

令和 3 年 8 月 17 日現在

機関番号：33924

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2018～2020

課題番号：18H01695

研究課題名(和文) 不純物準位による電子構造改質を用いた電子物性制御手法の確立と高性能熱電材料の創製

研究課題名(英文) Improvement of thermoelectric properties by use of impurity states, and development of new high-performance thermoelectric materials

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) 13,300,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、伝導電子が強散乱極限にある熱電半導体において、化学ポテンシャル近傍の電子構造を不純物準位を用いて建設的に変調することで、熱電性能を飛躍的に向上させることを目指した。Si-Ge系材料では、化学ポテンシャルが伝導帯に存在する条件下において、1 at.%のFe置換により熱電性能が著しく向上することを見出した。また、化学ポテンシャルが価電子帯に存在する条件下では、1 at.%程度のAuあるいはNiの添加により性能が向上することを示した。銀カルコゲナイドなどでも同様の効果を確認した。本研究により、熱電材料を高性能化するための新しい指針が構築・確認された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究では、熱電材料の物性を建設的に制御する指針を与えるとともに、実際に、複数の材料系で、新しい高性能熱電材料の開発に至った。理論的な予測を実験で検証することで、提案する指針が正しいことを証明したことから、同様の指針を用いた熱電材料の開発が促されると考えられる。また、この指針を用いた材料開発が活発に行われることで、エネルギー変換効率が高い熱電発電素子の開発が行われるようになり、排熱からの熱電発電により省エネルギー化が進む。同時に、カーボンニュートラルの実現に向けて、大きな寄与をすると判断される。

研究成果の概要(英文)：In this project, we tried to improve the performance of thermoelectric materials using the impurity states produced by dilute impurity elements under the condition of strongest scattering limit of conduction electrons.

We employed Si-Ge system as one of the typical thermoelectric materials, and found that 1 at.% Fe possesses a potential to greatly increase the magnitude of dimensionless figure of merit of n-type samples. Tiny amount of Au and Ni, which is less than a few at.%, were also found to improve thermoelectric performance of p-type Si-Ge. The strategy, with which we successfully improve the thermoelectric performance of Si-Ge, was also used for other thermoelectric materials, such as silver chalcogenides, and its validity was confirmed by the increase of their dimensionless figure of merit.

We stress here that the our newly proposed strategy to develop a high-performance thermoelectric materials should lead to the practical use of thermoelectric generators.

研究分野：固体物性，金属電子論

キーワード：熱電材料 熱電発電 ゼーベック係数 電気伝導度 熱伝導度 電子構造 不純物準位 強散乱極限

様式 C-19、F-19-1、Z-19（共通）

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、現状では、ゼーベック係数、熱伝導度、電気伝導度を最適化することの困難さと、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1930～1940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1950～1960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は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Bi₂Te₃系材料のみが、主要な実用化熱電材料として広く普及し続けている。

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

本研究は、日本が2050年までに実現を目指すカーボンニュートラル社会の構築に寄与する高性能熱電材料を開発するための革新的技術として、本提案研究では、固体物理の理論に基づき電子構造の観点から熱電材料の高性能化指針を構築すべく、『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』を確立することを目的とする。この手法により、高性能のバルク熱電材料を創製し、省エネルギー技術としての熱電発電のポテンシャルを示すとともに、申請者が提案してきた熱電材料設計指針の妥当性を証明することで、熱電材料開発にパラダイムシフトをもたらすことを目指している。

3. 研究の方法

本研究では、以下の方法で研究を遂行した。

(a) 電子構造計算による不純物準位の予測

バンド計算やクラスター計算などの電子構造計算プログラムでは、多くの近似が用いられ、得られる実験結果が正しいことが保障されているわけではない。特に、熱電材料などにおいてキャリア濃度を調整するため、あるいは、本研究で目的としているように電子物性を改質するために用いる元素の部分置換による電子構造への影響については、材料群ごとに分類し、定量的に評価する必要がある。そこで、超格子構造を用いたバンド計算や、バンド計算により最適化した結晶構造から抜き出したクラスターのクラスター準位計算を行い、熱電物性に良い影響を与える不純物準位に関する評価を行った。

(b) 不純物準位の電子物性に及ぼす影響の予測と物性測定に因るその検証

不純物準位のエネルギー位置、エネルギー幅、準位の密度、電子濃度をパラメータとして、上述した熱電材料群における電子物性（ゼーベック係数、熱伝導度、電気伝導度）の計算を行った。これにより最適な不純物準位の特徴が理解できるようになる。さらに、(a)にて得た不純物準位の特徴を考慮し、最適な不純物元素の種類と濃度を特定し、その条件で試料を作製する。作製した試料に対して、ゼーベック係数、熱伝導度、電気伝導度、ホール係数、比熱、磁化を測定する。この作業により、電子構造計算を用いた定量的物性設計の可能性を検証した。

(c) 大きなZTを示す材料の開発

極めて小さな格子熱伝導度を有する熱電半導体に対して、不純物準位による電子構造の建設的な変調を与えることで、低い熱伝導度と大きな出力因子を共存させた。この手法により、大きな ZT を示す熱電材料を開発した。

4. 研究成果

本研究では、極めて小さな格子熱伝導度を示す熱電材料に対して、不純物準位による電子構造制御を行うことで、熱電特性を著しく向上させることを目指している。この目的を達成するためには、極めて小さな格子熱伝導度を示す熱電材料を選定することが重要となる。本研究では、様々な材料系の物質を取り扱ったが、ここでは、ナノ粒子から構成される Si-Ge 系バルク材料および高マンガンシリサイド MnSi_y 、さらに、非調和格子振動により特徴づけられる $\text{Ag}_2(\text{Si}_{1-x}\text{Se}_x)$ 材料に対して得られた研究成果を示す。

4-1 Si-Ge 系熱電材料

図 1 (a) に、ダイヤモンド構造を有する Si に Fe が置換型不純物として存在する場合に得られる電子状態密度の計算結果を示す。[APEX 12, 045507 (2019)]この計算結果により、Fe の 3d 軌道の成分を主成分とする不純物準位が伝導帯の底に形成されることが予測された。また、同様の状況をモデル化したスペクトル伝導度 (図 1 (b)) を用いて熱電物性の計算 (図 1 (c)~(f)) を行うことで、1 at.% 以下の Fe の導入により、n 型 Si-Ge 系材料の無次元性能指数が著しく向上することを予測した。

同様の計算を行い、Au や Ni を不純物元素として選択することで、p 型材料についても性能向上が見込めることを予測した。

上記の予測に基づき、Si-Ge 系試料を作製し、その熱電物性を評価した。なお、格子熱伝導度が著しく小さいことが良い熱電材料の条件となるため、高エネルギーボールミルを用いたナノ結晶粉末を、低温かつ高压で焼結することで、高密度ナノ結晶バルク試料とした。報告されている Si-Ge 系材料の熱伝導度はナノ結晶化しても $2 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$ 程度であったが、本研究で作製した試料は $1 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$ を下回るほど、小さくなっていた。

伝導電子は強散乱極限に達しており、群速度の影響を考慮する必要がなくなる。このことで、不純物準位による状態密度のエネルギー依存性が、スペクトル伝導度のエネルギー依存性となり、計算により予測したように、ゼーベック係数の向上が期待できる。実際に、作製下試料のゼーベック係数は大きく、その絶対値は、 $500 \mu\text{V K}^{-1}$ にも達した。不規則性の電気伝導度への影響は低温では大きいですが、Si-Ge 系材料が大きな ZT を示す高温では、その影響がほぼ無視でき、結果として、Fe を導入した n 型材料において、900 K において $ZT = 1.88$ を得た。Au を導入した p 型材料で 1000K において $ZT = 1.63$ [JAP 58, 125501 (2019)], Ni を導入した材料で 1000 K で $ZT = 1.6$ [Submitted to ACS Applied Electronic Materials. (2021)] を達成した。いずれの材料も、既存材料を凌駕する性能を示している。図 3 にそれぞれの ZT の温度依存性を示す。

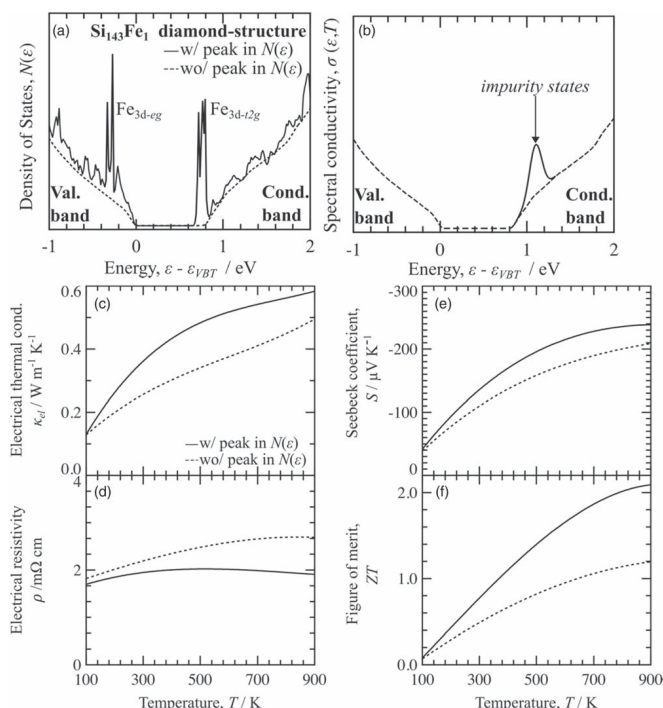


図 1 Si 中に於ける Fe の不純物準位 (不純物バンド) とその形成による物性変化の予測。 [APEX 12, 045507 (2019)]

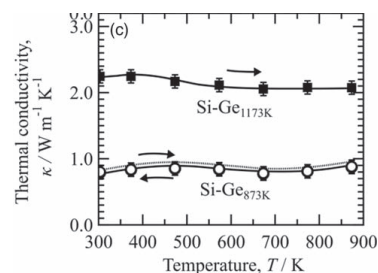


図 2 Si-Ge 系高密度ナノ結晶バルク材料の熱伝導度。 [APEX 12, 045507 (2019)]

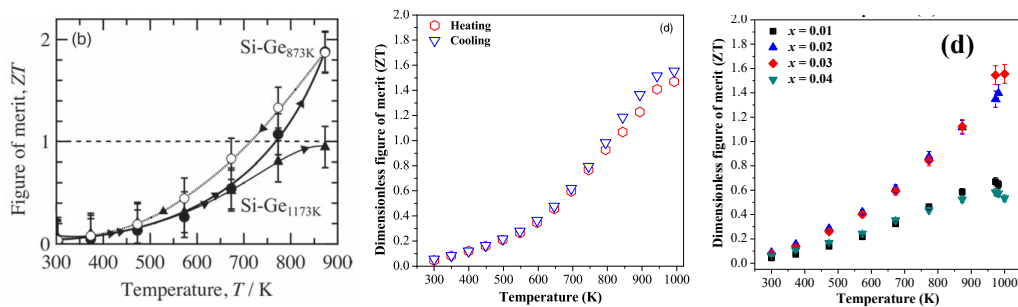


図3 本研究で得られた高性能 Si-Ge 系熱電材料の無次元性能指数 ZT 。(左) Fe を導入した n 型 Si-Ge 合金[APEX 12, 045507 (2019)], (中央) Au を導入した p 型 Si-Ge 合金[JJAP 58, 125501 (2019)], (右図) Ni を導入した p 型 Si-Ge 合金[Submitted to ACS Applied Electronic Materials]

4-2 高マンガンシリサイド(MnSi_y)系熱電材料

高マンガンシリサイドは、高い出力因子を得られる電子構造を有している。この材料に対して、Mn の Re 部分置換と液体急冷法によるナノ結晶化を併用することで、無次元性能指数を著しく向上させることに成功した。図4に示すように、得られた値は、 $ZT=1.15$ であり、Re を含有しない通常材料の $ZT = 0.5$ から2倍以上に達した。[ACS Appl. Mat. & Interfaces 11, 31169 (2019)]

主に、格子熱伝導度を低下させる目的で導入した Re は、価電子帯の上端に不純物準位を形成し、出力因子の向上に寄与していることを、放射光を用いた共鳴光電子分光実験による電子構造観察により明らかにした。[J. Appl. Phys 127, 035103 (2020)] (図5参照) Re 濃度が増大するとともに、化学ポテンシャル近傍のピークが大きくなっていることがわかる。

なお、本研究で得られた ZT の値は、香マンガンシリサイド系材料として最大である。

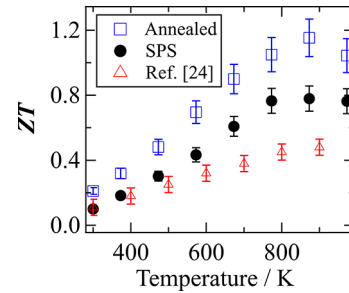


図4 高マンガンシリサイド (MnSi_y)系熱電材料得られた無次元性能指数。[ACS Appl. Mat. & Interfaces 11, 31169 (2019)]

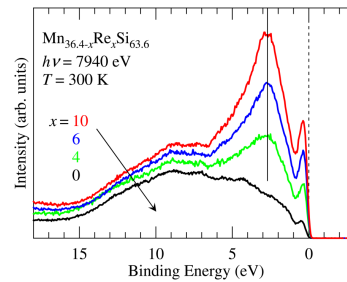


図5 高マンガンシリサイド (MnSi_y)系熱電材料の共鳴光電子分光スペクトル[J. Appl. Phys 127, 035103 (2020)]

4-3 Ag₂S_{1-x}Se_x系熱電材料

Ag₂Ch (Ch = S, Se, Te)は著しく小さな熱伝導度を示すことを、研究代表者らは明らかにしている。また、半導体的電子構造を有することから、熱電材料に相応しい電子構造を有していると言える。キャリア濃度を調整することが難しいが、本研究では、Ag₂S の S を Se で部分置換することで、電子が導入され、n 型熱電材料として優れた性能を示すことを明らかにした。[J. Elec. Mater 49, 2846 (2020)]

特に、Ag₂S_{0.4}Se_{0.6} の組成では、室温付近から $ZT = 0.8$ を示し、高温相に相変態する温度(約 350 K)付近までその値を維持できている。体温などの低温熱源を使った発電に期待できる。さらに、この材料系においても、不純物準位を建設的に利用することで、より高い性能が維持できることを見出しており、その結果は、論文として投稿する予定である。

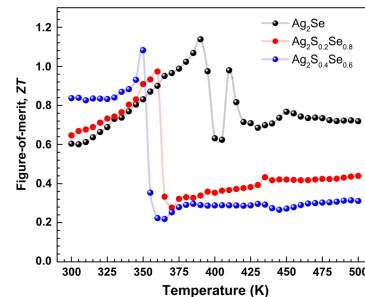


図6 Ag₂S_{1-x}Se_x 系熱電材料の無次元性能指数[J. Elec. Mater 49, 2846 (2020).]

上述した研究成果は、いずれも、不純物準位をバンド端に形成することで熱電材料としての性能が著しく向上することを示している。すなわち、本課題研究で提案した材料設計指針が極めて有効であると言える。なお、Si-Ge系材料においては、同様の材料設計指針に基づき、 $ZT = 3.7$ が得られる可能性も明らかにしている。[arXiv:1909.12476]さらなる高性能化を実験的に示すことができれば、本研究で提案する指針 (Electron Glass & Phonon Glass with Impurity States near the Band Edge) が熱電材料を開発する上での、新しいトレンドになる可能性が高い。

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 2件／うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 M. Adachi, S. Nishino, K. Hirose, M. Kiyama, Y. Yamamoto, and T. Takeuchi	4. 巻 61
2. 論文標題 High Dimensionless Figure of Merit $ZT = 1.38$ Achieved in p-Type Si-Ge-Au-B Thin Film	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Materials Transactions	6. 最初と最後の頁 1014-1019
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.2320/matertrans.MT-M2019310	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 S. Choi, S. Hiroi, M. Inukai, S. Nishino, R. Sobota, D. Byeon, M. Mikami, M. Matsunami, and T. Takeuchi	4. 巻 101
2. 論文標題 Effects of 5d-heavy element partial substitution on thermal transport in Fe ₂ VAl thin films	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 104312
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.101.104312	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 K. Hirose, M. Adachi, M. Murata, Y. Yamamoto, and T. Takeuchi	4. 巻 11288
2. 論文標題 Cooling-free infrared sensors with high-performance thermoelectric materials	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Proceedings of SPIE, Quantum Sensing and Nano Electronics and Photonics XVII	6. 最初と最後の頁 1128801
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1117/12.2541835	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 M. Matsunami, T. Iizuka, S. Ghodke, A. Yamamoto, H. Miyazaki, and T. Takeuchi	4. 巻 127
2. 論文標題 Hard X-ray photoemission spectroscopy of rhenium substituted higher manganese silicides	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 53103
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1063/1.5128185	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 S. Singh, K. Hirata, D. Byeon, T. Matsunaga, O. Muthusamy, S. Ghodke, M. Adachi, Y. Yamamoto, M. Matsunami, and T. Takeuchi	4. 巻 49
2. 論文標題 Investigation of Thermoelectric Properties of Ag ₂ SxSe _{1-x} (x = 0.0, 0.2 and 0.4)	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Electronic Materials	6. 最初と最後の頁 2813-2824
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1007/s11664-019-07857-5	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 -

1. 著者名 Muthusamy Omprakash, Kevin Delime-Codrin, Swapnil Ghodke, Saurabh Singh, Shunsuke Nishino, Yoshiyuki Yamamoto, Masaharu Matsunami, Harish Santhanakrishnan, Masaru Shimomura, Tsunehiro Takeuchi	4. 巻 58
2. 論文標題 Au and B co-doped p-type Si-Ge nanocomposites possessing ZT = 1.63 synthesized by ball milling and low-temperature sintering	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 125501
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7567/1347-4065/ab4fb9	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 Swapnil Ghodke, Akio Yamamoto, Hsuan-Chun Hu, Shunsuke Nishino, Takuya Matsunaga, Dogyun Byeon, Hiroshi Ikuta, Tsunehiro Takeuchi	4. 巻 11
2. 論文標題 Improved Thermoelectric Properties of Re-Substituted Higher Manganese Silicides by Inducing Phonon Scattering and an Energy-Filtering Effect at Grain Boundary Interfaces	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 ACS Applied Materials Interfaces	6. 最初と最後の頁 31169
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsami.9b09397	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 C.P. Goyal, M. Omprakash, M. Navaneethan, T. Takeuchi, Y. Shimura, M. Shimomura, S. Ponnusamy, Y. Hayakawa, H. Ikeda	4. 巻 3
2. 論文標題 Fabrication of ultrathin poly-crystalline SiGe-on-insulator layer for thermoelectric applications	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of Physics Communications	6. 最初と最後の頁 75007
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/2399-6528/ab302f	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 -

1. 著者名 K. Delime-Codrin, M. Omprakash, S. Ghodke, R. Sobota, M. Adachi, M. Kiyama, T. Matsuura, Y. Yamamoto, M. Matsunami, and T. Takeuchi	4. 巻 12
2. 論文標題 Large figure of merit $ZT = 1.88$ at 873 K achieved with nanostructured $\text{SiO}_{0.55}\text{Ge}_{0.35}(\text{PO}_{0.10}\text{Fe}_{0.01})$	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Applied Physics Express	6. 最初と最後の頁 045507 1-7
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7567/1882-0786/ab08b7	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 D. Byeon, R. Sobota, K. Delime-Codrin, S. Choi, K. Hirata, M. Adachi, M. Kiyama, T. Matsuura, Y. Yamamoto, M. Matsunami, and T. Takeuchi	4. 巻 10
2. 論文標題 Discovery of Colossal Seebeck Effect in Metallic Cu_2Se	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Nature Communications	6. 最初と最後の頁 72 1-7
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41467-018-07877-5	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 -

1. 著者名 Yue-Xing Chen, Fu Li, Wenting Wang, Zhuanghao Zheng, Jingting Luo, Ping Fan, Tsunehiro Takeuchi	4. 巻 782
2. 論文標題 Optimization of thermoelectric properties achieved in Cu doped $-\text{In}_2\text{S}_3$ bulks	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of Alloys and Compounds	6. 最初と最後の頁 641-647
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jallcom.2018.12.220	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 T. Homma, T. Kamata, N. Saito, S. Ghodke, T. Takeuchi	4. 巻 776
2. 論文標題 Effects of Re substitution for Mn on microstructures and properties in Re-substituted higher manganese silicide thermoelectric material	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of Alloys and Compounds	6. 最初と最後の頁 8-15
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jallcom.2018.10.209	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 K. Delime-Codrin, G. Swapnil, D. Byeon, R. Sobota, M. Matsunami and T. Takeuchi	4. 巻 59
2. 論文標題 Effective Decrease of the Thermal Conductivity Caused by Hf in Fe(V _{0.955} -xHf _{0.045} Tix)Sb Half-Heusler Phase	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Materials Transactions	6. 最初と最後の頁 1637-1644
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2320/matertrans.M2018171	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 S. Shanthi, K. Faizan, S. Nishino, M. Omprakash, T. Takeuchi, Y. Shimura, Y. Hayakawa, C. Muthamizhchelvan, and H. Ikeda	4. 巻 14
2. 論文標題 Influence of Au on Ge Crystallization and Its Thermoelectric Properties in a Au-induced Ge Crystallization Technique	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Journal of Advanced Physics	6. 最初と最後の頁 5460-5466
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.24297/jap.v14i2.7421	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

〔学会発表〕 計44件 (うち招待講演 8件 / うち国際学会 14件)

1. 発表者名 竹内恒博, ムスサミー オンプラカン, デリムコドリ ケビン, ゴドゥケ スワプニル, 松波雅治
2. 発表標題 高性能p型Si-Ge系熱電材料の開発
3. 学会等名 日本金属学会 2020年春期 第166回講演大会
4. 発表年 2019年 ~ 2020年

1. 発表者名 Omprakash Muthusamy, Saurabh Singh, Masahiro Adachi, Yoshiyuki Yamamoto, Tsunehiro Takeuchi
2. 発表標題 Improved thermoelectric performance of p-type Si-Ge alloy
3. 学会等名 第67回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2019年 ~ 2020年

1. 発表者名 Giovanna Latronico, Paolo Mele, Shrikant Saini, Fabrizio Valenza, Riccardo Carlini, Seongho Choi, Tsunehiro Takeuchi, Angelica Baldini, Umberto Anselmi-Tamburini, Cristina Artini
2. 発表標題 Synthesis, characterization and densification of n- and p-types skutterudites belonging to the $\text{Smy}(\text{Fe}_{1-x}\text{Ni}_x)_4\text{Sb}_{12}$ system to be used as substrates for wettability studies.
3. 学会等名 第67回応用物理学会春季学術講演会 (国際学会)
4. 発表年 2019年～2020年

1. 発表者名 Saurabh Singh, Keisuke Hirata, Gareoung Kim, Dogyun Byeon, Takashi Nagaya, Omprakash Muthusamy, Masaharu Matsunami, Tsunehiro Takeuchi
2. 発表標題 Tuning the thermoelectric property of flexible Ag_2S material by non-toxic transition metal substitution
3. 学会等名 第67回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2019年～2020年

1. 発表者名 竹内恒博
2. 発表標題 高性能熱電材料の開発 材料設計における多元系の意義
3. 学会等名 第67回応用物理学会春季学術講演会 (招待講演)
4. 発表年 2019年～2020年

1. 発表者名 Saurabh SINGH, Keisuke HIRATA, Takuya MATSUNAGA, Dogyun BYEON, Masaharu MATSUNAM, Tsunehiro TAKEUCHI
2. 発表標題 Flexible Inorganic Thermoelectric Materials $\text{Ag}_2(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)$
3. 学会等名 Materials Research Meeting 2019 (MRM2019) (国際学会)
4. 発表年 2019年～2020年

1. 発表者名 Omprakash Muthusamy, Tsunehiro Takeuchi
2. 発表標題 Enhanced thermoelectric properties of Si-Ge by tuning boron concentration and dispersion of Au nanoparticle in Si-Ge matrix synthesized by high-pressure and low-temperature sintering process
3. 学会等名 Materials Research Meeting 2019 (MRM2019) (国際学会)
4. 発表年 2019年～2020年

1. 発表者名 Tsunehiro Takeuchi
2. 発表標題 New concept to effectively increase ZT and development of high-performance Si-Ge based thermoelectric materials
3. 学会等名 Materials Research Meeting 2019 (MRM2019) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年～2020年

1. 発表者名 竹内恒博
2. 発表標題 世界最高性能を示すバルク熱電材料の開発
3. 学会等名 粉末粉体冶金協会 2019年度秋期大会 (第124回講演大会) (招待講演)
4. 発表年 2019年～2020年

1. 発表者名 Saurabh Singh, Keisuke Hirata, Dogyun Byeon, Swapnil Ghodke, Masaharu Matsunami, Masahiro Adachi, Yoshiyuki Yamamoto, Tsunehiro Takeuchi
2. 発表標題 Improvement of thermoelectric properties of Ag ₂ S by Se substitution
3. 学会等名 第80回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2019年～2020年

1. 発表者名 Swapnil Chetan Ghodke, Muthusamy Omprakash, Kevin Delime Codrin, Masahiro Adachi, Yoshiyuki Yamamoto, Tsunehiro Takeuchi
2. 発表標題 Thermal stability analysis and thermoelectric properties of supersaturated solid-solution of Silicon-Germanium-Phosphorous
3. 学会等名 第80回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2019年～2020年

1. 発表者名 竹内 恒博, スワブニル ゴドゥケ, ムスサミー オンブラカシ, サウラブ シン, ケビン デリム - コドリ, 足立 真寛, 山本 喜之
2. 発表標題 ZT>2を示すSi-Ge系熱電材料の開発
3. 学会等名 日本金属学会 2019年秋期 (第165回) 講演大会
4. 発表年 2019年～2020年

1. 発表者名 Swapnil Ghodke, Tsunehiro Takeuchi
2. 発表標題 Distinctive thermoelectric properties of supersaturated Si-Ge-P compounds: Achieving a very large figure magnitude of merit
3. 学会等名 第15回日本熱電学会学術講演会 (TSJ2019)
4. 発表年 2019年～2020年

1. 発表者名 D. Byeon, R. Sobota, K. D. Codrin, S. Choi, K. Hirata, M. Adachi, Y. Yamamoto, M. Matsunami, T. Takeuchi
2. 発表標題 Discovery of colossal Seebeck effect in Cu ₂ Se and Cu ₂ S
3. 学会等名 第15回日本熱電学会学術講演会 (TSJ2019)
4. 発表年 2019年～2020年

1. 発表者名 S. Singh, K. Hirata, M. Adachi, Y. Yamamoto, M. Matsunami, T. Takeuchi
2. 発表標題 Investigation of electronic and thermoelectric properties of Ag_2-xTM_xS (TM = Ti, V, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Cu) from first principle calculations
3. 学会等名 第15回日本熱電学会学術講演会 (TSJ2019)
4. 発表年 2019年 ~ 2020年

1. 発表者名 S. Ghodke, M. Omprakash, K. Delime-Codrin, M. Adachi, M. Kiyama, T. Matsuura, Y. Yamamoto, and T. Takeuchi
2. 発表標題 Thermoelectric Properties of Heavily doped Nano-structured n-type Silicon-Germanium Alloys
3. 学会等名 The Fifth Asia-Pacific Conference on Semiconducting Silicides and Related Materials (APAC-SILICIDE 2019) (国際学会)
4. 発表年 2019年 ~ 2020年

1. 発表者名 Saurabh Singh, Keisuke Hirata, Dogyun Byeon, Omprakash Muthusamy, Masaharu Matsunami, Tsunehiro Takeuchi
2. 発表標題 Thermoelectric Properties of $Ag_2(S_{1-x}Se_x)$
3. 学会等名 The 38th 4th International & Asian Conference on Thermoelectrics (ICT/ACT 2019) (国際学会)
4. 発表年 2019年 ~ 2020年

1. 発表者名 Swapnil Ghodke, Tsunehiro Takeuchi
2. 発表標題 Thermoelectric properties of heavily doped semicrystalline Si-Ge-P compounds
3. 学会等名 The 38th 4th International & Asian Conference on Thermoelectrics (ICT/ACT 2019) (国際学会)
4. 発表年 2019年 ~ 2020年

1. 発表者名 Seongho Choi, Satoshi Hiroi, Manabu Inukai, Robert Sobota, Dogyun Byeon, Masaharu Matsunami and Tsunehiro Takeuchi
2. 発表標題 Heavy element dependence of thermal conductivity in Fe ₂ VAl based superlattice thin film
3. 学会等名 The 38th 4th International & Asian Conference on Thermoelectrics (ICT/ACT 2019) (国際学会)
4. 発表年 2019年～2020年

1. 発表者名 Muthusamy Omprakash, Shunsuke Nishino, Masahiro Adachi, Saurabh Singh, Ghodke Swapnil, Yoshiyuki Yamamoto, Tsunehiro Takeuchi
2. 発表標題 High ZT = 1.6 at 973 K achieved in B-doped Si-Ge-Au nanocrystalline synthesized by high pressure and low temperature sintering process
3. 学会等名 The 38th 4th International & Asian Conference on Thermoelectrics (ICT/ACT 2019) (国際学会)
4. 発表年 2019年～2020年

1. 発表者名 廣瀬 光太郎, 足立 真寛, 西野 俊佑, 山本 喜之, 竹内 恒博
2. 発表標題 AuとBを共添加したSi-Ge系薄膜の熱電特性
3. 学会等名 第66回応用物理学会春季学術講演会 (東京工業大学 大岡山キャンパス, 2019/3/9)
4. 発表年 2018年～2019年

1. 発表者名 オムブラカシ ムスサミー, ゴドケ スワプニル, デリムコドリー ケビン, 足立 真寛, 山本 喜之, 竹内 恒博
2. 発表標題 Large evolution of ZT in p-type nanocrystalline bulk Si-Ge
3. 学会等名 第66回応用物理学会春季学術講演会 (東京工業大学 大岡山キャンパス, 2019/3/9)
4. 発表年 2018年～2019年

1. 発表者名 尾川 史武, 松波 雅治, 竹内 恒博
2. 発表標題 CePd3の熱電特性における元素置換効果
3. 学会等名 第66回応用物理学会春季学術講演会 (東京工業大学 大岡山キャンパス, 2019/3/9)
4. 発表年 2018年 ~ 2019年

1. 発表者名 竹内 恒博
2. 発表標題 高性能熱電材料開発における放射光の利用
3. 学会等名 第8回名古屋大学シンクロトン光研究センターシンポジウム (名古屋大学, 2019/1/17) (招待講演)
4. 発表年 2018年 ~ 2019年

1. 発表者名 竹内 恒博
2. 発表標題 Cu ₂ Seで観測される異常ゼーベック効果と巨大な出力因子(無次元性能指数)
3. 学会等名 第一回ブレ戦略研究会「次世代物質・デバイス戦略開発拠点」, 第一回TIAかけはし研究会「温度変化で発電するモバイル発電器」(筑波大学, 2018/11/26) (招待講演)
4. 発表年 2018年 ~ 2019年

1. 発表者名 竹内恒博
2. 発表標題 省エネルギー社会の構築に寄与する革新的熱利用材料・素子の研究
3. 学会等名 グリーン電子素子・材料研究センター 最終年度シンポジウム (豊田工業大学, 2018/11/2) (招待講演)
4. 発表年 2018年 ~ 2019年

1. 発表者名 崔 城豪、松波雅治、竹内恒博
2. 発表標題 Effects of Grain Boundaries and Impurities on Thermal Conductivity
3. 学会等名 グリーン電子素子・材料研究センター 最終年度シンポジウム（豊田工業大学，2018/11/2）
4. 発表年 2018年～2019年

1. 発表者名 Dogyun Byeon, Robert Sobota, Masaharu Matsunami, Tsunehiro Takeuchi
2. 発表標題 Colossal Seebeck Effect in Cu ₂ -Se
3. 学会等名 グリーン電子素子・材料研究センター 最終年度シンポジウム（豊田工業大学，2018/11/2）
4. 発表年 2018年～2019年

1. 発表者名 竹内恒博，邊韜均，Robert Sobota
2. 発表標題 銅カルコゲナイドで観測される巨大出力因子
3. 学会等名 粉体粉末冶金協会平成30年度秋季大会（第122回講演会）（朱鷺メッセ，新潟，2018/10/30）
4. 発表年 2018年～2019年

1. 発表者名 竹内 恒博，Swapnil Ghodke, Muthusamy Omprakash, 足立 真寛, 山本 喜之
2. 発表標題 Si-Ge系高性能バルク熱電材料の開発
3. 学会等名 粉体粉末冶金協会平成30年度秋季大会（第122回講演会）（朱鷺メッセ，新潟，2018/10/30）
4. 発表年 2018年～2019年

1. 発表者名 Tsunehiro Takeuchi
2. 発表標題 Electron and heat transport properties in solid materials
3. 学会等名 OIST Seminar (2018/10/24, OIST, Okinawa) (招待講演)
4. 発表年 2018年～2019年

1. 発表者名 Tsunehiro Takeuchi
2. 発表標題 Self-tuning carrier concentration effect and colossal value of ZT in Cu ₂ Se
3. 学会等名 Russian Conference on Thermoelectrics and their Applications RCT 2018 (2018/10/10, Sankt Peterburg, Russia) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年～2019年

1. 発表者名 竹内 恒博, 遼 韜均, 崔 城豪, ロバート ソボタ, ケビン デリムコドリー, 松波 雅治, 足立 真寛, 木山 誠, 松浦 尚, 山本 喜之
2. 発表標題 Cu ₂ -Seにおける自己キャリア濃度調整効果
3. 学会等名 第79回応用物理学会秋季学術講演会 (名古屋国際会議場, 2018/9/21) (注目講演)
4. 発表年 2018年～2019年

1. 発表者名 Swapnil Chetan Ghodke, Omprakash Muthusamy, Kevin Delime Codrin, Saurabh Singh, Masahiro Adachi, Tsunehiro Takeuchi
2. 発表標題 Distinctive thermoelectric properties of P doped SiGe
3. 学会等名 第79回応用物理学会秋季学術講演会 (名古屋国際会議場, 2018/9/21)
4. 発表年 2018年～2019年

1. 発表者名 Seongho Choi , Satoshi Hiroi , Dogyun Byeon , Masaharu Matsunami , Tsunehiro Takeuchi
2. 発表標題 Heavy-element dependence of thermoelectric properties in Fe ₂ VAl thin films
3. 学会等名 第79回応用物理学会秋季学術講演会（名古屋国際会議場，2018/9/20）
4. 発表年 2018年～2019年

1. 発表者名 松浦 佑哉，佐藤 敦武，田橋 正浩，高橋 誠，後藤 英雄，崔 城豪，竹内 恒博
2. 発表標題 ZnOナノ粒子添加によるZn ₄ Sb ₃ の熱電性能向上
3. 学会等名 第79回応用物理学会秋季学術講演会（名古屋国際会議場，2018/9/19）
4. 発表年 2018年～2019年

1. 発表者名 Kevin Delime , Muthusamy Omprakash , Ghodke Swapnil , Tsunehiro Takeuchi
2. 発表標題 High improvement of the figure of merit ZT in bulk amorphous-nanocrystalline Si _{0.55} Ge _{0.35} (Fe ₁ ,P _{0.10})
3. 学会等名 第79回応用物理学会秋季学術講演会（名古屋国際会議場，2018/9/19）
4. 発表年 2018年～2019年

1. 発表者名 竹内恒博，遠韜均，崔城豪，Robert Sobota，Kevin Delime-Codrin，松波雅治，足立真寛，木山誠，松浦尚，山本喜之
2. 発表標題 Cu ₂ - Se における自己キャリア濃度調整効果
3. 学会等名 第15回日本熱電学会学術講演会（TSJ2018）（東北大学，青葉山キャンパス，2018/9/13）
4. 発表年 2018年～2019年

1. 発表者名 Swapnil Ghodke, Omprakash Muthusamy, Kevin Delime-Codrin, Saurabh Singh, Tsunehiro Takeuchi, Masahiro Adachi, Yoshiyuki Yamamoto
2. 発表標題 Thermoelectric properties of heavily doped semicrystalline SiGe-P compounds
3. 学会等名 第15回日本熱電学会学術講演会 (TSJ2018) (東北大学, 青葉山キャンパス, 2018/9/13)
4. 発表年 2018年 ~ 2019年

1. 発表者名 Seongho Choi, Satoshi Hiroi, Shunsuke Nishino, Manabu Inukai, Okkyun Seo, Jae Myung Kim, Dogyun Byeon, Masashi Mikami, Masaharu Matsunami, Tsunehiro Takeuchi
2. 発表標題 Thermal conductivity of Ta doped Fe ₂ VAl/(Mo,W) superlattice thin films
3. 学会等名 第15回日本熱電学会学術講演会 (TSJ2018) (東北大学, 青葉山キャンパス, 2018/9/13)
4. 発表年 2018年 ~ 2019年

1. 発表者名 Kevin Delime-Codrin, Tsunehiro Takeuchi, Swapnil Ghodke, Dogyun Byeon
2. 発表標題 The decreases of the lattice thermal conductivity of the FeV _{0.955-x} Hf _{0.045} TixSb half-Heusler phases
3. 学会等名 The 37th 16th International & European Conference on Thermoelectrics (ICT/ECT 2018) (Caen, France, 2018/7/5) (国際学会)
4. 発表年 2018年 ~ 2019年

1. 発表者名 Swapnil Ghodke, Robert Sobota, David Berthebaud, Pierre-Yves Pichon, Christelle Navone, T. Takeuchi
2. 発表標題 Effect of element substitution on the phase stability of complex MnSi
3. 学会等名 The 37th 16th International & European Conference on Thermoelectrics (ICT/ECT 2018) (Caen, France, 2018/7/4) (国際学会)
4. 発表年 2018年 ~ 2019年

1. 発表者名 S. Choi, S. Hiroi, S. Nishino, M. Inukai, O. Seo, J. M. Kim, D. Byeon, M. Mikami, M. Matsunami, and T. Takeuchi
2. 発表標題 Thermal conductivity of Fe ₂ VAI-based superlattice thin film
3. 学会等名 The 37th 16th International & European Conference on Thermoelectrics (ICT/ECT 2018) (Caen, France, 4th, 2018/7/4) (国際学会)
4. 発表年 2018年～2019年

1. 発表者名 Dogyun Byeon, Robert Sobota, Kevin Delime-Codrin, Seongho Choi, Keisuke Hirata, Masahiro Adachi, Makoto Kiyama, Yoshiyuki Yamamoto, Takashi Matsuura, Masaharu Matsunami, Tsunehiro Takeuchi
2. 発表標題 Self-tuning carrier concentration effect of noble metal chalcogenides
3. 学会等名 The 37th 16th International & European Conference on Thermoelectrics (ICT/ECT 2018) (Caen, France, 2018/7/2) (国際学会)
4. 発表年 2018年～2019年

〔図書〕 計0件

〔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
---------------------------	-----------------------	----

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
---------	---------