

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 4 年 9 月 7 日現在

機関番号：11301

研究種目：挑戦的研究（萌芽）

研究期間：2020～2021

課題番号：20K20994

研究課題名（和文）液晶性高分子と蛍光色素を用いた植物栽培用波長・偏光変換塗布膜の開発

研究課題名（英文）Development of wavelength/polarization-conversion coating films using liquid crystalline polymer and fluorescent dye for plant cultivation

研究代表者

藤掛 英夫（FUJIKAKE, HIDEO）

東北大学・工学研究科・教授

研究者番号：20643331

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 4,800,000円

研究成果の概要（和文）：農業の植物栽培用途で光合成を促進する波長・偏光の光を得るため、大面積化・低コスト化に有利な波長変換層・偏光変換層からなる液晶性高分子素子とその作製法を提案した。まず波長変換層を形成するため、光合成に不要な紫外線と緑色光を吸収して、赤色光を蛍光発光する2色性色素を見出した。この色素を分子配向性の液晶モノマーに添加して、光配向膜の上に塗布して紫外線で硬化することで、直線偏光成分の強い赤色蛍光を得た。この波長変換層の上に偏光変換層を形成するため、液晶モノマーを赤色光に対して1/4波長板になる厚みにして硬化した。このように一体化された積層素子では、植物栽培に有利な円偏光性の強い赤色光が得られた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

植物栽培の収量を増やして食料危機を回避するには、太陽光のエネルギーをフルに活用した栽培法が望まれる。太陽光の自然光には植物に有害な紫外線や、クロロフィル色素を含む葉緑体の光合成に寄与しない波長（緑）の光が含まれるため、光合成に適した波長（青、赤）への変換が望まれる。また、色素分子の立体異性構造の光化学反応に基づき、一方の回転の円偏光が光合成に活用される（マメ科であれば左旋の円偏光が有用）。本研究により、光合成に有利な波長・偏光が同時に得られる素子を創出できた。この素子は、ビニールハウスのフィルムや外光併用植物工場の窓ガラスに塗布して使用できるため、今後の応用展開が期待される。

研究成果の概要（英文）：We proposed a new liquid crystal polymer device consisting of wavelength conversion and polarization conversion layers, which is advantageous for large area fabrication and cost reduction, to convert sunlight into appropriate wavelength and circular polarization that promotes photosynthesis of plants. For forming the wavelength conversion layer, we found organic dichroic dye that absorbs ultraviolet and green light unnecessary for photosynthesis, and emits red fluorescence. The dichroic dye was added to molecularly-oriented liquid crystal monomer. The solution with dye was coated on photoalignment layer, and then cured for synthesizing rigid polymer by ultraviolet light, to obtain red fluorescence with linearly polarization. For forming the polarization conversion layer, other liquid crystal monomer layer without dye was coated and cured, and the polymer thickness was adjusted so as to be 1/4 wavelength plate. The laminated device emitted red light with circular polarization.

研究分野：画像電子工学

キーワード：液晶性高分子 蛍光色素 波長変換 偏光変換 塗布製法

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

今後の世界的な人口増加で懸念される食料問題を軽減するためには、太陽光エネルギーをフルに活用して、生産効率の高い農業システムを構築する必要がある。一般に植物では、光合成色素(クロロフィル)の分子構造に基づく光吸収特性に基づき、緑色光は使用されず、青色・赤色の波長域が光合成に寄与して、植物栽培に有用である⁽¹⁾。また色素分子は、立体異性構造に基づき、光合成の化学反応では一方の回転方向の円偏光が活用されることが報告されている⁽²⁾。立体異性を伴う化学結合の電子励起に、特定方向に回転する円偏光が必要なためであり、例えば豆科植物なら左旋偏光の照明光が成長に有利である。一般にビニールハウスや外光併用植物工場では、太陽からの日光をそのまま照明として使用しているが、光合成に無用な波長の光(植物に有害な紫外光と使用できない緑色光)を、光合成に有用な波長の円偏光に変換できれば、植物の成長を促進して収穫量を増やせる(図1)。これまでの研究報告では波長変換のみが注目され、偏光変換までを目指した研究例は見当たらない。

一般に高分子などの有機材料では、分子設計の自由度から、様々な光学・電気・化学・機械的な特性が得られる。さらに有機材料の分子配向を制御することで、新たな光機能を創出することが可能である。筆者らは、これまでディスプレイで培われてきた液晶材料の分子配向の自己組織化効果を活用すれば、発光と光学制御の機能を融合でき、植物栽培の収率を高めるための波長・偏光変換機能を実現できると考えた。本研究では、液晶・有機ELディスプレイなどの高度な有機材料技術を農業分野に活用して、独創的かつ実用的な材料・デバイスを創出するものである。

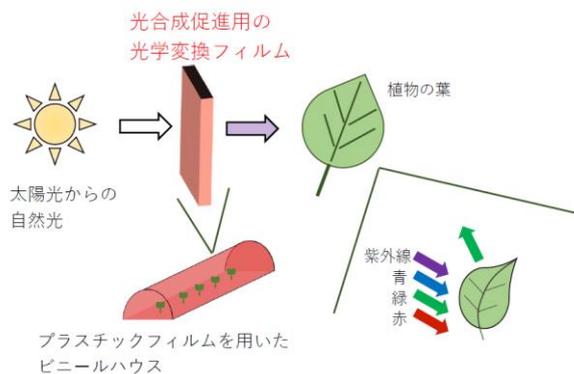


図1 植物の成長を促進する農業用光学機能フィルム

2. 研究の目的

植物成長を促進するため、自然光から光合成に有利な波長と偏光を同時に得る取り組みは、これまでに知られていない。また、発光・偏光制御の2つの機能を一括して行える素子は、これまでに提案されていない。そこで本研究では、日光の自然光照明に素子を挿入するという簡便な方法で、植物栽培に有用な波長・偏光が得られる光機能性高分子素子と作製方法を提案して構築することを目的とした(図2)。この場合の高分子素子は、ビニールハウス用プラスチックフィルムへの形成を念頭に、塗布工程で容易に大面積化できる必要がある。さらに、材料や工程が低コスト化に適したものであることが望まれる。

このような課題に対して筆者は、高分子の材料で、容易に分子配向を制御できる液晶性モノマーを活用することを考案した。これまでに、有機蛍光色素を液晶性高分子中に配向固定した光機能性素子に関する報告例はなく、また偏光制御機能も加えた素子のオリジナリティは高い。そこで、本研究では光合成に使用されていなかった特定の波長の光を、光合成に有用な波長の円偏光に変換できて、大面積化・低コスト化にも有利な塗布形成の素子を実現することを目指した。

本研究の素子は、実用の観点からも有効性が高く、実現されれば、農業分野へのインパクトは計り知れない。また、これまでにない斬新な光機能開拓の取り組みであるため、幅広い科学計測分野への応用も期待される。

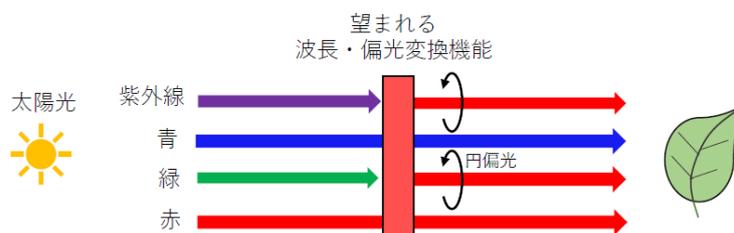


図2 光合成の促進に有用な波長・偏光変換機能

3. 研究の方法

本研究で提案する液晶性高分子素子の断面構造を図3に示す。本素子は、光合成に不要な入射光の波長成分を吸収して直線偏光の蛍光を発生する波長変換層と、直線偏光を一方の円偏光に変換する偏光変換層の積層構造からなる。波長変換層と偏光制御層の作製に、分子配向性の液晶モノマーを活用することが本素子の特徴である。

その作製方法は、以下の通りである。まず、硬くて細長い骨格で分子が配向しやすい液晶モノマーに、細長い分子構造の二色性有機蛍光色素を溶かして配向膜の上に塗布する。液晶性モノマーは配向方向が自己組織化するだけでなく、添加された細長い色素分子も配向させる能力がある。そのため、溶液は双方の分子が同じ方向に配向した状態となり、紫外線の照射により液晶性モノマーを高分子化させて固めれば、分子配向した蛍光色素を高分子膜の中に固定できる。ここでは、適切な色素構造を見出すことにより、日光中の紫外線・緑色光（無偏光）が蛍光分子で吸収されて、赤色波長で直線偏光の蛍光が得られる。

次に、この発光層の上に、蛍光色素を含まず液晶モノマーだけを、配向膜を用いて同様に塗布・硬化して、光位相差フィルムとなる偏光変換層を形成する。偏光変換層の配向方向は、波長変換層の配向方向から45°回転させて、直交偏光成分に対して屈折差（複屈折）を生み出す。この時、直交偏光間の複屈折が1/4波長板となるように偏光変換層の厚みを制御すれば、直線偏光を円偏光に変換できる。ここでは、ビニールハウス用シートへの適用を想定して、既存の高温焼成のラビングポリイミド配向膜は用いず、低温化を可能とする偏光紫外露光処理を伴う光配向膜を用いた。

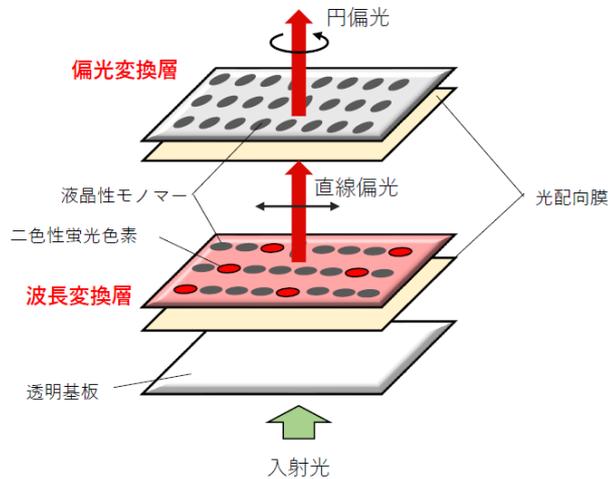


図3 波長変換層と偏光制御層の積層素子の基本構成

4. 研究成果

本研究の液晶性高分子素子は、波長変換層と偏光変換層の積層により構成される。最初に波長変換層の原理を確認するため、蛍光二色性色素を分子配向した液晶モノマー（DIC社 UCL-011-AC1）に溶かして高分子塗布膜を試作することに取り組んだ。使用した色素は、これまでに細長い分子の二色性色素として知られた有機蛍光色素（クマリン6、青色吸収）を、細長い分子の液晶性モノマーに溶かして、混合液を配向膜付きガラス基板で挟んで硬化した素子を試作した。この時、蛍光が強くなるように色素の濃度や厚みを調整した。その結果、蛍光色素の分子配向に基づき、入射光に対する光吸収の異方性と、蛍光発光の直線偏光性を観測できた。これにより、波長変換膜の基本原理を確認できた⁽³⁾。

次に、本研究の目的に沿った有機蛍光色素の特性を調査して、実験的に評価した。それにより、植物に有害な紫外線と、光合成に使用されない緑色光を吸収して、光合成に有用な青色光を発生する有機蛍光色素（EM-008、発光中心波長625nm）を見出した（図4）。その溶液（色素添加量0.3wt%）をスピコート法で配向膜付きガラス基板上に塗布して、主波長365nmの紫外線露光装置を用いて高分子化した^(4,5)。その際、基板には低温処理・大面積化に有利な光配向膜を設けて、色素添加モノマー溶液を基板に水平方向に分子配向させた。

スピコート回転数500rpm、膜厚17μmで試作した波長変換層を評価した結果、光合成に有用な赤色波長の蛍光が得られた。また、放出される蛍光は、高分子素子の分子配向方向の直線偏光成分が強く、市販のフィルム状の1/4波長板に挿入したところ、円偏光化も可能であることを確認した。なお、今回の波長変換層は蛍光発光の偏光異方性が劣るが、液晶モノマー溶液や高分子の配向性を向上させることにより、改善が可能と考えられる。

次に、このように得られた波長変換層の上に、偏光変換層を塗布法で直接形成して、波長変換膜で発光した直線偏光の蛍光を、光合成に有利な特定方向の円偏光膜に変換することに取り組んだ。ここでは、1/4波長板として機能する偏光変換層を形成するため、蛍光色素を含まない液晶モノマー

一を、スピコート法で光配向膜上に塗布して紫外線で硬化した。その際、塗布膜の厚みを減らすため、液晶モノマーをトルエンの有機溶媒で希釈するとともに（重量比 1:1）、スピコートの回転数により厚みを調整した（回転数 3650rpm で $2.9\mu\text{m}$ 厚）。また、液晶モノマーの光配向処理方向を波長変換膜の配向方向から 45° 回転させた。これにより、赤色光の波長に対して約 $1/4$ 波長板に相当する直交偏光の位相差（図 5）を確保できた。このように作製した一体構造の液晶性高分子素子から放出される赤色光を、回転方向が異なる円偏光フィルタを用いて測定したところ、一方の円偏光成分の強度が約 2 : 1 の割合で強いことを確認できた。円偏光の比が低いのは、波長変換層の蛍光色素（液晶性高分子）の配向性が低いためである。その改善には、波長変換層の材料や作製方法を検討する必要がある。

本研究により、太陽光の自然光から、光合成に有利な波長・偏光が得られる高分子素子を実現できた。今後、スピコートに替わり他の大面積塗布法を用いて素子を作製すれば、より実用的な技術になる。ビニールハウス栽培のプラスチックフィルムや外光併用植物工場の窓ガラスに塗布形成が可能のため、今後の農業分野への応用展開が期待できる。

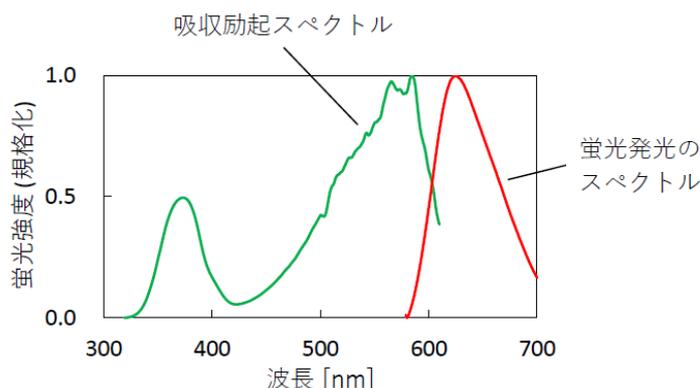


図 4 二色性色素の吸収・蛍光特性

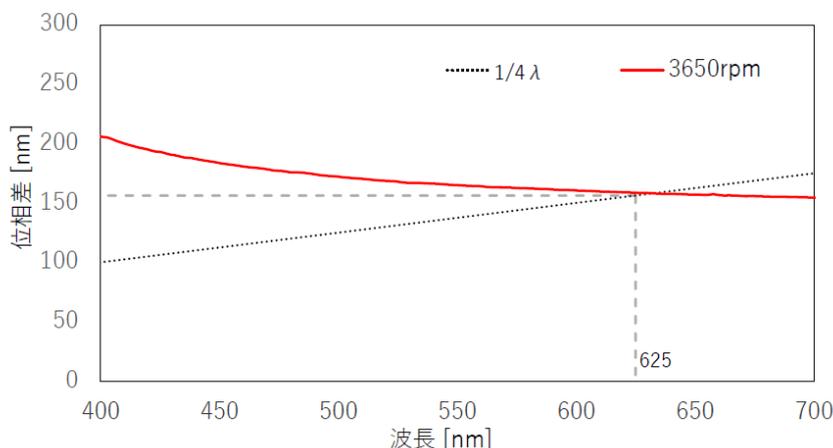


図 5 試作した偏光変換層の位相差特性

参考文献

- (1) Y. Goulas, Z. G. Cerovic, A. Cartelat and I. Moya, Dualex: A New Instrument for Field Measurements of Epidermal Ultraviolet Absorbance by Chlorophyll Fluorescence, Applied Optics, vol. 43, no. 23 pp. 4488-4496, 2009.
- (2) P. P. Shibayev and R. G. Pergolizzi, The Effect of Circularly Polarized Light on the Growth of Plants, International Journal of Botany, vol. 7, no. 1, pp.113-117, 2011.
- (3) R. Tsunaki, Y. Shibata, T. Ishinabe and H. Fujikake: "Photo-Luminescence Characteristics of Aligned Organic Fluorescent Dye in Liquid Crystalline Polymer Films for Photosynthesis Promotion, International Display Workshops, FMCp2-3L, 2020. (IDW Outstanding Poster Paper Award)
- (4) 綱木凌, 柴田陽生, 石鍋隆宏, 藤掛英夫, 光合成促進に向けた蛍光色素配向型液晶性高分子フィルムの波長・偏光特性, 映像情報メディア学会発光型/非発光型ディスプレイ合同研究会, vol.45, no. 2, pp.45-48, 2021. (電気学会電子・情報・システム部門技術委員会奨励賞)
- (5) Y. Shibata, R. Tsunaki, T. Ishinabe and H. Fujikake, Polarized Photoluminescence Characteristics of Uniaxially-Aligned Fluorescent Dye with Liquid Crystalline Polymer for Agricultural Applications, ITE Transactions on Media Technology and Applications, vol.9, no. 4, pp.203-209, 2021.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1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 Yosei Shibata, Ryo Tsunaki, Takahiro Ishinabe, Hideo Fujikake	4. 巻 9
2. 論文標題 Polarized Photoluminescence Characteristics of Uniaxially-Aligned Fluorescent Dye with Liquid Crystalline Polymer for Agricultural Applications	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 ITE Transactions on Media Technology and Applications	6. 最初と最後の頁 203-209
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.3169/mta.9.203	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2件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 1件）

1. 発表者名 Ryo Tsunaki, Yosei Shibata, Takahiro Ishinabe, Hideo Fujikake
2. 発表標題 Photo-Luminescence Characteristics of Aligned Organic Fluorescent Dye in Liquid Crystalline Polymer Films for Photosynthesis Promotion
3. 学会等名 International Display Workshops（ディスプレイ関連国際会議）（国際学会）
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 綱木凌, 柴田陽生, 石鍋隆宏, 藤掛英夫
2. 発表標題 光合成促進に向けた蛍光色素配向型液晶性高分子フィルムの波長・偏光特性
3. 学会等名 映情報メディア学会発光型/非発光型ディスプレイ合同研究会
4. 発表年 2021年

〔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
研究分担者	柴田 陽生 (SHIBATA YOSEI) (70771880)	東北大学・工学研究科・助教 (11301)	

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
---------	---------