

フォノンドラッグによる熱電効果の線形応答理論: FeSb₂ への応用

[1] 要旨:

排熱を電気エネルギーに変換する熱電材料開発は基礎科学の社会貢献という観点から極めて重要であり理論・実験両面から多くの研究が展開されてきた。しかし、従来の研究は個別的であり俯瞰的視点に欠けていた。最近になって Kubo-Luttinger による線形応答理論に基づく系統的な研究が展開され、バンド端電子状態の詳細や電子・格子相互作用が果たす役割が徐々に明らかになってきている。その中で、ナローギャップ半導体 FeSb₂ は電気抵抗が特徴ある温度依存性を示す低温領域で極めて大きなゼーベック効果を示す特異な例として注目を集めている。電気抵抗の特徴的な温度依存性から強い不純物ポテンシャルの存在が、ゼーベック係数のサイズ依存性からフォノンドラッグの可能性が示唆されていたが、従来からのボルツマン輸送方程式では強い不純物ポテンシャルの効果を扱うことができないため、ボルツマン理論を超えた微視的理論での解析が望まれていた。本論文では、強い不純物ポテンシャル下でのフォノンドラッグによる熱電効果の線形応答理論が初めて構築され、それにより FeSb₂ の実験結果の定量的な理解に成功した。この成功は今後の熱電材料開発において重要な指針を与える。

[2] 本文

ゼーベック効果とは物質の両端の温度差に比例して電圧が発生する現象であり、その比例係数はゼーベック係数と呼ばれている。ゼーベック係数が大きな物質は排熱を電気エネルギーに変換する熱電材料として応用上も大変重要である。この課題に対して多くの実験的研究が展開されてきているが、それらの解析には現象論的なボルツマンの輸送方程式を用いるのが一般的であった。しかし、ボルツマン方程式で捉えきれない現象も多く存在し、熱電効果の微視的かつ系統的な理論研究への期待が高まっていた。

ゼーベック効果には電子およびフォノンいずれもが役割を果たすが、後者にはフォノンドラッグという現象がある。フォノンドラッグとは温度勾配によってフォノンの流れが誘起され、それが電子格子相互作用を通して電子の流れを引き起こす現象であり、シリコンやゲルマニウムなどの不純物半導体の大きなゼーベック効果の原因と考えられている。最近、低温で大きなゼーベック係数を示すナローギャップ半導体 FeSb₂ が発見され、その起源がゼーベック係数のサイズ依存性からフォノンドラッグと指摘され注目を集めている。この物質では電気抵抗の特徴的な温度依存性から不純物バンドの存在が示唆され、さらに電気抵抗が肩構造をもつ温度領域で 40mV/K を超える大きなゼーベック係数が現れる。この特異なゼーベック効果を理解するためには不純物バンドにおける熱電効果を解析しなければならないが、ボルツマン輸送方程式では強い不純物ポテンシャルの効果を正確に扱うことができず、そのため、このような場合の微視的理論が必要とされていた。

最近、東京大学大学院理学系研究科物理学専攻と東京理科大学のグループは、Kubo-Luttinger による線形応答理論を用いて、強い不純物ポテンシャルがある場合のフォノンドラッグによる熱電効果の微視的理論を構築し FeSb₂ に適用した。その結果、実験で観測されているゼーベック係数の温度依存性を定量的に再現することに成功し (図 1)、電気抵抗が肩構造を示す温度領域でゼーベック係数にピーク構造が現れることを示した。さらに、ゼーベック係数が有効質量の二乗に比例して増大するという顕著な有効質量依存性を見出した。(図 2)。この成果は、日本物理学会が発行する英文誌 Journal of the Physical Society of Japan (JPSJ) の 2019 年 7 月号に掲載された。

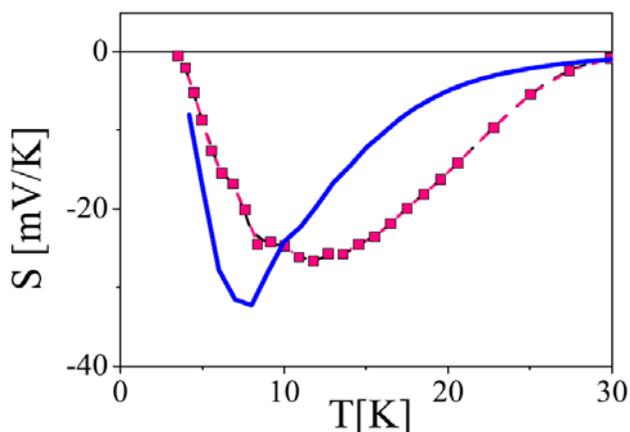


図1. フォノンドラック機構によるゼーベック係数 (S) の温度 (T) 依存性。青線が理論値、赤四角は実験値 (H. Takahashi et al., Nat. Commun. 7 12732 (2016).) である。

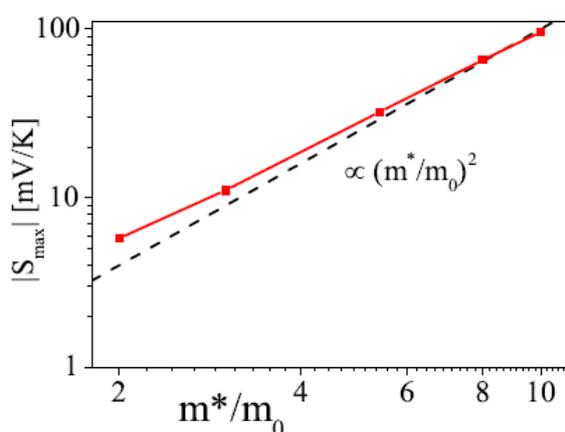


図2. ゼーベック係数の最大値 ($|S_{\max}|$) の有効質量 (m^*) 依存性 (m_0 は電子質量)。赤線が理論値であり、比較のため有効質量の二乗に比例する直線を点線で示してある。

従来のフォノンドラックは、電子系を単純な金属状態であると仮定したボルツマンの輸送方程式に基づいて議論されている。この場合、フォノンドラックによるゼーベック係数は有効質量に比例することが指摘されていた。これは、本研究で得られた結果と定性的に異なる。このことは、不純物バンド等を扱えないボルツマン方程式による解析では不十分であり、ボルツマン理論を超えた Kubo-Luttinger による線形応答に基づいた微視的理論が必要であることを示唆している。微視的理論に裏付けされたフォノンドラックによる熱電効果の今後の研究の展開が期待される。

原論文

[Effect of Phonon Drag on Seebeck Coefficient Based on Linear Response Theory: Application to FeSb₂](#)
 Hiroyasu Matsuura, Hideaki Maebashi, Masao Ogata, and Hidetoshi Fukuyama: *J. Phys. Soc. Jpn.* **88**, 074601 (2019).

< 情報提供 松浦弘泰 (東京大学大学院理学研究科 助教)
 前橋英明 (東京大学大学院理学研究科 特任研究員)
 小形正男 (東京大学大学院理学研究科 教授)
 福山秀敏 (東京理科大学 教授) >