

固体界面のフォノン熱伝達による熱整流現象の考察*

孫 新^{*1}, 小竹茂夫^{*2}
鈴木泰之^{*2}, 妹尾允史^{*2}Evaluation of Thermal Rectification at Interface of
Dissimilar Solids by Phonon Heat TransferXin SUN, Shigeo KOTAKE,
Yasuyuki SUZUKI and Masafumi SENOO

Several investigators have found that heat transfer coefficient at the interface between two dissimilar solids depends upon the direction of heat flow across the interface. Although many factors that affect heat transfer across the interface are reasonably well understood, the directional dependence of heat transfer coefficient, called thermal rectification has not yet been completely explained. In this paper, we evaluate the thermal rectification from the result of linear response theory by considering scattering and transmission of phonons across the interface, which depends on the temperature of the interface. This model could explain the reported behavior of thermal rectification.

Key Words: Thermal Rectification, Linear Response Theory, Heat Transfer Coefficient

1. 序 論

1936年, Starr⁽¹⁾は二つの材料の接触界面の伝熱が熱流方向に依存することを報告した。また, 1955年 Barzelay⁽²⁾はアルミニウム-ステンレス接触界面の熱伝達係数を測定し, 同様の報告をしている。二つの異なる材料を接触させることにより得られた接触界面において, 熱伝導の方向性が生じることがその後も多数報告された。この熱伝導整流現象は, ある二つの異なる材料AとBを接触させた系(2層系)において, A(温度 T_1) → B(温度 T_2)に流れる熱量とB(温度 T_1) → A(温度 T_2)に流れる熱量が一致しないことを意味する。この熱伝導整流現象を理論的に解明することは応用的な点からも重要である。最近の20年におけるこの実験事実についての理論的な解明の多くは^{(3)~(5)}, 熱の方向による固体接触界面の表面形状の変化および熱の縮流モデル(例えば, 橋のモデル⁽⁶⁾)を応用した接触界面の弾性変形の解析などによるものであり, 物性論的な点からの理論的解明は少なかった。一般的に, 二つの異なる材料の界面における伝熱の形態は次の三

つに分けられる。

- (1) 真実接触界面を通しての固体熱伝導。
- (2) 接触界面に介在する流体を通しての熱伝導と対流。
- (3) 真実接触界面を除く見掛けの接触界面間のふく射。

これらのうちで, 接触界面の温度が低く, 平均かんげきが小さい場合, 対流とふく射による伝熱は一般に無視できる。したがって, 接触界面の伝熱は(1)の真実接触部の固体熱伝導が主となり, これはフォノンと電子の流れによって解釈される。一般に金属では, 電子の流れによる熱伝導が全体の熱伝導の大部分を占める。熱伝導に寄与するフェルミ面近傍の電子密度は温度にあまり依存しないため, 電子による熱伝達係数は温度によって変化しない。一方, フォノンの密度分布は温度に大きく左右されるため, 格子振動による熱伝達係数は接触界面の温度に大きく依存すると考えられる。

近年, Leungら⁽⁷⁾は線形応答理論により接触界面における接触熱抵抗の計算方法を提案した。本研究では, この方法を用い, 二つの異なる材料の理想接触界面におけるフォノン熱伝達係数の計算に応用し, それが接触界面の温度に依存することを明らかにした。本

* 原稿受付 1997年7月22日。

*1 正員, 三重大学大学院(☎ 514-8507 津市上浜町 1515)。

*2 正員, 三重大学工学部。

研究では、この結果から、熱伝導の整流現象の理論的
 説明を試み、従来のモデルとの違いについて考察し
 た。以下、2章は、線形応答理論による接触界面にお
 けるフォノン熱伝達係数の計算方法について述べる。
 3章で、熱整流現象への応用を、4章で、計算結果に
 ついて考察を行う。

なお、本論文で使用するおもな記号を次のようにま
 とめる。

- K : 接触界面の熱伝達係数
- ΔT : 接触界面の温度こう配
- R : 接触界面の熱抵抗
- q : 接触界面の単位面積当たりの熱流束
- \mathcal{H} : 系のハミルトニアン密度
- H : 系のハミルトニアン
- \hat{n} : 接触界面に垂直な単位ベクトル
- A : 接触界面の面積
- J : エネルギー流れ演算子
- ρ : 密度
- ϕ : 座標
- M : 弾性率
- \mathcal{L} : 系のラグランジアン密度
- $F(z, z', t)$: ϕ の相関関数
- $\bar{F}(z, z', \omega)$: F のフーリエ変換
- $G(z, z', t)$: ϕ 遅延グリーン関数
- $\bar{G}(z, z', \omega)$: G のフーリエ変換
- v_i : 音速
- Z_i : インピーダンス
- r : 反射係数
- τ : エネルギー伝導係数
- k_i : 熱伝導率
- C_{ij} : 弾性係数

2. 接触界面熱伝達係数の計算

二つの固体の接触面には、接触熱抵抗が存在し、こ
 れは接触面の熱伝達係数として説明されてきた。い
 ま、図1に示すように、二つの固体の接触面を考
 える。固体A(B)を、領域 $z \leq 0 (z \geq 0)$ におく。こ
 こで時刻 t 、位置 z_2 における単位面積当たりの熱流束を $q(z_2, t)$ 、
 位置 z_1 の温度こう配を $\Delta T(z_1)$ とすると、単位面積当
 当たりの接触面熱伝達係数 K は次式で定義される。

$$K(z_1, z_2, t) = \frac{q(z_2, t)}{\Delta T(z_1)} = \frac{1}{R} \dots\dots\dots (1)$$

ここで、 R は単位面積当たりの接触熱抵抗である。
 $z_1 = z_2 = 0, t \rightarrow \infty$ において、熱の流れが定常状態に達
 したときの接触界面における熱伝達係数が定義され
 る。

$t=0$ の温度こう配は密度行列 $\rho(0)$ によって求めら
 れる。

$$\rho(0) = N^{-1} \exp \left[- \int d^3 r \beta(r) \mathcal{H}(r) \right] \dots\dots\dots (2)$$

ここで、 \mathcal{H} はハミルトニアン密度、 N は規格化定数
 である。 β は局部における温度状態を示し、以下に定
 義される。

$$\beta(r) = \frac{1}{T + \Delta T \epsilon(r, z_1)} \dots\dots\dots (3)$$

$$\epsilon(r, z_1) = \begin{cases} +\frac{1}{2} & z \leq z_1 \\ -\frac{1}{2} & z \geq z_1 \end{cases}$$

また、任意の時刻 t における密度行列 $\rho(t)$ の運動
 方程式は次の式より得られる。

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} = -i [H, \rho(t)] \dots\dots\dots (4)$$

ここで、 H はハミルトニアンである。以上のことか
 ら、単位面積当たりの熱流束の平均値は以下の式で表
 される。

$$q(z_2, t) = -\frac{1}{A} \int d^3 r [tr J(r) \rho(t)] \cdot \nabla \epsilon(r, z_2) \dots\dots\dots (5)$$

$$\nabla \epsilon(r, z_2) = -\hat{n} \delta(z - z_2)$$

ここで、 \hat{n} は接触界面に垂直な単位ベクトルで、 A
 は接触界面の面積である。 J はエネルギーの流れの演
 算子であり、熱流束が均一であるという仮定より、次
 の式を満たす。

$$\frac{\partial \mathcal{H}}{\partial t} + \nabla \cdot J = 0 \dots\dots\dots (6)$$

線形応答理論により、 K は次の式で計算される。

$$K(z_1, z', t) = \frac{2i}{\Delta T} \int_0^t \tau d\tau \int d^2 r_{\perp} d^2 r'_{\perp}$$

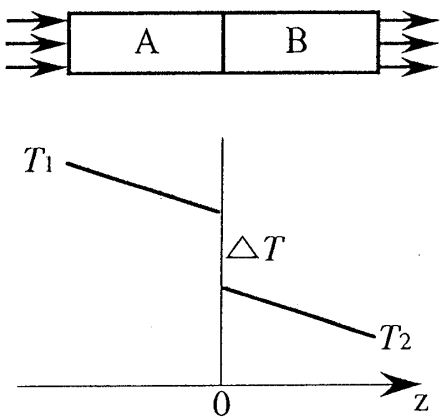


Fig. 1 Heat flow from solid A to solid B

$$\times \langle J_3(r', \tau) J_3(r, 0) \rangle \dots \dots \dots (7)$$

ここで、 $z_1, z_2 \rightarrow z, z', r=(r_1, z)$ などの記号の表記法を変える。 t が定常状態に達するほど十分に大きい場合、エネルギー保存則により、次の式が成立する。

$$\frac{\partial q(z', t)}{\partial z'} = 0 \dots \dots \dots (8)$$

つまり式(7)はあらゆる z' について計算が可能となる。また、 $z \leftrightarrow z'$ の対称性から、 z を任意に簡約することができ、これを z, z' 間の平均を取るときに利用する。

今、座標 $\phi(z)$ と密度関数 $\rho(z)$ 、弾性率 $M(z)$ をもった1次元の系を考える。この系のラグランジアン密度は次の式で表される。

$$\mathcal{L} = \frac{1}{2} \rho(z) \left[\frac{\partial \phi}{\partial t} \right]^2 - \frac{1}{2} M(z) \left[\frac{\partial \phi}{\partial z} \right]^2 \dots \dots \dots (9)$$

ここで、 $z \leq 0 (z \geq 0)$ において、 $\rho(z) = \rho_1 (\rho_2)$ 、 $M(z) = M_1 (M_2)$ を算出する。これにより、ハミルトニアン密度とエネルギーの流れを以下のように表す。

$$\mathcal{H} = \frac{\pi^2(z)}{2\rho(z)} + \frac{1}{2} M(z) \left[\frac{\partial \phi}{\partial z} \right]^2 \dots \dots \dots (10)$$

$$J = -\frac{M(z)}{\rho(z)} \pi(z) \frac{\partial \phi}{\partial z} \dots \dots \dots (11)$$

ここで、 $\pi = \rho \dot{\phi}$ である。式(11)を式(7)へ代入する。これにより、二つの異なる時間における四つの演算子を含む相関関数は Wick の定理⁽⁷⁾から以下のように展開される。

$$\begin{aligned} &\langle J(z', \tau) J(z, 0) \rangle \\ &\sim \langle \pi(z', \tau) \phi(z', \tau) \pi(z, 0) \phi(z, 0) \rangle \\ &\sim \langle \pi(z', \tau) \pi(z, 0) \rangle \langle \phi(z', \tau) \phi(z, 0) \rangle \\ &+ \langle \pi(z', \tau) \phi(z, 0) \rangle \langle \phi(z', \tau) \pi(z, 0) \rangle \dots \dots \dots (12) \end{aligned}$$

K は相関関数 $F(z, z', t) = \langle \phi(z, t) \phi(z', 0) \rangle$ により、以下のように表される。

$$\begin{aligned} K &= -\frac{2iM(z)M(z')}{T} \int_0^\infty t dt \\ &\times \left[\frac{\partial^2 F}{\partial t^2} \frac{\partial^2 F}{\partial z \partial z'} + \frac{\partial^2 F}{\partial t \partial z'} \frac{\partial^2 F}{\partial t \partial z} \right] \dots \dots \dots (13) \end{aligned}$$

式(5)により、定常状態に達したときの q を計算する。時間積分を無限大に、また、 Λ は1に設定する。簡単のため、 $M(z) = M_2$ 、 $M(z') = M_1$ と考える。式(13)は z, z', t に関する式となり、これから任意の時間、任意位置における熱伝達係数の計算が可能になる。

ここで、相関関数 F のフーリエ変換 $\tilde{F}(z, z', \omega)$ を導入する。

$$F(z, z', t) = \int \frac{d\omega}{2\pi} \tilde{F}(z, z', \omega) e^{-i\omega t} \dots \dots \dots (14)$$

ここで、 $\tilde{F}(z, z', \omega)$ は遅延グリーン関数 $\tilde{G}(z, z', \omega)$ によって計算される⁽⁴⁾。

$$\tilde{F}(z, z', \omega) = \frac{-2}{1 - e^{-\beta\hbar\omega}} \text{Im} \tilde{G}(z, z', \omega) \dots \dots \dots (15)$$

$$G(z, z', t) = -i\theta(t) \langle [\phi(z, t) \phi(z', 0)] \rangle \dots \dots \dots (16)$$

これを式(13)に代入して、

$$K = -\frac{8M_1M_2}{T^2} \int_0^\infty \frac{d\omega}{2\pi} \frac{\omega^2 e^{-\beta\hbar\omega}}{(1 - e^{-\beta\hbar\omega})^2} H(\omega) \dots \dots \dots (17)$$

が得られる。ここで、 $H(\omega)$ は以下の式により示される。

$$H(\omega) = \text{Im} \frac{\partial}{\partial z} \tilde{G}(z, z', \omega) \text{Im} \frac{\partial}{\partial z'} \tilde{G}(z, z', \omega) \dots \dots \dots (18)$$

この $\tilde{G}(z, z', \omega)$ は式(19)のように δ 関数の形で表される。

$$\begin{aligned} &\left[-\rho(z)\omega^2 - \frac{\partial}{\partial z} M(z) \frac{\partial}{\partial z} \right] \tilde{G}(z, z', \omega) \\ &= -\delta(z - z') \dots \dots \dots (19) \end{aligned}$$

この式により、 $z = z'$ の温度こう配が不連続な部分、すなわち接触界面における平面波が得られる。この平面波は波数 $k_i = \omega/v_i$ 、 $i = 1, 2$ 、と音速 $v_i = \sqrt{M_i/\rho_i}$ ($i = 1, 2$)により表される。さらに、定常状態の条件から、 \tilde{G} を $z < z'$ 、 $z' < z < 0$ 、 $0 < z$ の三つの領域で計算を行い、平面波の振幅が得られる。以上の計算結果により、インピーダンス $Z_i = \rho_i v_i$ 、反射係数 $r = (Z_1 - Z_2)/(Z_1 + Z_2)$ により H が得られる。

$$H = -\frac{1}{8} \frac{1 - r^2}{M_1 M_2} \dots \dots \dots (20)$$

$1 - r^2$ をエネルギー伝導の係数 τ とすると、 K は次の式で表される。

$$K = \frac{1}{T^2} \int_0^\infty \frac{d\omega}{2\pi} \frac{\omega^2 e^{-\beta\hbar\omega}}{(1 - e^{-\beta\hbar\omega})^2} \tau \dots \dots \dots (21)$$

この式により、

$$K = \frac{\pi}{6} \tau T \dots \dots \dots (22)$$

が得られる。よって、 K は温度に比例することがわかる。

以上のように、線形応答理論により接触界面のフォノンによる熱伝達係数について議論してきた。このフォノンとは、格子振動を量子化したものであり、反射係数 $r = (Z_1 - Z_2)/(Z_1 + Z_2)$ ($Z_i = \rho_i v_i$)により求めることができる。

3. 熱伝導整流現象の解析

この章では、2章で導かれた接触界面の K の計算理論式(22)をもとに、二つの異なる材料の接触面における熱整流現象を理論的に解析する。

図1に示すように、均質で断面が一様な材料A、B(熱伝導率 k_i 、 $i = A, B$)を理想的に接触させた系を考える。それぞれ長さは1、断面積は a とする。今、接

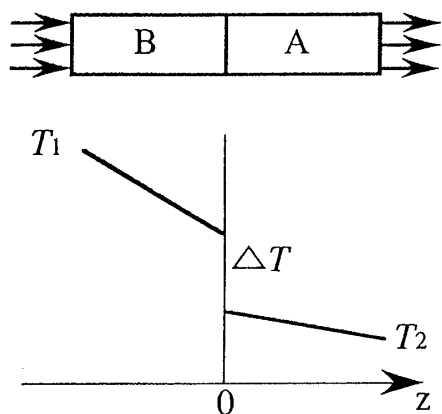


Fig. 2 Heat flow from solid B to solid A

触界面両端の温度をそれぞれ $T_1, T_2 (T_1 > T_2)$ とする。

このとき、電子およびフォノンによる熱流束 q は次の式に従う⁽⁵⁾。

$$q = (K_{ph} + K_{elec})\Delta T \dots\dots\dots (23)$$

ここで、 K_{ph}, K_{elec} はそれぞれフォノンと電子による接触界面の熱伝達係数で、 $\Delta T = T_1 - T_2$ は接触界面高温端と低温端の温度差である。

式(22)により、A から B までの熱流束 q_{AB} は以下の式により表される。

$$q_{AB} = \left(\frac{\pi}{6} \tau T_{12} + K_{elec} \right) \Delta T \dots\dots\dots (24)$$

図2に示すようにAとBを入れ替えると、BからAまでの熱流束 q_{BA} は

$$q_{BA} = \left(\frac{\pi}{6} \tau T_{21} + K_{elec} \right) \Delta T \dots\dots\dots (25)$$

となる。

フーリエの定理により、接触界面の温度は次のように表される。

$$T_{12} = \frac{k_A T_1 + k_B T_2}{k_A + k_B} \dots\dots\dots (26)$$

$$T_{21} = \frac{k_A T_2 + k_B T_1}{k_A + k_B} \dots\dots\dots (27)$$

したがって、 q_{AB} と q_{BA} の比は式(28)で表される。

$$\frac{q_{AB}}{q_{BA}} = \frac{\frac{\pi}{6} \tau T_{12} + K_{elec}}{\frac{\pi}{6} \tau T_{21} + K_{elec}} \dots\dots\dots (28)$$

二つの材料の熱伝導率が違う場合 ($k_A \neq k_B$)、式(26)、(27)より、 T_{12}, T_{21} は異なる。よって、式(28)より、

$$q_{AB} \neq q_{BA} \dots\dots\dots (29)$$

が得られ、接触面の熱伝達係数の差は次のように表される。

$$\Delta K = \frac{\pi}{6} \tau (T_{12} - T_{21}) \dots\dots\dots (30)$$

Table 1 Thermal conductivity $k [W/(m \cdot K)]$, density $\rho [g \cdot cm^{-3}]$ and elastic constant $C_{11}, C_{12}, C_{44} (10^{10} Pa)$ used in this calculation

	k	ρ	C_{11}	C_{12}	C_{44}
Al	238	2.70	108	62.0	28.3
Fe	78.2	7.87	230	13.5	117
Au	315.3	19.32	190	161	42.3
Ag	42.5	10.5	123	92.0	45.3
Si	138.5	2.34	165	64	79.2

Table 2 Calculated difference of heat transfer coefficient at the solid A → solid B contact interface

Metal A	Metal B	$\Delta K (W/(m^2 \cdot K))$
Al	Ag	-7.6×10^4
Al	Au	-3.0×10^4
Al	Si	8.2×10^4
Fe	Ag	-2.2×10^5
Fe	Au	-1.8×10^5
Fe	Si	-7.5×10^4
Fe	Al	-1.2×10^5

Table 3 Difference of heat transfer coefficient between Al → Fe and Fe → Al cases

Calculated ($W/(m^2 \cdot K)$)	Experimental ($W/(m^2 \cdot K)$)
1.2×10^5	$9.7 \times 10^3 (12 MPa)$
	$7.4 \times 10^3 (10 MPa)$
	$1.8 \times 10^3 (7 MPa)$
	$1.3 \times 10^3 (5 MPa)$
	$0.3 \times 10^3 (1 MPa)$

このことは、図1のような系に対してA(温度 T_1) → B(温度 T_2) に流れる熱流束と図2のB(温度 T_1) → A(温度 T_2) に流れる熱流束が一致しないことを示す。よって、二つの異なる材料の熱伝導率が異なる場合、接触界面において、熱整流現象が生じることが理論的に証明された。

4. 計算結果および考察

4・1 接触界面のフォノン熱伝達係数 K_{ph} の計算方法
 接触界面のフォノンによる熱伝達係数 K_{ph} を求める。ここで、立方晶の材料を例に取り、[100]方向の弾性率を C_{11} 、[110]方向の弾性率を $(C_{11} + C_{12} + 2C_{44})/2$ 、[111]方向の弾性率を $(C_{11} + 2C_{12} + 4C_{44})/3$ とする。この三つの方向について音速 v_i 、インピーダンス $Z_i = \rho_i v_i (i = A, B)$ 、反射係数 $r = (Z_1 - Z_2)/(Z_1 + Z_2)$ 、エネルギー伝導係数 $\tau = 1 - r^2$ の値から、式

(22)により、接触界面の熱伝達係数 K_{ph} を算出することができる。

具体的な計算に使用した材料の熱伝導率 k 、密度 ρ 、弾性定数 C_{11} , C_{12} , C_{44} を表 1 に示す。

4.2 熱整流効果の評価 アルミニウム、鉄、金、銀、シリコンの五つの物質について、式(30)により、 $T_1=400$ K, $T_2=200$ K の温度下での接触面の熱伝達係数の差について計算を行った。

計算された差の中で大きい正の値は A から B に (負の値は B から A) 熱の流れが大きいことを示す。これは熱整流効果を判断する目安となる。表 2 の中では、鉄と銀からなる系が最も大きな熱整流効果を示した。また、同じ金属が接触した場合でも、その接触した面の結晶方位が異なれば、異なった値の熱伝達率が得られることがわかる。

4.3 実験データとの比較および考察 アルミニウム、鉄を使用した場合における $T_1=400$ K, $T_2=200$ K の条件下での熱伝達係数の差について考察する。式(30)の計算結果と測定された実験値⁽⁶⁾を表 3 に示す。表 3 に示すように、同じ材料の組合せにおける実験からもさまざまな実験結果が報告されている。これは接触界面の熱伝達係数が実験条件に大きく依存するためである。本研究で行った計算結果と Fletcher ら⁽⁶⁾の実験結果は比較的よく一致していることがわかる。これはこの実験条件が今回の計算条件にいちばん近いと考えられる。また、実験における異種材料の接触状態は理想接触ではなく、本理論では理想接触の場合を想定して計算を行ったため、実験値より大きな値を得たものと考えられる。得られた実験値と計算値との方向性がよく一致、差はそれほど大きくないこと、また、高圧力による接触の場合ほど実験値は計算値に近づくことなどから、この理論を用いることにより、熱整流効果を説明することができると思えられる。

4.4 従来のモデルとの比較 従来接触熱抵抗のモデル(例えば、橋のモデルなど⁽⁶⁾)を基礎とした表面凹凸による真実接触部のマクロな縮流抵抗の変化から、熱整流現象の定性的な説明がなされてきた⁽³⁾⁻⁽⁵⁾。これらのモデルでは、理想接触の場合には縮流が生じないため、熱の整流現象は起こらないと考えられる。一方、ミクロな観点からフォノンによる熱伝導を評価

した場合、式(30)から、理想接触の場合でも、熱の整流現象が起こることを予測される。また、接触する固体の熱伝導率の差あるいは弾性定数の差が大きいほど、熱整流効果が大きくなると予測され、これは従来のモデル⁽⁹⁾⁻⁽¹¹⁾からは得ることができない。実際の接触面には、これら二つの効果が共存するものと推測され、複数の条件を加味した考察が期待される。

5. 結 言

本研究では線形応答理論から導かれた熱伝達係数の式(22)を用いて、固体の接触界面の熱伝達係数の計算を行い、二相系固体における熱整流の効果についての評価を行い、以下の結論を得た。

- (1) 式(30)により、熱整流効果は接触界面のフォノン熱伝達率が接触界面の温度に依存することによって生じており、二つの材料の熱伝導率が違う場合、熱整流効果が生じる。
- (2) 異種材料の熱伝導率の差あるいはエネルギー伝導の係数が大きいほど、熱整流効果は大きい。
- (3) Fletcher らの実験値と計算結果の比較から、熱整流の方向および値により一致が見られた。今回の理論は熱整流効果を説明する可能性があると考えられる。

文 献

- (1) Starr, *Copper Oxide Rectifier Phys.*, **7** (1936), 14-19.
- (2) Barzelay, M. E. and Tong, K. N., *NACA Tech. Note*, (1955), 3295-3299.
- (3) Stevenson, P. F., Peterson, G. P. and Fletcher, L. S., *J. Heat Transf.*, **113** (1991), 31-36.
- (4) Comninou, M. and Dundurs, J., *J. Heat Transf.*, **102** (1980), 319-323.
- (5) Peterson, G. P. and Fletcher, L. S., *J. Heat Transf.*, **110** (1988), 38-41.
- (6) 橋藤雄, 機誌, **55**-397(1952), 102-107.
- (7) Leung, P. T. and Young, K., *Phys. Rev.*, B, **36** (1987), 4973-4977.
- (8) Fletcher, L. S., *Trans. ASME, J. Heat Transf.*, **110**-4 (1988), 1059-1070.
- (9) Moon, J. S. and Keeler, R. N., *Int. J. Heat Mass Transf.*, **5** (1962), 731-735.
- (10) Dundurs, J. and Panek, C., *Int. J. Heat Mass Transf.*, **19** (1976), 731-736.
- (11) González de la Cruz G. and Gurevich, Yu. G., *Phys. Rev.*, B, **51** (1995), 2188-92.