Journal of the Korean Electrochemical Society
Vol. 12, No. 1, 2009, 68-74

탄소성형 Bipolar Plate의 전기화학적 특성과 연료전지 성능 비교

권영국 · 이재광 · 지덕진† · 이재영*

광주과학기술원 환경공학과 ERTL, †승림카본금속

(2009년 1월 12일 접수 : 2009년 2월 12일 채택)

Electrochemical Characteristics of Home-Made Bipolar Plate and Its Relationship with Fuel Cell Performance

Youngkook Kwon, Jae Kwang Lee, Dukjin Ji†, and Jaeyoung Lee*

Electrochemical Reaction and Technology Laboratory (ERTL), Department of Environmental Science and Engineering, Gwangju Institute of Science and Technology (GIST), Gwangju 500-712, Korea
†Seunglim Carbon Metal Co., Ltd., Wonsi, Danwon, Ansan, Gyeonggi, 425-851, Korea

(Recevied January 12, 2009 : Accepted February 12, 2009)

초 록

본 연구에서는 탄소성형 분리판의 물리화학적, 전기화학적 특성을 분석하여 수소 및 개미산연료 전지의 성능에 미치는 영향을 알아보았다. 기존 기계가공 탄소분리판과 탄소복합소재 탄소성형 분리판의 접촉저항, 부식특성, 소수성을 비교 평가하였다. 특히, 현재 연구개발 중인 탄소복합소재 성형분리판의 경우 계면접촉저항이 기계가공 분리판보다 1.5배 높게 나타났으며, 내식성 실험에서는 산에 취약하여 분리판 표면이 거칠어지고 결정성이 감소하였다. 연료전지의 성능은 분리판의 계면접촉저항에 크게 영향을 받았으며, 계면저항이 적은 기계가공 분리판이 수소 및 개미산 연료 전지에서 높은 성능을 나타냈다.

Abstract : The effect of physico-electrochemical properties of carbon bipolar plate(BPP) on hydrogen and formic acid fuel cell performance has been investigated. BPP made of conventional graphite and carbon fiber composite were compared with the factors of interfacial contact resistance (ICR), corrosion behaviours, and hydrophobicity. Among them, the ICR of carbon fiber composite BPP has 50% higher than conventional graphite and the surface of carbon fiber composite BPP became rougher due to weaker corrosion resistance. Fuel cell performance was strongly dependent of ICR value of carbon bipolar plate.

Keywords : Carbon bipolar plate, Interfacial contact resistance, Hydrophobicity, Chemical stability, Fuel cell performance.

1. 서 론

연료전지는 수소 또는 액체연료가 보유하고 있는 화학에너지를 직접 전기에너지로 변환시키는 에너지 변환 장치로써, 기존의 발전기술보다 높은 효율을 갖는 친환경적인 기술이다. 그러나 연료전지의 상용화를 위해서는 가격저감과 출력밀도 향상 등의 해결해야 할 과제가 남아있다. 고분자 전해질 연료전지의 스택 가격을 부품별로 분석하면 촉매전극이 40~50%로 가장 높고, 분리판은 20~30%, 전해질과 기타 20~30% 순으로

*E-mail: jaeyoung@gist.ac.kr

보고되었다.[1] 연료전지 스택 가격에서 높은 비중을 차지하는 분리판은 스택의 뼈대를 구성하여 셀 사이의 통전, 셀의 물과 열관리 및 연료와 산소의 이동 경로를 제공하는 연료전지의 핵심부품으로 국내외에서 연구개발이 활발하다. 특히, 고분자전해질 연료전지스택의 부피와 무게의 80% 이상을 분리판이 차지하고 있어 부피 및 무게 출력밀도 향상을 위해서는 새로운 소재의 개발이 필수적이다.[2] 국외의 경우 연료전지 분리판 개발은 이미 대량생산 공정체제를 갖추고 연료전지 시스템의 보급과 대규모의 시장형성을 기다리고 있는 상황이다. 일본에서는 Nissinbo, Showa Denko, Tokai Carbon 3사를 중심으로 탄소복합소재 성형분리판의 개발이 활발하며,[3] 미국과 유럽의 Entegris, GRAFCELL, Schunk, DANA, SGL, Bac2 등에서 이미 대량생산이 가능한 체제를 갖추었다. 국내에서도 최근 현대하이스코와 POSCO를 중심으로 자동차용 연료전지 금속성형분리판 개발을 활발히 진행하고 있다. 이러한 분리판 개발속도에 발맞추어 미국 에너지국(DOE)에서는 분리판 소재개발 시 요구되는 요소들의 목표치를 아래와 같이 설정하였다 (Table 1). 분리판의 소재로 사용되는 금속소재는 우수한 전기전도성과 기계적 특성 및 제작의 용이성이 있으나, 연료전지 내에서 부식에 약하다.[4,5] 그라파이트와 탄소복합소재는 높은 내식성과 낮은 계면저항으로 산업현장에서 널리 사용되고 있다.[6] 현재 국내에서 이용되는 분리판은 대부분 일본, 미국, 독일에서 수입한 고밀도 그라파이트 블록을 수지함침을 통하여 기체투과를 막은 후 기계가공을 통해 제작된다. 이렇게 생산된 분리판은 전기전도성이 좋고 제품 정밀도가 높아 좋은 성능을 낼 수 있으나, 그라파이트는 깨지기 쉬워 가공이 어려우며 오랜 제작기간으로 비용이 많이 소요되어 상용화가 불가능하다. 한편 탄소복합소재 분리판은 제조 비용이 낮고 가공이 용이하며 대량 생산이 가능하지만 성형에 필수적인 바인더로 인해 전기 전도성이 낮은 단점이 있다.[7,8]

본 연구에서는 기존의 기계가공을 통한 그라파이트 분리판 제조방법을 대체하기 위하여 현재 개발중인 성형분리판을 수지함침 후 기계가공된 제품과 물리전기화학적인 특성의 비교분석을 통하여 추후 성형분리판의 소재개발 및 성능개선 시 고려되어야 할 요소들을 모색하고자 하였다. 또한 기존의 수소연료전지를 목표로 개발되어 온 분리판을 액체연료전지에 적용시 고려되어야 할 핵심 요소를 알아보았다.

Table 1. DOE technical target of bipolar plate in Vision 2020

Characteristics	Units	2010	2015
Cost	$/kW	6	4
Weight	kg/kW	< 1	< 1
Corrosion	1 μA/cm^2	< 1	< 1
Resistivity	ohm/cm^2	0.01	0.01
Flexibility	%	3 to 5	3 to 5

2. 실 험

2.1. 재료 준비와 특성 분석

승림카본금속(주)에서 현재 개발중인 분리판 탄소성형복합소재(i, SLBP9)는 carbon과 수지의 composite 물질을 가압성형방법으로 제조하였다. 개발소재의 특성을 파악하기위해 동일한 방법으로 제조된 독일 Schunk(ii, FU4369)의 상용소재를 비교분석하였다. 일반적으로 탄소성형 분리판의 제조 시, 천연 그라파이트와 바인더의 함량은 각각 65 vol.%와 25 vol.%로 일정하게 유지하며, 나머지 10 vol.%는 탄소나 탄소섬유 등의 강화제를 첨가하여 제작한다.[9] 탄소성형복합소재 분리판과 비교하기 위해 선정된 기계가공분리판은 일본 Tokai Carbon의 분리판(iii, G347B)이며, 이 분리판은 등방성 흑연에 기체 기밀성을 부여하기 위해 페놀수지를 흑연의 내부에 침투시켜 경화시켜 제조되었다. 특히, Tokai Carbon 소재는 일본자동차연구소(JARI)에서 표준소재로 채택하고 있어 소재비교를 위한 대표성이 있다. 또한 Tokai Carbon의 흑연을 승림카본금속(주)에서 함침한 분리판(iv, G348A)의 비교분석을 실시하였다. 본 연구에 사용된 분리판은 사상유로이며, 유로면적은 3 × 3 cm^2, 두께는 4 mm로 일정하게 제작하였다. 실험에 사용된 분리판 소재들의 밀도, 비저항, 굴곡강도 특성들은 아래 Table 2에 정리하였다.

각 분리판의 특성은 다음의 물리·전기화학적 방법을 통하여 분석하였다. 아래 Fig. 1은 분리판의 접촉저항을 측정하는 장치로, 연료전지 스택에서와 동일한 구조에서 압력의 변화에 따른 분리판의 계면저항을 고주파 저항측정기(Hioki 3560 AC Miliohm HiTester)로 측정하였다.

접촉 저항(R)이 증가할 경우 아래 식 (1)과 같이 분리판 면적(A_s)에 따른 일정 전류(I)에서 전압 강하(V)가 증가하게 된다.

$$R = \frac{VA_s}{I} \quad (1)$$

Table 2. Properties of bipolar plates

BPPs	밀도 (g/cm^3)	비저항 (μΩ·cm)	굴곡강도 (kg$_f$/cm^3)
(i) SLBP9	1.91	8974	325
(ii) FU4369	1.93	6421	346
(iii) G347B	1.97	1213	765
(iv) G348A	1.94	1237	710

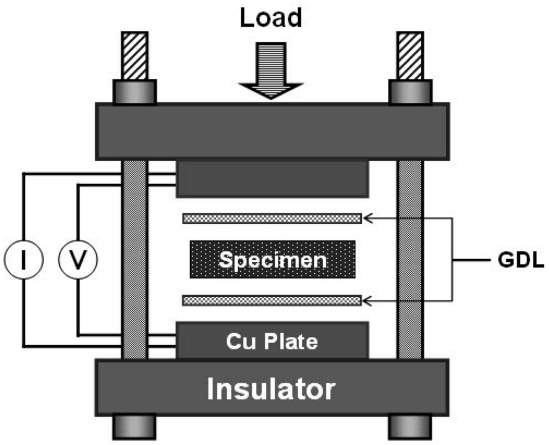

Fig. 1. Schematic diagram of the area specific resistance measurement.

연료전지의 장기 실험에서 균일한 성능을 얻기 위하여 물 관리는 필수이며, 이와 관련된 분리판 표면의 소수성을 알아보기 위해 Standard Goniometer (Model 200, Ramehart, Inc.)를 이용하여 접촉각을 측정하였다. 분리판의 내식성을 알아보기 위해 1 M H_2SO_4와 2 ppm HF를 혼합한 용액에서 –0.5~1.6 V (vs. Ag/AgCl) 범위의 Tafel plot을 측정하였다. 분리판의 내식성실험 전후의 표면 형태 변화를 관찰하기 위하여 SEM (FE-SEM, Hitachi S-4700) 분석을 하였으며, 분리판 결정성의 변화는 XRD (HR-XRD, D/MAX Ultima III) 분석을 통하여 확인하였다.

2.2. 단위전지 성능평가를 위한 전극제조

본 연구에서는 분리판의 특성과 연료전지 성능과의 관계를 알아보기 위해 수소연료전지(PEMFC) 뿐만 아니라 액체연료전지인 개미산연료전지(DFAFC)에도 적용하였다. PEMFC용 전극으로는 산화극과 환원극에 각각 0.3 mg/cm^2 40% Pt/C (E-TEK)를 스프레이 방법으로 증착하였다. 양이온 교환막은 Nafion 212 (Dupont)를 사용하였고, 기체확산층(GDL: gas diffusion layer)으로는 소수성 처리가 된 SGL 10 BB를 적용하였다. 80% 가습된 수소와 100% 가습된 산소의 유량은 300 sccm으로 충분히 공급하였으며, 운전 온도는 70°C를 유지하였다. DFAFC용 전극으로는 산화극과 환원극에 각각 3 mg/cm^2 Pt black (Aldrich)을 증착하였으며, 양이온 교환막은 Nafion 115 (Dupont)를 사용하였다. 연료극 확산층으로 사용된 탄소섬유는 친수성인 개미산의 확산을 돕기 위해 소수성 처리를 하지 않은 Toray 170을, 환원극에는 소수성 처리가 된 SGL 35 BC를 적용하였다. 연료는 3 M의 개미산을 사용하여 5 mL/min의 속도로 공급하였으며, 100% 가습된 산소는 200 sccm의 속도로 공급하였다. 운전 온도는 60°C로 유지하였다. 성능은 시간의 변화에 따라 일정한 전류를 증가하여 전압의 변화를 측정하는 방법으로 분극곡선을 얻었다. 촉매 잉크, 전극・전해질 접합체(MEA: membrane electrode assembly)의 제조 및 전처리는 기존 연구에서 수행한 방법과 동일하게 실시하였다.[10]

3. 결과 및 고찰

3.1. 분리판의 특성 분석

연료전지 스택에서 발생하는 저항 중 분리판이 가장 큰 비중을 차지하며,[11] GDL과 분리판의 접촉, 즉 접촉표면의 거칠기가 증가함에 따라 접촉저항은 증가하여 연료전지 성능은 저하된다. 일반적으로 계면에 가하는 압력이 증가함에 따라 스택 구성들 간의 접촉면적은 증가하게 되고, 이는 저항을 감소시킨다. 실험에 사용된 GDL은 연료전지 성능실험에 사용된 것과 동일한 것을 사용하였고, 분리판 시편의 면적은 2 × 2 cm^2 로 하였으며, Cu plate 간의 초기 계면저항은 5.3 mohm 으로 나타났다. 압력의 변화에 따른 분리판의 계면접촉저항(ICR: interfacial contact resistance) 결과는 Fig. 2와 같다. 단위면적당 접촉압력을 증가할수록 계면저항은 급격히 감소하였으며, 125 kg$_f$·cm^{-2} 이상의 압력에서는 저항이 거의 일정하였다. 위의 결과에서 분리판의 계면저항은 분리판의 제조 방법에 크게 영향을 받는 것으로 나타났다. 압력 변화에 따른 전체 구간에서 기계가공방법으로 제조된 (iii)이 가장 낮은 계면저항을 나타냈고, 같은 공정을 거친 (iv)도 비슷한 경향을 나타냈다. 하지만 성형방법으로 제조된 (i)과 (ii)의 경우 상대적으로 높은 저항을 나타냈고, Fig. 2(a)와 (b)에서 GDL의 종류와 상관없이 동일한 경향성을 나타냈다. 따라서 현재 기계가공방법으로 분리판을 제조할 경우 탄소복합소재를 성형하는 방법보다 상대적으로 계면저항이 낮은 것을 확인할 수 있었다.

연료전지의 환원극에 적용되는 탄소복합소재 분리판은 소재의 안정성이 중요하다. 산소와 물이 존재하는 환경에서 0.6 V (vs. RHE) 이상의 전압이 발생할 경우 분리판의 소재가 이산화탄소로 쉽게 산화되는 것으로 나타났다.[12-14] 또한 Tafel plot에서 높은 부식 전위는 열역학적인 관점에서 분리판이 전기화학적으로 안정하다는 것을 나타내는데, PEMFC의 경우 산화극의 부식과 환원극에서의 탄소소재 유실을 방지하기 위해 각각 0 V 와 1.23 V (vs. RHE) 이상의 부식전위가 요구되고 있다.[11] 또한 수소연료전지의 경우, 연료전지의 구동으로 인해 공기극에서 생성되는 물의 pH는 1~4 범위의 강산성으로 분리판의 부식에 직접적으로 영향을 미친다.[15] 이와 관련하여 탄소소재 분리판의 내식성에 대한 가속실험을 하기위해 강산인 1 M H_2SO_4와 2 ppm HF를

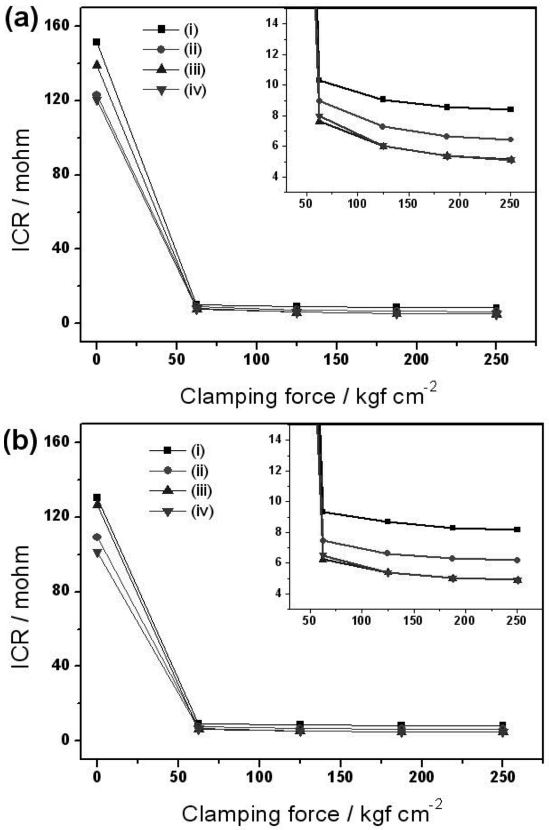

Fig. 2. Variation of interfacial contact resistance with clamping forces. Each gas diffusion layer is (a) 10 BB for PEMFC test and (b) Toray 170 for DFAFC test.

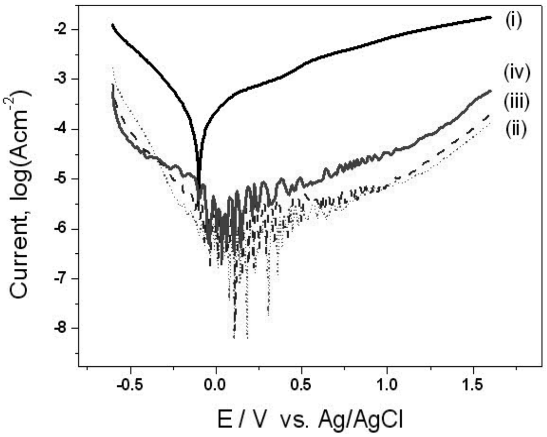

Fig. 3. Tafel plot of the specimens investigated. Specimens were tested in 0.5 M H_2SO_4 + 2 ppm HF solution at a scan rate of 1 mV/s.

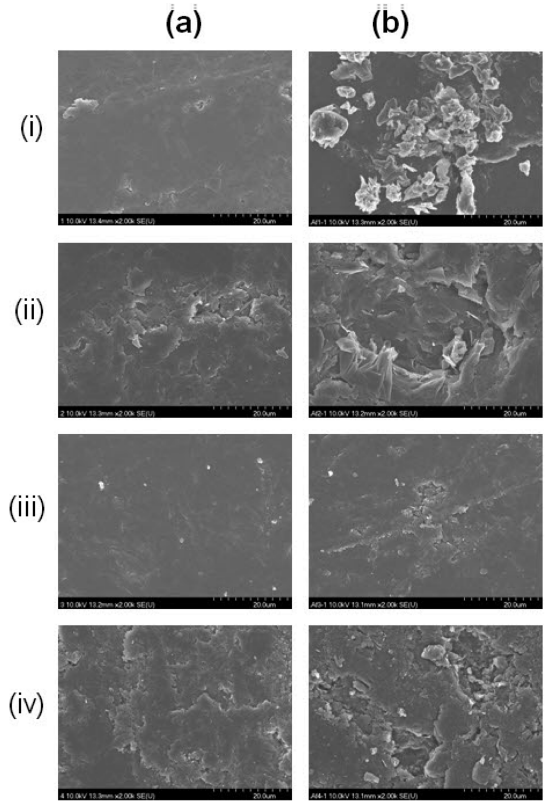

Fig. 4. SEM images of the surface morphology of the specimens. (a) Before and (b) after corrosion test.

혼합한 용액에서 Tafel plot을 얻었으며, 결과는 아래 Fig. 3과 같다. (ii)와 (iii)의 경우 상대적으로 부식에 강한 것으로 나타났으며, (i)의 경우 부식에 상당히 취약한 것으로 나타났다. 내식성 실험에서는 두 종류의 승림개발 소재가 상대적으로 부식에 약한 것으로 나타났으며, 특히 탄소성형복합소재의 경우 부식이 심하게 발생하여 분리판의 제조 후 내식성을 높이기 위해 추가적으로 소성공정이 필요하다.

내식성 실험에 따른 분리판의 변화를 알아보기 위해 내식성 실험 전후의 SEM, XRD 와 Contact angle을 비교분석하였다. Fig. 3은 내식성 실험에 따른 분리판 표면의 형태변화를 나타낸다. 내식성 실험 이전(Fig. 3(a))의 분리판 표면은 대체로 평탄하였으나, (i)의 경우 실험에 따라 부식이 상당히 진행된 것으로 나타났으며, (iii)의 경우 상당히 부식에 안정하여 표면변화가 거의 발생하지 않았다.

Fig. 5는 내식성 실험 전후 분리판 소재의 결정성을 나타내는 XRD 결과로 분리판의 제조 공정과 밀접한 관계가 있는 것으로 나타났다. 가압성형방법으로 제조된 분리판 (i)과 (ii)의 경우 탄소소재와 바인더 혼합물에 압력을 가하여 성형한 제품으로 소재의 변형이 적어 높은

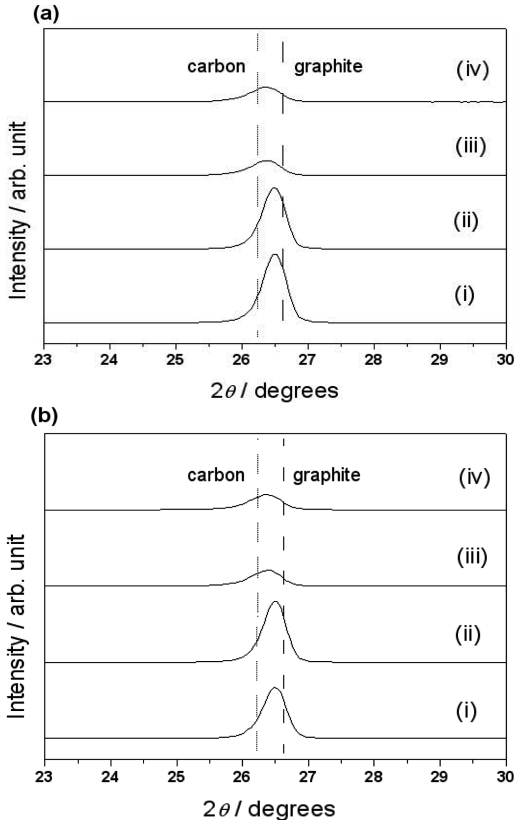

Fig. 5. X-ray diffraction patterns of specimens. (a) Before and (b) after corrosion test.

결정성을 나타내지만, 기계가공을 거친 분리판 (iii)과 (iv)의 경우 가공 과정에서 발생하는 소재의 변형으로 결정성이 상대적으로 감소하게 된다. 따라서, Fig. 5(a)에서 (i)과 (ii)의 경우 높은 강도로 Graphite에 가까운 결정성을 나타냈고, (iii)과 (iv)의 경우 낮은 강도의 Carbon에 가까운 성질을 나타냈다. 내식성 실험 후 Fig. 5(b)에서 대부분의 분리판은 실험 이전과 동일한 강도를 유지하였으나, (i)의 결정성이 급격히 감소한 것으로 나타났는데, 이는 Fig. 4(b)에서와 같이 내식성 실험 중 (i)의 분리판이 상당부분 훼손 된 것에 기인한다.

분리판 표면은 반응 중 생성 된 물의 유출을 용이하게 하기 위하여 소수성이어야 하며, 특히 장기간 운전으로 생성되어 축적된 물은 연료전지의 성능을 급격히 감소시키므로 원활한 배출이 필수적이다.[16] 특히 환원극에서 물의 배출이 원활하지 않을 경우 높은 유량을 공급해야하고, 이로 인해 전력소비 및 사용 산소량의 증가로 시스템 효율이 감소하게 된다.[16] 일반적으로 소수성 물질은 물과의 접촉각이 90° 이상을 나타내며, Fig. 6(a)의 (ii)와 (iii)의 경우 약한 소수성을 나타냈다. 분리판 (iv)는 친수성을

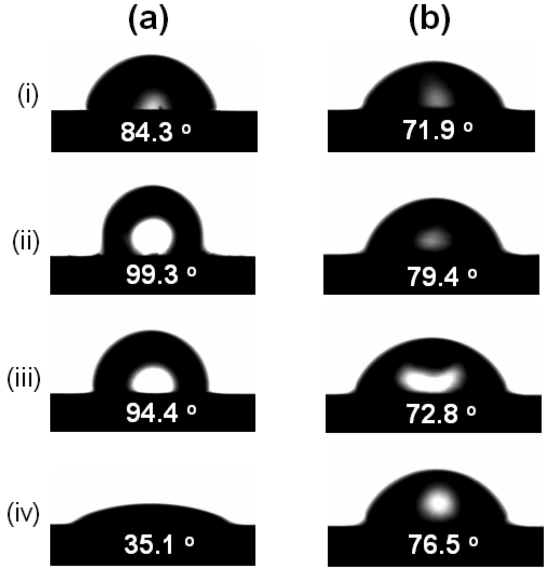

Fig. 6. Images of distilled water droplets on the surface of investigated specimens. (a) Before and (b) after corrosion test.

나타냈으며, 물은 서서히 분리판에 흡수되었다. 내식성 실험 후 접촉각은 대체로 감소하여 90° 이하를 나타냈으나, 분리판 (iv)의 경우 내식성 실험 전보다 접촉각이 증가하여 다른 분리판들과 비슷한 수준을 나타냈다. 이는 표면의 소수성 처리가 제대로 되지 않은 분리판이 내식성 실험의 표면부식반응 과정에서 소수성이 증가한 것으로 판단된다.

3.2. 단위전지 성능평가

분리판의 특성에 따른 연료전지 성능 변화를 알아보기 위해 동일한 조건에서 운전하였다. Table 3은 단위전지에서 분리판과 MEA의 접촉 저항을 측정한 결과이며, Fig. 2에서와 동일한 경향성을 나타냈다.

Fig. 7은 PEMFC와 DFAFC에서의 분극 곡선 결과이며, 분리판 (iii) 에서 가장 높은 성능을 나타냈다. 분리판 (iv) 는 (iii) 과 대등한 성능을 나타냈으며 분리판에 따른 성능은 접촉저항 결과와 깊은 상관관계가 있음을 나타낸다. 분리판

Table 3. Initial interfacial contact resistance in single cell configuration

BPPs	ICR / mohm	
	PEMFC	DFAFC
(i)	75	106
(ii)	38	58
(iii)	23	36
(iv)	24	46

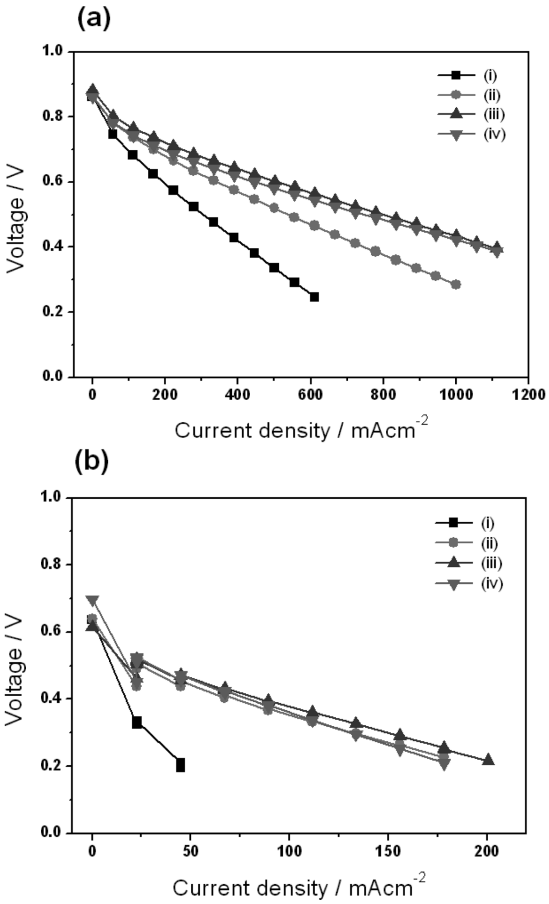

Fig. 7. Polarization curves in (a) proton exchange membrane fuel cell (PEMFC) and (b) direct formic acid fuel cell (DFAFC).

(iii), (iv) 보다 접촉저항이 상대적으로 높은 (ii)의 경우 PEMFC에서는 낮은 성능을 나타냈으나, DFAFC에서는 대등한 성능을 나타냈다. 분리판 (iii), (iv) 의 경우 PEMFC, DFAFC 모두에 적용 가능하며, (ii)의 경우 DFAFC에서는 상대적으로 경쟁력이 있는 것으로 나타났다.

이러한 결과들을 바탕으로 분리판의 제조 용이성과 연료전지에서의 성능과의 상관관계를 Fig. 8에서 나타냈다. 기계가공을 통한 분리판 (iii), (iv) 의 경우 제조 시 가격과 제조시간의 문제점이 있으나, 실제 연료전지에 적용할 경우 낮은 접촉저항과 내식성, 그리고 우수한 물 배출 능력으로 높은 연료전지 성능을 나타냈다. 하지만 (i), (ii) 의 경우 탄소복합소재 성형분리판으로 제조 과정이 간결하며 상대적으로 좋은 결정성을 나타내지만, 높은 접촉저항 및 부식성 등으로 낮은 연료전지 성능을 나타냈다. 특히, 단기 성능 실험 시 접촉저항에 크게 영향을 받는 것으로 나타났다.

본 실험에 사용된 (i) SLBP9 성형분리판은 성형성을 좋게

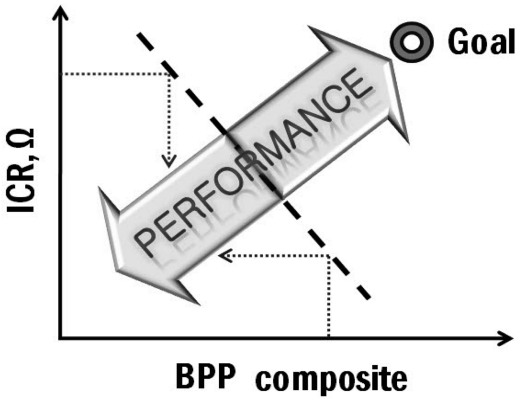

Fig. 8. Schematic diagram regarding single cell performance with respect to the carbon fiber composite properties.

하기위해 바인더함량을 높여 가공한 소재이며, 낮은 계면저항과 높은 연료전지 성능을 얻기 위해서는 다양한 바인더 종류의 적용과 최적의 비율을 확보하며, 내식성을 개선하기 위한 소성공정을 도입해야한다. 또한 경화온도와 경화조건에 따른 분리판의 특성 변화도 고려해야할 것이다.

4. 결 론

본 연구에서는 개발된 성형분리판과 기계가공분리판의 물리화학적, 전기화학적 특성을 분석하여 수소 및 개미산연료전지의 성능에 미치는 영향을 알아보았다. 현재 개발중인 탄소복합소재 성형분리판의 경우 초기 비저항, 계면접촉저항이 기계가공 성형분리판보다 각각 7배, 1.5배 높게 나타났다. 내식성 실험에서 개발성형분리판은 산에 취약하여 분리판 표면이 거칠어지고 결정성이 감소하는 현상이 나타났다. 수소연료전지에 분리판을 적용하였을 경우, 계면저항이 적은 기계가공 분리판에서 높은 성능을 나타냈다. 개미산연료전지에서도 기계가공 분리판이 높은 성능을 나타냈으나, 성형분리판인 Schunk 소재가 계면저항의 영향을 적게 받는 것으로 나타났다. 따라서 현재 개발중인 탄소복합소재 성형분리판의 제조시 사용되는 바인더의 종류와 혼합비율을 최적화하며 소성공정을 도입할 경우, 낮은 계면저항, 내식성, 소수성을 갖는 우수한 성능의 분리판을 얻을 수 있을 것으로 기대된다.

감사의 글

"This work was supported by the Korea Research Foundation Grant funded by the Korean Government (MOEHRD, Basic Research Promotion Fund) (KRF-2007-511-D00062)."

참고문헌

1. I. Bar-On, R. Kirchain, and R. Roth, *J. Power Sources*, **109**, 71 (2002).
2. X. Li, and I. Sabir, *Int. J. Hydrogen Energy*, **30**, 359 (2005).
3. Separator Development Trends, Fuel Cell Japan Report (2006).
4. I. U. Hwang, H. N. Yu, S. S. Kim, D. G. Lee, J. D. Suh, S. H. Lee, B. K. Ahn, S. H. Kim, and T. W. Lim, *J. Power Sources,* **184**, 90 (2008).
5. E. A. Cho, U. -S. Jeon, S. -A. Hong, I. -H. Oh, and S. -G. Kang, *J. Power Sources*, **142**, 177 (2005).
6. Y. Hung, K. M. El-Khatib, and H. Tawfik, *J. Power Sources,* **163**, 509 (2006).
7. E. A. Cho, U. -S. Jeon, H. Y. Ha, S. -A. Hong, and I. -H. Oh, *J. Power Sources*, **125**, 178 (2004).
8. R. Blunk, M. H. A. Elhamid, D. Lisi, and Y. Mikhail, *J. Power Sources*, **156**, 151 (2006).
9. P. H. Maheshwari, R. B. Mathur, and T. L. Dhami, *J. power sources*, **173**, 394 (2007).
10. S. Uhm, Y. Kwon, S. -T. Chung, and J. Lee, *Electrochim. Acta*, **53**, 5162 (2008).
11. C. -Y. Chung, S. -K. Chen, T. -S. Chin, T. -H. Ko, S. -W. Lin, W. -M. Chang, and S. -N. Hsiao, *J. Power Sources,* **186**, 393 (2009).
12. C. A. Reiser, L. Bregoli, T. W. Patterson, J. S. Yi, J. D. Yang, M. L. Perry, and T. D. Jarvi, *Electrochem. Solid-State Lett.*, **8**, A273 (2005).
13. L. M. Roen, C. H. Paik, and T. D. Jarvi, *Electrochem. Solid-State Lett.*, **7**, A19 (2004).
14. K. H. Kangasniemi, D. A. Condit, and T. D. Jarvi, *J. Electrochem. Soc.*, **151**, E125 (2004).
15. D. A. Shores and G. A. Deluga, in: W. Vielstich, H.A. Gasteiger, A. Lamm (Eds.), Handbook of Fuel Cells, vol. 3, John Wiley & Sons, (2003) pp.273.
16. M. Xiao, Y. Lu, S. J. Wang, Y. F. Zhao, and Y. Z. Meng, *J. Power Sources,* **160**, 165 (2006).