

NATIONAL INSTITUTE FOR FUSION SCIENCE

強磁場中のネルンスト素子の輸送現象と
エネルギー変換

中村浩章、池田一昭、山口作太郎

(Received - Oct. 3, 1997)

NIFS-MEMO-25

Nov. 1997

RESEARCH REPORT
NIFS-MEMO Series

This report was prepared as a preprint of work performed as a collaboration research of the National Institute for Fusion Science (NIFS) of Japan. This document is intended for information only and for future publication in a journal after some rearrangements of its contents.

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to the Research Information Center, National Institute for Fusion Science, Nagoya 464-01, Japan.

強磁場中でのネルンスト素子の輸送現象とエネルギー変換
Transport Phenomena and Energy Conversion of the Nernst
Element in a Strong Magnetic Field

中村浩章 (Hiroaki NAKAMURA)、池田一昭^a (Kazuaki IKEDA),
山口作太郎 (Satarou YAMAGUCHI)

National Institute for Fusion Science (NIFS),

^aDepartment of Fusion Science, The Graduate University for Advanced Studies (GUAS)

Oroshi-Cho, Toki-City, Gifu-Prefecture, 509-52, Japan, Phone&Fax : +81-52-789-4538,

E-mail:hiroaki@rouge.nifs.ac.jp, <http://rouge.nifs.ac.jp/~hiroaki/index.html>

(この論文は日本金属学会誌第61巻第12号に掲載決定)

Abstract

Electric generator by the Nernst effect in a strong magnetic field, which is called a Nernst element, was proposed in a few years ago. We have developed a measuring system of transport coefficients, which are, the thermoelectric coefficient α and the Nernst coefficient N , to find the Nernst element which has a good figure of merit. We obtained the temperature T and the magnetic field B dependence of both α and N of InSb, which has a high mobility and which is one of candidates of the Nernst elements, when $263\text{K} \leq T \leq 373\text{K}$ and $B \leq 4\text{T}$. We measured two types of InSb samples, which we called sample A and sample B. Their carrier concentrations at 77K are $n = 2.1 \times 10^{22}\text{m}^{-3}$ and $n = 2.9 \times 10^{21}\text{m}^{-3}$, respectively. This measurement gives the following two important results: (i) Both α and N of sample B, which is in the intrinsic region near room temperature, are higher than those of sample A. (ii) the N of both samples are proportional to B up to 4 T. This fact is inconsistent with theoretical result, that is, $N \propto 1/B^2$.

Keywords: *indium antimonide, Nernst effect, Nernst coefficient, Nernst element, thermomagnetic conversion, transport coefficient, thermoelectric power, mobility, Boltzmann equation, parabolic band, phonon, scattering process, figure of merit, strong magnetic field*

I. 緒言

半導体の熱電および熱磁気効果は古くから [1] 知られている。1960 年代には、半導体の応用上の利用のためにこれらが詳しく調べられてきた。その成果として、熱電効果の利用 [1,2] としては精密な温度制御や惑星探査衛星の電源などがある。一方、熱磁気効果の利用は古くは冷却に使おうと言う試み [3] があったが、その後普及されてはいない。しかし、近年は、超伝導コイルの性能向上の為に強磁場が比較的簡単に作り出せるようになってきた。このような時代背景のもとで、1993 年に単一バンドモデルを用いたネルンスト効果によるエネルギー変換の性能指数 Z_N の計算 [4] がある。この計算は磁場が強くなると Z_N は熱電効果による発電効率の性能指数 Z よりも大きくなる可能性があることを指摘している。これは強磁場中での、ネルンスト効果の発電の利点を指摘し、さらには、磁場効果の見直しの必要性を説いている。また、近年、低温でのペルチエ冷却の性能指数の磁場依存性について報告 [5] もある。

このように半導体の熱磁気効果と言った古くから存在を知られてきた現象は、強磁場と言う新しい環境のもとでは全くの未知の分野であり、応用の可能性が眠っているという期待ができる。

このような考えの下で、熱磁気効果のうちのネルンスト効果を使った発電と言うこれまで研究されなかった提案の実現可能性を調べるために、強磁場かつ温度勾配のある系での輸送係数の測定法の確立を行ってきた。そして最近ようやく実験データが出てきた。

本論文ではこの測定結果を報告する。まず、II. では磁場中での発電効率の性能指数の関係をネルンスト効果と熱電効果について各々まとめ、ネルンスト効果の利用の有利さをまとめる。そして III. では磁場中かつ温度勾配のある系での輸送現象をミクロに記述するボルツマン方程式からの物理的描像をまとめる。IV. では最近行った熱電能とネルンスト係数の実測値をボルツマン方程式による理論値と比較する。最後に V. では、今後の展望や課題をまとめる。

なお、この文献 [4] に従いネルンスト効果を用いた発電に使う素材をネルンスト素子と名付ける。

II. 変換効率

A. 熱電素子による発電の変換効率

熱電能の発電効率 ξ を評価するのに次式で定義される性能指数 Z を用いる。ただし、簡単のため、この章では輸送係数は系の平均値を取る近似を使う。

$$Z \equiv \frac{\sigma \alpha^2}{\kappa}. \quad (1)$$

なお、ここで σ, α, κ は各々電気伝導度、熱電能、熱伝導率である。さらに、高温側の温度を T_h とし、低温側を T_l とする。そして、外部電気負荷 R_l と素子内の抵抗 R の比を

$$\delta \equiv \frac{R_l}{R}, \quad (2)$$

とする。

これらを用いて、発電効率 ξ は次のようにかける。[3]

$$\begin{aligned} \xi &= \frac{T_h - T_l}{T_h} \left(\frac{\frac{\delta}{1+\delta}}{1 + \frac{1}{Z} \frac{1+\delta}{T_h} - \frac{1}{2} \frac{T_h - T_l}{T_h} \frac{1}{1+\delta}} \right) \\ &\equiv \xi_c \xi_d, \end{aligned} \quad (3)$$

ここで、 ξ_c はカルノーサイクルの場合の効率

$$\xi_c \equiv \frac{T_h - T_l}{T_h}, \quad (4)$$

である。そして、式(3)の ξ_c 以外の因子 ξ_d はデバイスの効率を表す。

なお、 Z, T_h, T_l を固定した場合、発電効率(3)は式(5)で表せる抵抗の比 δ を変数とした関数と考えられる。この関数は、次式で定義される δ^* の時、つまり

$$\delta^* \equiv \sqrt{1 + Z T_{av}}, \quad (5)$$

$$T_{av} \equiv \frac{T_h + T_l}{2}, \quad (6)$$

この時、最大値を持つ。この効率の最大値 ξ^* は次式で与えられる。

$$\begin{aligned} \xi^* &= \frac{T_h - T_l}{T_h} \frac{\delta^* - 1}{\delta^* + \frac{T_l}{T_h}} \\ &\rightarrow \frac{T_h - T_l}{T_h} \equiv \xi_c \quad (\text{as } Z \rightarrow \infty). \end{aligned} \quad (7)$$

この式(7)からわかるように、最大効率 ξ^* は Z について単調増加関数になり、 Z が無限大の極限でカルノーサイクルの効率になり、熱力学第二法則を満足している。デバイス効率 ξ_d の Z 依存性を $T_l = 300$ K, $T_h = 800$ K の場合に Fig. 1 に図示する。

B. ネルンスト素子による発電の変換効率

ネルンスト効果の発電効率 ξ_N を評価するのに次式で定義される性能指数 Z_N を用いる。

$$Z_N \equiv \frac{\sigma (BN)^2}{\kappa}. \quad (8)$$

ここで、 B は外部磁場、 N はネルンスト係数である。ネルンスト効果による発電効率 ξ_N は次のように表せる。[3]

$$\xi_N = \frac{T_h - T_l}{T_h} \left(\frac{\frac{\delta}{1+\delta}}{\frac{1+\delta}{T_h Z_N} - \frac{T_l}{T_h} - \frac{1}{2} \frac{T_h - T_l}{T_h} \frac{1}{1+\delta}} \right). \quad (9)$$

なお、 Z, T_h, T_l を固定した場合、この効率 ξ_N は抵抗の比(2)が次式で定義される δ_N^* の時、つまり

$$\delta_N^* \equiv \sqrt{1 - Z_N T_{av}}, \quad (10)$$

この時、最大になる。この効率の最大値 ξ_N^* は次式で与えられる。[3]

$$\xi_N^* = \frac{T_h - T_l}{T_h} \frac{1 - \delta_N^*}{1 + \delta_N^* \frac{T_l}{T_h}}. \quad (11)$$

ここでネルンスト素子の最適効率(11)と熱電素子の式(7)とを比較すると、双方とも、カルノー効率(4)とデバイスに依存した効率の積になっている。しかし、二つの場合の効率には以下の相違点がある。熱電能の場合は、抵抗の比 δ^* (5)において ZT_{av} に特に制限はない。一方、ネルンスト効果の場合は δ_N^* (10)が、実数の範囲で存在するには

$$Z_N T_{av} \leq 1, \quad (12)$$

という拘束条件が課せられる。[3] この条件(12)が成り立つならば、

$$0 \leq \xi_N \leq \xi_c \text{ for } \forall \delta \geq 0, \quad (13)$$

という恒等式が成り立ち、熱力学第二法則を満たす。デバイス効率の性能指数依存性を $T_1 = 300 \text{ K}$, $T_h = 800 \text{ K}$ の場合に Fig. 1 に図示する。この図より、ネルンスト素子の方が熱電素子より性能指数の増加に対して、“敏感”に増える。ゆえに、熱電素子とネルンスト素子で同じ性能指数を与えることができれば、ネルンスト素子の方がより効率的に発電を行えると言える。さらに、ネルンスト素子の性能指数 Z_N は式(8)のように磁場が B^2 の形で含まれている。このため、磁場以外の $\sigma N^2/\kappa$ が磁場の増加に対して、 B^{-2} 以上の強さで減少しなければ Z_N は磁場に対して単調増加となる可能性がある。

III. 理論計算

A. ボルツマン方程式

半導体では電子もしくはホールがキャリアーとして輸送現象を担っている。その際の振舞いを表す輸送係数の温度依存性はボルツマン方程式 [3,6,7] より求められる。なお、本論文でボルツマン定数 $k_B = 1$ という単位系にする。多数の粒子からなる系を考え、粒子はほとんど自由に運動しているが、ときどき他の粒子と衝突しその運動状態を変えるものとする。この時、粒子の分布関数を $f(\mathbf{r}, \mathbf{k}, t)$ とすると f の時間微分は定常状態では

$$\left(\frac{df}{dt}\right) = \left(\frac{df}{dt}\right)_{\text{field}} + \left(\frac{\partial f}{\partial t}\right)_t = 0. \quad (14)$$

ただし、 \mathbf{r} は粒子の位置座標、 \mathbf{k} は波数ベクトル、 t は時間を表す。さらに、 $\left(\frac{df}{dt}\right)_{\text{field}}$ は相空間の時間微分を、 $\left(\frac{\partial f}{\partial t}\right)_t$ は衝突による時間変化を表す。いま仮定として分布関数 f は平衡の際の分布関数 f_0 からのずれ $f_1 \equiv f - f_0$ は小さいとする。さらに f_1 は次式のようにキャリアーの速度 \mathbf{v} で展開できるとする。つまり、

$$f_1 = \mathbf{v} \cdot \boldsymbol{\chi}. \quad (15)$$

系の分布関数を求めることは、これまでの近似や仮定の下で $\boldsymbol{\chi}$ を求めることを意味する。ここでは、半導体の輸送現象を考えるには粒子として、電子もしくはホールといったキャリアーを考える。これらは、平衡系の場合には分布関数は次のフェルミ-ディラック分布 f_0 である。

$$f_0 = \frac{1}{\exp\left(\frac{\varepsilon - \zeta}{T}\right) + 1}, \quad (16)$$

なお、 ε はエネルギー、 ζ は化学的ポテンシャルである。そして、衝突項は以下のように仮定する。ここで τ は緩和時間である。

$$\left(\frac{\partial f}{\partial t}\right)_t = \frac{f - f_0}{\tau}. \quad (17)$$

一方、相空間の時間微分は

$$\left(\frac{df}{dt}\right)_{\text{field}} = -\mathbf{v} \cdot \nabla_{\mathbf{r}} f - \dot{\mathbf{k}} \cdot \nabla_{\mathbf{k}} f, \quad (18)$$

ただし、ドット ($\dot{\cdot}$) は時間微分を表す。電場 \mathbf{E} と磁場 \mathbf{B} 中での運動方程式は

$$\hbar \dot{\mathbf{k}} = q(\mathbf{E} + \mathbf{v} \times \mathbf{B}), \quad (19)$$

となる。ただし、 q はキャリアの電荷である。また、分布関数 f は温度勾配 $\nabla_{\mathbf{r}} T$ を通じてのみ位置座標 \mathbf{r} 依存性をもつ。さらにキャリアのエネルギーを ε 、有効質量を m_{eff} とし、ここでは以下の等方的な双曲型エネルギーバンドのみを扱う。

$$\varepsilon = \frac{\hbar^2 \mathbf{k}^2}{2m_{\text{eff}}}. \quad (20)$$

式(14)-(20)より、 χ の満たすべき方程式が次のように求められる。

$$D \frac{\partial f_0}{\partial \varepsilon} \mathbf{v} \cdot \nabla_{\mathbf{r}} T - q \frac{\partial f_0}{\partial \varepsilon} \mathbf{v} \cdot \mathbf{E} - \frac{q\hbar}{m_{\text{eff}}} (\mathbf{v} \times \mathbf{B}) \chi - \frac{\mathbf{v} \cdot \chi}{\tau} = 0. \quad (21)$$

なお、

$$D \equiv \frac{\varepsilon}{T} + T \frac{d}{dT} \left(\frac{\zeta}{T} \right). \quad (22)$$

ここで、表記の簡略のため以下のベクトル ϕ を定義する。

$$\phi \equiv \tau \frac{\partial f_0}{\partial \varepsilon} (D \nabla_{\mathbf{r}} T - q \mathbf{E}). \quad (23)$$

これを使って (21) の解が求まり、 f_1 は以下のようになる。

$$f_1 = \frac{\phi \cdot \mathbf{v} + s(\phi \times \mathbf{b}) \cdot \mathbf{v} + s^2(\phi \cdot \mathbf{b})(\mathbf{v} \cdot \mathbf{b})}{1 + s^2}, \quad (24)$$

ここで、

$$\mathbf{b} \equiv \frac{\mathbf{B}}{|\mathbf{B}|}, \quad (25)$$

$$s = \mu B, \quad (26)$$

$$\mu \equiv \frac{q\tau}{m_{\text{eff}}}, \quad (27)$$

ここで μ は移動度である。ミクロな散乱過程の理論 [8,9] から、移動度は以下のように $k = |\mathbf{k}|$ の幂でかける。

$$\mu = \mu_0 \left(\frac{d\mathcal{E}}{dk} \right)^2 k^{2r-3}, \quad (28)$$

なお、 r は散乱指数で以下の値を取る。

$$r = 0 \quad \text{音響フォノン散乱}, \quad (29)$$

$$r = 1 \quad \text{光学フォノン散乱}, \quad (30)$$

$$r = 2 \quad \text{イオン不純物散乱}. \quad (31)$$

ある物理量 A が \mathbf{k} -空間でのみの関数の場合、つまり $A = A(k)$ の場合は期待値 $\langle A \rangle$ は以下のように定義できる。

$$\langle A \rangle \equiv \int_0^\infty \left(-\frac{\partial f_0}{\partial \mathcal{E}} \right) A(k) k^3 d\mathcal{E}, \quad (32)$$

これを使い、状態密度 n は次のように求められる。

$$\begin{aligned} n &= \frac{2}{(2\pi)^3} \int_0^\infty f_0 d^3k = \frac{1}{\pi^2} \int_0^\infty f_0 k^2 \frac{dk}{d\mathcal{E}} d\mathcal{E} \\ &= \frac{1}{3\pi^2} \int_0^\infty f_0 \frac{d}{d\mathcal{E}} (k^3) d\mathcal{E} = \frac{1}{3\pi^2} \int_0^\infty \left(-\frac{\partial f_0}{\partial \mathcal{E}} \right) k^3 d\mathcal{E} \\ &= \frac{1}{3\pi^2} \langle 1 \rangle. \end{aligned} \quad (33)$$

次に、電流密度 \mathbf{j} と熱流 \mathbf{q} を求めてみる。これらの物理量は f_1 を使って以下のように書ける。

$$\mathbf{j} = \frac{2q}{(2\pi)^3} \int \mathbf{v} f_1 d^3k, \quad (34)$$

$$\mathbf{q} = \frac{2}{(2\pi)^3} \int \mathbf{v} \mathcal{E} f_1 d^3k. \quad (35)$$

一方、電流密度、熱流を次のようにテンソル $\hat{\sigma}, \hat{\theta}, \hat{\eta}, \hat{\kappa}$ を使って表すことができる。

$$\mathbf{j} = \hat{\sigma}\mathbf{E} - \hat{\theta}\nabla T, \quad (36)$$

$$\mathbf{q} = \hat{\eta}\mathbf{E} - \hat{\kappa}\nabla T. \quad (37)$$

このテンソルを求めるために、次の \mathbf{k} -空間のテンソル \hat{S} を導入する。磁化の方向を z 軸とする。

$$S_{xx} = S_{yy} = \frac{1}{1+s^2}; S_{zz} = 1; S_{xy} = -S_{yx} = \frac{s}{1+s^2}. \quad (38)$$

これらを使って輸送係数のテンソルは以下のようにかける。

$$\hat{\sigma} = \frac{q}{3\pi^2} \langle \mu \hat{S} \rangle, \quad (39)$$

$$\hat{\theta} = \frac{1}{3\pi^2} [\langle \epsilon \mu \hat{S} \rangle + C \langle \mu \hat{S} \rangle], \quad (40)$$

$$\hat{\eta} = \frac{T}{3\pi^2} \langle \epsilon \mu \hat{S} \rangle, \quad (41)$$

$$\hat{\kappa} = \frac{T}{3\pi^2 q} [\langle \epsilon^2 \mu \hat{S} \rangle + C \langle \epsilon \mu \hat{S} \rangle], \quad (42)$$

ここで、

$$\epsilon \equiv \frac{\mathcal{E}}{T}, \quad C \equiv T \frac{d}{dT} \left(\frac{\zeta}{T} \right). \quad (43)$$

このように表せる輸送係数のテンソルは、弱磁場の極限 ($s = \mu B \rightarrow 0$) と強磁場の極限 ($s \rightarrow \infty$) で以下のように簡単になる。

$$\alpha(0) = \frac{1}{q} \left[\frac{\langle \epsilon \mu \rangle}{\langle \mu \rangle} - \eta \right], \quad (44)$$

$$\alpha(\infty) = \frac{1}{q} \left[\frac{\langle \epsilon \rangle}{\langle 1 \rangle} - \eta \right], \quad (45)$$

$$N(0) = \frac{1}{q} \frac{\langle \epsilon \mu \rangle \langle \mu^2 \rangle - \langle \mu \rangle \langle \epsilon \mu^2 \rangle}{\langle \mu \rangle^2}, \quad (46)$$

$$N(\infty) = \frac{1}{q} \frac{1}{\langle 1 \rangle^2 B^2} \left[\left\langle \frac{\epsilon}{\mu} \right\rangle \langle 1 \rangle - \langle \epsilon \rangle \left\langle \frac{1}{\mu} \right\rangle \right]. \quad (47)$$

ここで、 $\eta \equiv \zeta/T$ である。また移動度の統計平均 $\bar{\mu}$ は以下のように表すことができる。

$$\bar{\mu} \equiv \frac{\int_0^\infty \mu f_0 d^3k}{\int_0^\infty f_0 d^3k} = \frac{\langle \mu \rangle}{\langle 1 \rangle}. \quad (48)$$

B. 非縮体の場合

一般に半導体のフェルミエネルギーは伝導帯と禁則帯の間にある。ゆえにフェルミエネルギー近傍のエネルギーを持つキャリアが存在する確立は低い。従って、半導体の統計的な振舞いを考えるにはフェルミ-ディラック分布(16)をマクスウェル分布と近似して考えることができる。[10,11]

$$f_0(\mathcal{E}) \sim e^{\eta - \mathcal{E}}, \quad (49)$$

なお、 $\eta < 0$ である。このとき、期待値(32)は

$$\begin{aligned} \langle A \rangle &= \int_0^\infty \left(-\frac{\partial f_0}{\partial \mathcal{E}} \right) A k^3 d\mathcal{E} \\ &= \left(\frac{2m_{\text{eff}}T}{\hbar^2} \right)^{\frac{3}{2}} e^\eta \int_0^\infty A \mathcal{E}^{\frac{3}{2}} \exp(-\mathcal{E}) d\mathcal{E}, \end{aligned} \quad (50)$$

と簡単になり、特に $A = A_0 \mathcal{E}^p$ の場合は以下のように厳密に積分が解ける。

$$\langle A_0 \mathcal{E}^p \rangle = \left(\frac{2m_{\text{eff}}T}{\hbar^2} \right)^{\frac{3}{2}} A_0 \Gamma\left(\frac{5}{2} + p\right) e^\eta, \quad (51)$$

なお、 $\Gamma(x) \equiv \int_0^\infty e^{-t} t^{x-1} dt$ はガンマ関数である。これを使い以下のように輸送係数(44)-(47)を得ることができる。

$$\alpha(0) = \frac{1}{q} [(r+2) - \eta], \quad (52)$$

$$\alpha(\infty) = \frac{1}{q} \left[\frac{5}{2} - \eta \right], \quad (53)$$

$$N(0) = \frac{1}{q} \bar{\mu} \left(\frac{1}{2} - r \right) \frac{3\sqrt{\pi} \Gamma\left(\frac{3}{2} + 2r\right)}{4 \Gamma^2(r+2)}, \quad (54)$$

$$N(\infty) = \frac{1}{q} \frac{16}{9\pi} \left(\frac{1}{2} - r \right) \Gamma(3-r) \Gamma(2+r) \left(\frac{1}{\bar{\mu} B^2} \right), \quad (55)$$

となる。

C. 2バンドの弱磁場極限

これまでの議論はキャリアが一種類の場合を考えた。電子とホールの2種類のキャリアが存在するときの弱磁場極限での振舞いを熱電能とネルンスト係数について結果のみまとめておく。

$$\alpha(0) = \frac{1}{e(n\mu_n + p\mu_p)} [-(2+r-\eta_n)n\mu_n + (2+r-\eta_p)\mu_p], \quad (56)$$

$$N(0) = -\frac{1}{e} \frac{3\sqrt{\pi}}{4} \frac{\Gamma(\frac{3}{2}+2r)}{\Gamma^2(r+2)} \times \left[(t_1\mu_n + t_2\mu_p) \left(r - \frac{1}{2} \right) + t_1 t_2 \left(2r + 4 + \frac{\mathcal{E}_G}{T} \right) (\mu_n + \mu_p) \right], \quad (57)$$

ここで、 $e > 0$ は素電荷、 \mathcal{E}_G はギャップエネルギーで、伝導帯の底から化学的ポテンシャルを測ったとき、 $\eta_n = \zeta/T$, $\eta_p = -(\zeta + \mathcal{E}_G)/T$ 、 n と p は各々電子とホールの状態密度を、そして、 μ_n と μ_p はおのおの電子とホールの移動度を表す。さらに、

$$t_1 \equiv \frac{n\mu_n}{n\mu_n + p\mu_p}, \quad (58)$$

$$t_2 \equiv \frac{n\mu_p}{n\mu_n + p\mu_p}, \quad (59)$$

である。

特に、真性領域では、電子とホールのキャリア濃度が等しくなる。そのキャリア濃度を n_i とすれば、

$$n = p = n_i, \quad (60)$$

を式(56)-(59)に代入して、熱電能とネルンスト係数を求めることができる。次章で実験結果を紹介するが、その比較のために理論計算として、2種類のキャリアが存在するときの弱磁場極限での振舞いの式(56)と(57)を使う。

IV. 輸送係数の測定結果

A. ネルンスト素子の候補材料

ネルンスト素子の候補材の一つとして InSb を選んだ。[12,13] この材料は、電子の移動度が常温で約 $8 \text{ m}^2/(\text{Vs})$ と大きい。このために、大きなネルンスト係数を持つと考えられ

る。なぜなら式(54)より、弱磁場ではネルンスト係数は移動度に比例するからである。熱電能とネルンスト係数を求めるために、過去の文献より InSb の以下の物理量を使った。真性領域でのキャリアー濃度 n_i は [14,15]

$$n_i(T) = 6 \times 10^{20} T^{\frac{3}{2}} \exp\left(-\frac{\mathcal{E}_G}{2T}\right) \left[\text{m}^{-3}\right], \quad \mathcal{E}_G = 0.26 \text{ [eV]}. \quad (61)$$

次に、移動度は [15,16]

$$\mu_n(T) = 7.7 \left(\frac{T}{300}\right)^{-1.66} \left[\frac{\text{m}^2}{\text{Vs}}\right], \quad (62)$$

$$\mu_p(T) = 8.5 \times 10^{-2} \left(\frac{T}{300}\right)^{-2} \left[\frac{\text{m}^2}{\text{Vs}}\right]. \quad (63)$$

さらに有効質量 [17,18] は、電子の質量を m_0 とし、

$$m_n = 0.01359m_0, \quad m_p = 0.45m_0. \quad (64)$$

これらを基本的な物理量として輸送係数を求めた。

キャリアーの散乱に関して、この実験の温度領域では音響フォノン散乱が支配的なので $r = 0$ の値を使う。さらに、二種類の不純物濃度の n 型 InSb を用意した。Sample A は 77K で $n = 2.1 \times 10^{22} \text{m}^{-3}$ 、Sample B は 77K で $n = 1.2 \times 10^{21} \text{m}^{-3}$ である。

B. 測定方法

Sample A, B とも Fig. 2 のような形状 (ブリッジ型) に加工した。温度勾配と磁場の空間配置はこの図のようにした。この際、熱電能電圧の測定には AC 間の電圧を、ネルンスト電圧は BD 間の電圧を測定した。計測線には直径 $50 \mu\text{m}$ の銅線をスポット熔接した。高温端にはフィルムヒーターをもちいて銅ブロックを温め、試料の一方と電気絶縁しながら接触させている。低温端は恒温槽で温度制御された水 (低温では凍らないように不凍液をいれている) を銅ブロックの中を循環させて冷やし、それに、電気絶縁した試料の另一端と接触させる。高温端の温度 T_h は 273K から 383K の間で変え、低温端の温度 T_l は 263K から 363K までの範囲で変化させ、測定を行った。なお、誤差 $\pm 0.12\text{K}$ である。空気中への熱伝達を小さくするために、 $2 \times 10^{-3} \text{Pa}$ 以下の真空中で、この実験を行った。

試料の温度分布を、磁場がない場合の有限要素法の数値計算で求めた。高温側を 373K に低温側を 273K にしている。その結果を Fig. 3 に示した。さらにネルンスト電圧を計る B 点と D 点の温度はその中心部とほぼ等しいことがわかる。そして、その中心部の温度勾配を Fig. 4 により詳細に図示した。これらの計算から、温度勾配が試料で一定という近似をまず使う。ただし、温度分布についての次のステップの考察は、試料の形状に関係するが、これについては報告 [19] を参照のこと。

磁場の発生には、超伝導コイルを利用した。直列に接続した 2 つのスプリットコイル (NbTi) が、クライオスタットの液体ヘリウム槽内に設置されている。このコイルに 60A の電流を流しボア中心部で 4T の磁場を与えることができる。

Fig. 5 に計測システムの概略を描いた。信号計測系として出力電圧と温度測定用熱電対の電圧がある。これらを絶縁アンプで増幅し、アナログデジタル変換器 (ADC) でデジタル信号に変換しパソコンに取り込んだ。これらの一連の作業は、パソコンで自動計測制御ソフトウェアを使い制御させている。なお、12bit の ADC と絶縁アンプの利得を最大である 2000 倍にすることにより $2.4\mu\text{V}$ の分解能で電圧を測定できる。

C. 測定結果

このような測定系で計測を行ったが、ここで気を付けねばならないことがある。試料に温度勾配をつけるため、当然試料には温度分布がある。一般に熱電能やネルンスト係数といった輸送係数は温度依存性がある。ゆえに測定電圧は、 T_l から T_h の温度での輸送係数が操り込まれたものとして観測される。熱電能の場合は温度勾配と平行に電圧が生じるので T_l から T_h の平均値が観測できる。

$$V_\alpha = \int_0^l \alpha(T) \left(\frac{\partial T}{\partial x} \right) dx = \int_{T_l}^{T_h} \alpha(T) dT, \quad (65)$$

ここで、 x 軸を温度勾配方向にとり、この方向の試料の長さを l とし y 軸は温度勾配と磁場の両方に垂直な方向に取り、その方向の試料の幅を w とする。さらに、計測された熱電能を $\bar{\alpha}$ として以下のように定義する。

$$\bar{\alpha} \equiv \frac{V_\alpha}{T_h - T_l} = \frac{1}{T_h - T_l} \int_{T_l}^{T_h} \alpha(T) dT. \quad (66)$$

T_h が、 T_l に近づく極限で、 $\bar{\alpha}$ は $\alpha(T)$ になる。Sample A と Sample B の $\bar{\alpha}$ の磁場依存性を Fig. 6 に示す。なお、エラーバーは統計誤差とアナログ信号をデジタルに変換するさいの誤差を足し合わせ最大限に見積っている。以下のすべての図についても同じように誤差を見積っている。Fig. 6 では、磁場は低温端を 273K、高温端を 283K に固定して、-4T から 4T まで連続的にスキャンした。Sample B の $\bar{\alpha}$ の方が Sample A より大きな絶対値を持っていることがわかる。若干の起伏があるが、後で見るネルンスト係数のような強い磁場依存性は見られない。さらに、Sample A の $\bar{\alpha}$ の温度依存性を、 $B = 0.1$ T の場合を Fig. 7 に、そして $B = 4$ T の場合を Fig. 8 に示す。なお、Fig. 7 には弱磁場極限の理論カーブ (56) も描いた。これらは、ほぼ同じオーダーになっている。さらに、いずれのグラフも 300K 辺りで変化が見られる。これは 300K で外来領域から真性領域に移り変わると考えられる。

次に、ネルンスト効果の結果を報告する。ネルンスト係数の測定は、温度勾配と垂直方向 (y 軸方向) に行われる。したがって、ごく簡単な近似では並列に組まれた等価回路と考えられる。この近似の下では、計測される電圧は以下のような関係式を満たす。

$$\begin{aligned} V_N &= \int_0^w \frac{1}{l} \int_0^l N(T) B \left(\frac{\partial T}{\partial x} \right) dx dy \\ &= \frac{wB}{l} \int_{T_l}^{T_h} N(T) dT. \end{aligned} \quad (67)$$

計測できるネルンスト係数を、熱電能の次元 V/K にあわせるために次の物理量 $\bar{\beta}$ を定義する。

$$\bar{\beta} \equiv \frac{V_N l}{w (T_h - T_l)}. \quad (68)$$

ここで定義した $\bar{\beta}$ は、先の簡単な近似 (67) では N と以下のような関係がある。

$$\bar{\beta} = \frac{B}{T_h - T_l} \int_{T_l}^{T_h} N(T) dT. \quad (69)$$

$\bar{\beta}$ の磁場依存性を Fig. 9 に示す。磁場は熱電能と同様に -4T から 4T まで連続的にスキャンした。ネルンスト効果は磁場がないと起こらないので必ず原点を通る。Sample B の $\bar{\beta}$ の方が Sample A より大きな値を持ち、Sample B の 4T の強磁場では $\bar{\beta}$ の大きさは $\bar{\alpha}$ と同程度になる。さらに、Sample A の $\bar{\beta}$ の温度依存性を、 $B = 0.1$ T の場合を Fig. 10 に、Fig. 11 に $B = 4$ T の場合を示す。なお、Fig. 10 には弱磁場極限の理論カーブ (57) も描いた。理論値と実測値の違いが 3 倍から 10 倍のオーダーになっている。これは熱電能と比べると大きな

違いである。Fig. 11 では熱電能と同様に 300K あたりで外来領域から真性領域に移り変わる様子が確認できる。この遷移は Fig. 10 では誤差に埋もれていると考えられる。

V. まとめと今後の課題

ネルンスト素子を使った発電の可能性の検証というのが研究の目的にあり、ようやく常温付近で輸送係数の計測ができるところまで辿り着くことができた。その結果を紹介してきた。

今回は Sample B のネルンスト係数が Sample A より大きな値を取ることがわかった。計測を行った温度領域で Sample B はすでに真性領域になっている。Sample A は 300K あたりで外来領域から真性領域になる動作が確認された。ゆえに、真性領域で大きなネルンスト係数を出せるなら、これはドーピングをしなくていいので、材料を作成する点では非常に有り難いことになる。それから、我々の印磁可能な最大値 4T まではネルンスト係数は磁場にたいして単調増加している。これは強磁場の理論値 (55) が磁場無限大の極限では磁場の -2 乗で減少していく振舞いとはまったく異なる。すでに常温で、かつ 4T の磁場では、式 (26) で定義された磁場の強さを表すパラメータ s が、式 (62) より $s = \mu B \approx 30 \gg 1$ となり、理論で言う強磁場のはずであるが、その兆候はない。さらに例えば 10T などの強磁場中でどのような振舞いをするかが応用上、基礎物理上でも重要な問題である。仮に強磁場でも減少しないなら性能指数を増加させられる可能性があるからである。

このようなネルンスト係数の実験データと理論計算からのずれの理由として、試料の形状による起因する可能性がある。今回は熱電能、ネルンスト係数の計測結果を紹介したが、性能指数の評価には、さらに電気伝導率と熱伝導率が必要である。これらの測定においても、強磁場では弱磁場の時とは違い、形状の効果が利いてくることは良く知られている。磁場中で計測される輸送係数には、一般に形状効果が含まれているので、任意な形状で輸送係数を見積るためには、有限要素法のような計算機コードを用いて、形状効果を除いたミクロなプロセスから求められる“物理的な”値を各要素に与え、それを下に試料のキャリアーの密度分布を求めるといった数値計算を行う必要があると思われる。

このようなことを想定し、次は電気伝導率と熱伝導率についても強磁場での計測方法の

確立を行いながら、かつ、計算機コードの開発も行っていきたい。

ACKNOWLEDGEMENTS

本研究を進めるにあたり、文部省核融合科学研究所長飯吉厚夫先生、同研究所プラズマ制御系主幹本島修先生には有形無形にご援助を頂きました。また、名古屋大学工学部の黒田光太郎博士には半導体の加工等の技術的なご支援を、そして、住友電気工業株式会社の龍見雅見博士には半導体の調達においてお世話になりました。また、有限要素法の計算は核融合科学研究所の林浩己さんが行ってくださいました。みなさまにこころより感謝申し上げます。

REFERENCES

- [1] 上村欣一, 西田勲夫: 熱電半導体とその応用, 日刊工業新聞社, (1988), 1.
- [2] 梶川武信編集: 熱電変換システム技術総覧, リアライズ社, (1996), 53.
- [3] T. C. Harman and J. M. Honig: *Thermoelectric and Thermomagnetic Effects and Applications*, McGraw-Hill, New York, (1967), 311.
- [4] S. Yamaguchi, O. Motojima, A. Sagara, A. Komori, A. Iiyoshi, T. Matsuda, M. Onozuka and Y. Soman: *Proc. 12th Int. Conf. Thermoelectrics*, Yokohama, Japan. (1994), 521.
- [5] Y. Ogawa, K. Ueda and H. Sugawara: *J. of Adv. Phys.* **8**(1996), 137.
- [6] 例えば、鈴木増雄: 岩波講座現代の物理学 4, 統計力学, 岩波書店, (1994), 250.
- [7] L. Sosnowski: *Semiconductors*, Proc. Int'l. School of Physics XXII, Academic, London (1963), p.436 (review article).
- [8] K. Seeger: *Semiconductor Physics*, Springer-Verlag, (1989), Chap. 6, p.156.
- [9] C. Hilsum and A. C. Rose-Innes: *Semiconducting III-V Compounds*, Pergamon, Oxford, (1961), p.116.
- [10] S. Miyashita and I. Yokota: *J. Phys. Soc. Jpn.* **14** (1959), 750.
- [11] 植村泰忠, 菊地誠: 物理学選書 6, 半導体の理論と応用(上), 裳華房 (1960), p.171.
- [12] H. Nakamura, K. Ikeda, S. Yamaguchi and K. Kuroda:
J. Adv. Sci., **8** (1996), 153.
- [13] K. Ikeda, H. Nakamura, S. Yamaguchi and K. Kuroda:
J. Adv. Sci., **8** (1996), 147.
- [14] H. J. Hrostowski, F. J. Morin, T. H. Geballe and G. H. Wheatleyn:
Phys. Rev. **100** (1955), 1672.

- [15] O. Madelung: *Physics of III-V Compounds*,
ed. R. K. Willardson and A. C. Beer, J. Wiley & Sons, (1964), p. 115.
- [16] J. D. Wiley: *Semiconductors and Semimetals*,
ed. R. K. Willardson and A. C. Beer, Academic Press, Vol. 10, (1975), p. 169.
- [17] D. M. Zengin: *J. Phys.*, **D16** (1983), 635.
- [18] D. M. S. Bagguley, M. L. A. Pobinson and R. A. Strandling:
Phys. Lett., **6** (1963), 143.
- [19] K. Ikeda, H. Nakamura and S. Yamaguchi:
the XVI International Conference on Thermoelectrics,
Aug., Dresden, Germany (1997) (ICT'97) で発表.
<http://xxx.lanl.gov/abs/cond-mat/9709152> の preprint を参照。

FIGURES

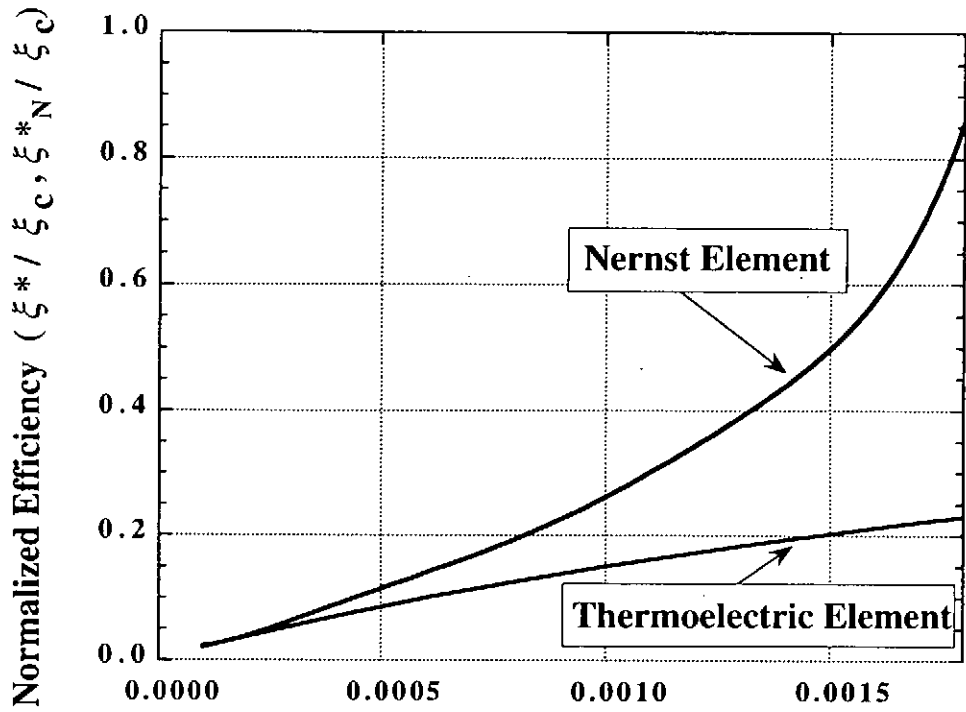
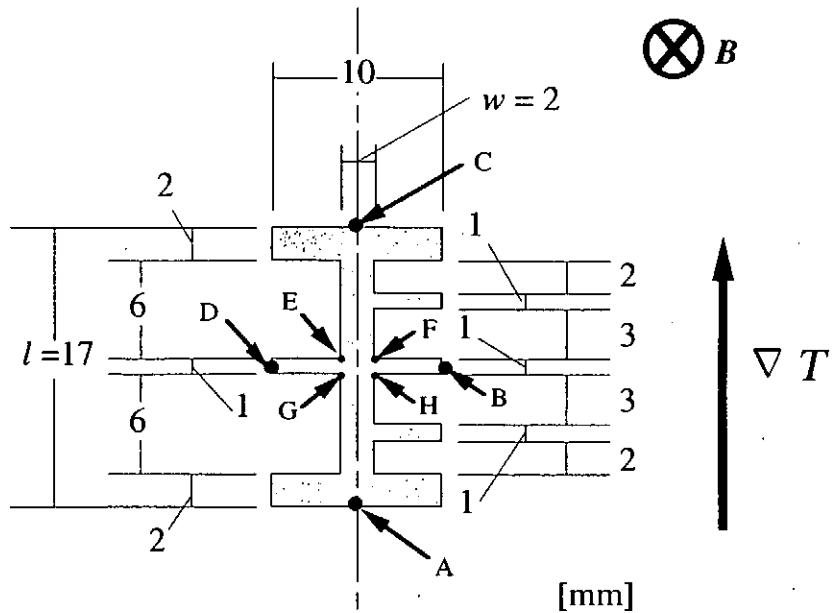


Figure of merit , Z / K and Z_N / K

FIG. 1. Comparison of generator efficiencies for thermoelectric and Nernst effects as a function of figure of merit, respectively at $T_l = 300$ K and $T_h = 800$ K.



Thickness = 1mm

FIG. 2. Shape of sample called a "Bridged Shape". Thermoelectric voltage is measured between A and C. Nernst voltage is measured between B and D.

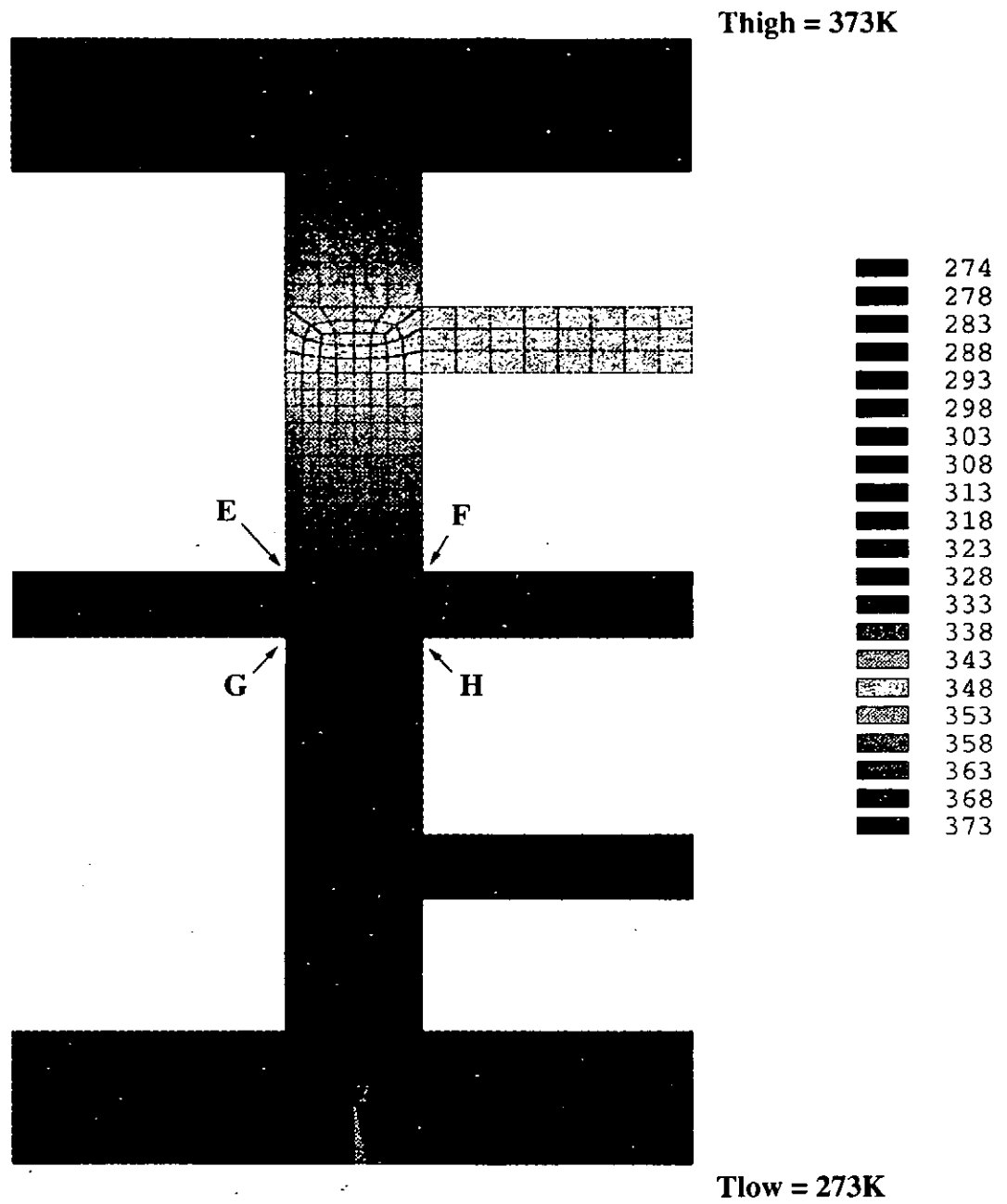


FIG. 3. Temperature distribution in the "Bridged Shape" sample at $T_l = 273\text{ K}$ and $T_h = 373\text{ K}$. These result were calculated by the finite element method.

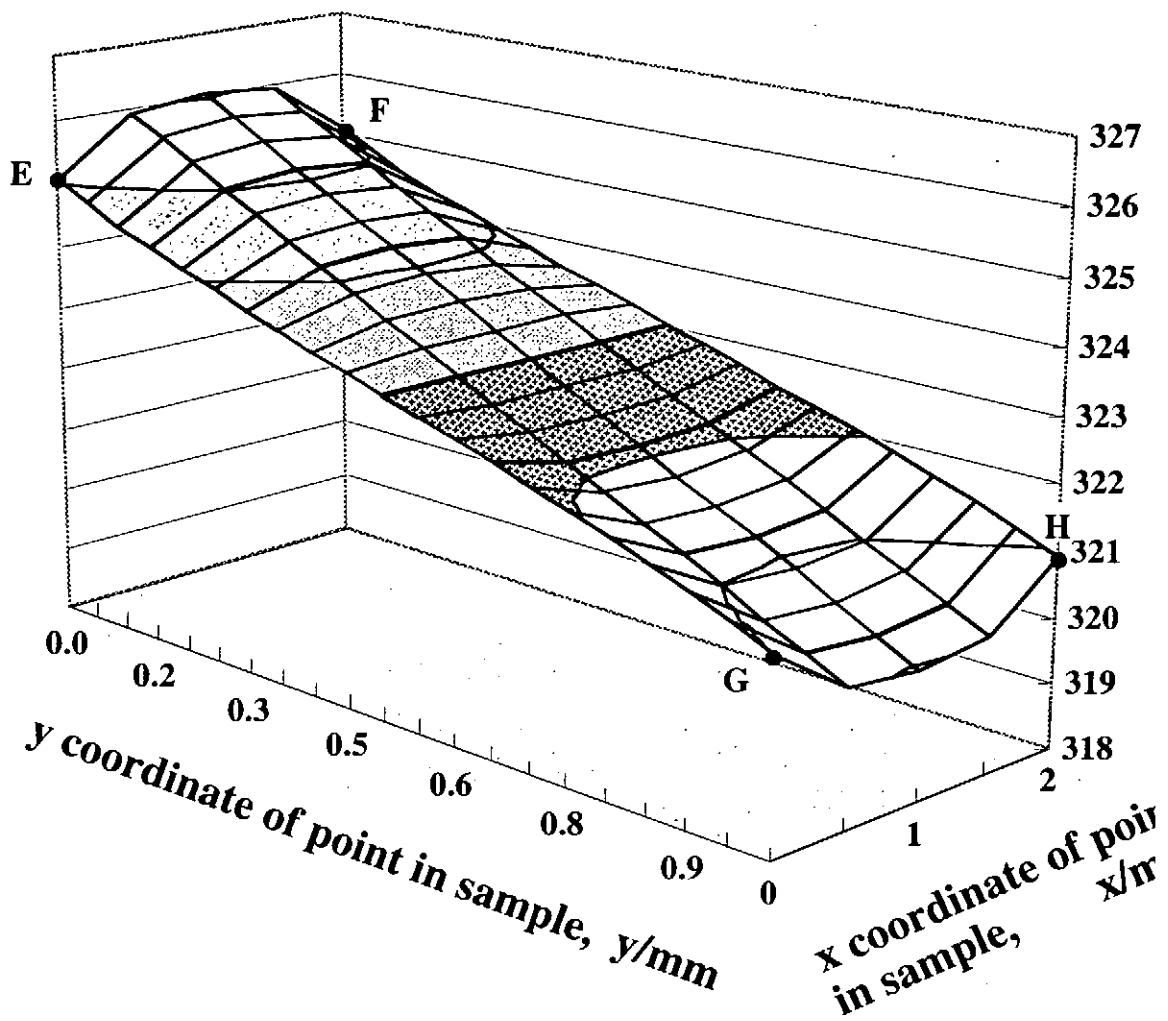


FIG. 4. Temperature distribution in the region E-F-H-G of the "Bridged Shape" sample at $T_l = 273$ K and $T_h = 373$ K. These result were calculated by the finite element method.

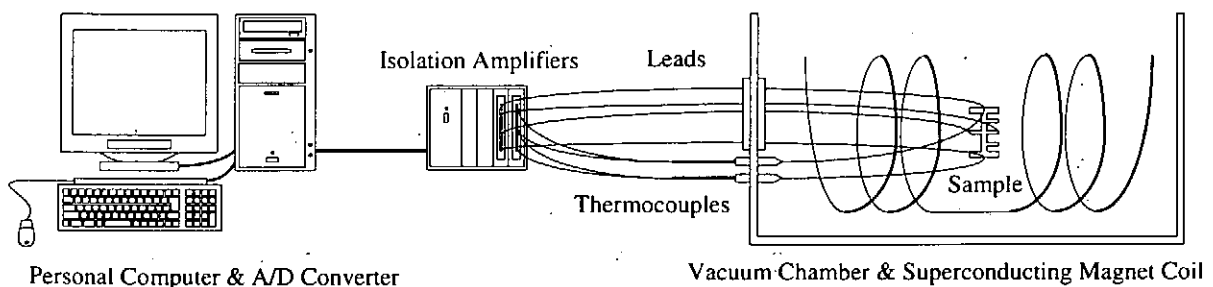


FIG. 5. Measuring System. Signals from sample are amplified by Isolation Amplifiers. Computer obtains these signals by diagnostic system.

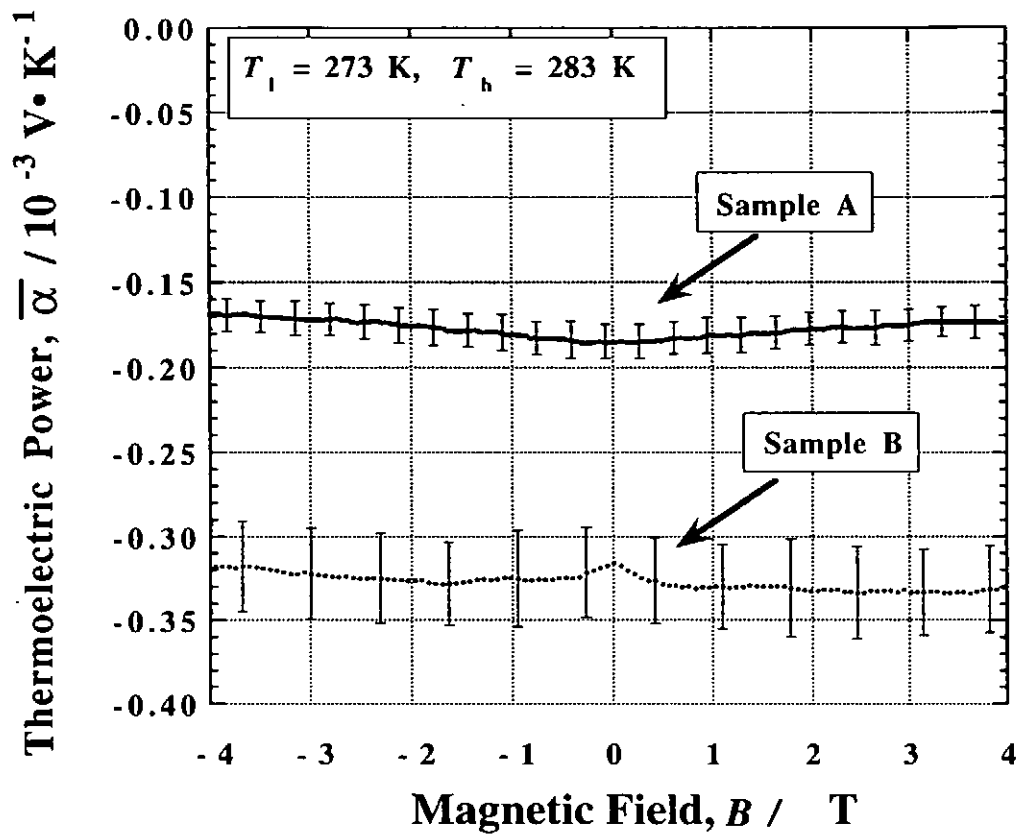


FIG. 6. Magnetic-field dependence of "measured" thermoelectric power, $\bar{\alpha}$ at $T_l = 273$ K and $T_h = 283$ K.

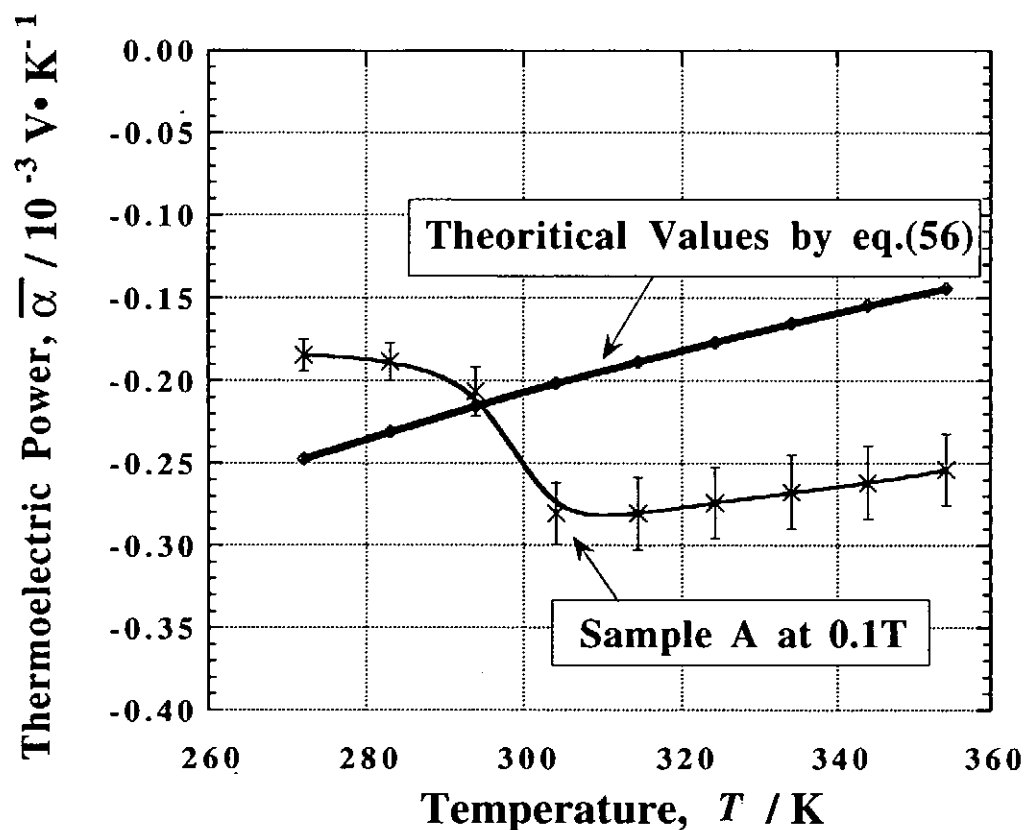


FIG. 7. Temperature dependence of "measured" thermoelectric power, $\bar{\alpha}$, in $B = 0.1$ T of sample A. Solid curve denotes theoretical values given by eq.(56).

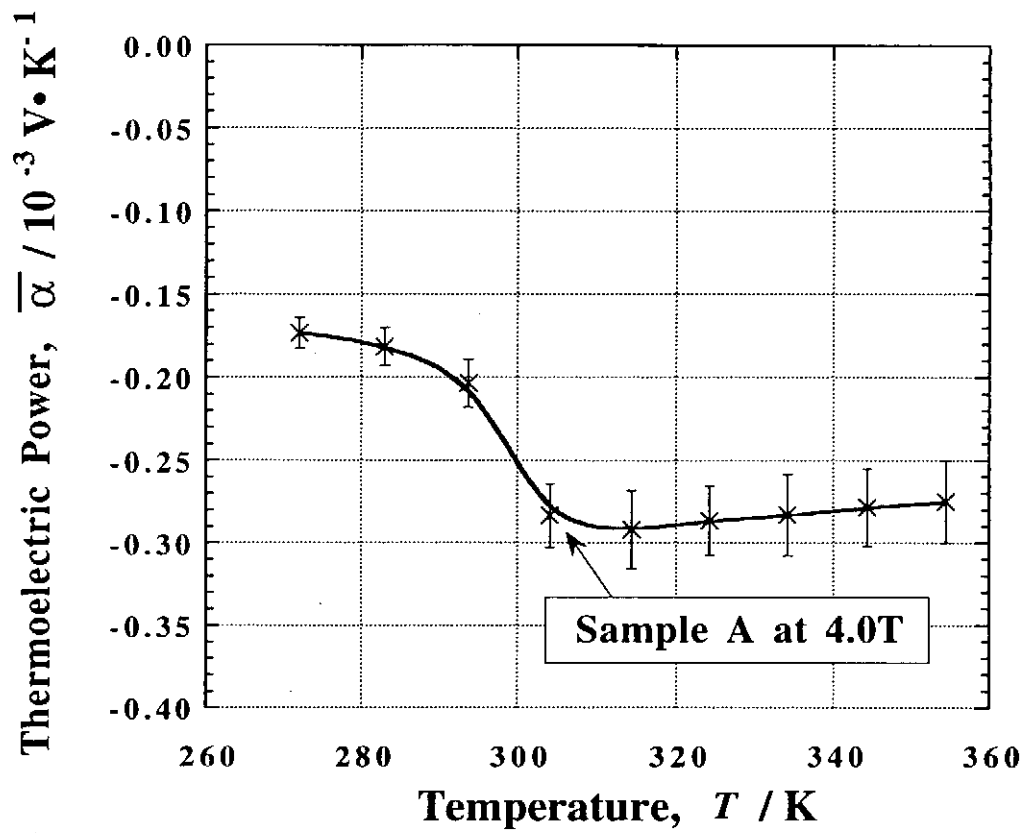


FIG. 8. Temperature dependence of "measured" thermoelectric power, $\bar{\alpha}$, in $B = 4.0\text{T}$ of sample A.

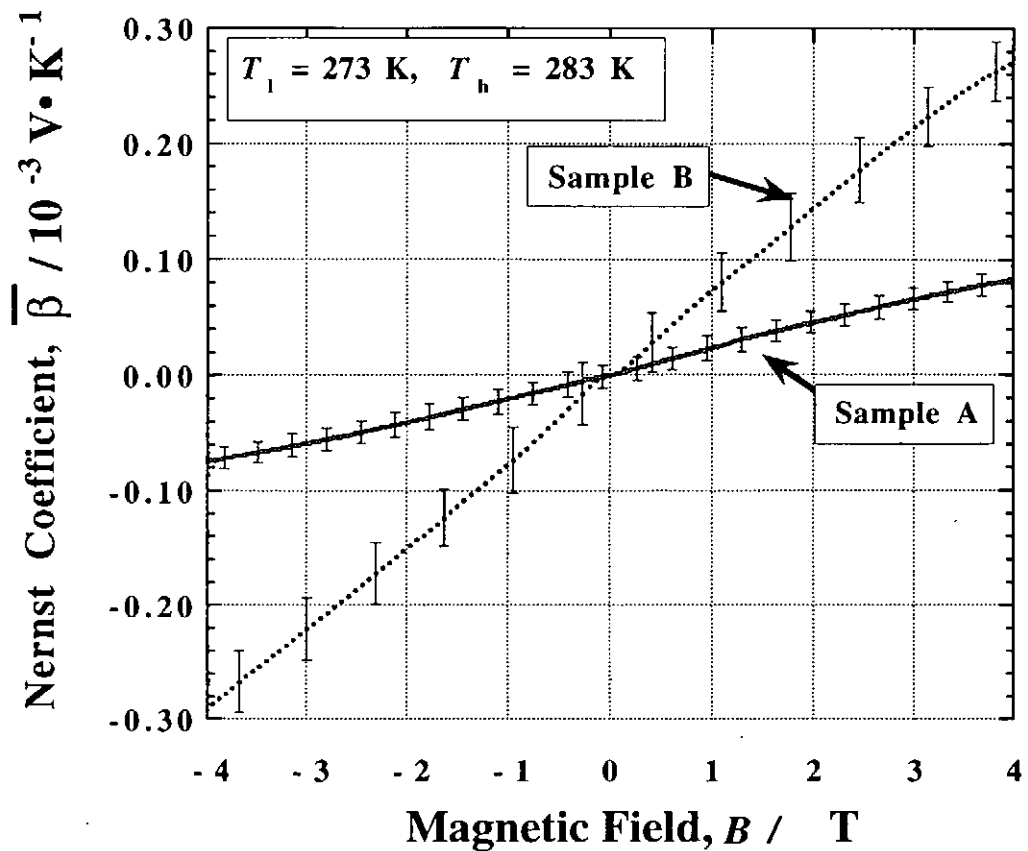


FIG. 9. Magnetic-field dependence of "measured" Nernst Coefficient, $\bar{\beta}$, at $T_1 = 273 \text{ K}$ and $T_h = 373 \text{ K}$.

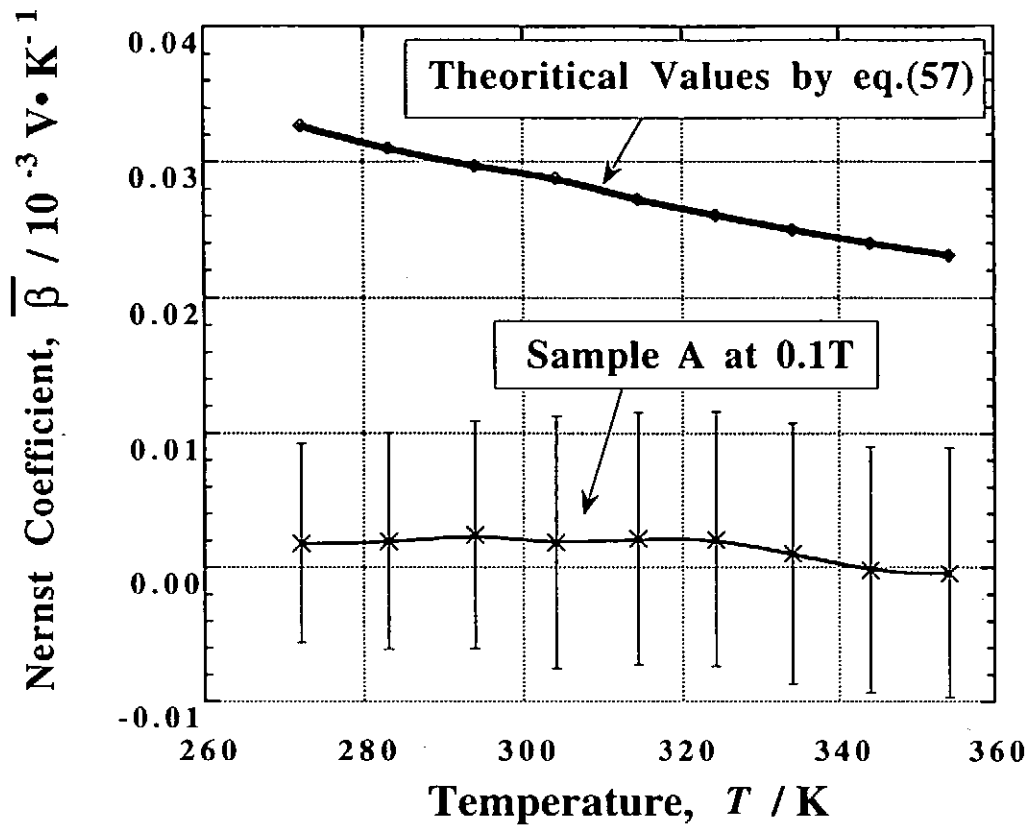


FIG. 10. Temperature dependence of “measured” Nernst Coefficient, $\bar{\beta}$, in $B = 0.1\text{T}$ of sample A. Solid curve denotes theoretical values given by eq.(57).

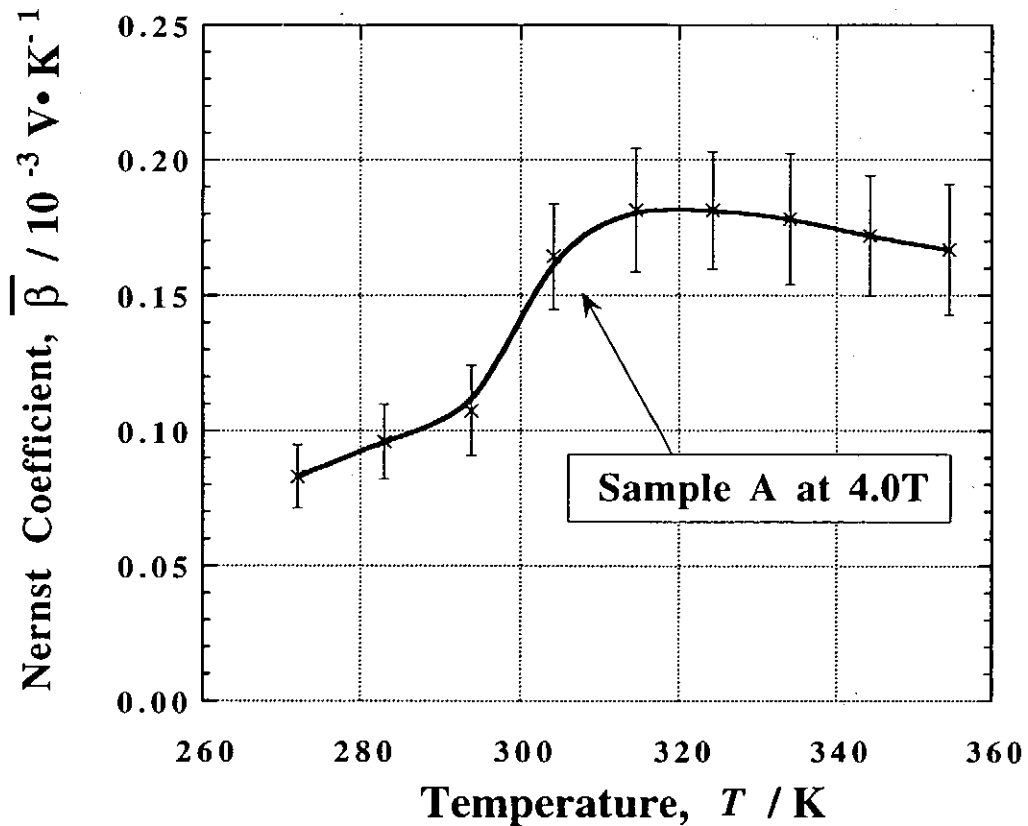


FIG. 11. Temperature dependence of “measured” Nernst Coefficient, $\bar{\beta}$, in $B = 4.0\text{T}$ of sample A.

NIFS-MEMO シリーズ出版リスト
(Recent Issues of NIFS-MEMO Series)

- NIFS-MEMO-1 都築哲哉、東井和夫、松浦清剛、「パソコンによる JIPP T-IIU プラズマの平衡位置フィードバック制御」1991年4月
T.Tsuzuki, K.Toi and K.Matsuura, "Feedback Control of Plasma Equilibrium with Control System Aided by Personal Computer on the JIPP T-II Tokamak"; Apr.1991 (In Japanese)
- NIFS-MEMO-2 久保田雄輔、大林治夫、宮原 昭、大野和子、中村光一、堀井憲爾、「環境磁界の研究 (I) 三次元積分磁束計の開発」1991年7月
Y.Kubota, H.Obayashi, A.Miyahara, K.Ohno, K.Nakamura and K.Horii, "Development of Three-Dimensional Compact Magnetic Dosimeter for Environmental Magnetic Field Monitoring", July,1991 (In Japanese)
- NIFS-MEMO-3 「核融合科学研究所技術研究会; 1991年3月19,20日 土岐文化プラザ」1991年8月
"Proceedings of Symposium on Technology in Laboratories; Mar. 19, 20, 1991" Aug. 1991 (In Japanese)
- NIFS-MEMO-4 「プラズマ中におけるカオス現象」1991年8月
"Chaotic Phenomena in Plasmas ", Aug. 1991 (In Japanese)
- NIFS-MEMO-5 山崎耕造、「ファジー論理のトロイダルプラズマ制御への応用」1992年2月 "Fuzzy Logic Application to Troidal Plasma Control ", Feb. 1992 (In Japanese)
- NIFS-MEMO-6 平成3年度 核融合科学研究所 支援調査共同研究報告書 「大出力マイクロ波源の開発に関する調査研究」1992年4月
"Development of High Power Microwave Source ", Apr. 1992 (In Japanese)
- NIFS-MEMO-7 平成3年度 核融合科学研究所 共同研究(調査支援研究)研究成果報告書
「プラズマにおけるカオス現象」1992年11月
"Chaotic Phenomena in Plasma, II", Nov. 1992 (In Japanese)
- NIFS-MEMO-8 NIFSシンポジウム報告書「核融合炉材料照射用強力中性子源の設計と大学の役割」1993年1月
"Design of Intense Neutron Source for Fusion Material Study and the Role of Universities", Jan. 1993 (In Japanese)
- NIFS-MEMO-9 平成2、3、4年度 核融合科学研究所共同研究研究会研究成果報告書
「開放磁場における電位と輸送機構」1993年4月
(Ed.) K. Yatsu and T. Hatori "Potential Formation and Transport in Open Field Line Systems", Apr. 1993 (In Japanese)
- NIFS-MEMO-10 伊藤公孝、「人口太陽は燃えるか -核融合研究最前線-原子力オープン・スクール講演」1993年5月
K. Itoh, Reports of NIFS Collaboration Workshop from 1990 to 1992 at National Institute for Fusion Science.
"At the Front of Fusion Research -Introductory Lecture Open to Public-", May 1993 (In Japanese)

- NIFS-MEMO-11 (Ed.) T. Kato
"Atomic Physics and Radiation in Divertor and/or Disruption Plasmas",
Aug. 1993 (In English)
- NIFS-MEMO-12 平成4年度 核融合科学研究所 共同研究 (調査支援研究) 研究成果報告書
「プラズマのカオス現象 (まとめ)」 1993年10月
"Chaotic Phenomena in Plasma, III", Oct. 1993
(In Japanese)
- NIFS-MEMO-13 久保田雄輔、野田信明、相良明男、井上徳之、赤石憲也、本島修,
「プラズマ対向材料の開発・研究用高熱負荷試験装置ACT」 1994年3月
"Electron Beam Irradiation Test Facility for Research and Development of Plasma
Facing Components", Mar. 1994
(In Japanese)
- NIFS-MEMO-14 「平成5年度核融合科学研究所技術研究会
日時：1994年3月23日-24日
場所：セラトピア土岐、土岐商工会議所」 1994年7月
"Proceedings of Symposium on Technology in Laboratories
by Department of Engineering and Technical Services", July 1994
(In Japanese)
- NIFS-MEMO-15 S.-I. Itoh, K. Itoh, G. Soltwisch, K. H. Finken,
"Study on Sawtooth and Transport
-- A Report of Japan-TEXTOR Collaboration --", Jan. 1995
(In English)
- NIFS-MEMO-16 久保田 雄輔、野田信明、相良明男、井上徳之、赤石憲也、山本純也、本島修
「LHD用ダイバータ板の開発・研究各種カーボン・銅接合材の熱負荷試験」
Y. Kubota, N. Noda, A. Sagara, N. Inoue, K. Akaishi, J. Yamamoto, O. Motojima,
"Research and Development of Divertor Plates for LHD (High Heat Flux Tests of Various
Kinds of Materials)", Apr. 1995 (In Japanese)
- NIFS-MEMO-17 江尻 晶,
「LHDにおける窓の熱設計」
A. Ejiri,
"Calculation of the Heat Transfer in the Windows of the Large Helical Device"
Nov. 1995 (In Japanese)
- NIFS-MEMO-18 田辺哲朗、森田健治 編集
核融合科学研究所共同研究
「プラズマと壁との相互作用に関する研究会」
核融合科学研究所、平成7年9月12日-9月13日
(Eds.) T. Tanabe and K. Morita
"Proceedings of the Symposium on Plasma-Materials Interaction"
NIFS, Sep. 12-13, 1995,
Dec. 1995 (In Japanese)
- NIFS-MEMO-19 K. Itoh (ed.),
Study on Sawtooth and Transport in Part of Japan-TEXTOR Collaboration 1995; Feb. 1996
- NIFS-MEMO-20 編集責任、核融合科学研究所、太刀川恭治、山本純也、
「核融合科学研究所共同研究、核融合炉用先進超伝導体、研究調査報告書 1
Nb₃Sn系超伝導体」

Editors: K. Tachikawa and J. Yamamoto,
"Studies on Advanced Superconductors for Fusion Device"
Part 1 - Present Status of Nb₃Sn Conductors-", Mar. 1996 (in Japanese)

- NIFS-MEMO-21 飯吉厚夫、藤原正巳、岡本正雄、大薮修義、金子修、笹尾眞實子、須藤滋、菅野龍太郎、武藤敬、村上定義、竹入康彦、富田幸博、山崎耕造
「LHDにおけるD-³He核融合の検討」
A. Iiyoshi, M. Fujiwara, M. Okamoto, N. Ohyabu, O. Kaneko, M. Sasao, S. Sudo, R. Kanno, T. Mutoh, S. Murakami, Y. Takeiri, Y. Tomita and K. Yamazaki,
"Studies on D - ³He Fusion in LHD", Mar. 1996 (in Japanese)
- NIFS-MEMO-22 編集責任、核融合科学研究所、太刀川恭治、山本純也、三戸利行
「核融合科学研究所共同研究、核融合炉用先進超伝導導体、研究調査報告書 2 先進金属系超伝導導体」
Editors: K. Tachikawa, J. Yamamoto and T. Mito,
"Studies on Advanced Superconductors for Fusion Device"
Part 2 - Metallic Superconductors other than Nb₃Sn -", Mar. 1997 (in Japanese)
- NIFS-MEMO-23 K. Itoh (ed.), S.-I. Itoh, U. Stroth, T. Iwasaki, M. Yagi and A. Fukuyama,
"Discussion Record of the Workshop on Nonlocal Transport"
June 1997
- NIFS-MEMO-24 Collapse, Terminating Eventsの物理
日本物理学会 シンポジウム
第52回年会 1997.3.29
"Physics of Collapse and Terminating Events" (in Japanese)
July 1997
- NIFS-MEMO-25 中村浩章、池田一昭、山口作太郎
「強磁場中でのネルンスト素子の輸送現象とエネルギー変換」
H. Nakamura, K. Ikeda, S. Yamaguchi,
"Transport Phenomena and Energy Conversion of the Nernst Element in a Strong Magnetic Field" (in Japanese)
Nov. 1997