

การเตรียมแบเรียมซีเรตที่มีการเจือโลหะและไม่มีการเจือโลหะด้วยกระบวนการขั้นตอนเดียว

Preparation of Doped and Undoped BaCeO₃ Perovskite via One Pot Process

นางสาว ณิชวรรณ จุลศักดิ์
ผศ. อภิรัตน์.ดร.ไพศาลกิตติโชติ อาจารย์ที่ปรึกษาโครงการ
ภาควิชาวิศวกรรมวัสดุ คณะวิศวกรรมศาสตร์ มหาวิทยาลัยเกษตรศาสตร์

บทคัดย่อ

งานวิจัยนี้มีวัตถุประสงค์ในการเตรียมแบเรียมซีเรตเพอโรฟสไกต์ด้วยกระบวนการขั้นตอนเดียวจากสารประกอบเชิงซ้อนซึ่งเตรียมได้จากเกลือของโลหะแบเรียม แบเรียมไนเตรด) หรือแบเรียมคาร์บอเนต(ซีเรียมไนเตรดและไตรเอทานอลามีน สารประกอบเชิงซ้อนจะนำไปใช้เป็นส่วนประกอบในการเตรียมแบเรียมซีเรตที่บริสุทธิ์โดยผ่านการเผาที่อุณหภูมิ 950 องศาเซลเซียส เป็นเวลา 2 ชั่วโมง นอกจากนี้สารประกอบเชิงซ้อนยังสามารถนำมาเจือโลหะสตรอนเทียม แซมาเรียมและแกโดลิเนียม เพื่อเตรียมเป็นแบเรียมซีเรตที่ผ่านการเจือโลหะอัตราส่วนร้อยละ 10 และ 20 โดยโมลจะไม่เกิดต่อโครงสร้างของแบเรียมซีเรตเพอโรฟสไกต์

คำสำคัญ: กระบวนการขั้นตอนเดียว, แบเรียมซีเรต, เพอโรฟสไกต์

Abstract

This research was objected to prepare barium cerate perovskite via One Pot Process from complexes which were prepared from barium salts (barium nitrate or barium carbonate), cerium nitrate and triethanolamine. The complexes were used as the precursors for preparing the pure barium cerates by calcinating at 950°C for 2 h. In addition, the complexes could be doped with strontium samarium and gadolinium for preparing doped barium cerates. Doped nickel, cobalt and strontium at 10% and 20% by mole did not show any effect to barium cerates perovskite structure.

Keywords: one pot process, barium cerates, perovskite

เซลล์เชื้อเพลิงถูกค้นคว้าและพัฒนาเพื่อเป็นแหล่งพลังงานใหม่ทดแทนพลังงานเชื้อเพลิง จากถ่านหิน ปิโตรเลียม และแก๊สธรรมชาติที่มีอยู่อย่างจำกัด โดยเป็นทางเลือกของแหล่งพลังงานใหม่ที่ยังมีการศึกษาและพัฒนาอย่างต่อเนื่อง พลังงานที่ได้จากเซลล์เชื้อเพลิงเกิดจากการเปลี่ยนพลังงานเคมีของเชื้อเพลิง เช่น แก๊สไฮโดรเจน แก๊สธรรมชาติ มีเทน เมทานอล และแก๊สจากถ่านหิน โดยเปลี่ยนขบวนการทางเคมีไฟฟ้าไปเป็นพลังงานไฟฟ้าได้โดยตรง ซึ่งการเกิดมลพิษจากเซลล์เชื้อเพลิงนี้น้อยมากเมื่อเทียบกับการใช้พลังงานจากแหล่งอื่น

องค์ประกอบหลักของเซลล์เชื้อเพลิงประกอบด้วยขั้วอิเล็กโทรด (Electrode) สองขั้ว คือ แคโทด (Cathode) และแอโนด (Anode) คั่นด้วยอิเล็กโทรไลต์ (Electrolyte) มีการเติมเชื้อเพลิง เช่น แก๊สไฮโดรเจนเข้าไปที่แอโนด ในขณะที่แก๊สออกซิเจนจากอากาศจะผ่านเข้าไปในเซลล์เชื้อเพลิงที่แคโทด เมื่อมีตัวเร่งปฏิกิริยาแก๊สไฮโดรเจน (H₂) จะถูกออกซิไดซ์ให้แตกตัวออกเป็นโปรตอน (H⁺) และอิเล็กตรอน ซึ่งอิเล็กตรอนจะเคลื่อนที่ผ่านวงจรภายนอกให้กระแสไฟฟ้าออกมาและวิ่งไปยังแคโทดเพื่อรีดิวซ์แก๊สออกซิเจนให้เป็นออกซิเจนไอออน (O²⁻) และเคลื่อนที่ผ่านอิเล็กโทรไลต์ไปยังแอโนด ในขณะที่ในที่สุดเมื่อโปรตอนและออกซิเจนไอออนรวมตัวกันจะได้ผลผลิตเป็นน้ำบริสุทธิ์ที่แอโนดพร้อมกับให้ความร้อนออกมาด้วย

อิเล็กโทรไลต์ที่ดีสำหรับเซลล์เชื้อเพลิงชนิดออกไซด์ของแข็ง (Solid Oxide Fuel Cell, SOFC) ต้องเป็นวัสดุที่มีสมบัติหลายประการ ในขณะนี้สารที่ใช้เป็นอิเล็กโทรไลต์ที่ได้รับความนิยมเข้ามาสำหรับเซลล์เชื้อเพลิงชนิดนี้คือ ยิทเทียมสตาบิไลซ์เซอโคโรเนีย (Yttrium-stabilized Zirconia, YSZ) เนื่องจากการเคลื่อนที่ของออกซิเจนไอออนผ่านยิทเทียมสตาบิไลซ์เซอโคโรเนียที่เป็นอิเล็กโทรไลต์ จำเป็นต้องถูกกระตุ้นด้วยพลังงานสูงมาก ส่งผลให้เซลล์เชื้อเพลิงต้องทำงานที่อุณหภูมิสูง ถ้าสามารถหาวัสดุทดแทนที่ทำงานได้ที่อุณหภูมิต่ำ จะลดต้นทุนของอิเล็กโทรดและวัสดุที่

เป็นตัวเชื่อมต่อกันของเซลล์เข้าด้วยกัน ทำให้มีการวิจัยเพื่อมุ่งเน้นหาแนวทางที่ทำให้เซลล์เชื้อเพลิงชนิดของแข็งออกไซด์ทำงานได้ที่อุณหภูมิต่ำลง ซึ่งอาจทำได้โดยการใช้อิเล็กโทรไลต์ของแข็งชนิดอื่น

สารเซรามิกส์แบเรียมซีเรต (Barium cerate, BaCeO₃) (มีโครงสร้างเป็นแบบเพอรอฟสไกต์ที่มีสมบัติสามารถนำไฟฟ้าได้คล้ายกันกับอิเล็กโทรไลต์ของแข็งที่เป็นอิเล็กโทรไลต์ ในเซลล์เชื้อเพลิงชนิดของแข็งออกไซด์ จากโครงสร้างที่คล้ายกันนี้ทำให้งานวิจัยมีวัตถุประสงค์ในการใช้แบเรียมซีเรต เพื่อเป็นทางเลือกหนึ่งในการใช้งานเป็นอิเล็กโทรไลต์ในเซลล์เชื้อเพลิงชนิดของแข็งออกไซด์ เพื่อนำมาใช้ทดแทนอิเล็กโทรไลต์ของแข็งเซโรโคเนีย ซึ่งนิยมใช้กันอย่างแพร่หลายในปัจจุบันแต่มีราคาแพง และอุณหภูมิในการเริ่มทำงานที่สูงทำให้ต้องสิ้นเปลืองพลังงานมากในการทำระบบมีอุณหภูมิสูงพร้อมจะทำงาน ซึ่งเป็นข้อเสียของอิเล็กโทรไลต์เซโรโคเนีย

ปัจจุบันนี้มีกระบวนการทางเคมีมากมาย ที่ใช้ในการเตรียมสารประกอบแบเรียม แต่อย่างไรก็ตาม ปัญหาทางด้านราคาของสารตั้งต้น ความบริสุทธิ์ ความเป็นเนื้อเดียวกันและอุณหภูมิสูงที่ใช้ในการเตรียมสารประกอบเชิงซ้อน ยังเป็นอุปสรรคสำคัญสำหรับวิธีดังกล่าว สำหรับงานวิจัยนี้ ได้นำกระบวนการขั้นตอนเดียว (One pot process) เข้ามาประยุกต์ใช้ในการเตรียมสารประกอบเชิงซ้อนดังกล่าว

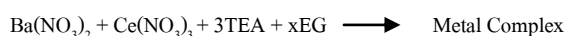
กระบวนการขั้นตอนเดียวเป็นกระบวนการสังเคราะห์ที่พัฒนามาจากกระบวนการเตรียมแบบดั้งเดิม ซึ่งกระบวนการขั้นตอนเดียวนี้มีประโยชน์ทางการเตรียมที่มีขั้นตอนไม่ยุ่งยาก เครื่องมือที่ใช้หาง่ายและมีราคาไม่สูงมากนัก อีกทั้งวิธีการนี้ยังสามารถเตรียมสารประกอบเชิงซ้อน ที่มีความบริสุทธิ์สูงรวมถึงราคาของสารเคมีและวัสดุที่ใช้ในการเตรียมสารประกอบเชิงซ้อนนี้มีราคาไม่สูงมากนัก

2. วิธีการทดลอง

2.1 การสังเคราะห์สารประกอบเชิงซ้อนของแบเรียมซีเรตโดยกระบวนการขั้นตอนเดียว

2.1.1 การสังเคราะห์สารประกอบเชิงซ้อนจากแบเรียมไนเตรตและซีเรียมไนเตรต

การสังเคราะห์สารประกอบเชิงซ้อนแบเรียมซีเรตด้วยกระบวนการขั้นตอนเดียว ทำได้โดยการทำปฏิกิริยากันของสารตั้งต้นคือ แบเรียมไนเตรตและซีเรียมไนเตรต โดยมีสารไดเอทานอลามีนและสารเอทิลีน ไกลคอลทำหน้าที่เป็นลิแกนด์และตัวทำละลายตามสมการที่ 1



จากนั้นนำผลิตภัณฑ์ที่ได้ไปทดสอบด้วยเทคนิคอินฟราเรดสเปกโตรโฟโตมิเตอร์ (Fourier Transform Infrared Spectrophotometer, FTIR) และศึกษาสมบัติทางความร้อน โดยเทคนิคการวิเคราะห์ทางความร้อน (Thermo gravimetric Analysis, TGA)

2.1.2 สังเคราะห์สารประกอบเชิงซ้อนจากแบเรียมคาร์บอเนตและซีเรียมไนเตรต

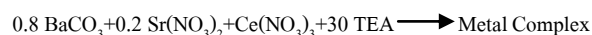
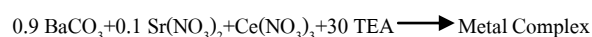
ทำการทดลองสังเคราะห์สารประกอบเชิงซ้อนแบเรียมซีเรตด้วยกระบวนการขั้นตอนเดียว จากการทำปฏิกิริยากันของแบเรียมคาร์บอเนตและซีเรียมไนเตรต โดยมีสารไดเอทานอลามีนเป็นลิแกนด์ โดยไม่มีการใส่ตัวทำละลายตามสมการที่ 2



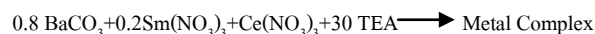
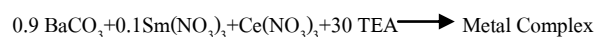
จากนั้นนำผลิตภัณฑ์ที่ได้ไปทดสอบด้วยเทคนิคอินฟราเรดสเปกโตรโฟโตมิเตอร์ (Fourier Transform Infrared Spectrophotometer, FTIR) และศึกษาสมบัติทางความร้อน โดยเทคนิคการวิเคราะห์ทางความร้อน (Thermo gravimetric Analysis, TGA)

2.2 การสังเคราะห์สารประกอบเชิงซ้อนของแบเรียมซีเรตโดยกระบวนการขั้นตอนเดียวที่มีการเจือโลหะแทนตำแหน่งของแบเรียม

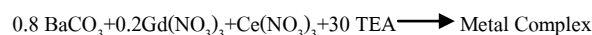
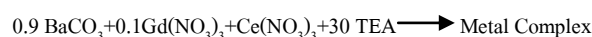
การสังเคราะห์สารประกอบเชิงซ้อนของแบเรียมซีเรตจากแบเรียมคาร์บอเนตและซีเรียมไนเตรตที่มีการเจือด้วยสตรอนเทียม (Strontium, Sr) ร้อยละ 10 และ 20 โดยโมล



การสังเคราะห์สารประกอบเชิงซ้อนของแบเรียมซีเรตจากแบเรียมคาร์บอเนตและซีเรียมไนเตรตที่มีการเจือด้วยซาแมเรียม (Samarium, Sm) ร้อยละ 10 และ 20 โดยโมล



การสังเคราะห์สารประกอบเชิงซ้อนของแบเรียมซีเรตจากแบเรียมคาร์บอเนตและซีเรียมไนเตรตที่มีการเจือด้วยแกโดลิเนียม (Gadolinium, Gd) ร้อยละ 10 และ 20 โดยโมล



2.3 การสังเคราะห์สารประกอบเชิงซ้อนของแบเรียมซีเรตโดยกระบวนการขั้นตอนเดียวที่มีการเจือโลหะแทนตำแหน่งของซีเรียม

การสังเคราะห์สารประกอบเชิงซ้อนของแบเรียมซีเรตจากแบเรียมคาร์บอเนตและซีเรียมไนเตรทที่มีการเจือด้วยซาแมเรียม (Samarium, Sm) ร้อยละ 10 โดยโมล
 $BaCO_3 + 0.1Sm(NO_3)_2 + 0.9Ce(NO_3)_3 + 30 TEA \longrightarrow Metal\ Complex$

การสังเคราะห์สารประกอบเชิงซ้อนของแบเรียมซีเรตจากแบเรียมคาร์บอเนตและซีเรียมไนเตรทที่มีการเจือด้วยแกโดลิเนียม (Gadolinium, Gd) ร้อยละ 10 โดยโมล
 $BaCO_3 + 0.1Gd(NO_3)_3 + 0.9Ce(NO_3)_3 + 30 TEA \longrightarrow Metal\ Complex$

2.4 การเตรียมผงเซรามิกส์แบเรียมซีเรตจากกระบวนการเผา
 นำสารประกอบเชิงซ้อนที่ได้มาเผาที่อุณหภูมิที่คาดว่าเหมาะสมจากผลของการวิเคราะห์ทางความร้อน โดยให้ความร้อนเพิ่มขึ้นอย่างสม่ำเสมอ 3.5 องศาเซลเซียสต่อนาทีที่อุณหภูมิและเวลาที่แตกต่างกัน

1. อุณหภูมิ 800 องศาเซลเซียส เป็นเวลา 2 ชั่วโมง
2. อุณหภูมิ 850 องศาเซลเซียส เป็นเวลา 2 ชั่วโมง
3. อุณหภูมิ 900 องศาเซลเซียส เป็นเวลา 3 ชั่วโมง
4. อุณหภูมิ 900 องศาเซลเซียส เป็นเวลา 6 ชั่วโมง
5. อุณหภูมิ 950 องศาเซลเซียส เป็นเวลา 2 ชั่วโมง
6. อุณหภูมิ 1,000 องศาเซลเซียส เป็นเวลา 2 ชั่วโมง
7. อุณหภูมิ 1,100 องศาเซลเซียส เป็นเวลา 2 ชั่วโมง

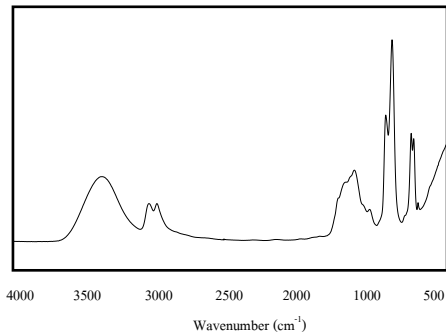
ทำการศึกษาคู่มือการสังเคราะห์แบเรียมซีเรตด้วยเทคนิคการเลี้ยวเบนของรังสีเอ็กซ์เพื่อยืนยันสูตรผลิตภัณฑ์กับไฟล์มาตรฐาน JCPDS ซึ่งตรงกับสารเซรามิกส์แบเรียมซีเรต หมายเลข 01-089-8271 โดยทำการวัดที่ 2Theta ตั้งแต่ 10 จนถึง 90 องศา

3. ผลการทดลองและอภิปรายผล

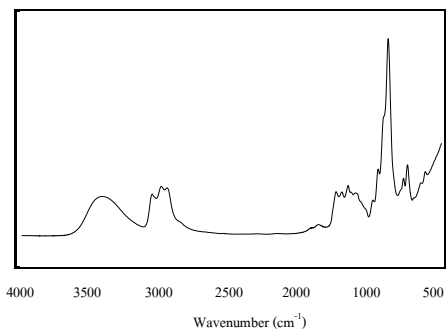
3.1 การสังเคราะห์สารประกอบเชิงซ้อนของแบเรียมซีเรตโดยกระบวนการขั้นตอนเดียวทั้งที่มีการเจือโลหะและไม่มีการเจือโลหะ

เมื่อนำสารตั้งต้นทั้งหมดมาผสมรวมกันจะได้สารละลายขุ่นสีขาวเหลือง เมื่อเกิดปฏิกิริยาเสร็จสมบูรณ์จะได้สารผลิตภัณฑ์เป็นสารประกอบเชิงซ้อนของแบเรียมซีเรตที่มีลักษณะเป็นของเหลวเหนียวข้น มีสีน้ำตาลดำ

3.2 การวิเคราะห์สูตรโครงสร้างด้วยเครื่องฟูเรียร์ทรานฟอร์มอินฟราเรดสเปกโตรโฟโตมิเตอร์ ของสารประกอบเชิงซ้อนของแบเรียมซีเรตจากแบเรียมไนเตรทและแบเรียมคาร์บอเนต



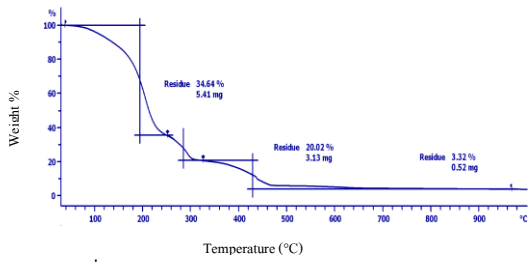
รูปที่ 3.2.1 FTIR สเปกตรัมสารประกอบเชิงซ้อนแบเรียมซีเรตจากแบเรียมไนเตรทและซีเรียมไนเตรท



รูปที่ 3.2.2 FTIR สเปกตรัมสารประกอบเชิงซ้อนแบเรียมซีเรตจากแบเรียมคาร์บอเนตและซีเรียมไนเตรท

นำสารประกอบเชิงซ้อนแบเรียมซีเรตมาวิเคราะห์สูตรโครงสร้างด้วยเทคนิคอินฟราเรดสเปกโตรโฟโตมิเตอร์ จากรูปที่ 3.2.1 และ 3.2.2 พบว่าสารประกอบเชิงซ้อนมีการดูดกลืนในช่วงประมาณ 500-700 cm^{-1} แสดงว่ามีพันธะระหว่างโลหะกับออกซิเจน ช่วงการดูดกลืน 820 – 880 cm^{-1} แสดงถึงโหมดการสั่นของ Ce-O และการดูดกลืนที่ 1,000-1,100 cm^{-1} แสดงถึงโหมดการสั่นของ Ba-O ช่วงการดูดกลืนที่ 1200-1300 cm^{-1} แสดงถึงโหมดการสั่นชนิด C-H bending ช่วงการดูดกลืน 2800 cm^{-1} – 2900 cm^{-1} แสดงถึงโหมดการสั่นชนิด C-H stretching และการดูดกลืนที่ 3356.14 cm^{-1} แสดงว่ามีหมู่ฟังก์ชันไฮดรอกซิล (hydroxyl) จากตัวทำละลายเมทานอลจากตัวทำละลายเมทานอลหรือเอทิลีนไกลคอล จากผลการวิเคราะห์แสดงให้เห็นว่าสารประกอบเชิงซ้อนที่เกิดขึ้นมีหมู่ Ba-O, Ce-O, OH และ C-H เป็นองค์ประกอบ

3.3 การศึกษาสมบัติทางความร้อนเพื่อหาอุณหภูมิที่เหมาะสมในการเตรียมผงเซรามิกส์แบเรียมซีเรตโดยเทคนิคการวิเคราะห์ทางความร้อน (Thermo gravimetric Analysis, TGA)



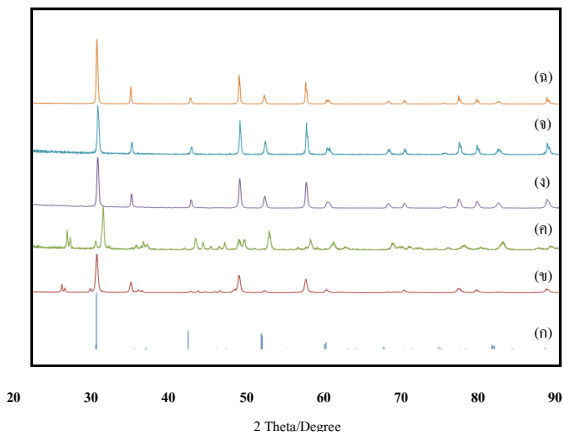
รูปที่ 3.3 เทอร์โมแกรมของสารประกอบเชิงซ้อนแบเรียมซีเรต

จากแผนภาพแสดงผลการวิเคราะห์ทางความร้อนเพื่อหาอุณหภูมิที่เหมาะสมในการเตรียมผงเซรามิกส์แบเรียมซีเรต จากสารประกอบเชิงซ้อนของแบเรียมซีเรตที่ได้จากสารตั้งต้นแบเรียมคาร์บอเนตและซีเรียมไนเตรท การสูญเสียมวล แบ่งออกเป็น 3 ช่วง คือในช่วงอุณหภูมิ 80 ถึง 250 องศาเซลเซียส มีน้ำหนักที่สูญเสียซึ่งเป็นน้ำหนักของน้ำและตัวทำละลาย มีน้ำหนักของสารที่เหลืออยู่ประมาณร้อยละ 34.64 และในช่วงที่ 2 ที่อุณหภูมิ 250 ถึง 330 องศาเซลเซียส มีน้ำหนักที่สูญเสียซึ่งเป็นน้ำหนักของสารอินทรีย์ที่มาจากตัวทำละลายและสารตั้งต้นที่เหลือจากการทำปฏิกิริยาจึงมีน้ำหนักของสารที่เหลืออยู่ประมาณร้อยละ 20.02 และในช่วงอุณหภูมิ 330 ถึง 650 องศาเซลเซียส มีน้ำหนักของสารที่เหลืออยู่ร้อยละ 3.32 ซึ่งเป็นน้ำหนักของเฟสเซรามิกส์ที่เกิดขึ้น

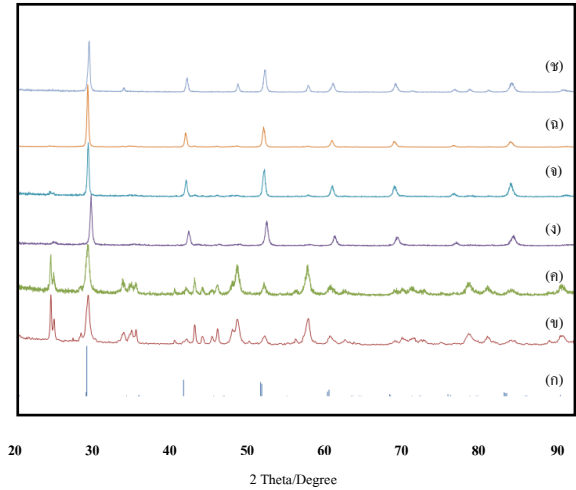
ซึ่งถือว่ามีความค่อนข้างน้อยเนื่องจากสารพรีเคอร์เซอร์มีส่วนประกอบของตัวทำละลายปนอยู่มาก ส่งผลให้เหลือปริมาณของสารเซรามิกส์ที่เกิดขึ้นค่อนข้างต่ำ

3.4 การเตรียมผงเซรามิกส์แบเรียมซีเรตด้วยการเผาเปลี่ยนเฟส (Calcination) และศึกษาโครงสร้างผลึกแบเรียมซีเรตด้วยเทคนิคการเลี้ยวเบนของรังสีเอกซ์ (X-Ray Diffraction, XRD)

จากผลการวิเคราะห์ทางความร้อนเพื่อหาอุณหภูมิที่เหมาะสมในการเตรียมผงเซรามิกส์แบเรียมซีเรต ในช่วงอุณหภูมิ 650 องศาเซลเซียสขึ้นไปมีช่วงน้ำหนักที่หายไปคงที่ แต่เพื่อทำการเผาสารประกอบเชิงซ้อนสมบูรณ์มากขึ้นจึงทำการศึกษาโครงสร้างผลึกแบเรียมซีเรตด้วยเทคนิคการเลี้ยวเบนของรังสีเอกซ์



รูปที่ 3.4.1 รูปแบบการเลี้ยวเบนของรังสีเอกซ์ของแบเรียมซีเรตจากสารประกอบแบเรียมไนเตรท (ก) แบเรียมซีเรตมาตรฐาน JCPDS หมายเลข 01-089-8271 (ข) เผาที่อุณหภูมิ 850 องศาเซลเซียส เป็นเวลา 2 ชั่วโมง (ค) เผาที่อุณหภูมิ 900 องศาเซลเซียส เป็นเวลา 3 ชั่วโมง (ง) เผาที่อุณหภูมิ 950 องศาเซลเซียส เป็นเวลา 2 ชั่วโมง (จ) อุณหภูมิ 1,000 องศาเซลเซียส เป็นเวลา 2 ชั่วโมง (ฉ) เผาที่อุณหภูมิ 1,100 องศาเซลเซียส เป็นเวลา 2 ชั่วโมง

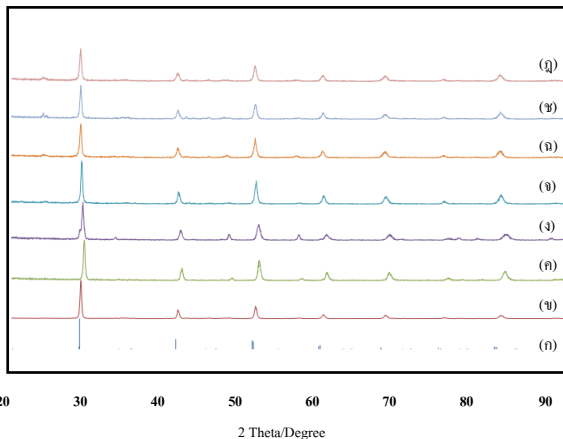


รูปที่ 5.7.2 รูปแบบการเลี้ยวเบนของรังสีเอกซ์ของแบเรียมซีเรตจากสารประกอบแบเรียมคาร์บอเนต (ก) แบเรียมซีเรตมาตรฐาน JCPDS หมายเลข 01-089-8271 (ข) สารประกอบเชิงซ้อนที่คั้นเอาตะกอนขึ้นมาที่อุณหภูมิ 800 องศาเซลเซียส (ค) สารประกอบเชิงซ้อนที่ไม่มีการคั้นเอาตะกอนขึ้นมาทำการเผาที่อุณหภูมิ 800 องศาเซลเซียส (ง) สารประกอบเชิงซ้อนทำการเผาที่อุณหภูมิ 900 องศาเซลเซียส เป็นเวลา 3 (จ) สารประกอบเชิงซ้อนทำการเผาที่อุณหภูมิ 900 องศาเซลเซียส 6 ชั่วโมง (ฉ) สารประกอบเชิงซ้อนทำการเผาที่อุณหภูมิ 950 องศาเซลเซียส เป็นเวลา 2 ชั่วโมง (ช) สารประกอบเชิงซ้อนทำการเผาที่อุณหภูมิ 1,000 องศาเซลเซียส เป็นเวลา 2 ชั่วโมง

เมื่อทดสอบผงแบเรียมซีเรตที่เตรียมจากสารประกอบเชิงซ้อนที่มาจากแบเรียมไนเตรทและแบเรียมคาร์บอเนต ด้วยเทคนิคการเลี้ยวเบนของรังสีเอกซ์เมื่อนำมาเปรียบเทียบกับฟิสิกส์ของแบเรียมซีเรตมาตรฐาน JCPDS หมายเลข 01-089-8271 เพื่อให้ได้เฟสของแบเรียมซีเรตที่สมบูรณ์ในการเผาสารประกอบเชิงซ้อนจึงเลือกใช้แบเรียมคาร์บอเนตเป็นสารตั้งต้นและทำการเผาที่อุณหภูมิ 950 องศาเซลเซียส เป็นเวลา 2 ชั่วโมง

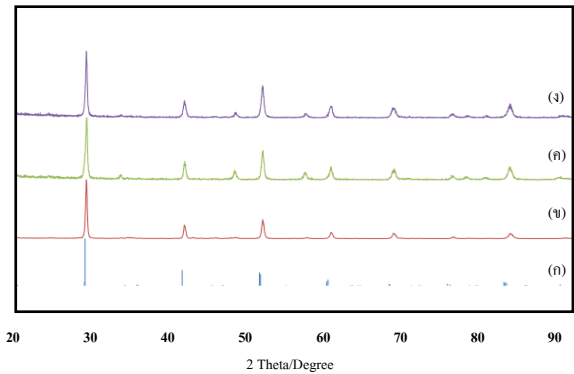
3.5 การเตรียมผงเซรามิกส์แบเรียมซีเรตที่มีการเจือโลหะแทนที่ตำแหน่งของแบเรียมและซีเรียมด้วยการเผาเปลี่ยนเฟส (Calcination) และศึกษาโครงสร้างผลึกด้วยเทคนิคการเลี้ยวเบนของรังสีเอ็กซ์ (X-Ray Diffraction, XRD)

สารประกอบเชิงซ้อนของแบเรียมซีเรตที่มีการเจือสตรอนเทียม, ซาแมเรียมและแกโดลิเนียมที่ร้อยละ 10 และ 20 โดยโมลแทนที่ตำแหน่งของแบเรียมและซีเรียมถูกนำมาทำการเผาเปลี่ยนเฟสที่อุณหภูมิ 950 องศาเซลเซียส เป็นเวลา 2 ชั่วโมงเกิดเป็นผงละเอียดสีขาวและทำการศึกษาโครงสร้างผลึกด้วยเทคนิคการเลี้ยวเบนของรังสีเอ็กซ์



รูปที่ 3.5.1 รูปแบบการเลี้ยวเบนของรังสีเอ็กซ์ของรังสีเอ็กซ์ของแบเรียมซีเรตจากสารประกอบแบเรียมคาร์บอเนต โดยผ่านการเผาที่อุณหภูมิ 950 องศาเซลเซียส (ก) แบเรียมซีเรตมาตรฐาน JCPDS หมายเลข 01-089-8271(ข) แบเรียมซีเรตที่ไม่ผ่านการเจือ)คเจือ (สตรอนเทียม ร้อยละ10 โดยโมล) ง) เจือสตรอนเทียม ร้อยละ (20 โดยโมล) จ)เจือ (แซมาเรียม ร้อยละ 10 โดยโมล) ฉ)เจือ (แซมาเรียม ร้อยละ 20 โดยโมล) ช)เจือ (แกโดลิเนียม ร้อยละ 10 โดยโมล และ (ฎ) เจือแกโดลิเนียม ร้อยละ 20 โดยโมล

เมื่อทดสอบผงแบเรียมซีเรตที่เตรียมจากสารประกอบเชิงซ้อนที่มีการเจือ โลหะแทนที่ตำแหน่งของแบเรียมนำมาเปรียบเทียบกับพีคแบเรียมซีเรตมาตรฐาน JCPDS หมายเลข 01-089-8271, ทั้งนี้พบว่าการเจือด้วยสตรอนเทียม แซมาเรียมและแกโดลิเนียมมีการแทนที่แบเรียมอย่างสมบูรณ์ในโครงสร้างผลึก



รูปที่ 3.5.2 รูปแบบการเลี้ยวเบนของรังสีเอ็กซ์ของแบเรียมซีเรตจากสารประกอบแบเรียมคาร์บอเนตโดยผ่านการเผาที่อุณหภูมิ 950 องศาเซลเซียส (ก) แบเรียมซีเรตมาตรฐาน JCPDS หมายเลข 01-089-8271 (ข) แบเรียมซีเรตที่ไม่ผ่านการเจือ)คเจือ (แซมาเรียม ร้อยละ 10 โดยโมล และ)ง) เจือแกโดลิเนียม ร้อยละ 10 โดยโมล

เมื่อทดสอบผงแบเรียมซีเรตที่เตรียมจากสารประกอบเชิงซ้อนที่มีการเจือ โลหะแทนที่ตำแหน่งของซีเรียมนำมาเปรียบเทียบกับพีคแบเรียมซีเรตมาตรฐาน JCPDS หมายเลข 01-089-8271 ทั้งนี้พบว่าการเจือด้วยแซมาเรียมและแกโดลิเนียมมีการแทนที่ซีเรียมอย่าง ไม่สมบูรณ์ใน โครงสร้างผลึกทำให้เกิดเฟสของแบเรียมซีเรตที่ไม่บริสุทธิ์

4. สรุปผลการทดลอง

การเตรียมสารแบเรียมซีเรตจากกระบวนการขั้นตอนเดียว สามารถเตรียมได้โดยใช้เกลือของแบเรียม ซึ่งอาจเป็นแบเรียมไนเตรทและแบเรียมคาร์บอเนต ทำปฏิกิริยากับซีเรียมไนเตรท โดยมีไตรเอทานอลามีนและเอทิลีนไกลคอลเป็นลิแกนด์และตัวทำละลาย รวมถึงวิธีการนี้ยังสะดวกต่อการเจือด้วยโลหะ สารประกอบเชิงซ้อนหลังจากผ่านการเผาที่อุณหภูมิ 950 องศาเซลเซียส เป็นเวลา 2 ชั่วโมง พบว่าผงเซรามิกส์ที่เกิดขึ้นมีความบริสุทธิ์และไม่มีการปนเปื้อนของสาร สามารถยืนยันได้จากการวิเคราะห์ด้วยเทคนิคการเลี้ยวเบนรังสีเอ็กซ์ (X-Ray Diffraction) นอกจากนี้จากการเจือด้วยโลหะที่ร้อยละ 10 และ 20 โดยโมล ยังไม่มีผลต่อโครงสร้างของแบเรียมซีเรต

5. กิตติกรรมประกาศ

งานวิจัยนี้จัดขึ้นตามหลักสูตรวิศวกรรมศาสตรบัณฑิต สาขาวิศวกรรมวัสดุ มหาวิทยาลัยเกษตรศาสตร์ และสำเร็จลุล่วงไปด้วยดี สืบเนื่องมาจากความช่วยเหลือในการทำงาน ทุนสนับสนุนในการทำงานวิจัย ตลอดจนการเอาใจใส่ ให้คำปรึกษา

และคำแนะนำที่ดี จาก ผศ อภิรัตน์.ดร.ไพศาลกิตติโชติ ประธาน
กรรมการที่ปรึกษา จึงกราบขอบพระคุณมา ณ ที่นี้

เอกสารอ้างอิง

- [1] Amitava Chakroborty, A. D. S., B. Maiti, H.S. Maiti (2002). "Preparation of low-temperature sinterable BaCe_{0.8}Sm_{0.2}O₃ powder by autoignition technique." **Materials Letters**. 7: 862– 867.
- [2] G.N. Glavee, R.D. Hunt, and Paranthaman(1999). "Low temperature preparation of BaCeO₃ and Ce_{0.75}Zr_{0.25}O₂ thin films using sol-gel processing techniques." **Material Research Bulletin**. Vol. 34, No. 5, pp. 817-825,
- [3] Hiroshige Matsumoto, Ikuyo Nomura, Sachio Okada, Tatsumi Ishihara(2008). "Intermediate-temperature solid oxide fuel cells using perovskite-type oxide based on barium cerate." **Solid State Ionics**. 179 : 1486-1489
- [4] J. Melnik, J. Lua, K.T. Chuang and A.R.Sanger (2008). "Stability and Electric Conductivity of Barium Cerate Perovskites Co-Doped with Praseodymium." **The Open Fuels & Energy Science Journal**. 1, 7-10
- [5] Laobuthee, A., *et al.* 2005. "Doped MgAl₂O₄ Spinel Screen Print Thick Film as Sensing Material for Humidity Measurement." **International Journal of Materials & Structural Reliability**. 3: No. 2. 95-103.
- [6] L. Pelletier, A. M., N. Maffei (2005). "Ammonia fuel cell using doped barium cerate proton conducting solid electrolytes." **Journal of Power Sources**. 145: 262–265.
- [7] N. Maffei, L. P., A. McFarlan b (2004). "Performance characteristics of Gd-doped barium cerate-based fuel cells." **Journal of Power Sources**. 136 24–29.
- [8] Peng Ranran, Wu Yan, Yang Lizhai, Mao Zongqiang(2006). "Electrochemical properties of intermediate-temperature SOFCs based on proton conducting Sm-doped BaCeO₃ electrolyte thin film." **Solid State Ionics**. 177: 389-393
- [9] P. Pasierba, R. Gajerski, M. Rokita, M. Rekas (2001). "Studies on binary system Li₂CO₃-BaCO₃ ." **Physica**. B 304 463-476
- [10] Xin-Tai Su, Q.-Z. Y., Xiao-Hai Ma, Wen-Feng Zhang, Chang-Chun Ge (2006). "Effect of co-dopant addition on the properties of yttrium and neodymium doped barium cerate electrolyte." **Solid State Ionics**. 177: 1041–1045.
- [11] XU Chao, Z. J., YANG Xujie , LU Lude, WANG Xin (2008). "Synthesis and characterization of BaCeO₃ nanocrystals via solvothermal-based method." **Journal of Rare Earths**. 6: 51-54.
- [12] ZhiJie Li, RuiQuan Liu, JiDe Wang, Zheng Xu, YaHong Xie, BenHui Wang (2007). "Preparation of double-doped BaCeO₃ and its application in the synthesis of ammonia at atmospheric pressure." **Science and Technology of Advanced Materials**. 8: 566-570