

機関番号：12701

研究種目：基盤研究(A)

研究期間：2011～2013

課題番号：23245046

研究課題名(和文) イオン液体を用いたソフトマテリアルの創成

研究課題名(英文) Development of Soft Material Using Ionic Liquids

研究代表者

渡邊 正義 (Watanabe, Masayoshi)

横浜国立大学・工学研究院・教授

研究者番号：60158657

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 38,000,000円、(間接経費) 11,400,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、イオン液体と高分子からなるソフトマテリアルの創成について検討を行った。様々なイオン液体中での高分子の相挙動の観察から、その溶解性支配因子を整理し、クーロン相互作用に加え、ファンデルワールス力、水素結合、カチオン- 相互作用の重要性を指摘した。また、UCST及びLCSTを示すポリマーのブロック共重合体を用いて、温度誘起ゾルゲル転移、水-イオン液体のシャトリング現象、光刺激による相転移現象を実現した。さらに、スルホン酸化ポリイミド等をマトリックスとしたイオン液体複合膜を作製し、真空下でも駆動するアクチュエーター、無加湿中温形燃料電池用電解質膜の創製に成功した。

研究成果の概要(英文)：In this study, innovative soft materials consisting of polymers and ionic liquids have been systematically explored. In order to obtain fundamental information on the soft materials, solubility and phase behavior of polymers in ionic liquids were studied and revealed the importance of van der Waals, hydrogen bonding and cation-pai interactions in addition to Coulombic interaction for the decisive factors. By using different block copolymers consisting of the segments having upper critical and/or lower critical solution temperatures, thermally induced sol-gel transition, nano-gel shuttling between water phase and ionic liquid phase, and photo-induced phase transition between unimer and micelle were realized. Furthermore, by using sulfonated polyimides as matrix polymer, composite membranes with ionic liquids were fabricated and were successfully demonstrated to be useful for environmentally durable ionic actuators and non-humidified intermediate temperature fuel cells.

研究分野：化学

科研費の分科・細目：材料化学・高分子・繊維材料

キーワード：イオン液体 高分子 ゲル 相溶 LCST型相分離 UCST型相分離 ポリイミド ブロック共重合体

## 1. 研究の背景

イオン液体は食塩のようにアニオンとカチオンからなる塩にもかかわらず、室温付近に融点を示す。一般的なイオン液体には、①イオンのみからなる新しい溶媒②液体でありながら蒸気圧がない③耐熱性が高く液体温度範囲が広い(不揮発性)④不燃性⑤化学的に安定⑥自己解離性を示し、イオン伝導性を有するなどの特徴が挙げられる。このように、水、分子性有機溶媒といった、従来から知られている溶媒とは全く異なる特性を有しているイオン液体は、第3の溶媒として注目を集め、電気デバイス用の電解液や有機合成の溶媒、潤滑油等としての応用が検討されている。その中で、イオン液体を用いた高分子ソフトマテリアルが注目されている。高分子ソフトマテリアルを構成する分散媒としてイオン液体を用いることにより、使用可能な温度領域が飛躍的に拡大するだけでなく、イオン液体の特性に基づく新規な機能を賦与した材料の創製が期待できる。

一般的に物質の融点 ( $T_m$ ) は下記の式で表される

$$T_m = (\Delta H_m) / (\Delta S_m)$$

ここで、 $\Delta H_m$  は融解エンタルピー、 $\Delta S_m$  は融解エントロピーである。式から $\Delta H_m$ が小さく、 $\Delta S_m$ が大きい程、融点が低くなると考えられる。イオン液体となる塩は、構成するイオンの大きさが比較的大きく、電荷が非局在化していることが多い。このことから $\Delta H_m$ の主な原因であるクーロン相互作用を低減しているものと考えられる。また、イオンのコンフォメーションの自由度が高く、非対称であることが $\Delta S_m$ を増大させているものと考えられる。

このようなイオン液体の構造的な特徴は、イオン液体やその混合物に働く相互作用、及び、構造形成にも大きな影響を与えている。例えば、イミダゾリウムカチオンのアルキル鎖を延長すると、イオン性の部位同士と非イオン性の部位同士がそれぞれドメインを形成し、ナノ相分離構造を形成することが知られている。また、イオン液体に他の分子を混入した場合、混入した分子の極性に依りて配位構造が変わる。このことによって、塩であるにもかかわらず DMSO 等の高極性溶媒からベンゼンなどの低極性溶媒まで、様々な溶媒と相溶することができる。本研究ではポリベンジルメタクリレート (PBnMA) がイオン液体  $[C_n\text{mim}][\text{NTf}_2]$  中で LCST を示すことを報告している。これは PBnMA を溶解すると、ベンジル基周辺に存在するイオンの構造形成が促進されるという疎水性水和と同様な現象が起こっているためと理解することができる。このようなイオン液体の特性を支配する相互作用を理解することが、新たなソフトマテリアルの創製に繋がるであろうと考えられる。

## 2. 研究の目的

本研究では、イオン液体と高分子からなるソフトマテリアルの創製を目指して研究を進めた。具体的には、①イオン液体-高分子の相互作用を決める因子の探索 ②相挙動を利用したソフトマテリアルの創製 ③イオンゲル膜のアクチュエータへの適用の3項目について検討した。

## 3. 研究の方法

### 3.1 イオン液体-高分子の相互作用を決める因子の探索

イオン液体の凝集力にはクーロン相互作用の寄与が大きいと考えられるが、イオン液体中への高分子の溶解にはクーロン相互作用が大きく関与しない場合が多いため、溶解度パラメータを用いて説明することは困難である。本研究では様々なイオン液体中でのポリエチレングリコールグリシジルエーテル (PEGE) の溶解挙動を観察した。さらに、酸素原子の含有率の異なるポリエーテル類の溶解挙動の観察も行った。

### 3.2 相挙動を利用したソフトマテリアルの創製

我々はイオン液体中で様々な高分子が UCST や LCST 等の相挙動を示すことを報告している。本研究では、水中で LCST を示し、 $[C_2\text{mim}][\text{NTf}_2]$  中で UCST を示すポリ-*n*-イソプロピルアクリルアミド (PNIPAm) と、同じく水中で LCST を示すポリエチレンオキサイド (PEO) のジブロックコポリマーに着目し、新規の刺激応答性システムの構築を試みた。PNIPAm ブロックに、光感性部位として Azobenzene を導入し (図 3.1)、光刺激による相変化を観察した。次に懸濁重合により、PNIPAm を架橋してコアとし、PEO をコロナとするナノゲル微粒子を作製し、水-イオン液体二相分離系での相挙動の観察を行った。

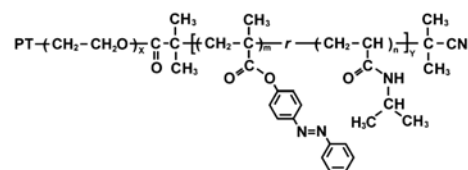


図 3.1 PEO-*b*-P(AzoMA-*r*-NIPAm)の化学構造.

### 3.3 イオンゲル膜のアクチュエータへの適用

イオン液体に非相溶なポリスチレン (PSt) と相溶するポリメチルメタクリレート (PMMA) からなるトリブロック共重合体 SMS、および、スルホン酸化ポリイミド (SPI) を合成し、 $[C_2\text{mim}][\text{NTf}_2]$  との複合膜を作製した。得られた膜を用いてアクチュエータ素子を作製し、アクチュエータ特性を評価した。

## 4. 研究成果

### 4. 1 イオン液体—高分子の相互作用を決める因子の探索

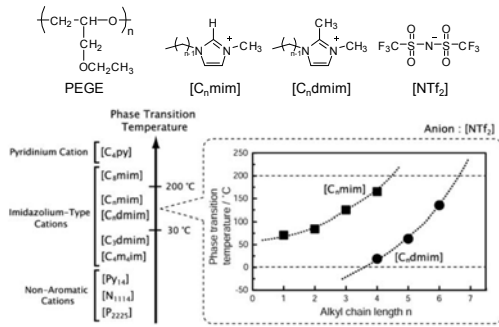


図 4.1 イオン液体の構造と相転移温度.

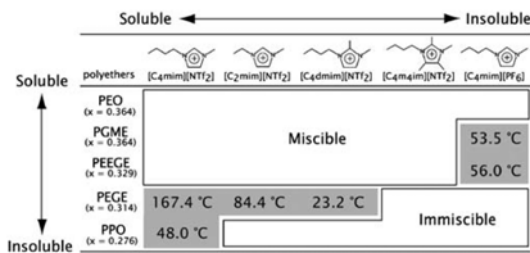


図 4.2 酸素原子の含有量の異なるポリエーテルの相挙動。X はポリマー構造中の酸素原子の重量分率.

図 4.1 に PEGE の溶解挙動の観察結果を示す。PEGE は芳香族カチオンを有するイオン液体への溶解度が大きいことが分かった。また、イミダゾリウムのビストリフルオロメタンスルホニルアミド塩 ( $[C_n\text{mim}][\text{NTf}_2]$ ) 中で LCST 型の相挙動が観察された。さらに、イミダゾリウムカチオンのアルキル鎖長の増大とともに LCST の相転移温度が上昇することが分かった。一方、イミダゾリウムカチオンの 2 位をメチル基でキャップした場合 ( $[C_n\text{dmim}][\text{NTf}_2]$ )、相転移温度が低下することが分かった。以上の結果から、イオン液体と PEGE の相溶性には、芳香族の  $\pi$  電子による相互作用、ファンデルワールス力、及び、高分子の O 原子と、イミダゾリウムカチオンの 2 位のプロトン間に働く水素結合が重要であることが分かった。そこで、O 原子の含有量の異なるポリエーテル類のイオン液体中での相挙動を調査したところ、O 原子の含有量が低下するとともに可溶→LCST→不溶と変化することが分かった (図 4.2)。

### 4. 2 相挙動を利用したソフトマテリアルの創製

PNIPAm ブロックの一部をアゾベンゼンで置換した PEO-*b*-P(AzoMA-*r*-NIPAm) は低温では P(AzoMA-*r*-NIPAm) セグメントをコア、PEO セグメントをコロナとする micelle を形成しているが、温度を上げると P(AzoMA-*r*-NIPAm) の UCST により、unimer 状態で分散するようになった。このとき、アゾベンゼン構造が *cis* 体の時は *trans* 体の時よりも極性が大きいので、低い相転移温度を示す。

その結果、両者の相転移温度の間の温度領域では、光照射による micelle-unimer の相転移が可能であった (図 4.3)。

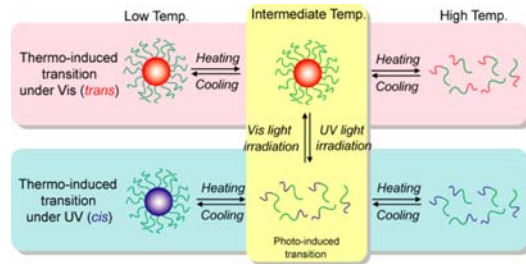


図 4.3 光刺激による micelle-unimer 間の相転移.

一方、PNIPAm ブロックを架橋して得られるナノゲル微粒子は水層—イオン液体層間で温度刺激によるシャトリング現象を示した。即ち、低温では水層でハイドロゲルコロイド微粒子として分散するが、温度上昇とともに LCST 現象によりコアから水を吐き出し、ある温度以上ではイオン液体層に移動した。さらに温度を上げると、UCST 現象によりコアが膨潤し、イオンゲルコロイド微粒子として分散するようになった。温度を下げると、再びハイドロゲルとして水相に分散した (図 4.4)。

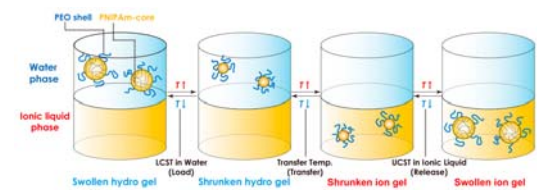


図 4.4 水層 (上層) —イオン液体層 (下層) 間のシャトリング現象.

### 4. 3 イオンゲル膜のアクチュエータへの適用

SMS-48 を用いて得られるゲルは AFM の位相像から、柔らかい地に固いドメインが点在した相分離構造を有していることが分かった。この結果から、イオン液体が選択的に PMMA 部分に相溶する一方、相溶しない PSt が物理架橋点となり、マイクロ相分離構造を持つ複合膜を形成したものと考えられる (図

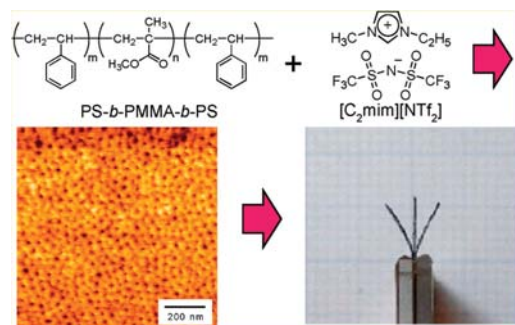


図 4.5 SMS と  $[C_2\text{mim}][\text{NTf}_2]$  の化学構造 (上) と複合膜の AFM 像 (位相像 (左下))、及び、作製したアクチュエータの駆動の様子 (右下)。

4.5)。次に、得られた複合膜を用いてアクチュエータを作製した。ケッチェンブラック、PVDF、[C<sub>2</sub>mim][NTf<sub>2</sub>]からなる複合電極を用い、電極—複合膜—電極の三層構造を作製して、電極に矩形波の電圧を印加したところ、印加電圧に応じて屈曲が繰り返し起こった。さらに、減圧状態にしたガラス容器の中でも駆動することを確認した。

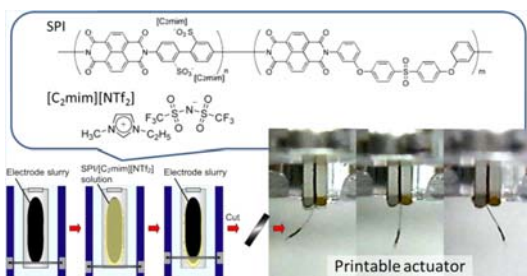


図 4.6 IL/SPI 複合膜を用いたプリンタブルアクチュエーターとその駆動。

SPI はスルホン酸基のカウンターカチオンを[C<sub>2</sub>mim]に変換し、[C<sub>2</sub>mim][NTf<sub>2</sub>]との複合膜を作製し、アクチュエーター特性を評価した。SPI はキャスト製膜により厚み約 10 μm の薄膜の形成が可能で、電極—複合膜—電極とプリンティング手法を用いてのアクチュエーター素子の作製が可能であった (図 4.6)。また、一般的にアクチュエーターは素子の貯蔵弾性率が大きい程、発生力が大きくなることが知られている。SPI を用いた複合膜はこれまで報告されてきたイオンゲルの中では最も高い貯蔵弾性率を示し、本研究においても、50wt% の SPI を含む複合膜で作製したアクチュエーターは 3 V 印加時に自重の約 70 倍もの発生力を生み出すことが分かった。

イオン液体アクチュエーターの駆動原理はまだ解明されていない。本研究では、アクチュエーターの駆動の起源がアニオン及びカチオンの輸率( $t_+$ ,  $t_-$ )と体積( $v_+$ ,  $v_-$ )の違いによるものと考えた。具体的には輸率と体積の積の差 $\Delta v (= t_+v_+ - t_-v_-)$ が正の場合はプラス極側、負の場合はマイナス極側に屈曲すると予想した。さらに、電極の歪み、及び、アクチュエーターの変位の計算式の導出を試みた (図

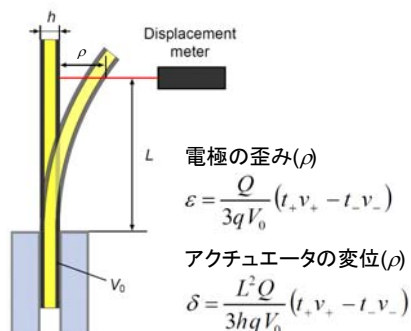


図 4.7 カチオン及びアニオンの輸率と体積がアクチュエーター駆動を支配すると仮定した場合の歪み(e)と変位(d)の計算式。Q は充電電荷量。

4.7)。現在のところ、 $\Delta v$  が負となる [C<sub>2</sub>mim][NTf<sub>2</sub>]/PEUU 系ではマイナス極側、正となる Li[NTf<sub>2</sub>]/PEUU 系ではプラス極側に屈曲することを確認している。今後は様々な系への適用可能性を確かめていく予定である。

## 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 21 件すべて査読有)

- (1) Tuning of Sol-Gel Transition Temperatures for Thermoreversible Ion Gels  
Y. Kitazawa, T. Ueki, S. Imaizumi, T. P. Lodge, M. Watanabe  
*Chem. Lett.*, **43**, 204–206, (2014).
- (2) Energy Applications of Ionic Liquids  
D. R. MacFarlane, N. Tachikawa, M. Forsyth, J. M. Pringle, P. C. Howlett, G. D. Elliott, J. H. Davis, Jr., M. Watanabe, P. Simon, C. A. Angell  
*Energy Environ. Sci.*, **7**, 232–250 (2014).
- (3) Thermoreversible Nanogel Shuttle between Ionic Liquid and Aqueous Phases  
T. Ueki, S. Sawamura, Y. Nakamura, Y. Kitazawa, H. Kokubo, M. Watanabe  
*Langmuir*, **29**, 13661–13665 (2013).
- (4) Effects of Carbon Electrode Materials on Performance of Ionic Polymer Actuators Having Electric Double-Layer Capacitor Structure  
H. Kokubo, T. Honda, S. Imaizumi, K. Dokko, M. Watanabe  
*Electrochemistry*, **81**, 849–852 (2013).
- (5) Protic Ionic Liquids: Fuel Cell Applications  
T. Yasuda, M. Watanabe  
*MRS Bull.*, **38**, (2013) 560–566.
- (6) Printable Polymer Actuators from Ionic Liquid, Soluble Polyimide, and Ubiquitous Carbon Materials  
S. Imaizumi, Y. Ohtsuki, T. Yasuda, H. Kokubo, M. Watanabe  
*ACS Appl. Mater. Interfaces*, **5**, 6307–6315 (2013).
- (7) Structural Study on the UCST-Type Phase Separation of Poly(N-isopropylacrylamide) in Ionic Liquid  
H. Asai, K. Fujii, T. Ueki, S. Sawamura, Y. Nakamura, Y. Kitazawa, M. Watanabe, Y.-S. Han, T.-H. Kim, M. Shibayama  
*Macromolecules*, **46**, 1101–1106 (2013).
- (8) Light-Controlled Reversible Micellization of a Diblock Copolymer in an Ionic Liquid  
T. Ueki, Y. Nakamura, T. P. Lodge, M. Watanabe  
*Macromolecules*, **45**, 7566–7573 (2012).
- (9) Structural Analysis of High Performance Ion-Gel Comprising Tetra-PEG Network  
H. Asai, K. Fujii, T. Ueki, T. Sakai, U.-I. Chung,

M. Watanabe, Y.-S. Han, T.-H. Kim, M. Shibayama  
*Macromolecules*, **45**, 3902–3909 (2012).  
(10) Heat Capacities and Glass Transitions of Ion Gels  
Yamamuro, T. Someya, M. Kofu, T. Ueki, K. Ueno, M. Watanabe  
*J. Phys. Chem. B*, **116**, 10935–10940 (2012).  
(11) Microscopic Insights into Ion Gel Dynamics Using Neutron Spectroscopy  
M. Kofu, T. Someya, S. Tatsumi, K. Ueno, T. Ueki, M. Watanabe, T. Matsunaga, M. Shibayama, V. G. Sakai, M. Tyagide, O. Yamamuro  
*Soft Matter*, **8**, 3888–3897 (2012).  
(12) Thermoreversible High-temperature Gelation of an Ionic Liquid with Poly(benzyl methacrylate-*b*-methyl methacrylate-*b*-benzyl methacrylate) Triblock Copolymer  
Y. Kitazawa, T. Ueki, K. Niitsuma, S. Imaizumi, T. P. Lodge, M. Watanabe  
*Soft Matter*, **8**, 8067–8074 (2012).  
(13) Unlocking of Interlocked Heteropolymer Gel by Light: Photoinduced Volume Phase Transition in an Ionic Liquid from a Metastable State to an Equilibrium Phase  
T. Ueki, A. Yamaguchi, M. Watanabe  
*Chem. Commun.*, **48**, 5133–5135 (2012).  
(14) Driving Mechanisms of Ionic Polymer Actuators Having Electric Double Layer Capacitor Structures  
S. Imaizumi, Y. Kato, H. Kokubo, M. Watanabe  
*J. Phys. Chem. B*, **116**, 5080–5089 (2012).  
(15) Effects of Polymer Structure on Properties of Sulfonated Polyimide/Protic Ionic Liquid Composite Membranes for Nonhumidified Fuel Cell Applications  
T. Yasuda, S. Nakamura, Y. Honda, K. Kinugawa, S.-Y. Lee, M. Watanabe  
*ACS Appl. Mater. Interfaces*, **4**, 1783–1790 (2012).  
(16) High-performance Ion Gel with Tetra-PEG Network  
K. Fujii, H. Asai, T. Ueki, T. Sakai, S. Imaizumi, U. Chung, M. Watanabe and M. Shibayama  
*Soft Matter*, **8**, 1756–1759 (2012).  
(17) Polymer Actuators Using Ion-Gel Electrolytes Prepared by Self-Assembly of ABA-Triblock Copolymers  
S. Imaizumi, H. Kokubo, M. Watanabe  
*Macromolecules*, **45**, 401–409 (2012).  
(18) Polymers in Ionic Liquids: Dawn of Neoteric Solvents and Innovative Materials  
T. Ueki, M. Watanabe  
*Bull. Chem. Soc. Jpn.*, **85**, 33–50 (2012).  
(19) UCST Phase Transition of Azobenzene-Containing Random Copolymer in an Ionic Liquid  
T. Ueki, Y. Nakamura, A. Yamaguchi, K. Niitsuma, T. P. Lodge, M. Watanabe

*Macromolecules*, **44**, 6908–6914 (2011).  
(20) Structural Aspects of the LCST Phase Behavior of Poly(benzyl methacrylate) in Room-temperature Ionic Liquid  
K. Fujii, T. Ueki, K. Niitsuma, T. Matsunaga, M. Watanabe, M. Shibayama  
*Polymer*, **52**, 1589–1595 (2011).  
(21) Structural Effects of Polyethers and Ionic Liquids in Their Binary Mixtures on Lower Critical Solution Temperature Liquid-liquid Phase Separation  
K. Kodama, R. Tsuda, K. Niitsuma, T. Tamura, T. Ueki, H. Kokubo, M. Watanabe  
*Polym. J.*, **43**, 242–248 (2011).

〔総説・解説〕(計3件)

(3) 小久保 尚, 渡邊 正義 「イオン液体 ～イオンのみからなる揮発しない液体～」 *科学と教育*, **60**(3), 122-123(2012).  
(2) 安田 友洋, 渡邊 正義 「エネルギーデバイス用次世代電解質としてのイオン液体」 *日本イオン交換学会誌*, **22**, 2(2011).  
(1) 安田 友洋, 渡邊 正義 「無加湿燃料電池電解質としてのイオン液体」 *化学工学*, **75**, 386 (2011).

〔学会発表〕(計14件)

(1) "Innovation of Energy Devices by Collaboration of Ionic Liquids and Polymers", M. Watanabe, The 13th Pacific Polymer Conference, Grand Hi-Lai Arena, Kaohsiung, Taiwan, November 17-22, 2013. (招待講演)  
(2) イオン液体と高分子のコラボレーションによるエネルギーデバイスのイノベーション、渡邊正義, 第62回高分子討論会、金沢大学角間キャンパス、9月11–13日、2013. (招待講演)  
(3) Polymer Electrolytes of Ionic Liquids: Fundamentals and Applications, M. Watanabe, The 19th International Conference on Solid State Ionics (SSI-19), International Conference Center, Kyoto, June 2-7, 2013. (招待講演)  
(4) Materialization of Ionic Liquids: Polymer Electrolytes of Ionic Liquids, M. Watanabe, 2013 MRS Spring Meeting & Exhibit, San Francisco Marriot Marquis, USA, April 1-5, 2013. (招待講演)  
(5) Electromaterials Based on Ionic Liquids and Polymers, M. Watanabe, Electromaterials Symposium, North Wollongong, Australia, February 13-15, 2013.  
(6) Polymer Actuators Using Ion-Gel Electrolytes Prepared by Self-Assembly of ABA-Triblock Copolymers and Their Driving Mechanisms, M. Watanabe, International Union of Materials Research Societies - International Conference on Electronic Materials 2012 (IUMRS-ICEM 2012), Pacifico Yokohama, Japan, September 23-28, 2012. (招待講演)  
(7) Polymer Electrolytes of Ionic Liquids:

Fundamentals and Applications, M. Watanabe, XIII International Symposium on Polymer Electrolytes (ISPE-13), Selfoss, Iceland, August 26-31, 2012.

(8) Polymers in Ionic Liquids: Dawn of Neoteric Solvents and Innovative Materials, M. Watanabe, IUPAC MACRO2012 World Polymer Congress, Virginia Tech, U.S.A., June 24-30, 2012.

(9) イオン液体を用いたエネルギー変換技術 総論、渡邊 正義、クリーンエネルギー材料産学官研究会、横浜国立大学 教育文化ホール、2月3日、2012年。

(10) How Can We Use Energy of Materials for Sustainable Society?, M. Watanabe, 62nd Annual Meeting of the International Society of Electrochemistry: Battery Contest, Niigata Convention Center Toki Messe, Niigata, Japan, September 11, 2011.

(11) イオン液体からグリーンマテリアルイノベーションへ、渡邊 正義、クリーンエネルギー材料産学官研究会、横浜国大大学会館 4F 会館ホール、7月22日、2011年。

(12) Polymer Electrolytes of Ionic Liquids for Lithium Batteries and Fuel Cells, M. Watanabe, 18th International Conference on Solid State Ionics (SSI 18th), Warszawa, Poland, July 3-7, 2011.

(13) How Can We Use Energy of Materials for Sustainable Society?, M. Watanabe, Public Panel Discussion: "Are Electric Cars Vehicles for Tomorrow?", Warsaw University of Technology, Warsaw, Poland, July 7, 2011 (依頼講演)

(14) Protic Ionic Liquids: Applications to Non-Humidified Fuel Cells, M. Watanabe, 4th Congress on Ionic Liquids (COIL-4), Washington DC, USA, June 15-18, 2011 (招待講演)

#### 〔図書〕(計 3件)

(1) Chapter 10: Ion Gels for Ionic Polymer Actuators  
M. Watanabe, S. Imaizumi, T. Yasuda, H. Kokubo.

In "Soft Actuators: Materials, Modeling, Applications, and Future Perspectives" edited by K. Asaka and H. Okuzaki, Springer Japan, Tokyo, 2014. in press.

(2) Chapter 20: Supported Protic Ionic Liquids in Polymer Membranes for Electrolytes of Nonhumidified Fuel Cells  
T. Yasuda, M. Watanabe.

In "Supported Ionic Liquids: Fundamentals and Applications" edited by R. Fehrmann, A. Riisager and M. Haumann, John Wiley and Sons, New York, 2013, pp. 407-411.

(3) 第8講 イオン液体を利用した光誘起型高分子材料の創出と高機能化  
小久保 尚、上木 岳士、渡邊 正義  
“フォトクロミズムの新展開と光メカニカル機能材料”、シー・エム・シー、2011、pp.

143-150.

#### 〔産業財産権〕

##### ○出願状況 (計 1 件)

(1)

名称: イオン液体含有ゲル状組成物、ゲル状薄膜、及びその製造方法

発明者: 鄭 雄一、酒井 崇匡、上木 岳士、柴山 充弘、藤井 健太、渡邊 正義

権利者: 東京大学、横浜国立大学

種類: 特願

番号: 2011-198851

出願年月日: 2011/9/11

国内外の別: 国内

#### 6. 研究組織

##### (1) 研究代表者

渡邊 正義 (Watanabe Masayoshi)

横浜国立大学・工学研究院・教授

研究者番号: 60158657

##### (2) 研究分担者

獨古 薫 (Dokko Kaoru)

横浜国立大学・工学研究院・准教授

研究者番号: 70438117

小久保 尚 (Kokubo Hisashi)

横浜国立大学・工学研究院・特別研究教員

研究者番号: 80397091

##### (3) 連携研究者

なし