

微型质子交换膜燃料电池构造技术进展

郭航, 吴晓晖, 叶芳, 马重芳

(北京工业大学环境与能源工程学院传热强化与过程节能教育部重点实验室及传热与能源利用北京市重点实验室, 北京 100124)

摘要:从膜电极组件的构造技术、双极板加工技术和整体制作与组装技术 3 个主要方面较为详尽地介绍了微型燃料电池构造技术的最新进展状况, 对其技术特点以及发展前景开展了分析与讨论。

关键词:微型燃料电池; 加工技术; 双极板; 质子交换膜

中图分类号:TM911.4

文献标识码:A

文章编号:0253-4320(2008)10-0022-05

Advances in fabrication technology of micro proton exchange membrane fuel cells

GUO Hang, WU Xiao-hui, YE Fang, MA Chong-fang

(Key Laboratory of Enhanced Heat Transfer and Energy Conservation of the Ministry of Education; Key Laboratory of Heat Transfer and Energy Conversion of Beijing Municipality, College of Environmental and Energy Engineering, Beijing University of Technology, Beijing 100124, China)

Abstract: With the rapid development of portable electronic devices, needs of high-performance of power sources are critical. Micro fuel cells are considered as a promising choice for the next generation of power sources of portable electronic equipments. Micro fuel cells are required to be compact, small in volume and as light as possible. Because the traditional mechanical treatment can not meet those requirements, new fabrication technology should be applied in micro fuel cells. The state of the art of manufacturing technology of membrane electrode assembly, processing technology of bipolar plate and packaging technique is introduced in this paper. Analysis and discussion of the distinguishing feature and long-term potential of the new fabrication technology have been conducted.

Key words: micro fuel cell; process technology; bipolar plate; proton exchange membrane

近年来随着信息技术的发展,以手机、笔记本电脑为代表的便携式电子设备的功能不断增加,对其电源续航能力的要求也越来越高。传统的镍镉、镍氢电池以及锂电池等已经不能满足电子产品日益增加的高能耗需求。质子交换膜燃料电池的能量密度高,使用甲醇作为燃料的能量密度可达 5~6 kWh/kg,是普通锂电池的 10 倍^[1],与此同时,电量用完时只需更换燃料罐,不像普通的充电电池那样需要长时间充电^[2]。由于燃料电池的独特优势,在小型移动通讯设备以及便携式电子产品领域,以微型燃料电池作为替代电源的研究在最近几年受到高度重视,它被认为是最有可能补充甚至代替目前广泛使用的镍镉、镍氢电池以及锂电池,从而成为未来可移动电源的主流^[3-4]。在诸多种类燃料电池中,质子交换膜燃料电池由于具有合适的工作温度,被认为是最有前途用于便携式电源的燃料电池。质子交换膜燃料电池目前主要有 2 类:氢质子交换膜燃料电池(包括重整制氢的燃料电池)和直接甲醇燃料

电池。近年来迅猛发展的微型机电系统(Microelectro-mechanical system, MEMS)、腐蚀、光刻等技术,更加促进了微型燃料电池的发展。许多研究机构都从不同角度探索构建微型燃料电池的新方法,取得了一批新成果。本文将对微型质子交换膜燃料电池的构造技术进行开展回顾、分析和预测。

1 质子交换膜燃料电池的结构

常规的燃料电池的主体结构一般为“三明治”结构,从阳极到阴极依次为阳极流场板、阳极扩散层、阳极催化剂层,质子交换膜、阴极催化剂层、阴极扩散层和阴极流场板。在一些场合也将扩散层、催化剂层和质子交换膜层合为一体称为膜电极组件(Membrane Electrode Assembly, MEA)。传统制造方法这几层是分开制作的,然后再组装在一起,密封成型。流场板大都使用机械加工方法,MEA 也是使用热压、沉淀等方法来制作。对于微型燃料电池来说,这样的方法已经不能满足需要。不少研究者都开始

收稿日期:2008-07-04

基金项目:北京市优秀人才培养资助项目(2008),传热与能源利用北京市重点实验室开放基金项目(2008)

作者简介:郭航(1970-),男,博士,副教授,研究方向为燃料电池的热流体技术、制冷空调系统及换热装置的现代技术,通讯联系人,hangguo@bjut.edu.cn。

尝试打破传统的制作方法,利用 MEMS 技术将微型燃料电池整体做成一体或者用 MEMS 技术将燃料电池的某些部分做成一体,这样可以减小整个燃料电池的体积,同时也可以利用已经成熟的微加工技术来批量生产,降低燃料电池的成本。

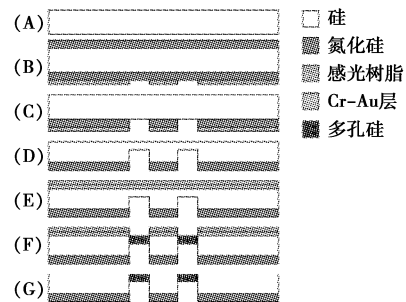
2 膜电极组件加工技术

膜电极组件由对称的 5 部分组成:中间是质子交换膜,两边依次是催化层和扩散层,这部分结构是电池进行化学反应、产生电流的场所。膜电极性能的好坏关系到整个燃料电池性能的优劣。对于微型质子交换膜燃料电池,因为受体积限制,需要将膜电极做得尽量薄。在质子交换膜方面,Nafion 系列膜有很高的质子传导性能和稳定性,但是也有其严重的缺点,即这种膜的甲醇透过率高,且造价较贵。所以寻找这种电解质的替代品已经成为研究热点之一。

改良质子交换膜最普通的方法就是使用有机-无机混合材料,把 Nafion 只当作质子交换膜的组成部分。近年来利用纳米硅制作质子交换膜显示出强的势头,不管是在质子通过率还是在防止燃料的透过方面的性能都可以与 Nafion 膜相媲美。此外纳米硅在高温情况下同样可以显示出稳定的性能,这一点较传统的聚合物材料有更大的优势。

Gold 等^[5]用经硫酸填充的多孔硅作为微型质子交换膜燃料电池的质子交换膜,这样制得的质子交换膜厚度为 40 ~ 70 μm ,拥有的导质子率为 0.0068 ~ 0.3 S/cm,性能在某种程度上已经超越了传统的 Nafion 膜的导质子率(0.05 S/cm)。此外蚁酸的渗透性和 Nafion 膜相当,随着阳极电流的增加,渗透率从 $4.3 \times 10^{-8} \text{ mol}/(\text{s} \cdot \text{cm}^2)$ 到 $3.9 \times 10^{-7} \text{ mol}/(\text{s} \cdot \text{cm}^2)$ 与 Nafion 膜的 $1.23 \times 10^{-7} \text{ mol}/(\text{s} \cdot \text{cm}^2)$ 相当。这种膜的优点就是可以利用硅的成熟的微加工技术,使用反应离子深刻蚀法在硅层上形成 100 μm 的质子交换膜。加工过程如图 1 所示:使用直径为 100 mm、电阻率为 0.01 ~ 0.02 $\Omega \cdot \text{cm}$ 双面抛光的硅片,加工之前表面的氧化物通过浸没在腐蚀缓冲溶液中去除(A)。首先使用低压气相沉积法将 800 nm 的氮化硅沉淀在硅片的两面(B)。影印石版术在每一个模型上制作 4 个圆形的小孔,小孔的总面积为 0.0625 cm^2 ,每个模型的面积为 2.25 cm^2 ,使用氟利昂等离子体来去除小孔上面的氮化硅(C)。使用深度离子刻蚀方法得到厚度为 100 μm 的硅膜(D),50 nm 厚的铬和金喷涂在薄片的背面来增强硅的导电性能,然后使用腐蚀缓冲溶液去除氧化物,在铬层上包被

一层感光树脂来防止在下一步过程中的酸性腐蚀(E)。通过电化学刻蚀形成纳米孔,形成多孔硅膜(F)。最后去除感光性树脂和铬层得到最终的多孔硅膜(G)。最终使用 40 mg 质量分数为 5% 的 Nafion 膜填充上面得到的多孔硅来形成质子交换膜。使用这种新型的膜来制作微型燃料电池,使用 5 mol/L 的甲酸和 0.5 mol/L 硫酸的混合溶液能够产生的最大电流密度为 120 mA/cm^2 ^[6]。



(A)去除氧化物;(B)沉淀氮化硅;(C)制作模型;(D)深度离子刻蚀;(E)镀金属膜;(F)电化学刻蚀;(G)去除杂质

图 1 多孔硅膜的制作过程^[6]

Pichonat 等^[7]研究了一种用 Nafion 溶液填充多孔硅的微孔来制作的质子交换膜,这种结构可以很好地改善 Nafion 膜水的横向扩散状况。之后该研究小组又研究了新型的不用 Nafion 溶液的膜,不需要 Nafion 溶液和其他任何的离子聚合物溶液来填充多孔硅的孔,直接在多孔硅的内部移植上硅烷分子来模仿 Nafion 膜的构造,从而得到较高的导质子性能。制造过程为:将硅烷分子移植到多孔硅内部表面来仿制 Nafion 膜的表面结构,使用硅烷的三钠盐作为原料来仿造。制作过程为:①将多孔硅膜浸泡在纯硫酸和质量分数为 33% 的双氧水的混合溶液中(二者体积比为 4:1)10 min;②将亲水多孔膜浸没在质量分数为 1% 的硅烷乙醇溶液中 1 h;③激活膜的导质子性能,使用 H 原子来替代硅烷三盐中的 Na 原子,方法是将上 2 步制得的膜浸没在质量分数为 20% 的硫酸溶液中持续 12 h,随后使用去离子水去除残渣。其显著特点是能够很好地和硅微加工技术相兼容,不需要 Nafion 和其他分子聚合物溶液,适合于大量生产。实验证明这种新的方法有较好的前景^[8]。

在气体扩散层方面, Lee 等^[9]用多孔硅来制作微型燃料电池的气体扩散层(Gas Diffusion Layer, GDL),铂催化剂用物理沉淀法沉淀在扩散层的表面和内部,来增强多孔硅的导电性能。用平板印刷技术将 Pt 制作在金属肋壁上作为微型热传感器,微型温度传感器测量的范围为 20 ~ 46 $^{\circ}\text{C}$,电阻范围为

1.649 ~ 1.694 k Ω 。实验表明,温度仍然和阻值成线性关系,温度的精确度和灵敏度分别为 0.3 $^{\circ}\text{C}$ 和 $1.05 \times 10^{-3}/^{\circ}\text{C}$,证明了利用这种方法来测量燃料电池内部温度的可行性和兼容性。

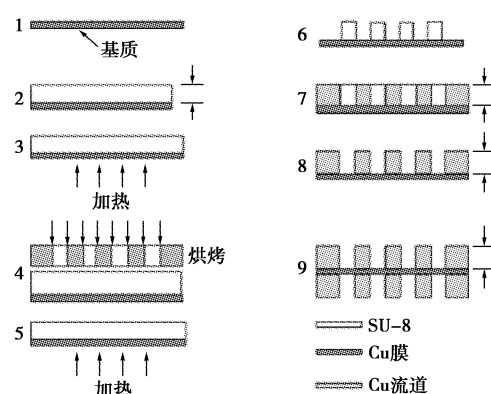
3 流场板加工技术

流场板也叫双极板或者支撑体,功能是收集电流,使反应物均匀分布、排出产物、支撑膜电极等,这些功能决定了燃料电池中的流场板必须具有足够的导电率、较高的强度、耐酸性腐蚀、较好的传热性能和易加工等,目前流场板占整个质子交换膜燃料电池总质量的 70% ~ 80%,成本占总成本的 40% ~ 50%。因此流场板必须要降低质量、减小体积、大幅度降低成本。在微型电池研究中,提高电池的体积和质量比功率尤为重要,因此流场板的材料选择、流场设计和加工是比较关键的^[10]。

传统的燃料电池流场的加工方法是机械加工方法,而当电池的体积变小时,流道的尺寸也需进一步变小,所以对于微型燃料电池,其流场加工方法就不同。最近各研究机构都将刻蚀、氢氧化钠腐蚀、平版印刷术、印刷电路板技术等应用于微型燃料电池的流场加工上。Park 等^[11]研究了干馏、碳化制作的碳结构的聚合物来制作流场板。这种材料能够使加工的体积比传统的机加工的体积要小,价格也要便宜,并用这种材料制作了厚度为 1 mm 的流场板,以此来制作微型燃料电池,使用环氧树脂密封电池,这样水可以直接和暴露的质子交换膜进行水合。最初实验证明了这种材料的可行性。

Hsieh 等^[12]用铜作极板来制作微型质子交换膜燃料电池堆,使用类似于 X 光深刻模造法(LIGA)的微型制作过程来深度紫外光刻得到 SU-8(2100)抗蚀剂和 SU-8 流场模型。使用富士(HPB7S)透明材料作为掩膜,此外利用平版印刷技术能够得到大于或者等于 15 μm 宽的流道连接部分,最后通过电铸过程得到 200 μm (深) \times 300 μm (宽) \times 150 μm (肋壁宽)的流道,制作过程如图 2 所示。

Kim^[13]用硅作为基底的燃料电池制作方法是:用照相平版印刷方法在 $525 \pm 25 \mu\text{m}$ 厚度的硅上制作矩形断面的流道,流道尺寸为 400 μm (宽) \times 230 μm (深);在硅流场板的背部制作厚 500 μm 的耐热玻璃,来加强硅的物理强度,克服比较脆的缺点;然后在硅流场板上镀一层金来增加硅的稳定性,在硅和金之间有一个钼层,可以增加金和硅之间的结合性能,其中金层厚 550 nm,钼层厚 20 nm。在耐热玻璃



1—清洁的铜片;2—涂敷 SU-8;3—软性烘烤处理;
4—曝光;5—背面烘烤;6—进一步制作;7—电铸;
8—去除感光树脂;9—在背面重复 1~8 过程

图 2 铜流场板的制作过程^[12]

的表面上制作上一层 TaN_x 作为加热器,控制电池内部的温度。这样制作的单电池在环境温度和压力下以及 20 mL/min 燃料供应流量的情况下,当输出电压等于 0.6 V 时可以得到的实际功率密度为 203 mW/cm^2 ,最大功率密度为 261 mW/cm^2 。电池的比体积功率密度为 360 mW/cm^3 。这和常规尺寸电池的性能相当,更进一步证明这种方法还可以用于批量生产从而降低成本。

Lee 等^[14]用一种不锈钢薄板制作质子交换膜燃料电池的流场板,流道尺寸为 300 $\mu\text{m} \times 300 \mu\text{m}$,内部有微型的纹理结构,其尺寸是 100 μm (宽) \times 50 μm (深)和 50 μm (宽) \times 50 μm (深)。这样制作的单电池的总厚度为 2.6 mm,有效反应面积为 4 cm^2 ,而流场板面积为 16 cm^2 ,为了防止材料的腐蚀,双极板上镀上一层约为 5 μm 的复合防腐材料。经过数值分析和实验表明,含有微型纹理的流场有更加均匀的气体浓度,可以提高电池的性能;含有微型纹理的流场板有更加好的排水能力;电池的极化曲线表明,电池的平均功率密度为 195 mW/cm^2 。长期稳定性实验测验也表明,电池有很好的稳定性。

4 微型燃料电池的整体制作与组装

传统的燃料电池流场板和 MEA 层是分离的,而微型燃料电池是将 MEA 部分和流场板利用微型机械系统加工在一起,或者提出一种新型的电池构造方法,以达到减小电池体积的方式。Lu^[15]用硅作为基底用电化学的方法制成微型直接甲醇燃料电池,阴、阳两极和肋的宽度都为 750 μm ,流道深度为 400 μm ,这些结构都是用 MEMS 技术加工而成,电池将 MEA 夹在 2 块微型的硅板上,极化实验显示用

2 mol/L 的甲醇在 60℃ 的情况下得到的最大功率密度为 50 mW/cm², 同时在 8 mol/L 时也能够得到相当不错的结果。该微型燃料电池的制作过程如图 3 所示。

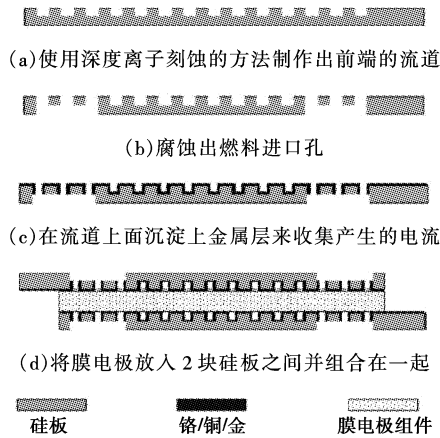
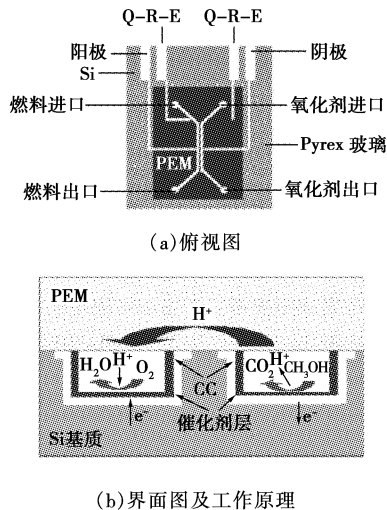


图 3 微型燃料电池的加工过程^[15]

Motokawa 等^[16]研究了一种新型的微型直接甲醇燃料电池(图 4), 其不同于常规燃料电池的地方是阴、阳极的微型流道在一块平板上, 阴极和阳极的流场在硅板的同一面上, 其中用到影印石版术、离子刻蚀技术和电子束沉淀技术等 MEMS 技术, 这样制作能够使离子从阳极到阴极的距离变短, 从而可能增强燃料电池的性能, 实验初步证明了这种新型方法的可行性。



(b) 界面图及工作原理

图 4 新概念的微型直接甲醇燃料电池^[16]

Yang 等^[17]设计了有不同流场的全被动式直接甲醇燃料电池(燃料和空气全部是通过自然对流和扩散的方式来提供的), 然后对 3 种不同的流场组织形式进行了性能测定(阴阳两极都是平行流场、阴阳两极都为点状流场、阳极为平行流场阴极为点状流场), 结果显示阳极为平行流场阴极为点状流场的性能最好, 阴阳两极都是平行流场次之, 阴阳两极都为

点状流场时电池的性能最差。这是因为 2 种流场的开孔率不同: 平行流场 58%, 点状流场 36.8%, 所以点状流场的燃料输送要比平行流场低很多, 此外平行流场在移除阳极生成二氧化碳和阴极生成水的能力也较点状流场要强得多, 所以平行流场要有更好的性质。

Ito 等^[18]将微型直接甲醇燃料电池组加工在有机聚合物上, 最后得到的开路电压为 5.6 V, 平均功率密度为 3 mW/cm², 并且考虑到其使用于便携式设备, 对这种电池组进行了折叠实验, 经过 1 000 次的反复折叠, 没有一块电池损坏, 电池的总体性能也没有明显的衰减。Ito 研究小组^[19]随后又将微型燃料电池用微加工方法集成在感光玻璃上的电池组, 将 13 个微型燃料电池制作在感光玻璃的一系列微孔内(直径 50 ~ 200 μm), 并初步证明了该方法的可行性。

Qiao 等^[20]用新型的电镀过程制作微型管状直接甲醇燃料电池的催化剂层, 成功将一薄层的 Pt 电极催化剂加工在质子交换膜上, 减少了传统方法的复杂性, 电镀技术同样控制催化剂镀层的厚度为 12 μm 和 Pt 粒子的直径为 10 nm, 最后在 Pt 的担量为 6 mg/cm² 下产生的最大功率密度为 2 mW/cm²。Shah 等^[21]用平版印刷技术将微型燃料电池制作在二甲基硅油上, 通过实验得到开路电压为 0.79 V, 在 0.375 V 的电压下有 0.282 mW/cm² 的功率密度。

Lee 等^[22]用“lip-flop”法将单电池制作在一个平板上, 用一个连续的质子交换膜贯穿整个电池组, 中间使用了大量的腐蚀方法、沉淀技术, 这种设计的显著特点是 2 个不同电池之间的相互连接是在隔膜的同侧, 用 4 个单电池来产生最大功率密度 40 mW/cm²。

Seyfang 等^[23]制作了一种新型的简单的燃料电池, 它只有 3 部分组成: 2 个微结构的玻璃碳薄片和含有催化剂涂层的薄膜, 这些结构用溅射、激光切除、反应离子蚀刻法来构造, 最后利用各种不同流场做了实验, 得出的最大功率密度为 415 mW/cm², 与常规方法的微型燃料电池的性能相当。

Zhang 等^[24]用 MEMS 技术将 6 个质子交换膜燃料电池制作成一个电池组, 制作方法是: 将膜电极组件放在阴、阳两极板之间压 12 h, 用环氧树脂密封电池, 环氧树脂同时还作为 MEA 部分和极板部分的连接材料。将各个电池的阴极朝上连接在一起, 电池之间的空隙部分全部用环氧树脂来密封, 防止气体的泄露。最后将燃料电池的阴、阳两极用点焊的方法串联起来形成电池组。最后得到的电池总体积为

4.0 cm³, 总质量是 8.5 g。将制作好的电池组放置在有机玻璃盒里, 使用环氧树脂来密封电池的有机玻璃盒之间的空隙。阳极使用一个小型的氢气储藏桶来供应电池燃料, 阴极用自呼吸式结构, 通过极化曲线的测量电池堆在 250 mA/cm² 的电流密度下能够得到 0.9 W 的功率和 104 mW/cm² 的平均功率密度。

Urbani 等^[25]制作了一个微型质子交换膜燃料电池组, 在室温下为便携式设备提供能量。电池组为自呼吸式, 由一个金属罐来提供氢气, 一个 DC-DC 转换器来进行输出能量的控制, 由一个风扇来冷却电池组。电池组由 10 个单电池组成, 有效的面积为 25 cm², 能够在 6 V 时产生 15 W 的能量输出, 最终能够在 9.5 V 的情况下产生 12 W 的能量输出, 可以为便携式 DVD 机持续供电 3 h。

5 结论

全面地介绍了近年来微型燃料电池各个部分以及电池整体的加工构造技术的进展。

(1) 在膜电极组件的构造技术方面, 主要是利用多孔硅的多孔性能代替碳布和碳纸来制作气体扩散层部分, 利用多孔硅材料作为原始的材料填充 Nafion 溶液来制作质子交换膜。

(2) 在流场板的构造技术方面, 主要使用物理沉淀、平版印刷、腐蚀、MEMS 的技术来代替传统的机械加工方法来制作流场板。

(3) 在燃料电池地整体制作与组装技术方面, 主要是利用 MEMS 技术将电池整体加工在一起, 或者部分加工在一起。

总体来说, 微型燃料电池的构造技术还不十分成熟, 需要进一步开展研究和开发工作。

参考文献

- [1] Broussely M, Archdale G. Li-ion batteries and portable power source prospects for the next 5 - 10 years[J]. *Journal of Power Sources*, 2004, 136(2): 386 - 394.
- [2] Ha S, Adams B, Masel R. A miniature air breathing direct formic acid fuel cell[J]. *Journal of Power Sources*, 2004, 128(2): 119 - 124.
- [3] Dyer C K. Fuel cells for portable applications[J]. *Fuel Cells Bulletin*, 2002, 3: 8 - 9.
- [4] 王诚, 毛宗强, 陈荣华, 等. 小型燃料电池的研究现状与应用前景分析[J]. *化学进展*, 2006, 18(1): 30 - 35.
- [5] Gold S, Chu K L, Lu C, *et al.* Acid loaded porous silicon as a proton exchange membrane for micro-fuel cells[J]. *Journal of Power Sources*, 2004, 135(1/2): 198 - 203.
- [6] Chu K L, Gold S, Subramanian V, *et al.* A nanoporous silicon membrane electrode assembly for on-chip micro fuel cell applications[J]. *Journal of Microelectromechanical Systems*, 2006, 15(3): 671 - 673.
- [7] Pichonat T, Gauthier-Manuel B, Hauden D. A new proton-conducting porous silicon membrane for small fuel cells[J]. *Chemical Engineering Journal*, 2004, 101(1/2/3): 107 - 111.
- [8] Pichonat T, Gauthier-Manuel B. Realization of porous silicon based miniature fuel cells[J]. *Journal of Power Sources*, 2006, 154(1): 198 - 201.
- [9] Lee C Y, Chuang C W. A novel integration approach for combining the components to minimize a micro-fuel cell[J]. *Journal of Power Sources*, 2007, 172(1): 115 - 120.
- [10] 万年坊. 微型聚合物膜燃料电池的结构与性能研究[D]. 北京: 清华大学, 2007: 29.
- [11] Park B Y, Madou M J. Design, fabrication, and initial testing of a miniature PEM fuel cell with micro-scale pyrolyzed carbon fluidic plates[J]. *Journal of Power Sources*, 2006, 162(1): 369 - 379.
- [12] Hsieh S S, Feng C L, Huang C F. Development and performance analysis of a H₂/air micro PEM fuel cell stack[J]. *Journal of Power Sources*, 2006, 163(1): 440 - 449.
- [13] Kim J Y, Kwon O J, Hwang S M, *et al.* Development of a miniaturized polymer electrolyte membrane fuel cell with silicon separators[J]. *Journal of Power Sources*, 2006, 161(1): 432 - 436.
- [14] Lee S J, Lee Y M, Lee C Y, *et al.* The performance of miniature metallic PEM fuel cells[J]. *Journal of Power Sources*, 2007, 171(1): 148 - 154.
- [15] Lu G Q, Wang C Y, Yen T J, *et al.* Development and characterization of a silicon-based micro direct methanol fuel cell[J]. *Electrochimica Acta*, 2004, 49(5): 821 - 828.
- [16] Motokawa S, Mohamedi M, Momma T, *et al.* MEMS-based design and fabrication of a new concept micro direct methanol fuel cell (μ -DMFC)[J]. *Journal of Power Sources*, 2004, 6(6): 562 - 565.
- [17] Yang W M, Chou S K, Shu C. Effect of current-collector structure on performance of passive micro direct methanol fuel cell[J]. *Journal of Power Sources*, 2007, 164(2): 549 - 554.
- [18] Ito T, Kimura K, Kunimatsu M. Characteristics of micro DMFCs array fabricated on flexible polymeric substrate[J]. *Electrochemistry Communications*, 2006, 8(6): 973 - 976.
- [19] Ito T, Kunimatsu M. Fabrication of a micro DMFCs array made of photosensitive glass[J]. *Electrochemistry Communications*, 2006, 8(1): 91 - 94.
- [20] Qiao H, Kunimatsu M, Okada T. Pt catalyst configuration by a new plating process for a micro tubular DMFC cathode[J]. *Journal of Power Sources*, 2005, 139(1/2): 30 - 34.
- [21] Shah K, Shin W C, Besser R S. A PDMS micro proton exchange membrane fuel cell by conventional and non-conventional microfabrication techniques[J]. *Sensors and Actuators B*, 2004, 97(2/3): 157 - 167.
- [22] Lee S J, Chang-Chien A, Cha S W, *et al.* Design and fabrication of a micro fuel cell array with "flip-flop" interconnection[J]. *Journal of Power Sources*, 2004, 112(2): 410 - 418.
- [23] Seyfang B C, Kuhnke M, Lippert T, *et al.* A novel simplified micro-PEFC concept employing glassy carbon micro-structures[J]. *Electrochemistry Communications*, 2007, 9(8): 1958 - 1962.
- [24] Zhang X G, Zheng D, Wang T, *et al.* A preliminary study of a miniature planar 6-cell PEMFC stack combined with a small hydrogen storage canister[J]. *Journal of Power Sources*, 2007, 166(2): 441 - 444.
- [25] Urbani F, Squadrito G, Barbera O, *et al.* Polymer electrolyte fuel cell mini power unit for portable application[J]. *Journal of Power Sources*, 2007, 169(2): 334 - 337. ■