

# 単層カーボンナノチューブの接触熱抵抗 Thermal Boundary Resistance of Single Walled Carbon Nanotubes

○正 丸山 茂夫 (東大院)                      学 五十嵐 康弘 (東大院学)  
 学 谷口 祐規 (東大院学)                    正 澁田 靖 (東大院学)

Shigeo MARUYAMA, Yasuhiro IGARASHI, Yuki TANIGUCHI and Yasushi SHIBUTA

Molecular dynamics simulations of heat transfer between nanotubes in a bundle of 7 SWNTs were performed. Initially, whole system was kept at 300 K for 100 ps. Then, the temperature of only the center SWNT was suddenly heated up to 1000 K and temperature control was stopped. By monitoring the temperature of each SWNT, heat transfer from the center nanotube to surrounding nanotubes were calculated. We found that this heat transfer rate was well characterized by the thermal boundary resistance (TBR) between nanotubes. TBR value was estimated to be  $1.0 \times 10^{-7} \text{ m}^2 \text{ K/W}$ . We have defined a length scale that can express the amount of TBR in comparison to the axial heat conduction. The estimated length was about  $1 \mu\text{m}$ .

*Key Words:* Carbon Nanotube, Molecular Dynamics, Thermal Resistance

## 1. 背景・目的

単層カーボンナノチューブ(SWNT)は、際立った多くの特性によって、様々な応用が期待され、研究が精力的に進められている。中でも、軸方向の高い熱伝導性はナノデバイスにおける一次元的熱伝導物質としての応用が見込まれている<sup>(1)</sup>。しかし、SWNTを熱デバイス素材として利用する場合、軸方向の伝熱特性のみならず、半径方向の伝熱特性、つまりバンドルの状態における各SWNT間の熱抵抗や、他の物質との間の熱抵抗も知っておく必要がある。また、熱抵抗と軸方向の熱伝導率との兼ね合いで、どの程度の長さにおいて、SWNTが一次元的熱伝導物質とみなすことができるかも決まる。そこで、本研究では、SWNTのバンドルにおける各SWNT間の熱抵抗や、さらに他の物質の例として水との間の熱抵抗を、分子動力学シミュレーションを用いて計算した。

## 2. SWNTバンドルの熱抵抗

### 2.1 計算方法

ナノチューブバンドルにおける各チューブ間の熱抵抗を測定するため、分子動力学法を用いて計算を行った。炭素原子間のポテンシャルには、Brennerポテンシャル<sup>(2)</sup>とLennard-Jones(12-6) Potential ( $\sigma = 3.37 \text{ \AA}$ ,  $\epsilon = 3.845 \times 10^{-22} \text{ J}$ )を適用した。分子動力学法の計算手法は既報と同様である<sup>(3)</sup>。

$50 \times 60 \times 60 [\text{ \AA}]$ のセルの中に(5, 5) SWNT(長さ  $50 \text{ \AA}$ , 原子数

400)を7本配置し(Fig.1), 全体を300 Kで100 psの間緩和した後、速度スケールリング法を用いて、中央のSWNTを1000 Kに加熱した。その後、一切の温度制御をやめて中央のSWNT(hot tube)と周囲のSWNT(cool tube)の温度変化を観察した。

### 2.2 計算結果

Fig.2は中央のSWNTの温度と、それ以外の6本のSWNTの温度の時間変化を示している。中央のSWNTから他の6本に熱が伝わっていることが分かる。Fig.3は、中央(高温)と周囲(低温)のSWNTの温度差と、その変化を指数関数で近似した曲線を示したものである。近似式は、式(1)のようになった。

$$T_{hot} - T_{cool} = \exp(a + bt) \quad (1)$$

$$a = -3.36 \times 10^{-2}, \quad b = -3.241 \times 10^{10}$$

ナノチューブ1本を固体と考え、周囲のチューブとの伝熱が熱伝達率で表現できると考えると、長さのスケール(直径)が  $10^{-10} [\text{m}]$ 程度であり、ビオ数( $Bi = hL/\lambda$ )が非常に小さいことから伝熱的には集中熱容量法を用いることができる。(式(2)) ( $S, c, V, \rho, R$ はそれぞれ、表面積、比熱、体積、密度、界面熱抵抗)

$$T_{hot} - T_{cool} = A \exp\left(-\frac{S}{R\rho cV}t\right) \quad (2)$$

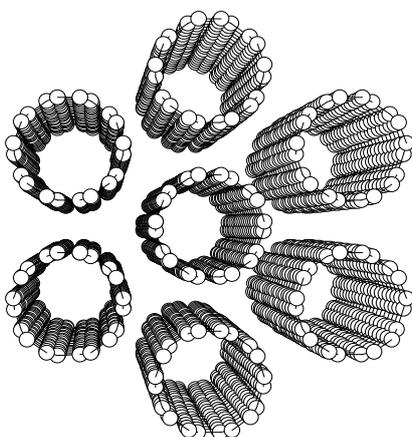


Fig.1 Initial condition

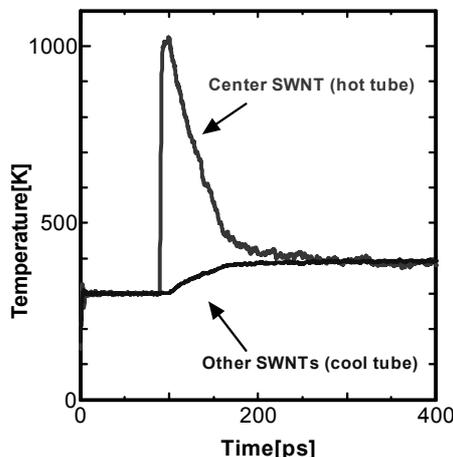


Fig.2 Temperature change of hot (center) SWNT and cool (surrounding) SWNTs

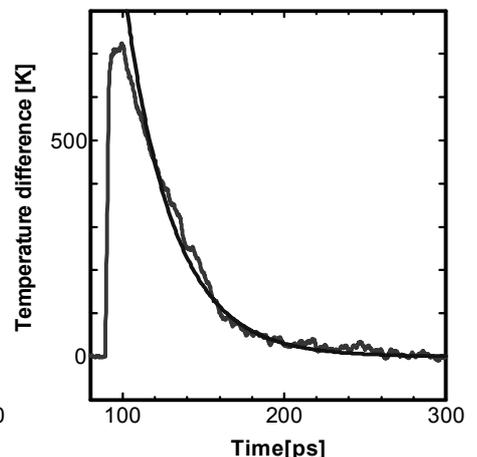


Fig.3 Change of temperature difference

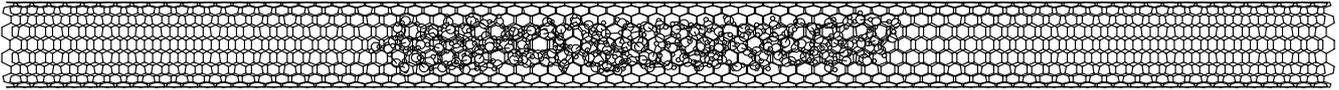


Fig 4 Initial condition

すなわち、界面熱抵抗 (1/h) で伝熱特性を表現することができる。式(1)と式(2)の指数部分の比較から、SWNT と SWNT の間にどの程度の界面熱抵抗(TBR)があるかを見積もった。その結果、SWNTとSWNT間の界面熱抵抗の値は、 $6.9 \times 10^{-8} [\text{m}^2\text{K}/\text{W}]$ 程度であると見積もられた。この次元は、熱伝達率の逆数であり、熱伝達率で表現すると、 $1.4 \times 10^7 [\text{W}/\text{m}^2\text{K}]$ となる。

### 2.3 考察

SWNTの軸方向の熱伝導率は、 $1000 \text{ W}/\text{mK}$ 程度と見積もられている。SWNTの伝熱特性の一つとして、異方性が挙げられるが、ここでSWNTの軸方向と、半径方向の熱伝導の比を求める。

軸方向と、半径方向の伝熱量を比較するため、それぞれの方向での熱抵抗を比較する。長さLの場合、軸方向の熱抵抗は  $L/Ah$  (ただし、AはSWNT断面積) で表せ、半径方向の熱抵抗は  $1/A'h$  (A'は表面積)。これらの熱抵抗が等しくなるときのSWNT長さは、軸方向の熱伝導と比較した界面熱抵抗を示す特性長となる。このSWNT長さを Characteristic Length of TBR ( $L_{TBR}$ ) とする。

$$\frac{L}{\left(\frac{\pi d^2}{4}\right)\lambda} = \frac{1}{(\pi d L_{TBR})h} \quad L_{TBR} \approx \sqrt{\frac{\lambda d}{h}} \quad (3)$$

この(3)式に、本計算で得られた値(TABLE 1)を代入すると、(軸方向の熱伝導率は  $1000 [\text{W}/\text{mK}]$ とした) Characteristic Length of TBR は  $2.6 \mu\text{m}$  となった。つまり、SWNTの  $2.6 \mu\text{m}$  程度の長さである場合には、軸方向に伝わる熱量と半径方向に伝わる熱量が同じオーダーになるため、一次元的な熱伝達にならならず周囲のSWNTに熱が拡散していくことである。

TABLE 1

	S[m <sup>2</sup> ]	$\rho V$ [kg]	c[J/kgK]
SWNT and SWNT	$1.80 \times 10^{-17}$	$7.97 \times 10^{-24}$	1039
SWNT and Water	$2.88 \times 10^{-17}$	$5.74 \times 10^{-24}$	692

## 3. ナノチューブ-水の接触熱抵抗

### 3.1 計算方法

$201.18 \times 60 \times 60 [\text{\AA}]$ のセルの中に、(10, 10) SWNT と、その内部に 192 個の水分子を配置し、分子動力学法を用いて計算を行った。炭素原子に関しては前節と同じように Brenner ポテンシャルを用い、水は SPC/E ポテンシャルを用いて表現した。炭素-水の間には、L-J ポテンシャルと、四重極モーメントによるポテンシャル<sup>(4)</sup>の和で表した。計算手法は既報と同様である<sup>(5)</sup>。

まず、初めの 100 ps は系全体を 300 K に保つように、温度制御を施し、次に、SWNT を 1000 K に加熱して、その後は、一切の温度制御をなくし SWNT と水のそれぞれの温度変化を観察した。

### 3.2 計算結果

Fig. 4 は、SWNT と水の温度変化、その温度差の変化とその近似曲線を示している。近似曲線の式は、(1)式のように

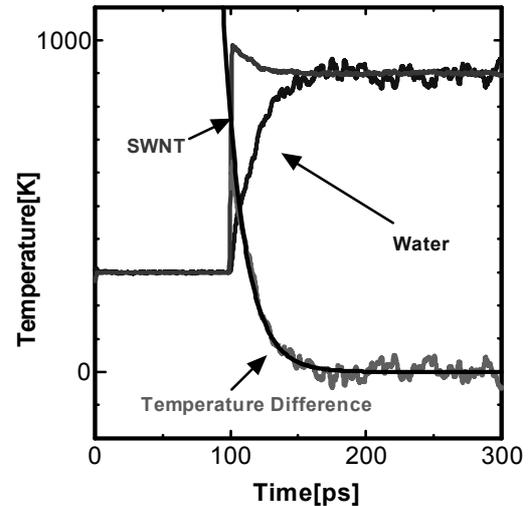


Fig.5 Temperature change of SWNT and Water

になった。

$$a = 12.43, \quad b = -5.945 \times 10^{10}$$

前節と同じように集中熱容量法を用いて、温度差の変化から界面熱抵抗を見積もったところ、 $1.2 \times 10^{-7} [\text{m}^2\text{K}/\text{W}]$ 程度であると見積もられた。

### 3.3 考察

SWNT-水間の熱抵抗に関しても、式(3)を用いて Characteristic Length of TBR を求めると、 $0.34 \mu\text{m}$  と求められた。つまり、水と直接熱の授受を行っている状態では、SWNTの長さが  $0.34 \mu\text{m}$  程度になったところで、軸方向の伝熱と、水への熱の拡散が同じオーダーになる。

## 4. 結論

分子動力学法を用いることで、SWNT-SWNT や SWNT-水の熱抵抗を見積もり、それぞれ、 $6.9 \times 10^{-8} [\text{m}^2\text{K}/\text{W}]$ 、 $1.2 \times 10^{-7} [\text{m}^2\text{K}/\text{W}]$  という値を得た。その値と、SWNTの軸方向の熱伝導率を比較し、どの程度の長さにおいてSWNTが一次元熱伝達物質として働くかを考察した。

同じ次元で比較したところ、SWNTの伝熱特性が変わる点を Characteristic Length of TBR と定義し、その値を算出した。SWNT-SWNT間で  $2.6 \mu\text{m}$ 、SWNT-水間で  $0.34 \mu\text{m}$  であることが分かった。

SWNTの熱デバイスとしての応用を実現するには、他にも様々な物質との関係を調べる必要がある。この後の展開として、さらに数種の物質とSWNTの間の熱抵抗を計算する必要があると考える。

## 参考文献

- (1) S. Maruyama, *Microscale Thermophys. Eng.*, **7** (2003), 41.
- (2) D. W. Brenner, *Phys. Rev. B*, **42-15** (1990), 9458.
- (3) 澁田・丸山, ピーポッドからの2層ナノチューブ生成過程の分子動力学, 機論(B編), 投稿中
- (4) Walther, J. H. et al., *J. Phys. Chem. B*, **105** (2001), 9980.
- (5) 木村・丸山, 第40回日本伝熱シンポジウム講演論文集 Vol. 1, (2003), 33