

doi: 10.11835/j.issn.1000-582X.2023.06.010

质子交换膜燃料电池气体扩散层制备过程 材料表征和孔尺度模拟计算

杨王凡¹, 尹泽泉¹, 朱礼军¹, 邵勤思², 容忠言², 隋邦傑¹

(1. 武汉理工大学汽车工程学院, 武汉 430070; 2. 上海大学理学院, 上海 201900)

摘要:为研究质子交换膜燃料电池(PEMFC)气体扩散层的制备方法对其结构和性能的影响, 将聚丙烯腈基碳纤维原纸作为前驱体, 以酚醛树脂作为粘结剂, 采用热压、碳化、石墨化等工艺制成气体扩散层, 考察在原纸浸渍的过程中, 不同质量分数酚醛树脂乙醇溶液对气体扩散层结构和性能的影响。利用扫描电子显微镜、汞侵入法、四探针法等进行性能表征, 并利用 X 射线断层扫描技术获得气体扩散层的三维结构, 通过孔尺度模拟进行性能计算。结果表明, 采用实验表征方法和模拟计算方法可以更加准确和清楚地对气体扩散层性能进行表征, 在使用 15% 质量分数酚醛树脂乙醇溶液浸渍原纸时, 可以得到与商用气体扩散层相等的 78% 孔隙率, 同时将电阻率降低了 30% 左右。

关键词:质子交换膜燃料电池; 气体扩散层; 制备表征; 孔尺度模型

中图分类号: TK91

文献标志码: A

文章编号: 1000-582X(2023)06-112-10

Material characterization and pore-scale simulation of PEMFC gas diffusion layer during its fabrication process

YANG Wangfan¹, YIN Zequan¹, ZHU Lijun¹, SHAO Qinsi²,
JUNG Chungyen², SUI PangChieh¹

(1. School of Automotive Engineering, Wuhan University of Technology, Wuhan 430070, P. R. China;

2. College of Science, Shanghai University, Shanghai 201900, P. R. China)

Abstract: This paper reports the results of an investigation into the effects of fabrication techniques on the structure and performance of a gas diffusion layer (GDL) for proton exchange membrane fuel cells (PEMFC). In the experiment, GDLs were fabricated by hot-pressing, carbonization, and graphitization with polyacrylonitrile-based carbon fiber paper as the precursor and phenolic resin as the adhesive to bind the fibers. The effects of the mass fraction of phenolic resin solution on the structure and properties of GDL were investigated. The GDL microstructure was characterized by scanning electron microscopy, mercury intrusion porosimetry, and four-probe method. The structure of GDL was obtained by X-ray tomography, and pore-scale simulations were performed on the structure. The results show that GDL performance can be quantified accurately via experimental characterization and simulations. It is found that for a raw paper impregnated with 15% mass-fraction phenolic

收稿日期: 2021-10-27

基金项目: 国家自然科学基金资助项目(21776226); 国家自然科学基金青年基金资助项目(51803116)。

Supported by the National Natural Science Foundation of China (21776226), and the National Natural Science Foundation of China for Distinguished Young Scholars (51803116).

作者简介: 杨王凡(1998—), 男, 硕士研究生, 主要研究方向为燃料电池, (E-mail) wf_yang@whut.edu.cn。

通信作者: 隋邦傑, 男, 教授, 主要研究方向为燃料电池, (E-mail) pcsui@whut.edu.cn。

resin solution, a GDL with 78% porosity and 30% reduced resistivity can be obtained compared with commercial GDLs.

Keywords: proton exchange membrane fuel cell; gas diffusion layer; fabrication process; material characterization; pore-scale simulation

在“碳达峰, 碳中和”的背景下, 质子交换膜燃料电池 (proton exchange membrane fuel cell, PEMFC) 零部件亟需国产化以降低成本, 这需要深入研究零部件制备工艺、结构和性能以及其关联性。气体扩散层 (gas diffusion layer, GDL) 作为膜电极 (membrane electrode assembly, MEA) 中不可缺少的组件, 其制备工艺的研究十分重要^[1]。以阴极侧为例, GDL 位于双极板与微孔层之间, 厚度约为 100~300 μm , 是一个以碳纤维为骨架、酚醛树脂类材料为粘结剂制成的多孔介质层, 耦合了气、水、电、热、力等多个物理场, 是进行气体扩散、水渗透、电子传导、热量传递的场所, 同时需要具有一定的机械强度、耐腐蚀性和较长的使用寿命^[2]。

目前国内外对气体扩散层制备工艺、结构和性能的研究大多是单独实验制备和简单的性能表征, 或者将商用气体扩散层重构, 然后利用孔尺度模型 (pore scale model, PSM) 进行水气传输性能的模拟计算, 模拟计算采用的主要数值方法之一是格子玻尔兹曼方法 (lattice Boltzmann method, LBM)。德国 SGL 公司利用聚丙烯腈基碳纤维 (polyacrylonitrile based carbon fiber, PANCF) 为原材料, 加入粘结剂、疏水剂等添加剂, 利用固化、碳化等工艺制备了商业应用广泛的气体扩散层^[3]。Chevalier 等^[4]通过控制 PANCF 的直径和排列方式制成碳纤维原纸, 通过化学方法改进了制备工艺, 固化和碳化后得到了纳米纤维气体扩散层, 提高了在高增湿操作条件下燃料电池的功率密度。Zhu 等^[5]利用随机重构的方法进行了商业化 GDL 碳纤维骨架重构, 并利用孔尺度模拟方法研究了气体扩散率随碳纤维含量变化的规律。上述研究都只是单独采用实验表征或者模拟计算的方法来研究制备工艺、结构对性能的影响, 而对制备工艺、结构和性能之间的联系没有深入地探索, 没有明确建立起实验制备与模拟计算的联系。另外, 模拟计算的重构模型大多数是参考商业化 GDL 的结构参数, 导致对样品结构了解的局限性, 也无法将数值模拟与制备工艺结合起来提高研究效率和改进研究方法。

本研究中通过热压、碳化、石墨化等工艺, 使用不同质量分数酚醛树脂溶液浸渍原纸制备出了一批 GDL 样品, 采用扫描电子显微镜 (electron scanning microscope, SEM)、汞侵入法 (mercury intrusion porosimetry, MIP)、四探针法等方式对样品进行了表征, 并将实验结果与 PSM 仿真模拟相结合, 建立了制备工艺、结构和性能之间的联系, 更加深入地研究了性能变化规律。结果表明, 15% 酚醛树脂溶液浸渍时, 树脂碳在固相中占比为 25%, 可以达到东丽商业化 GDL 78% 的孔隙率以及更优的电阻率。

1 实验材料及方法

1.1 实验材料

工业上大量应用的碳纤维有 PANCF、沥青基碳纤维、纤维素基碳纤维等^[6], PANCF 由于碳收率高、化学性能和机械性能稳定等优点在燃料电池 GDL 领域应用广泛。基于 PANCF 制成的材料有碳布和碳纸 2 种: 碳布缺乏尺寸稳定性, 且织布工艺昂贵, 因而应用较少; 碳纸因其抄纸工艺成熟、性能稳定等优点而被广泛应用^[7]。本研究中采用 PANCF 为骨架, 利用阔叶木浆和粘性纤维经过抄纸工艺制成碳纸原纸, PANCF 直径为 8 μm , 长度由 3 mm 和 6 mm 短切碳纤维混合而成。粘结剂原料采用 60% 质量分数的酚醛树脂浓溶液, 用乙醇稀释成 5%、10%、15%、18% 和 20% 质量分数的酚醛树脂稀溶液。

1.2 实验仪器

本研究中使用的仪器见表 1。

表1 实验用仪器和设备

Table 1 Instruments and equipment used in this experiment

仪器名称	型号	生产厂商
鼓风烘箱	DHG-300	上海岛韩实业
平板热压机	HP-50T	合肥科晶
分析天平	AL204	梅特勒-托利多
加热辊压机	JK-GYJ-100C-250	深圳晶科诺尔
高温石墨炉	定制	株洲远航工业炉

1.3 实验流程

图1为实验步骤流程图。用配制好的5%、10%、15%、18%、20%不同质量分数的酚醛树脂溶液浸渍原纸后在较低温度下预固化，在溶剂挥发的同时预定型，然后热压固化，最后碳化石墨化来增加碳纸的导电性。

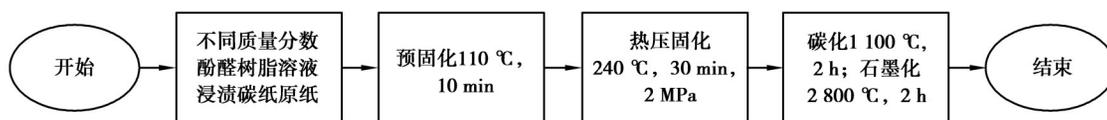


图1 实验流程图

Fig. 1 Experimental flow chart

2 重构原理与孔尺度模型

2.1 GDL模型重构

Shojaeefard等^[8]对GDL重构技术进行了分类，GDL适用的方式有两种：一种是随机重构，利用商业化GDL的一些结构信息进行纤维骨架建模，如纤维直径、长度、排布规律和孔径分布等，此重构方式经济性较好，但是由于随机重构技术受限以及粘结剂形状的不规则性，导致不能准确还原GDL的结构，造成一定误差^[9]；另外一种方法是X射线断层扫描技术(X-ray tomography, XCT)重构，利用X射线对GDL样品进行扫描得到三维结构，这种方法较为准确，且不受商业化GDL结构的影响，可以自制GDL进行重构^[10]。本研究中采用XCT技术对不同浓度酚醛树脂溶液浸渍所得的GDL样品进行重构，设备型号为Xradia Versa CT，分辨率为1 μm，视域宽度为1 mm，XCT的原始数据为160张左右的二维切片图，用AVIZO软件进行阈值分割处理，通过控制模型中纤维直径与SEM中纤维直径近似相等的方法，调整灰度阈值以区分固体和孔隙^[11]。

2.2 孔尺度模型

用PSM方法模拟计算GDL内的传输性能。PSM通过模拟GDL组分传输过程，计算气体扩散率和电导率^[12]。在PSM模型中，有以下几个假设：1)忽略GDL表面气体扩散和气体吸附；2)气体输运过程仅由扩散驱动，水在GDL中以蒸汽形式存在。在GDL中，传质过程发生在孔隙结构中，电子传导发生在石墨纤维以及酚醛树脂石墨化产物中。在气体扩散过程中，考虑了Fick扩散^[5]：

$$\nabla x_{O_2} = \frac{RT}{p} \left(\frac{x_{O_2} J_{H_2O} - x_{H_2O} J_{O_2}}{D_{O_2-H_2O}} + \frac{x_{O_2} J_{N_2} - x_{N_2} J_{O_2}}{D_{O_2-N_2}} \right), \quad (1)$$

$$\nabla x_{H_2O} = \frac{RT}{p} \left(\frac{x_{H_2O} J_{O_2} - x_{O_2} J_{H_2O}}{D_{O_2-H_2O}} + \frac{x_{H_2O} J_{N_2} - x_{N_2} J_{H_2O}}{D_{H_2O-N_2}} \right), \quad (2)$$

$$\nabla x_{N_2} = \frac{RT}{p} \left(\frac{x_{N_2} J_{O_2} - x_{O_2} J_{N_2}}{D_{O_2-N_2}} + \frac{x_{N_2} J_{H_2O} - x_{H_2O} J_{N_2}}{D_{H_2O-N_2}} \right). \quad (3)$$

式中： x_i 是物质*i*的摩尔分数； J_i 是所使用的气体*i*的通量，即流量； R 是气体常数； T 是温度； p 为压强； D_{i-j} 是气体*i*和*j*的二元扩散系数。

使用欧姆定律计算电子传输 (电流):

$$J_e = -\sigma_e \nabla \phi_e \quad (4)$$

式中: J_e 为电流密度; σ_e 为电子导电性; ϕ_e 为电势。

截取重构的三维模型中的一个六面体计算域, 在这个计算域中有3个传输方向和6个边界, 在需要计算的传输方向穿过的2个边界设置Dirichlet边界条件, 在剩余的4个边界设置周期性边界条件。在PSM模型中, 有效输运特性计算如下:

$$J = -\frac{M_{\text{eff}}(b_2 - b_1)}{l} \quad (5)$$

$$M_{\text{eff}} = -\frac{Jl}{(b_2 - b_1)} \quad (6)$$

式中: M_{eff} 是有效传输特性; J 是计算通量; l 是计算域的长度; b_1 和 b_2 是所设定的Dirichlet边界条件^[13]。

3 结果与讨论

原纸石墨化实验的对比实验, 即将未经树脂浸渍的原纸进行碳化与石墨化, 发现剩余的固相质量为初始原纸的65%左右, 表明存在于原纸中的阔叶木浆和粘性纤维发生反应生成气体, 导致损失质量35%左右。另外, 由于原纸存在不均匀性, 裁取的10 cm×10 cm的原纸存在微小的质量差别。

表2为石墨化后所得样品产品参数。随着浸渍原纸的酚醛树脂溶液浓度升高, 石墨化后得到的碳纸质量以及树脂碳百分比逐渐增大。

表2 所得不同质量分数酚醛树脂溶液处理的GDL相关物性参数

Table 2 Related physical property parameters of GDLs treated with phenolic resin solutions of different mass fraction

树脂溶液质量分数/%	原纸质量/g	石墨化质量/g	树脂碳百分比/%	厚度/mm	尺寸/cm ²
5	0.595 7	0.457 2	15.31	0.16	10×10
10	0.603 5	0.487 8	19.58	0.16	10×10
15	0.624 6	0.538 3	24.58	0.16	10×10
18	0.609 2	0.624 3	36.57	0.16	10×10
20	0.603 2	0.697 3	43.77	0.16	10×10

3.1 酚醛树脂热分析

本实验中采用的粘结剂是热固性酚醛树脂, 在加热时会发生固化反应, 并且随着温度升高, 其固化速率会加快^[14], 所以需要选择合适的固化条件。酚醛树脂(60%浓溶液)在空气气氛下不同升温速率的DSC (differential scanning calorimetry)曲线如图2(a)所示, 其在惰性气氛下的TG(thermal gravity)曲线如图2(b)所示。从图2(a)中可以看出, 酚醛树脂固化是一个复杂的过程, 在220~240 °C有一个剧烈的固化反应放热峰, 由于酚醛树脂在高温时流动性增大, 更易从原纸骨架中流出, 降低了树脂在碳纤维骨架中的含量。因此, 需要合适的固化温度来平衡固化速度与流动性, 进而维持碳纤维骨架中的树脂含量。在原纸浸渍后的预固化过程中, 大部分溶剂挥发, 树脂的粘度增大, 使树脂预定型; 在后续240 °C持续30 min的热压固化中采用2 MPa的压力来控制厚度和树脂在原纸中的含量。图2(b)为20~1 100 °C的热重分析, 从图中看出, 在400~800 °C时, 酚醛树脂的质量急剧下降, 这是因为酚醛树脂反应产生一氧化碳、二氧化碳、甲烷、酚、甲酚类和二甲酚类等物质^[15], 生成的气体物质挥发掉了。在1 000 °C以后, 酚醛树脂质量基本保持不变。因此, 本研究中选择碳化温度为1 100 °C, 保温时间为2 h; 最后在2 800 °C下进行2 h的石墨化处理。

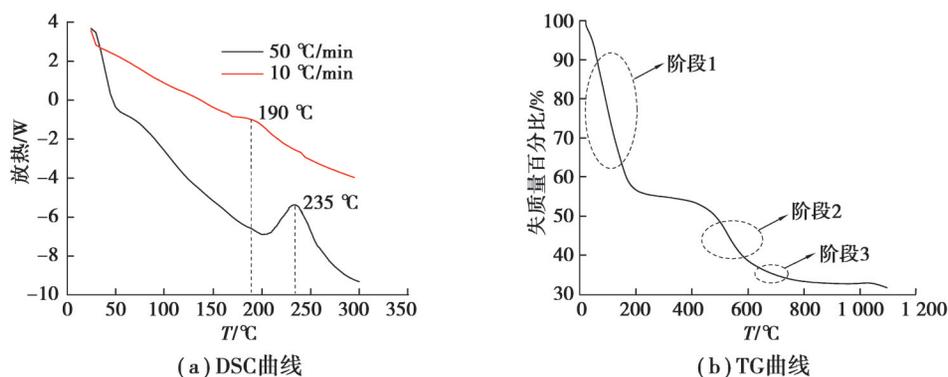
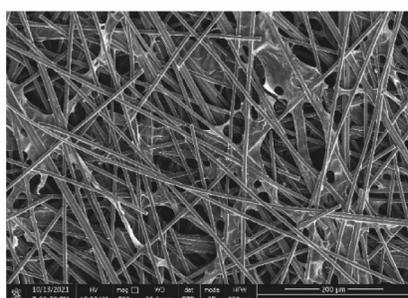


图2 酚醛树脂热分析

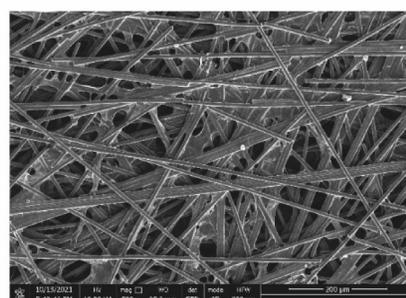
Fig. 2 Thermal Analysis of phenolic resin

3.2 气体扩散层形貌分析

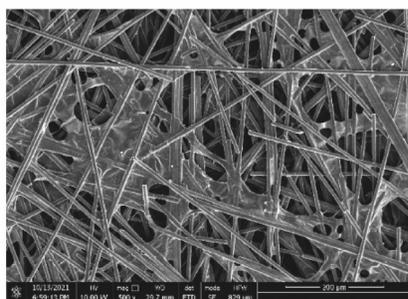
图3通过SEM图像对比了本实验中所得到的质量分数分别为5%、10%、15%、18%和20%酚醛树脂溶液浸渍的GDL, 以及典型商用GDL的形貌特征。由图3(a)~(e)可看出随着浸渍酚醛树脂浓度升高, GDL表面孔隙越来越少, 固相成分越来越多, 导致孔隙率降低。用此工艺制备出的GDL样品与图3(f)所示Toray商业化的碳纸中树脂碳的形貌类似, 具有相似的孔径分布和电阻率。它们的粘结剂都呈现片状结构搭接在纤维之间, 这有利于增加GDL的机械强度和导电性能^[16]。实验所得的GDL中呈片状结构的粘结剂与图3(g)和(h)所示SGL和AVCARB的GDL中呈现碎片状的粘结剂相比有明显的不同, 这与制备工艺有关, 如固化方式、碳化以及石墨化的温度。这些形貌的GDL对导电、传质、散热都有一定的影响^[7]。粘结剂在GDL中的存在形状对GDL中气体传输造成影响, 片状结构阻挡气体传输路径, 导致传输路径变长, 弯曲度增加^[5], 进一步影响导电性^[5]。



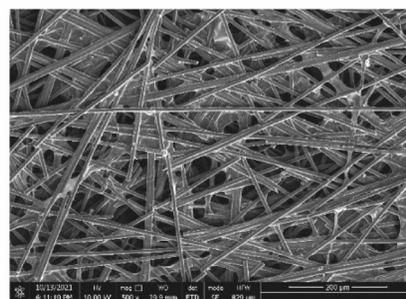
(a) 5%酚醛树脂溶液浸渍所得GDL



(b) 10%酚醛树脂溶液浸渍所得GDL



(c) 15%酚醛树脂溶液浸渍所得GDL



(d) 18%酚醛树脂溶液浸渍所得GDL

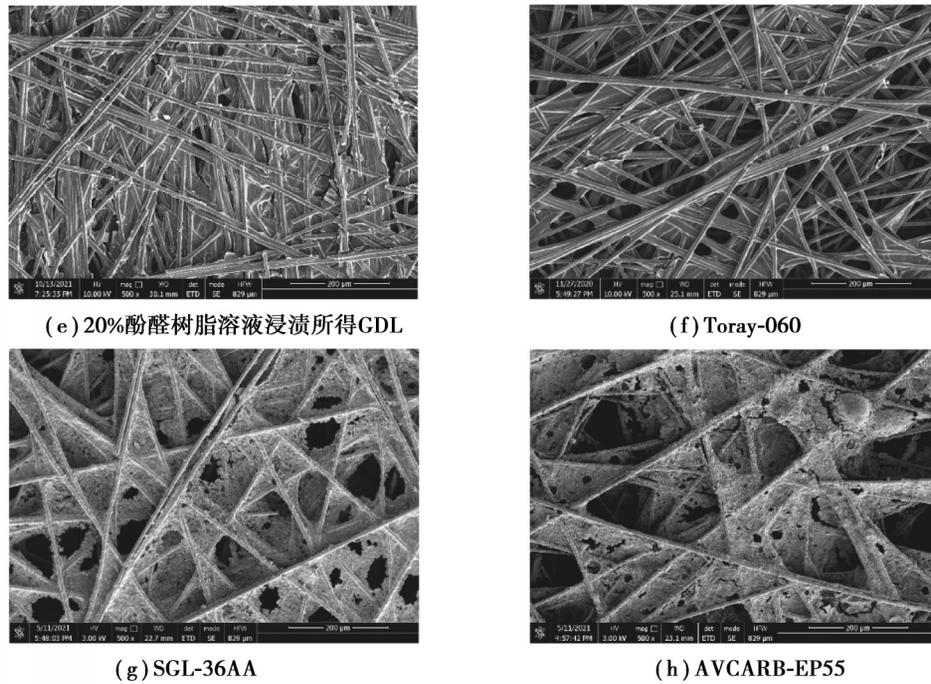
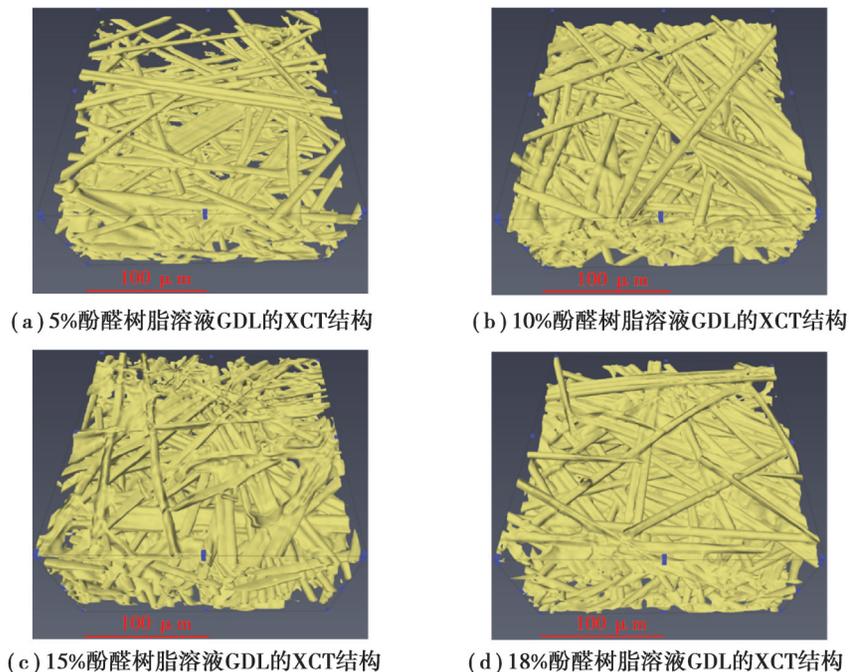


图3 不同种类GDL的SEM图

Fig. 3 SEM images of different GDLs

3.3 气体扩散层孔结构分析

GDL中的孔结构包括孔隙率和孔径分布。我们采用了2种方法测量所制备出GDL的孔隙率：一种是MIP，汞作为一种非浸润液体，进入多孔介质时外压力与进汞体积形成函数关系，根据压力分布获得孔径分布，同时获得孔隙率^[17]；另外一种方法是使用XCT技术将制成的GDL重构，通过阈值分割等手段获得三维结构，利用AVIZO软件计算孔隙率。图4(a)~(e)为通过XCT方式重构得出的本实验中质量分数分别为5%至20%酚醛树脂溶液浸渍的GDL三维结构图。随着酚醛树脂的质量分数增加，GDL的孔隙结构受到明显影响。图4(f)和(g)为利用光学显微镜放大140倍时5%和15%酚醛树脂溶液浸渍制备的GDL形貌图，可看出随着酚醛树脂质量分数增加，GDL的透光性降低，通孔减少，孔结构也发生显著的变化。



(a) 5%酚醛树脂溶液GDL的XCT结构

(b) 10%酚醛树脂溶液GDL的XCT结构

(c) 15%酚醛树脂溶液GDL的XCT结构

(d) 18%酚醛树脂溶液GDL的XCT结构

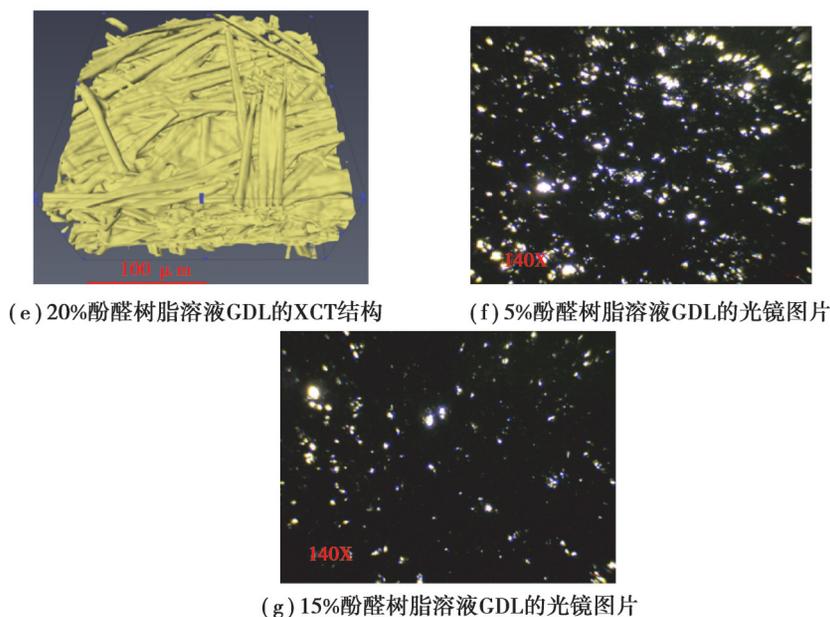


图4 GDL结构图片

Fig. 4 Structures of GDLs

3.3.1 孔隙率

图5为2种方法所得的孔隙率随着浸渍酚醛树脂浓度变化的关系。通过XCT重构计算出的孔隙率与MIP实验测量的孔隙率结果基本一致。GDL中的固相体积随树脂浓度升高而变大，所以孔隙率降低。在酚醛树脂浓度质量分数为15%时，孔隙率为78%，也就是商业化GDL的水平^[18]。本研究中原纸孔隙率为90%，可以看出，酚醛树脂溶液质量分数每增加5%，GDL的孔隙率降低4%左右。

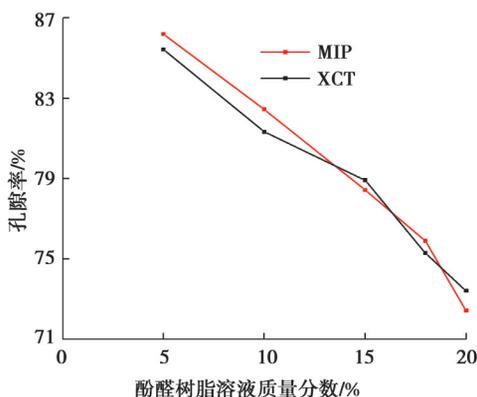


图5 通过XCT以及MIP测得不同质量分数酚醛树脂溶液浸渍的GDL孔隙率

Fig. 5 Porosities measured by XCT and MIP of GDLs impregnated with phenolic resin solutions of different mass fractions

3.3.2 孔径分布

孔径分布影响气体传输。采用MIP来测量GDL中的孔径分布，根据等体积法将GDL中不规则形状孔隙等效为球体，利用球体积公式得出孔径。图6为利用MIP测得不同酚醛树脂溶液浸渍原纸后所得GDL的孔径分布。孔径集中分布在20~200 μm之间，平均孔径为30 μm左右，随着孔径增大，整个孔径分布呈现孔径体积先增大后减小的趋势，这与酚醛树脂含量在原纸中流动情况以及碳化石墨化反应过程有关。不同质量分数酚醛树脂溶液所得到的GDL的孔径分布趋势不同，低浓度树脂浸渍所得碳纸大孔偏多，大于20 μm的孔隙随浓度增加而减少，小于20 μm的孔在高浓度时较多，孔径体积峰在分布曲线上随着浸渍树脂质量分数增大而左移。

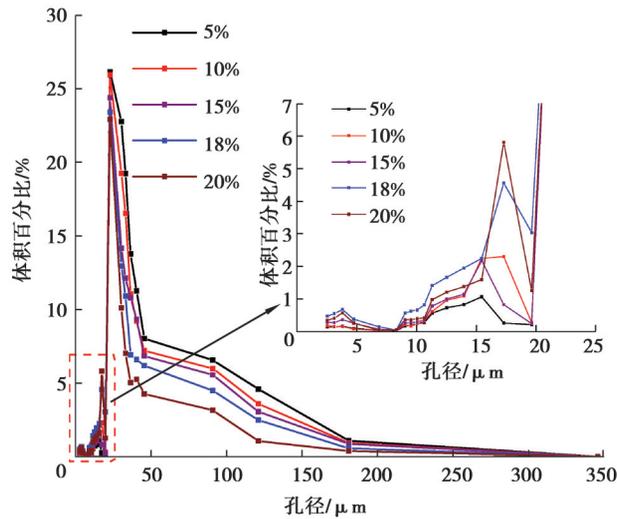


图6 不同质量分数酚醛树脂浸渍时所得GDL利用MIP测的孔径分布

Fig. 6 Pore size distribution measured by MIP of GDLs obtained by impregnation of phenolic resin with different mass fractions

3.4 气体扩散层性能分析

3.4.1 气体扩散率

扩散是GDL中气体传输十分重要的方式,气体扩散率是GDL最重要的性能参数之一,对整个MEA的工作效率有很大影响^[19]。采用PSM模拟计算GDL的气体扩散率,XCT重构GDL模型中的固相部分由纤维和树脂碳粘结剂组成。在不同树脂碳百分比的模型经过阈值分割后得到的三维结构中,各裁取4个 $100 \times 100 \times 100 \mu\text{m}^3$ 的计算域,分别计算厚度方向(through-plane, TP)和平面方向(in-plane, IP)上的气体扩散率。图7为气体扩散率随酚醛树脂溶液质量分数变化的关系。当树脂质量分数由5%增加至20%时,IP方向上的气体扩散率下降了20%左右,TP方向的气体扩散率下降了约50%。由此可见,GDL的气体扩散率在不同方向上有很大不同,IP方向上的气体扩散率大于TP方向,随着树脂质量分数增加,两者之比越来越大。这是由于随着树脂碳含量增加,树脂碳在GDL中的片状结构占比增大,且大多是平行于IP方向的,因而对TP方向上气体传输的影响远大于IP方向。

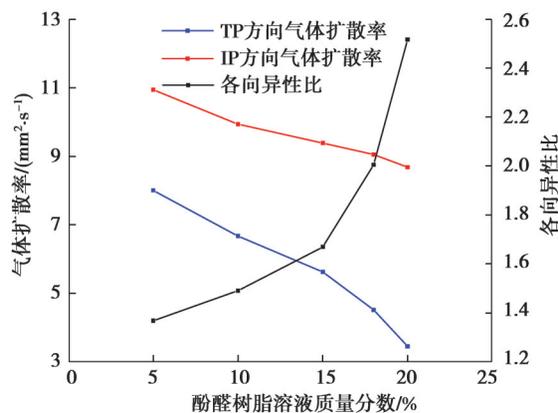


图7 不同质量分数酚醛树脂溶液浸渍的GDL通过PSM计算各向异性的气体扩散率

Fig. 7 Anisotropic gas diffusivity of GDLs impregnated with different mass fractions of phenolic resin solution calculated by PSM

3.4.2 电阻率

GDL的内阻是影响欧姆极化的重要参数,需要通过适当的工艺来降低电阻率。我们采用四探针法来

测定 GDL 的 IP 方向电阻率, 其原理是通过更换探针间的通电位置, 利用欧姆定律计算平面电阻^[4]; 采用 PSM 计算 IP 方向和 TP 方向的电阻率。2 种方法得出的不同方向的电阻率随酚醛树脂溶液质量分数的变化如图 8 所示。可以看出 2 种方法所测得的 IP 方向的电阻率基本一致, 随着树脂碳含量增加, 2 个方向的电阻率都降低。树脂质量分数由 5% 增加至 20%, IP 方向的电阻率下降了 25%, TP 方向的电阻率下降了 70%, 说明树脂石墨化后的不定型碳对 TP 方向的电阻率影响更大。本研究中用四探针法测试了 Toray-060 碳纸, 测得其 IP 电阻率数据为 $7.3 \text{ m}\Omega\cdot\text{cm}$ 。用本文中的工艺制得样品的 IP 方向电阻率均小于 Toray-060 型号的电阻率, 浸渍树脂的质量分数为 15% 时, 所制 GDL 的 IP 电阻率比 Toray-060 的小 30%。文献报道 Toray-060 型号 TP 方向的电阻率为 $80 \text{ m}\Omega\cdot\text{cm}$ ^[20], 与本研究中制得样品的电阻率大致相等, 证明了本研究中采用工艺的可行性。

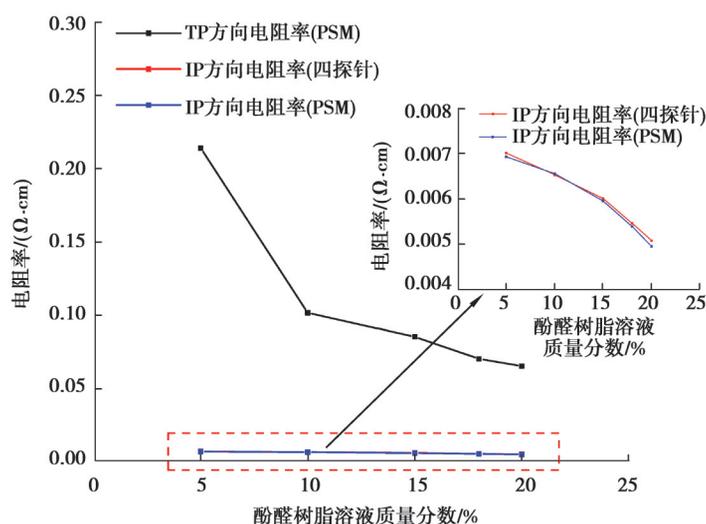


图 8 不同质量分数酚醛树脂溶液浸渍的 GDL 通过 PSM 以及四探针法测得的面电阻

Fig. 8 Conduction resistance of GDLs impregnated with different mass fractions of phenolic resin solution measured by PSM and four-probe method

4 结 论

本研究中提供了一个完整的 GDL 制备方案, 通过实验测试和模拟计算 2 种方式对制得的 GDL 进行了表征, 定量研究了浸渍酚醛树脂浓度对气体扩散层结构和性能的影响, 得出的结论如下。

1) 通过对酚醛树脂的热分析, 得出了制备方案: 在 110°C 预固化 10 min, 在 240°C 和 2 MPa 压力下保温 30 min 固化, 1100°C 保温 2 h 碳化, 在 2800°C 保温 2 h 石墨化。

2) 酚醛树脂溶液质量分数在 15% 左右, 即树脂碳成分最佳百分比为 25% 时, 得到了与 Toray 经典型号 GDL 形貌和性能相似的样品, 孔隙率为 78%, 与 Toray-060 型号 GDL 相比, TP 方向电阻率相等, IP 方向电阻率降低了 30%。

3) 结合 XCT 和 PSM 进行了 GDL 的孔尺度模拟计算, 得出了孔隙率、气体扩散率、电阻率随浸渍酚醛树脂质量分数增大而降低的趋势。

4) 将实验表征与模拟计算方法相结合, 2 种方法得出的结果较为接近, XCT 重构后进行模拟计算可以深入研究 GDL 结构, 有利于 GDL 的结构改进。

参考文献

- [1] Sun Y, Liu W Q, Xu D Y, et al. Self-healing of super hydrophobic and hierarchical surfaces for gas diffusion layer[J]. International Journal of Hydrogen Energy, 2020, 45(54): 29774-29781.
- [2] Xing L, Shi W D, Su H N, et al. Membrane electrode assemblies for PEM fuel cells: a review of functional graded design and optimization[J]. Energy, 2019, 177: 445-464.

- [3] Schweiss R, Meiser C, Damjanovic T, et al. SIGRACET® gas diffusion layers for PEM fuel cells, electrolyzers and batteries (white paper)[R]. SGL Carbon GmbH, 2016.
- [4] Chevalier S, Lavielle N, Hatton B D, et al. Novel electrospun gas diffusion layers for polymer electrolyte membrane fuel cells: Part I. Fabrication, morphological characterization, and *in situ* performance[J]. Journal of Power Sources, 2017, 352: 272-280.
- [5] Zhu L J, Yang W F, Xiao L S, et al. Stochastically modeled gas diffusion layers: effects of binder and polytetrafluoroethylene on effective gas diffusivity[J]. Journal of the Electrochemical Society, 2021, 168(1): 014514.
- [6] Trefilov A M I, Tiliakos A, Serban E C, et al. Carbon xerogel as gas diffusion layer in PEM fuel cells[J]. International Journal of Hydrogen Energy, 2017, 42(15): 10448-10454.
- [7] Omrani R, Shabani B. Review of gas diffusion layer for proton exchange membrane-based technologies with a focus on unitised regenerative fuel cells[J]. International Journal of Hydrogen Energy, 2019, 44(7): 3834-3860.
- [8] Shojaeefard M H, Molaeimanesh G R, Nazemian M, et al. A review on microstructure reconstruction of PEM fuel cells porous electrodes for pore scale simulation[J]. International Journal of Hydrogen Energy, 2016, 41(44): 20276-20293.
- [9] Simaafrookhteh S, Shakeri M, Baniassadi M, et al. Microstructure reconstruction and characterization of the porous GDLs for PEMFC based on fibers orientation distribution[J]. Fuel Cells, 2018, 18(2): 160-172.
- [10] Gao Y, Jin T, Wu X Y, et al. The effect of fiber orientation on stochastic reconstruction and permeability of a carbon paper gas diffusion layer[J]. Energies, 2019, 12(14): 2808.
- [11] Rama P, Liu Y, Chen R, et al. An X-ray tomography based lattice boltzmann simulation study on gas diffusion layers of polymer electrolyte fuel cells[J]. Journal of Fuel Cell Science and Technology, 2010, 7(3): 031015.
- [12] Zhu L J, Zhang H, Xiao L S, et al. Pore-scale modeling of gas diffusion layers: effects of compression on transport properties [J]. Journal of Power Sources, 2021, 496: 229822.
- [13] Zhu L J, Wang S F, Sui P C, et al. Multiscale modeling of an angled gas diffusion layer for polymer electrolyte membrane fuel cells: Performance enhancing for aviation applications[J]. International Journal of Hydrogen Energy, 2021, 46(39): 20702-20714.
- [14] Lei Z X, Ji J R, Wu Q Q, et al. Curing behavior and microstructure of epoxy-POSS modified novolac phenolic resin with different substitution degree[J]. Polymer, 2019, 178: 121587.
- [15] Ren Q Q, He L M, Hu S, et al. Formation of highly graphitic char derived from phenolic resin carbonization by Ni-Zn-B alloy [J]. Environmental Science and Pollution Research, 2020, 27(18): 22639-22647.
- [16] Ryan E M, Mukherjee P P. Mesoscale modeling in electrochemical devices — a critical perspective[J]. Progress in Energy and Combustion Science, 2019, 71: 118-142.
- [17] Ozden A, Shahgaldi S, Li X G, et al. A review of gas diffusion layers for proton exchange membrane fuel cells — with a focus on characteristics, characterization techniques, materials and designs[J]. Progress in Energy and Combustion Science, 2019, 74: 50-102.
- [18] Kakaee A H, Molaeimanesh G R, Elyasi Garmaroudi M H. Impact of PTFE distribution across the GDL on the water droplet removal from a PEM fuel cell electrode containing binder[J]. International Journal of Hydrogen Energy, 2018, 43(32): 15481-15491.
- [19] Zhao J, Shahgaldi S, Alaefour I, et al. Gas permeability of catalyzed electrodes in polymer electrolyte membrane fuel cells[J]. Applied Energy, 2018, 209: 203-210.
- [20] Kleemann J, Finsterwalder F, Tillmetz W. Characterisation of mechanical behaviour and coupled electrical properties of polymer electrolyte membrane fuel cell gas diffusion layers[J]. Journal of Power Sources, 2009, 190(1): 92-102.

(编辑 罗敏)