

機関番号：12608

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2008～2010

課題番号：20540480

研究課題名（和文）分子性気体の大気圧非平衡プラズマの素過程と発光分光計測に関する研究

研究課題名（英文）Elementary processes of atmospheric-pressure molecular gas discharge plasmas in non-equilibrium state and their diagnostics with OES

研究代表者

赤塚 洋 (Hiroshi AKATSUKA)

東京工業大学・原子炉工学研究所・准教授

研究者番号：50231808

研究成果の概要（和文）：

酸素、窒素、およびその混合気体を中心として、放電プラズマ内部での励起状態の生成消滅に関して、レート方程式を立式し、定常状態の数密度を、電子温度・密度、ガス温度の関数として表現した。大気圧アルゴンプラズマ及び低気圧窒素プラズマを対象として、励起状態の生成消滅を記述することが可能となった。放電気圧を上昇させることに対応する理論モデルの構築が今後の課題として残された。

研究成果の概要（英文）：

We review fundamentals of optical emission spectroscopy (OES) of plasmas of atmospheric pressure and, in particular, its applications to processing plasmas. Collisional radiative model is described to understand the excitation kinetics and population distributions of excited states in order to examine the electron temperature and density. It is shown that corona equilibrium is often adopted as justifiable assumption of excitation kinetics for general processing plasmas. Line intensity measurement methods are studied for atmospheric-pressure Ar plasma and low-pressure N₂ plasma.

Population densities of excited states of argon atoms are theoretically examined for ionizing argon plasma in a state of non-equilibrium under atmospheric pressure from the viewpoint of elementary processes with collisional radiative model. The dependence of excited state populations on the electron and gas temperatures is discussed.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	1,400,000	420,000	1,820,000
2009年度	1,100,000	330,000	1,430,000
2010年度	1,000,000	300,000	1,300,000
総計	3,500,000	1,050,000	4,550,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：プラズマ科学・プラズマ科学

キーワード：大気圧プラズマ、非平衡プラズマ、発光分光計測、励起状態の生成消滅、レート方程式、窒素プラズマ、アルゴンプラズマ

1. 研究開始当初の背景

(1) 現在、産業プロセスで大気圧非平衡プラズマが盛んに応用されている。ところが、処理対象の物性制御に関しては、放電電力・気圧、ガス組成など、装置の運転パラメータを

用いて経験的に行われてきた。プラズマモニタに OES 法は用いられているが、測定対象が非平衡なので、データの物理的意味を適切に解釈しているとはいえない。電子温度・密度は、平衡性を仮定できないので簡単な OES では測定不可能である。現状では、レーザー

ムソン散乱計測によるしかないが、この方法は高価で複雑な測定システムを必要とし、産業応用のプラズマ診断装置として適切とはいえない。

(2) また、大気圧希ガスプラズマに、酸素や窒素等のプラズマを混入し実際の産業応用プラズマを生成すると、発光は分子性気体に起因するバンドスペクトルが中心となり、希ガスの衝突輻射モデルを適用することができず、現在の研究に限界があることが判明した。現状を打開するには、分子性気体の原子分子過程をモデル化する必要がある。従来の単純なOESでは、励起状態の生成消滅のモデル化が不十分のため、励起温度と電子温度・密度を関係づけることが困難であった。本研究はこの点を克服するべく行うものである。

2. 研究の目的

本研究では、分子性気体の放電による大気圧非平衡プラズマの、電子密度や電子温度などの基礎パラメータの発光分光計測法の開発を目指し、大気圧プラズマ中の原子分子過程から主要な過程を抽出し、各種の励起状態の生成消滅のカイネティクスに関してモデリングを行い、大気圧プラズマ中の励起状態や原子状ラジカルの数密度などの理論予測モデルを確立することが第1の目的である。さらに、このモデルを適用し、実際に発光分光計測(OES)により測定される励起状態数密度から、適切に電子温度・密度等を決定するような、簡便で実践的な発光分光計測の基礎を確立することが、本研究の最終目的である。

3. 研究の方法

(1) プラズマ内における励起状態や原子状ラジカル、負イオン等の生成消滅に関して、レート方程式を立式し、定常状態におけるそれら励起状態等の数密度を、電子温度・密度、ガス温度の関数として表現できるようにする。即ち、理論式をまとめるとともに、数値計算によりこれらの数密度を具体的に求める。この際に、こうした分子性気体放電による非平衡プラズマでは、電子エネルギー分布関数がマックスウェル的でないことが本質的であることを我々は既に見いだしている。従って、これらの理論計算にあたっては、電子のエネルギー分布関数に関して、必ずボルツマン方程式を連立し、正確な速度係数を見いだす様にする。

(2) 励起状態等の粒子種の数密度の、各種のプラズマパラメータに対する依存性を体系的に検討する。あわせて実験的に、放電条件を変化させた際の値の変化につき、様々な角度から考察を加える。適切なモデリングの確立に努めることとする。

4. 研究成果

(1) アルゴンプラズマのCRモデルと理論的考察

遷移の上準位はプラズマ中で発電子衝突により生成し、電子衝突/輻射遷移によって消滅する。励起状態については拡散や移流の影響は一般に無視でき、電子衝突と輻射遷移による生成消滅の釣り合いによって数密度が決定され、この際に用いる密度計算モデルを「衝突輻射モデル(CRモデル)」という。大気圧プラズマを対象とする場合は、これらに加えて、基底状態の原子衝突による励起・脱励起を含めなければならない。なお、大気圧プラズマの場合、衝突広がりによる各線の広がり顕著なため、基底状態に対して共鳴線でない場合(基底状態への遷移が許容遷移でない場合)には、遷移を光学的に薄いものとして扱える。

本研究の結果、電子密度がある臨界密度(以下本報では臨界電子密度 N_{c} という)より大きい場合には、中性粒子衝突を結局は無視できることとなり、従来のCRモデルにより励起状態数密度を記述できる事が明らかとなった。この臨界密度は、電子衝突とガス衝突のいずれがより高頻度かを分ける電子密度で、中性粒子基底状態密度を N_1 、第 p 準位から第 $(p-1)$ 準位への電子衝突脱励起係数を $C_{p,p-1}$ 、原子衝突脱励起係数を $K_{p,p-1}$ 、とすると、次式で計算される。

$$N_{c} C_{p,p-1} = N_1 K_{p,p-1}, \quad (1)$$

一般的な条件で生成した大気圧非平衡プラズマのガス温度や、一般的な測定に使用する分光測定準位 p を対象とすると、 N_{c} の値はおよそ $(6.0 \times 10^{12} - 1.0 \times 10^{13}) \text{ cm}^{-3}$ 程度となることが示されている。従って、これ以下の密度の場合はガス衝突が支配的な低電子密度プラズマ、これ以上の密度のときは電子衝突が支配的な高電子密度プラズマとして扱うべきと結論される。電子密度の高低の判断は次節の方法を用いれば可能である。以下に、おのおの場合の、電子温度決定方法の具体例を考察する。

(A) 高電子密度の場合 この場合は中性気体衝突による影響をほとんど無視することができ、減圧プラズマの衝突輻射モデルを適用することができる。プロセスプラズマで用いられるプラズマの多くは電離進行プラズマであるから、うまく準位対を選ぶ事により、励起温度と電子温度の間に1対1の関係を見いだすことができる。アルゴンプラズマの場合ならば、例えば図1に示すごとく、ガス温度によらず、4p-5pの準位群で定まる励起温度

T_{ex} と電子温度 T_e の間に単調増加の関係があることを利用すれば、電子温度を決定することができる。この際、4p-5p のそれぞれ 1 点のみを取って線対法により励起温度を決定するよりも、多数の測定値の平均値として励起温度を決定するのが良い。励起状態密度を決定する際の遷移確率にも、ある程度の不確かさが含まれており、励起状態密度の総合的な分布の平均値としての励起温度には、それらがならされているという長所もあると考えられるからである。

(B) 低電子密度の場合 この場合は、励起状態の生成消滅に関して、中性アルゴン原子の衝突による励起脱励起が主要な過程であり、当然ながら、ガス温度も重要なパラメータとなる。そこで、電子温度の決定に先立ち、回転温度をガス温度の近似値として測定しておくのが良いと考えられる。微量の不純物として、たとえば僅かに窒素分子を添加して、第 2 正帯の回転温度を求めることなどで可能である。その後、(A) と同様に、励起温度と電子温度が単調増加の関係にあることから、例えば 4p-5p の励起温度から、図 2 を用いて電子温度を決定する事が可能となる。実際には、必ずしも 4p-5p に拘る必要はないが、4p あるいは 5p で表される準位は多数存在し、励起温度の値について多点測定により信頼度を高める事が可能であり、優れていると考えられる。ただ、残念ながら、こうした報告も、他の実験方法と十分にクロスチェックがなされた訳ではない。他の方法としては、例えばトムソン散乱計測法によって電子温度を求め、比較検討するという事が考えられ、今後の重要な課題である。

(2) 窒素プラズマの場合

窒素プラズマ中の励起種の微小時間変化に

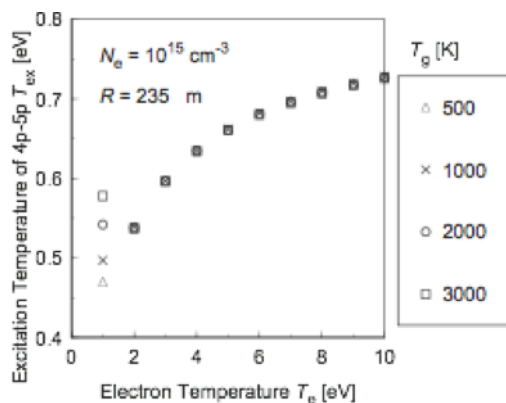


図 1 ガス温度 $500 \leq T_g$ [K] ≤ 3000 の範囲にて、電子密度 $N_e = 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ および放電管内径 $R = 235 \mu\text{m}$ の場合に計算された、4p-5p 準位で定まる励起温度と電子温度の関係。

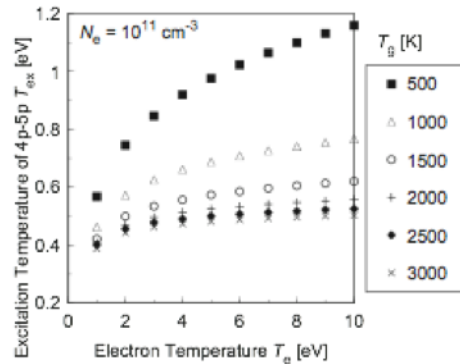


図 2 ガス温度 $500 \leq T_g$ [K] ≤ 3000 の範囲にて、電子密度 $N_e = 10^{11} \text{ cm}^{-3}$ および放電管内径 $R = 235 \mu\text{m}$ の場合に計算された、4p-5p 準位で定まる励起温度と電子温度の関係。

つき常微分方程式を立式する。このとき、適当な初期値(例えば平衡組成)から出発し、定常到達を以て計算完了だが、本計算では電子密度 N_e を入力値とするため、出力として求められる陽イオン密度と等しくなるとは限らないことに注意する。従って、各回の計算結果を参照し、電気的中性条件が満たされるように P 又は T_g の一方を調整することとし(即ち従属変数扱い)、全体を Self-Consistent とする。また、計算の結果、解離原子や振動励起の生成消滅もあり得、よって EEDF-VDF モジュールに戻り、Self-Consistent となるまで計算を繰り返す。なお、本研究の常微分方程式は極めて硬い方程式となるので、カプス・レントロフ・シャンパン公式を用いて解いた。

図 3 および図 4 に、本計算結果の EEPF と VDF をそれぞれ示す。なお、本稿で述べる「電子温度」とは、EEDF が Maxwell 的でないため、通常の電子温度とは異なり、注意を要する。すなわち、Electron Kinetic Temperature のことであり、Boltzmann 方程式を解いて得ら

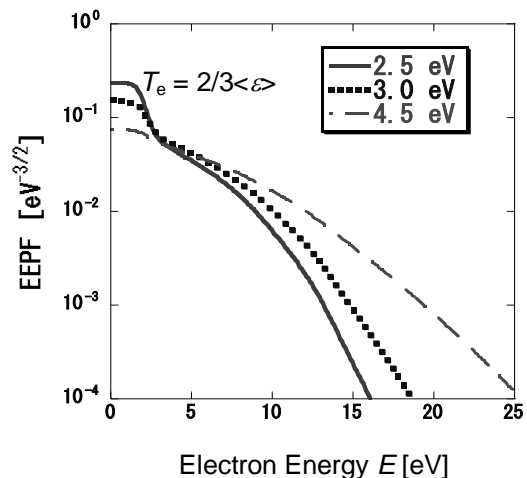


図 3 得られた EEPF の例

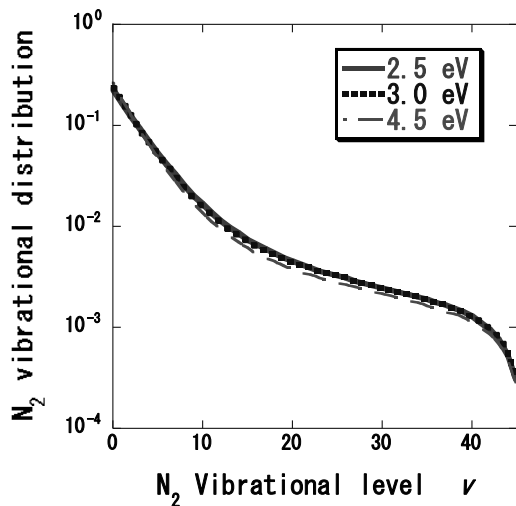


図4 得られたVDFの例

れた電子平均エネルギー $\langle \epsilon \rangle$ の2/3倍と定義する。すなわち

$$T_e = (2/3) \langle \epsilon \rangle \quad (1)$$

と定義することとする。

図3を見ると明らかなように、EPPFはMaxwellからはかなりかけ離れた形状をしていることが解る。特徴的なディップが2-3 eVの所に有り、これは振動励起に必要とされる電子エネルギーがこの付近であるため、電子エネルギー分布の減少が引き起こされることに起因している。また、VDFとSelf-Consistentに解いているため、振動脱励起による超弾性衝突の効果を含めることが可能となっており、高エネルギーテール側を過小評価しないことも確認された。次に図4をみると明らかに、VDFもMaxwellとはかなり異なる分布となっている。振動量子数に応じて、密度の減少が急-緩-急という分布を示している。こうした分布は類似の分野の研究者からも多数報告されており、妥当なものと思われる。特に、後述の様にC状態がX状態とコロナ平衡に有ると仮定すれば、C状態の振動分布を図4の結果から計算により求めることができ、さらにはC状態のOES実験との比較により検証が可能である。その結果、我々の計算結果はC状態の振動分布と完全に一致し、上記の妥当性が実験的にも確認されたと考えている。

計算の結果、電子温度の上昇とともに、C/B比は上昇することが理解された。C/B比は、電子密度にはあまり依存せず、電子温度のみで定まるようなパラメータであることから、2PSと1PSの発光強度比が、電子温度のおおよそ目安になると結論できよう。もちろん、厳密な議論を行うには、B,Cそれぞれの電子励起準位について、各振動レベルにわたって

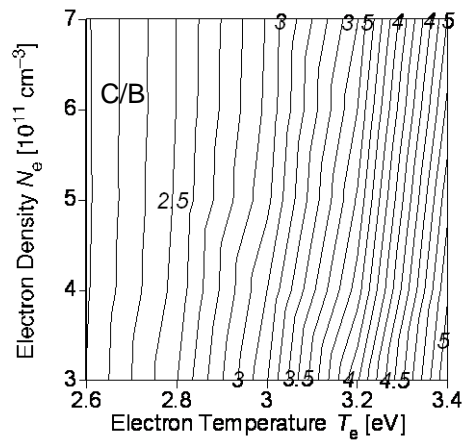


図5 1 Torr 放電における窒素分子C/B比の等高線図

総和を取らねばならないが、それも振動準位がMaxwell等であると仮定することにより、ある程度の指標を与える物と見なすことができる。その一方、電子密度を直接に求めることは困難であることも理解される。しかしながら、窒素分子解離度は電子密度にも依存するので、C/B比測定即ち2PS/1PS強度比測定とアクチノメトリーの併用により、電子密度を推測することが原理的には可能ということになる。

そこで、C/B比と解離度のそれぞれについて、窒素放電1 Torr時の等高線図を計算し、図5と図6にそれぞれ示す。図5からは、C/B比が求められれば T_e がある程度の精度で推測が可能であると理解できる。ついで、求めた T_e とアクチノメトリー等による解離度の測定値を図8に適用すると、精度は電子密度より劣るものの、その交点から電子密度が求められると結論できる。

ただし、B,Cの各準位について、生成消滅の素過程を詳らかに調べてみると、顕著な際が両準位に存在することが明らかとなった。それぞれの準位の生成消滅の素過程で重要な

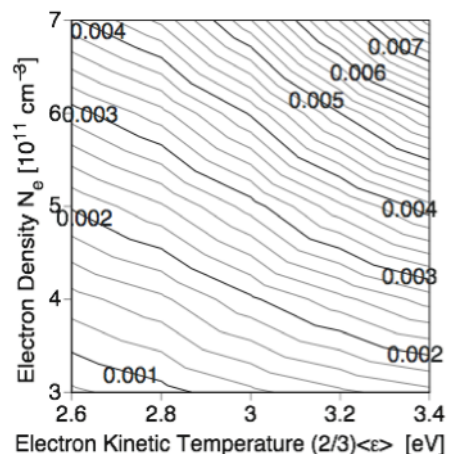


図6 1 Torr 放電における窒素分子解離度の等高線図

反応を表 1 にまとめて示す。C 状態は X 状態からの電子衝突励起で生成され、輻射遷移により消滅する、すなわち、およそコロナ平衡として近似できることが解る（もちろん、若干ではあるが、分子準安定 A 状態相互の衝突、すなわちエネルギープーリング反応も無視できない）。それに対して、B 状態の場合は非常に複雑な分子衝突により生成消滅が支配されていることが理解できる。生成の場合は準安定 A 状態と基底状態の振動励起状態 ($v \geq 6$) の衝突による寄与が最も大きく、また消滅も基底状態分子衝突による緩和によることが判明した。従って、こうした電子励起状態の生成消滅を検討するにあたり、振動励起状態密度も合わせて計算し、しかもその計算を Self-Consistent とすることの重要性をここでも確認することができる。C 状態がコロナ平衡に有り、B 状態はそうではないことについては、各準位の振動励起分布の OES 測定結果を、X 状態からコロナ平衡を仮定して説明できるか否かという実験検証からも既に我々の先の研究から理解されており、理論モデルの正しさを裏付ける結果と考えられる。

表 1 B 状態および C 状態の生成消滅の各反応速度。条件 $T_e = 3.0 \text{ eV}$, $N_e = 4.0 \times 10^{11} \text{ cm}^{-3}$, $P = 1.0 \text{ Torr}$.

Population Reaction		Rate [$\text{cm}^{-3} \cdot \text{s}^{-1}$]
C	$\text{N}_2(\text{X}) + \text{e}^- \rightarrow \text{N}_2(\text{C}) + \text{e}^-$	6.8×10^{17}
	$\text{N}_2(\text{A}) + \text{N}_2(\text{A}) \rightarrow \text{N}_2(\text{C}) + \text{N}_2(\text{X})$	1.2×10^{17}
	Depopulation Reaction	
	$\text{N}_2(\text{C}) \rightarrow \text{N}_2(\text{B}) + h\nu$	8.0×10^{17}
Population Reaction		Rate [$\text{cm}^{-3} \cdot \text{s}^{-1}$]
B	$\text{N}_2(\text{X}, v \geq 6) + \text{N}_2(\text{A}) \rightarrow \text{N}_2(\text{B}) + \text{N}_2(\text{X})$	1.84×10^{18}
	$\text{N}_2(\text{X}) + \text{e}^- \rightarrow \text{N}_2(\text{B}) + \text{e}^-$	1.23×10^{18}
	$\text{N}_2(\text{C}) \rightarrow \text{N}_2(\text{B}) + h\nu$	0.80×10^{18}
	$\text{N}_2(\text{A}) + \text{N}_2(\text{A}) \rightarrow \text{N}_2(\text{B}) + \text{N}_2(\text{X})$	0.24×10^{18}
	$\text{N}_2(\text{a}^*) + \text{N}_2(\text{X}) \rightarrow \text{N}_2(\text{B}) + \text{N}_2(\text{X})$	0.01×10^{18}
	Depopulation Reaction	
	$\text{N}_2(\text{B}) + \text{N}_2(\text{X}) \rightarrow \text{N}_2(\text{A}) + \text{N}_2(\text{X})$	2.09×10^{18}
	$\text{N}_2(\text{B}) \rightarrow \text{N}_2(\text{A}) + h\nu$	1.89×10^{18}
	$\text{N}_2(\text{B}) + \text{N}_2(\text{X}) \rightarrow \text{N}_2(\text{X}) + \text{N}_2(\text{X})$	0.14×10^{18}

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 9 件)

①赤塚洋. 旧くて新しい非平衡プラズマ分光計測の新展開 -大気圧アルゴンプラズマと減圧窒素プラズマ-, 電学論A, **131**, pp. 6-10, (2011) 査読無.

②Y. Ichikawa, T. Sakamoto, A. Nezu, H. Matsuura and H. Akatsuka; Actinometry Measurement of Dissociation Degree of Nitrogen and Oxygen in $\text{N}_2\text{-O}_2$ Microwave Discharge Plasmas; Jpn. J. Appl. Phys., **49**, 106101 (16 pages) (2010) 査読有.

③赤塚洋; 発光分光計測を用いたプロセスプラズマの診断; 電気学会論文誌 A(基礎・材料・共通部門誌), **130**, [10], 892-898 (2010) 査読有.

④T. Yuji, T. Urayama, S. Fujii, Y. Iijima, Y. Suzaki, H. Akatsuka, Basic Characteristics for PEN Film Surface Modification Using Atmospheric-Pressure Nonequilibrium Microwave Plasma Jet, Electron. and Comm. . Jpn., **93** [5] pp. 42-49, (2010) 査読有.

⑤J. Mizuoichi, T. Sakamoto, H. Matsuura and H. Akatsuka; Evaluation of EEDF in Microwave Discharge Plasmas by Spectroscopic Diagnostics with Collisional Radiative Model; Jpn. J. Appl. Phys., **49**, 036001 (14 pages) (2010) 査読有.

⑥ T. Yuji, S. Fujii, N. Mungkung and H. Akatsuka; Optical Emission Characteristics of Atmospheric-Pressure Nonequilibrium Microwave Discharge and High-Frequency DC Pulse Discharge Plasma Jets; IEEE Trans. Plasma Sci., **37**, [6], 839-845 (2009) 査読有.

⑦ H. Akatsuka; Excited Level Population and Excitation Kinetics of Non-Equilibrium Ionizing Argon Discharge Plasma of Atmospheric Pressure; Phys. Plasmas, **16**, 043502 (16 pages) (2009) 査読有.

⑧ T. Yuji, T. Urayama, S. Fujii, N. Mungkung and H. Akatsuka; Temperature Behavior of Atmospheric-Pressure Non-Equilibrium Microwave Discharge Plasma Jets for Poly(ethylene naphtharate)-Surface Processing; Surface & Coatings Technology, **202**, 5289-5292 (2008) 査読有.

⑨湯地敏史、浦山卓也、藤井修逸、飯島善時、須崎嘉文、赤塚洋; 大気圧非平衡マイクロ波プラズマジェットを用いた PEN フィルム表面処理における基礎特性; 電気学会論文誌 A(基礎・材料・共通部門誌), **128**, [6],

449-455 (2008) 査読有.

〔学会発表〕(計 21 件)

①桑野慧, 根津篤, 松浦治明, 赤塚洋. 窒素プラズマ中の窒素原子密度のアクチノメトリー法による測定と希ガス混入効果, 第 27 回プラズマ・核融合学会年会, 2010/12/01, 北大.

②H. Akatsuka, K. Kuwano, A. Nezu, H. Matsuura. Measurement of Nitrogen Dissociation Degree of Nitrogen Discharge Plasma by Actinometry Method with Subtraction of First Positive Band Spectrum, 63rd Gaseous Electronics Conference & 7th International Conference on Reactive Plasmas, 2010/10/05, Maison de la Chimie, Paris.

③桑野慧, 根津篤, 松浦治明, 赤塚洋. 第 1 正帯減算による窒素原子アクチノメトリー測定と窒素プラズマ解離度への希ガス混入効果, 第 71 回応用物理学会学術講演会, 2010/09/15, 長崎大.

④赤塚洋, 市川陽亮, 桑野慧, 坂本武士, 根津篤, 松浦治明. アクチノメトリー法および第 1 正帯バンドスペクトルの減算による窒素プラズマ中の窒素解離度の測定, 電気学会プラズマ研究会, 2010/05/08, 兵庫県立大.

⑤桑野慧, 根津篤, 松浦治明, 赤塚洋. 窒素プラズマ中の窒素解離度のアクチノメトリー法測定と希ガスの混入効果, 日本物理学会第 65 回年次大会, 2010/03/20, 岡山大.

⑥高井渉, 根津篤, 松浦治明, 赤塚洋. マイクロ波放電酸素プラズマの解離度に対する希ガス混入効果のアクチノメトリー測定, 平成 22 年電気学会全国大会, 2010/03/17, 明大駿河台キャンパス.

⑦K. Kuwano, A. Nezu, H. Matsuura, H. Akatsuka. Fundamental Study on Discharge Characteristics of Nitrogen-Rare Gas Microwave Plasma, The 27th Symposium on Plasma Processing, 2010/02/01, 横浜開港記念館.

⑧W. Takai, A. Nezu, H. Matsuura, H. Akatsuka. Diagnostics of oxygen-rare gas mixed plasmas excited by microwave discharge, The 27th Symposium on Plasma Processing, 2010/02/01, 横浜開港記念館.

⑨T. Shibata, A. Nezu, H. Akatsuka. Diagnostics of Electron Temperature of Low-Pressure Discharge Nitrogen Plasma by Optical Emission Spectroscopy, The 27th Symposium on Plasma Processing, 2010/02/01, 横浜開港記念館.

⑩W. Takai, A. Nezu, H. Matsuura, H. Akatsuka. Diagnostics of oxygen-rare gas mixed plasmas excited by microwave discharge, The 6th Asia-Pacific International Symposium on the Basic and

Application of Plasma Technology, 2009/12/16, Minghsin University of Science and Technology, 台湾.

⑪H. Akatsuka. Population Distribution and Excitation Kinetics of Non-Equilibrium Argon Plasma of Atmospheric Pressure, The 6th Asia-Pacific International Symposium on the Basic and Application of Plasma Technology, 2009/12/15, Minghsin University of Science and Technology, 台湾.

⑫K. Kuwano, A. Nezu, H. Matsuura, H. Akatsuka. Fundamental Study on Discharge Characteristics of Nitrogen-Rare Gas Microwave Plasma, The 6th Asia-Pacific International Symposium on the Basic and Application of Plasma Technology, 2009/12/14, Minghsin University of Science and Technology, 台湾.

⑬赤塚洋. 低温大気圧プラズマの励起状態密度分布の特徴, プラズマ核融合学会第 26 回年会, 2009/12/01, 京都市国際交流会館.

⑭柴田智彦, 根津篤, 松浦治明, 赤塚洋. 発光分光計測による低気圧窒素プラズマの電子温度診断の可能性, 第 56 回応用物理学会連合講演会, 2009/03/30, 筑波大学.

⑮湯地敏史, 釘宮彰宏, 川野泰和, 青木慎二, 藤井修逸, 赤塚洋. 大気圧非平衡マイクロ波ミニタイププラズマジェット分光計測, 第 56 回応用物理学会連合講演会, 2009/03/30.

⑯赤塚洋, 市川陽亮, 坂本武士. 放電窒素プラズマの励起状態数密度の素過程に基づく検討, 日本物理学会 第 64 回年次大会, 2009/03/27, 立教大学.

〔図書〕(計 1 件)

赤塚洋. 発光分光, 大気圧プラズマ 基礎と応用 第 4 章診断法 第 4 節ガス温度計測 4.4.1, オーム社, pp. 164-169, 2009.

6. 研究組織

(1) 研究代表者

赤塚 洋 (AKATSUKA HIROSHI)
東京工業大学・原子炉工学研究所・准教授
研究者番号: 50231808

(2) 研究分担者

松浦 治明 (MATSUURA HARUAKI)
東京工業大学・原子炉工学研究所・助教
研究者番号: 70262326

(3) 連携研究者

湯地 敏史 (YUJI TOSHIFUMI)
宮崎大学・教育文化学部・講師
研究者番号: 80418988