



(19)中華民國智慧財產局

(12)發明說明書公開本

(11)公開編號：TW 201543746 A

(43)公開日：中華民國 104 (2015) 年 11 月 16 日

(21)申請案號：104109524

(22)申請日：中華民國 104 (2015) 年 03 月 25 日

(51)Int. Cl. : *H01M4/96 (2006.01)* *H01M4/86 (2006.01)*

(30)優先權：2014/03/28 日本 2014-069243

(71)申請人：東麗股份有限公司 (日本) TORAY INDUSTRIES, INC. (JP)
日本(72)發明人：加藤頌 KATO, SHO (JP)；若田部道生 WAKATABE, MICHIO (JP)；三宅徹
MIYAKE, TORU (JP)；橋本勝 HASHIMOTO, MASARU (JP)

(74)代理人：丁國隆；黃政誠

申請實體審查：無 申請專利範圍項數：14 項 圖式數：7 共 44 頁

(54)名稱

氣體擴散電極及其製造方法

(57)摘要

一種氣體擴散電極及其製造方法，係於導電性多孔質基材之至少單面上形成含導電性微粒子與撥水性樹脂之微多孔層而構成，用於燃料電池之氣體擴散電極，厚度方向之氣體擴散性為 30% 以上，且導電性多孔質基材之滑落角為 70° 以下，孔隙率為 80% 以上，且微多孔層厚度為 10μm 以上 50μm 以下，孔隙率為 60% 以上 95% 以下。

發明摘要

※ 申請案號：104109574

※ 申請日：104.3.25

※IPC 分類：H01M 4/96 (2006.01)

H01M 4/86 (2006.01)

【發明名稱】(中文/英文)

· 氣體擴散電極及其製造方法

· 【中文】

一種氣體擴散電極及其製造方法，係於導電性多孔質基材之至少單面上形成含導電性微粒子與撥水性樹脂之微多孔層而構成，用於燃料電池之氣體擴散電極，厚度方向之氣體擴散性為 30%以上，且導電性多孔質基材之滑落角為 70°以下，孔隙率為 80%以上，且微多孔層厚度為 10 μ m 以上 50 μ m 以下，孔隙率為 60%以上 95%以下。

【英文】

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)

氣體擴散電極及其製造方法

【技術領域】

【0001】燃料電池係將氫與氧反應生成水時產生之能量以電氣方式取出之機構，由於能量效率高而排放物僅為水，因此期待作為乾淨能源。本發明係關於燃料電池所使用之氣體擴散電極及其製造方法，特別是關於燃料電池中作為燃料電池車等之電源使用之高分子電解質型燃料電池所使用之氣體擴散電極及其製造方法。

【先前技術】

【0002】高分子電解質型燃料電池所使用之電極，係於高分子電解質型燃料電池中，挾於 2 分離器間而配置，於高分子電解質膜之兩面，具有形成於高分子電解質膜表面之觸媒層與形成於該觸媒層外側之氣體擴散層所構成之構造。作為電極中用以形成氣體擴散層之個別構件，而有氣體擴散電極流通。而該氣體擴散電極所追求之性能，可舉例如氣體擴散性、用以匯集觸媒層產生電氣之導電性以及有效除去觸媒層表面產生水分之排水性等。為了得到如此之氣體擴散電極，一般使用兼具氣體擴散能以及導電性之導電性多孔質基材。

【0003】導電性多孔質基材具體來講使用碳纖維構成之碳氈、碳紙以及碳布等，其中從機械特性等觀點來看，最宜為碳紙。

【0004】又，燃料電池係將氫與氧反應生成水時產生之能量以電氣方式取出之系統，因此當電氣負荷增大，即取出至電池外部之電流增大時，將產生多量之水分(水蒸氣)。當該水蒸氣於低溫凝結成水滴，阻塞氣體擴散電極之細孔時，對觸媒層之氣體(氧或氫)供給量降低，最終當全部細孔阻塞時，則停止發電(此現象稱為泛溢(flooding))。

【0005】爲了盡可能不使泛溢現象發生，換言之，爲了盡可能提高引起泛溢現象發生之電流值，氣體擴散電極追求排水性。作爲提高該排水性之手段，氣體擴散電極通常採用經實施撥水處理之導電性多孔質基材(參照專利文獻 1、2 及 3)。關於撥水處理，一般採用之技術係將前述導電性多孔質基材浸漬於將撥水材料分散於水或有機溶媒之分散液(參照專利文獻 1、2 及 3)。

【0006】又，經實施前述撥水處理之導電性多孔質基材若直接作爲氣體擴散電極使用，則由於其纖維孔隙粗糙，水蒸氣凝結產生大顆粒水滴，而不足以完全抑制泛溢現象。因此，於實施撥水處理之導電性多孔質基材上，有藉由塗布將碳黑等導電性微粒子分散之塗液而乾燥燒結，而設置稱爲微多孔層之塗層的情形(參照專利文獻 1、2 及 3)。

【0007】於燃料電池車用途，起步、高速行駛以及爬坡等駕駛模式中要求大馬力，因此需要高輸出功率。又，爲了達成高輸出功率，必須使氫與氧從燃料電池內部分離器之氣體流路迅速通過氣體擴散層而擴散至觸媒層。

【0008】因此，氣體擴散電極要求高度之氣體擴散性。考慮如此需求，氣體擴散電極使用之導電性多孔質基材宜盡可能薄且高孔隙率，使氣體容易擴散。於如此情況下塗布微多孔層，則用以形成微多孔層之塗液，即微多孔層塗液將滲入厚度小而孔隙率高之基材中，極端情況下塗液將滲透至基材反面，而使塗液污染製造步驟。為此而進行清除該等污染將導致生產性降低。又，微多孔層塗液滲入而阻塞基材內部細孔，將有氣體難以擴散導致發電性能降低之可能性。

【0009】專利文獻 3 中揭示一種爲了抑制微多孔層塗液滲入導電性多孔質基材，藉由將基材撥水處理後進行燒結而分解除去撥水材料中之界面活性劑，使其後塗布之微多孔層不滲入基材之技術。但是，專利文獻 3 所揭示方法中，經撥水處理之基材與微多孔層黏合性差，而有微多孔層於燃料電池組裝中部份缺損導致微多孔層無法發揮原有機能之可能性。

先前技術文獻

專利文獻

【0010】

專利文獻 1 日本專利第 3382213 號公報

專利文獻 2 特開 2000-123842 號公報

專利文獻 3 日本專利第 3773325 號公報

【發明內容】

[發明所欲解決之課題]

【0011】本發明之課題係鑑於前述技術背景，而提供一種氣體擴散性優異，微多孔層與導電性多孔質基材黏合性良好之氣體擴散電極。

[用以解決課題之手段]

【0012】本發明之氣體擴散電極係為了解決前述課題而採用如下之手段。即一種氣體擴散電極，係於導電性多孔質基材之至少單面上形成含導電性微粒子與撥水性樹脂之微多孔層而構成，用於燃料電池之氣體擴散電極，厚度方向之氣體擴散性為 30%以上，且導電性多孔質基材之滑落角為 70°以下，孔隙率為 80%以上，且微多孔層厚度為 10 μ m 以上 50 μ m 以下，孔隙率為 60%以上 95%以下。

【0013】又，本發明之氣體擴散電極製造方法係為了解決前述課題而採用如下之手段。即一種氣體擴散電極製造方法，係於導電性多孔質基材之至少單面上形成含導電性微粒子與撥水性樹脂之微多孔層而構成，用於燃料電池之氣體擴散電極製造方法，該方法係將導電性多孔質基材概略水平搬運或設置，從其下側塗布混練導電性微粒子、撥水性樹脂及分散媒之微多孔層塗液，進行乾燥及燒結而得到氣體擴散電極。

[發明效果]

【0014】藉由本發明之氣體擴散電極，可期待以下之效果。

・可得到氣體擴散性良好且可高功率發電之氣體擴散電極。

- 可得到導電性多孔質基材與微多孔層黏合性良好，而不易發生龜裂，耐久性良好，且不易發生泛溢現象之氣體擴散電極。

- 可得到微多孔層表面異物附著等外觀缺陷少之氣體擴散電極。

【0015】又，藉由使用本發明之氣體擴散電極製造方法，可期待以下之效果。

- 可適宜製造前述之本發明氣體擴散電極。
- 可不污染製造步驟而高生產性生產氣體擴散電極。

【圖式簡單說明】

【0016】

第 1 圖表示製造本發明氣體擴散電極之較佳裝置的配置之 1 例。

第 2 圖表示用以製造比較例(習知技術)之氣體擴散電極之裝置的配置例。

第 3 圖實施例及比較例中用以實施撥水處理之裝置的配置例。

第 4 圖用以說明氣體擴散電極各構成要件之厚度定義之氣體擴散電極概略截面圖。

第 5 圖固體高分子型燃料電池之一單元(單電池)之截面圖。

第 6 圖用以測定面內氣體穿透性之裝置之概略圖。

第 7 圖用以說明黏合力測定方法之概略圖。

【實施方式】**[發明實施形態]**

【0017】本發明之氣體擴散電極，係於導電性多孔質基材之至少單面上形成含導電性微粒子與氟樹脂等撥水性樹脂之微多孔層而構成。

【0018】固體高分子型燃料電池中，氣體擴散電極需要高氣體擴散性，用以使分離器供給之氣體擴散至觸媒；高排水性，用以將伴隨電化學反應生成之水排出至分離器；以及高導電性，用以將產生之電流取出。換言之，要求使氣體穿透厚度方向且導電性優異之薄片狀材料。因此，氣體擴散電極中使用具有導電性，平均細孔徑通常為 $10\mu\text{m}$ 以上 $100\mu\text{m}$ 以下之多孔體構成基材之導電性多孔質基材。導電性多孔質基材具體來講宜使用例如碳纖維抄紙體、碳氈、碳紙以及碳布等含碳纖維多孔質基材、發泡燒結金屬、金屬網以及多孔金屬等金屬多孔質基材。其中，從耐腐蝕性優異之觀點來看，宜使用含碳纖維之碳氈、碳紙以及碳布等多孔質基材，進一步，從吸收電解質膜厚度方向尺寸變化之特性，即「彈性」優異之觀點來看，宜使用碳纖維抄紙體黏結碳化物構成之基材，即使用碳紙。

【0019】在此，由於燃料電池之發電性能大幅仰賴氣體擴散性，因此於燃料電池車等需要高輸出功率之用途上，要求導電性多孔質基材厚度盡可能小，且孔隙率高而提高氣體擴散性。因此，本發明中導電性多孔質基材之厚度宜為 $220\mu\text{m}$ 以下，較宜為 $180\mu\text{m}$ 以下，更宜為

150 μm 以下，特別宜為 120 μm 以下。又，導電性多孔質基材厚度若過薄，則有步驟中操作性惡化之顧慮。因此，現狀宜以 70 μm 左右或 80 μm 左右為其下限。

【0020】又，當導電性多孔質基材之孔隙率為 80% 以上，宜為 85% 以上，則氣體擴散性將進一步提高。工業上可生產之導電性多孔質基材之孔隙率上限為 95% 左右。

【0021】另外，導電性多孔質基材之孔隙率係藉由掃描電子顯微鏡等顯微鏡，從導電性多孔質基材之面垂直截面隨機選擇相異 20 個位置，以 20000 倍左右放大進行攝影，將各圖像之孔隙部與非孔隙部二值化而計測相對於全體面積(孔隙部面積與非孔隙部面積之和)之孔隙部面積比率，以 20 個位置之該比率平均值表示孔隙率。掃描電子顯微鏡可使用日立製作所股份有限公司製 S-4800，或與其同等之裝置。用以製作導電性多孔質基材截面之裝置可使用 Hitachi High-Technologies 股份有限公司製離子研磨裝置 IM4000，或與其同等之裝置。

【0022】導電性多孔質基材為了提高將燃料電池內部生成之水排出之排水性，而需要提高撥水性。基材之撥水性指標，可採用基材之滑落角。為了提高排水性而使泛溢現象不易發生，必須使用滑落角為 70° 以下，宜為 60° 以下，較宜為 50° 以下之導電性多孔質基材。滑落角越低越適宜，但滑落角可測定之下限為 1° 左右。另外所謂基材之滑落角，意為於水平配置之基材上滴下 10 μ 升之水滴，將基材從水平狀態階段性增加傾斜，當水滴滑

落時基材面與水平面形成之角度(傾斜角度)。又，導電性多孔質基材之滑落角，從導電性多孔質基材之至少單側測定之滑落角為 70° 以下即足夠。因此對於僅單面形成微多孔層之氣體擴散電極之導電性多孔質基材，爲了求得滑落角，可從氣體擴散電極未形成微多孔層側(氣體擴散電極之導電性多孔質基材側)測定滑落角。一方面，對於兩面形成微多孔層之氣體擴散電極之導電性多孔質基材，爲了求得滑落角，可使用形成微多孔層前之導電性多孔質基材測定滑落角。

【0023】爲了使滑落角爲前述範圍，通常以撥水材料對導電性多孔質基材實施撥水處理。撥水材料宜使用氟樹脂，氟樹脂可列舉 PTFE(聚四氟乙烯)(例如「鐵氟龍」(註冊商標))、FEP(四氟乙烯六氟丙烯共聚物)、PFA(全氟烷氧基氟樹脂)、ETFA(乙烯四氟乙烯共聚物)、PVDF(聚偏二氟乙烯)以及 PVF(聚氟乙烯)等，宜使用發揮強撥水性之 PTFE 或 FEP。PTFE 表現較強撥水性，但不易於導電性多孔質基材內部擴散，因此，從容易於構成導電性多孔質基材之碳纖維全體中擴散之觀點來看，宜使用 FEP。

【0024】導電性多孔質基材藉由撥水材料進行撥水處理，使撥水材料附著量(亦稱撥水材料量)相對於導電性多孔質基材每 100 質量份，宜爲 1 質量份以上，20 質量份以下，較宜爲 2 質量份以上，10 質量份以下。撥水材料量若小於 1 質量份，則難以得到滑落角爲前述範圍之充分撥水性。又，撥水材料量若大於 20 質量份，則有導

電性多孔質基材之細孔阻塞導致氣體擴散性降低以及導電性降低之可能性。

【0025】一般來講，撥水處理之方法習知為浸漬於撥水材料與水等分散媒構成之撥水材料分散液之處理技術。但是，由於該等處理技術難以控制對導電性多孔質基材之撥水材料附著量，而較宜使用模具塗布以及噴霧塗布等塗布技術作為撥水處理之方法。撥水材料分散液可將原液適度稀釋使用。通常，撥水材料分散液黏度為數 $\text{mPa} \cdot \text{s}$ 至數十 $\text{mPa} \cdot \text{s}$ ，但為了控制對導電性多孔質基材之滲入程度等目的，亦可添加增黏劑提高黏度而使用。但是，撥水材料分散液必須進入導電性多孔質基材之細孔，因此黏度上限為 $200\text{mPa} \cdot \text{s}$ 左右。

【0026】撥水材料分散液通常含有界面活性劑作為分散劑。為了發揮撥水性，最終須將該界面活性劑藉由熱分解等方法除去。但是，於撥水處理步驟結束後使界面活性劑殘留，則後述與微多孔層之接著性較良好。

【0027】氣體擴散電極係於兩面積層觸媒層之電解質膜兩側，以微多孔層與觸媒層接觸之方式夾入，用以構成膜電極接合體。該膜電極接合體係組裝入燃料電池之單電池。當運轉條件如車上用途般涉及廣範圍之溫度與輸出功率時，將受到電解質膜之膨脹收縮與溼潤乾燥等負荷，於氣體擴散電極中，若微多孔層與導電性多孔質基材之接著性低，則可能由於該等負荷導致微多孔層與導電性多孔質基材剝離。因此，導電性多孔質基材藉由撥水材料進行撥水處理時，為了提高微多孔層與導電性

多孔質基材之接著性，於微多孔層塗液塗布前，宜不進行撥水材料之燒結。

【0028】關於該導電性多孔質基材與微多孔層之接著性，可於發電性能之評估試驗後，從燃料電池取出膜電極接合體，將氣體擴散電極解體時，藉由觀察氣體擴散電極中微多孔層對於導電性多孔質基材之接著狀態，而定性評估。

【0029】導電性多孔質基材與微多孔層接著性之較實用指標，可採用導電性多孔質基材與微多孔層之黏合力，該黏合力宜為 5N/cm^2 以上。

【0030】導電性多孔質基材與微多孔層之黏合力，係將微多孔層從導電性多孔質基材剝離時，剝離面每單位面積之最大張力，可使用拉伸試驗機(例如島津製作所股份有限公司製「AUTOGRAPH」(註冊商標))測定。以該黏合力小於 5N/cm^2 之氣體擴散電極製作膜電極接合體時，微多孔層容易從導電性多孔質基材剝離，剝離部份將累積生成水而成為阻礙氣體擴散之主要因素，或可能發生耐久性降低等缺陷。

【0031】若導電性多孔質基材與微多孔層之接著性過大，則前述黏合力測定時，微多孔層或導電性多孔質基材本身將發生凝集破壞，此時，微多孔層與導電性多孔質基材之接著性無法實質測定，但黏合力所得到值若為 5N/cm^2 以上，則於使用該氣體擴散電極之膜電極接合體中，不會因實用上之負荷而導致微多孔層與導電性多孔質基材剝離。另外，黏合力之值越大越適宜，但從前述觀點來看，黏合力可測定之上限通常為 50N/cm^2 左右。

【0032】本發明中，以導電性多孔質基材之至少單面上形成微多孔層之氣體擴散電極為前提。

【0033】微多孔層之孔隙率必須為 60%以上 95%以下。微多孔層之孔隙率若小於 60%，則微多孔層中氣體(氫氣、空氣或氧氣)擴散性低，又由於微多孔層內產生凝結水時之排水性低，高電流密度之發電性能將降低。微多孔層之孔隙率宜為 70%以上，較宜為 75%以上。微多孔層之孔隙率越高越適宜，但組裝入燃料電池時，可維持微多孔層構造之上限為 95%。

【0034】關於微多孔層之孔隙率，可與導電性多孔質基材之孔隙率同樣如下進行測定。藉由離子研磨裝置(可使用 Hitachi High-Technologies 公司製 IM4000 型及其同等品)切出微多孔層厚度方向之面垂直截面，從該面垂直截面隨機選擇相異 20 個位置，藉由掃描電子顯微鏡等顯微鏡以 20000~50000 倍左右放大進行攝影，將各圖像之孔隙部與非孔隙部二值化而計測相對於全體面積(孔隙部面積與非孔隙部面積之和)之孔隙部面積比率，以 20 個位置之該比率平均值作為微多孔層之孔隙率(%)。

【0035】微多孔層係含有碳黑、奈米碳管、奈米碳纖維、碳纖維之短纖、石墨烯以及石墨等導電性微粒子而構成。從雜質少且不易使觸媒活性降低之觀點來看，碳黑宜使用乙炔黑。

【0036】進一步，為了提高微多孔層中之氣體擴散性，宜使用可形成高孔隙率塗膜之奈米碳纖維作為導電性微粒子。

【0037】又，微多孔層要求導電性、氣體擴散性、水之排水性、保溼性以及導熱性等特性，進一步要求於燃料電池內部陽極側之耐強酸性以及陰極側之耐氧化性，因此除導電性微粒子外，亦含有氟樹脂等撥水性樹脂。用於微多孔層之撥水性樹脂與用於撥水處理之撥水材料同樣可列舉 PTFE、FEP、PFA 及 ETFE 等氟樹脂。從撥水性特別高之觀點來看，宜為 PTFE 或 FEP。微多孔層中撥水性樹脂之含量，相對於導電性微粒子 100 質量份，宜為 1 質量份以上 50 質量份以下。撥水性樹脂含量若小於 1 質量份，則無法得到充分撥水效果。又，撥水性樹脂含量若大於 50 質量份，則導電性多孔質基材之細孔由撥水性樹脂填埋，而有氣體擴散性降低之顧慮，同時導電性多孔質基材之導電性有可能受損。撥水性樹脂含量更適宜之範圍，相對於導電性微粒子 100 質量份，係 5 質量份以上 30 質量份以下。

【0038】為了於導電性多孔質基材設置微多孔層，於導電性多孔質基材塗布微多孔層塗液。微多孔層塗液係前述導電性微粒子、撥水性樹脂以及水或醇類等分散媒混練構成。又，微多孔層塗液中，大多摻混界面活性劑作為使導電性微粒子與撥水性樹脂分散之分散劑。

【0039】微多孔層塗液中導電性微粒子之濃度，從生產性觀點來看，通常相對於塗液全量為 5 質量%以上，宜為 10 質量%以上。黏度、導電性微粒子之分散安定性以及塗液之塗布性等若為適宜則濃度無上限，但實際上若大於 50 質量%則塗液之適宜性有可能受損。特別是當

使用乙炔黑作為導電性微粒子時，就本發明者之探討，25 質量%左右為上限，若大於該濃度，則乙炔黑將再凝聚，即發生滲濾現象，因黏度急遽增加而有損塗液之塗布性。該現象於使用水作為分散媒之塗液(水系塗液)時特別顯著發生。

【0040】微多孔層之功能在於(1)保護觸媒、(2)不使孔隙粗糙之導電性多孔質基材表面轉印於電解質膜之補修效果以及(3)防止陰極產生之水蒸氣凝結於觸媒層附近之效果。前述之中，為了發揮(2)補修效果，微多孔層需要一定程度之厚度，為達此目的，微多孔層塗液宜盡可能不滲入導電性多孔質基材中。當微多孔層塗液之滲入增加，則原本應積層於導電性多孔質基材表面之微多孔層變薄而難以得到補修效果。又，導電性多孔質基材中滲入之微多孔層塗液有可能阻礙氣體擴散電極中氣體之擴散。

【0041】導電性多孔質基材之滲入程度，可藉由水銀孔隙計從細孔徑分布定量化。相對於導電性多孔質基材原本之細孔徑分布曲線之峰高(通常存在於細孔徑 $10\mu\text{m}$ 以上 $100\mu\text{m}$ 以下之範圍)，塗布微多孔層塗液導致微多孔層侵入導電性多孔質基材內部之前述峰高將衰減。該細孔衰減率(相對於導電性多孔質基材原本之峰高，導電性多孔質基材原本之峰高與微多孔層塗液侵入導電性多孔質基材內部之峰高差值之比率(%))可作為滲入程度之指標，稱為滲入指數。本發明中，滲入指數(細孔衰減率)宜為 65%以下。

【0042】關於微多孔層之厚度，考慮現狀之導電性多孔質基材之表面粗糙度，於乾燥狀態必須為 $10\mu\text{m}$ 以上 $50\mu\text{m}$ 以下，若大於 $50\mu\text{m}$ 則氣體擴散電極本身之電阻將增高。更適宜之微多孔層厚度範圍係 $10\mu\text{m}$ 以上 $40\mu\text{m}$ 以下，最適宜之微多孔層厚度範圍係 $15\mu\text{m}$ 以上 $40\mu\text{m}$ 以下。

【0043】在此微多孔層之厚度如第 4 圖所示，係從氣體擴散電極厚度 103A 減去導電性多孔質基材厚度 101A 之值。換言之，微多孔層滲入導電性多孔質基材之部份不包含於微多孔層之厚度。

【0044】另外，氣體擴散電極之厚度與導電性多孔質基材之厚度，係使用測微計等，於欲測定試料之面垂直方向施加 0.15MPa 之荷重並測定而得到。

【0045】微多孔層塗液係如前述將導電性微粒子分散於分散媒(水系則為水)而調製。為了使導電性微粒子分散，對於導電性微粒子每 100 質量份，可添加 0.1 質量份至最多 10 質量份之分散劑。但是，為了使該分散長時間安定而防止塗液黏度上昇，且塗液不分離，使用界面活性劑作為分散劑，增加其添加量係有效。

【0046】又，如前述使微多孔層厚度於乾燥狀態為 $10\mu\text{m}$ 以上時，塗液黏度宜保持 $1000\text{mPa}\cdot\text{s}$ 以上。塗液黏度若較該值為低，則塗液將於導電性多孔質基材表面上流動，且塗液將流入導電性多孔質基材之細孔而造成滲透至背面。反之若塗液黏度過高則塗布性惡化，因此塗液黏度上限為 $25\text{Pa}\cdot\text{s}$ 左右。塗液黏度範圍宜為 $3000\text{mPa}\cdot\text{s}$ 以上， $20\text{Pa}\cdot\text{s}$ 以下，更宜為 $5000\text{mPa}\cdot\text{s}$ 以上， $15\text{Pa}\cdot\text{s}$ 以下。

【0047】本發明中，爲了有效製造前述之氣體擴散電極，係將導電性多孔質基材概略水平搬運或設置，從其下側塗布前述微多孔層塗液，藉由如此方法，將受到重力影響，而抑制微多孔層塗液對導電性多孔質基材之滲入。導電性多孔質基材之角度爲概略水平即可，最宜爲完全水平，即基材面與水平面構成角度爲 0° ，但傾斜一定程度亦無妨。可容許之限度爲水平面至 60° ，若傾斜超出此範圍，則滲入增加且容易發生朝下方向之液滴流動。

【0048】又，藉由僅從如此搬運或設置之導電性多孔質基材之下側塗布微多孔層塗液，從上方落下之塵埃等附著於塗布面而形成外觀缺陷之可能性亦減少。

【0049】本發明中，從下側塗布微多孔層塗液後，爲了除去分散媒而進行乾燥。乾燥時，微多孔層塗液亦宜爲抑制微多孔層塗液滲入導電性多孔質基材中之狀態。通常，乾燥溫度爲 50°C 以上 120°C 以下，宜爲 60°C 以上 100°C 以下之範圍進行，乾燥後接著進行燒結。燒結時，微多孔層塗液亦宜爲抑制微多孔層塗液滲入導電性多孔質基材中之狀態。但是，乾燥步驟與燒結步驟不需爲分別之步驟，燒結步驟亦可兼爲乾燥。在此，所謂燒結係爲了將撥水性樹脂作爲黏合劑固定導電性微粒子形成微多孔層，而以撥水性樹脂之熔融溫度進行熱處理。燒結溫度適合爲 250°C 以上， 400°C 以下。燒結溫度若小於 250°C ，則當撥水材料分散液與微多孔層塗液中使用界面活性劑時，無法將其充分除去。又燒結溫度若大於 400°C ，則作爲黏合劑使用之撥水性樹脂有分解之顧慮。

【0050】如前述，撥水材料分散液與微多孔層塗液中，除分散媒以外，亦多添加界面活性劑作為分散劑與增黏劑，該等若殘存於氣體擴散電極中，則有可能損害氣體擴散性與導電性，因此宜於使撥水材料分散液與微多孔層塗液之分散媒乾燥之同時除去，或藉由乾燥後進行之熱處理(燒結)除去。

【0051】如前述，本發明製造之氣體擴散電極之適宜態樣，係對於規定厚度與孔隙率之導電性多孔質基材實施撥水處理，從水平搬運之導電性多孔質基材下側塗布微多孔層塗液，於抑制微多孔層塗液滲入導電性多孔質基材中之狀態進行乾燥及燒結，藉此除去微多孔層塗液以及撥水材料分散液中之界面活性劑，使所得到氣體擴散電極之氣體擴散能力不受損害。

【0052】關於氣體擴散電極之氣體擴散性，需要考慮氣體擴散電極之厚度方向，即相對於氣體擴散電極水平面之面垂直方向，以及氣體擴散電極之面內，即氣體擴散電極水平面方向之雙方。

【0053】藉由使用厚度方向之氣體擴散性設定為 30% 以上，宜為 32% 以上之氣體擴散電極，可得到高發電性能。厚度方向之氣體擴散性越高越適宜，但組裝入燃料電池時，考慮到孔隙率過高而電池內部受到壓力時可維持構造之前提下，上限值為 40% 左右。在此，厚度方向之氣體擴散性可如下進行測定。即，於氣體擴散電極一側(1 次側)流通欲測定擴散性之氣體，另一側(2 次側)流通氮氣，將 1 次側與 2 次側之壓力差控制於 0Pa 附近

($0\pm 3\text{ Pa}$)，即幾乎無壓力差造成氣體流動，僅藉由分子擴散造成氣體移動現象之狀態下，藉由 2 次側之氣體濃度計，測定達到平衡時之氣體濃度，將該值(%)作為厚度方向氣體擴散性之指標。

【0054】一方面，藉由使用面內氣體穿透性設定為 25cc/分鐘以上之氣體擴散電極，可得到更高發電性能。固體高分子型燃料電池之單電池截面示於第 5 圖。如第 5 圖所示，固體高分子型燃料電池之單電池，係於電解質膜 201 之兩面設置觸媒層 202 及 203，其兩外側配置氣體擴散層 204，進一步於其兩外側配置分離器 205。分離器 205 中刻劃有氣體流路 206，此處為氫氣(陽極)、氧氣或空氣(陰極)所流通。氣體流路與氣體流路間存在稱為脊柱 207 之部份，若不供給對應該脊柱之觸媒層氣體，則該部份觸媒層將不發電，而降低發電性能。因此，氣體擴散層 204 需要使通過氣體流路供給之氣體沿面內方向擴散，而使氣體亦可到達對應脊柱 207 部份的觸媒層之機能。對應該面內氣體擴散性之氣體擴散電極，其要求特性採用面內氣體穿透性。該面內氣體穿透性，係如後述使用氣體擴散電極，基本測定條件為 5kPa 壓力差下進行測定。但是，測定上之極限若大於 190cc/分鐘則無法測定，實際上限值為 3kPa 下 190cc/分鐘左右，當具有大於此上限值之穿透性時，係氣體擴散電極厚度過大而導致厚度方向氣體擴散性降低，或者孔隙率過大導致燃料電池中組裝入氣體擴散層時，該氣體擴散層無法維持構造。

【0055】若無法抑制微多孔層塗液滲入導電性多孔質基材，則導電性多孔質基材表面之微多孔層厚度減小，微多孔層原本之「修補效果」意義降低。若爲了避免該情形而增加塗布量(單位面積質量)，則有損氣體擴散性。

【0056】導電性多孔質基材可取用沿長度方向捲取之導電性多孔質基材捲繞體，本發明中，從導電性多孔質基材捲繞體捲出導電性多孔質基材，從下側塗布微多孔層塗液時，導電性多孔質基材宜以概略水平搬運或設置。且從下側塗布微多孔層塗液後，以塗布面不接觸搬運滾筒之方式進行乾燥及燒結而將氣體擴散電極藉由捲取機等捲取，即藉由捲對捲方式之加工，可於抑制微多孔層塗液滲入導電性多孔質基材之狀態下，連續進行步驟而提高量產性。

[實施例]

【0057】以下，藉由實施例更具體說明本發明。實施例使用之材料及各種評估方法如下所示。

【0058】<材料>

A：導電性多孔質基材

・以如下方式調製得到厚度 100 μ m，孔隙率 85%之碳紙。

【0059】將 TORAY 股份有限公司製聚丙烯腈系碳纖維「TORAYCA」(註冊商標)T300-6K(平均單纖維徑：7 μ m，單纖維數：6000 條)切割爲 6mm 長度，與 Alabama River 公司製闊葉樹漂白牛皮紙漿(LBKP)商品紙漿(硬木)，以水爲抄造媒體連續抄造，進一步於聚乙烯醇之 10

質量%水溶液中浸漬及乾燥，經過抄紙步驟後，捲取為捲狀而得到碳短纖維之單位面積質量為 15g/m^2 之長形碳纖維紙。相對於碳纖維紙 100 質量份，添加紙漿量等同於 40 質量份，聚乙烯醇附著量等同於 20 質量份。

【0060】將中越黑鉛工業股份有限公司製石墨片 BF-5A(平均粒徑 $5\mu\text{m}$)、酚樹脂及甲醇以 2:3:25 之質量比混合製備分散液。對於前述碳纖維紙，以相對於碳短纖維 100 質量份之酚樹脂浸漬量為 78 質量份之方式，於前述分散液連續浸漬，以 90°C 溫度乾燥 3 分鐘，經過樹脂浸漬步驟後，捲取為捲狀而得到樹脂浸漬碳纖維紙。酚樹脂係使用荒川化學工業股份有限公司製可溶型酚樹脂 KP-743K 與 Novolac 型酚樹脂 TAMANOL759 以 1:1 質量比混合之樹脂。

【0061】於 Kawajiri 股份有限公司製 100t 加壓機設置呈相互平行之熱板，於下熱板上配置間隔物，以熱板溫度 170°C ，面壓力 0.8MPa 反覆開閉加壓機，並間歇式搬運以脫模紙從上下夾住之樹脂浸漬碳纖維紙，使同一位置共計加熱加壓 6 分鐘而進行壓縮處理。又，熱板之有效加壓長度 LP 為 1200mm ，間歇式搬運時之樹脂浸漬碳纖維紙搬運量 LF 為 100mm ， LF/LP 為 0.08。換言之，藉由重複 30 秒加熱加壓、開膜以及碳纖維紙搬運 (100mm) 而進行壓縮處理，捲取為捲狀。

【0062】經壓縮處理之碳纖維紙作為前驅體纖維片，導入至保持氮氣環境，最高溫度 2400°C 之加熱爐中，於加熱爐內連續移動，同時以約 $500^\circ\text{C}/\text{分鐘}$ (至 650°C 為

400℃/分鐘，溫度大於 650℃則為 550℃/分鐘)之昇溫速度燒成，經過碳化步驟後，捲取為捲狀得到碳紙。所得到碳紙之密度為 0.25g/cm^3 ，孔隙率為 85%。

【0063】調整碳纖維之單位面積質量以及壓縮處理時之間隔物厚度，使碳化後之厚度為 $150\mu\text{m}$ ，此外與厚度 $100\mu\text{m}$ ，孔隙率 85%之碳紙同樣方式得到厚度 $150\mu\text{m}$ ，孔隙率 85%之碳紙。

【0064】調整碳纖維之單位面積質量以及壓縮處理時之間隔物厚度，使碳化後之厚度為 $180\mu\text{m}$ ，此外與厚度 $100\mu\text{m}$ ，孔隙率 85%之碳紙同樣方式得到厚度 $180\mu\text{m}$ ，孔隙率 85%之碳紙。

【0065】調整碳纖維之單位面積質量以及酚樹脂浸漬量，使碳化後之孔隙率為 75%，此外與厚度 $100\mu\text{m}$ ，孔隙率 85%之碳紙同樣方式得到厚度 $100\mu\text{m}$ ，孔隙率 75%之碳紙。

B：分散媒 離子交換水

C：撥水材料或撥水性樹脂

・PTFE 樹脂「Polyflon」(註冊商標)PTFE 分散液 D-210C(DAIKIN 工業股份有限公司製)

・FEP 樹脂「Polyflon」(註冊商標)FEP 分散液 ND-110(DAIKIN 工業股份有限公司製)

D：其他

・界面活性劑「TRITON」(註冊商標)X-100(NACALAI TESQUE 股份有限公司製)

E：導電性微粒子(碳質粉末)

・碳黑「DENKA BLACK」(註冊商標)(電氣化學工業股份有限公司製)

【0066】<氣體擴散電極、導電性多孔質基材以及微多孔層之厚度測定>

關於氣體擴散電極之厚度以及導電性多孔質基材之厚度，係使用 Mitutoyo 製測微計，對氣體擴散電極或導電性多孔質基材施加 0.15MPa 之荷重並進行測定。微多孔層之厚度係從氣體擴散電極之厚度減去導電性多孔質基材之厚度而求得。

【0067】<黏度測定>

於 Spectris 公司製 Bohlin 旋轉式流變儀之黏度測定模式中，使用直徑 40mm，傾斜 2°之圓形錐板，使錐板轉速增加(提高剪力)並測定應力。此時，剪力 17/秒之黏度值為塗液之黏度。

【0068】<導電性多孔質基材之孔隙率測定>

掃描電子顯微鏡使用日立製作所股份有限公司製 S-4800，從導電性多孔質基材之面垂直截面隨機選擇相異 20 個位置，以 20000 倍放大進行攝影，將各圖像之孔隙部與非孔隙部二值化而計測相對於全體面積(孔隙部面積與非孔隙部面積之和)之孔隙部面積比率(%), 求得 20 個位置之該比率平均值。製作導電性多孔質基材之面垂直截面時，使用 Hitachi High-Technologies 股份有限公司製離子研磨裝置 IM4000。

【0069】<微多孔層之孔隙率測定>

使用 Hitachi High-Technologies 公司製 IM4000 作為離子研磨裝置，切出微多孔層厚度方向之面垂直截面，從該面垂直截面隨機選擇相異 20 個位置，藉由掃描電子顯微鏡(股份有限公司日立製作所製 S-4800)以 20000 倍放大進行攝影，將各圖像之孔隙部與非孔隙部二值化而計測相對於全體面積(孔隙部面積與非孔隙部面積之和)之孔隙部面積比率(%),求得 20 個位置之該比率平均值。

【0070】<導電性多孔質基材之滑落角>

使用協和界面科學股份有限公司製自動接觸角計 DM501 之滑落角設定模式，於試料上滴下 10μ 升之水滴，試料平台從水平狀態階段性增加傾斜(以 1° /秒傾斜，停止 1 秒，反覆進行操作)，以水滴滑落而從測定畫面消失時之試料傾斜角度為滑落角。

【0071】<撥水材料附著量>

將撥水處理前之導電性多孔質基材(碳紙)切出 $5\text{cm}\times 5\text{cm}$ 之正方形，以電子天秤測定其質量，從撥水處理後以 380°C 除去撥水材料中所含界面活性劑之導電性多孔質基材同樣切出 $5\text{cm}\times 5\text{cm}$ 之正方形，測定樣本之質量，質量增加部份除以撥水處理前之質量乘以 100，求得導電性多孔質基材每 100 質量份之附著量(質量份)。

【0072】<厚度方向之氣體擴散性>

使用西華產業製水蒸氣氣體水蒸氣穿透擴散評估裝置(MVDP-200C)，於氣體擴散電極之一方(1次側)流通欲測定擴散性之氣體，另一方(2次側)流通氮氣。將 1 次側與 2 次側之壓力差控制於 0Pa 附近($0\pm 3\text{Pa}$)，藉由 2 次側

之氣體濃度計，測定達到平衡時之氣體濃度，將該值(%)作為厚度方向之氣體擴散性。

【0073】<面內氣體穿透性>

使用西華產業製水蒸氣氣體水蒸氣穿透擴散評估裝置(MVDP-200C)，如第 6 圖所示之管路系統中，最初僅開啓閥 A(303)，閥 B(305)維持關閉狀態，將氮氣 313 流入一次側管路 A(302)，於質流控制器(301)流通預定量(190cc/分鐘)之氣體，於壓力控制器(304)調整氣體壓力為相對於大氣壓施加 5kPa。於氣體室 A(307)與氣體室 B(309)間之密封材(312)上設置氣體擴散電極試料(308)。接著，關閉閥 A(303)，開啓閥 B(305)，使氮氣流入管路 B(306)。流入氣體室 A(307)之氮氣通過氣體擴散電極試料(308)之孔隙而移動至氣體室 B(309)，通過管路 C(310)，進一步通過氣體流量計(311)而排出至大氣中。測定此時氣體流量計(311)流通之氣體流量(cc/分鐘)，將該值作為面內氣體穿透性。

【0074】<滲入指數：細孔衰減率>

從水銀孔隙計之細孔徑分布定量化。首先，求得導電性多孔質基材原本之細孔徑分布曲線之峰高(通常存在於細孔徑 10 μ m 以上 100 μ m 以下之範圍)。接著於該基材塗布微多孔層塗液，藉此測定微多孔層塗液侵入導電性多孔質基材內部之狀態下之前述峰高。接著求得相對於導電性多孔質基材原本之峰高，導電性多孔質基材原本之峰高與微多孔層塗液侵入導電性多孔質基材內部之峰高差值之比率(%), 將其作為滲入指數使用。

【0075】<發電性能>

使用所得之氣體擴散電極，於電解質膜・觸媒層一體化製品(日本 Gore 製電解質膜「GORE-SELECT」(註冊商標)之兩面形成日本 Gore 製觸媒層「PRIMEA」(註冊商標)者)之兩側，以觸媒層與微多孔層接觸之方式夾住，於 130℃進行熱壓而製作膜電極接合體(MEA)。將該膜電極接合體組裝入燃料電池用單電池，使電池溫度為 40℃，燃料利用效率為 70%，空氣利用效率為 40%，加濕陽極側之氫氣及陰極側之空氣使露點分別為 75℃及 60℃而發電，提高電流密度得到停止發電之電流密度值(電流密度上限)作為耐泛濫性之指標。又，亦同樣測定通常運轉條件(電池溫度 70℃)以及高溫條件(電池溫度 80℃)之發電性能。

【0076】<黏合指數>

前述發電性能之評估試驗後，從燃料電池取出膜電極接合體，對於氣體擴散電極解體時氣體擴散電極之微多孔層對導電性多孔質基材之黏合程度藉由以下 4 階段進行定性評估，作為黏合指數。

【0077】等級 4 僅解體並不發生剝離，若強硬剝離，則觸媒層與微多孔層間發生剝離。

【0078】等級 3 僅解體並不發生剝離，若強硬剝離，則微多孔層之間發生凝集破壞，微多孔層大部分殘留於導電性多孔質基材側。

【0079】等級 2 僅解體並不發生剝離，若強硬剝離，則微多孔層之間發生凝集破壞，微多孔層於導電性多孔質基材側與觸媒層側相同程度分離。

【0080】等級 1 僅解體便發生導電性多孔質基材剝離，導電性多孔質基材上幾乎無微多孔層殘留。

【0081】<黏合力>

使用島津製作所股份有限公司製「AUTOGRAPH」(註冊商標)AGS-X 之拉伸試驗模式，將微多孔層與導電性多孔質基材之黏合程度以黏合力定量化。使用第 7 圖具體說明黏合力之測定方法。第 7 圖中，下方向箭頭表示壓縮方向，上方向箭頭表示拉伸方向。如第 7 圖所示，設置於拉伸試驗機之上下 2 個試料設置治具(401 及 402)，其試料接地面(2.0cm×2.0cm)貼附雙面膠布(Nichiban 製「NICETACK」(註冊商標)一般型 NW-20)(403)。從氣體擴散電極切下 2.24cm×2.24cm 大小之試料(404)，以導電性多孔質基材面(405)朝下，置於試驗機下側設置之試料設置治具(402)之上。將試驗機設為壓縮模式，以上方之另一試料設置治具(401)，從微多孔層面側(406)以 400N(面壓力 1MPa)加壓 30 秒。其後，將試驗機設為拉伸試驗模式，以 0.5mm/秒之速度使上側之試料設置治具(401)上昇。此時施加之最大張力除以試料面積(2.24cm×2.24cm)之值為黏合力。製作 3 個前述試料(404)進行測定，採用其平均值。

【0082】(實施例 1)

使用第 3 圖表示之捲取式搬運裝置，將捲取為捲狀之厚度 100μm，孔隙率 85%碳紙裝設於捲出機 2，從捲出機 2 捲出碳紙 1，以導輥 3 搬運，並於填滿撥水材料分散液之浸漬槽 15 浸漬進行撥水處理，於設定為 100℃

之乾燥機乾燥，以捲取機 9 捲取而得到經撥水處理之導電性多孔質基材。撥水材料分散液使用以水將 FEP 稀釋為 2 質量%濃度之 FEP 分散液(「Polyflon」(註冊商標)FEP 分散液 ND-110(DAIKIN 工業股份有限公司製))。另外，燒結爐 8 不昇溫而維持室溫。

【0083】接著，使用如第 1 圖所示裝置，將前述經撥水處理之導電性多孔質基材裝設於捲出機 2，從捲出機 2 捲出經撥水處理之導電性多孔質基材，以捲取機 9 捲取之同時，對於導電性多孔質基材以水平(基材面與水平面構成之角度為 0°)搬運之部份，從下側使用模具塗布機 5 塗布微多孔層塗液，其後於乾燥機 7 乾燥，於燒結爐 8 燒結而得到氣體擴散電極。

【0084】使用之微多孔層塗液如下。

【0085】將電氣化學工業股份有限公司製「DENKA BLACK」(註冊商標)7.7 質量份、FEP 分散液(DAIKIN 工業股份有限公司製「Polyflon」(註冊商標)ND-110)3.0 質量份、界面活性劑(NACALAI TESQUE 股份有限公司製「TRITON」(註冊商標)X-100)14 質量份以及離子交換水 75.3 質量份藉由行星式攪拌機混練，將黏度調整為 $10\text{Pa}\cdot\text{s}$ 得到微多孔層塗液。

【0086】微多孔層塗液塗布後之乾燥以 90°C 進行，進一步，其後之燒結以 350°C 進行。乾燥燒結後之微多孔層單位面積質量設定為 $15\text{g}/\text{m}^2$ ，微多孔層厚度設定為約 $30\mu\text{m}$ 。

【0087】另外，微多孔層塗液之塗布步驟中，完全未發生塗液污染滾筒類等情形。

【0088】(比較例 1)

使用如第 2 圖表示方法設置模具塗布機之裝置代替第 1 圖之裝置，將導電性多孔質基材於垂直搬運狀態下塗布微多孔層塗液，此外全部與實施例 1 同樣進行調製氣體擴散電極。另外，微多孔層塗液之塗布步驟中，塗液滲透導電性多孔質基材而污染滾筒類，於塗布結束後進行清掃作業。

【0089】(比較例 2)

使用如第 3 圖表示之捲取式搬運裝置，得到經撥水處理之導電性多孔質基材時，將燒結爐 8 設定為 370℃進行燒結，此外全部與比較例 1 同樣進行調製氣體擴散電極。

【0090】微多孔層塗液之塗布步驟中，塗液滲透導電性多孔質基材而污染滾筒類，於塗布結束後進行清掃作業，但污染程度較比較例 2 輕微。

【0091】(實施例 2)

於實施例 1 中，除將碳紙之撥水處理以及微多孔層塗液使用之 FEP 分散液變更爲 PTFE 樹脂「Polyflon」(註冊商標)PTFE 分散液 D-210C(DAIKIN 工業股份有限公司製)，且將燒結溫度變更爲 380℃之外，全與實施例 1 同樣進行調製氣體擴散電極。與實施例 1 相同，微多孔層塗液之塗布步驟中，完全未發生塗液污染滾筒類等情形。

【0092】(實施例 3)

於實施例 1 中，除將碳紙之撥水處理使用之 FEP 分散液變更爲 PTFE 樹脂「Polyflon」(註冊商標)PTFE 分散液 D-210C(DAIKIN 工業股份有限公司製)，且將燒結溫度變更爲 380℃之外，全與實施例 1 同樣進行調製氣體擴散電極。與實施例 1 相同，微多孔層塗液之塗布步驟中，完全未發生塗液污染滾筒類等情形。

【0093】(實施例 4)

於實施例 1 中，除將微多孔層塗液使用之 FEP 分散液變更爲 PTFE 樹脂「Polyflon」(註冊商標)PTFE 分散液 D-210C(DAIKIN 工業股份有限公司製)，且將燒結溫度變更爲 380℃之外，全與實施例 1 同樣進行調製氣體擴散電極。與實施例 1 相同，微多孔層塗液之塗布步驟中，完全未發生塗液污染滾筒類等情形。

【0094】(實施例 5)

將厚度 100 μm ，除將孔隙率 85%之碳紙變更爲厚度 150 μm ，孔隙率 85%之碳紙之外，全與實施例 1 同樣進行調製氣體擴散電極。與實施例 1 相同，微多孔層塗液之塗布步驟中，完全未發生塗液污染滾筒類等情形。

【0095】(實施例 6)

將厚度 100 μm ，除將孔隙率 85%之碳紙變更爲厚度 180 μm ，孔隙率 85%之碳紙之外，全與實施例 1 同樣進行調製氣體擴散電極。與實施例 1 相同，微多孔層塗液之塗布步驟中，完全未發生塗液污染滾筒類等情形。

【0096】(實施例 7)

除將厚度 $100\mu\text{m}$ ，孔隙率 85%之碳紙變更爲厚度 $100\mu\text{m}$ ，孔隙率 75%之碳紙之外，全與實施例 1 同樣進行調製氣體擴散電極。與實施例 1 相同，微多孔層塗液之塗布步驟中，完全未發生塗液污染滾筒類等情形。

【0097】(實施例 8)

於實施例 1 中，除調整微多孔層塗液之塗布量，使微多孔層厚度爲 $45\mu\text{m}$ (單位面積質量 $18\text{g}/\text{m}^2$)之外，全與實施例 1 同樣進行調製氣體擴散電極。與實施例 1 相同，微多孔層塗液之塗布步驟中，完全未發生塗液污染滾筒類等情形。

【0098】(實施例 9)

於實施例 1 中，除調整微多孔層塗液之塗布量，使微多孔層厚度爲 $70\mu\text{m}$ (單位面積質量 $25\text{g}/\text{m}^2$)之外，全與實施例 1 同樣進行調製氣體擴散電極。與實施例 1 相同，微多孔層塗液之塗布步驟中，完全未發生塗液污染滾筒類等情形。

【0099】(實施例 10)

於實施例 1 中，將微多孔層塗液變更爲以下塗液。

【0100】將電氣化學工業股份有限公司製「DENKA BLACK」(註冊商標)7.7 質量份、FEP 分散液(DAIKIN 工業股份有限公司製「Polyflon」(註冊商標)ND-110)3.0 質量份、界面活性劑(NACALAI TESQUE 股份有限公司製「TRITON」(註冊商標)X-100)3 質量份以及離子交換水 86.3 質量份藉由行星式攪拌機混練後，藉由珠磨機分散，以抽氣器除泡調製塗液。經調整之微多孔層塗液黏度爲 $3.8\text{Pa}\cdot\text{s}$ 。

【0101】又，前述組成之塗液黏度低，一次塗布無法達成 $30\mu\text{m}$ 之厚度，因此分 2 次進行塗布而達成 $30\mu\text{m}$ 厚度。除使用該微多孔層塗液且分 2 次進行塗布以外，與實施例 1 同樣進行調製氣體擴散電極。如此塗布之微多孔層構造緻密，孔隙率為 52%。與實施例 1 相同，微多孔層塗液之塗布步驟中，完全未發生塗液污染滾筒類等情形。

【0102】(實施例 11)

於實施例 1 中，除將撥水材料分散液變更為 PTFE 樹脂「Polyflon」(註冊商標)PTFE 分散液 D-210C(DAIKIN 工業股份有限公司製)藉由離子交換水稀釋至 0.2 質量%之分散液之外，全與實施例 1 同樣進行氣體擴散電極之製作。由於撥水材料分散液變更為低濃度，撥水材料對於碳紙構成纖維之附著量減少，滑落角為 90° 以上(傾斜至 90° 亦不滑落)。與實施例 1 相同，微多孔層塗液之塗布步驟中，完全未發生塗液污染滾筒類等情形。

【0103】關於該等實施例及比較例中製作之氣體擴散電極之加工條件及特性一併示於表 1。可知本發明氣體擴散電極範圍內之實施例，由於滲入指數小而氣體擴散性良好，其發電性能為良好，且黏合力亦良好。又，實施例中，可發現若脫離本發明氣體擴散電極之範圍，則發電性能與黏合程度略為降低之部份，但由於採用本發明之製造方法，微多孔層表面附著異物等外觀缺陷少，且不污染製造步驟，生產性高。

【0104】表 1

	實施例 1 第 1 圖	比較例 1 第 2 圖	比較例 2 第 2 圖	實施例 2 第 1 圖	實施例 3 第 1 圖	實施例 4 第 1 圖	實施例 5 第 1 圖	實施例 6 第 1 圖	實施例 7 第 1 圖	實施例 8 第 1 圖	實施例 9 第 1 圖	實施例 10 第 1 圖	實施例 11 第 1 圖
使用裝置(對應之參照圖面)													
導電性多孔質基材之厚度	μm	100	100	100	100	100	150	180	100	100	100	100	100
導電性多孔質基材之孔隙率	%	85	85	85	85	85	85	85	75	85	85	85	85
撥水處理之撥水材料種類	—	FEP	FEP	PTFE	PTFE	FEP	FEP	FEP	FEP	FEP	FEP	FEP	PTFE
撥水材料附著量	質量份	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5
經撥水處理之導電性多孔質基材 滑落角	°	29	32	26	65	24	32	35	29	29	29	29	90 以上
微多孔層厚度	μm	30	30	30	30	30	30	30	30	45	70	30	30
微多孔層之單位面積質量	g/m ²	15	20	15	15	15	15	15	15	18	23	15	15
微多孔層之撥水性樹脂種類	—	FEP	FEP	FEP	PTFE	PTFE	FEP	FEP	FEP	FEP	FEP	FEP	FEP
微多孔層之孔隙率	%	67	67	66	69	67	67	67	67	67	67	52	67
微多孔層之滲入指數	%	61	78	60	62	62	57	54	55	62	66	81	59
步驟中之滾筒污染	—	無	有	一部分	無	無	無	無	無	無	無	無	無
氣體擴散電極													
厚度方向之氣體擴散性	%	33	26	34	32	34	31	27	28	30	28	29	32
氣體擴散電極													
面內氣體穿透性	cc/分	28	19	26	32	28	67	85	30	28	28	30	31
發電性能(於 80℃)：高溫條件	A/cm ²	1.69	1.64	1.49	1.65	1.69	1.67	1.61	1.47	1.7	1.44	1.45	1.55
發電性能(於 70℃)：通常運轉條件	A/cm ²	2.25	1.83	2.01	2.23	2.28	2.12	1.85	1.89	2.09	1.86	1.92	1.92
發電性能(於 40℃)：耐泛濫性	A/cm ²	1.66	1.31	1.67	1.65	1.63	1.66	1.54	1.67	1.68	1.67	1.66	1.42
氣體擴散電極之黏合指數	—	等級 4	等級 4	等級 1	等級 4	等級 4	等級 4	等級 4	等級 4	等級 4	等級 4	等級 4	等級 3
氣體擴散電極之黏合力	N/cm ²	6.5	7.2	2.3	5.7	8	7.9	6	5.6	6.1	5.8	6.4	7.4

【符號說明】

【0105】

- 1 導電性多孔質基材(碳紙)
- 2 捲出機
- 3 導輥(非驅動)
- 4 模具塗布機 A
- 5 模具塗布機 B
- 6 背壓滾筒(驅動)
- 7 乾燥機
- 8 燒結爐
- 9 捲取機
- 10 分隔紙
- 11 分隔紙捲出機
- 12 塗液槽
- 13 輸液泵
- 14 過濾器
- 15 浸漬槽
- 101 導電性多孔質基材
- 102 微多孔層
- 101A 導電性多孔質基材厚度
- 102A 微多孔層厚度
- 103A 氣體擴散電極厚度
- 201 電解質膜
- 202 陽極側觸媒層
- 203 陰極側觸媒層

- 204 氣體擴散層
- 205 分離器
- 206 氣體流路
- 207 脊柱
- 301 質流控制器
- 302 管路 A
- 303 閥 A
- 304 壓力控制器
- 305 閥 B
- 306 管路 B
- 307 氣體室 A
- 308 氣體擴散電極試料
- 309 氣體室 B
- 310 管路 C
- 311 氣體流量計
- 312 密封材
- 313 氮氣
- 401 試料設置治具(上側)
- 402 試料設置治具(下側)
- 403 雙面膠布
- 404 氣體擴散電極試料
- 405 導電性多孔質基材面
- 406 微多孔層面

申請專利範圍

- 1.一種氣體擴散電極，係於導電性多孔質基材之至少單面上形成含導電性微粒子與撥水性樹脂之微多孔層而構成且用於燃料電池之氣體擴散電極，厚度方向之氣體擴散性為 30%以上，且導電性多孔質基材之滑落角為 70°以下，孔隙率為 80%以上，且微多孔層厚度為 10 μ m 以上 50 μ m 以下，孔隙率為 60%以上 95%以下。
- 2.如請求項 1 之氣體擴散電極，其中前述導電性多孔質基材之厚度為 150 μ m 以下。
- 3.如請求項 1 或 2 之氣體擴散電極，其面內氣體穿透性為 25cc/分鐘以上。
- 4.如請求項 1 至 3 中任一項之氣體擴散電極，其中前述導電性多孔質基材為碳紙。
- 5.如請求項 1 至 4 中任一項之氣體擴散電極，其中前述導電性多孔質基材與微多孔層之黏合力為 5N/cm² 以上。
- 6.如請求項 1 至 5 中任一項之氣體擴散電極，其厚度方向之氣體擴散性為 32%以上，且導電性多孔質基材之厚度為 120 μ m 以下，孔隙率為 85%以上，且微多孔層厚度為 10 μ m 以上 40 μ m 以下。
- 7.如請求項 1 至 6 中任一項之氣體擴散電極，其中撥水性樹脂為聚四氟乙烯或四氟乙烯六氟丙烯共聚物。
- 8.一種氣體擴散電極之製造方法，係於導電性多孔質基材之至少單面上形成含導電性微粒子與撥水性樹脂之微多孔層而構成且用於燃料電池之氣體擴散電極之製

造方法，該方法係將導電性多孔質基材概略水平搬運或設置，從其下側塗布混練導電性微粒子、撥水性樹脂及分散媒之微多孔層塗液，進行乾燥及燒結而得到氣體擴散電極。

9.如請求項 8 之氣體擴散電極製造方法，其係於微多孔層塗液塗布前，以撥水材料對導電性多孔質基材進行撥水處理，不進行撥水材料之燒結。

10.如請求項 8 或 9 之氣體擴散電極製造方法，其中以概略水平搬運或設置之導電性多孔質基材係從沿長度方向捲取之導電性多孔質基材捲繞體捲出，從下側塗布微多孔層塗液後，以塗布面不接觸搬運滾筒之方式捲取氣體擴散電極。

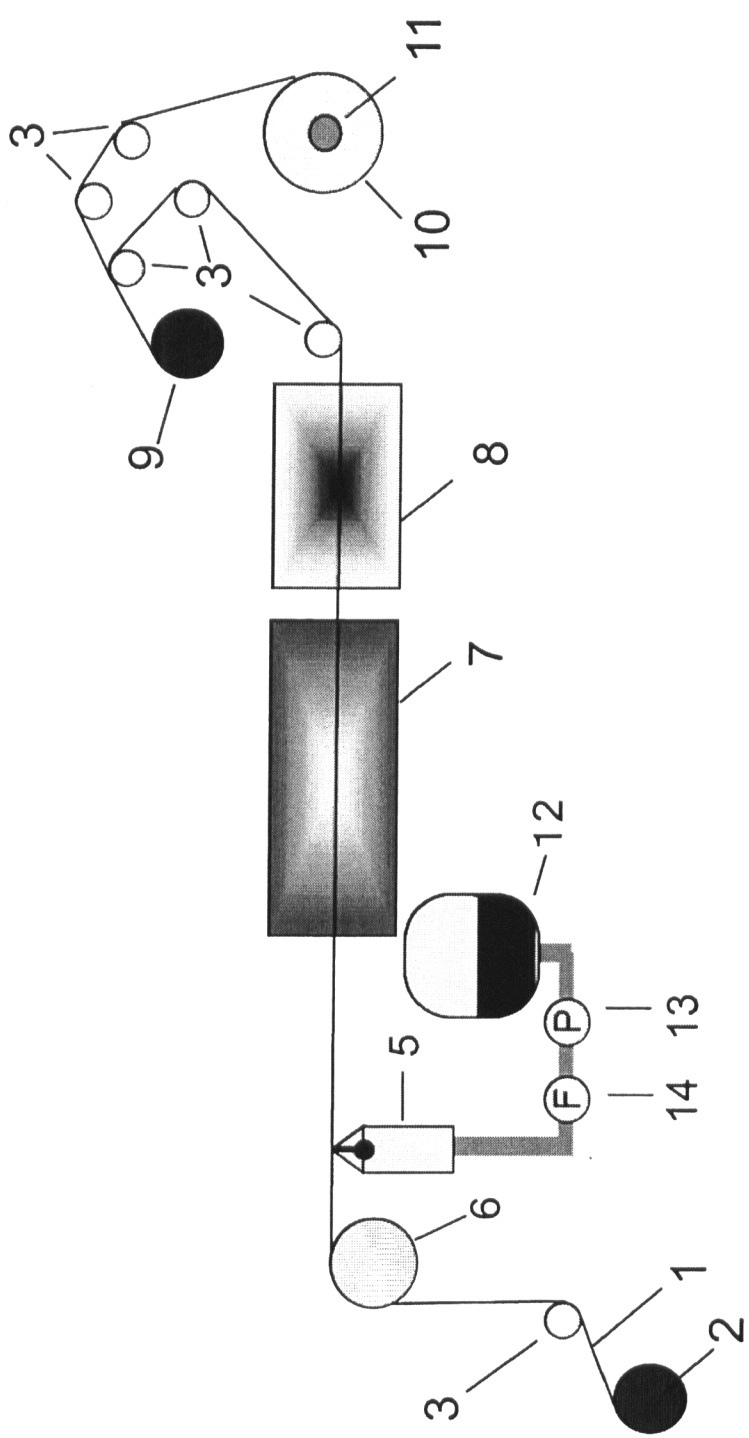
11.如請求項 8 至 10 中任一項之氣體擴散電極製造方法，其係從下側塗布微多孔層塗液，而於抑制對導電性多孔質基材之滲入狀態下乾燥。

12.如請求項 8 至 11 中任一項之氣體擴散電極製造方法，其係從下側塗布微多孔層塗液，而於抑制對導電性多孔質基材之滲入狀態下乾燥及燒結。

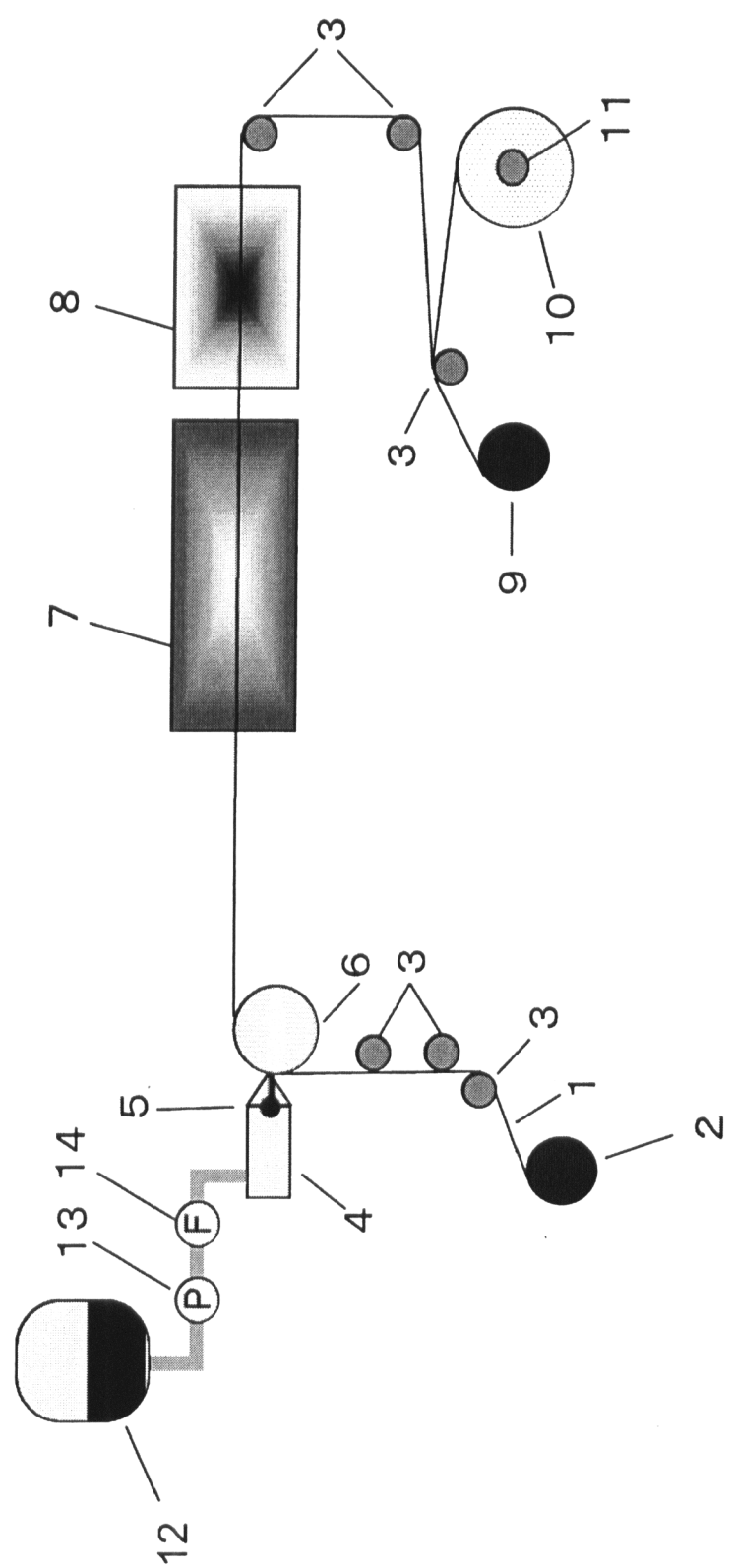
13.如請求項 8 至 12 中任一項之氣體擴散電極製造方法，其僅從下側塗布微多孔層塗液。

14.如請求項 8 至 13 中任一項之氣體擴散電極製造方法，其中前述微多孔層塗液之黏度為 $1000\text{mPa}\cdot\text{s}$ 以上。

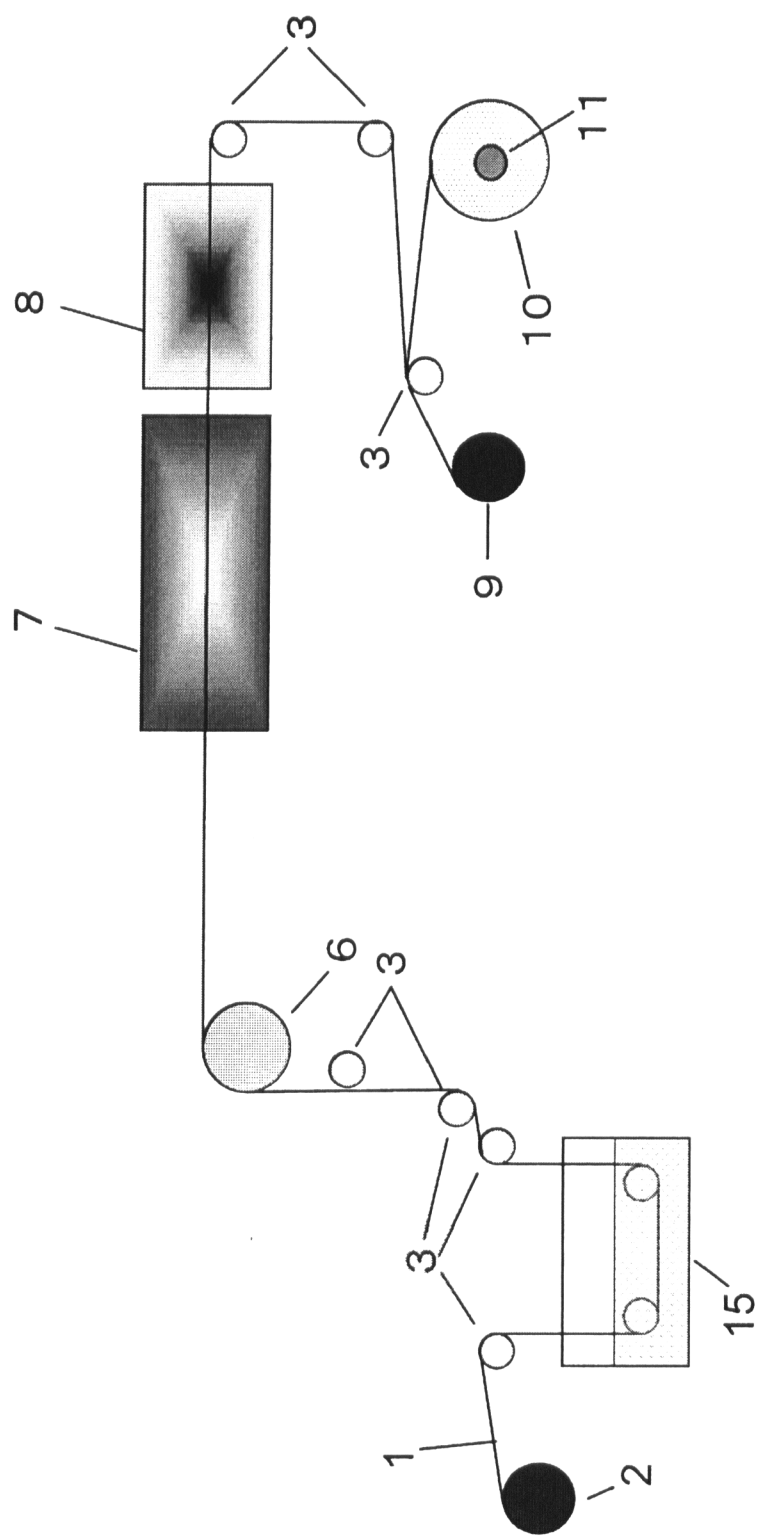
圖式



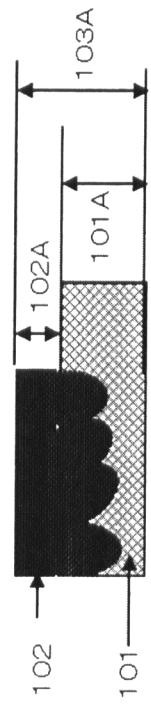
第 1 圖



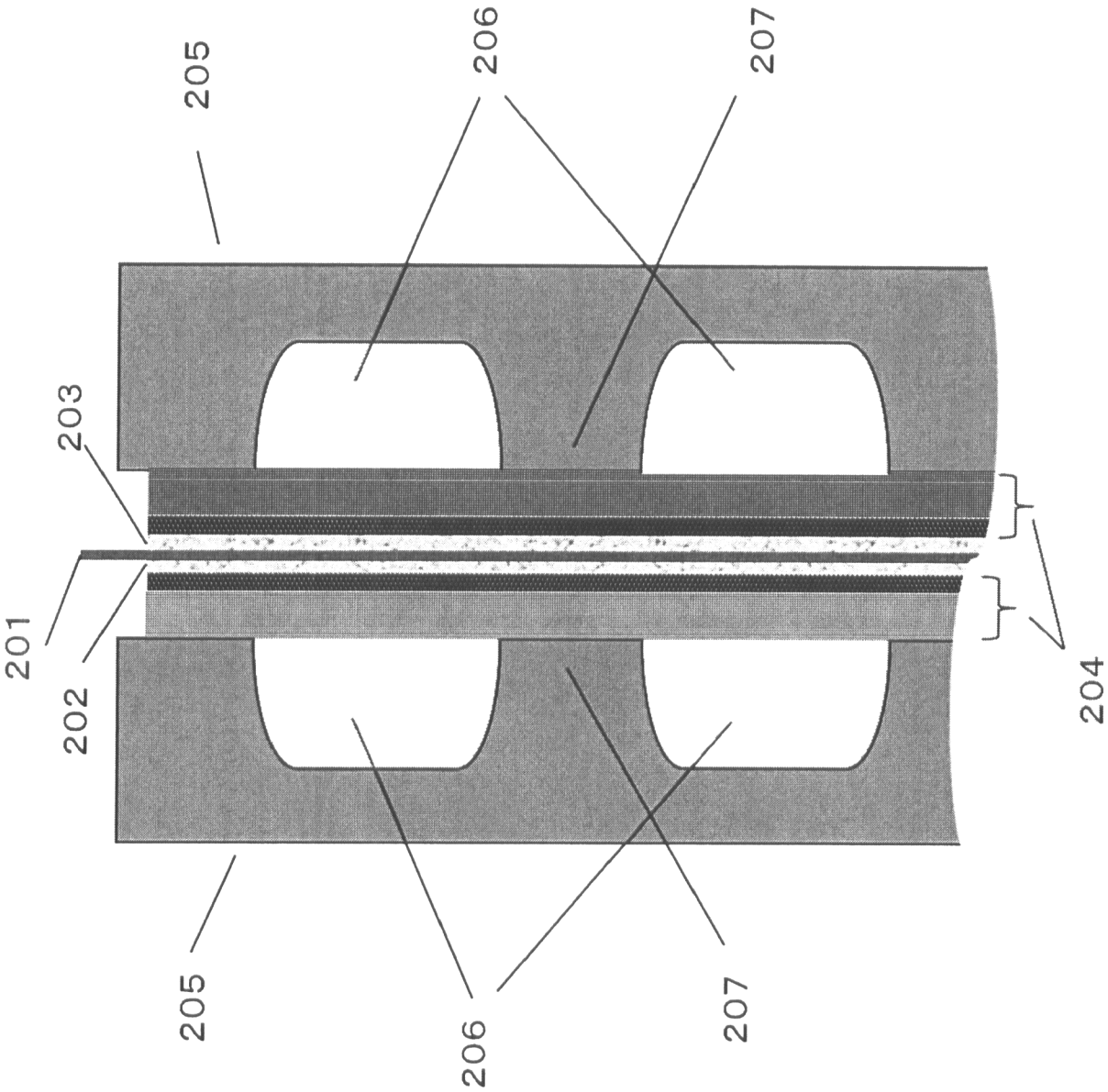
第 2 圖



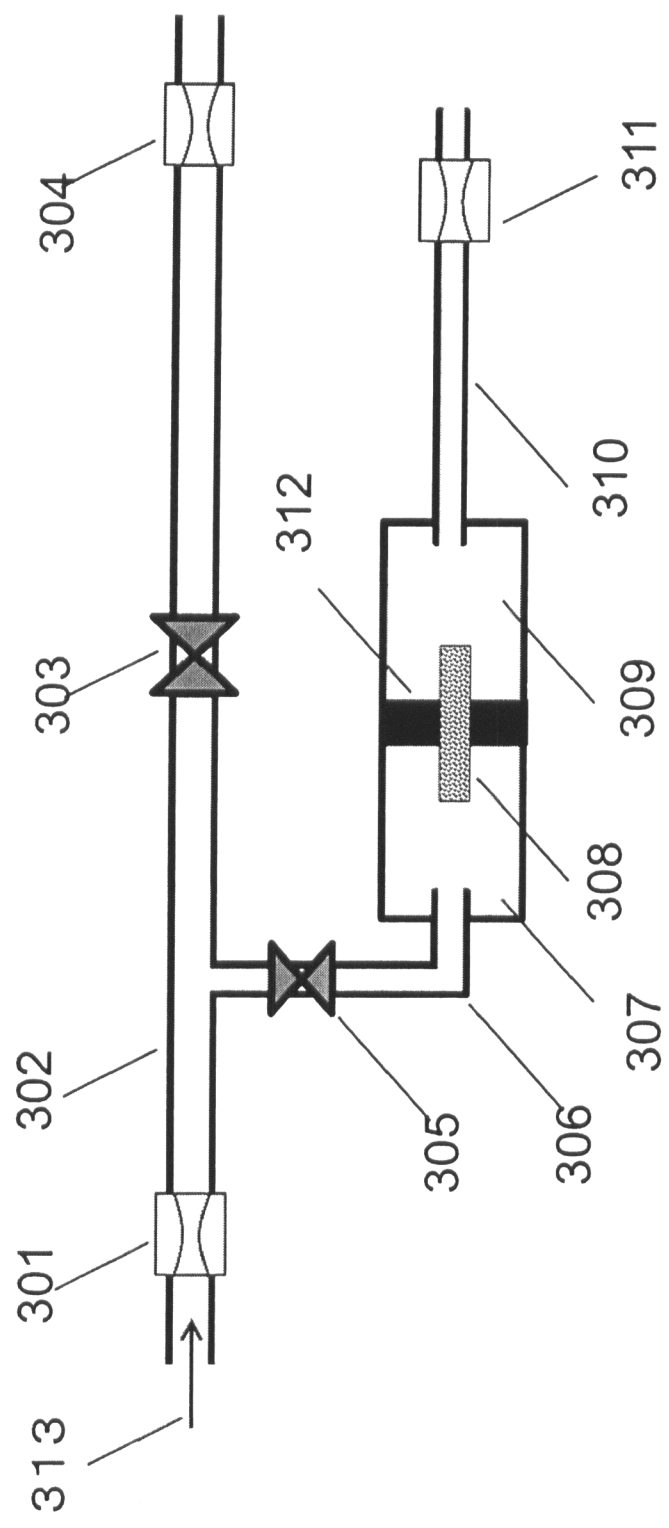
第 3 圖



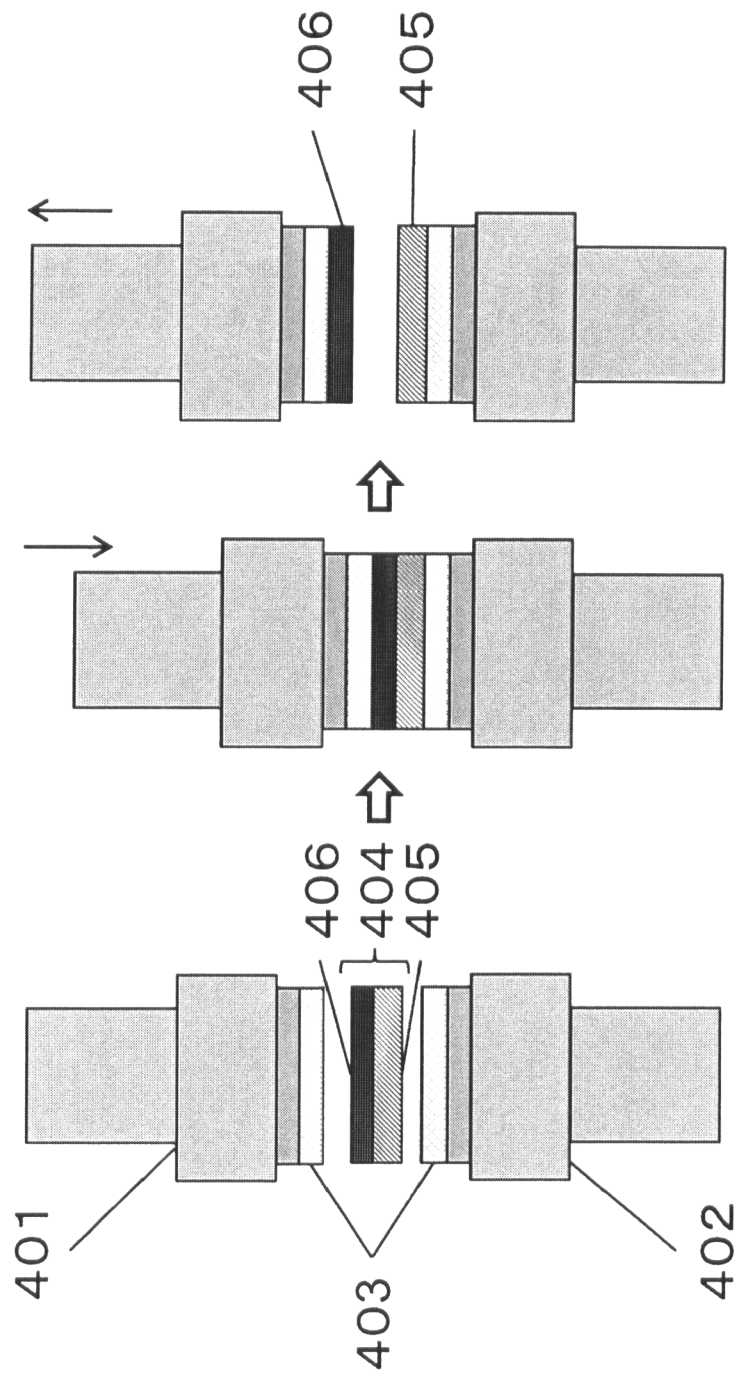
第 4 圖



第 5 圖



第 6 圖



第 7 圖