

令和 6 年 9 月 11 日現在

機関番号：33924

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2021～2023

課題番号：21H01628

研究課題名(和文) バンド端近傍に形成する不純物準位を利用した高性能熱電材料の創製

研究課題名(英文) Development of high-performance thermoelectric materials using impurity states formed near the band edge

研究代表者

竹内 恒博 (Takeuchi, Tsunehiro)

豊田工業大学・工学(系)研究科(研究院)・教授

研究者番号：00293655

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,900,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、高性能熱電材料の開発手法を提案し、提案する手法の有効性を証明する研究を行った。

Si-Ge系材料では、Fe3d不純物準位を利用して、 $ZT > 3$ を示す材料の開発に成功した。また、 $Ag_2(S1-xSex)$ 系熱電半導体に、V3d不純物準位を導入することで、室温付近でのZTの値を50%以上向上させた。本手法を用いる条件として母相が強散乱極限に達している必要があることも明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

熱電材料を開発するためにはゼーベック係数、電気伝導度、熱伝導度を同時に最適化する必要があるが、これらの物性は相関しているために、建設的に材料設計することが難しいと言われてきた。本研究では、ゼーベック係数、電気伝導度、および電子熱伝導度を同時に最適化する方法を提案し、それを証明した。さらに、格子熱伝導度を同時に低減する手法の提案と証明も行っており、新しい考え方を提示している点において学術的価値が高い。結果として得られる材料は、実用化材料の性能を上回っていることから、工学的に意義が高いと判断される。さらに、結果として得られる素子は、省エネルギー社会の構築に資するため、社会的な意義も有している。

研究成果の概要(英文)：By employing impurity states near the band edge of thermoelectric semiconductors, we tried to improve their thermoelectric performance. This concept allows us to simultaneously obtain a large magnitude of Seebeck coefficient and rather small electrical resistivity.

Fe 3d impurity states are introduced in the conduction band of Si-Ge alloys. With the help of nano-structuring leading to a reduction in lattice thermal conductivity, the observed ZT exceeded 3. This strategy also applied to $Ag_2S1-xSex$, that is characterized by extremely small lattice thermal conductivity due to anharmonic lattice vibrations. The intentionally introduced V 3d states near the bottom of conduction band led to a significant increase of Seebeck coefficient with keeping its electrical resistivity unchanged.

We revealed that this strategy works only when the electrons stays in the strongest scattering limit, and also the potential of the proposed strategy in developing high-performance thermoelectric materials.

研究分野：金属電子論，半導体電子論，熱電物性

キーワード：熱電材料 ゼーベック係数 電気伝導度 熱伝導度 出力因子 熱電無次元性能指数 スペクトル伝導度 不純物準位

1. 研究開始当初の背景

化石燃料枯渇、その燃焼に伴う地球温暖化ガス排出、東日本大震災に端を発する原発停止と電気料金の高騰などの深刻な問題を大きく緩和する技術として、未利用熱や廃熱から電力を生み出す熱電発電が注目されている。残念なことに、相関する3つの物性（ゼーベック係数、熱伝導度、電気伝導度）を最適化することで性能を向上する困難さと、100年以上に亘り続けられてきた材料開発研究で蔓延してしまった『正しくない常識（主に放物線バンド近似を用いた半導体電子論の利用）』により、革新的な材料開発が難しくなっている。

量子力学や量子統計を基礎にして1930年代までに確立した自由電子論や金属電子論が熱電材料に応用されるようになったのは1940～1950年代である。上記の理論は、半導体において大きなゼーベック係数と金属的な電気伝導が両立することを教えてくれる。同時期には、エレクトロニクスを牽引する希少キャリア半導体が盛んに研究されるようになり、しかも、その発展による社会変革は目覚ましいものであった。また、希少キャリア半導体の電気伝導が半導体理論として系統的にまとめられていった。このような状況下において、半導体理論を用いて熱電材料の物性をキャリア濃度、移動度、有効質量などをパラメータとして議論する傾向が高まっていった。

希少キャリア半導体では、バンド端付近の電子構造が用いられるため、放物線バンド近似は良い近似であり、キャリア濃度、移動度、有効質量を用いた材料改質は概ね正しい。しかし、使われる際の温度領域が高く、かつ、構造の複雑な縮退半導体を用いる熱電材料では、放物線近似が妥当ではない複数のバンドが伝導に寄与する場合がほとんどであるため、キャリア濃度、移動度、有効質量を用いた解析では定性的な解釈の枠組みをでることができない。結果として、1950年頃に発見された Bi_2Te_3 系材料のみが、現在においても、なお、主要な実用化熱電材料として広く認知され続けている。

物性物理の観点から言及すれば、電子構造や電子散乱、あるいは、電子の量子状態に関する定量的な情報があれば、Boltzmann 輸送方程式や久保公式で知られる線形応答理論を用いて電子輸送現象を定量的に解析・予測することが可能である。一方で、物性物理学で培われてきたこのような知識が、実用的熱電材料の開発に十分に利用されているとは言い難い。また、上記の問題が主因となる材料開発の遅れにより、産業界から要請される性能（無次元性能指数 $ZT > 4$ ）に対して、実用材料の性能が低く抑えられている ($ZT \sim 1.0$)。

2. 研究の目的

本研究の具体的な目的は、『強散乱極限に達している縮退半導体のバンド端近傍に不純物準位を形成することで著しく小さな熱伝導度と大きな出力因子を共存させる手法を確立する』ことである。この条件は、上述した電子構造・電子散乱・フォノン散乱をデザインすることに相当する。この手法により、世界最高性能の（多結晶状態で $ZT > 4.0$ を示す）バルク熱電材料を創製することを目的とした。

3. 研究の方法

研究代表者らは、基礎研究として様々な材料で開発される異常物性を解明する研究を行ってきた経緯があり、その結果として、熱電物性の制御指針を構築するに至った。さらに、それらを活用する目的で、熱電材料を高性能化するために必要となる電子構造やフォノン分散に関する必要条件を、多くの研究者や技術者ができるだけ容易に理解できる簡単な表現で提示してきた。さらに、その必要条件を満たす材料を生み出すために2種類の戦略を考案し、実際にそれらを用いて材料開発を行ってきた。『戦略1』電子構造計算を駆使して、化学ポテンシャル（半導体分野ではフェルミレベルと呼ばれることが多い）近傍の電子構造が条件を満たす材料を選定し、その電子構造に影響を与えないような重い不純物元素を少量導入することで、低エネルギーに不純物の局所振動モードを形成させる方法』では、複数の材料においても性能を10倍程度に高めることに成功したものの、格子熱伝導度を著しく小さくすることが難しく、残念ながら、 ZT は1を大きく超えることがなかった。そこで、この問題を解決する方法として、『戦略2』格子熱伝導度が著しく小さい半導体材料に着目し、不純物準位を利用することで電子構造を建設的に変化させる手法』を考案した。通常は、不純物準位は、準位密度が大きくても局所的であるために伝導への寄与は小さくなく、伝導電子の電気伝導への寄与に於けるエネルギー依存性を大きく変化させることは難しいと考えられている。しかし、非調和格子振動が著しく顕著である材料や不規則性を含むナノ結晶材料では、不純物準位以外の電子も強散乱極限に陥るため、伝導電子の電気伝導への寄与におけるエネルギー依存性を能動的に変調できるようになる。本研究は、この戦略2に基づく研究の延長線上に位置づけられる。

なお、この考え方は、一般的に良い熱電材料の条件とされてきた Electron Crystal & Phonon Glass（電子にとっては規則的で、フォノンにとっては乱れている）という考え方とは明確に異なり、Electron Glass & Phonon Glass with Impurity States near the Band Edge（電子とフォノンの双方にとって乱れている条件下でバンド端に不純物準位を有する）と表現できる。つまり、常識を覆す独創的なアイデアを基に計画した。

上記の手法で材料開発を行い、その有効性を確かめるために、高品質な試料作製、高精度の物性測定、精密構造観察、電子構造計算、電子構造解析、フォノン計算、フォノン解析などの全てを用いた。

4. 研究成果

2019年に我々は、*n*型 Si-Ge 系熱電材料においてバルク材料として最大の $ZT \sim 3.7$ が得られることを報告した[1]。Si-Ge の一部を Fe で置換することで、電子構造を建設的に変調させ、フェルミ準位近傍の狭い範囲に状態密度のピークを形成することで、低い電気抵抗率を保ちつつゼーベック係数を大きくしたと主張している。さらに、格子熱伝導度 κ_{lat} を小さくするために、高エネルギー遊星型ボールミルと低温・高圧焼結技術を併用することで、試料をナノ結晶からなるバルク材料(ナノバルク材料)にしている。ナノバルク材料では、フォノンの平均自由行程が短くなり、格子熱伝導度を低くすることが可能である[2]。しかし、作製プロセス中に試料が酸化しやすく、 ZT 値の再現性が得られにくいことが問題であった。そこで、本研究では酸化を抑制可能な Si-Ge 系ナノバルク試料の作製方法を確立することで、再現性の確認に苦しんでいた値を再現するとともに、試料組成や試料作製条件の精密化も行き、 $ZT > 3.7$ を示す Si-Ge 系熱電材料を開発することを目指した。

不純物順位を与える元素として Fe を 1 at.% 含有し、メカニカルアロイングによりナノ粒子化した $(\text{Si}_{55}\text{Ge}_{35}\text{P}_{10})_{99}\text{Fe}_1$ に対して、575°C、350 MPa の低温高圧条件で焼結したところ、平均結晶粒径は 9.0 nm のナノバルク試料の作製に成功した。なお、ナノ粒子の焼結の際に試料の酸化が問題になることから、Ti 粉末で試料を挟み込み酸素ゲッターとして利用した。その結果、Ti 粉末を用いずに作製した試料と比較して残留酸素濃度を 1/2 以下に低減させることに成功した。この結果は、比抵抗の低減に寄与している。

作製した試料のゼーベック係数の絶対値は、以前の試料と同様に、廣井温度領域に亘り $400 \mu\text{VK}^{-1}$ 以上を維持していた。一方で、低残留酸素化により比抵抗は明らかに低下し、最も ZT が高くなる高温域において数 $\text{m}\Omega\text{cm}$ 程度に抑えられていた。また、ナノ構造化により、熱伝導度は $1 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ を下回った。測定したこれらの物性値から ZT を計算したところ、922 K で $ZT = 5$ が得られることがわかった。[3] 再現性の確認は必要ではあるが、この値はバルク熱電材料として世界最高値であり、目的とした高性能 Si-Ge 系バルク熱電材料の作製に成功したと言える。

Ag_2S の低温相は規則構造を持つ無機化合物でありながら延性があり、柔軟性もあることが報告されている。更に、電子物性制御に適した半導体電子構造を持ち、かつ格子熱伝導度が $0.5 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ 以下と低いため、優れた熱電性能を持つ材料の実現が期待できる。本研究では、373 K 以下で柔軟かつ高性能な Ag_2S ベースの熱電材料を開発することを目的とした。

Ag の部分的な元素置換による化学ポテンシャル近傍の電子構造の制御により、 $\text{Ag}_2\text{S}_{0.55}\text{Se}_{0.45}$ の ZT の向上を試みた。DFT 計算により、部分的な V 置換が化学ポテンシャル付近の電子構造を変化させ、熱電物性を変化させることを予測した。実験で検証した結果、V を 1 at.% 置換した材料では柔軟性を保ちながら ZT を 350 K で置換前から 2 倍程度増加させることに成功した。最大 ZT は 350 K で得られた 0.71 であり、この値は柔軟な熱電材料に対して報告された ZT の中で最大値に近い値であった。[4]

不純物順位を利用してスペクトル伝導度に変化をもたらすためには、不純物順位の寄与を母相のバンドの寄与と同程度にする必要がある。不純物順位が局在的であることを考慮すると、母相もまた局在的、あるいは、強散乱極限状態である必要が示唆される。今回、性能の著しい向上に成功した材料系は、いずれも、強散乱極限状態にあったことから、不純物順位を利用する際の条件として強散乱極限状態か局在状態が必要であることを裏付けている。 Ag_2S 系材料の性能は、著しく高いと言えないが、Si-Ge 系材料に関しては、比較的安価で無害であることに加え、広い温度領域で $ZT > 1$ を示しつつ、最大値が $ZT = 5$ にも達していることから、量産する技術が開発できれば、広く社会実装され得る材料である。

[1] S.Ghodke *et al.*, arxiv.org/abs/1909.12476 (2019).

[2] O.Muthusamy *et al.*, *J Electron. Mater.* **47**, 3260-3266 (2018).

[3] R. Ishihara *et al.*, in preparation.

[4] K. Sato *et al.*, *AIP Advances* **13**, 125206 (2023).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計14件（うち査読付論文 14件 / うち国際共著 11件 / うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 Saurabh Singh, Keisuke Hirata, Sudhir K Pandey, Tsunehiro Takeuchi	4. 巻 1
2. 論文標題 Recent Advances in Energy Harvesting from Waste Heat Using Emergent Thermoelectric Materials	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Emerging Materials: Design, Characterization and Applications	6. 最初と最後の頁 155-184
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1007/978-981-19-1312-9_5	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 K. Sato, K. Hirata, S. Singh, K. Kuga, F. Ogawa, M. Matsunami, T. Takeuchi	4. 巻 102
2. 論文標題 Electronic structure of silver chalcogenides investigated by hard x-ray photoemission spectroscopy and density functional theory calculations	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 45104
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0095987	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 Seongho Choi, Kazuya Kubo, Naoki Uchiyama, Tsunehiro Takeuchi	4. 巻 921
2. 論文標題 Thermoelectric properties of higher manganese silicide consolidated by flash spark plasma sintering technique	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of Alloys and Compounds	6. 最初と最後の頁 166104
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jallcom.2022.166104	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Keisuke Hirata, Kentaro Kuga, Masaharu Matsunami, Minyue Zhu, Joseph P Heremans, Tsunehiro Takeuchi	4. 巻 13
2. 論文標題 Magneto-thermal conductivity effect and enhanced thermoelectric figure of merit in Ag ₂ Te	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 AIP Advances	6. 最初と最後の頁 15016
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0131326	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Shunya Sugimoto, Gareoung Kim, Tsunehiro Takeuchi, Miho Tagawa, Toru Ujihara, Shunta Harada	4. 巻 934
2. 論文標題 Thermal conduction in titanium-chromium oxide natural superlattices with an ordered arrangement of nearly pristine interfaces	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Journal of Alloys and Compounds	6. 最初と最後の頁 167915
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jallcom.2022.167915	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Giovanna Latronico, Paolo Mele, Chihiro Sekine, Pan Sian Wei, Saurabh Singh, Tsunehiro Takeuchi, Cedric Bourgs, Takahiro Baba, Takao Mori, Pietro Manfrinetti, Cristina Artini	4. 巻 2023
2. 論文標題 Effect of the annealing treatment on structural and transport properties of thermoelectric Sm _y (Fe _x Ni _{1-x}) ₄ Sb ₁₂ thin films	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Nanotechnology	6. 最初と最後の頁 115705
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1361-6528/aca980	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Keisuke Hirata, Saurabh Singh, Tsunehiro Takeuchi	4. 巻 13
2. 論文標題 Significantly reduced lattice thermal conductivity with anharmonic lattice vibrations and band edge effect in electronic thermal conductivity in Ag ₂ S _{1-x} Se _x (x=0 - 0.6)	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 AIP Advances	6. 最初と最後の頁 35122
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0142241	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Kyohei Kakuyama, Kotaro Hirose, Masahiro Adachi, Tsunehiro Takeuchi, Masafumi Kimata	4. 巻 13
2. 論文標題 Nanostructured Si-Ge thermoelectric material for 1200 V/W highly sensitive infrared thermopile sensor device	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 AIP Advances	6. 最初と最後の頁 35128
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0144938	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Omprakash Muthusamy, Saurabh Singh, Keisuke Hirata, Kentaro Kuga, Santhana Krishnan Harish, Masaru Shimomura, Masahiro Adachi, Yoshiyuki Yamamoto, Masaharu Matsunami, and Tsunehiro Takeuchi	4. 巻 3
2. 論文標題 Synergetic Enhancement of the Power Factor and Suppression of Lattice Thermal Conductivity via Electronic Structure Modification and Nanostructuring on a Ni- and B Codoped p Type Si - Ge Alloy for Thermoelectric Application	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 ACS Applied Electronic Materials	6. 最初と最後の頁 5621-5631
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsaem.1c01075	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Yadav Kavita, Singh Saurabh, Muthuswamy Omprakash, Takeuchi Tsunehiro, Mukherjee K.	4. 巻 102
2. 論文標題 Anomalous dependence of thermoelectric parameters on carrier concentration and electronic structure in Mn-substituted Fe ₂ CrAl Heusler alloy	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Philosophical Magazine	6. 最初と最後の頁 357 ~ 374
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1080/14786435.2021.1994161	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Yadav Kavita, Singh Saurabh, Muthuswamy Omprakash, Takeuchi Tsunehiro, Mukherjee K	4. 巻 34
2. 論文標題 Unravelling the phonon scattering mechanism in half-Heusler alloys ZrCo _{1-x} Ir _x Sb (x = 0, 0.1 and 0.25)	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Physics: Condensed Matter	6. 最初と最後の頁 35702
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1361-648X/ac30b5	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Lai Huajun, Peng Ying, Gao Jie, Song Haili, Kurosawa Masashi, Nakatsuka Osamu, Takeuchi Tsunehiro, Miao Lei	4. 巻 119
2. 論文標題 Reinforcement of power factor in N-type multiphase thin film of Si _{1-x-y} GexSny by mitigating the opposing behavior of Seebeck coefficient and electrical conductivity	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Applied Physics Letters	6. 最初と最後の頁 113903
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0062339	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Saurabh Singh, Shubham Singh, Bhuvanesh Srinivasan, Ashish Kumar, Nitinkumar Bijewar, Takao Mori, Tsunehiro Takeuchi, Jean francois Halet	4. 巻 649
2. 論文標題 First Principles Study on Electronic and Thermal Transport Properties of FeRuTiX Quaternary Heusler Compounds (X= Si, Ge, Sn)	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Zeitschrift fur anorganische und allgemeine Chemie	6. 最初と最後の頁 e202300080
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/zaac.202300080	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する

1. 著者名 Kosuke Sato, Saurabh Singh, Itsuki Yamazaki, Keisuke Hirata, Artoni Kevin R Ang, Masaharu Matsunami, Tsunehiro Takeuchi	4. 巻 13
2. 論文標題 Improvement of thermoelectric performance of flexible compound Ag ₂ S _{0.55} Se _{0.45} by means of partial V-substitution for Ag	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 AIP Advances	6. 最初と最後の頁 125206
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0171888	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する

[学会発表] 計37件 (うち招待講演 10件 / うち国際学会 15件)

1. 発表者名 Keisuke Hirata, Tsunehiro Takeuchi
2. 発表標題 The control of unusual electronic and lattice thermal conductivity of silver chalcogenides
3. 学会等名 The 11th Colloquium on Thermoelectric Project (online)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Anoop Divakaran, Tsunehiro Takeuchi
2. 発表標題 Special techniques for precisely estimating the power generation in Ag ₂ S simultaneously possessing large Seebeck coefficient and moderately small electrical resistivity
3. 学会等名 Virtual Conference on Thermoelectrics (VCT2022) (Online) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Kosuke Sato, Tsunehiro Takeuchi
2. 発表標題 An extraordinary thermoelectric figure of merit observed in Ag ₂ S with a spatially separate composite effect
3. 学会等名 Virtual Conference on Thermoelectrics (VCT2022) (Online) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 A. Hara, S. Choi, K. Hirata, K. Sato, M. Matsunami and T. Takeuchi
2. 発表標題 Development of high-performance CrSi ₂ thermoelectric materials by means of high-energy-ballmilling and low-temperature-high-pressure sintering
3. 学会等名 The 6th Asia-Pacific Conference on Semiconducting Silicides and Related Materials, 2022 (APAC-Silicide 2022) (Online) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Anoop Mampazhasseri Divakaran, Gareoung Kim, Koki Murase, Masaharu Matsunami, Tsunehiro Takeuchi
2. 発表標題 Role of contact pad on the local heating during thermoelectric power measurements of Silver Chalcogenide subjected to unusual heating
3. 学会等名 第83回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 佐藤紅介, 平田圭佑, シンサウラブ, 松波雅治, 竹内恒博
2. 発表標題 延性を有する化合物半導体Ag ₂ -xCu _x S _{0.7} Te _{0.3} の熱電物性
3. 学会等名 第83回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 正岡伊織, Omprakash Muthusamy, 松波雅治, 加藤 慎也, 竹内恒博
2. 発表標題 p型熱電材料 Si65-xGe35Al3Vxの組成依存性
3. 学会等名 日本金属学会 2022年秋期 第171回講演大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 山崎樹, Artoni Kevin R. Ang, 平田圭祐, 松波雅治, 竹内恒博
2. 発表標題 カルコゲナイド系材料を用いた積層型熱電発電素子の開発
3. 学会等名 第19回日本熱電学会学術講演会 (TSJ2022)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 竹内恒博
2. 発表標題 革新的熱利用材料・素子の開発～熱ダイオード, 熱流スイッチング素子, 熱電発電素子～
3. 学会等名 第83回応用物理学会秋季学術講演会 (招待講演)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 武藤正憲, 平田圭祐, 竹内恒博, 松波雅治
2. 発表標題 Ag4.53Te3における低熱伝導度の起源解明
3. 学会等名 第83回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Tsunehiro Takeuch
2. 発表標題 Composite effects on thermoelectric properties: a new design of practical thermoelectric generators
3. 学会等名 SSDM2022: 2022 International Conference on Solid State Devices and Materials (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 竹内恒博
2. 発表標題 金属・半導体における電気伝導と熱伝導
3. 学会等名 日本金属学会 2023年春期 第172回講演大会(基調講演) (招待講演)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 佐藤紅介, 平田圭佑, シンサウラブ, 松波雅治, 竹内恒博
2. 発表標題 延性を有する化合物半導体Ag ₂ S _{1-x} Te _x (x = 0.3 - 0.6) の構造と熱電物性
3. 学会等名 第70回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 武藤正憲, 平田圭佑, 竹内恒博, 松波雅治
2. 発表標題 極小格子熱伝導度を示す化合物半導体Ag _{4.5} Te ₃ の熱電物性
3. 学会等名 第70回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Tsunehiro Takeuchi
2. 発表標題 Thermoelectric Properties of (Ag,Cu) ₂ (S,Se,Te) and Their Potential for Thermoelectric Generators
3. 学会等名 The 7th International Conference on Electronic Materials and Nanotechnology for Green Environment (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Tsunehiro Takeuchi
2. 発表標題 Huge enhancement of thermoelectric dimensionless figure of merit in (Ag,Cu) ₂ (S,Se,Te) and their electric power generation
3. 学会等名 Sustainability through Science and Technology (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 竹内恒博
2. 発表標題 複合材料効果を利用した革新的熱電変換材料・素子の開発
3. 学会等名 第5回 次世代スマート・マテリアルの創製と応用展開に関する研究会 講演会 「SDGsに貢献するスマートマテリアル」 (招待講演)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Saurabh Singh, Keisuke Hirata, Kosuke Sato, Gareoung Kim, Masaharu Matsunami and Tsunehiro Takeuchi
2. 発表標題 Enhancement of thermoelectric properties of flexible Ag ₂ S _{1-x} Se _x (0 < x < 0.5) material by electronic structure modification
3. 学会等名 Virtual Conference on Thermoelectrics (VCT2021) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Singh Saurabh, Tsunehiro Takeuchi
2. 発表標題 Development of High Performance Flexible Thermoelectric Materials Ag ₂ (S,Se) by Electronic Structure Modification
3. 学会等名 DCMS Materials 4.0 Summer School 2021 (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Fahmi Machda, Tsunehiro Takeuchi
2. 発表標題 Influence of excess of Al concentrations to Seebeck coefficient of Heusler alloy thin films deposited on n-Si substrates
3. 学会等名 DCMS Materials 4.0 Summer School 2021 (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 正岡伊織, 原敦, Omprakash Muthusamy, 廣瀬光太郎, 足立真寛, 山本喜之, 竹内恒博
2. 発表標題 Si-Ge系熱電材料への酸化の影響
3. 学会等名 第18回日本熱電学会学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 原惇, Choi Seongho, 松波雅治, 竹内恒博
2. 発表標題 CrSi ₂ のナノ化による熱伝導度の低減と性能向上
3. 学会等名 第18回日本熱電学会学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Saurabh Singh, Keisuke Hirata, Masaharu Matsunami, Tsunehiro Takeuchi
2. 発表標題 Systematic Study About the Annealing of Skutterudite $\text{Smy}(\text{Fe}_x\text{Ni}_{1-x})_4\text{Sb}_{12}$ Thin Films
3. 学会等名 第82回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Saurabh Singh, Keisuke Hirata, Masaharu Matsunami, and Tsunehiro Takeuchi
2. 発表標題 Development of High Performance π Type Thermoelectric Device Using Flexible $\text{Ag}_2(\text{S}, \text{Se})$ Material
3. 学会等名 1st Japan France Virtual Workshop on Thermoelectrics (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Giovanna Latronico, Paolo Mele, Cristina Artini, Pietro Manfrinetti, Carlo Fanciulli, Saurabh Singh, Tsunehiro Takeuchi, Cedric Bourges, Takao Mori, and Chihiro Sekine
2. 発表標題 High-Power Factor and Annealing Optimization of Fe,Ni-based Skutterudites
3. 学会等名 1st Japan France Virtual Workshop on Thermoelectrics (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Fahmi Machda, Kentaro Kuga, Saurabh Singh, Masaharu Matsunami, Tsunehiro Takeuchi
2. 発表標題 Thermoelectric Performance of W-substituted Fe_2VAl Thin Films Deposited on n-Si wafers
3. 学会等名 日本金属学会 2022年春期 第170回講演大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 竹内恒博
2. 発表標題 金属・半導体における電気伝導と熱伝導
3. 学会等名 日本金属学会 2023年春期 第172回講演大会（招待講演）
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 佐藤紅介, 平田圭佑, シンサウラブ, 松波雅治, 竹内恒博
2. 発表標題 延性を有する化合物半導体Ag ₂ S _{1-x} Te _x (x = 0.3 - 0.6) の構造と熱電物性
3. 学会等名 第70回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Kosuke Sato, Tsunehiro Takeuchi
2. 発表標題 Reduction of working temperature for the large magnitude in thermoelectric dimensionless figure of merit of Ag ₂ -xCu _x S
3. 学会等名 The 39th Annual International Conference on Thermoelectrics (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 廣井慧, 尾原幸治, 中島宏, 森茂生, Muthusamy Omprakash, 竹内 恒博
2. 発表標題 B添加Ball-milled Si-Geに対する結晶・非晶pair distribution function分離解析
3. 学会等名 第20回日本熱電学会学術講演会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 石原峻伍, 正岡伊織, 松波雅治, 竹内恒博
2. 発表標題 Si-Ge系ナノバルク熱電材料の開発
3. 学会等名 第14回スマートエネルギー技術研究センターシンポジウム (豊田工業大学)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Tsunehiro Takeuchi
2. 発表標題 Development of high-performance thermoelectric materials using constructive electronic structure modifications and composite effects
3. 学会等名 ISSP Regular Workshop: How high can we raise thermoelectric performance? (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Anoop Mampazhasseri Divakaran, Kim Gareoung, Masaharu Matsunami, Tsunehiro Takeuchi
2. 発表標題 Enhanced power generation in Silver Chalcogenide subjected to Unusual Heating
3. 学会等名 MRM2023/IUMRS-ICA2023 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Tsunehiro Takeuchi
2. 発表標題 A guiding principle constructed on the basis of considerations about electronic structure and phonon dispersion for developing high-performance thermoelectric materials and recent progress achieved with it
3. 学会等名 MRM2023/IUMRS-ICA2023 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 竹内恒博, 石原峻伍, 平田圭佑, 松波雅治
2. 発表標題 低温高圧焼結で作製したSi-Ge系ナノバルク熱電材料の酸化を防止するプロセスの確立と高性能化
3. 学会等名 日本金属学会 2024年春期 第174回講演大会
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 石原峻伍, 平田圭佑, 松波雅治, 竹内恒博
2. 発表標題 酸化の少ない高性能ナノバルクSi-Ge系熱電材料の作製
3. 学会等名 第71回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 廣井慧, 尾原幸治, 中島宏, 森茂生, Muthusamy Omprakash, 竹内恒博
2. 発表標題 結晶・非晶混合Si-Geに対するpair distribution分離解析
3. 学会等名 第71回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2024年

〔図書〕 計1件

1. 著者名 Saurabh Singh, Bed Poudel, Amin Nozariasbmarz, Tsunehiro Takeuchi, Shashank Priya	4. 発行年 2023年
2. 出版社 CRC press	5. 総ページ数 27
3. 書名 Energy Harvesting and Storage Devices, 80-107 Constructive approach towards design of high-performance thermoelectrics, thermal diodes, and thermomagnetic devices for energy generation applications	

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究協力者	平田 圭佑 (Hirata Keisuke)	豊田工業大学・大学院工学研究科・助教 (33924)	
研究協力者	松波 雅治 (Matsunami Masaharu)	豊田工業大学・大学院工学研究科・准教授 (33924)	
研究協力者	佐藤 紅介 (Sato Kosuke)	豊田工業大学・大学院工学研究科・博士課程学生 (33924)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関			
米国	Saurabh Singh	The Pennsylvania State University	Ag ₂ (S, Se, Te)系熱電材料の開発	
イタリア	Cristina Artini	University of Genova	Smy(FexNi _{1-x}) ₄ Sb ₁₂ 薄膜熱電材料の開発	
中国	Lei Mao	Guilin Univ. of Electronic Technology	Ag ₂ (S, Se, Te)系熱電素子の開発	