

기계적 합금화법에 의해 제조된 Au첨가 BiSbTe 합금의 열전특성의 이방성

민왕기*, 이창호, 박용호, 박의민

부산대학교 재료공학과

Anisotropy of thermoelectric properties of Au added BiSbTe alloys prepared by MA-PDS process

Wang-Kee Min*, Changho Lee, Yong-Ho Park, Ik-Min Park

School of Materials Science and Engineering, Pusan National University

1. 서론

Bi-Sb-Te 화합물은 상온에서 동작하는 열전냉각소자로서 폭넓게 사용되고 있으며, 많은 연구가 진행되고 있다. 기존의 증기 압축식 냉각방식에 비해 무소음, 무진동, 소형경량화 환경 친화적인 특성을 가지고 있으며 일반적으로 열전재료의 효율은 성능지수 Z 로 나타낸다. Z 값은 $S^2\sigma/k$ 로 나타내고, 이때 S 는 Seebeck 계수, σ 는 전기전도도, k 는 열전도도이다.

지금까지의 연구에서는 단결정의 Bi-Sb-Te 화합물에 도핑원소를 첨가한 열전재료가 가장 높은 성능지수를 나타내고 있지만 결정구조가 c 축이 a 축에 약 7배가 긴 hexagonal 구조를 가지고 있어 전기적 이방성이 아주 크고, c 축에 평행한 면에 따라 벽개파괴가 일어나기 쉽다는 단점을 가지고 있다. 분말야금 법으로 단결정 열전재료를 제조하면 열전도도를 감소시킬 수 있고, 조직 미세화를 통하여 기계적 강도의 향상을 기대할 수 있을 것으로 예상된다.

본 연구에서는 기계적 합금화법(Mechanical Alloying ; MA)에 의해 제조된 Au첨가 $\text{Bi}_1\text{Sb}_3\text{Te}_6$ 합금의 열전특성의 이방성에 대하여 상세히 조사하였다.

2. 실험방법

$\text{Bi}(99.99\%, <150\mu\text{m})$, $\text{Sb}(99.99\%, <150\mu\text{m})$, $\text{Te}(99.99\%, <150\mu\text{m})$, $\text{Au}(99.99, <180\mu\text{m})$ 분말을 $\text{Bi}_1\text{Sb}_3\text{Te}_6 + \text{Xwt.\%}$ ($X=0, 0.01, 0.02, 0.03, 0.05, 0.1, 0.3$)의 조성으로 혼합하여 $\text{Ar}(+5\%\text{H}_2)$ 분위기 중에서 stainless steel 용기와 지르코니아 볼을 사용하여 200시간, 주파수 25Hz로 진동볼밀을 이용하여 MA를 하였다. MA에 의해 제조된 합금분말을 $75\mu\text{m}$ 이하로 sieving 한 후, 통전가압 소결장치(Pulse Discharge Sintering ; PDS)를 이용하여 소결하였다. PDS시의 온도, 압력 및 시간은 각각 618K, 56MPa 및 10분으로 하였다. Seebeck계수는 직육면체형태의 시험편의 양끝에 10-30K의 온도차를 두어서 측정하였다. 열전도도는 레이저 플래쉬법에 의해 측정된 열확산율, 밀도, 비열을 각각 측정하여 계산하였다. 열전특성의 이방성평가에는 소결방향과 평행인 방향 및 수직인 방향의 두 방향을 측정하였다.

3. 결과 및 고찰

Fig. 1에서는 실험에 사용된 재료들의 power factor와 열전도도를 나타내었다. Au첨가량에 관계없이 소결방향에 수직인 방향의 power factor 및 열전도도가 수평방향보다 높은 것을 알 수 있다. 이는 수직방향의 전기 및 열전도도가 수평방향보다 더 높음을 의미한다. Hall효과 측정결과에서도 알 수 있듯이 Au의 첨가량에 따라 전체적으로 carrier의 농도는 높아지지만 수직 방향과 수평방향을 비교하면 Au의 량에 관계없이 수직방향이 수평방향보다 높음을 알 수 있다.

Fig.2는 Fig. 1의 값으로부터 계산된 성능지수의 변화를 나타내었다. 방향에 상관없이 거의 동등한 값을 나타냄을 알 수 있다. 성능지수 값에서 차이가 나지 않는 것은, 수직방향 시편의 전기전도도 및 power factor가 수평방향에 비하여 높은 값을 가지지만 동시에 열전도가 증가하여 성능지수에는 변화가 미치지 않는다. 수직방향의 전도도가 증가하는 이유는 다음과 같이 생각된다. X선회절결과에 의하면, Au의 첨가여부에 상관없이 수직방향의 (110)면의 peak의 강도가 (1010)면의 peak의 강도보다 높음을 알 수 있다. 이는 (110)면의 증가가 전도도의 증가에 기인한 것으로 생각된다.

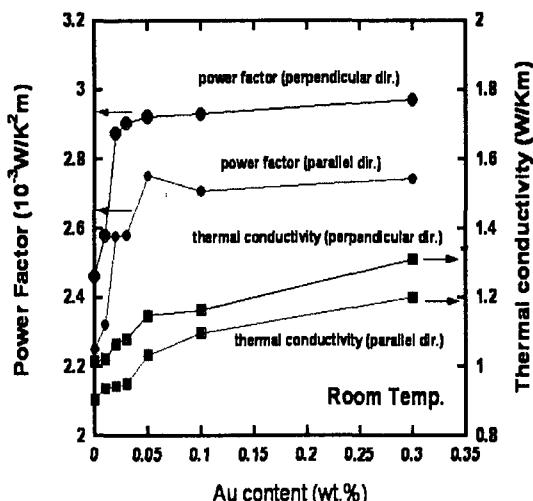


Fig 1. Effect of Au and directionality on the power factor and conductivity of $\text{Bi}_1\text{Sb}_3\text{Te}_6$ alloy

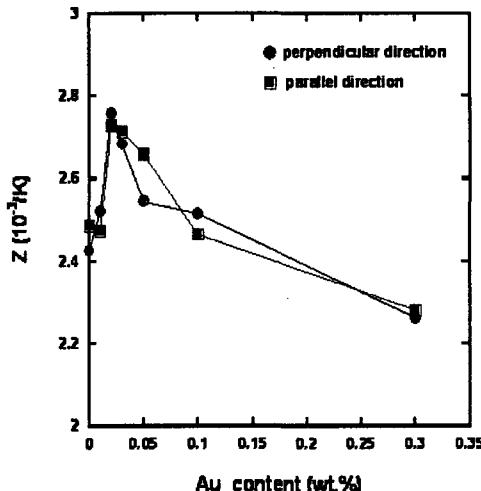


Fig 2. Effect of Au and directionality on the thermoelectric figure of merit of $\text{Bi}_1\text{Sb}_3\text{Te}_6$ alloy

4. 결론

MA-PDS 방법으로 제조한 $\text{Bi}_1\text{Sb}_3\text{Te}_6$ 합금 열전재료의 소결방향에 따른 열전성질의 이방성을 조사하였다. Au의 첨가량에 관계없이 수직방향의 시편이 수평방향에 비하여 높은 전기전도도를 나타내었다. 이것은 X선회절 결과 (110)면의 세기의 증가가 기여한 것으로 판단된다. 수평방향과 수직방향 모두 power factor의 증가와 함께 열전도도 또한 높아져서 성능지수 Z의 값은 변하지 않았다. 즉 열전성질의 이방성은 나타나지 않았다.