

32. M. Rérat and R. Dovesi, in International Conference of Computational Methods in Sciences and Engineering (ICCMSE 2004), Lecture Series on Computer and Computational Sciences, edited by T. Simos and G. Maroulis _Brill Academic, Leiden, The Netherlands, (2004), Vol. 1, p. 771.

ӘОК 538.916

ҚАТТЫ ОКСИДТІ ОТЫНДЫҚ ЭЛЕМЕНТТЕРГЕ АРНАЛҒАН АНОДТЫҚ МАТЕРИАЛДАРДЫҢ ӨТКІЗГІШТІГІН ЗЕРТТЕУ

Кулманжанова К.М., Жантемір А.Ғ., Айдарбеков Н.К.

kulmanzhanova_km@mail.ru

Л.Н. Гумилев атындағы Еуразия Ұлттық университеті магистранттары,
Нұр-Сұлтан, Қазақстан

Ғылыми жетекшісі – Бекмырза К.Ж.

Композитті өндіру. Бастапқы ұнтақтардан үш түрдегі композиттер алғашқы құрамдарды дисперсияға қатысты біріктіру арқылы жасалды: «Ni-m/YSZ-m», «Ni-n/YSZ-m», «Ni-n/YSZ-n», көлем бойынша композиттерде Ni мөлшері 10, 20, 30, 40 және 50%. Композициялық ұнтақтарды дайындау алдын ала ультрадыбысты өңдеу арқылы изопропанол құрамдастарын араластыру арқылы жүзеге асырылады, содан кейін тәулік ішінде ұнтақтау құралдарымен араластырылады.

1-кестеде металл никельден дайындалған композитті компоненттердің және оның тотыққан формасына қатынасы, сондай-ақ композиттердің жалпы тығыздығының мәндері көрсетілген.

Кесте 1. Құрамдардың композитке қатынасы

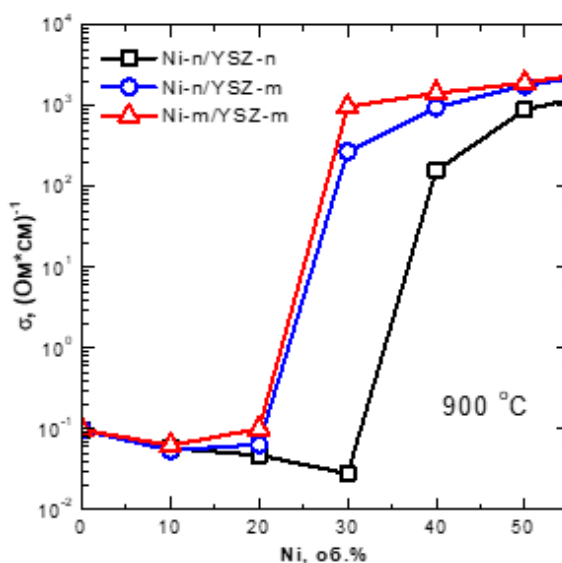
Белгіленуі	Ni, көл.%	Ni, масс.%	NiO, көл.%	NiO, масс.%	$\gamma_{\text{Ni-YSZ}}$, г/см ³
10Ni/90YSZ	10	14,31	15,62	17,53	6,22
20Ni/80YSZ	20	27,32	29,40	32,35	6,52
30Ni/70YSZ	30	39,18	41,60	45,05	6,81
40Ni/60YSZ	40	50,06	52,61	56,05	7,11
50Ni/50YSZ	50	60,05	62,48	65,67	7,41

Үлгі дайындау және зерттеу әдістері. Дайындалған композициялық ұнтақтардан электрөткізгіштігін өлшеу үшін статикалық тығыздау арқылы үлгілер пайда болды. Үлгілер тікбұрышты көлденең қимасы 3×2×30 мм болды. Сығылған үлгілердің салыстырмалы тығыздығы 0,65 болды, төгу массасы және қысымның тығыздау таңдау арқылы қол жеткізілді. Алынған тығыздаулар ауа атмосферасында қыздырып-біріктіріледі. Ni-n/YSZ-n, Ni-n/YSZ-m түріндегі композиттер 1200°C, ал Ni-m/YScSZ-m 1400°C температурасында қыздырып-біріктірілді, екі жағдайда да 4 сағат алынған. Пісірілген үлгілерге 0,2мм платина сымынан зонд қойылды. Үлгілер сутегі атмосферасында 1 сағат уақытта және 900°C температурада қалпына келтірілді және 700-900°C температура диапазонында Solartron SI-1260/1287 құралының көмегімен ылғалданған сутегі (3% H₂O) атмосферасында, тұрақты токта 4-зондты әдісімен өлшеу жүргізілді. Қалпына келтірілген, өлшеуден өткен үлгілерде тығыздық гидростатикалық өлшеу әдісімен анықталды.

Анодтардың поляризациялық кедергісін өлшеу имитациялық спектроскопия әдісі (Solartron SI-1260/1287) арқылы дискі түріндегі газ диффузиялық электродтары Ni/YSZ бар қатты электролит YSZ-мен симметриялық ұяшықтарда жүргізілді. Электролит үлгілері YSZ-n ұнтағынан жасалған, ол 300МПа қысымда статикалық пресспен тығыздалған. Алынған үлгілер 1350°C температурада 5 сағаттық әсер ету уақытында қыздырып-біріктірілді. Пісірілген дисктердің диаметрі шамамен 7 мм, ал қалыңдығы 1 мм болды. Анодтық кабатты

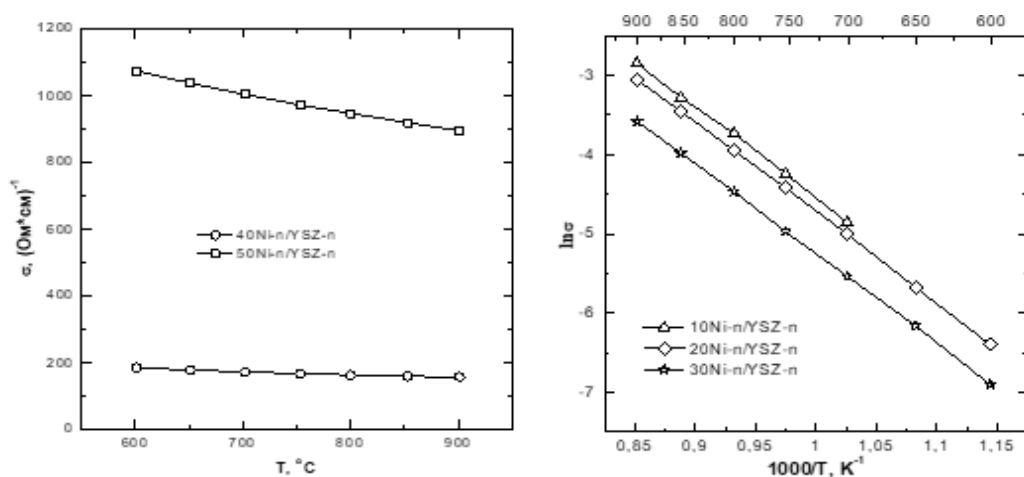
бояу әдісімен жағу үшін композитті ұнтақтан изопропилдік спирт негізінде қатты құрылымдардың масса бойынша қатынасы бар: Ni/YSZ – 82,1%, ПВБ – 14%, ТГМ – 3,9%, сия дайындалды. Келтірілген анод қабаттарының қалыңдығы 20-30 мкм болды. Электродтар 1200°C температурада 4 сағат ішінде ауа атмосферасында пісіріледі. Импедант өлшемдеріне дейін ұяшықтық электродтар сутегіде 1 сағат ішінде 900°C температурада қалпына келтірілді. Импедант өлшеу 0,1Гц - 1МГц жиілік диапазонында, 15 мВ кіріс сигналының амплитудасы бойынша жүргізілді. Өлшеудің температуралық диапазоны 50°C қадамдарда 700-900°C болды.

Өлшеу нәтижелері. 1-суретте классикалық нысаны бар Ni көлемдік мазмұны бойынша 900°C-та анодты композиттерінің үш түрінің Ni/YSZ өткізгіштігінің тәуелділігі көрсетілген. Сонымен қатар, Ni-n/YSZ-n құрамының перколяциялық шегі ~10% астам үлкен Ni қарай ауысады. Шамасы, наноөлшемді Ni және YSZ ұнтақтары араласқан кезде пайда болған құрылымға байланысты.



Сурет 1. Ni көлемдік мазмұнының үш түрлі анодтық композиттердің Ni/YSZ 900°C температурадағы өткізгіштігіне тәуелділігі.

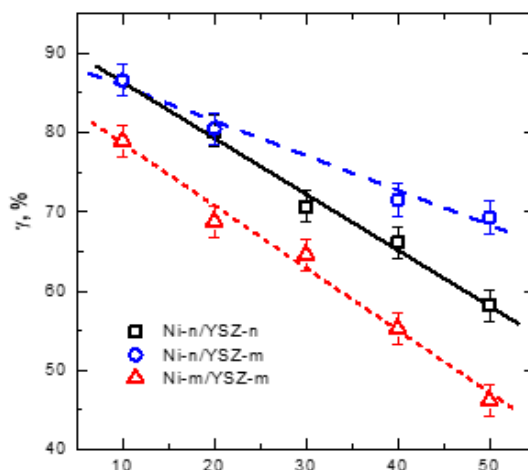
Перколяция шегінен кейінгі анодтық материалдардың өткізгіштігінің күрт артуы электрондық өткізгіш канал пайда болуына байланысты. әртүрлі мазмұндағы Ni композиттердің Ni-n/YSZ-n өткізгіштігінің температуралық тәуелділігі 2-суретте көрсетілгендей бұл бекітуді дәлелдейді. Құрамында 30% астам никель бар құрамдар (2-сурет) «металлик» өткізгіштік типіне тән температураның артуымен өткізгіштігінің төмендеуін көрсетеді. Құрамында 30%-дан кем никель бар құрамадардың өткізгіштігі Аррениусовскийдің тәуелділігіне тәуелді болады, бұл иондық өткізгіштігінің нақты түрін көрсетеді.



а

б)

Сурет 2. Қоспалардың өткізгіштігінің температуралық тәуелділігі: а) 40Ni-n/60YSZ-n, 0Ni-n/50YSZ-n; б) 10Ni-n/90YSZ-m, 20Ni-n/80YSZ-m, 30Ni-n/70YSZ.



Сурет 3. Ni құрамына байланысты никельдің сутекте тотықсыдануынан кейін Ni/YSZ анод композиттерінің үш түрінің үлгілерінің нақты тығыздығы.

3-суретте сутегідегі никельдің қалпына келгеннен кейін зерттелетін үлгілердің тығыздығы көрсетілген. Ni мөлшері арта түскен сайын үлгінің тығыздығы төмендейтіні көрінеді, бұл табиғи: $\text{NiO} \rightarrow \text{Ni}$ қалпына келуі 41% көлемінің өзгеруімен бірге жүреді. Сондай-ақ Ni-m/YSZ-m құрамдардың төмен тығыздығы күтілуде, себебі ірі ұнтақтар наноөлшемділерге қарағанда нашарқыздырып-біріктіріледі.

Анодтың құрамының өткізгіштігіне әсерін зерттеу наноөлшемді NiO және YSZ ұнтақтарынан құрылған композиттік анодтың кем дегенде бір субмикрон ұнтағын қамтитын анодтармен салыстырғанда біртекті және тығыз құрылымымен сипатталатындығын көрсетті. Бұл жағдайда «наноөлшемді» анодтың перколяция шегі Ni мазмұнын ~ 10 көл.% -ға дейін көтереді.

Пайдаланылған әдебиеттер тізімі

1. М.В. Перфильев, А.К. Демин, Б.Л. Кузин, А.С. Липилин, Высокотемпературный электролиз газов // М.: Наука, 1988, с. 232
2. W.A. Meulenber, N.H. Menzler, H.P. Buchkremer, et al. // J. Am. Ceram. Soc., V. 127, 2002, p 99