Trans. of the Korean Hydrogen and New Energy Society(2014. 8), Vol. 25, No. 4, pp. 378~385
DOI: http://dx.doi.org/10.7316/KHNES.2014.25.4.378
ISSN 1738-7264
eISSN 2288-7407

고분자전해질연료전지를 위한 그래핀 기반 PtM 촉매들의 산소환원반응성 연구

양종원[1] · 최장군[1] · 조한익[2] · 박종진[3] · 권용재[1†]
[1]서울과학기술대학교 에너지환경대학원, [2]한국과학기술연구원, [3]코오롱환경서비스

A Study on Oxygen Reduction Reaction of PtM Electrocatalysts Synthesized on Graphene for Proton Exchange Membrane Fuel Cell

JONGWON YANG[1], CHANGKUN CHOI[1], HAN-IK JOH[2], JONG JIN PARK[3], YONGCHAI KWON[1†]
[1]Grad. School of Energy and Environment, Seoul National University of Science and Technology, 232 Gongreung-ro, Nowon-gu, Seoul 139-743, Korea
[2]Korea Institute of Science and Technology (KIST), Carbon Convergence Materials Research Center, Hwarang-ro 14-gil 5, Seongbuk-gu, Seoul 136-791, Korea
[3]KOLON tower annex, 13, Kolon-ro, Gwachun-si, 427-709, Gyeonggi-do, Korea

Abstract >> In this research, we investigate electrical performance and electrochemical properties of graphene supported Pt (Pt/G) and PtM (M = Ni and Y) alloy catalysts (PtM/Gs) that are synthesized by modified polyol method. With the PtM/Gs that are adopted for oxygen reduction reaction (ORR) as cathode of proton exchange membrane fuel cells (PEMFCs), their catalytic activity and ORR performance and electrical performance are estimated and compared with one another. Their particle size, particle distribution and electrochemically active surface (EAS) area are measured by TEM and cyclic voltammetry (CV), respectively. On the other hand, regarding ORR activity and electrical performance of the catalysts, (i) linear sweeping voltammetry by rotating disk electrode and rotating ring-disk electrode and (ii) PEMFC single cell tests are used. The TEM and CV measurements demonstrate particle size and EAS of PtM/Gs are compatible with those of Pt/G. In case of PtNi/G, its half-wave potential, kinetic current density, transferred electron number per oxygen molecule and H_2O_2 production % are excellent. Based on data obtained by half-cell test, when PEMFC singlecell tests are carried out, current density measured at 0.6V and maximum power density of the PEMFC single cell employing PtNi/G are better than those employing Pt/G. Conclusively, PtNi/Gs synthesized by modified polyol shows better ORR catalytic activity and PEMFC performance than other catalysts.

Key words : Modified polyol(수정된 폴리올법), Proton exchange membrane fuel cell(고분자전해질연료전지), PtM catalyst(백금합금촉매), Graphene(그래핀), ORR(산소환원반응성)

1. 서 론

연료전지 시스템은 에너지 변환효율이 높고 이산화탄소 저감을 유추하는 친환경적인 것이므로 현재

†Corresponding author : kwony@seoultech.ac.kr
[접수일 : 2014.07.17 수정일 : 2014.07.25 게재확정일 : 2014.08.31]
Copyright ⓒ 2014 KHNES

우리 지구가 직면하고 있는 에너지고갈, 환경오염 및 기상이변과 관련된 문제를 완화할 수 있는 대안중의 하나로 고려된다[1,2]. 이러한 연료전지 중에서도 고분자전해질연료전지(Proton Exchange Membrane Fuel Cell; PEMFC)가 다양한 장점 때문에 가장 활발히 연구된다. 이러한 PEMFC는 수소의 산화 반응과 산소의 환원 반응을 통해 화학적 에너지를 전기적 에너지로 전환하는 에너지 변환 장치로서 낮은 작동온도 (100°C 이하에서 구동), 높은 출력밀도 및 높은 출력범위로 인해, 휴대용 전자기기의 전원장치부터 수송용 및 발전용 전력공급까지 그 응용분야가 다양하다[1-3].

PEMFC는 크게 수소의 산화반응(Hydrogen Oxidation Reaction; HOR)이 발생하는 연료극(Anode)과 산소의 환원반응(Oxygen Reduction Reaction; ORR)이 일어나는 공기극(Cathode) 및 그 사이의 수소양이온이 통과하는 막으로 구성되어 있다. 연료전지 성능을 향상시키기 위해서는 산화 및 환응 반응의 반응속도를 증가시켜야 한다. 반응속도의 증가를 통한 PEMFC의 성능향상을 위해서는 특히 율속반응의 반응성을 향상시켜야 하며 이를 위해, 반응을 위한 활성화에너지를 낮춰야 한다. 그 동안의 연구결과, ORR이 율속반응임을 알게 되었다(HOR이 ORR 보다 약 5배 이상 빠른 것으로 보고되었다). 이러한 ORR 활성화에너지를 낮추기 위해 그 동안은 고가의 백금(Pt) 촉매를 사용하였다. 하지만 백금촉매는 비싼 귀금속이여서 PEMFC 상업화에 큰 걸림돌이 되고 있다. PEMFC의 대표적인 응용처인 연료전지 자동차의 경우, 현재의 백금가격을 고려할 때, 2015년까지 사용량을 현재의 절반 이하 수준으로 줄여야 한다. 그러므로 이러한 고가의 귀금속 백금 촉매를 대체하는 신규 촉매가 필요하고, 백금 함유량은 낮추면서 활성과 내구성은 향상된 촉매가 적절한 대안으로 제시되고 있다[3,4].

이러한 목표에 입각해서, 촉매개발은 크게 금속촉매 및 담지체 물질을 조정하는 것과 촉매합성 방법을 개선하는 접근으로 분류할 수 있다. 촉매자체의 물질을 조정하는 방법으로는 백금 표면을 보조금속으로 합금시키는 방법과 담지체로 사용되는 탄소의 종류를 바꾸는 것이 가장 적절하다. 이러한 보조금속으로는 주로 전이금속(Ni, Co, Cu, Fe)이 주로 쓰이고 있고 근래에 희토류 금속인 Y나 Sc도 이용되고 있다[5,6]. 또한 담지체로는 일반적으로 사용되는 카본블랙(Carbon Balck) 뿐 아니라 탄소나노튜브(CNT), 다공성 탄소 (Ordered mesoporous carbon; OMC) 및 그래핀(Graphene) 등이 이용되고 있다[7,8].

본 연구에서는 촉매입자로 백금 표면을 보조금속으로 합금시킨 것을 담지체로 그래핀을 이용하여 ORR용 촉매를 합성하였다. 보조금속으로는 전이금속인 Ni과 희토류 금속인 Y를 이용하였다. 담지체인 그래핀은 흑연(Graphite)과 탄소 2중 결합을 뜻하는 -ene가 결합된 용어로 세계에서 가장 얇은 소재로 탄소동소체로, 그래핀을 구성하고 있는 탄소는 4개의 최외각 전자를 가지고 있으며 그 중 3개는 sp2 혼성오비탈을 형성하여 강한 공유결합인 σ 결합을 이루고 나머지 1개의 전자는 다른 탄소 원자의 전자 1개와 함께 π 결합을 형성하여 육각형 벌집 모양의 2차원 구조체를 이룬다. 이러한 특징에 의해 그래핀은 전자전도성이 우수하고 타 물질과의 결합이 우수한 특징을 가지므로 본 연구에서 이용되었다[9].

한편, 본 연구를 위해 촉매합성 방법의 경우에도 기존에 가장 많이 이용되었던 함침법(impregnation)이 아닌 폴리올법(Polyol) 이 이용되었다[10]. 이 합성법은 촉매입자 크기의 통제가 용이하고 표면활성제나 안정제 없이도 촉매 입자들의 배열을 일정하게 하는 장점이 있다. 이는 에틸렌글리콜의 연속환원 반응성 때문에 기인한다. 에틸렌글리콜의 적용에 의해 금속 전구체내 이온은 금속 콜로이드형태로 환원되며 에틸렌글리콜은 글리콜산으로 산화된다. 글리콜산은 염기용매 하에서 글리콜 음이온으로 탈양성자화 되면서 금속 표면에 흡착되어 촉매 안정제 및 표면활성제로서의 역할을 한다. 이 때문에 금속입자 간격의

균일함이 유지되고 글리콜음이온 농도에 따라 금속 입자 크기가 조절된다. 글리콜음이온 농도는 pH 증가에 의해 같이 증가하므로 pH 조절을 통해 촉매입자의 간격 및 크기를 조절할 수 있다[10].

본 논문에서는 기존의 ORR 반응 활성을 통한 연료전지 공기극 및 PEMFC 성능 향상을 위해, 촉매자체의 구성을 조정하고 또한 촉매합성 방법을 개선하는 등의 2가지 변화를 시도하였다. 기존의 백금 촉매 사용을 줄이기 위해 Pt-Ni 및 Pt-Y의 합금 촉매를 이용하였고 촉매 성능 향상을 위한 담지체로 그래핀을 이용하였다. 또한 촉매 합성 방법 개선을 위해 기존의 폴리올법을 수정한 수정된 폴리올법을 이용하여 촉매합성을 진행하였다. 이렇게 합성된 공기극 촉매들의 촉매활성 및 구조적인 특성들이 평가되었고 이 촉매들을 이용한 완전지 성능 평가도 실시하였다.

2. 실험방법

그래핀을 담지체로 이용하는 PtM (M= Ni, Y) 구조의 촉매가 수정된 폴리올법에 의해 제조되었다. 우선 그래핀산화물(Graphene oxide; GO)에서 환원반응에 의해 산화물을 제거하여, 그래핀을 얻는다[11]. 에틸렌글리콜에 이렇게 얻은 그래핀 0.13g을 섞고 초음파로 분산시킨다. $PtCl_4$ 0.112g 및 $NiCl_2 \cdot 6H_2O$ 0.886g 및 YCl_3 0.846g을 담지체가 있는 비이커에 각각 첨가하고 다시 15분간 초음파처리 시킨다. 그 이후, 0.1M NaOH를 넣고 다시 15분간 초음파처리 시키고, 160°C로 미리 예열된 교반맨틀에서 환류 시킨다. 이렇게 얻어진 용액을 비이커에 담고 0.5M 황산을 이용하여 pH 2 까지 적정한다. 그 후에 증류수를 이용하여 여과 및 세척한 후 160°C에서 진공오븐에서 12시간 건조시킨다.

공기극 촉매의 환원반응 활성을 측정하기 위해 정전위기(CHI 7200, CH Instrument, USA)를 이용하여 다양한 반전지 반응특성을 평가하였다. 주로 반복주사 전압-전류법(Cyclic Voltammetry, CV) 및 선형주사 전압-전류법(Linear Sweep Voltammetry, LSV)를 이용하였는데 LSV 측정의 회전디스크형(Rotating Disk Electrode, RDE)의 전극 조건하에서 실험을 실시하였다. 반전지 특성 측정을 위한 기준전극으로는 3M의 KCl에 담궈진 Ag/AgCl 전극이 상대전극으로는 백금 와이어가 사용되었다. 작업전극을 제작하기 위해 촉매입자들을 이소프로판올과 5wt% 나피온(Solution Technology, Inc., 1100EW)용액에 용해시켜 초음파를 이용하여 10분간 섞어준다. 이렇게 제조한 촉매잉크를 유리탄소전극(Glass Carbon Electrode, GCE)에 적정량을 로딩시킨다. 전해질로는 1M 황산을 이용하였다.

공기극 촉매의 환원반응 활성 테스트 후에 그 촉매들이 PEMFC 성능에 미치는 영향을 측정하기 위해 완전지 테스트가 진행되었다. PEMFC 완전지 테스트를 위해 막전극(Membrane Electrode Assembly, MEA) 제조가 필요하다. 제조된 막전극의 유효면적은 $5cm^2$이고 본 연구를 통해 만들어진 촉매들은 공기극에, 상용 Pt/C (Johnson Matthey Pt 40 wt%) 촉매는 연료극에 로딩된다. 또한 막전극용 막으로는 나피온 212 (Dupont사, 미국)가 이용되었다. 막전극의 촉매층을 만들기 위해 필요한 잉크는 금속입자, 5wt% 나피온, 증류수와 이소프로필알코올을 적당량 섞고 초음파로 분산한 후 공기 스프레잉 방식으로 나피온 막 표면에 코팅되는 CCM (Catalyst Coated Membrane) 법으로 제조되었다. 연료극 및 공기극에 코팅되는 촉매량은 $0.4mg/cm^2$이었고 가스확산층(GDL E-Tek)과 가스켓을 이용하여 MEA 조립을 완료하였다. PEMFC 완전지 성능 측정을 위해 단위전지 조립을 마친 후, 그 전지는 연료전지 테스트스테이션(Fuel Cell Control System, CNL Inc.)에 연결한다. 단위전지 온도는 65°C, 1atm조건하에서 운전한다. 연료극 및 공기극 연료인 수소 및 산소가스는 상대습도 100%하에서 운전하였다.

3. 결과 및 토론

3.1 PtM 촉매의 구조 평가

해당 연구를 위해 준비한 촉매들인 백금-그래핀 (Pt/G) 및 백금합금-그래핀(PtM/G (M = Ni, Y)) 촉매들의 분산도 및 입자크기를 정성적으로 평가하기 위해 TEM 분석을 실시하였다. Fig. 1에 나타난 것은 TEM으로 측정된 Pt/G, PtNi/G 및 PtY/G 촉매들의 이미지다. 분석 결과 Pt/G 촉매뿐 아니라 PtM/G 촉매들도 금속 입자들이 상대적으로 잘 담지되었음을 알 수 있다.

Pt 기반 촉매들의 전기화학적 활성 표면적(Electrochemically Active Surface Area, EAS)을 측정하기 위해서는 CV 테스트를 실시하였다. CV 테스트는 질소 가스 조건에서 실시되었고 전해질로는 1M 황산 수용액이 이용되었다. 주사속도는 10 mVs^{-1}였다. 3가지 다른 종류의 촉매들(Pt/G, PtNi/G 및 PtY/G)의 CV 커브는 Fig. 2에 나타내었다. 모든 촉매들의 EAS는 CV 커브와 다음 식에 의해 얻어졌다.

$$EAS = Q/mq \quad (1)$$

여기서 Q는 촉매 입자내에 흡착된 수소의 전하량이고 q는 Pt 표면에 흡착된 수소층의 형성을 위해 필요한 전하량이며, m은 금속촉매의 로딩량이다. 수소의 단일층이 Pt 표면위에 흡착된다는 가정하에, q는 210μCcm^{-2}이다. 이러한 방식으로 계산된 Pt/G, PtNi/G 및 PtY/G 촉매들의 EAS는 각각 182.6m^2g^{-1}, 264.4m^2g^{-1} 및 195.6m^2g^{-1}이다. 이를 통해 PtNi/G촉매의 활성표면적이 가장 높은 것을 확인할 수 있다.

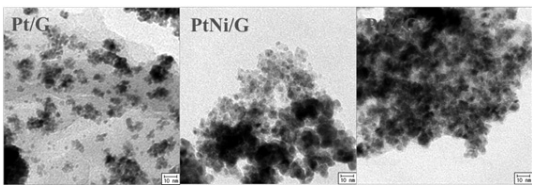

Fig. 1 TEM images of Pt/G, PtNi/G and PtY/G catalysts

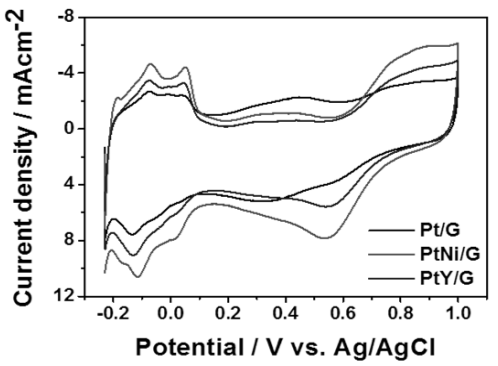

Fig. 2 CVs of Pt/G, PtNi/G and PtY/G catalysts that were recorded in N_2 saturated state. 1M H_2SO_4 was used as an electrolyte and the all CVs were implemented at room temperature with scan rate of 50mV/s

3.2 PtM 촉매의 촉매활성 및 ORR 반응성 평가

PtM/G (M = Ni, Y) 촉매의 활성 및 ORR 반응성을 측정하기위해 회전원판전극(RDE) 및 회전 고리-원판 전극(Rotating Ring Disk Electrode, RRDE)을 이용한 LSV를 측정하였다. Fig. 3은 촉매들의 RDE를 이용한 LSV 커브 결과들을 보여준다. 각 촉매들의 한계전류밀도(Limiting current density)와 반파장 전위차(Half-wave potential)에 대한 결과는 Table 1에 요약하였다.

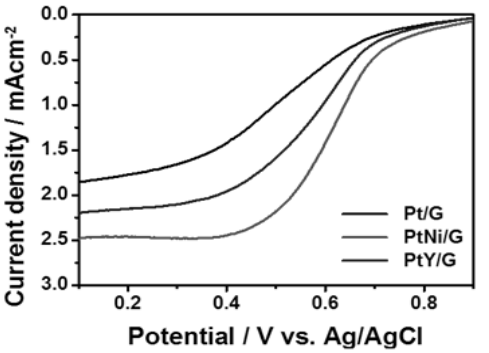

Fig. 3 LSV curves using RDE of Pt/G, PtNi/G and PtY/G catalysts that were recorded in O_2-saturated state. 1M H_2SO_4 was used as an electrolyte and the all tests were implemented at room temperature and rotating speed for the tests was 1200rpm

Table 1 LSV data

	Half wave potential (V)	Limitting current density ($mAcm^{-2}$)
Pt/G	0.46	1.86
PtNi/G	0.54	2.48
PtY/G	0.48	2.20

반파장 전위차의 경우, PtNi/G가 가장 좋은 값(0.54V)을 보여줬고, PtY/G가(0.48V), Pt/G 촉매가 가장 낮은(0.46V)를 나타내었다. PtNi/G의 경우 반파장 전위차가 가장 좋은 값을 나타내는데 이는 PtNi/G 촉매의 ORR 반응에서 발생되는 과전압(overpotential)이 적기 때문이다.

ORR 반응에 대한 PtM/G 촉매의 효과를 심화해서 평가하기 위해, 각 촉매들의 산소분자당 전이되는 전자 개수, n값과 속도론적 전류밀도(Kinetic current density), j_k를 측정하였다. n 값과 i_k값은 모두 쿠테키-레비치식(Koutechy-Levich, K-L식)을 적용함으로써 다음과 같은 식을 통해 얻을 수 있었다[12].

$$1/j = 1/j_k + 1/Bw^{0.5} \quad (2)$$

여기서 j와 ω는 가해진 전류밀도 및 RDE 회전속도이다. 이 식의 1/j 와 $1/\omega^{0.5}$를 축으로 하여 직선을 그리면 그 직선의 y절편 값($1/j_k$)및 기울기 값(1/B) 으로부터 원하는 값들인 j_k 및 B값을 구할 수 있다. 일단 B값이 정해지면 n값은 다음의 레비치 식(Levich)에 의해 계산되어진다[13].

$$n = B/0.2F(D_{O_2})^{2/3}V^{-1}/6C_{O_2} \quad (3)$$

여기서 F는 Faraday상수이며(96485C/mol)이다. D_{O2}는 1M H_2SO_4 전해질 상에서 산소가스의 확산계수($1.4x10^{-4}cm^2/sec$)이다. ν는 동점도($0.01cm^2/sec$)이며 C_{O2}는 산소가스의 벌크농도($1.87x10^{-6}mol/cm^3$)이다. 상수 0.2는 회전속도가 실험조건의 rpm 일때의 보정상수이다[12,13].

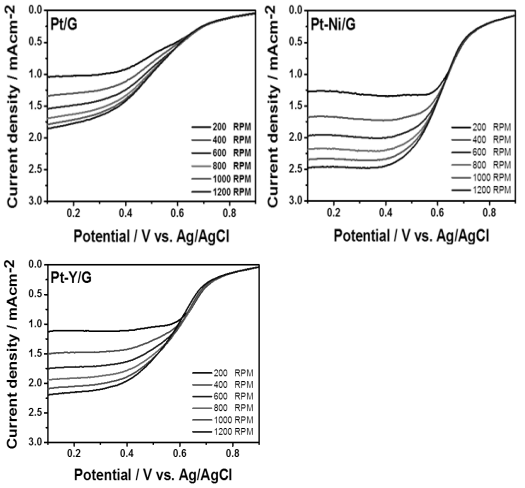

Fig. 4 LSV curves gained by changes in the rotation speed of RDE in Pt/G, PtNi/G, and PtY/G catalysts. Rotation speed of the RDE was varied from 200 to 1200 rpm. For the tests, 1M H_2SO_4 solution was used as an electrolyte in O_2-saturated state with scan rate of $10mVs^{-1}$

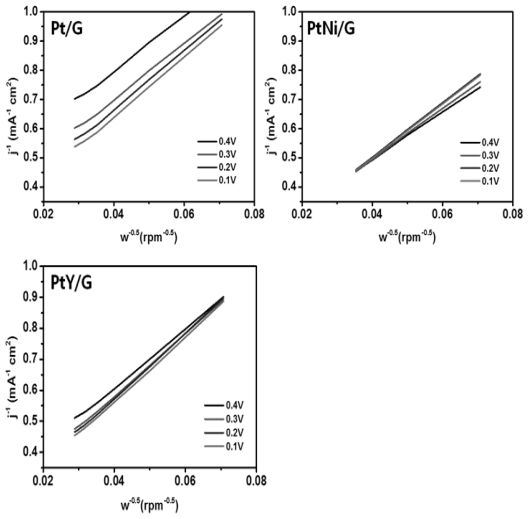

Fig. 5 Koutecky-Levich (K-L) plots showing the linear relationship between 1/j and $1/\omega^{0.5}$ of Pt/G, PtNi/G, and PtY/G catalysts

j_k 및 B 값을 통한 n 값을 얻기위해 다양한 RDE rpm 하에서 LSV 커브를 구했다. Fig. 4와 5는 그러한 다양한 rpm에서 시도된 LSV와 그 LSV 커브들을 통해 얻은 1/j와 $1/\omega^{0.5}$를 축으로 결과를 얻은 그림들

을 나타내었다. Fig. 4에서 얻은 세가지 촉매물질들의 LSV 커브들은 전극 회전 rpm을 200에서 1200까지 변화시켰고, Fig. 5의 직선들은 0.1-0.4V vs. Ag/AgCl 조건에서 정리되었다. 평가결과, 각 촉매들의 산소분자당 전이되는 전자 개수 n값은 각각 3.69 (PtNi/G), 3.34 (PtY/G) 및 3.32 (Pt/G)였다. 모든 촉매가 이상적인 n 값인 4에 근접하였다. 이는 모든촉매들이 산소의 환원반응에서 중간물질인 H_2O_2를 거치지 않고 직접 목적생성물인 H_2O를 얻는 바람직한 환원 반응성이 좋았다는 것을 의미한다.

산소의 환원반응에서 중간물질인 H_2O_2를 거치지 않고 바로 목적생성물인 H_2O를 얻는 바람직한 환원반응의 정도가 높을수록 ORR 촉매로서 유리하다. 이러한 각 촉매물질들의 환원반응 선택성을 평가 하기 위해 RRDE법을 이용하여 H_2O_2 생성율을 측정하였고 Fig. 6에 그 결과가 나타나 있다. H_2O_2생성율은 다음식을 이용하여 계산하였다.

$$H_2O_2\% = 200(I_r/N)/(I_d + I_r/N) \quad (4)$$

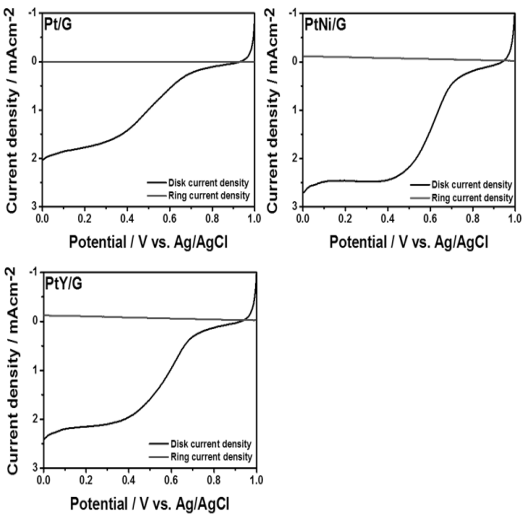

Fig. 6 RRDE curves for Pt/G, PtNi/G and PtY/G catalysts. For the tests, 1M H_2SO_4 solution was used as an electrolyte in O_2 saturated state with scan rate of 10mVs^{-1} and rotation rate of 1200rpm

여기서 N은 콜렉션효율(Collection efficiency), I_d는 디스크전극의 전류(Disk current), 및 I_r은 링전극의 전류(Ring current)이다. N은 1.42의 보정값을 이용하였다. 식 3을 이용한 H_2O_2 생성율을 계산한 결과, 그 비율이 각각 3.4% (Pt/G), 3.8% (PtNi/G) 및 4.6% (PtY/G)였다. Fig. 5와 6의 결과를 토대로 각 촉매물질들의 ORR 반응성은 중간물질인 H_2O_2를 거치지 않고 바로 목적생성물인 H_2O를 얻기에 적절한 것으로 평가된다.

3.3 PtM 촉매의 PEMFC 성능 평가

공기극 촉매의 환원반응 활성 테스트 후에 그 촉매들이 PEMFC 성능에 미치는영향을 측정하기 위해 PtM/G (M = Ni, Y) 촉매의 PEMFC 성능을 평가하였고 그 결과는 Fig. 7에 나타내었다.

PEMFC 완전지 테스트를 위해 상용 Pt/G 촉매는 공통적으로 연료극 촉매로 이용하였고, 본 논문에서 고려하는 3가지 종류의 촉매는(Pt/G, PtNi/G 및 PtY/G) 공기극에 이용되었다. 평가결과, PtM/G 촉매들을 이용했을때의 PEMFC 성능이 Pt/G 촉매를 이용했을때보다 더 우수하게 측정되었다. 즉, 세가지 촉매를 이용했을 때의 0.6V에서의 전류밀도는 각각 0.066Acm^{-2} (PtNi/G), 0.024Acm^{-2} (PtY/G) 및 0.013 Acm^{-2} (Pt/G)

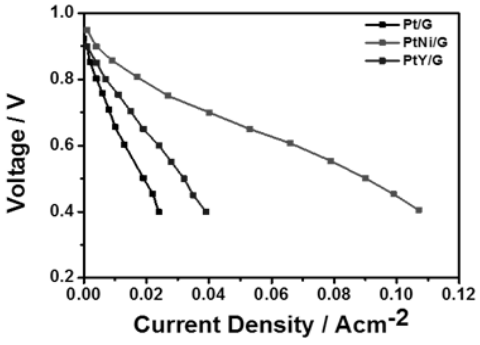

Fig. 7 Polarization curves of PEMFC single cells using Pt/G, PtNi/G and PtY/G as cathode catalysts. For the tests, CCM method was used for making MEA with the loading amount of 0.4mgcm^{-2} in both electrodes

였고, 최대 PEMFC 출력밀도(Maximum power density)는 각각 45.1mWcm^{-2} (PtNi/G), 16.0mWcm^{-2} (PtY/G) 및 10.0 mWcm^{-2} (Pt/G)였다.

이러한 여러 촉매들을 이용했을 때, PEMFC 성능의 경향으로부터 다음 사항들을 알 수 있다. 첫째, 공기극 촉매들을 이용했을 때, PEMFC 성능의 경향은 그 촉매들의 ORR 성능의 경향과 일치되게 나타남을 알 수 있었다. 이는 적용한 촉매에 의한 공기극 반응의 활성화 정도에 의해 전체 PEMFC 성능이 영향을 받음을 보여주는 증거이다. 둘때, 수정된 폴리올법을 이용하여 합성한 PtM/G 촉매는 Pt/G 촉매와 비교하여 ORR 반응성(3전극 테스트 결과) 및 PEMFC 성능(완전지 실험 결과)에서 우수한 결과를 초래하는 것을 확인할 수 있었다. 이는 폴리올법의 장점인 (1) 정전기력 발생에 의한 촉매입자 간에는 척력이 발생되어 금속입자 간격이 균일하게 유지되는 점과, (2) 계면활성제등 잠재적인 불순물들이 되어 촉매활성을 낮출 수 있는 첨가제의 사용을 하지 않기 때문에 가능한 것으로 판단된다.

4. 결 론

본 논문에서는 수정된 폴리올법에 의해 합성된 PtM/G (M=Ni 및 Y) 촉매들의 연료전지 성능 및 ORR에 대한 특성 평가를 진행하였다. 합성된 합금 촉매들은 PEMFC의 공기극 촉매로 사용되며 그 촉매들의 측정된 ORR의 반응특성 및 연료전지의 전기적 성능과 특징들을 평가하였다. 성능 및 특성 비교를 위해, PtM/G 촉매들의 입자 크기와 분포는 TEM에 의해 관측되었고 EAS는 CV에 의해 측정되었으며 그들의 ORR의 반응특성 및 연료전지의 전기적 성능은 RDE 및 RRDE를 이용한 LSV 및 완전지 테스트를 통해 평가되었다. ORR의 반응특성의 경우에도, 그 촉매들은 Pt/G 촉매와 비슷하거나 더 나은 반파장전위, 속도론적 전류밀도, 산소분자당 전이되는 전자개수, H_2O_2 생성율을 나타내었다. 촉매의 구조적 특성 및 산소환원반응성에 입각해서 완전지 성능을 평가했을 때, PtM/G 촉매들은 Pt/G 촉매보다 더 우수한 완전지 성능을 보여주었다(더 우수한 0.6V에서 전류밀도 및 PEMFC 출력밀도 값). 0.6V에서의 전류밀도는 각각 0.066Acm^{-2} (PtNi/G), 0.024Acm^{-2} (PtY/G) 및 0.013 Acm^{-2} (Pt/G)였고, 최대 출력밀도는 각각 45.1mWcm^{-2} (PtNi/G), 16.0mWcm^{-2} (PtY/G)및 10.0 mWcm^{-2} (Pt/G)였다.

결론적으로 수정된 폴리올법에 의해 합성된 PtM/G 촉매들은 Pt/G 촉매보다 우수한 산소환원반응성 및 PEMFC 완전지 성능을 가짐을 알 수 있었다

후 기

이 연구는 2014년 서울과학기술대학교 교내 학술연구비 지원으로 수행되었습니다.

References

1. T. Toda, H. Igarashi, H. Uchida, and M. Watanabe, “Enhancement of the Electroreduction of Oxygen on Pt Alloys with Fe, Ni, and Co”, Journal of The Electrochemical Society, Vol. 146, 1999, p. 3750.
2. K.-S. Lee, S. Sim and D. Kim, “Performance of Fuel Cell with PEMFC Fabricated under Different Pressure”, Trans of the Korean Hydrogen and New Energy Society Vol. 24, 2013, p. 70.
3. S. Yoo, S. Hwang, and S.-K. Lim, “Current status of electrocatalyst for PEMFC”, News & Information for Chemical Engineers, Vol. 30, 2012, p. 422.
4. H.-S. Oh, J.-G. Oh, B. Roh, I. Hwang, and H. Kim, “Development of Highly Active and Stable Non-precious Oxygen Reduction Catalysts for PEM Fuel Cells using Polypyrrole and a Chelating Agent”, Electrochemistry Communications, Vol. 13, 2011, p. 879.
5. Y.-H. Cho, T.-Y. Jeon, J. W. Lim, Y.-H. Cho, M.

Ahnb, N. Jung, S. J. Yoo, W.-S. Yoon, and Y.-E. Sung, “Performance and Stability Characteristics of MEAs with Carbon-Supported Pt and Pt1Ni1 Nanoparticles as Cathode Catalysts in PEMFuel Cell”, International Journal of Hydrogen Energy , Vol. 36, 2011, p. 4394.

6. S. J. Yoo, S.-K.Kim, T.-Y. Jeon, S. J. Hwang, J.-G. Lee, S.-C. Lee, K.-S. Lee, Y.-H. Cho, Y.-E. Sung, and T.-H. Kim, “Enhanced Stability and Activity of Pt-Y Alloy Catalysts for Electrocatalytic Oxygen Reduction”, Chemical Communications, Vol. 47, 2011, p. 11414.
7. X. Wang, W. Li, Z. Chen, M. Waje, Y. Yan. “Durability investigation of carbon nanotube as catalyst support for proton exchange membrane fuel cell”, Jounal of Power Source, Vol. 158, 2006, p. 154.
8. R. I. Jafri, N. Rajalakshmi, S. Ramaprabbu, “Nitrogen doped graphene nanoplatelets as catalyst support for oxygen reduction reaction in proton exchange membrane fuel cell”, Journal of Materials Chemistry, Vol. 20, 2010, p. 7114.
9. D. R. Kauffman, A. Star, “Graphene versus carbon nanotubes for chemical sensor and fuel cell applications”, Analyst, Vol. 135, 2010, p. 2790.
10. H.-S. Oh, J.-G. Oh, and H. Kim, “Modification of Polyol Process for Synthesis of Highly Platinum Loaded Platinum-Carbon Catalysts for Fuel Cells”, Journal of Power Sources, Vol. 183, 2008, p. 600.
11. Y. Li, W. Gao, L. Ci, C. Wang and P. M. Ajayan, “Catalytic performance of Pt nanoparticles on reduced graphene oxide for methanol electro-oxidation”, Carbon, Vol. 48, 2010, p. 1124.
12. K. Hyun, J. H. Lee, C. W. Yoon, and Y. Kwon, “The Effect of Platinum Based Bimetallic Electrocatalysts on Oxygen Reduction Reaction of Proton Exchange Membrane Fuel Cells”, International Journal of Electrochemical Science, Vol. 8, 2013, p. 11752.
13. T.-Y. Jeon, S. J. Yoo, Y.-H. Cho, K.-S. Lee, S. H. Kang, and Y.-E. Sung, “Influence of Oxide on the Oxygen Reduction Reaction of Carbon-Supported Pt-Ni Alloy Nanoparticles”, The Journal of Physical Chemistry C, Vol. 13, 2009, p. 19732.