

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 5 月 6 日現在

機関番号：14301

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2012～2013

課題番号：24760042

研究課題名(和文) 高強度テラヘルツ光によるコロイド半導体ナノ粒子の発光明滅現象の解明と制御

研究課題名(英文) Studying and controlling photoluminescence blinking of quantum dots by using intense THz pulses

研究代表者

廣理 英基(Hirori, Hideki)

京都大学・物質-細胞統合システム拠点・准教授

研究者番号：00512469

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,500,000円、(間接経費) 1,050,000円

研究成果の概要(和文)：本研究は、光電子デバイスへの応用が期待される半導体量子ドット・井戸試料に対し、THzパルスを用いた発光現象の解明および制御法の確立を目的としている。高密度励起状態において荷電励起子が生成されることを明らかにし、従来OFF状態の生成にはオージェ過程が必要とされる定説を覆す結果を得た。OFF状態は励起キャリアが不純物準位に束縛されることが原因の1つと考えられている。また、GaAs量子井戸における不純物準位に対しTHz非線形光学応答の観測を行い、従来の光学的手法では観測できなかった高品質GaAs量子井戸における束縛キャリアの存在を明らかにした。

研究成果の概要(英文)：The purpose of this study is studying and controlling the photoluminescence phenomena of quantum dots or wells, which has expected for the applications of electro-optic devices. The excitation density dependence of photoluminescence (PL) blinking of single CdSe/ZnS quantum dots indicates that the biexciton generation is a precursor of the trion state and not of the OFF state. Also, the THz electric field dependence and the relaxation dynamics of the PL flash intensity of GaAs quantum wells suggest that the strong electric field of the THz pulse ionizes impurity states during the one-picosecond period of the THz pulse and release carriers from a giant reservoir containing impurity states in the AlGaAs layers.

研究分野：応用物理学・工学基礎

科研費の分科・細目：応用光学・量子光工学

キーワード：THz分光 非線形分光 高強度THz発生 半導体光物性 量子井戸 量子ドット

1. 研究開始当初の背景

近年、ナノ構造半導体である量子ドットは元々のバルク半導体とは異なる新規な電氣的・光学的特性を示し、高効率な発光材料・太陽電池材料、さらには単一光子源への応用が期待されている。量子ドットは空間的に制約された構造を持ち電氣的・光学的特性は離散的な電子準位、励起子の束縛エネルギーによって特徴づけられる。特に光生成された励起子の強い閉じ込め効果は高い量子効率を実現し、高効率な発光素子 (LED) への応用が期待されている。また、光励起されたキャリア間の強いクーロン相関は発光に寄与するキャリアの個数を制限し、量子ドットからの放射される発光は非古典的な光子統計に従い、単一光子状態を表すアンチバンチング現象を示す。このため安全性の高い量子暗号や量子情報処理のキーデバイスとして期待される単一光子源への開発を目指した研究が精力的に行なわれている。

しかし量子ドットからの発光は、発光する (オン) 状態と発光しない (オフ) 状態を繰り返す発光明滅 (ブリンキング) 現象を伴うことが知られている。オフ状態はしばしば数十秒のオーダーで継続することもあり、量子効率の低下や単一光子源への応用を妨げるだけでなく、蛍光ラベルとして使用する際にはバイオイメージングへの応用さえも妨げている。現在では量子ドットの作成法を工夫することによる発光明滅効果の低下の実現もされている。しかし、さらなる材料設計の指針を与えるためには未解明である明滅の原因を明らかにすることが肝要である。

2. 研究の目的

本研究では、高効率な発光素子・太陽電池材料さらには単一光子発生源への応用が期待される半導体量子ドットにおける発光明滅現象の解明および制御法を確立することを目的としている。このために、(1) まず CdSe/ZnS 量子ドットを試料として、従来考えられてきたオフ状態のメカニズムの検証を行った。CdSe/ZnS 量子ドットでは、CdSe/CdS 量子ドットとは異なり、電子もホールもコアに局在するため、従来のトリオン (荷電励起子) 生成だけでは説明できないオフ状態の起源が提唱されている。本研究では、CdSe/ZnS について明滅現象の励起強度依存性の詳細を調べることにより、オフ状態とトリオン状態の関係を明らかにすることを試みた。また、(2) 発光現象の THz 照射による制御実験の手法を確立するために、可視光領域の CW 光と高強度 THz パルスを使った時間分解発光分光法を用いて、非ドープ GaAs/AlGaAs 量子井戸の光キャリアダイナミクスを調べた。

3. 研究の方法

(1) CdSe/ZnS コアシェル量子ドットにおける発光明滅現象の光励起強度依存性

試料は粒径 8 nm の CdSe/ZnS コア/シェル量子ドットを PMMA/トルエン溶液で希釈し、厚さ 150 μm のガラス基板にスピコートして用いた。532 nm を中心波長とする CW レーザーを励起光に使い、量子ドットの発光は対物レンズによって集められ、アバランシェフォトダイオードによって観測した。また、時間相関単一光子計数法を用いて単一量子ドットの発光寿命測定を行った。このとき、励起光には 444 nm、パルス幅 50 ps、くり返し周波数 5 MHz のパルスレーザーを用い、発光をアバランシェフォトダイオードによって観測した。本手法では、それぞれの光子について、測定開始からの絶対時間と励起パルスとの相対時間を記録することで、発光強度ごとに発光寿命を求めることができる。

(2) GaAs/AlGaAs 試料における巨大な発光増強

半導体材料における発光現象の THz パルス照射による制御実験の手法を確立するために、(532nm および 785nm) と高強度 THz パルスを使った時間分解発光分光法を用いて、非ドープ GaAs/AlGaAs 量子井戸の光キャリアダイナミクスを調べた。可視光と高強度 THz パルスを用いた時間分解発光分光法を行った。使用した THz パルスの最大電場強度は $\sim 770 \text{ kV/cm}$ 、1ps 程度のパルス幅である。ワイヤグリッド偏光子対を用いて、時間波形を変えずに電場強度だけを変えた測定を行った。

4. 研究成果

(1) CdSe/ZnS コアシェル量子ドットにおける発光明滅現象の光励起強度依存性

(1-a) 励起強度依存性

図 1 は単一量子ドットの発光強度の時間変

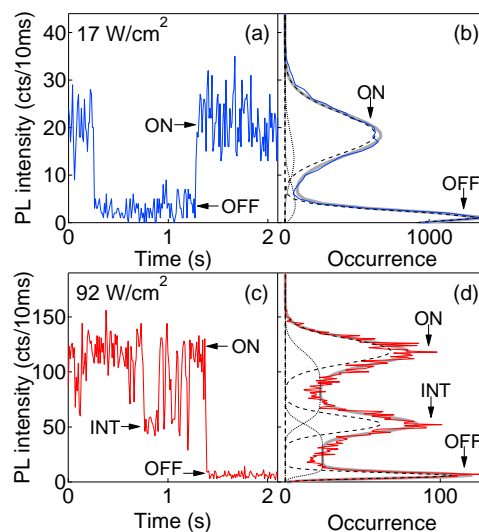


図 1 17、92 W/cm^2 における同じ単一量子ドットの (a),(c) 発光の時間変化と (b),(d) ヒストグラム。 (a),(c) は 120 s の測定の一部を示す。 (b),(d) においてはフィッティング曲線 (太い灰色の実線) とその構成成分 (破線と点線) も示す。

化とヒストグラムを示す。弱励起下 (17 W/cm^2) ではオン状態とオフ状態の2状態を示す (図 1(a),(b)) のに対し、強励起下 (92 W/cm^2) ではオン状態のおよそ半分の発光強度を有する中間状態が現れることがわかった (図 1(c),(d))。図 1(b)と(d)の示した発光強度のヒストグラムは、オン、オフ、中間の3つの状態に由来する成分 (破線) と、タイムビンの間にこれらの状態を切り替わることに由来する成分 (点線) の和でフィッティングすることができる。ポアソン分布を用いて、3状態の分布は ($i=\text{ON, OFF, INT}$) と表された。

図 2(a)はオン状態と中間状態の発光強度の励

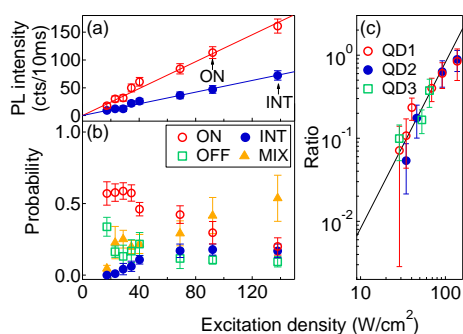


図 2 (a)オン状態と中間状態の発光強度、(b)それぞれの状態の出現確率、(c)中間状態とオン状態の出現確率の比、の励起強度依存性

起強度依存性を示す。それぞれの状態の発光強度は本実験の励起強度の範囲で線形に増加しており、オン状態と中間状態の強度比は約 0.4 であった。図 2(b)はオン、オフ、中間状態の出現確率の励起強度依存性を示す。これらはフィッティングによって得られた a_i ($i=\text{ON, OFF, INT}$) をフィッティング曲線の面積で割ったものに相当する。状態間の切り替わりの出現確率 (MIX) も示しており、これは図 1(b),(d)の点線の成分の和に対応する。励起強度を強くすると、オフ状態に有意な変化が見られないのに対して、オン状態は減少し中間状態は増加する。切り替わりの成分の増加は強励起下においてオン状態から中間状態への遷移が促進されていることを示唆している。

図 2(c)は3つの単一量子ドットについての中間状態とオン状態の出現確率の比を表す。これらは同じ傾向を示し、励起強度の2乗に比例して増加する。バイエキシトンの生成レートは励起強度の2乗に比例することから、中間状態への遷移はバイエキシトン生成によるものだと考えられる。本研究での最大の励起強度 (138 W/cm^2) では、バイエキシトンの生成レートは約 $3 \times 10^4 \text{ s}^{-1}$ と見積もられる。これはエキシトンの生成レート (約 $1 \times 10^6 \text{ s}^{-1}$) の3%程度である。バイエキシトン状態においてはオーグメント再結合が支配的に起こることを考慮すると、見積もりの結果は図 2(a)において発光強度が飽和しない振

舞いを示すことと整合性がある。

(1-b) 発光スペクトルと発光寿命

トリオンが形成されていることを確かめるために、共焦点顕微鏡発光測定系を用いてオン状態と中間状態の発光スペクトルを測定した。図 3(b)は高強度励起下 (120 W/cm^2) における単一量子ドットの発光スペクトルの時間変化を示す (積算時間 40 ms、読み出し時間 110 ms)。2つの異なる発光状態があり、発光強度の弱い中間状態は発光強度の強いオン状態に比べてレッドシフトしている。オン状態と中間状態の発光スペクトルの和を見ると、レッドシフトの量は 13 meV 程度であることがわかる (図 3(c))。理論の先行研究から、観測されたレッドシフトはトリオン状態に起因すると考えられる [8]。また、弱励起下で同様の実験を行うと、中間状態は観測されなかった。さらに、時間分解発光測定によってオン状態と中間状態における発光寿命を測定した。図 3(d)に示すように、指数関数フィッティングによって得られた中間状態の発光寿命 ($\tau_{\text{INT}} \sim 23 \text{ ns}$) はオン状態 ($\tau_{\text{ON}} \sim 39 \text{ ns}$) に比べて短い。これはトリオン状態においてオーグメント再結合が起こることによって発光寿命が速くなることを反映している。

また、図 2(a)において中間状態の発光強度がオン状態に比べて小さいことも、無輻射緩

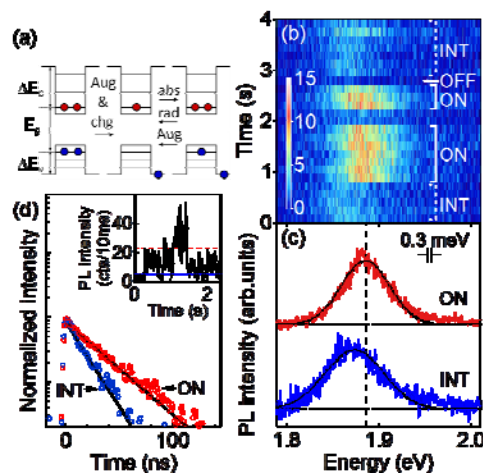


図 3 (a)CdSe/ZnS 量子ドットのエネルギーダイアグラムとトリオン生成に至る過程。 E_g 、 ΔE_c 、 ΔE_v はそれぞれ ~ 1.9 、 ~ 1.1 、 $\sim 0.6 \text{ eV}$ 。バイエキシトン生成に伴ってオーグメント過程が起こり (Aug)、量子ドットがチャージする (chg)。中間状態において量子ドットが光を吸収するとトリオンが生成され、発光 (rad) あるいはオーグメント再結合によって緩和する。(b)単一量子ドットの発光スペクトルの時間変化。(c)積算したオン状態と中間状態の発光スペクトル。実線はガウスフィットを表す。(d)オン状態と中間状態における発光の時間波形。挿入図は発光強度の時間変化と閾値 (破線: オン状態と中間状態、点線: 中間状態とオフ状態) を表す。

和が起きることから説明できる。粒径 5 nm の CdSe/ZnS 量子ドットを用いた先行研究において、オン状態の 4 % の発光強度を有する中間状態が観測されている。本研究において中間状態の発光強度が比較的大きい（オン状態の 40 %）のは、より大きな粒径の試料を用いたことで電子やホールの変動関数の重なりが小さくなり、オーグゼ再結合が抑制されるからだと考えられる。この推測は、CdSe/CdS 量子ドットにおいてシェルを厚くすることでコアに局在したホールと局在していない電子の変動関数の重なりが小さくなり、トリオン状態の発光強度や発光寿命が大きくなることとも整合性がある。

(1-c) 継続時間の分布

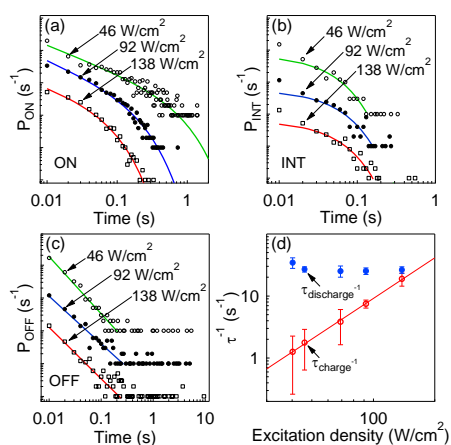


図 4 46、92、138 W/cm²における(a) オン状態、(b)オフ状態、(c)中間状態の継続時間の分布 (d)チャージングレート(白丸)と中性化レート(黒丸)の励起強度依存性。実線は直線フィットを表す。

ここでは、状態間の遷移過程についてさらなる知見を得るために、オン、オフ、中間状態の継続時間の分布を調べた。図 1 で得られた発光強度の時間変化について、発光強度の閾値によってオン、オフ、中間状態を定義し、解析を行った。図 4(a)は 46、92、138 W/cm²におけるオン状態の継続時間の分布を表す。これらは短時間の領域ではべき乗則に従うが、長時間の領域ではカットオフが現れ、べき乗則から外れていく。これらの分布は量子ドットのチャージングによる遷移過程を含んだべき乗則によって再現することができる。一方、オフ状態の継続時間の分布はべき乗則に従い(図 4(b))、フィッティングから得られた緩和寿命は励起強度に依存しない。また、中間状態の分布は指数関数に従う(図 4(c))。

図 4(d)が示すようにオン状態におけるチャージングレート $\tau_{\text{discharge}}^{-1}$ は励起強度の 2 乗に比例する。図 4(d)と図 2(c)の両方で見られた励起強度の 2 乗に依存する振る舞いから、高強度励起下におけるバイエキシトン生成によって量子ドットのチャージング、すなわ

ちオン状態から中間状態への遷移が起こると結論付けられる。図 4(d)に示すように $\tau_{\text{discharge}}^{-1}$ は励起強度に依存せず、この過程は光励起によって起こるものではないことがわかる。

(1-d) まとめ

本研究では単一の CdSe/ZnS 量子ドットにおける明滅現象の励起強度依存性を調べた。比較的高強度励起の下で、オン状態とオフ状態に加えて中間状態が現れることがわかった。粒径の大きな試料を用いたために、比較的大きな中間状態の発光強度が観測された。これによって 3 つの状態を明確に区別することができ、明滅現象における量子ドットの振る舞いを系統的に研究することができた。実験の結果、中間状態はバイエキシトン生成に伴ってチャージした量子ドットにおけるトリオン状態の形成に起因すると結論付けた。中間状態において有意な発光が観測されたことから、オフ状態はトリオン状態ではなく、トラップ準位を介した無輻射緩和やマルチチャージ状態など、別のメカニズムに起因する状態であると言える。オフ状態の詳細なメカニズムを本研究からは明らかにできないが、図 2(b)においてオフ状態の出現確率が励起強度に依存しないことから、バイエキシトン生成の関与は必要ないと考えられる。本研究によって、量子ドットにおける明滅現象の適切なモデルの構築が促進され、単一光子源といった応用につながることを期待される。

(2) GaAs/AlGaAs 試料における巨大な発光増加

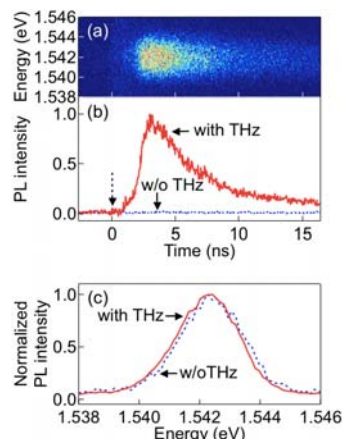


図 5 (a) 発光フラッシュの典型的なストリークカメラ像。(b) 1.542 eV 周辺でエネルギー積分した発光の時間発展。実線と破線はそれぞれ THz 光のあるなしに対応している。(c) 時間積分した発光スペクトル。

図 5(a)はストリークカメラで測定した典型的な二次元像である。図 5(b)は量子井戸からの 1.542 eV での重い正孔励起子発光の時間波形である。赤実線と青点線はそれぞれ THz 光照射のあるなしに対応している。連続光の強度は 0.6 W/cm² である。図 5 (b)の点

線矢印で示した時刻 0 s でパルス幅 1ps 程度の THz 光パルス照射している。THz なしでの発光 (青点線) は弱くてナノ秒の時間領域ではほとんど検出できない。一方で、THz 光照射では照射直後の発光の増強 (フラッシュ) が観測されていて、フラッシュは 5 ns で緩和した。図 5(c) は時間積分した発光のスペクトルである。赤実線と青破線はそれぞれ THz 光照射のあるなしのスペクトルである。ともに 1.542 eV にスペクトルの中心をもっていて、形状がほぼ一致している。

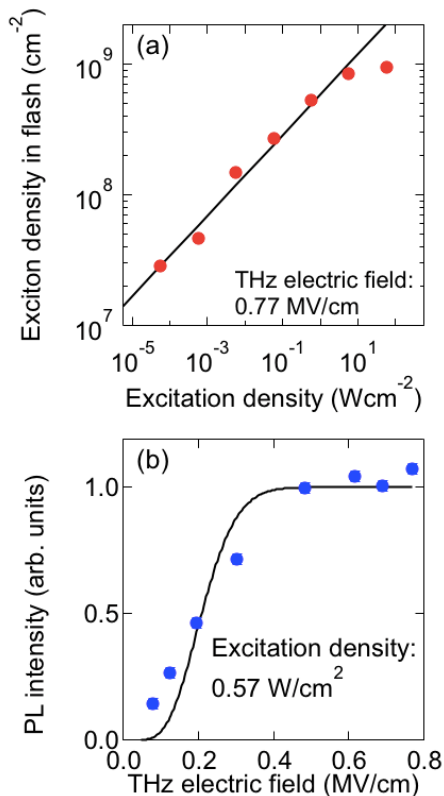


図 6 (a) 発光フラッシュの連続光強度依存性 (赤丸)。THz 光のピーク電場強度は 0.77 MV/cm である。実線はアイガイドであり、光強度に対して 0.2 乗を表す。(b) フラッシュの THz 強度依存性 (青丸)。光強度は 0.57 W/cm^2 である。実線は電界イオン化を仮定した計算結果である。

図 6(a) は 0.77 MV/cm の電場振幅をもつ THz 光を照射したときの発光のフラッシュ強度の連続光強度依存性である。励起連続光強度を増やしていくと、フラッシュの強度は光強度に対して 0.2 乗で増加していき、光強度が 6 W/cm^2 以上では飽和するふるまいを示した。図 6(b) はフラッシュ強度の THz 電場強度依存性である。THz 電場強度を強くしていくとフラッシュ強度は強くなり、0.4 MV/cm 程度で飽和することがわかった。THz 電場強度に対して非線形なふるまいを示さないことから、衝突イオン化の効果は起こっていないと考えられる。

図 5 で示されるフラッシュに含まれる励起子数は、定常状態の励起子数から見積もるこ

とができる。テラヘルツ光照射での瞬間的な発光の増幅は定常状態の発光強度に比べて 3 倍程度になったので、井戸層の励起子数も 3 倍になったと考えられる。図 6(a) のように、光強度を強くしていくとフラッシュに含まれる励起子数が $9 \times 10^8 \text{ cm}^{-2}$ で頭打ちになることから、トラップ準位の密度は $9 \times 10^8 \text{ cm}^{-2}$ となる。また、最も弱い光強度 0.06 mW/cm^2 のもとでは、連続光で生成された井戸層の定常的なキャリア数は $2.5 \times 10^3 \text{ cm}^{-2}$ であるのに対して、フラッシュに含まれるキャリア数は $2.5 \times 10^7 \text{ cm}^{-2}$ と見積もることができる。これは、テラヘルツ光の照射で、井戸層の励起子の数が定常状態に比べて瞬間的に 4 桁増加していることを意味している。バリア層より低エネルギー側で井戸層だけの連続光励起 (1.58 eV) でフラッシュが観測されなかった。これは、井戸層にトラップ準位がほとんど存在していないことを示唆している。以上の実験結果から、バリア層にある不純物準位の束縛エネルギー 38 meV で非輻射寿命 1.6 ms の深い準位にトラップされたキャリアはテラヘルツ光で活性化されたあと、非輻射で井戸層の伝導帯の底に緩和して励起子を生成して、最終的に輻射的再結合していると考えられることができる。

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 7 件)

- 雑誌名: Physical Review Letters 誌, 111 巻, 頁 067401-1-067401-5 (2013), 発表年 2013, 査読有, Editor's Suggestion
論文名: Terahertz-induced optical emission of photoexcited undoped GaAs quantum wells
著者名: K. Shinokita, *H. Hirori, *K. Tanaka, T. Mochizuki, C. Kim, H. Akiyama, L. N. Pfeiffer, and K. W. West
- 雑誌名: Physical Review B Rapid Communications 誌, 87 巻, 頁 201202-1-201202-4, 発表年 2013, 査読有
論文名: Electric field ionization of gallium acceptors in germanium induced by single-cycle terahertz pulses
著者名: Y. Mukai, *H. Hirori, *K. Tanaka
- 雑誌名: Physical Review B, 88 巻, 頁 155440-1-155440-5 (2013), 発表年 2013, 査読有
論文名: Biexciton state causes photoluminescence fluctuations in CdSe/ZnS core/shell quantum dots at high photoexcitation densities
著者名: N. Yoshikawa, *H. Hirori, H. Watanabe, T. Aoki, T. Ihara, R. Kusuda, C. Wolpert, T. K. Fujiwara, A. Kusumi, Y. Kanemitsu, and *K. Tanaka

4. 雑誌名 : Proceedings of the International Society for Optics and Photonics (SPIE), 8604 巻, 頁 86040B(全5頁), 発表年 2013, 査読無し
論文名 : High-power THz pulse generation and nonlinear THz spectroscopy
著者名: K. Shinokita, *H. Hirori, K. Tanaka, T. Mochizuki, C. Kim, H. Akiyama, L. N. Pfeiffer, K. W. West.
 5. 雑誌名 : IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics 誌 (Invited review paper), 19 巻, 頁 8401110 (全 10 頁), 発表年 2012, 査読有
論文名: Nonlinear optical phenomena induced by intense single-cycle terahertz pulses
著者名: *H. Hirori, *K. Tanaka.
 6. 雑誌名 : Proc. SPIE 誌, 8240 巻, 頁 82400B, 発表年 2012
論文名: Single-cycle terahertz pulses with amplitudes exceeding 1 MV/cm generated by optical rectification in LiNbO3 and applications to nonlinear optics
著者名: *H. Hirori, K. Tanaka, 査読有
 7. 雑誌名 : 応用物理学会誌 (解説), 81 巻 第 4 号, 頁 291-297, 発表年 2012
論文名: 高強度 THz パルスで誘起する非線形光学現象
著者名: *廣理英基, 田中耕一郎, 査読有
- [学会発表] (計 10 件)
1. 会議名 : Nonlinear Optics, 場所 : The Fairmont Orchid, Kohala Coast, Hawaii (アメリカ), 期間: 2013 年 7 月 22-26 日 (発表日 7 月 22 日)
題名 : High-power Terahertz Pulse Generation and Application to Nonlinear THz Spectroscopy
著者名: *H. Hirori, K. Tanaka
 2. 会議名: The 18th International Conference on Electron Dynamics in Semiconductors, Optoelectronics and Nanostructures (EDISON18), 場所: くにびきメッセ, 松江市, 島根県 (日本), 期間: 2013 年 7 月 22-26 日 (発表日 7 月 25 日)
題名 : High-power Terahertz Pulse Generation and Application to Nonlinear THz Spectroscopy
著者名: *H. Hirori, K. Tanaka
 3. 会議名: 2013 Photonics West, 場所: The Moscone Center, San Francisco (アメリカ), 期間: 2013 年 2 月 2-7 日, 講演番号: 8604-10
題名: High-power THz pulse generation and nonlinear THz spectroscopy
著者名: *H. Hirori, K. Tanaka
 4. 会議名: 第 68 回 日本物理学会, 場所: 広島大学, 東広島市, 期間: 2013 年 3 月 26 日-29

- 日
題名: 超高強度 THz 光源の開発と非線形光学現象への応用に関する研究 (第 7 回 日本物理学会若手奨励賞 受賞記念講演)
著者名: 廣理英基
5. 会議名: 第 61 回応用物理学会春季学術講演会、
著者名: 廣理英基、田中耕一郎、
題名: 超高強度 THz 光源の開発と THz 非線形分光、応用物理学会、場所: 青山学院大学 相模原キャンパス、
期間: 2014 年 3 月 17-20 日
 6. 会議名: 日本物理学会 2013 年秋季大会、徳島大学、期間: 2013 年 9 月 25-28 日
題名: CdSe/ZnS 単一量子ドットにおける高強度励起下でのトリオン生成
著者名: 吉川尚孝, 廣理英基, 渡邊浩, 青木隆朗, Christian Wolpert, 田中耕一郎
 7. 会議名: 日本物理学会 2013 年秋季大会, 場所: 徳島大学、期間: 2013 年 9 月 25-28 日
題名: 希土類オルソフェライト HoFeO3 における高強度テラヘルツ磁場誘起マグノン生成
著者名: 向井佑, 廣理英基, 山本隆文, 陰山洋, 田中耕一郎
 8. 会議名: International Workshop on Optical Terahertz Science and Technology 2013(OTST2013), 場所: Kyoto Terssa, Japan, 期間: April 1-5, 2013
題名: Dynamics of Optically Excited Carriers under Intense Terahertz Pulse in GaAs Quantum Wells
著者名: K. Shinokita, H. Hirori, T. Mochizuki, H. Akiyama, L. N. Pfeiffer, K. W. West, and K. Tanaka
 9. 会議名 CLEO-PR & OECC/PS 2013, 場所: Kyoto International Conference Center, Kyoto、期間: June 30-July 4, 2013
題名: Photoluminescence Flash Induced by Intense Single-Cycle Terahertz Pulses in Undoped GaAs Quantum Wells
著者名: K. Shinokita, H. Hirori, K. Tanaka, T. Mochizuki, H. Akiyama, K. W. West, L. N. Pfeiffer
 10. 会議名: 日本物理学会 2013 年秋季大会, 場所: 徳島大学、期間: 2013 年 9 月 25-28 日
題名: GaAs 量子井戸の励起子内部準位における過渡的 AC シュタルク効果の観測
著者名: 内田健人, 廣理英基, 篠北啓介, 望月敏光, 金昌秀, 吉田正裕, 秋山英文, L.N.Pfeiffer, K.W.WestE, 田中耕一郎
- [図書] (計 0 件)
[産業財産権]
○出願状況 (計 0 件)
○取得状況 (計 0 件)
[その他]
ホームページ等
6. 研究組織
(1) 研究代表者: 廣理 英基 (代表)
研究者番号: 00512469