

B14

Bi-Sb 합금의 자기-열전특성

한서대학교 장 경욱*

연세대학교 이 동희

Magneto-thermoelectric Properties of Bi-Sb alloys

Hanseo University Kyung-Wook Jang

Yonsei University Dong-Hi Lee

1. 서론

열전재료는 Bi_2Te_3 계, PbTe 계, Si-Ge 계 등 사용온도 범위에 따라 열전특성이 나뉘고 있다. 200K 이하의 온도에서는 일반적으로 Bi-Sb 합금의 열전특성이 가장 우수하고, 특히 이 재료가 갖는 자기-열전효과(magneto-thermoelectric effects)를 이용하면 더욱 열전 성능을 향상시킬 수 있는 것으로 알려져 있다. 더욱이 이 합금에서는 자기, 열, 전기장의 복합적인 작용으로 발생하는 열-자기효과(thermo-magnetic effects) 중 Ettingshausen 효과가 다른 열전재료에 비해 현저하게 커서, 이를 이용한 단일재료의 열전소자의 제조가 가능하다.

이러한 관점에서 Bi-Sb 합금은 극저온을 얻기 위한 냉각 module 용 재료로서 적용될 가능성이 매우 클 것으로 전망된다. 따라서 본 연구에서는 Sb의량을 0~15at% 까지 달리하여 Bi-Sb 합금을 일방향응고하여 제조한 단결정에 대해 열전특성에 미치는 자장의 영향을 조사하였다.

2. 실험방법

순도 99.99%의 Bi 와 Sb 를 사용하여 조성에 맞는 모합금을 제조한 후, 이를 석영관에 장입하여 10^{-5} torr 의 진공하에서 봉입하여 수직 Bridgeman 법으로 외경 13mm의 단결정 시편을 제조하였다. 이 때 결정성장온도는 온도구배 25°C, 속도 2mm/hr 의 조건으로 행하였다.

단결정으로부터 3×3×12mm의 시편을 취하여 일정온도구배법으로 Seebeck 계수, 4 point probe 법으로 전기전도도, Z-meter 법으로 성능지수를 100K부터 상온 까지의 온도 범위에서 측정하였다. 또한 전류와 수직인 방향으로 10 kG 까지의 자장을 가하여 자기-열전특성 즉, 자장의 세기에 따른 열전특성의 변화를 조사하였다.

3. 실험결과 및 고찰

Bi-Sb 합금에서 Sb 가 증가할수록 에너지 금지대의 폭이 커지고, 따라서 열전특성에 영향을 주는 것으로 알려져 있다. 그러나 열전특성이 최대가 되는 Sb 량에 대해서는 연구자들간에 다소 차이를 보이고 있다. 그림 1에 Sb 량을 달리한 Bi-Sb 합금의 열전특성의 온도에 따른 변화를 나타내었다. Seebeck 계수는 Sb 가 증가할수록 순수 Bi 의 $-80\mu\text{VK}^{-1}$ 로 부터 15 at% Sb 합금의 $-100\sim-120\mu\text{VK}^{-1}$ 까지 증가하였다. 이는 에너지 금지대의 폭(E_g)이 증가한 것 때문이라고 판단된다. 즉 Jain 등에 의하면 Sb 가 12at% 일 때 E_g 는 0.014eV 로 최대가 되며, Seebeck 계수는 일반적으로 E_g 가 클수록 증가하기 때문이다. 전기전도도는 Sb가 증가함에 따라 1/3~1/2 배 정도 감소하였다. 한편 순수한 Bi 와 5at% Sb 합금에서는 온도가 높아짐에 따라 전기전도도가

감소하는 금속형 특성을 보이는 반면, 15at% Sb 합금에서는 미미하게 증가하는 반도체 특성을 나타내고 있다. 열전도도는 Sb가 증가함에 따라 현저히 감소하는 경향을 보였다. 이는 고용체 형성으로 유발된 strain field 에 의해 phonon의 산란이 증가하였기 때문으로 판단된다.

그림 2는 상온에서 열전특성에 미치는 자장의 효과를 조사한 결과이다. 순수함 Bi에서 Seebeck 계수에 미치는 자장의 효과는 거의 없었으나, Bi-Sb 합금에서는 가해진 자장의 세기가 커질수록 Seebeck 계수가 증가하였다. 전기전도도는 자장의 세기가 커짐에 따라 감소하는 경향을 보이며, 순수한 Bi에 비해 Bi-Sb 합금에서 변화의 폭이 작았다. 이는 합금화에 의해 carrier 농도가 현저하게 감소하여 carrier 이동에 미치는 자장의 영향이 적었기 때문으로 판단된다. 한편 Bi-Sb 합금의 열전도도는 자장에 의존하지 않았고 이는 Bi-Sb 고용체 합금에서 열전도는 carrier에 의존하지 않는 격자열전도의 기여가 크다는 것을 의미한다.

4. 결 론

200K 이하의 저온용 열전 module 용 소자의 재료로서 유망한 Bi-Sb 합금의 열전 특성에 미치는 Sb 합금량과 외부 자장의 효과를 조사 분석하여 다음과 같은 결과를 얻었다.

- (1) Bi-Sb 합금의 Seebeck 계수와 전기전도도는 온도가 낮아짐에 따라 증가하였고, 열전도도는 거의변하지 않았다. 성능지수는 120K 부근에서 $8 \times 10^{-3} \text{ K}^{-1}$ 을 보였다.
- (2) 상온에서 Bi-Sb 합금의 열전특성에 미치는 자장의 효과를 조사한 결과, Seebeck 계수는 자장이 커짐에 따라 증가하였고, 전기전도도는 감소하는 반면, 열전도도는 변화가 미미하였다.

5. 참고문헌

- [1] W.M. Yim and F.D. Rosi, Solid State Electronics 15, 1121(1972)
- [2] G.E. Smith and R. Wolfe, J. Appl. Phys. 33, 841(1962)
- [3] R. Wolfe and G.E. Smith, Appl. Phys. letters 1, 841(1962)
- [4] C.F. Kooi et al, J, Appl. Phys. 34, 1735(1963)
- [5] R.B. Horst and L.R. Williams, Proc. 3rd. ICTEC, Arlington, Texas, 183(1980)
- [6] H.J. Goldsmid, 1st European Conf. on Thermoelectrics, 340(1988)
- [7] A.L. Jain, Phys. Rev. letters 9, 1225(1963)