

2024 年度 傾斜的研究費（全学分）国際研究環支援 研究報告書

【研究費区分】：国際研究環支援

【研究代表者所属】：理学研究科化学専攻

【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

【研究分担者（所属,氏名,職）】

- ・ 東京都立大学, Ahmed Ibrahim, 博士後期課程 3 年
- ・ Jiangsu University (China), Zhang Bofan, Assistant Professor(2022 年 8 月都立大で博士(理学)の学位取得).
- ・ Energiatudományi Kutatóközpont (Hungary), Irfan Khan, Ph.D, Post Doctoral Fellow (2021 年 8 月都立大で博士(理学)の学位取得)
- ・ Eötvös Loránd Tudományegyetem (Hungary), Zoltán Homonnay, Ph.D, Professor
- ・ Ruđer Boskovic Institute, Stjepko Krehula, Ph.D, Senior Research Associate
- ・

【HP（*本研究の HP を作成している場合は、その URL を記入してください。）】

- ・ なし

【活動概要と、ここで形成された研究グループ・研究拠点の今後の研究活動について】（800～1000 字程度で記入。図（組織図含）、グラフ等の使用も可。）

- ・ ○当初目的

本研究課題では環境浄化特性を有する光フェントン触媒ガラスおよび高い Na 電池正極特性を有する導電性ガラスを家庭ごみ焼却スラグから開発することを目的とした。Fe⁴⁺を家庭ごみ焼却スラグ中に発現させる具体的な方策として、①塩基度(CaO/SiO₂比)を変化させる方法、②鉄よりも電気陰性度の高い元素を不純物として加える方法を用いる。これにより従来、光触媒効果の評価基準としてきた、メチレンブルー(MB)分解の反応速度定数(k)の最大値である 115×10⁻³ min⁻¹、および導電率の最大値 2.2×10⁻⁸ S cm⁻¹を超える材料を、家庭ごみ焼却スラグを原料に開発する

- 達成できた点

スラグを原料とした Na 電池正極材の開発において、スラグ中への析出が確認された酸化鉄ナノ粒子のモデル化合物であるゲーサイトナノ粒子(α-FeOOH NPs)中の鉄をランタノイド元素のランタン(La)、ガドリニウム(Gd)、ルテチウム(Lu)で正極および負極とした Na 電池を作成し、特性評価を行った。その結果、10mol%の Fe を Lu で置換したサンプルの 300 °C, 30 分熱処理試料が、5 mA g⁻¹の電流密度において、正極として用いた場合 217 mAh g⁻¹、負極の場合 500 mAh g⁻¹の高い放電容量が得られた。この値は既に他の研究者によって報告されている酸化物系層状化合物の Na 電池の容量よりも高いことが分かった。高い性能を有する Na 電池の開発に対し、少量の異元素を鉄に対して置換することで、α-FeOOH NPs は高い Na 電池正極特性を示すことが分かった。

- 達成できなかった点

高い光触媒効果を持つ試料を家庭ごみ焼却スラグから開発するテーマの一環として、家庭ごみ焼却スラグから、遷移金属元素などの微量成分を除いた、家庭ごみ焼却スラグのモデル化合物について、当初目的の①に該当する、塩基度を変化させた試料、5Na₂O·xCaO·11Al₂O₃·(62-x)SiO₂·22Fe₂O₃ (x=31, 35, 37, 41 wt%)を作製し、その構造と

光触媒特性との相関を調査した。その結果、 $x = 35$ (塩基度:1.3) の $800\text{ }^{\circ}\text{C}$, 100 min の熱処理試料が、今回評価した試料中で最大のメチレンブルー分解の反応速度定数(k)の値、 $86 \times 10^{-3}\text{ min}^{-1}$ を示すことが明らかになった。本プロジェクトで目標としている k 値は $115 \times 10^{-3}\text{ min}^{-1}$ であるため、今回得られた最大の k 値はそ目標値をわずかに下回った。次年度はこの試料に対して、硝酸処理の条件を最適化することで k 値の増大をも目論む。

(※研究の全体の目的・意義に照らし、当該年度の研究で、どのように進捗・達成されたかも含め記載すること。)

【学会発表 (発表題目, 発表大会名, 年月を記入)】

<国際学会>

- A. Doumae, A. Ibrahim, Z. Homonnay, E. Kuzmann, S. Krehula, M. Marcus, L. Pavic, A. Bafti, A. Šantic, S. Kubuki, "The relationship between Structure and Photocatalytic Effect of Lanthanide-Substituted Goethite Nanoparticles", Mössbauer spectroscopy of Materials Sciences (MSMS2024), Kurdejev, Czech Republic (May 27-31st, 2024).
- T. Komagata, A. Ibrahim, Z. Klencar, M. Gracheva, Z. Homonnay, E. Kuzmann, S. Krehula, M. Marcus, L. Pavic, M. Razum, A. Šantic, S. Kubuki, "Development of Tin Oxide Particles Distributed Phosphovanadate Glass as a Cathode for Secondary Battery with High Performances", Mössbauer spectroscopy of Materials Sciences (MSMS2024), Kurdejev, Czech Republic (May 27-31st, 2024).
- S. Stichleutner, B. Herczeg, L. Machala, Z. Homonnay, J. Pechousek, R. Vondrasek, L. Kouril, D. Smrcka, M. Kudor, V. A. Skuratov, L. Krupa, S. Kubuki and E. Kuzmann, "Mossbauer and XRD Observation of the Effect of Swift Heavy Ion Irradiation in Nano-maghemite", Mössbauer spectroscopy of Materials Sciences (MSMS2024), Kurdejev, Czech Republic (May 27-31st, 2024).
- S. Krehula, N. Popov, L. K. Krehula, S. Miljanic, M. Perovic, M. Boskovic, A. Ibrahim, S. Kubuki, E. Kuzmann, Z. Homonnay, "Investigations of Doped Iron Oxide Nanoparticles by Mossbauer Spectroscopy and Other Techniques", Mössbauer spectroscopy of Materials Sciences (MSMS2024), Kurdejev, Czech Republic (May 27-31st, 2024).
- S. Krehula, N. Popov, S. Kubuki, A. Ibrahim, E. Kuzmann, Z. Homonnay, L. K. Krehula, M. Perovic, M. Boskovic, K. Zadro, S. Miljanic, M. Ristic, S. Music, "Doped iron oxide nanoparticles: Synthesis, properties and applications", International Symposium on the Industrial Applications on the Mössbauer Effect (ISIAME2024), Kita-Kyushu, Fukuoka, Japan (Sep.1-5, 2024).
- A. Ibrahim, A. S. Ali, I. Khan, B. Zhang, Z. Homonnay, E. Kuzmann, S. Krehula, M. Marcus, L. Pavic, A. Šantic, S. Kubuki, " ^{57}Fe -Mössbauer study of highly covalent Fe-O bond found in iron oxide nanoparticles of photocatalyst prepared from domestic waste molten slag", International Symposium on the Industrial Applications on the Mössbauer Effect (ISIAME2024), Kita-kyushu, Fukuoka, Japan (Sep.1-5, 2024).
- K. Nomura, M. Takahashi, Y. Kobayashi, T. Naka, Y. Yoshimura, Y. Koike, S. Kubuki, Jun Okabayashi, C. Barrero, " ^{57}Fe Mössbauer spectrometric study of functional oxides doped with dilute ^{57}Fe ", International Symposium on the Industrial Applications on the Mossbauer Effect (ISIAME2024), Kita-kyushu, Fukuoka, Japan (Sep.1-5, 2024).
- S. Kubuki, The Mössbauer study of Ni- or Sn-goethite nanoparticles as a highly effective photocatalyst and a cathode active material for secondary batteries, KFKI seminar, Budapest, Hungary (Apr. 4, 2024).

<国内学会>

- S. Krehula, N. Popov, S. Kubuki, A. Ibrahim, E. Kuzmann, Z. Homonnay, L. K. Krehula, M. Perovic, M. Boskovic, K. Zadro, S. Miljanic, M. Ristic, S. Music, "Doped iron oxide nanoparticles: Synthesis, properties and applications", メスバウアー分光研究会講演会, 八王子市, 東京 (Aug. 30, 2024).
- A. Ibrahim, S. Kubuki, "The Improvement of the Energy Storage Ability of Vanadate Glass and Ceramics as a Cathode for Na-ion Battery", メスバウアー分光研究会講演会, 八王子市, 東京 (Aug. 30, 2024).

【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）】

- A. Ibrahim, K. Tani, K. Hashi, B. Zhang, Z. Homonnay, E. Kuzmann, A. Bafti, L. Pavic, S. Krehula, M. Marcius, S. Kubuki, Debye Temperature Evaluation for Secondary Battery Cathode of α - $\text{Sn}_x\text{Fe}_{1-x}\text{OOH}$ Nanoparticles Derived from the ^{57}Fe - and ^{119}Sn -Mössbauer Spectra, International journal of molecular sciences 25 (5) 2488 (Apr. 2024), <https://doi.org/10.3390/ijms25052488>.
- S. Stichleutner, B. Herczeg, J. Pechoušek, L. Machala, Z. Homonnay, D. Smrcka, L. Kouril, R. Vondrášek, M. Kudor, V. A. Skuratov, L. Krupa, S. Kubuki, E. Kuzmann, Change in Superparamagnetic State Induced by Swift Heavy Ion Irradiation in Nano-Maghemite, Metals 14 (4), 421 (Apr. 2024), <https://doi.org/10.3390/met14040421>
- M. Hayashi, S. Takatsuji, S. Kubuki, T. Watanabe, R. Endo, M. Susa, Effect of Coordination Structure of Iron Ions on Iron Oxide Activity Coefficients in the $\text{CaO-SiO}_2\text{-FeO-Fe}_2\text{O}_3$ Slags at 1573 K Under Oxygen Partial Pressures Between 10^{-9} and 10^{-4} atm, steel research international, 2400068 (May. 2024), <https://doi.org/10.1002/srin.202400068>.
- A. Ibrahim, K. Akiyama, I. Khan, B. Zhang, A. S. Ali, K. Sinkó, J. Rohonczy, Z. Homonnay, E. Kuzmann, M. Razum, L. Pavić, S. Krehula, M. Marcius, S. Kubuki, Novel sol-gel route for expanding the glass forming region of tin phosphate glass for secondary battery electrode applications, Journal of alloys and compounds, 997 174930 (Aug. 2024), <https://doi.org/10.1016/j.jallcom.2024.174930>.
- H. M. H. Zakaly, S. A. M. Issa, A. S. Ali, N. Almousa, R. Elsaman, S. Kubuki, M. M. Atta, Exploring the potential of bismuth-containing silicate borate glasses for optoelectronic devices and radiation protection, Optical Materials, 156 115956 (Oct. 2024), <https://doi.org/10.1016/j.optmat.2024.115956>.
- H. Rahman, B. Zhang, S. Kubuki, S. Nakashima, Catalytic activity of Nb-doped α - Fe_2O_3 —Heterojunction structure, ferrimagnet-like character, and high activity, Inorganic Chemistry Communications, 169, 113077 (Nov. 2024), <https://doi.org/10.1016/j.inoche.2024.113077>.
- I. Khan, A. Ibrahim, S. Satake, K. A. Béres, M. Mohai, Z. Czigány, K. Sinkó, Z. Homonnay, E. Kuzmann, S. Krehula, M. Marcius, L. Pavić, A. Šantić, S. Kubuki, ^{57}Fe -Mössbauer, XAFS and XPS studies of photo-Fenton active $x\text{MO}\cdot 40\text{Fe}_2\text{O}_3\cdot(60-x)\text{SiO}_2$ (M: Ni, Cu, Zn) nano-composite prepared by sol-gel method, Ceramics International, 50 (24 Part C), 55177-55189 (Dec. 2024), <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2024.10.367>.

- K. A. Béres, L. Kótai, E. Kuzmann, L. Machala, P. Novák, M. Pápai, S. Kubuki, Z. Homonnay, Unusual relaxation phenomena in the ^{57}Fe Mössbauer spectra of FeX_3 ($\text{X} = \text{Cl}, \text{NO}_3, \text{ClO}_4, \text{MnO}_4, 1/2 (\text{S}_2\text{O}_8)$) complex salts containing urea, methylated urea, chlorido or aquo ligands: studies on the influence of the ligand sphere and deuteration, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 334 (1), 873-889 (Jan. 2025), <https://doi.org/10.1007/s10967-024-09832-9>.
- M. G. Moustafa, A. K. Aladim, S. Heikal, S. Kubuki, A. Ibrahim, Glass cathode crystallization with optimized cyclability towards energy storage technology, *Journal of Alloys and Compounds*, 1022, 179986 (Jan. 2025), <https://doi.org/10.1016/j.jallcom.2025.179986>.
- B. Zhang, M. Zhao, K. Cheng, J. Wu, S. Kubuki, L. Zhang, Y. C. Yong, Piezoelectric effect coupled advanced oxidation processes for environmental catalysis application, *Coordination Chemistry Reviews*, 523, 216234 (Jan. 2025), <https://doi.org/10.1016/j.ccr.2024.216234>.
- N. Popov, S. Marijan, L. Pavić, S. Miljanić, K. Zadro, L. K. Krehula, Z. Homonnay, E. Kuzmann, S. Kubuki, A. Ibrahim, S. Krehula, Influence of Al^{3+} ions on the direct hydrothermal formation and properties of hematite ($\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$) nanorods, *Journal of Alloys and Compounds*, 1018, 179223 (Feb. 2025), <https://doi.org/10.1016/j.jallcom.2025.179223>.
- A. Ibrahim, M. Razum, L. Pavić, Z. Homonnay, E. Kuzmann, A. Santić, M. Y. Hassaan, K. Akiyama, S. Kubuki, Enhancing cyclability of $\text{Fe}_2\text{O}_3\text{-V}_2\text{O}_5\text{-P}_2\text{O}_5$ ceramic cathode for high-performance sodium-ion batteries through heat treatment, *Materials chemistry and physics* 332, 130231 (Feb. 2025), <https://doi.org/10.1016/j.matchemphys.2024.130231>.
- L. Zhang, K. Cheng, Z. Yang, Y. Zhang, S. Kubuki, P. A. Bingham, Y. C. Yong, B. Zhang, X. Duan, Deciphering the Origin of Higher Shell Coordination on Single Iron Catalysts for Resilient Modulating Persulfate Oxidation Into Singlet Oxygen Pathway, *Advanced Functional Materials*, 35(12), 2417441 (Feb. 2025), <https://doi.org/10.1002/adfm.202417441>.
- M. G. Moustafa, A. K. Aladim, H. Y. Amin, S. Kubuki, A. Ibrahim, Effective attainment of a substantial proportion of the PbTiO_3 crystalline phase through a non-isothermal crystallization process, *Journal of Non-Crystalline Solids* 648, 123323 (Feb. 2025), <https://doi.org/10.1016/j.jnoncrysol.2024.123323>.
- M. G. Moustafa, A. K. Aladim, S. Kubuki, A. Ibrahim, Exploring the photocatalytic performance of borosilicate glass nanocomposites modified with MnO_2 for environmental safety, *Ceramics International*, in press (Feb. 2025), <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2025.02.185>.
- B. Zhang, J. Rui, Y. Zhang, L. Yang, S. Kubuki, Y. C. Yong, L. Zhang, Geometric and Electronic Perspectives on Dual-Atom Catalysts for Advanced Oxidation Processes, *Inorganic Chemistry Frontiers*, in press (Mar. 2025) <https://doi.org/10.1039/D5QI00478K>.

【国際学術会議開催実績報告】(*複数開催した場合は、そのすべてについてそれぞれ記載すること)

- 名称：東京都立大学 理学部化学科 化学コロキウム (メスバウアー分光研究会 講演会 共催)
- 日時： 2024年 8月 30日 (金) 15:00 ~ 17:00

- ・場所： 東京都立大学 南大沢キャンパス 11号館 201室
- ・参加人数：合計 15人（内海外研究者 3人）

【海外研究者の招聘実績】

- ・Homonnay Zoltan 教授(エトボシュ ローランド大学, ハンガリー)
- ・Stjepko Krehula 博士(ルジェルボスコヴィッチ研究所, クロアチア)

【外部資金への応募状況】

- ・久富木志郎(日本側代表), “Sustainable Waste-Derived Water Treatment Solutions”, 令和 6(2024)年度 JSPS International Joint Research Programme, 総額 28,150 千円 (2024-2027) (不採択).
- ・久富木志郎(日本側代表), 「環境浄化効果を有する鉄系ナノ触媒の開発とメスバウアー分光法による構造解析」, 令和 7 年度, 日本学術振興会 二国間交流事業(中国-日本), 総額 3,600 千円 (2024-2027) (不採択).
- ・久富木志郎(代表), 「指定廃棄物からの RI 除去法および RI 除去後の廃棄物を原料とするガラス固化体と環境浄化光触媒の開発」, 令和 7 年度環境研究総合推進費, 総額 38,792 千円(2025-2027) (不採択).
- ・久富木志郎(代表), 「特異な鉄電子状態をカギとするナノ材料開発」, 東京都立大 傾斜的研究費 (全学分)学長裁量枠 国際研究環支援, 総額 4,500 千円(2024-2025) (採択).

【科学研究費助成事業や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), 「精密に価数制御したバナジン酸塩ガラスを正極に用いた Na イオン電池の高性能化」, 文科省科研費 基盤研究 B, 総額 18,293 千円(2023-2025) (実施中).
- ・久富木志郎(代表), 「家庭ゴミ焼却スラグを原料とした環境浄化光触媒の開発-高酸化数鉄イオン安定化への挑戦-」, 文科省科研費 挑戦的研究 (萌芽), 総額 4,999 千円(2025-2027) (不採択).
- ・久富木志郎(代表), 「製鋼スラグのリサイクル法の開発」, 企業受託研究費(大阪ソーダ), 総額 2,000 千円 (2025)

【受賞等】

- ・なし

【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産業財産権の出願・取得状況】

(産業財産権の種類, 名称, 出願番号, 出願年月日)

- ・なし

【研究分担額】

(研究代表者・分担者名, 所属, 金額 (円))

・なし