

## 科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成24年 5月15日現在

機関番号：63902

研究種目：基盤研究（B）

研究期間：2008～2011

課題番号：20340101

研究課題名（和文） 量子熱電効果の非平衡物理と熱駆動ナノデバイスの開拓

研究課題名（英文） Quantum Effect on Thermoelectric effect and Proposal of Nano Thermomagnetic device

研究代表者

中村 浩章（NAKAMURA Hiroaki）

核融合科学研究所・ヘリカル研究部・准教授

研究者番号：30311210

研究成果の概要（和文）：

磁場中での量子熱電現象を解明すべく、理論および実験を行った。(1)Bi に関して、フォノンドラッグを考慮したネルンスト係数の導出、(2) 金属-半導体接合面での整流効果の予言、(3) GaAs/AlGaAs の磁場中電子温度勾配下のネルンスト電圧の測定、(4) 試料中での温度分布・電位分布を正確に求める輸送方程式の計算機シミュレーション法確立、(5) Bi ナノワイヤのホール電圧・ネルンスト電圧の測定の研究成果があった。

研究成果の概要（英文）：

To reveal the mechanism of quantum thermoelectric effect in a magnetic field, we established both theories and experiments. We obtained the following results: (i) estimation of Nernst coefficients for Bi using the theory of “phonon drag”, (ii) proposal of rectification effect in metal-semiconductor junction, (iii) measurement of Nernst voltage for GaAs/AlGaAs, (iv) development of simulation for transport equation of electric and heat currents, and (v) measurement of transport coefficients of Bi nano-wire.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	5,000,000	1,500,000	6,500,000
2009年度	3,200,000	960,000	4,160,000
2010年度	3,200,000	960,000	4,160,000
2011年度	3,200,000	960,000	4,160,000
年度			
総計	14,600,000	4,380,000	18,980,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・数理物理・物性基礎

キーワード：熱電効果、ネルンスト効果、フォノンドラッグ、温度勾配、二次元電子系、ナノワイヤ、量子輸送現象

## 1. 研究開始当初の背景

温度勾配による起電力生成の研究は、熱電素子による発電への応用などを念頭に、常温付近の古典輸送理論を基にして、古くから現在に至るまで広く行われてきた。1990年代に高温超伝導体が熱電素子へ転用[寺崎等, PRB

56 (1997) R12685]されたのを契機に、新しい概念を基にした熱電材料の探索が始められ、非フェルミ流体である強相関電子系の熱電効果研究も散見されるようになっていた[Xu等, Nature 406 (2000) 486, Wang等, PRB 64 (2001) 224519, Be1等 PRL 92 (2004)

217002]。本研究提案当時、量子性に基づく熱電効果の実験的研究は増えつつあったが、系統的な研究はまだ行われていない状況であった。

そこで、強相関係の研究とは独立に、我々はメゾスコピック系のバリスティック伝導領域で、量子ネルンスト効果を提案した。[Solid State Comm. 135 (2005) 163]。その研究は科研費[萌芽研究 No. 17654073 “量子ネルンスト効果の理論と実験”平成 17~19 年度]を用いて推進していた。開始当時、数 mm 程度の単結晶 Bi バルク材料で我々の予言したネルンスト係数の量子化が実験的に観測された[Behnia 等 PRL, 98 (2007) 166602, Science 317 (2007) 1729]。この実験結果には、未解明の点が多く残っていた。まず、前述の我々の予言では 2 次元電子系を対象としていたが、実験試料は 3 次元性が強かった。また、我々の予言では同程度の量子ホール効果も観測されるはずであるが、同実験試料では量子ホール効果はほとんど観測されていなかった。

## 2. 研究の目的

温度勾配を駆動力とする量子効果の系統立てた研究は、理論・実験とも未開拓であった。そこで、温度勾配が引き起こす熱流による新しい量子輸送現象(量子熱電効果)を探索し、それらを系統的に記述できる非平衡理論を構築することを研究目的とした。我々の研究方針として、(1) 新奇な熱量子効果を示す物理現象を提案し、(2) それらを Keldysh 形式(相互作用が支配的な非平衡輸送現象の研究に近年よく用いられる)などの理論体系で解明する。さらに、(3) 提案した熱量子効果現象の実証実験を行う。

具体的な量子熱電効果の現象として現時点で想定していたのは、磁場中、接合界面の非対称ポテンシャル系、そして、相互作用がある系という以下の異なる 3 つの場合であった。

- [1] 磁場中の量子熱電効果(量子ネルンスト効果)
- [2] 金属 - 半導体接合系での整流作用
- [3] スピン軌道相互作用系での量子熱流輸送現象

## 3. 研究の方法

初年度は、研究課題の第一に挙げた[1]磁場中の量子熱電効果(量子ネルンスト効果)を理論・実験の両面から解明を行った。また、第二のテーマの[2]金属 - 半導体接合系での熱流の整流作用を理論的に検討する。

次年度以降は、第三のテーマ [3]スピン軌道相互作用系での量子熱流輸送現象の理論検討を開始した。また、実験的研究としては初年度に引き続き[1]磁場中の量子熱電効果

(量子ネルンスト効果)の新たなサブテーマを行う。なお、初年度内に測定準備が完了しない可能性があるため、その場合には二年目をめどに準備を完了し、随時サブテーマを開始する。

本研究組織の前身の科研費(萌芽 No. 17654073「量子ネルンスト効果の理論と実験」平成 17~19 年度)で培った活発な意見提案を全員が行える体制で望んだ。担当以外の者も、理論・実験にかかわらず議論をほぼ全員で進めた。

全期間を通じて、[I]新奇な量子熱電効果の発見、[II]温度差による非線形応答現象の理論構築について藤井を中心に全員で取り組むことができた。

## 4. 研究成果

(1) ビスマスにおける量子ネルンスト効果の新理論の構築の成功である。昨年度我々が 2 次元電子系を使い予言していたネルンスト係数の理論値と、1997 年の Behnia (仏)グループによるビスマスの実験データとの間には定量的な相違があった。この相違を克服すべく、キャリアとフォノンの相互作用によるフォノンドラッグの効果を考慮してネルンスト係数を計算し、フィッティングパラメータなしで定性的かつ定量的にも実験と一致する結果を得た(図 1)。この成果は Physical Review B 80(2009)075313 として発表した。この論文は、Editors' Suggestion に選ばれ、世界的に評価された。

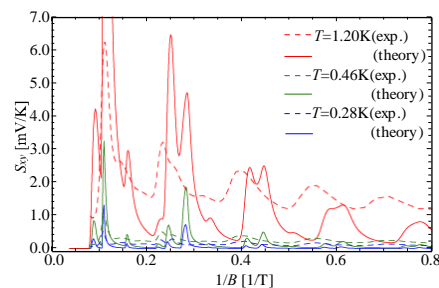


図 1 (ネルンスト係数) × (磁場) を、磁場の逆数に対してプロットしたグラフ。

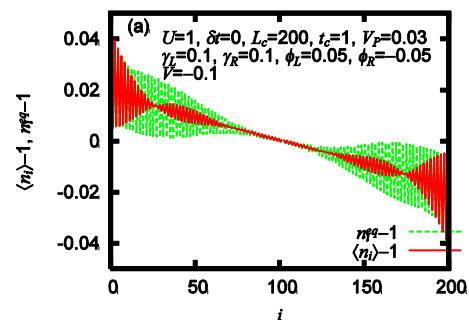


図 2 モット絶縁体に左向きの電子の流れを起こすようなバイアスをかけた時の、余剰電子密度(赤実線)および、その平衡成分(緑破線)

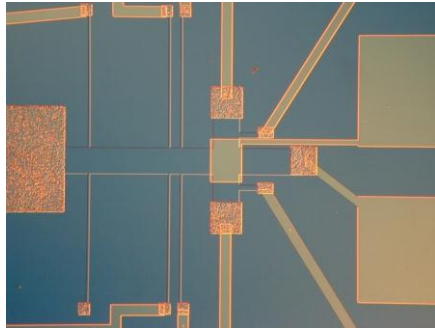


図3：試料の走査電子顕微鏡写真

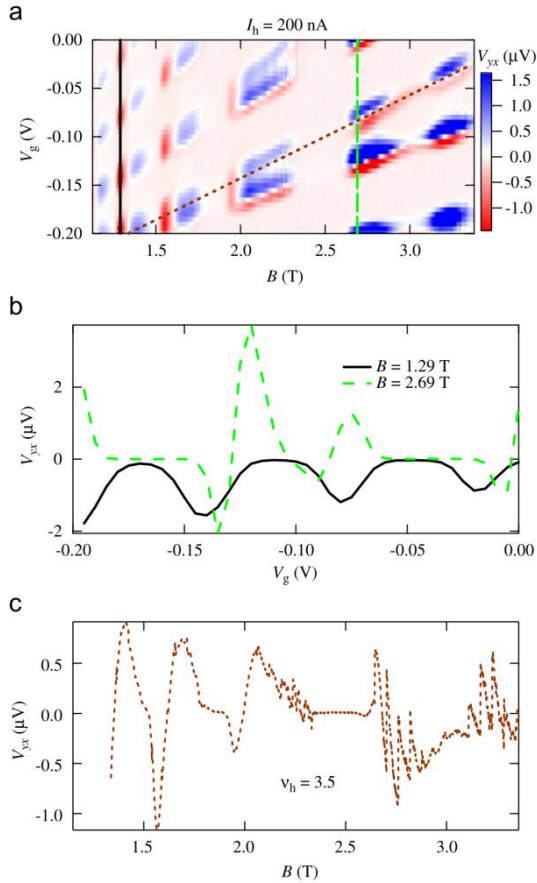


図4：ネルンスト電圧と磁場の関係。

(a)ネルンスト電圧  $V_{xy}$  の磁場  $B$  - 加熱部位のゲート電圧  $V_g$  面内でのプロット。(b) a 図の磁場一定とした切り口。黒実線： $B = 1.29 \text{ T}$ 。緑破線： $B = 2.69 \text{ T}$ 。(c) a 図のランダウ準位充填率  $\cdot h$  を一定とした切り口 ( $\cdot h = 3.5$ )。

(2) 金属-半導体接合面で作られる非対称なポテンシャルを伝導する熱流の解析を行うための基礎研究として、接合界面を通した集団的電荷輸送の非平衡グリーン関数による解析を行った。本研究により、従来の数値計算では扱えなかった定常状態での輸送特性を計算し、整流作用の抑制を再現するとともに、電荷分布の計算からそのメカニズムを解明した(図2)。

(3) ネルンスト効果の実験研究として、GaAs/AlGaAs 二次元電子系の量子ホール領域における電子温度勾配下のネルンスト電圧の測定を行った。これは、ビスマス以外での物質で、量子ネルンスト効果を新しく探し出すことを目的としたもので、量子ホール効果の実験でよく用いられる GaAs/AlGaAs 単一ヘテロ接合二次元電子系試料を用いている(図3)。この量子ホール系では、ビスマスとは異なり熱伝導を担うのは格子振動ではなく電子のみである。それゆえ、温度勾配下における電子系のみネルンスト係数の計測が行える特徴がある。ネルンスト係数およびゼーベック係数を測定より得ることができた(図4)。本結果は、国内外の会議で発表を行った。

(4) GaAs/AlGaAs でのネルンスト係数の測定において、従来の熱電半導体研究で用いられるような単純な試料中の温度勾配・電位分布では説明できない振る舞いを示した。そこで、我々は、試料中での温度分布・電位分布の「歪み」を正確に求めるため、輸送方程式の計算機シミュレーションを行った。このシミュレーションのアルゴリズムは、試料をメッシュ状に切り、そのメッシュ点上での温度・電位を、輸送方程式から導かれる非線形ポアソン方程式を数値的に解くというものである。この際、実験状況に応じた境界での温度・電位を与えると、試料中の温度・電位分布が求められるようになっていく。この一連のシミュレーションコードを完成することができた。さらに、このシミュレーションコードを用いて、測定実験で肝となる加熱領域(電流を流してジュール加熱による熱源部)を模した長方形のシミュレーション領域で、磁場中で電流を流した場合、局所的に周辺の部分より温度が下がる部分が生じることを発見することができた。特に、磁場中で長方形の半導体両端に電位差を加えた場合、試料中に電流及び熱流が流れ、Ettingshausen 効果が起こり、両端の熱浴よりも試料中の内部で温度が低くなる冷却現象が確認された。このシミュレーション結果は、現実の二次元半導体試料を用いた実験で起きるネルンスト電圧測定時の出力の理論からのずれが、上記半導体試料中の温度勾配によるものであるという推測の裏付けとなるものである。

(5) ナノワイヤ構造をもつ熱電半導体の量子輸送現象について、実験および理論での進展があった。実験においては、まずビスマスのナノワイヤにおいて試料作成・測定系の開発を完成し、ワイヤの長手方向の電気特性のみならず、ワイヤの垂直方向に磁場をかけた場合のホール電圧もしくはネルンスト電圧の測定が可能になった。さらに、ワイヤ

一の直径を変えた試料を作成し、ナノワイヤの磁場中での輸送係数の直径依存性を計測できるようになった。特に本研究で作成したワイヤは他のグループで作成されたより長手方向が十分長いことが特徴である。そのため両端の温度勾配依存性が正確に測定できるものと評価されている。一方、理論においては、かつて行った磁場中での三次元ビスマスバルクのフォノンドラッグ効果の計算を、ナノワイヤ系に適用すべく改良を行った。これにより、ナノワイヤでのフォノンドラッグを取り入れた理論計算の基盤を確立できた。

#### 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20件)

- ① Naomi Hirayama, Akira Endo, Kazuhiro Fujita, Yasuhiro Hasegawa, Naomichi Hatano, Hiroaki Nakamura, Ryōen Shirasaki, Kenji Yonemitsu, Transport-Coefficient Dependence of Current-Induced Cooling Effect in a Two-Dimensional Electron Gas, Journal of Electronic Materials, vol. 41 (2012) pp. 1535-1539.  
DOI: 10.1007/s11664-011-1850-3
- ② Ryōen Shirasaki, Akira Endo, Naomichi Hatano and Hiroaki Nakamura, Thermomagnetic Effect in the Quantum Hall System, Journal of Electronic Materials, vol. 41 (2012) pp. 1540-1545.  
DOI: 10.1007/s11664-011-1880-x
- ③ Takayuki Teramoto, Takashi Komine, Shinji Naomi Hirayama, Akira Endo, Kazuhiro Fujita, Yasuhiro Hasegawa, Naomichi Hatano, Hiroaki Nakamura, Ryōen Shirasaki, Kenji Yonemitsu, Temperature Distribution in Two-Dimensional Electron Gases under a Strong Magnetic Field, Journal of Electronic Materials, vol. 40 (2011) pp. 529-532.  
DOI: 10.1007/s11664-010-1470-3
- ④ Naomi Hirayama, Akira Endo, Kazuhiro Fujita, Yasuhiro Hasegawa, Naomichi Hatano, Hiroaki Nakamura, Ryōen Shirasaki, Temperature Distribution in Nano-Devices under a Strong Magnetic Field, Computer Physics Communications, vol. 182 (2011) 90-92  
DOI:10.1016/j.cpc.2010.07.043
- ⑤ Hiroaki Nakamura, Naomichi Hatano, Ryōen Shirasaki, Naomi Hirayama, Kenji Yonemitsu, Quantum Oscillations of Thermoelectric Effects in a Pseudo-one-dimensional Electron Gas with a Spin-Orbit Interaction, Journal of Electronic Materials, vol. 40 (2011) pp. 601-605.  
DOI: 10.1007/s11664-010-1470-3
- ⑥ K. Fujita, A. Endo, S. Katsumoto and Y. Iye: "Measurement of diffusion thermopower in the quantum Hall systems", Physica E, vol. 42, 1030-1033 (2010)  
DOI:10.1016/j.physe.2009.10.032.
- ⑦ Yasuhiro Hasegawa, Daiki Nakamura, Masayuki Murata, Hiroya Yamamoto, Takashi Komine, High-precision temperature control and stabilization using a cryocooler, Review of Scientific Instruments, Vol.81 (2010) 094901  
DOI: 10.1063/1.3484192
- ⑧ Masayuki Murata, Daiki Nakamura and Yasuhiro Hasegawa, Takashi Komine, Daisuke Uematsu, Shinichiro Nakamura and Takashi Taguchi, Electrical nanocontact between bismuth nanowire edges and electrodes, Journal of Electronic Materials, Vol.39(2010) 1536-1542.  
DOI: 10.1007/s11664-010-1282-5
- ⑨ Hiroaki NAKAMURA, A.M. ITO, Seiki SAITO, Yuichi TAMURA, Susumu FUJIWARA, Noriyasu OHNO, Shin KAJITA, 67. Comparison of Hydrogen Adsorption on Diamond and Graphite Surfaces, Plasma and Fusion Research, Vol.5 (2010) S2072 (4 pages)  
DOI: 10.1585/pfr.5.S2072
- ⑩ Yuichi Tamura, Hiroaki Ohtani, Tomohiro Umetani, Nakamura Hiroaki, Haptization on Numerical Simulation of Plasma, IEEE Transactions on Plasma Science, Vol.38 (2010) pp.2974-2979.  
DOI: 10.1109/TPS.2010.2060363
- ⑪ Akira Endo, Naomichi Hatano, Hiroaki Nakamura, and Ryōen Shirasaki, Fundamental relation between longitudinal and transverse conductivities in the quantum Hall system, Journal of Physics: Condensed Matter, Vol. 21, No.34(2009)345803 (11pages),  
DOI: 10.1088/0953-8984/21/34/345803
- ⑫ M. Matsuo, A. Endo, N. Hatano, H. Nakamura, R. Shirasaki and K. Sugihara, Quantum Nernst Effect in a Bismuth

- Single Crystal, Physical Review B, Vol. 80(2009)075313(6pages).  
DOI: 10.1103/PhysRevB.80.075313
- ⑬ Yasuhiro Hasegawa, Masayuki Murata and Daiki Nakamura, Takashi, Komine, “Reducing thermal conductivity of thermoelectric materials by using a narrow wire geometry”, Journal of Applied Physics, Vol. 106, pp.063703 1-7 (2009)  
DOI: 10.1063/1.3212982
- ⑭ Masayuki Murata, Daiki Nakamura, Yasuhiro Hasegawa, Takashi Komine, Takashi Taguchi and Shinichiro Nakamura, Vladimir Jovovic and Joseph P. Heremans, “Mean free path limitation of thermoelectric properties on bismuth nano-wire”, Journal of Applied Physics, Vol. 105, pp.113706 1-9 (2009)  
DOI: 10.1063/1.3131842
- ⑮ Masayuki Murata, Daiki Nakamura, Yasuhiro Hasegawa, Takashi Komine, Takashi Taguchi and Shinichiro Nakamura, Vladimir Jovovic and Joseph P. Heremans, “Thermoelectric properties of bismuth nanowires in a quartz template”, Applied Physics Letters, Vol.94, 192104 (2009)  
DOI: 10.1063/1.3133355
- ⑯ A. Endo, N. Hatano, H. Nakamura and R. Shirasaki, “Fundamental relation between longitudinal and transverse conductivities in the quantum Hall system”, Journal of Physics: Condensed Matter 21 (2009) 345803.  
DOI: 10.1088/0953-8984/21/34/345803
- ⑰ Kenji Yonemitsu and N. Maeshima, “Coupling-Dependent Rates of Energy Transfers from Photoexcited Mott Insulators to Lattice Vibrations,” Phys. Rev. B 79, 125118 (6 pages) (2009).  
DOI: 10.1103/PhysRevB.79.125118
- ⑱ K. Yonemitsu, “Nonequilibrium Green’s-Function Approach to the Suppression of Rectification at Metal-Mott-Insulator Interfaces,” J. Phys. Soc. Jpn. 78, 054705 (8 pages) (2009).  
DOI: 10.1143/JPSJ.78.054705
- ⑲ Yamamoto, Masahiro Kuraishi, Ryuji Sugita, Yasuhiro Hasegawa, and Hiroaki Nakamura, Influence of the band structure of BiSb alloy on the magneto-Seebeck coefficient, Journal of Applied Physics, Vol. 104, Issue 5 (2008) pp. 053714(6pages).  
DOI: 10.1063/1.2975387
- ⑳ Takayuki Teramoto, Takashi Komine, R. Sugita, Yasuhiro Hasegawa, and Hiroaki Nakamura, Numerical Analysis of Magneto-Seebeck Effect of Bismuth with Anisotropic Band Structure, Journal of Applied Physics, Vol. 103 (2008) pp. 043717 (6pages).  
DOI: 10.1063/1.2840060
- [学会発表] (計 20件)
- ① 藤田和博、量子ホール系の直流電流加熱による熱起電力：充填率および電流磁場方向依存性、日本物理学会2012年第67回年次大会、2012.3、関西学院大学(兵庫)
- ② Ryōen Shirasaki, Thermomagnetic effect in the quantum Hall system, 30th International Conference on Thermoelectrics (ICT 2011), 2011.7.18, Traverse City, MI, USA
- ③ Naomi Hirayama, Transport-coefficient dependence of current-induced cooling effect in a two-dimensional electron gas, 30th International Conference on Thermoelectrics (ICT 2011), 2011.7.18, Traverse City, MI, USA
- ④ Naomi Hirayama, Theoretical study of thermoelectric and thermomagnetic characteristics of Bismuth nanowires under a quantizing magnetic field, International Workshop on Simulation and Manipulation of Quantum Systems for Information Processing, 2011. 10, Jülich, Germany
- ⑤ N. Hirayama, Theoretical study of thermoelectric and thermomagnetic characteristics of Bismuth nanowires under a quantizing magnetic field, NATO Advanced Research Workshop on New materials for thermoelectric applications: theory and experiment, 2011. 9, Hvar, Croatia
- ⑥ K. Fujita, Spatial distribution of electron temperatures induced by a current in the quantum Hall regime, 19th Int. Conf. on Electronic Properties of Two-Dimensional Systems (EP2DS19), 2011.7, Tallahassee FL, USA
- ⑦ 藤田和博、量子ホール系における電流加熱時電子温度の空間分布と発生する熱起電力、日本物理学会2011年秋季大会、2011.9.23、富山大学(富山)
- ⑧ 平山尚美、ビスマスナノワイヤーの量子化磁場下での熱電特性の理論計算、日本物理学会2011年秋季大会、2011.9.23、富山大学(富山)

- ⑨ K. Fujita, Experimental verification of the Mott relation in the thermoelectric effect of the quantum Hall systems, 30-th Int. Conf. on the Physics of Semiconductors, 2010. 7. 29, COEX, Seoul, Korea
- ⑩ A. Endo, Measurement of thermoelectric power in unidirectional lateral superlattices, 30-th Int. Conf. on the Physics of Semiconductors, 2010. 7, COEX, Seoul, Korea
- ⑪ H. Nakamura, Quantum oscillation of the Peltier effect in a pseudo-one-dimensional system with a spin-orbit interaction, The 29th International Conference on Thermoelectrics (ICT2010), 2011.6, Shanghai, China
- ⑫ M. Matsuo, Quantum Nernst effect in a bismuth single crystal, 第27回 東北大学金属材料研究所所内講演会 2009. 5
- ⑬ 藤田和博、「量子ホール領域における拡散熱電能の充填率依存性」日本物理学会 2009年秋季大会、熊本大学、2009年9月.
- ⑭ 白崎良演、量子ホール系の熱電能：対角成分と非対角成分の関係、日本物理学会 第 65 回年次大会、岡山大学、2010. 3
- ⑮ M. Matsuo, Quantum Nernst effect in a bismuth single crystal, Workshop on Spin Caloritronics, 2009. 2, Lorentz International Center, Netherland.
- ⑯ N. Hirayama, Temperature distribution in nano-devices under a strong magnetic field, International Conference on Computational Physics 2009 (CCP2009), 高雄 (台湾)、2009 年 12 月
- ⑰ K. Fujita, "Measurement of diffusion thermopower in the quantum Hall systems", The 18th international conference on electronic properties of two-dimensional systems EP2DS-18 神戸 2009 年 7 月 23 日
- ⑱ K. Yonemitsu, "Photoinduced Charge Order and Melting Dynamics in 1/4-Filled Organic Conductors," Gordon Research Conference on Ultrafast Phenomena in Cooperative Systems, Il Ciocco (Italy), February 2008
- ⑲ 藤田和博、「量子ホール系における拡散熱電能の測定」, 日本物理学会 2008 年秋季大会、岩手大学、9 月.
- ⑳ 松尾まり、「ビスマスにおける量子ネルンスト効果」 日本物理学会 2008 年秋季大会岩手大学 (盛岡) 9 月.

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]  
○出願状況 (計 0 件)

名称：  
発明者：  
権利者：  
種類：  
番号：  
出願年月日：  
国内外の別：

○取得状況 (計 0 件)

名称：  
発明者：  
権利者：  
種類：  
番号：  
取得年月日：  
国内外の別：

[その他]

#### 6. 研究組織

##### (1) 研究代表者

中村 浩章 (NAKAMURA Hiroaki)  
核融合科学研究所・ヘリカル研究部・准教授  
研究者番号：30311210

##### (2) 研究分担者

羽田野 直道 (HATANO Naomichi)  
東京大学・生産技術研究所・准教授  
研究者番号：70251402

米満 賢治 (YONEMITSU Kenji)  
分子科学研究所・理論・計算分子科学研究領域・准教授

研究者番号：60270823

遠藤 彰 (ENDO Akira)

東京大学・物性研究所・助教

研究者番号：20260515

長谷川 靖洋 (HASEGAWA Yasuhiro)

埼玉大学・理工学研究科・准教授

研究者番号：60334158

白崎 良演 (SHIRASAKI Ryōen)

横浜国立大学・工学 (系) 研究科 (研究院)・准教授

研究者番号：90251751

藤井 達也 (FUJII Tatsuya)

東京大学・物性研究所・助教

研究者番号：30334345

##### (3) 連携研究者

該当なし