

Interfacial Stability Between Anode and Electrolyte of LSGM-Based SOFCs

Kwang-Nyeon Kim,^{***} Jooho Moon,^{**} Ji-Won Son,^{*} Joosun Kim,^{*}
Hae-Weon Lee,^{*} Jong-Ho Lee,^{*} and Byung-Kook Kim^{*†}

^{*}Materials Division, KIST, Seoul 136-791, Korea

^{**}School of Advanced Materials Engineering, Yonsei University, Seoul 120-749, Korea

(Received June 13, 2005; Accepted July 4, 2005)

LSGM계 고체산화물 연료전지의 전해질-음극 사이의 계면안정성

김광년^{***} · 문주호^{**} · 손지원^{*} · 김주선^{*} · 이해원^{*} · 이종호^{*} · 김병국^{*†}

^{*}한국과학기술연구원 재료연구부

^{**}연세대학교 세라믹공학과

(2005년 6월 13일 접수; 2005년 7월 4일 승인)

ABSTRACT

Interfacial reactions at LSGM electrolyte and NiO-GDC anode interfaces were thoroughly investigated with Environmental Scanning Electron Microscopy (ESEM-PHILIPS XL-30) and Energy Dispersive X-ray (EDX-Link XL30). According to the analysis, serious reaction zone was observed at LSGM/NiO-GDC interface. It was found that the reaction layer was originated from the chemical reaction between NiO and LSGM. The reaction products were identified as La deficient form of LSGM based perovskite and Ni-La-O compounds such as LaSrGa₃O₇ and LaNiO₃ from the X-Ray Diffraction (XRD, Philips) analysis. According to the electrical characterization, interfacial layer was very electrically resistive which would be the cause of high internal resistance and low power generating characteristic of the unit cell.

Key words : SOFC, LSGM, NiO, Interfacial reaction, Conductivity

1. 서 론

고체산화물 연료전지(Solid Oxide Fuel Cell : SOFC)는 수소와 산소가 가지고 있는 화학적 에너지를 전기화학반응에 의해 직접 전기에너지로 변환시키는 에너지 변환장치인 연료전지의 한 종류로서 높은 변환효율과 환경친화적인 면에서의 많은 장점 때문에 차세대 에너지 변환장치로 주목을 받고 있다.^{1,2)} SOFC는 작동온도에 따라서 고온형(800°C이상)과 중저온형(500~800°C)로 나누어진다. 고온형은 작동온도가 높아 고가의 촉매재료가 필요 없고 내부 개질형 설계가 용이하다. 그러나 고온 가스밀봉의 어려움과 고온의 작동온도로 인해 전극과 연결재료에 대한 선택의 폭이 좁아지고 구성 요소들의 수명이 단축되어 제작 및 유지비용이 증가하는 단점이 있다. 이러한 이유로 최근에는 작동온도가 낮은 저온형 SOFC의 연구가 활발히 진행되고 있다.²⁾

현재 중저온형 전해질 재료로는 크게 지르코니아(ZrO₂)

나 세리아(CeO₂)와 같은 fluorite의 구조의 전해질과 LaGaO₃계와 같이 페롭스카이트(perovskite)의 구조를 갖는 전해질로 나눌 수 있다. 일반적으로 지르코니아 계 전해질의 경우 800°C 이하의 중저온 영역에서는 이온전도도가 너무 낮아 적용하기가 힘들 것으로 예상되고 있으며 세리아 계 전해질의 경우엔 높은 이온전도도에도 불구하고 환원분위기에서 쉽게 환원된다는 특성 때문에 전해질 영역이 제한된다는 단점이 있다. 그러나 본 연구에서 다루는 LaGaO₃계 산화물인 LSGM(La_{0.8}Sr_{0.2}Ga_{0.8}Mg_{0.2}O_{3-δ})은 높은 이온전도도와 넓은 전해질 영역을 가지고 있어 최근 들어 저온형 SOFC의 전해질재료로 가장 주목 받고 있는 재료이다.³⁾

그러나 이러한 장점에도 불구하고 전해질 소재인 LSGM이 음극의 주성분인 NiO를 포함한 주변 전지성분들과 극심한 반응성을 보임에 따라 화학적인 상안정성은 물론 전기전도도 측면에서 많은 문제점이 지적되고 있다.⁴⁻⁸⁾ 본 논문에서는 이러한 LSGM계 전해질을 사용한 고체산화물 연료전지에 대해 제기되고 있는 구성성분간의 반응성을 살펴보기 위해 LSGM 전해질과 NiO-GDC 음극재료간의 계면반응성을 미세구조 및 상분석 결과를 통해 고찰하고 이러한 계면 반응층이 단전지의 특성에 어떠한 영

[†]Corresponding author : Byung-Kook Kim

E-mail : bkkim@kist.re.kr

Tel : +82-2-958-5542 Fax : +82-2-958-5489

향을 줄 것인지에 대해 알아 보았다.

2. 실험 방법

LSGM계 SOFC에서 가장 문제가 되고 있는 NiO와 LSGM간의 반응성을 살펴보기 위해 NiO(Sumitomo, Japan)와 LSGM($\text{La}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{Mg}_{0.2}\text{O}_{3-\delta}$, SEIME, Japan)을 1:1로 섞어 혼합체를 만든 후 1450°C 6시간 동안 소결하여 반응성을 관찰하였다. 반응결과와 생성된 상은 X-선 회절분석기(Mac. Science, AXPHF, Japan)를 이용하여 40 Kv, 30 mA, $4^\circ/\text{min}$ 의 조건으로 측정하여 분석하였다.

계면 반응에 참가한 초기상들과 상분석 결과 나타난 반응물들의 전기적 물성을 알아보기 위해 고상법(Solid State Reaction Method)으로 각 상들에 대한 전도도 측정용 시편을 제조하였다. 출발 원료로는 LSGM($\text{La}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{Mg}_{0.2}\text{O}_{3-\delta}$, SEIME, Japan), La_2O_3 (순도 99.99%, 고순도 화학, 이하 같음, Japan), Sr_2O_3 , Ga_2O_3 분말과 NiO(Sumitomo, Japan) 분말을 사용하였으며 각 상들의 조성에 따라 원료분말을 무게비로 정확히 칭량하고 지르코니아 불과 함께 24시간 혼합하여 ball-milling하였다. 이렇게 혼합한 원료는 건조과정과 분쇄 및 하소과정을 거친 후 일축가압법으로 성형체를 만들어 소결하였으며 X-선 회절 분석(Mac. Science, AXPHF, Japan)을 통해 상을 확인하였다. 이렇게 제작된 전기전도도 측정용 소결시편들의 밀도는 아르키메데스법을 이용한 측정결과 모두 95% 이상의 상대밀도를 나타내었다.

전기전도를 측정하기 위해서 시편을 bar 형태로 가공한 후 직류 4단자법을 이용하여 $500\sim 1000^\circ\text{C}$ 까지 산화 및 환원 분위기하에서 전기전도도를 측정하였다. 직류 4단자법으로 전기전도도를 측정시 바깥 전극으로의 전류공급은 Current Source(224 Programmable current source KEITHLEY사, USA)를 이용하였으며 내부전극에서의 전압강하는 Multi-meter(Model 2000 multimeter, KEITHLEY사, USA)를 이용하였다. 본 연구에 사용한 측정장치의 개략도 및 시편 형상을 Fig. 1에 나타내었다.

한편 LSGM 전해질에 기반한 실제 단전지에서의 음극-전해질간 계면 반응성을 관찰하기 위해 음극으로 많이 사용되는 NiO-GDC 복합체를 사용하여 음극지지형 단전지를 제작하고 그 계면을 관찰하였다. 먼저 음극으로 사용되는 NiO-GDC 기판을 제조하기 위해 GDC($\text{Ce}_{0.9}\text{Gd}_{0.1}\text{O}_{1.95}$, Rhodia, USA)와 NiO(Sumitomo, Japan)를 혼합하여 10 MPa로 일축 가압 성형하여 두께 1 mm의 음극성형체를 제조하였다. 제조된 음극 성형체 위에는 planetary milling(Fritsch, Plenerisette 5)을 통해 제조한 스크린 인쇄용 전해질 페이스트를 이용하여 전해질 층을 형성하였다. 전해질까지 형성된 시편은 공기중, 1400°C 6시간 동안 소결하였으며 열처리 후 LSGM 전해질 층과 GDC + NiO 음

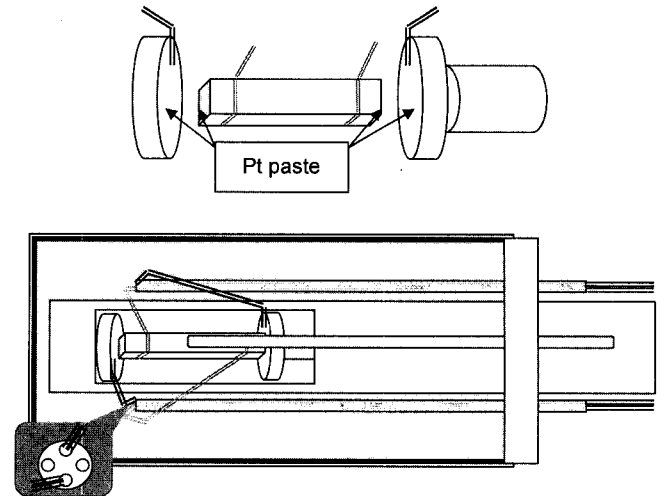


Fig. 1. Schematic diagram of the measurement apparatus for 4-probe DC electrical conductivity.

극 사이의 반응성을 관찰하였다.

음극과 전해질 계면은 주사전자 현미경(FEI, XL30)에 15 Kev 가속전압을 주어 관찰하였으며 계면에 생성된 각 반응물들에 대한 정량분석을 하기 위해 EDS(Energy Dispersive Spectroscopy; FEI, XL30)를 사용하여 spot 또는 plane mapping을 하였다. 또한 계면 반응성 정도를 관찰하기 위해 SEM 이미지를 대상으로 이미지 분석 프로그램(Image-Pro Plus version 3.0, Media Cybernetics, USA)을 이용하여 화상분석을 함으로써 반응 생성물의 양 및 분포를 관찰하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1. LSGM과 NiO의 반응성

LSGM과 NiO가 반응을 할 경우, 그 사이에 어떠한 새로운 상이 생성되는지 살펴보기 위해 LSGM과 NiO를 50:50 vol%로 섞은 후 36시간 ball-milling하고 1400°C 에서 6시간 소결하였다. 소결한 시편에 대한 X-선 회절 분석결과 Fig. 2에 보듯이 $\text{La}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{Mg}_{0.2}\text{O}_{3-\delta}$ 과 NiO 이외에 LaNiO_3 와 $\text{LaSrGa}_3\text{O}_7$ 등의 이차상이 관찰되었다. LaNiO_3 는 LSGM과 NiO가 반응하여 생성된 것으로 보이며 $\text{LaSrGa}_3\text{O}_7$ 의 경우는 LaNiO_3 의 2차상이 생성되면서 LSGM내 La의 고용량이 변해 생성된 것으로 판단된다.

생성된 2차상 LaNiO_3 와 $\text{LaSrGa}_3\text{O}_7$ 상들의 전기적 물성이 미치는 영향을 알아보기 위해 각 반응생성물들의 단일 상 시편을 제조하고 그 전기전도도를 측정하였다. 시편제조를 위해 La_2O_3 (순도 99.99%, 고순도 화학, 이하 같음), Sr_2O_3 , Ga_2O_3 분말과 NiO(Sumitomo, Japan) 분말을 출발 원료로 하여 조성에 따라 칭량한 후 고상반응법을 이용하여 해당 분말을 제조하였다. 제조된 분말을 이용하여

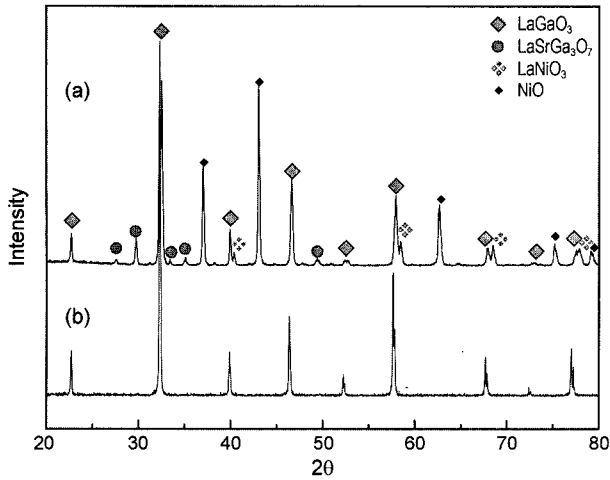


Fig. 2. X-ray diffraction patterns of LSGM+NiO composite (50 : 50 v%) (a) and $\text{La}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{Mg}_{0.2}\text{O}_{3-\delta}$ (b) sintered at 1450°C for 6 h.

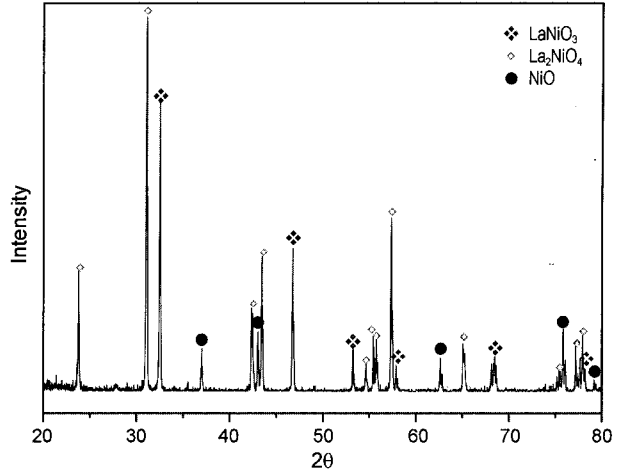


Fig. 4. X-ray diffraction patterns of LaNiO_3 and its by-product after the heat treatment at 1400°C for 6 h.

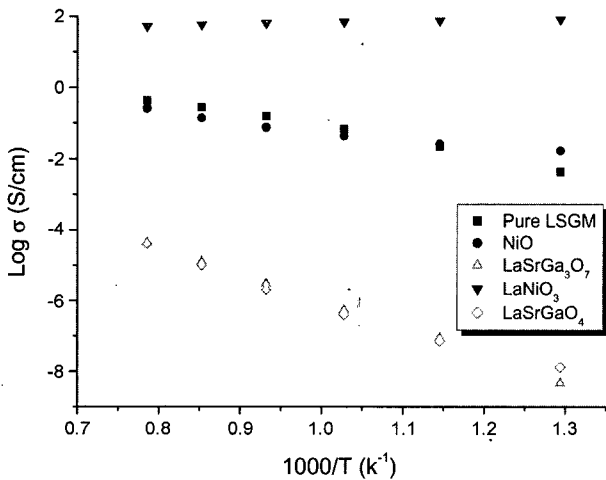


Fig. 3. Arrhenius plots of the electrical conductivity of LSGM, NiO, $\text{LaSrGa}_3\text{O}_7$, LaSrGaO_4 ¹¹⁾ and LaNiO_3 .

LaNiO_3 의 경우는 900°C 2시간, $\text{LaSrGa}_3\text{O}_7$ 의 경우는 1400°C 6시간 동안 소결하여 전도도 측정용 시편을 제조하였으며 비교를 위해 순수한 NiO와 LSGM 시편을 제조한 후 전기전도도 크기를 비교하였다. 순수한 NiO와 LSGM은 각각 NiO(Sumitomo, Japan)와 LSGM($\text{La}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{Mg}_{0.2}\text{O}_{3-\delta}$, SEIME, Japan) 분말을 출발물질로 하였으며 해당 분말을 일축가압 성형하여 1400°C 6시간 동안 소결하여 제조하였다.

소결된 시편은 각각 직류 4단자법을 이용해 500°C 부터 1000°C 까지 공기분위기에서 전기 전도도를 측정하였다. 측정된 전기 전도도는 Fig. 3에 보듯이 LSGM은 NiO와 비슷한 크기의 전기전도도⁹⁾를 가졌으며 문헌치들과 유사하게 800°C 에서 0.16 S/cm 정도의 결과를 나타내었다.¹⁰⁾ 반응 생성물인 $\text{LaSrGa}_3\text{O}_7$ 상의 경우 산화분위기에서는

$\text{LaSrGa}_3\text{O}_7$ 상이나 환원 분위기에서는 LaSrGaO_4 상¹¹⁾으로 나타난다고 보고되어 있는데 두 경우 모두 매우 낮은 전기 전도도를 가진 것으로 나타났다. 한편 LaNiO_3 상의 경우는 금속과 비슷한 매우 높은 전기 전도도를 가진 것으로 관찰되었으나 1000°C 이상의 온도에서는 상이 불안정해지는 것으로 알려져 있다.^{12,13)} 이를 확인하기 위하여 고상법으로 제조한 LaNiO_3 분말을 1400°C 에서 6시간 동안 소결한 후 X-선 회절 분석을 하였다. 분석 결과 LaNiO_3 은 고온에서 안정된 상으로 존재하지 못하고 La_2NiO_4 와 NiO상 등으로 분해되는 것을 확인할 수 있었다. 이러한 LaNiO_3 상의 불안정성은 전기적 물성뿐만 아니라 계면의 불안정성을 가져와 기계적 물성도 악화시킬 것으로 예상된다.

3.2. LSGM-NiO 복합체의 전기적 물성

LSGM과 NiO와의 반응 생성물이 복합체의 전기전도도에 미치는 영향을 알아보기 위해 LSGM에 NiO를 3, 6, 9 v% 첨가한 복합분말을 36시간 ball-milling하여 제조한 후 그 특성을 관찰하였다. 우선 X-선 회절 분석을 통해서 ball-milling만 거친 분말과 1400°C 에서 6시간 동안 소결한 분말, 수소분위기에서 환원한 상태의 분말에 대한 상 분석 결과를 Fig. 5에 나타내었다. 관찰결과 소결전 혼합 상태에 비해 소결하고 난 후에는 NiO의 양이 많아질수록 LaNiO_3 및 $\text{LaSrGa}_3\text{O}_7$ 등의 2차상이 많이 생성되는 것으로 나타났다. 한편 환원분위기에서 열처리한 분말의 경우에는 NiO 및 LaNiO_3 의 상은 사라지고 새로운 LaSrGaO_4 상이 나타나는데 이는 $\text{LaSrGa}_3\text{O}_7$ 가 환원되면서 생성되는 것으로 판단된다.^{11,14)}

NiO의 함량에 따른 전기전도도의 변화를 살펴보기 위해서 NiO가 각각 3, 6, 9 v% 혼합된 분말을 일축가압 성형하여 1400°C 에서 6시간 동안 소결한 후 직류 4단자법

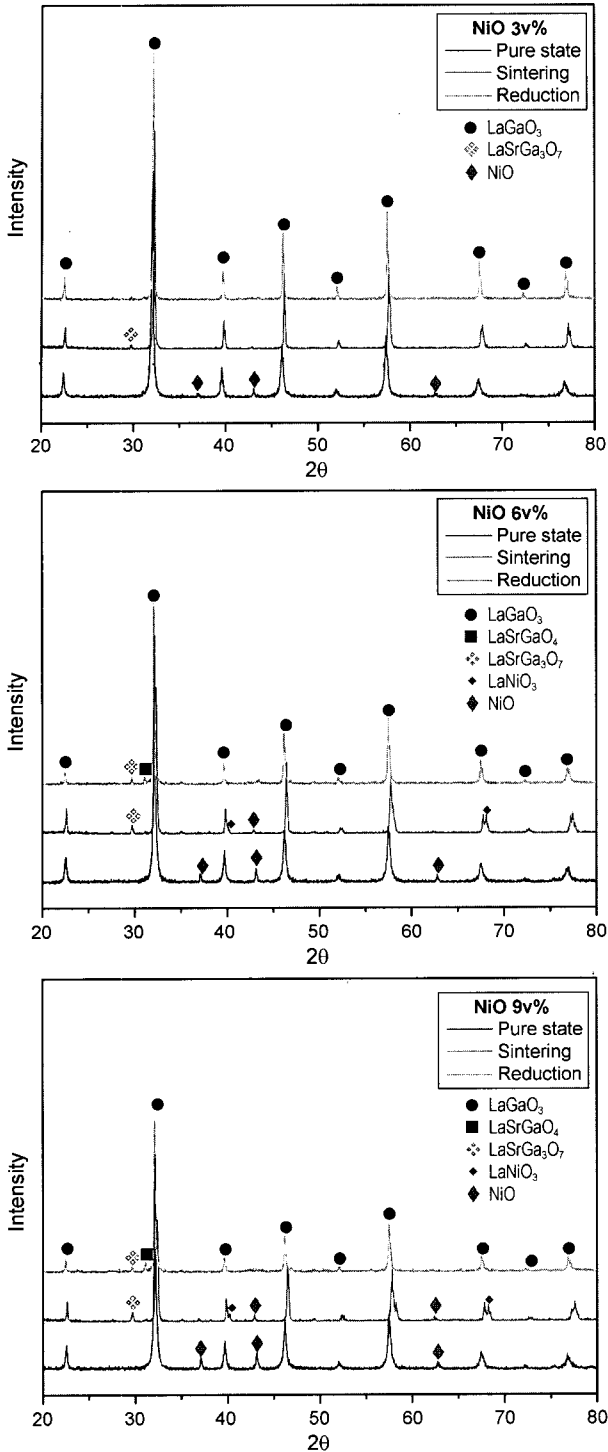


Fig. 5. X-ray diffraction patterns of LSGM+NiO (3, 6, 9 v%) composite sintered at 1450°C for 6 h.

을 사용하여 500°C부터 1000°C까지 공기 중 및 환원(H₂) 분위기에서 전기 전도도를 측정하였다. 측정된 전기전도도의 결과(Fig. 6)를 보면 공기중에서는 NiO의 첨가량이 많아지면서 전도도가 매우 높은 반응물인 LaNiO₃상의 생성으로 인해 전도도가 상승하는 것으로 나타났다. 하지만

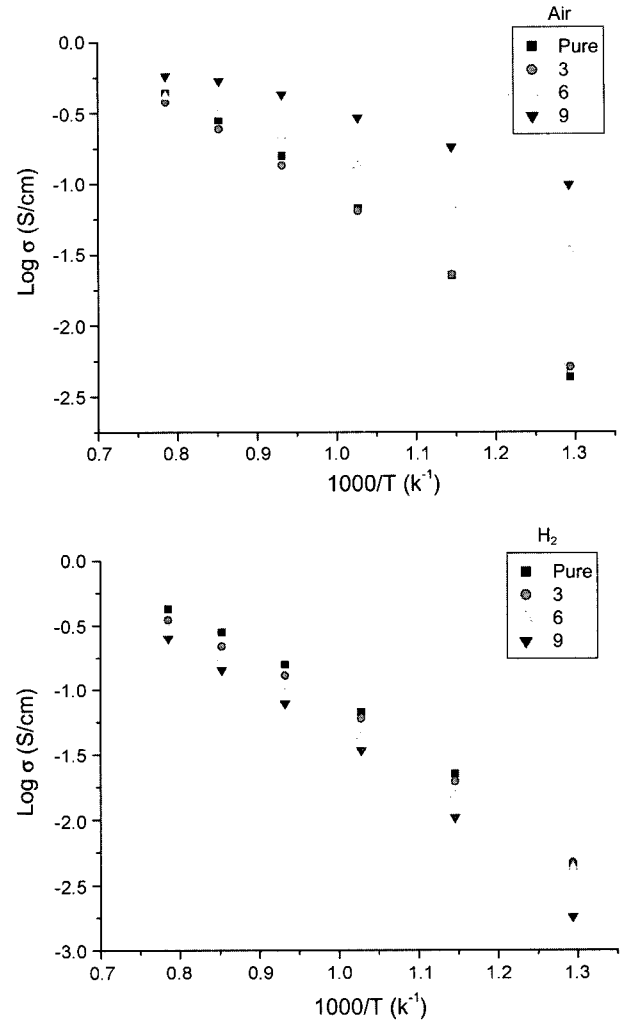


Fig. 6. Electrical conductivity of LSGM+NiO (3, 6, 9 v%) composite in Air and H₂ atmosphere.

환원분위기에서는 LaNiO₃상이 분해되면서 전도도가 매우 낮은 LaSrGaO₄상이 생성됨으로써 전기전도도가 낮아지는 것으로 나타났는데 이는 앞서 Fig. 5에서의 상분석 데이터와도 일치하는 결과이다.

Fig. 7는 LSGM에 NiO가 3, 6, 9 v% 첨가된 복합체시편의 단면을 연마한 후 SEM을 통해 살펴본 미세구조 사진이다. 미세구조를 살펴보면 NiO량이 많아질수록 검은색점과 회색점들이 많이 생성되었음을 볼 수 있다. Fig. 7에 함께 나타난 각 점에 대한 EDS분석결과를 보면 검은색점은 Ni와 Mg 성분이 주인 상으로 나타났으며 회색점은 La, Sr, Ga, O로 구성된 LaSrGa₃O₇상으로 나타났다. Ni와 Mg가 주인 검은색상과 회색의 LaSrGa₃O₇상은 LSGM상이 NiO와의 반응에 의해 분해되며 LaSrGa₃O₇상과 Mg와 Ni가 주인 상으로 분리된 것으로 판단된다. 한편 또 다른 반응생성물인 LaNiO₃상은 다른 반응생성물들과 달리 SEM상으로는 구분이 되지 않는 것으로 나타났는데

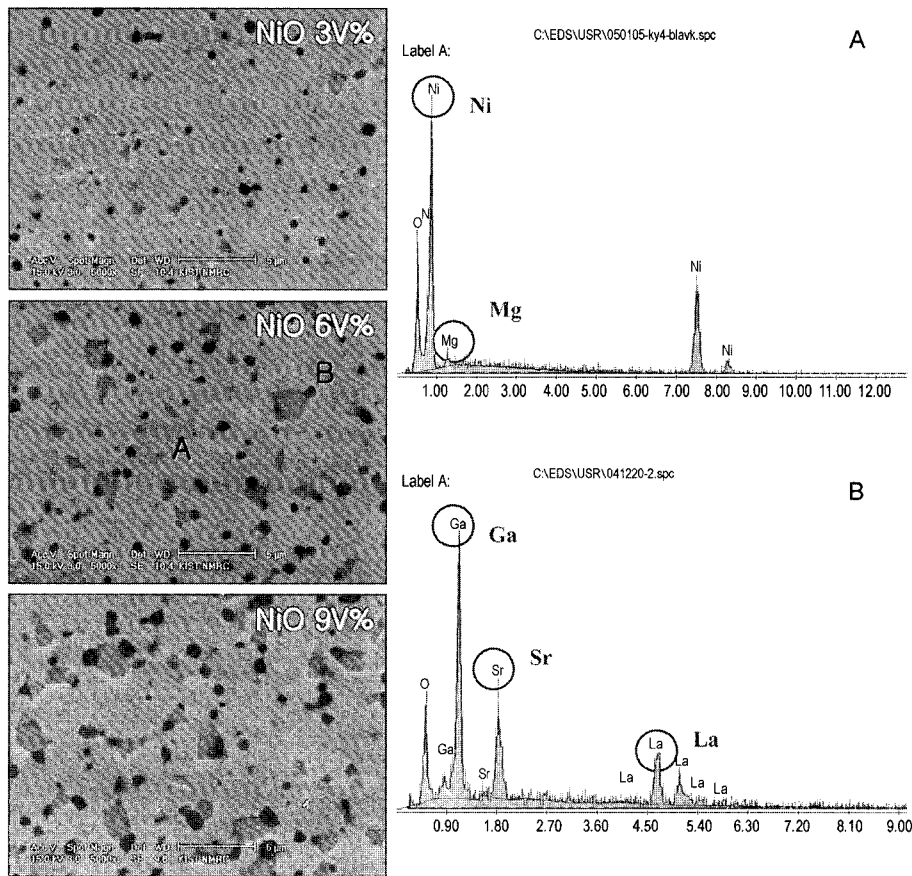


Fig. 7. SEM images of LSGM+NiO (3, 6, 9 v%) composite and the result of EDS analysis on site A and site B.

Table 1. Area Fraction of each Reaction Product Estimated from Image Analysis

Phase	NiO composition		
	3 v%	6 v%	9 v%
Black area(Ni-rich)	2.4%	4.1%	6.3%
Gray area(LaSrGa ₃ O ₇)	2.7%	8.6%	11.7%
White area(LSGM)	94.9%	87.3%	82.0%

EDS 분석결과 흰색으로 나타나는 LSGM과 같은 콘트라스트를 가짐을 알 수 있었다.

반응후의 SEM 이미지에 대하여 이미지 분석 프로그램인 Image Pro Plus를 이용하여 각 반응상의 면적분율을 계산하고 이를 Table 1에 정리하였다. 화상분석 결과를 살펴보면 NiO의 함량이 증가할수록 반응생성물인 LaSrGa₃O₇ 상이 점차 증가함을 볼 수 있으며 또 다른 반응생성물인 LaNiO₃가 일부 분해되어 생성되는 것으로 생각되는 Ni와 Mg가 첨가된 이차상도 NiO 첨가량이 증가할수록 증가함을 볼 수 있다. 반면 상대적으로 모상인 LSGM의 면적분율은 NiO의 첨가량이 증가하면서 반응량이 증가함에 따라 줄어들음을 볼 수 있다.

3.3. GDC-NiO 음극과 LSGM 전해질 계면에서의 반응성

GDC + NiO 복합체 음극기판 위에 LSGM을 스크린 인쇄법으로 인쇄하여 소결한 후 계면에서의 반응성을 관찰해보았다. Fig. 8은 GDC + NiO 음극기판위에 LSGM을 인쇄한 후 1450°C에서 6시간 소결한 단전지의 미세구조 사진으로 계면에 생성된 반응상에 대한 화상분석의 정확도를 높이기 위해서 명암대비가 훨씬 용이한 BSE(Back-Scattering Electron)이미지를 사용하였다. Fig. 8의 결과에서 보듯이 복합체 음극과 전해질 사이에는 반응층이 발견되었으며 EDS 분석을 수행한 결과 앞서 Fig. 7에서의 결과와 마찬가지로 검은색 점은 Ni와 Mg가 주된 상으로 나타났으며 전해질 층 안쪽에 발견된 회색상(A)은 LaSrGa₃O₇상으로 분석되었다. 한편 Fig. 8의 전해질과 전극계면에는 앞서 Fig. 7에서와 같은 복합체의 경우 관찰되지 않았던 짙은 회색상(B)이 관찰되는데 EDS 분석결과 다른 성분을 포함하지 않은 NiO상으로 나타났다. 그림에서와 같이 전해질과의 계면에 NiO가 연속적으로 분포하는 이유는 음극에 존재하는 NiO상이 이동했다기 보다는 LSGM과 NiO가 만나 생성된 LaNiO₃가 고온에서 열처리 중 분해되면서 그림과 같은 연속상을 형성하는 것으로 판단된다. 음극과 전해질 계면에서의 반응성을 좀더 면밀히

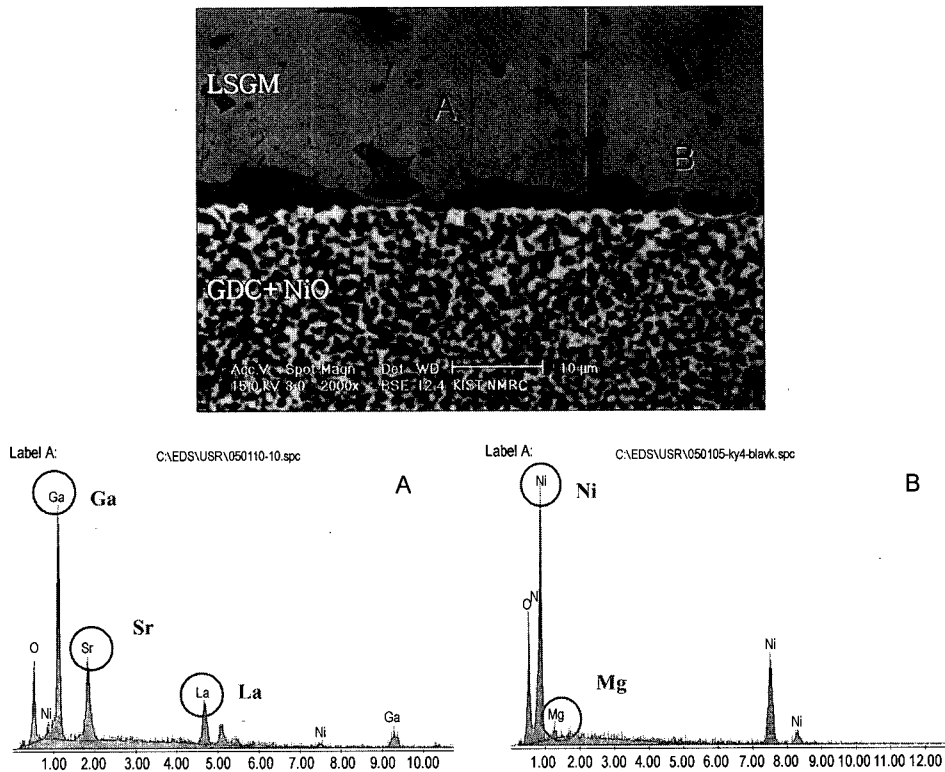


Fig. 8. Cross-sectional BSE image of LSGM electrolyte on GDC-NiO anode and the result of EDS analysis on site A and B.

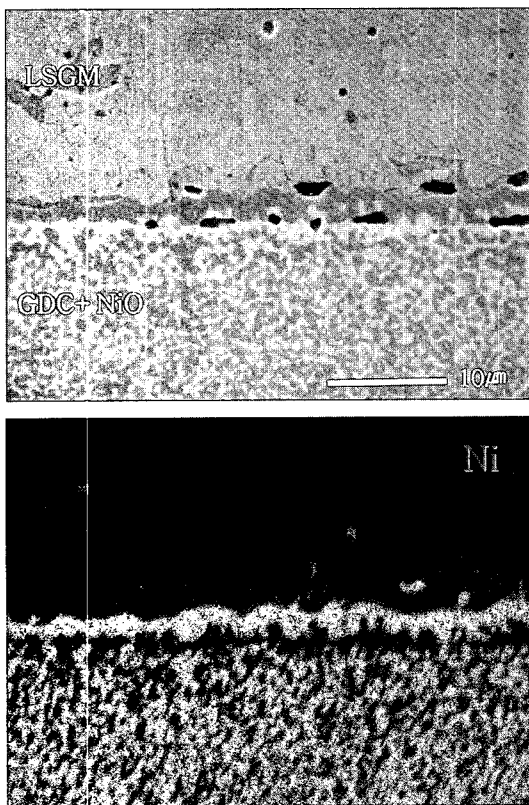


Fig. 9. Cross sectional view of LSGM electrolyte on GDC-NiO anode and the result of EDS plane mapping analysis for Ni.

관찰하기 위해서 EDS plane mapping을 통해 정량분석을 수행한 Fig. 9의 결과를 보면 음극과 전해질 사이에 NiO 층이 연속적으로 형성되어 있는 모습을 보다 뚜렷이 확인할 수 있다.

이상의 결과에서와 같이 음극과 전해질 계면에 연속적인 이차상이 생성이 된다면 계면의 불안정성은 물론 전지의 성능에 악영향을 줄 것으로 판단된다. 특히 저항이 큰 $\text{LaSrGa}_3\text{O}_7$ 상층이 존재하는 경우 단전지의 내부저항을 크게 증가시켜 성능저하를 유발할 것이며 연속적인 NiO 층의 형성 또한 전극반응면적을 감소시켜 단전지 성능을 저하시키는 물론 음극의 환원시 전해질과 음극사이의 접합 강도를 약화시키는 원인으로 작용해 작동 중 전극과 전해질이 분리되면서 단전지가 파손되거나 계면의 저항이 점차 증가하면서 단전지의 장기성능을 크게 감소시킬 것으로 사료된다. 이러한 전극과 전해질 계면에서의 반응성이 실제 단전지 성능이나 수명에 미치는 영향에 대해선 이어지는 논문에서 다룰 예정이다.

4. 결 론

LSGM 전해질을 이용한 고체산화물 연료전지에서 가장 큰 문제가 되고 있는 음극과 전해질간의 반응성을 관찰하기 위해 음극물질인 NiO와 LSGM과의 반응성을 관찰하였다. X-선 회절 분석결과 반응에 의한 생성물은 $\text{LaSrGa}_3\text{O}_7$

및 LaNiO_3 상 등이 있는 것으로 관찰되었다. 이들 이차상 중 $\text{LaSrGa}_3\text{O}_7$ 상은 전기전도도가 매우 낮은 것으로 나타났다. LaNiO_3 상의 경우는 고온 상안정성이 매우 떨어짐을 알 수 있었다. 실제 단전지 제조공정에 따라 GDC + NiO 음극기판위에 LSGM 전해질을 코팅한 단전지를 구성하고 그 계면을 관찰한 결과 전해질과 음극 계면에서는 LaNiO_3 , NiO 및 $\text{LaSrGa}_3\text{O}_7$ 상 등의 이차상이 형성됨을 볼 수 있었는데 EDS 분석을 통하여 계면반응물들의 분포를 관찰한 결과 $\text{LaSrGa}_3\text{O}_7$ 상과 NiO 상의 경우 전해질과 전극 계면에 연속상 형태로 존재함을 알 수 있었다. 전극과 전해질 계면에 존재하는 이러한 연속적인 이차상은 계면의 불안정성을 야기시켜 단전지의 내구성 및 성능에 악영향을 줄 것으로 예상되는데, 특히 $\text{LaSrGa}_3\text{O}_7$ 상은 전기전도도가 아주 낮은 물질이라 계면에 존재하는 경우 단전지의 내부저항을 크게 증가시킬 것으로 사료된다.

감사의 글

이 논문은 연료전지핵심원천기술 개발사업과 국가지정 연구실 사업의 일환으로 수행되었으며 이에 감사드립니다.

REFERENCES

1. N. Q. Minh, "High-Temperature Fuel Cells. Part II : The Solid Oxide Fuel Cell," *Chemtech.*, **21** 120-26 (1991).
2. N. Q. Minh, "Ceramic Fuel Cell," *J. Am. Ceram. Soc.*, **76** [3] 563-88 (1993).
3. T. Ishihara, H. Matsuda, and Y. Takita, "Doped LaGaO_3 Perovskite Type Oxide as a New Oxide Ionic Conductor," *J. Am. Chem. Soc.*, **116** 3801-03 (1994).
4. M. Hrovat, A. Ahmad-Khanlou, Z. Samardzija, and J. Hole, "Interactions between Lanthanum Gallate Based Solid Electrolyte and Ceria," *Mater. Res. Bull.*, **34** 2027-34 (1999).
5. N. Maffei and G. de Silveira, "Interfacial Layers in Tape Cast Anode-Supported Doped Lanthanum Gallate SOFC Elements," *Solid State Ionics*, **159** 209-16 (2003).
6. A. Naoumidis, A. Ahmad-Khanlou, Z. Samardzija, and D. Kolar, "Chemical Interaction and Diffusion on Interface Cathode/Electrolyte of SOFC," *J. Anal. Chem.*, **365** 277-81 (1999).
7. K. Huang, J.-H. Wan, and J. B. Goodenough, "Increasing Power Density of LSGM-Based Solid Oxide Fuel Cell Using New Anode Materials," *J. Electro. Soc.*, **148** [7] 788-94 (2001).
8. F. W. Poulsen and N. van der Puil, "Phase Relations and Conductivity of Sr-and La-Zirconates," *Solid State Ionics*, **53-56** 777-83 (1992).
9. V. B. Tare, G. M. Mehrotra, and J. B. Wagner, Jr., "Electrical Transport in NiO-CeO₂ Mixtures," *Solid State Ionics*, **18-19** 747-50 (1986).
10. S. P. S. Badwal, "Zirconia-Based Solid Electrolytes : Microstructure, Stability and Ionic Conductivity," *Solid State Ionics*, **52** 23-32 (1992).
11. M. Berkowski, "SrLaGaO₄-SrLaAlO₄ Solid Solutions : New Promising Substrate Materials for HTSc," *J. of Alloys and Comp.*, **251** 1-6 (1997).
12. A. Martinez-Juarez L. Sánchez, E. Chinarro, P. Recio, C. Pascual, and J. R. Jurado, "Electrical Characterization of Ceramic Conductors for Fuel Cell Applications," *Solid State Ionics*, **135** 525-28 (2000).
13. M. T. Colomer, D. A. Fumo, J. R. Jurado, and A. M. Segadaes, "Non-Stoichiometric $\text{La}_{(1-x)}\text{NiO}_{(3-\delta)}$ Perovskite Produced by Combustion Synthesis," *J. Mater. Chem.*, **9** 2505-10 (1999).
14. P. Huang, A. Horky, and A. Petric, "Interfacial Reaction between Nickel Oxide and Lanthanum Gallate During Sintering and Its Effect on Conductivity," *J. Am. Ceram. Soc.*, **82** [9] 2402-06 (1999).