

Pt_{ML}/Pd (110)上での酸素還元反応

Oxygen reduction reaction on Pt_{ML}/Pd (110)

田中貴金属工業株式会社¹, 阪大院工², アトミックデザイン研究セ³

政広 泰¹, 松谷 耕一¹, 海江田 武¹, 西崎 允子¹, Bhume Chantaramolee²,

Paulus Himawan Lim², ○(D)岸田 良², 国方 伸一², Wilson Agerico Diño^{2,3}

Tanaka Kikinzoku Kogyo, K.K.¹, Dept. of Appl. Phys., Osaka Univ.², CAMT Osaka Univ.³

Yasushi Masahiro¹, Koichi Matsutani¹, Takeshi Kaieda¹, Masako Nishizaki¹, Bhume Chantaramolee²,

Paulus Himawan Lim², °Ryo Kishida², Shinichi Kunikata², Wilson Agerico Diño^{2,3}

E-mail: kishida@dyn.ap.eng.osaka-u.ac.jp

酸素還元反応(ORR)は固体高分子形燃料電池(PEFC)の反応全体でボトルネックとなる過程である。ORR は PEFC のカソードで進行し、その触媒としてこれまで Pt が用いられてきた。カソード触媒の Pt 使用量の削減および ORR 活性を向上させるため、Pt 原子層(Pt_{ML})を別の金属表面に被覆させた系が考えられてきた[1-4]。

我々はこれまでに、Pt より安価な Pd や Ag を用いた系に着目し、特に Pt_{ML}/Ag (110)上で酸素解離に活性化障壁が存在しないことを示してきた[5]。本研究では Pt_{ML}/Pd (110)について、その表面上での ORR を密度汎関数理論に基づいた第一原理計算から調べた。まず、Pt_{ML}/Pd (110)上で O 原子が最安定となる吸着サイトとして、ショートブリッジ (sb)サイトを見出した。さらに、O₂ 分子の sb サイトへの解離には活性化障壁が存在しないことがわかった。また、解離した O 原子(O_{ads})へのプロトン化過程を調べ、OH_{ads} および H₂O_{ads} が生成し、脱離するまでのエネルギー変化を追跡した。計算には H₃O⁺を用いてプロトンの授受過程を調べた。H₃O⁺の表面への接近、O_{ads} および OH_{ads} へのプロトン移動には活性化障壁が存在せず、さらに表面から H₂O 分子の脱離する際のエネルギー変化は全体から見てほぼ無視できる程度であることを示した。

本講演では、これらの結果を詳細に紹介するとともに、Pt (110)など他の表面と比較し、総合的な観点から ORR 触媒表面の反応性について考察を述べる。

[1] M.C.S. Escaño et al., J. Nanosci. Nanotechnol. 11 (2011) 2944.

[2] M.C.S. Escaño et al., J. Power Source 247 (2014) 562.

[3] F. Oermy et al., J. Alloys Compounds 594 (2014) 93.

[4] F. Oermy et al., J. Vac. Soc. Jpn. 57 (2014) 277.

[5] Y. Masahiro et al., Surf. Sci. (in preparation).