研究成果報告書 科学研究費助成事業



令和 元 年 6 月 2 4 日現在

機関番号: 17102					
研究種目:基盤研究(B)(一般)					
研究期間: 2016~2018					
課題番号: 16H04219					
研究課題名(和文)ダブルレセプター機能によるバイオマーカーガスのppbレベル検知					
研究課題名(英文)Semiconductor gas sensor by introducing double receptors for ppb detection of bio-marker gases					
с со					
研究代表者					
島ノ江 憲剛 (Shimanoe, Kengo)					
九州大学・総合理工学研究院・教授					
− − − − − − − − − − − − − − − − − − −					
交付決定額(研究期間全体):(直接経費) 13,200,000円					

研究成果の概要(和文):本研究では、これまで構築してきた半導体ガスセンサの設計指針に、新たな表面レセ ブターとしてダブルレセプターの概念を導入することで、ppbレベルでの有機ガス、特に呼気中の癌バイオマー カーの検出を行うことを目的とした。本研究の主な成果は二つある。一つは、酸素を放出するペロブスカイト型 酸化物粒子をセンサ材料に混合すると、パルス駆動により酸素を放出し、センサ感度が上昇することを明らかに した。次に、レセプター担持クラスター粒子についてパルス加熱条件を検討したところ、pptレベルでトルエン を検知できることを見出した。この結果は半導体ガスセンサの世界最高感度を更新した。

研究成果の学術的意義や社会的意義 本研究は、超高感度マイクロガスセンサの設計に関するものであり、増感作用のためのレセプター効果や素子の 駆動方法に新たな概念を導入し、世界最高感度のガスセンサを構築したものである。これらの成果は、学術会議 や化学雑誌に掲載されるのみならず、新聞にも掲載された。また、科学雑誌では、そのインパクトの大きさから モデル図が雑誌の表紙に採択された。

研究成果の概要(英文): In this study, I aimed to detect organic gases in ppb level particularly cancer biomarker in expiration by introducing the new concept of the double receptors into the materials design of the semiconductor gas sensor which I proposed so far. There is two main results in this study. At first, it was found that when the perovskite type oxide particles were mixed with sensor material of SnO2, the oxygen released from the perovskite type oxide by pulse heating enhanced sensor response. Secondly, after optimizing pulse heating conditions, receptor-loaded cluster particles could detect toluene in ppt level. This result updated the world's best sensitivity of the semiconductor gas sensor.

研究分野:機能材料学

キーワード: ガスセンサ 超高感度 レセプター ppt 金属酸化物 半導体 バイオマーカー 呼気

様 式 C-19、F-19-1、Z-19、CK-19(共通)

1.研究開始当初の背景

半導体ガスセンサでは、ガスと酸化物上の吸着酸素との反応により、酸化物粒子間の粒界ポ テンシャルが変化して電気抵抗が変わると考えられており、申請者のグループではこれまで以 下の重要な設計因子を明らかにしている。

(1)トランスデューサ機能(粒子径とドナー密度を制御することにより、センサのガス感度(空気中とガス中での電気抵抗の比)を著しく向上できる)

(2)レセプター機能(酸化物粒子表面に Pd などの活性の高い成分をナノ粒子として分散すると 電子的あるいは化学的な機構により感度が飛躍的に向上する)

(3) 感応体利用率(ガスが多孔質感応体のすみずみまで到達できるような高次構造にすれば感度が格段に向上する)

これまで本研究者は、これら三つの因子に関する更なる展開として以下の新しい知見を見出 している。

・測定環境に水蒸気が存在すると、酸素吸着種は O²⁻から O⁻となり、センサ感度を著しく低下させる。つまり、呼気のような水蒸気濃度が 4vol%となる場合には、O2-吸着を積極的に形成することが必要である。

・1 に関連したレセプター効果として、Pd のサイズを 3nm 以下にすると 4vol%の水蒸気を存在しても水蒸気のセンサ感度への影響を著しく抑制できる (ナノ Pd 上への O²の吸着効果)。

・表面修飾によるレセプター効果として、Fe³⁺や Sb⁵⁺の表面修飾が水蒸気存在下で O²⁻の吸 着を促進する。

・トランスデューサ機能と利用効率を融合した効果として、ナノ粒子をクラスター化することにより、大きなポアを導入することが可能となり、大きな分子でも感応体の利用効率を飛躍的に向上させることができる。さらに、そのナノサイズ Pd を担持した SnO₂ クラスターを基にしたガスセンサが、ガス分子サイズが大きなトルエンでも ppb レベルで検知できることを世界で初めて示した。

以上の研究成果から、ppb レベルのガス分子を水蒸気存在下でも高感度に検知できる可能性が生まれてきた。一方、最近のガスセンサ研究の動向として、ppb レベルの極微量ガス検知を ヘルスケアあるいは医療の初期診断(バイオマーカー診断)に応用しようとする提案がある。

2.研究の目的

上記の背景から、超高感度ガスセンサの設計指針を構築するために、以下を研究目的に設定 した

(1) ガス種の選択的検知を目指したダブルレセプター触媒の検討

(2) 貴金属担持による SnO₂ 内部の空乏層拡張の検証と水蒸気吸着抑制メカニズムの検討

(3)レセプター担持センサによる高機能センシングの検討

3.研究の方法

上記の目的に対して、それぞれ以下のようにして研究を行った。

(1) SnCl₄·5H₂O と NH₄HCO₃を出発原料と逆均一沈殿法を用いて調製した SnO₂ 粉末及び 0.2mol%Pd 担持 SnO₂ クラスター粒子(Pd-SnO2)を得て、これをペロブスカイト型酸化物 (La0.1Sr0.9Co0.4Fe0.6O3-δ (LSCF)あるいは Ba0.95La0.05FeO3 (BLF))と混合し、MEMS 型半 導体ガスセンサを作製した。センサ素子の膜厚は約 40-60 μm であった。素子背面に搭載したマ イクロヒータのパルス加熱(ヒータ ON 時間:5 s, OFF 時間:5 s)により制御し、各種ガスに対して センサ感度を測定した。

(2)SnO₂および Sb-SnO₂(0.1mol%)は逆均一沈殿法を用いて調製した⁽¹⁾。得られた前駆体は、 600-700°Cで焼成した。スクリーン印刷法を用いてセンサ膜を作製後、580°Cで焼成し、更に前 処理として異なる酸素分圧下で3時間熱処理した。その後、雰囲気を保持したまま2°C/minで センサ作動温度である350°Cまで冷却し、センサ素子の電気抵抗値の安定を確認後、電気抵抗 値の酸素分圧依存性を測定した。測定は、乾燥及び湿潤雰囲気下(P_{H2O}=0.03atm,24°Cの時の飽 和水蒸気圧)で行った。得られた電気抵抗値と酸素分圧の関係から式(1)を用いて酸素吸着平衡定 数や吸着酸素濃度を算出した。SnO₂、Sb-doped SnO₂のドナー濃度は、それぞれ0.0056(nm⁻³)、 0.034(nm⁻³)の値を用いた。

(3)上記(1)の0.2mol%Pd 担持 SnO₂クラスター粒子を用いて MEMS 型半導体ガスセン サを作製した。センサ素子の膜厚は約40 µm であった。作製した0.2mol%Pd 担持 SnO₂クラス ター粒子の素子を素子背面に搭載したマイクロヒータのパルス加熱(ヒータ ON 時間:5 s, OFF 時 間:100 s)により制御し、1,2,4,6,7.9 ppb C₇H₈/air,を被検ガスとして電気抵抗値の変化を評価し た。また作製した SnO₂粒子を N₂ 80%, O₂ 20% ガス中において(ヒータ ON 時間:5 s, OFF 時間:5,60, 100s)に制御し 1,2,4,6,7.9 ppb C₇H₈/air,を被検ガスとして電気抵抗値の変化を評価した。

4.研究成果

(1)ダブルレセプター触媒の検討

ペロブスカイト型酸化物を含むセンサ膜をパルス加熱するとペロブスカイト型酸化物から酸素が放出され、センサ膜内の酸素分圧が上昇し、Pd-SnO2表面への酸素吸着が上昇することが 期待される。さらに、酸素吸着量が増大することにより、多くの可燃性ガスと反応が速やかに



図 1 ペロブスカイト型酸化物を混合した MEMS 型 Pd-SnO2 センサの応答特性 (左: 200ppm の CO 検知特性、右: 200ppm のトルエン検知特性)

進行し、感度が上昇することが考えられる。図1にPd-SnO2、LSCF+Pd-SnO2、BLF+Pd - SnO2 の各温度に対する CO およびトルエンの応答特性を示す。ペロブスカイト型酸化物を混合し、 作動温度を250℃にすると感度が著しく上昇することがわかる。また、COの反応ではLSCFが、 トルエンとの反応ではBLFが感度上に有効に働くことが示された。このような酸素吸着特性を 基に超高感度ガスセンサを検討したところ、後に示すパルス応答による ppt レベル検知に結び 付いている。

(2) 空乏層拡張の検証と水蒸気吸着抑制メカニズムの検討

(2.1) 焼成および前処理時の酸素分圧が吸着酸素に与える影響

焼成、前処理による粒子表 面状態が酸素吸着挙動に与 える影響を調査するため、 700℃、酸素あるいは窒素流 通下で3時間焼成した SnO₂ を用いて,580℃前処理時の 酸素を 100,1,0.1%とし 350℃における酸素吸着挙動 について検討した。700℃焼 成により得られた SnO2の結 晶子半径 a は、O₂、N₂焼成 でいずれも 7.0nm であった。 また、今回の条件では、R₀ に大きな変化がみられなか ったため、Np は一定として 解析した。図2に各試料の前 処理時の酸素分圧と吸着酸 素量の関係を示す。前処理時 の酸素分圧によらず、O²⁻が Oよりも優先的に吸着する ことが明らかとなった。N₂ 中焼成試料が O₂ 中焼成に比 べ、O-吸着酸素量がわずかに 多く、O-が少ないことから、 高温焼成時に導入された酸 素欠陥あるいは表面構造等 が酸素吸着サイトに関係し ていると推察される。一方、 前処理時の酸素分圧の影響 をみると、酸素分圧減少に伴 い、 O⁻は増加し, O²⁻は減 少する傾向が得られ、全吸着 酸素量は増加傾向にあるた め、前処理時の雰囲気によっ ても表面状態の改質が起こ り、酸素吸着サイトが変化す ると考えられる。また、酸素 吸着挙動は、焼成雰囲気より



図 2 580 前処理時の酸素分圧と センサ作動温度 350 における(a)O-及び O²-濃度及び(b)全吸着酸素量の関係

表1 乾燥雰囲気下での各試料の吸着酸素濃度

試料	前処理	[0 ⁻]	[0 ²⁻]	[0 ²⁻] + [0 ⁻]
		(nm ⁻²)	(nm ⁻²)	(nm ⁻²)
Sn0 ₂	02	1.3×10 ⁻⁴	5.1 × 10 ⁻³	5.2×10 ⁻³
	N ₂	2.6×10 ⁻³	3.9×10 ⁻³	6.5×10 ⁻³
Sb-Sn02	02	4.1 × 10 ⁻³	3.4 × 10 ⁻²	3.8 × 10 ⁻²
	N ₂	1.2 × 10 ⁻²	3.0 × 10 ⁻²	4.2×10 ⁻²

表2 湿潤雰囲気下での各試料の吸着酸素濃度

試料	前処理	[0-]	[0 ²⁻]	[0 ²⁻] + [0 ⁻]
		(nm ⁻²)	(nm ⁻²)	(nm ⁻²)
Sn0 ₂	02	4.5×10 ⁻⁴	2.7 × 10 ⁻³	7.2×10 ⁻³
	N ₂	3.4 × 10 ⁻³	3.2×10 ⁻³	6.6×10 ⁻³
$Sb-SnO_2$	02	9.7 × 10 ⁻⁴	2.3×10 ⁻²	2.4 × 10 ⁻²
	N ₂	8.7 × 10 ⁻⁵	2.7 × 10 ⁻²	2.3 × 10 ⁻²

も前処理雰囲気に強く影響するため、センサ作動時の表面状態の設計には、前処理条件の精密 制御が重要と考えられる。

(2.2) バルク内ドナー濃度制御による吸着酸素への影響

次に SnO₂ バルク内のドナー濃度が酸素吸着に及ぼす影響を調査するため、600°C、O₂ 流通下 で 3 時間焼成した SnO₂、Sb-SnO₂を用いて電気抵抗値の酸素分圧依存性を検討した。600°C焼 成後の結晶子半径 *a* は、SnO₂、Sb-SnO₂それぞれ 5.6、6.4nm であった。表1に乾燥雰囲気下で の各試料の吸着酸素濃度を示す。Sb ドープの有無にかかわらず、2.1 の結果と同様に、低酸素 分圧(N₂)での前処理により O²は減少し、O⁻および全吸着酸素量は増加する傾向が得られた。し たがって、バルクのドナー濃度によらず、前処理時の酸素分圧により表面状態が変化すること がわかった。また、Sb-SnO₂ の吸着酸素量は、SnO₂に比べ1桁程度高い値を示しており、Sb 添 加によるドナー濃度の増加が酸素負電荷吸着を促進することがわかった。次に湿潤雰囲気下で の酸素挙動について検討した。水蒸気存在下では乾燥雰囲気下に比べ電気抵抗値が一桁以上減

少する。一般的に、水蒸気 共存下では、水酸基吸着に より酸素の負電荷吸着が 阻害されるために電気抵 抗値が減少すると考えら れている。しかし,表2に 示した、湿潤雰囲気下での 吸着酸素濃度をみると、乾 燥・湿潤雰囲気条件で、吸 着酸素量に大きな差は生 じないことがわかった。す なわち、水蒸気による酸素 負電荷吸着の阻害は起き ていないことが示唆され た。水酸基がドナーとして 振る舞うモデルも提唱さ れているが(3)、水蒸気によ る電気抵抗値減少及びセ ンサ感度の低下について は、更なるメカニズムの検 証が必要である。

(3)レセプター担持センサによる高機能センシングの検討

図 3(a)に 0.2mol%Pd 担 持 SnO₂ クラスターの 250 ℃, off 時間 100s でのトル エンの濃度を階段状に変 化させた際の電気抵抗値 変化を示す。図 3(a)では C₇H₈ 濃度の増加に従い、 電気抵抗値が減少してい るのとすわかる。次に図

3(b)に本センサにおける S_iと S_eの C₇H₈ 濃度依存性 を示す。すべてのトルエン濃度範囲において Siは S_eより高い値を示し、約 200 ppt C₇H₈に対する感 度Siは2を示した。この値はこれまで我々が報告 したトルエンの検出下限と比較すると、本研究に おけるトルエン検出下限は1桁向上し更なる高感 度化が達成された。ヒータ Off 時において電極近 傍付近まで C7H8が拡散し、ヒータ ON 時にはその C₇H₈と吸着酸素が反応して高い感度が得られて いると考えられる。このことから更なる高感度化 には Utility factor の活用が重要であることが明ら かになった。次に更なる高度のために Air 中にお ける1パルス間における250°Cの電気抵抗値変化 の (a)各前処理温度依存性及び、(b) 各 400 ℃ の前 処理後の off 時間依存性を調査した。図 4(a)に示す ように前処理温度が昇温するに従って、250 ℃に おける1パルス間の電気抵抗値は増大し、400 ℃ で最も大きな電気抵抗値を示した。SnO2では400











図5 SnO₂における様々なトルエンの濃 度に対すセンサ応答 S_eの前処理依存性

[°]C の前処理を印加することにより、表面に吸着した分子状酸素(O₂)は負電荷吸着酸素(O₇, O²) に変化することが知られている。そのため他の前処理温度よりも高い電気抵抗値を示したと考 えられる。次に、図 4(b)に示すように 400°C までの前処理後の off 時間を長くするにつれて、 250°C では低い電気抵抗値が得られた。前処理温度から off 時間が長くなるにしたがって、負 電荷吸着酸素(O⁻, O²)⁻の一部が温度のエネルギーを失ったため、負電荷吸着酸素を保てなくなる ことが由来と考えられる。これらの結果を基に、図 5 に SnO₂における様々なトルエンの濃度 に対すセンサ応答 S_eの前処理依存性 を示す。この結果から 400°C, off 時間 5s の前処理を施し たセンサ感度の値は、250 °C における off 時間 60s の前処理なしのセンサ感度に比べて、約 5.3 倍のセンサ感度を示した。これらのことから、400 °C の前処理により、負電荷吸着酸素量が増 加し、SnO₂のトルエンに対する更なる高感度化の可能性が示された。

5.主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計14件)

Noboru Yamazoe, Koichi Suematsu, <u>Kengo Shimanoe</u>, Surface chemistry of neat tin oxide sensor for response to hydrogengas in air, Sens. Actuators B: Chem., 227, 403–410 (2016).

Koichi Suematsu, Kazuya Kodama, Nan Ma, Masayoshi Yuasa, Tetsuya Kida, <u>Kengo Shimanoe</u>, Role of vanadium oxide and palladium multiple loading on the sensitivity and recovery kinetics of tin dioxide based gas sensors, RSC Adv., 6, 5169-5176 (2016).

Koichi Suematsu, Nan Ma, Kazuya Kodama, Masayoshi Yuasa, Tetsuya Kida, <u>Kengo Shimanoe</u>, Vanadium oxide loading on tin dioxide nanoparticles for improving gas detection in a humid atmosphere, Mater. Lett., 179, 214–216 (2016).

Koichi Suematsu, Miyuki Sasaki, Nan Ma, Masayoshi Yuasa, <u>Kengo Shimanoe</u>, Antimony-Doped Tin Dioxide Gas Sensors Exhibiting High Stability in the Sensitivity to Humidity Changes, ACS Sens., 1, 913–920 (2016).

<u>K. Shimanoe</u>, N. Ma, T. Oyama, M. Nishibori, K. Watanabe, High Performance of SnO₂-Based Gas Sensor by Introducing Perovskite-Type Oxides, ECS Trans., 75 (16) 31-37 (2016).

Masayoshi Yuasa, Koichi Suematsu, Kiyomi Yamada, Ken Watanabe, Tetsuya Kida, Noboru Yamazoe, <u>Kengo Shimanoe</u>, Thermally Stable SnO₂ Nanocrystals, Synthesis and Application to Gas Sensors, Crys. Grow. Design, 16, 4203–4208 (2016).

Koichi Suematsu, Kiyomi Yamada, Masayoshi Yuasa, Tetsuya Kida, <u>Kengo Shimanoe</u>, Evaluation of Oxygen Adsorption Based on the Electric Properties of SnO₂ Semiconductor Gas Sensors, Sens. Mater., Vol. 28, No. 11, 1211–1217 (2016).

<u>島ノ江憲剛</u>,半導体ガスセンサの材料設計,セラミックス,52,(8), pp.534-542 (2017).

Shunsuke Gunji, Masaya Jukei, Yasuhiko Shimotsuma, Kiyotaka Miura, Koichi Suematsu, Ken Watanabe, <u>Kengo Shimanoe</u>, Unexpected gas sensing property of SiO_2/SnO_2 core-shell nanofibers in dry and humid conditions, Journal of Materials Chemistry C 5(25), 6369-6376 (2017).

Koichi Suematsu, Kosuke Watanabe, Akihiro Tou, Yongjiao Sun, <u>Kengo Shimanoe</u>, Ultraselective Toluene-Gas Sensor: Nanosized Gold Loaded on Zinc Oxide Nanoparticles, Anal. Chem., 90 (3), 1959–1966 (2018).

Koichi Suematsu, Nan Ma, Ken Watanabe, Masayoshi Yuasa, Tetsuya Kida, <u>Kengo Shimanoe</u>, Effect of humid aging on the oxygen adsorption in SnO₂ gas sensors, Sensors, 18(1), 254 (2018)

Theerapong Santhaveesuk, <u>Kengo Shimanoe</u>, Koichi Suematsu, Supab Choopun, Size-Independent and Ultrahigh CO Gas Sensor Based on TiO₂ Modified ZnO Tetrapods, Physica Status Solidi (A) Applications and Materials Science, 215(14), 1700784 (2018).

Yongjiao Sun, Koichi Suematsu, Ken Watanabe, Maiko Nishibori, Jie Hu, Wendong Zhang, <u>Kengo</u> <u>Shimanoe</u>, Determination of Effective Oxygen Adsorption Species for CO Sensing Based on Electrical Properties of Indium Oxide, J. Electrochem. Soc., 165(7), B275-B280 (2018).

Koichi Suematsu, Hotaka Uchino, Takaharu Mizukami, Ken Watanabe, <u>Kengo Shimanoe</u>, Oxygen adsorption on ZrO₂-loaded SnO₂ gas sensors in humid atmosphere, Journal of Materials Science, 54(4), 3135–3143 (2019).

〔学会発表〕(計46件)

以下は、招待講演のみ。

<u>Kengo Shimanoe</u>, Nan Ma, Ryohei Kato, Maiko Nishibori, New Semiconductor Gas Sensor Based on Enhancing Oxygen Partial Pressure, CIMTEC2016, 2016/6/6, Centro Congressi Hotel Quattrotorri at Best Western Hotel Quattrotorri Perugia.

<u>島ノ江憲剛</u>,半導体ガスセンサの材料設計,第一回セラミックス界面応用研究会,2016/6/15, 国立研究開発法人物質・材料研究機構.

<u>K. SHIMANOE</u>, T. Oyama, N. Ma, M. Nishibori, K. Watanabe, MEMS-type Gas Sensors using Metal Oxides Semiconductor, The International Conference on nanoFIS 2016 - Functional Integrated nano Systems", 2016/6/27, Graz (University of Graz).

<u>K. Shimanoe</u>, N. Ma, T. Oyama, K. Suematsu, K. Watanabe, M. Mishibori, High Performance of Metal Oxide Semiconductor Gas Sensors Under Humid Condition: Approach from Materials Design,

The 16th International Meeting on Chemical Sensors (IMCS 2016), 2016/7/12, Cheju (Ramada Plaza Hotel).

<u>島ノ江 憲剛</u>,酸化物半導体ガスセンサの微細構造制御と MEMS 素子への応用,(一社)未踏 科学技術協会ナノ粒子・構造応用研究会 第13回公開講演会,2016/9/14,(公社)日本化学会 化 学会館.

<u>島ノ江 憲剛</u>, 西堀 麻衣子,渡邉 賢, 酸化物半導体ガスセンサ - 研究開発の最前線 - , 2016 年電子情報通信学会ソサイエティ大会 (IoT 時代に求められるセンサ技術・デバイス),2016/9/20, 北道大学札幌キャンパル, 2016/9/20.

<u>K. Shimanoe</u>, K. Suematsu, K. Watanabe, M. Nishibori, Materials design for MEMS-type metal oxide semiconductor gas sensors, The 6th NIMS UR1 CNRS SG WORKSHOP, 2016/10/17, Fukuoka (Acros Fukuoka).

<u>K. Shimanoe</u>, N. Ma, T. Oyama, H. Uchino, Maiko Nishibori, Ken Watanabe, Material Design of Semiconductor Gas Sensors for Practical Use, 2016 MRS Fall Meeting & Exhibit, 2016/11/28, Boston.

<u>Kengo Shimanoe</u>, High Performance of Semiconductor Gas Sensors: Which of transducer function and utility factor is effective for sensitivity, 8th International Conference on Electroceramics (ICE2017), 2017/5/30, 名古屋大学.

Kengo Shimanoe, Ken Watanabe, Koichi Suematsu, Maiko Nishibori, High performance of MEMS-type semiconductor gas sensor in operating pulse-heating, The 15th International Nanotech Symposium & Nano-Convergence Expo (NANO KOREA), 2017/7/12, KINTEX (Korea).

<u>Kengo Shimanoe</u>, Ken Watanabe, Suematsu Koichi, Gas sensing properties of MEMS-type metal oxide gas sensor: Design of receptor function for pulse-heating mode, 12th Asian Conference on Chemical Sensors, 2017/11/14, Pan Pacific Hanoi, Vietnam (Hanoi).

<u>Kengo Shimanoe</u>, Materials design for MEMS-type metal oxide semiconductor gas sensors, The 3rd International conference & Exhibition for Nanopia (NANOPIA 2016), 2016/11/17, CECO (Changwon Exhibition Convention Center), Korea.

<u>島ノ江</u>憲剛,酸化物半導体ガスセンサの高性能化に向けた材料設計の確立,日本セラミックス協会 2018 年年会, 2018/3/1,東北大学.

他の招待講演3件あり。

〔産業財産権〕
○出願状況(計0件)
〔その他〕
ホームページ:http://www.mm.kyushu-u.ac.jp/lab_03/index.html
プレス発表:日本経済新聞(電子版)8月30日付掲載。
学術雑誌表紙:米国化学会 Analytical chemistry, 90 巻 (19 号)の Supplementary Cover Art に選ばれる。

6.研究組織 (1)研究分担者 研究分担者氏名:西堀麻衣子 ローマ字氏名:(NISHIBORI, maiko) 所属研究機関名:九州大学 部局名:大学院総合理工学研究院 職名:准教授 研究者番号(8桁):20462848

研究分担者氏名:渡邉 賢 ローマ字氏名:(WATANABE, ken) 所属研究機関名:九州大学 部局名:大学院総合理工学研究院 職名:准教授 研究者番号(8桁):90552480

研究分担者氏名:末松 昂一 ローマ字氏名:(SUEMATSU, koichi) 所属研究機関名:九州大学 部局名:大学院総合理工学研究院 職名:助教 研究者番号(8桁):90637555

※科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等に ついては、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。