

## 무탄소 에너지 전환을 위한 직접 암모니아 연료전지

김남진<sup>1</sup> · 주형국<sup>1,2,3\*</sup>

<sup>1</sup>단국대학교 과학기술대학 수소에너지학과

<sup>2</sup>단국대학교 과학기술대학 에너지공학과

<sup>3</sup>단국대학교 에너지환경연구소

(2025년 7월 9일 접수 : 2025년 7월 23일 수정 : 2025년 7월 25일 채택)

## Direct Ammonia Fuel Cells for Carbon-Free Energy Conversion

Namjin Kim<sup>1</sup> and HyungKuk Ju<sup>1,2,3\*</sup>

<sup>1</sup>Department of Hydrogen Energy, Dankook University, Cheonan 31116, Republic of Korea

<sup>2</sup>Department of Energy Engineering, Dankook University, Cheonan 31116, Republic of Korea

<sup>3</sup>Energy and Environmental Research Center (E2RC), Dankook University, Cheonan 31116, Republic of Korea

(Received July 9, 2025 : Revised July 23, 2025 : Accepted July 25, 2025)

### 초 록

암모니아는 다가를 탄소중립 사회에서 장거리 운송 및 저장의 용이성 측면에서 유망한 수소 저장물질 및 직접 무탄소 연료로 주목받고 있다. 특히, 별도의 크래킹 과정을 거치지 않고 암모니아를 직접 연료로 사용하는 직접 암모니아 연료전지(Direct Ammonia Fuel Cell; DAFC)는 고순도 수소 생산에 소모되는 추가 에너지를 제거함으로써 시스템 구조를 단순화하고 에너지 효율을 향상시킬 수 있는 높은 잠재력을 지닌다. 그러나 저온 작동 조건(100 °C 이하)의 DAFC는 암모니아 산화 반응(Ammonia Oxidation Reaction; AOR)의 복잡한 반응 메커니즘과 촉매 표면에서의 중간 생성물( $N_{ads}$ ,  $NO_{ads}$ )의 비가역적 흡착에 따른 촉매 피독 현상으로 인해 낮은 전력 밀도가 문제가, 고온 작동 조건(700-900 °C)에서는 장기 구동 시 촉매의 소결 및 질화로 인한 내구성 문제가 제기되며, 이는 상용화를 위한 다양한 기술적 도전 과제로 작용한다. 본 연구에서는 이러한 한계를 극복하기 위한 최근의 촉매 및 전극 소재 개발 동향을 고찰하였다. 특히, 고성능 직접 암모니아 음이온교환막 연료전지(DA-AEMFC) 구현을 위한 전극 구조 및 시스템 설계 전략을 종합적으로 제시하고자 한다.

**Abstract :** With its high hydrogen density, storability, and ease of transportation, ammonia has emerged as a key candidate for both hydrogen storage and direct use as a carbon-free fuel in future carbon-neutral energy systems. Among various technologies, direct ammonia fuel cells (DAFCs), which operate without the need for upstream hydrogen reforming, are particularly promising due to their simplified system configuration and potential for enhanced energy efficiency by avoiding the energy-intensive process of hydrogen purification. Nevertheless, DAFCs operating under low-temperature conditions (~100 °C) face critical challenges, primarily stemming from the sluggish kinetics of the ammonia oxidation reaction (AOR) and the catalyst poisoning caused by the irreversible adsorption of nitrogen-based intermediates ( $N_{ads}$  and  $NO_{ads}$ ). At high-temperature conditions (700-900 °C), however, the problem of the catalyst durability arises from nitridation and sintering during long-term operation. These issues significantly hinder power output and remain obstacles to practical deployment. This paper provides an over-

\*E-mail: HyungKuk Ju (hyungkuk.ju@dankook.ac.kr)

view of recent developments in catalysts and electrode materials aimed at addressing these limitations and proposes strategic approaches for electrode architecture and system design toward realizing high-performance direct ammonia anion exchange membrane fuel cells (DA-AEMFCs).

**Keywords :** direct ammonia fuel cell, ammonia oxidation reaction, carbon-free fuel, hydrogen carrier

## 1. 서 론

2021년부터 발표된 IPCC 6차 평가 보고서에 따르면, 전 지구적 탄소 순 배출 제로(net-zero)는 2050년 까지 달성되어야 하며, 이를 달성하지 못할 경우 산업화 이전 대비 평균 기온 상승폭을 1.5 °C 이하로 억제하는 목표는 사실상 달성이 어려울 것으로 경고하고 있다.<sup>1,2)</sup> 이러한 국제적 요구에 부응하기 위해, 무탄소 에너지원(carbon-free energy)의 개발 및 상용화가 시급히 요구되고 있다. 지속 가능하며 이산화탄소를 배출하지 않는 에너지원에 대한 연구가 활발히 진행되는 가운데, 수소는 전세계적으로 주목받는 매력적인 에너지원이다. 수소는 재생에너지 전력과 연계해 수전해 시스템을 통해서 생산이 가능하며, 높은 질량 대비 에너지 밀도(120 MJ kg<sup>-1</sup>)를 가진다. 하지만, 상온에서 기체 상으로 존재한다는 점과 낮은 부피 대비 에너지 밀도(8 MJ L<sup>-1</sup>@liquid H<sub>2</sub>, 5.6 MJ L<sup>-1</sup>@700 bar)로 인해서 압축과 액화를 통해서 체적 에너지 밀도를 높이고 저장 효율을 높이는 방식을 사용한다.<sup>3)</sup> 대표적으로 수소 연료전지가 전원으로 사용되는 수소 연료전지 자동차는 동일 체적에 더 많은 수소를 저장하여 밀도 및 체적 대비 에너지 밀도를 높여 주행 거리를 확보하는 것이 필수적이므로 700 bar 이상으로 압축된 수소를 사용한다.<sup>4,5)</sup> 하지만 수소를 압축하는 경우 수소 에너지의 함량의 10-15%가 액화의 경우 30-40%의 상당한 손실이 예상된다고 보고되고 있다.<sup>6,7)</sup> 이렇듯 고압 저장 및 극저온 액화는 막대한 에너지 소비 뿐만 아니라 복잡하고 고가의 저장·수송 시스템을 필요로 하며, 대규모 수소 인프라 추가 설비가 필수적이기 때문에 이는 수소 공급 비용의 상승을 초래하게 된다.<sup>8)</sup> 특히 장거리, 장주기의 특성을 가지는 해양 운송에 경우 운송과 수소에 대한 운송 및 저장 비용이 기하급수적으로 증가하게 된다.<sup>3)</sup> 이러한 특성 때문에

수소는 글로벌 수소 밸류체인 형성 및 수소 수입·수출 유통망 구축에 있어 심각한 제약 요인으로 작용한다. 이처럼 수소를 저장 및 운송 기술의 한계는 수소 에너지 경제성과 지속 가능성 확보에 있어 심각한 기술적 장벽으로 작용한다. 이 때문에 현재 논의되고 있는 글로벌 수소 공급망 구축에 있어서 암모니아, 메탄올 및 액상유기수소운반체(Liquid organic hydrogen carrier; LOHC)등 액체 저장 물질을 이용하여 운송 및 저장하는 방식을 고려하고 있다. 이 중, 암모니아는 글로벌 산업 전반에서 비료 원료, 냉매, 화학 합성 원료 등으로 대량 사용되고 있으며, 이에 따라 생산, 저장 및 운송에 필요한 기반 인프라가 세계적으로 잘 구축되어 있는 이점을 가지고 있다.<sup>9)</sup> Table 1에서와 같이 암모니아의 경우 다른 수소 캐리어 대비 높은 수소 함량(17.6 wt%)을 가지며, 낮은 압력에서도 액화가 가능(상온@10 bar 또는 -33 °C@상압) 하기 때문에 수소 보다 상대적으로 높은 에너지 밀도(15.3 MJ L<sup>-1</sup>)와 높은 체적당 수소 밀도(120.3 kg-H<sub>2</sub> m<sup>-3</sup>)로 인해서 수소에 비해 저장 및 운송 측면에서 현저한 이점을 가진다.<sup>6,7,10,11)</sup>

하지만 암모니아를 수소로 크래킹하여 연료로 활용하는 경우, 크래킹 반응을 유지하기 위한 추가적인 공정(열원 및 분리/정제)이 필요하고, 이에 따라 시스템이 복잡 해지며 에너지 손실이 발생하게 된다.<sup>6)</sup> 반면, 암모니아를 연료로 직접 사용하는 방식은 전체 시스템 구조를 단순화할 수 있어, 시스템 수준에서 비용과 무게를 줄일 수 있고, 궁극적으로 에너지 효율을 향상시킬 수 있다. 따라서 최근에는 이러한 암모니아가 직접적으로 연료로 이용하려고 하는 연구가 선행되고 있다. 그 중에선 수소 연료 전지와 유사한 메커니즘을 차용한 직접 암모니아 연료전지(Direct Ammonia Fuel Cell; DAFC)라는 기술이 많은 주목을 받고 있다.<sup>11)</sup> DAFC는 암모니아를 직접 전기화학적으로 산화

**Table 1. Comparing carbon-neutral alternative fuels [12–14]**

항목	압축 수소	액화 수소	암모니아	LOHC	
				액상 유기 수소 운반체	메탄올
저장 압력 (bar)	700 @ 20 °C	1 @ -253 °C	10 @ 25 °C	1	1
수소 함량 (wt%)	100	100	17.6	6.2	12.6
밀도 (Kg m <sup>-3</sup> )	40	70.8 @ -253 °C	682 @ -33 °C	769	792
체적 당 수소 밀도 (kg-H <sub>2</sub> m <sup>-3</sup> )	5	70.9	120.3	47.1	100

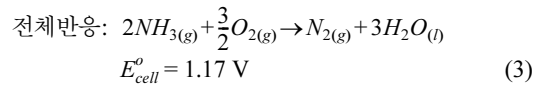
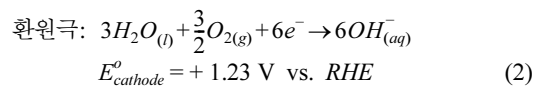
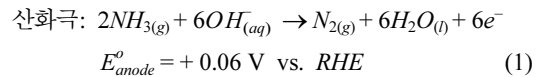
시켜 전기를 생성하는 에너지 변환장치다. DAFC를 통해 암모니아를 단순한 에너지 운반체가 아닌 에너지원으로 직접 활용하는 접근 방식은 기존 수소에너지의 수소 전용 인프라 설비 및 시스템 구축, 운송 및 저장에서 이슈로부터 자유로운 실질적이며 효율적인 탄소중립 달성의 핵심적인 해결책이 될 수 있다. 본 총설에서는 저온 또는 고온에서 작동하는 DAFC에 대해서 다루어 보고 해당 기술이 핵심적인 무탄소 에너지 기술로 부상하기 위해 해결해야 할 도전 과제들과 최근 연구동향을 다루고자 한다.

## 2. 저온 암모니아 연료전지(DA-AEMFC)

### 2.1. DA-AEMFC의 시스템 구성 및 작동 원리

Fig. 1(a)는 저온 암모니아 연료전지(Direct Ammonia-Anion Exchange Membrane Fuel Cell; DA-AEMFC)를 나타낸 개략도를 나타낸 것이다. DA-AEMFC는 물이 액체 상태로 존재하는 25 °C에서 100 °C 범위의 온도에서 작동하며, 일반적으로 암모니아수(NH<sub>4</sub>OH)가 연료로 공급된다. 주요 구성요소는 연료와 공기 등 반응물이 확산되는 다공성 기체확산층(gas diffusion layer; GDL), 연료의 산화 및 산소의 환원 반응이 일어나는 촉매층(catalyst layer; CL), 그리고 전기화학 반응에서 발생한 이온이 전달되는 고분자 음이온 교환막(anion exchange membrane; AEM)으로 구성된다.

일반적인 AEM기반 연료전지와 같이 이러한 구성 요소들은 산화극, 환원극 및 음이온 교환막이 일체화된 형태로 전기화학 반응이 실제로 일어나는 연료전지에 핵심 구조를 이루며, 이를 막전극집합체(Membrane Electrode Assembly; MEA)라고 한다.<sup>16,17)</sup> DA-AEMFC에 대한 산화극, 환원극 및 전체 반응식은 다음과 같다.



단, 산화극에서 암모니아를 수용액상(aqueous phase)으로 가정 시 평형전위는 0.09 V vs. RHE로 계산된다. 연료전지에서의 산화극에서 발생하는 반응은 암모니아가 산화(ammonia oxidation reaction; AOR)되며, 해당 반응을 통해서 암모니아와 수산화 이온(OH<sup>-</sup>)이 반응하여 질소와 물분자를 형성하고(eq. (1)), 환원극에서 산소가 환원(oxygen reduction reaction; ORR)되어 수산화 이온이 형성된다. 암모니아 산화를 통해

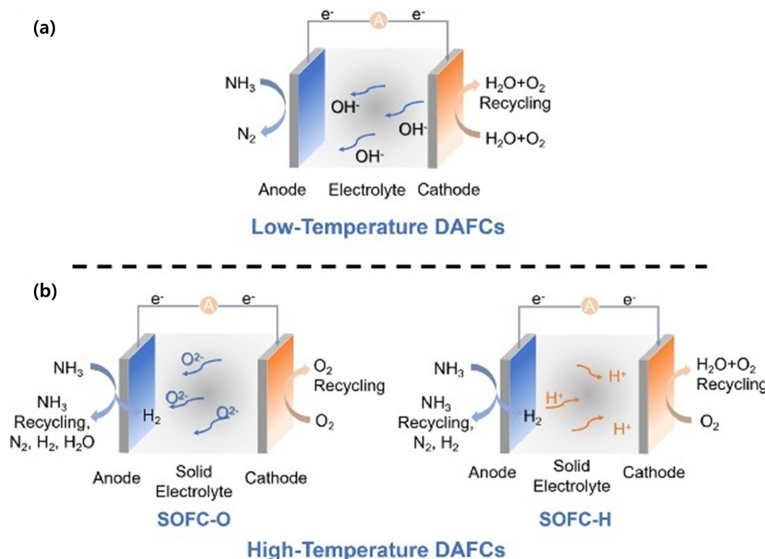


Fig. 1. Types of direct ammonia fuel cells (DAFC). Schematic of (a) low-temperature direct ammonia fuel cell (DA-AEMFC) and (b) high-temperature direct ammonia fuel cell (DA-SOFC). Figure reproduced with permission from Ref. [15].

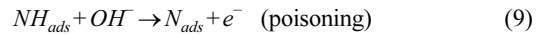
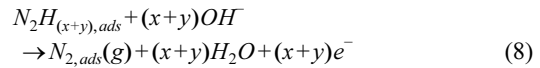
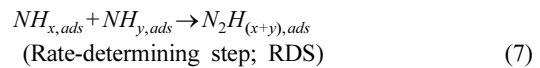
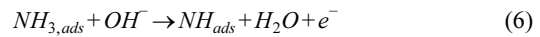
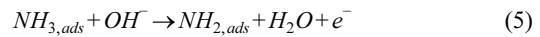
발생한 전자는 외부 회로를 통해서 이동한 후 산소 환원 반응에 참여한다.<sup>15)</sup> 수산화 이온은 음이온 교환막을 통해서 환원극에서 산화극으로 이동한다. 산화극에서는 연료로 사용되는 암모니아와 보조 전해질 (supporting electrolyte)로써 수산화 이온을 공급해주는 KOH 수용액을 주입하며, 환원극에서는 ORR 위해 물과 산소를 함께 공급한다. 한편 (eq. (3))에 의하면 암모니아 연료전지의 열역학적 이론 전위는( $E^0_{\text{cell}} = 1.17 \text{ V}$ )로 수소 연료전지의 열역학적 이론 전위인( $E^0_{\text{cell}} = 1.23 \text{ V}$ )보다 다소 낮지만 이론적으로는 여전히 효율적이고 잠재성이 있는 에너지 기술로써 여러 분야에 적용이 가능하다. DA-AEMFC는 PEMFC (proton exchange membrane fuel cell; PEMFC)와 유사하게 빠른 응답성과 신속한 시동 및 정지가 가능하므로 운전 유연성이 요구되는 전력수요가 가변적인 이동 기기, 휴대용 기기와 같은 어플리케이션 전원 장치에 적합하다는 특징이 있다.<sup>18)</sup> 특히 부피 대비 높은 에너지 밀도를 가진 암모니아의 경우 수소보다 연료 저장 효율이 우수하여 전체 시스템 부피를 효과적으로 감소시킨다는 측면에서는 실질적인 이점을 제공 가능하다.

한편, DA-AEMFC는 기존 수소 연료전지에서 사용하는 양성자/프로톤 이온교환막(proton exchange membrane; PEM)이 아닌 음이온 교환막을 사용한다. 산성 환경에서 암모니아는 암모늄이온( $\text{NH}_4^+$ )으로 전환되며, 이는 이온교환막 내의 술폰산기( $-\text{SO}_3\text{H}$ )와 결합하여 수소 이온( $\text{H}^+$ )을 치환함으로써 고분자막의 이온전도도를 현저히 감소시킨다. 이로 인해 프로톤 전달 저항이 증가하고, 장시간 노출 시에는 촉매전극층 내 이오노머의 전도성 손실과 전기화학적 표면적 감소까지 초래되어 연료전지 성능이 비가역적으로 저하될 수 있다는 연구 결과가 보고되었다.<sup>22,23)</sup>

## 2.2. AOR 메커니즘 및 고효율 촉매 설계 전략

비교적 반응 속도가 빠르고 낮은 과전압으로 높은 전류밀도를 나타내는 수소산화반응(hydrogen oxidation

reaction; HOR)과는 달리, 암모니아산화반응(AOR)은 암모니아 연료전지에서 이루어지는 전기화학 반응은 6개의 전자( $6 e^-$ ) 전달을 수반하는 반응이다. 다 단계적인 전자 전달 반응으로 인해 상대적으로 느린 반응 속도와 이로 인한 높은 과전압이 요구된다.<sup>26)</sup> 이에 따라서 효율적인 전기화학 반응 구현과 고효율 촉매 설계를 위해 AOR의 반응 경로에 대한 이해가 필수적이며, 이를 기반으로 반응 메커니즘 모델들이 제안되었다. 이중 알칼리 조건에서 Pt 계열 촉매에서의 AOR반응을 설명하는 대표적인 메커니즘은 1970년 Gerischer 및 Mauerer에 의해 제안된 G-M Mechanism이다.<sup>27)</sup> G-M Mechanism은 Fig. 2(a)와 (eq. (4)-(9))에서 잘 설명되어 있다.



암모니아가 수산화 이온과 전기화학 반응을 통해 탈양성자화(deprotonation)된 중간체( $\text{NH}_x$ , ( $x=1,2$ ))를 형성한다(eq. (5, 6)). 이후 이러한 중간체들이 이합체화(dimerization)되어 하이드라진 계열 중간체( $\text{N}_2\text{H}_x$ , ( $x=2-4$ ))를 생성하며(eq. (7)). 지속적인 탈수소화 반응을 거쳐 기체 상의 질소를 형성한다. 이때 질소 중간체의 이합체화 되는 단계는 전기화학적 반응이 수반

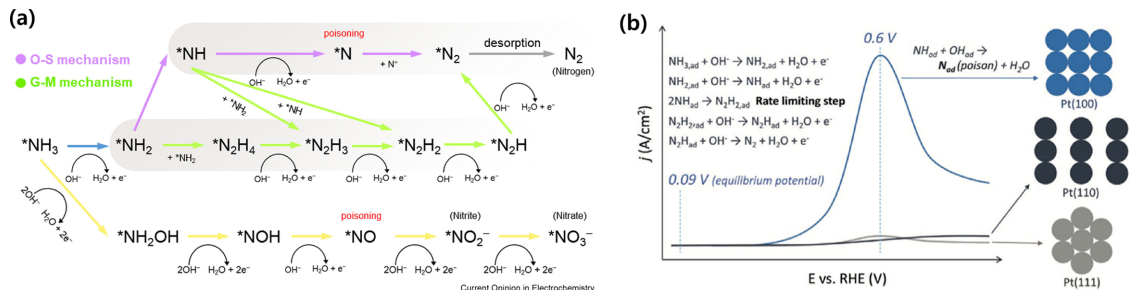


Fig. 2. (a) Mechanism of ammonia oxidation reaction under alkaline conditions. (b) Schematic illustration of the electrochemical ammonia oxidation reaction. Figure reproduced with permission from Ref. [24, 25].

되지 않는, AOR 매커니즘 내의 속도 결정단계(RDS)로 간주된다. 반면, 이합체화를 거치지 못한 중간체들은 계속된 탈수소화 과정을 통해서  $N_{ads}$ 를 형성(eq. (9))하며, 이는 촉매 표면에 강하게 흡착하여 촉매 활성점을 차단하는 피독물질로 작용한다.<sup>28,29)</sup>

Fig. 2(b)는 Pt/C 촉매의 AOR의 전류 및 전위의 특성을 나타낸 개략도이다. 암모니아 산화에 대한 평형 전위( $E^0_{NH_3/N_2} = 0.06$  V vs. RHE)보다 더 높은 과전압에서 암모니아 산화반응이 시작되며, 약 0.6 V vs. RHE에서 최대 전류밀도를 달성한다. 이처럼 높은 과전압에서 반응이 진행되는 이유는 AOR이 복잡한 산화 매커니즘과 다수의 전자가 순차적으로 관여하는 다단계 반응경로(multi-step reaction mechanism)를 갖기 때문이다. 탈수소화 된 중간체들이 이합체화되어 N-N결합을 형성하기 위해서는 계산화학적으로 높은 활성화와 장벽을 넘어야 하며, 최종 암모니아 완전 산화 반응인  $N_2$  생성 반응은 열역학적으로는 유리하지만, 동역학적으로는 매우 느린 반응속도를 가지는 전기화학 반응이다.<sup>19-21)</sup> 약 0.6 V vs. RHE에서 전류밀도가 최대값에 도달한 이후 전류가 감소하는 현상은 전극 표면에 형성된  $O/OH_{ads}$ 종에 의해서 Pt 촉매표면에 산화물이 형성되고, 이로 인해 암모니아보다 높은 흡착 에너지를 가진 산화중(피독물질)이 추가적인 암모니아 산화반응을 방해하며 Pt-O층을 생성하기 때문으로 보고되며, 이러한 변화는 전기화학 반응이 일어나는 활성 면적을 감소시키고, 지속적인 피독 현상으로 작용한다.<sup>31)</sup> 비록 Pt-O 생성만으로 암모니아의 지속적인 산화 반응 저하를 완전히 설명하기에는 한계가 있으나, 암모니아 연료전지에서는 산화극에서의 AOR이 효율적으로 진행될 수 있도록 적절한 전위 범위를 설정하여 운전하는 것이 필수적이다. 나아가 안정적인 연

료전지의 작동과  $N_2$ 의 선택적 생성을 유도하기 위해서는 전기화학 반응이 원활히 일어나는 최적의 전위 범위를 고려해야 한다. Sabatier의 원리에 따르면, AOR의 반응 중간체인  $NH_x$  종에 대해 적절한 흡착 에너지를 갖는 금속(흡착력이 너무 강하거나 약하지 않은)이 효과적인 AOR 촉매가 될 수 있다.<sup>32)</sup>  $NH_x$ 종에 따른 다양한 전이 금속의 결합 강도는  $Ru > Rh > Pd > Ir > Pt >> Au, Ag, Cu$  순으로 나타낸다고 보고되었다.<sup>21,33)</sup> Ru과 Rh는  $N_{ads}$ 와 강한 결합을 형성함으로써 반응 중간체의 탈착이 어렵고, 이로 인해 촉매 피독현상이 쉽게 유발된다. 반면, Au, Ag, Cu는  $NH_x$  종과의 결합력이 상대적으로 약하여 초기 흡착 단계에서 반응이 제한되며, 이로 인해 AOR에서 낮은 촉매 활성을 보인다. 이에 비해 고가의 귀금속인 Pt는  $NH_x$  종과의 결합 강도가 적절하여 우수한 암모니아 산화 활성을 나타내며, 이러한 특성으로 인해 DA-AEMFC에서 주로 사용되는 촉매로 널리 활용되고 있다.<sup>21,29,33,34)</sup>

Fig. 3는 Pt/C 촉매의 AOR에 대한 순환전압전류법과 정전압 분석 결과를 나타낸다. 두 그래프 모두 장시간 암모니아 산화 반응이 진행될 경우, 촉매 표면에 강하게 흡착된  $N_{ads}$ 에 의해 전기화학적 활성점이 차단되고, 이로 인해 AOR 촉매 성능이 저하됨을 보여준다. 이러한  $N_{ads}$ 의 피독에 의한 축적은 장기간 셀 운전 시 성능 열화의 주요 원인이 될 수 있으며, 따라서 촉매 표면에서  $N_{ads}$ 의 생성을 억제하거나 이를 효과적으로 제거할 수 있는 전략의 개발이 필수적이다. 특히, Pt 기반 촉매에서는  $N_{ads}$ 와의 상호작용을 제어하는 것이 AOR의 활성을 향상시키고 촉매 내구성을 확보하는 핵심 요인으로 작용한다. 이를 위해 최근에는 합금화, 도핑, 표면 결합력 조절, 결정면 제어 및 형상 제어 등 다양한 전략을 기반으로 한 고효율 촉

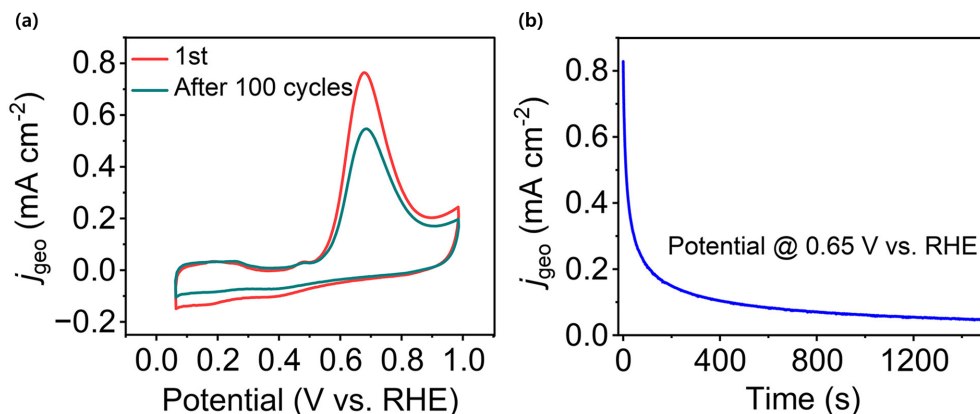


Fig. 3. (a) Cyclic voltammometry analysis in 0.1 M KOH + 0.1 M  $NH_3$  solution. (b) Chronoamperometric analysis in 0.1 M KOH + 0.1 M  $NH_3$  solution. Figure reproduced with permission from Ref. [30].

매 개발이 활발히 진행되고 있다. Vidal-Iglesias 등은 알칼리성 전해질에서 Pt (100) 결정면이 암모니아의 선택적 산화에 대해 우수한 활성을 보인다는 사실을 보고하였다.<sup>35)</sup> Jin 그룹에서는 안정화제 없이 고온 분리법을 이용하여 Pt (100) 표면을 선택적으로 제조하였으며 이를 이용한 DA-AEMFC는  $42.4 \text{ mW cm}^{-2}$ 의 최대 전력 밀도를 달성하였다.<sup>36)</sup> Pt 기반 촉매의 AOR 활성을 향상시키기 위한 대표적인 전략 중 하나는 합금화를 통한  $\text{NH}_x$  중간체의 흡·탈착 에너지 조절이다. 특히 Pt-Ir 합금 촉매에서 Ir은 Pt에 비해 탈양산화 단계에서 낮은 활성화 에너지 장벽을 가지며, 이에 따라 단일 Pt 촉매보다 더 낮은 개시 전위를 제공할 수 있다.<sup>31,33,37)</sup> Zhao 등은 Pt-Ir 합금 촉매를 산화 극으로 사용하여 구성된 DAFC 시스템을 통해  $80^\circ\text{C}$ 의 운전 조건에서  $135 \text{ mW cm}^{-2}$ 의 최대 전력 밀도를 보고하였다.<sup>12)</sup> 최근에는 이러한 고성능 AOR 촉매 개발을 위한 전략으로 밀도범함수이론(DFT)기반 계산이 적극적으로 활용되고 있다.<sup>33)</sup> DFT 계산은 특정 금속 표면에서 반응물과의 전자 구조 상호작용, 흡착 에너지, 반응 경로 등을 정량적으로 예측할 수 있어, 촉매 스크리닝 과정에서 소요되는 시간과 비용을 획기적으로 절감할 수 있다. 이를 통해 유망한 촉매 후보를 사전에 선별하고, 실험적 검증 대상으로 집중함으로써 고성능 촉매 개발의 효율성을 크게 향상시킬 수 있을 것으로 기대된다. 그러나 실제 기체 확산전극(gas diffusion electrode; GDE) 기반의 MEA 구조를 적용한 연료전지 시스템에서는, DFT 계산으로 예측된 촉매 활성과 실제 셀 테스트에서 나타나는 성능 간에 차이가 발생하는 한계가 존재한다.

### 2.3. AOR을 위한 최적의 AEMFC의 도전 과제

DA-AEMFC에서는 연료인 암모니아가 확산 현상으로 인하여 음이온 교환막을 통해서 산화극에서 환원극으로 이동하는 암모니아 크로스오버(crossover) 현상이 발생한다.<sup>39)</sup> 이러한 크로스오버는 셀 운전 중 연료 손실을 초래할 뿐만 아니라, 환원극에서의 촉매 피독을 유발하고, 산화 반응과 환원 반응이 동시에 진행됨에 따라 혼성 전위(mixed potential)를 형성하여 셀 전압 손실을 유도하는 등 시스템 성능 저하의 주요 원인으로 작용한다.<sup>39-41)</sup>

Fig. 4는 암모니아 크로스오버 현상을 나타낸 모식도이다. 일반적으로 음이온 교환막의 두께가 증가하면 암모니아 크로스오버를 효과적으로 억제할 수 있으나, 동시에 두꺼운 막으로 인한 옴 저항(ohmic resistance)이 증가하여 전류 밀도가 감소하는 trade-off가 발생한다. 이에 따라, 고분자막의 두께는 유지하면서도 암모니아 크로스오버를 효과적으로 억제할 수 있는 기술적 접근과 설계 전략의 개발이 요구된다. 최근에는 막 구조 내에 기능성 고분자의 사슬 가교(crosslinking), 소수성 측쇄(hydrophobic side chain) 도입 등을 통해 암모니아 투과를 억제하고 선택적인 음이온 전도성을 확보하려는 연구가 활발히 진행되고 있다.<sup>42-44)</sup> 암모니아 크로스오버 문제 외에도, 암모니아수를 연료로 사용할 경우 낮은 에너지 밀도가 시스템의 전체 효율을 제한하는 주요 요인으로 작용한다. 또한, 스택 내에서 KOH 기반 전해질을 관리해야 하는 시스템적 복잡성 역시 고려해야 할 요소이다. 이러한 한계를 극복하기 위한 대안으로, 기체 상태의 암모니아를 직접 연료로 주입하여 연료전지를 구동하는 방식이 일부 연구에서 제시되고 있다. 예를 들어, Zhao 등은 기체 암모니아

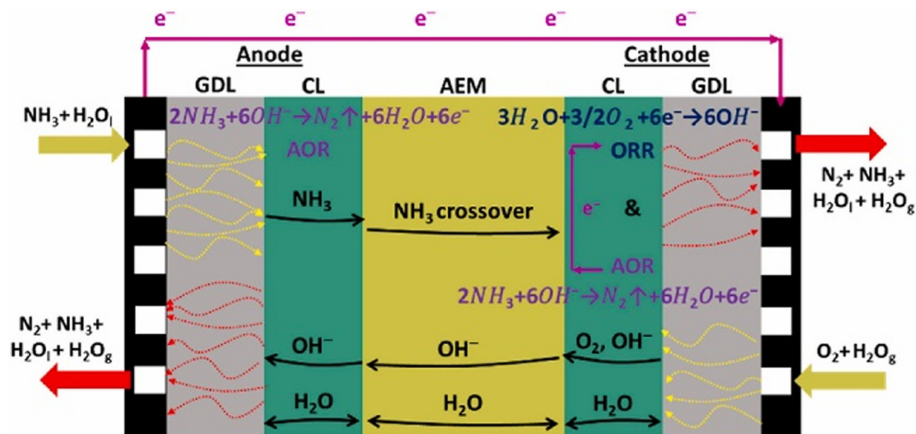


Fig. 4. Ammonia crossover phenomenon in low-temperature ammonia fuel cells. Figure reproduced with permission from Ref. [38].

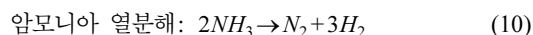
를 주입하여 작동하는 DA-AEMFC 시스템을 구현하였으며, 이를 통해 최대  $75 \text{ mW cm}^{-2}$ 의 전력 밀도를 달성하였다.<sup>45)</sup>

### 3. 고온 암모니아 연료전지(DA-SOFC)

저온 DA-AEMFC 시스템에서의 1) AOR의 느린 반응 속도 2) DA-AEMFC에서의 암모니아 크로스 오버 3) AOR 중간체로 인한 촉매 피독과 같은 문제점들을 극복하기 위한 대안으로, 고온 조건에서 암모니아를 연료로 사용하는 연료전지에 대한 연구가 활발히 진행되고 있다. 고온 연료전지 시스템에서는 이온 전도성을 갖는 고체 산화물을 전해질로 사용하는 고체산화물연료전지(direct ammonia-solid oxide fuel cell; DA-SOFC)가 적용된다. Fig. 1(b)는 DA-SOFC의 작동 원리를 간략히 도식화한 그림이며, 프로톤 전도형 DA-SOFC (DA-SOFC-H) 400–600 °C 중온 범위에서, 산소 음이온 전도형 DA-SOFC-O는 700–900 °C의 고온 범위에서 작동한다. 암모니아의 열분해 반응( $2\text{NH}_3 \rightleftharpoons \text{N}_2 + 3\text{H}_2$ ,  $\Delta H^0 = \text{ca.} +103\text{--}112 \text{ kJ mol}^{-1}$  @ 400–900 °C)은 이러한 온도 범위에서 흡열 반응이며, 르 샤틀리에의 원리에 따라 고온 환경에서 자발적으로 진행된다. 따라서 DA-SOFC에서는 산화극에 공급된 암모니아가 고온 조건에서 크래킹되어 수소를 생성하고, 이어서 생성된 수소가 전기화학적으로 산화되는 반응이 유도된다. 이 메커니즘은 저온 시스템에서 요구되는 암모니아의 복잡한 직접 산화 경로를 우회함으로써 전기화학 반응의 활성화 에너지 장벽을 효과적으로 낮추고, 반응 속도론적 측면에서도 DA-AEMFC에 비해 유리한 조건을 제공한다. 실제로 최근 연구에서는 암모니아를 연료로 활용한 DA-SOFC 시스템이 대략  $1.3 \text{ W cm}^{-2}$  이상의 우수한 전력밀도를 구현하는 등, 저온 DA-AEMFC에 비해 우수한 출력 성능을 보인 사례가 보고되었다.<sup>46)</sup>

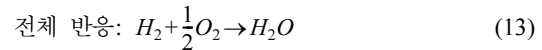
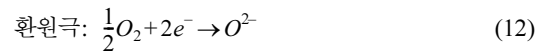
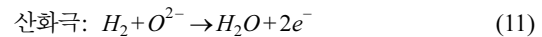
#### 3.1. DA-SOFC의 시스템 및 작동 원리

DA-AEMFC와 달리, DA-SOFC는 고온 환경에서 암모니아를 연료(산화극)에 주입되면 열화학적 분해 반응을 통해 수소가 생성되고, 이후 전기화학적 산화 반응을 통해 에너지를 발생시키는 방식으로 작동한다. 암모니아의 열분해 반응은 다음과 같다.



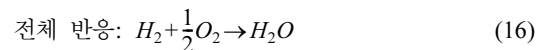
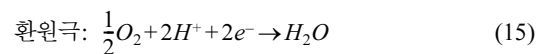
생성된 수소는 연료극에서 전기화학적으로 산화되며, 공기가 공급되는 공기극(환원극)에서는 산소가 환원 반응을 통해 물( $\text{H}_2\text{O}$ )을 형성한다. 이때 전기화학

반응은 사용된 고체산화물 전해질의 이온 전도 특성에 따라 다르게 나타나며, 이에 따라 DA-SOFC는 이온 종류와 작동 온도에 따라 DA-SOFC-O와 DA-SOFC-H로 구분된다. DA-SOFC-O는 전해질로 산소 음이온 전도성 고체산화물, 주로 YSZ (Yttria-Stabilized Zirconia)를 사용한다. DA-SOFC-O 시스템에서의 전기화학 반응은 다음과 같다.



Ma 등은 Ni-YSZ/YSZ/LSM-YSZ로 구성된 DA-SOFC-O를 제작해  $526 \text{ mW cm}^{-2}$ 의 최대 전력밀도를 달성하였다.<sup>47)</sup>

DA-SOFC-H는 전해질로 프로톤 전도성 고체산화물을 사용하며, 중온(400–600 °C)에서 작동이 가능하며, 대표적으로 BaCeO<sub>3</sub> 및 BaZrO<sub>3</sub> 기반의 고체 전해질이 활용된다. Xie 등은 기존의 BaCeO<sub>3</sub> 전해질에 Nd를 도핑하여 BaCe<sub>0.9</sub>Nd<sub>0.1</sub>O<sub>3-δ</sub>(BCNO) 전해질을 합성하였으며 Ni-BCNO/BCNO/LSC-BCNO로 구성된 DA-SOFC-H를 통해  $315 \text{ mW cm}^{-2}$ 의 최대 전력 밀도를 달성하였다.<sup>48)</sup> DA-SOFC-H 시스템에서의 전기화학 반응은 다음과 같다.



이처럼 두 종류의 DA-SOFC는 전해질을 통해 이동하는 이온의 종류가 상이함에 따라 각 전극에서의 반응 경로는 다르지만, 전체적인 전기화학 반응식은 동일하다. 이를 통해 암모니아 연료를 고온에서 직접 활용할 수 있는 효율적인 전기화학 시스템 구현이 가능하다.

#### 3.2. DA-SOFC의 한계점과 최근 연구 동향

DA-SOFC는 고온 환경에서 높은 전력 밀도를 구현할 수 있는 장점을 지니고 있으나, 장기 운전 시 성능 저하 현상이 관찰되고 있다.<sup>49)</sup> 이러한 문제는 주로 촉매의 성능 열화와 내구성 저하에 기인한다. 특히, DA-SOFC의 장기 운전 시 산화극 표면에서 분해되지

않은 암모니아가 잔존하게 되면, 촉매 표면의 질화(nitridation)가 유도되어 연료(암모니아)-촉매-전해질로 이루어진 삼상계면(three-phase boundary; TPB)에서의 전기화학 반응 활성을 저해하고, 촉매-전해질 계면의 저항을 증가시키는 것으로 보고되었다.<sup>50)</sup> 또한, 고온 조건에서는 촉매로 사용되는 Ni 입자의 성장이 촉진되어, 결과적으로 촉매 활성이 저하되는 현상도 보고된 바 있다.<sup>51)</sup> 이를 해결하기 위한 전략으로, Ni 기반 산화극 촉매에 Cr, SrO 등의 금속을 첨가하여 Ni 입자의 조대화(coarsening) 및 질화 반응을 억제하고 촉매의 구조적 안정성을 향상시키려는 연구가 진행되고 있다.<sup>52)</sup> 그럼에도 불구하고, 여전히 불완전한 암모니아 분해로 인한 잔류 암모니아 문제, 장기 운전 시 발생하는 전극-전해질 계면의 균열 및 박리(delamination) 등은 DA-SOFC의 안정성 확보에 있어 주요한 기술적 과제로 남아 있다.<sup>53)</sup> DA-SOFC의 상용화를 위해서는 다음과 같은 여러 측면에서의 기술 개발이 병행되어야 한다: 1) 고온 작동 조건에서 세라믹 구성요소의 본질적 취성(brittleness)으로 인해 셀 및 스택의 대면적화 과정에서 구조적 파손 위험이 커지므로, 기계적 신뢰성 향상을 위한 구조 최적화와 소재 공학적 보강이 필수적이다. 2) 성능을 저하시키지 않으면서도 시스템 비용을 낮출 수 있는 중온(400–600 °C) 작동 범위용 고이온전도성 프로톤 전도체 세라믹의 개발이 함께 이루어져야 한다. 3) 스택 설계에서는 경량화와 더불어 열팽창 불일치, 응력 축적, 밀봉부 열화에 대응할 수 있는 장기 내구성 확보가 중요하다. 4) 시스템 효율을 유지하기 위해 비가역적 열 손실을 최소화할 수 있는 고성능 단열 및 폐열 회수(열 차폐-열교환 통합) 전략이 필요하다. 5) 암모니아 연료의 안정적인 분해 및 전기화학 반응 최적화를 위해서는 연료 공급 속도, 농도, 온도 등에 대한 정밀한 제어 기술과 전극 내 NH<sub>3</sub> 분해 반응의 균일성을 확보할 수 있는 전극 구조 설계가 병행되어야 한다. 이러한 기술 요소들은 상호 밀접하게 연계되어 있으므로, DA-SOFC의 상용화를 위해서는 소재 개발, 시스템 설계, 열관리 및 연료 제어 전략을 포괄하는 통합적 연구 접근이 요구된다.

#### 4. 결 론

암모니아는 우수한 저장 및 운송 특성 뿐만 아니라, 이미 구축된 글로벌 인프라를 활용할 수 있다는 장점을 바탕으로 탄소중립 사회 실현을 위한 핵심 수소 캐리어로 주목받고 있다. 특히 크래킹 과정을 생략하고 암모니아를 직접 연료로 사용하는 직접 암모니아 연료전지 기술은 시스템의 단순화 및 에너지 효율 향상 측면에서 수소 기반 에너지 전환 기술 중 높은 잠재

력을 지니고 있다. 그러나 DAFC의 두 가지 주요 시스템인 DA-AEMFC와 DA-SOFC는 각각 고유의 기술적 한계를 안고 있으며, 상용화를 위해서는 여전히 해결해야 할 과제가 많다. DA-AEMFC는 암모니아 산화 반응의 낮은 반응 속도로 인한 고과전압 요구, 반응 중간체 및 부산물에 의한 촉매 피독, N≡N 결합의 비효율적 dimerization 등으로 인해 낮은 전류 밀도와 장기 운전 안정성 확보에 어려움을 겪고 있다. 현재 Pt, Ir 등의 귀금속 촉매가 상대적으로 높은 활성을 보이고 있지만, 중간체에 대한 강한 흡착으로 인한 탈활성화 및 고비용 문제가 산업적 확대를 제한하는 요소로 작용하고 있다. 따라서 암모니아 산화 반응의 메커니즘에 대한 심화 이해와 함께, 높은 활성을 유지하면서도 내피독성이 우수한 촉매 개발이 향후 DA-AEMFC 성능 향상을 위한 핵심 과제로 지목되고 있다. DA-SOFC는 고온에서 암모니아의 자발적 열분해 반응을 활용하여 높은 전력 밀도를 달성할 수 있는 이점이 있으나, 장기 운전 시 Ni 촉매의 조대화 및 질화, 전극-전해질 계면의 열적 불안정성 등으로 인해 내구성 확보가 중요한 도전 과제로 지적된다. 이에 대응하기 위해서는 촉매 내구성 향상, 전해질 소재의 안정성 확보, 셀 구조 최적화, 연료 공급 정밀 제어 등 다각적인 기술적 접근이 필요하다. 아울러, 암모니아 전기화학 반응의 복잡한 메커니즘을 정량적으로 이해하고 최적의 촉매 및 반응 조건을 설계하기 위해 신뢰성 높은 실험 기반 데이터 축적과 AI-머신러닝 기법의 적용이 필수적이다. 특히 삼상계면에서의 반응 경로 및 중간체 상호작용에 대한 정밀한 분석은 향후 예측 기반 촉매 설계 및 시스템 최적화에 핵심적인 역할을 수행할 것으로 기대된다. 이와 같이, 직접 암모니아 연료전지는 탄소중립 실현을 위한 차세대 에너지 변환 기술로서 실질적인 가능성을 갖추고 있으며, 다학제적이고 체계적인 연구를 통해 상용화를 향한 실질적인 도약이 기대된다.

#### Acknowledgement

본 성과물은 중소벤처기업부에서 지원하는 2025년도 산학연 Collabo R&D 사업(R-2025-00886)의 연구 수행으로 인한 결과물임을 밝힙니다.

#### References

1. AR6 Synthesis Report: Climate Change 2023. <https://www.ipcc.ch/report/ar6/syr/> (accessed April 28, 2025).
2. Net Zero by 2050 – Analysis, IEA (2021). <https://www.iea.org/reports/net-zero-by-2050> (accessed April 28, 2025).
3. M. Yang, R. Hunger, S. Berrettoni, B. Sprecher and B.

- Wang, A review of hydrogen storage and transport technologies, *Clean Energy*, **7(1)**, 190–216 (2023).
4. A. Magliano, C. Perez Carrera, C.M. Pappalardo, D. Guida and V.P. Berardi, A comprehensive literature review on hydrogen tanks: Storage, safety, and structural integrity, *Appl. Sci.*, **14(20)**, 9348 (2024).
  5. H.T. Hwang and A. Varma, Hydrogen storage for fuel cell vehicles, *Curr. Opin. Chem. Eng.*, **5**, 42–48 (2014).
  6. A. Cai and Z. Rozario, Direct ammonia fuel cells: A general overview, current technologies and future directions, *Johns. Matthey Technol. Rev.*, **66(4)**, 479–489 (2022).
  7. G. Jeerh, M. Zhang and S. Tao, Recent progress in ammonia fuel cells and their potential applications, *J. Mater. Chem. A*, **9(2)**, 727–752 (2021).
  8. N. Armaroli and V. Balzani, The hydrogen issue, *Chem. Sus. Chem.*, **4(1)**, 21–36 (2011).
  9. A. Klerke, C.H. Christensen, J.K. Nørskov and T. Vegge, Ammonia for hydrogen storage: Challenges and opportunities, *J. Mater. Chem.* **18**, 2304–2310 (2008).
  10. F. Jiao and B. Xu, Electrochemical ammonia synthesis and ammonia fuel cells, *Adv. Mater.*, **31(31)**, 1805173 (2019).
  11. H. Shi, J. Tang, W. Yu, M.O. Tadé and Z. Shao, Advances in power generation from ammonia via electrocatalytic oxidation in direct ammonia fuel cells, *Chem. Eng. J.*, **488**, 150896 (2024).
  12. Y. Zhao, B.P. Setzler, J. Wang, J. Nash, T. Wang, B. Xu and Y. Yan, An efficient direct ammonia fuel cell for affordable carbon-neutral transportation, *Joule*, **3(10)**, 2472–2484 (2019).
  13. A.T. Wijayanta, T. Oda, C.W. Purnomo, T. Kashiwagi and M. Aziz, Liquid hydrogen, methylcyclohexane, and ammonia as potential hydrogen storage: Comparison review, *Int. J. Hydrog. Energy*, **44(29)**, 15026–15044 (2019).
  14. M.R. Usman, Hydrogen storage methods: Review and current status, *Renew. Sust. Energ. Rev.*, **167**, 112743 (2022).
  15. Z.-H. Lyu, J. Fu, T. Tang, J. Zhang and J.-S. Hu, Design of ammonia oxidation electrocatalysts for efficient direct ammonia fuel cells, *Energy Chem.*, **5(3)**, 100093 (2023).
  16. Y. Liu, Z. Pan, O.C. Esan, X. Xu and L. An, Performance characteristics of a direct ammonia fuel cell with an anion exchange membrane, *Energy Fuels*, **36(21)**, 13203–13211 (2022).
  17. Y. Liu, Z. Pan, O.C. Esan, X. Huo, X. Shi and L. An, Development and performance evaluation of a passive direct ammonia fuel cell, *J. Power Sources*, **570**, 233057 (2023).
  18. D.K. Bora and A. Faik, Direct ammonia fuel cells for power generation: Recent technological advances and mobility applications, *Curr. Opin. Green Sustain. Chem.*, **48**, 100944 (2024).
  19. I. Katsounaros, M.C. Figueiredo, F. Calle-Vallejo, H. Li, A.A. Gewirth, N.M. Markovic and M.T.M. Koper, On the mechanism of the electrochemical conversion of ammonia to dinitrogen on Pt(100) in alkaline environment, *J. Catal.*, **359**, 82–91 (2018).
  20. H.S. Pillai and H. Xin, New insights into electrochemical ammonia oxidation on Pt(100) from first principles, *Ind. Eng. Chem. Res.*, **58(25)**, 10819–10828 (2019).
  21. A.O. Elnabawy, J.A. Herron, S. Karraker and M. Mavrikakis, Structure sensitivity of ammonia electro-oxidation on transition metal surfaces: A first-principles study, *J. Catal.*, **397**, 137–147 (2021).
  22. K. Hu and D. Yang, Studies on the effects of NH<sub>3</sub> in H<sub>2</sub> and air on the performance of PEMFC, *Energies*, **14(20)**, 6556 (2021).
  23. Y.A. Gomez, A. Oyarce, G. Lindbergh and C. Lagergren, Ammonia contamination of a proton exchange membrane fuel cell, *J. Electrochem. Soc.*, **165**, F189 (2018).
  24. H. Ju, D. Yoon, S. Bong and J. Lee, Challenge and opportunity in scaling-up hydrogen production via electrochemical ammonia electrolysis process, *Curr. Opin. Electrochem.*, **49**, 101609 (2025).
  25. Y. Guo, Z. Pan and L. An, Carbon-free sustainable energy technology: Direct ammonia fuel cells, *J. Power Sources*, **476**, 228454 (2020).
  26. X. Ding, Y. Ji, H. Huang, J. Huang, S. Chen, C. Yang, F. Li and M. Luo, Electrocatalysis of the ammonia oxidation reaction, *Chem. Catalysis*, **4(6)**, 100932 (2024).
  27. H. Gerischer and A. Mauere, Untersuchungen zur anodischen oxidation von ammoniak an platin-elektroden, *J. Electroanal. Chem. Interfacial Electrochem.*, **25(3)**, 421–433 (1970).
  28. H. Kim, S. Hong, H. Kim, Y. Jun, S.Y. Kim and S.H. Ahn, Recent progress in Pt-based electrocatalysts for ammonia oxidation reaction, *Appl. Mater. Today*, **29**, 101640 (2022).
  29. A.C.A. de Vooy, M.T.M. Koper, R.A. van Santen and J.A.R. van Veen, The role of adsorbates in the electrochemical oxidation of ammonia on noble and transition metal electrodes, *J. Electroanal. Chem.*, **506(2)**, 127–137 (2001).
  30. X. Ding, Y. Ji, H. Huang, J. Huang, S. Chen, C. Yang, F. Li and M. Luo, Electrocatalysis of the ammonia oxidation reaction, *Chem. Catalysis*, **4(6)**, 100932 (2024).
  31. Z.-F. Li, Y. Wang and G.G. Botte, Revisiting the electrochemical oxidation of ammonia on carbon-supported metal nanoparticle catalysts, *Electrochim. Acta*, **228**, 351–360 (2017).
  32. A.J. Medford, A. Vojvodic, J.S. Hummelshøj, J. Voss, F. Abild-Pedersen, F. Studt, T. Bligaard, A. Nilsson and J.K. Nørskov, From the Sabatier principle to a predictive theory of transition-metal heterogeneous catalysis, *J. Catal.*, **328**, 36–42 (2015).
  33. J.A. Herron, P. Ferrin and M. Mavrikakis, Electrocatalytic oxidation of ammonia on transition-metal surfaces: A first-principles study, *J. Phys. Chem. C*, **119(26)**, 14692–14701 (2015).

34. K. Siddharth, Y. Chan, L. Wang, M. Shao, Ammonia electro-oxidation reaction: Recent development in mechanistic understanding and electrocatalyst design, *Curr. Opin. Electrochem.*, **9**, 151–157 (2018).
35. F.J. Vidal-Iglesias, J. Solla-Gullón, V. Montiel, J.M. Feliu and A. Aldaz, Ammonia selective oxidation on Pt(100) sites in an alkaline medium, *J. Phys. Chem. B*, **109**(26), 12914–12919 (2005).
36. H. Jin, S. Lee, Y. Sohn, S.-H. Lee, P. Kim, and S.J. Yoo, Capping agent-free synthesis of surface engineered Pt nanocube for direct ammonia fuel cell, *Int. J. Energy Res.*, **45**, 18281–18291 (2021).
37. L. Song, Z. Liang, Z. Ma, Y. Zhang, J. Chen, R.R. Adzic and J.X. Wang, Temperature-dependent kinetics and reaction mechanism of ammonia oxidation on Pt, Ir, and PtIr alloy catalysts, *J. Electrochem. Soc.*, **165**, J3095 (2018).
38. D.R. Dekel, K. Yassin, I.G. Rasin and S. Brandon, Modeling direct ammonia anion-exchange membrane fuel cells, *J. Power Sources*, **558**, 232616 (2023).
39. Y. Han, Y. Zhao, Z. Ren, T. Wei, H. Zhang, S. Sun, H. Yu and Z. Shao, Studies on ammonia crossover behavior of hydroxide exchange membranes for direct ammonia fuel cells, *J. Membrane Science*, **717**, 123638 (2025).
40. L.M. Wilder, K. Wyatt, C.A. Skangos, W.E. Klein, M.R. Parimuha, J.L. Katsirubas, J.L. Young and E.M. Miller, Membranes matter: Preventing ammonia crossover during electrochemical ammonia synthesis, *ACS Appl. Energy Mater.*, **7**(2), 536–545 (2024).
41. S. Suzuki, H. Muroyama, T. Matsui and K. Eguchi, Fundamental studies on direct ammonia fuel cell employing anion exchange membrane, *J. Power Sources*, **208**, 257–262 (2012).
42. Z. Jiao, Y. Han, T. Wang, J. Dong, Y. Zhao and J. Yang, Covalently crosslinked poly (*p*-terphenyl *N*-methylpiperidine) based anion exchange membranes for low temperature direct ammonia fuel cells, *J. Power Sources*, **623**, 235404 (2024).
43. S. Gottesfeld, D.R. Dekel, M. Page, C. Bae, Y. Yan, P. Zelenay and Y.S. Kim, Anion exchange membrane fuel cells: Current status and remaining challenges, *J. Power Sources*, **375**, 170–184 (2018).
44. O. Siddiqui and I. Dincer, A review and comparative assessment of direct ammonia fuel cells, *Therm. Sci. Eng. Prog.*, **5**, 568–578 (2018).
45. Y. Zhao, T. Wang, B.P. Setzler, R. Abbasi, J. Wang and Y. Yan, A high-performance gas-fed direct ammonia hydroxide exchange membrane fuel cell, *ACS Energy Lett.*, **6**(5), 1996–2002 (2021).
46. S.S. Shy, S.C. Hsieh and H.Y. Chang, A pressurized ammonia-fueled anode-supported solid oxide fuel cell: Power performance and electrochemical impedance measurements, *J. Power Sources*, **396**, 80–87 (2018).
47. Q. Ma, J. Ma, S. Zhou, R. Yan, J. Gao and G. Meng, A high-performance ammonia-fueled SOFC based on a YSZ thin-film electrolyte, *J. Power Sources*, **164**(10), 86–89 (2007).
48. K. Xie, Q. Ma, B. Lin, Y. Jiang, J. Gao, X. Liu and G. Meng, An ammonia fuelled SOFC with a BaCe<sub>0.9</sub>Nd<sub>0.1</sub>O<sub>3-δ</sub> thin electrolyte prepared with a suspension spray, *J. Power Sources*, **170**(1), 38–41 (2007).
49. L. Zhang, Y. Cong, W. Yang and L. Lin, A direct ammonia tubular solid oxide fuel cell, *Chinese J. Catalysis*, **28**(9), 749–751 (2007).
50. J. Yang, A.F.S. Molouk, T. Okanishi, H. Muroyama, T. Matsui and K. Eguchi, A stability study of Ni/Yttria-stabilized zirconia anode for direct ammonia solid oxide fuel cells, *ACS Appl. Mater. Interfaces*, **7**(51), 28701–28707 (2015).
51. H. Inokawa, T. Ichikawa and H. Miyaoka, Catalysis of nickel nanoparticles with high thermal stability for ammonia decomposition, *Appl. Catal. A-Gen.*, **491**, 184–188 (2015).
52. M. Hashinokuchi, M. Zhang, T. Doi and M. Inaba, Enhancement of anode activity and stability by Cr addition at Ni/Sm-doped CeO<sub>2</sub> cermet anodes in NH<sub>3</sub>-fueled solid oxide fuel cells, *Solid State Ionics*, **319**, 180–185 (2018).
53. R. Lan and S. Tao, Ammonia as a suitable fuel for fuel cells, *Front. Energy Res.*, **2**, (2014).