

고분자 전해질 연료전지(PEMFC)에서 촉매 지지체 가속 열화 조건 변화의 영향

오소형 · 한유한 · 유동근 · 김명환* · 박지웅* · 최영진* · 박권필†

순천대학교 화학공학과
57922 전남 순천시 매곡동 315
*한국자동차연구원
31214 충청남도 천안시 동남구 풍세면 풍세로 303
(2023년 9월 1일 접수, 2023년 12월 15일 수정본 접수, 2023년 12월 21일 채택)

Effects of Changes in Accelerated Degradation Conditions for Catalyst Supports in Polymer Electrolyte Fuel Cell

Sohyeong Oh, Yuhan Han, Donggeun Yoo, Myoung Hwan Kim*, Ji Young Park*, Youngjin Choi* and Kwonpil Park†

Department of Chemical Engineering, Suncheon National University, 315 Maegok-dong, Suncheon, Jeonnam, 57922, Korea
*KATECH, 303, Pungse-ro, Pungse-myeon, Dongnam-gu, Cheonan-si, Chungcheongnam-do, 31214, Korea
(Received 1 September 2023; Received in revised form 15 December 2023; Accepted 21 December 2023)

요 약

고분자 전해질 연료전지(PEMFC) 내구성에 촉매 지지체 내구성이 미치는 영향이 크다. 촉매 지지체의 가속 내구 평가는 높은 전압(1.0~1.5 V)에서 진행되어 촉매층의 촉매와 이온노머 바인더도 같이 열화되어 지지체 내구성 평가에 방해가 된다. 내구성 평가대상인 지지체가 더 열화되는 조건을 찾고자 기존의 프로토콜 (DOE 프로토콜)을 개선하였다. 상대습도를 35% 낮추고 전압변화 횟수를 감소시킨 프로토콜 (MDOE)을 개발하였다. 1.0 ↔ 1.5 V 전압변화 사이클 반복 후에 촉매 비활성도 (MA)와 전기화학적 활성면적 (ECSA), 전기이중층 용량 (DLC), Pt 용해와 입자 성장 등을 분석하였다. 비활성도 감소 40% 도달하는데 MDOE 프로토콜은 500 사이클 밖에 안되어 DOE방법보다 전압변화 횟수를 감소시키면서 카본 지지체 열화를 DOE 프로토콜보다 50% 증가시킬 수 있었다.

Abstract – The durability of the catalyst support has a significant effect on the durability of proton exchange membrane fuel cells (PEMFC). The accelerated durability evaluation of the catalyst support is performed at a high voltage (1.0 to 1.5 V), and the catalyst and ionomer binder in the catalyst layer are also deteriorated, hindering the evaluation of the durability of the support. The existing protocol (DOE protocol) was improved to find conditions in which the support, which is a durability evaluation target, deteriorates further. A protocol (MDOE) was developed in which the relative humidity was lowered by 35% and the number of voltage changes was reduced. After repeating the 1.0 ↔ 1.5 V voltage change cycle, the catalyst mass activity (MA), electrochemical active area (ECSA), electrical double layer capacity (DLC), Pt dissolution and particle growth were analyzed. Reaching 40% reduction in mass activity, the MDOE protocol took only 500 cycles, reducing the number of voltage changes compared to the DOE method and increasing the degradation of the carbon support by 50% compared to the DOE protocol.

Key words: PEMFC, Catalyst support, PtCo/C catalyst, Degradation, Durability test

1. 서 론

고분자 전해질 연료전지(Polymer Exchange Membrane Fuel Cell, PEMFC)는 차세대 무공해 전기자동차(Zero-emission Electric

Vehicles, ZEV)에 제일 적합한 에너지 변환장치로 인정받고 있다. 그러나 PEMFC의 상용화 시장을 확대하기 위해서는 비용 절감과 수명연장이 필수적이다[1,2]. 최근에 PEMFC의 내구성이 더욱 강조되고 있는데 이는 대형 트럭 ZEV로 관심이 집중되면서 요구되는 내구성 향상이 증가하였기 때문이다. 승용차와 경량 트럭 ZEV 등의 운전시간이 5,000~8,000시간 요구되었는데[3], 대형 트럭 운전시간이 약 30,000시간(약 백만 마일)이나 되기 때문이다.

전체 막전극집합체(Membrane and Electrode Assembly, MEA)의 열화 중에 cathode 촉매 층의 열화와 관련된 출력 감소가 많은 부분을 차

† To whom correspondence should be addressed.
E-mail: parkkp@snu.ac.kr

This is an Open-Access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution Non-Commercial License (<http://creativecommons.org/licenses/by-nc/3.0>) which permits unrestricted non-commercial use, distribution, and reproduction in any medium, provided the original work is properly cited.

지하므로[4] 촉매층을 구성하는 각 요소의 열화 현상을 이해하고, 내구성을 향상시키기 위한 소재의 개발이 요구되고 있다.

PEMFC 전극의 촉매층은 촉매와 촉매 지지체 그리고 이오노머 바인더로 구성되어 있다. 촉매의 열화는 용해와 입자 성장으로 촉매 활성 면적이 감소하는 것이다. 촉매의 입자 성장은 1) 작은 백금 입자가 용해되어 큰 입자 위에 석출되어 입자가 성장한다는 Ostwald ripening 메커니즘[5], 2) 부식된 카본 지지체 상에서 Random cluster-cluster 충돌에 의해 백금 입자의 덩어리(Agglomeration)가 발생하는 메커니즘[6], 3) Cluster의 Gibbs 자유 에너지를 최소화하기 위해 백금 입자가 성장한다는 메커니즘[7]이 있다. 이와 같은 촉매입자 성장은 상대습도가 높고 전압변화(부하 변화)가 있는 조건에서 잘 일어난다. 촉매 지지체 열화는 카본이 고전압에서 산화되어 CO₂로 소실되는 메커니즘에 의한[8]. 이오노머 바인더의 열화는 고전압에서 라디칼에 의한 고분자망의 주사슬과 결사슬의 열화에 의한다고 알려져 있다[9,10]. 전극촉매 열화와 내구성에 관한 연구 개발은 많이 되었지만 이에 비해 촉매 지지체의 내구성에 관한 연구는 부족한 편이다.

미국의 에너지부(Department of Energy, DOE)나 일본의 신에너지·산업기술종합개발기구(New Energy and Industrial Technology Development Organization, NEDO)에서는 차량용 PEMFC MEA에 대해서 1.0~1.5 V 범위에서 전압변화를 반복하는 가속 내구 평가(Accelerated Stress Test, AST)를 통하여 촉매 지지체의 내구성을 평가하고 있다[11,12]. 촉매 지지체는 카본이 많이 사용되고 있는데 카본은 1.0 V 이상의 고전압에서 CO₂로 산화되어 소실되는 것으로 알려져 있다[8]. PEMFC에서 이와 같은 고전압은 시동/정지 과정에서 수소/산소 계면 형성시, 그리고 flooding, 연료부족(Starvation)시 발생한다[13,14].

촉매 지지체의 AST는 높은 전압(1.0~1.5 V)에서 진행되어 촉매층의 촉매와 이오노머 바인더도 같이 열화되어 지지체 내구성 평가에 방해가 된다. 본 연구에서는 내구성 평가대상인 지지체가 더 열화되는 조건을 찾고자 DOE 프로토콜보다 상대습도를 낮추고 전압 변화 횟수를 감소시킨 프로토콜(Modified DOE, MDOE)을 PtCo/C 전극[15-17]에 적용하였고, 전극 촉매층에서 각 요소의 열화를 구분하여 정량적으로 분석하여 비교하였다.

2. 실험

2-1. 촉매 지지체 가속 내구 평가

촉매 지지체 AST에 사용된 MEA는 12 μ m 두께의 강화막(Reinforced membrane)에 데칼 방법으로 제조한 전극 층을 hot pressing 하여 전극 면적이 25 cm²인 MEA를 준비하였다. 촉매층의 슬러리는 촉매와 지지체, 바인더 이오노머 그리고 알콜계 수용성 용매를 혼합한 것이다. 촉매는 anode는 Pt/C이며, cathode는 PtCo/C 그리고 지지체는 카본블랙(Vulcan XC 72), 바인더 이오노머는 Nafion solution를 사용하였다. MEA와 가스확산층(Gas Diffusion Layer, GDL)을 9채널 분리판(미세 유로) 셀(CNL Energy, Korea)에 체결하였으며, 스테이션(CNL Energy, Korea)에서 온도와 습도, 가스, 유량 등을 제어하여 MEA의 성능 및 내구 평가를 진행하였다.

촉매 지지체 열화는 80 °C, 상대습도(Relative Humidity, RH) 100%에서 anode H₂, Cathode N₂를 주입한 후 potentiostat (HCP803, Biologic, France)를 이용하여 1.0 V (1 sec) ↔ 1.5 V (1 sec)를 각각 5,000 cycles를

진행하는 중에, 촉매 지지체 내구 지표인 Mass Activity (MA) 및 순환전압전류법(Cyclic Voltammetry, CV)를 측정하여 MA < 40% 또는 전극활성면적(Electrochemical Surface Area, ECSA) < 40% 감소일 때 내구 평가를 종료하고 성능을 비교하였다.

2-2. 촉매 지지체 열화 분석

촉매 지지체의 모든 성능 측정은 cell 80 °C, RH 100%에서 진행하였다. MA는 anode에 H₂, cathode에 O₂를 주입하고 절대압력 150 kPa에서 저전류 구간(0.09-0.8 A) I-V 성능을 측정하여 산출하였다. 전해질막에 의한 전압감소는 저전류 구간의 임피던스를 측정하여 나온 HFR(High frequency Resistance)을 통해 전압을 보정하였고, 수소투과에 의한 전압감소는 수소투과전류밀도(Hydrogen Crossover current Density, HCCD)로 보정하였다. 보정된 I-V 그래프로부터 0.9 V에서 전류밀도를 구한 후 촉매 로딩량으로 나누어서 MA를 계산하였다.

CV는 anode와 cathode에 각각 수소(40 mL/min)와 질소(200 mL/min)를 공급하고, scan rate는 30 mV/sec로 전압을 변화시키면서 전류를 측정하여 14 cycles 후 측정된 값을 택했다. CV 그래프로부터 ECSA는 0.05-0.4 V의 면적으로 구하였으며, 전기이중층용량(Double Layer Capacitance, DLC)는 페러데이 반응이 일어나지 않는 0.4-0.6 V의 전압 구간에서 anode 전류와 cathode 전류의 폭을 통해 계산되었다.

2-3. 촉매 지지체 열화 원인 정량 분석

촉매 지지체 열화에 따른 전극 층의 열화 원인을 촉매(Pt)의 용해 및 입자 성장, 촉매 지지체 및 바인더로 구분하여 정량화한 Sharma와 Andersen의 방법[18]으로 분석하였다.

촉매 지지체 열화 원인을 정량화하기 위해서 촉매 지지체 열화 전후의 Pt 양 및 크기를 XRF (X-Ray Fluorescence Spectromete, XRF-1800, Shimadzu, Japan) 및 TEM (Transmission Electron Microscop, JEM-ARM 200F, JEOL, Japan)을 통해 분석하였으며, CV 측정을 통해 ECSA 및 DLC 값을 확인하였다.

3. 결과 및 고찰

3-1. 저전류 구간에서 I-V 성능 변화

전극촉매 활성분극의 변화를 비교하기 위해 저전류 구간(< 70 mA/cm²)에서 막 저항에 의한 전압 감소와 수소투과에 의한 전압 감소를 보완한 I-V 분극곡선을 Fig. 1에 나타냈다. 임피던스를 측정해 HFR (High Frequency Resistance)에 전류를 곱해 구한 전압을 보정하고, LSV로 측정된 수소투과도로 전압 손실을 환산해 I-V 곡선을 보정한 것이다. 1.0~1.5 V의 높은 전압 구간에서 부하변동에 따른 MEA 내구성을 평가한 것인데, 이 I-V 곡선은 촉매와 촉매 지지체가 있는 촉매층의 열화를 나타낸 것이다. 전체적으로 성능 감소가 많이 되었고, MDOE 방법이 DOE 방법보다 촉매층을 더 열화 시켰음을 볼 수 있다. MDOE 방법의 1회 사이클이 4초로 DOE 방법보다 2배 긴 영향이 큰 것으로 보인다. 전압변화 횟수에 영향을 많이 받는 촉매 열화보다 촉매 지지체의 열화 속도를 증가시키기 위해 사이클 당 시간을 증가시킨 결과다. 평가시간이 2배 소요되었지만 1,500 사이클 시간은 100분 밖에 안 되기 때문에 내구성 평가실험으로는 매우 짧은 시간으로 문제가 되지 않는다. 지지체 열화 내구 평가 프로토콜은 촉매층의 구성 요소인 촉매, 카본 지지체, 이오노

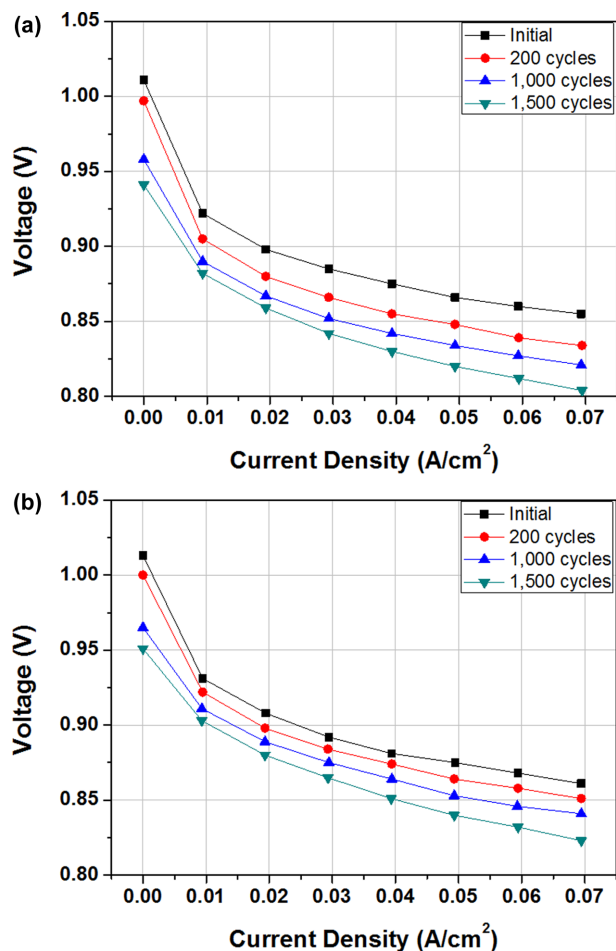


Fig. 1. Change of I-V curves reflected voltage decrease due to membrane resistance and hydrogen crossover after a) MDOE AST b) DOE AST.

며 바인더 중에서 지지체의 열화 속도를 제일 높이는 것이 기본적으로 갖춰야할 점이다. 각 구성 요소가 얼마나 열화되었는지 확인하는 분석을 다음 절부터 CV, TEM 및 XRF 등을 통해 진행하였다.

Fig. 1의 I-V 곡선 중 0.9 V에서 전류밀도를 촉매 로딩 무게로 나누어 구한 MA 변화를 Fig. 2에 비교하였다. MDOE 방법이 1,500 cycles 후 MA가 58.8% 감소해 DOE 방법의 48.2%보다 약 10% 더 감소했다. 두 방법 모두 DOE의 MA 내구 종료 기준(40%) 이상이어서 1,500 사이클 만에 평가를 종료한 것이다. MDOE 방법은 RH를 변화시켜 DOE의 100% RH에서 65%로 감소시켰다. Pt 촉매의 용해 반응이 수분과 반응하여 양이온으로 Pt 입자가 변하기 때문에 Pt의 용해에 의한 열화 속도를 감소시키기 위한 것이었다[18]. 물론 카본 지지체의 산화도 수분과 반응에 의해 진행되지만 촉매의 용해 반응보다 수분 의존도가 낮은 점을 감안한 것이다.

3-2. 촉매 지지체 열화과정에서 CV 변화

촉매 지지체 가속 열화 과정에서 촉매층의 변화를 확인하기 위해 CV 분석한 결과를 Fig. 3에 나타냈다. 촉매의 활성을 나타내는 0.1~0.25 V 범위에서 MDOE 방법의 CV 변화 폭이 DOE 방법의 CV 변화폭보다 크다. 이오노머와 촉매/지지체의 계면을 나타내는 DLC를 계산하는 중앙 수평 부분의 변화도 MDOE 방법이 더 큼을

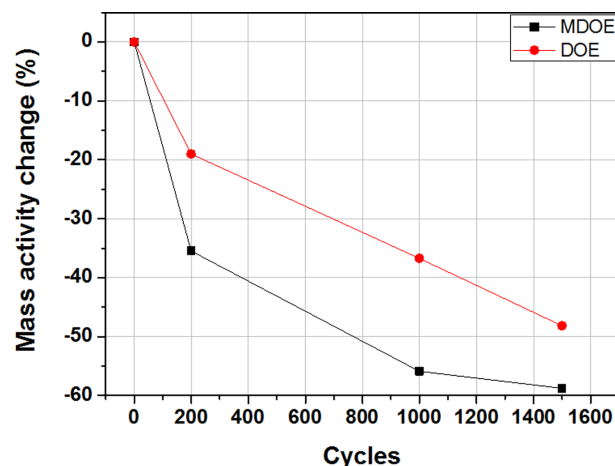


Fig. 2. Comparison of mass activity of MDOE method and DOE method during AST of catalyst support.

보이고 있다. 즉 촉매/지지체와 이오노머의 계면을 나타내는 DLC 변화는 MDOE 방법에서 더 많이 나타나서 카본 지지체 열화는 MDOE 방법이 더 큼을 알 수 있다.

CV로부터 산출한 ECSA 변화를 Fig. 4에 비교하였다. 같은 1,500 사이클 후 MDOE 방법은 ECSA가 약 30% 감소한 반면 DOE 방법은 약 20% 감소해 MDOE 방법이 촉매층의 열화 속도를 증가시켰음을 보였다. 두 방법 모두 1,500 사이클 후 전극 촉매 지지체 AST DOE 프로토콜 기준 ECSA 40%에 미치지 못하였다. MA에 의한 평가 종료는 1,500 사이클만에 달성하였는데, ECSA 기준으로는 달성하지 못한 것이다. 고전압 범위에서 I-V 성능에 미치는 영향이 전기화학적 활성면적보다 더 큰 열화 요소가 있음을 암시한 것이다. 그리고 두 방법 모두 10, 100 사이클 초기에는 ECSA가 오히려 증가하는 현상을 보이는데 이는 초기에 PtCo/C 촉매의 Co가 용해되어 Pt 주위에 빈 공간이 형성되어 Pt의 비표면적이 향상된 현상[19]때문이라고 판단된다.

이온 전도성인 이오노머 바인더와 전자 전도성인 Pt와 카본의 계면은 전기이중층을 형성하고, DLC의 변화를 측정하면 이오노머와 접하고 있는 Pt와 카본의 양의 변화를 알 수 있다. CV 측정에 의해 DLC를 산출할 수 있어서 DLC 변화로부터 이오노머와 접하고 있는 카본의 양의 변화를 알 수 있다[17]. 이오노머와 접하고 있는 카본의 양이 Pt보다 많기 때문이다. Fig. 5에서 MDOE 방법이 DOE 방법보다 DLC 감소가 커서 카본 지지체의 열화가 심함을 나타냈다. 동일한 1,500 사이클 후 MDOE 방법에 의해 DLC 감소가 17.4%, DOE 방법에 의해 11.6% 감소해 MDOE 방법에 의해 카본 지지체의 열화 속도를 1.5배 이상 증가시켰다.

3-3. 촉매 입자크기 변화 비교

촉매 지지체 AST 전후의 전극 촉매의 크기를 TEM으로 분석하여 비교하였다(Fig. 6, 7). 촉매 지지체 열화 후 전극의 입자 크기 증가는 MDOE 방법에서는 0.7 nm (약 15%), DOE 방법에서는 0.4 nm (약 9%)로 나타나 MDOE에서 전극 촉매의 입자가 더 성장함을 확인하였다. PEMFC 촉매 열화 메커니즘은 서론에서 언급한 것처럼 백금 용해, Ostwald ripening, agglomeration으로 설명되는데 촉매층에서 Pt 촉매의 입자크기 증가는 Ostwald ripening과 agglomeration에

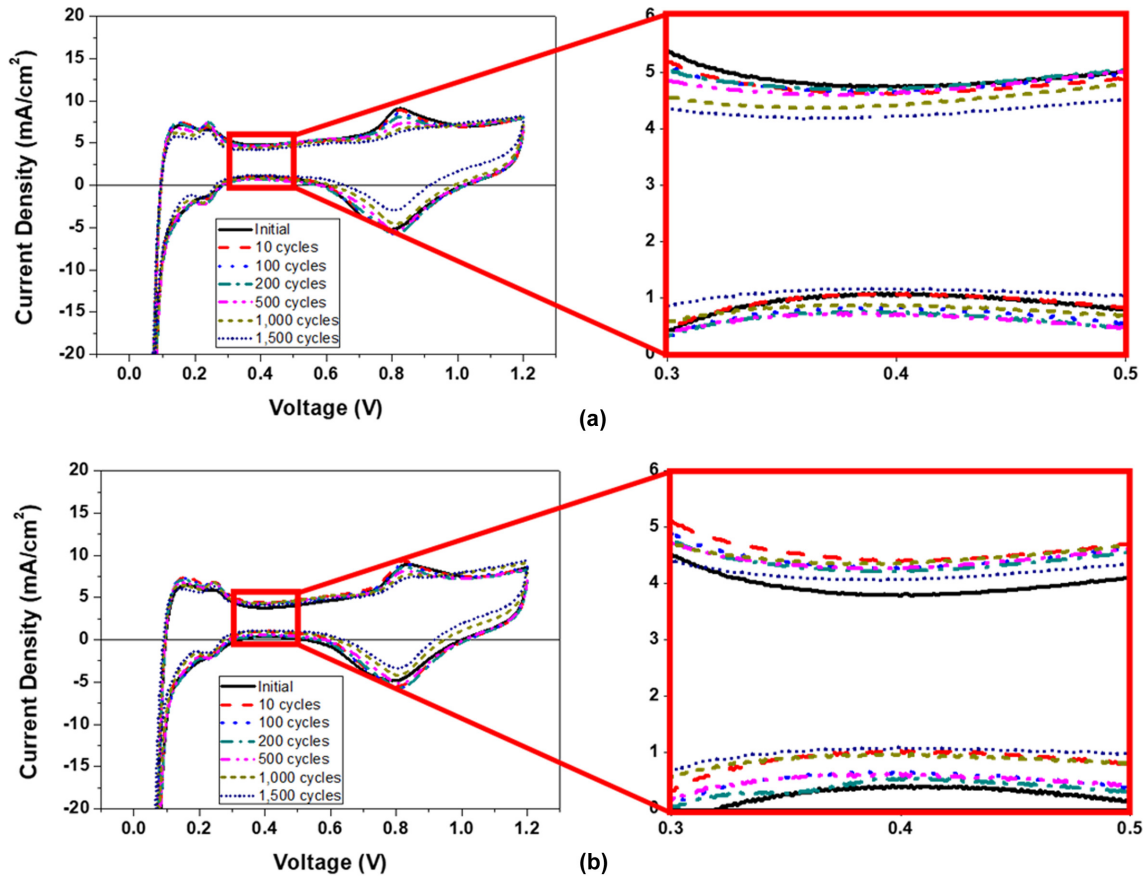


Fig. 3. Change of CV curves during AST of catalyst support a) MDOE AST b) DOE AST.

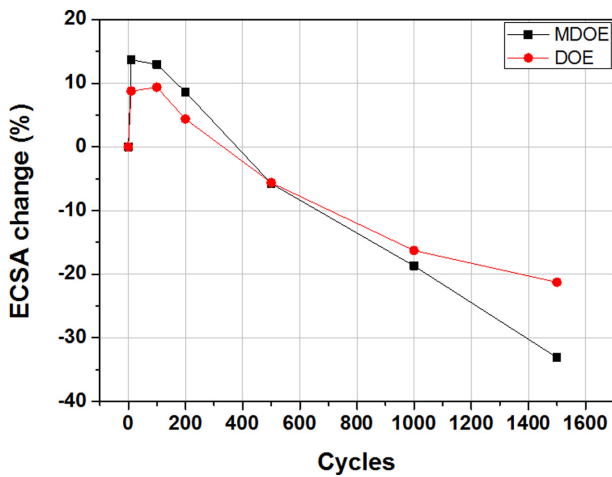


Fig. 4. Comparison of electrochemical surface area by MDOE method and DOE method during AST of catalyst support.

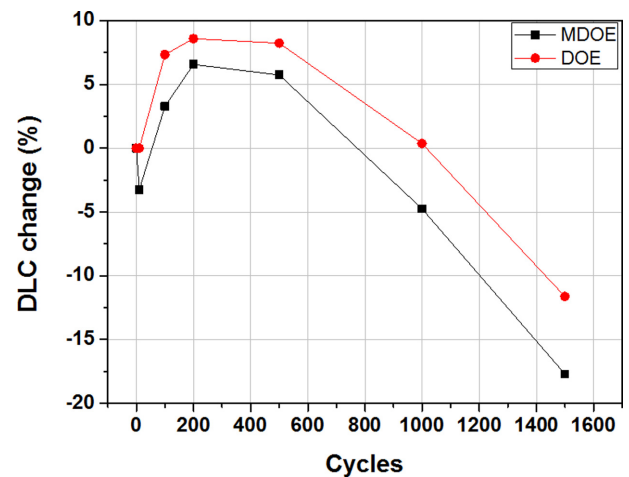


Fig. 5. Comparison of double layer capacity by MDOE method and DOE method during AST of catalyst support.

의해 주로 발생한다[20]. Agglomeration은 탄소 지지체 열화가 동반되어야 가능한 메커니즘인데, 탄소 지지체 열화가 더 된 MDOE 방법에 의해서 촉매 cluster들이 더 모여져 있는 것을 TEM 분석으로 확인할 수 있다.

3-4. 이오노머 바인더 열화 비교

ECSA 변화는 촉매뿐만 아니라 탄소 지지체, 이오노머 바인더의

영향을 받기 때문에 이들의 영향을 정량적으로 구분하면 각 요소의 내구성 향상을 통한 전체 촉매층의 내구성 향상에 기여할 수 있다. 전극의 ECSA 손실 원인을 1) 촉매 입자 성장, 2) 촉매 용해, 3) 탄소 부식 4) 바인더 부식이라고 분류할 수 있고, 이들의 관계식은 (1) 식과 같다[20].

$$\left(1 - \frac{ECSA_f}{ECSA_i}\right) \times 100 = \left\{1 - [1 - (I_d + I_e + I_{Hf})] \frac{R_f}{R_i}\right\} \times 100 \quad (1)$$

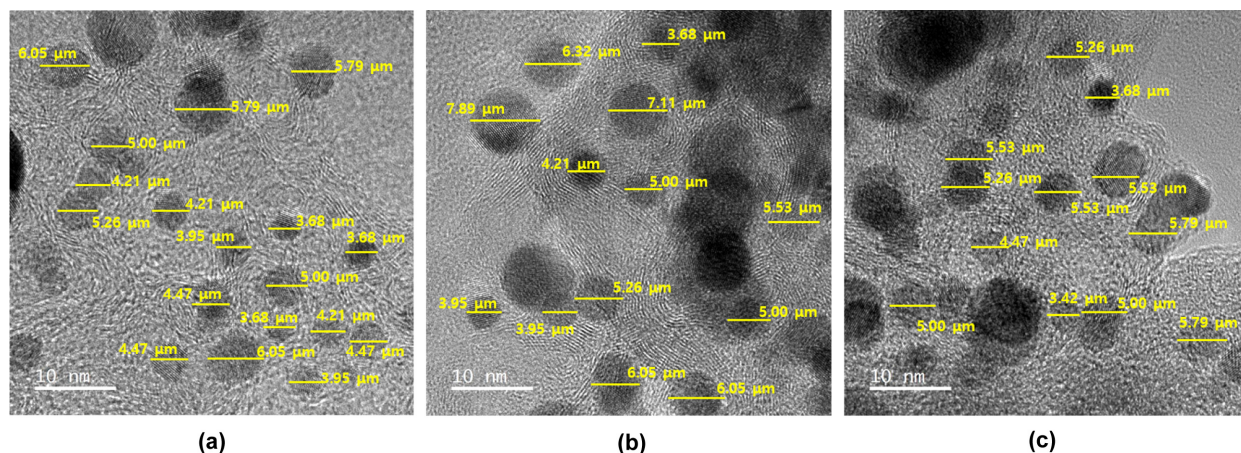


Fig. 6. Change of TEM image of PtCo/C before and after AST of catalyst support a) Initial PtCo/C b) After MDOE AST c) After DOE AST.

$$I_{H^+} = 1 - \left(\frac{ECSA_f}{ECSA_i} \right) \left(\frac{R_i}{R_f} \right) - (I_d + I_{e^-}) \quad (2)$$

$ECSA_i$: Initial electrochemical surface area

$ECSA_f$: After AST electrochemical surface area

I_d : Fractional losses due to dissolution

I_{e^-} : Fractional losses due to e^- connectivity loss

I_{H^+} : Fractional losses due to H^+ connectivity loss

R_i : Initial particle (averaged)

R_f : After AST particle (averaged)

XRF, CV, TEM 분석을 통해 구한 물성 값과 (2) 식으로부터 구한 이오노머 부식을 정리해 Fig. 7에 비교하였다. MDOE 방법에 의한 촉매층의 전체 ECSA 감소는 33.1% 감소했는데 이 중에 17.4%가

탄소 지지체 부식에 의한 것으로 분석되었다. DOE 방법에 의해 전체 ECSA 감소는 21.2% 감소했는데 이중에 11.6%가 탄소 지지체 부식에 의한 것으로 분석되었다. 두 방법 모두 촉매층의 전체 ECSA 감소에 지지체 카본 부식이 제일 많은 역할을 했는데, MDOE 방법이 DOE 방법보다 더 많이 카본 지지체를 열화시켰다. 전극층 모두 촉매 용해와 이오노머 부식은 입자 성장과 카본 부식에 비해 그 영향이 작았다. MDOE 방법이 DOE 방법에 비해 이오노머 부식 비율이 작는데 촉매 층에서 라디칼 발생 속도 차이에 의한 결과라고 판단된다[17,19,20].

4. 결 론

PEMFC 촉매 지지체 AST 프로토콜의 조건을 변경하여 촉매 지지체의 열화가 크게 일어나는 조건을 찾아 지지체 가속 내구성 평가 방법을 개선하고자 하였다.

촉매 열화 속도를 감소시키기 위해 DOE 프로토콜에 비해 상대적으로는 35% 감소시키고 전압변화 횟수보다 전압유지시간을 증가시킨 프로토콜(MDOE) 적용시켰다. MDOE 방법에 의한 DLC 감소 속도가 DOE 방법보다 증가해 지지체 열화 속도를 증가시킬 것을 보였다. 1,500 사이클 후에 DOE 기준 열화 목표 ECSA 감소는 발생하지 않았지만 MDOE 방법에 의해 MA는 58% 감소해 DOE 기준 열화 목표를 초과했다. ECSA 감소는 촉매뿐만 아니라 촉매 지지체와 이오노머 바인더의 영향을 받기 때문에 각 요소의 열화를 분리해 분석하였다. 촉매의 열화는 XRF와 TEM 분석으로 촉매 지지체 열화는 CV를 통한 DLC 분석으로 그리고 이오노머 바인더 열화는 촉매와 지지체 열화 측정값과 식에 의해 산출하였다. PtCo/C 촉매층에서 지지체 열화가 50% 이상 많은 부분을 차지하였지만 촉매와 바인더 열화도 같이 발생하였다. MDOE 방법에 의해 촉매 지지체 열화를 DOE 방법보다 50% 증가시켰다.

감 사

본 연구는 2021년도 산업통상자원부 및 산업기술평가관리원(KEIT) 연구비 지원에 의한 연구입니다(20015756).

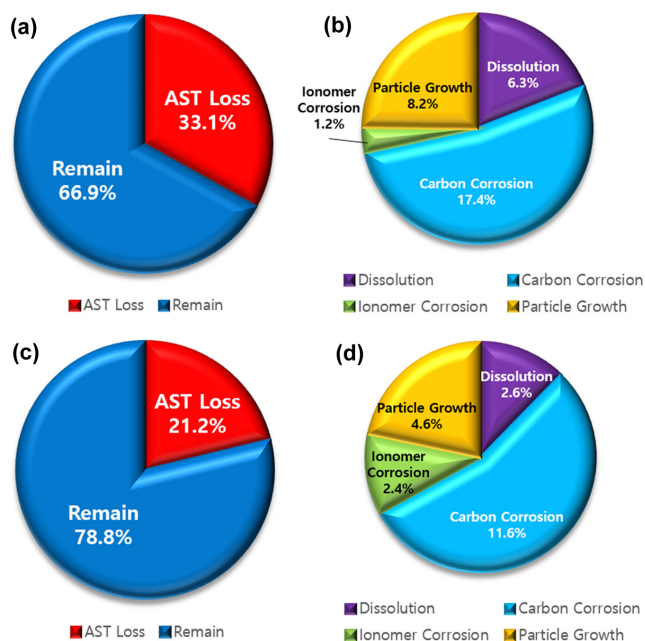


Fig. 7. Comparison of catalyst layer degradation by MDOE method and DOE method during AST of catalyst support a) Total ECSA loss of MDOE b) Quantification analysis of degradation by MDOE c) Total ECSA loss of DOE d) Quantification analysis of degradation by DOE.

Reference

- Gittleman, C. S., Kongkanand, A., Masten, D. and Gu, W., "Materials Research and Development Focus Areas for Low Cost Automotive Proton-exchange Membrane Fuel Cells," *Curr. Opin. Electrochem.*, **18**, 81(2019).
- Borup, R. L., Kusoglu, A., Neyerlin, K. C., Mukundan, R., Ahluwalia, R. K., Cullen, D. A., More, K. L., Weber, A. Z. and Myers, D. J., "Recent Developments in Catalyst-related PEM Fuel Cell Durability," *Curr. Opin. Electrochem.*, **21**, 192 (2020).
- Marcinkoski, J., Vijayagopal, R., Adams, J., James, B., Kopasz, J. and Ahluwalia, R., "Hydrogen Class 8 Long Haul Truck Targets. Subsection of the Electrified Powertrain Roadmap. Technical Targets for Hydrogen-Fueled Long-Haul Tractor-Trailer Trucks. https://hydrogen.energy.gov/pdfs/19006_hydrogen_class8_long_haul_truck_targets.pdf.
- Borup, R. et al., "Scientific Aspects of Polymer Electrolyte Fuel Cell Durability and Degradation," *Chem. Rev.*, **107**, 3904(2007).
- Watanabe, M., Tsurumi, K., Mizukami, T., Nakamura, T. and Stonehart, P., "Activity and Stability of Ordered and Disordered Co-Pt Alloys for Phosphoric Acid Fuel Cells," *J. Electrochem. Soc.*, **141**(10), 2659-2668(1994).
- Akita, T., Taniguchi, A., Maekawa, J., Siroma, Z., Tanaka, K., Kohyama, M. and Yasuda, K., "Analytical TEM Study of Pt Particle Deposition in the Proton-exchange Membrane of a Membrane electrode-Assembly," *J. Power Sources*, **159**(1), 461-467(2006).
- Zhai, Y., Zhang, H., Xing, D. and Shao, Z., "The Stability of Pt/C Catalyst in H₃PO₄/PBI PEMFC During High Temperature Life Test," *J. Power Sources*, **164**(1), 126-133(2006).
- Sharma, R. and Andersen, S. M., "An Opinion on Catalyst Degradation Mechanisms During Catalyst Support Focused Accelerated Stress Test (AST) for Proton Exchange Membrane Fuel Cells (PEMFCs)," *Applied Catalysis B: Environmental*, **239**, 636-643(2018).
- Kaddouri, A. E., Flandin, L. and Bas, C., "Chemical Degradation of PFSA Ionomer Binder in PEMFC's Catalyst Layer," *Int. J. Hydrogen Energy*, **43**, 15386-15397(2018).
- Morawietz, T., Handl, M., Oldani, C., Gazdzicki, P., Hunger, J., Wilhelm, F., Blake, J., Friedrich, K. A. and Hiesgen, R., "High-Resolution Analysis of Ionomer Loss in Catalytic Layers after Operation," *J. of Electrochem. Soc.*, **165**(6), F3139-F3147(2018).
- https://www1.eere.energy.gov/hydrogenandfuelcells/fuelcells/pdfs/component_durability_profile.pdf, "Doe Cell Component Accelerated Stress Test Protocols for Pem Fuel Cells."
- Daido University, Ritsumeikan Univ., Tokyo Institute of Technology, Japan Automobile Research Ins., "Cell Evaluation and Analysis Protocol Guideline," NEDO, Development of PEFC Technologies for Commercial Promotion-PEFC Evaluation Project, January 30(2014).
- Kim, M., Jung, N., Eom, K. S., Yoo, S. J., Kim, J. Y., Jang, J. H., Kim, H. J., Hong, B. K. and Cho, E. A., "Effects of Anode Flooding on the Performance Degradation of Polymer Electrolyte Membrane Fuel Cells," *J. of Power Sources*, **266**, 332-340(2014).
- Yoo, D. G., Kim, H. S., Oh, S. H. and Park, K. P., "Durability Evaluation of Cathode Open-type Proton Exchange Membrane Fuel Cells Stacks," *Korean Chem. Eng. Res.*, **61**(1), in print(2023).
- Yumiya, H., Kizaki, M. and Asai, H., "Toyota Fuel Cell System (TFCS)," *World Electric Vehicle Journal*, **7**, 85(2015).
- Banham, D. and Ye, S., "Current Status and Future Development of Catalyst Materials and Catalyst Layers for Proton Exchange Membrane Fuel Cells: An Industrial Perspective," *ACS Energy Lett.*, **2**, 629(2017).
- Oh, S. H., Yoo, D. G., Kim, M. H., Park, J. Y. and Park, K. P., "Effect of Pt-Co/C Cathode Catalyst on Electrochemical Durability of Membrane in PEMFC," *Korean Chem. Eng. Res.*, **61**(1), in print(2023).
- Kim, T., Lee, H., Sim, W., Lee, J., Kim, S., Lim, T. and Park, K., "Degradation of Proton Exchange Membrane by Pt Dissolved/deposited in Fuel Cells," *Korean J. Chem. Eng.*, **26**(5), 1265-1271 (2009).
- Ahluwalia, R. K., Papadias, D. D., Kariuki, N. N., Peng, J.-K., Wang, X., Tsai, Y., Graczyk, D. G. and Myers, D. J., "Potential Dependence of Pt and Co Dissolution from Platinum-cobalt Alloy PEFC Catalysts Using Time-resolved Measurements," *J. Electrochem. Soc.*, **165**, F3024(2018).
- Sharma, R. and Andersen, S. M., "Membrane Fuel Cell Catalyst Layers during an Accelerated Stress," *ACS Catal*, **8**, 3424-3434 (2018).

Authors

Sohyeong Oh: Researcher, Fuel Cell Test and Evaluation Center, Suncheon National University, Suncheon 57922, Korea; ohso45@naver.com

Yoochan Han: Bachelor's, Department of Chemical Engineering, Suncheon National University, Suncheon 57922, Korea; dbgks9574@naver.com

Donggeun Yoo: Doctor's course, Department of Chemical Engineering, Suncheon National University, Suncheon 57922, Korea; ehdrms6832@gmail.com

Myounghwan Kim: Vice President, KATECH, 303, Pungse-ro, Pungse-myeon, Dongnam-gu, Cheonan-si, Chungcheongnam-do, 31214, Korea; kimmh@katech.re.kr

Jiyoung Park: Lab Leader, KATECH, 303, Pungse-ro, Pungse-myeon, Dongnam-gu, Cheonan-si, Chungcheongnam-do, 31214, Korea; jypark1@katech.re.kr

Choi Yeongjin: Senior Researcher, KATECH, 303, Pungse-ro, Pungse-myeon, Dongnam-gu, Cheonan-si, Chungcheongnam-do, 31214, Korea; yjchoi@katech.re.kr

Kwonpil Park: Professor, Department of Chemical Engineering, Suncheon National University, Suncheon 57922, Korea; parkkp@scnu.ac.kr