

液中プラズマで合成した鉄含有カーボンナノフレークの酸素還元特性

Oxygen reduction characteristics of iron-containing carbon nanoflake synthesized by in-liquid plasma

名大院工¹, 名城大理工², 名大未来社会創造機構³

○(D)天野智貴¹、近藤博基¹、堤隆嘉¹、石川健治¹、平松美根男²、堀勝³

Nagoya Univ. Eng.¹, Meijo Univ. Sci. Eng.², Nagoya Univ. Inst. Innovation for Future Society³,

○Tomoki Amano¹, Hiroki Kondo¹, Takayoshi Tsutsumi¹, Kenji Ishikawa¹, Mineo Hiramatsu²,

Masaru Hori³

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

背景 固体高分子形燃料電池では、触媒である白金(Pt)の高価格と現有埋蔵量の問題から、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、研究開発が活発になっている[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で低コストな合成手法を確立した[2]。またエタノール中への鉄フタロシアニンの添加によって鉄(Fe)を含有したカーボンナノフレークを合成し、その酸素還元特性を明らかにした[3]。今回、原料アルコール種が酸素還元特性に及ぼす効果を明らかにしたので報告する。

実験方法 分散溶媒としてN,N-dimethylformamide (DMF)を用い、ホモジナイザーによって30分間処理することで鉄フタロシアニン(15 mg)を分散させた。その後、DMFに分散した鉄フタロシアニン(40 ml)を、エタノール、1-プロパノールまたは1-ブタノール(160 ml)とそれぞれ混合した。同液を用いて液中プラズマ処理を30分間行った。

実験結果 Fig.1 は、合成したナノフレークにおける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。分子量の大きいアルコールを用いた場合ほど、触媒活性の起源となるFe-N結合のピークが減少した。Fig.2 は、合成したナノフレークにおける酸素還元電流の分極曲線である。エタノール、1-プロパノールおよび1-ブタノールに対して、酸素還元開始電位はそれぞれ0.89、0.87および0.74 V vs. RHEであった。一方、0.2 V vs. RHEにおける酸素還元電流密度はそれぞれ4.29、4.46および2.59 mAcm⁻²であった。この結果から、Fe-N結合の増加によって触媒活性が増加したものと考えられる。すなわち、アルコール種に依存し

たプラズマ合成制御により、より高い触媒活性を有するカーボンナノフレークが合成可能であることがわかった。

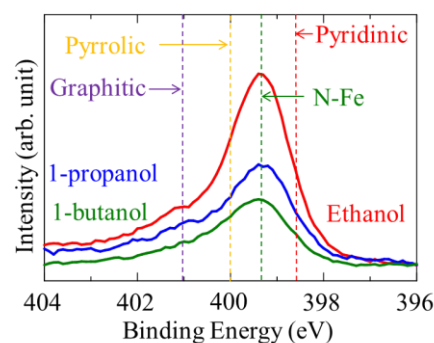


Fig.1 N 1s photoelectron spectra of Fe-containing carbon nanoflake.

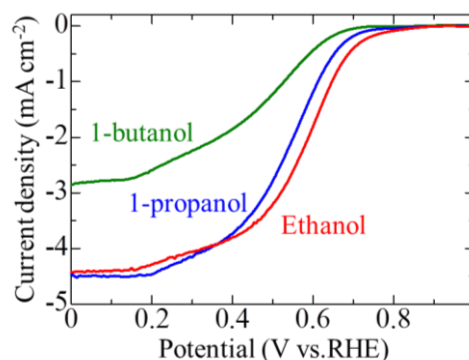


Fig.2 Polarization curves of ORR using the Fe-containing carbon nanoflakes at a sweeping rate of 10 mV·s⁻¹ in O₂-saturated HClO₄ electrolyte (0.1-mol/L).

[1]U. I. Koslowski, *et al.*: *J. Phys. Chem. C*, **112** (2008) 15356.

[2]T. Hagino, *et al.*: *Applied Physics Express*, **5** (2012) 035101.

[3] 天野、他: 2017 年 第 64 回応用物理学会春季学術講演会, 16a-315-4 (2017).