

개미산 수소 발생기 기반 연료전지 시스템의 활용 가능성 평가: 시스템 성능 평가 및 에너지밀도 분석

황채민¹ · 한지원¹ · 노진수¹ · 김동형² · 이태훈³ · 유수상⁴ · 김민재⁵ · 윤성모⁶ · 오택현^{7†}

¹국립창원대학교 스마트제조융합협동과정, ²국립창원대학교 기계공학부, ³한국자동차연구원 탄소중립기술연구소 수소동력연구본부, ⁴현대위아 무인체계개발팀, ⁵삼성전자 생활가전사업부, ⁶국방과학연구소 제2기술연구원, ⁷국립창원대학교 우주항공공학부

Feasibility Assessment of a Fuel Cell System Using a Formic Acid-Based Hydrogen Generator: System Performance Evaluation and Energy Density Analysis

CHAE MIN HWANG¹, JI WON HAN¹, JIN SU NO¹, DONG HYEONG KIM², TAE HOON LEE³, SU SANG YU⁴, MIN JAE KIM⁵, SEONG MO YUN⁶, TAEK HYUN OH^{7†}

¹Department of Smart Manufacturing Engineering, Changwon National University, 20 Changwondaehak-ro, Uichang-gu, Changwon 51140, Korea

²Department of Mechanical Engineering, Changwon National University, 20 Changwondaehak-ro, Uichang-gu, Changwon 51140, Korea

³Hydrogen Powertrain R&D Division, Net Zero Technology R&D Laboratory, Korea Automotive Technology Institute, 86 Gongdan-ro 474beon-gil, Seongsan-gu, Changwon-si 51577, Korea

⁴Hyundai-wia Unmanned System Development Team, 153 Jeongdongro, Seongsan-gu, Changwon 51533, Korea

⁵Samsung Electronics Digital Appliances Business, 129 Samsung-ro, Yeongtong-gu, Suwon 16667, Korea

⁶2nd R&D Institute, Agency for Defense Development, P.O. Box 35, Yuseong Post Office, 11 Yuseong-gu, Daejeon 34186, Korea

⁷Department of Aerospace Engineering, Changwon National University, 20 Changwondaehak-ro, Uichang-gu, Changwon 51140, Korea

†Corresponding author :
taekhyun@changwon.ac.kr

Received 19 June, 2026
Revised 23 July, 2026
Accepted 3 August, 2026

Abstract >> This study assesses the feasibility of a fuel cell system using a formic acid-based hydrogen generator. The hydrogen generator employing a Pd/NH₂-MWCNTs catalyst demonstrated stable performance for 2 h. Although the mixed gas supplied by the hydrogen generator reduced the power output of the fuel cell system compared with operation using pure hydrogen, the fuel cell exhibited stable performance under various load and stability tests. While the conversion efficiency of the hydrogen generator slightly affected the gravimetric energy density of the fuel cell system, the operating duration significantly affected. This study provides quantitative design criteria for high-energy-density fuel cell systems using a formic acid-based hydrogen generator.

Key words : Formic acid(개미산), Hydrogen generator(수소 발생기), Polymer electrolyte membrane fuel cell(고분자전해질막 연료전지), Gravimetric energy density(중량 에너지밀도)

1. 서론

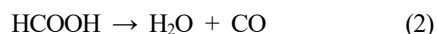
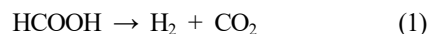
기후 변화 위기와 에너지 안보 문제가 전 세계적으로 심화됨에 따라 기존 화석연료 중심의 에너지 체계에서 벗어나 친환경 대체에너지로 전환하기 위한 연구가 활발히 수행되고 있다¹⁾. 다양한 대체에너지원 중에서 수소에너지는 연소 또는 전기화학반응 시 탄소 화합물을 직접 배출하지 않으며, 전기에너지와 화학에너지 간의 변환이 가능하다는 장점이 있다. 또한, 수소는 태양광 및 풍력과 같은 재생에너지원의 간헐성을 보완할 수 있는 에너지 저장 매체로서 다양한 산업 분야에 활용할 수 있다²⁻⁴⁾. 이러한 장점으로 인해 2025년까지 총 36개국이 국가 수소 전략 및 정책을 수립하여 수소 경제 활성화를 추진하고 있다⁵⁾.

수소에너지는 항공우주, 화학산업, 발전산업, 모빌리티 등 다양한 분야에서 활용될 수 있다. 특히, 모빌리티 분야에서는 다양한 연료전지 종류 중에서도 고분자 전해질막 연료전지(polymer electrolyte membrane fuel cell, PEMFC)가 주로 사용된다. PEMFC는 낮은 작동 온도, 빠른 시동 특성, 높은 출력밀도 및 우수한 부하 응답성으로 인해 수송용 및 전원용 동력원으로 적합하다⁶⁾.

이러한 기술적 장점에도 불구하고 PEMFC의 광범위한 상용화는 수소의 저장 및 운송 문제로 인해 제한되어 있다. 현재 가장 널리 활용되는 압축 수소 저장법은 고압 용기를 이용하여 기체 상태의 수소를 저장하는 방식으로, 빠른 충전과 직접적인 수소 공급이 가능하다는 장점이 있다. 그러나 높은 저장 압력으로 인한 수소 누출 문제를 해결하기 위해 저장 용기에 엄격한 안전조건이 요구된다. 액화수소 저장법은 기체 수소 저장 대비 높은 부피 저장밀도를 확보할 수 있다는 장점이 있지만, 극저온 상태의 수소가 기화되는 boil-off gas로 인해 연료 손실이 발생할 수 있어 별도의 단열 및 냉각 시스템이 필요하다⁷⁾. 이에 따라 PEMFC 적용 분야를 확대하기 위해 수소를 안정적으로 저장하고 필요한 시점에 공급할 수 있는 수소 저장 및 운송 기술이 요구된다.

액상 유기 수소 운반체(liquid organic hydrogen carrier,

LOHC)는 상온 및 상압에 가까운 조건에서 액체 상태로 저장과 운송이 가능하다는 장점으로 인해 유망한 수소 저장 기술로 주목받고 있다⁸⁾. 대표적인 LOHC에는 톨루엔(toluene), 메틸사이클로헥산(methylcyclohexane), 암모니아(ammonia), 개미산(formic acid, HCOOH) 등이 있다. 톨루엔 및 메틸사이클로헥산은 탈수소화 반응을 위해 약 300°C의 높은 반응 온도를 요구하므로 별도의 열공급 시스템이 필요하다는 단점이 있다⁹⁾. 미반응한 암모니아는 PEMFC의 비가역적 성능 저하를 유발할 수 있는 단점이 있다¹⁰⁾. 반면 개미산은 저장 용량(4.4 wt%, 53.4 g/L)이 높고 반응 온도가 비교적 낮다는 장점이 있다. 개미산 분해 반응 경로는 식 (1)의 탈수소 반응과 식 (2)의 탈수 반응으로 구분되며, 비교적 낮은 온도(25-80°C)에서는 탈수소 반응에 대한 선택성이 우수하여 수소 공급에 유리하다¹¹⁾. 또한, 발생한 CO₂를 수소화 공정을 통해 다시 개미산으로 전환할 수 있어 연료 재생이 가능한 탄소 순환형 수소 운반체로 활용할 수 있다는 장점이 있다¹²⁾.



개미산 수소 발생기는 촉매 반응기에 공급된 개미산을 분해하여 수소를 생산한다. 개미산 수용액 공급률을 조절함으로써 작동 조건에 따라 수소 생산률을 조절할 수 있기 때문에 소형 및 이동형 연료전지 시스템에 적용할 수 있다¹³⁾. 이와 같은 장점으로 인해 많은 연구진들이 PEMFC용 수소 공급원으로 활용하기 위한 개미산 수소 발생기에 대해 연구하였다.

Xu와 Liu¹⁴⁾는 개미산 탈수소화 반응을 위한 고효율 Ag-Pd/C 촉매를 설계하였으며, pH 가변 방식을 통해 수소 발생을 즉각적으로 제어하는 ‘On-off’ 시스템을 개발하였다. Oh¹⁵⁾는 높은 개미산 농도에서도 탈수소 반응에 대해 반응 선택성이 우수한 Pd/C₃N₄ 촉매를 설계하였으며, 수소 발생기 성능 평가를 통해 PEMFC의 적용 가능성을 확인하였다. Masuda 등¹⁶⁾은 개미산과 이산화탄소 간의 상호 변환을 위한 PdAg/

amine-MSC 촉매를 개발하였으며, 해당 촉매를 적용한 고정형 반응기를 통해 수소 발생 성능을 평가하였다. Ruiz-López 등¹⁷⁾은 동일한 반응기 내에서 개미산을 활용한 탈수소 반응 및 이산화탄소 수소화 반응을 모두 수행할 수 있는 ‘OneReactor’ 기술을 개발하였다.

이처럼 개미산을 활용한 수소 발생 시스템에 관한 많은 연구가 수행되었지만, 대부분의 경우 수소 발생 반응을 위한 촉매 설계 및 수소 발생기 단일 성능 평가에 집중되어 있다. 개미산 수소 발생기를 실제 PEMFC와 통합할 때 개미산 탈수소 반응으로 생성된 H_2/CO_2 혼합 기체가 연료전지 성능에 미치는 영향과 통합 시스템의 운전 안정성을 추가로 평가해야 한다. 그러나 이에 대한 연구가 상대적으로 부족한 실정이다.

또한 개미산 수소 발생기 기반 연료전지 시스템이 타 동력원과 경쟁하기 위해서는 단순히 수소 발생 성능을 향상시키는 것이 아닌, 전체 연료전지 시스템의 중량 에너지밀도 관점에서 설계 목표를 도출하는 과정이 필요하다. 연료전지 시스템의 중량 에너지밀도는 수소 발생기의 전환효율, 작동 시간, 연료 저장량 및 시스템 질량에 의해 결정된다. 따라서 목표 에너지밀도를 달성하기 위해 요구되는 수소 발생기의 정량적인 성능 조건을 제시할 수 있어야 한다. 그러나 기존 연구에서는 개미산 수소 발생기의 성능 인자(전환효율, 작동 시간)가 전체 PEMFC 시스템의 중량 에너지밀도에 미치는 영향을 분석하고, 이를 바탕으로 수소 발생기의 설계 방향을 제시하는 연구가 충분히 수행되지 않았다.

이에 따라 본 연구에서는 개미산 수소 발생기 기반 PEMFC 시스템의 적용 가능성을 평가하고자 하였다. 개미산 수소 발생기에 적용할 촉매로는 Table 1에 제시한 개미산 탈수소화 촉매 중 전환빈도(turnover frequency, TOF)가 가장 높은 Pd/NH₂-MWCNTs 촉매를 선정하였다. TOF는 촉매의 단위 활성점당 단위 시간에 생성되는 생성물의 양을 나타내는 촉매 성능 인자로, 높은 TOF는 동일한 Pd 양으로부터 높은 수소 발생률을 확보할 수 있음을 의미한다. 따라서 Pd/NH₂-MWCNTs 촉매는 높은 전환효율과 안정적

Table 1. Comparison of TOF values for formic acid dehydrogenation catalysts

Catalyst	TOF (h ⁻¹)	Reaction temperature (°C)	Ref
Pd/NH ₂ -MWCNTs	5791	50	[18]
Pd/C	186-347	50	[19]
Pd/N-C	645	45	[20]
Pd/mpg-C ₃ N ₄	324	55	[21]
Pd/NH ₂ -mpg-C ₃ N ₄	1810	55	[22]

인 수소 공급이 요구되는 개미산 수소 발생기 촉매로 적합하다고 판단하였다. 또한, 높은 촉매 활성은 비교적 낮은 반응 온도에서도 탈수소화 반응을 촉진할 수 있으므로 열공급 시스템과 같은 보조 장치의 에너지 소모 및 질량을 줄일 수 있어 시스템의 중량 에너지밀도 향상 측면에서도 유리하다.

이를 바탕으로 본 연구에서는 Pd/NH₂-MWCNTs 촉매가 적용된 개미산 수소 발생 시스템과 PEMFC가 통합된 연료전지 시스템의 성능을 평가하였다. 연료전지 시스템 평가에서는 수소 발생기에서 탈수소 반응으로 생성된 혼합 기체를 PEMFC에 공급하여 다양한 부하 변화 및 장시간 운전 조건에서의 연료전지 성능을 평가하였다. 또한 수소 발생기의 전환효율과 작동 시간이 전체 시스템의 중량 에너지밀도에 미치는 영향을 분석함으로써 타 동력원보다 우수한 중량 에너지밀도를 달성하기 위한 수소 발생기의 정량적 설계 조건을 도출하고자 하였다.

2. 연구 방법

2.1 시약 및 기구

본 연구를 위해 활용된 시약은 다음과 같다. US Research Nanomaterials사(USA)의 다중벽탄소나노튜브(multi-walled carbon nanotubes, MWCNTs)를 사용하였고, Sigma-Aldrich사(USA)의 APTES (H₂N(CH₂)₃Si(OC₂H₅)₃), 질산팔라듐(Pd(NO₃)₂·2H₂O), 구연산 나트륨(HOC(COONa)(CH₂COONa)₂·2H₂O)을 사용하였다. 또한 Samchun Chemical사(Korea)의 증류수

(H_2O), 에탄올(C_2H_6O), 수산화나트륨($NaOH$), 수소화붕소나트륨($NaBH_4$), 개미산($HCOOH$), 실리카겔(SiO_2)을 사용하였다.

본 연구를 위해 다음과 같은 기구를 활용하였다. Ika사(Germany)의 가열 교반기(RCT Basic), Inwha HNC사(Korea)의 고온 전기로, Changshin Science사(Korea)의 진공 건조기(C-DVD1), Omega사(USA)의 부피 유량계(FMA-1605A), Graphtec사(Japan)의 데이터 수집장치(GL240), Longer Precision Pump사(China)의 시린지 펌프(LSP02-2A), Boxer사(Germany)의 펌프(9QQ), Itech사(Taiwan)의 전원 공급기(IT6720), Prodigit사(Taiwan)의 전자부하 장치(3330F), Horizon Fuel Cell Technologies사(Singapore)의 100 W급 연료전지 스택(H-100)을 사용하였다.

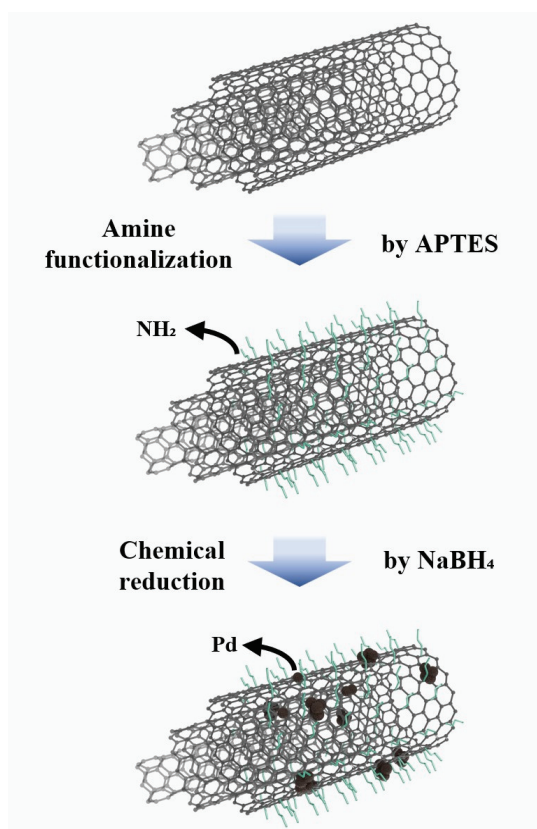


Fig. 1. Schematic illustration for the preparation process of Pd/NH_2 -MWCNTs

2.2 촉매 제작

Kim 등¹⁸⁾의 선행 연구를 참고하여 Fig. 1의 과정을 통해 Pd/NH_2 -MWCNTs 촉매를 제작하였다. 먼저 600 g의 증류수에 38 g의 MWCNTs를 첨가하였다. 준비된 용액에 촉매 분산을 위한 75.76 g의 구연산 나트륨과 아민 기능화를 위한 43.04 g의 APTES를 첨가한 후, 30 분 동안 200 rpm으로 교반하였다. 교반이 종료된 용액에 5 g의 질산팔라듐을 용해한 후, 30분 동안 200 rpm으로 교반하였다. 촉매 표면에 Pd를 환원시키기 위한 $NaBH_4$ 수용액을 제작하였다. 0.62 g의 $NaOH$ 를 50 g의 증류수에 용해한 후, 11.36 g의 $NaBH_4$ 를 용해하였다. 제작한 $NaBH_4$ 수용액을 시린지 펌프를 사용하여 2시간 동안 교반되고 있는 촉매 용액에 주입하였다. $NaBH_4$ 수용액 주입이 종료된 후, 충분한 혼합을 위해 22시간 동안 200 rpm으로 교반하였다. 교반이 종료된 촉매는 증류수와 에탄올로 충분히 세척한 후, 고온전기를 활용하여 100°C에서 12시간 동안 건조하였다.

2.3 촉매 분석

본 연구에서 사용한 촉매의 형태학적 특성을 분석하기 위해 저전압 주사전자현미경(low voltage scanning electron microscope, LV-SEM; Merlin compact, Carl Zeiss, Germany)과 투과전자현미경(transmission electron microscope, TEM; Talos F200X, Thermo Scientific, USA)을 활용하였다. 촉매의 전자구조 및 화학적 상태를 분석하기 위해 X-선 광전자 분광 분석기(X-Ray photoelectron spectroscopy, XPS; AXIS SUPRA+, Kratos Analytical Ltd, UK)를 활용하였다. 또한 촉매에 담지된 Pd의 양을 정량적으로 확인하기 위해 유도결합 플라즈마 분광분석기(inductively coupled plasma-optical emission spectroscopy, ICP-OES; 720, Agilent, USA)를 활용하였다.

2.4 수소 발생 시스템 성능평가

수소 발생 성능을 평가하기 위해 Fig. 2(a)와 같이 실

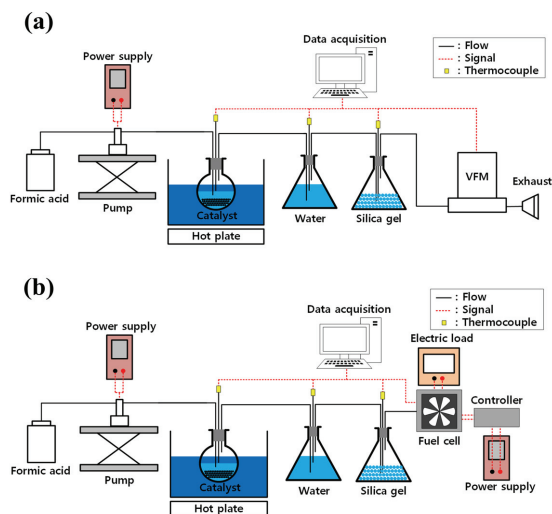


Fig. 2. Experimental setups for (a) hydrogen generator test and (b) fuel cell test

험 장치를 구성하였다. 먼저 40 g의 Pd/NH₂-MWCNTs 촉매와 400 g의 증류수를 혼합하여 반응기를 준비하였으며, 핫플레이트를 활용하여 반응 온도를 55°C로 유지하였다. 이후, H₂/CO₂ 혼합 기체를 반응기 내부에 공급하여 공기를 제거하였다. 200 g의 개미산과 100 g의 증류수를 혼합한 65.3 wt%의 개미산 수용액을 준비한 후, 마이크로펌프를 활용하여 1.2 mL/min의 일정한 유량으로 반응기에 공급하였다. 발생된 기체의 불순물과 수분은 각각 증류수와 실리카겔을 사용하여 제거하였다. 기체 유량을 측정하기 위해 부피 유량계를 사용하였으며, 온도를 측정하기 위해 K-type 열전대를 사용하였다. 데이터 수집 장치를 사용하여 결과 데이터를 수집한 후, 노트북을 활용하여 저장하였다.

수소 발생기의 성능을 정량적으로 평가하기 위해 성능 인자로 식 (3)의 전환효율을 활용하였다. 이론 기체 발생량은 실험에 사용한 개미산 수용액 질량에 기반하여 계산하였으며, 실제 기체 발생량은 부피 유량계를 활용하여 측정된 값으로부터 도출하였다. 기체 발생량은 25°C, 1 atm 기준으로 계산하였다.

$$\text{전환효율 (\%)} = \frac{\text{실제 기체 발생량 (L)}}{\text{이론 기체 발생량 (L)}} \times 100 \quad (3)$$

2.5 연료전지 시스템 성능평가

연료전지 시스템 성능을 평가하기 위해 Fig. 2(b)와 같이 실험 장치를 구성하였다. 공급 기체의 조성이 연료전지 시스템의 성능에 미치는 영향을 분석하기 위해 수소 발생기에서 발생한 기체와 고순도 수소를 PEMFC에 공급하였다.

본 연구에서 PEMFC 스택의 목표 출력은 30 W로 설정하였다. 스택 구동에 필요한 수소 유량과 연료전지 효율은 식 (4)를 통해 계산하였으며, 계산에 사용된 값은 Table 2에 정리하였다. 순수 수소 공급 조건에서는 계산된 수소 요구 유량인 420 mL/min의 수소를 일정 유량으로 0.5 barg의 압력 조건에서 공급하였다. 개미산 수소 발생기 공급 조건에서는 개미산 탈수소화 반응을 통해 발생한 혼합 기체를 PEMFC에 공급하였다. 개미산 탈수소화 반응에서는 H₂와 CO₂가 1:1 몰비로 생성되므로 목표 기체 발생률을 840 mL/min으로 설정하였으며, 개미산 수소 발생기로부터 발생한 기체를 별도의 유량 및 압력 제어 없이 PEMFC에 공급하였다. 두 조건 모두 공급 기체는 상온으로 유지하였으며, 별도의 가습은 수행하지 않았다.

$$V_{H_2} = \frac{P_{stack}}{\eta_{stack} \times LHV_{H_2}} \times V_{mole} \times 60 \quad (4)$$

연료전지 부하는 전자로드기를 사용하여 인가하였으며, 다양한 부하 평가 동안 전류는 1분 간격으로 0에서 2.5 A까지 변화되었다. 안정성 평가에서는 2시간

Table 2. Parameters used to estimate the hydrogen flow rate required for PEMFC operation

Parameter	Symbol	Value
Fuel cell stack power (W)	P_{stack}	30
Fuel cell stack efficiency	η_{stack}	0.4
Lower heating value of hydrogen (kJ/mol)	LHV_{H_2}	241.8
Molar volume of gas (L/mol)	V_{mole}	22.4

동안 2 A의 정전류 조건이 적용되었다. 데이터 수집 장치를 사용하여 전압 데이터를 수집하였으며, 측정된 데이터는 노트북에 저장하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1 Pd/NH₂-MWCNTs 촉매 특성 분석

제작한 Pd/NH₂-MWCNTs 촉매의 표면 형상 및 Pd 입자의 분산 상태를 분석하기 위해 주사전자현미경과 투과전자현미경을 활용하여 이미지를 측정하였다. Fig. 3과 같이 MWCNTs는 긴 원통형 구조를 보였으며, MWCNTs 표면에 Pd 나노입자들이 분포한 것을 확인하였다²³⁾. 이러한 Pd 입자의 담지 특성은 TEM 분석 결과에서도 동일하게 관찰되었다. Fig. 4에서 확인할 수 있듯이 촉매 지지체인 MWCNTs 벽면에 Pd 나노입자들이 균일하게 분산되었다²⁴⁾. 이는 APTES를 이용한 아민 기능화가 Pd 입자 및 분산에 기여한 것으로 사료된다²⁵⁾.

촉매 표면의 화학적 상태를 분석하기 위해 XPS 분석을 수행한 결과를 Fig. 5에 나타내었다. Fig. 5(a)의 full spectrum에서 O 1s, Pd 3d, C 1s 피크와 함께 N 1s, Si 2p 피크가 관찰되었다. 촉매 지지체인 MWCNTs는 탄소 기반 소재이므로 N 1s, Si 2p 피크의 존재는 APTES에 의한 아민기와 실리콘 기반 결합이 MWCNTs 표면에 도입되었음을 의미한다^{25,26)}. 따라서 아민 기능화가 촉매 표면에 성공적으로 수행되었음을 알 수 있다. Fig. 5(b)는 Pd 3d spectrum의 분석 결과이다. Pd 3d의 피크는 금속 상태인 Pd⁰와 산화 상태의 Pd²⁺로 구성되었으며 각각 Pd⁰ 3d_{5/2} (335.9 eV) 및 3d_{3/2} (341.2 eV), Pd²⁺의 3d_{5/2} (338.5 eV) 및 3d_{3/2} (343.1 eV)로 구분되었다²⁵⁾. Pd⁰ 피크를 통해 환원 과정에 의해서 Pd 전구체가 금속 Pd 입자로 촉매 표면에 형성되었음을 확인하였다. Pd²⁺ 피크는 촉매 보관 과정에서 표면 산화에 의해 나타난 것으로 판단된다^{27,28)}. Fig. 5(c)는 N 1s spectrum의 분석 결과이다. N 1s의 피크는 Pyridinic N (398.7 eV), Pyrrolic N (400.5 eV), Graphitic N (402.0 eV) 피크로 구분되었으며, APTES를 활용한

아민 기능화 과정을 통해 질소 종이 다양한 형태로 도입되었음을 의미한다. Pyridinic N은 Pd와의 상호작용을 강화하고 개미산 분자와의 결합력을 높여 분해 반응을 촉진하며 Pyrrolic N은 아민 기능화 과정에서 도입된 -NH₂의 구성요소로서 개미산의 O-H 결합 분해를 촉진한다. Graphitic N은 탄소 구조의 전자 특성을 변화시켜 금속 및 지지체 간의 전하 이동을 원활하게 함으로써 촉매 활성을 향상시킨다²⁵⁾. 해당 피크들을 통해 촉매 표면에 아민기가 성공적으로 도입되었음을 확인하였다.

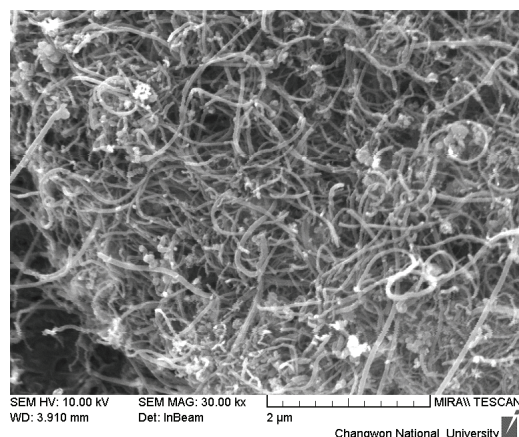


Fig. 3. SEM image of Pd/NH₂-MWCNTs catalyst

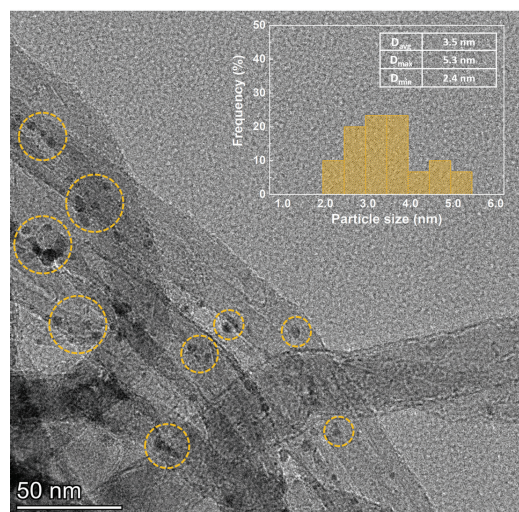


Fig. 4. TEM image of Pd/NH₂-MWCNTs catalyst

Table 3. Pd loading on catalyst

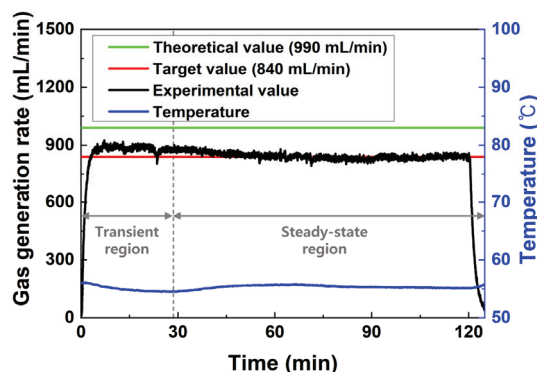
Element	Target (wt%)	Analysis (wt%)
Pd	5.0	3.8

촉매에 담지된 Pd의 함량을 정량적으로 확인하기 위해 ICP-OES 분석을 수행하였으며 그 결과를 Table 3에 나타내었다. 분석 결과 Pd 담지량은 3.8 wt%로 측정되었으며 목표하였던 5.0 wt%보다 낮게 담지되었다. 이와 같은 담지량 차이는 촉매 제작 과정에서 Pd 전구체의 일부가 지지체 표면에 고정되지 못하고 세척 과정에서 제거되었기 때문으로 판단된다²⁹⁾.

3.2 수소 발생 시스템 성능평가

Pd/NH₂-MWCNTs 촉매를 적용한 수소 발생기에 개미산 수용액을 2시간 동안 공급하며 성능을 평가하였다. PEMFC로 30 W의 동력을 생산하기 위해 필요한 목표 기체 발생률은 840 mL/min이며, 실험 간의 반응 온도는 $55.5 \pm 1.1^{\circ}\text{C}$ 의 범위에서 유지되었다.

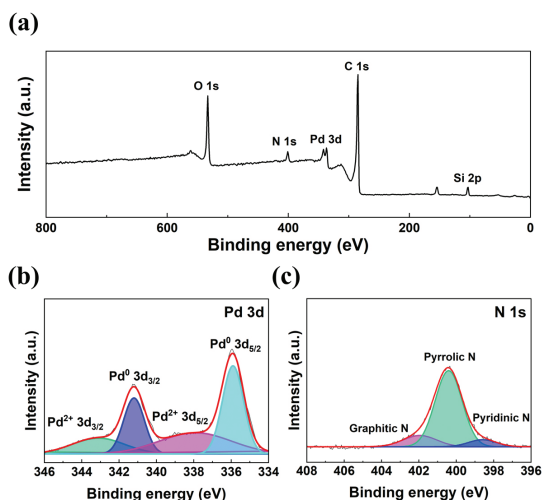
Fig. 6에서 확인할 수 있듯이 초기 약 28분 동안은 목표 기체 발생률보다 높은 기체 발생률이 측정되었다. 이는 개미산 수용액 공급 직후 촉매 반응이 일시

**Fig. 6.** Result of hydrogen generator test

적으로 활성화되어 기체 발생률이 증가한 것으로 판단된다. 이후 반응이 안정화됨에 따라 기체 발생률은 목표 범위 내에서 실험 종료 시점까지 안정적으로 유지되었다. 실험에 사용한 개미산 수용액의 질량을 기준으로 계산한 이론 기체 발생률은 990 mL/min이었으며, 성능평가 동안 발생한 평균 기체 발생률은 844.6 mL/min이었다. 이에 따른 수소 발생기의 전환 효율은 85.6%로 나타났다. 본 실험을 통해 개미산 수소 발생기는 2시간 동안 안정적인 수소 발생 및 공급이 가능함을 확인하였다. 따라서 Pd/NH₂-MWCNTs 촉매를 적용한 수소 발생기는 PEMFC를 위한 수소 공급원으로 장시간 활용 가능하다고 판단된다.

3.3 연료전지 시스템 성능평가

연료전지 시스템은 배터리와 함께 하이브리드 동력 시스템의 형태로 무인자동차, 상용 자동차와 같은 다양한 모빌리티에 주로 활용된다³⁰⁾. 이러한 모빌리티 분야에서는 운전 조건에 따른 부하 변동이 빈번하게 발생하므로 연료전지가 다양한 부하 조건에서 안정적으로 출력을 조절하는 것이 필수적이다³¹⁾. 따라서 본 연구에서는 전류를 0 A에서 2.5 A까지 0.5 A 간격으로 변화시키며 다양한 부하 조건에서 기체를 공급하며 연료전지의 출력 특성을 평가하였다. 이후, 장시간 운전 조건에서 출력 저하 없이 안정적인 구동이 가능한지 확인하기 위해 2 A의 일정한 부하 조건에서 2시간 동안 안정성 평가를 수행하였다.

**Fig. 5.** XPS analysis results of Pd/NH₂-MWCNTs catalyst: (a) full spectrum, (b) Pd 3d region, (c) N 1s region

다양한 부하 조건에서의 실험 결과는 Fig. 7(a)에 나타내었다. 공급 기체의 조성과 상관없이 다양한 부하 조건에서 각 연료전지 시스템 모두 부하 증가에 따라 출력이 증가하는 경향을 보였다. 하지만 고전류 영역으로 갈수록 개미산 수소 발생기 공급 조건과 순수 수소 공급 조건 사이의 출력 차이가 증가하였다. 최대 출력 지점인 2.5 A에서 개미산 수소 발생기와 연결된 PEMFC의 출력은 30.4 W였으며, 순수 수소를 공급한 PEMFC의 출력은 35.7 W로 개미산 수소 발생기 공급 조건에서 약 15% 출력이 낮게 나타났다.

안정성 평가의 실험 결과는 Fig. 7(b)와 같다. 개미산 수소 발생기로부터 발생한 혼합 기체를 공급하는 경우, 순수 수소를 공급한 조건에 비해 연료전지 평균 출력이 6.5 W 감소하였다. 다양한 부하 조건에서의 평가 결과와 동일하게 혼합 기체 공급 조건에서 순수 수소 대비 연료전지 출력이 감소하는 것을 확인할 수 있다. 또한, 개미산 수소 발생기 공급 조건에

서는 초기 약 15분 동안의 연료전지 출력이 전체 평균 출력보다 높게 나타났다. Fig. 6의 수소 발생기 운전 초기 과도 구간에서 상대적으로 높은 기체 발생률로 인해 PEMFC에 공급되는 수소량이 일시적으로 증가하였으며, 이에 따라 초기 출력 또한 비교적 높게 나타난 것으로 사료된다. 이후 기체 발생률이 안정화됨에 따라 연료전지 출력 또한 일정한 범위에서 안정적으로 유지되었다.

개미산 수소 발생기를 수소 공급원으로 활용하는 PEMFC 시스템은 2시간 연속 운전 동안 안정적인 출력을 보여주었다. 따라서, 개미산 수소 발생기 기반의 PEMFC 시스템은 장시간 동안 안정적으로 전력을 공급할 수 있는 적합한 동력원으로 판단된다.

개미산 수소 발생기로부터 발생한 혼합 기체를 공급한 경우, 순수 수소 공급 조건보다 연료전지 출력이 낮게 나타난 현상은 크게 2가지 원인에 의한 것으로 판단된다. 첫 번째는 CO₂로 인한 anode에서의 수소 분압 감소이다. 개미산 탈수소 반응으로 생성된 기체는 순수 수소가 아니라 H₂와 CO₂가 함께 포함된 혼합 기체이므로 실제 PEMFC에 공급되는 수소의 분압은 감소하게 된다. Nernst 방정식에 따라 순수 수소 대비 혼합 기체를 공급하는 경우 발생하는 가역 전압 손실을 식 (5)에 나타내었다³²⁾. 해당 식을 통해 혼합 기체에 포함된 수소의 분압이 감소할수록 전압 손실은 증가하는 것을 확인할 수 있다. 또한, Fig. 7(a)에서 전류가 증가할수록 성능 차이가 증가하는 현상을 분석하였는데, 이는 혼합 기체에 포함된 CO₂가 anode 공급 가스 내에 희석 기체로 작용하였기 때문으로 판단된다. 전류 밀도가 증가함에 따라 수소 소모량이 증가하므로 희석 기체로 작용한 CO₂의 반응물 공급 제한 영향이 상대적으로 크게 나타난다^{10,33)}. 결과적으로 수소 분압 감소에 따라 가역 전압이 감소하였으며, CO₂에 의한 물질 전달 저항이 증가하여 개미산 수소 발생기가 적용된 PEMFC의 출력이 저하된 것으로 판단된다³⁴⁾.

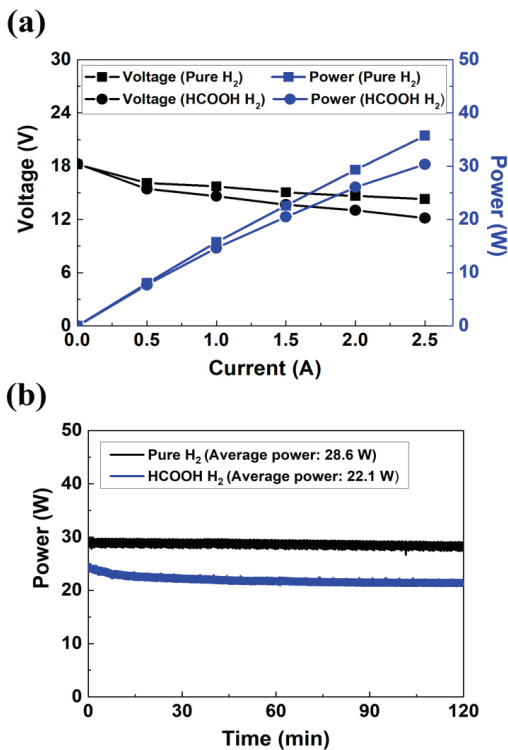


Fig. 7. Results of fuel cell test: (a) various load tests and (b) stability test

$$\Delta E = \frac{RT}{zF} \ln \left(\frac{p_{H_2, \text{mixed}}}{p_{H_2, \text{pure}}} \right) \quad (5)$$

두 번째는 혼합 기체 내 CO₂의 역수성가스 전환 반응(reverse water gas shift, RWGS)으로 인한 PEMFC 성능 저하이다. 역수성가스 전환 반응은 식 (6)과 같으며 anode에 유입된 CO₂가 Pt 촉매 표면에 흡착된 수소와 반응하여 CO와 H₂O를 생성하는 반응이다^{33,35,36}. 생성된 CO는 Pt 촉매에 흡착되어 수소 산화 반응이 일어나는 활성 부위를 차단한다. 이로 인해 anode에서 촉매의 유효 반응 면적이 감소하고, 결과적으로 연료전지의 성능이 저하된다^{34,37,38}.



이와 관련하여 Yuranov 등³²은 H₂/N₂ 혼합 기체와 H₂/CO₂ 혼합 기체와의 비교를 통해 H₂/CO₂ 혼합 기체를 활용한 연료전지 성능 손실이 더 컸으며, 이는 RWGS 반응으로 인한 추가적인 손실 발생임을 규명하였다. 또한 Díaz 등³³은 anode에 다양한 농도의 CO₂를 공급하였을 때 PEMFC 성능이 저하되는 현상을 실험적으로 분석하였으며, CO₂ 노출 이후 저하된 성능을 회복하기 위한 연료전지 재생 방법을 제시하였다. 본 연구에서도 개미산 수소 발생기에서 발생한 혼합 기체 내 CO₂가 PEMFC 내부에서 RWGS 반응을 유발하여 성능 저하를 야기한 것으로 판단된다.

본 연구에서는 개미산 수소 발생기로부터 발생한 혼합 기체를 공급하는 경우 순수 수소 대비 PEMFC 출력이 낮게 나타난 이유를 수소의 낮은 분압 및 RWGS 반응의 영향으로 분석하였다. 다만, 본 연구에서 제시한 성능 저하 원인은 정성적 해석으로, 생성 기체 내 H₂, CO₂ 및 CO 농도에 대한 정량 분석은 수행되지 않았다. 따라서 수소 분압 감소와 RWGS 반응으로 인한 CO 피독의 영향을 명확히 규명하기 위해서는 가스크로마토그래피와 같은 정량적 기체 조성 분석이 필요하다. 향후에는 분석 결과를 바탕으로 연료전지 시스템의 성능을 향상하기 위해 혼합 기체 내 수소 농도 제어, CO₂ 분리 방안, 연료전지 성능 회복 방안 등에 대한 추가적인 연구가 수행되어야 한다.

3.4 연료전지 시스템 에너지밀도 분석

개미산 기반 수소 발생기와 PEMFC가 통합된 동력 시스템의 설계 목표를 도출하기 위해 전체 시스템의 중량 에너지밀도를 분석하였다. 중량 에너지밀도는 시스템이 단위 질량당 공급할 수 있는 에너지 양으로 배터리, 가스터빈, 내연기관 등 다양한 동력원과의 성능 비교를 위한 성능 인자로 사용된다. 본 연구에서는 개미산 수소 발생기의 주요 성능 인자인 전환효율과 작동 시간이 연료전지 시스템의 중량 에너지밀도에 미치는 영향을 분석하였다.

연료전지 시스템의 중량 에너지밀도는 식 (7)을 통해 계산하였다. 식 (7)에 따르면 시스템의 총 에너지량이 증가하거나 시스템의 전체 질량이 감소할수록 중량 에너지밀도는 증가하게 된다.

$$\text{중량 에너지밀도} (Wh/kg) = \frac{\text{에너지 양} (Wh)}{\text{시스템 질량} (kg)} \quad (7)$$

개미산 수소 발생기가 적용된 연료전지 시스템에서는 수소 발생기 전환효율이 향상될 경우 동일한 에너지를 생산하는 데 필요한 개미산 수용액의 질량이 감소하므로 연료 무게 저감으로 인해 중량 에너지밀도가 증가한다. 또한, 수소 발생기 작동 시간이 증가할수록 연료전지가 생산하는 총 에너지량이 증가하므로 중량 에너지밀도가 증가한다. 이에 따라 본 연구에서는 100 W급 PEMFC 시스템을 가정하여 개미산 수소 발생기의 작동 시간과 전환효율에 따른 중량 에너지밀도 변화를 분석하였다.

시스템의 질량은 식 (8)을 통해 계산하였다. 연료전지 시스템의 최대 동력은 100 W로 설정하였으며, 최대 동력에서의 작동 효율은 혼합 기체를 공급했을 때의 연료전지 출력값을 바탕으로 효율을 계산하여 29%로 가정하였다. 요구 에너지량을 생산하기 위한 연료 질량은 식 (9)를 통해 도출하였다. 계산에 사용된 구체적인 값은 Table 4에 제시하였다.

$$M_{\text{system}} = M_{\text{fuel}} + M_{\text{hg}} + M_{\text{stack}} \quad (8)$$

Table 4. Parameters used to estimate the mass of the fuel cell system

Parameter	Symbol	Value
Required Energy (Wh)	E	100 ~ 2000
Fuel cell stack efficiency	η_{stack}	0.29
Fuel cell stack mass (kg)	M_{stack}	0.52
Molar mass of formic acid (g/mol)	MW_{HCOOH}	46.03
Formic acid concentration	C_{HCOOH}	0.98
Molar mass of hydrogen (g/mol)	MW_{H_2}	2.02
Lower heating value of hydrogen (kWh/kg)	LHV	33.33
Hydrogen generator system mass (kg)	M_{hg}	0.78
Hydrogen generator conversion efficiency	η_{hg}	0.8 ~ 1.0

$$M_{fuel} = \frac{E \times MW_{HCOOH}}{\eta_{stack} \times LHV \times MW_{H_2} \times \eta_{hg} \times C_{HCOOH}} \quad (9)$$

개미산 수소 발생기의 주요 성능 인자가 연료전지 시스템의 중량 에너지밀도에 미치는 영향을 Fig. 8에 나타내었다. Fig. 8(a)는 작동 시간을 10시간으로 고정한 조건에서 전환효율 변화에 따른 중량 에너지밀도 변화를 나타낸 결과이다. Fig. 8(a)에서 확인할 수 있듯이 전환효율이 증가함에 따라 중량 에너지밀도는 비교적 점진적으로 증가하였다. 이는 앞서 언급하였듯이 전환효율이 증가할수록 동일한 출력 및 작동 시간을 유지하는 데 필요한 개미산 수용액의 질량이 감소하기 때문이다. Fig. 8(b)는 전환효율이 90%로 일정할 때 작동 시간 변화에 따른 중량 에너지밀도 변화를 나타낸 결과이다. 작동 시간이 증가할수록 중량 에너지밀도가 비교적 급격하게 증가하는 경향을 보였다. 작동 시간이 짧은 경우 생산 가능한 에너지 양이 작기 때문에 시스템 질량의 영향이 크게 작용하여 중량 에너지밀도가 낮아진다. 반면, 작동 시간이 증가하면 생산 가능한 에너지 양이 증가하므로 중량 에너지밀도가 크게 향상된다. 본 분석을 통해 수소 발생기의 전환효율을 개선하는 것보다 작동 시간을 개선하는 것이 시스템의 중량 에너지밀도 향상에 효율적인 방법임을 알 수 있다.

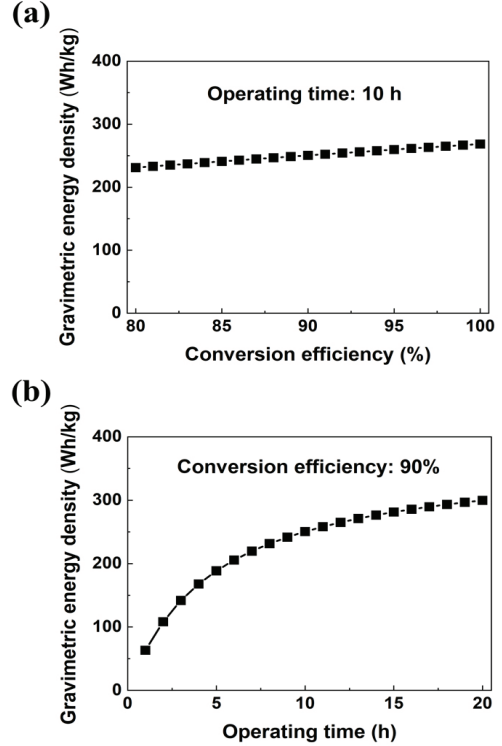


Fig. 8. Effect of formic acid hydrogen generator on gravimetric energy density: (a) conversion efficiency, (b) operating time

해당 결과를 바탕으로 다양한 조건에서의 연료전지 시스템 중량 에너지밀도를 Fig. 9에 나타내었으며, 본 연구의 실험 결과인 수소 발생기의 전환효율 (85.6%)과 작동 시간(2 h)을 적용한 현재 시스템의 위치를 함께 표시하였다. 현재 시스템의 중량 에너지밀도는 107 Wh/kg으로, 상용 이차전지(150-250 Wh/kg)보다 낮은 수준이다³⁹⁾. 개미산 수소 발생기 기반 PEMFC 시스템이 기존 이차전지 대비 동력원으로서의 경쟁력을 갖추기 위해서는 상용 이차전지의 성능을 상회하는 300 Wh/kg 이상의 중량 에너지밀도가 확보되어야 한다. Fig. 9의 분석 결과, 300 Wh/kg 이상의 에너지밀도를 달성하기 위해서는 수소 발생기의 전환효율이 95% 이상, 작동 시간이 17시간 이상이어야 하는 것으로 나타났다. 이는 본 연구의 실험 결과와 비교하였을 때 전환효율은 9.4%p 이상 향상되고, 작동 시간은 15시간 이상 연장되어야 한다. 해당 성능 조건을 만족하는 경우, 개미산 수소 발생기 기반

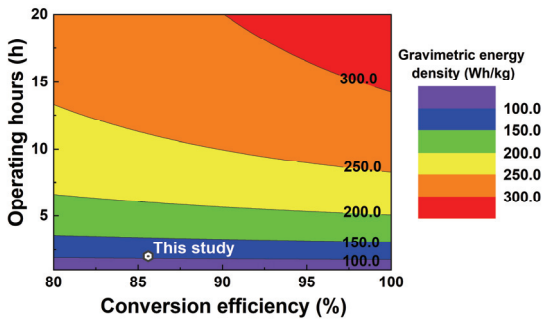


Fig. 9. Gravimetric energy densities of the fuel cell system under various conditions of hydrogen generator

PEMFC 시스템은 우수한 중량 에너지밀도를 갖는 동력 시스템으로 활용될 수 있다.

반면, 순수 수소를 공급하는 경우에는 PEMFC 스택 효율이 38%로 향상되어 목표 중량 에너지밀도를 달성하기 위한 수소 발생기의 성능 조건이 혼합 기체 공급 조건에 비해 완화된다. 예를 들어, 약 300 Wh/kg의 에너지밀도를 달성하기 위해 혼합 기체 공급 조건에서는 95%의 전환효율과 17시간의 작동 시간이 요구되는 반면, 순수 수소 공급 조건에서는 92%의 전환효율과 10시간의 작동 시간으로도 목표 값에 도달할 수 있는 것으로 나타났다. 이는 3.3절에 기술한 바와 같이 혼합 기체 공급 시 PEMFC 출력 저하로 스택 효율이 감소하고, 이로 인해 동일한 출력을 내기 위해 필요한 연료 질량이 증가하여 에너지밀도가 감소된 것으로 판단된다. 따라서 목표 중량 에너지밀도를 달성하기 위해서는 수소 발생기의 전환효율 및 장시간 운전 성능 향상뿐만 아니라 혼합 기체 공급 조건에서 PEMFC의 성능 저하를 최소화하는 시스템 설계가 함께 고려되어야 한다.

이러한 관점에서 본 분석 결과는 개미산 수소 발생기가 적용된 PEMFC 시스템의 설계 목표를 정량적으로 도출하는 데 활용될 수 있다. 즉, 목표 중량 에너지밀도를 달성하기 위해 요구되는 수소 발생기의 성능 조건(전환효율, 작동 시간)을 도출할 수 있으며, 이를 바탕으로 촉매 및 수소 발생기의 설계 방향을 설정할 수 있다. 특히, 작동 시간이 중량 에너지밀도에 미치는 영향이 크므로 장시간 운전 조건에서

촉매 비활성화를 억제할 수 있는 방안과 안정적인 개미산 공급 시스템이 확보되어야 한다⁴⁰⁾. 또한, 미반응한 개미산의 축적에 따른 촉매 성능 저하를 방지하기 위해 개미산 공급 유량 및 반응 온도 최적화 등에 대한 추가적인 실험적 검증이 필요하다⁴¹⁾.

4. 결론

본 연구에서는 개미산 수소 발생기 기반 PEMFC 시스템의 활용 가능성을 평가하였다. 개미산 수소 발생기는 2시간 동안 안정적으로 기체를 발생시켰으며, 85.6%의 전환효율을 보여주었다. 개미산 수소 발생기 기반의 연료전지 시스템은 개미산 수소 발생기로부터 공급된 혼합 기체를 사용한 경우, 순수 수소 공급 대비 성능이 소폭 감소하였음에도 불구하고 장시간 안정적인 연료전지 구동이 가능하였다. 연료전지 시스템의 중량 에너지밀도 분석을 통해 수소 발생기의 작동 시간이 전환효율에 비해 연료전지 시스템의 중량 에너지밀도에 지배적인 영향을 미치는 것을 확인하였다. 또한, 300 Wh/kg 이상의 중량 에너지밀도를 달성하기 위한 개미산 수소 발생기의 성능 목표를 95%의 전환효율 및 17시간 이상의 작동 시간으로 도출하였다. 본 연구 결과는 목표 중량 에너지밀도를 달성하기 위한 수소 발생기의 정량적 설계 조건을 도출하는 데 활용될 수 있으며, 향후 고에너지밀도 연료전지 동력 시스템 설계를 위한 기초 자료로 활용될 수 있을 것으로 판단된다.

후 기

이 성과는 정부(과학기술정보통신부)의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행된 연구이다(No. 2021R1F1A1046889).

References

1. R. Qian, S. Hao, X. Zou, R. Zhao, R. Li, and K. H. D. Tang, "Technological developments and feasibility of hydrogen energy systems: production, storage, and distribution", Fuel,

- Vol. 409, 2026, pp. 137917, doi:<https://doi.org/10.1016/j.fuel.2025.137917>.
2. X. Zuo, Q. Xia, and Z. Xin, "Hydrogen energy systems for decarbonization: comprehensive techno-economic analysis and commercial pathways", *International Journal of Hydrogen Energy*, Vol. 202, 2026, pp. 152700, doi: <https://doi.org/10.1016/j.ijhydene.2025.152700>.
3. L. Fan, Z. Tu, and S. H. Chan, "Recent development of hydrogen and fuel cell technologies: a review", *Energy Reports*, Vol. 7, 2021, pp. 8421-8446, doi: <https://doi.org/10.1016/j.egy.2021.08.003>.
4. M. Habibi, M. G. Hosseini, and K. Wang, "Toward sustainable energy: a comprehensive review of hydrogen production, storage, and utilization", *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, Vol. 226, 2026, pp. 116193, doi: <https://doi.org/10.1016/j.rser.2025.116193>.
5. Q. Li, Q. Zhang, L. Zhang, J. Lang, W. Yuan, G. An, T. Lei, and J. Yan, "A comprehensive review of advances and challenges of hydrogen production, purification, compression, transportation, storage and utilization technology", *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, Vol. 226, 2026, pp. 116196, doi: <https://doi.org/10.1016/j.rser.2025.116196>.
6. J. Han, J. Feng, P. Chen, Y. Liu, and X. Peng, "A review of key components of hydrogen recirculation subsystem for fuel cell vehicles", *Energy Conversion and Management: X*, Vol. 15, 2022, pp. 100265, doi: <https://doi.org/10.1016/j.ecmx.2022.100265>.
7. Z. Li, J. Hou, and F. Markert, "Towards a novel boil-off gas handling system for liquid hydrogen fuel cell vehicles", *International Journal of Hydrogen Energy*, Vol. 158, 2025, pp. 150544, doi: <https://doi.org/10.1016/j.ijhydene.2025.150544>.
8. P. T. Aakko-Saksa, C. Cook, J. Kiviahio, and T. Repo, "Liquid organic hydrogen carriers for transportation and storing of renewable energy - Review and discussion", *Journal of Power Sources*, Vol. 396, 2018, pp. 803-823, doi: <https://doi.org/10.1016/j.jpowsour.2018.04.011>.
9. Y. Ni, Z. Han, Y. Chai, G. Wu, and L. Li, "Catalytic hydrogen storage in liquid hydrogen carriers", *EES Catalysis*, Vol. 1, No. 4, 2023, pp. 459-494, doi: <https://doi.org/10.1039/d3ey00076a>.
10. N. Rajalakshmi, T. T. Jayanthi, and K. S. Dhathathreyan, "Effect of carbon dioxide and ammonia on polymer electrolyte membrane fuel cell stack performance", *Fuel Cells*, Vol. 3, No. 4, 2003, pp. 177-180, doi: <https://doi.org/10.1002/fuce.200330107>.
11. A. Al-Nayili, H. S. Majidi, T. M. Albayati, and N. M. C. Saady, "Formic acid dehydrogenation using noble-metal nanoheterogeneous catalysts: towards sustainable hydrogen-based energy", *Catalysts*, Vol. 12, No. 3, 2022, pp. 324, doi: <https://doi.org/10.3390/catal12030324>.
12. D. Wei, R. Sang, P. Sponholz, H. Junge, and M. Beller, "Reversible hydrogenation of carbon dioxide to formic acid using a Mn-pincer complex in the presence of lysine", *Nature Energy*, Vol. 7, 2022, pp. 438-447, doi: <https://doi.org/10.1038/s41560-022-01019-4>.
13. R. van Putten, T. Wissink, T. Swinkels, and E. A. Pidko, "Fuelling the hydrogen economy: scale-up of an integrated formic acid-to-power system", *International Journal of Hydrogen Energy*, Vol. 44, No. 53, 2019, pp. 28533-28541, doi: <https://doi.org/10.1016/j.ijhydene.2019.01.153>.
14. F. Xu and X. Liu, "'On-off' control for on-demand hydrogen production from the dehydrogenation of formic acid", *ACS Catalysis*, Vol. 11, No. 22, 2021, pp. 13913-13920, doi: <https://doi.org/10.1021/acscatal.1c03923>.
15. T. H. Oh, "A formic acid hydrogen generator using Pd/C₃N₄ catalyst for mobile proton exchange membrane fuel cell systems", *Energy*, Vol. 112, 2016, pp. 679-685, doi: <https://doi.org/10.1016/j.energy.2016.06.096>.
16. S. Masuda, K. Mori, Y. Futamura, and H. Yamashita, "PdAg nanoparticles supported on functionalized mesoporous carbon: promotional effect of surface amine groups in reversible hydrogen delivery/storage mediated by formic acid/CO₂", *ACS Catalysis*, Vol. 8, No. 3, 2018, pp. 2277-2285, doi: <https://doi.org/10.1021/acscatal.7b04099>.
17. E. Ruiz-López, S. Ivanova, and M. Á. Centeno, "OneReactor technology: insights of real H₂ charge/discharge cycles via formic acid", *International Journal of Hydrogen Energy*, Vol. 120, 2025, pp. 521-528, doi: <https://doi.org/10.1016/j.ijhydene.2025.03.292>.
18. Y. Kim, H. Lee, S. Yang, J. Lee, H. Kim, S. Hwang, S. W. Jeon, and D. H. Kim, "Ultrafine Pd nanoparticles on amine-functionalized carbon nanotubes for hydrogen production from formic acid", *Journal of Catalysis*, Vol. 404, 2021, pp. 324-333, doi: <https://doi.org/10.1016/j.jcat.2021.10.007>.
19. C. Hu, J. K. Pulleri, S. W. Ting, and K. Y. Chan, "Activity of Pd/C for hydrogen generation in aqueous formic acid solution", *International Journal of Hydrogen Energy*, Vol. 39, No. 1, 2014, pp. 381-390, doi: <https://doi.org/10.1016/j.ijhydene.2013.10.067>.
20. M. Jeon, D. J. Han, K. S. Lee, S. H. Choi, J. Han, S. W. Nam, S. C. Jang, H. S. Park, and C. W. Yoon, "Electronically modified Pd catalysts supported on N-doped carbon for the dehydrogenation of formic acid", *International Journal of Hydrogen Energy*, Vol. 41, No. 34, 2016, pp. 15453-15461, doi: <https://doi.org/10.1016/j.ijhydene.2016.04.102>.
21. J. H. Lee, J. Ryu, J. Y. Kim, S. W. Nam, J. H. Han, T. H. Lim, S. Gautam, K. H. Chae, and C. W. Yoon, "Carbon dioxide mediated, reversible chemical hydrogen storage using a Pd nanocatalyst supported on mesoporous graphitic carbon nitride", *Journal of Materials Chemistry A*, Vol. 2, No. 25, 2014, pp. 9490-9495, doi: <https://doi.org/10.1039/c4ta01133c>.
22. T. H. Lee, S. M. Yun, M. J. Kim, G. Kim, E. S. Jung, and T. H. Oh, "Pd nanocatalyst supported on amine-functionalized mesoporous graphitic carbon nitride for formic acid hydrogen generator in the polymer electrolyte membrane fuel cell system", *Fuel Processing Technology*, Vol. 264, 2024, pp. 108133, doi:

- <https://doi.org/10.1016/j.fuproc.2024.108133>.
23. N. T. Abdel-Ghani, G. A. El-Chaghabby, and F. S. Helal, "Individual and competitive adsorption of phenol and nickel onto multiwalled carbon nanotubes", *Journal of Advanced Research*, Vol. 6, No. 3, 2015, pp. 405-415, doi: <https://doi.org/10.1016/j.jare.2014.06.001>.
 24. V. M. Shinde, E. Skupien, and M. Makkee, "Synthesis of highly dispersed Pd nanoparticles supported on multi-walled carbon nanotubes and their excellent catalytic performance for oxidation of benzyl alcohol", *Catalysis Science & Technology*, Vol. 5, No. 8, 2015, pp. 4144-4153, doi: <https://doi.org/10.1039/c5cy00563a>.
 25. X. Du, F. Gao, Y. Hua, X. Zhang, H. Li, and L. Di, "Green, mild, and rapid plasma synthesis of nitrogen/amino-cofunctionalized MWCNTs-supported Pd catalyst in solution for boosting formic acid dehydrogenation", *Fuel*, Vol. 377, 2024, pp. 132751, doi: <https://doi.org/10.1016/j.fuel.2024.132751>.
 26. W. Nie, Y. Luo, Q. Yang, G. Feng, Q. Yao, and Z. H. Lu, "An amine-functionalized mesoporous silica-supported PdIr catalyst: boosting room-temperature hydrogen generation from formic acid", *Inorganic Chemistry Frontiers*, Vol. 7, No. 3, 2020, pp. 709-717, doi: <https://doi.org/10.1039/c9qi01375j>.
 27. C. Zhou, S. Li, H. Chai, Q. Liu, J. Hu, Z. Liu, K. Yu, F. Fan, W. Zhou, A. Duan, C. Xu, and X. Wang, "Immobilizing Pd nanoparticles on amine-functionalized yolk-shell mesoporous silica nanospheres for efficient H₂ production from formic acid dehydrogenation", *Applied Catalysis B: Environment and Energy*, Vol. 346, 2024, pp. 123750, doi: <https://doi.org/10.1016/j.apcatb.2024.123750>.
 28. C. Zhou, S. Li, H. Chai, J. Hu, Z. Liu, K. Yu, C. Wang, A. Duan, C. Xu, and X. Wang, "Ultrafine PdCo nanoparticles on amine-functionalized CeZrSBA-15 with short channels for efficient H₂ production from formic acid dehydrogenation", *Fuel*, Vol. 365, 2024, pp. 131170, doi: <https://doi.org/10.1016/j.fuel.2024.131170>.
 29. L. Delannoy, N. El Hassan, A. Musi, N. N. Le To, J. M. Krafft, and C. Louis, "Preparation of supported gold nanoparticles by a modified incipient wetness impregnation method", *The Journal of Physical Chemistry B*, Vol. 110, No. 45, 2006, pp. 22471-22478, doi: <https://doi.org/10.1021/jp062130l>.
 30. M. Waseem, M. Amir, G. S. Lakshmi, S. Harivardhagini, and M. Ahmad, "Fuel cell-based hybrid electric vehicles: an integrated review of current status, key challenges, recommended policies, and future prospects", *Green Energy and Intelligent Transportation*, Vol. 2, No. 6, 2023, pp. 100121, doi: <https://doi.org/10.1016/j.geits.2023.100121>.
 31. S. Ma, M. Lin, T. E. Lin, T. Lan, X. Liao, F. Maréchal, J. Van herle, Y. Yang, C. Dong, and L. Wang, "Fuel cell-battery hybrid systems for mobility and off-grid applications: a review", *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, Vol. 135, 2021, pp. 110119, doi: <https://doi.org/10.1016/j.rser.2020.110119>.
 32. I. Yuranov, N. Autissier, K. Sordakis, A. F. Dalebrook, M. Grasemann, V. Orava, P. Cendula, L. Gubler, and G. Laurenczy, "Heterogeneous catalytic reactor for hydrogen production from formic acid and its use in polymer electrolyte fuel cells", *ACS Sustainable Chemistry & Engineering*, Vol. 6, No. 5, 2018, pp. 6635-6643, doi: <https://doi.org/10.1021/acssuschemeng.8b00423>.
 33. M. A. Díaz, A. Iranzo, F. Rosa, F. Isorna, E. López, and J. P. Bolivar, "Effect of carbon dioxide on the contamination of low temperature and high temperature PEM (polymer electrolyte membrane) fuel cells. Influence of temperature, relative humidity and analysis of regeneration processes", *Energy*, Vol. 90, 2015, pp. 299-309, doi: <https://doi.org/10.1016/j.energy.2015.06.097>.
 34. C. Sishtla, G. Koncar, R. Platon, S. Gamburzev, A. J. Appleby, and O. A. Velez, "Performance and endurance of a PEMFC operated with synthetic reformat fuel feed", *Journal of Power Sources*, Vol. 71, No. 1-2, 1998, pp. 249-255, doi: [https://doi.org/10.1016/S0378-7753\(97\)02719-5](https://doi.org/10.1016/S0378-7753(97)02719-5).
 35. X. Cheng, Z. Shi, N. Glass, L. Zhang, J. Zhang, D. Song, Z. S. Liu, H. Wang, and J. Shen, "A review of PEM hydrogen fuel cell contamination: impacts, mechanisms, and mitigation", *Journal of Power Sources*, Vol. 165, No. 2, 2007, pp. 739-756, doi: <https://doi.org/10.1016/j.jpowsour.2006.12.012>.
 36. S. Kim, N. Jeon, S. Lee, C. Ahn, and J. S. Ahn, "A study on reverse-water gas shift reaction in solid oxide water electrolysis cell-stack for CO₂ reduction", *Journal of Hydrogen and New Energy*, Vol. 35, No. 2, 2024, pp. 162-167, doi: <https://doi.org/10.7316/JHNE.2024.35.2.162>.
 37. N. Zamel and X. Li, "Effect of contaminants on polymer electrolyte membrane fuel cells", *Progress in Energy and Combustion Science*, Vol. 37, No. 3, 2011, pp. 292-329, doi: <https://doi.org/10.1016/j.pecs.2010.06.003>.
 38. T. Gu, W. K. Lee, and J. W. V. Zee, "Quantifying the 'reverse water gas shift' reaction inside a PEM fuel cell", *Applied Catalysis B: Environmental*, Vol. 56, No. 1-2, 2005, pp. 43-49, doi: <https://doi.org/10.1016/j.apcatb.2004.08.016>.
 39. M. Chen, K. Yang, B. Dong, Q. Zhou, Y. Zhang, Y. Zhu, A. Iqbal, X. Liu, C. Yan, C. Low, and X. Qian, "Anti-pulverization inter-metallic Fe-Sn anchored on N-doped carbon anode boosted superior power and stable lithium storage", *Journal of Power Sources*, Vol. 553, 2023, pp. 232272, doi: <https://doi.org/10.1016/j.jpowsour.2022.232272>.
 40. H. Wang, Z. Wang, X. Liu, N. Gao, X. Song, and Z. Zhao, "AuPd nanocatalysts supported on citric acid-modified boron nitride to boost hydrogen generation from formic acid dehydrogenation", *ACS Applied Nano Materials*, Vol. 6, No. 5, 2023, pp. 3285-3292, doi: <https://doi.org/10.1021/acsnm.2c05062>.
 41. C. Hao, C. Shen, Y. Zhang, J. Liu, X. Chen, J. Guan, Z. Yu, and J. Zheng, "The perplexing pH and concentration-dependent hydrogen production from formic acid catalyzed by iridium complexes in aqueous solutions", *International Journal of Hydrogen Energy*, Vol. 95, 2024, pp. 621-629, doi: <https://doi.org/10.1016/j.ijhydene.2024.11.250>.