

令和 6 年 4 月 30 日現在

機関番号：14401
研究種目：基盤研究(C) (一般)
研究期間：2021～2023
課題番号：21K04642
研究課題名(和文) 格子内酸素により揮発性有機化合物の低温燃焼を可能にする新規な貴金属フリー触媒

研究課題名(英文) Noble-metal-free catalysts to decompose volatile organic compounds at low temperatures by using the lattice oxygen

研究代表者
布谷 直義 (Nunotani, Naoyoshi)

大阪大学・大学院工学研究科・助教

研究者番号：40715314
交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,200,000円

研究成果の概要(和文)：人体や環境に有害な揮発性有機化合物(トルエン等)を効率的に燃焼できる貴金属フリー触媒の創成を行った。格子内から効率的に酸素種を供給できる助触媒に着目し、 $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{ZrSn}_{0.93}\text{Fe}_{0.07}\text{O}_4$ - を創製した結果、トルエンを250℃で完全燃焼できることを明らかにした。また、耐熱性に優れる $\text{La}_{10}\text{Si}_5\text{Co}_2\text{O}_{27}$ - を創製した結果、1000℃で合成したにもかかわらずトルエンを310℃で完全燃焼でき、同温度で合成したPt/Al₂O₃(290℃)に匹敵する活性であった。さらに、1400℃で合成した本触媒(330℃で完全燃焼)は、同温度で合成したPt/Al₂O₃(380℃)を上回る活性であった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

揮発性有機化合物の燃焼触媒としては、貴金属系触媒が高活性であることが知られているが、貴金属は高価かつ希少であることから貴金属フリー触媒が望まれている。本研究では、格子内からの酸素供給に着目することにより、従来の貴金属フリー触媒より優れた活性を示す触媒を創製した。さらに、Pt系触媒は高温耐久性に問題があり、高濃度トルエンを処理する際に局所過熱(1000℃以上)されると失活するが、高温耐久性に優れる貴金属フリー触媒を新たに設計することにより、そのような高温に暴露された後においてPt系触媒に匹敵あるいは上回る活性を示す触媒も創製した。

研究成果の概要(英文)：Noble-metal-free catalysts were developed in order to effectively decompose volatile organic compounds (toluene, etc.) which are harmful for human health and the environment. I focused on the promoter which can supply oxygen species, and $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{ZrSn}_{0.93}\text{Fe}_{0.07}\text{O}_4$ - was synthesized. As a result, this catalyst decomposed toluene at the temperature as low as 250 °C. Furthermore, I developed apatite-type $\text{La}_{10}\text{Si}_5\text{Co}_2\text{O}_{27}$ - with the high thermally stability and the oxygen supply ability. Although $\text{La}_{10}\text{Si}_5\text{Co}_2\text{O}_{27}$ - was synthesized at 1000 °C, it completely oxidized toluene at 310 °C, which was comparable to that of Pt/Al₂O₃ prepared at 1000 °C (290 °C). For $\text{La}_{10}\text{Si}_5\text{Co}_2\text{O}_{27}$ - (calcined at 1400 °C), complete toluene combustion was realized at 330 °C, which was lower than that of Pt/Al₂O₃ prepared at 1400 °C (380 °C).

研究分野：無機材料化学

キーワード：環境触媒 貴金属フリー 揮発性有機化合物 酸化触媒

様式 C-19、F-19-1 (共通)

1. 研究開始当初の背景

揮発性有機化合物 (VOCs) は、室温でも揮発しやすい有機化合物 (トルエン等) の総称であり、溶剤として塗料や印刷工場等で広く使用されている。しかし、揮発した VOCs は、高濃度では中毒症状を引き起こし、極低濃度でもシックハウス症候群などの健康障害の原因となる。さらに、環境中に排出された VOCs は、光化学オキシダント等の発生原因となることから、工場等からの VOCs 排出量は大気汚染防止法により規制されている。その一方、VOCs の排出量は年間 10 万トン以上 (2018 年度 PRTR 集計より) であり、未だ多量の VOCs ガスが工場等で発生している。特に、VOCs の中でもトルエンは排出量が最も多い化合物である。従って、トルエンを始めとした VOCs を大気環境に放出する前に除去しなければならない。

数ある VOCs 除去法の中でも触媒燃焼法は、酸化触媒に接触させるだけで VOCs を無害な炭酸ガスと水蒸気に分解できるため、簡素な設備で連続使用可能、省エネルギー、かつメンテナンスが不要といった特長を有している。一般的な VOCs 燃焼触媒としては、Pt 系触媒が知られているが、Pt は希少かつ高価な元素であるため、Pt 等の貴金属を全く含まない貴金属フリー触媒が注目を集めている。しかし、高活性な貴金属フリー触媒として知られている Co_3O_4 においても、トルエンを完全燃焼するためには 300°C^1 まで加熱する必要があることから、より高活性な触媒が求められている。

また、触媒上で高濃度の VOCs を燃焼させる場合、局所的に高温 (1000°C) になるが、Pt 系触媒は、このような高温下で Pt の凝集により失活することも問題となる。耐熱性を有する貴金属フリー触媒としては LaCoO_3 (融点: 1740°C^2) が知られているが、トルエン完全燃焼には 410°C^3 必要であり、さらなる活性向上が望まれる。

2. 研究の目的

本研究では、低温で VOCs を完全燃焼できる貴金属フリー触媒の創製を目的としている。これを実現するためには、気相中の酸素だけでは不十分であることから、格子内から酸素を供給できる材料を助触媒として用いることが効果的と考えられる。即ち、大気中の酸素を酸化物イオンとして格子内に貯蔵し、活性点に放出する、という酸素貯蔵放出特性を有していることが求められる。ここで、酸素を貯蔵・放出する際には、酸化還元反応に加えて格子内の酸化物イオンの移動が生じているため、触媒としては酸化還元能に加えて酸化物イオン伝導性を有することが重要と考えられる。このような考えを基に、格子内酸素を活用することにより、効率的に VOCs を燃焼できる新規な貴金属フリー触媒の創製を行った。

3. 研究の方法

格子内から効率的に酸素を供給できる材料として、ジルコニウム-スズ複合酸化物 (ZrSnO_4) に着目した。 ZrSnO_4 は歪んだ結晶構造⁴⁾であり、複数の価数を取る $\text{Sn}^{2+/4+}$ を含むために酸化還元能を有しているため、酸素貯蔵放出特性を示すことが明らかになっている⁵⁾。さらに、格子内からの酸素供給を促進させるため、 ZrSnO_4 に対し、 Sn^{4+} より低価数であり、かつ価数変化しやすい $\text{Fe}^{2+/3+}$ を固溶させることにより、酸化物イオンの伝導経路となり得る酸化物イオン欠陥を形成させ、かつ酸化還元能を向上させた $\text{ZrSn}_{1-x}\text{Fe}_x\text{O}_{4-\delta}$ の創製を行った。これらを助触媒とし、 Co_3O_4 を担持した $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{ZrSn}_{1-x}\text{Fe}_x\text{O}_{4-\delta}$ を創製した。

高温耐久性に優れた貴金属フリー触媒としては、アパタイト型希土類ケイ酸塩 ($\text{R}_{10}\text{Si}_6\text{O}_{27}$ (R: 希土類)) に着目した。アパタイト型 $\text{La}_{10}\text{Si}_6\text{O}_{27}$ は 1750°C でも安定⁶⁾であることが報告されていることから、耐熱性が極めて高い材料である。さらに、アパタイト型構造は、結晶構造内に酸化物イオン伝導経路を有している⁷⁾ことから、低温でも効率的に格子内酸素を活性点へと供給できると考えられる。そこで、様々な $\text{R}_{10}\text{Si}_6\text{O}_{27}$ (R: La, Nd, Sm, Gd) および Pt を担持した $\text{Pt}/\text{R}_{10}\text{Si}_6\text{O}_{27}$ を合成し、導電率がトルエン燃焼活性に与える影響を調べた^{8,9)}。この知見を基に、 $\text{La}_{10}\text{Si}_6\text{O}_{27}$ に対し、価数変化しやすい $\text{Co}^{2+/3+}$ を導入した $\text{La}_{10}\text{Si}_5\text{CoO}_{27-\delta}$ を創成し、トルエン燃焼活性を調べた¹⁰⁾。

4. 研究成果

(1) 低温でトルエンを完全燃焼できる新規貴金属フリー触媒

$\text{ZrSn}_{1-x}\text{Fe}_x\text{O}_{4-\delta}$ ($x \leq 0.07$) について粉末 X 線回折 (XRD) 測定を行ったところ、いずれの試料においても ZrSnO_4 相に帰属されるピークのみ観測され、単相であった。また、Fe 添加量 (x) の増加に伴い、格子体積は単調に減少した。これは、 ZrSnO_4 の Sn^{4+} ($0.083 \text{ nm}^{11)$) サイトが、より

イオン半径が小さい $\text{Fe}^{2+/3+}$ (Fe^{2+} : 0.075 nm、 Fe^{3+} : 0.069 nm¹¹⁾) により部分置換されたためと考えられる。一方、 $x > 0.07$ においては、格子体積のさらなる減少は観測されず、一定であった。従って、 $\text{Fe}^{2+/3+}$ の固溶限界は $x = 0.07$ であると考えられる。

$\text{ZrSn}_{1-x}\text{Fe}_x\text{O}_{4-\delta}$ ($x \leq 0.07$) の水素昇温還元 (H_2 -TPR) 測定結果を図 1 に示す。 ZrSnO_4 においては、340°C 付近から還元ピークが観測されたことから、格子内から酸素を供給できると考えられる。また、Fe 添加量 (x) が増大するに従い、還元開始温度が低温側にシフトし、固溶限界組成である $\text{ZrSn}_{0.93}\text{Fe}_{0.07}\text{O}_{4-\delta}$ において最も低い温度から還元が開始されることがわかった。このことから、 $\text{ZrSn}_{0.93}\text{Fe}_{0.07}\text{O}_{4-\delta}$ が最も高い酸素供給能を有していると考えられる。

$\text{Co}_3\text{O}_4/\text{ZrSn}_{1-x}\text{Fe}_x\text{O}_{4-\delta}$ (Co_3O_4 担持率 : 19 wt%) におけるトルエン燃焼活性を図 2 に示す。比較のため、合成した Co_3O_4 の結果も同図に示す。 $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{ZrSnO}_4$ は、 Co_3O_4 と比較して高い活性を示し、トルエンを 290°C で完全燃焼できることがわかった。これは、 ZrSnO_4 から Co_3O_4 へと効率的に酸素種が供給されたためと考えられる。また、 ZrSnO_4 に $\text{Fe}^{2+/3+}$ を固溶させることにより活性はさらに向上し、 $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{ZrSn}_{0.93}\text{Fe}_{0.07}\text{O}_{4-\delta}$ において最も高い活性が得られ、トルエンを 250°C で完全燃焼できることが明らかになった。これは、 Sn^{4+} より低価数であり、かつ価数変化しやすい $\text{Fe}^{2+/3+}$ を固溶させることにより、酸素供給能が向上したためと考えられる。

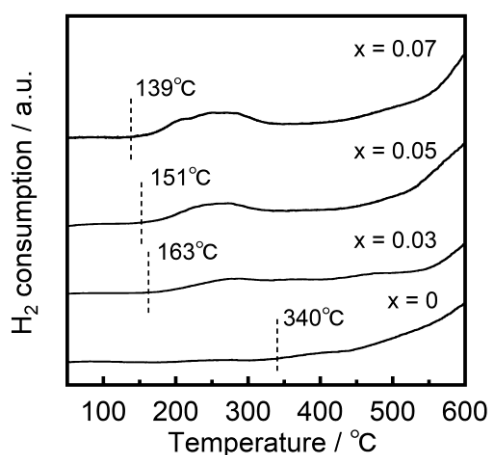


図 1 $\text{ZrSn}_{1-x}\text{Fe}_x\text{O}_{4-\delta}$ の H_2 -TPR プロファイル (測定条件 : 反応ガス 5 vol% H_2 -95 vol% Ar、流量 50 mL \cdot min⁻¹、昇温速度 5°C \cdot min⁻¹)

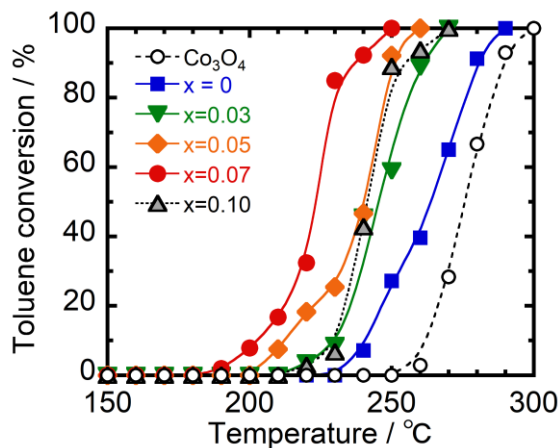


図 2 $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{ZrSn}_{1-x}\text{Fe}_x\text{O}_{4-\delta}$ におけるトルエン転化率の温度依存性 (活性測定条件 : 反応ガス 0.09 vol% トルエン-99.91 vol% 空気、流量 20 mL \cdot min⁻¹、触媒 0.1 g)

(2) 高温耐久性に優れる貴金属フリー触媒

$\text{R}_{10}\text{Si}_6\text{O}_{27}$ (R: La, Sm, Nd, Gd) の XRD 測定結果から、いずれもアパタイト型構造単相が得られた。XRD パターンから格子体積を算出した結果 (表 1)、 R^{3+} イオンのイオン半径¹¹⁾ の増加に伴い、格子体積も増大することがわかった。 $\text{R}_{10}\text{Si}_6\text{O}_{27}$ の導電率を測定した結果 (表 1)、格子体積の増加に伴い、導電率 (900°C) も増加することがわかった。これは、格子体積の増大により、

表 1 $\text{R}_{10}\text{Si}_6\text{O}_{27}$ における R^{3+} のイオン半径、格子体積、および 900°C の導電率

Sample	Ionic radius of R^{3+} / nm	Lattice volume / nm ³	Conductivity / S \cdot cm ⁻¹
$\text{La}_{10}\text{Si}_6\text{O}_{27}$	0.117	0.587	1.87×10^{-4}
$\text{Nd}_{10}\text{Si}_6\text{O}_{27}$	0.112	0.556	1.51×10^{-4}
$\text{Sm}_{10}\text{Si}_6\text{O}_{27}$	0.110	0.535	0.22×10^{-4}
$\text{Gd}_{10}\text{Si}_6\text{O}_{27}$	0.108	0.528	0.10×10^{-4}

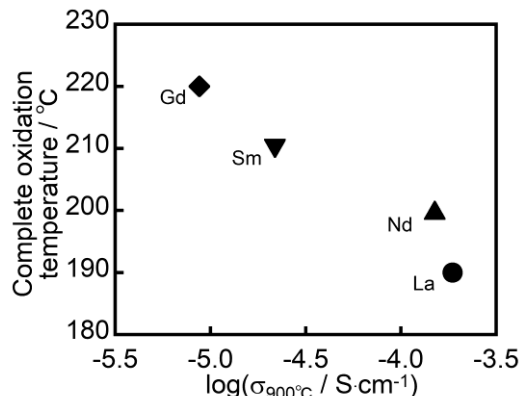


図 3 $\text{R}_{10}\text{Si}_6\text{O}_{27}$ の導電率 (900°C) と、 $\text{Pt}/\text{R}_{10}\text{Si}_6\text{O}_{27}$ のトルエン完全燃焼温度の関係 (活性測定条件 : 反応ガス 0.09 vol% トルエン-99.91 vol% 空気、流量 20 mL \cdot min⁻¹、触媒 0.1 g)

イオン伝導経路が拡大したためと考えられる。Pt/R₁₀Si₆O₂₇ (Pt 担持率：1 wt%) を用い、トルエン燃焼活性を調べた。得られたトルエン完全燃焼温度と、R₁₀Si₆O₂₇ の導電率の関係を図 3 に示す。R₁₀Si₆O₂₇ の導電率が増加するに従い、Pt/La₁₀Si₆O₂₇ はより低温でトルエンを完全燃焼できるようになり、Pt/La₁₀Si₆O₂₇ において最大の活性が得られることが明らかになった。従って、酸化物イオン伝導性が高い助触媒ほど、より効率的に格子内酸素を Pt へと供給でき、La₁₀Si₆O₂₇ が最も優れた酸素供給能を有することがわかった。

このようにして得られた知見を基に、高温耐久性に優れるトルエン燃焼触媒の創成を行った。貴金属フリー触媒としては、Co₃O₄ が高い活性を示すことで知られているが、900°C で分解することから高温耐久性に問題がある。また、LaCoO₃ は耐熱性に優れる (融点：1740°C²⁾) もの、トルエン燃焼活性が低い (トルエンを 410°C で完全燃焼³⁾) ことが問題であった。これらに対し、アパタイト型 La₁₀Si₆O₂₇ は耐熱性に優れている (1750°C でも安定⁶⁾)

ことに加え、Pt への酸素供給能に優れていたことから、本研究にて触媒母体として選択した。ここで La₁₀Si₆O₂₇ は、構成カチオンがいずれも単独の価数で安定 (La³⁺ および Si⁴⁺) であることから、酸素の貯蔵・放出の際に必要な酸化還元能を付与するために、価数変化しやすい Co^{2+/3+} を固溶させた La₁₀Si₅CoO_{27-δ} を創製した。その結果 (図 4)、La₁₀Si₅CoO_{27-δ} のみでも酸素を放出できることがわかった。従って、La₁₀Si₅CoO_{27-δ} における格子内からの酸素供給によりトルエン燃焼が促進できると期待できる。ここで、一般に触媒活性には比表面積が影響することから、高比表面積が得られる手法であるゾルゲル法または共沈法を用い、1000°C で焼成することにより、La₁₀Si₅CoO_{27-δ} を合成した。なお、ゾルゲル法で合成した触媒を LSC(SG-1000°C)、共沈法で合成した触媒を LSC(CP-1000°C) と表記する。

XRD 測定により、LSC(SG-1000°C) および LSC(CP-1000°C) はいずれもアパタイト型構造単相であった。比表面積を測定したところ、LSC(SG-1000°C) は 3.5 m²·g⁻¹ であったのに対し、LSC(CP-1000°C) は 9.6 m²·g⁻¹ と高比表面積を有していることがわかった。そこで、LSC(SG-1000°C) および LSC(CP-1000°C) の表面および断面について、走査型電子顕微鏡 (SEM) 観察を行った (図 5)。LSC(SG-1000°C) は、厚さ約 1 μm の湾曲した板状粒子であり、内部は密であることがわかった。これは、ゾルゲル法においては、蒸発乾固で得られたキセロゲル前駆体を 1000°C で焼成したことにより、粒子が凝集したためと考えられる。一方、LSC(CP-1000°C) においては、多数のマクロ孔 (約 100 nm) を有する不定形粒子が観測された。これは、共沈法においては、共沈で得られた微粉末前駆体を 1000°C で焼成したことにより、微粉末同士が空隙を維持したまま互いに結合したためと推測される。

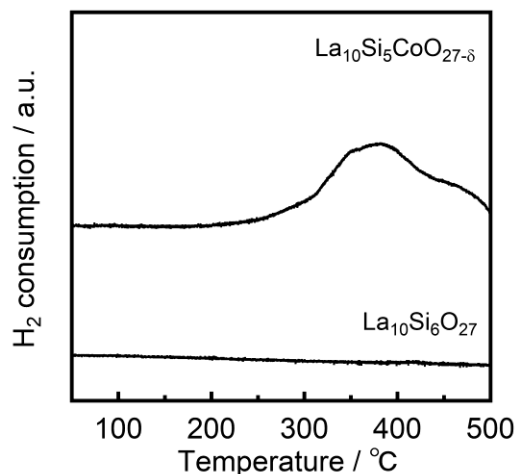


図 4 La₁₀Si₅CoO_{27-δ} および La₁₀Si₆O₂₇ の TPR プロファイル (測定条件：反応ガス 5 vol% H₂-95 vol% Ar、流量 50 mL·min⁻¹、昇温速度 5°C·min⁻¹)

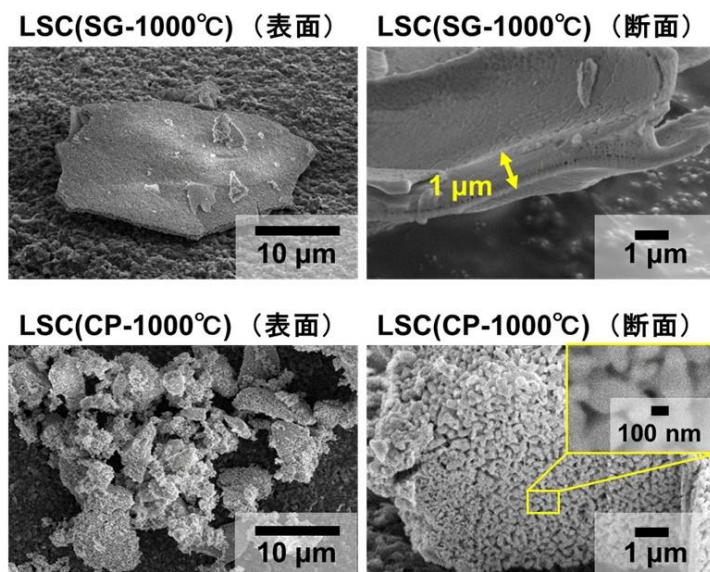


図 5 LSC(SG-1000°C) および LSC(CP-1000°C) の表面および断面の SEM 像

図 6 に、LSC(SG-1000°C)および LSC(CP-1000°C)のトルエン燃焼活性を示す。LSC(SG-1000°C)は、トルエンを 390°Cで完全燃焼でき、LaCoO₃ (トルエンを 410°Cで完全燃焼³⁾)と比較して高活性であることがわかった。これは、アパタイト型 La₁₀Si₅CoO₂₇₋₈における格子内からの酸素供給によりトルエン燃焼が促進されたためと考えられる。さらに、LSC(CP-1000°C)は、LSC(SG-1000°C)よりも高い活性を示し、トルエンを 310°Cで完全燃焼できることがわかった。これは、LSC(CP-1000°C)が LSC(SG-1000°C)より高比表面積であるためと考えられる。

LSC(CP-1000°C)の活性を Pt 系触媒と比較するため、Pt/Al₂O₃ (Pt 担持率: 0.1 wt%) を 500°Cまたは 1000°Cで合成した (以下、Pt/Al₂O₃(500°C)、Pt/Al₂O₃(1000°C)と表記)。得られた Pt/Al₂O₃(500°C) および Pt/Al₂O₃(1000°C)の活性を図 6 に併せて示す。Pt/Al₂O₃ は、500°C合成の場合は高活性 (トルエンを 220°Cで完全燃焼)であったが、1000°C合成により活性が大幅に低下 (トルエンを 290°Cで完全燃焼)することがわかった。この失活は、高温暴露による Pt の凝集が要因と考えられる。1000°Cで合成した触媒同士を比較すると、LSC(CP-1000°C) (310°Cで完全燃焼) は、Pt/Al₂O₃(1000°C) (290°Cで完全燃焼) に匹敵する高い活性を有することが明らかになった。

さらに、触媒が高濃度トルエンを多量に処理する場合、瞬間的に 1000°Cを超える可能性が考えられる。そのような異常過熱に対しても耐久性がある触媒を目指し、高温焼成に適した固相法を用い、1400°Cで焼成した La₁₀Si₅CoO₂₇₋₈(LSC(SS-1400°C)と表記)の合成も行った。LSC(SS-1400°C)のトルエン燃焼活性を図 7 に示す。比較として、Pt/Al₂O₃ を 1400°Cで合成した触媒 (Pt/Al₂O₃(1400°C)と表記) の結果も併せて同図に示す。LSC(SS-1400°C)におけるトルエン完全燃焼温度は 330°Cであり、Pt/Al₂O₃(1400°C) (380°Cで完全燃焼) よりも高い活性を示すことがわかった。以上の結果から、アパタイト型 La₁₀Si₅CoO₂₇₋₈は、高温耐久性に優れ、かつ高い活性を示す貴金属フリー触媒であることが明らかになった。

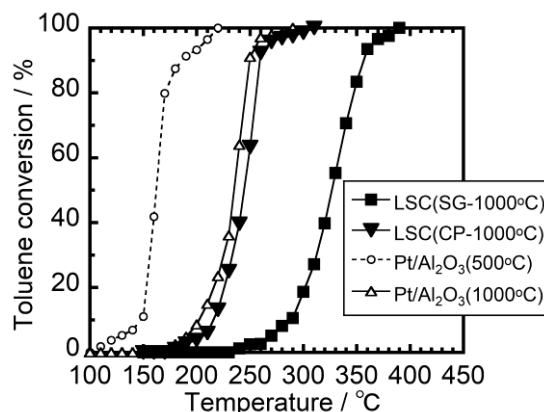


図 6 LSC(SG-1000°C)、LSC(CP-1000°C)、Pt/Al₂O₃(500°C) および Pt/Al₂O₃(1000°C)におけるトルエン転化率の温度依存性 (活性測定条件: 反応ガス 0.09 vol%トルエン-99.91 vol%空気、流量 20 mL·min⁻¹、触媒 0.1 g)

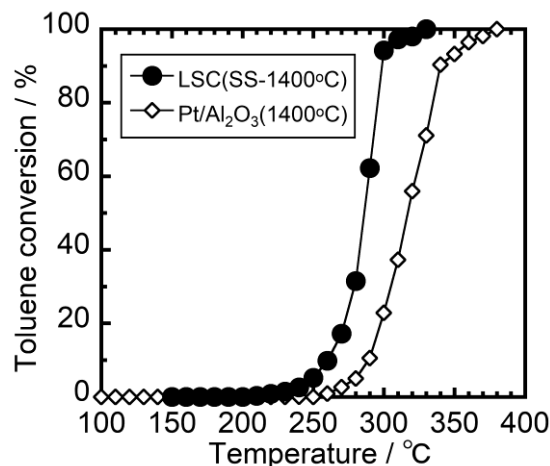


図 7 LSC(SS-1400°C)および Pt/Al₂O₃(1400°C)におけるトルエン転化率の温度依存性 (活性測定条件: 反応ガス 0.09 vol%トルエン-99.91 vol%空気、流量 20 mL·min⁻¹、触媒 0.1 g)

<引用文献>

- 1) G. Bai, H. Dai, J. Deng, Y. Liu, F. Wang, Z. Zhao, W. Qiu, and C.T. Au, *Appl. Catal. A: Gen.*, **450**, 42 (2013).
- 2) J.P. Coutures, J.M. Badie, R. Berjoan, J. Coutures, R. Flamand, and A. Rouanet, *High Temp. Sci.*, **13**, 331 (1980).
- 3) M. Alifanti, M. Florea, S. Somacescu, and V.I. Parvulescu, *Appl. Catal. B: Environ.*, **60**, 33 (2005).
- 4) H. Shirai, N. Akiyama, N. Nunotani, and N. Imanaka, *Chem. Lett.*, **47**, 723 (2018).
- 5) N. Nunotani, K. Morita, and N. Imanaka, *Funct. Mater. Lett.*, **15**, 2250025 (2022).
- 6) H. Yoshioka, *Chem. Lett.*, **33**, 392 (2004).
- 7) S. Nakayama, T. Kageyama, H. Aono, and Y. Sadaoka, *J. Mater. Chem.*, **5**, 1801 (1995).
- 8) K. Matsuo, N. Nunotani, and N. Imanaka, *J. Asian Ceram. Soc.*, **9**, 14662 (2021).
- 9) N. Imanaka and N. Nunotani, *Proc. Jpn. Acad. Ser. B: Phys. Biol. Sci.*, **99**, 198 (2023).
- 10) N. Nunotani, K. Kakihana, and N. Imanaka, *Chem. Lett.*, **52**, 771 (2023).
- 11) R.D. Shannon, *Acta Crystallogr. Sect. A*, **32**, 751 (1976).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計6件（うち査読付論文 6件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Nunotani Naoyoshi, Kakihana Kenjiro, Imanaka Nobuhito	4. 巻 52
2. 論文標題 Thermally Stable Apatite-type La ₁₀ Si ₅ Co ₂ O ₂₇ - Catalyst for Toluene Combustion	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Chemistry Letters	6. 最初と最後の頁 771 ~ 774
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1246/cl.230283	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Nunotani Naoyoshi, Takashima Masanari, Choi Yeon-Bin, Uetake Yuta, Sakurai Hidehiro, Imanaka Nobuhito	4. 巻 59
2. 論文標題 Dihydroxyacetone production by glycerol oxidation under moderate condition using Pt loaded on La _{1-x} BixO _F solids	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Chemical Communications	6. 最初と最後の頁 9533 ~ 9536
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D3CC01734F	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Nunotani Naoyoshi	4. 巻 130
2. 論文標題 Development of environmental catalysts for oxidation of organic compounds with a focus on lattice oxygen	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of the Ceramic Society of Japan	6. 最初と最後の頁 825 ~ 831
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2109/jcersj2.22069	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Nunotani Naoyoshi, Morita Kunimitsu, Imanaka Nobuhito	4. 巻 15
2. 論文標題 Pt supported on ZrSn _{1-x} Sr _x O ₄ - for catalytic liquid-phase oxidation of phenol	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Functional Materials Letters	6. 最初と最後の頁 2250025
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1142/S1793604722500254	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Matsuo Kenji、Nunotani Naoyoshi、Imanaka Nobuhito	4. 巻 9
2. 論文標題 Effect of oxide-ion conductivity of apatite-type Ln10Si6O27 on catalytic activity for toluene combustion	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Asian Ceramic Societies	6. 最初と最後の頁 1466 ~ 1472
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1080/21870764.2021.1992850	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Nunotani Naoyoshi、Li Zhuowei、Imanaka Nobuhito	4. 巻 19
2. 論文標題 Novel Pt/La1-xBixOF/SBA 16 catalysts for liquid phase phenol oxidation	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 International Journal of Applied Ceramic Technology	6. 最初と最後の頁 746 ~ 752
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1111/ijac.13877	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計19件 (うち招待講演 4件 / うち国際学会 5件)

1. 発表者名 Naoyoshi Nunotani, Kenji Matsuo, Nobuhito Imanaka
2. 発表標題 Precious-metal-free Catalysts Based on Apatite-type Lanthanum Silicate for Toluene Combustion
3. 学会等名 15th European Congress on Catalysis (EUROPACAT2023) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 前田気悦、布谷直義、今中信人
2. 発表標題 ジルコニウム-スズ複合酸化物系触媒によるビスフェノールA の液相酸化
3. 学会等名 日本セラミックス協会第36回秋季シンポジウム
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 布谷直義、松尾健司、今中信人
2. 発表標題 アパタイト型希土類ケイ酸塩の導電率がトルエン燃焼活性に与える影響
3. 学会等名 第132回触媒討論会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Naoyoshi Nunotani, Kenji Matsuo, Nobuhito Imanaka
2. 発表標題 Catalytic Combustion of Toluene over Noble-metal-free Catalysts Based on Apatite-type Lanthanum Silicate
3. 学会等名 The 37th International Korea-Japan Seminar on Ceramics (K-J Ceramics 37) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 布谷直義、柿花健仁朗、今中信人
2. 発表標題 高温耐久性に優れるアパタイト型ケイ酸ランタン系触媒を用いたトルエンの完全燃焼
3. 学会等名 第133回触媒討論会
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 布谷直義、松尾健司、今中信人
2. 発表標題 希土類ケイ酸塩における導電率がトルエン燃焼活性に与える影響
3. 学会等名 第40回希土類討論会
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 布谷直義
2. 発表標題 格子内酸素に着目した酸化触媒の創成
3. 学会等名 日本セラミックス協会関西支部2022年度支部大会（招待講演）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 布谷直義、李卓蔚、今中信人
2. 発表標題 オキシフッ化ランタン系触媒を用いたフェノールの液相酸化
3. 学会等名 第38回希土類討論会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Naoyoshi Nunotani, Abdul Rohman Supandi, Nobuhito Imanaka
2. 発表標題 Catalytic Phenol Oxidation over Pt/CeO ₂ -ZrO ₂ -SnO ₂ /ZrO ₂ /SBA-16 Catalysts in Liquid-phase
3. 学会等名 The 9th Tokyo Conference on Advanced Catalytic Science and Technology (TOCAT9) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Naoyoshi Nunotani, Zhuowei Li, Nobuhito Imanaka
2. 発表標題 Catalytic Liquid-phase Oxidation of Phenol Using Novel Catalysts Based on Lanthanum Oxyfluoride
3. 学会等名 12th International Conference on Environmental Catalysis (ICEC2022) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 布谷直義
2. 発表標題 格子内酸素を活用した新規な環境触媒
3. 学会等名 コロキウム2022 (招待講演)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 田中巧、布谷直義、今中信人
2. 発表標題 ジルコニウム-スズ複合酸化物を母体として用いた新規な貴金属フリートルエン燃焼触媒
3. 学会等名 第61回セラミックス基礎科学討論会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 前田気悦、布谷直義、今中信人
2. 発表標題 ジルコニウム-スズ複合酸化物系触媒によるp-クレゾールの液相酸化
3. 学会等名 第61回セラミックス基礎科学討論会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 布谷直義、森田一光、今中信人
2. 発表標題 ジルコニウム-スズ複合酸化物系触媒を用いたフェノールの液相酸化分解
3. 学会等名 第131回触媒討論会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 柿花健仁朗、松尾健司、布谷直義、今中信人
2. 発表標題 アパタイト型ランタンシリケート系貴金属フリー触媒によるトルエンの完全燃焼
3. 学会等名 第37回希土類討論会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 柿花健仁朗、松尾健司、布谷直義、今中信人
2. 発表標題 ケイ酸ランタンを母体とした貴金属フリー触媒のトルエン完全燃焼特性
3. 学会等名 第10回JACI/GSCシンポジウム
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Kenji Matsuo, Naoyoshi Nunotani, Nobuhito Imanaka
2. 発表標題 Noble-metal-free Catalysts for Toluene Combustion Based on Apatite-type Lanthanum Silicate
3. 学会等名 14th Pacific Rim Conference on Ceramic and Glass Technology (PACRIM 14) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 柿花健仁朗、松尾健司、布谷直義、今中信人
2. 発表標題 貴金属を含まないランタンシリケート系触媒によるトルエンの完全燃焼
3. 学会等名 第60回セラミックス基礎科学討論会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 布谷直義
2. 発表標題 格子内酸素に着目した酸化触媒の創成
3. 学会等名 日本セラミックス協会2022年年会（招待講演）
4. 発表年 2022年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関