

بهینه سازی پارامترهای فرآیند ریخته گری نواری زیر کونیا تثبیت شده با ایتریا به وسیله

طراحی تاگوچی به عنوان الکترولیت پیل سوختی اکسید جامد

سارا پایدار^{۱*}، محمد حسین شریعت^۲، سیروس جوادپور^۳

(تاریخ دریافت: ۱۳۹۴/۱۲/۱۰، ش.ص. ۵۶-۴۷، تاریخ پذیرش: ۱۳۹۵/۰۳/۰۷)

چکیده

در پژوهش حاضر، بهینه‌سازی پارامترهای موثر در فرآیند ریخته‌گری نواری برای تولید فیلم ضخیمی از ترکیب زیرکونیای تثبیت شده با ایتریا (YSZ8)، جهت استفاده به عنوان الکترولیت جامد در پیل‌های سوختی اکسید جامد (SOFC) مورد بررسی قرار گرفته است. برای این منظور، طراحی تاگوچی با در نظر گرفتن خصوصیات از دوغاب و فیلم ایجاد شده شامل ویسکوزیته دوغاب و دانسیته خام نمونه‌های تولیدی و متغیرهایی نظیر درصد فاز جامد، درصد چسب و نسبت پلاستیسایزر به چسب، استفاده شد. نتایج حاکی از آن است که درصد فاز جامد بیش‌ترین تاثیر را بر ویسکوزیته دوغاب و دانسیته خام دارد. لذا دوغابی حاوی حداکثر فاز جامد ممکن (۶۵ درصد وزنی دوغاب) با درصدی مناسب از چسب (۶ درصد وزنی فاز جامد مورد استفاده) و پلاستیسایزر (معادل درصد چسب مورد استفاده) که ویسکوزیته قابل قبولی را ایجاد نماید، می‌تواند به عنوان دوغاب بهینه انتخاب شود. سپس نمونه تولید شده در شرایط بهینه، در دمای 1450°C به مدت ۲ ساعت سینتر گردید. دانسیته نهایی نمونه سینتر شده معادل ۹۷ درصد دانسیته تئوری تعیین شد. هدایت یونی نمونه سینتر شده به روش طیف‌نگاری امپدانس در محدوده دمایی ۳۰۰ تا ۸۰۰ درجه سانتی‌گراد اندازه‌گیری و معادل $1/0.88 \times 10^{-5} (\Omega \cdot \text{cm})^{-1}$ در دمای 300°C و $2/27 \times 10^{-2} (\Omega \cdot \text{cm})^{-1}$ در دمای 800°C تعیین شد.

واژه های کلیدی: ریخته گری نواری، الکترولیت، دانسیته، طراحی تاگوچی.

^۱ - دانشجوی دکتری، دانشکده مهندسی، بخش مهندسی مواد

^۲ - استاد، دانشگاه شیراز، دانشکده مهندسی، بخش مهندسی مواد

^۳ - استاد، دانشگاه شیراز، دانشکده مهندسی، بخش مهندسی مواد

* - نویسنده مسئول مقاله: s.paydar28@gmail.com, spaydar@shirazu.ac.ir

پیشگفتار

پیل‌های سوختی از جمله تجهیزات الکتروشیمیایی هستند که برای تبدیل انرژی شیمیایی به الکتریکی مورد استفاده قرار می‌گیرند. این تکنولوژی، پاک و دارای بازده بالا بوده و برای تولید همزمان الکتریسیته و حرارت می‌تواند مورد استفاده قرار بگیرد. در پیل‌های سوختی از سوخت‌های مختلفی از جمله هیدروژن، هیدروکربن‌ها و همچنین سوخت‌های تجدید پذیر مانند اتانول و متانول می‌تواند استفاده شود [۶-۱۱]. بنابراین، پیل‌های سوختی می‌توانند جایگزین مناسبی برای موتورهای احتراق داخلی و توربین‌ها جهت تبدیل انرژی شیمیایی به انرژی الکتریکی بدون ایجاد گازهای گلخانه‌ای و آلودگی باشند [۷، ۸]. پیل‌های سوختی متشکل از سه لایه آند، کاترولیت و کاتد می‌باشند و به صورت‌های مختلفی طراحی شده‌اند. در میان این طرح‌ها، نوع مسطح از مزایای چگالی توان بالاتر در واحد حجم و هزینه‌های تولید پایین‌تر برخوردار می‌باشد. در این طراحی الکتروولیت به شکل لایه نازک بسیار متراکم (۱۰-۱۰۰ میکرومتر) می‌باشد [۴]. در پیل‌های سوختی با کارکرد در درجه حرارت بالا، زیرکونیای تثبیت شده با ایتریا (YSZ8) به دلیل هدایت یون اکسیژن بالا و پایداری شیمیایی در محدوده دمایی گسترده به عنوان الکتروولیت و کامپوزیت (YSZ8-Ni) به عنوان آند استفاده می‌شود. در راستای تولید پیل‌های سوختی مسطح معمولاً از فرآیند ریخته‌گری نواری استفاده می‌شود [۲، ۹، ۱۰].

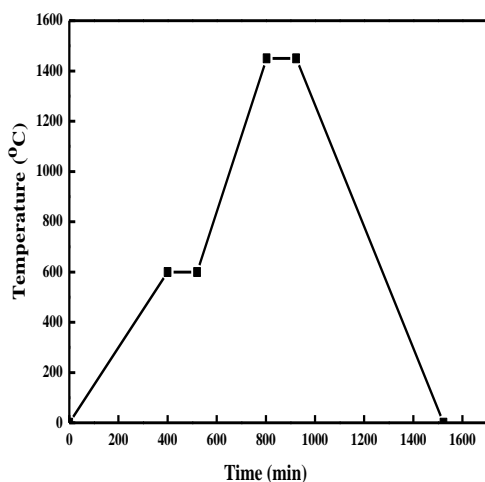
ریخته‌گری نواری، یکی از روش‌هایی است که به صورت گسترده در تولید قطعه‌های سرامیکی به شکل نوارهای نازک با سطوح بزرگ قابل بهره‌برداری بوده [۹-۱۲] که مواد مورد نیاز جهت انجام عملیات ریخته‌گری نواری به صورت دوغاب تهیه می‌شوند. دوغاب‌ها شامل ذره‌های سرامیکی معلق در یک محیط آبی یا آلی است که با مواد افزودنی پراکنده‌ساز، پلاستیسایزر و چسب مخلوط شده‌اند. مواد پراکنده‌ساز به منظور جدا کردن آگلومره‌های نرم و پخش مناسب ذرات سرامیکی در دوغاب، پلاستیسایزر جهت ایجاد پلاستیسیته لازم برای جدا کردن نوار از زیرلایه پس از خشک شدن و چسب جهت افزایش غلظت دوغاب و ایجاد اتصال فیزیکی

بین ذره‌های سرامیکی، مورد استفاده قرار می‌گیرند [۹، ۱۱]. همان گونه که ذکر شد جهت ایجاد دوغاب، با توجه به جنس پودر ترکیبات سرامیکی، حلال‌های آبی یا آلی مورد استفاده قرار می‌گیرد. حلال آبی به دلیل غیر سمی بودن و قیمت پایین نسبت به حلال‌های آلی جهت ایجاد دوغاب در اولویت می‌باشد؛ اما از آنجا که حلال‌های آلی فرارتر می‌باشد، نوارهای خام یکنواخت، راحت‌تر ایجاد خواهند شد، اما در مورد دوغاب‌های آبی جهت ایجاد نوارهای خام بدون عیب و ترک تمام پارامترها باید تحت کنترل باشد. درصد پودر جامد، پراکنده‌ساز، انعطاف دهنده و چسب موجود در دوغاب و زمان اضافه شدن این مواد به دوغاب از جمله پارامترهای موثر در کیفیت محصول تولیدی در فرآیند ریخته‌گری نواری می‌باشد [۹]. در صورت عمل نکردن انعطاف دهنده به دلیل درصد نامناسب یا زمان نامناسب اضافه شدن آن، نوار خیس در حین خشک شدن ترک خواهد خورد و همچنین نوار بعد از خشک شدن به زیر لایه می‌چسبد و به راحتی از روی زیرلایه جدا نخواهد شد [۹]. از دیگر عوامل موثر در ایجاد نواری بدون عیب، هوازدايي دوغاب می‌باشد، به گونه‌ای که اگر هوازدايي به صورت موثر صورت نگیرد، نوارها در حین خشک شدن ترک خواهد خورد. بنابراین، در ایجاد دوغابی مناسب جهت تولید قطعه‌ای نواری، پارامترهای بسیاری وجود دارند که حائز اهمیت می‌باشند. روابط متقابل بین پارامترها پیچیده بوده و تجزیه و تحلیل این فرآیند برای بهینه‌سازی پارامترها زمان‌گیر است. از این رو، تجزیه و تحلیل با استفاده از روش‌های آزمایشی متعارف هزینه و زمان‌بر می‌باشند. یکی از ابزارهای مهم برای طراحی آزمایش روش تاگوچی است. روش تاگوچی ترکیبی از تکنیک‌های ریاضی و آماری بوده که با استفاده از این روش، می‌توان در شرایط آزمایشی با حداقل تعداد آزمایش‌ها، شرایط بهینه دوغاب را تعیین کرد [۱۳ و ۱۴]. هدف از این تحقیق، استفاده از روش تاگوچی جهت بهینه‌سازی پارامترهای موثر در ایجاد دوغاب مناسب از ماده سرامیکی YSZ8 جهت انجام عملیات ریخته‌گری نواری و همچنین بررسی اثر پارامترهای مختلف بر خصوصیات نمونه‌های تولیدی از ترکیب YSZ8 به روش ریخته‌گری نواری است.

مواد و روش‌ها

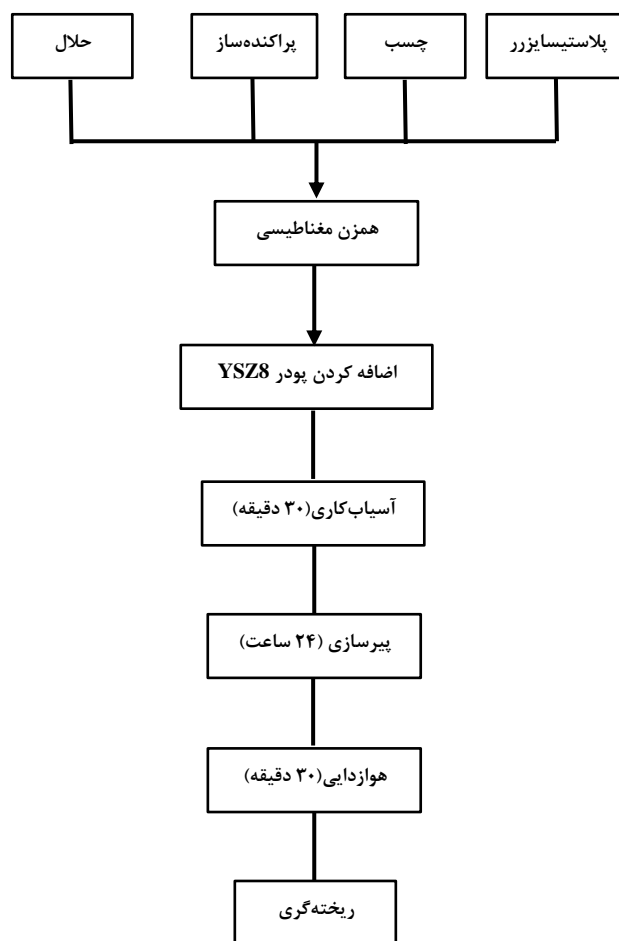
متغیر بوده، و مقدار پراکنده ساز ۱ درصد وزنی پودر، ثابت نگه داشته شد. همچنین، درصد چسب و نسبت پلاستیسایزر به چسب در محدوده ۴-۶ درصد وزنی و ۱/۵-۰/۵ به ترتیب تغییر داده شد. پس از تهیه دوغاب‌ها، جهت بررسی خواص رئولوژیکی آن‌ها، ویسکوزیته توسط دستگاه ویسکومتر مدل Fungilab تعیین شد. همچنین اندازه‌گیری پتانسیل زتا به صورت تابعی از pH توسط دستگاه زتاسایزر مدل Microtrac ZC007 انجام شد. جهت ایجاد لایه‌ای یکنواخت بدون عیب و ترک، دوغاب‌ها باید کاملاً یکنواخت مخلوط شده باشند و عاری از هرگونه حباب هوا باشند. در این راستا، هوازدايي دوغاب‌ها با استفاده از دستگاه جارمیل بدون استفاده از گلوله، با سرعت ۱۰ دور بر دقیقه به مدت ۳۰ دقیقه انجام شد. سپس ریخته‌گری بر روی زیر لایه‌ی تفلونی انجام شد و نوارهایی با ضخامت تقریبی ۱۰۰ تا ۲۰۰ میکرون ایجاد شدند. بعد از خشک شدن نوارها به مدت ۲۴ ساعت در محیطی خنک مانند یخچال (دمای ۷-۳ درجه سانتیگراد)، نمونه‌ها تا دمای ۱۲۰۰ درجه سانتیگراد (دمایی که چگالش کامل رخ نمیدهد؛ اما چسب و انعطاف دهنده‌ها از سطح خارج شده و فقط استحکام مکانیکی نمونه افزایش یافته است) به مدت ۱ ساعت سینتر شدند و سپس دانسیته نمونه‌ها (به عنوان دانسیته تقریباً خام) با استفاده از روش ارشمیدس بر اساس استاندارد ASTM C373 اندازه‌گیری شد. در ادامه برای تعیین سیکل حرارتی مناسب جهت عملیات تفجوشی نمونه‌های ریخته‌گری شده، ابتدا باید دمای خروج مواد افزودنی تعیین گردد، لذا آنالیز حرارتی TG بر روی پودر PVB انجام شد. در این راستا به منظور تولید نمونه‌های نهایی، نمونه‌های ریخته‌گری شده در شرایط بهینه با سیکل عملیات حرارتی نشان داده شده در شکل ۲ تفجوشی شدند. در نهایت به منظور بررسی هدایت الکتریکی نمونه ریخته‌گری شده در شرایط بهینه، امپدانس نمونه در محدوده دمای ۳۰۰-۹۰۰°C و محدوده فرکانسی ۰/۱-۱۰^۶ هرتز اندازه‌گیری گردید. برای انجام آنالیز طیف‌نگاری امپدانس الکتروشیمیایی از دستگاه آنالیز طیف‌نگاری امپدانس الکتروشیمیایی مدل Solartron 1287 استفاده شد. در این فرآیند به منظور ایجاد الکترو

در این پژوهش عملیات تولید نوارهای سرامیکی از ترکیب اکسید زیرکونیوم تثبیت شده با ایتریا (YSZ8) در سه مرحله به شرح زیر انجام شد. در مرحله اول مشخصات پودر سرامیکی، آنالیز آن و فرمول دقیق دوغاب تعیین گردید. در مرحله دوم رفتار رئولوژیکی و پتانسیل زتای دوغاب تولید شده بررسی شد. در مرحله آخر ریخته‌گری دوغاب، خشک کردن آن و بررسی خواص نمونه‌های خام تولیدی انجام پذیرفت. پس از خشک شدن و انجام عملیات تفجوشی نمونه‌های خام تولیدی هدایت الکتریکی نمونه تهیه شده از دوغاب بهینه مورد بررسی قرار گرفت. جهت تولید دوغاب زیرکونیای تثبیت شده با ایتریا، پودر میکرونی تجاری YSZ8 با مارک (Inframat Advanced Materials, USA)، پلی وینیل بوتیرال (PVB) به عنوان چسب، دی‌بوتیل فتالات (DPB) به عنوان انعطاف دهنده، استاریک اسید به عنوان پراکنده ساز و سیکلوهاگزانون به عنوان حلال مورد استفاده قرار گرفت. توسط دستگاه پراش اشعه X (XRD) ساخت شرکت Bruker آلمان، خلوص و ساختار کریستالی پودر YSZ8 تعیین گردید. برای تعیین مورفولوژی، اندازه و توزیع اندازه ذرات پودر، از میکروسکوپ الکترونی روبشی (SEM) مدل Oxford و دستگاه تعیین اندازه ذرات به روش لیزری (PSA) با مدل Microtrac W332 استفاده گردید. در این تحقیق دوغاب‌های مورد نیاز جهت انجام عملیات ریخته‌گری نواری مطابق با مراحل ۱ که در شکل ۱ آورده شده است، تهیه شدند. متغیرهای روش ریخته‌گری نواری براساس جدول ۱ در سه سطح انتخاب شدند و با توجه به وجود سه متغیر، براساس روش تاگوچی و نرم‌افزار Minitab 9.16 آزمایش با شرایط گوناگون طبق جدول ۲ انجام گرفت. همان‌گونه که در شکل ۱ مشاهده می‌شود، در اولین مرحله از فرآیند تولید، حلال با پراکنده ساز، چسب و پلاستیسایزر در دستگاه همزن مغناطیسی در دمای محیط و مدت زمان یک ساعت، مخلوط گردید. پس از آماده شدن محلول، پودر 8YSZ در دستگاه آسیاب گلوله‌ای و با استفاده از گلوله‌های زیرکونیایی با قطر ۲ میلی‌متر، در مدت زمان ۳۰ دقیقه با محلول مخلوط شد. در این پژوهش درصد پودر جامد در محدوده ۶۵-۵۵ درصد وزنی



شکل ۲- سیکل عملیات حرارتی جهت تفجوشی نمونه‌های ریخته‌گری شده

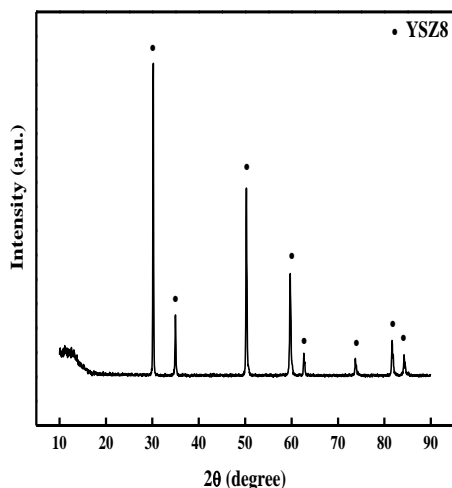
بر روی نمونه‌ها، سطح آن‌ها توسط خمیر پلاتین^۴ و به روش رنگ‌آمیزی با استفاده از قلم‌مویی کوچک پوشش داده شدند. سپس برای حذف مواد آلی موجود در خمیر پوشش داده شده و همچنین تشکیل الکترودی متخلخل، نمونه‌ها به مدت ۱ ساعت در دمای ۹۰۰°C نگهداری شدند. به منظور جلوگیری از ورقه شدن پوشش (الکتروُد) سرعت گرمایش در این عملیات کم و حدود ۳°C/min انتخاب شد.



شکل ۱- مراحل تولید فیلم‌های ضخیم به روش ریخته‌گری نواری مورد استفاده در این تحقیق

نتایج و بحث

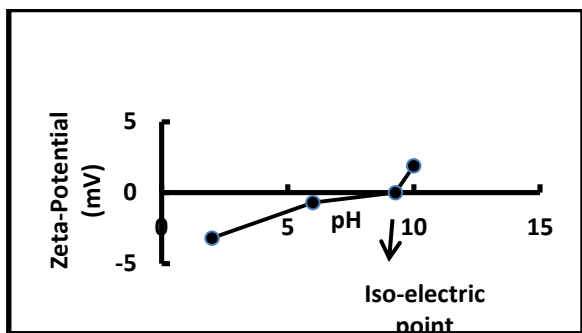
شکل ۳، الگوی پراش پرتو ایکس پودر YSZ8 با فاز مکعبی خالص را نشان می‌دهد. با توجه به شکل مشخص است که هیچ فاز قابل تشخیص دیگری بجز فاز اصلی در ترکیب پودر اولیه وجود ندارد.



شکل ۳- الگو XRD پودر YSZ8

^۴ -Pt paste

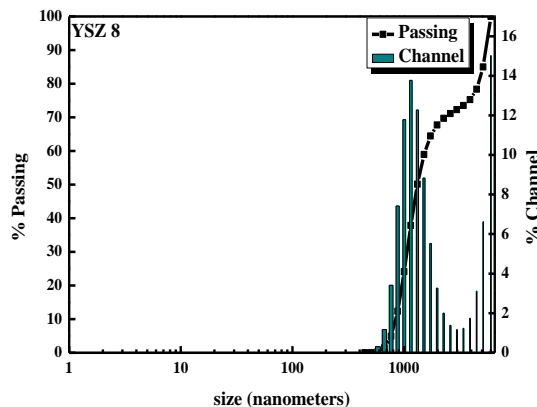
یک رقم اعشار) حاصل شده است. اندازه‌گیری پتانسیل زتا تاثیر pH بر پایداری دوغاب را به خوبی نشان می‌دهد. بنابراین، فرمولاسیون دوغاب برای جلوگیری از رسوب کردن، دور از نقطه ایزوالکتریک تعریف شد [۱]. لذا در این تحقیق برای بردار نمودن ذرات و ایجاد نیروی دافعه بین آنها، pH دوغاب معادل ۲ انتخاب شد.



شکل ۶- تغییرات پتانسیل زتا با pH برای دوغاب YSZ8

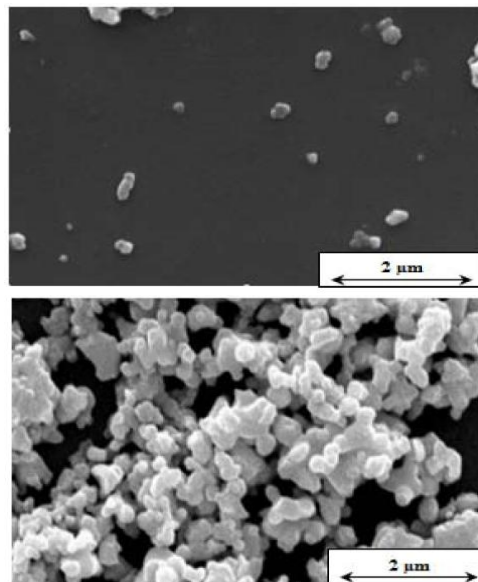
همان‌گونه که ذکر شد در پژوهش حاضر از روش طراحی تاگوچی برای تعیین شرایط بهینه و انتخاب موثرترین پارامترها در ویسکوزیته و دانسیته خام نمونه‌های ریخته‌گری شده استفاده شد. نتایج حاصل از اندازه‌گیری خصوصیات مورد نظر در شرایط مختلف دوغاب در جدول ۲ و ۳ نشان داده شده است. در جدول ۳ تفاوت داده‌های ماکزیمم و مینیمم (Δ) تعریف شده است. همان‌گونه که در جدول ۲ دیده می‌شود، بیش‌ترین ویسکوزیته معادل 1910CP و دانسیته نسبی خام $72/26$ درصد می‌باشد که به ترتیب مربوط به آزمایش‌های شماره ۷ و ۵ می‌باشند. نمودارهای مربوط به ویسکوزیته و دانسیته در سطوح مختلف در شکل ۷ و ۸ نشان داده شده است. همان‌گونه که در شکل ۷ مشاهده می‌شود و انتظار می‌رود با افزایش چسب، ویسکوزیته افزایش یافته است که این به دلیل زنجیرهای پلیمری موجود در چسب بوده که موجب اتصال و محدود کردن حرکت ذرات سرامیکی دوغاب می‌شود. همچنین با افزایش درصد ماده جامد، غلظت دوغاب افزایش می‌یابد که موجب افزایش ویسکوزیته می‌شود. در مورد اثر متغیرهای مورد بررسی بر روی دانسیته، دیده می‌شود که افزایش در درصد چسب و پلاستیسیایزر فقط تا محدوده‌ای دانسیته را افزایش می‌دهد و پس از آن روندی معکوس مشاهده می‌شود.

شکل ۴، توزیع اندازه ذرات پودر YSZ8 را نشان می‌دهد. همان‌گونه که مشاهده می‌شود، ذرات دارای توزیع متقارن و باریک بوده و اندازه متوسط آنها حدود ۱ میکرون می‌باشد.



شکل ۴- توزیع اندازه ذرات پودر YSZ8

در شکل ۵، مورفولوژی ذرات YSZ8 دیده می‌شود. همان‌گونه که مشخص است ذرات به صورت آگلومره بوده و اندازه آگلومرها به صورت تکی کوچک‌تر از یک میکرومتر می‌باشد.



شکل ۵- مورفولوژی پودر YSZ8 در بزرگنمایی‌های مختلف

شکل ۶، نتایج حاصل از آزمون تعیین پتانسیل زتا را نشان می‌دهد. همان‌گونه که دیده می‌شود، نقطه ایزوالکتریک (پتانسیل زتا = ۰) در pH حدود ۹/۲ (با دقت

جدول ۳ مشخص است، تفاوت داده‌های ماکزیمم و مینیمم (Δ) در حالت C از دیگر حالت‌ها بیش‌تر است. بنابراین، درصد فاز جامد موثرترین پارامتر بر روی ویسکوزیته و دانسیته می‌باشد.

در این تحقیق هدف داشتن بالاترین مقدار دانسیته و ویسکوزیته مناسب می‌باشد. ویسکوزیته دوغاب‌ها باید به گونه‌ای باشند که قابلیت ریخته‌گری مناسبی را برای دوغاب ایجاد نمایند. به این دلیل که ویسکوزیته و غلظت دوغاب‌ها جهت ایجاد نوار مناسب باید در محدوده‌ی معینی قرار بگیرد و نباید به قدری غلیظ باشد که تیغه دستگاه ریخته‌گری نواری نتواند آن را به صورت یکنواخت روی زیرلایه پهن کند.

بنابراین مقادیر متغیرها در ماکزیمم حالت، شرایط بهینه را مشخص می‌کند؛ اما از آنجا که الکترولیت پیل سوختی باید کاملاً متراکم باشد، پارامتر دانسیته از اهمیت بالاتری برخوردار است و بر این اساس شرایط بهینه برای دوغاب با انتخاب پارامتر A و B در سطح ۲ و پارامتر C در سطح ۳ تعیین گردید ($A_2B_2C_3$). نمونه در این شرایط دارای بالاترین دانسیته و میزان ویسکوزیته مناسب می‌باشد.

در واقع حضور چسب، باعث اتصال بین ذرات شده و استحکام نوارهای خام را بعد از تبخیر حلال، از طریق ایجاد پل‌های آلی بین ذرات سرامیک فراهم می‌کند. زمانی که مقادیر کافی از چسب به دوغاب اضافه نشود، نوارهای خام ترک می‌خورند و هنگامی که بیش از حد اضافه شوند، حفره‌های زیادی در نوارها بعد از تفجوشی ایجاد می‌شود و دانسیته کاهش می‌یابد، لذا باید درصد بهینه مورد استفاده قرار گیرد. پلاستیسایزرها نیز مواد آلی با وزن مولکولی کم‌تر نسبت به چسب‌ها می‌باشند. بعد از خشک شدن دوغاب، پلاستیسایزر با شکستن پیوندهای چسب، باعث افزایش انعطاف‌پذیری نوار می‌شوند. افزایش غلظت پلاستیسایزر تا حدی، سبب افزایش انعطاف‌پذیری نوارها و کاهش حفره‌ها می‌شود؛ اما زمانی که غلظتش از حدی افزایش پیدا کند، فاصله بین ذرات افزایش پیدا کرده که منجر به کاهش دانسیته خام نوار می‌گردد [۹]. در این رابطه لازم به یادآوری است که افزایش درصد ماده جامد همیشه باعث افزایش دانسیته می‌شود. در هر صورت هر عاملی که اختلاف بین داده‌های سطوح (Δ) آن بیش‌ترین مقدار شود، موثرترین عامل در بهینه سازی می‌باشد. در جدول ۳ اختلاف بین مقادیر ویسکوزیته و دانسیته خام نمونه‌ها در سطوح مختلف ارائه شده است. همان‌گونه که از

جدول ۱- پارامترها و سطوح استفاده شده در این آزمایش

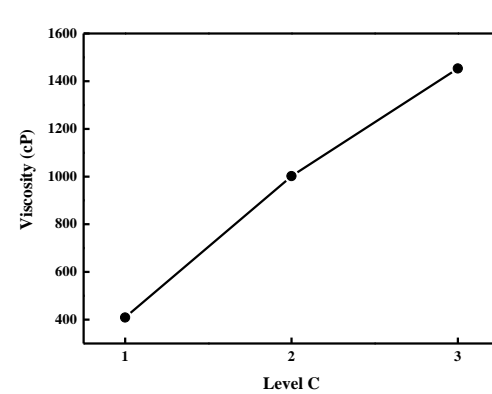
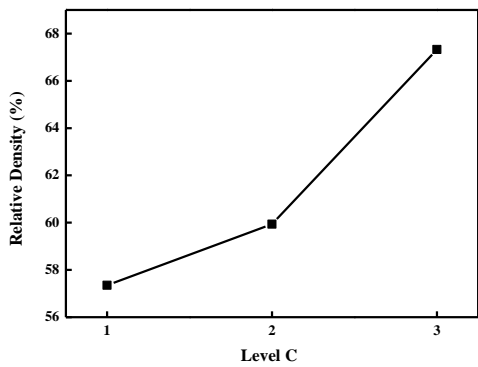
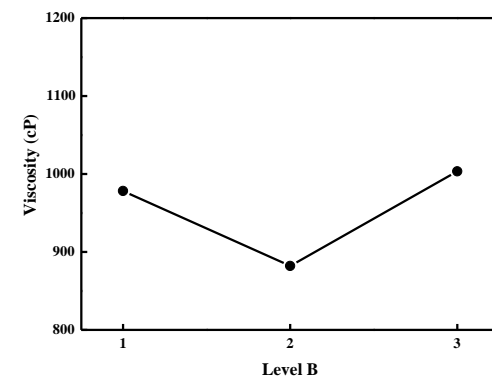
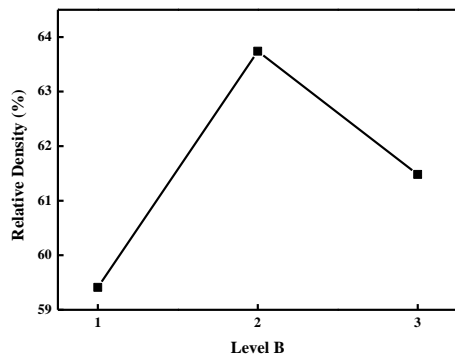
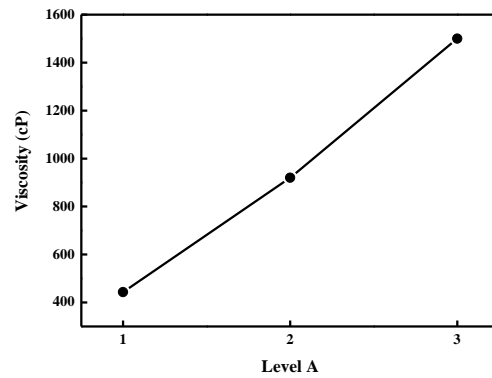
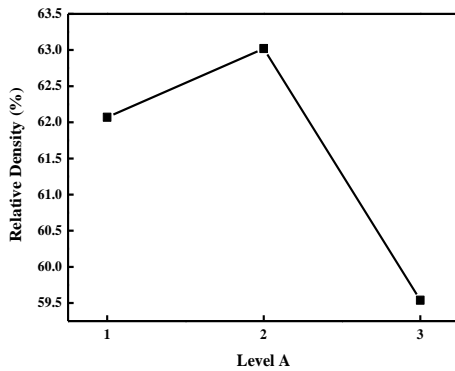
پارامترها	سطوح		
	۱	۲	۳
A غلظت چسب	۴ wt. %	۶ wt. %	۸ wt. %
B نسبت پلاستیسایزر به چسب	۰/۵	۱	۱/۵
C غلظت ماده جامد	۵۵ wt. %	۶۰ wt. %	۶۵ wt. %

جدول ۲- مقادیر ویسکوزیته و دانسیته اندازه‌گیری شده برای نمونه‌ها

شماره آزمایش-ها	A	B	C	ویسکوزیته (cP)	دانسیته نسبی	
					نسبت به دانسیته تئوری	(/.)
#۱	۱	۱	۱	۱۷۵	۵۷	
#۲	۱	۲	۲	۳۰۵	۶۰/۶	
#۳	۱	۳	۳	۸۵۰	۶۸/۶	
#۴	۲	۱	۲	۸۵۰	۶۰/۱	
#۵	۲	۲	۳	۱۶۰۰	۷۲/۲۶	
#۶	۲	۳	۱	۳۱۰	۵۶/۷	
#۷	۳	۱	۳	۱۹۱۰	۶۱/۱۴	
#۸	۳	۳	۱	۷۴۱	۵۸/۳۶	
#۹	۳	۳	۲	۱۸۵۰	۵۹/۱۳	

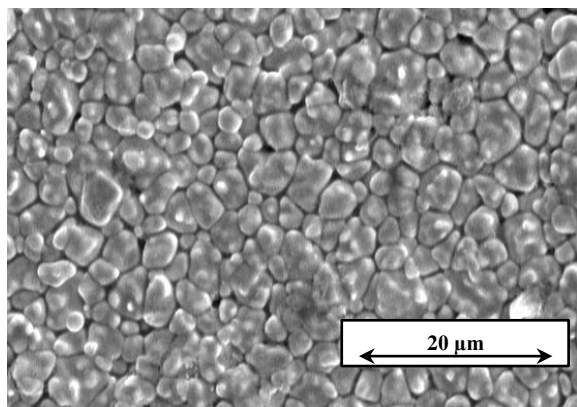
جدول ۳- مقادیر ویسکوزیته و دانسیته در سطوح مختلف

پارامترها	ویسکوزیته (cP)			دانسیته نسبی (%)		
	سطح ۱	سطح ۲	سطح ۳	سطح ۱	سطح ۲	سطح ۳
	A	۴۴۳/۳	۹۲۰	۱۵۰۰/۳	۶۲/۰۷	۶۳/۰۲
B	۹۷۸/۳	۸۸۲	۱۰۰۳/۳	۵۹/۴۱	۶۳/۷۴	۶۱/۴۷
C	۴۰۸/۷	۱۰۰۱/۷	۱۴۵۳/۳	۵۷/۳۵	۵۹/۹۴	۶۷/۳۳
Δ	۱۰۵۷	۱۲۱/۳	۱۰۴۴/۷	۳/۴۸	۴/۳۳	۹/۹۸



شکل ۸- نمودارهای دانسیته در سطوح مختلف

شکل ۷- نمودارهای ویسکوزیته در سطوح مختلف

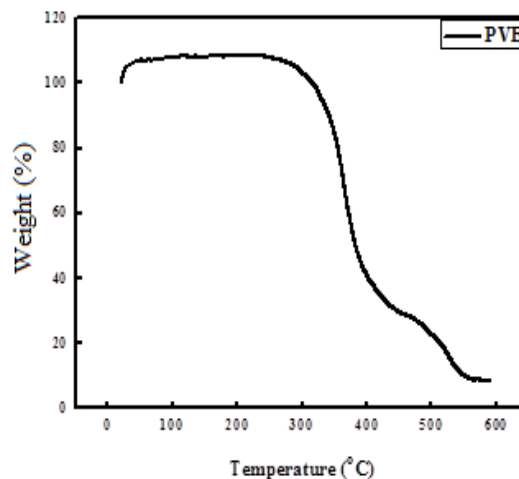


شکل ۱۰- تصویر سطح سینترینگ نمونه ریخته گری شده در شرایط بهینه

شکل ۱۱، نتایج حاصل از طیف سنجی امپدانس نمونه 8YSZ سینتر شده در دمای 1450°C و زمان ۲ ساعت را در دو دمای اندازه گیری تست (300°C و 800°C) درجه سانتیگراد) نشان می دهد و نتایج به دست آمده در جدول ۴ گزارش شده که با دیگر تحقیقات در این زمینه کاملاً مطابقت دارد [۱۵].

همان گونه که در شکل ۱۱ در نمودار مربوط به دمای اندازه گیری 300°C درجه سانتیگراد کاملاً مشهود است، منحنی از سه بخش اصلی تشکیل شده است که به ترتیب با افزایش فرکانس (از راست به چپ)، اثر الکترو، مرزدانه و دانه ها نشان داده می شود و معرف محدوده فرکانس هایی می باشد که این سه جز دارای سهم بیشتری در ایجاد ممانعت بر سر راه انتقال جریان الکتریکی از طریق نفوذ یون ها هستند. با افزایش دما منحنی ها به سمت راست کشیده شده و به عبارتی مقاومت اجزا مختلف سیستم (الکترو، مرزدانه و دانه ها) کاهش یافته و اثرات آن ها به فرکانس های بالاتر منتقل شده و به تدریج از اثر مرزدانه ها نیز کاسته می شود، به طوری که در دماهای بالا سهم مقاومت مرزدانه در برابر حرکت یون ها به صفر نزدیک شده و مقاومت کل الکترولیت معادل مقاومت درون دانه در برابر حرکت یون های متحرک می گردد.

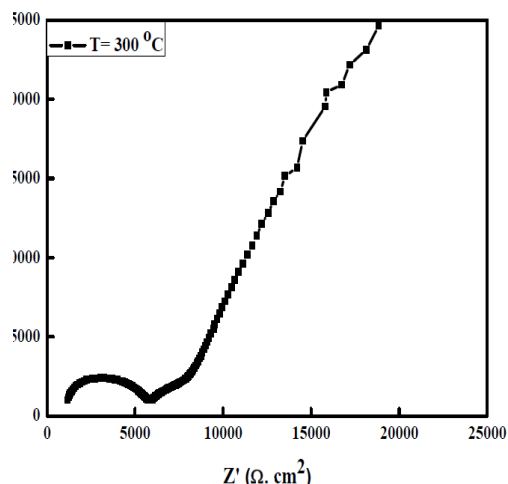
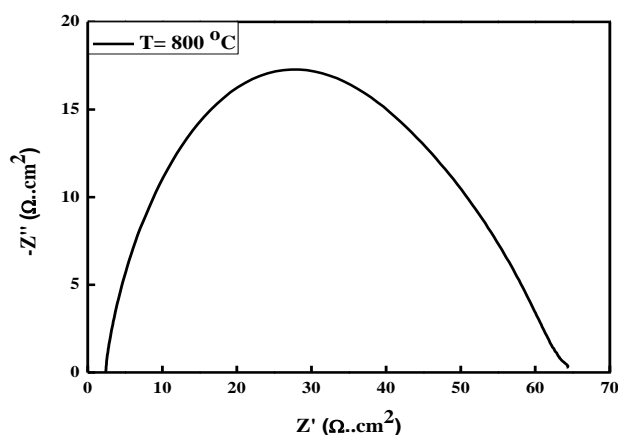
همان گونه که قبلاً ذکر شد، برای تعیین سیکل حرارتی مناسب جهت عملیات سینترینگ از پودر PVB تست TG انجام گرفت که نتایج آن در شکل ۹ آورده شده است.



شکل ۹- نمودار TG پودر PVB

همان گونه که مشخص است، شروع کاهش وزن در دمای 300°C می باشد، شیب این کاهش تا دمای 400°C تند بوده و سپس با شیب ملایم تری تا دمای 600°C این روند کاهش وزن ادامه دارد. بنابراین، برای سینترینگ نمونه های ریخته گری شده، ابتدا نمونه ها تا دمای 600°C با سرعت گرمایش $1/5^{\circ}\text{C}/\text{min}$ حرارت دیدند و به مدت ۲ ساعت در این دما نگه داشته شدند. در ادامه جهت انجام عملیات سینترینگ نهایی، نمونه ها با سرعت گرمایش $3^{\circ}\text{C}/\text{min}$ تا دمای 1450°C حرارت دیدند و به مدت ۲ ساعت در این دما به صورت کامل سینتر شدند.

شکل ۱۰ تصویر سطح نمونه ریخته گری شده در شرایط بهینه را پس از انجام عملیات سینترینگ نشان می دهد. همان طور که مشخص است نمونه از دانسیته نسبی بالا (۹۷ درصد) برخوردار بوده و در آن اثری از حضور تخلخل و عدم یکنواختی در چیدمان ذرات (دانه های کنونی) دیده نمی شود.



شکل ۱۱- نمودار طیف سنجی امپدانس نمونه YSZ8 سینتر شده در دمای 1450°C و زمان ۲ ساعت در دماهای اندازه‌گیری ۳۰۰ و ۸۰۰ درجه سانتیگراد

جدول ۴- هدایت الکتریکی نمونه YSZ8 سینتر شده در دمای 1450°C و زمان ۲ ساعت، در دماهای اندازه‌گیری مختلف تست

دما (°C)	هدایت الکتریکی ($\Omega^{-1}\cdot\text{cm}^{-1}$)
۸۰۰	$2/27 \times 10^{-2}$
۷۰۰	$1/5 \times 10^{-2}$
۶۰۰	5×10^{-3}
۵۰۰	$1/04 \times 10^{-2}$
۴۰۰	2×10^{-4}
۳۰۰	$1/088 \times 10^{-5}$

ریخته‌گری نواری تعیین شد. در راستای تولید دوغاب بهینه حداکثر فاز جامد ممکن ۶۵ درصد وزنی دوغاب، درصد چسب ۶ درصد وزنی فاز جامد مورد استفاده و درصد پلاستیسایزر معادل درصد چسب تعیین گردید که ویسکوزیته قابل قبولی را ایجاد می‌نماید. نمونه ریخته‌گری شده در شرایط بهینه که با عملیات حرارتی مناسب پخت شده است، از دانسیته نسبی ۹۷ درصد و هدایت الکتریکی $(\Omega\cdot\text{cm})^{-1}$ $2/27 \times 10^{-2}$ در دمای کاری ۸۰۰ درجه سانتیگراد برخوردار بوده است.

نتایج جدول ۴ نیز نشان می‌دهد که با افزایش دما رسانایی افزایش پیدا می‌کند؛ زیرا که با افزایش دما موبیلیتی و غلظت جاهای خالی (Vacancy) اکسیژن افزایش می‌یابند.

نتیجه‌گیری

در این پژوهش، با استفاده از روش آماری تاگوشی شرایط بهینه جهت تولید دوغابی مناسب از YSZ8 برای

References:

- 1- R. V. Wandekar, B. N. Wani, and S. R. Bharadwaj, "Crystal structure, electrical conductivity, thermal expansion and compatibility studies of Co-substituted lanthanum strontium manganite system," *Solid State Sci.*, vol. 11, no. 1, pp. 240–250, 2009.
- 2- T. Baquero, J. Escobar, J. Frade, and D. Hotza, "Aqueous tape casting of micro and nano YSZ for SOFC electrolytes," *Ceram. Int.*, vol. 39, no. 7, pp. 8279–8285, 2013.
- 3- B. Steele, "Fuel-cell technology: Running on natural gas," *Nature*, vol. 400, no. August, pp. 619–621, 1999.
- 4- S. Ramanathan and M. B. Kakade, "Aqueous slurry processing of monolithic films for SOFC – YSZ, LSM and YSZ–NiO systems," *Int. J. Hydrogen Energy*, vol. 36, no. 22, pp. 14956–14962, 2011.
- 5- M. Liu, D. Dong, R. Peng, J. Gao, J. Diwu, X. Liu, and G. Meng, "YSZ-based SOFC with modified electrode/electrolyte interfaces for operating at temperature lower than 650 °C," *J. Power Sources*, vol. 180, no. 1, pp. 215–220, 2008.
- 6- M. Liu, Z. Liu, M. Liu, and L. Nie, "Fabrication and characterization of functionally-graded LSCF cathodes by tape casting," *Int. J. Hydrogen Energy*, vol. 38, no. 2, pp. 1082–1087, 2013.
- 7- a. Kumar, P. S. Devi, and H. S. Maiti, "Effect of metal ion concentration on synthesis and properties of La_{0.84}Sr_{0.16}MnO₃ cathode material," *J. Power Sources*, vol. 161, no. 1, pp. 79–86, 2006.
- 8- G. J. Li, Z. R. Sun, H. Zhao, C. H. Chen, and R. M. Ren, "Effect of temperature on the porosity, microstructure, and properties of porous La_{0.8}Sr_{0.2}MnO₃ cathode materials," *Ceram. Int.*, vol. 33, no. 8, pp. 1503–1507, 2007.
- 9- D. Hotza and P. Greil, "Review: aqueous tape casting of ceramic powders," *Mater. Sci. Eng. A*, vol. 202, no. 1–2, pp. 206–217, 1995.
- 10- M. P. Albano and L. B. Garrido, "Aqueous tape casting of yttria stabilized zirconia," *Mater. Sci. Eng. A-Structural Mater. Prop. Microstruct. Process.*, vol. 420, no. 1–2, pp. 171–178, 2006.
- 11- L. H. Luo, A. I. Y. Tok, and F. Y. C. Boey, "Aqueous tape casting of 10mol%-Gd₂O₃-doped CeO₂ nanoparticles," *Mater. Sci. Eng. A*, vol. 429, no. 1–2, pp. 266–271, 2006.
- 12- J. Gorauskis, C. Baudín, and a. J. Sánchez-Herencia, "Tape casting of Y-TZP with low binder content," *Ceram. Int.*, vol. 33, no. 6, pp. 1099–1103, 2007.
- 13- K. Do Kim, D. W. Choi, Y.-H. Choa, and H. T. Kim, "Optimization of parameters for the synthesis of zinc oxide nanoparticles by Taguchi robust design method," *Colloids Surfaces A Physicochem. Eng. Asp.*, vol. 311, pp. 170–173, 2007.
- ۱۴- ر. معمارزاده، س. جوادپور و ف. پناهی، " بهینه سازی عوامل موثر بر اندازه نانو ذرات اکسید قلع به روش تاگوچی"، *مجله مواد نوین*، جلد ۲، شماره ۳، ص ۱۱–۲۰، بهار ۱۳۹۱.
- 15- M. Ghatee, M.H. Shariat, J.T.S. Irvine, "Investigation of electrical and mechanical properties of 3YSZ/8YSZ composite electrolytes," *Solid State Ionics*, vol. 180, pp. 57–62, 2009.