

令和元年6月24日現在

機関番号：14401

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2016～2018

課題番号：16H03885

研究課題名(和文)ホモ・ヘテロ・ナノギャップ構造を持つ周期ナノドット転写法の開発

研究課題名(英文) Development of a technique to transfer nanodot in lattice with homo- hetero- and nanogap

研究代表者

中田 芳樹 (Nakata, Yoshiki)

大阪大学・レーザー科学研究所・准教授

研究者番号：70291523

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 8,400,000円

研究成果の概要(和文)：レーザー誘起ドット転写法と超短パルスレーザー干渉パターン加工法を融合した、素材やサイズ及び配列が自由な新しい金属3Dナノプリンタを提案した。その結果、(1)Auナノドットアレーのシングルショット形成、(2)シングルショットでの多重発生によるホモ接合及びナノギャップ構造($l=17.4\text{nm}$)の形成、(3)2ショットによるAu及びPtナノドットのヘテロ接合及び交互配列形成、(4)位相グレーティングと空間周波数フィルタリングの最適化による超高精度ビーム整形、(5)AuナノドットのSERS活性測定、などに関する成果を得た。よって、素材や加工速度で従来法を越えた新しい3Dナノプリンタを開発に成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

レーザー誘起ドット転写法と超短パルスレーザー干渉パターン加工法の組み合わせは世界初の成果であり、その性能もユニークかつ高性能である。一方、紫外から近赤外域のレーザー光に適用できるユニバーサルかつ高精度なビーム整形技術は、全てのレーザーのポテンシャルを最大限引き出す鍵となり、基礎研究から製造技術、光・電子部品、医療など多彩な分野で応用が期待される。これらの研究成果を元に2件の国内特許出願(海外は1件準備中)、国内プレスリリース及び海外配信を行った。また、11本の論文を執筆し、さらに2件のkeynote講演及び16件の招待講演を得た。また、3件の受賞を得た。

研究成果の概要(英文)：By combining laser-induced dot transfer and interfering ultra-short pulse laser processing, a new metal 3D nano-printer is proposed. Results are as follows; (1) single shot deposition of Au nanodot array, (2) fabrication of homo- and nanogap ($l=17.4\text{nm}$) by multi-generation in a single shot, (3) hetero- and alternating Au and Pt nanodots by two shots' process, (4) ultrafine beam shaping by optimizing phase a grating and a spatial frequency filtering, (5) observation of the SERS activity of Au nanodots. New 3D nano-printer technique with better adaptability to different materials and processing speed was developed successfully.

研究分野：応用物理学・工学基礎、応用光学・量子光工学

キーワード：レーザー誘起ドット転写 金属ナノドット 周期構造 ナノ3Dプリンター 超短パルスレーザー ビーム整形 (2)ホモ接合・ヘテロ接合・ナノギャップ構造

様式 C-19、F-19-1、Z-19、CK-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

金属ナノ構造に関する研究が多分野で進められている。例えば、金属ナノ構造の近接場で起こる表面増強ラマン散乱(SERS: Surface-Enhanced Raman Scattering)を利用した超高感度分光分析や、一元または多元金属からなる均一・不均一触媒など、バイオや環境など幅広い分野において金属ナノ構造の設計と作製法が重要な研究テーマとなっている。これまでの作製法は、化学還元法などのボトムアップ的手法及びリソグラフィなどのトップダウン的手法に大別される。前者はサイズ分布や配列の制御が困難であり、後者は加工時間やコストの問題が大きい。共にウェットプロセスを用いるために素材が制限され、また任意の場所に追加堆積するオンデマンド性に欠ける。

一方、超短パルスレーザーを用いた微細加工は、熱変成の悪影響が少なく加工解像度に優れた手法として知られている。それに対し研究代表者は、超短パルスレーザーで極微細な熱プロセスを誘起出来る事に注目し、フェムトリットル溶融金属を発生させる事でナドロップやナノウィスカーなどの3次元ナノ構造を形成する事に成功し、これをSLS(Solid-Liquid-Solid)プロセスと命名した。さらに干渉パターン内のスポット毎にSLSプロセスを誘起し、精密に配列した3次元ナノ構造をシングルショットで一括形成することに成功した(Appl. Phys. A, 101, 471 (2010)。これを研究分担者が保有する技術であるレーザー誘起ドット転写(LIDT)法と融合することで「干渉パターン LIDT 法」を開発し、さらに従来のシングルドット LIDT 法と合わせることで、素材やサイズ及び配列が自由な新しい金属ナノ3Dプリンタ技術を開発できると発想した。

2. 研究の目的

- (1)超短パルスレーザー干渉パターン加工法とLIDT法を融合し、「干渉パターンLIDT法」を開発する。これにより、素材が自由かつ自動配列が可能な新しい金属ナノ3Dプリンタ技術を確立する。さらに堆積位置精度を向上させたシングルビームLIDT装置と合わせ、配列が自在なオンデマンド形成も可能とする。これらの装置を用い、周期配列ナノドットやホモ接合・ヘテロ接合・ナノギャップ構造等を形成し、本手法の有効性を実証する。
- (2)均一な面積加工を可能とするために、空間光変調器(SLM: Spatial-Light-Modulator)に表示したバーチャルな位相グレーティングと空間周波数フィルタリングを利用した超高精度ビーム整形技術を確立する。
- (3)金属ナノドットのSERS活性を測定し、プラズモニクスにおける有用性を実証する。

3. 研究の方法

(1) LIDT装置の構築

- ① 干渉パターンLIDT装置の開発(図1):波長785nm、パルス幅約200fsの光源をDOE(Diffractive Optical Element)で分岐し、2枚の凸レンズからなる縮小光学系で4ビーム干渉パターンをターゲット上に形成する(周期3.9 μ m)。ポインティング安定装置を導入し(1mrad/h \rightarrow 10 μ mrad/h)及び5nm精度ステージを導入し、干渉パターンの絶対位置を安定化させる。また、ビーム整形装置を導入し、フラット・パターン加工を可能にする(後述)。干渉パターン加工部にドナー薄膜とレーザー基板を配置し、干渉パターンLIDT装置を構築する。真空排気装置により、大気と真空($P < 3$ kPa)でのLIDTを可能にする。

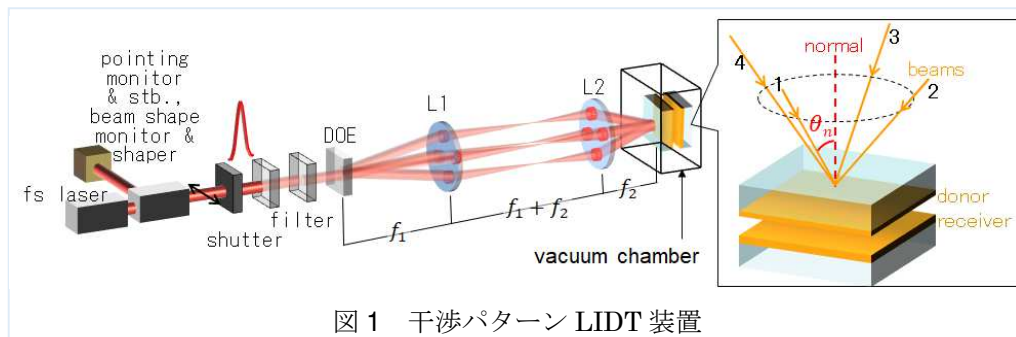


図1 干渉パターン LIDT 装置

- ② ドナー薄膜及びレーザー基板:合成石英にAuあるいはPt薄膜をスパッタリング堆積したものを用いる。
- ③ 超高精度ビーム整形法(図2):光源はビーム径(1/e²)が9.8mmで波長780nmのCWレーザーあるいは上記の fs レーザー、SLMは浜松ホトニクス社 LCOS-SLM X-10468-02を用いる。SLMに表示したバーチャルな位相グレーティングと4f光学系のフーリエ面における空間周波数を用いたビーム整形において、除去成分と抽出成分の空間分布を最適化する事で、ビーム整形精度が高精度

かつ波面制御も可能な手法を開発する。

- ④ シングルナノドットアレー及びホモ接合・ヘテロ接合・ナノギャップ構造の作製:干渉パターン LIDT をおこなう事で、シングルナノドットアレーを一括形成する。またシングルスポットからの複数ドット同時形成やマルチショット LIDT などを用い、ホモ接合・ヘテロ接合・ナノギャップ構造を作製する。
- ⑤ シングルビーム LIDT 装置の堆積位置安定化:ポインティング精密制御装置(ガルバノミラー)を導入し、オンデマンドなナノドット堆積の位置精度を向上させる。

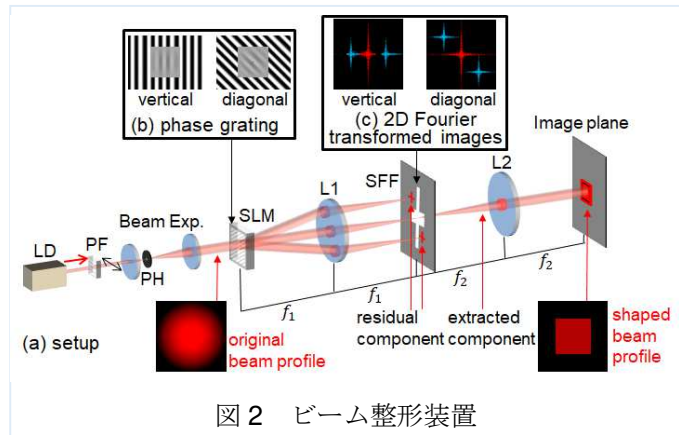


図2 ビーム整形装置

- (2) Au ナノドット構造の SERS 活性測定:様々な配列を持つ Au ナノドット構造の SERS 活性を明らかにする。

4. 研究成果

- (1) 干渉パターン LIDT 実験結果:シングルナノドットアレーの一括形成

図3は厚さ40nmのAu薄膜をドナーに用いた干渉パターンLIDTのSEM観察結果である。Auナノドットが3.6 μ mの周期で正方格子配列していることが分かり、干渉パターンLIDT法の有効性が確認された。Pt薄膜でも同様にナノドットアレーの作製に成功した。原理的には、素材が波長に対して不透明であればLIDTが可能である。

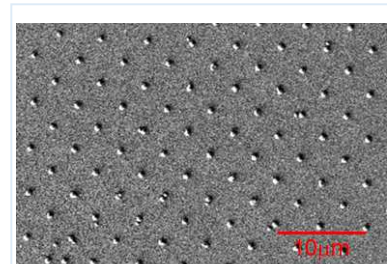


図3 干渉パターンLIDTで堆積したAuナノドットアレーの例

- (2) ホモ接合・ヘテロ接合・ナノギャップ構造の作製

図4はシングルショットで作製したナノドット形状のSEM観察結果を示す。比較的低フルエンス(a-1)の場合、直径484nmのAuナノドットが形成された。鳥瞰図(a-2)から、押しつぶされた球状をしていることが分かる。これは、一定の軟性を持つ温度でAuナノドットがレーザー基板に衝突変形し堆積したためと思われる。一方、比較的高いフルエンスでは干渉パターン中の単一スポットから複数のナノドットが放出され、(b)多段ナノドットや(c)ナノギャップ($\Delta F=17.4$ nm)が形成され、シングルショットでホモ接合・ナノギャップ構造を簡単に得ることに成功した。この場合、単一素材に限られる事、ギャップ長がランダムである事などから、これらの制御が必要な場合はマルチショットを用いる。

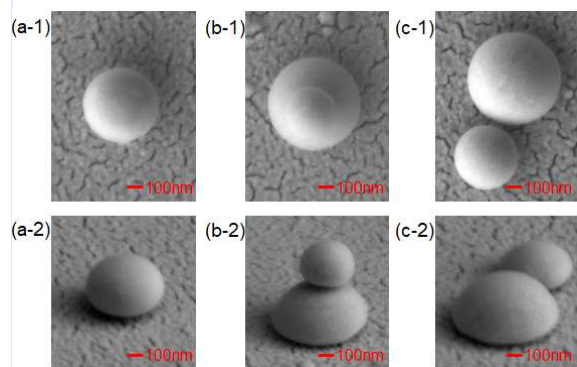


図4 シングルショットの干渉パターンLIDT結果の例: a シングルナノドット、b 多段ナノドット(ホモ接合)、c ナノギャップ構造

図5は2ショットを用いて作製したPt及びAuナノドットが近接した(a)ヘテロ接合構造及び(b)交互配列の光学顕微鏡像である。前者の場合、比較的大きなAuナノドット周期配列の近隣にPtナノドットを配置した。異なるショットで形成されるナノドットが相互作用し堆積位置のばらつきが発生しており、さらに調査が必要である。

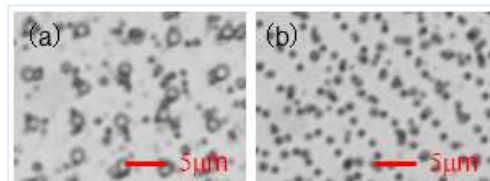


図5 Pt,Au ナノドット(a)ヘテロ構造、(b)交互配列

- (3) 超高精度ビーム整形

本研究では位相グレーティングと4f光学系による空間周波数フィルタリングの最適化による超高精度な手法を開発した(Sci. Rep, 9, 4640 (2019))。ターゲットとした形状は、ステップスキヤニングを用いたマルチショット加工において大面積で均一な加工形状が

作製出来る矩形フラットトップである。

入力光に SLM で位相グレーティング (ϕ_1 と ϕ_2 の周期構造)を与え、フーリエ面で回折光(除去成分)をカットした場合の出力光(抽出成分)の強度及び位相は(1)式で表される。

$$\vec{E}(0) \propto E_0 \cos\left(\frac{\Delta\phi}{2}\right) \times \exp\left(j\frac{\phi_1 + \phi_2}{2}\right) \quad (1)$$

ここで、 $\Delta\phi = \phi_1 - \phi_2$ は位相グレーティングの位相深さである。式より、 $\Delta\phi$ をビームプロファイル内で制御する事で減衰率分布の制御、すなわちビーム整形が可能となる事が分かる。

図 6 左の模式図にあるように、縦と斜めの位相グレーティングで比較を行った。この場合、それぞれのグレーティングベクトル k_g は矩形の法線ベクトル k_x 、 k_y と並行あるいは 45° となり、後者が本研究で開発した新しい構成である。位相グレーティングの周期はそれぞれ $\Lambda = 80\mu\text{m}$ (4 pixels) または $\Lambda = 56.6\mu\text{m}$ ($2\sqrt{2}$ pixels) とした。 $\Delta\phi$ に対する減衰率には実測値を用いた。空間周波数フィルターは直径1mm の円孔または幅1mm の十字スリットを用いた。

従来の図 6(a-1,2) $k_g \parallel k_x, k_y$ の場合、抽出成分と除去成分がフーリエ面で空間的に重なるため(図 2(c)左)、フィルタリングの際に抽出成分の空間周波数が高い成分が同時に除去されてしまう。その結果、エッジがなまりリップルが発生した。一方新しい構成である図 6(b-1,2) $k_g \nparallel k_x, k_y$ の場合、抽出成分と除去成分が空間的に分離されるため(図 2(c)右)、上記の問題が解消された。これらの構成において、矩形ビームエッジでの光強度が 20%から 80%に立ち上がるまでの長さを比較すると、それぞれ $102\mu\text{m}$ と $20\mu\text{m}$ であり、新しい構成では SLM のピクセルサイズと同スケールの精度でビーム整形が可能となった。また、図 6(c)のようにパターンニングも可能である。本手法の対応範囲は SLM で決まり、市販の製品では紫外から近赤外、また CW からフェムト秒レーザーまで対応可能である。

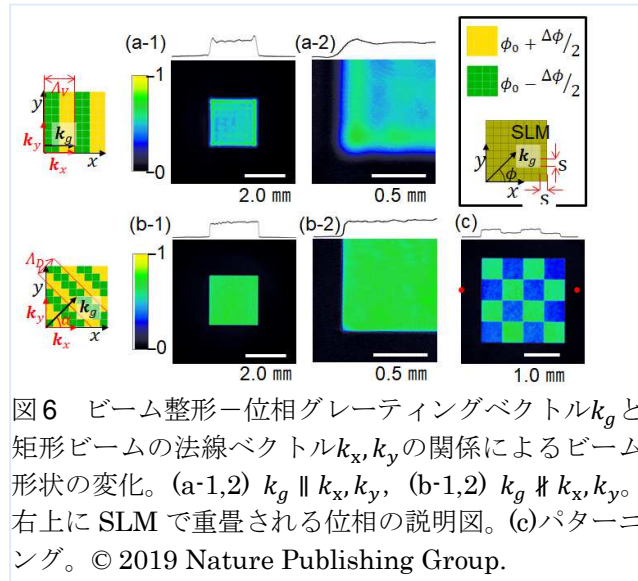


図 6 ビーム整形—位相グレーティングベクトル k_g と矩形ビームの法線ベクトル k_x, k_y の関係によるビーム形状の変化。(a-1,2) $k_g \parallel k_x, k_y$, (b-1,2) $k_g \nparallel k_x, k_y$ 。右上に SLM で重畳される位相の説明図。(c)パターンニング。© 2019 Nature Publishing Group.

(4) シングルビーム LIDT 装置の堆積位置精度向上

シングルビーム LIDT 装置にポインティング精密制御装置を導入した。Au ターゲットを用いた LIDT 実験において、直径 500 nm の Au ナノドットのオンデマンド堆積に成功した。

(5) SERS 測定

図 4 の様々な構造を用いて SERS 測定を行った結果を図 7 に示す。測定試料は 0.1 mol/L ピリジン水溶液である。レーザーの波長は 532nm、出力は 5.0mW、対物レンズ倍率 40 倍、露光時間 10 秒で測定を行った。図 7(a)は図 4(c)の Au ナノギャップを用いた場合であり、SERS のピーク位置が図 7(c)に示した通常の Raman(pyridine(neat))からシフトした。これは金表面に吸着したピリジンの SERS を検出したことを示唆している。一方、図 4(a)(b)などの測定結果との比較では、SERS シグナル強度にナノ構造依存性は見られなかった。これは、532 nm(single mode LSP)で励起しているためと考えられる。よって、ダイマー構造(ナノギャップ)の gap-mode LSP に対応する波長を SERS 光源として用いることで、より高い SERS シグナルが得られると期待できる。

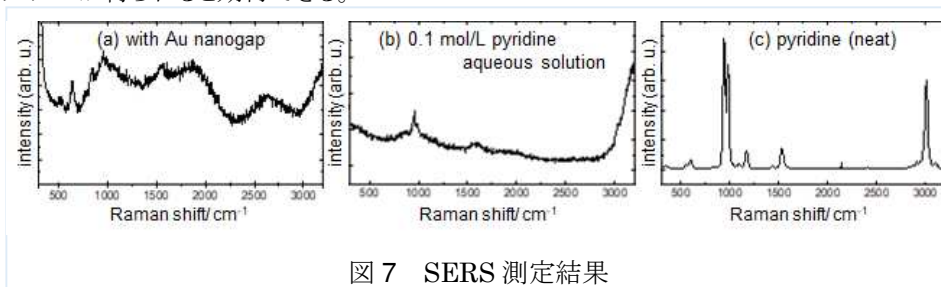


図 7 SERS 測定結果

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 11 件)

- (1) Y. Nakata, K. Osawa, N. Miyanaga, Utilization of the high spatial- frequency component in adaptive beam shaping by using a virtual diagonal phase grating, Scientific Reports, 査読有, 9, 2019, 9640-1-7, DOI: s41598-019-40829-7.
- (2) Y. Nakata, K. Murakawa, N. Miyanaga, A. Narazaki, T. Shoji, Y. Tsuboi, Local Melting of Gold Thin Films by Femtosecond Laser-Interference Processing to Generate, Nanoparticles on a Source Target, Nanomaterials, 査読有, 8, 2018, 477-1-9, DOI: 10.3390/nano8070477.
- (3) A. Narazaki, T. Sato, H. Niino, Y. Nakata, T. Shoji, Y. Tsuboi, A. Oyane, H. Miyaji, Laser lift-off process for additive micropatterning of functional particles and films, Proc. of the 2018 IEEE International Symposium on Micro-NanoMechatronics and Human Science (MHS2018), 査読無, 1, 2018, 333-337.
- (4) Y. Nakata, M. Yoshida, N. Miyanaga, Parallel fabrication of spiral surface structures by interference pattern of circularly polarized beams, Scientific Reports, 査読有, 8, 2018, 13448, DOI: 10.1038/s41598-018-31834-3.
- (5) 中田芳樹, 岡田龍雄. レーザー誘起転写法:膜転写と顕微画像レーザー分光法を用いたプロセス可視化, オプトロニクス, 査読無, 433, 2018, 120-126.
- (6) 奈良崎愛子, 佐藤 正健, 新納 弘之, 中田芳樹, 東海林竜也, 坪井泰之, レーザー誘起ドット転写による微粒子形成, 電子材料研究会資料「物質生成・材料合成を目指した高エネルギープロセス」, 査読無, EFM-17, 2017, 7-10.
- (7) 奈良崎愛子, レーザー転写パターンニング - ナノ粒子から機能性薄膜まで -, オプトロニクス, 査読無, 433, 2018, 127-131.
- (8) 大澤一仁, 林 英輝, 吉田匡孝, 中田芳樹, 宮永憲明, 空間光位相変調器とフーリエ光学系を用いたビーム整形に関する研究, 光・量子デバイス研究会 資料, 査読無, OQD-18, 2018, 39-42
- (9) 中田芳樹, コヒーレント光干渉パターン加工法の進展, オプトロニクス, 査読有, 4, 2017, 139-143.
- (10) Kazuhito Osawa, Masataka Yoshida, Yoshiki Nakata, Noriaki Miyanaga, Aiko Narazaki, Tatsuya Shoji, Yasuyuki Tsuboi, Beam shaping by spatial light modulator and 4f system to square and top-flat for interference laser processing, Proc. SPIE, 査読有, 10091, 2017, 100911C-1-8, DOI: 10.1117/12.2253983.
- (11) Yoshiki Nakata, Yoshiki Matsuba, Noriaki Miyanaga, Sub-micron period metal lattices fabricated by interfering ultraviolet femtosecond laser processing, Appl. Phys. A, 査読有, 122, 2016, 1-6, DOI: 10.1007/s00339-016-0061-4.

[学会発表] (計 29 件、うち Keynote 2 件、Invite 16 件を下記に示す。)

- (1) Y. Nakata, Y. Kosaka, E. Hayashi, N. Miyanaga, A. Narazaki, T. Shoji, Y. Tsuboi, K. Osawa, M. Yoshida, Beam shaping in macro- and micro- scale for laser processing (INVITE), The International Congress on Applications of Lasers & Electro-Optics (ICALEO), USA (October, 2019).
- (2) Y. Nakata, T. Aoyama, Y. Kosaka, E. Hayashi, H. Shiraga, N. Miyanaga, Fine beam shaping technique by spatial light modulator and 4f for area processing (INVITE), International Conference on Ultrafast Optical Science ULTRAFASLIGHT - 2019, Russia (September, 2019).
- (3) 中田芳樹, 小坂悠起, 林英輝, 椿本孝治, 宮永憲明, 大澤一仁, 吉田匡孝, 東海林竜也, 坪井泰之, 奈良崎愛子, レーザー干渉パターン加工法の最近の進展(招待), 電気学会 c 部門大会, 沖縄 (9 月、2019 年)
- (4) Y. Nakata, Y. Kosaka, E. Hayashi, N. Miyanaga, A. Narazaki, T. Shoji, Y. Tsuboi, K. Osawa, M. Yoshida, The Beam shaping in macro- and micro- scale for laser processing (INVITE), International Symposium International Symposium "Fundamentals of Laser Assisted Micro- and Nanotechnologies " (FLAMN-19), St. Petersburg, Russia (July, 2019)
- (5) 中田芳樹, 小坂悠起, 林英輝, 白神宏之, 宮永憲明, 奈良崎愛子, 東海林竜也, 坪井泰之, マクロとミクロのビーム整形及びナノマテリアル創成(招待), 第 91 回レーザー加工学会, 大阪 (6 月、2019 年)
- (6) Y. Nakata, Nanostructures in lattice fabricated by interference laser processing technique (KEYNOTE), Silver Jubilee Assembly of Advanced Materials Congress (AFMC 2019), Stockholm, Sweden (March, 2019).
- (7) 中田芳樹, 村川 恵一, 奈良崎愛子, 東海林竜也, 坪井泰之, 平面加工におけるマクロとミクロのビーム整形技術(招待), レーザー学会学術講演会, 東京 (1 月、2019 年)
- (8) 中田芳樹, 光のミクロとマクロの制御及び加工応用(招待), 第 62 回 光波センシング技術研究会, 東京(12 月, 2018 年)
- (9) Y. Nakata, E. Hayashi, N. Miyanaga, Nanostructures in lattice fabricated by interference laser processing technique (INVITE), International conference on ultrafast optical science, Moscow, Russia (October, 2018).
- (10) Y. Nakata, Rapid fabrication of nanostructures in lattice (INVITE), Laser Precision Microfabrication (LPM) 2018, Edinburg, UK (June, 2018).
- (11) Y. Nakata, E. Hayashi, K. Osawa, M. Yoshida, N. Miyanaga, Fine Beam Shaping Technique by Spatial Light Modulator and 4f System for Area Processing (KEYNOTE), International Workshop on Frontiers in Lasers and Applications (FLA 2018), Okinawa, Japan (April, 2018)

- (12) Y. Nakata, Rapid fabrication of metallic nanostructures in lattice by interference femtosecond laser processing (INVITE), International Conference on Metamaterials and Nanophotonics, Vladivostok, Russia (September, 2017)
- (13) Y. Nakata, M. Yoshida, K. Osawa, N. Miyanaga, Interference ultra-short pulse laser processing of solids and fabrication of nanostructures in lattice (INVITE), International Conference on Advanced Laser Technologies 2017, Busan, Korea (September, 2017)
- (14) 中田芳樹、宮永憲明、コヒーレントビームの干渉パターン制御とナノ周期構造の形成(招待), レーザー学会学術講演会第37回年次大会, 徳島(1月, 2017年)
- (15) Y. Nakata, K. Osawa, M. Yoshida, N. Miyanaga, Induction of energy on nano-region by laser and material processing (INVITE), Energy Materials Nanotechnology (EMN) Meeting on Energy and Sustainability, Osaka, Japan (November, 2016)
- (16) Y. Nakata, M. Yoshida, K. Osawa, N. Miyanaga, Nano-fabrication by interference pattern of coherent beam (INVITE), 10th international conference on photoexcited processes and applications (ICPEPA-10), Brasov, Romania (August, 2016)
- (17) Y. Nakata, M. Yoshida, K. Osawa, N. Miyanaga, Recent progress on interference femtosecond laser processing (INVITE), International Symposium "Fundamentals of Laser Assisted Micro- and Nanotechnologies" (FLAMN-16), St. Petersburg, Russia (June, 2016)
- (18) Y. Nakata, N. Miyanaga, Metal droplets smaller than 100 nm radius fabricated by femtosecond laser processing of thin films (INVITE), Energy Materials Nanotechnology (EMN) on Droplets, San Sebastian, Spain (May, 2016)

〔産業財産権〕

○出願状況(計2件)

名称:光渦発生方法及び光渦発生装置 発明者: <u>中田芳樹</u> 、吉田匡孝 出願者:国立大学法人大阪大学 種類:特許 番号:特願 2018-118906 出願年:2018年 国内外の別:国内	名称:ビーム整形装置 発明者: <u>中田芳樹</u> 、大澤一仁 出願者:国立大学法人大阪大学 種類:特許 番号:特願 2018-117035 出願年:2018年 国内外の別:国内
--	---

〔その他〕

(1) 受賞(計3件)

- ① K. Osawa, M. Yoshida, Y. Nakata, N. Miyanaga, A. Narazaki, T. Shoji, Y. Tsuboi, "Beam shaping by spatial light modulator and 4f system to square and top-flat for interference laser processing", LAMOM 2017 Best Student Presentation Award, 2017.
- ② 中田芳樹, レーザー学会業績賞・論文賞(オリジナル部門)「コヒーレントビームの干渉パターン制御とナノ周期構造の形成」, 2016.
- ③ M. Yoshida, "Fabrication of nanostructures in hexagonal lattice by using six-beam interference pattern of femtosecond laser", 大阪大学レーザーエネルギー学研究センター 年度末報告会 ベストポスター賞 修士・学士生部門, 2017

(2) ホームページ

<http://www.ile.osaka-u.ac.jp/research/lcc/index.html>

https://www.eurekalert.org/pub_releases/2019-04/ou-qol042319.php

[https://www.alphagalileo.org/en-gb/Item-](https://www.alphagalileo.org/en-gb/Item-Display/ItemId/178111?returnurl=https://www.alphagalileo.org/en-gb/Item-Display/ItemId/178111)

[Display/ItemId/178111?returnurl=https://www.alphagalileo.org/en-gb/Item-Display/ItemId/178111](https://www.alphagalileo.org/en-gb/Item-Display/ItemId/178111)

6. 研究組織

研究代表者氏名:中田芳樹 ローマ字氏名:(NAKATA, Yoshiki) 所属研究機関名:大阪大学 部局名:レーザー科学研究所 職名:准教授 研究者番号(8桁):70291523	研究分担者氏名:奈良崎愛子 ローマ字氏名:(NARAZAKI, Aiko) 所属研究機関名:産業総合技術研究所 部局名:エレクトロニクス・製造領域 職名:主任研究員 研究者番号(8桁):40357687
研究分担者氏名:坪井泰之 ローマ字氏名:(TSUBOI, Yasuyuki) 所属研究機関名:大阪市立大学 部局名:大学院理学研究科 職名:教授 研究者番号(8桁):00283698	研究分担者氏名:東海林竜也 ローマ字氏名:(SHOJI, Tatsuya) 所属研究機関名:大阪市立大学 部局名:大学院理学研究科 職名:講師 研究者番号(8桁):90701699

研究協力者

・研究協力者氏名:宮永憲明、 ローマ字氏名:(MIYANAGA, Noriaki)