

Single-cathode와 Dual-cathode 미생물연료전지의 탄소원과 질산성질소의 전류발생 특성

장재경^{1*} · 이은영² · 유영선¹ · 이성현¹ · 황지환¹ · 이형모¹ · 김종구¹ · 강연구¹ · 김영화¹
¹국립농업과학원 농업공학부 에너지환경공학과, ²수원대학교 환경에너지공학과

Received : October 19, 2011 / Accepted : November 16, 2011

Electricity Production Performance of Single- and Dual-cathode Microbial Fuel Cells Coupled to Carbon Source and Nitrate. Jang, Jae Kyung^{1*}, Eun Young Lee², Young Sun Ryou¹, Sung Hyoun Lee¹, Jihwan Hwang¹, Hyung Mo Lee¹, Jong Goo Kim¹, Youn Koo Kang¹, and Young Hwa Kim¹. ¹Energy and Environmental Division, National academy of Agricultural Science, Rural Development Administration, Suwon 441-707, Korea, ²Dept. of Environmental Energy Engineering, The University of Suwon, Hwaseong 445-743, Korea – Microbial fuel cells (MFC), devices that use bacteria as a catalyst to generate electricity, can utilize a variety of organic wastes as electron donors. The current generated may differ depending on the organic matter concentrations used, when other conditions, such as oxidant supply, proton transfer, internal resistance and so on, are not limiting factors. In these studies, a single-cathode type MFC (SCMFC) and dual-cathode type MFC (DCMFC) were used to ascertain the current's improvement through an increase in the contact area between the anode and the cathode compartments, because the cathode reaction is one of the most serious limiting factors in an MFC. Also an MFC was conducted to explore whether an improvement in electricity generation resulted from oxidizing the carbon sources and nitrates. About 250 mg L⁻¹ sodium acetate was fed to an anode compartment with a flow rate of 0.326 mL min⁻¹ by continuous mode. The current generated from the DCMFC was higher than the value produced from MFC with a single cathode. COD removal of dual-cathode MFC was also higher than that of single-cathode MFC. The nitrate didn't affect current generation at 2 mM, but when 4 and 8 mM nitrate was supplied, the current in the single-cathode and dual-cathode MFC was decreased by 98% from 5.97±0.13 to 0.23±0.03 mA and 8.40±0.23 to 0.20±0.01 mA, respectively. These results demonstrate that increasing of contact area of the anode and cathode can raise current generation by an improvement in the cathode reaction.

Keywords: Microbial fuel cell, electricity, nitrate, dual-cathode, single-cathode

서 론

미생물연료전지는 전자공여체(electron donor)로 다양한 탄소원을 이용할 수 있으며, 이들을 이용할 수 있는 미생물에 의해 발생하는 전자와 수소이온을 외부회로와 양이온교환막을 통해 양극부로 전달하고 양극부에서 산소와 반응하여 최종적으로 전기에너지와 물이 생성되는 장치이다[2-4, 6, 7, 10]. 매개체 없이 대사과정에서 생성된 전자를 직접 전극으로 전달 할 수 있는 미생물이 있다는 것이 밝혀지면서 미생물연료전지에 대한 연구가 활발하게 진행되었다. 이러한 미생물을 전기화학적으로 활성이 있는 미생물이라고 하며[7, 8]. 이들 미생물을 혐기조건에서 다양한 탄소원을 공급하면

서 농화 배양하여 이용한다. 미생물연료전지의 운전은 미생물 대사과정에서 생성된 전자와 수소이온을 원활하게 양극부로 전달, 양극반응속도($4H^+ + 4e^- + O_2 \rightarrow H_2O$)에 저해되지 않도록 하는 것이 전류발생 효율 향상을 위해서는 중요하다. 이와 더불어 양극부 반응속도에 영향을 미치지 않도록 전자수용체로 사용되는 산소의 적절한 공급과 이것의 친화도를 높이는 일이다. Pham *et al.*(2004)은 양극부에 공급하는 산소의 포화농도에 따른 영향을 실험하였으며, 6.0 mg O₂ L⁻¹ 이상 유지하여야 하나 백금촉매를 사용하였을 때, 양극부 산소 포화농도를 6.0 mg O₂ L⁻¹에서 2.2 mg O₂ L⁻¹으로 감소시킬 수 있다는 연구 결과를 발표하였다[12]. 또한 양극부에 공급한 산소의 농도에 따라 양이온 교환막을 통해 음극부로 확산되는 산소의 농도를 측정하였는데, 양극부 농도가 높을 수록 음극부로 확산되는 산소의 양도 많음을 보였다[12]. 이 결과에서 적절한 산소농도의 제어가 매우 중요하다는 것을 밝혔다. Pham *et al.*(2004)의 연구 결과 이후, 양극부 반응

*Corresponding author

Tel: +82-31-290-1815, Fax: +82-31-290-1840

E-mail: jkjang1052@korea.kr

속도를 증가시키는 것에 대한 연구가 활발히 진행되고 있는데 이러한 이유는 양극부 반응속도를 향상시키는 것이 에너지 발생 및 효율 향상에 미치는 영향이 크기 때문이다. 양극부 산소공급량이 높으면 산소가 음극부로 확산되고, 음극부에 미생물들은 전자수용체로 전극뿐 아니라 산소를 전자수용체를 이용하게 될 것이고, 이는 전류 발생을 떨어뜨리는 원인이 되는 것이다.

실제 폐수에는 유기오염물질뿐 만 아니라 다양한 전자수용체를 포함하고 있을 가능성이 매우 높다. 특히, 가축분뇨처럼 질소성분이 포함되어 있는 폐수를 이용해서 미생물연료전지를 운전할 때, 전자수용체가 존재한다면 처리되는 것만큼 모두 전기에너지로 되지 않아 전류값이 감소하게 될 것이다.

따라서 이 연구에서는 미생물연료전지의 구조변경을 하여, 일반적인 음극부와 양극부 각 한 개로 구성된 것(Single-cathode microbial fuel cell; SCMFC)와 음극부 한 개에 양극부 두 개로 이루어진 미생물연료전지(Dual-cathode microbial fuel cell; DCMFC)를 이용해서 전류발생에 미치는 영향을 확인하였다. 또한 탄소원뿐 만 아니라 전자수용체가 포함되어 있을 때 전류발생에 미치는 영향과 유기오염물질과 질산성질소의 저감 효과를 알아보려고 하였다.

실험 재료 및 방법

미생물연료전지

미생물연료전지는 음극부 한 개에 양극부 한 개로 구성된 single-cathode 미생물연료전지(SCMFC)와 음극부 한 개에 양극부 두 개로 구성된 dual-cathode 미생물연료전지(DCMFC)를 이용하였다(Fig. 1).

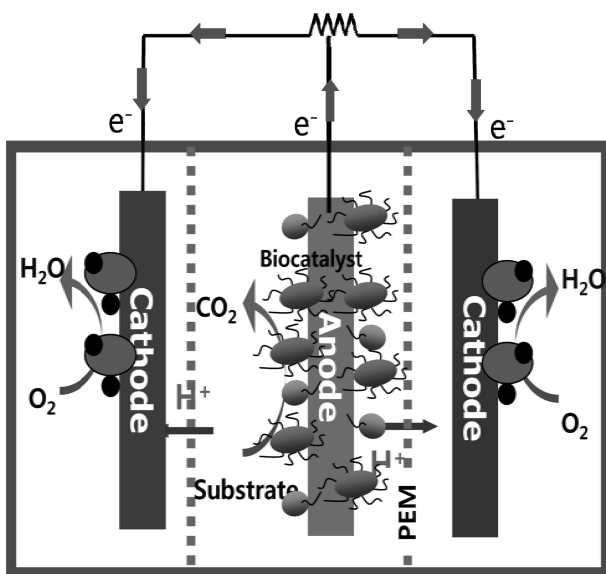


Fig. 1. Schematic diagram of a dual-cathode microbial fuel cell.

두께 60 mm인 탄소전극(GF series, Electrosynthesis, Amherst, NY, USA)을 양극부와 음극부에 사용하였으며 양극부에 사용한 전극은 백금촉매(20% platinum on Vulcan XC-72, E-TEK, NJ, USA)를 이용하여 전극 표면에 로딩($0.73 \pm 0.01 \text{ mg/cm}^2$)한 것을 이용하였다. 양극부와 음극부 사이에는 절연 상태를 만들어주면서 양이온만 선택적으로 전달될 수 있는 전처리된 양이온 교환막을 장착시켰다[8]. 폐수 공급은 연동펌프(505S, Watson-Marlow, Falmouth, Cornwall, UK)를 이용하여 $0.326 \text{ mL min}^{-1}$ 의 유속으로 연속 공급하였다. 양극부에는 공기를 이용하여 포화시킨 증류수를 공급하였다. 미생물연료전지 모두 온도가 일정하게 조절되는 챔버에서 운전하였으며, 온도는 30°C 를 유지하였다.

접종 및 농화배양

접종원으로는 중량하수처리장의 혐기소화액을 이용하였다. 접종액 100 mL을 phosphate buffer(1 M, 30 mL) 및 mineral solution(10 mL), salt solution(10 mL)를 혼합하여 최종 1 L가 되도록 조제한 것을 이용하였다[3]. 펌프를 이용하여 $0.326 \text{ mL min}^{-1}$ 의 유속으로 주입하면서 미생물연료전지 음극부 전극에 충분히 접촉할 수 있도록 하였다. 접종은 저항을 10 ohm으로 연결한 상태에서 접종액을 유입한 후 전압의 변화가 발생하는 것을 확인한 후 약 1시간 정도 더 접종액을 공급한 후 인공폐수로 교체하여 연속공급 하였다. 이때 전압을 측정하여 발생 전압이 S자 모양으로 증가하는 것으로 농화 배양이 되었는지의 여부를 판단하였다.

폐수

인공폐수는 초산나트륨(CH_3COONa)를 이용하여 화학적 산소요구량(chemical oxygen demand, COD)로 환산하여 250 mg L^{-1} 가 되도록 조제하여 사용하였다. 인공폐수는 초산나트륨과 함께 phosphate buffer(1 M)(30 mL) 및 mineral solution(10 mL), salt solution(10 mL)를 혼합하여 최종 1 L가 되도록 조제하여 121°C 에서 15분간 멸균 한 후 질소가스를 이용하여 인공폐수가 실온이 될 때까지 공급하여 혐기 상태가 되도록 하였다. 미생물연료전지를 운전하는 동안에도 배지가 들어있는 용기에 질소가스를 충전한 가스백(gas bag)을 부착하여 운전 중에도 혐기적인 상태가 되도록 하였다.

전류발생 측정 및 폐수 분석

각 미생물연료전지에서 발생하는 전류값은 multimeter (Keithley Instrument Inc., Cleveland, OH, USA)를 이용하여 5분 간격으로 양극부와 음극부 사이의 전압차로 측정하였다. 측정된 전압은 컴퓨터(personal computer)로 전달하고 측정된 전압은 고정된 외부 저항값을 고려하여 $V=IR$ (V: 저항, I: 전류, R: 저항)의 공식에 따라 환산하였다. 화학적 산소 요구량(Chemical oxygen demand, COD)은 HACH의 3개의 서로 다른 농도범위(0-150(LR), 0-1,500(MR), 0-15,000

(HR) ppm)의 kit를 사용하여 측정하였다. 질산성질소(NO_3^-)는 HACH kit 중 Chromotropic acid method에 의해 410 nm에서 흡광 광도계(DR 5000 UV-VIS spectrophotometer, Loveland, CO, USA)를 이용하여 측정하였다.

결과 및 고찰

탄소원에 의한 single-cathode와 dual-cathode 미생물연료전지의 전류발생 양상 비교

250 mg L⁻¹의 인공폐수에 0.326 mL min⁻¹의 유속으로 일정하게 공급하면서 single-cathode와 dual-cathode 미생물연료전지에서 발생하는 전류발생 양상을 확인하였다. Single-cathode 미생물연료전지와 dual-cathode 미생물 연료전지에서 발생하는 전류는 각각 5.77±0.25 mA와 8.32±0.42 mA로 한 개의 음극부에 2개의 양극부로 구성된 dual-cathode 미생물연료전지가 Fig. 2와 같이 더 높게 나타났다.

Gil *et al.*(2003)은 전류발생에 저해 요소로 양극반응을 지적하였으며[2] 이후 다양한 방법들이 시도되었는데 첫째, 백금이나 cobat teramethoxyphenylporphyrin와 같은 촉매를 사용하거나, 둘째, 전해질액을 사용하는 것이다[3, 14]. 최근에는 산소 대신 ferricyanide($\text{Fe}(\text{CN})_6^{3-}$), permanganate (MnO_4^-)와 같은 전자수용체를 이용하여 양극 반응속도를 증가시키는 연구가 시도되었다[12, 13]. 그러나 이들 방법은 독성화합물인 시안화합물을 포함하고 있거나 부영양화의 원인 물질을 포함하고 있어 환경에 유해한 영향을 미치기 때문에 지속적인 사용에 부적합하여 실용화에는 한계가 있다. 그러나 본 연구는 기존의 미생물연료전지의 구조를 바꾸어 양극부를 한 개 더 장착함으로써 양극부로부터 음극부로 산소가 확산되어 전류가 감소할 수 있다는 것을 감안하고도 약 40% 이상 전류 발생을 향상시킬 수 있었다. 이 결과는 음극부와 양극부의 접촉면적이 증가된 것과 양극부 oxidant의 공급이

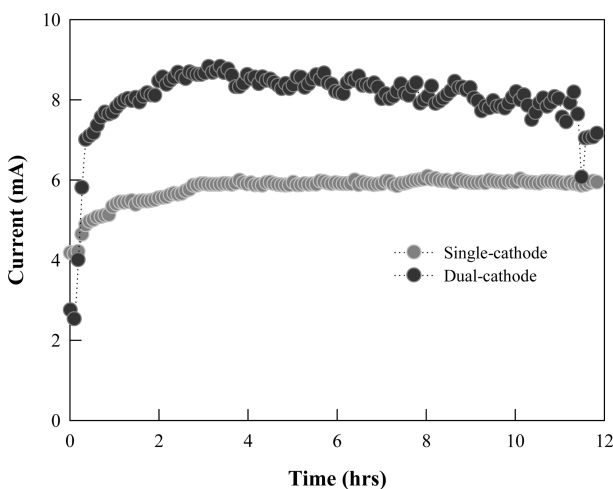


Fig. 2. Comparison of current generation of single-cathode and dual-cathode microbial fuel cells as fed only AWW.

증가되어 양극반응속도가 향상된 것으로 판단된다.

Single-cathode와 dual-cathode 미생물연료전지에서의 화학적산소요구량 제거능

250 mg L⁻¹ 인공폐수에 0, 2, 4, 그리고 8 mM의 KNO_3 가 되도록 조제된 fuel을 0.326 mL min⁻¹ 유속으로 공급하면서 화학적 산소 요구량(COD)을 이용하여 제거능을 산출하였다(Fig. 3).

탄소원만 포함한 경우, COD 제거능도 전류발생에서 보여준 것과 마찬가지로 dual-cathode 미생물연료전지에서 더 높게 나타났다. 이와 마찬가지로 2 mM KNO_3 를 포함하는 인공폐수를 이용한 경우에서도 dual-cathode 미생물연료전지의 COD 제거량이 single-cathode 미생물연료전지보다 약 13% 더 높은 것으로 나타났다. 그러나 4 mM과 8 mM KNO_3 를 공급할 때는 single-cathode 미생물연료전지나 dual-cathode 미생물연료전지 모두 COD는 질산성질소의 농도가 증가하면서 증가하는 것으로 나타났으며, 두 개의 다른 타입의 미생물연료전지 모두 95% 이상의 COD 제거율을 보였다. COD 제거능은 Fig. 3과 같이 거의 똑같이 나타났다.

질산성질소가 전류발생에 미치는 영향

이 연구는 인공폐수를 공급하면서 안정된 전류가 발생될 때, KNO_3 를 이용하여 최종 농도로 2 mM이 되도록 첨가하여 KNO_3 에 의한 전류 발생은 없는지 알아보았다. Fig. 4에 나타난 것과 같이 2 mM KNO_3 를 첨가하였을 때, 전류값은 single-cathode 미생물연료전지는 5.93±0.04 mA에서 5.70±0.28 mA으로 약 0.2 mA정도의 차이를 보였으며, dual-cathode 미생물연료전지의 경우는 8.29±0.33에서 8.30±0.45 mA로 거의 변화가 없었다(Fig. 4).

따라서 KNO_3 가 전류 발생에 이용되는 에너지원으로 사

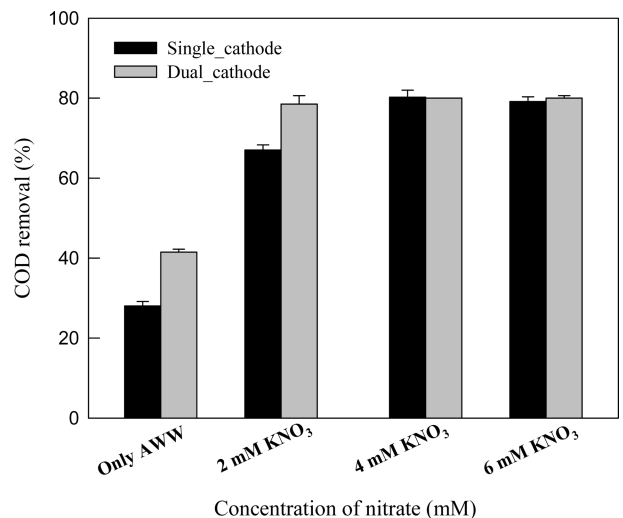


Fig. 3. COD removal as fed AWW with 0, 2, 4 and 8 mM KNO_3 using the SCMFC and DCMFC.

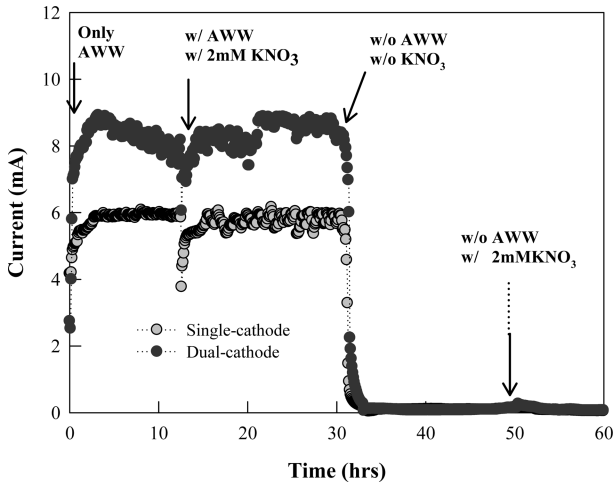


Fig. 4. Current generation by itself KNO_3 .

용되는지의 여부를 확실히 알아보기 위하여 인공폐수와 KNO_3 모두 공급하지 않으면서 전류발생을 관찰하다가 인공 폐수를 포함하지 않는 2 mM KNO_3 만을 공급하면서 전류발생 양상을 관찰하였다. KNO_3 만 공급하였을 때, single-cathode와 dual-cathode 미생물연료전지 각각 0.095 ± 0.002 에서 0.141 ± 0.025 mA로 그리고 0.084 ± 0.007 에서 0.154 ± 0.047 mA으로 일시적으로 증가하는 듯 하였으나 다시 감소하여 single-cathode와 dual-cathode 미생물연료전지 모두 차이가 없었다. 이때 전류값은 인공폐수와 KNO_3 모두 공급하지 않았을 때와 거의 비슷하였다. 이 실험 결과로 KNO_3 에 의한 전류 발생은 없는 것으로 나타났다. 이는 초기 단계에서 질소가 함유되지 않은 인공폐수를 이용하여 농화 배양되어 질소를 분해하는 미생물이나 그로부터 전기에너지를 발생시킬 수 있는 미생물이 부재에 의한 것으로 생각된다. 그러나 주된 이유는 Morris *et al.*(2009)의 결과에서 보여준 것과 같이 [11] 음극부에 NO_3 나 SO_4 가 전자수용체로 이용될 수 있다는 것과 이들 이온들이 존재할 때 coulomb yield가 감소되었다는 연구결과로부터 생물학적인 분해에 의해 전기에너지를 생산하는 것보다는 이들 이온이 음극부에 존재할 때 전류 감소가 더 큰 것이 원인이라고 생각된다[1, 5].

질산성질소를 포함한 폐수공급에 따라 single-cathode와 dual-cathode 미생물연료전지로부터 전류 발생 비교

실제 폐수에는 다양한 전자수용체가 포함되어 있을 수 있어 전류 발생을 감소시킬 수 있다. 특히, 가축분뇨에는 질소 이온 종류(NH_4^+ , NO_2^- , 그리고 NO_3^-)가 높은 농도로 함유되어 있어 이들의 저해현상을 제어하기 위해서는 이들 전자수용체가 전류에 미치는 영향을 알아볼 필요가 있다. 따라서 이 연구에서는 질산성질소의 농도 변화에 따른 전류 발생에 미치는 영향을 확인하고 single-cathode와 dual-cathode 미생물연료전지에서는 어떤 양상으로 나타나는지를 확인하기 위한 것이다. 250 mg L^{-1} 탄소원에 0, 2, 4 그리고 8 mM

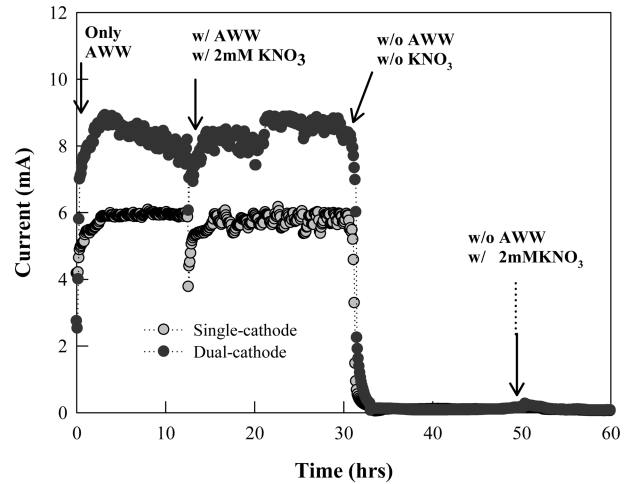


Fig. 5. Effect of 0, 2, 4, and 8 mM nitrate concentration on the current generation using the single-cathode and dual-cathode MFCs.

KNO_3 이 되도록 조제한 인공폐수를 이용하여 전류발생에 미치는 영향을 관찰하였다(Fig. 5).

양극부에서 확산된 산소는 전류감소에 영향을 미친다는 결과에 따라 산소 이외의 다른 전자수용체가 음극부에 존재하는 경우, 전자가 전극으로 전달되어 외부 회로를 거쳐 양극부로 전달되는 것 대신 우선적으로 음극부에 포함된 전자수용체를 이용할 것이기 때문에 질산성질소 농도에 따른 영향을 알아본 것이다. 0과 2 mM KNO_3 를 포함하는 인공폐수를 공급하였을 때, single_cathode 미생물연료전지에서는 각각 5.97 ± 0.13 mM과 5.85 ± 0.19 mM가 발생되었으며, dual-cathode 미생물연료전지에서는 8.40 ± 0.23 mM와 7.91 ± 0.38 mM가 발생되어 35~44%의 전류발생량이 컸다. 그러나 질산성질소의 농도가 4 mM 이상 증가시켰을 때는 single-cathode와 dual-cathode 미생물연료전지 모두에서 전류 감소 현상이 두드러지게 나타났으며, 8 mM KNO_3 를 공급하였을 때는 0.3 mA 이하로 탄소원만 공급하였을 때보다 전류값이 96% 감소되었다. 이와 같이 전류 발생이 감소된 것은 Morris *et al.*과 Jang *et al.*(2012) 결과와 마찬가지로 KNO_3 가 전자수용체로 작용하여 저해 요소로 작용한 것을 보여주는 것이다[5, 9, 11]. 질산성질소의 제거량을 측정된 결과, 0, 2, 4, 그리고 8 mM 질산성 질소를 공급하면서 single-cathode와 dual-cathode 미생물연료전지에서 차이가 거의 없는 것이 유사한 경향으로 제거되었다(Fig. 6).

2 mM KNO_3 에서는 약 93%였으며, 4 mM KNO_3 에서는 97% 정도로 single-cathode와 dual-cathode 차이 없이 제거되는 것으로 나타났다. 그러나 8 mM에서는 single-cathode와 dual-cathode 미생물연료전지 모두 약 63%로 제거율이 감소되었다. 이것은 질산성질소가 전기화학적 반응 즉, 음극부에서 미생물의 작용에 의해 탄소원으로부터 생성된 전자의 sink로 이용되어 전류발생의 증가 없이 탄소원의 분해에 저

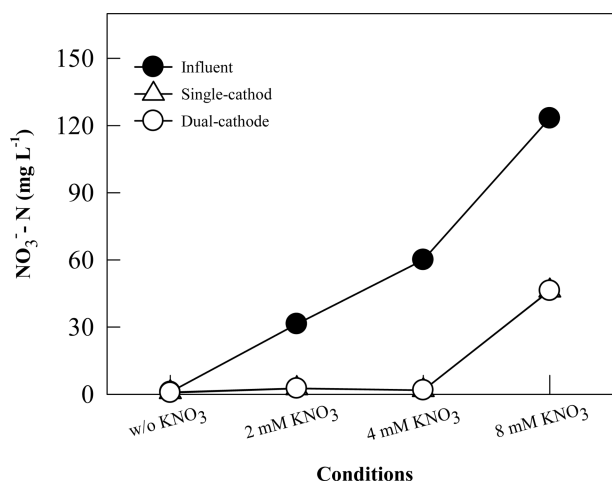


Fig. 6. Change of effluent nitrate concentration at 0, 2, 4, and 8 mM KNO₃. This figure was cited from abstract no. 110771 of 2011 ASABE.

해 없이 지속적으로 감소한 것을 보여준 것으로 판단된다.

요 약

이 연구에서는 일반적인 음극부 한 개에 양극부 한 개로 구성된 single-cathode 미생물연료전지(SCMFC)와 음극부 한 개에 양극부 두 개로 이루어진 dual-cathode 미생물연료전지(DCMFC)를 이용하여 전류발생에 미치는 영향을 확인하였다. 이 결과 dual-cathode 미생물연료전지에서 single-cathode 미생물연료전지 보다 전류발생이 약 40% 높았으며 COD 제거율도 약 13% 더 높은 것으로 확인되었다. 이것은 양극부와 음극부의 접촉면적이 증가하여 양극반응속도가 향상된 것에 의한 것으로 판단되며 dual-cathode 미생물연료전지가 single-cathode보다 전류발생과 COD제거 측면에서 더 효율이 높은 것으로 나타났다. 음극부 전자수용체에 대한 영향 실험에서는 전자수용체로 사용된 질산성질소의 농도가 높아질수록 급격히 전류발생이 감소하는 것을 확인 할 수 있었으며, 이에 대한 적절한 처리가 필요한 것으로 나타났다.

Acknowledement

This research was supported by the research program for “Agricultural Science and Technology Development (Project No. PJ0064112011)”, National Academy of Agricultural Science, Rural Development Administration, Republic of Korea.

REFERENCES

1. Chang, I. S., H. Moon, J. K. Jang, and B. H. Kim. 2005.

- Improvement of a microbial fuel cell performance as a BOD sensor using respiratory inhibitors. *Biosensors and Bioelectronics* **20**: 1856-1859.
2. Gil, G. C., I. S. Chang, B. H. Kim, M. Kim, J. K. Jang, H. S. Park, and H. J. Kim. 2003. Operational parameters affecting the performance of a mediator-less microbial fuel cell. *Biosens. Bioelectron.* **18**: 327-324.
3. Jang, J. K., T. H. Pham, I. S. Chang, K. H. Kang, H. Moon, K. S. Cho, and B. H. Kim. 2004. Construction and operation of a novel mediator- and membrane-less microbial fuel cell. *Process Biochem.* **39**: 1007-1012.
4. Jang, J. K., I. S. Chang, H. W. Hwang, Y. F. Choo, J. Lee, K. S. Cho, B. H. Kim, and K. H. Neelson. 2010. Electricity generation coupled to oxidation of propionate in a microbial fuel cell. *Biotechnology letters.* **32**: 79-85.
5. Jang, J. K., J. E. Choi, Y. S. Ryou, S. H. Lee, E. and Y. Lee. 2012. Effect of ammonium and nitrate on the current generation using dual-cathode microbial fuel cells. *J. Microbiol. Biotechnol.* Doi: 10.4014/jmb.1110.10040
6. Kim, B. H., H. J. Kim, M. S. Hyun, and D. H. Park. 1999(B). Direct electrode reaction of Fe (III) reducing bacterium, *Shewanella putrefaciens*. *J. Microbiol. Biotechnol.* **9**: 127-131.
7. Kim, B. H., T. Ikeda, H. S. Park, H. J. Kim, M. S. Hyun, K. Kano, K. Takagi, and H. Tatsumi. 1999(A). Electrochemical activity of a Fe (III)-reducing bacterium, *Shewanella putrefaciens* IR-1, in the presence of alternative electron acceptors. *Biotechnol. Tech.* **13**: 475-478.
8. Larminie, J and A. Dicks. 2000. Fuel cell systems explained. pp. 66-68. 1st Ed. John Wiley and Sons, West Sussex, England.
9. Li, J., Q. Fu, X. Zhu, Q. Liao, L. Zhang, and H. Wang. 2010. A solar regenerable cathodic electron acceptor for microbial fuel cells. *Electrochimica Acta.* **55**: 2332-2337.
10. Logan, B. E., B. Hamelers, R. Rozendal, U. Schroder, J. Keller, S. Freguia, P. Aelterman, and K. Rabaey. 2006. Microbial fuel cells: Methodology and technology. *Environ. Sci. Technol.* **40**: 5181-5192.
11. Morris, J. M., S. Jin. 2009. Influence of NO₃ and SO₄ on power generation from microbial fuel cells. *Chemical Engineering Journal.* **153**: 127-130.
12. Pham, T. H., J. K. Jang, I. S. Chang, and B. H. Kim. 2004. Improvement of cathode reaction of a mediatorless microbial fuel cell. *J. Microbiol. Biotechnol.* **14**: 324-329.
13. You, S., Q. Zhao, J. Zhang, J. Jiang, and S. Zhao. 2006. A microbial fuel cell using permanganate as the cathodic electron acceptor. *Journal of Power Source.* **162**: 1409-1415.
14. Zhao, F., F. Harnisch, U. Schroder, F. Scholz, P. Bogdanoff, and I. Herrmann. 2005. Application of pyrolysed iron (II) phthalocyanine and CoTMPP based oxygen reduction catalysts as cathode materials in microbial fuel cells. *Electrochemistry Communications.* **7**: 1405-1410.