ชื่อเรื่องวิทยานิพนธ์ สภาพการนำไอออนและสมบัติเชิงกลของอิเล็กโทรไลต์ที่มีเซอร์โคเนียเป็นฐาน เตรียมโดยเทคนิคการเคลือบสารละลาย

ชื่อผู้เขียน นางสาวมาลินี มีโพธิ์

หลักสูตร วิทยาศาสตรมหาบัณฑิต (สาขาวิชาวัสดุศาสตร์)

คณะกรรมที่ปรึกษา ผู้ช่วยศาสตราจารย์ ดร. ดรุณี วัฒนศิริเวช ประธานกรรมการ
อาจารย์ ดร. สุธี วัฒนศิริเวช กรรมการ

บทคัดย่อ

งานวิจัยนี้มีวัตถุประสงค์เพื่อปรับปรุงค่าการนำไอออนของเซรามิกชนิด 3YSZ สำหรับใช้เป็นวัสดุอิเล็กโทรไลต์ในเซลล์เชื้อเพลิงออกไซด์ของแข็ง (Solid oxide fuel cell) ซึ่งทำการเตรียมผงเซรามิกด้วยเทคนิคการเคลือบสารละลาย โดยการเคลือบผงเซรามิก 3YSZ ด้วยสารละลาย 3 ชนิด ได้แก่ อิตเทรียในปริมาณ 5 mol% ซีเรียในปริมาณ 10 mol% และอิตเทรียผสมกับซีเรียในปริมาณ 5 และ 10 mol% ตามลำดับ (รหัสย่อ 5Y, 10Ce และ 10Ce5Y ตามลำดับ) โดยทำการเผาอบผนึกตัวอย่างที่อุณหภูมิ 1300-1500°C เป็นเวลา 1-5 ชั่วโมง จากนั้นทำการวิเคราะห์ชิ้นงานหลังการเผาอบผนึก ได้แก่ การเปลี่ยนแปลงโครงสร้าง โครงสร้างจุลภาค สมบัติทางไฟฟ้า และสมบัติเชิงกล

จากผลการวิเคราะห์การเปลี่ยนแปลงโครงสร้างของตัวอย่าง 5Y พบว่าที่อุณหภูมิการเผาอบผนึก 1300°C เวลา 1 ชั่วโมง ตัวอย่างมีโครงสร้างเป็นเตตระโกนอลเพียงแบบเดียว แต่เมื่อเพิ่มเวลาเป็น 3 และ 5 ชั่วโมง จะเกิดโครงสร้างทรงลูกบาศก์ร่วมด้วยและเมื่อเพิ่มอุณหภูมิการเผาอบผนึกเป็น 1400 และ 1500°C ตัวอย่างจะมีเพียงโครงสร้างเตตระโกนอลที่มีความเป็นเตตระโกนอลต่ำลงเมื่อเทียบกับตัวอย่าง 3YSZ ที่ผ่านการเผาอบผนึกในสภาวะเดียวกัน และผลการวิเคราะห์ด้วยกล้องจุลทรรศน์อิเล็กตรอนแบบส่องผ่าน (TEM) ประกอบกับเทคนิค EDS พบว่าอิตเทรียมีการกระจายตัวในแต่ละเกรนแบบไม่สม่ำเสมอ และจะเกิดการเติบโตของเกรนเมื่อเพิ่มอุณหภูมิและเวลา

ในการเผาอบผนึก ผลการวิเคราะห์สมบัติทางไฟฟ้าพบว่าตัวอย่าง 5Y มีค่าการนำไอออนภายในเกรนเพิ่มขึ้นตามอุณหภูมิและเวลาการเผาอบผนึก และมีค่าสูงกว่าตัวอย่าง 3YSZ เมื่อเทียบที่สภาวะการเผาอบผนึกเดียวกัน ส่วนค่าการนำไอออนของขอบเกรนของตัวอย่าง 5Y มีค่าสูงกว่าตัวอย่าง 3YSZ โดยมีค่าเพิ่มขึ้นตามอุณหภูมิและเวลาในการเผาอบผนึก ค่าการนำไอออนที่ 600°C มีค่าสูงสุดเมื่อตัวอย่างผ่านการเผาอบผนึกที่อุณหภูมิ 1500°C เป็นเวลา 5 ชั่วโมง โดยมีค่าเท่ากับ 3.30×10^{-2} S/cm และมีความแข็งแรงในการหักงอและความต้านทานการแตกร้าวเท่ากับ 221 MPa และ 2.74 $MPa/m^{1/2}$ ตามลำดับ

จากผลการวิเคราะห์การเปลี่ยนแปลงโครงสร้างของตัวอย่าง 10Ce พบว่ายังคงมีโครงสร้างเป็นเตตระโกนอล แต่มีโครงสร้างทรงลูกบาศก์เกิดขึ้นร่วมด้วยหลังการเผาอบผนึกที่อุณหภูมิ 1500°C เป็นเวลา 5 ชั่วโมง และจากผลการวิเคราะห์ด้วยกล้องจุลทรรศน์อิเล็กตรอนแบบส่องผ่าน (TEM) ประกอบกับเทคนิค EDS พบว่าซีเรียมีการกระจายตัวในแต่ละเกรนแบบไม่สม่ำเสมอ โดยมีขนาดเกรนโตขึ้นเล็กน้อยเมื่อเทียบกับตัวอย่าง 3YSZ ที่ผ่านการเผาอบผนึกในสภาวะเดียวกัน ผลการวิเคราะห์สมบัติทางไฟฟ้าพบว่าที่ทุกสภาวะการเผาอบผนึกตัวอย่าง 10Ce มีค่าการนำไอออนภายในเกรนด้อยกว่าตัวอย่าง 3YSZ โดยมีการเปลี่ยนแปลงไปตามสภาวะการเผาอบผนึกเพียงเล็กน้อย ส่วนค่าการนำไอออนของขอบเกรนพบว่าตัวอย่าง 5Y หลังการเผาอบผนึกเป็น 1500°C ที่เวลา 1 ชั่วโมงเป็นต้นไปจะมีค่าสูงกว่าตัวอย่าง 3YSZ เมื่อเทียบที่ภาวะเดียวกัน ค่าการนำไอออนที่ 600°C มีค่าสูงสุดเมื่อตัวอย่างผ่านการเผาอบผนึกที่อุณหภูมิ 1500°C เป็นเวลา 5 ชั่วโมง โดยมีค่าเท่ากับ 0.31×10^{-2} S/cm มีค่าความแข็งแรงในการหักงอและค่าความต้านทานการแตกร้าวเท่ากับ 326 MPa และ 3.32 $MPa/m^{1/2}$ ตามลำดับ

จากผลการวิเคราะห์การเปลี่ยนแปลงโครงสร้างของตัวอย่าง 10Ce5Y พบว่ามีเพียงโครงสร้างแบบทรงลูกบาศก์ โดยการเพิ่มอุณหภูมิและเวลาในการเผาอบผนึกทำให้เกิดการเติบโตของเกรน ผลการวิเคราะห์สมบัติทางไฟฟ้าพบว่าที่ทุกสภาวะการเผาอบผนึกตัวอย่าง 10Ce5Y มีค่าการนำไอออนภายในเกรนด้อยกว่าตัวอย่าง 3YSZ โดยมีค่าเปลี่ยนแปลงไปตามสภาวะการเผาอบผนึกเพียงเล็กน้อย ส่วนค่าการนำไอออนของขอบเกรนมีค่าสูงกว่าตัวอย่าง 3YSZ และมีค่าเพิ่มขึ้นตามอุณหภูมิและเวลาในการเผาอบผนึก ค่าการนำไอออนที่ 600°C มีค่าสูงสุดเมื่อตัวอย่างผ่านการเผาอบผนึกที่อุณหภูมิ 1500°C เป็นเวลา 5 ชั่วโมง โดยมีค่าเท่ากับ 0.77×10^{-2} S/cm มีค่าความแข็งแรงในการหักงอและค่าความต้านทานการแตกร้าวเท่ากับ 209 MPa และ 1.19 $MPa/m^{1/2}$ ตามลำดับ

คำสำคัญ : ค่าการนำไอออน / สมบัติเชิงกล / อิเล็กโทรไลต์ / ซีเรีย / อิตเทรีย

Thesis Title Ionic Conductivity and Mechanical Properties of Zirconia Based Electrolyte Fabricated by Solution Coating Technique

Author Miss Malinee Meepho

Degree Master of Science (Materials Science)

Supervisory Committee Assist. Prof. Dr. Darunee Wattanasiriwech Chairperson
Lecturer Dr. Suthee Wattanasiriwech Member

ABSTRACT

This research aimed to improve ionic conductivity of 3YSZ ceramic for using as an electrolyte in solid oxide fuel cell (SOFC). Ceramic powder was prepared by a simple solution coating technique. 3YSZ powder was coated with 3 types of solutions, 5 mol% yttria, 10 mol% ceria and 5 mol% yttria mixed with10 mol% ceria (Code: 5Y, 10Ce and, 10Ce5Y respectively). The samples were sintered at 1300-1500°C for 1-5 hours. Phase development, microstructure, electrical properties and mechanical properties of sintered samples were investigated.

For 5Y samples, the XRD results showed that after sintering at 1300°C for 1 hour, the coated samples exhibited only tetragonal structure. Increasing sintering time to 3-5 hours resulted in co-existence of tetragonal and cubic structure. Further increasing sintering temperature to 1400-1500°C, the crystal structure changed to tetragonal with lower tetragonality compared to the starting 3YSZ sintered at the same condition. From Transmission Electron Microscope (TEM) and Energy Dispersed X-ray Spectroscopy (EDS) analysis results, yttria was inhomogeneously distributed in individual grain. Grain growth was found when increasing sintering temperature and time. Impedance spectroscopy analysis results of all sintered samples showed that grain

interior conductivity of 5Y samples were only slightly increased with increasing sintering temperature and time and higher than that of 3YSZ at the same sintering condition. Grain boundary conductivity of the sintered samples was, however, improved with increasing sintering temperature and superior to that of 3YSZ. The highest ionic conductivity of 3.30 x 10^{-2} S/cm at 600°C was found in the sample sintered at 1500°C for 5 hours. Flexural strength and fracture toughness of this sample were 221 MPa and 2.74 MPa/$m^{1/2}$ respectively.

For 10Ce samples, the XRD results showed that all sintered samples, the coated samples were tetragonal except the one sintered at 1500°C for 5 hours which showed co-existence of tetragonal and cubic structure. From Transmission Electron Microscope (TEM) and Energy Dispersed X-ray Spectroscopy (EDS) analysis results, ceria was also inhomogeneously distributed in individual grain. Coating with ceria solution also caused a slightly increase in grain size of the sintered samples. Impedance spectroscopy analysis results showed that grain interior conductivity of the coated samples was inferior to that of 3YSZ and only slightly affected by the sintering conditions. Grain boundary conductivity of the coated samples was, however, improved with increasing sintering temperature and became superior to that of 3YSZ when sintered at 1500°C for 1 h. The highest ionic conductivity of 0.31 x 10^{-2} S/cm at 600°C was found in the sample sintered at 1500°C for 5 hours. Flexural strength and fracture toughness of this sample were 326 MPa and 3.32 MPa/$m^{1/2}$ respectively.

For 10Ce5Y samples, the XRD results showed that after sintering at all conditions, the coated samples exhibited only cubic structure. Microstructure analysis showed that the sintered samples exhibited grain growth when increasing sintering temperature and time. Impedance spectroscopy analysis results of all samples showed that grain interior conductivity of the samples was inferior to that of 3YSZ and only slightly affected by the sintering conditions. Grain boundary conductivity of the samples was, however, improved with increasing sintering temperature and superior to that of 3YSZ. The highest ionic conductivity of 0.77 x 10^{-2} S/cm at 600°C was found in the sample sintered at 1500°C for 5 hours. Flexural strength and fracture toughness were 209 MPa and 1.19 MPa/$m^{1/2}$ respectively.

Keywords : Ionic conductivity / Mechanical property / 3YSZ / Ceria / Yttria