HWAHAK KONGHAK Vol. 33, No. 6, December, 1995, pp. 780-786
(Journal of the Korean Institute of Chemical Engineers)

용융탄산염연료전지의 anode반응에서 물질전달의 영향

박권필*† · 전해수

*순천대학교 화학공학과
고려대학교 화학공학과
(1995년 5월 4일 접수, 1995년 7월 22일 채택)

Mass Transfer Effects on the Anode Reaction in MCFC

Gwun Pil Park*† and Hai Soo Chun

**Dept. of Chem. Eng., Sunchon University, Sunchon 540-742, Korea*
Dept. of Chem. Eng., Korea University, Seoul 136-701, Korea
(Received 4 May 1995; accepted 22 July 1995)

요 약

용융탄산염연료전지에서 anode의 수소산화 반응에 미치는 물질전달의 영향을 규명하기 위해, 정상상태 분극실험으로 반응물과 생성물의 확산영향을 보았고, Ni 및 Ni-Al anode의 금속투과 수소확산계수를 정전류기법(galvanostatic method)으로, 그리고 이들의 교환전류밀도를 전이상태 분극실험으로 구하였다. 생성물과 반응물의 확산이 anode의 반응속도에 비슷한 정도로 영향을 주었으며, 알루미늄이 니켈에 첨가됨으로 인해 금속투과 수소의 확산계수와 교환전류밀도가 감소됨을 확인하였고 그리고 수소 확산속도 감소에 따라 교환전류밀도도 감소됨을 알 수 있었다.

Abstract—The effect of mass transfer on the hydrogen oxidation reaction at molten carbonate fuel cell (MCFC) anode were studied. The effects of reactant diffusion and of products diffusion on the rate of the anode raction were studied with steady-state polarization experiment. The exchange current densities of Ni-anode, Ni-Al anode were obtained by a transient method and diffusivities of hydrogen through these anodes were measured by galvanostatic method in MCFC anode half cell. The effect of products diffusion on the rate of anode reaction was same that of reactant diffusion. It was found that the diffusivities of hydrogen and the exchange current densities of the anodes were decreased by adding aluminum into the nickel anode. It was seemed that decrease of exchange current densitiy resulted from decrease of hydrogen diffusivity through the anode.

1. 서 론

용융탄산염연료전지(Molten Carbonate Fuel Cell, MCFC)는 650℃의 고온에서 작동되므로 낮은 분극을 갖고, 또 폐열을 이용할 수 있을 뿐만 아니라 연료의 내부개질이 가능하여 인산형연료전지 보다 효율이 높다(내부개질형 MCFC 효율 : 약 60%). 그리고 전극반응의 낮은 분극 때문에 귀금속 촉매가 필요없으며, CO가스도 anode에 촉매독을 주지 않고 전기화학반응에 이용되므로 개질공정에서 CO 제거장치가 따로 필요하지 않아 인산형연료전지보다 경제적이다.

그러나 MCFC는 고온에서 부식성이 강한 탄산염전

해질을 사용하여 작동되기 때문에 장시간 운전하기 위해서는 스택 및 단위전지의 각 요소마다 기술적으로 해결해야할 점들이 많다. 특히 anode에서는 소결(sintering) 및 전이(dislocation) 등에 의해 전극의 두께가 수축하는 크립(creep)이 문제가 되고 있다. Anode의 크립은 요소간의 접촉저항을 증가시키고 연료가스 누수의 원인이 되는 등 전지의 성능을 감소시키므로 이를 방지하기 위해 처음에는 다공성 순수 Ni anode에 Cr을 약 10% 첨가하였으나 이 anode도 MCFC anode 조업조건에서 100 psi의 압력을 100시간 동안 받으면 크립이 약 10% 발생하여 장시간 운전하기에 만족스럽지 못하므로 다른 방법들이 연구되고 있다[1, 2]. 근래에 Al 2-3%를 Ni anode에 첨가한 Ni-Al anode개발을 많이 시도하는데[3, 4], 같은 조건에서 크립은 5% 이하인 것으로 발표되고 있다.

MCFC anode로 순수 Ni이 사용된 이유 중 하나가 용융탄산염 내 수소산화반응에서 Ni의 교환전류밀도가 다른 금속에 비해 훨씬 크기 때문인데, Ni의 교환전류밀도가 큰 이유는 금속 내를 통과하는 수소의 확산계수가 다른 금속보다 크기 때문이라고 알려져 있다[5]. 그러면 순수 Ni에 Al을 첨가하면 수소확산계수는 어떻게 변하고 그 영향은 교환전류밀도에 어떤 변화를 주는지, 그리고 MCFC anode의 전극반응은 물질전달과 전극표면반응 모두 전체반응속도에 영향을 주는 혼합율속반응(mixed controlling reaction)이라고 알려져 있으나[6, 7], 물질확산 중 생성물의 확산과 반응물의 확산 어느 것이 더 영향을 주는지 본 연구에서는 anode의 가스공급방법을 변화시키면서 생성물과 반응물의 확산 각각이 anode의 반응속도에 미치는 영향을 살펴보고자 하였다.

2. 실 험

2-1. 반쪽전지

본 실험에 사용한 반쪽전지는 Fig. 1과 같다. 기준전극(reference electrode)은 알루미나관 내에 금선을 삽입하고 관 내부로 67%CO_2-33%O_2 혼합가스가 흐르도록 하였으며 알루미나관 한쪽 끝의 중심에 약 0.35 mm의 구멍을 뚫어 전해질이 작업전극 부분과 연결되도록 하였다[7]. 상대전극(counter electrode)은 작업전극을 둘러싼 알루미나관에 부착시킨 금박(gold flag)을 사용하였고, 전극과 전선(은선)은 스팟용접에 의해 접착하였다. 전해질은 Li_2CO_3와 K_2CO_3를 62/38 몰비로 혼합한 것으로 250 ml 알루미나 도가니에 넣었으며 조성이 40%H_2-40%CO_2-20%H_2O인 가스 급송은 전해질까지 잠긴 알루미나관(bubbler)을 통해 이루어졌다. 전기로 내부

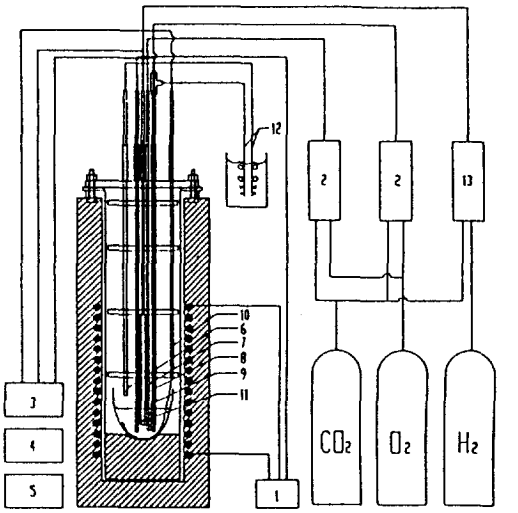

Fig. 1. Schematic diagram of anode half-cell system.

1. Temperature controller
2. Gas mixer
3. Potentiostat/ Galvanostat
4. Computer
5. Recorder/Oscilloscope
6. Thermocouple
7. Counter electrode
8. Working electrode
9. Bubbler
10. Gas outlet
11. Reference electrode
12. Bubble counter
13. Humidifier

에 4개의 배플을 고정시켜 측정부위의 온도를 일정하게 유지시켰으며(650±1℃) 온도는 전해질의 중심에 위치한 열전대(K type)가 연결된 온도조절기로 조절하였다.

2-2. 작업전극(working electrode)

본 실험에서 사용한 전극재질은 순수Ni판 전극(Material Research Co., 99.99% pure), Ni-Al 금속간 화합물(intermetalic compound)과 Ni-Al합금(Ni-Al alloy)전극 등이었다. Ni-Al 금속간 화합물전극은 순수Ni 전극 표면에 pack cementation방법으로 Al을 증착시켜 Ni_3Al과 같은 금속간 화합물이 형성되게 한 것이다[8]. Pack cementation은 Al 25.0 wt%, NH_4Cl 5.0% 그리고 알루미나입자(particle size : 6-9 μ)가 혼합된 pack안에 순수 Ni판을 넣어 650℃에서 Al(2.5 wt%)을 증착시켰다. 상세한 내용은 문헌 8에 수록되었다. 그리고 Ni-Al 합금 전극제조는 Ni입자와 Al입자(4.75 wt%)를 혼합하여 유도로(Ace Vacuum Arc Melting Furnace, AVAR 3030-6)에 넣고 5×10^{-6} torr진공, 3000℃ 온도에서 용융후 서냉하는 과정을 4회 반복함으로서 Al이 균일하게 분산되도록 하였다. 각 전극은 알루미나입자(0.1 μm)와 다이아몬드 페이스트로 최종 연마하여 거울상이 나타

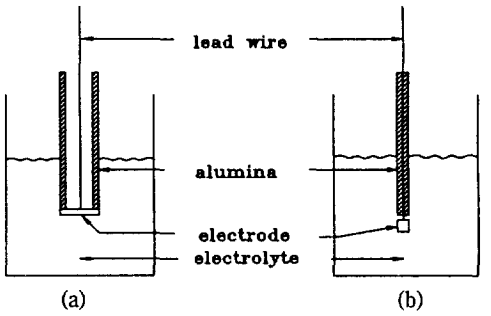

Fig. 2. Types of working electrodes used in this experiment.

나게 한 후 증류수에서 세척하고, 건조 후 사용하였다.

본 실험에서 사용한 작업전극의 형태는 Fig. 2에 나타낸 것처럼 두 가지 종류인데 a)형태의 전극은 정상상태분극실험과 수소가스확산계수 측정실험에 사용되었고 b)형태의 전극은 전이상태 측정실험에 사용하였다. a)형태의 전극은 가스급송을 알루미나관 내부와 알루미나관 밖에서 분리하여 급송할 수 있게 한 것이다. a)형태 전극에서 금속전극과 알루미나관의 접착은 반응접착(reaction bonding)을 이용하였고[9], 이 때 조작은 전극과 알루미나관 사이에 구리관을 끼어 넣고 950℃에서 100 psi로 12시간 가압하여 밀착하였다.

2-3. 정상상태 및 전이상태 분극실험방법

일정한 과전위상태에서 전류응답은 물질전달의 영향 때문에 시간에 따라 감소하다 일정한 값에 도달하는데 본 실험에서는 20분 정도 후에 정상상태에 도달하였다. Ni 금속의 산화 전위는 −950 mV이고, −1900--2200 mV 범위에서는 CO_3^{-2}와 CO_2의 환원에 의한 탄화가 일어나기 때문에 이들 전위범위를 벗어나 −980--1150 mV전위에서 과전위를 변화시키면서 정상상태분극곡선(steady state polarization curve)을 얻었다. 개회로전위(open circuit potential)에 도달한 후 다음 단계의 실험을 시작하였는데, 개회로전위에 도달하는 시간은 약 20분이었다. 물질전달이 전극반응에 미치는 영향을 측정하지 위해 Fig. 2의 a)형 작업전극을 이용해 가스를 분리급송하여 개회로전위에 도달한 후 일부 가스급송을 중단하고 일정한 과전위하에 전류응답변화를 보는 실험(no bubbling test)도 수행하였다[6].

전이상태분극실험은 개회로 전위를 유지하다 전기로의 열선과 온도조절기에 흐르는 교류가 전류응답에 주는 영향을 제거하기 위해 전기로와 온도조절기의 전원을 차단하고 순간적으로 일정한 과전위를 작업전극에 부과하여 짧은 시간 동안(0.3 sec)에 변화하는 전류응답을 측정하였다. Potentiostat(EG & G model 273 Princeton Applied Research)로 일정한 과전위의 전위스텝(potential step)을 가하고 0.3 msec의 간격으로 1000개의 전류응답 데이터를 받았는데 이 시간은 매우 짧은 시간이므로 열선의 전원차단에 의한 온도변화는 거의 없었다.

2-4. 수소의 확산계수 측정 방법

앞 절에서 설명된 MCFC 반쪽전지장치(650℃)에서 Holleck & Wick[10]의 정전류법(galvanostatic method)으로 전극을 통과하는 수소의 확산계수를 측정하였다. Fig. 2-a)형태의 작업전극을 탄산염전해질에 넣고 진공펌프(Welch Scientific Co. 10^{-3} mmHg)로 전극안의 공기를 제거한 후 1 atm의 수소를 전극내부에 유입하고, 전해질 접촉전극면 쪽에는 H_2O와 CO_2가스를 공급하였다. 650℃에서 개회로전위에 도달한 후 galvanostat(EG & G model 273)로 일정한 전류(0.1 mA)를 유지하면서 작업전극의 전위가 일정한 값에 도달할 때(약 250초)까지 그 변화를 측정하였다.

3. 결과 및 고찰

3-1. 전해질 내 물질전달의 영향

수소(40 ml/min)와 이산화탄소(40 ml/min)가 증발기(60℃)를 거치는 동안, 증발기의 온도에서 수증기가 포화되었다고 가정하고, Nernst식에 의해 개회로 전위를 계산하면 −1070 mV인데 비해 실제측정값은 −1050 mV로서 약간 차이가 있었다. 이 정도의 차이는 다른 실험[11, 12]에서도 나타났지만 그 원인으로 생각되는 점들은, 수증기의 포화가 불완전하였거나, 수성가스 전이반응(water gas shift reaction)이 평형에 미도달하였거나 또는 기준전극과 작업전극부분 탄산염이온 농도의 불균일 등이다.

MCFC anode의 반쪽전지에서 가스급송관을 통해 $H_2/CO_2/H_2O$ 가스를 계속 급송하였을 때의 정상상태 분극곡선과 이들 가스를 급송하다 중단한 후 측정한 정상상태 분극곡선의 차이로부터 Ang과 Sammells는 물질전달이 anode의 수소산화 반응에 크게 영향이 있음을 지적하였다[6]. 본 실험에서는 반응물인 H_2와 생성물인 CO_2/H_2O을 분리하여 급송함으로서 반응물과 생성물 각각의 물질전달이 반응에 미치는 영향을 보고자 하였다.

생성물인 H_2O/CO_2의 물질전달영향을 알아보기 위해 H_2가스는 Fig. 2-a)형태의 순수 Ni작업전극 내부관에 계속 유입하고 H_2O/CO_2는 가스급송관으로 급송하다 중단한 후 전류를 측정한 결과 H_2O/CO_2의 공급을 계

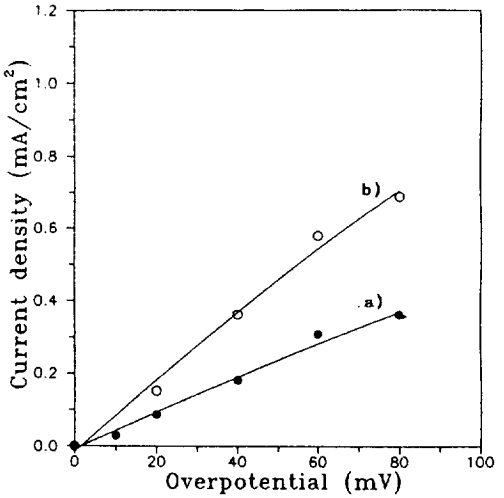

Fig. 3. Steady-state polarization curves of pure nickel anode at 650°C with gas condition.

a) H_2 gas flowing to working electrode(w.e.) and CO_2/H_2O gas flowing through bubbler

b) H_2 gas flowing to w.e. and Ar gas flowing through bubbler

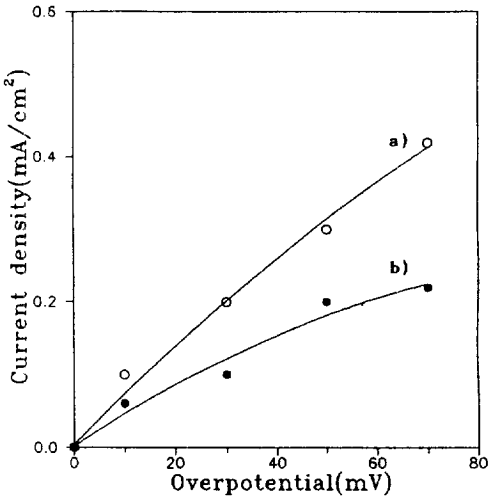

Fig. 4. Steady-state polarization curves of pure nickel anode at 650°C with gas condition.

a) $H_2/CO_2/H_2O$ gas flowing through bubbler and H_2 flowing to w.e.

b) $H_2/CO_2/H_2O$ gas flowing through bubbler and no flowing H_2 to w.e.

속했을 때와 급송중단 후 측정했을 때 큰 차이가 없었다. 이것은 전극면에 H_2O/CO_2 가스가 정체되어 있기 때문

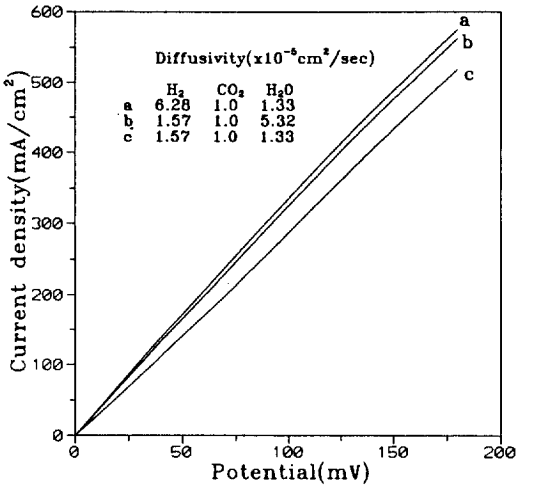

Fig. 5. Effect of gas diffusivities on porous anode performance simulated by agglomerate model.

이라고 생각된다. 이를 확인하기 위해 H_2O/CO_2가스대신 Ar 가스를 급송하면 Fig. 3에 나타낸 것처럼 전류값이 H_2O/CO_2를 계속 급송한 경우보다 많이 증가함을 보였다.

Fig. 4에서는 가스급송관을 통해 $H_2/CO_2/H_2O$ 가스를 계속 급송하고 작업전극 내부관을 통해 H_2를 계속 급송한 경우 곡선 a)와 급송하다 중단한 경우 곡선 b)의 분극곡선을 나타낸 것이다. 그림에서 보듯이 작업전극 내부관에서 H_2 급송이 계속 있을 때가 가스급송이 중단됐을 때보다 같은 전위에서 큰 전류값이 나타나 Ni 금속 투과 수소가 용융탄산염 전해질의 수소산화 반응에서 전류밀도를 높이는 한 원인이라고 밝힌 Uchida[5]의 결과와 일치함을 보인다. 온도 650℃의 용융탄산염 전해질(Li/K, 62/38) 내에서 수소의 확산계수는 1.69×10^{-5} cm²/sec[13]이고, 650℃ Ni의 금속통과 수소확산계수는 1.75×10^{-5} cm²/sec[14]이므로 수소공급이 전해질과 Ni전극을 통해 비슷하게 이루어짐을 알 수 있다. Fig. 3과 4를 비교하면 반응물인 수소와 생성물인 H_2O/CO_2의 물질전달 모두 anode의 전극반응에 비슷하게 영향을 주고 있음을 볼 수 있다.

그리고 다공성 anode의 성능을 모사한 agglomerate model[15]을 이용하여 anode의 성능에 물질전달이 미치는 영향을 모사한 것을 Fig. 5에 나타냈다. Ang[6]의 반응기구를 따르고, kinetics는 Butler-Volmer식으로 표현되며, 금속상 내에서 IR drop은 없고, 정온정압 조건에서 모든 물성치는 일정하다는 가정하에 agglomerate model을 적용하였다. 곡선 a)와 b)는 다른 조건들(교환전류밀도 : 40 mA/cm², 40%H_2-40%CO_2-20%H_2O,

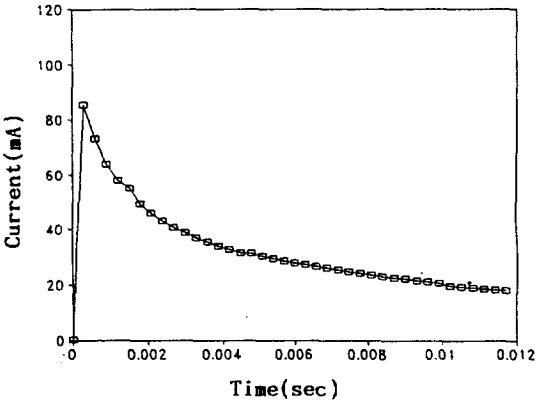

Fig. 6. Variation of current with time at a nickel anode.

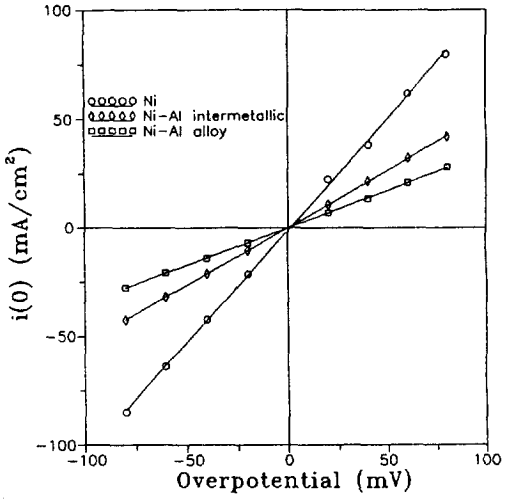

Fig. 7. Activation polarization curves from i(0) values extrapolated on $t^{1/2}$ space at various anode.

microporosity : 0.2, 650℃)은 곡선 c)와 모두 동일하고 수소와 물의 확산계수가 곡선 c)의 값의 4배인 조건에서 성능을 모사한 것이다. 곡선 a), b) 모두 비슷하게 성능이 증가함을 보여 반응물과 생성물의 확산이 비슷한 정도로 anode반응에 영향을 주고 있음을 여기서도 보이고 있다.

3-2. 교환전류밀도

수소 40%, 이산화탄소 40% 그리고 수증기 20%의 가스조성을 갖는 반쪽전지에서 Ni작업전극에 40 mV과 전위를 step으로 가하였을 때 나타난 전류응답을 0.3 msec간격으로 측정한 결과를 Fig. 6에 나타냈다. 이 그림을 보면 시간에 따라 전류가 감소하여 거의 한계전

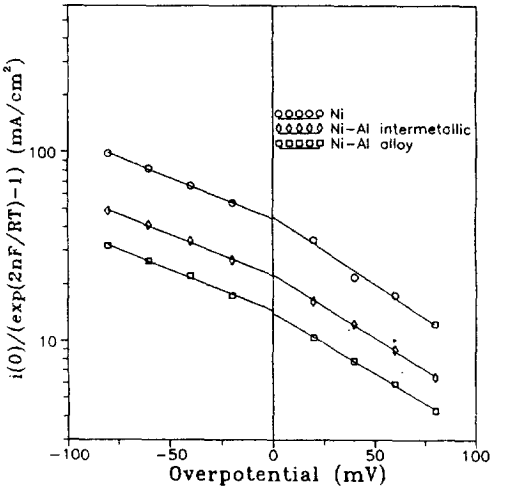

Fig. 8. Allen-Hickling plot from i(0) values extrapolated on $t^{1/2}$ space at various anodes.

Table 1. Transfer coefficients, exchange current densities and H_2 diffusivities for various anodes

Anode	α_c	i_o(mA/cm²)	D(cm²/sec)
Pure Ni	1.26	40	4.5×10^{-5}
Ni-Al intermetallic(Al 2.5 wt%)	1.19	24	2.6×10^{-5}
Ni-Al alloy (Al 4.75 wt%)	1.22	13	1.1×10^{-5}

류에 이르게 되는데 이것은 표면반응속도에 비해 물질전달속도가 느리기 때문에 나타나는 일반적인 현상이다. 물질전달속도를 배제시킨 반응속도에 의한 전류 즉 교환전류밀도는 시간이 0일 때의 전류값 i(0)이다. 이 그림에서 보듯이 i(0)값은 전기이중층의 영향이 제거된 0.3-0.5 msec사이의 데이터를 외삽하여 얻을 수 있다[7]. 그러나 전류는 $t^{1/2}$에 비례하므로[16] i vs $t^{1/2}$ 플롯에서 외삽하여 i(0)를 얻는 것이 더 정확하기 때문에 이 방법으로 구한 i(0)값을 Fig. 7에 나타냈다. 이 그림에서 보는 바와 같이 Al이 Ni에 첨가됨에 따라 같은 전위에서 전류가 감소함을 보인다.

수소산화반응이 Butler-Volmer식을 따른다고 하고 이 식을 Allen-Hickling 도시를 위한 형태로 변형하면 다음과 같다.

$$\ln\frac{i(0)}{\exp[(\alpha_A+\alpha_C)\eta F/RT]}=\ln i(0)-\frac{\alpha_C\eta F}{RT} \qquad (1)$$

(1)식의 좌변과 과전위 η를 도시한 Allen-Hickling 도시가 Fig. 8인데 절편으로부터 교환전류밀도를, 기울

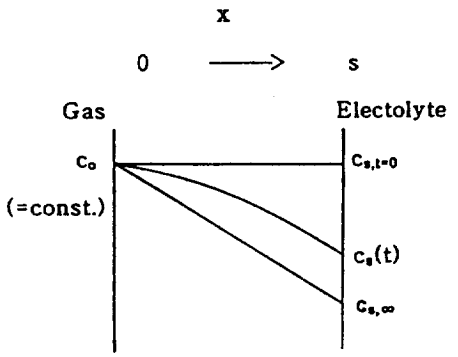

Fig. 9. Variation of H_2 concentration with time at constant current.

기로부터 cathode의 전달계수 α_c를 구하였다. Anode전류방향과 cathode전류방향의 기울기가 서로 다른데 이것은 대부분의 potentiostat의 느린 응답 때문에 발생한 것이라고 생각되고 있다[5]. 각 전극에 대해 구한 교환전류밀도와 α_c가 Table 1에 있다. 이 표에서 보듯이 전달계수 α_c는 1.19-1.26으로 그 값의 변화가 거의 없고, 교환전류밀도는 Al이 첨가됨으로 인해 40에서 13 mA/cm^{2}까지 감소함을 나타내 크립을 방지하기 위해 첨가되는 Al이 anode의 수소산화반응속도를 크게 감소시킴을 알 수 있다.

3-3. 금속전극 내 H_2확산

Fig. 9에 한쪽면은 수소와 접촉하고 한쪽면은 전해질과 접촉한 전극이 일정한 전류가 흐름에 따라 수소의 농도가 어떻게 변하는가를 도시하였다. 수소와 접촉하고 있는 전극면의 수소농도는 일정한 농도 C_o를 유지하고, 전해질과 접촉하고 있는 전극의 수소농도 $C_o(t)$는 정상상태의 값 $C_{s,\infty}$에 접근하고 있다. 금속내부를 수소가 확산해 이동할 때도 일반적으로 유체의 확산에 적용되는 Fick의 확산법칙을 적용할 수 있다. Nernst 식과 경험식에 의해 Fick 식의 농도항을 과전위항으로 표시하고 미분방정식을 풀면 아래와 같은 식이 된다[10].

$$\frac{\eta_\infty-\eta(t)}{\eta_\infty-\eta(0)} \cong \frac{8}{\pi}\exp\left(-D\frac{\pi^2 t}{4s^2}\right) \qquad (2)$$

좌변에 자연대수를 취해 시간에 대해 도시하면 $t \geq 0.12\ s^2/D$일 때 직선이 얻어지고, 이 기울기로부터 확산계수를 얻을 수 있다.

전류가 흐르지 않은 상태에서 1 atm의 수소로 포화된 순수 Ni 전극에 일정한 전류 0.1 mA를 흐르게 한 다음 시간에 따른 과전위(η) 변화를 측정해 Fig. 10-a)와 같이

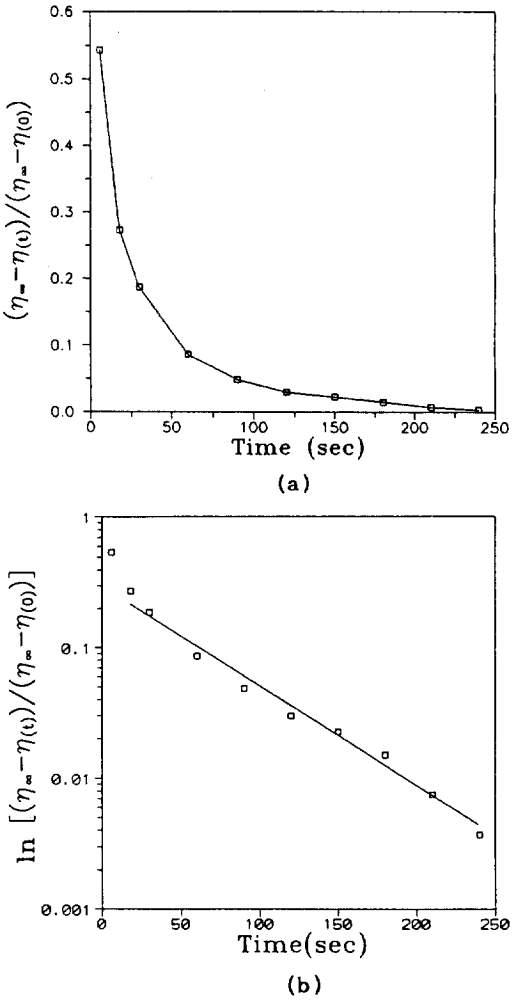

Fig. 10. Potential variation of pure nickel anode with time at constant current.
a) time vs $(\eta_\infty-\eta_{(t)})/(\eta_\infty-\eta_{(0)})$
b) time vs ln $(\eta_\infty-\eta_{(t)})/(\eta_\infty-\eta_{(0)})$

도시했다. Fig. 10-a)의 과전위분율에 자연대수를 취해 도시하면 Fig. 10-b)와 같이 직선이 얻어짐을 볼 수 있다. 이 기울기로부터 확산계수 D를 계산하면 순수 Ni판 전극의 확산계수값은 4.5×10^{-5} cm^2/sec이었고 이는 기체부피법(gas volumetric method)으로 구한 값 1.75×10^{-5}[14]보다 다소 큼을 보였다. 이와 같은 방법으로 Ni-Al intermetallic anode(Al 2.5 wt%)와 Ni-Al alloy anode(Al 4.75 wt%)에서의 수소확산계수값은 각각 2.6×10^{-5}, 1.1×10^{-5} cm^2/sec를 얻었다. 크립을 방지하기 위해 Ni소재에 Al을 첨가하게 되면 수소의 확산계수값

은 감소됨을 알 수 있다. 이상의 교환전류밀도와 수소 확산계수를 비교하면 Table 1에서 보듯이 수소확산계수의 크기순서가 교환전류밀도의 크기순서와 같아, 전극내 수소의 확산계수가 작아지면 수소산화반응의 교환전류밀도도 작아짐을 알 수 있다.

4. 결 론

용융탄산염연료전지(650℃, Li/K : 62/38)에서 anode의 수소산화반응에 물질전달이 미치는 영향에 대해 실험한 결과 다음과 같은 결론을 얻었다.

Anode의 수소산화반응속도에 반응물의 확산과 생성물의 확산이 비슷한 정도로 영향을 주었으며, 수소가 Ni anode를 투과함으로서 MCFC Ni anode의 수소산화반응속도를 증가시킴을 보였다. Ni-anode에 Al이 첨가되면 교환전류밀도는 감소하였으며, Ni에 Al이 첨가됨으로 인해 금속을 투과하는 수소의 확산계수도 다소 감소되었다.

감 사

본 연구는 대체에너지 기술개발지원센터의 연구지원금에 의한 연구결과의 일부입니다. 연구비 지원에 감사드립니다.

사용기호

C_0 : hydrogen concentration at electrode surface contacting gas [mol/cm^3]
C_s : hydrogen concentration at electrode surface contacting electrolyte [mol/cm^3]
$C_{s\infty}$: C_s at steady state [mol/cm^3]
D : Fick's diffusion coefficient [cm^2/sec]
F : Faraday constant [C/mol]
i(0) : current density at time zero [mA/cm^2]
i_0 : exchange current density [mA/cm^2]
R : gas constant [J/mol K]
s : characteristic length [cm]
T : temperature [K]
t : time [sec]
α_A : anodic transfer coefficient [-]
α_C : cathodic transfer coefficient [-]
η : overpotential [mV]
$\eta(0)$: overpotential at time zero [mV]
η_∞ : overpotential at steady state [mV]

참고문헌

1. Kinoshita, K.: ANL Rep. ANL-79-55, Argonne National Laboratory, Argonne, IL, USA, 1979.
2. Iacovangelo, C. D.: *J. Electrochem. Soc.*, **133**, 2410 (1986).
3. Yamamasu, Y., Kakihara, T., Kasai, E. and Morita, T.: Poc. Int. Fuel Cell Conf., Makuhari, Japan, 161 (1992).
4. Tanaka, J., Saiai, A. and Sakurada, S.: Proc. 3rd Int. Symp., Carbonate Fuel Cell Technology, The Electrochem. Soc., Pennington, NJ, USA 37(1993).
5. Nishina, T., Takahashi, M. and Uchida, I.: *J. Electrochem. Soc.*, **137**, 1112(1990).
6. Ang, P. G. P. and Sammells, A. F.: *J. Electrochem. Soc.*, **127**, 1287(1980).
7. Lu, S. H. and Selman, J. R.: *J. Electrochem. Soc.*, **131**, 2827(1984).
8. Chun, H. S., Park, G. P., Lim, J. H., Kim, K., Lee, J. K., Moon, K. H. and Youn, J. H.: *J. Power Sources*, **49**, 245(1994).
9. Allen, R. V. and Borbidge, W. E.: *J. Mater. Sci.*, **18**, 2835(1983).
10. Holleck, G. and Wicke, E.: *Z. Phys. Chem. N.F.*, **56**, 155(1967).
11. Vogel, W. M. and Iacovangelo, C. D.: *J. Electrochem. Soc.*, **124**, 1305(1977).
12. Weewer, R.: Dutch National Fuel Cell R & D Program Report Contact No 4.903.01/02(1991).
13. Selman, J. R. and Maru, H. C.: "Advances in Molten Salt Chemistry", Vol. 4, Plenum Press, New York(1983).
14. Volkl, J. R. and Alefeld, G.: "Diffusion in Solids, Recent Development", Academic Press, New York (1975).
15. Yuh, C. Y. and Selman, J. R.: *J. Electrochem. Soc.*, **131**(9), 2062(1984).
16. Gerisher, H. and Vielstich, W.: *Z. Phys. Chem. N.F.*, **3**, 16(1955).