

碲化铋基塑性热电材料研究取得进展

碲化铋(Bi₂Te₃)基热电材料涵盖Bi₂Te₃及其与Bi₂Se₃和Sb₂Te₃形成的赝二元固溶体，在固态制冷、精准控温和局域热管理等方面已实现商业应用。但是，Bi₂Te₃基材料本征为脆性，外力作用下易发生解理破碎，限制了其在柔性/微型电子等领域的应用。此前，中国科学院上海硅酸盐研究所通过两类本征反位缺陷的互相作用，在单晶中引入高密度/多样化微结构，实现了Bi₂Te₃晶体从脆性至塑性的转化。但是，Bi₂Se₃和Sb₂Te₃晶体及其与Bi₂Te₃形成的赝二元固溶体的力学性能及形变能力，以及它们是否具有类似Bi₂Te₃单晶的塑性特性尚不清楚。

近日，上海硅酸盐所团队联合中国科学院大学杭州高等研究院科研人员，揭示了Bi₂Se₃和Sb₂Te₃的本征缺陷-微结构-力学性能映射关系，确定了Bi₂(Te,Se)3和(Bi,Sb)2Te3赝二元固溶体兼具良好塑性和优异热电性能的化学组分区间。

研究团队利用温度梯度法，合成了Bi₂Te₃、Bi₂Se₃和Sb₂Te₃晶体。与Bi₂Te₃晶体不同，Bi₂Se₃和Sb₂Te₃晶体均表现为脆性，在面内方向三点弯曲最大应变量<3%，低于Bi₂Te₃晶体。透射电镜表征发现，Bi₂Te₃晶体存在交错层、涟漪、层错等高密度/多样化微结构，Bi₂Se₃和Sb₂Te₃晶体的原子排列较为规整。这种微结构的差异源于Bi₂Te₃、Bi₂Se₃和Sb₂Te₃不同的本征缺陷特征。理论计算发现，Bi₂Te₃中两种反位缺陷BiTe和TeBi的缺陷形成能相等时，其数值仅为0.6 eV，导致Bi₂Te₃晶体可同时存在高浓度BiTe和TeBi反位缺陷，形成高密度/多样化的微结构。Bi₂Se₃中反位缺陷BiSe和SeBi缺陷形成能相等时的数值较高，反位缺陷难以同时大量存在；Sb₂Te₃中反位缺陷SbTe和TeSb的缺陷形成能相等时的数值较低，但其出现在极富Te区，在实验上难以实现。因此，Bi₂Se₃和Sb₂Te₃晶体中未观测到高密度/多样化微结构，材料表现出脆性特征。

在Bi₂Te₃中固溶Sb或Se将改变其本征缺陷特征，进而影响微结构、力学性能和热电性能。研究团队合成了系列Bi₂(Te,Se)3和(Bi,Sb)2Te3固溶体。室温力学性能测试表明，随着Sb或Se固溶量增加，晶体塑性逐渐减弱。当Sb固溶量低于70%或Se固溶量低于20%时，晶体表现出类似于Bi₂Te₃的优良塑性，沿面内方向最大弯曲应变量~10%。透射电镜表征发现，具有塑性的Bi₂(Te,Se)3和(Bi,Sb)2Te3晶体也存在高密度/多样化微结构，进一步证明其与塑性的关联。热电性能测试发现，Sb固溶能够提高Bi₂Te₃晶体的空穴浓度，Se固溶可以将主要载流子从空穴转变为电子。同时，固溶Sb或Se均可降低晶格热导率。综合力学性能与热电性能测试结果，研究团队绘制出Bi₂(Te,Se)3与(Bi,Sb)2Te3晶体的组分-塑性-导电类型-热电性能关系图。当Sb固溶量0.7<y<0.7时，晶体同时具有p型导电行为、优良塑性和高热电性能，其层内方向三点弯曲最大应变量~10%，功率因子PF~20 μW cm⁻¹K⁻²，热电优值zT~0.6。

上述成果拓宽了Bi₂Te₃基塑性无机热电材料的研究范畴，深化了科研人员对热电材料缺陷-微结构-力学性能映射关系的认知，对指导新型高性能塑性无机热电材料的研究具有重要价值。

相关研究成果发表在《自然-通讯》(Nature Communications)上。研究工作得到国家重点研发计划、国家自然科学基金、中国科学院稳定支持基础研究领域青年团队计划的支持。

原文地址：<http://www.china-nengyuan.com/tech/235242.html>