

令和 5 年 6 月 26 日現在

機関番号：11301

研究種目：若手研究

研究期間：2020～2022

課題番号：20K15178

研究課題名（和文）Designing high-performance thermoelectrics in low-dimensional materials

研究課題名（英文）Designing high-performance thermoelectrics in low-dimensional materials

研究代表者

NGUYEN TUANHUNG (NGUYEN, TUAN HUNG)

東北大学・学際科学フロンティア研究所・助教

研究者番号：10844425

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 2,100,000円

研究成果の概要（和文）：我々は、2次元材料と3次元トポロジカル半金属の熱電輸送を理論的に研究した。ヤヌス  $-Ge_2SSe$  などの2次元材料では、室温で  $3.33\text{W/mK}$  という本質的に低い格子熱伝導率を見出し、高い熱電変換効率に寄与することがわかった。また、3次元半金属の異常な状態密度により熱電性能を高めることができ、いわゆる熱電ホール効果という新しい熱電応答を示すことを見出した。関連する話題として、光触媒などの別のエネルギー変換のための低次元材料についても議論しました。(Using DeepL Translator)

研究成果の学術的意義や社会的意義

熱電材料は、排ガスを発生させることなく、廃熱からエネルギーを取り出すことができます。したがって、熱電変換デバイスは、カーボンニュートラルな社会にとって不可欠なエネルギー変換となる。本研究では、熱電材料として2次元材料と3次元半金属に注目した。その結果、単層2次元材料は、量子閉じ込め長によって熱電性能を向上させることができることを発見した。一方、3次元半金属は、そのトポロジー特性に基づき、熱電変換を実現する新しい方法を示しています。このように、今回の成果は、高性能なエネルギー変換を実現する新しい熱電材料の開発に貢献するものである。(Using DeepL Translator)

研究成果の概要（英文）：We theoretically studied the thermoelectric (TE) transports of two-dimensional materials and 3D topological semimetals. In the 2D materials, such as Janus  $-Ge_2SSe$ , we found an intrinsic low lattice thermal conductivity of  $3.33\text{ W/mK}$  at room temperature, contributing to high TE efficiency. We also found that the 3D semimetal can enhance the TE performance due to the unusual density of states of the 3D semimetals and shows a new TE response, the so-called TE Hall effect. As a related topic, we also discussed low-dimensional materials for another energy conversion, such as photocatalysis.

研究分野：Thermoelectricity

キーワード：Thermoelectricity DFT calculation Optical properties Raman calculation 1D materials 2D materials 3D semimetals Photocatalysis

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

#### 1. 研究開始当初の背景

Thermoelectric (TE) materials can directly convert waste heat to electrical energy in a solid-state device without any moving parts and carbon emissions. Therefore, the study and development of TE materials have grown immensely in the past decade. However, their development is thwarted by the lack of high-performance TE material, which requires an efficiency of about 20% for industrial applications. A high-performance TE material needs both a high power factor (good electrical transport) and low thermal conductivity. However, the coupling between the electrical and thermal transport properties in TE materials makes this goal challenging. Our previous studies proposed that the power factor is enhanced when the electrons are confined by a narrow space (i.e., a low-dimensional material). However, low-dimensional material usually has a high thermal conductivity; for example, the thermal conductivity of graphene is in the range of 3000-5000 W/mK at room temperature. Therefore, discovering good low-dimensional materials for the TE application has been challenging.

#### 2. 研究の目的

In this project, we focused on designing and studying the new low-dimensional materials, which can show intrinsic low-thermal conductivity and high TE performance. We also investigated the TE properties of the 3D topological materials, which can show the low-dimensional transport characters even with 3D structures.

#### 3. 研究の方法

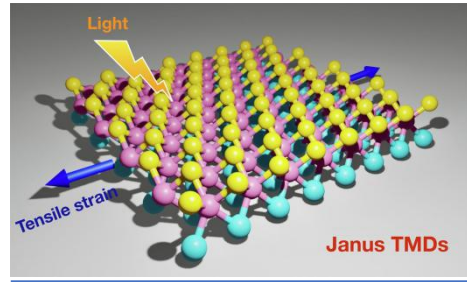
We used the first-principles calculations based on density functional theory (DFT), which is the most popular tool that can accurately predict the properties of materials with only the input crystal structure. With the DFT calculations, the properties relevant to the real applications can be accurately predicted compared with experiments. In this study, we also developed a comprehensive theory for TE of low-dimensional materials and 3D topological materials based on the electron-phonon and phonon-phonon interactions.

#### 4. 研究成果

**- 2D Janus materials with intrinsic low thermal conductivity [Thanh et al., ACS Appl. Energy Mater. 6, 910-919 (2023)]**

A 2D Janus material is defined by a sandwiched layers structure, in which the two faces of the material are either asymmetrically functionalized, such as Janus MoSSe as shown in Fig. 1. Compared with the conventional 2D materials, the electronic properties of the 2D Janus materials have novel features due to the structural symmetry-breaking, which might contribute to the TE properties. In this project, for the first time, we designed a monolayer Janus

structure with the Mexican-hat band,  $\gamma$ -Ge<sub>2</sub>SSe, by replacing the S atoms on one side of the synthesized  $\gamma$ -GeS with Se atoms. Using first-principles calculations based on DFT, we show that  $\gamma$ -Ge<sub>2</sub>SSe is mechanically, dynamically, and thermally stable. With the  $\gamma$ -structure, the Janus  $\gamma$ -Ge<sub>2</sub>SSe shows an intrinsic low lattice thermal conductivity of 3.33

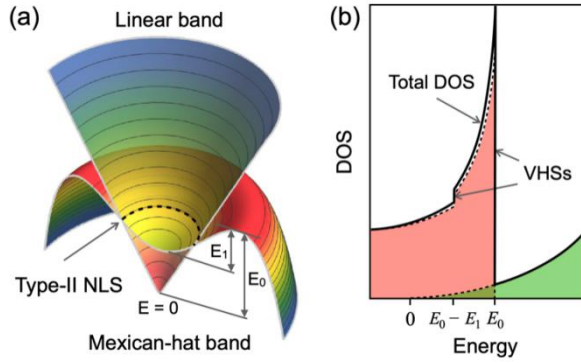


**Figure 1:** 2D Janus MoSSe.

W/mK at room temperature, which will contribute to obtaining high TE efficiency. By using the Boltzmann transport theory, we find that the maximum TE power factor and figure of merit of the Janus  $\gamma$ -Ge<sub>2</sub>SSe reach 55-85 mW/mK<sup>2</sup> and 0.7-0.9 in the temperature range from 300 to 900 K, respectively. Thus, the Janus  $\gamma$ -Ge<sub>2</sub>SSe is suitable for the good TE materials.

**- 3D nodal-line semimetal with the DOS of low-dimensional [Hung et al., Phys. Rev. B 105, 115142-1-5 (2022)]**

In this work, we investigated the TE response of a 3D semimetal with non-trivial band topology (see Fig. 2 (a)), so-called the type II nodal-line semimetal (NLS), by the semi-analytical calculation with the two-band model and the first-principles calculation with Mg<sub>3</sub>Bi<sub>2</sub> as example material. The density of states (DOS) in such a type-II NLS possesses two van Hove singularities near the energy of the nodal line, as shown in Fig.



**Figure 2:** (a) Two-band model for type-II NLS with a linear band and a Mexican-hat band. The dashed line denotes the nodal line. (b) Total density of states (solid line) of the linear band (green) and Mexican-hat band (red) has two van Hove singularities at  $E_0$  and  $E_0 - E_1$ .

2(b), which leads to a large Seebeck coefficient,  $S$ , value compared to the normal metals. We note that this feature often appears in low-dimensional material, where the confinement effect occurs. Combined with the linear band (see Fig.2 (a)) at the nodal line for high electrical conductivity,  $\sigma$ , the type-II NLS can exhibit a relatively high TE power factor  $PF = S^2\sigma$  at the nodal line. In particular, we found  $S \sim 100 \mu\text{V/K}$ , which is more than the upper limit  $k_B/e \approx 87 \mu\text{V/K}$  of metallic, and  $PF \sim 60 \mu\text{W/cmK}^2$  at 300 K for the n-type Mg<sub>3</sub>Bi<sub>2</sub>. Thus, the TE performance of the Mg<sub>3</sub>Bi<sub>2</sub> type II NLS is twice the value of the best-known TE semiconductor material Bi<sub>2</sub>Te<sub>3</sub> at room temperature. The unique DOS of the type-II NLS is important to improve the thermoelectric properties of the semimetal. Our results suggested the type-II NLSs as a potential class of high-performance thermoelectric materials among metals

and semimetals, which are traditionally considered not good thermoelectric materials compared to semiconductors.

**- 3D Dirac/Weyl semimetal with thermoelectric Hall effect [Paratama et al., Phys. Rev. B: Lett. 106, L081304 (2022)]**

Although the TE material is mainly a semiconductor, other emergent materials such as topological materials show many features (high carrier mobility, low thermal conductivity, etc.) that could be beneficial to improve TE properties. For example, the 3D Dirac and Weyl semimetals show the non-saturating Seebeck coefficient,  $S$ , under a high magnetic field,  $B$ , by theoretical study. In contrast, in a recent experiment, a saturated  $S$  appears on the 3D Dirac semimetal  $ZrTe_5$  at high  $B \sim 2$  Tesla. Thus, it is necessary to confirm analytically whether such the saturated  $S$  arises from the intrinsic bulk properties of the 3D Dirac semimetal, or not. In this work, we showed that the saturated value of  $S$  appears as the Seebeck coefficient of 3D Fermi liquid. This phenomenon originates from the existence of the zeroth Landau level of the 3D Dirac fermion, which is independent of  $B$ , and thus can not be satisfied in 3D electron gas in conventional metals or semiconductors. From the experimental point of view, we provide a theory on a phase transition of 3D Dirac semimetal by magnetic field. Our finding will give a solution for explaining the discrepancy between the previous theory and experiment.

**- An book to learn first-principles calculation for solid-state physics [N. T. Hung, A. R. T. Nugraha and R. Saito, Quantum ESPRESSO Course for Solid-State Physics, Jenny Stanford Publishing, 372 pages, (2022) ]**

We published a textbook “Quantum ESPRESSO Course for Solid-State Physics” by Nguyen Tuan Hung, Ahmad R.T. Nugraha, Riichiro Saito. Quantum ESPRESSO is an open software of first-principles calculation for the electronic structure of materials. Nowadays, many researchers can run Quantum ESPRESSO on personal computers without paying any cost of the software. This book is educationally designed for beginners in computational physics and materials science with many tutorials on Quantum ESPRESSO based on many tutorial courses in the world given by the authors. Therefore, it is very practical for students who aim to learn the first-principles calculation. In particular, for the experimental students who wish to run the first-principles calculation themselves to compare the experimental results of new materials directly.

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計16件（うち査読付論文 16件 / うち国際共著 16件 / うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Gulo Desman Perdamaian, Hung Nguyen Tuan, Yang Tan-Ju, Shu Guo-Jiun, Saito Riichiro, Liu Hsiang-Lin	4. 巻 197
2. 論文標題 Exploring unusual temperature-dependent optical properties of graphite single crystal by spectroscopic ellipsometry	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Carbon	6. 最初と最後の頁 485 ~ 493
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.carbon.2022.06.032	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 Pratama F. R., Saito Riichiro, Hung Nguyen T.	4. 巻 106
2. 論文標題 Magneto-Seebeck coefficient of the Fermi liquid in three-dimensional Dirac and Weyl semimetals	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 L081304
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.106.L081304	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 Thanh Vuong Van, Truong Do Van, Tuan Hung Nguyen	4. 巻 6
2. 論文標題 Janus -GeSSe Monolayer as a High-Performance Material for Photocatalysis and Thermoelectricity	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 ACS Applied Energy Materials	6. 最初と最後の頁 910 ~ 919
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsaem.2c03316	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 Natsui Ryusuke, Shimizu Hiroshi, Nakanishi Yusuke, Liu Zheng, Shimamura Akito, Hung Nguyen Tuan, Lin Yung-Chang, Endo Takahiko, Pu Jiang, Kikuchi Iori, Takenobu Taishi, Okada Susumu, Suenaga Kazu, Saito Riichiro, Miyata Yasumitsu	4. 巻 17
2. 論文標題 Vapor-Phase Indium Intercalation in van der Waals Nanofibers of Atomically Thin W6Te6 Wires	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 ACS Nano	6. 最初と最後の頁 5561 ~ 5569
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsnano.2c10997	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 Gulo Desman Perdamaian, Hung Nguyen Tuan, Sankar Raman, Saito Riichiro, Liu Hsiang-Lin	4. 巻 7
2. 論文標題 Exploring optical properties of 2H- and 1T'-MoTe2 single crystals by spectroscopic ellipsometry	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Physical Review Materials	6. 最初と最後の頁 044001-1 ~ 13
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevMaterials.7.044001	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 Hsiang-Lin Liu, Bergitta Dwi Annawati, Nguyen Tuan Hung, Desman Perdamaian Gulo, Pablo Solis-Fernandez, Kenji Kawahara, Hiroki Ago, Riichiro Saito	4. 巻 107
2. 論文標題 Interference of excitons and surface plasmons in the optical absorption spectra of monolayer and bilayer graphene	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 165421
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.107.165421	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 Hung Nguyen T., Adhidewata Jyesta M., Nugraha Ahmad R. T., Saito Riichiro	4. 巻 105
2. 論文標題 Enhanced thermoelectric performance by van Hove singularities in the density of states of type-II nodal-line semimetals	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 115142-1 ~ 5
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.105.115142	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 Shiyi Han, Yan Zhao, Nguyen T. Hung, Bo Xu, Riichiro Saito, Jin Zhang, Lianming Tong	4. 巻 13
2. 論文標題 Complex Raman tensor in helicity-changing Raman spectra of black phosphorus under circularly polarized light	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry Letters	6. 最初と最後の頁 1241 ~ 1248
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcllett.1c03826	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 Vuong V. Thanh, Nguyen V. Duy, Do V. Truong, Nguyen T. Hung	4. 巻 582
2. 論文標題 Effects of strain and electric field on electronic and optical properties of monolayer -GeX (X = S, Se and Te)	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Applied Surface Science	6. 最初と最後の頁 152321 ~ 152321
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.apsusc.2021.152321	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 Wenny V. Sinambela, Sasfan A. Wella, Fitri S. Arsyad, Nguyen T. Hung, Ahmad R. T. Nugraha	4. 巻 11
2. 論文標題 Electronic, optical, and thermoelectric properties of bulk and monolayer germanium tellurides	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Crystals	6. 最初と最後の頁 1290 ~ 1290
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3390/cryst11111290	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 Sake Wang, Nguyen T. Hung, Hongyu Tian, Md Shafiqul Islam, Riichiro Saito	4. 巻 16
2. 論文標題 Switching behavior of a heterostructure based on periodically doped graphene nanoribbon	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review Applied	6. 最初と最後の頁 024030-1 ~ 10
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevApplied.16.024030	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 Riichiro Saito, Muhammad S. Ukhtary, Sake Wang, Nguyen T. Hung	4. 巻 23
2. 論文標題 Selection rule for Raman spectra of two-dimensional materials using circularly-polarized vortex light	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Chemistry Chemical Physics	6. 最初と最後の頁 17271 ~ 17278
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D1CP02209A	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 Thanh Vuong V., Van Nguyen D., Truong Do V., Saito Riichiro, Hung Nguyen T.	4. 巻 526
2. 論文標題 First-principles study of mechanical, electronic and optical properties of Janus structure in transition metal dichalcogenides	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Applied Surface Science	6. 最初と最後の頁 146730 ~ 146730
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.apsusc.2020.146730	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 Hung Nguyen T., Saito Riichiro	4. 巻 4
2. 論文標題 The origin of quantum effects in low dimensional thermoelectric materials	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Advanced Quantum Technologies	6. 最初と最後の頁 2000115 ~ 2000115
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/qute.202000115	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 Thanh Vuong V., Van Nguyen D., Truong Do V., Hung Nguyen T.	4. 巻 54
2. 論文標題 Charge-induced high-performance actuation of borophene	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Physics D: Applied Physics	6. 最初と最後の頁 105504 ~ 105504
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1361-6463/abc8b5	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 Zhang Kunyan, Wang Tong, Pang Xiaoqi, Han Fei, Shang Shun-Li, Hung Nguyen T., Liu Zi-Kui, Li Mingda, Saito Riichiro, Huang Shengxi	4. 巻 102
2. 論文標題 Anisotropic Fano resonance in the Weyl semimetal candidate LaAlSi	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 235162-1 ~ 8
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.102.235162	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10件(うち招待講演 7件/うち国際学会 5件)

1. 発表者名 Nguyen Tuan Hung
2. 発表標題 Searching high thermoelectric performance of atomic layers and topological materials based on the band structures
3. 学会等名 Kick off Symposium on e ASIA JRP: Data driven design of high performance thermoelectrics, Thailand. (招待講演)(国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Nguyen Tuan Hung
2. 発表標題 Designing new materials for energy applications: From thermoelectricity to artificial muscles
3. 学会等名 Vietnam Japan Workshop on Engineering and Environmental Sciences, Thuy Loi University, Dong Da, Vietnam. (招待講演)(国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Nguyen Tuan Hung
2. 発表標題 Thermoelectricity: From low dimensional semiconductors to 3D semimetals
3. 学会等名 1st Conference on Quantum Sciences and Technology (ConQuest 2022), Indonesia. (招待講演)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Nguyen Tuan Hung
2. 発表標題 Entangling heat and charge in quantum material for thermoelectric application
3. 学会等名 The 3rd International Workshop on Engineering Physics, IC MEMS Sensors and Their Applications, Ho Chi Minh, Vietnam (招待講演)(国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Nguyen Tuan Hung
2. 発表標題 3D semimetal for thermoelectricity
3. 学会等名 VANJ Conference 2022 Diversity for an Inclusive Society, The University of Tokyo, Tokyo, Japan. (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Nguyen Tuan Hung
2. 発表標題 Thermoelectric properties of quantum materials
3. 学会等名 Novel Properties and Applications of Low Dimensional Materials Workshop, National Taiwan Normal University, Taipei, Taiwan. (招待講演)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Nguyen Tuan Hung
2. 発表標題 The origin of quantum effects in low dimensional thermoelectric materials
3. 学会等名 NT21: International Conference on the Science and Application of Nanotubes and Low- Dimensional Materials, On-line by Zoom (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Nguyen Tuan Hung
2. 発表標題 Thermoelectric energy conversion of 3D topological insulators
3. 学会等名 The 62th FullerenesNanotubes-Graphene General Symposium
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Nguyen Tuan Hung
2. 発表標題 Artificial muscles for soft robots
3. 学会等名 VANJ Conference 2020 - Science and Technology in the New Normal (招待講演)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Nguyen Tuan Hung
2. 発表標題 Two-channel model for low thermal conductivity of Mg3Bi2
3. 学会等名 The 59th FullerenesNanotubes-Graphene General Symposium
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計1件

1. 著者名 Nguyen Tuan Hung, Ahmad R.T. Nugraha, Riichiro Saito	4. 発行年 2022年
2. 出版社 Jenny Stanford Publishing	5. 総ページ数 372
3. 書名 Quantum ESPRESSO Course for Solid-State Physics	

〔産業財産権〕

〔その他〕

Researchmap <a href="https://researchmap.jp/nguyentuanhung/">https://researchmap.jp/nguyentuanhung/</a> Scopus <a href="https://www.scopus.com/authid/detail.uri?authorId=56912954900">https://www.scopus.com/authid/detail.uri?authorId=56912954900</a> Webpage <a href="https://nguyen-group.github.io">https://nguyen-group.github.io</a>
---

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