

• Topical Issue • 가공된 기능성 재료 기술(Engineered Functional Materials)

# 마이크로 홀 배열 세리아 기능층을 포함하는 고내구 고분자 전해질막 연료전지

## Micro-hole Array Ceria Functional Layer Embedded Membrane for Durable Polymer Electrolyte Membrane Fuel Cell

설창욱<sup>1</sup>, 장세근<sup>2,#</sup>, 김상문<sup>1,#</sup>  
Changwook Seol<sup>1</sup>, Segeun Jang<sup>2,#</sup>, and Sang Moon Kim<sup>1,#</sup>

<sup>1</sup> 인천대학교 기계공학과 (Department of Mechanical Engineering, Incheon National University)

<sup>2</sup> 국민대학교 기계공학과 (School of Mechanical Engineering, Kookmin University)

# Corresponding Authors / E-mails: ksm7852@inu.ac.kr, TEL: +82-32-835-8096, ORCID: 0000-0002-2311-2211  
sjang@kookmin.ac.kr, TEL: +82-2-910-4815, ORCID: 0000-0001-8319-8400

KEYWORDS: Polymer electrolyte membrane fuel cell (고분자 전해질막 연료전지), Membrane durability (전해질막 내구성), micro-pattern (마이크로 패턴), Plasma etching (플라즈마 식각), Radical scavenger (라디칼 제거제)

*For the commercialization of polymer electrolyte membrane fuel cells (PEMFCs), it is essential to achieve high performance while improving the durability of the membrane electrode assembly. In particular, the durability of PEMFCs can be improved by adding radical scavengers, such as CeO<sub>2</sub> (ceria), to the membrane. Though it is desirable to insert the ceria at the interface between the membrane and electrode, where the generated radical attack initiates, this increases interfacial resistance and ionic resistance, thereby inducing a probable reduction in initial performance, compared to that of a conventional membrane. Here, we developed modified Nafion electrolyte membranes with a spatially located patterned ceria containing Nafion ionomer to improve durability while minimizing performance degradation. The fabrication process includes an etching process to pattern the electrolyte membrane, and the ceria nanoparticle layer is selectively deposited by spray coating onto the membrane. The synergetic effect of the structural modification of the electrolyte membranes and the introduction of the functional ceria layer exhibited improved chemical durability, while maintaining the initial performance of the PEMFC.*

Manuscript received: March 19, 2024 / Revised: May 24, 2024 / Accepted: May 30, 2024

### NOMENCLATURE

PEMFC	=	Polymer Electrolyte Membrane Fuel Cell
MEA	=	Membrane Electrode Assembly
HFR	=	High Frequency Resistance
PFSA	=	Perfluorosulfonic Acid

### 1. 서론

고분자 전해질막 연료전지(PEMFC)는 높은 에너지 변환 효율과 이산화탄소, 질소산화물, 황산화물, 탄화수소 등의 오염 물질을 배출하지 않는 친환경 에너지 장치로 널리 인정받고 있다[1,2]. 이러한 여러 장점 덕분에 PEMFC는 수소 자동차, 휴대용 기기,

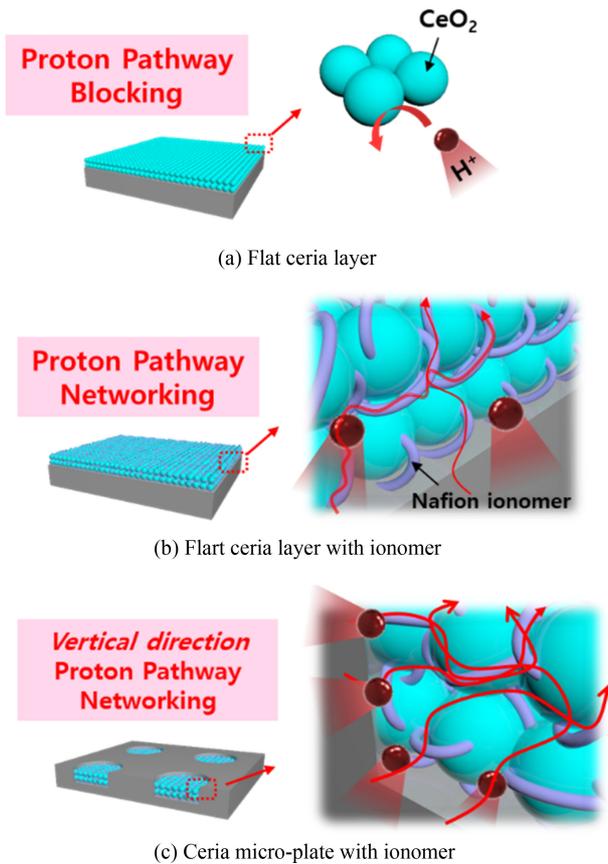


Fig. 1 Schematic illustration of ceria-embedded Nafion membrane: (a) Flat ceria layer, (b) Flat ceria layer with ionomer, and (c) Ceria micro-plate with ionomer

무인 항공기, 지게차, 굴삭기 또는 건물용 발전기 등 다양한 모빌리티 응용에서 주요 동력원으로 사용될 수 있다[3,4]. PEMFC의 핵심 구성 요소인 막-전극접합체(MEA)는 전기화학 반응이 일어나는 장소로, 산화극과 환원극의 촉매층 및 양성자 교환막으로 구성되어 있다. 나피온(Nafion) 전해질막과 같은 퍼플루오로술폰산(PFSA) 기반 전해질막은 높은 이온전도도, 유연한 기계적 특성, 구조적 안정성 덕분에 PEMFC의 전해질로 널리 사용되고 있다[5,6]. 그럼에도 불구하고, 높은 비용, 높은 가스 투과성, 그리고 가혹한 연료전지 작동 조건에서의 화학적 열화는 PEMFC의 상용화를 저해하는 주요 요소이다. 특히, 높은 전류 밀도에서 작동할 때 환원극에서 불완전한 산소 환원 반응이나 전해질막을 통한 수소 가스의 크로스오버(Crossover)로 인해 생성되는 라디칼들이 전해질막의 과불화탄소 백본과 촉매층의 사이드 체인 이온기를 공격, 이로 인해 멤브레인이 얇아지고, 이온기가 용해되며, 표면에 결함이 형성될 수 있다. 이 문제를 해결하기 위해, 라디칼의 화학적 공격을 완화하고 멤브레인을 강화하기 위해 멤브레인에 라디칼 제거제 또는 기능성 첨가제를 삽입하는 연구가 진행되어 오고 있는데, 이러한 첨가제 중에서 세리아(Ceria,  $\text{CeO}_2$ )는 산성 환경에서 라디칼을 효과적으로 제거하고 재생할 수 있는 능력 덕분에 주목받고 있다. 세리아의 활용은 라디칼 공격을 효과적으로 제거하여 PEMFC의 내구성을

향상시킬 수 있다[7-9]. 그러나, 세리아 층의 삽입은 전해질막과 전극층 계면 저항 증가 및 막-전극접합체의 이온전도도 능력을 떨어뜨려, 초기 성능이 기존 막-전극접합체보다 좋지 않다는 단점을 지니고 있다[10,11].

따라서, 본 논문에서는 패틴화된 전해질막에 나피온 이오노머 체인이 포함된 세리아 층을 부분적으로 삽입하는 공정을 제안하고자 한다. Fig. 1과 같이, 전면적에 세리아 층만 삽입되어있는 전해질막을 사용할 경우, 전해질막과 전극층 간의 이오노머 체인 네트워크가 세리아 층에 의해 연결되지 못해 막-전극접합체의 이온전도도가 감소 및 옴 저항 증가를 유발할 수 있다. 전해질막과 전극층 간 이오노머 네트워크 형성을 하기 위해, 삽입된 기능성 세리아 층에 나피온 이오노머를 추가하여 막-전극접합체 이온전도도 감소를 최소화할 수 있다. 더 나아가, 국부적으로 식각이 된 전해질막의 마이크로 패턴 속에 세리아/이오노머 층을 삽입하여 성능 감소 최소화 및 내구성 향상을 기대할 수 있다. 본 논문에서 제안하는 공정은 전해질막 패틴화를 위한 식각 공정을 포함하며, 세리아 층은 스프레이 코팅 공정을 통해 고분자 스텐실 마스크 내 마이크로 홀패턴에 노출된 전해질막 표면에 부분적으로 삽입된다. 부분적으로 삽입된 세리아 층이 삽입된 나피온 막이 기존 막 대비 우수한 화학적 안정성을 보일 수 있으며, 성능 저하를 최소화하면서 향상된 내구성을 동시에 제공할 수 있다.

## 2. 실험방법

### 2.1 세리아 기능층이 삽입된 전해질막 제조법

Fig. 2와 같이 마이크로 홀패턴을 갖는 고분자 스텐실을 에칭 마스크로 사용되어 기존의 나피온 막(NRE-211, Dupont, USA) 표면에 부착시킨다. 폴리머 스텐실과 폴리이미드 필름을 순차적으로 유리 기판에 부착된 나피온 막 상에 배치해 접촉을 유지하였다. 결합된 어셈블리를 플라즈마 챔버(Femto Science, Korea) 안에 배치시키고, 진공 펌핑과 공기 가스 공급 사이의 균형을 맞추어  $3.0 \times 10^{-1}$  Torr의 압력을 유지시켰다. 50 W의 Capacitive 플라즈마 전력으로 이온, 전자 및 자유 라디칼로 구성된 산소 플라즈마가 생성되었으며, 고분자 스텐실 마스크로 덮인 나피온 막은 식각 시간 약 2시간 동안 산소 플라즈마에 노출시켰다. 고분자 스텐실과 나피온 막 사이의 완전한 접촉으로 인해 스텐실과 막 사이의 접촉 부위는 식각되지 않았으며, 스텐실의 마이크로 홀패턴이 배치된 노출 영역의 막이 선택적으로 식각되었다. 본 실험에서 사용된 세리아 나노입자의 크기와 관련하여, 세리아 입자의 활성 표면적은 입자 크기에 반비례하며, 작은 크기의 입자를 사용할 때 라디칼 소거 효과가 향상될 수 있다. 그러나 크기가 10 nm 이하인 매우 미세한 입자는 입자 간의 약한 반발력과 고유의 불안정성 때문에 강하게 응집되는 경향이 있다[12]. 게다가, 세리아 나노입자의 화학적 안정성은 결정립 크기가 커지고 단위 질량당 표면적이 감소함에 따라 증가하는 것으로 보고되었다[11]. 따라서, 라디칼 소거 효과와 적절한 안정성을

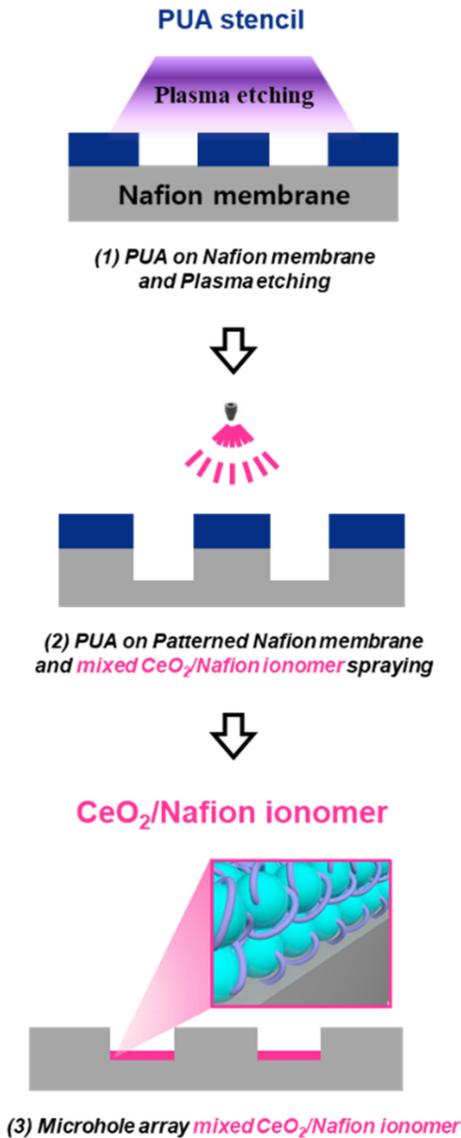


Fig. 2 Schematic illustration of fabrication of ceria micro-plate ceria on Nafion membrane

달성하기 위해 적절히 큰 크기의 입자를 사용해야 한다. 다시 말해, 라디칼의 소거 효과는 응집 문제가 두드러지는 작은 크기의 나노입자(4-6 nm)보다 큰 나노입자에서 더 효과적이기에 25 nm 크기의 세리아 입자를 사용하였다. 세리아/이오노머 용액은 0.5 wt% 로 희석된 세리아 용액과 5 wt% 나피온 이오노머를 5:1 부피비로 섞어 준비하였다. 식각된 부위에 준비된 세리아/이오노머 용액을 스프레이 방식으로 도포하여 부분적으로 세리아 기능층이 삽입된 나피온 전해질막을 제작하였다.

### 2.2 막-전극접합체 제작

전극층은 Pt/C 촉매 용액을 스프레이 공정을 통해 제조되었으며, 준비된 촉매 용액은 40 wt% Pt/C 촉매(Johnson Matthey Co., UK)와 5 wt% 나피온 이오노머 용액(Sigma-aldrich, USA)을 균일하게 혼합하여 제조되었다. 나피온 이오노머와 백금 촉매의

비율은 건조 혼합물(Pt/C+Nafion Ionomer)의 총 중량에 대한 Nafion의 중량 비율로 정의되었으며, 이를 23 wt%로 설정하였다. 또한, 촉매 잉크의 점도를 조절하기 위해 증류수와 이소프로필 알코올을 첨가하고 초음파발생장치를 통해 균일하게 혼합하였다. 그 후, 촉매 잉크를 순수한 나피온 전해질막 표면에 직접 분사하여 산화극과 환원극 각각 약 0.2 mg·cm<sup>-2</sup>의 동일한 Pt 로딩으로 구성하였고, 활성 면적은 각각 5.0 cm<sup>2</sup>으로 제작되었다. 이후 상온에서 12시간 이상 건조하여 막-전극접합체를 준비하였다.

### 2.3 연료전지 단위전지 구성 및 평가

준비된 막-전극접합체를 가스화산층 사이에 배치하고 (Sigracet 39BC, SGL Carbon, Germany), 양쪽에 테프론 개스킷을 삽입하였다. 연료전지 단위전지에 사용된 유동장은 채널과 리브(Rib) 폭은 각각 1 mm로, Serpentine 형태 채널이 있는 흑연 소재의 판이 사용되었다. End Plate를 양쪽에 배치시킨 뒤, 8개의 볼트를 80 in·lb의 토크로 조여 단단히 조립하였다. 준비된 단위전지의 성능 평가는 완전 습도 작동 조건에서 모두 평가되었으며, 완전 가습 조건에서는 단위전지 온도를 60°C로 유지하고, 산화극과 환원극에 각각 완전 가습된 수소와 공기 가스를 각각 150, 800 SCCM의 유량으로 주입하였다. 같은 작동 환경에서, 고주파 저항(High Frequency Resistance, HFR)은 Potentiostat (HCP-803, BioLogic, France) 장비로 평가되었으며, 4.0 kHz의 고정 주파수를 갖는 1.0 A의 정전류 신호에서 측정되었다. 본 실험에서 사용한 전해질 막의 화학적 내구성을 평가하기 위해, 일정한 전압을 유지시키는 개방 회로 전압(OCV) 테스트를 수행하였다. OCV 테스트에서는 단위전지 온도를 90°C로 유지시키고, 25%의 상대 습도(Relative Humidity, RH)로 부분 가습된 수소 가스와 산소 가스를 각각 200 SCCM 유량으로 공급하여 48시간 동안 OCV 변화를 기록하였다.

### 2.4 형태학적 분석

각 샘플의 형태학적 특성을 관찰하기 위해 가속 전압 10.0 kV의 전계 방출 주사 전자 현미경(JEOL, JSM-7800F, JAPAN)을 사용하였다.

## 3. 실험 결과 및 고찰

### 3.1 세리아 층 삽입 및 저항 특성 평가

세리아 층에 첨가된 이오노머가 전해질막과 전극층 간의 네트워크 형성 효과를 확인하기 위해, 세리아 로딩별로 정전류 1.0 A에서의 High Frequency Resistance를 측정 및 비교를 하였다(Fig. 3). 세리아 층이 삽입되지 않은 Pristine한 MEA는 약 0.273 ohm·cm<sup>2</sup>의 값을 나타내었다. 전면적에 세리아 층이 삽입된 MEA는 세리아 로딩량이 증가함에 따라 저항값이 지속적으로 증가하였고, 특히 0.22 mg·cm<sup>-2</sup>에서 급격한 저항 증가가 나타났다. 이에 반해, 이오노머가 섞인 세리아층이 삽입된 MEA의

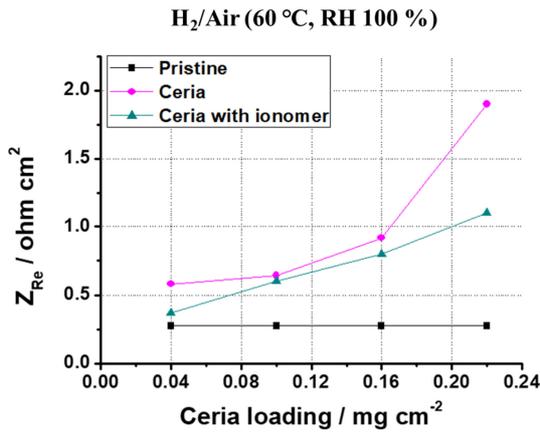


Fig. 3 The HFR plot of pristine, flat ceria without ionomer, and ceria with ionomer deposited on Nafion membrane 211

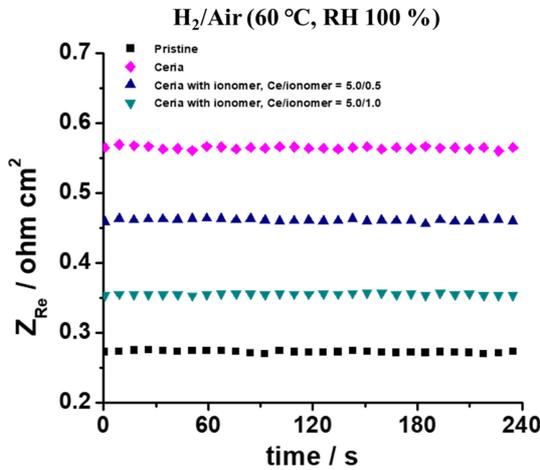


Fig. 4 The HFR plot of pristine, ceria without ionomer, ceria with ionomer (ceria solution/ionomer solution = 5.0/0.5 v/v), and ceria with ionomer (ceria solution/ionomer solution = 5.0/1.0 v/v) deposited on Nafion membrane 211

경우 전체적으로 선형적으로 저항값이 증가되었고, 같은 세리아 로딩양인 0.22 mg·cm<sup>-2</sup>에서 상대적으로 확연히 낮은 저항값을 나타내었다. 이는 나피온 이오노머가 전해질막으로부터 전달된 수소 이온이 전극층으로의 전도를 위한 이오노머 체인 네트워크 역할을 할 수 있음을 의미하며, 나피온 이오노머가 혼합되어 있는 경우, 높은 로딩량의 세리아를 MEA 내에 삽입할 수 있음을 나타낸다.

세리아 기능층의 이오노머 양에 따른 효과를 조사하기 위해, 0.04 mg·cm<sup>-2</sup>의 동일한 세리아 로딩량으로 도포된 전해질막의 HFR 측정을 해보았다. 먼저, 이오노머 없이 세리아 층만 도입된 전해질막의 오믹 저항은 순수한 나피온 전해질막 대비하여 약 106% 증가하였다. 다음으로, 상대적으로 적은 양의 이오노머를 포함한 세리아 층을 가진 전해질막(Ceria with Ionomer, Ceria Solution/Ionomer Solution = 5.0/0.5 v/v)의 경우, 순수한 나피온 전해질막 대비하여 32.5% 높은 오믹 저항이 측정되었으며, 오믹 저항 감소 효과를 보였다. 이오노머 양을 증가를

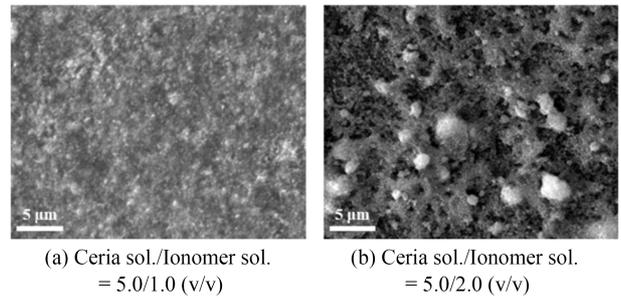
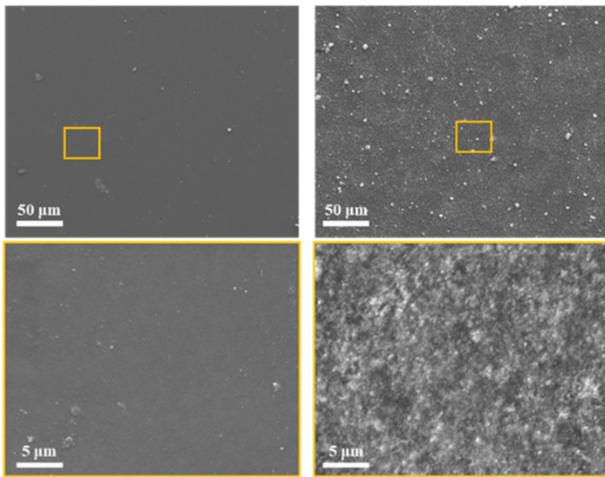


Fig. 5 The SEM images of flat ceria with ionomer (ceria solution/ionomer solution = 5.0/1.0 v/v), and ceria with ionomer (ceria solution/ionomer solution = 5.0/2.0 v/v) deposited on Nafion membrane 211

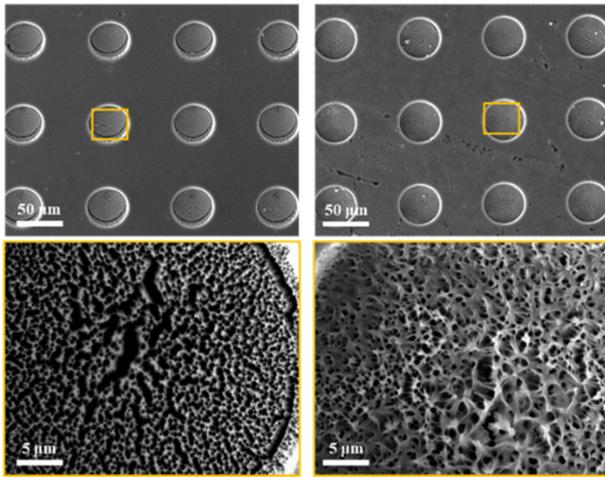
시켰을 때의 전해질막(Ceria with Ionomer, Ceria Solution/Ionomer Solution = 5.0/1.0 v/v)의 경우, 순수한 나피온 전해질막 대비하여 17.6% 높은 오믹 저항이 측정되었으며, 이오노머 함량이 높을수록 오믹 저항 감소 효과가 커지는 것을 확인할 수 있었다. 그러나, 세리아 나노입자 대비 나피온 이오노머의 비율을 계속해서 높였을 때, Fig. 5와 같이 세리아 입자가 뭉치는 현상(Aggregation)이 나타났다. 이는 세리아 입자의 단위 질량당 표면적이 줄어들어, 라디칼 스캐빈저 역할 능력 저하를 유도할 수 있기 때문에, 본 실험에서는 오믹 저항 감소 효과와 더불어 입자 뭉침 현상을 고려하여 Ceria with Ionomer, Ceria Solution/Ionomer Solution = 5.0/1.0 v/v를 선정하여 실험을 수행하였다.

### 3.2 단위전지 성능 및 내구도 평가

나피온 이오노머가 전해질막과 전극층의 이온 전도 네트워크를 형성할 수 있음을 확인한 후, 본 논문에서 제안하는 공정법으로 세리아 기능층이 고르게 도포가 되는지 확인하기 위해, Fig. 6과 같이 나피온 전해질막(Pristine Nafion Membrane 211), 전면적으로 세리아 층이 도포된 전해질막(Nafion Membrane with Flat Ceria Layer), 패턴화된 전해질막(Micro-pattern Etched Membrane) 그리고 부분적으로 세리아 나노입자가 삽입된 전해질막(Nafion Membrane with Patterned Ceria Micro-plates)의 주사전자현미경의 이미지를 얻었다. 본 논문에서는 50 μm 크기의 홀 패턴을 사용하였다. 패턴 크기 선정과 관련하여, 세리아 층은 내구도를 높이지만 동시에 양성자 전도도를 낮추기 때문에 적절한 패턴 형상을 찾는 것이 중요하다. 이는 앞서 연구된 저가 습 환경에서 성능 향상을 위해 사용된 TiO<sub>2</sub> 입자 패턴 어레이가 도포된 복합 전해질막 연구를 바탕으로 선정하였다[13]. 세리아 나노입자는 전반적으로 고르게 분포될 수 있었으며, 특히 부분적으로 삽입된 세리아 나노입자는 홀 패턴에만 선택적으로 도포된 것을 확인할 수 있었다. 식각된 홀 패턴 부분에 선택적으로 삽입된 세리아 입자와 도포되지 않은 나피온 전해질막의 구분을 명확하게 하기 위해, 에너지분산형 분광분석법(Energy Dispersive Spectrometer, EDS)을 사용하였다. Fig. 7과 같이 제작된 세리아 나노입자가 삽입된 홀 패턴의 전해질 막은 전해질막

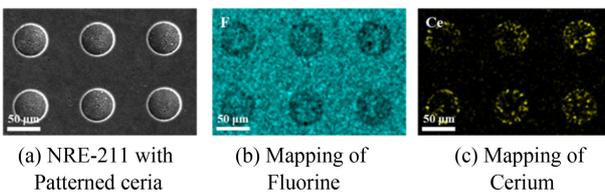


(a) Pristine NRE-211 (b) NRE-211 with flat ceria



(c) Patterned NRE-211 (d) NRE-211 with Patterned ceria

Fig. 6 Scanning electron microscope (SEM) images of the pristine Nafion membrane 211 (a), Nafion membrane with flat ceria layer (b), micro-pattern etched membrane (c), and Nafion membrane with patterned ceria micro-plates (d)



(a) NRE-211 with Patterned ceria (b) Mapping of Fluorine (c) Mapping of Cerium

Fig. 7 Morphological features of NRE-211 with Patterned ceria: (a) The SEM images of NRE-211 with Patterned ceria, (b) The corresponding EDS elemental mapping images of Fluorine (F), and (c) The corresponding EDS elemental mapping images of Cerium (Ce)

및 나피온 이오노머 구성 성분인 플루오린(F) 이온으로 확인이 되었다. 세리아 나노입자층의 경우, 전해질막의 홀 패턴 부분에 만 선택적으로 도포된 것을 Ce 원자 맵핑을 통해 확인하였으며, 이는 기능성 세리아 나노입자층이 부분적으로 홀 패턴 형상으로 삽입이 되었음을 시사한다.

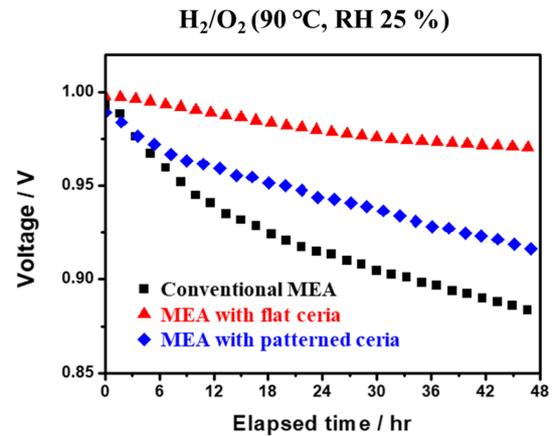


Fig. 8 OCV profiles of MEAs with flat ceria and patterned ceria and conventional MEA with OCV retention for 48 hours

나피온 전해질막에 삽입된 세리아 층의 효과를 확인하기 위해 나피온 전해질막, 전면적에 걸쳐서 세리아 나노입자 층이 있는 나피온 막과 부분적으로 세리아 나노입자 층이 삽입되어 있는 나피온 막을 사용하여 단위 전지를 구성하여, 각 전해질막의 화학적 내구도를 파악하기 위한 OCV 테스트를 48시간 동안 Fig. 8과 같이 실시하였다. 시험 전에 모든 샘플의 OCV는 약 0.95 V 이상의 값을 나타내었으며, 이는 PEMFC가 나피온 막에 의해 효과적으로 분극될 수 있음을 나타낸다. 그러나 OCV 환경에서의 유지가 지속됨에 따라 PEMFC의 OCV는 나피온 막의 손상으로 인해 점차 감소하였다. 순수 나피온 막과 세리아 층이 있는 나피온 막의 단위 전지의 경향을 비교한 결과, 후자가 OCV 감소량은 약 29 mV로 더 적었으며(전자는 111 mV), 이는 세리아 나노입자 층이 전해질 막의 화학적 내구성을 향상시킬 수 있음을 나타낸다. 부분적으로 삽입된 세리아 층 역시, 순수한 나피온 막을 사용했을 때보다 더 낮은 OCV 변화량을 나타냈으나(74 mV), 전면적에 걸쳐 삽입된 세리아 나노입자층의 전해질 막보다는 높은 감소량을 나타내었다. OCV 테스트 결과, 세리아 층이 깔린 나피온 막의 면적과 화학적 내구성 향상과는 비례 관계에 있음을 확인하였다. 제조된 전해질 막을 사용한 단위전지의 성능의 유지도를 파악하기 위해, PEMFC의 성능을 OCV 테스트 전후로 비교하였다(Fig. 9). PEMFC의 양극/음극에 완전히 가습된 수소/공기 가스를 공급하고 단위전지 작동 온도를 60 °C로 고정하였다. OCV 테스트 이전에 세리아 나노입자가 전면적으로 삽입된 전해질막의 단위전지의 최대 전력 밀도는 748 mW·cm<sup>2</sup>로 기준 PEMFC의 최대 전력 밀도 값(872 mW·cm<sup>2</sup>)에 비해 약 14.22% 감소하였다.

이는 수소 이온 전달이 전면적에 걸쳐 형성된 세리아 나노입자층에 막혀 원활하지 못하여 이온전도도 감소, 옴 저항의 증가로 인한 것으로 사료된다. 반면, 부분적으로 삽입된 세리아 층의 성능은 기존의 것에 비해 약 2.98% 감소된 846 mW·cm<sup>2</sup>의 최대전력밀도를 나타내었으며, 이는 약 20% 세리아 층을 제외한 나머지 면적의 높은 이온전도도, 낮은 계면 저항에 기인하여, 높은 성능을 나타낸 것으로 보인다. OCV 테스트 후에는 PEMFC의 성능 순서가 뒤바뀌었는데, 기준 막-전극접합체의 최대 전류

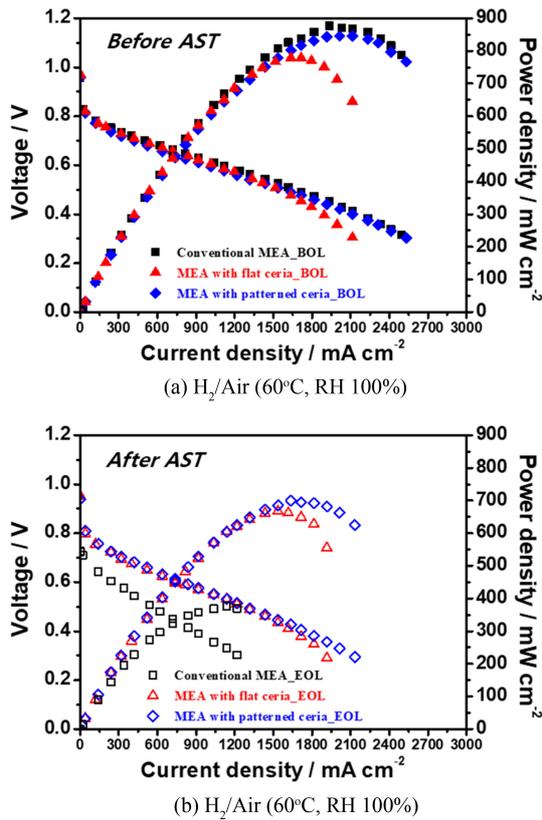


Fig. 9 Polarization curves of MEAs with flat ceria and patterned ceria and conventional MEA before OCV test (a) and after OCV test (b)

밀도값은 370 mW·cm<sup>-2</sup>로 약 57.6% 감소된 성능을 보여주었다. 반면, 전면적에 걸쳐 삽입된 세리아 나노입자층의 전해질 막을 포함하는 단위전지는 OCV 테스트 전후에 성능은 약 687 mW·cm<sup>-2</sup>로 약 8.16%의 가장 낮은 변화량을 보여주었다. 특히, 패턴화된 세리아/나피온 이오노머 기능층이 삽입된 막-전극접합체는 약 16.8% 감소된 최대 전류 밀도값 704 mW·cm<sup>-2</sup>를 나타내었으며, 이는 패턴화된 기능성 금속층이 라디칼 스캐빈저 역할을 전해질 막에 일부 작용하여 기존 막-전극접합체보다 더욱 우수한 내구도를 나타낼 수 있음을 보여준다. 비록 전면적에 도포된 세리아 층을 포함하는 전해질막을 활용한 단위전지의 내구도보다 뛰어난 것은 아니지만, 3차원 형상의 막-전극접합체의 구조적 장점 즉, 반응성이 가장 활발한 막/전극 계면의 확장에 따른 촉매활용률 향상 및 이온전도경로 추가 확보를 통해[14], 초기 성능 확보와 함께 내구성 향상을 동시에 가질 수 있다는 것을 보여준다.

#### 4. 결론

본 연구에서는 세리아/나피온 이오노머 기능층을 공간적으로 패턴화된 전해질막 표면에 삽입함으로써, 기존의 막-전극접합체와 유사한 초기 성능을 유지하면서도 뛰어난 내구성을 확보할

수 있음을 보여주었다. 세리아 층을 단독으로 도포하였을 때에는 세리아 층 두께에 따라 지수적으로 HFR 저항이 증가하는 반면, 세리아/나피온 이오노머를 혼합하여 도포한 기능층은 두께에 따라 선형적으로 HFR 저항이 증가하는 특성을 확인하였다. 마이크로 홀패턴을 지니는 고분자 스텐실을 이용하여 나피온 전해질막 상에 패턴화 및 세리아 기능층을 스프레이 방식으로 도포할 수 있었으며, 부분적으로 삽입된 세리아/나피온 이오노머 기능층이 라디칼 제거제 역할을 수행하여 개선된 화학적 내구성을 보여주었다. 또한, 전해질막의 3차원 구조화를 통해 전면적에 도포된 세리아 기능층을 갖는 전해질막보다 우수한 초기 성능을 확보할 수 있었으며, 48시간 OCV 테스트 이후에도 더 나은 성능을 유지하는 것을 확인하였다. 향후 패턴 및 세리아/나피온 이오노머 로딩양 최적화를 통해 성능과 내구성 측면에서 더욱 향상된 연료전지 시스템 구현이 가능할 것으로 기대된다.

#### ACKNOWLEDGEMENT

This work was supported by the National Research Foundation (NRF) of Korea (No. RS-2023-00277319).

#### REFERENCES

- Gasteiger, H. A., Marković, N. M., (2009), Just a dream-or future reality?, *Science*, 324(5923), 48-49.
- O'hayre, R., Cha, S.-W., Colella, W., Prinz, F. B., (2016), *Fuel cell fundamentals*, John Wiley & Sons.
- Dyer, C. K., (2002), Fuel cells for portable applications, *Journal of Power Sources*, 106(1-2), 31-34.
- Paulson, L. D., (2003), Will fuel cells replace batteries in mobile devices?, *Computer*, 36(11), 10-12.
- Kusoglu, A., Weber, A. Z., (2017), New insights into perfluorinated sulfonic-acid ionomers, *Chemical Reviews*, 117(3), 987-1104.
- Spiegel, C., (2007), *Designing and building fuel cells*, Mcgraw-hill.
- Pearman, B. P., Mohajeri, N., Brooker, R. P., Rodgers, M. P., Slattery, D. K., Hampton, M. D., Cullen, D. A., Seal, S., (2013), The degradation mitigation effect of cerium oxide in polymer electrolyte membranes in extended fuel cell durability tests, *Journal of Power Sources*, 225, 75-83.
- Baker, A. M., Wang, L., Johnson, W. B., Prasad, A. K., Advani, S. G., (2014), Nafion membranes reinforced with ceria-coated multiwall carbon nanotubes for improved mechanical and chemical durability in polymer electrolyte membrane fuel cells, *The Journal of Physical Chemistry C*, 118(46), 26796-26802.

9. Kang, Y. S., Jang, S., Choi, E., Jo, S., Kim, S. M., Yoo, S. J., (2022), Sandwich-like nafion composite membrane with ultrathin ceria barriers for durable fuel cells, *International Journal of Energy Research*, 46(5), 6457-6470.
10. Baker, A. M., Mukundan, R., Spornjak, D., Judge, E. J., Advani, S. G., Prasad, A. K., Borup, R. L., (2016), Cerium migration during PEM fuel cell accelerated stress testing, *Journal of The Electrochemical Society*, 163(9), F1023-F1031.
11. Banham, D., Ye, S., Cheng, T., Knights, S., Stewart, S. M., Wilson, M., Garzon, F., (2014), Effect of CeOx crystallite size on the chemical stability of CeOx nanoparticles, *Journal of the Electrochemical Society*, 161(10), F1075-F1080.
12. Munusamy, P., Sanghavi, S., Varga, T., Suntharampillai, T., (2014), Silica supported ceria nanoparticles: a hybrid nanostructure to increase stability and surface reactivity of nanocrystalline ceria, *RSC Advances*, 4(17), 8421-8430.
13. Nam, L. V., Choi, E., Jang, S., Kim, S. M., (2021), Patterned mesoporous TiO<sub>2</sub> microplates embedded in Nafion® membrane for high temperature/low relative humidity polymer electrolyte membrane fuel cell operation, *Renewable Energy*, 180, 203-212.
14. Seol, C., Jang, S., Lee, J., Nam, L. V., Pham, T. A., Koo, S., Kim, K., Jang, J.-H., Kim, S. M., Yoo, S. J., (2021), High-performance fuel cells with a plasma-etched polymer electrolyte membrane with microhole arrays, *ACS Sustainable Chemistry & Engineering*, 9(17), 5884-5894.

**Changwook Seol**

Ph.D. candidate in the Department of Mechanical Engineering, Incheon National University. His research interest is micro-patterning and polymer electrolyte membrane fuel cell.

E-mail: scw1111@inu.ac.kr

**Segeun Jang**

Assistant Professor in the School of Mechanical Engineering, Kookmin University. His research interest is developing interface engineering and energy devices, including polymer electrolyte membrane fuel cells.

E-mail: sjang@kookmin.ac.kr

**Sang Moon Kim**

Associate Professor in the Department of Mechanical Engineering, Incheon National University. His research interest is multi-scale design and fabrication of membrane and electrode architectures for fuel cell.

E-mail: ksm7852@inu.ac.kr