



(19) 中華民國智慧財產局

(12) 發明說明書公告本

(11) 證書號數：TW I644478 B

(45) 公告日：中華民國 107 (2018) 年 12 月 11 日

(21) 申請案號：104105484

(22) 申請日：中華民國 104 (2015) 年 02 月 17 日

(51) Int. Cl. : **H01M4/96 (2006.01)****H01M4/88 (2006.01)****H01M8/02 (2016.01)**

(30) 優先權：2014/02/24 日本

2014-032830

(71) 申請人：日商東麗股份有限公司 (日本) TORAY INDUSTRIES, INC. (JP)

日本

(72) 發明人：宇都宮將道 UTSUNOMIYA, MASAMICHI (JP)；谷村寧昭 TANIMURA, YASUAKI (JP)；釜江俊也 KAMAE, TOSHIYA (JP)

(74) 代理人：丁國隆；黃政誠

(56) 參考文獻：

WO 2011/074327A1

Liquid-Water-Droplet Adhesion-Force Measurements on fresh and Aged Fuel-Cell Gas-Diffusion Layers; Journal of The Electrochemical Society, 159(5) B489-B496 (2012)。

審查人員：鐘文宏

申請專利範圍項數：16 項 圖式數：0 共 62 頁

(54) 名稱

氣體擴散電極基材、其製造方法及應用

(57) 摘要

一種氣體擴散電極基材，其係在電極基材的單面形成有由碳系填料與氟樹脂構成的微孔層之使用於燃料電池的氣體擴散電極基材，形成有微孔層的面之相反側的面之水的滑移角(slip angle)為 30 度以下、垂直面氣體穿透阻力為 15~190mmAq。

(以下記載為氾流(flooding));(2)當使固體高分子型燃料電池在小於70℃的相對低溫且高電流密度區域運作時，大量產生的液態水導致隔離板的氣體流路(以下記載為流路)堵塞，燃料氣體的供給不足，結果產生發電性能瞬間性降低的問題(以下記載為阻塞(plugging))。為解決此等(1)、(2)的問題，已完成諸多組合。

【0004】專利文獻1中提案一種使微孔層的一部分滲入至電極基材內部的氣體擴散電極基材。根據使用此氣體擴散電極基材的燃料電池，由於隔離板側的氣體擴散電極基材表面呈平滑且具有高撥水性，液態水不易在流路中滯留，阻塞可獲改善。然而，由於電極基材內部的空隙率減少，而有氣體擴散性下降導致發電性能降低的問題。

【0005】專利文獻2中提案一種使用FEP作為電極基材之氟樹脂的氣體擴散電極基材。根據使用此氣體擴散電極基材的燃料電池，由於FEP被覆電極基材之碳纖維，因此隔離板側的氣體擴散電極基材表面具有高撥水性，液態水不易在流路中滯留，阻塞可獲改善。然而，因FEP被覆電極基材之碳纖維，而有隔離板與氣體擴散電極基材之界面阻力增大的問題。

【0006】專利文獻3中提案一種在電極基材的兩面使用形成有由碳黑、氟樹脂所構成之微孔層的氣體擴散電極基材的燃料電池。根據使用此氣體擴散電極基材的燃料電池，由於隔離板側的微孔層呈平滑且具有高撥水性，液態水不易在流路中滯留，阻塞可獲改善。然而，因隔離板側的微孔層導致從電極基材朝隔離板的排水受

阻，而有氾流顯著的問題。

【0007】雖已完成諸如此類之諸多組合，惟尚未發現可滿足作為耐氾流性、耐阻塞性優良，且機械特性、導電性、熱傳導性優異的氣體擴散電極基材者。

[先前技術文獻]

[專利文獻]

【0008】

專利文獻1:日本特開2008-127661號公報

專利文獻2:日本特開2006-120508號公報

專利文獻3:日本特開平9-245800號公報

【發明內容】

[發明欲解決之課題]

【0009】本發明之目的係鑒於所述習知技術的背景，而提供一種耐氾流性、耐阻塞性優良，在低溫下可展現高發電性能，甚而機械特性、導電性、熱傳導性優異的氣體擴散電極基材。

[解決課題之手段]

【0010】為解決所述課題，本發明之氣體擴散電極基材係採用如下手段。亦即，一種氣體擴散電極基材，其係在電極基材的單面形成有由碳系填料與氟樹脂構成的微孔層之使用於燃料電池的氣體擴散電極基材，形成有微孔層的面之相反側的面之水的滑移角(slip angle)為30度以下、垂直面氣體穿透阻力為15~190mmAq。

【0011】又，為解決所述課題，本發明之氣體擴散電極基材之製造方法係採用如下手段。亦即，一種氣體擴散電極基材之製造方法，其係前述之氣體擴散電極基

材之製造方法，係在厚度為 $160\mu\text{m}$ 以下之電極基材的單面，塗敷由碳系填料、氟樹脂及分散媒(dispersion medium)構成的碳塗液後，以10秒以上且短於5分鐘的時間水平地保持塗敷有碳塗液的氣體擴散電極基材，接著，在進行乾燥及燒結之際，在塗敷碳塗液之前未塗敷氟樹脂、或在塗敷氟樹脂後未進行燒結。

【0012】又，為解決所述課題，本發明之膜電極接合體係採用如下手段。亦即，一種膜電極接合體，其係在電解質膜的兩側具有觸媒層，進而在前述觸媒層的外側具有前述之氣體擴散電極基材、或以前述之製造方法所得到的氣體擴散電極基材。

【0013】再者，為解決所述課題，本發明之燃料電池係採用如下手段。亦即，一種燃料電池，其係在前述之膜電極接合體的兩側具有隔離板。

[發明之效果]

【0014】本發明之氣體擴散電極基材，由於氣體擴散電極基材之形成有微孔層的面之相反側的面之水的滑移角為 30 度以下，流經流路內的液態水不易受到氣體擴散電極基材的緩衝影響，耐阻塞性高。再者，本發明之氣體擴散電極基材，由於其垂直面氣體穿透阻力為 $15\sim 190\text{mmAq}$ ，故氣體擴散性高，當使用本發明之氣體擴散電極基材時，可展現高發電性能。電極基材由於可使用碳紙等，因此，本發明之氣體擴散電極基材的機械強度、導電性、熱傳導性亦良好。

【圖式簡單說明】

無。

【實施方式】

[實施發明之形態]

【0015】以往作為撥水性的指標，大多使用水的接觸角，在電極基材的單面形成有微孔層的氣體擴散電極基材，大致上，形成有微孔層的面之相反側的面之水的接觸角為140度以上；採用水的接觸角時無法看出撥水性的差異，但以水的滑移角測定時，便可看出氣體擴散電極基材的種類所產生的差異，本發明人利用此指標致力重複研究的結果，而達成本發明。

【0016】本發明之氣體擴散電極基材係在電極基材的單面形成有微孔層。

【0017】此外，本發明中，茲將僅由碳紙等構成而未設有微孔層的基材、或「氣體擴散電極基材」中的該部分稱為「電極基材」，將在電極基材設有微孔層的基材稱為「氣體擴散電極基材」。

【0018】以下，針對各要素加以說明。

【0019】本發明之電極基材需有用以將所供給的氣體自隔離板朝觸媒擴散之較高的面內方向之氣體擴散性及垂直面方向之氣體擴散性、用以將伴隨電化學反應而產生的液態水朝隔離板排出之高排水性、用以取出所產生的電流之高導電性。此外，所稱「垂直面方向」，係意指與基材面正交的方向。

【0020】因此，作為電極基材，較佳使用碳纖維織物、碳纖維不織布、碳纖維抄紙體等含有碳纖維的多孔體、或發泡燒結金屬、金屬網、膨脹金屬等金屬多孔體，其中，若要耐腐蝕性優異，較佳使用含有碳纖維的多

孔體，再者，若要機械強度優異，較佳使用以碳化物結黏碳纖維抄紙體而成的基材，即「碳紙」。在本發明中，以碳化物黏結碳纖維抄紙體而成的基材，通常如後所述，係藉由將樹脂含浸於碳纖維的抄紙體中加以碳化而得。

【0021】關於碳纖維，可列舉聚丙烯腈(PAN)系、瀝青系及螺螄系等碳纖維。其中，基於機械強度優異觀點，宜在本發明中使用PAN系、瀝青系碳纖維。

【0022】本發明之碳纖維係以單纖維的平均直徑在 $3\mu\text{m}$ 以上為佳，更佳為 $5\mu\text{m}$ 以上。又，單纖維的平均直徑較佳為 $20\mu\text{m}$ 以下，更佳為 $10\mu\text{m}$ 以下。當平均直徑在 $3\mu\text{m}$ 以上時，細孔徑較大，排水性提高，可抑制汨流現象。另一方面，當平均直徑為 $20\mu\text{m}$ 以下時，水蒸氣擴散性變小，高溫下的發電性能提升。又，若使用具有不同平均直徑之2種以上的碳纖維，由於可提高電極基材的表面平滑性，因而較佳。

【0023】在此，碳纖維中的單纖維平均直徑，係藉由掃描式電子顯微鏡等的顯微鏡將碳纖維放大1000倍以上，以進行照相攝影，隨機選取30根不同的單纖維，測量其直徑，再求出其平均值者。關於掃描式電子顯微鏡，可採用日立製作所(股)製S-4800或與其同等的產品。

【0024】本發明中的碳纖維，其單纖維的平均長度較佳為 3mm 以上，更佳為 5mm 以上。又，單纖維的平均長度較佳為 20mm 以下，更佳為 15mm 以下。平均長度為 3mm 以上時，電極基材的機械強度、導電性、熱傳導性優良，因而較佳。另一方面，平均長度為 20mm 以下時

，抄紙之際的碳纖維的分散性優良，可獲得均質的電極基材，因而較佳。具此平均長度的碳纖維，可藉由將連續的碳纖維切成所欲之長度的方法等而得。

【0025】在此，碳纖維的平均長度，係藉由掃描式電子顯微鏡等的顯微鏡將碳纖維放大50倍以上，以進行照相攝影，隨機選取30根不同的單纖維，測量其長度，再求出其平均值者。關於掃描式電子顯微鏡，可採用日立製作所(股)製S-4800或與其同等的產品。此外，碳纖維中的單纖維的平均直徑及平均長度通常係針對作為原料的碳纖維直接觀察碳纖維來測量，但也可觀察電極基材來測量。

【0026】本發明中，電極基材的基重較佳為所謂 $50\text{g}/\text{m}^2$ 以下的低基重，更佳為 $45\text{g}/\text{m}^2$ 以下，再佳為 $40\text{g}/\text{m}^2$ 以下。又，電極基材的基重較佳為 $20\text{g}/\text{m}^2$ 以上，更佳為 $25\text{g}/\text{m}^2$ 以上，再佳為 $30\text{g}/\text{m}^2$ 以上。電極基材的基重若為 $20\text{g}/\text{m}^2$ 以上，構成電極基材之碳纖維的每單位面積的量更為合適，可進一步提升導電性，所得氣體擴散電極基材的導電性更高，在高溫、低溫任一情形下，均可進一步提升發電性能。又，電極基材的基重若為 $20\text{g}/\text{m}^2$ 以上，可進一步提升電極基材的機械強度，而更容易支持電解質膜、觸媒層。另一方面，電極基材的基重若為 $50\text{g}/\text{m}^2$ 以下，可進一步提升電極基材之垂直面方向的氣體擴散性，所得氣體擴散電極基材之垂直面方向的氣體擴散性更大，在高溫、低溫任一情形下，均可進一步提升發電性能。

【0027】具有所述基重的電極基材，可藉由在後述

的製法中控制預備含浸體中的碳纖維基重、樹脂成分相對於碳纖維的摻含量而得。此外，本發明中，將樹脂組成物含浸於含碳纖維的抄紙體中所構成者記載為「預備含浸體」。在此，藉由減少預備含浸體的碳纖維基重，可獲得低基重的基材，藉由增加碳纖維基重，可獲得高基重的基材。又，藉由減少樹脂成分相對於碳纖維的摻含量，可得到低基重的基材，藉由增加樹脂成分的摻含量，可得到高基重的基材。此外，本發明中，基重意指每單位面積的質量。

【0028】在此，電極基材的基重，係藉由將使用電子天秤所秤得之電極基材的質量，除以電極基材之XY面的面積而獲得。此外，在以下說明中，XY面係意指基材面。再者，亦可將電極基材自氣體擴散電極基材分離，並測量電極基材的基重。例如，可對氣體擴散電極基材在大氣中於600°C下加熱30分鐘，使氣體擴散電極基材中的微孔層所含之樹脂組成物氧化分解後，在乙醇等的溶劑中進行超音波處理藉以去除微孔層的殘渣後取出電極基材。

【0029】本發明中，氣體擴散電極基材的基重較佳為80g/m²以下，更佳為50g/m²以下。又，氣體擴散電極基材的基重較佳為30g/m²以上，更佳為35g/m²以上。在氣體擴散電極基材的基重小於30g/m²時，則會變成為構成氣體擴散電極基材之碳纖維、碳系填料的每單位面積的量較少、導電性低的氣體擴散電極基材，而在高溫、低溫任一狀態下，均有發電性能降低的情形。另一方面，在氣體擴散電極基材的基重大於80g/m²時，由於氣體

擴散電極基材之面內方向的氣體擴散性及垂直面方向的氣體擴散性均降低，在高溫、低溫任一狀態下，均有發電性能降低的情形。具此基重的氣體擴散電極基材，可藉由控制電極基材的基重與微孔層的基重而得。

【0030】在此，氣體擴散電極基材的基重，係藉由將使用電子天秤所秤得之氣體擴散電極基材的質量，除以氣體擴散電極基材之XY面的面積而獲得。

【0031】本發明中，電極基材內部的細孔徑較佳為 $30\mu\text{m}$ 以上，更佳為 $40\mu\text{m}$ 以上，再佳為 $50\mu\text{m}$ 以上。又，電極基材內部的細孔徑較佳為 $80\mu\text{m}$ 以下，更佳為 $75\mu\text{m}$ 以下，再佳為 $70\mu\text{m}$ 以下。細孔徑若為 $30\mu\text{m}$ 以上，可進一步提升排水性，而能夠進一步抑制汨流。細孔徑若為 $80\mu\text{m}$ 以下，則導電性更高，在高溫、低溫任一情形下，均可進一步提升發電性能。為設計成此細孔徑範圍，包含單纖維的平均直徑為 $3\mu\text{m}$ 以上 $8\mu\text{m}$ 以下的碳纖維、與單纖維的平均直徑大於 $8\mu\text{m}$ 的碳纖維兩者係屬有效。

【0032】此處，電極基材的細孔徑，係藉由水銀壓入法，求得在測定壓力 $6\text{kPa}\sim 414\text{MPa}$ (細孔徑 $30\text{nm}\sim 400\mu\text{m}$)的範圍所測得之細孔徑分布的波峰直徑。此外，出現複數個波峰時，係採用最高波峰的波峰直徑。關於測定裝置，可採用島津製作所公司製Auto Pore 9520或與其同等的產品。

【0033】本發明中，電極基材的厚度較佳為 $160\mu\text{m}$ 以下，更佳為 $140\mu\text{m}$ 以下，再佳為 $120\mu\text{m}$ 以下。又，電極基材的厚度較佳為 $50\mu\text{m}$ 以上，更佳為 $60\mu\text{m}$ 以上，再佳為 $70\mu\text{m}$ 以上。電極基材的厚度若為 $160\mu\text{m}$ 以下，由於排

水路徑縮短，可進一步提升排水性，而能夠進一步抑制汜流，且導電路徑縮短，可進一步提升導電性，在高溫、低溫任一情形下，均可進一步提升發電性能。另外，電極基材的厚度若為 $160\mu\text{m}$ 以下，將碳塗液塗敷於電極基材之際，由於碳塗液容易向塗敷碳塗液的面之相反側滲出，而能夠以碳塗液的塗敷步驟進行碳系填料向碳纖維上的附著，得以提升氣體擴散電極基材的生產性。另一方面，電極基材的厚度若為 $50\mu\text{m}$ 以上，由於面內方向的氣體擴散進一步提升，可更容易向位於隔離板之肋條下的觸媒供給氣體，因此，在高溫、低溫任一情形下，均可進一步提升發電性能。又，電極基材的厚度若為 $50\mu\text{m}$ 以上，可進一步提升電極基材的機械強度，而更容易支持電解質膜、觸媒層。

【0034】具此厚度的電極基材，可藉由在後述之製法中控制熱處理時的厚度而得。於此，電極基材的厚度可在以表面壓力 0.15MPa 加壓的狀態下，利用測微計求得。將10處之個別的測定值加以平均後之值視為其厚度。

【0035】再者，亦可將電極基材由氣體擴散電極基材分離，並測量電極基材的厚度。例如，可對氣體擴散電極基材在大氣中於 600°C 下加熱30分鐘，使氣體擴散電極基材中的微孔層所含之樹脂組成物氧化分解後，在乙醇等的溶劑中進行超音波處理藉以去除微孔層的殘渣後取出電極基材。

【0036】本發明所使用的電極基材，相對於前述電極基材之形成有微孔層之一側的表面粗糙度，其相反側的表面粗糙度較佳為具有高達 $1.0\mu\text{m}$ 以上的差，更佳為

2.0 μm 以上，再佳為2.5 μm 以上。在電極基材的表面/背面處，當表面粗糙度有一定的差時，將碳塗液塗敷於電極基材之際，由於碳塗液容易向塗敷碳塗液的面之相反側滲出，而能夠以碳塗液的塗敷步驟進行碳系填料向碳纖維上的附著，得以提升氣體擴散電極基材的生產性。另一方面，此表面粗糙度的差較佳為5.0 μm 以下，更佳為4.5 μm 以下，再佳為4.0 μm 以下。透過此表面粗糙度的差為5.0 μm 以下，可進一步提升電極基材的機械強度，而更容易支持電解質膜、觸媒層。此處，電極基材的表面粗糙度可藉由利用雷射顯微鏡等，在電極基材的表面對5mm見方的範圍進行測量，再進行面斜率校正後，求出表面的算術平均粗糙度(Ra)[μm]而得。

【0037】本發明中，氣體擴散電極基材的厚度較佳為190 μm 以下，更佳為170 μm 以下，再佳為150 μm 以下。又，氣體擴散電極基材的厚度較佳為70 μm 以上，更佳為80 μm 以上，再佳為90 μm 以上。氣體擴散電極基材的厚度若為70 μm 以上，由於面內方向的氣體擴散進一步提升，可更容易向位於隔離板之肋條下的觸媒供給氣體，因此，在高溫、低溫任一情形下，均可進一步提升發電性能。另一方面，氣體擴散電極基材的厚度若為190 μm 以下，可進一步提升排水性，而能夠進一步抑制汨流，且導電用路徑縮短，可進一步提升導電性，在高溫、低溫任一情形下，均可進一步提升發電性能。具此厚度的氣體擴散電極基材，可藉由控制電極基材的厚度與微孔層的厚度而得。

【0038】在此，氣體擴散電極基材的厚度可在以表

面壓力0.15MPa加壓的狀態下，利用測微計求得。將10處之個別的測定值加以平均後之值視為其厚度。

【0039】本發明中，需在電極基材的單面配置有微孔層。微孔層需有用以將所供給的氣體自隔離板朝觸媒擴散之高垂直面方向的氣體擴散性、用以將伴隨電化學反應而產生的液態水朝隔離板排出之高排水性、用以取出所產生的電流之高導電性。再者，亦具有促進水分朝電解質膜的逆擴散，潤溼電解質膜之功能。本發明中，重要的是微孔層僅配置於電極基材的單面。當微孔層配置於電極基材的兩面時，由於在電極基材與隔離板之間配置有撥水性較電極基材為高的微孔層，因此會阻礙來自電極基材內部的排水，導致低溫下的發電性能降低。

【0040】本發明中，微孔層的基重較佳為 $35\text{g}/\text{m}^2$ 以下，更佳為 $30\text{g}/\text{m}^2$ 以下，再佳為 $25\text{g}/\text{m}^2$ 以下。又，微孔層的基重較佳為 $10\text{g}/\text{m}^2$ 以上，更佳為 $12\text{g}/\text{m}^2$ 以上，再佳為 $14\text{g}/\text{m}^2$ 以上。微孔層的基重若為 $10\text{g}/\text{m}^2$ 以上，可進一步覆蓋電極基材表面，可進一步促進生成水的逆擴散，而能夠抑制電解質膜的乾化。又，微孔層的基重若為 $35\text{g}/\text{m}^2$ 以下，可進一步提升排水性，而能夠進一步抑制汩流。

【0041】基於提升導電性與排水性觀點，微孔層係可由包含碳系填料與氟樹脂的多孔體所構成。

【0042】作為碳系填料可使用碳黑、線狀碳等。就碳黑而言，較佳使用體積電阻低、純度高的乙炔黑。就線狀碳而言，較佳使用縱橫比為30~5000的線狀碳。較佳為並用該碳黑與該線狀碳。透過使用此線狀碳，相較

於僅使用碳黑作為碳系填料的情形，可提升微孔層的空隙率，使垂直面方向的氣體擴散性獲改善，而能夠抑制汨流。並用碳黑與線狀填料作為碳系填料時，相較於僅使用線狀碳作為碳系填料的情形，可於碳塗液塗敷時促進碳塗液向電極基材的滲入，更容易引起碳系填料向碳纖維的附著，而能夠縮小滑移角。線狀碳相對於碳系填料的混合質量比較佳為0.05以上，更佳為0.15以上，再佳為0.2以上。又，線狀碳相對於碳系填料的混合質量比較佳為0.8以下，更佳為0.7以下，再佳為0.65以下。

【0043】再者，透過使用縱橫比為30~5000的線狀碳，由於可縮短微孔層的導電路徑，而使電阻變小。線狀碳的縱橫比若為30以上，碳塗液中之線狀碳的交絡增加，而使碳塗液的黏度增加。其結果，碳塗液向電極基材的滲入成適度的狀態，微孔層的表面粗糙度減小，使氣體擴散電極基材的電阻變小。另一方面，線狀碳的縱橫比若為5000以下，則碳塗液中之線狀碳的交絡成適度的狀態，在碳塗液中不易引起固體成分的凝聚、沉降。本發明中，線狀碳的縱橫比更佳為3000以下，再佳為1000以下。又，線狀碳的縱橫比更佳為35以上，再佳為40以上。

【0044】在此，線狀碳的縱橫比係意指：平均長度(μm)/平均直徑(μm)。平均長度係利用掃描式電子顯微鏡、穿透式電子顯微鏡等的顯微鏡，放大1000倍以上以進行照相攝影，隨機選取10個不同的線狀碳，測量其長度，求出平均值；平均直徑係利用掃描式電子顯微鏡、穿透式電子顯微鏡等的顯微鏡，放大1000倍以上以進行照

相攝影，隨機選取10個不同的線狀碳，測量其直徑，求出平均值。關於掃描式電子顯微鏡，可使用日立製作所(股)製S-4800或與其同等的產品。

【0045】作為線狀碳，可列舉氣相成長碳纖維，單層奈米碳管、雙層奈米碳管、多層奈米碳管、奈米碳角體、奈米螺旋碳管、杯狀積層型奈米碳管、竹狀奈米碳管、石墨奈米纖維。其中，由可增加縱橫比，導電性、機械特性優異而言，可舉出氣相成長碳纖維、單層奈米碳管、雙層奈米碳管、多層奈米碳管作為較適合使用於本發明中的線狀碳。氣相成長碳纖維係指使氣相中的碳藉由觸媒成長而成者，較佳為平均直徑為5~200nm、平均纖維長度為1~20 μ m之範圍者。

【0046】本發明中，基於促進液態水的排放、耐腐蝕性優良觀點，微孔層係包含氟樹脂。作為氟樹脂，可列舉聚四氟乙烯(PTFE)、四氟乙烯-六氟丙烯共聚物(FEP)、四氟乙烯-全氟烷基乙烯基醚共聚物(PFA)等。其中，較佳使用熔點為200 $^{\circ}$ C以上320 $^{\circ}$ C以下的氟樹脂。使用此類氟樹脂時，氟樹脂於熔融時呈低黏度，氟樹脂的局部分布較少，可提升發電性能。作為此類氟樹脂，可列舉FEP或PFA，特佳為FEP。

【0047】氟樹脂的含量，以相對於碳系填料的質量比率計，較佳為5質量%以上，更佳為10質量%以上，再佳為15質量%以上。又，氟樹脂的含量，以相對於碳系填料的質量比率計，較佳為50質量%以下，更佳為35重量%以下，再佳為30質量%以下。藉由使氟樹脂的含量在此範圍，可維持充分的撥水性，同時可進一步提升微

孔層的氣體擴散性。

【0048】本發明中，較佳為在可由氣體擴散電極基材之形成有微孔層的面之相反側觀察到的碳纖維表面附著有碳系填料。再者，就該碳系填料而言，較佳為包含前述之縱橫比為30~5000的線狀碳。於此，碳系填料是否附著的確認，例如可依循以下程序來進行。首先，對氣體擴散電極基材之形成有微孔層的面之相反側表面的碳纖維以2000倍的觀察倍率進行照相攝影。關於掃描式電子顯微鏡，可使用日立製作所(股)製S-4800或與其同等的產品。對前述表面之碳纖維的影像，自氣體擴散電極基材隨機針對不同的10處進行照相攝影。其後以目視確認在所得各影像的碳纖維上是否存在碳系填料，只要可於1張以上的照片中確認出碳系填料，則判斷為在碳纖維表面附著有碳系填料。

【0049】藉由在碳纖維表面附著碳系填料，碳纖維表面即形成有凹凸，可提升撥水性。然而，碳纖維表面的碳系填料的附著量增加時，由於電極基材的細孔會堵塞而導致排水性降低，因此，較佳為將碳系填料的附著量控制成在氣體擴散電極基材之形成有微孔層的面之相反側的電極基材表面具有直徑10 μm 以上的細孔的程度。又，前述電極基材表面之細孔的直徑更佳為20 μm 以上，再佳為30 μm 以上。

【0050】於此，氣體擴散電極基材之形成有微孔層的面之相反側的電極基材表面的細孔徑係以掃描式電子顯微鏡進行測定。由氣體擴散電極基材之形成有微孔層的面之相反側的電極基材表面隨機選取10處，以400

倍的觀察倍率進行照相攝影，於各影像中測量細孔的直徑。對於非呈圓形的細孔，係以內接圓的直徑作為細孔的直徑。關於掃描式電子顯微鏡，可使用日立製作所(股)製S-4800或與其同等的產品。當所得影像內存在複數個細孔時，係使用細孔的直徑最大者。以各影像中所得之值的平均作為細孔的直徑。

【0051】作為前述碳系填料對碳纖維表面之附著量的指標，可使用前述碳系填料在碳纖維表面的被覆率。亦即，可由氣體擴散電極基材之形成有微孔層的面之相反側觀察到的此被覆率較佳在1~70%的範圍內。此被覆率更佳在50%以下，再佳在30%以下。又，此被覆率更佳為6%以上，再佳為8%以上。前述被覆率若為1%以上，在碳纖維表面形成有凹凸，可提升撥水性。又，前述被覆率若為70%以下，由於電極基材的細孔不易堵塞，故可為垂直面方向的氣體擴散性高、發電性能高的氣體擴散電極基材。

【0052】此處碳系填料在碳纖維表面的被覆率，例如可依循以下程序求得。首先，對氣體擴散電極基材之形成有微孔層的面之相反側表面的碳纖維以2000倍的觀察倍率進行照相攝影。關於掃描式電子顯微鏡，可使用日立製作所(股)製S-4800或與其同等的產品。由氣體擴散電極基材隨機選取不同的部位進行照相攝影直至可獲得10張前述表面之碳纖維的影像。其次，由所得影像切出碳纖維部分，進行二值化。二值化的方法有多種，若可明確判別以碳系填料被覆之部分與未以碳系填料被覆之部分，則可採用以目視判別的方法，而在本發明中較佳

採用使用影像處理軟體等的方法。於此，作為影像處理軟體，可使用 Adobe System 公司製 Adobe "PHOTOSHOP" (註冊商標) 或者 JTrim。接下來就使用 Jtrim v1.53c 時的處理方法加以說明。較佳為，在各影像中，進行標準化處理後，以臨限值 128 進行二階調化，而得到二值化影像。在所得之各個二值化影像中，算出以碳系填料被覆之部分的面積相對於碳纖維的面積 (以碳系填料被覆之部分與未以碳系填料被覆之部分的面積和) 的比例 (%)，求取其平均值，當作為前述之被覆率。以影像處理軟體進行二值化時，在因碳纖維的形狀效果使碳纖維的側面部分變白的情況下，於切出碳纖維部分之際，較佳為去除碳纖維側面 $0.5\mu\text{m}$ 的量。以影像處理軟體求取面積之比例時，較佳為計數畫素數來算出。

【0053】本發明中，較佳為在由氣體擴散電極基材之形成有微孔層的面之相反側觀察到的碳纖維表面及碳系填料表面存在氟樹脂。由是否檢測出氟，可確認氟樹脂的存在。透過在由氣體擴散電極基材之形成有微孔層的面之相反側觀察到的碳纖維表面及碳系填料表面具有氟樹脂，則形成有微孔層的面之相反側的面即顯示滑移角 30 度以下之較強的撥水性。於此，氟的檢測可利用掃描式電子顯微鏡 (SEM)-EDX 測定，以加速電壓 10kV、放大倍率 400 倍以上的條件進行測定。在依測定所得之光譜資料中，將在 $0.68\sim 0.69\text{keV}$ 觀測到波峰的場合定義為檢測出氟。關於掃描式電子顯微鏡，可使用日立製作所 (股) 製 S-4800 或與其同等的產品。關於能量分散型 X 射線分析裝置，可使用堀場製作所 (股) EX-220SE 或與其

同等的產品。

【0054】本發明中，微孔層的空隙率較佳為60%以上，更佳為65%以上，再佳為70%以上。又，微孔層的空隙率較佳為85%以下，更佳為80%以下，再佳為75%以下。空隙率若為60%以上，可進一步提升排水性，而能夠進一步抑制汨流。空隙率若為85%以下，水蒸氣擴散性更小，可進一步抑制乾化。此外，導電性高，在高溫、低溫任一情形下，均可提升發電性能。

【0055】具有此空隙率的微孔層可藉由在後述的製法中，控制微孔層的基重、碳系填料相對於氟樹脂、其它材料的摻含量、碳系填料的種類、及微孔層的厚度而得。其中，控制碳系填料相對於氟樹脂、其它材料的摻含量、碳系填料的種類係屬有效。在此，藉由增加碳系填料相對於氟樹脂、其它材料的摻含量，可獲得高空隙率的微孔層，藉由減少碳系填料相對於氟樹脂、其它材料的摻含量，可獲得低空隙率的微孔層。

【0056】此處，微孔層的空隙率，係使用利用離子束剖面加工裝置之剖面觀察用樣品，利用掃描式電子顯微鏡等的顯微鏡，將剖面放大1000倍以上以進行照相攝影，測量空隙部分的面積，求得空隙部分相對於觀察面積的面積比。以掃描式電子顯微鏡而言，可使用日立製作所(股)製S-4800或與其同等的產品。

【0057】本發明中，需在電極基材的單面配置有微孔層，而從可降低氣體擴散電極基材的滑移角及可降低隔離板與氣體擴散電極基材間的電阻觀點而言，較佳為一部分的微孔層含浸於電極基材。

【0058】本發明中，作為耐阻塞性的指標，係使用氣體擴散電極基材之形成有微孔層的面之相反側的面之水的滑移角。前述滑移角愈小，耐阻塞性愈高。滑移角需為30度以下，更佳為25度以下，再佳為20度以下。滑移角若為30度以下，在燃料電池的發電時，可抑制流經流路內的液態水附著於氣體擴散電極基材的情形，可使流路內的液態水迅速地排出，而提高耐阻塞性。滑移角係指使氣體擴散電極基材之形成有微孔層的面之相反側朝上呈水平，於前述面上載置10 μ L純水，以1度/秒之速度傾斜之際，純水開始滾落的角度。滑移角可使用協和界面科學(股)製自動接觸角計DM-501或與其同等的產品來測定。

【0059】具此滑移角的氣體擴散電極基材，可藉由在後述之製法中控制線狀碳相對於碳系填料的混合質量比、氟樹脂的種類與摻含量、碳系填料在碳纖維表面的被覆率、塗敷碳塗液後至進行乾燥前的水平保持時間等而得。其中，控制氟樹脂的摻含量、碳系填料在碳纖維表面的被覆率係屬有效。於此，藉由增加氟樹脂的摻含量、碳系填料在碳纖維表面的被覆率，可縮小滑移角。

【0060】本發明中，係使用垂直面氣體穿透阻力作為垂直面方向之氣體擴散性的指標。氣體擴散電極基材的垂直面氣體穿透阻力愈小，垂直面方向的氣體擴散性愈高。垂直面氣體穿透阻力需在15~190mmAq的範圍內。垂直面氣體穿透阻力更佳為180mmAq以下，再佳為170mmAq以下。又，垂直面氣體穿透阻力更佳為25mmAq以上，再佳為50mmAq以上。當垂直面氣體穿透阻力為

15mmAq以上時，可進一步縮小水蒸氣擴散性，可進一步抑制電解質膜的乾化。又，當垂直面氣體穿透阻力為190mmAq以下時，可進一步提升垂直面方向的氣體擴散性，在涵蓋低溫至高溫的廣泛溫度範圍下，更容易展現高發電性能。其中，氣體擴散電極基材的垂直面氣體穿透阻力可如以下方式測定。亦即，使用從氣體擴散電極基材所切出之直徑4.7cm的圓形樣品，以差壓計測量使空氣以 $58\text{cc}/\text{min}/\text{cm}^2$ 的流速從微孔層側的面穿透其相反面時微孔層側的面與其相反面的差壓，並設為垂直面氣體穿透阻力。此外，因無法取得氣體擴散電極基材單體等理由，而無法求出氣體擴散電極基材的垂直面氣體穿透阻力時，可藉由從膜電極接合體中取出氣體擴散電極基材，依上述方法求出氣體擴散電極基材的垂直面氣體穿透阻力。

【0061】具此垂直面氣體穿透阻力的氣體擴散電極基材，可藉由在後述之製法中控制電極基材及氣體擴散電極基材的基重、電極基材及氣體擴散電極基材的空隙率、碳塗液的滲入等而得。於此，藉由減少電極基材及氣體擴散電極基材的基重、及/或增加電極基材及氣體擴散電極基材的空隙率，可減小垂直面氣體穿透阻力。

【0062】本發明中，對氣體擴散電極基材以1MPa加壓之狀態下的垂直面方向的電阻較佳為 $7.4\text{m}\Omega\cdot\text{cm}^2$ 以下，更佳為 $7\text{m}\Omega\cdot\text{cm}^2$ 以下，再佳為 $6.5\text{m}\Omega\cdot\text{cm}^2$ 以下。藉著電阻為 $7.4\text{m}\Omega\cdot\text{cm}^2$ 以下，可縮小燃料電池的電阻過電壓(resistance overvoltage)，而提升燃料電池堆疊體的發電性能。欲降低電阻，可藉由增大前述碳系填料在碳纖

維表面的被覆率、或減少氟樹脂的摻合量來調整。又，對氣體擴散電極基材以1MPa加壓之狀態下的垂直面方向的電阻之下限不特別限定，為降低電阻而過度增大前述碳系填料在碳纖維表面的被覆率時，則垂直面氣體擴散阻力增大；過度減少氟樹脂的摻合量時，則滑移角變大，因此，較佳為限縮於 $2\text{m}\Omega \cdot \text{cm}^2$ 左右。

【0063】其次，作為電極基材，以獲取自碳纖維抄紙體的碳纖維燒成體為例，對適於獲得本發明之氣體擴散電極基材的方法，具體加以說明。

【0064】〈抄紙體、及抄紙體的製造方法〉

為了獲得含碳纖維的抄紙體，可使用使碳纖維分散於液體中而製造的濕式抄紙法、或分散於空氣中而製造的乾式抄紙法等。其中，由生產性優良而言，較佳為使用濕式抄紙法。

【0065】就提升電極基材的排水性、面內方向的氣體擴散性之目的而言，可在碳纖維中混合有機纖維來進行抄紙。作為有機纖維，可使用聚乙烯纖維、維尼綸纖維、聚縮醛纖維、聚酯纖維、聚醯胺纖維、嫻綵纖維、乙酸酯纖維等。

【0066】又，就提升抄紙體的形態保持性、操作性之目的而言，可包含有機高分子作為黏合劑。此處，作為有機高分子，可使用聚乙烯醇、聚乙酸乙烯酯、聚丙烯腈、纖維素等。

【0067】就將面內的導電性、熱傳導性各向同性地保持之目的而言，抄紙體係以碳纖維隨機分散於二維平面內而成的片狀較佳。

【0068】在抄紙體所得到的細孔徑分布，雖會受到碳纖維的含有率、分散狀態的影響，但可形成為大致20~500 μm 左右的大小。

【0069】抄紙體係碳纖維的基重較佳為10g/m²以上，更佳為15g/m²以上，再佳為20g/m²以上。又，抄紙體中，碳纖維的基重較佳為40g/m²以下，更佳為35g/m²以下，再佳為30g/m²以下。碳纖維的基重若為10g/m²以上，電極基材的機械強度優良，因而較佳。碳纖維的基重若為40g/m²以下，電極基材的面內方向的氣體擴散性與排水性優良，因而較佳。此外，當貼合複數片抄紙體時，貼合後的碳纖維的基重較佳為於上述之範圍內。

【0070】此處，抄紙體中的碳纖維基重，係可藉由將切成邊長10cm之方形的抄紙體，在氮氣環境下保持於溫度450℃的電爐內15分鐘，將去除有機物所得的殘渣的重量除以抄紙體的面積(0.01m²)而求得。

【0071】〈樹脂組成物的含浸〉

藉由在含碳纖維的抄紙體中含浸樹脂組成物而形成預備含浸體。作為將樹脂組成物含浸於含碳纖維的抄紙體之方法，係可使用：將抄紙體浸漬於含樹脂組成物的溶液中之方法、將含樹脂組成物的溶液塗布於抄紙體之方法、將由樹脂組成物所構成的薄膜重疊於抄紙體來進行轉印之方法等。其中，由生產性優良而言，較佳使用將抄紙體浸漬於含樹脂組成物的溶液中之方法。

【0072】本發明所使用的樹脂組成物，係以燒成時進行碳化而成為導電性碳化物者較佳。樹脂組成物係指可視需求於樹脂成分中添加溶劑等而成者。此處，樹脂

成分係指包含熱硬化性樹脂等的樹脂，並進一步視需求包含碳系填料、界面活性劑等的添加物者。

【0073】更詳言之，樹脂組成物所含之樹脂成分的碳化產率(carbonization yield)係以40質量%以上為佳。當碳化產率為40質量%以上時，電極基材的機械特性、導電性、熱傳導性優異，因而較佳。

【0074】作為構成樹脂成分的樹脂，可列舉酚樹脂、環氧樹脂、三聚氰胺樹脂、呋喃樹脂等的熱硬化性樹脂等。其中，由碳化產率高而言，較佳使用酚樹脂。又，作為可視需求添加於樹脂成分的添加物，就提升電極基材的機械特性、導電性、熱傳導性之目的而言，可包含碳系填料。此處，作為碳系填料，可使用碳黑、奈米碳管、奈米碳纖維、碳纖維的磨碎纖維、石墨、薄片石墨等。

【0075】本發明所使用的樹脂組成物可直接使用依前述構成所獲得的樹脂成分，亦可視需求，以提高對於抄紙體的含浸性為目的而包含各種溶劑。此處，作為溶劑，可使用甲醇、乙醇、異丙醇等。

【0076】本發明中使用的樹脂組成物係以在25℃且0.1MPa的狀態下為液狀較佳。為液狀時，對於抄紙體的含浸性優異，電極基材的機械特性、導電性、熱傳導性佳，因而較佳。

【0077】相對於100質量份的碳纖維，較佳為含浸30~400質量份的樹脂成分，更佳為含浸50~300質量份的樹脂成分。當樹脂成分的含浸量為30質量份以上時，電極基材的機械特性、導電性、熱傳導性佳，因而較佳。

另一方面，當樹脂成分的含浸量為400質量份以下時，電極基材之面內方向的氣體擴散性及垂直面方向的氣體擴散性優異，因而較佳。

【0078】 < 貼合、熱處理 >

可在形成含碳纖維的抄紙體中含浸有樹脂組成物而成的預備含浸體後，在進行碳化之前，先進行預備含浸體的貼合或熱處理。

【0079】就將電極基材形成既定厚度之目的而言，可貼合複數片的預備含浸體。於此情況下，可貼合複數片具有同一性狀的預備含浸體，也可貼合複數片具有不同性狀的預備含浸體。具體而言，亦可貼合碳纖維的平均直徑、平均長度、抄紙體的碳纖維基重、樹脂成分的含浸量等不同的複數片預備含浸體。

【0080】就將樹脂組成物進行增稠、部分交聯之目的而言，可將預備含浸體進行熱處理。作為熱處理的方法，係可使用噴吹熱風之方法、夾持於加壓裝置等的熱板間而進行加熱之方法、夾持於連續帶而進行加熱之方法等。

【0081】 < 碳化 >

將樹脂組成物浸漬於含碳纖維的抄紙體後，為了進行碳化，在惰性氣體環境下進行燒成。此燒成可使用批次式加熱爐，亦可使用連續式加熱爐。又，惰性氣體環境係可藉由將氮氣、氫氣等的惰性氣體流通於爐內而得。

【0082】本發明中，燒成的最高溫度較佳在1300~3000℃的範圍內，更佳在1700~3000℃的範圍內，再佳在1900~3000℃的範圍內。當此最高溫度為1300℃

以上時，樹脂成分會進行碳化，電極基材的導電性、熱傳導性優異，因而較佳。另一方面，當此最高溫度為3000℃以下時，加熱爐的運轉成本變低，故較佳。

【0083】在燒成之際，升溫速度較佳在80~5000℃/分的範圍內。當升溫速度為80℃以上時，由於生產性優異，故較佳。另一方面，當升溫速度為5000℃以下時，由於樹脂成分的碳化緩和地進行而形成緻密的構造，所以電極基材的導電性、熱傳導性優異，故較佳。

【0084】此外，本發明中，係將樹脂組成物含浸於含碳纖維的抄紙體後進行碳化者記載為「碳纖維燒成體」。

【0085】<撥水加工>

諸如後述，使碳系填料附著於可由氣體擴散電極基材之形成有微孔層的面之相反側觀察到的碳纖維表面之際，在碳塗液的塗敷前，使電極基材浸漬於包含碳系填料與氟樹脂的含浸液時，就提升排水性之目的而言，亦可對碳纖維燒成體實施撥水加工。另一方面，諸如後述，使碳系填料附著於可由氣體擴散電極基材之形成有微孔層的面之相反側觀察到的碳纖維表面之際，若透過藉碳塗液的塗敷使碳塗液的一部分滲入至電極基材來進行時，較佳為在對電極基材塗敷碳塗液之前，未實施撥水加工。

【0086】撥水加工係可藉由將氟樹脂塗布於碳纖維燒成體並施以熱處理來進行。此處，作為氟樹脂，可列舉聚四氟乙烯(PTFE)、四氟乙烯-六氟丙烯共聚物(FEP)、四氟乙烯-全氟烷基乙烯基醚共聚物(PFA)等。氟樹脂

的塗布量係以相對於碳纖維燒成體 100 質量份，較佳為 1~50 質量份，更佳為 3~40 質量份。當氟樹脂的塗布量為 1 質量份以上時，電極基材的排水性優異，故較佳。另一方面，當氟樹脂的塗布量為 50 質量份以下時，電極基材的導電性優異，故較佳。於氟樹脂塗敷後，較佳為在 90℃ 以上且小於 200℃ 下進行乾燥，惟不應在碳塗液的塗敷前進行燒結。具體而言，應避免在 200℃ 以上的熱處理。對塗敷有氟樹脂的電極基材在 200℃ 以上的溫度下進行熱處理時，附著於氟樹脂四周的界面活性劑經熱分解，使電極基材呈撥水性。藉由在 90℃ 以上且小於 200℃ 下進行氟樹脂塗敷後的乾燥，可促進碳塗液向電極基材的滲入，碳系填料對碳纖維的附著所需的時間為短時間。

【0087】此外，碳纖維燒成體係相當於「電極基材」。如上所述，碳纖維燒成體可視需求實施撥水加工，而在本發明中，經實施撥水加工的碳纖維燒成體亦相當於「電極基材」（未實施撥水加工的碳纖維燒成體當然相當於「電極基材」）。

【0088】<微孔層的形成>

微孔層可藉由在電極基材的單面塗敷由碳系填料、氟樹脂及分散媒構成的碳塗液而形成。此外，就此時之電極基材而言，厚度為 160 μm 以下較合適。

【0089】碳塗液中亦可含有界面活性劑等的分散助劑。作為分散媒，可使用水或有機溶劑等，惟使用乙二醇等醇類作為分散媒時，碳塗液向電極基材的滲入過快而不易加以控制，因此，作為分散媒較佳使用水。分散

助劑更佳使用非離子性之界面活性劑。又，作為碳系填料，較佳使用如前述之特定縱橫比的線狀碳，惟亦可含有除此之外的各種碳系填料。

【0090】對電極基材塗布碳塗液，係可使用市售的各種塗布裝置來進行。作為塗布方式，係可使用網版印刷、旋轉網版印刷、噴灑噴霧、凹版印刷、照相凹版印刷(gravure printing)、模塗布機(die coater)塗布、棒式塗布(bar coating)、刀塗布(blade coating)等。以上例示的塗布方法僅為例示，非限定於此。

【0091】為使碳系填料附著於可由氣體擴散電極基材之形成有微孔層的面之相反側觀察到的碳纖維表面，可透過藉前述碳塗液的塗敷使碳塗液的一部分滲入至電極基材來進行，亦可藉由在前述碳塗液的塗敷前，將電極基材浸漬於包含碳系填料與氟樹脂的含浸液並加以乾燥而使附著；為提升氣體擴散電極基材的生產性，較佳為透過藉前述碳塗液的塗敷使碳塗液的一部分滲入至電極基材來進行。

【0092】使碳系填料附著於可由氣體擴散電極基材之形成有微孔層的面之相反側觀察到的碳纖維表面之際，若透過藉碳塗液的塗敷使碳塗液的一部分滲入至電極基材來進行時，較佳為在對電極基材塗敷碳塗液之前，未實施撥水加工(未塗敷氟樹脂)。透過未進行撥水加工，可促進碳塗液向電極基材的滲入，碳系填料對碳纖維的附著所需的時間為短時間。再者，由於可刪減撥水加工的步驟，可提升氣體擴散電極基材的生產性。

【0093】對電極基材塗敷碳塗液後，較佳為以10秒

以上且短於5分鐘的時間將塗敷有碳塗液的氣體擴散電極基材保持水平至進行乾燥前。亦即，以XY面呈水平的方式，保持此氣體擴散電極基材。於此，水平係意指能以基材內的碳塗液在面內不移動的程度保持水平的平面。透過以10秒以上保持水平，碳塗液即滲入至電極基材，使碳纖維表面附著有碳系填料。藉由保持時間短於5分鐘，可提升氣體擴散電極基材的生產性。於此，碳塗液的黏度較佳在 $1\sim 25\text{Pa}\cdot\text{s}$ 的範圍內，更佳在 $2\sim 20\text{Pa}\cdot\text{s}$ 的範圍內，再佳在 $3\sim 15\text{Pa}\cdot\text{s}$ 的範圍內。黏度係以剪率-剪應力制控型黏度計進行測量。在碳塗液調溫成 23°C 的黏度計中使用圓錐角1度的圓錐體，測量剪率 17s^{-1} 下的黏度。關於剪率-剪應力制控型黏度計，可使用VISCOTECH(股)製剪率-剪應力制控型流變儀RC30型與其同等的產品。

【0094】在碳塗液對電極基材的塗敷後，為去除分散媒，較佳在 $80\sim 150^\circ\text{C}$ 的溫度下烘乾塗液。亦即，將塗敷物投入至設定為 $80\sim 150^\circ\text{C}$ 之溫度的乾燥器，以 $5\sim 30$ 分鐘的範圍加以乾燥。乾燥風量只要適當決定即可，劇烈的乾燥由於有時會在微孔層的表面誘發微小裂痕，故較不理想。如此，碳塗液中的固體成分(碳系填料、氟樹脂、界面活性劑等)於乾燥後殘留。

【0095】乾燥後的塗敷物係投入至馬弗爐、燒成爐或高溫型乾燥機，在 $300\sim 380^\circ\text{C}$ 進行 $5\sim 20$ 分鐘的加熱，使氟樹脂熔融，成為碳系填料彼此的黏合劑而進行燒結。藉由進行燒結，界面活性劑經熱分解，而形成屬包含碳系填料與氟樹脂之多孔體的微孔層。

【0096】在碳塗液的塗敷步驟或撥水加工步驟任一者中，當使用四氟乙烯-六氟丙烯共聚物(FEP)作為氟樹脂時，馬弗爐、燒成爐或高溫型之乾燥機的溫度較佳為370℃以下。透過設為370℃以下的溫度，可抑制四氟乙烯-六氟丙烯共聚物(FEP)的熱分解。

【0097】<膜電極接合體>

藉由將前述之氣體擴散電極基材，接合於兩面具有觸媒層之固體高分子電解質膜的至少單面，可構成膜電極接合體。此時，藉由在觸媒層側配置微孔層，而更容易引起生成水的逆擴散，此外觸媒層與氣體擴散電極基材的接觸面積增大，可降低接觸電阻。

【0098】<燃料電池>

本發明之燃料電池係在上述膜電極接合體的兩側具有隔離板。亦即，藉由在上述膜電極接合體的兩側設置隔離板而構成燃料電池。一般而言，係藉由將在此膜電極接合體的兩側隔著墊圈以隔離板予以夾持者積層複數個，而構成固體高分子型燃料電池。觸媒層係由包含固體高分子電解質和觸媒載持碳的層所構成。作為觸媒，一般係使用鉑。若為供給含一氧化碳的改質氣體至陽極側的燃料電池時，較佳為使用鉑及鈦作為陽極側的觸媒。固體高分子電解質較佳為使用質子傳導性、耐氧化性、耐熱性高的全氟磺酸系高分子材料。此燃料電池單元和燃料電池的構成本身乃為周知者。此外，在本發明之燃料電池中，氣體擴散電極基材的微孔層較佳為與觸媒層相接。

[實施例]

【0099】以下，依據實施例具體地說明本發明。實施例中使用的材料、電極基材及氣體擴散電極基材的製作方法、燃料電池的電池性能評定方法係顯示如下。

【0100】<電極基材的製作>

將TORAY(股)製聚丙烯腈系碳纖維“TORAYCA(登錄商標)”T300(平均碳纖維直徑： $7\mu\text{m}$)切成平均長度12mm，使之分散於水中並利用濕式抄紙法連續進行抄紙。再者，將作為黏合劑之10質量%的聚乙烯醇水溶液塗布於該抄紙，使之乾燥，而製得碳纖維基重 $15.5\text{g}/\text{m}^2$ 的抄紙體。相對於100質量份的抄紙體，聚乙烯醇的塗布量為22質量份。

【0101】使用以1：1的質量比混合有可溶型酚樹脂和酚醛清漆型酚樹脂而成的樹脂作為熱硬化性樹脂，使用鱗片狀石墨(平均粒徑 $5\mu\text{m}$)作為碳系填料，使用甲醇作為溶劑，以熱硬化性樹脂/碳系填料/溶劑=10質量份/5質量份/85質量份的摻合比將此等加以混合，使用超音波分散裝置進行1分鐘的攪拌，而獲得均勻分散的樹脂組成物。

【0102】將切成 $15\text{cm}\times 12.5\text{cm}$ 的抄紙體浸漬於裝滿鋁盤的樹脂組成物中，以相對於碳纖維100質量份，樹脂成分(熱硬化性樹脂+碳系填料)為130質量份的方式含浸之後，在 100°C 下進行5分鐘的加熱使之乾燥，而製成預備含浸體。其次，一邊利用平板壓製機進行加壓，一邊在 180°C 下進行5分鐘的熱處理。此外，加壓時，將間隔物配置於平板壓製機，以熱處理後的預備含浸體的厚度成為 $130\mu\text{m}$ 的方式，調整上下加壓面板的間隔。

【0103】將預備含浸體經熱處理後所得的基材，導入在加熱爐中保持為氮氣環境之最高溫度為2400℃的加熱爐，而獲得碳纖維燒成體。

【0104】相對於碳纖維燒成體95質量份，賦予5質量份的PTFE，在100℃下進行5分鐘的加熱使之乾燥，而製成厚度100 μm 、基重24g/m²、電極基材內部的細孔徑為35 μm 的電極基材。

【0105】<微孔層的形成>

使用縫模塗布機在電極基材形成微孔層。此處使用的碳塗液係使用：作為碳系填料之屬碳黑的一種的乙炔黑(電氣化學工業股份有限公司製"DENKA BLACK"(註冊商標))、氣相成長碳纖維(昭和電工股份有限公司製"VGCF"(註冊商標)，平均直徑：0.15 μm ，平均纖維長：8 μm ，縱橫比：50，線狀碳的一種)、氣相成長碳纖維(昭和電工股份有限公司製VGCF-S，平均直徑：0.10 μm ，平均纖維長：11 μm ，縱橫比：110，線狀碳的一種)、或多層奈米碳管(Cheap Tubes公司製，平均直徑：0.015 μm ，平均纖維長：20 μm ，縱橫比：1300，線狀碳的一種)當中的至少1種；作為氟樹脂，係使用PTFE(DAIKIN工業股份有限公司製"POLYFLON"(註冊商標)D-1E)或者FEP(DAIKIN工業股份有限公司製"NEOFLON"(註冊商標)ND-110)；作為界面活性劑，係使用NACALAI TESQUE股份有限公司製"TRITON"(註冊商標)X-100；作為分散媒係使用純水或者乙二醇(NACALAI TESQUE股份有限公司製)，並調整成以質量份記載表1~5所示摻合量之碳塗液的組成。此外，表1~5

所示PTFE及FEP的摻含量係表示PTFE及FEP之水分散液形式的摻含量。利用模塗布機對電極基材塗敷碳塗液後，再保持水平60秒後，在120℃下加熱(燒結)10分鐘、在380℃下加熱(燒結)10分鐘，而製成氣體擴散電極基材的碳纖維表面附著有碳系填料的氣體擴散電極基材。

【0106】<固體高分子型燃料電池的發電性能評定>

藉由依序添加鉑載持碳(田中貴金屬工業(股)製，鉑載持量：50質量%)1.00g、純水1.00g、“NAFION”(註冊商標)溶液(Aldrich公司製“NAFION”(註冊商標)5.0質量%)8.00g、異丙醇(NACALAI TESQUE公司製)18.00g，而作成觸媒液。

【0107】其次，在切成7cm×7cm的“NAFLON”(註冊商標)PTFE帶“TOMBO”(註冊商標)No.9001((NICHIAS(股)製)上，以噴灑方式塗布觸媒液，在室溫下使之乾燥，製成附有鉑量為0.3mg/cm²之觸媒層的PTFE片。接著，用兩片附有觸媒層的PTFE片夾住切成10cm×10cm的固體高分子電解質膜“NAFION”(註冊商標)NRE-211CS(DuPont公司製)，一邊用平板壓製機加壓到5MPa，一邊於130℃下加壓5分鐘，而將觸媒層轉印於固體高分子電解質膜。加壓後，將PTFE片剝離，而製成附有觸媒層的固體高分子電解質膜。

【0108】其次，用切成7cm×7cm的兩片氣體擴散電極基材夾住附有觸媒層的固體高分子電解質膜，一邊以平板壓製機加壓到3MPa，一邊於130℃下加壓5分鐘，製成膜電極接合體。此外，氣體擴散電極基材係以具有微孔層的面與觸媒層側相接的方式配置。

【0109】將所得膜電極接合體組入燃料電池評定用單電池，測定使電流密度變化時的電壓。在此，作為隔離板，係使用槽寬度1.0mm、槽深度1.0mm、肋條寬度1.0mm之一條流路的蛇紋石型隔離板。又，對陽極側供給無加壓的氫，對陰極側供給無加壓的空氣，並進行評定。此外，氫、空氣均是藉由設定為80℃的增濕瓶進行增濕。又，氫、空氣中的氧的利用率分別設為80%、67%。

【0110】首先，測定運轉溫度設為65℃、增濕溫度設為80℃、電流密度設為 $2.2\text{A}/\text{cm}^2$ 時的輸出電壓，作為耐汨流性(低溫性能)的指標使用。又，運轉溫度設為65℃、電流密度設為 $2.2\text{A}/\text{cm}^2$ ，計數保持30分鐘時的輸出電壓降低次數，作為耐阻塞性的指標使用。亦即，計數30分鐘內輸出電壓成為0.20V以下的次數，將為7次以上者評為C、將次數為5~6次者評為B、將為3~4次者評為A、將為2次以下者評為S。

【0111】<滑移角的測定>

滑移角係指使氣體擴散電極基材之形成有微孔層的面之相反側朝上呈水平，於前述面上載置10 μL 純水，以1度/秒之速度傾斜之際，純水開始滾落的角度。滑移角係使用協和界面科學(股)製自動接觸角計DM-501來測定。測定係改變部位實施8次，採用其平均值。

【0112】<電阻的測定>

氣體擴散電極基材之垂直面方向的電阻係藉由將切成 $2.23\text{mm}\times 2.23\text{mm}$ 的氣體擴散電極基材夾持於2片鍍金板之間，並施加1.0MPa之均等的表面壓力時，流通1.0A的電流，測量電阻並乘以面積而求得。

【0113】 <垂直面氣體穿透阻力的測定>

使用從氣體擴散電極基材切出之直徑4.7cm的圓形樣品，用差壓計測量使空氣以 $58\text{cc}/\text{min}/\text{cm}^2$ 的流速從微孔層側的面穿透其相反面時，微孔層側的面與其相反面的差壓，將之視為垂直面氣體穿透阻力。

【0114】 <氟樹脂之熔點的測定>

藉由差示掃描熱分析來測定氟樹脂的熔點。裝置係使用 Seiko Instruments 股份有限公司 (SII 公司) 製 DSC6220，在氮氣中以升溫速度 $2^\circ\text{C}/\text{分}$ 使溫度由 30°C 變化至 400°C ，觀察此時的吸放熱波峰，以 150°C 以上之溫度下的吸熱波峰作為氟樹脂的熔點。

【0115】 <表面粗糙度的測定>

使用雷射顯微鏡來測定電極基材的表面粗糙度。測定裝置係利用 VK-X100 (KEYENCE(股)製)，以倍率10的物鏡掃描5mm見方的範圍並進行測定，再進行面斜率校正後，求出5mm見方中的算術平均粗糙度 (Ra)。對隨機選取的10處進行測定，以各處之算術平均粗糙度的平均作為表面粗糙度 [μm]。

【0116】 <碳系填料是否附著の確認>

對氣體擴散電極基材之形成有微孔層的面之相反側表面的碳纖維以2000倍的觀察倍率進行照相攝影。關於掃描式電子顯微鏡，係使用日立製作所(股)製 S-4800，對前述表面之碳纖維的影像，自氣體擴散電極基材隨機針對不同的10處進行照相攝影。其後以目視確認在所得各影像的碳纖維上是否存在碳系填料，只要可於1張以上的照片中確認出碳系填料，則判斷在碳纖維表面附

著有碳系填料。

【0117】〈氟樹脂之存在的確認〉

對由氣體擴散電極基材之形成有微孔層的面之相反側觀察到的碳纖維表面及碳系填料表面，利用掃描式電子顯微鏡(SEM)-EDX測定，以加速電壓10kV、放大倍率400倍以上的條件進行測定，在依測定所得之光譜資料中，確認是否在0.68~0.69keV觀測到波峰。關於掃描式電子顯微鏡，係使用日立製作所(股)製S-4800；關於能量分散型X射線分析裝置，係使用堀場製作所(股)EX-220SE。將在0.68~0.69keV觀測到波峰的情形定義為存在氟樹脂。

【0118】(實施例1)

依循〈電極基材的製作〉及〈微孔層的形成〉所記載之方法，得到具有表1所示組成之微孔層的氣體擴散電極基材。評定該氣體擴散電極基材的發電性能的結果，如表1所記載，耐阻塞性良好，輸出電壓為0.39V(運轉溫度65℃、增濕溫度80℃、電流密度2.2A/cm²)，耐汨流性亦良好。又，滑移角及電阻良好、垂直面氣體穿透阻力極為良好。對實施例1中所得之氣體擴散電極基材進行差示掃描熱分析的結果，於327℃確認有吸熱波峰。亦即，確認包含熔點為327℃的氟樹脂。此外，可確認到：在氣體擴散電極基材之形成有微孔層的面之相反側表面的碳纖維表面附著有碳系填料；在碳纖維表面及碳系填料表面存在氟樹脂。

【0119】(實施例2)

除在〈微孔層的形成〉中，將碳塗液變更為表1所

示組成者以外，係依循〈電極基材的製作〉及〈微孔層的形成〉所記載之方法，得到具有表1所示組成之微孔層的氣體擴散電極基材。評定該氣體擴散電極基材的發電性能的結果，如表1所記載，耐阻塞性更良好，輸出電壓為0.40V(運轉溫度65°C、增濕溫度80°C、電流密度2.2A/cm²)，耐汨流性亦更良好。又，滑移角及電阻更良好、垂直面氣體穿透阻力極為良好。對實施例2中所得之氣體擴散電極基材進行差示掃描熱分析的結果，於327°C確認有吸熱波峰。亦即，確認包含熔點為327°C的氟樹脂。此外，可確認到：在氣體擴散電極基材之形成有微孔層的面之相反側表面的碳纖維表面附著有碳系填料；在碳纖維表面及碳系填料表面存在氟樹脂。

【0120】(實施例3)

除未實施電極基材的撥水加工，亦即未對碳纖維燒成體賦予PTFE以外，係依循〈電極基材的製作〉及〈微孔層的形成〉所記載之方法，得到具有表1所示組成之微孔層的氣體擴散電極基材。評定該氣體擴散電極基材的發電性能的結果，如表1所記載，耐阻塞性極為良好，輸出電壓為0.43V(運轉溫度65°C、增濕溫度80°C、電流密度2.2A/cm²)，耐汨流性亦極為良好。又，滑移角及電阻及垂直面氣體穿透阻力均極為良好。對實施例3中所得之氣體擴散電極基材進行差示掃描熱分析的結果，於260°C確認有吸熱波峰。亦即，確認包含熔點為260°C的氟樹脂。此外，可確認到：在氣體擴散電極基材之形成有微孔層的面之相反側表面的碳纖維表面附著有碳系填料；在碳纖維表面及碳系填料表面存在氟樹脂。

【0121】(實施例4)

除在〈微孔層的形成〉中，將碳塗液變更爲表1所示組成者以外，係依循〈電極基材的製作〉及〈微孔層的形成〉所記載之方法，得到具有表1所示組成之微孔層的氣體擴散電極基材。評定該氣體擴散電極基材的發電性能的結果，如表1所記載，耐阻塞性更良好，輸出電壓爲0.40V(運轉溫度65℃、增濕溫度80℃、電流密度2.2A/cm²)，耐汨流性亦更良好。又，滑移角更良好、垂直面氣體穿透阻力及電阻極爲良好。對實施例4中所得之氣體擴散電極基材進行差示掃描熱分析的結果，於327℃確認有吸熱波峰。亦即，確認包含熔點爲327℃的氟樹脂。此外，可確認到：在氣體擴散電極基材之形成有微孔層的面之相反側表面的碳纖維表面附著有碳系填料；在碳纖維表面及碳系填料表面存在氟樹脂。

【0122】(實施例5)

除在〈微孔層的形成〉中，將碳塗液塗敷後在水平狀態下的保持時間變更爲30秒以外，係依循〈電極基材的製作〉及〈微孔層的形成〉所記載之方法，得到具有表1所示組成之微孔層的氣體擴散電極基材。評定該氣體擴散電極基材的發電性能的結果，如表1所記載，耐阻塞性更良好，輸出電壓爲0.40V(運轉溫度65℃、增濕溫度80℃、電流密度2.2A/cm²)，耐汨流性亦更良好。又，滑移角良好、垂直面氣體穿透阻力及電阻極爲良好。對實施例5中所得之氣體擴散電極基材進行差示掃描熱分析的結果，於327℃確認有吸熱波峰。亦即，確認包含熔點爲327℃的氟樹脂。此外，可確認到：在氣體擴

散電極基材之形成有微孔層的面之相反側表面的碳纖維表面附著有碳系填料；在碳纖維表面及碳系填料表面存在氟樹脂。

【0123】(實施例6)

除未實施電極基材的撥水加工，亦即未對碳纖維燒成體賦予PTFE以外，係依循〈電極基材的製作〉及〈微孔層的形成〉所記載之方法，得到具有表1所示組成之微孔層的氣體擴散電極基材。評定該氣體擴散電極基材的發電性能的結果，如表1所記載，耐阻塞性極為良好，輸出電壓為0.42V(運轉溫度65℃、增濕溫度80℃、電流密度2.2A/cm²)，耐汨流性亦極為良好。又，垂直面氣體穿透阻力更良好，滑移角及電阻極為良好。對實施例6中所得之氣體擴散電極基材進行差示掃描熱分析的結果，於260℃確認有吸熱波峰。亦即，確認包含熔點為260℃的氟樹脂。此外，可確認到：在氣體擴散電極基材之形成有微孔層的面之相反側表面的碳纖維表面附著有碳系填料；在碳纖維表面及碳系填料表面存在氟樹脂。

【0124】(實施例7)

除在〈電極基材的製作〉中將抄紙體的碳纖維基重設為23.3g/m²、將預備含浸體的厚度調整為195μm，且未實施電極基材的撥水加工，亦即未對碳纖維燒成體賦予PTFE、將電極基材的厚度變更為150μm、基重變更為34.2g/m²；在〈微孔層的形成〉中，將碳塗液塗敷後在水平狀態下的保持時間變更為120秒以外，係依循〈電極基材的製作〉及〈微孔層的形成〉所記載之方法

，得到具有表2所示組成之微孔層的氣體擴散電極基材。評定該氣體擴散電極基材的發電性能的結果，如表2所記載，耐阻塞性極為良好，輸出電壓為0.41V(運轉溫度65℃、增濕溫度80℃、電流密度2.2A/cm²)，耐汨流性亦極為良好。又，滑移角及電阻極為良好、垂直面氣體穿透阻力良好。對實施例7中所得之氣體擴散電極基材進行差示掃描熱分析的結果，於260℃確認有吸熱波峰。亦即，確認包含熔點為260℃的氟樹脂。此外，可確認到：在氣體擴散電極基材之形成有微孔層的面之相反側表面的碳纖維表面附著有碳系填料；在碳纖維表面及碳系填料表面存在氟樹脂。

【0125】(實施例8)

除未實施電極基材的撥水加工，亦即未對碳纖維燒成體賦予PTFE；在〈微孔層的形成〉中，將碳塗液塗敷後在水平狀態下的保持時間變更為120秒以外，係依循〈電極基材的製作〉及〈微孔層的形成〉所記載之方法，得到具有表2所示組成之微孔層的氣體擴散電極基材。評定該氣體擴散電極基材的發電性能的結果，如表2所記載，耐阻塞性極為良好，輸出電壓為0.42V(運轉溫度65℃、增濕溫度80℃、電流密度2.2A/cm²)，耐汨流性亦極為良好。又，滑移角及垂直面氣體穿透阻力極為良好、電阻更良好。對實施例8中所得之氣體擴散電極基材進行差示掃描熱分析的結果，於260℃確認有吸熱波峰。亦即，確認包含熔點為260℃的氟樹脂。此外，可確認到：在氣體擴散電極基材之形成有微孔層的面之相反側表面的碳纖維表面附著有碳系填料；在碳纖維表面

及碳系填料表面存在氟樹脂。

【0126】(實施例9)

除未實施電極基材的撥水加工，亦即未對碳纖維燒成體賦予PTFE；在〈微孔層的形成〉中，將碳塗液塗敷後在水平狀態下的保持時間變更爲180秒以外，係依循〈電極基材的製作〉及〈微孔層的形成〉所記載之方法，得到具有表2所示組成之微孔層的氣體擴散電極基材。評定該氣體擴散電極基材的發電性能的結果，如表2所記載，耐阻塞性極爲良好，輸出電壓爲0.41V(運轉溫度65℃、增濕溫度80℃、電流密度2.2A/cm²)，耐汨流性亦極爲良好。又，滑移角及垂直面氣體穿透阻力極爲良好、電阻良好。對實施例9中所得之氣體擴散電極基材進行差示掃描熱分析的結果，於260℃確認有吸熱波峰。亦即，確認包含熔點爲260℃的氟樹脂。此外，可確認到：在氣體擴散電極基材之形成有微孔層的面之相反側表面的碳纖維表面附著有碳系填料；在碳纖維表面及碳系填料表面存在氟樹脂。

【0127】(實施例10)

除在〈微孔層的形成〉中，將碳塗液變更爲表3所示組成者以外，係依循〈電極基材的製作〉及〈微孔層的形成〉所記載之方法，得到具有表3所示組成之微孔層的氣體擴散電極基材。評定該氣體擴散電極基材的發電性能的結果，如表3所記載，耐阻塞性更良好，輸出電壓爲0.40V(運轉溫度65℃、增濕溫度80℃、電流密度2.2A/cm²)，耐汨流性亦更良好。又，滑移角更良好、垂直面氣體穿透阻力及電阻極爲良好。此外，可確認到：

在氣體擴散電極基材之形成有微孔層的面之相反側表面的碳纖維表面附著有碳系填料；在碳纖維表面及碳系填料表面存在氟樹脂。

【0128】(實施例11)

除在〈微孔層的形成〉中，將碳塗液變更為表3所示組成者以外，係依循〈電極基材的製作〉及〈微孔層的形成〉所記載之方法，得到具有表3所示組成之微孔層的氣體擴散電極基材。評定該氣體擴散電極基材的發電性能的結果，如表3所記載，耐阻塞性良好，輸出電壓為0.39V(運轉溫度65℃、增濕溫度80℃、電流密度2.2A/cm²)，耐汨流性亦良好。又，滑移角更良好、垂直面氣體穿透阻力及電阻極為良好。而且，實施例11中所使用的碳塗液比實施例10中所使用的碳塗液更容易發生沉降。對實施例11中所得之氣體擴散電極基材進行差示掃描熱分析的結果，於327℃確認有吸熱波峰。亦即，確認包含熔點為327℃的氟樹脂。此外，可確認到：在氣體擴散電極基材之形成有微孔層的面之相反側表面的碳纖維表面附著有碳系填料；在碳纖維表面及碳系填料表面存在氟樹脂。

【0129】(實施例12、13)

除變更為：在〈樹脂組成物的含浸〉中控制電極基材的表面/背面之樹脂成分的附著量，且相對於電極基材之形成有微孔層之一側的表面粗糙度，增大其相反側的表面粗糙度以外，係依循〈電極基材的製作〉及〈微孔層的形成〉所記載之方法，得到具有表3所示組成之微孔層的氣體擴散電極基材。評定該氣體擴散電極基材的

發電性能的結果，如表3所記載，相較於比較例，耐阻塞性及耐汨流性更為提升。又，就滑移角及電阻及垂直面氣體穿透阻力而言亦獲提升。特別是在實施例13中，相對於電極基材之形成有微孔層之一側的表面粗糙度，其相反側的表面粗糙度為最佳者，因此發電性能提升極大幅度。對實施例12及13中所得之氣體擴散電極基材進行差示掃描熱分析的結果，於260℃確認有吸熱波峰。亦即，確認包含熔點為260℃的氟樹脂。此外，可確認到：在氣體擴散電極基材之形成有微孔層的面之相反側表面的碳纖維表面附著有碳系填料；在碳纖維表面及碳系填料表面存在氟樹脂。

【0130】 [表 1]

	實施例 1	實施例 2	實施例 3	實施例 4	實施例 5	實施例 6
微孔層	氣相成長碳纖維(縱橫比: 50)	2.3	4.6	4.6	4.6	1.4
	乙炔黑	7.7	3.1	3.1	3.1	6.3
	PTFE	4	4	-	4	-
	FEP	-	-	5	-	5
	界面活性劑	14	14	14	14	14
	乙二醇	-	-	-	-	-
	純水	74.3	74.3	73.3	74.3	73.3
	基重[g/m ²]	14	20	20	20	20
	水平保持時間[秒]	60	60	60	60	60
	厚度[μm]	100	100	100	100	100
電極基材	基重[g/m ²]	24.0	24.0	24.0	24.0	24.0
	碳系填料在碳纖維表面的被覆率[%]	7	7	9	7	9
	直徑 10μm 以上之細孔的有無	有	有	有	有	有
	撥水劑(氟樹脂)	PTFE	PTFE	-	PTFE	PTFE
	撥水劑(氟樹脂)摻合量[%]	5	5	-	5	5
	撥水加工步驟的乾燥溫度[°C]	100	100	-	100	100
	碳塗液的含浸基重[g/m ²]	-	-	-	-	-
	第 2 微孔層基重[g/m ²]	-	-	-	-	-
	滑移角[度]	27	24	12	23	27
	垂直面氣體穿透阻力[mmAq]	150	70	40	50	40
氣體擴散電極基材的物性	電阻[mΩ · cm ²]	7.2	6.6	6.2	6.4	6.4
	耐阻塞性	B	A	S	A	B
	耐汙流性: 輸出電壓[V]	0.39	0.40	0.43	0.40	0.40
發電性能						

【0131】 [表 2]

		實施例 7	實施例 8	實施例 9
微孔層	氣相成長碳纖維(縱橫比: 50)	0.7	2.3	2.3
	乙炔黑	7.0	5.4	5.4
	PTFE	-	-	-
	FEP	5	5	5
	界面活性劑	14	14	14
	乙二醇	-	-	-
	純水	73.3	73.3	73.3
	碳塗液的組成			
	基重[g/m ²]	20	20	20
	水平保持時間[秒]	120	120	180
電極基材	厚度[μm]	150	100	100
	基重[g/m ²]	34.2	24.0	24.0
	碳系填料在碳纖維表面的被覆率[%]	9	34	56
	直徑 10μm 以上之細孔的有無	有	有	有
	撥水劑(氟樹脂)	-	-	-
	撥水劑(氟樹脂)摻合量[%]	-	-	-
	撥水加工步驟的乾燥溫度[°C]	-	-	-
	碳塗液的含浸基重[g/m ²]	-	-	-
	第 2 微孔層基重[g/m ²]	-	-	-
	氣體擴散電極基材的物性	滑移角[度]	15	10
垂直面氣體穿透阻力[minAq]		185	45	50
電阻[mΩ · cm ²]		6.4	6.7	7.2
耐阻塞性		S	S	S
發電性能	耐汙流性: 輸出電壓[V]	0.41	0.42	0.41

【0132】 [表 3]

	實施例 10	實施例 11	實施例 12	實施例 13
微孔層	氣相成長碳纖維(縱橫比: 50)	-	4.6	4.6
	氣相成長碳纖維(縱橫比: 110)	4.6	-	-
	多層奈米碳管(縱橫比: 1300)	-	4.6	-
	乙炔黑	3.1	3.1	3.1
	PTFE	4	4	-
	FEP	-	-	5
	界面活性劑	14	14	14
	乙二醇	-	-	-
	純水	74.3	74.3	73.3
	基重[g/m ²]	20	20	20
水平保持時間[秒]	60	60	60	
厚度[μm]	100	100	100	
基重[g/m ²]	24.0	24.0	24.0	
電極基材	碳系填料在碳纖維表面的被覆率[%]	7	5	12
	微孔層側	16.1	16.1	14.0
	微孔層側之相反側	16.8	16.8	19.1
	表面粗糙度的差	0.7	0.7	5.1
	直徑 10μm 以上之細孔的有無	有	有	有
	撥水劑(氟樹脂)	PTFE	PTFE	-
	撥水劑(氟樹脂)摻合量[%]	5	5	-
	撥水加工步驟的乾燥溫度[°C]	100	100	-
	碳塗液的含浸基重[g/m ²]	-	-	-
	第 2 微孔層基重[g/m ²]	-	-	-
氣體擴散電極基材的物性	滑移角[度]	24	27	7
	垂直面氣體穿透阻力[minAq]	55	40	35
	電阻[mΩ · cm ²]	6.4	6.4	6.0
	耐阻塞性	A	B	S
發電性能	耐氾流性: 輸出電壓[V]	0.40	0.39	0.45

【0133】(比較例1)

除在〈微孔層的形成〉中，將碳塗液塗敷後在水平狀態下的保持時間變更爲5秒以外，係依循〈電極基材的製作〉及〈微孔層的形成〉所記載之方法，得到具有表4所示組成之微孔層的氣體擴散電極基材。氣體擴散電極基材之附著於碳纖維之碳系填料所產生的碳纖維表面的被覆率爲0%。評定該氣體擴散電極基材的發電性能的結果，如表4所記載，耐阻塞性降低，輸出電壓爲0.34V(運轉溫度65℃、增濕溫度80℃、電流密度2.2A/cm²)，耐氾流性亦降低。又，垂直面氣體穿透阻力極爲良好，惟電阻更加不良，滑移角極爲不良。對比較例1中所得之氣體擴散電極基材進行差示掃描熱分析的結果，於327℃確認有吸熱波峰。亦即，確認包含熔點爲327℃的氟樹脂。此外，可確認到：在氣體擴散電極基材之形成有微孔層的面之相反側表面的碳纖維表面未附著碳系填料；在碳纖維表面及碳系填料表面存在氟樹脂。

【0134】(比較例2)

除在〈電極基材的製作〉中，將氟樹脂(PTFE)的賦予量變更爲20質量份；在〈微孔層的形成〉中，將碳塗液塗敷後在水平狀態下的保持時間變更爲5秒以外，係依循〈電極基材的製作〉及〈微孔層的形成〉所記載之方法，得到具有表4所示組成之微孔層的氣體擴散電極基材。氣體擴散電極基材之附著於碳纖維之碳系填料所產生的碳纖維表面的被覆率爲0%。評定該氣體擴散電極基材的發電性能的結果，如表4所記載，耐阻塞性降低，輸出

電壓為0.33V(運轉溫度65℃、增濕溫度80℃、電流密度2.2A/cm²)，耐汜流性亦降低。因電極基材的細孔中填充有氟樹脂，垂直面氣體穿透阻力亦更加不良。滑移角亦更加不良，電阻非常不良。對比較例2中所得之氣體擴散電極基材進行差示掃描熱分析的結果，於327℃確認有吸熱波峰。亦即，確認包含熔點為327℃的氟樹脂。此外，可確認到：在氣體擴散電極基材之形成有微孔層的面之相反側表面的碳纖維表面未附著碳系填料；在碳纖維表面及碳系填料表面存在氟樹脂。

【0135】(比較例3)

除在〈電極基材的製作〉中，將氟樹脂變更為FEP；在〈電極基材的製作〉中，將碳塗液塗敷後在水平狀態下的保持時間變更為5秒以外，係依循〈電極基材的製作〉及〈微孔層的形成〉所記載之方法，得到具有表4所示組成之微孔層的氣體擴散電極基材。氣體擴散電極基材之附著於碳纖維之碳系填料所產生的碳纖維表面的被覆率為0%。評定該氣體擴散電極基材的發電性能的結果，如表4所記載，耐阻塞性更良好，惟輸出電壓為0.35V(運轉溫度65℃、增濕溫度80℃、電流密度2.2A/cm²)，耐汜流性降低。垂直面氣體穿透阻力極為良好，惟滑移角不良，電阻非常不良。對比較例3中所得之氣體擴散電極基材進行差示掃描熱分析的結果，於327℃確認有吸熱波峰。亦即，確認包含熔點為327℃的氟樹脂。此外，可確認到：在氣體擴散電極基材之形成有微孔層的面之相反側表面的碳纖維表面未附著碳系填料；在碳纖維表面及

碳系填料表面存在氟樹脂。

【0136】(比較例4)

除在〈電極基材的製作〉中，將氟樹脂變更為FEP；將氟樹脂(FEP)的賦予量變更為2質量份；在〈電極基材的製作〉中，將碳塗液塗敷後在水平狀態下的保持時間變更為5秒以外，係依循〈電極基材的製作〉及〈微孔層的形成〉所記載之方法，得到具有表4所示組成之微孔層的氣體擴散電極基材。氣體擴散電極基材之附著於碳纖維之碳系填料所產生的碳纖維表面的被覆率為0%。評定該氣體擴散電極基材的發電性能的結果，如表4所記載，耐阻塞性降低，輸出電壓為0.22V(運轉溫度65℃、增濕溫度80℃、電流密度2.2A/cm²)，耐汨流性降低。垂直面氣體穿透阻力極為良好，惟滑移角更加不良，電阻不良。對比較例4中所得之氣體擴散電極基材進行差示掃描熱分析的結果，於327℃確認有吸熱波峰。亦即，確認包含熔點為327℃的氟樹脂。此外，可確認到：在氣體擴散電極基材之形成有微孔層的面之相反側表面的碳纖維表面未附著碳系填料；在碳纖維表面及碳系填料表面存在氟樹脂。

【0137】(比較例5)

除在〈電極基材的製作〉中，將碳纖維燒成體變更為TORAY(股)製TGP-H-030、將氟樹脂變更為FEP；在〈電極基材的製作〉中，將碳塗液塗敷後在水平狀態下的保持時間變更為5秒；在〈微孔層的形成〉中，將分散媒變更為乙二醇，且未使用界面活性劑以外，係依循〈電

極基材的製作 > 及 < 微孔層的形成 > 所記載之方法，得到具有表4所示組成之微孔層的氣體擴散電極基材。氣體擴散電極基材之附著於碳纖維之碳系填料所產生的碳纖維表面的被覆率為0%。評定該氣體擴散電極基材的發電性能的結果，如表4所記載，耐阻塞性良好，惟輸出電壓為0.25V(運轉溫度65℃、增濕溫度80℃、電流密度2.2A/cm²)，耐汨流性降低。電阻極為良好，惟滑移角及垂直面氣體穿透阻力極為不良。對比較例5中所得之氣體擴散電極基材進行差示掃描熱分析的結果，於327℃確認有吸熱波峰。亦即，確認包含熔點為327℃的氟樹脂。此外，可確認到：在氣體擴散電極基材之形成有微孔層的面之相反側表面的碳纖維表面未附著碳系填料；在碳纖維表面及碳系填料表面存在氟樹脂。

【0138】(比較例6)

除在 < 電極基材的製作 > 中，將氟樹脂的乾燥溫度變更為380℃，並且在碳塗液的塗敷前提高電極基材的撥水性以外，係依循 < 電極基材的製作 > 及 < 微孔層的形成 > 所記載之方法，得到具有表4所示組成之微孔層的氣體擴散電極基材。氣體擴散電極基材之附著於碳纖維之碳系填料所產生的碳纖維表面的被覆率為0%。評定該氣體擴散電極基材的發電性能的結果，如表4所記載，耐阻塞性降低，輸出電壓為0.35V(運轉溫度65℃、增濕溫度80℃、電流密度2.2A/cm²)，耐汨流性亦降低。垂直面氣體穿透阻力極為良好，惟滑移角非常不良，電阻更加不良。對比較例6中所得之氣體擴散電極基材進行差示掃描

熱分析的結果，於327°C 確認有吸熱波峰。亦即，確認包含熔點為327°C 的氟樹脂。此外，可確認到：在氣體擴散電極基材之形成有微孔層的面之相反側表面的碳纖維表面未附著碳系填料；在碳纖維表面及碳系填料表面存在氟樹脂。

【0139】(比較例7)

除在〈電極基材的製作〉中，將抄紙體的碳纖維基重設為 $38.8\text{g}/\text{m}^2$ 、將預備含浸體的厚度調整為 $260\mu\text{m}$ ，且未實施電極基材的撥水加工，亦即未對碳纖維燒成體賦予PTFE、將電極基材的厚度變更為 $200\mu\text{m}$ 、基重變更為 $63.2\text{g}/\text{m}^2$ 以外，係依循〈電極基材的製作〉及〈微孔層的形成〉所記載之方法，得到具有表5所示組成之微孔層的氣體擴散電極基材。氣體擴散電極基材之附著於碳纖維之碳系填料所產生的碳纖維表面的被覆率為0%。評定該氣體擴散電極基材的發電性能的結果，如表5所記載，耐阻塞性降低，輸出電壓為 0.32V (運轉溫度 65°C 、增濕溫度 80°C 、電流密度 $2.2\text{A}/\text{cm}^2$)，耐汨流性亦降低。滑移角及垂直面氣體穿透阻力極為不良，電阻良好。對比較例7中所得之氣體擴散電極基材進行差示掃描熱分析的結果，於 327°C 確認有吸熱波峰。亦即，確認包含熔點為 327°C 的氟樹脂。此外，可確認到：在氣體擴散電極基材之形成有微孔層的面之相反側表面的碳纖維表面未附著碳系填料；在碳纖維表面及碳系填料表面未存在氟樹脂。

【0140】(比較例8)

除在〈電極基材的製作〉中，將抄紙體的碳纖維基

重設為 38.8g/m^2 、將預備含浸體的厚度調整為 $260\mu\text{m}$ ，且未實施電極基材的撥水加工，亦即未對碳纖維燒成體賦予 PTFE、將電極基材的厚度變更為 $200\mu\text{m}$ 、基重變更為 63.2g/m^2 ；在〈電極基材的製作〉中，將碳塗液塗敷後在水平狀態下的保持時間變更為 5 秒以外，係依循〈電極基材的製作〉及〈微孔層的形成〉所記載之方法，得到具有表 5 所示組成之微孔層的氣體擴散電極基材。氣體擴散電極基材之附著於碳纖維之碳系填料所產生的碳纖維表面的被覆率為 0%。評定該氣體擴散電極基材的發電性能的結果，如表 5 所記載，耐阻塞性降低，輸出電壓為 0.32V (運轉溫度 65°C 、增濕溫度 80°C 、電流密度 2.2A/cm^2)，耐汨流性亦降低。滑移角及垂直面氣體穿透阻力極為不良，電阻良好。對比較例 8 中所得之氣體擴散電極基材進行差示掃描熱分析的結果，於 327°C 確認有吸熱波峰。亦即，確認包含熔點為 327°C 的氟樹脂。此外，可確認到：在氣體擴散電極基材之形成有微孔層的面之相反側表面的碳纖維表面未附著碳系填料；在碳纖維表面及碳系填料表面未存在氟樹脂。

【0141】(比較例 9)

除未實施電極基材的撥水加工，亦即未對碳纖維燒成體賦予 PTFE；在〈微孔層的形成〉中，將碳塗液塗敷後在水平狀態下的保持時間變更為 350 秒以外，係依循〈電極基材的製作〉及〈微孔層的形成〉所記載之方法，得到具有表 5 所示組成之微孔層的氣體擴散電極基材。評定該氣體擴散電極基材的發電性能的結果，如表 5 所記載

，耐阻塞性更良好，惟輸出電壓為0.25V(運轉溫度65°C、增濕溫度80°C、電流密度2.2A/cm²)，耐汨流性非常不良。又，滑移角極為良好，惟垂直面氣體穿透阻力極為不良，電阻良好。對比較例9中所得之氣體擴散電極基材進行差示掃描熱分析的結果，於260°C確認有吸熱波峰。亦即，確認包含熔點為260°C的氟樹脂。此外，可確認到：在氣體擴散電極基材之形成有微孔層的面之相反側表面的碳纖維表面附著有碳系填料；在碳纖維表面及碳系填料表面存在氟樹脂。

【0142】(比較例10)

除將碳塗液以水稀釋後，於燒結後以成為基重15g/m²的方式含浸於〈電極基材的製作〉中所得之電極基材，並在100°C下加熱5分鐘；在〈微孔層的形成〉中，將碳塗液塗敷後在水平狀態下的保持時間變更為5秒以外，係依循〈電極基材的製作〉及〈微孔層的形成〉所記載之方法，得到具有表5所示組成之微孔層的氣體擴散電極基材。氣體擴散電極基材之附著於碳纖維之碳系填料所產生的碳纖維表面的被覆率為100%，在氣體擴散電極基材之形成有微孔層的面之相反側的電極基材表面未確認有直徑10μm以上的細孔。評定該氣體擴散電極基材的發電性能的結果，如表5所記載，耐阻塞性更良好，惟輸出電壓為0.32V(運轉溫度65°C、增濕溫度80°C、電流密度2.2A/cm²)，耐汨流性降低。滑移角更為良好，惟垂直面氣體穿透阻力及電阻非常不良。對比較例10中所得之氣體擴散電極基材進行差示掃描熱分析的結果，於

327°C 確認有吸熱波峰。亦即，確認包含熔點為327°C的氟樹脂。此外，可確認到：在氣體擴散電極基材之形成有微孔層的面之相反側表面的碳纖維表面附著有碳系填料；在碳纖維表面及碳系填料表面存在氟樹脂。

【0143】(比較例11)

除在〈微孔層的形成〉中，藉由在380°C下進行燒結前，將以氣相成長碳纖維/PTFE/界面活性劑/純水=7.7質量份/2.5質量份/14質量份/75.8質量份之摻合比混合的碳塗液亦塗敷於先前形成有微孔層者之相反側的面，並在100°C下加熱5分鐘而形成第2微孔層以外，係依循〈電極基材的製作〉及〈微孔層的形成〉所記載之方法，得到兩面具有表5所示組成之微孔層的氣體擴散電極基材。此外，將先前進行之碳塗液塗敷後在水平狀態下的保持時間設為5秒。氣體擴散電極基材之附著於碳纖維之碳系填料所產生的碳纖維表面的被覆率為100%，在氣體擴散電極基材之先前形成有微孔層的面之相反側的電極基材表面(第2微孔層表面)未確認有直徑10 μm 以上的細孔。將該氣體擴散電極基材配置成使先前形成有微孔層的面與觸媒層側相接並評定發電性能的結果，如表5所記載，耐阻塞性極為良好，惟輸出電壓為0.25V(運轉溫度65°C、增濕溫度80°C、電流密度2.2A/cm²)，耐汨流性降低。滑移角及電阻極為良好，惟垂直面氣體穿透阻力非常不良。對比較例11中所得之氣體擴散電極基材進行差示掃描熱分析的結果，於327°C確認有吸熱波峰。亦即，確認包含熔點為327°C的氟樹脂。此外，可確認到：在氣體擴散電

極基材之形成有微孔層的面之相反側表面的碳纖維表面附著有碳系填料；在碳纖維表面及碳系填料表面存在氟樹脂。

【0144】(比較例12)

除在〈電極基材的製作〉中，將碳纖維燒成體變更爲TORAY(股)製TGP-H-030、將氟樹脂變更爲FEP；在〈電極基材的製作〉中，將碳塗液塗敷後在水平狀態下的保持時間變更爲5秒以外，係依循〈電極基材的製作〉及〈微孔層的形成〉所記載之方法，得到具有表5所示組成之微孔層的氣體擴散電極基材。氣體擴散電極基材之附著於碳纖維之碳系填料所產生的碳纖維表面的被覆率爲0%。評定該氣體擴散電極基材的發電性能的結果，如表5所記載，耐阻塞性更良好，惟輸出電壓爲0.25V(運轉溫度65℃、增濕溫度80℃、電流密度2.2A/cm²)，耐汨流性降低。滑移角及垂直面氣體穿透阻力不良，電阻更加不良。對比較例12中所得之氣體擴散電極基材進行差示掃描熱分析的結果，於327℃確認有吸熱波峰。亦即，確認包含熔點爲327℃的氟樹脂。此外，可確認到：在氣體擴散電極基材之形成有微孔層的面之相反側表面的碳纖維表面未附著碳系填料；在碳纖維表面及碳系填料表面存在氟樹脂。

【0145】 [表4]

		比較例 1	比較例 2	比較例 3	比較例 4	比較例 5	比較例 6
微孔層	氣相成長碳纖維(縱橫比:50)	2.3	2.3	2.3	2.3	5.0	4.6
	乙炔黑	5.4	5.4	5.4	5.4	-	3.1
	PTFE	4	4	4	4	5	4
	FEP	-	-	-	-	-	-
	界面活性劑	14	14	14	14	-	14
	乙二醇	-	-	-	-	90	-
	純水	74.3	74.3	74.3	74.3	-	74.3
	基重[g/m ²]	20	20	20	20	20	20
	水平保持時間[秒]	5	5	5	5	5	60
	厚度[μm]	100	100	100	100	110	100
電極基材	基重[g/m ²]	24.0	24.0	24.0	24.0	46.3	24.0
	碳系填料在碳纖維表面的被覆率[%]	0	0	0	0	0	0
	直徑 10μm 以上之細孔的有無	有	有	有	有	有	有
	撥水劑(氟樹脂)	PTFE	PTFE	FEP	FEP	FEP	PTFE
	撥水劑(氟樹脂)摻合量[%]	5	20	5	2	5	5
	撥水加工步驟的乾燥溫度[°C]	100	100	100	100	100	380
	碳塗液的含浸基重[g/m ²]	-	-	-	-	-	-
	第2微孔層基重[g/m ²]	-	-	-	-	-	-
	氣體擴散電極基材的物性	80	50	35	50	80	80
	垂直面氣體穿透阻力[minAq]	70	200	70	70	230	40
發電性能	電阻[msΩ · cm ²]	7.6	8.5	8.5	7.7	6.4	7.6
	耐阻塞性	C	C	A	C	B	C
	耐汙流性: 輸出電壓[V]	0.34	0.33	0.35	0.22	0.25	0.35

【0146】 [表 5]

		比較例 7	比較例 8	比較例 9	比較例 10	比較例 11	比較例 12
微孔層	氣相成長碳纖維(縱橫比 : 50)	-	-	2.3	2.3	2.3	2.3
	乙炔黑	7.7	7.7	5.4	5.4	5.4	5.4
	PTFE	4	4	-	4	4	4
	FEP	-	-	5	-	-	-
	界面活性劑	14	14	14	14	14	14
	乙二醇	-	-	-	-	-	-
	純水	74.3	74.3	73.3	74.3	74.3	74.3
	基重[g/m ²]	20	20	20	20	20	20
	水平保持時間[秒]	60	5	350	5	5	5
	厚度[μm]	200	200	100	100	100	110
電極基材	基重[g/m ²]	63.2	63.2	24.0	24.0	24.0	46.3
	碳系填料在碳纖維表面的被覆率[%]	0	0	80	100	100	0
	直徑 10μm 以上之細孔的有無	有	有	有	無	無	有
	撥水劑(氟樹脂)	-	-	-	PTFE	PTFE	FEP
	撥水劑(氟樹脂)摻合量[%]	-	-	-	5	5	5
	撥水加工步驟的乾燥溫度[°C]	-	-	-	100	100	100
	碳塗液的含浸基重[g/m ²]	-	-	-	15	-	-
	第 2 微孔層基重[g/m ²]	-	-	-	-	10	-
	滑移角[度]	80	80	10	24	10	35
	垂直面氣體穿透阻力[mmAq]	240	230	240	230	220	200
氣體擴散電極基材的 物性	電阻[mΩ · cm ²]	7.2	7.2	7.6	8.4	6.4	7.8
	耐阻塞性	C	C	A	A	S	A
	耐汙流性 : 輸出電壓[V]	0.32	0.32	0.25	0.32	0.25	0.25
發電性能							

【符號說明】

無。

【代表圖】

【本案指定代表圖】：無。

【本代表圖之符號簡單說明】：

無。

【本案若有化學式時，請揭示最能顯示發明特徵的化學式】：

無。

發明專利說明書

(本說明書格式、順序，請勿任意更動)

【發明名稱】(中文/英文)

氣體擴散電極基材、其製造方法及應用

【技術領域】

【0001】本發明係有關於一種適用於燃料電池、尤為固體高分子型燃料電池的氣體擴散電極基材。更詳言之，係有關於一種耐汨流性、耐阻塞性優良，在低溫下可展現高發電性能，甚而機械特性、導電性、熱傳導性優異的氣體擴散電極基材。

【先前技術】

【0002】固體高分子型燃料電池係將含氫氣的燃料氣體供給至陽極，將含氧氣的氧化氣體供給至陰極，藉由在兩極所引起的電化學反應而得到電動勢，一般而言，該固體高分子型燃料電池係依序積層隔離板、氣體擴散電極基材、觸媒層、電解質膜、觸媒層、氣體擴散電極基材、隔離板而構成。氣體擴散電極基材需要高氣體擴散性，以使所供給的氣體由隔離板擴散至觸媒層，也需要高排水性，以將伴隨電化學反應而產生的水朝隔離板排出，又需要高導電性，以提取出所產生的電流，於是，由碳纖維等所構成的電極基材被廣泛使用。

【0003】然而，就其課題來說，已知有：(1)當使固體高分子型燃料電池在小於70°C的相對低溫且高電流密度區域運作時，大量產生的液態水導致電極基材堵塞，燃料氣體的供給不足，結果產生發電性能降低的問題

I644478

發明摘要

※ 申請案號：104105484

※ 申請日：104/02/17

※IPC 分類：
H01M 4/96 (2006.01)
H01M 4/88 (2006.01)
H01M 8/02 (2016.01)

【發明名稱】(中文/英文)

氣體擴散電極基材、其製造方法及應用

【中文】

一種氣體擴散電極基材，其係在電極基材的單面形成有由碳系填料與氟樹脂構成的微孔層之使用於燃料電池的氣體擴散電極基材，形成有微孔層的面之相反側的面之水的滑移角(slip angle)為30度以下、垂直面氣體穿透阻力為15~190mmAq。

【英文】

無。

申請專利範圍

1. 一種氣體擴散電極基材，其係在電極基材的單面形成有由碳系填料與氟樹脂構成的微孔層之使用於燃料電池的氣體擴散電極基材，形成有微孔層的面之相反側的面之水的滑移角(slip angle)為30度以下、垂直面氣體穿透阻力為15~190mmAq。
2. 如請求項1之氣體擴散電極基材，其中對氣體擴散電極基材以1MPa加壓之狀態下的垂直面方向的電阻為 $7.4\text{m}\Omega \cdot \text{cm}^2$ 以下。
3. 如請求項1或2之氣體擴散電極基材，其中在可由氣體擴散電極基材之形成有微孔層的面之相反側觀察到的碳纖維表面附著有碳系填料，且在氣體擴散電極基材之形成有微孔層的面之相反側的電極基材表面具有直徑 $10\mu\text{m}$ 以上的細孔。
4. 如請求項1或2之氣體擴散電極基材，其中在可由氣體擴散電極基材之形成有微孔層的面之相反側觀察到的碳纖維表面附著有碳系填料，且包含縱橫比為30~5000的線狀碳作為碳系填料。
5. 如請求項1或2之氣體擴散電極基材，其中可由氣體擴散電極基材之形成有微孔層的面之相反側觀察到的碳纖維表面的1~70%係以碳系填料被覆。
6. 如請求項1或2之氣體擴散電極基材，其中該電極基材的厚度為 $160\mu\text{m}$ 以下。
7. 如請求項1或2之氣體擴散電極基材，其中相對於該電極基材之形成有微孔層之一側的表面粗糙度，其相反

- 側的表面粗糙度係具有高達 $1.0\mu\text{m}$ 以上 $5.0\mu\text{m}$ 以下的差。
- 8.如請求項1或2之氣體擴散電極基材，其中在由氣體擴散電極基材之形成有微孔層的面之相反側觀察到的碳纖維表面及碳系填料表面存在氟樹脂。
 - 9.如請求項1或2之氣體擴散電極基材，其係包含熔點為 200°C 以上 320°C 以下的氟樹脂。
 - 10.如請求項1或2之氣體擴散電極基材，其中氟樹脂為四氟乙烯-六氟丙烯共聚物(FEP)。
 - 11.如請求項1或2之氣體擴散電極基材，其中該碳系填料係包含氣相成長碳纖維。
 - 12.一種氣體擴散電極基材之製造方法，其係如請求項1至11中任一項之氣體擴散電極基材之製造方法，係在厚度為 $160\mu\text{m}$ 以下之電極基材的單面，塗敷由碳系填料、氟樹脂及分散媒(dispersion medium)構成的碳塗液後，以10秒以上且短於5分鐘的時間水平地保持塗敷有碳塗液的氣體擴散電極基材，接著，在進行乾燥及燒結之際，在塗敷碳塗液之前未塗敷氟樹脂、或在塗敷氟樹脂後未進行燒結。
 - 13.如請求項12之氣體擴散電極基材之製造方法，其中分散媒為水。
 - 14.如請求項12或13之氣體擴散電極基材之製造方法，其中在塗敷碳塗液之前、在塗敷氟樹脂後未進行燒結時，係在塗敷氟樹脂後，於 90°C 以上且小於 200°C 的溫度下進行乾燥。
 - 15.一種膜電極接合體，其係在電解質膜的兩側具有觸媒

層，進而在該觸媒層的外側具有如請求項1至11中任一項之氣體擴散電極基材、或以如請求項12至14中任一項之製造方法所得到的氣體擴散電極基材。

16.一種燃料電池，其係在如請求項15之膜電極接合體的兩側具有隔離板。