

# 오존, 암모니아 순차적 처리를 통한 바나듐 레독스 흐름 전지용 활성화 카본 펠트 전극 개발

최한솔 · 김한성<sup>†</sup>

연세대학교 화공생명공학과

## Development of Activated Graphite Felt Electrode Using Ozone and Ammonia Consecutive Post Treatments for Vanadium Redox Flow Batteries

HANSOL CHOI, HANSUNG KIM<sup>†</sup>

Department of Chemical and Biomolecular Engineering, Yonsei University, 50 Yonsei-ro, Seodaemun-gu, Seoul 03722, Korea

<sup>†</sup>Corresponding author :  
elchem@yonsei.ac.kr

Received 30 July, 2021  
Revised 18 August, 2021  
Accepted 19 August, 2021

**Abstract >>** A carbon felt electrode was prepared using ozone and ammonia sequential treatment and applied as an electrode for a vanadium redox flow battery (VRFB). The physical and electrochemical analyses demonstrate that the oxygen groups facilitate nitrogen doping in the carbon felt. Carbon felt (J5O3+NH3), which was subjected to ammonia heat treatment after ozone treatment, showed higher oxygen and nitrogen contents than carbon felt (J5NH3+O3), which was subjected to ammonia heat treatment first and then ozone treatment. From the charging/discharging of VRFB, the J5O3+NH3 carbon felt electrode showed 14.4 Ah/L discharge capacity at a current density of 150 mA/cm<sup>2</sup>, which was 15% and 33% higher than that of J5NH3+O3 and non-activated carbon felt (J5), respectively. These results show that ozone and ammonia sequential treatment is an effective carbon felt activation method to increase the performance of the vanadium redox flow battery.

**Key words :** Vanadium redox flow battery(바나듐 레독스 흐름 전지), Ozone(오존), Ammonia(암모니아), Consecutive post treatments(순차적 처리), Activation of carbon felt(카본 펠트 활성화)

## 1. 서론

전 세계적으로 화석연료의 지속적인 사용으로 인한 온실가스 배출 억제를 위해 신재생에너지와 에너

지 저장 장치(energy storage system, ESS)에 대한 관심이 증가하고 있다<sup>1,2)</sup>. ESS 장치 중 하나인 바나듐 레독스 흐름전지(vanadium redox flow battery, VRFB)는 바나듐의 산화, 환원 반응을 이용해 화학에너지를

전기에너지로 저장하는 이차 전지로서 높은 안정성과 긴 사용수명으로 인해 많은 연구가 진행되고 있다<sup>3)</sup>. 바나듐 이온의 산화 환원 반응은 전극 표면에서 발생하기 때문에 VRFB의 에너지 효율은 전극의 전기화학적 활성에 크게 영향을 받는다<sup>4,5)</sup>. VRFB에 사용되는 전극은 강산성의 바나듐 전해질을 견딜 수 있도록 화학적으로 안정해야 하며, 기계적 강도와 전기전도도가 우수해야 하기 때문에 일반적으로 카본 펠트(carbon felt)가 전극으로 사용된다. 카본 펠트는 다공성 3D 구조를 가지고 있어 전해질이 원활하게 흐를 수 있으며 바나듐 이온의 산화 환원 반응에 필요한 넓은 전극 표면적을 제공한다<sup>6)</sup>. 그러나 카본 펠트 전극은 발수성 성질로 인해 바나듐 활물질에 대한 반응성이 낮으며, 그로 인해 VRFB의 에너지 효율을 저하시키는 주요 원인이 된다<sup>7,8)</sup>. 따라서 전극의 전기화학적 활성을 향상시키기 위해 전극 표면 개질에 관한 다양한 연구가 진행되고 있다.

전극 표면 위에 전기화학적 활성점으로 작용하는 산소작용기를 형성시키는 방법으로 열처리<sup>9)</sup>, 산처리<sup>10)</sup>, 전기화학적 산화<sup>11)</sup>, 및 오존 처리<sup>12)</sup>법들이 보고되었다. 질소 도핑된 탄소를 사용하여 전기화학적 반응속도를 증가시키는 연구 또한 활발히 진행되고 있다<sup>13-15)</sup>. 질소 작용기를 도입하는 방법으로 화학기상증착법(chemical vapor deposition, CVD)<sup>16)</sup>, 암모니아의 열처리법<sup>17,18)</sup>, 도파민 코팅법<sup>19)</sup>, 그리고 폴리피롤 코팅법<sup>20)</sup> 등이 보고되었다. 최근에는 순차적 전극 표면 처리를 통해 전극 표면에 산소작용기와 질소작용기를 형성하여 전극의 전기화학적 활성을 증가시키는 연구가 개발되었다<sup>21)</sup>. 공기 열처리를 통해 전극 표면에 산소 작용기를 형성시킨 후 순차적으로 산소 작용기가 형성된 카본 펠트에 질소전구체로 멜라민을 사용하여 고온 열처리를 통해 전극 표면에 산소작용기와 질소작용기가 도입된 고탄성 카본 펠트 전극을 제조하였다. 하지만 상기 순차적 처리 방법은 고온에서 장시간 열처리를 진행해야 하고, 또한 분말 형태의 질소 전구체를 열분해하여 질소 작용기를 도입해야 되기 때문에 실제 카본 펠트에 형성되는 질소 작용기 대비 많은 양의 고체 전구체가 필요하므로 질

소 전구체의 유실이 많아 경제적으로 비효율적이라는 문제가 있다. 따라서 순차적 처리 방법을 이용하여 전극 제조 시 저온에서 단시간에 산소 작용기를 도입하며 전구체의 소실 없이 고함량의 질소 작용기를 도입할 수 있는 경제적이고 간편한 공정이 요구된다.

본 연구에서는 이러한 문제를 해결하기 위하여 먼저 오존으로 저온에서 짧은 시간 동안 카본 펠트를 활성화하여 카본 펠트에 산소작용기를 형성시킨 후 암모니아 기체를 사용하여 고온 열처리를 진행함으로써 질소작용기를 형성하는 순차적 전극 표면 처리 제조법을 개발하였다. 오존, 암모니아 순차적 처리를 통해 제조된 카본 펠트 전극의 물성 및 전기화학적 특성은 X선 광전자 분광법(X-ray photoelectron spectrometer, XPS), 순환 전압 전류(cyclic voltammetry, CV) 및 전기화학 임피던스 분광법(electrochemical impedance spectroscopy, EIS)을 사용하여 분석하였으며, 이를 VRFB용 전극으로 적용하여 단전지 성능 평가를 진행하였다.

## 2. 실험

### 2.1 산소작용기와 질소작용기가 형성된 카본 펠트 전극 제조

본 실험에서는 오존과 암모니아 순차적 처리를 이용하여 산소작용기와 질소작용기가 형성된 카본 펠트 전극을 제조하였다. 카본 펠트(GF061AH, 5 mm; JNTG, Hwasung, Korea)를 3.0 cm×3.0 cm 크기로 잘라 원형의 전기로 안에 넣고, 180°C에서 6분 동안 오존 분위기하에서 열처리하여 산소 작용기가 도입된 카본 펠트 전극을 제조하고 J5O3로 명명하였다. 오존 가스를 Ar으로 교체하여 10분 동안 Ar 기체를 흘려준 후, 8°C/분의 속도로 승온시키고 900°C에 도달하면, Ar 가스를 암모니아 가스로 교체 후, 암모니아 가스가 J5O3와 충분히 반응할 수 있도록 유량 0.5 L/min의 속도로 천천히 흘려주면서 1시간 동안 열처리를 진행하여 최종적으로 표면에 산소 작용기와 질

소 작용기가 도입된 카본 펠트 전극을 제조하고 J5O3+NH3로 명명하였다. 활성화 순서가 카본 펠트의 성능에 미치는 영향을 살펴보기 위해서 암모니아 열처리를 먼저 진행하고 그 후 오존을 처리하여 카본 펠트를 제조하고 J5NH3+O3로 명명하였다.

### 2.2 전기화학적 및 물리적 특성 평가

VO<sup>2+</sup>/VO<sup>2+</sup> 산화 환원 반응에 대한 전기화학적 활성을 평가하기 위해 0.1 M VOSO<sub>4</sub>+3.0 M H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> 전해질을 사용하는 삼전극 시스템으로 CV 측정 시험을 수행하였다. 전압 범위는 0.0-1.0 V (vs. Hg/Hg<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>)이며 주사 속도는 5 mV/s이다. EIS는 10<sup>1</sup> to 10<sup>5</sup> Hz의 주파수 범위에서 측정하였다. X선 광전자 분광법(XPS, K-alpha, Thermo, Waltham, MA, USA)을 사용하여 전극 표면의 성분을 분석하였다.

### 2.3 VRFB 단전지 충방전 실험

충전/방전 시험에 사용된 단일 셀은 9 cm<sup>2</sup> 면적의 전극과 Nafion 117을 전해질막으로 사용하였으며 수직 유동 채널(80×80×3.4 mm), 두 개의 흑연 극판(80×80×5 mm), 두 개의 동판(80×80×1 mm) 및 두 개의 알루미늄 플레이트(110×110×7 mm)로 구성하였다. 초기 V(IV) 용액은 1.5 M VOSO<sub>4</sub>를 3 M 황산에 용해시켜 제조하였다. V(III) 표준 용액을 얻기 위해, 같은 양의 V(IV) 용액을 양극 및 음극에 사용하고 4 mA/cm<sup>2</sup>의 정전류 밀도에서 1.6 V까지 충전시켰다. 음극(1.5 M V<sup>3+</sup> + 3 M H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>)과 양극 전해질(1.5 M VO<sup>2+</sup> + 3 M H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>)은 각각 20 mL이며, 모든 전해질은 대기와 접촉을 차단하였고 V(II)의 산화를 방지하기 위해 음극 전해질에는 질소 가스를 흘려주었다. 충방전 시험은 배터리 테스트 시스템(Scribner Associates Inc., Southern Pines, NC, USA)을 사용하여 20 ccm 유속으로 수행되었다. 충방전 전압 범위는 0.8-1.6 V 사이이며, 50-150 mA/cm<sup>2</sup> 사이의 다양한 전류밀도에서 정전류 모드로 충전/방전을 실시하였다.

### 3. 결과 및 고찰

Fig. 1은 오존, 암모니아 순차적 처리를 통해 제조된 카본 펠트 전극 표면의 XPS survey spectra 결과이다. 비교를 위해 표면 처리하지 않은 카본 펠트(J5)

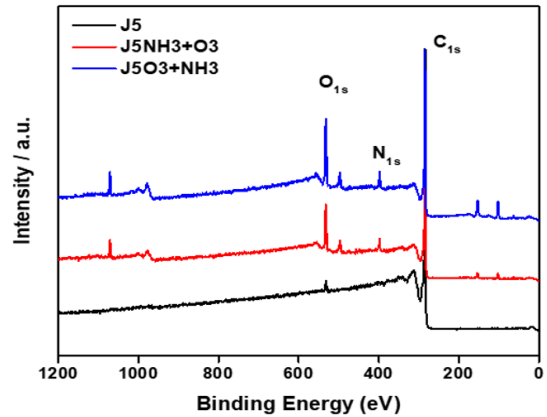


Fig. 1. XPS survey spectra of J5, J5NH3+O3 and J5O3+NH3

Table 1. Elemental composition ratio of different graphite felts

Graphite felt	Carbon (At. %)	Oxygen (At. %)	Nitrogen (At. %)
J5	97.04	2.37	0.59
J5NH3+O3	86.8	10.78	2.42
J5O3+NH3	83.09	12.91	4.0

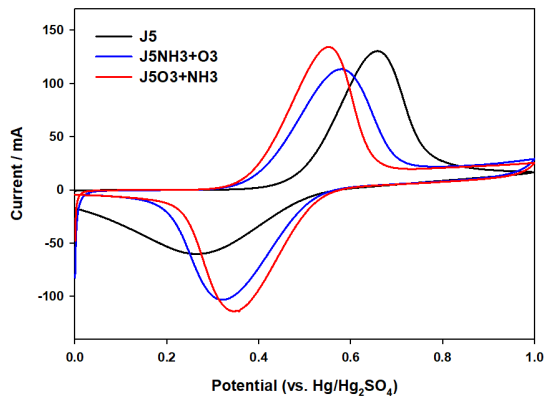


Fig. 2. Cyclic voltammograms of J5, J5NH3+O3 and J5O3+NH3 graphite felts with 0.1 M VOSO<sub>4</sub>+3.0 M H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> electrolyte at a scan rate of 5 mV/s with potential window of 0.0 V to 1.0 V vs. Hg/Hg<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>

와 암모니아를 먼저 처리하고 오존으로 순차적 처리한 카본 펠트인 J5NH3+O3의 표면 작용기 함량을 측정하였으며 표면에 생성된 원소 별 함량을 Table 1에 정리하였다. Fig. 1에서 보듯이 표면 처리 하지 않은 J5 카본 펠트에서는 질소 작용기는 0.59 at%로 매우 낮았으며 소량의 산소 작용기만 검출되었다. 오존, 암모니아의 순서로 활성화한 J5O3+NH3의 O, N 함량이 각각 12.91 at%, 4.0 at%로 높은 산소 및 질소 함량이 검출되었다. 반면 J5NH3+O3의 O, N 함량은 각각 10.78 at%, 2.42 at%로 질소 작용기와 산소 작용기 모두 상대적으로 낮은 함량을 보였다. 이는 활성화 처리 순서가 카본 펠트 표면에 형성되는 작용

기의 함량에 영향을 미치는 것을 의미한다. 산소 작용기는 카본 펠트 표면의 결함을 유도하게 되고 이는 질소 작용기가 더 수월하게 카본 펠트 표면에 형성될 수 있게 하는 활성점으로 작용하는 것으로 해석된다<sup>21)</sup>.

Fig. 2는 각 카본 펠트 전극들에 대한 바나둠 이온의 전기화학적 산화 환원 활성을 평가한 CV 결과를 보여준다. 일반적으로 CV에서 측정되는 산화 및 환원 전류의 peak potential 차이( $\Delta E_p$ ), peak 산화 및 환원 전류 그리고 이들의 비( $I_{pa}/I_{pc}$ )는 전기화학 촉매 활성 평가에 사용되는 주요 인자들이다. 일반적으로  $\Delta E_p$  값이 작을수록,  $I_{pa}/I_{pc}$ 가 1에 근접할수록

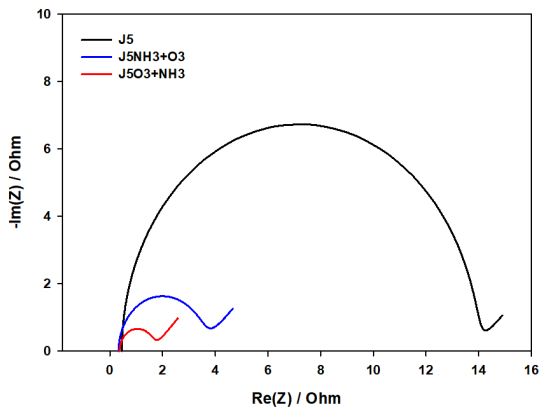


Fig. 3. Nyquist plots of J5, J5NH3+O3 and J5O3+NH3 graphite felts in a frequency range from  $10^{-2}$  to  $10^5$  Hz in 0.1 M  $\text{VOSO}_4$ +3.0 M  $\text{H}_2\text{SO}_4$  electrolyte at open circuit voltage

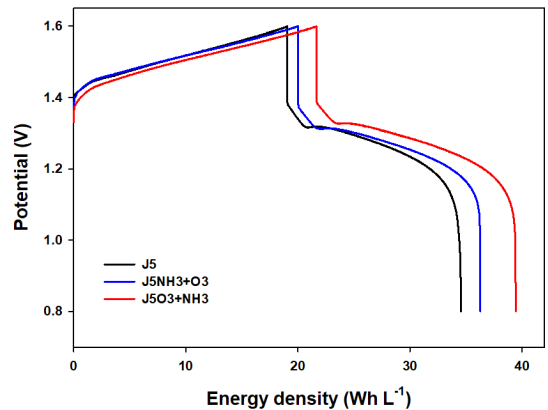


Fig. 4. Charge/discharge curves of the 2nd cycle employing different graphite felts, obtained at a constant current density of  $100 \text{ mA/cm}^2$

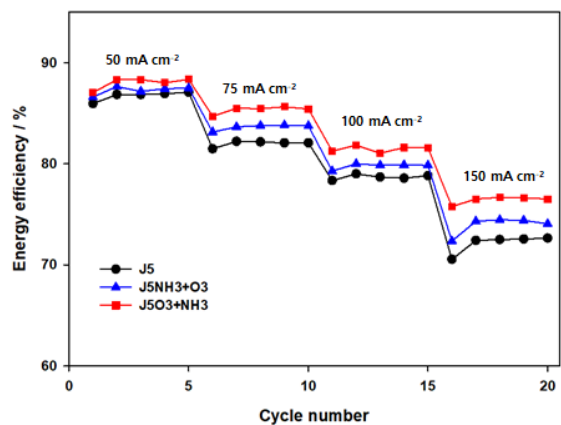
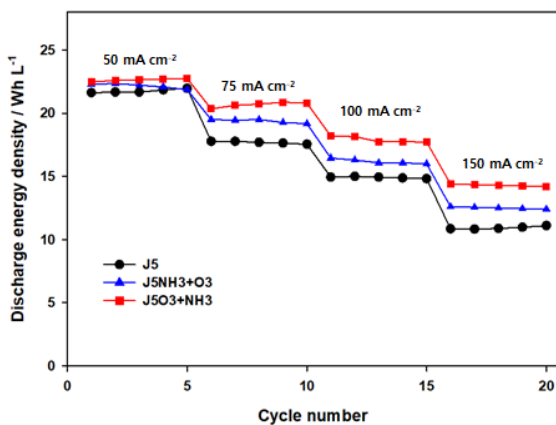


Fig. 5. Cyclic performance of VRFBs employing different graph felts at different current densities (a) discharge energy density and (b) energy efficiency

전극의 활성이 우수하며 레독스 반응이 가역적으로 진행됨을 의미한다. Fig. 2에서 보듯이 오존, 암모니아 순차적 처리된 카본 펠트(J5O3+NH3)가 암모니아, 오존 카본 펠트(J5NH3+O3)와 비활성화된 카본 펠트(J5)보다 우수한 전기화학적 활성을 보였다. J5O3+NH3의 산화 및 환원 피크 전류는 각각 134.2 및 -113.9 mA로 측정되었다. 이는 J5의 130.3 및 -60.1 mA보다 훨씬 증가한 수치이다.

J5O3+NH3 ( $\Delta E_p=206$  mV)의 피크 전위차는 J5O3 ( $\Delta E_p=394$  mV)보다 48% 작았으며, 산화 및 환원 피크 전류비도 J5O3+NH3 ( $I_{pa}/I_{pc}=1.18$ )가 J5 ( $I_{pa}/I_{pc}=2.17$ )보다 더 1에 근접하였다. 이는 J5O3+NH3의 높은 산소와 질소 작용기 함량이 바나듐 산화 환원 반응의 활성 증가에 기여하는 것을 알 수 있다.

오존, 암모니아 순차적 처리 카본 펠트 전극의 활성 증가는 EIS 결과에서도 확인할 수 있다. Fig. 3에 보여준 Nyquist plot 결과에 의하면 J5O3+NH3 전극이 J5NH3+O3 전극과 J5 전극 대비 전하 이동 저항이 각각 60%, 90% 감소하였다. 이러한 EIS 결과는 전해질과 전극의 계면에서 전하 전달 저항이 감소되었음을 의미하며 Fig. 2의 CV 결과와도 일치하는 것을 알 수 있다.

J5, J5NH3+O3 그리고 J5O3+NH3 전극을 양극과 음

극에 적용하여 VRFB 단전지를 구성하고  $100 \text{ mA/cm}^2$  전류밀도에서 충방전 실험을 진행한 결과를 Fig. 4에 나타냈다. Fig. 4에서 볼 수 있듯이 J5O3+NH3의 에너지 밀도가 가장 높았으며 비활성화된 J5가 가장 낮은 에너지 밀도를 나타냈다. 이는 전기화학 특성 평가 결과와 동일하였다.

Fig. 5는 다양한 전류 밀도에서 측정된 성능 결과이다. 충방전 결과를 바탕으로 계산된 전류 효율(coulombic efficiency, CE), 전압 효율(voltage efficiency,

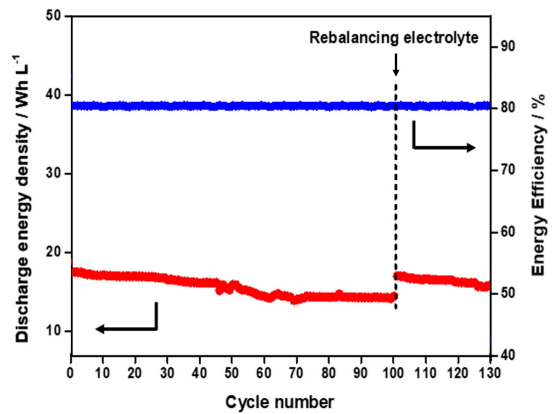


Fig. 6. The discharge energy density and energy efficiency of the J5O3+NH3 according to the number of cycles at  $100 \text{ mA/cm}^2$

Table 2. Summary of cycling performance for the VRFBs employing different graphite felts at various current densities

Electrode (negative/positive)	Current density ( $\text{mA/cm}^2$ )	5 cycle average efficiency (%)			Discharge capacity (Ah L <sup>-1</sup> )
		CE	VE	EE	
J5	50	97.1	89.3	86.7	21.8
	75	97.9	83.8	82.0	17.7
	100	98.2	80.1	78.7	14.9
	150	98.8	73.0	72.1	10.9
J5NH3+O3	50	97.5	89.5	87.3	22.2
	75	98.0	85.3	83.6	19.4
	100	98.0	81.4	79.8	16.2
	150	98.8	74.8	73.9	12.5
J5O3+NH3	50	97.2	90.5	88.0	22.6
	75	97.8	87.2	85.3	20.7
	100	98.1	83.1	81.5	17.9
	150	98.7	77.5	76.5	14.4

VE), 에너지 효율(energy efficiency, EE) 그리고 방전 용량(discharge capacity, Ah/L)을 Table 2에 정리하였다. 그 결과 150 mA/cm<sup>2</sup>의 높은 전류밀도에서 J5는 10.9 Ah/L의 방전 용량과 72.1%의 에너지효율을 나타냈고 J5NH<sub>3</sub>+O<sub>3</sub>는 12.5 Ah/L와 73.9%로 측정되었다. 반면, J5O<sub>3</sub>+NH<sub>3</sub>를 사용하는 VRFB는 14.4 Ah/L와 76.5%로 가장 높은 방전 용량과 효율을 보였다. 이러한 성능 향상은 순차적 처리를 통해 형성된 산소 작용기와 질소 작용기가 바나듐 이온의 산화/환원에 필요한 과전압을 감소시켰기 때문이다.

Fig. 6은 J5O<sub>3</sub>+NH<sub>3</sub> 전극을 사용하여 100 mA/cm<sup>2</sup>에서 130 cycle 동안 측정된 에너지 효율과 방전 용량 결과이다. 전체 cycle 동안 에너지 효율은 감소되지 않고 일정한 효율을 유지하였다. 반면 방전 용량의 경우 바나듐 이온의 투과로 인해 50 cycle 이후 점차적으로 감소하였다. 전해질막을 통한 바나듐 이온의 크로스오버 때문에 발생하는 성능 감소는 양, 음극 전해질을 혼합하여 3.5가 전해질로 초기화 하는 rebalancing 과정을 통해서 해결할 수 있다. 100 cycle 이후 rebalancing을 시행할 경우 방전 용량은 초기 성능의 96%로 회복되었으며, 이는 오존, 암모니아 순차적 처리를 통해 제조된 카본 펠트가 강산성의 바나듐 전해질 조건에서 바나듐 산화 환원 반응 동안 전기화학적으로 안정함을 보여준다.

## 4. 결론

본 연구에서는 오존, 암모니아 순차적 처리 방법을 사용하여 표면에 다량의 산소 작용기와 질소 작용기가 형성된 카본 펠트 전극을 제조하였고 이를 VRFB용 전극에 적용하였다. XPS 결과 J5O<sub>3</sub>+NH<sub>3</sub> 카본 펠트가 J5NH<sub>3</sub>+O<sub>3</sub>와 J5 카본 펠트 대비 높은 표면 산소와 질소 함량을 보였다. 이는 오존, 암모니아 순차적 처리 시 먼저 형성된 산소 작용기가 질소 작용기 도입을 위한 활성점으로 작용하여 많은 양의 질소 작용기가 형성됨을 보여준다. 전기화학 특성 평가 결과 J5O<sub>3</sub>+NH<sub>3</sub> 카본 펠트 표면에 형성된 다량의 산소와 질소 작용기가 바나듐 산화/환원 반응을 향상

시켜 J5NH<sub>3</sub>+O<sub>3</sub>와 J5 카본 펠트 대비 높은 전기화학 활성을 보였다. VRFB 단위 전지 충방전 실험에서 J5O<sub>3</sub>+NH<sub>3</sub>의 방전 용량은 150 mA/cm<sup>2</sup>의 전류밀도에서 14.4 Ah/L로 이는 J5NH<sub>3</sub>+O<sub>3</sub> 및 J5 대비 각각 15% 및 33% 더 높았다. 또한, 장기 운전 평가 결과에서도 130 cycle 동안 에너지효율이 유지되었다. 이러한 실험 결과는 오존 암모니아 순차적 처리 방법이 공정 효율화를 높일 수 있으며 산소 작용기와 질소 작용기를 동시에 형성할 수 있는 매우 효과적인 카본 펠트 활성화 방법임을 보여준다.

## 후 기

이 논문은 2016년도 한국전력공사의 재원으로 한전전력연구원(과제 번호: No. R16EA06)의 지원으로 수행된 연구 결과입니다.

## References

1. Z. Yang, J. Zhang, M. C. W. Kintner-Meyer, X. Lu, D. Choi, J. P. Lemmon, and J. Liu, "Electrochemical energy storage for green grid", *Chem. Rev.*, Vol. 111, No. 5, 2011, pp. 3577-3613, doi: <https://doi.org/10.1021/cr100290v>.
2. B. Dunn, H. Kamath, and J. M. Tarascon, "Electrical energy storage for the grid: a battery of choices", *Science*, Vol. 334, No. 6058, 2011, pp. 928-935, doi: <https://doi.org/10.1126/science.1212741>.
3. Z. Mai, H. Zhang, X. Li, S. Xiao, and H. Zhang, "Nafion/polyvinylidene fluoride blend membranes with improved ion selectivity for vanadium redox flow battery application", *Journal of Power Sources*, Vol. 196, No. 13, 2011, pp. 5737-5741, doi: <https://doi.org/10.1016/j.jpowsour.2011.02.048>.
4. K. J. Kim, Y. J. Kim, J. H. Kim, and M. S. Park, "The effects of surface modification on carbon felt electrodes for use in vanadium redox flow batteries", *Materials Chemistry and Physics*, Vol. 131, No. 1-2, 2011, pp. 547-553, doi: <https://doi.org/10.1016/j.matchemphys.2011.10.022>.
5. Z. González, C. Botas, P. Álvarez, S. Roldán, C. Blanco, R. Santamaria, M. Granda, and R. Menéndez, "Thermally reduced graphite oxide as positive electrode in vanadium redox flow batteries", *Carbon*, Vol. 50, No. 3, 2012, pp. 828-834, doi: <https://doi.org/10.1016/j.carbon.2011.09.041>.
6. H. Kaneko, K. Nozaki, Y. Wada, T. Aoki, A. Negishi, and M. Kamimoto, "Vanadium redox reactions and carbon electrodes



- for vanadium redox flow battery”, *Electrochimica Acta*, Vol. 36, No. 7, 1991, pp. 1191-1196, doi: [https://doi.org/10.1016/0013-4686\(91\)85108-J](https://doi.org/10.1016/0013-4686(91)85108-J).
7. B. Sun and M. Skyllas-Kazacos, “Chemical modification of graphite electrode materials for vanadium redox flow battery application—part II. Acid treatments”, *Electrochimica Acta*, Vol. 37, No. 13, 1992, pp. 2459-2465, doi: [https://doi.org/10.1016/0013-4686\(92\)87084-D](https://doi.org/10.1016/0013-4686(92)87084-D).
  8. B. Sun and M. Skyllas-Kazacos, “Chemical modification and electrochemical behaviour of graphite fibre in acidic vanadium solution”, *Electrochimica Acta*, Vol. 36, No. 3-4, 1991, pp. 513-517, doi: [https://doi.org/10.1016/0013-4686\(91\)85135-T](https://doi.org/10.1016/0013-4686(91)85135-T).
  9. B. Sun and M. Skyllas-Kazacos, “Modification of graphite electrode materials for vanadium redox flow battery application—I. Thermal treatment”, *Electrochimica Acta*, Vol. 37, No. 7, 1992, pp. 1253-1260, doi: [https://doi.org/10.1016/0013-4686\(92\)85064-R](https://doi.org/10.1016/0013-4686(92)85064-R).
  10. L. Yue, W. Li, F. Sun, L. Zhao, and L. Xing, “Highly hydroxylated carbon fibres as electrode materials of all-vanadium redox flow battery”, *Carbon*, Vol. 48, No. 11, 2010, pp. 3079-3090, doi: <https://doi.org/10.1016/j.carbon.2010.04.044>.
  11. W. Zhang, J. Xi, Z. Li, H. Zhou, L. Liu, Z. Wu, and X. Qiu, “Electrochemical activation of graphite felt electrode for  $\text{VO}^{2+}/\text{VO}_2^+$  redox couple application”, *Electrochimica Acta*, Vol. 89, 2013, pp. 429-435, doi: <https://doi.org/10.1016/j.electacta.2012.11.072>.
  12. D. Kil, H. J. Lee, S. Park, S. Kim, and H. Kim, “Synthesis of activated graphite felts using short-term ozone/heat treatment for vanadium redox flow batterie”, *J. Electrochem. Soc.*, Vol. 164, No. 13, 2017, pp. A3011-A3017, doi: <https://doi.org/10.1149/2.0311713jes>.
  13. J. Jin, X. Fu, Q. Liu, Y. Liu, Z. Wei, K. Niu, and J. Zhang, “Identifying the active site in nitrogen-doped graphene for the  $\text{VO}^{2+}/\text{VO}_2^+$  redox reaction”, *ACS Nano*, Vol. 7, No. 6, 2013, pp. 4764-4773, doi: <https://doi.org/10.1021/nn3046709>.
  14. Y. Shaoa, X. Wang, M. Engelhard, C. Wang, S. Dai, J. Liu, Z. Yang, and Y. Lin, “Nitrogen-doped mesoporous carbon for energy storage in vanadium redox flow batteries”, *Journal of Power Sources*, Vol. 195, No. 13, 2010, pp. 4375-4379, doi: <https://doi.org/10.1016/j.jpowsour.2010.01.015>.
  15. H. Lee and H. Kim, “Development of nitrogen-doped carbons using the hydrothermal method as electrode materials for vanadium redox flow batteries”, *J. Appl. Electrochem.*, Vol. 43, 2013, pp. 553-557, doi: <https://doi.org/10.1007/s10800-013-0539-0>.
  16. S. Wang, X. Zhao, T. Cochell, and A. Manthiram, “Nitrogen-doped carbon nanotube/graphite felts as advanced electrode materials for vanadium redox flow batteries”, *J. Phys. Chem. Lett.*, Vol. 3, No. 16, 2012, pp. 2164-2167, doi: <https://doi.org/10.1021/jz3008744>.
  17. C. Flox, J. Rubio-García, M. Skoumal, T. Andreu, and J. R. Morante, “Thermo-chemical treatments based on  $\text{NH}_3/\text{O}_2$  for improved graphite-based fiber electrodes in vanadium redox flow batteries”, *Carbon*, Vol. 60, 2013, pp. 280-288, doi: <https://doi.org/10.1016/j.carbon.2013.04.038>.
  18. T. Wu, K. Huang, S. Liu, S. Zhuang, D. Fang, S. Li, D. Lu, and A. Su, “Hydrothermal ammoniated treatment of PAN-graphite felt for vanadium redox flow battery”, *J. Solid State Electrochem.*, Vol. 16, 2012, pp. 579-585, doi: <https://doi.org/10.1007/s10008-011-1383-y>.
  19. H. J. Lee and H. Kim, “Graphite felt coated with dopamine-derived nitrogen-doped carbon as a positive electrode for a vanadium redox flow battery”, *J. Electrochem. Soc.*, Vol. 162, No. 8, 2015, pp. A1675-A1681, doi: <https://doi.org/10.1149/2.0081509jes>.
  20. S. Park and H. Kim, “Fabrication of nitrogen-doped graphite felts as positive electrodes using polypyrrole as a coating agent in vanadium redox flow batteries”, *Journal of Materials Chemistry A*, Vol. 3, No. 23, 2015, pp. 12276-12283, doi: <https://doi.org/10.1039/C5TA02674A>.
  21. H. J. Lee, D. Kil, and H. Kim, “Synthesis of activated graphite felt using consecutive post-treatments for vanadium redox flow batteries”, *J. Electrochem. Soc.*, Vol. 163, No. 13, 2016, pp. A2586-A2591, doi: <https://doi.org/10.1149/2.0531613jes>.