

저기습 조건에서 냉각 유체의 고분자 전해질 연료전지에 대한 영향

이흥주 · 송현도 · 권준택 · 김준범*

울산대학교 화학공학부 연료전지연구실

(2007년 1월 15일 접수 : 2007년 1월 24일 채택)

Effect of Coolant on PEMFC Performance in Low Humidification Condition

Hungjoo Lee, Hyundo Song, Juntaek Kwon, and Junbom Kim*

Department of Chemical Engineering, University of Ulsan, San 29, Mugeodong, Ulsan 680-749, Korea

(Received January 15, 2007 : Accepted January 24, 2007)

초 록

고분자 전해질 연료전지의 성능은 cell 온도, 전체 압력, 반응 기체의 부분 압력, 상대습도와 같은 다양한 요인들에 의해 영향을 받는다. 이온화된 수소 이온은 H_3O^+ 의 형태로 membrane을 통과하여 물을 생성하는 반응으로 전기를 발생시킨다. 대용량 연료전지에서는 부수적으로 생성되는 열을 제거하거나 다른 용도로 사용할 목적으로 냉각시스템이 필요하다. 냉각수의 전도도가 상승할 경우에 연료전지에서 발생된 전류의 일부가 냉각수를 통하여 누설되어 연료전지의 성능을 감소시킬 수 있다. 본 연구에서는 3차 증류수와 ethylene glycol이 함유되어 있는 부동액을 사용하여 저항 수치 변화를 관찰하는 실험을 수행하였다. 3차 증류수의 경우 저항값이 설정치 이하로 내려가는데 약 28일이 소요되었고, 연료전지의 운전에 의한 영향은 관찰되지 않았다. 부동액을 냉각수로 사용한 경우는 43일이 지나도 저항값이 설정치 이하로 내려가지는 않았지만, stack 분리판의 집착부에 이상이 생긴 것으로 추정되는 연료전지의 성능 저하가 발생하여 전도도 실험을 중단하였다. 고분자 전해질 연료전지에서는 수소이온의 이온전도성 저하를 방지하기 위하여 외부에서 기습하여 주는 방식이 일반적이지만, 소용량 연료전지에서는 무기습 조건을 적용하여 연료전지의 효율을 높이고 제작단가도 경감할 수 있다. 이를 위하여 저기습 및 무기습 실험을 수행하였으나 대용량 연료전지에서는 양측 무기습인 경우에 50~60°C 이상의 고온에서 성능이 발현되기 어려운 것으로 관찰되었다. 냉각수의 유량을 다르게 하여 실험을 수행한 경우에는 0.78 L/min과 같은 낮은 유량에서 출구온도와 입구온도를 측정하여 본 결과 두 온도 사이에 ΔT 가 다른 유량에서보다 크게 발생하여 성능이 감소된 것으로 사료된다. 이와 같이 냉각수의 온도와 유량을 다르게 하여 양측 무기습 실험을 수행한 결과, 연료전지의 성능이 cell 온도에 직접적인 연관이 있는 것으로 관찰되었다.

Abstract : Proton exchange membrane fuel cell (PEMFC) performance could be affected by various factors such as cell temperature, total pressure, partial pressure of reactants and relative humidity. Hydrogen ion is combined with water to form hydronium ion [H_3O^+] and pass through membrane resulting electricity generation. Cooling system is needed to remove heat and other uses on large scale fuel cell. In case that coolant conductivity is increased, fuel cell performance could be decreased because produced electricity could be leaked through coolant. In this study, triple distilled water (TDW) and antifreeze solution containing ethylene glycol was used to observe resistance change. Resistance of TDW was taken 28 days to reach preset value, and effect on fuel cell operation was not observed. Resistance of antifreeze solution was not reached to preset value up to 48 days, but performance failure occurred presumably caused by bipolar plate junction resulting stoppage resistance experiment. Generally PEMFC humidification is performed near-saturated operating conditions at various temperatures and pressures, but non-humidifying condition could be applied in small scale fuel cell to improve efficiency and reduce system cost. However, it was difficult to operate large scale fuel cell without humidifying, especially higher than 50~60°C. In case of small flux such as 0.78 L/min, temperature difference between inlet and outlet was occurred larger than other cases resulting performance decrease. Non-humidifying performance experiments were done at various cell temperature. When both of anode and cathode humidification were removed, cell performance was strongly depended on cell operating temperature.

Keywords : Proton exchange membrane fuel cell, Non-humidification, Coolant, Antifreeze.

*E-mail: jbkim@mail.ulsan.ac.kr

1. 서 론

연료전지는 전기화학반응에 의한 생성물이 환경친화적인 물이라는 이점으로 인하여 유망한 대체에너지로 연구되고 있고, 산업 판도를 바꿀 미래의 10대 기술 중 가장 희망적인 분야이다. 특히 고분자전해질 연료전지(PEMFC)는 자동차 엔진으로서의 본격적인 생산이 2010년 정도로 예정되어 있고 실용화를 위한 각종 개발이 이루어지고 있으나 촉매량 저감, 저가습 상태에서의 고성능 이온전도체 개발, 효율적인 유로 설계 등 해결해야 할 기술적인 과제가 있는 상황이다.

연료전지는 수소와 산소의 전기화학반응을 이용하여 전기를 생성하며 열이 부수적으로 발생하는 기관이다. 연료전지를 전기 자동차에 적용하기 위해서 수십 KW급 stack이 개발되고 있으며, 연료전지의 대용량화에 따라 단위부피당 열 생성량이 많아져 냉각의 중요성이 증대되고 있다.¹⁾ 발생열로 인한 stack의 온도 상승이 적정 범위에 있을 경우에는 성능을 높이는 요인이 될 수도 있지만 국부적으로라도 물의 비점 근처에 도달할 경우 고분자전해질의 전도도가 낮아지고 성능이 급격히 감소하기 때문에 적절한 온도를 유지할 수 있는 냉각시스템이 필요하다. 일반적으로 냉각수는 온도가 올라가면 저항이 낮아지고 전도도가 상승하게 되므로 실제 상용화를 위해서는 냉각수의 전도도 상승에 따른 연료전지의 효율저하를 미연에 방지할 필요가 있다.

Stack 운전에 필요한 부수장비 중에 고분자전해질의 이온전도도를 유지하기 위한 가습부가 있으며 과량으로 공급되는 공기의 습도를 높이기 위하여 다량의 에너지를 소모하고 있다. 이와 같이 고분자전해질 연료전지에 대한 연구는 높은 상대습도 조건에서 수행된 것이 많았지만 일부에서는 외부 가습이 없는 운전에 대한 모델링,²⁻⁶⁾ 건조한 반응 기체의 양론비 영향,^{3-5,7)} 온도의 영향,^{3,8-11)} self-humidifying polymer electrolyte membrane^{10,11)} 등의 연구가 수행되었다. 본 연구에서는 효율적인 연료전지 운전을 목적으로 외부 가습이 없는 경우에 3차 증류수와 ethylene glycol이 함유되어 있는 부동액을 사용하여 저항 수치 변화, 온

도에 따른 성능 변화, 냉각수 유량에 따른 성능 변화 실험을 수행하였고 이와 같은 실험을 통하여 새로운 냉각수가 연료전지에 미치는 영향을 관찰하였다.

2. 실험

2.1 시스템 구성

본 연구실에서는 대용량 electronic load 장비로 480 A까지 연료전지의 운전이 가능하고, 30 L급 수조를 이용한 냉각수로 cell의 온도를 제어하며, cFP를 이용한 연료전지 자동제어 시스템을 Fig. 1과 같이 구성하였다.

운전압력은 상압이고, 수소측은 일반 공업용 수소를 사용하여 양론비 1.5로 공급하였고, 공기측은 compressor를 사용하여 양론비 2로 공급하였으며, 생성 전력량에 따라 공급유체의 양을 변화시키는 flow tracking logic을 자체 제작하여 사용하였다. 본 연구에서는 면적이 250 cm²이고 상용화된 전극-전해질 집합체를 사용하였으며, 2개의 cell로 구성된 stack으로 실험을 수행하였다. Stack의 냉각수 입구와 출구 부분에 온도, 압력, 전도도를 측정하는 센서를 부착하였으며 LabVIEW 언어를 사용한 제어 logic을 제작하여 1초당 혹은 0.5초당 측정된 data가 Excel 파일에 자동적으로 저장되도록 구성하였다. 외부가습 장비인 가습기와 heater에는 RTD 온도 센서를 부착하였으며 시험장비와 연결하여 PID 방식으로 제어하였다.

2.2 냉각수의 전도도 실험

유량을 조절할 수 있는 slidacs가 장착된 30 L 급 수조로 stack의 온도를 일정하게 조절하였다. 수조에서 stack으로 들어가는 입구 부분에 전도도 센서 A를 장착하였고, 출구 부분에 센서 B를 장착하여 연료전지 실험과 휴지기에든 계속적으로 전도도의 변화를 관찰할 수 있도록 구성하였다. 전도도, 저항, 온도의 3가지 조건을 측정할 수 있는 전도도 센서를 사용하였고 3차 증류수를 사용한 경우에는 25°C로 보정된 저항 수치를 측

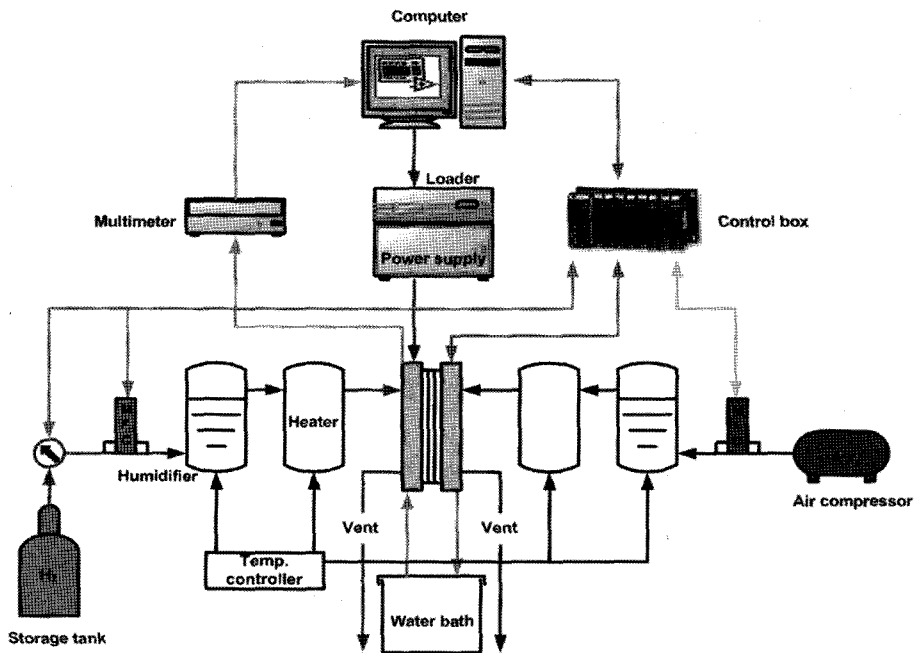


Fig. 1. Schematic of experimental system.

정하였고, 부동액을 사용한 경우에는 실제 온도에 대한 저항 수치를 측정하였다. 저항값은 온도와 공기 중에 노출되는 시간에 따라 변하게 되므로 공기와의 접촉을 최대한 방지하고 온도를 일정하게 유지한 후 저항값의 변화를 관찰하는 실험을 수행하였다. 두 종류의 냉각수에 대하여 30~45일간 실험을 수행하기 때문에 4분당 1개의 data를 추출하였으며 저항값이 설정치 이하로 내려가는데 소요되는 시간과 연료전지 가동시 stack에 미치는 영향을 관찰하였다. 연료전지를 가동하지 않는 경우에 3차 증류수는 25°C, 부동액은 30°C로 일정하게 유지하여 전류를 생성할 때와의 저항값을 비교하였다.

2.3 무가습 실험

연료전지의 운전 중에 가습에 소요되는 비용을 최소화하기 위하여 양측 무가습 실험을 수행하였고, 공급 기체의 유량은 최소 유량을 150 mA/cm²로 하여 저유량, 저전류에서 반응이 원활하게 이루어질 수 있도록 하였다. 전류 증가는 25 mA/cm², delay time은 120초로 설정하였고 마지막 50초 동안 100개 data의 평균값을 기록함으로써 정밀도가 높은 그래프를 얻을 수 있는 시스템을 구성하였다. Cell의 온도는 상온에서부터 증가시키면서 연료전지의 성능이 유지되는 온도까지 실시간으로 온도와 전압을 동시에 측정함으로써 anode와 cathode 양측 무가습 경우에 대한 cell 온도별 성능 변화를 관찰하였다. 이와 함께 냉각수의 유량을 1.65, 1.50, 1.29, 0.78 L/min으로 감소시키면서 냉각수 유량에 대한 성능변화를 관찰하는 실험도 수행하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1 냉각수의 전도도 실험

저온에서의 연료전지 운전은 많은 연구가 진행 중이지만 동결 문제에 관한 명확한 해결 방안이 제시되지는 않았다. 자동차에 연료전지가 이용될 경우에 연료전지의 성능 감소에 영향을 주지 않고 저온에서도 동결이 되지 않는 냉각수의 개발이 필요하다.

본 연구실에서 냉각수로 사용한 3차 증류수와 ethylene glycol이 함유되어 있는 부동액은 온도가 상승하게 되면 저항이 낮아지고 전도도가 상승하게 된다. 냉각수의 전도도가 상승할 경우에 연료전지에서 발생된 전류의 일부가 냉각수를 통하여 누설되어 연료전지의 효율을 감소시킬 수 있다. 이와 같은 실험 조건을 선정하기 위하여 membrane에 영향을 주지 않으면서 냉각수의 전도도를 낮출 수 있는 방법을 구상 중에 있다. 온도가 변할 경우에 냉각수 저항의 크기 변화를 산출하기 위한 실험을 수행하였으나 초기 저항 수치가 매번 다르게 관찰되었다. 이와 같은 현상은 증류수를 수조에 넣을 경우 공기 중에 노출되는 시간과 증류수의 초기 전도도 값에 영향을 받아 나타나는 것으로 사료된다.

전도도 센서의 정확도를 측정할 목적으로 수조에 1차 증류수를 사용하여 두 센서의 저항을 비교하여 본 결과 A센서(냉각수 입구)와 B센서(냉각수 출구)는 각각 0.775 MOhm-cm, 0.671 MOhm-cm로 0.104 MOhm-cm의 차이가 발생하였다. 두 센서의 저항 수치를 보정하여 3차 증류수와 부동액을 냉각수로 사용한 경우의 시간에 대한 저항값의 변화를 Fig. 2와 3에 각각 나타내었다. 저항값이 18.2 MOhm인 3차 증류수는 공기에 노출되는 순간 저항이 급격히 감소하게 된다. 실험에 사용된 3차 증류수와 부동액의 초기 저항값은 A센서에서 각각 1.35 MOhm과

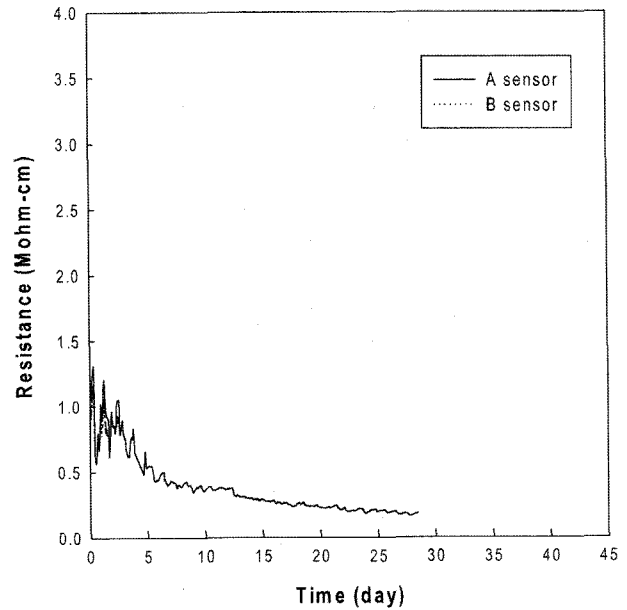


Fig. 2. Long run conductivity (TDW); A sensor=stack inlet and B sensor=stack outlet.

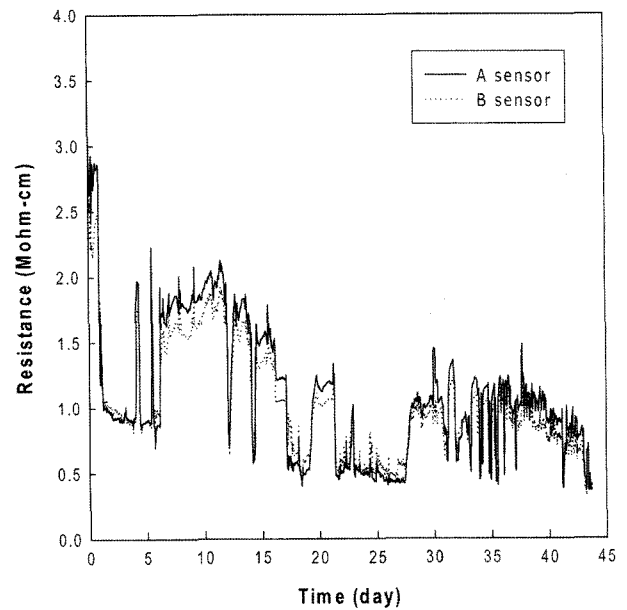


Fig. 3. Long run conductivity (antifreeze solution); A sensor=stack inlet and B sensor=stack outlet.

3.47 MOhm이었고, B센서에서 각각 1.15 MOhm과 3.12 MOhm으로 부동액이 약 2.6배 정도 높은 초기 저항값을 보임으로서 냉각수로 쓰인 부동액이 3차 증류수보다 공기 노출에 대한 영향이 작은 것으로 관찰되었다.

두 종류의 냉각수는 온도를 상승시킨 상태에서 연료전지 실험을 수행할 경우에 저항값이 급격히 낮아졌으며, 다시 온도를 하강시킬 경우 저항값이 상승하므로 온도에 대한 영향이 큰 것으로 관찰되었다. 3차 증류수의 경우 저항값이 설정치 이하로 내려가는데 약 28일이 소요되었고, 연료전지의 운전에 의한 영

항은 관찰되지 않았다. 부동액을 냉각수로 사용한 경우는 43일이 지나도 저항값이 설정치 이하로 내려가지는 않았지만, stack 분리판의 접착부에 이상이 생긴 것으로 추정되는 연료전지의 성능 저하가 발생하여 전도도 실험을 중단하였다. 부동액을 이용한 실험인 Fig. 3에서 볼 수 있는 바와 같이 2일~6일, 17일~20일, 22일~27일의 기간 동안 연료전지가 운전될 경우에 stack의 출구 부분에 위치한 B센서가 입구 부분에 위치한 A 센서보다 저항값이 높아지는 특이한 현상을 관찰할 수 있었다. 연료전지 작동시의 전기적 성질에 의하여 냉각수의 저항값을 떨어뜨리는 이온이 stack 내부에 일시적으로 갇혀 나타나는 현상일 수도 있고, 또는 센서의 오차에 의한 현상일 수도 있어서 이의 해석을 위한 보충실험을 수행 중에 있다.

3.2 무기습 성능 실험

Cell 온도 30, 40, 50, 60°C인 조건에서 2 cell stack을 이용하여 anode와 cathode 양측 무기습 실험을 수행하였다. Fig. 4에서 볼 수 있는 바와 같이 40/40/40인 경우에는 anode측 온도/cell 온도/cathode측 온도를 나타낸 것이고, --/40/--인 경우에는 양측 무기습인 조건에서 cell의 온도를 40°C로 일정하게 유지한 것이다. 양측 무기습인 경우에 cell의 온도가 40°C인 조건에서 가장 좋은 성능이 나타났다. Cell 온도가 50°C 이상에서는 저전류에서도 성능이 저하된 것이 관찰되었으며 70°C의 경우에는 전기를 거의 생성하지 못하였다. Fig. 4의 각 점은 100개 data의 평균값을 나타낸 것이고 이에 대한 표준 편차를 Fig. 5에 나타내었다. Cell의 온도가 60°C인 경우를 제외하고는 저전류에서 비교적 안정한 값을 나타내었고, 양측 무기습인 경우에는 고전류로 갈수록 전압의 편차가 크게 관찰되었다. Cell의 온도가 60°C이고 양측 무기습인 경우에는 다른 경우에 비하여 저전류에서부터 전압의 저하가 뚜렷이 나타나고 100 A에서 최소 전압인 1.0 V에 도달하였다. 동일한 stack을 사용하여 일정한 전류 조건하에서 cell 온도가 성능에 미치는 영향을 알아보는 실험을 수행하였고 그 결과를 Fig. 6에 나타내었다. 꺾은선 그래프는 각 점들의 온도를 수조로 일정하게 유지시킨 후 2시간동안 전압을

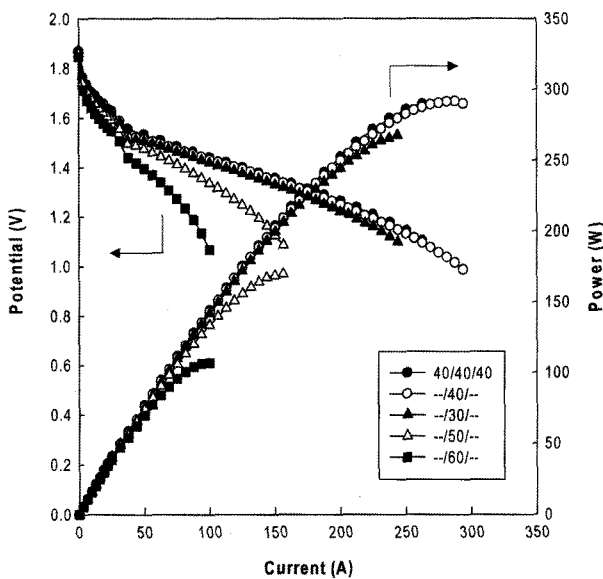


Fig. 4. Cell performance at non-humidification (antifreeze solution); 2 cell stack, MEA=250 cm², P=1atm, H₂/air stoichiometry=1.5/2.

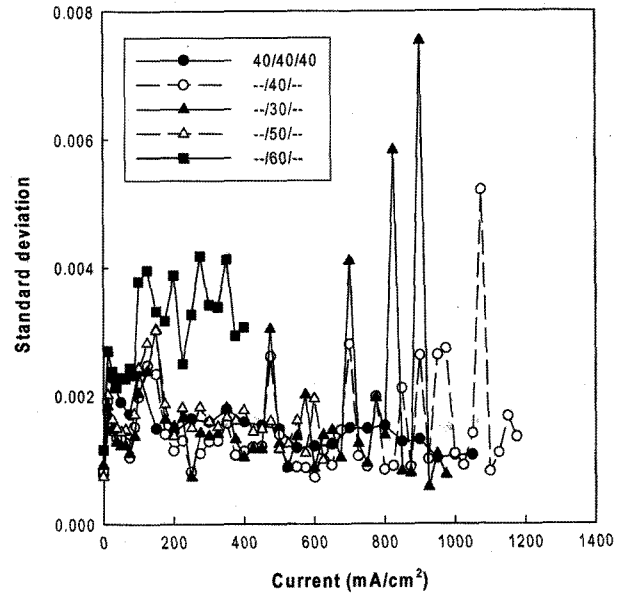


Fig. 5. Standard deviation at non-humidification (antifreeze solution).

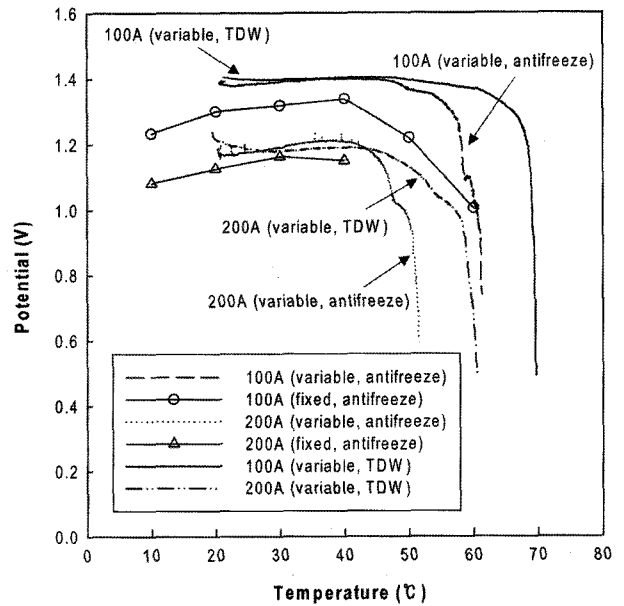


Fig. 6. Cell performance at non-humidification on various cell temperature (antifreeze solution, TDW).

측정하고 마지막 1분 동안의 data를 평균하여 기록한 것이고, 꺾은선 이외의 그래프는 stack 입구 냉각수 부분에 RTD 온도 센서를 부착하여 수조의 온도를 실시간으로 변화시키면서 온도 변화와 전압을 측정하는 것이다. Antifreeze는 냉각수로 부동액을 이용한 경우이고, TDW(triple distilled water)는 3차 증류수를 이용한 경우이다. 부동액을 냉각수로 쓴 경우에는 100 A에서는 55°C 부근에서 성능이 급격히 저하되고, 200 A에서는 40°C 부근에서부터 성능이 저하되는 것이 관찰되었다. 이와는 달리 3차 증류수를 냉각수로 이용한 경우에는 100 A에서는 60°C 부근, 200A에서는 50°C 부근에서 성능이 저하됨으로서 부동액을 이

용한 경우보다 약 10°C 높은 온도까지 성능이 유지되는 것이 관찰되었다. 실온(15°C)에서 상대습도가 38%인 공기가 cell을 통과할 때 cell의 온도가 50°C, 60°C, 70°C일 경우 상대습도는 5.3%, 3.3%, 2.1%로 낮아지게 된다. 양측 무가습 조건에서 cell의 온도가 높아질수록 cell 내부에서 반응기체들의 상대습도는 낮아지게 되고 이온전도도 또한 낮아지므로 50~60°C 이상고온의 경우에는 성능이 발휘되기 어려운 것으로 사료된다. Cell 온도가 30°C, 40°C인 경우에는 상대습도가 15.3%, 8.8%이고 이와 같은 상대습도 조건에서 장시간 운전에 관한 실험은 수행 중에 있다.

3.3 냉각수 유량에 대한 성능 실험

냉각수 유량과 cell 성능의 상관관계에 대한 실험을 수행하였다. 3차 증류수를 냉각수로 사용하고 constant current 100 A 조건하에서 냉각수의 유량을 변화시켰고 냉각수의 온도는 20~80°C까지 실시간으로 변화시킨 경우의 유량에 대한 성능 변화를 Fig. 7에 나타내었다. 수조의 온도를 80°C로 설정할 경우에 냉각수의 온도는 약 30분 후에 설정값에 도달하게 된다. 본 연구에서는 냉각수의 온도가 설정치에 도달하는 과정에서 0.5초당 온도를 측정하여 냉각수의 유량과 온도가 연료전지에 미치는 영향을 관찰하는 실험을 수행하였다.

냉각수의 유량이 1.65 L/min과 1.50 L/min일 경우에는 성능이 유사하게 나타났지만 유량이 1.29, 0.78 L/min인 경우에는 cell의 성능이 낮아진 것이 관찰되었다. 이와 동시에 stack의 배출 부분과 입구 부분의 냉각수 온도 차이를 관찰하여 본 결과 유량이 0.78 L/min일 경우에는 온도차이가 크게 나타난 것을 볼 수 있었다. 냉각수의 온도가 상승할수록 stack outlet과 inlet의 온도 차이는 감소하였으며 유량이 1.29, 1.50, 1.65 L/min인 경우에 냉각수의 온도가 52°C 이상인 경우에는 오히려 출구 온도가 입구 온도보다 더 낮아졌다. 냉각수의 온도가 낮은 경우에는 stack 외부로 방출되는 열보다 연료전지 반응에서 생성된 열이 냉각수로 흡수되는 양이 많아 냉각수 온도가 상승하지만, 냉각수의 온도가 높아질수록 stack 외부로 방출되는 열이 많아져

출구 부분의 온도가 입구 부분의 온도보다 낮아진 것으로 사료된다. 유량이 0.78 L/min인 경우에는 고온에서 stack 외부로 방출되는 열도 많지만 상대적으로 낮은 유속으로 인하여 생성된 열을 흡수할 수 있는 체류시간이 길어질 것이다. 이 유량에서는 다른 유량보다 약 11°C 높은 63°C까지 출구 온도가 입구 온도보다 높은 경향이 관찰되었다. 유량이 0.78 L/min에서는 63°C, 다른 유량에서는 약 68°C 이후에서 온도차이 곡선이 상승하는 부분이 관찰되었는데 이의 해석을 위한 실험을 수행 중에 있다. 이와 함께 상온에서 공급되는 기체의 열교환에 의한 영향도 생각해 볼 수 있을 것이다.

4. 결 론

- 1) 냉각수로 사용한 부동액의 경우 증류수보다 저항 감소에 더 오랜 시간이 소요되어 전도도 실험 면에서 좋은 성과를 나타내었다.
- 2) Anode와 cathode 양측 무가습인 경우에 고온, 고전류로 갈수록 성능의 저하가 심하게 나타났다. Cell의 온도가 높아질수록 상대습도는 낮아지게 되고 이온전도도 또한 낮아지므로 무가습 조건에서는 고온에서 성능이 발휘되기 어려운 것으로 사료된다.
- 3) 양측 무가습인 경우에 고전류로 갈수록 전압의 편차가 크게 관찰되었고, cell의 온도가 60°C인 경우를 제외하고는 저전류에서 비교적 안정한 값을 나타내었다.
- 4) 부동액과 3차 증류수의 양측 무가습 성능 실험에서 3차 증류수를 냉각수로 사용하였을 경우가 부동액을 냉각수로 사용하였을 경우보다 약 10°C 높은 온도까지 성능이 유지되었다.
- 5) 양측 무가습의 경우에 냉각수의 유량이 cell의 성능에 영향을 미치는 것이 관찰되었고, 본 시스템에서는 냉각수 유량이 1.29 L/min 이하일 경우에 성능이 저하되었다.

감사의 글

이 논문은 2006년 울산대학교 연구비의 지원을 받아 수행되었습니다.

참고문헌

1. G. Maggio, V. Recupero, and C. Mantegazza, "Modeling of Temperature distribution in a solid polymer electrolyte fuel cell stack", *J. Power Sources*, **62**, 167 (1996).
2. M. V. Williams, H. R. Kunz, and J. M. Fenton, "Operation of Nafion®-based PEM fuel cells with no external humidification: influence of operating conditions and gas diffusion layers", *J. Power Sources*, **135**, 122 (2004).
3. F. N. Buchi and S. Srinivasan, "Operating proton exchange membrane fuel cells without external humidification of the reactant gases", *J. Electrochem. Soc.*, **144**(8), 2767 (1997).
4. S. H. Chan, S. K. Goh, and S. P. Jiang, "A mathematical model of polymer electrolyte fuel cell with anode CO kinetics", *Electrochim. Acta*, **48**(13), 1905 (2003).
5. D. Picot, R. Metkmeijer, J. J. Beziau, and L. Rouveyre, "Impact of the water symmetry factor on humidification and cooling strategies for PEM fuel cell stacks", *J. Power Sources*, **75**, 251 (1998).
6. I. M. Hsing and P. Futerko, "Two-dimensional simulation of water transport in polymer electrolyte fuel cells", *Chem. Eng. Sci.*, **55**, 4209 (2000).

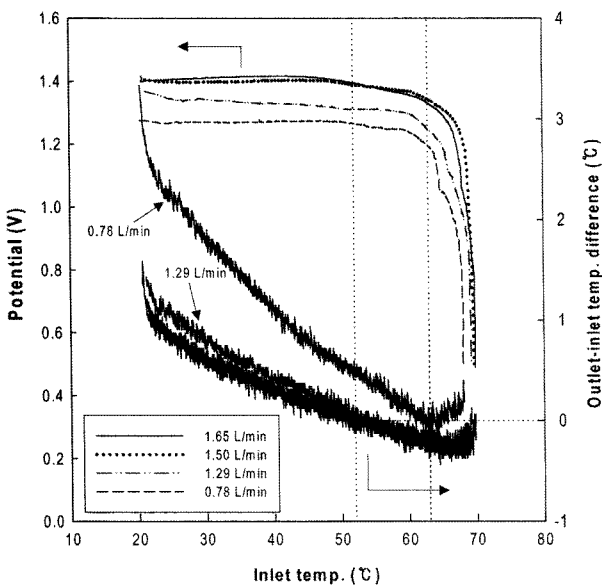


Fig. 7. Cell performance at non-humidification on various coolant flow (TDW).

7. M. Noponen, T. Mennola, M. Mikkola, T. Hottinen, and P. Lund, "Measurement of current distribution in a free-breathing PEMFC", *J. Power Sources*, **106**(1), 304 (2002).
8. Z. Qi, A. Kaufman, "PEM fuel cell stacks operated under dry-reactant conditions", *J. Power Sources*, **109**(2), 469 (2002).
9. D. R. Sena, E. A. Ticianelli, V. A. Pagain, and E. R. Gonzalez, "Effect of water transport in a PEFC at low temperatures operating with dry hydrogen", *J. Electroanal. Chem.*, **477**(2), 164 (1999).
10. S. H. Kwak, T. H. Yang, C. S. Kim, and K. H. Yoon, "The effect of Platinum loading in the self-humidifying polymer electrolyte membrane on water uptake", *J. Power Sources*, **118**, 200 (2003).
11. T. H. Yang, Y. G. Yoon, C. S. Kim, S. H. Kwak, and K. H. Yoon, "A novel preparation method for a self-humidifying polymer electrolyte membrane", *J. Power Sources*, **106**, 328 (2002).