

補助事業番号 2023M-418

補助事業名 2023年度 メカノケミカル反応による環境低負荷な材料開発に関する補助事業

補助事業者名 広島大学 齋藤健一

1 研究の概要

本事業では、メカノケミカル反応を用い、世界中で必要とされる物質をグリーンな製法で化学合成する。具体的には、①CO₂を発生せず、水・海水から超高効率の水素製造、②アルコールと金属から、常温かつハロゲンフリーで、金属アルコキシドと水素を製造、③もみ殻から廃棄されるシリカ（ガラス）を原料に次世代LED（シリコン量子ドットLED）の開発、である。これらの研究・開発は、申請者らの研究グループによるオリジナルな手法である。

2 研究の目的と背景

持続可能な17の開発目標(SDGs)の達成が、世界中で真摯に取り組まれている。本事業では、このうちの3つ、目標7(エネルギーをクリーンに)、目標13(気候変動に具体的対策を)、目標15(陸の豊かさを守ろう)、に係る研究を行う。具体的にはメカノケミカル反応を用い、①水・海水を原料とした常温での超高効率水素製造、②低温かつハロゲンフリーでの金属アルコキシドの合成、③もみ殻から次世代LEDの製造ならびに高効率シリコン量子ドットLEDの開発を行う。そして「環境・エネルギー・資源」を重視した研究開発より、本国ならびに未来の地球—宇宙船地球号の保全—への寄与が目的である。

3 研究内容

メカノケミカル反応による環境低負荷な材料開発

(https://home.hiroshima-u.ac.jp/saitow/JKA_report/jka_report_2025.pdf)

① 水素製造に関する研究

メカノケミカル反応による環境低負荷な材料開発として、水素製造の研究を行った。金属や金属酸化物を水と一緒に遊星型ボールミルで湿式粉碎し、常温での高効率水素生成を見出した。具体的には、チタンならびにチタン酸化物と水とのメカノケミカル反応により、高効率な水素生成が確認された。これらの成果は、英国王立化学会の学術誌において、論文として出版された。特許としても出願している。

② 金属アルコキシド製造に関する研究

金属アルコキシドは、車のコーティング、光触媒コーティング、誘電体膜などの膜形成に不可欠な物質である。しかし、金属アルコキシドの自体の合成が困難であり、その簡便な合成法が模索されている。例えば、需要も多いシリコンのアルコキシド（アルコキシラン）の工業的な合成法は、温度300℃、ハロゲンやフッ化水素が使われ、副生成物に塩酸が生成するなど、環境高負荷な条件が懸念材料となっている。

我々は、メカノケミカル法による金属アルコキシドの実験において、特にシリコンの研

究で特筆する成果を得られた。具体的には、固体シリコンをアルコール中で粉砕するだけで、合計9種類にも及ぶアルコキシシランの生成を見出した。この手法は、ハロゲンフリー、非加熱、フッ酸未使用となる環境低負荷な手法である。これらの成果は、国際会議 ISOS20(The 20th International Symposium on Silicon Chemistry)にて発表し二つの賞を受賞した。また特許としても出願した。

③ シリコン量子ドットに関する研究

もみ殻を原料にしたシリコン量子ドットを製造した。具体的には、もみ殻から抽出したシリカをボールミルで微小化し、還元反応でシリコン粉末にした。これを化学処理により更にサイズを微小化し、赤色発光とオレンジ色発光するシリコン量子ドットの合成に成功した。更に、このシリコン量子ドットをLEDにも搭載した。従って、もみ殻由来のシリカを原料にしたLEDの製造に成功した。とりわけ合成の工程を一つ加えることにより、シリコン量子ドットの収率・収量が、先行研究の7倍となったことは特筆に値する。

また、化学合成によるシリコン量子ドットならびにシリコン量子ドットLEDの研究においても、大きな進展があった。具体的には、発光効率、発光輝度、LED耐久性、低電圧発光と4つの分野で、世界記録となるシリコン量子ドットLEDの開発に成功した。これらの成果は、論文として出版され、また特許としても出願された。その他、緑色発光のシリコン量子ドット合成も開発し、この成果はアメリカ化学の材料化学で権威のある学術誌に論文が掲載された。その後、発光効率が世界トップとなり、特許としても出願準備中である。その他、日本化学会からシリコン量子ドットの総説の執筆依頼をうけ、その総説はオックスフォード大学出版会発行の学術誌で出版された。その他日本語の専門書でも総説が複数出版された。その他、米国の大学の共同研究を開始した。

4 本研究が実社会にどう活かされるか—展望

本研究では、上記2に記したように、「環境・エネルギー・資源」を重視した研究開発より、本国ならびに未来の地球—宇宙船地球号の保全—への寄与が目的である。従って、実社会にどう活かされるか、それは大変重要なことと考える。具体的には、メカノケミカル法による水素製造は実用化を鑑み複数の企業と共同研究について検討中である。金属アルコキシドの研究は、常温・ハロゲンフリー・フッ酸フリーでの製法として、革新的な環境低負荷な手法ともいえる。シリコン量子ドットならびにそのLEDについても、重金属フリーの照明や発光体として利用でき、またその原料には廃材となった太陽光パネルも活用できる。以上、すべてにおいて社会実装を踏まえ、検討もしくは準備中である。これらが社会実装されるよう、引き続き邁進したい。

5 教歴・研究歴の流れにおける今回研究の位置づけ

我々は15年程前からメカノケミカル法を用いた物質科学の研究を行っている。シリコン量子ドット

の研究は21年前から行っている。それらの研究の流れにおいて、この度の三つの研究、①水素製造、②金属アルコキシドの製造、③シリコン量子ドットならびにLEDの研究を、現在展開している。今後も、これらの研究を発展させ、「環境・エネルギー・資源」を重視した研究開発より、本国ならびに未来の地球—宇宙船地球号の保全—に寄与する研究を行いたい。

6 本研究にかかわる知財・発表論文等

特許出願

- 1) 特願2023-185777, トリアルコキシシランの製造方法, 齋藤 健一, 七里明音
- 2) 特願2023-087655, 水素の製造方法, 齋藤 健一, 水谷 友哉
- 3) 特願2023-187463, 水素の製造方法, 齋藤 健一, 芦田翔
- 4) 特願2025-055347, アルコキシシランおよび水素の製造方法, 齋藤 健一, 七里明音
- 5) 特願2025-36455, シリコン量子ドットを用いたLED装置、シリコン量子ドット、シリコン量子ドット前駆体、シリコン量子ドット分散液、及びシリコン量子ドットを用いたLED装置の製造方法, 齋藤 健一, 王理

論文発表

- 1) Record-Breaking Far-Red Silicon Quantum Dots LEDs Enabled by Solvent Engineering: Toward Superseding Perovskite Quantum Dots, L. Wang, Y. Wada, H. Ueda, T. Hirota, K. Sumida, Y. Oba, K. Saitow, *Small Science*, **5**, 2400647 (2025).
- 2) 世界初、水素の高効率製造法！高温・巨大施設での製法が、室温・実験室でも可能に、齋藤健一, *Ceramics Japan*, 印刷中 (2025).
- 3) 高効率発光するシリコン量子ドットの開発 —合成・光物性・塗布型LED— 齋藤健一, *量子ドット技術の最前線*, エヌティーエス (2025).
- 4) Room-temperature thermochemical water splitting: efficient mechanocatalytic hydrogen production, T. Yamamoto, S. Ashida, N. Inubuse, S. Shimizu, Y. Miura, T. Mizutani, K. Saitow, *J. Mater. Chem. A*, **12**, 30906–30918 (2024).
- 5) Ligand Stabilities and Reactivities of Green Photoluminescent Silicon Quantum Dots: Positive Aging in Solution, N. Jingu, K. Sumida, T. Hayakawa, T. Ono, K. Saitow, *Chem. Mater* **36**, **10**, 5077–5091 (2024).
- 6) 高発光シリコン量子ドット蛍光体 —合成法の開発と塗布型LEDの開発— 齋藤健一, *次世代蛍光体材料の開発*, シーエムシー出版 pp 37-50. (2024).
- 7) もみ殻を原料にした量子ドットLED, 齋藤健一, *アグリバイオ*, **8**, 421–423 (2024).
- 8) シリコン量子ドット前駆体, シリコン量子ドット, シリコン量子ドットLEDの製造 齋藤健一, *クリーンテクノロジー*, **34**, 66–73 (2024).
- 9) 1D, 2D, and 3D Mapping of Plasmon and Mie Resonances: A Review of Field Enhancement Imaging Based on Electron or Photon Spectromicroscopy, K. Saitow, *J. Phys. Chem. C*, **128**,

5367–5393 (2024).

- 10) シリコン量子ドットの合成とLEDへの利用, 齋藤健一, 粉体技術, **165**, 25–32 (2024).
- 11) Bright Silicon Quantum Dot Synthesis and LED Design: Insights into Size–Ligand–Property Relationships from Slow- and Fast-band Engineering, K. Saitow, *Bull. Chem. Soc. Jpn*, **97**, uoad002 (2024)., Inside Coverに掲載
- 12) Cost-Effective Ultra-Bright Silicon Quantum Dots and Highly Efficient LEDs from Low-Carbon Hydrogen Silsesquioxane Polymer, H. Ueda, K. Saitow, *ACS Appl. Mater. Interfaces*, **16**, 985–997 (2024).
- 13) Mechanochemically Tailored Silicon Particles for Efficient H₂ Production: Entropy and Enthalpy Engineering, T. Mizutani, H. Ohta, T. Ueda, T. Kashiwagi, T. Fukuda, T. Shiobara, K. Saitow, *ACS Sustainable Chem. Eng.* **11**, 11769–11780 (2023).
- 14) Large-Area Plasmon Mapping via an Optical Technique: Silver Nanohole Array and Nano-Sawtooth Structures, M. Sakamoto, K. Saitow, *J. Phys. Chem. C*, **127**, 13105–13111 (2023), Cover Pictureに掲載

7 補助事業に係る成果物

- (1) 補助事業により作成したもの: 特になし
- (2) (1)以外で当事業において作成したもの: 特になし

8 事業内容についての問い合わせ先

所属機関名: 広島大学自然科学研究支援開発センター(ヒロシマダイガク シゼンカガクケンキュウシエンカイハツセンター)

住 所: 〒739-8526

広島県東広島市鏡山1-3-1

担 当 者: 教授 齋藤健一 (サイトウケンイチ)

担 当 部 署: 研究開発部門 物質科学部(ケンキュウカイハツブモン ブッシツカガクブ)

E - m a i l: saitow@hiroshima-u.ac.jp

U R L: <https://home.hiroshima-u.ac.jp/saitow/>