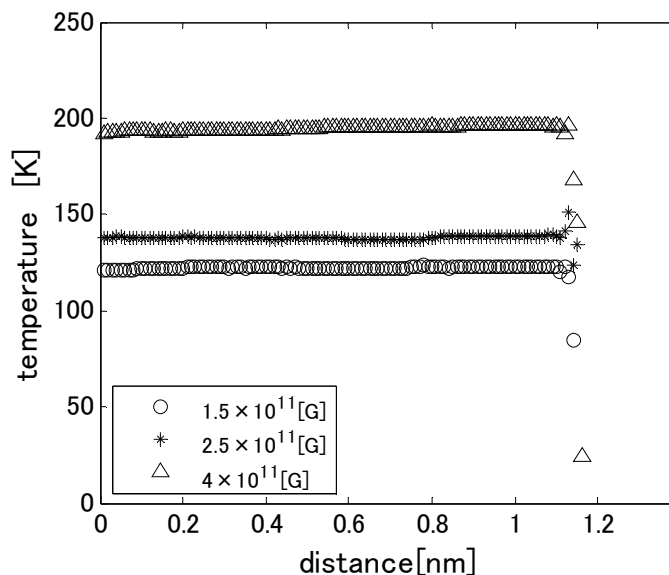


Fig.3.9 SWNT(20,20)における Lennard-Jones 分子の温度分布

3.3.5 界面熱抵抗

マクロスケールでは 2 つの物質が接している部分において，界面の熱抵抗を無視し，双方で同じ温度とみなせる．しかしマイクロナノスケールの物質では，2 つの物質間に存在する熱抵抗を無視することができなくなる．熱流束 Q と界面熱抵抗の関係は

$$Q = \frac{\Delta TA}{R} \quad (3.2)$$

と表される[15]．ここで，物質間の温度差を ΔT ，表面積を A ，界面熱抵抗を R としている．

また界面熱コンダクタンスは界面熱抵抗の逆数であり，

$$K = \frac{1}{R} = \frac{Q}{\Delta TA} \quad (3.3)$$

と表される．

流速と界面熱コンダクタンスの関係は Fig.3.10 のようになった．グラフに記入しているエラーバーはランダム誤差の大きさである．しかし，計算結果のタイムスケールに比べ，タイムスケールの大きなランダム誤差は，系統誤差として現れるため，正しく見積もることができない．そのため誤差を少なく見積もってしまっているが，流速が遅いデータの誤差が大きい傾向が分かる．

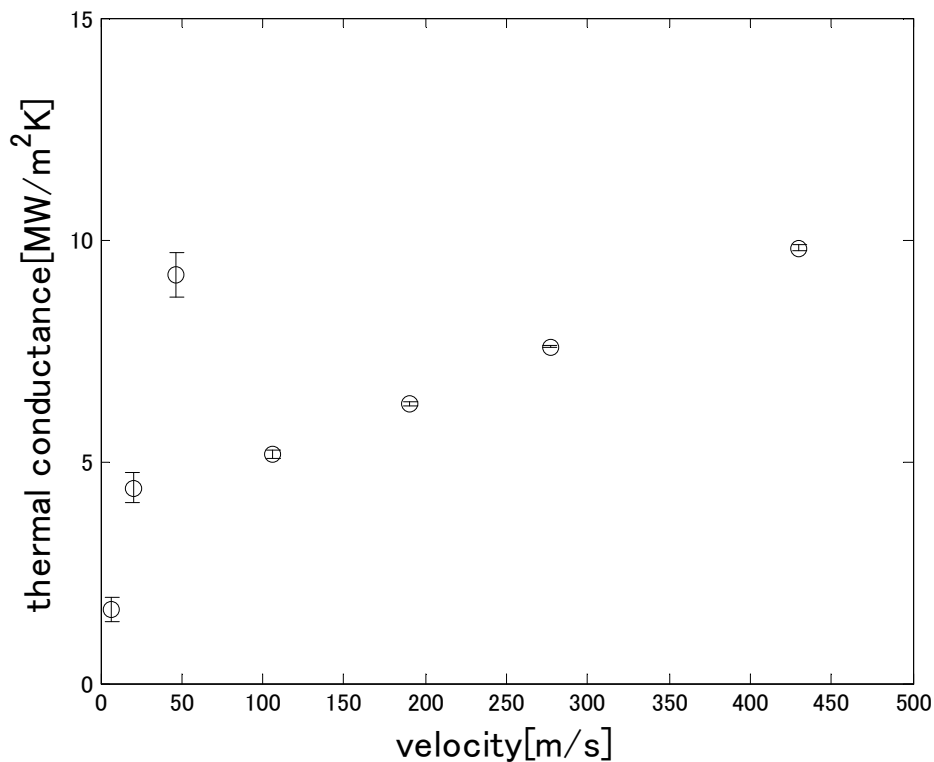


Fig.3.10 SWNT(20,20)における
Lennard-Jones 分子の界面熱コンダクタンス

これは(3.3)式に示すように、界面熱コンダクタンスの値は温度差の関数となるため、流速が小さいところでは、温度差の絶対値に比べ、誤差が大きくなっていくことが原因である。そのため、比較的信用性の高いデータ領域を表示している。流速が大きいく所に注目すると、界面熱コンダクタンスは5~10[MW/m² K]程度で、流速が大きくなるにつれ、界面熱コンダクタンスが上がっていく傾向が見られる。

3.3.6 管内の摩擦力

マイクロナノスケールでの摩擦損失についても考察を進める。摩擦抵抗係数の大きさを比較するには、(3.4)式で示されるレイノルズ数の値が等しいものを用いて比較する。マクロスケールでの Poiseuille 流れでは、レイノルズ数の値が等しければ、摩擦抵抗係数の値が一意に決まるからである。しかしマイクロナノスケールにおいてもレイノルズ数を比較基準として用いることの妥当性は定かではないため μ ナノスケールの現象の傾向を見る目安として考える。

$$\text{Re} = \frac{ud\rho}{\mu} \quad (3.4)$$

ここで、 d は管の半径、 u は流速、 μ は流体の粘度、 ρ は流体の密度である。レイノルズ数と摩擦抵抗係数の関係は両対数グラフで観察した。

管内流れでの単位質量あたりの摩擦損失は、摩擦抵抗係数 λ を用いて

$$\Delta E = \lambda \frac{u^2 l}{2d} \quad (3.5)$$

と表される。ここで l は流管の長さである。よって単位時間あたりの摩擦損失は、

$$\Delta W = \lambda \frac{u^3}{2d} \quad (3.6)$$

となる。平衡系では、流体に与えた仕事と摩擦損失の大きさが等しいとして、 λ を求めることができる。単位質量単位時間あたりの与えた仕事は加速度と速度の積で表されるので、

$$au = \lambda \frac{u^3}{2d} \quad (3.7)$$

となり λ の値が求まる。ここで a は加速度である。

SWNT 内の Lennard-Jones 分子の流れの摩擦抵抗係数とレイノルズ数の関係は Fig.3.11 のようになった。速度が負の値を取ったものは、プロットしていない。また流れの半径を Lennard-Jones 分子の密度が 0 になるところを壁面として取った。グラフの直線は Poiseuille 流れでの式であり以下のように表される。

$$\lambda = \frac{64}{\text{Re}} \quad (3.8)$$

マイクロナノスケールでの関係も Poiseuille 流れの関係も対数グラフ上での傾きは、ほぼ同じような傾きを持った。

またマイクロナノスケールでの摩擦抵抗係数とレイノルズ数の関係は

$$\lambda = \frac{0.013}{\text{Re}} \quad (3.9)$$

としてフィテティングし、破線で表した。レイノルズ数が大きくなれば摩擦係数が小さくなるという傾向はマイクロナノスケールの場合もマクロスケールの場合も共通していることが理解できる。

壁面での速度の滑りを u_1 とし、速度滑りがない場合の平均流速を u_2 としたとき、滑りのある流れのレイノルズ数と摩擦抵抗係数の関係は、

$$\lambda = \frac{64}{\text{Re}(1 + \frac{u_1}{u_2})} \quad (3.10)$$

と表すことができる。(3.9)式と(3.10)式から u_1 と u_2 の関係を求めると

$$u_1 = 4922u_2 \quad (3.11)$$

となり壁面での速度の滑りが、流体内の速度勾配と比べ非常に大きいオーダーとなることが分かる。先ほども述べたようにレイノルズ数を比較基準で用いることの妥当性は定かではないが、流体の速度勾配よりも壁面の速度勾配が支配的になる傾向があると考えられる。このことは先ほどの速度分布とも一致している。

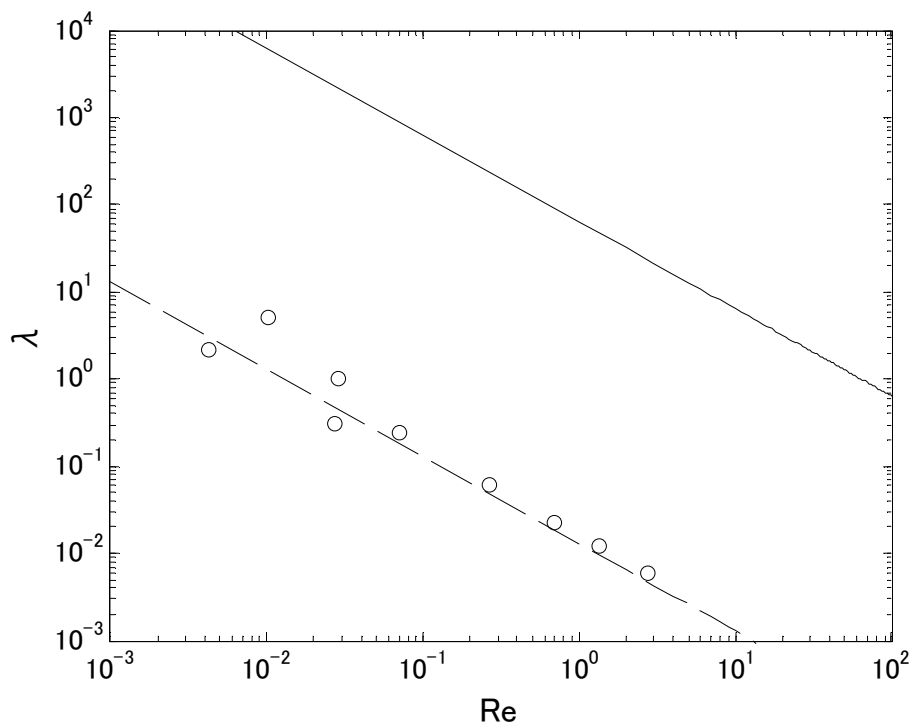


Fig.3.11 SWNT(20,20)における Lennard-Jones 分子の摩擦抵抗係数とレイノルズ数

第四章 水のシミュレーション

4.1 計算の指針

前章では Lennard-Jones 分子でのシミュレーションを行いマクロスケールとの比較を行った。本章では、水分子を用いて、水分子と Lennard-Jones 分子との違い、直径による違いといったマイクロナノスケールでの条件の違いによる比較を行う。

水分子のクーロンポテンシャルは距離に反比例するために、カットオフ距離を長く取る必要があり、計算負荷とのバランスの良いカットオフの値の設定が難しい。また直径の太い SWNT では、誤差が出やすい傾向があった。様々なカットオフを試した結果カットオフ距離を 31[Å]以上取れば、十分な精度を保てることが分かった。そのため本研究では、カットオフ距離 r_c を 31[Å]としている。

Lennard-Jones 分子と同様にポテンシャルの値から最適な密度を求め、その密度を用いて流れの解析を行っていく。流れの解析においては Lennard-Jones 分子と同様に、SWNT 内の分子には温度制御を行わず、SWNT のみに温度制御を行った。また SWNT の温度は水が液体として存在できるように温度として 300K に制御した。

周期境界条件を課したシミュレーションセルの大きさは(100.0Å × 100.0Å × 62.873Å) と設定した。隣り合う SWNT の影響は無視できるように軸方向以外のセルサイズを十分大きくしている。初期配置の C-C の距離は 1.452 Å とし、SWNT はカイラリティが (6,6), (10,10), (20,20) の 3 種類、長さが 62.873Å のものを用いている。炭素数はそれぞれ 600, 1000, 2000 個となっている。

4.2 ポテンシャルエネルギーと密度

4.2.1 計算方法

最適な水分子との比を見つけるために、水分子 1 つあたりに働くポテンシャルエネルギーが最小になるものを安定な密度とした。

シミュレーションの開始から 25 ps は SWNT と水分子の両方に温度制御をかけ 300 K で安定するようにした。その後、25~50 ps の間、水分子の温度制御を止め、SWNT のみに温度制御をかけた。45~50 ps の間のデータをポテンシャルエネルギーの計算に用いた。水分子の数を変えてシミュレーションを繰り返した結果は次に述べる。

4.2.1 計算結果

平衡状態でのポテンシャルエネルギーと水分子の数の関係を Fig.4.1 に示す。横軸が水分子の数、縦軸がポテンシャルエネルギーである。

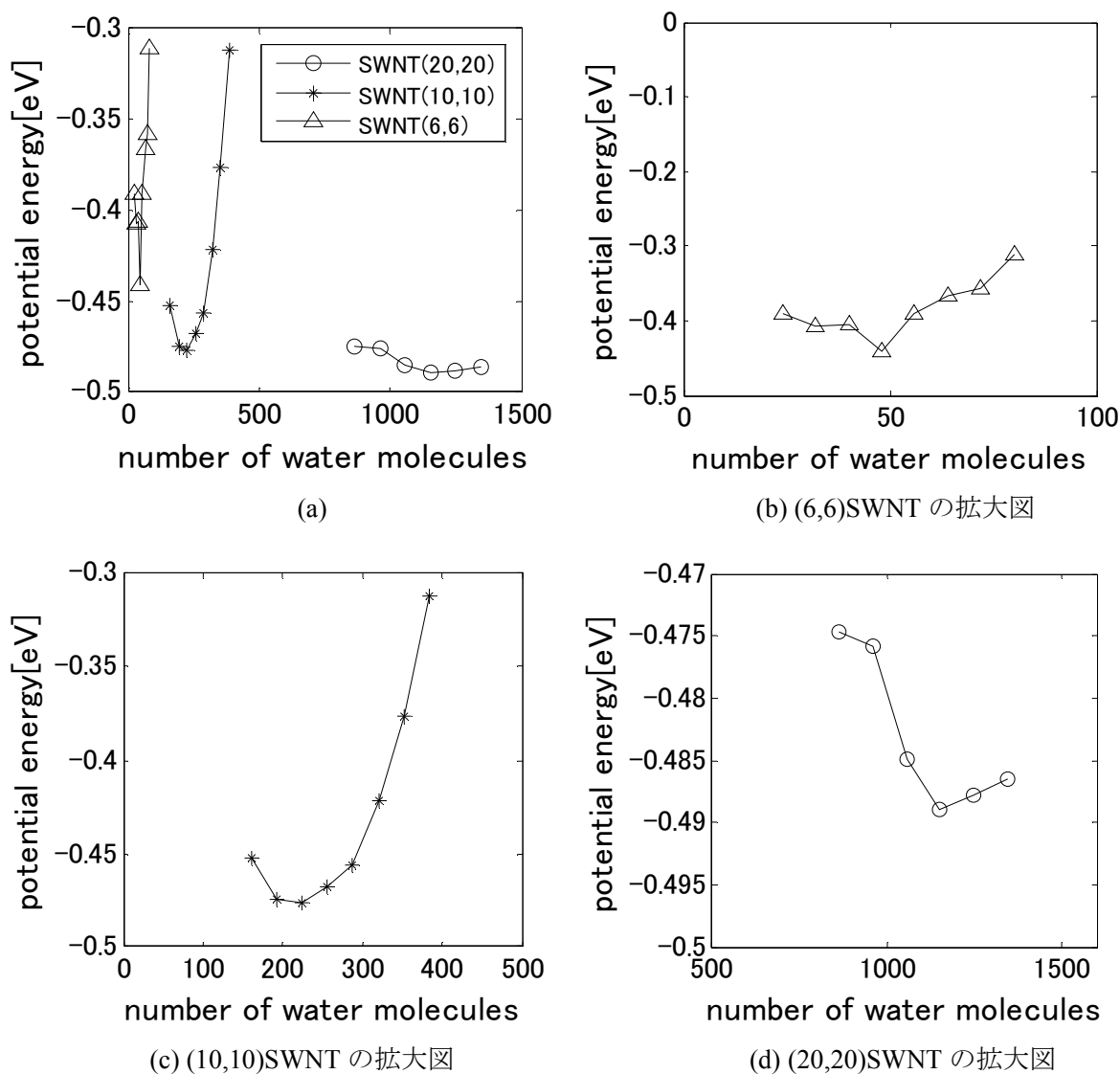


Fig.4.1 水の分子数と単位分子数あたりのポテンシャルエネルギー

直径の大きい SWNT ほどポテンシャルエネルギーの谷が緩やかである。これは水分子の絶対数が大きいこと、分子数の変化の影響が小さいことが原因と考えられる。ポテンシャルエネルギーが最小となった水の分子数は、SWNT(6,6)のものが 48 個、SWNT(10,10)のものが 224 個、SWNT(20,20)のものが 1152 個であった。次項以降の計算には、この数の水分子を SWNT に配置した上でシミュレーションを行うこととする。

このときの水の密度と SWNT の半径の関係を Fig.4.2 に示す。SWNT の半径を用いて水の密度を定義したものを radius 1 としてプロットした。また radius 2 については 4.3.3 で述べる密度分布を元に水の密度が 0 になる位置を半径として密度を定義した。radius 2 のプロットでは SWNT の半径によらずほぼ一定の値を示した。このことから、SWNT 内に占める流体の有効半径は SWNT の半径の大きさでなく流体の密度が 0 となる点を規準にするのが妥当であると考えられる。

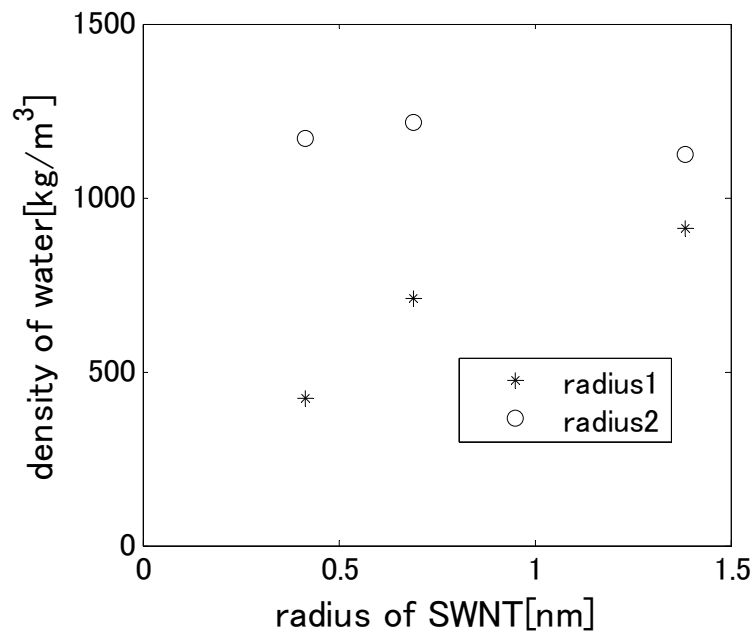


Fig.4.2 SWNT の半径と水の密度

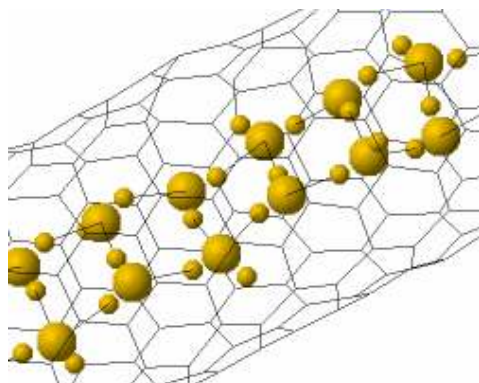
4.3 流れのシミュレーション

4.3.1 計算方法

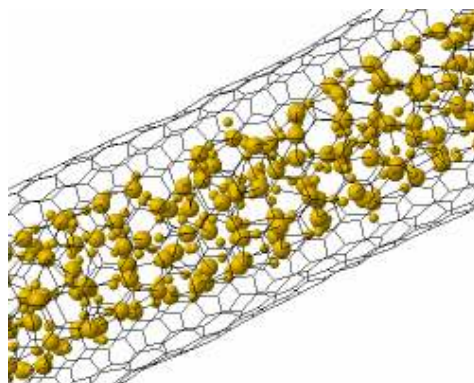
Lennard-Jones 分子の流れと同様に，重力場により流れを与える方法を採用した。

水分子に加速度を与え，速度，温度が十分に安定し定常状態を確認した後にデータを取得した．水分子の流れは Lennard-Jones 分子とくらべ比較的早く安定したため，シミュレーションの時間は 500ps とした．また，定常状態に至るまでの時間に違いがあること，分子数の違いによりデータとして扱える母数が異なることから計算結果として利用した時間はカイラリティにより異なる．

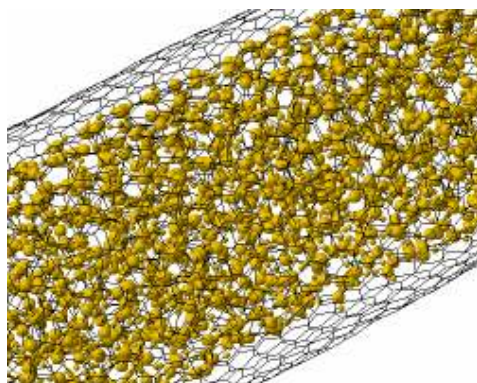
(6,6)SWNT では，計算の後半 400ps を，(10,10)SWNT では後半 300ps を，(20,20)SWNT では後半 200ps を計算結果として用いた．温度制御は SWNT のみにつけ，その温度は 300K とした．シミュレーションのスナップ画像を Fig.4.3 に示す．



(a) (6,6)SWNT 内の水の流れ



(b) (10,10)SWNT 内の水の流れ



(c) (20,20)SWNT 内の水の流れ

Fig.4.3 水の流れのスナップ画像

4.3.2 温度と速度と力の関係

Fig.4.4 に水分子の加速度と速度の関係を示す。横軸が加速度、縦軸が速度である。Fig.4.5 は水分子の速度と温度の関係を表す。横軸が速度、縦軸が温度である。直径の小さな SWNT では同じ加速度を与えたときに、速度が上がりにくい傾向がある。これは、直径の小さい SWNT ほど水分子の体積に対する壁面の面積の割合が大きくなり摩擦が大きくなったことが原因と考えられる。

また速度と温度の関係では、直径の小さな SWNT では温度が高くなりやすい傾向が見られる。細い SWNT では、水分子の数に対して水と SWNT の接触面積が大きくなり、水の熱が SWNT に奪われたからだと推測できる。

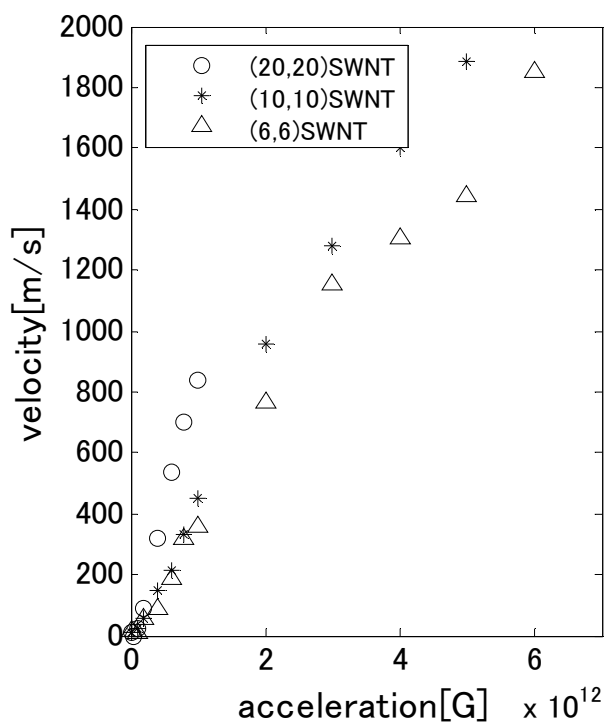


Fig.4.4 水の加速度と速度

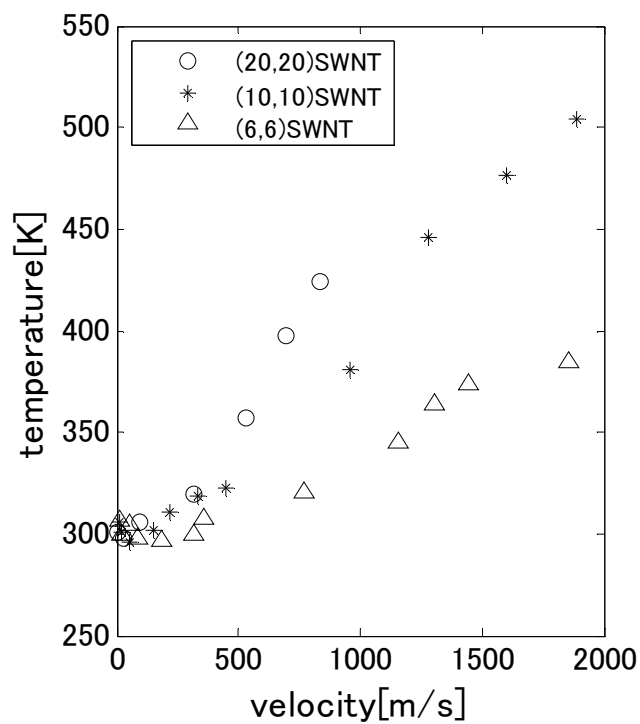


Fig.4.5 水の速度と温度

4.3.3 密度、速度、温度の分布

3.3.3 で述べた方法で径方向の分布を計算した。カイラリティが (6,6), (10,10), (20,20) の SWNT の半径はそれぞれ 0.416, 0.693, 1.386nm となっている。密度のグラフを Fig. 4.6 に示す。流速を与えていない場合と非常に大きな加速度で流速を与えている場合を比較した。横軸が SWNT の中心からの距離、縦軸が密度である。SWNT(20,20)の場合に注目すると、水分子の場合も Lennard-Jones 分子と同様に、密度の粗密があらわれている。しかし、Lennard-Jones 分子と比べ密度の粗密が緩やかになっていることが分かる。これは水のポテンシャルでは、Lennard-Jones 分子のポテンシャルと比べ、ポテンシャルの谷が緩やかだったことが原因と考えられる。また直径の変化により密度分布の形状が異なる。直径の値が異なり SWNT の半径が小さくなるにつれ密度の層の数が減少していくことが分かる。また流速を与えている場合の方が密度の粗密の幅はやや緩やかであるが、非常に影響は少ないことが分かる。

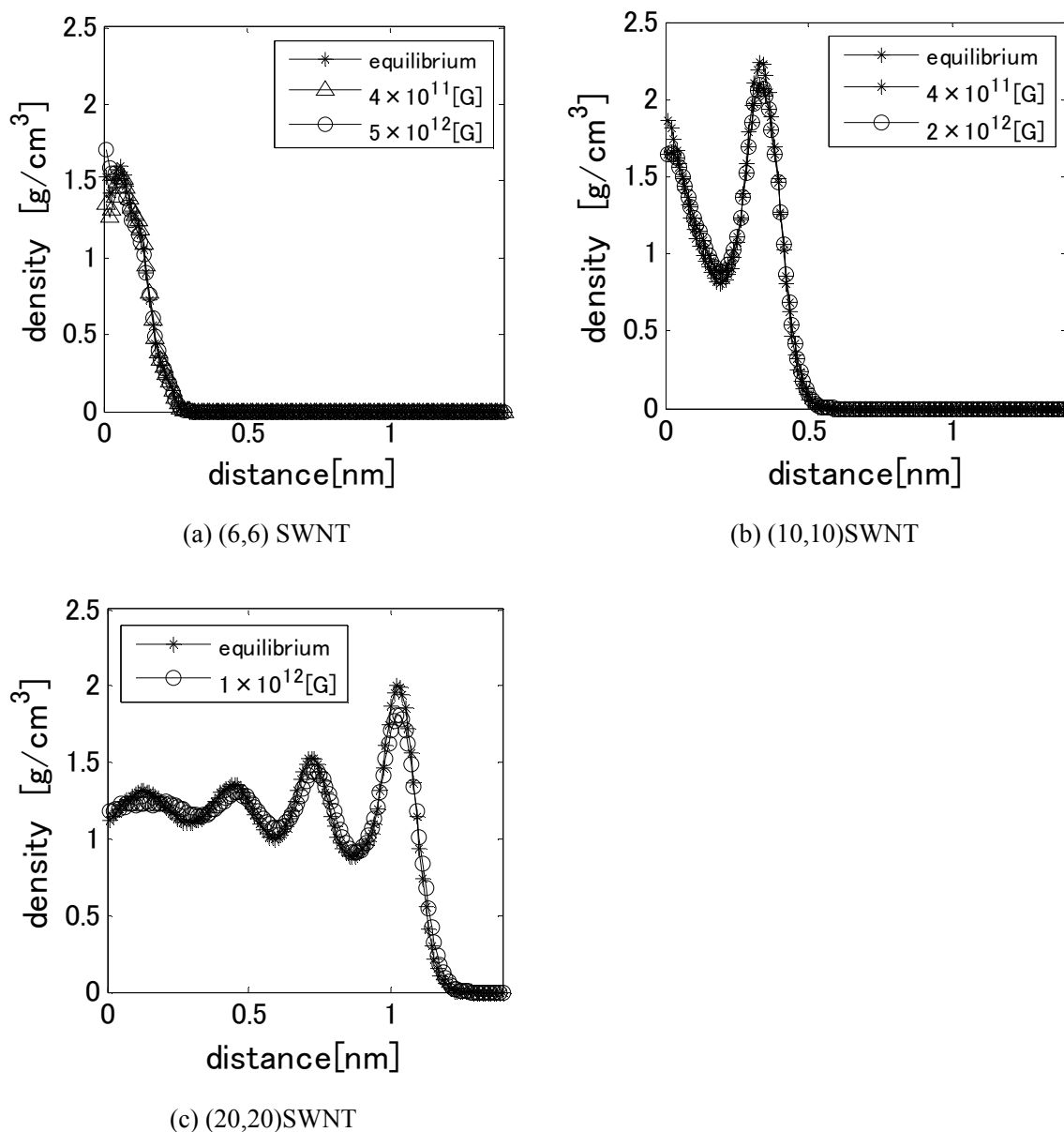


Fig.4.6 水の密度分布

速度分布のグラフを Fig. 4.7 に示す. 横軸は SWNT の中心からの距離, 縦軸が速度である. 例として各 SWNT に対し 3 通りの加速度における分布をプロットした. また, SWNT の中心の速度を基準に速度分布を無次元化したグラフを Fig4.8 に示す. (6,6)SWNT と (10,10)SWNT において流速が遅い場合は壁面付近で速度がなだらかに落ちていくことが分かる. しかし, (6,6)SWNT と (10,10)SWNT においても流速が速い場合はほぼ一様な速度分布を示した. 速度分布は SWNT のカイラリティと流速により違いがあらわれた. また (20,20)SWNT に関しては, 壁面に向かうにつれ, わずかに速度が下がる傾向が見られたが, ほぼ一定の速度であると考えられる. 速度が壁面付近で下がる場合も密度分布の形状に変化は見られず, 速度分布の違いは定常的な構造の変化によるのではなく, 動的な構造が関わっている可能性がある. このことは Hanasaki, Nakatani らの研究結果とも一致する[7]. また, 速度分布の形状は SWNT の運動を考慮するかによらず Hanasaki, Nakatani らの研究と同様の結果を示した.

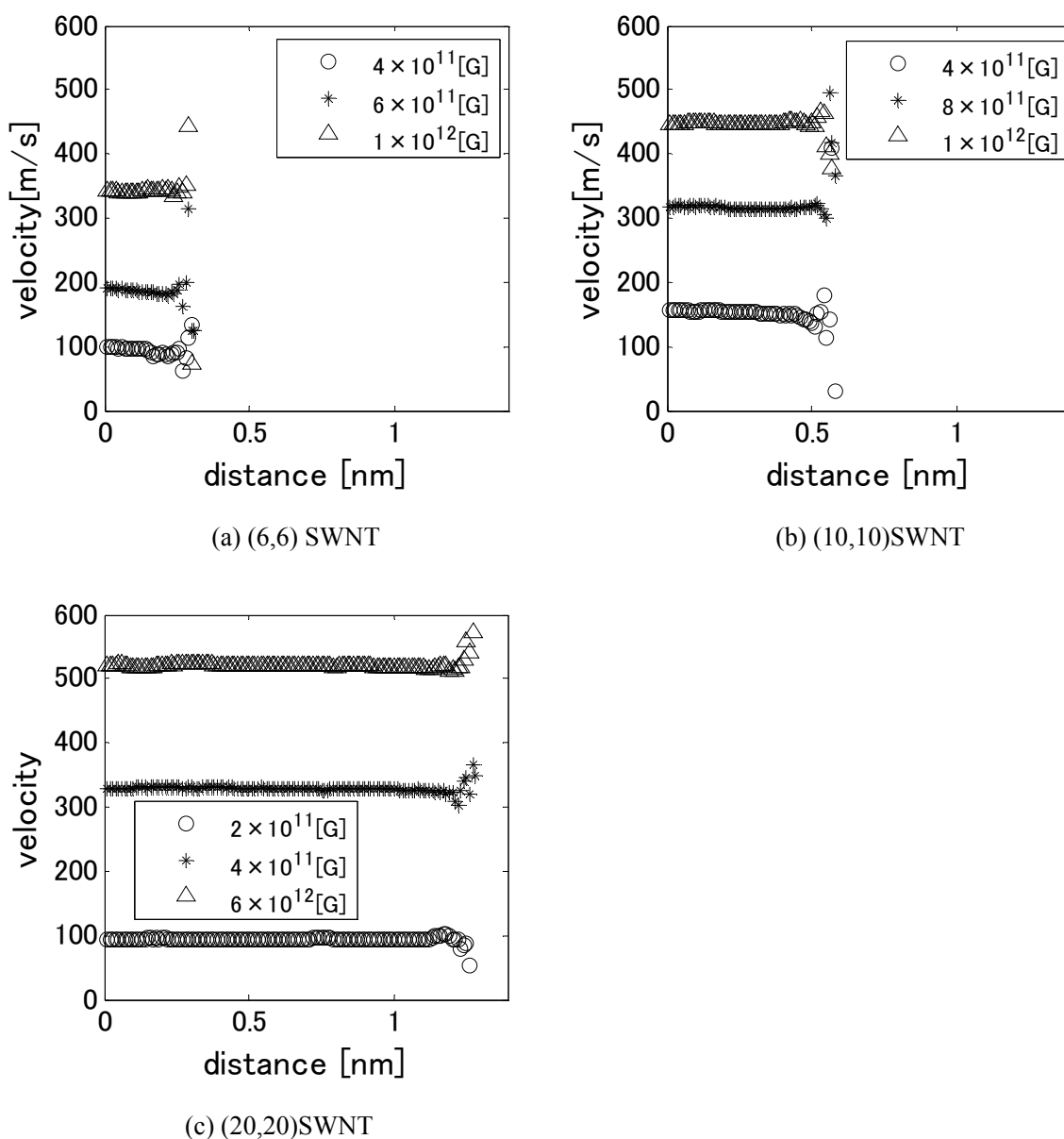
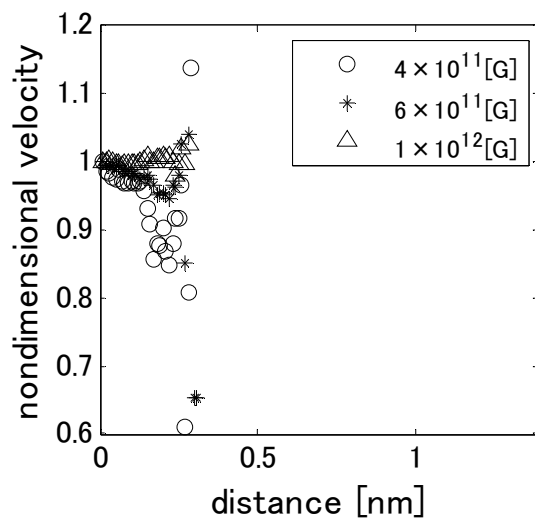
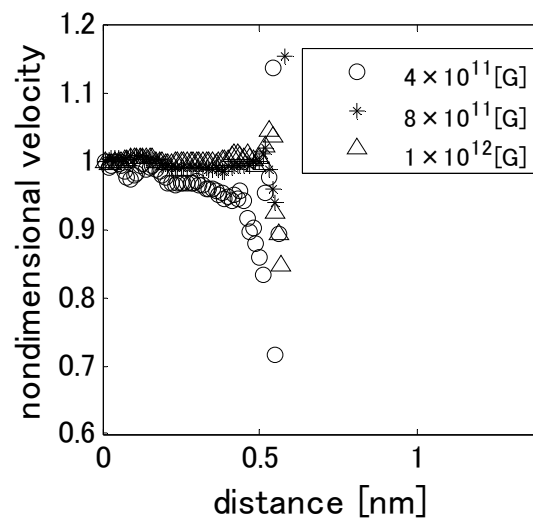


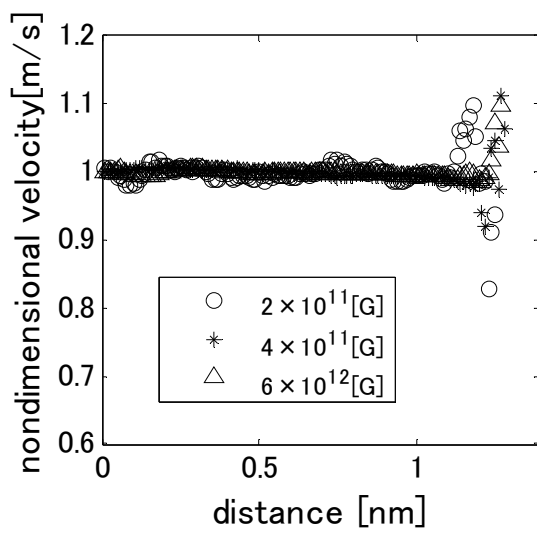
Fig.4.7 水の速度分布



(a) (6,6) SWNT



(b) (10,10)SWNT



(c) (20,20)SWNT

Fig.4.8 水の無次元速度の分布

温度分布のグラフを Fig.4.9 に示す. 横軸が SWNT の中心からの距離, 縦軸が温度である. 速度分布同様に各 SWNT に対し 3 通りの加速度に対する温度分布を示す. 異なる温度での温度分布を見るため, 速度分布とは異なる加速度でのグラフをプロットした. 温度分布は温度やカイラリティによる相違はほとんど見られなかった.

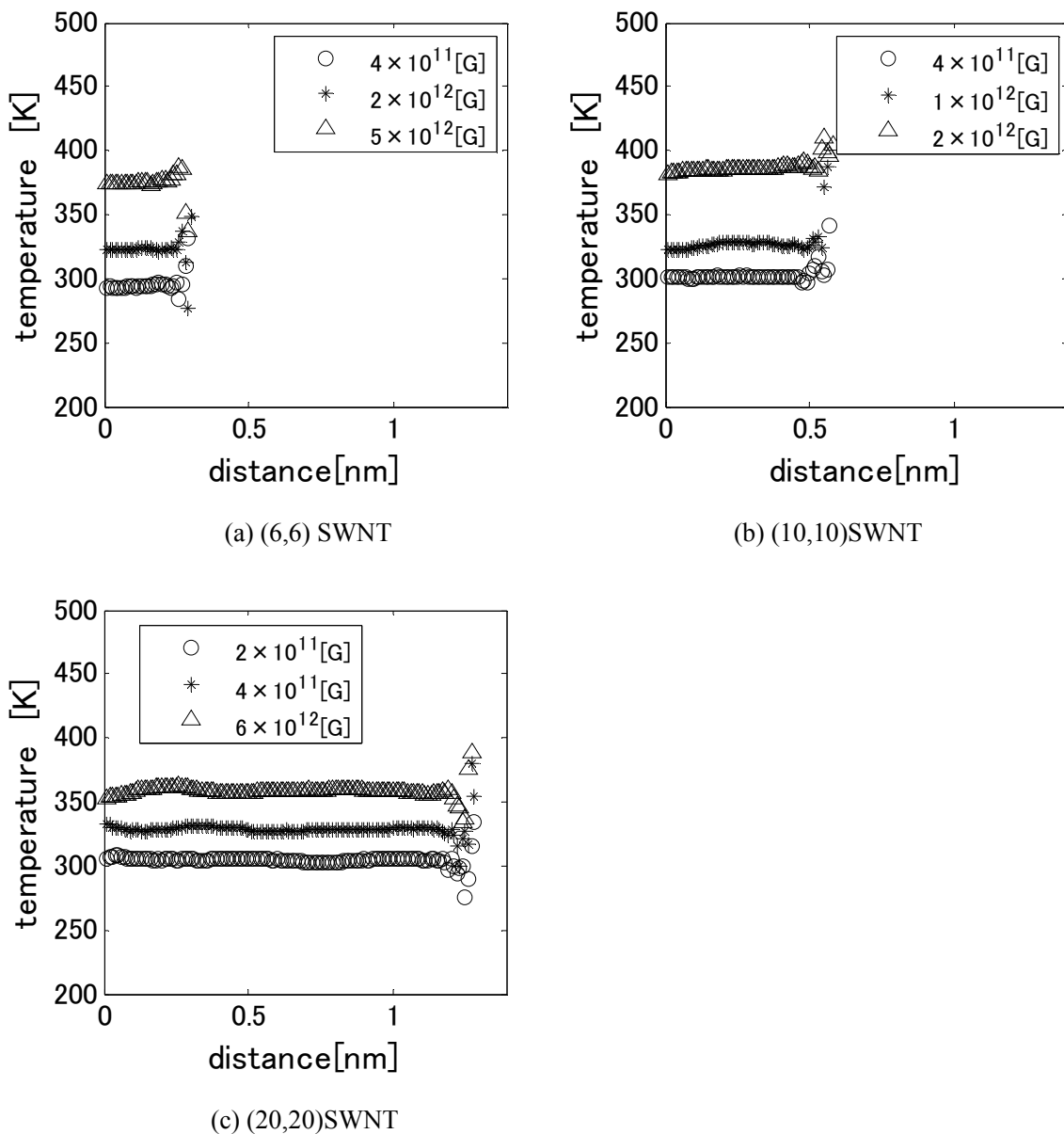


Fig.4.9 水の温度分布

4.3.6 界面熱抵抗

(3.2)式に基づき, 水の界面熱抵抗を求めた. 流速と界面熱コンダクタンスの関係は Fig.4.10 のようになった. エラーバーはランダム誤差の大きさを表示している. しかし, 計算結果の時間スケールが非常に短く, ランダム誤差のタイムスケールより小さくなっている. そのためエラーバーが実際の誤差より小さく見積もられているが, 流速が低いものほど誤差が大きい傾向が見られる. これは, 界面熱コンダクタンスは温度差の関数であり, 流速が遅いところでは, 温度差が小さく誤差が大きくなるからである. ここでは, 比較的信用性の高いデータが見やすい領域を表示した.

流速が大きいところでは流速が上がるにつれ界面熱コンダクタンスが上がっていることが分かる. しかし, 流速が大きなものでは発熱量が大きく, 温度も高くなっているため, 界面熱抵抗の値の上昇は温度によるものが, 流速によるものか判断することはできない.

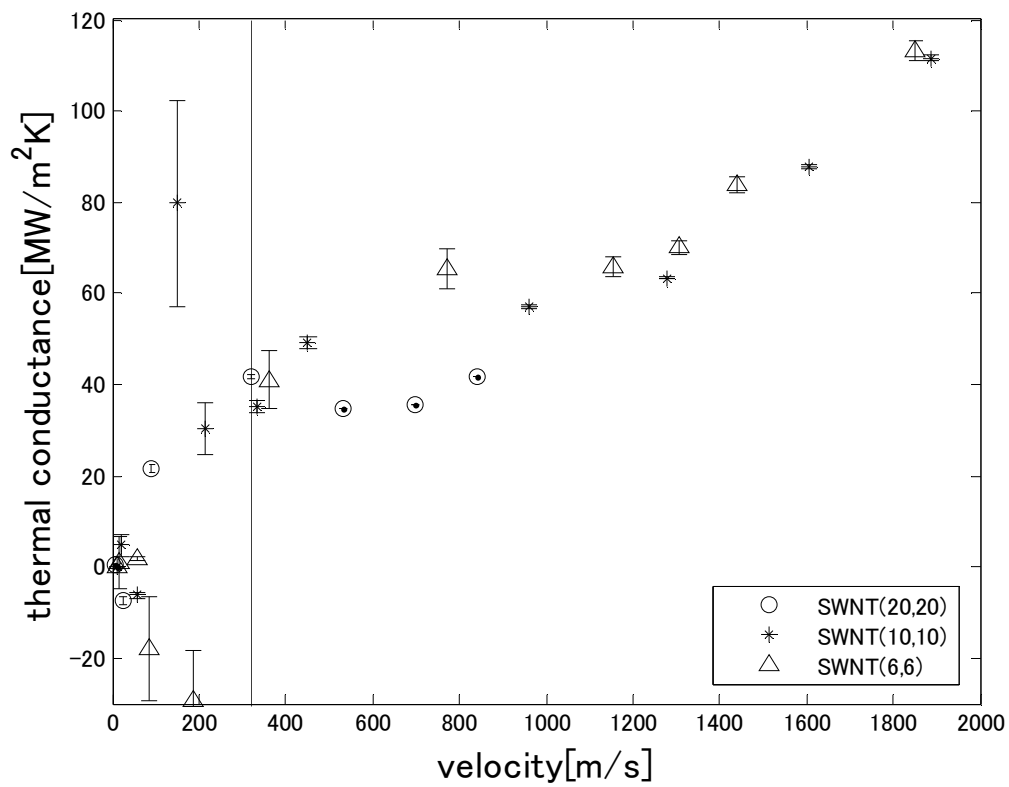


Fig4.10 水の界面熱コンダクタンス

4.3.7 管内の摩擦力

3.3.6 と同様の方法で水の流れの摩擦抵抗係数とレイノルズ数の関係を求めた。流れの半径の大きさは、水分子の密度が 0 になる位置を有効半径として定義した。

SWNT 内の水分子の流れの摩擦抵抗係数とレイノルズ数の関係は Fig.4.11 のようになった。グラフの直線は Poiseuille 流れでの関係である。

水分子の流れの場合も、Lennard-Jones 分子の場合と同様に、対数グラフ上で Poiseuille 流れとほぼ同じような傾きを持った。しかし、レイノルズ係数が大きくなると傾きがやや緩やかになる傾向が見られた。

また、直径が大きな SWNT になるにつれ、マクロスケールの値に近づく傾向が見られる。

Poiseuille 流れでは流体の性質によらず、レイノルズ数により摩擦抵抗係数が一意に決まるのに対し、マイクロナノスケールの流れでは流体の性質や、SWNT のカイラリティにより値が異なることが理解できる。

また直径の小さな SWNT での流れで速度勾配が見られた場合でも、摩擦抵抗係数の値は小さく、マクロスケールでの粘性による速度勾配と違った要因で速度勾配が現れた可能性がある。

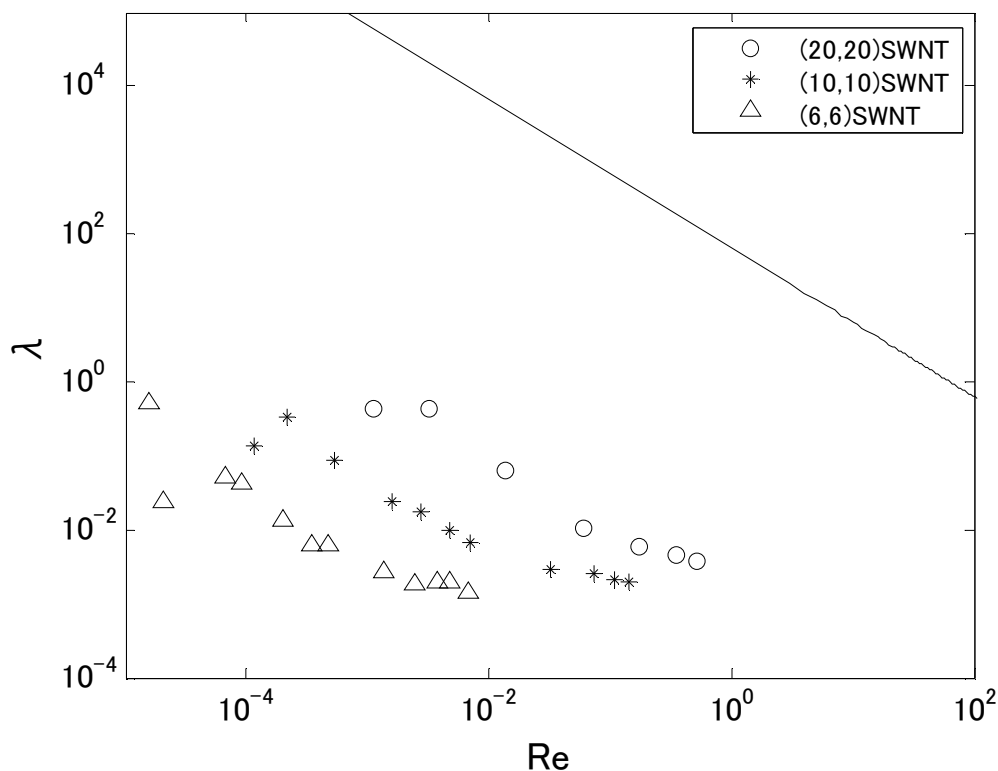


Fig.4.11 水の摩擦抵抗係数とレイノルズ数

第五章 結論

5.1 結論

1. マクロスケールでは密度は一定であるが、マイクロナノスケールではポテンシャルが安定する場所の密度が高くなり、密度に粗密ができる。また、ポテンシャルの種類により密度分布の形状は異なる。
2. 界面熱コンダクタンスの値は流速が高くなるにつれ、大きくなっていく傾向が見られたが、その変動量は小さい。
3. マイクロナノスケールでの流速分布ではほぼ一定の値を取るが、これは粘性による速度勾配に比べ、壁面での速度の滑りが支配的になることが原因と考えられる。

5.2 今後の課題

1. 流体と SWNT の温度差が小さく温度差の関数となっている値の誤差が非常に大きくなってしまった。これを改善するためには、流体に温度制御をかけ、流体と SWNT に人為的な温度差を与えたシミュレーションを行うことが必要となる。
2. 本研究では熱依存の現象か流速依存の現象か判断することができない現象があった。流体に温度制御をかけ温度依存性のない環境下での比較検討が必要となる。

謝辞

丸山研究室に入って一年間の研究生活の中で、多くの方々のお世話になりました。毎週の研究会での確かなアドバイスをくださいました、丸山教授に心から感謝致します。また、研究室を支えてくださった渡辺さんありがとうございました。

塩見さんには、分子動力学の基礎の基礎から丁寧に教えていただきました。また卒論の考察に行き詰る度に何度も相談に乗っていただき、考えをまとめ、無事に書き上げることができました。ありがとうございました。

研究分野が同じ分子動力学である西村さんの伊豆さんには、忙しい中ソフトの設定の仕方やプログラムのことなど様々なことを教えていただきました。また伊豆さん、大川さん、山本さんには卒業論文や中間発表の添削をしていただきました。卒業論文の書き方を全く知らなかった僕に丁寧に教えてくださって、ありがとうございました。

村上さんや宮内さんの研究熱心な姿勢は非常に刺激になり、研究に対する熱意が沸きました。ハイさんはいつも研究室の雰囲気を明るくしてくださり、研究室生活が楽しいものとなりました。

研究分野が異なり一緒に何かをする機会はあまりありませんでしたが、エリックさん、石川さん、シャンロンさん、マリオさん、小倉さん、佐々木さん、ジャンイーさんとは一緒に研究室生活を送れて楽しかったです。

また同じ4年の岡部君が新しい装置を熱心に作り上げる姿は、刺激になり卒論研究に対する励みとなりました。

1年という短い期間でしたが、研究室のみなさんには大変お世話になりました。心より感謝申し上げます。

参考文献

- [1] H. W. Kroto, *et al.*, *Nature*, **318**-6042 (1985), 162.
- [2] W. Krätschmer, L. D. Lamb, K. Fostiropoulos and D. R. Huffman, *Nature*, **347** (1990), 354.
- [3] S. Iijima, *Nature*, **354** (1991), 56.
- [4] S. Iijima and T. Ichihashi, *Nature*, **363** (1993), 603.
- [5] Y. Gogotsi, J.A. Libera, A.G. Yazicioglu, C.M. Megaridis, *Appl. Phys. Lett.*, **79**(2001), 1021
- [6] 齋藤 理一郎, 篠原 久典, 「カーボンナノチューブの基礎と応用」培風館 2004
- [7] I. Hanasaki, A. Nakatani, *J. Phys. Chem.*, **124**(2006)144708
- [8] D. W. Brenner, *Phys. Rev. B*, **42**-15 (1990), 9458.
- [9] Tersoff, *J. Phys. Rev. Lett.*, **56**-6 (1986), 632.
- [10] 岡崎 進 「コンピューターシミュレーションの基礎」化学同人 2000
- [11] H.J.C. Brendsen, J.R. Grigera, T.P. Straatsm, *J. Phys. Chem.*, **91**(1987)6269
- [12] G. S. Heffelfinger, F van Swol, *J. Phys. Chem.*, **100**(1994)7548
- [13] J. Koplik, J.R. Banavar, J.F. Willemsen, *Phys. Rev. Lett.*, **60**(1988)1282
- [14] V.P. Sokhan, D. Nicholson, N. Quirke, *J. Phys. Chem.*, **117**(2002)8531
- [15] 五十嵐 康弘 「分子動力学法による単層カーボンナノチューブの界面熱抵抗」, 東京大学 学位論文, 2005

以上

卒業論文

カーボンナノチューブ内の
流れと熱伝達の分子動力学

通し番号 1-49 ページ完

平成 20 年 2 月 1 日提出

指導教員 丸山 茂夫教授

60213 島 洸一