

Abstract

Project Code: TRG5680019

Project Title: Synthesis of yttrium-doped barium zirconate nanoparticles by sonochemical method and improvement of their sinterability and proton conductivity by addition of NiO

Investigator: Asst.Prof.Panpailin Seeharaj, King Mongkut's Institute of Technology Ladkrabang

E-mail Address: kspanpai@kmitl.ac.th

Project Period: 2 years

This research project investigated the synthesis and characterization of proton conducting yttrium-doped barium zirconate ($\text{BaY}_{0.1}\text{Zr}_{0.9}\text{O}_3$; BYZ) nanoparticles by the sonochemical method. It was found that spherical monodispersed BYZ nanoparticles were successfully prepared in single step without the requirement of high temperature calcination process by the ultrasonication in highly basic aqueous solution. The stoichiometric solution of $\text{BaCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$, $\text{ZrOCl}_2 \cdot 8\text{H}_2\text{O}$ and $\text{YCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ was precipitated in a 20 M NaOH under high intensity ultrasonic irradiation (20 kHz, 150 W/cm^2) for 15, 30 and 60 min. As-prepared powders were identified by XRD, FT-IR and Raman spectroscopy as cubic perovskite BYZ. The microstructure examined by SEM and TEM showed spherical shaped BYZ nanoparticles formed by isoelectric aggregation of primary nanocrystals and this unique morphology was induced by the effects of the ultrasonication and the strong alkaline environment. BYZ powders prepared under ultrasonication for 60 min had narrow sized distribution with the average particle size of $267 \pm 26 \text{ nm}$ and the specific surface area of $40.2 \text{ m}^2/\text{g}$. BYZ and BYZ with 4 mol% of NiO ceramics sintered in the air at 1550°C and 1450°C for 20 h showed good densification (95 % for BYZ and BYZ with 4 mol% of NiO) and consisted of large grain size ($7.67 \pm 2.79 \mu\text{m}$ for BYZ and $5.26 \pm 0.72 \mu\text{m}$ for BYZ with 4 mol% of NiO) with low grain boundary density. The improvement of densification behavior could be attributed to the high sinteractive surface area and the unique morphology of the initial BYZ nanopowders.

Keywords: sonochemical synthesis, yttrium-doped barium zirconate, nanoparticles

บทคัดย่อ

รหัสโครงการ: TRG5680019

ชื่อโครงการ: การสังเคราะห์แบเรียมยิตเทรตเซอร์โคเนตขนาดอนุภาคนาโนโดยวิธีโซโนเคมี และการปรับปรุงสมบัติการเผาผนึกและการนำโปรตอนด้วยการเติม निकเกิลออกไซด์

ชื่อนักวิจัย: ผศ.ดร.ปานไพลิน สีหาราช สถาบันเทคโนโลยีพระจอมเกล้าเจ้าคุณทหารลาดกระบัง

E-mail Address: kspanpai@kmitl.ac.th

ระยะเวลาโครงการ: 2 ปี

งานวิจัยนี้ได้ศึกษาการสังเคราะห์และตรวจสอบสมบัติของวัสดุตัวนำโปรตอน คือ แบเรียม-ยิตเทรตเซอร์โคเนต ($\text{BaY}_{0.1}\text{Zr}_{0.9}\text{O}_3$; BYZ) อนุภาคนาโนเมตรโดยวิธีโซโนเคมีในสารละลายต่าง ความเข้มข้นสูง โดยได้ทำการสังเคราะห์สารจากการตกตะกอนสารผสมแบเรียมคลอไรด์ไดไฮเดรต ($\text{BaCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$) เซอร์โคเนียมออกไซด์คลอไรด์ออกตะไฮเดรต ($\text{ZrOCl}_2 \cdot 8\text{H}_2\text{O}$) และยิตเทรียมคลอไรด์-เฮกซะไฮเดรต ($\text{YCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$) ในสารละลายโซเดียมไฮดรอกไซด์ (NaOH) ความเข้มข้น 20 โมลาร์ พร้อมกับการผ่านคลื่นอัลตราโซนิกความเข้มข้นสูง (20 กิโลเฮิร์ตซ์ 150 วัตต์ต่อตารางเซนติเมตร) เป็นเวลา 15 30 และ 60 นาที จากการตรวจสอบด้วยเทคนิคการเลี้ยวเบนของรังสีเอกซ์ (XRD) อินฟราเรดสเปกโทรสโกปี (FT-IR) และรามานสเปกโทรสโกปี (Raman spectroscopy) พบว่าสารที่สังเคราะห์ได้ คือ BYZ ที่มีโครงสร้างแบบลูกบาศก์เพอโรฟสไกต์ (cubic perovskite) ผลที่ได้แสดงให้เห็นว่าสามารถสังเคราะห์ BYZ จากวิธีโซโนเคมีในสารละลายต่างความเข้มข้นสูงได้โดยตรงโดยไม่ต้องทำการเผาแคลไซน์ที่อุณหภูมิสูง จากการตรวจสอบสัณฐานวิทยาด้วยเทคนิคกล้องจุลทรรศน์อิเล็กตรอนแบบส่องกราด (SEM) และกล้องจุลทรรศน์อิเล็กตรอนแบบส่องผ่าน (TEM) พบว่า BYZ ที่สังเคราะห์ขึ้นจากการผ่านคลื่นอัลตราโซนิกเป็นเวลา 60 นาที มีลักษณะเป็นอนุภาคทรงกลมที่กระจายตัวอย่างสม่ำเสมอและมีขนาดที่ใกล้เคียงกัน โดยมีขนาดอนุภาคเฉลี่ย 267 นาโนเมตร และมีพื้นที่ผิวจำเพาะ 40.2 ตารางเมตรต่อกรัม อนุภาค BYZ ที่ได้นั้นเกิดจากการเกาะรวมตัวของผลึก BYZ ขนาดเล็กในทุก ๆ ทิศทาง (isoelectric aggregation) ซึ่งเป็นผลมาจากการใช้วิธีโซโนเคมีในสารละลายต่างความเข้มข้นสูง จากการศึกษาสมบัติการเผาผนึก (sintering) พบว่าผงผลึก BYZ บริสุทธิ์ที่ผ่านการเผาผนึกในอากาศที่อุณหภูมิ 1550 องศาเซลเซียส เป็นเวลา 20 ชั่วโมง และผงผลึก BZY ที่มีการเติมสารปรับปรุงสมบัติการเผาผนึก คือ นิกเกิลออกไซด์ (NiO) ในอัตราส่วนร้อยละ 4 โดยโมล และทำการเผาผนึกที่อุณหภูมิ 1450 องศาเซลเซียส เป็นเวลา 20 ชั่วโมง ได้เป็นเซรามิกส์ที่มีความหนาแน่นสูงและประกอบด้วยเกรนขนาดใหญ่ คือ มีความหนาแน่นเท่ากับร้อยละ 95 และมีขนาดเกรน $7.67 \mu\text{m}$ และ $5.26 \pm 0.72 \mu\text{m}$ ตามลำดับ ซึ่งการปรับปรุงสมบัติการเผาผนึกของ BYZ บริสุทธิ์ น่าจะเป็นผลมาจากลักษณะเฉพาะของผงผลึก BYZ อนุภาคนาโนเมตร ที่มีรูปร่างเป็นทรงกลมที่สม่ำเสมอและมีพื้นที่ผิวจำเพาะที่สูง

คำหลัก: การสังเคราะห์โดยวิธีโซโนเคมี แบเรียมยิตเทรตเซอร์โคเนต อนุภาคนาโนเมตร