

平成25年度 傾斜的研究費（全学分） 研究報告書

【研究費区分】：⑤国際共同研究支援枠

【研究代表者所属】：都市教養学部・理工学系・化学コース

【研究代表者氏名】：久富木 志郎

【研究代表者氏名フリガナ】：クブキ シロウ

【研究代表者職】：准教授

【国内研究分担者（所属,氏名,職）】

- ・ 首都大学東京 都市教養学部 理工学系化学コース 秋山和彦 助教

【国外研究分担者（所属,氏名,職）】

- ・ エトボシュローランド大学 ホモナイ ゴルタン 教授
- ・ エトボシュローランド大学 クズマン エルノー 教授
- ・ エトボシュローランド大学 シンコー カタリン 准教授
- ・ エトボシュローランド大学 コブジ バラージ 氏
- ・ ルジェルボスコビッチ研究所 リスティッチ ミラ 博士
- ・ ルジェルボスコビッチ研究所 クレフラ ステプコ 博士

【研究課題名】：

ナノ粒子を原料とする導電性ガラスおよび光触媒ガラスの開発とその放射化学的アプローチによるキャラクタリゼーション

【研究実績の概要（600～800字程度で記入。図、グラフ等の使用も可。）】

本研究期間、報告者である久富木は導電性ガラス、光触媒ガラスおよび酸化鉄ナノ粒子の構造と物性の相関解明研究を行った。以下にその研究成果の概要を示す。

1. 高い電気特性を有するバナジン酸塩ガラスの開発とその二次電池としての応用
＜概要＞酸化バナジウムを主成分とするガラスの組成開発により、二次電池の正極材料として高い電気特性を有するガラス組成の開発に成功した(図1参照)。このガラスの熱処理によって生成する四価のバナジウム(V^{4+})によって高い導電性を示すこと等、構造と物性の相関に関する重要な知見が得られた。
2. 可視光応答型光触媒作用を有するケイ酸鉄ガラスの構造とメチレンブルー分解機構の解明
＜概要＞熱処理を施したケイ酸鉄ガラス中に析出したヘマタイト($\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$)相が、可視光照射応答型の光触媒作用を示し、メチレンブルーを分解することを見出した(図2参照)。このガラスの成分は自治体などで排出される家庭ゴミの焼却灰と成分が近く、廃棄物を環境浄化光触媒としてリサイクルできる可能性が示唆された。
3. 金属鉄-マグヘマイトナノ粒子混合粉体による有機物分解機構の解明
＜概要＞ナノ粒子の金属鉄とマグヘマイト($\gamma\text{-Fe}_2\text{O}_3$)の混合粉体が、バルク粒子よりも高いメチレンブルー分解効果を持つことを明らかにした。メチレンブルーの分解過程で金属鉄は酸化され、マグヘマイト中の八面体空孔サイトに入ることによって混合粉体はマグネタイト(Fe_3O_4)に変化した。

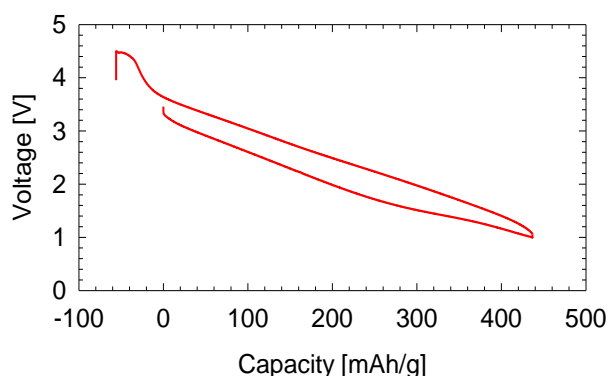


図 1. $\text{Li}_2\text{O-V}_2\text{O}_5\text{-P}_2\text{O}_5\text{-Fe}_2\text{O}_3$ 系ガラスを正極材料として用いたリチウムイオン電池の充放電曲線。従来の値 50mAh g^{-1} を超える放電容量 436.7mAh g^{-1} を記録した。

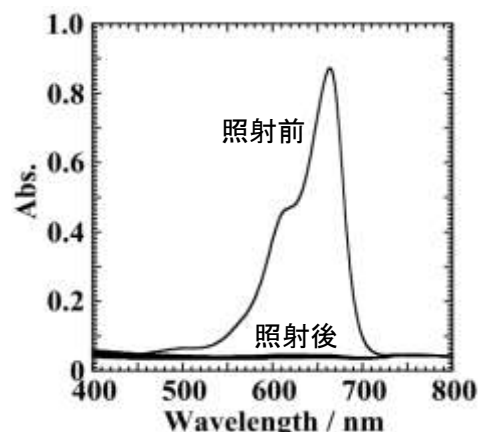


図 2. 可視光照射下で光触媒ガラスを浸漬したメチレンブルー水溶液の UV-Vis スペクトル。ガラスの持つ光触媒効果により光照射 1 日でメチレンブルーが分解した

いずれの研究テーマについても共同研究先であるハンガリー、クロアチア共和国より研究者を招聘することで研究は飛躍的に推進された。

【学会発表（発表題目，発表大会名，年月を記入）】

1. Yoshioka, S. Kubuki, S. Masuda, H. Akiyama, K. Kazuhiro, H. and Nishida, T.
“ ^{57}Fe -Mössbauer, XANES and HR-TEM Studies of Electrically Conductive $\text{BaO-Fe}_2\text{O}_3\text{-V}_2\text{O}_5$ Glasses”, *XXXVIII Colloquium Spectroscopicum Internationale*, Tromsø (Norway) (June 2013).
2. Kubuki, S. Matsuda, K. Akiyama, K. and Nishida, T.
“ ^{57}Fe -Mössbauer Study of Electrically Conductive Alkaline Iron Vanadate Glasses”, *XXXVIII Colloquium Spectroscopicum Internationale*, Tromsø (Norway) (June 2013).
3. 西田哲明・古本功・久富木志郎
「導電性バナジウム酸塩ガラスの局所構造と物性」
第 50 回アイントロップ・放射線研究発表会. 東京大学農学部(東京都文京区) (2013 年 7 月).
4. 松田弘賢・久富木志郎・秋山和彦・西田哲明
「タングステン置換バナジウム酸塩ガラスの局所構造と物性」
第 50 回アイントロップ・放射線研究発表会. 東京大学農学部(東京都文京区) (2013 年 7 月).
5. 高橋佑輔・久富木志郎・秋山和彦・西田哲明
「可視光応答型光触媒効果を有するケイ酸鉄ガラスの開発と構造解析」
第 50 回アイントロップ・放射線研究発表会. 東京大学農学部(東京都文京区) (2013 年 7 月)..
6. 芝野幸也・久富木志郎・秋山和彦・西田哲明
「マグヘマイト前駆体としてのマグネタイトナノ粒子の合成」
第 50 回アイントロップ・放射線研究発表会. 東京大学農学部(東京都文京区) (2013 年 7 月).
7. 久富木志郎・岩沼準・高橋佑輔・秋山和彦・西田哲明
「家庭ゴミ焼却スラグを原料とした可視光応答型光触媒ガラスの開発とその環境浄化資材および太陽電池用電極としての応用」

第 5 回東京都施策提案研究発表会. 東京都庁 (東京都新宿区) (2013 年 7 月).

8. Kubuki, S. Masuda, H. Akiyama, K. Zsabka, P. Homonnay, Z. Kuzmann, E. Kitajo, A. Okada, S. and Nishida T.
“Mössbauer Study of New Vanadate Glass with Large Charge-Discharge Capacity”, *International Conference on the Applications of the Mössbauer Effect(ICAME2013)*, Opatija(Croatia) (Sep. 2013).
9. Kubuki, S. Matsuda, K. Akiyama, K. Homonnay, Z. Kuzmann, E. and Nishida T.
“Electrical Conductivity and Local Structure of Lithium Iron Tungsten Vanadate Glass”, *International Conference on the Applications of the Mössbauer Effect(ICAME2013)*, Opatija(Croatia) (Sep. 2013).
10. Kubuki, S. Shibano, K. Akiyama, K. Homonnay, Z. Kuzmann, E. Ristić, M. and Nishida T.
“Mössbauer Study of Magnetite Nano Particle Prepared for Water Cleaning”, *International Conference on the Applications of the Mössbauer Effect(ICAME2013)*, Opatija(Croatia) (Sep. 2013).
11. Kubuki, S. Takahashi, Y. Akiyama, K. Homonnay, Z. Kuzmann, E. Sinko, K. Ristić, M. and Nishida T.
“Visible Light Activated Photo-Catalytic Effect and Local Structure of Iron Silicate Glass Prepared by Sol-Gel Method”, *International Conference on the Applications of the Mössbauer Effect(ICAME2013)*, Opatija(Croatia) (Sep. 2013).
12. Lengyel, A. Kuzmann, E. Homonnay, Z. Várhelyi Jr., Cs. Klencsár, Z. Kubuki, S. Szalay, R. and Várhelyi, Cs.
“Mössbauer Study of Novel Iron(II)-Dioxine Complexes with Branching Alkyl Chains”, *International Conference on the Applications of the Mössbauer Effect(ICAME2013)*, Opatija (Croatia) (Sep. 2013).
13. Hassaan, M.Y. Salem, S.M. Moustafa, M.G. Kubuki, S. Matsuda, K. and Nishida, T. “Controlled Crystallization an Ionic Conductivity of a Nanostructured LiNbFePO₄ Glass-Ceramics”, *International Conference on the Applications of the Mössbauer Effect (ICAME2013)*, Opatija (Croatia) (Sep. 2013).
14. Mikuni, A. Hosoya, N. Isobe, N. Kubuki, S. “Characteristics of Hagi Wares and Current Research trend. *The 30th Japan-Korea International Seminar on Ceramics @Kitakyushu*, Kita-Kyushu (Japan) (Nov. 2013).
15. Kobzi, B. Sinclair, J. Sinkó K and Kubuki, S. “Study on the Effect of Cryogenic Conditions on the Porous Aluminium Oxide Structures”, *International Exchange Program in Tokyo Metropolitan University -The Global Human Resource Program Bridging across Physics and Chemistry-*, Hachi-Oji, Tokyo(Japan) (Jan. 2014).
16. Takahashi, Y. Kubuki, S. Akiyama, K. Sinkó, K. Homonnay, Z. Kuzmann, E. Ristić, M. and Nishida T.
“Visible Light Activated Photo-Catalytic Effect and Local Structure of Iron Silicate Glass Prepared by Sol-Gel Method”, *International Exchange Program in Tokyo Metropolitan University -The Global Human Resource Program Bridging across Physics and Chemistry-*, Hachi-Oji, Tokyo(Japan) (Jan. 2014).
17. Matsuda, K. Kubuki, S. Akiyama, K. Sinkó, K. Homonnay, Z. Kuzmann, E. Ristić, M. and Nishida T.
“Electrical Conductivity and Local Structure of Lithium Iron Tungsten Vanadate Glass”, *International Exchange Program in Tokyo Metropolitan University -The Global Human Resource Program Bridging across Physics and Chemistry-*, Hachi-Oji, Tokyo(Japan) (Jan. 2014)..
18. Watanabe, Y. Kubuki, S. Akiyama, K. Sinkó, K. Homonnay, Z. Kuzmann, E. Ristić, M. Krehula, S. and Nishida T.

“Structural and Visible Light Photo-Catalytic Effect of Alumino-Silicate Glass Containing iron”,
International Exchange Program in Tokyo Metropolitan University -The Global Human Resource Program Bridging across Physics and Chemistry-, Hachi-Oji, Tokyo(Japan) (Jan. 2014).

19. 岩本 恭平・山本 知一・吉岡 聡・安田 和弘・松村 晶・原 一広・久富木 志郎
 「熱処理したバナジウム酸塩ガラスの微細構造と電気伝導」
 平成25年度応用物理学会九州支部学術講演会. 長崎大学工学部 (長崎市文教町) (2013年11月).
20. 松田弘賢・久富木志郎・喜多條鮎子・岡田重人・西田哲明・エルノークズマン・ホモナイゾルタン
 「メスバウアー分光法による導電性バナジウム酸塩ガラスのキャラクタリゼーション」
 平成25年度KUR専門研究会「不安定原子核の理工学と物性応用研究II, 京都大学原子炉実験所(大阪府泉南郡) (2013年12月).
21. 久富木志郎,
 「可視光照射により触媒作用を示す酸化鉄含有ソーダライムシリケートガラス」
 JST 新技術説明会. JST 東京別館ホール(東京都千代田区) (2014年1月).
22. 飯田悠介・久富木志郎・秋山和彦・岩沼準・高橋佑輔・Homonnay Zoltán・Kuzmann Ernő・西田哲明,
 「鉄イオンを含むケイ酸塩ガラスの光触媒効果と局所構造の相関」
 日本セラミックス協会2014年年会. 慶応大学日吉キャンパス(神奈川県横浜市) (2014年3月).
23. 渡部友佳・芝野幸也・久富木志郎・Ristić Mira・Krehula Stjepko・Homonnay Zoltán・Kuzmann Ernő・西田哲明,
 「鉄および酸化鉄ナノ粒子の化学的合成法の開発と有機物分解能の評価」
 日本セラミックス協会2014年年会. 慶応大学日吉キャンパス(神奈川県横浜市) (2014年3月).

【論文発表又は著書発行 (発表題目, 著者, 発表誌又は出版社, 年月を記入)】

1. Shibano, K. Kubuki, S. Akiyama, K. Homonnay, Z. Kuzmann, E. Ristić, M. and Nishida, T. “Oxidation Mechanism of Fe⁰ in Fe⁰-Iron Oxide Mixture in Methylene Blue Leaching Test”,
Proc. Spec. Res. Meet. “Science and Engineering of Unstable Nuclei and Their Uses on Condensed Matter Physics”(KURRI-177), 77-80 (Mar. 2013).
2. Masuda, H. Kubuki, S. Akiyama, K. Zsabka, P. Homonnay, Z. Kuzmann, E. and Nishida, T. “⁵⁷Fe- and ¹¹⁹Sn-Mössbauer Studies of Electrically Conductive New Vanadate Glass”,
Proc. Spec. Res. Meet. “Science and Engineering of Unstable Nuclei and Their Uses on Condensed Matter Physics”(KURRI-177), 25-29 (Mar. 2013).
3. Kubuki, S. Iwanuma, J. Akiyama, K. Homonnay, Z. Kuzmann, E. and Nishida, T.
 “Water Cleaning Ability and Local Structure of Iron-Containing Soda-Lime Silicate Glass”, *Hyperfine Interact.*, 218, 41-45, DOI: 10.1007/s10751-012-0655-y (Apr. 2013).
4. Kubuki, S. Shibano, K. Akiyama, K. Zoltán, H. Kuzmann, E. Ristić, M. and Nishida, T.
 “Decomposition Mechanism of Methylene Blue Caused by Metallic Iron-Maghemite Mixture”, *Hyperfine Interact.*, 218, 47-52, DOI: 10.1007/s10751-012-0672-x (Apr. 2013).
5. Kuzmann, E. Stichleutner, S. Sápi, A. Klencsár, Z. Oshtrakh, M. I. Semionkin, V. A. Kubuki, S. Homonnay and Z. Varga, L. K. “Mössbauer Study of FINEMET with different Permeability”, *Hyperfine Interact.*, 219, 63-67, DOI: 10.1007/s10751-012-0711-7 (Apr. 2013).
6. Kubuki, S. Masuda, H. Akiyama, K. Homonnay, Z. Kuzmann, E. and Nishida, T.
 “Electrical Conductivity and Local Structure of Lithium Tin Iron Vanadate Glass”,
Hyperfine Interact., 219, 141-145, DOI: 10.1007/s10751-012-0657-9 (Apr. 2013).
7. Kubuki, S. Shibano, K. Akiyama, K. Homonnay, Z. Kuzmann, E. Ristić, M. and Nishida, T. “Effect of the Structural Change of an Iron- Iron Oxide Mixture on the Decomposition of Trichloroethylene”, *J. Radioanal.*

- Nucl. Chem.*, 295, 23-30, DOI: 10.1007/s10967-012-1933-5 (Apr. 2013).
8. Kubuki, S. Matsuda, K. Akiyama, K. Homonnay, Z. Sinkó, K. Kuzmann, E. and Nishida, T.
“Enhancement of Electrical Conductivity and Chemical Durability of $20R_2O \cdot 10Fe_2O_3 \cdot xWO_3 \cdot (70-x)V_2O_5$ glass (R= Na, K) Caused by Structural Relaxation”, *J. Non-Cryst. Solids*, 378, 227-233. [dx.doi.org/10.1016/j.jnoncrysol.2013.07.012](https://doi.org/10.1016/j.jnoncrysol.2013.07.012) (Aug. 2013).
 9. Kubuki, S. Matsuda, K. Akiyama, K. and Nishida, T.
“ ^{57}Fe -Mössbauer Study of Electrically Conductive Alkaline Iron Vanadate Glasses”, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, DOI: 10.1007/s10967-013-2748-8 (Oct. 2013).
 10. Kuzmann, E. Lengyel, A. Homonnay, Z. Várhelyi Jr, Cs. Klencsár, Z. Kubuki, S. Szalay, R.
“Mössbauer Study of Novel Iron(II)-Dioxime Complexes with Branched Alkyl Chains”, *Hyperfine Interact.*, DOI: 10.1007/s10751-013-0916-4 (Oct. 2013).
 11. Matsuda, K. Kubuki, S. Akiyama, K. Homonnay, Z. Kuzmann, E. and Nishida T.
“Electrical Conductivity and Local Structure of Lithium Iron Tungsten Vanadate Glass”, *Hyperfine Interact.*, DOI: 10.1007/s10751-013-0920-8 (Oct. 2013).
 12. Shibano, K. Kubuki, S. Akiyama, K. Homonnay, Z. Kuzmann, E. Kurehula, S. Ristić, M. and Nishida T.
“Local Structure and Water Cleaning Ability of Iron Oxide Nanoparticles Prepared by Hydrothermal Reaction”, *Hyperfine Interact.*, DOI: 10.1007/s10751-013-0930-6 (Oct. 2013).
 13. Kubuki, S. Masuda, H. Matsuda, K. Akiyama, K. Kitajo, A. Okada, S. Zsabka, P. Homonnay, Z. Kuzmann, E. and Nishida, T.
“Mössbauer Study of New Vanadate Glass with Large Charge-Discharge Capacity”, *Hyperfine Interact.*, DOI: 10.1007/s10751-013-0931-5 (Oct. 2013).
 14. Hassaan, M. Y. Salem, S. M. Moustafa, M.G. Kubuki, S. Matsuda K. and Nishida, T.
“Controlled Crystallization and Ionic Conductivity of a Nanostructured $LiNbFePO_4$ Glass-Ceramic”, *Hyperfine Interact.*, DOI: 10.1007/s10751-013-0926-2 (Oct. 2013).
 15. Takahashi, Y. Kubuki, S. Akiyama, K. Sinko, K. Kuzmann, E. Homonnay, Z. Ristić, M. and Nishida, T.
“Visible Light Activated Photo-Catalytic Effect and Local Structure of Iron Silicate Glass Prepared by Sol-Gel Method”, *Hyperfine Interact.*, DOI: 10.1007/s10751-013-0928-0 (Nov. 2013).
 16. Sinkó, K. Kubuki, S. and Peterlik. H.
“Various Three-Dimensional Structures connected by Al–O/OH/Acetate–Al bonds”, *Inorganic Chemistry*, DOI: 10.1021/ic402189c (Oct. 2013).
 17. Kubuki, S. Iwanuma, J. Akiyama, K. Homonnay, Z. Sinkó, K. Kuzmann, E. and Nishida, T.
Visible Light Activated Catalytic Effect of Iron Containing Soda-lime Silicate Glass Characterized by ^{57}Fe -Mössbauer Spectroscopy. *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, DOI: 10.1007/s10967-014-3109-y, in press (2014).
 18. Katsuki, H. Shiraishi, A. Pee, J-H. Cho, W-S. Takahashi, Y. and Kubuki, S. A relationship between Oxydation State of Iron and Color of Arta Celadon Glaze Characterized by ^{57}Fe -Mössbauer Spectroscopy. *J. Ceram. Soc. Jpn.*, in press (2014).

【科学研究費補助金への応募状況、採択状況】

- ・ 久富木志郎(代表), ユビキタス元素を原料とするヘマタイトナノ粒子分散可視光応答型光触媒の開発. 文部科学省・平成 26 年度科学研究費助成事業(学術研究助成基金助成金) 挑戦的萌芽研究, 総額

3,770 千円

【国等の提案公募型研究費，企業からの受託研究費・共同研究費の獲得状況】

- ・ 久富木志郎(代表)，高い二次電池正極特性をもつバナジン酸塩ガラスの開発と放射化学的アプローチによる構造解析，平成 26 年度物質・デバイス領域共同研究拠点 一般研究課題，総額 200 千円
- ・ 久富木志郎(代表)，環境に優しい機能性ナノ酸化物ガラスの開発と放射化学的手法による構造解析．日本学術振興会二国間交流事業オープンパートナーシップ共同研究，総額 5,000 千円(申請中)
- ・ 久富木志郎(代表)，可視光応答型光触媒ガラス材の実用化を目指した研究開発．セントラル硝子(株)，総額 1,300 千円(2014).

【その他社会貢献】

[公的審議会・委員会等の公的貢献，生涯学習支援・普及啓発，国際貢献・国際交流等]

- ・ なし

【研究成果による特許等の工業所有権の出願・取得状況】

(工業所有権の名称，発明者，権利者，工業所有権の種類・番号，出願年月日，取得年月日)

- ・ 久富木志郎・岩沼準・秋山和彦・西田哲明，アナターゼ型酸化チタンを含まないヘマタイト相分散型可視光応答型光触媒ガラス．特願 2013-22250 (H.25.2.7).
- ・ 久富木志郎・高橋佑輔・秋山和彦・西田哲明，光触媒ガラス、及びその製造方法．特願 2014-42080(H.26.3.4).

【研究分担額】

(研究代表者・分担者名，所属，金額 (円))

- ・ なし