

การประชุมวิชาการเครือข่ายวิศวกรรมเครื่องกลแห่งประเทศไทย ครั้งที่ 25 19-21 ตุลาคม 2554 จังหวัดกระบี่

# การศึกษาการผนึกด้วยแรงกดด้วยคอนดักทีฟซิลเวอร์เพนท์และไมก้าสำหรับเซลล์ เชื้อเพลิงออกไซด์ของแข็งแบบแผ่น Study of Compressive Seals Based on Conductive Silver Paint and Mica for a Planar Solid Oxide Fuel Cell

<u>นิตินัย ปัญญ์บุศยกุล</u><sup>1</sup>\*, กฤษฎา บุญศิริ<sup>1</sup>, จารุวัตร เจริญสุข<sup>2</sup> และ สุมิตรา จรสโรจน์กุล<sup>3</sup>

<sup>1</sup>ภาควิชาวิศวกรรมเครื่องกล คณะวิศวกรรมศาสตร์ มหาวิทยาลัยเทคโนโลยีมหานคร จ.กรุงเทพฯ 10530 <sup>2</sup> ภาควิชาวิศวกรรมเครื่องกล คณะวิศวกรรมศาสตร์ สถาบันเทคโนโลยีพระจอมเกล้าเจ้าคุณทหารลาดกระบัง <sup>3</sup> ศูนย์เทคโนโลยีโลหะและวัสดุแห่งชาติ อุทยานวิทยาศาสตร์ประเทศไทย จ.ปทุมธานี 12120 \* ติดต่อ: E-mail: nitinai\_oak1@hotmail.com

#### บทคัดย่อ

การวิจัยนี้เกี่ยวข้องกับการผนึกด้วยแรงกดโดยใช้คอนดักซ์ทรีพเมทัลเพนท์ (Conductive metal paint) ร่วมกับวัสดุผนึกไมก้า (mica) ภายใต้เงื่อนไขการทำงานของเซลล์เชื้อเพลิงออกไซด์ของแข็งแบบแผ่น (SOFC) ปัญหาที่เป็นอุปสรรค์ต่อการพัฒนาเซลล์เชื้อเพลิงออกไซด์ของแข็งแบบแผ่นเกิดขึ้นจากปัญหาของการรั่วของก๊าซที่ จุดเชื่อมต่อระหว่างอินเตอร์คอนเน็กเตอร์กับหอเซลล์ และแต่ละเซลล์ บทความนี้ได้มีการศึกษาอัตราการรั่วของ ก๊าซที่ผ่านวัสดุผนึกที่มีการจัดเรียงแบบซ้อนกัน (Sandwich) ระหว่างวัสดุผนึกไมก้า และคอนดักซ์ทรีพซิลเวอร์ เพนท์ (Conductive silver paint) การทดลองจะทำที่อุณหภูมิห้อง จนถึง 800°C (อุณหภูมิทำงานของ SOFC) และ การวัดการรั่วถูกวัดด้วยมาโนมิเตอร์ ตามมาตรฐานของ ASTM F 37-89 โดยอินเตอร์คอนเน็กเตอร์ที่ใช้ในการ ทดลองทำจากเหล็กกล้าไร้สนิม 316 (Stainless Steel 316) แรงกดที่กระทำกับอินเตอร์คอนเน็กเตอร์ที่ใช้ในการ ทดลองทำจากเหล็กกล้าไร้สนิม 316 (Stainless Steel 316) แรงกดที่กระทำกับอินเตอร์คอนเน็กเตอร์ที่ใช้ในการ ทดลองทำจากเหล็กกล้าไร้สนิม 316 (Stainless Steel 316) แรงกดที่กระทำกับอินเตอร์คอนเน็กเตอร์อยู่ที่ 500-2500 N ร่องป้องกันการรั่วเป็นรูปสี่เหลี่ยม ขนาดความกว้าง 2, 4, 6 และ 8 mm ขนาดความลึก 2 mm จากผลการ ทดลองพบว่าอัตราการรั่วน้อยกว่า 17 cm<sup>3</sup>/min ภายใต้แรงกดที่ 2500 N และอุณหภูมิจากอุณหภูมิห้อง จนถึง 800°C โดยพบว่าพฤติกรรมของวัสดุผนึกในช่วง elastic จะส่งผลกระทบต่อการผนึกของวัสดุผนึก ขณะที่โครงสร้าง จุลภาคของวัสดุผนึกภายใต้แรงกดจะถูกทำการศึกษาด้วย SEM (Scanning Electron Microscope) ค**ำหลัก**: การผนึกด้วยแรงกด, คอนดักซ์ทรีพซิลเวอร์เพนท์, เซลล์เชื้อเพลิงออกไซด์ของแข็ง, ไมก้า, อัตราการรั่ว

#### Abstract

Compressive seals based on a conductive metal paint and mica composites have been investigated under operating conditions of a planar solid oxide fuel cell (SOFC). A problem of gas leakage at the connecting point between the interconnector of the cell stack and each single cell is one of major issues in developing an SOFC. This paper has studied the leak rate by using a sandwich arrangement of mica paper and conductive silver paint applying onto the interconnector joint. This experiment was carried



out at ambient temperature and the leak rate was measured using ASTM F37-89 guideline. The interconnector used in this experiment was made of 316 stainless steel. The normalized compressive load was applied up to 2500 N. The square groove of 2, 4, 6, and 8 mm. wide and 2 mm deep was used to prevent any gas leakage of the seal. The leak rate of this seal was shown to be as low as 17 cm<sup>3</sup>/min under applying normalized compressive load of 2500 N and ambient temperature up to 800°C. The leak rate is also influenced by the elastic response of the seal. The microstructure of this compressive seal was examined using a scanning electron microscope.

Keywords: Compressive seal, Conductive silver paint, Gas leakage, Mica, SOFC

#### 1. คำนำ

การพัฒนาเซลล์เซื้อเพลิงออกไซด์ของแข็งแบบ แผ่น (Solid Oxide Fuel cell, SOFC) มีองค์ประกอบ หลัก คือ กระบวนการผลิตเชื้อเพลิง (Fuel processing), การควบคุมแปลงผันพลังงานไฟฟ้า (Power electronics), สมรรถนะของระบบและหอ เซลล์ รวมทั้งแบบจำลองและวัสดุ (Stack/Systems performance & Modeling), สำหรับเซลล์และหอเซลล์ รวมทั้งกรรมวิธีการผลิต (Cell/Stack Materials & Manufacturing) [1] ดังแสดงในรูปที่ 1 งานวิจัยนี้ มุ่งเน้นที่การศึกษาวัสดุผนึกเซลล์เชื้อเพลิงออกไซด์ ของแข็งเพื่อป้องกันการรั่วระหว่างจุดเชื่อมต่อของ อินเตอร์คอนเน็กเตอร์กับเซลล์ การรั่วของเชื้อเพลิงจะ ทำให้ประสิทธิภาพลดลง [1-3,7-9,15] ดังนั้นการ ป้องกันการจึงเป็นปัจจัยที่สำคัญในการพัฒนาหอเซลล์

ปัจจุบันมีนักวิจัยจำนวนมากให้ความสนใจใน การศึกษาและพัฒนาวัสดุผนึกให้มีคุณสมบัติที่ เหมาะสมกับสภาวะการทำงานของ SOFC เพื่อ ผลักดัน SOFC ให้ประสบความสำเร็จและสามารถ นำไปใช้งานได้จริงในเชิงพาณิชย์ จากงานวิจัยที่ผ่าน มาพบว่าวัสดุที่มีคุณสมบัติเป็น rigid body จำพวก แก้วกับเซรามิค [4-9] สามารถป้องกันการรั่วได้ดี แต่มี ความยุ่งยากในการหาวัสดุผนึกที่มีความเข้ากันได้ของ สัมประสิทธิ์การขยายตัวเชิงความร้อนระหว่างวัสดุ ผนึกกับเซลล์ และอินเตอร์คอนเน็กเตอร์ ขณะเดียวกัน คณะวิจัย [10,11] ได้ออกแบบเซลล์และหอเซลล์ให้มี รูปแบบเซลล์แยกส่วนจากกันและแต่ละเซลล์ต่อกัน แบบอนุกรม (Segmented-Cell-in-Series) ทำให้

สามารถนำวัสดุผนึกชนิดโลหะที่มีความยืดหยุ่นสูงมา ประยุกต์ใช้กับการป้องกันการรั่วของ SOFC เพื่อลด ผลกระทบจากสัมประสิทธิ์การขยายตัวเชิงความร้อน โดยวัสดุที่เลือกใช้คือเงิน จากงานวิจัยของ Stevenson พบว่าเงินมีความเสถียรภายใต้การสัมผัสกับ [12] อากาศที่ 700 °C ขณะที่ Yeong-Shyung Chou และ Jeffry W. Stevenson [13, 14] มีการศึกษาพฤติกรรม ของการรั่วโดยใช้เงินร่วมกับไมก้า โดยพบว่าสามารถ ลดอัตราการรั่วลงได้ 60% เมื่อเทียบกับไมก้า ที่ หลังจากผ่านไป 18 วัฏจักรความร้อน 800°C นอกจากนั้นยังมีการศึกษาศักยภาพของวัสดุเงิน (99.99%) ในการป้องกันการรั่วสำหรับ SOFC ซึ่ง พบว่ามีศักยภาพในการป้องกันการรั่วที่ดี โดยอัตรา การรั่วต่ำสุดอยู่ที่ 0.75 cm³/min (800°C, 2500N, ความกว้าง 6 mm, ร่องผนึกสี่เหลี่ยม) [15] แต่ เนื่องจากเงินเป็นวัสดุที่นำไฟฟ้า เพราะฉะนั้นจึง ้จำเป็นต้องหาวัสดุที่มีคุณสมบัติเป็นฉนวนไฟฟ้าเช่น ไมก้าเพื่อประกอบเป็นวัสดุผสม (Hybrid material) แต่ ไมก้ามีลักษณะโครงสร้างเป็นแผ่นเรียงทับซ้อนกันจึง ทำให้อัตราการรั่วสูงกว่าวัสดุเงิน โดยมีอัตราการรั่ว น้อยที่สุดอยู่ที่ 67 cm³/min (800°C, 2500N, ความ กว้าง 6 mm, ร่องผนึกสี่เหลี่ยม) [1] ดังนั้นผู้วิจัยจึงมี แนวคิดที่จะนำคอนดักช์ทรีพเมทัลเพนท์ (Conductive metal paint) ที่มีส่วนผสมหลักคือวัสดุเงิน และมีข้อดีที่ มีสถานะเป็นของเหลวทำให้สามารถแทรกเข้าไปใน แผ่นของวัสดุไมก้าเพื่อลดปัญหาของการรั่วพร้อมทั้ง ยังคงคุณสมบัติของการเป็นฉนวนไฟฟ้าอยู่



งานวิจัยนี้จึงมุ่งเน้นที่จะศึกษาการป้องกันการ รั่วที่จุดเชื่อมต่ออินเตอร์คอนเน็กเตอร์ของ SOFC โดย ใช้วัสดุผนึกที่มีการจัดเรียงแบบซ้อนกัน (Sandwich) ระหว่างไมก้ากับคอนดักซ์ทรีพซิลเวอร์เพนท์ (Conductive silver paint) ที่อุณหภูมิ 30-800 °C ภายใต้แรงกดแบบ uniform load 500-2500 N กระทำ กับอินเตอร์คอนเน็กเตอร์ ร่องป้องกันการรั่วเป็นรูป สี่เหลี่ยมขนาดความกว้าง 2, 4, 6 และ 8 mm ลึก 2 mm ตามลำดับ



รูปที่ 1 องค์ประกอบการพัฒนาเซลล์เชื้อเพลิงออกไซด์ ของแข็งแบบแผ่น

#### **2**. การทดลอง

อุปกรณ์อินเตอร์คอนเน็กเตอร์ และเซลล์เทียม ดังแสดงในรูปที่ 2 ที่ประกอบสมบูรณ์แล้วจะถูกวางใน เตาอบ โดยมีการส่งผ่านแรงที่ 500-2500 N การ ้ควบคุมอุณหภูมิจะเพิ่มขึ้นด้วยอัตรา 1°C/min ซึ่งเป็น เงื่อนไขทางด้านการขยายตัวเชิงความร้อนของวัสดุที่ เหมาะสมต่อรูปร่างของวัสดุ ซึ่งจะไม่ทำให้วัสดุเกิด การแตกเสียหายจากความร้อน [7-10] ร่องผนึกเป็น รูปสี่เหลี่ยมขนาดความกว้าง 2, 4, 6 และ 8 mm ลึก 2 mm อัตราการรั่วถูกวัดที่อุณหภูมิ 30-800°C โดยคง อุณหภูมิไว้ 30 นาที ในขณะเดียวกันจะทำการป้อน ก๊าซที่ใช้ทดแทนก๊าซไฮโดรเจน (Nitrogen gas, 2 เข้าไปยังชุดอินเตอร์คอนเน็กเตอร์ และเซลล์ bar) เทียม ขณะนั้นวาล์วจะต้องถูกปิดลง และยอมให้ก๊าซ ในโตรเจนไหลผ่านไปยังมานอมิเตอร์ที่ใช้สำหรับวัด ้อัตราการรั่วตามมาตรฐาน ASTM F 37-89 ดังรูปที่ 2 โดยจัดเรียงคอนดักซ์ทรีพเมทัลเพนท์ ร่วมกับวัสดุ ผนึกไมก้า (8 ชั้น) แบบซ้อนกัน



3. ผลการทดลองและการอภิปราย

#### 3.1 โครงสร้างจุลภาค

ภาพถ่ายโครงสร้างจุลภาคของหน้าตัดและ พื้นผิววัสดุผนึกระหว่างไมก้ากับคอนดักช์ทรีพซิลเวอร์ เพนท์ หลังการใช้งานที่ 800 °C ภายใต้แรงกด ดัง แสดงในรูปที่ 3-4 จากผลการทดลองจะสังเกตได้ว่า เห็นว่าคอนดักช์ทรีพซิลเวอร์เพนท์สามารถแทรกเข้า ไประหว่างชั้นของวัสดุไมก้าได้ดังแสดงในรูปที่ 3 การ ตรวจสอบรูพรุน และตำหนิภายในโครงสร้างจุลภาค ของพื้นผิวของวัสดุผนึก ที่กำลังขยายต่างๆ (200→5 µm) พบว่าโครงสร้างพื้นผิวของคอนดักช์ทรีพซิลเวอร์ เพนท์ มีปริมาณรูพรุนขนาดประมาณ 0.5 µm กระจายเต็มพื้นที่ผิว







รูปที่ 4 โครงสร้างจุลภาคของพื้นผิววัสดุผนึกไมก้า ระหว่างกับคอนดักช์ทรีพซิลเวอร์เพนท์

## 3.2 ผลกระทบของอุณหภูมิที่แรงกด 500–2500 N

ความสัมพันธ์ระหว่างอัตราการรั่วกับแรงด้วย การปรับเปลี่ยนอุณหภูมิ ด้วยวัสดุผนึกไมก้า (Mica) และวัสดุ Conductive silver plaint ภายใต้ร่องผนึก แบบตัวสี่เหลี่ยมขนาดความกว้างของร่องที่ 2, 4, 6 และ 8 mm ที่อุณหภูมิ 30, 400, 500, 600, 700 และ 800°C แต่ละอุณหภูมิจะทำการทดสอบที่แรงกดแบบ Uniform Load ขนาด 500 – 2500 N จากรูปที่ 5 ผล การทดลองจะเห็นได้ว่าทุกเงื่อนไขของการทดลอง อัตราการรั่วจะมีแนวโน้มลดลงตามการเพิ่มขึ้นของอุณหภูมิ อัตราการรั่วที่ความกว้าง 2, 4, 6, และ 8 mm (2500 N, 800°C) คือ 35, 24, 22 และ 17 cm<sup>3</sup>/min ตามลำดับ จากรูป 5(a-d) พบว่าการเพิ่มความกว้าง ทำให้มีอัตราการรั่วน้อยลง





รูปที่ 3 โครงสร้างจุลภาคของหน้าตัดวัสดุผนึกระหว่าง ไมก้ากับคอนดักช์ทรีพซิลเวอร์เพนท์











ผลกระทบของการปรับเปลี่ยนความกว้างของ ร่องผนึกตัวสี่เหลี่ยมที่ความกว้าง 2 mm อัตราการรั้ว อยู่ในช่วง 35 cm<sup>3</sup>/min. ( 2500 N, 800°C) ดังแสดงใน รูปที่ 6(f) เมื่อเพิ่มความกว้างเป็น 4, 6, และ 8 mm อัตราการรั้วจะลดลงเหลือ 68, 62 และ 48% ตามลำดับ การเพิ่มแรงกดจาก 500 N ถึง 2500 N พบว่าอัตราการรั้วลดลงอย่างรวดเร็ว ที่อุณหภูมิ 30 °C ดังแสดงในรูปที่ 6(a) และจะลดลงน้อยมากเมื่อเพิ่ม แรงที่ 800°C



## ME-NETT 25 The 25<sup>th</sup> Conference of the Mechanical Engineering Network of Thailand





#### อุณหภูมิต่างๆ

# 3.3 ผลกระทบของความกว้างจุดเชื่อมต่อของ อินเตอร์คอนเน็กเตอร์ที่อุณหภูมิ 30- 800°C

จากผลการทดลองที่แรงกด 500 - 2500 N พบว่าอัตราการรั่วเมื่อความกว้างต่าง ๆ จะมีลักษณะ การรั่วที่เหมือนกันทุกเงื่อนไข โดยสามารถแบ่งเกร เดียร์ (slope) ของอัตราการลดลงของการรั่วได้สาม ช่วงนั้นคือ ช่วงที่ 1 ที่อุณหภูมิประมาณ 30-400°C ช่วงที่ 2 ที่อุณหภูมิประมาณ 400-500°C และ ช่วงที่ 3 ที่อุณหภูมิประมาณ 500-600°C โดยอัตราการรั่วจะ ลดลงอย่างรวดเร็วในช่วงที่ 1 และ 2 แต่อัตราการรั่ว จะลดลงอย่างช้า ๆ ในช่วงที่ 3 อัตราการรั่วที่ลดลง อย่างรวดเร็วในช่วงที่ 2 คาดว่าเกิดจากวัสดุที่ใช้เป็น วัสดุผนึกกำลังอยู่ในช่วงของการปรับเปลี่ยนรูปร่างให้ เกิดสภาวะสมดุลจากผลของความเค้นเนื่องจากความ ร้อนแสดงดังรูปที่ 7



## ETM63





รูปที่ 7 ความสัมพันธ์ระหว่างอัตราการรั่วกับแรงด้วย การปรับเปลี่ยนค่าความกว้าง ที่แรงต่างๆกัน

#### 4. สรุปผลการทดลอง

จากการทดลองพบว่าอัตราการรั้วสำหรับการ ผนึกด้วยแรงกดโดยใช้คอนดักช์ทรีพซิลเวอร์เพนท์ (Conductive silver paint) ร่วมกับวัสดุผนึกไมก้า (mica) ที่มีการจัดเรียงแบบซ้อนกัน (Sandwich) จะมี แนวโน้มลดลงเมื่อมีการเพิ่มความกว้าง อุณหภูมิ และ แรงกด แต่แรงกดจะมีผลกระทบต่ออัตราการรัวน้อย มาก เมื่อมีอุณหภูมิมากกว่า 500 °C โดยมีอัตราการ รั้วต่ำสุดเท่ากับ 17 cm³/min (800°C, 2500N, ความ กว้าง 8 mm) ซึ่งต่ำกว่า ซึ่งอัตราการรั่วจะน้อยกว่า กรณีการใช้วัสดุไมก้าเพียงอย่างเดียว ซึ่งเป็นผลอัน เนื่องมาจากอุณหภูมิที่สูงขึ้นจะทำให้ค่ายังโมดูลัสของ ้วัสดุผนึกที่มีส่วนผสมของวัสดุเงินเป็นหลักลดลง โดย สังเกตได้จากโครงสร้างจุลภาคของวัสดุผนึกภายใต้ แรงกดที่คอนดักซ์ทรีพซิลเวอร์เพนท์มีการแทรกอยู่ ระหว่างแผ่นวัสดุไมก้า ส่งผลให้ช่องว่างและการ เชื่อมโยงของช่องว่างระหว่างพื้นผิวลดลง

#### 5. กิตติกรรมประกาศ

ขอขอบคุณหน่วยงานที่สนับสนุนดังนี้คือ สำนักงานคณะกรรมการการอุดมศึกษา สำนักงาน นโยบายและแผนพลังงาน และ ศูนย์เทคโนโลยีและ วัสดุแห่งชาติ (MTEC) ที่ให้การสนับสนุนทุนวิจัย

#### 6. เอกสารอ้างอิง

 Punbusayakul N, Boonsiri K, Charojrochkul S, and Charoensuk J (2010). Effect of Surface Roughness for Leak rate on Interconnector Joint Under Operating Condition of Planar Solid Oxide Fuel Cell, Energy Technology Network of Thailand, May 5–7, 2010, Cha-Am Phetchburi, Thailand

- [2] Wongklang Punbusayakul N. W. Charojrochkul S, Charoensuk J, and Fungtammasan В (2009). Design and Development the Interconnector Joint of Oxide Fuel Planar Solid Cell, paper presented in The 23<sup>rd</sup> Conference of the Mechanical Engineering Net of Thailand, November 4-7, 2009, Chiang Mai, Thailand
- [3] Punbusayakul N, Charojrochkul S, Charoensuk J, and Fungtammasan B.(2009)
   Effect of Load Distribution Patterns on a Non-Rigid-Body Interconnector Under Loading Condition of Planar Solid Oxide Fuel
   Cell, International Conference on Green and Sustainable Innovation
- [4] Azra Selimovic, Miriam Kemm, Tord Torisson, and Mohsen Assadi, (2005). Steady state and transient thermal stress analysis in planar solid oxide fuel cells, Journal of Power Sources, vol.145, April 2005, pp 463 -469.
- [5] Jinnapat A, Jiamsirilert S and Charojrochkul S. (2007). Study of Ceramic Seal for Solid Oxide Fuel Cells, Journal of materials Online AZojomo, vol 3, June 2007
- K. Scott Weil, Christopher A. Coyle, Jens T. [6] Darsell, Gordon G. Xia and John S. Hardy. (2005). Effects thermal cycling of and thermal aging on the hermeticity and strength of silver-copper oxide air-brazed seals, Journal of Power Sources, vol.152, March 2005, pp. 97-104.

- [7] Punbusayakul N, Wongklang W, Wongtida K, Charoensuk J, and Charojrochkul S. (2008). Behavior of Various Glass Seal for Planar Solid Oxide Fuel Cell, paper presented in *SmartMat08 & IWOFM-2*, April 2008, Chiang Mai, Thailand
- [8] Punbusayakul N, Wongklang W, Wongtida K, Charoensuk J, and Charojrochkul S. (2008). Behaviour of Various Glass Seal for Planar Solid Oxide Fuel Cell, Advanced Materials Research, vol. 55-57, April 2008, pp. 817-820.
- [9] Charojrochkul S (2005). Operation Study of Sealing Materials for Solid Oxide Fuel Cells, Energy Technology Network of Thailand, July 22-29 Nakhonratchasima, Thailand
- [10] Suksam N, Charojrochkul S and Charojrochkul J (2009). Numerical Simulation of a Segmented-Cell-in-Series Planar SOFC, International Conference on Green and Sustainnable Innovation Dec.2-4 Chiang Rai Thailand
- [11] Suksam N, (2010). Numerical Simulation of a Segmented-Cell-in-Series Planar SOFC.King Mongkut's Institute of Technology Ladkrabang
- [12] J. Stevenson, SOFC Seal Materail Status,
  (2003), PNNL Presentation at SECA Core Technology Program SOFC Seal Meeting,
   July 8 sandia National Laboratory Albuquerque, NM
- [13] Yeong-Shyung C, Stevenson (2003). Novel silver/mica multilayer compressive seals for solid-oxide fuel cells: The effect of thermal cycling and material degradation on leak behavior, J. Mater. Res., Vol. 18, No. 9, Sep 2003

- [14] Yeong-Shyung C, Stevenson J.W, Hard J, and Singh P. (2009). Long-term ageing and materials degradation of hybrid mica compressive seals for solid oxide fuel cells, *Journal of Power Sources*, vol. 191, August 2009, pp. 384–389.
- [15] Phira A, Punbusayakul N, Boonsiri K, Charojrochkul S, and Charoensuk J. (2011). A Study on the Sealing Performance of Silver Material for Solid Oxide Fuel Cell, Energy Technology Network of Thailand, May 3–5, 2011, Phuket, Thailand