

ポリドーパミン-鉄コンポジット膜の作製と焼成による触媒電極への応用

Preparation of Polydopamine-Fe Composite Films and Application for Catalytic Electrodes by Calcination



東北大院環境¹, 東北大 WPI-AIMR² (M1)野崎 浩平¹, 阿部 博弥¹,
熊谷 明哉², 末永 智一¹, 藪 浩²

Grad. of Env. Stu., Tohoku Univ.¹, WPI-AIMR., Tohoku Univ.²

°Kohei Nozaki¹, Hiroya Abe¹, Akichika Kumatani², Tomokazu Matsue¹, Hiroshi Yabu²

E-mail: kouhei.nozaki.r5@dc.tohoku.ac.jp

【緒言】 燃料電池には、高価な白金を酸素還元反応(ORR)の触媒に用いているため、コストや資源の面で大きな課題がある。そのため、白金に代わる触媒活性点として鉄などの非白金金属触媒や窒素含有炭素触媒の研究が行われている。我々は、気液界面におけるドーパミン(DA)の酸化重合により形成したポリドーパミン(PDA)¹を窒素ドーブ炭素材料の原料として着目した (Fig. 1a)。PDA は金属イオンとの錯体形成や、アミン基を有する化合物と付加反応により、多様な金属イオンや窒素元素を有する炭素材料の原料となり得る。本研究では、鉄や窒素元素をドーブした PDA コンポジット膜を作製し、焼成により得られた炭素材料の ORR 活性を評価した。

【実験】 DA、FeCl₃の濃度が 10 mg/mL、ポリエチレンジアミン(PEI)の濃度が 2.5 mg/mL になるようにアンモニア水溶液(pH 9.5)を調製した。この溶液を 24 時間静置し、気液界面に PDA-PEI-Fe コンポジット膜を形成させた。比較として PDA のみの膜も作製した。これらの薄膜を Si 基板及び、グラッシーカーボン(GC)電極上にすくい取り、窒素雰囲気下、800 °Cで 2 時間焼成を行なった。この PDA-PEI-Fe 焼成薄膜表面の Fe, N の化学結合状態を評価するために、X 線光電子分光(XPS)を行なった。また、この PDA-PEI-Fe 焼成薄膜の炭素構造を評価するために、ラマン散乱分光装置を用いてラマン散乱分光測定を行なった。次にこれらの焼成電極と Pt 担持カーボン(Pt/C)の ORR 活性を比較するために酸素雰囲気下で

回転ディスク電極(2400 rpm、5 mV/s)を用いて、0.2 V から -0.8 V vs. Ag/AgCl に掃引し、電流値を測定した。

【結果】 Fig. 1b,c に PDA-PEI-Fe 焼成薄膜の XPS スペクトルを示す。この結果、Fe2p 軌道及び、N1s 軌道由来のピークが得られたことから、PDA-PEI-Fe 焼成薄膜は Fe, N を含有した炭素材料であることがわかった。次に、PDA-PEI-Fe 焼成薄膜のラマン散

乱分光測定を行なった結果(Fig. 1d)、G バンド、D バンドのピークが得られ、黒鉛構造を有することがわかった。またこれらの強度比から算出した R 値($R = I_D/I_G$)は 1.10 となり、PDA-PEI-Fe 焼成薄膜は格子欠陥を有することがわかった。次に、各電極で測定したリニアスイープボルタモグラム(LSV, Fig. 2)より、PDA-PEI-Fe 焼成薄膜の ORR 開始電位(-0.02 V vs. Ag/AgCl)は、GC 及び PDA 焼成薄膜と比較して、貴にシフトしており、また、反応電子数に関しても Pt/C に匹敵する性能を有することが明らかとなった。これは Fe, N が PDA 薄膜にドーブされたため、ORR の触媒活性点が増えたからであると考えられる。

1) H. Abe, H. Yabu, T. Matsue, *Langmuir*, 2017, **33**, 6404-6409.

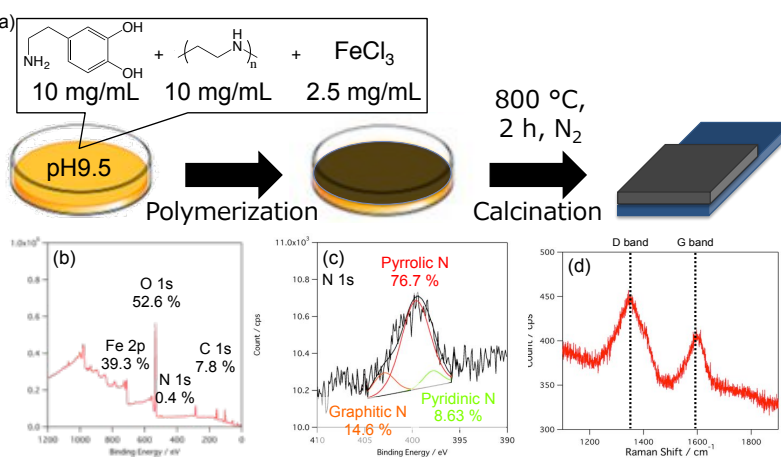


Fig. 1. PDA-PEI-Fe 膜の (a) 作製手順. (b) XPS スペクトル. (c) N1s の XPS スペクトル. (d) ラマン分光測定結果.

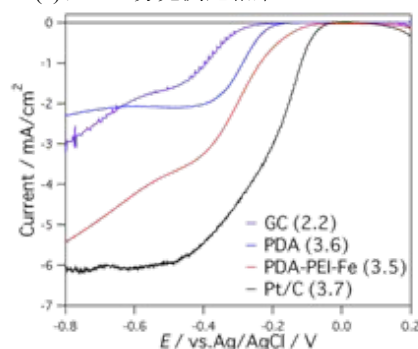


Fig. 2. GC, PDA, PDAPEI-Fe, Pt/C の LSV 結果 (括弧内は反応電子数) .