

文章编号:1674-2974(2016)12-0050-06

PEM 燃料电池膜电极中的水传输行为^{*}

叶东浩^{1,2†}, 詹明², 潘牧¹

(1. 武汉理工大学 材料复合新技术国家重点实验室, 湖北 武汉 430070;

2. 武汉船用电力推进装置研究所, 湖北 武汉 430064)

摘要:为避免电池“水淹”, PEM 燃料电池发生电化学反应产生的多余水必须及时排出。基于阴极催化层(CL)与气体扩散层(GDL)之间极易发生的“水淹”特点, 建立实验模型, 分析阴极催化层产生的水穿透碳纸气体扩散层材料到达气体流道的路径与阻力。在纵向传输过程中, GDL 中最大孔中的最小孔径是限制水渗透的主要阻力。只有当水头压力足够大时, 水才能进入并且穿过这些限制孔径的孔到达 GDL 材料表面。对于碳纸 GDL 材料, 水在这些孔中流动时所需压力(~ 1 kPa)显著小于水初始穿透这些孔所需压力(~ 6 kPa)。增加微孔层(MPL)会明显增加液态水的穿透阻力, MPL 层中不同 Teflon 含量对水渗透压力影响不大。对碳纸 GDL 材料设置引导孔能显著降低液态水的渗透压力, 有助于提升燃料电池中的水管理能力。

关键词:燃料电池; 水传输; 气体扩散层; 限制孔; 渗透压力

中图分类号: TM 911.4

文献标识码: A

Water Flow in and around the MEA of PEM Fuel Cell

YE Dong-hao^{1, 2†}, ZHAN Ming², PAN Mu¹

(1. State Key Laboratory of Advanced Technology for Materials Synthesis and Processing, Wuhan Univ of Technology, Wuhan, Hubei 430070, China; 2. Wuhan Institute of Marine Electric Propulsion System, Wuhan, Hubei 430064, China)

Abstract: In order to avoid the “water flooding”, the excess water generating in PEM fuel cell should be drained timely. In this study, an experiment model was applied to analyze the path of water flow corresponding to the flow resistances based on the “flooding” between catalyst layer (CL) and gas diffusion layer (GDL). Narrow apertures in the largest pores of carbon paper gas diffusion layer are the primary resistance to liquid water penetration. After sufficient hydrostatic pressure is applied, water penetrates the limiting aperture and flows through the pore reaching the GDL surface. For the carbon paper GDL material, the pressure(~ 1 kPa) required for water to flow through the pores is much less than the pressure (~ 6 kPa) to penetrate the limiting aperture of the pores. Adding micro-porous layer (MPL) can obviously increase water penetrate resistance. The content of Teflon in the MPL has little effect on the water penetration pressure. It is helpful to promote the water management in fuel cell by setting pilot holes on the carbon paper GDL material.

Key words: fuel cell; water flow; gas diffusion layer; limiting aperture; penetration pressure

^{*} 收稿日期: 2015-12-11

基金项目: 国家高技术研究发展计划(863 计划)项目(2013AA110201); 美国国家自然科学基金资助项目(0903661)

作者简介: 叶东浩(1985-), 男, 湖北武汉人, 博士

† 通讯联系人, E-mail: yedonghao@whut.edu.cn

气体扩散层(GDL)是质子交换膜燃料电池(PEMFC)中电极的必要组成部分. 碳纸 GDL 材料的多孔性使得其具备将反应气体从流道输送到催化层(CL)中,和将水从 CL 中输送到流道中的功能. GDL 必须满足电传导性,同时也需要满足用来防止水塞满扩散层中微孔的疏水特性. 电池“水淹”会导致反应气体被堵塞在 CL 之外,而 CL 中的水也排不出去.

Benziger 等人^[1-2]考察了 GDL 中的水渗透实验. 得出的结论是液态水只能在 GDL 材料中最大的孔和次最大的孔中传输,而这些孔占据 GDL 材料孔隙率的主要部分,气体则是通过 GDL 材料中的小孔从流道传输到 CL 中. 也有文献通过核磁共振(NMR)和中子散射成像技术证明了液态水在 GDL 材料最大的孔中传输^[3-5].

有研究文献将燃料电池的性能与不同 GDL 材料做对比来校核 GDL 的孔隙与电池性能的关系^[6-7]. 为减少电池的“水淹”发生率,通常的做法就是添加 Teflon 到 GDL 纤维材料中^[6, 8-12]. 也有研究表明在 CL 和 GDL 中间添加疏水性的微孔层(MPL)可以控制 GDL 中的水饱和度^[11, 13-16].

PEM 燃料电池中水的移除依赖于 GDL 中的水传输和气体流道中液滴分离的耦合作用. 然而很少有文献报道将这种耦合作用运用到电池中的流场设计中. Jiao 等人^[17]和 Lee 等人^[18]开发出一个模型来显示孔径以及孔形如何影响 GDL 中的液态水饱和度. 已知流道结构能够改变水在流道中的积累程度, Gerteisen 等人^[19]实验性地证实了对碳纸 GDL 进行系统性的打孔可提高极限电流密度达 8%~22%.

通过实验模拟电池反应过程中水穿透 GDL 碳纸的过程,重点研究“水淹”情况下液态水穿透 GDL (包含 MPL)的阻力. 由于 GDL 材料的特性,目前尚无法有效考察和控制碳纸孔径尺寸在使用过程中的变化,本实验中采取机械打孔创造出不同孔径来分析 GDL 中的水传输行为,同时也比较了水在打孔后的 GDL 中传输阻力与打孔前的水传输阻力,结果表明打孔后能显著降低水的传输阻力,堵水现象能够得到很大程度的缓解. 讨论了水穿透带 MPL 的碳纸所需的压力与流量的关系,液态水在 GDL 材料中的纵向渗透取决于 GDL 中大孔中的限制孔径,但是在渗透之后,水的流量则取决于其渗透路径的平均孔径.

1 实验部分

1.1 材料准备

测试用的 GDL 购买于 Fuel Cell Earth LLC,其中 Toray 碳纸(TGP-H-120)厚度为 370 μm ,孔隙率约 78%,孔径分布呈 10~100 μm 的正态分布,其中大部分孔径处于 30~40 μm ,图 1 给出了碳纸 GDL 材料的 SEM 扫描图.

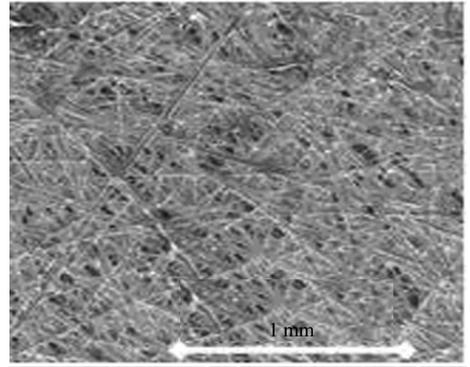


图 1 20% Teflon 疏水处理的 Toray 碳纸材料 SEM 扫描图

Fig. 1 Micrographs of carbon paper GDL materials with 20% Teflon

MPL 由 20% (质量分数) Teflon 与 1 mg/cm^2 的炭黑 XC72 组成,通过喷涂工艺涂覆在 GDL 与膜接触的一面.

1.2 纵向传输实验

图 2 给出了液态水穿透 GDL 示意图. GDL 样品被密封于两室之间. 其中一室填充去离子水,并且用聚乙烯管连接到一水箱中;另一室不做处理,与大气相通,水从一室穿透 GDL 渗透到另一室,并被收集到一放置在分析仪(Ohaus Model AR0640)上的烧杯中. 与水接触的 GDL 材料直径为 2.5 cm,面积约 5 cm^2 . 在测试之前,GDL 样品储存于干燥器中. 水箱固定在一可升降的实验台架上. 实验开始前,保持水箱中液态水液面与 GDL 表面齐平,增加压力的方法是通过上升实验台架的高度来使得水的静水压力每隔 10 s 增加 5 mm (50 Pa),直至有水开始从 GDL 中渗出. 观察有水开始渗透时,固定压力持续 100 s,测定液态水穿透 GDL 的流量. 为测定水在不同压力下穿透 GDL 的流量,后续每隔 100 s 提升压力 50 Pa. 透过透明的亚克力板可见 GDL 表面,因此在每种静态水压下,可记录在 GDL 表面形成的液滴数量和位置. 压力测试精度为 ± 15 Pa. 多

次试验记录水在不同压力下的流量,最后取平均值. 因需测定液态水穿透 GDL 的流量,穿透 GDL 表面的液态水采用重力法收集, Yu 等人^[20]分析了重力对燃料电池性能的影响,对于气体吹扫方式已在参考文献^[21]中阐述.

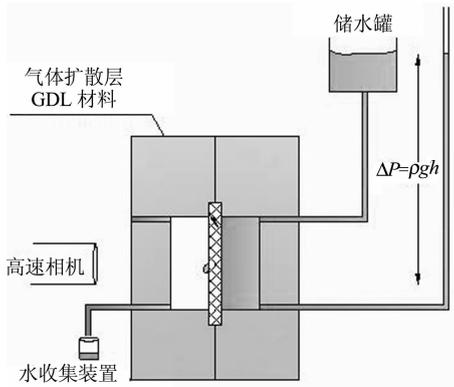


图2 水渗透 GDL 的可视化测试装置原理图
Fig. 2 Schematic of cell for measuring flow through GDL media

需要说明的是,此实验装置旨在模拟电池中液态水从 CL 层传输到 GDL/MPL 的过程,更重要的是模拟电池的“水淹”过程. 实验选用的材料是按照电池运行时的真实材料制作而成的,电池在实际运行过程中,多孔的 CL 层通常不会完全被液体填充,但电池“水淹”经常发生且会产生严重的后果. 通过此实验分析“水淹”等极限情况下电池中的水传输行为,包括 CL 中液态水完成从 CL 层到达 GDL 表面的传输阻力,同时也可间接证明 CL 层中水的传输状态.

2 结果

随着水压的增加,测定水渗透碳纸 GDL 的临界压力以及在不同压力下渗透的水流量. 通过控制储水罐与测试 GDL 材料的高度差计算出即时作用在样品表面的水压力. 水穿透 GDL 材料的临界压力定义为在 GDL 材料另一侧观察到有水渗出或者测试到第一滴液态水滴入烧杯时的压力. 随着压力的增加,通过透明的亚克力板也可观察到 GDL 材料表面出现水滴的位置和数量.

在观察水穿透 GDL 材料渗出之前,压力每 10 s 增加 50 Pa,当达到临界渗透压力后,压力增加率改为每 100 s 增加 50 Pa,这样可记录在 100 s 时间内收集到的水量,从而可得出水在此压力下的渗透量. 由于 GDL 材料表面是可视的,因此还可得出在不

同压力下 GDL 材料中出现渗透点的个数. 渗透点个数与渗透流量成正比例关系. 图 3 给出了 4 次压力循环下 GDL 表面渗透流量与压力的关系图. 第一次循环时水穿透干态 GDL 材料渗透到另一侧所需临界压力约为 5.7 kPa,而第二次循环相比于第一次循环,其临界渗透压力值从 5.7 kPa 降到约 0.7 kPa,降幅达 87.7%. 随着循环次数的增加,其临界渗透压力没有出现明显改变并趋于稳定. 由此可推断,碳纸 GDL 的水渗透率在组装到电池后,需要经过“浸润过程”才能趋于稳定. 这可能是 GDL 中孔径增大了或者水在 GDL 中孔表面上的有效接触角减小了. 我们认为此“浸润过程”是由于有残余的水存在 GDL 中,而这些残余水显然减小了水在 GDL 表面的接触角. 燃料电池在完成组装后,其内部 GDL 层为干态,相比于第二次水穿透压力,第一次穿透压力要明显高很多,这从另一角度证实了燃料电池在完成组装后需要活化过程,而此活化过程不仅是完成对催化剂的活化,同时也是对 GDL 层的活化,我们建议电池活化策略应采用大电流放电,充分润湿 GDL 材料,从而提高电池的排水性能.

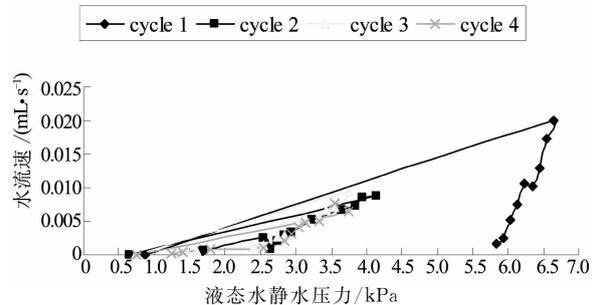


图3 液态水穿透带 MPL(20% Teflon)碳纸的流量与压力对应关系

Fig. 3 Water flow rate through the GDL media with 20% Teflon loading as a function of the pressure

图 4 给出了稳态时液态水穿透带 MPL 的 GDL 材料起始渗透压力以及渗透关闭压力. 从图 4 中可以明显地看出,水穿透 GDL 所需起始渗透压力都高于渗透关闭压力. GDL 材料涂敷 MPL 后能显著增大水穿透 GDL 所需压力. 在稳态时,水穿透碳纸 GDL 材料所需压力从约 700 Pa 增大到约 1 200 Pa. GDL 中 MPL 的 Teflon 含量在稳态时对水穿透 GDL 材料的影响不大. 关闭压力表示水保持持续从阴极 CL 向阴极气体流动中流动所需的最小压差. 若压差低于关闭压力,则不足以提供足够压力使得 GDL 外表面上的液滴与 GDL 表面的接触周长变化. 此时在孔出口的拉普拉斯(Laplace)压力

与作用在液滴上的水压以及重力保持平衡,因此水滴悬挂在孔出口处.

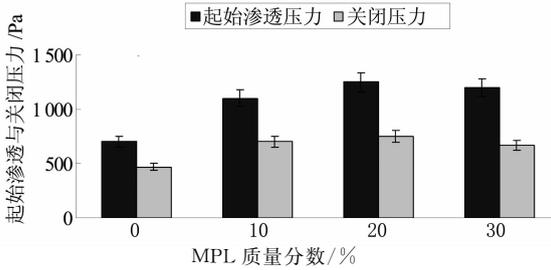


图 4 稳态时不同 MPL 含量的 GDL(未打孔)对水渗透的起始渗透压力及关闭压力

Fig. 4 Penetration and shut off of pressure for water flow through a carbon paper GDL with different MPL loading

对涂敷有 MPL 层的 GDL 进行机械打孔,选用不同直径的金属针对碳纸 GDL 材料进行打孔处理,打孔后孔径大小如图 5 所示.从图 5 中可以看出,在对 GDL 材料打孔前,水穿透 GDL 的临界渗透压力约为 6 kPa,但是当对 GDL 材料进行打孔后,水穿透 GDL 材料的临界渗透压力显著减小,临界渗透压力值从约 6 kPa 下降到约 1 kPa.随着 GDL 材料中打孔孔径的增大,水在 GDL 中的临界渗透压力持续降低.

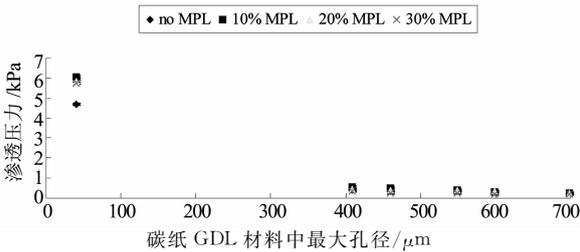


图 5 GDL 中不同孔径以及 MPL 与水首次临界渗透压力的关系

Fig. 5 Initial water penetration pressure as a function of the GDL with different apertures and MPL loading

从图 5 中可以看出,MPL 的含量对水在 GDL 中临界渗透压力影响不大.在没有对 GDL 材料打孔时,MPL 明显提高了水渗透 GDL 的临界压力,从~4.6 kPa 增加到~6 kPa.打孔后的 GDL 材料似乎消除了 MPL 对水渗透 GDL 所需压力的影响,MPL 中 Teflon 含量对水在 GDL 材料中的临界渗透压力的影响并不明显.这是由于打孔破坏了 MPL 层的疏水层,水可以直接穿透 GDL 析出.由达西定律可知,水渗透压力与孔径为乘幂关系,因此对图 4 中数据进行拟合,可得出水穿透 GDL 材料所需压力与孔径的关系为: $P = 361d^{-1.1}$.

3 讨论

由于 GDL 材料的疏水特性,水更偏向停留在 GDL 外部.水穿透 GDL 需要有一定的压力,只有当静水压高于水在 GDL 孔中的表面张力时,液态水才会渗透到 GDL 材料的孔中.临界起始压力必须足够高以使得水能够穿透所选路径的最窄处.水纵向穿透 GDL 材料的过程需经历以下几个步骤:

1) 当处于 CL 层与膜之间的水压力开始增加时,水会选择进入到 GDL 碳纸与 CL 层接触的最小的孔中.所需的压力可根据杨-拉普拉斯(Young-Laplace)方程得出:

$$\Delta P = \frac{2r_w}{R} \tag{1}$$

式中: r_w 为水的黏度系数; R 为曲率半径.针对固液接触,假设一水通道由若干孔径不一的、截面接近圆形的系列孔道组成,则 R 可由接触角来表示, $R = d / \cos\theta$,整理得:

$$\Delta P = \frac{2r_w \cos \theta}{d} \tag{2}$$

式中: d 为 GDL 中的平均孔径; θ 为接触角^[22].在水纵向穿透 GDL 材料的过程中,GDL 孔径并非保持不变.液态水从 GDL 外进入到 GDL 中,根据阻力最小原则,由拉普拉斯方程可知,液态水会选择 GDL 中最大的孔渗透进入.

2) 当液态水进入到 GDL 中最大的孔中后,随着水压的增加,液态水开始渗透到次最大孔中, d 减小,所需渗透压力提高.

3) 当水渗透到次最大孔中后,随着水压继续增加,液态水继续在 GDL 中纵向传输.当压力满足水继续向第三大的孔中(孔径仅次于次最大孔径)渗透所需压力时,液态水开始向第三大孔中渗透.

依此类推,直到水穿透 GDL 材料从 CL 达到气体流道.

需要指出的是,由于 GDL 为无序的多孔性材料,水在 GDL 中不同孔径的孔中渗透时,遵循渗透阻力最小原则.因此,水穿透 GDL 材料所经过的路径的孔径大小之和应该是最大的,水穿透这些孔所需的压损之和即为水初始渗透所需压力.

因此,液态水穿透 GDL 碳纸所需的压力即为液态水穿透一个水通道中系列孔道的阻抗之和,而通过每一个孔道的阻抗可简化用 Hagen-Poiseuille 方程表示^[23],则总阻抗可由式(3)表示.

$$\frac{\Delta P}{l_{\text{GDL}}} = \sum \left(\frac{\Delta P_i}{l_i} \right) = \frac{8Q\mu_w}{\pi} \sum \frac{1}{r_i^4}. \quad (3)$$

式中: l 为每个孔道的长度; r 为每个孔道的孔径. 根据水传输在开始出现以及开始关闭时所需压力、流量, 水流动限制半径、出口孔径以及水流动限制孔的长度均可通过计算得出. 水在开始出现渗透时限制流动半径可通过杨-拉普拉斯(Young-Laplace)方程得到:

$$r_{\text{breakthrough}} = \frac{2r_w \cos \theta}{\Delta P_{\text{breakthrough}}}. \quad (4)$$

假设水在 Teflon 包裹的碳纤维上的接触角为 110° [22, 24], 则水渗透过碳纸的限制流动半径约为 $9 \mu\text{m}$, 长度约为 $1.1 \mu\text{m}$. 此限制半径可能出现在 MPL 层中, 也可能出现在 GDL 层中. 而在 GDL 实际结构中, GDL 中的孔是十分不规整的, 非直通, 非圆柱形孔, 孔壁表面粗糙并且可能包含其他化学成分, 因此, 此模型中的孔径值应该作为有效孔径.

实验中 GDL 一侧全部充满液态水, 另一侧处于开放性空间, 测试水穿透 GDL 的阻力, 可假设为模拟燃料电池在实际运行中, GDL 的催化层侧已完全“水淹”. 根据实验结果, CL 层上电化学反应生成的水要穿透 GDL, 必须满足最低渗透压力 (700 Pa) 才能实现传输. 也就是说, CL 层完全被“水淹”要待静水压力满足最低渗透压之后才能穿透 GDL 达到流动中. 由此我们可以理解为, CL 层中的水通常情况下呈气态, 只有在如本实验设置的极限情况下, 达到饱和蒸气压后, 聚集而造成“水淹”.

对 GDL 打孔会显著降低水渗透 GDL 所需压力, 能够有效改善 CL 层与 GDL 之间的“水淹”现象. 燃料电池在运行过程中, 电池中的水平衡非常重要. 若 CL 层产生的水完全不排出, 则电池会因时间累积而造成“水淹”; 由于电池中质子只有在水作为载体的情况下才能从阳极传输到阴极, CL 层产生的水全部排出, 电池会因水太少而造成膜干, 影响质子传输, 从而影响电池的性能. 因此, 保持电池中水平衡的工程问题一直是一个难题. 根据菲克第一定律, 电池在运行时质子传输需要的水量 (J) 为:

$$J = -D \frac{\Delta P}{l}. \quad (5)$$

式中: J 为膜中实现质子传输所需水通量; D 为传输系数; ΔP 为压差; l 为膜厚度. 我们可以得出保持膜的加湿度所需的压差 ΔP . 根据图 5 所示, GDL 中不同孔径对水渗透所需的压力 $\Delta P'$ 不同. 为保证膜处于充分湿润状态, 须满足 $\Delta P' > \Delta P$, 因此可得出对 GDL 改性打孔所需直径.

4 对燃料电池设计的影响

Kimball 等人[2, 22]证实了水穿透一面积 $< 10 \text{ cm}^2$ 的 GDL 可仅通过一个引导孔. 引导孔可位于流动道下, 也可位于脊岸下. 从原理上讲, GDL 上能够设置一系列引导孔来引导水的传输, 不仅能增加膜的湿度, 同时也能排出多余的水.

以前对 GDL 的研究工作主要集中在对 GDL 进行疏水处理以及添加 MPL 层使水能够最低限度地浸入 GDL 中[6, 8, 10-14]. 对 GDL 材料设置引导孔可以有效地解决“水淹”问题, 增加膜的湿度以及加速水的排出. GDL 材料中最理想的孔径分布应该是呈双峰分布. GDL 中应该存在一些大孔能够储水并能够作为排出从 CL 层产生的多余水的通道; 同时, GDL 也应该存在足够多的小孔, 使得反应气体能够从气体流动道传输到 CL 层中去. 最精确的控制为 GDL 中的小孔足够小, 并且存在一定数量的大孔, 同时也要考虑 GDL 大孔对电子传导的影响[25-27]. 因此, GDL 材料能够通过设计来引导水从 CL 到气体流动道的传输, 缓解电池中的水淹以及膜加湿问题.

5 结论

讨论了水在 GDL 不同压缩率下的纵向穿透 GDL 的阻力. 同时也讨论了 GDL 中大孔径对水传输的影响.

只有当水头压力高于穿透 GDL 中最大孔中的限制孔径所需的拉普拉斯压力时, 水传输才会发生. 随着水头压力的增加, 液态水首先会从 GDL 材料中最大的孔中渗透出, 其次会从次最大的孔中渗透出. 水第一次穿透 GDL 材料所需起始水头压力为 5.7 kPa , 达到稳态时, 渗透 GDL 所需水头压力为 1.2 kPa . 对 GDL 打孔后, 能够显著降低水穿透 GDL 的阻力. 此类引导孔有助于提升燃料电池中的水管理能力.

参考文献

- [1] BENZIGER J, NEHLSSEN J, BLACKWELL D, *et al.* Water flow in the gas diffusion layer of PEM fuel cells [J]. *Journal of Membrane Science*, 2005, 261(1): 98-106.
- [2] KIMBALL E, WHITAKER T, KEVREKIDIS Y G, *et al.* Drops, slugs, and flooding in polymer electrolyte membrane fuel cells [J]. *AIChE Journal*, 2008, 54(5): 1313-1332.

- [3] ELLER J, ROSÉN T, MARONE F, *et al.* Progress in in situ X-ray tomographic microscopy of liquid water in gas diffusion layers of PEFC [J]. *Journal of the Electrochemical Society*, 2011, 158(8): B963–B970.
- [4] LITSTER S, SINTON D, DJILALI N. Ex situ visualization of liquid water transport in PEM fuel cell gas diffusion layers [J]. *Journal of Power Sources*, 2006, 154(1): 95–105.
- [5] LU Z, DAINO M M, RATH C, *et al.* Water management studies in PEM fuel cells, part III: dynamic breakthrough and intermittent drainage characteristics from GDLs with and without MPLs [J]. *International Journal of Hydrogen Energy*, 2010, 35(9): 4222–4233.
- [6] PARK S, POPOV B N. Effect of cathode GDL characteristics on mass transport in PEM fuel cells [J]. *Fuel*, 2009, 88(11): 2068–2073.
- [7] PARK S, POPOV B N. Effect of a GDL based on carbon paper or carbon cloth on PEM fuel cell performance [J]. *Fuel*, 2011, 90(1): 436–440.
- [8] BEVERS D, ROGERS R, VON BRADKE M. Examination of the influence of Teflon coating on the properties of carbon paper in polymer electrolyte fuel cells [J]. *Journal of Power Sources*, 1996, 63(2): 193–201.
- [9] LIN G, VAN NGUYEN T. A two-dimensional two-phase model of a PEM fuel cell [J]. *Journal of the Electrochemical Society*, 2006, 153(2): A372–A382.
- [10] PARK G G, SOHN Y J, YANG T H, *et al.* Effect of Teflon contents in the gas diffusion media on the performance of PEMFC [J]. *Journal of Power Sources*, 2004, 131(1): 182–187.
- [11] FISHMAN Z, BAZYLAK A. Heterogeneous through-plane porosity distributions for treated PEMFC GDLs I. Teflon effect [J]. *Journal of the Electrochemical Society*, 2011, 158(8): B841–B845.
- [12] LOBATO J, CA IZARES P, RODRIGO M, *et al.* Influence of the Teflon loading in the gas diffusion layer of PBI-based PEM fuel cells [J]. *Journal of Applied Electrochemistry*, 2008, 38(6): 793–802.
- [13] ATIYEH H K, KARAN K, PEPPLEY B, *et al.* Experimental investigation of the role of a microporous layer on the water transport and performance of a PEM fuel cell [J]. *Journal of Power Sources*, 2007, 170(1): 111–121.
- [14] WEBER A Z, NEWMAN J. Effects of microporous layers in polymer electrolyte fuel cells [J]. *Journal of the Electrochemical Society*, 2005, 152(4): A677–A688.
- [15] KARAN K, ATIYEH H, PHOENIX A, *et al.* An experimental investigation of water transport in PEMFCs the role of microporous layers [J]. *Electrochemical and Solid-State Letters*, 2007, 10(2): B34–B38.
- [16] NAM J H, LEE K J, HWANG G S, *et al.* Microporous layer for water morphology control in PEMFC [J]. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 2009, 52(11): 2779–2791.
- [17] JIAO K, ZHOU B. Innovative gas diffusion layers and their water removal characteristics in PEM fuel cell cathode [J]. *Journal of Power Sources*, 2007, 169(2): 296–314.
- [18] LEE K J, KANG J H, NAM J H, *et al.* Steady liquid water saturation distribution in hydrophobic gas-diffusion layers with engineered pore paths: an invasion-percolation pore-network analysis [J]. *Journal of Power Sources*, 2010, 195(11): 3508–3512.
- [19] GERTEISEN D, HEILMANN T, ZIEGLER C. Enhancing liquid water transport by laser perforation of a GDL in a PEM fuel cell [J]. *Journal of Power Sources*, 2008, 177(2): 348–354.
- [20] YU Yi, TU Zheng-kai, ZHAN Zhi-gang, *et al.* Gravity effect on the performance of PEM fuel cell stack with different gas manifold positions [J]. *International Journal of Energy Research*, 2012, 36: 845–855.
- [21] YE D H, ERIC G, JEAN C M, *et al.* The effect of gas diffusion layer compression on gas bypass and water slug motion in parallel gas flow channels [J]. *AIChE Journal*, 2015, 61(1): 355–367.
- [22] GAUTHIER E, DUAN Q, HELLSTERN T, *et al.* Water flow in, through, and around the gas diffusion layer [J]. *Fuel Cells*, 2012, 12(5): 835–847.
- [23] BIRD R B, STEWART W E, LIGHTFOOT E N. *Transport Phenomena* [M]. 2nd ed. New York: John Wiley & Sons Inc, 2007.
- [24] GALEMBECK F. Surface modification of Teflon: contact angle measurements [J]. *Journal of Polymer Science: Polymer Letters Edition*, 1977, 15(2): 107–109.
- [25] KIMBALL E E, BENZIGER J B, KEVREKIDIS Y G. Effects of GDL structure with an efficient approach to the management of liquid water in PEM fuel cells [J]. *Fuel Cells*, 2010, 10(4): 530–544.
- [26] MISHRA V, YANG F, PITCHUMANI R. Measurement and prediction of electrical contact resistance between gas diffusion layers and bipolar plate for applications to PEM fuel cells [J]. *Journal of Fuel Cell Science and Technology*, 2004, 1(1): 2–9.
- [27] ZHOU T, LIU H. Effects of the electrical resistances of the GDL in a PEM fuel cell [J]. *Journal of Power Sources*, 2006, 161(1): 444–453.