文章编号: 1007 - 4252(2022)04 - 0004 - 371 DOI: 10.20027/j.gncq.2022.0046

燃料电池空气阴极三维重构表征研究进展

景子恒[1],燕 召[2],张小可[1],车如心[1,*],王二东[2,*]
(1. 大连交通大学环境与化学工程学院,大连 116028; 2. 中国科学院大连化学物理研究所,大连 116023)

摘要: 燃料电池因效率高、成本低和环境友好等优势受到广泛关注。在燃料电池运行过程中,空气阴极微观结构变化和液态水分布会影响气体的传质,进而影响电池的放电性能。电极的可视化技术可以有效地获得空气阴极微观结构信息,为空气阴极的研究提供重要参考。目前,X 射线计算机断层扫描技术(X-ray CT)和聚焦离子束与扫描电子显微镜联用技术(FIB-SEM)对燃料电池空气阴极微观结构的表征应用最为广泛。本文围绕 X-ray CT 和 FIB-SEM 两种三维重构技术对燃料电池空气阴极的微观结构、液态水分布、寿命和传质问题的研究进行综述。

关键词: 燃料电池; 空气阴极; 三维重构
中图分类号: TM911.4 **文献标志码:** A

Research Progress on 3D Reconstruction Characterization of Fuel Cell Air Cathode

JING Zi-heng[1],YAN Zao[2],ZHANG Xiao-ke[1],CHE Ru-xin[1,*],WANG Er-dong[2,*]
(1. Environmental and Chemical Engineering, Dalian Jiaotong University, Dalian 116028, China; 2. Dalian Institute of Chemical Physics, Chinese Academy of Sciences, Dalian 116023, China)

Abstract: Fuel cells have received extensive attention due to their high efficiency, low cost, and environmental friendliness. During the operation of the fuel cell, the microstructure change of the air cathode and the distribution of liquid water will affect the mass transfer of the gas, which in turn affects the discharge performance of the cell. The visualization technology of the electrode can effectively obtain the microstructure information of the air cathode, which provides an important reference for the research of the air cathode. At present, X-ray computed tomography (X-ray CT) and focused ion beam combined with scanning electron microscopy (FIB-SEM) are the most widely used techniques to characterize the microstructure of fuel cell air cathodes. In this paper, the research on the microstructure, liquid water distribution, lifetime and mass transfer of fuel cell air cathodes are reviewed by two 3D reconstruction techniques, X-

收稿日期: 2022-07-07; **修订日期:** 2022-08-15
基金项目: 国家自然科学基金资助项目(22005299).
作者简介: 景子恒(1996-),男,在读硕士研究生,主要研究方向为金属空气电池阴极(E-mail: jingzihengtx@163.com).
通信作者: 车如心(1965-),女,博士,教授,主要研究方向为环境功能材料(E-mail: mailjyl@aliyun.com);
王二东(1981-),男,博士,研究员,主要研究方向金属燃料电池(E-mail: edwang@dicp.ac.cn).

ray CT and FIB-SEM.

Key words: Fuel cell; Air cathode; Three-dimensions reconstruction

0 引言

燃料电池是一种能够将化学能以高效、安静、清洁的方式转化为电能的装置[1]，具有效率高、成本低、安全性高和环境友好等优点[2]。燃料电池主要包括金属/空气电池[3]、醇类燃料电池[4]和氢氧燃料电池[5]等。作为下一代能源储存装置，燃料电池受到了广泛的关注[6]。

燃料电池由阳极、阴极、电解质隔膜和电解液组成，如图 1 所示[7]。由于空气阴极上的氧还原反应(Oxygen reduction reaction，ORR)在反应过程中复杂的吸附机制和缓慢的反应动力学过程，会产生较大的过电位，导致电池性能下降[8]，所以，对空气阴极进行三维重构有利于加深对上述问题的认识层次。空气阴极主要包括气体扩散层(Gas diffusion layer，GDL)、集流层(Current Collector)和催化层(Catalyst layer，CL)。气体扩散层为空气阴极的气体传质提供通道并具有疏水性防止电解液从空气阴极泄漏[9-10]。集流层是空气阴极电子传导的介质[11]。催化层为空气阴极的 ORR 提供反应界面，是 ORR 的主要场所[12]。

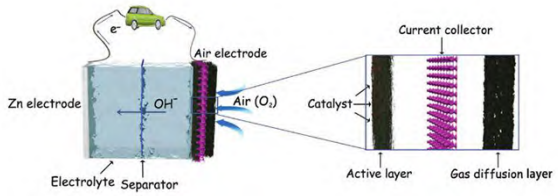

图 1 锌/空气电池及空气电极原理图[7]

Fig. 1 Schematic illustration of Zn/air battery and air electrode [7]

空气阴极的有效能量转换取决于电化学反应动力学、电极结构和传质的综合作用[13]。在电化学反应上，空气阴极的 ORR 性能受电催化活性限制[14]。在电极结构上，燃料电池空气阴极有着复杂、非均匀、各向异性的微观结构[15]。空气阴极的微观结构是影响传质的关键因素。同时，空气阴极中液态水的分布也会对电极性能产生重要影响。因此，获得准确的空气阴极微观结构信息可以为提升电极性能提供重要的参考依据。电极可视化技术可有效获得空气阴极的微观结构影像，通过影像可获得空气阴极的孔隙率、弯曲度、液态水分布、催化剂直径及分布等信息，可分析出对电极性能产生影响的因素。X 射线计算机断层扫描(X-ray CT)[16]和聚焦中子束与扫描电子显微镜联用(FIB-SEM)[17]两种技术在研究燃料电池空气阴极微观结构的三维重构中应用最为广泛。本文围绕使用 X-ray CT 和 FIB-SEM 两种三维重构技术研究燃料电池空气阴极的微观结构、液态水分布、寿命和传质问题进行综述，分析研究现状并为将来的研究工作提供借鉴。

1 对阴极三维重构技术的研究

1.1 对空气阴极微观结构的研究

空气阴极拥有复杂地、非均匀地和各向异性地微观结构。空气阴极主要由碳支撑体、疏水剂、粘结剂和催化剂等组成。空气阴极碳支撑体、疏水剂和粘结剂的含量，离聚物团聚体和催化剂颗粒直径对孔隙率、孔直径和弯曲度有着重要的影响。孔隙率、孔直径和弯曲度的变化会影响空气阴极的气体传输，进而影响燃料电池的放电性能[18-20]。相对于传统的测量方法，空气阴极的可视化技术得到的三维影像可以获得更加准确的空气阴极结构信息。同时，也可以通过三维影像分析影响空气阴极结构的因素。

Zhang 等人[21]使用 X-ray CT 对燃料电池空气阴极进行表征获得了气体扩散层的结构信息，如图 2 所示。结果表明，TGP-H-060 气体扩散层的孔隙率在 60%~90%之间，平均孔隙率为 76%，孔隙直径范围为 8~86 μm，平均直径为 35 μm。H2315 气体扩散层的孔隙率在 62%~76%之间，平均孔隙率为 69%，孔隙直径范围为 1~44 μm，平均孔隙直径为 18 μm。

Xin 等人[22]使用 FIB-SEM 对燃料电池空气阴极催化层进行表征，通过三维影像研究了燃料电池空气阴极催化层离聚物含量对阴极结构和放电性能的影响。结果表明，催化剂在低离子含量时易于聚集，当离聚物含量从 10 wt%增加到 30 wt%时，催化

剂团聚体的平均直径从 313 nm 减小到 210 nm。电化学测试表明,当离聚物含量为 20 wt%时,电池放电性能最好,催化剂电荷转移阻力最小,电催化活性最高。

Cetinbas 等人[23] 使用 X-ray CT 对空气阴极进行了表征,通过三维影像研究了燃料电池空气阴极离聚物厚度的影响因素。结果表明,离聚物团聚体的分布是不均匀的。催化层团聚体的直径范围为 50~600 nm,平均直径为 248 nm。离聚物膜厚度范围为 0~30 nm。当离聚物与碳的质量比 I/C = 0.8 时,离聚物厚度的峰值为 5 nm,直径范围为 200~500 nm 的离聚物团聚体中离聚物厚度范围为 10~11 nm。当 I/C = 0.6 时,离聚物膜厚度约为 5 nm。当 I/C = 1 时,离聚物膜厚度大于 15 nm。此研究表明离聚物的厚度随着 I/C 的增加和离聚物团聚体直径的减小而变厚。

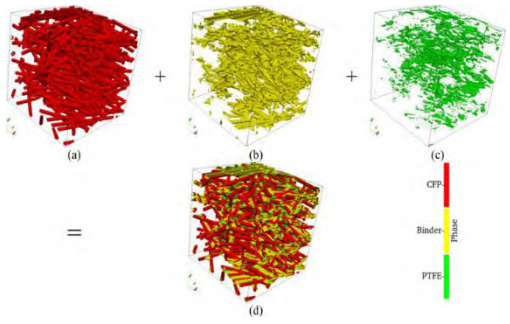

图 2　X-ray 表征气体扩散层结构 (a) 碳纤维; (b) 粘合剂; (c) 聚四氟乙烯; (d) 气体扩散层的三维重构影像[21]

Fig. 2 X-ray characterization of gas diffusion layer structure: (a) carbon fiber skeleton; (b) binder network; (c) PTFE network; (d) final GDL[21]

Park 等人[24] 使用 FIB-SEM 对燃料电池空气阴极催化层进行表征,通过获得的三维影像对比了低离聚物与碳质量比的催化层 Pt/C(IJ) 和二氧化硅涂层的催化层 SiO_2-Pt/C(IJ) 的微观结构和性能的差异(IJ,喷墨打印)。结果表明,Pt/C(IJ) 和 SiO_2-Pt/C(IJ) 的形貌与孔隙率一致,但电化学测试表明 SiO_2-Pt/C(IJ) 的放电性能更好。研究表明 Pt/C(IJ) 和 SiO_2-Pt/C(IJ) 的氧气扩散阻力、结构和稳定性几乎一致,SiO_2-Pt/C(IJ) 性能高的原因是二氧化硅层增加了催化层的导电性。

Thiele 等人[25] 使用 FIB-SEM 对燃料电池空气阴极催化层进行表征获得了催化层的结构信息。结果表明,催化层的孔隙率为 58%,孔径直径范围为 7~350 nm,Pt 催化剂颗粒的平均粒径为 2.8±1.45 nm 且为非球形。

1.2　对空气阴极水分布的研究

燃料电池空气阴极中的液态水填充量是影响电池放电性能的关键因素。液态水的过量积聚会影响反应气体的传输,导致放电电流密度分布不均匀,降低电池放电性能。对于质子交换膜燃料电池,空气阴极中的液态水是放电产物,液态水的分布和传输尤为重要[26-27]。空气阴极的可视化是研究其内部液态水分布和传输的有效方法。通过空气阴极的可视化技术可获得阴极液态水的三维分布影像,通过三维影像可以获得空气阴极内部液态水分布、接触角和液态水传输过程等信息,也可以协助分析空气阴极液态水分布的影响因素。

Satjaritanun 等人[28] 使用 X-ray CT 对气体扩散层进行了表征,通过三维影像研究水压和注水位置对燃料电池空气阴极 GDL 内部液态水的分布和传输过程的影响。结果表明液态水在 GDL 内的传输能力随着水压的增大而变强。实验过程中使用金属压片模拟阴极外侧的气体流道结构,当注水点不在金属压片下时,液态水先纵向传输到电极界面间的空隙中,然后向较大的孔隙传输。当注水点位于金属压片之下时,由于金属压片的作用注入的液态水会横向传输到未被压片压住的区域。在多个注水点注水测试中发现,相隔 800 μm 的两个注水点注入的液态水没有强烈的相互影响。同时,压缩过的 GDL 孔隙率和不同界面间的空隙更小,在相同注水点和水压下积聚的液态水更少。

Liu 等人[29] 使用 X-ray CT 对 GDL 进行了表征,通过三维影像研究燃料电池空气阴极 GDL 内部固体纤维-液态水-空气三相接触点并计算了固-液接触角。结果表明,GDL 拥有 0°~180°的广泛接触角,内部存在亲水和疏水的混合润湿状态。其中疏水性(接触角>90°) 是 PTFE 粘结剂和 GDL 的局部特殊形貌形成的,亲水性(接触角<90°) 是 GDL 的固体纤维和碳质粘结剂上表面的氧化基团形成的。

Xu 等人[30] 使用 X-ray CT 对空气阴极进行表征,通过三维影像研究燃料电池工作温度对 GDL 中液态水分布和传输的影响。结果表明,在电池工作温度为 40 ℃ 时,液态水从微孔层(MPL) 到气体流

场呈现下降分布，液态水的传输初始由 GDL-MPL 界面底部连接的水簇驱动，待出现毛细指移（一定毛细压力下液体侵入孔隙）现象后液态水的传输由 GDL-MPL 变为 GDL-流场完全连接的水簇驱动。在电池工作温度为 80 ℃时，液态水呈现谷状分布，在 GDL-MPL 和 GDL-流场界面处液态水饱和度逐渐增加，液态水的传输起初由 GDL-流场顶部连接的水簇驱动，在相变诱导（在一定温度梯度下液体在高温区蒸发为气体传输到低温区再冷凝为液体）形成的水簇与毛细指移形成的水簇连接后，液态水的传输由连接的水簇驱动。由此可见，随着电池工作温度的提高，GDL 中的液态水传输由毛细指移为主的驱动变为相变诱导为主的驱动。

Pournemat 等人[31] 使用 FIB-SEM 对空气阴极进行表征，通过三维影像研究燃料电池 GDL 的孔径、润湿性和相对湿度对液态水分布的影响，如图 3 所示。结果表明，随着孔隙尺寸的增大，液态水在 MPL 孔隙中的填充度增加，在 CL 孔隙中填充度减小。润湿性对含水量影响不大，但会影响液态水的分布，在 MPL（与水的接触角大）中先填充大孔，在 CL（与水的接触角小）中先填充小孔。研究结果表明随着润湿性的下降液态水由先填充小孔变为先填充大孔。随着相对湿度的下降，MPL 和 CL 中的液态水填充度下降。

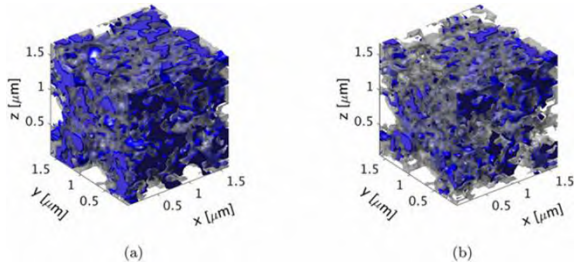

图 3 FIB-SEM 表征催化剂层液体分布（a）气体流道下；（b）非气体流道下（灰色表示催化层结构，蓝色表示液态水）[31]

Fig. 3 FIB-SEM to characterize the liquid distribution of the catalyst layer (a) under the gas flow channel; (b) under the non-gas flow channel (grey indicates the structure of the catalyst layer, blue indicates liquid water) [31]

1.3 对空气阴极寿命的研究

燃料电池的寿命是评估电池性能的关键因素。在燃料电池放电的过程中，碳载体的腐蚀和催化剂的迁移是导致空气阴极性能下降和寿命缩短的主要原因。其中，碳腐蚀会导致空气阴极催化层的孔隙率下降，而结构塌缩和裂纹会影响气体传质，导致电极的性能下降。同时，催化剂的迁移会使 ORR 界面减小，导致电极性能下降。通过电极可视化技术的三维影像可获得催化剂迁移方向、出现裂纹的区域、孔隙率下降的程度以及催化层结构塌缩的情况等，为提升空气阴极寿命提供了有效的参考信息。

White 等人[32] 使用 X-ray CT 对催化层进行了表征，通过三维影像研究了燃料电池放电过程中空气阴极催化层衰减过程的结构变化。结果表明，在电池放电过程中催化层孔隙率呈非线性变化并产生纳米尺度裂纹。催化层内部的颗粒腐蚀和固体结构的塌缩会导致孔隙率下降、弯曲度上升和努森扩散系数下降。催化层催化剂包覆膜水化屈曲导致裂纹的产生，催化层局部腐蚀和液态水动力学使裂纹扩大。当放电结束时，催化层孔隙率降低 40%，平均孔径增大 50%，固体面积分数降低 25%，并在局部区域产生纳米尺度的裂纹。

Zhong 等人[33] 使用 X-ray CT 对空气阴极进行了表征，通过三维影像研究了低温对燃料电池空气阴极的影响。结果表明，电堆中各单池的阴极性能衰减不一致。原因是各单池空气阴极所含的液态水量不一致。在低温放电时，液态水的冻胀应力破坏了膜电极的组件，导致催化剂流失和聚团，甚至导致了催化层的分层。经过 20 次融冻循环后发现，电堆中离进气口近的单池性能衰减更严重。同时，在三维影像中发现催化层出现了裂纹。

Matsui 等人[34] 使用 X-ray CT 对催化层进行了表征，通过三维影像研究了 Pt 催化剂在燃料电池放电过程中三维分布的变化，如图 4 所示。结果表明，在电池放电过程中空气阴极催化剂发生了不可逆的氧化、分解、迁移和聚团，并且此过程取向于向膜电极的纵深方向进行。

Schulenburg 等人[35] 使用 FIB-SEM 对催化层进行了表征，通过三维影像研究了启停循环对燃料电池空气阴极催化层结构的影响。结果表明，经过 1 000次启动/关闭循环后，催化层的碳腐蚀导致了结构的塌缩，孔隙由测试前的相互连接的网络结构变成了以孤立为主的结构，孔隙的变化阻碍了催化层的传质，降低了电池的性能。

Ghosh 等人[36] 使用 FIB-SEM 对空气阴极进行了表征，通过三维影像研究了碳电化学腐蚀对燃料

电池空气阴极催化层结构的影响。结果表明，经过耐久性测试后，空气阴极催化层孔隙率急剧下降，在空气流道下侧的催化层孔隙率减小更严重，在 CL-MPL 界面处孔隙率下降更加严重。催化层孔隙率下降是碳腐蚀和电池的压缩应力共同导致的，同时 Pt 催化剂颗粒的迁移加速了碳腐蚀。

Star 等人[37] 使用 FIB-SEM 对空气阴极进行了表征，通过三维影像研究了燃料电池空气阴极碳腐蚀、微观结构和性能退化的关系。结果表明，Pt 催化剂的熟化和炭黑初生颗粒内部非晶态的优先腐蚀是导致电池阴极性能下降的主要原因，空气阴极的性能随碳腐蚀的加剧而下降，空气阴极性能的下降在孔隙度损失和弯曲度增加之前发生，表明空气阴极性能的衰减与碳腐蚀之间联系更加密切。

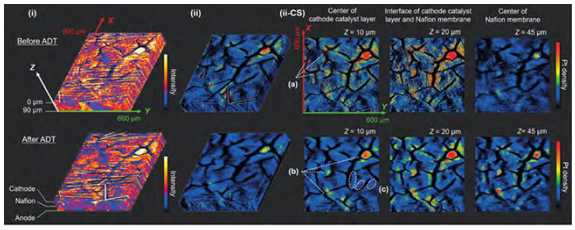

图 4　X-ray CT 表征催化层（i）重构的三维影像；（ii）Pt 催化剂分布的三维影像；（ii-cs）2 000 次加速退化循环后催化层纵向 10 μm、20 μm 和 45 μm 处的横向断截面原位重构影像（a）催化层的线状结构；（b）Pt 催化剂团聚区域；（c）Pt 催化剂迁移区域（虚线圈）[34]

Fig. 4 X-ray CT characterization of catalytic layer (i) 3D images of morphology reconstructed; (ii) 3D images of the Pt density and (ii-cs) their cross-sectional images at Z = 10 μm, 20 μm, and 45 μm reconstructed by in situ CT-XANES before and after the 20000ADT cycles (a) Observed line-like structures; (b) areas that the Pt catalyst aggregated and (c) areas that the Pt catalyst was lost (dashed circles) [34]

1.4　对空气阴极传质的研究

燃料电池空气阴极气体渗透性的变化会影响阴极的电极电位和极限电流密度，导致电池放电性能的减弱[38-39]。空气阴极的气体渗透性主要受微观结构的影响。电极可视化技术和计算机流体模拟相结合可以了解空气阴极微观结构和气体渗透性的关系。通过三维影像得到的微观数据和阴极气体渗透性结合可帮助研究人员提升电极性能。

Jiang 等人[40] 使用 X-ray CT 对 GDL 进行了表征，通过三维影像研究了燃料电池 GDL 的孔隙率、纤维直径和压降对阴极气体渗透率的影响，如图 5。结果表明，渗透率随孔隙率和纤维直径的增加而增大，当纤维直径大于 8 μm 时对渗透率的影响尤为明显，但当孔隙率足够大时纤维直径的变化对孔隙率几乎没有影响。压降仅改变 GDL 内气体的流速，对渗透率影响较小。

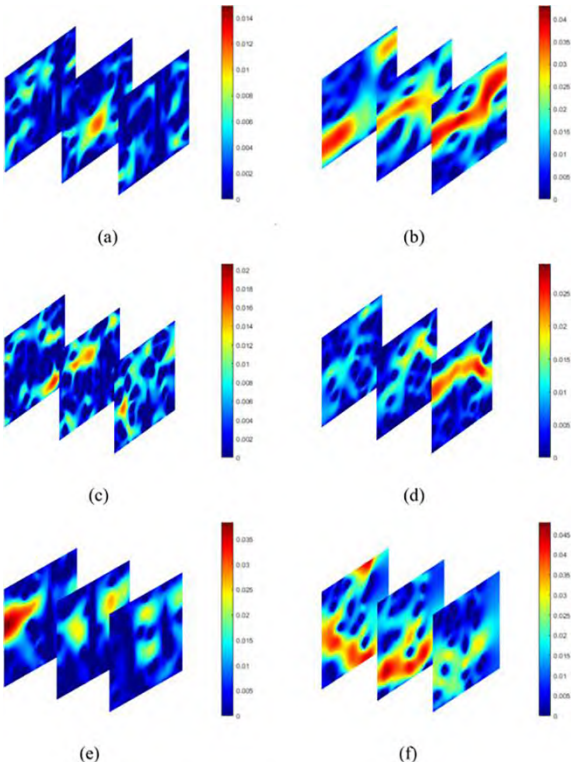

图 5　不同孔径和纤维直径的平面空气流速截面云图（a）孔隙度 = 0.7，直径 = 7 μm；（b）孔隙度 = 0.9，直径 = 7 μm；（c）孔隙度 = 0.7，直径 = 8 μm；（d）孔隙度 = 0.8，直径 = 8 μm；（e）孔隙度 = 0.8，直径 = 9 μm；（f）孔隙度 = 0.9，直径 = 9 μm[40]

Fig. 5 Plane air velocity cross-sectional nephograms for different pore sizes and fiber diameters (a) porosity = 0.7, diameter = 7 μm; (b) porosity = 0.9, diameter = 7 μm; (c) porosity = 0.7, diameter = 8 μm; (d) porosity = 0.8, diameter = 8 μm; (e) porosity = 0.8, diameter = 9 μm; (f) porosity = 0.9, diameter = 9 μm [40]

Liao 等人[41] 使用 X-ray CT 对 GDL 进行了表征，通过三维影像研究了燃料电池空气阴极 GDL 的纤维直径、孔隙度和厚度对传质的影响。结果表明，当纤维直径从 7 μm 增加到 9 μm 时，GDL 气体流速显著提高，但扩散特性基本不变。当孔隙率从 60% 提升到 80% 时，GDL 的气体流速与扩散特性都有明

显的改善。当厚度从 112 μm 增加到 280 μm 时，GDL 气体流速明显降低，但扩散特性变化不明显。

Shin 等人[42] 使用 FIB-SEM 对催化层进行了表征，通过三维影像研究了燃料电池空气阴极催化层的润湿性对传质的影响。结果表明，催化层的毛细压力随着孔隙的升高而降低，在相同毛细管压力下增湿的催化层的水饱和度更低。催化层的比表面积随着液态水饱和度的增加而减小。同时，在全部的水饱和度条件下增湿的催化层的活性比表面积都更小。随着水饱和度的增加，催化层的气相和液相渗透率均有所升高。但在相同水饱和度条件下，增湿催化层的渗透率更低。同时，电池的质子电导率随相对湿度的增加而增大，在低相对湿度和润湿催化层的条件下电池放电性能更好。

Inoue 等人[43] 使用 FIB-SEM 对催化层进行了表征，通过三维影像研究了燃料电池空气阴极催化层氧气传质系数较低的原因。结果表明，催化层炭黑的团聚和离聚物的不均匀包覆形成了孤立的大孔导致传质下降。同时，离聚物在相同曲率包覆下孔隙间相互不充分的连接导致催化层弯曲率偏大，最终导致催化层氧气传质系数降低。

2 结论

三维重构技术已经在揭示燃料电池空气阴极微观结构、内部物质分布和传质等方向为研究人员提供了重要的参考依据。但是在燃料电池研发过程中，空气阴极的三维重构仍然需要进一步完善，如更高分辨率空气阴极精细三维结构解析、多尺度元素分布表征、实际工况下空气阴极结构演变的原位在线分析等。三维重构技术除了可以表征燃料电池的空气阴极外，也可用于对其他电池/电堆、三维材料和器件等内部结构的影像重构，应用较为广泛。在未来，三维重构技术将为多领域、多方向提供重要的参考信息。

参考文献:

[1] Jiao K, Ni M. Challenges and opportunities in modelling of proton exchange membrane fuel cells (PEMFC) [J]. International Journal of Energy Research, 2017, 41(13): 1793-1797.

[2] Kiani M, Tian X Q, Zhang W. Non-precious metal electrocatalysts design for oxygen reduction reaction in polymer electrolyte membrane fuel cells: Recent advances, challenges and future perspectives [J]. Coordination Chemistry Reviews, 2021, 441: 213954.

[3] Han X, Li X, White J, et al. Metal-air batteries: From static to flow system [J]. Advanced Energy Materials, 2018, 8(27): 1801396.

[4] Han J, Park E. Direct methanol fuel-cell combined with a small back-up battery [J]. Journal of Power Soures, 2002, 112(2): 477-483.

[5] Moore R M, Hauer K H, Ramaswamy S, et al. Energy utilization and efficiency analysis for hydrogen fuel cell vehicles [J]. Journal of Power Sources, 2006, 159(2): 1214-1230.

[6] Zhang G, Xie B, Bao Z, et al. Multi-phase simulation of proton exchange membrane fuel cell with 3D fine mesh flow field [J]. International Journal of Energy Research, 2018, 42(15): 4697-4709.

[7] Pan J, Xu Y Y, Yang H, et al. Advanced architectures and relatives of air electrodes in Zn-air batteries [J]. Advanced Science, 2018, 5(4): 1700691.

[8] Antolini E, Salgado J R C, Giz M J, et al. Effects of geometric and electronic factors on ORR activity of carbon supported Pt-Co electrocatalysts in PEM fuel cells [J]. International Journal of Hydrogen Energy, 2005, 30(11): 1213-1220.

[9] Zhou K, Li T, Han Y, et al. Optimizing the hydrophobicity of GDL to improve the fuel cell performance [J]. RSC Advances, 2021, 11(4): 2010-2019.

[10] Chen Y, Tian T, Wan Z, et al. Influence of PTFE on water transport in gas diffusion layer of polymer electrolyte membrane fuel cell [J]. International Journal of Electrochemical Science, 2018, 13(4): 3827-3842.

[11] Xu K, Loh A, Wang B, et al. Enhancement of oxygen transfer by design nickel foam electrode for Zinc-air battery [J]. Journal of The Electrochemical Society, 2018, 165(5): 809-818.

[12] Suter T A M, Smith K, Hack J, et al. Engineering catalyst layers for next generation polymer electrolyte fuel cells: A review of design, materials, and methods [J]. Advanced Energy Materials, 2021, 11(37): 2101025.

[13] Litster S, Epting W K, Wargo E A, et al. Morphological analyses of polymer electrolyte fuel cell electrodes with nano-scale computed tomography imaging [J]. Fuel Cells, 2013, 13(5): 935-945.

[14] Huang L, Zang W, Ma Y, et al. In-situ formation of isolated iron sites coordinated on nitrogen-doped carbon coa-

ted carbon cloth as self-supporting electrode for flexible aluminum-air battery [J]. Chemical Engineering Journal, 2021, 421: 129973.

[15] Molaeimanesh G R, Akbari M H. A three-dimensional pore-scale model of the cathode electrode in polymer-electrolyte membrane fuel cell by lattice Boltzmann method [J]. Journal of Power Sources, 2014, 258: 89-97.

[16] Zenyuk I V. Bridging X-ray computed tomography and computational modeling for electrochemical energy-conversion and storage [J]. Current Opinion in Electrochemistry, 2019, 13: 78-85.

[17] Nan N, Wang J. FIB-SEM three-dimensional tomography for characterization of carbon-based materials [J]. Advances in Materials Science and Engineering, 2019: 8680715.

[18] Franzen D, Ellendorff B, Paulisch M C, et al. Influence of binder content in silver-based gas diffusion electrodes on pore system and electrochemical performance [J]. Journal of Applied Electrochemistry, 2019, 49(7): 705-713.

[19] Xu K, Song J, Song P, et al. Performance decay of air electrode configuration for rechargeable Zinc-air batteries [J]. Journal of The Electrochemical Society, 2020, 167(13): 130501.

[20] Selvarani G, Sahu A K, Sridhar P, et al. Effect of diffusion-layer porosity on the performance of polymer electrolyte fuel cells [J]. Journal of Applied Electrochemistry, 2007, 38(3): 357-362.

[21] Zhang H, Zhu L, Harandi H B, et al. Microstructure reconstruction of the gas diffusion layer and analyses of the anisotropic transport properties [J]. Energy Conversion and Management, 2021, 241: 114293.

[22] Xin X, Sikan P, Shanfu L, et al. Modulation of the microstructure of the Ag/C-based alkaline cathode via the ionomer content for a bipolar membrane fuel cell [J]. Journal of Power Sources, 2017, 354: 92-99.

[23] Cetinbas F C, Ahluwalia R K, Kariuki N N, et al. Agglomerates in polymer electrolyte fuel cell electrodes: Part I. structural characterization [J]. Journal of The Electrochemical Society, 2018, 165(13): 1051-1058.

[24] Park K, Ohnishi T, Goto M, et al. Improvement of cell performance in catalyst layers with silica-coated Pt/carbon catalysts for polymer electrolyte fuel cells [J]. International Journal of Hydrogen Energy, 2020, 45(3): 1867-1877.

[25] Thiele S, Fürstenhaupt T, Banham D, et al. Multiscale tomography of nanoporous carbon-supported noble metal catalyst layers [J]. Journal of Power Sources, 2013, 228: 185-192.

[26] Kotaka T, Tabuchi Y, Pasaogullari U, et al. The influence of liquid water interaction between channel, GDL and CL on cell performance [J]. The Electrochemical Society, 2013, 58(1): 1033-1046.

[27] Afra M, Nazari M, Kayhani M H, et al. 3D experimental visualization of water flooding in proton exchange membrane fuel cells [J]. Energy, 2019, 175: 967-977.

[28] Satjaritanun P, Hirano S, Shum A D, et al. Fundamental understanding of water movement in gas diffusion layer under different arrangements using combination of direct modeling and experimental visualization [J]. Journal of The Electrochemical Society, 2018, 165(13): 1115-1126.

[29] Liu C P, Saha P, Huang Y, et al. Measurement of contact angles at carbon fiber-water-air triple-phase boundaries inside gas diffusion layers using X-ray computed tomography [J]. ACS Applied Materials Interfaces, 2021, 13(17): 20002-20013.

[30] Xu H, Nagashima S, Nguyen H P, et al. Temperature dependent water transport mechanism in gas diffusion layers revealed by subsecond operando X-ray tomographic microscopy [J]. Journal of Power Sources, 2021, 490: 229492.

[31] Pournemat A, Wilhelm F, Haußmann J, et al. A steady-state monte carlo study on the effect of structural and operating parameters on liquid water distribution within the microporous layers and the catalyst layers of PEM fuel cells [J]. Journal of The Electrochemical Society, 2018, 165(13): 1092-1097.

[32] White R T, Ramani D, Eberhardt S, et al. Correlative X-ray tomographic imaging of catalyst layer degradation in fuel cell [J]. Journal of The Electrochemical Society, 2019, 166(13): 914-925.

[33] Zhong D, Lin R, Jiang Z, et al. Low temperature durability and consistency analysis of proton exchange membrane fuel cell stack based on comprehensive characterizations [J]. Applied Energy, 2020, 264: 114626.

[34] Matsui H, Ishiguro N, Uruga T, et al. Operando 3D visualization of migration and degradation of a platinum cathode catalyst in a polymer electrolyte fuel cell [J]. Angewandte Chemie International Edition, 2017, 56(32): 9371-9375.

[35] Schulenburg H, Schwanitz B, Linse N, et al. 3D imaging of catalyst support corrosion in polymer electrolyte fuel cells [J]. The Journal of Physical Chemistry, 2011, 115(29):

14236-14243.

[36] Ghosh S, Ohashi H, Tabata H, et al. In-plane and through-plane non-uniform carbon corrosion of polymer electrolyte fuel cell cathode catalyst layer during extended potential cycles [J]. Journal of Power Sources, 2017, 362: 291-298.

[37] Star A G, Fuller T F. FIB-SEM tomography connects microstructure to corrosion-induced performance loss in PEMFC cathodes [J]. Journal of The Electrochemical Society, 2017, 164(9): 901-907.

[38] Wang Y, Wang S, Liu S, et al. Three-dimensional simulation of a PEM fuel cell with experimentally measured through-plane gas effective diffusivity considering Knudsen diffusion and the liquid water effect in porous electrodes [J]. Electrochimica Acta, 2019, 318: 770-782.

[39] Bautista M, Bultel Y, Ozil P. Polymer electrolyte membrane fuel cell modelling [J]. Chemical Engineering Research and Design, 2004, 82(7): 907-917.

[40] Jiang Z, Yang G, Li S, et al. Study of the anisotropic permeability of proton exchange membrane fuel cell gas diffusion layer by lattice Boltzmann method [J]. Computational Materials Science, 2021, 190: 110286.

[41] Liao J, Yang G, Li S, et al. Effect of structural parameters on mass transfer characteristics in the gas diffusion layer of proton exchange membrane fuel cells using the lattice boltzmann method [J]. Energy & Fuels, 2021, 35(3): 2654-2664.

[42] Shin S, Maiyalagan T, Jothi V R, et al. Numerical analysis on transport properties of self-humidifying dual catalyst layer via 3-D reconstruction technique [J]. International Journal of Hydrogen Energy, 2021, 46(27): 14639-14650.

[43] Inoue G, Kawase M. Effect of porous structure of catalyst layer on effective oxygen diffusion coefficient in polymer electrolyte fuel cell [J]. Journal of Power Sources, 2016, 327: 1-10.