

고분자 전해질 연료전지용 분리판 기술개발 현황 및 전망

조은애 · 오인환

1. 서론

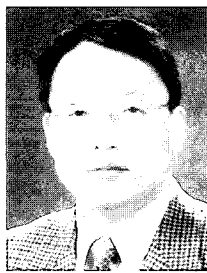
고분자 전해질 연료전지는 수소이온교환 특성을 갖는 고분자막을 전해질로 사용하는 연료전지로서 solid polymer electrolyte fuel cell (SPEFC), solid polymer fuel cell (SPFC), polymer electrolyte fuel cell (PEFC), 또는 proton-exchange membrane fuel cell (PEMFC) 등의 다양한 이름으로 불리고 있다. 고분자 전해질 연료전지는 다른 형태의 연료전지에 비해 작동온도가 낮고, 전류밀도 및 출력밀도가 높으며, 시동시간이 짧은 동시에 부하변화에 대한 응답특성이 빠른 특성이 있다.^{1,2} 특히 전해질로 고분자막을 사용하므로 전해질 손실이 없고, 기존의 확립된 기술인 메탄올 개질기의 적용이 가능하며, 반응기체 압력변화에도 덜 민감하다. 또한 디자인이 간단하고 제작이 쉬우며, 다양한 범위의 출력을 낼 수 있는 장점이 있기 때문에 다양한 분야에 적용이 가능하여,

현재 연료전지 자동차, 가정용 발전 및 휴대기기용 전원으로 집중적으로 연구개발이 진행되어 여러 가지 시제품이 발표되고 있으며, 일부는 시운전이 진행 중이다.

이러한 고분자 전해질 연료전지의 상용화는 현재 kW 당 수천불인 스택 가격을 어느 정도로 낮출 수 있는가에 달려있다고 할 수 있다. 현재 기술로 연료전지 스택의 가격을 부품별로 분석하면 **그림 1**과 같이 분리판이 전체 스택 가격의 50% 정도로 가장 높은 비중을 차지하고, 전해질이 18%, 촉매가 15%, 기체 확산층으로 사용되는 탄소재료가 6% 정도를 차지한다.³ 따라서 고분자 전해질 연료전지 스택의 가격을 낮추기 위해서는 스택 비용의 50%를 차지하는 분리판의 가격을 낮추는 것이 반드시 필요하다. 현재 이용되는 분리판은 대부분 고밀도 그라파이트를 기계 가공해 제작하는데, 깨지기 쉬워 가공이 어렵고 시간이 오래 걸려 비용이 많이 소요되고 있다. 이에 따



조은애
 1992 ~ KAIST 재료공학전공 (학사)
 1996
 1996 ~ KAIST 재료공학전공 (석사)
 1998
 1998 ~ KAIST 재료공학전공 (박사)
 2002
 2000 Pennsylvania State University
 방문연구원
 2001 일본 금속재료기술연구소
 방문연구원
 2002 ~ KIST 연료전지연구센터
 현재 선임연구원



오인환
 1975 ~ 서울대학교 화학공학 (학사)
 1979
 1979 ~ 한국과학기술원 화학공학 (석사)
 1981
 1985 ~ Purdue University 화학공학
 1991 (박사)
 1981 ~ 한국과학기술연구원, 연구원
 1985
 1985 ~ Purdue University, R. A
 1990
 1992 ~ 한국과학기술연구원 선임·책임
 연구원, 환경·공정연구부장,
 현재 조정부장

Current R&D Issues on Bipolar Plates of PEMFC

한국과학기술연구원 연료전지연구센터 (EunAe Cho and In-Hwan Oh, Fuel Cell Research Center, Korea Institute of Science and Technology, 39-1 Hawolgok-dong, Sungbuk-gu, Seoul 136-791, Korea) e-mail: eacho@kist.re.kr

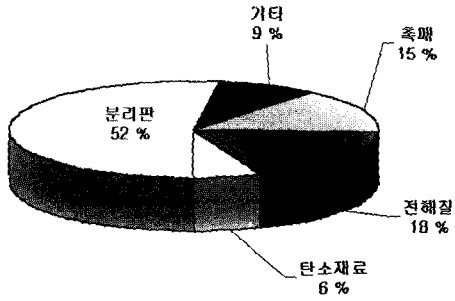


그림 1. Cost analysis for a PEMFC stack.³

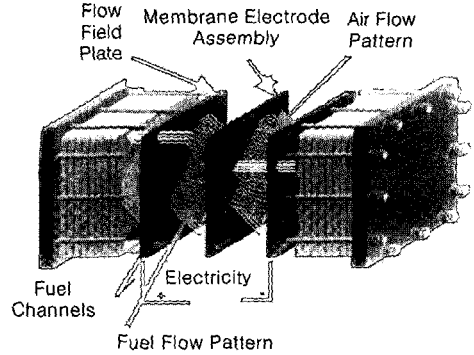


그림 2. A Schematic diagram of the Ballard PEMFC stack.

라 그래파이트를 대체할 저가의 분리판 소재 개발을 위해 많은 연구가 진행되고 있다.

분리판 소재로 이용되기 위해 요구되는 특성으로는 낮은 가격 외에도 우수한 가공성, 우수한 기계적 강도와 높은 전기 전도성, 낮은 밀도와 낮은 기체 투과율, 그리고 화학적인 안정성을 들 수 있다. 이러한 다양한 요구 사항을 만족시키는 재료로 현재 스테인리스 강을 위주로 한 금속 분리판과 탄소 분말과 고분자로 제조한 복합 분리판 개발이 이루어지고 있다. 스테인리스 강 경우 가공성과 가격, 기계적 강도, 소재의 전기 전도도 등은 월등히 우수하지만, 부식이 발생하여 전해질 막을 오염시킬 뿐만 아니라 표면에 산화막을 형성함으로써 전기 전도도가 급격히 감소하는 문제점이 있다. 한편 복합 분리판은 밀도가 낮고 화학적 안정성 등은 우수하지만 기계적 특성과 전기전도도가 떨어지는 단점이 있다. 본 고에서는 고분자 전해질 연료전지용 분리판의 역할 및 요구특성을 이해하고, 대체소재로서 금속 및 복합 분리판 개발 현황에 대해 소개하고자 한다.

2. 고분자 전해질 연료전지용 분리판

2.1. 고분자 전해질 연료전지 스택 구성

고분자 전해질 연료전지의 주요 구성요소는 고분자 전해질 막과 전극 (anode, cathode), 그리고 스택을 구성하기 위한 분리판 (separator)으로 이루어져 있다. Anode와 cathode의 두 전극을 고분자 전해질 막과 일체형으로 제작한 것을 막-전극 집합체 (membrane-electrode assembly, MEA) 라고 하는데, 전기화학반응에 의해 전류를 발생시키는 역할을 하며, 분리판은 anode에서 생성된 전자를 다음 셀의 cathode 쪽으로 전도해주는 집전판 역할을 한다. 연료

전지 스택 (stack)은 MEA와 분리판을 수십, 수백개씩 반복적으로 적층함으로써 구성되는데, 단위전지나 스택은 구성요소 간의 접촉저항을 줄이기 위하여 양쪽 끝판 (end plate)을 tie rod나 공기압으로 압착하게 되어 있다. 양쪽 끝판에는 반응기체의 출구 및 입구, 냉각수 순환구, electric power output을 위한 connection이 설치되어 있다. 그림 2는 이러한 고분자 전해질 연료전지 스택 개념도를 나타낸 것이다. 실제 시스템은 이러한 스택 외에도 연료개질기, 공기압축기, 열 및 물 처리기, 전력변환기 등으로 이루어진다.

2.2 분리판의 역할 및 요구특성

양극판 (bipolar plate) 또는 유로판 (flow field plate)으로 불리는 분리판 (separator)은 고분자 전해질 연료전지 스택의 핵심부품으로서 한쪽 면에는 anode용 가스유로가, 다른 쪽 면에는 cathode용 가스유로가 새겨져 있는 전기전도성 판이다. 분리판은 anode에서 생성된 전자를 다음 셀의 cathode 쪽으로 전도해주는 집전판 역할을 하며, MEA를 지지해주고, anode 및 cathode 쪽으로 각각 연료와 산화제를 공급해주는 통로를 제공해주는 동시에, 전기운전 중에 생기는 물을 제거해주는 통로 역할을 한다. 또한 연료전지의 운전시 발생하는 열을 효과적으로 방출하여 일정한 온도의 운전조건을 유지하기 위한 냉각판의 역할도 포함한다. 이러한 여러 가지의 조건을 만족시키기 위해 일반적으로 분리판이 가져야 할 특성은 다음과 같다.

첫째, 연료전지의 높은 효율을 위해 분리판에 의한 전압 손실은 최소한이 되어야 하므로 전기 전도도가 좋아야 한다. 1 A/cm²의 전류로 작동할 때, 고효율을 위해서는 전압 손실은 최소한 10 mV/plate가 적

당하므로 분리판의 저항은 각 plate 당 $10 \text{ m}\Omega \cdot \text{cm}$ 보다 작아야 하는데 이는 금속과 몇몇 반도체에 해당 하는 저항값이다.

둘째, 공급되는 수소와 공기의 흐름을 완벽하게 분리해야 되는데 연료가스들의 누설은 안전성 및 효율에 직접적인 연관이 있으므로 가스 투과율은 매우 낮아야 한다. 1 A/cm^2 의 전류로 작동 시 전극 표면의 단위 면적 당 즉 1 cm^2 의 면적에 $2.1 \times 10^{-5} \text{ moles/sec}$ 의 수소와 접하게 되며 작동 조건이 90°C , 2 atm 일 경우 매초 당 접하는 수소의 부피는 0.31 cm^3 에 해당하게 된다. 안전성 및 효율에 영향을 미치지 않는 범위인 0.5%의 누설 rate를 취할 경우 분리판의 최대 가스 투과도는 $1.0 \times 10^{-4} \text{ cm}^2/\text{sec} \cdot \text{cm}^2$ 이어야만 한다.

셋째, 제조 단가가 낮아야 한다. 원재료의 값은 어느 정도 정해져 있기 때문에 분리판 제조시 드는 비용을 줄일 수 있어야만 연료전지의 대중적인 상용화가 가능할 수 있다. 미국 에너지성의 분리판 상용화 목표 가격은 $\$10/\text{kW}$ 이다.³

넷째, 작동 조건이 가압 상태이며 연료 가스의 유출을 막기 위해 스택 간 밀착을 하게 되는데 이러한 힘을 지탱해줄 만큼 충분한 기계적 강도가 요구되므로 50 MPa 이상의 강도를 가져야만 한다.³

다섯째, 사용되는 전해질 내에서 내부식 특성이 있어야 한다.

여섯째, 단위 전지 사이에 반복적으로 사용되는 분리판은 무게 및 부피를 가중시키기 때문에 전체 장치의 무게와 부피에서 차지하는 비율이 매우 크다. 최근 연료전지 시스템의 단위 kW당 무게는 4 kg/kW 인데, 이 중 스택 부분이 차지하는 무게 비율이 30%라면 각각의 분리판의 무게는 $200 \text{ g} \cdot \text{m}$ 을 초과해서는 안 된다.

일곱째 고분자 전해질 연료전지의 성능 및 내구성은 운전온도에 민감하므로 운전시 발생하는 열을 효과적으로 방출할 수 있는 열전도도가 우수해야 한다.

따라서 분리판 재료는 전기전도도가 높고, 기체투과도가 낮으며, 기계적 강도가 우수하고, 화학적으로 안정해야 하며, 가볍고, 가격이 저렴해야 한다. 현재는 그래파이트를 기계적으로 가공하여 유로를 형성한 분리판이 대부분 사용되고 있는데, 가공이 어려워 가격이 비싸고 대량생산에 적합하지 않은 단점이 있다. 따라서 분리판이 요구하는 특성을 만족시키면서 제조단가를 낮추기 위해 금속 또는 탄소 분말을 몰딩한 복합재를 이용해 분리판을 개발하기 위

한 연구가 진행되고 있다.

3. 분리판 재료

3.1 그래파이트

현재 분리판의 재료로 그래파이트가 전세계적으로 가장 널리 사용되고 있다. 그래파이트 분리판은 전기 전도성 입자인 흑연 분말을 몰딩하여 일정한 크기의 흑연 피를 만든 후 이를 원하는 두께 및 크기의 흑연 판으로 자르고 페놀수지 등을 3~4회 함침시킴으로써 제조한다. 분리판에 함침된 레진은 흑연판 내부에 존재하는 기공을 봉쇄함으로써 기공 사이로 반응 기체가 침투하여 반대편 전극으로 가스가 누설되는 것을 방지해 주는 역할을 한다. 그래파이트 분리판의 가스유로는 밀링가공이나 전기방전가공으로 만들 수 있다. 그래파이트 분리판은 전기 전도성이 뛰어나며 내식성이 뛰어나지만 그래파이트는 내부에 기공이 많으므로 밀도가 낮아 경량의 스택 제작이 가능하나 반응가스의 혼합을 막기 위해 일정한 두께가 요구되어 결과적으로 스택의 부피가 커지는 단점을 가지고 있다. 또한 성형시 기계가공을 거쳐야 하므로 제조가격이 비싸 PEMFC 제작비용 중 50% 이상을 차지하고 있으며 대량생산이 어려운 단점이 있다. 따라서 현재 분리판에 대한 연구의 초점은 가격이 싸며 가공이 쉬운 재료를 이용하여 제조 단가를 낮출 수 있는 방향으로 진행 중이며, 이에 전기저항이 작고 내식성이 좋은 금속을 사용하는 금속 분리판과 전도성 물질 (탄소 또는 금속분말)과 고분자를 혼합한 복합 분리판이 있다.

3.2 금속 분리판

금속은 금속자체가 갖는 우수한 전기 전도성과 우수한 기계적 물성 및 싼 가격 때문에 분리판의 재료로 장점을 갖는다. 그러나 고분자전해질 연료전지에 이용되는 수소이온 교환막은 일반적으로 양이온을 교환해 줄 수 있는 작용기가 있는 고분자로 만들어진 다. 이때 고분자 구조 내에 양이온 교환능력이 있는 작용기인 술폰산 (sulfonic acid) 기가 존재하며, 이 술폰기가 연료전지 운전 중 약 1 M의 황산으로 작용하게 되어 금속의 부식이 촉진되고 표면에 생성된 금속산화물 (metal oxide)이 전기절연체로 작용하여 전기 전도성을 낮추며, 또한 이때 해리되어 나오는 금속 양이온이 촉매층 및 고분자전해질을 오염시킴으로써 연료전지의 성능을 감소시키게 된다.⁴ 따라서

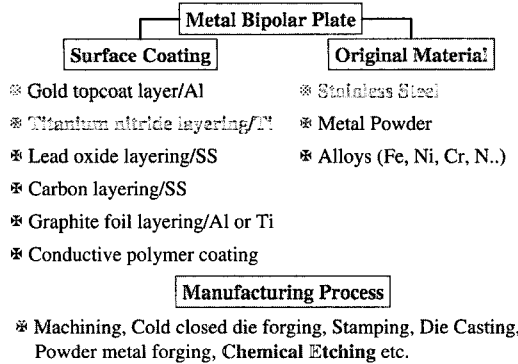


그림 3. World-wide status of the metallic bipolar plates development.

금속 분리판의 개발은 연료전지 운전시 발생하는 분리판의 부식 방지에 그 초점을 맞추고 있다. 금속 분리판 제작에 사용되고 있는 방법으로는 크게 두 가지 형태로 나눌 수 있는데, 알루미늄, 스테인리스 강, 타이타늄 등의 금속 재질에 내식성이 우수한 물질을 코팅하여 제작하는 방법과 자체 내식성이 강한 합금을 사용하는 방법이 있다. 그림 3에 현재까지 보고된 금속 분리판 재질 및 제작 방법을 정리하였다.

코팅에 의해 분리판을 제작할 때 이용되는 모재로는 Al, Ti, Ni, 스테인리스 강 등이 있다. 이런 금속 재료의 표면에 gold, titanium nitride, lead oxide, carbon, conductive polymer 등을 코팅하여 전도성 및 내식성을 향상시켜 분리판으로 사용한다.^{5,6} 이때 코팅 물질은 전도성이 우수해야 할 뿐만 아니라 모재와의 접착력이 높아야 하며, 모재와 열 팽창 계수(thermal expansion coefficient)의 차이가 작은 물질을 사용해야 한다. Woodman 등은⁵ 모재와의 열팽창 계수의 차이가 큰 물질을 분리판에 코팅하였을 때 운전 조건에 따라 전기 온도가 60~120 °C까지 변화하는 연료전지의 특성상 열 팽창률 차이에 의한 계면에서의 stress에 의해 코팅층에 미세한 틈이나 공극이 생기게 되며 이것이 코팅 층의 파괴를 가져오게 된다고 보고하였다. 이를 방지하기 위해서는 가능한 팽창계수의 차이가 적은 물질을 이용하거나 모재와 코팅 층 사이에 적당한 중간 코팅 층을 사용해야 하며, 1차 코팅한 모재를 열처리하여 인위적으로 틈을 생성시키고 이 위에 다시 코팅하여 틈을 제거하는 공정을 여러 번 반복하여 내식성 및 접착력이 우수한 코팅을 할 수 있다고 보고하였다.⁶ 이와 같이 표면을 코팅한 금속 분리판 성능은 코팅층을 얼마나 결

표 1. Coating Layer and Process for Metallic Bipolar Plates⁷

Coating layer	Coating process
Gold topcoating	Pulse current electro deposition
Stainless steel	Physical vapor deposition (PVD) (e.g. magnetron sputtering), or chemical vapor deposition (CVD), and electroless deposition for Ni-Ph alloy
Graphite topcoating	PVD (closed-field, unbalanced, magnetron sputter ion plating) and chemical anodization/oxidation over coating)
Titanium nitride	RF-diode sputtering
Indium doped tin oxide	Electron beam evaporation
Lead oxide	Vapor deposition and sputtering
Silicon carbide	Glow discharge decomposition and vapor deposition
Titanium aluminum nitride	RF-planar magnetron (sputtering)

함이 없이 만들 수 있는가에 달려 있으며 이는 코팅 물질에 따른 코팅 방법 선정에 있어서 필수적으로 고려해야 할 사항이다. 표 1에 재질에 따라 적용할 수 있는 코팅 방법을 정리하였다.⁷

모재의 내식성을 향상시키기 위해 표면에 내식성이 우수한 금속을 코팅하는 방법 외에 고분자 구조 내에 carbon이 많은 물질을 표면에 코팅한 후 고온(~1500 °C)에서 그래파이트화시켜 코팅 층을 형성하는 방법 등이 시도되고 있다.⁸

3.3 복합 분리판

그래파이트 분리판의 단점을 극복하기 위한 방법으로 전기 전도성 분말과 고분자 수지를 성형하여 원하는 가스유로를 직접 제작하는 복합 분리판(composite bipolar plate)이 있는데, 고분자전해질 연료전지 개발 초기에 이미 GE에서 탄소나 흑연인자들을 페놀수지나 불소고분자수지와 함께 성형하여 사용하였다.⁹ 복합 분리판은 전도성 물질인 탄소 또는 금속 분말과 binder로 고분자를 최대 9:1까지 배합한 후 사출성형이나 몰딩성형을 통해 제작하는데 이는 초기 장치설비 투자 후에는 연속공정을 통해 분리판을 제작할 수 있으므로 그래파이트 분리판 가격의 70% 이상을 차지하는 가공비를 크게 줄일 수 있는 장점이 있다.

전기 전도성 물질로는 금속 분말 또는 탄소 분말을 사용한다. 금속을 전도성 물질로 채택한 복합 분리판은 1998년 미국 에너지청에서 전기 전도성이 우수하고 내부식이 뛰어난 TiC 파우더를 고분자와 혼합한 후 molding을 통해 분리판을 제작하였으며,¹⁰ Los Alamos 국립 연구소에서는 2001년 다공성의 그래

파이트와 polycarbonate (PC) 그리고 스테인리스를 이용하여 분리판을 제작하였다.¹¹ 이때 다공성 그라파이트는 고밀도 그라파이트에 비해 가공시간 및 생산비용이 적게 든다는 장점을 가지고 있으며 전기 전도성을 유지할 수 있다. 또한 PC 및 스테인리스는 기체투과도를 만족시킬 수 있으며 가공성이 좋은 PC를 이용하여 분리판을 성형하고 스테인리스가 갖는 우수한 기계적 물성을 또한 갖게 된다.

탄소를 전도성 물질로 하는 탄소복합 분리판은 현재 대부분의 복합 분리판 개발에 응용되고 있는데 이때 이용되는 고분자는 열가소성 수지 및 열경화성 수지 모두 이용되고 있다. 열가소성 수지로서는 polypropylene, polyethylene, polyvinylidene fluoride 등이 이용되고 있으며 열경화성 수지로서는 phenolic 수지, epoxy 수지 및 vinyl ester 계열 수지가 이용되고 있다.¹² 또한 수지의 종류에 따라 그 성형 방법 및 시간이 결정되는데 열경화성 수지의 경우 고온 몰드에서도 단단한 성질을 갖기 때문에 몰드를 냉각하기 위한 시간이 짧아 processing time이 짧은 장점을 가지고 있으나 열가소성 수지에 비해 상대적으로 가격이 비싼 단점이 있다. 따라서 최근에 연구의 초점은 열가소성 수지로서 가소성 수지의 특성인 재생 가능한 장점이 크게 부각되고 있다.

복합 분리판의 재료로 이용되는 물질들의 예를 Ⅱ-2에 정리하였다.

복합재료를 이용하여 분리판을 제조하는 방법은 금속을 전도성 물질로 하는 경우, Los Alamos 금속 복합 분리판은 스테인리스 판을 stamping한 판과 그라파이트와 고분자를 혼련-성형한 판을 오븐에서 curing하고 hot pressing으로 접착한다. 그리고 여기에 다시 polycarbonate 판을 접합하는 식으로 제조

된다.¹¹ 또 다른 금속 복합재료인 TiC/resin 복합체는 TiC powder를 원하는 입자크기로 제조한 후 이를 고분자와 혼련하고 몰드 성형을 하여 제조한다.¹² 그러나 TiC의 혼련시 금속 입자들이 혼련기의 외벽을 손상시키거나 몰드자체를 손상시킬 수 있는 단점이 있다.

탄소를 전도성 물질로 사용하는 탄소-고분자 복합 분리판 또한 몰드 성형과 탄소의 조제 (braiding, knitting, weaving), prepreg의 제조 (commingling; melt, powder, or solvent impregnation), 최종 복합체의 mixing을 통한 공정을 거쳐 만들어진다. 이렇게 제조된 복합체는 EDM (electric discharge machining), 밀링 가공, compression molding, transfer molding 등을 통해 분리판의 형태로 가공된다. 일본 Kureha Chemical Co. 이나 Ashahi Glass 등에서는 위의 공정을 거친 분리판을 수소 분위기 1,100 °C 이상의 고온에서 소결하여 포함된 고분자의 C-H 결합의 양을 조절하는 carbonization 방법을 이용하여 분리판을 얻고자 했다.¹³ 그러나 최근에는 소결과정을 거치지 않고도 우수한 전도성을 얻을 수 있는 BMC (bulk moulding compound)의 개발이 이루어지고 있다.^{14,15}

4. 결론

자동차용, 가정용, 휴대기기용 전원으로서 개발되고 있는 고분자전해질 연료전지의 상용화를 위해서는 스택의 제조단가를 낮추는 것이 필수적이다. 그중에서도 현재 스택가격의 60%를 차지하고 있는 분리판의 가격저감이 시급하다. 현재 사용되고 있는 그라파이트 분리판은 깨지기 쉽고 가공이 어려워 이를 대체하기 위해 금속 분리판이나 복합 분리판의 개발이 진행되고 있다. 금속 분리판은 기계적 특성이 우수하고 가공이 쉽지만 부식에 의해 성능이 감소하는 단점이 있고 복합 분리판은 화학적 안정성은 우수하지만 전기전도도가 낮고 기계적 특성이 떨어지는 단점이 있다. 이에 따라 내식성이 우수한 금속 분리판과 전기전도도 및 기계적 특성이 우수한 복합 분리판을 개발하기 위해 전세계적으로 연구개발이 활발히 진행되어 현재 미국, 일본, 독일 등에서는 상용화에 근접한 기술을 보유하고 있다. 그러나 국내에서는 최근에서야 대체 분리판 재료의 개발에 관한 연구가 본격적으로 시작되어, 아직까지 고유기술을 확보하지

Ⅱ-2. Composite Bipolar Plate Materials

	Base material	Support material	
Metal based	Layered graphite	Polycarbonate plastic	Stainless steel
	Titanium carbide	Polyvinylidene fluoride	
		Resin	Filler/Fiber
Carbon based	Thermoplastic	<ul style="list-style-type: none"> · Polyvinylidene fluoride · Poly propylene · Polyethylene 	<ul style="list-style-type: none"> · Carbon/graphite powder · Carbon black
	Thermoset	<ul style="list-style-type: none"> · Epoxy resin · Phenolic resin (phenyl aldehyde resol, phenyl aldehyde Novolac, etc) · Furan resin · Vinylester 	<ul style="list-style-type: none"> · Coke-graphite fiber · Carbon/graphite fiber · Cellulose fiber · Cotton flock

못하고 있는 형편이다. 따라서 외국과의 기술격차를 단시일 내에 줄이기 위해서는 여러 연구기관들의 역량을 결집하여 연구개발 효율을 극대화할 수 있는 전략과 정부차원의 집중적인 투자가 요구된다.

참고문헌

1. L. J. M. J. Blomen and M. N. Mugerwa, "Fuel Cell Systems", Plenum Press, New York, 1993.
2. K. Kordesch and G. Simader, "Fuel Cells and Their Applications", VCH, Weinheim, Germany, 1996.
3. I. Bar-On, R. Kirchain, and R. Roth, *J. Power Sources*, **102**, 71 (2002).
4. T. Mennola, M. Mikkola, M. Noponen, T. Hotinen, and P. Lund, *J. Power Source*, **112**, 261 (2002).
5. P. L. Hentall, J. B. Lakeman, G. O. Mepsted, P. L. Adcock, and J. M. Moore, *J. Power Sources*, **80**, 235(1999).
6. A. S. Woodman, E. B. Anderson, K. D. Jayne, and M.C. Kimble, *Proceedings AESF SUR/FIN '996* (21-24), 717 (1999).
7. V. Metha and J. S. Cooper, *J. Power Sources*, **114**, 32 (2003).
8. N. Cunningham, D. Guay, J. P. Dodelet, Y. Meng, A. R. Hlil, and A. S. Hay, *J. Electrochem. Soc.*, **149**, A905 (2002).
9. R. J. Lawrance, U. S. Patent 4,214,969 (1980).
10. A. B. LaConti, A. E. Griffith, C. C. Cropley, and J. A. Kosek, US Patent A9076018 (1998).
11. Los Alamos National Laboratory Home Page (1998). Available from <http://www.ott.doe.gov/pdfs/contractor.pdf>.
12. V. Mehta and J. S. Cooper, *J. Power Sources*, **114**, 32 (2003).
13. T. M. Besmann, J. W. Klett, J. J. Henry, Jr., and E. L.-Curzio, *J. Electrochem. Soc.*, **147**, 4083 (2000).
14. Kurt I. Butler, US Patent 6,251,308 (2001).
15. C. E. Hinton, C. L. Scortichini, and R. D. Mussell, US Patent 6,103,413 (2001).