

Oral presentation | 9 Applied Materials Science : 9.4 Thermoelectric conversion

📅 Sun. Mar 16, 2025 10:00 AM - 11:15 AM JST | Sun. Mar 16, 2025 1:00 AM - 2:15 AM UTC 🏢 K309
(Lecture Hall Bldg.)

[16a-K309-1~5] 9.4 Thermoelectric conversion

Takafumi Ishibe(Osaka Univ.)

10:00 AM - 10:15 AM JST | 1:00 AM - 1:15 AM UTC

[16a-K309-1]

Anomalous Nernst Effect in Heusler-type $\text{Co}_2\text{Mn}_{1-x}\text{Fe}_x\text{Ga}$ Compounds

Mito Nagase¹, Hidetoshi Myazaki¹, Yoichi Nishino¹, Weinan Zhou², Guangzong Xing², Keisuke Masuda², Yuya Sakuraba² (1.Nagoya Inst. Tech., 2.NIMS)

🎯 Presentation by Applicant for JSAP Young Scientists Presentation Award

10:15 AM - 10:30 AM JST | 1:15 AM - 1:30 AM UTC

[16a-K309-2]

Direct Measurement of Transverse Thermoelectric Effect in WSi_2 Single Crystal

○Shoya Ohsumi¹, Hidetoshi Imai¹, Hikari Manako¹, Shogo Yoshida¹, Ryuji Okazaki¹, Yoshiki Sato² (1.Tokyo Univ. of Sci, 2.Saitama Univ.)

10:30 AM - 10:45 AM JST | 1:30 AM - 1:45 AM UTC

[16a-K309-3]

Angular dependence of thermoelectric power in MoSi_2

○Aina Sakamoto¹, Hikari Mamako¹, Shoya Ohsumi¹, Hidetoshi Imai¹, Yoshiki J. Sato², Shogo Yoshida¹, Ryuji Okazaki¹ (1.Tokyo Univ. of Sci., 2.Saitama Univ.)

🎯 Presentation by Applicant for JSAP Young Scientists Presentation Award 🇬🇧 English Presentation

10:45 AM - 11:00 AM JST | 1:45 AM - 2:00 AM UTC

[16a-K309-4]

Stacking-Dependent Anisotropic Thermoelectric Properties of NbSe_2 Polymorphs based on First-Principles Band Calculations

○(M2)Mark Roa Cleofe¹, Koichi Nakamura¹, Tetsuro Habe¹ (1.Kyoto Univ. Adv. Sci)

🎯 Presentation by Applicant for JSAP Young Scientists Presentation Award 🇬🇧 English Presentation

11:00 AM - 11:15 AM JST | 2:00 AM - 2:15 AM UTC

[16a-K309-5]

Design and fabrication of stair-shaped flexible thermoelectric generator using $\text{Ag}_{1.97}\text{V}_{0.03}\text{S}_{0.55}\text{Se}_{0.45}$ free-standing film for self-powered wearable electronic applications

○(P)Suresh Prasanna Chandrasekar¹, Artoni Kevin R. Ang¹, Masaharu Matsunami¹, Tsunehiro Takeuchi¹ (1.Toyota Technological Institute)

ホイスラー型 $\text{Co}_2\text{Mn}_{1-x}\text{Fe}_x\text{Ga}$ 化合物における異常ネルンスト効果

Anomalous Nernst Effect in Heusler-type $\text{Co}_2\text{Mn}_{1-x}\text{Fe}_x\text{Ga}$ Compounds

名工大¹, 物質・材料研究機構² (M2)長瀬 未都¹, 〇宮崎 秀俊¹, 西野 洋一¹, Zhou Weinan², Xing

Guangzong², 増田 啓介², 桜庭 裕弥²

Nagoya Inst. Tech.¹, NIMS², Mito Nagase,^〇Hidetoshi Miyazaki¹, Yoichi Nishino¹, Weinan Zhou²,

Guangzong Xing², Keisuke Masuda², Yuya Sakuraba²

E-mail: miyazaki@nitech.ac.jp

異常ネルンスト効果は、外部磁場がない状態で磁性材料に垂直な温度勾配を加えると熱起電力が発生する現象であり、IoT デバイスや熱流センサー用の自立型電源への応用が期待されている^[1]。大きな異常ネルンスト係数 (S_{ANE}) を有するためには大きな異常ネルンスト伝導率 (α_{xy}) および異常ホール伝導率 (σ_{xy}) が必要であるが、 $L2_1$ 型 Co_2MnGa 合金は特異な電子構造により、薄膜^[2]や単結晶^[3]において大きな異常ネルンスト係数を持つことが報告されている。Xing らは、 Co_2MnGa の Mn サイトに Fe をドーピングすることで、電子ドーピングによる電子構造のフェルミ準位の最適化により α_{xy} が更に向上する可能性があることを理論的に予測した^[4]。そこで、本研究では、バルク $\text{Co}_2\text{Mn}_{1-x}\text{Fe}_x\text{Ga}$ 多結晶体の合成方法を確立するとともに、 $\text{Co}_2\text{Mn}_{1-x}\text{Fe}_x\text{Ga}$ 化合物の結晶構造、電子構造、 S_{ANE} および α_{xy} の関係を調査した。

$\text{Co}_2\text{Mn}_{1-x}\text{Fe}_x\text{Ga}$ 化合物は、Ar 雰囲気中でアーク溶融によりインゴットを作製し、粉砕した試料を 50 MPa、1173 K、5 分間の放電プラズマ焼結することにより測定用試料を作製した。電子構造は SPring-8 BL46XU での硬 X 線光電子分光法 (HAXPES)、結晶構造は SPring-8 BL02B2 での高分解能粉末 X 線回折 (XRD) 測定によって評価した。 S_{ANE} および α_{xy} は、NIMS において PPMS (Quantum Design 社) の上に測定用試料を設置し、手作りのホルダーを使用して平面温度勾配を与えることで評価した。理論的電子構造、 α_{xy} は、擬ポテンシャル法に基づく第一原理バンド計算コード Quantum Espresso を使用して計算した。

合成した $\text{Co}_2\text{Mn}_{1-x}\text{Fe}_x\text{Ga}$ 多結晶性は、XRD 測定から全試料でホイスラー構造に起因する $L2_1$ ピークが存在し単相であることを確認した。 Co_2MnGa において、 S_{ANE} は $5.4 \pm 0.1 \mu\text{V/K}$ であり、単結晶で報告された $6.0 \mu\text{V/K}$ の値に匹敵する値であった^[3]。しかしながら、 $\text{Co}_2\text{Mn}_{1-x}\text{Fe}_x\text{Ga}$ の α_{xy} および S_{ANE} は、Fe ドーピングにより減少し、理論予測と一致しなかった。そこで我々は最も単純な Co_2MnGa ($x=0$) に着目しその原因を考察した。図 1 に示す HAXPES により観測した Co_2MnGa の価電子帯スペクトルは、Co サイトへ Coulomb 相互作用 ($U=3\sim 4 \text{ eV}$) を追加した第一原理計算により理論的に再現することができた。そこで、図 2 に示すように Co サイトに U を追加した際の $\text{Co}_2\text{Mn}_{0.8}\text{Fe}_{0.2}\text{Ga}$ における α_{xy} を計算したところ、 $U=3 \text{ eV}$ で実験値を再現することができた。この結果は、ホイスラー型 Co_2MnGa 化合物において、Co サイトへの電子相関の効果を適切に考慮することにより、 α_{xy} を正確に予想できることを示しており、今後、理論計算により効率的に高い異常ネルンスト効果を示す材料の探索が可能になることを明らかにした。

参考文献：

- [1] K. Uchida *et al.*, Appl. Phys. Lett. **118**, 140504, (2021).
- [2] K. Sumida *et al.* Commun. Mater. **1**, 89 (2020).
- [3] A. Sakai, *et al.*, Nat. Phys. **14**, 1119, (2018).
- [4] G. Xing *et al.*, Acta Mater. **270**, 119856 (2024).

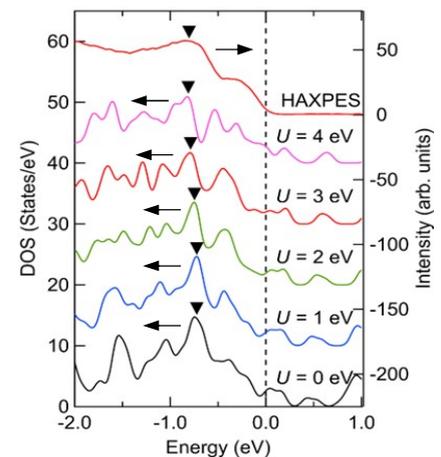


図 1 Co_2MnGa の価電子帯光電子スペクトルおよびバンド計算から求められた電子構造の Co サイトへの U 依存性。

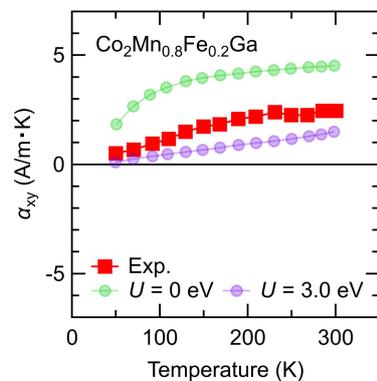


図 2 $\text{Co}_2\text{Mn}_{0.8}\text{Fe}_{0.2}\text{Ga}$ における α_{xy} の実験値および Co サイトへの Hubbard- U を追加した際に得られた理論計算の温度依存性。

WSi₂における横型熱電変換の直接測定

Direct Measurement of Transverse Thermoelectric Effect in WSi₂ Single Crystal

東理大創域理工¹, 埼玉大理工² °(M1)大隅 翔也¹, (B)今井 秀俊¹, (M2)眞子 日佳里¹,
吉田 章吾¹, 岡崎 竜二¹, 佐藤 芳樹²

Tokyo Univ. of Sci.¹, Saitama Univ.², °(M1)Shoya Ohsumi¹, (B)Hidetoshi Imai¹,
(M2)Hikari Manako¹, Shogo Yoshida¹, Ryuji Okazaki¹, Yoshiki J. Sato²

E-mail: 6224508@ed.tus.ac.jp

横型熱電変換は熱と電気を直交方向に変換する技術で、フレキシブルな熱電変換デバイスへの応用が期待されている[1]。様々な横型熱電変換材料の候補物質が提案されているが、その検証は横ゼーベック係数の測定に留まっており、横型熱電変換の直接的な測定手法の確立が求められている。

本研究では、ゼーベック係数の符号が軸方向によって異なる軸依存伝導極性を示す WSi₂ 単結晶に注目した[2, 3]。このような物質は、温度勾配を異なる結晶軸の間につけることで直交方向に熱起電力が生じることが知られており、単一物質での横型熱電変換が可能である[4]。我々は、図 1 のように結晶軸の間に温度勾配をつけ、4 つの熱電対で縦方向、横方向の熱起電力と温度差を直接測定した。図 2(a)に縦方向、横方向それぞれの温度差を示した。温度勾配をつけた縦方向に大きな温度差が生じていることがわかる。一方、図 2(b)は縦方向、横方向それぞれの熱起電力を示しているが、横方向に大きな熱起電力が生じている。これは、横型熱電変換が WSi₂ 単結晶内で実際に達成されたことを示す結果である[3]。本講演では、測定結果に関してより詳細な議論を行う予定である。

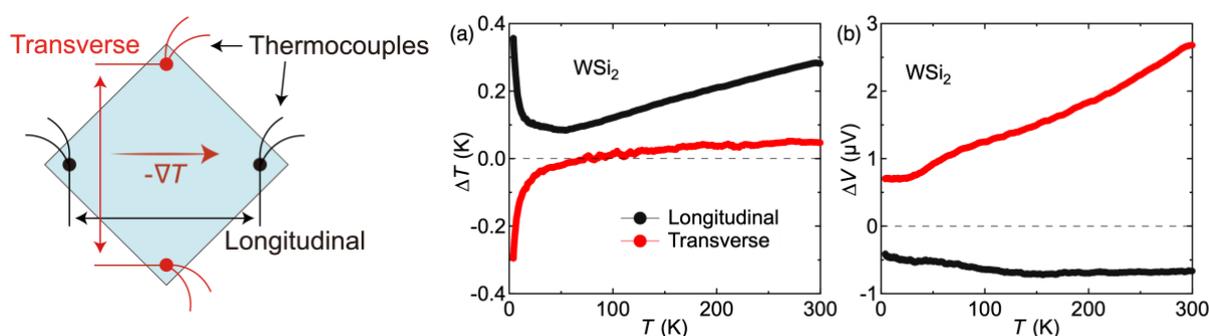


Fig. 1. Schematic image of the transverse thermoelectric measurement. Fig. 2. Temperature dependent temperature difference (a) and voltage drop (b) along the transverse (red) and the longitudinal (black) direction.

[1] H. Tanaka *et al.*, *Adv. Mater.* **35**, 38 (2023).

[3] S. Ohsumi *et al.*, *PRX Energy* **3**, 4 (2024).

[2] K. G. Koster *et al.*, *Chem. Mater.* **35**, 11 (2023).

[4] K. Uchida and J. P. Haremans, *Joule* **6**, 10 (2022).

MoSi₂における熱起電力の角度依存性

Angular dependence of thermoelectric power in MoSi₂

東京理科大¹, 埼玉大² ○(B)坂本 愛奈¹, (M2)眞子 日佳里¹, (M1)大隅 翔也¹,

(B)今井 秀俊¹, 佐藤 芳樹², 吉田 章吾¹, 岡崎 竜二¹

Tokyo University of Science¹, Saitama University², °Aina Sakamoto¹, Hikari Manako¹,

Shoya Ohsumi¹, Hidetoshi Imai¹, Yoshiki J. Sato², Shogo Yoshida¹, Ryuji Okazaki¹

E-mail: 6221053@ed.tus.ac.jp

熱エネルギーを直接電気エネルギーに変換する熱電発電は持続可能な社会を実現するための有望な技術の1つである^[1]。ゼーベック係数を用いた熱電変換素子は縦型熱電効果を用いたものと横型熱電効果を用いたものがある。縦型熱電効果は温度勾配と平行方向に熱起電力を発生させる現象であり、横型熱電効果は温度勾配と直交方向に熱起電力を発生させる現象である。縦型熱電効果を用いた熱電変換素子は多くの接合構造を形成する必要があるのに対し、横型熱電効果を用いた熱電変換素子は単一材料で熱起電力を増強できるため、横型熱電効果を示す材料が注目されている^[1]。

本研究では結晶構造に由来する異方的電子・ホール伝導により横型熱電効果を示す軸依存伝導極性材料^[1,2,3]である MoSi₂ を用いて最大の熱起電力がどの角度に現れるのかを調べた。Fig.1 は生じた電場の角度依存性を示したものであり、赤線は電場のデータをフィッティングしたものである。実験の結果、熱起電力が最大となる角度は温度勾配に対して 90° 方向ではなく、115° 方向（赤矢印）に現れた。角度依存性の実験結果及びサーモグラフィーで読み取った温度勾配の値 (Fig.2) を用いて *a* 軸方向のゼーベック係数 S_{aa} 及び *c* 軸方向のゼーベック係数 S_{cc} を求めたところ、それぞれ $S_{aa} = 6.6 \mu\text{V/K}$, $S_{cc} = -10.9 \mu\text{V/K}$ であり、先行研究^[4]と同程度の値を得た。講演では熱起電力の角度依存性の結果から、このゼーベック係数の導出を行う過程について詳しく議論する。

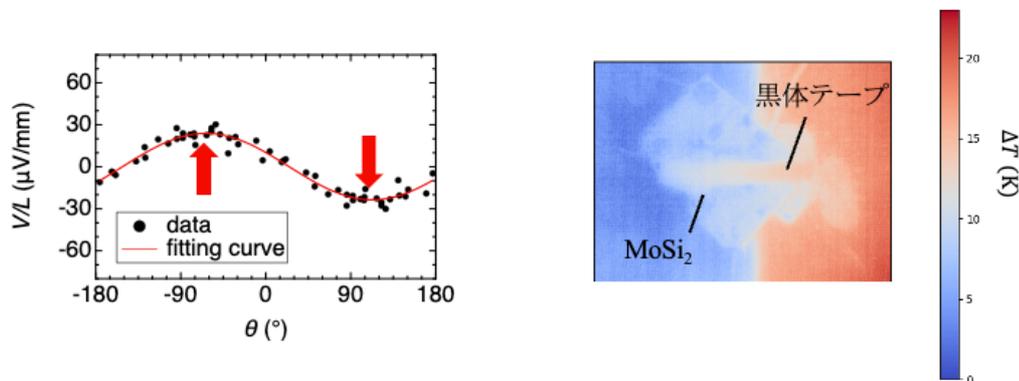


Fig.1: Angular dependence of thermoelectromotive power in MoSi₂ at room temperature.

Fig.2: Thermographic image of the MoSi₂ single crystal under temperature gradient.

[1] K. Uchida and J.P. Heremans, *Joule* 6, 2240 (2022).

[3] S. Ohsumi *et al.*, *PRX Energy* 3, 4 (2024).

[2] H. Manako *et al.*, *Nat. Commun.* 15, 3907 (2024).

[4] 眞子日佳里ら, 日本物理学会第 79 回年次大会.

Stacking-Dependent Anisotropic Thermoelectric Properties of NbSe₂ Polymorphs based on First-Principles Band Calculations

Kyoto University of Advanced Science, Graduate School of Engineering

○Mark Edwin Cleofe, Jr., Koichi Nakamura, Tetsuro Habe

E-mail: 2023mm02@kuas.ac.jp

I. Introduction

Interlayer stacking sequences lead to variations in the physical properties of 2D transition metal dichalcogenides (TMDCs) compared to their bulk counterparts. Various configurations can be realized primarily due to weak van der Waals (vdW) interactions in-between the layers [1]. Additionally, the stacking orders can determine crystal symmetry which significantly influences the electronic band dispersions [2]. Layered Niobium Diselenide (NbSe₂), one of the emerging TMDCs, has attracted significant attention due to its unique physical properties. However, much of the current literature has focused on 2H_a, its most stable configuration, leaving behind a limited attention to several metastable structures, such as 2H_c, 3R, and 2H-3R. Here, we investigate the in-plane and out-of-plane thermoelectric transport properties of 2H_a, 2H_c, 3R, and 2H-3R phases of NbSe₂, including Seebeck coefficient S , electrical conductivity σ , electronic thermal conductivity κ_e , and thermoelectric power factor $S^2\sigma$.

II. Methods

The optimized crystal and electronic band structures of the various NbSe₂ stacking configurations were obtained using density functional theory (DFT). The total electronic energy for each configuration was numerically computed using Quantum ESPRESSO [3]. The calculations are performed using the projector augmented wave method with the Perdew-Burke-Ernzerhof exchange-correlation (XC) functionals. The effects of the vdW interactions were accounted for by incorporating vdw-df-C6 as a correction to the XC functional [4]. The lattice structure and atomic positions were optimized with thresholds set at 1×10^{-5} hartree and 1×10^{-4} hartree/bohr for the total energy and forces on atoms, respectively. The electronic band structures and density of states (DOS) are calculated using the optimized structure for further transport coefficients calculations. The thermoelectric coefficients are calculated by applying the first-principles band structures to the semi-classical Boltzmann transport equation with constant relaxation time approximation. The Fermi velocity v_F calculations are numerically calculated by using the multi-orbital tight-binding Hamiltonian reproducing the first-principles band structure on the Wannier function basis.

III. Results and Discussions

FIG. 1 illustrates the strong anisotropic transport behavior along the in-plane and out-of-plane directions of the layered NbSe₂ materials. Aside from a change of sign, the charge density at which the in-plane Seebeck coefficient crosses the zero value varies with the stacking sequence; however, no significant change in amplitude was observed. In contrast, the out-of-plane Seebeck coefficient did not undergo a sign change, but the amplitude was strongly influenced by the stacking structure. Analysis of the Fermi velocities reveals that while having higher v_F in the out-of-plane direction, the transverse electrical and electronic thermal conductivities of the various structures remain limited due to the weak vdW coupling. On the other hand, the low out-of-plane v_F in the 2H_c configuration leads to the highest out-of-plane Seebeck coefficient among the stacking orders. These differences are due to the variations in the electronic structure among the stacking sequences. In-depth analysis of the relationship between the transport coefficients and the Fermi velocities will be discussed in the presentation.

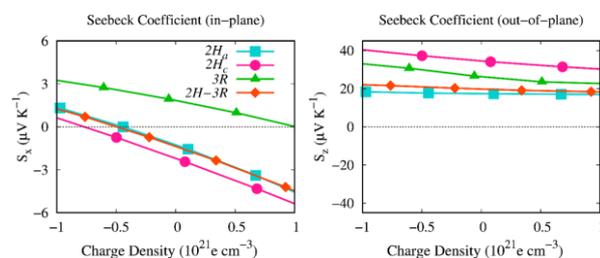


FIG. 1 Seebeck coefficient of 2H_a, 2H_c, 3R, and 2H-3R stacking configurations of NbSe₂ at 300°K as functions of charge density.

References:

- [1] M. Marezio, *et al.*, J. Solid State Chem. **4**, 425 (1972).
- [2] F. Zhang, *et al.*, Phys. Rev. B. **82**, 035409 (2010).
- [3] P. Giannozzi *et al.*, J. Phys.: Condens. Matter **21**, 395502 (2009).
- [4] R. Sabatini, *et al.*, J. Phys.: Condens. Matter **24**, 424209 (2012)

Design and fabrication of stair-shaped flexible thermoelectric generator using $\text{Ag}_{1.97}\text{V}_{0.03}\text{S}_{0.55}\text{Se}_{0.45}$ free-standing film for self-powered wearable electronic applications

Toyota Tech. Inst.¹, °Suresh Prasanna C¹, Artoni Kevin R. Ang¹, Masaharu Matsunami¹, Tsunehiro Takeuchi¹

E-mail: c-s-prasanna-24@toyota-ti.ac.jp

Abstract

Miniaturization of electronic devices has become one of the latest trends of modern technology. Flexible Thermoelectric Generators (f-TEGs), being thin and safe, are the promising replacements for the conventional batteries in mobile applications. Generally, there exists an inverse relation between the thickness of the thermoelectric (TE) material and the thermal gradient (∇T) experienced across it. This raises a limitation against the simultaneous achievement of large flexibility and high output power. The current work, therefore, focuses on a facile approach to fabricate a stair-shaped f-TEG using a high-performance $\text{Ag}_{1.97}\text{V}_{0.03}\text{S}_{0.55}\text{Se}_{0.45}$ based compound with superior ductility at room temperature. The ductility of the material allows us to fabricate a 0.2 mm thick flexible free-standing film via simple mechanical rolling on the sintered $\text{Ag}_{1.97}\text{V}_{0.03}\text{S}_{0.55}\text{Se}_{0.45}$. The fabricated stair-shaped f-TEG using the free-standing film have demonstrated superior flexibility, coupled with effectively high thermal gradient and high output power. As shown in fig.1 (c), the preliminary results exhibited a ∇T of ~ 4 K and output voltage ~ 0.3 mV with a single TE leg even in the absence of an efficient heat sink. These findings highlight the potential of our design strategy for advanced self-powered wearable electronic applications.

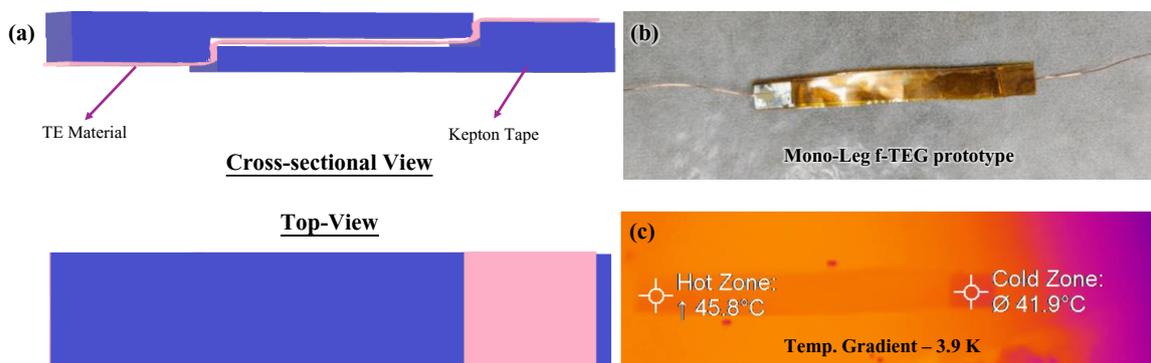


Fig. 1. (a) Schematic representation of stair-shaped f-TEG (b) Photograph of the mono-leg f-TEG prototype (c) Infra-red image of the mono-leg f-TEG on the heat source.