

T.C.
SÜLEYMAN DEMİREL ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

KATI OKSİT YAKIT PİLLERİNDE KULLANILMAK ÜZERE
K₂NiF₄ YAPISINDA ELEKTROT MADDE SENTEZLERİ VE
ELEKTROKİMYASAL KARAKTERİZASYONU

Hasan ASLANBAY

Danışman: Yrd. Doç. Dr. Sibel DİKMEN

YÜKSEK LİSANS TEZİ
KİMYA ANABİLİM DALI
ISPARTA - 2010

TEZ ONAYI

Hasan ASLANBAY tarafından hazırlanan “Katı oksit yakıt pillerinde kullanılmak üzere K_2NiF_4 yapısında elektrot madde sentezleri ve elektrokimyasal karakterizasyonu” adlı tez çalışması aşağıdaki jüri tarafından oy birliği/oy çokluğu ile Süleyman Demirel Üniversitesi Kimya Anabilim Dalı’nda **YÜKSEK LİSANS TEZİ** olarak kabul edilmiştir.

Danışman: Yrd. Doç. Dr. Sibel DİKMEN
Süleyman Demirel Üniversitesi
Kimya Anabilim Dalı

(İmza)

Jüri Üyeleri :

(Ünvanı, Adı ve Soyadı)

(İmza)

(Kurumu).....

(Ünvanı, Adı ve Soyadı)

(İmza)

(Kurumu).....

(Ünvanı, Adı ve Soyadı)

(İmza)

(Kurumu).....

Prof. Dr. Mustafa KUŞCU

Enstitü Müdürü

Not: Bu tezde kullanılan özgün ve başka kaynaktan yapılan bildirimlerin, çizelge, şekil ve fotoğrafların kaynak gösterilmeden kullanımı, 5846 sayılı Fikir ve Sanat Eserleri Kanunundaki hükümlere tabidir.

İÇİNDEKİLER

Sayfa

İÇİNDEKİLER	i
ÖZET	ii
ABSTRACT	iii
TEŞEKKÜR	iv
ŞEKİLLER DİZİNİ	v
ÇİZELGELER DİZİNİ	vi
SİMGELER VE KISALTMALAR DİZİNİ	vii
1. GİRİŞ	1
2. KAYNAK ÖZETLERİ	5
2.1. Yakıt Pili Tarihçesi	5
2.2. Yakıt Pili Yapısı ve Çalışma Prensipleri	7
2.3. Yakıt Pilinin Avantajları ve Dezavantajları	9
2.4. Yakıt Pili Türleri	10
2.4.1. Proton değişim zarlı yakıt pili (PEMFC)	12
2.4.2. Alkali yakıt pilleri (AFC)	15
2.4.3. Fosforik asit yakıt pilleri (PAFC)	16
2.4.4. Erimiş karbonat yakıt pilleri (MCFC)	18
2.4.5. Katı oksit yakıt pilleri (SOFC)	19
2.5. Katı Oksit Yakıt Pili Bileşenleri	21
2.5.1. SOFC'ler için katot malzemeler	21
2.5.2. SOFC'ler için anot malzemeler	22
2.5.3. SOFC'ler için ara bağlantı malzemeleri	23
2.5.4. SOFC'ler için elektrolit malzemeler	24
3. MATERYAL VE YÖNTEM	26
3.1. Materyal	26
3.1.1. Kullanılan kimyasal maddeler	26
3.1.2. Kullanılan alet ve cihazlar	26
3.2. Yöntem	27
3.2.1. $Sr_{1,4}La_{0,6}Mn_{1-x}M_xO_{4-\delta}$ katı faz reaksiyon yöntemi ile sentezi	27
3.2.2. $Ce_{0,8}Gd_{0,18}Bi_{0,2}O_{2-\delta}$ elektrolitinin hidrotermal reaksiyon yöntemiyle sentezi	29
4. ARAŞTIRMA BULGULARI VE TARTIŞMA	31
4.1. XRD Analizleri	31
4.1.1. $Sr_{1,4}La_{0,6}Mn_{1-x}Co_xO_{4-\delta}$ numunesi	32
4.1.2. $Sr_{1,4}La_{0,6}Mn_{1-x}Ni_xO_{4-\delta}$ numunesi	32
4.1.3. $Sr_{1,4}La_{0,6}Mn_{1-x}Fe_xO_{4-\delta}$ numunesi	33
4.1.4. $Ce_{0,8}Gd_{0,18}Bi_{0,2}O_{2-\delta}-Sr_{1,4}La_{0,6}Mn_{0,6}Co_{0,4}O_{4-\delta}$ elektrolit ve elektrotun kimyasal uyum testi	34
4.2. SEM Analizleri	35
4.3. Impedans Analizleri	36
5. SONUÇ	39
6. KAYNAKLAR	40
ÖZGEÇMİŞ	43

ÖZET

Yüksek Lisans Tezi

KATI OKSİT YAKIT PİLLERİNDE KULLANILMAK ÜZERE K_2NiF_4 YAPISINDA ELEKTROT MADDE SENTEZLERİ VE ELEKTROKİMYASAL KARAKTERİZASYONU

Hasan ASLANBAY

Süleyman Demirel Üniversitesi
Fen Bilimleri Enstitüsü
Kimya Anabilim Dalı

Danışman: Yrd.Doç.Dr.Sibel DİKMEN

Bu çalışmada Katı Oksit Yakıt Pilleri (SOFC) nde kullanılmak üzere elektrot ve elektrotun kimyasal uyumunu incelemek amacıyla elektrolit madde sentezi yapılmıştır. Elektrot sentezinde Katı Faz Reaksiyon Yöntemi kullanılmıştır. Elektrolit sentezi Hidrotermal Yöntem ile yapılmıştır. Belirlenen stokiyometrik oranlarda hazırlanan kimyasallar havan içerisinde aseton yardımıyla karıştırılarak, yüksek sıcaklık fırınlarında kalsine edilmiştir. Kalsinasyon sonucu elde edilen her bir numunenin farklı stokiyometrik oranlardaki serileri sentezlenmiştir.

SOFC; elektrot grubu, elektrolit, ara bağlantı malzemelerinden oluşmaktadır. Elektrot ve elektrolit arasındaki kimyasal uyum çok önemlidir. Bu uyum kimyasal uyum testi ile XRD analizleri yardımıyla incelenmiştir. Stokiyometrilere hesaplamada termal analiz, iletkenlik ölçümleri için impedans analizleri, yüzey yapıları ve gözenek boyutlarının incelenmesi için SEM analizleri yapılmış ve yapılar aydınlatılmıştır.

Anahtar Kelimeler: SOFC, hidrotermal sentez, doplanmış seria, K_2NiF_4 yapısı

2010, 44 sayfa

ABSTRACT

M. Sc. Thesis

SYNTHESIS AND ELECTROCHEMICAL CHARACTERIZATION OF K_2NiF_4 STRUCTURE ELECTRODE MATERIALS FOR SOLID OXIDE FUEL CELL APPLICATIONS

Hasan ASLANBAY

Süleyman Demirel University
Graduate School of Applied and Natural Sciences
Chemistry Department

Supervisor: Asist. Prof. Sibel DİKMEN

In this study, electrode materials have been synthesized, and the chemical compatibility of the electrode with commonly used electrolytes for solid oxide fuel cell applications have been checked. Classical solid state reaction method were used in electrode synthesis. Stoichiometric mixtures of starting materials were grounded with the help of acetone to get homogeneous mixture, and then were calcined in high temperature. Electrolyte synthesis were carried out by the hydrothermal method.

Solid oxide fuel cells (SOFCs); were consisted of electrode group, electrolyte and interconnection materials. Chemical compatibility of the electrode with electrolyte is considerably important. This compatibility was investigated by chemical compatibility test and XRD analysis. Thermal analysis were used to determine the exact stoichiometry of the starting materials. Conductivities of the samples have been determined by impedance measurements, and the surface structure, and pore dimension have been determined by SEM measurements.

Key Words: SOFC, hydrothermal synthesis, doped ceria, K_2NiF_4 structure.

2010, 44 pages

TEŞEKKÜR

Bu çalışmayı hazırlamamda beni yönlendiren, literatür araştırmalarım ve deneysel çalışmalarım desteklerini esirgemeyen, karşılaştığım zorlukları bilgi ve tecrübesi ile aşmamda yardımcı olan değerli danışman hocam Yrd. Doç. Dr. Sibel DİKMEN'e teşekkür ederim.

Süleyman Demirel Üniversitesi Fen Edebiyat Fakültesi Kimya Bölümü'ndeki bütün öğretim üyesi hocalarıma destek ve yardımlarından dolayı teşekkür ederim.

Araştırmalarım ve çalışmalarım manevi yardımlarını esirgemeyen Fatih AYMELEK, Gökhan Güven BATIR, Ahmet AKGÜL ve Burçin CÜLÜ başta olmak üzere tüm arkadaşlarıma teşekkür ederim.

106T536 No'lu TÜBİTAK 1001 Araştırma Projesi ve 1747-YL-08 No'lu Yüksek Lisans Projesi ile tezimi maddi olarak destekleyen TÜBİTAK ve Süleyman Demirel Üniversitesi Bilimsel Araştırma Projeleri Yönetim Birimi Başkanlığı'na teşekkür ederim.

Ayrıca hayatımın her anında bana destek veren canım aileme ve bu süre içerisinde beni sabırla destekleyerek her zaman yanımda olan ve sıkıntılarımı paylaşan nişanlıma sonsuz sevgilerimi sunarım.

Hasan ASLANBAY

ISPARTA, 2010

ŞEKİLLER DİZİNİ

Şekil 2.1. William Robert Grove tarafından geliştirilen yakıt hücresi.....	5
Şekil 2.2. Mond ve Langer'in tasarladığı yakıt pili	6
Şekil 2.3. Gemini uzay aracında kullanılan proton değişim zarlı yakıt pili.....	7
Şekil 2.4. Yakıt pili	8
Şekil 2.5. Yakıt pili türleri	12
Şekil 2.6. Proton değişim zarlı yakıt pili.....	13
Şekil 2.7. Alkali yakıt pili	15
Şekil 2.8. Fosforik asit yakıt pili	17
Şekil 2.9. Erimiş karbonat yakıt pili	18
Şekil 2.10. Katı oksit yakıt pili	20
Şekil 2.11. Florit kristal yapısı (Wikipedia, 2001).....	25
Şekil 3.1. Katı faz reaksiyon sentezleri için deneysel akış şeması.....	28
Şekil 3.2. Hidrotermal reaksiyon sentezi için deneysel akış şeması	30
Şekil 4.1. $Sr_{1,4}La_{0,6}Mn_{1-x}Co_xO_{4-\delta}$ malzemelerine ait toz x-ışını kırınım desenleri	32
Şekil 4.2. $Sr_{1,4}La_{0,6}Mn_{1-x}Ni_xO_{4-\delta}$ malzemelerine ait toz x-ışını kırınım desenleri	33
Şekil 4.3. $Sr_{1,4}La_{0,6}Mn_{1-x}Fe_xO_{4-\delta}$ malzemelerine ait toz x-ışını kırınım desenleri.....	33
Şekil 4.4. 800°C ve 1000°C'te 2 hafta bekletilmiş $Ce_{0,8}Gd_{0,18}Bi_{0,02}O_{2-\delta}$ $Sr_{1,4}La_{0,6}Mn_{0,6}Co_{0,4}O_{4-\delta}$ malzemelerine ait toz x-ışını kırınım desenleri ...	34
Şekil 4.5. 1350°C'te yoğunlaştırılmış $Ce_{0,8}Gd_{0,18}Bi_{0,02}O_{2-\delta}$ yüzeyinin taramalı elektron mikrosafığı (SEM).....	35
Şekil 4.6. 1375°C'te yoğunlaştırılmış $Sr_{1,4}La_{0,6}Mn_{0,6}Co_{0,4}O_{4-\delta}$ yüzeyinin taramalı elektron mikrosafığı (SEM).....	36
Şekil 4.7. 300°C'de $Ag Ce_{0,8}Gd_{0,18}Bi_{0,02}O_{2-\delta} Ag$ hücresine ait AC impedans grafığı (Dikmen et al., 2010)	37
Şekil 4.8. 500°C'de $Ag Ce_{0,8}Gd_{0,18}Bi_{0,02}O_{2-\delta} Ag$ hücresine ait AC impedans grafığı (Dikmen et al., 2010)	38
Şekil 4.9. $Ce_{0,8}Gd_{0,18}Bi_{0,02}O_{2-\delta}$ numunesinin sıcaklığa bağlı iletkenlik değişimi (Dikmen et al., 2010)	38

ÇİZELGELER DİZİNİ

Çizelge 2.1. Yakıt pilleri arasındaki farklar.....	11
Çizelge 3.1. Kullanılan kimyasal maddeler.....	26
Çizelge 4.1. Numunelere uygulanan işlemler.....	31

SİMGELER VE KISALTMALAR DİZİNİ

~	Yaklaşık
Ω	Ohm
cm	Santimetre
kW	Kilovat
μm	Mikro Metre
W	Vat
Ca	Kalsiyum
Co	Kobalt
Cr	Krom
La	Lantan
Fe	Demir
Mn	Mangan
Ni	Nikel
Sr	Stronsiyum
H ₂	Hidrojen Gazı
O ₂	Oksijen Gazı
CO ₃ ²⁻	Karbonat İyonu
H ⁺	Hidrojen İyonu
La ³⁺	Lantan İyonu
O ²⁻	Oksit İyonu
OH ⁻	Hidroksit İyonu
Mn ³⁺	Mangan İyonu
ABO ₃	Perovskit Yapısına Ait Genel Formül
CO	Karbon Monoksit
CO ₂	Karbon Dioksit
H ₂ S	Hidrojen Sülfür
KOH	Potasyum Hidroksit
K ₂ CO ₃	Potasyum Karbonat
K ₂ NiF ₄	Potasyum Nikel Florür Yapısı
LiAlO ₂	Lityum Alüminyum Oksit

Li₂CO₃	Lityum Karbonat
LaCoO₃	Lantan Kobalt Oksit
LaMnO₃	Lantan Mangan Oksit
LSM	Lantan Stabilize Mangan Oksit
H₃PO₄	Fosforik Asit
NO_x	Azot Oksit Türevleri
Sr₂MnO₄	Stronsiyum Mangan Oksit
Y₂O₃	Yitriyum Oksit
YSZ	Yitriyum Stabilize Zirkonya
ZrO₂	Zirkonyum Oksit
SEM	Scanning Electron Microscope (Taramalı Elektron Mikroskobu)
TGA	Termal Gravimetrik Analiz
XRD	X-Ray Diffraction (X-Işını Kırınım Deseni)
AFC	Alkaline Fuel Cells (Alkali yakıt pilleri)
MCFC	Molten Carbonate Fuel Cells (Erimiş karbonat yakıt pilleri)
NASA	National Aeronautics Space Administration (Ulusal Havacılık Uzay Dairesi)
PEMFC	Proton Exchange Membrane Fuel Cells (Proton değişim zarlı yakıt pilleri)
PAFC	Phosphoric Acid Fuel Cells (Fosforik asitli yakıt pilleri)
SOFC	Solid Oxide Fuel Cells (Katı oksit yakıt pilleri)

1. GİRİŞ

Enerji, insana yönelik tüm faaliyetlerin ve üretim basamaklarının gerçekleşmesi için gerekli temel kaynaktır. Sürdürülebilir kalkınmanın ekonomik, sosyal ve çevresel boyutlarının tartışılmasında önemli bir faktördür. İnsanlığın gelişimi ile birlikte enerji ihtiyacı da sürekli olarak artmaktadır. Günümüzde gelişmiş ve gelişmekte olan ülkelerin en önemli gereksinimi enerjidir. Her ne kadar tam bir ölçüt olmasa da ülkelerin gelişmişlik düzeyleri, ürettiği ve tükettikleri enerji ile ölçülür. Endüstrileşme ile baş gösteren buhar gücü gereksinimi ile kömür kullanımını büyük bir hızla artırmıştır. Daha sonraları elektrik enerjisinin kullanılmaya başlanması ve içten yanmalı motorların kullanım alanının genişlemesi, elektrik üretiminde kömür ve petrol kullanımını büyük bir hızla artırmıştır. Sonunda endüstri ve yaşam için en önemli hammadde, fosil yakıtlar olmuştur.

Bu yakıtların tükenmesi ve fiyatlarının devamlı artması, enerji üretimi fosil yakıtla bağlı olan bir ülke için çok büyük bir problemdir. Fosil yakıtta dışa bağımlılık, fosil yakıt ile üretilen enerjide dışa bağımlılık demektir ve bu da enerjide dışa bağımlılık anlamına gelir. Kullanılan enerjide dışa bağımlılık ülke ekonomisine çok büyük zararlar verir. Bu durumda, fosil yakıtlara alternatif olabilecek, yeni, yenilenebilir enerji kaynaklarına ihtiyaç önem arz eder. Alternatif enerji kaynakları arasında en çok dikkati çeken hidrojen enerjisinin yakıt olarak kullanıldığı yakıt pilleridir.

Yakıt pilleri hidrojen ekonomisi için önemli bir teknoloji olup petrol ve diğer fosil yakıtlara göre daha temiz ve daha yüksek verimlilikte alternatifler sunarak dünyadaki enerji üretim tekniklerini büyük ölçüde değiştirme potansiyeline sahiptir. Yakıt pili sisteme dışarıdan sağlanan yakıt ve elektrokimyasal reaksiyonun gerçekleşmesini sağlayacak olan oksitleyicinin kimyasal enerjisini doğrudan elektrik ve ısı formunda kullanılabilir enerjiye çevirebilen güç aletidir. Bir yakıt pilinde yakıt (örneğin H_2) anot yüzeyine uygulanır ve burada yükseltgenerek dış devreye hareket eden elektronlar açığa çıkar. Yükseltgeyici (O_2) katoda uygulanır ve burada dış devreden gelen elektronlarla indirgenir. Bu şekilde elektronların dış devre kanalıyla anottan katoda akışı sonucu doğru-akım elektriği üretilir. İki elektrot arasına iyonların

(örneğin O^{2-}) iletimini sağlayan bir elektrolit yerleştirilir. Yakıt kullanımındaki yüksek verim nedeniyle, bu elektrokimyasal reaksiyondan çıkan yan ürün sadece su ve ısıdır. Yakıt pili sistemi bir yanma reaksiyonu vermediği için çok daha fazla elektrik üretmektedir. Bu sistemi pilden ayıran en büyük özellik, güç üretimi için şarja gereksinim olmaması ve yakıt sağlandığı sürece güç üretiminin devamlı olacak olmasıdır. Yakıt pilleri oldukça yüksek pazar potansiyeline sahiptir. Gelecek on yıl içerisinde özellikle Elektrik Güç Jeneratörleri ve Taşınabilir Güç Araçları için ana güç kaynağı olarak yakıt pillerinin kullanılması beklenmektedir. Dünyanın gelişmiş ülkeleri ve önde gelen otomotiv şirketleri yakıt pillerinin araştırılması ve geliştirilmesi için çok yüksek miktarlarda para ve zaman harcamaktadırlar.

Yakıt pilleri yakıt ve oksitleyicinin bileşimine, yakıtın doğrudan veya dolaylı beslenmesine, kullanılan elektrot ve elektrolit cinsine ve operasyon sıcaklığına bağlı olarak farklı kombinasyonlarda bulunabilir. Katı Oksit Yakıt Pili (Solid Oxide Fuel Cells, SOFC), hidrokarbon yakıtlardan elektrik üretiminde en çok kullanılan yakıt pili çeşididir. Bunun en önemli nedeni yüksek operasyon sıcaklığına bağlı olarak yüksek verim sağlamasıdır. Ayrıca yapısının diğer yakıt pil çeşitlerine göre daha basit oluşu, safsızlıklara karşı daha tolere olabilmesi, dışarıdan bir yakıt reform ünitesine ihtiyacı olmaması ve modüler oluşu gibi özellikleri de üstünlükleri arasında sıralanabilir. SOFC'in kullanımında en temel sorun yüksek operasyon sıcaklığı ile alakalı olarak materyal seçiminin sınırlı olmasıdır. Bu nedenle uygun materyallerin geliştirilmesi ve seramik yapıların fabrikasyonu SOFC'in ticari olarak daha yaygın hale gelebilmesi için gerçekleştirilmesi gereken en önemli basamaklardır.

Katı Oksit Yakıt Pillerinin üretimini hızlandırabilmek için öncelikle maliyetin düşürülmesi gerekmektedir. Bunun en etkili yöntemi ise yakıt pilinin çalışma sıcaklığının düşürülmesidir. Mevcut katı oksit yakıt pilleri $1000^{\circ}C$ civarında bir çalışma sıcaklığına sahiptir ve bu sıcaklık hem pil materyalleri arasında istenmeyen tepkimelere neden olur hem de maliyeti artırır. Bu nedenle son yıllardaki çalışmalar katı oksit yakıt pilinin sıcaklığını $800^{\circ}C$ 'nin altına çekmeye yöneliktir. Orta sıcaklık katı oksit yakıt pillerinin geliştirilmesinde önem arz eden başlıca husus istenilen çalışma sıcaklık aralığında istenilen özelliklere sahip malzemenin üretilmesidir.

Bu bağlamda gerek katı elektrolit, gerek elektrot olarak kullanılabilen malzemelerin üzerine yapılan çalışmalar her geçen gün hızla artmaktadır.

S. Liping ve çalışma grubu potansiyel katot materyalleri olarak La doplanmış Sr_2MnO_4 üzerine yakın zamanda bir makale yayınlamıştır (Liping et al., 2008). Bu çalışmada $\text{Sr}_{2-x}\text{La}_x\text{MnO}_{4-\delta}$ 'nin oldukça geniş oksijen kısmı basınç aralığında iyi bir termokimyasal kararlılık gösterdiği ve ayrıca hali hazırda kullanılan elektrolit materyallerininkine yakın ısıl genişleme katsayısına sahip olduğu gösterilmiştir. Yapılan çalışmada katot materyali için önemli bir özellik olan diğer pil bileşenleri ile reaksiyona girip girmediği de kontrol edilmiş ve bu konuda da gelecek vaat eden özellikleri tespit etmiştir. Q. Li ve çalışma grubu $\text{Sm}_{2-x}\text{Sr}_x\text{NiO}_4$ üzerinde araştırmalar yapmış (Li et al., 2007), ve sonuçlara göre bu materyallerin de potansiyel katot olabilecekleri sonucuna varmıştır. Y. Wang ve çalışma grubu ise alternatif katot materyali olabilecek $\text{A}_{2-\alpha}\text{A}'\text{BO}_4$ ($\text{A}=\text{Pr, Sm}$; $\text{A}'=\text{Sr}$; $\text{B}=\text{Fe, Co}$) üzerine yaptıkları çalışmaları (Wan et al., 2006) ile dikkat çekmektedir. Bu çalışma sonucu üretilen materyallerin ısıl genişleme katsayıları ve katodik özellikleri incelenmiş ve yakıt pillerinde uygun biçimde kullanılacakları sonucuna varılmıştır. F. Zhao ve çalışma grubu $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{Co}_{0,8}\text{Ni}_{0,2}\text{O}_{4-\delta}$ 'i potansiyel katot olarak düşünmüş (Zhao et al., 2008) ve araştırma sonuçları pil performansının oldukça dayanıklı olduğunu göstermekle beraber yüzeyler arası polarizasyon rezistansının perovskit yapısındaki kobaltlara göre daha yüksek olduğunu göstermiştir. L. Sun ve çalışma grubu ise Sr ile doplanmış Nd_2NiO_4 materyalini potansiyel katot olarak kabul etmiş ve mevcut elektrolit materyalleri ile uyumu ve pil potansiyeli üzerine ciddi araştırma yapmıştır (Sun et al., 2008). Araştırma sonucu, bu materyallerin doped ceria ile oldukça uyumlu olduğu sonucuna varmıştır. K_2NiF_4 yapısında farklı materyaller üzerine benzer çalışmalar farklı gruplar tarafından sürdürülmektedir (Kharton et al., 2001; Bochkov et al., 1999; Mazo et al., 2001; Jin et al., 2008; Peña-Martínez et al., 2008; Canales-Vázquez et al., 2007; Yoo et al., 2007; Wei et al., 2008; Zhu et al., 2008; Li et al., 2006). Son yıllara kadar potansiyel katot olarak çoğunlukla perovskit yapısındaki materyaller üzerine yoğunlaşan çalışmalar, büyük ölçüde K_2NiF_4 yapısındaki materyallere kaymıştır.

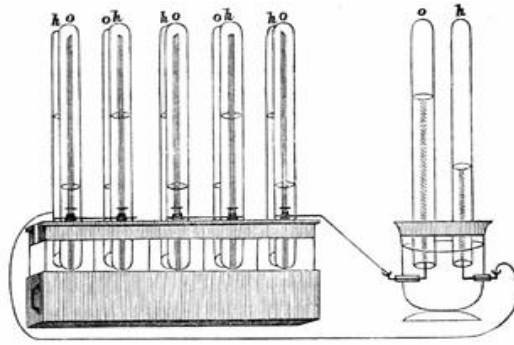
Bu tez çalışmasında da yine orta sıcaklık katı oksit yakıt pillerinde etkili bir şekilde kullanılabilir olan $Sr_{1,4}La_{0,6}Mn_{1-x}B_xO_{4-\delta}$ (B=Fe, Co, Ni) ($x=0,0-1,0$) materyalleri katı oksit yakıt pilleri katot materyali olarak uygun olup olmadığı çalışılmıştır.

2. KAYNAK ÖZETLERİ

2.1. Yakıt Pili Tarihçesi

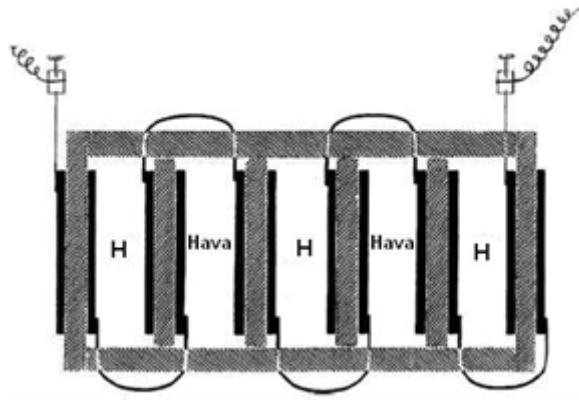
Yakıt pilleri ilk defa 19. yüzyılın sonunda geliştirilmiştir. İlk pratik yakıt pili Apollo uzay programı için 1960'larda yapılmıştır. Günümüzde de hala uzay projelerinde yakıt pillerinin kullanımı devam etmektedir.

1838 yılında William Robert Grove (yakıt hücrelerinin babası olarak bilinir) yakıt hücrelerinin temel çalışma prensibi olan su elektrolizinin tersine çevrilmesiyle hidrojen ve oksijenden elektrik enerjisi üretmeyi başarmıştır. Grove hücresi olarak adlandırılan hücre, çinko sülfat içerisinde çinko elektrot ve nitrik asit içerisinde platin elektrot daldırılarak oluşturulmuş ve yaklaşık 1,8 volt civarında gerilim ve 12 amperlik akım üretmiştir. Grove, elektrotlardan biri sülfürik asit kabına diğeri oksijen ve hidrojen kabına daldırılan iki platin elektrotu düzenleyerek, elektrotlar arasında sabit bir akım akacağını keşfetmiştir. Sızdırmazlığı sağlanan kaplar hem suyu hem de gazları tutmuşlardır. Grove, akım aktığı sürece, su seviyesinin her iki tüpte de arttığını belirlemiştir. 1800'de, İngiliz bilim adamları Willam Nicolas ve Anthony Carlisle, elektrik yardımıyla suyun hidrojen ve oksijene ayrılabilceğini ispatlamışlardır. Fakat iki gazın birleştirip su ve elektrik üretilebileceğini çözememişlerdir. Grove, birkaç elektrotu seri devreyle bağlayarak bileşimini ayarlamak suretiyle suyun ayrıştırılmasını etkileyebileceğini keşfetmiştir. Bunu gaz bataryası adını verdiği ve ilk yakıt pili olarak tanımlayabileceğimiz Şekil 2.1.' de gösterilen aygıtla başarmıştır (Bıyıköğlü, 2003).



Şekil 2.1. William Robert Grove tarafından geliştirilen yakıt hücresi

Grove'den sonra birçok bilim adamı yakıt pili gelişimi için çaba harcamıştır. 1882 yılında Lord Rayleigh tarafından platin elektrotların verimini arttırmak için çeşitli çalışmalar yapılmıştır. Bunun için katı elektrot, gaz ve sıvı arasındaki işlem yüzeyini arttırmış hidrojenin yanı sıra kömür gazı da kullanılmıştır. 1889'da kimyager Ludwig Mond ve Carl Langer tarafından Grove'un çalışmaları tekrarlanarak; oksijen kaynağı olarak havayı, hidrojen kaynağı olarak da endüstriyel kömür gazını kullanarak 1,5 watt güç üreten ve %50 verimle çalışan bir yakıt pili geliştirilmiştir. Yakıt pilinden 1,47 volt gerilim elde edilmesi beklenmiş ancak bu değer 0,97 volt olarak ölçülmüştür. Şekil 2.2.'de Mond ve Langer'in tasarladığı yakıt pili görülmektedir.



Şekil 2.2. Mond ve Langer'in tasarladığı yakıt pili

1894'de Wilhelm Oswald kömür türevli yakıtlar ile çalışan bir elektrokimyasal pil yapmıştır. 1932'de Francis T. Bacon ilk başarılı yakıt pilini geliştirmiştir. Bu yakıt pilinde hidrojen-oksijen hücre ve alkalın elektrolit kullanılmıştır. Bu projenin önemini kavrayan Pratt&Whitney şirketi bu projeye lisans vererek NASA programlarında kullanılmasını sağlamıştır. 1959'da Bacon ve arkadaşları 5 kW'lık güç üreten bir yakıt pili yapmışlardır. Aynı yılın sonunda Harry Karl Ihring 20 beygir (yaklaşık 15 kW) gücünde yakıt piliyle çalışan traktör tasarlamıştır. Bu buluş günümüzdeki modern yakıt piliyle çalışan makinelerin başlangıcı olmuştur (Bıyıkoglu, 2003).

1950 yılı sonları ve 1960'lı yıllarda NASA yakıt hücresi teknolojisine oldukça ciddi yatırımlar yapmıştır. Yakıt hücreleri hafif olmaları ve yan ürün olarak su üretmelerinden dolayı uzay uygulamaları için düşünölmeye başlanmıştır. Uzay

çalışmalarında yakıt hücrelerinin kullanılması; yüksek verim, düşük gürültü ve titreme, yüksek enerji yoğunluğu gibi avantajlar sağlamaktadır. İlk olarak Gemini uzay aracında General Elektrik tarafından üretilen proton değişim zarlı yakıt hücresi kullanılmıştır. Şekil 2.3.'de NASA çalışmalarında Gemini uzay aracında kullanılan proton değişim zarlı yakıt hücresi görülmektedir.



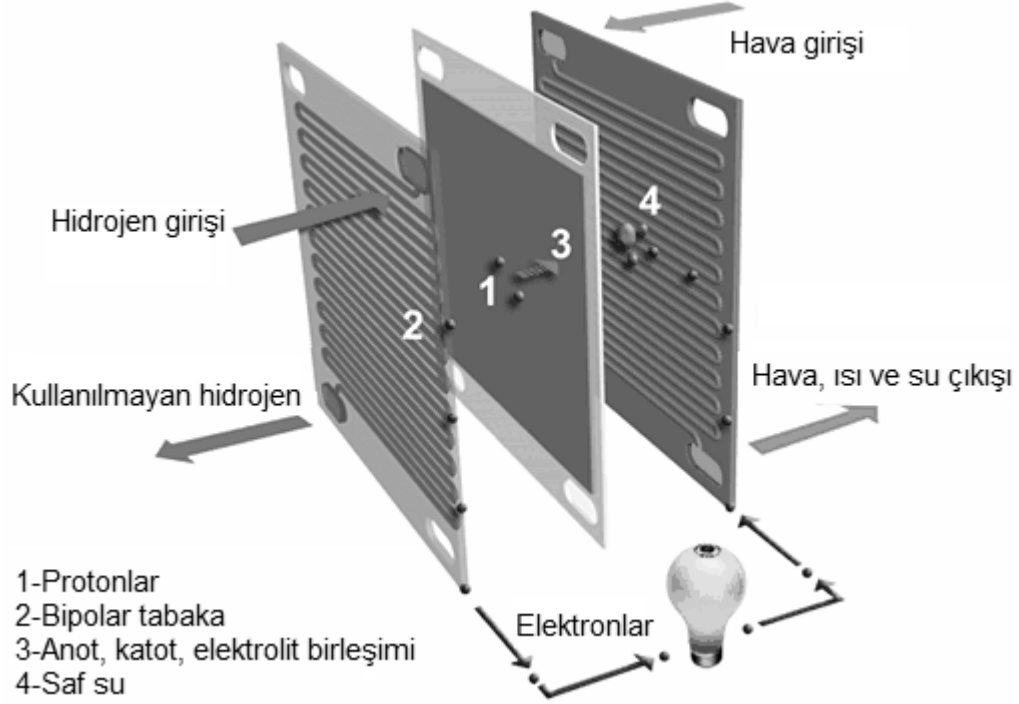
Şekil 2.3. Gemini uzay aracında kullanılan proton değişim zarlı yakıt pili

1970'li yıllarda General Motor "Elektrovan" adlı yakıt hücresiyle çalışan bir araç geliştirmiştir. 1970'li yıllarda devlet destekli yakıt hücresi araştırmaları başlamış ve bu amaçla Los Alamos Ulusal Laboratuvarı ve Brookhaven Ulusal Laboratuvarları kurulmuştur. Son elli yılda, büyük otomobil üreticileri ve federal ajanslar yakıt hücreli otomobiller ve diğer uygulamalarda kullanılmak üzere yakıt hücresi teknolojilerinde gelişmeye destekleri devam etmiştir. Şimdilerde ise gelecek için yakıt hücrelerinin geleneksel güç kaynaklarının yerinin alması beklenmektedir. Cep telefonlarında kullanılabilecek mikro yakıt hücrelerinden motor sporlarında kullanılabilecek büyük güçlü yığın yakıt hücrelerine kadar geniş çaplı çalışmalar sürmektedir (Çetinkaya ve Karaosmanoglu, 2005).

2.2. Yakıt Pili Yapısı ve Çalışma Prensibi

Tipik bir yakıt pili, basitçe anot ve katot olarak adlandırılan iki elektrot ve bunların arasına sıkıştırılmış elektrolitten oluşur. Bu iki uç elektrot tabaka içerisinde oksijen ve hidrojeni dağıtmak için kanallara sahiptirler. Kullanılacak yakıt, pilin anoduna

beslenir. Oksijen (ya da hava) yakıt pilinin katoduna verilir. Bir katalizörün işlemi kuvvetlendirmesiyle yakıt, proton ve elektrona ayrıştırılır. Bu iki parça yakıt pilinin içinde katoda doğru ayrı rotalardan gider. Proton elektrolitin içinden geçer. Yakıt pilinin genel bir şeması Şekil 2.4.'de verilmiştir (Akbulut, 2007).



Şekil 2.4. Yakıt pili

Elektronlar dış devrede farklı bir yol izleyerek katoda dönüp oksijen ile birleşip su molekülüne dönüşmeden önce faydalanılabilir bir elektrik enerjisi üretirler. Tamamen kimyasal bu süreç sonucunda yakıt pili neredeyse hiç kirletici açığa çıkarmamaktadır. Bu nedenle yakıt pilleri sıfır emisyonlu motorlar olarak da adlandırılırlar (Larminie and Dicks, 2003).

Yakıt pili sistemi bir yanma reaksiyonu vermediği için çok daha fazla elektrik üretmektedir. Bu sistemi, pilden ayıran en büyük özellik, güç üretimi için şarja gereksinim olmaması ve yakıt sağlandıkça güç üretiminin devam edecek olmasıdır. Tüm yakıt pillerinde su, pil çalışma sıcaklığına göre sıvı veya buhar şeklinde ürün olarak açığa çıkar. Oksitleyici olarak oksijen kullanılıyorsa su, hava kullanılıyorsa

azot ve su, bileşimde karbon bulunan yakıt kullanılması durumunda ise karbon dioksit oluşur. Su pili terk eder ve böylece pil kendini soğutmuş olur. Ancak çok yüksek sıcaklıkta çalışan pillerde soğutma ekipmanı kullanılması gerekir (Çetinkaya ve Karaosmanoğlu, 2005).

2.3. Yakıt Pili Avantajları ve Dezavantajları

Yakıt pillerinin diğer yakıt sistemlerine göre avantajları (Yıldızbilir, 2006):

- Yakıt pili, termal enerji sistemlerine göre daha yüksek verimle çalışır. Termal sistemlerden elektrik elde edilirken, sistemin verimi “Carnot Çevrimi Kriterleri”’nden etkilenirken, yakıt pili sistemlerinde bu etkileşim yoktur. Termal sistemlerde elektrik üretimindeki verim %35-40’ı geçemezken, yakıt pili sistemlerinde %70’e yakın verimle çalışılmaktadır.
- Yakıt pilinde meydana gelen emisyon miktarı, diğer yakıtlara göre ihmal edilecek kadar azdır. Yan ürün olarak bir tek su oluşmaktadır. Yakıt pillerinde CO, NO_x, yanmamış hidrokarbonlar ve kirletici diğer maddeler oluşmazken, oksitleyici olarak hava kullanıldığında ihmal edilecek kadar az miktarda azot atıklar ve hidrokarbonlar kullanıldığında ise çok düşük miktarda CO₂ oluşur. Günümüzde çevre kirliliği ve insan sağlığı için birçok yasal kısıtlamaların uygulandığı bu zamanda, diğer teknolojilerde maliyeti çok fazla arttırmaktayken, bu sistemin çevre dostu olması çok değerli bir alternatif yakıt olmasına neden olmaktadır.
- Hareketli aksamın bulunmadığı yakıt pillerinde sistem, gürültü kirliliği oluşturmamaktadır. Yakıt pillerinde kullanılacak yakıt sayısı çok fazla olduğundan, fosil ve alternatif yakıtların kullanımının kolaylığı nedeniyle çok farklı alanlarda kullanılabilir.
- Yakıt pilleri istenilen büyüklükte ve kapasitede üretilebilir. Basit bir yapıya sahiptirler. Büyüklüklerine göre 10 W’tan 4,5 kW’a kadar olan bir güç yelpazesine sahiptirler. Boyutları bir el çantasında taşınabilecek kadar küçük veya buzdolabı kadar büyük olabilirler. Modülerdirler, gerekli görülen her yerde kullanılabilir ve yerleştirilebilirler.
- Yüksek sıcaklıklı yakıt pillerinde elektrik üretiminin yanı sıra yan ürün olarak oluşan atık ısı geri kazanılabilir ve buhar santrallerinde kullanılır.

- Yakıt pilleri dayanıklı ve güvenli sistemlerdir.

Yakıt pillerinin diğer yakıt sistemlerine göre dezavantajları (Çetinkaya ve Karaosmanoğlu, 2002):

- Yakıt pili kullanımı, çok fazla bilgi ve ileri teknoloji gerektiren bir sistemdir.
- Diğer sistemlerden daha pahalı bir sistemdir.
- Uygulamalarının tam verimle gerçekleşmesi için uzun zamana ve çok paraya ihtiyaç vardır.

2.4. Yakıt Pili Türleri

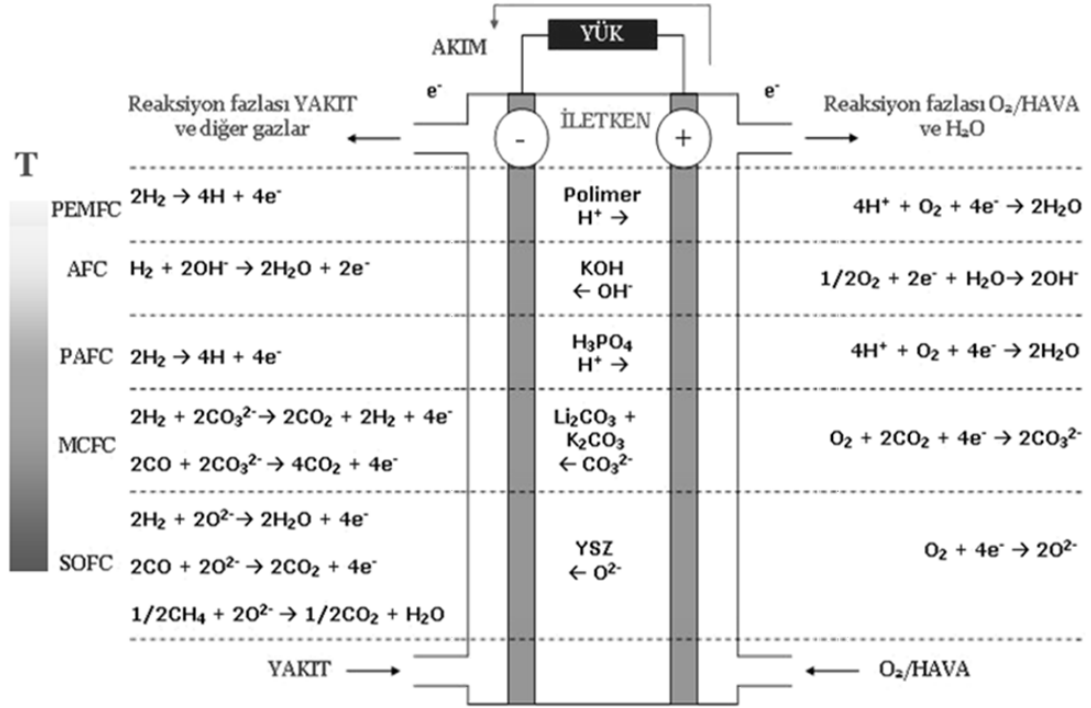
Yakıt pilleri uygulamada, çalışma sıcaklığı, elektrolit tipi ve yakıt tipine göre sınıflandırılmaktadır. Yakıt pilinin çalışma sıcaklığı 150°C 'den düşükse, “düşük sıcaklık yakıt pili”, 500°C ile 1000°C arasında ise “yüksek sıcaklık yakıt pili” olarak adlandırılmaktadır. Düşük sıcaklık yakıt pillerinin hidrojen gibi basit yakıt ve platin gibi iyi ve pahalı katalizör gerektirmelerine karşı, yüksek sıcaklık yakıt pilleri hidrokarbon yakıt ve daha ucuz katalizör kullanabilme potansiyeline sahiptir. Kullanılan elektrolit asidik veya sıvı, katı veya sıvı-katı karışımı içerisinde alkalın biçiminde olabilir. Kullanılan yakıtlar genellikle hidrojen, doğal gaz (metan), metanol ve propandır (Hoogers, 2003).

Yakıt hücrelerinin her ne kadar çalışma prensipleri benzer olsa da, çalışma koşulları ve uygulama alanları farklılık gösterirler. Yakıt pilleri bünyelerinde kullanılan elektrolit çeşidine göre aşağıdaki şekilde sınıflandırılır.

- Proton değişim zarlı yakıt pilleri (Proton Exchange Membrane Fuel Cells, PEMFC)
- Alkali yakıt pilleri (Alkaline Fuel Cells, AFC)
- Fosforik asitli yakıt pilleri (Phosphoric Acid Fuel Cells, PAFC)
- Erimiş karbonat yakıt pilleri (Molten Carbonate Fuel Cells, MCFC)
- Katı oksit yakıt pilleri (Solid Oxide Fuel Cells, SOFC)

Çizelge 2.1. Yakıt pilleri arasında ki farklar (Aydın, 2007)

	PEMFC	AFC	PAFC	MCFC	SOFC
Elektrolit	Katı Polimer Membran	KOH	Sıvı Fosforik Asit	Sıvı Erimiş Karbonatlar	Y ₂ O ₃ içeren zirkonya
Çalışma Sıcaklığı	80°C	65°C - 220°C	150°C - 220°C	650°C	600°C – 1000°C
Katalizör	Platin	Platin	Platin	Nikel	Perovskit
Transfer edilen iyon	H ⁺	OH ⁻	H ⁺	CO ₃ ⁻²	O ⁻²
Yakıt Islahı	Pil Dışı	Pil Dışı	Pil Dışı	Pil içi	Pil İçi
Anot Gazı	Hidrojen	Hidrojen	Hidrojen	Hidrojen, Metan	Hidrojen, Metan
Katot Gazı	Saf oksijen veya hava	Saf Oksijen	Havadan Oksijen	Havadan Oksijen	Havadan Oksijen
Isı Yönetimi	Soğutucu	Soğutucu - Koj.	Kojenerasyon	Kojenerasyon	Kojenerasyon
Verim	%35-60	%50-70	%35-50	%40-55	%45-60
Diğer Özellikler	Elektrolitin katı olmasının getirdiği avantajlara sahiptir. Düşük sıcaklıkta çalışması diğer bir avantajıdır.	Hidrojen ve oksijenle iyi performans gösterir. Uzun süreli çalışmaları gibi kapalı uygulamalar için uygundur.	Performans AFC den düşüktür.	Elektrolit korozif ve hareket edebilir. Pil yapısı için paslanmaz çelik gerekir. Pahalı metaller gerekmez.	Materyaller arasında ısıl genişleme oranlılıkları oluşabilir.



Şekil 2.5. Yakıt pili türleri

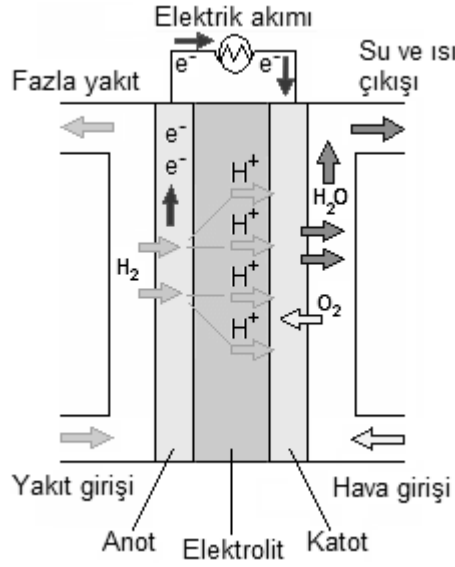
Yakıt pillerinin çalışma sıcaklığı ve çalışma ömürleri, pilin yapısında kullanılan malzemelerin fizikokimyasal ve termomekaniksel özelliklerine bağlıdır. Çalışma sıcaklığı aynı zamanda yakıt pilinde kullanılacak yakıt açısından da önemli rol oynar. Ayrıca kullanılan yakıtı göre de reaksiyon hızını arttıracak katalizör seçilir. Düşük sıcaklıkta çalışan yakıt pillerinde kimyasal reaksiyon çok yavaş olur. Reaksiyonu hızlandırmak ve pil verimini arttırmak için katalizör olarak çok pahalı olan platin kullanılır. Bu da pil maliyetini arttırmaktadır. Yüksek sıcaklıkta çalışan yakıt pilleri için bu durum söz konusu değildir. Pil çalışma sıcaklığı reaksiyonu hızlandırmak için yeterlidir. Yüksek sıcaklıkta çalışan pillerde katalizör olarak daha ucuz malzemeler kullanılabilir (Yıldızbilir, 2006).

2.4.1. Proton değişim zarlı yakıt pili (PEMFC)

Elektrolit olarak polimer madde kullanıldığı için bu pillere "polimer elektrolit yakıt pili" de denmektedir. Yakıt olarak hidrojen, oksitleyici olarak da havanın oksijenini kullanır. Elektrotlar karbon yapıldır. PEM yakıt pillerinde ince, geçirgen bir polimer

elektrolit kullanılır. Polimer zar küçük ve hafiftir. Bu zara geçirgen zar da denmektedir. Bu tip yakıt pilleri 80°C sıcaklıklarda çalışabilir

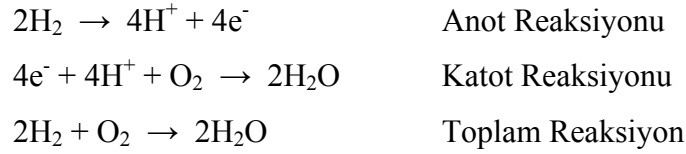
Hidrojen atomları pilin anot tarafına verilir ve burada iyonize olurlar. Pozitif yüklü protonlar geçirgen zardan geçerek katoda yönelirler. Elektronlar, anottan katoda harici bir yoldan ilerleyerek elektrik enerjisinin ortaya çıkmasını sağlarlar. Katotta elektronlar, hidrojen protonları ve havadan alınan oksijen birleşerek su meydana getirir (Kellegöz ve Özkan, 2004).



Şekil 2.6. Proton değişim zarlı yakıt pili

Bu tip yakıt pilinin çalışması için polimer zar hidrojen protonlarının geçmesine izin verirken elektronların ve daha başka ağır gazların geçişini engellemelidir. Anot ve katot elektrotları bir kenarından ince platin tabakası ile örtülmüştür. Pil yaklaşık 80°C'de çalıştığından meydana gelecek kimyasal reaksiyonlar için yeterli bir sıcak ortam yoktur. Platin tabakalar katalizör etkisiyle reaksiyonları yeterli seviyeye çıkarırlar. Proton değişim zarlı yakıt pillerinde verim %40–50 civarındadır. Şu an dünyada 50 kW üniteler çalışmakta, 250 kW üniteler ise tasarım aşamasındadır (Kellegöz ve Özkan, 2004).

Proton deęişim zarlı yakıt pillerinin alıřması esnasından katot, anot ve pil de toplam meydana gelen kimyasal reaksiyon ařaęıda verilmiřtir. Toplam reaksiyonda grldę gibi ıkıř rn sadece sudur (zdemir, 2002).



Proton deęişim zarlı yakıt pillerinin en nemli elemanı proton iletim zellięine sahip polimer zardır. Yakıt hcreleriyle ilgili yapılan alıřmaların bařında polimer zarların geliřtirilmesi yer almaktadır. Polimer zarların yksek verimlilikte alıřabilmesi iin su ile tamamen doyurulmuř olmaları gerekmektedir. Yapılan alıřmalarda zarın tam doygun olduęu zaman yksek iyonik iletkenlięe ulařıldıęı grlmřtir (Altıntař ve Donatan, 2003). PEM yakıt pilinde kullanılan zar yaklaşık 50 m kalınlıęındadır. Proton deęişim zarının;

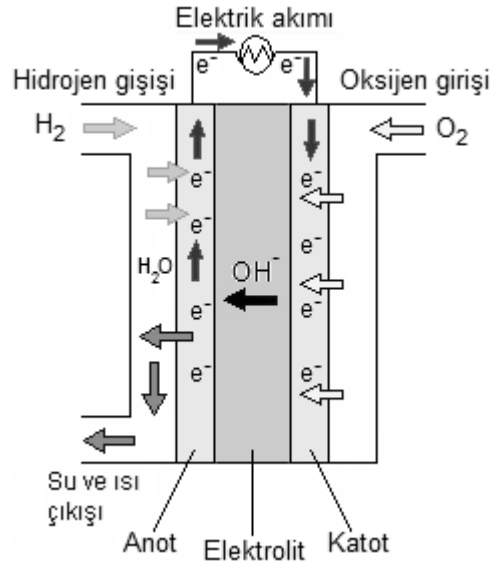
- Proton geirgen zellikte olması,
- Su, yakıt (hidrojen veya metanol), oksijen ve havadaki dięer gazları geirmemesi,
- Mekanik dayanımının yksek olması,
- Uzun sreli kullanımda ısıl ve kimyasal direnci yksek,
- Teknolojik olarak yaygın bir řekilde kullanılabilmesi iin emniyetli ve ucuz olması gerekmektedir.

Proton deęişim zarlı yakıt pilleri yksek akım ve g yoęunluęuna sahiptir. retim maliyetlerinin pahalı olması dezavantajıdır. Ayrıca yan rn olarak ıkan suyun idaresi de performans iin kritik bir noktadır. PEM yakıt pilleri tm yakıt pilleri arasında en fazla ilgi eken ve en fazla mit vaat eden tipidir. Gnmzde geliřtirilen yakıt pilleri arasında PEM yakıt pilleri bu zellikleri nedeniyle en bařta gelmektedir (zdemir, 2002).

2.4.2. Alkali yakıt pilleri (AFC)

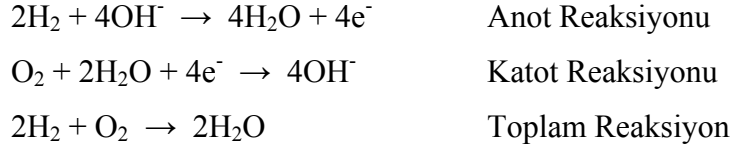
Alkali yakıt pilinde, konsantre potasyum hidroksit (KOH) çözeltisi hem soğutucu hem de elektrolit olarak kullanılır. Bu çözelti hidroksit iyonlarını katottan anoda iletir ve polimer elektrolit membranlı yakıt pilleri gibi 80-100°C civarında düşük sıcaklıklarda çalışır (Bıyıkoğlu, 2003).

Bazı özelliklerinden dolayı alkali yakıt pilleri, PEM yakıt pillerine alternatiftir. Oksijen indirgeme kinetiği, asit elektrolitlerdekine göre daha hızlıdır. Voltaj, elektrolit içerisinde biriken hidroksit iyonlarının konsantrasyonuna bağlı olarak değişir. Platin ve gümüş katalizörler hidroksit iyonlarının hızla ayrışmasına neden olur ve katottaki potansiyel artarak neredeyse teorik elektrokimyasal değere ulaşır. Alkali yakıt pillerinde alkali ortam asit ortama göre daha az korozif olduğundan dolayı; gümüş, katalizör olarak kullanılabilir. Ucuz bir katalizör ve sıvı bir elektrolit, alkali yakıt pillerinin PEM yakıt pillerine göre avantajını ortaya koymaktadır. PEM yakıt pillerinde önemli bir sorun olan giriş gazlarının nemlendirilmesi ise alkali yakıt pilleri için gerekmemektedir (Hacker et al., 2005).



Şekil 2.7. Alkali yakıt pili

Alkali yakıt pillerinin sakıncalarından biri karbondioksite hassas olmalarıdır. Yakıt ve oksitlenme ortamı genellikle, alkali çözeltisiyle reaksiyona girerek karbonatları üreten karbondioksit içerir. Karbonat ise hücre içerisindeki kimyasal reaksiyonlara engel olur. Bu yüzden alkali yakıt pillerinin en büyük dezavantajı çok saf hidrojen gerektirmesidir (Beyribey, 2006).

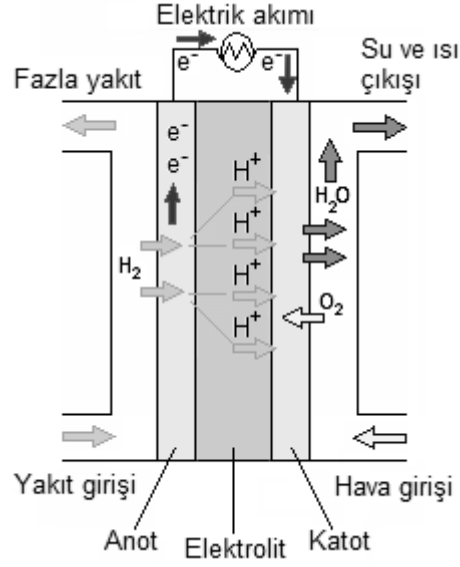


Kullanılan katalizörlerin ve saf hidrojenin pahalı olması ile hidrojenin sıvılaştırılması ve sıkıştırılması için ekstra enerji tüketimi gerekmesi bu tür yakıt pillerinin maliyetini yükseltmektedir (Beyribey, 2006).

2.4.3. Fosforik asit yakıt pilleri (PAFC)

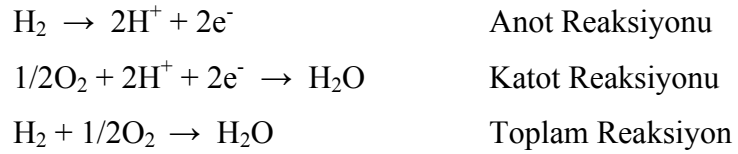
Fosforik asit yakıt pili platin katalizör parçacıkları tutmak için karbon siyahı içeren karbon kâğıdından yapılmış anot ve katottan oluşur. Elektrolit silikon karbit bağlanmış politetrafloretillen'dir. PAFC çalışma sıcaklığı 150°C ile 220°C arasında değişir. Fosforik asit çok iyi iyonik iletkenliğe ve oldukça iyi dayanıklılığa sahiptir. 150°C 'nin altında fosforik asit zayıf iyonik iletkenliğe sahipken, 220°C 'nin üstünde fosforik asit dayanıksız olur. Anot ve katotta platin katalizör PAFC'nin çalışma sıcaklığında kimyasal reaksiyonu artırmak için istenir. PAFC elektrotlar su geçirmez karbon kâğıdından oluşan geri dönüşlü tabakaya sahiptir(Çamcı, 2005).

Direk hidrojen veya yakıt işleme ünitesi tarafından üretilen hidrojen PAFC de kullanılabilir. Eğer yakıt işleme ünitesi kullanılırsa CO'in kaldırılması gerekir. Çünkü PAFC 150°C'in üzerindeki sıcaklıklarda çalışmada platin katalizör yakıt içinde %1 CO'ya tolerans gösterebilir. H₂S ve COS platin yüzeyinde toplanır.



Şekil 2.8. Fosforik asit yakıt pili

Hidrojenin oksitlenmesi için gereken aktif bölgeler kapanmış olur. Anot egzoz gazı yakıt işleme ünitesi için gereken ısı girişini sağlamak için yakılır.



Yüksek çalışma sıcaklığı PAFC çalışmasını etkilerken istenen çalışma sıcaklığını gerçekleştirmek için uzun çalıştırma zamanı istenir. İstenen yakıt pili grup sıcaklığını sürdürebilmek için ısı yönetimi grup içinde soğutma kanallarından akan sıvı veya soğutucu hava tarafından gerçekleştirilir. PAFC için aşınma problemdir. PAFC yakıt pili içinde karbon ve platin parçaların aşınmasını önlemek için her bir pil 0,8 voltun altında çalışmak zorundadır (Çamcı, 2005).

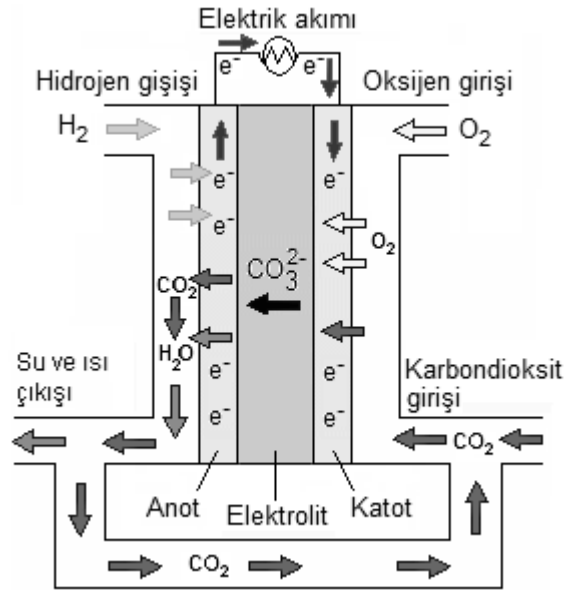
Su yönetimi PAFC'leri için problem değildir. Çünkü fosforik asit PAFC çalışma sıcaklığında yeterli iyonik iletkenliğe sahiptir. PAFC sistemlerinin diğer güç üretim metotlarıyla ekonomik olarak rekabeti başarması için PAFC sistemlerinin güç yoğunluğunu artırmak ve maliyetleri düşürmek gerekiyor. Katalizör ihtiyacının azaltılması ve iki kutuplu levha maliyetlerinin düşürülmesi için önemli olan yüksek

voltaja dayanabilecek aşınmaya dirençli maddelerin geliştirilmesi gerekmektedir (Çamcı, 2005).

2.4.4. Erimiş karbonat yakıt pilleri (MCFC)

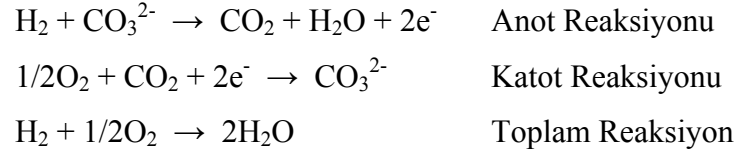
MCFC nikel alaşımlı anot, nikel oksit katot ve LiAlO_2 seramik elektrolit yardımcı matrisinden oluşur. Elektrolit lityum, sodyum ve/veya potasyum alkali karbonatların bileşiminden oluşur. MCFC çalışma sıcaklığı 600°C ile 700°C arasında değişir. Bu sıcaklıklarda alkali karbonatlar son derece iletken erimiş tuz şeklindedir. Anot ve katot içindeki nikel MCFC'nin yüksek çalışma sıcaklığı yüzünden kimyasal reaksiyonları yeterli düzeye artırır. Karbonat iyonları iyonik iletkenliği sağlar.

Anottaki hidrojenin karbonat iyonları tarafından oksitlenmesiyle su, CO_2 ve elektronlar üretilir. Elektronlar anottan katoda bir dış devre yardımıyla gider. Katoda oksijen ve CO_2 elektronlarla reaksiyona girerek karbonat iyonları üretir.



Şekil 2.9. Erimiş karbonat yakıt pili

Anot egzozu CO_2 ve su şeklindedir. Bir dış devre yardımıyla CO_2 katoda O_2 indirgenmesi esnasında kullanılmak üzere yol alır. Tüm reaksiyon ekzotermiktir. Gerçekleşen toplam reaksiyon aşağıda olduğu gibidir.

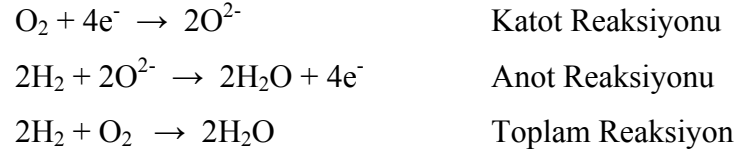


MCFC geniş yakıt bileşiminde çalışabilir. Çünkü oldukça yüksek sıcaklıkta çalışması (650°C) ve katalizör olarak platin kullanmadığı için, yakıt işleme ünitesi tarafından üretilen CO yakıt pilinde kullanılabilir. Anotta hidrojenin oksitlenmesi CO oksitlenmesinden çok hızlı meydana gelir. Üretilen su anotta su-gaz değişim reaksiyonu ile CO ile reaksiyona girer. Bu reaksiyonla yakıt pili için ek hidrojen üretilmiş olur. Anot egzoz gazının yanması yakıt işleme ünitesi için gerekli ısı girişini sağlar. Yüksek sıcaklıkta çalışma aynı zamanda yakıtın içten buhar dönüştürme işlemine yardım eder. MCFC’de içten dönüştürülebilen yakıtlar metan, metanol, propan ve nafta’ dır. Yakıt pili reaksiyonu içten dönüştürme işlemi için ihtiyaç duyulan ısı girişini sağlamasıyla MCFC çalışma sıcaklığı dengelemek için gereken soğutma ihtiyacını azaltır.

MCFC’nin dezavantajları erimiş karbonat elektrolitin yüksek aşındırma özelliği, katot yarı reaksiyonu için CO₂ ihtiyacı, düşük kükürt toleransı, elektrolit sızıntısı, yüksek sıcaklıklarda çalışmaya dayanıklı madde isteğidir. MCFC’nin avantajları yakıtı içten dönüştürme kabiliyeti, daha az maliyetli nikel katalizör, CO’in yakıt olarak kullanılması ve kojenerasyon potansiyeline sahip olmasıdır (Çamcı, 2005).

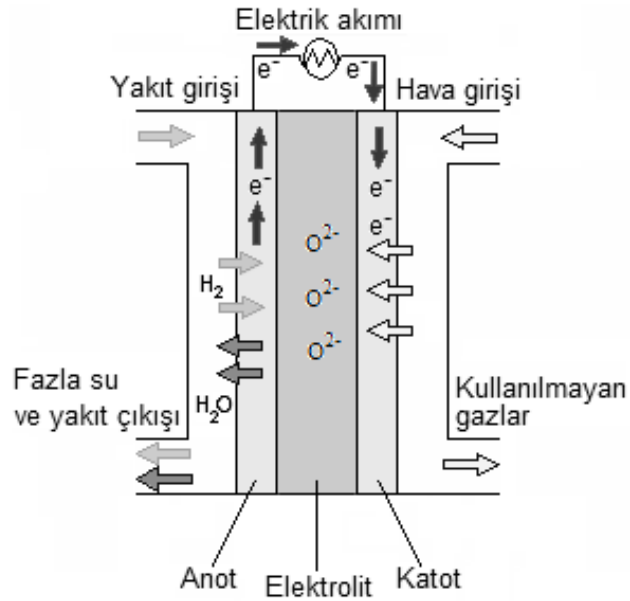
2.4.5. Katı oksit yakıt pilleri (SOFC)

SOFC tamamen katı yapıda olup elektrolit olarak oksit-iyon iletkenlikli bir seramik yapı kullanır. Bu nedenle diğer tanımlanan bütün yakıt pillerinden daha basit olup, sadece katı ve gazdan oluşan iki faz yapı içerir. Yüksek çalışma sıcaklığı nedeniyle değerli metal katalizörlere ihtiyaç yoktur. MCFC’de de olduğu gibi hidrojen ve CO’in ikisi birden yakıt olarak kullanılabilir. Hücre reaksiyonları aşağıdaki gibi meydana gelmektedir.



Katı oksit yakıt pilinde çalışma sıcaklığının çok yüksek olması nedeniyle malzeme seçimi önemlidir. İyi bir iyon, elektron iletkeni olmasının yanında başka özellikler de vardır. Bunlar malzemelerin, hücrenin kararlılığı ve birlikte uzun süreli çalışmanın sağlanabilmesidir. Malzemelerin dayanıklılığı haricinde elektrot, elektrolit ve ara bağlantıların termal genleşmeleri benzer olmalıdır. Elektrolit ve ara bağlantılar, gaz karışımını önleyecek kadar yoğun ve elektrotlar gaz taşınmasını sağlayacak kadar gözenekli olmalıdır. Diğer önemli özellikler, üretim kolaylığı ve düşük maliyettir.

SOFC katottan negatif yüklü iyonun (O^{2-}) elektrolit içerisinde geçerek anoda gelmesi yönüyle MCFC ile benzerlik gösterir. Böylece su ürünü anotta oluşur.



Şekil 2.10. Katı oksit yakıt pili

SOFC'nin anodu genelde seramik ve metalin özel bir karışımı olan zirkonya seramikten oluşur. Metalik yapı nikeldir. Bunun seçilmesinin nedeni, kimyasal

indirgeme ve kısmi indirgeme şartları altında yüksek elektronik iletkenliği ve kararlılığıdır. Nikelin varlığı, dahili yakıt işleme katalizörü olarak kullanılmasıyla bir avantaja çevrilir ve dahili yakıt işleminin doğrudan anot üzerinde gerçekleştirilmesi mümkün olur. Katot materyaller büyük zorlanmalara maruz kalırlar. Günümüzde SOFC katotlarının büyük kısmı elektronik olarak oksit iletkenlikli ya da hem elektronik hem de iyonik olarak iletkenlikli (karışık iletkenlikli) seramiklerden yapılırlar. İkinci seçenek için en fazla tercih edilen katot materyali stronsiyum katkı lantan manganittir (Akbulut, 2007).

2.5. Katı Oksit Yakıt Pili Bileşenleri

2.5.1. SOFC'ler için katot malzemeler

Katı oksit yakıt hücreleri için kullanılan katot malzemeler yüksek elektriksel iletkenlik, oksijen indirgenmesi için yüksek katalitik ve diğer hücre bileşenleri ile uyumluluk gibi birçok özelliği taşımalıdır. SOFC'lerin geliştirilmesinin ilk zamanlarında diğer uygun malzemeler mevcut olmadığından katot olarak platin kullanılmıştır. Fakat platin oldukça pahalı bir malzemedir ve güç üretmek üzere SOFC'lerde kullanın çözüm sunmamaktadır. Daha ucuz olan perovskitler de gerekli özelliklere sahip olduğundan dikkatleri üzerine çekmeyi başarmışlardır.

Bir SOFC bileşeni olarak göz önünde bulundurulması için bir malzemenin birçok şartı sağlaması gerekmektedir. SOFC'deki yüksek işletim sıcaklığı ve kombine yükseltgenme/indirgenme ortamları birçok aday malzemeye sınırlamalar getirmiştir. Katot malzeme seçiminde aşağıda sunulan kriterler göz önünde bulundurulmaktadır:

- Oksijen indirgenmesi için yüksek elektro katalitik aktivite,
- Yüksek elektronik iletkenlik,
- Yükseltgeyici atmosferde ve yüksek sıcaklıkta kararlılık,
- Diğer hücre bileşenleri ile uyumlu termal genleşme,
- Verimli oksijen aktarımı için gözenekli yapı.

LaCoO₃ 1969'ta Tedmon ve arkadaşları tarafından denenmiş ve bu malzemenin başlangıç performansının iyi olduğu görülmüştür. Fakat yitrium stabilize zirkonyum (YSZ) elektrolit ile meydana gelen reaksiyonlardan dolayı artan işletim süreleri ile birlikte şiddetli bozulma problemleri yaşamıştır. Katotlarla ilgili araştırmalar daha sonra lantan manganit (LaMnO₃) bazlı malzemelere dönmüştür.

LaMnO₃ gibi ABO₃ perovskit yapısına sahip materyallerin katot malzeme olarak kullanılmasının uygun olduğu düşünülmektedir. Örneğin LaMnO₃'e ait elektriksel iletkenlik Mn elementinin sahip olduğu 3d elektronları ile daha da artmaktadır. La³⁺ ve Mn³⁺ bölgelerinden bulunan düşük değerlik iyonlarının doplanması iletkenliği arttırabilmektedir. Tekniğin bilinen durumuna ait katot malzemelerinden biri Sr doplanmış LaMnO₃'tir (LSM). Diğer birçok oksite kıyasla LSM, Sr doplanma yüzdesinin istenilen özelliklere göre ayarlanabilmesi yapıya alışılmadık bir tek faz bölgesi sağlar ve bu durum SOFC'lerde katot için gerekli şartları büyük ölçüde karşılanması yardımcı olur (Mutlu, 2007).

2.5.2. SOFC'ler için anot malzemeler

Katotta olduğu gibi anotta da yakıt oksidasyonu için katalitik aktivite ile elektriksel iletkenlik birleştirilmelidir. Anot malzemeler için gerekli kriterler kısaca aşağıdaki gibidir:

- Etkili yükseltgenme katalizlemesi,
- Yüksek elektronik iletkenlik,
- İndirgeyici anodik ortam ve yüksek sıcakta kararlılık,
- Diğer hücre bileşenleri ile uyumlu termal genleşme,
- Sülfür kirlilikleri ve hidrokarbon yakıtlara tolerans.

Yirminci yüzyılın başında platin ve altın gibi değerli metallerin yanı sıra demir ve nikel gibi geçiş metallerini de içeren birçok aday anot malzemesi denenmiştir. Fakat platinin ömrü çalışan bir yakıt hücresinde (SOFC) uzun olmamakta, nikel ise yüksek sıcaklıklarda agregasyon nedeniyle yakıt girişini engellemektedir. Daha sonra nikel

agregasyon probleminin bir kompozit anot oluşturmak üzere nikel matris içerisine yitrium stabilize zirkonyum elektrolit taneciklerinin karıştırılmasıyla çözülebileceği düşünülmüştür. Bu tür nikel sermet anotlar belli koşullar altında yeterli performansı sağlayabilmektedir fakat karbonlu yakıtlardan dolayı karbon kirliliği gibi problemler yaşanmaktadır. Yinede adı geçen nikel sermet (Ni ve $ZrO_2-Y_2O_3$) malzemeler şimdiye kadarki SOFC geliştirme süreçlerinde en başarılı malzemeler olmuşlardır (Mutlu, 2007).

2.5.3. SOFC'ler için ara bağlantı malzemeleri

Yüksek sıcaklık katı oksit yakıt hücrelerinde (SOFC) ara bağlantı malzemelerinin sahip olduğu iki rol, hücreler arasında elektriksel bağlantı ve hücre stakı içerisinde gaz ayırımıdır. Ara bağlantının tüm hücre bileşenleri ile uyumlu olması ve yükseltgeyici ve indirgeyici gazlara karşı kararlı olması gerektiğinden çok sıkı malzeme sınırlaması gerekliliği doğmaktadır. Bu gerekliliklere ilaveten maliyet ve üretim kolaylığı gibi kısıtlamalarla mümkün olan seçenek şansı sadece birkaç malzeme ile sınırlı kalmaktadır. Bu malzemeler $900^{\circ}C - 1000^{\circ}C$ arasındaki işletim sıcaklıkları için toprak kromit bazlı perovskit tipi oksit seramikler veya daha düşük hücre işletim sıcaklıkları için metalik alaşımlardan seçilmektedir.

Bir ara bağlantı malzemesinden beklenen özellikler SOFC konfigürasyonuna göre değişmesine rağmen söz konusu özellikler genel olarak aşağıdaki gibidir:

- Yüksek elektriksel iletkenlik, düşük iyonik iletkenlik,
- Yakıt ve havada kimyasal kararlılık,
- Diğer hücre bileşenleri ile eşleşen termal genleşme,
- Yüksek mekanik dayanım,
- Yüksek ısı iletkenliği,
- Diğer hücre bileşenlerine karşı kimyasal kararlılık.

Belirli SOFC tasarımlarına göre üretim kolaylığı. gaz çevirmeyen yoğunluk, diğer hücre bileşenleri ile gaz geçirmeyen izolasyon oluşturabilme ve malzeme maliyeti

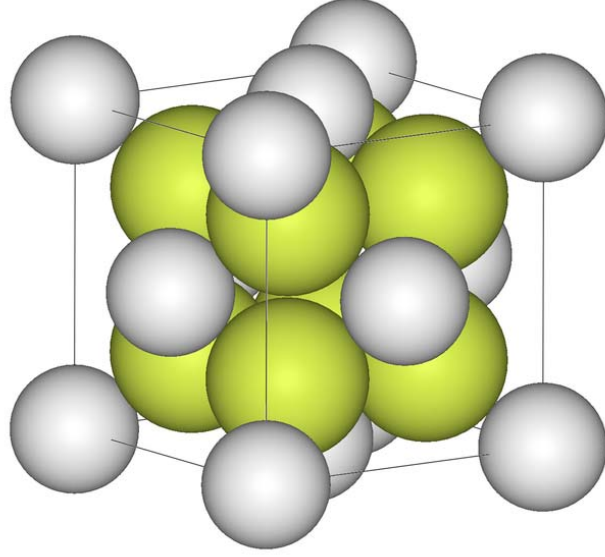
gibi diğer şartlar da önemli rol oynamaktadır. Yukarıda listelenen gerekli özelliklerden ilk üçü hayati öneme sahip olduğundan birçok aday malzemeyi elemektedir. Esasen 800°C'yi aşan işletim sıcaklıkları için gerekli şartların sadece doplanmış toprak kromitleri saklamaktadır. Özellikle (La, Sr, Ca)(Cr, Mg)O₃ sisteminden oluşan kompozisyonlar başlıca ara bağlantı malzemeleridir. Fakat (Y, Ca)CrO₃ sisteminden oluşturulan kompozisyonlar da kabul edilebilir özelliklere sahiptir. Bu toprak kromitleri gerekli şartların çoğunu sağlamasına rağmen üretim ve yüksek maliyetler bakımından problemlere sahiptir. Metalik ara bağlantı malzemeleri oksit seramiklere kıyasla daha az maliyetle daha kolay üretilebilmesine rağmen bunların SOFC işletim koşullarındaki ömürleri bakımından geliştirilmeleri gerekmektedir (Mutlu, 2007).

2.5.4. SOFC'ler için elektrolit malzemeler

Katı oksit yakıt hücrelerinde kullanılan elektrolit malzeme aranacak başlıca özellikler; yeterli oksijen iyon iletkenliği ($>0,03 \text{ Scm}^{-1}$), ihmal edilecek kadar düşük elektriksel iletkenlik, yükseltgeyici ve indirgeyici koşullarda kararlılık ve hücrenin çalışması sırasında yoğunluk ve geçirmezliktir (Gong et al., 2006). Elektrolit malzeme ayrıca diğer yakıt hücresi bileşenleri ile kimyasal ve mekanik (termal genleşme) olarak uyumlu olmalıdır. Bu uyumluluk unsuru, bazı proseslerin mevcut çoklu bileşenlerle gerçekleştirilmesine ihtiyaç duymasından dolayı üretim proseslerini de etkilemektedir ki, bu durum parametrelerin (Örn. sıcaklık veya basınç) tüm bileşenler için uygun değerlere sınırlanmasına yol açmaktadır. Yeni elektrolit malzemelerin geliştirilmesinde önemli bir konu da orta sıcaklık katı oksit yakıt hücreleri (IT-SOFC) için işletim sıcaklığının 500°C - 800°C'ye düşürülmesidir. Bahsi geçen işletim sıcaklıkları yüksek sıcaklıkta işleme ait gereklilikleri esnetebileceği gibi yakıt kullanım esnekliğini de yeterince sağlayacaktır.

Şimdiye kadar yapılan çalışmalarda florit yapısını taşıyan stabilize zirkonyum, özellikle yitriyum stabilize zirkonyum SOFC'ler için en çok tercih edilen elektrolit olmuştur. Doplanmış seryum gibi diğer florit yapıları oksit iyon iletkenleri de düşük sıcaklıkta (600°C - 800°C) çalışan SOFC'ler için düşünülmüştür. Son zamanlarda

perovskitler, kahverengi mileritler ve heksagonal yapılı oksitler de iyi iyonik iletkenliğe sahip olduđu görülmüştür (Mutlu, 2007).



Şekil 2.11. Florit kristal yapısı (Wikipedia, 2001)

Bu tez çalışmasında orta sıcaklık katı oksit yakıt pillerinde etkili bir şekilde kullanılabilir olan katot materyali sentezlenmiş ve orta sıcaklık katı oksit yakıt pillerine uygun olup olmadığı araştırılmıştır.

3. MATERYAL VE YÖNTEM

3.1. Materyal

3.1.1. Kullanılan kimyasal maddeler

Çizelge 3.1.Kullanılan kimyasal maddeler

Kullanılan Kimyasallar	Temin Edilen Firma
Stronsiyum karbonat (SrCO_3 , 99,99+%)	Aldrich
Lantan(III) oksit (La_2O_3 , 99,5%)	Merck
Mangan(III) oksit (Mn_2O_3 , 99%)	Aldrich
Kobalt(II, III) oksit (Co_3O_4 , 99,8%)	Aldrich
Nikel(II) oksit (NiO , 99,8%),	Aldrich
Demir(II) klörür tetrahidrat ($\text{FeCl}_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$, 99%)	Merck
Aseton ($\text{C}_3\text{H}_6\text{O}$, 99%)	Riedel-de Haen
Terpineol($\text{C}_{10}\text{H}_{18}\text{O}$)	Sigma
Etil Selülöz	Fluka
Seryum(III) nitrat hegzahidrat ($\text{Ce}(\text{NO}_3)_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, 99,99%)	Aldrich
Gadolinyum(III) nitrat hegzahidrat ($\text{Gd}(\text{NO}_3)_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, 99,9 %)	Aldrich
Bizmut(III) nitrat hegzahidrat ($\text{Bi}(\text{NO}_3)_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, 99,9 %)	Sigma- Aldrich
Amonyak (NH_3 , 29%)	Merck

3.1.2. Kullanılan alet ve cihazlar

Yapı Analizleri: PXD (Powder X-Ray Diffraction), Rigaku D/Max- 2200/PC diffractometre ile tayin edildi. İ.Ü. İleri Analizler Laboratuvarı, İSTANBUL

Yüzey Analizleri: JEOL JSM-5400 taramalı elektron mikroskobu (SEM) kullanılarak yapıldı. M.K.Ü. Fen-Ed. Fakültesi, Fizik Bölümü-HATAY

Isısal Kararlılık Testleri: PXD (Powder X-Ray Diffraction), Rigaku D/Max- 2200/PC diffractometre ile tayin edildi. İ.Ü. İleri Analizler Laboratuvarı, İSTANBUL

İletkenlik Ölçümleri: Solartron 1260 A Frequency Response Analyzer cihazı ile ölçüldü. S.D.Ü. Fen-Ed. Fakültesi, Kimya Bölümü-İSPARTA

Pellet Hazırlanması: Manfredi S.p.A. 10060 N-1153 pres ve Pike Technologies 13mm Die Kit yardımıyla hazırlanır. S.D.Ü. Fen-Ed. Fakültesi, Kimya Bölümü-İSPARTA

Sentez Fırınları: Hazırlanan numunelerin kalsinasyonunun gerçekleştiği Protherm Furnaces PLF 140/5 7920W fırın kullanılır. S.D.Ü. Fen-Ed. Fakültesi, Kimya Bölümü-İSPARTA

Hidrotermal Sentez: Binder 300°C 08-38421 DIN 12880 Markalı etüv hidrotermal sentez için kullanıldı. S.D.Ü. Fen-Ed. Fakültesi, Kimya Bölümü-İSPARTA

3.2. Yöntem

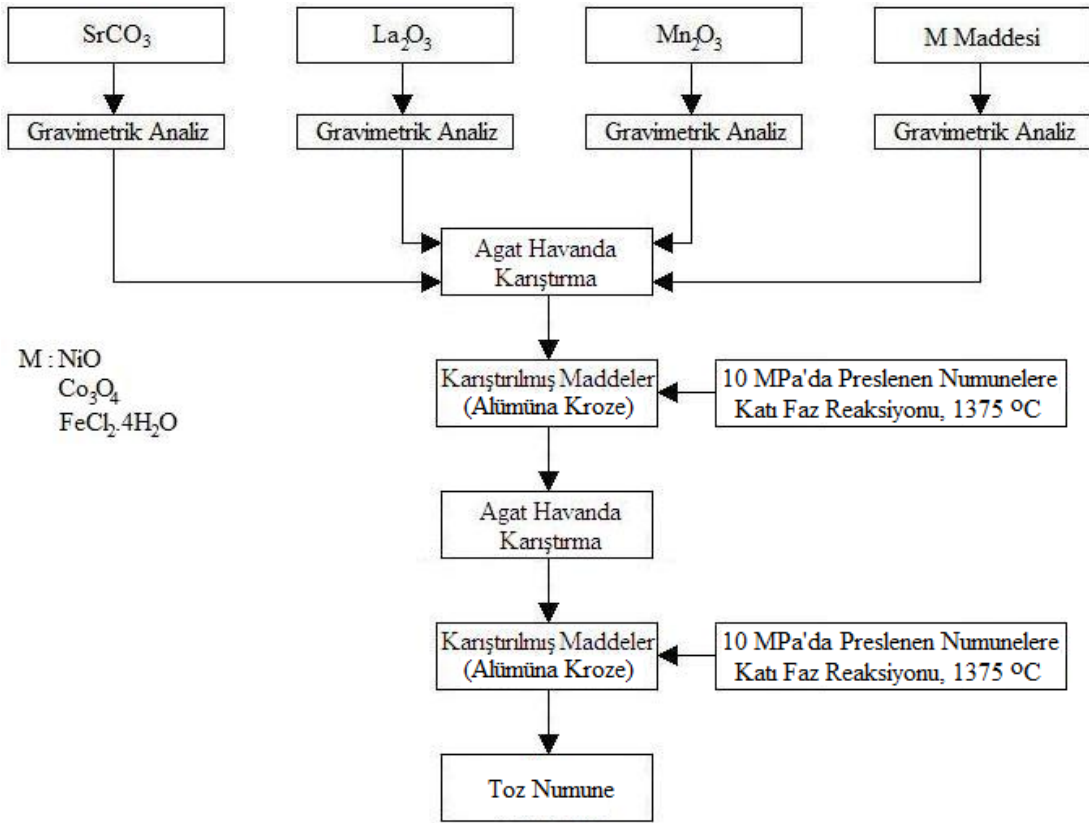
3.2.1. $Sr_{1,4}La_{0,6}Mn_{1-x}M_xO_{4-\delta}$ katı faz reaksiyon yöntemi ile sentezi

Bu çalışmamızda, Katı Oksit Yakıt Pilleri uygulamalarında katı elektrot olarak kullanılmak üzere eser elementlerle katkılanmış stronsiyum katı çözeltileri katı faz reaksiyon yöntemiyle sentezlenmiştir. Katı faz reaksiyon sentezlere başlamadan evvel reaksiyon stokiyometrisinin temini için başlangıç maddelerinin ısısal gravimetrik analizleri TGA (Thermal Gravimetric Analyzer) ile yapılır. Katı faz reaksiyonu yöntemi temel olarak başlangıç bileşiklerinin mekanik olarak karıştırılıp kalsine edilmesi prensibine dayanmaktadır. Bu yöntemle istenilen malzemenin elde edilmesi sırasında esas oluşum reaksiyonları kalsinasyon sırasında gerçekleşmektedir.

Stronsiyum karbonat ($SrCO_3$, 99,99+% Aldrich), lantan(III) oksit (La_2O_3 , 99,5% Merck), mangan(III) oksit (Mn_2O_3 , 99% Aldrich), kobalt(II,III) oksit (Co_3O_4 , 99,8% Aldrich), nikel(II) oksit (NiO , 99,8% Aldrich), demir(II) klörür tetrahidrat ($FeCl_2 \cdot 4H_2O$, 99% Merck) ayrı ayrı stokiyometrik oranlarda tartılarak ve numuneler

aseton (C_3H_6O , 99% Riedel-de Haen) muamelesiyle agat havanda dövülerek karıştırılır. Bu karıştırma işlemi 1-2 saat sürmektedir. Karıştırılan numuneler 10 MPa basınç uygulanarak silindirik peletler (11,3 mm çapında ve 2-3 mm kalınlığında) haline getirilir. Hazırlanan peletler $1375^{\circ}C$ 'ta 24 saat boyunca kalsine edilir (Fırının ısınma ve soğuma hızı $2^{\circ}C \text{ min}^{-1}$).

Birinci kalsinasyon işlemi bittikten sonra numuneler tekrar agat havanda 1-2 saat öğütülerek tekrar 10 Mpa basınçta silindirik peletler haline getirilir. Hazırlanan peletler $1350^{\circ}C$ 'ta 12 saat boyunca kalsine edilir.



Şekil 3.1. Katı faz reaksiyon sentezleri için deneysel akış şeması

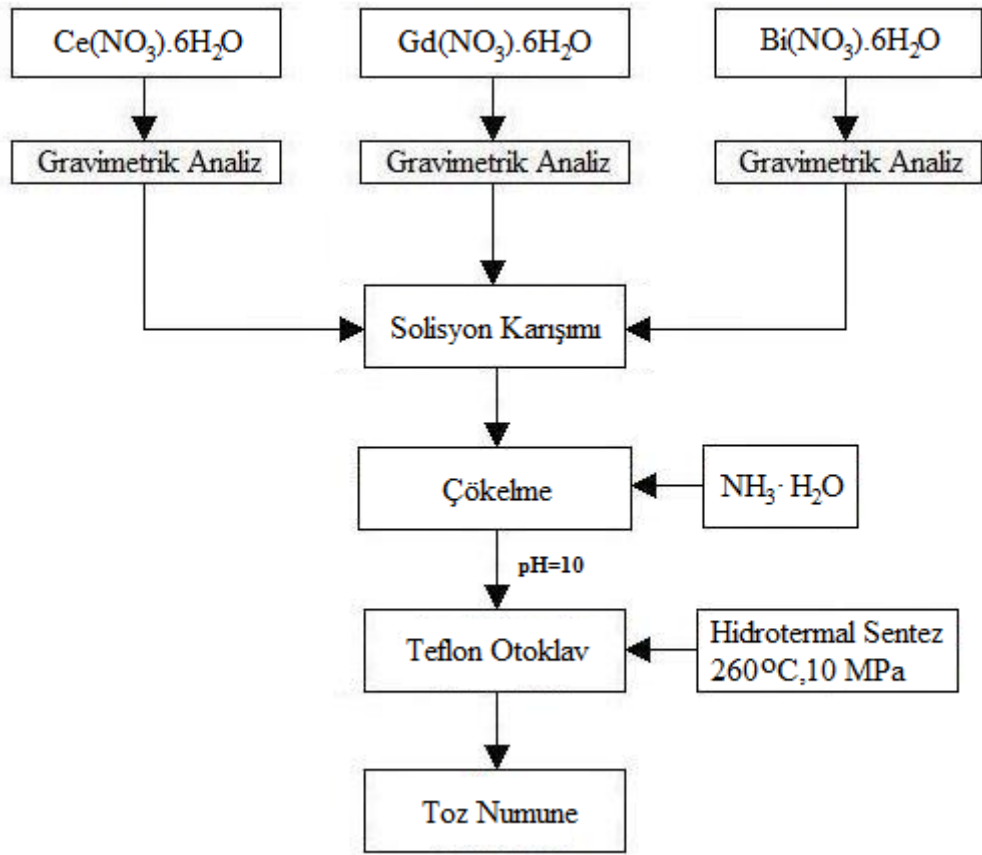
Katı faz reaksiyon proseslerinde reaktanların kuvvetli şekilde karıştırılması ve uzun süre yüksek sıcaklıklarda kalsinasyon yapılması gerekli olmaktadır. Uzun süreli termal muameleden dolayı sentezlenen tozlar reaktifliğini kaybetmekte ve morfolojinin kontrolü zorlaşmaktadır.

Kalsinasyon işleminden sonra numuneler agat havanda toz haline getirilir ve $Sr_{1.4}La_{0.6}Mn_{1-x}M_xO_{4-\delta}$ (M : Co, Ni, Fe, ve x = 0,0- 0,2-0.4 ve 0,6) katı çözeltileri oda sıcaklığında desikatörde saklanır.

3.2.2. $Ce_{0,8}Gd_{0,18}Bi_{0,2}O_{2-\delta}$ elektrolitinin hidrotermal reaksiyon yöntemiyle sentezi

Bu çalışmamızda, Katı Oksit Yakıt Pilleri uygulamalarında katı elektrolit olarak kullanılmak üzere eser elementlerle eş katkılanmış seryum katı çözeltisi hidrotermal olarak sentezlenmiştir. Hidrotermal sentezler özellikle seramik endüstrisinde nanoboyutta parçacıklara sahip materyaller üretiminde kullanılan bir yöntemdir. Hidrotermal sentezlere başlamadan evvel reaksiyon stokiyometrisinin temini için başlangıç maddelerinin ısısal gravimetrik analizleri TGA (Thermal Gravimetric Analyzer) ile yapılır. Seryum(III) nitrat heksahidrat ($Ce(NO_3)_3 \cdot 6H_2O$), 99,99% Aldrich), gadolinyum nitrat heksahidrat ($Gd(NO_3)_3 \cdot 6H_2O$), 99,9%, Aldrich), bizmut nitrat heksahidrat ($Bi(NO_3)_3 \cdot 6H_2O$), 99,9%) stokiyometrik oranlarda ayrı ayrı saf suda çözülür ve karıştırılarak NH_4OH ile pH = 10'de eş çöktürme yapılır. Çöken jeller teflon reaksiyon kabı içeren çelik otaklavlara yerleştirilip 200-300°C 'lik etüve 12 saat kalmak üzere yerleştirilir. "Hidrotermal" terimi yüksek sıcaklık ve yüksek buhar basıncının bir arada kullanımını ifade eder. Bu proseste reaksiyon "otoklav" adı verilen kapalı dikey reaksiyon kaplarında kabın tabanı ile tavanı arasında sıcaklık farkı oluşturarak gerçekleşmektedir

Otoklavlar 260°C den hemen oda sıcaklığına alınır ve $Ce_{0,8}Gd_{0,18}Bi_{0,2}O_{2-\delta}$ katı çözelti kristallenmiş tozları diiyonize su ile bir müddet yıkanır ve oda sıcaklığında havada kurutulur. Deneysel akış şeması aşağıdaki gibidir.



Şekil 3.2. Hidrotermal reaksiyon sentezi için deneysel akış şeması

4. ARAŞTIRMA BULGULARI VE TARTIŞMA

Bu çalışmada $Sr_{1.4}La_{0.6}Mn_{1-x}M_xO_{4-\delta}$ (M : Co, Ni, Fe, ve x = 0,0- 0,2-0,4 ve 0,6) sentezlenmiş olup yapısal ve elektrokimyasal özellikleri tayin edilmiştir. Sadece katot materyalinin sentezlenip kimyasal karakterizasyonunun yapılması yapının kararlılığının anlaşılmasında yeterli olmayacağı düşünülmüş ve katot materyal ile uyumlu bir elektrolit sentezi de yapılarak kimyasal uyum daha anlaşılır bir şekilde ifade edilmeye çalışılmıştır. Aşağıda her bir seriye ve elektrolite ait yapılan çalışma sonuçları ayrı başlıklar altında verilmiştir.

Çizelge 4.1. Numunelere uygulanan işlemler

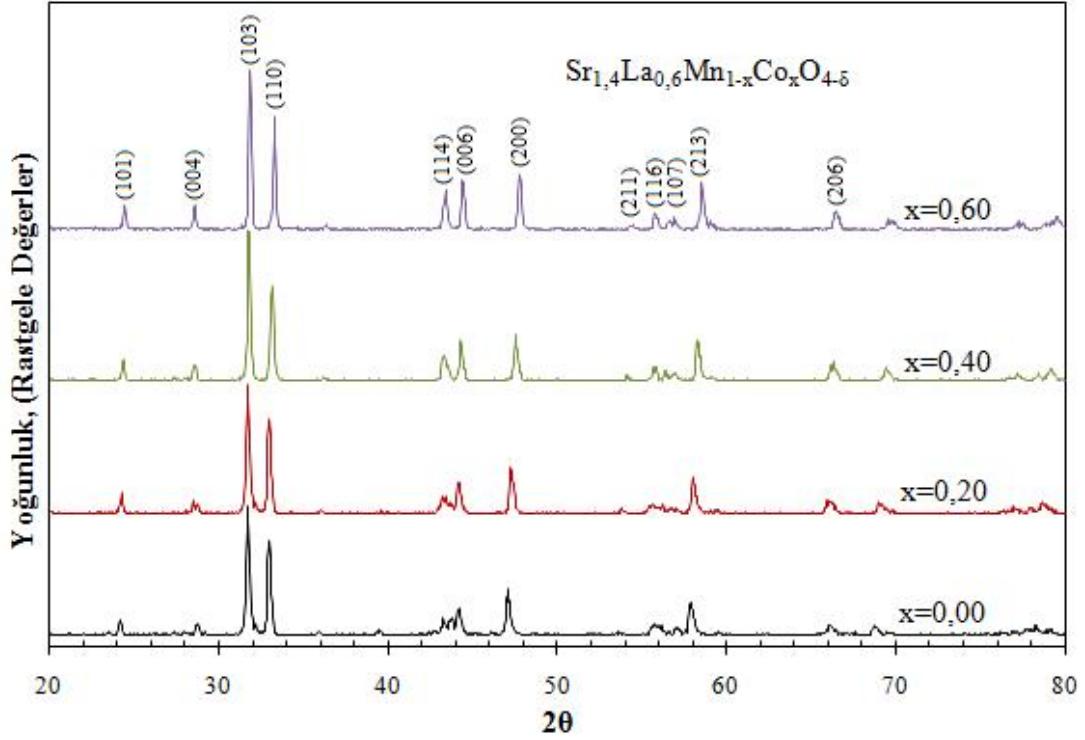
Malzeme	Kalsinasyon	XRD	TGA	SEM	IMPEDANS
$Sr_{1.4}La_{0.6}Mn_1O_{4-\square}$	1375°C	√			
$Sr_{1.4}La_{0.6}Mn_{0.8}Co_{0.2}O_{4-\square}$	1375°C	√			
$Sr_{1.4}La_{0.6}Mn_{0.6}Co_{0.4}O_{4-\square}$	1375°C	√		√	
$Sr_{1.4}La_{0.6}Mn_{0.4}Co_{0.6}O_{4-\square}$	1375°C	√			
$Sr_{1.4}La_{0.6}Mn_{0.8}Ni_{0.2}O_{4-\square}$	1375°C	√			
$Sr_{1.4}La_{0.6}Mn_{0.6}Ni_{0.4}O_{4-\square}$	1375°C	√			
$Sr_{1.4}La_{0.6}Mn_{0.4}Ni_{0.6}O_{4-\square}$	1375°C	√			
$Sr_{1.4}La_{0.6}Mn_{0.8}Fe_{0.2}O_{4-\square}$	1375°C	√	√		
$Sr_{1.4}La_{0.6}Mn_{0.6}Fe_{0.4}O_{4-\square}$	1375°C	√	√		
$Sr_{1.4}La_{0.6}Mn_{0.4}Fe_{0.6}O_{4-\square}$	1375°C	√	√		
$Ce_{0.80}Gd_{0.18}Bi_{0.02}O_{2-\delta}$	260°C	√	√	√	√

4.1. XRD Analizleri

Sentezlenen tüm numunelerin saflıkları XRD analizi ile sistematik olarak incelenmiştir. Sentezlenen maddelerin karakterizasyonu toz X-ışını kırınımı, PXD (Powder X-Ray Diffraction), Rigaku D/Max- 2200/PC diffractometre ile tayin edilmiştir.

4.1.1. $\text{Sr}_{1,4}\text{La}_{0,6}\text{Mn}_{1-x}\text{Co}_x\text{O}_{4-\delta}$ numunesi

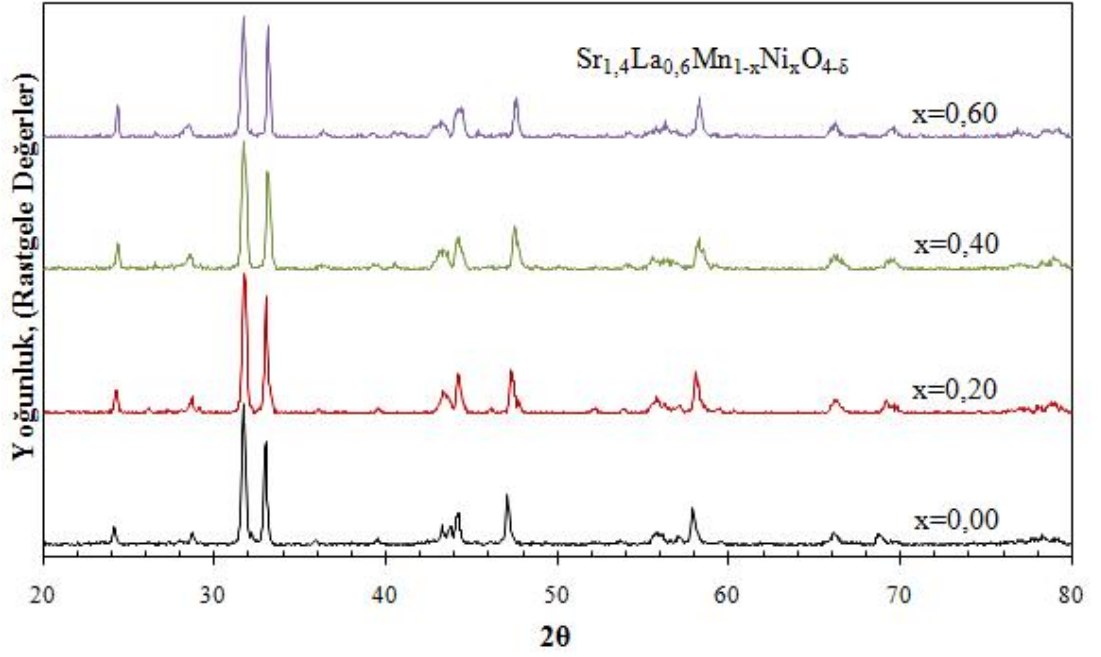
$\text{Sr}_{1,4}\text{La}_{0,6}\text{Mn}_{1-x}\text{Co}_x\text{O}_{4-\delta}$ ($x=0,0-0,2-0,4$ ve $0,6$) numuneleri sentezlenmiş ve yapısal olarak tayin edilmiştir. Şekil 4.1.'de numunelere ait x-ışını kırınım desenleri görülmektedir. Şekilde de görüldüğü gibi hazırlanan numuneler K_2NiF_4 yapısında olup herhangi bir safsızlık görülmemektedir.



Şekil 4.1. $\text{Sr}_{1,4}\text{La}_{0,6}\text{Mn}_{1-x}\text{Co}_x\text{O}_{4-\delta}$ malzemelerine ait toz x-ışını kırınım desenleri

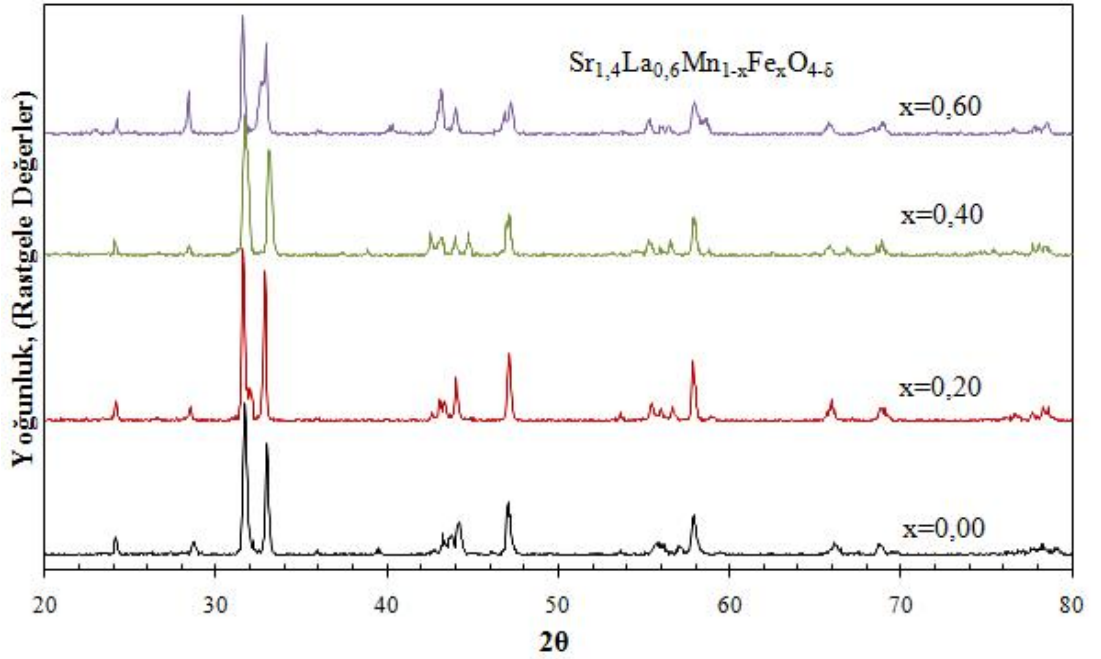
4.1.2. $\text{Sr}_{1,4}\text{La}_{0,6}\text{Mn}_{1-x}\text{Ni}_x\text{O}_{4-\delta}$ numunesi

$\text{Sr}_{1,4}\text{La}_{0,6}\text{Mn}_{1-x}\text{Ni}_x\text{O}_{4-\delta}$ ($x=0,0-0,2-0,4$ ve $0,6$) numuneleri sentezlenmiş ve yapısal olarak tayin edilmiştir. Şekil 4.2.'de numunelere ait X-ışını kırınım desenleri görülmektedir. Şekilde de görüldüğü gibi hazırlanan numuneler K_2NiF_4 yapısında olup herhangi bir safsızlık görülmemektedir.



Şekil 4.2. $Sr_{1,4}La_{0,6}Mn_{1-x}Ni_xO_{4-\delta}$ malzemelerine ait toz X-ışını kırınım desenleri

4.1.3. $Sr_{1,4}La_{0,6}Mn_{1-x}Fe_xO_{4-\delta}$ numunesi



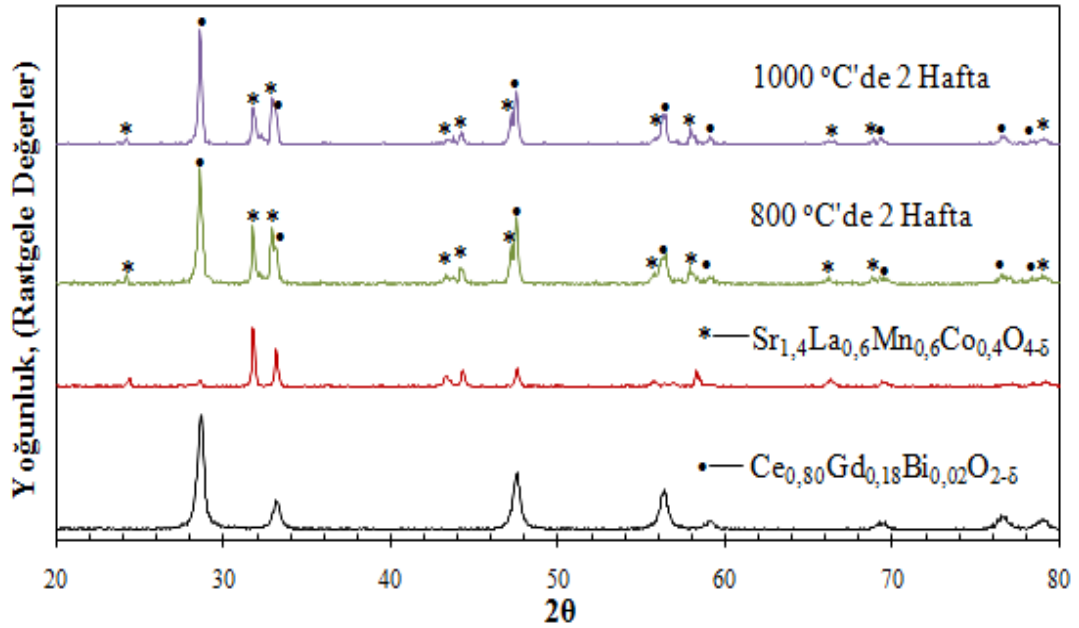
Şekil 4.3. $Sr_{1,4}La_{0,6}Mn_{1-x}Fe_xO_{4-\delta}$ malzemelerine ait toz X-ışını kırınım desenleri

$Sr_{1,4}La_{0,6}Mn_{1-x}Fe_xO_{4-\delta}$ ($x=0,0- 0,2-0,4$ ve $0,6$) numuneleri sentezlenmiş ve yapısal olarak tayin edilmiştir. Şekil 4.3.'de numunelere ait X-ışını kırınım desenleri

görülmektedir. Şekilde de görüldüğü gibi hazırlanan numuneler K_2NiF_4 yapısında olup herhangi bir safsızlık görülmemektedir.

4.1.4. $Ce_{0,8}Gd_{0,18}Bi_{0,02}O_{2-\delta}$ - $Sr_{1,4}La_{0,6}Mn_{0,6}Co_{0,4}O_{4-\delta}$ elektrolit ve elektrotun kimyasal uyum testi

$Ce_{0,8}Gd_{0,18}Bi_{0,02}O_{2-\delta}$ - $Sr_{1,4}La_{0,6}Mn_{0,6}Co_{0,4}O_{4-\delta}$ elektrolit ve elektrotun XRD grafikleri Şekil 4.4.'de görülmektedir. Aynı ayrı desenlerde görüldüğü gibi ilk desen $Ce_{0,8}Gd_{0,18}Bi_{0,02}O_{2-\delta}$ numunesine ikinci desen $Sr_{1,4}La_{0,6}Mn_{0,6}Co_{0,4}O_{4-\delta}$ numunesine diğer desenler de birebir oranında karıştırılıp agat havanda dövülerek toz haline getirilen numunelerin yüksek sıcaklık kimyasal kararlılık testlerine aittir. $800^\circ C$ ve $1000^\circ C$ de iki hafta bekletilerek yapılan kimyasal uyum testleri olumlu sonuç vermiştir.



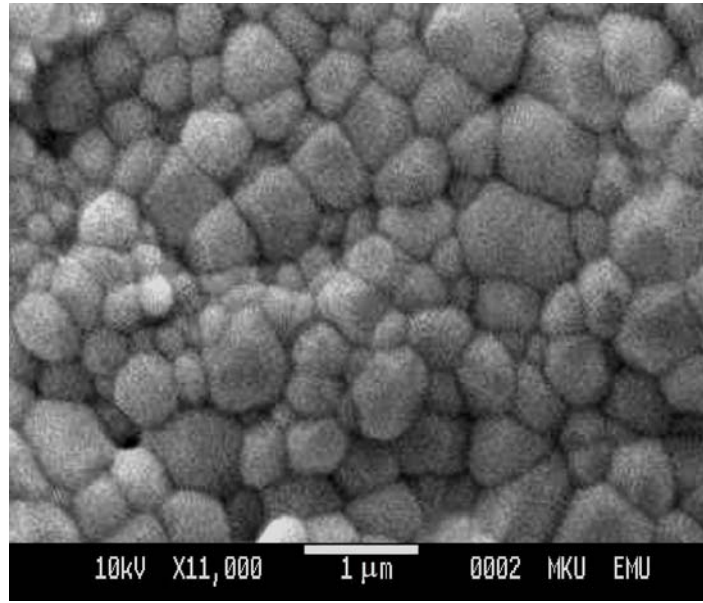
Şekil 4.4. $800^\circ C$ ve $1000^\circ C$ 'te 2 hafta bekletilmiş $Ce_{0,8}Gd_{0,18}Bi_{0,02}O_{2-\delta}$ $Sr_{1,4}La_{0,6}Mn_{0,6}Co_{0,4}O_{4-\delta}$ malzemelerine ait toz X-ışını kırınım desenleri

Bu test ile hem yüksek sıcaklıkta elektrot ve elektrolitin kararlılıklarına hem de elektrot-elektrolit arasında kimyasal uyuma bakılmıştır. Elektrot ve elektrolit dışında herhangi bir pik görülmemiş olması aralarında kimyasal reaksiyonun olmadığına delil olmuştur. Elektrot ve elektrolitte aranan özelliklerden biri olan yapısal kararlılık ve diğer hücre bileşenleri ile kimyasal uyum yapılan test sonucunda ölçülmüş ve

herhangi bir problem ile karşılaşılmamıştır. Katı oksit yakıt pillerinde uyum içerisinde kullanılabilceği gösterilmiştir.

4.2. SEM Analizleri

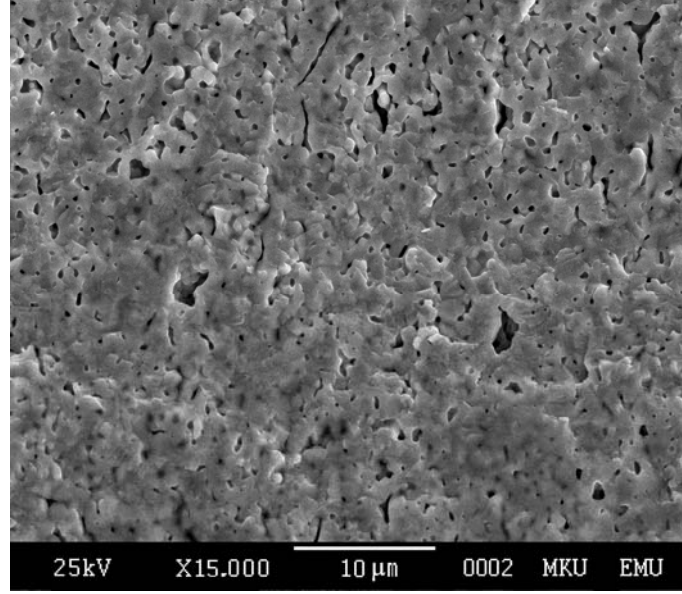
Yüzey analizleri için çalışmalar JEOL JSM-5400 taramalı elektron mikroskobu (SEM) kullanılarak yapılır. SEM ölçümlerinden önce numuneler yüklemelerini azaltmak için altın ile kaplanır.



Şekil 4.5. 1350°C'te yoğunlaştırılmış $Ce_{0,8}Gd_{0,18}Bi_{0,02}O_{2-\delta}$ yüzeyinin taramalı elektron mikrosrafığı (SEM)

1350°C'ta yoğunlaştırılmış $Ce_{0,8}Gd_{0,18}Bi_{0,02}O_{2-\delta}$ numunesine ait SEM sonucu göstermektedir, şekilden görüleceği üzere bu numune oldukça küçük ve uniform parçacık boyutlarına sahiptir ($\sim 1 \mu$).

1375°C de yoğunlaştırılmış $Sr_{1,4}La_{0,6}Mn_{0,6}Co_{0,4}O_{4-\delta}$ numunesine ait SEM görüntüsü Şekil 4.6.'da görülmektedir. Elektrotların elektrolitten daha gözenekli bir yapıya sahip olması elektrotlarda aranan bir özelliktir. Görüntüde gözenekli yapı dikkati çekmektedir. Görüntünün bulanık olması SEM çekim esnasındaki hatalardan kaynaklanmaktadır.



Şekil 4.6. 1375°C'te yoğunlaştırılmış $\text{Sr}_{1,4}\text{La}_{0,6}\text{Mn}_{0,6}\text{Co}_{0,4}\text{O}_{4-\delta}$ yüzeyinin taramalı elektron mikrografı (SEM)

4.3. İmpedans Analizleri

İmpedans Spektroskopisi toplam iletkenlik ve düşük sıcaklıklarda (500°C'ın altında) iç (bulk) ve sınır (grain boundary) iletkenliklerinin toplam iletkenliğe katkısını bulmada oldukça etkili bir alettir. Numunelerin elektriksel iletkenlikleri sinterlenmiş seramik peletler ile yapılır. Alfa gümüş pasta peletin her iki yönüne de sürülür. Daha sonra numune kurutularak 500°C'ta 1 saat tutulur. Platin yerine gümüş elektrod seçilmesinin nedeni yüksek sıcaklıklarda gümüşün platine göre daha düşük dirence sahip oluşudur. AC impedans ölçümleri 2-prob metodu ile özel olarak dizayn edilmiş kuartz numune kabında gerçekleştirilir.

Akım toplayıcı olarak platin tel kullanılır ve her numuneden üç farklı pelet üzerinde ölçümler gerçekleştirilir. Solartron 1260 A Frequency Response Analyzer 0,01 Hz-10 MHz frekans aralığında 25°C -700°C arasında her 25°C'ta bir ölçüm olmak suretiyle kullanılır ve ölçüm alınan her sıcaklıkta termal dengenin oluşması için 30 dakika beklenir. Veriler SMART program ile toplanır ve daha sonra uygun eş devrelere Zview programı ile aktarılır.

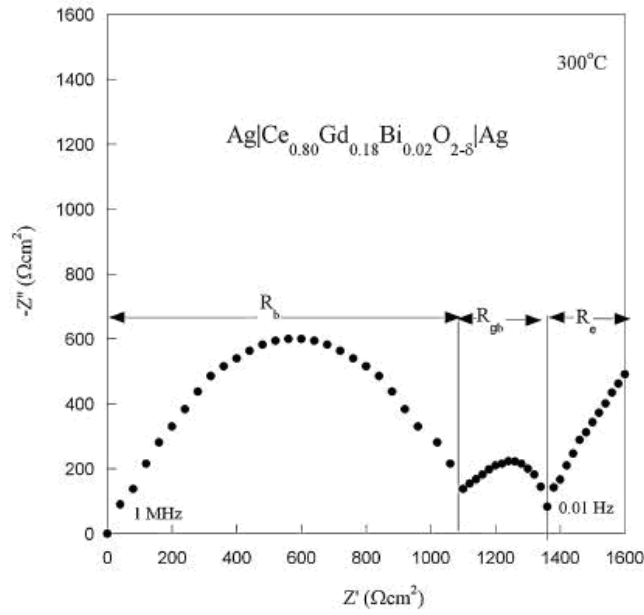
Toplam rezistans:

$$R_t = R_b + R_{gb} \quad (4.1)$$

Burada R_t , R_b ve R_{gb} , sırasıyla toplam, bulk ve garin boundary rezistanslarıdır. Daha sonra iletkenlik:

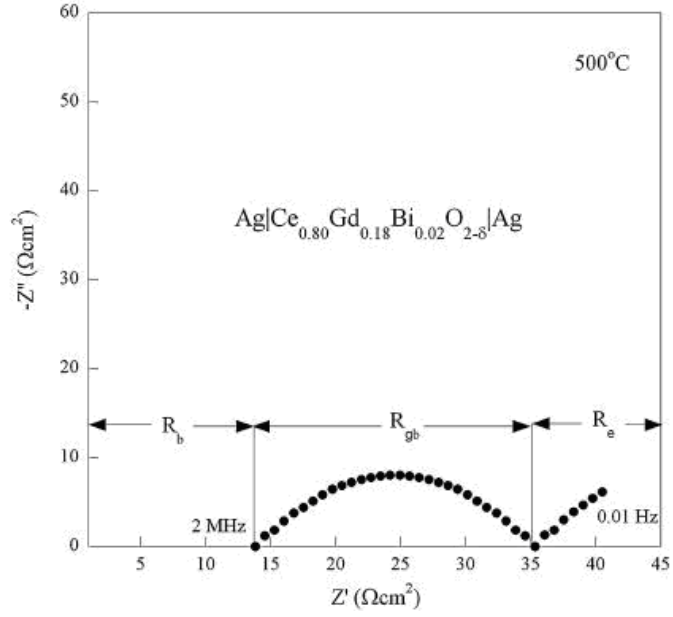
$$\sigma = \frac{L}{SR} \quad (4.2)$$

ile hesaplanır. Burada L ve S sırasıyla pellet kalınlığı ve elektrot yüzey alanıdır.

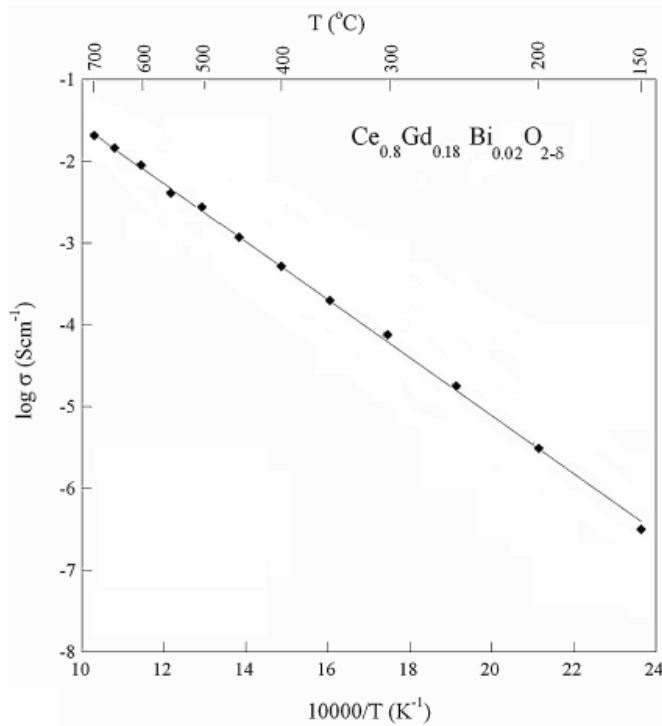


Şekil 4.7. 300°C'de Ag | Ce_{0,8}Gd_{0,18}Bi_{0,02}O_{2-δ} | Ag hücresine ait AC impedans grafiği (Dikmen et al., 2010)

300°C ve 500°C Ce_{0,8}Gd_{0,18}Bi_{0,02}O_{2-δ} numunesi için impedans grafikleri şekillerde görülmektedir. Şekil 4.7. ve Şekil 4.8.'de de görüldüğü gibi yarı daire görünüşleri ve gerçek eksen (Z') kesişimleri ölçüm sıcaklığı ile değişim göstermektedir. Bulk iletkenliğine ait yarı daire 300°C'de kolayca görülmektedir. Yüksek sıcaklıklarda bulk yarı dairesi ortadan kalkar (~500°C). Saf seryum oksit oldukça zayıf iyonik iletkenliğe sahiptir ($\sigma_{700^\circ\text{C}} \sim 10^{-4} \text{Scm}^{-1}$).



Şekil 4.8. 500°C’de Ag | Ce_{0,8}Gd_{0,18}Bi_{0,02}O_{2-δ} | Ag hücresine ait AC impedans grafiği (Dikmen et al., 2010)



Şekil 4.9. Ce_{0,8}Gd_{0,18}Bi_{0,02}O_{2-δ} numunesinin sıcaklığa bağlı iletkenlik değişimi (Dikmen et al., 2010)

Ce_{0,8}Gd_{0,18}Bi_{0,02}O_{2-δ} numunesi kompozisyonu ile birlikte katı elektrolitin iyonik iletkenliği ortam oksijen boşluklarından dolayı artmıştır ve Şekil 4.9.’da Arrhenius eğrisi olarak gösterilmiştir (Dikmen et al., 2010).

5.SONUÇ

Sentezlenen numunelerin XRD sonuçları ayrı ayrı seriler halinde grafiklendirilerek Şekil 4.1., Şekil 4.2. ve Şekil 4.3. da verilmiştir. XRD analizleri ile her bir seri sistematik olarak incelenmiştir. Uygulanan XRD analizleri elde edilen ürünlerin istenilen fazda elde edilip edilmediğin anlaşılmasında yardımcı olmuştur.

Şekil 4.4.'de elektrot-elektrolit kimyasal uyum testi verilmiş ve elektrot-elektrolit uyumluluğu incelenmiştir.

Sentezlenen numunelerde herhangi bir safsızlık görülmemekle birlikte elektrotun aranan özellikleri bünyesinde bulundurduğu saptanmıştır. Gözenekli bir yapıya sahip olan elektrot, yüksek sıcaklıkta uzun süre kararlılık göstermiş ve katı oksit yakıt pilleri için uygun olduğu gösterilmiştir.

Katı faz reaksiyon yöntemiyle sentezlene elektrot ve hidrotermal yöntem ile sentezlenen elektrolit tanecik boyutları ve yapı içerisinde ki dağılımları SEM analizleri ile incelenmişti. Şekil 4.5.'te $Ce_{0,8}Gd_{0,18}Bi_{0,02}O_{2-\delta}$ numunesinin görüntüsü ile Şekil 4.6.'da sunulan $Sr_{1,4}La_{0,6}Mn_{0,6}Co_{0,4}O_{4-\delta}$ numunesinin görüntüsü karşılaştırıldığında elektrota ait numune görüntüsü daha gözenekli bir yapıya sahiptir. Elektrotlar için istenen bir özellik olan gözenekli yapı elde edilmiştir.

Impedans ölçüm cihazı ile gerçekleştirilen iletkenlik ölçümleri 150°C, 200°C, 250°C, 300°C, 350°C, 400°C, 450°C, 500°C, 550°C, 600°C, 650°C ve 700°C sıcaklıkları için gerçekleştirilmiştir. $Ce_{0,8}Gd_{0,18}Bi_{0,02}O_{2-\delta}$ numunesi kompozisyonu ile birlikte katı elektrolitin iyonik iletkenliği ortam oksijen boşluklarından dolayı artmıştır ve Şekil 4.9.'da Arrhenius eğrisi olarak gösterilmiştir (Dikmen et al., 2010).

Elde edilen bu veriler ışığında hidrotermal olarak sentezlenen $Ce_{0,8}Gd_{0,18}Bi_{0,02}O_{2-\delta}$ numunesinin katı oksit yakıt pilleri için ideal elektrolit, $Sr_{1,4}La_{0,6}Mn_{1-x}Fe_xO_{4-\delta}$ (x=0,0- 0,2-0,4 ve 0,6) serilerine ait elektrotların katı oksit yakıt pilleri için iyi bir elektrot olabileceğini söyleyebiliriz.

6.KAYNAKLAR

- Akbulut, B., 2007. Yakıt Pili Hibrit Santralleri. Fırat Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü, Yüksek Lisans Tezi, 111s, Elazığ.
- Altıntaş, B., ve Donatan, S., 2003. Membran Teknolojisi ve Katkılı Membranlar (2). Kimya Teknolojileri Dergisi. Bilişim Yayıncılık, Fuarçılık ve Tanıtım Hizmetleri A.Ş. Sayı: 29, İstanbul.
- Aydın, M., 2007. PEM Yakıt Pilinin İki Boyutlu Modellemesi. İstanbul Teknik Üniversitesi Enerji Enstitüsü, Yüksek Lisans Tezi, 82s, İstanbul.
- Beyribey, D. B., 2006. H₂-O₂ Yakıt Pillerinde PtRu/C ve PtIr/C Kompozit Elektrotların Sentezi. Yıldız Teknik Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü, Yüksek Lisans Tezi, 94s, İstanbul.
- Bıyıkoglu, A., 2003. Yakıt Hücrelerinin Tarihsel Gelişimi, Çalışma Prensipleri ve Bugünkü Durumu, Gazi Üniversitesi Fen Bilimleri Dergisi, 16(3), 523-542.
- Bochkov, D.M., Kharton, V.V., Kovalevsky, A.V., Viskup, A.P., Naumovich, E.N., 1999. Oxygen permeability of La Cu(Co)O_{4+δ} solid solutions. Solid State Ionics, 120, 281-288.
- Canales-Vázquez, J., Ruiz-Morales, J.C., Marrero-López, D., Peña-Martínez, J., Núñez, P., Gómez-Romero, P., 2007. Fe-substituted (La,Sr)TiO₃ as potential electrodes for symmetrical fuel cells (SFCs). Journal of Powder Sources, 171, 552-557.
- Çamcı, Ö., 2005. Yakıt Pilinin Motorlu Taşıtlarda Uygulanması. Yıldız Teknik Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü, Yüksek Lisans Tezi, 83s, İstanbul.
- Çetinkaya, M. ve Karaosmanoğlu, F., 2002. Yakıt Pilleri ve Uygulamaları. 3e Electrotech Dergisi. Bilişim Yayıncılık, Fuarçılık ve Tanıtım Hizmetleri A.Ş. Sayı: 100, İstanbul.
- Çetinkaya M. ve Karaosmanoğlu, F., 2005. Yakıt Pilleri, Makina Mühendisleri Odası Bülteni. 98s. Ankara
- Dikmen, S., Aslanbay, H., Dikmen, E. ve Şahin, O.; 2010. Hydrothermal preparation and electrochemical properties of Gd³⁺ and Bi³⁺, Sm³⁺, La³⁺, and Nd³⁺ codoped ceria-based electrolytes for intermediate temperature-solid oxide fuel cell. Journal of Power Sources, 195- 9, 2488-2495.
- Fergus, J. W., 2006. Electrolytes for solid oxide fuel cells. Journal of Power Sources, 162, 30-40.

- Gong, W., Gopalan, S, ve Pal U. B., 2006. Performance of intermediate temperature (600-800°C) solid oxide fuel cell based on Sr and Mg doped lanthanum-gallate electrolyte. *Journal of Power Sources*, 160, 305-315.
- Hacker, V., Wallnöfer, E., Baumgartner, W., Schaffer, T., Besenhard, J.O., Schröttner, H. Ve Schmied, M., 2005. Carbon Nanofiber-Based Active Layers for Fuel Cell Cathodes-Preparation and Characterization. *Electrochemistry Communications*, 7,377-382.
- Hoogers, G., 2002. *Fuel Cell Technology Handbook*. Trier University of Applied Sciences, CRC Press LLC, 0-8493-0877-1, 360,Germany.
- Jin, C., Liu, J., Zhang, Y., Sui, J., Guo, W., 2008. Characterization and electrochemical performances of $Ba_{2-x}Sr_xFeO_{4+\delta}$ as a novel cathode material for intermediate-temperature solid oxide fuel cells *Journal of Powder Sources*, 182, 482-488.
- Kellegöz, M., ve Özkan, İ., 2004. PEM Yakıt Hücrelerinin; Üretim Aşamaları, Performansa Etkileri ve Karşılaşılabilecek Zorluklar İle Diğer Yakıt Hücrelerine Nazaran Avantajları ve Dezavantajları. V. Ulusal Temiz Enerji Sempozyumu Bildiri Kitabı. Su Vakfı Yayınları, Cilt:2, 809–818, İstanbul.
- Kharton, V.V., Viskup, A.P., Kovalevsky, A.V., Naumovich, E.N., Marques, F.M.B., 2001. Ionic transport in oxygen-hyperstoichiometric phases with K_2NiF_4 - type structure. *Solid State Ionics*, 143, 337–353.
- Larminie, J., and Dicks, A., 2003. *Fuel Cell Systems Explained Second Edition*.Oxford Brookes Universty, John Wiley & Sons, 978-1-59124-807-1, 418, İngiltere.
- Li, Q., Fan, Y., Zhao, H., Sun, L., Huo, L., 2007. Preparation and electrochemical properties of a $Sm_{2-x}Sr_xNiO_4$ cathode for an IT-SOFC. *Journal of Powder Sources*, 167, 64–168.
- Li, S., Lü, Z., Wei, B., Huang, X., Miao, J., Cao, G., Zhu, R., Su, W., 2006. A study of $(Ba_{0,5}Sr_{0,5})_{1-x}Sm_xCo_{0,8}Fe_{0,2}O_{3-\delta}$ as a cathode material for IT-SOFCs. *Journal of Alloys and Compounds*, 426, 408–414.
- Liping, S., Lihua, H., Hui, Z., Qiang, L., Pijolat, C., 2008.La substituted Sr_2MnO_4 as a possible cathode material in SOFC. *Journal of Powder Sources* 179, 96–100.
- Mazo, G.N., Savvin, S.N., Petrykin, V.V., Koudriashov, I.A., 2001. Oxygen mobility in layered cuprates $La_{2-x}Sr_xCuO_{4-\delta}$. *Solid State Ionics*, 141–142, 313–319.

- Mutlu, A., 2007. Yakıt Hücresi Sistemleri İçin Katı Oksit Elektrolitlerinin Hazırlanması. İstanbul Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü, Yüksek Lisans Tezi, 80s, İstanbul.
- Özdemir, E., 2002. Yakıt Pili İle Elektrik Üretimi. 3e Electrotech Dergisi Bilişim Yayıncılık, Fuarçılık ve Tanıtım Hizmetleri A.Ş. Sayı: 94, İstanbul.
- Peña-Martínez, J., Marrero-López, D., Ruiz-Morales, J.C., Buegler, B.E., Núñez, P., Gauckler, L.J., 2006. SOFC test using $\text{Ba}_{0,5}\text{Sr}_{0,5}\text{Co}_{0,8}\text{Fe}_{0,2}\text{O}_{3-\delta}$ as cathode on $\text{La}_{0,9}\text{Sr}_{0,1}\text{Ga}_{0,8}\text{Mg}_{0,2}\text{O}_{2,85}$ electrolyte. *Solid State Ionics*, 177, 2143–2147.
- Sun, L., Li, Q., Zhao, H., Huo, L., Grenier, J., 2008. Preparation and electrochemical properties of Sr-doped Nd_2NiO_4 cathode materials for intermediate-temperature solid oxide fuel cells. *Journal of Power Sources*, 183, 43-48.
- Wan, Y., Nie, H., Wang, S., Wen, T., Guth, U., Valshook, V., 2006. $\text{A}_{2-a}\text{A}'_a\text{BO}_4$ -type oxides as cathode materials for IT-SOFCs (A=Pr, Sm; A'=Sr; B=Fe, Co), *Materials Letters*, 60, 1174–1178.
- Wei, B., Lü, Z., Huang, X., Liu, M., Lia, N., Su, W., 2008. Synthesis, electrical and electrochemical properties of $\text{Ba}_{0,5}\text{Sr}_{0,5}\text{Zn}_{0,2}\text{Fe}_{0,8}\text{O}_{3-\delta}$ perovskite oxide for IT-SOFC cathode. *Journal of Power Sources*, 176, 1-8.
- Wikipedia, 2001. Wikimedia Commons. <http://upload.wikimedia.org/wikipedia/commons/0/0c/Fluorite-unit-cell-3D.png>. Erişim Tarihi: 12.02.2010.
- Yıldızbilir, F., 2006. Yakıt Pili İle Elektrik Enerjisi Üretimi. Fırat Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü, Yüksek Lisans Tezi, 46s, Elazığ.
- Yoo, K.B., Choi, G.M., 2007. Cathodic overpotential of $\text{La}_{0,6}\text{Sr}_{0,4}\text{CoO}_{3-\delta}$ and its composite cathodes LSC–LSGM on LaGaO_3 -based fuel cell. *Journal of the European Ceramic Society*, 27, 4211–4214.
- Zhao, F., Wang, X., Wang, Z., Peng, R., Xia, C., 2008. K_2NiF_4 type $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{Co}_{0,8}\text{Ni}_{0,2}\text{O}_{4+\delta}$ as the cathodes for solid oxide fuel cells *Solid State Ionics*, 179, 1450–1453.
- Zhu, C., Liu, X., Xu, D., Yan, D., Wang, D., Su, W., 2008. Preparation and performance of $\text{Pr}_{0,7}\text{Sr}_{0,3}\text{Co}_{1-y}\text{Cu}_y\text{O}_{3-\delta}$ as cathode material of IT-SOFCs. *Solid State Ionics*, 179, 1470–1473.

ÖZGEÇMİŞ

Adı Soyadı: Hasan ASLANBAY

Doğum Yeri ve Yılı: İstanbul, 01.06.1984

Medeni Hali: Bekâr

Yabancı Dili: İngilizce



Eğitim Durumu (Kurum ve Yıl)

Lise: Bayrampaşa Tuna Lisesi (1999 - 2002)

Lisans: Pamukkale Üniversitesi (2003 - 2007)

Yüksek Lisans: Süleyman Demirel Üniversitesi (2007 - 2010)

Çalıştığı Kurum/Kurumlar ve Yıl:

Türk Hava Kuvvetleri (2009 - Devam Ediyor.)

SCI, SSCI VE AHCI TARAFINDAN TARANAN DERGİLERDE YAYIMLANAN
TEKNİK NOT, EDİTÖRE MEKTUP, TARTIŞMA, VAKA TAKDİMİ VE ÖZET
TÜRÜNDEN YAYINLAR DIŞINDAKİ MAKALE

1- Dikmen, S.,Aslanbay, H.,Dikmen, E., Şahin, O.; 2010. Hydrothermal preparation and electrochemical properties of Gd^{3+} and Bi^{3+} , Sm^{3+} , La^{3+} , and Nd^{3+} codoped ceria-based electrolytes for intermediate temperature-solid oxide fuel cell, Journal of Power Sources,195, 9, 2488-2495.

ULUSAL TOPLANTIDA SUNULARAK TAM METİN OLARAK
YAYIMLANAN BİLDİRİ:

1- Dikmen, S., Aslanbay, H., Dikmen, E., Şahin, O., Hidrotermal olarak hazırlanmış gadolinyum doplanmış serianın elektrokimyasal özellikleri üzerine neodimiyum eş-doplamanın etkisi, I.Ulusal Metal,Yarıiletken ve Oksit Materyallerin Üretiminde Kullanılan Sistemler ve Analiz Teknikleri Kongresi, s20, Eskişehir, 2009.

ULUSLARARASI TOPLANTIDA SUNULARAK ÖZET METİN OLARAK
YAYIMLANAN BİLDİRİ:

1- Karakuş, Ö.Ö., Mutlu, L., Binici, S., Aslanbay, H. ve Deligöz, H., “Synthesis of Three New *mono*-Oxime Derivatives of Azocalix[4]arene and Some Metal Complexes”, Pakistan-Türkiye 1. Kimya Günleri, p.37, PP-19, Konya, 2007.

2- Karakuş, Ö.Ö., Aslanbay, H. ve Deligöz, H., “Synthesis and Characterization of *Tetakis*- Derivatives of Bisphenol-A With 4-Phenylazoaniline and 5-(4-Aminophenylazo)-25,26,27-Tribenzoyloxy-28-hydroxycalix[4]arene”, Pakistan-Türkiye 1. Kimya Günleri, p.36 , PP-18, Konya, 2007.