

ナノ粒子装荷有機シンチレータの開発に向けた  
ZrO<sub>2</sub> ナノ粒子の表面修飾の研究

Study on surface modification of ZrO<sub>2</sub> nanoparticle for the development of  
nanoparticle-loaded organic scintillators

東北大院工<sup>1</sup>, 静岡大電子研<sup>2</sup>, 東北大 WPI-AIMR<sup>3</sup>, 東北大 NICHe<sup>4</sup>, 東北大多元研<sup>5</sup>  
渡邊 晶斗<sup>1</sup>, 越水 正典<sup>2</sup>, 横 哲<sup>3</sup>, 成 基明<sup>4</sup>, 筈居 高明<sup>5</sup>, 阿尻 雅文<sup>3</sup>,  
林 大和<sup>1</sup>, 藤本 裕<sup>1</sup>, 浅井 圭介<sup>1</sup>

Tohoku Univ.<sup>1</sup>, Shizuoka Univ.<sup>2</sup>, Tohoku Univ. WPI-AIMR<sup>3</sup>, Tohoku Univ. NICHe<sup>4</sup>,  
Tohoku Univ. IMRAM<sup>5</sup> Akito Watanabe<sup>1</sup>, Masanori Koshimizu<sup>2</sup>, Yoko Akira<sup>3</sup>, Seong Gimyeong<sup>4</sup>,  
Takaaki Tomai<sup>5</sup>, Tadafumi Adschiri<sup>3</sup>, Yamato Hauashi<sup>1</sup>, Yutaka Fujimoto<sup>1</sup>, Keisuke Asai<sup>1</sup>  
E-mail: akito.watanabe.e5@tohoku.ac.jp

高エネルギー物理学等の実験物理の分野において、用途が粒子線計測に限定されがちである有機シンチレータの機能を拡張することを目的とした重金属の装荷研究が数多く行われている。一般的に、これらの重金属の装荷量とシンチレータの発光量の間にはトレードオフの関係が生ずることが知られている。そのため、発光量低下の回避と両立する重金属の多量装荷手法の探索は、重要な研究課題の一つである。そこで我々は、次世代の金属装荷型有機シンチレータの新形態として、ナノ粒子装荷有機シンチレータを案出し、これを実現すべく超臨界水熱合成を通じた有機修飾ナノ粒子の合成を行ってきた<sup>[1]</sup>。ナノ粒子が均一に分散する高品質な分散液を得るためには、ナノ粒子の表面修飾状態の精密な制御が求められる。この制御に係る重要な因子は、ナノ粒子表面の修飾密度、修飾分子の分子鎖の長さ、修飾分子と溶媒の親和性、および修飾層への溶媒分子の浸透性である。我々は、これらの詳査・最適化を図りつつ適切な修飾系の探索を進め、高機能性を示すナノ粒子装荷液体シンチレータの開発を目指している。本研究では、このスキームを ZrO<sub>2</sub> ナノ粒子に適用し、液体シンチレータの溶媒であるトルエンへ良好に分散するナノ粒子の開発を試みた。

本稿では、溶媒分子の浸透性に関する研究の成果を述べる。浸透性の制御には、炭素鎖の長さを異にする複数の修飾分子を利用する。本研究では、修飾有機分子として 6 フェニルヘキサン酸 (6PHA) と 8 フェニルオクタン酸 (8POA) を採用し、ZrO<sub>2</sub> ナノ粒子表面に当該 2 種分子による修飾を施した。両者の混合比を異にする 5 種 (量論比で 3PPA:6PHA = 1:0, 3:1, 1:1, 1:3, 0:1) の試料を用い、当該修飾が分散性に与える影響を調べた。表 1 に、その結果を示す。ここで、粒子径は TEM 像に基づいて推算された平均値であり、重量損失は熱重量分析 (TGA) の結果に基づいて算出された修飾分子の重量比である。

これらの値から導き出された表面修飾密度の値は 2.6~3.5 分子/nm<sup>2</sup>であった。表 1 中には、原子吸光分析法 (ICP-AES) によって測定された、液体シンチレータ中の当該ナノ粒子分散濃度が併記されている。いずれの条件においても

Table 1. Analysis results of ZrO<sub>2</sub> nanoparticles.

| 6PHA:8POA                    | 1:0      | 3:1      | 1:1      | 1:3      | 0:1      |
|------------------------------|----------|----------|----------|----------|----------|
| 粒子径                          | 3.4 nm   | 4.9 nm   | 6.8 nm   | 5.0 nm   | 8.2 nm   |
| 重量損失 (TGA)                   | 17.4 wt% | 19.4 wt% | 14.7 wt% | 17.5 wt% | 12.8 wt% |
| 表面修飾密度 (分子/nm <sup>2</sup> ) | 3.4      | 3.5      | 2.6      | 3.2      | 3.1      |
| Zr 分散濃度                      | 0.33 wt% | 0.51 wt% | 1.00 wt% | 0.41 wt% | 0.17 wt% |

遜色のない表面修飾密度が得られており、異種分子の混合修飾の効果が、分散濃度を向上させることが示された。特に、6PHA と 8POA を 1:1 で混合した系での分散濃度は 1.00 wt%であり、単分子修飾での値の 3 倍以上に達した。こうして、多元化をはじめとする修飾系の組成・構造・形態の工夫が分散性向上のための有効な方途であることが示された。

[1] A. Watanabe, et al., Nanomaterials, 11(4), 1124 (2021).