特集 ― 古くて新しい炭素の新展開 ―

グラファイト系炭素の次元性と応用

Dimensionality and Applications of Various Graphite Carbons

村上 睦明

Mutsuaki MURAKAMI

It reports on the advancement of a recent graphitized carbon material from the viewpoint of dimensionality and application. First of all, the dimensional change and the possible application of fullerene (zero-dimensional graphite), carbon nanotube (one-dimensional), and graphene (two-dimensional) are described. The synthesis of the unique graphite fiber is also mentioned, as an example of obtaining a graphitized material in various forms by the molecular structure of the raw material. Next, making of a high-quality graphite film from a polyimide and its optical and thermal applications are described. It introduces the research of the pressure-induced phase transition from the graphite film to diamond.

[graphite, dimensionality, fullerene, nanotube, graphene, thermal application, optical application, phase transition, diamond]

1. はじめに

近年、炭素材料の研究は急速に進捗しており、中でもカーボンナノチューブやフラーレンを含むグラファイト系炭素はその優れた物性（高電気伝導度、高電子移動度、高耐熱性、高熱伝導度、等）のゆえに21世紀の新素材としての期待が高まっている。本報告では、各種のグラファイト系炭素の次元性に注目し、その作製と応用の観点から最近の進歩について紹介する。

2. 次元性による炭素の分類

炭素材料の多様性は、炭素原子が sp^3 , sp^2 , sp 結合のいずれの結合をも取り得る事による。 sp^3 結合からなるダイヤモンド, sp^2 結合からなるグラファイト, sp 結合からなるカルビンは炭素の典型的同素体であり、それぞれの結合様式に起因する三次元的、二次元的、一次元的物性を持つ。Table 1 に示す様に、この3種類の同素体についてはすでに固相、液相、気相から合成する方法が報告されている[1]。

カルビンは1968年に発見され[2]、発見と構造の提唱は早かったものの炭素の研究対象としては取り

残されている。カルビンの相図は気相、液相、ダイヤモンド、グラファイトに囲まれた狭い領域に存在すると言われているが明確ではなく、合成法、物性、結晶構造のいずれもまだ確立されたものではない。研究が進まない理由は、十分な大きさの結晶が得られない事、多くの形態 (α -, β -カルビン, チャオアイト等) が存在する事である。一方で有機化学者はポリアセチレンの脱水素反応やポリ塩化ビニルの脱塩素化反応、などからカルビン型高分子の合成に取り組んでおり、これからのカルビン研究には有機化学者と高圧力研究者の密接な協力が必要であろう。

Table 1. Synthetic methods of carbon allotropes (Diamond, Graphite, Carbyne).

	Method		
	Solid Phase	Liquid Phase	Gas Phase
Diamond	Shock-wave conversion, Heat treatment under static pressure.	Temperature gradient method	Plasma method
Graphite	Heat treatment of polymer	Recrystallization from melt metal	Thermal degradation and deposition
Carbyne	Synthesis (Chemical)	Acetylene polymerization	Plasma method

〒566-0072 大阪府摂津市鳥飼西 5-1-1 (株)カネカ エレクトロニクス研究所

Electronics Research Laboratories, KANEKA Corporation, 5-1-1 Torikai-nishi, Settsu, Osaka 566-0072

Electronic address: Mutsuaki_Murakami@kn.kaneka.co.jp

グラファイト系炭素においても次元性からの分類が可能である。すなわち、フラーレンを0次元とすれば、カーボンナノチューブは一次元、グラフェン(単層グラファイト)は二次元であると考えられる。グラファイトは三次元構造を持つが物性は二次元的であり、 $a-b$ 面に沿って簡単に壁開でき、単結晶グラファイトの電気伝導度は面方向と面垂直方向とで5000倍異なる。グラファイトはvan der Waals力で弱く結合した層間に各種の原子や分子を挿入する事が出来、その様な層間化合物の生成によってグラファイトの二次元的性質をより顕著に引き出す事ができる。この様な層間化合物の形成反応はリチウム二次電池における陰極反応として広く用いられている。

3. フラーレンの高分子化と応用

フラーレンはその二重結合に種々の置換基の付加が可能で、高温、高圧、光、電子線などの作用で比較的簡単に重合する。すなわち、フラーレンから一次元的炭素や二次元的炭素の合成が可能となる。例えば、液-液界面析出法という極めて簡易な方法でフラーレンの高分子を得る事ができる[3]。これは C_{60} を飽和溶解させたトルエン溶液にイソプロピルアルコールを静かに注ぎ、 20°C で放置する事によって液-液界面にウィスカ状生成物を析出させるものである。生成物の機械的強度は C_{60} 結晶よりも一桁大きく、TEM観察により成長軸方向に C_{60} の分子中心間距離1.0 nmで最密充填している事が明らかになっている。この事から C_{60} 分子が $[2+2]$ 付加環化重合によって一次元的に高分子化していると考えられている。

エレクトロニクス分野でフラーレンの応用として興味深いのはN型半導体としての応用である。ポリチオフェンやペンタセン等の有機半導体はフレキシブル、印刷可能、低コスト化可能などの特徴を有し、シリコンデバイス代わる有機FETや太陽電池としての期待が大きい。有機半導体は一般にP型半導体であるのに対して、 C_{60} は数少ないN型半導体であり、エピタキシャルフィルムは $0.6\text{ cm}^2/\text{Vs}$ の移動度を有している。自己組織化により塗布するだけで C_{60} 誘導体が一次元配向する材料が開発されており、P型有機半導体との組み合わせで印刷可能な太陽電池の開発が進んでいる[4]。現在、薄膜有機太陽電池の変換効率は数%であるが、将来的にはシ

リコンを上回る高効率期待できるとの指摘もあり、今後の進捗が期待される。

4. カーボンナノチューブとその応用

カーボンナノチューブ(CNT)は近年活発に研究されておりすでに膨大な報告がある。CNTはアーク放電、レーザー蒸発法、化学気相蒸着(CVD)法、等で合成されるが、合成時に純粋な黒鉛を使用すればフラーレンが、原料にLaやScなどの遷移金属を添加すれば金属内包フラーレンが、NiやCoを添加すればCNTを含む気相成長炭素繊維が得られる。CNTの特徴はアスペクト比が極めて大きく、柔軟で弾性に富み、樹脂並みに軽く、金属よりも電気伝導性、熱伝導性に優れると言う点である。しかし、これらの特徴を備えたCNTを実用材料とするには、①大きさ・長さを制御する、②単層CNTのみを作る、③キラリティ(金属的・半導体的CNTの作り分け)を制御する、④バンドル(束)をほぐす、⑤電極界面との物性を理解・制御する、等の技術開発が必要となる。

最近、スーパーグロース法と名づけられたCNTの画期的な製造法が開発された[5, 6]。これは水がCNT成長触媒の活性発現と維持に重要であると言う発見に基づき、CVD法を改良したものである。この方法には、①単層CNTのみが生成する、②太さが均一($\phi 3\text{ nm}$)である、③長さは1~2 mmであり従来の手法で得られるCNT($10\text{ }\mu\text{m}$ 程度)より極めて長い、④すすや触媒が少なく高純度である、⑤バンドルを形成しない、⑥高密度に生成する(5×10^{11} 本/ cm^2)、等の特徴がある。これらの特徴は実用化に向けての多くの技術課題を解決するものである。キラリティの制御は最も難しい製造技術で現在でも金属CNTと半導体CNTを作り分ける事はできない。しかし最近、金属と半導体の単層CNT混合物を化学的に分離する技術が開発された[7]。これはアミンと金属CNTの吸着エネルギーが半導体的CNTとの吸着エネルギーより大きい事を利用するものである。CNTとオクチルアミンを分散・溶解させたTHF溶液を超音波処理しさらに遠心分離を繰り返すと、結果的に有機溶媒に溶解しやすいアミンと金属CNTが上澄み液中に残る。

実用的な観点からはCNTのバンドルをほぐして完全分散させる事、電極界面との物性を理解・制御する事は重要である。分散には超音波などの物理的

手法や分散剤を用いる化学的方法があるが、CNT はアスペクト比が大きくその直径は可視光よりも短いため、透明樹脂に完全分散できれば透明導電性フィルムが得られるはずである。この様な透明導電性プラスチックフィルムは多様な用途展開が可能である。すでに表面抵抗 $10^5 \Omega/\text{cm}^2$ 、全光線透過率 85% のフィルムが得られており、透過率を保ったまま表面抵抗を $10^3 \Omega/\text{cm}^2$ 以下にする事が目標である。また、フッ素樹脂を原料として用いる事により得られるアモルファス CNT、カーボンナノウォール、カーボンナノホーン、等の実用的に興味深い CNT 類似炭素も知られている。中でもアモルファス CNT は水素貯蔵などのエネルギー貯蔵デバイスとしての応用が考えられる興味深い材料である[8]。

5. ポリアセン型高分子とグラファイト化

ここでは原材料を選ぶ事によりユニークな炭素・グラファイト繊維を合成できる例を紹介する。筆者らはペリレンтетラカルボン酸無水物 (PTCDA) を用いてポリアセン型 (一次元グラファイト型) 高分子であるポリペリナフタレン (PPN) を合成し、さらに高温熱処理して特異なグラファイトリボンを作成した[9]。合成は極めて簡単で、加圧成型した PTCDA のペレットを Ar 気流中、赤外線加熱炉で加熱するだけである。Fig. 1 (a) には PTCDA ペレット、(b) には 800°C の熱処理によりペレット上に成長した繊維状生成物の写真を示す。生成物は Fig. 2 に示す様に、数 10 mm の長さで一辺が $0.3 \mu\text{m}$ の四角な形状を持つ良く成長した繊維状炭素である。 530°C の処理で得られた生成物のレーザーラマンスペクトルの測定から各吸収のラマンモードが同定され、これにより成長初期には確かにポリペリナフタ

レン構造となっている事が確認されている[10]。この様な生成物の形状は成長条件や原料を制御する事により多様に変化させる事ができる。一例として、Fig. 3 には PTCDA を用いて Ar/水素の混合ガス中で気相成長させたリボン状生成物 (a) と、ナフタレンтетラカルボン酸無水物 (NTCDA) から得られる丸い形状の繊維 (b) を示す。

この PPN 高分子を熱処理すると処理温度の上昇と共に水素脱離し、炭素化・グラファイト化が進行する。TEM 観察から、炭素化繊維は基本的にはアモルファスであるが炭素分子は全体としては成長方向に積み重なっている事が観察された。処理温度が高くなるに従い分子の積み重なりは顕著になり、 2800°C では Fig. 4 に示すようにグラファイトが積み重なった梯子のような形状のユニークなリボン状グラファイト繊維となる[11]。このようなグラファイ

Fig. 1. (a) PTCDA pellet and (b) heat-treated PTCDA pellet at 800°C in Ar.

Fig. 2. (a) SEM feature of the PPN fibers developed on the pellet synthesized in Ar at 800°C and (b) SEM feature of the PPN fiber.

トリボンは理論的にも興味深く、その物性測定が開始されている。

(a)

(b)

Fig. 3. SEM feature of the PPN fibers, (a) synthesized from PTCDA in Ar/H₂ at 800°C, (b) synthesized from NTCDA in Ar at 800°C.

Fig. 4. TEM feature of graphitized PPN fiber (HTT = 2800°C).

6. グラフェンの作製と応用

単層のグラファイトシートであるグラフェンは物理的に興味ある対象でホットな話題を提供している。高配向性グラファイトの表面に Electro-phoretic deposition 法でダイヤモンドのナノ粒子を形成し、さらに 1600°C で加熱してナノグラフェンが作製されている[12]。得られたナノグラフェンは炭素数 3000 個、基板との層間は通常のグラファイトより 20~50% 大きく、グラフェンが形成されている事が確認された。この様なナノグラフェンの電子状態はエッジの構造によって大きな影響を受け、エッジが Zigzag 型である場合には、フェルミ準位端に局在した電子状態を形成し、強磁性などの興味深い物性の出現が理論的に予測されている[13, 14]。実際に、榎らは Fig. 5 に示す様に高真空 STM, STS (Scanning tunneling spectroscopy) を用いてナノグラファイトの電子状態を測定し、Zigzag 型エッジの部分でフェルミ準位端に局在した電子状態を輝点 (fermi level at $V_s = -30$ mV) として観察する事に成功している[15]。

グラフェンはゼロギャップ半導体であり、質量のないディラック粒子と等価な電子構造を有し、通常の電子とは異なる伝導特性を示すと予想されている。グラファイト結晶を壁開した厚さ 3 nm (グラファイト 9 層に相当) の試料の伝導度が測定されているが、この様なグラファイトシートは二次元的半金属に特有な ambipolar な挙動を示し、電子・ホール濃度は $10^{13}/\text{cm}^2$ 、移動度は $10,000 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ であると報

(Reprinted from J. Mater. Chem. 2005, 15, 3999)

Fig. 5. STM image (9 nm × 9 nm) of a hydrogen-terminated nano-graphite edge. The edge states are responsible for the bright spots around the zigzag edge.

告されている[16]。最近、ついに単層シートの磁気輸送現象が測定され、質量ゼロの準粒子の存在が確かめられた。無磁場における電気抵抗の測定では不純物量によらない値が得られ、ゼロギャップ半導体の理論値 $4e^2/(\pi h)$ より大きな値となっている[17, 18]。このような大きな移動度や特異な準粒子の存在は、将来このような特性を利用した全く新しいデバイスの可能性を示すものである。

7. 高分子からの高品質グラファイトの作製と応用

高分子フィルムを炭素化する固相からのグラファイト作製に関する報告は1987年になされ、意外にTable 1に示した9種類の炭素作成法の中では一番新しい。最初の報告から20年を経過した現在でも良質のグラファイトになる高分子としては、ポリイミド (PI)、ポリオキサジアゾール、ポリパラフェニレンビニレンなど数種類が知られているに過ぎない[19-21]。高分子が良質のグラファイトに転化出来るためには、①分子配向した高分子であり、②熱分解の過程で気化・溶融せず、③分解後ただちに再結合し、④分子の配向性を保ったまま炭素化する事が必要である。

炭素化・グラファイト化の過程は以下の様に進行する。PIフィルムは500℃付近で熱分解してその重量は約45%になり、この時に厚さ・長さは等方的に収縮する。その後、重量は徐々に減少するだけであまり変化しないが、重量変化のほとんど無い2000℃以上の領域ではフィルム厚さが薄くなる一方で面積は増加する。このような変化は2000℃付近から炭素の再配列が起こり、グラファイト化が進行する事に対応している。Fig. 6には得られたグラファ

Fig. 6. Lattice image (TEM feature) of the graphite film (HTT = 3000°C).

イトの断面 TEM 写真を示す。グラファイトの層構造 (層間 0.3354 nm) はきれいに配向しており、極めて高品質のグラファイトである事が分かる。得られるグラファイトの特徴は高品質である事以外に、フィルム状の大面积グラファイトが容易に得られる事、製造プロセスの制御により柔軟性や強靱性などの機械的性質を自在に制御できる事、などで工業的に重要な材料となっている。

Fig. 7にはPIから得られた柔軟なグラファイトフィルムの写真を示す。このフィルムはグラファイト層を破壊せずに層間の剥離を行った後圧縮する、と言う方法で製造されるが[22]、従来のグラファイトフィルムと比較して機械的強度や電気伝導度等の物性は10倍優れている。例えば、熱伝導度は800~1200 W/mKでありその値は銅の2倍以上である。このような性質は携帯電話や小型ゲーム機、あるいは携帯用パソコンのCPU、チップセット、メモリ等からの発熱を速やかに拡散するための放熱材料として広く使用されている。また、製造条件の制御で得られる硬質フィルムは世界最高の音速(19000 m/sec)を有しており、雑音を防ぐための内部損失が大きい ($\tan \delta = 0.02$)、軽い (比重 2.1 g/cm³)、などの性質を生かしてスピーカー用のツイータ (高音) 振動板として商品化された。

複数枚のPIフィルム (厚さ 25 μm) を1000~5000枚積層し、内部にしわやひずみが入らないようにしながら加圧下で炭素化・グラファイト化する方法で、グラファイトブロックが作製される[23]。例えば3200℃で作製されたグラファイトの場合、品質を評価するのに用いられる電気抵抗の温度依存性 ($\sigma_{RT}/\sigma_{4.2K}$) は6.0であり、最高級のグラファイト

Fig. 7. Flexible graphite sheet obtained from polyimide film (HTT = 2800°C).

である事を示している。このブロックはモノクロメーターとしてX線回折装置に広く用いられている。これはグラファイトの(002)X線回折強度が極めて大きい事を利用してCuK α 線以外の波長のX線を除去するものであるが、モノクロとして使用するにはグラファイト層が平行である事が必要である。現在モザイクスプレッド値(MS)が0.3~0.4°の商品が製造・販売され、X線回折装置に不可欠な素子となっている。この方法で得られたブロック(Fig. 8 (a))は高圧力の実験の方々にはなじみ深い中性子線回折においても、高次回折線を除去する役割の中性子線フィルターとして使用されている。最近、高度な製造技術を駆使してトロイダル型に成型したグラファイトのX線集光素子が開発され、直接光の300倍に達する高強度X線が得られた[24]。Fig. 8 (b), (c)には、トロイダル型グラファイトX線集光素子と集光原理を示す。これはトロイダル型素子の内面でX線を全反射し単色化すると同時に焦点に集光するもので、簡易に強力なX線を得る新たな手法として興味深い。

Fig. 8. Graphite blocks for radiation optics, (a) neutron filter with MS = 1.8° and (b) toroidal type graphite X-ray condenser device (1/3 part of the whole device).

8. ダイヤモンドへの圧力誘起相転移

ダイヤモンドには良く知られた立方晶以外に六方晶ダイヤが存在する。立方晶ダイヤがABCABCの積層構造を持つものに対して、グラファイト、六方晶ダイヤはABABABの積層構造を持つ。従ってグラファイト⇒立方晶ダイヤ間の相転移には熱と圧力の両方が必要となるが、グラファイト⇌六方晶ダイヤの間は圧力のみで相転移する。しかし、六方晶ダイヤは加圧下では安定に存在するものの常圧・室温ではグラファイトに戻ってしまう。グラファイトの六方晶ダイヤへの圧力誘起相転移に関する報告として、電気抵抗測定[25]、X線測定[26]、反射率とラマン測定[27]があり、それらの結果から結晶性のよいグラファイトほど、また圧力の一軸性が高いほど低い圧力で転移すると考えられている。

清水らは前記の高品質グラファイトフィルム(PIの3000°C処理品)を用いて、ダイヤモンドへの転移実験を行っている[28]。加圧装置としてダイヤモンドアンビルセルを、圧力媒体として一軸性の高い(準静水圧)Daphne Oilと、静水圧であると考えられるHeを用いた。Fig. 9にはX線測定の結果を示す。Daphne Oilの場合六方晶ダイヤとグラファイトの共存する圧力領域は17~23 GPaであり、Heでは両相の共存する圧力領域は19~23 GPaであった。静水圧でも準静水圧でもグラファイトと六方晶ダイヤが共存する圧力領域は過去の報告と比べて極めて

Fig. 9. X-ray diffraction patterns of the graphite film under pressure, (a) in Daphne Oil, (b) in He.

狭く、急激に転移が起きると推測できた。試料は圧力を下げると5~10 GPaまで透明性を有しているが常圧では黒色に戻り、ラマン測定からも実際にグラファイトに戻っている事が確認された。一方、圧力下で加熱処理を行うと六方晶ダイヤモンドの一部が立方晶ダイヤモンドに変換され、室温で六方晶と立方晶が共存するダイヤモンドフィルムを取り出す事ができた。これはグラファイト→六方晶ダイヤモンド→立方晶ダイヤモンドの転移プロセスを明確に示した最初の例であると考えられ、今後の研究の進捗が期待される[29]。

9. おわりに

本報告ではグラファイト系炭素材料の次元性と言うキーワードで、その最新動向と応用について述べた。古くて新しいと言われる炭素材料は出発原料や作製法の多様化、プロセスの精密制御などで21世紀の素材と言われるにふさわしい内容を備えるに至った。中でもグラファイト系材料はその多様な用途展開のゆえにとりわけ重要な材料となりつつある。高圧力や超高温による材料合成、極低温などにおける物性測定の手段はより高付加価値の炭素材料を得るための重要な手段であり、今後その重要性はますます増加するであろう。

参考文献

- [1] 大谷杉郎: 炭素新時代 (ダイヤモンド社, 1987), 第3章, p. 77. 記載の表に加筆.
- [2] A.El. Goresy, G. Donnay: *Science*, **164**, 363 (1968).
- [3] K. Miyazawa, Y. Kuwasaki, A. Obayashi, M. Kuwabara: *J. Mater. Res.*, **17**, 83 (2002).
- [4] M. Chikamatsu, S. Nagamatsu, Y. Toshida, K. Saito, K. Yase: *Appl. Phys. Lett.*, **87**, 203504 (2005).
- [5] K. Hata, D.N. Futaba, T. Yamada, K. Mizuno, T. Namai, M. Yumura, S. Iijima: *Science*, **306**, 1362 (2004).
- [6] D.N. Futaba, K. Hata, T. Yamada, K. Mizuno, M. Yumura: *Phys. Rev. Lett.*, **95**, 056104 (2005).
- [7] Y. Maeda, S. Kimura, M. Kanda, Y. Hirashima, T. Hasegawa, T. Wakahara, Y. Lian, T. Nakahodo, T. Tsuchiya, T. Akasaka, J. Lu, X. Zhang, Z. Gao, Y. Yu, S. Nagase, S. Kazaoui, N. Minami, T. Shimizu, H. Tokumoto, R. Saito: *J. Am. Chem. Soc.*, **127**, 10287 (2005).
- [8] H. Nishino, C. Yamaguchi, H. Nakaoka, R. Nishida: *Carbon*, **41**, 2165 (2003).
- [9] M. Murakami: *Synth. Met.*, **18**, 531 (1987).
- [10] M. Murakami, S. Iijima, S. Yoshimura: *J. Appl. Phys.*, **60**, 3856 (1986).
- [11] M. Murakami: *J. Appl. Phys.*, **67**, 194 (1990).
- [12] A.M. Affoune, B.L. Prasad, H. Sato, T. Enoki, Y. Kaburagi, Y. Hishiyama: *Chem. Phys. Lett.*, **17**, 348 (2001).
- [13] 藤田光考, 若林克法, 伊神正貫, 中田恭子, 草部浩一: *固体物理*, **32**, 179 (1997).
- [14] 榎敏明: *応用物理*, **74**, 192 (2005).
- [15] T. Enoki, Y. Kobayashi: *J. Mater. Chem.*, **15**, 3999 (2005).
- [16] K.S. Novoselov, A.K. Geim, S.V. Morozov, D. Jiang, Y. Zhang, S.V. Dubonos, I.V. Grigorieva, A.A. Firsov: *Science*, **306**, 666 (2004).
- [17] K.S. Novoselov, A.K. Geim, S.V. Morozov, D. Jiang, M.I. Katsnelson, I.V. Grigorieva, S.V. Dubonos, A.A. Firsov: *Nature*, **348**, 197 (2005).
- [18] Y. Zhang, Y.-W. Tan, H.L. Stormer, P. Kim: *Nature*, **348**, 201 (2005).
- [19] M. Murakami, K. Watanabe, S. Yoshimura: *Appl. Phys. Lett.*, **48**, 1594 (1986).
- [20] T. Ohnishi, I. Murase, T. Noguchi, M. Hirooka: *Synth. Met.*, **14**, 207 (1986).
- [21] M. Inagaki, T. Takeichi, Y. Hishiyama, A. Oberlin: *Chem. Phys. Carbon*, **26**, 245 (1999).
- [22] 西木直巳, 武弘義, 村上睦明, 吉村進, 吉野勝美: *電学論 A*, **123**, 1115 (2003).
- [23] M. Murakami, N. Nishiki, K. Nakamura, J. Ehara, H. Okada, T. Kouzaki, K. Watanabe, T. Hoshi, S. Yoshimura: *Carbon*, **30**, 255 (1992).
- [24] 西木直巳, 川島勉, 村上睦明, 吉村進, 吉野勝美: *電学論 A*, **124**, 1059 (2004).
- [25] F.P. Bundy, J.S. Kasper: *J. Chem. Phys.*, **46**, 3437 (1967).
- [26] Y.X. Zhao, I.L. Spain: *Phys. Rev. B*, **40**, 993 (1989).
- [27] M. Hanfland, K. Syassen, R. Sonnenschein: *Phys. Rev. B*, **40**, 1951 (1989).
- [28] 魚留篤, 中本有紀, 加賀山朋子, 清水克哉, 草部浩一, 西川泰司, 村上睦明, 大石泰生, 綿貫徹: 第46回高圧討論会要旨集, 1P20, p. 96 (2005).
- [29] 魚留篤, 加賀山朋子, 中本有紀, 清水克哉, 草部浩一, 西川泰司, 村上睦明, 大石泰生, 綿貫徹: 第61回日本物理学会講演要旨集, 30pTE-10, p. 859 (2006).

[2006年4月28日受理]