

分子接合によるカーボンナノチューブ凝集体の熱伝導率制御の可能性

Controllability of the Thermal Conductivity of Carbon-Nanotube Aggregates
by Molecular Junctions奈良先端大物質, 関本祐紀, 岩堀健治, 鄭 敏喆, 小島広孝, 辨天宏明, [○]中村雅一NAIST, Y. Sekimoto, K. Iwahori, M.-C. Jung, H. Kojima, H. Benten, [○]M. Nakamura

E-mail: mnakamura@ms.naist.jp

IoT のためのセンサーやウェアラブルデバイスの電源として身の回りの廃熱を利用して発電するフレキシブル熱電変換デバイスが期待されており、近年有機あるいは有機無機ハイブリッド熱電材料が盛んに研究されている。この目的のために、我々は、カーボンナノチューブ(CNT)の接合部に特殊なタンパク質を挿入することで、パワーファクターは落とさずに熱伝導率を劇的に下げられること[1,2]や、十分な素子厚みと柔軟性を両立できる CNT 紡績糸を用いた布状熱電素子[3-5]を提案・実証し、研究を進めてきた。その過程で、上述のようにタンパク質分子接合によって熱伝導率を劇的に下げることができるだけでなく、CNT を紡績することで極めて大きな熱伝導率が得られる場合があることも判ってきた。今回、CNT 複合材料という枠内において、試料作製方法と複合化させる有機材料を変えることによって、熱伝導率がどれだけ下げられるのか、あるいは、上げられるのかを探索することを目的とし、熱伝導率評価に主眼を置いて実験を行った結果の現状を報告する。

CNT/かご状タンパク質複合材料については、既報の方法[1,2]により水中でタンパク質分子を CNT に吸着させ、その分散液を乾燥させて凝集体膜（厚み 20-100 μm ）を作製した。また、同様の分散液から糸状試料も作製した[6]。CNT 紡績糸については、各種の分散剤やバインダーを添加した CNT 分散液を原料とし、既報の方法[3-5]により湿式紡糸により作製した（直径 20-50 μm ）。薄膜状の試料の厚み方向熱伝導率は、アイフェイズ社製 ai-phase mobile 1u を用い、温度波熱分析法によって測定した。この方法は、比較的薄い試料の厚み方向熱伝導率を測定でき、接触熱抵抗の影響が少なく、有機系試料を劣化させる可能性がある金属膜の蒸着が不要という利点を有している。糸状試料の長手方向熱伝導率は、独自に作製した装置によって、導電性自立線状試料の熱伝導率を測定することができる 3 ω 法[8, 9]によって測定した。単一の糸状試料の熱伝導率を測定する方法としては、理論式の近似条件さえ満たしていれば信頼性の高い方法であると考えられる。

これまでに得られた暫定的な結果の一部を、表 1 および 2 に示す。薄膜状試料については、ニート CNT では 17~65 W/mK の値となっているのに対し、タンパク質分子接合を形成したものでは、0.1 W/mK 以下の値が得られている。なお、後者においても導電率はほとんど低下しなかった。柔軟な骨格を持つタンパク質分子が CNT 間に挿入されることで、熱輸送が効果的に抑制されることを示していると考えられる。一方、糸状試料の長手方向熱伝導率については、特定の CNT/ポリマー紡績糸において、極めて高い熱伝導率が測定されている。講演では、熱伝導率測定の信頼性について評価した結果や、試料の組成や作製法による熱伝導率の変化についても報告する。

[1]伊藤他: 第 75 回秋季講演会 19p-A3-17. [2] M. Ito et al., *Appl. Phys. Express* **7**, 065102 (2014) [3] 伊藤他: 第 63 回春季講演会 21p-W351-9. [4] M. Ito et al., *J. Mater. Chem. A* **5**, 12068 (2017). [5] 小泉他: 第 77 回秋季講演会 15a-B13-3. [6] 濱邊他: 第 65 回春季講演会（発表予定） [7] 森川, 橋本: ネットワークポリマー **34**, 110 (2013). [8] L. Lu et al., *Rev. Sci. Instrum.* **71**, 2996 (2001). [9] 関本他: 第 64 回春季講演会 14p-P4-16.

表 1. 薄膜状試料の厚み方向熱伝導率

試料	熱伝導率 (W/mK)
ニート CNT (1)	17.2
ニート CNT (2)	65
CNT/タンパク質 (1)	0.098
CNT/タンパク質 (2)	0.063

表 2. 糸状試料の長手方向熱伝導率

試料	熱伝導率 (W/mK)
金 (標準試料)	307
ニート CNT	30.5
CNT/ポリマー (1)	119
CNT/ポリマー (2)	456