

---

**修士論文** (2009 年度)

---

## 量子スピンホール系における熱電効果の研究

東京工業大学大学院物性物理学専攻修士課程

高橋 隆志\*

### 概要

量子スピンホール (QSH) 物質は、バルクは非磁性絶縁体であり、バルク状態のギャップを横切るようにエッジ状態が存在する。この一つのエッジ状態は互いに逆向きのスピンの逆方向に進む状態対からなり、非磁性不純物等の存在下でも後方散乱をうけず (完全透過)、ギャップレス (金属的) であるという著しい性質を持っている。当初理論的に提唱されたが、実験でも HgTe 量子井戸をはじめとした幾つかの物質でも確かめられている。2 次元 QSH 系におけるエッジの完全透過電流は、時間反転対称性を崩さない限り安定であり、なおかつバルクギャップが量子ホール系などに比べると非常に大きい ( $\text{Bi}_2\text{Se}_3$  で  $0.3\text{eV}$ ) という特性を持つ。

これらの特性から、本研究ではエッジ状態の輸送を活用することによって熱電変換効果を大きくすることができるのではないかと予測の下、2 次元 QSH 系でのエッジ状態とバルク状態が共存した場合での輸送特性を計算を行った。一般的にエッジ状態数はバルク状態に比べると断然少ないため、エッジ状態の寄与が大きくなるように、ナノメートルサイズの断面積を持つナノサイズリボン状の系を想定した。エッジ状態はコヒーレントであることを仮定して Landauer-Büttiker の公式で計算した。その際に用いるべき系の有効長さサイズはエッジ状態の非弾性散乱長となる。熱電変換効率を特徴付ける性能指数  $ZT$  は電気伝導率、Seebeck 係数、熱伝導率から計算した。化学ポテンシャルがバルクバンド端にあるとすると、エッジ状態はバルク状態とはキャリアの電荷の符号が反対であるため、エッジ状態とバルク状態の熱電輸送現象は競合することが分かった。どちらかが支配的であるかは系の形状、温度などさまざまなパラメータによって決まるという結果が得られた。様々なパラメータへの依存度を探るために、バルク輸送、エッジ輸送、フォノン輸送 3 者の比を無次元パラメータで特徴づけることにより、一般的な 2 次元 QSH 系での  $ZT$  の振る舞いを解析した。

解析の結果、エッジ状態の優勢度にはエッジの非弾性散乱長が大きく影響し、低温になるとエッジ状態の非弾性散乱長が長くなるため、バルクが優勢な状況からエッジ状態が優勢な状況へとクロスオーバーが起こる。温度を下げていってクロスオーバーが起こる際、 $ZT$  は極小となりエッジが優勢になると再び増加する。このクロスオーバーは非常に細いリボンの場合は  $5\text{-}10\text{K}$  程度で起こることを理論的に見出した。

本研究で行った内容は出版されており、カラー図はオンラインで確認できる [1]。

---

\*現東京工業大学大学院物性物理学専攻博士課程 (r-takahashi@stat.phys.titech.ac.jp)

## 目 次

|          |                                     |            |
|----------|-------------------------------------|------------|
| <b>1</b> | <b>序論</b>                           | <b>197</b> |
| <b>2</b> | <b>2次元量子スピンホール物質</b>                | <b>199</b> |
| 2.1      | 量子スピンホール効果                          | 199        |
| 2.2      | Kane-Mele モデル                       | 200        |
| 2.3      | トポロジカルナンバー                          | 202        |
| <b>3</b> | <b>熱電変換の物性</b>                      | <b>204</b> |
| 3.1      | 熱電変換現象                              | 204        |
| 3.2      | 無次元性能指数 $ZT$ の向上方法                  | 204        |
| 3.3      | キャリア輸送現象                            | 205        |
| 3.3.1    | 輸送行列                                | 205        |
| 3.3.2    | 磁場のない半古典的輸送現象理論                     | 206        |
| 3.4      | 熱電現象                                | 207        |
| 3.4.1    | ペルチェ効果                              | 207        |
| 3.4.2    | ゼーベック効果                             | 207        |
| 3.4.3    | トムソン効果                              | 208        |
| 3.4.4    | 輸送行列と熱電係数                           | 208        |
| 3.4.5    | 熱電変換効率                              | 209        |
| 3.5      | Landauer-Büttiker の公式               | 210        |
| <b>4</b> | <b>2次元量子スピンホール物質の熱電効果</b>           | <b>212</b> |
| 4.1      | エッジ状態のみの熱電効果                        | 212        |
| 4.2      | エッジとバルクによる輸送                        | 213        |
| 4.2.1    | 輸送特異性の漸近形                           | 216        |
| 4.2.2    | 系のサイズと輸送特性                          | 217        |
| 4.3      | 様々な物質パラメーターによる $ZT$                 | 220        |
| 4.3.1    | 無次元パラメーターによる $ZT$ の最大値              | 220        |
| 4.3.2    | $ZT$ のクロスオーバー                       | 221        |
| <b>5</b> | <b>2次元量子スピンホール系におけるエッジ状態の非弾性散乱長</b> | <b>222</b> |
| 5.1      | 電子-フォノン散乱による緩和時間                    | 222        |
| 5.1.1    | $\tau$ の求め方                         | 224        |
| 5.2      | $\tau$ の見積もり                        | 228        |
| 5.3      | 電子-電子散乱による緩和時間                      | 230        |
| 5.4      | 実験におけるエッジ状態の緩和時間                    | 230        |
| 5.5      | エッジ状態の交差消滅                          | 230        |
| <b>6</b> | <b>まとめと結論</b>                       | <b>231</b> |

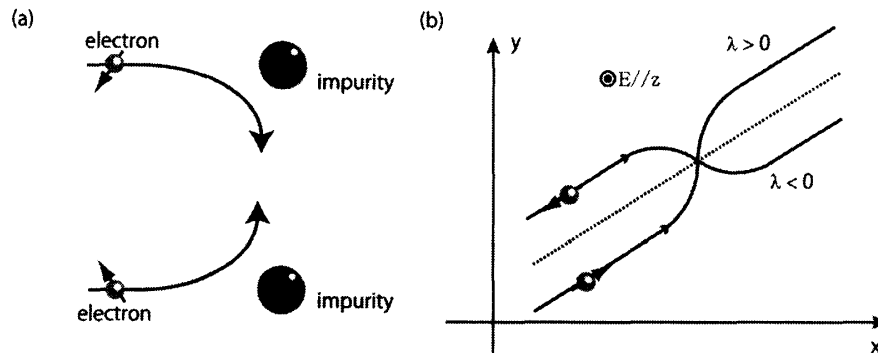


図 1: (a) Dyakanov らによって示された不純物によるスピン分極の図を表す。不純物に散乱される場合、電荷の持つスピンの方向によって散乱方向が異なる。(b) Murakami らによって提唱された内因的なスピンホール効果。 $\lambda$  はヘリシティを表す。電場に対して垂直な向きに電荷に速度が与えられる。

## 1 序論

近年になってスピンホール効果 [2, 3] が理論、実験の側面から研究され、それに伴いスピン流に関する物理が盛んになっている。スピンホール効果自体は、不純物によるもの (図 1(a)、[4, 5] 参照) として以前から知られていたが、Murakami らが示したスピン流 [2] は内因的なスピン流であり、スピン軌道相互作用に起因する (図 1(b))。またこれは時間反転対称な流れであるところが通常のオーム電流とは大きく異なる。この Murakami らが示したスピンホール効果は古典的なホール効果とは異なり外部からの磁場はいらない。また電位差は生まず、上向きスピンと下向きスピンが逆方向へ流れると言う性質を持つ。2004 年に Kato らが行った GaAs 試料での実験 [6] では、スピン分極が観測された (図 2)。2005 年には Wunderlich らによって LED を使ったスピンホール実験も行われている [7]。

スピンホール効果に関連した研究として量子スピンホール (QSH) 効果が Kane、Mele および Bernevig らによって提唱された [8, 9, 10]。当初グラフェンでの観測が期待されたが、グラフェンの  $K$  点におけるスピン軌道相互作用が弱く、バンドギャップが小さすぎて観測は不可能とされた。QSH 物質は、量子ホール (QH) 物質と似通った性質を持ち、量子力学における幾何学的位相に関連して、非磁性で観測されるという新たな量子状態を示している。QSH 相においてバルクはギャップの開いた絶縁体であるが、バルク状態のギャップを横切るようにエッジ状態が存在し、エッジチャンネルが量子化されたコンダクタンスを示すことが知られている。このエッジ状態は、時間反転で互いに 1 対の状態からなるのでヘリカルエッジ状態と呼ばれる。最近になって実験の報告が相次いでいる [11, 12]。後述するように QSH 系として  $\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x$ 、 $\text{Bi}_2\text{Te}_3$ 、そして  $\text{Bi}_2\text{Se}_3$  などが実験と理論の両側面から研究されている。これらの物質は一方で効率の良い熱電変換材料として知られている。

物質による熱電変換は熱エネルギーと電気エネルギーの直接変換であり、特定の物質を用いて行われる効率のよい変換を行う。様々な産業で作られる廃熱を電気に変えるなどの利用が考えられ、変換効率を上げれば大規模な省エネルギー効果が期待されている産業の一つである。熱電変換物質の性能指数は  $Z$  であたえられ [13]、温度  $T$  をかけた無次元化性能指数  $ZT$  がよく使われる。熱電変換素子の効率性能は  $ZT$  の増加関数で与えられ、 $ZT$  が大きければ大きいほど

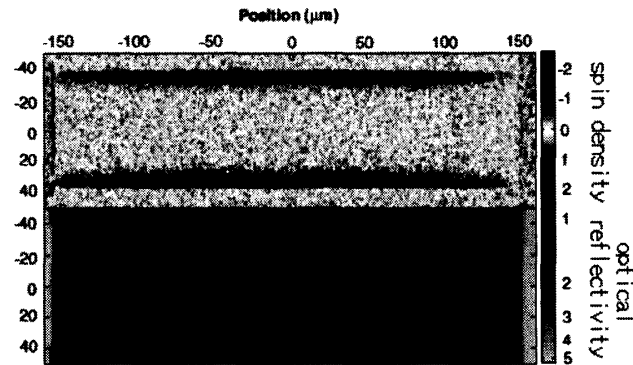


図 2: 文献 [6] から転載した。Kato らによって GaAs を試料とした実験で示されたスピン分極の図である。上の図はスピン分極によるスピン密度を表す。電場は水平方向に流れている。スピンの試料の端に分布しているのが分かる。下の図は光の反射が場所に寄らず一定であることを示している。

ど熱電変換効率が上がり、カルノーサイクルに近づいていく事が知られている。 $ZT$  を大きくするには電気伝導率とゼーベック係数を大きくし、熱輸送を小さくするという条件がある。しかし一般的に電気伝導率を大きくすると必然的に熱輸送も大きくなるので、それに反する物質を探さなければならない。現状知られている物質では、熱伝導率を電気伝導率で割った値が温度の一次に比例すると言う Wiedemann-Franz 則が成り立つために、高い  $ZT$  を見出すのは容易ではない。Hicks[14, 15]、Maham[16] などは低次元化による状態密度の局所化と化学ポテンシャルをバンド端以下にしてフォノンも含めた輸送全体を抑えるという方法で  $ZT$  を大きくすることができると予想している。現状ではテルライド系の超格子を使うことによって  $ZT \sim 2$  以上を達成している。

2DQSH 相は非磁性な不純物に対して安定なエッジ状態を持つ。また量子スピンホール物質である  $\text{Bi}_2\text{Te}_3$ 、 $\text{Bi}_2\text{Se}_3$  は共にバルクギャップが  $0.1\text{eV}$  のオーダーであるから、常温のエネルギーよりもかなり高いので熱輸送の議論も可能だと考えられる。また、系がナノメートルサイズのリボン構造であると想定することによって、バルクの輸送とエッジによる輸送が共存する状況が考えられる。このことによってバルクの輸送は抑えつつ、系にエッジの輸送を加えることによって  $ZT$  の振る舞いがどのようなようになるかを系の輸送特性計算から示した。

本論文の構成は、先ず第 1 章で QSH に関する導入をおこなう。そこで QSH の簡単な実験と理論的な背景を述べる。次に第 2 章で熱電変換に関する物性理論的な背景を述べた後、第 3 章で我々が行った 2DQSH に関するその熱電輸送の計算結果を本論として述べる。その次に第 4 章において、本論で問題となるエッジ状態の非弾性散乱について我々の計算結果を説明し、議論を行う。最後にまとめと結論をのべる。

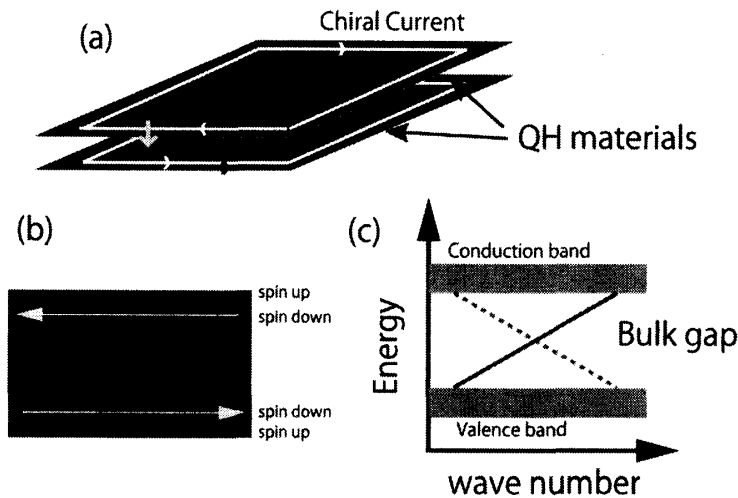


図 3: (a) カイラルエッジ状態の QH 物質を 2 枚あわせる事で, QSH 物質のヘリカルエッジ状態を表すことができる。(b) 2 次元 QSH 物質をリボン構造にした場合のエッジ電流を表し、一つのエッジに Kramers 対が逆向きに流れている。(c) QSH 物質における分散を簡単に表した図である。

## 2 2 次元量子スピンホール物質

### 2.1 量子スピンホール効果

QSH 相は 2005 年に Kane、Mele らおよび Bernevig によって提唱された [8, 9, 10] 新しい物質の状態である。QSH 相ではバルクにギャップが開いた状態で、それをエッジ状態が貫く形で存在している分散関係 (図 3(c)) がある。エッジ状態は時間反転に関して対称な対を持つので、一つのエッジにつきスピン上下の Kramers 対が逆向きに方向へ進む状態でなければならない (図 3(b))。これはちょうど逆向きのエッジ状態を持つ QH 物質を二枚あわせたようになっている (図 3(a))。QH 物質のエッジ状態が一方向状態であるカイラルに対して、QSH 相は互いに逆向きに進行する状態であることからヘリカルエッジ状態と呼ばれる。一見、一つのエッジに逆向きの状態が存在するので後方散乱が容易に起こるかのように思えるが、系が非磁性であり、時間反転に関して対称である限りスピンを反転させる因子が存在せず、後方散乱は起きない。よってエッジ状態は完全透過係数を持つチャネルとなり、非磁性な不純物に対して安定である [17, 18]。

当初 Kane らは非磁性であるグラフェンでの QSH 相を想定していた。グラフェンは通常の絶縁体とは異なり、伝導電子帯と価電子帯間のバンドギャップが閉じているゼロギャップ点が存在する。ここにスピン軌道相互作用によってギャップを開けることで QSH 相となり、それによるエッジ状態の実現が考えられていた。しかし、実際はグラフェンのスピン軌道相互作用は小さく、エッジ状態を観測するにはバンドギャップが小さすぎた。そのために他の候補を探す試みが行われ、2006 年に、Zhang らの論文 [19] によりスピン軌道相互作用が大きい HgTe での QSH が予言され、2007 年に König らによって初めて実験で 2DQSH 相が観測された [11]。

一方 QSH 系は 3 次元でも実現する。2007 年には Fu らによって 3 次元 QSH 相が理論的

に予言された [20]。3 次元 QSH 相では、表面にギャップレスな表面状態が存在し、それは非磁性不純物存在下でもギャップレスにとどまる。この表面状態に対しても完全電流が期待されそうだが、実際には不純物による散乱が完全には禁止されていないので、伝導は拡散的になると考えられる。しかし完全な後方散乱が存在しないため、比較的大きな表面電流が得られると期待される。それらの後に実験として角度分解光電子分光による表面状態のフェルミ面が観測によって 2008 年に Hsieh らによって  $\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x$  [12]、2009 年には Xia らによって  $\text{Bi}_2\text{Se}_3$  [21]、また Chen らより  $\text{Bi}_2\text{Te}_3$  [22] が QSH 物質であると実証された。なお、本論文で扱うのは 2 次元 QSH 相であると想定しているため、以下では 2 次元 QSH 系に限って議論を行う。

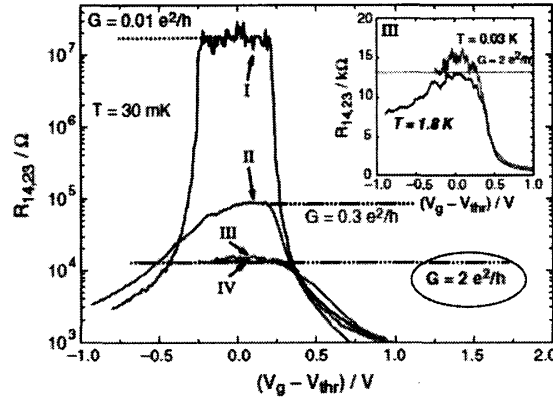


図 4: 文献 [11] より転載した。König らによる HgTe での QSH 相のコンダクタンス測定結果のグラフである。丸で囲んだ部分が 2 チャンネル分の量子コンダクタンスを示し、エッジの効果を表している。

## 2.2 Kane-Mele モデル

Kane、Mele による QSH 相の論文 [8] で用いられたハミルトニアン  $H_{KM}$  は

$$H_{KM} = t \sum_{\langle i,j \rangle} c_i^\dagger c_j + i\lambda_{SO} \sum_{\langle\langle i,j \rangle\rangle} \nu_{ij} c_i^\dagger s_z c_j + i\lambda_R \sum_{\langle i,j \rangle} c_i^\dagger (\mathbf{s} \times \hat{\mathbf{d}}_{ij})_z c_j + \lambda_v \sum_i \xi_i c_i^\dagger c_i \quad (1)$$

で与えられ、彼らはこれを 2 次元六角系構造 (図 5(a)) へ適用した。ここで  $c_i^\dagger$ 、 $c_i$  はそれぞれ格子点  $i$  における電子の生成・消滅演算子である。第一項目は最近接点へのホッピングを表す。第二項目はスピン軌道相互作用項であり、次近接格子点へのホッピングを表し、 $\lambda_{SO}$  はその強さを表す。また  $\nu_{ij}$  は  $j$  から  $i$  への移動が反時計回りなら +1、逆なら -1 となる。 $\mathbf{s}$  は  $s = \frac{1}{2}$  スピン演算子である。第三項目は面に垂直な方向のポテンシャルの傾きからくる反転対称性の破れからくるラッシュバ項で、 $\lambda_R$  はその強さを表す。 $\hat{\mathbf{d}}_{ij}$  は最近接格子へ向かう向きの単位ベクトルである。第四項目は A 点と B 点の対称性を壊す項、即ち on-site の交替ポテンシャル項であり、 $\lambda_v$  はその強さを表す。 $\xi_i$  は  $i$  が A なら +1、B なら -1 とする。

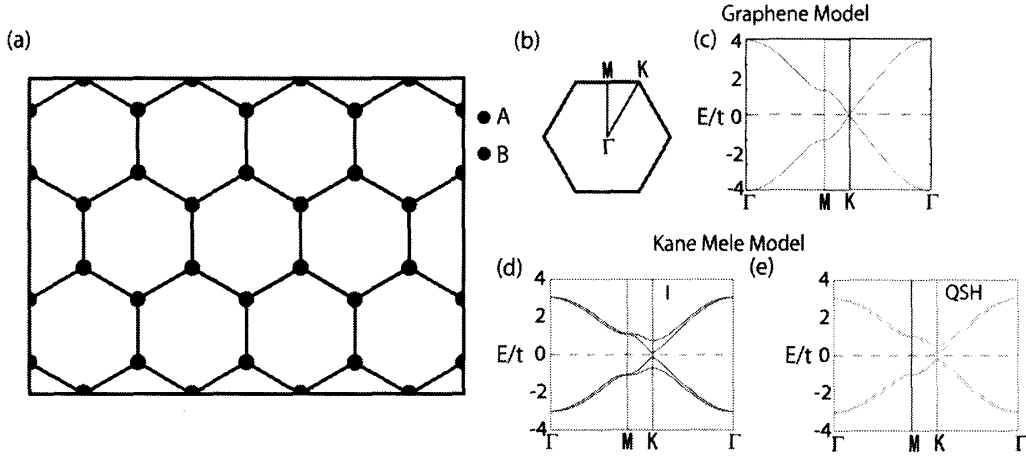


図 5: (a) 二次元六角形格子構造の図を模してある。A と B の単位胞からなる。(b) 六角形格子構造のブリリュアンゾーンを示している。(c) 近接格子のホッピングのみを考慮したハミルトニアンでの(a)のバンド構造を表している。K 点でバンドギャップが閉じている。(d) Kane-Mele モデルによる絶縁体相でのバンド構造を表している。 $H_{KM}$  のパラメータを  $\frac{\lambda_{SQ}}{t} = 0.06$ 、 $\frac{\lambda_R}{t} = 0.05$ 、 $\frac{\lambda_V}{t} = 0.4$  とした。(e) Kane-Mele モデルによる QSH 相での分散を表している。 $H_{KM}$  のパラメータを  $\frac{\lambda_{SQ}}{t} = 0.06$ 、 $\frac{\lambda_R}{t} = 0.05$ 、 $\frac{\lambda_V}{t} = 0.1$  とした。

このモデルはパラメータを変化させるとギャップレスエッジ状態を持つ QSH 相と、それを持たない絶縁相の 2 つの相の間を行き来することができる。図 5(d) と (e) がパラメータを変化させた  $H_{KM}$  のバルクでの分散を表しており、図 5(b) が第一ブリリュアンゾーンを示している。図 5(c) はいわゆるグラフェンモデルであり、ホッピング項のみを考慮した場合の分散である。K 点付近で線形な分散を持ち、ギャップが閉じている。図 5(d)、(e) はそれぞれ絶縁相、QSH 相でのバルクの分散を示しているが、分散に差異は少ない。グラフェンの場合と比べると、スピン軌道相互作用による分裂が起こっており、両図とも  $\Gamma$  点と M 点で Kramers 縮退をし、K 点でのギャップは開いている。

次にエッジ状態を考えるために、エッジを持つような形状を考える。一般的に物質のリボン構造は複雑な形を取るが、並進対称性を与えた形でバルクから切り出した形状を考えると計算が簡単になる。図 6 は系をリボン状に加工し、一次元方向に対称性を与えた図であり、図 6(a) がジグザグ構造、図 6(b) がアームチェア型構造といわれている。図 7 はグラフェンモデルに

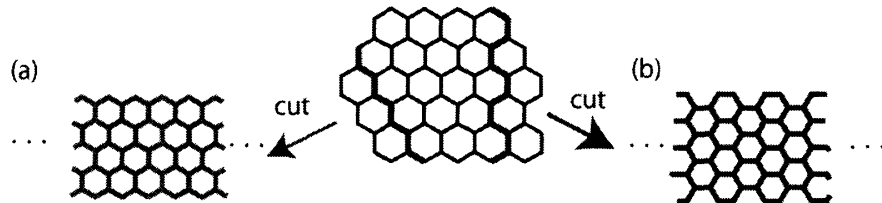


図 6: 2 次元六角形格子構造をリボン状に切り出した場合を表している。(a) ジグザグ型リボン構造 (b) アームチェア型リボン構造

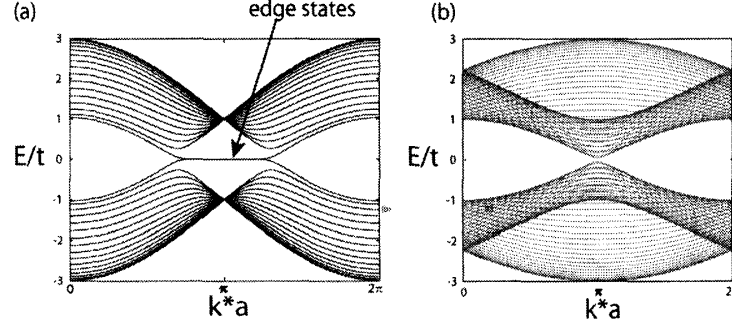


図 7: リボン構造のグラフェンモデルにおける分散を示す。(a) ジグザグ型 (b) アームチェア型

におけるジグザグ、アームチェア型リボン構造における分散を表している。 $k*a$  はリボンに沿った方向の格子定数に波数をかけたものである。アームチェア型構造はギャップが開いているのに対し、ジグザグ型構造の分散はギャップが閉じていて、エッジ状態を持っているが、エッジ状態は速度 0 となっている。図 8(a)(b)、図 8(c)(d) はそれぞれジグザグ型構造、アームチェア型における QSH 相 (a) と絶縁相 (b) の分散を表している。QSH 相においてはギャップの間を横切るようにエッジ状態が存在しているが、絶縁相においてはバルクと同じようにギャップが開いたままである。系の幅は全て、一つの六角形鎖を 9 つ張り合わせた分の幅を想定している。ギャップを横切る状態はエッジに局在し、理想的な状況（絶対零度で乱れがない）では完全透過確率を持つ伝導チャンネルを示す。このエッジ状態は時間反転不変な摂動の存在の下でもギャップレスであり続ける [18, 17]。そのため完全透過チャンネルは生き残ることになる。

### 2.3 トポロジカルナンバー

系が絶縁相か QSH 相であるかを特徴付けるのが  $Z_2$  トポロジカルナンバーであり、これはバルクの波動関数の位相情報から決定される。そこで重要になるのが時間反転対称点  $\Gamma_i$  である。 $\mathbf{k} = -\mathbf{k} \pmod{\mathbf{G}}$  を満たす波数を時間反転対称点  $\Gamma_i$  と呼び、2 次元の場合にはブリリュアンゾーン内に 4 個の時間反転対称点が存在する。また、

$$w_{mn}(\mathbf{k}) = \langle u_{-\mathbf{k},m} | \Theta | u_{\mathbf{k},n} \rangle \quad (2)$$

という  $2N \times 2N$  の行列を定義する。ここで  $\Theta$  は複素共役演算子  $K$  を用いた時間反転演算子  $\Theta = i\sigma_y K$ 、 $|u_{\mathbf{k},n}\rangle$  は波数  $\mathbf{k}$  を持つフェルミエネルギー  $E_F$  以下  $n$  番目の Bloch 波動関数である。後述するように各時間反転対称点  $\mathbf{k} = \Gamma_i$  で指数  $\delta_i$  が定義され、ブリリュアンゾーンでの各  $\Gamma_i$  での積が  $-1$  のときに系は QSH 相、 $+1$  のときに絶縁相である。この積を  $(-1)^\nu$  と表したとき、 $\nu (= 0, 1)$  が  $Z_2$  トポロジカルナンバーである。

$$(-1)^\nu \equiv \prod_i \delta_i. \quad (3)$$

この  $\delta_i$  は空間反転対称性がない場合は

$$\delta_i = \frac{\sqrt{\det[w(\Gamma_i)]}}{\text{Pf}[w(\Gamma_i)]} \quad (4)$$



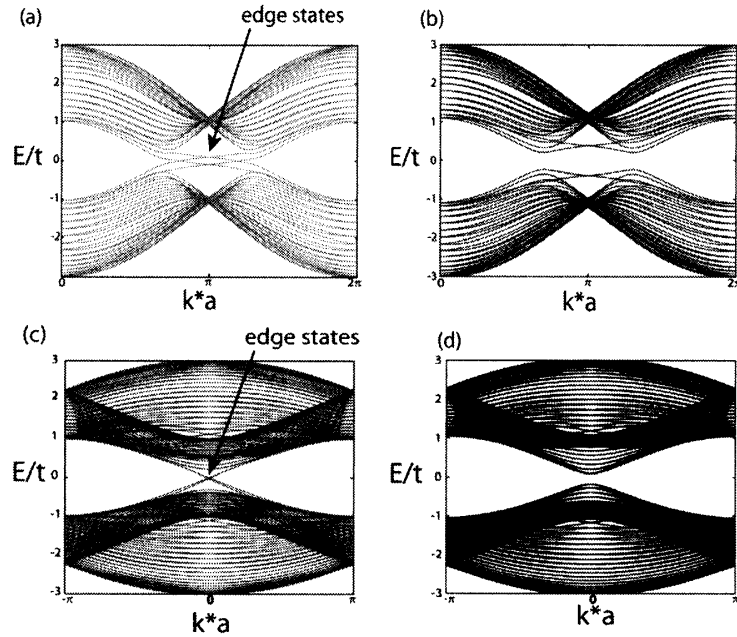


図 8: Kane-Mele モデルにおける分散を表している。QSH 相 (a)、絶縁体相 (b) におけるジグザグ型リボン構造の分散を表している。QSH 相 (c)、絶縁体相 (d) におけるアームチェア型リボン構造の分散を表している。

と表せる。ここで反対称行列に対し  $\text{Pf}[w(\Gamma_i)]^2 = \det[w(\Gamma_i)]$  であるから、 $\pm\sqrt{\det[w(\Gamma_i)]}$  の符号の曖昧さが残る。これは時間反転対称点間で波動関数が滑らかなように変化するように定めることで符号を決める。図 9 は 2 次元長方形格子の場合の例である。図 9(b) では

$$\frac{\det[w(\mathbf{k})]}{|\det[w(\mathbf{k})]|} = e^{i\theta(\mathbf{k})} \quad (5)$$

とした場合の図 9(a) に表された経路による位相変化を表している。図 9(b) での  $R(\mathbf{k})$  は位相  $e^{i\theta(\mathbf{k})}$  の主値を表し、経路の間獲得した位相  $\Delta_{12(34)}$  は  $2\pi$  の整数倍 ( $2\pi n_{12(34)}$ ) である。始点である  $e^{i\theta(\Gamma_{1(3)})}$  から  $e^{i\theta(\Gamma_{2(4)})}$  へと、断熱変化で至る場合に奇数回数回って着けば ( $n_{12(34)}$  が奇数)  $\delta_1\delta_2 = -1$ 、偶数回数回って着けば ( $n_{12(34)}$  が偶数)  $\delta_1\delta_2 = +1$  である。図 9(b) の場合だと

$$\delta_1\delta_2\delta_3\delta_4 = (-1) \times (+1) = -1 \quad (6)$$

となって  $Z_2$  トポロジカルナンバー  $\nu = 1$  であり、系は QSH 相を示す。他方空間反転対称性がある場合は

$$\delta_i = \prod_m \xi_{2m}(\Gamma_i) \quad (7)$$

で与えられる [23]。  $\xi_{2m}(\Gamma_i)$  はフェルミ面以下の Kramers 対による波動関数の  $\Gamma_i$  におけるパリティである。このようにバルクのハミルトニアン固有状態が分かれば、 $Z_2$  トポロジカルナンバーが計算でき、ギャップレスエッジ状態の情報が分かる。

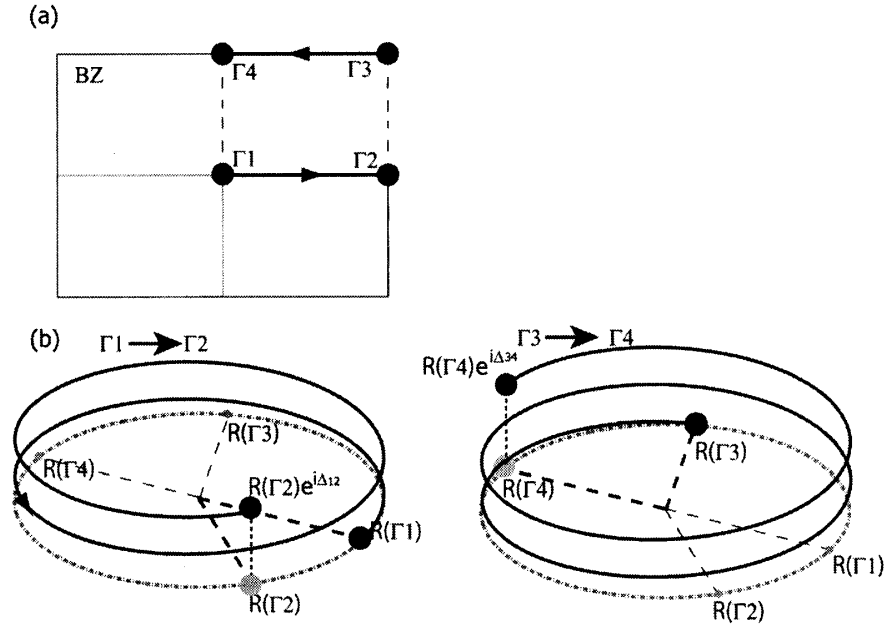


図 9: (a) 2次元長方形格子を例としたブリリュアンゾーンを表す。(b)  $\det[w]$  を (a) の場合に断熱変化させた場合の軌跡の例を示す。

### 3 熱電変換の物性

#### 3.1 熱電変換現象

物質に電圧をかけると抵抗による発熱が生じる。その逆として温度差に因って電流が流れることがある。前者は電気エネルギーを一部熱に換え、後者は熱エネルギーを電気エネルギーへと変換したことになる。これらから、物質によって熱電変換が可能であることを示唆している。更にこのエネルギー変換は直接変換であり、他の間接的な発電装置より変換性能は一般的に優れていると期待される（例えば原子力や火力発電は熱エネルギーを運動エネルギーに換え、それを電気エネルギーへと変化させている）。

熱電変換の性能は物質によって異なり、その性能を表した指数として無次元の値  $ZT$  [13] がよく使われる。 $Z$  は物質固有の量であり、様々な物質パラメータに依存する。また  $T$  は絶対温度である。 $ZT$  が大きければ大きいほどその物質の熱電変換性能が良いということになり（図 10）、熱電変換分野ではその物質の探求が主軸となる。

#### 3.2 無次元性能指数 $ZT$ の向上方法

前節でも述べたが熱電変換性能が良い物質を探すには、 $ZT$  が高い物質を選べばよい。無次元性能指数  $ZT$  は

$$ZT = \frac{\sigma S^2 T}{\kappa} \quad (8)$$

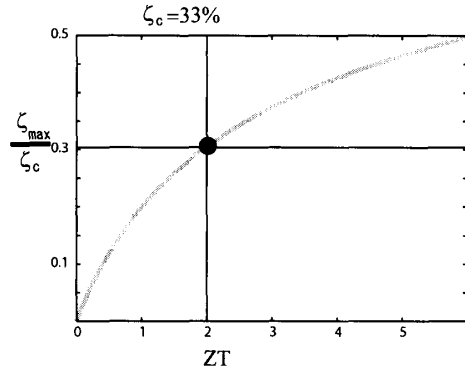


図 10:  $ZT$  による  $\zeta_{max}$  の図である。 $\zeta_{max}$  はその物質における最大の熱電変換効率である。 $\zeta_c$  はカルノー効率であり例として  $\zeta_c = 33\%$  とした。図中の点は現状で最大とされる  $ZT = 2$  の効率を示している。

で与えられる [13]。ここで、 $\sigma$  は電気伝導率、 $S$  はゼーベック係数、 $\kappa$  は熱伝導率を表す。この式から  $ZT$  を高くするためには、電気を通しやすいが熱は通しにくい物質であれば良いことが分かる。これを Slack[24] は「PGEC (Phonon-Glass Electron-Crystal)」と言い、フォノンに対してはガラスのように乱れがあることで平均自由行程を小さくし、電子に対しては結晶のような伝導であることが理想的であると表した。 $ZT$  向上のための別の提案として Hicks らの物質低次元化がある [14]。彼らの主張は、量子的な効果で電子を 1 次元に制限することによって井戸幅による電気伝導率を操作することでき、井戸幅を狭くすれば大きな  $ZT$  を示すことができると言うことであった。この理論の問題点は緩和時間が定数であることであるが、それは系の詳細によるところである。実際に Hicks らの論文を受けていくつかの実験結果が報告されている。Boukai らが行った実験がその一つである [25]。彼らの実験結果によると 3 次元 300K で  $ZT \sim 0.01$  [26] だったのが一次元状のシリコン 200K で  $ZT \sim 1$  という結果が出た。だがしかし、彼らはフォノンドラッグによる効果が無視できないとも主張している。また Mahan らは状態密度の局所化によって  $ZT$  の向上を一般的に示した [16]。こうした努力にもかかわらず現在の室温での  $ZT$  は 1 程度である。 $ZT$  が 3 以上になれば実用面でのメリットが大きい、それには革新的な何かが必要であると考えられる。

### 3.3 キャリア輸送現象

#### 3.3.1 輸送行列

物質に電流を流すとジュール熱が発生するように、物質中において電荷の流れと熱流は互いに結びついている。よって線形応答の範囲で一般的な輸送行列は

$$\begin{pmatrix} \dot{j} \\ q \\ w \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} L_{11} & L_{12} \\ L_{21} & L_{22} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} -\nabla\mu \\ -\frac{1}{T}\nabla T \end{pmatrix}, \quad (9)$$

となり、非対角項はオンサーガーの関係により一致するので

$$\begin{cases} L_{11} = L_0 \\ L_{21} = L_{12} = L_1 \\ L_{11} = L_2 \end{cases} \quad (10)$$

と表すことができる。

### 3.3.2 磁場のない半古典的輸送現象理論

分配関数  $f(\mathbf{r}, \mathbf{k}, t)$  は定常状態であることを

$$\mathbf{v} \cdot \nabla f + \frac{\partial \mathbf{k}}{\partial t} \cdot \nabla_{\mathbf{k}} f = \left( \frac{\partial f}{\partial t} \right)_{\text{collision}} \quad (11)$$

となる。ここで最終項は不純物との衝突による寄与であり、これは緩和時間近似によって

$$\left( \frac{\partial f}{\partial t} \right)_{\text{collision}} = \frac{\partial f}{\partial t} = -\frac{f(\mathbf{r}, \mathbf{k}, t) - f_0(\mathbf{r}, \mathbf{k})}{\tau(\mathbf{k})} \quad (12)$$

で与えられるので

$$f(\mathbf{r}, \mathbf{k}, t) = f_0(\mathbf{r}, \mathbf{k}) + (f(\mathbf{r}, \mathbf{k}, 0) - f_0(\mathbf{r}, \mathbf{k}))e^{-\frac{t}{\tau(\mathbf{k})}} \quad (13)$$

となる。これから緩和時間  $\tau(\mathbf{k})$  が分布関数が平衡に戻る速さの指数と考えてよいことが分かる。熱勾配のある系での平衡状態の分布関数は

$$f_0(\mathbf{r}, \mathbf{k}, t) = \frac{1}{\exp\left(\frac{\epsilon_{\mathbf{k}} - \eta(\mathbf{r})}{k_B T(\mathbf{r})}\right) + 1} \quad (14)$$

と表すことができる。またこの分配関数の微分は

$$\nabla f_0(\mathbf{r}, \mathbf{k}, t) = -\frac{\exp\left(\frac{\epsilon - \eta}{k_B T}\right)}{(\exp\left(\frac{\epsilon - \eta}{k_B T}\right) + 1)^2} \left[ \frac{-\nabla \eta}{k_B T} - \frac{(\epsilon - \eta)}{k_B T} \frac{\nabla T}{T} \right] \quad (15)$$

$$\frac{\partial f_0}{\partial \epsilon} = -\frac{\exp\left(\frac{\epsilon - \eta}{k_B T}\right)}{(\exp\left(\frac{\epsilon - \eta}{k_B T}\right) + 1)^2} \frac{1}{k_B T} \quad (16)$$

$$\rightarrow \nabla f_0(\mathbf{r}, \mathbf{k}, t) = \frac{\partial f_0}{\partial \epsilon} \left[ -\nabla \eta - \frac{(\epsilon - \eta)}{T(\mathbf{r})} \nabla T \right] \quad (17)$$

で与えられる。ここで、式(11)に式(13)を代入し、定常状態の分布関数のズレの微分を小さいとすると

$$\begin{aligned} \frac{f(\mathbf{r}, \mathbf{k}, t) - f_0(\mathbf{r}, \mathbf{k})}{\tau(\mathbf{k})} &= \mathbf{v} \cdot \nabla f + \frac{\partial \mathbf{k}}{\partial t} \cdot \nabla_{\mathbf{k}} E \partial_E f \\ &= \partial_E f \mathbf{v} \cdot \left( -\nabla(\eta + q\phi) - \frac{(\epsilon - \eta)}{T} \nabla T \right) \end{aligned} \quad (18)$$

と表せる。ここで  $\phi$  は電位、 $q$  は電荷を表す。また、分布関数の平衡からのズレを  $f(\mathbf{r}, \mathbf{k}, t) - f_0(\mathbf{r}, \mathbf{k}) = g(\mathbf{r}, \mathbf{k})$  とおくと、

$$g(\mathbf{r}, \mathbf{k}) = \tau(\mathbf{k}) \mathbf{v} \cdot \left( (-\nabla \mu) + \frac{\epsilon - \eta}{T} (-\nabla T) \right) (-\partial_E f) \quad (19)$$

で与えられる。ここで  $\mu = \eta + q\phi$  とした。電荷による輸送は、平衡からズレた分布関数からの寄与だと考えられるので、 $g$  による分布関数、分配関数  $D(\epsilon)$  を用いて電流  $\mathbf{j}$ 、熱流  $\mathbf{w}_q$  は

$$\begin{cases} \mathbf{j} = q \int \mathbf{v}(\epsilon) g(\mathbf{r}, \mathbf{k}) D(\epsilon) d\epsilon \\ \mathbf{w}_q = \int (\epsilon - \eta) \mathbf{v}(\epsilon) (\epsilon - \eta) g(\mathbf{r}, \mathbf{k}) D(\epsilon) d\epsilon \end{cases} \quad (20)$$

で与えられる。

### 3.4 熱電現象

熱電現象は主にペルチェ効果、ゼーベック効果、トムソン効果などが古くから知られている。ここではそれらについて述べる。

#### 3.4.1 ペルチェ効果

異なった金属を接合し、電流を流すことによってその接合部で熱が発生する現象である。金属 A, B を接合したものに電流  $I$  を流し、単位時間当たりの熱量  $\dot{Q}$  を出す場合のペルチェ係数  $\pi_{AB}$  は以下のように与えられる。

$$\dot{Q} = \pi_{AB} I \quad (21)$$

#### 3.4.2 ゼーベック効果

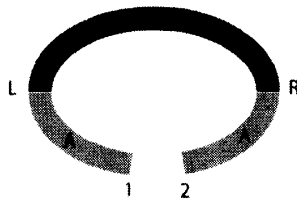


図 11: 異なる金属の接合

図 11 のように異なる金属を接合し、接合部 L の温度を  $T + \Delta T$ 、R の温度を  $T$  とすると、端子 1、2 間で電圧  $\Delta V$  が生じる。

$$\Delta V = S_{12} \Delta T \quad (22)$$

ここで  $S_{12}$  をゼーベック係数と呼ぶ。

### 3.4.3 トムソン効果

簡単のため、一次元で考える。図 12 のように温度勾配が物質にある場合、電場が生じたときにジュール熱に加え

$$\Delta q = \tau \partial_x T I \Delta T \quad (23)$$

という熱が発生する。この係数  $\tau$  をトムソン係数という。物質に熱勾配が存在する場合、高温にある粒子は低温へ流れるはずであるから、 $\Delta T > 0$  ならば図 12 の場合抵抗が低くなり吸熱を行う。

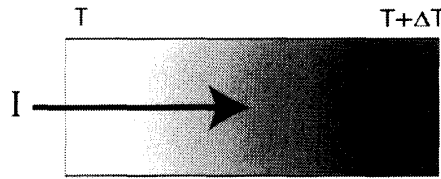


図 12: 温度勾配のある導体における電流

### 3.4.4 輸送行列と熱電係数

一様物質の場合では、電流によって生じる物理量は以下のように定義される。

$$\begin{cases} \mathbf{j} = \sigma \mathbf{E} \\ \nabla \mu = S(-\nabla T) \\ \mathbf{w}_q = \pi \mathbf{j} + \kappa_e(-\nabla T) \end{cases} \quad (24)$$

ここでキャリアによる熱伝導率  $\kappa_e$ 、熱流  $w_q$  である。熱伝導率はフォノンによる寄与  $\kappa_{ph}$  が無視できないので全体の熱伝導率  $\kappa = \kappa_{ph} + \kappa_e$  とする。これらと輸送行列 (9) を比べると

$$\begin{cases} \sigma = q^2 L_0 \\ S = \frac{L_1}{q T L_0} \\ \pi = \frac{L_1}{q L_0} \\ \kappa_e = \frac{1}{T} \frac{L_0 L_2 - L_1^2}{L_0} \end{cases} \quad (25)$$

で与えられる。また、これらによって電流、熱流は

$$\begin{cases} \mathbf{j} &= \sigma \left( -\frac{\nabla \mu}{q} \right) + S \sigma (-\nabla T) \\ \mathbf{w}_q &= S \sigma T \left( -\frac{\nabla \mu}{q} \right) + (\kappa + S^2 \sigma T) (-\nabla T) \\ &= S T \mathbf{j} + \kappa (-\nabla T) \end{cases} \quad (26)$$

で与えられる。

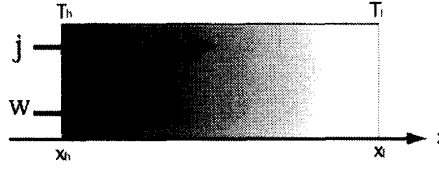


図 13: 温度勾配のある熱流と電流

### 3.4.5 熱電変換効率

電場による仕事を考慮したエネルギー保存則より

$$u \partial_t \rho_d = -\nabla \mathbf{w} + \mathbf{E} \cdot \mathbf{j} \quad (27)$$

$$= -\nabla(\mathbf{w}_q + \eta \frac{\mathbf{j}}{q}) + \mathbf{F} \cdot \frac{\mathbf{j}}{q} \quad (28)$$

$$= -\nabla \mathbf{w}_q + \frac{\mathbf{j}^2}{\sigma} + S \mathbf{j} \cdot \nabla T - \frac{\eta}{q} \nabla \cdot \mathbf{j} \quad (29)$$

が成り立つ。ここで  $u$  は粒子あたりのエネルギー密度、 $\rho_d$  は粒子密度である。また、物質が定常状態  $\Delta \mathbf{j} = 0$  と  $\partial_t = 0$  である場合は

$$-\nabla \mathbf{w}_q + \frac{\mathbf{j}^2}{\sigma} + S \mathbf{j} \cdot \nabla T = 0 \quad (30)$$

である。ここで  $\delta T = T_h - T_l$  とする。

以下では簡単のため次元で考える。図 13 のように物質の高温  $T_h$  から低温  $T_l$  への熱流  $w_q(T)$  がある場合、熱電変換効率は

$$\zeta = \frac{\Delta w_q}{w_q(T_h)} \quad (31)$$

$$\Delta w_q = w_q(T_h) - w_q(T_l) = -\frac{j^2}{\sigma} L + S j \delta T \quad (32)$$

で与えられる。

熱流の式 (26) と保存式 (29) を組み合わせ、図 13 の条件から

$$\partial_x^2 T = -\frac{j^2}{\kappa \sigma} \quad (33)$$

$$\rightarrow \partial_x T = -\frac{j^2}{\kappa \sigma} x + \frac{j^2}{2\kappa \sigma} (x_h + x_l) - \frac{\delta T}{L} \quad (34)$$

$$\rightarrow T = -\frac{j^2}{2\kappa \sigma} x^2 + \left( \frac{j^2}{2\kappa \sigma} (x_h + x_l) - \frac{\delta T}{L} \right) x + \frac{T_h x_l - T_l x_h}{L} - \frac{j^2}{2\kappa \sigma} x_h x_l \quad (35)$$

が成立する。よって、

$$w_q(T_h) = S T_h j - \frac{j^2}{2\sigma} L + \kappa \frac{\delta T}{L} \quad (36)$$

$$w_q(T_l) = S T_l j + \frac{j^2}{2\sigma} L + \kappa \frac{\delta T}{L} \quad (37)$$

$$\rightarrow \Delta w_q = S j \delta T - \frac{j^2 L}{\sigma} \quad (38)$$



図 14: 熱浴 LR に挟まれた試料

が得られる。以上より熱効率 $\zeta$ は

$$\zeta = \frac{Sj\delta T - \frac{j^2 L}{\sigma}}{ST_h j - \frac{j^2 L}{2\sigma} + \kappa \frac{\delta T}{L}} \quad (39)$$

で与えられる。電流流したときの効率の最大値 $\zeta_{max}$ は $\frac{\partial \zeta}{\partial j} = 0$ という条件から

$$\zeta_{max} = \frac{\delta T}{\bar{T}} \frac{\sqrt{1 + Z\bar{T}}}{\sqrt{1 + Z\bar{T}} + \frac{T_l}{T_h}} \quad (40)$$

$$j = \frac{\kappa \delta T}{SL\bar{T}} - 1 \pm \sqrt{1 + Z\bar{T}} \quad (41)$$

$$ZT = \frac{\sigma S^2}{\kappa} T \quad (42)$$

$$ZT = \frac{L_1^2}{L_0 L_2 - L_1^2 + \kappa_L T L_0} \quad (43)$$

となる。ここで $\bar{T} = (T_l + T_h)/2$ である。これら結果から変換効率の最大値 $\zeta_{max}$ と $ZT$ の関係は図 10 のようになり、 $\zeta_{max}$ は $ZT$ の増加関数であることが示された。よって $ZT$ が大きければ大きい程、その物質の熱電変換効率は良いことになる。

### 3.5 Landauer・Büttiker の公式

メゾスコピック系における輸送行列の計算では Landauer・Büttiker の公式が使われる [27]。これは系の電子構造から得られるチャンネルの透過波、反射波を用いて計算することができ、量子ホール系のような完全透過波を持つような場合は簡単にコンダクタンスを計算することができる。ここでは本論で用いる二端子の場合だけを議論する。図 14 に表されたように、熱浴 L、R に挟まれた試料を想定する。それぞれの熱浴は温度 $\theta_1, \theta_2$ 、化学ポテンシャル $\mu_1, \mu_2$ とする。

電子はコヒーレントに伝導すると考え、 $T_{ij}$ は左側でチャンネル $j$ の電子が、チャンネル $i$ として右側へ透過する確率を表しており、また、 $T'_{ij}$ は右側でチャンネル $j$ の電子が、チャンネル $i$ として左側へ透過する確率を表している。同様に $R_{ij}$ は左側でチャンネル $j$ の電子が、チャンネル $i$ として左側へ戻る反射確率を表し、 $R'_{ij}$ は右側でチャンネル $j$ の電子が、チャンネル $i$ として右側へ戻る反射確率を表している。これらは波動関数の $S$ 行列に相当し、リード左右での粒子の入射状



態  $|\phi_{in}\rangle$ 、射出状態  $|\phi_{out}\rangle$  に対し、

$$|\phi_{out}\rangle = S|\phi_{in}\rangle \quad (44)$$

$$|\phi_{in(out)}\rangle = \begin{pmatrix} \text{Left lead}_{in(out)} \\ \text{Right lead}_{in(out)} \end{pmatrix} \quad (45)$$

$$S = \begin{pmatrix} R & T' \\ T & R' \end{pmatrix} \quad (46)$$

という関係が成立し、 $S$  行列のユニタリ性から

$$\sum_j (T_{ij} + R'_{ij}) = 1 \quad (47)$$

$$\sum_j (T'_{ij} + R_{ij}) = 1 \quad (48)$$

が得られる。以上より、左側でのチャネル  $i$  による電流は

$$J_i^l = \frac{1}{h} \sum_{k_{Li}=0}^{\infty} \left[ f_1 k_L - \sum_j R_{ij}(k_{Li}) f_1 k_{Li} - \sum_j T'_{ij}(k_{Li}) f_2 k_{Li} \right] \quad (49)$$

で表される。ここで  $f_1, f_2$  は左、右側でのフェルミ分布関数である。また、細線での横方向の運動エネルギーを  $E_i^T$  とした分散

$$E_i = E_i^T + \frac{\hbar^2 k_{Li}^2}{2m} \quad (50)$$

から

$$J^l = \frac{\hbar}{m} \int_{E_i^T} \sum_i T'(E_i) [f(E)_1 - f(E)_2] dE \quad (51)$$

$$T'(E_i) = \sum_j T'_{ij} \quad (52)$$

が得られる。Boltzmann 方程式において、粒子が熱を運ぶと考えると、

$$w^l = \frac{\hbar}{m} \int_{E_i^T} T'(E_i) (E - \mu) [f_1(E) - f_2(E)] dE \quad (53)$$

また、線形近似より

$$f(E)_1 - f(E)_2 = (-\partial_E f) \left[ (\mu_1 - \mu_2) + \frac{(E - \bar{\mu})}{\bar{\theta}} (\theta_1 - \theta_2) \right] \quad (54)$$

となって、熱輸送も含めた Landauer-Büttiker の公式

$$\begin{pmatrix} \frac{j}{q} \\ w \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} L_0 & L_1 \\ L_1 & L_2 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \mu_1 - \mu_2 \\ \frac{1}{\bar{\theta}} (\theta_1 - \theta_2) \end{pmatrix}, \quad (55)$$

$$L_\nu = \frac{1}{h} \int_{E_i^T} \sum_i T(E - E_i^T) (E - \mu)^\nu (-\partial_E f) dE \quad (56)$$

が得られる。次章ではこの式を用いて実際に熱電輸送を計算する。

## 4 2次元量子スピンホール物質の熱電効果

2次元量子スピンホール (2DQSH) 系は非磁性な不純物に対して安定であるエッジ状態を持つため、それをうまく活用できれば伝導に大きく寄与することが期待できる。一方エッジ状態が優勢になるには、バルク状態に対するエッジ状態数の比を大きくする必要があり、そのために以下では細いリボン状の系を考えることのする。

この章では、先ずエッジ状態のみが輸送に影響すると言う場合を考える。エッジ状態の輸送のみではフォノンの寄与がなく、大きな  $ZT$  が期待できる。これが本研究の動機でもある。次にバルクの輸送を考慮に入れた熱輸送について論じる。系のサイズや物理的なパラメータによって輸送係数は大きく変化することを示す。また、計算結果からエッジ状態とバルク状態の競合状態が起こっていることが分かり、それについても述べる。

### 4.1 エッジ状態のみの熱電効果

バルクの輸送を不純物で抑えて無視できると過程し、エッジ状態による輸送のみが許される場合を想定する。エッジ状態のみによる輸送現象を考える際は、図 15(a) で表される状態密度で、エネルギーが  $-\Delta < E < 0$  の間だけ透過率  $T$  が 1、それ以外が 0 という状況の下 Landauer-Büttiker の公式を用いる。

$$L_\nu^e = \frac{2\ell}{sh} \int_{-\Delta}^0 (E - \mu)^\nu (-\partial_E f) dE \quad (57)$$

$$= c_e F_e(\nu, \mu) (k_B T)^\nu \quad (58)$$

$$c_e = \frac{2\ell}{sh} \quad (59)$$

$$F_e(\nu, \mu) = \int_{-\bar{\Delta}-\bar{\mu}}^{-\bar{\mu}} x^\nu \frac{e^x}{(e^x + 1)^2} dx \quad (60)$$

またフォノンを無視した無次元性能効率

$$ZT = \frac{L_1^2}{L_0 L_2 - L_1^2} \quad (61)$$

となる。上添え字  $e$  はエッジによる輸送を表している。また、 $s$  は系の断面積、 $\ell$  は系の有効サイズ、 $\bar{\Delta} = \Delta/k_B T$ 、 $\bar{\mu} = \mu/k_B T$  を示す。系が Landauer-Büttiker の公式が有効であるのは、エッジのコヒーレンス状態が保たれている間だけであるから、 $\ell$  はエッジ状態の非弾性散乱長  $\ell_{\text{inel}}$  に相当すると考えられる。上述の輸送係数を用いて熱電変換効率の指数  $ZT$  を計算した結果が図 15(b) である。現在達成されている  $ZT$  の値は大きくても 2 程度なので、系の化学ポテンシャルがバルクのバンド中に入ると  $ZT$  が非常に大きくなることが分かる。これはエッジのキャリアが大きなエネルギーを持つためである。これは現実的なモデルではないが、エッジの状態がバルクに対して大きくなる場合を考えたとこれと同様なことが起きるのではないと考えられ、大きな  $ZT$  を期待することができる。

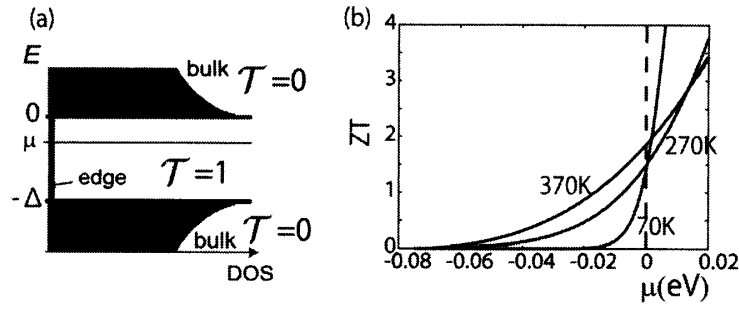


図 15: (a) 状態密度 (DOS) のエネルギー  $E$  依存性図を表す。透過率  $T = 1$  はエッジ状態では 1、バルクでは 0 とした。(b) 熱電変換効率の指数  $ZT$  と化学ポテンシャル  $\mu$  の関係。ただしバルクの電子とフォノンの輸送を無視している。 $\Delta = 0.15\text{eV}$  である。

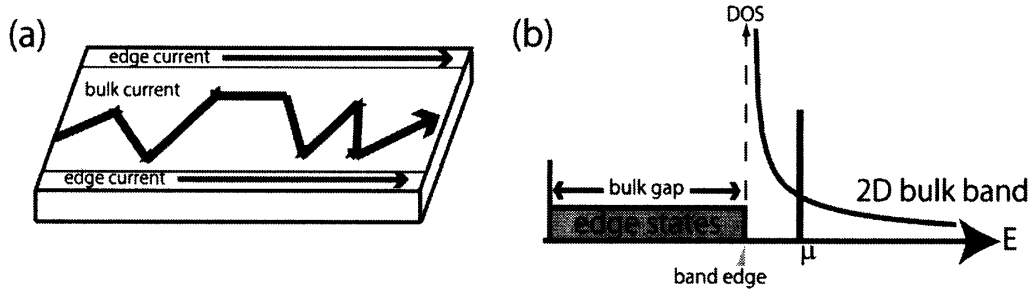


図 16: (a) 2次元状の細いリボン構造を想定した図である。(b) バルクの第一バンドとエッジ状態を表した状態密度図である。

## 4.2 エッジとバルクによる輸送

前節を踏まえ、もう少し現実的な状況を議論するため、エッジ状態にバルクによる第一バンドを加えたモデル (図 16) のような状況の下、議論を行う。エネルギーが  $-\Delta < E < 0$  では先の場合と同じように輸送係数は Landauer-Büttiker の公式より得られる。以下では解析を容易にするため、化学ポテンシャルは伝導バンド端付近にあるとし、ギャップが十分大きいとして荷電しバンドによる伝導を無視する。QSH 系のギャップは大きいものでは  $0.3\text{eV}$  程度なのでこの近似は容易に満たされる。また、バルク状態は 2 次元であり、想定するリボンの幅は細いので、幅方向の運動エネルギーは量子化され、その第一サブバンドのみを計算している。リボン幅  $W = 10\text{nm}$  とした時、第一サブバンドと第二サブバンドの間のエネルギーは

$$\frac{3\hbar^2}{2m} \left( \frac{\pi}{W} \right)^2 \sim 0.14\text{eV} \quad (62)$$

であるから第二サブバンドのエネルギーも十分大きく、その輸送に対する寄与を無視する。

バルクによる輸送係数は緩和時間  $\tau$  を一定とした近似の下、Boltzmann 方程式から

$$L_\nu^b = \frac{1}{s} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{dk}{2\pi} c \tau v^2 (\epsilon - \mu)^\nu (-\partial_\epsilon f(\epsilon)) \quad (63)$$

$$= \frac{4\sqrt{2m\mu^*}c}{esh} \int_0^\infty d\epsilon \sqrt{\epsilon} (\epsilon - \mu)^\nu (-\partial_\epsilon f(\epsilon)) \quad (64)$$

$$= c_b F_b(\nu, \mu) (k_B T)^\nu \quad (65)$$

$$c_b = \frac{4\sqrt{2mk_B T} \mu^* c}{esh} \quad (66)$$

$$F_b(\nu, \mu) = \int_{-\bar{\mu}}^{\infty} \sqrt{x + \bar{\mu}} x^\nu \frac{e^x}{(e^x + 1)^2} dx \quad (67)$$

で与えられる。 $c$  はキャリアーポケットの個数であり物質による定数である。また  $\mu^*$  は移動度、 $m$  は有効質量、上添え字  $b$  はバルクの輸送であることを表している。ここでエッジ、バルクの両比例定数  $c_e$ 、 $c_b$  はそれぞれの輸送の強さを表す物質固有の定数となっている。全体的な輸送はそれらの和で与えられる。

$$L_\nu = L_\nu^e + L_\nu^b \quad (68)$$

これら輸送係数を温度 1.8K の条件下に計算された輸送特性の結果が図 18(a)(b)(c)(d) である。ここでは量子スピンホール物質であると予言されている  $\text{Bi}_2\text{Te}_3$  [22] のパラメータを以下のように与えた。 $\text{Bi}_2\text{Te}_3$  の  $c$  は 6 である。非弾性散乱長  $\ell_{\text{inel}}$  は QSH 系の  $\text{HgTe}$  量子井戸の実験から  $1\mu\text{m}$  とする。系の断面積  $s$  は  $10\text{nm} \times 0.5\text{nm}$  と想定した。電子の有効質量は電子の質量  $m_e$  を用いて  $0.02m_e$  である。移動度  $\mu^*$  は  $2000\text{cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$  と想定した。この仮定は文献 [28] から約 80K での  $\text{Bi}_2\text{Te}_3$  のバルク移動度の値である。ここで図 17 に表されているように、この移動度は  $\text{Bi}_2\text{Te}_3$  の組成にも依存している。

$\kappa_L$  は  $0.1\text{Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$  とする。この値も同様に薄膜の値が得られなかったため、バルクの値を [29] から引用した。また文献 [30] では細線状態にした物質の熱伝導率について触れているので、[29] の値と [30] を勘案して  $\kappa_L$  を決めた。計算結果が図 18 である。Edge はエッジ輸送のみの計算結果、Bulk はバルクのみの計算結果、Total は両方あわせた輸送係数からの計算結果である。熱伝導率のグラフは格子からの寄与も無視できないため、グラフ中に挿入してある。また、前章同様に熱伝導率の格子からの寄与は定数としてあり、全熱伝導率は電荷と格子の寄与の和で表される。上記パラメータを用いて計算された輸送特性の説明は以下のようにになっている。

**電気伝導率** 図 18(a) が電気伝導率に関する計算結果である。それぞれの輸送の大きさから、バンドエッジ付近においては輸送現象にしろエッジの状態がバルクに比べて十分大きいと考えられる。また、 $\bar{\mu}$  が負の領域で  $\sigma$  が飽和しているのはエッジチャネルによる伝導のみによる輸送が寄与し、バルク輸送は小さいことを示している。 $\bar{\mu}$  が大きくなるにつれバルクの輸送が大きくなるが、キャリア数が小さいので  $\sigma$  は大きくはならない。リボン幅を小さくすることによってエッジによる伝導率はかなり大きくなる。

**Seebeck 係数** Seebeck 係数  $S$  (図 18(b)) は興味深い振る舞いを行っている。 $L_1^e$  と  $L_1^b$  が逆符号であるため互いに相殺してしまう現象が起こり、全体で見ると  $\bar{\mu}$  が 0 付近で極大のような形

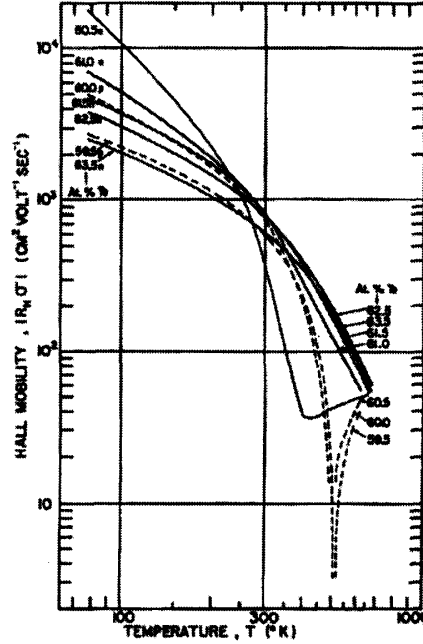


図 17:  $\text{Bi}_2\text{Te}_3$  の移動度と温度の関係を表したグラフ（文献 [28] から転載）である。物質の組成によって移動度の値が大きく異なるのが分かる。

をとっている。つまり、エッジ状態はバルクのバンドのすぐ下にある価電子帯のような振る舞いをしており、キャリアの符号が反対符号となり、Seebeck 係数に互いに逆符号の寄与を与えることになる。互いの輸送係数  $L_1^e$ ,  $L_1^h$  の大きさが同じ程度だと熱と電流は無関係に流れることが分かる。また、化学ポテンシャルがバンドエッジより大きい場合では、エッジ輸送による Seebeck 係数は、化学ポテンシャルに対して線形に振舞う。また、バルク輸送による Seebeck 係数はギャップ中において線形に振舞う。

**熱伝導率** 電荷だけによる熱伝導率  $\kappa_e$  は図 18(c) の Edge&Bulk に相当し、エッジとバルク両輸送のクロスオーバー領域ではあまり大きな値の変化はない。しかし個々の値より熱伝導率が大きくなっているのが分かる。割り当てられたパラメータでは格子からの熱伝導率と電荷からの熱伝導率の寄与が同程度である。

**性能指数**  $ZT$  については、エッジ、バルク両輸送による Seebeck 効果が相殺されるため、Total で劇的に大きな値はでないということを図 18(d) は示している。Seebeck 効果の値が相殺されているのにもかかわらず、Total の値がバルクより比較的大きいのは Total での  $\sigma$  が大きいからだと考えられる。エッジだけの性能指数  $Z_e T$  は化学ポテンシャルと共に増加関数となっているのが分かる。漸近形からのその振る舞いは

$$Z_e T \sim \left( \bar{\mu} - \frac{\bar{\Delta}}{2} \right)^2 \quad (69)$$

という簡単な形になる。

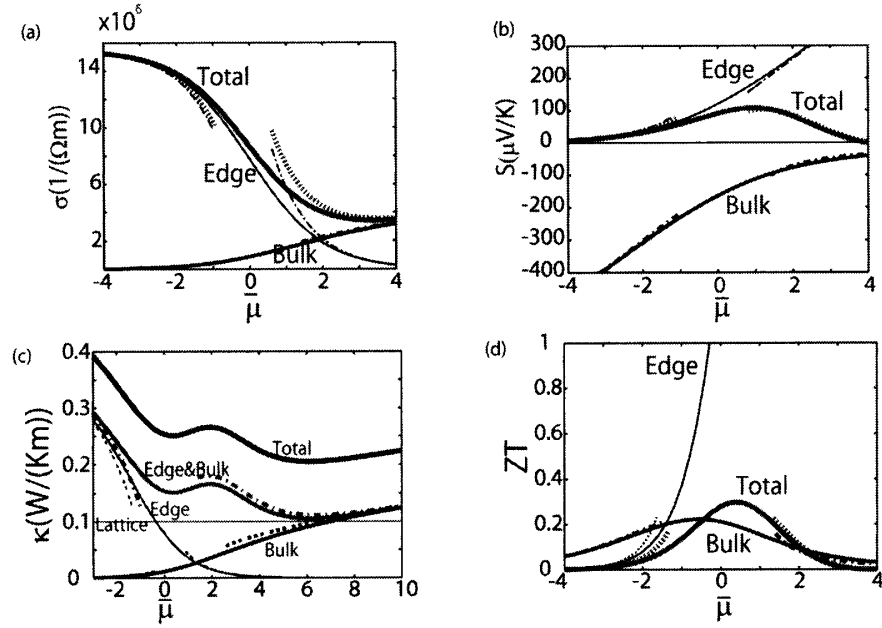


図 18: (a) 電気伝導率  $\sigma$  の計算結果を示す。(b) Seebeck 係数  $S$  の計算結果を示す。(c) 熱伝導率  $\kappa$  の計算結果を示す。(d)  $ZT$  の計算結果を示す。用いたパラメータは 4.2 節参照。 $\bar{\mu} = \mu/k_B T$  である。

#### 4.2.1 輸送特異性の漸近形

輸送特性を表す各々の図 18 での破線は、 $\bar{\mu}$  が非常に小さい（バルクバンドから遠く離れている）場合と  $\bar{\mu}$  がバンドエッジより大きい場合の化学ポテンシャルによる漸近線を表す。

**エッジ輸送**  $\bar{\mu}$  が非常に大きい（バルクバンド中にある）場合のエッジ輸送の関数  $F_e(\nu, \mu)$  の漸近系は

$$F_e(0, \mu) = e^{-\bar{\mu}} \quad (70)$$

$$F_e(1, \mu) = -(1 + \bar{\mu})e^{-\bar{\mu}} \quad (71)$$

$$F_e(2, \mu) = (1 + (1 + \bar{\mu})^2)e^{-\bar{\mu}} \quad (72)$$

となる。他方  $\mu$  がバンドギャップ中でバンドエッジから離れている場合は

$$F_e(0, \mu) = 1 - e^{\bar{\mu}} \quad (73)$$

$$F_e(1, \mu) = (\bar{\mu} - 1)e^{\bar{\mu}} \quad (74)$$

$$F_e(2, \mu) = \frac{\pi^2}{3} + (-\bar{\mu}^2 + 2\bar{\mu} - 2)e^{\bar{\mu}} \quad (75)$$

で与えられる。

**バルク輸送**  $\bar{\mu}$  がバンドエッジより大きい場合のバルク輸送の関数  $F_b(\nu, \mu)$  の漸近形は

$$F_b(0, \mu) = \sqrt{\bar{\mu}} \quad (76)$$

$$F_b(1, \mu) = \frac{\pi^2}{6\sqrt{\bar{\mu}}} \quad (77)$$

$$F_b(2, \mu) = \frac{\pi^2}{3}\sqrt{\bar{\mu}} \quad (78)$$

となる。 $\bar{\mu}$  がバンドギャップ中でバンドエッジから離れている場合は

$$F_b(0, \mu) = \frac{\sqrt{\pi}}{2} e^{\bar{\mu}} \quad (79)$$

$$F_b(1, \mu) = \frac{\sqrt{\pi}}{2} e^{\bar{\mu}} \left( \frac{3}{2} - \bar{\mu} \right) \quad (80)$$

$$F_b(2, \mu) = \frac{\sqrt{\pi}}{2} e^{\bar{\mu}} \left( \frac{15}{4} - 3\bar{\mu} + \bar{\mu}^2 \right) \quad (81)$$

と表すことができる。

以上を用いて各輸送係数の化学ポテンシャルによる漸近形は計算できる。それぞれに共通することは、状態がなくなった輸送係数は指数関数的に減少するということである。また、漸近形から計算された輸送特性は、エッジとバルクの輸送によるクロスオーバー領域から離れた領域において積分をそのまま計算した場合とかなり一致している。

#### 4.2.2 系のサイズと輸送特性

輸送特性は系のサイズによって値が変わることが式から分かる。Seebeck 効果の計算において、エッジ、バルク個々の値は変わらないが、電気伝導率が増えるために全体での Seebeck 係数は系のサイズに依存する。また、図 19(a)(b) 中における  $r$  と  $g$  の意味については後に述べる。

**断面積変化** 図 19(a) は系の断面積を  $s$  は幅 10nm × 厚さ 5nm とした図である。Seebeck 効果、 $ZT$  においてはエッジ、バルク輸送による個々の寄与だけは変化しない。また Seebeck 係数での Total の値から分かるように、断面積を増やしてもエッジの輸送がバルクに比べ優勢的であるのは変わらない。電気伝導率、熱伝導率においてエッジ、バルク両輸送が断面積の増加によって抑えられているのが図 18 と比べると分かる（バルクは 2 次元系としているので、厚さに反比例して伝導率が低下する）。電荷による全体の輸送効率が下がるので、電荷からの熱伝導率は大きく下がるが、熱伝導率は格子からの寄与がスケールを決めてしまうので、図 18 の場合とオーダーは変わらない。よって  $ZT$  は大幅に下がってしまう。

**非弾性散乱長** 先にも述べたとおり、エッジ輸送は系の非弾性散乱長  $\ell_{\text{inel}}$  に大きく依存する（即ち  $\ell = \ell_{\text{inel}}$ ）。図 19(b) は先の輸送特性の計算で扱ったパラメータで、非弾性散乱長  $\ell$  のみを変化させた場合の結果である。 $\ell = 100\mu\text{m}$  において、電気伝導率と熱伝導率に関してはエッジ輸送がバルク輸送に比べ十分大きくなっており、バルクギャップからバンドエッジ付近にかけてほとんどエッジ輸送からの寄与で値が決められている。また、バンドギャップ中での熱伝導

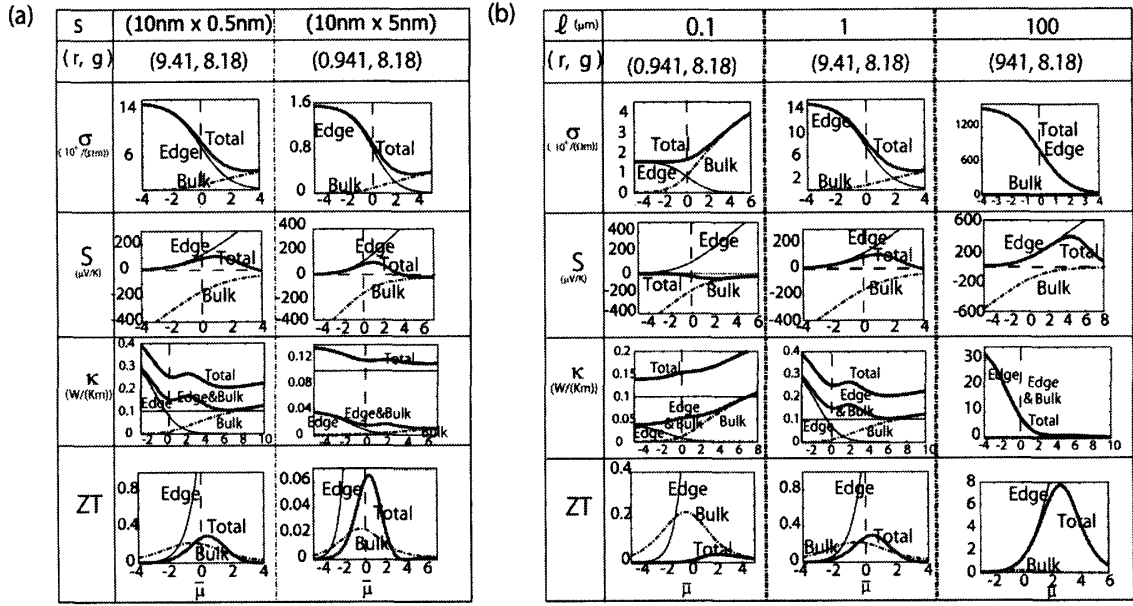


図 19: (a) 系の断面積を変化させた場合の結果を示す。左は最初の計算結果と同じ  $s = 10\text{nm} \times 0.5\text{nm}$  である。右は断面積を 10 倍にした  $s = 10\text{nm} \times 5\text{nm}$  場合の計算結果である。(b) 非弾性散乱長だけを変化させた場合の結果を示す。左側が  $\ell = 0.1\mu\text{m}$ 、右側が  $\ell = 1\mu\text{m}$  (最初の計算結果と同じもの)、右側が  $\ell = 100\mu\text{m}$  の場合を示している。いずれも横軸は  $\mu$  であり、ここで破線はバルクの輸送のみの結果となる。

率はエッジ輸送によって大きくなっているが、バンドエッジを過ぎた時点で急激に小さくなる。輸送現象においてエッジが支配的なため、バンドエッジ付近ではエッジ輸送による Seebeck 係数がバルク輸送からの寄与に打ち勝っている。更に Seebeck 係数はバンドエッジを過ぎたところで最大値をとっているために Total での  $ZT$  の最大値が大きくなると考えられる。

$\ell = 0.1\mu\text{m}$  ではバンドエッジ付近の輸送現象でバルクによる輸送がエッジによる輸送より大きくなっている。それを表しているのが Seebeck 係数である。Seebeck 係数は負でなおかつ 0 付近であるため、Total での  $ZT$  がバルク、エッジ個々の輸送だけからなる  $ZT$  を大幅に下回っているのが図からわかる。また熱伝導率は格子による寄与が大きい。本論文で使った熱伝導率は仮想的なものであり、なおかつバルクで知られているものより小さい。なのでバルクが支配的な輸送現象では格子による熱伝導率の詳細が重要になってくるのが分かる。

**Lorentz 数** 物質の特性を表す指数として Lorentz 数

$$L = \frac{\kappa}{\sigma T} \quad (82)$$

がある。この値は温度、物質依存性が少ないことが知られている。上式を 3 次元 Boltzmann 方程式に基づいて計算すると  $L \sim \frac{\pi^2}{3} \left(\frac{k_B}{e}\right)^2 \sim 2.45 \times 10^{-8} \text{W}\Omega/\text{K}^2$  となる。これは多くの金属で成り立っていることが実験的に明らかにされており、またこのことが  $ZT$  向上への一つの障壁となっている。

エッジ輸送のある系でサイズを変えて計算した結果が図 20 である。電気伝導率同様、化学ポテンシャルがバルクギャップからバンドエッジを経て、バルク領域へと変わる際、Total の Lorentz



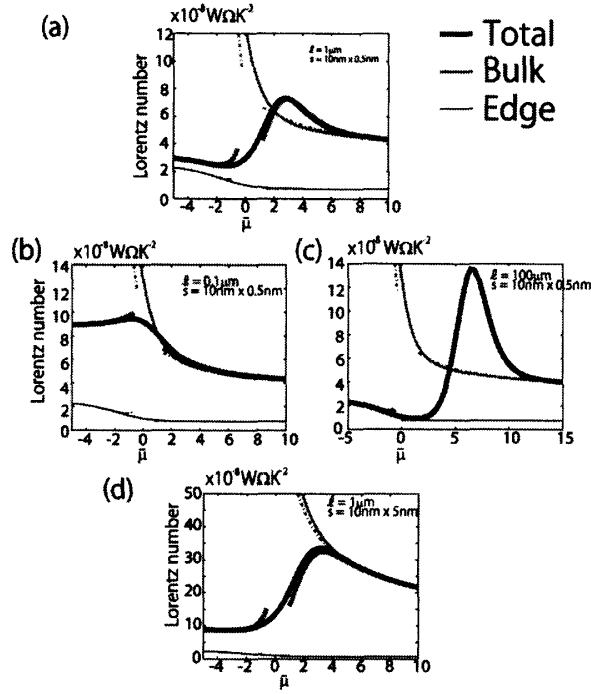


図 20: 前節の輸送特性の計算仮定において、サイズを変化させた場合のローレンツ数を示す。(a)  $\ell = 1\mu\text{m}$ 、 $s = 10\text{nm} \times 0.5\text{nm}$ (b)  $\ell = 1\mu\text{m}$ 、 $s = 10\text{nm} \times 0.5\text{nm}$ (c)  $\ell = 0.1\mu\text{m}$ 、 $s = 10\text{nm} \times 0.5\text{nm}$ (d)  $\ell = 100\mu\text{m}$ 、 $s = 10\text{nm} \times 5\text{nm}$

数がエッジ状態の寄与からバルク輸送の寄与へとスイッチしていることが分かる。Lorentz 数も他の輸送特性同様エッジ輸送とバルク輸送が競合しあうバンドエッジ付近で特異な値を示している。バルク輸送のみの  $\mu$  がバンドエッジ付近からバルクギャップ入ると、電気伝導率が指数関数的に減るために Lorentz 数は大きくなる。Total での Lorentz 数がギャップ中でエッジのみの Lorentz 数と振る舞いが同じだが、値に差ができるのはフォノンの熱伝導率の寄与が Total に反映しているためである。断面積を増やすと電荷全体の輸送が小さくなるが、相対的にフォノンの寄与が大きくなるので図 20(d) で Lorentz 数が増大している。

### 4.3 様々な物質パラメーターによる $ZT$

#### 4.3.1 無次元パラメーターによる $ZT$ の最大値

前節で用いたモデルは輸送特性が様々な物質パラメータに依存する。ここでは物質パラメータの変化によってどのように  $ZT$  が変化するかを議論する。無次元パラメータ  $r$ 、 $g$  を

$$\begin{aligned} r &= c_e/c_b \\ &= \frac{e\ell}{2\sqrt{2mk_B T}\mu^*c} \end{aligned} \quad (83)$$

$$\begin{aligned} g &= \left( \frac{\kappa_L}{k_B^2 T} \right) / c_b \\ &= \frac{\kappa_Lesh}{4\sqrt{2mk_B^5 T^3}\mu^*c} \end{aligned} \quad (84)$$

というように定義すると  $ZT(\mu, r, g)$  は

$$ZT(\mu, r, g) = \frac{F(1, \mu, r)^2}{F(0, \mu, r)F(2, \mu, r) - F(1, \mu, r)^2 + gF(0, \mu, r)} \quad (85)$$

$$F(\nu, \mu, r) = rF_e(\nu, \mu) + F_b(\nu, \mu) \quad (86)$$

と表せる。これを用いて各  $r$ 、 $g$  の値における、 $\mu$  による  $ZT$  の最大値  $ZT_{max}$  を取り出したのが図 21 である。またそのときの  $\mu$  の値  $\mu_{max}$  が図 22(a) である。図 22(b) はエッジ輸送とバルク輸送のクロスオーバー領域での  $r$  を少しずつ変化させた場合の  $\bar{\mu} - ZT$  図である。 $r$  を増加させるにしたがって、 $\bar{\mu}$  による  $ZT$  の最大値が急にずれることが見て取れる。輸送係数の大きさを表す値  $c_e$ 、 $c_b$  は物質パラメータで構成され、 $r$  が大きければエッジ輸送の効果が大きく、小さければバルクの輸送効果が大きくなることを示す。図 21 では、それらの輸送係数の支配性の中間であるクロスオーバーが  $r \sim 2.3$  で見られる。図 22(a) ではそのときの  $\mu_{max}$  の変化が劇的に示されている。図 22(b) ではクロスオーバーがおきるときの  $r$  による変化が表されており、エッジによる輸送とバルクによる輸送の  $ZT$  の最大値が、それぞれ異なる化学ポテンシャルから派生していることがよく分かる。これらの図からわかるとおり、輸送現象においてどちらが支配的かで化学ポテンシャル  $\bar{\mu}_{max}$  が不連続に振舞っている。 $r$  が大きく、エッジ状態が支配的な状況ではバルク状態が支配的な場合に比べ  $g$  依存性が少なくなる。これはエッジ状態が支配的な輸送状況ではフォノンの熱伝導率に対する依存性がバルクの場合に比べて小さくなることを示している。エッジ状態が支配的でも図 18(d) のように  $ZT$  が二次関数的に増加しないのは、バルクによるフォノンの熱伝導率が存在するためである。 $g$  を抑えたまま  $r$  を大きくすることで、大きな  $ZT$  が期待できる。極端な場合は図 19(b) での  $\ell = 100\mu\text{m}$  における  $ZT$  のグラフである。このように  $ZT$  が 1 を大きく上回ることもありうる。

$r$  を表す式から、温度を下げるに従ってクロスオーバーの領域に入ることが分かる。このことから、 $ZT_{max}$  は温度を下げると共に一度下がってクロスオーバー領域に入り、また大きくなるという過程を経ることが想定される。不純物の濃度を大きくすれば移動度  $\mu^*$  は小さくなり、 $r$  を大きくすることが可能だと考えられる。しかし  $r$  を決定する上では、系のエッジ状態の非弾性散乱長も問題になる。それゆえに、実際にどの程度の温度でクロスオーバーが出るのも非弾性散乱長の振る舞いに大きく依存する。ここでは Machida らの量子ホール効果の実験 [31] を

参考にし  $\ell_{\text{inel}} \sim T^{-1.5}$  とすると

$$r \sim T^{-2} \quad (87)$$

が得られる。その他の定数は変化が少ないとして、 $r \sim 2.3$ となる温度を見積もると、 $T \sim 5-10\text{K}$ でクロスオーバーが見えるのではないかと考えられる。

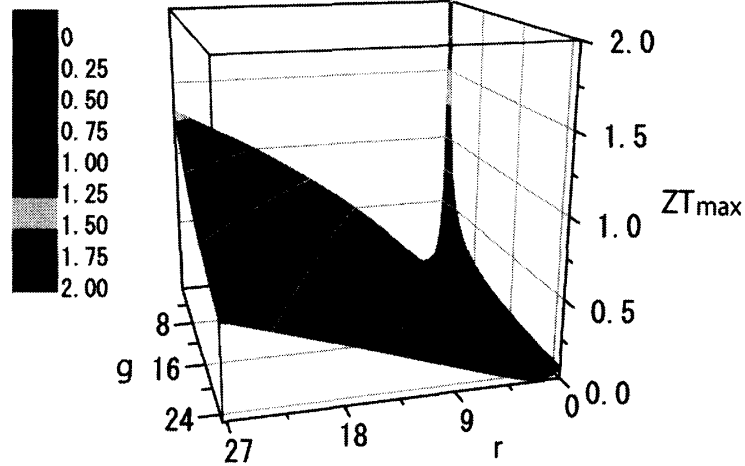


図 21: パラメータ  $r$ 、 $g$  による  $ZT_{\text{max}}$  の図を示す。カラーは文献 [1] 参照

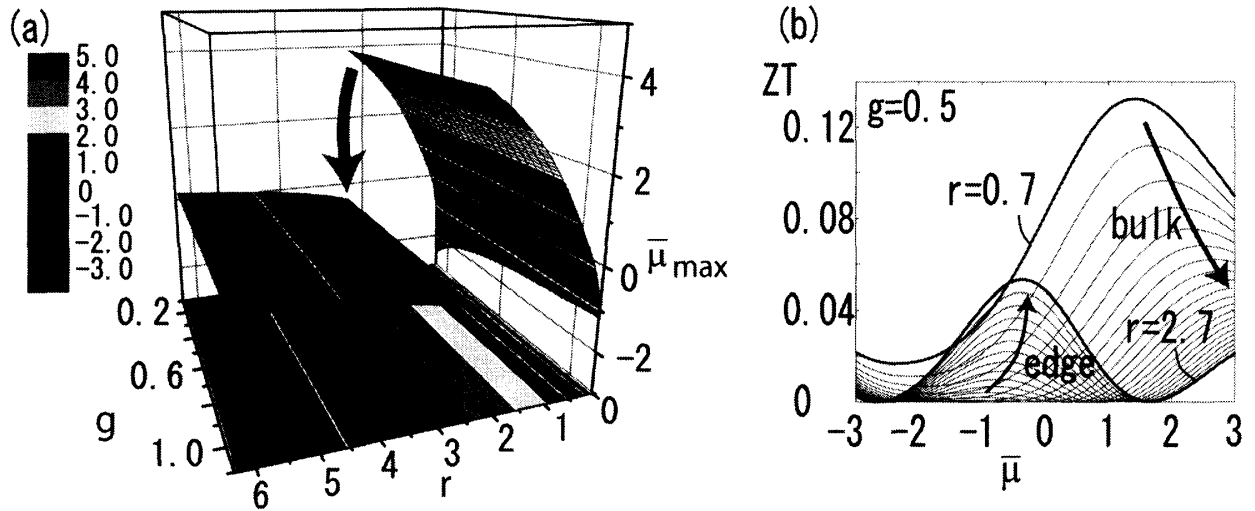


図 22: (a) パラメータ  $r$ 、 $g$  を与えたときの  $ZT_{\text{max}}$  をとる場合の  $\bar{\mu} = \bar{\mu}_{\text{max}}$  を表す図である。(b)  $g = 0.5$  とし、 $r$  をクロスオーバー付近で変化させたときの  $ZT$  を示す。カラーは文献 [1] 参照

#### 4.3.2 $ZT$ のクロスオーバー

図 21 から、 $r$  がある値の場合は Seebeck 係数  $S = 0$  となり、輸送行列の非対角要素が 0 となる状況が実現する。これは熱流と電流がまったく独立に流れていることを示唆している。そ

れは

$$F(1, \mu, r) = rF_e(1, \mu) + F_b(1, \mu) = 0 \quad (88)$$

$$\rightarrow r_{crossover}(\mu) \equiv -\frac{F_b(1, \mu)}{F_e(1, \mu)} \quad (89)$$

と定義できる。バンドエッジを過ぎると  $r_{crossover}$  は指数関数的に増えていく (図 23)。これはエッジ輸送の項  $F_e(1, \mu)$  が、バンドエッジを過ぎると指数関数的に減少するためである。またこの図から、バンドエッジ付近の輸送特性はエッジ、バルク両輸送が存在する場合においては、 $r$  が 1~2 近傍では熱電変換の効率がまったく期待できないことを示唆している。

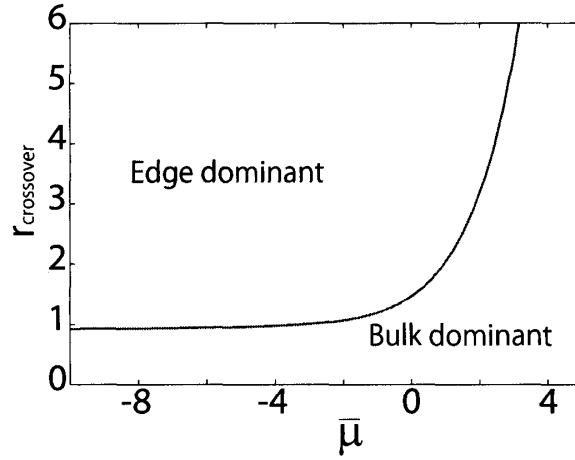


図 23: 熱流と電流が互いに独立となって Seebeck 係数が 0 となってしまう時の  $r = r_{crossover}$  の化学ポテンシャル変化図である。

## 5 2次元量子スピンホール系におけるエッジ状態の非弾性散乱長

ここでは前章で問題となった  $ZT$  を決める因子  $r$  に現れるエッジ状態の非弾性散乱長について議論をする。この論文では有限な温度に焦点を当てているので電子-フォノン散乱によるエッジ状態の緩和時間  $\tau$  の計算を行う。

### 5.1 電子-フォノン散乱による緩和時間

非弾性散乱による緩和時間  $\tau_k$  を求める。エッジ局在の波動関数は

$$\psi_e(\mathbf{r}, k) = \frac{1}{\sqrt{L}} e^{ikx} \phi_e(\mathbf{r}) \quad (90)$$

$$\phi_e(\mathbf{r}) = \frac{1}{\sqrt{\lambda(1 - e^{-\frac{W}{\lambda}})}} e^{-\frac{y}{2\lambda}} \quad (91)$$

とする。またバルク局在の波動関数は

$$\psi_b(\mathbf{r}, k) = \frac{1}{\sqrt{L}} e^{ikx} \phi_b(\mathbf{r}) \quad (92)$$

$$\phi_b(\mathbf{r}) = \frac{1}{\sqrt{2W}} \sin(k_y y) \quad (93)$$

と仮定する ( $k_y = \frac{\pi}{W}$ )。相互作用ハミルトニアンは

$$\begin{aligned} H_{ep} &= \int d\mathbf{r} \rho(\mathbf{r}) V_{ep}(\mathbf{r}) \\ &= - \sum \rho(\mathbf{q} + \mathbf{G}) V_{ep}(\mathbf{q} + \mathbf{G}) (\mathbf{q} + \mathbf{G}) \cdot \frac{\mathbf{e}_{\mathbf{q}+\mathbf{G}}}{\sqrt{2MN\omega_{\mathbf{q}}}} (a_{\mathbf{q}} + a_{-\mathbf{q}}^\dagger) \end{aligned} \quad (94)$$

である。ここで  $\mathbf{G} = 0$  で考えていくので

$$H_{ep} = \sum D_{\mathbf{k}, \mathbf{q}} C_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}^\dagger C_{\mathbf{k}} (a_{\mathbf{q}} + a_{-\mathbf{q}}^\dagger) \quad (95)$$

として、先ず  $D_{\mathbf{k}, \mathbf{q}}$  を求める。

$$\psi(\mathbf{r}) = \sum_k (C_k^e \psi_e(\mathbf{r}, k) + C_k^b \psi_b(\mathbf{r}, k)) \quad (96)$$

より、

$$\begin{aligned} \rho_k(\mathbf{q}) &= C_{k+q_x}^{e\dagger} C_k^e \int dy e^{iq_y y} \phi_e^*(y) \phi_e(y) + C_{k+q_x}^{e\dagger} C_k^b \int dy e^{iq_y y} \phi_e^*(y) \phi_b(y) \\ &\quad + C_{k+q_x}^{b\dagger} C_k^e \int dy e^{iq_y y} \phi_b^*(y) \phi_e(y) + C_{k+q_x}^{b\dagger} C_k^b \int dy e^{iq_y y} \phi_b^*(y) \phi_b(y) \end{aligned} \quad (97)$$

と与えられるので、エッジ間同士の非弾性散乱とエッジからバルクへの非弾性散乱を考えるので以下の二つの  $D$  のみを考える。

$$D_{k, \mathbf{q}}^{ee} = i\mathbf{q} \cdot \frac{\mathbf{e}_{\mathbf{q}} V_{ep}(\mathbf{q})}{\sqrt{2MN\omega_{\mathbf{q}}}} \int dy e^{iky} \phi_e^*(y) \phi_e(y) \quad (98)$$

$$D_{k, \mathbf{q}}^{eb} = i\mathbf{q} \cdot \frac{\mathbf{e}_{\mathbf{q}} V_{ep}(\mathbf{q})}{\sqrt{2MN\omega_{\mathbf{q}}}} \int dy e^{iky} \phi_b^*(y) \phi_e(y) \quad (99)$$

一方、フォノンに因る緩和時間  $\tau$  は [32]

$$\frac{1}{\tau_k} = 2\pi \sum_{\mathbf{q}} |D_{k, \mathbf{q}}|^2 (1 - f_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}) (n_{\mathbf{q}} \delta(\epsilon_{\mathbf{k}+\mathbf{q}} - \epsilon_{\mathbf{k}} - \omega_{\mathbf{q}}) + (n_{-\mathbf{q}} + 1) \delta(\epsilon_{\mathbf{k}+\mathbf{q}} - \epsilon_{\mathbf{k}} + \omega_{\mathbf{q}})) \quad (100)$$

であるから、今の場合は

$$\begin{aligned} \frac{1}{\tau_k} &= 2\pi \sum_{\mathbf{q}} |D_{k, \mathbf{q}}^{ee}|^2 (1 - f_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}) (n_{\mathbf{q}} \delta(\epsilon_{\mathbf{k}+\mathbf{q}} - \epsilon_{\mathbf{k}} - \omega_{\mathbf{q}}) + (n_{-\mathbf{q}} + 1) \delta(\epsilon_{\mathbf{k}+\mathbf{q}} - \epsilon_{\mathbf{k}} + \omega_{\mathbf{q}})) \\ &\quad + 2\pi \sum_{\mathbf{q}} |D_{k, \mathbf{q}}^{eb}|^2 (1 - f_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}) (n_{\mathbf{q}} \delta(\epsilon_{\mathbf{k}+\mathbf{q}} - \epsilon_{\mathbf{k}} - \omega_{\mathbf{q}}) + (n_{-\mathbf{q}} + 1) \delta(\epsilon_{\mathbf{k}+\mathbf{q}} - \epsilon_{\mathbf{k}} + \omega_{\mathbf{q}})) \\ &\equiv \frac{1}{\tau_k^{ee}} + \frac{1}{\tau_k^{eb}} \end{aligned} \quad (101)$$

として、それぞれの緩和時間を求めていく。

5.1.1  $\tau$  の求め方

$x$  方向周期的境界条件を課し、 $D$  が  $q_y$  に対して対称的な場合について考える。

$$\frac{1}{\tau_k} = 2\pi \sum_{\mathbf{q}} |D_{k,\mathbf{q}}(q_y^2)|^2 (1 - f_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}) (n_{\mathbf{q}} \delta(\epsilon_{\mathbf{k}+\mathbf{q}} - \epsilon_{\mathbf{k}} - \omega_{\mathbf{q}}) + (n_{-\mathbf{q}} + 1) \delta(\epsilon_{\mathbf{k}+\mathbf{q}} - \epsilon_{\mathbf{k}} + \omega_{\mathbf{q}})) \quad (102)$$

また

$$f_1(\mathbf{q}) = \epsilon_{\mathbf{k}+\mathbf{q}} - \epsilon_{\mathbf{k}} - \omega_{\mathbf{q}} \quad (103)$$

$$f_2(\mathbf{q}) = \epsilon_{\mathbf{k}+\mathbf{q}} - \epsilon_{\mathbf{k}} + \omega_{\mathbf{q}} \quad (104)$$

と定義すると、それぞれ  $f_{1,2} = 0$  のときに  $q_y^2 \equiv g_{1,2}(q_x)$  がなりたつとすると  $\sum \rightarrow \frac{LW}{(2\pi)^2} \int dq_x$  として対称性を考慮して緩和時間は

$$\begin{aligned} \frac{1}{\tau_k} &= \frac{LW}{\pi} \int dq_x \frac{1}{\left| \frac{\partial f_1(q_y^2=g_1)}{\partial q_y} \right|} |D_{1k}(q_x)|^2 (1 - f_{k+q_x}) n_{\sqrt{\mathbf{q}_x^2 + \mathbf{g}_1(\mathbf{q}_x)}} \\ &+ \frac{LW}{\pi} \int dq_x \frac{1}{\left| \frac{\partial f_2(q_y^2=g_2)}{\partial q_y} \right|} |D_{2k}(q_x)|^2 (1 - f_{k+q_x}) (1 + n_{\sqrt{\mathbf{q}_x^2 + \mathbf{g}_2(\mathbf{q}_x)}}) \end{aligned} \quad (105)$$

で与えられる。

**edge-edge** エッジからエッジへの緩和時間  $\tau_k^{ee}$  を考える。

$$\begin{aligned} \int dy e^{iq_y y} \phi_e^*(y) \phi_e(y) &= \int dy \frac{1}{\lambda(1 - e^{-\frac{W}{\lambda}})} e^{-\frac{y}{\lambda} + iq_y y} \\ &= \frac{1}{(1 - e^{-\frac{W}{\lambda}})(1 - i\lambda q_y)} (1 - e^{-\frac{W}{\lambda} + iq_y W}) \end{aligned} \quad (106)$$

$$\begin{aligned} \left| \int dy e^{iq_y y} \phi_e^*(y) \phi_e(y) \right|^2 &= \frac{1}{(1 - e^{-\frac{W}{\lambda}})(1 + \lambda^2 q_y^2)} \\ &\times (1 - 2\cos(q_y W) e^{-\frac{W}{\lambda}} + e^{-\frac{2W}{\lambda}}) \end{aligned} \quad (107)$$

よって

$$\begin{aligned} |D_{k,\mathbf{q}}^{ee}|^2 &= \frac{V_{ep}^2(\mathbf{q})}{2MNc_L} \frac{q}{(1 - e^{-\frac{W}{\lambda}})(1 + \lambda^2 q_y^2)} \\ &\times (1 - 2\cos(q_y W) e^{-\frac{W}{\lambda}} + e^{-\frac{2W}{\lambda}}) \end{aligned} \quad (108)$$

となる。

また図 24 が示す分散関係より

$$f_1(\mathbf{q}) = \epsilon_{\mathbf{k}+\mathbf{q}} - \epsilon_{\mathbf{k}} - \omega_{\mathbf{q}} \quad (109)$$

$$= v_c q_x - c_L q \quad (110)$$

とすると、 $f_1 = 0$  のとき

$$q = (v_c/c_L)q_x \quad (111)$$

$$q_y^2 = \frac{v_c^2 - c_L^2}{c_L^2} q_x^2 \equiv \alpha^2 q_x^2 \quad (112)$$

$$= g_1^{ee}(q_x) \quad (113)$$

$$\left| \left( \frac{\partial f_1(\mathbf{q})}{\partial q_y} \right)_{q_y^2 = g_1^{ee}} \right| = c_L \sqrt{\frac{v_c^2 - c_L^2}{v_c^2}} \equiv \beta \quad (114)$$

$$\begin{aligned} |D_{1k}^{ee}(q_x)|^2 &= \frac{v_c V_{ep}^2(\mathbf{q})}{2MNc_L^2} \frac{q_x}{(1 - e^{-\frac{W}{\lambda}})(1 + \lambda^2 \alpha^2 q_x^2)} \\ &\times (1 - 2\cos(\alpha q_x W) e^{-\frac{W}{\lambda}} + e^{-\frac{2W}{\lambda}}) \end{aligned} \quad (115)$$

更に  $0 < q_x < k_0 - k$  という条件が加わる。そして

$$\delta(f_1)(1 - f_{\mathbf{k}+\mathbf{q}})n_{\mathbf{q}} = \frac{\exp(\frac{v_c(k+q_x-k_0)-\mu}{T})}{(\exp(\frac{v_c(k+q_x-k_0)-\mu}{T}) + 1)} \frac{1}{(\exp(\frac{v_c q_x}{T}) - 1)} \quad (116)$$

$$\equiv G_1(q_x) \quad (117)$$

次に

$$f_2(\mathbf{q}) = \epsilon_{\mathbf{k}+\mathbf{q}} - \epsilon_{\mathbf{k}} + \omega_{\mathbf{q}} \quad (118)$$

$$= v_c q_x + c_L q \quad (119)$$

とすると、 $f_2 = 0$  のとき

$$q = -(v_c/c_L)q_x \quad (120)$$

$$q_y^2 = \frac{v_c^2 - c_L^2}{c_L^2} q_x^2 \equiv \alpha^2 q_x^2 \quad (121)$$

$$= g_2^{ee}(q_x) = g_1^{ee} \quad (122)$$

$$\left| \left( \frac{\partial f_1(\mathbf{q})}{\partial q_y} \right)_{q_y^2 = g_1^{ee}} \right| = c_L \sqrt{\frac{v_c^2 - c_L^2}{v_c^2}} \equiv \beta \quad (123)$$

$$\begin{aligned} |D_{2k}^{ee}(q_x)|^2 &= -\frac{v_c V_{ep}^2(\mathbf{q})}{2MNc_L^2} \frac{q_x}{(1 - e^{-\frac{W}{\lambda}})(1 + \lambda^2 \alpha^2 q_x^2)} \\ &\times (1 - 2\cos(\alpha q_x W) e^{-\frac{W}{\lambda}} + e^{-\frac{2W}{\lambda}}) \end{aligned} \quad (124)$$

更に  $q_x < 0$  という条件が加わる。そして

$$\begin{aligned} \delta(f_2)(1 - f_{\mathbf{k}+\mathbf{q}})n_{\mathbf{q}} &= \frac{\exp(\frac{v_c(k+q_x-k_0)-\mu}{T})}{(\exp(\frac{v_c(k+q_x-k_0)-\mu}{T}) + 1)} \frac{1}{(\exp(\frac{-v_c q_x}{T}) - 1)} \\ &\equiv G_2(q_x) \end{aligned} \quad (125)$$

以上より

$$\begin{aligned}
\frac{1}{\tau_k^{ee}} &= \frac{LW}{\pi\beta} \int_0^{k_0-k} dq_x |D_{1k}^{ee}(q_x)|^2 G_1(q_x) + \frac{LW}{\pi\beta} \int_{\Delta}^0 dq_x |D_{2k}^{ee}(q_x)|^2 G_2(q_x) \\
&\equiv \frac{1}{\tau_{1k}^{ee}} + \frac{1}{\tau_{2k}^{ee}}
\end{aligned} \tag{126}$$

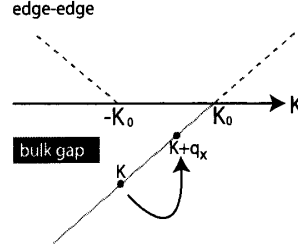


図 24: エッジからエッジへの散乱

**edge-bulk** 前節同様に、エッジ状態  $k$  からバルク状態  $k + q_x$  への緩和時間  $\tau_k^{eb}$  の計算はエネルギー保存の関係から  $f_1$  の項のみを考えればよい。

$$\begin{aligned}
\int dy e^{iq_y y} \phi_b^*(y) \phi_e(y) &= \frac{1}{\sqrt{2W\lambda(1 - e^{-\frac{W}{\lambda}})}} \int dy e^{-\frac{y}{2\lambda} + iq_y y} \sin(k_y y) \\
&= \frac{1}{2i} \frac{1}{\sqrt{2W\lambda(1 - e^{-\frac{W}{\lambda}})}} \int dy (e^{-\frac{y}{2\lambda} + iq_y y + ik_y y} - e^{-\frac{y}{2\lambda} + iq_y y - ik_y y}) \\
&= \frac{1}{2i} \frac{1}{\sqrt{2W\lambda(1 - e^{-\frac{W}{\lambda}})}} \left[ \frac{1}{-\frac{1}{2\lambda} + iq_y + ik_y} - \frac{1}{-\frac{1}{2\lambda} + iq_y - ik_y} \right] \\
&\times (-e^{-\frac{W}{2\lambda} + iq_y W} - 1) \\
&= \frac{1}{\sqrt{2W\lambda(1 - e^{-\frac{W}{\lambda}})}} \frac{k_y}{\frac{1}{4\lambda^2} + k_y^2 - q_y^2 - i\frac{q_y}{\lambda}} (1 - e^{-\frac{W}{2\lambda} + iq_y W}) \tag{127}
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
\left| \int dy e^{iq_y y} \phi_b^*(y) \phi_e(y) \right|^2 &= \frac{\pi^2}{2W^3\lambda(1 - e^{-\frac{W}{\lambda}})} \frac{1}{\left(\frac{1}{4\lambda^2} + k_y^2 - q_y^2\right)^2 + \frac{q_y^2}{\lambda^2}} \\
&\times (1 + 2\cos(q_y W) e^{-\frac{W}{2\lambda}} + e^{-\frac{W}{\lambda}}) \tag{128}
\end{aligned}$$

よって

$$\begin{aligned}
|D_{k,\mathbf{q}}^{eb}|^2 &= \frac{V_{ep}^2(\mathbf{q})}{4MNc_L} \frac{\pi^2}{W^3\lambda(1 + e^{-\frac{W}{\lambda}})} \frac{q}{\left(\frac{1}{4\lambda^2} + k_y^2 - q_y^2\right)^2 + \frac{q_y^2}{\lambda^2}} \\
&\times (1 + 2\cos(q_y W) e^{-\frac{W}{2\lambda}} + e^{-\frac{W}{\lambda}}) \tag{129}
\end{aligned}$$

となる。



エッジからバルクへの散乱その1 図25での非弾性散乱を考える。図の分散を考慮すると、 $f_1$ は先のエッジエッジ散乱の場合と同じになるが、積分範囲が変わる。よって。

$$|D_{1k1}^{eb}(q_x)|^2 = \frac{v_c V_{ep}^2(\mathbf{q})}{4MNc_L^2} \frac{\pi^2}{W^3 \lambda (1 - e^{-\frac{W}{\lambda}})} \frac{q_x}{\left(\frac{1}{4\lambda^2} + k_y^2 - \alpha^2 q_x^2\right)^2 + \frac{\alpha^2 q_x^2}{\lambda^2}} \times (1 - 2\cos(\alpha q_x W) e^{-\frac{W}{2\lambda}} + e^{-\frac{W}{\lambda}}) \quad (130)$$

$$\frac{1}{\tau_k^{eb1}} = \frac{LW}{\pi\beta} \int_{k_0-k} dq_x |D_{1k1}^{eb}(q_x)|^2 G_1(q_x) \quad (131)$$

となる。

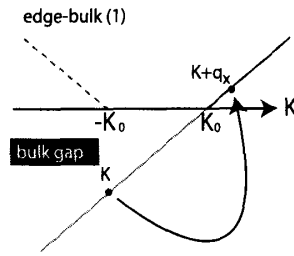


図 25: エッジからバルクへの散乱その1

エッジからバルクへの散乱その2 図26での非弾性散乱を考える。図の分散からエッジ状態  $k(< k_0)$  とバルク状態  $k + q_x$  はそれぞれ

$$\epsilon_{\mathbf{k}} = v_c(k - k_0) \quad (132)$$

$$\epsilon_{\mathbf{k}+\mathbf{q}} = -v_c(k + q_x + k_0) \quad (133)$$

$$(134)$$

( $q_x < -k_0 - k$ ) となるので、

$$f_1(\mathbf{q}) = \epsilon_{\mathbf{k}+\mathbf{q}} - \epsilon_{\mathbf{k}} - \omega_{\mathbf{q}} \quad (135)$$

$$= -2v_c k - v_c q_x - c_L q \quad (136)$$

とすると、 $f_1 = 0$  のとき

$$q = -(v_c/c_L)q_x - 2(v_c/c_L)k \quad (137)$$

$$\begin{aligned} q_y^2 &= \alpha^2 q_x^2 + 4\frac{v_c^2}{c_L^2} k q_x + 4\frac{v_c^2}{c_L^2} k^2 \\ &\equiv g_1^{eb2}(q_x) \end{aligned} \quad (138)$$

となる。また、

$$\left| \frac{\partial f_1(q_y^2 = g_1^{eb2}(q_x))}{\partial q_y} \right| = c_L \sqrt{\frac{g_1^{eb2}(q_x)}{q_x^2 + g_1^{eb2}(q_x)}} \quad (139)$$

である。更に

$$\begin{aligned}\delta(f_1)(1 - f_{\mathbf{k}+\mathbf{q}})n_{\mathbf{q}} &= \frac{\exp(\frac{-v_c(k+q_x+k_0)-\mu}{T})}{(\exp(\frac{-v_c(k+q_x+k_0)-\mu}{T}) + 1)} \frac{1}{(\exp(\frac{-v_c q_x - 2v_c k}{T}) - 1)} \\ &\equiv G_3(q_x)\end{aligned}\quad (140)$$

となる。よって緩和時間は

$$\frac{1}{\tau_k^{eb2}} = \frac{LW}{\pi c_L} \int^{-k_0-k} dq_x \sqrt{\frac{q_x^2 + g_1^{eb2}(q_x)}{g_1^{eb2}(q_x)}} |D_{1k2}^{eb}(q_x)|^2 G_3(q_x) \quad (141)$$

$$\begin{aligned}|D_{1k2}^{eb}(q_x)|^2 &= -\frac{v_c V_{ep}^2(\mathbf{q})}{MN c_L^2} \frac{\pi^2}{4W^3 \lambda (1 - e^{-\frac{W}{\lambda}})} \frac{q_x + 2k}{(\frac{1}{4\lambda^2} + k_y^2 - g_1^{eb2}(q_x))^2 + \frac{g_1^{eb2}(q_x)}{\lambda^2}} \\ &\times (1 - 2\cos(\sqrt{g_1^{eb2}(q_x)}W)e^{-\frac{W}{2\lambda}} + e^{-\frac{W}{\lambda}})\end{aligned}\quad (142)$$

となる。

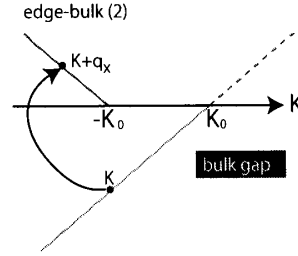


図 26: エッジからバルクへの散乱その 2

## 5.2 $\tau$ の見積もり

ここでは簡単な非弾性散乱長の見積もりの議論を行う。

- ポテンシャル  $V_{ep}(\mathbf{q}) \sim$  フェルミエネルギーとした定数近似にする。
- エッジ状態が支配的な場合を問題としているので、 $-k_B T < \epsilon_{\mathbf{k}} = \mu < 0$  とする。
- $\alpha \sim \frac{v_c}{c_L} \gg 1$ 。
- $\beta \sim c_L$ 。
- $e^{-\frac{W}{2\lambda}} \sim 0$ 。
- $\frac{T}{v_c} \lambda \ll 1$ 。
- $\gamma = \frac{\lambda T}{c_L} \sim 10^{-2} T \ll 1$  (低温)

という条件のもと計算を行った。

## edge-edge 散乱

$$\begin{aligned}
\frac{1}{\tau_{1k}^{ee}} &= \frac{LW}{\pi} \int \frac{dq_x}{c_L} G_1 |D_{1k}^{ee}(x)|^2 \\
&\sim \frac{V_{ep}^2 T^2}{2\pi \rho c_L^3 v_c} \int_0^{\frac{\mu}{T}} dx \frac{x \exp(x)}{(\exp(x) + 1) (\exp(x) - 1)} \\
&\sim \frac{V_{ep}^2 T^2}{2\pi \rho c_L^3 v_c} \left(1 - e^{-\frac{\mu}{T}}\right)
\end{aligned} \tag{143}$$

$$\begin{aligned}
\frac{1}{\tau_{2k}^{ee}} &\sim -\frac{V_{ep}^2 T^2}{2\pi \rho c_L^3 v_c} \int_{-\infty}^0 dx \frac{x}{(\exp(-x) - 1) (\exp(x) + 1)} \\
&\sim \frac{V_{ep}^2 T^2}{2\pi \rho c_L^3 v_c} \times \frac{\pi^2}{6}
\end{aligned} \tag{144}$$

ここで適当な金属のパラメータを

- $V_e \sim 10^{-19}[\text{J}]$ .
- $\rho_{3D} \sim 10^4 [\text{kg}/\text{m}^3] \rightarrow \rho \sim 10^{-6}[\text{kg}/\text{m}^2]$ .
- $T \sim 10^{-23}[\text{J}]$ .

とすると、

$$\begin{aligned}
\frac{V_{ep}^2 T^2}{2\pi \rho c_L^3 v_c} \times \frac{1}{\hbar^3} &\sim \frac{(10^{-19})^2 \cdot (10^{-23})^2}{10 \cdot 10^{-6} \cdot (10^3)^3 \cdot 10^6} \times \frac{1}{(10^{-34})^3} \\
&\sim 10^8 [\text{s}^{-1}]
\end{aligned} \tag{145}$$

が得られる。

## edge-bulk 散乱

$$\begin{aligned}
\frac{1}{\tau_k^{eb1}} &\sim \frac{4\pi V_{ep}^2 T^2}{\rho c_L^3 v_c} \left(\frac{\lambda}{W}\right)^3 \int_{-\frac{\epsilon_k}{T}}^{\frac{\lambda}{W}} dx \frac{x}{(\exp(x) - 1) (\exp(x) + 1)} \\
&\sim \frac{4\pi V_{ep}^2 T^2}{\rho c_L^3 v_c} \left(\frac{\lambda}{W}\right)^3
\end{aligned} \tag{146}$$

$$\begin{aligned}
\frac{1}{\tau_k^{eb2}} &\sim \frac{LW}{\pi c_L} \frac{4\pi^2 V_{ep}^2 T^2}{M N c_L^2 v_c} \left(\frac{\lambda}{W}\right)^3 \frac{\exp\left(x - \frac{\mu}{T}\right)}{(\exp\left(x - \frac{\mu}{T}\right) + 1) (\exp\left(x - \frac{\epsilon_k}{T}\right) - 1)} \\
&\sim \frac{4\pi V_{ep}^2 T^2}{\rho c_L^3 v_c} \left(\frac{\lambda}{W}\right)^3
\end{aligned} \tag{147}$$

先のパラメータより

$$\begin{aligned}
\frac{4\pi V_{ep}^2 T^2}{\rho c_L^3 v_c} \left(\frac{\lambda}{W}\right)^3 \times \frac{1}{\hbar^3} &\sim \frac{10 \cdot (10^{-19})^2 \cdot (10^{-23})^2}{10^{-6} \cdot (10^3)^3 \cdot 10^6} \times \frac{1}{(10^{-34})^3} \left(\frac{\lambda}{W}\right)^3 \\
&\sim 10^9 \times \left(\frac{\lambda}{W}\right)^3 [\text{s}^{-1}]
\end{aligned} \tag{148}$$

となる。エッジの局在が大きくなればこの散乱は抑えられる。侵入長が一原子幅程度  $\lambda \sim 1\text{\AA}$ 、幅  $W$  を  $10\text{nm}$  としたとき、

$$\frac{1}{\tau_k^{eb2}} \sim 10^3 \quad (149)$$

が得られる。

以上より、低温ではフェルミ速度  $v_c \sim 10^6\text{m/s}$  としたとき非弾性散乱長  $\ell_{\text{inel}}$  は

$$\ell_{\text{inel}} \sim 10^{-2}[\text{m}] \quad (150)$$

が得られる。

### 5.3 電子-電子散乱による緩和時間

電子間相互作用による緩和時間の計算はフォノンのそれに比べて複雑である。エッジ状態間における電子間散乱の緩和時間は1次元 Luttinger 流体の問題となり、相互作用は Luttinger 流体のパラメータに繰り込まれコヒーレンスを壊すことはない [18, 17]。一方エッジ状態とバルク状態間における非弾性散乱は重要な値になるが、定量的な見積もりが難しいため本論文では言及できなかった。しかし、この問題は本論文で扱ったモデルの正当性、つまりバルク状態とエッジ状態を分けて輸送を考えることが正しいかと言う問題にも関連してくる。また、QH 物質の実験において、ホール伝導率に関する実験では電子間散乱が無視できないとの報告もある [33]。このようにエッジ状態とバルク状態の電子間散乱については分かっていないことも多く、更に理論・実験による研究が必要である。

### 5.4 実験におけるエッジ状態の緩和時間

現在 QSH 物質に関するエッジ状態の緩和に関する実験結果はほとんどない。序論でも述べたように 2DQSH 物質は QH 物質とエッジ状態が似ており、非弾性散乱に関する状況は類似していると思われる。Machida らが行った実験 (図 27) [31] では非弾性散乱長は  $\ell_{\text{inel}} \sim T^{-1.5}$  であるとされ、1K では  $1\mu\text{m}$  程度であるとされる。

また、QSH 物質では、König らの行った実験では温度 1.8K、長さ  $1\mu\text{m}$  の試料においてエッジ状態の非局所伝導が確認されている [11]。よって非弾性散乱長はそれ以上の長さを持つと考えられる。

### 5.5 エッジ状態の交差消滅

非弾性散乱ではないが、2DQSH 物質において非磁性な場合でもリボン幅が小さい時にはエッジ状態が消滅してしまう。エッジ状態は互いに逆向きスピンの逆方向の速度で流れているので、図 28 のように狭い場所ではエッジ電流が消えてしまう [34]。しかし、エッジ状態の侵入長はビスマス薄膜などでは原子間幅程度 [35] であるとされるので、今回のようなナノメートルサイズ

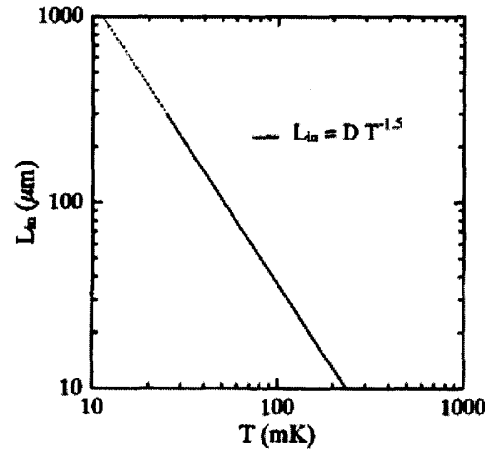


図 27: Machida らが行った量子ホール効果の非弾性散乱長のグラフ（文献 [31] より転載）である。

の 2DQSH を想定した場合はエッジ状態の消滅は考えなくても良いことになる。HgTe 量子井戸系の侵入長さは 6nm 程度 [35] であり、リボンの幅はこれよりある程度広い必要がある。

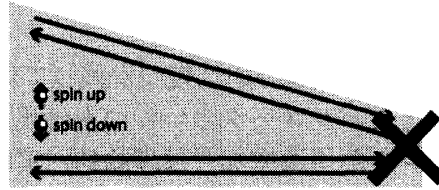


図 28: 2DQSH 物質のエッジ状態が狭い領域では消滅してしまうことを示している。

## 6 まとめと結論

本論文では 2 次元量子スピンホール系の物質に対しての熱電輸送特性を計算し、エッジ状態とバルク状態がどのように輸送に寄与するのかを解析した。エッジ状態は完全透過電流であり、Landauer-Büttiker の公式を用いた。またバルク状態は Boltzmann 方程式を用いて緩和時間一定近似の下輸送係数の計算を行った。エッジ状態のみを考慮した場合の性能指数  $ZT$  は二次関数的に増加し、かなり大きな値をとることを示した。

一般にエッジ状態はバルク状態に比べ状態数が少なく、輸送への寄与は小さい。しかし、系をナノメートルサイズの断面積を持つリボン状にすることで、エッジ状態による輸送が全体の輸送に対して大きくなり、バルクの輸送と同程度かそれ以上の寄与を輸送現象に及ぼすことが分かった。エッジ輸送とバルク輸送が互いに共存する場合は、エッジ状態とバルク状態とはキャリアが逆向きの符号を持っているので、輸送行列の非対角要素は競合し合う。その結果 Seebeck 係数もエッジ、バルク輸送において競合しあうため、それぞれ単独の場合よりも  $ZT$  が減少してしまうことが分かった。その結果、温度を低下させていくことで 2DQSH 系におい

てバルク輸送からエッジ輸送へのクロスオーバーが起こることを示した。クロスオーバー領域においては、電流と熱流が互いに独立し、Seebeck 効果が抑えられる。

次に、より一般的な状況での  $ZT$  の振る舞いを調べるため、物質パラメータと系の形状に依存する無次元指数  $r$ 、 $g$  を導入し、エッジ状態とバルク状態が共存する系での化学ポテンシャルを変化させた場合の  $ZT$  の最大値の計算を行った。また、 $r \sim 2.3$  の場合、バンドエッジ付近に化学ポテンシャルが存在する場合はエッジ輸送とバルク輸送が同程度となり、これらの間の競合のため Seebeck 係数が小さいことを示した。また、エッジ状態が支配的な場合は  $ZT$  を大きくできる（2 以上）ことが分かった。エッジ状態が輸送状況においてバルクよりも優位になるには、 $r$  を大きくすれば良い。即ち (i) エッジ状態の非弾性散乱長が長い、(ii) 低温、(iii) 小さいバルク移動度、が条件であることがわかった。特に非弾性散乱長が長いことは重要であり、これを長くすることができれば  $ZT$  は大幅に向上する。非弾性散乱長を控えめにしてみ積もると、 $\text{Bi}_2\text{Te}_3$  リボンにおいては、ほぼ 5~10K 程度でバルク輸送からエッジ輸送へのクロスオーバーが起こり、温度低下と共にこのクロスオーバー温度で  $ZT$  は減少から増加に転じる。

エッジの非弾性散乱については現状、実験・理論においてほとんど研究されていない。本論文ではフォノンによる低温での非弾性散乱について見積もった。見積もりに必要な散乱過程は電子のエッジ状態間遷移とエッジ状態からバルク状態への遷移であった。エッジ状態からバルク状態への遷移への緩和時間は、エッジ状態の侵入長とリボンの幅に依存することが分かった。結果は実験の値よりもずっと大きい値となった。電子間散乱の定量的な評価にはこれは実験では電子間散乱による非弾性散乱が優勢であることを示唆している。実験・理論両面での研究が今後必要であろう。

本論文で行った研究に対して、将来的な課題は幾つか残っている。第 3 章で行った  $\text{Bi}_2\text{Te}_3$  の輸送特性の計算の場合に割り当てたパラメータのいくつかは現状良く分かっていない。系を細線にした場合の移動度とフォノンの熱伝導率などは理論的、実験的にも研究の余地は残っていると考えられる。また、計算で用いた緩和時間一定近似がどこまで輸送現象を正しく記述しているかも問題として残っている。しかし緩和定数、その他の定数がある程度簡単であれば、計算結果と物理的考察が行いやすいという利点があるため、本論文ではその近似を用いた。

第 4 章でも記したように 3 次元の QSH 物質の場合は、完全後方散乱は禁止されるものの、非磁性不純物によって弾性散乱はされるので完全透過ではない。しかし表面状態のスピン分裂により後方散乱はある程度抑制され、伝導性の良い表面状態が期待できる。実験的な関連で言うと、Hor らが 3 次元 QSH 物質で低温における異常な Seebeck 係数の増大を観測している [36]。これが本研究とどのような関連があるかは詳しくは分からないが、QSH 物質においても熱電効果の実験はなされており、本論文の理論と今後の実験データと比較していくことができると考えられる。

## 謝辞

修士二年間ご指導してくださった村上修一先生に厚くお礼を申し上げます。また、私との議論に応じてくれた松本君、和田君にも感謝いたします。私の所属した研究室、また関係者全ての方の前途に幸があることを願っています。

## 参考文献

- [1] Ryuji Takahashi and Shuichi Murakami, Phys. Rev. B **81**, 161302(R),(2010).
- [2] S. Murakami, N. Nagaosa and S. S.-C. Zhang, Science **301**, 1348 (2006).
- [3] J. Sinova *et al.*, Phys. Rev. Lett. **92**, 126603 (2004).
- [4] M. I. Dyakanov, V. I. Perel, *JETP Lett.* **13**, 467 (1971).
- [5] M. I. Dyakanov, V. I. Perel, *Phys. Lett., A* **35**, 459 (1971).
- [6] Y. K. Kato,*et al.*, Science, **306**, 1910 (2004).
- [7] J. Wunderlich *et al.*, Phys. Rev. Lett. **94**, 047204 (2005).
- [8] C. L. Kane and E. J. Mele, Phys. Rev. Lett. **95**, 146802 (2005);
- [9] C. L. Kane and E. J. Mele, Phys. Rev. Lett. **95**, 226801 (2005).
- [10] B. A. Bernevig and S.-C. Zhang, Phys. Rev. Lett. **96**, 106802 (2006).
- [11] M. König *et al.*, Science, **318** 766, (2007).
- [12] D. Hsieh *et al.*, Nature **452**, 970, (2008).
- [13] H. J. Goldsmid “*Thermoelectric Refrigeration*” (Plenum, New York, 1964).
- [14] L. D. Hicks and M. S. Dresselhaus, Phys. Rev. B **47**, 12727 (1993).
- [15] L. D. Hicks and M. S. Dresselhaus, Phys. Rev. B **47**, 16631 (1993).
- [16] G. D. Mahan, J. O. Sofo, Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A. **93**, 7436 (1996).
- [17] C. Xu and J. E. Moore, Phys. Rev. B **73**, 045322 (2006).
- [18] C. Wu, B. A. Bernevig and S.-C. Zhang, Phys. Rev. Lett. **96**, 106401 (2006).
- [19] B. A. Bernevig and S.-C. Zhang, Science **314**, 1757 (2006).
- [20] L. Fu, C. L. Kane, E. J. Mele, Phys. Rev. Lett. **98**, 106803 (2007).
- [21] Y. Xia *et al.*, Nature Phys., **5** 398, (2009).
- [22] Y. L. Chen *et al.*, arXiv: 0904.1829.
- [23] L. Fu, C. L. Kane, E. J. Mele, Phys. Rev. B **76**, 045302 (2007).
- [24] G.A. Slack, in “*CRC Handbook of Thermoelectrics*” (Ed. D.M. Rowe) pp. 407-440, (CRC Press, Boca Raton, 1995).
- [25] A. Boukai *et al.*, Nature, **451** 06458, (2008).

- [26] L. Weber, *et al.*, Appl. Phys. A**53** 136 (1991).
- [27] U. Sivan and Y. Imry, Phys. Rev. B **33**, 551 (1985).
- [28] C. H. Champness,, Kipling, A. L., Can. J. Phys., **44**, 769 (1966).
- [29] D. K. C. MacDonald *et al.*, Philos. Mag. **4** 443 (1959).
- [30] J. Zou, A. Balandin, J. Appl. Phys. **89**, 2932 (2000).
- [31] T. Machida *et al.*, Phys. Rev. B **54**, 16860 (1996).
- [32] Gerald D. Mahan “*Many-Particle Physics 3rd ed.*” (Springer, 2000).
- [33] E. Chow and H. P. Wei, Phys. Rev. B **52**, 13749 (1995).
- [34] B. Zhou *et al.*, Phys. Rev. Lett., **101**, 246807 (2008).
- [35] M. Wada, S. Murakami, F. Freinuth, G. Bihlmayer, preprint.
- [36] Y. S. Hor *et al.*, Phys. Rev. B **79**,195208 (2009).