

科学研究費補助金研究成果報告書

平成 22 年 6 月 8 日現在

研究種目：若手研究 (B)

研究期間：2007～2009

課題番号：19710083

研究課題名 (和文) カーボンナノチューブの熱伝導に関する理論的研究

研究課題名 (英文) Theoretical study on thermal transport in carbon nanotubes

研究代表者

山本 貴博 (YAMAMOTO TAKAHIRO)

東京大学・大学院理工学研究科・助教

研究者番号：30408695

研究成果の概要 (和文)：次世代ナノ電子デバイス開発に向けて、デバイスの発熱と放熱は最重要課題の1つである。本研究では、高効率な放熱材料として期待されているカーボンナノチューブの熱伝導特性の理論およびシミュレーション研究を遂行した。本研究の主な成果は、(1) 不純物や欠陥などによる熱伝導率の低下とそのメカニズムの解明、(2) 湾曲変形に対して強靱な高熱伝導性、(3) マイクロメートル長ナノチューブの準バリスティック熱伝導、(4) サブミクロン長のナノチューブ熱伝導シミュレーションのためのシミュレーション手法開発である。

研究成果の概要 (英文)：Toward the realization of next-generation nanodevices, the Joule heating and heat transport in nanomaterials are one of the high-priority issues. In this project, we have theoretically investigated the heat transport in carbon nanotubes, which are promising candidates for heat removal materials. The remarkable results of this project are (i) Reduction of thermal conductivity due to defects and impurities scattering, (ii) Bending robustness of thermal conductance, (iii) Quasi-ballistic transport in micrometer-length nanotubes, and (iv) Development of novel simulation technique for heat transport in sub-millimeter nanotubes.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007年度	1,300,000	0	1,300,000
2008年度	800,000	240,000	1,040,000
2009年度	600,000	180,000	780,000
総計	2,700,000	420,000	3,120,000

研究分野：複合新領域

科研費の分科・細目：ナノ・マイクロ科学、ナノ構造科学

キーワード：ナノチューブ・フラーレン、物性理論、熱工学、計算物理

1. 研究開始当初の背景

今日の半導体製造技術の進歩は“日進月歩”どころか“秒進分歩”と言われている。国際半導体技術ロードマップでの電界効果

トランジスタの開発実績は版を重ねる毎に前倒しされ、ムーアの法則を上回る速さで微細化と高性能化が進められている。一見順調

に進んでいるかのように思われる超微細半導体製造であるが、今後更なる微細化・高密度集積化を長期に渡って実現させるためには克服すべき課題は多い。中でも微細化にともなう消費電力と発熱は増加の一途を辿り、近年ますます深刻化している。

デバイス発熱問題を克服すべく新材料としてカーボンナノチューブ (CNT) が注目されている。CNT は炭素原子 6 員環ネットワークからなる筒状材料で、その直径は数ナノメートル、長さは数マイクロメートルに及ぶ。この特異な構造を反映して CNT は多彩かつ優れた物性を備えている。特に、ダイヤモンドを凌駕する高い熱伝導率や軽量でありながら機械的に強靱かつ柔軟であるなどの性質は、放熱デバイス応用にとって理想的である。実際、CNT を用いた放熱デバイスの試作品が既に関発されており、従来の放熱デバイスを遥かに凌ぐ放熱効率を実現している。

2. 研究の目的

1. で述べたように CNT の熱伝導研究はその重要性が認識されながらも、最近まで国内外において電気伝導ほど活発に行われることはなかった。その大きな理由として、CNT などのナノ材料の熱伝導率を高精度に測定することが電気伝導測定と比べてはるかに難しいことが挙げられる。最近になってようやく CNT の熱伝導率に関する実験データが報告され始めてきたが、その測定手法や試料の違いなどによって測定値にバラつきが大きく、結果の解釈が難しい。このような状況において、理論解析と計算機シミュレーションの果たす役割は大きく、ナノスケール熱伝導の基礎物理を理解しながら CNT に特有な熱伝導特性を開拓しそれを熱デバイスの設計へ活用することは極めて重要である。

しかしながら、これまでの CNT の熱伝導に関する理論研究は、不純物や欠陥を全く含まない CNT に対するものがほとんどである。また、熱伝導性を低下させる原因 (熱抵抗の原因) に関する詳細な研究は国内外において皆無に等しい。本研究は CNT の熱伝導に関する理論的研究の中でも、特に熱抵抗の原因解明に焦点を当てたものである。

3. 研究の方法

本研究を遂行するに当たって各種シミュレーション手法 (非平衡分子動力学法, 非平衡 Green 関数法, フォノン波束散乱シミュレーションなど) を併用した。

4. 研究成果

(1) 欠陥による熱抵抗

熱伝導率の低下の要因の 1 つとして考えられる欠陥の影響について詳しく調べた。欠陥の種類としては、原子空孔欠陥, ストーン・ウエルズ (SW) 欠陥, C^{13} 同位体について調べた。これらの欠陥の中でも原子空孔欠陥が室温熱伝導率を最も低下させることが分子動力学シミュレーションによって明らかとなった。また、原子空孔欠陥の濃度を増加させると急激に熱伝導率が減少し、1% 程度の欠陥濃度で純粋なナノチューブの熱伝導率の半分にまで低下することが明らかとなった。さらに、原子空孔欠陥による熱伝導率低下のメカニズムを明らかにするために非平衡グリーン関数法を用いて非平衡フォノン密度の計算を行った結果、原子空孔欠陥周りの結合の切断された 3 つの炭素原子に局在したフォノンによる散乱が熱抵抗の原因であることが明らかとなった。

(2) 湾曲効果

CNT は強靱かつ柔軟な機械的性質を有することから、CNT を湾曲させてデバイスに応用することが可能である。放熱材としての応

用を念頭に置いた際には、湾曲変形によって CNT の高い熱伝導性が低下してしまうことが危惧される。そこで本研究では、湾曲変形が CNT の熱伝導性に及ぼす影響を非平衡分子動力学法によって調べた。その結果、CNT の6員環ネットワークが壊れないような湾曲変形によって、CNT の熱伝導率はほとんど影響を受けないことが明らかとなった。これは CNT がフォノン導波管として機能することを意味する。一方、6員環ネットワークが壊れてしまうような過度な湾曲変形に対しては熱伝導率が大きく低下することが明らかとなった。

(3) フォノン散乱の影響

本研究では非平衡分子動力学法によって CNT の室温での熱伝導率のチューブ長依存性を計算した。その結果、チューブ長を数ナノメートルから数マイクロメートルへと変化させたとき、熱伝導率がチューブ長に対して非線形に増加することが分かった。この非線形性の原因を明らかにするためにフォノン透過モデルによる理論解析を行った結果、室温でのマイクロメートル長のCNTにおいては『バリスティックなフォノン』と『拡散的なフォノン』が共存して熱流を担っており、その共存の結果として熱伝導率の長さ依存性に非線形性が現れることが明らかとなった。

(4) 非平衡分子動力学法の改良

現在、非平衡分子動力学法を用いてマイクロメートル長のナノチューブの熱伝導をシミュレートすることが可能である。次なる狙いはミリメートル長のナノチューブの熱伝導性のシミュレーション予測であり、そのためには新しいアルゴリズムの開発が必要である。本研究では、温度制御領域を仮想的に半無限大に見立てることによって、中心領域と温度制御領域での非物理的なフォノン反射を抑え

るシミュレーション手法を提案した。具体的には、温度制御領域の端の原子層の運動方程式にフォノン吸収項を付加することを行った。このフォノン吸収境界条件をCNTの熱伝導に応用したのは本研究が初めてである。フォノン吸収境界条件をCNTに用いた結果、温度制御領域の端の原子層を固定した場合（固定端境界条件）と比べて、CNTの中心領域と温度制御領域の界面での温度ドロップが小さくなった、すなわち、界面での非物理的なフォノン散乱が抑制された。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 11 件)

- ① 山本貴博, 渡辺一之, 渡邊聡, カーボンナノチューブの量子化熱伝導度、日本物理学会誌、査読有、42 巻、2007、355-359
- ② 山本貴博, 渡辺一之, 渡邊聡, カーボンナノチューブの熱輸送、固体物理、査読有、42 巻、2007、21-34
- ③ T. Yamamoto, Y. Nakazawa, K. Watanabe, Control of electron- and phonon-derived thermal transport in carbon nanotubes、New Journal of Physics、査読有、Vol. 9、2007、pp. 245-1-245-11
- ④ M. Morooka, T. Yamamoto, K. Watanabe, Defect-induced circulating thermal current in graphene with nanosized width、Physical Review B、査読有、Vol. 77、2008、pp. 033412-1-033412-4
- ⑤ Y. Girard, T. Yamamoto, K. Watanabe, Current-Induced Forces in Conducting and Semiconducting Carbon Nanotubes、Journal of Physics: Conference Series、査読有、Vol. 100、2008、pp. 052063-1-052063-4
- ⑥ S. Satofumi, T. Yamamoto, K. Watanabe, Numerical Simulation of the Electronic Transport in Graphene Nano-Ribbon Devices、Journal of Computational Electronics、査読有、Vol. 7、2008、pp. 390-393
- ⑦ Y. Girard, T. Yamamoto, K. Watanabe, Spin-Polarized Current Induced by

Adatoms in Metallic Carbon Nanotubes, e-Journal of Surface Science and Nanotechnology, 査読有、Vol. 6、2008、pp. 157–160

- ⑧ E. R. Hernandez, R. Rurai, A. Barreiro, A. Bachtold, T. Takahashi, T. Yamamoto, and K. Watanabe, Using Thermal Gradients for Actuation in the Nanoscale, UTAM Symposium on Modelling Nanomaterials and Nanosystems, 査読有、Vol. 13、2008、pp. 141–150
- ⑨ F. Nishimura, T. Takahashi, T. Yamamoto, K. Watanabe, Bending Robustness of Thermal Conductance of Carbon Nanotubes: Nonequilibrium Molecular Dynamics Simulation, Applied Physics Express, 査読有、Vol. 2、2009、pp. 035003-1–035003-3
- ⑩ 山本貴博, 塩見淳一郎, カーボンナノチューブの熱伝導シミュレーション, 日本金属学会誌, 査読有、Vol. 73、2009、pp. 583–588
- ⑪ T. Yamamoto, S. Konabe, J. Shiomi, S. Maruyama, Crossover from Ballistic to Diffusive Thermal Transport in Carbon Nanotubes, Applied Physics Express, 査読有、Vol. 2、2009、pp. 095003-1–095003-3

[学会発表] (計30件)

- ① T. Yamamoto, 他, Ballistic Thermal Transport in Carbon Nanotubes, International Symposium on Frontier in Computational Science of Nanoscale Transport, 2007年6月7日、東京
- ② M. Morooka, T. Yamamoto, K. Watanabe, Circulating Phonon Current at Zero-Transmission Dips in Defective Graphene Nanoribbons, International Symposium on Frontiers in Computational Science of Nanoscale Transport, 2007年6月7日、東京
- ③ T. Takahashi, T. Yamamoto, K. Watanabe, Phonon wavepacket scattering simulations on graphene nanojunctions, International Symposium on Frontiers in Computational Science of Nanoscale Transport, 2007年6月7日、東京
- ④ T. Yamamoto, K. Yamada, K. Watanabe, Liouville-von Neumann equation approach to time-dependent electronic transport in molecular bridges, IVC-17/ICSS-13 and ICN+T2007 congress, 2007年7月3日、Stockholm
- ⑤ T. Takahashi, T. Yamamoto, K. Watanabe, Phonon Wavepacket dynamics simulation on graphene nanoribbon junctions, 第33回フラーレン・ナノチ

ューブ総合シンポジウム, 2007年7月11日-13日、福岡

- ⑥ 山本貴博, 伝導計算の現状と課題: 熱伝導、大規模・高精度電子状態計算手法に関する研究会 II, 2007年7月25日、茨城
- ⑦ 諸岡雅弘, 山本貴博, 渡辺一之, グラフェンナノリボンのフォノン伝導に及ぼすSW欠陥の影響 – 非平衡グリーン関数法と波束法による解析 –, 日本物理学会2007年秋季大会, 2007年9月22日、北海道
- ⑧ T. Yamamoto, Recent Development in Thermal Transport Study of Carbon Nanotubes, 9th International Conference on Atomically Controlled Surfaces, Interfaces and Nanostructures, 2007年12月12日、東京
- ⑨ T. Takahashi, T. Yamamoto, K. Watanabe, Molecular dynamics study on interfacial resistance of graphene nanoribbon junctions, 9th International Conference on Atomically Controlled Surfaces, Interfaces and Nanostructures, 2007年12月12日、東京
- ⑩ T. Yamamoto, K. Yamada, K. Watanabe, Polaron Effects on Transient Current Behavior of Atomic Contacts, 15th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy, 2007年12月6日、静岡
- ⑪ 山本貴博, ナノカーボン物質のフォノン輸送理論, 日本物理学会 第63回年次大会, 2008年3月22日、大阪
- ⑫ 山本貴博, カーボンナノチューブ研究・開発における「ブレークスルー」にいま何が必要か? : はじめに, 日本物理学会 第63回年次大会, 2008年3月23日、大阪
- ⑬ 西村史生, 斉田卓也, 山本貴博, 渡辺一之, 多層カーボンナノチューブとナノピポッドの熱伝導に関する非平衡分子動力学計算, 日本物理学会 第63回年次大会, 2008年3月23日、大阪
- ⑭ 高橋徹, 山本貴博, 渡辺一之, 多層カーボンナノチューブの熱伝導に関する波束打ち込みシミュレーション, 日本物理学会 第63回年次大会, 2008年3月23日、大阪
- ⑮ T. Yamamoto, From Coherent to Incoherent Heat Transport in Carbon Nanotubes, Transmission of Information and Energy in Nonlinear and Complex Systems 2008, 2008年6月5日、Singapore
- ⑯ T. Takahashi, T. Yamamoto, K. Watanabe,

- Phonon Wavepacket Simulations on Multi-Walled Nanotubes, Transmission of Information and Energy in Nonlinear and Complex Systems 2008, 2008年6月5日、Singapore
- ⑰ F. Nishimura, T. Takahashi, T. Yamamoto, K. Watanabe, Phonon Wavepacket Simulations on Multi-Walled Nanotubes Molecular-dynamics Simulations on Heat Conduction in Peapod, Transmission of Information and Energy in Nonlinear and Complex Systems 2008, 2008年6月5日、Singapore
- ⑱ T. Yamamoto, 6th US-Japan Joint Seminar on Nanoscale Transport Phenomena - Science and Engineering, Transmission of Information and Energy in Nonlinear and Complex Systems 2008, 2008年6月5日、Boston
- ⑲ 早川健, 山本貴博, 渡辺一之、光照射による半導体 CNT の電気伝導制御、日本物理学会 2008 年秋季大会、2008 年 9 月 23 日、岩手
- ⑳ 山本貴博, 小鍋哲, 西村史生, 渡辺一之、カーボンナノチューブの準弾道的フォノン熱伝導に関する現象論的アプローチ、日本物理学会 2008 年秋季大会、2008 年 9 月 23 日、岩手
- 21 T. Hayakawa, T. Yamamoto, K. Watanabe, Photoconductance of Carbon Nanotubes: NEGF+DFT Calculations, International Symposium on Surface Science and Nanotechnology, 2008 年 11 月 12 日、東京
- 22 F. Nishimura, T. Yamamoto, K. Watanabe, Molecular Dynamics Simulations of Thermal Transport through van der Waals Coupling in Carbon Nanotubes, International Symposium on Surface Science and Nanotechnology, 2008 年 11 月 12 日、東京
- 23 D. Hirai, T. Hayakawa, S. Konabe, T. Yamamoto, K. Watanabe, Photo-Induced Electronic Transport in Nitrogen-Doped Carbon Nanotubes, The 16th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy, 2008 年 12 月 11 日、静岡
- 24 F. Nishimura, T. Yamamoto, K. Watanabe, Molecular Dynamics Study of Thermal Transport in Carbon Nanotubes with Atomic Defects and Bending, The 16th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy, 2008 年 12 月 12 日、静岡
- 25 山本貴博, 西村史生, 高橋徹, 渡辺一之、Molecular-Dynamics Simulations on Carbon-Nanotube Phonon Fiber, 第 36 回フラーレン・ナノチューブ総合シンポジウム、2009 年 3 月 2 日、愛知
- 26 西村史生, 山本貴博, 渡辺一之、Molecular-Dynamics Simulations on Thermal Transport in Peapod and Multi-Walled Carbon Nanotube, 第 36 回フラーレン・ナノチューブ総合シンポジウム、2009 年 3 月 2 日、愛知
- 27 西村史生, 山本貴博, 渡辺一之、非平衡分子動力学法によるピーポッドと多層カーボンナノチューブの熱伝導度計算、日本物理学会、第 64 回年会、2009 年 3 月 29 日、東京
- 28 山本貴博、カーボンナノチューブ熱伝導のバリスティック-拡散クロスオーバー、ナノ学会 第 7 回大会、2009 年 5 月 9 日、東京
- 29 D. A. Thomas, T. Yamamoto, S. Watanabe, Molecular-dynamics simulations on heat transport in carbon nano-structures under non-reflecting boundary conditions, 日本物理学会 2009 年秋季大会、2009 年 9 月 26 日、熊本
- 30 山本貴博、カーボンナノチューブ熱伝導シミュレーションの最近の進展、日本熱物性学会「マイクロ・ナノスケールの熱物性とシステムデザイン」、2009 年 12 月 11 日、東京

〔図書〕(計 2 件)

- ① T. Yamamoto, K. Watanabe, E.R. Hernandez, "Mechanical Properties, Thermal Stability and Heat Transport in Carbon Nanotubes" in Carbon Nanotubes: Advanced Topics in the Synthesis, Structure, Properties and Applications, Topics in Applied Physics 111, 155-182 (Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg 2008): A. Jorio, M.S. Dresselhaus, and G. Dresselhaus (Eds.)
- ② T. Yamamoto, K. Watanabe, S. Watanabe, "Thermal Transport of Small Systems" in Oxford Handbook of Nanoscience and Technology: Frontiers and Advances (Oxford University Press) A. Narlikar and Y. Fu (Eds.)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

山本 貴博 (YAMAMOTO TAKAHIRO)
 東京大学・大学院理工学研究科・助教
 研究者番号：30408695