

低周波成膜 DLC の酸素還元反応

DLC film deposition by low frequency plasma for Oxygen reduction reaction

電機大¹, 春日電機² ○(M2) 松崎 充晃¹, (B) 小嶋 翔¹, (B) 小笠原 知大¹, 鈴木 輝夫²,
田村 豊², 小木曾 智², 杉村 智², 松浦 慶², 向山 義治¹, 平栗 健二¹, 大越 康晴¹
Tokyo Denki Univ.¹, Kasuga Denki², °Mitsuaki. Matsuzaki¹, Sho Kojima¹, Tomohiro Ogasawara¹,
Teruo Suzuki², Yutaka Tamura², Satoshi Ogiso², Satoshi Sugimura², Kei Matsuura²,
Yoshiharu Mukouyama, Kenji Hirakuri, Yasuharu Ohgoe
E-mail: 22rme20@ms.dendai.ac.jp

【研究背景】白金は燃料電池等における電極触媒として使用されているが、高コストといった課題がある[1]。その一方で、ダイヤモンド状炭素薄膜（Diamond-Like carbon : DLC）は、低コストで優れた電気化学特性を有することから[1]，酸素還元反応（Oxygen Reduction Reaction : ORR）の電極として機能することが期待できる。また、DLC の成膜を低周波化することで膜構造を可変させることができるということが報告されている[2]。そこで本研究では、低周波プラズマを用いた成膜に注目し、DLC の ORR 活性を評価すること目的とした。

【実験方法】CH₄を原料ガス(ガス圧力:50 Pa, 流量:1.67×10⁻⁶ cm³/s)とし、高周波(13.56 MHz, 100 W)および低周波(30 kHz, 50 W)電源を用いた CVD 法により、各種 DLC を成膜した。この時、膜厚をいずれも 300 nm とした。そして、三電極法を用いた CV (Cyclic voltammetry) 測定により、DLC の ORR を評価した。その際、電解質には 0.1 mol/L の NaOH, 作用極を DLC, 対極を Pt 線, 参照極を Hg/Hg₂SO₄電極とした。また、DLC の膜構造分析にはフーリエ変換型赤外分光分析法 (FT-IR), 表面分析には MgKα を X 線源として X 線光電子分光法 (XPS) を用いた。

【実験結果および結論】Fig. 1 に DLC の電気化学特性を示す。縦軸は、ORR 測定において、

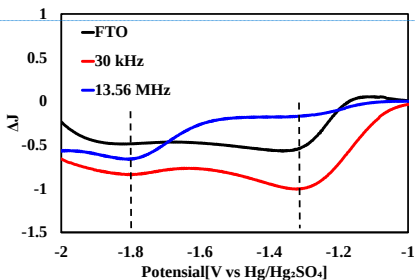


Fig. 1 Cyclic voltammogram of DLC film with low frequency plasma

酸素バブリングと窒素バブリングを行った際の電流値の差分を、溶存酸素雰囲気下の電流密度変化として示している。なお、1.3V および -1.8V に ORR に由来するピークが見られる。13.56 MHz 成膜に対し、30 kHz 成膜では ORR が増大した。このとき、FT-IR および XPS 分析より、13.56 MHz 成膜に対し、30 kHz 成膜の DLC では、水素終端部分の C-H 基が減少し、DLC 表面において酸素官能基の形成が増加した。このことから高周波成膜に対し、低周波成膜では、水素終端の減少と DLC 表面における酸素官能基形成の増加により ORR 活性が向上するため酸素還元電極して応用が期待できる。

【参考文献】
[1] K. Honda *et al.*, ECS trans, 75, 1021, 2016.
[2] J. A. Santiago *et al.*, Surf. Coat. Technol., 382, 124899, 2020.

コメントの追加 [向山1]: 東京電機大では？
電大所属の著者に 1 が付いていません

コメントの追加 [向山2]: 「白金は燃料電池等における電極触媒」の方が良いと思います。

コメントの追加 [Y03]: 文章を遂行してください。

コメントの追加 [充晃4R3]: 文章を修正しました

コメントの追加 [向山5]: 「活性を評価すること目的」

コメントの追加 [向山10]: 「ORR 活性が向上するため」が良いと思います。

コメントの追加 [向山6]: 文字数制限があるなら、線源に関する記述は削除できると思います。

コメントの追加 [Y07]: 実験方法の記載の順番に、CV 測定、FT-IR、XPS の実験結果について説明してください。その上で、結論を述べてください。
Fig. 1 については、本文中の -1.3 V や -1.8V の説明が分かりやすくなるように、まず最初に、縦軸と横軸の意味を丁寧に説明してください。

コメントの追加 [充晃8R7]: 修正しました。

コメントの追加 [向山9]: 「DLC の電気化学特性を示す」はどうでしょうか？