

特集

熱電変換—エネルギー基幹技術への脱皮を目指して

熱電冷却システムのブレークスルー

Breakthrough in Thermoelectric Cooling Systems

小川 吉彦*

Yoshihiko Ogawa

1. まえがき

特定フロン規制が始まり、更に代替フロン中のオゾン層破壊も判明している状況下で非フロン冷却システムの開発が深刻な問題となり、熱電半導体冷却システム(以後、ペルチェ冷却システムという)も注目されている。

1956年にYofféが著わした熱電現象とその応用に関する著書¹⁾は、現在に至るまでペルチェ冷却や熱電発電システムの設計に広く利用されている。しかし、この理論では熱電半導体中の温度分布の解析を無視し、始めから直線的温度分布仮定をしている点に大きな問題がある。この仮定はペルチェ冷却システムでは不十分である。特に、熱電半導体とそれに付けられる熱導体板との間での熱流連続の境界条件が満たされず、正しいシステム設計ができない。このため、著者は正確な熱電微分方程式を導出し、これにより熱電システムに関する種々の解析を行い、また実験結果との一致性も確かめた^{2~7)}。本解説では始めにこの理論の概要を述べ、続いて更なる実用化のためのブレークスルーの諸問題を検討する。

2. 熱電現象解析の概要

熱電現象に関する微分方程式は電子が運ぶ電流密度 J と熱流密度 J_q をボルツマン輸送方程式より求めることができる²⁾。これに格子振動が関与する熱流を加えると、1次元直流状態で以下の式が得られる。ただし、符号の煩わしさ解消のため、電流や熱流は n 形では図-1(a)の方向の正スカラ値とし、ゼーベック係数 S も正值にする。 p 形の正孔では図-1(b)の向きで同一正值になる。電流密度 J は

$$J = \pm \rho \frac{dV}{dx} - \rho S \frac{dT}{dx} \quad (1)$$

\pm は+が n 形、-が p 形である。また T : 温度、 ρ : 比抵抗、 V : 電位。熱流密度 J_q は κ を熱伝導率として

$$J_q = -\kappa \frac{dT}{dx} + SJT \quad (2)$$

上2式とエネルギー保存則より、温度の微分方程式が得られる。

$$\frac{d}{dx} \left[\kappa \frac{dT}{dx} \right] = JT \frac{dS}{dx} - \rho J^2 \quad (3)$$

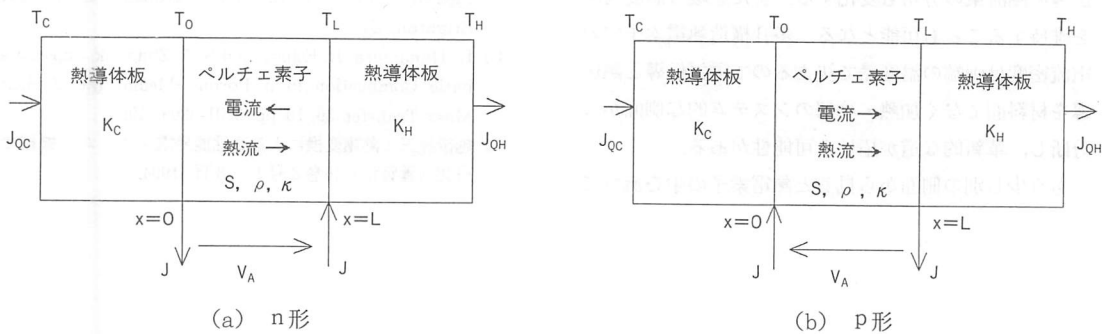


図-1 ペルチェ冷却システムのモデル

*北海道大学工学部電子工学科教授
〒060 札幌市北区北13条西8丁目

ペルチェ素子の両端には熱導体板が付く(図-1参照). この単位断面積当り熱コンダクタンスを左側で K_c , 右側で K_H とし, 左端の温度を T_c , 右端の温度を T_H , ペルチェ素子左端の温度を T_0 , 同右端の温度を T_L , 左端の吸熱流密度を J_{qc} , 右端の放熱流密度を J_{qh} とすると, 熱導体板に関して次式が成立する.

$$J_{qc} = K_c(T_c - T_0), J_{qh} = K_H(T_L - T_H) \quad (4)$$

ペルチェ素子両端の境界条件は

$$J_{qc} = J_q(0), J_{qh} = J_q(L) \quad (5)$$

3パラメータ S, ρ, κ が温度の関数なので式(3)は非線形で厳密な解析は数値計算を必要とするが, 以下の近似で殆ど厳密解に一致する線形解析ができる⁷⁾.

使用温度範囲で S, ρ, κ は十分な精度で次のように近似できる.

$$S = S_0 + c_s T, \rho = \rho_0 + c_\rho T, \kappa = \kappa_0 + c_\kappa T \quad (6)$$

以後に使用する実測値を基にした値では, 絶対温度の場合で

$$\begin{aligned} S_0 &= 1.1034 \times 10^{-4}, c_s = 3.1848 \times 10^{-7}, \\ \rho_0 &= -5.0817 \times 10^{-4}, c_\rho = 5.9036 \times 10^{-6}, \\ \kappa_0 &= 0.0298, c_\kappa = -4.917 \times 10^{-5} \end{aligned} \quad (7)$$

単位は S が[V/K], ρ が $[\Omega \cdot \text{cm}]$, κ が[W/K/cm]である. κ のみ式(6)から求まる素子内平均温度での一定値 $\bar{\kappa}$ を使い, かつ式(3)右辺に現れる温度勾配を平均値 G_T , すなわち

$$G_T = \frac{T_H - T_c}{L} \quad (8)$$

で近似すると, 同式は線形化され, 一般解は

$$\begin{aligned} T &= C_1 e^{\gamma x} + C_2 e^{-\gamma x} + T_p, \\ \gamma &= \sqrt{\frac{J(c_s G_T - c_\rho J)}{\kappa}}, T_p = \frac{\rho_0 J}{c_s G - c_\rho J} \end{aligned} \quad (9)$$

式(1)の両辺に J を乗じて積分すると

$$P = V_A J = rJ^2 + V_s J, V_s = \int_0^L S \frac{dT}{dx} dx, r = \int_0^L \rho dx \quad (10)$$

ここに P は入力電力, V_A は印加電圧, V_s はゼーベック起電力である. 次に式(2), (3)より次式が得られる.

$$\frac{dJ_q}{dx} = \rho J^2 + JS \frac{dT}{dx} \quad (11)$$

定電流状態で上式を積分して(式(5)参照)

$$J_{qh} - J_{qc} = P \quad (12)$$

これは吸熱流 J_{qc} と入力電力 P の和が右側からの放射熱流密度 J_{qh} に等しいというエネルギー保存則を意味する.

式(12)より成績係数 COP が求まり,

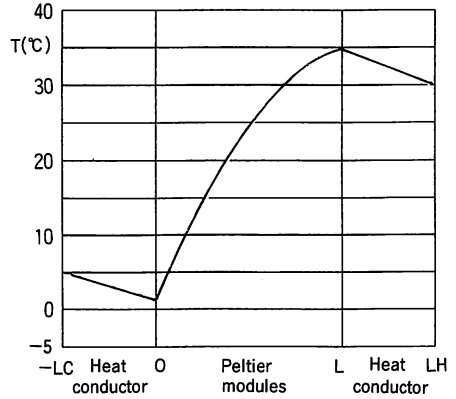


図-2 ペルチェ冷却素子内温度分布

$$COP = \frac{J_{qc}}{P} = \frac{J_{qc}}{J_{qh} - J_{qc}} \quad (13)$$

以上がシステム設計に必要な式である. 実際のペルチェモジュールは n 形と p 形チップ(各々断面積 A , 素子長 L)を交互に N 個平面状に配列して全てをオーム接触させ, 電圧 V_{AT} を印加する. n, p 両チップの平均特性で動作するものと考えると $V_{AT} = NV_A$ とするだけでよく, COP の値は変わらない.

$L = 1$ (mm), $J = 300$ (A/cm²), $K_c = 2$ (W/K/cm²), $K_H = 4$ (W/K/cm) のときの温度分布を図-2に示す. 図中の熱導体板の厚みは適当である. ペルチェ素子部の温度分布が直線的でないことが分かる. これはジュール発熱のためで, 図は比較的ジュール発熱が大きくて COP が0.57と小さい. 実際には電流密度を下げて, 温度分布を今少し直線に近づけ COP を大きくするのが好ましい. なお, 温度分布の曲線性は, 文献3)で実測と比較して確かめてある.

ペルチェ冷却システムの性能はペルチェ素子の S, ρ, κ の他に, 素子両端に付く熱導体板の熱コンダクタンス K_c, K_H に大きく影響される. この様子を図-3に示す. 横軸を K_H , パラメータを K_c に取り, 図(a)は COP , 図(b)は吸熱流密度 J_{qc} を示している. なお, $L = 1$ (mm), $J = 200$ (A/cm²), $T_c = 278$ (K), $T_H = 303$ (K)の値を採用した. K_c, K_H 共に2以下では COP, J_{qc} の減少が激しい. K_c, K_H は大きいほど良いが, 特に K_H は可能な限り大きいことが望ましく, ブレークスルーのための一つの要因である.

ペルチェ冷却システムは COP が最大になる状態で動作させるのが好ましい. このためには, 次式で決まる J を使えばよい.

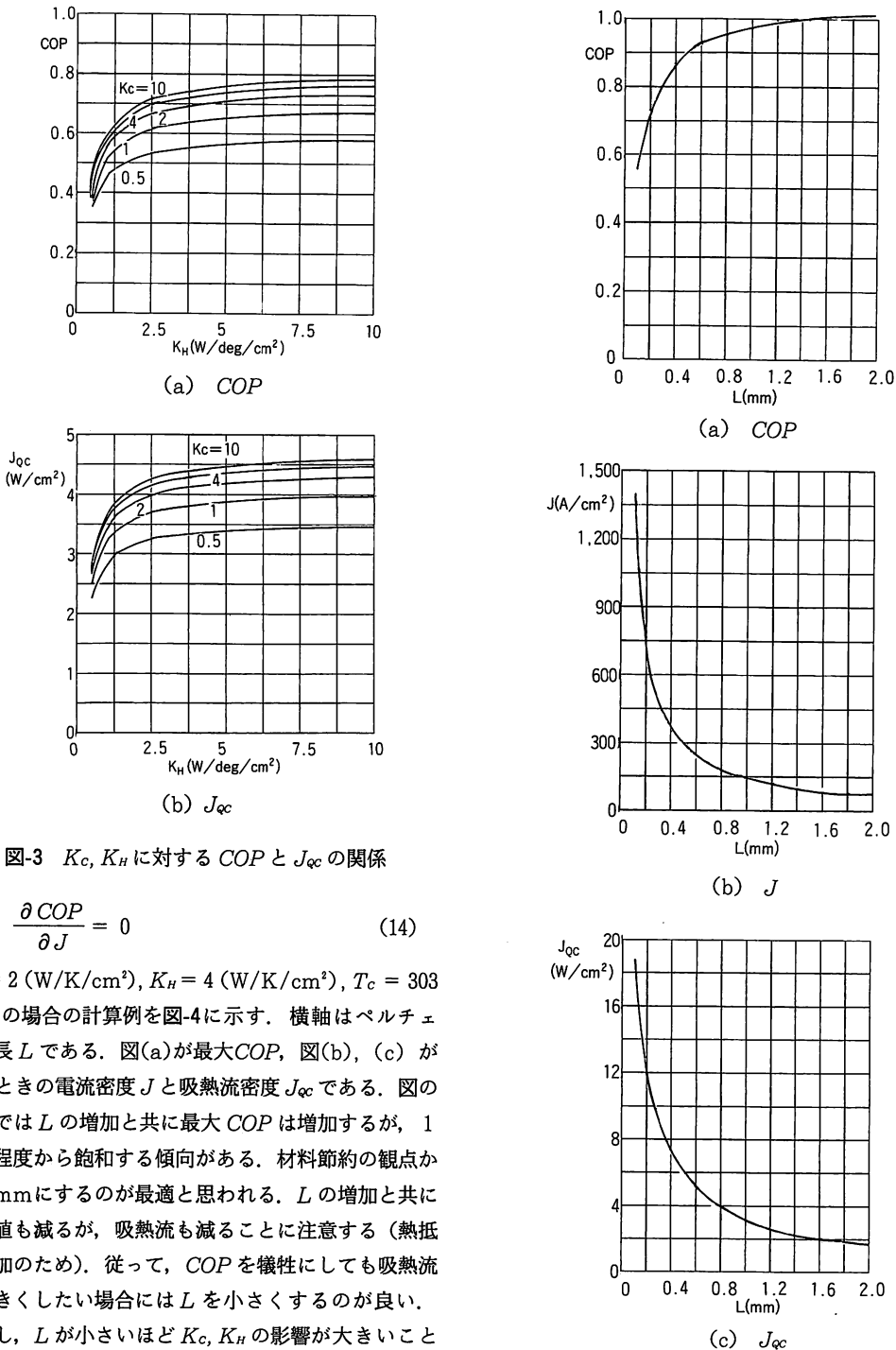


図-3 K_c, K_H に対する COP と J_{qc} の関係

$$\frac{\partial COP}{\partial J} = 0 \tag{14}$$

$K_c = 2$ (W/K/cm²), $K_H = 4$ (W/K/cm²), $T_c = 303$ (K) の場合の計算例を図-4に示す。横軸はペルチェ素子長 L である。図(a)が最大 COP , 図(b), (c) がそのときの電流密度 J と吸熱流密度 J_{qc} である。図の範囲では L の増加と共に最大 COP は増加するが、1 mm程度から飽和する傾向がある。材料節約の観点から1 mmにするのが最適と思われる。 L の増加と共に電流値も減るが、吸熱流も減ることに注意する(熱抵抗増加のため)。従って、 COP を犠牲にしても吸熱流を大きくしたい場合には L を小さくするのが良い。しかし、 L が小さいほど K_c, K_H の影響が大きいことに注意する。加えて、 L を小さくするほど素子と電極間の接触抵抗の影響が強くなる。これを減らすこと、すなわちオーミック性の良好な電極形成もブレイクスルーのための大きな要因となる。

ブレイクスルーのために、もちろん高性能熱電材料の開発も欠かせない。高性能材料としては性能指数 $Z =$

図-4 最大 COP 動作時の素子長 L に対する COP, J, J_{qc} の関係

$S^2/\kappa/\rho$ (K⁻¹) が大きいだけでなく、熱応力に十分耐えることができ、かつオーミック電極が容易に形成できる材料が要求される。次章でブレイクスルーのた

めの諸問題を検討する。

3. ブレークスルーのための諸問題

3.1 熱電材料

現在使われている高性能 Bi_2Te_3 系多結晶は、 $Z = 3 \times 10^{-3} (\text{K}^{-1})$ 程度である。しかし $Z = 4 \times 10^{-3} (\text{K}^{-1})$ では性能が飛躍的に向上する。より高純度なBiおよびTeを使用し結晶性も良好にすると高Z値が期待できるが、結晶のへき開性が強調され機械的強度の点から問題となり、ブレークスルーの対象となる。なお、性能指数Zをペルチェ冷却系で過大評価するのは問題である（注：熱電発電では良い評価値である）。その理由はS, ρ , κ の性能への寄与の仕方がZの形で統一されず、同じZ値でも性能に差が生じる。例えば κ を小さくしてZを高めようとする研究があるが、冷却システムに存在する熱リークのために κ の減少の効果が期待できないことがあり注意を要する。この傾向は小さいペルチェモジュールほど強い。逆言すれば、冷却室への熱リークを極力抑えるシステム構成にすべきと言うことになる。特にモジュール近傍での逆熱選流問題を十分に解決すべきである。

Bi_2Te_3 系チップは、へき開性のために使用中のサイクリックな熱応力で割れやすい。現在の冷却システムは製品の信頼性の上から、この問題の解消に真剣に取り組んでおり一応の目的を達成している。しかし製品の長寿命化のために、より一層の解決が要求される。このためには2方面での研究が必要である。一つはモジュールに加わる熱応力を極力分散させるように材料力学的見地からの設計法を確立することである。今一つは新材料の開発である。このためにはSiの研究が歩んだ道を踏襲し、熱電半導体の基礎的研究から始めるべきである。まず、へき開性の無い高純度単結晶真性半導体作成の研究を行い、その上でp, n制御用ドーパントの研究を行う。一見、遅々とした研究のようであるが、実はこれが早道であると確信する。対象は低 κ のためのイオン結晶性の重い材料で、エネルギーギャップが0.2~0.3eV程度のものが望ましい²⁾。例えばPbTeやPbSeなどである。筆者らのグループではPbTeを対象にしている。

素子電極のオーミック性も改善すべきである。これは電極部の電力損失がCOPや吸熱流を下げるだけでなく、半導体と金属電極との密着性（機械的強度）とオーミック性が強い相関を有しているためである。この密着性は材料同士の相性だけでなく、不純物やボイ

ドなどの発生にも左右される。

以上では材料の高性能追求に徹し、製品の価格の問題を無視した。しかしペルチェ冷却チップの高価なことが、広範な実用化を阻止していることは否めない。そこで現在の阻止程度の性能を維持し、かつ大量生産可能で廉価なモジュールを開発することは切実な問題である。このために、例えば焼結材料の開発研究が行われている。特に真空中での焼結（SPS）は性能と大量生産性の両面で有望である。究極の目的は焼結によりモジュール構造を一体成型することである。

3.2 熱導体板

通常のモジュールは、電極用金属を張り付けた2枚の薄いアルミナセラミック板に多数のp, nチップを挟んで半田付けしている。これをアルミニウムスペーサで固定し、さらに放熱側には放熱フィンとファンを付ける。この複合の熱導体系の単位断面積当りの等価熱コンダクタンスが、図-1の K_C, K_H である。セラミックの熱伝導性の悪さが主として K_C, K_H の値を制限する。これを熱伝導性に優れる高純度窒化アルミニウムに代えると問題は解消するが、極めて高価である。そこでセラミック使用を止めることが考えられる。この種のモジュールは既に開発されており、スケルトンモジュールとして市販されている。写真1の手前に示す黒いモジュールがそれで、電極がむき出しの状態になっている。このため持ち運びができず、始めから後方に示すようなアルミニウムスペーサ（薄膜アルミナで電気絶縁されている）に固定する。このような構成は、もはやモジュールと言うよりペルチェシステムと言うべきであろう。この構造でも問題が完全に解消された訳ではない。アルミニウムスペーサに固定するとき使用する接着剤やシリコングリース自身の熱伝導性の

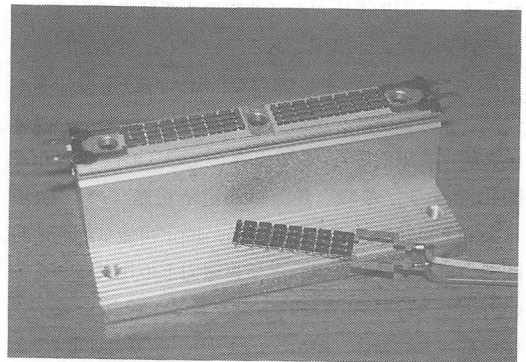
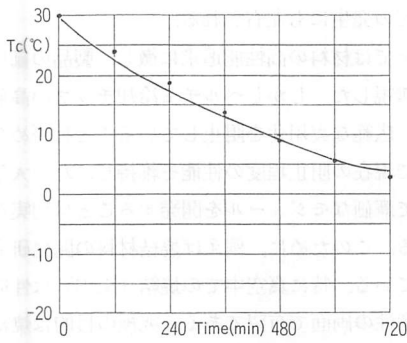
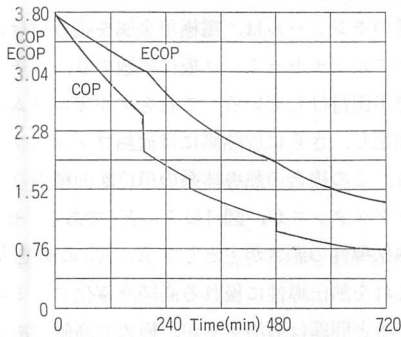


写真1 スケルトンモジュール（黒い素子）と、アルミニウムスペーサへの固定状況（株式会社サームボニック提供）



(a) T_c



(b) COPおよびECOP

図-5 スケルトンモジュール冷却システムの冷却温度 T_c とCOPおよび ECOP の時間特性

悪さや塗りむらが問題になる。従って、固定法も未だブレークスルーの対象である（注：これは熱応力対策とも密接に関係した大きな問題である）。

図-5はスケルトンモジュール使用冷蔵庫の高性能性をシミュレートしたものである⁵⁾。図(a)は冷却時間特性で、黒丸は市販のフロンガス使用10リットル冷蔵庫に熱負荷を与えたときの実測値である。これに合わせるように印加電圧可変（曲線の不連続点で可変）にして計算したのが実線である。ただし、実験的に決めた $K_c = 1.4$, $K_H = 2.1$, および $0.8(W/K)$ の冷却室への熱リークコンダクタンス値を使用した（他のパラメータ値は文献参照）。このときの COP の時間変化を図(b)に示す。なお、熱流は測定不可能なので COP は実測できないことに注意する。測定可能な熱流の時間積分値（全移動熱量）と積算電力との比（これを E COP とする）が測定される値である。冷却システムは通常非平行動作なので、ECOP と COP は図示のように異なり、 $ECOP \geq COP$ である。ところがペルチェ冷却関係者の中には、計算できる COP を他の冷却装置の COP（実際には ECOP）と比べて自ら損をして

いることがある。図では720分時（庫内温度約3°C）で ECOP が1.3となり、これはフロン使用冷蔵庫の測定値を上回っている。試作ペルチェ冷却システムでの実測でも良好な結果を得ている。さらに大きな K_c , K_H を使えば一段と高性能になる。

3.3 低温への挑戦

COP の低下を度外視すれば、1段ペルチェ冷却システムで零下10°C以下（外気室温）の達成は可能である。ただし、 K_c , K_H は十分大きくする。特に K_H を大きくして放熱負担に耐えるようにする。この目的で試作した10リットル冷蔵庫を写真2に、冷却試験結果を図-6に示す。フィン（写真参照）の放熱性を検討して K_H を大きくしている。しかし更に大きな K_H を要求したい。このためには、冷却用閉循環液体で狭いべ

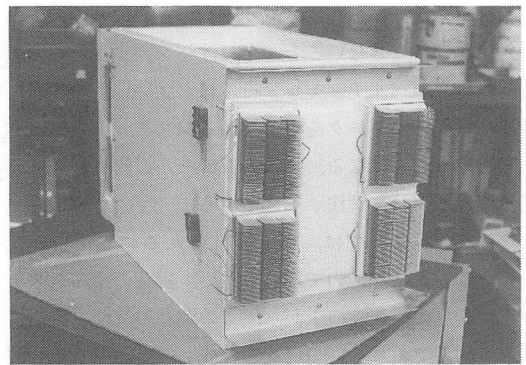


写真2 スケルトンモジュール試作冷凍庫の裏面放熱部（株式会社テクノバ提供）

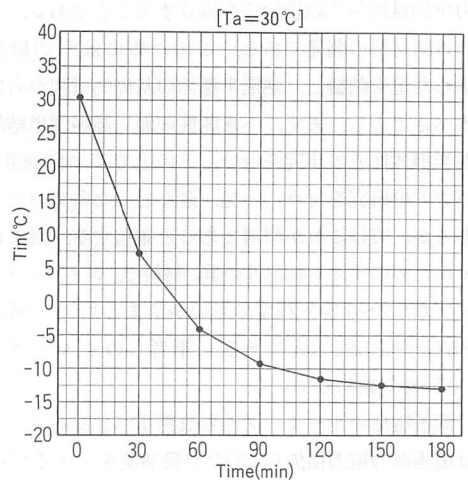


図-6 スケルトンモジュール冷凍庫の冷却特性。
 $T_m \equiv T_c$, $T_a \equiv T_H \cdot 992$ チップ使用。投入電力120W（株式会社テクノバ提供）

ルチェモジュール放熱部領域の発熱を速やかに広い空間に移し、そこに設置する広いフィンで放熱させればよい。

低温動作で *COP* を向上するには多段カスケードモジュールにする。2段を考えよう。従来提案の2段カスケードでは、高温側モジュールの占有面積を低温側より大きくしている（2倍程度が適当³⁾）。ただし、両モジュールチップとも同一電流を流す。しかし広い面積の高温側モジュールから冷却室への熱リークの抑え方が難しく、*COP* 向上はそれほど期待できないようである。これに対し両モジュールを同一面積にし低温側電流を小さくすると、理論的に *COP* が向上し⁶⁾、かつ構造上の熱リーク問題も解決し易くなる。カスケード形の利点を考えよう。1段素子内温度分布は自動的に決まるが、これが必ずしも *COP* 最大時温度分布ではない。この長さの素子を半分ずつの2段カスケードにし、*COP* 最大となるように両電流値を調整することができる（両電流値が等しければ1段と同じ）。

1段当り到達可能な温度差には限界があるから、それ以上大きな温度差を得たいときにもカスケード形が必要になる。例えばハイビジョン用カメラのCCD冷却などに、このような要求がある。この考えを推し進めると、多段カスケード形で液体窒素温度までの冷却の可能性を生じ、筆者は現在この検討を行っている。この固体冷却装置で実現で、例えば高温超伝導ジョセフソン論理回路などの用途は飛躍的に高まると期待できる。

3.4 電源問題

スイッチングレギュレータ直流電源の変換効率が、電源も含めた冷却システム全体の *COP* に影響する。90%以上の変換効率のものの開発を期待したい。

出力電圧固定のスイッチングレギュレータをオン・オフにより温度制御する現在方式では、電流の急変で生じる熱応力がモジュールに加わり寿命に大きく影響する。そこで電流を徐々に変化させ（少なくとも数秒）、瞬時的な強い熱応力の発生を防ぐ制御方式を開発すべきである。

ペルチェモジュールの最大 *COP* 時電流は温度差の減少に対して直線的に減少するので⁶⁾、*COP* 向上のために温度差の増加に応じて印加電圧を増加させる可変電源が望ましい。例えば図-4のシミュレーションでは、このことをある程度考慮している。

以上の電源問題解決はペルチェ冷却システムのみで

なく、広く要求されるものと考えたい。

3.5 おわりに

ペルチェ冷却システムの理論の概要とブレイクスルーの諸問題を述べた。紹介した理論を使うと正確かつ容易に性能解析ができるので、利用されることをお薦めする。ブレイクスルーの対象は材料とシステム構成の両方に存在するが、両者は密接に関係する。材料としては高性能のみでなく、機械的強度や良好なオーミック性、さらには価格まで解決すべき多くの問題がある。基礎的研究の進展に期待する。

システム的には、ペルチェモジュールへの吸排熱性を極力良好にし、かつ冷却室への熱リークを極力抑える構造の開発が第一である。第二は製品の信頼性確保の上からモジュールに掛かる熱応力を極力低減する努力をすることである。これらのためには熱力学・材料力学技術者の多大の協力を必要とする。さらに電源問題も重要な課題である。

ペルチェ冷却システムは単純構造で製作容易と見られがちだが、電気系・熱系・熱応力系が渾然一体となっている複雑なシステムである。単純性のために逆に設計の自由度が制限されて商品化の難しい製品であり、丁寧に扱うべきものであると認識すべきである。

ペルチェ冷却システムは相当に高性能な冷却能力を有していることが理論的に解明され、フロンに代わる有力候補の一つである。是非とも産官学が協力し、研究開発体制の大々的に発展することを切に念願する。

参考文献

- 1) アー・エフ・イオフェ他著・坂田民雄訳；半導体とその応用—半導体熱電素子・熱電冷却—，日刊工業新聞社（1960）。
- 2) 小川吉彦，武笠幸一，長尾二郎，木谷文一，白川智昭，鶴沼英郎；熱電冷却素子に関する一考察，信学論C-II，J75-C-II，8（1992），416-424。
- 3) 小川吉彦，酒井基弘，久野文雄，手塚弘房，木谷文一；熱電冷却素子の再評価，信学論C-II，J76-C-II，6（1993），449-457。
- 4) 小川吉彦，渡辺日出男，酒井基弘，都能克博；熱電変換素子による熱電発電の解析，信学論C-II，J77-C-II，1（1994），34-43。
- 5) 小川吉彦；エネルギーCOPの提案，信学論A，J77-A，5（1994），816-819。
- 6) 小川吉彦；ペルチェ冷却システムの最適動作，信学論C-II，J77-C-II，8（1994），313-320。
- 7) 小川吉彦，木谷文一；熱電微分方程式の改良線形近似，信学論C-II，J77-C-II，3（1995），119-124。