[Research Paper] 대한금속 · 재료학회지 (*Korean J. Met. Mater.*), Vol. 60, No. 4 (2022) pp.315-320
DOI: 10.3365/KJMM.2022.60.4.315

$FeSe_2$-$FeTe_2$ 계 다결정 소재의 상 형성 거동 및 전기 전도 특성에 관한 연구

박옥민[1,a] · 김태완[2,a] · 이세웅[1] · 김현식[1] · 신원호[3] · Jamil Ur Rahman[4] · 김상일[1,*]

[1]서울시립대학교 신소재공학과
[2]전북대학교 전기공학과
[3]광운대학교 전자재료공학과
[4]University of Oslo 물리학과

Study of Phase Formation Behavior and Electronic Transport Properties in the $FeSe_2$-$FeTe_2$ System

Okmin Park[1,a], TaeWan Kim[2,a], Se Woong Lee[1], Hyun-Sik Kim[1], Weon Ho Shin[3], Jamil Ur Rahman[4], and Sang-il Kim[1,*]

[1]Department of Materials Science and Engineering, University of Seoul, Seoul 02504, Republic of Korea
[2]Department of Electrical Engineering and Smart Grid Research Center, Jeonbuk National University, Jeonju 54896, Republic of Korea
[3]Department of Electronic Materials Engineering, Kwangwoon University, Seoul 01897, Republic of Korea
[4]Department of Physics, University of Oslo, 0371 Oslo, Norway

Abstract: In this study, we investigated the phase formation behavior of the $FeSe_2$-$FeTe_2$ system and the evolution of their thermoelectric transport properties. A series of $Fe(Se_{1-x}Te_x)_2$ (x = 0, 0.2, 0.6, 0.8 and 1) compounds were synthesized by conventional solid-state reaction. Single phase orthorhombic structures were formed, except for $FeSe_{0.4}Te_{1.6}$ (x = 0.2). For $FeSe_{0.4}Te_{1.6}$ (x = 0.2), in which a mixture of $FeSe_2$ and $FeTe_2$-based phases was observed. The electrical conductivity of $FeSe_2$ was as low as 31 S/cm at room temperature, and greatly increased to 1295 S/cm in $FeSe_{0.8}Te_{1.2}$. Then it decreased to 335 S/cm for $FeTe_2$. It was shown that the bipolar conduction of electrons and holes pronouncedly exists in the sample. For $FeSe_2$ and $FeTe_2$, the Seebeck coefficient was positive at room temperature, becoming negative at high temperatures. For the other samples, the Seebeck coefficient was negative at room temperature and the magnitude of Seebeck coefficient increased with temperature. As results, the maximum power factor of 0.19 mW/mK^2 was observed for $FeSe_{0.8}Te_{1.2}$ (x = 0.6) at room temperature mostly due to its high electrical conductivity. The maximum power factor observed at 600 K was 0.34 mW/mK^2 for $FeSe_2$ (x = 0) with the largest Seebeck coefficient of -101 μV/K. The Hall carrier concentration was measured and compared, and effective masses were calculated to further investigate electrical transport in the samples.

(Received 25 January, 2022; Accepted 22 Fabruary, 2022)

Keywords: thermoelectric, FeSe2, FeTe2, solid solution, bipolar conduction

1. 서 론

최근 차량 및 각종 산업에서 폐열을 활용한 에너지 하베스팅 (Energy harvesting) 기술에 대한 관심과 필요성이 증대되고 있다. 다양한 에너지 하베스팅 기술들 중에서도 특히 열전 (Thermoelectric) 기술은 친환경적이고 다른 하베스팅 기술에 비해 소음이 적은 이점 등으로 활발히 연구되고 있다. 이종 금속의 양단에 전류를 주어 온도 차(흡열 및 발열)를 발생시키는 Peltier 효과를 이용한 열전냉각, 역으로 금속 양단에 온도 차이를 부여하여 전기를 발생시키는 Seebeck 효과를 이용한 열전발전은 수 μW 부터 수 kW 수준까지 광범위한 전력 사용 범위와 함께 저온에서

[a]Equal contribution
- 박옥민: 석사과정, 이세웅: 학사과정, Jamil Ur Rahman: 연구원, 김태완 · 김현식 · 신원호 · 김상일: 교수

**Corresponding Author:* Sang-il Kim
[Tel: +82-2-6490-2414, E-mail: sang1.kim@uos.ac.kr]

Copyright ⓒ The Korean Institute of Metals and Materials

고온까지 폭 넓은 온도 범위에서 응용될 수 있다 [1-4]. 이러한 열전소재의 열전성능은 무차원 성능 지수, *ZT*로 나타낼 수 있다. *ZT*는 아래의 식 (1)과 같이 표현된다[5].

$$ZT = \frac{\sigma S^2}{\kappa_{tot}} T \quad (1)$$

이때, σ는 전기전도도, S는 제벡계수, T는 절대온도, κ_{tot} 는 열전도도이다. 특히 전기전도도와 제벡계수의 제곱을 곱한, σS^2 를 따로 파워팩터 (power factor)라 부른다. *ZT*를 향상시키기 위해서는 파워팩터를 증가시키고 열전도도를 감소시켜야 한다. 하지만 파워팩터의 구성요소인 전기전도도와 제벡계수는 상충관계(Trade-off)로서 일반적으로 전기전도도가 증가하면 제벡계수가 감소하며 제벡계수가 증가하면 전기전도도가 감소하게 된다. 열전도도 κ_{tot} 는 전자 열전도도 κ_e 와 격자 열전도도 κ_l 로 구성되어 있으며, 열전도도 감소를 위해서는 격자열전도도 κ_l 를 낮추어야 한다 [6, 7]. 격자 열전도도는 격자의 진동을 양자화한 포논(phonon)의 산란에 의해서 결정되며, 포논 산란이 클수록 격자 열전도도는 감소하게 된다. 다양한 포논 산란 메커니즘 중에서도 열전도도를 효과적으로 감소시키는데 일반적으로 사용되는 메커니즘은 점 결함 포논 산란(Point defect phonon scattering)이다. 점 결함 포논 산란 메커니즘은 열전소재에 사용된 주 원소가 아닌 이종 원소를 도핑 또는 고용하여 결정 내에 결함을 발생시켜 포논을 산란시키는 메커니즘이다 [8-10]. 따라서 최근에는 이러한 메커니즘을 이용하여 열전재료에 이종 원소를 도핑 및 고용하는 연구가 다양하게 등장하고 있다 [11-13].

열전발전에 사용되는 열전재료 중 Bi_2Te_3계 및 Bi_2Se_3계와 같이 16족 원소의 화합물인 칼코제나이드(Chalcogenide) 중 반도체 특성을 보이는 소재 중, 열전도도가 낮은 소재는 우수한 열전성능을 보여준다 [14]. 이러한 칼코제나이드 중에서도 전이금속 디칼코제나이드 (Transition Metal Dichalcogenide, TMDC) 화합물은 뛰어난 광학적·자기적 성질과 더불어 약한 독성을 가져 열전 소재로서의 가능성이 연구되고 있다 [15-16]. 또한 몇 가지 전이금속 화합물은 국부적인 *d* 오비탈 또는 *f* 오비탈의 전자로 인해 큰 m^*를 가지고 있는데 [17], 이는 파워팩터 향상에 있어 유리하게 작용할 수 있다. 식 (2)에서와 같이 파워팩터는 유효질량(m^*)과 이동도(μ)에 비례한다 [18,19].

$$\sigma S^2 \propto m^{*\frac{3}{2}} \mu \quad (2)$$

현재 전이금속 디칼코제나이드에 관한 다양한 연구들이 이루어지고 있으며 [20,21], 한 예로 $HfSe_2$ 소재의 경우 고온에서 약 1.1의 높은 *ZT* 값이 보고된 바 있다 [22]. 또한 전이금속 디칼코제나이드 소재에서 확장하여, 전이금속 이외의 금속 원소를 갖는 금속 칼코제나이드 소재에 대한 연구들도 수행되어지고 있다 [23-25]. 금속 칼코제나이드 소재로는 전이후금속인 Sn과 In을 기반으로 하는 $SnSe_2$와 InSe 등이 대표적이다. Sn 기반 전이 후 금속 칼코제나이드 $SnSe_2$의 경우 750 K에서 최대 *ZT* 값 약 0.4로 준수한 열전성능이 보고된 바 있다 [23]. 또한, In 기반 전이 후 금속 칼코제나이드 InSe의 경우 795 K에서 0.05 수준의 낮은 *ZT* 값을 나타내나 Si를 도핑함으로써 795 K에서 0.14의 *ZT* 값을 나타내며 약 210%의 열전 성능 향상이 보고되었다 [25]. 마찬가지로 Fe 기반 금속 칼코제나이드 또한 열전소재로써 연구되고 있다 [26,27]. 이러한 Fe 기반 금속 칼코제나이드 중에서도 특히 $FeSe_2$ 및 $FeTe_2$는 10^{18} - 10^{19} cm^{-3}의 높은 전하밀도를 기반으로 다른 금속 칼코제나이드들과 비교하여 뛰어난 전기전도도 값을 나타낸다 [28,29]. 하지만 높은 전기전도도에 비해 낮은 제벡계수의 영향으로 0.1–0.3의 다소 낮은 *ZT* 값을 가지는데, 이러한 문제점을 해결하기 위해 불순물을 첨가하여 전기적 특성을 향상시키는 연구가 이루어지고 있다. 또한 Fe 기반 금속 칼코제나이드의 뛰어난 전기적 특성을 활용한 연구로서, Bi-Sb-Te계 합금에 $FeTe_2$를 도핑하여 350-400 K 범위에서 *ZT* 값이 모조성에 비해 43% 향상된 수치를 보여주며 도핑 소재로도 적용될 수 있다는 결과가 보고된 바 있다 [30]. 본 연구에서는 사방정계로 결정구조가 같은 두 금속 칼코제나이드 $FeSe_2$ 및 $FeTe_2$ 를 포함하여 두조성의 고용조성 $Fe(Se,Te)_2$ 의 전기적 특성 및 열전특성을 연구하였다. 전기전도도, 제벡계수, 전하밀도가 측정되었으며, 제벡계수와 전하밀도로부터 유효질량을 산출하였다.

2. 실험 방법

$Fe(Se_{1-x}Te_x)_2$ (x = 0, 0.2, 0.6, 0.8, 1) 잉곳을 전통적인 용융-응고 공정을 통하여 합성하였다. 분말 형태의 고순도 합성 원료 Fe (99.9%, Kojundo Chemical Laboratory Co., Ltd.), Se (99.999%, KRTLab), Te (99.999%, 5N Plus) 를 화학양론에 맞게 칭량 후 혼합하여 석영관(직경 15 mm)에 넣고 진공(~10^{-4} torr) 봉합하였다. 봉합된 석영관을 510 °C에서 72시간 동안 용융 후 냉각하여 잉곳 형태의 고용체를 수득하였다. 고에너지 스테인리스 볼밀(SPEX 8000D, SPEX)을 사용하여 수득한 잉곳을 분말로 분쇄하였다. (SUS Ball 직경: 5 mm, 개수: 8개, 분쇄 시간: 5분) 분말을 430 °C

55 MPa 에서 12분 간 가압소결 (Spark Plasma Sintering: SPS, SPS-1030, Sumitomo Coal Mining Co., Ltd.)하여 직경 11 mm, 높이 11 mm의 디스크 모양의 벌크 소결체를 제조하였다. 소결이 진행되는 동안 챔버 내부는 진공(~10^{-5} Torr)을 유지하였다. X선 회절(X-Ray Diffraction: XRD, D8 Discover, Bruker) 분석을 통해 상형성 거동 및 이차상 존재 여부를 파악한 이후 Se-Te 치환고용에 의한 격자상수의 변화를 산출하였다. 합성 소재의 조성을 확인하기 위해 Scanning electron microscopy (SEM)-energy dispersive spectroscopy (EDS) 측정을 진행하였으며, 열전성능 측정 장비 (ZEM-3, Advanced-Riko)를 통해 Helium 분위기에서 각 샘플 (측정된 샘플 규격: 2×2×8 mm^3)의 전기전도도 및 제벡계수를 측정하였다. 이렇게 측정된 제벡계수와 전기전도도를 통해 파워팩터를 계산하였다. 샘플의 전기적 거동을 파악하기 위해 홀 효과 측정 시스템 (HMS-5500, Ecopia)을 이용하여 각 샘플 (측정 샘플 규격: 7×7×0.5 mm)의 홀 비저항 (Hall resistivity) 값을 측정한 뒤, 측정값을 기반으로 전하밀도를 산출하였다. 홀 측정은 상온(300 K)에서 진행되었다.

3. 실험 결과

그림 1(a)는 $Fe(Se_{1-x}Te_x)_2$ ($x = 0, 0.2, 0.6, 0.8, 1$) 샘플의 XRD 측정결과를 나타낸다. $FeSe_2$ ($x = 0$) 및 $FeTe_2$ ($x = 1$) 샘플의 경우 사방정계 구조의 $FeSe_2$ (JCPDS: 01-079-1892)와 $FeTe_2$ (JCPDS: 01-074-0246) 가 단일상으로 합성된 것을 확인하였으며, Te-rich 상인 $FeSe_{0.8}Te_{1.2}$ ($x = 0.6$) 및 $FeSe_{0.4}Te_{1.6}$ ($x = 0.8$)의 XRD 결과에서는 단일상을 형성을 확인하였다. $FeSe_{1.6}Te_{0.4}$ ($x = 0.2$)의 경우 $FeSe_2$와 $FeTe_2$를 기반으로 하는 두가지 상이 함께 존재하는 것을 확인하였다. 표 1에는 SEM-EDS로 측정된 Fe, Se, Te의 원자비율을 나타내며, 화학양론적 조성비에서 벗어나지 않는 것을 확인하였다. 그림 1(b)는 XRD 결과로부터 산출된 각 샘플의 a축, b축, c축 격자상수를 나타낸다. $x = 0.2$ 조성은 복합체의 두 사방정계 구조의 구성상의 두 가지 격자상수를 모두 표시하였다. $FeSe_2$에 대한 격자상수는 내부가 색칠된 기호로, $FeTe_2$에 대한 격자상수는 빈 기호로 나타냈다. 모든 축에서 전반적으로 $FeSe_2$보다 $FeTe_2$에 대한 격자상수가 큰데, 이는 Te가 Se보다 큰 원자반경을 갖는 것에 기인한다. 먼저 $FeTe_2$에 대한 격자상수를 살펴보면 $x = 1$부터 $x = 0.2$까지 Se 함량이 증가할수록 모든 축의 격자상수가 감소하는 경향을 보였다. 이는 $FeTe_2$의 Te 자리에 Se가 성공적으로 치환고용 되었다는 실험적 증거가 된다. 다음으로 $x = 0$과 $x = 0.2$ 조성의 $FeSe_2$에 대한 격자상수를 비교해보면 a축은 3.6089 Å에서 3.6169 Å으로, b축은 4.7411 Å에서 4.8165 Å으로, c축은 5.7707 Å에서 5.7925 Å으로 증가한 것을 확인할 수 있으며 이 결과는 $FeSe_2$상에 Te의 고용이 한계가 있음을 알 수 있다.

Table 1. Atomic composition measured by electron dispersive spectroscopy (EDS) of the $Fe(Se_{1-x}Te_x)_2$ ($x = 0, 0.2, 0.6, 0.8$ and 1) samples.

$Fe(Se_{1-x}Te_x)_2$	$x = 0$	$x = 0.2$	$x = 0.6$	$x = 0.8$	$x = 1$
Fe	0.36	0.34	0.36	0.32	0.36
Se	0.64	0.51	0.26	0.12	-
Te	-	0.14	0.38	0.45	0.64

그림 2(a)는 $Fe(Se_{1-x}Te_x)_2$ ($x = 0, 0.2, 0.6, 0.8, 1$) 각 조성의 전기전도도 측정 결과를 나타낸다. $FeSe_2$ ($x = 0$) 샘플의 경우 상온에서 31 S/cm 로 매우 낮은 전도도를 보이

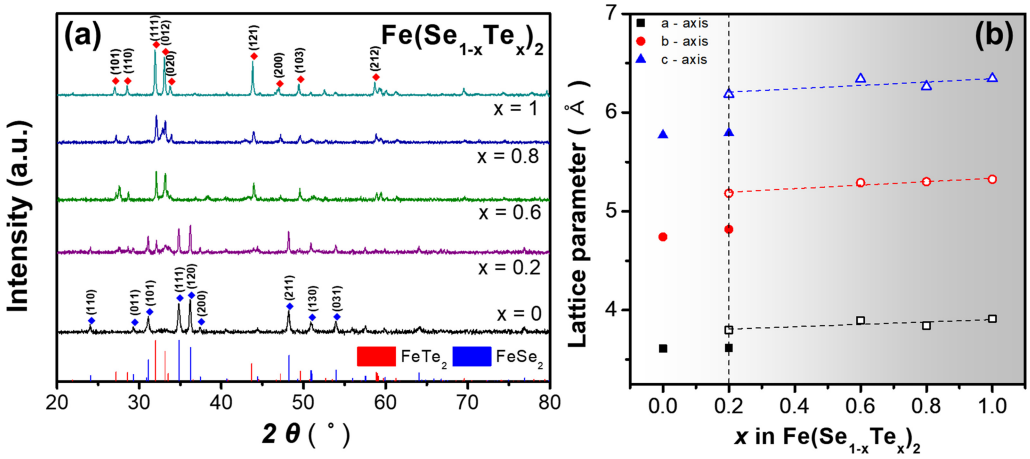

Fig. 1. (a) XRD patterns and (b) calculated lattice parameters *a*, *b* and *c* of $Fe(Se_{1-x}Te_x)_2$ ($x = 0, 0.2, 0.6, 0.8$ and 1). Solid and open symbols in (b) correspond to lattice parameters of $FeSe_2$ and $FeTe_2$ phases, respectively.

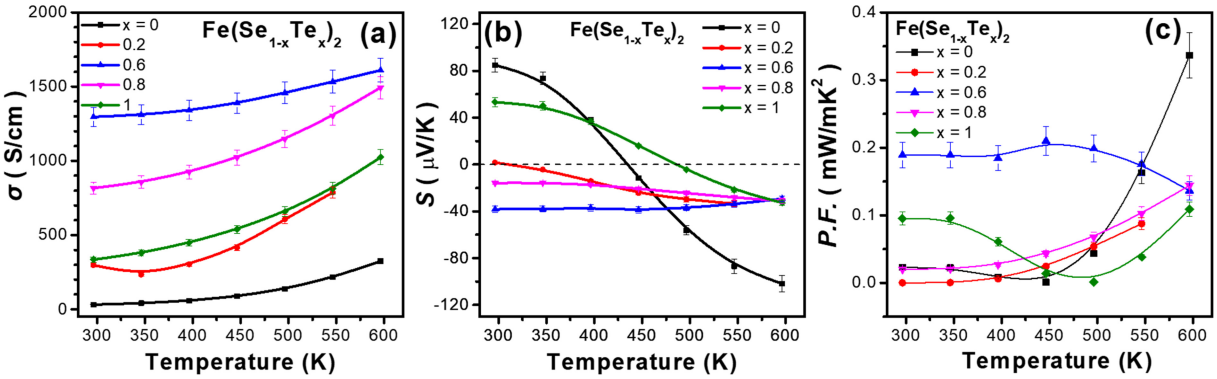

Fig. 2. (a) Electrical conductivity σ, (b) Seebeck coefficient *S* and (c) power factor *P. F.* as a funtion of temperature for the $Fe(Se_{1-x}Te_x)_2$ (x = 0, 0.2, 0.6, 0.8 and 1).

며, $FeSe_{0.8}Te_{1.2}$ ($x = 0.6$) 샘플에서 1295 S/cm의 가장 높은 값은 나타내다가, $FeTe_2$ ($x = 1$) 조성에서 335 S/cm 로 낮아진다. 모든 조성에서 온도가 증가하며 전기전도도가 증가하는 반도체 거동을 보였다. 그림 2(b)는 각 조성의 제벡계수를 나타낸다. $FeSe_2$ ($x = 0$) 및 $FeTe_2$ ($x = 1$) 모조성의 제벡계수는 300 K에서 양의 제벡계수 값을 보이나 온도가 증가함에 따라 특정 온도를 기점으로 음의 값으로 전환되는 양극성 전도(bipolar conduction) 특성을 보인다. $FeSe_2$ ($x = 0$) 경우 제벡계수는 상온에서 83 μV/K 수준이며 450 K 부근에서 *n*-type 전도로 변화되어, 600 K 에서 -101 μV/K 로 낮아진다. $FeTe_2$ ($x = 1$) 경우 제벡계수는 상온에서 53 μV/K 수준이며 500 K 부근에서 *n*-type 전도로 변화되어, 600 K 에서 -36 μV/K 로 낮아진다. 상기 두 샘플에 대해서 제벡계수가 0 인 온도부근에서는 온도차에 의한 전자의 이동과 정공의 이동이 상쇄를 이룬다고 생각할 수 있다.

그림 2(c)는 각 샘플의 전기전도도 및 제벡계수로부터 산출된 파워팩터를 나타낸다. 상온에서는 $FeSe_{0.8}Te_{1.2}$ ($x = 0.6$) 조성이 0.19 mW/mK^{2}으로 가장 우수한 파워팩터를 보여주었다. 그러나 고온으로 갈수록 전기전도도는 증가하는데 반해 제벡계수의 크기는 감소하여 고온(600 K)에서 0.14 mW/mK^2 수준까지 감소하였다. 반면 상온에서 0.020 mW/mK^2 수준으로 낮은 파워팩터 값을 보였던 $FeSe_{0.4}Te_{1.6}$ ($x = 0.8$) 조성은 고온으로 갈수록 전기전도도와 제벡계수의 크기가 함께 증가하여 600 K에서 $x = 0.6$ 조성의 파워팩터를 추월하였다. 고온(600 K)에서 가장 우수한 파워팩터를 보인 조성은 $FeSe_2$ ($x = 0$)로, 전도 전환이 일어나기 전 약 430 K까지는 전기전도도는 증가하는데 반해 제벡계수의 크기가 감소하여 파워팩터가 감소하는 양상을 보였으나, n-type 전도로 전환이 이루어진 이후 전기전도도와 제벡계수의 크기가 함께 증가하여 600 K에서 0.34 mW/mK^{2}로 가장 높은 파워팩터 값을 나타냈다. $FeTe_2$ ($x = 1$) 조성 또한 $FeSe_2$ ($x = 0$) 조성과 유사한 파워팩터 경향을 보였으나 전반적으로 작은 제벡계수 크기로 고온 영역에서 x = 0 조성에 비해 낮은 파워팩터를 보여주었다.

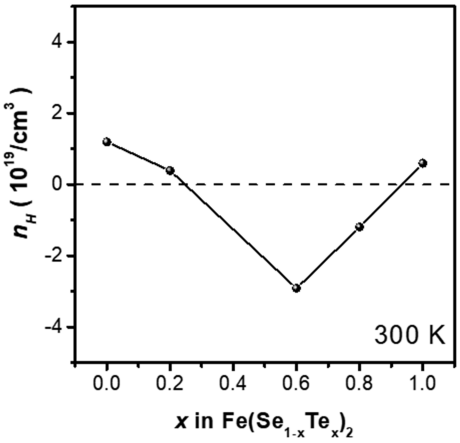

Fig. 3. (a) Hall carrier concentration n_H as a function of x in $Fe(Se_{1-x}Te_x)_2$ (x = 0, 0.2, 0.6, 0.8 and 1) at 300K.

앞서 나타난 전기적 성질의 거동을 보다 깊이 파악하기 위해 홀 효과를 이용하여 상온에서 측정한 각 조성의 전하밀도를 그림 3에 나타내었다. 상온에서 측정된 홀 전하밀도의 부호는 상온에서 제벡계수의 부호와 동일하게 측정되었다. $FeSe_{1.6}Te_{0.4}$ ($x = 0.2$) 조성은 3.90×10^{18}/cm^3 로 모든 조성 중 가장 낮은 전하밀도를 보였으며, $FeSe_{0.8}Te_{1.2}$ ($x = 0.6$) 조성은 2.9×10^{19}/cm^{3}로 모든 조성 중 가장 높은 전하밀도를 보였다. 이는 양극성 전도 상황에서 상온에서 우세한 전하(전자 혹은 정공)를 확인한 결과가 된다.

반도체의 전기적 특성 거동은 페르미 준위의 전자상태밀도에 기반을 두고 있다. 전자상태밀도의 크기는 전자 상태

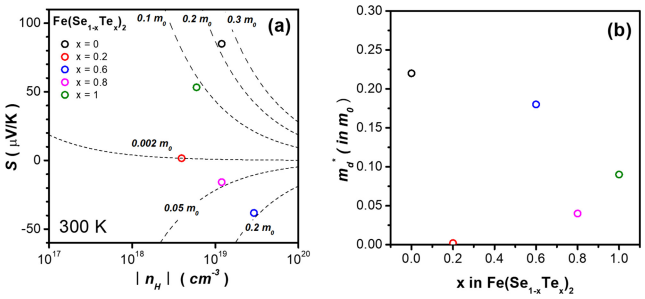

Fig. 4. (a) Pisarenko plot S-$|n_H|$, (b) effective mass m_* as a function of x of $Fe(Se_{1-x}, Te_x)_2$ (x = 0, 0.2, 0.6, 0.8 and 1) at 300K (m_0 = free electron mass).

밀도 유효질량과 직결되며, 유효질량을 계산함으로써 전기적 특성 거동을 전자구조의 변화의 관점에서 해석하였다. 각 샘플의 전자상태밀도 유효질량은 식 (4)를 통해 산출되었으며, 그 값을 그림 4에 나타냈다.

$$S = \frac{8\pi^2 K_B^2}{3eh^2} m^* T \left(\frac{\pi}{3n}\right)^{\frac{2}{3}} \tag{4}$$

식 (4)에서 S, k_B, e, h, m^* 그리고 n은 각각 제벡계수, 볼츠만 상수, 단위 전하량, 플랑크 상수, 전자상태밀도 유효질량, 그리고 전하밀도를 의미한다. 그림 4(a)에 각 샘플의 전하밀도에 따른 제벡계수 (Pisarenko 그래프)를 나타냈다. 그림 4(a)의 점선은 식 (4)를 통해 계산한 동일한 유효질량에 대한 전하밀도와 제벡계수의 상관관계를 나타낸다. 이때, m_0는 전하의 정지질량이다. 그림 4(b)에 각 샘플의 유효질량만을 따로 나타냈다. m^*는 전하밀도 및 제벡계수와 비례관계를 가진다. 따라서 그림 4(b)에서 확인할 수 있듯이 m^*는 각 샘플이 보이는 전하밀도 및 제벡계수 거동과 유사한 거동을 보인다. $FeSe_2$ (x = 0)와 $FeTe_2$ (x = 1) 조성의 m^*는 각각 0.22 m_0와 0.09 m_0 로 계산되었으며, $FeSe_2$의 경우 중간 정도의 전하밀도와 가장 큰 제벡계수를 가져 가장 큰 m^*값을 보였다. x = 0.6 조성은 가장 높은 전하밀도를 갖으며 0.19 m_0로 $FeSe_2$ 다음으로 높은 m^*값을 보였다. x = 0.2 조성은 가장 낮은 전하밀도와 가장 작은 제벡계수를 가져 약 0.002 m_0 의 가장 작은 m^*값을 보였다. 전자와 전공의 양극성 전도가 유사한 정도로 나타나는 것으로 보인다.

상온 열전재료 가장 많이 연구되고 있는 Bi_2Te_3 기반 열전 소재의 경우도 양극성 전도를 보이는 대표적인 소재이며 Bi 자리에 Sb를 도핑하여 p형 열전소재로써, Te 자리에 Se를 일정량 도핑하므로써 n형 열전소재로써 활용이 되고 있다 [14]. 본 연구를 통해 $FeSe_2$ 및 $FeTe_2$ 소재에서도 Bi_2Te_3 기반 열전소재의 경우 처럼 양극성 전도를 보이는 것을 확인하였으며, $FeSe_{0.8}Te_{1.2}$ (x = 0.6) 샘플에서 상온 전하밀도가 $2.9\times10^{19}/cm^3$ 로 상당히 높으며, 전기전도도도 또한 1300 S/cm 수준으로 높은 전도가 확인되었으며, 동시에 -38 μV/K 으로 상온 파워팩터가 0.19 W/mK^2 에 달하여 매우 높은 수준임이 확인되어 n형 열전소재로써의 가능성이 높은 것이 확인 되었다. $FeTe_2$ (x = 1)의 소재의 경우에도 상온 전하밀도가 $5.9\times10^{18}/cm^3$로 열전소재로써 높은 수준이며, 전기전도도도 또한 300 S/cm 수준으로 높은 전도가 확인되었으며, 동시에 제벡계수는 53 uV/K 으로 상온 파워팩터가 0.09 W/mK^2 로 산출되어 상온 파워팩터가 0.09 W/mK^2 로 측정되어 높은 수준임이 확인되어 p형 열전소재로써의 가능성이 높은 것이 확인 되었다. 다만, 본 연구는 $FeSe_2$-$FeTe_2$ 계 소재에서의 전기전도 특성 기반의 열전 성능을 평가한 것으로써, $Fe(Se,Te)_2$ 소재를 기반으로 양이온 도핑을 통한 추가 연구를 통하여, 실제 p형 및 n형 열전소재로 의미 있는 ZT 값을 발현할 수 있을 것으로 보고 추가 연구를 진행하고 있다.

4. 결 론

금속 디칼코제나이드 $Fe(Se_{1-x}Te_x)_2$ (x = 0, 0.2, 0.6, 0.8, 1) 소재의 조성에 따른 고용체 형성 여부 및 전기적 특성 변화를 연구하였다. XRD 측정 결과로부터 $FeSe_{1.6}Te_{0.4}$ (x = 0.2) 조성에서 $FeSe_2$ 및 $FeTe_2$ 구조를 기반으로 하는 복합체가 형성됨을 확인하였으며, $FeSe_{0.8}Te_{1.2}$ (x = 0.6) 및 $FeSe_{0.4}Te_{1.6}$ (x = 0.8) 조성에서는 Se가 Te 자리에 치환고용되어 단일상을 형성함을 확인하였다. $FeSe_2$, $FeTe_2$ 조성은 고온으로 올라가면서 p형 반도체에서 n형 반도체로 변화하는 뚜렷한 전도 전환 특성을 나타냈으며, 전도 전환 이후 온도 영역에서 두 조성 모두 제벡계수 및 전기전도도가 증가하여 600 K에서 각각 0.34 mW/mK^2, 0.11 mW/mK^2의 비교적 높은 최대 파워팩터 수치를 보였다. $FeSe_{0.8}Te_{1.2}$ (x = 0.6) 조성에서 상온 전하밀도가 $2.9\times10^{19}/cm^3$ 로 상당히 높으며, 전기전도도도 또한 1300 S/cm 수준으로 높은 전도가 확인되었으며, 동시에 제벡계수는 -38 uV/K 으로 상온 파워팩터가 0.19 W/mK^2 에 달하여 매우 높은 수준임이 확인되어 n형 열전소재로써의 가능성이 높은 것이 확인 되었다. $FeTe_2$ (x = 1)의 소재의 경우에도 p형 열전소재로써 상온 전하밀도가 $5.9\times10^{18}/cm^3$ 로 열전소재로써 높은 수준이며, 전기전도도도 또한 300 S/cm 수준으로 높은 전도가 확인되었으며, 동시에 제벡계수는 53 uV/K으로 상온 파워팩터가 0.09 W/mK^2 로 산출되어 높은 수준임이 확인되어 p

형 열전소재로써의 가능성이 높은 것이 확인 되었다. $Fe(Se,Te)_2$ 소재를 기반으로 양이온 도핑을 통한 추가 연구를 통하여, 실제 p형 및 n형 열전소재로 의미 있는 *ZT* 값을 발현할 수 있을 것으로 보고 추가 연구를 진행하고 있다.

Acknowledgements

This work was supported by the Basic Study and Interdisciplinary R&D Foundation Fund of the University of Seoul (2020) for Sang-il Kim and by the National Research Foundation of Korea (NRF-2021R1C1C1006147) for TaeWan Kim.

REFERENCE

1. G. Sebald, D. Guyomar, and A. Agbossou, *Smart Mater. Struct.* **18**, 125006 (2009).
2. M. H. Mohammad, K. Navid, Y. Jiajun, P. Chengfeng, M. J. Eric, M. Krzysztof , and M. Carmel, *Adv. Funct. Mater.* **29**, 1906098 (2019).
3. O. Michitaka, T. Toshiki, E. Koichi, and A. Hiromichi, *J. Appl. Phys.* **79**, 1816 (1996).
4. Z. Soleimani, S. Zoras, B. Ceranic, S. Shahzad, and Y. Cui, *Sustain. Energy Technol. Assess.* **37**, 100604 (2020).
5. C. N. R. Rao, F. L. Deepak, G. Gundiah, and A. Govindaraj, *Prog. Solid State Chem*. **31**, 1 (2003).
6. M. G. Holland, *Physical Review.* **134**, A471 (1964).
7. B. R. Ortiz, H. Peng, A. Lopez, P. A. Parilla, S. Lany, and E. S. Toberer, *Phys. Chem. Chem. Phys*. **17**, 19410 (2015).
8. Z. Huang, D. Wang, C. Li, J. Wang, G. Wang, and L. Zhao, *J. Mater. Chem. A*. **8**, 4931 (2020).
9. Y. Yang, T. W. Kim, S. Hong, J. An, and S. -i. Kim, *Korean J. Met. Mater.* **58**, 721 (2020).
10. H. Xie, X. Su, G. Zheng, T. Zhu, K. Yin, Y. Yan, C. Uher, M. G. Kanatzidis, and X. Tang, *Adv. Energy Mater*. **7**, 1 (2017).
11. Z. Cheng, L. Zhi, Z. Min, X. Hongyao, H. Changhua, S. Xianli, T. Gangjian, P. F. P. Poudeu, U. Ctirad L. Wei, and T. Xinfeng, *J. Mater. Chem. C*. **8**, 619 (2020).
12. J. -H. Pi, G. -E. Lee, and I. -H. Kim, *Korean J. Met. Mater.* **59**, 422 (2021).
13. H. J. Cho, H. S. Kim, and S. I. *Kim, Korean J. Met. Mater.* **57**, 673 (2019).
14. S. Scherrer, *in: D.M. Rowe (Ed.), Thermoelectrics Handbook Macro to Nano*, chap 27, CRC, Boca Raton, FL (2006).
15. A. Ghosh and R. Thangavel, *Indian J. Phys*. **91**, 1339 (2017).
16. G. J. Snyder and E. S. Toberer, *Nat. Mater*. **7**, 105 (2008).
17. K. Kishimoto, K. Kondo, and T. Koyanagi, *J. Appl. Phys.* **100**, 093710 (2006).
18. S. -i. Kim and H. -S. Kim, *Korean J. Met. Mater.* **59**, 127 (2021).
19. C. M. Bhandari, *Thermoelectrics, edited by D. M. Rowe , Chap. 4*, pp. 27-42 CRC, Boca Raton (1995).
20. G. E. Yakovleva, A. I. Romanenko, A. Y. Ledneva, V. A. Belyavin, V. A. Kuznetsov, A. S. Berdinsky A. T. Burkov, P. P. Konstantinov, S. V. Novikov, M. K. Han, S. J. Kim and V. E. Fedorov, *J. Am. Ceram. Soc.* **102**, 6060 (2019).
21. I. Pallecchi, N. Manca, B. Patil, L. Pellegrino and D. Marr, *Nano Futures* **4**, 032008 (2020).
22. G. Yumnam, T. Pandey and A. K. Singh, *J. Chem. Phys.* **143**, 234704 (2015).
23. J. h. Bang, J. W. An, S. O. Hong, G. C. Bang W. H. Shin, T. W. Kim, and K. M. Lee, *J. Alloys. Compd.* **868**, 159161 (2021)
24. D. H. Kim, H. S. Kim, J. U. Rahman, H. Shin, T. W. Kim, and S. I. Kim, *J. Korean Ceram. Soc.* **59**, 64 (2022).
25. K. H. Lee, M. W. Oh, H. S. Kim, W. H. Shin, K. M. Lee, J. H. Lim, J. I. Kim, and S. I. Kim, *Inorg. Chem. Front.* **6**, 1475 (2019)
26. G. Li, B. Zhang, J. Rao, D. H. Gonzalez, G. R. Blake, R. A. de Groot, and T. T. M. Palstra, *Chem. Mater*. **27**, 8220 (2015).
27. F. F. Aliev, G. G. Guseinov, G. P. Pashaev, G. M. Agamirzoeva, and A. B. Magerramov, *Inorg. Mater.* **44**, 115 (2008)
28. D. K. Sharma, B. Joshi, K. R. Patel, V. Ganeshan, and Y. K. Sharma, *Int. j. recent res. rev.* **6**, 22 (2013).
29. W. H. Shin, J. W. Roh, B. K. Ryu, H. J. Chang, H. S. Kim, S. I. Lee, W. S. Seo, and K. H. Ahn, *ACS Appl. Mater. Interfaces.* **10**, 3689 (2018)
30. V. K Gudelli, V. Kanchana, G. Vaitheeswaran, M. C. Valsakumar, and S. D. Mahanti, *RSC Adv*. **4**, 9424 (2014).