

【研究費区分】： 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

【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

【国内の研究機関又は大学に所属する研究分担者（所属,氏名,職）】

- ・理工学研究科 分子物質化学専攻, コブズイ バラシュ, 博士後期課程1年

【海外の研究機関又は大学に所属する研究分担者（所属,氏名,職）】

- ・テキサスA&M大学, シャルマ ヴィレンダ, 教授
- ・アル アズハル大学, ハッサン ムハマド, 教授
- ・エトボシュ ローランド大学, ホモナイ ズルタン, 教授
- ・メキシコ国立自治大学, オレア-メヤ オスカー, 准教授
- ・シェフィールド ハラム大学, ビンガム ポール, 博士主席研究員
- ・ルジェルボスコヴィッチ研究所, クレフラ ステプコ, 博士研究員

【研究課題名】： 家庭ゴミ焼却スラグを原料とする環境浄化光触媒ガラスの開発とその国際的応用展開

【研究実績の概要】（600～800字程度で記入。図（組織図含）、グラフ等の使用も可。）

本年度は国際共同研究への参加各国より、焼却スラグの提供を受ける予定であったが、研究分担者の国では家庭ゴミ焼却スラグを排出している都市がないことが分かった。このため、採取する家庭ゴミ焼却スラグは東京都二十三区清掃組合の一つである、多摩川清掃工場のみより提供を受けることとした。家庭ゴミ焼却スラグの性状分析、光触媒ガラスとしての構造解析、性能評価を実施した。その結果、以下の成果が得られた。

#### ①家庭ゴミ焼却スラグの性状分析結果

- 1) 成分分析の結果、主成分は酸化ケイ素 ( $\text{SiO}_2$ ) 23.32%, 酸化カルシウム ( $\text{CaO}$ ) 21.79%, 酸化アルミニウム ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) 16.68%, 酸化鉄 ( $\text{Fe}_2\text{O}_3$ ) 11.45%, 酸化ナトリウム ( $\text{Na}_2\text{O}$ ) 6.57%であった。残りの約20%の中にはレアメタルの一つである酸化チタン等が含まれることが分かった。平成29年度は毎月、サンプリングを実施したが、主要成分についてはその濃度の大きな変動は見られなかった。また、中性子線照射による精密な $\gamma$ 線分析より、高い性能を持つ高価な触媒として知られるパラジウムが含まれていることが分かった。
- 2) このスラグを4mol/Lの硝酸に5日間浸漬したところ、ゲル状になった。これにより、有価金属回収のためには有利であること、ゾルゲル法によるガラス作成が可能であることが示唆された。この結果を踏まえ、鉄を加えた系酸塩ガラスを作成し、光触媒効果の評価を実施したところ、

過酸化水素の共存下において光フェントン反応を引き起こすことが明らかになった。

## ②家庭ゴミ焼却スラグを原料とした光触媒ガラスの物性評価と構造解析

- 1) 研究計画初年度は焼却スラグに対して、酸化ナトリウムを10%、酸化鉄を50%加え作成したガラスセラミックスのメチレンブルー分解の反応速度定数が、熱処理前で  $0.81 \sim 0.94 \times 10^{-3} \text{ min}^{-1}$  であったのに対し、熱処理後は  $2.25 \sim 2.65 \times 10^{-3} \text{ min}^{-1}$  となった。本年度は焼却スラグに対して酸化鉄を0~10%加え作成したガラスセラミックスに対して、光触媒効果の評価を実施した。その結果、酸化鉄を5%加え溶融後、800°Cで1000分熱処理した試料のメチレンブルー分解の反応速度定数が  $1.69 \times 10^{-3} \text{ min}^{-1}$  で最大となった。
- 2) 1) の原因解明のため、作成したガラスセラミックスについてX線回折(XRD)およびメスバウアースペクトルの測定を行った。高い光触媒効果を示した熱処理後の試料にはナノサイズのマグヘマイト相が存在していることが低温(77K=液体窒素温度)でのメスバウアースペクトル測定から判明した。

【学会発表(発表題目, 発表大会名, 年月を記入)】二重下線は研究代表者, 下線は研究分担者

### <国際学会>

- S. Krehula, M. Ristić, C. Wu, X. Li, L. Jiang, J. Wang, G. Sun, T. Zhang, M. Perović, M. Bošković, B. Antić, B. Kobzi, S. Kubuki and S. Musić, Microstructural properties and OER activity of hydrothermally prepared Ni-Fe (oxy) hydroxides, *3<sup>rd</sup> Mediterranean Conference on the Application of the Mössbauer Effect (MECAME2017)*, Jerusalem (Israel) (Jun. 5-7, 2017).
- S. Kubuki, <sup>57</sup>Fe-Mössbauer study of iron-containing materials for environmental Purification, Sheffield Hallam University Seminar 2017, Sheffield (U. K.) (Jul. 20, 2017).
- K. Sunakawa, S. Kubuki, Y. Aoki, T. D. Matsuda, R. Higashinaka, M. Perović, M. Bošković, E. Kuzmann, Z. Homonnay and T. Nishida, Local structure and magnetic properties of iron phosphate glass prepared by sol-gel method, *2nd International Conference on Phosphate Materials*, Oxford (U. K.) (Jul. 26-28, 2017).
- S. Ishikawa, S. Kubuki, K. Akiyama, K. Sunakawa, B. Kobzi, S. Nemeth, A. Lengyel, E. Kuzmann, Z. Homonnay, T. Nishida, <sup>57</sup>Fe-Mössbauer Study of Visible-light activated photocatalytic glass ceramics prepared from waste slag, *The 34th International Conference on the Application of the Mössbauer Effect (ICAME2017)*, St. Petersburg (Russia) (Sep. 3-8, 2017).

以上4件

### <国内学会>

- K. Sunakawa, S. Kubuki, K. Akiyama, Y. Aoki, T. D. Matsuda, R. Higashinaka, M. Perović, M. Bošković and T. Nishida, ゼルゲル法により合成した鉄リン酸ガラスの磁気的性質とメスバウアーパラメータの相関, 第54回アイソトープ・放射線研究発表会, 東京大学農学部(東京都文京区)

(Jul. 5-7, 2017).

- S. Ishikawa, S. Kubuki, K. Sunakawa, B. Kobzi, S. Nemeth, A. Lengyel, E. Kuzmann, Z. Homonnay, T. Nishida, Relationship between local structure and visible-light activated photocatalytic effect of glass ceramics prepared from waste slag, 第 54 回アイトープ・放射線研究発表会, 東京大学農学部 (東京都文京区) (Jul. 5-7, 2017).
- 久富木志郎,  
レアメタル不要で高性能な可視光応答型光触媒ガラス,  
首都大学東京新技術説明会, JST 東京別館ホール(東京都千代田区) (Jul.11, 2017).
- 久富木志郎, 石川史織, 片山裕加, コブズイバラシユ,  
スチール缶と家庭ゴミ焼却スラグを利用した水質浄化材の開発,  
東京都施策提案発表会, 東京都庁第二本庁舎(東京都千代田区) (Jul. 26-27, 2017).
- 砂川晃佑, 久富木志郎, 秋山和彦, 青木勇二, 松田達磨, 東中隆, Marija Perovic, Marko Boskovic, 西田 哲明,  
ゾル-ゲル法により合成した鉄リン酸ガラスの磁気的性質と局所構造の相関,  
日本セラミックス協会 30 回秋季年会, 神戸大学 (兵庫県神戸市),  
(Sep. 19-21, 2017).
- Kobzi Balazs, Kubuki Shiro, Homonnay Zoltan, Kuzmann Ernő, Mira Ristić, Stjepko Krehula,  
Nishida Tetsuaki,  
Improving the visible light photocatalytic activity of SnOx·SiO<sub>2</sub> glass systems by introducing SnOx nanoparticles,  
日本セラミックス協会 30 回秋季年会, 神戸大学 (兵庫県神戸市)  
(Sep. 19-21, 2017).
- S. Morishita, K. Sunakawa, K. Nomura, K. Akiyama, S. Kubuki, Z. Homonnay, K. Sinkó, E. Kuzmann,  
Structural Analysis and Magnetic Properties of Iron Silicate Glass prepared by Sol-Gel Method,  
第 19 回メスバウアー分光研究会, 首都大学東京南大沢キャンパス(東京都八王子市)  
(Mar. 19, 20, 2018).
- Y. Katayama, S. Ishikawa, K. Akiyama, K. Nomura, S. Kubuki, S. Nemeth, E. Kuzmann and Z. Homonnay,  
The Relationship between Chemical Structure and Visible Light Activated Photo-catalytic Effect of Iron-containing Glass Prepared from Slag,  
第 19 回メスバウアー分光研究会, 首都大学東京南大沢キャンパス(東京都八王子市)

(Mar. 19, 20, 2018).

- S. Ishikawa, S. Kubuki, K. Akiyama, K. Sunakawa, B. Kobzi, S. Nemeth, A. Lengyel, E. Kuzmann, Z. Homonnay, T. Nishida,  
Relationship between Local Structure and Visible-light Activated Photocatalytic Effect of Iron-containing Soda Lime Glass Ceramics,  
第 19 回メスバウアー分光研究会, 首都大学東京南大沢キャンパス(東京都八王子市)  
(Mar. 19, 20, 2018).
- B. Kobzi, S. Kubuki,  
Investigation of a synergetic Fenton-like oxidation and photocatalyst reaction of iron silicate glass systems characterized by  $^{57}\text{Fe}$  Mössbauer spectroscopy  
第 19 回メスバウアー分光研究会, 首都大学東京南大沢キャンパス(東京都八王子市)  
(Mar. 19, 20, 2018).

以上 10 件

【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)】 二重下線は研究代表者, 下線は研究分担者

- S. Krehula, M. Ristić, M. Reissner, S. Kubuki, S. Musić, Synthesis and Properties of Indium-doped Hematite, *J. Alloys and Compounds*, 695, 1900-1907 (Feb. 2017).
- B. Kobzi, E. Kuzmann, K. Sinkó, Z. Homonnay, M. Ristic, S. Krehula, T. Nishida, S. Kubuki,  
The relationship between  $\text{Sn}^{\text{II}}$  fraction and visible light activated photocatalytic activity of  $\text{SnO}_x\cdot\text{SiO}_2$  glass studied by Mössbauer spectroscopy, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 311(3), 1859-1865(Mar. 2017).
- K. Sinkó, A. Meiszterics, J. Rohonczy, B. Kobzi, S. Kubuki, Effect of Phosphorus Precursor on the Structure of Bioactive Calcium Phosphate System, *Materials Science and Engineering C*, 73, 767-777(Apr. 2017).
- S. Ishikawa, B. Kobzi, K. Sunakawa, S. Nemeth, A. Lengyel, E. Kuzmann, Z. Homonnay, T. Nishida and S. Kubuki, Visible-light activated photocatalytic effect of glass and glass ceramic prepared by recycling waste slag with hematite, *Pure and Applied Chemistry*, 89(4), 419-428 (Apr. 2017).
- B. Kobzi, Y. Watanabe, K. Akiyama, E. Kuzmann, Z. Homonnay, S. Krehula, M. Ristić, T. Nishida and S. Kubuki,  $^{57}\text{Fe}$ -Mössbauer study and methylene blue decomposing effect of nanoparticle mixtures composed of metallic iron and maghemite, *J. Alloys. Compounds*, 722, 94-100 (Oct. 2017).

- T. Nishida, A. Morimoto, Y. Yamamoto, S. Kubuki, Waste water purification using new porous ceramic prepared by recycling waste glass and bamboo charcoal, *Applied Water Science*, 7(8), 4281-4286 (Dec. 2017).
- B. Kobzi, E. Kuzmann, Z. Homonnay, S. Krehula, M. Ristic, S. Kubuki, Improving the visible light photocatalytic activity of  $\text{SnO}_x\text{-SiO}_2$  glass systems by introducing  $\text{SnO}_x$  nanoparticles, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, accepted(Mar. 2018).
- S. Krehula, M. Ristić, C. Wu, X. Li, L. Jiang, J. Wang, G. Sun, T. Zhang, M. Perović, M. Bošković; B. Antić, L. K. Krehula, B. Kobzi, S. Kubuki, S. Musić, Influence of Fe(III) doping on the crystal structure and properties of hydrothermally prepared  $\text{Ni}(\text{OH})_2$  nanostructures, *J. Alloys. Compounds*, submitted.

以上 8 件

**【科学研究費補助金への応募状況，採択状況】**

- 「金属並みの導電性を持つバナジウム酸塩ガラスの開発とその二次電池正極材としての応用」, 17,550 千円, 基盤研究(B), H.27-29, 継続
- 「高容量 Na イオン電池正極材としての「ナノ」バナジウム酸塩ガラスの開発」, 18,100 千円, 基盤研究(B), H.30-32, 申請中
- 「ナノ結晶および低次元電子系のサイズ効果と表面状態」, 50,000 千円, 基盤研究(A), H.30-33, 申請中

以上 3 件

**【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】**

- 「家庭ゴミ焼却スラグを原料とする環境浄化光触媒ガラスの開発とその国際的応用展開」, 首都大学東京傾斜的研究費(全学分)学長裁量枠 戦略的研究プロジェクト支援国際共同支援枠, 2,000 千円, H. 28-H.29, 継続
- “Characterization of eco-friendly functional glasses containing nano-sized oxide particles with nuclear measurement methods”, Hungary Japan TÉT project (TÉT12 JP-1-2014-00256), 741,440 HUF (2,860 千円), H. 28-29, 継続
- 「家庭ゴミ焼却スラグからの有価金属回収技術および可視光応答型光触媒ガラス作成技術の開発とその国際的応用展開」, 首都大学東京 高度研究, 60,000 千円, H.29-H.32, 採択
- 「理論計算に基づいた半導体ナノガラスの開発」, 首都大学東京 傾斜的研究費(全学分) 学長裁量枠ミニ研究環, 800 千円, H. 29, 採択
- “Application of iron-containing glass and natural light in photocatalytic inactivation of *Escherichia coli* “, East Asia and Pacific Summer Institutes (EAPSI), National Science Foundation (米国), 692 千円, H.29,

採択

以上 5 件

**【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]

- ・大学等放射線施設協議会 常議員
- ・日本アイソトープ協会 企画専門委員会 委員
- ・メスバウアー分光研究会 運営委員(事務局)

**【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, 光触媒ガラス, 特願 2013-22250, 特開 2014-152062, 特許第 6095156 号 (2017 年 2 月 7 日).
- ・ 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, 特開 2015-167871, 特許第 6237350 号(2017 年 11 月 10 日).
- ・ 久富木 志郎, コブジ バラシユ, 砂川 晃佑, 光触媒ガラス, 特願 2016-094204, 特開 2017-202437 (2017 年 11 月 16 日).

以上 3 件

**【研究分担額】**

(研究代表者・分担者名,所属,金額 (円))

- ・ 久富木志郎, 都市教養学部 理工学系, 1,000,000 円