

缺陷结构演化实现高性能热电材料研究获进展

热电转换技术能够通过塞贝克效应（Seebeck effect）和帕尔贴效应（Peltier effect）实现热能与电能直接相互转换。基于该技术制备的热电器件具有系统体积小、无运动部件、无噪声、无损耗和无污染等优点，在深空探测、固态制冷和精确控温等领域有重要应用。热电转换效率主要由材料的无量纲热

电优值（ZT值）决定（ $ZT = S^2 \sigma T / \kappa$ ）。为了获得高ZT值，热电材料需要同时具有高的温差电动势（S）和电导率（ σ ）及低热导率（ κ ），但三个参数协同调控困难。数年来，热电材料的ZT值处于1.0左右，热电转换效率较低。

近日，中国科学院理化技术研究所低温材料及应用超导研究中心与清华大学、日本国立材料研究所等研究机构合作，提出了缺陷结构演化调控热电输运性能、提升ZT值的研究策略，为实现高性能热电材料研究提供了新思路。

该研究通过调控制备工艺诱导本征Ge空位进行高维定向演化，在碲化锗材料中构建了从原子尺度的点缺陷、纳米尺度的位错和电畴到微观尺度的晶界的多级结构。研究通过DFT计算可知GeTe中的位错形成能为-38 meV/atom，理论上证实了可以通过Ge空位的调控形成大量的位错和位错网络。这显著降低了晶格热导率，实验得到Bi_{0.07}Ge_{0.90}Te-873的最小晶格热导率仅0.48 Wm⁻¹K⁻¹，接近于理论最小值。此外，高维缺陷的构建弱化了载流子散射，在不影响Seebeck系数的前提下，提高了Hall迁移率和电导率，实现了电导率与Seebeck系数的解耦，大幅提升了电输运性能。由于热导率和电学性能的解耦调控，材料的ZT值达到2.3以上的水平，且在300 K-798 K的温度段范围内获得了1.56的平均ZT值，这是目前已报道的最高值。基于该GeTe基热电材料制备了单臂热电器件，获得了144 mW的功率和1.82 Wcm⁻²的功率密度，优化修正后的最高转换效率达到11%。

该研究提出了缺陷结构演化协同调控热电输运性能、提高热电优值的新思路。相关研究成果以Evolution of defect structures leading to high ZT in GeTe-based thermoelectric materials为题，发表在《自然-通讯》（Nature Communications）上。研究工作得到理化所低温材料及应用超导研究中心的支持。

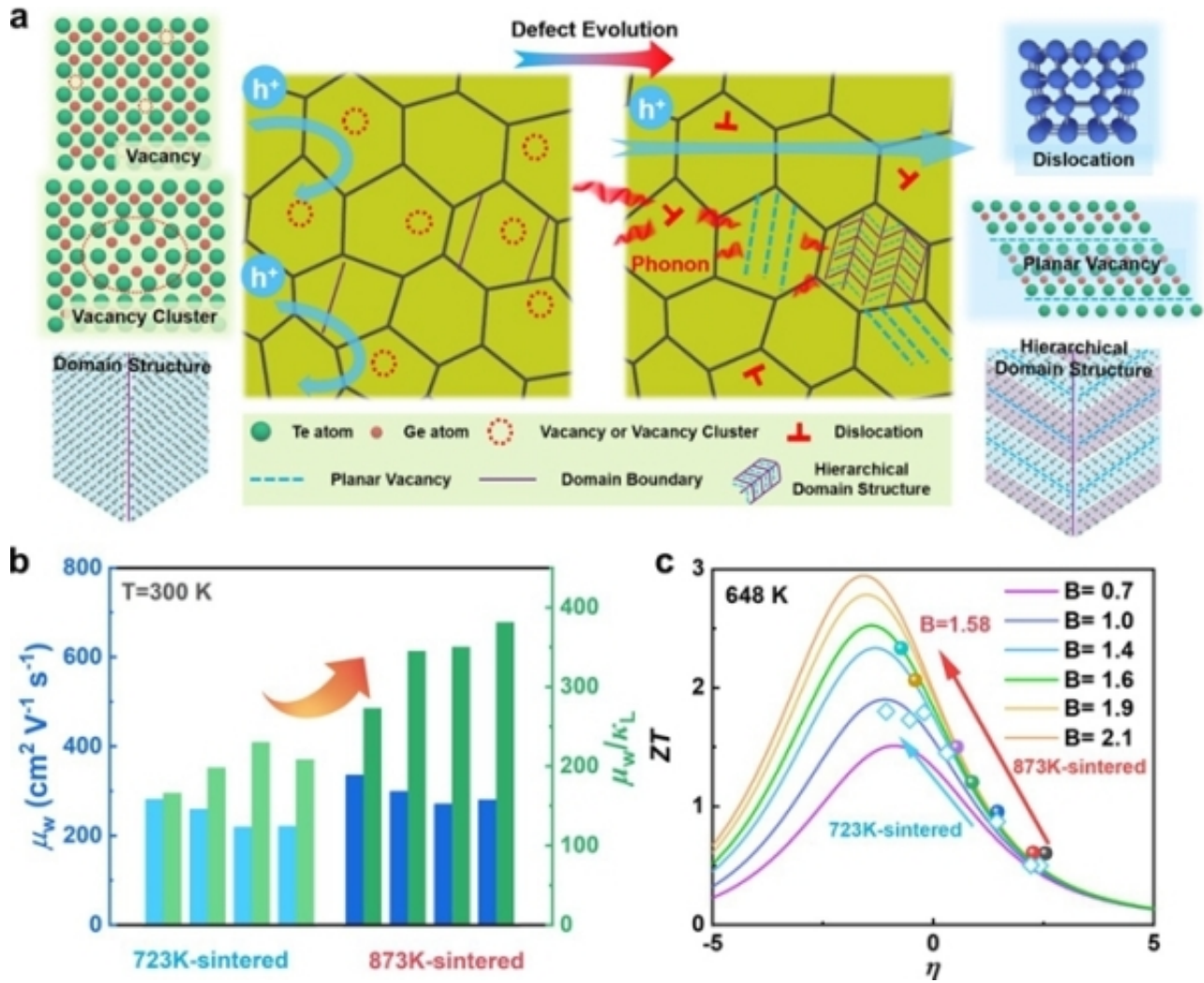


图1.缺陷结构演化实现对电声输运性能的协同调控。(a) 缺陷结构演化调控电声输运特性示意图；(b) 873 K烧结样品的加权迁移率以及加权迁移率和晶格热导率的比值与723 K烧结样品的对比；(c) 648 K温度下ZT值与简约费米能级及不同品质因子的关系。

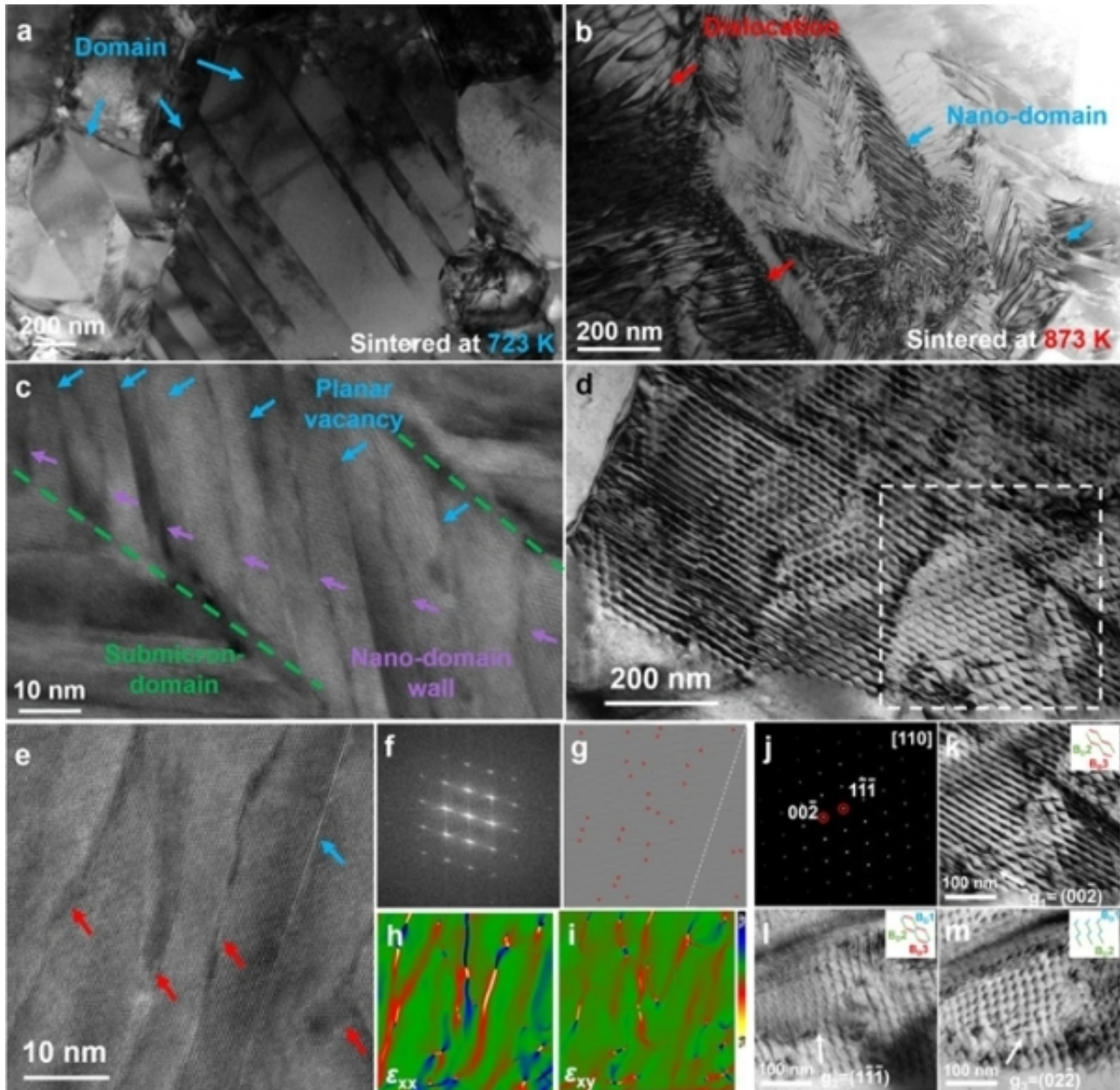


图2.空位诱导缺陷结构演化的TEM表征。(a、b) 723 K和873 K烧结温度下样品的形貌对比；(c) 在(b)图中随机选取一处展示出的纳米畴结构的高分辨TEM图；(d) 一处873 K烧结样品中观察到的位错网络；(e-i) 随机选取的一处带有位错和空位层缺陷的高分辨TEM及其FFT、IFFT和应变分布图；(j-m) 位错网络的选取电子衍射图及不同g矢量(衍射矢量)方向下的形貌图。

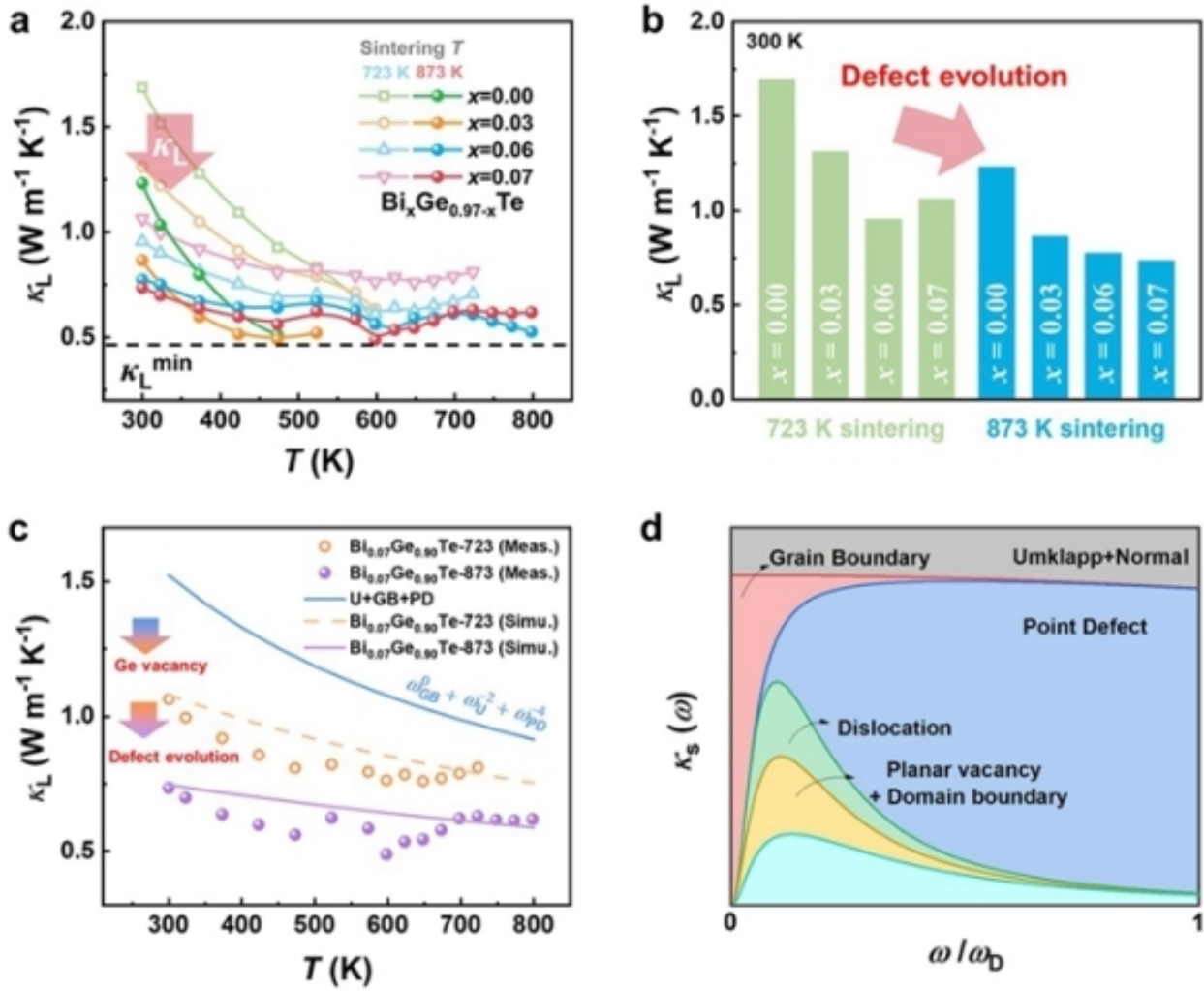


图3.缺陷结构演化对热导率调控的机理。(a)不同温度烧结样品的晶格热导率随温度的变化图；(b)873 K烧结样品的室温晶格热导率与723 K烧结样品的对比；(c)Debye-Callaway模型计算得到的缺陷演化对晶格热导率的贡献与实测样品晶格热导率较好吻合；(d)Debye-Callaway模型计算的不同缺陷对声子散射的贡献。

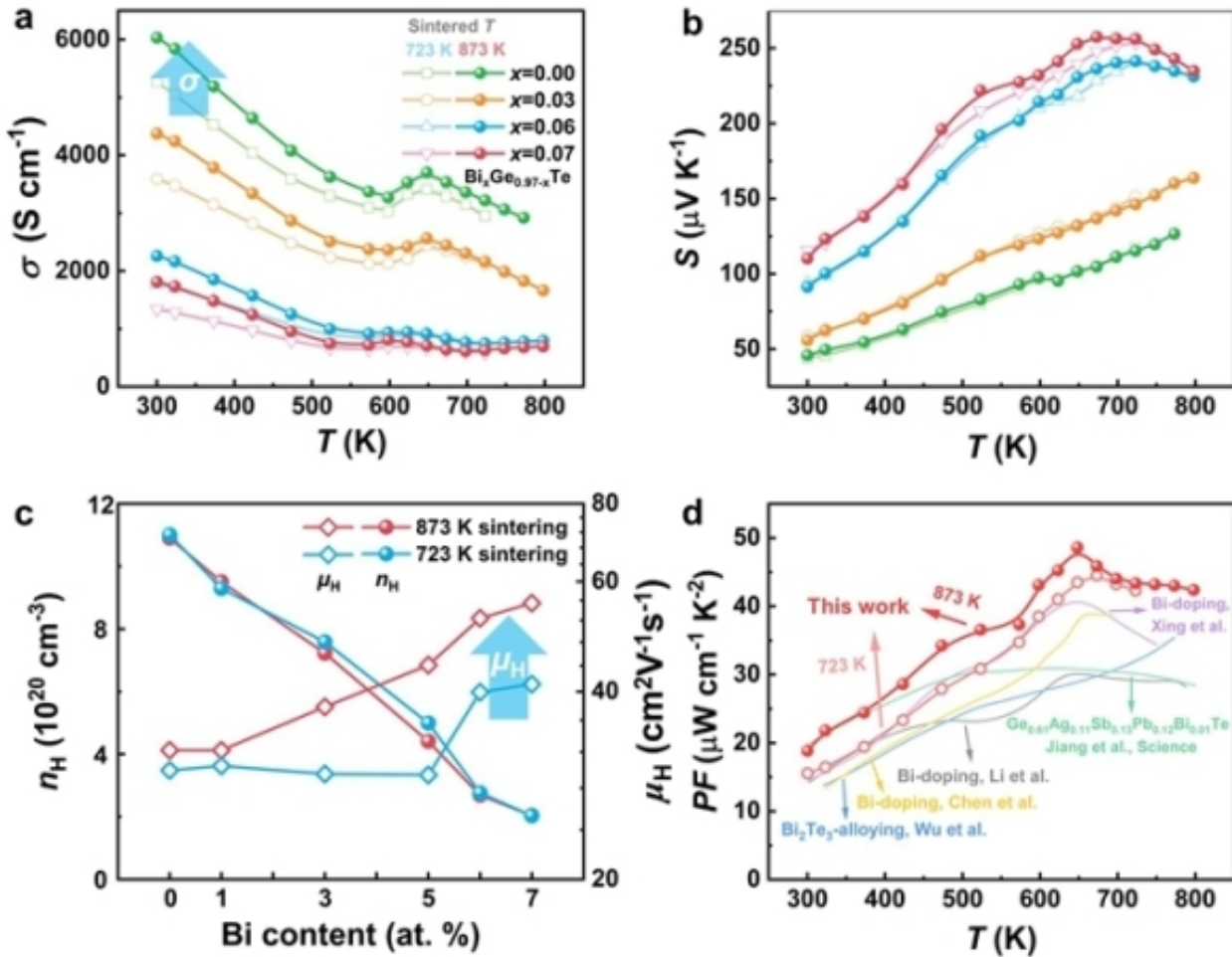


图4.缺陷结构演化对电输运性能的影响。(a、b)电导率和Seebeck系数随温度变化的趋势图；(c)室温下Hall载流子浓度和迁移率的变化情况；(d)功率因子随温度的变化及与其他文献的对比情况。

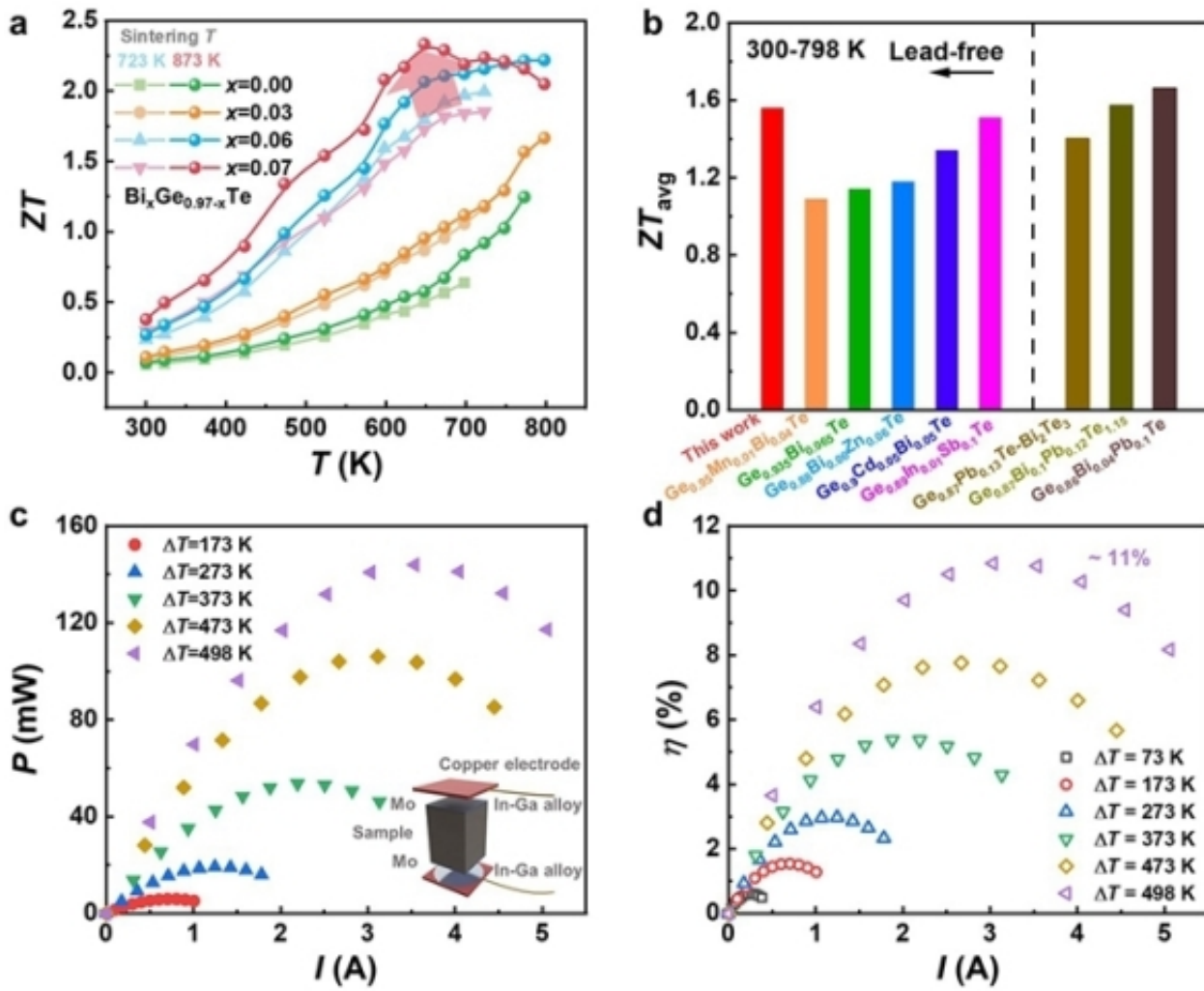


图5.热电优值与转化效率测试。(a) 不同烧结温度下ZT值随温度变化情况的对比；(b) 300-798 K下平均ZT值与其他文献的对比情况；(c、d) 器件测试的输出功率及效率。

原文地址：<http://www.china-nengyuan.com/tech/187921.html>