1. 学歴

1970年3月31日 東京教育大学理学部物理学科卒業

1970年4月 1日 東京教育大学大学院理学研究科修士課程入学物理学専攻

1972年3月31日 東京教育大学大学院理学研究科修士課程修了(理学修士)

1972年4月 1日 東京教育大学大学院理学研究科博士課程入学物理学専攻

1975年3月31日 東京教育大学大学院理学研究科博士課程修了(理学博士)

2. 職歷

1975年4月 1日 日本学術振興会奨励研究員

1976年2月 1日 東京工業大学工学部有機材料工学科助手

1979年4月 1日 米国ウイスコンシン大学化学科客員研究員

1981年3月31日 東京工業大学工学部有機材料工学科助手復職

1986年4月 1日 東京工業大学工学部有機材料工学科助教授

1991年5月 1日 東京工業大学工学部有機材料工学科教授

1999年4月 1日 東京工業大学大学院理工学研究科有機・高分子物質教授

2013年3月31日 定年退職 名誉教授

2015年4月 1日 公益財団法人 豊田理化学研究所 客員フェロー

3. 個人情報

学会活動等

1994年4月~1996年3月 応用物理学会常務理事

1996年4月~2002年3月 応用物理学会評議員

1994年4月~1996年3月 応用物理学会有機分子バイオエレクトロニクス分科会副幹事長

1994年4月~1996年3月 応用物理学会有機分子バイオエレクトロニクス分科会誌編集委員長

1993年1月~1996年12月 Liq. Cryst. Editorial Board

1994年4月~1999年3月 Jpn. J. Appl. Phys. 編集委員

1994年4月~1995年3月 固体物理 誌友

1995年1月~1998年1月 文部省学術審議会専門委員

1996年4月~1997年3月 光技術動向調查委員会 第3分科会副主查

1997年4月~1999年3月 応用物理学会有機分子バイオエレクトロニクス分科会幹事長

1997年10月~1999年12月 日本液晶学会理事、学会誌編集委員長

1999-2002 国際液晶学会理事

 2004年
 日本液晶学会理事、副会長

 2005年~2007年
 日本液晶学会理事、会長

表彰

1990 年 9 月 応用物理学会賞 反強誘電性液晶の発見「Antiferroelectric Chiral Smectic Phases Responsible for the Tristable Switching in MHPOBC」Jpn. J. Appl. Phys. 28 (1989) L1265

2000年10月 液晶学会 業績賞「液晶物性に関する広範な研究とその展開」

2007年8月 応用物理学会フェロー表彰「液晶物性の基礎科学と応用に関する研究」

2007 年 9 月 応用物理学会論文賞「Bent-Core Liquid Crystals: Their Mysterious and

Attractive World Jpn. J. Appl. Phys. 45 (2A), 2006, pp.597-625.

2018年4月 文部科学大臣表彰「バナナ形液晶の研究 -液晶科学の新分野創生-」

2012 年 8 月 国際液晶学会名誉会員

2012 年 9 月 液晶学会功績賞「強誘電性・反強誘電性液晶及びバナナ型液晶の分子科学並びに日本液晶

学会等関連学会に対する貢献」

2013年6月 フンボルト研究賞

客員教授

2006 年 7 月~ (1 か月) スロベニア・ Jozef Stefan 研究所

2009年3月~(3か月) ベルギー・ルーバンカトリック大学化学科

2011 年 3 月~ (4 か月) スロベニア・Jozef Stefan 研究所

2012 年 7 月~ (3 か月) ポーランド・ワルシャワ大学化学科

2013 年 5 月~(1 年間) ドイツ・ Otto-von-Guericke 大学マクデブルク物理学科

2015年2月~(2か月) ドイツ・シュツッツガルト大学化学科

2. 研究成果

液晶以外

(1) イオン結晶の光物性

おもにアルカリハライド中の色中心の光物性研究を行った。Ag-, Au-のイオン対の欠陥構造の電子状態を励起緩和状態を含めて明らかにした。また、それらの磁場効果について実験を行い、考察した。

(2) ポリアセチレンの光物性

ポリアセチレンを合成し、特に不純物濃度に最新の周囲を払って試料作製し、暗伝導、光伝導スペクトル、反射スペクトル、発光スペクトル、ラマン散乱スペクトルなどの光物性手法によって研究した。特に、エネルギー端のエキシトン状態について詳細に検討し、シスポリアセチレンや他のトランスポリエン同様、トランスポリアセチレンも電子一電子クーロン相互作用が重要な役割を果たしていうことを明らかにした。

や、有機非線形光学材料、電気四重極子や磁気双極子に基づく非線形光学効果の観察と解析、有機発光ダイオード、有機トランジスタ

(3) 非線形光学分光

非線形光学の手法を用いて、有機物LB膜やスピンコート膜の極性構造を研究した。SHGスペクトルを測定することによる、双極子遷移由来の共鳴増強ばかりでなく、中心対称性を有する物質においても電気四重極子や磁気双極子に基づく共鳴増強が確認できた。これにより、双極子遷移禁制の励起状態の情報が得られることを可能にした。この手法をフタロシアニン膜やポリマーの電子構造の解析に役立てることに成功した。

(4) 有機トランジスタ

フタロシアニンをはじめとする多くの化合物を真空蒸着や分子線エピタキシーで薄膜作成し、薄膜トランジスタを構築した。特に分子配向に注目し、移動度などに与える影響を調べた。また、TTF やオリゴチオフェンの溶媒プロセスによる製膜も行いトランジスタ性能を調べた。

(5) 有機発光ダイオード

光取り出し効率の観点から有機発光ダイオードの研究を行った。特に大きな業績はバックリング 構造上にデバイスを作製することで、外部取り出し効率を 2 倍以上に増加させることができることを 示したことである。あらゆる方向に膜内を導波する光をある波長域にわたり、回折により外部に取り 出すことを可能にしたものである。これはあらゆる方向にある幅を持った周期構造を作ることに成功 したことに由来する。Nature Photonics に論文掲載された。

液晶関連

(6) 強制レーリー、弾性、準弾性光散乱法を用いた液晶の粘弾性係数、拡散定数測定

液晶の粘性係数、弾性係数は液晶ディスプレイなどの応用にとって非常に重要なパラメータであるが、異方性を有する液晶のこれら全ての係数を決定することは容易ではない。我々は非接触かつ非摂動状態でこれらの合計9つの全ての係数を決定するために、光散乱手法を用いたシステ

ムを構築し、系統的な測定を行った。強制レイリー散乱は通常の方法では測定が困難なツイスト弾性係数測定に応用する一方で、拡散定数の異方性を多くの液晶相で測定し新たな知見を得た。

(7) コレステリック液晶の光学物性、及びそれを利用したレーザー発振

らせん構造を有するコレステリック液晶はその周期性による円偏光選択的な選択反射を示す。 我々はらせん軸に対する斜入射の際に起こる全反射帯の存在を実験的に発見し、シミュレーションによって、分散関係を明らかにし、反射光の楕円偏光解析を行った。この時の研究は最近のコレステリック液晶を用いた色素レーザーの開発につながった。この分野でも全可視光域チューニング可能なレーザー、赤緑青色同時レーザー発振など多くの業績をあげた。コレステリック複合膜を用いた構造によって、光学ダイオード、白色リフレクターなど新しいデバイスを作製した。これらの成果は Nature Materials に掲載された。

(8) 液晶の配向制御法の開発と光第二高調波発生法(SHG)などを用いた配向評価

光配向制御法など新しい液晶配向法を開発した。また、SHG などを用いて配向膜、その上の液晶膜の配向を評価した。特に、最大エントロピー法を導入することによって、これまで任意性の大きかった配向評価の精度を高めることに成功した。SHG 法は液晶以外の有機蒸着薄膜、LB 膜の分子配向評価にも応用した。

(9) 強誘電性液晶の構造と物性

強誘電性液晶の発見以後、いち早く研究に着手し、多くの成果を上げた。特に我々の開発した 三角波を用いた自発分極測定法は標準的な方法になっている。表面安定化強誘電性液晶による デバイス提案がなされてからは強誘電性液晶薄膜の研究にも取り組んだ。この中で、さまざまな分 子配列構造や欠陥構造の解析は重要な成果である。

(10) 反強誘電性液晶とその副次相の構造と物性

強誘電性液晶研究の過程で反強誘電性液晶相を発見した。また、3 層周期、4 層周期の副次相を発見し、さまざまな光学測定実験に基づき構造を提案した。その後の、共鳴 X 線回折実験や理論解析によって、当初の我々のモデルの正当性は確認されている。基礎物性はもちろん、ディスプレイをはじめとする様々な応用研究を行った。

(11)屈曲形液晶の極性とキラリティ

棒状や円盤状ではない屈曲形の液晶分子が示す極性やキラリティ由来の多くの現象を発見した。特に、非キラル分子のスメクチック層へのパッキングに由来する初めての強誘電性、非キラル分子が形成する自然分掌は多くの研究者の興味を引くところとなり、液晶の重要な研究分野の一つになった。最初の論文は約1000回の引用がある。キラルシステムへの非キラル屈曲型分子の添加によるキラリティの増強、キラルドメインの偏りの制御、キラル非線形光学効果、棒状液晶との混合による局所的相分離のもたらす新現象、特異な電気流動現象、屈曲型分子添加によるブルー相の安定化、特異な相転移現象など研究は多岐にわたる。現在、この分野の本の執筆を行っている。

(12)極性カラムナー液晶の開発

他の合成化学者との共同研究により極性カラムナー液晶系の構築を目指してきた。これまで電場によるスイッチング可能ないくつかの液晶系を見出した。これらはカラム軸方向に分極を発生させるだけではなく、電場によるカラムの配向も可能である。これらは電場を切ると非極性に緩和するが、

最近、電場を切っても極性が残り、しかも、分極の反転が可能な真の強誘電性カラムナー液晶を 見出し Science 誌に論文を発表した。

<u>4. 論文リスト</u>

主な論文, 著作物等 (データは 2015 年 3 月 17 日現在)

原著論文:640報

総引用件数:約17,000回

h-index: 57

その他:解説、書籍(単独、共著、chapter)多数

[代表的な原著論文]

 Direct Method with Triangular Waves for Measuring Spontaneous Polarization in Ferroelectric Liquid Crystals

(自発分極測定のための三角波法の提案:引用件数 296)

- K. Miyasato, S. Abe, H. Takezoe, A. Fukuda and E. Kuze, Jpn. J. Appl. Phys. 22 (1983) L661-L663
- 2. Antiferroelectric Chiral Smectic Phases Responsible for the Tristable Switching in MHPOBC (反強誘電性液晶の発見:引用件数 591)
 - A. D. L. Chandani, E. Gorecka, Y. Ouchi, H. Takezoe and A. Fukuda, Jpn. J. Appl. Phys. 28 (1989) L1265-L1268
- 3. Distinct Ferroelectreic Smectic Liquid Crystals Consisting of Banana Shaped Achiral Molecules (屈曲形液晶における極性スイッチングの発見:引用件数 995)
 - T. Niori, T. Sekine, J. Watanabe, T. Furukawa and H. Takezoe, J. Mat. Chem. 6 (1996) 1231-1233.
- 4. Polarization-Modulated Smectic Liquid Crystal Phases

(B7 相の構造決定:引用件数 204)

- D. A. Coleman, J. Fernsler, N. Chattham, M. Nakata, Y. Takanishi, E. Korblova, D. R. Link, R.-F. Shao, W. G. Jang, J. E. Maclennan, O. Mondainn-Monval, C. Boyer, W. Weissflog, G. Pelzl, L.-C. Chien, J. Zasadzinski, J. Watanabe, D. M. Walba, H. Takezoe, and N. A. Clark, Science **301** (2003) 1204-1211.
- Electro-Tunable Optical Diode using an Anisotropic Layer Sandwiched by Hetero-Photonic Bandgap Cholesteric Liquid Crystal Films

(新規光ダイオードの発見:引用件数 143)

- J. Hwang, M. H. Song, B. Park, S. Nishimura, T. Toyooka, J. W. Wu, Y. Takanishi, K. Ishikawa and H. Takezoe, Nature Materials **4** (2005) 383-387.
- 6. Bent-core Liquid Crystals: Their Mysterious and Attractive World

(屈曲形液晶の招待解説論文:引用件数 450)

- H. Takezoe and Y. Takanishi, Jpn. J. Appl. Phys. 45 (2006) 597-625.
- 7. Fabrication of a simultaneous red-green-blue reflector using single-pitched cholesteric liquid crystals

(単一ピッチコレステリック液晶を用いた白色光反射板:引用件数90)

N. Y. Ha, Y. Ohtsuka, S. M. Jeong, S. Nishimura, G. Suzaki, Y. Takanishi, K. Ishikawa and H.

Takezoe,

Nature Mater. 7 (2008) 43-47.

8. Antiferroelectric liquid crystals -interplay of simplicity and complixity -

(反強誘電相、副次相の招待解説論文:引用件数 56)

- H. Takezoe, E. Gorecka, and M. Cepic, Rev. Mod. Phys. 82 (2010) 82 (2010) 897-937.
- 9. Light extraction from organic light emitting diodes enhanced by spontaneously formed buckles

(光 LED の光取り出し効率の提案と実証:引用件数 149)

- W. H. Koo, S. M. Jeong, F. Araoka, K. Ishikawa, S. Nishimura, T. Toyooka, H. Takezoe, Nature Photon. 4 (2010) 222-225.
- 10. Ferroelectric Columnar Liquid Crystal Featuring Confined Polar Groups within Core-Shell Architecture

(カラムナー強誘電性液晶の発見:引用件数27)

- D. Miyajima, F. Araoka, H. Takezoe, J. Kim. K. Kato, M. Takata, and T. Aida, Science **336** (2012) 209-213.
- 11. Optical Driven Translational and Rotational Motions of Microrod Particles in a Nematic Liquid Crystal

(液晶中のマイクロロッドの光駆動運動:引用件数 0)

- A. Eremin, P. Hirankittiwong, N. Chattham, H. Nadashi, R. Stannarius, J. Limtrakul,
- O. Haba, K. Yonetake, A. Eremin, and H. Takezoe

Proc. Nat. Accad. Sci. 112 (2015) 1716-1720.

[最近の主要な原著論文(2012~)]

- Viscoelasticity of Ambient-temperature Nematic Binary Mixtures of Bent-core and Rodlike Molecules
 - P. Sathyanarayana, V. S. R. Jampani, M. Skarabot, I. Musevic, K. V. Le, H. Takezoe, and S. Dhara
 - Phys. Rev. E 85 (2012) 011702-1-9.
- 2) Transition between Widened BPs by Light Irradiation Using Photo-active Bent-core Liquid Crystal with Chiral Dopant
 - H.-C. Jeong, K. V. Le, M.-J. Gim, S.-T. Hur, S.-W. Choi, F. Araoka, K. Ishikawa, and H. Takezoe
 - J. Mater. Chem. 22 (2012) 4627-4630.
- 3) Interplay between Polarity and Chirality in the Electric-field-responsive Columnar Phase of a Dipeptide Derivative
 - N. Koizumi, G. Shanker, F. Araoka, K. Ishikawa, C. V. Yelamaggad, and H. Takezoe NPG Asia Mater. **4** (2012) e11-1-7.
- 4) Ferroelectric Columnar Liquid Crystal Featuring Confined Polar Groups within Core-Shell Architecture
 - D. Miyajima, F. Araoka, H. Takezoe, J. Kim. K. Kato, M. Takata, and T. Aida Science **336** (2012) 209-213.

- 5) Pattern-stabilized "Decorated" Polar Liquid Crystal Fibers
 A. Eremin, U. Kornek, S. Stern, R. Stannarius, F. Araoka, H. Takezoe, H. Nadashi, W. Weissflog, and A. Jakli
 Phys. Rev. Lett. 109 (2012) 017801-1-5.
- 6) Critical Behavior in Electric-field-induced Anchoring Transition in a Liquid Crystal S. Aya, K. V. Le, Y. Sasaki, F. Araoka, K. Ishikawa, and H. Takezoe Phys. Rev. E **86** (2012) 0107012(R) 1-4.
- Photoisomerization-induced Stable Liquid Crystalline Cubic Blue Phase M.-J. Gim, S.-T. Hur, K.-W. Park, M. Lee, S.-W. Choi, and H. Takezoe Chem. Commun. 48 (2012) 9968-9970.
- 8) High-resolution Calorimetric study of Phase Transitions in Chiral Smectic-C Liquid Crystalline Phases
 - Y. Sasaki, K. V. Le, S. Aya, M. Isobe, H. Yao, C. C. Huang, H. Takezoe, and K. Ema Phys. Rev. E **86** (2012) 061704 (5 pages).
- Alignment of Liquid Crystals Using a Molecular Layer with Patterned Molecular Density
 - J.-H. Son, W.-C. Zin, H. Takezoe, and J.-K. Song
 - Adv. Mater. **24** (2012) 6105-6110.
- 10) Amplification of the Stereochemistry of Biomolecular Adsorbates by Deracemization of Chiral Domains in Bent-core Liquid Crystals
 - G. Lee, R. J. Carlton, F. Araoka, N. L. Abbott, and H. Takezoe Adv. Mater. **25** (2013) 245-249.
- Multiple Nematic Phases Observed in Chiral Mesogenic Dimers
 A. Zep, S. Aya, K. Aihara, K. Ema, D. Pociecha, K. Madrak, P. Bernatowicz, H. Takezoe, and E. Gorecka
 - J. Mater. Chem. C 1 (2013) 46-49.
- 12) Laser-driven Microflow-induced Bistable Orientation of a Nematic Liquid Crystal in Perfluoropolymer-treated Unrubbed Cells
 - V. S. R. Jampani, M. Skarabot, H. Takezoe, I. Musevic, and S. Dhara Opt. Exp., 21 (2013) 724-729.
- Highly-ordered Helical Nanofilament Assembly Aligned by Nematic Director Field F. Araoka, G. Sugiyama, K. Ishikawa, and H. Takezoe Adv. Func. Mater. 23 (2013) 2701-2707..
- 14) Unusual Temperature Dependence of Smectic Layer Structure Associated with the Nematic-Smectic C Phase Transition in a Hockey-stick-shaped Four-ring Compound L. Chakraborty, N. Chakraborty, D. Debnath Sarkar, N. V. S. Rao, S. Aya, K. V. Le, F. Araoka, K. Ishikawa, D. Pociecha, E. Gorecka, and H. Takezoe J. Mater. Chem. C, 1 (2013) 1562-1566.
- Evolution of the Discontinuous Anchoring Transition under an Electric FieldS. Aya, F. Araoka, K. Ishikawa, and H. Takezoe

- Phys. Rev. E, **87** (2013) 012507-1-5.
- 16) Critical Anomalies in Thermal Diffusivity of Liquid Crystalline Terephthal-bis-(4-n-butylaniline)
 - J. Morikawa, A. Kishi, Y. Shinoda, T. Hashimoto, K. Ema, and H. Takezoe Phys. Rev. E, **87** (2013) 022501-1-5.
- 17) Are Chiral Dopants with Higher Twisting Power Advantageous to Induce Wider Temperature Range of the Blue Phases?
 - H.-C. Jeong, S. Aya, S. Kang, F. Araoka, K. Ishikawa, and H. Takezoe Liq. Cryst. 40 (2013) 951-958.
- 18) High-optical-quality Ferroelectric Film Wet-processed from a Ferroelectric Columnar Liquid Crystal as Observed with Nonlinear-optical Mmicroscopy
 - F. Araoka, S. Masuko, A. Kogure, D. Miyajima, T. Aida, and H. Takezoe Adv. Mater. **30** (2013) 4014-4017.
- 19) General Method for Enantioselectively Producing Helical Nanofilament T. Ueda, S. Masuko, F. Araoka, K. Ishikawa, and H. Takezoe Angew. Chem. Int. Ed. 52 (2013) 6863-6866.
- 20) Photo-induced Ordering Transition in Microdroplets of Liquid Crystals with Azo-dendrimer
 - G. Lee, F. Araoka, K. Ishikawa, Y. Momoi, O. Haba, K. Yonetake, and H. Takezoe Part. Part. Syst. Charact. **30** (2013) 847-852.
- 21) Novel Bistable Device Using Anchoring Transition and Command Surface
 - T. Ikeda, S. Aya, F. Araoka, K. Ishikawa, O. Haba, K. Yonetake, Y. Momoi, and H. Takezoe
 - Appl. Phys. Express, 6 (2013) 061701-1-3.
- 22) Labyrinthin Instability in Freely Suspended Films of a Polarization-dodulated Smectic Phase
 - A. Eremin, U. Kornek, R. Stannarius, W. Weissflog, H. Nadashi, F. Araoka, and H. Takezoe
 - Phys. Rev. E 88 (2013) 062512-1-8.
- 23) Columnar Liquid Crystal as a Unique Ferroelectric Liquid Crystal
 - F. Araoka and H. Takezoe
 - Jpn. J. Appl. Phys. **53** (2014) 01AA01-1-6.
- 24) Polar Columnar Liquid Crystals
 - H. Takezoe and F. Araoka
 - Liq. Cryst. **41** (2014) 393-401.
- 25) Discontinuous Thermal Diffusivity Change due to the Anchoring Transition of a Liquid Crystal on a Perfluoropolymer Surface
 - M. Uehara, S. Aya, F. Araoka, K. Ishikawa, H. Takezoe, and J. Morikawa Chem. Phys. Chem. **15** (2014) 1452-1456.
- 26) Highly Elastic Liquid Crystal with Bend Elastic Constant of Sub-nN Mediated by the

Resident Molecular Assemblies

S. Aya, H. Obara, D. Pochiecha, F. Araoka, K. Okano, K. Ishikawa, E. Gorecka, T. Yamashita, and H. Takezoe

Adv. Mater. **26** (2014) 1918-1922.

27) Historical Overview of Polar Liquid Crystals

H. Takezoe

Ferroelectrics, 468 (2014) 1-17...

- 28) Stepwise Heat Capacity Change Associated with an Orientation Transition in Liquid Crystals
 - S. Aya, Y. Sasaki, D. Pociecha, F. Araoka, E. Gorecka, K. Ema, I. Musevic, H. Orihara, K. Ishikawa, and H. Takezoe

Phys. Rev. E 89 (2014) 022512-1-5.

- 29) Stable Electro-optic Response in Wide-temperature Blue Phases Realized in Chiral Asymmetric Bent Dimers (Invited paper)
 - S. Aya, A. Zep, K. Aihara, K. Ema, D. Pociecha, E. Gorecka, F. Araoka, K. Ishikawa, and H. Takezoe
 - Opt. Mater. Exp. 4 (2014) 662-671.
- 30) Local Orientational Analysis of Helical Filaments and Nematic Director in a Nano-scale Separated Phase Composed of Rod-like and Bend-core Liquid Crystals using Small- and Wide-angle X-ray Microbeam Scattering
 - Y. Takanishi, H. Yao, T. Fujisawa, K. Ema, Y. Ohtsuka, Y. Takahashi, J. Yamamoto, H. Takezoe, and A. Iida
 - J. Phys. Chem. B 118 (2014) 3998-4004.
- 31) Optical Manipulation of the Nematic Director Field around Microspheres covered with an Azo-dendrimer Monolayer
 - P. Hirankittiwong, N. Chattham, J. Limtrakul, O. Haba, K. Yonetake, A. Eremin, R. Stannarius, and H. Takezoe
 - Opt. Exp. 22 (2014) 20087-20093.
- 32) Structure-sensitive Bend Elastic Constants between Piconewton and Sub-nanonewton in Diphenylacetylene-core-based Liquid Crystals
 - S. Aya, S. Ogino, Y. Hayashi, K. Okano, D. Pociecha, K. V. Le, F. Araoka, S. Kawauchi, E. Gorecka, N. Vaupotic, H. Takezoe, and K. Ishikawa

Phys. Rev. E **90** (2014) 042506-1-6.

- 33) Photoresponsive Stripe Pattern in Achiral Azobenzene Liquid Crystals
 - K. Okano, S. Aya, F. Araoka, H. Obara, S. Sato, T. Yamashita, H. Takezoe, and K. Asakura
 - Chem. Phys. Chem., 16 (2015) 95-98.
- 34) Optical Driven Translational and Rotational Motions of Microrod Particles in a Nematic Liquid Crystal
 - A. Eremin, P. Hirankittiwong, N. Chattham, H. Nadashi, R. Stannarius, J. Limtrakul,

O. Haba, K. Yonetake, A. Eremin, and H. Takezoe Proc. Nat. Accad. Sci. 112 (2015) 1716-1720.

[代表的な著作物]

強誘電性液晶の構造と物性(福田敦夫と共著)、コロナ社、1990 液晶のつくる世界 一画像をかえた素材ー、 ポプラ社、1995 液晶のしくみがわかる本(高西陽一、宮地弘一と共著)、 技術評論社、1999 液晶・高分子入門(渡辺順次と共著)、裳華房、2004