N-rich COF の炭化から得られる多孔性物質の電極触媒活性

(名大院理) ○近藤 大雅・阿波賀 邦夫

Electrocatalytic activity of porous materials derived from carbonization of Covalent Organic Framework (*Graduate School of Science, Nagoya University*) OTaiga Kondo, Kunio Awaga,

Electrocatalysts are those that promote energy conversion reactions such as oxygen reduction reactions (ORR) and hydrogen evolution reactions (HER). Recently, metal-free electrocatalysts have been well studied due to their low cost and high durability. The performance of electrocatalyst is highly depended on two properties: "porosity" and "heteroatom-doping". Good porosity provides a space for reactive molecules to adsorb, and increase catalytic active sites on the surface. The heteroatom-doping can not only improve the wettability and electron conductivity, but also increase the amount of catalytic active sites. Porous heteroatom-doped carbons (PHCs) are considered to be good candidates for electrocatalysts. One promising approach to prepare PHCs is to carbonization of heteroatom-containing organic precursors. In this research, to get high heteroatom content, N-rich covalent organic framework (COF) is utilized as the precursor. To prevent collapsing of the pores and get high porosity, a salt-assisted pyrolysis method is established. The effect of salt and carbonization temperature dependence are investigated. In addition, the electrocatalytic ORR activities of PHCs are also discuss.

Keywords: Covalent Organic Frameworks, Carbonization, Porosity, Electrocatalysis

電極表面上でエネルギー変換を行い酸素還元反応や水素生成反応を促すものを電極触媒という。現在、白金等の貴金属を含むものが広く用いられているが、コストや耐久性に難点を抱えており、近年その難点を補うメタルフリー触媒の研究が広くなされている。メタルフリー電極触媒の活性を高めるには「ヘテロ原子の導入」と「高い

表面積」が重要であると考えられている 1 。この 2 つを同時に満たすため、ヘテロ原子として窒素を豊富に含ませた有機共有結合構造体 (COF) を炭化させた。炭化することで表面積が大幅に低下することが知られているが 2 、炭化の際に炭酸カリウムを包含させることにより、COF よりも高い表面積をもたせることに成功した(**Fig.**) 3 。この炭化のメカニズムを考察するべく、赤外分光法や 2 線光電子分光法によって COFの骨格やヘテロ原子の結合状態の変化を追跡した。

最後に、得られた炭化物の酸素還元反応の触媒活性を比較し、窒素含有量および表面積との相関 を調べた結果を報告する。

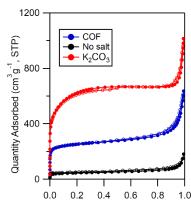


Fig. COF と炭化物の吸着等温線

1) M. Shao et al., Chem. Rev., **2016**, 116, 3594. 2) X. Zhang et al., Carbon, **2017**, 116, 686. 3) D. Yan, Y. Wu, R. Kitaura, K. Awaga, J. Mater. Chem. A, **2019**, 7, 26829.