

オンサイト SO₂ 被毒による PEFC Pt カソード触媒の *operando* Pt L_{III} 端 XAFS 解析

(名大院理/物国セ¹・電通大²・JASRI/SPRING-8³) ○佐藤 功真¹・松井 公佑¹・Samjeske Gabor¹・宇留賀 朋哉^{2,3}・唯 美津木¹

On-site SO₂ poisoning of PEFC Pt Cathode Catalyst for *operando* Pt L_{III}-edge XAFS analysis (¹Graduate School of Science/RCMS, Nagoya Univ., ²UEC, ³JASRI/SPRING-8) ○Koshin Sato,¹ Hirotsuke Matsui,¹ Samjeske Gabor,¹ Tomoya Uruga,^{2,3} Mizuki Tada¹

In the practical use of polymer electrolyte fuel cells (PEFCs), SO₂ contaminant in air causes serious poisoning of Pt electrocatalyst at cathode, resulting in significant decrease in cell performance. The recovery of the poisoned Pt catalyst is still difficult, and the understanding of poisoning and recovery mechanisms of Pt catalyst is required. In this study, *operando* Pt L_{III}-edge XAFS analysis of Pt cathode PEFC catalyst for SO₂ poisoning and subsequent recovery process under practical PEFC operation was investigated. The Pt L_{III}-edge XANES and EXAFS suggested changes in the redox behaviors of the Pt catalyst by SO₂ poisoning, and the formation of Pt-S bonds was observed, suggesting that the S species covered the Pt catalyst surface to inhibit the reaction with oxygen. After a typical recovery treatment (1.0 V, 1 h under air at cathode), PEFC power was recovered but slight changes in the local coordination structure of the Pt catalyst was observed by *operando* XAFS.

Keywords : XAFS; Polymer Electrolyte Fuel Cell; SO₂ poisoning; *operando* measurement

固体高分子形燃料電池 (PEFC) の実走行時には、カソードに供給される空気中の微量なコンタミ成分である SO₂ 等により Pt 電極触媒の被毒が引き起こされ、セル出力の大幅な低下が起こる。回復プロトコルの開発も検討されているが、触媒性能の完全な回復は難しく、被毒・回復メカニズムの解明が求められている。本研究では、PEFC 実セル運転下での SO₂ 被毒・回復処理に対するオペランド Pt L_{III} 端 XAFS 解析を検討し、SO₂ 被毒時の Pt 触媒表面の局所構造変化を明らかにした。

4 ppm の SO₂ をカソードに流通させ (0.4 V, 4 h)、電気化学活性表面積が 10% 程度まで低下することを確認した。Pt L_{III} 端 XANES では、セル電位に対するホワイトライン強度の応答変化が乏しくなり、EXAFS からは Pt-S 結合の形成とともに、Pt-Pt/Pt-O 配位数の変化が減少した。Pt 表面を S 種が覆うことで表面上の酸素の反応サイトが被毒され、結果として PEFC の出力低下に繋がることが示唆された。また、回復処理後 (カソード air 流通下, 1.0 V, 1 h) は、電気化学も XAFS のどちらも部分的な回復を示し、Pt 触媒の顕著な移動や凝集は観察されなかったが、Pt-Pt 配位数のわずかな増加がみられた。

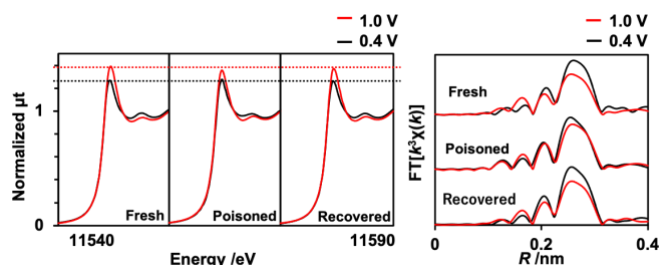


Fig. 1 被毒前後、回復後の Pt L_{III} 端 XANES と EXAFS.