

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2022年12月1日(01.12.2022)



(10) 国際公開番号

WO 2022/250087 A1

(51) 国際特許分類:

C07C 15/14 (2006.01) G01T 1/203 (2006.01)
C07C 15/20 (2006.01) C07D 209/80 (2006.01)
C07C 43/20 (2006.01) C07D 213/22 (2006.01)
C07D 471/04 (2006.01) C07D 307/81 (2006.01)
C09K 11/06 (2006.01)

JP]; 〒4648601 愛知県名古屋市千種区不老町 1 番 Aichi (JP). 国立大学法人 東京大学 (THE UNIVERSITY OF TOKYO) [JP/JP]; 〒1138654 東京都文京区本郷七丁目 3 番 1 号 Tokyo (JP).

(21) 国際出願番号: PCT/JP2022/021418

(22) 国際出願日: 2022年5月25日(25.05.2022)

(25) 国際出願の言語: 日本語

(26) 国際公開の言語: 日本語

(30) 優先権データ:
特願 2021-087900 2021年5月25日(25.05.2021) JP

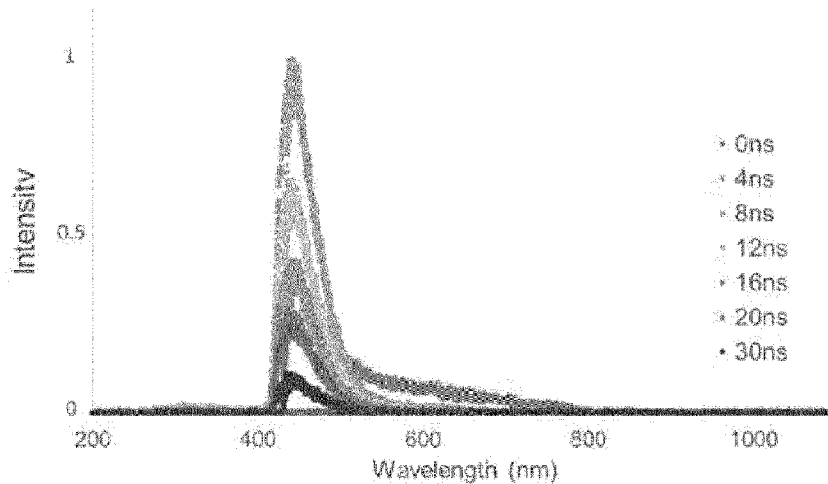
(71) 出願人: 国立大学法人東海国立大学機構 (NATIONAL UNIVERSITY CORPORATION TOKAI NATIONAL HIGHER EDUCATION AND RESEARCH SYSTEM) [JP/

(72) 発明者: 伊丹 健一郎 (ITAMI, Kenichiro); 〒4648601 愛知県名古屋市千種区不老町 1 番 国立大学法人東海国立大学機構内 Aichi (JP). 岩田 亜樹子 (IWATA, Akiko); 〒4648601 愛知県名古屋市千種区不老町 1 番 国立大学法人東海国立大学機構内 Aichi (JP). 佐藤 綾人 (SATO, Ayato); 〒4648601 愛知県名古屋市千種区不老町 1 番 国立大学法人東海国立大学機構内 Aichi (JP). 杉田 亮平 (SUGITA, Ryohei); 〒1138654 東京都文京区本郷七丁目 3 番 1 号 国立大学法人東京大学内 Tokyo (JP). 田野井 慶太郎 (TANOI, Keitaro); 〒1138654 東京都文京区本郷七丁目 3 番 1 号 国立大学法人東京大学内

(54) Title: ORGANIC SCINTILLATION MATERIAL

(54) 発明の名称: 有機シンチレーション材料

[図1]



(57) Abstract: Provided is an organic scintillation material containing a polycyclic aromatic compound having four or more (hetero)aromatic rings, the polycyclic aromatic compound being at least one compound selected from the group consisting of fused ring compounds that have four or more (hetero)aromatic rings and that include (1) a catenane compound, (2) a carbon nano-ring compound, and (3) a fused ring other than an anthracene ring in which three or more (hetero)aromatic rings are combined, and the fused ring compound (3) being a specific compound, or the polycyclic aromatic compound content ranging from 1.00×10^{-4} to 5 mass%, where the total amount of the organic scintillation material is 100 mass%, the organic scintillation material making it possible to improve sensitivity to radiation and to improve scintillation performance.



WO 2022/250087 A1

Tokyo (JP). 山下 真一(YAMASHITA, Shinichi);
〒1138654 東京都文京区本郷七丁目3番1号
国立大学法人東京大学内 Tokyo (JP).

(74) 代理人: 弁理士法人三枝国際特許事務所
(SAEGUSA & PARTNERS); 〒5410045 大阪府
大阪府中央区道修町1-7-1 北浜
コニシビル Osaka (JP).

(81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保
護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ,
BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH,
CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO,
DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT,
HN, HR, HU, ID, IL, IN, IQ, IR, IS, IT, JM, JO, JP,
KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK,
LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW,
MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE,
PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD,
SE, SG, SK, SL, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT,
TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, WS, ZA, ZM, ZW.

(84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保
護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS,
MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM,
ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ,
TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ,
DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT,
LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS,
SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM,
GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

一 国際調査報告 (条約第21条(3))

(57) 要約: 4個以上の(複素)芳香環を有する多環芳香族化合物を含有し、前記多環芳香族化合物が、(1)カテナン化合物、(2)カーボンナノリング化合物、及び(3)3個以上の(複素)芳香環が複合したアントラセン環以外の縮合環を有し、且つ、4個以上の(複素)芳香環を有する縮合環式化合物よりなる群から選ばれる少なくとも1種の化合物であり、且つ、前記縮合環式化合物(3)が特定の化合物であるか、多環芳香族化合物の含有量が、有機シンチレーション材料の総量を100質量%として、 1.00×10^{-4} ~5質量%である、有機シンチレーション材料は、放射線への感度を向上させ、シンチレーター能を向上させることができる。

明 細 書

発明の名称：有機シンチレーション材料

技術分野

[0001] 本発明は、有機シンチレーション材料に関する。

背景技術

[0002] 放射線により励起され発光する特性を有する化合物群（シンチレーション材料）には、例えば、アントラセンに代表される有機結晶シンチレーション材料や、ジフェニルオキサゾール（PPO）に代表される有機液体シンチレーション材料等の有機シンチレーション材料の他、ヨウ化ナトリウム、ヨウ化セシウム等に代表される無機結晶シンチレーション材料等の無機シンチレーション材料等が挙げられる。これらのシンチレーション材料は、ガイガーカウンター等の放射線測定器等に組み込まれ、放射線の測定等に用いられる。

[0003] シンチレーション材料のうち、有機シンチレーション材料については、様々な報告がなされており（例えば、特許文献1参照）、安価、軽量、加工性に優れる等の優位性を有しているが、その一方で、微量の放射線への感度において問題を有している。

先行技術文献

特許文献

[0004] 特許文献1：国際公開第2019/122773号

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0005] 本発明は、放射線への感度を向上させ、シンチレーター能を向上させた有機シンチレーション材料を提供することを目的とする。

課題を解決するための手段

[0006] 本発明者らは、前記の課題を解決すべく鋭意研究を重ねた結果、特定の多環芳香族化合物を採用することで、微量でも放射線への感度を向上させ、シ

ンチレーター能を向上させた有機シンチレーション材料を提供することができることを見出した。具体的には以下の発明を包含する。

- [0007] 項 1. 4 個以上の（複素）芳香環を有する多環芳香族化合物を含有し、前記多環芳香族化合物が、
- (1) カテナン化合物、
 - (2) カーボンナノリング化合物、
 - (3 A - 1) 5 個以上の（複素）芳香環が縮合している、ペリレンイミド環以外の縮合環を有する縮合環式平面化合物（1）、
 - (3 A - 2) 1 個以上の複素芳香環と 3 個の芳香環とが縮合した縮合環式平面化合物（2）、
 - (3 A - 3) 1 個以上のアリール基で置換され、ハロゲン原子を含まないトリフェニレン化合物、
 - (3 A - 4) 1 個以上の炭化水素基で置換されたピレン化合物、
 - (3 B - 1) 1 個以上のアリール基で置換され、ハロゲン原子を含まないフェナントレン化合物、及び
 - (3 C) ワープドナノグラフェン化合物
- よりなる群から選ばれる少なくとも 1 種の化合物である、有機シンチレーション材料。

- [0008] 項 2. 有機溶媒中の溶液である、項 1 に記載の有機シンチレーション材料。

- [0009] 項 3. 4 個以上の（複素）芳香環を有する多環芳香族化合物が溶媒中に存在する溶液を含有する有機シンチレーション材料であって、前記多環芳香族化合物が、
- (1) カテナン化合物、
 - (2) カーボンナノリング化合物、及び
 - (3) 3 個以上の（複素）芳香環が複合したアントラセン環以外の縮合環を有し、且つ、4 個以上の（複素）芳香環を有する縮合環式化合物
- よりなる群から選ばれる少なくとも 1 種の化合物であり、

前記多環芳香族化合物の含有量が、前記有機シンチレーション材料の総量を100質量%として、 1.00×10^{-4} ~5質量%である、有機シンチレーション材料。

[0010] 項4. 前記縮合環式化合物が、

(3A) 4個以上の(複素)芳香環が縮合した縮合環を有する縮合環式平面化合物、

(3B) 4個以上の(複素)芳香環を有するフェナントレン化合物、及び

(3C) ワープドナノグラフェン化合物

よりなる群から選ばれる少なくとも1種である、項3に記載の有機シンチレーション材料。

[0011] 項5. 前記縮合環式平面化合物が、

(3A-1) 5個以上の(複素)芳香環が縮合している、ペリレンイミド環以外の縮合間を有する縮合環式平面化合物(1)、

(3A-2) 1個の複素芳香環と3個の芳香環とが縮合した縮合環式平面化合物(2)、

(3A-3) 1個以上のアリール基で置換され、ハロゲン原子を含まないトリフェニレン化合物、及び

(3A-4) 1個以上の炭化水素基で置換されたピレン化合物

よりなる群から選ばれる少なくとも1種である、項4に記載の有機シンチレーション材料。

[0012] 項6. 前記フェナントレン化合物が、

(3B-1) 1個以上のアリール基で置換され、ハロゲン原子を含まないフェナントレン化合物

である、項4に記載の有機シンチレーション材料。

[0013] 項7. 前記ワープドナノグラフェン化合物が、

(3C-1) 親水基非含有ワープドナノグラフェン化合物

である、項1又は4に記載の有機シンチレーション材料。

[0014] 項8. 前記カテナン化合物が、

(1 A) 2以上のシクロパラフェニレン化合物が、絡み合って幾何学的に連結したインターロック化合物

である、項1又は3に記載の有機シンチレーション材料。

[0015] 項9. 前記カーボンナノリング化合物が、

(2 A) 8～30個のベンゼン環を有するシクロパラフェニレン化合物、及び

(2 B) 9～30個の(複素)芳香環が環状に単結合で結合したヘテロ元素含有カーボンナノリング化合物

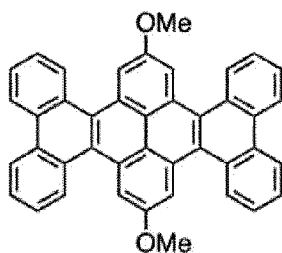
よりなる群から選ばれる少なくとも1種である、項1又は3に記載の有機シンチレーション材料。

[0016] 項10. 前記有機シンチレーション材料中に含まれる固形分の総量を100モル%として、高分子化合物の含有量が0～40モル%である、項2又は3に記載の有機シンチレーション材料。

[0017] 項11. 項1又は3に記載の有機シンチレーション材料を含有する、放射線測定器。

[0018] 項12. 式:

[0019] [化1]



[0020] [式中、Meはメチル基を示す。]

で表される化合物。

発明の効果

[0021] 本発明によれば、放射線への感度を向上させ、シンチレーター能を向上させた有機シンチレーション材料を提供することができる。

[0022] これらの有機シンチレーション材料は、原子レベルでの分子デザインが可

能であり、 α 線、 β 線、陽子線等の粒子放射線、 γ 線、X線等の電磁放射線等に特異的な有機シンチレーション材料のデザイン、合成及び供給が可能である。

図面の簡単な説明

[0023] [図1]種々の電子線を照射した際の、実施例9の有機シンチレーション材料の発光スペクトルを示す。

発明を実施するための形態

[0024] 本明細書において、「含有する (comprise)」は、「実質的にのみからなる (consist essentially of)」、及び「のみからなる (consist of)」も包含する概念である。

[0025] 本明細書において、範囲を「A～B」で表す場合、特に限定されない限り、A以上B以下を意味する。

[0026] 本発明の有機シンチレーション材料は、4個以上の（複素）芳香環を有する多環芳香族化合物を含有し、前記多環芳香族化合物が、

- (1) カテナン化合物、
- (2) カーボンナノリング化合物、及び
- (3) 3個以上の（複素）芳香環が複合したアントラセン環以外の縮合環を有し、且つ、4個以上の（複素）芳香環を有する縮合環式化合物よりなる群から選ばれる少なくとも1種の化合物である。

[0027] なお、本発明の第1の態様では、多環芳香族化合物は、

- (1) カテナン化合物、
- (2) カーボンナノリング化合物、
- (3 A - 1) 5個以上の（複素）芳香環が縮合している、ペリレンイミド環以外の縮合環を有する縮合環式平面化合物 (1)、
- (3 A - 2) 1個の複素芳香環と3個の芳香環とが縮合した縮合環式平面化合物 (2)、
- (3 A - 3) 1個以上のアリール基で置換され、ハロゲン原子を含まないト

リフェニレン化合物、

(3A-4) 1個以上の炭化水素基で置換されたピレン化合物、

(3B-1) 1個以上のアリール基で置換され、ハロゲン原子を含まないフェナントレン化合物、及び

(3C) ワープドナノグラフェン化合物

よりなる群から選ばれる少なくとも1種の化合物である。

[0028] 一方、本発明の第2の態様では、多環芳香族化合物の含有量が、有機シンチレーション材料の総量を100質量%として、 $1.00 \times 10^{-4} \sim 5$ 質量%である。

[0029] (1-1) カテナン化合物

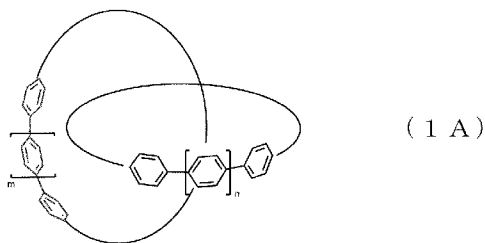
カテナン化合物は、特に制限されず、2以上の環状化合物が、絡み合っ幾何学的に連結したインターロック化合物を意味しており、なかでも、シンチレーター能、計測の空間分解能等の観点から、

(1A) 2以上のシクロパラフェニレン化合物が、絡み合っ幾何学的に連結したインターロック化合物

が好ましい。

[0030] このようなカテナン化合物としては、例えば、一般式(1A)：

[0031] [化2]



[0032] [式中、m及びnは同一又は異なって、4~100の整数を示す。2個のシクロパラフェニレン分子が絡み合っ幾何学的に連結している。]

で表されるカテナン化合物が挙げられる。

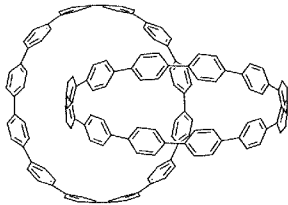
[0033] 一般式(1A)において、m及びnは特に制限されるわけではなく、シンチレーター能、計測の空間分解能等の観点から、4~100の整数が好ましく、5~50の整数がより好ましく、6~30の整数がさらに好ましく、7

～20の整数が特に好ましい。

[0034] m及びnは同一でも異なってもよいが、同一であるほうが簡便に合成することができる。

[0035] このようなカテナン化合物としては、例えば、

[0036] [化3]



[0037] [式中、12個のベンゼン環からなるシクロパラフェニレン同士が2個絡み合って幾何学的に連結している。]

等が挙げられる。

[0038] このようなカテナン化合物は、公知又は市販品を使用することができ、また、例えば、既報 (Science 2019, 365, 272-276.) に記載の方法にしたがって合成することもできる。

[0039] (1-2) カーボンナノリング化合物

カーボンナノリング化合物は、特に制限されず、(複素)芳香環、つまり、芳香環又は複素芳香環が、単結合を介して環状に結合している化合物である限り特に制限はないが、シンチレーター能、計測の空間分解能等の観点から、

(2A) 8～30個のベンゼン環を有するシクロパラフェニレン化合物、及び

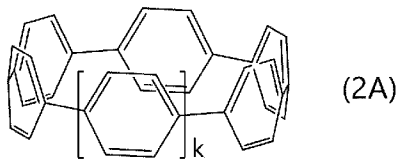
(2B) 9～30個の(複素)芳香環が環状に単結合で結合したヘテロ元素含有カーボンナノリング化合物

等が好ましい。

[0040] このうち、シクロパラフェニレン化合物としては、例えば、一般式(2A)：

[0041]

[化4]



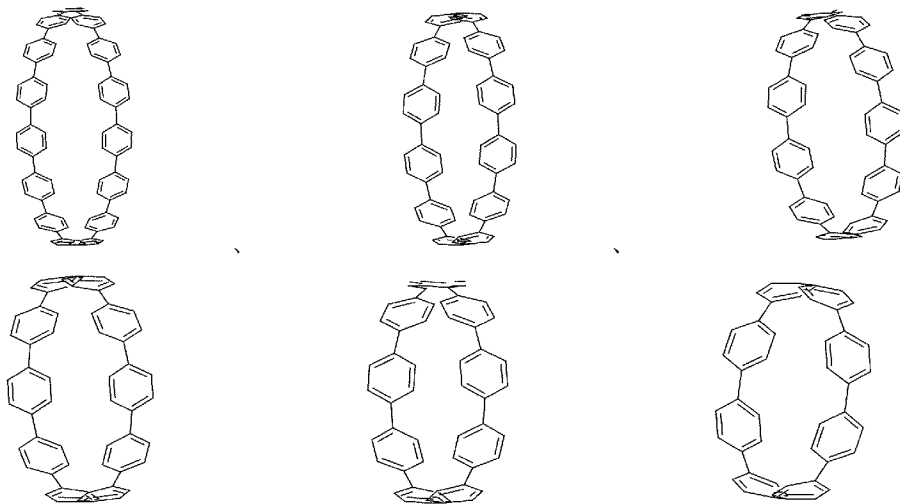
[0042] [式中、kは3～25の整数を示す。]

で表されるシクロパラフェニレン化合物が挙げられる。

[0043] 一般式(1A)において、kは特に制限されるわけではなく、シンチレータ能、計測の空間分解能等の観点から、3～25の整数が好ましく、4～20の整数がより好ましく、5～15の整数がさらに好ましい。

[0044] このようなシクロパラフェニレン化合物としては、例えば、

[0045] [化5]



[0046] [式中、それぞれ、15個、12個、11個、10個、9個及び8個のベンゼン環からなるシクロパラフェニレンである。]

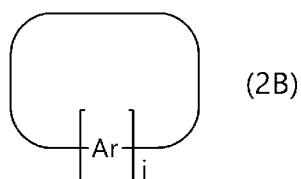
等が挙げられる。

[0047] このようなシクロパラフェニレン化合物は、公知又は市販品を使用することができ、また、例えば、既報 (Angew. Chem. Int. Ed. 2010, 49, 10202-10205., Angew. Chem. Int. Ed. 2009, 48, 6112-6116., Chem. Sci. 2012, 3, 2340-2345.) に記載の方法にしたがって合成することができる。

[0048] また、ヘテロ元素含有カーボンナノリング化合物としては、例えば、一般

式 (2B) :

[0049] [化6]



[0050] [式中、Arは同一又は異なって、2価の芳香族炭化水素基又は2価の複素環式基を示す。ただし、Arのうち少なくとも1つは2価の複素環式基を示す。jは9~15の整数を示す。]

等が挙げられる。

[0051] 一般式(2B)において、Arは、2価の芳香族炭化水素基又は2価の複素環式基である。つまり、Arは、芳香環及び複素芳香環から選ばれる有機環を備える2価の基(以下、「2価の有機環基」と言うこともある)であり、この有機環を構成する2つの炭素原子に結合する水素原子をそれぞれ、1つつ脱離させてなる基である。

[0052] なお、各Arは、同一でもよいし異なってもよい。ただし、Arのうち少なくとも1つは2価の複素環式基を示す。

[0053] 芳香環としては、ベンゼン環だけでなく、複数のベンゼン環を縮合した環(ベンゼン縮合環)、ベンゼン環と他の環を縮合させた環等も挙げられる(以下、複数のベンゼン環を縮合した環及びベンゼン環と他の環を縮合させた環をまとめて、単に「縮合環」と言うことがある)。上記縮合環としては、例えば、ペントレン環、インデン環、ナフタレン環、アントラセン環、テトラセン環、ペンタセン環、ピレン環、ペリレン環、トリフェニレン環、アズレン環、ヘプタレン環、ビフェニレン環、インダセン環、アセナフチレン環、フルオレン環、フェナレン環、フェナントレン環等が挙げられる。

[0054] 複素芳香環としては、例えば、窒素原子、酸素原子、ホウ素原子、リン原子、ケイ素原子及び硫黄原子から選ばれる少なくとも1種の原子を有する複素芳香環が挙げられる。複素芳香環の具体例としては、例えば、フラン環、チオフェン環、ピロール環、シロール環、ボロール環、ホスホール環、イミ

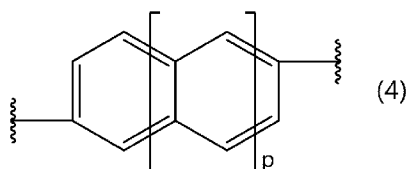
ダゾール環、ピラゾール環、オキサゾール環、チアゾール環、ピリジン環、ピリダジン環、ピリミジン環、ピラジン環等が挙げられる。また、これら同士又はこれらとベンゼン環、上記縮合環等との複素縮合環等（チエノチオフェン環、キノリン環、ベンゾフラン環、ベンゾチオフェン環等）も使用できる。

[0055] Arとしては、上記の環のなかでも、2価の6員芳香環又は2価の6員複素芳香環を備える基であって、パラ位に結合手を有する基が好ましい。

[0056] また、Arを形成する有機環としては、単環又は縮合環が好ましく、単環がより好ましい。

[0057] これらのなかでも、Arは、一般式（4）：

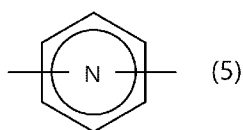
[0058] [化7]



[0059] [式中、pは0～3の整数を示す。]

で表される2価の芳香族炭化水素基、又は一般式（5）：

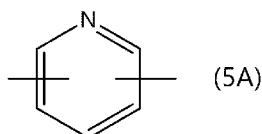
[0060] [化8]



[0061] [式中、Nで示される環は、窒素含有複素芳香環を示す。]

で表される2価の複素環式基が好ましく、一般式（5A）：

[0062] [化9]

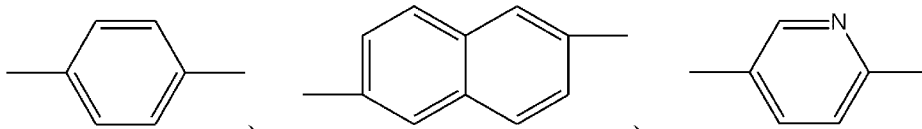


[0063] で表されるピリジレン基がより好ましい。

[0064] なかでも、シンチレーター能、計測の空間分解能等の観点から、

[0065]

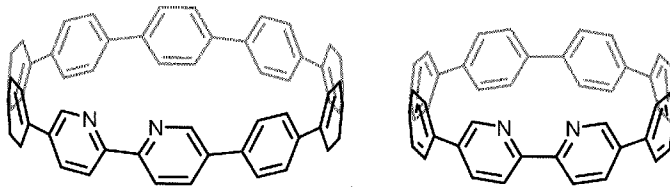
[化10]



[0066] 等が好ましい。

[0067] このようなヘテロ元素含有カーボンナノリング化合物としては、例えば、

[0068] [化11]



[0069] [式中、2個のピリジン環と、それぞれ、8個及び6個のベンゼン環からなるヘテロ元素含有カーボンナノリング化合物である。]

等が挙げられる。

[0070] このようなヘテロ元素含有カーボンナノリング化合物は、公知又は市販品を使用することができ、また、例えば、既報 (Org. Lett. 2012, 14, 1888-1891., Angew. Chem. Int. Ed. 2015, 54, 9646-9649.) に記載の方法にしたがって合成することができる。

[0071] (1-3) 3個以上の(複素)芳香環が複合したアントラセン環以外の縮合環を有し、且つ、4個以上の(複素)芳香環を有する縮合環式化合物

本発明の第2の態様においては、3個以上の(複素)芳香環が複合したアントラセン環以外の縮合環を有し、且つ、4個以上の(複素)芳香環を有する縮合環式化合物は、特に制限されず、(複素)芳香環、つまり、芳香環又は複素芳香環が3個以上縮合したアントラセン環以外の縮合間を有し、且つ、芳香環又は複素芳香環を4個以上有している化合物である限り特に制限はないが、シンチレーター能、計測の空間分解能等の観点から、

(3A) 4個以上の(複素)芳香環が縮合した縮合環を有する縮合環式平面化合物、

(3B) 4個以上の(複素)芳香環を有するフェナントレン化合物、及び

(3C) ワープドナノグラフェン化合物

等が好ましい。

[0072] [1-3-1] 4個以上の(複素)芳香環が縮合した縮合環を有する縮合環式平面化合物

本発明の第2の態様においては、4個以上の(複素)芳香環が縮合した縮合環を有する縮合環式平面化合物は、特に制限されず、4個以上の(複素)芳香環、つまり、4個以上の芳香環又は複素芳香環が縮合環を形成した平面化合物である限り特に制限はないが、シンチレーター能、計測の空間分解能等の観点から、

(3A-1) 5個以上の(複素)芳香環が縮合している、ペリレンイミド環以外の縮合環を有する縮合環式平面化合物(1)、

(3A-2) 1個の複素芳香環と3個の芳香環とが縮合した縮合環式平面化合物(2)、

(3A-3) 1個以上のアリール基で置換され、ハロゲン原子を含まないトリフェニレン化合物、及び

(3A-4) 1個以上の炭化水素基で置換されたピレン化合物
等が好ましい。

[0073] なお、本発明の第1の態様においては、「4個以上の(複素)芳香環が縮合した縮合環を有する縮合環式平面化合物」としては、上記した(3A-1)～(3A-4)の化合物を使用することが必須である。

[0074] (3A-1) 5個以上の(複素)芳香環が縮合している、ペリレンイミド環以外の縮合環を有する縮合環式平面化合物(1)

5個以上の(複素)芳香環が縮合している、ペリレンイミド環以外の縮合環を有する縮合環式平面化合物(1)は、5個以上の(複素)芳香環、つまり、5個以上の芳香環又は複素芳香環が縮合環(ペリレンイミド環以外の縮合環)を形成した平面化合物であるが、シンチレーター能、計測の空間分解能等の観点から、分子中に硫黄原子を含んでいないことが好ましい。

[0075] この縮合環式平面化合物(1)において、芳香環としては、ベンゼン環が

挙げられる。

[0076] また、複素芳香環としては、例えば、窒素原子、酸素原子、ホウ素原子、リン原子、ケイ素原子及び硫黄原子から選ばれる少なくとも1種の原子を有する複素芳香環が挙げられる。上記のとおり、シンチレーター能、計測の空間分解能等の観点から、分子中に硫黄原子を含んでいないことが好ましいため、複素芳香環としては、例えば、窒素原子、酸素原子、ホウ素原子、リン原子及びケイ素原子から選ばれる少なくとも1種の原子を有する複素芳香環が好ましい。このような複素芳香環の具体例としては、例えば、フラン環、ピロール環、シロール環、ポロール環、ホスホール環、イミダゾール環、ピラゾール環、オキサゾール環、チアゾール環、ピリジン環、ピリダジン環、ピリミジン環、ピラジン環等が挙げられる。

[0077] この縮合環式平面化合物(1)は、置換基を有することもできる。このような置換基としては、例えば、アルキル基、アルコキシ基、アリール基、ヘテロアリール基、ボロン酸又はそのエステル基、シアノ基等が挙げられる。

[0078] 置換基としてのアルキル基としては、特に制限はなく、メチル基、エチル基、*n*-プロピル基、*n*-ブチル基、*n*-ペンチル基等の炭素数1~10(特に1~6)の鎖状アルキル基の他、イソプロピル基、イソブチル基、*sec*-ブチル基、*tert*-ブチル基等の炭素数3~10(特に3~6)の分岐鎖状アルキル基も挙げられる。

[0079] アルキル基は、置換基を有することもできる。アルキル基が置換されている場合の置換基としては、例えば、ハロゲン原子(フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子等)、後述のアルコキシ基、後述のアリール基、後述のヘテロアリール基、後述のボロン酸又はそのエステル基、シアノ基等が挙げられる。これらの置換基を有する場合、その個数は、例えば、1~5個とすることができる。

[0080] 置換基としてのアルコキシ基としては、特に制限はなく、メトキシ基、エトキシ基、*n*-プロピルオキシ基、*n*-ブチルオキシ基、*n*-ペンチルオキシ基等の炭素数1~10(特に1~6)の鎖状アルコキシ基の他、イソプロ

ピルオキシ基、イソブチルオキシ基、*sec*-ブチルオキシ基、*tert*-ブチルオキシ基等の炭素数3~10（特に3~6）の分岐鎖状アルコキシ基も挙げられる。

[0081] アルコキシ基は、置換基を有することもできる。アルコキシ基が置換されている場合の置換基としては、例えば、ハロゲン原子（フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子等）、上記のアルコキシ基、後述のアリール基、後述のヘテロアリール基、後述のボロン酸又はそのエステル基、シアノ基等が挙げられる。これらの置換基を有する場合、その個数は、例えば、1~5個とすることができる。

[0082] 置換基としてのアリール基は、芳香環を備える1価の基であり、この芳香環を構成する1つの炭素原子に結合する水素原子を1つ脱離させてなる基である。

[0083] 芳香環としては、ベンゼン環だけでなく、複数のベンゼン環を縮合した環（ベンゼン縮合環）、ベンゼン環と他の環を縮合させた環等も挙げられる（以下、複数のベンゼン環を縮合した環及びベンゼン環と他の環を縮合させた環をまとめて、単に「縮合環」と言うことがある）。上記縮合環としては、例えば、ペンタレン環、インデン環、ナフタレン環、アントラセン環、テトラセン環、ペンタセン環、ピレン環、ペリレン環、トリフェニレン環、アズレン環、ヘプタレン環、ビフェニレン環、インダセン環、アセナフチレン環、フルオレン環、フェナレン環、フェナントレン環等が挙げられる。

[0084] つまり、アリール基としては、例えば、フェニル基、ペンタレニル基、インデニル基、ナフチル基、アントラセニル基、テトラセニル基、ペンタセニル基、ピレニル基、ペリレニル基、トリフェニレニル基、アズレニル基、ヘプタレニル基、ビフェニレニル基、インダセニル基、アセナフチル基、フルオレニル基、フェナレニル基、フェナントレニル基等が挙げられる。

[0085] アリール基は、置換基を有することもできる。アリール基が置換されている場合の置換基としては、例えば、ハロゲン原子（フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子等）、上記のアルキル基、上記のアルコキシ基、上記

のアリール基、後述のヘテロアリール基、後述のボロン酸又はそのエステル基、シアノ基等が挙げられる。これらの置換基を有する場合、その個数は、例えば、1～5個とすることができる。

[0086] 置換基としてのヘテロアリール基は、複素芳香環を備える1価の基であり、この複素芳香環を構成する1つの炭素原子に結合する水素原子を1つ脱離させてなる基である。

[0087] 複素芳香環としては、例えば、窒素原子、酸素原子、ホウ素原子、リン原子、ケイ素原子及び硫黄原子から選ばれる少なくとも1種の原子を有する複素芳香環が挙げられる。上記のとおり、シンチレーター能、計測の空間分解能等の観点から、分子中に硫黄原子を含んでいないことが好ましいため、複素芳香環としては、例えば、窒素原子、酸素原子、ホウ素原子、リン原子及びケイ素原子から選ばれる少なくとも1種の原子を有する複素芳香環が好ましい。このような複素芳香環の具体例としては、例えば、フラン環、ピロール環、シロール環、ボロール環、ホスホール環、イミダゾール環、ピラゾール環、オキサゾール環、チアゾール環、ピリジン環、ピリダジン環、ピリミジン環、ピラジン環等が挙げられる。また、これら同士又はこれらとベンゼン環、上記縮合環等との複素縮合環等（チエノチオフェン環、キノリン環、ベンゾフラン環等）も使用できる。ただし、本発明では、ペリレンイミド環は形成しない。

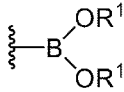
[0088] つまり、アリール基としては、例えば、フェニル基、ペンタレニル基、インデニル基、ナフチル基、アントラセニル基、テトラセニル基、ペンタセニル基、ピレニル基、ペリレニル基、トリフェニレニル基、アズレニル基、ヘプタレニル基、ビフェニレニル基、インダセニル基、アセナフチル基、フルオレニル基、フェナレニル基、フェナントレニル基等が挙げられる。

[0089] アリール基は、置換基を有することもできる。アリール基が置換されている場合の置換基としては、例えば、ハロゲン原子（フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子等）、上記のアルキル基、上記のアルコキシ基、上記のアリール基、後述のヘテロアリール基、後述のボロン酸又はそのエステル

基、シアノ基等が挙げられる。これらの置換基を有する場合、その個数は、例えば、1～5個とすることができる。

[0090] 置換基としてのボロン酸若しくはそのエステル基としては、

[0091] [化12]



[0092] [式中、2個のR¹は同一又は異なって、水素原子又はアルキル基を示す。2個のR¹は互いに結合して、隣接する-O-B-O-とともに環を形成してもよい。]

で表される基が好ましい。

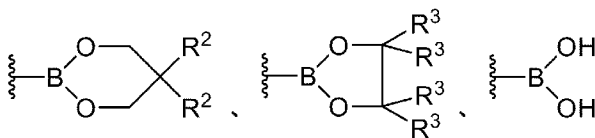
[0093] 上記ボロン酸若しくはそのエステル基のR¹は水素原子又はアルキル基である。

[0094] アルキル基は上記したものを採用でき、置換基の種類及び数も同様である。

[0095] また、また、R¹がアルキル基である場合には、それぞれのアルキル基を構成する炭素原子が、互いに結合して隣接する-O-B-O-とともに環を形成してもよい。この際、2個の酸素原子が、アルキレン基（メチレン基、エチレン基、トリメチレン基、テトラメチレン基等の炭素数1～10のアルキレン基等）を介して結合することとなる。

[0096] このようなボロン酸若しくはそのエステル基としては、例えば、

[0097] [化13]



[0098] [上記式中、R²及びR³は同一又は異なって、水素原子又はアルキル基を示す。]

で表される基が挙げられる。

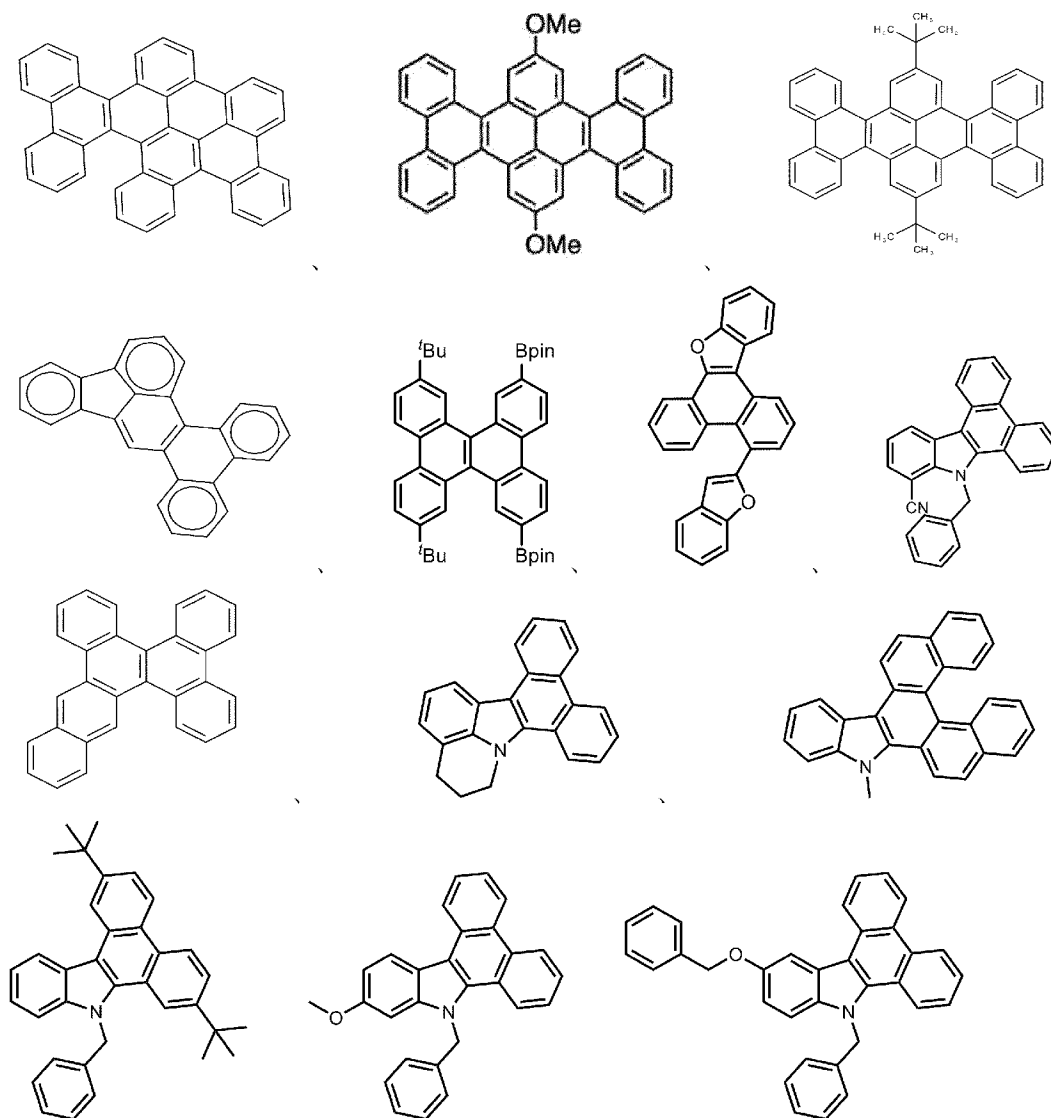
[0099] 上記のR²及びR³は水素原子又はアルキル基である。

[0100] アルキル基は上記したものを採用でき、置換基の種類及び数も同様である

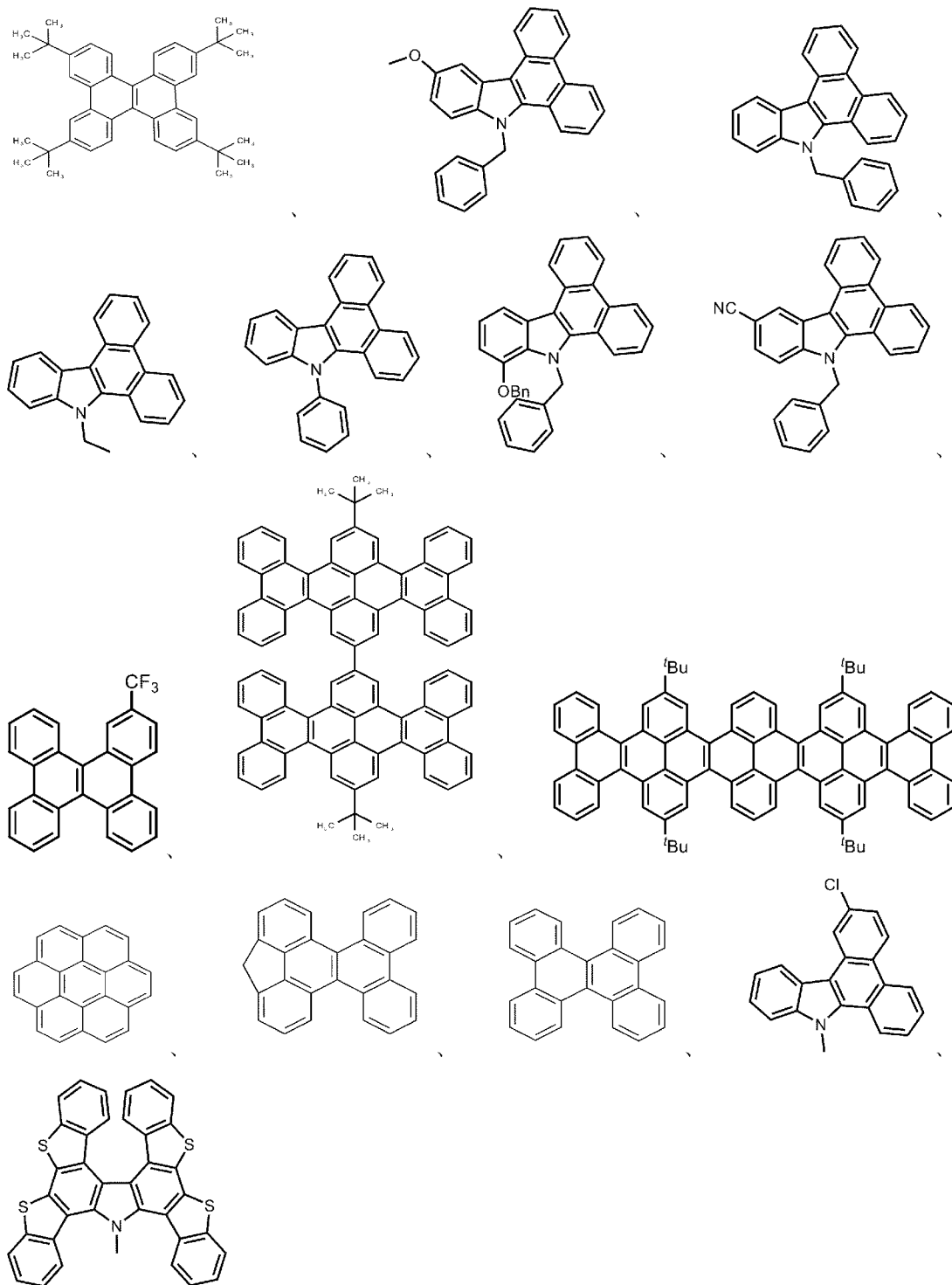
[0101] ボロン酸又はそのエステル基は、置換基を有することもできる。ボロン酸又はそのエステル基が置換されている場合の置換基としては、例えば、ハロゲン原子（フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子等）、上記のアルコキシ基、上記のアリール基、上記のボロン酸又はそのエステル基、シアノ基等が挙げられる。これらの置換基を有する場合、その個数は、例えば、1～5個とすることができる。

[0102] このような5個以上の（複素）芳香環が縮合している、ペリレンイミド環以外の縮合環を有する縮合環式平面化合物（1）としては、例えば、

[0103] [化14]



[0104] [化15]



[0105] [式中、Meはメチル基を示す。^tBuはtert-ブチル基を示す。Bpinはピナコレートボリル基を示す。Bnはベンジル基を示す。]

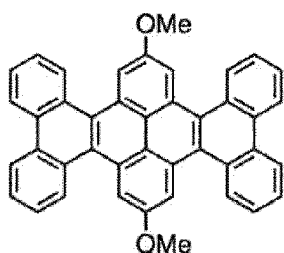
等が挙げられる。

[0106] このような5個以上の（複素）芳香環が縮合している、ペリレンイミド環

以外の縮合環を有する縮合環式平面化合物（1）は、公知又は市販品を使用することができ、また、例えば、既報（Angew. Chem. Int. Ed. 2017, 56, 1 2224-12228.、Angew. Chem. Int. Ed. 2020, 59, 6551-6554.、Nature Commun. 2015, 6, 6251 (doi: 10.1038/ncomms7251).、Chem. Sci. 2018, 9, 7556-7561.）に記載の方法にしたがって合成することができる。

[0107] また、以下の化合物：

[0108] [化16]



[0109] は、後述の実施例に記載の方法にしたがって合成することができる。

[0110] （3A-2）1個の複素芳香環と3個の芳香環とが縮合した縮合環式平面化合物（2）

1個の複素芳香環と3個の芳香環とが縮合した縮合環式平面化合物（2）は、1個の複素芳香環と3個の芳香環とが縮合している。

[0111] この縮合環式平面化合物（2）において、複素芳香環としては、例えば、窒素原子、酸素原子、ホウ素原子、リン原子、ケイ素原子及び硫黄原子から選ばれる少なくとも1種の原子を有する複素芳香環が挙げられる。複素芳香環の具体例としては、例えば、フラン環、チオフェン環、ピロール環、シロール環、ボロール環、ホスホール環、チオール環、イミダゾール環、ピラゾール環、オキサゾール環、チアゾール環、ピリジン環、ピリダジン環、ピリミジン環、ピラジン環等が挙げられる。また、これら同士又はこれらとベンゼン環、上記縮合環等との複素縮合環等（チエノチオフェン環、キノリン環、ベンゾフラン環、ベンゾチオフェン環等）も使用できる。なかでも、シンチレーター能、計測の空間分解能等の観点から、ピロール環が好ましい。

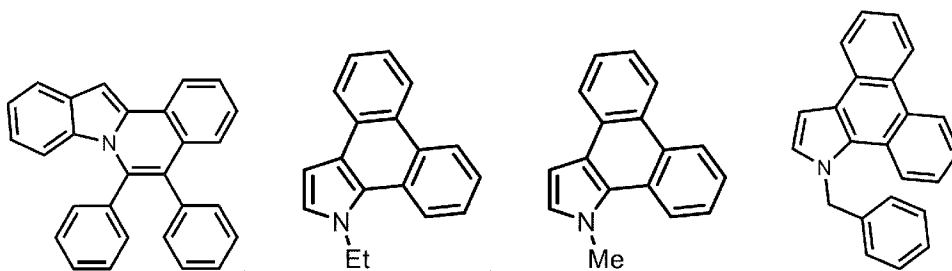
[0112] この縮合環式平面化合物（2）において、芳香環としては、ベンゼン環が

挙げられる。

[0113] この縮合環式平面化合物（2）は、置換基を有することもできる。このような置換基としては、例えば、アルキル基、アルコキシ基、アリール基、ヘテロアリール基、ボロン酸又はそのエステル基、シアノ基等が挙げられる。これらの置換基は、上記したものを採用できる。本発明では、シンチレーター能、計測の空間分解能等の観点から、縮合環式平面化合物（2）中には、ハロゲン原子を含んでいないことが好ましい。

[0114] このような1個の複素芳香環と3個の芳香環とが縮合した縮合環式平面化合物（2）としては、例えば、

[0115] [化17]



[0116] [式中、Etはエチル基を示す。Meはメチル基を示す。]

等が挙げられる。

[0117] このような1個の複素芳香環と3個の芳香環とが縮合した縮合環式平面化合物（2）は、公知又は市販品を使用することができ、また、例えば、既報（Chem. Sci. 2018, 9, 7556-7561.）に記載の方法にしたがって合成することができる。

[0118] （3A-3）1個以上のアリール基で置換され、ハロゲン原子を含まないトリフェニレン化合物

1個以上のアリール基で置換され、ハロゲン原子を含まないトリフェニレン化合物は、トリフェニレンが、1個以上のアリール基で置換されており、ハロゲン原子を含んでいない。

[0119] アリール基は、芳香環を備える1価の基であり、この芳香環を構成する1つの炭素原子に結合する水素原子を1つ脱離させてなる基である。

[0120] 芳香環としては、ベンゼン環だけでなく、複数のベンゼン環を縮合した環（ベンゼン縮合環）、ベンゼン環と他の環を縮合させた環等も挙げられる（以下、複数のベンゼン環を縮合した環及びベンゼン環と他の環を縮合させた環をまとめて、単に「縮合環」と言うことがある）。上記縮合環としては、例えば、ペントレン環、インデン環、ナフタレン環、アントラセン環、テトラセン環、ペントセン環、ピレン環、ペリレン環、トリフェニレン環、アズレン環、ヘプタレン環、ビフェニレン環、インダセン環、アセナフチレン環、フルオレン環、フェナレン環、フェナントレン環等が挙げられる。

[0121] つまり、アリール基としては、例えば、フェニル基、ペントレニル基、インデニル基、ナフチル基、アントラセニル基、テトラセニル基、ペントセニル基、ピレニル基、ペリレニル基、トリフェニレニル基、アズレニル基、ヘプタレニル基、ビフェニレニル基、インダセニル基、アセナフチル基、フルオレニル基、フェナレニル基、フェナントレニル基等が挙げられる。

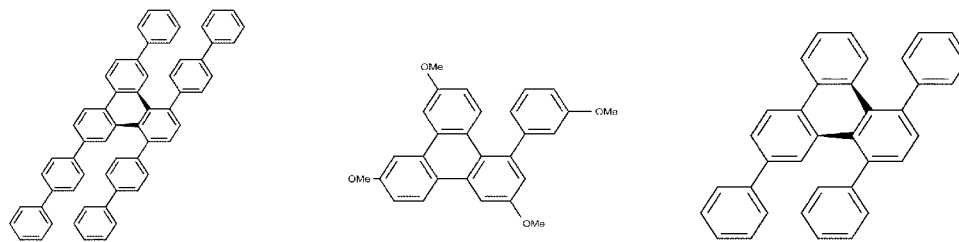
[0122] アリール基は、置換基を有することもできる。アリール基が置換されている場合の置換基としては、例えば、上記のアルキル基、上記のアルコキシ基、上記のアリール基、上記のヘテロアリール基、上記のボロン酸又はそのエステル基、シアノ基等が挙げられる。これらの置換基を有する場合、その個数は、例えば、1～5個とすることができる。

[0123] このトリフェニレン化合物は、さらに、置換基を有することもできる。このような置換基としては、例えば、アルキル基、アルコキシ基、ヘテロアリール基、ボロン酸又はそのエステル基、シアノ基等が挙げられる。これらの置換基は、上記したものを採用できる。

[0124] このような1個以上のアリール基で置換され、ハロゲン原子を含まないトリフェニレン化合物としては、例えば、

[0125]

[化18]



[0126] [式中、Meはメチル基を示す。]

等が挙げられる。

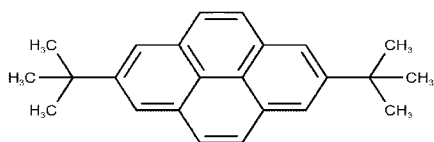
[0127] このような1個以上のアリール基で置換され、ハロゲン原子を含まないトリフェニレン化合物は、公知又は市販品を使用することができ、また、例えば、既報 (Science, 2018, 359, 435-439.、Angew. Chem. Int. Ed. 2020, 59, 6551-6554.) に記載の方法にしたがって合成することができる。

[0128] (3A-4) 1個以上の炭化水素基で置換されたピレン化合物

ピレン化合物は、1個以上の炭化水素基で置換されている。このような置換基としての炭化水素基としては、例えば、アルキル基、アリール基等が挙げられる。これらの置換基としての炭化水素基は、上記したものを採用できる。

[0129] このようなピレン化合物としては、例えば、

[0130] [化19]



[0131] 等が挙げられる。

[0132] このようなピレン化合物は、公知又は市販品を使用することができ、また、例えば、既報 (Nature Commun. 2015, 6, 6251 (doi: 10.1038/ncomms7251).) に記載の方法にしたがって合成することができる。

[0133] [1-3-2] 4個以上の(複素)芳香環を有するフェナントレン化合物
本発明の第2の態様では、フェナントレン化合物は、4個以上の(複素)芳香環、つまり、4個以上の芳香環又は複素芳香環を有している。フェナン

トレンが、3個のベンゼン環が縮合して形成されるものであるため、4個以上の（複素）芳香環を有するフェナントレン化合物は、フェナントレン骨格以外に、1個以上の（複素）芳香環、つまり、1個以上の芳香環又は複素芳香環を有する化合物である。このようなフェナントレン化合物としては、特に制限されないが、シンチレーター能、計測の空間分解能等の観点から、

（3B-1）1個以上のアリール基で置換され、ハロゲン原子を含まないフェナントレン化合物

等が好ましい。

[0134] なお、本発明の第1の態様においては、「4個以上の（複素）芳香環を有するフェナントレン化合物」としては、上記した（3B-1）の化合物を使用することが必須である。

[0135] 1個以上のアリール基で置換され、ハロゲン原子を含まないフェナントレン化合物は、フェナントレンが、1個以上のアリール基で置換されており、ハロゲン原子を含んでいない。

[0136] アリール基は、芳香環を備える1価の基であり、この芳香環を構成する1つの炭素原子に結合する水素原子を1つ脱離させてなる基である。

[0137] 芳香環としては、ベンゼン環だけでなく、複数のベンゼン環を縮合した環（ベンゼン縮合環）、ベンゼン環と他の環を縮合させた環等も挙げられる（以下、複数のベンゼン環を縮合した環及びベンゼン環と他の環を縮合させた環をまとめて、単に「縮合環」と言うことがある）。上記縮合環としては、例えば、ペントレン環、インデン環、ナフタレン環、アントラセン環、テトラセン環、ペントセン環、ピレン環、ペリレン環、トリフェニレン環、アズレン環、ヘプタレン環、ビフェニレン環、インダセン環、アセナフチレン環、フルオレン環、フェナレン環、フェナントレン環等が挙げられる。

[0138] つまり、アリール基としては、例えば、フェニル基、ペントレニル基、インデニル基、ナフチル基、アントラセニル基、テトラセニル基、ペントセニル基、ピレニル基、ペリレニル基、トリフェニレニル基、アズレニル基、ヘプタレニル基、ビフェニレニル基、インダセニル基、アセナフチル基、フル

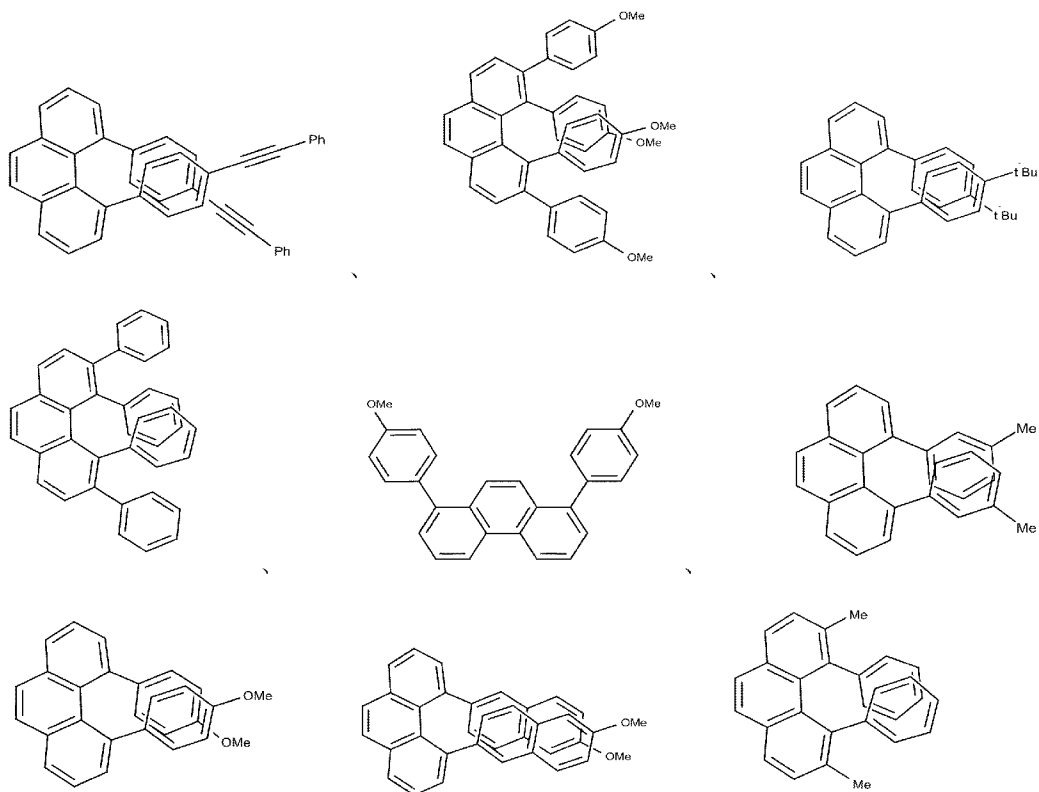
オレニル基、フェナレニル基、フェナントレニル基等が挙げられる。

[0139] アリール基は、置換基を有することもできる。アリール基が置換されている場合の置換基としては、例えば、上記のアルキル基、上記のアルコキシ基、上記のアリール基、上記のヘテロアリール基、上記のボロン酸又はそのエステル基、シアノ基等が挙げられる。これらの置換基を有する場合、その個数は、例えば、1～5個とすることができる。

[0140] このフェナントレン化合物は、さらに、置換基を有することもできる。このような置換基としては、例えば、アルキル基、アルコキシ基、ヘテロアリール基、ボロン酸又はそのエステル基、シアノ基等が挙げられる。これらの置換基は、上記したものを採用できる。

[0141] このような1個以上のアリール基で置換され、ハロゲン原子を含まないフェナントレン化合物としては、例えば、

[0142] [化20]



[0143] [式中、Phはフェニル基を示す。Meはメチル基を示す。tBuはtert-ブチル基を示す。]

等が挙げられる。

[0144] このような1個以上のアリール基で置換され、ハロゲン原子を含まないフェナントレン化合物は、公知又は市販品を使用することができ、また、例えば、既報 (Chem. Sci. 2019, 10, 5470-5475.) に記載の方法にしたがって合成することができる。

[0145] [1-3-3] ワープドナノグラフェン化合物

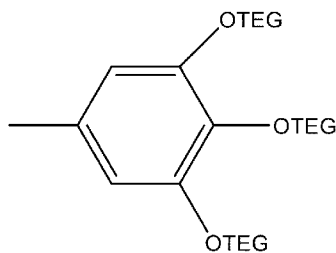
ワープドナノグラフェン化合物は、フラレン、カーボンナノチューブ、グラフェン等とは異なり、5個の七角形構造に由来する「うねり」(湾曲)構造を有するナノカーボンである。

[0146] ワープドナノグラフェン化合物は、特に制限されないが、シンチレーター能、計測の空間分解能等の観点から、

(3C-1) 親水基非含有ワープドナノグラフェン化合物
等が好ましい。

[0147] なお、親水基非含有ワープドナノグラフェン化合物が含有しない親水基としては、水酸基、カルボキシ基、スルホン酸基、ヒドロキシアルキル基、アミド基、アルキレンオキシド基、アンモニウム基等や、一般式(6)：

[0148] [化21]



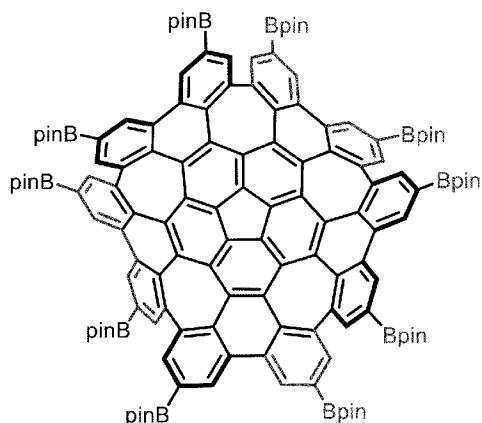
[0149] [式中、TEGはテトラエチレングリコール基を示す。]

で表される基等が挙げられる。

[0150] このような親水基非含有ワープドナノグラフェン化合物としては、例えば

[0151]

[化22]



[0152] [式中、Bpinはピナコレートボリル基を示す。]

等が挙げられる。

[0153] このような親水基非含有ワープドナノグラフェン化合物は、公知又は市販品を使用することができ、また、例えば、既報 (Angew. Chem. Int. Ed. 2018, 57, 2874-2878.) に記載の方法にしたがって合成することができる。

[0154] (1-4) 有機シンチレーション材料

本発明の有機シンチレーション材料は、上記した化合物を含有していることから、精密有機合成によるナノカーボンの分子デザインに基づき、蛍光波長、溶解性、シンチレーション能等の向上及び調整が可能である。

[0155] 本発明の有機シンチレーション材料は、溶媒を用いて懸濁又は溶解させて懸濁液又は溶液として使用することができる。使用できる溶媒としては、特に制限されないが、例えば、水、トルエン、N,N-ジメチルホルムアミド (DMF) 等が挙げられる。

[0156] 特に、本発明の有機シンチレーション材料においては、生体への毒性がない溶媒に溶解させることができるため、生体用に適用可能な初めてのシンチレーション材料となり得る。なお、本発明の第2の態様では、上記した多環芳香族化合物が溶媒中に存在する溶液を使用することが必須である。

[0157] このような本発明の有機シンチレーション材料には、上記した多環芳香族化合物以外にも、有機シンチレーション材料に含ませることができる添加剤を含ませることも可能である。ただし、ごく微量でも優れたシンチレーショ

ン能を発揮しやすい観点からは、固形分の総量を100モル%として、通常使用されるマトリックスである高分子化合物の含有量を低減し、0~40モル%、特に0~20モル%、さらに0~10モル%とすることも可能である。

[0158] このような本発明の有機シンチレーション材料は、液体シンチレーションカウンターによる放射性物質の測定に使用することができる他、放射線検出器に組み込むことができる等、放射性物質を検出する様々な場面で利用することができる。また、本発明の有機シンチレーション材料は、医薬等、生体を用いた研究用資材としても利用することができる。

[0159] 本発明の有機シンチレーション材料が溶液である場合、上記した多環芳香族化合物の含有量は、特に制限されないが、ごく微量でも優れたシンチレーション能を発揮することができる。このため、本発明の有機シンチレーション材料が溶液である場合、上記した多環芳香族化合物の含有量は、0.005~10mmol/Lが好ましく、0.1~1mmol/Lがより好ましい。

[0160] 本発明の有機シンチレーション材料が溶液である場合、上記した多環芳香族化合物の含有量は、ごく微量でも優れたシンチレーション能を発揮することができる。このため、本発明の有機シンチレーション材料が溶液である場合、上記した多環芳香族化合物の含有量は、 1.00×10^{-4} ~5質量%が好ましく、 1.50×10^{-4} ~1質量%がより好ましく、 2.00×10^{-4} ~ 1.00×10^{-2} 質量%がさらに好ましい。なお、本発明の第2の態様では、上記した多環芳香族化合物の含有量が 1.00×10^{-4} ~5質量%であることが必須である。

[0161] また、本発明の放射線測定器は、本発明の有機シンチレーション材料を含有すること以外は従来の放射線測定器と同様とすることができる。この場合、本発明の有機シンチレーション材料はごく微量でも優れたシンチレーション能を発揮することができる。

実施例

- [0162] 以下に実施例等を挙げて本発明を具体的に説明するが、本発明はこれらに何ら限定されるものではない。
- [0163] [実施例 1 ~ 5 3]
- 実施例 1 の有機シンチレーション材料は、既報 (Science 2019, 365, 272-276.) に記載の方法にしたがって合成した。
- [0164] 実施例 2 の有機シンチレーション材料は、既報 (Angew. Chem. Int. Ed. 2010, 49, 10202-10205.) に記載の方法にしたがって合成した。
- [0165] 実施例 3、5 及び 8 の有機シンチレーション材料は、既報 (Chem. Sci. 2012, 3, 2340-2345.) に記載の方法にしたがって合成した。
- [0166] 実施例 4 の有機シンチレーション材料は、既報 (Angew. Chem. Int. Ed. 2009, 48, 6112-6116.) に記載の方法にしたがって合成した。
- [0167] 実施例 6、11、16、30、41 及び 42 の有機シンチレーション材料は、既報 (Angew. Chem. Int. Ed. 2017, 56, 12224-12228.) に記載の方法にしたがって合成した。
- [0168] 実施例 9、12、15、32 及び 33 の有機シンチレーション材料は、既報 (Nature Commun. 2015, 6, 6251 (doi: 10.1038/ncomms7251).) に記載の方法にしたがって合成した。
- [0169] 実施例 10 の有機シンチレーション材料は、既報 (Org. Lett. 2012, 14, 1888-1991.) に記載の方法にしたがって合成した。
- [0170] 実施例 13 及び 34 の有機シンチレーション材料は、既報 (Angew. Chem. Int. Ed. 2020, 59, 6551-6554.) に記載の方法にしたがって合成した。
- [0171] 実施例 14、17、18、20、21、23~29、35、45、46、49、51 及び 52 の有機シンチレーション材料は、既報 (Chem. Sci. 2018, 9, 7556-7561.) に記載の方法にしたがって合成した。
- [0172] 実施例 19 及び 38 の有機シンチレーション材料は、既報 (Science 2018, 359, 435-439.) に記載の方法にしたがって合成した。
- [0173] 実施例 22、31、37、43、44、47、48、50 及び 53 の有機シンチレーション材料は、既報 (Chem. Sci. 2019, 10, 5470-5475.) に記載

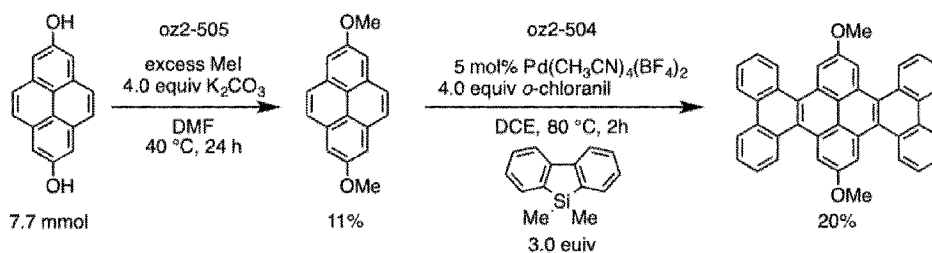
の方法にしたがって合成した。

[0174] 実施例 36 及び 40 の有機シンチレーション材料は、市販品の化合物を使用した。

[0175] 実施例 39 の有機シンチレーション材料は、既報 (Angew. Chem. Int. Ed. 2018, 57, 2874-2878.) に記載の方法にしたがって合成した。

[0176] 実施例 7 の有機シンチレーション材料は、以下の方法で合成した。

[0177] [化23]



[0178] 式中、Me はメチル基を示す。DMF はジメチルホルムアミドを示す。DCE は 1, 2-ジクロロエタンを示す。

[0179] 2, 7-ジヒドロキシピレン (1800 mg, 7.7 mmol)、MeI (CH₃I; 過剰量) 及び K₂CO₃ (2100 mg, 30.8 mmol, 4.0 当量) を、乾燥ジメチルホルムアミド (DMF; 120 mL) 中、40 °C で 24 時間攪拌することで反応を進行させた。水を加えることにより反応を停止し、酢酸エチルを用いた抽出操作及びシリカカラムクロマトグラフィーにより精製し、2, 7-ジメトキシピレンを得た (216.7 mg, 0.847 mmol, 11%)。

[0180] 次に、得られた 2, 7-ジメトキシピレン (52.7 mg, 0.2 mmol)、9, 9-ジメチル-9H-9-ジベンゾ [b, d] シロール (126.7 mg, 0.6 mmol, 3.0 当量)、Pd(CH₃CN)₄(BF₄)₂ (4.4 mg, 0.01 mmol, 5 mol%)、o-クロラニル (197.4 mg, 0.8 mmol, 4.0 当量) を、乾燥ジクロロエタン (DCE; 2.0 mL) 中、80 °C で 2 時間攪拌することで反応を進行させた。反応温度を室温に昇温させることにより反応を停止し、薄層シリカカラムクロマトグラフィー

ーにより精製し、実施例7の有機シンチレーション材料であるジメトキシヘキサベンゾテトラセンを得た(22.8 mg, 0.04 mmol, 20%)。¹H NMR (400 MHz, CDCl₃) δ 8.91 (d, J = 7.2 Hz, 4H), 8.77 (d, J = 7.6 Hz, 4H), 8.51 (s, 4H), 7.73 (t, J = 7.6 Hz, 4H), 7.65 (t, J = 7.6 Hz, 4H), 4.07 (s, 6H)。

[0181] [試験例1：シンチレーション能の測定]

(1) 放射性同位体ー有機シンチレーション材料混合プレートの作製

N, N-ジメチルホルムアミド(DMF)に、表1~6に示す有機シンチレーション材料(原則1 mM、化合物により一部例外あり)を溶解させた。また、これとは別に、N, N-ジメチルホルムアミド(DMF)に、アントラセンを7.8 mM溶解させた。96穴プレート(Isoplate-96、株式会社パーキンエルマージャパン)に、得られた溶液を5 μLずつ分注し、さらに放射性同位体(RI)である³⁵S-硫酸を10 μL(1 kBq)ずつ加えた。遠心機にて1分間遠心(1000 rpm)した後、無色透明なプレートシールにてウェルを封じた。

[0182] (2) 放射線による発光量の測定

作製したRIー有機シンチレーション材料混合プレートの各ウェルにおける発光を、マイクロプレートRI・グロー発光測定システム(MicroBeta²、株式会社パーキンエルマージャパン)により測定した。MicroBeta²は、サンプルの上下に装備された光電子増倍管での同時計数法により発光測定を行う装置であり、1サンプルにつき1分間1回測定を行った。化合物自身の蓄光による発光を防ぐために、プレートを装置にセットし、暗環境状態に置いてから1時間後に測定を開始した。

[0183] (3) 測定結果の解析

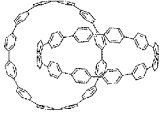
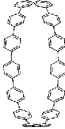
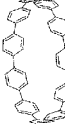
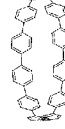
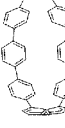
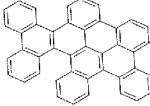
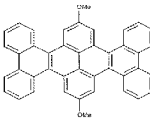
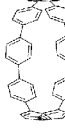
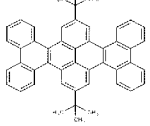
上記(2)により得たアントラセン、及び各有機シンチレーション材料の測定結果を基にして、各有機シンチレーション材料を0.2 mM、0.5 mM又は1 mM相当になるように測定値(cpm)を補正した。この測定値は

、1分あたりのカウント数であり、数値が大きいほど強く光ることを意味している。なお、アントラセンは、各実施例の有機シンチレーション材料より極めて高濃度である7.8 mMにおいて、測定値 (cpm) は約71である。さらには、各有機シンチレーション材料の値をアントラセンの値で除することで、アントラセン相対比 (cpm/cpm) とする値に変換した。

[0184] 結果を表1～6に示す。

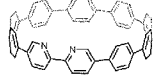
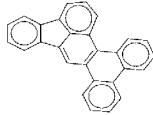
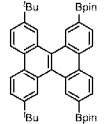
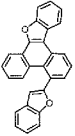
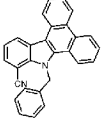
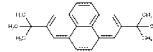
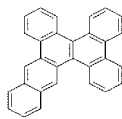
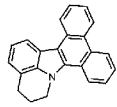
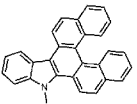
[0185]

[表1]

実施例	構造	MW	組成式	ケミカル スクリーニング (cpm)	mol濃度	質量濃度	アントラセン相対比 (cpm/アントラセンcpm)
1		1,826.35	C144H96	3764	0.2mM	3.87×10^{-4} 質量%	414
2		1,141.47	C90H60	7751	1mM	1.21×10^{-3} 質量%	852
3		837.08	C66H44	7462	1mM	8.87×10^{-4} 質量%	820
4		913.18	C72H48	7357	1mM	9.67×10^{-4} 質量%	808
5		760.98	C60H40	6807	1mM	8.06×10^{-4} 質量%	748
6		526.64	C42H22	2655	0.5mM	2.79×10^{-4} 質量%	292
7		562.67	C42H26O2	4597	1mM	5.96×10^{-4} 質量%	505
8		684.88	C54H36	4567	1mM	7.26×10^{-4} 質量%	502
9		614.83	C48H38	4113	1mM	6.51×10^{-4} 質量%	452

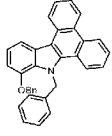
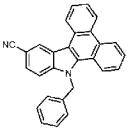
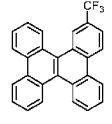
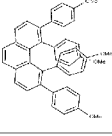
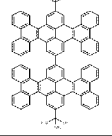
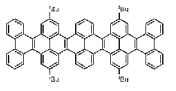

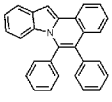
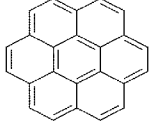
[0186]

[表2]

実施例	構造	MW	組成式	ケミカル スクリーニング (cpm)	mol濃度	質量濃度	アントラセン相対比 (cpm/アントラセンcpm)
10		762.96	C58H38N2	3961	1mM	8.08×10^{-4} 質量%	435
11		352.44	C28H16	2818	1mM	3.73×10^{-4} 質量%	310
12		692.55	C46H54B2O4	2760	1mM	7.34×10^{-4} 質量%	303
13		384.43	C28H16O2	2620	1mM	4.07×10^{-4} 質量%	288
14		382.47	C28H18N2	2443	1mM	4.05×10^{-4} 質量%	268
15		314.47	C24H26	2302	1mM	3.33×10^{-4} 質量%	253
16		378.47	C30H18	2162	1mM	4.01×10^{-4} 質量%	238
17		307.40	C23H17N	2151	1mM	3.26×10^{-4} 質量%	236
18		381.48	C29H19N	1973	1mM	4.04×10^{-4} 質量%	217

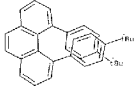
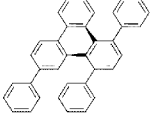
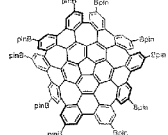
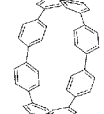
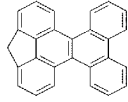
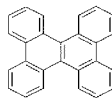
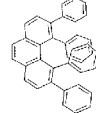
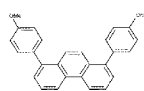
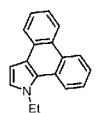
[0187]

[表4]

実施例	構造	MW	組成式	ケミカル スクリーニング (cpm)	mol濃度	質量濃度	アントラセン相対比 (cpm/アントラセンcpm)
28		463.58	C ₃₄ H ₂₅ NO	1088	1mM	4.91×10 ⁻⁴ 質量%	120
29		382.47	C ₂₈ H ₁₈ N ₂	1050	1mM	4.05×10 ⁻⁴ 質量%	115
30		396.41	C ₂₇ H ₁₅ F ₃	1003	1mM	4.20×10 ⁻⁴ 質量%	110
31		602.73	C ₄₂ H ₃₄ O ₄	865	1mM	6.38×10 ⁻⁴ 質量%	95
32		1,115.43	C ₈₈ H ₅₈	739	1mM	1.18×10 ⁻³ 質量%	81
33		1,075.45	C ₈₄ H ₆₆	660	1mM	1.14×10 ⁻³ 質量%	73
34		424.50	C ₂₈ H ₂₄ O ₄	566	1mM	4.50×10 ⁻⁴ 質量%	62
35		369.47	C ₂₈ H ₁₉ N	453	1mM	3.91×10 ⁻⁴ 質量%	50
36		300.36	C ₂₄ H ₁₂	434	1mM	3.18×10 ⁻⁴ 質量%	48

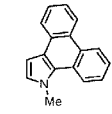
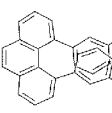
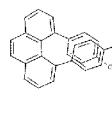
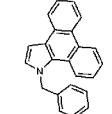
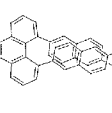
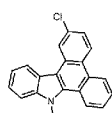
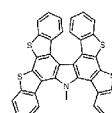
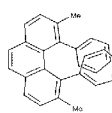
[0189]

[表5]

実施例	構造	MW	組成式	ケミカル スクリーニング (cpm)	mol濃度	質量濃度	アントラセン相対比 (cpm/アントラセンcpm)
37		442.65	C34H34	425	1mM	4.69×10 ⁻⁴ 質量%	47
38		456.59	C36H24	424	1mM	4.84×10 ⁻⁴ 質量%	47
39		2,250.74	C140H140B10O20	391	1mM	2.38×10 ⁻³ 質量%	43
40		608.78	C48H32	364	1mM	6.45×10 ⁻⁴ 質量%	40
41		340.43	C27H16	317	1mM	3.61×10 ⁻⁴ 質量%	35
42		328.41	C26H16	314	1mM	3.48×10 ⁻⁴ 質量%	35
43		482.63	C38H26	304	1mM	5.11×10 ⁻⁴ 質量%	33
44		390.48	C28H22O2	287	1mM	4.14×10 ⁻⁴ 質量%	32
45		245.33	C18H15N	246	1mM	2.60×10 ⁻⁴ 質量%	27

[0190]

[表6]

実施例	構造	MW	組成式	ケミカルスクリーニング (cpm)	mol濃度	質量濃度	アントラセン相対比 (cpm/アントラセンcpm)
46		231.30	C17H13N	184	1mM	2.45×10^{-4} 質量%	20
47		358.48	C28H22	160	1mM	3.80×10^{-4} 質量%	18
48		390.48	C28H22O2	160	1mM	4.14×10^{-4} 質量%	18
49		307.40	C23H17N	153	1mM	3.26×10^{-4} 質量%	17
50		490.60	C36H26O2	115	1mM	5.20×10^{-4} 質量%	13
51		315.80	C21H14ClN	113	1mM	3.35×10^{-4} 質量%	12
52		605.81	C37H19NS4	100	1mM	6.42×10^{-4} 質量%	11
53		358.48	C28H22	91	1mM	3.80×10^{-4} 質量%	10

[0191] [試験例 2 : 発光ピーク波長の測定]

シンチレーション光を利用した放射線検出器は、大多数が光電子倍增管によりシグナル電子を増幅させている。光電子倍增管は、シンチレーション光の波長により感度が大きく異なることが判明しており、400~500 nmにおいてその感度が極大となる製品が多い（例えば、「光電子倍增管その基礎と応用」参照）。

[0192] そこで、ジメチルホルムアミド（DMF）に対して多環芳香族化合物を 1

mM溶解させた実施例9の有機シンチレーション材料に対して、電子線形加速器で35 MeVまで加速したパルス幅1ナノ秒（FWHM）の電子線をパルス照射し、発光ピーク波長を5ナノ秒のゲート幅で観測した。この結果、図1に示されるように、発光ピーク波長は約440 nmであることが理解することができ、多くの放射線検出器に適切な有機シンチレーション材料であることが示唆された。なお、図1において、各発光スペクトルは、それぞれ、上から順に、電子線パルス照射から測定の遅延時間を0ナノ秒、4ナノ秒、8ナノ秒、12ナノ秒、16ナノ秒、20ナノ秒、30ナノ秒とした場合の発光スペクトルである。

請求の範囲

- [請求項1] 4個以上の（複素）芳香環を有する多環芳香族化合物を含有し、前記多環芳香族化合物が、
- (1) カテナン化合物、
 - (2) カーボンナノリング化合物、
 - (3 A-1) 5個以上の（複素）芳香環が縮合している、ペリレンイミド環以外の縮合環を有する縮合環式平面化合物（1）、
 - (3 A-2) 1個の複素芳香環と3個の芳香環とが縮合した縮合環式平面化合物（2）、
 - (3 A-3) 1個以上のアリール基で置換され、ハロゲン原子を含まないトリフェニレン化合物、
 - (3 A-4) 1個以上の炭化水素基で置換されたピレン化合物、
 - (3 B-1) 1個以上のアリール基で置換され、ハロゲン原子を含まないフェナントレン化合物、及び
 - (3 C) ワープドナノグラフェン化合物
- よりなる群から選ばれる少なくとも1種の化合物である、有機シンチレーション材料。
- [請求項2] 有機溶媒中の溶液である、請求項1に記載の有機シンチレーション材料。
- [請求項3] 4個以上の（複素）芳香環を有する多環芳香族化合物が溶媒中に存在する溶液を含有する有機シンチレーション材料であって、前記多環芳香族化合物が、
- (1) カテナン化合物、
 - (2) カーボンナノリング化合物、及び
 - (3) 3個以上の（複素）芳香環が複合したアントラセン環以外の縮合環を有し、且つ、4個以上の（複素）芳香環を有する縮合環式化合物
- よりなる群から選ばれる少なくとも1種の化合物であり、

前記多環芳香族化合物の含有量が、前記有機シンチレーション材料の総量を100質量%として、 1.00×10^{-4} ~5質量%である、有機シンチレーション材料。

[請求項4]

前記縮合環式化合物が、

(3A) 4個以上の(複素)芳香環が縮合した縮合環を有する縮合環式平面化合物、

(3B) 4個以上の(複素)芳香環を有するフェナントレン化合物、及び

(3C) ワープドナノグラフェン化合物

よりなる群から選ばれる少なくとも1種である、請求項3に記載の有機シンチレーション材料。

[請求項5]

前記縮合環式平面化合物が、

(3A-1) 5個以上の(複素)芳香環が縮合している、ペリレンイミド環以外の縮合環を有する縮合環式平面化合物(1)、

(3A-2) 1個の複素芳香環と3個の芳香環とが縮合した縮合環式平面化合物(2)、

(3A-3) 1個以上のアリール基で置換され、ハロゲン原子を含まないトリフェニレン化合物、及び

(3A-4) 1個以上の炭化水素基で置換されたピレン化合物

よりなる群から選ばれる少なくとも1種である、請求項4に記載の有機シンチレーション材料。

[請求項6]

前記フェナントレン化合物が、

(3B-1) 1個以上のアリール基で置換され、ハロゲン原子を含まないフェナントレン化合物

である、請求項4に記載の有機シンチレーション材料。

[請求項7]

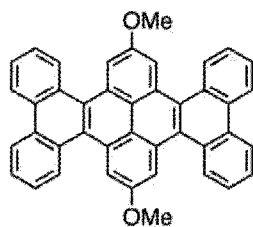
前記ワープドナノグラフェン化合物が、

(3C-1) 親水基非含有ワープドナノグラフェン化合物

である、請求項4に記載の有機シンチレーション材料。

- [請求項8] 前記カテナン化合物が、
(1 A) 2以上のシクロパラフェニレン化合物が、絡み合っ幾何学的に連結したインターロック化合物
である、請求項1又は3に記載の有機シンチレーション材料。
- [請求項9] 前記カーボンナノリング化合物が、
(2 A) 8～30個のベンゼン環を有するシクロパラフェニレン化合物、及び
(2 B) 9～30個の(複素)芳香環が環状に単結合で結合したヘテロ元素含有カーボンナノリング化合物
よりなる群から選ばれる少なくとも1種である、請求項1又は3に記載の有機シンチレーション材料。
- [請求項10] 前記有機シンチレーション材料中に含まれる固形分の総量を100モル%として、高分子化合物の含有量が0～40モル%である、請求項2又は3に記載の有機シンチレーション材料。
- [請求項11] 請求項1又は3に記載の有機シンチレーション材料を含有する、放射線測定器。
- [請求項12] 式：

[化1]



[式中、Meはメチル基を示す。]

で表される化合物。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2022/021418

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER		
<p><i>C07C 15/14</i>(2006.01)i; <i>C07C 15/20</i>(2006.01)i; <i>C07C 43/20</i>(2006.01)i; <i>C07D 471/04</i>(2006.01)i; <i>C09K 11/06</i>(2006.01)i; <i>G01T 1/203</i>(2006.01)i; <i>C07D 209/80</i>(2006.01)i; <i>C07D 213/22</i>(2006.01)i; <i>C07D 307/81</i>(2006.01)i FI: C09K11/06 601; C07C15/20; C07C15/14; C07D213/22; C07D209/80; C07D471/04 104A; C07D307/81; G01T1/203; C07C43/20 D CSP</p> <p>According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC</p>		
B. FIELDS SEARCHED		
Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) C07C15/14; C07C15/20; C07C43/20; C07D471/04; C09K11/06; G01T1/203; C07D209/80; C07D213/22; C07D307/81		
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched Published examined utility model applications of Japan 1922-1996 Published unexamined utility model applications of Japan 1971-2022 Registered utility model specifications of Japan 1996-2022 Published registered utility model applications of Japan 1994-2022		
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used) CAplus/REGISTRY (STN); JSTPlus/JMEDPlus/JST7580 (JDreamIII)		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 58-40359 A (BASF AKTIENGESELLSCHAFT) 09 March 1983 (1983-03-09) claims, page 4, upper right column, line 16 to page 5, upper left column, page 10, lower left column, lines 8-13, page 10, lower left column, line 14 to lower right column, line 5, page 10, lower right column, line 14 to page 18, examples	1-11
A	entire text	12
X	WO 2019/131370 A1 (TORAY INDUSTRIES, INCORPORATED) 04 July 2019 (2019-07-04) claim 1, paragraphs [0027]-[0031], [0054], [0058]-[0087], tables 1-4, example 1	1-9, 11
A	entire text, all drawings	10, 12
X	US 5606638 A (NANOPTICS INCORPORATED) 25 February 1997 (1997-02-25) claim 1, column 4, lines 49-57, column 5, lines 5-7	1-11
A	entire text, all drawings	12
<input checked="" type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input checked="" type="checkbox"/> See patent family annex.		
<p>* Special categories of cited documents:</p> <p>“A” document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance</p> <p>“E” earlier application or patent but published on or after the international filing date</p> <p>“L” document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)</p> <p>“O” document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means</p> <p>“P” document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed</p> <p>“T” later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention</p> <p>“X” document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone</p> <p>“Y” document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art</p> <p>“&” document member of the same patent family</p>		
Date of the actual completion of the international search 27 July 2022		Date of mailing of the international search report 09 August 2022
Name and mailing address of the ISA/JP Japan Patent Office (ISA/JP) 3-4-3 Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915 Japan		Authorized officer Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2022/021418

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2001-354862 A (IRIE, Masahiro) 25 December 2001 (2001-12-25) claims 1, 7-8, paragraphs [0026], [0046]	1-11
A	entire text	12
A	JP 2019-4058 A (TOSOH CORPORATION) 10 January 2019 (2019-01-10) entire text, all drawings	12
A	WO 2012/169635 A1 (NATIONAL UNIVERSITY CORPORATION NAGOYA UNIVERSITY) 13 December 2012 (2012-12-13) entire text, all drawings	12
A	OZAKI, Kyohei et al. One-shot K-region-selective annulative π -extension for nanographene synthesis and functionalization. Nature Communications. 16 February 2015, 6, 6251, DOI: 10.1038/ncomms7251 entire text	12
A	JP 9-511055 A (BRITISH NUCLEAR FUELS PUBLIC LIMITED COMPANY) 04 November 1997 (1997-11-04) entire text, all drawings	1-12

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.

PCT/JP2022/021418

Patent document cited in search report			Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)	Publication date (day/month/year)
JP	58-40359	A	09 March 1983	US 4486587 A claims, column 1, line 25 to column 2, line 40, column 11, lines 22-28, column 11, lines 29-38, column 11, line 48 to column 26, examples	
WO	2019/131370	A1	04 July 2019	US 2021/0173100 A1 claim 1, paragraphs [0037]-[0041], [0058], [0062]-[0095], tables 1-4, example 1	
US	5606638	A	25 February 1997	(Family: none)	
JP	2001-354862	A	25 December 2001	(Family: none)	
JP	2019-4058	A	10 January 2019	(Family: none)	
WO	2012/169635	A1	13 December 2012	US 2014/0206908 A1 entire text, all drawings	
JP	9-511055	A	04 November 1997	US 5712166 A entire text, all drawings	

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC）） C07C 15/14(2006.01)i; C07C 15/20(2006.01)i; C07C 43/20(2006.01)i; C07D 471/04(2006.01)i; C09K 11/06(2006.01)i; G01T 1/203(2006.01)i; C07D 209/80(2006.01)i; C07D 213/22(2006.01)i; C07D 307/81(2006.01)i FI: C09K11/06 601; C07C15/20; C07C15/14; C07D213/22; C07D209/80; C07D471/04 104A; C07D307/81; G01T1/203; C07C43/20 D CSP		
B. 調査を行った分野 調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC）） C07C15/14; C07C15/20; C07C43/20; C07D471/04; C09K11/06; G01T1/203; C07D209/80; C07D213/22; C07D307/81 最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの 日本国実用新案公報 1922-1996年 日本国公開実用新案公報 1971-2022年 日本国実用新案登録公報 1996-2022年 日本国登録実用新案公報 1994-2022年 国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語） CAplus/REGISTRY (STN); JSTPlus/JMEDPlus/JST7580 (JDreamIII)		
C. 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
X	JP 58-40359 A (バフ・アクチエンゲゼルシャフト) 09.03.1983 (1983-03-09) 特許請求の範囲, 第4頁右上欄第16行-第5頁左上欄, 第10頁左下欄第8-13行, 第10頁 左下欄第14行-同頁右下欄第5行, 第10頁右下欄第14行-第18頁, 実施例	1-11
A	全文	12
X	WO 2019/131370 A1 (東レ株式会社) 04.07.2019 (2019-07-04) 請求項1, 段落[0027]-[0031], [0054], [0058]-[0087], 表1-4, 実施例1	1-9, 11
A	全文, 全図	10, 12
X	US 5606638 A (NANOPTICS INCORPORATED) 25.02.1997 (1997-02-25) 請求項1, 第4欄第49-57行, 第5欄第5-7行	1-11
A	全文, 全図	12
X	JP 2001-354862 A (入江 正浩) 25.12.2001 (2001-12-25) 請求項1, 7-8, 段落[0026], [0046]	1-11
A	全文	12
<input checked="" type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。 <input checked="" type="checkbox"/> パテントファミリーに関する別紙を参照。		
* 引用文献のカテゴリー “A” 特に関連のある文献ではなく、一般的な技術水準を示すもの “E” 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に 公表されたもの “L” 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若し くは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を 付す） “O” 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献 “P” 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の 後に公表された文献 “T” 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と抵 触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引 用するもの “X” 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性 又は進歩性がないと考えられるもの “Y” 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献 との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がな いと考えられるもの “&” 同一パテントファミリー文献		
国際調査を完了した日	国際調査報告の発送日	
27.07.2022	09.08.2022	
名称及びあて先 日本国特許庁(ISA/JP) 〒100-8915 日本国 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	権限のある職員（特許庁審査官） 川嶋 宏毅 4V 1777 電話番号 03-3581-1101 内線 3478	

C. 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリ*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
A	JP 2019-4058 A (東ソー株式会社) 10.01.2019 (2019 - 01 - 10) 全文, 全図	12
A	WO 2012/169635 A1 (国立大学法人名古屋大学) 13.12.2012 (2012 - 12 - 13) 全文, 全図	12
A	OZAKI, Kyohei et al., One-shot K-region-selective annulative π -extension for nanographene synthesis and functionalization, NATURE COMMUNICATIONS, 2015.02.16, 6, 6251, DOI: 10.1038/ncomms7251 全文	12
A	JP 9-511055 A (ブリティッシュ・ニュークリア・フューエルズ・パブリック・リミテッド・カンパニー) 04.11.1997 (1997 - 11 - 04) 全文, 全図	1-12

国際調査報告
 パテントファミリーに関する情報

国際出願番号

PCT/JP2022/021418

引用文献	公表日	パテントファミリー文献	公表日
JP 58-40359 A	09.03.1983	US 4486587 A 特許請求の範囲, 第1欄第25行-第2欄第40行, 第11欄第22-28行, 第11欄第29-38行, 第11欄48行-第26欄, 実施例	
WO 2019/131370 A1	04.07.2019	US 2021/0173100 A1 請求項1, 段落[0037]-[0041], [0058], [0062]-[0095], 表1-4, 実施例1	
US 5606638 A	25.02.1997	(ファミリーなし)	
JP 2001-354862 A	25.12.2001	(ファミリーなし)	
JP 2019-4058 A	10.01.2019	(ファミリーなし)	
WO 2012/169635 A1	13.12.2012	US 2014/0206908 A1 全文, 全図	
JP 9-511055 A	04.11.1997	US 5712166 A 全文, 全図	