

固体高分子形燃料電池における Pt 電極の劣化特性に関する 計算科学シミュレーション

鈴木俊也、尾澤伸樹、○島崎智実、久保百司

東北大学大学院工学研究科 (〒980-8579 仙台市青葉区荒巻字青葉 6-6-11-703)

固体高分子形燃料電池は多方面での活用が期待されているが、白金の溶解・溶出が起こりやすいことが問題となっている。近年、今井らは白金の溶出過程に関して α -PtO₂や β -PtO₂構造を經由して Pt が溶解していくのではないかとというモデルを提案した[1]。しかし、その詳細な反応機構は不明である。そこで本研究では密度汎関数法を用いて α -PtO₂から β -PtO_{2構造への遷移過程について検討を行った。}

計算には、密度汎関数計算プログラム Dmol³を用いた。汎関数として PW91(GGA) を使用し、基底は DNP とした。 α -PtO₂から β -PtO_{2への遷移の過程を調べるために、まずは、 α -PtO₂ から Pt 原子を 1 つ浮き上がらせたモデルを作成し、さらにもう 1 つ Pt 原子が浮き上がる過程を検討した。図 1 にその詳細を示す。図 1(A)では、最初に浮き上がらせた Pt 原子に加え、Pt 原子(a)、(b)、(c)がさらに浮き上がる様子を示し、それぞれ反応経路 a、b、c とする。このときの、反応経路 a にそったエネルギー変化を図 1(B)にまとめた。計算結果をおこなった活性化エネルギーから反応経路 a のみ起こりうる。以上の検討から、図 2 のような中間構造を經由し、さらに酸化が進むことにより、 β -PtO₂が形成されると考えられる。議論の詳細は当日に発表を行う。}

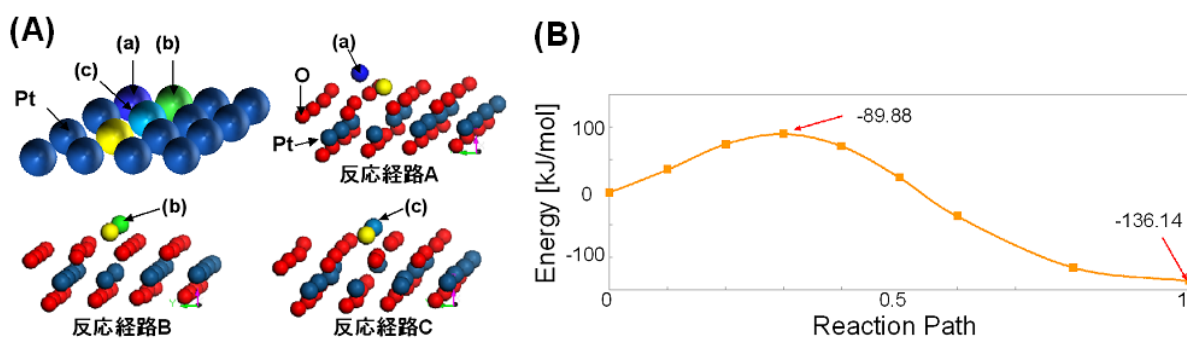


図 1 (A) α -PtO₂からの遷移。左上図は Pt 層を表す。その他の図は反応の終状態。

(B) reaction pass のエネルギー。反応モデルは(a)。

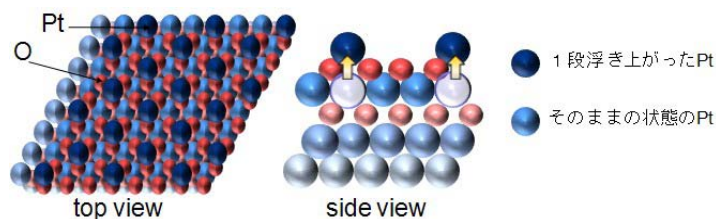


図 2 α -PtO₂から β -PtO₂への中間構造