

液中プラズマを用いて合成した鉄含有ナノグラフェンの酸素還元特性

Oxygen reduction characteristics of Fe-containing nanographene synthesized by in-liquid plasma

名大院工¹, 名城大², NUエコエンジニアリング³, 名大未来社会創造機構⁴ ○(D)天野智貴¹,
近藤博基¹, 竹田圭吾¹, 石川健治¹, 平松美根男², 加納浩之³, 関根誠¹, 堀勝⁴

Nagoya Univ. Eng.¹, Meijo Univ.², NU eco-engineering.³, Nagoya Univ. Inst. Innovation for Future
Society⁴, °Tomoki Amano¹, Hiroki Kondo¹, Keigo Takeda¹, Kenji Ishikawa¹, Mineo Hiramatsu²,

Hiroyuki Kano³, Makoto Sekine¹, Masaru Hori¹

E-mail: amano.tomoki@j.mbox.nagoya-u.ac.jp

背景 燃料電池は、二酸化炭素を排出しない安定な次世代エネルギーデバイスとして期待されている。しかし、触媒である白金(Pt)の高価格と現有埋蔵量の限界から、白金代替触媒が求められている。近年、窒素と遷移金属を含有した炭素(C)材料において高い触媒性能が報告され、研究開発が広く行われている[1]。一方、我々は液中プラズマを用いて、高い結晶性を有するナノグラフェンの高速かつ低コストな合成を実現している [2]。また Pt ナノ微粒子を担持させたナノグラフェンが、触媒反応において高い耐久性を有することを見出している [3]。今回、原料アルコール中への有機鉄錯体の添加により、鉄(Fe)含有ナノグラフェンを合成し、その酸素還元特性を明らかにした。

実験方法 ナノグラフェンの合成原料であるエタノール (100 ml) に鉄フタロシアニンを 5 mg 添加し、超音波洗浄機を用いて 30 分間処理することで分散させた。液中プラズマを用いたナノグラフェンの合成時間は 10~30 分とした。

実験結果 Fig.1 は、合成したナノグラフェンの N 1s 光電子スペクトルである。図中のスペクトルは、C 1s 光電子スペクトルの面積強度で規格化して示している。合成時間が 10 分から 20 分に長くなると共に Fe-N 結合に起因するピーク成分が減少し、さらに成長時間が 30 分になると Pyridinic な C-N 結合に起因するピーク成分が増大した。Fig.2 は、合成したナノグラフェンにおける酸素還元電流の分極曲線である。合成時間 10、20 および 30 分に対して、酸素還元開始電位はそれぞれ 0.79、0.73 および 0.82 V vs. RHE であった。一方、0.2 V vs. RHE おける酸素還元電流密度はそれぞれ 3.2、4.2 および 4.5 mAcm⁻² であった。すなわち合成時間が長くなるほど、触媒特性が向上する傾向が見られた。これらの結果より、プラズマ放電時

間の増加に伴い、フタロシアニン中の Fe-N 結合が分解され、触媒活性を有するピリジン型 C-N 結合が形成されたものと考えられる。

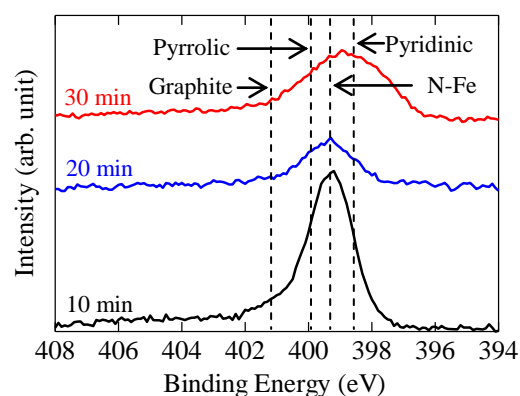


Fig.1 N 1s photoelectron spectra of Fe-containing nanographene.

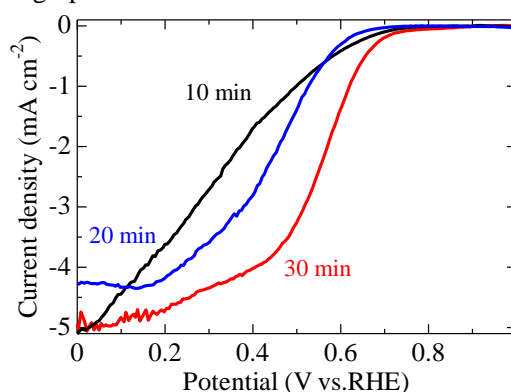


Fig.2 Polarization curves for the ORR on the Fe-containing nanographene electrocatalysts at a sweeping rate of 10 mV · s⁻¹ in O₂-saturated 0.1-mol/L HClO₄ electrolyte.

- [1] J. Ozaki, *et al.*: Carbon, **45** (2007) 1847.
[2] T. Hagino, *et al.*: Applied Physics Express, **5** (2012) 035101.
[3] T. Amano *et al.*, 10th AEPSE, 22a-D-4, Jeju, Korea (2015).