

## 金属支撑固体氧化物燃料电池阳极造孔及电化学性能

林凯生<sup>1</sup>, 朱志刚<sup>1,2</sup>, 宋琛<sup>1</sup>, 刘太楷<sup>1</sup>, 文魁<sup>1</sup>, 毛杰<sup>1</sup>, 张小锋<sup>1</sup>, 邓畅光<sup>1</sup>, 邓春明<sup>1</sup>, 刘敏<sup>1</sup>

(1. 广东省科学院新材料研究所, 现代材料表面工程技术国家工程实验室, 广东省现代表面工程技术重点实验室, 粤港现代表面工程技术联合实验室, 广州 510650; 2. 华南理工大学材料科学与工程学院, 发光材料与器件国家重点实验室, 广州 510641)

**摘要:** 金属支撑固体氧化物燃料电池(MS-SOFC)的阳极微观结构如孔隙率、三相界面(TPB)及催化活性位点的分布显著影响其电化学性能。为系统研究并调控其微观结构, 本工作采用喷雾造粒和机械混合工艺, 在 NiO-Gd<sub>0.2</sub>Ce<sub>0.8</sub>O<sub>1.9</sub>(GDC)粉末中引入石墨造孔剂, 探究其添加形式对大气等离子喷涂(APS)制备阳极的微观结构及电化学性能的影响。结果表明: 未添加石墨的阳极呈现典型的喷涂态层状堆叠结构, 其特征主要为亚微米级裂纹和细小孔洞; 而通过复合团聚引入石墨的阳极涂层内部孔隙结构尺度适中、分布均匀, 并伴随少量微裂纹, 为燃料传输与产物排出提供了有效通道; 机械混合添加的石墨因聚集成约 5 μm 的颗粒, 喷涂后形成大尺寸孤立孔洞, 破坏了 Ni 导电网络的连续性, 并减少了 TPB 有效活性位点。电化学阻抗谱分析表明, 石墨可调控喷涂过程中粉末的热响应行为, 促进粉末熔融而形成更均匀的微观结构, 从而增强电荷转移并降低高频极化电阻。石墨的添加形式对孔隙结构及反应活性位点具有关键调控作用, 机械混合添加形成的大尺寸孔隙阻碍了燃料吸附/解离过程, 导致其低频极化电阻最大。尽管添加石墨有助于调控孔隙, 但其在喷涂过程中的热分解会提高阳极表面粗糙度, 影响电解质沉积质量, 导致含石墨电池的开路电压降低, 欧姆电阻升高, 整体输出性能下降。后续工作可通过阳极表面改性, 协同孔隙结构均匀性优化, 构建更多有效的反应活性位点, 以提升 MS-SOFC 的综合输出性能。

**关键词:** 阳极; 石墨造孔剂; 大气等离子喷涂; 金属支撑型固体氧化物燃料电池; 电化学性能

中图分类号: TM911 文献标志码: A 文章编号: 0454-5648(2026)04-1359-11

网络出版时间: 2025-12-29



固体氧化物燃料电池(solid oxide fuel cells, SOFC)是一种全固态的能量转换装置, 能通过电化学反应将燃料(如氢、碳氢化合物和生物质气等)中的化学能转化为电能和热能。它不仅可以突破卡诺循环的限制, 发挥高能量转换效率, 同时还可以减少石油等不可再生资源的使用, 实现清洁能源的转换, 在家庭热电联供系统、微型供电系统、固定/分布式电站、运输辅助动力装置等领域展现出广泛的应用前景<sup>[1-2]</sup>。SOFC 由多孔电极(阳、阴极)和致密电解质组成, 其运行温度一般在 500~1000 °C, 在此高温工况下, 电池必须具备足够的结构强度来克服热应力。因此, 传统

SOFC 通过增大电解质或阳极厚度来构建支撑结构, 形成了电解质支撑 SOFC 和阳极支撑 SOFC, 但与此同时也伴随如陶瓷材料脆性较大、不易机械加工、抗热震性能和焊接性能较差等一系列问题, 限制了其在汽车、船舶、无人机等非定置领域的应用<sup>[3-5]</sup>。以金属材料作为支撑体的金属支撑 SOFC(Metal-supported SOFC, MS-SOFC)凭借良好的机械性能、较低的成本、快速启动、易于密封等优势吸引了广泛关注, 在移动电源领域展现出巨大的应用潜力<sup>[6-7]</sup>。

在 SOFC 中, 氧气在阴极被还原成 O<sup>2-</sup>, 在氧分压的驱动下穿过致密电解质抵达阳极, 与燃料发生

收稿日期: 2025-09-22。 修订日期: 2025-10-21。

基金项目: 国家重点研发计划(2023YFE0108000); 国家自然科学基金(52201069); 广东省科技计划项目(2023B1212060045, 2023B1212120008); 广东省科学院青年人才专项(2024GDASQNR-0208); 广东省科学院发展专项资金项目(2024GDASZH-2024010102); 广东省科学院新材料研究所专项资金项目(2023GINMZX-202301020104); 广州市基础与应用基础研究项目(2025A04J5111)。

第一作者: 林凯生(1979—), 男, 工程师。

通信作者: 宋琛(1990—), 男, 高级工程师。

Received date: 2025-09-22. Revised date: 2025-10-21.

First author: LIN Kaisheng (1979—), male, Engineer.

E-mail: links168@163.com

Correspondent author: SONG Chen (1990—), male, Senior Engineer.

E-mail: phd.songchen@gmail.com

电化学反应, 因此阳极的催化活性和微观结构能够显著影响电池的输出性能。Udomsilp 等<sup>[8]</sup>通过调控阳极结构和成分, 发现在 700 °C @ 0.7 V 时, 电池的峰值输出功率密度从约 600 mW·cm<sup>-2</sup> 提高至约 1200 mW·cm<sup>-2</sup>, 表明三相反应边界(TPB)[即气相(孔)、离子相和电子相三者相互交集的位点]密度增加是输出性能提升的关键因素。TPB 的有效分布状况取决于孔隙结构与活性相的空间连续性, 它们同时决定了电荷与燃料气体在电极中的传输效率, 适当的孔隙结构可改善气体扩散路径并降低低频极化电阻<sup>[9]</sup>。在阳极中引入造孔剂是构建孔结构的常见方法, Nien 等<sup>[10]</sup>将 0、5%、10%、15%(质量分数)炭黑造孔剂加入到 NiO-BaZr<sub>0.1</sub>Ce<sub>0.7</sub>Y<sub>0.2</sub>O<sub>3-δ</sub> 阳极中, 在湿 H<sub>2</sub> 和干 O<sub>2</sub> 的测试气氛中, 加入 10% 炭黑造孔剂的电池表现出最高的峰值功率密度。Zhou 等<sup>[11]</sup>向 NiO-YSZ 阳极中掺入 1.5%、2.0%、2.5%、3.0%、3.5%(质量分数)的马铃薯淀粉, 发现孔隙率随着造孔剂含量增多而增大, 当含量为 2.5% 时, 电池表现出最好的输出性能。然而, 造孔剂的含量在达到最优值后继续增加时, TPB 密度将逐渐降低, 导致电化学性能下降。Cigdem 等<sup>[12]</sup>将 20%(体积分数)的大米淀粉、活性炭和石墨作为造孔剂添加到 NiO-YSZ 中, 虽然所得阳极孔隙率相近(34.2%~36.7%), 但含石墨的电池性能最高, 归因于石墨能形成细小且分布均匀的孔隙结构, 有助于构建更多有效的 TPB 反应位点。因此, 阳极设计需综合考虑孔隙率、孔径分布、连通路径及结构完整性之间的平衡, 以获得最优的电化学反应位点。

传统阳极制备通常采用流延、丝网印刷、浸渍等工艺, 需经历高温烧结过程(>1200 °C), 这会造成 MS-SOFC 中金属支撑体的氧化、翘曲变形, 并诱发其与阳极相互反应, 导致阳极结构退化和催化性能降低<sup>[4, 13]</sup>。等离子喷涂技术对基体的热影响较小, 能够有效避免上述问题, 同时具备沉积效率高、涂层结合强度良好的优势, 在 MS-SOFC 的制备上展现出巨大应用前景<sup>[14]</sup>。Lin 等<sup>[15]</sup>采用大气等离子喷涂(APS)技术成功制备了不同微观结构的 MS-SOFC, 基体与功能层之间结合良好, 700 °C 时峰值输出功率密度达到 1079 mW·cm<sup>-2</sup>。Yang 等<sup>[16]</sup>利用 APS 在 NiO-YSZ 中引入 Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> 和聚甲基丙烯酸甲酯(PMMA)造孔剂, 实现了最高达 40% 的孔隙率。充足的孔隙结构不仅为燃料传输与产物排出提供了有效通道, 更扩大了 Ni(催化相)、YSZ(离子传导相)与燃料的接触范围, 最终提升了 SOFC 的电化学性能。

目前, 关于 MS-SOFC 阳极造孔剂的研究大多

集中于其种类选择、含量优化和粒径调控等方面。基于此, 本工作选用石墨作为造孔剂, 分别采用喷雾造粒和机械混合工艺制备 NiO-Gd<sub>0.2</sub>Ce<sub>0.8</sub>O<sub>1.9</sub> (GDC)阳极粉末, 利用 APS 在多孔 430L 基体上逐层制备阳极、电解质和阴极, 系统研究了不同石墨添加形式对阳极微观结构演变和电化学性能的影响。通过对比阳极的微观结构特征与表面粗糙度, 揭示了石墨在等离子喷涂阳极中的作用机制。电化学测试分析了石墨对电池开路电压(OCV)、欧姆电阻和极化电阻的影响规律。采用等效电路拟合电化学阻抗(EIS), 定量解析极化阻抗中电荷转移、表面吸附/解离和气体扩散等过程的贡献占比, 为基于阳极的结构设计提供理论基础与工艺参考。

## 1 实验

### 1.1 涂层制备

选取 C1、C2 与 C3 3 种粉末作为喷涂原料。C1 为未添加造孔剂的 NiO-GDC 复合团聚粉末(青岛天尧实业有限公司); C2 采用喷雾造粒工艺将 40%(体积分数)的 2000 目石墨(平均粒径  $D_{50}=6.5 \mu\text{m}$ )与 NiO 和 GDC 混合制成复合团聚粉末(青岛天尧实业有限公司); C3 则采用机械混合法制备, 将相同含量的石墨与 C1 粉末在辊筒球磨机中搅拌混合 4 h 以上。基于这 3 种粉末制备的涂层和单电池也相应沿用其粉末名称。粉末的微观形貌如图 1 所示, 3 种粉末均呈类球形,  $D_{50}=45 \mu\text{m}$ , 具有良好的流动性, 适用于 APS 工艺。制备工艺不同导致粉末结构存在差异, C2 团聚粉末中, 石墨作为低密度相嵌入 NiO-GDC 颗粒, 截面形貌(见图 1d)显示亮白色颗粒为 GDC, 浅灰色颗粒为 NiO<sup>[17]</sup>, 这类团聚粉末整体结构相对松散, 石墨在颗粒内部分布较均匀, 但仍存在局部石墨含量偏低的区域。相比之下, C3 粉末中石墨因机械混合易发生团聚, 部分聚集体粒径可达 ~5  $\mu\text{m}$ , 与 NiO-GDC 粉末呈物理混合态共存。

基体采用直径 20 mm、厚度 1 mm 的多孔 430L 圆片, 喷涂前将其置于丙酮中超声清洗 20 min, 以去除表面污染物。阳极采用 APS 系统(GTV, 德国)制备, 所得阳极需进行热处理以去除石墨, 将 C2、C3 放置于空气气氛中的管式炉(OTF-1200X, 合肥科晶, 中国)内, 以 5 °C·min<sup>-1</sup> 的升温速率加热到 750 °C, 并保温 2 h。去除造孔剂后的阳极在加湿 H<sub>2</sub> 气氛中 [3%(体积分数)H<sub>2</sub>O]重新升温至 650 °C, 保温 2 h, 使 NiO 还原为 Ni, 以便于形貌观察和表面粗糙度分析。电解质和阴极同样采用 APS 系统制备形成单电池, 电

解质粉末选用熔融破碎  $\text{Sc}_2\text{O}_3\text{-ZrO}_2$  (ScSZ, Fujimi, 日本), 阴极粉末为团聚  $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{Co}_{0.2}\text{Fe}_{0.8}\text{O}_{3-\delta}$  (LSCF)

粉末 (Metco 6830A, Sulzer Metco, 美国), 单电池的活性面积为  $0.785\text{ cm}^2$ , 具体喷涂参数见表 1。

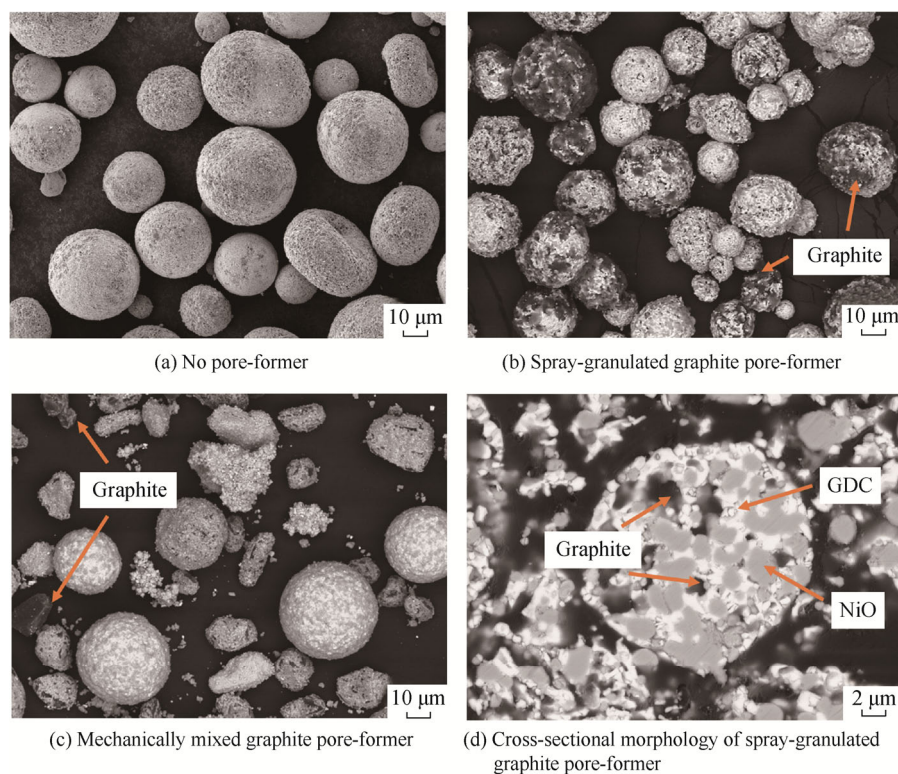


图 1 粉末的微观表面形貌及喷雾造粒工艺添加石墨的截面形貌

Fig. 1 Surface morphology of powders and cross-sectional morphology of graphite-added agglomerates

表 1 等离子喷涂 MS-SOFC 功能层参数

Table 1 Parameters of plasma sprayed MS-SOFC functional layer

Parameter	Plasma arc power/kW	Flow rate of Ar/(L·min <sup>-1</sup> )	Flow rate of H <sub>2</sub> /(L·min <sup>-1</sup> )	Spraying distance/mm
Anode	35	45	5	70
Electrolyte	75	150	8	130
Cathode	14	40	3	100

## 1.2 表征与测试

粉末和阳极涂层的微观形貌采用场发射扫描电子显微镜 (SEM, Nova-nano-430, FEI, 美国) 进行表征。涂层孔隙率采用 Image J 软件, 基于图像中孔隙与涂层的“灰度差异”实现像素级分割, 通过统计孔隙像素在总像素中的数量占比计算孔隙率<sup>[18]</sup>。随机选取 5 张放大倍数为 2000 倍的 SEM 照片, 调试 Image J 软件参数后自动化分析图像, 并直接获取孔隙率数值, 基础流程已在前期工作中阐述<sup>[19]</sup>。阳极的表面粗糙度 ( $R_a$ ) 使用表面轮廓仪 (Dektak XT, BRUKER, 美国) 在  $1\text{ mm} \times 1\text{ mm}$  区域内以面扫描模式测量。单电池使用导电粘合剂 (DAD-87, 上海合成树脂研究所, 中国) 密封于直径  $20\text{ mm}$  的玻璃管内, 置于  $140\text{ }^\circ\text{C}$  的干燥箱中 [DHG-9030(A), 上海一恒,

中国] 保温固化  $20\text{ min}$  以上。在电化学性能测试前, 在阴极表面用银浆绘制集流网络, 通过直流四端法将银线分别连接至电池的阳极与阴极, 以减小接触电阻和收集电流。随后将电池放入高温管式炉中, 以  $5\text{ }^\circ\text{C} \cdot \text{min}^{-1}$  的升温速率均匀升温至  $650\text{ }^\circ\text{C}$ , 保温  $2\text{ h}$ , 使阳极 NiO 充分还原成 Ni, 以保证电子导电性和足够孔隙率, 整个过程在阳极侧持续通入加湿  $\text{H}_2$  [3% (体积分数)  $\text{H}_2\text{O}$ ] 作为燃料, 阴极侧以空气为氧化剂。还原过程结束后, 在  $600\text{~}750\text{ }^\circ\text{C}$  条件下进行电化学性能测试, 采用电化学工作站 (Zennium-XC, Zahner, 德国) 测量电池的开路电压 (OCV)、电流密度-电压-功率密度 ( $I\text{-}V\text{-}P$ ) 和电化学阻抗谱 (EIS)。其中 EIS 在开路电压下测试, 频率范围为  $10^5\text{~}10^{-2}\text{ Hz}$ , 交流振幅为  $10\text{ mV}$ 。为进一步获取电池极化阻抗中的高

频、低频部分的贡献值，采用 Zview 软件对 EIS 进行拟合<sup>[20]</sup>。

## 2 结果与讨论

### 2.1 阳极形貌

图 2 为阳极还原后的截面微观形貌，其中 C2 和 C3 均经过热处理去除石墨造孔剂。所有阳极涂层的厚度均控制在 40~50 μm，且与 430L 基体结合良好，未见明显剥离或间隙缺陷。石墨造孔剂的引入显著改变了阳极内部的孔隙结构和空间分布，通过 Image J 软件测得 C1、C2、C3 的孔隙率分别为：26%±2%，37.0%±3.1%，42.0%±2.3%。其中，C1 阳极结构相对致密，孔隙分布较均匀，以亚微米级裂纹和细小孔洞为主。裂纹的形成源于等离子体射流中高温飞行粒子撞击到低温基体时，瞬间产生的温度梯度引发热应力，直接诱导微裂纹生成<sup>[14, 21]</sup>。C2 采用复合团聚粉末制备，石墨在团聚颗粒内部分布较均匀，因此，喷涂后孔隙的数量与尺寸相比 C1 明显增大，同时呈现弥散且均一的空间分布，未出现大尺度孔洞聚集。相比之下，C3 中的石墨因机械混合易发生团聚，导致热处理后形成大量直径约 5 μm，部分甚至超过 10 μm 的不规则大孔洞。值得注意的是，此类孔洞可能会损害阳极的结构完整性，降低电池的高温力学稳定性。Yang 等<sup>[22]</sup>发现 APS

阳极的结合强度随孔隙率升高而下降，其中孔隙率最高 (37.2%) 的涂层结合强度最低 [(24.4±4.0) MPa]，其失效模式主要为层间断裂。此外，涂层的硬度与弹性模量等力学性能与其内部层间孔隙特征呈负相关，孔隙率越低，涂层内部结构越致密均匀，力学性能与抗热震稳定性越优异<sup>[23, 24]</sup>。本工作中，C1 与 C2 阳极的孔隙率基本满足 SOFC 对结构稳定性的要求<sup>[22]</sup>；而 C3 的大孔结构可能需进一步优化以避免潜在的结构失效风险。

图 2d~图 2f 的高倍 SEM 照片揭示了石墨对粉末熔融行为的影响，其中白色颗粒为 GDC，浅灰色颗粒为 Ni，由于 NiO 的熔点低于 GDC，二者在 APS 过程中的熔融行为存在显著差异，这直接影响了阳极的微观结构特征<sup>[19, 25]</sup>。C1 中熔融良好的区域呈现典型的喷涂态层状堆叠结构，但部分区域存在未完全熔融的 Ni 和 GDC，这些颗粒之间无序搭接形成细密孔隙网络。C2 呈现出良好的熔化均一性，未观察到明显的未熔融区域，这主要得益于石墨与 NiO-GDC 在喷雾造粒阶段形成的复合团聚结构，确保了喷涂过程中石墨、NiO 与 GDC 分散均匀，保持同步受热熔融。C3 同样存在未熔融区域，但数量较 C1 明显减少，表明石墨的添加在喷涂过程中改变了团聚粉末的热响应特性，使阳极层形成熔融更均匀的微观结构，但其效果不及复合团聚的 C2。

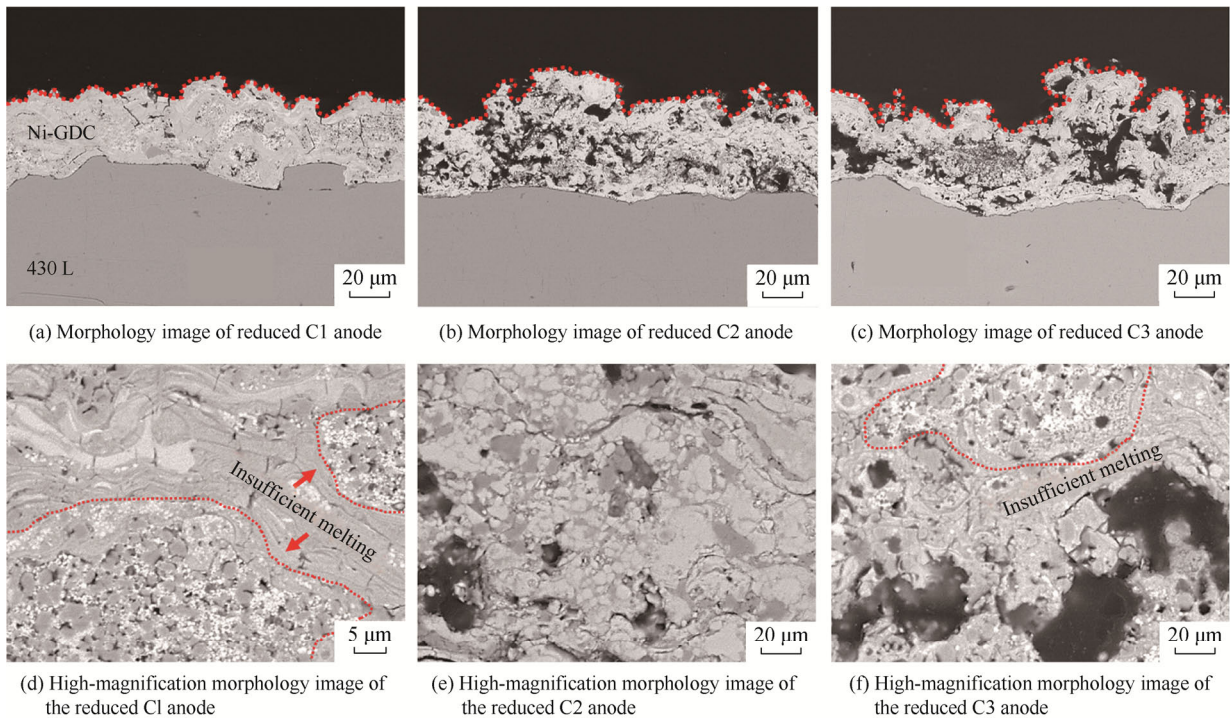


图 2 还原后的阳极截面微观形貌以及高倍形貌照片

Fig. 2 Cross-section morphology of the reduced anode and high-magnification morphology images

阳极表面均呈现典型的峰峦状起伏形貌, 且 C1、C2、C3 起伏程度依次增大。图 3 为三维轮廓仪测量的阳极表面粗糙度结果, C1、C2、C3 的平均粗糙度  $R_a$  分别为 6.64、7.06  $\mu\text{m}$  和 7.66  $\mu\text{m}$ , 表明添加石墨增大了阳极表面粗糙度。这主要归因于石墨在等离子喷涂过程中的热分解行为<sup>[26]</sup>, 高温使部分石墨在开放环境下氧化生成  $\text{CO}_2$  气体, 其在尚未完全凝固的阳极表面逸出时, 刻蚀形成不规则凹坑

与凸起, 最终导致表面粗糙度增加。进一步对比分析可知, 喷雾造粒制备的 C2 复合粉末中, 石墨颗粒在 NiO-GDC 内部均匀分散, 喷涂时受热更温和、分解过程更平缓, 气体逸出对表面形貌的扰动较小; 而机械混合粉末 C3 中的石墨团聚形成大尺寸颗粒, 喷涂时集中受热快速分解, 气体逸出更剧烈, 对涂层表面的冲击效果更显著, 最终导致 C3 阳极表面起伏程度大于 C2。

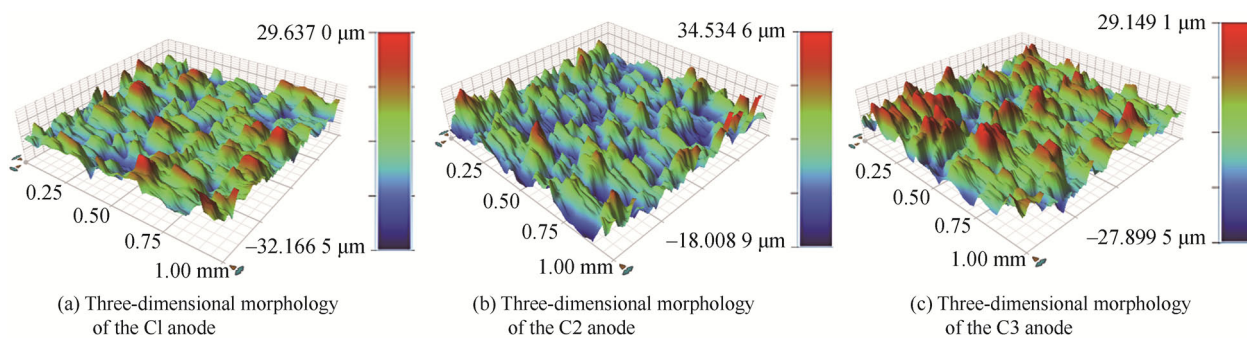


图 3 阳极的表面粗糙度表征

Fig. 3 Surface roughness characterization of anode

## 2.2 电化学性能

图 4 为基于不同粉末喷涂阳极形成的 MS-SOFC 的电化学输出性能, 其中图 4d 总结了 600~750  $^{\circ}\text{C}$  内 C1、C2 和 C3 的 OCV 和峰值输出功率密度。OCV 与电解质的致密度呈正相关, 随温度升高而逐渐降低<sup>[23]</sup>。在 600、650、700、750  $^{\circ}\text{C}$  时, C1 的 OCV 分别为 1.040、1.030、1.018、1.006 V; C2 为 1.035、1.026、1.015、1.005 V; C3 为 1.021、1.012、0.996、0.984 V。在整个测试温度区间内, C1 均展现出最高的 OCV。在 750  $^{\circ}\text{C}$  时, C1 与 C2 的 OCV 均在 1.0 V 以上, 而 C3 的 OCV 在 700  $^{\circ}\text{C}$  时已降至 1.0 V 以下, 说明 C1 对应电解质的致密度最高, 其次为 C2, C3 相对最低。700  $^{\circ}\text{C}$  时, C1、C2、C3 峰值输出功率密度分别为 727、671、535  $\text{mW}\cdot\text{cm}^{-2}$ ; 750  $^{\circ}\text{C}$  时分别为 957、855、678  $\text{mW}\cdot\text{cm}^{-2}$ 。MS-SOFC 的电解质和阴极采用同步喷涂方法制备而成, 因此性能差异主要由不同的 Ni/GDC 阳极特征主导。与未添加造孔剂的 C1 相比较, 添加石墨造孔剂的 C2 和 C3 整体输出性能并未实现有效提升, 表明孔结构改善带来的传质增益被电解质质量下降所抵消。

为探究石墨造孔剂导致输出性能下降的原因, 对 OCV 状态下 C1、C2、C3 的 EIS 进行测试, 结果如图 5 所示。欧姆电阻( $R_o$ )由阻抗曲线实轴高频截距确定, 低频截距代表总电阻( $R_t$ ), 二者差值即为

极化电阻( $R_p$ ), 主要反映阳极与阴极在测试过程中的总极化损失<sup>[27]</sup>。图 5d 汇总对比了 C1、C2、C3 的  $R_o$  和  $R_p$  值。在整个测试温度区间内, C1、C2、C3 的  $R_o$  呈依次增大趋势, 表明电解质本身或阳极/电解质界面的离子/电子传输阻力升高。与未添加石墨的 C1 相比, C2 始终表现出最小的  $R_p$ , 说明喷雾造粒方式引入石墨能通过改善粉末熔融均匀性和阳极导电网络的连续性降低极化电阻。相反, C3 由于大尺寸孤立孔洞破坏活性相连接, 电化学活性显著降低, 表现出最大的  $R_p$ 。值得关注的是, 尽管 C2 的  $R_t$  和  $R_p$  均低于 C1, 其整体输出性能反而更低。进一步分析可知, 该矛盾主要源于 C2 表现出更低的 OCV 与更高的  $R_o$ , 由于 OCV 和  $R_o$  直接决定电池的起始电位与有效电压窗口, 其负面影响大于  $R_p$  改善带来的正向作用, 因此最终主导电池整体性能下降<sup>[28-29]</sup>。以上结果说明石墨的添加形式对  $R_p$  具有显著调控作用, 采用喷雾造粒方法制备的复合团聚粉末性能优于采用机械混合工艺制备的粉末。

电极极化过程涉及复杂的电化学反应, 采用等效电路对 EIS 进行拟合能识别出各过程的贡献值。图 6 为 700  $^{\circ}\text{C}$  时的 EIS 原始及拟合曲线和等效电路模型, 其中  $R_p$  由气体/电极界面处的电荷转移过程相关的高频电阻( $R_1$ )和表面吸附/解离和气体扩散的低频电阻( $R_2$ )组成<sup>[28, 30]</sup>。表 2 列举了 700  $^{\circ}\text{C}$  MS-SOFC 的 EIS

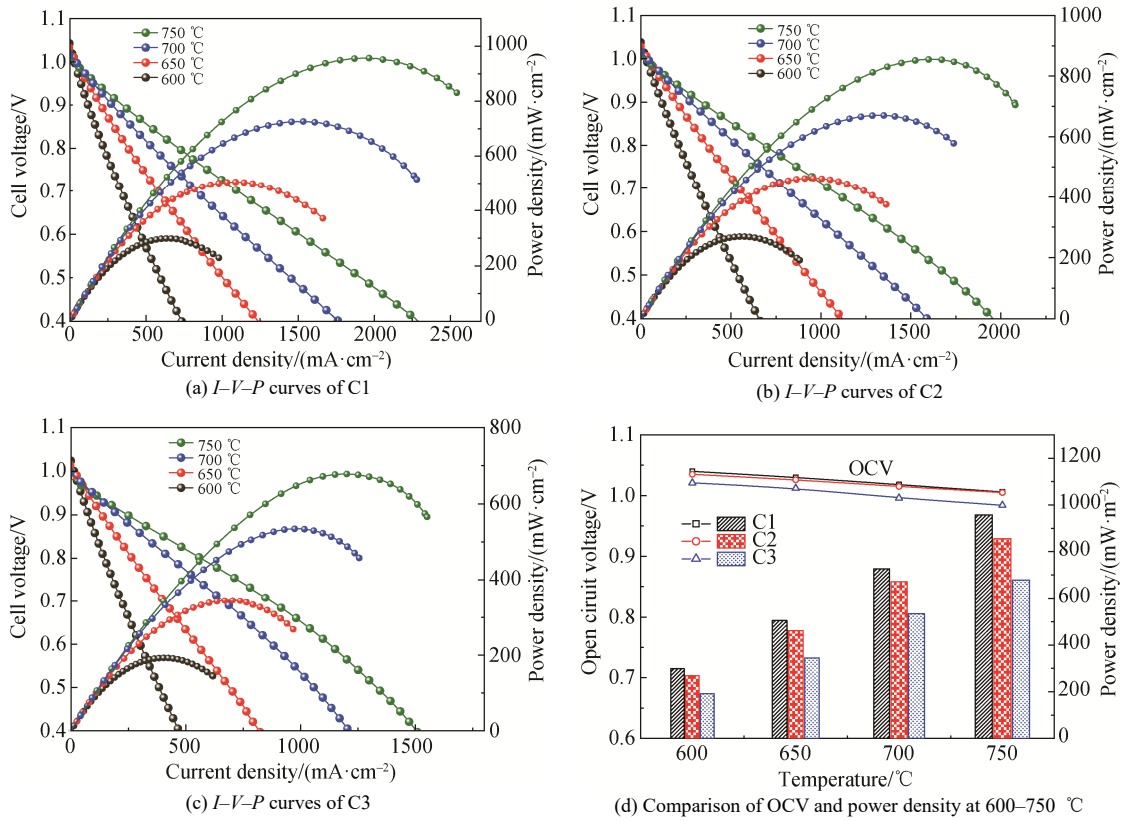


图 4 基于不同阳极涂层的 MS-SOFC 在 600~750 °C 的开路电压和输出功率密度  
Fig. 4 OCV and output power density of MS-SOFCs with different anode coatings at 600–750 °C

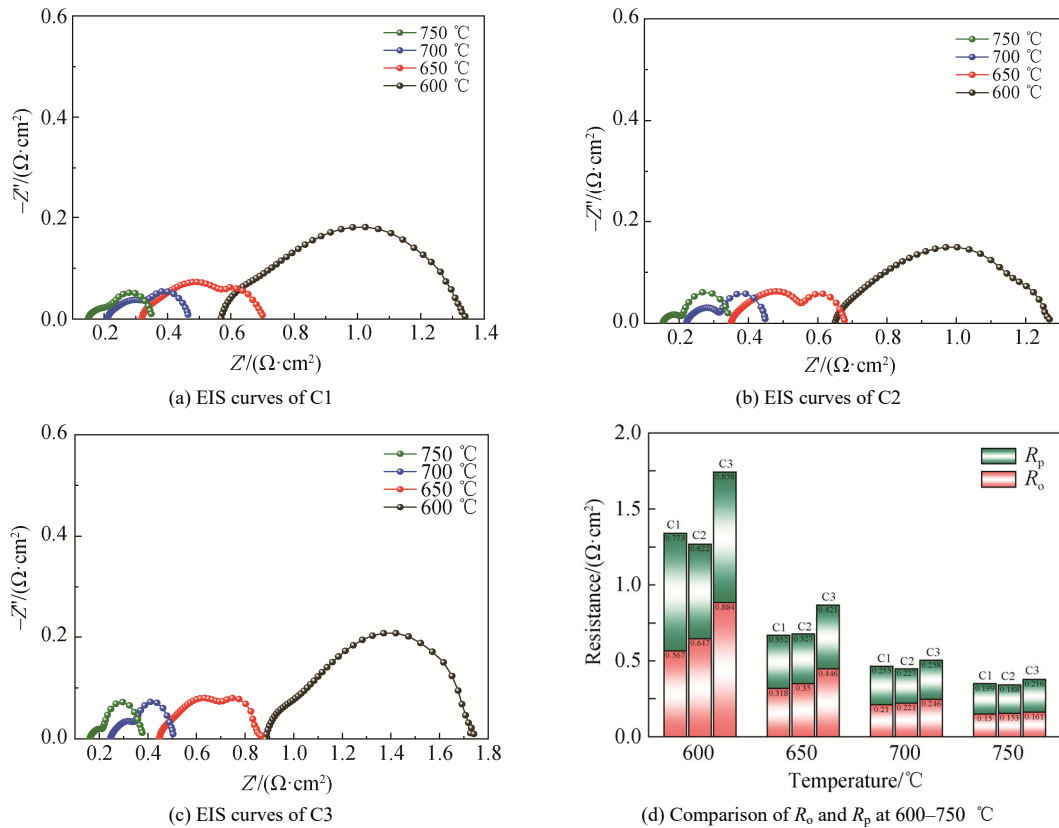


图 5 基于不同阳极涂层的 MS-SOFC 电化学阻抗谱  
Fig. 5 Electrochemical impedance spectroscopy (EIS) curves of MS-SOFC based on different anode coatings

拟合数值, 其与实测值的误差极小, 可以忽略不计。从表 2 中可以看出, C2 与 C3 的  $R_1$  值接近, 而 C1 的  $R_1$  值显著高于二者, 表明添加石墨造孔剂能够有效改善阳极电荷转移能力, 进而降低高频极化电阻。结合图 2 的微观形貌分析可知, C2 和 C3 的粉末熔融程度优于 C1, 可以促进阳极内部 Ni 颗粒形成连续的搭接网络, 从而优化电荷转移路径, 最终表现为更低的  $R_1$  [19]。

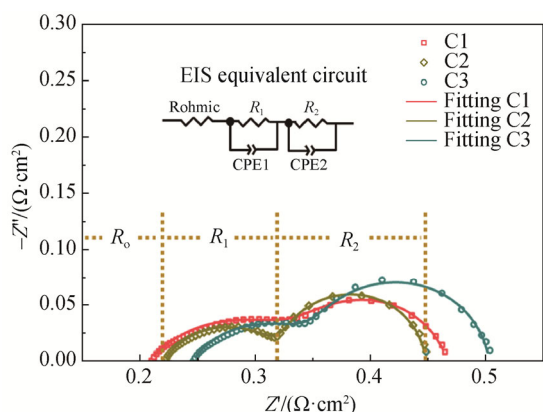


图 6 700 °C 时的 EIS 原始曲线、拟合曲线及其等效电路  
Fig. 6 EIS original curves, fitting curves and the equivalent circuit at 700 °C

表 2 MS-SOFC 在 700 °C 的 EIS 拟合数值  
Table 2 EIS fitting values of MS-SOFC at 700 °C

Cell	$R_0/(\Omega \cdot \text{cm}^2)$	$R_1/(\Omega \cdot \text{cm}^2)$	$R_2/(\Omega \cdot \text{cm}^2)$	$R_p/(\Omega \cdot \text{cm}^2)$	Actual $R_p/(\Omega \cdot \text{cm}^2)$
C1	0.208	0.142	0.118	0.259	0.255
C2	0.220	0.107	0.120	0.227	0.227
C3	0.245	0.115	0.143	0.258	0.258

相比之下, 低频电阻  $R_2$  则更多由传质特征所主导, C1 和 C2 的  $R_2$  相近, 但形成机制并不相同。C1 的裂纹通道可视为二维宏观通道系统, 气体传输不仅存在体扩散, 同时伴随更快速的 Knudsen 扩散甚至粘性流, 路径短、曲折因子低、局部传质阻力小。但裂纹分布具有局部集中性, 导致有效参与反应的气体通道面积有限, 从而削弱整体传质效率 [9, 31]。相比之下, C2 的三维连通孔结构路径较长、曲折度适中, 气体传输以体扩散为主要形式。虽然局部传质阻力略高, 但其更大的有效传质面积能够补偿路径长度带来的阻力增量 [31-32]。因此, C1 与 C2 在路径长度、曲折因子与有效传质截面积三方面形成相互补偿, 使其整体有效扩散系数相近, 从而表现为相近的  $R_2$ 。

然而, C2 的输出性能未能得到提升, 根本原因在于较低的 OCV 与较高的  $R_0$ , 共同抵消了气体传

质与电荷转移改善带来的增益。相比之下, C3 表现出最高的  $R_2$  值。结合其微观结构可知, C3 存在大量尺寸孔洞, 导致 Ni 与 GDC 难以形成高密度、连续的导电与催化网络; 同时, 大尺寸孔隙占据了活性物质的分布空间, 使得电极表面缺乏足够的反应位点来支撑燃料的吸附与解离过程, 直接造成电化学反应动力学受阻, 最终体现为  $R_2$  值显著升高 [33]。对比 C2 和 C3 的性能差异可知, 石墨造孔剂的添加形式(复合团聚与机械混合)显著影响阳极低频极化电阻, 即与燃料的表面吸附/解离和气体扩散过程相关。因此, 未来提升 MS-SOFC 阳极性能的关键不仅在于孔隙率本身, 还在于孔结构的尺度、连通性以及活性相网络的完整程度。

理论上, 提高阳极的表面粗糙度与比表面积可扩大其与电解质层的有效接触界面, 增大反应面积并降低界面电阻, 从而提升电池输出性能 [30]。然而, 本工作的结果表明, 添加石墨造孔剂虽增加了阳极表面粗糙度, 却对电解质致密化过程产生了不利影响, 导致 OCV 降低与  $R_0$  升高。图 7 为沉积于 C1、C2、C3 阳极表面的电解质微观形貌, 可清晰观察到三者的电解质内部微缺陷呈明显递增趋势, 这归因于阳极微观结构及 APS 快速凝固特性的交互作用:

1) 阳极粗糙表面引发的电解质熔滴铺展不均。阳极表面起伏越大, 熔融电解质颗粒在沉积时越难形成连续平整的覆盖层, 不仅易形成局部厚度差异, 还因厚区与薄区的冷却收缩速率不同而产生拉应力, 诱发垂直于界面的微裂纹 [8, 34]。这种裂纹会破坏电解质的屏障功能, 是 OCV 降低的重要原因之一。

2) 阳极大尺寸孔隙导致电解质渗透与屏障失效。当阳极存在大尺寸孔隙时, 部分细小的熔融电解质粒子可能渗透进阳极孔隙内, 造成电解质层局部变薄, 降低 OCV。若孔隙为贯通型结构, 电解质粒子的渗透会直接形成“电解质-阳极贯穿通道”, 破坏电解质的离子传导屏障功能 [35]。

3) 阳极致密度不均诱发的界面热应力。APS 制备电解质层会经历快速冷却过程, 阳极致密度差异将放大界面热应力差异。致密区热导率高, 沉积于上方的电解质冷却快、收缩量大, 而疏松区热导率低, 电解质冷却慢、收缩量小, 二者收缩差会在电解质层内部形成剪切应力, 最终诱发网状微裂纹 [36-37]。

上述因素共同降低了电解质的致密度, 导致燃料与氧化剂可能发生交叉渗透, 造成 OCV 下降;

同时微裂纹和孔隙增加了氧离子传导阻力,造成  $R_o$  增大<sup>[21, 23]</sup>。这些不利效应最终抵消了阳极-电解质

的界面面积增益,导致添加石墨的电池整体输出性能未能得到提升。

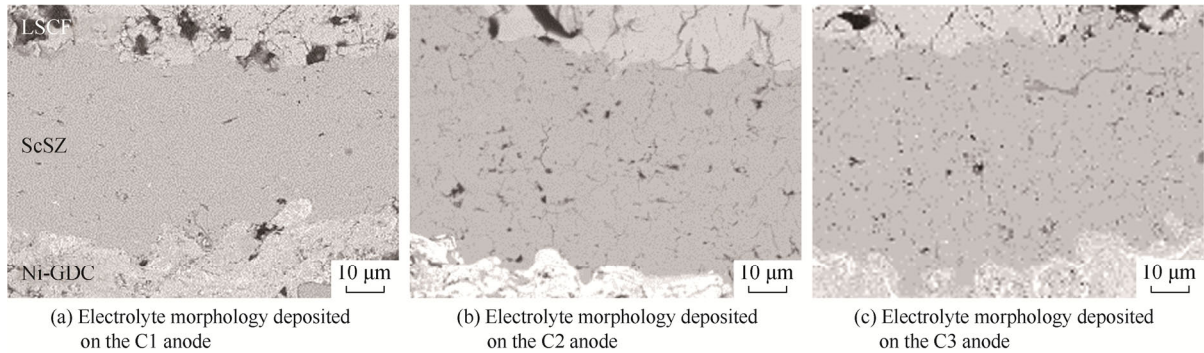


图7 单电池测试后的电解质微观形貌

Fig. 7 Microscopic morphology of electrolyte after single cell test

降低阳极表面粗糙度可有效改善电解质熔滴的铺展行为,从而提高其致密化程度,然而这一调控策略需平衡电解质致密性与阳极-电解质结合界面的关系<sup>[8]</sup>。Guo 等<sup>[38]</sup>通过研磨处理降低了阳极表面粗糙度,可显著改善电解质的沉积均匀性,但同时也磨损了阳极表面的活性结构,使 Ni 与 GDC 的有效外露面积减少,导致阳极与电解质的有效结合面积减少。尽管电解质致密性得以提升,却因界面接触不足而造成  $R_o$  增大,最终使电池整体性能下降。基于上述分析,在后续研究中可通过多种阳极表面改性技术调控其表面粗糙度,在提升电解质致密性的同时,保障阳极与电解质的界面结合质量,从而降低界面传输电阻。此外,需同步优化阳极内部微观结构,构建细小均匀的孔隙和连续的 TPB,以增强反应气体传输与电化学反应活性。通过实现表面状态与内部结构的协同优化,有望进一步提升 MS-SOFC 的输出性能。

### 3 结论

本工作通过在 NiO-GDC 粉末中引入石墨造孔剂,系统比较了喷雾造粒及机械混合 2 种添加形式对 APS 制备的 MS-SOFC 的阳极微观结构及电化性能的影响。结果表明,喷雾造粒能使石墨均匀嵌入 NiO-GDC,形成复合团聚结构,从而在阳极中构建尺度适中、分布均匀的孔隙结构。而机械混合则易导致石墨聚集,形成约  $5 \mu\text{m}$  的大尺寸孔洞,破坏 NiO-GDC 导电网络的连续性。与未添加石墨的阳极相比,引入石墨有助于促进 NiO 和 GDC 颗粒的分散,改善喷涂过程中粉末的熔融行为。EIS 分析表明,熔融程度的改善可有效提升阳极的电荷转移能

力,显著降低高频电阻  $R_1$ 。此外,石墨的添加形式对电极的孔隙结构及反应活性位点具有关键调控作用,进而影响气体扩散和燃料吸附/解离速率。因此喷雾造粒形成的均一孔结构保持较低的  $R_2$ ,而机械混合导致的大孔洞显著增加低频极化电阻  $R_2$ 。

相反,未添加石墨的单电池表现出最优的电化学输出性能,750 °C 时,OCV 为 1.006 V,峰值输出功率密度为  $957 \text{ mW}\cdot\text{cm}^{-2}$ 。相比之下,添加石墨的电池性能未得到提升,主要受限于其较低的 OCV 与较高的欧姆电阻  $R_o$ 。分析表明,石墨的引入改变了阳极的表面和体相结构,最终影响了 APS 电解质的沉积质量,具体表现为: 1) 石墨热分解产生的  $\text{CO}_2$  气体逸出时增大了阳极表面粗糙度  $R_a$ (分别为  $6.64$ 、 $7.06 \mu\text{m}$  和  $7.66 \mu\text{m}$ ),导致电解质沉积不均而出现厚度差异; 2) 阳极大尺寸孔隙为部分细小熔融电解质粒子提供了渗透通道,诱发局部薄化及气密性失效; 3) 阳极致密度分布不均加剧了界面热应力,诱发网状微裂纹的产生。这些因素共同导致其 OCV 降低、 $R_o$  升高,抵消了石墨对阳极的极化行为所带来的部分优势。未来的工作可聚焦于阳极表面的可控改性,以在不损伤活性结构的前提下降低粗糙度,同时协同阳极内部微观结构优化,以期进一步提升 MS-SOFC 的输出性能。

#### 参考文献:

- [1] 杜柯, 林凯生, 宋琛, 等. 固体氧化物燃料电池电堆及相关系统发展现状与展望[J]. 中国电机工程学报, 2025, 45(10): 3877–3892.  
DU Ke, LIN Kaisheng, SONG Chen, et al. Proc CSEE, 2025, 45(10): 3877–3892.
- [2] WANG Y Q, SHI J X, GU X, et al. Toward mobility of solid oxide fuel cells[J]. Prog Energy Combust Sci, 2024, 102: 101141.

- [3] 朱志刚, 宋琛, 董东东, 等. 固体氧化物燃料电池 Fe-Cr 金属支撑体研究进展[J]. 材料导报, 2025, 39(20): 142–151.  
ZHU Zhigang, SONG Chen, DONG Dongdong, et al. Mater Rep, 2025, 39(20): 142–151.
- [4] 高圆, 李智, 李甲鸿, 等. 金属支撑固体氧化物燃料电池技术进展[J]. 综合智慧能源, 2022(8): 1–24.  
GAO Yuan, LI Zhi, LI Jiahong, et al. Integrated Intelligent Energy, 2022(8): 1–24.
- [5] KUTERBEKOV K A, NIKONOV A V, BEKMYRZA K Z, et al. Classification of solid oxide fuel cells[J]. Nanomaterials, 2022, 12(7): 1059.
- [6] ANTUNES F C, DE OLIVEIRA J P J, DE ABREU R S, et al. Reviewing metal supported solid oxide fuel cells for efficient electricity generation with biofuels for mobility[J]. J Energy Chem, 2025, 103: 106–153.
- [7] XU K, CHEN Z D, BAO C X, et al. Unravelling the oxidation behaviors of porous stainless steel 430L substrate for metal-supported solid oxide fuel cells[J]. Int J Hydrog Energy, 2024, 73: 577–589.
- [8] UDOMSILP D, RECHBERGER J, NEUBAUER R, et al. Metal-supported solid oxide fuel cells with exceptionally high power density for range extender systems[J]. Cell Rep Phys Sci, 2020, 1(6): 100072.
- [9] METCALFE C, KESLER O. Influence of microstructure on electrochemical performance of plasma sprayed Ni-YSZ anodes for SOFCs[J]. Fuel Cells, 2020, 20(6): 730–740.
- [10] NIEN S H, HSU C S, CHANG C L, et al. Preparation of  $\text{BaZr}_{0.1}\text{Ce}_{0.7}\text{Y}_{0.2}\text{O}_{3-\delta}$  based solid oxide fuel cells with anode functional layers by tape casting[J]. Fuel Cells, 2011, 11(2): 178–183.
- [11] ZHOU J, LIU Q L, ZHANG L, et al. Influence of pore former on electrochemical performance of fuel-electrode supported SOFCs manufactured by aqueous-based tape-casting[J]. Energy, 2016, 115: 149–154.
- [12] CIGDEM T, ONBILGIN S, TIMURKUTLUK B, et al. Effects of pore former type on mechanical and electrochemical performance of anode support microtubes in solid oxide fuel cells[J]. Int J Hydrog Energy, 2022, 47(22): 11633–11643.
- [13] DOGDIBEGOVIC E, CHENG Y, SHEN F Y, et al. Scaleup and manufacturability of symmetric-structured metal-supported solid oxide fuel cells[J]. J Power Sources, 2021, 489: 229439.
- [14] 朱志刚, 宋琛, 胡永俊, 等. 粉末粒径对等离子喷涂固体氧化物燃料电池阳极微观结构及性能的影响[J]. 材料研究与应用, 2023, 17(2): 329–337.  
ZHU Zhigang, SONG Chen, HU Yongjun, et al. Mater Res Appl, 2023, 17(2): 329–337.
- [15] LIN J, LI H X, WANG W H, et al. Atmospheric plasma spraying to fabricate metal-supported solid oxide fuel cells with open-channel porous metal support[J]. J Am Ceram Soc, 2023, 106(1): 68–78.
- [16] YANG Y C, WANG P H, TSAI Y T, et al. Influences of feedstock and plasma spraying parameters on the fabrication of tubular solid oxide fuel cell anodes[J]. Ceram Int, 2018, 44(7): 7824–7830.
- [17] NENNING A, BISCHOF C, FLEIG J, et al. The relation of microstructure, materials properties and impedance of SOFC electrodes: A case study of Ni/GDC anodes[J]. Energies, 2020, 13(4): 987.
- [18] REDNYK A, MUSALEK R, TESAR T, et al. Liquid plasma spraying of NiO-YSZ anode layers applicable for SOFC[J]. Mater Today Commun, 2024, 38: 107855.
- [19] ZHU Z G, NING H L, SONG C, et al. Effect of low plasma spraying power on anode microstructure and performance for metal-supported solid oxide fuel cells[J]. J Therm Spray Technol, 2024, 33(5): 1725–1735.
- [20] SONG W C, MA Z K, YANG Y, et al. Characterization and polarization DRT analysis of direct ethanol solid oxide fuel cells using low fuel partial pressures[J]. Int J Hydrog Energy, 2020, 45(28): 14480–14490.
- [21] 陈丹, 宋琛, 杜柯, 等. 沉积温度对等离子喷涂金属支撑体固体氧化物燃料电池结构及电化学性能的影响[J]. 材料导报, 2022, 36(增刊 1): 15–19.  
CHEN Dan, SONG Chen, DU Ke, et al. Mater Rep, 2022, 36(Suppl 1): 15–19.
- [22] YANG Y C, CHEN Y C. Influences of the processes on the microstructures and properties of the plasma sprayed IT-SOFC anode[J]. J Eur Ceram Soc, 2011, 31(16): 3109–3118.
- [23] 杜柯, 宋琛, 余敏, 等. 固体氧化物燃料电池氧化钪稳定氧化锆电解质的等离子喷涂制备及性能[J]. 硅酸盐学报, 2022, 50(7): 1929–1935.  
DU Ke, SONG Chen, YU Min, et al. J Chin Ceram Soc, 2022, 50(7): 1929–1935.
- [24] DU X H, SONG C, DU K, et al. High-energy atmospheric plasma spraying: A novel approach for fabricating dense electrolytes in metal-supported solid oxide fuel cells[J]. Ceram Int, 2025, 51(19): 27190–27198.
- [25] ÖKSÜZÖMER M A F, DÖNMEZ G, SARIBOĞA V, et al. Microstructure and ionic conductivity properties of gadolinia doped ceria ( $\text{Gd}_x\text{Ce}_{1-x}\text{O}_{2-x/2}$ ) electrolytes for intermediate temperature SOFCs prepared by the polyol method[J]. Ceram Int, 2013, 39(7): 7305–7315.
- [26] BASTAKYS L, MARCINAUSKAS L, MILIEŠKA M, et al. Tribological properties of  $\text{Cr}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Cr}_2\text{O}_3$ - $\text{SiO}_2$ - $\text{TiO}_2$  and  $\text{Cr}_2\text{O}_3$ - $\text{SiO}_2$ - $\text{TiO}_2$ -graphite coatings deposited by atmospheric plasma spraying[J]. Coatings, 2023, 13(2): 408.
- [27] LV H P, HUANG Z Z, ZHANG G J, et al. A new design of metal supported micro-tubular solid oxide fuel cell with sandwich structure[J]. Int J Hydrog Energy, 2022, 47(78): 33420–33428.
- [28] GAO J T, LI J H, WANG Y P, et al. Self-sealing metal-supported SOFC fabricated by plasma spraying and its performance under unbalanced gas pressure[J]. J Therm Spray Technol, 2020, 29(8): 2001–2011.
- [29] JIANG S P, CHAN S H. A review of anode materials development in solid oxide fuel cells[J]. J Mater Sci, 2004, 39(14): 4405–4439.
- [30] 富涛, 高九涛, 高圆, 等. 阳极微结构对等离子喷涂金属支撑 SOFC 的电池性能的影响研究[J]. 热喷涂技术, 2022, 14(1): 28–37.  
FU Tao, GAO Jiutao, GAO Yuan, et al. Therm Spray Technol, 2022, 14(1): 28–37.
- [31] NIU Y H, LV W Q, RAO G F, et al. A critical look into effects of electrode pore morphology in solid oxide fuel cells[J]. AIChE J, 2017, 63(6): 2312–2317.
- [32] YAMAZAKI K, KISHIMOTO M, IWAI H. Three-dimensional numerical simulation of counter gas transport in porous anodes of solid oxide fuel cells[J]. J Power Sources, 2025, 627: 235766.
- [33] TIMURKUTLUK C, ONBILGIN S, YILDIRIM F, et al. The role of pore former type on the performance of anode functional layer in microtubular solid oxide fuel cells[J]. Int J Hydrog Energy, 2025, 142: 886–895.

- [34] FONDARD J, BERTRAND P, BILLARD A, et al. Manufacturing and testing of a metal supported Ni-YSZ/YSZ/La<sub>2</sub>NiO<sub>4</sub> IT-SOFC synthesized by physical surface deposition processes[J]. *Solid State Ion*, 2017, 310: 10–23.
- [35] ONUKI S, IGUCHI F, SHIMIZU M, et al. Influence of small defects produced in electrolytes during manufacturing processes on operated SOFCs[J]. *Meet Abstr*, 2015, MA2015–03(1): 307.
- [36] 薛顶喜, 伊炳尧, 李国君, 等. 功能梯度阳极固体氧化物燃料电池热应力数值模拟研究[J]. *无机材料学报*, 2024, 39(11): 1189–1196.  
XUE Dingxi, YI Bingyao, LI Guojun, et al. *J Inorg Mater*, 2024, 39(11): 1189–1196.
- [37] XIE J M, LI J Y, HAO W Q, et al. Influence of interface morphology on the thermal stress distribution of SOFC under inhomogeneous temperature field[J]. *Energies*, 2023, 16(21): 7349.
- [38] GUO Y, SONG C, LIU T K, et al. Effect of plasma sprayed anode surface structure on metal-supported SOFC performance[J]. *Ceram Int*, 2025, 51(6): 7495–7501.

#### 作者贡献声明:

宋琛: 提出研究方向、设计论文框架、修订论文;  
刘敏: 提出研究方向、设计论文框架、修订论文;  
林凯生: 绘制图表、参与数据分析与论文撰写;  
朱志刚: 绘制图表、参与数据分析与论文撰写;  
刘太楷: 实验测试、参与数据分析;  
文魁: 实验测试、参与数据分析;  
毛杰: 完善论文框架, 修订论文;  
张小锋: 完善论文框架, 修订论文;  
邓畅光: 完善论文框架, 修订论文;  
邓春明: 完善论文框架, 修订论文。

## Pore-Forming and Electrochemical Performance of Anodes for Metal-Supported Solid Oxide Fuel Cells

LIN Kaisheng<sup>1,2</sup>, ZHU Zhigang<sup>1,2</sup>, SONG Chen<sup>1</sup>, LIU Taikai<sup>1</sup>, WEN Kui<sup>1</sup>, MAO Jie<sup>1</sup>, ZHANG Xiaofeng<sup>1</sup>,  
DENG Changguang<sup>1</sup>, DENG Chunming<sup>1</sup>, LIU Min<sup>1</sup>

(1. Institute of New Materials, Guangdong Academy of Sciences; National Engineering Laboratory of Modern Materials Surface Engineering Technology; Guangdong Provincial Key Laboratory of Modern Surface Engineering Technology; Guangdong-Hong Kong Joint Laboratory of Modern Surface Engineering Technology, Guangzhou 510650, China; 2. School of Materials Science and Engineering, State Key Laboratory of Luminescent Materials and Devices, South China University of Technology, Guangzhou 510641, China)

### Extended Abstract

**Introduction** Solid oxide fuel cells (SOFCs) are high-efficient solid-state energy conversion devices. However, all-ceramic self-supported SOFCs face several challenges such as high brittleness, difficulty in mechanical processing, poor thermal shock resistance, and limited weldability, which result in high manufacturing costs and restrict the applications in mobile power systems. In contrast, metal-supported SOFCs (MS-SOFCs) with metal materials as the external structural support, exhibit remarkable mechanical strength, low cost, and rapid start-up capability, making it highly promising for mobile applications. The anode is a critical component of MS-SOFCs, serving as the site where fuel oxidation occurs to generate electrons. Its microstructure significantly influences the density and effectiveness of the triple-phase boundaries (TPB), where the gas phase, the ionic phase, and the electronic phase intersect. The TPB density largely determines the polarization resistance, with its low-frequency component being inversely related to anode gas diffusion. A common strategy to enhance gas transport is the incorporation of pore-formers, such as graphite, into the anode raw materials. Most studies focus on the type, particle size, and content of pore-formers, which directly affect the pores number, size, and distribution. In this work, atmospheric plasma spraying (APS) was employed to fabricate three types of anodes and corresponding cells. APS reduces thermal input to the metal substrate, effectively preventing oxidation, deformation, and elemental interdiffusion between the metal support and the anode at high temperatures. This study systematically investigates the influence of graphite incorporation methods on the microstructural evolution of the anode and the resulting cell performance, providing important theoretical insights into the operational mechanisms of SOFC anodes.

**Methods** Porous 430L stainless steel substrates were used as supports. Three different NiO-GDC (Gd<sub>0.2</sub>Ce<sub>0.8</sub>O<sub>1.9</sub>) anode powders were prepared. C1 is the baseline without a pore-former. C2 contains 40% (in volume fraction) graphite, which is mixed by spray granulation process to produce composite particles. C3 is made by mechanically mixing 40% of the same graphite with C1 powder. All powders are spherical with good fluidity. Anode layers were deposited *via* APS. Subsequently, the C2 and C3 anodes were heat-treated in air to remove the graphite pore-former at 750 °C for 2 h. A ScSZ (Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-ZrO<sub>2</sub>) electrolyte and an LSCF (La<sub>0.6</sub>Sr<sub>0.4</sub>Co<sub>0.2</sub>Fe<sub>0.8</sub>O<sub>3-δ</sub>) cathode were subsequently deposited by APS to build single cells. The microstructure and porosity of the anodes were characterized using scanning electron microscopy (SEM) and image analysis software. The surface roughness was measured by profilometer. The electrochemical performance, including the open-circuit voltage (OCV), current–voltage–power (*I–V–P*) and electrochemical impedance spectroscopy (EIS), were evaluated in the range of 600–750 °C using humidified H<sub>2</sub> as fuel and air as oxidant. The equivalent circuit fitting of EIS data is carried out to quantitatively analyze the contribution of charge transfer, surface adsorption/dissociation and gas diffusion in polarization impedance.

**Results and discussion** The incorporation of graphite pore-former significantly modified the pore size distribution and total porosity within the anodes. The measured porosity of C1, C2, and C3 was  $26\% \pm 2\%$ ,  $37\% \pm 3.1\%$ , and  $42\% \pm 2.3\%$ , respectively. The C1 anode featured a relatively dense structure with uniformly distributed pores, which primarily consisted of submicron cracks and fine pores originating from the thermal stress inherent to the APS process. In contrast, the C2 anode showed a notable increase in both the number and size of pores, which were homogeneously dispersed without significant agglomeration. The C3 anode, however, contained a substantial amount of large pores, mostly  $\sim 5 \mu\text{m}$  in diameter, attributed to the agglomeration of graphite particles during mechanical mixing, resulting in coarse and irregular pore structures after heat treatment. Furthermore, the addition of graphite modified the thermal response characteristics of the agglomerated powder during the spraying process, promoting the formation of a more uniformly melted microstructure in the anode layer. The average surface roughness ( $R_a$ ) values for C1, C2, and C3 were 6.64, 7.06 nm, and  $7.66 \mu\text{m}$ , respectively, indicating that graphite addition increased anode surface roughness. This phenomenon is due to the thermal decomposition of graphite during the plasma spraying process, where high temperatures cause partial oxidation of graphite in the open atmosphere, thereby generating  $\text{CO}_2$  gas. The release of this gas from the incompletely solidified anode surface etches irregular pits and protrusions, ultimately leading to increased surface roughness. The cell without graphite pore-former (C1) consistently demonstrated the highest OCV and maximum power density, reaching 1.0 V and  $957 \text{ mW} \cdot \text{cm}^{-2}$  at  $750 \text{ }^\circ\text{C}$ , respectively. EIS analysis revealed that the anodes with graphite pore-former (C2 and C3) exhibited improved charge transfer capability, thereby reducing the high-frequency polarization resistance. Despite this, the overall output performance of C2 and C3 did not show effective enhancement, which is attributed to their increased ohmic resistance ( $R_o$ ) and lower OCV. The elevated surface roughness and inherent porosity in the C2 and C3 anodes adversely affected the quality of the subsequently sprayed electrolyte layer, introducing microcracks and gas permeation pathways. This resulted in increased  $R_o$  and reduced OCV, ultimately weakening the benefits gained from the reduced polarization resistance.

**Conclusions** The method of graphite pore-former addition significantly affects the anode microstructure and overall cell performance. Compared with mechanical mixing, spray granulation produces a superior and uniform pore structure. However, contrary to conventional expectation, the introduction of graphite pore-forming agent into the APS anode reduces overall cell performance due to induced electrolyte defects, which elevated  $R_o$  and lowered OCV. Future optimization should focus on strategies to reduce anode surface roughness and refine pore structure without affecting the quality of electrolyte deposition. It is anticipated that this will further enhance the output performance of MS-SOFCs.

**Keywords** anode; graphite pore-former; atmospheric plasma spraying; metal-supported solid oxide fuel cells; electrochemical performance