固体高分子形燃料電池用ガス拡散層の液水制御* (X線ラジオグラフィ可視化法による新構造マイクロ多孔質体の液水分布特性)

廣瀬 生典^{*1}, 宇高 義郎^{*2}, 田崎 豊^{*3}

Moisture Control in Gas Diffusion Layer of Polymer Electrolyte Fuel Cell (Characteristics of Water Distribution in New Type Microporous Media Applying X-Ray Radiography)

Ikunori HIROSE, Yoshio UTAKA^{*4} and Yutaka TASAKI

^{*4} Division of Systems Research, Yokohama National University,
79-5 Tokiwadai, Hodogaya, Yokohama-shi, Kanagawa, 240-8501 Japan

The mass transfer characteristics of gas diffusion layer (GDL) are closely related to cell performance in PEFC. In this study, the observation method of internal water distribution in microporous media for GDL by using X-ray radiography was examined to elucidate the enhancement mechanisms of oxygen diffusivity of new type microporous media shown in the previous report. It was shown that the distinction between the areas of void and water in microporous media was possible by using X-ray computer tomography. Further, the water distributions in the structure of new type microporous media, in which two kinds of porous media having different wettability are arranged alternately (Hybrid type GDL), was visualized and the mechanism of high oxygen diffusivity of Hybrid structure of microporous media was clarified.

Key Words: Mass Transfer, Oxygen Diffusivity, Microporous Media, Wettability, Galvanic Battery, Gas Diffusion Layer, X-Ray Radiography, Polymer Electrolyte Fuel Cell

1. はじめに

固体高分子型燃料電池(Polymer Electrolyte Fuel Cell, PEFC)は、高効率で環境への負荷が少ない動力源として、自動車や家庭用コージェネレーションなどへの利用が進められている。図1に示すように、PEFCのセル内部は、膜電極接合体(MEA)と呼ばれる、プロトンを受け渡す役割を持つイオン交換性高分子膜(PEM)を電解質とし、その両端に触媒層(CL)、多孔質ガス拡散層(GDL)を挟みつけた構造からなっている。アノード側では水素が電子を放出する酸化反応が起き、カソード側において、酸素とプロトン(H⁺)が水を生成する還元反応が起きる。GDLは、触媒層からの電子を運ぶ電極として、また反応熱をセパレータへ放熱する役割を持ち、特にカソード側では、生成水をガス流路側へ排出し、かつ供給される反応ガスを逆方向に触媒層まで十分に拡散できる構造になっていることが必要

である。

PEFCの安定性および性能の向上にはセル内部の液水・湿分制御が重要であり、セルの構成要素のうち特にGDLの特性が大きく影響している。空気と比較して、水中の酸素の拡散抵抗は著しく大きく、過剰な液水はGDL内部の酸素の拡散経路を塞ぐことになる。したがって、GDL内部の液水の存在状態が酸素拡散現象を支配すると考えられる。例えば、GDL内に十分な割合の空隙が存在しても、図2に示すような酸素拡散方向に対して垂直方向に液水が広がるような分布形

Fig. 1 Schematic of PEFC

* 原稿受付 2009年8月18日。

^{*1} オリンパス(株) (☎ 192-8512 八王子市久保山町2-3)。

^{*2} 正員, フェロー, 横浜国立大学大学院工学研究院 (☎ 240-8501 横浜市保土ヶ谷区常盤台79-5)。

^{*3} 正員, 日産自動車(株)総合研究所 (☎ 237-8523 横須賀市夏島町1-1)。

E-mail: utaka@ynu.ac.jp

態をとる場合には、酸素の拡散抵抗は非常に大きい。したがって、このような液水分布では発電反応に必要な酸素が供給されにくく、セル出力の低下を招くことになるため、過剰な液水を除去する必要がある。一方、プロトンが高分子電解質膜(PEM)内で水和した状態で存在することによって、プロトンのアノードからカソード側への移動を実現しているため、PEMには湿分が必要であり、反応ガスは加湿状態で供給される。

以上のように、液水を除去してカソード側触媒層への酸素拡散を保持する一方で、適度にセル内の湿分を保つことも必要とされるため、PEFCにおいては液水および湿分の制御が重要となる。

PEFCにおいて重要な役割を担うGDLにおける液水挙動の特性に関して近年活発に研究が遂行されてきている。例えば、Grauら⁽¹⁾によりGDL材質の撥水性の効果、Narhe and Beysens⁽²⁾によるGDL表面の接触角の影響、あるいはYamadaら⁽³⁾により、圧力損失を計測することでフラッディングを予測できる可能性を実験的に示した。またBenzigerら⁽⁴⁾は2種類の異なる空隙率の材質の組み合わせが水の排出に有効であること、Parら⁽⁵⁾は2種類の空隙寸法を検討し、触媒層からの水分排出が難しいことを示した。また、著者らの一部は、ガルバニ電池式酸素吸収体を用いるGDL多孔体の酸素拡散特性の測定法の開発⁽⁶⁾、さらに、液水存在下におけるGDL多孔質体の酸素拡散特性の測定法の提案⁽⁷⁾を行い、その特性について検討した。一方最近、中性子線ラジオグラフィ、X線ラジオグラフィ⁽⁸⁾、蛍光顕微鏡⁽⁹⁾などの手法を用いてGDL多孔体内の液水の可視化解析が進められてきている。これまでの研究の多くにおいては、通常用いられているGDL内の液水分布に関する実験解析を中心に進められてきている。しかし、さらに高性能なGDLを実現するための特別な構造の工夫による液水制御機能の向上などに関する研究が今後必要であると考えられる。

前報⁽¹⁰⁾では、燃料電池性能向上のためのGDL内液水挙動を実現する目的で新たに考案した、ぬれ部と非ぬれ部を交互に配置するぬれ性分布を利用する新形式の

Fig. 2 Diffusion of Oxygen in GDL with water

GDL構造(Hybrid構造)を検討した。その結果、多孔体試料内部に液水が存在した状態でも、酸素拡散に有効であることを実験的に示した。それはHybrid構造多孔体による酸素拡散のための経路の創成・保持により実現されることが考えられた。

以上のようなGDLの高機能化のためには、多孔質体試料内の液水の挙動と酸素拡散特性との関係を実際に明らかにすることが重要である。本研究では、X線CTを用いた液水可視化手法により多孔体内の液水を視覚的にとらえ、Hybrid構造試料における実際の液水移動・分布現象を明らかにする。その結果に基づいてHybrid構造の高性能な酸素拡散特性についてさらに検討することを目的とする。

2. 新形式 GDL 構造と前報の結果の概要

図3に、前報⁽¹⁰⁾で検討したぬれ性分布を利用して酸素拡散経路を保つHybrid構造多孔体とその原理を示す。親水部と撥水部が互いに接するように交互に並列させた構造により、触媒層で生成され多孔体内に送られた撥水部と親水部にまたがる液水は、ぬれ性の違いにより多孔体構造材への接触角が異なり、撥水部の液水は親水部へすばやく引き込まれ、撥水部に空隙が形成される。その結果として、内部に液水が存在しても、ぬれ性の境界の撥水部側に酸素拡散経路が確保される効果が期待される。この液水分布は本来相反する液水保持と酸素拡散の両者を実現できるという点で、1章で述べたようなセル全体の液水・湿分制御にとって望

Fig. 3 Configuration and principle of Hybrid GDL

ましい特性を有していると考えられる。前報⁽¹⁰⁾において、その Hybrid 構造試料の液水存在状態での酸素拡散特性の向上効果を、改良型ガルバニ電池式酸素濃度センサを酸素吸収体として利用した酸素拡散係数測定実験で検証した。Hybrid 構造の含水条件での酸素拡散特性評価に用いた試料の構造を図4に示した。構造の詳細については後述する。図5に、代表的な結果として、ぬれ性を有するカーボンペーパー（図中のCP_w）と撥水性のPTFE 繊維（PTFE）を交互に配置した Hybrid 構造（表2の①CP_w-PTFE）における場合を示した。実験条件等の詳細については後述する。含水状態での酸素拡散係数 D [m²/s] をドライ状態の酸素拡散係数 D_{dry} [m²/s] で規格化した値 $R_D = D/D_{dry}$ の含水率 S_a [%] に対する変化を表している。CP_w と PTFE の厚さは0.38 mm および0.45 mm である。Hybrid 構造および Single 構造ともに、含水率の低下にともなって空隙が増加し酸素拡散の経路が増大するため、定性的には R_D 値が上昇していく傾向を示している。しかし、その値には大きな差異が見られ、液水存在下の Hybrid 構造試料の酸素拡散特性は、従来の一様なぬれ性をもつ Single 構造試

料と比べて、飛躍的に高い酸素拡散係数を示していることがわかる。例えば含水率20%付近では、酸素拡散係数値は Single 構造の3倍程度に達した。さらに、Hybrid 構造の親水部と撥水部のピッチの酸素拡散特性への影響を検討し、ピッチが小さい場合において、同条件で5倍程度になるなど、より良好な酸素拡散特性を有することを示した。したがって、Hybrid 構造の適用は、PEFC のカソード側 GDL の酸素拡散に対してより有効な特性を有することがわかる。これは Hybrid 構造の目的としている、親水部の撥水部から液水引き寄せにより撥水部に優先的に空隙が形成される効果により、空隙が連続した酸素拡散経路が生まれるためであると考えられる。しかし、実際には液水の可視化により実際の液水分布の検証が必要である。

3 多孔体試料およびX線可視化実験装置・方法

3.1 Hybrid構造試料 図4に示した Hybrid 構造試料は、それぞれ多孔体構造をもった撥水材料と親水材料が密着して交互に並んだ構造になっており、それらが外径5 mm、肉厚 $t = 0.16$ mm のポリプロピレン製リングに入っている。試料外周のリングとの隙間はファイラーで埋められている。表1に本測定に用いた多孔体試料の性質をまとめた。ここで、撥水材料としては、PTFE 樹脂繊維を多孔質シート状に加工したもの（PTFE）、および実際の GDL 材料であるカーボンペーパー基材に PTFE 含浸撥水処理を施したもの（CP_{NW}）を用いている。親水材料には、同じく GDL 材料であるカーボンペーパー基材に酸化チタンコーティングによる親水処理を施したもの（CP_w）、および木材を由来とする吸水ペーパー（WP）を用いた。

表2に単体試料を組み合わせた Hybrid 構造試料それぞれにおける条件を示した。表1に示した各多孔質材料から3通りの Hybrid 構造、①CP_w-PTFE、②CP_w-CP_{NW} および③WP-PTFE を作成した。ここで、 $(f_w)_w$ と $(f_w)_w$ は、それぞれ乾燥状態におけるぬれ性部の全体に対する空隙割合および拡散コンダクタンス割合を示している。なお単体試料の拡散係数は別に測定した。それら3通りの Hybrid 構造の組み合わせの特徴は次の通りである。組み合わせ① CP_w-PTFE は親水部に親水処理したカーボンペーパーを、撥水部に PTFE を用いた組み合わせであり、図5に示したように Hybrid 構造の最も典型的と考えられる特性が表れた。図5の t_w 、 t_{nw} はそれぞれぬれ部と非ぬれ部の厚さを表す。② CP_w-CP_{NW} には①における撥水部をカーボンペーパーに換え、同一基材でぬれ性のみ変化させた。③WP-PTFE の組み合わせでは、両材料ともに表面処理を施

Fig. 4 Test piece of Hybrid GDL

Fig. 5 Relation between relative diffusion coefficient and saturation for Hybrid ①CP_w-PTFE

Table 1 Specification of test porous materials

Materials	Notation	Diameter μm	Pore Diameter μm	Porosity	Thickness mm	Density g/cm^3
PTFE porous media	PTFE	35	35.2	66%	0.45	0.8
Carbon paper(Non-wettable)	CP _{NW}	14	32	70%	0.38	0.48
Carbon paper(Wettable)	CP _W	14	32	70%	0.38	0.47
Wettable paper	WP	6	—	80%	0.12	0.32

Table 2 Experimental conditions

Combination	Type	t_w mm	t_{NW} mm	$(f_p)_w$	$(f_D)_w$	CT
①CP _W -PTFE	Single	CP _W	Wettable			
		PTFE	Non-Wettable			
	Hybrid	0.38	0.45	0.47	0.45	
②CP _W -CP _{NW}	Single	CP _W	Wettable			
		CP _{NW}	Non-Wettable			○
	Hybrid	0.38 0.76	0.38 0.76	0.5 0.5	0.51 0.51	○
③WP-PTFE	Single	WP	Wettable			
		PTFE	Non-Wettable			
	Hybrid	0.12	0.13	0.51	0.53	
		0.36 0.96	0.45 0.9	0.49 0.56	0.47 0.54	○

していない。試料厚さを変化させ、3種類の組み合わせの酸素拡散測定を行った。組み合わせ①～③のいずれにおいても、それぞれ親水部と撥水部のピッチを変化させているが、その際に親水部と撥水部の酸素拡散コンダクタンス割合と空隙割合のどちらもほぼ1:1になるように条件を設定した。また、比較のため、撥水および親水材料単体 (Single 構造) で同じ構造の試料についても測定した。

3.2 X線CT撮影による液水分布の可視化

X線による多孔体試料内部の可視化には、マイクロフォーカスX線CTシステムを使用した。含水状態の試料をホルダに取り付け、液水の蒸発過程での内部の液水挙動と空隙形成の様子を観察した。図6はX線CT撮影装置の構成を示している。X線は線源からコーン状に広がりを持って照射され、観察試料を透過、減衰して検出器に達する。撮影ではスライス断面のCT画像として内部の様子を観察・撮影することができる。図中のSODおよびSIDを調整して最適画像を得るようにした。CT撮影用のホルダにHybrid構造試料を取り付けた状態を図7に示す。ホルダはX線を透過しやすいアクリル性で、透過厚さは0.1mm×2であるため、ほとんど測定試料に対して妨げとはならず十分な透過量が期待できる。試料自体にも肉厚0.16mmのポリプロピレン製リング、シリコン系のフィラーを多孔体隣接部に用いたが、これらの材質のX線透過は比較的良好であり、X線の減衰は特に問題とはならなかった。

Fig. 6 Configuration of X-ray CT system

Fig. 7 Arrangement of test materials

試料内部への液水充填には、試料を純水中に完全に浸した状態で密閉容器に入れ、その密閉容器を真空引きすることで含水を行う真空含浸法を用いた。以上の Hybrid 多孔体それぞれの組み合わせごとに含水状態から、ゆっくりと乾燥させてゆく準定常的な過程を実現し、X線 CT 撮影を行った。

4 X線CTによる液水可視化実験結果および考察

本報ではX線 CT 撮影による可視化結果を、前報⁽¹⁰⁾の酸素拡散係数測定実験の結果と合わせて示す。酸素拡散係数の測定には、宇高ら^{(6),(7)}が開発したガルバニ電池酸素吸収体による測定装置を用いた。表2に実験条件を示した。今回X線 CT 撮影を行った条件について最右欄に丸印を付した。すなわち、②の Hybrid 構造と、前報⁽¹⁰⁾で特異な性質が現れた CP_{NW} の Single 構造について可視化を行った。さらに、組み合わせ③の、3種類のピッチが異なる Hybrid 構造のうち、最大ピッチの条件について行った。

4.1 組み合わせ② CP_W - CP_{NW} 図8に組み合わせ② CP_W - CP_{NW} の含水率に対する酸素拡散係数測定結果を示す。組み合わせ①と同様に Hybrid と Single とともに含水率の低下により非線形的に R_D 値が上昇し、Hybrid 構造では Single 構造と比較して無次元酸素拡散係数 R_D が増大した。また、この組み合わせについて Single の CP_{NW} で Hybrid ほどではないが、比較的大きい酸素拡散係数が測定されている。

図9に、② CP_W - CP_{NW} における液水飽和状態 ($S_a = 100\%$) とドライ状態 ($S_a = 0\%$) の CT 撮影画像を示す。図9の上側の画像において、紙面の上から下方向が酸素拡散方向である。画像にはホルダや試料のまわりのリング、フィラーも同時に写っている。図9の下側の画像がその面に垂直な実線部の断面である。図

9(b)のドライ状態で中央部の比較的暗く写っている部分が観察対象の多孔体である。多孔体部分の比較的白く見える部分がカーボン繊維を、暗い部分が空隙を表している。図9(a)のウェット状態では、多孔体部分が全体的に白っぽくなり、空隙が液水に変わることによって変化することが分かる。したがって、液水およびカーボン繊維部は比較的明るく、空隙は暗くみえることによって、液水が満たされた部分と空隙が多い部分とを判別することが可能である。この際にカーボン繊維と液水を判別することは困難であるが、ドライ状態との比較により空隙の形成を定性的に判断することが可能である。

次に、図10に Hybrid 構造のぬれ部と非ぬれ部の厚さ t_W と t_{NW} の等しい $t_W = t_{NW} = 0.38\text{ mm}$ の条件のウェット状態からの乾燥過程における CT 画像を示す。図10(a)の CT 画像から、ぬれ性の境界部分から空隙が形成されはじめ図10(b)において液水が集中している親水部が白く、優先的に空隙が形成された撥水部が暗く写って縞模様状にはっきりと液水が分布していること

(a) Wet ($S_a = 100\%$) (b) Dry ($S_a = 0\%$)

Fig. 9 X-ray CT image for Hybrid ② CP_W - CP_{NW}

Fig. 8 Relation between relative diffusion coefficient and saturation for Hybrid ② CP_W - CP_{NW}

(a) (b)

Fig. 10 X-ray CT image for Hybrid ② CP_W - CP_{NW}

が分かる。なお図 10(a)から(b)へと空隙が多い状態へ移行している。したがって、液水部分と空隙部分の二極集中がみてとれ、また酸素拡散方向に連続して貫通する空隙経路が形成されている様子が分かる。これは Hybrid 構造の目的である液水を保持しながら良好な酸素拡散を行うために適切な液水分布であり、酸素拡散係数測定実験における Hybrid 構造の高い酸素拡散係数特性を裏付けるものといえる。

図 11 に撥水性材料を重ねた CP_{NW} の Single 構造の CT 画像を示す。写真中の実線は断面位置を示している。なお図 11 の (a)から(d)へと空隙が多い乾燥状態へ移行している。各撥水部で特に偏った液水分布はみられないが、基材同士の接触面から優先的に空隙が形成され、その後厚さ方向に空隙の形成が進む様子がみられた。酸素拡散係数測定実験において CP_{NW} Single は Hybrid には及ばないものの高い酸素拡散係数を示したが、それはこの特異な液水分布に起因すると考えられる。その原因は前報⁽¹⁰⁾でも述べた通り、PTFE 含浸による撥水処理の強さが基材内部と表面部で異なり、勾配を有している可能性が考えられる。この場合液水

Fig. 11 X-ray CT image for CP_{NW} Single

は撥水性が強い基材表面部分から基材内部へ引き寄せられるように移動し、Hybrid 構造を適用した場合と類似の液水分布が生じる可能性がある。対照的に、表面処理を施しておらず、一様なぬれ性をもつと考えられる PTFE の Single ではこのような傾向は示していない。

4.2 組み合わせ③WP-PTFE 図 12 に組み合わせ③WP-PTFE の含水率に対する酸素拡散係数測定結果を示す。この場合も前述の組み合わせと同様に平均含水率の低下に伴う R_D 値の上昇、Single 構造と比較した場合の Hybrid 構造のより良好な酸素拡散特性がみられた。この組み合わせでは親水部と撥水部のピッチを 3 通りに変化させて実験を行った。ピッチが小さくなるほど同じ含水率での R_D 値は高くより良好な酸素拡散特性を示す結果が得られている。

ピッチが $t_W = 0.96$ mm, $t_{NW} = 0.9$ mm と最も大きい条件について、X 線 CT 撮影を行った結果を図 13 に示す。この試料は中央と両端に撥水部の PTFE が 3 層、親水部の WP が 2 層並んだ構造となっておりその様子が画像から確認できる。また、撥水部は 1 ピッチにつき基材の PTFE が 2 枚、親水部は WP が 3 枚重ねられている。写真(a)および(d)は飽和度がそれぞれ 100 および 0%を、また(b)および(c)は乾燥途中の状態を示している。また、写真(e)は(c)における中央部右側のぬれ性境界部を拡大したもので、下側が WP、上側が PTFE を示している。写真(e)に見られるように、境界部のぬれ側に密着して非ぬれ側に優先的に暗く写されている空隙が形成されていることが分かる。それらの空隙が立体的に内部につながって形成されているものと考えられる。このように境界部から優先的に空隙が形成されることが、ピッチが小さい条件になるほど良好な酸素拡散特性を示した理由の一つであると考えられる。

Fig. 12 Relation between relative diffusion coefficient and saturation for Hybrid ③WP-PTFE

また前述したように、撥水部には PTFE が 2 枚入っており、液水が残っている中央部分は 2 枚の接触部である。基材の接触部に液水が残留する現象は CP_{NW} Single と対照的であり、これは PTFE が後処理による撥水性ではなく材料本来の撥水性を一様に持っているためで

Fig. 13 X-ray CT images for Hybrid ③WP-PTFE

Fig. 14 Vaporization characteristics of each test material

あると考えられる。親水部に注目してみるとウェット状態とドライ状態で液水の有無による色の濃淡変化はみられるもののドライ状態で空隙と繊維を見分けることは困難である。しかし WP が 3 枚入っていることによる境界部分の確認は可能であり、親水性の WP が液を引き込むことで親水部内においてこの部分が優先的に空隙となることが考えられる。これが図 12 で WP Single の酸素拡散係数が高い原因であると考えられる。

4.3 各材料の水分蒸発速度 試料に用いた多孔体の含水状態からの水分蒸発速度を測定した。試料の酸素拡散方向は、Hybrid の異なるぬれ性試料のあわせ面に平行な方向であるが、水分の蒸発もこの方向に進むと考えられる。したがって、酸素拡散係数測定実験と同様に片面から蒸発が進むように、表 1 に示した全ての多孔体試料を同時に並列し、経過時間と質量を測定することにより蒸発速度を測定した。このようにすることで、全ての試料について等しい条件を設定した。各試料の含水した状態からの液水の蒸発速度を図 14 に示した。横軸は経過時間、縦軸は蒸発した液水の単位蒸発面積あたりの質量である。CP_{NW} の蒸発速度が他と比較して若干速いものの、試料によってほとんど差異がないことがわかる。X 線可視化により撥水部から優先的に空隙が形成されることが確認されたが、これが蒸発速度の差ではなく、Hybrid 構造による親水部への引き込みによって起きている現象であることが確認される。

5 結 論

本研究では、親水部と撥水部が互いに接するように交互に並列させるぬれ性分布を利用して、酸素拡散の向上を目的とする新しい GDL 構造 (Hybrid 構造) を提案し、その効果を、X 線ラジオグラフィを用いた可視化により、前報に示した改良型ガルバニ電池式酸素濃度センサを酸素吸収体として用いた酸素拡散係数測定実験と対比することにより検証した。具体的には、

- (1) Hybrid 構造を適用した含水状態の微細多孔体内において、撥水部から親水部への液水移動により、ぬれ性境界部から撥水部内への空隙形成がなされ酸素拡散経路が確保されることを、X 線 CT による液水分布の可視化により示した。そのことから、Hybrid 構造多孔体による酸素拡散特性の向上は、液水移動による液水分布の偏りの実現によることが確かめられた。
- (2) Hybrid 構造においては、境界部のぬれ側に密着して非ぬれ側に優先的に空隙が形成されることから、相対的に境界部の密度が高くなる小さなピッ

チ条件ほど良好な酸素拡散特性を示した理由の一つであると推測された。

本研究のX線計測に元横浜国立大学大学院学生岩崎大剛君および大平彬君の協力を得た。また、本研究の一部に、日本学術振興会科学研究費補助金（基盤研究(B)20360096）および新エネルギー・産業技術総合研究機構「固体高分子形燃料電池実用化戦略的技術開発／次世代技術開発」の援助を受けた。ここに記して、謝意を表す。

文 献

- (1) Gurau, V., Bluemle, M.J., De Castro, E.S., Tsou, Y.-M., Mann, A. Jr., and Zawadzinski, T.A. Jr., Characterization of Transport Properties in Gas Diffusion Layers for Proton Exchange Membrane Fuel Cells. I. Wettability (Internal Contact Angle to Water and Surface Energy of GDL Fibers), *Journal of Power Sources*, Vol.160 (2006), pp.1156-1162.
- (2) Narhe, R. D. and Beysens, D. A. Water condensation on a super-hydrophobic pike surface. *Eurphysics Letters*, Vol.75, No.1 (2006), p.98.
- (3) Yamada, H., Hatanaka, T., Murata, H., and Morimoto, Y., Measurement of Flooding in Gas Diffusion Layers of Polymer Electrolyte Fuel Cells with Conventional Flow Fields, *Journal of The Electrochemical Society*, Vol.159 (2006), pp. A1748-A1754.
- (4) Benziger, J., Nehlsen, J., Blackwell, D., Brennan, T. and Itescu, J., Water Flow in the Gas Diffusion Layers of PEM Fuel Cells, *Journal of Membrane Science*, Vol.261 (2005), pp. 98-108.
- (5) Par, G.-G., Sohn, Y.-J., Yang, T.-H., Yoon, Y.-G., Lee, W.-Y., and Kim, C.-S. Effect of PTFE Content in the Gas Diffusion Media on the Performance of PEMFC, *Journal of Power Sources*, Vol.31, (2004), pp.182-187.
- (6) Utaka, Y., Tasaki, Y., Wang, S., Ishiji, T. and Uchikoshi, S., Method of measuring oxygen diffusivity in microporous media, *International Journal of Heat and Mass Transfer*, Vol.52 (2009), pp.3685-3692.
- (7) Utaka, Y., Iwasaki, D., Tasaki, Y. and Wang, S., Measurement of Effective Oxygen Diffusivity in Micro Porous Media with Moisture, *Transactions of the Japan Society of Mechanical Engineers, Series B*, Vol.75, No.757 (2009), pp.1822-1829.
- (8) Sinha, P.K., Halleck, P. and Wang, C.-H., Qualification of Liquid Water Saturation in a PEM Fuel Cell Diffusion Medium Using X-ray Microtomography, *Electrochemical and Solid State Letters*, Vol.9, No.7, (2006), pp.A344-A348.
- (9) Lister, S., Sinton, D. and Djilali, N., Ex situ visualization of liquid water transport in PEM fuel cell gas diffusion layers, *Journal of Power Sources*, Vol.154, Issue 1, (2006) pp. 95-105.
- (10) Utaka, Y. and Hirose, I., Moisture Control in Gas Diffusion Layer of Polymer Electrolyte Fuel Cell (Configuration of GDL in Alternate Porous Layers of Different Wettability), *Transactions of the Japan Society of Mechanical Engineers*, Vol.76, No.762 (2010), pp.326-333.