

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 13 日現在

機関番号：11501

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2011～2013

課題番号：23350086

研究課題名(和文)電子ペーパーのフルカラー化に向けた超高性能カラー電子インクの精密合成

研究課題名(英文)Precise Syntheses of High Performance Color Electronic Inks Applicable to Full-Color Electronic Paper

研究代表者

川口 正剛 (Kawaguchi, Seigou)

山形大学・理工学研究科・教授

研究者番号：00204694

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 15,700,000円、(間接経費) 4,710,000円

研究成果の概要(和文)：「電子ペーパー」は、書き換え可能で、紙がもつ手軽さ、柔軟性、薄さ、高視認性、そしてメモリー性などの機能を有する反射型ディスプレイである。高精細化という点で優れている電気泳動方式において最も重要なKeyマテリアルは、無極性媒体中に存在(分散)した微粒子(電子インク)である。本研究では、高精細な電子ペーパーのフルカラー化を達成するために、無極性媒体中で白、イエロー、マゼンタ、シアン色を有する単分散かつ高性能な着色高分子電子インク的设计・合成およびそのような液体中において微粒子の帯電制御に関する基礎的かつ根本的知見を明らかにした。

研究成果の概要(英文)：Electronic rewritable papers have recently attracted a great deal of interest for use in information displays, requiring low cost, low weight, good flexibility, and low power consumption. The fabrication of the displays can be achieved in several ways, such as by using cholesteric liquid crystals, twisting white-black balls, mobile fine particles with liquid crystals, in-plane electrophoretic particles, or micro-encapsulated electrophoretic particles. Among these different materials, microencapsulated electrophoretic displays (EPDs) offer an advantage of lower manufacturing cost. In this study, we have studied the preparation and particle size control of novel high performance white and color microspheres by dispersion polymerization in low dielectric constant media, such as Isopar and silicone oils. We also study new preparation methods of stable dispersions of TiO₂ fine particles encapsulated with polymers and their chargeability control of the particles in the hydrocarbon media.

研究分野：化学

科研費の分科・細目：材料化学・機能材料・デバイス

キーワード：高分子微粒子合成 電子ペーパー 電気泳動 着色微粒子 マクロモノマー 分散重合 帯電制御 有機・無機ハイブリッド

1. 研究開始当初の背景

近年のエレクトロニクス分野の発展による、よりいっそうの情報化社会に向けて、情報を表示・閲覧するための多様なニーズが潜在している。そのようなニーズに対応するために、従来のディスプレイのように書き換え可能で、薄型軽量、柔軟性、低消費電力および高コントラストなどの特徴をもちながら、電源を切っても表示が記憶（メモリー性）できる「紙」のような特徴を持つ反射型電子ペーパーの開発に多くの関心が向けられている。

これまで様々な表示方式の電子ペーパーが提案され、それぞれ独自に発展してきている。電気泳動方式、液晶方式、エレクトロクロミック方式、MEMS方式、エレクトロウェット方式、サーマルライタブル方式などがあげられる。これらの方式にはそれぞれ利点と解決すべき技術的な課題が残されている。

電子ペーパーは一般に、電力消費なしに画像を保持できる反射型ディスプレイのことを言う。したがって、電子ペーパーは液晶や有機ELのように電力を消費するタイプとは根本的に表示システムが異なる。電子ペーパーは私たちが本や印刷物を視認するのと同じ原理を用いているので、長時間の使用に対しても目の負担が小さく、かつメモリー性を有しているため低消費電力など、従来のディスプレイに比べて優位な点をもっている。タブレットや電子書籍、大型看板やポスター、電子新聞、掲示板、POPなどの様々なデジタルサイネージの市場が期待されている。

電子ペーパーの表示方式は多様で、粒子タイプ、液晶タイプ、発色タイプ、酸化還元タイプなどがある。カラー化については粒子タイプ、液晶タイプ、発色タイプがある。粒子タイプのカラー化はマイクロカプセル型電気泳動方式やツイストボール方式、トナー方式や電子粉流体方式、磁気泳動方式、エレクトロウェット方式などがあげられる。粒子タイプは液晶タイプに比べ高画質を実

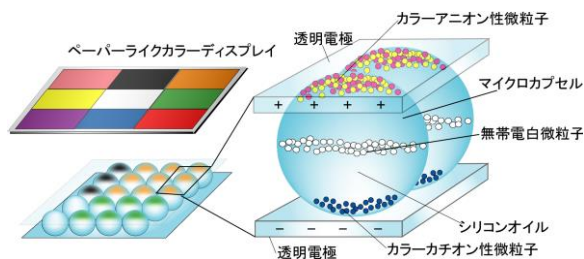


図1. 本研究で取り組んだフルカラー電子ペーパーの概念図

現できると期待されている。しかしながら、微粒子の精密な制御や色彩の鮮やかさなどが課題として残っている。近年、ブリヂストンで電子粉流体を用いたカラー電子ペーパーの開発がなされたが、素子の制御が難しいなどの問題点も指摘されている。カラーフィ

ルターを用いたフルカラー化も提案されているが、この方法では反射率の低下を招き、高精細化は難しいと考えられる。

このように粒子タイプの電子ペーパーのフルカラー化には技術的に様々な解決すべき課題がある。そのような中で、筆者らはその鍵となるカラーマテリアルは、無極性媒体中に存在(分散)した微粒子(電子インク)にあるととらえている。すなわち、高精細な電子ペーパーのフルカラー化を実現するために、無極性媒体中で白、イエロー、マゼンタ、シアン色を有する単分散かつ高性能な電子インク的设计・合成およびそのような液体中において微粒子の帯電制御に関する基礎的かつ根本的理解が必要であると考えている。図1には、本研究で開発している非電気泳動性の白微粒子、泳動性のシアン、イエロー、マゼンタ微粒子からなる4粒子系のカラー電子ペーパーの模式図を示す。カラー微粒子を自在に動かすことができれば高精細なカラー化が達成できると期待される。

2. 研究の目的

従来のディスプレイのように書き換え可能で、柔軟性や超低消費電力、高コントラストなどの特徴をもちながら、電源を切っても表示が記憶（メモリー性）される「紙」のような特徴を持つ反射型電子ペーパーに多くの関心が寄せられている。事実、白黒表示の電子ペーパーは既に製品化されている。現在、そのフルカラー化に大きな期待が寄せられているが、未だ達成されていない。フルカラー化を達成させるためには、その表示を担う最も重要なkeyマテリアルである微粒子をいかに高性能・高機能化できるかにかかっているが、これまで材料面からのアプローチは皆無であった。

申請者らは、過去15年間、機能性高分子微粒子の設計・合成、特に分散重合法による高分子微粒径制御に関して詳細かつ系統的な基礎的研究を行い、様々な基礎的知見を報告してきた。また、高分子微粒子合成で培った知見を基にして、2003年から電子ペーパーの有力候補の1つであるマイクロカプセル化電気泳動方式に着目し、その表示を担う機能性微粒子の設計・合成および表示特性に関する基礎的な研究を行ってきた。

図1に示すように、この方式の表示は無極性媒体中（たとえば、イソパラフィンやシリコンオイルなど）に分散したサブミクロンサイズの微粒子の電気泳動によって達成される。したがって、微粒子に要求される特性は、非極性媒体中で長期間にわたって分散安定性を保つこと、低沈降性であること、微粒子表面の帯電制御が設計できること、高いコントラストが達成できること、メモリー性付与のためにカプセル壁とほよい相互作用をもつことなどが考えられている。しかしながら、微粒子がこの表示素子において最も基本的かつ重要なKeyマテリアルであるにもか

かわらず、方法論やデバイス化などの応用的研究が先行しており、機能性微粒子の設計や微粒子の電気泳動特性に及ぼす帯電制御法など材料面および物性面からの基礎的研究が欠如しているのが実状である。米国 E-ink 社で開発された白黒表示ディスプレイでは、微粒子表面が高分子で被覆あるいはグラフト化された TiO_2 (白微粒子)、カーボンブラック (黒微粒子) が用いられているが、絶縁性、凝集、沈降性などに様々な問題点が指摘されている。また、そのような方法で合成した微粒子では詳細な帯電制御は不可能であり、多粒子混合系によるフルカラー化には大きな障害となっている。事実、完全反射型で高精細なフルカラー電子ペーパーは未だ実現されていない。

本研究では、フルカラー電子ペーパー実現のために必要な基本的要素技術の根本的理解を図るために、フルカラー化に必要な機能性の白 (W)、イエロー (Y)、マゼンタ (M)、シアン (C) 色などの単分散着色微粒子の新規設計・合成のための合成戦略を確立する。また、合成した微粒子の電気泳動特性に及ぼす帯電制御技術の詳細かつ系統的な検討を行い、フルカラー電子ペーパーのプロトタイプを作成するための基本的理念の確立を図ることを目的とした。

3. 研究の方法

本研究では、電子ペーパーに用いられている高沸点・非極性媒体 (イソパラフィンやシリコンオイル) 中において高分子微粒子を直接合成できるための実験的条件の確立と得られる微粒子の電気泳動特性評価を行い、どのような官能基がどのように微粒子の移動に影響を及ぼすのか、フルカラー電子ペーパー用の機能性電子インクとしての基礎的理念の確立を図る。研究期間内で以下の4つの事項について行った。

1. 分散重合法による単分散カラー微粒子合成条件の検討および微粒子径制御
2. 分散重合法による単分散・高屈折率白色微粒子合成法の検討および微粒子径制御
3. 微粒子の電気泳動特性評価と帯電制御技術の根本的理解
4. 多粒子混合系フルカラー電子ペーパープロトタイプの実作と動作確認

4. 研究成果

(1) 無帯電 (非電気泳動性) 高屈折率白色微粒子の合成

電子ペーパーに用いるということはすなわち高沸点かつ低誘電率媒体であるイソパラフィン系溶剤である Isopar やシリコンオイル中などで微粒子を効率よく合成する技術を確立することにある。微粒子合成には非水系分散重合 (NAD) 法が利用できるが、これまでの NAD 研究は塗料用途 (アクリレート

系) が中心であり、単分散性や高屈折率化といった点で必ずしも確立されていなかった。

白色の強さ (隠ぺい性) は連続相と分散相の屈折率差の2乗に比例すると考えられるので、屈折率の高い結晶性モノマーである 2-ビニルナフタレン (2-VNp, 屈折率=1.68) に着目した。様々な分散剤や条件下で 2-VNp の分散重合を試み、微粒子合成の最適条件を精査したところ、2-VNp モノマーをシリコンオイルや Isopar 中、ポリジメチルシロキサンマクロモノマー (PDMS-MA) を重合性分散剤として用いた分散共重合によって、収率高くかつ単分散な微粒子が得られることを見いだした。得られた微粒子の SEM 写真を図 2 に示す。常温でシリコンオイルに可溶な過酸化ラウロイル (LPO) を開始剤として用い、かつ初期モノマー濃度を高くするとミクロン~サブミクロンサイズの単分散なポリマー微粒子が収率高く合成できることがわかった。微粒子径は仕込み PDMS-MA 濃度を変化させることによって $1.5 \mu\text{m}$ サイズから $0.4 \mu\text{m}$ サイズまで自在に設計可能であった。

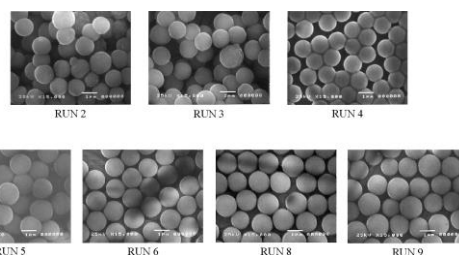


図 2. シリコンオイル中、分散重合で合成されたポリ (2-ビニルナフタレン) 微粒子の SEM 写真. Run 2(2-VNp; 2.0g, LPO;2mol%), Run3(2-VNp; 2.0g, LPO;2.5mol%), Run4(2-VNp; 2.0g, LPO;3.0mol%), Run5(2-VNp; 3.0g, LPO;2.0mol%), Run6(2-VNp; 3.0g, LPO;3.0mol%),

得られた微粒子の性能を評価するために、反射率、 ζ -電位および 2 微粒子系電気泳動実験を行った。反射率は、所定固形濃度に調整した粒子径 $0.39 \mu\text{m}$ の PVNp 微粒子分散液を $100 \mu\text{m}$ のスぺーサーをもつスライドガラスセルに注入し、反射率計を用いて測定した。PVNp 固形濃度 30% で反射率は 50% を超えるものとなった。図 3 には微粒子コアの固形濃度を 30% に調整した分散液について波長 500nm の反射率の微粒子径依存性を調べた結果について示す。反射率は $0.1 \mu\text{m}$ から $0.2 \mu\text{m}$ まで粒子径が大きくなるにつれて増加するが、それ以上の粒子径ではほぼ一定となり、 $0.6 \mu\text{m}$ 以上では逆に減少することがわかった。微粒子運動性や沈降性を考慮すると微粒子の最適径はおおよそ $0.2 \sim 0.3 \mu\text{m}$ 程度であるといえる。また、ゼータ電位を Isopar 中で測定したところ、 $\pm 3 \text{mV}$ であり非泳動微粒子であった。

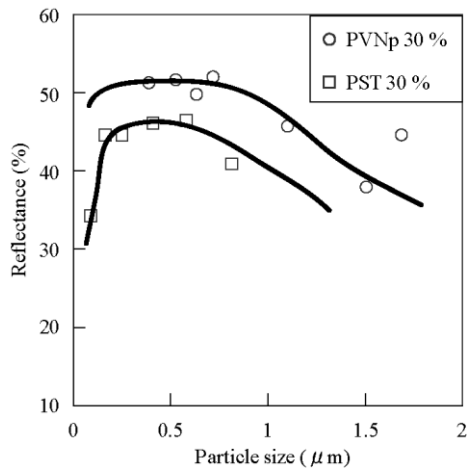


図3 微粒子径サイズと波長 500nm の反射率との関係

また、100 μm のスペーサー厚を有する 2 枚の ITO 電極間に所定の濃度に調整した PVNp 微粒子と泳動性の C.B 微粒子の混合した分散液を注入し、電場応答性について評価を行った。比較のために同じ濃度のポリスチレン (PST) 微粒子についても行った。両デバイスとも電場に応答して白-黒反転を示した。表示は黒微粒子のみの電気泳動によるものであることが別の実験で確かめられている。同じ粒子径、固形含量のラテックス分散液であるにもかかわらず、PVNp 微粒子とポリスチレン (PST) 微粒子とでは白色度の強さは大きく異なっていた。すなわち PST 微粒子では隠ぺい性が不十分で白表示の際に黒が若干透けているが、PVNp 微粒子では非常に高いコントラストで白黒表示が達成できた。このように屈折率が高い PVNp 微粒子は黒粒子を十分に隠ぺいすることが可能で、TiO₂ 微粒子以外の白色高分子微粒子として高いポテンシャルを有していると言える。また、図 1 で示した非泳動性の白色微粒子の特徴を生かしたデバイスに用いることができることが明らかとなった。

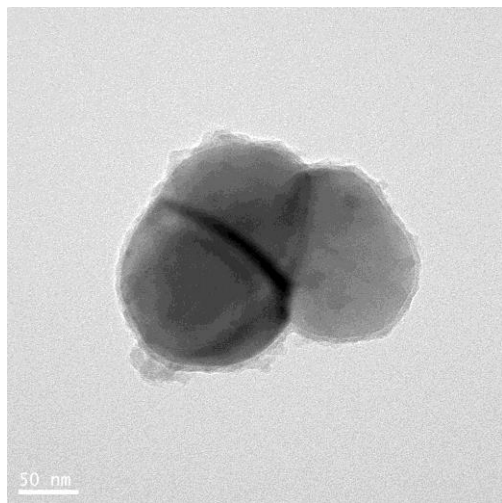


図 4 PVNp の殻で覆われた TiO₂ 微粒子の TEM 写真

(2) TiO₂ 内包高屈折率白色微粒子の合成

白色微粒子のさらなる高性能化を目指して TiO₂ の持つ強い隠ぺい性を活かしつつ凝集しやすい等の欠点を補うために、TiO₂ 内包高分子微粒子の合成を試みた。分散剤として 2-(ジメチルアミノ)エチルメタクリレート (DMAEMA)-g-PDMS を用いて TiO₂ 微粒子をプレ分散させたシリコンオイル中で、少量の 2-VNp および PDMS-MA を用いた分散共重合を行うと、凝集物や副微粒子生成なしで TiO₂ の表面が PVNp の殻で覆われたハイブリッド微粒子を合成することができる (図 4)。このコアシェル微粒子は、乾燥後も Isopar やシリコンオイルに自己分散し、1 次微粒子化する。分散液の反射率および分散安定性は極めて高くかつガラスへの付着は全く観察されない。高性能白色微粒子として高い潜在能力があると考えられる。

(3) カラー微粒子の設計・合成

電子ペーパーに利用可能なカラー微粒子の合成法としては、顔料の分散とカプセル化、液中乾燥法、転相乳化法などが報告されている。また、水/アルコール媒体中での分散重合を用いた黒色微粒子の合成も報告されている。しかし、これらの方法では再分散性、微粒子径や帯電性制御といったところで高性能化が難しい。筆者らは Isopar やシリコンオイル中で直接分散重合を行い、鮮やかに発色できるカラー微粒子の合成法の確立を目指した。

IsoparG やシリコンオイル中で鮮やかに発色できるカラー微粒子を合成するためには、微粒子自体からの散乱を抑制する必要がある。すなわち、連続相と微粒子との屈折率差をできるだけ小さくし、微粒子内部に色素や顔料を内包したカラー微粒子がその候補になるものと考えられる。筆者らはポリメタクリル酸メチル (PMMA) 微粒子をその候補として考えた。しかしながら、様々な分散剤や条件下でメタクリル酸メチル (MMA) の分散重合を試みたが、満足のいく結果は得られなかった。これは PMMA が連続相に部分的に溶解することが原因と考えられる。そこで、スキーム 1 に示すように MMA と様々な極性モノマーとの分散共重合を試みたところ、極性モノマーとしてアクリロニトリル (AN) を用

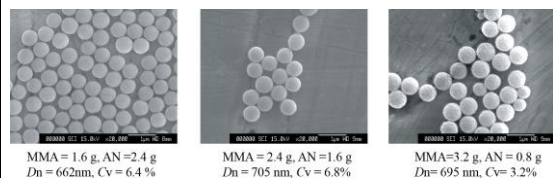


図 5 MMA と AN の分散共重合で得られる微粒子の SEM 写真

共重合条件 : Isopar G 20mL, AIBN = 2 mol% to monomers, PDMS-MA = 10wt% to monomers, 60 °C, 24h.

いたとき、高収率かつ単分散な高分子微粒子が得られることがわかった。図5に Isopar G 中、PDMS マクロモノマーを用いて MMA と AN との分散共重合で得られた微粒子の SEM 写真を示す。重量比で MMA:AN= 8:2、6:4、4:6 の場合には凝集物がなく、比較的単分散な微粒子が得られていることがわかる。マクロモノマー濃度をモノマーに対して 3%~100wt% まで変化させても比較的単分散性を維持したまま 1140nm~240nm まで微粒子径をコントロールできることもわかった。したがって Isopar 中で PMMA 微粒子を効率高く合成するためには、AN を加えて共重合する方法が最も適切な方法であるといえる。

AN が MMA の微粒子合成に良く作用する理由として以下のようなことが考えられる。均一系の場合、AN を M_1 、MMA を M_2 とした時、反応性比はそれぞれ、 $r_1 = 0.14$, $r_2 = 1.32$ である。すなわち、AN よりも MMA の方が共重合性は高く、MMA リッチな共重合体が得られる。しかしながら、分散重合における AN と MMA の共重合体組成の転化率依存性を詳しく調べてみると、AN の方が MMA よりも早く消費されていることがわかった。これは連続相と微粒子内部のモノマー分配の違いが原因である。AN は Isopar G には溶解しないこと、重合初期では Isopar G と MMA に混合溶液に溶解していること、生成コポリマーは MMA には溶解しないが AN は溶解することなどの実験事実から、重合中、微粒子内部では MMA よりも AN の濃度が高くなっていると考えられる。このような AN の性質が MMA の分散重合をうまく進行させた理由であると考えられる。

(4) 反応性(重合性)染料の合成とカラー微粒子の合成

前項で確立した AN と MMA との分散共重合系を利用して、微粒子内部に染料を取り込んだ微粒子の合成を試みた。染料が重合後連続相に染み出ないように共有結合で微粒子内部に固定化する方法を考えた。合成した反応性染料の構造を図5に示す。様々な染料および反応性染料を用いて分散重合を行ったところ、一部染料系では重合禁止剤あるいは抑制剤として作用するもの、重合によって退色するもの、激しく凝集を引き起こすものがあった。しかし重合条件を選ぶことによって、染料を 10wt% 以上微粒子内部に内包し、染料の染み出しもなく、単分散で分散性の高いサブミクロンサイズのカラー微粒子を収率高く合成できることがわかった。

合成した Y、M、C カラー微粒子の分散液の写真および微粒子の SEM 写真を図6に示す。単分散微粒子が得られていること、それぞれ微粒子が分散液中で鮮やかに発色していることがわかる。なお、カラー微粒子はすべて非電気泳動性であった

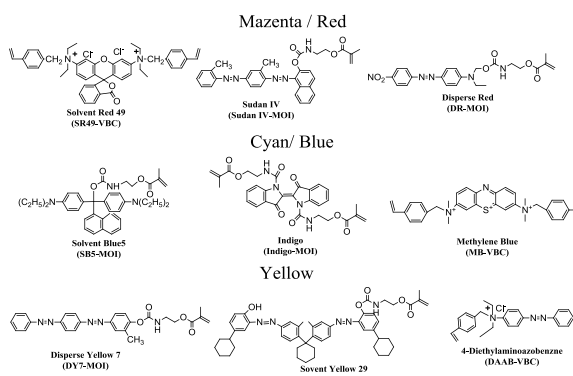


図5 合成した反応性染料の構造式

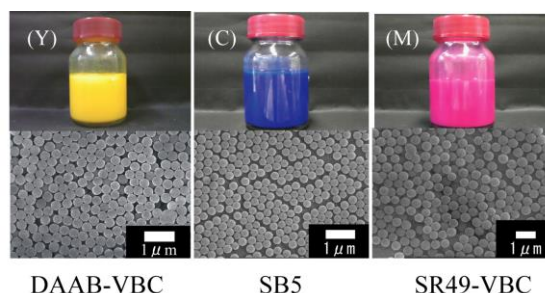


図6 カラー分散液の写真および微粒子の SEM 写真

(5) カラー微粒子の帯電制御法

微粒子の帯電性の制御はカラー電子ペーパーの最も鍵となる基本要素技術であるが、残念ながらよくわかっていない。電気泳動性を制御するのにどのような官能基がどのくらいの量が必要なのかはまだよくわかっていない。微粒子の電気泳動特性を精密に制御したい場合、電荷制御剤を後添加するよりも、微粒子それ自身が電気泳動性を持っている方が適切であると考えられる。筆者らは帯電性と電気泳動特性の関係を調べるために、PVNp 微粒子を用いて少量のコモノマー(4-ビニルベンジルクロリドやメタクリル酸、2-(ジメチルアミノ)エチルメタクリレートなど)を加えて分散共重合をすることによって微粒子を合成し、その後三級アミンなどを反応させることによって粒子径が同じで、正帯電+100mV から負帯電-35mV の ζ -電位のみが異なる PVNp 微粒子を合成した。黒微粒子を混合して、白微粒子の ζ -電位の違いと表示特性との関連について詳しく検討を行ったが、表示特性は必ずしも期待通りとはならなかった。また、予想に反して電気泳動性が極めて高いカラー微粒子も得られている。微粒子の電気泳動性の直接観察と ζ -電位の値は必ずしも一致せず、非極性媒体中における ζ -電位の物理的意味や解釈も含めて未解決な部分が多く、基礎的知見の構築が強く望まれる。

本研究で行った帯電性制御は、微粒子合成時に使用する分散剤自身(マクロモノマー)

に帯電性を付与することである。RAFT 重合法を用いてカルボキシル基やアミノ基を様々なポリマー鎖の中に導入したマクロモノマーを合成し、それを用いた微粒子合成を行うことによって帯電基を微粒子表面、グラフト鎖の中心、グラフト鎖の末端に導入することが可能である。電気泳動に対する閾電圧の制御、電気泳動性、分散安定性、表示特性について様々な角度から検討を行っている。

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 14 件)

- ① 川口正剛, 分散重合法を用いた電子ペーパー用カラー微粒子設計, 接着の技術, 査読有, 33, 2013, pp.47-54
<https://www.adhesion.or.jp/journal/gijutsushi/>
- ② Y. Saito, L.T.N. Lien, Y. Jinbo, J. Kumaki, A. Narumi, S. Kawaguchi, Influence of Primary Structure of Main Chain on Backbone Stiffness of Cylindrical Rod Brushes, 査読有, Polym. J., 45, 2013, pp. 193-201. doi:10.1038/pj.2012.117
- ③ 武田力, 小長谷龍, 平井文乃, 榎本航之, 鳴海敦, 川口正剛, フルカラー電子ペーパー用機能性電子インクの精密合成, 色材協会誌, 査読有, 85, 2012, pp. 505-512
<http://www.shikizai.org/Journal/backnumber/vol85/index.html>
- ④ A. Narumi, Y. Kimura, S. Kawaguchi, Precipitation Polymerization of *N*-Tert-Butylacrylamide in Water Producing Monodisperse Polymer Particles, Colloid Polymer Science, 査読有, 290, 2012, pp. 379-397 DOI 10.1007/s00396-011-2571-0
- ⑤ A. Narumi, Y. Ohashi, D. Togashi, Y. Saito, Y. Jinbo, Y. Izumi, K. Matsuda, T. Kakuchi, S. Kawaguchi, Star Polymer with Cross-linked Core and Water-soluble Poly(*N*-hydroxyethylacrylamide)-arms. Synthesis by Arm-first Method using ATRP and Characterizations by SEC-MALS and SAXS Measurement in Water, *J. Polym Sci., Part-A, Polym. Chem.*, 査読有, 50, 2012, pp. 3546-3559
[http://onlinelibrary.wiley.com/journal/10.1002/\(ISSN\)1099-0518](http://onlinelibrary.wiley.com/journal/10.1002/(ISSN)1099-0518)

[学会発表] (計 92 件)

- ① 川口正剛, 分散重合法を用いた電子ペーパー用カラー微粒子設計, 日本接着学会微粒子設計セミナー, フォーラムミカサ エコ(東京), 2014年2月20日 [Invited]
- ② S. Kawaguchi, Preparation of Functional Polymer Particles for Electronic Rewritable Paper, 10th China-Japan

Seminar on Advanced Engineering
Plastics, Polymer Alloys, Blends and Composites, Gwangju, China, 2013/11/27~30 [Invited]

- ③ 平井文乃, 鳴海敦, 川口正剛, ポリラウリルメタクリレートマクロモノマーを用いた電子ペーパー用微粒子の精密合成, 第 17 回高分子ミクロスフェア討論会, 東北大学, pp. 107-108, 2012年11月7~9日
- ④ 平井文乃, 武田力, 鳴海敦, 川口正剛, フルカラー電子ペーパー用帯電性カラー微粒子の精密合成, 第 60 回高分子討論会, pp. 4457-4458, 岡山大学, 2011年9月28日~30日
- ⑤ 平井文乃, 鳴海敦, 川口正剛, RAFT 重合法による電子ペーパー用マクロモノマー分散剤の合成, 第 60 回高分子学会年次大会, pp. 821, 大阪国際会議場, 2011年5月25~27日
- ⑥ 武田力, 小長谷龍, 鳴海敦, 川口正剛, 電子ペーパー用カラー帯電性微粒子の設計と電気泳動性, 第 60 回高分子学会年次大会, pp.1138, 大阪国際会議場, 2011年5月25~27日

[図書] (計 7 件)

川口正剛, 武田力, 鳴海敦, CMC 出版, フルカラー電子ペーパーのための高分子微粒子設計: 最新フォトリソポリマー材料と応用技術, 2011, pp.187-193

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

[その他]

ホームページ等

http://kawaguchi-narumi_lab.yz.yamagata-u.ac.jp/

6. 研究組織

(1)研究代表者

川口 正剛 (KAWAGUCHI, Seigou)
山形大学・大学院理工学研究科・教授
研究者番号: 00204694

(2)研究分担者

()

研究者番号:

(3)連携研究者

()

研究者番号: