

基于稳态电热拉曼技术的碳纳米管纤维导热系数测量及传热研究

李满 戴志高 应见见 肖湘衡 岳亚楠

Thermal characterization of carbon nanotube fibers based on steady-state electro-Raman-thermal technique

Li Man Dai Zhi-Gao Ying Jian-Jian Xiao Xiang-Heng Yue Ya-Nan

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 64, 126501 (2015) DOI: 10.7498/aps.64.126501

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.126501>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2015/V64/I12>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

考虑界面散射的金属纳米线热导率修正

Thermal conductivities of metallic nanowires with considering surface and grain boundary scattering

物理学报.2013, 62(18): 186501 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.186501>

用拉曼光谱测量 GeSbSe 玻璃的热导率

Thermal conductivity measurement on GeSbSe glasses: Raman scattering spectra method

物理学报.2014, 63(13): 136502 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.136502>

相变材料热物理性质的分子动力学模拟

Molecular dynamics simulation of the thermophysical properties of phase change material

物理学报.2013, 62(5): 056601 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.056601>

非简谐振动对纳米金刚石表面性质的影响

The influence of anharmonicity on the surface effect in nanodiamond

物理学报.2012, 61(10): 106501 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.61.106501>

聚对苯撑/LiNi_{0.5}Fe₂O₄ 纳米复合热电材料的制备及其性能研究

Study on the preparation and properties of polyparaphenylene/LiNi_{0.5}Fe₂O₄ anocomposite thermoelectric materials

物理学报.2012, 61(7): 076502 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.61.076502>

基于稳态电热拉曼技术的碳纳米管纤维导热系数测量及传热研究*

李满¹⁾ 戴志高²⁾ 应见见²⁾ 肖湘衡²⁾ 岳亚楠^{1)†}

1) (武汉大学动力与机械学院, 武汉 430072)

2) (武汉大学物理科学与技术学院, 武汉 430072)

(2014年12月23日收到; 2015年1月29日收到修改稿)

利用稳态电热拉曼技术测量了碳纳米管纤维对流换热环境下的导热系数. 该方法基于材料拉曼信号与温度之间的关系, 实时探测一维材料在不同电加热(内热源)下的中心点温度, 利用对流环境下的稳态导热模型推导出材料的导热系数, 实现了一维微纳材料热物性的无损化和非接触式测量. 实验发现: 碳纳米管纤维的导热系数远低于单根碳纳米管的导热系数, 但高于碳纳米管堆积床的导热系数. 这表明碳纳米管体材料的热物性主要取决于内部管束的列阵和管束间的接触热阻.

关键词: 拉曼散射, 碳纳米管纤维, 导热系数, 界面热阻

PACS: 65.80.-g, 65.90.+i

DOI: 10.7498/aps.64.126501

1 引言

碳纳米管是碳原子以 sp^2 键结合而成, 具有管状结构的一维纳米材料^[1,2]. 近二十年来, 碳纳米管因其优异的电学、热学和力学特性一直是研究的热点之一. 由于单根碳纳米管直径为纳米量级, 不便操控, 一般需要将其组装成宏观结构, 如碳纳米管纤维、碳纳米管阵列等进行应用. 其中, 碳纳米管纤维及其复合材料保留了碳纳米管优异的力学性能, 在航空航天、防弹设备、体育器材等领域有较大的应用潜力^[3]. 人们对碳纳米管纤维及其复合材料的机械性质研究较多^[4-6], 而对其热学性质的研究并不充分. 当碳纳米管被集合成纤维管束时, 内部的结构将对材料的传热性质影响较大. 目前已测的单根碳纳米管的导热系数高达 $3000\text{ W}/(\text{m}\cdot\text{K})$ ^[7], 而理论研究表明缺陷、管壁和长度等因素会降低其导热系数^[8,9]. 可以预见的是, 宏观的碳纳米管纤维由于缺陷和界面的存在, 其导热系数会远小于单根碳纳米管. 前人的工作中, Ericson等^[4]测得

发烟硫酸法所制备的碳纤维材料的导热系数仅为 $20\text{ W}/(\text{m}\cdot\text{K})$; Aliev等^[10]采用固相纺丝法获得的碳纳米管纤维的导热系数为 $26\text{ W}/(\text{m}\cdot\text{K})$, 说明不同的制备方法所带来的结构上的不同会对其材料的传热性能产生影响. 因此, 深入研究碳纳米管束的结构对其导热系数的影响尤为重要.

在一维材料的热物性测量方法中, 3ω 方法应用较广^[11,12], 但其要求样品具有显著的伏安特性曲线, 且对测量信号(三倍频信号)的信噪比有较高的要求. 微桥法^[13]在一维材料的测量中已有广泛的应用, 但样品和电极之间的接触热阻对材料的热物性测量会产生一定的影响, 且微桥法所使用的样品台设计较为复杂, 对实验系统的要求较高. 拉曼热测量技术是基于材料拉曼散射信号随材料温度发生变化这一特性而开发的新型热物性测量方法, 由于拉曼测温具有超高的空间分辨率, 可适用于各种稳态或瞬态传热模型的传热测量, 近年来已在碳纳米管、硅纳米线和石墨烯等纳米材料的传热研究中广泛应用^[14-18]. 在前期的工作中, Yue等^[17]发

* 国家自然科学基金青年科学基金(批准号: 51206124)资助的课题.

† 通信作者. E-mail: yyue@whu.edu.cn

明了适用于测量一维微/纳米材料的稳态电热拉曼技术. 该方法建立了一维材料在均匀内热源下的稳态导热模型, 利用拉曼光谱测量样品中心点在电加热条件下的温升, 继而对样品中心温度与加热功率之间进行线性拟合推导出材料的导热系数, 具有测量方法简单、无损化和非接触等优点. 本文利用稳态电热拉曼技术测量碳纳米管纤维材料的传热性质, 并将该方法拓展至对流换热的条件下进行热物性测量, 继而分析结构和加热等条件对材料导热性质的影响.

2 实验原理及一维导热模型推导 (考虑对流换热效应)

如图1所示, 在稳态电热拉曼技术中, 样品端点用银胶黏在铝块(热沉)上, 与电源相连形成通路. 对样品施加恒定的电流进行加热, 此时样品的温度分布如图1(右下)所示. 铝块作为热沉, 其尺寸远大于样品, 因此可认为样品端点的温度维持在室温. 根据带有内热源的一维导热模型可知样品的温度分布为^[17] $T(x) = I^2RL/(2A_c k) \cdot (1/4 - x^2/L^2) + T_0$, 其中, I 为加热电流, R 为样品电阻, k 为样品导热系数, A_c 为样品横截面积, L 为样品长度, x 为碳纤维上任一点距离中心点的距离, T_0 是环境温度. 由该式可知, 样品的最大温度在样品中心处 ($x = 0$). 将拉曼散

射激光聚焦于样品中心处, 根据扫描的拉曼光谱信号可以确定样品中心点在不同加热强度下的温度, 即 $T(0) = I^2RL/(8A_c k) + T_0$. 由此式可知样品中心点温度与加热功率 I^2R 成线性关系, 导热系数可由斜率推出. 上述稳态电热拉曼方法中的一维导热模型是建立在真空条件下, 即忽略了对流换热的热损失. 然而在实际的光学测量中, 难以维持较高的真空环境且光路在穿过真空窗口时会产生一定的信号损失, 继而导致相应的测量误差. 因此, 为提高稳态电热拉曼方法的适用性, 本文考虑对流换热的影响, 将该方法拓展至空气环境中进行热物性测量.

考虑对流换热, 导热微分方程为 $d^2T/dx^2 - hS(T - T_0)/(kA_c) + Q/(kA_cL) = 0$, 令温升为 $u = T - T_0$, 则方程可写为 $d^2u/dx^2 - hSu/(kA_c) + I^2R/(kA_cL) = 0$. 式中第二项为对流换热项, h 为材料与空气的对流换热系数, S 为材料的截面周长, A_c 为截面面积; 第三项为内热源项, Q 为电加热功率 (I^2R). 代入边界条件: $T(L/2) = T_0$ 和 $dT/dx|_{x=0} = 0$, 可得材料内部的温度分布为

$$T(x) = \frac{I^2R}{hLS} \times \left(1 - \frac{e^{\sqrt{hS/(kA_c)}x} + e^{-\sqrt{hS/(kA_c)}x}}{e^{\sqrt{hS/(kA_c)}L/2} + e^{-\sqrt{hS/(kA_c)}L/2}} \right) + T_0, \quad (1)$$

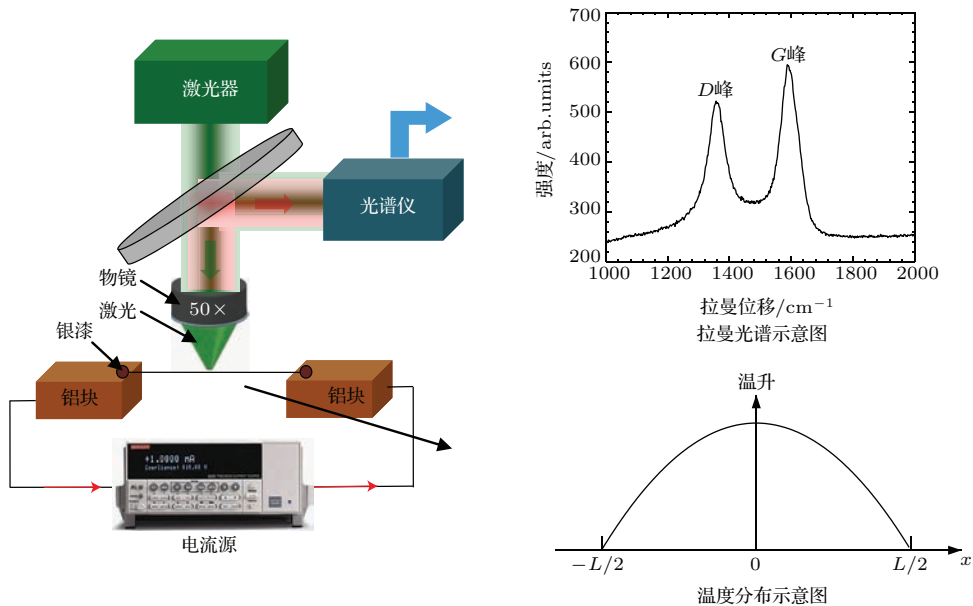


图1 (网刊彩色) 稳态电热拉曼技术测量碳纳米管纤维导热系数实验原理图

Fig. 1. (color online) The schematic of the steady-state electro-Raman-thermal technique for characterizing thermal conductivity of carbon nanotubes fiber.

当 $x = 0$ 时,

$$T(0) = \frac{I^2 R}{hLS} \times \left(1 - \frac{2}{e^{\sqrt{hS/(kAc)}L/2} + e^{-\sqrt{hS/(kAc)}L/2}} \right) + T_0. \quad (2)$$

由方程 (2) 可以看出, 中心点温度不仅与加热量 $I^2 R$ 有关, 还与 k 和 h 相关.

3 样品简介和实验细节

本文采用的碳纳米管纤维由南京吉仓纳米科技有限公司提供, 由浮动催化法制备. 相比较发烟硫酸法^[4]和固相纺丝法制备的碳纳米管纤维^[3](拉伸强度分别约为 116 和 460 MPa), 本文采用的碳纳米管纤维的拉伸强度较高, 为 800—1000 MPa, 直径为 13 μm , 其微观结构如图 2 (a) 所示.

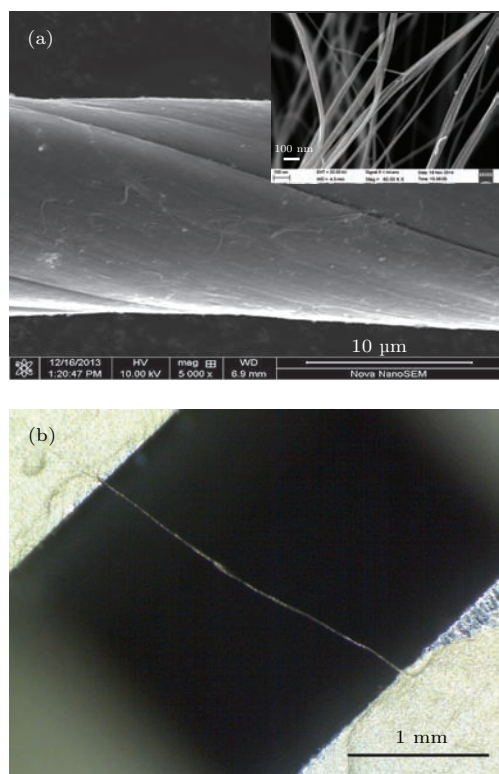


图 2 (a) 碳纳米管纤维的扫描电镜图; (b) 显微镜下碳纳米管纤维样品图

Fig. 2. (a) The scanning electron microscope images of carbon nanotubes fiber; (b) the image of carbon nanotubes fiber adhered on stages.

本文中使用的拉曼光谱仪是由 HORIBA Jobin Yvon 公司生产的 LabRam HR 共焦光谱仪, 分辨率为 0.65 cm^{-1} . 测试过程中激光器的激光功

率为 4 mW, 曝光时间为 1 min, 物镜为 $50\times$. 本文实验过程主要分为两个阶段: 1) 拉曼信号温度系数的校核实验; 2) 碳纳米管纤维热物性测量实验.

在校核实验过程中, 将碳纳米管纤维通过银胶黏在加热片表面, 在粘结点附近固定热电偶实时测量加热片的表面温度, 调整加热片的功率来控制加热片的表面温度, 从而实现了对碳纳米管纤维的温度控制. 在测温实验过程中, 碳纳米管纤维首先通过银胶粘结在距离为 2.53 mm 的样品台铝块上, 如图 2 (b) 所示. 对样品施以恒定电流加热, 电流强度从零开始到 13 mA 为止, 所对应的加热功率最高至 35.94 mW. 电流加热稳定后, 反复三次读取纤维中心的拉曼光谱. 如图 3 (a) 所示, 碳纳米管纤维的拉曼光谱有明显的 3 个特征峰, 分别是 1350 cm^{-1} 的双共振拉曼 (D 峰)、 1590 cm^{-1} 的切向振动模式 (G 峰)、 2700 cm^{-1} 的二阶模 ($2D$ 峰). 由 G 峰与 $2D$ 峰强度之比可判定本纤维样品由双层壁结构的碳纳米管构成. 此外 D 峰标识了样品的缺陷程度, 因此本样品的 D 峰信号较强说明样品内部单根碳纳米管的 C—C 结构存在较高的缺陷率.

4 实验结果与讨论

4.1 校核实验结果与讨论

拉曼光谱的强度 (峰高)、频率 (波数) 和半峰宽都与温度相关. Balandin 等^[15]利用石墨烯拉曼频率与温度的关系, 首次测得了悬置石墨烯具有高导热系数的特性. Yue 等^[18]利用拉曼热测量技术测量了外延生长石墨烯与 4H 碳化硅之间的接触热阻. Li 等^[14]对碳纳米管 G 峰频率的温度系数进行了标定, 发现 700 K 以内 G 峰的拉曼频率和温度之间可以看作线性, 并据此测量了单根碳纳米管的导热系数.

不同的碳材料在不同的激光照射下的拉曼信号的温度系数会有所不同, 因此测量不同材料和使用不同激光光源的实验需要重新标定温度系数. 本文样品的拉曼 G 峰位随温度变化的结果如图 3 (b) 所示, 温度系数为 $-0.02 \text{ cm}^{-1}/\text{K} \pm 0.005 \text{ cm}^{-1}/\text{K}$. 表 1 列出了其他碳材料 G 峰频率的温度系数, 范围在 $-0.015 \text{ cm}^{-1}/\text{K}$ 至 $-0.026 \text{ cm}^{-1}/\text{K}$ 之间, 与本文样品所测结果较为一致. 温度系数的差别来自于样品缺陷、质量以及其他不同实验条件 (如激光波长等) 的影响.

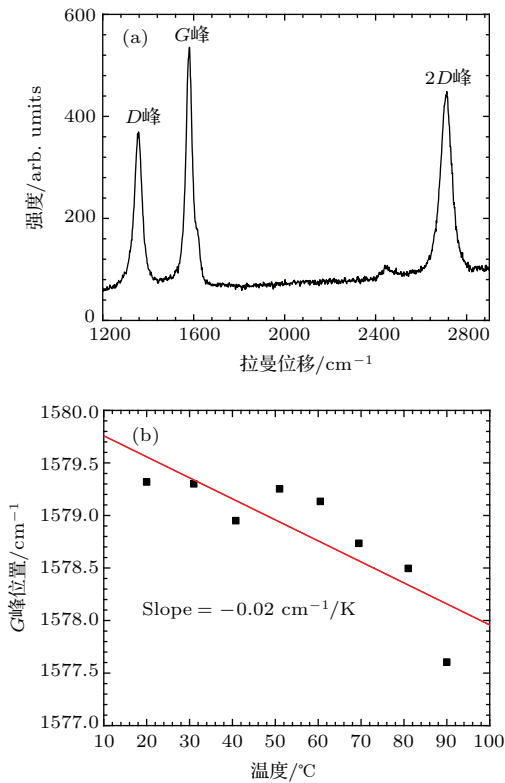


图3 (a) 样品拉曼光谱图; (b) 碳纳米管纤维 G 峰温度系数校核结果

Fig. 3. (a) A typical Raman spectrum of carbon nanotube fiber; (b) the linear fitting of the temperature coefficient of G peak position.

表1 碳纳米材料拉曼光谱 G 峰频率 (波数) 的温度系数
Table 1. The temperature coefficient of G peak position of allotropes of carbon in literature.

样品	温度系数 /cm ⁻¹ ·K ⁻¹	温度范围/K	文献
单壁碳纳米管	-0.0257	300—773	[14]
单壁碳纳米管	-0.0189	299—773	[19]
单层石墨烯	-0.0162	83—373	[20]
双层石墨烯	-0.0154	113—373	[20]
双层壁碳纳米管	-0.022	180—320	[21]
双层壁碳纳米管纤维	-0.02	293—363	本文

4.2 热测量实验结果与讨论

对于在空气中进行的低维材料的热测量实验, 由于其比表面积较高, 样品与空气之间的对流换热影响较为显著. 针对具有微纳结构的低维材料, 文献[22, 23]提出了一种计算微尺度对流换热系数的计算方程:

$$h = \left(2.68 + \frac{0.110}{\sqrt{D}} \right)^2, \quad 10 \mu\text{m} < D < 10 \text{ m}. \quad (3)$$

由此方程计算可得本文样品在空气(自然对流)中的对流换热系数为1102 W/(m²·K), 与文献[23—25]中相近直径的一维材料的实验和模拟值相近.

碳纳米管纤维的中心点温度随加热功率升高, 图4所示为碳纳米管的G峰信号, 高加热功率所对应的拉曼波峰位置向低波数方向偏移. 根据校核实验的G峰位移温度系数可知测量实验中不同加热功率下的样品中心点温度, 如图5所示. 另由上述计算所得的对流换热系数和实验测得的中心点温度随功率的变化关系可以拟合出理论温升曲线, 其中碳纳米管纤维的导热系数k是唯一的拟合参数. 拟合结果如图5所示, 黑点是实验所测的温升, 红色直线是拟合的结果, 拟合所得的导热系数为66.93 W/(m·K) ± 11.49 W/(m·K). 此测量值对应的中心点的温升范围为0—270 °C, 对应的整根碳纤维的平均温度为20—220 °C. 文献[7, 14]中单根碳纳米管的导热系数在1000 W/(m·K)以上. 对于宏观碳纳米管材料, 由于纳米管之间接触热阻的存在, 其导热系数会大幅降低. 有学者发现, 碳纳米管堆积床的导热系数可低于1 W/(m·K)[26]. 与单根碳纳米管不同, 碳纳米管纤维中存在大量的碳纳米管的接触界面. 研究发现, 对于两根直径为50 nm左右的碳纳米管的接触界面, 其界面热导在10⁻⁸ W/K数量级[27], 而对于一根长度为1 μm, 直径为50 nm的碳纳米管而言, 假设其导热系数为1000 W/(m·K), 其热导为G_{CNT} = kA_c/L ≈ 3 × 10⁻⁶ W/(m·K). 界面热阻高于碳纳米管本身热阻两个数量级, 说明界面传热主导了碳纳米管纤维中的传热, 从而导致碳纳米管纤维的导热系数远低于单根碳纳米管. 此外, 本文样品内部碳纳米管较高的缺陷率也是导致导热系数较低的原因, 因此, 本文测得碳纳米管纤维材料的导热系数值低于单根纳米管两个数量级是合理的. 对于制备方法对样品的传热性质产生的影响, 固相纺丝法和发烟硫酸法制备的碳纳米管纤维的导热系数要低于浮动催化法制备的样品[4, 10]. 这一点主要有两方面的原因: 1) 本文所测得的导热系数是高于室温条件下的导热系数, 而研究发现温度较高时碳纳米管纤维的导热系数会有所上升[10]; 2) 主要生成的碳纳米管纤维的排列与缺陷也不一样, 浮动催化法制备的样品拉伸强度较强, 说明浮动催化法制备的碳纳米管纤维其排列更加规律有序, 碳纳米管之间的连接更加紧密.

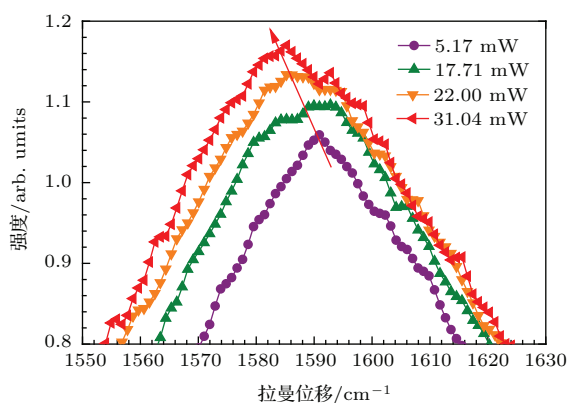


图4 (网刊彩色) 碳纳米管纤维拉曼光谱G峰随加热功率的变化

Fig. 4. (color online) The G peaks of carbon nanotubes fiber under different electrical heating power.

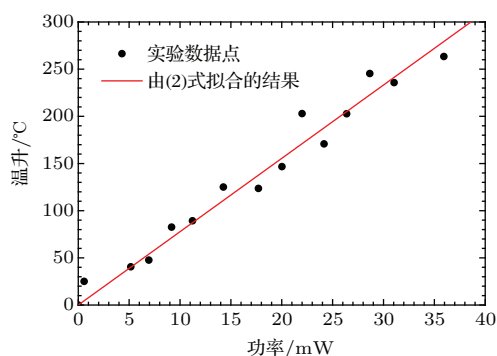


图5 (网刊彩色) 碳纳米管纤维中心点温升随加热功率变化的线性拟合图

Fig. 5. (color online) The linear fitting of temperature rise of middle point of carbon nanotubes fiber with the electrical heating power.

实验测量误差主要有两个方面: 辐射换热导致的热损失和中心点位置的测量偏移. 对于辐射换热损失, 在加热功率最大时辐射换热带来的热损失最大. 为粗略计算, 假设中心点温度为整根纤维的辐射换热温度, 发射率(ε)为1(最大值), 通过辐射换热公式 $E_b = \varepsilon\sigma A(T^4 - T_0^4)$ 可得样品最大的辐射换热功率为0.47 mW, 所对应电流的加热功率为36 mW, 辐射换热的影响仅为1.3%, 因此可以忽略不计. 假设中心点测量位置偏移20%(较大的估计), 即实际测量在 $x = 0.1L$ 处:

$$\frac{I^2 R}{hLS} \left[1 - \frac{e^{\sqrt{hS/(kAc)}L/10} + e^{-\sqrt{hS/(kAc)}L/10}}{e^{\sqrt{hS/(kAc)}L/2} + e^{-\sqrt{hS/(kAc)}L/2}} \right] + T_0.$$

拟合后导热系数为74.87 W/(m·K), 误差为11.9%. 在实验中, 测量中心点的位置偏移量远小于20%, 因此中心点位置的偏移不会带来较大的测量误差.

本文实验原理和操作简单, 且为非接触、无损化测量, 因此具有较强的适用性. 另外, 本文方法

不仅适用于大于激光斑点的样品测量, 同时也对小于激光光斑(1 μm)的样品具有适用性. 当样品小于激光斑点时, 拉曼散射所测得的样品温度不是样品中心点的温度, 而是样品的平均温度, 材料的导热系数也可测得. 此外, 由方程(1)可知, 在一定的加热功率下, 材料内部的温度场与材料的导热系数以及材料和周围介质之间的对流换热系数有关. 因此, 本文测量方法还可以利用导热系数已知的材料测量其在不同的流体介质中的对流换热系数, 也可以通过测量一维材料长度方向上不同位置处的温度, 继而实现材料的导热系数和材料在流体介质中的对流换热系数的双重测量.

5 结 论

本文利用稳态电热拉曼技术测量了碳纳米管纤维在空气自然对流条件下的导热系数. 通过在导热微分方程中添加对流换热项, 拓宽了该热物性测量方法的适用性. 实验发现, 碳纳米管纤维材料的导热系数为 $66.93 \text{ W}/(\text{m}\cdot\text{K}) \pm 11.49 \text{ W}/(\text{m}\cdot\text{K})$, 远小于单根碳纳米管的导热系数. 分析认为: 较低的导热系数来自于纤维中存在的大量接触界面, 继而导致较高的接触热阻; 碳纳米管结构中较高的缺陷率也会对材料的传热产生较大影响. 该测量方法不仅适用于高空间分辨率的温度探测和传热分析, 且可用于微尺度空间下的对流换热系数测量, 并可扩展至导热系数和对流换热系数的同步测量.

参考文献

- [1] Iijima S 1991 *Nature* **354** 56
- [2] Baughman R H, Zakhidov A A, de Heer W A 2002 *Science* **297** 787
- [3] Meng F C, Zhou Z P, Li Q W 2010 *Mater. Rev.* **24** 38 (in Chinese) [孟凡成, 周振平, 李清文 2010 材料导报 **24** 38]
- [4] Ericson L M, Fan H, Peng H, Davis V A, Zhou W, Sulpizio J, Wang Y, Booker R, Vavro J, Guthy C 2004 *Science* **305** 1447
- [5] Dalton A B, Collins S, Munoz E, Razal J M, Ebron V H, Ferraris J P, Coleman J N, Kim B G, Baughman R H 2003 *Nature* **423** 703
- [6] Koziol K, Vilatela J, Moiala A, Motta M, Cunniff P, Sennett M, Windle A 2007 *Science* **318** 1892
- [7] Pop E, Mann D, Wang Q, Goodson K, Dai H 2006 *Nano Lett.* **6** 96
- [8] Feng D L, Feng Y H, Chen Y, Li W, Zhang X X 2013 *Chin. Phys. B* **22** 016501

- [9] Feng Y, Zhu J, Tang D W 2014 *Chin. Phys. B* **23** 083101
- [10] Aliev A E, Guthy C, Zhang M, Fang S, Zakhidov A A, Fischer J E, Baughman R H 2007 *Carbon* **45** 2880
- [11] Wang Z L, Tang D W, Zheng X H, Bu W F, Zhang W G 2007 *J. Eng. Thermophys.* **28** 490 (in Chinese) [王照亮, 唐大伟, 郑兴华, 布文峰, 张伟刚 2007 工程热物理学报 **28** 490]
- [12] Choi T Y, Poulikakos D, Tharian J, Sennhauser U 2005 *Appl. Phys. Lett.* **87** 013108
- [13] Shi L, Li D, Yu C, Jang W, Kim D, Yao Z, Kim P, Majumdar A 2003 *J. Heat Transfer* **125** 881
- [14] Li Q, Liu C, Wang X, Fan S 2009 *Nanotechnology* **20** 145702
- [15] Balandin A A, Ghosh S, Bao W, Calizo I, Teweldebrhan D, Miao F, Lau C N 2008 *Nano Lett.* **8** 902
- [16] Doerk G S, Carraro C, Maboudian R 2010 *ACS Nano* **4** 4908
- [17] Yue Y, Eres G, Wang X, Guo L 2009 *Appl. Phys. A* **97** 19
- [18] Yue Y, Zhang J, Wang X 2011 *Small* **7** 3324
- [19] Raravikar N R, Keblinski P, Rao A M, Dresselhaus M S, Schadler L S, Ajayan P M 2002 *Phys. Rev. B* **66** 235424
- [20] Calizo I, Balandin A, Bao W, Miao F, Lau C 2007 *Nano Lett.* **7** 2645
- [21] Bassil A, Puech P, Tubery L, Bacsa W, Flahaut E 2006 *Appl. Phys. Lett.* **88** 173113
- [22] Peirs J, Reynaerts D, van Brussel H 1998 *Proceeding of the 1998 IEEE International Conference on Robotics and Automation* Leuven, Belgium, May 20–20, 1998 p1516
- [23] Churchill S W, Chu H H S 1975 *Int. J. Heat Mass Transfer* **18** 1049
- [24] Guan N, Liu Z, Zhang C, Jiang G 2014 *Heat Mass Transfer* **50** 275
- [25] Wang Z L, Liang J G, Tang D W 2012 *J. Eng. Thermophys.* **33** 670 (in Chinese) [王照亮, 梁金国, 唐大伟 2012 工程热物理学报 **33** 670]
- [26] Prasher R S, Hu X J, Chalopin Y, Mingo N, Lofgreen K, Volz S, Cleri F, Keblinski P 2009 *Phys. Rev. Lett.* **102** 105901
- [27] Yang J, Shen M, Yang Y, Evans W J, Wei Z, Chen W, Zinn A A, Chen Y, Prasher R, Xu T T, Keblinski P, Li D 2014 *Phys. Rev. Lett.* **112** 205901

Thermal characterization of carbon nanotube fibers based on steady-state electro-Raman-thermal technique*

Li Man¹⁾ Dai Zhi-Gao²⁾ Ying Jian-Jian²⁾ Xiao Xiang-Heng²⁾ Yue Ya-Nan^{1)†}

1) (School of Power and Mechanical Engineering, Wuhan University, Wuhan 430072, China)

2) (School of Physics and Technology, Wuhan University, Wuhan 430072, China)

(Received 23 December 2014; revised manuscript received 29 January 2015)

Abstract

Carbon nanotube (CNT) fiber is a promising material due to its extensive potential in micro/nanoelectronics, where the thermal performance is of great importance. In this work, a well-developed steady-state electro-Raman-thermal technique is employed and extended to the ambient environment for measuring thermal conductivity of the CNTs fiber. In this technique, two ends of the CNT fiber are attached to heat sinks and a steady electrical current flows in a sample to induce Joule heating. The heat dissipates to the ambient air and goes through the sample to the heat sinks. With combined effects of natural heat convection and heat conduction, a steady temperature profile along the sample can be established. The middle point temperature of the fiber is probed by measuring the local Raman spectrum. It is because the Raman scattering (such as G peak) of CNT fiber is temperature dependent and thus it can be used as a temperature indicator for thermal property measurement. In calibration experiment, the temperature coefficient of the G peak of CNT fiber is first obtained. A modified one-dimensional heat conduction solution involving free convection effect is derived as

$$T(x) = \frac{I^2 R}{hLS} \left(1 - \frac{e^{\sqrt{hS/(kA_c)}x} + e^{-\sqrt{hS/(kA_c)}x}}{e^{\sqrt{hS/(kA_c)}L/2} + e^{-\sqrt{hS/(kA_c)}L/2}} \right) + T_0.$$

It can be found that the relationship between middle point temperature (T_0) and applied Joule heating power ($I^2 R$) can be used to extract the thermal conductivity of the material (k) as long as the convection coefficient (h) is available. In this work, the convection coefficient is calculated by the model established by Peirs et al. The thermal conductivity of CNT fiber synthesized from floating catalyst method is measured to be $66.93 \text{ W}/(\text{m}\cdot\text{K}) \pm 11.49 \text{ W}/(\text{m}\cdot\text{K})$. This value is a little bit larger than that of other CNT fibers synthesized by the acid spun method or the dry-spinning method, which can be explained by the different sample structures induced from different synthesize method. This value is two orders of magnitude smaller than that of individual carbon nanotube, and two orders of magnitude larger than that of CNTs packed bed, showing that heat conduction in CNT based bulk material is determined mainly by a large number of thermal interfaces between CNTs contacts rather than the intrinsic thermal property of CNT.

Keywords: Raman scattering, carbon nanotube fiber, thermal conductivity, interfacial thermal resistance

PACS: 65.80.-g, 65.90.+i

DOI: 10.7498/aps.64.126501

* Project supported by the Young Scientists Fund of the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 51206124).

† Corresponding author. E-mail: yyue@whu.edu.cn