

## 金単原子接合における熱電能の揺らぎ

(東工大院・理工) ○松下 龍二, 金子 哲, 木口 学

### Thermopower fluctuation in single Au atomic contact

(Tokyo Institute of Technology) ○Ryuji Matsushita, Satoshi Kaneko, Manabu Kiguchi

#### 【はじめに】

低次元系物質はその特有の電子構造により巨大熱起電力の発現などが期待できるので、効率的な熱電材料の候補の一つとして期待されている。特に金属単原子接合は究極サイズの低次元系としてその熱電特性が注目を集めている。熱電材料の性能は無次元性能指数  $ZT = \sigma S^2 T / \kappa$  ( $T$ : 温度,  $\sigma$ : 電気伝導率,  $\kappa$ : 熱伝導率,  $S$ : 熱電能) により表現される。中でも熱電能  $S$  は単位温度差によって生じる起電力を表し、熱電材料の発電性能に関する重要な指標の一つである。そのため、これまで金をはじめとした金属単原子接合の熱電能計測が行われ、単原子接合はバルクの場合と比べて熱起電力値の揺らぎが大きくなるという特徴を持つ事が明らかとなった[1]。一方で、 $S$  の値が温度に依存するにもかかわらず、温度変化に対する単原子接合における熱電能の挙動を調べた研究はあまりない。 $ZT$  の最適化のためにも単原子接合における熱電能の温度依存性を明らかにすることが望まれる。そこで本研究は、金単原子接合の室温付近における熱電能の温度に対する挙動を、その揺らぎに着目して明らかにすることを目的とした。

#### 【実験】

実験は大気中で、MCBJ (Mechanically Controllable Break Junction) 法を利用して行った。切れ込みを入れた金線を、断熱・絶縁処理した弾性基板上に固定し、3点曲げにより金線を機械的に破断することで金ナノ接合を作製した。そのうえで金ナノ接合を自己破断させることにより金単原子接合を作製した[1, 2]。切れ込みの両側に取り付けた白金薄膜製ヒーター、白金薄膜抵抗測温体を用いて接合の両側の温度を室温付近で制御した。破断過程における電気伝導度・熱起電力の時間変化を同時計測した。

#### 【結果と考察】

図1に接合の電気伝導度  $G$  ( $G_0 = 2e^2/h \approx 13 \text{ k}\Omega$ ) に対する熱起電力  $V_{TE}$  の分布を示す。熱起電力の値が  $0 \text{ V}$  付近を中心に両側の極性に分布するという金ナノ接合特有の熱起電力分布が観測された[1]。電気伝導度をもとに単原子接合に関する熱起電力を抽出し、標準偏差から熱起電力の分布幅を見積もったところ、熱起電力の標準偏差  $\sigma V_{TE}$  は温度差  $\Delta T$  に比例した(図2(a))。この比例関係は熱電能の揺らぎという観点で次のように説明することができる。熱電能  $S$  は透過率関数  $\tau(E)$  を用いて式(1)のように表現できるため、透過率関数  $\tau(E)$  の形状に依存する。

$$S = -\frac{\pi^2 k_B^2 T}{3e} \frac{d \ln \tau(E)}{dE} \Big|_{E=E_F} \quad (1)$$

( $k_B$ : ボルツマン定数,  $T$ : 温度,  $e$ : 電気素量,  $\tau(E)$ : 透過率関数,  $E_F$ : フェルミエネルギー)。 $\tau(E)$ は接合構造に依存するため、欠陥等の影響により熱電能  $S$  は種々の値を取りうる[3]。個々の単原子接合で発生する熱起電力は  $V_{TE}=S\Delta T$  と表現できるため、 $\sigma V_{TE}$  と  $\Delta T$  の比例関係は個々の接合における熱起電力  $V_{TE}$  の  $\Delta T$  依存性を反映したものであり、測定温度範囲で熱電能  $S$  の揺らぎが一定であることを示唆している。

次に、更に広い温度範囲について単原子接合の熱電能の温度依存性を計測したところ、熱電能の平均値は温度に依存せず  $0 \text{ V/K}$  近傍の値を示したが、標準偏差  $\sigma S$  は  $320\text{K}$  付近より高温の領域で減少した (図 2(b))。加熱による熱電能の標準偏差の減少は、温度上昇に伴い欠陥濃度が減少した事に由来すると考えられる。単原子接合付近の欠陥は電子散乱源として働き、透過率曲線に大きな影響を与えるため、欠陥濃度が大きいほど熱電能の揺らぎが大きくなると考えられる。金の低次元ナノ構造体はバルク状態に比べ融点が極端に減少することが知られており、単原子接合付近の構造では  $320 \text{ K}$  付近でも融解による構造変化が起こりうると考えられる[4]。したがって単原子接合付近において、構造変化が引き起こされることで欠陥濃度が減少し結晶性が増加することにより熱起電力の揺らぎが小さくなったと考えられる。

以上より温度変化による構造変化に由来する金単原子接合の熱電能の揺らぎの変化を観測することに成功した。

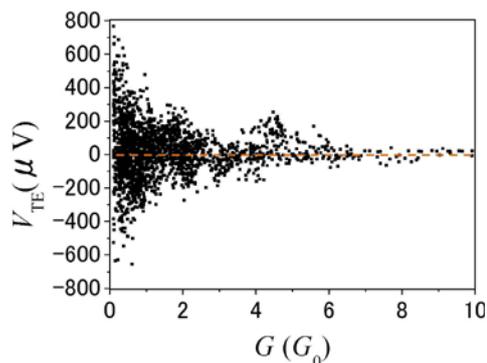


図 1: 金ナノ接合の電気伝導度と熱起電力の相関図 (高温側温度:  $315 \text{ K}$ 、低温側温度:  $301 \text{ K}$ )。破線は  $0 \text{ V}$  の位置を示す。

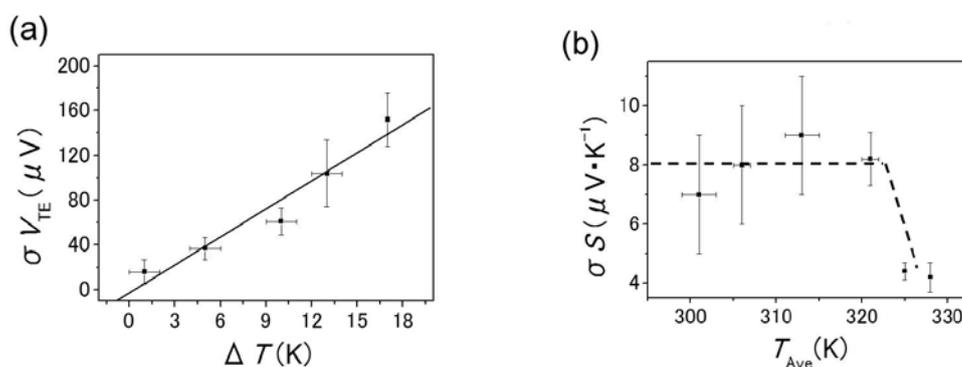


図 2: (a) 熱起電力標準偏差の温度差依存性。直線は線形フィッティング結果 (平均温度  $T_{Ave} : \leq 312 \text{ K}$ )、(b) 熱電能標準偏差の温度依存性。破線はアイガイド。(a), (b) 共に、対象電気伝導度範囲は  $0.7 \sim 1.3 G_0$ 。

#### 【参考文献】

- [1] B. Ludoph and J. M. van Ruitenbeek, *PRB*, **59**, 12290 (1999).
- [2] R. Matsushita, *et. al.*, *PRB*, **84**, 245412 (2011).
- [3] C. Untiedt, *et. al.*, *PRB*, **62**, 9962 (2000).
- [4] T. Castro and R. Reifenberger, *PRB*, **42**, 8548 (1990).