研究論文

ソリューションプラズマプロセスを用いて合成した窒素含有カーボンの

窒素含有量制御による触媒活性向上

千葉 聡, 木口崇彦*, 藤間卓也**, 石﨑貴裕****

Improvement in Catalytic Activity of Nitrogen Doped Carbon Synthesized by Solution Plasma Process with Controlling Doping Concentration

by

Satoshi CHIBA*, Takayoshi KIGUCHI*, Takuya FUJIMA**, and [†]Takahiro ISHIZAKI*^{,***} (Received Oct. 7, 2015; Accepted Jan. 7, 2016)

Abstract

Nitrogen doped carbon has been attracted as Pt alternative oxygen reduction reaction (ORR) catalyst for fuel cell and metal-air battery. In this study, we synthesized nitrogen doped carbons from benzene and pyrazine by solution plasma process (SPP) and investigated their physicochemical properties and ORR activity. Changing the mixture ratio of benzene and pyrazine, we succeeded in controlling the nitrogen concentration in carbon. Especially, the nitrogen concentration of the carbon synthesized from pure pyrazine reached high concentration of 8.58 at%. In order to evaluate its ORR activity, cyclic voltammetry (CV) measurements were performed and the CV curves were then normalized by the specific surface area. As a result, it was found that the ORR activity of nitrogen doped carbon was influenced by the bonding configuration states of nitrogen in the carbon structure and its ORR activity was enhanced with an increase in the nitrogen concentration in the precursors.

Keywords: solution plasma, electrocatalysis, nitrogen doped carbon, oxygen reduction reaction

1. 緒言

現在、燃料電池や金属空気電池の酸素還元触媒として一

平成 27 年 10 月 7 日受付
* 芝浦工業大学工学部材料工学科先端材料研究室:東京都江 東区豊洲 3-7-5
TEL 03-5859-8115 FAX 03- 5859-8101
ishizaki@shibaura-it.ac.jp
Department of Material Science and Engineering, Shibaura Institute of Technology: 3-7-5 Toyosu, Koutou-ku, Tokyo 152-8552, Japan
** 東京都市大学工学部機械工学科機械材料研究室:東京都世 田谷区玉堤 1-28-1
Department of Mechanical Engineering, Faculty of Engineering, Tokyo City University: 1-28-1 Tamazutsumi, Setagaya-ku, Tokyo 158-8557, Japan

*** JST CREST: 332-0012 埼玉県川口市本町 4-1-8 JST CREST: 4-1-8 Honcho, Kawaguchi, Saitama, 332-0012, Japan

†:連絡先/ Corresponding author

般的に用いられている白金系触媒は,酸素還元反応(ORR) に対する高い活性を示すが,原料コストが高く,CO被毒に より長期安定性に欠ける¹⁾⁻⁶⁾.そのため,新たな酸素還元触 媒として窒素含有カーボンが注目されている.窒素含有カ ーボンは酸素還元反応に対して高い触媒活性を示し,かつ 長期安定性も優れていることから,様々な方法で合成され ている^{1),3),4),7)}.

窒素含有カーボンの合成法に関して,我々はソリューションプラズマプロセス(SPP)という液中でのプラズマプロ セスに着目した.SPP は液中の対向電極間に直流バイポー ラ電圧を印加することでプラズマを生成し,反応を進行さ せるプロセスである.SPP は液中プロセスであるため,気 相プロセスと比較して分子密度が高く,反応速度が速い. また,真空設備が不要であり,簡便な装置構成である⁸⁾⁻¹²⁾,