

동결/해동 조건에서 기체확산층이 고분자전해질연료전지의 내구성에 미치는 영향에 관한 연구

임수진, 박구곤[†], 박진수, 손영준, 임성대, 양태현, 김창수

*한국에너지기술연구원 연료전지연구단

Investigation of Gas Diffusion Layer Effects on the Freeze/Thaw Condition Durability in PEFCs

SOOJIN LIM, GUGON PARK[†], JINSOO PARK, YOUNGJUN SOHN, SUNGDAE YIM, TAEHYUN YANG, CHANGSOO KIM

*Fuel Cell Research Center, Korea Institute of Energy Research
102 Gajeong-ro, Yuseonggu, Daejeon, 305-343, Korea

ABSTRACT

The effect of gas diffusion layers (GDLs) on the freeze/thaw condition durability in polymer electrolyte fuel cells (PEFCs) were investigated. For this purpose, three kinds of GDLs, such as, felt, paper and cloth types with different basic properties have been first prepared, then the changes in the properties and performance of cells was observed during the freeze/thaw cycles ranging from -30 to 70°C. The performance evaluations were conducted by using the single cells consisting of different GDLs. The performance degradation and the cell resistance increase could be directly correlated. The physical destruction of electrode was shown by SEM analysis. The mechanically supporting ability on the interface between the cell components can help enhancing the durability of PEFCs in the freeze/thaw condition.

KEY WORDS : PEFC(고분자전해질연료전지), Water management(물 관리), Freeze/thaw(동결/해동), Durability(내구성), Bending stiffness(휨 강도)

1. 서 론

최근 고분자전해질연료전지의 상용화가 휴대용 및 자동차용 연료전지를 중심으로 급속히 진행되고 있다. 이에 따라 연구개발의 중심은 점점 더 연료전지의 내구성을 확보하는 방향으로 옮겨가고

있다. 특히 막전극접합체(MEA)의 내구성에 대해서는 많은 연구들이 진행되고 있다¹⁾.

고분자전해질연료전지를 구성하는 핵심요소 중 하나인 전해질 막은 dupont사의 나피온(nafion)이 주로 사용된다. 이 전해질 막은 수분이 존재하는 조건에서 원활한 수소이온 전도성을 가진다. 즉, 수소이온의 이동을 위해, 연료극(anode)과 공기극(cathode)에 공급되는 기체는 수분을 함유하고 있

[†]Corresponding author : gugon@kier.re.kr

어야 한다. 전해질 막의 이온 전도성을 높이기 위해서는 막 내부에 수분의 양이 많을수록 유리함을 알 수 있다. 하지만 전극, 기체확산층(GDL) 및 분리판에 과도한 수분이 존재할 경우, 액상으로 응축된 수분이 연료의 원활한 이동을 방해하여, 성능저하의 원인이 될 수 있다. 보다 높은 성능과 내구성을 확보하기 위해서는 원활한 수분의 공급 및 배출, 즉 물 관리가 반드시 필요하다. 연료전지의 공기극에서 생성된 수분은 운전조건에 따라 전극촉매층 또는 기체확산층에서 액상의 물로 응축되어 이동할 수 있다. 기상과 액상이 동시에 존재하는 시스템에서 수분은 모세관 흐름, 증발 및 기체의 shear 등에 의해 이동할 수 있다. 전극 및 기체확산층이 적절히 설계되어있지 않을 경우 과도한 양의 수분 응축 및 이로 인한 성능저하 현상은 필연적으로 발생할 수 있는데, 특히 높은 전류밀도에서 운전할 경우 과도한 수분에 의한 성능저하가 발생할 가능성이 더욱 커진다. 즉, 증가한 액상의 물이 분리판의 채널방향으로 원활히 배출되지 않아 전극촉매층을 향한 산소분자의 확산을 방해하여, 셀 성능 저하가 발생하는 flooding 현상으로 나타난다²⁻⁷⁾.

일반적으로 100°C 이하에서 운전되는 고분자전해질연료전지는 항상 액상의 물이 존재하며, 이로 인해 운전 중 flooding에 의한 성능저하가 발생할 뿐만 아니라, 영하 온도조건에서 동결에 의한 성능저하 문제도 야기할 수 있다. 특히 자동차의 경우, 겨울철 필연적으로 영하의 운전조건을 경험하게 되므로, 동결에 의한 성능 저하 문제는 연료전지 자동차의 상용화를 위해 반드시 해결되어야 할 문제로 볼 수 있다⁸⁾.

최근 동결에 의한 고분자전해질연료전지의 성능저하와 물성변화에 대한 연구들이 진행되고 있는데, Mukundan과 그의 연구진들은 동결/해동 시 성능저하의 주요 원인을 막전극접합체의 전극촉매 탈리로 인한 셀 저항의 증가로 보고했으며, 또 cloth 재질의 기체확산층이 paper 재질의 기체확산층보다 동결조건에서 더 유리하다고 발표했다^{9,10)}. Kim과 Mench는 동결 조건에서 막전극접합체의 미세구조 및 수치해석에 대해 연구하였다. 그들은

단위전지나 스택평가 없이 막전극접합체 재료자체를 동결/해동하며 실험을 진행하였다¹¹⁻¹⁴⁾.

본 연구는 고분자전해질연료전지 시스템이 영하 조건에 노출될 경우, 셀 열화현상을 관찰하고, 내구성을 확보하기 위한 방법을 제시하고자 하였다. 특히 적절한 기체확산층의 선정이 셀 성능향상에 큰 영향을 미침을 확인하였으며, 내구성이 강한 기체확산층을 선정하고, 나아가 내구성 향상을 위한 최선의 방법을 제시하는데 그 목적이 있다.

2. 실험방법

동결/해동 조건에 적합한 최적의 기체확산층을 선정하기 위해 cloth, felt, paper 세 종류의 기체확산층을 선정한 뒤 -30°C ~ 70°C의 온도범위를 반복적으로 경험시켰다. 기체확산층에 관한 자세한 정보는 Table 1에 나타내었다. 동결/해동을 반복한 후 I-V 성능, cyclic voltammetry(CV), 내부저항 및 수소소투과도 변화 등을 확인하였다. 동결/해동 실험과정에 대한 내용은 Fig. 1에 나타내었다. 특수하게 고안된 온도조절 장치를 이용하여, 1.5°C min⁻¹의 속도로 온도를 변화시켰으며, 동결/해동 실험 전 70°C에서 10초 동안 퍼지과정을 거쳤다.

동결/해동 사이클을 진행하며, 셀의 성능 및 전기화학적 물성변화를 조사하였다. 전기화학적 반응 특성 및 활성금속의 표면적 변화를 확인하기 위해 CV 기법을 이용했으며, 전해질 막의 물리적 손상에 의한 기체의 섞임 여부를 확인하기 위해, 수소기체투과도를 측정하였다. CV는 70°C, 0.01V ~ 1.2V의 범위에서 50mV s⁻¹의 주사속도로 측정하

Table 1 Properties of gas diffusion layers

Diffusion media type	Carbon cloth type	Carbon felt type	Carbon paper type
Thickness [μm]	350	400	230
PTFE content [%]	5	5	5
Existence of MPL	Yes	Yes	Yes
Porosity [%]	80	84	80
Areal weight [g m^{-2}]	166	140	85

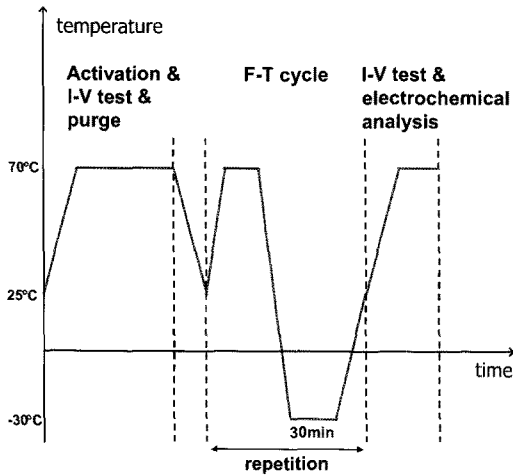


Fig. 1 Schematic of the single cell evaluation including the freeze/thaw cycle test.

였고, 셀의 저항성분 변화를 관찰하기 위해 ac-impedance 분석을 20mA cm^{-2} 와 400mA cm^{-2} 조건에서 측정하였다. 성능평가를 진행한 MEA에 대한 사후분석을 SEM을 통해 진행하였다. 기체확산층의 물리적 강도 측정을 위해 V-5 Model 150-E stiffness tester를 사용하여 휨 강도를 비교하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1 단위전지 성능변화

Fig. 2는 동결/해동조건에서 기체확산층에 따른 성능변화 정도를 보여준다. 50회의 동결/해동 사이클 실험 진행하였으며, 재현성 확인을 위해 동일한 조건으로 3회 반복 실험한 결과를 정리하였다. 그림에서는 평균값 및 편차를 비교해 볼 수 있다.

Fig. 2(a)에는 0.7V 그리고 (b)는 0.6V에서 전류밀도의 변화를 나타내었다. Carbon cloth를 사용한 경우, 첫 번째 사이클에서는 큰 성능저하가 일어나지 않았지만 횡수가 증가함에 따라 성능 저하가 점점 가속화됨을 보여주었다. 50 사이클 동결/해동 반복시 0.7V에서 572mA cm^{-2} 의 전류밀도가 385mA cm^{-2} 로 저하되었고, 0.6V에서는 $1,052\text{mA cm}^{-2}$ 값이 719mA cm^{-2} 로 감소하였다. Carbon felt를 적용

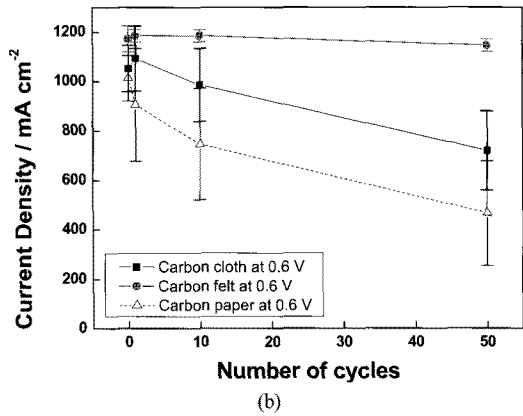
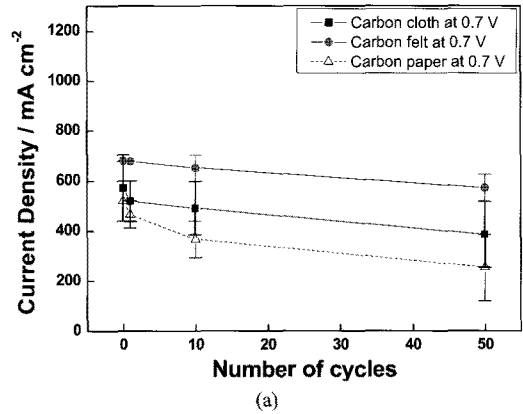


Fig. 2 The changes in current densities of various GDL applied MEAs with the number of freeze/thaw cycles: (a) cell voltage at 0.7V, (b) cell voltage at 0.6V.

한 경우는 동결/해동 사이클 50회 동안 0.7V에서는 약간의 성능 저하를 보이지만, 0.6V에서는 성능 저하가 거의 나타나지 않았다. Carbon paper를 사용한 단위전지의 성능저하는 다른 샘플들보다 심각하게 관찰되었는데, 첫 번째 사이클부터 전류밀도의 감소가 나타났으며, 50사이클 후 0.6V 조건에서 $1,012\text{mA cm}^{-2}$ 의 값이 466mA cm^{-2} 로 감소하여 약 54%의 성능저하를 보였다. 이는 기체확산층의 선택이 동결/해동 환경에서 연료전지의 내구성에 영향을 미친다는 사실을 알려준다. 본 연구조건에서는 felt 재질의 기체확산층을 사용하는 것이 유리함을 알 수 있다.

3.2 촉매활성면적 및 기체투과도 변화

기체확산층 재질에 따라 성능 저하 수준에 차이가 나는 원인에 대해 알아보기 위해 촉매활성면적 변화 및 막에 대한 기체 투과도 실험을 수행하였으며, Fig. 3에 나타내었다. 촉매활성면적은 고분자전해질연료전지의 성능을 결정하는 중요한 인자 중 하나로, CV 기법을 통해 확인할 수 있는데, 일반적으로 촉매활성면적이 클수록 좋은 성능을 나타낸다¹⁵⁾. Fig. 3(a)는 촉매의 전기화학적 활성면적 변화를 나타내며, 동결/해동 후 70°C에서 측정된 그래프이다. 초기상태 MEA의 전극 활성면적을 1로 normalization하여, 동결/해동 실험에 따른 변화 정도를 표시하였다. Felt 재질의 기체확산층을 사용

한 경우, 동결/해동 10 사이클 조건에서는 가장 낮은 수준의 변화를 보였다. 그러나 50 사이클 후에는 기체확산층 재질에 따른 활성면적 변화 정도가 매우 유사함을 확인할 수 있다. 이는 본 연구의 실험조건에서는 기체확산층의 종류가 전극촉매의 활성면적 변화에 특이한 영향을 주지는 않음을 나타낸다. 또한 Fig. 3(b)는 전해질 막에 대한 수소기체의 투과도 변화를 나타내는데, 50회 동결/해동 사이클을 경험한 후에도 변화가 크지 않음을 볼 수 있다. 이는 동결/해동 실험 자체가 전해질 막에 물리적인 손상을 발생시키지는 않았고, 또한 기체확산층의 재질이 전해질 막의 물리적 결합 정도에 유의할만한 영향을 주지는 않음을 나타낸다. 그러므로 기체확산층의 재질이 전극촉매 활성면적 및 기체투과도 변화에 직접적인 영향은 미치지 않음을 알 수 있다.

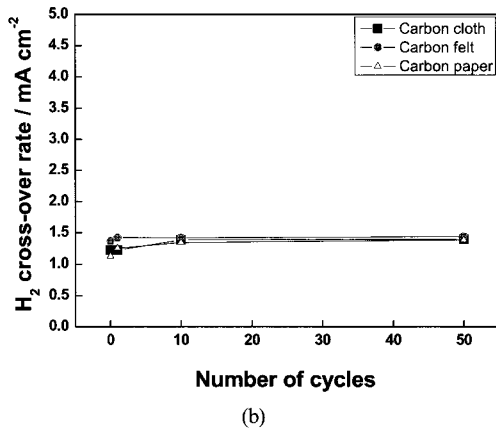
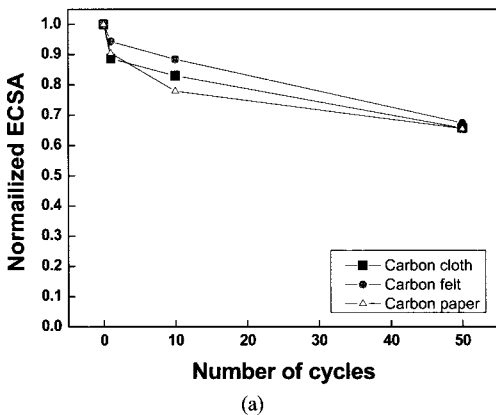


Fig. 3 The changes in electrochemical properties with the number of freeze/thaw cycles: (a) electrochemical surface area (ECSA) of active metal, (b) hydrogen cross-over rate.

3.3 저항변화

성능저하의 원인을 파악하기 위해, ac-impedance 기법을 통해 단위전지의 반응저항과 접촉저항의 변화를 살펴보았다. 접촉저항은 전해질 막, 전극층, 기체확산층 등 단위전지 구성품 전체의 접촉저항이 포함된 값을 나타내고, 반응저항은 전극층에서의 전기화학 반응뿐만 아니라 연료의 공급 및 반응 생성물의 배출 과정에 발생하는 저항을 포함하는 값이다.

온도 사이클 후 ac-impedance 기법으로 얻은 저항은 Fig. 4에 나타내었다. Fig. 4(a)는 20mA cm⁻²에서 저항 변화를 Fig. 4(b)는 400mA cm⁻²에서의 저항변화를 나타낸다. 접촉저항은 20mA cm⁻²와 400mA cm⁻²에서 모두 증가하는 결과를 보여주는데, 특히 carbon paper와 carbon cloth의 경우 접촉 저항 증가가 훨씬 더 크게 나타났다.

반응저항 성분은 동결/해동 50 사이클 후에도 크게 증가하지 않음을 확인할 수 있으며, 기체확산층의 종류에 따른 값의 차이 역시 크게 나타나지 않았다.

고분자전해질연료전지의 경우 일반적인 운전조건으로 장기운전시, 접촉저항은 일정수준을 유지

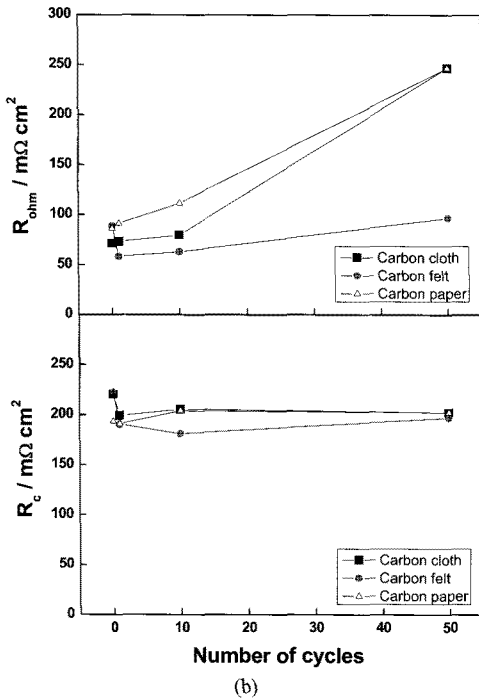
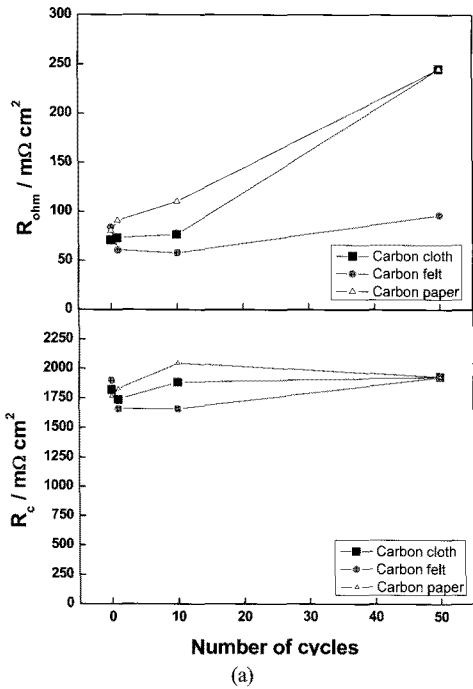


Fig. 4 Changes in contact resistances (R_{ohm}) and cathodic charge-transfer resistance (R_c) of freeze/thaw cycled cells measured by ac-impedance spectroscopy at the current of (a) 20mA cm⁻² and (b) 400mA cm⁻².

하거나 감소하고, 반응저항이 증가하는 현상을 보이는데, Fig. 4의 결과에서는 반대의 경향을 보이고 있다. 이는 본 연구의 50회 동결/해동 조건에서는 일반적인 장기운전시 발생하는 열화요인인 활성금속 비대화 및 용출, 탄소지지체 부식, 전해질 막 얇아짐 등에 의한 반응저항의 증가가 일어나기에 앞서, 전해질 막과 전극층 사이의 물리적 파손에 의한 접촉저항 증가가 연료전지 성능저하에 더 큰 영향을 미침을 알게 해 준다.

3.4 SEM 분석

Fig. 5는 동결/해동 50회 사이클 실험을 경험한 기체확산층의 표면에 대한 SEM사진이다. Fig. 5 (a)는 초기상태의 막전극접합체에 대한 사진이고, Fig. 5(b), (c), (d)는 서로 다른 종류의 기체확산층을 적용한 막전극접합체에 대한 표면 사진이다. (b)는 carbon cloth를 사용한 막전극접합체의 표면으로, 채널 아랫부분에서 촉매층 손상이 상대적으로 심하게 일어났음을 확인할 수 있다. 그러나 carbon felt를 사용한 (c)에서는 표면에 대한 심각한 파손은 찾아볼 수 없다. Carbon paper를 사용한 (d)는 carbon cloth 경우와 마찬가지로 채널 아래에서 더욱 심각한 촉매층 손상을 보인다. 즉, 분리

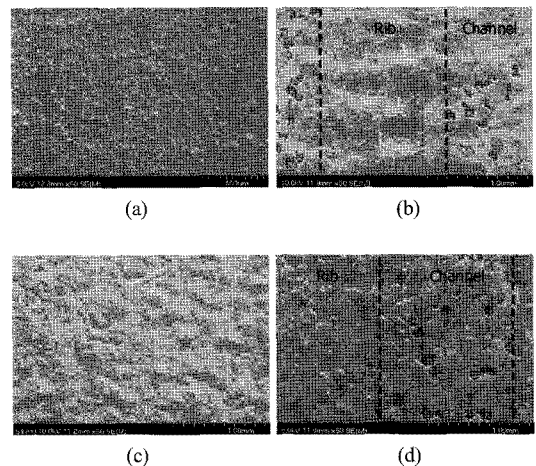


Fig. 5 SEM images of 50 time freeze/thaw cycled MEAs with various kinds of GDLs. (a) fresh MEA, (b) carbon cloth type GDL, (c) carbon felt type GDL, (d) carbon paper type GDL.

판이 직접적인 지지를 할 수 없는 채널 아래에는 기체확산층 자체 만의 지지력이 상대적으로 약하므로, 보다 심각한 촉매층 손상이 일어나는 것으로 생각할 수 있고, 동결/해동 조건에서는 이로 인해 연료전지의 성능 및 내구성이 영향 받는다는 것을 확인하였다.

3.5 휨 강도 분석 및 열화과정 제시

이상의 결과를 통해서 동결/해동 조건에서는 막 전극접합체에 대한 물리적인 지지력이 연료전지 성능 및 내구성에 큰 영향을 미침을 예상할 수 있었다. 분리판의 rib에 의해 지지를 받는 부분은 전극층의 손상이 적으며, rib에 의한 직접적인 지지를 받지 못하는 채널 아래의 존재하는 전극층은 상대적으로 보다 심각한 파손을 보임을 관찰할 수 있었다. 이러한 배경에서 기체확산층의 종류에 따른 동결/해동 내구성의 차이를 재료 자체의 물리적 강성과 연계시키고자 하였으며, 이 지지력의 차이를 확인하기 위해 각 재료의 휨 강도를 비교해 보았다. Table 2에 측정값을 나타내었는데, 동결/해동 내구성이 가장 우수했던 felt의 경우 다른 기체확산층과 비교해서 월등히 높은 휨 강도를 보임을 알 수 있다.

기체확산층의 휨 강도 및 내구성 평가 결과를 통해서, 동결/해동 반복조건에서 고분자전해질연료전지의 주요 열화과정을 기체확산층의 종류에 따라 제시하고자 하였다. Nitta 등은 기체확산층이 rib 아래부분은 얇아지는 반면, 채널아래에서는 채널 내부로 솟아오르며, 이는 기체확산층 자체의 물리적 특성에 따라 그 정도가 다를 수 있다고 발표하였다¹⁶⁾. 또한, Budinski 등은 채널아래는 고분자전해질막이 수화로 인한 팽창이 일어나며, 이로인

해 촉매층 및 계면에 대한 손상이 유발된다고 연구하였다¹⁷⁾.

이러한 연구와 결과를 바탕으로 수화/건조 및 동결/해동시 기체확산층 종류에 따른 막전극접합체의 변화를 도식화 하여 Fig. 6에 나타내었다. Carbon cloth는 매우 휘기 쉬운 특성을 가지고 있지만, carbon felt와 paper는 상대적으로 휨이 적은 재질이다. 하지만 carbon paper의 경우는, 얇은 두께로 인해, 보다 쉽게 깨어짐 현상이 발생할 수 있다. 그에 비해 carbon felt는 보다 두껍고 휨에 더 큰 저항성을 가진다. Fig. 6(a)는 실험 전 단위전지의 단면을 나타낸다. Fig. 6(b), (c), (d)는 carbon cloth, felt, paper를 적용하여 동결/해동 실험을 진행하는 경우에 대한 개념도이다. Carbon cloth를 사용하게 될 경우는 기체확산층 자체가 매우 유연하고, 질긴 특성을 가지므로, 막전극접합체의 형상 변화에 민감하게 반응하여, 두 재료사이에 계면에 틈이 생길 가능성이 상대적으로 적을 것으로 예상할 수 있다. 그 결과 셀 내에 존재하는 수분 역시 비교적 고르게 분포할 것임을 예상할 수 있다. 하지만 반복적인 팽창/수축이 진행될 경우에는 막과 전극층 사이의 계면 손상을 예측할 수 있다. 기체확산층 자체가 구부러지기 쉽고 휨 강도도 약하므로 막전극접합체 팽창이 유동적이고 고른 물분포를 가질 수 있다. 이에 반해 휨 강도가 가장 큰 carbon felt의 경우는 수분조건에 따른 막전극접합체의 물리적 형상변화를 최소화할 수 있으며, 이로 인해 전극층의 파손 정도를 최소화할 수 있을 것으로 예측할 수 있다. 마지막으로 정확히 정량화할 수는 없지만, 휨 강도가 충분히 강하지도 않고, 충분히 유연하지도 않은 carbon paper의 경우는 수분조건에 따라 막이 물리적으로 팽창하고자 할 때, 충분히 지지하거나 형상에 따라 변화하지 못할 것이다. 그림에 나타난 바와 같이 기체확산층 자체의 파손 및 기체확산층과 막전극접합체 사이의 틈새 형성 등이 예상되고, 이러한 공간은 응축된 수분의 응집 및 동결시 부피 팽창에 의한 연료전지의 파손을 가속화 시킬 것을 예상할 수 있다.

Table 2 Bending stiffness of gas diffusion layers

Diffusion media type	Bending stiffness [g cm]
Carbon cloth	0.422
Carbon felt	78.4
Carbon paper	5.4

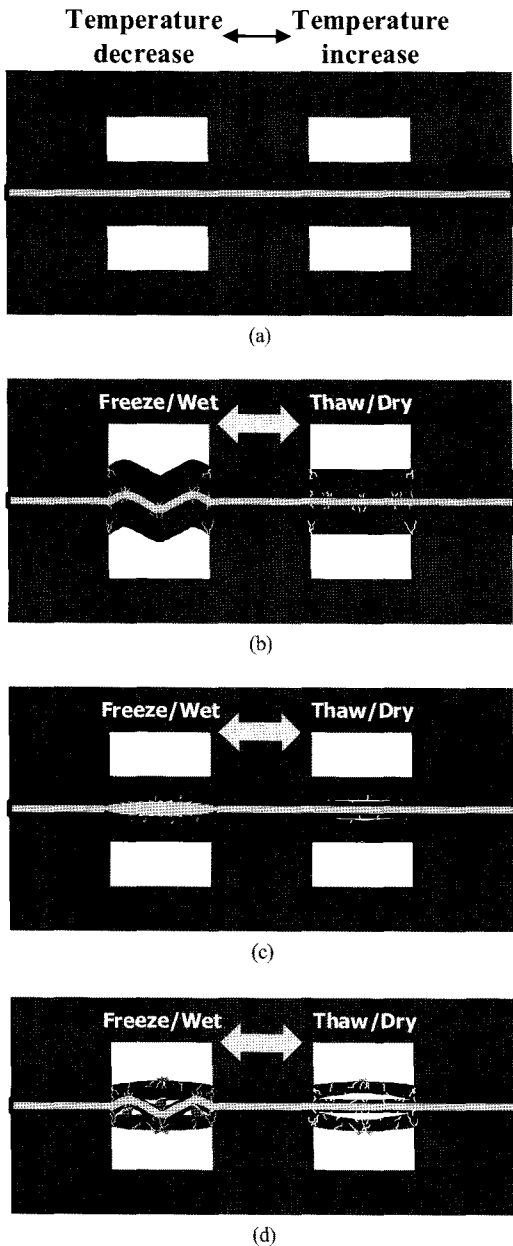


Fig. 6 Proposed degradation mechanism of freeze/thaw cycling condition for the different kinds of GDLs (a) as compressed cell, (b) carbon cloth type GDL, (c) carbon felt type GDL, (d) carbon paper type GDL.

4. 결 론

고분자 전해질 연료전지가 영하 조건에 노출될 때

내구성을 확보하기 위해 기체확산층이 가져야할 요건을 제시하기 위해, 세 가지 재질의 기체확산층을 선정하여 $-30^{\circ}\text{C} \sim 70^{\circ}\text{C}$ 조건을 반복 경험시키며, 성능 및 내구성을 확인하였다. 전극측매 활성면적 변화, 수소 투과도 변화, 저항 성분 변화 등의 분석을 통해서 동결/해동 조건에서 성능저하의 원인을 찾고자 하였다. 동결/해동 조건에서 성능저하의 주요 원인은 전해질 막과 전극 계면의 물리적 파손에 의한 저항성분 증가에 있음을 밝혀냈으며, 나아가 기체확산층의 물리적 지지력과 내구성 사이의 연관성을 찾을 수 있었다. 힘 강도 값이 가장 큰 carbon felt를 사용한 경우, carbon cloth나 paper를 사용시에 비해 월등한 동결/해동 조건 내구성을 나타내었다. 이러한 결과를 기초로 각 기체확산층 재질에 따라 반복적인 수화/건조 및 동결/해동 환경에서 연료전지가 열화되는 과정을 제시하였다. 또한 동결/해동 조건에서 내구성을 증대시키기 위해 기체확산층이 가져야할 조건을 제시하였으며, 본 연구의 범위에서는 felt 형태의 기체확산층이 가장 우수한 재료로 제시되었다.

후 기

본 연구는 지식경제부 신재생에너지프로젝트형 사업(2004-N-FC12-P-01) 및 한국에너지기술연구원 지원 하에 수행되었습니다.

참 고 문 헌

- 1) www1.eere.energy.gov/hydrogenandfuelcells/pdf_s/fc_report_congress_feb2003.pdf.
- 2) F. N. Büchi, A. B. Geiger, R. P. Neto, "Dependence of current distribution on water management in PEFC of technical size", J. Power Sources, Vol. 145, 2005, p. 62.
- 3) U. Pasaogullari, C. Y. Wang, "Two-phase transport and the role of micro-porous layer in polymer electrolyte fuel cells", Chim. Acta, Vol. 49, 2004, p. 4359.

- 4) Y. S. Kim, L. Dong, M. A. Hickner, T. E. Glass, V. Webb, J. E. McGrath, "State of water in disulfonated poly(arylene ether sulfone) copolymer and a perfluorosulfonic acid copolymer (Nafion) and its effect on physical and electrochemical properties", *Macromolecules*, Vol. 36, 2003, p. 6281.
- 5) M. Saito, K. Hayamizu, T. Okada, "Temperature dependence of inomer and water transport in perfluorinated ionmer membranes for fuel cells", *J. Phys. Chem.* Vol. 109, 2005, p. 3112.
- 6) M. Oszcipok, D. Riemann, U. Kronenwett, M. Kreideweis, M. Zedda, "Statistic analysis of operational influences on the cold start behavior of PEM fuel cells", *J. Power Source*, Vol. 145, 2005, p. 407.
- 7) E. J. Ahn, Y. G. Yoon, G. G. Park, J. S. Park, W. Y. Lee, H. S. Han, C. S. Kim, "Property changes of gas diffusion layer in a PEFC by compression", *Trans. of the Korean Society of Hydrogen Energy*, Vol. 17, 2006, p. 347.
- 8) G. G. Park, Y. J. Sohn, T. H. Yang, Y. G. Yoon, C. S. Kim, "Effect of PTFE contents in the gas diffusion media on the performance of PEMFC", *J. Power Source*, Vol. 131, 2004, p. 182.
- 9) R. Mukundan, Y. S. Kim, F. Garzon, B. Pivovar, "Freeze/thaw effects in PEM fuel cells", *ECS Trans.*, Vol. 1, 2006, p. 140.
- 10) R. Mukundan, Y. S. Kim, T. Tockward, J. R. Davey, B. Pivovar, D. S. Hussey, D. L. Jacobson, M. Arif, R. Borup, "Performance of PEM fuel cells at sub-zero temperature", *ECS trans.*, Vol. 11, 2007, p. 243.
- 11) S. He, M. M. Mench, "One-dimensional transient model for frost heave in polymer electrolyte fuel cells", *J. Electrochem. Soc.*, Vol. 153, 2006, p. A1724.
- 12) S. He, S. H. Kim, M. M. Mench, "1D transient model for frost heave in polymer electrolyte fuel cells II. Parametric study", *J. Electrochem. Soc.*, Vol. 154, 2007, p. B1024.
- 13) S. Kim, M. M. Mench, "Physical degradation of membrane electrode assemblies undergoing freeze/thaw cycling; Micro-strure effects", *J. Power Source*, Vol. 174, 2007, p. 206.
- 14) S. He, J. H. Lee, M. M. Mench, "1D transient model for frost heave in polymer electrolyte fuel cells III. Heat transfer, microporous, and cycling effects", *J. Electrochem. Soc.*, Vol. 154, 2007, p. B1227.
- 15) S. Ge, C. Y. Wang, "Cyclic voltametry study of ice formation in the PEFC catalyst layer during cold start", *J. Electrochem. Soc.* Vol. 154, 2007, p. B1399.
- 16) I. Nitta, "Inhomogeneous compression of PEMFC gas diffusion layers", *TKK Dissertations* 106, 2008.
- 17) M. Budinski, C. Gittleman, Y. Lai, D. Miller, K. O'Leary, "Mechanical and chemical degradation in automotive fuel cell membranes", *International workshop on degradation issue of fuel cells*, 2007.