



Düzlemsel Elektrolit Destekli Tek Odacıklı Katı Oksit Yakıt Pili'nin Tek Aşamalı Ortak Sinterleme Yöntemiyle Üretimi ve Elektriksel Performansına Etkisi

Yunus SAYAN^{1*}, Jung-Sik KİM², Houzheng WU³

^{1, 2, 3} Loughborough University, School of Aeronautical, Automotive, Chemical and Materials Engineering, Aeronautical Engineering, LE11 3TU, Loughborough, United Kingdom

¹Bitlis Eren Üniversitesi, Mühendislik Mimarlık Fakültesi, Makine Mühendisliği, 13100, Bitlis, Türkiye

¹<https://orcid.org/0000-0002-0871-6842>

²<https://orcid.org/0000-0002-3696-7251>

³<https://orcid.org/0000-0002-7628-3890>

*Sorumlu yazar: ysayan@beu.edu.tr; y.sayan@lboro.ac.uk

Araştırma Makalesi

ÖZ

Makale Tarihi:

Geliş tarihi: 06.02.2024

Kabul tarihi: 10.05.2024

Online Yayınlanma: 10.12.2024

Anahtar Kelimeler:

Tek odacıklı katı oksit yakıt pili

Pil üretimi

Sıcak presleme,

Birlikte sinterleme

Pil performansı

Bu çalışma, önceki çalışmalarda sunduğumuz katot ve anot destekli düzlemsel tek odacıklı katı oksit yakıt pillerinin (TO-KOYP) üretimi için geliştirilmiş tek adımlı ortak sinterleme yönteminin elektrolit destekli düzlemsel TO-KOYP'lerin üretimine uygulanabilirliğini araştırmaktadır. Ayrıca bu yöntemle elde edilen elektrolit destekli düzlemsel TO-KOYP'lerin enerji dönüşüm kabiliyetleri test edilmiştir. Pillerin anot, elektrolit ve katot katmanları için kullanılan malzemeler sırasıyla; nikel oksit (NiO)-gadolinium katkılı ceria (CGO), CGO ve lantan stronsiyum kobalt ferrit (LSCF)-CGO'dan oluşmaktadır. Optimize edilmiş sıcak presleme ve sinterleme ayarlarıyla birlikte iyi tanımlanmış kalınlık oranı ve kalınlığa sahip elektrolit destekli düzlemsel bir TO-KOYP'nin tek aşamalı ortak sinterleme yöntemiyle üretilebilirliği görülmüştür. Sinterleme sırasında çatlama ve delaminasyon olmadığı fakat pilin kenarlarında eğrilik olduğu görülmüştür. Pilin diğer destek türlerinde yapıldığı gibi sinterleme sırasında pil üzerine yerleştirilen belirli kütleye sahip gözenekli alümina plakaları kullanılarak eğrilik oluşumu engellenmiş neredeyse tamamen düz bir pil elde edilmiştir. Elde edilen piller 600°C'de farklı yakıt/oksijen oranlarına sahip metan-oksijen-nitrojen gaz karışımlarında tek haznede test edilmiştir. Elektrolit kalınlığının artırılması, pilin tek aşamada ortak sinterlenebilirliğinin artmasına yol açmasına rağmen pil performansı üzerinde olumsuz etkilere sebep olmuştur. Nihai düzlemsel pilin (kalınlık 60-300-40 µm, anot-elektrolit-katod) maksimum güç yoğunluğu ve açık devre voltajı (OCV) yakıt açısından zengin durumda (gaz karışımı 7, CH₄-O₂-N₂ 100-38-100 ml dk⁻¹, R:2,6) sırasıyla; 14,4 mW cm⁻² ve 0,55 V olarak bulunmuştur. Maksimum güç yoğunluğu ve OCV nihai düzlemsel pilden daha ince bir elektrolite sahip olan fakat kenarlarında eğrilik bulunan pil 1'den aynı gaz karışımında sırasıyla 29,39 mW cm⁻² ve 0,55 V olarak elde edilmiştir.

Production of Planar Electrolyte Supported Single Chamber Solid Oxide Fuel Cell by Single Step Co-Sintering Method and Its Effect on Electrical Performance

Research Article

ABSTRACT

Article History:

Received: 06.02.2024

Accepted: 10.05.2024

Published online: 10.12.2024

Keywords:

Single chamber solid oxide fuel cell

Cell manufacturing

Hot pressing

This study investigates the applicability of the single step co-sintering method developed for the production of cathode and anode supported planar single chamber solid oxide fuel cells (SC-SOFCs), which we presented in previous studies, to the production of electrolyte-supported planar SC-SOFCs. In addition, the energy conversion capabilities of electrolyte-supported planar SC-SOFCs obtained by this method were tested. The materials used for the anode, electrolyte and cathode layers of cells consist of nickel oxide (NiO)-gadolinium-doped ceria

(CGO), CGO and lanthanum strontium cobalt ferrite (LSCF)-CGO, respectively. It has been demonstrated that an electrolyte supported planar SC-SOFC with well-defined thickness ratio and thickness along with well-adjusted hot pressing and sintering settings can be produced by the single step co-sintering method. It was detected that there was no cracking or delamination during sintering, but there was curvature at the cell's edges. By using porous alumina plates of a certain mass placed on the cell during sintering, as is done in other support types of the cell, curvature formation is prevented and an almost completely planar cell is obtained. The performance test was applied to the obtained cells in a single chamber at 600°C in methane-oxygen-nitrogen gas mixtures with different fuel/oxygen ratios. Increasing electrolyte thickness had negative effects on cell performance in spite of enhanced the cell's single step co-sinterability. The maximum power density and open circuit voltage (OCV) of the final planar cell (thickness 60-300-40 µm, anode-electrolyte-cathode) were found to be 14.4 mW cm⁻² and 0.55 V, respectively, in a fuel rich condition (gas mixture 7, CH₄-O₂-N₂, 100-38-100 ml min⁻¹, R:2.6). The maximum power density and OCV were obtained from cell 1, which has a thinner electrolyte than the final planar cell but has curvature at the edges, as 29.39 mW cm⁻² and 0.55 V, respectively, in the same gas mixture.

To Cite: Sayan Y., Kim JS., Wu H. Düzlemsel Elektrolit Destekli Tek Odacıklı Katı Oksit Yakıt Pili'nin Tek Aşamalı Ortak Sinterleme Yöntemiyle Üretimi ve Elektriksel Performansına Etkisi. *Osmaniye Korkut Ata Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü Dergisi* 2024; 7(5): 2026-2052.

1. Giriş

Gelecek vaat eden bir elektrokimyasal enerji dönüşüm cihazı olarak katı oksit yakıt pili (KOYP); yüksek yakıt esnekliği, yüksek dönüşüm verimliliği, çevre dostu olması (Catalano ve ark., 2018; Wei ve ark., 2019; Hussain ve Yangping., 2020; Kamvar ve ark., 2020) gürültüsüz olması ve hareketli parça içermemesi (Milcarek ve ark., 2018) nedeniyle büyük faydalara sahiptir. Pilde meydana gelen elektrokimyasal reaksiyonlar sonucunda yakıtın kimyasal enerjisi doğrudan elektrik enerjisine dönüştürülür (Timurkutluk ve ark., 2016; Gu ve ark., 2018). Bu teknoloji büyük bir ilerleme sürecindedir ve termomekanik kırılmalıkları ve boyutları nedeniyle şu anda sabit uygulamalar için kullanılmaktadır (Bedon ve ark., 2021).

Geleneksel KOYP'ler gözeneksiz bir elektrolitle ayrılmış iki odadan oluşur. Tek bir katı oksit yakıt pili, katot ve anot elektrotları arasında sıkıştırılmış seramik elektrolit kullanır (Su ve Hu, 2020a; Deepi ve ark., 2022; Bukhari ve ark., 2023). Bunlar bir KOYP'nin temel bileşenleridir. Katot oksijen gazı (O₂) indirgemeden anot ise yakıtın (hidrojen gazı, H₂, metan, CH₄ vb.) oksidasyonundan sorumludur. Katotta elektrokimyasal reaksiyonunun bir sonucu olarak üretilen oksijen iyonları (O²⁻), elektrotlar arasındaki oksijen (O) kısmi basıncı farklılıklarının bir sonucu olarak elektrolit boyunca katot katmanından anot katmanına hareket eder (Timurkutluk ve ark., 2016; Lyu ve ark., 2020). Anot ve katot elektrotları arasındaki kısmi oksijen basıncı farkı açık devre voltajının (ADV) oluşmasına neden olur (Mariño ve ark., 2016). Anot bölümünde üretilen elektronların katot bölümüne hareketi sırasında dış devre üzerinden elektrik akımı elde edilir (Timurkutluk ve ark., 2016).

KOYP'lerin çalışma sıcaklığı elektrolit malzemesine bağlı olarak 600 ila 1000°C arasında olabilir. Bu nedenle yakıt kirliliğine karşı dirençleri düşük sıcaklıkta çalışan yakıt pillerine göre daha fazladır. Ayrıca daha yüksek çalışma sıcaklığı reaksiyon kinetiğini iyileştirir dolayısıyla KOYP'lerin elektrik verimliliğinin artmasına neden olur. Bu nedenle en verimli yakıt pillerinden biri olduğu düşünülmektedir

(Timurkutluk ve ark., 2016; Mahmud ve ark., 2017). Ancak yüksek çalışma sıcaklığı termal stres sonucu KOYP bileşenlerinde çatlak oluşumuna neden olabilir. Ayrıca malzeme bozulmasına, üretim maliyetlerinin artmasına, sınırlı malzeme seçimine, dayanıklılığın azalmasına dolayısıyla pilin kullanım ömrünün kısalmasına neden olur (Mahmud ve ark., 2017; Kamvar ve ark., 2020; Su ve Hu, 2020b). Dahası yakıt ve oksidantın pil içerisinde ayrı tutulabilmesi için etkili bir sızdırmazlık sağlanması gerekmektedir. Yüksek sıcaklıkta gaz sızdırmazlığı oldukça karmaşıktır ve pil ile diğer sızdırmazlık bileşenleri arasındaki sıkı bağlantılar arızalara neden olan gerilim kaynağı olabilir (Bedon ve ark., 2021). KOYP teknolojisinin büyük ölçekli başarılı ticarileştirilmesi için pil ömrünün uzatılması, termal döngülenebilirliğin artırılması, performansın artırılması ve üretim fiyatının düşürülmesi gerekmektedir (Nurk ve ark., 2018). Bu bakımdan tek odacıklı KOYP'ler (TO-KOYP'ler) herhangi bir sızdırmazlık malzemesi gerektirmediğinden alternatif olabilir. Anottan katot taraflarına kadar gaz sızdırmazlığına gerek olmadığından herhangi bir çatlak oluşumu pil çalışmasını sona erdirmez (Kamvar ve ark., 2020). TO-KOYP'lerde anot ve katot elektrotları aynı atmosfere yerleştirildiğinden gaz sızdırmazlığına gerek yoktur. TO-KOYP cihazları için pil tasarımı oldukça kompakttır ve genel olarak üretim geleneksel çift odacıklı KOYP'lere (ÇO-KOYP) kıyasla daha basittir (Briault ve ark., 2014; Yussenko ve ark., 2022). Sıkı yalıtımın ortadan kaldırılması sonucunda artan mekanik ve termal direnç sayesinde hızlı başlatma ve kapatma elde edilebilir. Bu tür faydalar TO-KOYP'leri taşınabilir güç cihazları için oldukça ilgi çekici kılmaktadır (Tian ve ark., 2020; Ao ve ark., 2022). Ayrıca özel uygulama da tasarlanabilmektedir. Örneğin; TO-KOYP'ler termal motorlarla çalıştırılabilir. Bu amaçla motor çıkışına pil yerleştirilebilir. Bu egzoz gazındaki yanmamış hidrokarbonların elektrığe dönüştürülmesine yardımcı olabilir böylece araçlardaki elektronik cihazlara güç sağlayabilir ve sonuç olarak yakıt verimliliğini artırabilir (Bedon ve ark., 2021).

TO-KOYP'lerde OCV'nin üretimi öncelikle elektrotların ilgili gazlara karşı seçiciliğine ve elektro-katalitik aktivitesine bağlıdır. Çift odacıklı KOYP'lerde (Mariño ve ark., 2018; Tian ve ark., 2019; Ao ve ark., 2022) olduğu gibi yalnızca yoğun (gözeneksiz) bir elektrolite bağlı değildir. Böylece pil, gaz sızdırmazlığı olmadan çalışabilir. TO-KOYP'lerin bu avantajları, yoğun bir elektrolite ihtiyaç duyulmadığından ince ve gözenekli bir elektrolitin hazırlanmasında bant döküm, serigrafi vb. gibi basit ve düşük maliyetli tekniklerin kullanılmasına olanak tanır. Bununla birlikte bazı yazarlar; gözenekli elektrolitin, anot elektrotundan katot elektrotuna hidrojen gazı taşınmasına ve elektrolit boyunca katot elektrotundan anot elektrotuna oksijen gazı taşınmasına izin verebileceğini vurgulamıştır. Bu gerçekler OCV düşüşüne ve pil performansının azalmasına neden olabilir. Bu yüzden gazların taşınmasını önlemek için pilde yoğun ve kalın bir elektrolit bulunması önerilmektedir (Mariño ve ark., 2018).

Anot, elektrolit ve katot gibi farklı destek türlerine sahip KOYP'ler arasında; anot veya katot destekli KOYP'lerin sahip olduğu sorunların üstesinden gelmek için araştırmacılar tarafından elektrolit destekli KOYP'ler önerilmiştir. Anot ve katot destekli piller için ortak sorun kalın destek katmanı (anot destekli piller için anot katmanı ve katot destekli piller için katot katmanı) nedeniyle gazların kütle aktarımının sınırlandırılmasıdır. Buna ek olarak: Düşük iletkenlik nedeniyle katodun yavaş reaksiyonu katot destekli

piller için ciddi bir sorun haline gelir. Anot destekli piller için potansiyel tekrar oksidasyon, pillerin uzun vadeli stabilizesini sınırlayan başka bir sorundur. Bunlarla karşılaştırıldığında elektrolit destekli piller; kalın elektrolitten dolayı nispeten güçlü bir yapısal desteğe sahiptirler, anotun tekrar oksidasyonu nedeniyle meydana gelen arızaya daha az duyarlıdır ve nispeten düşük kütle taşıma sınırlamalarına sahiptirler. Ancak kalın elektrolite bağlı ohmik kayıplar ciddi bir sorun olabilir (Singhal ve Kendall, 2003; Minh, 2004).

Geleneksel imalat süreçleriyle yapılan tam bir TO-KOYP genellikle birçok imalat adımı gerektirir. Tüm bu adımlar zaman alıcıdır aynı zamanda çok yüksek imalat maliyetine neden olur. Örnek olarak elektrolit destekli KOYP'nin üretim prosesi: bant dökümü, serigrafi baskı, laminasyon ve sinterlemedir (Wei ve ark., 2019). Bu çalışma, üretim adımlarını azaltmak ve böylece bir pili üretmek için gereken maliyeti ve zamanı azaltmak amacıyla TO-KOYP'nin diğer konfigürasyonları (katot/anot destekli piller) için oluşturulan tek aşamalı ortak sinterleme metodolojisinin elektrolit destekli tek odacıklı bir KOYP'nin üretimine uygulanabilirliğini araştırmaktır. Bu yüzden bu çalışma tek aşamalı ortak sinterleme yaklaşımının elektrolit destekli pillere uygulanabilirliğini değerlendirmek üzere genişletildi. Önceki bulgulara göre optimize edilmiş sıcak presleme ve sinterleme koşullarıyla birlikte pilin optimum kalınlık ve kalınlık oranının belirlenmesi; daha iyi ortak sinterleme sonuçlarına yol açar, çatlama ve delaminasyondan kaçınılır ancak pilin kenarında bir miktar eğrilik kalır. Bununla birlikte sinterleme sırasında uygulanan sınırlı kısıtlama ile düzlemsel paralel bir TO-KOYP'ye üretilebilir. Yerleşik metodolojiye uygun olarak ve karşılaştırmalı değerlendirmelerde tutarlılık sağlamak için önceki çalışmalarda yapıldığı gibi bu çalışmada sonraki adımlar yapıldı. Yani piller tek aşamada üretilip sinterlenebilmesi için önce hammadde halindeki pil katmanları anot-elektrolit-katot olacak şekilde üst üste yerleştirilerek hazırlandı. Ardından en uygun sıcak presleme koşullarında preslenerek elektrolit destekli sinterlenmemiş TO-KOYP'ler elde edildi. Daha sonra iyi tanımlanmış sinterleme koşullarında ve kısıtlı sınırlama ile birlikte bu piller sinterlendi. Akabinde elektrolit destekli bu pillerin gözeneklilik, mikro yapı, katman yapışması ve diğer fazların safsızlıkları/oluşumunu analiz etmek için; parlatma, taramalı elektron mikroskobu (SEM), enerji dağılımlı spektroskopi (EDS), X-ışını kırınım yöntemi (XRD) gibi farklı karakterizasyon teknikleri sinterlenmiş bu pillere uygulandı. Elde edilen piller, daha sonra hem sinterleme modifikasyonlarının pil performansı üzerindeki etkilerini değerlendirmek hem de bu pillerin göreceli enerji dönüşüm kapasitesini görmek için farklı gaz karışımlarında test edildi.

2. Materyal ve Metot

2.1. Pillerin Hazırlanması

Gerekli pilleri yapmak için anot, elektrolit ve katot şerit rulolar kullanıldı. Tüm rulolar Maryland Tape Casting Ltd, ABD'den satın alınmıştır (Maryland Tape Casting, 2016). Şirket bu şerit ruloları yapmak için şerit döküm tekniğini kullanmıştır. Anot, elektrolit ve katot katmanları için kullanılan malzemeler sırasıyla: ağırlıkça %60 NiO (nikel oksit)-ağırlıkça %40 $Ce_{0,8}Gd_{0,2}O_{2-\delta}$ (gadolinium katkılı ceria (CGO)), $Ce_{0,8}Gd_{0,2}O_{2-\delta}$ ve ağırlıkça %50 $La_{0,6}Sr_{0,4}Co_{0,2}Fe_{0,8}O_{3-\delta}$ (lantan stronsiyum kobalt ferrit

(LSCF)—ağırlıkça %50 CGO (%20 gadolinyum(Gd))’dan oluşmaktadır. Her bir şeridin ayrıca kalınlığı 20 µm’dir. Tedarikçi tarafından temin edilen bu katmanların bulamaç bileşiminin özeti referans (Sayan ve ark., 2018)’ın bulunduğu derginin web sayfasındaki destekleyici veriler kısmında bulunabilir. Elektrolit ve anot sinterleme sıcaklığı katottan çok daha yüksektir (Choi, 2015). Bundan dolayı LSCF katotunun sinterlenmesini geciktirmek amacıyla LSCF katot parçacık boyutu, anot ve elektrolitin parçacık boyutundan daha büyük olacak şekilde tanımlanmıştır. Böylelikle tek aşamalı ortak sinterleme işlemi sırasında malzemelerin nihai yoğunluğunun dengelenebileceği düşünülmüştür. Bu çalışmada katot şerit için parçacık boyutu 1 µm olarak tanımlanmıştır. Buna karşılık elektrolit ve anot şeritler için parçacık boyutu 0,3 µm olarak tanımlanmıştır.

Pili hazırlamak için öncelikle anot, katot ve elektrolit katmanları ayrı ayrı yapılır. Ardından bu katmanlar sandviç biçiminde anot, elektrolit ve katot olacak şekilde üst üste yerleştirilir. Gerek duyulan kalınlıkta elektrolit elde etmek için elektrolit malzemesinden yapılan şerit, istenen boyutlarda elektrolit şerit rulosundan kesilir. Ancak önceden bahsettiğimiz gibi her bir şeridin kalınlığı 20 µm olduğundan elektrolite istenilen kalınlığı vermek için bu kesimlerden belli sayıda yapılır. Akabinde bu kesilen elektrolit şeritler düzgünce üst üste yerleştirilerek arzu edilen elektrolit kalınlığı elde edilir. Aynı işlemler, anot ve katot için de yapılır. İstenen kalınlıkta anot, elektrolit ve katot katmanları yapıldıktan sonra bu katmanlar üst üste sırası ile yerleştirilerek arzu edilen piller oluşturulur. Daha sonra üst üste yerleştirilmiş bu katmanlar, 2 MPa basınç ve 60°C sıcaklıkta 5 dakika bekletilerek preslendi (Carvel Isıtmalı Tezgah Üstü Sıcak Pres, model: 3853CE-8, ABD). Sıcak presleme parametreleri, pilin her katmanı arasında yeterli kompaktlık ve iyi bağ elde etmek ayrıca aşırı preslemeyi ve homojen olmayan pil bölgesi dağılımını önlemek için hassas bir şekilde belirlendi. Ayrıntılı açıklama referans (Sayan ve ark., 2018)'de sunulmuştur.

Ortak sinterleme yoluyla sinterlenmiş bir pilin kalitesi her bir pil katmanının kalınlığından doğrudan etkilenebilir. Bu etkiyi incelemek için farklı kalınlık kombinasyonlarına sahip birkaç elektrolit destekli düzlemsel pil hazırlandı. Hazırlanan piller daha sonra aynı presleme şartlarında sıcak preslenip akabinde 1200°C sıcaklıkta 1 saat boyunca sinterlendiler. Tek aşamalı ortak sinterlemenin üretimi sırasında daha az kusur elde etmek için pillerin sinterleme profili, her bir şerit katmanının bağlanma ve büzülme özelliklerinin kapsamlı bir şekilde incelenmesiyle dikkatlice belirlendi. Aynı sinterleme profili daha önce yayınlanmış olan anot destekli TO-KOYP üretimi için kullanılmıştır ve referans (Sayan ve ark., 2018)'de bulunabilir.

Başlangıçta ısıtma ve soğutma sırasında pilin sinterleme davranışı etkisini analiz etmek için elektrolit destekli bir pil yapıldı. Bu pil anot-elektrolit-katot (A-E-K) olarak 60-200-40 (kalınlık oranı: 3-10-2) µm kalınlığa, 40 mm genişliğe (G) ve 40 mm uzunluğa (U) sahiptir (bkz. Tablo 1).

Ayrıca pilin elektrolit kalınlığı ve pil boyutunun tek aşamalı ortak sinterleme üzerindeki etkisini incelemek amacıyla farklı elektrolit kalınlığına ve pil boyutuna sahip iki pil tipi hazırlandı. Birinci pil tipinin GxU'su 40x40 mm olarak belirlendi ve pil tipi 1 olarak adlandırıldı. Pil tipi 2 olarak adlandırılan ikinci pil tipi ise sırasıyla 30 mm ve 30 mm genişlik ve uzunluğa sahip olacak şekilde hazırlandı. Birinci

tip pil için elektrolit kalınlığı 200 µm ve 300 µm olacak şekilde iki pil hazırlandı (pil 1 ve pil 2, bkz. Tablo 1) ve piller için katot ve anot malzemesinin kalınlığı sırasıyla 40 µm ve 60 µm kalınlığında sabit tutuldu. İkinci tip pil için ise tek pil hazırlandı (pil 3) ve bu pilin A-E-K'si 60-300-40 µm kalınlığa sahipti (bkz. Tablo 1).

Ek olarak: Sınırlı kısıtlamanın tek aşamalı ortak sinterleme üzerindeki etkisini analiz etmek amacıyla üç aynı pil yapıldı ve sırasıyla pil 4, pil 5 ve pil 6 olarak adlandırıldı. Hepsi sırasıyla 40 mm ve 40 mm genişliğe ve uzunluğa sahipti. Ayrıca anot, elektrolit ve katot kalınlıkları Tablo 1'de görüldüğü gibi aynıdır. Bu piller, pillerin üstüne yerleştirilen bir veya birkaç gözenekli alümina (Al₂O₃) kapak plakası (kalınlığı 1 mm ve gözenekliliği %40, ESLTM 42520-2) ile sinterlendi. Bu, eğrilik oluşumunu sınırlama yeteneğini artırdı ve sonunda eğrilik olmayan bir pil elde etme yeteneğini arttırdı.

Tablo 1. Bu çalışmada hazırlanmış olan elektrolit destekli düzlemsel pillerin boyutsal özellikleri ile sinterlenme türleri

Pil	Kalınlık Oranı anot:elektrolit:katot	Kalınlık/µm anot:elektrolit:katot	GenişlikxUzunluk /mm	Sinterleme Tipi	
Isıtma ve soğutma sırasında pilin sinterleme davranışı etkisini analiz etmek için hazırlanan elektrolit destekli bir pil.	-	3-10-2	60-200-40	40x40	Kısıtlama olmadan sinterlenmiştir.
Pil Tipi 1	Pil 1	3-10-2	60-200-40	40x40	Kısıtlama olmadan sinterlenmiştir.
	Pil 2	3-15-2	60-300-40	40x40	Kısıtlama olmadan sinterlenmiştir.
Pil Tipi 2	Pil 3	3-15-2	60-300-40	30x30	Kısıtlama olmadan sinterlenmiştir.
	Pil 4	3-15-2	60-300-40	40x40	Pilin üzerine yerleştirilen 75x75 mm GxU'ya ve %40 gözenekliye sahip bir alümina kapak plakası ile sinterlenmiştir (toplam kütle 16,45 g.).
	Pil 5	3-15-2	60-300-40	40x40	Pilin üzerine yerleştirilen 75x75 mm GxU'ya ve %40 gözenekliye sahip iki alümina kapak plakası ile sinterlenmiştir (toplam kütle 32,9 g.).
	Pil 6	3-15-2	60-300-40	40x40	Pilin üzerine yerleştirilen 75x75 mm GxU'ya ve %40 gözenekliye sahip üç alümina kapak plakası ile sinterlenmiştir (toplam kütle 49,35 g.).

2.2. Karakterizasyon ve Testler

Sinterlenmiş bir pilin gözenek yapısını ve tane boyutunu doğru bir şekilde araştırmak için (Özel ve Hamidli, 2022; Özel ve Aslan, 2023), tek aşamada düzlemsel olarak elde ettiğimiz son elektrolit destekli pile (pil 6) yarı otomatik Struers LaboSystem (Almanya yapımı) kullanılarak özenle taşlama ve parlatma uygulandı. Bu amaçla pil, ilk olarak Almanya'da üretilen Struers CitoPress 5 kullanılarak bakelite içine monte edildi. Ayrıca Almanya'da üretilen Zeiss 1530-VP FEGSEM marka SEM ve EDS kullanılarak sinterlenmiş bu pilin mikroyapısı ve kimyasal elementi karakterize edildi. İkincil elektronlar ve geri saçılan elektronlar için görüntüleme hızlandırma voltajı sırasıyla: 5 kV ve 20 kV olarak ayarlandı. Ayrıca tüm EDS spektrumlarını elde etmek için 20 kV hızlandırma voltajı uygulandı.

Nihai pilin gözenekliliğini niceliksel olarak belirlemek için ImageJ programı kullanıldı. Bu işlem için nihai pilin kesit alan SEM görüntülerinden faydalanıldı. Pilin elektrolit ve elektrotlarının ortalama gözenekliliğini yaklaşık olarak belirlemek için uygulanan süreç şu şekilde açıklanabilir: Pilin katot, anot ve elektrolit kesit alanlarının geri saçılım SEM görüntüleri ayrı ayrı elde edildi. Her görüntünün WD'si 8,5, Mag 2,00 KX ve ölçeği 10 µm idi. Daha sonra eşik analizi için elde edilen görüntüler ImageJ programına gönderildi ve sekiz bitlik görüntü kalitesine ayarlandı. Her görüntü için eşik ayarı titizlikle yapıldı. Pilin her katmanının gözenekliliği, görüntülerdeki siyah bölgenin yüzdesi niceliklendirilerek kaydedildi.

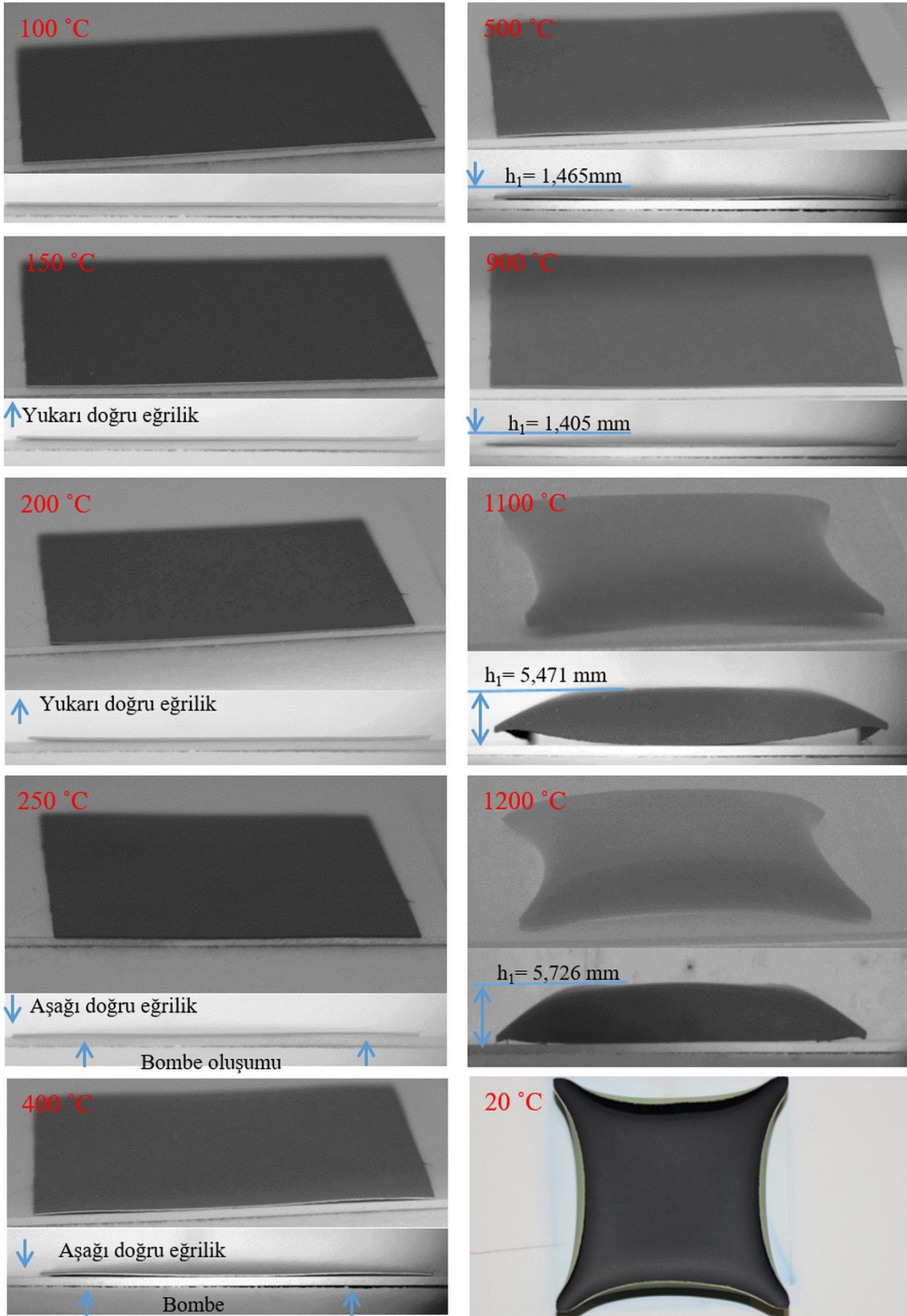
Tek aşamada ortak sinterleme ile elde edilen pillerden bazılarına (pil 1 ve pil 6) performans testi uygulandı. Bu pillerin polarizasyon ve açık devre gerilimi (OCV) ölçümleri için Birleşik Krallık'ta üretilen bir potansiyostat (Solarton Analytical 1280C) ve Birleşik Devletler'de üretilen CorrWare®/CorrView™ elektrokimyasal paketi (Scribner Associates Inc.) kullanıldı. Ayrıca performans testi sırasında akımı toplamak için pillerin anot ve katot yüzeylerine altından yapılmış ızgara biçiminde elektronik devreler oluşturuldu. Bunun için Birleşik Krallık'ta üretilen Q150T S/E/ES Turbo-Pompa Püskürtme Kaplaması (Quorum Technologies) kullanıldı. %90 nikel (Ni) ve %10 kromdan (Cr) yapılmış kromel teli, gümüş macunu ile püskürtülmüş altın ızgaralara bağlandı. Tüm piller tek odalı bir koşulda ve alumina pil tutucusunda akış yönüne dik olacak şekilde yerleştirildikten sonra test edildi. Ayrıca tüm pillerin anot katmanı başlangıçta nikel oksit (NiO) formundaydı. Bu nedenle NiO öncelikle azot (N₂) ve hidrojen (H₂) gaz karışımı ile nikel indirgeni. İndirgenme, 0,01 L dak⁻¹ H₂ ve 0,19 L dak⁻¹ N₂ akış hızıyla 600°C'de 1 saat süreyle gerçekleştirildi. İndirgenmeden sonra her pil farklı bileşimlere sahip gaz karışımlarında 600°C'de test edildi. Gaz karışımları özellikleri Şekil 9 ve Tablo 3 te detaylı olarak verilmiştir.

3. Bulgular ve Tartışma

3.1 Sinterleme Sonuçları

3.1.1 Isıtma Sırasında Sıcaklık Artışı ile Elektrolit Destekli Pilin Sinterleme Davranışı

Şekil 1: Bir elektrolit destekli bir pilin farklı sıcaklıklarda sinterleme sırasında alınan görüntülerini göstermektedir. Pil; 40x40 mm genişlik ve uzunlukta, 60-200-40 μm , A-E-K, (kalınlık oranı: 3-10-2) kalınlığa sahiptir. Pil ayrıca gözenekli bir alumina altlık üzerine yerleştirilmiştir ve pilin katodu bu altlığın üst yüzeyine degecek şekilde konumlandırılmıştır. Şekil 1'e göre pilde 100 °C sıcaklıkta gözle görülür bir değişiklik yoktur ancak kenarlarında hafif bir yukarı doğru yönelim vardır. Bu durum yüzeyin üst kısmında başlayan katkı maddelerinin sinterleme sırasında giderilmesinden kaynaklanır. Bu da kılcal kuvvetlerin neden olduğu anot tarafında basınç stresine yol açar. Sıcaklık daha da arttığında 250 °C'de kapiler kuvvet yönündeki değişim nedeniyle eğrilik yönü aşağı doğru değişmeye başlar ve bir bombe oluşumuna neden olur. 400°C sıcaklıkta pilden katkı maddeleri uzaklaştırıldıktan sonra pil yapısı ana büzülme sıcaklığına (900°C) kadar neredeyse tekdüze hale gelir. Bu sıcaklıkta alümina altlığın üst yüzeyinden pilin üst yüzeyinin tepe noktasına (h_1) olan mesafe, 500°C'deki (1,465 mm) h_1 ile karşılaştırıldığında çok az azalmaya rağmen 1,405 mm olarak ölçüldü. Bunun nedeni: ayrıştırma işleminden sonra parçacıkların yeniden düzenlenmesi olasılığıdır. Sıcaklık 1100°C ve 1200°C'ye yükseltildiğinde h_1 sırasıyla 5,471 mm ve 5,726 mm'ye yükselir. Bu, esas olarak katot katmanının yüksek büzülme davranışından kaynaklanır (eğriliğin katot katmanına (aşağıya) doğru olduğu görülebilir). Ayrıca pilde sinterleme sonrasında oda sıcaklığında yaptığımız görsel gözleme göre herhangi bir çatlak veya çatlak benzeri kusur oluşmamıştır. Pil, sinterleme sırasında oluşan artık gerilime ve soğutma sırasındaki termal genişleme katsayısı (CTE) uyumsuzluğuna dayanacak kadar güçlüydü.



Şekil 1. Elektrolit destekli bir pilin farklı sıcaklıklarda sinterleme sırasında çekilmiş resimleri

3.1.2. Elektrolit Kalınlığının ve Pil Boyutunun Tek Aşamalı Ortak Sinterleme Üzerindeki Etkisi

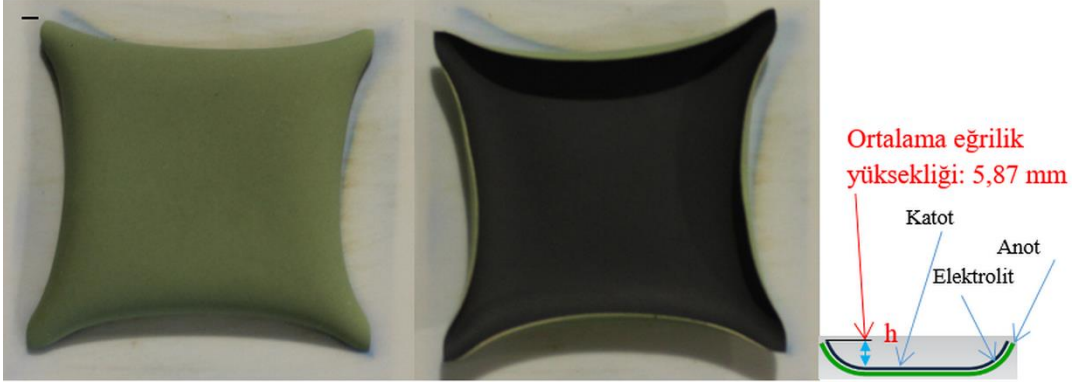
Elektrolit destekli pil için, elektrolit kalınlığının pili desteklemek için yeterli olması ve aşırı ohmik kayıplara neden olmaması gerekmektedir. Bu nedenle başlangıçta anot, elektrolit ve katot kalınlığı sırasıyla 60 µm, 200 µm ve 40 µm olan pil 1(kalınlık oranı: 3-10-2) oluşturuldu. Bu kalınlık ve kalınlık oranı için ortalama eğrilik yüksekliği h, 5,87 mm olarak ölçüldü (bkz. Şekil 2, Ortalama eğrilik yüksekliği, katodun üst yüzeyinden eğrilerin tepe noktasına kadar hesaplandığına dikkat edin. Ölçüm pillerin her kenarından alınıp bunların ortalaması alınarak yapılmıştır). Daha sonra pilin deformasyona karşı direncini artırmak ve eğrilik oluşumunu baskılamak amacıyla elektrolit kalınlığı 200 µm'den 300 µm'ye artırıldı. Böylelikle ortalama eğrilik yüksekliği 5,56 µm'ye düşürüldü (bkz. Şekil 2, pil 2). Bu durum, elektrolit kalınlığının artırılmasıyla elektrolit destekli pilde elektrolit malzemesinin (CGO) daha baskın hale gelmesi ve böylece katot büzülmesinin olumsuz etkisinin azalmasına bağlanabilir. Diğer bir deyişle elektrolitin uzunluk yönüne normal kesit alanının artması, atalet momentinde ($I = bc^3/12$, bu çalışmada b kalınlık ve c genişlik) bir artışa ve dolayısıyla bükülmeye karşı direncin artmasına neden olmuştur ($\sigma = My/I$, σ bükülme stresi, M iç bükülme momenti, y nötr eksen ile kesit üzerinde bir nokta arasındaki dik mesafe ve I atalet momenti). Ayrıca pil boyutu 40x40 mm GxU'dan 30x30 mm GxU'ya düşürüldü ve sonuç olarak ortalama eğrilik yüksekliği 5,56 mm'den 4,11 mm'ye düştü (bkz. Şekil 2; pil 2 ve pil 3). Ancak yüksek güç çıkışı elde etmek için pil boyutunu küçültmek faydalı değildir ve bu nedenle çalışmanın geri kalanında pil genişliği ve uzunluğu sırasıyla 40 mm ve 40 mm olarak sabit tutulmuştur.

Pil Türü 1

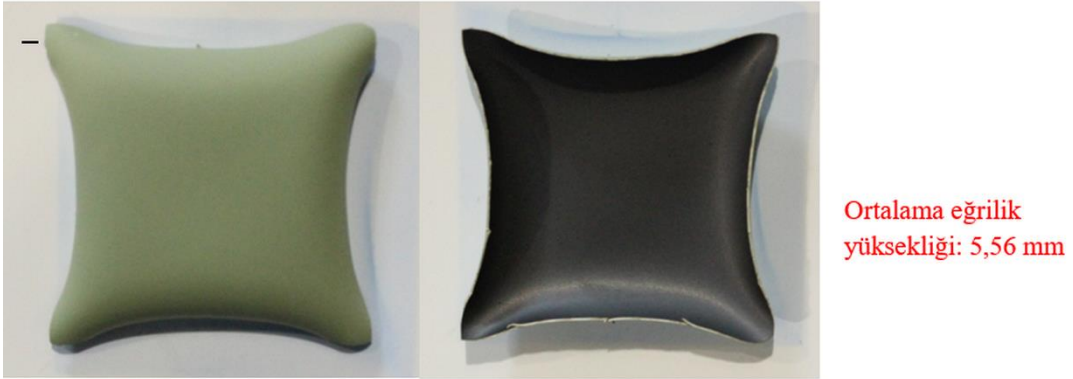
Pil 1 40 x 40 mm GxU, kalınlık oranı: 3-10-2 (A-E-K), kalınlık:60-200-400 µm

Anot tarafından görünüm

Katot tarafından görünüm

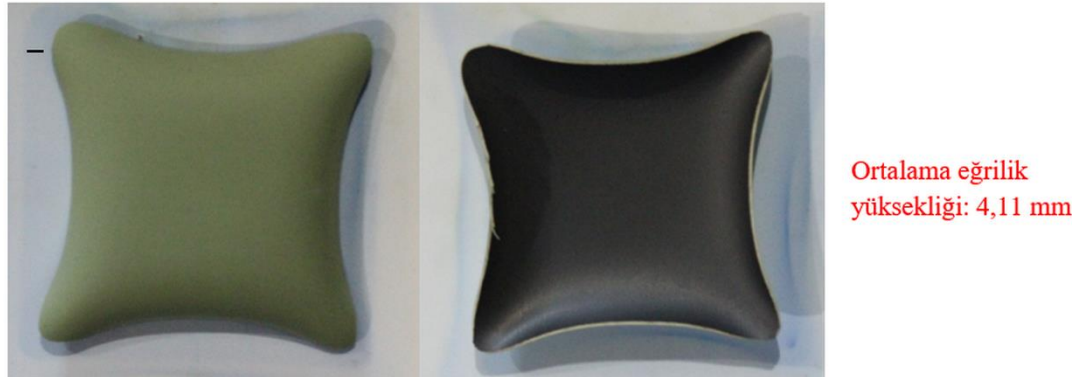


Pil 2 40 x 40 mm GxU kalınlık oranı:3-15-2 (A-E-K), kalınlık:60-300-40 µm



Pil Türü 2

Pil 3 30 x 30 mm GxU, kalınlık oranı:3-15-2 (A-E-K), kalınlık:60-300-40 µm

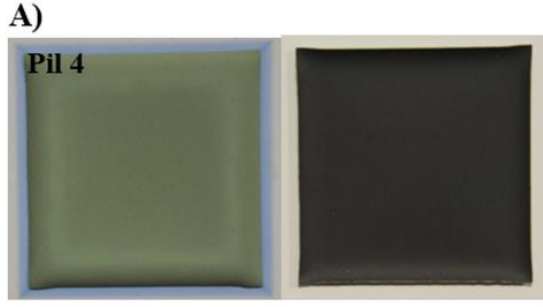


Şekil 2. Elektrolit kalınlığı ve pil boyutunun 1200 °C'de sinterlenmiş pil sinterlenebilirliği üzerindeki etkisi

3.1.3. Elektrolit Destekli Pillerin Kısıtlı Sinterlenmesi

Eğrilik oluşumunu baskılamak ve böylece eğrilik içermeyen pil elde etmek için elektrolit destekli pile sınırlı kısıtlama uygulandı. Bunun için sinterleme sırasında oluşabilecek eğrilikleri baskılamak için belirli kütlelere sahip gözenekli alümina plakalar sinterlemeden önce sinterlenecek pillerin üzerine

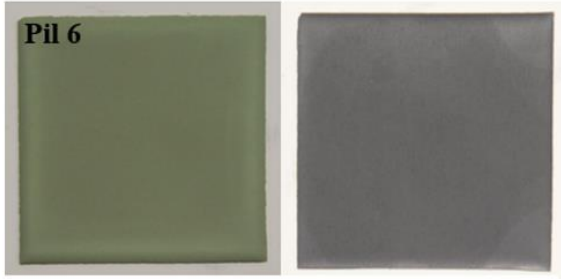
yerleştirildi. Şekil 3: Bir veya birkaç gözenekli alümina kapak plakalarıyla sinterlenmiş üç özdeş elektrolit destekli düzlemsel pillerin görüntülerini (pil 4, pil 5 ve pil 6) ortalama eğrilik yükseklikleri ile gösterir. Şekil 4: Nihai eğrilik içermeyen pili (pil 6) farklı perspektiflerden gösterir. Ek olarak: Şekil 3B'de gözenekli alümina plaka kütlesi ile ortalama eğrilik yüksekliği arasındaki ilişki olası bir $y = -0,0328 + 5,593 \cdot \exp(-0,081 \cdot x)$ denklemiyle gösterilmektedir. Bu elektrolit destekli düzlemsel TOKOYP'ler için plaka kütlesinin değişmesiyle ortalama eğrilik yüksekliğini öngörmek için kullanılabilir. Pil 2 ve Pil 4 özdeş pil olmalarına rağmen (60-300-40 μm , A-E-K, 40x40 mm GxU) pil 2 kısıtlama olmadan sinterlenirken pil 4 üzerine yerleştirilen 75x75 mm GxU gözenekli bir alümina plakası ile (kalınlık 1 mm ve kütlesi 16,45 g) sinterlenmiştir. Pil 2'de oluşan ortalama eğrilik yüksekliği 5,56 mm iken bu değer pil 4 için 1,11 mm olarak ölçülmüştür (neredeyse %80 düşüş) (bkz. Şekil 2, pil 2 ve Şekil 3, pil 4). Ancak bu kütle eğrilik içermeyen elektrolit destekli düzlemsel bir pil elde etmek için yeterli değildi. Bu nedenle pil 2 ve pil 4 ile özdeş olan bir pil daha yapıldı (pil 5) ve bu pil bu sefer üzerine yerleştirilen iki tane gözenekli alümina plakası ile (toplam kütle 32,9 g) sinterlenmiştir. Sonuç olarak ortalama eğrilik yüksekliği 0,38 mm'ye düştü (bkz. Şekil 3, pil 5). Bu pillerin aynısı olan başka bir pil (pil 6) daha yapıldı ve bu kez üzerine yerleştirilen 3 tane gözenekli alümina plakası (toplam kütle 49,35 g) ile sinterlenmiştir. Bunun sonucunda neredeyse eğrilik içermeyen elektrolit destekli düzlemsel bir pil elde edildi (bkz. Şekil 3 ve Şekil 4, pil 6). Şekil 3 ve Şekil 4'den görülebileceği gibi ortalama eğrilik yüksekliğindeki azalma, alümina plakasının kütlesindeki artışla doğrusal olarak orantılı değildir.



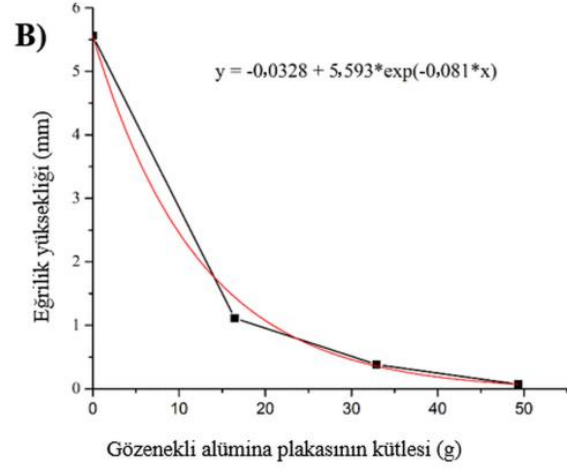
Ortalama eğrilik yüksekliği: 1,11 mm



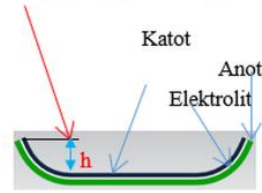
Ortalama eğrilik yüksekliği: 0,38 mm



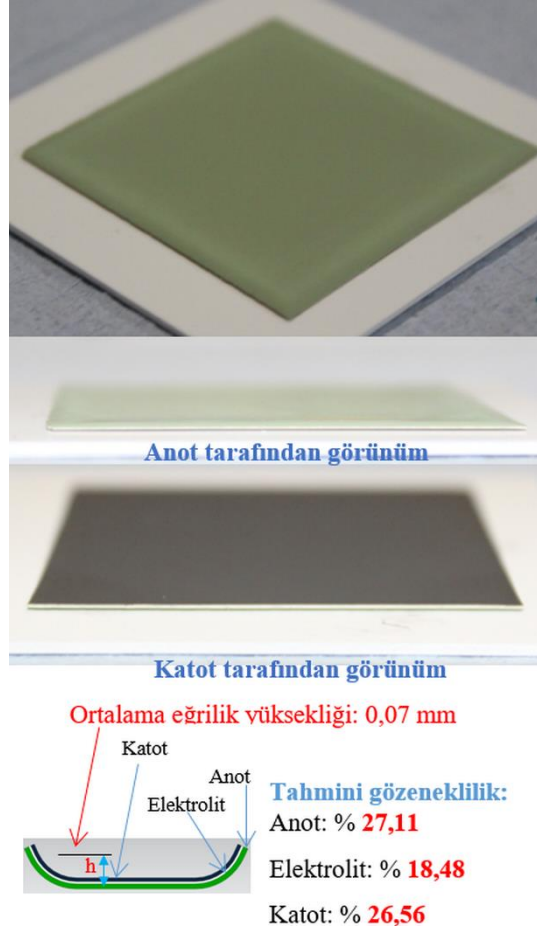
Ortalama eğrilik yüksekliği: 0,07 mm



Ortalama eğrilik yüksekliği



Şekil 3. A) Eğrilik oluşumunu baskılamak için gözenekli alümina plakaları ile sinterlenen Pil 1, Pil 2 ve Pil 3'ün sinterlenme sonuçları ile ortalama eğrilik yükseklikleri ve B) plaka ağırlığı ile eğrilik yüksekliği arasındaki ilişkiyi gösteren grafik ve bunun olası denklemi



Şekil 4. Neredeyse eğrilik içermeyen düzlemsel elektrolit destekli pilin (pil 6) farklı perspektiflerden görünüşleri ile anot, katot ve elektrolit tahmini gözeneklilik yüzdeleri

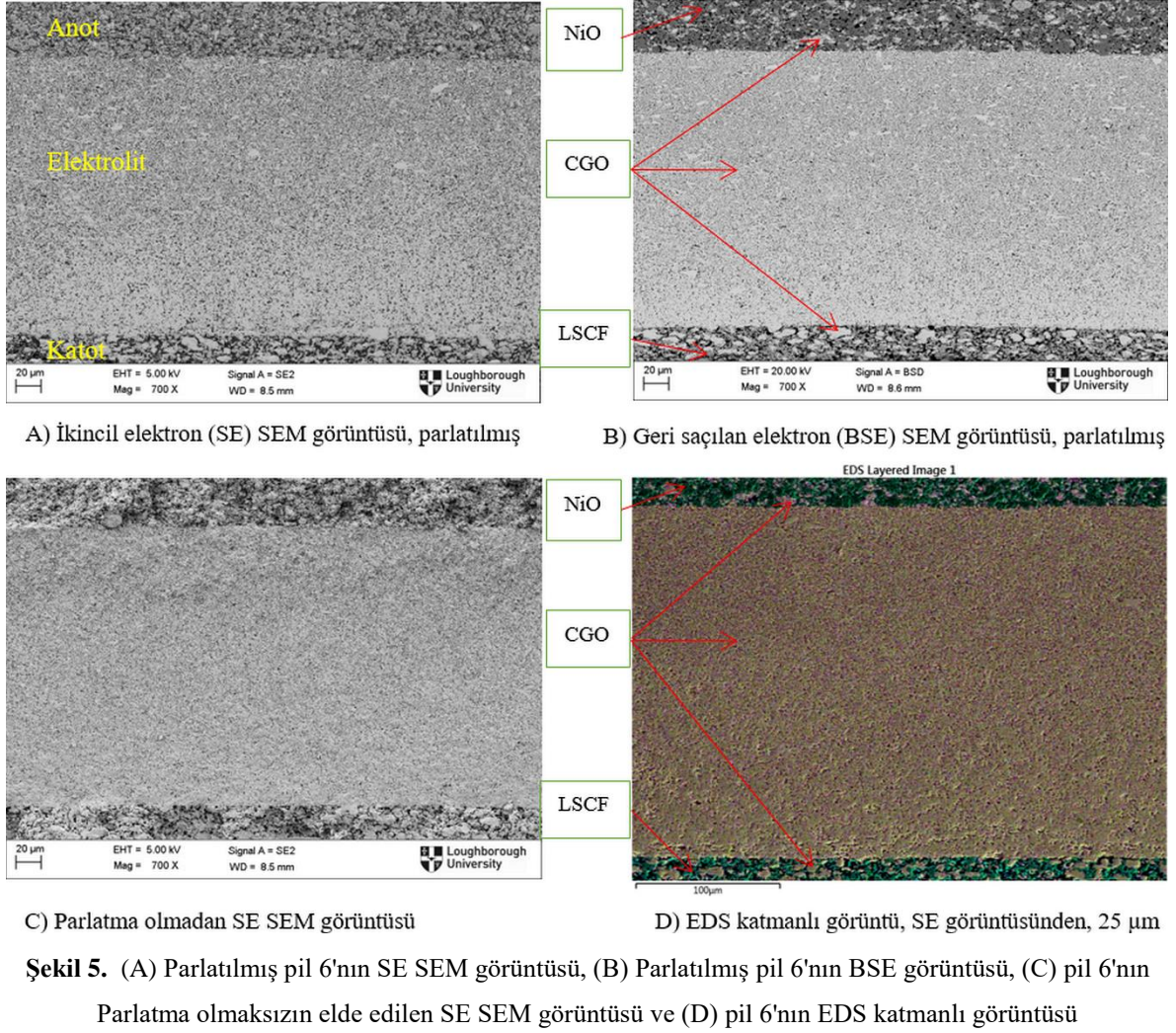
3.1.4. Sinterlenmiş Nihai Pilin Karakterizasyonu

Şekil 5: Nihai eğrilik içermeyen pilin (pil 6) SE ve BSE SEM ve EDS katmanlı görüntülerini göstermektedir. Ayrıca Tablo 2'de bu nihai pilin anot, katot ve elektrolitin tahmini gözenekliliği gösterilmektedir. Ek olarak: Tablo 2, pil 6'nın anot ve katotunun tahmini ortalama parçacık boyutunu ve ortalama gözenek boyutunu da özetler. Şekil 5'e göre katot katmanı pilin anot katmanlarına göre daha kaba tane yapısına sahiptir. LSCF katotunun daha yüksek sinterleme sıcaklığı nedeniyle bu beklendiği gibidir. Pil, CGO malzemesinin iyi bir şekilde sinterlenmesi için gereken sıcaklıktan daha düşük bir sıcaklıkta sinterlenmesinden dolayı gözenekli bir elektrolit yapıya sahiptir. Katmanlar arasında pil boyunca sürekli olarak iyi bir adezyon vardır. Ayrıca genellikle anot tarafındaki NiO'nun ve katot tarafındaki LSCF'nin bağlantısının makul olduğu görülmektedir ancak her iki tarafta da CGO'nun düşük bağlantısı vardır (bağlantılar arasında kopukluk), bu da elektrokimyasal reaksiyonlar için üçlü faz sınırını azaltabilir.

Tablo 2'ye göre pil 6'nın tahmini anot, elektrolit ve katot gözenekliliği sırasıyla: %27,11, %18,48 ve %26,56'dır. Ayrıca ortalama parçacık ve gözenek boyutları anot katmanı için sırasıyla: $2,307 \pm 1,715\mu\text{m}$ ve $1,102 \pm 0,621\mu\text{m}$, ve katot katmanı için ise sırasıyla: $2,767 \pm 2,343 \mu\text{m}$ ve $1,342 \pm 0,682$

μm olarak bulunmuştur. Katot katmanının bu ortalama parçacık ve gözenek boyutları, katodun iri taneli yapısından dolayı anot katmanının ortalama parçacık ve gözenek boyutlarından daha büyüktür.

Pil 6, kalınlık 60-300-40 μm , A-E-K, pil üzerine yerleştirilen üç adet 75x75 mm LxW gözenekli alümina kapak plakası ile sinterlenmiştir

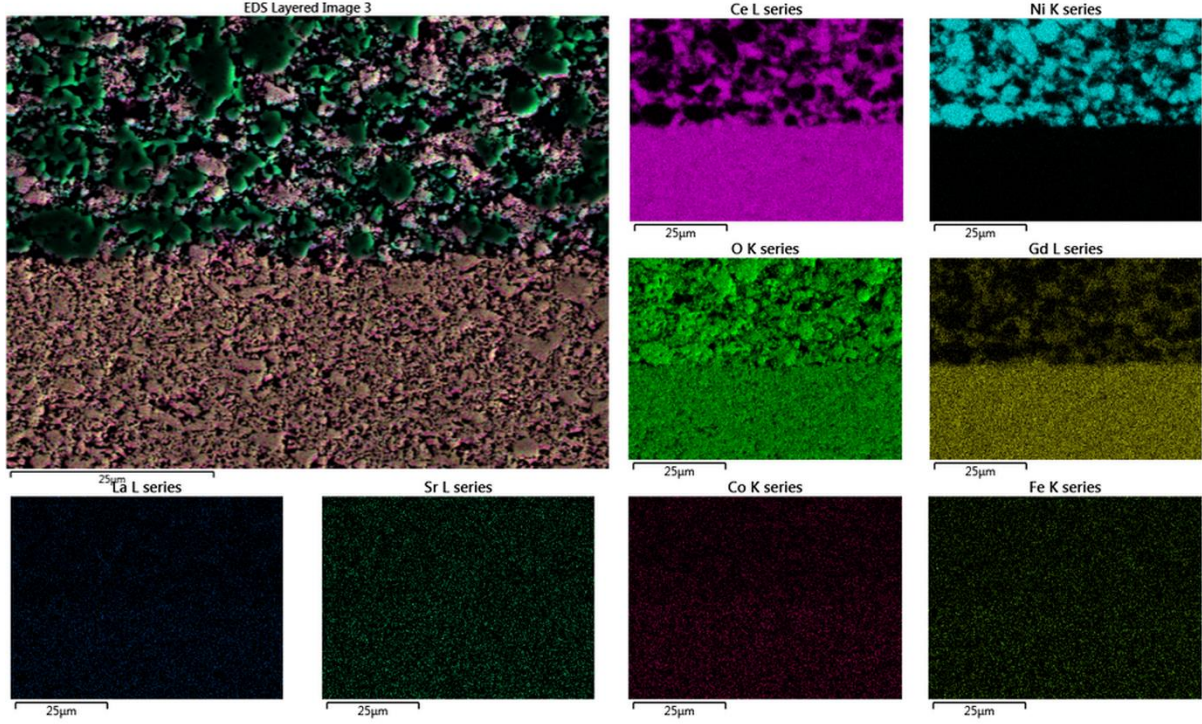


Tablo 2. Düzlemsel elektrolit destekli nihai pil olan pil 6'nın (kalınlık: 60-300-40 μm , A-E-K) elektrotlarının ve elektrolitinin gözeneklik yüzdeleri ile anot ve katodunun ortalama parçacık ve gözenek boyutları

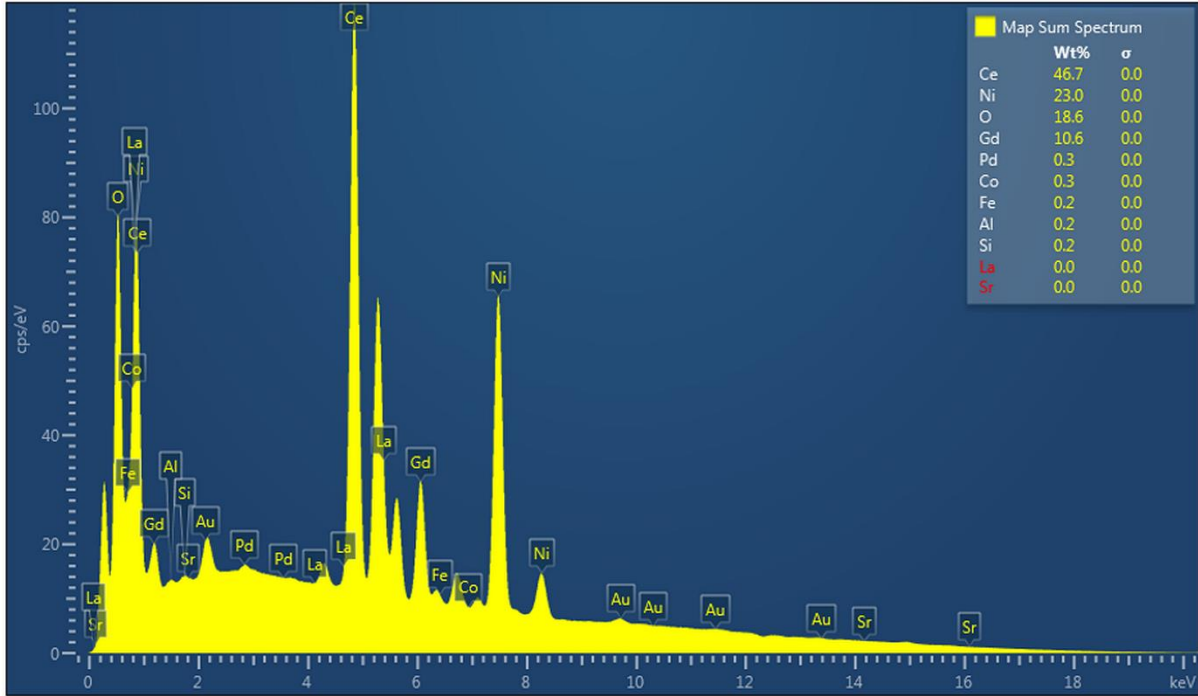
	Anot	Elektrolit	Katot
Gözeneklik (%)	27,11	18,48	26,56
Ortalama parçacık boyutu (μm)	2,307 \pm 1,715		2,767 \pm 2,343
Ortalama gözenek boyutu (μm)	1,102 \pm 0,621		1,342 \pm 0,682

Pile 6'nın EDS haritaları ve anot ve katot tarafından alınmış harita özeti spektrumları sırasıyla Şekil 6 ve Şekil 7'de gösterilmektedir. Şekil 6A'ya göre seryum (Ce), oksijen O, Ni ve gadolinyum Gd elementleri kompozit anot elektrodunun (NiO-CGO malzemedan oluşan) beklenen bölgesindedir. Anot katmanında, ister katot katmanından yayılan ister imalat işlemi sırasında gelen gözlemlenebilir hiçbir yabancı madde Şekil 6A'ya göre yoktur. Bununla birlikte Şekil 6B, anot bileşeninde aslında bazı yabancı maddelerin bulunduğunu göstermektedir. Anot tarafında alüminyum (Al), silisyum (Si), demir (Fe) ve kobalt (Co) gibi elementlerin gözlemlendiği görülmektedir. Fe ve Co gibi yabancı maddelerin bazıları büyük olasılıkla katot tarafından gözenekli elektrolit tabakası boyunca yayılmıştır. Altın (Au) ve paladyumun (Pd) varlığı ise muhtemelen SEM görüntüleme öncesinde bu elementlerin pil yüzeylerine püskürtülmesinden kaynaklanmaktadır. Bu püskürtmenin amacı önceden bahsedildiği gibi SEM görüntülerinin alınabilmesi için pilin iletken hale getirilmesidir. Al'ın varlığı ise muhtemelen ya gözenekli alümina kaplama plakasından ya da alt alümina tabakadan kaynaklanmaktadır. Ek olarak: Si, üretim sürecinin herhangi bir aşamasında yapıya girmiş olabilir. Benzer şekilde Şekil 7A; katot elektrotlarını oluşturan lantan (La), stronsiyum (Sr), Co, Fe, Ce, O ve Gd elementlerinin de öngörülen alanda olduğunu göstermektedir. Katot tarafında da anot tarafında görülen ve benzer sebeplerden kaynaklanan bazı safsızlıklar (Al, Si ve Pd) gözlemlendi (Şekil 7B). Ancak katot tarafında herhangi Ni elementin varlığı gözlemlenmedi (bkz. Şekil 7B). Bu yabancı maddelerin anot ve katot tarafındaki miktarları oldukça az olsa da pilin aktif reaksiyon alanlarını bloke ederek pil performansının düşmesine neden olabilirler.

A) Pil 6'nın EDS haritasının anot tarafından alınmış görüntüleri

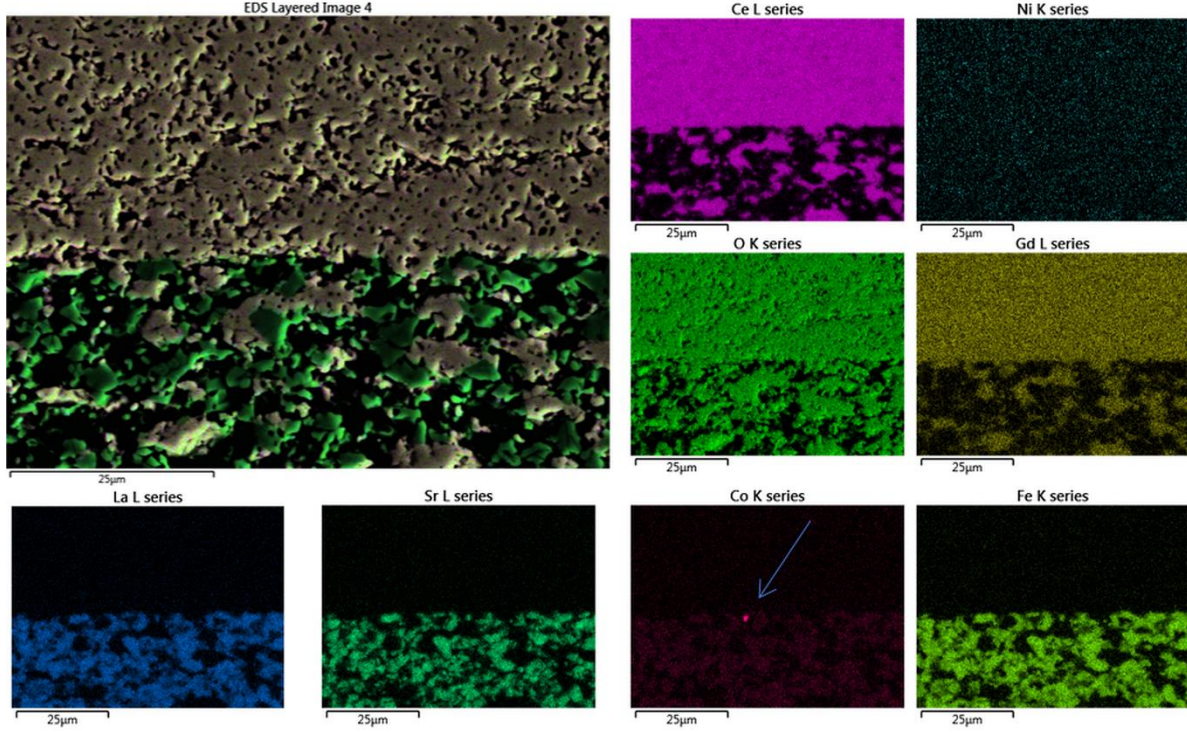


B) Pile 6'nın anot tarafından alınmış EDS harita özeti spektrumları

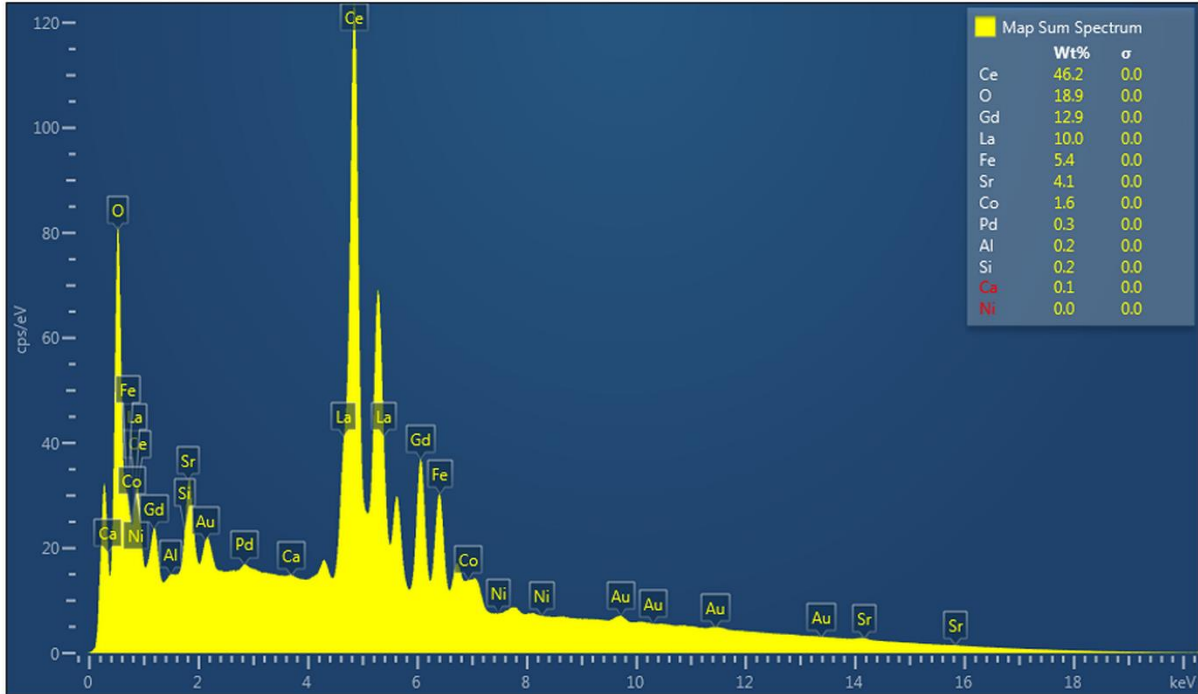


Şeki 6 A) Pil 6'nın EDS haritasının anot tarafından alınmış görüntüleri ve B) Pil 6'nın yine anot tarafından alınmış EDS harita özeti spektrumları, pil 6: 60-300-40 µm, A-E-C, kalınlığa sahiptir ve üzerine yerleştirilen üç adet 75x75 mm alümina gözenekli kapak plakası ile sinterlenmiştir

A) Pil 6'nın EDS haritasının katot tarafından alınmış görüntüleri



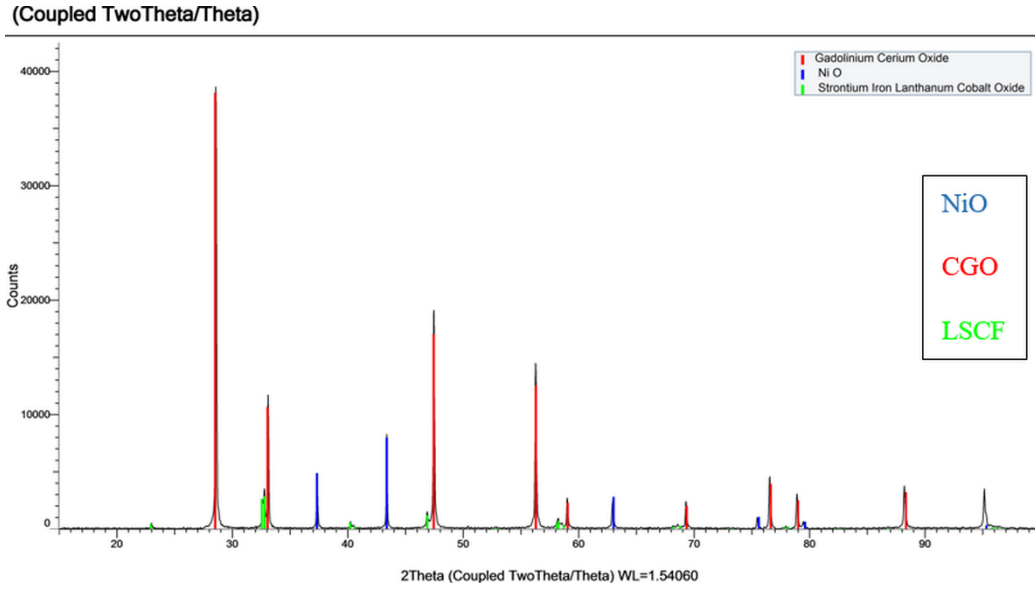
B) Pile 6'nın katot tarafından alınmış EDS harita özeti spektrumları



Şekil 7. A) Pil 6'nın EDS haritasının katot tarafından alınmış görüntüleri ve B) Pil 6'nın yine katot tarafından alınmış EDS harita özeti spektrumları

Ek olarak: Şekil 8'de pil 6'nın XRD kırınım pikleri gösterilmektedir. Bu şekle göre anot, elektrolit ve katot katmanları oluşturan NiO, CGO ve LSCF fazları net olarak görülmektedir. Ayrıca pil 6'nın harita

özeti spektrumunda (Şekil 6 ve 7) bazı istenmeyen faz oluşumlarına yol açabilecek safsızlıklar gözlenmesine rağmen Şekil 8'e göre sinterleme sonrasında pilde istenmeyen faz oluşumları yoktur.



Şekil 8. Pil 6'nın X-Işını kırınım pikleri (Pil kalınlığı: 60-300-40 μm , A-E-K, üç adet 75x75 mm GXU alümina kapak plakası üzerine yerleştirilerek sinterlenmiştir)

3.2. Pil Performans Test Sonuçları

Şekil 9: Pil 1 ve pil 6'nın OCV ve polarizasyon sonuçlarını göstermektedir. Ayrıca Tablo 3: Bu iki pilin belirli gaz karışımlarındaki OCV ve maksimum güç yoğunluklarını vermektedir. Şekil 9A'ya göre pil 1'in en yüksek güç yoğunluğu ve OCV'si yakıt açısından zengin gaz karışımlarında (gaz karışımı 1, gaz karışımı 4 ve gaz karışımı 7, R: 2,6) elde edilmiştir. Pil 1'in maksimum OCV'si, tüm gaz karışımları içerisinde gaz karışımı 4'te (80-31-100 ml dk⁻¹, CH₄-O₂-N₂, R: 2,6) 0,65 V olarak ölçüldü ve bu karışımdaki maksimum güç yoğunluğu ise 24,32 mW cm⁻² olarak elde edildi. Ancak maksimum güç yoğunluğu 7 numaralı gaz karışımında (100-38-100 ml dk⁻¹, CH₄-O₂-N₂, R: 2,6) 29,39 mW cm⁻² olarak elde edilmiştir. Bu karışımdaki maksimum OCV ise 0,55 V olarak ölçülmüştür (bkz. Şekil 9A ve Tablo 3). Benzer eğilimler pil 6'da da gözlemlendi. Maksimum güç yoğunluğu ve OCV değerleri yakıt açısından zengin gaz karışımları olan gaz karışımları 1, 4 ve 7'de elde edildi (R: 2,6). Ayrıca elektrolit kalınlığı 200 μm 'den (pil 1) 300 μm 'ye (pil 6) artırıldığında pil OCV'si ve güç yoğunluğu R:2,6 ve R:1,8'lik yakıt/oksijen oranlarının neredeyse tamamında azaldı, ancak genellikle R:1'de arttı. Pil 6'nın maksimum OCV'si ve güç yoğunluğu gaz karışımı 7'de elde edildi ve sırasıyla: 0,55 V ve 14,4 mW cm⁻² olarak ölçüldü (bkz. Tablo 3 ve Şekil 9B). Artan elektrolit kalınlığına bağlı olarak pil performansının azalmasının nedeni: Esas olarak artan elektrolit kalınlığının, katot tarafından anot tarafına artan O²⁻ yolu nedeniyle yüksek ohmik kayıplara neden olması gerçeğine atfedilebilir (Morales ve ark., 2009; Ding ve ark., 2010). Ayrıca önceden bahsettiğimiz gibi piller tek odacıklı pil tutucusunda akış yönüne dik olarak yerleştirildi. Metan, oksijen ve nitrojen gazların karışımından oluşan gaz karışımı ilk olarak katot yüzeyine temas ettikten sonra elektrolitin gözenekli yapısından dolayı anot tarafına geçerler. Bu olayda

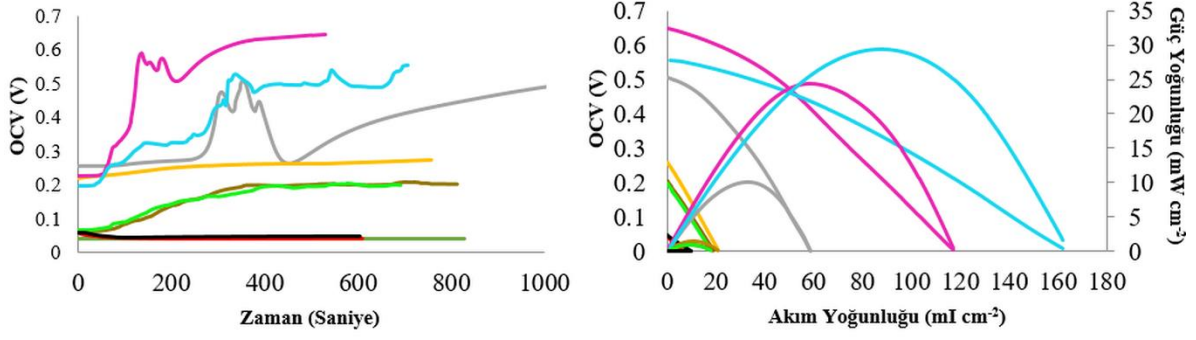
metan ve oksijen gazları elektrolitin gözenekli olmasından dolayı anot tarafına konveksiyon ve difüzyonla geçmektedir. Burada dikkat edilmesi gereken nokta, O₂ hazının mol kütlelerinin (32 g) CH₄ (16 g) gazının mol kütlelerinden büyük olmasıdır. Bu durumda metan gazının difüzyonu oksijen gazının difüzyonundan daha iyidir sonucu çıkarılabilir. Böylelikle her ne kadar metan gazının katottan anoda difüzyonu veya taşını mı artan elektrolit kalınlığı ile birlikte bir miktar düşse de bu oksijen gazının difüzyonuna göre daha küçük olacaktır. Dolayısıyla artan elektrolit kalınlığı ile birlikte katotta daha fazla O₂ birikecek buda anot ve katottaki oksijen kısmi basınç farkını artıracaktır. Sonuç olarak OCV artacaktır. Bununla birlikte elektrolit kalınlığının artması, anot yüzeyi boyunca metan dönüşümü sunucunda meydana gelen H₂ ve CO gazların anottan katoda gözenekli elektrolit yapısından dolayı meydana gelen difüzyonun mesafesini artırır. Bu durum oluşan bu yan gazların çoğunluğun katotta kimyasal reaksiyona girmeden anotta elektrokimyasal reaksiyona girmesi ile sonuçlanır ve böylece daha iyi pil performansı elde edilir. Azalan pil performansı, elektrolit kalınlığını artırmanın faydasının kalınlık artırmanın olumsuz etkilerinden daha az olduğunu göstermektedir. Zayıf gaz koşullarında (R:1) pil performansındaki artış aynı mantık ile açıklanabilir. Fakat bu durumda gaz karışımı zayıf karışım olduğunda yani metan oranı (gaz karışımı, 3, 6 ve 9) zengin karışımlara göre (gaz karışımı 1, 2, 4, 5, 7 ve 8) daha az olduğundan bir önceki cümlede bahsettiğimiz tam tersi bir olay gerçekleşmiş olabilir. Bir başka deyişle artan pil performansı, elektrolit kalınlığının artırmanın pozitif etkisinin negatif etkisinden daha fazla olduğunu göstermektedir. Ek olarak: Farklı gaz karışımlarında her iki pildeki OCV salınımı, anotun ince bir katmana sahip olması nedeniyle temel olarak Ni oksidasyonu/indirgenmesinden kaynaklanıyor olabilir (Kuhn ve Napporn, 2010; Wang ve ark., 2013).

Ayrıca metan ve oksijen gazlarının miktarının arttırılmasıyla gönderilen gaz karışımının toplam miktarı arttırılmıştır (bkz. Tablo 3). Yakıt /oksijen oranı 2,6 olan gaz karışımlarında toplam gaz karışım miktarını arttırmak genel olarak pil 1 ve pil 6'nın performansı üzerinde olumlu etki yapmıştır. Fakat bu durum R: 1,8 ve R: 1 yakıt/hava oranına sahip gaz karışımlarında ağırlıklı olarak negatif bir etki yapmıştır. Pil performansındaki artış artan gaz akış hızıyla birlikte yüzey değişim katsayısının ve sıcaklığın artmasıyla açıklanabilir (Morales ve ark., 2009; Kuhn ve Napporn, 2010). Sıcaklığın artması katalitik aktiviteyi arttıracığından pil performansı artar. Ayrıca yüzey değişim kat sayısının artması anot tarafında daha fazla metanın reforme edilmesine ve oluşan yan gazlar H₂ ve CO'nun daha fazla miktarda elektrokimyasal reaksiyona girmesine yol açar. Bu durum doğal olarak performansın artmasına sebep olur. Ancak artan toplam gaz akış hızına rağmen karışımdaki metan oranı azaldığında yakıt açısından zengin gaz karışımlarına kıyasla zayıf gaz karışımlarında performansta düşüşler gözlemlenebilir. Yakıt açısından zengin gaz karışımlarında anot tarafında yeterli metan yüzdesi olacağından bunun sonucunda azalan bekleme süresi daha fazla metanın reforme edilmesini kolaylaştırabilir. Bununla birlikte anot tarafında yeterli metan yoksa, kalma süresinin azalması yakıt açısından zengin gaz karışımlarına kıyasla zayıf gaz karışımlarında anot yüzeyinde daha az metan ancak daha fazla O₂ adsorbe edildiği bir duruma neden olabilir. Bu nedenle daha az reformasyon sağlanır ve dolayısıyla pil performansında azalma olur.

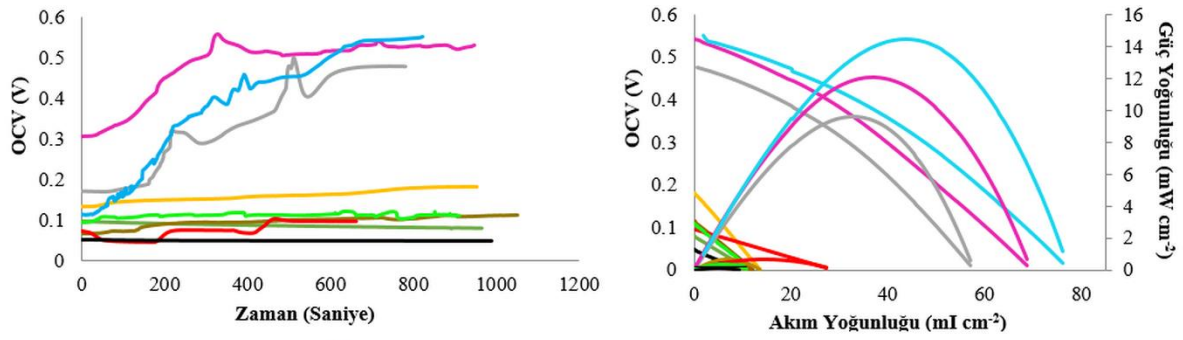
Şekil 9A, 9B ve Tablo 3: Tüm sabit metan ve nitrojen gazları içeren gaz karışımlarında artan O₂ miktarının pillerin OCV'si ve güç yoğunluğu üzerinde olumsuz etkileri olduğunu göstermektedir. Bunun nedeni: Anot destekli pile kıyasla elektrolit destekli pilde düşürülmüş anot kalınlığının sebep olduğu etkilerdir. Anot, metan gazını yeniden düzenlemek ve ayrıca sentez gazlarının (H₂ ve CO) oksijen iyonları ile elektrokimyasal reaksiyonuna girmesini sağlamak için yeterli aktif yüzey alanına sahip olması gerekir (Buccheri ve ark., 2011; Meunier, 2016). Yeterli metan reformasyonu olmazsa anot tarafında oksijen kısmi basıncı artar dolayısıyla anot ve katot arasındaki oksijen kısmi basınç farkı azalır. Sonuç olarak Nernst denkleminde göre OCV azalır. Ayrıca yeteri miktarda H₂ ve CO üretilmediği için pil performansı da düşer. Bu nedenle ince anoda yakıt açısından daha zengin bir gaz karışımının (Meunier, 2016) gönderilmesi beklenir. Bu, ince anot katmanından kaynaklanan etkili reforme edici katalitik alanın bulunmaması nedeniyle azalan metan reformasyonunu telafi etmek amacıyla daha fazla metanın reforme edilmesine yardımcı olacaktır. Gaz karışımındaki artan metan gazı oranı ile birlikte anot aktif yüzey alanlarında oksijen adsorpsiyonu azalacak ve daha fazla metan gazı adsorbe olacaktır. Bu da daha fazla metan gazının reaksiyona girmesi ile sonuçlanır. Ancak tüm sabit metan ve nitrojen gazları içeren gaz karışımlarındaki oksijen gaz miktarının artması toplam gaz karışımlarındaki CH₄ oranının azalmasına sebep olur. Oksijen gazı miktarının artması nedeniyle anottaki yüzey alanları O adsorpsiyonu tarafından daha fazla işgal edilecektir. Başka bir deyişle oksijen gazı Ni yüzeyindeki adsorpsiyon alanları için metan gazı ile rekabet eder ve artan O₂, CH₄'ün kısmi oksidasyonu üzerinde engelleyici bir etkiye neden olur (Meunier, 2016). Bu nedenle tam metan reformasyonu daha az meydana gelir ve dolayısıyla OCV ve güç yoğunluğu azalır. Ayrıca pilin elektrokimyasal reaksiyonlarına katılmayan H₂O ve CO₂'nin oluşumu, artan O₂ ile birlikte artar (Meunier, 2016) ve dolayısıyla pil performansı düşer.

Özetlemek gerekirse: Pil 1'e göre daha kalın elektrolite sahip olan pil 6'nın performans sonuçları, tek aşamalı ortak sinterleme yoluyla düzlemsel bir elektrolit destekli pil elde etmek için artırılan elektrolit kalınlığının pil performansı üzerinde olumsuz etkisi olduğunu göstermektedir. Genel olarak pil performansının literatürdeki elektrolit destekli TO-KOYP'lerle karşılaştırıldığında nispeten düşük olduğu bulunmuştur. Bu muhtemelen referans (Sayan ve ark., 2023) bahsedilen anot destekli TO-KOYP'lerin düşük pil performansına sebep olan nedenlerdir. Örneğin: her iki elektrottaki safsızlıklar (bkz. Şekil 6 ve Şekil 7), kataliz zehirlenmesi, CGO elektrolitinin indirgenmesi vb.

A) Pil 1'in (kalınlık: 60-200-40 μm , A-E-K) farklı akış hızı ve gaz karışımındaki OCV ölçümleri ve polarizasyon sonuçları



B) Pil 6'nin (kalınlık: 60-300-40 μm , A-E-K) farklı akış hızı ve gaz karışımındaki OCV ölçümleri ve polarizasyon sonuçları



- Gaz karışımı: $\text{CH}_4\text{-O}_2\text{-N}_2$ mL dk^{-1}
- Gaz karışımı 1 : 40-15-100 mL R:2,6
 - Gaz karışımı 2 : 40-22-100 mL R:1,8
 - Gaz karışımı 3 : 40-40-100 mL R:1
 - Gaz karışımı 4 : 80-31-100 mL R:2,6
 - Gaz karışımı 5 : 80-44-100 mL R:1,8
 - Gaz karışımı 6 : 80-80-100 mL R:1
 - Gaz karışımı 7 : 100-38-100 mL R:2,6
 - Gaz karışımı 8 : 100-56-100 mL R:1,8
 - Gaz karışımı 9 : 100-100-100 mL R:1

Şekil 9. A) Pil 1 ve B) Pil 2'nin farklı akış hızı ve gaz karışımındaki OCV ölçümleri ve polarizasyon sonuçları, R, yakıt/oksijen oranı

Tablo 3. Farklı gaz karışımlarında pil 1 ve pil 6'nın maksimum OCV ve güç yoğunluğu sonuçları

		Pil 1		Pil 6	
		<i>Kalınlık 60-200-40 μm</i>		<i>Kalınlık 60-300-40 μm</i>	
		<i>A- E- C</i>		<i>A-E- C</i>	
		OCV (V)	Güç yoğunluğu (mW cm^{-2})	OCV (V)	Güç yoğunluğu (mW cm^{-2})
Sabit CH ₄ (40ml/dk) ve Sabit N ₂ (100 ml/dk)	Gaz karışımı 1 (R:2,6)	0,5	10,04	0,48	9,6
	Gaz karışımı 2 (R:1,8)	0,27	1,42	0,18	0,63
	Gaz karışımı 3 (R:1)	0,04	0,084	0,08	0,22
Sabit CH ₄ (80ml/dk) ve Sabit N ₂ (100 ml/dk)	Gaz karışımı 4 (R:2,6)	0,65	24,32	0,53	12,03
	Gaz karışımı 5 (R:1,8)	0,2	1,01	0,11	0,34
	Gaz karışımı 6 (R:1)	0,042	0,07	0,095	0,69
Sabit CH ₄ (100ml/dk) ve Sabit N ₂ (100 ml/dk)	Gaz karışımı 7 (R:2,6)	0,55	29,39	0,55	14,4
	Gaz karışımı 8 (R:1,8)	0,2	0,93	0,11	0,33
	Gaz karışımı 9 (R:1)	0,047	0,13	0,046	0,11

4. Sonuçlar

Anot ve katot destekli pillerin konfigürasyonu için oluşturulan tek aşamalı ortak sinterleme tekniği kullanılarak elektrolit destekli düzlemsel bir TO-KOYP üretildi. İyi tanımlanmış kalınlık ve kalınlık oranına sahip elektrolit destekli düzlemsel bir pilin optimize edilmiş sıcak presleme ve sinterleme koşulları ile birlikte tek aşamada ortak sinterleme ile üretilebilirliği görüldü. Sonuçlar: Sinterleme sırasında delaminasyon ve çatlamanın olmadığı ancak pilin kenarlarında eğriliğin oluştuğunu gösterdi. Pilin diğer konfigürasyonlarında yapıldığı gibi eğrilik oluşumunu bastırmak ve düzlemsel ve eğriliksiz

pil elde etmek için gözenekli alümina kapak plakası kullanıldı. Pilin üst yüzeyine yerleştirilen toplam kütlesi 49,35 g olan üç adet gözenekli alümina kapak plakası kullanılarak neredeyse eğrilik içermeyen elektrolit destekli bir pil başarıyla elde edildi. SEM, EDS ve XRD karakterizasyon teknikleri; sinterlenmiş nihai pilin tahmini gözenekliliğini, ortalama parçacık ve gözenek boyutunu ölçmek ve pildeki olası safsızlıkları ile birlikte istenmeyen faz oluşumlarını tespit etmek amacıyla kullanılmıştır. Sonuç: Pilde istenmeyen faz oluşumlarının olmadığını ancak Fe ve Co gibi bazı elementlerin katottan anot katmanına yayıldığını gösterdi. Ayrıca pilin anot ve katotunda Al, Si vb. gibi başka elementler de tespit edildi.

Piller, pillerin göreceli enerji dönüşüm kapasitesini ve elektrolit kalınlığının pil performansı üzerindeki etkisini araştırmak için test edildi. Maksimum güç yoğunluğu, yakıt açısından oldukça zengin koşullarda (gaz karışımı 7, 100-38-100 ml dk⁻¹, CH₄-O₂-N₂, R:2,6) 29,39 mW cm⁻² olarak pil 6'ya kıyasla ince bir elektrolite sahip olan pil 1'den elde edilmiştir. Bu gaz karışımında pil 1'in maksimum OCV'si 0,55 V olarak ölçülmüştür. Elektrolit kalınlığı arttığında (pil 6) artan ohmik kayıplardan dolayı pil performansı önemli ölçüde azaldı. Pil 6'nın maksimum OCV ve güç yoğunluğu gaz karışımı 7'de (100-38-100 ml dk⁻¹, CH₄-O₂-N₂, R:2,6) sırasıyla 0,55 V ve 14,4 mW cm⁻² olarak ölçülmüştür. Bu nedenle eğrilsiz düzlemsel pil elde etmek amacıyla elektrolit kalınlığının artırılması pil performansı üzerinde olumsuz etkilere neden olmuştur.

Çıkar Çatışması Beyanı

Makale yazarları aralarında herhangi bir çıkar çatışması olmadığını beyan ederler.

Araştırmacıların Katkı Oranı Beyan Özeti

Yazarlar makaleye eşit oranda katkı sağlamış olduklarını beyan ederler.

Teşekkür

Çalışma, Türkiye Cumhuriyeti Milli Eğitim Bakanlığı ile birlikte EPSRC'nin Hindistan-İngiltere İşbirliğine Dayalı Yakıt Pilleri Araştırma Girişimi Projesi tarafından desteklenen "Katı Oksit Yakıt Pillerinin Hızlandırılmış Yaşlanması ve Bozunmasının Modellenmesi" (EP/I037059/1) projesi ile desteklenmiştir. Ayrıca Birleşik Krallık-Kore İşbirlikçi Araştırma Etkinliği Projesi (EP/M02346X/1) EPSRC'nin Yakıt Pillerinde "SOFC Yığınlarının İzlenmesi ve Kontrolü İçin Yeni Teşhis Araçları ve Teknikleri" konulu projesi ile destek vermiştir. Yazarlar yukarıda adı geçen tüm destekçilere sağladıkları finansmandan dolayı minnetle teşekkür ederler.

Referanslar

Ao G., Yan Y., Zhao P., Pan Z., Lv Z. ve Wang, Z. Enhanced redox and reoxidation tolerances of Ce_{0.8}Gd_{0.2}O_{1.9} electrolyte for Ni cermet anodes in single-chamber SOFCs. Journal of Solid State Electrochemistry 2022; 26(3): 865–873. doi:10.1007/s10008-022-05130-0

- Bedon A., Viricelle JP., Rieu M., Mascotto S. ve Glisenti A. Single chamber solid oxide fuel cells selective electrodes: A real chance with brownmillerite-based nanocomposites. *International Journal of Hydrogen Energy* 2021; 46(27): 14735–14747. doi:10.1016/j.ijhydene.2021.01.220
- Briault P., Rieu M., Laucournet R., Morel B., Viricelle JP. Anode supported single chamber solid oxide fuel cells operating in exhaust gases of thermal engine. *Journal of Power Sources* 2014; 268: 356–364. doi:10.1016/j.jpowsour.2014.06.061
- Buccheri MA., Singh A., Hill JM. Anode- versus electrolyte-supported Ni-YSZ/YSZ/Pt SOFCs: Effect of cell design on OCV, performance and carbon formation for the direct utilization of dry methane. *Journal of Power Sources* 2011; 196(3): 968–976. doi:10.1016/j.jpowsour.2010.08.073
- Bukhari M., Mohsin M., Kayani ZN., Rasool S., Raza R. The La⁺³-, Nd⁺³-, Bi⁺³-doped ceria as mixed conductor materials for conventional and single-component solid oxide fuel cells. *Energies* 2023; 16(14). doi:10.3390/en16145308
- Catalano M., Taurino A., Zhu J., Crozier PA., Dal Zilio S., Amati M., Mele C. Dy- and Tb-doped CeO₂-Ni cermets for solid oxide fuel cell anodes: electrochemical fabrication, structural characterization, and electrocatalytic performance. *Journal of Solid State Electrochemistry* 2018; 22(12): 3761–3773. doi:10.1007/s10008-018-4064-2
- Choi I. Fabrication of wavy type via in-situ observation of curvature evolution during Fabrication of wavy type porous triple-layer SC-SOFC via in-situ observation of curvature evolution during co-sintering. Loughborough University, Loughborough, United Kingdom, 2015. <https://dspace.lboro.ac.uk/dspace-jspui/bitstream/2134/18668/1/Thesis-2015-Choi.pdf> adresinden erişildi.
- Deepi AS., Dharani Priya S., Samson Nesaraj A., Selvakumar AI. Component fabrication techniques for solid oxide fuel cell (SOFC)–A comprehensive review and future prospects. *International Journal of Green Energy* 2022; 19(14): 1600–1612. doi:10.1080/15435075.2021.2018320
- Ding C., Lin H., Sato K., Amezawa K., Kawada T., Mizusaki J., Hashida, T. Effect of thickness of Gd_{0.1}Ce_{0.9}O_{1.95} electrolyte films on electrical performance of anode-supported solid oxide fuel cells. *Journal of Power Sources* 2010; 195(17): 5487–5492. doi:10.1016/j.jpowsour.2010.03.075
- Gu B., Sunarso J., Zhang Y., Song Y., Yang G., Zhou W., Shao Z. A high performance composite cathode with enhanced CO₂ resistance for low and intermediate-temperature solid oxide fuel cells. *Journal of Power Sources* 2018; 405(July): 124–131. doi:10.1016/j.jpowsour.2018.10.025
- Hussain S., Yangping L. Review of solid oxide fuel cell materials: cathode, anode, and electrolyte. *Energy Transitions* 2020; 4(2): 113–126. doi:10.1007/s41825-020-00029-8
- Kamvar M., Ghassemi M., Steinberger-Wilckens R. The numerical investigation of a planar single chamber solid oxide fuel cell performance with a focus on the support types. *International Journal of Hydrogen Energy* 2020; 45(11): 7077–7087. doi:10.1016/j.ijhydene.2019.12.220
- Kuhn M., Napporn TW. Single-chamber solid oxide fuel cell technology-from its origins to today's state of the art. *Energies* 2010; 3(1): 57–134. doi:10.3390/en3010057

- Lyu Y., Xie J., Wang D., Wang J. Review of cell performance in solid oxide fuel cells. *Journal of Materials Science* 2020; 55(17): 7184–7207. doi:10.1007/s10853-020-04497-7
- Mahmud LS., Muchtar A., Somalu MR. Challenges in fabricating planar solid oxide fuel cells: A review. *Renewable and Sustainable Energy Reviews* 2017; 72(January): 105–116. doi:10.1016/j.rser.2017.01.019
- Mariño M., Breuil P., Rieu M., Jamon D., Rampnoux JM., Viricelle JP., Garrelie F. Simulation of nanosecond IR laser annealing of cerium gadolinium oxide. *Journal of the European Ceramic Society* 2018; 38(11): 3875–3880. doi:10.1016/j.jeurceramsoc.2018.04.035
- Mariño M., Rieu M., Viricelle JP., Garrelie F. Laser induced densification of cerium gadolinium oxide: Application to single-chamber solid oxide fuel cells. *Applied Surface Science* 2016; 374: 370–374. doi:10.1016/j.apsusc.2015.12.220
- Maryland Tape Casting 2016. <http://www.marylandtapecasting.com/> adresinden erişildi.
- Meunier M. Performance and ageing of an anode-supported SOFC operated in single-chamber conditions. *Journal of Power Sources* 2016; 153(1): 108–113. doi:10.1016/j.jpowsour.2005.03.138
- Milcarek RJ., Garrett MJ., Welles TS., Ahn, J. Performance investigation of a micro-tubular flame-assisted fuel cell stack with 3,000 rapid thermal cycles. *Journal of Power Sources* 2018; 394(May): 86–93. doi:10.1016/j.jpowsour.2018.05.060
- Minh N. Solid oxide fuel cell technology features and applications. *Solid State Ionics* 2004; 174(1–4): 271–277. doi:10.1016/j.ssi.2004.07.042
- Morales M., Piñol S., Segarra M. Intermediate temperature single-chamber methane fed SOFC based on Gd doped ceria electrolyte and $\text{La}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{CoO}_{3-\delta}$ as cathode. *Journal of Power Sources* 2009; 194(2): 961–966. doi:10.1016/j.jpowsour.2009.05.027
- Nurk G., Kooser K., Urpelainen S., Käämbre T., Joost U., Kodu M., Lust E. Near ambient pressure X-ray photoelectron - and impedance spectroscopy study of $\text{NiO} - \text{Ce}_{0.9}\text{Gd}_{0.1}\text{O}_{2-\Delta}$ anode reduction using a novel dual-chamber spectroelectrochemical cell. *Journal of Power Sources* 2018; 378(January): 589–596. doi:10.1016/j.jpowsour.2017.12.080
- Özel S., Aslan K. Investigation of the effect of Cr_2O_3 particles on al-si matrix composites produced by powder metallurgy. *Bitlis Eren Üniversitesi Fen Bilimleri Dergisi* 2023; 12(2): 387–395. doi:10.17798/bitlisfen.1223482
- Özel S., Hamidli, T. Investigation of $\text{ZrO}_2\text{-Y}_2\text{O}_3$ added al matrix composites produced by T/M method. *Bitlis Eren Üniversitesi Fen Bilimleri Dergisi* 2022; 11(4): 1042–1049. doi:10.17798/bitlisfen.1169380
- Sayan Y., Kim JS., Wu H. Performance of anode supported single chamber solid oxide fuel cells produced in various thicknesses by single-step co-sintering. *International Journal of Engineering Research and Development* 2023; 15(1): 195–211.
- Sayan Y., Venkatesan V., Guk E., Wu H., Kim, JS. Single-step fabrication of an anode supported planar single-chamber solid oxide fuel cell. *International Journal of Applied Ceramic Technology* 2018;

15(6): 1375–1387. doi:10.1111/ijac.13012

Singhal SC., Kendall K. High temperature solid oxide fuel cells: fundamentals, design and applications. Oxford: Elsevier Advanced Technology; 2003.

Su H., Hu YH. Progress in low-temperature solid oxide fuel cells with hydrocarbon fuels. *Chemical Engineering Journal* 2020a; 402(April): 126235. doi:10.1016/j.cej.2020.126235

Su H., Hu YH. Progress in low-temperature solid oxide fuel cells with hydrocarbon fuels. *Chemical Engineering Journal* 2020b; 402(June): 126235. doi:10.1016/j.cej.2020.126235

Tian Y., Lü Z., Wang Z., Wei B., Guo X., Wu P. Effect of the angle between gas flow direction and electrode on single-chamber SOFC stacks. *Journal of Solid State Electrochemistry* 2019; 23(6): 1651–1657. doi:10.1007/s10008-019-04266-w

Tian Y., Wu P., Zhang X., Guo X., Ding L. Performance of a linear array solid oxide fuel cell micro-stack operated in single-chamber conditions. *Ionics* 2020; 26(12): 6217–6224. doi:10.1007/s11581-020-03780-6

Timurkutluk B., Timurkutluk C., Mat MD., Kaplan Y. A review on cell/stack designs for high performance solid oxide fuel cells. *Renewable and Sustainable Energy Reviews* 2016; 56: 1101–1121. doi:10.1016/j.rser.2015.12.034

Wang ZH., Lü Z., Chen KF., Wei B., Zhu XB., Huang XQ., Su WH. Redox tolerance of thin and thick Ni/YSZ anodes of electrolyte-supported single-chamber solid oxide fuel cells under methane oxidation conditions. *Fuel Cells* 2013; 13(6): 1109–1115. doi:10.1002/fuce.201200050

Wei L., Zhang J., Yu F., Zhang W., Meng X., Yang N., Liu S. A novel fabrication of yttria-stabilized-zirconia dense electrolyte for solid oxide fuel cells by 3D printing technique. *International Journal of Hydrogen Energy* 2019; 44(12): 6182–6191. doi:10.1016/j.ijhydene.2019.01.071

Yusenko MV., Belyaev VD., Demin AK., Bronin DI., Salanov AN., Sobyenin VA., Potemkin DI. Performance of single-chamber solid oxide fuel cells based on Ni and Ni–Cu alloy anodes and fed with a methane–air mixture. *Kinetics and Catalysis* 2022; 63(1): 123–128. doi:10.1134/S0023158422010116