

平成 30 年 5 月 14 日現在

機関番号：16301

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15K06569

研究課題名(和文) 結晶-結晶化学変換を利用して調製したペロブスカイト型酸化物の低温触媒反応系の開発

研究課題名(英文) Low temperature-catalytic reaction over perovskite-type oxide prepared by utilizing solid-solid transformation

研究代表者

八尋 秀典 (YAHIRO, Hidenori)

愛媛大学・理工学研究科(工学系)・教授

研究者番号：90200568

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,800,000円

研究成果の概要(和文)：結晶-結晶化学変換を利用して調製したペロブスカイト型酸化物を液-固系や固-固系の不均一触媒反応系に応用した。ペロブスカイト型酸化物触媒はシアノシリル化反応、クネーフェナーゲル縮合反応(液-固系)に活性を示し、表面にブレンステッド酸点および塩基点の生成が推定された。また、本法で調製した銀担持ペロブスカイト型酸化物の微小粒子状物質の燃焼活性(固-固系)はこれまで最も良いとされている銀担持酸化セリウム触媒の活性と同等であった。さらに、本法を利用した部分置換ペロブスカイト型酸化物の新規合成法の開発に成功した。

研究成果の概要(英文)：Perovskite-type oxide catalysts prepared by utilizing solid-solid transformation were applied to several heterogeneous catalytic reactions including liquid-solid and solid-solid catalytic reaction. Perovskite-type oxide exhibited the catalytic activity for cyanosilylation and Knoevenagel condensation reactions (Liquid-Solid catalytic system), suggesting the formation of both Bronsted acid and base on surface. It was found that the catalytic activity of the particulate matter (PM) oxidation over Ag-loaded perovskite-type oxide (Solid-Solid catalytic system) was comparable to that over Ag-loaded cerium dioxide which has been well-known to be the best candidate for PM oxidation. In addition, the novel preparation route of partially-substituted perovskite-type oxide was developed.

研究分野：触媒化学，無機材料化学

キーワード：ペロブスカイト型酸化物 金属シアノ錯体 シアノシリル化反応 微小粒子状物質 部分置換ペロブスカイト型酸化物

## 1. 研究開始当初の背景

複合金属酸化物は単独金属酸化物とは異なる機能が発現するために、その有用性は高く評価されてきた。複合金属酸化物の合成は金属酸化物原料の混合物を固相拡散が誘発される温度まで高温焼成する方法(第一世代)、混合溶液から生成するゾルゲルや水酸化物前駆体の焼成(第二世代)によって行われてきた。省エネルギーの観点から考えて調製法に関する共通認識はいかに低温で不純物が少ない複合金属酸化物を得るかである。ただし、材料の利用目的によって得たいものの物性は異なる。例えば、ペロブスカイト型複合金属酸化物材料を例にすると、磁性や誘電材料には粒界が少ない結晶性の高いものが要求されるが、触媒や燃料電池電極材料にはむしろ表面積が高い、ナノ粒子が求められる。これまで多くの複合金属酸化物の調製が提案されているが、本研究ではさらに発展的な第三世代の複合金属酸化物合成法を提案する。研究代表者は、これまで結晶性固体の金属シアノ錯体の熱焼成により結晶性ペロブスカイト型複合金属酸化物触媒の合成を検討してきた(*Catal. Surv. Asia*, **13**, 221-228 (2009); *Topics in Catal.*, **52**, 823-827 (2009); *Catal. Today*, **139**, 125-129 (2008); *Catal. Today*, **175**, 534-540 (2011))。金属シアノ錯体とペロブスカイト型酸化物はその結晶構造が非常に類似しており、その結果、低温での合成が可能となることを証明した。すなわち、前駆体のインヒレント(inherent)をそのまま生かした新しい合成法と捉えることができる。また、結晶性シアノ金属錯体は原子状態で混合された究極の複合金属酸化物の前駆体とも考えられ、室温で容易に調製できることが特徴である。本研究ではこのような結晶性金属錯体を利用した新しい結晶性複合酸化物合成法の確立とこれまでに築けなかった新しい複合酸化物の設計指針を提案することを目指した。さらに、この研究を遂行中、種々の形状を持つ金属シアノ錯体が調製できること、金属シアノ錯体を低温でゆっくりと熱分解するとペロブスカイト型酸化物微粒子の集合体(アッセンプリ)が形成できること、その集合体は  $30 \text{ m}^2 \text{ g}^{-1}$  以上の高表面積を持つこと、外郭形状は元の金属シアノ錯体の形状を維持していることを明らかにした(*Catal. Today*, **175**, 534-540 (2011))。

これまで多く研究者がペロブスカイト酸化物の高表面積化に関して検討してきている。例えば、Luら(*J. Supercritical Fluids*, **46**, 77 (2008))は超臨界反応システムにおいて、 $70\text{-}100 \text{ m}^2 \text{ g}^{-1}$ の驚異的は表面積を有するペロブスカイト型  $\text{Ca}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{Ti}_{1-x}\text{Fe}_x\text{O}_{3-\delta}$ を得ている。また、Sazaboら(*Appl. Catal. B*, **37**, 175 (2002))はメカニカルミリングにより発生した熱で固相反応を行うリアクティブグリーンディング法を開発し、 $40 \text{ m}^2 \text{ g}^{-1}$ 以上の  $\text{LaCo}_{1-x}\text{Fe}_x\text{O}_3$ を得ている。しかしながら、これらの調製法は特殊な装置、特別な雰囲気下

で調製しているため、実用化には不向きである。そこで、我々は、比較的簡便に、かつ高表面積で不純物の含有量が少ない金属複合酸化物触媒を得るための方法の開発を行った。また、ペロブスカイト型酸化物は、一般的にCO酸化やNO分解反応など気固系反応触媒として用いられているが、液固系反応触媒としての報告例は少ない。そこで、液固系反応へのペロブスカイト型酸化物触媒の応用について検討を行った。さらに、本研究の遂行中に固相系反応であるPM燃焼に金属シアノ錯体から調製したペロブスカイト型酸化物触媒が高い活性を示すことを見出したので、それについても報告する。

## 2. 研究の目的

本研究では、ペロブスカイト型酸化物触媒を実用化させるための指針を与えることを目的として以下の三項目について検討を行った。

- (1) 種々の条件で合成したペロブスカイト型酸化物触媒を用いて、液固系反応としてシアノシリル化反応、クネーフェナーゲル縮合反応等を行い、ペロブスカイト型酸化物の液固反応に対する触媒特性を検討した。
- (2) シアノ錯体熱分解法(以下、CN法)を用いた銀担持ペロブスカイト型酸化物触媒を調製し、PM燃焼反応に対する触媒特性を検討した。
- (3) CN法を用いたAサイト置換ペロブスカイト型酸化物 LSCF ( $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{Co}_{1-y}\text{Fe}_y\text{O}_{3-\alpha}$ )の新規合成方法を検討した。

## 3. 研究の方法

- (1) 種々の条件で合成したペロブスカイト型酸化物触媒を用いた液固系反応

調製した種々のペロブスカイト型酸化物の触媒活性を評価するために、ベンズアルデヒドとシアニ化トリメチルシリル(TMSCN)のシアノシリル化反応を次のような条件：触媒量(0.05 g)、ベンズアルデヒド(0.5 mmol)、TMSCN (1.0 mmol)、溶媒ジクロロメタン(12 mL)、内部標準(ナフタレンあるいはo-ジクロロベンゼン)、反応温度(20°C)、反応時間(1 h)、空気雰囲気で行った。生成物の分析は、GC-FIDを用い、生成物の生成量により触媒活性を評価した。

ベンズアルデヒドとマロノニトリルのクネーフェナーゲル縮合反応を次のような条件：触媒量(0.05 g)、ベンズアルデヒド(1.5 mmol)、マロノニトリル(1.0 mmol)、溶媒エタノール(3 mL)、内部標準(o-ジクロロベンゼン)、反応温度(70°C)、反応時間(24 h)、空気雰囲気で行った。生成物の分析は、GC-FIDを用い、生成物の生成量により触媒活性を評価した。

- (2) 銀担持ペロブスカイト型酸化物触媒を用いたPM燃焼反応

多核金属シアノ錯体前駆体 ( $\text{La}[\text{Fe}(\text{CN})_6] \cdot n\text{H}_2\text{O}$ )を調製し、得られた前駆体を焼成する

ことにより目的のペロブスカイト型酸化物 (LaFeO<sub>3</sub>) を合成した。Ag 担持は以下の 2 通りの方法で行った。硝酸銀を LaFeO<sub>3</sub> に含浸担持し、600 °C で 3 時間焼成し、Ag/LaFeO<sub>3</sub>-imp 触媒を得た。また、焼成前の La[Fe(CN)<sub>6</sub>]·nH<sub>2</sub>O に硝酸銀水溶液を担持した後、600-1000 °C で 1 時間焼成し、Ag/LaFeO<sub>3</sub>-CN 触媒を得た。触媒活性の評価はガス流通系焼成装置を用い、PM の代替品となるアセチレンカーボンブラックと触媒を 1 : 10 の割合で混合し、10% 希釈 O<sub>2</sub> の流通下、1 °C / min の昇温速度で 600 °C まで昇温し、GC-TCD を用いて出口ガス中の CO<sub>2</sub> 濃度を定量した。CO<sub>2</sub> 濃度が最大となる温度を最大燃焼温度と定義し、触媒活性を評価するひとつの基準として用いた。

### (3) CN法を用いた A サイト置換ペロブスカイト型酸化物の合成

K<sub>3</sub>[Fe(CN)<sub>6</sub>] と AgNO<sub>3</sub> との反応により得られた Ag<sub>3</sub>[Fe(CN)<sub>6</sub>] の水溶液に NH<sub>4</sub>Cl 水溶液を添加し、原料錯体 (NH<sub>4</sub>)<sub>3</sub>[Fe(CN)<sub>6</sub>] を調製した。La(NO<sub>3</sub>)<sub>3</sub>·6H<sub>2</sub>O と Sr(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub> の 1-α : α の混合溶液 (H<sub>2</sub>O or CH<sub>3</sub>OH) に上記の原料錯体を加え、前駆体 (NH<sub>4</sub>)<sub>x</sub>La<sub>1-x</sub>Sr<sub>x</sub>[Fe(CN)<sub>6</sub>]·nH<sub>2</sub>O を調製した。得られた前駆体をマッフル炉中、1000 °C、1 h、大気雰囲気下で焼成し、ペロブスカイト型複合金属酸化物 La<sub>1-x</sub>Sr<sub>x</sub>FeO<sub>3</sub> を調製した。調製した試料のキャラクタリゼーションとして、XRD, XRF, TG-DTA 測定を行った。

## 4. 研究成果

### (1) 種々の条件で合成したペロブスカイト型酸化物触媒を用いたシアノシリル化反応

我々は種々の方法により調製したペロブスカイト型酸化物触媒上でのシアノシリル化反応活性について検討し、シアノ錯体熱分解法 (CN 法) がシアノシリル化反応に対して有効な調製法であることを明らかにした (*Res. Chem. Intermed.*, **41**, 9551-9560 (2015))。また、本反応はブレンステッド (Brønsted) 酸点が活性点であること、種々の固体酸触媒とシアノシリル化活性を比較から (Fig. 1), LaFeO<sub>3</sub> が最も表面積が小さいにもかかわらず最も高い活性を示すことを明らかにした。しかしながら、その高活性の理由については明らかになっていない。

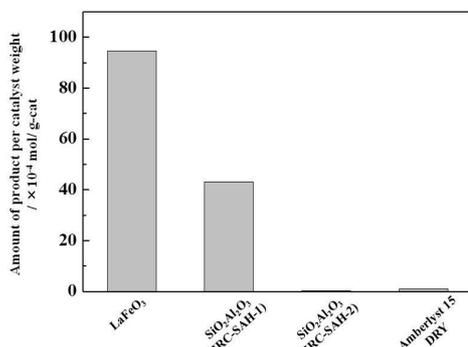


Fig. 1 Catalytic activity for cyanosilylation over LaFeO<sub>3</sub>, SiO<sub>2</sub>-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, and Amberlyst 15.

そこで、シアノ錯体前駆体から調製した LaFeO<sub>3</sub> 触媒上で塩基反応であるクネーフェナーゲル縮合反応に対する触媒活性について検討し、本触媒上でのシアノシリル化反応機構についての知見を得ることを目的とした。

600-1000 °C で焼成した LaFeO<sub>3</sub> を用いたクネーフェナーゲル縮合反応の触媒活性を調べた。触媒活性は焼成温度と共に増加し、1000 °C 焼成で最大となった。触媒の焼成温度が高くなるとペロブスカイト相の結晶子径が大きくなり、触媒活性も向上した。すなわち、ペロブスカイト構造の結晶子径が触媒活性を制御する因子であると考えられる。この傾向はシアノシリル化活性と同様な傾向である。クネーフェナーゲル縮合反応は塩基反応であることから、LaFeO<sub>3</sub> 触媒には塩基点が存在することが示唆された。

また、B サイト金属がシアノシリル化活性に及ぼす影響について検討するために、B サイト置換ペロブスカイト酸化物触媒 LaMO<sub>3</sub> (M = Al, Mn, Fe, Co) をクエン酸法で調製し、すべての酸化物が単一相で形成していることを確認した。シアノシリル化活性の序列は LaAlO<sub>3</sub> >> LaFeO<sub>3</sub> > LaMnO<sub>3</sub> > LaCoO<sub>3</sub> であった。LaMO<sub>3</sub> 触媒の B サイトに Al を導入することでシアノシリル化活性が大幅に向上した。

シアノシリル化反応以外 (Diels-Alder 反応, Knoevenagel 反応) で、ペロブスカイト型酸化物が顕著な触媒活性を示した反応系は認められなかったが、ペロブスカイト型酸化物触媒は、Brønsted 酸が関与する反応および塩基点が関与する反応に活性を示すことがわかった。活性がまだ低いので、活性向上のために金属担持などの修飾等が必要であると考えられる。

### (2) 銀担持ペロブスカイト型酸化物触媒を用いた PM 燃焼反応

近年、大気汚染の原因である PM の接触除去プロセスが検討されている。本研究では低温触媒反応系の開発の一環として、低温 PM 除去触媒の開発を試みた。

多核金属シアノ錯体前駆体 (La[Fe(CN)<sub>6</sub>]·nH<sub>2</sub>O) に Ag を導入してシアノ錯体熱分解法により調製した Ag 担持ペロブスカイト型酸化物触媒 (Ag/LaFeO<sub>3</sub>-CN) が、これまで最も低温活性が高いとされている Ag/CeO<sub>2</sub> 触媒と同等の PM 燃焼活性を示すことを見出した。

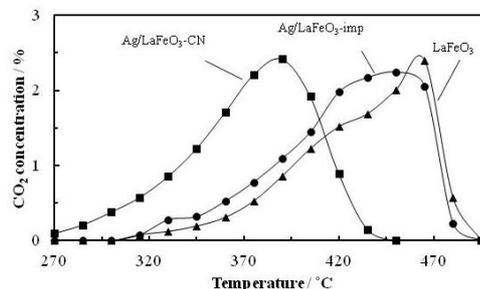


Fig. 2 The TPR profiles of Ag/LaFeO<sub>3</sub>-imp (●), Ag/LaFeO<sub>3</sub>-CN (■), and LaFeO<sub>3</sub> (▲).

さらに、通常の含浸法（ペロブスカイト型酸化物を調製後に含浸担持）で調製した触媒(Ag/LaFeO<sub>3</sub>-imp)では Ag 添加効果は認められず、CN 法で調製した Ag/LaFeO<sub>3</sub>-CN 触媒でのみ Ag 添加による低温活性化が認められること(Fig. 2)、FE-SEM 測定から、含浸法で調製した Ag/LaFeO<sub>3</sub>-imp 触媒ではペロブスカイト表面上に平均直径 60 - 100 nm の Ag 粒子が生成するのに対し、Ag/LaFeO<sub>3</sub>-CN 触媒では 10 nm 前後の Ag 粒子がペロブスカイト表面に高分散していること(Fig. 3)、CN 法で調製した触媒は繰り返しの使用において高い耐久性を示すこと、などを明らかにした。

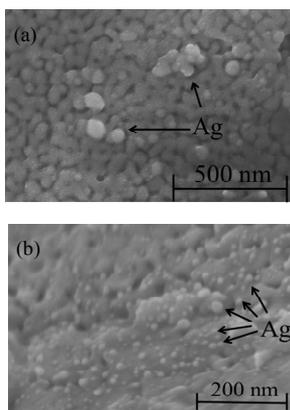


Fig. 3 The FE-SEM images of Ag/LaFeO<sub>3</sub>-imp (a) and Ag/LaFeO<sub>3</sub>-CN (b).

### (3) CN法を用いた A サイト置換ペロブスカイト型酸化物の合成

ペロブスカイト型酸化物触媒はCO酸化やメタン燃焼に活性であり、A サイト金属イオンを部分置換（例えば、La<sub>0.9</sub>Sr<sub>0.1</sub>FeO<sub>3</sub> など）することで触媒活性が大幅に向上する。我々は、シアノ錯体熱分解法に着目し、前駆体 La[Fe(CN)<sub>6</sub>]の低温焼成により均質な LaFeO<sub>3</sub> が得られることを報告しているが、本法で La<sub>0.9</sub>Sr<sub>0.1</sub>FeO<sub>3</sub> を調製する際、K<sub>3</sub>[Fe(CN)<sub>6</sub>]を出発原料とするために前駆体が La<sub>0.9</sub>Sr<sub>0.1</sub>K<sub>0.1</sub>[Fe(CN)<sub>6</sub>]となり、A サイトに K<sup>+</sup>が残留するという問題があった。そこで本研究では、まず出発原料に K<sup>+</sup>を含まない(NH<sub>4</sub>)<sub>3</sub>[Fe(CN)<sub>6</sub>]を新たに調製し、それを用いたペロブスカイト型複合金属酸化物 La<sub>0.9</sub>Sr<sub>0.1</sub>FeO<sub>3</sub> の合成について検討した。

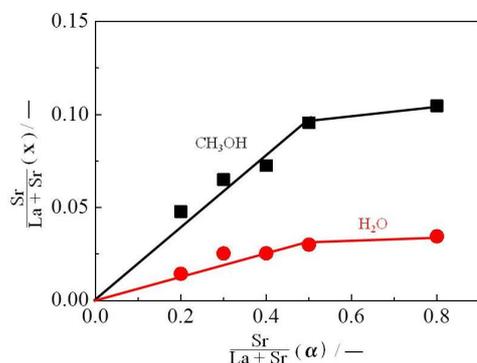


Fig. 4 x values in (NH<sub>4</sub>)<sub>x</sub>La<sub>1-x</sub>Sr<sub>x</sub>[Fe(CN)<sub>6</sub>]·nH<sub>2</sub>O as a function of α values in atomic ratio of La with Sr containing in mixed solution of CH<sub>3</sub>OH (■) or H<sub>2</sub>O (●).

K<sub>3</sub>[Fe(CN)<sub>6</sub>]と AgNO<sub>3</sub> との反応により得られた Ag<sub>3</sub>[Fe(CN)<sub>6</sub>]の水溶液に NH<sub>4</sub>Cl 水溶液を添加して調製した原料錯体の XRF, TG-DTA 測定から、原料由来の K<sup>+</sup>や Ag<sup>+</sup>を含まない目的の (NH<sub>4</sub>)<sub>3</sub>[Fe(CN)<sub>6</sub>]が生成していることを確認した。原料錯体を用いて調製した多核金属シアノ錯体前駆体(NH<sub>4</sub>)<sub>x</sub>La<sub>1-x</sub>Sr<sub>x</sub>[Fe(CN)<sub>6</sub>]·nH<sub>2</sub>O 中の XRF より求めた x 値は、合成時の A サイトの原料の元素比(La : Sr = 1-α : α)であるα値よりも小さいが、α値が増加するにつれて x 値が増加した(Fig. 4)。また、H<sub>2</sub>O 溶媒では、Sr は前駆体中にほとんど導入できなかったのに対し、溶解度の低い CH<sub>3</sub>OH 溶媒を用いると前駆体中の Sr 量は大幅に向上した。

調製した前駆体(NH<sub>4</sub>)<sub>x</sub>La<sub>1-x</sub>Sr<sub>x</sub>[Fe(CN)<sub>6</sub>]·nH<sub>2</sub>O は La[Fe(CN)<sub>6</sub>]·5H<sub>2</sub>O (x = 0)や(NH<sub>4</sub>)Sr[Fe(CN)<sub>6</sub>] (x = 1)と類似の XRD パターンを示したが、回折ピーク位置は両者とは異なった。La<sup>3+</sup>よりも Sr<sup>2+</sup>のイオン半径が小さいため、前駆体への Sr<sup>2+</sup>の導入量が増えると高角度側にシフトすることが考えられる。調製した前駆体を 1000 °C で焼成した La<sub>1-x</sub>Sr<sub>x</sub>FeO<sub>3</sub> 試料の XRD パターンは LaFeO<sub>3</sub>と類似しており、Sr 固溶によるピークの高角度側へのシフトが確認できた(Fig. 5)。以上の結果から、本法により目的の複合金属酸化物 La<sub>1-x</sub>Sr<sub>x</sub>FeO<sub>3</sub> (0 < x < 0.1)が合成できることがわかった。

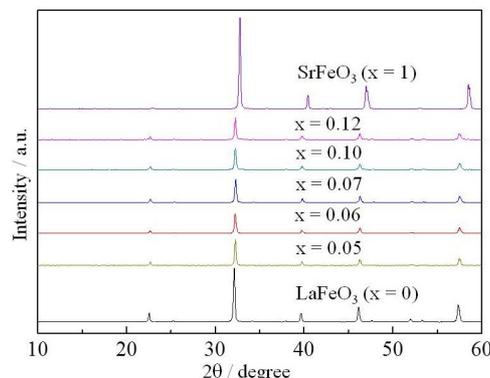


Fig. 5 XRD patterns of La<sub>1-x</sub>Sr<sub>x</sub>FeO<sub>3</sub> calcined at 1000 °C for 1 h.

## 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

(雑誌論文)(計 14 件)

Yamaguchi Syuhei, Miyake Yuki, Takiguchi Keiko, Ihara Daijiro, Yahiro Hidenori, Oxidation of cyclic hydrocarbons with hydrogen peroxide over iron complexes encapsulated in cation-exchanged zeolite, *Catalysis Today*, 303, 1018, 249-255, 査読有。

DOI: 10.1016/j.cattod.2017.10.047

Sanchez-Rodriguez Daniel, Yamaguchi Syuhei, Ihara Daijiro, Yamaura Hiroyuki, Yahiro Hidenori, Self-propagating high-

temperature synthesis of highly dispersed noble metals on ceria powder: Application to Pd/CeO<sub>2</sub> catalyst, *Ceramics International*, 43, 2017, 14533-14536, 査読有 .

DOI: 10.1016/j.ceramint.2017.07.208

ITAGAKI Yoshiteru, YAMAMOTO Yuga, AONO Hiromichi, YAHIRO Hidenori, Anode-supported SOFC with thin film of proton-conducting BaCe<sub>0.8</sub>Y<sub>0.2</sub>O<sub>3-α</sub> by electrophoretic deposition, *Journal of the Ceramic Society of Japan*, 125, 2017, 528-532, 査読有 .

DOI: 10.2109/jcersj2.17048

ITAGAKI Yoshiteru, HIRAO Akinori, AONO Hiromichi, YAHIRO Hidenori, Hydrogen permeation of BaCe<sub>0.80</sub>Y<sub>0.20</sub>O<sub>3-x</sub>-Gd<sub>0.1</sub>Ce<sub>0.9</sub>O<sub>x</sub> dual-phase membranes, *Journal of Ceramic Society of Japan*, 125, 2017, 338-342, 査読有 .

DOI: 10.2109/jcersj2.16230

Daniel Sanchez-Rodriguez, Hiroki Wada, Syuhei Yamaguchi, Jordi Farjas, Hidenori Yahiro, Synthesis of LaFeO<sub>3</sub> perovskite-type oxide via solid-state combustion of a cyano complex precursor: The effect of oxygen diffusion, *Ceramics International*, 43, 2017, 3156-3165, 査読有 .

DOI: 10.1016/j.ceramint.2016.11.134

Hiroyuki Yamaura, Shinsuke Hirao, Syuhei Yamaguchi, Hidenori Yahiro, Investigation on Reduction Behaviors of SnO<sub>2</sub> and SnO<sub>2</sub>-Supported CuO Sensor Materials by Temperature-Programmed Reduction Method Combined with Resistance Measurement, *Sensors and Materials*, 28, 2016, 1203-1210, 査読有 .

DOI: 10.18494/SAM.2016.1410

Syuhei Yamaguchi, Hiroki Wada, Takahisa Okuwa, Hidenori Yahiro, Cyanosilylation of benzaldehyde with TMSCN over A-site metal substituted perovskite-type oxide catalyst prepared by thermal decomposition of heteronuclear cyano complex precursors, *Ceramic Transactions*, 257, 2016, 81-90, 査読有 .

DOI: 10.1002/9781119234463.ch8

Syuhei Yamaguchi, Hiroyuki Yamaura, Kenta Morihara, Masataka Iwasaki, Hidenori Yahiro, Cyanosilylation of Benzaldehyde with Trimethylsilyl cyanide over Zn-Sn Mixed Oxide Catalysts with Cubic-shaped Particles, *Chemistry Letters*, 45, 2016, 851-853, 査読有 .

DOI: 10.1246/cl.160320

山浦弘之, 八尋秀典, 活性炭を利用した水銀処理の開発動向, *ファインケミカル*, 45(7), 2016, 14-19, 査読無 .

山口修平, 八尋秀典, 金属シアノ錯体からのペロブスカイト型酸化物触媒の合成, *セラミックス*, 51, 2016, 12-15, 査読無 .

Syuhei Yamaguchi, Hiroki Wada, Daniel Sanchez-Rodriguez, Jordi Farjas, Hidenori Yahiro, Synthesis of perovskite-type oxide, LaFeO<sub>3</sub>, from coordination polymer precursor, La[Fe(CN)<sub>6</sub>]·5H<sub>2</sub>O, *Journal of the Ceramic Society of Japan*, 124, 2016, 7-12, 査読有 .

DOI: 10.2109/jcersj2.15198

Daniel Sanchez-Rodriguez, Hiroki Wada, Syuhei Yamaguchi, Jordi Farjas, Hidenori Yahiro, Self-propagating high-temperature synthesis of LaMO<sub>3</sub> perovskite-type oxide using heteronuclear cyano metal complex precursors, *Journal of Alloys and Compounds*, 649, 2015, 1291-1299, 査読有 .

DOI: 10.1016/j.jallcom.2015.07.246

Yoshiteru Itagaki, Tomohisa Takemasa, Syuhei Yamaguchi, Hidenori Yahiro, Impedance study of anodic properties of Ni-Fe impregnated SDC, *ECS Transactions*, 68, 2015, 1427-1434, 査読有 .

DOI: 10.1149/06801.1427ecst

Syuhei Yamaguchi, Takahisa Okuwa, Hiroki Wada, Hiroyuki Yamaura, Hidenori Yahiro, Cyanosilylation of benzaldehyde with TMSCN over perovskite-type oxide catalysts prepared by thermal decomposition of heteronuclear cyano complex precursors, *Research on Chemical Intermediates*, 41, 2015, 9551-9560, 査読有 .

DOI: 10.1007/s11164-015-1980-y

[学会発表](計 29 件)

山浦弘之, 高橋浩紀, 山口修平, 八尋秀典, ペロブスカイト型酸化物を用いた PM 燃焼反応のための銀担持方法の検討, 第 121 回触媒討論会, 2018

hiroki TAKAHASHI, Hiroyuki YAMAURA, Makoto FUKUOKA, Syuhei YAMAGUCHI, Hidenori YAHIRO, PM oxidation of Ag-loaded perovskite-type oxide catalyst prepared by thermal decomposition of heteronuclear cyano-complex precursor, the 8th Japan-China Workshop on Environmental Catalysis and Eco-materials, 2017

Hidenori YAHIRO, Improvement of electrochemical performance of SOFC composite electrode formed by EPD, *Composites at Lake Louise 2017*, 2017

武多瞭, 渡邊悠暉, 板垣吉晃, 青野宏通, 八尋秀典, Ni 担持した BaCe<sub>0.8</sub>Y<sub>0.2</sub>O<sub>3</sub> 多孔体のアンモニア分解活性と電気的特性, 日本セラミックス協会第 30 回秋季シンポジウム, 2017

福岡諒, 山口修平, 八尋秀典, シアノ錯体熱分解法により調整したペロブスカイト型複合金属酸化物 La<sub>1-x</sub>Sr<sub>x</sub>FeO<sub>3</sub> を触媒としたシアノシリル化反応, 第 120 回触媒討論会, 2017

高橋浩紀, 山浦弘之, 西堀麻衣子, 山口

修平, 八尋秀典, シアノ錯体前駆体から調整した銀担持ペロブスカイト型酸化物触媒のPM酸化反応, 第120回触媒討論会, 2017

Hidenori YAHIRO, Syuhei YAMAGUCHI, Catalysis of perovskite-type oxide prepared by the decomposition of heteronuclear cyano complex, the 12th Pacific Rim Conference on Ceramic and Glass Technology, 2017

Jian CUI, Naoto ITO, Yoshiteru ITAGAKI, Syuhei YAMAGUCHI, Hidenori YAHIRO, Property of Ni-SDC Anodes for SOFC with H<sub>2</sub> and NH<sub>3</sub> Fuels, 16th Korea-Japan Symposium on Catalysis, 2017

山浦弘之, 田島永美里, 西堀 麻衣子, 山口修平, 八尋秀典, 立方体形状を有するスズ-金属複合酸化物触媒の調製, 第119回触媒討論会, 2017

高橋浩紀, 山浦弘之, 西堀 麻衣子, 山口修平, 八尋秀典, ペロブスカイト型酸化物へのAg担持が及ぼすPM酸化活性への影響, 第119回触媒討論会, 2017

高橋浩紀, 山浦弘之, 山口修平, 八尋秀典, 酸化物触媒のPM酸化活性と耐久性の評価, 2016年日本化学会中国四国支部大会 香川大会, 2016

山口修平, 和田啓暉, 福岡諒, 八尋秀典, シアノ錯体から調製したペロブスカイト型酸化物触媒を用いた液相系酸塩基反応, 第118回触媒討論会, 2016

崔健, 板垣吉晃, 青野宏通, 山口修平, 八尋秀典, Ni-SDCアノード触媒の調製とSOFC特性評価, 日本セラミックス協会第29回秋季シンポジウム, 2016

長谷川雄紀, 山口修平, 八尋秀典, シアノ錯体熱分解法を用いたシリカ担持ペロブスカイト型酸化物の調製, 日本セラミックス協会第29回秋季シンポジウム, 2016

高橋浩紀, 山浦弘之, 山口修平, 八尋秀典, Durability of Ag/CeO<sub>2</sub> and perovskite-type oxides for PM oxidation, 触媒学会西日本支部第7回触媒科学研究発表会, 2016

Yuga Yamamoto, Yoshiteru Itagaki, Hiromichi Aono, Hidenori Yahiro, Electrophoretic deposition of dense BaCe<sub>0.8</sub>Y<sub>0.2</sub>O<sub>3</sub> electrolyte thin films, 2016 Asian SOFC Symposium, 2016

Naoto Ito, Yoshiteru Itagaki, Hiromichi Aono, Hidenori Yahiro, Evaluation of Ni/(SmO<sub>1.5</sub>)<sub>x</sub>(CeO<sub>2</sub>)<sub>1-x</sub> as anode material for direct ammonia fueled SOFC, 2016 Asian SOFC Symposium, 2016

Jian Cui, Yoshiteru Itagaki, Syuhei Yamaguchi, Hidenori Yahiro, Anode characteristics of Ni loaded SDC prepared by co precipitation method, 2016 Asian SOFC Symposium, 2016

Daniel Sanchez-Rodriguez, Hiroki Wada,

Yuki Hasegawa, Syuhei Yamaguchi, Jordi Farjas, Hidenori Yahiro, Self-propagating high-temperature synthesis of LaMO<sub>3</sub> perovskite-type oxide catalyst using heteronuclear cyano metal complex precursors, 16th International Congress on Catalysis, 2016

Yoshiteru Itagaki, Hidenori Yahiro, Improvement of Electrochemical Performance of Bilayer SOFC, 19th Topical Meeting of the International Society of electrochemistry, 2016

(他9件)

〔図書〕(計1件)

八尋秀典, 板垣吉晃他, テクノシステム, 材料表面の親水・親油の評価と制御設計(第3章第8節 固体酸化物形燃料電池-分散系の応用-担当), 2016, 602 (149-156)

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

八尋 秀典 (YAHIRO, Hidenori)  
愛媛大学・大学院理工学研究科・教授  
研究者番号: 90200568

### (2) 連携研究者

山口 修平 (YAMAGUCHI, Syuhei)  
愛媛大学・大学院理工学研究科・准教授  
研究者番号: 50397494

山浦 弘之 (YAMAURA, Hiroyuki)  
愛媛大学・大学院理工学研究科・講師  
研究者番号: 40314968