

令和 4 年 6 月 21 日現在

機関番号：14301

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2019～2021

課題番号：19K05329

研究課題名（和文）荷電粒子場における芳香族有機化合物の発光メカニズムの解明

研究課題名（英文）Dynamics of aromatic organic compounds induced by depositing charged particle

研究代表者

中村 秀仁（Hidehito, Nakamuara）

京都大学・複合原子力科学研究所・助教

研究者番号：60443074

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,400,000円

研究成果の概要（和文）：蛍光剤を添加すること無く荷電粒子で発光する芳香族有機化合物は世界的な話題となり、その発光メカニズムの解明が待ち望まれてきた。そのような中、本研究は、芳香族有機化合物に荷電粒子を印加しながら分子振動を観測することで、発光をもたらす新たなダイナミクスを見出すことに挑んだ。本研究の成果は、外部エネルギー供給場のプロタイプを各種分光器内に増設するという独自のアプローチで、荷電粒子に対する芳香環有機化合物の発光メカニズムの解明に迫ったことにある。

研究成果の学術的意義や社会的意義

昨今の緊迫したウクライナ情勢を巡り、原子力発電所の占拠および核テロへの懸念を踏まえると、原子力や放射線を取り扱う施設での徹底した安全管理が、今後ますます重要になると考えられる。本研究による成果は、それらの安全管理に貢献することは言うまでもなく、医療機関での安全管理や産業廃棄物に混在する放射性物質の検査などに必要とされる各種分析装置の基盤素材を高度化する技術として広範囲で活用されることが期待される。

研究成果の概要（英文）：There has been great interest in the use of aromatic organic compounds in electronic devices. A key element of their luminescence is to control the electronically excited states. The common approach is to change molecular structures by synthesis of several compounds. However, it is difficult to optimize luminescence attributes. Here, we have focused on electronically excited states that are subject to external energies.

研究分野：原子力

キーワード：プラスチック 光 放射線

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

本申請の礎は、測定対象となる光を受光対象が検知可能な波長へ変換する有機化合物にある。この種の光変換デバイスは、その柔軟な加工性と優れた可塑性により光伝搬用ファイバーから作物栽培用フィルムに及ぶ幅広い応用を実現している。放射線や原子力分野での利用に関して言えば、数種類の蛍光剤を添加した芳香族有機化合物がシンチレーション物質として開花し、安全管理に必要不可欠な検出素子の一つになった。しかし、その波長変換のために課せられた『芳香族有機化合物の蛍光波長と重なる吸収波長をもつ蛍光剤の添加』という制約は、使用できる蛍光剤の種類を事実上限定した上、製造過程の複雑化をもたらし、結果として性能の改良に限界を生じさせ、半世紀以上に亘り新素材の創製を遠ざけてきた。

この長年の課題に対し、申請者は、蛍光剤を添加せずとも芳香族有機化合物を高純度化することで、荷電粒子検出に適した光学特性を付与できることを明らかにし、従来に無い検出素子の設計開発を可能にした(参考文献[1,2])。そのインパクトは、実用化重視の開発競争を激化させた一方、ゲームチェンジングな光変換デバイス創生のため、基礎研究の重要性を改めて問うに至った(参考文献[3])。本研究の学術的問いは、荷電粒子を照射した際に蛍光剤無添加の芳香族有機化合物はどのような分子状態にあるのか、という同化合物をシンチレーション物質として最大限発揮するための根源となるものである。

<参考文献>

- [1] [†]H.Nakamura, H.Kitamura and R. Hazama, "Radiation measurements with heat-proof polyethylene terephthalate bottles", *Proceedings of the Royal Society A* 466. 2847-2856 (2010). <https://dx.doi.org/10.1098/rspa.2010.0118>
- [2] [†]H.Nakamura, Y.Shirakawa, S.Takahashi and H.Shimizu, "Evidence of deep-blue photon emission at high efficiency by common plastic", *EPL (Europhysics Letters)* 95. 22001 (2011). <http://dx.doi.org/10.1209/0295-5075/95/22001>
- [3] G.H.V.Bertrand, M.Hamel and F.Sguerra, "Current Status on Plastic Scintillators Modifications", *Chemistry-A European Journal*, 20: 48, 15660 (2014). <http://dx.doi.org/10.1002/chem.201404093>

2. 研究の目的

蛍光剤を添加すること無く荷電粒子で発光する芳香族有機化合物は世界的な話題となり、その発光メカニズムの解明が待ち望まれてきた。そのような中、本研究の目的は、芳香族有機化合物に外部エネルギーとして荷電粒子を印加しながら、発光をもたらす新たなダイナミクスを見出すことにあった。

3. 研究の方法

本研究では、研究期間を3年に設定し、マイルストーンとして令和元年度に課題A(外部エネルギー供給場のデザイン開発)および課題B(試料作製の工程確立)、令和2年度に課題C(エネルギー場における分子構造の検証)および課題D(多方面から仮説の再検証)、令和3年度に課題E(発光メカニズムの解明)の計5課題を課し、順次実施した。

4. 研究成果

本研究の成果は、外部エネルギー供給場のプロトタイプを各種分光器内に増設するという独自のアプローチで、荷電粒子に対する芳香環有機化合物の蛍光メカニズムの解明に迫ったことにある。さらに、その研究過程で、ポリエチレンナフタレート(PEN)の荷電粒子に対するユニークな特性を抑えることにも成功した。それらの一部は、次に挙げるように、筆頭・責任著者として SCOPAS 掲載査読付原著論文に上梓した(原著論文[1,2])。

今後、本成果は、原子力や放射線を取り扱う施設や医療機関での放射線安全管理をはじめ、産業廃棄物に混在する放射性物質の検査に必要とされる各種分析装置の基盤素材を高度化する技術として利用されることが期待される。

ここで、本成果の一部を紹介する。射出成型したポリエチレンナフタレート(密度 1.33g/cm³)から、表面凹凸の異なる 1 mm厚の板を複数試作した。その一例を、図 1 に示す。各表面状態に対してスペクトル分析を実施し、表面凹凸と検出される蛍光量の関係をモデル化したことで、アルファ線に起因した蛍光を効率よく抽出できる表面状態の決定に成功した(詳細は、原著論文[1]を参照)。

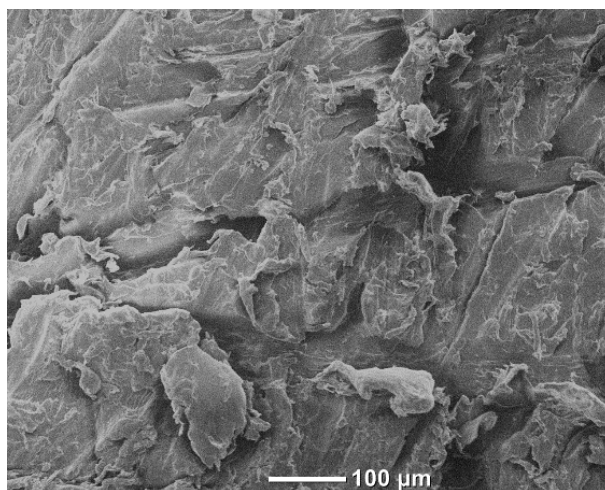
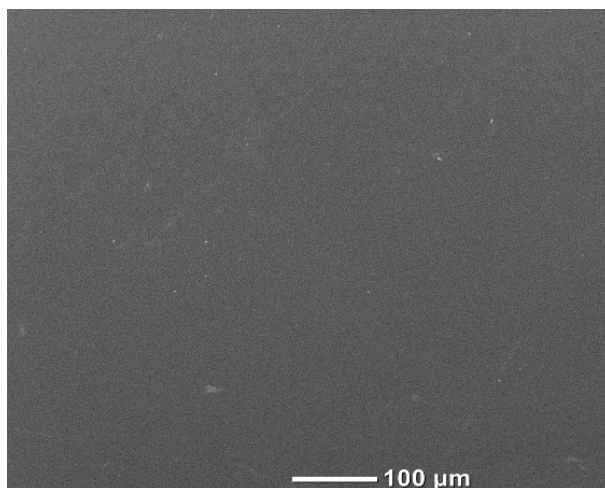
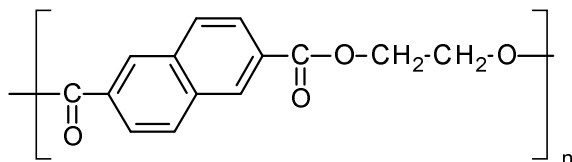


図 1 : PEN の構造式 (上) 鏡面 (中)・粗面 (下) 加工を施した PEN の SEM 画像

< 原著論文 >

- [1] [†]H.Nakamura, K.Mori, N.Sato, T.Kamata, and M.Kanayama,
“Enhanced extraction via surface asperities of light generated around the boundary plane in poly (ethylene naphthalate)”
Physica Scripta, 95, 095303 (2020)
<https://doi.org/10.1088/1402-4896/abae1d>
- [2] [†]H.Nakamura, K.Mori, and Y.Shirakawa,
“Fluorescence pulses derived from thin poly (ethylene terephthalate) in response to charged particles”,
Physica Scripta, 96, 125307 (2021)
<https://doi.org/10.1088/1402-4896/ac237f>

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Nakamura Hidehito, Mori Kazuhiro, Shirakawa Yoshiyuki	4. 巻 96
2. 論文標題 Fluorescence pulses derived from thin poly (ethylene terephthalate) in response to charged particles	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physica Scripta	6. 最初と最後の頁 125307 ~ 125307
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1402-4896/ac237f	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 Nakamura Hidehito, Mori Kazuhiro, Sato Nobuhiro, Kamata Takashi, Kanayama Masaya	4. 巻 95
2. 論文標題 Enhanced extraction via surface asperities of light generated around the boundary plane in poly (ethylene naphthalate)	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physica Scripta	6. 最初と最後の頁 095303 ~ 095303
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1402-4896/abae1d	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0件

〔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
---------	---------