

纳米 SiO₂ 复合对 Mg₃Sb₂ 基材料热电性能的影响*

高君玲^{1)†} 赵怀周²⁾ 许艳丽¹⁾

1) (长治学院物理系, 长治 046011)

2) (中国科学院物理研究所, 北京凝聚态物理国家实验室, 北京 100190)

(2023 年 2 月 11 日收到; 2023 年 5 月 4 日收到修改稿)

Mg₃(Sb, Bi)₂ 基热电材料由于其优异的热电性能和较低的成本近来受到广泛的关注. 本研究通过将纳米 SiO₂ 复合进成分为 Mg_{3.275}Mn_{0.025}Sb_{1.49}Bi_{0.5}Te_{0.01} 的基体相中, 考察其热输运性能的变化及机制. 结果表明, 当 SiO₂ 复合进 Mg₃Sb₂ 基材料中时, 由于引入大量的微小晶界, 能有效地散射声子, 促使晶格热导率降低, 优化热输运性能, 如 SiO₂ 体积含量为 0.54% 时, 室温时热导率由复合前的 1.24 W/(m·K) 降至 1.04 W/(m·K), 降幅达到 15%; 同时其对电子也产生强烈的散射作用, 导致迁移率和电导率大幅下滑, 结果表现为近室温区功率因子剧烈衰减, 恶化了电输运性能. 电性能相对于热性能较大降低幅度使得材料在整个测试温区的热电优值没有得到改善. 纳米 SiO₂ 作为 Mg₃Sb₂ 基热电材料复合物来调控热电性能是有效的备选物质, 可结合其他手段改善输运特性, 如在晶界处适当修饰, 降低载流子传输的晶界势垒, 能够提升该体系的综合热电性能.

关键词: 纳米 SiO₂, Mg₃Sb₂ 基材料, 复合, 热电输运性能

PACS: 71.20.Nr, 72.20.Pa

DOI: 10.7498/aps.72.20230176

1 引言

当前热电材料的转换效率仍然较低、制备成本较高, 导致热电器件大规模的应用受到极大制约^[1]. 为了提高热电转换效率, 长期以来科研人员不断利用新的技术和理论来探寻具有优异热电性能的材料. 一般而言主要集中于两个方面的工作, 一方面运用新的技术和手段来提升传统热电材料 (Bi₂Te₃, PbTe 等) 的性能^[2,3], 另一方面通过探索新型的热电材料, 利用新发现的现象和理论 (如自旋塞贝克效应、磁拖曳效应等) 来优化热电材料的各项参数^[4-6], 达到提升热电性能的效果. 近年来, Zintl 相 Mg₃(Sb, Bi)₂ 基热电材料由于具有优异的热电性能和相对较低的成本受到了关注, 通过掺杂^[7,8]、合金化^[9] 和控制组分^[10-12] 等手段使其热电性能逐步的提高,

经过不断的努力, 目前其 N 型合金材料室温热电优值已超过 0.8^[13,14], 逐渐超越了传统 N 型 Bi₂Te₃ 的性能, 同时其高温时的性能表现良好, 有望在热电制冷^[15] 和温差发电技术中同时得到运用, 从而取代传统的材料, 促进热电技术的广泛应用.

Mg₃(Sb, Bi)₂ 基合金作为典型的“声子玻璃-电子晶体”类材料^[16], 如何优化提高其热电性能对其广泛的实际应用显得尤为重要. 该体系在前期研究工作中通过一系列方式来优化材料的能带结构和载流子输运过程中的散射机制, 达到热电性能的提升^[17-19], 而复合作为热电材料制备研究的重要手段, 对于该体系鲜见报道, 因此在基体的晶粒间隙有意识地复合其他材料, 特别是研究可以和声子平均自由程尺度比拟的纳米材料复合对该体系材料性能的影响, 从而探索复合对性能的影响规律, 这对提高其热电性能, 了解该体系材料复合后

* 山西省高等学校科技创新计划 (批准号: 2021L511) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: calm228@163.com

的热电性能输运机制格外重要. SiO_2 具有熔点高, 热导率低, 作为复合的备选材料不与基体材料反应等诸多优点, 因此实验中选取疏水的 SiO_2 纳米颗粒作为复合的材料, 研究其与 $\text{Mg}_3(\text{Sb, Bi})_2$ 基热电材料复合后热电性能的变化和规律.

2 实验

在手套箱中将 Mg 屑 (99.99%)、Sb 块 (99.99%)、Bi 块 (99.99%)、Mn 粉 (99.99%) 和 Te 粉 (99.99%) 按照比例 $\text{Mg}_{3.275}\text{Mn}_{0.025}\text{Sb}_{1.49}\text{Bi}_{0.5}\text{Te}_{0.01}$ 分别称量配料, 同时加入不同体积比 (0%, 0.09%, 0.18% 和 0.54%) 的疏水纳米 SiO_2 粉末 (粒径为 7—40 nm). 所有原料共 10 g 放入容积为 60 mL 的不锈钢罐中, 将两颗直径为 12.5 mm 的钢球置入球磨罐, 然后使用 SPEX 8000 M 型高能球磨机研磨 12 h, 该球磨机采用三维振动的工作方式对原料研磨, 可获得纳米级粒度的粉料. 研磨完成后称取一定质量的粉料放入孔径为 12.7 mm 的石墨模具中, 然后于放电等离子烧结设备中进行烧结, 烧结工艺参数: 50 °C/min 的升温速度到达 600 °C 后保温 2 min, 然后继续以 50 °C/min 的升温速度到达 800 °C 后保温 2 min, 最后样品随炉冷却, 烧结过程中压力为 50 MPa, 腔体真空度保持在 10 Pa 以下. 将烧结好的样品切割出不同规格的样品, 分别测试各项热电参数: 电导率 σ 和塞贝克系数 α 在 LSR-3 装置测试完成; 热导率可由公式 $\kappa = DC_p d$ 计算求得, 其中热扩散系数 D 由 LFA-100 仪器测试, 杜隆-珀替定律可计算求得比热 C_p , 而密度 d 由阿基米德原理测试得出; 霍尔载流子浓度 n 和迁移率 μ 由 CH-30 霍尔效应测试系统得到. 材料的室温物相成分通过 X 射线衍射仪 (BRUKER D8 ADVANCE) 测试分析.

3 结果和讨论

3.1 物相成分分析

图 1 为不同体积含量 SiO_2 的 $\text{Mg}_{3.275}\text{Mn}_{0.025}\text{Sb}_{1.49}\text{Bi}_{0.5}\text{Te}_{0.01}$ 样品 XRD 衍射图谱. 根据 $\text{Mg}_3(\text{Sb, Bi})_2$ 标准峰 (PDF#03-0375) 可知: 由于所有样品中 SiO_2 复合量都较低, 主晶相均为 $\text{Mg}_3(\text{Sb, Bi})_2$ 的特征衍射峰. 同时可见图谱中 (101) 方向衍射峰强明显高于其他方向, 说明晶体生长时优先选择此

方向. 随着 SiO_2 含量逐渐增加, 可探测到微弱的 SiO_2 第 2 相衍射峰. 尽管含量较低, 纳米 SiO_2 对基体材料的电热输运性能却影响较大, 具体分析见下节.

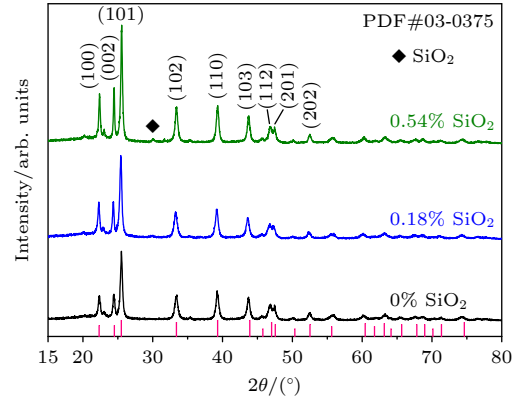


图 1 不同 SiO_2 含量的 $\text{Mg}_{3.275}\text{Mn}_{0.025}\text{Sb}_{1.49}\text{Bi}_{0.5}\text{Te}_{0.01}$ XRD 图谱

Fig. 1. XRD of $\text{Mg}_{3.275}\text{Mn}_{0.025}\text{Sb}_{1.49}\text{Bi}_{0.5}\text{Te}_{0.01}$ with different SiO_2 content.

3.2 电输运性能分析

图 2(a) 为不同纳米 SiO_2 复合体积含量的样品电导率随温度的变化曲线, 可知复合前后所有曲线随温度的变化趋势一致, 随温度的升高逐渐降低, 表现出显著的简并半导体特征. 同时, 随着复合比例的增大, 电导率不断降低, 当 SiO_2 复合体积含量增加为 0.54% 时, 室温电导率明显下降, 由复合前的 641 S/cm 降低至 297.6 S/cm, 降低的幅度达到 53%, 而在较高的温度时, 电导率降幅减缓, 723 K 时由复合前的 210.4 S/cm 降低至 153.9 S/cm, 降幅为 27%. 对于塞贝克系数而言, 由图 2(b) 可见, 当 SiO_2 含量较低时, 塞贝克系数相对于无添加样品并没有改观, 并且由图可知体积含量为 0.09% 的样品还略有下降, 当 SiO_2 体积含量升高到 0.18% 时, 塞贝克系数才有增大的趋势. 体积含量增至 0.54% 后, 室温时塞贝克系数由无复合前的 184 $\mu\text{V}/\text{K}$ 升为 195 $\mu\text{V}/\text{K}$, 723 K 时由 281 $\mu\text{V}/\text{K}$ 增至 300 $\mu\text{V}/\text{K}$, 但增幅不足以补偿电导率剧烈降低带来的功率因子的损失 (图 2(d)), 从而导致所有复合 SiO_2 的样品功率因子均呈现不同程度的下降, 且随着复合体积分含量的增大而降低, 尤其在室温区域大幅下滑. 纳米 SiO_2 复合对该体系材料电性能的影响较大, 表现为电导率衰减明显, 而塞贝克系数提升程度较弱, 综合电性能恶化显著.

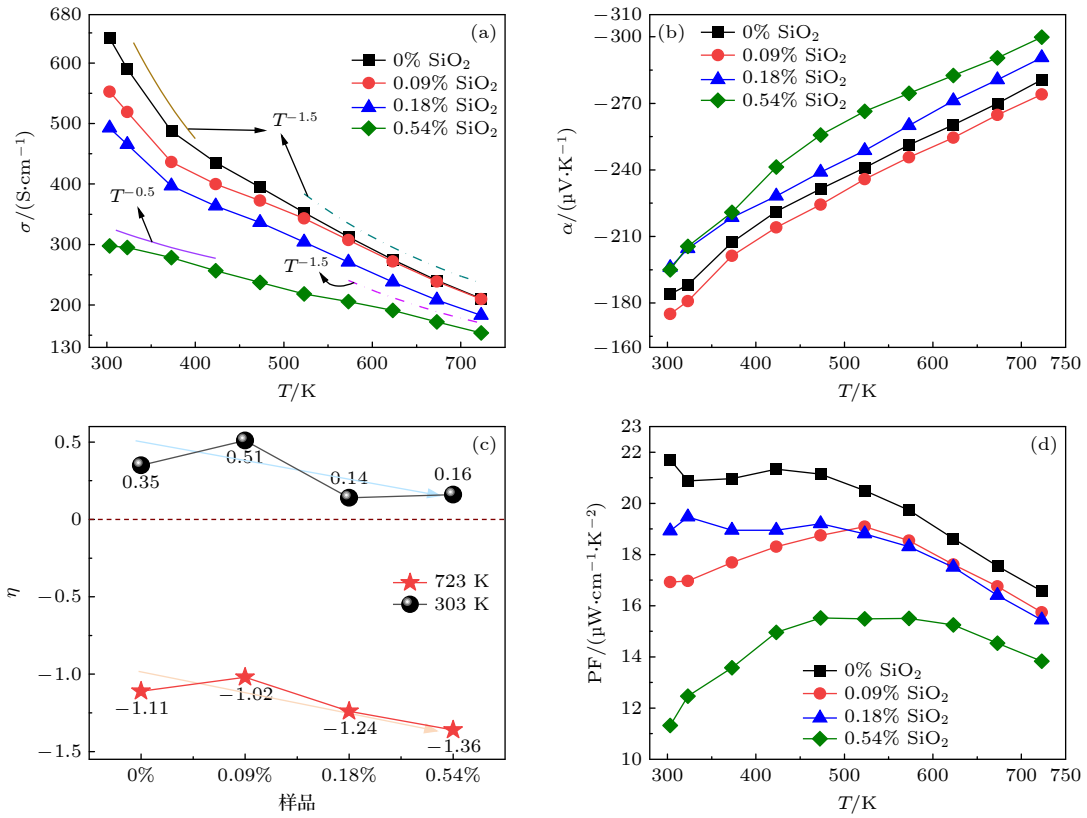


图 2 (a), (b), (d) 不同 SiO₂ 含量的 Mg_{3.275}Mn_{0.025}Sb_{1.49}Bi_{0.5}Te_{0.01} 电性能温度依赖曲线; (c) 室温和 723 K 时样品的简约费米能级变化趋势图

Fig. 2. (a), (b) and (d) are temperature dependence curves of electrical properties of Mg_{3.275}Mn_{0.025}Sb_{1.49}Bi_{0.5}Te_{0.01} with different SiO₂ content; (c) change trend of reduced Fermi level of samples at room temperature and 723 K.

进一步考察载流子 (该体系为电子) 在运输过程中的行为机制, 对热电半导体而言, 当低于本征激发温度时, 由于载流子浓度起伏较小, 电导率主要由载流子迁移率决定, 因此迁移率随温度的变化趋势和电导率大体一致, 通过分析电导率的温度依赖关系可判断载流子的散射机制. 由图 3 可知, 对于 SiO₂ 含量较低或者无复合时的 3 个样品, 在整个测试温区内电导率温度依赖曲线满足 $T^{-1.5}$ 的变化趋势, 这是典型的声学波散射机制. 随着复合体积含量提升至 0.54%, 电导率温度依赖曲线关系在低于 500 K 时和 $T^{-0.5}$ 趋势线接近, 载流子散射机制已经由单一的声学波散射转变为较为复杂的情况: 由于引入纳米 SiO₂ 第二相, 导致大量细小晶界的出现, 此时晶界散射在载流子运输过程中已经显著增加, 使得迁移率大幅下降 (由图 3 室温测试数据图可见: 载流子浓度在 SiO₂ 复合含量逐渐增加时有下降趋势, 而迁移率则降幅显著, 最终使得电导率也出现明显降低. 当温度较高时 (>500 K), 载流子运输又重新表现为声学波散射机制 ($T^{-1.5}$). 晶界散射导致迁移率和电导率的快速下滑也出现

在 Bi-Sb 合金^[20] 和 Bi₂Te₃ 合金^[21] 中, 从而恶化了电性能, 这可能是由于该类材料中的载流子在运输过程中具有较大的平均自由程, 纳米级微小晶界对载流子的散射剧烈所致^[22]. 通过退火或烧结工艺的改变增大 Mg₃(Sb, Bi)₂ 材料中的晶粒尺寸, 减小晶界散射提升载流子的迁移率可提高热电性能也证实了上述研究结果^[13,23,24].

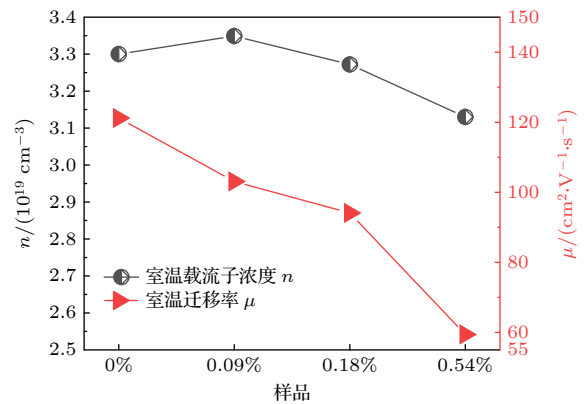


图 3 室温霍尔载流子浓度与迁移率随 SiO₂ 含量变化关系图
Fig. 3. The composition dependence of hall carrier concentration and mobility at room temperature.

由单抛物带模型和声学波散射机制可计算样品在不同温度时的简约费米能级 η . 由图 2(c) 可知, 室温时费米能级均为正值, 且呈现出降低的趋势, 随着纳米 SiO₂ 体积分含量的增大, 费米能级逐渐从导带内向导带底移动. 当温度升至 723 K 时, 简约费米能级越过导带底进入禁带, 此时全部变为负值, 同样呈降低的趋势, 塞贝克系数在费米能级逐渐穿越导带底进入禁带过程中逐渐增大.

基于玻尔兹曼统计理论, 在单抛物带模型下考察高温时的输运参数, 塞贝克系数可表示为^[25]

$$\alpha = \frac{k_B}{e} \left(\eta - \frac{(\lambda + 2)F_{\lambda+1}(\eta)}{(\lambda + 1)F_{\lambda}(\eta)} \right), \quad (1)$$

其中 k_B 为玻尔兹曼常数, e 是电子电荷, λ 为确定散射机制下得散射因子, 样品 723 K 时是由声学波主导的散射机制, 对应的散射因子是 0. $\eta = E_F/(k_B T)$ 是简约费米能级, 费米积分表达为 $F_m(\eta) = \int_0^{\infty} \frac{x^m}{1 + \exp(x - \eta)}$, 霍尔载流子浓度由下式决定:

$$n = 4\pi \left(\frac{2m^* k_B T}{h^2} \right)^{\frac{3}{2}} \frac{F_{\frac{1}{2}}(\eta)}{r_H}, \quad (2)$$

其中, m^* 是电子有效质量, 霍尔因子 r_H 和霍尔迁移率 μ 由 (3) 式和 (4) 式决定, μ_0 为漂移迁移率, 由此可得电导率的表达式 (5):

$$r_H = \frac{3}{4} \frac{F_{\frac{1}{2}}(\eta) F_{-\frac{1}{2}}(\eta)}{F_0^2(\eta)}, \quad (3)$$

$$\mu = \frac{1}{2} \frac{F_{-\frac{1}{2}}(\eta)}{F_0(\eta)} \mu_0, \quad (4)$$

$$\sigma = ne\mu = \frac{16\sqrt{2}\pi e k_B^{3/2} T^{3/2} F_0(\eta)}{3h^3} \mu_0 m^{*3/2}. \quad (5)$$

通过拟合塞贝克系数和电导率在测试最高温 723 K 时的实验数据可得 $\mu_0 m^{*3/2}$ 值为 $71 \text{ cm}^2/(\text{V}\cdot\text{s}) m_e^{3/2}$. 据此可得塞贝克系数和功率因子作为电导率函数的理论关系曲线图 4, 同时将实验测试数据也画入图内, 可见塞贝克系数随电导率的增大而降低, 二者呈负相关的关系. 由前述讨论可知晶界导致的界面散射在 500 K 以下测试温区作用明显, 在高于 500 K 时所有样品均表现出声学波散射机制主导的输运过程. 图 4 中实测数据大体在理论曲线周围, 说明在该温度理论曲线预设迁移率为一定值和实际情况基本符合, 载流子浓度的变化是 723 K

时塞贝克系数和电导率变化的主要原因. 由于塞贝克系数和载流子浓度满足负相关的关系, 该温度时随着 SiO₂ 含量的提升, 塞贝克系数有轻微提升, 但载流子浓度逐渐降低导致电导率和功率因子衰减更为显著. 图 4 还绘制出 723 K 时理论预测的功率因子作为电导率函数的关系曲线, 可见实验样品数据基本处于理论计算曲线周围, 但距离理论峰值仍有较大差距, 仍需通过调控载流子浓度来提升此温区电导率, 进而优化该体系的电输运性能.

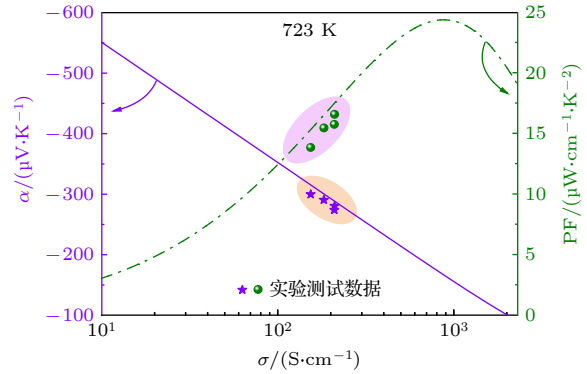


图 4 塞贝克系数、功率因子作为电导率函数在 723 K 时的关系曲线

Fig. 4. Relation curve of Seebeck coefficient and power factor as conductivity function at 723 K.

3.3 热输运性能分析

由图 5 测试所得的热扩散系数和热导率随温度的变化曲线可见, 二者均随温度的提升稳步下降, 同时 SiO₂ 含量的增大会促使样品热导率降低. 当 SiO₂ 复合体积分含量为 0.09% 时, 热导率并没有优化, 当含量进一步增大时, 热导率才表现出明显的降低效果. 随着 SiO₂ 含量的逐渐提高, 热导率值不断减小, SiO₂ 体积分含量为 0.54% 时, 室温时热导率由复合前的 $1.24 \text{ W}/(\text{m}\cdot\text{K})$ 降至 $1.04 \text{ W}/(\text{m}\cdot\text{K})$, 降幅达到 15%; 在测试最高温 723 K 时, 无复合时样品热导率为 $0.8 \text{ W}/(\text{m}\cdot\text{K})$, SiO₂ 体积分含量为 0.54% 的样品热导率数值为 $0.75 \text{ W}/(\text{m}\cdot\text{K})$, 降幅下落至 5%. 由下述分析可知, 由于室温时 0.54% 的样品电导率大幅降低 (图 2(a)), 使其电子热导率也随之大幅下降 (图 6(b)), 而 723 K 时电导率的衰减明显减弱, 电子热导率的降低的程度要远小于室温时的结果 (室温时降幅是 723 K 时的 2 倍有余), 最终导致总热导率在 723 K 和室温时的降幅差距较大. 纳米 SiO₂ 体积分含量增加时对热导率的降低作用对

该材料体系的影响能够逐渐表现出来, 优化了热输运性能.

热导率由晶格热导率和电子热导率两部分构成: $\kappa = \kappa_L + \kappa_e$. 电子热导率服从 Wiedemann-Franz 定律, 即 $\kappa_e = L_0 \sigma T$, 其中 L_0 为洛伦兹常数, 通过弛豫时间近似下求解玻尔兹曼方程可以得到洛伦兹常数的计算公式:

$$L_0 = \left(\frac{k_B}{e} \right)^2 \left[\frac{3F_2(\eta)}{F_0(\eta)} - \left(\frac{2F_1(\eta)}{F_0(\eta)} \right)^2 \right]. \quad (6)$$

通过计算可得图 6(a) 所示的洛伦兹常数随温度变化的曲线, 可见各样品洛伦兹常数随温度升高单调递减, 进而计算电子热导率可得图 6(b). 各样品电子热导率随纳米 SiO₂ 体积含量增大逐渐降低, 室温时未复合样品电子热导率为 0.32 W/(m·K), SiO₂ 体积含量为 0.54% 时, 热导率为 0.15 W/(m·K), 急剧下降幅度达 53%; 高温阶段降低趋势减缓, 723 K 时未复合样品电子热导率为 0.23 W/(m·K), SiO₂ 体积含量为 0.54% 时热导率为 0.17 W/(m·K),

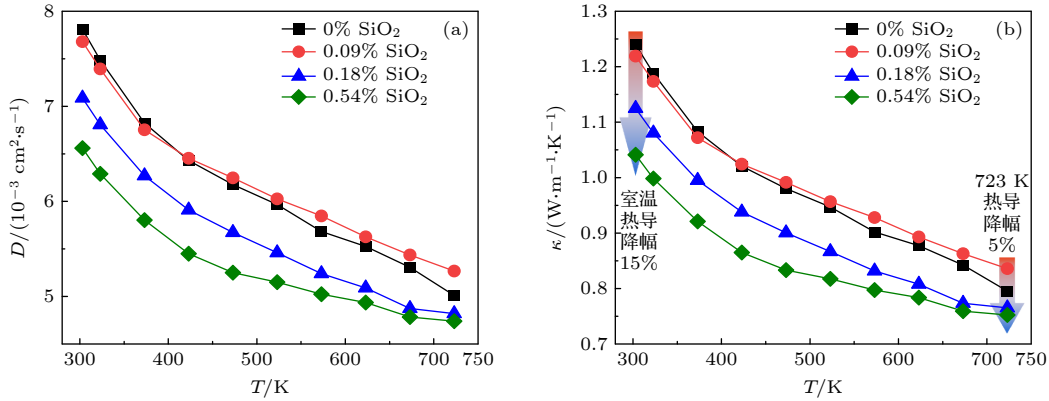


图 5 实验测试的热扩散系数 (a) 和热导率 (b) 的温度依赖关系曲线

Fig. 5. Temperature dependence curve of thermal diffusivity (a) and thermal conductivity (b).

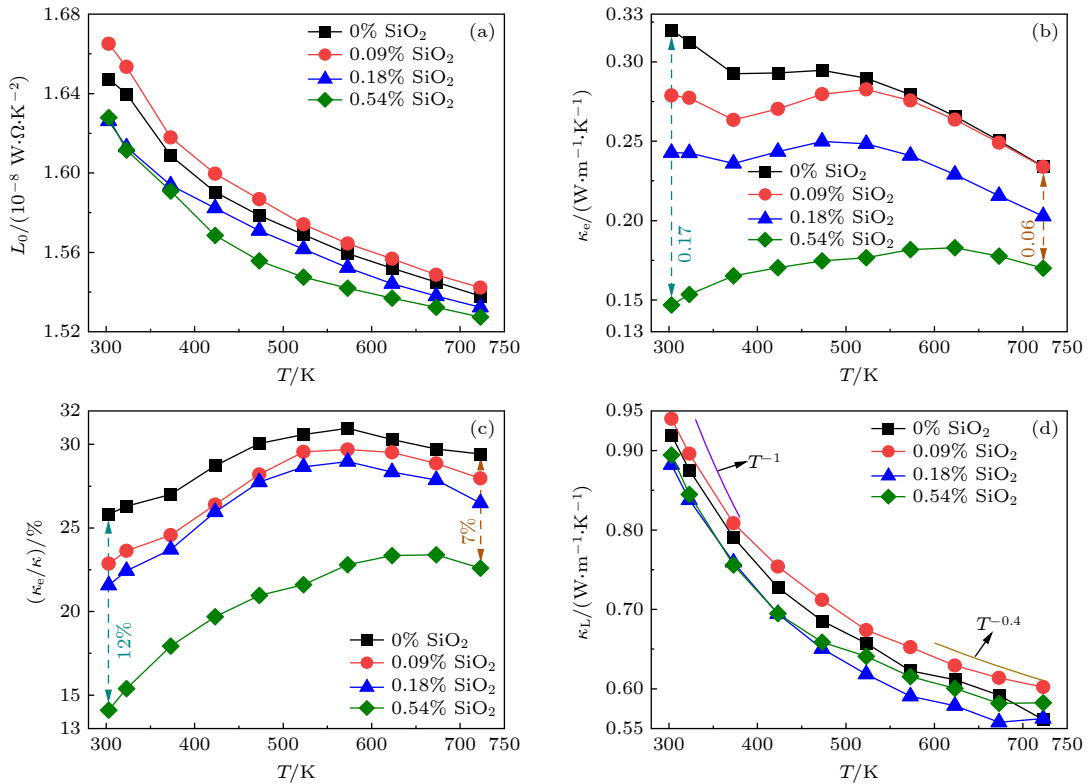


图 6 计算所得洛伦兹常数 (a)、电子热导率 (b)、电子热导率占比 (c) 和晶格热导率 (d) 的温度依赖关系曲线

Fig. 6. The temperature dependence curves of Lorentz constant (a), electronic thermal conductivity (b), electronic thermal conductivity ratio (c) and lattice thermal conductivity (d).

降幅减小为 26%. 由图线同时可知前 3 个 SiO_2 含量较低的样品变化趋势相同, 均不断减小. 当 SiO_2 含量较高时, 对于 SiO_2 体积含量为 0.54% 的样品, 在 600 K 之前由于大幅降低的电导率, 导致电子热导率变化趋势截然相反, 随温度升高而不断增大, 高于 600 K 时又逐渐呈下降的走向. 图 6(c) 计算了电子热导率占总热导率的百分数, 随 SiO_2 复合含量增加占比逐渐降低, 特别地, 室温时未复合前和复合 0.54% 相差 12%, 723 K 时差别减少为 7%. 总之, 洛伦兹常数虽有轻微的降低但幅度较小, 电导率较大的降幅是电子热导率变化的主导因素. 由图还可看出电子热导率在总热导中占比随温度先升后降, 峰值出现在 600 K 附近的变化特征.

图 6(d) 为计算所得晶格热导率的温度依赖曲线. 纳米 SiO_2 引入大量微小界面诱发晶界对声子发生散射, 由于测试和实验的误差, 除复合体积含量为 0.09% SiO_2 样品的晶格热导率略高于无复合时外, 其他样品大致表现出随复合量增加而下降的特点. 此外, 在低于 400 K 近室温区域内, 晶格热导率随温度变化接近 T^{-1} 趋势线, 说明在此温域由声子-声子散射机制主导; 当温度逐渐升高时, 声子在运输过程中散射行为更为复杂: 在高于 600 K 时 κ_L-T 曲线已经接近 $T^{-0.4}$ 趋势线, 除了声子-声子散射外, 晶界散射已经在声子传导中的比重逐步增加, 点缺陷散射和电子-声子散射处于次要地位, 这两者主导的散射作用叠加起来共同影响着晶格热导率变化趋势. 纳米 SiO_2 细小的晶界不仅对载流子的输运有显著的影响, 在声子输运过程中也起到了很好的散射屏蔽作用, 因此纳米 SiO_2 是调控 Mg_3Sb_2 基材料热性能的有效物质.

考察材料的综合热电性能, 由图 7 所示的复合不同含量的 SiO_2 后样品的 ZT 值温度依赖关系可见所有样品的热电优值都随温度的升高而增大, 但复合后样品的 ZT 值并没有改善. 该系列样品的热电性能主要由电导率和热导率比值 σ/κ 决定, 对实验数据进一步分析, 可横向比较热导率和电导率下降的幅度. 以室温数据为例, 热阻率和电阻率作为热导率和电导率的倒数, 随着 SiO_2 复合含量的增加, 各样品热阻率比值为 1:1.02:1.11:1.19, 而电阻率比值为 1:1.16:1.30:2.15, 显然电阻率增大的速度更快, 致使 σ/κ 不断降低, 进而使得 ZT 值没有改善. 当纳米 SiO_2 复合进入 Mg_3Sb_2 基热电材料中时, 纳米级的微小晶界在电子和声子输运中影响较大, 不仅对声子产生散射作用, 对该体系电

子运输的散射更加剧烈, 图 7 插图展示了样品中声子和电子的散射原理. 电子和声子的晶界散射同时作用表现为复合样品相较于未复合样品热导率虽有所降低, 热性能得到有限的优化, 但由于其电导率大幅降低致使功率因子显著下降, 综合作用的结果是复合样品的 ZT 值呈现不同程度的下降, 恶化了热电性能. 综上所述, SiO_2 作为复合物对于优化 Mg_3Sb_2 体系的热输运性能是有效的, 但必须结合其他手段来协同优化其综合热电性能.

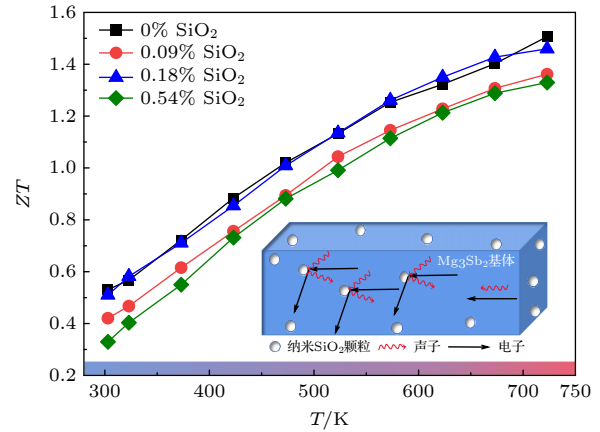


图 7 不同纳米 SiO_2 含量的 $\text{Mg}_{3.3}\text{Sb}_{1.5}\text{Bi}_{0.49}\text{Te}_{0.01}$ 样品 ZT 值温度依赖曲线; 插图为纳米 SiO_2 复合的 Mg_3Sb_2 基材料样品电子和声子输运过程中的散射原理图

Fig. 7. Temperature dependence curve of ZT value of $\text{Mg}_{3.3}\text{Sb}_{1.5}\text{Bi}_{0.49}\text{Te}_{0.01}$ samples with different nano- SiO_2 content; the illustration shows the scattering schematic diagram of the electron and phonon transport process of the composite with Mg_3Sb_2 -based material and nano- SiO_2 .

4 结论

纳米 SiO_2 作为第 2 相复合进 Mg_3Sb_2 基材料中引进大量的微小晶界, 实验证明能有效散射声子, 促使晶格热导率降低, 优化热输运性能; 同时其对电子也产生强烈的散射作用, 导致近室温区迁移率大幅下滑, 电导率下降更为显著, 而塞贝克系数轻微的提升不足以补偿电导率的降低效果, 表现为功率因子剧烈衰减, 恶化了电输运性能. 由于纳米 SiO_2 复合后电性能的降低程度要高于热性能的优化程度, 样品热电优值在整个测试温区没有得到改善. 本研究证明纳米 SiO_2 作为 Mg_3Sb_2 基热电材料复合物来调控热电性能是有效的备选物质, 但必须结合其他手段协同对材料进行改性, 如在晶界处做适当修饰, 降低载流子传输的晶界势垒, 达到提升性能的目标.

参考文献

- [1] Mao J, Liu Z, Zhou J, Zhu H, Zhang Q, Chen G, Ren Z 2018 *Adv. Phys.* **67** 69
- [2] Kim S I, Lee K H, Mun H A, Kim H S, Hwang S W, Roh J W, Yang D J, Shin W H, Li X S, Lee Y H 2015 *Science* **348** 109
- [3] Pei Y, Shi X, LaLonde A, Wang H, Chen L, Snyder G J 2011 *Nature* **473** 66
- [4] He J, Tritt T M 2017 *Science* **357** eaak9997
- [5] Boona S R, Myers R C, Heremans J P 2014 *Energy Environ. Sci.* **7** 885
- [6] Zheng Y, Lu T, Polash M M, Rasoulianboroujeni M, Liu N, Manley M E, Deng Y, Sun P, Chen X, Hermann R P, Vashae D, Heremans J P, Zhao H 2019 *Sci. Adv.* **5** eaat9461
- [7] Imasato K, Kang S D, Snyder G J 2019 *Energy Environ. Sci.* **12** 965
- [8] Ren Z, Shuai J, Mao J, Zhu Q, Song S, Ni Y, Chen S 2018 *Acta Mater.* **143** 265
- [9] Imasato K, Kang S D, Ohno S, Snyder G J 2018 *Mater. Horiz.* **5** 59
- [10] Tamaki H, Sato H K, Kanno T 2016 *Adv. Mater.* **28** 10182
- [11] Shuai J, Ge B, Mao J, Song S, Wang Y, Ren Z 2018 *J. Am. Chem. Soc.* **140** 1910
- [12] Imasato K, Ohno S, Kang S D, Snyder G J 2018 *APL Mater.* **6** 016106
- [13] Wood M, Kuo J J, Imasato K, Snyder G J 2019 *Adv. Mater.* **31** 1902337
- [14] Mao J, Zhu H, Ding Z, Liu Z, Gamage G A, Chen G, Ren Z 2019 *Science* **365** 495
- [15] Yang J, Li G, Zhu H, Chen N, Lu T, Gao J, Guo L, Xiang J, Sun P, Yao Y 2022 *Joule* **6** 193
- [16] Ren P, Liu Y, He J, Lv T, Gao J, Xu G 2018 *Inorg. Chem. Front.* **5** 2380
- [17] Shi X, Wang X, Li W, Pei Y 2018 *Small Methods* **2** 1800022
- [18] Brod M K, Anand S, Snyder G J 2023 *Mater. Today Phys.* **31** 100959
- [19] Imasato K, Wood M, Anand S, Kuo J J, Snyder G J 2022 *Adv. Energy Sustainability Res.* **3** 2100208
- [20] Sharp J W, Volckmann E H, Goldsmid H J 2001 *Phys. Status Solidi A* **185** 257
- [21] Sharp J W, Goldsmid H J 1999 *Proceedings of the 18th International Conference on Thermoelectrics* Baltimore, USA, August 29–September 2, 1999 p709
- [22] Jin H, Heremans J P 2018 *Phys. Rev. Mater.* **2** 115401
- [23] Kuo J J, Kang S D, Imasato K, Tamaki H, Ohno S, Kanno T, Snyder G J 2018 *Energy Environ. Sci.* **11** 429
- [24] Kanno T, Tamaki H, Sato H K, Kang S D, Ohno S, Imasato K, Kuo J J, Snyder G J, Miyazaki Y 2018 *Appl. Phys. Lett.* **112** 033903
- [25] Mao T, Qiu P, Liu J, Du X, Hu P, Zhao K, Ren D, Shi X, Chen L 2020 *Phys. Chem. Chem. Phys.* **22** 7374

Effects of nano-SiO₂ on thermoelectric properties of Mg₃Sb₂-based materials*

Gao Jun-Ling^{1)†} Zhao Huai-Zhou²⁾ Xu Yan-Li¹⁾

1) (*Department of Physics, Changzhi University, Changzhi 046011, China*)

2) (*Beijing National Laboratory for Condensed Matter Physics, Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China*)

(Received 11 February 2023; revised manuscript received 4 May 2023)

Abstract

Recently, Mg₃(Sb,Bi)₂-based thermoelectric materials have received extensive attention owing to excellent thermoelectric properties and the low cost. This study investigates the change and mechanism of thermoelectric transport properties of Mg_{3.275}Mn_{0.025}Sb_{1.49}Bi_{0.5}Te_{0.01}/SiO₂ nanocomposite. The results show that nano-SiO₂ can effectively scatter phonons, promote the reduction of lattice thermal conductivity, and optimize the heat transport performance owing to the introduction of a large number of tiny grain boundaries. For example, when SiO₂ content is 0.54%, the thermal conductivity decreases by 15% from 1.24 W/(m·K) to 1.04 W/(m·K) compared with that of 0% SiO₂ sample at room temperature. At the same time, the material system also has a strong scattering effect on electrons. This leads to a sharp attenuation of power factor and electrical transport performance with decline of mobility and conductivity in the room temperature area. Nano SiO₂ is an effective candidate for regulating thermoelectric properties of Mg₃Sb₂ based thermoelectric material. The thermoelectric transport performance of the material will be improved by combining with other methods, such as appropriate grain boundary modification to reduce the potential barrier of charge carrier transport.

Keywords: nano-SiO₂, Mg₃Sb₂-based materials, composite, thermoelectric transport properties

PACS: 71.20.Nr, 72.20.Pa

DOI: 10.7498/aps.72.20230176

* Project supported by the Scientific and Technological Innovation Programs of Higher Education Institutions of Shanxi Province, China (Grant No. 2021L511).

† Corresponding author. E-mail: calm228@163.com



纳米SiO₂复合对Mg₃Sb₂基材料热电性能的影响

高君玲 赵怀周 许艳丽

Effects of nano-SiO₂ on thermoelectric properties of Mg₃Sb₂-based materials

Gao Jun-Ling Zhao Huai-Zhou Xu Yan-Li

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 72, 117102 (2023) DOI: 10.7498/aps.72.20230176

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.72.20230176>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

Bi/Sb原子置换位置对Mg₂Si_{0.375}Sn_{0.625}合金电子传输性能的影响

Effect of Sb/Bi atom substitution site on electronic transport properties of Mg₂Si_{0.375}Sn_{0.625} alloy

物理学报. 2022, 71(24): 248401 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20221364>

SiO₂/聚四氟乙烯复合介质材料热性能和介电性能的数值模拟

Numerical simulation of thermal and dielectric properties for SiO₂/polytetrafluoroethylene dielectric composite

物理学报. 2022, 71(21): 210201 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220839>

FeNiMo/SiO₂复合粉芯的制备与软磁性能调控

Preparation of FeNiMo/SiO₂ composite core and regulation of soft magnetic properties

物理学报. 2022, 71(15): 157502 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20212317>

Mg₂Si_{0.3}Sn_{0.7}掺杂Ag和Li的热电性能对比

Comparative study of thermoelectric properties of Mg₂Si_{0.3}Sn_{0.7} doped by Ag or Li

物理学报. 2019, 68(11): 117201 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190247>

Mn₃As₂掺杂Cd₃As₂纳米结构的制备及热电性能

Preparation and thermoelectric properties of Mn₃As₂-doped Cd₃As₂ nanostructures

物理学报. 2022, 71(18): 187201 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220584>

氧化铟/聚(3,4-乙烯二氧噻吩)复合材料的微结构及其热电性能研究

Microstructure and thermoelectric properties of In₂O₃/poly(3, 4-ethylenedioxythiophene) composites

物理学报. 2018, 67(19): 197201 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20180382>