

酸素還元反応電極触媒の劣化過程の同一視野 TEM 観察

(静岡大学院工¹⁾) ○宮林 恵子¹

Identical-location TEM analysis of ORR electrocatalysts during accelerated degradation test (¹*Graduate School of Integrated Science and Technology, Shizuoka University*) ○Keiko Miyabayashi¹

Gold grids are usually used for identical-location TEM analysis of electrocatalysts. However, the gold dissolves and precipitates on the catalysts, making observation difficult in the degradation test where more than 1.0 V is applied. In this study, gold grids were coated with iridium and were applied to the durability evaluation of fuel cell cathode catalysts. A potential simulating the start-up and shutdown conditions was applied to the grid loaded only with carbon. Although gold nanoparticles of 10 nm or more were deposited after 1000 potential cycles in the case of the gold grid, no gold deposition was observed even after 3000 cycles in the case of the iridium-coated Au grid. This result indicates that the iridium coating suppresses the leaching and reprecipitation of gold during the degradation test.

Keywords : *Electrocatalyst; Surface modification; Degradation test; Oxygen reduction reaction; Identical-location TEM analysis*

自動車用の燃料電池触媒の耐久性評価では、起動停止や加速時を模した電位を印加し、サイクル数毎の特性を評価する。劣化過程の触媒粒子の詳細な構造変化は TEM で観察され、特に、同一視野 TEM(IL-TEM)観察は、触媒粒子の溶解再析出、マイグレーション、合体、カーボン腐食の過程を追跡でき、劣化機構解明に重要な情報を与える。¹⁾ 電極触媒の IL-TEM 観察では、酸性溶液中での電位耐性を考慮し金グリッドが選択されるが、起動停止耐久性試験では、グリッドへ 1.0-1.5 V を印加するため金が溶解再析出し、ナノ粒子形態変化の追跡を困難にする。²⁾ 酸性条件下、1.0 V 以上で酸化被膜を形成するイリジウムによるグリッドの被覆は、高電位での金の溶解抑制が期待できる。本研究では、燃料電池カソード触媒の耐久性評価のため、イリジウム被覆金グリッドを作製し、金の溶解再析出の抑制を検討した。

陽極酸化により作製したイリジウム被覆金グリッドは、STEM-EDX 測定からイリジウムで被覆されていることを確認した。金グリッドの CV 測定では、金の還元ピークが 1.23 V 付近に確認されたが、イリジウム被覆金グリッドでは金の還元ピークは認められなかった。カーボン担体を塗布したグリッドの電位サイクル試験では、金グリッドでは 1000 電位サイクル後に 10 nm を超える金ナノ粒子が析出したが、イリジウム被覆金グリッドでは電位 3000 サイクル後もカーボンへの金の析出は認められず、イリジウム被覆によりグリッドからの金の溶解が抑制できることを明らかにした。

1) K. J. Mayrhofer, C. J. Meier, S. J. Ashton, G. K. Wiberg, F. Kraus, M. Hanzlik, M. Arenz, *Electrochem. Commun.* **2008**, 10,1144-1147

2) J. Speder, A. Zana, I. Spanos, J. J. K. Kirkensgaard, K. Mortensen, A. Hanzlik, M. Arenz, *J. Power Sources*, **2014**, 261, 14-22.