### 研究論文

## ソリューションプラズマプロセスにより合成した窒素含有カーボンの 特性と酸素環元触媒活性に及ぼす放電周波数の影響

†和田雄太\*,笹川圭祐\*,金子 周\*,LEE Hoonseung\*\*,石﨑貴裕\*\*

# Effect of Discharge Frequency on Characteristics and Electrocatalytic Activity for Oxygen Reduction of Nitrogen-containing Carbons Synthesized by Solution Plasma Process

by

<sup>†</sup> Yuta WADA\*, Keisuke SASAGAWA\*, Amane KANEKO\*, Hoonseung LEE\*\* and Takahiro ISHIZAKI\*\*

(Received Jul. 14, 2017; Accepted Oct. 27, 2017)

#### **Abstract**

Oxygen reduction reaction (ORR) is one of the important factors that affects the performance of Lithium(Li)-air battery. Many researchers have reported that the hetero-atom doped graphene exhibited ORR catalytic activity, but complex process is required to dope the hetero-atom within graphene. Solution plasma process (SPP) is a new and simple synthesis method. In this study, we aimed to synthesize nitrogen-containing carbon by SPP using pyridine (C<sub>5</sub>H<sub>5</sub>N) as a raw material and investigate effect of change in discharge frequency on the characteristics of the synthesized carbons. X-ray Photoelectron Spectroscopy (XPS) studies revealed that the nitrogen contents in the synthesized carbons were changed in the range of approximately 1.6 to 2.0 at. % depending on the frequencies. The electrocatalytic activity for ORR of the synthesized carbon were electrochemically estimated. The nitrogen-containing carbon synthesized at 20 kHz showed the most superior electrocatalytic activity for ORR.

Keywords: Solution plasma, Carbon, Oxygen reduction reaction

### 1. 緒言

エネルギー資源の枯渇問題などの観点から、化石燃料等に代わるエネルギー源の需要が高まっている <sup>1)-5)</sup>. 特に、サイクル寿命が長く、充放電が可能で、エネルギー効率が高

平成 29 年 7 月 14 日受付

\* 芝浦工業大学大学院理工学研究科材料工学専攻: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 and Science Engineering, Shibaura Institute of Technology: 3-7-5 Toyosu, Koutou-ku, Tokyo 135-8548, Japan

\*\* 芝浦工業大学工学部材料工学科: 東京都江東区豊洲 3-7-5 Department of Material and Science Engineering, Shibaura Institute of Technology: 3-7-5 Toyosu, Koutou-ku, Tokyo 135-8548, Japan

†:連絡先/ishizaki@shibaura-it.ac.jp

い Lithium (Li)イオン二次電池は効率的なエネルギーデバイスとして注目されている <sup>6</sup>. しかし、理論上のエネルギー密度の観点から、Li イオン二次電池では、急速に発展している電気自動車や電子機器などの将来の要求に応えることが困難である。そこで、Li 空気電池が新たな二次電池として大きな注目を集めている <sup>7</sup>. この電池は、正極活物質として空気中の酸素を用いているため、電池構造中に多くの負極活物質を充填することが可能である。このため、他の電池と比較して非常に大きなエネルギー密度を得ることが可能である。

正極で起こる酸素還元反応 (ORR) には,以下に示すような4電子での一段階反応(1)と,2電子での二段階反応(2)(3)が存在する.2電子反応の際に生成する HO<sub>2</sub>は強力な酸化