

LSM이 코팅된 고체산화물 연료전지용 Crofer Mesh 집전체 개발

백주열 · 박석주[†] · 이승복[†] · 이종원^{†,*} · 임탁형[†] · 송락현[†] · 김광범 · 신동열[†]

연세대학교 신소재공학과, [†]한국에너지기술연구원 연료전지연구단

(2010년 9월 10일 접수: 2010년 10월 10일 채택)

Development of LSM-Coated Crofer Mesh for Current Collectors in Solid Oxide Fuel Cells

Joo-Yul Baek, Seok-Joo Park[†], Seung-Bok Lee[†], Jong-Won Lee^{†,*}, Tak-Hyoung Lim[†],
Rak-Hyun Song[†], Kwang-Bum Kim, and Dong-Ryul Shin[†]

School of Advanced Material Engineering, Yonsei University, 134 Shinchon-dong, Sodaemoon-gu, Seoul 120-749, Korea

[†]Fuel Cell Research Center, Korea Institute of Energy Research, 102 Gajeong-ro, Yuseong-gu, Daejeon 305-343, Korea

(Received September 10, 2010 : Accepted October 10, 2010)

초 록

본 연구에서는 고체산화물 연료전지의 공기극 집전체로 사용되고 있는 고가의 Ag 소재를 대체하고자 전도성 세라믹이 코팅된 mesh 형태의 Crofer 22 APU 집전체를 개발하였다. 고전자전도성의 $(\text{La}_{0.80}\text{Sr}_{0.20})_{0.98}\text{MnO}_3$ (LSM)을 습식 스프레이법으로 코팅하여 고온 산화 및 전기적 특성의 열화를 억제하고자 하였다. 800°C의 산화 실험 결과에 의하면 LSM이 코팅된 Crofer mesh의 면저항(area-specific resistance)은 mesh의 제작에 사용된 와이어 지름과 접촉 부위의 형상 등 실제 접촉점의 수 및 면적을 좌우하는 mesh의 특성에 의해 좌우되었다. 또한 LSM 코팅 후 H_2/N_2 분위기에서의 열처리를 통해 Crofer mesh와 LSM 코팅층 계면에서의 Cr 함유 산화물의 형성을 효과적으로 억제하여 전기적 특성의 열화를 억제할 수 있다.

Abstract : A Crofer 22 APU mesh coated with a conductive ceramic material was developed as an alternative cathode current collector to Ag-based materials for solid oxide fuel cells. $(\text{La}_{0.80}\text{Sr}_{0.20})_{0.98}\text{MnO}_3$ (LSM) layer was deposited onto the Crofer mesh using a spray-coating technique, in an attempt to mitigate the degradation of electrical properties due to surface oxidation at high temperatures. The oxidation experiments at 800°C in air indicated that the area-specific resistance (ASR) of the LSM-coated Crofer mesh was strongly dependent on the wire diameter and the contact morphology between mesh and cell. In addition, the post-heat-treatment in H_2/N_2 resulted in a reduced thickness of Cr-containing oxide scales at the interface between Crofer mesh and LSM layer, leading to a decreased ASR.

Keywords : Solid oxide fuel cell, Current collector, Crofer 22 APU mesh, LSM, Area-specific resistance

*E-mail: jjong277@kier.re.kr

1. 서 론

고체산화물 연료전지(solid oxide fuel cell: SOFC)는 연료(수소, 탄화수소, 알콜 등)가 보유하고 있는 화학 에너지를 전기화학반응에 의해 직접 전기에너지로 변환시키는 에너지 변환 장치이다. SOFC는 인산형 및 용융 탄산염 연료전지 등 다른 연료전지에 비해 효율이 높고, 별도의 연료 개질기가 필요 없으며, 가스터빈과 함께 복합 발전이 가능하다는 장점을 갖고 있다.¹⁾ SOFC의 작동 원리는 연료극(anode)에서 수소(H_2)의 전기화학적 산화 반응에 의해 수소 이온(H^+)과 전자가 형성되고, 전자가 외부회로를 통해 공기극(cathode)로 이동한다. 공기극에서 산소(O_2)가 전자를 받아 산소 이온(O^{2-})으로 환원되고, 전해질(electrolyte)을 거쳐 연료극으로 이동하여, 수소 이온과 결합하여 물이 생성된다.

전기화학반응에 의해 발생한 전기를 외부로 전달하는 집전체는 단전기 및 스택의 출력과 장기 내구성을 좌우하는 핵심 부품이다. 특히, 연료극 지지 원통형 SOFC의 경우, 공기극 소재의 낮은 전기전도도로 인하여 저항 손실을 최소화시킬 수 있는 효율적인 집전 기술이 요구된다. 일반적으로 공기극 집전체는 Fig. 1에 도시된 것처럼 길이 방향의 주집전체와 원주 방향의 보조집전체로 구성된다. 공기극 집전체는 전기저항이 낮고, 고전류 부하와 고온의 작동 조건하에서 전극, 연결재 등 다른 구성요소와 화학적으로 반응하지 않아야 하며, 기계적 안정성도 유지되어야 한다.

이러한 이유로 공기극 소재와 유사한 perovskite 구조의 산화물 또는 Pt, Au, Pd, Ag 등의 귀금속이 사용되고 있다. 이중 보조집전체로는 Ag가 주로 사용되는데, 고가이고, 낮은 녹는점($961.8^{\circ}C$)으로 인하여 장시간 운전시 휘발 문제가 발생할 수 있으며, 와이어 형태의 경우 대면적 집전에 어려움이 있다. 따라서 고온에서 안정하며 대면적 집전이 용이한 저가의 대체 재료 개발이 필요하다. 최근 stainless steel 계열의 Crofer 22 APU, E-brite 등의 금속 소재를 적용하려는 시도가 이루어지고 있으나, Cr을

함유하는 표면/계면 산화물 형성으로 인하여 전기저항이 증가하고 Cr 휘발/피독 현상이 발생하는 등 장기 내구성 및 신뢰성이 감소하는 문제점이 발생한다.^{2,3)} 이에 본 연구에서는 보조집전체용 Ag 와이어를 대체하고자 전도성 산화물이 코팅된 mesh 형태의 Crofer 22 APU 집전체를 개발하였다.

2. 실험장치 및 방법

2.1. Crofer mesh 시편 준비

본 연구에서는 두 가지 지름($\phi=0.1\text{ mm}$ 및 0.2 mm)의 와이어로 평직(plain weave) 제작된 상용 Crofer 22 APU mesh를 사용하였다. Crofer mesh를 $1\text{ cm} \times 1\text{ cm}$ 크기로 절단 후, 세라믹 코팅층과의 접착력을 향상시키기 위해 sand-blasting 처리를 통해 mesh 표면의 거칠기를 증가시켰다. Sand-blasting 처리에 사용된 분말은 320 mesh 입자크기를 갖는 alumina 분말이었으며, sand-blasting 처리 후, Crofer mesh를 ethanol 용액에서 초음파 처리하여 표면의 불순물을 제거하였다. 또한 일부 시편들은 셀과 집전체 사이의 접촉면적을 증가시키기 위하여 mesh를 프레스 가공(10초간 1.5 ton/cm^2 의 압축력 인가)하여 mesh 표면을 평탄하게 변형시켰다.

2.2. LSM slurry 제조

LSM slurry는 $(La_{0.80}Sr_{0.20})_{0.98}MnO_3$ (LSM, Fuel Cell Materials) 분말과 유기 바인더, 첨가제, 분산제, 용매 등을 혼합하여 제조하였다. 이후 다양한 크기의 zirconia ball을 넣고 100시간 동안 ball milling 과정을 통해 균일하게 혼합하였다.

2.3. 스프레이 코팅 및 후 열처리

Fig. 2에 도시된 것과 같이 스프레이 코팅법으로 Crofer

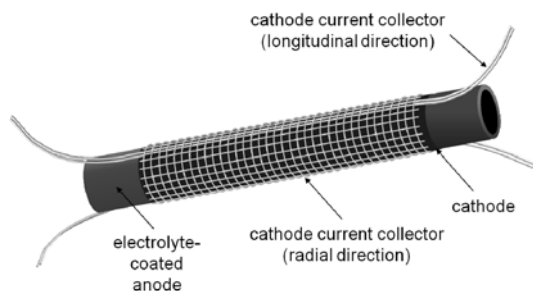


Fig. 1. Schematic diagram of cathode current collectors for anode-supported tubular solid oxide fuel cells.

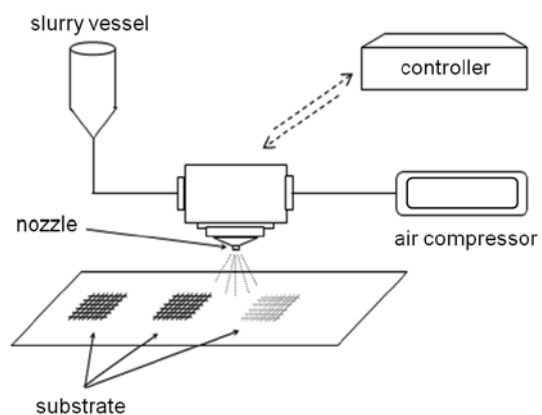


Fig. 2. Schematic diagram of the spray-coating equipment.

mesh 표면에 LSM 코팅층을 형성하였다. 코팅 시 노즐의 이동속도는 0.3 m/s, 토출 분압은 1.8 kg-f/cm², mesh 시편과 노즐 사이의 거리는 7 cm로 유지하였다. 코팅된 시편을 상온에서 건조한 후, 800°C와 950°C의 환원 분위기(90 vol.% H₂/10 vol.% N₂)에서 3시간 동안 열처리하여, 금속 산화를 억제하면서 치밀한 코팅층을 얻고자 하였다.

2.4. 전기적 특성평가 및 미세조직 관찰

제작된 시편들을 800°C 공기의 산화 분위기에 노출시키며 시간에 따라 면저항(area-specific resistance: ASR)을 측정하였다. ASR 측정의 개략도는 Fig. 3에 도시되어 있다. Spot welding을 통해 Pt 판재와 Pt 와이어를 연결하였고, Pt 와이어에 100 mA/cm²의 전류를 인가하여 시편의 ASR을 측정하였다. ASR 측정시, 각 시편에 대해 Crofer mesh와 Pt 판재 사이의 접촉면적을 일정하게 유지하기 위하여 동일한 무게의 alumina 판을 Pt 판재 위에 올려 일정한 압력을 가하였다. 또한, 각 시편들의 산화 거동을 해석하기 위해 무게 변화, X선 회절(X-ray diffractometry: XRD), 주사현미경(scanning electron microscopy: SEM), 조성분석(energy dispersive spectroscopy: EDS)을 활용하여 시편들의 미세구조를 분석하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1. 코팅되지 않은 Crofer mesh의 산화 거동

Fig. 4는 800°C의 공기 중에서 산화 실험 동안 코팅되지 않은 Crofer mesh의 무게 증가량을 측정한 결과이다. 산화 실험 중 시간이 증가함에 따라, 무게가 점차적으로 증가하였으며, 무게-시간 곡선이 포물선 형태로 나타나고 있는데, 이는 확산에 의해 제어되는 산화막의 형성에 의

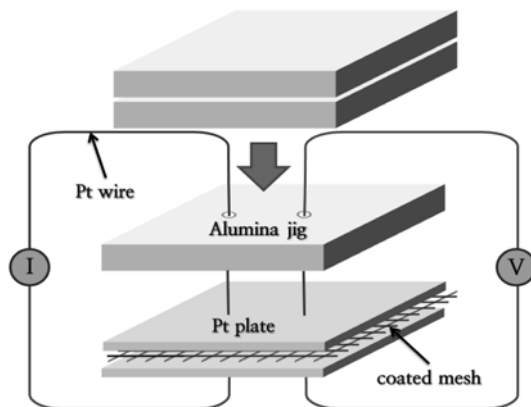


Fig. 3. Schematic illustration of the experimental setup for ASR measurements.

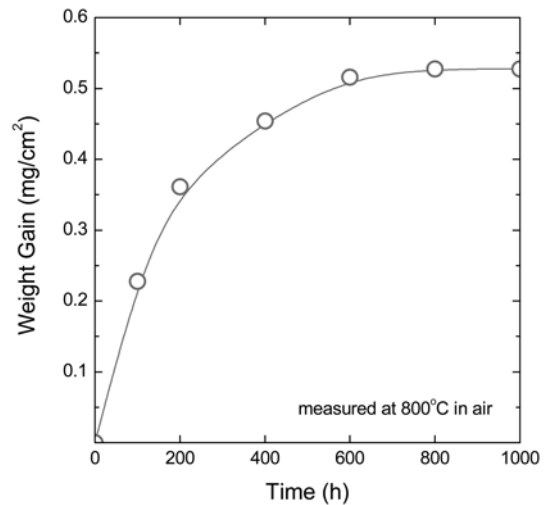


Fig. 4. Plot of weight gain versus time measured on the bare Crofer mesh during the oxidation experiment at 800°C in air.

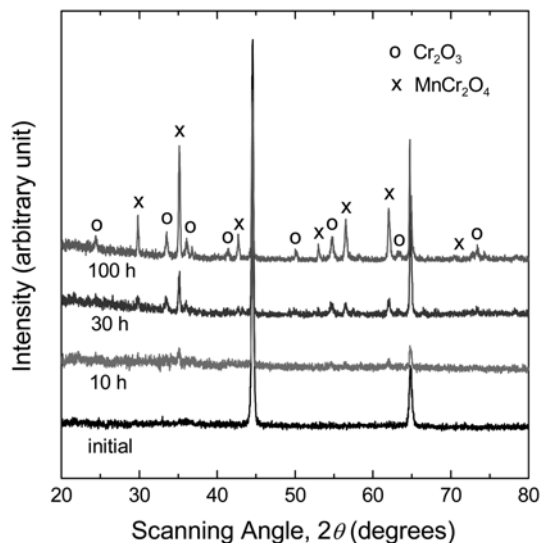


Fig. 5. XRD patterns of the bare Crofer meshes subjected to oxidation for different periods.

한 것으로 판단된다.⁴⁾ 1000시간 노출 시 약 0.527 mg/cm²의 무게 증가가 측정되었다. 무게 증가의 원인을 알아보기 위해 10, 30, 100시간 동안 실험 후 XRD 분석을 실시하였다. Fig. 5에 도시된 바와 같이 초기상태에서는 Fe-Cr 합금의 회절 피크만 존재하지만, 시간이 증가할수록 corundum구조의 Cr₂O₃와 spinel 구조의 MnCr₂O₄ 성분들의 회절 피크가 나타났다. 이러한 결과는 코팅되지 않은 LSM 표면에 Cr₂O₃과 MnCr₂O₄로 구성된 두 개의 산화막 층이 형성되었음을 의미한다.

기존 문헌에 의하면 800°C 고온의 경우, Cr_2O_3 내부에서 Mn^{2+} 이온의 확산 속도가 Cr^{3+} 이온의 확산 속도보다 약 85배 빠르다.^{5,6)} 따라서, Crofer 소재와 같이 Mn을 포함한 Fe-Cr 합금의 산화시, Cr_2O_3 의 형성과 함께 Cr_2O_3 상단에 $(\text{Mn,Cr})_3\text{O}_4$ 의 spinel 층이 형성되는 것으로 알려져 있다.⁷⁻¹⁰⁾ 이러한 Cr 함유 산화물들은 시간에 따라 두께가 증가하여 ASR을 증가시키며, 산화물로부터 Cr 성분이 휘발되어 공기극/전해질 계면을 피독시키는 문제점을 야기시킨다.^{2,3,11,12)} 이에 본 연구에서는 고전자전도성 산화물인 LSM을 코팅하여 ASR 증가를 억제하는 동시에 Cr 함유 산화물의 형성을 억제하고자 하였다.

3.2. LSM이 코팅된 Crofer mesh의 특성: 와이어 지름의 영향

기존 판재(plate) 형태의 Crofer 소재를 사용한 실험¹³⁾들과 달리 mesh 형태의 집전체 경우 다양한 변수들이 존재한다. 우선 본 연구에서는 mesh의 제작에 사용된 와이어의 지름(ϕ)에 따른 ASR의 변화를 측정하였다. Mesh의 ϕ 값에 따라 단위 인치 당 와이어의 개수인 mesh# 값이 결정되며, 본 실험에 사용된 mesh는 $\phi = 0.1$ mm의 경우 #70, $\phi = 0.2$ mm의 경우 #50의 규격을 갖는다. Fig. 6(a)와 (b)는 광학현미경으로 촬영한 $\phi = 0.1$ mm 및 0.2 mm를 갖는 mesh의 표면 사진이다. Fig. 6에 표시된 바와 같이 mesh 형태의 집전체 경우, 두 와이어가 교차하는 지점을 통해서만 집전이 이루어지며, Jiang의 문헌¹⁴⁾에서 제시된 방법으로 모서리 길이가 ϕ 값인 정사각형의 접촉면적(contact area)을 계산하여 Table 1에 정리하였으며, $\phi = 0.2$ mesh의 총 접촉면적은 15.52 mm²로서 $\phi = 0.1$ mesh의 경우 보다 약 2배 넓다.

LSM이 코팅된 Crofer mesh로부터 100시간 동안 산화 실험 후 측정된 ASR을 Table 1에 정리하였다. 100시간 후 측정된 $\phi = 0.2$ mesh의 ASR 값은 143.7 m Ω cm²로서 $\phi = 0.1$ mesh의 63.3 m Ω cm² 보다 두 배 이상 높게 측정되었다. Table 1에서 계산된 총 접촉면적에 의하면, 접촉면적이 넓은 $\phi = 0.2$ mesh가 상대적으로 낮은 ASR 값을 보일 것으로 예상되었지만, 실제 결과는 단위면적당 접촉점(contact point)의 수가 많은 $\phi = 0.1$ mesh가 더욱 낮은 ASR 값을 보였다. Mesh 형태의 집전체 경우, 접촉 부위의 형상이 구형으로서 실제 접촉면적이 이론적으로 계산된 값보다 매우 작으며, 접촉점의 수에 의해 ASR 값이 좌우된다는 것을 의미한다.

3.3. LSM이 코팅된 Crofer mesh의 특성: 프레스 가공 영향

앞서 언급된 바와 같이 mesh 형태의 집전체 경우, 접촉 부위의 형상이 구형으로서 접촉면적이 매우 제한적이다. 이에 본 연구에서는 셀과 집전체 사이의 접촉면적을 증

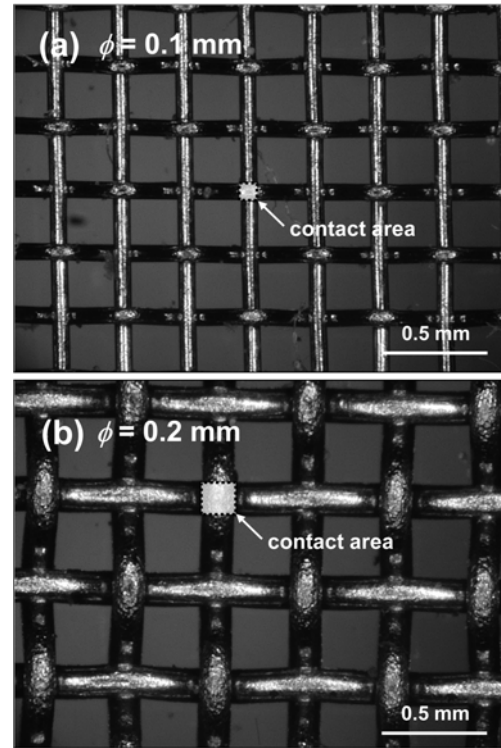


Fig. 6. Optical micrographs taken from the bare Crofer meshes with the wire diameters of (a) 0.1 mm and (b) 0.2 mm.

Table 1. Number of contact points, total contact area and ASR value determined for the meshes with different wire diameters

| Wire diameter (mm) | Number of contact points (#/cm ²) | Total contact area (mm ²) | ASR after 100 h (m Ω cm ²) |
|--------------------|---|---------------------------------------|---|
| 0.1 | 756 | 7.56 | 63.3 |
| 0.2 | 388 | 15.52 | 143.7 |

가시키기 위하여 LSM 코팅 전 mesh에 압축력을 가하여 mesh 표면을 평탄하게 가공하고자 시도하였다. Fig. 7(a)는 $\phi = 0.1$ mesh를 프레스 가공하지 않은 경우의 SEM 사진으로서, 구형의 와이어 표면에 LSM이 코팅된 것을 확인할 수 있다. 반면, 프레스 가공한 경우에는 Fig. 7(b)에 도시된 바와 같이 평탄한 Crofer 표면에 LSM이 코팅된 것을 확인할 수 있으며, 이에 따라 셀과 집전체 사이의 접촉면적이 증가할 것이라 예상된다.

Fig. 8은 프레스 가공 유무에 따라 LSM이 코팅된 Crofer $\phi = 0.1$ mesh의 ASR을 산화 시간에 따라 도시한 그림이다. 두 시편의 경우, 실험 초기에 ASR이 감소하는 것을 볼 수 있는데, 이는 Crofer mesh와 LSM 코팅층

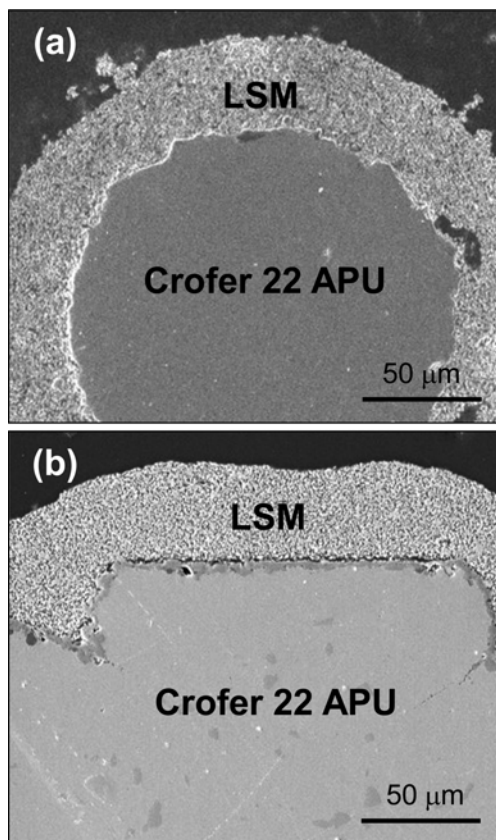


Fig. 7. SEM images of the cross-sections of the LSM-coated Crofer meshes: (a) without pressing and (b) with pressing.

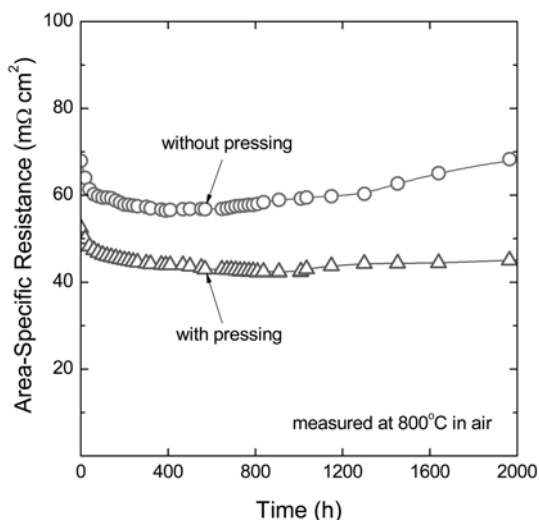


Fig. 8. Plots of ASR against time measured on the LSM-coated Crofer meshes during the oxidation experiment at 800°C in air: (a) without pressing and (b) with pressing.

사이에 형성되는 산화물로 인하여 치밀한 조직의 계면이 형성되어 일시적으로 접촉저항이 낮아지는 현상으로 사료된다.⁴⁾ 하지만, 일정시간 후 ASR은 점차적으로 증가하는 것을 알 수 있다. 실험 초기뿐만 아니라 2000시간 후 프레스 가공된 시편에서 측정된 ASR은 프레스 가공을 거치지 않은 시편보다 낮게 측정되었다. 이로부터 프레스 가공 후 접촉 면적이 증가하여 실제로 ASR 값이 감소하였음을 확인할 수 있었고, 접촉면적이 작은 mesh 형태 집전체의 단점을 프레스 가공을 통하여 보완할 수 있을 것으로 사료된다.

3.4. LSM이 코팅된 Crofer mesh의 특성: 후 열처리 온도 영향

금속 소재의 공기극 집전체는 고온의 산화분위기에 노출되어 표면이 산화되기 쉽고, 결과적으로 집전체의 전기전도성은 표면에 형성된 산화물의 전기적 특성에 의해 좌우된다. 일반적으로 공기극 집전체가 높은 전기전도도를 유지하려면, 산화물 자체의 전기전도도가 높고, 표면에 형성된 산화물의 두께가 얇아야 하는 요구조건과 함께 조직이 치밀하여 지속적인 산소 유입을 억제할 수 있어야 한다.^{4,13)} 이에 본 연구에서는 LSM 코팅 후, 열처리를 실시하여 LSM 코팅층의 치밀도를 향상시켜 Crofer mesh와 LSM 코팅층 사이에 형성되는 계면 산화물의 형성을 억제하고자 하였다.

Fig. 9는 LSM 코팅 후 열처리 조건에 따른 시편들의 ASR을 측정된 결과이다. 950°C에서 열처리한 경우, 초기 ASR 값이 다른 두 시편의 경우 보다 낮게 측정되었는데, 이는 950°C 열처리 과정에서 치밀한 LSM 코팅층 및

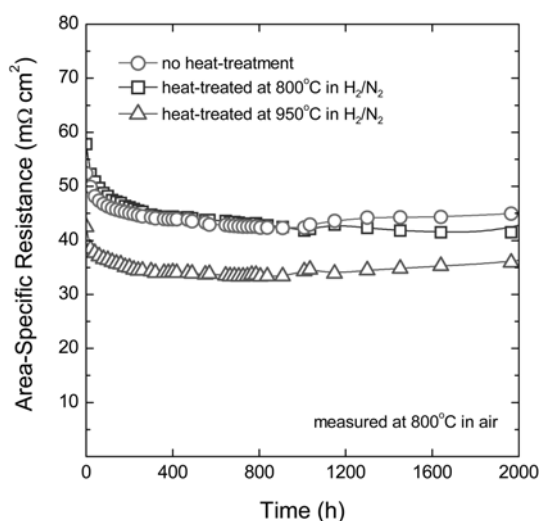


Fig. 9. Effect of post-heat-treatment temperature on the ASR value of LSM-coated Crofer meshes.

Crofer/LSM 계면 형성, 또는 평탄한 LSM 표면 형성에 의한 것으로 사료된다. 2000시간 후, 열처리를 하지 않은 시편의 ASR은 $42.4 \text{ m}\Omega \text{ cm}^2$, 800°C 에서 열처리한 시편의 경우 $44.5 \text{ m}\Omega \text{ cm}^2$ 로 측정되어 두 시편이 유사한 ASR값을 나타내었다. 반면에 950°C 에서 열처리한 시편의 ASR은 $35.8 \text{ m}\Omega \text{ cm}^2$ 로 다른 두 시편보다 낮게 나타났다.

Fig. 10은 2000시간의 산화 실험 후 관찰한 Crofer mesh의 단면 사진이다. 열처리를 하지 않은 시편과 800°C 에서 열처리를 수행한 시편은 약 $3.5\text{--}4.0 \mu\text{m}$ 두께의 계면 산화물 층이 형성된 반면에, 950°C 열처리를 수행한 시편에 형성된 계면 산화물 층의 두께는 약 $1.0\text{--}1.5 \mu\text{m}$ 로 상대적으로 두께가 얇은 것으로 확인되었다. 기존의 문헌¹⁵⁾과

저자의 기존 실험결과¹⁶⁾에 따르면, LSM 코팅층은 900°C 이상에서 본격적으로 소결이 이루어져 densification rate가 급속히 증가한다. 따라서 800°C 에서 열처리한 경우보다 950°C 에서 열처리한 경우 LSM 코팅층의 치밀도가 크게 증가하고, 이로 인하여 산화 실험 시 Crofer mesh와 LSM 코팅층 사이의 계면 산화물 형성이 효과적으로 억제된 것으로 사료된다.

온도가 증가할수록 LSM 코팅층의 수축률 및 치밀도가 증가하므로 1000°C 이상의 고온에서 열처리를 수행하는 것이 치밀도 향상 및 계면 산화물 형성에 유리할 수 있으나, 다음과 같은 문제점이 발생한다. Ferrite계 stainless steel의 일종인 Crofer 금속 모재의 경우, 1000°C 이상의 고온에서 열처리시 σ 상의 Fe-Cr 화합물이 석출되고, 결정립 조대화도 인하여 인성, 연성 등의 기계적 특성이 급격히 저하된다.^{17,18)} 또한 1000°C 이상의 환원 분위기 노출시 LSM이 분해되어 La_2O_3 , MnO, SrMnO_3 , La_2MnO_4 와 같은 저항이 큰 상이 형성된다.^{19,20)}

Fig. 11에 도시된 EDS 조성 분석 결과를 보면 Crofer

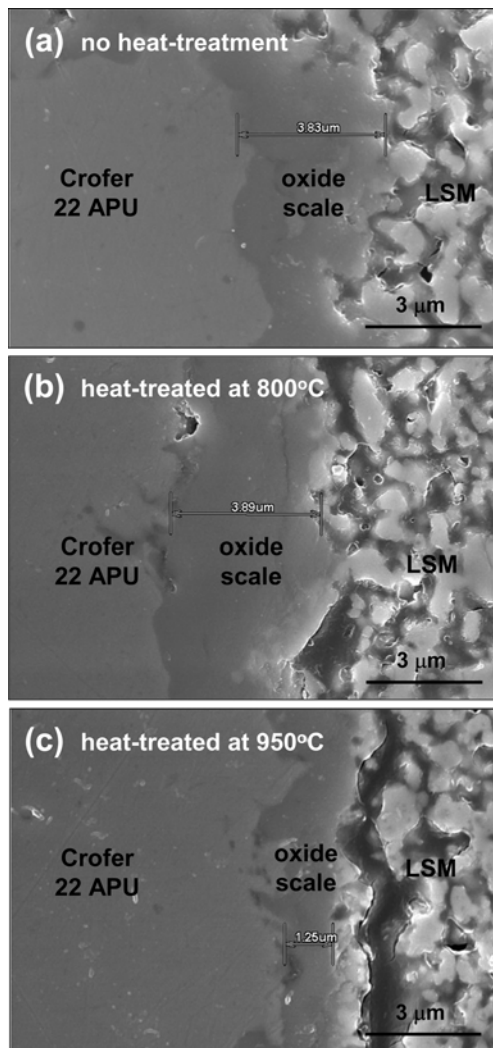


Fig. 10. SEM micrographs of the LSM-coated Crofer meshes subjected to post-heat-treatments at different temperatures.

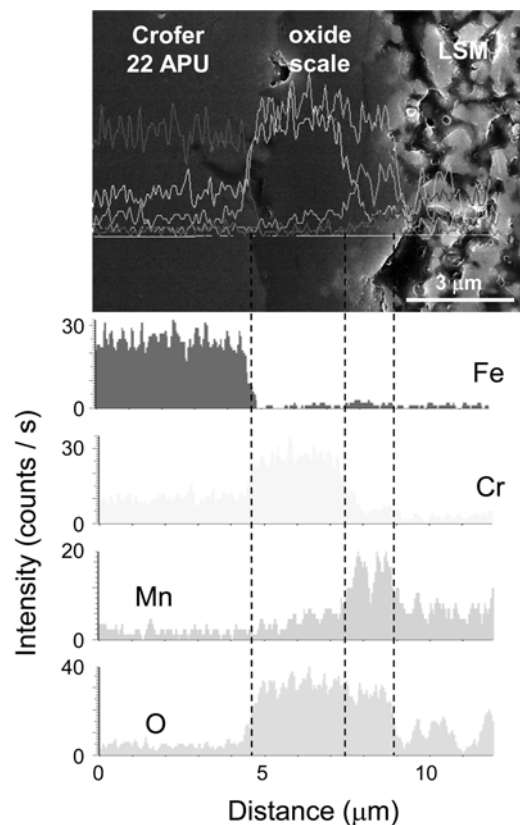


Fig. 11. Concentration profiles of Fe, Cr, Mn and O obtained for the LSM-coated Crofer mesh. The post-heat-treatment was performed at 800°C in H_2/N_2 .

mesh와 LSM 코팅층 사이의 계면에 Cr을 주성분으로 하는 산화물 층과 Mn-Cr-Fe 산화물 층이 형성된 것을 볼 수 있다. Fig. 9로부터 알 수 있듯이 2000시간의 산화 실험 동안 급격한 ASR의 증가 없이 일정한 값을 유지하고 있는데, 이로부터 초기에 형성된 계면 산화물 층이 지속적으로 성장하지 않고 일정한 두께를 유지하고 있는 것으로 사료된다. LSM 코팅 조건을 최적화 함으로써 Crofer mesh와 LSM 코팅층 사이에 형성되는 계면 산화물의 형성을 억제하여 ASR의 증가를 억제하는 동시에 Cr 성분이 휘발되어 공기극/전해질 계면을 피독시키는 문제점을 억제할 수 있을 것으로 예상된다.

4. 결 론

본 연구에서는 스프레이 코팅법을 이용하여 고체산화물 연료전지용 공기극 집전체인 Crofer 22 APU mesh 표면에 전도성 세라믹 소재인 LSM을 코팅하여 고온 산화 및 전기적 특성의 열화를 억제하고자 하였으며 다음과 같은 결론을 얻을 수 있었다.

코팅되지 않은 Crofer mesh의 경우, 800°C의 산화 분위기에서 표면에 산화물의 형성으로 인해 무게가 점차적으로 증가하였으며, 형성된 표면 산화물은 Cr_2O_3 과 MnCr_2O_4 의 두 개의 층으로 이루어져 있음을 확인할 수 있었다.

LSM 코팅 후 mesh의 제작에 사용된 와이어의 지름(ϕ)에 따른 ASR의 변화를 측정한 결과로부터 mesh 형태의 집전체 경우, 실제 접촉 면적이 이론적으로 계산된 값보다 매우 작으며, 접촉점의 수에 의해 ASR 값이 좌우된다. 또한 코팅 전에 mesh를 프레스 가공하여 접촉 면적을 증가시켜 ASR을 감소시킬 수 있으며, 접촉면적이 작은 mesh 형태 집전체의 단점을 프레스 가공을 통하여 보완할 수 있음을 알 수 있었다.

LSM 코팅 후 950°C N_2/H_2 분위기에서 열처리를 수행한 경우, Crofer mesh와 LSM 코팅층 사이의 Cr 함유 계면 산화물 형성이 효과적으로 억제되어 ASR 값이 감소되었다.

감사의 글

본 연구는 2009년도 지식경제부의 재원으로 한국에너지기술평가원(KETEP)의 지원을 받아 수행한 연구 과제입니다(No. 2008NFC12J1630102008).

참고문헌

1. S. C. Singhal and K. Kendall, 'High temperature solid oxide fuel cell: fundamentals, design and applications' Elsevier Science (2003).

2. H. Tu and U. Stimming, 'Advances, aging mechanisms and lifetime in solid-oxide fuel cells' *J. Power Sources*, **127**, 284 (2004).
3. A. Webber and E. I. Tiffee, 'Materials and concepts for solid oxide fuel cells (SOFCs) in stationary and mobile applications' *J. Power Sources*, **127**, 273 (2004).
4. Z. Yang, J. S. Hardy, M. S. Walker, G. Xia, S. P. Simner, and J. W. Stevenson, 'Structure and conductivity of thermally grown scales on ferritic Fe-Cr-Mn steel for SOFC interconnect applications' *J. Electrochem. Soc.*, **151**, A1825 (2004).
5. M. G. E. Cox, B. McEnaney, and V. D. Scott, 'A chemical diffusion model for partitioning of transition elements in oxide scales on alloys' *Philosophical Magazine*, **26**, 839 (1972).
6. R. K. Wild, 'High temperature oxidation of austenitic stainless steel in low oxygen pressure' *Corrosion Sci.*, **17**, 87 (1977).
7. X. Chen, P. Y. Hou, C. P. Jacobson, S. J. Visco, and L. C. D. Jonghe, 'Protective coating on stainless steel interconnect for SOFCs: oxidation kinetics and electrical properties' *Solid State Ionics*, **176**, 425 (2005).
8. N. Sakai, T. Horita, Y. P. Xiong, K. Yamaji, H. Kishimoto, M. E. Brito, H. Yokokawa, and T. Maruyama, 'Structure and transport property of manganese-chromium-iron oxide as a main compound in oxide scales of alloy interconnects for SOFCs' *Solid State Ionics*, **176**, 681 (2005).
9. H. Jurokawa, K. Kawamura, and T. Maruyama, 'Oxidation behavior of Fe-16Cr alloy interconnect for SOFC under hydrogen potential gradient' *Solid State Ionics*, **168**, 13 (2004).
10. K. Fujita, T. Hashimoto, K. Ogasawara, H. Kameda, Y. Matsuzaki, and T. Sakurai, 'Relationship between electrochemical properties of SOFC cathode and composition of oxide layer formed on metallic interconnects' *J. Power Sources*, **131**, 270 (2004).
11. Z. Yang, G. Xia, and J. W. Stevenson, 'Mn_{1.5}Co_{1.5}O₄ spinel protection layers on ferritic stainless steels for SOFC interconnect applications' *Electrochem. Solid-State Lett.*, **8**, 168 (2005).
12. Z. Yang, G. Xia, G. D. Maupin, and J. W. Stevenson, 'Conductive protection layers on oxidation resistant alloys for SOFC interconnect applications' *Surf. Coat. Tech.*, **201**, 4476 (2006).
13. S. S. Pyo, S. B. Lee, T. H. Lim, R. H. Song, D. R. Shin, S. H. Hyun, and Y. S. Yoo, 'Characteristic of (La_{0.8}Sr_{0.2})_{0.98}MnO₃ coating on Crofer22APU used as metallic interconnects for solid oxide fuel cell' *Int. J. Hydrogen Energy*, in press.
14. S. P. Jiang, J. G. Love, and L. Apateanu, 'Effect of contact between electrode and current collector on the performance of solid oxide fuel cells' *Solid State Ionics*, **160**, 15 (2003).
15. B. P. McCarthy, L. R. Pederson, Y. S. Chou, X. D. Zhou, W. A. Surdaval, and L. C. Wilson, 'Low-temperature sintering of lanthanum strontium manganite-based contact pastes for SOFCs' *J. Power Sources*, **180**, 294 (2008).

16. J. H. Kim, R. H. Song, and S. H. Hyun, 'Effect of slurry-coated LaSrMnO_3 on the electrical property of Fe-Cr alloy for metallic interconnect of SOFC' *Solid State Ionics*, **174**, 185 (2004).
17. M. G. Fontana, and N. D. Greene, 'Corrosion Engineering' McGraw-Hill (1986).
18. W. F. Smith, 'Structure and properties of engineering alloys' McGraw-Hill (1993).
19. J. H. Kuo, H. U. Anderson, and D. M. Sparlin, 'Oxidation-reduction behavior of undoped and Sr-doped LaMnO_3 nonstoichiometry and defect structure' *J. Solid State Chem.*, **83**, 52 (1989).
20. J. Mizusaki and H. Tagawa, 'Nonstoichiometry and thermochemical stability of the perovskite-type $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_{3-\delta}$ ' *Solid State Ionics*, **49**, 111 (1991).