

Synthesis and Characterization of LSGM Solid Electrolyte for Solid Oxide Fuel Cell

Young-Hoon Seong[†], Seung Hwan Jo, P. Muralidharan, and Do Kyung Kim

Department of Materials Science and Engineering, Korea Advanced Institute of Science and Technology (KAIST),
Daejeon 305-701, Korea

(Received November 7, 2007; Accepted November 19, 2007)

연료전지용 LSGM 페로브스카이트계 전해질의 합성 및 특성 연구

성영훈[†] · 조승환 · P. Muralidharan · 김도경

한국과학기술원 신소재공학과

(2007년 11월 7일 접수; 2007년 11월 19일 승인)

ABSTRACT

The family of (Sr,Mg)-doped LaGaO₃ compounds, which exhibit high ionic conductivity at 600-800°C over a wide range of oxygen partial pressure, appears to be promising as the electrolyte for intermediate temperature solid oxide fuel cells. Conventional synthesis routes of (Sr,Mg)-doped LaGaO₃ compounds based on solid state reaction have some problems such as the formation of impurity phases, long sintering time and Ga loss during high temperature sintering. Phase stability problem especially, the formation of additional phases at the grain boundary is detrimental to the electrical properties of the electrolyte. From this point of view, we focused to synthesize single phase (Sr,Mg)-doped LaGaO₃ electrolyte at the stage of powder synthesis and to apply relatively low heat-treatment temperature using novel synthesis route based on combustion method. The synthesized powder and sintered bulk electrolytes were characterized by XRD, TG-DTA, FT-IR and SEM. AC impedance spectroscopy was used to characterize the electrical transport properties of the electrolyte with the consideration of the contribution of the bulk lattice and grain boundary to the total conductivity. Finally, relationship between synthesis condition and electrical properties of the (Sr, Mg)-doped LaGaO₃ electrolytes was discussed with the consideration of phase analysis results.

Key words : LSGM, Electrolyte, Synthesis, Sintering, AC impedance, Ionic conductivity

1. 서 론

란타넘-갈레이트 (LaGaO₃)계 소재는 기존의 고체산화물 연료전지(SOFC)용 전해질 재료인 이트리아계(YSZ) 소재에 비해 상대적으로 높은 이온 전도 특성을 보이기 때문에 중저온형 고체산화물 연료전지의 고체전해질의 대체 재료로 많은 연구가 이루어지고 있다. 기존의 YSZ 소재를 전해질로 SOFC 시스템을 구현할 경우 1000°C 부근의 고온에서 작동하기 때문에 고온에서 견딜 수 있는 특수한 합금이나 값비싼 세라믹 재료들을 사용해야 하고 시스템의 초기 구동 시간이 오래 걸리며 재료의 내구성이 저하되는 문제점이 있다. 따라서 상용화에 가장 걸림돌인 비용 상승 문제가 뒤따른다. 이에 YSZ 전해질을 란타넘-갈레이트계 전해질로 대체할 경우 작동온도를 500~800°C 범위까지 낮출 수 있게 되어 고온 작동으로 인해 발생하는 단점을 극복하여 중저온형 고체 산화물 연료 전지를 구현할 수 있을 것으로 기대된다.¹⁻³⁾

이러한 관점에서 최근 스트론튬과 마그네슘이 도핑된 란타넘-갈레이트계 전해질(LSGM)에 대한 연구가 많은 주목을 받고 있다. LSGM 전해질이 SOFC용 전해질로 사용되기 위해서는 최대한 낮은 온도에서 안정적인 전기적 특성을 가지는 치밀한 전해질을 얻을 수 있어야 한다. 지금까지의 연구에서는 LSGM 전해질을 합성하기 위하여 주로 고상 반응법이 사용되고 있으나, 1500°C 이상의 높은 소결 온도와 긴 소결 시간이 요구되며 소결후에도 이차상 (LaSrGaO₄, LaSrGa₃O₇, La₄Ga₂O₉)들이 입계에 편석되어 전해질의 이온전도도 특성 및 장기 안정성을 저하시키는 것으로 알려져 있다.⁴⁾ 그러나 수계합성법을 이용할 경우 상대적으로 작은 크기를 갖는 LSGM 분말을 합성할 수 있으며 이로 인하여 고상반응법에 비해 상대적으로 낮은 소결 온도에서 치밀한 단상 페로브스카이트 조직을 얻을 수 있는 것으로 보고 되고 있다. LSGM 분말 합성에 이용된 수계 합성 방법 방법으로는 폐치니법,⁵⁾ 글리신 연소합성법,^{6,7)} 솔젤공정,^{6,8)} 등의 다양한 결과가 보고 되고 있다. 이러한 수계 합성법들은 고상반응법에 비해 작은 분말을 얻을 수 있으나 합성 과정에서 입자들간에 강한 응집체를 형성하기 쉬우며 표면에 흡착된 유기

[†]Corresponding author : Young-Hoon Seong
E-mail : eric_1999@kaist.ac.kr
Tel : +82-42-869-4151 Fax : +82-42-869-3310

물질과 일부 비정질상의 존재로 인해 소결 특성이 저하되고 이차상들이 효과적으로 제거되지 못하는 등의 문제점이 발생하여 입자 합성에 따른 장점을 충분히 활용하지 못하는 것이 문제점으로 지적되어 왔다.

본 연구에서는 이러한 단점을 극복하기 위하여 시트르산 연소합성법을 이용하여 기존의 수계합성법이 보인 단점을 극복한 우수한 특성을 갖는 LSGM 분말의 합성을 시도 하였다. 일반적으로 시트르산 연소 합성법은 합성시 중합체 형성을 유도하여 질산염 양이온물질이 균일하게 도핑이 되고 결정성이 우수한 분말을 얻을 수 있는 방법으로 알려져 있다. 합성된 LSGM 분말을 이용하여 기존의 고상 반응법에 비해 낮은 열처리 및 소결 온도에서 치밀하고 우수한 전기적 특성을 갖는 LSGM 전해질을 제조하였다. 한편으로는 고상 반응법에 의하여 LSGM 전해질을 합성하고 각각의 분말 특성, 소결 특성 및 전기 전도도 특성을 비교 분석하였다.

2. 실험 방법

2.1. 분말의 합성 및 소결

시트르산 연소합성법을 이용하여 LSGM 분말을 합성하였다. Sr과 Mg의 도핑 농도는 이온 전도도 값이 상대적으로 높다고 보고된 조성 중에 하나인 20 mol%를 선택하였다.^{9,13)} 출발원료로 일정 몰비의 $\text{La}(\text{NO}_3)_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, $\text{Ga}(\text{NO}_3)_3 \cdot x\text{H}_2\text{O}$, $\text{Sr}(\text{NO}_3)_2$, $\text{Mg}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ (Aldrich Chemical Co. U.S.A, 99.9%)를 칭량하고 증류수에 녹여 0.025 M의 수용액을 제조하였다. 또한 $\text{C}_3\text{H}_4(\text{OH})(\text{COOH})_3 \cdot \text{H}_2\text{O}$ (Oriental Chemical Ind. Co.)를 증류수에 녹여 0.09 M의 시트르산 수용액을 준비한 후 위의 금속염 수용액과 상온에서 30분간 교반하여 혼합하였다. 이때 금속염과 시트르산의 몰비는 화학량론에 근거하여 1:1.8로 고정하였다. 두 수용액의 교반과정 중에 질산 수용액 (HNO_3 -Junsei Chemical Co. Japan) 6 mL를 산화제로 첨가하였다. 만들어진 수용액을 90°C에서 교반을 하고 수분을 증발을 시킨 뒤 125°C의 오븐에서 48시간 건조를 하였으며 응축된 수용액은 부피가 커지고 오렌지 빛을 띠는 딱딱한 겔의 형태를 나타내었다. 이렇게 건조된 겔을 분쇄한 후 Heating Mantle에서 250°C로 가열을 하여 연소반응을 유도하여 분말을 합성한 후 2-PrOH (Junsei Chemical Co. Japan), 지르코니아 불과 함께 12시간 볼밀링을 실시하였다. 최종적으로 80°C의 오븐에서 24시간 건조를 실시하였다. 분말의 소결시 입자 표면에 존재하는 유기물과 비정질상의 영향에 의해 균열과 수축 거동의 변화를 방지하기 위해 하소를 시행하였다. 합성된 분말의 입자 성장 및 응집을 최소화하고 분말의 결정화 및 유기물을 분해하기 위하여 800°C에서 10시간 동안 하소 처리를 한 후 2-PrOH 24시간 동안 볼밀링을 실시 한 뒤 80°C에서 24시간 건조하였다. 체질을 한 후

직경 12 mm의 원통형 스테인리스 몰드를 이용하여 일축 가압 성형을 하고 200 MPa로 CIP(Cold Isostatic Press)를 하여 성형체를 제조하였다. 성형한 시편을 승온 속도는 5°C/min, 소결 온도는 1300, 1350, 1400, 1450°C로 하여 10시간 동안 각각 소결을 실시하였다. 시트르산 합성법으로 제조한 LSGM 분말 및 소결 특성과 비교를 하기 위하여 고상법을 이용하여 LSGM 소결체를 합성하였다. 일정 몰비의 La_2O_3 , Ga_2O_3 , SrCO_3 , MgO (Aldrich Chemical Co. U.S.A, 99.9%)을 정량하여 2-PrOH (Junsei Chemical Co. Japan)과 지르코니아 불을 이용해 24시간 볼밀링을 실시하였다. 80°C에서 24시간 건조를 한 후 앞서 설명한 동일한 절차에 의해 성형체를 제조한 후 동일한 조건에서 소결하였다.

2.2. 특성 분석

합성된 LSGM 분말의 입자 크기 및 형상을 관찰하기 위하여 주사전자현미경(SEM/EDS, Philips XL30)을 이용하였으며 온도에 따른 열분해 거동을 연구하기 위하여 TGA/DSC (SDT600Q, SETARAM92-18, France) 분석을 실시하였다. 열분석은 공기 분위기에서 5°C/min의 승온 속도로 최대 1400°C까지 분석을 실시하였다. 합성한 분말 및 소결체의 상 형성 여부 확인을 위해 X선 회절 분석(XRD, Rigaku D/MAX-IIIc)을 실시하였다. 아arki메데스 기법을 이용하여 소결체의 밀도를 측정하였고, 소결체의 미세구조는 표면을 1 μm 다이아몬드 분산액을 이용해 연마한 후 열에칭을 실시한 후 주사전자 현미경을 이용해 관찰하였다.

시트르산 연소합성법과 고상법으로 합성한 분말을 이용하여 제조한 LSGM 전해질의 전기 전도 특성을 Impedance/gain-phase analyzer (Solatron 1260, UK)를 이용하여 분석하였다. 디스크 모양의 소결체 양 단면을 연마한 후 Ag전극을 코팅한 후 Ag sheet와 Pt 선을 연결하여 공기중에서 600°C에서 한 시간 동안 열처리 한 후 공기중에서 각각 250~600°C의 온도범위, 1 Hz-10 MHz 범위에서 분석을 실시하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1. 분말의 합성 및 특성 분석

Fig. 1에는 시트르산 연소 합성법으로 합성된 LSGM 분말의 열처리 조건 별 SEM 사진을 나타내었다. 합성된 분말은 불규칙하게 응집되어 있는 형상으로 열처리 온도가 올라감에 따라 입자 크기가 증가하는 것을 알 수 있다. Fig. 2는 TGA/DSC를 이용하여 온도에 따른 LSGM 분말의 열분해 거동을 분석한 결과 이다. 이 결과에서 보이는 바와 같이 125°C와 225°C에서 흡열 피크가 나타났고, 275°C, 475°C와 675°C에서 발열 피크가 관찰되었다. 125°C

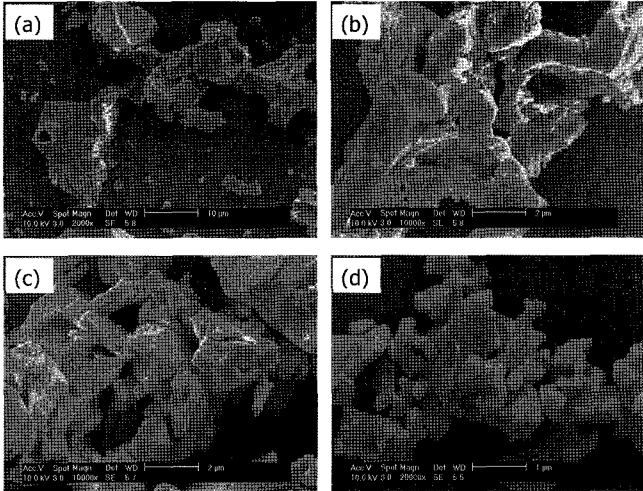


Fig. 1. SEM images of LSGM powders by citric acid process: as-synthesized (a), calcined at (b) 400°C, (c) 800°C, and (d) 1100°C.

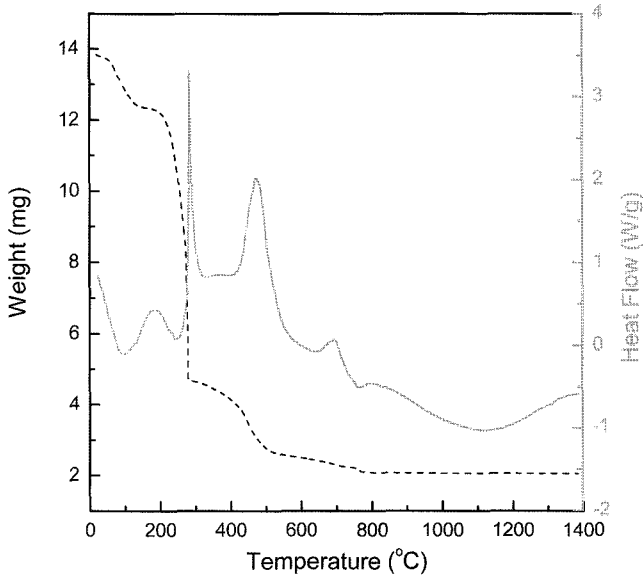


Fig. 2. Thermal analysis of LSGM powders synthesized by citric acid process.

의 흡열 피크와 8%의 질량 감소는 중합체 매트릭스 구조에 함유되었던 수분의 기화에 기인한 것이며 275°C의 강한 발열 피크와 약 54%에 가까운 질량감소는 분말 표면에 잔류하던 중합체 매트릭스와 질화물의 분해에 따른 결과이며 475°C의 강한 발열 피크는 연소 합성 이후에도 완전히 사라지지 않은 중합체와 유기물등의 분해에 의한 것이다. 이 온도는 일반적인 고분자 중합체의 완전연소 온도와 일치한다. 675°C의 발열 피크는 탄산염과 나머지 모든 유기물의 분해에 따른 것이다. 이후의 800-1300°C 범위에서는 비정질상이 페로브스카이트 상의 결정질로 바뀌는 상변화를 일으키는데 800°C부터 질량감소곡선의 기울기가 매우 완만하고 곡선의 기울기가 바뀌는 점으로 보

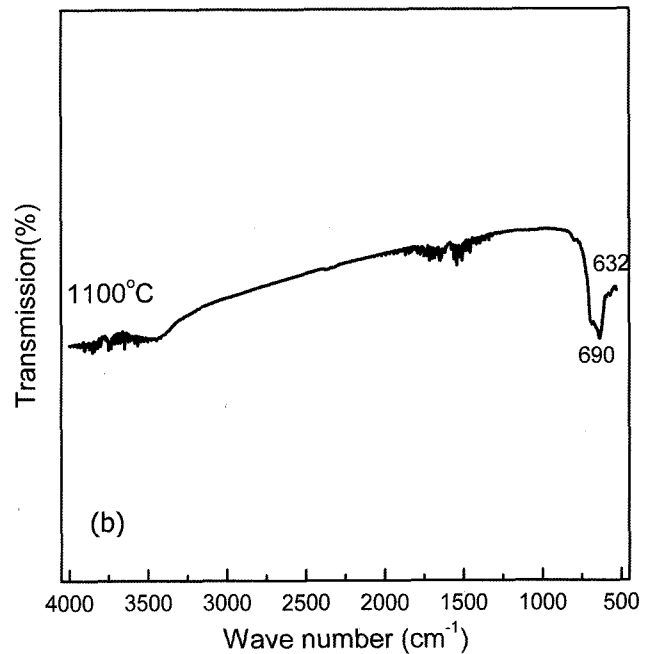
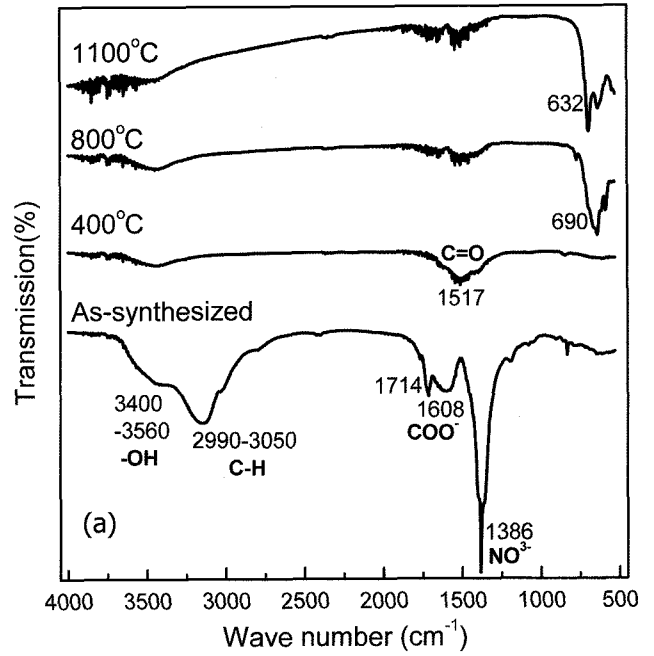


Fig. 3. FT-IR analysis of LSGM powders synthesized by (a) citric acid process, (b) solid state reaction.

아 상변이가 이루어졌음을 알 수 있었다.

Fig. 3은 두가지 방법으로 합성한 LSGM분말의 온도별 열처리 조건에 따른 FT-IR 스펙트럼을 나타내고 있다. 시트르산 연소합성법의 분말에서는 3560-3400 cm^{-1} 에서 -OH가 검출되며 2990 cm^{-1} 에서 시트레이트 이온이 나타났고 카르복실레이트 양이온(COO⁻)이 1740-1608 cm^{-1} 에서 나타났으며 CO₃²⁻은 1500-1430 cm^{-1} , 1080-1030 cm^{-1} , 800 cm^{-1} 에서 검출되었다. 1730-1700과 1190-1075 cm^{-1} 에서는 카르

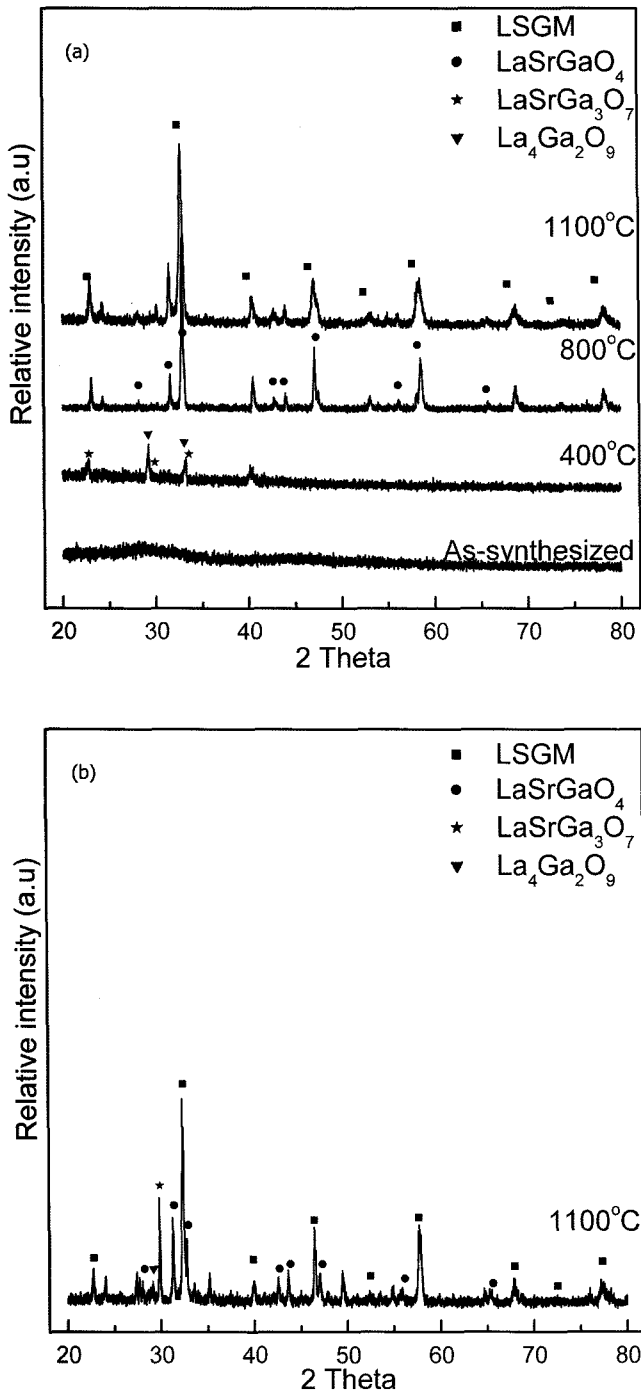


Fig. 4. XRD patterns of LSGM powders synthesized by (a) citric acid process, (b) solid state reaction.

보닐 결합이 검출되었고 1386 cm^{-1} 에서는 질산염 이온이 존재하고 있음을 알 수 있었다. 400°C 열처리 후의 스펙트럼에서는 금속과 카르보닐기의 결합이 끊어지기 시작함을 알 수 있다. 이것은 앞에서 언급되었던 400°C 부근의 TGA/DSC 결과와도 일치한다. 분말 열처리 온도가 올라감에 따라 CO_3^{2-} 과 OH_2 이온들은 점점 강도가 약해짐을 알 수 있고 800°C 열처리 이후에는 모든 음이온들이

사라지고 오직 632 cm^{-1} 에서만 금속산화물이 검출되는 데 이는 TGA/DSC에서 언급된 결과와 일치하는 것을 알 수 있다. 고상합성법 분말의 1100°C 열처리 후 FTIR 스펙트럼에서도 금속 산화물범위는 632 cm^{-1} 로 나타나고 있으며 이는 시트르산 연소법이 800°C 열처리 후 유기물이 첨가되지 않은 고상 합성법에 나타나는 금속산화물과 일치하는 결과를 나타냄으로써 TGA/DSC의 결과와 잘 일치하고 있음을 알 수 있다.

X-선 분석을 통해 합성방법과 열처리 온도에 따라 분말의 상분석을 실시하였다. Fig. 4에 시트르산 연소법, 고상법에 따라 합성된 분말을 400°C , 800°C , 1100°C 에서 열처리를 한 뒤 나타나는 상 형성 과정을 나타내고 있다. 시트르산 연소법으로 합성한 분말은 합성 직후 비정질 형태의 피크가 나타났고 열처리 온도가 400°C 로 상승하게 되면 시트르산 연소법으로 합성한 분말은 작은 강도의 피크가 나타나기 시작했다. 800°C 열처리 후 시트르산 연소법으로 합성된 분말은 이차상을 포함하고 있으나 LSGM 피크가 강하게 나타나기 시작하였다. 이것은 800°C 온도에서 분말표면에 잔존해있던 유기물들이 사라지고 상형성에 필요한 열 에너지를 얻게 됨으로써 비정질에서 결정질로 상 전이가 이루어 졌음을 뜻한다. 결국 열처리 온도가 높아짐에 따라 LSGM 피크는 강하게 나타나는 반면 비정질상, 이차상의 피크는 점점 감소하고 있음을 보여준다. 고상법으로 합성한 분말의 경우 1100°C 열처리 시 시트르산 연소합성법, 글리신 연소합성법의 1100°C 열처리 결과와 비슷한 상변화 양상을 보이고 있으나 $\text{LaSrGa}_3\text{O}_7$ 이차상이 상대적으로 많이 생성되었음을 알 수 있다.

3.2. 분말의 소결 특성 분석

각각의 합성법으로 준비된 LSGM 분말을 1300 , 1350 , 1400 , 1450°C 에서 10시간씩 상압소결을 실시하였다. Sr과 Mg이 각각 20 mol%씩 도핑 된 LSGM의 이론밀도는 6.4534 g/cm^3 이며, 격자상수가 3.912 \AA 이라고 보고되고 있으며, 도핑농도가 증가할수록 orthorhombic-rhombohedral-cubic 구조를 갖는다고 알려져 있다.¹²⁾ 합성된 분말의 소결 밀도를 분석한 결과 1300°C 에서 소결된 시트르산 연소합성법, 고상법 소결체는 96%, 87.4%의 밀도를 갖고 1450°C 의 소결온도에서는 두 합성법에서 96~98%근처의 밀도를 가짐을 알 수 있었다. 특히 시트르산 연소합성법 소결체는 1300°C 와 1450°C 에서 비슷한 상대 밀도를 갖고 있음을 알 수 있었는데 이점을 통해 시트르산 연소합성법이 치밀한 소결체를 얻기에 효과적인 합성법임을 알 수 있었다.

Fig. 5는 각 합성법에 따른 소결온도에 따른 상변화 분석을 나타내고 있다. 시트르산 연소합성법에서는 1250°C 이하에서는 이차상이 생성되었으나 소결온도가 1300°C 이상으로 올라감에 따라 LSGM 페로브스카이트 단일상

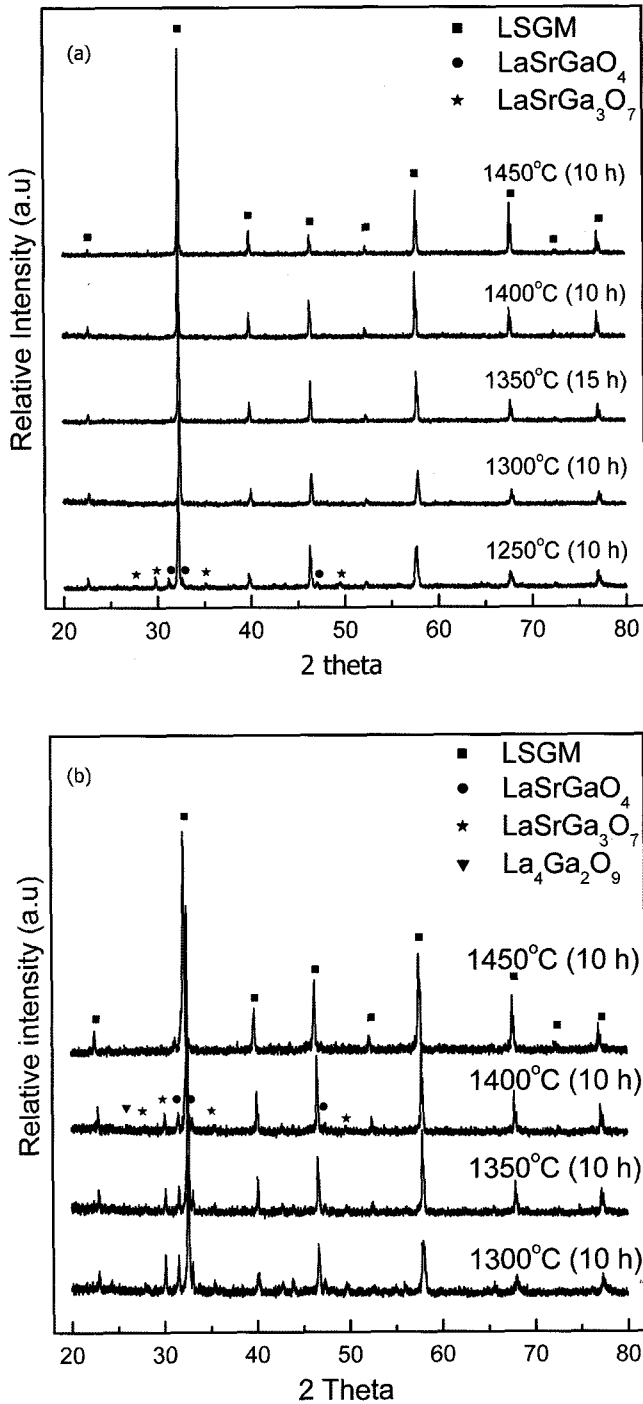


Fig. 5. XRD patterns of sintered LSGM powders synthesized by (a) citric acid process (b) solid state reaction.

이 만들어졌다. 시트르산 연소합성법을 통하여 만든 LSGM은 1250°C의 소결온도까지는 LaSrGaO_4 상이 가장 주된 이차상이라고 할 수 있고, 이에 반해 고상합성법에서는 시트르산 연소합성법에 비해 같은 소결온도에서도 이차상이 상대적으로 많이 나타났으며 1450°C의 소결온도에서도 이차상인 LaSrGaO_4 와 $\text{LaSrGa}_3\text{O}_7$ 두 가지 이차상이

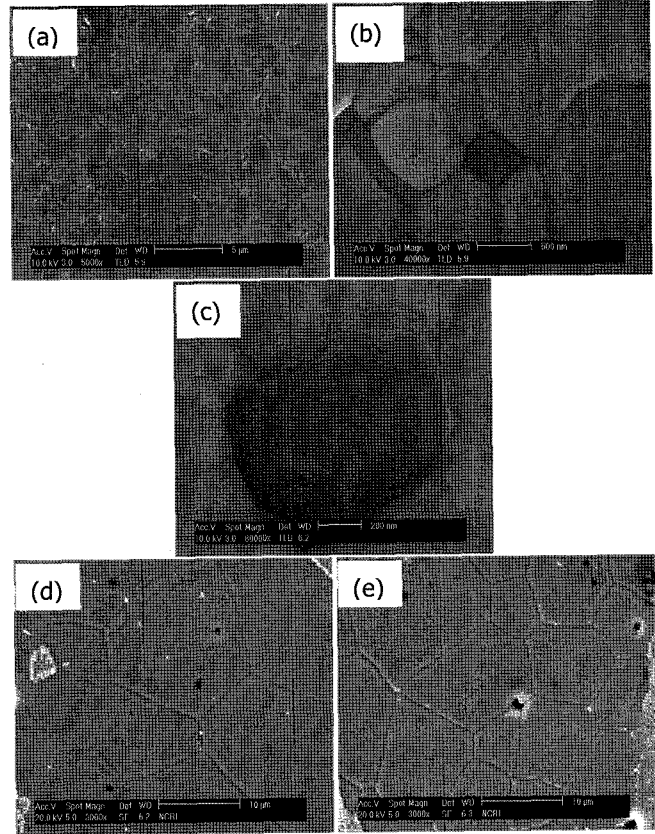


Fig. 6. Microstructures of LSGM sample sintered at 1300°C (a, b) by citric acid process (c) MgO segregated at grain boundaries of sintered LSGM sample by citric acid process, 1450°C by (d,e) solid state reaction.

여전히 강하게 나타났으며 $\text{LaSrGa}_3\text{O}_7$ 상은 비교적 높은 녹는점(~1600°C)을 갖고 있어 1450°C 이상의 소결 온도에도 안정적인 이차상으로 존재하게 된다.⁹⁻¹¹⁾ 이점에 비추어 볼 때 이차상의 형성은 합성방법에 따라 다른양상을 띠고 있음을 알 수 있다.

Fig. 6은 두 가지의 합성법으로 합성된 분말을 1300, 1450°C에서 소결한 소결체의 미세구조 사진을 보여 주고 있다. 시트르산 연소합성법으로 합성된 분말의 소결 시 결정립 크기는 1-2 μm이고, 고상법으로 합성한 분말의 소결시 결정립 크기는 7-15 μm로 조대한 결정립 구조를 나타내었다.

미세구조 사진에서 볼 수 있듯이 시트르산 연소합성법으로 합성된 분말의 소결 시 입계내에서 LSGM 상의 결정립과 다른 어두운 색을 띠는 결정립이 관찰되었다. 이 결정립을 EDS 조성분석을 통해 MgO임을 확인할 수 있었다. Fig. 6(c)는 SEM을 통하여 본 MgO의 이미지이며 이러한 MgO 상의 분리현상은 조성의 불안정으로 생성되는 현상으로 소결시 분말의 Ga과 Mg의 비가 부분적으로 이룬 값과는 달리 Mg의 비율이 높아짐에 따라 발생할 수 있는 문제점이다. Mg의 비율이 적게 되면 $\text{LaSrGa}_3\text{O}_7$ 이

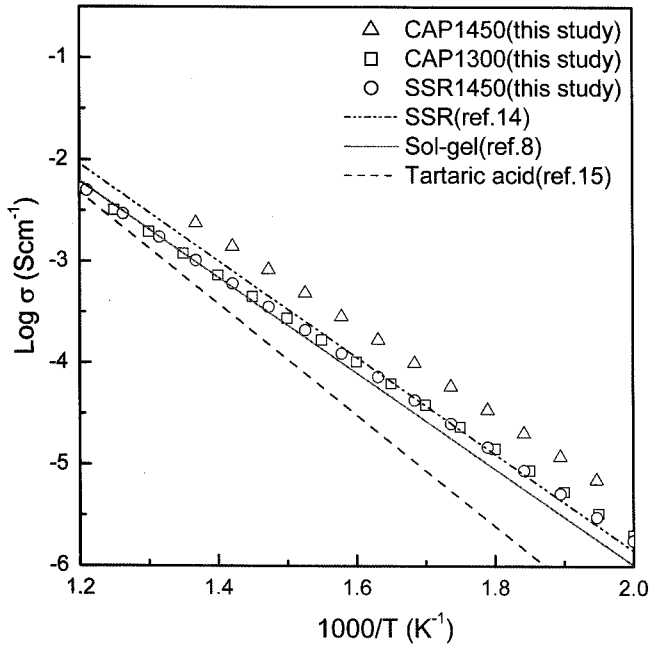


Fig. 7. Bulk electrical conductivity of LSGM electrolytes prepared from powder synthesized by citric acid process (CAP), solid state reaction(SSR).

차상이 생성되며 이 상은 1600°C의 비교적 높은 용융점을 갖고 있어 소결 시 입계내에 남아 전기적 저항을 일으킨다. 반대로 Mg의 비율이 높아지게 되면 LaSrGa₃O₇ 상이 사라지게 되고 반면에 LaSrGaO₄ 이차상이 생성되는데 이 상은 1400°C의 비교적 낮은 융점으로 소결시 액상으로 존재하여 입계내로 확산하게 되고 악영향을 주지 않아 전기적 저항을 크게 주지 않고 오히려 LSGM 결정립들의 접촉에 도움을 줄 가능성이 있다고 보고 되고 있으며⁹⁾ 이렇게 부분적으로 Mg의 비율이 높아지게 되어 Ga 자리에 고용될 수 있는 한계점인 30 mol%를 넘게 되면 MgO가 석출되어 입계 내에서 분리가 되지만 40 mol%가 넘지 않으면 X선 분석으로 검출이 되지 않는다고 보고 된다.⁹⁾ 본 연구에서도 X선 분석 시 MgO가 검출되지 않았음에도 불구하고 부분적으로 조성분석과 미세구조 사진 분석 결과 MgO의 석출이 어느 정도 있었음을 알 수 있었다. 아직 이러한 MgO의 석출이 전기전도도에 어떤 영향을 미치는지에 대해 명확하게 밝혀진 바는 없어, 향후 이에 대한 연구가 필요할 것으로 사료된다.

3.3. 전기 전도도 분석

두가지 합성법으로 각각 합성한 분말을 1300°C와 1450°C의 조건에서 소결한 시편을 교류 임피던스 분석장비(solatron 1260)를 이용하여 임피던스를 측정하고 이로부터 벌크저항값을 구하여 다음의 계산식에 의해 전도도를 구하였다. 전도도를 온도의 역수로 나타낸 Arrhenius plot 을 Fig.

7에 나타내었다.

$$\sigma = \frac{L}{RA}$$

여기에서 *L*: 시편 두께, *R*: 벌크 저항값, 그리고 *A*: 시편의 단면적이다.

시트르산 합성법으로 합성한 시편들의 경우 소결 온도가 1300°C에서 1450°C로 상승할 경우 전기 전도도가 증가하는 경향을 보였다. 이는 소결 온도가 상승함에 따라 소결체의 입계 내에 편석되었던 이차상들이 감소하면서 전기전도도 향상으로 나타난 것으로 사료되며 특히 1450°C에서 소결한 시편의 경우 500°C 이하의 온도 영역에서 고상반응법으로 합성한 LSGM 전해질 비교할 경우 높은 전기 전도도를 갖는 것을 알 수 있었다. 그리고 두가지 방법으로 소결된 시편 모두 문헌에서 보고 되는 activation energy 값과 유사하게 나타났으며, 시트르산 연소합성법으로 합성 후 1300°C에서 소결한 시편의 전기 전도도가 고상법으로 소결한 1450°C 시편의 전기전도도와 거의 같은 값을 나타내고 있음을 알 수 있는데 이를 통하여 시트르산 연소합성법이 고상법에 비해 저온소결에 유리한 합성법임을 알 수 있었다. 또한 앞에서 보여주는 전기전도도 결과는 그동안 보고된 LSGM 전해질의 전기 전도도 값과 비교해 볼 때, 매우 우수한 특성을 나타내고 있으며 이로부터 시트르산 연소합성법은 저온용 LSGM 전해질 분말의 제조에 유리한 합성공정법임을 확인할 수 있었다.

4. 결 론

시트르산 연소합성법과 고상 반응법을 이용하여 LSGM 분말 및 소결체를 제조하고 전기적 특성을 분석하였다. 이 중 새로운 합성공정인 시트르산 연소합성법을 통해 합성한 LSGM 분말의 경우 800°C 열처리 시 기존 합성법에 비해 이차상이 적고 입자 크기가 음을 알 수 있었다. 또한 고상반응법으로 합성한 분말과 비교하여 시트르산 연소합성법으로 합성한 LSGM 분말의 경우 조건에 따라 1300°C 이상의 온도에서 97% 이상의 높은 상대 밀도와 페로브스카이트 단상구조를 갖는 우수한 특성을 보임을 알 수 있었다. 시트르산 연소합성법과 고상법으로 제조된 LSGM 전해질의 전기적 특성을 분석한 결과 시트르산 연소합성법으로 제조된 소결체가 고상법으로 제조된 소결체에 비해 높은 전기 전도도를 보이는 것을 알 수 있었다.

Acknowledgment

이 논문은 산업자원부 지원 연료전지 핵심원천기술 개발사업의 일환으로 수행되었으며 이에 감사 드립니다.

REFERENCES

1. B. C. H. Steele, "Materials for Fuel-cell Technologies," *Nature*, **414** 345-52 (2001).
2. B. C. H. Steele, "Appraisal of CeGdO Electrolytes for IT-SOFC Operation at 500°C," *Solid State Ionics*, **129** 95-110 (2000).
3. Ishihara, T., H. Matsuda, and Y. Takita, "Doped LaGaO₃ Perovskite-Type Oxide as a New Oxide Ionic Conductor," *J. Am. Ceram. Soc.*, **116** [9] 3801-03 (1994).
4. Djurado, E. and M. Labeau, "Second Phases in Doped Lanthanum Gallate Perovskites," *J. Eur. Ceram. Soc.*, **18** [10] 1397-404 (1998).
5. Schulz, O. and M. Martin, "Preparation and Characterisation of La_{1-x}Sr_xGa_{1-y}Mg_yO_{3-(x+y)/2} for the Investigation of Cation Diffusion Processes," *Solid State Ionics*, **135** [1-4] 549-55 (2000).
6. L Cong, L., et al., "Synthesis and Characterization of IT-electrolyte with Perovskite Structure La_{0.8}Sr_{0.2}Ga_{0.85}Mg_{0.15}O_{3-d} by Glycine-nitrate Combustion Method," *J. Alloys Compd.*, **348** [1-2] 325-31 (2003).
7. Min Shi, Ning Liu, Yudong Xu, Yupeng Yuan, P. Majewski, and F. Aldinger, "Synthesis and Characterization of Sr-and Mg-Doped LaGaO₃ by Using Glycine Nitrate Combustion Method," *J. Alloys Compd.*, **425** 348-52 (2006).
8. Rambabu, B., et al., "Innovative Processing of Dense LSGM Electrolytes for IT-SOFC's," *J. Power Sources*, **159** [1] 21-8 (2006).
9. Huang, K.Q., R.S. Tichy, and J.B. Goodenough, "Superior Perovskite Oxide-ion Conductor; Strontium- and Magnesium-doped LaGaO₃: I, Phase Relationships and Electrical Properties," *J. Am. Ceram. Soc.*, **81** [10] 2565-75 (1998).
10. Huang, K.Q., R.S. Tichy, and J.B. Goodenough, "Superior Perovskite Oxide-ion Conductor; Strontium- and Magnesium-doped LaGaO₃: II, ac Impedance Spectroscopy," *J. Am. Ceram. Soc.*, **81** [10] 2576-80 (1998).
11. Huang, K.Q., R. Tichy, and J.B. Goodenough, "Superior Perovskite Oxide-ion Conductor; Strontium- and Magnesium-doped LaGaO₃: III, Performance Tests of Single Ceramic Fuel Cells," *J. Am. Ceram. Soc.*, **81** [10] 2581-85 (1998).
12. Glavatskikh, T.Y., et al., "Synthesis, Structure, Microstructure, and Electrical Conductivity of (La,Sr)(Ga,Mg)O_{3-delta} Oxide-ion-conducting Ceramics," *Inorg. Mater.*, **37** [6] 647-50 (2001).
13. Gorelov, V.P., et al., "The Effect of Doping and Processing Conditions on Properties of La_{1-x}Sr_xGa_{1-y}Mg_yO_{3-a}," *J. Eur. Ceram. Soc.*, **21** [13] 2311-17 (2001).
14. Li, Z.C., et al., "Synthesis and Characterization of La_{0.85}Sr_{0.15}Ga_{0.85}Mg_{0.15}O_{3-d} Electrolyte by Steric Entrapment Synthesis Method," *J. Eur. Ceram. Soc.*, **26** [12] 2357-64 (2006).
15. O. Cinar, O. Berkem, and A. G. Mehmet, "X-ray Single Phase LSGM at 1350°C," *J. Eur. Ceram. Soc.*, **27** [2-3] 599-604 (2007).