

令和 4 年 6 月 24 日現在

機関番号：17102

研究種目：若手研究

研究期間：2018～2021

課題番号：18K14149

研究課題名(和文)有機無機ナノハイブリッドを指向したシリカマイクロディスク光共振器の研究

研究課題名(英文) Research on silica microdisk toward organic-inorganic nanohybrid optical resonator

研究代表者

吉岡 宏晃 (Yoshioka, Hiroaki)

九州大学・システム情報科学研究院・助教

研究者番号：20706882

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,200,000円

研究成果の概要(和文)：髪の毛と同程度の大きさをもつマイクロディスク光共振器は、光集積回路、高感度バイオセンサーなどで利用される重要な先端光技術である。このマイクロディスク光共振器は半導体プロセスと同様の手法で製造されるが、研究代表者は有機材料に限定されるがインクジェット技術で印刷する独自の技術を提案してきた。本研究では、これまで挑戦的であった無機マイクロディスクの常温作製を志向し、その前段階となる有機・無機材料のハイブリッド型として、ガラスの一種であるナノシリカマイクロディスクの印刷に関する要素研究を行った。その成果として、良好なシリカマイクロディスクの印刷作製を可能にし、色素を用いたレーザー素子化にも成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究における有機無機ナノハイブリッドのシリカマイクロディスク光共振器のインクジェット技術による常温作製の成功は、これまで挑戦的であった無機マイクロディスクの常温作製という学術的課題の解決の糸口となる。加えて、本研究成果は無機のナノ粒子を常温でマイクロディスク形状に凝集させる独自の技術であるため、インクの段階で生体由来の分子との共用が可能であったり、凝集体の隙間であるナノポラスに物質を捕捉したりと、マイクロ光共振器に新しい機能を付加することができる。つまり、次世代のバイオセンサーや環境モニターといった社会的意義の大きい応用展開が期待できる。

研究成果の概要(英文)：Optical microdisk cavities, which are about the same size as hair, are important advanced optical technologies used in optical integrated circuits, high-sensitivity biosensors, and so on. This microdisk cavity is manufactured by the same method as the semiconductor process. On the other hand, the principal investigator has proposed a unique technique for printing with inkjet technology, although it is limited to organic materials. In this research, we aimed to produce inorganic microdisks at room temperature, which had been challenging until now, and conducted elemental research on printing of nanosilica microdisks as a hybrid type of organic and inorganic materials. As a result, we have made it possible to print fine silica microdisks and succeeded in making laser devices using dyes.

研究分野：レーザー工学

キーワード：微小光共振器 レーザー インクジェット

1. 研究開始当初の背景

マイクロディスク光共振器は、数 μm ~ 数 100 μm 程度の直径サイズを有する微小光共振器の一種である。これは、円周方向に光が安定して伝搬する WGMs (whispering-gallery modes) を形成することから高い Q 値をもち、集積光学、低しきい値レーザー、非線形光学、光信号処理、高感度バイオセンサーなど関連する研究が盛んに行われる。スフィア、ロッド、リングなど様々ある形状の中でもマイクロディスクは、平面的な形状ゆえエッジに光が局在してより小さなモード体積となり、純粋な基本 WGM モードやより高い Q 値が得られ易く基礎物理の観点から優れた光物性を示す。また、平面、曲面、大面積に作製できるため、実用的な観点からも実装・応用において魅力的である。

作製法に関しては、材料の組み合わせ・手法ともに幅広い。主流としては、電子線・フォトリソグラフィ法、レーザービーム露光法、sol-gel 法といった減算的手法が用いられる。中でも多用されるリソグラフィ法は半導体の作製にも用いられ高精度で一度に大量に作製できる。しかし複数あるプロセスごとに専用の装置が必要で、作製過程においては刺激の強い薬品や熱的処理を利用する。例として、シリカのマイクロディスクのリソグラフィ法による作製を挙げると、シリコン基板への熱酸化によるシリカ層形成、露光と現像、エッチング、表面精度向上のためのヒートフローやアニール、の 4 ステップを経るが、材料の融解も含め 2 つの工程で熱的処理が必要となる。レーザービーム露光法、sol-gel 法においても、熱的プロセスを含む。これに対して研究代表者は、新しい手法である「インクジェット印刷法」を確立した。これは、高分岐ポリマーを利用した有機のマイクロディスクに特化した加算的手法で、オンサイト・オンデマンドに作製することができる。インクジェット技術の特徴である室温・大気圧下でのインク吐出が可能で、使用する有機材料の劣化、ひずみ、熱的ストレスは小さい。

これら減算・加算的手法によるマイクロディスクには、主に有機系の線形ポリマー(アクリル)・高分岐ポリマーおよび有機色素を添加したもの、無機系のシリカ・シリコンおよび希土類イオンを添加したものがある。しかし、単一材料のディスクに他の材料をコートした応用デバイスは存在するが、無機系・有機系材料が直接添加混合されたハイブリッドタイプは現在のところ存在しない。なぜなら、減算的手法ではいずれも無機系・有機系材料それぞれの融点/ガラス転移温度の違いにより作製温度パラメータが異なり、加算的手法のインクジェット印刷法では常温吐出で有機材料のみに限定されるからである。ゆえに、研究代表者は「有機・無機ハイブリッドのマイクロディスク」の達成には有機材料の熱耐性の許容範囲でプロセスを完結させる必要があると考え、その根幹にある「無機のマイクロディスク光共振器を非熱的プロセスで実現できるか？」という学問的問いのもと本研究を推進する。

2. 研究の目的

マイクロディスク材料と作製手法の関係性において、熱的プロセスを用いる手法は単一材料に限定されるが有機・無機双方で達成され、常温プロセスの手法では有機系のみしか達成されておらず、「無機かつ常温」の領域は未踏である。そこで本研究では、これまで挑戦的であった無機マイクロディスクの常温作製という学問的課題を、有機で実績のあるインクジェット印刷法を用いて無機のマイクロディスク光共振器を常温常圧で印刷作製できる要素技術を確立するための有機・無機ハイブリッドマイクロディスクの開発を目的とする。

3. 研究の方法

本研究では、まずインクジェット印刷法を用いたシリカディスクの作製要素技術の確立とディスク構造の評価を行った。ナノシリカ粒子分散溶液より作製される「凝集型ディスク」と結合剤を導入した「結合型ディスク」について実施した。そして、色素を添加したマイクロディスク光共振器のレーザー発振評価と光・熱耐性評価を光工学の観点から行った。具体的には、まず、凝集型マイクロディスクの作製およびその評価として、シリカ粒子分散インクの開発、印刷の最適化、凝集型マイクロディスクの構造評価を行った。次に、結合型ディスクの開発および評価として、結合剤導入インクの開発と印刷最適化、結合型ディスクの構造評価を行った。そして、凝集型・結合型ディスクの性能比較評価として、各ディスクの光・熱耐性評価、WGM レーザー発振の基礎評価、ナノシリカ凝集体の FDTD 法による散乱計算、短波長域での WGM レーザー発振評価を行った。

4. 研究成果

(1) ナノシリカ粒子分散溶液を用いた凝集型・結合型マイクロディスクの作製

まず、インクの開発として、球形のナノシリカ粒子(粒径 12, 45, 80 nm) および鎖状のナノシリカ粒子(粒径 12 nm) の 4 種類の ethyl methyl ketone (MEK) 分散溶液について、分光光度計を用いて光の吸収・散乱特性の評価を行った。結果として、図 1 に示すように粒径 12 nm において吸収・散乱が低く、マイクロディスクに向いていることが分かった。インクとしての利

用においては、インクジェットセットアップでの安定した吐出を志向して、propylene glycol monomethylether (PGME)への溶媒の変更や濃度の調整を行った。また、結合型マイクロディスクには結合剤としてアクリル系オリゴマーを用いた。

次に、それら粒径 12 nm の球状・鎖状ナノシリカ粒子インクを用いて様々な基板にインクジェット印刷を行うことで、良好なマイクロディスク構造を形成できるか調査を行った。このとき、併せてピエゾ駆動型インクジェットヘッド、そのパルス電圧・幅の制御のためのピエゾコントローラ、メニスカス形成のための正負圧発生器からなるインクジェットシステムの各種パラメータを追い込みながら行った。まず、結合剤を用いない純粋な凝集型マイクロディスク（球形粒子）について構造維持評価のために、インク溶媒に対して低い溶解性を有し純粋な凝集体を形成できる FEP ($n = 1.34$ at 600 nm)と、多少溶解性を有し疑似的な結合

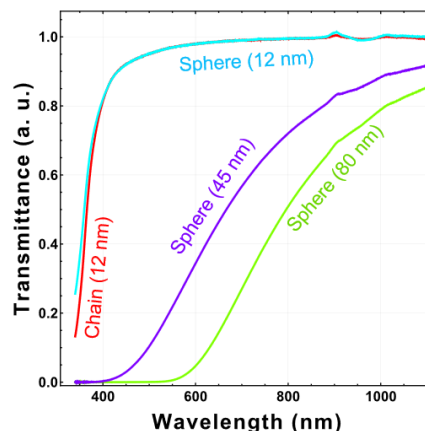


図1 ナノシリカ分散溶液の材料透過特性

効果を付加するフッ素系球状ポリマー($n = 1.45$ at 600 nm)の基板に印刷を行った。その結果として、図2左側の凝集型マイクロディスクの光学顕微鏡画像より、FEP基板上に形成された純粋なマイクロディスクの凝集体は表面張力による応力に耐えられず形状を維持できないことが明らかになった。一方で、フッ素系球状ポリマー基板上に形成されたマイクロディスクは部分的に溶解したポリマーがナノポールに入り込んだことによる応力分散で形状を維持できることが分かった。また、原子間力顕微鏡を用いて構造評価を行ったところ、テーパ角は2.4度、表面粗さ R. M. S.は7.1 nm²であった。以上より、利用可能なマイクロディスクを作製するには、結合剤を用いたアプローチが有効であることが示唆され、続いて結合型マイクロディスク（鎖状粒子）の作製評価を行った。結合型では、いずれもインク溶媒に対して溶解性を示さない PMMA ($n = 1.49$ at 600 nm)、ガラス($n = 1.46$ at 600 nm)、PET ($n = 1.57$ at 600 nm)、ITO ($n = 1.88$ at 600 nm)、FEP ($n = 1.34$ at 600 nm)の基板にマイクロディスクを印刷した。図2右側の結合型マイクロディスクの光学顕微鏡画像より、いずれの基板においても円形の良好なマイクロディスクが形成されたが、印刷されたマイクロディスクの直径に着目すると、PMMAにて235 μm、ガラスにて235 μm、PETにて180 μm、ITOにて155 μm、FEPにて130 μmであり、FEP基板において最も小さな直径が得られた。直径が小さければ Free spectral range (FSR)が大きくなり WGMs レーザ発振のスペクトル解析が容易であり、かつ、低屈折率であるシリカマイクロディスク(結合剤用いない場合、理論的に $n = 1.26$ at 600 nm)のコア導波路化のための剥離を鑑みて、本研究ではFEP基板を用いたマイクロディスクが適している。また、原子間力顕微鏡を用いて構造評価を行ったところ、テーパ角は30度、表面粗さ R. M. S.は5.8 nm²であった。加えて、結合剤の効果について、紫外光照射による表面改質実験

を行ったところ、わずかな屈折率の変化(エリプソメトリーによる)はあったが、目的とする耐久性向上の観点からは優位性が無く、自然固化で十分に結合された。以上の評価をまとめると、球状・鎖状いずれの粒子でも条件次第で良好なマイクロディスクが印刷でき、絡み合った構造の鎖状粒子によるマイクロディスクが球状による構造体よりも強靱で結合剤を用いるとより安定性が高まると言える。

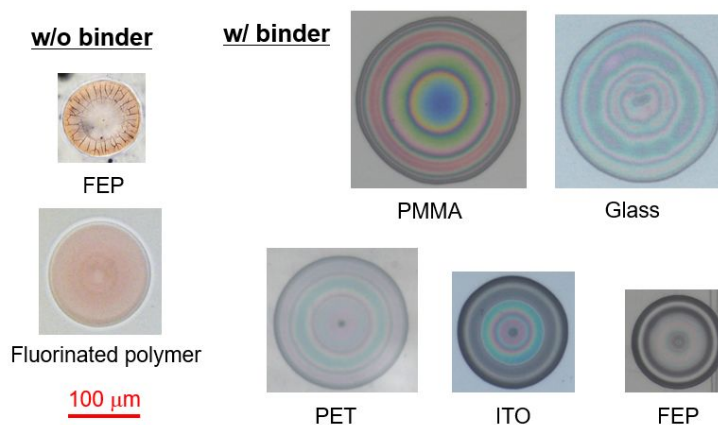


図2 凝集型・結合型マイクロディスクの光学顕微鏡画像

(2) レーザ発振評価および光・熱耐性評価

作製された結合型マイクロディスクの性能評価として、レーザー発振特性および励起光に対する熱耐久性について評価した。耐久性の比較のために、結合剤を用いた球状・鎖状シリカの結合型マイクロディスク（結合剤にアクリル系オリゴマーを用いたマイクロディスク）に加え、ナノポールにポリマーが入り込んだ半結合型マイクロディスク（フッ素系球状ポリマー上に印刷したマイクロディスク）について評価を行った。赤・橙色領域で蛍光を発する Rhodamine590 色素を添加した両マイクロディスクを、光学顕微鏡、分光器、532nm の励起用ピコ秒 Q スイッチパルスレーザーからなる顕微分光セットアップを用いて発振評価を行った

ところ、いずれのマイクロディスクも励起光に対する熱耐久性を有し構造を維持できることが分かった。また、レーザー発振の結果について、半結合型マイクロディスクは基板であるフッ素系球状ポリマーと境界付近で混合しているため剥離ができないため基板上のまま励起を行ったが、レーザー発振を得ることができなかった。一方で、FEP 基板上に作製された結合型マイクロディスクは、基板から剥離し励起を行い、いずれもレーザー発振を得ることができた。一例として、球状粒子による結合型マイクロディスクのレーザー発振特性を図 3 に示す。図 3(a)より、マイクロディスクの縁にスペckルを伴う高輝度のレーザー発振光（挿入図）および、WGM 特有の櫛状のレーザー発振スペクトルが確認できる。また、図 3(b)の入出力特性より、約 $18 \mu\text{J}/\text{mm}^2$ のレーザー発振しきい値が得られ、これはこれまでの有機マイクロディスクによる値よりもわずかに大きい程度であり、良好な結果と言える。

また、結合型マイクロディスクレーザーの短波長側での発振可能領域の拡張について評価を行った。ナノシリカ粒子分散インクとの相溶性の関係で緑よりも短波長域で発光する色素を用いることができなかったが、相溶性を有しこれまでより短波長側の黄領域で発光する Rhodamine560 色素を用いたマイクロディスクでレーザー発振が示唆された。

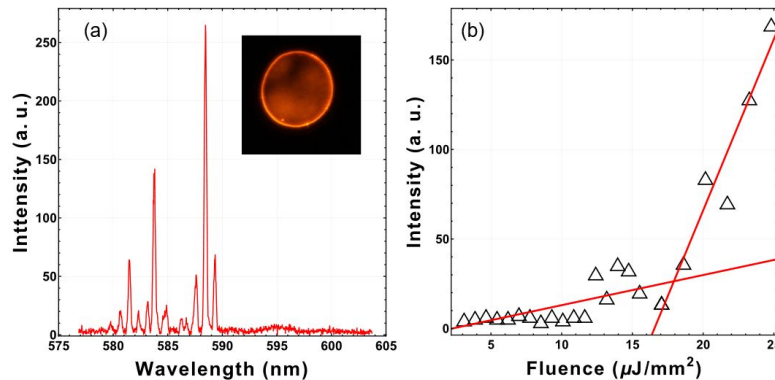


図 3 球状ナノシリカ粒子による結合型マイクロディスクの
(a)レーザー発振スペクトルと(b)入出力特性

(3) ナノ粒子構造体中の光伝搬シミュレーション

FDTD 法による計算解析により、ナノ粒子が分散した領域（二次元）に光が斜入射した際の s 、 p 偏光それぞれの光伝搬について解析を行った。モデルとして、真空中からナノ粒子が分散された領域へ角度 45 度で入射する構成を用いた。まず、安定なシミュレーション条件を探るために、スネルの法則から導き出される屈折率の変動を伝搬距離と空間分解能を変え調べた（条件： s 偏光、波長 600 nm 、粒径 12 nm 、シリカの体積分率 0.5 ）。図 4(a)の伝搬距離と屈折率の関係より、おおよそ $13 \mu\text{m}$ 以上の伝搬で一定の屈折率が得られ安定した計算が行えることが分かった。また、

図 4(b)の空間分解能と屈折率の関係より、 2 nm 以下の空間分解能で安定した計算が行えることが分かった。以上の条件を踏まえ、再度シミュレーションを行い、一例として図 4(c)に示すように s 偏光の伝搬プロファイルが得られた。結果として、用いたナノ粒子のサイズ 12 nm では大きな散乱は確認されず、ナノ粒子の集合体であるマイクロディスクは光共振器として十分に利用できることが明らかになった。また、 p 偏光の場合も同様の結果であった。

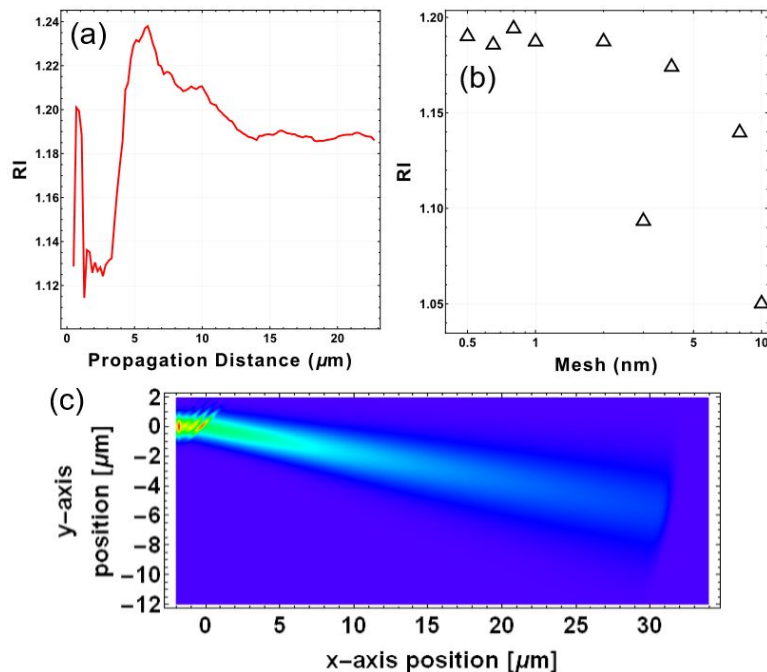


図 4 ナノ粒子凝集体への斜入射光の伝搬結果。(a)伝搬距離、
(b)空間分解能と屈折率の関係。(c)伝搬ビームの強度プロファイル

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 2件/うち国際共著 2件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Mikami Yuya, Yoshioka Hiroaki, Obata Nasim, Han Sangmin, Oki Yuji	4. 巻 11
2. 論文標題 Polarization-dependent refractive index analysis for nanoporous microcavities by ray tracing of a propagating electromagnetic field	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Optical Materials Express	6. 最初と最後の頁 2924 ~ 2924
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1364/OME.434394	査読の有無 無
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 Abdul Nasir, Yuaya Mikami, Rui Yatabe, Hiroaki Yoshioka, Nilesh Vasa, Yuji Oki	4. 巻 11
2. 論文標題 Fully room temperature and label free biosensing based on an ink-jet printed polymer microdisk laser	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Optical Materials Express	6. 最初と最後の頁 592-602
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1364/OME.415000	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 該当する

1. 著者名 Abdul Nasir, Rui Yatabe, Yuya Mikami, Hiroki Yoshioka, Nilesh Vasa, Yuji Oki	4. 巻 46
2. 論文標題 Ink-jet printed, blended polymer-based microdisk resonators for controlling non-specific adsorption of biomolecules	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Optics Letters	6. 最初と最後の頁 262-265
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1364/OL.412993	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 該当する

〔学会発表〕 計23件（うち招待講演 5件/うち国際学会 5件）

1. 発表者名 興雄司
2. 発表標題 インクジェットプリンタと同様に印刷可能な抗原抗体検査向け光センサー
3. 学会等名 山形大学インクジェット開発センター、インクジェット研究会YU-IJWS、2021年度第2回セミナー（招待講演）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 三上裕也、吉岡宏晃
2. 発表標題 DFBマイクロリングレーザーに向けたSi3N4回折格子構造の作製と評価
3. 学会等名 第2回CRESTチーム内ワークショップ
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 小幡ナシム、吉岡宏晃
2. 発表標題 光ファイバー結合型高分解スペクトル計測セットアップの構築
3. 学会等名 第3回CRESTチーム内ワークショップ
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Nasim Obata, Yuya Mikami, Hiroaki Yoshioka, Yuji Oki
2. 発表標題 Direct printing of Microdisk into High Transparency Nanoporous SiO ₂ Film
3. 学会等名 The 74th Joint Conference of Electrical, Electronics and Information Engineers in Kyushu, International Session (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 吉岡宏晃
2. 発表標題 プリンタブル有機微小光共振器の最新動向
3. 学会等名 一般社団法人レーザー学会、第28回レーザー夏の学校(招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 平本航太、吉岡宏晃
2. 発表標題 光集積回路への実装に向けた有機マイクロディスク光共振器の作製手法の検討
3. 学会等名 第4回CRESTチーム内ワークショップ
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 富重紀貴、小幡ナシム、三上裕也、吉岡宏晃、興雄司
2. 発表標題 材料混合による屈折率変調を志向したプリンタブル有機無機ハイブリッドマイクロディスクの作製に関する検討
3. 学会等名 2021年（令和3年度）応用物理学会九州支部学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 下村小太郎、Abdul Nasir、吉岡宏晃、興雄司
2. 発表標題 黄色波長域でのレーザー発振を志向したプリンタブル有機マイクロディスクの作製検討
3. 学会等名 2021年（令和3年度）応用物理学会九州支部学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 下村小太郎、アブドゥルナシル、吉岡宏晃、興雄司
2. 発表標題 プリンタブル有機マイクロディスクレーザーの波長500nm帯における発振波長域の拡張
3. 学会等名 レーザー学会第560回研究会「有機コヒーレントフォトンクス」、有機コヒーレントフォトンクス学生講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 平本航太、小幡ナシム、三上裕也、吉岡宏晃、興雄司
2. 発表標題 光集積回路への有機マイクロディスク光共振器の実装に向けた印刷技法の検討
3. 学会等名 レーザー学会第560回研究会「有機コヒーレントフォトンクス」、有機コヒーレントフォトンクス学生講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 小幡ナシム、三上 裕也、吉岡宏晃、興雄司
2. 発表標題 ナノポーラスSiO ₂ 膜への光学構造直接印刷
3. 学会等名 レーザー学会第560回研究会「有機コヒーレントフォトンクス」、有機コヒーレントフォトンクス学生講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Abdul Nasir, Yuya Mikami, Hiroaki Yoshioka, Yuji Oki
2. 発表標題 Surface charge control of microdisk lasers for minimizing the non-specific adsorption of biomolecules
3. 学会等名 レーザー学会第560回研究会「有機コヒーレントフォトンクス」
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 三上裕也、吉岡宏晃、小幡ナシム、韓尚旻、興雄司
2. 発表標題 偏光依存性を導入したナノポーラスマイクロキャピティの新しい屈折率モデルの開発
3. 学会等名 レーザー学会第560回研究会「有機コヒーレントフォトンクス」
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 小幡ナシム、吉岡宏晃
2. 発表標題 印刷技法によるナノポーラスシリカ膜へのインフィル型光微小共振器の形成
3. 学会等名 第5回CRESTチーム内ワークショップ
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 吉岡 宏晃, 興 雄司
2. 発表標題 精密オンデマンドプロセスによる印刷有機マイクロレーザー
3. 学会等名 レーザー学会学術講演会第41回年次大会（招待講演）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 小幡 ナシム, 三上 裕也, 吉岡 宏晃, 興 雄司
2. 発表標題 高透明ナノポーラスSiO ₂ 膜への光導波路直接印刷
3. 学会等名 レーザー学会学術講演会第41回年次大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 吉岡 宏晃
2. 発表標題 プリンタブル有機トポロジカル光共振器 ~ハイブリッドナノフォトニスによる高度集積~
3. 学会等名 筑波大学物質科学セミナー（招待講演）
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Abdul Nasir, Yuya Mikami, Taku Takagishi, Rui Yatabe, Hiroaki Yoshioka, Nilesh J. Vasa, Yuji Oki
2. 発表標題 Fully room temperature bio-sensing using active microdisk fabricated by ink-jet printing method
3. 学会等名 Conference on Lasers and Electro-Optic (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Hiroaki Yoshioka, Yuya Mikami, Taku Takagishi, Naoya Nishimura, and Yuji Oki
2. 発表標題 Additive fabrication of silica 3D structure for WGM optical micro cavities
3. 学会等名 6th Korea-Japan Joint Symposium on Advanced Solar Cells 2019 - 3rd International Symposium on Energy Research and Application (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 吉岡 宏晃, 三上 裕也, 高岸 拓, 西村 直也, 興 雄司
2. 発表標題 シリカナノ粒子を用いた有機・無機ハイブリッド型のマイクロディスク光共振器によるレーザー発振
3. 学会等名 レーザー学会第528回研究会「有機固体レーザー」
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Hiroaki Yoshioka, Shintaro Mitsui, and Yuji Oki
2. 発表標題 Lasing from Printable Organic-inorganic Microdisk Cavity with Mixed Doping of Laser Dye and ZnO
3. 学会等名 44th European Conference on Optical Communication (ECOC 2018) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 韓 尚旻, 三上 裕也, 吉岡 宏晃, 興 雄司
2. 発表標題 シリカゾルインクによるマイクロディスクキャビティの印刷作製法の検討
3. 学会等名 平成30年度(第71回)電気・情報関係学会九州支部連合大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Taku Takagishi, Hiroaki Yoshioka, Shintaro Mitsui, Yuya Mikami, Naoya Nishimura, and Yuji Oki
2. 発表標題 Highly Transparent Organic Microdisk Cavity in Visible Range by the Ink-jet Printing Method
3. 学会等名 Conference on Lasers and Electro-Optics 2018 (CLEO:2018) (国際学会)
4. 発表年 2018年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

九州大学興研究室 http://laserlab.ed.kyushu-u.ac.jp Hiroaki YOSHIOKA .net https://hiroaki-yoshioka.net/ 九州大学興研究室 https://www.facebook.com/micronanolaserdev/ 九州大学興研究室 https://www.facebook.com/micronanolaserdev/

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