

令和元年6月25日現在

機関番号：12401

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2016～2018

課題番号：16K05433

研究課題名(和文) 重水素化したBEDT-TTF塩の μ SRによる研究

研究課題名(英文) Muon spin rotation studies on deuterated BEDT-TTF salts

研究代表者

谷口 弘三 (Taniguchi, Hiromi)

埼玉大学・理工学研究科・准教授

研究者番号：50323374

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,500,000円

研究成果の概要(和文)：まず、詳細なマクロ磁化測定により、k-ET₂Cu[N(CN)₂]Clのゼロ磁場反強磁性状態におけるスピン構造を決定した。これは、当初の計画にはなかった望外の成果である。次に、質的には同じ磁性体であると考えられていたk-(d₈-ET)₂Cu[N(CN)₂]Brのスピン構造も決定したが、これら二つの塩のスピン構造が異なるということが判明した。さらに、同じ反強磁性相に位置する6種類の試料で μ SR測定を行い、 μ SR回転シグナルの比を考察し、ミクロな観点でこのゼロ磁場スピン構造の変化を確認した。また、この塩での三つのミュオンサイトの内、二つは分子層で一つはアニオン層であるという重要知見も得た。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究により、ET塩における重要物質のゼロ磁場スピン構造を決定したが、これはこの系では初の成功例であり、この系での応用研究(例えば、電気磁気効果の探索、X線照射による磁性変化の研究など)にとって重要な知見となる。また、多数のレビュー論文や専門書などでも取り上げられている有名な κ -型ET塩の温度-圧力相図に、新たな相境界があるという新事実が明らかになった。この相境界の近傍には反強磁性-超伝導の相境界があり、超伝導の出現に対して、この新相境界がどのような役割があるかを再考しなければならない。以上、本研究で得られた知見は、この系の磁性、超伝導研究に不連続的な発展をもたらすと期待される。

研究成果の概要(英文)：We determined the spin structure of k-ET₂Cu[N(CN)₂]Cl at a zero magnetic field by means of detailed magnetization measurements. This achievement was not expected in our proposal. Furthermore, we determined the zero-field spin structure of k-(d₈-ET)₂Cu[N(CN)₂]Br, which has been regarded as qualitatively the same magnet as k-ET₂Cu[N(CN)₂]Cl, and, surprisingly, found that these two materials have different zero-field spin structures. On the basis of these new findings, we performed zero-field μ SR studies on six kinds of antiferromagnets that situated in the antiferromagnetic phase of κ -ET system. We detected the discontinuous change of the ratio of internal fields at around k-(d₈-ET)₂Cu[N(CN)₂]Br salt, which means the confirmation of the change of the zero-field spin structure from the microscopic viewpoint. We also obtained the finding that two muon sites are at the molecular layers and the other one site is at the anion layers.

研究分野：物性物理学

キーワード：有機伝導体 磁性 ミューエスアール 磁化測定 スピン構造 磁場誘起相転移 重水素化

様式 C-19、F-19-1、Z-19、CK-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

BEDT-TTF (ET) という有機分子からなる物質群は、旧来の有機導体の特徴である擬一次元電子系ではなく擬二次元電子系を与え、パイエルス不安定性の問題を解決したことにより、多くの超伝導体を輩出してきた。また、この系が多様な分子配列を持つことも、旧来の有機導体とは大きく異なる点である。異なる分子配列を持つ ET 塩では、必ずと言っていいほどその物質群特有の興味深い電子状態を実現しており、この多様性も ET 塩が発展してきた理由である。例えば、 κ -型 ET 塩と呼ばれる系では、10K 級の常圧超伝導体、Mott 絶縁体 (且つジャロシンスキー-守谷 (DM) 相互作用を持つ傾角反強磁性体)、スピン液体候補物質などを輩出している。特に、この系では Mott 転移が数百 bar という極めて弱い圧力の印加で出現し、また、低温では反強磁性が超伝導へと一次相転移を示すことから、温度-圧力相図が注目され続けてきた。結果として、相図上のすべての電子状態に対して、膨大な研究がなされてきたわけである。しかしながら、この系の最も基礎的な物性である「反強磁性状態におけるゼロ磁場下のスピン構造」が未決定であった。これは、このような有機物では中性子回折実験が困難であるということに起因しており、このスピン構造未決定の問題は κ -型物質に限ったことではない。例えるならば、土台 (ゼロ磁場スピン構造の決定) を構築する前にきらびやかな建物 (様々な物性展開) を建設してきたわけである。

我々は、まず、このゼロ磁場スピン構造の問題にアクセスでき得るミュオンスピン回転法 (μ SR) に着目した。それは、この手法はゼロ磁場下でミクロな観点での磁性研究が可能であるからである。しかしながら、有機導体でのこの手法の適用はそれほど例がなく、方法論が必ずしも確立しているとは言い難い状況であった。特に、ミュオンが試料のどこに止まるかというミュオンサイトの問題があり、ゼロ磁場スピン構造に簡単にはアクセスできない。試行錯誤しながら研究を続けていたとき、試料を重水素化 (ET の末端の水素を重水素に置換) すると、常磁性状態の μ SR スペクトルにおける緩和成分が大幅に抑制されるということを発見した。このことは、ミュオンサイトが水素原子に近い位置であることを意味し、この問題をつきつめればミュオンサイトが決定できるのではないかという考えに至った。また、この常磁性状態での緩和 (水素原子の核スピンによるもの) は、より低温での磁性研究に対して謂わば邪魔者であり、重水素化の手法がこれを抑制できることから、磁性研究だけでなく、この系の全てのミュオン研究に対して有効であることも明らかであった。このような経緯で、重水素化した有機導体での μ SR 研究をさらに発展させようという考えに至った。

2. 研究の目的

- 1) 反強磁性状態であっても転移温度近傍の磁気モーメント (内部磁場) が小さい温度域では、核スピンからのシグナルが邪魔をし、電子スピンからの情報をマスクしてしまう。上述したように、重水素化した試料では、この核スピンからの緩和が大幅に抑制されるので、転移点近傍まで電子系の情報を抽出できるはずである。この予測に基づき、重水素化した反強磁性体の μ SR 研究を展開し、例えば、磁気転移の臨界指数などを決定する。
- 2) 水素体と重水素体での常磁性状態での緩和の違いから、ミュオンサイトを仮定して予測される緩和率を計算し、ミュオンサイトの決定を目指す。
- 3) ミュオンサイトが決定できれば、磁性相でのスペクトルからゼロ磁場磁気構造を決定する。ここでも、仮定した磁気構造から得られる内部磁場を計算し、実験結果と比較する。
- 4) μ SR 研究を別角度から補強するために、マクロ磁化測定を行い、スピン構造を推測する。

3. 研究の方法

重水素化した ET 分子を用いて、主に κ -型 ET 塩を合成し、ポールシェラー研究所 (スイス) と理研-ラザフォードアップルトン研究所 (英国) で μ SR 実験を行う。また、磁化測定のためにこの系の大型単結晶を合成する。合成した試料は、温度、磁場、磁場方位の関数として磁化を測定する。特に、磁場方位依存性に関しては、実は、この系ではこれまでそれほど詳細には調べられていなかった。当初は、あくまでも、 μ SR 研究の補助的な目的で磁化測定を行っていたが、この磁場方位依存性の実験から、後述するような大きな成果が得られた。

4. 研究成果

μ SR 実験と磁化測定による研究は平行して推進していたが、磁化測定から決定的に重要な成果が得られた。これは、本研究の中心的な物質である κ -ET₂Cu[N(CN)₂]Cl (κ -Cl) のゼロ磁場スピン構造をマクロ磁化測定と数値シミュレーションにより特定できたというものである。この物質は、 κ -型 ET 塩における母物質とも見なせる最重要物質であったが、磁化測定の報告例は意外に少なく、また、報告されていた重要な実験結果が間違っており、さらに別の重要な実験結果もその解釈が間違っていたということがわかり、新解釈を模索した結果、ついに、**ゼロ磁場スピン構造の決定に至った**。これは、**有機導体分野、少なくとも擬二次元系有機物質では、初の成功例である**。また、同時に、これまで古典的スピンフロップ転移であると考えられてきた磁化の振る舞いが、実は、**半分のスピンの 180 度反転するという前例のないスピン再配向転移であることを明らかにした**。しかも、この現象は、スピン軸に対して垂直に磁場を印加したときに起きるとい、他に例をみない特徴を持つ。これらの成果は、20 年来の課題を解決し、DM 相互作用による新奇磁場誘起現象を見出したという点で多に注目を浴びている [発表論文③は、JPSJ Editor's choice に選定され、JPSJ

News and Comments でも取り上げられた。さらに、日本物理学会誌 2018 年 8 月号 (JPSJ の最近の注目論文から) と科学新聞 2018 年 6/1 号にも掲載された。また、関連する結果を発表した学生が、2018 年秋の物理学会学生優秀賞をいただいた (学会発表⑥)]。

大きな発見は、さらに続く。 κ -Cl 塩と質的には同じ反強磁性体であると考えられてきた κ -(d8-ET)₂Cu[N(CN)₂]Br (d8- κ -Br) に同様の磁化の角度依存性の解析手法を適用したところ、この物質のゼロ磁場スピン構造も特定できたが、なんと、これら二つの物質のゼロ磁場スピン構造が異なるということが判明した。これら両物質は、同じ結晶構造であり、 κ -型 ET 塩の有名な温度-圧力相図における同一の反強磁性相の中に位置すると考えられていたわけであるが、我々の成果は、この反強磁性相の中に新たな相境界があるという、これまでの常識を覆す新事実を明らかにしたわけである。

以上のようなマクロ測定の結果を受けて、平行して推進してきた μ SR 研究の結果を再検証した。試料としては、この κ -型の反強磁性相に位置する 6 種類の試料 (混晶系を含む) である。すべての物質で明瞭なミュオンスピン回転シグナルが観測され、3 種類の回転成分からなる解析モデルですべての結果が説明できた。これはミュオンサイトが 3 種類あるということの意味する。得られた回転周波数からそれぞれのサイトでの内部磁場を見積もり、三つの「内部磁場の比」を 6 個の試料で比較したところ、d8- κ -Br の近傍で内部磁場の比が不連続に変化していることが明らかになった。これはスピン構造の一次転移的な変化をマイクロなプローブでとらえたことを意味する。また、それぞれの回転成分の物質依存性から、三つのミュオンサイトの内二つは、スピン構造の変化に鈍感であり、残りの一つだけがスピン構造の変化に敏感であるということもわかった。これは、二つのミュオンサイトが分子層であり、残り一つが絶縁層 (アニオン層) であることを意味していると考えられる。

以上のように、当初、 μ SR 研究だけからミュオンサイトを決定し、さらにゼロ磁場スピン構造を議論しようと考えていたが、マクロ磁化測定からゼロ磁場スピン構造が決定され、さらに μ SR からその結果がマイクロな観点で確認された。この研究の中で行った μ SR 実験は、 κ -Cl 塩自体の実験を除き、すべて重水素化された試料を使って行い、当初の期待通り電子スピンの寄与を効果的に抽出することができた。この意味で当初の目的の一部は達成されたが、マクロ磁化測定によるゼロ磁場磁気構造の決定は、当初の目的にはない望外の成果である。さらに、多数のレビュー論文や専門書などにも取り上げられている有名な「 κ -型 ET 塩の温度-磁場相図」が、実は、間違っていた、もしくは不十分であったという驚くべき発見もあった。また、全く予想外の論理展開 (圧力誘起スピン構造転移における内部磁場の変化の解析) からミュオンサイトに関する重要知見が得られた。

今回の「ET 系磁性体における初のゼロ磁場スピン構造の決定」、「新奇磁場誘起スピン再配列転移の発見」、「 κ -型 ET 塩の温度-磁場相図における新相境界の発見」などの成果は、この系の磁性研究に不連続的な進展を引き起こすことは確実であるが、まだこの知見を使った議論は始まったばかりであり、今後のさらなる展開が期待される。例えば、この圧力誘起のスピン配列転移が、そのすぐ高圧側にある反強磁性-超伝導転移とどのような関係があるのかといった議論である。また、高磁場下では κ -Cl と d8- κ -Br のスピン構造は同一であることが知られており、我々の磁化測定の結果もこれを支持しているが、そうすると、「磁場-圧力相図」はどのような構造を持つのかという問題がある。今後、このような問題にも取り組んでいきたい。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 9 件、すべて査読あり)

- ① 綱川仁志, 生沼浩介, 石川瑠偉, 谷口弘三, κ -型 BEDT-TTF 塩の反強磁性相のゼロ磁場磁気構造と磁場誘起スピン再配向, 固体物理, vol. 54 No. 3 159-167 (2019).
- ② A. Ohnuma, H. Taniguchi, Y. Takahashi, A. Kawamoto, Density Wave State in New α -Type Organic Conductor, α -(BEDT-TTF)₂MHg(XCN)₄ (M = NH₄, X = Se): A Key Material for Universal Phase Diagram of X = S and X = Se Systems, J. Phys. Chem. C **122**, 24321-24328 (2018).
- ③ R. Ishikawa, H. Tsunakawa, K. Oinuma, S. Michimura, H. Taniguchi, K. Satoh, Y. Ishii, and H. Okamoto, Zero-Field Spin Structure and Spin Reorientations in Layered Organic Antiferromagnet, κ -(BEDT-TTF)₂Cu[N(CN)₂]Cl, with Dzyaloshinskii-Moriya Interaction, J. Phys. Soc. Jpn. **87**, 064701 1-12 (2018).
- ④ Y. Hattori, S. Iguchi, T. Sasaki, S. Iwai, H. Taniguchi, and H. Kishida. Electric-field-induced intradimer charge disproportionation in the dimer-Mott insulator β' -(BEDT-TTF)₂ICl₂. Phys. Rev. B **95**, 085149 1-5 (2017).
- ⑤ H. Oike, Y. Suzuki, H. Taniguchi, Y. Seki, K. Miyagawa, and K. Kanoda, Anomalous metallic behaviour in the doped spin liquid candidate κ -(ET)4Hg2.89Br8, Nature Communications, **8**, 756 (7page) (2017).
- ⑥ R. Kobayashi, K. Hashimoto, N. Yoneyama, K. Yoshimi, Y. Motoyama, S. Iguchi, Y. Ikemoto, T. Moriwaki, H. Taniguchi, and T. Sasaki, Dimer-Mott and charge-ordered insulating states in the quasi-one-dimensional organic conductors δ' P- and δ' C-(BPDT-TTF)₂ICl₂, Phys. Rev. B **96**, 115112 1-8 (2017).

- ⑦ S. Tsuchiya, K. Nakagawa, J. Yamada, H. Taniguchi, and Y. Toda, Photoinduced phase separation with local structural ordering in organic molecular conductors, *Phys. Rev. B* **96**, 134311 1-6 (2017).
- ⑧ T. Uehara, M. Ito, J. Angel, J. Shimada, N. Komakine, T. Tsuchiya, H. Taniguchi, K. Satoh, K. Triyana, Y. Ishii, and I. Watanabe, Studies on magnetism of the layered organic antiferromagnet bordered on a superconducting phase by μ SR and magnetization measurements, *J. Phys. Soc. Jpn.* **85**, 024710 1-6 (2016).
- ⑨ J. Angel, T. Uehara, J. Shimada, N. Komakine, T. Tsuchiya, H. Taniguchi, I. Watanabe, and K. Triyana, Crystal growth of the layered organic antiferromagnet, deuterated κ -(BEDT-TTF)₂Cu[N(CN)₂]Br, *AIP Conference Proceedings*, **1755**, 150011-1-6 (2016).

[学会発表] (計 30 件)

- ① 浦井瑞紀, 古川哲也, 宮川和也, 谷口弘三, 斉藤みく, 佐々木孝彦, 鹿野田一司, ¹H NMRによるX線照射された κ -(ET)₂Cu[N(CN)₂]Clの磁気秩序抑制過程の観測III, 日本物理学会第74回年次大会 (2019年3月) .
- ② 若松浩大, 宮川和也, 谷口弘三, 鹿野田一司, |型有機超伝導体における圧力下磁場侵入長測定, 日本物理学会第74回年次大会 (2019年3月) .
- ③ Hiromi Taniguchi, Zero-field magnetic structure and spin reorientations in layered organic antiferromagnets with Dzyaloshinskii-Moriya interaction, 4th international conference on functional materials science 2018 (2018年11月).
- ④ 土屋聡, 中川絃一, 谷口弘三, 戸田泰則, 有機絶縁体 κ -(BEDT-TTF)₂Cu[N(CN)₂]Clにおける光誘起キャリアダイナミクスにおける分子秩序化の影響, 日本物理学会秋季大会 (2018年9月) .
- ⑤ 小澤宏彬, 岡野修樹, 小林拓矢, 道村真司, 谷口弘三, 佐藤一彦, κ -(d8-ET)₂Cu[N(CN)₂]Brの超伝導-反強磁性転移, 日本物理学会秋季大会 (2018年9月) .
- ⑥ 綱川仁志, 生沼浩介, 石川瑠偉, 道村真司, 谷口弘三, 佐藤一彦, 石井康之, 岡本博之, 傾角反強磁性体 κ -ET₂Cu[N(CN)₂]Clの磁場誘起スピン再配向, 日本物理学会秋季大会 (2018年9月) .
- ⑦ 谷口弘三, 綱川仁志, 生沼浩介, 石川瑠偉, 道村真司, 佐藤一彦, 石井康之, 岡本博之, κ -ET₂Cu[N(CN)₂]Cl のゼロ磁場磁気構造, 日本物理学会秋季大会 (2018年9月) .
- ⑧ 生沼浩介, 綱川仁志, 道村真司, 小林拓矢, 谷口弘三, 佐藤一彦, 石井康之, 岡本博之, κ -(d8-ET)₂Cu[N(CN)₂]Br のゼロ磁場磁気構造, 日本物理学会秋季大会 (2018年9月) .
- ⑨ 谷口弘三, 石川瑠偉, 小林拓矢, 道村真司, 佐藤一彦, 石井康之, Fahmi Astuti, Retno Asih, Julia Angel, 渡邊功雄, κ -ET₂X塩の反強磁性相のゼロ磁場 μ SR, 日本物理学会秋季大会 (2018年9月) .
- ⑩ 浦井瑞紀, 古川哲也, 宮川和也, 谷口弘三, 斉藤みく, 佐々木孝彦, 鹿野田一司, ¹H NMRによるX線照射された κ -(ET)₂Cu[N(CN)₂]Clの磁気秩序抑制過程の観測II, 日本物理学会秋季大会 (2018年9月) .
- ⑪ 若松浩大, 藤井武則, 鈴木悠司, 宮川和也, 谷口弘三, 鹿野田一司, 有機伝導体 κ -(ET)₄Hg_{2.89}Br₈の圧力下熱電効果測定, 日本物理学会秋季大会 (2018年9月) .
- ⑫ 中川絃一, 土屋聡, 谷口弘三, 戸田泰則, 重水素化ドナーを含んだ有機超伝導体 κ -(ET)₂Cu[N(CN)₂]Brにおける光励起キャリアダイナミクスの温度特性, 日本物理学会第73回年次大会 (2018年3月) .
- ⑬ 関靖秀, 浦井瑞紀, 谷口弘三, 宮川和也, 鹿野田一司, 擬二次元有機導体 κ -(ET)₂X (X=Cu[N(CN)₂]Cl, Cu₂(CN)₃)の温度圧力制御下面内および面間輸送特性, 日本物理学会第73回年次大会 (2018年3月) .
- ⑭ 浦井瑞紀, 古川哲也, 宮川和也, 谷口弘三, 斉藤みく, 佐々木孝彦^c, 鹿野田一司, ¹H NMRによるX線照射された κ -(ET)₂Cu[N(CN)₂]Clの磁気秩序抑制過程の観測, 日本物理学会第73回年次大会 (2018年3月) .
- ⑮ 小林亮太, 橋本顕一郎, 米山直樹, 谷口弘三, 吉見一慶, 本山裕一, 佐々木孝彦, 強相関有機導体(BPDT-TTF)₂Xにおける電子状態の次元性, 日本物理学会秋季大会 (2017年9月) .
- ⑯ 浦井瑞紀, 古川哲也, 宮川和也, 伊藤美穂, 谷口弘三, 斉藤みく, 佐々木孝彦, 鹿野田一司, X線照射された κ -(ET)₂Cu[N(CN)₂]Clの電気抵抗の量子臨界スケーリング解析, 日本物理学会秋季大会 (2017年9月) .
- ⑰ 岡野修樹, 栗城裕悟, 谷口弘三, 佐藤一彦, 石井康之, 直流/交流磁化率測定による κ -(d₈-BEDT-TTF)₂Cu[N(CN)₂]Brの温度掃引下反強磁性 超伝導転移の研究, 日本物理学会秋季大会 (2017年9月) .
- ⑱ 石川瑠偉, 土屋拓海, 谷口弘三, 佐藤一彦, 石井康之, 角度回転磁化測定による κ -(BEDT-TTF)₂Xの傾角反強磁性の研究, 日本物理学会秋季大会 (2017年9月) .
- ⑲ Hiromi Taniguchi, Zero- and low-field magnetism of layered organics, κ -(BEDT-TTF)2X, *International Workshop on Organic Molecule Systems*, (2017年8月) .
- ⑳ 山本陸, 古川哲也, 伊藤哲明, 宮川和也, 斉藤みく, 伊藤美穂, 谷口弘三, 佐々木孝彦,

- 鹿野田一司, X線照射された κ -(ET)₂Cu[N(CN)₂]Clにおけるランダムネス誘起スピン液体の1H-NMR, 日本物理学会第72回年次大会 (2017年3月) .
- ⑳ 鈴木悠司, 宮川和也, 谷口弘三, 鹿野田一司, 機伝導体 κ -(ET)₄Hg_{2.89}Br₈の圧力下における電子状態, 日本物理学会第72回年次大会 (2017年3月) .
- ㉑ 浦井瑞紀, 古川哲也, 宮川和也, 伊藤美穂, 谷口弘三, 齊藤みく, 佐々木孝彦, 鹿野田一司, X線照射された κ -(ET)₂Cu[N(CN)₂]Clの圧力下電子状態, 日本物理学会第72回年次大会 (2017年3月) .
- ㉒ 黒子めぐみ, B. Hartmann, J. Muller, 井口敏, 谷口弘三, 佐々木孝, ダイマーマット絶縁体 β' -(BEDT-TTF)₂ICl₂の輸送ノイズ測定II, 日本物理学会第72回年次大会 (2017年3月) .
- ㉓ Hiromi Taniguchi, Studies on layered organic antiferromagnets by muon spin rotation, 3rd International Conference on Functional Materials Science (ICFMS 2016).
- ㉔ 鈴木悠司, 藤井武則, 宮川和也, 谷口弘三, 鹿野田一司, 有機超伝導体 κ -(ET)₄Hg_{2.89}Br₈のネルンスト効果, 日本物理学会秋季大会 (2016年9月) .
- ㉕ 石川瑠偉, 有山正樹, 谷口弘三, 佐藤一彦, BEDT-TTF系層状有機反強磁性体のスピントロップ磁場の研究, 日本物理学会秋季大会 (2016年9月) .
- ㉖ 土屋拓海, 谷口弘三, 佐藤一彦, 層状有機反強磁性体 κ -(d8-BEDT-TTF)₂Cu[N(CN)₂]Clの磁化特性の研究, 日本物理学会秋季大会 (2016年9月) .
- ㉗ 佐藤一彦, 丸地隆之, 谷口弘三, 伊藤孝, 髭本亘, J-PARC/MUSEにおけるミュオンスピン回転緩和法測定のための圧力容器の開発, 日本物理学会秋季大会 (2016年9月) .
- ㉘ 岡野修樹, 栗城裕梧, 谷口弘三, 佐藤一彦, Mott転移近傍有機物質の相分離と超伝導転移の研究, 日本物理学会秋季大会 (2016年9月) .
- ㉙ J. Angel, F. Astuti, D. Sari, H. Taniguchi, I. Watanabe, μ SR studies on Hydride and Deuteride Organic antiferromagnet β' -(BEDT-TTF)₂ICl₂, 日本物理学会秋季大会 (2016年9月) .

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年：

国内外の別：

○取得状況 (計 0 件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：

取得年：
国内外の別：

[その他]

ホームページ等

<http://www.phy.saitama-u.ac.jp/~taniguchi/>

6. 研究組織

(2) 研究協力者

研究協力者氏名：小林 拓矢

ローマ字氏名：Takuya Kobayashi