

**先端研究助成基金助成金(最先端・次世代研究開発支援プログラム)
実績報告書**

本様式の内容は一般に公表されます

研究課題名	プラズモニク結晶ナノアンテナ構造による革新的ナノバイオ計測
研究機関・ 部局・職名	九州大学・先導物質化学研究所・教授
氏名	玉田 薫

1. 研究実施期間 平成23年2月10日～平成26年3月31日

2. 収支の状況

(単位:円)

	交付決定額	交付を受けた額	利息等収入額	収入額合計	執行額	未執行額	既返還額
直接経費	108,000,000	108,000,000	0	108,000,000	108,000,000	0	0
間接経費	32,400,000	32,400,000	0	32,400,000	32,400,000	0	0
合計	140,400,000	140,400,000	0	140,400,000	140,400,000	0	0

3. 執行額内訳

(単位:円)

費目	平成22年度	平成23年度	平成24年度	平成25年度	合計
物品費	100,000	62,365,507	11,186,740	8,038,469	81,690,716
旅費	0	750,558	917,942	900,342	2,568,842
謝金・人件費等	0	5,667,975	8,137,850	8,126,268	21,932,093
その他	0	664,337	329,195	814,817	1,808,349
直接経費計	100,000	69,448,377	20,571,727	17,879,896	108,000,000
間接経費計	0	17,440,000	4,235,000	10,725,000	32,400,000
合計	100,000	86,888,377	24,806,727	28,604,896	140,400,000

4. 主な購入物品(1品又は1組若しくは1式の価格が50万円以上のもの)

物品名	仕様・型・性能等	数量	単価 (単位:円)	金額 (単位:円)	納入 年月日	設置研究機関名
Cypher-KT型 高分解能原子間力顕微鏡	株式会社アサイラムテクノロジー製 CypherKT型 1台外	1	26,008,500	26,008,500	2011/5/20	先導物質化学研究所
ゼータ電位・粒子径・分子量測定装置	英国マルバーン社製ゼータサイザー Nano-ZS 1台	1	9,429,000	9,429,000	2011/6/23	先導物質化学研究所
日本ミホア株式会社製超純水製造装置	日本ミホア株式会社製 Elix Advantage3本体 1台外	1	1,169,910	1,169,910	2011/5/19	先導物質化学研究所
生体分子観察全反射1分子蛍光イメージングシステム	株式会社ニコン製 TIRF/Ti-E-K1 1台外	1	18,270,000	18,270,000	2012/1/25	先導物質化学研究所
フーリエ変換赤外分光分析装置	米国パーキンエルマーライアントアナリティカルサイエンス社製 Frontier Gold FT-IR KJP051201 1台外	1	4,830,000	4,830,000	2012/3/13	先導物質化学研究所
REFRACTOR高感度反射アクセサリ-RG2-P11	米国パーキンエルマーライアントアナリティカルサイエンス社製 RG2-P11 1	1	861,000	861,000	2012/3/27	先導物質化学研究所
プリュスター角顕微鏡	独国Accurion社製 nanofilm_ultrabam	1	6,648,214	6,648,214	2013/1/30	先導物質化学研究所
Langmuir-Blodgett膜作製装置	独国Accurion社製 nanofilm_trough_large	1	2,276,786	2,276,786	2013/1/30	先導物質化学研究所
全反射照明蛍光顕微鏡用レーザー光源セット	640LX	1	819,220	819,220	2013/3/12	先導物質化学研究所
小型SiO2蒸着装置	株式会社アールデック製 RD002-SiO2	1	6,499,500	6,499,500	2014/2/7	先導物質化学研究所

5. 研究成果の概要

本研究は、金属ナノ微粒子の多次元(1次元、2次元、3次元)結晶および複雑系における局在プラズモンの協同励起に関する申請者の独創的研究を、癌マーカー高感度検出やリアルタイム1分子計測に応用しライブ・イノベーションを推進しようというものである。主な研究成果は、1)多次元結晶および複雑系微粒子集合体における協同的プラズモン特性の解明、2)局在プラズモン蛍光増強シートの開発、3)走査型プローブ顕微鏡による微粒子シートのナノマニピュレーション、4) 蛍光増強シートによる1分子イメージング(実施例)、5)高感度プラズモンバイオセンサー試作、である。本プロジェクトを通じて、全反射顕微鏡下で、ナノの空間分解能を保ちながら、蛍光発光を数倍増強することに成功したが、これは基礎生化学および医学の分野に広く貢献できる技術であり、生命機能や疾患原因の解明など、国民生活へも還元できる技術である。

課題番号	LR007
------	-------

**先端研究助成基金助成金(最先端・次世代研究開発支援プログラム)
研究成果報告書**

本様式の内容は一般に公表されます

研究課題名 (下段英語表記)	プラズモニック結晶ナノアンテナ構造による革新的ナノバイオ計測
	Innovative NanoBio Detection with Plasmon NanoAntenna
研究機関・部局・ 職名 (下段英語表記)	九州大学・先導物質化学研究所・教授
	Kyushu University, Institute for Materials Chemistry and Engineering
氏名 (下段英語表記)	玉田 薫
	Kaoru Tamada

研究成果の概要

(和文)：本研究は、我々が保有する独自技術である金属微粒子自己組織化を用いて、多次元結晶など複雑な構造の微粒子集合体を形成し、そこでの局在プラズモンの協同的励起を理論計算および実験的検証の両方から完全解明することを目的とする。その応用出口として、ナノの空間分解能を有するプラズモン蛍光増強シートを完成させ、高感度・高分解能1分子イメージング法を確立しようというものである。研究成果として、全反射顕微鏡下で蛍光ビーズの実時間測定を行い、150 nm²/Pixelの空間分解能、30msec/frameの記録速度において、ガラス基板上の4倍以上の蛍光強度を得ることに成功した。ナノの空間分解能の実時間1分子蛍光観察が可能になったことで、基礎生物学や医学の発展に広く貢献できると期待している。

(英文)： This project is designed to understand the collective excitation of localized surface plasmon mode on multidimensionally aligned complex metallic nanoparticles by both theoretical and experimental approaches. This study is based on our original study for self-assembly of metallic nanoparticles. The expected out-put is an enhanced fluorescence imaging of a single molecule with nano-spatial resolution. In this project, we have succeeded to realize 4 times fluorescence enhancement of the model beads with 150 nm²/pixel spatial resolution under 30 msec/frame real-time imaging. This nano-imaging technique can contribute extensively to the fields of basic biology or medical science.

様式21

1. 執行金額 140,400,000 円
(うち、直接経費 108,000,000 円、間接経費 32,400,000 円)

2. 研究実施期間 平成23年2月10日～平成26年3月31日

3. 研究の目的

近年我々は熱分解法により粒径の揃った均一な銀ナノ微粒子（直径約 5nm）をグラムスケールで大量合成する手法の開発に成功した（特許第 4415083 号）。この粒子は界面活性を有し、気水界面に展開すると自発的に巨大二次元結晶を形成する。二次元結晶形成により、局在プラズモンに起因する可視吸収帯は大きくレッドシフトするとともに、ピークの精鋭化を生じる。我々は、これを“プラズモニクナノシート”と名付け、巨視的な光をナノ厚みのシート内に閉じ込め、二次元方向に高効率で導波できる転写自在のナノ材料として技術確立した。

通常プリズムカップリング等で金属薄膜表面に励起させる伝搬型表面プラズモン波は、金属-誘電体接合面に光の局在化を引き起こすものの、そのしみだし深さは数 100nm に及ぶ。一方、金属ナノ微粒子による光の局在化では、ナノ領域への閉じ込めが可能だが、バルク入射光のごく一部しか活用することができない。これに対して、我々のナノシートは、入射したバルク入射光をナノ厚み界面で一括トラップすることが可能である。さらに空間分解能が低い従来の伝搬型プラズモンとは異なり、この局在プラズモンシートは原理的にナノの空間分解能を保持することが期待される。

この最先端・次世代研究では、プログラムの主旨にあわせて、挑戦的な課題設定をした。以下に、基礎研究および応用研究の目標をそれぞれ示す。

(1). 基礎研究（プラズモニクス）達成目標

- ①多次元（1次元、2次元、3次元）微粒子結晶の協同的プラズモン特性の完全解明
フラクタル次元や多成分混合系など複雑系への挑戦
- ②紫外、近赤外等）に共鳴波長を持つ新規ナノ微粒子の設計・合成の検討

(2). 応用研究（ライフ・イノベーション）達成目標

- ①可視光励起蛍光増強シートの開発
蛍光発光強度：スライドガラス上の 10 倍以上（FDTD 計算値を目標値とする）
空間分解能：使用する光学顕微鏡／記録媒体検出限界以下（190nm²/ 1 pixel）
- ②紫外光励起蛍光増強シートの開発
- ③高感度プラズモン増強蛍光バイオセンサーの試作
目標感度限界：癌マーカーカットオフ値より 1ng/ml
- ④上記シートによる高感度 1 分子蛍光イメージング
全反射顕微鏡観察（緑／赤発光）および落射型顕微鏡観察（青色発光）による 1 分子リアルタイム観測

4. 研究計画・方法

(1). 多次元結晶および複雑系微粒子集合体における協同的プラズモン特性の解明

金および銀微粒子からなる自己組織化構造形成と、走査型顕微鏡（SPM）によるナノマニピレーションの効果の両方についてFDTD計算ならびに実験により検証する。同一粒子会合構造に加えて、異種粒子積層構造、異種粒子面内規則構造、フラクタル等複雑系構造、SPMによる1粒子加工表面について、実験/計算の両面から検討を進める。

(2). 紫外および赤外励起用微粒子の設計と合成

各種金属アロイの実効誘電率を計算予測、ナノ微粒子とした時の共鳴波長を算出し、これに基づき合成の指針を立てる。金/銀混合系から開始し、その後紫外光共鳴粒子合成を目指して異種金属材料について検討する。

(3). 局在プラズモン蛍光増強シートの開発

銀および金ナノ微粒子2次元シートを使い、生体膜観察用の可視光励起蛍光増強シートを完成させる。FRETによる蛍光消光を抑えるため、スペーサー層を導入する。蛍光増強度の定量的試験に加えて、光・熱対損傷性試験、生体適合性などについても検討する。

(4). 高感度プラズモン増強蛍光バイオセンサーの試作

我々が開発した微粒子シートを実際にバイオ系研究者に使用してもらい、その実用効果について検討する。アビジン-ビオチン反応によるバイオセンシングモデル実験に加えて、細胞イメージングへの応用も試みる。

5. 研究成果・波及効果

(1). 多次元結晶および複雑系微粒子集合体における協同的プラズモン特性の解明

我々は、本プロジェクトにおいて、金属基板上に銀ナノ微粒子シートを積層した際に、積層層数に応じて、オレンジ～赤～ピンク～紫～青の鮮やかな呈色が得られる新規プラズモン現象を発見した。これについて、FDTD計算により原理解明するとともに、プラズモンを利用したフルカラーナノコーティング法として特許出願およびプレスリリースを行った（図1）。この手法を使えば、曲率のある基板も容易に美しくフルカラーコーティングすることができる。さらに金および銀微粒子シートの混合積層膜の成果も加えて、国際誌に2本の論文発表をした。



図1 金属微粒子によるフルカラーナノコーティング。曲率のある材料でも均一にコーティング可能。

さらに金属種が異なると隣接する微粒子間においてもプラズモンカップリングが生じないことをFDTD理論計算により確認し、この現象を用いて混合微粒子膜における相分離構造を利用した共鳴角のチューニングに成功した。本成果について、複数の国内・国際会議にて招待講演を行った。現在論文投稿準備中である。

原子間力顕微鏡（AFM）を用いた微粒子シートのナノパターンニングについては、AFMプローブによるスクラッチ法と局所陽極酸化法の両方の技術確立に成功した。陽極酸化法では、

酸化部分が形状として盛り上がる一方、ケルビンプローブ顕微鏡観察によりパターン部分の表面電位が低下することを確認した(図2)。この現象について理論的に説明するために、多層積層膜の表面電位測定を実施した。その結果、ナノメートル厚の微粒子シートの転写により、表面電位(仕事関数)が均一に、自在に制御可能であることを確認した。陽極酸化による局所的仕事関数の制御とあわせて、ナノエレクトロニクスデバイスへの応用が期待できる。これらの成果について、現在論文投稿中である。

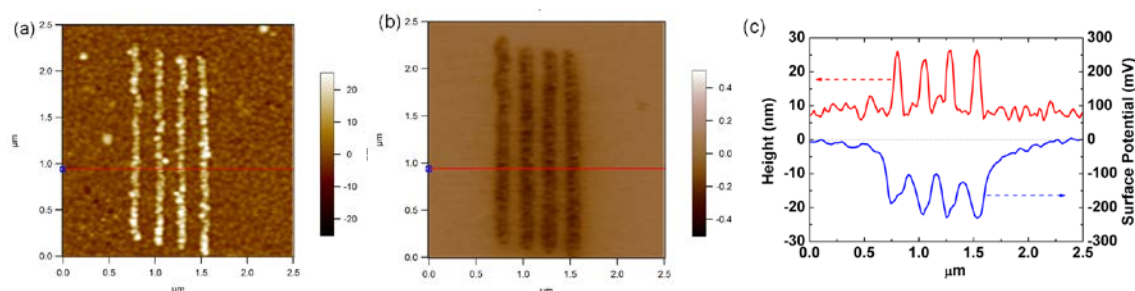


図2 陽極酸化パターン表面の(a)高さ画像と(b)表面電位画像。(c)はそれぞれの断面プロファイル。ライン形状は高さ20nm幅150nmである

(2). 紫外および赤外励起用微粒子の設計と合成

金・銀アロイ粒子については、物理的混合法による波長チューニングが可能であったことから合成法の検討は行わないこととした。代わって紫外光共鳴粒子の合成法について検討を開始し、アルミ系材料よりも化学的合成に適した材料として、パラジウムナノ粒子の新規合成とプラズモンの基礎特性評価を行い、従来にない強い紫外プラズモン共鳴を示す微粒子の開発に成功した。ただし本材料は大気中で不安定で、二次元膜化には成功していない。

ところが、研究最終年になって、銀微粒子シートの積層数を数10層まで重ねると、(i)10層程度の積層で可視域の局在プラズモン吸収が完全に消え、(ii)フォトリックバンドギャップともとれる400-500 nmのゼロ吸収域を経て、300-350 nmの紫外域に強い吸収バンドが現れる新奇現象を発見した。これは、プラズモニク・メタマテリアルの分野でも特に近年世界で注目を集めている“ナノメタマテリアル”、すなわち、ナノスケールの金属の3次元構造に基づく新しい光学効果の発現として、国際会議発表において注目を集めた。本研究成果を基に平成26年度科研費基盤研究Aに採択され、現在「複雑系3次元ナノメタマテリアルの創成」として研究継続中である。

赤外励起についても、金微粒子積層構造にて実現可能であることから、積層により波長チューニングの幅を広げる方向で現在も検討を進めている。

(3). 局在プラズモン蛍光増強シートの開発

半導体ナノ粒子(QDs)をマーカーとする蛍光増強試験を行った(韓国ソウル大学およびシンガポール国立大学との共同研究)。銀微粒子シート(粒径5nm)と蛍光色素との距離をSiO₂スパッタ層で調整することで、局在表面プラズモン共鳴電場による蛍光増強を実験で確認した。蛍光消光を避けるためのSiO₂スペーサー層の膜厚と蛍光増強度との関係について検討した結果、励起波長によらずSiO₂膜厚20 nmで最大の増強度が得られること、微粒子シートによる蛍光増強は微粒子シート表面から50nm以下の領域に限られることがわかった(図3)。

金微粒子シート（粒径10nm）についても同様の実験を行い、金微粒子シートではSiO₂膜厚50nmで蛍光が最大となることを確認した。さらに蛍光寿命測定により、銀ナノ微粒子シート上でQDsの蛍光寿命が1/30程度にまで早まることを確認した。

さらにバイオ用蛍光ビ

ーズ（粒径100nm）による1分子イメージング試験により、金属微粒子シートが実際に蛍光イメージングにおいて有効であることを実験的に確認した。エバネッセント光を用いる全反射顕微鏡観察では、蛍光の強度が通常の顕微鏡観察に比べて極めて弱くなる。これを補うために伝搬型プラズモンを用いると、空間分解能が1/10に低下するといった問題があった。これに対して、金属微粒子シートを用いたイメージングでは蛍光強度を4倍上げつつも高い空間分解能が維持できるという結果が得られた（図4）。これによりライフ・イノベーションの目標値（蛍光発光強度：FDTD計算値として10倍、空間分解能：190nm²/1pixel）を達成した。これらの成果について、国際誌にて論文発表した。

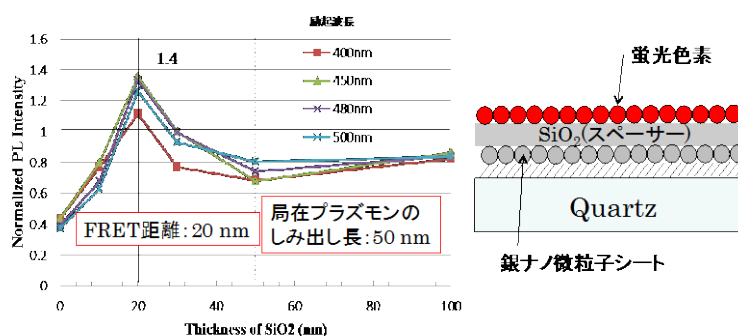


図3 銀微粒子シートによる蛍光増強におけるSiO₂膜厚と蛍光増強強度の関係。銀微粒子シートからの距離20nmで蛍光は最大となり、伝搬型プラズモンに比べてプラズモンのしみ出し長は極めて短い

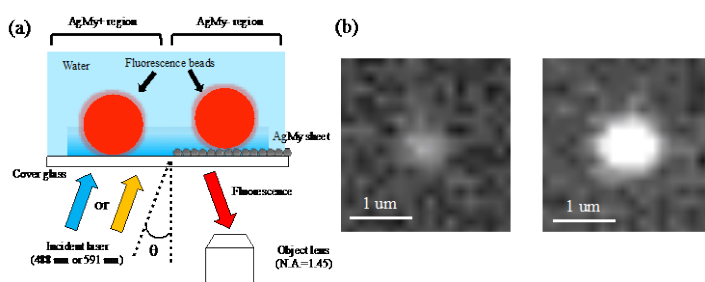


図4 全反射顕微鏡による蛍光ビーズによる1分子イメージングテスト。銀微粒子シートにより約4倍の増強と高い空間分解能が確認できた。

(4). 高感度プラズモン増強蛍光バイオセンサーの試作

我々が開発した微粒子シートでは、基板から数10nmの領域でのみ明確な蛍光増強特性が現れる。高分解能イメージングに適したこの手法は、タンパク質1分子や細胞膜の観察に適していると考えられる。広島大学医歯薬保健学研究院との共同研究により、銀微粒子二次元シート基板上での細胞蛍光観察を試みた結果、細胞の接着点についてより高いコントラストで可視化することができた。また、銀微粒子シート上への接着細胞において、強い接着抑制効果が確認された。一方、銀微粒子シートとは異なり、金微粒子シート上では細胞接着がガラス基板同様に良好であることを確認した。両微粒子ともに疎水性キャッピング分子で被覆した構造を有することから、細胞接着性の違いは、有機分子によるものではなく、金属コアの性質によるものであると考えられる。すなわち本実験を通じて、接着界面における高分解能画像に加えて、銀微粒子の細胞（生体）毒性に関わる重要な知見を得ることができた。

様式21

一方で、銀微粒子シート上SiO₂スペーサー層にシランカップリング剤を介してストレプトアビジンを固定化、その上にビオチン分子で修飾した金微粒子を分子認識的に吸着させるモデル実験系を確立した。これを用いて、①金微粒子による蛍光消光を使った高感度バイオセンサー、②リトマス紙のように目視で反応が確認できるフルカラーバイオセンサーの基本システムの考案に成功した。

6. 研究発表等

雑誌論文 計 19 件	<ol style="list-style-type: none"> 1) Jungmok You, Akihito Yoshida, June Seok Heo, Han-Soo Kim, Hyun Ok Kim, <u>Kaoru Tamada</u>, Eunkyong Kim, Protein coverage on polymer nanolayers leading to mesenchymal stem cell patterning, <i>Physical Chemistry Chemical Physics</i>, 2011, 13, 39, 17625-17632 (ISSN: 1463-9076). 2) Nobuko Fukuda, Naoyuki Ishida, Kenichi Nomura, Tong Wang, <u>Kaoru Tamada</u>, Hirobumi Ushijima, Analysis of Adsorption and Binding Behaviors of Silver Nanoparticles onto a Pyridyl-Terminated Surface Using XPS and AFM, <i>Langmuir</i> 2011, 27, 12916-12922 (ISSN: 0743-7463). 3) Hyo Won Kim, Jaehoon Jung, Mina Han, Seongjoon Lim, <u>Kaoru Tamada</u>, Masahiko Hara, Maki Kawai, Yousoo Kim, Young Kuk, One-Dimensional Molecular Zippers 2011, <i>Journal of the American Chemical Society</i>, 133, 24, 9236-9238 (ISSN: 0002-7863). 4) Hyo Won Kim, Mina Han, H.-J. Shin, Y. Oh, <u>Kaoru Tamada</u>, Masahiko Hara, Yousoo Kim, Maki Kawai, Young Kuk, Control of Molecular Rotors by Selection of Anchoring Sites, <i>Physical Review Letters</i> 2011, 106, 14, 146101 (ISSN: 0031-9007). 5) 中田武志, 楊菲, 吉田晃人, 立間徹, <u>玉田薫</u>, 銀ナノシートを用いた酸化チタン非接触光触媒活性の評価, <i>表面科学</i> 2011, 32, 11, 727-732 (ISSN 0388-5321). 6) Mana Toma, Koji Toma, Kanae Michioka, Yasuhiro Ikezoe, Daiki Obara, Koichi Okamoto and Kaoru Tamada, Nanoscale coupling of photons to vibrational excitation of Ag nanoparticle 2D array studied by scanning tunneling microscope light emission spectroscopy, <i>Physical Chemistry Chemical Physics</i> 2011, 12, 14749-14753. 7) Yoshikazu Kumashiro, Yasuhiro Ikezoe, Tomohiro Hayashi, Youichi Okabayashi, <u>Kaoru Tamada</u>, Masayuki Yamato, Teruo Okano, Masahiko Hara, Temperature-modulated adsorption of poly(N-isopropylacrylamide)- grafted ferritin on solid substrate, <i>Colloids and Surfaces B: Biointerfaces</i>, 95, 57 (2012). eISSN: 0927-7765 http://www.journals.elsevier.com/colloids-and-surfaces-b-biointerfaces/ 8) Makoto Yamamoto, Toshifumi Teruo, Reiko Ueda, Keisuke Imazu, <u>Kaoru Tamada</u>, Takeshi Sakano, Kenji Matsuda, Hisao Ishii, Yutaka Noguchi, Photoinduced conductance switching in a dye-doped gold nanoparticle transistor, <i>Applied Physics Letters</i> 101, 023103 (2012). Print: ISSN 0003-6951 eISSN 1077-3118 http://apl.aip.org/ 9) Koichi Okamoto, Brian Lin, Keisuke Imazu, Akihito Yoshida, Koji Toma, Mana Toma, <u>Kaoru Tamada</u>, Tuning colors of silver nanoparticle sheets by multilayered crystalline structures on metal substrates, <i>Plasmonics</i>, DOI 10.1007/s11468-012-9437-2 (2012). Print: ISSN 1557-1955 eISSN:1557-1963 http://link.springer.com/journal/11468 10) A. Yoshida, K. Imazu, X. Li, K. Okamoto, <u>K. Tamada</u>, Spectroscopic Properties of Multilayered Gold Nanoparticles 2D Sheets, <i>Langmuir</i>, 28, 17153 (2012). Print: ISSN 0743-7463 eISSN 1520-5827 http://pubs.acs.org/journal/langd5 11) X. Xu, M. Funato, Y. Kawakami, K. Okamoto, <u>K. Tamada</u>, Grain size dependence of surface plasmon enhanced photoluminescence, <i>Optical Express</i>, 21, 3145 (2012). eISSN: 1094-4087
----------------	--

	<p>http://www.opticsinfobase.org/oe/home.cfm</p> <p>12) Usukura, S. Shinohara, K. Okamoto, J. Lim, K. Char, <u>K. Tamada</u>, Highly confined, enhanced surface fluorescence imaging with two-dimensional silver nanoparticle sheets, <i>Applied Physics Letters</i> 104, 121906 (2014). ISSN:0003-6951, E-ISSN: 1077-3118</p> <p>13) M. Yamamoto, R. Ueda, T. Terui, K. Imazu, <u>K. Tamada</u>, T. Sakano⁴, K. Matsuda, H. Ishii, and Y. Noguchi, Wavelength dependence and multiple-induced states in photoresponses of copper phthalocyanine-doped gold nanoparticle single-electron device, <i>Japanese Journal of Applied Physics</i> 53, 01AC02 (2014). ISSN online: 1347-4065, print: 0021-4922</p> <p>14) D. Tanaka, S. Shinohara, E. Usukura, P. Wang, K. Okamoto, and <u>K. Tamada</u>, High-sensitivity surface plasmon resonance sensors utilizing high-refractive-index silver nanoparticle sheets, <i>Japanese Journal of Applied Physics</i> 53, 01AF01 (2014). ISSN online: 1347-4065, print: 0021-4922</p> <p>(掲載済み一査読有り) 計 14 件</p> <p>15) 銀微粒子によるプラズモニックナノシートの作製と応用 <u>玉田薫</u>, 岡本晃一「光アライアンス」特集：光デバイスの未踏領域, Vol.23, 6, 7-10 (2012). ISSN 0917-026X http://www.nikko-pb.co.jp/user_data/oa_top.php?category_id=13</p> <p>16) 金属微粒子を使ったフルカラーコーティング <u>玉田薫</u>「コンバーテック」特集：薄膜形成技術と表面の機能化, Vol.3, 480, 84 (2013). ISSN 0911-2316 http://www.converttech.jp/aboutconverttech.html</p> <p>17) ナノ材料による新しい機能発現 <u>玉田薫</u>, 岡本晃一, 大岩さゆり「レーザー研究」特集号 近接場相互作用が拓く新しい産業応用 Vol.41, 3, 184-190 (2013). ISSN 0387-0200 http://www.lsj.or.jp/laser/11_1.html</p> <p>(掲載済み一査読無し) 計 3 件</p> <p>18) Akira Baba, Keisuke Imazu, Akihito Yoshida, Daisuke Tanaka and <u>Kaoru Tamada</u>, Surface Plasmon Resonance Properties of Silver Nanoparticle 2D Sheets on Metal Gratings, in press, <i>SpringerPlus</i> (2014).</p> <p>(未掲載) 計 1 件</p>
<p>会議発表 計 68 件</p>	<p>1) <u>玉田薫</u>, 分子・ナノ材料の自己組織化と新しい機能発現, 九州大学, 2011. 6. 3, OPERA研究交流セミナー (専門向け, 依頼講演)</p> <p>2) <u>Kaoru Tamada</u>, NanoBio Imaging on Ag nanoparticle 2D crystalline sheet, KRISS, Korea, 2011.6.9, The 1st International NanoBio Imaging Workshop (専門向け, 招待講演)</p> <p>3) <u>玉田薫</u>, 銀微粒子二次元結晶による協同的局在プラズモン励起, 長崎大学 2011.6.11, 九州表面・真空研究会 (専門向け, 招待講演)</p> <p>4) <u>Kaoru Tamada</u>, Brian Lin, Keisuke Imazu, Akihito Yoshida, Akira Baba, Koichi Okamoto, Collective Plasmon Mode Excited on Multidimensionally Assembled</p>

	<p>Metallic Nanoparticles, Singapore, 2011.6.28, ICMAT2011 (専門向け, 口頭発表)</p> <p>5) 玉田薫, 金属ナノ微粒子自己組織化による新しい機能発現, 東京, 2011.8.23, 新化学技術推進協会 先端化学・材料技術分科会講演会 (専門向け, 招待講演)</p> <p>6) 玉田薫, 金属ナノ微粒子自己組織化とデバイス応用, 九州大学, 2011.9.5, 第2回有機分子・バイオエレクトロニクスの未来を拓く若手研究者討論会 (専門向け, 招待講演)</p> <p>7) <u>Kaoru Tamada</u>, Collective Plasmon Mode Excited on Multidimensionally Assembled Metallic Nanoparticles, 韓国慶州, 2011.9.15, KJF International Conference on Organic Materials for Electronics and Photonics 2011(KJF-ICOME2011) (専門向け, 国際会議招待講演)</p> <p>8) Akihito Yoshida, Xinheng Li, Keisuke Imazu, Koichi Okamoto, <u>Kaoru Tamada</u>, Fabrication and Spectroscopic Properties of Layer-by-Layer Gold Nanosheet on Gold Thin Film, 九州大学, 2011.9.19-22, The 3rd Asian Symposium on Advanced Materials (専門向け, ポスター)</p> <p>9) Keisuke Imazu, Akihito Yoshida, Koichi Okamoto, <u>Kaoru Tamada</u>, Localized Surface Plasmon Resonance properties of mixed monolayers composed of silver and gold nanoparticles, 九州大学, 2011.9.19-22, The 3rd Asian Symposium on Advanced Materials (専門向け, ポスター)</p> <p>10) Xinheng Li, Akihito Yoshida, Keisuke Imazu, Koichi Okamoto, <u>Kaoru Tamada</u>, Au film thickness dependence of Ag particle nanosheet plasmonic coupling, 九州大学, 2011.9.19-22, The 3rd Asian Symposium on Advanced Materials (専門向け, ポスター)</p> <p>11) <u>Kaoru Tamada</u>, Introductory talk : Plasmonics for green and bio innovation, 船堀, 2011.11.11-15, International Symposium on Surface Science –Towards Nano-, Bio-, and Green Innovation – (ISSS6) (専門向け, 企画セッション)</p> <p>12) Akihito Yoshida, Keisuke Imazu, Xinheng Li, Koichi Okamoto, <u>Kaoru Tamada</u>, Spectroscopic Properties of Multilayered Metal Nanoparticle Sheet on Gold Thin Film, 船堀, 2011.11.11-15, International Symposium on Surface Science –Towards Nano-, Bio-, and Green Innovation – (ISSS6) (専門向け, ポスター)</p> <p>13) Keisuke Imazu, Akihito Yoshida, Koichi Okamoto, <u>Kaoru Tamada</u>, Spectroscopic Properties of mixed monolayers composed of silver and gold nanoparticles, 船堀, 2011.11.11-15, International Symposium on Surface Science –Towards Nano-, Bio-, and Green Innovation – (ISSS6) (専門向け, ポスター)</p> <p>14) Xinheng Li, Akihito Yoshida, Keisuke Imazu, Koichi Okamoto, <u>Kaoru Tamada</u>, Gold film thickness-dependent Plasmonic Coupling of Metallic Particle Nanosheets, 船堀, 2011.11.11-15, International Symposium on Surface Science –Towards Nano-, Bio-, and Green Innovation – (ISSS6) (専門向け, ポスター)</p> <p>15) 玉田薫, プラズモニック結晶ナノアンテナ構造による革新的なバイオ計測, 東京アキバホール, 2011.12.15-16, JSTさきがけ「物質と光作用」公開シンポジウム (専門向け, 依頼講演)</p> <p>16) <u>Kaoru Tamada</u>, Collective Plasmon Mode Excited on Multi-dimensionally Assembled Metallic Nanoparticles, 韓国ソウル, 2012.3.9, JSPS-APCPI Joint Symposium on Active Polymer for Pattern Integration (専門向け, 一般講演)</p> <p>17) 玉田薫, Introductory talk: 最先端バイオイメージング, 東京早稲田, 2012.3.15, 応用物理学会有機分子バイオエレクトロニクス分科会企画シンポジウム (専門向け, 企画セッション)</p>
--	---

	<p>18) <u>Kaoru Tamada</u>, Collective Plasmon Mode Excited on Multi-dimensionally Assembled Metallic Nanoparticles, 仙台, 2012.3.21-22, 3rd International Workshop on Nanostructure & Nanoelectronics (専門向け, 招待講演)</p> <p>19) Daiki Obara, Akihito Yoshida, Jungmok You, Eunkyong Kim, Ryogo Tero, and <u>Kaoru Tamada</u>, Enhanced photoluminescence of dye molecules on plasmonic Ag nanosheet, 6th International Conference on Molecular Electronics and Bioelectronics (MBE6), 仙台 (震災のため紙面発表に変更), 2011年3月16日, 応用物理学会.</p> <p>20) Keisuke Imazu, Daiki Obara, Takeshi Nakada, Akihito Yoshida, and <u>Kaoru Tamada</u>, Spectroscopic properties of mixed monolayers composed of silver and gold nanoparticles, 6th International Conference on Molecular Electronics and Bioelectronics (MBE6), 仙台 (震災のため紙面発表に変更), 2011年3月16日, 応用物理学会.</p> <p>21) Takeshi Nakada, Daiki Obara, Keisuke Imazu, Fei Yang, Akihito Yoshida, Tetsu Tatuma, and <u>Kaoru Tamada</u>, Characterization of vertical remote photocatalytic activity of Pt-modified TiO₂ with Ag nanosheet, 6th International Conference on Molecular Electronics and Bioelectronics (MBE6), 仙台 (震災のため紙面発表に変更), 2011年3月16日, 応用物理学会.</p> <p>22) Takaaki Miya, Akihito Yoshida, and <u>Kaoru Tamada</u>, The detection of inorganic crystals on Au thin-film using surface plasmon resonance, 6th International Conference on Molecular Electronics and Bioelectronics (MBE6), 仙台 (震災のため紙面発表に変更), 2011年3月16日, 応用物理学会.</p> <p>23) <u>玉田薫</u>, 第58回春季応用物理学会関係連合講演会特別シンポジウム「有機分子バイオエレクトロニクス分科会の新たな挑戦」M&BE分科会の将来, 神奈川工科大学 (震災のため紙面発表に変更), 2011年3月16日, 応用物理学会.</p> <p>24) <u>Kaoru Tamada</u>, Keisuke Imazu, Akihito Yoshida, Xinheng Li, Koichi Okamoto, Full color nanocoating with plasmonic nanomaterials on plastic films, MRS 2012 Spring Meeting, San Francisco, CA, USA, 2012.4.9-13 (主催: Materials Research Society) (口頭発表, 一般)</p> <p>25) <u>Kaoru Tamada</u>, Keisuke Imazu, Akihito Yoshida, Xinheng Li, Koichi Okamoto, Collective plasmon mode excited on multi-dimensionally assembled metallic nanoparticles, MRS 2012 Spring Meeting, San Francisco, CA, USA, 2012.4.9-13 (主催: Materials Research Society) (ポスター発表, 一般)</p> <p>26) <u>Kaoru Tamada</u>, Introductory: Printed devices for bio and medical application, International Conference on Flexible and Printed Electronics (ICFPE 2012), 東京大学, 2012.9.6-8 (主催: ICFPE組織委員会*) (口頭発表, 依頼講演) *本人主催のセッション</p> <p>27) 田中大輔, Wang Pangpang, 馬場暁, 岡本晃一, <u>玉田薫</u>, クレッチマン配置による金表面に積層した銀ナノシートのSPR特性, 2012年秋季応用物理学会学術講演会, 松山, 愛媛, 2012.9.11-14 (主催: 応用物理学会) (口頭発表, 一般)</p> <p>28) <u>玉田薫</u>, 金属微粒子によるフルカラーナノコーティング, 表面技術協会第126回講演大会, 室蘭工大, 2012.9.27 (主催: 表面技術協会) (口頭発表, 依頼講演)</p> <p>29) 篠原修平, Wang Pangpang, 田中大輔, Jaehoon Lim, Kookheon, Char, 岡本晃一, <u>玉田薫</u>, 表面プラズモン共鳴による蛍光増強に関する研究, 第32回表面科学学術講演会 (主催: 日本表面科学会) (口頭発表, 一般)</p> <p>30) <u>玉田薫</u>, 金属ナノ微粒子の多次元自己組織化と光機能, 東京農工大学・電気通信大学第9回合同シンポジウム「ナノ未来材料とコヒーレント光科学」,</p>
--	---

	<p>2012.12.15 (主催：東京農工大学・電気通信大学) (口頭発表, 招待講演)</p> <p>31) <u>Kaoru Tamada</u>, Opening Remark, Seventh International Conference on Molecular Electronics and Bioelectronics (M&BE7), 福岡国際会議場, 2013.3.17-19 (主催：M&BE7 組織委員会*) *本人主催の国際会議 (組織委員長)</p> <p>32) Koichi Okamoto, Xiaoying Xu, Keisuke Imazu, Akihito Yoshida, <u>Kaoru Tamada</u>, Nanointerface Photonics tuned by Metal Nanograin and Nanoparticles, M&BE7, 福岡国際会議場, 2013.3.17-19 (主催：M&BE7 組織委員会*) (口頭発表, 一般)</p> <p>33) Pangpang Wang, Koichi Okamoto, <u>Kaoru Tamada</u>, Nanopatterning on Silver Nanoparticle Monolayer Using AFM Local Oxidation Nanolithography, M&BE7, 福岡国際会議場, 2013.3.17-19 (主催：M&BE7 組織委員会*) (口頭発表, 一般)</p> <p>34) Ryo Degawa, Xinheng Li, Koichi Okamoto, <u>Kaoru Tamada</u>, Optical Property of Multilayered Metal Particulate Two-dimensional Crystalline Films, M&BE7, 福岡国際会議場, 2013.3.17-19 (主催：M&BE7 組織委員会*) (ポスター発表, 一般)</p> <p>35) Shuhei Shinohara, Pangpang Wang, Daisuke Tanaka, Jaehooh Lim, Kookheon Char, Koichi Okamoto, <u>Kaoru Tamada</u>, Fluorescence Enhancement Produced by Ag Nanoparticle 2D Sheets, M&BE7, 福岡国際会議場, 2013.3.17-19 (主催：M&BE7 組織委員会*) (ポスター発表, 一般)</p> <p>36) Daisuke Tanaka, Pangpang Wang, Koichi Okamoto, <u>Kaoru Tamada</u>, Improved Angular Sensitivity of SPR Sensors by use of Self-assembled Ag Nanoparticle Top Coating, M&BE7, 福岡国際会議場, 2013.3.17-19 (主催：M&BE7 組織委員会*) (ポスター発表, 一般)</p> <p>37) Sayuri Ooiwa, Pangpang Wang, Jaehooh Lim, Kookheon Char, Koichi Okamoto, <u>Kaoru Tamada</u>, Local Surface Plasmon Field-Enhanced Fluorescence on Au Nanoparticle Sheet, M&BE7, 福岡国際会議場, 2013.3.17-19 (主催：M&BE7 組織委員会*) (ポスター発表, 一般)</p> <p>38) Eiji Usukura, Koichi Okamoto, <u>Kaoru Tamada</u>, Fluorescence Enhancement by 2D Nanoparticle Sheet, M&BE7, 福岡国際会議場, 2013.3.17-19 (主催：M&BE7 組織委員会*) (ポスター発表, 一般)</p> <p>39) 篠原修平, Wang Pangpang, Jaehooh Lim, Kookheon Char, 岡本晃一, <u>玉田薫</u>, 銀ナノ微粒子二次元シートによる蛍光増強, 2013 年応用物理学会春季学術講演会, 2013.3.27-30 (主催：応用物理学会) (口頭発表, 一般)</p> <p>40) Wang Pangpang, 岡本晃一, <u>玉田薫</u>, ナノリソグラフィーによる銀微粒子シートの局所酸化, 2013 年応用物理学会春季学術講演会, 2013.3.27-30 (主催：応用物理学会) (口頭発表, 一般)</p> <p>41) 臼倉英治, 岡本晃一, <u>玉田薫</u>, 銀ナノ微粒子 2 次元シートの電場増強効果を利用した蛍光増強基板, 2013 年応用物理学会春季学術講演会, 2013.3.27-30 (主催：応用物理学会) (口頭発表, 一般)</p> <p>42) 大岩さゆり, Wang Pangpang, Jaehooh Lim, Kookheon Char, 岡本晃一, <u>玉田薫</u>, 金微粒子ナノシートの局在表面プラズモン共鳴による蛍光増強, 2013 年応用物理学会春季学術講演会, 2013.3.27-30 (主催：応用物理学会) (口頭発表, 一般)</p> <p>43) 出川亮, Xinheng Li, 岡本晃一, <u>玉田薫</u>, 金属微粒子 2 次元結晶多層積層膜の光学特性, 2013 年応用物理学会春季学術講演会, 2013.3.27-30 (主催：応用物理学会) (ポスター発表, 一般)</p> <p>44) <u>K. Tamada</u>, Application of Multilayered Silver Particle 2D Crystalline Films, The 2013 International Symposium on Modern Optics and Its Applications (ISMOA2013), Bandung, Indonesia, June 26, 2013. (口頭、招待講演)</p>
--	---

<p>45) <u>K. Tamada</u>, Bio-application of Multidimensional Metallic Nanoparticle Sheet, ICMAT 2013, Singapore, July 4, 2013. (口頭、招待講演)</p> <p>46) <u>K. Tamada</u>, Dimensional Optical Property of Self-assembled Metallic Nanoparticles, IUPAC 9th International Conference on Novel Materials and their Synthesis (NMS-IX) & 23rd International Symposium on Fine Chemistry and Functional Polymers (FCFP-XXIII), Shanghai, China, October 18, 2013. (口頭、招待講演)</p> <p>47) <u>K. Tamada</u>, Bio-Application of Ag Nanoparticle 2D Sheet, Annual Meeting of the Physical Society of Republic of China, Taichung, Taiwan, Jan. 22, 2014. (口頭、招待講演)</p> <p>48) <u>玉田 薫</u>, 金属微粒子積層膜によるフルカラーコーティング, 学振 136 委員会「将来加工技術シンポジウムin九州」ヒルトン福岡シーホークス, 2014.3.3. (口頭、招待講演)</p> <p>49) Wang Pangpang, Patterning on a 2D crystal nano sheet composed of silver nano-particles using AFM local oxidation nano-lithography, 日本化学会第 94 春季年会, 名古屋大学, 2014.3.27-30 (口頭、招待講演)</p> <p>50) 大岩 さゆり, Wu Wenya, Chan Yinthai, 岡本 晃一, <u>玉田 薫</u>, Localized surface plasmon field-enhanced fluorescence on Au nanoparticle sheet, 第 21 回日本化学会九州支部・韓国化学会支部合同セミナー, 2013.6.13. (ポスター、一般講演)</p> <p>51) Pangpang Wang, Koichi Okamoto and <u>Kaoru Tamada</u>, Optical Properties of Silver Nanoparticle Monolayer with Patterns, 2013 JSAP-MRS Joint Symposia, Doshisha University, Kyoto, Japan, 2013.9.16-20. (口頭、一般講演)</p> <p>52) 白倉英治, 岡本晃一, <u>玉田薫</u>, 銀ナノ粒子 2 次元シートの電場増強効果を利用した蛍光増強基板, 第 74 回応用物理学会秋季学術講演会, 同志社大学, 2013.9.16-20. (口頭、一般講演)</p> <p>53) 白倉英治, 岡本晃一, <u>玉田薫</u>, 銀微粒子 2 次元シート基板の蛍光増強効果, 第 64 回コロイドおよび界面化学討論会, 名古屋工業大学, 2013.9.19. (口頭、一般講演)</p> <p>54) 白倉英治, 岡本晃一, <u>玉田薫</u>, 銀微粒子 2 次元シート基板を利用した蛍光顕微鏡観察, 2013 年真空・表面科学合同講演会(第 33 回表面科学学術講演会), つくば国際会議場, 2013.11.25. (口頭、一般講演)</p> <p>55) 出川亮, 朴 秀知, 坂井 伸行, 立間 徹, 岡本晃一, <u>玉田薫</u>, 金属微粒子多層積層膜を用いた非接触光触媒作用の評価, 2013 年真空・表面科学合同講演会(第 33 回表面科学学術講演会), つくば国際会議, 2013.11.25. (口頭、一般講演)</p> <p>56) 大岩さゆり, Wu Wenya, Chan Yinthai, 岡本晃一, <u>玉田薫</u>, 金属微粒子ナノシートにおける蛍光増強特性評価, 2013 年真空・表面科学合同講演会(第 33 回表面科学学術講演会), つくば国際会議, 2013.11.25. (口頭、一般講演)</p> <p>57) 出川亮, 朴秀知, 坂井伸行, 立間徹, 岡本晃一, <u>玉田薫</u>, 金属微粒子多層積層膜を用いた非接触光触媒作用の評価, 応用物理学会九州支部学術講演会—九州支部設立 60 周年記念大会, 長崎大学, 2013.11.30. (口頭、一般講演)</p> <p>58) 白倉英治, 柳瀬雄輝, 岡本晃一, <u>玉田薫</u>, 金属微粒子シートを用いた蛍光顕微鏡観察, 第 11 回プラズモニクス研究会, 広島大学, 2014.1.24. (口頭、一般講演)</p> <p>59) 田中大輔, 白倉英治, 大岩さゆり, 今津圭介, 岡本晃一, <u>玉田薫</u>, 金・銀ナノ粒子混合 LB 膜の局在プラズモン共鳴特性, 第 11 回プラズモニクス研究会, 広島大学, 2014.1.24. (口頭、一般講演)</p>

	<p>60) 篠原修平, 岡本晃一, <u>玉田薫</u>, 銀ナノ微粒子二次元シートによる蛍光増強, 第60回応用物理学会春季学術講演会, 神奈川工科大学, 2014.3.28. (口頭、一般講演)</p> <p>61) 田中大輔, 臼倉英治, 大岩さゆり, 今津圭介, 岡本晃一, <u>玉田薫</u>, 金・銀ナノ粒子混合LB膜の局在プラズモン共鳴特性, 第60回応用物理学会春季学術講演会, 神奈川工科大学, 2014.3.28. (口頭、一般講演)</p> <p>専門家向け 計 61 件</p> <p>62) <u>玉田薫</u>, ナノテクでつくる未来のエコ社会, 福岡市サイトピア, 2012.3.24, 福岡市西区主催市民公開講座 (一般向け)</p> <p>63) Method for Producing a full color thin film by metal nanoparticles, <u>Kaoru Tamada</u>, The 3rd INNOBIZ GLOBAL FORUM 2012, Daejeon, Korea, 2012.5.23-24 (主催:韓国INNOBIZ association) (口頭発表, 依頼講演)</p> <p>64) <u>玉田薫</u>, 金属微粒子によるフルカラーナノコーティング, 関西TLO技術講演会, 玉田薫, 2012.6.29, 京都 (主催: 関西TLO) (口頭発表, 依頼講演)</p> <p>65) <u>玉田薫</u>, 金属微粒子によるフルカラーナノコーティング, 第3回有機分子・バイオエレクトロニクスの未来を拓く若手研究者討論会, 岩手, 2012.8.23 (主催: 応用物理学会有機分子バイオエレクトロニクス分科会) (口頭発表, 依頼講演)</p> <p>66) <u>玉田薫</u>, 金属微粒子を使ったフルカラーコーティング, 九州大学新技術説明会, 東京, 2012.11.20 (主催: JST) (口頭発表, 依頼講演)</p> <p>67) <u>玉田薫</u>, プラズモニック結晶ナノアンテナ構造による革新的ナノバイオ計測, 九州大学口頭研究院, 若手研究者交流セミナー, 福岡, 2012.11.21 (主催: 九州大学) (口頭発表, 依頼講演)</p> <p>68) <u>玉田薫</u>, 金属微粒子を使ったフルカラーコーティング, 第5回新潟大学イノベーションサロンセミナー, 新潟大学ベンチャービジネスラボラトリー, 2014.11.22. (口頭発表, 依頼講演)</p> <p>一般向け 計 7 件</p>
<p>図書 計 8 件</p>	<p>1) <u>玉田薫</u>, 無限の可能性を信じる, <u>表面科学</u> 2011, 32, 8, 489-494.</p> <p>2) <u>玉田薫</u>, 表面新物質創製: 自己組織化による界面のデザイン: 有機膜形成, P139-161 (23 頁).</p> <p>3) <u>玉田薫</u>, Current Review 04: 新しい局面を迎えた界面の分子科学, 化学同人, 2011 年, 12 章「先端プラズモン計測と界面反応」 P137-143 (7 頁).</p> <p>4) <u>玉田薫</u>, 新材料・新素材シリーズ: フォトニックナノ構造の最近の進展, シーエムシー出版, 2011 年, 16 章「プラズモンセンサーの現状」 P255-267 (13 頁). Fabrication and application of plasmonic silver nanosheet,</p> <p>5) <u>K. Tamada</u>, Reviews in Plasmonics (edit. Chris D. Geddes), Vol.2010, 139-157, Springer, 2012. ISBN 978-1-4614-0884-0</p> <p>6) Gemini-SAMs, <u>K. Tamada</u>, Handbook of Biofunctional Surfaces (edit. W. Knoll), Pan Stanford publishing, Singapore, 2012. Print ISBN: 9789814316637/ eBook ISBN: 9789814364188 DOI: 10.4032/9789814364188</p> <p>7) 多元組織化と光機能, <u>玉田薫</u></p>

	<p>「プラズモンナノ材料開発の最前線と応用」(監修:山田淳, シーエムシー)2012. ISBN 978-4-7813-0693-3</p> <p>8) 表面プラズモンによる薄膜構造、組成評価: バイオ分野への応用, 玉田薫 「薄膜の評価技術ハンドブック」(監修: 吉田貞史/金原榮、テクノシステム) 2013. ISBN 9784924728677</p>
産業財産権 出願・取得状況 計1件	<p>(取得済み) 計0件</p> <p>(出願中) 計1件</p> <p>“Manufacturing of full-color nanosheets by metallic nanoparticles” 米国特許申請番号 (61/533903) 2011-09-13. 発明の名称: 金属ナノ粒子を用いた呈色膜および呈色方法</p> <ul style="list-style-type: none"> ・ 代表発明者 玉田薫 権利者 九州大学 ・ 出願番号: PCT/JP2012/073530 ・ 出願日: 2012/9/13 ・ 公開日: 2013/3/21 (公開番号: WO2013/039180)
Webページ (URL)	<p>http://www.cm.kyushu-u.ac.jp/ 本プログラムの紹介</p> <p>その他研究所のWebサイトトップページにて、研究成果掲載中 (金属微粒子によるフルカラーナノコーティング)</p>
国民との科学・技術対話の実施状況	<p>上記「一般向け講演」で記載の通り、市民公開講座、若手育成、産学連携技術交流会などに積極的に参加し、得られた専門知識の社会還元に努めた。</p>
新聞・一般雑誌等掲載 計1件	<p>「九大、プラズモン相互作用で金属微粒子によるフルカラーコーティングを実現」 (2012年4月20日 マイナビニュース)</p>
その他	<p>受賞・表彰等</p> <p>玉田薫, 公益社団法人 日本表面科学会 第4回フェロー表彰 「分子およびナノ材料の二次元組織化に関する研究」(2012.2.8)</p> <p>学生の受賞等</p> <ol style="list-style-type: none"> 1. Shuhei Shinohara, Pangpang Wang, Daisuke Tanaka, Jaehooh Lim, Kookheon Char, Koichi Okamoto, Kaoru Tamada, Fluorescence Enhancement Produced by Ag Nanoparticle 2D Sheets, M&BE7, 福岡国際会議場 (主催: M&BE7 組織委員会) ポスター賞 (2013.3.19) 2. 大岩さゆり, 第21回日本化学会九州支部・韓国化学会支部合同セミナー 「Localized surface plasmon field-enhanced fluorescence on Au nanoparticle sheet」ポスター賞 (2013.6.13) 3. 出川亮, 応用物理学会九州支部学術講演会—九州支部設立60周年記念大会— 「金属微粒子多層積層膜を用いた非接触光触媒作用の評価」発表奨励賞 (2013.11.30)

7. その他特記事項 なし