



УКРАЇНА

(19) UA (11) 46917 (13) U
(51) МПК (2009)
С30В 11/00МІНІСТЕРСТВО ОСВІТИ
І НАУКИ УКРАЇНИДЕРЖАВНИЙ ДЕПАРТАМЕНТ
ІНТЕЛЕКТУАЛЬНОЇ
ВЛАСНОСТІОПИС
ДО ПАТЕНТУ
НА КОРИСНУ МОДЕЛЬвидається під
відповідальність
власника
патенту(54) СПОСІБ ОТРИМАННЯ НЕСТЕХІОМЕТРИЧНОГО ТЕРМОЕЛЕКТРИЧНОГО МАТЕРІАЛУ р-
PbSb₂Te₄<Te>

1

2

(21) u200907467

(22) 16.07.2009

(24) 11.01.2010

(46) 11.01.2010, Бюл.№ 1, 2010 р.

(72) ФРЕЙК ДМИТРО МИХАЙЛОВИЧ, ГОРІЧОК
ІГОР ВОЛОДИМИРОВИЧ, БОРИК ВІКТОР ВАСИ-
ЛЬОВИЧ, ЗАПУХЛЯК РУСЛАН ІГОРОВИЧ(73) ПРИКАРПАТСЬКИЙ НАЦІОНАЛЬНИЙ УНІ-
ВЕРСИТЕТ ІМЕНІ ВАСИЛЯ СТЕФАНИКА(57) Спосіб отримання нестехіометричного термо-
електричного матеріалу р-PbSb₂Te₄<Te>, який
полягає в тому, що вихідну речовину свинець (Pb),

сурму (Sb), телур (Te), які у масовому співвідно-
шенні відповідають сполуці PbSb₂Te₄, завантажують у кварцову вакуумовану ампулу, яку поміщають у піч, температура якої є вищою від температури плавлення вихідних компонентів, ампулу витримують при цій температурі, здійснюють гомогенізуючий відпал і охолоджують на повітрі до кімнатної температури, після чого одержані злишки дроблять і здійснюють пресування, який відрізняється тим, що як вихідні компоненти додатково використовують надстехіометричний телур до 3 ат. %, високого класу чистоти (99,999 %).

Корисна модель відноситься до технології напівпровідникових матеріалів і може бути використана у термоелектричних пристроях.

Напівпровідникові сполуки A^{IV}B^{VI} та A₂^VB₃^{VI} - перспективні термоелектричні матеріали для кімнатної (~300K) і середньої (500-700K) температурних областей - синтезують із окремих компонентів і отримують із парової фази чи розплаву як у вигляді полікристалів, так і монокристалів [Н.Х. Абрикосов, Л.Е. Шалимова. Полупроводниковые материалы на основе соединений A^{IV}B^{VI}. Наука. М. - 1975].

Однак ці матеріали та способи їх отримання не забезпечують оптимальних значень термоелектричних параметрів: коефіцієнт термо-е.р.с. (α), питома електропровідність (σ), теплопровідність (χ), питома термоелектрична потужність (N=α²σ),

термоелектрична добротність ($Z = \frac{\alpha^2 \sigma}{\chi}$) та без-

розмірна термоелектрична добротність (ZT), а також їх механічної міцності.

Найбільш близькими до запропонованої корисної моделі є спосіб отримання термоелектричних матеріалів, який полягає в тому, що вихідні речовини завантажують у кварцову ампулу, яку поміщають у піч, температура якої є вищою від температури плавлення вихідних речовин і витримують її до отримання сполуки, здійснюють наступний гомогенізуючий відпал і охолоджують до кімнатних температур, після чого одержані злишки дроблять і

здійснюють пресування [Л.Е. Шелимова, О.Т. Карпинский, Т.Е. Свечникова, Е.С. Авилов, М.А. Кретьова, В.С. Земсков. Синтез и структура слоистых соединений в системах PbTe-Bi₂Te₃ і PbTe-Pb₂Te₃. Неорганические материалы, 2004. т.40. №2. СС.1440-1447].

В основу корисної моделі поставлене завдання запропонувати спосіб отримання матеріалу, у якому вибором вихідних компонентів та технологічних режимів можна отримати речовину з покращеними термоелектричними параметрами і механічними характеристиками.

Поставлене завдання вирішується наступним чином: вихідні речовини свинець (Pb), сурму (Sb) і телур (Te) високого класу чистоти (99,999%), взятих у вагових співвідношеннях, що відповідають хімічній формулі PbSb₂Te₄ завантажують у кварцову ампулу, яку вакуумують, потім її поміщають у піч, температура якої є вищою від температури плавлення вихідних компонентів, в подальшому ампулу витримують при цій температурі, після чого здійснюють гомогенізаційний відпал, у подальшому ампулу з синтезованою сполукою охолоджують до кімнатної температури, а одержані злишки дроблять і здійснюють пресування, згідно з корисною моделлю у якості вихідних компонентів додатково використовують надстехіометричний телур до 3 ат. %.

Отриманий термоелектричний матеріал характеризується покращеними термоелектричними параметрами та високою механічною міцністю. Це

(13) U
(11) 46917
(19) UA

пов'язано із тим, що надстехіометричний телур, утворюючи анти структурні дефекти Te_{Pb}^+ , обумовлює зменшення концентрації основних носіїв, що є причиною зростання коефіцієнта термо-е.р.с. та зменшення коефіцієнту теплопровідності.

Спосіб отримання термоелектричного матеріалу здійснюють наступним чином. Як вихідні речовини використовують свинець, сурму і телур, взяті у вагових співвідношеннях, що відповідають хімічній формулі PbSb_2Te_4 , а також додатково надстехіометричний телур до 3ат.%, вихідні речовини завантажують у кварцову ампулу, яку поміщають у піч, температура якої є вищою від температури плавлення вихідних речовин, ампулу витримують при цій температурі, потім здійснюють гомогенізаційний відпал, а у подальшому її охолоджують і після чого одержані злитки дроблять і пресують.

Вихідні компоненти чистоти (99,999%) свинець, сурма і телур, взяті у вагових співвідношен-

нях, що відповідають хімічній формулі PbSb_2Te_4 ($\text{Pb}=0,22\text{мас.}\%$, $\text{Sb}=0,25\text{мас.}\%$, $\text{Te}=0,53\text{мас.}\%$), а також додатково надстехіометричний телур до 3ат.%, завантажують в ампулу, яку поміщають у піч, температура якої є вищою від температури плавлення вихідних компонентів і яка складає $(1070\pm 10)\text{K}$, витримують при цій температурі на протязі 5 годин, потім здійснюють гомогенізаційний відпал при температурі $(930\pm 20)\text{K}$ на протязі 3 годин, охолоджують синтезований матеріал на повітрі до кімнатної температури, після чого одержані злитки дроблять і пресують. Термоелектричні параметри отриманого таким чином матеріалу при кімнатній температурі мають наступні значення:

$$\alpha = 42 \text{ мкВ } \text{K}^{-1}, \sigma = 2,3 \cdot 10^3 \text{ Ом}^{-1} \text{ см}^{-1}, \\ \chi = 21,5 \cdot 10^{-3} \text{ Вт см}^{-1} \text{ K}^{-1}, \alpha^2 \sigma = 4,06 \text{ мкВт см}^{-1} \text{ K}^{-1} \\ Z = 0,192 \cdot 10^{-3} \text{ K}^{-1}, ZT_{300\text{K}} = 0,058$$

і характеризуються покращеними механічними властивостями.