

論文

PEMFC용 복합소재 분리판을 위한 2단계 제조공법의 예비성형 조건에 대한 연구

허성일*, 오경석*, 장준호*, 양유창**, 한경섭*+

A Study on Precuring Condition of the 2-step Manufacturing Method for PEMFC Composite Bipolar Plates

Seong-Il Heo*, Kyung-Seok Oh*, Jun-Ho Jang*, Yoo-Chang Yang**, Kyung-Seop Han*+

ABSTRACT

The 2-step manufacturing method consisting of preforming and stamping processes was developed to manufacture composite bipolar plates for PEMFCs. The preform was composed of expanded graphite, graphite flake and phenol resin. Precuring conditions were optimized by checking the electrical conductivity, flexural strength and microstructure. Precuring temperature (100°C) slightly above the melting point of phenol powders (90°C) induced moderate curing, but also prevented excessive curing. Preforms utilizing the tangled structure of expanded graphite were easily fabricated at low pressure of 0.07-0.28MPa. The proper precuring time, 5min, was determined to fabricate the preform stably because insufficient and excessive precuring deteriorated the flexural strength of composite bipolar plates.

초 록

본 연구에서는 고분자 전해질 연료전지(PEMFC)용 복합소재 분리판의 제작을 위해, 예비성형과 스탬핑 공정으로 이루어지는 2단계 제조공법을 개발하고 예비성형 조건이 소재의 물성에 미치는 영향을 고찰하였다. 예비성형체는 팽창흑연, 흑연분말, 페놀수지를 이용하여 제조되었으며, 예비성형 공정은 전기 전도도, 굽힘 강도와 미세 구조의 분석을 통해 최적화되었다. 예비성형은 페놀수지의 지나친 경화를 막기 위해 페놀 분말의 녹는점인 90°C보다 약간 높은 100°C에서 이루어졌다. 본 연구에서 개발된 예비성형체는 팽창흑연의 서로 잘 얹히는 성질로 인해 0.07-0.28MPa의 낮은 압력에서도 쉽게 제조되었다. 부족하거나 과도한 예비경화는 복합소재 분리판의 강도 저하를 야기하기 때문에, 예비성형체를 안정적으로 제조하기 위한 예비성형 시간은 5분으로 결정되었다.

Key Words : 고분자 전해질 연료전지(PEMFC), 복합소재 분리판(Composite Bipolar Plate), 예비성형체(Preform), 팽창흑연(Expanded Graphite)

1. 서 론

최근 연료전지는 화석 연료의 대안으로서 많은 관심을 끌고 있다. 그 중에서도 PEMFC는 높은 에너지 밀도와 낮은 작동 온

도 등의 장점으로 인해 자동차 동력원, 휴대용 전원, 가정용 발전 등의 용도로 관련 기업 및 연구소에서 활발히 연구되고 있다. 그러나 아직은 높은 제작 단가와 내구성에 대한 신뢰 부족이 상용화의 걸림돌이 되고 있다[1, 2].

* 포항공과대학교 기계공학과 대학원

*+ 포항공과대학교 기계공학과(E-mail:kshan@postech.ac.kr)

** 현대자동차 환경기술연구소

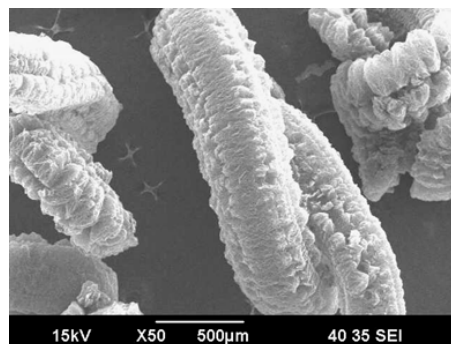
특히, 분리판은 PEMFC에서 가장 가격 비중이 높은 요소 중의 하나로 알려져 있다[3]. 분리판은 PEMFC 내에서 i) 단위 셀 간의 전류 전달, ii) 수소 및 냉각수의 이동통로 그리고 iii) 각각의 셀을 구조적으로 지지하는 등의 중요한 역할을 하는 요소이다. 이러한 다양한 조건을 고려하여 그동안 여러 물질이 PEMFC용 분리판의 소재로 연구되어 왔다. 현재까지 주로 사용되고 있는 기계가공 분리판은 흑연 평판에 채널을 가공하여 제조하였으나, 채널 가공비용이 너무 비싸 상용화하기에는 어려움이 따른다. 또한 스테인리스 스틸과 같은 금속 분리판은 부식에 약할 뿐만 아니라 성형 시 발생하는 스프링백으로 인해 정교한 제작이 어려운 단점이 있다. 이러한 단점을 극복하기 위해 전기 전도성이 우수하고 원하는 형상으로의 성형이 용이한 전도성 복합재료에 대한 연구가 수행되고 있다[4].

복합소재 분리판에 대한 연구는 이미 성숙기에 이르렀으며 대부분의 연구는 전기 전도도와 부식성이 우수한 흑연을 전도성 충전제로 사용하고 있다[5]. 특히, 60wt.% 이상의 높은 질량비를 가진 흑연 보강 전도성 고분자 복합재료(이하 복합소재 분리판)는 PEMFC용 분리판에 요구되는 주요 물성(전기 전도도 100S/cm, 굽힘 강도: 40MPa)을 만족하고 있다[6]. 또한 초기 및 장기 성능면에서도 기존의 기계가공판을 대체할 수 있는 소재로 평가받고 있다[7].

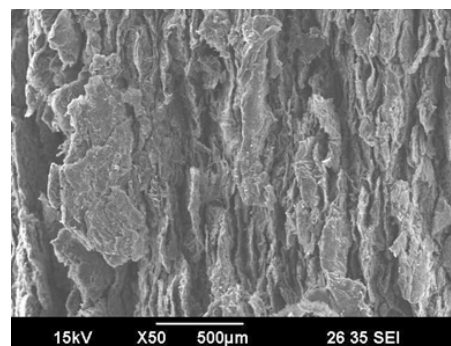
이러한 결과를 바탕으로, 복합소재 분리판의 성능을 최적화하기 위해 흑연 분말의 크기와 형상에 대한 실험 및 이론적인 연구가 수행되었다. Richard 등[8]은 다양한 충전제와 충전 비율에 대해 소재의 특성을 연구하였으나, 실험의 일관성이 부족하여 사용된 입자 간의 직접적인 특성 비교를 하기 어려웠다. 흑연입자의 크기가 작아짐에 따라 전기 전도도와 굽힘 강도가 감소한다는 보고가 있었으나[9], 입자의 크기가 작아질 때 소재 내의 공극률도 함께 증가하고 있기 때문에 그러한 결과를 그대로 받아들이기는 어렵다. 일반적으로는 입자가 작아지면 기계적 강도가 높아지며[10], 이러한 경향은 실험을 통해서도 확인되었다. 또한 구상에 비해 판상 흑연이 전기 전도도와 기계적 강도의 측면에서 보다 우수하였으며, 강도 보강을 위해 탄소섬유가 사용되기도 하였다[11, 12].

이러한 노력에도 불구하고, 복합소재 분리판을 성공적으로 상용화하기 위해서는 생산효율을 보다 높여야만 한다. 이를 위해 사출성형 공법을 이용하는 연구가 활발히 이루어지고 있으나, 아직 분리판의 대면적화와 박판화 추세를 만족시키기에는 한계가 있다[13, 14]. 또한 최근에는 생산성을 높이기 위해, wet-lay sheet를 이용하는 등 새로운 제조공법 개발에 대한 연구도 다양하게 시도되고 있다[15-17].

본 연구에서는 복합소재 분리판의 생산성 증가라는 당면과제를 해결하기 위하여 예비성형체를 이용한 2단계 제조공법이 개발되었다. 예비성형과 스탬핑 공정은 복합소재 분리판의 전기 전도도와 굽힘 강도를 측정함으로써 최적화되었으며, 이러한 결과는 미세구조의 관찰을 통해 뒷받침되었다.



(a) Expanded graphite (worm-type)



(b) Horizontally compressed expanded graphite

Fig. 1 Shape of expanded graphite.

2. 실험

2.1 소재

본 연구에서는 고분자 수지로써 낮은 수축률, 높은 내부식성과 기계적 강도를 가지는 열경화성 수지인 페놀 수지(Kolon Chemical, Korea)를 사용하였다.

전도성 충전제로는 평균직경 200µm인 흑연분말과 팽창흑연(이상 Hyundai-kish, Korea)을 사용하였다. 판상 흑연분말을 황산 등에 노출시킨 뒤 갑작스런 열충격을 가하면, 판상 흑연의 면(c-axis) 방향으로 급격히 팽창하여 Fig. 1a와 같은 형상을 가지게 된다. 팽창흑연은 매우 많은 기공을 가지고 있으며 입자들이 서로 꼬이기 쉬운 벌레 형태를 취하고 있다. 팽창흑연의 이러한 성질로 인해, 낮은 압력에서 바인더가 없이도 예비성형체의 형상을 유지할 수 있게 된다. 팽창흑연은 압축이 진행되면 처음에는 입자들이 급형의 빈 공간 내에서 재배열되다 임계압력(rigidity threshold)을 넘어서면 입자가 찌그러지기 시작한다[18]. 압축된 팽창흑연은 Fig. 1b와 같이 원래의 판상 흑연분말과 유사한 형상으로 되돌아간다.

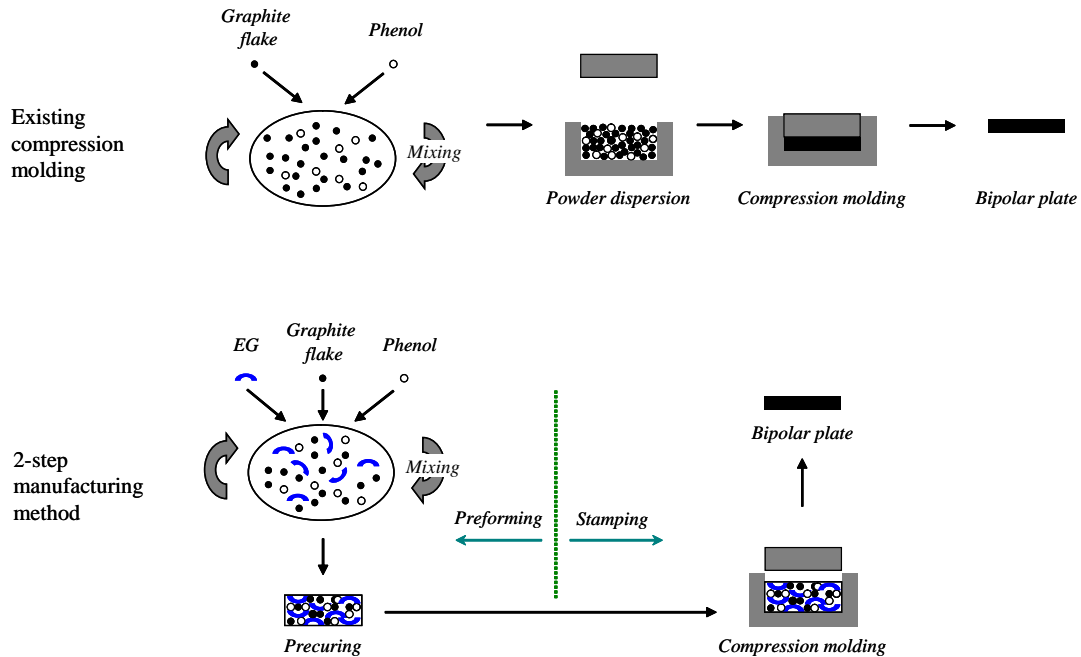


Fig. 2 Schematic diagram of manufacturing processes of composite bipolar plates.

2.2 예비성형체 제작(Preforming)

예비성형체 제작은 Fig. 2에서 보는 바와 같이, 분말 혼합과 예비성형으로 이루어진다. 먼저 팽창흑연, 흑연분말 그리고 페놀 분말을 7.5:67.5:25wt.%의 비율로 준비한 뒤, 약 30분 동안 흔들 어 섞는다. 혼합분말은 상온에서 알루미늄 금형에 고르게 분산시킨 다음 100℃로 예열된 Hot press에서 예비성형 공정을 거치게 된다.

예비성형 온도는 페놀분말의 과도한 경화를 방지하기 위해 페놀분말의 녹는점인 90℃보다 약간 높은 온도인 100℃로 고정되었다. 예비성형의 압력과 시간은 복합소재 분리판의 물성에 가장 중요한 영향을 끼치는 인자 중의 하나이다. 예비성형 공정을 최적화하기 위해, 예비성형 압력과 시간은 각각 0.07~0.7MPa 그리고 3~20분 사이에서 변화되었다.

흑연분말과 페놀수지만으로 예비성형체를 제작하기 위해서는 압출기 등의 장비를 준비해야 한다. 또한 원활한 유동성 확보를 위해서는 수지 비율을 증가시켜야 하므로 원하는 전기 전도도를 얻기가 어렵다. 이에 비해, 본 연구에서 개발된 제조공법은 별도의 시설 증가 없이도 손쉽게 예비성형체를 만들 수 있다는 장점이 있다.

2.3 스탬핑(Stamping) 공정

제조된 예비성형체를 150℃로 가열되어 있는 스틸 금형에

서 30초 동안 예열시켜 주면, 예비성형 공정 동안 예비 경화된 페놀 수지가 유동성을 다시 확보하게 된다. 이때, 높은 압력을 가해주면 예비성형체가 압축되면서 페놀수지가 팽창흑연과 흑연분말의 공극 사이로 침투하게 된다.

스탬핑 공정의 압력과 시간은 각각 0~15MPa 그리고 1~5분 사이에서 변화되었으며, 실험을 통해 적절한 공정 조건을 결정하였다.

Fig. 2에서 보는 바와 같이, 본 연구에서 개발된 2단계 제조공법은 기존 압축성형 공정 시에 압축성형용 금형 내에서 흑연/페놀 혼합 분말을 분산하던 번거로움을 없앴다. 이를 통해 압축성형용 금형의 온도를 성형 온도인 150℃로 유지시킬 수 있어 생산성을 현저히 증가시킬 수 있다.

2.4 실험 방법

제조된 복합소재 분리판의 성형 상태 및 팽창흑연의 첨가에 따른 치밀화 거동 변화를 조사하기 위해, 아르키메데스의 원리를 이용한 밀도 측정(ASTM D792-00)과 전자주사현미경(Philips XL 3S)을 이용한 미세구조 분석을 실시하였다.

전기 전도도 측정은 4단자법(4 point probe method)을 이용하였다. 제조된 복합소재 분리판은 전기 락톱(bandsaw)을 이용하여 60×12.7(mm²)의 크기로 잘랐으며 전기 전도도 측정을 위해 단자와 접촉될 네 부분에는 은(Ag) 페이스트를 바른 뒤 50℃에

서 2시간 동안 열처리하였다. Multimeter 34401A(Agilent)를 이용하여 시편 바깥쪽의 두 단자에 일정한 전류(I)를 흘려준 뒤, 안쪽 두 단자에서 전압강하(V)를 측정하여 저항(R)이 계산되었다. 전기 전도도(σ)는 저항과 시편의 치수(A: 시편 단면적, L: 전압 접촉부 사이의 거리)와의 관계를 이용하여 다음과 같이 계산되었다.

$$\sigma = \frac{1}{R} \times \frac{L}{A} \quad (1)$$

굽힘 강도는 3점 굽힘 실험(ASTM D790-02)을 통해 측정 되었으며, 각각의 실험은 UTM(Shimadzu, 5ton)을 이용하여 이루어졌다. 지지대 사이의 간격(L, support span)과 시편두께(t)의 비(L/t)는 16으로 하였다. 시편이 파괴되었을 때의 최대 하중을 P, 시편의 폭을 W라 하면 굽힘 강도는 다음과 같이 얻어진다.

$$\text{Flexural strength} = \frac{3PL}{2Wt^2} \quad (2)$$

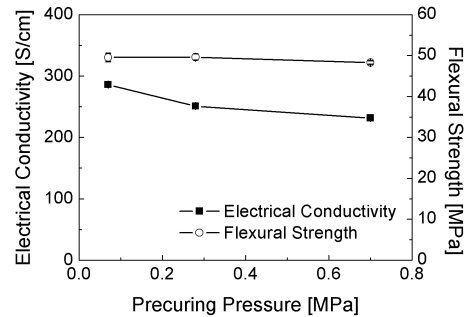
실험 결과의 일관성을 위해, 전기 전도도를 측정할 때 사용되었던 시편이 그대로 다시 사용되었다.

3. 결과 및 토의

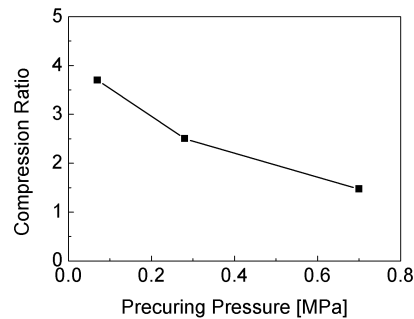
성형 조건의 주요 변수는 예비성형과 스탬핑 공정의 압력과 시간이다. 각각의 실험변수가 서로 종속관계에 있으므로, 본 연구에서는 선행 실험을 통해 실험조건을 한정하였다. 즉, 하나의 변수를 알아내기 위해서 나머지 세 가지 변수는 고정시켜 실험을 수행해나가는 방식을 택하였다. 각각의 실험변수에 대해 나머지 실험조건은 아래 Table 1과 같이 고정되었다. 예를 들어, 실험변수인 예비성형 압력을 결정하기 위해서는, 실험조건인 예비성형 시간, 스탬핑 압력과 시간이 각각 5분, 10MPa와 3분으로 고정되었다. 그 외에 실험 온도는 앞서 논의한 바와 같이, 예비성형과 스탬핑 온도를 각각 100℃와 150℃로 고정되었다.

Table 1 실험변수에 따른 실험조건

실험변수	실험조건	예비성형		스탬핑	
		압력 (MPa)	시간 (분)	압력 (MPa)	시간 (분)
예비성형	압력	-	5	10	3
	시간	0.28	-		
스탬핑	압력		5	-	10
	시간			10	-



(a) Electrical conductivity and flexural strength



(b) Compression ratio

Fig. 3 Material properties of composite bipolar plates according to the precuring pressure.

3.1 예비성형 압력

팽창흑연/흑연/페놀 혼합분말은 팽창흑연의 잘 얹히는 성질로 인해 낮은 압력에서도 예비성형체 제작이 가능하였다. Fig. 3a는 예비성형 압력이 높아짐에 따라 복합소재 분리판의 물성이 약간 감소하고 있음을 보여준다. 이는 페놀분말이 녹아서 흑연입자 사이에 고루 퍼지기 전에 압축이 진행되었기 때문으로 판단된다. 그러나 PEMFC용 분리판에 요구되는 물성(전기 전도도: 100S/cm, 굽힘 강도: 40MPa)과 비교하면 미미한 변화이다.

높은 예비성형 압력은 성형성 면에서도 불리한 결과를 나타내었다. 금속복합재료 등에서 사용되는 예비성형체는 기지재의 주입을 위해 일정한 강도를 가져야 하나[19], 본 연구에서 개발한 예비성형체는 추가적인 기지재의 주입 없이 최종형상으로 압축되어야 하므로 압축비가 성능 및 성형성에 있어서 중요한 인자로 작용한다. Fig. 3b는 예비성형 압력에 따른 압축비를 나타내며, 압축비는 다음과 같이 계산되었다.

$$\text{압축비} = \frac{\text{복합소재 분리판의 밀도}}{\text{예비성형체의 밀도}} \quad (3)$$

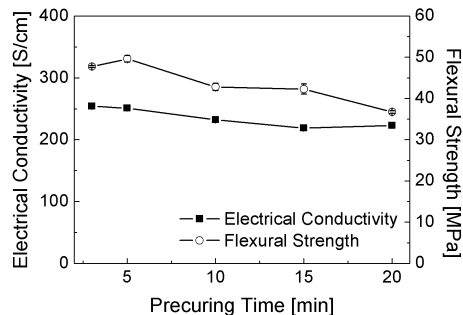
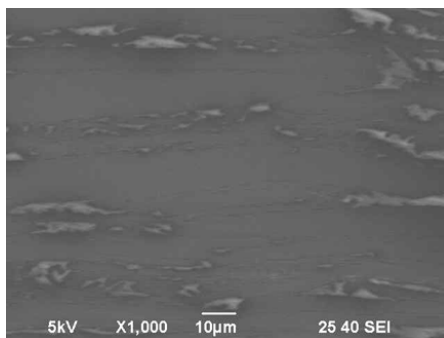
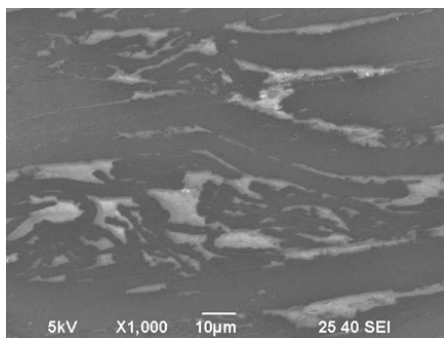


Fig. 4 Electrical conductivity and flexural strength according to the precuring time.



(a) 5min



(b) 15min

Fig. 5 Microstructure of composite bipolar plates according to the precuring time.

예비성형 압력이 0.7MPa로 증가되었을 때, 예비성형체의 밀도는 1.26g/cm^3 이며 이때의 압축비는 약 1.5까지 낮아지고 있다. PEMFC에 사용되는 분리판은 수소와 냉각수가 흐르는 통로의 역할을 하므로 복잡한 형태의 유로(channel)를 가지고 있다. 그러므로 유로를 안정적으로 제작하기 위해서는 예비성형체가 적어도 2이상의 압축비를 가지는 것이 좋다. 압축비와 성형성에 대한 보다 자세한 연구는 향후 계속 수

행될 예정이다.

이러한 결과를 바탕으로, 예비성형 단계에서는 예비성형체의 형상을 유지할 수 있을 정도의 압력만 가해주는 것이 최종 물성에 유리함을 알 수 있다. 그러나 0.07MPa 이하에서는 예비성형체의 강도가 약해 부서질 위험이 높아 제조 시에 세심한 주의가 필요하다. 그러므로 물성과 생산성을 고려하였을 때, 예비성형 압력은 0.28MPa이 적절하였다.

3.2 예비성형 시간

예비성형 시간 또한 복합소재 분리판의 물성에 큰 영향을 미치는 변수이다. Fig. 4는 예비성형 시간에 따른 전기 전도도와 굽힘 강도의 변화를 나타낸다. 예비성형 시간이 3분일 때에는 5분에 비해 굽힘 강도가 낮은 것으로 보아 경화시간이 부족했음을 알 수 있다. 굽힘 강도는 예비성형 시간이 5분일 때 가장 높은 값을 나타낸 뒤, 시간이 길어짐에 따라 지속적으로 하락하고 있으며 20분에 이르면 기준 강도인 40MPa를 하회하고 있다.

이러한 강도의 변화는 소재의 치밀화와 밀접한 관계가 있다. 예비성형 시간이 길어지면 페놀수지의 경화가 과도하게 진행되어, 스탬핑 공정 시에 예열을 해 주어도 페놀이 유동성을 확보하기가 어려워지게 된다. 그 결과 Fig. 5b와 같이, 스탬핑 후에도 페놀수지가 흑연분말 사이에 고르게 침투하지 못하고 국부적으로 뭉치게 되어 예비성형체의 원활한 치밀화를 방해한다. 이러한 경향은 예비성형 시간이 3분에서 20분으로 길어지면서, 복합소재 분리판의 밀도가 1.863g/cm^3 에서 1.816g/cm^3 로 점진적으로 떨어지고 있는 것으로도 재확인할 수 있다. 이러한 페놀의 뭉침 현상이 복합소재 분리판의 강도를 약화시키는 주요인으로 작용하게 된다.

전기 전도도는 예비성형 시간이 늘어남에 따라 지속적으로 하락하고 있는 것을 볼 수 있다. 이는 앞서 살펴보았듯이, 소재의 치밀화 부족으로 인한 것으로 페놀수지가 뭉친 지역이 흑연 간의 전기적 네트워크 형성을 방해하여 전기 전도도가 감소하게 된다. 이러한 경향은 밀도가 감소하는 경향과 유사한데, 이는 전기 전도도가 밀도 변화와 밀접한 상관관계를 가지는 때문이다[12].

예비성형 시간과 경화 정도에 따른 분석은 추후 경화모니터링을 통해 보완할 예정이다.

3.3 스탬핑(Stamping) 공정

Fig. 6은 스탬핑 압력에 따른 전기 전도도와 굽힘 강도의 변화를 나타낸다. 스탬핑 압력이 증가함에 따라 전기 전도도와 굽힘 강도가 급격히 증가한다, 약 3.5MPa에서부터는 증가 폭이 둔화된다. 그리고 10MPa에 이르면 소재의 치밀화가 완료되고 전기 전도도와 굽힘 강도가 더 이상 증가하지 않는다.

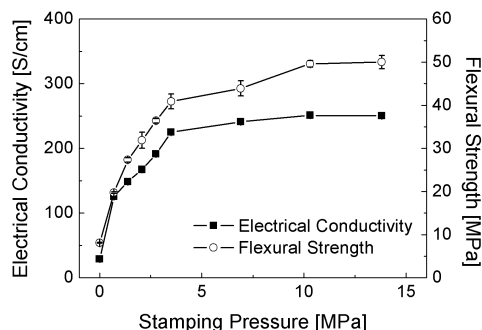


Fig. 6 Electrical conductivity and flexural strength according to the stamping pressure.

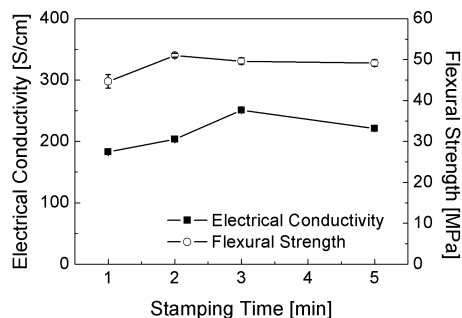


Fig. 7 Electrical conductivity and flexural strength according to the stamping time.

이러한 경향은 기존의 압축성형 공정에서 얻은 성형압력에 따른 물성 변화 결과와도 유사하다[11, 12].

스탬핑 시간은 복합소재 분리판의 물성에 큰 영향을 미치지 않았다. Fig. 7에 따르면 스탬핑 시간이 2분이 되면 이미 굽힘 강도가 최고치에 도달한 것을 알 수 있으며, 2분 이후에 전기 전도도가 다소 증가하긴 하나 물성 기준치와 비교하면 미미한 수준이다.

예비성형체를 이용한 2단계 제조공법은 기존의 압축성형 공정에서 10분 이상 걸리던 고압성형 시간을 2~3분으로 단축시키는 것을 가능케 하였다. 또한 고온압축용 금형 내에서 흑연/고분자 혼합분말을 직접 분산시키는 번거로운 작업을 생략하였다. 이는 금형의 온도를 항상 고온(150℃)으로 유지할 수 있게 하여 생산효율이 획기적으로 증가하였다.

4. 결 론

본 연구에서는 PEMFC용 분리판 제조를 위해, 예비성형체를 이용한 2단계 제조공법을 개발하였다. 성형공정은 제조된

복합소재 분리판의 전기적·기계적 특성 평가를 통해 최적화되었으며 이를 통해 얻어지는 결론은 다음과 같다.

1. 예비성형과 스탬핑으로 이루어진 2단계 제조공법은 제조 공정을 간편화하고 고압 성형 시간을 단축시킴으로써 양산화를 위한 기초를 마련하였다.
2. 예비성형 압력이 너무 낮으면 취급 시에 부서지기 쉽고, 너무 높으면 스탬핑 공정 시에 성형성이 나빠진다. 또한 예비성형 시간이 너무 짧으면 경화가 부족하고, 너무 길면 스탬핑 공정 동안 페놀수지의 유동성이 떨어진다. 이러한 조건을 고려하여 최적화된 예비성형 조건은 0.28MPa, 5분이다.
3. 스탬핑 압력 10MPa에서 소재의 치밀화가 완료되었으며, 2분의 스탬핑 공정만으로도 50MPa 이상의 우수한 굽힘 강도를 얻을 수 있었다.

후 기

본 연구는 산업자원부의 수소·연료전지사업단 지원을 받아 수행되었습니다.

참고문헌

- 1) M.A.J. Cropper, S. Geiger and D.M. Jollie, "Fuel cells: a survey of current developments," *Journal of Power Sources*, Vol. 131, 2004, pp. 57-61.
- 2) P. Zegers, "Fuel cell commercialization: The key to a hydrogen economy," *Journal of Power Sources*, Vol. 154, 2006, pp. 497-502.
- 3) I. Bar-On, R. Kirchain and R. Roth, "Technical cost analysis for PEM fuel cells," *Journal of Power Sources*, Vol. 109, 2002, pp. 71-75.
- 4) A. Hermann, T. Chaudhuri and P. Spagnol, "Bipolar plates for PEM fuel cells: A review," *International Journal of Hydrogen Energy*, Vol. 30, 2005, pp. 1297-1302.
- 5) A.L. Dicks, The role of carbon in fuel cells, *Journal of Power Sources*, Vol. 156, 2006, pp. 128-141.
- 6) D. N. Busick and M.S. Wilson, "Low-cost composite materials for PEFC bipolar plates," *Fuel Cells Bulletin*, Vol. 2, 1999, pp. 6-8.
- 7) E.A. Cho, U.-S. Jeon, H.Y. Ha, S.-A. Hong and I.-H. Oh, "Characteristics of composite bipolar plates for polymer electrolyte membrane fuel cells," *Journal of Power Sources*, Vol. 125, 2004, pp. 178-182.

- 8) Richard H. J. Blunk, Daniel J. Lisi, Yeong-Eun Yoo and Charles L. Tucker III, "Enhanced Conductivity of Fuel Cell Plates through Controlled Fiber Orientation," *AIChE Journal*, Vol. 49, No.1, 2003, pp. 18-29.
- 9) H.C. Kuan, C.C.M. Ma, K.H. Chen and S.M. Chen, "Preparation, electrical, mechanical and thermal properties of composite bipolar plate for a fuel cell," *Journal of Power Sources*, Vol. 134, 2004, pp. 7-17.
- 10) S.-H. Kim and H.T. Hahn, "Size effect in particulate metal matrix composites: an analytical approach," *Advanced composite Materials*, Vol. 15, 2006, pp. 175-191.
- 11) S.I. Heo, J.C. Yun, K.S. Oh and K.S. Han, "Influence of particle size and shape on electrical and mechanical properties of graphite reinforced conductive polymer composites for the bipolar plate of PEM fuel cells," *Advanced composite Materials*, Vol. 15, 2006, pp. 115-126.
- 12) 허성일, 윤진철, 오경석, 한경섭, "흑연입자/탄소섬유 혼합 보강 전도성 고분자 복합재료의 전기적, 기계적 특성 연구," *한국복합재료학회지*, Vol. 19, No. 2, 2006, pp. 7-12.
- 13) A. Heinzl, F. Mahlendorf, O. Niemzig and C. Kreuz, "Injection moulded low cost bipolar plates for PEM fuel cells," *Journal of Power Sources*, Vol. 131, 2004, pp. 35-40.
- 14) A. Müller, P. Kauranen, A. von Ganski and B. Hell, "Injection moulding of graphite composite bipolar plates," *Journal of Power Sources*, Vol. 154, 2006, pp. 467-471.
- 15) B.D. Cunningham, J. Huang and D.G. Baird, "Development of bipolar plates for fuel cells from graphite filled wet-lay material and a thermoplastic laminate skin layer," *Journal of Power Sources*, Vol. 165, 2007, pp. 764-773.
- 16) R. Blunk, M.H.A. Elhamid, D. Lisi and Y. Mikhail, "Polymeric composite bipolar plates for vehicle applications," *Journal of Power Sources*, Vol. 156, 2006, pp. 151-157.
- 17) X. Yan, M. Hou, H. Zhang, F. Jing, P. Ming and B. Yi, "Performance of PEMFC stack using expanded graphite bipolar plates," *Journal of Power Sources*, Vol. 160, 2006, pp. 252-257.
- 18) A. Celzard, S. Schneider and J.F. Maréché, "Densification of expanded graphite," *Carbon*, Vol. 40, 2002, pp. 2185-2191.
- 19) J. I. Song, Y.C. Yang and K. S. Han, "Squeeze Casting Conditions of Al/Al₂O₃ Metal Matrix Composites with Variations of Preform Drying Process," *Journal of Materials Science*, Vol. 31, 1996, pp. 2615-2621.