

고분자 전해질 연료전지용 수소극 촉매층의 이오노머 함량 영향

박범준^{1,3} · 이선호^{1,2} · 우승희¹ · 박석희¹ · 정남기^{3†} · 임성대^{1,2,3†}

¹한국에너지기술 연구원 연료전지 연구실, ²과학기술연합대학원대학교 재생에너지공학과, ³충남대학교 에너지과학기술대학원

Effect of Ionomer Content on the Anode Catalyst Layers of PEM Fuel Cells

BEOMJUN PAK^{1,3}, SEONHO LEE^{1,2}, SEUNGHEE WOO¹, SEOK-HEE PARK¹, NAMGEE JUNG^{3†},
SUNG-DAE YIM^{1,2,3†}

¹Fuel Cell laboratory, Korea Institute of Energy Research (KIER), 152 Gajeong-ro, Yuseong-gu, Daejeon 34129, Korea

²Renewable Energy Engineering, University of Science & Technonlogy (UST), 217 Gajeong-ro, Yuseong-gu, Daejeon 34113, Korea

³Energy Science and Technology, Chungnam National University, 99 Daehak-ro, Yuseong-gu, Daejeon 34134, Korea

†Corresponding author :

jimmyim@kier.re.kr
njung@cnu.ac.kr

Received 8 October, 2019

Revised 20 November, 2019

Accepted 30 December, 2019

Abstract >> For the low-Pt electrodes for polymer electrolyte fuel cells (PEMFCs), the optimization of ionomer content for anode catalyst layers was carried out. A commercial catalyst of 20 wt.% Pt/C was used instead of 50 wt.% Pt/C which is commonly used for PEMFCs. The ionomer content varies from 0.6 to 1.2 based on ionomer to carbon ratio (I/C) and the catalyst layer is formed over the electrolyte by the ultrasonic spray process. Evaluation of the prepared MEA in the unit cell showed that the optimal ionomer content of the air electrode was 0.8 on the I/C basis, while the hydrogen electrode was optimal at the relatively high ionomer content of 1.0. In addition, a large difference in cell performance was observed when the ionomer content of the hydrogen electrode was changed. Increasing the ionomer content from 0.6 to 1.0 by I/C in a hydrogen electrode with 0.05 mg/cm² platinum loading resulted in more than double cell performance improvements on a 0.6 V. Through the analysis of various electrochemical properties in the single cell, it was assumed that the change in ionomer content of the hydrogen electrode affects the water flow between the hydrogen and air electrodes bounded by the membrane in the cell, which affects the overall performance of the cell. A more specific study will be carried out to understand the water flow mechanism in the future, and this study will show that the optimization process of hydrogen electrode can also be a very important cell design variable for the low-Pt and high-performance MEA.

Key words : Polymer electrolyte membrane fuel cell(고분자전해질연료전지), Anode catalyst layer(수소극 촉매층), Ionomer content(이오노머 함량), MEA(막전극접합체), Hydrogen oxidation reaction(수소산화반응)

1. 서론

고분자 전해질 연료전지(polymer electrolyte membrane fuel cell, PEMFC)는 수소의 화학 에너지를 전기 에너지로 변환하는 고효율 친환경의 발전장치이다. 연료전지를 구성하는 단위전지는 수소의 산화반응(hydrogen oxidation reaction, HOR)과 산소의 환원반응(oxygen reduction reaction, ORR)을 통하여 반응을 완성하며, 이 전기화학반응을 원활하게 진행하기 위해서는 백금과 같은 귀금속 촉매가 사용된다. 하지만 백금촉매의 높은 가격 이슈는 연료전지 상용화의 핵심 장애물이 되고 있다. 따라서 연료전지 전극에 사용되는 백금 사용량을 줄이기 위한 저백금 전극 개발은 연료전지에서 중요한 연구 주제가 되어 왔다¹⁻⁵⁾. 고분자 전해질 연료전지 수소극에서의 HOR 반응은 공기극의 ORR 반응에 비하여 매우 빠른 반응 특성을 지녀 0.05 mg/cm²의 저백금량의 수소극에서 3 mV 미만의 낮은 과전압이 보고되고 있다⁶⁾. 따라서 대부분의 연구는 공기극에서의 저백금화에 집중되어 왔다. 그 결과 저백금 전극에서의 이오노머 필름에 의한 산소확산 저항 및 촉매와 계면을 이루는 이오노머에 의한 백금촉매의 피독 현상⁷⁻¹¹⁾ 등 공기극의 저백금화 과정에서 중요한 진전들이 이루어지고 있으며, 전극구조 및 공정 기술의 이해를 기반으로 점진적인 MEA의 성능향상이 이루어지고 있다¹²⁻¹⁴⁾.

반면, 수소극에 대한 관심은 거의 찾아보기 힘들다. 그럼에도 불구하고 최근의 공기극 백금 사용량의 혁신적인 저백금화 성과는 백금 사용량을 0.1 mg/cm² 수준으로 낮추고 있어 공기극 백금량이 상용 MEA의 수소극 백금량에 근접하게 되었다. 따라서 MEA에서의 추가적인 저백금화를 위해서는 수소극에서의 저백금화 연구가 필요한 시점이 되었다. 수소극의 빠른 반응속도에도 불구하고 실제 연료전지에서 수소극의 저백금화를 위해서는 수소극 촉매층의 초박막화에 따른 여러 구조적인 문제점들이 예상된다. 본 연구에서는 이러한 수소극 촉매층의 저백금화 연구의 과정으로서 수소극에서의 이오노머 함량에 대한 영향을 보고하고자 한다. 수소극의 초박막 촉매층을 고

려하여 공기극 촉매층 제조에 널리 사용되는 50 wt.% Pt/C 대신에 20 wt.% Pt/C 상용촉매로 촉매층을 제조하였으며 이 과정에서 촉매층 구조 최적화의 시작점인 이오노머 함량 최적화 과정을 수행하였다. 그 과정에서 수소극에서는 공기극과 달리 최적 이오노머 함량이 달라지며, 또한 이러한 수소극에서의 최적 이오노머 함량이 셀 내에서의 물 제어 측면에서 고려되어야 한다는 새로운 결과를 얻을 수 있었다. 따라서 본 연구에서는 이러한 수소극 촉매층의 설계를 위한 기본 연구 결과들을 공유하고 토의하고자 한다.

2. 실험 방법

2.1 촉매 슬러리 제조

전극촉매로는 3종류의 상용 촉매가 사용되었다. 이오노머 함량 영향을 보기 위한 주 대상 촉매층 제조를 위해서는 19.3 wt.% Pt/C (TEC10E20E, Tanaka Kikinzoku Kogyo)가 사용되었다. Table 1의 수소극으로는 46.4 wt.% Pt/C (TEC10E50E, Tanaka Kikinzoku Kogyo.)를 Table 2의 공기극으로는 46.9 wt.% Pt/C (TEC10F50E, Tanaka Kikinzoku Kogyo.)를 각각 사용하였다. 이오노머 바인더로는 단측쇄(short side chain, SSC) 구조를 지니는 이오노머 현탁액(Aquivion D72-25BS, Sigma Aldrich)을 사용하였다. 용매로는 1-propanol (99.5%, Junsei Chemical Co., Ltd.), 2-propanol (99.7%, Junsei Chemical Co., Ltd.), 물을 각각

Table 1. Specification of MEAs prepared with different I/C in the cathode

Anode		Cathode		
Ionomer to carbon ratio (I/C)	Pt loading (mg _{Pt} · cm ⁻²)	Ionomer to carbon ratio (I/C)	Pt loading (mg _{Pt} · cm ⁻²)	ECSA (m ² · g _{Pt} ⁻¹)
		0.4		46.8
0.8	0.135	0.6		60.1
		0.8	0.05	74.5
		1.0		72.2

4:1:5 비로 사용하였다. I/C (Ionomer/Carbon)가 각각 0.4, 0.6, 0.8, 1.0, 1.2가 되도록 계산된 비율에 따라서 촉매, 이오노머 바인더 및 용매의 양을 조절하여 각 성분을 혼합하였다. 혼합된 촉매 슬러리를 분산시키기 위해 초음파 분산기(Powersonic 410, Hwashin Technology Company)를 이용하여 10분간 분산시켰다. 추가로 이오노머의 충분한 분산을 위하여 공자전 혼합기(PDM-300V, Dae Wha Tech Co.)에서 1시간 혼합하고 삼분롤밀(EXAKT 50i, DAE WHA Tech Co.)을 통한 세 번의 분쇄 과정을 거친 후에 다시 공자전 혼합기에서 1시간 혼합하였다.

2.2 MEA 제조

유효면적 28.5 cm²의 catalyst coated membrane (CCM) 형태의 MEA를 제조하기 위하여 준비된 촉매 슬러리를 초음파 스프레이(exacta-coat, Sono-Tek.)를 사용하여 90°C 분위기에서 고분자 전해질 막(NAFION Membrane NRE-211, Ion Power, Inc.)에 직접 분사하였다. Table 1 및 2에 정리된 여러 종류의 MEA를 제조하기 위하여 각기 수소극과 공기극의 백금 담지량 및 이오노머 함량이 제어된 촉매층을 고분자 막 양쪽에 형성하였다. 이렇게 제조된 MEA는 단위전지에 체결하기 전에 120°C, 50 bar조건에서 2분간 수행된 Hot-pressing과정을 거쳤다.

Table 2. Specification of MEAs prepared with different I/C in the anode

Cathode		Anode	
Ionomer to carbon ratio (I/C)	Pt loading (mg _{Pt} · cm ⁻²)	Ionomer to carbon ratio (I/C)	Pt loading (mg _{Pt} · cm ⁻²)
		0.6	
		0.8	
0.8	0.1	1.0	0.05
		1.2	

2.3 MEA 전기화학특성 분석

MEA의 분극곡선은 탄소유로판과 금으로 코팅된 구리 블록의 집전판으로 이루어진 단위전지를 사용하였다. 단위전지에서는 기체 확산층(GDL, Sigracet[®] 10BC, SGL Carbon)을 양쪽극에 동일하게 사용하였다. 셀 온도 80°C, 상대습도 100%, 대기압의 운전조건에서 수소와 공기를 양극에 공급하면서 MEA 성능을 측정하였다. MEA의 활성화를 위하여 셀 전압을 0.4, 0.6, 0.8 V로 변화시키는 과정을 반복하였고 각 전압에서 각각 3분, 2분 10초, 2분씩 유지하여 총 4시간 동안 활성화를 진행하였다. I-V 성능은 open circuit voltage (OCV)에서 0.3 V 까지 10 mV/s의 스캔 속도로 전압을 가하며 측정된 전류 밀도를 사용하였다. 연료로 공급된 수소와 공기의 유량은 각각 0.35 l/min, 1.5 l/min 이었다. I-V 성능을 측정 한 후 셀 저항은 전기화학 임피던스 분광법(electrochemical impedance spectroscopy, EIS)을 사용하였다. HFR 측정을 위한 임피던스 분석은 10⁶-5×10⁸ Hz범위의 주파수에서 측정하였다. 이때 공급된 연료는 I-V 성능 평가 때와 동일하였다. 임피던스 측정이 끝난 후 순환전압전류특성(cyclic voltammetry, CV)을 측정하였다. CV 측정을 위하여 공급되는 수소와 질소의 유량은 각각 0.2 l/min, 1.0 l/min이었으며, 단위전지의 OCV가 0.14 V 이하로 낮아졌음을 확인 후 측정을 진행하였다. 이때 스캔속도는 50 mV/s, 스캔 전압 범위는 0.01-1.2 V였다. CV 측정 후 수소이온 전달저항은 수소/질소 조건 하의 EIS 분석으로 측정하였다. EIS 분석은 1.0-2×10⁴ Hz범위의 주파수에서 측정하였다. 수소/질소 EIS 측정이 완료되면 양극 모두에 수소를 각각 1.0 l/min, 0.35 l/min의 유량으로 공급하며 수소산화반응 성능(hydrogen oxidation reaction, HOR)을 측정하였다. HOR은 OCV에서 0.2 V까지 5.0 mV/s의 속도로 스캐닝하며 측정된 전류 밀도를 사용하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1 공기극의 이오노머 함량에 따른 MEA의 전기화학적 특성

고분자전해질 연료전지에서 HOR의 빠른 반응속도는 일반적으로 공기극에 비하여 낮은 백금량을 필요로 한다. 실제로 상용 MEA의 수소극 백금량은 공기극의 25% 수준이다. 이 경우에 수소극의 촉매층 두께는 공기극에 비하여 얇게 된다. 본 연구에서는 이를 고려하여 공기극에서 일반적으로 사용되는 50 wt% 백금 함량의 Pt/C 촉매 대신에 수소극에의 활용을 고려하여 촉매층의 두께를 두 배 정도 높일 수 있는 20 wt% 백금 함량의 Pt/C 촉매를 사용하였으며 이 촉매에서 이오노머 함량 최적화 연구를 수행하였다. 우선, 20 wt.% Pt/C 촉매의 이오노머 함량에 따른 촉매층에서의 전기화학적 특성을 살펴보고자 전기화학적 분석이 용이한 공기극에 이 촉매를 적용하여 그 거동을 살펴보았다. Table 1에서와 같이 수소극은 46.4 wt.% Pt/C와 0.8 I/C의 이오노머 함량으로 0.135 mg/cm²의 백금 담지량을 지니는 동일한 촉매층을 사용하면서, 공기극의 촉매층을 20 wt.% Pt/C 촉매를 사용하면서 이오노머 함량을 I/C 기준으로 0.4-1.0으로 달리한 4 종류의 MEA를 제조하였다. 이 때 공기극 촉매층의 백금 담지량은 최종적으로 수소극에의 적용을 고려하여 0.05 mg/cm²의 낮은 백금 담지량으로 조절하였다. 이렇게 제조된 활성면적 25 cm²의 MEA는 자체 제작된 단위전지에서 100% 상대습도의 H₂/Air를 주입하면서 80°C의 셀 온도에서 I-V 성능을 평가하였다.

Fig. 1(a)에 도시된 결과에서 우선 셀 성능을 살펴보면, 공기극 촉매층의 이오노머 함량이 증가함에 따라서 셀 성능이 점진적으로 증가하여 I/C가 0.8일 때 가장 우수한 성능을 보이며, 그 이상인 I/C 1.0에서는 오히려 셀 성능이 다소 감소하는 전형적인 이오노머 함량에 따른 셀 성능 양상을 보인다. 즉, 20 wt.% Pt/C에서도 I/C 기준의 최적 이오노머 함량은 기존의 50 wt.% Pt/C와 큰 차이가 없어 보인다. Fig. 1(b)에

서와 같이 고전류 밀도에서 이오노머 함량에 따른 셀 성능 거동을 살펴보기 위하여 도시된 0.8 A/cm²에서의 셀 전압 양상에서도 이러한 성능 거동이 잘 관찰된다. 또한, 셀의 접촉저항 분석을 위하여 수행된 고주파 임피던스 분석에서도 공기극 촉매층의 이오노머 함량이 증가함에 따라 점진적으로 저항이 감소하여 셀 성능과 동일한 양상으로 I/C 0.8에서 최소의 셀 저항을 보여준다. 이러한 이오노머 함량에 따른 셀 저항 양상은 동일한 전해질막을 사용하고 있다는 점을 고려하면 막과 공기극 촉매층 계면에서의 계면저항이 이오노머 증가에 비례하여 감소되는 것에 기인하는 것으로 판단된다. 최적 이오노머 함량 이상으로 이오노머 양을 증가할 경우에는 이오노머의 뭉침현상으로 인하여 오히려 막과 촉매층의 계면 균일성을 저해하는 것으로 보고되고 있다¹⁵⁻¹⁸⁾.

공기극 촉매층의 이오노머 함량이 셀 성능에 주는

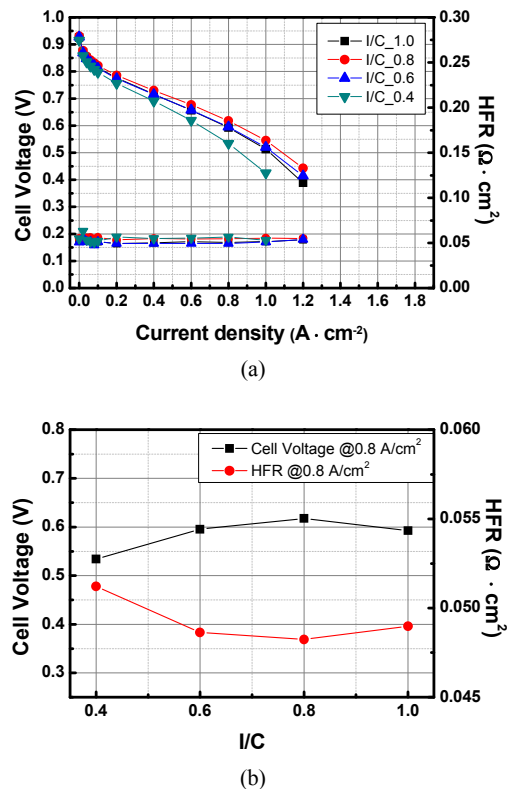


Fig. 1. (a) Polarization curves and HFRs of MEAs prepared with different I/C in the anode H₂/Air = 0.35/1.5 l/min, (b) Cell Voltage and HFRs at 0.8 A/cm² as a function of I/C.

영향을 보다 자세히 확인하기 위하여 HFR값을 보정한 I-V 성능을 Tafel 형식으로 도시하여 보았다. 즉, 셀 성능에서 접촉저항 HFR의 영향을 배제시킨 후에 그 성능 거동을 살펴보고자 하였다. Fig. 2(a)에 의하면 HFR값을 보정한 후에도 이오노머 함량에 따른 고전압에서의 셀 성능은 I/C 기준으로 0.8 > 1.0 > 0.6 > 0.4 순의 동일한 경향을 보인다. 이오노머 함량의 증가가 셀 저항 뿐만 아니라 ORR 반응속도론 측면에서도 공기극 촉매층에 영향을 줄 수 있다. Table 1에 도시된 CV에 의하여 결정된 각 MEA의 ECSA값이 이오노머 함량이 증가함에 따라 46.8, 60.1, 74.5, 72.2 m²/g_{Pt}와 같이 점진적으로 증가하다 감소함을 알 수 있다. 즉, 이오노머 함량 증가에 따라서 전기화학 반응에 참여할 수 있는 백금 표면적이 증가하여 ORR 반응에 기여를 하고 있음을 알 수 있

다. 또한, H₂/N₂ 조건에서 측정된 임피던스 결과를 Fig. 2(b)에서와 같이 살펴보면 이오노머 함량이 증가함에 따라서 촉매층의 이온전달 저항 또한 점진적으로 감소하는 경향을 보여 준다. 이러한 결과는 50 wt.% Pt/C 기반의 촉매층에서 이미 보고된 바 있다^{19,20}. 이상의 결과들을 요약하면, 20 wt.% Pt/C 기반 촉매층에서 이오노머 함량이 증가함에 따라서, 촉매층의 이온전도도는 I/C 1.0까지 지속적으로 증가하며, ECSA, HFR 및 셀 성능은 I/C 0.8에서 최적값을 보이며 1.0에서는 다소 감소된다. Tafel plot에서 확인된 바와 같이 I/C 1.0에서의 고전압 셀 성능 감소는 아마도 I/C 1.0의 과도한 이오노머 함량에서는 촉매층에서의 이오노머 두께의 증가로 인한 촉매 표면에서의 산소 농도 감소가 ORR 반응속도 감소를 야기하는 것으로 추측된다^{21,22}.

3.2 수소극 이오노머 함량에 따른 MEA의 전기화학적 특성

앞에서의 연구 결과를 기반으로 수소극 촉매층의 이오노머 함량에 따른 셀 성능 경향을 살펴보기 위하여 Table 2에서와 같이 4종류의 MEA를 제조하였다. 공기극은 46.9 wt.% Pt/C와 0.8 I/C의 이오노머 함량으로 0.10 mg/cm²의 백금 담지량을 지니는 동일한 촉매층을 사용하면서, 수소극의 촉매층을 앞의 공기극 연구에 사용하였던 촉매층과 동일하게 20 wt.% Pt/C 촉매를 사용하면서 이오노머 함량을 I/C 기준으로 0.6-1.2로 달리하였으며 이 때 백금 담지량을 0.05 mg/cm²로 조절하였다. 4종류의 MEA는 자체 제작된 단위전지에서 100% 상대습도와 H₂/Air주입 조건 및 80°C의 셀 온도에서 평가되었다.

Fig. 3(a)에 도시된 결과에서 셀 성능을 살펴보면 공기극 촉매층이 동일함에도 불구하고 수소극 촉매층의 이오노머 함량에 따라 셀 성능이 크게 달라짐을 볼 수 있다. 수소극 촉매층의 이오노머 함량이 I/C 기준으로 0.6에서 1.0으로 증가하게 되면 전체 셀 성능이 0.6 V 기준으로 0.6 A/cm²에서 1.25 A/cm²로서 2배 이상 증가하는 결과를 보인다. 이러한 결과는 고

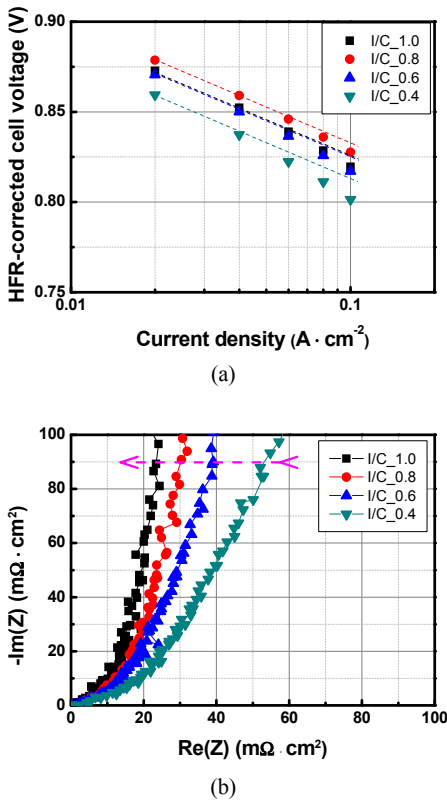


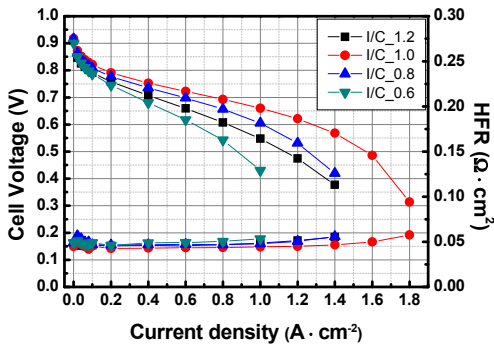
Fig. 2. (a) Tafel plots of MEAs with different I/C in the cathode, (b) Proton resistance of cathode catalyst layers determined by H₂/N₂ EIS. H₂/N₂ = 0.2/1.0 l/min.

분자 전해질 연료전지에서 대부분의 저항이 공기극에서 비롯된다는 사실을 고려해 볼 때 매우 특이한 결과이다. 0.8 A/cm² 기준으로 수소극의 이오노머 함량에 따른 전체 셀 성능 및 HFR을 도시한 Fig. 3(b)의 결과에서도 I/C 1.0을 분기점으로 수소극의 이오노머 함량 영향이 명확해 보인다. 이러한 셀 성능 및 셀 저항 양상을 좀 더 자세히 분석하기 위하여 HFR 값을 보정한 I-V 성능을 Tafel 형식으로 도시하였다.

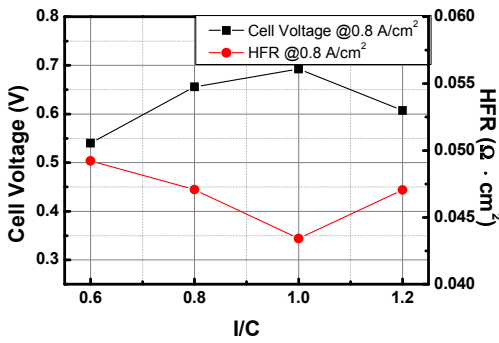
Fig. 4(a)에서와 같이 HFR값을 보정한 후에도 셀 성능의 큰 차이가 관찰되며, 이로써 수소극의 이오노머 함량 변경으로 인하여 셀 성능이 크게 변화될 수 있음을 보여준다. 공기극을 기준전극으로 바꾸어 측정한 수소극의 HOR 성능 특성 또한 Fig. 4(b)에 도시된 결과와 같이 셀 성능과 유사하게 이오노머 함량이 1.0까지 증가함에 따라서 HOR 과전위 또한 감

소하는 경향을 보이지만, 이 결과에 의하면 HOR의 과전위가 전체 셀 성능에 기여하는 정도는 매우 작아 보인다.

반면에 Fig. 5에 도시된 공기극의 H₂/N₂ 임피던스 결과는 이전 Fig. 3(b)와는 상반되는 특이한 양상을

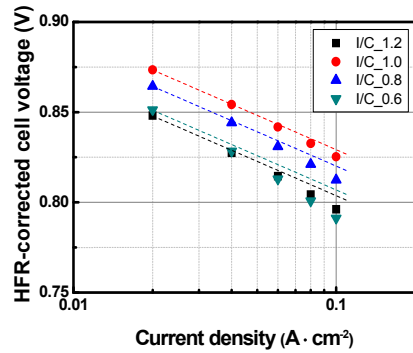


(a)

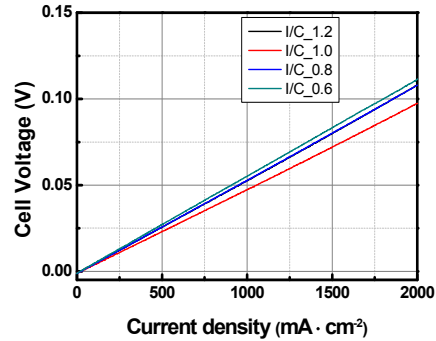


(b)

Fig. 3. (a) Polarization curves and HFRs of MEAs prepared with different I/C in the anode H₂/Air = 0.35/1.5 l/min, (b) Cell Voltage and HFRs at 0.8 A/cm² as a function of I/C.



(a)



(b)

Fig. 4. (a) Tafel plots of MEAs prepared with different I/C in the anode, (b) HOR characteristics measured under H₂/H₂ = 1.0/0.35 l/min.

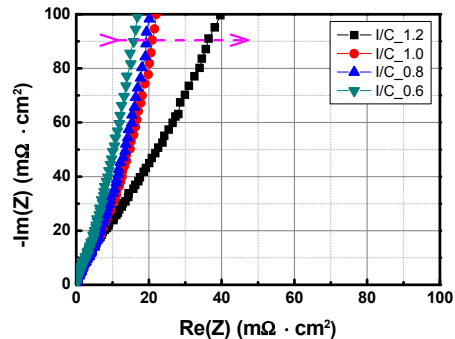


Fig. 5. Proton resistance of cathode catalyst layers determined by H₂/N₂ EIS, H₂/N₂ = 0.2/1.0 l/min.

보인다. 특히, 이 경우에는 임피던스가 측정하게 되는 공기극의 촉매층은 동일함에도 불구하고 수소극 촉매층의 이오노머 함량 차이로 인하여 공기극 촉매층의 이온전도도가 달라지는 양상을 보이는 것이다. 즉, 이오노머 함량이 I/C 기준으로 0.6에서 1.2까지 증가함에 따라서 공기극 촉매층의 이온전도도는 오히려 감소하는 경향을 보여준다. 이는 일반적이지 않은 결과이며, 현재 시점에서 가능한 해석으로는 수소극에서의 이오노머 함량 변화가 셀 내에서 막을 중심으로 하는 물의 흐름에 크게 영향을 주는 것으로 추측된다. 즉, 수소극의 이오노머 함량이 증가하게 되면 수소극 촉매층을 구성하는 이오노머의 비중 증가로 인하여 보다 친수성을 띠게 된다. 수소극 촉매층의 친수성 증가로 인하여 셀 내에서의 물의 흐름이 공기극에서 수소극으로의 back diffusion이 강화되는 것으로 추측된다²³⁾. 이러한 수소극 촉매층의 높은 이오노머 함량으로 인한 물의 흐름이 전해질막 및 공기극 촉매층을 다소 건조한 상황으로 만들 수 있으며 이것이 전체적인 셀 성능에 영향을 주는 것으로 추측된다. 특히, 본 연구에서 사용된 공기극 촉매는 소수성 특성을 강하게 띠고 있어 이러한 물의 흐름에 보다 민감한 것으로 추측된다. 이러한 물의 흐름에 대한 세부 메커니즘에 대해서는 추후 보다 면밀한 연구를 통하여 규명되어야 하며, 본 연구에서는 수소극 촉매층의 이오노머 함량 제어가 셀 성능에 크게 영향을 줄 수 있다는 실험적 결과 보고에서 그 의미를 찾고자 한다.

4. 결론

20 wt.% Pt/C 상용촉매를 사용하여 이오노머 함량을 I/C 기준으로 0.6에서 1.2로 달리하며 0.05 mg/cm²의 백금량을 지니는 촉매층을 초음파 스프레이 공정을 통하여 제조하고 이를 수소극으로 활용하기 위한 연구를 수행하였다. 제조된 촉매층을 공기극 및 수소극에 각각 적용하였을 경우에 공기극에서는 최적 이오노머 함량이 I/C 기준으로 0.8인 반면에 수소극에서는 1.0으로 다른 최적값을 보여주었다. 특히, 동일한

공기극을 사용하였음에도 불구하고 수소극의 이오노머 함량 변화만으로도 셀 성능이 매우 크게 변화되었으며, 수소극 촉매층의 I/C를 0.6에서 1.0으로 증가하였을 경우에 0.6 V 기준으로 2배 이상의 셀 성능 향상이 관찰 되었다. CV에 의한 촉매층의 백금활성 표면적(ECSA), 임피던스 분석에 의한 셀저항(HFR), Tafel plot, H₂/N₂ 임피던스 분석을 통한 촉매층의 이온전달 저항, HOR 특성 등의 전기화학적 분석 결과를 기반으로 볼 때 수소극 촉매층의 이오노머 함량에 따른 친수성 변화가 막을 경계로 하는 수소극과 공기극 촉매층 사이의 물 흐름에 영향을 주며 이것이 막 저항 및 공기극 촉매층의 이온 전달 저항을 변화시키며 이것이 전체 셀 성능에 크게 영향을 주는 것으로 추측되었다. 공기극과 수소극의 상대습도를 변화시키며 셀에서 배출되는 기체의 이슬점을 측정하는 등의 실험을 통한 보다 면밀한 물 흐름에 대한 이해는 추가 연구에서 진행 예정이다.

후 기

본 연구는 한국연구재단 기후변화대응기술개발사업(2015M1A2A2056550) 및 산업통상자원부와 한국에너지기술평가원(20173010032100)의 지원을 받아 수행되었습니다.

References

1. B. G. Pollet, "The Use of Power Ultrasound for the Production of PEMFC and PEMWE Catalysts and Low-Pt Loading and High-Performing Electrodes", *Catalysts*, Vol. 9, No. 3, 2019, pp. 246-263, doi: <https://doi.org/10.3390/catal9030246>.
2. B. Millington, V. Whipple and B. G. Pollet, "A novel method for preparing proton exchange membrane fuel cell electrodes by the ultrasonic-spray technique" *Journal of Power Sources*, Vol. 196, No. 20, 2011, pp. 8500-8508, doi: <https://doi.org/10.1016/j.jpowsour.2011.06.024>.
3. T. H. Huang, H. L. Shen, T. C. Jao, F. B. Weng, and A. Su, "Ultra-low Pt loading for proton exchange membrane fuel cells by catalyst coating technique with ultrasonic spray coating machine", *International Journal of Hydrogen Energy*, Vol. 37, No. 18, 2012, pp. 13872-13879, doi:

- <https://doi.org/10.1016/j.ijhydene.2012.04.108>.
- H. A. Gasteiger, J. E. Panels, and S. G. Yan, "Dependence of PEM fuel cell performance on catalyst loading", *Journal of Power Sources*, Vol. 127, No. 1-2, 2004, pp. 162-171, doi: <https://doi.org/10.1016/j.jpowsour.2003.09.013>.
 - H. N. Su, S. J. Liao, T. Shu, and H. L. Gao, "Performance of an ultra-low platinum loading membrane electrode assembly prepared by a novel catalyst-sprayed membrane technique", *Journal of Power Sources*, Vol. 195, No. 3, 2010, pp. 756-761, doi: <https://doi.org/10.1016/j.jpowsour.2009.08.037>.
 - K. C. Neyerlin, W. Gu, J. Jorne, and H. A. Gasteiger, "Study of the Exchange Current Density for the Hydrogen Oxidation and Evolution Reactions", *Journal of The Electrochemical Society*, Vol. 154, No. 7, 2007, pp. B631-B635, doi: <https://doi.org/10.1149/1.2733987>.
 - N. Nonoyama, S. Okazaki, A. Z. Weber, Y. Ikogi, and T. Yoshida, "Analysis of Oxygen-Transport Diffusion Resistance in Proton-Exchange-Membrane Fuel Cells", *Journal of The Electrochemical Society*, Vol. 158, No. 4, 2011, pp. B416-B423, doi: <https://doi.org/10.1149/1.3546038>.
 - S. J. Lee, S. Mukerjee, J. McBreen, Y. W. Rho, Y. T. Kho, and T. H. Lee, "Effects of Nafion impregnation on performances of PEMFC electrodes", *Electrochimica Acta*, Vol. 43, No. 24, 1998, pp. 3693-3701, doi: [https://doi.org/10.1016/S0013-4686\(98\)00127-3](https://doi.org/10.1016/S0013-4686(98)00127-3).
 - C. Y. Ahn, J. Y. Cheon, S. H. Joo, and J. Kim, "Effects of ionomer content on Pt catalyst/ordered mesoporous carbon support in polymer electrolyte membrane fuel cells", *Journal of Power Sources*, Vol. 222, 2013, pp. 477-482, doi: <https://doi.org/10.1016/j.jpowsour.2012.09.012>.
 - K. H. Kim, K. Y. Lee, S. Y. Lee, E. A. Cho, T. H. Lim, H. J. Kim, S. P. Yoon, S. H. Kim, T. W. Lim, and J. H. Jang, "The effects of relative humidity on the performances of PEMFC MEAs with various Nafion[®] ionomer contents", *International Journal of Hydrogen Energy*, Vol. 35, No. 23, 2010, pp. 13104-13110, doi: <https://doi.org/10.1016/j.ijhydene.2010.04.082>.
 - C. Wang, X. Cheng, X. Yan, S. Shen, C. Ke, G. Wei, and J. Zhang, "Respective Influence of Ionomer Content on Local and Bulk Oxygen Transport Resistance in the Catalyst Layer of PEMFCs with Low Pt Loading", *Journal of The Electrochemical Society*, Vol. 166, No. 4, 2019, pp. F239-F245, doi: <https://doi.org/10.1149/2.0401904jes>.
 - K. Y. Ahn, C. N. Yang, and S. Lee, "A Study on Electrochemical Characteristics of MEA with Nafion Ionomer Content in Catalyst Layer for PEMFC", *Trans. of the Korean Hydrogen and New Energy Society*, Vol. 21, 2010, No. 6, pp. 540-546.
 - H. S. Jang, and E. A. Cho, "Effects of Additives and Hot-Pressing Conditions on the Surface and Performance of MEAs for PEMFCs", *Trans. of the Korean Hydrogen and New Energy Society*, Vol. 21, No. 5, 2010, pp. 398-404.
 - K. S. Lee, J. S. Lee, N. H. Kwon, and I. C. Hwang, "Development of High Performance MEA by Decal Method for PEM Fuel Cell", Vol. 22, No. 5, 2011, pp. 585-591.
 - S. M. Andersen, and L. Grahl-Madsen, "Interface contribution to the electrode performance of proton exchange membrane fuel cells - Impact of the ionomer", *International Journal of Hydrogen Energy*, Vol. 41, No. 3, 2016, pp. 1892-1901, doi: <https://doi.org/10.1016/j.ijhydene.2015.11.101>.
 - K. H. Kim, K. Y. Lee, H. J. Kim, E. A. Cho, S. Y. Lee, T. H. Lim, S. P. Yoon, I. C. Hwang, and J. H. Jang, "The effects of Nafion[®] ionomer content in PEMFC MEAs prepared by a catalyst-coated membrane (CCM) spraying method", *International Journal of Hydrogen Energy*, Vol. 35, No. 5, 2010, pp. 2119-2126, doi: <https://doi.org/10.1016/j.ijhydene.2009.11.058>.
 - H. Yu, J. M. Roller, W. E. Mustain, and R. Maric, "Influence of the ionomer/carbon ratio for low-Pt loading catalyst layer prepared by reactive spray deposition technology", *Journal of Power Sources*, Vol. 283, 2015, pp. 84-94, doi: <https://doi.org/10.1016/j.jpowsour.2015.02.101>.
 - S. Holdcroft, "Fuel Cell Catalyst Layers: A Polymer Science Perspective", *Journal of American Chemical Society*, Vol. 26, 2014, pp. 381-393, doi: <https://doi.org/10.1021/cm401445h>.
 - Y. Liu, C. Ji, W. Gu, D. R. Baker, J. Jorne, and H. A. Gasteiger, "Proton Conduction in PEM Fuel Cell Cathodes: Effects of Electrode Thickness and Ionomer Equivalent Weight", *Journal of The Electrochemical Society*, Vol. 157, No. 3, 2010, pp. B1154-B1162, doi: <https://doi.org/10.1149/1.3435323>.
 - Y. Liu, C. Ji, W. Gu, J. Jorne, and H. A. Gasteiger, "Effects of Catalyst Carbon Support on Proton Conduction and Cathode Performance in PEM Fuel Cells", *Journal of American Chemical Society*, Vol. 158, No. 6, 2011, pp. B614-B621, doi: <https://doi.org/10.1149/1.3562945>.
 - M. S. Lee, M. Uchida, H. Yano, D. A. Tryk, H. Uchida, and M. Watanabe, "New evaluation method for the effectiveness of platinum/carbon electrocatalysts under operating conditions", *Electrochimica Acta*, Vol. 55, No. 28, 2010, pp. 8504-8512, doi: <https://doi.org/10.1016/j.electacta.2010.07.071>.
 - T. Suzuki, K. Kudo, and Y. Morimoto, "Model for investigation of oxygen transport limitation in a polymer electrolyte fuel cell", *Journal of Power Sources*, Vol. 222, 2013, pp. 379-389, doi: <https://doi.org/10.1016/j.jpowsour.2012.08.068>.
 - T. Y. Kim, J. H. Lee, T. H. Yang, Y. G. Yoon, S. H. Park, and S. D. Yim, "Novel catalyst layer synthesized by an in situ sol-gel process with tetraethoxysilane in a Nafion ionomer solution with Pt/C/ for PEFCs: the effects of self-assembled Nafion-SiO₂ on Pt ORR activity and an increased water content in the polymer membranes", *RSC Advances*, Vol. 2, 2012, pp. 6957-6969, doi: <https://doi.org/10.1039/C2RA20796F>.