

課題番号 :2014B-E06

利用課題名（日本語） :単結晶 Pt における高指数の結晶面に対する価電子帯電子状態観察による酸素結合エネルギーの解明

Program Title (English) :Elucidation of oxygen bonding energy to high-index surface of the Pt single crystal by valence electronic structure analysis

利用者名(日本語) :原田 慈久<sup>1)</sup>, 干鯛 将一<sup>2)</sup>, 丹羽 秀治<sup>1)</sup>, 宮脇 淳<sup>1)</sup>, 石井 賢司<sup>3)</sup>, 清水 裕友<sup>4)</sup>

Username (English) :Y. Harada<sup>1)</sup>, S. Hidai<sup>2)</sup>, H. Niwa<sup>1)</sup>, J. Miyawaki<sup>1)</sup>, K. Ishii<sup>3)</sup>, H. Shimizu<sup>4)</sup>

所属名(日本語) :1) 東京大学物性研究所, 2) 東芝燃料電池システム, 3) 日本原子力機構, 4) 関西学院大学理工学部

Affiliation (English) :1) ISSP, The University of Tokyo, 2) Toshiba Fuel Cell Power systems Corp., 3) Japan Atomic Energy Agency, 2) Kwansai Gakuin University

キーワード：燃料電池触媒、白金、単結晶、酸素吸着、X線非弾性散乱

### 1. 概要 (Summary)

固体高分子形燃料電池(PEFC)に用いられるPt系カソード触媒の性能を評価するために、Pt単結晶の(111)表面に対しPt L吸収端共鳴励起X線非弾性散乱(RIXS)を適用し、酸素吸着に関与する最表面PtのPt 5d電子状態密度を対称性選択して観測することに成功した。

### 2. 実験 (Experimental)

測定試料は、千葉大学大学院工学研究科・星研究室にて成長させたPt(111)単結晶を用いた。表面を酸素+水素バーナーで1300°C程度まで加熱した後にArガス中で冷却し、超純水中に漬け表面を保護してから治具に取り付けた。表面感性を高めるために、光の入射角が試料法線に対して極力大きくなるように配置し、ArガスおよびO<sub>2</sub>ガス雰囲気下において、SPring-8 BL11XUに設置された高分解能X線非弾性散乱測定装置を用いてPtのL吸収端RIXS測定を行った。O<sub>2</sub>ガスは5%、100%の2条件を選択した。

### 3. 結果と考察 (Results and Discussion)

図1(a)に各条件におけるPt L吸収端RIXSの結果を示す。最表面PtのPDOSを抽出した差分スペクトルを図1(b)に示す。得られた結果から、5eV以下の領域に複数のピーク構造を持った強い差分が現れることがわかる。図1(c)に、DFT計算より求めた0.25ML、1.00ML被覆率のPt 5d<sub>2</sub> PDOS[1]を示す。室温においてO<sub>2</sub>吸着するfccサイトの被覆率0.25MLが本実験結果をよく再現する。本実験の結果から、今後本来の目的であった高指数面での酸素吸着への展開はもちろんのこと、酸素分圧やガス種の組み合わせによる共吸着のメカニズム、さらに電気化学測定と

の組み合わせによる新たな研究の展開が想定される。

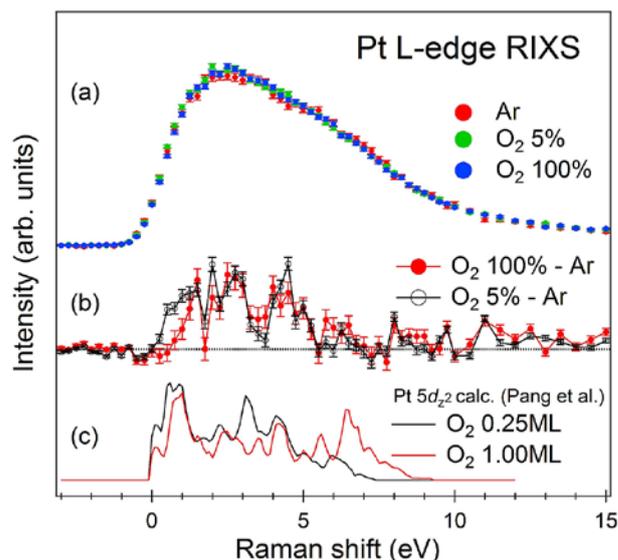


図1 (a) Pt単結晶(111)表面の酸素吸着前後のPt L-edge RIXS (b)差分スペクトル(c)DFTによるPt(111)表面の酸素吸着時(被覆率0.25ML, 1.00ML)のPt 5d<sub>2</sub> PDOS計算結果

### 4. その他・特記事項 (Others)

本研究はNEDO「固体高分子形燃料電池実用化推進技術開発事業／基盤技術開発／低白金化技術の研究開発」の一環として千葉大学の星永宏先生の協力を得て行ったものです。この場を借りて感謝致します。

[1] Q. Pang *et al.*, *Appl. Surf. Sci.* **257**, 3047 (2011).