

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 4 年 6 月 21 日現在

機関番号：32410

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2019～2021

課題番号：19K05155

研究課題名(和文) 高活性・高耐久化メタン脱水素芳香族化触媒のための二元活性種複合制御

研究課題名(英文) Development of bifunctional activity for highly active and durable catalysts for methane dehydroaromatization

研究代表者

有谷 博文(Aritani, Hirofumi)

埼玉工業大学・工学部・教授

研究者番号：40303929

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：メタン脱水素芳香族化触媒の高活性・高耐久化を目指した二元活性種複合制御として、H-MFI上のMoへのV共修飾による炭化物活性種の高活性化、並びにH-MFI上の強酸点に起因する炭素析出の抑制としてGa格子置換による部分メタロシリケート化MFI担体を導入した。その結果、修飾MoへのV共修飾(Mo/V=10-40)はMo炭化物活性種の相形成を抑制した過炭化状態を形成し失活抑制効果を示すこと、およびH-MFI担体への部分Ga骨格置換(Al/Ga=100)は炭素析出効果を示したことから、これらの協奏的效果により失活抑制されたメタン脱水素芳香族化触媒の高活性・高耐久化に寄与することが明らかとなった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

天然ガスからの直接資源化プロセスの高活性化・高耐久化は、近年とくに問題が顕在化する石油枯渇と価格高騰に対する技術的問題解決のみならず、LNG資源化とそこで要求されるエネルギー低減に極めて有効であることが強調される。本研究で目指す、Mo/H-MFI触媒の実用化までの難関と位置づけられる課題の克服は、化学的安定なメタンの高転化と、ベンゼン等への直接転換プロセスで不可避となっている炭素析出による触媒失活の抑制を同時に克服する目的であることから、本研究が今後の実用化への促進に直結することが期待できる。同時に、炭素析出と並行したMo活性種の活性低下要因の検討が失活抑制の具体策となることも期待される。

研究成果の概要(英文)：For highly active Mo/H-MFI based catalysts with durable activity for methane dehydroaromatization, catalyst improvements were made in two categories: partial Ga introduction into the H-MFI (GaAl-MFI metallosilicates) and V co-modification into Mo on MFI-based supports. Their purpose is to prevent degradation of active Mo species, and prevent carbon deposition on strong acid sites of the H-MFI at the same time. As a result, trace V co-modification to Mo (Mo/V=10-40) was effective in suppressing the deterioration of MTB activity. It was concluded by Mo L-edge XANES study that the V co-modification effect contributed to the formation of over-carbonized Mo species with highly active one. On the other hand, partial Ga introduction (Al/Ga=100) on the H-MFI showed an inhibitory effect of carbon precipitation. From these results, it was concluded that these effects contribute to the bifunctional activity, i.e., high activity and durability of the methane dehydroaromatization catalysts.

研究分野：触媒化学

キーワード：メタン脱水素芳香族化 Mo/H-MFI触媒 炭化モリブデン活性種 Mo L殻XANES

### 1. 研究開始当初の背景

天然ガス (LNG) はメタンを主成分とするが、エネルギー資源と化学原料資源という両面がある一方で、その大部分が燃料用途に使われている現状である。とくに近年の火力発電における石炭から LNG への転換が目覚ましく、その需要の高まりとともに資源としての LNG 価格も高騰傾向にある。すなわち現状では天然ガスは化学的資源としてはほぼ利用されず、専ら C<sub>2</sub> 以上の石油資源が使われていると言える。しかし石油資源の枯渇が将来的観点より危惧される中、可採埋蔵量の豊富な天然ガスの化学的資源としての利用の重要性は現在の大きな課題である。しかし、メタンは化学的に極めて安定であることから穏和な反応プロセスでの化学的転換が容易でなく、また常温常圧での液化運搬や他の有用な材料への転化・材料としての利用も熱力学的に極めて困難である。

一方、天然ガスを有用な各種化学原料等へと転化するプロセスは一般に Gas To Liquid (GTL) プロセスと総称され、いわゆる GTX(メタン資源化)プロセスの主要な一つに位置づけられる。GTX プロセスには大きく二通りあり、メタン選択酸化により合成ガス(CO+H<sub>2</sub>)を経由して目的物を生成する間接 GTL と、メタン原料を直接的に目的物へと転化させる直接 GTL に大別される。現状、GTL の大半が合成ガスを經由する間接 GTL であるが、一度他の中間体を經由するため熱的エネルギーを主とするエネルギーロスが大きいことから、産業・経済的に効率的といえない。そこで、中間化合物を経由しない直接 GTL プロセスの開発が近年盛んに研究されてきた。

その中でも、メタンを直接的にベンゼン等の芳香族炭化水素種へ高選択的に転化する脱水素芳香族化プロセス (MTB : Methane To Benzene) は、メタン以外の第二成分を直接必要とせず、加えて H-MFI 型ゼオライトを基材とする触媒に 700~800°C 程度の加熱条件のみで高活性な触媒反応であることから、簡便かつ産業性に富む画期的な触媒プロセスとして特に注目されているものであり、日本国でも実用化試験が 2008 年前後のパイロットプラント試験稼動開始などで始まった現状でもある。よって石油系資源の価格高騰に起因する今後の期待も含め、現状での GTL プロセスに既知の高活性化・高耐久化への課題を克服することが急務と位置づけられる。

### 2. 研究の目的

先述の LNG 主成分であるメタンを資源化することを目的として、直接 GTL プロセスとして画期的な反応にメタン脱水素芳香族化がある。本反応ではメタンを直接的に石油資源であるベンゼンなどに転換できるのみならず、合成ガスを經由しない高いエネルギー効率にも特長がある。その代表的触媒として Mo 修飾 H-MFI 型ゼオライト (Mo/H-MFI) があり、他に高活性を示す触媒系に乏しいことから本研究の中心として位置づけられる。

本触媒はいわゆる二元機能触媒として説明され、メタンの脱水素過程に働く Mo<sub>2</sub>C などの炭化物種、そこで生成されるメチリデンなどからの芳香族化を H-MFI 上の強い酸点が寄与する・その際に H-MFI 細孔径の適切なサイズが高い芳香族選択性の要因となっているが、いわゆる外表面でも反応が進行するためナフタレン等も低選択率ながら生成する。概要として、MTB 反応機構の概要は図 1 に示す過程で説明される。その特徴として、反応初期段階では高いベンゼン収率と選択率を示すが、反応の進行とともに脱水素側への平衡によってコーキング(炭素析出)が避けられず触媒活性の低下が引き起こされる。一方、H-MFI の Si/Al<sub>2</sub> 組成比、およびこの担体上に修飾する Mo 種の固定化方法によりベンゼンへの転化活性が著しく変化することが先行研究からも明らかである。さらに、経時失活を引き起こす H-MFI 上の強い酸点の酸強度を適度に抑制することが本触媒の失活抑制に対する大きなカギとなり、これまでも有機シランなどによる被覆処理などが研究されてきた。しかしながら強酸点の被覆のないし中和的抑制は急激なメタン転化率の低下をもたらす高活性化への寄与につながらないことから、酸点の酸強度をわずかに抑制しつつ酸量を保持することが要求される。従って、MFI ゼオライトへの表面処理的手法ではなく格子内部への第三成分微量転化による部分的置換によってその酸強度制御を施すことが一つの有効な方法であると位置づけられる。さらに、MFI 担体上に担持する Mo 種はメタンからの脱水素過程の第一段階を制御し、脱水素後のメチリデン種等での中間体安定化のために必須である。この活性種は一般に炭化モリブデン(Mo<sub>2</sub>C)種であるとされているが、結晶性炭化物種ではその活性が顕著に低下することを先の研究で明らかにした。

これらの背景をもとに、本研究では MTB 用 Mo/H-MFI 触媒の高活性化・高耐久価のため、以下の二つの観点から検討した。第一に MFI ゼオライト細孔内活性点としての酸強度の制御、および第二に細孔内外に修飾するモリブデン活性種の高活性化条件を検討しその炭化物活性種の検討と失活抑制条件について、それぞれ MTB 活性の評価と、構造解析並びに失活主要因となる析出炭素

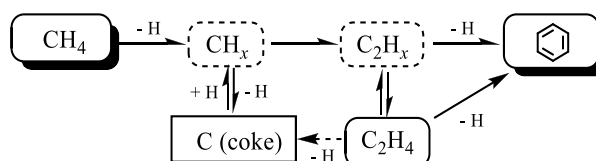


図 1 CH<sub>4</sub>脱水素芳香族化の推定反応経路

量評価の双方から検討を加えた。

### 3. 研究の方法

本研究では、触媒調製・活性評価・キャラクタリゼーション（触媒の活性構造解析）の3区分を段階的かつ並行的に進行させた。まず基盤的触媒としてのMo/H-MFIの調製は、H-MFIのSi/Al<sub>2</sub>組成比28~72の各H-MFI担体を、図2に示す手順にて水熱合成法により調製し担体として用いた。またGa含有メタロシリケートは前駆体にさらに当量のAl/Ga比となるGa(NO<sub>3</sub>)<sub>3</sub>を原料に加え、同様に水熱合成した。この得られたH-MFIないしH-GaMFI（メタロシリケート：MFI骨格内にGaAl共含有）にMoO<sub>2</sub>(C<sub>5</sub>H<sub>7</sub>O<sub>2</sub>)<sub>2</sub>のCHCl<sub>3</sub>溶液にて非水含浸（後乾燥、500°C3h焼成してMo修飾（全触媒ともMoO<sub>3</sub>として5.0wt%）触媒試料を得た。さらに、Mo-V共修飾触媒については含浸溶液に当量のVO(C<sub>5</sub>H<sub>7</sub>O<sub>2</sub>)<sub>3</sub>を添加し同様に含浸修飾した。メタン脱水素芳香族化活性の評価は、固定床流通型反応装置において石英反応管に各試料と石英粒（各0.250g）を充填し、前処理時・反応時いずれも流速を全30 mL/min、SV = 14400 mL h<sup>-1</sup> (g-cat)<sup>-1</sup>として750°CにてHe+CO(2%)による還元前処理後、CH<sub>4</sub>(20%)+HeまたはこれにH<sub>2</sub>(0-2%)添加した反応ガスにて750°Cにおける活性を検討した。生成ガスはTCDおよびFIDの二台のGCを用いてオンライン分析を行い活性の評価に用いた。反応後の試料に析出した炭素量の評価には、TG (Rigaku TG 8120)を用いた。さらに、Mo/H-MFI触媒の構造解析にはXRD (Rigaku RINT 2300)およびMoのL<sub>3</sub>殻XANES (分子科学研究所極端紫外光実験施設[UVSOR-IMS] BL2Aにて全電子収量法(TEY)により測定した。その解析にはREX2000 (Rigaku)ソフトウェアを用いた。

### 4. 研究成果

#### (1) メタン脱水素芳香族化の高活性化・高耐久化

まず、H-MFIのシリカアルミナ組成に対するMo(5.0wt%)修飾触媒のメタン脱水素芳香族化(MTB: Methane To Benzene)活性を検討した。CH<sub>4</sub>に対しH<sub>2</sub>(1%、CH<sub>4</sub>/H<sub>2</sub>=20)共存によって経時失活抑制させた場合の反応経時変化(750°C)を図3に示す。シリカアルミナ組成比の増大（アルミナ濃度低下）に従った初期活性および低下、および同程度の経時失活の傾向を示すが、最も高Al組成であるSi/Al<sub>2</sub>=23のみ誘導期のある初期活性と大きな失活速度を示した。本組成ではH<sub>2</sub>非共存で全組成比中最も低活性であったこと、またAl高組成ではMFIゼオライト骨格構造の安定性が低い傾向があることから、Si/Al<sub>2</sub>=28の組成比で初期活性の最大を示し、またSi/Al<sub>2</sub>=40-72では初期活性が低下するが経時失活の速度も低下すると結論付けられた。この最大初期活性を示したMo/H-MFI(28)では、反応時共存する水素分圧に対する失活抑制効果が顕著であり、図4に示すように2%までのH<sub>2</sub>分圧増大に伴い初期活性はやや低下する一方で顕著な失活抑制効果が認められた。本反応で進行するメタンからのベンゼン生成は6 CH<sub>4</sub> → C<sub>6</sub>H<sub>6</sub> + 9 H<sub>2</sub>の反応式で示されるが、ここで生成するH<sub>2</sub>に加えてさらに分圧増大させることにより失活抑制効果を示す一方で、3%以上の高分圧では転化率の低下を示すこともわかった。

初期活性の最大を示したSi/Al<sub>2</sub>=28のH-MFI組成比では、骨格AlのGa部分置換により構造の不安定化が想定されることから、本研究ではSi/Al<sub>2</sub>=40の組

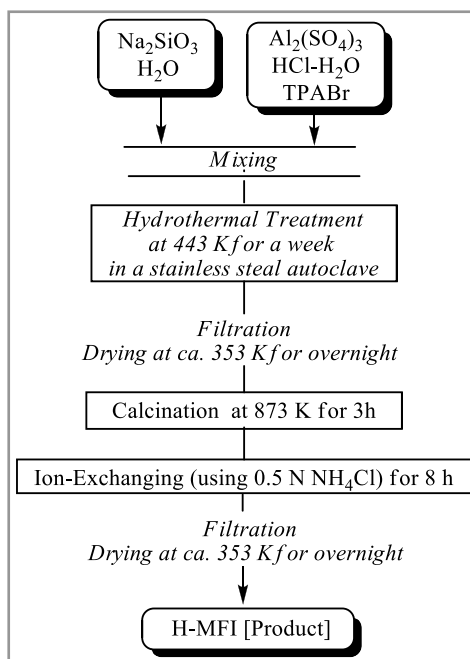


図2 H-MFIの水熱合成手順

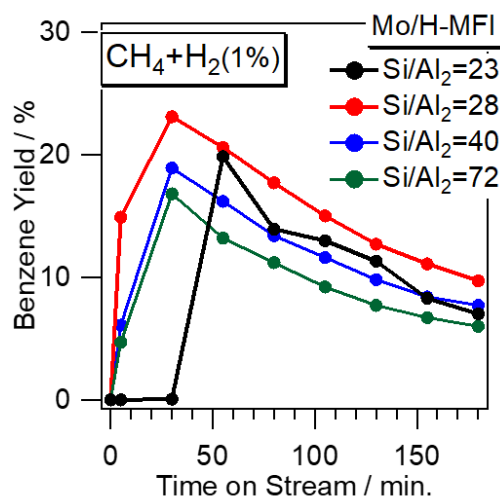


図3 Mo/H-MFI触媒におけるMTB（メタン脱水素芳香族化）活性経時変化における担体Si/Al<sub>2</sub>組成の影響(750°C)

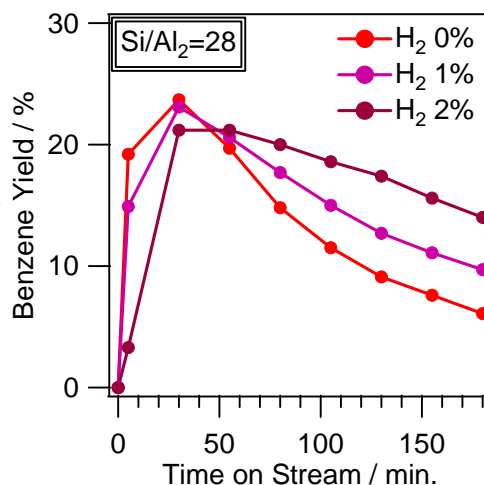


図4 Mo/H-MFI (Si/Al<sub>2</sub>=28) 触媒のMTB活性における共存水素分圧の影響

成比での Ga 部分置換（局所的メタロシリケート化）を行うことによる H-MFI 系触媒の高活性化を以下のように図った。この組成比において、Ga を骨格内 Al と格子置換した局所置換メタロシリケートを担体とし、Mo 修飾した Mo/GaAlMFI(40)における MTB 活性を検討した。これは H-MFI の極めて強い酸点が炭素析出失活の大きな要因となること、また Si/Al<sub>2</sub> 組成の増大に従いその酸強度が低下し酸量が増大することが、本 MTB 触媒系において高活性化につながる想定される（図 3）ことから、酸量を保持しながらさらなる酸強度の抑制を図ったものである。その結果（図 5・上段）、微量の Ga による骨格置換(骨格内 Al/Ga=100)において明確な初期活性の増大が認められるが、経時失活の抑制効果が見られないことがわかった。さらに、これより高濃度での Ga 局所格子置換では初期活性の低下とともに経時失活の進行も抑制できないことがわかった。このことから、H-MFI 担体の酸強度抑制のみでは失活抑制に直接つながらないこと、および以前の研究より Mo 活性種の反応経時での炭化的構造変化が Mo/MFI では見られることから、Mo 活性種への V 共修飾について以下検討を行った。この V 共修飾は、Mo 種が反応時にメタンとの反応により還元され炭化物活性種となるが、Mo 同様に炭化される第二成分の共修飾が有効と考えられること、および形成される Mo<sub>2</sub>C 炭化物活性種の結晶化を抑制することを狙ったものである。その結果（図 5・下段）として、Mo/H-MFI(40)およびその Ga 局所置換 Mo/GaAlMFI(40)に Mo/V=10-40 にて共修飾した触媒における MTB 活性を示す。V 非修飾の Mo/H-MFI と比較し、Mo/V=40 の場合に高い初期活性の増大および経時失活の抑制傾向が顕著に認められた。この高活性化および失活抑制は、Mo/H-MFI のみではいずれの組成比でも見られなかった高い活性であったことから、担体側では微量 Ga の局所置換効果、および担持 Mo 側では V 共修飾による効果があわせて発揮されたものと評価される。

そこで、Ga 非含有 H-MFI 担体における担持 Mo への V 共修飾効果についても、MTB 高活性を示した Si/Al<sub>2</sub>=28-40 の組成比にてあわせて検討した。その結果、Si/Al<sub>2</sub>=28 組成の H-MFI 担体（図 6・上段）では、V 非修飾の場合に初期活性が最も高い傾向であるが、その後の経時失活抑制においては V 共修飾が有効となる傾向がみられ、とくに Mo/V=10 にて最も失活抑制効果の傾向が顕著であった。一方、Si/Al<sub>2</sub>=40 組成の H-MFI 担体（図 6・下段）では、Si/Al<sub>2</sub>=28 の場合と比較してやや活性が低下するものの、Mo/V=10-20 において V 非修飾の場合における初期活性を低下させないこと、およびこれらの条件でも経時失活は V 非修飾と比べて明確な抑制効果が認められないことがわかった。

このように、H-MFI 担体への Ga 共修飾によって担持 Mo への V 共修飾効果も条件が異なることから、これまでの研究で最も高活性・高耐久性を示した Mo/V=40 における Mo-V/GaAlMFI(40)触媒（図 5）の高活性因子についてさらなる検討を進めている。とくに、V 共修飾では担体 H-MFI の高 Al 組成時に失活抑制効果が発揮されることから、比較的酸量の多い条件が高活性につながるものと現段階までの結果で予測され、さらにその担体条件での H-MFI 上の酸強度の微小な抑制が高活性化および失活抑制に対し有効に働くものと推論した。

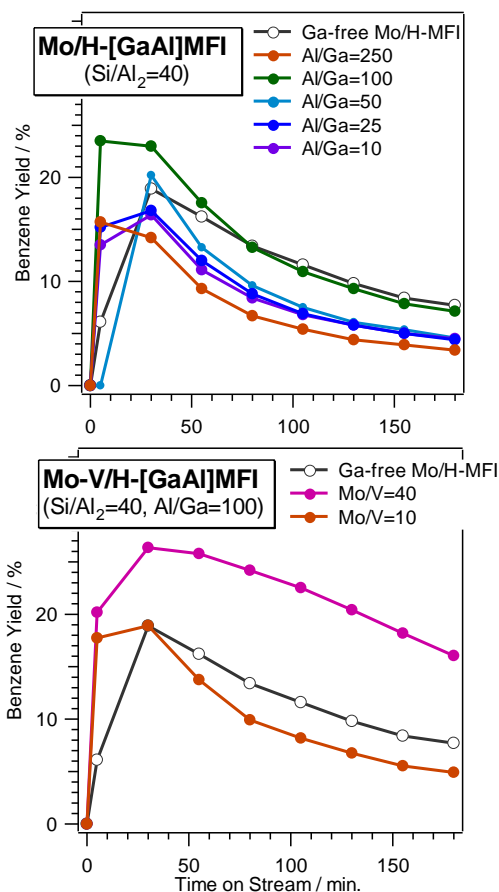


図 5 Mo/H-GaAlMFI (Si/Al<sub>2</sub>=40) およびその V 共修飾触媒における MTB 活性。

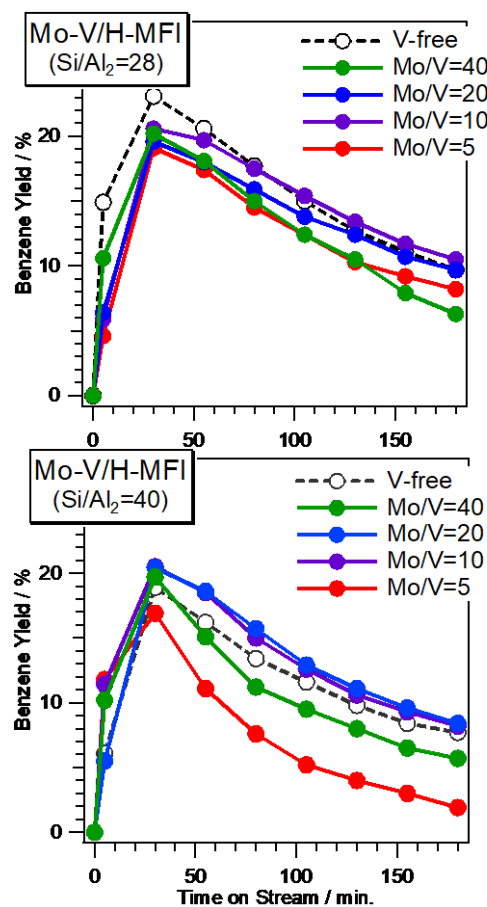


図 6 V 共修飾 Mo/H-MFI (Si/Al<sub>2</sub>=28-40) 触媒の MTB 活性における Mo/V 共修飾比の影響。

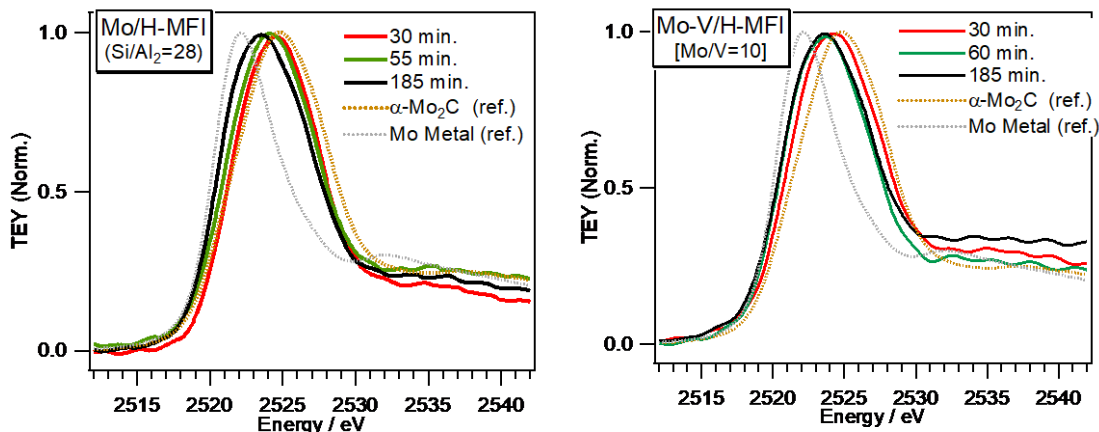


図7 Mo/H-MFI(28)およびそのV共修飾(Mo/V=10)触媒におけるMo L<sub>III</sub>殻XANESスペクトルの時間変化(参照スペクトル: Mo金属および $\alpha$ -Mo<sub>2</sub>C)。

表1 Mo L<sub>III</sub>殻XANESスペクトル(図7)より求めた吸収端エネルギー(一次微係数極大値より評価)。

Mo/H-MFI(28)		Mo-V/H-MFI(28)	
React. Time	Edge Energy / eV	React. Time	Edge Energy / eV
30	2521.36	30	2520.96
55	2520.86	55	2520.86
185	2520.48	185	2520.60
$\alpha$ -Mo <sub>2</sub> C	2520.96	$\alpha$ -Mo <sub>2</sub> C	2520.96
Mo Metal	2520.22	Mo Metal	2520.22

## (2) H-MFI上Mo活性種の構造解析

本触媒では、担体上のMo活性種の炭化還元的構造変化が、H-MFI系担体の強い酸点と共に協奏的に働くことが先行研究でも明らかにされている。とくに、Mo活性種は反応初期の炭化還元によりMo<sub>2</sub>C類似の炭化物種に還元され、これがメタンの水素引き抜きによる中間種を形成させると解釈されている。次いでその中間種はH-MFI酸点上での炭素間結合形成を経てベンゼンを主成分とした熱的安定な生成物となり脱離する機構が考えられているが、同時に過剰の水素引き抜き、および生成

物からのさらなる脱水素の進行により炭素析出が並行して起こるといえる。これを完全に抑止することが困難であることから、先のH-MFIへのGa局所置換による酸強度抑制が図られるが、同時に担体の酸強度が与える担持Mo活性種の炭化還元状態の最適化とその失活抑制のための構造的安定化も並行して求められるといえる。そこで、本研究ではまずH-MFI担体上でのMo活性種の形成状態を経時変化として検討し、さらにそのV共修飾による影響について、Mo/H-MFI(28)触媒の高活性条件を一例として以下検討を行った。図7に、Mo/H-MFI(28)およびそのV共修飾(Mo/V=10)触媒におけるMo活性種(反応経時30-185分後)MoのL<sub>III</sub>殻XANESスペクトルを示す。なお、Mo金属(Mo<sup>0</sup>)、 $\alpha$ -Mo<sub>2</sub>C(Mo<sup>2+</sup>)、MoO<sub>2</sub>(Mo<sup>4+</sup>)の各参照試料から吸収端エネルギーはそれぞれ、2520.22、2520.96、2522.96 eVであった。よって還元状態の進行により吸収端の低エネルギー側へのシフトが認められることがわかる。これをMTB触媒反応経時のMo活性種評価にも適用すると(表1)、Mo/H-MFI(28)触媒では反応開始30分後で一定の還元度となった後に、活性極大となる55分後には $\alpha$ -Mo<sub>2</sub>Cと同程度の状態となり、さらに長時間反応後にはさらに還元が進行しMo金属に極めて近い還元度まで近づくことがわかった。従って、本触媒でのMTB活性はC<sub>6</sub>H<sub>6</sub>収率が反応後30分で極大を示した後に緩やかな失活を示したこと、および触媒調製時はMo<sup>6+</sup>酸化物種が反応前(COによる還元前処理後)でおおよそMo<sup>4+</sup>まで還元が進んだ結果をあわせると、反応活性極大時の $\alpha$ -Mo<sub>2</sub>C類似炭化物種形成後さらに還元が進み、いわゆる過炭化の状態に至ることが推論された。一方で、V共修飾を行った触媒上のMo活性種は、反応後30分で既にMo<sub>2</sub>Cに極めて近い還元状態となること、また活性極大となる55分後にはV非修飾の場合と同様に $\alpha$ -Mo<sub>2</sub>Cと同程度の状態となることがわかった。さらに、長時間反応後の還元度はV非修飾の場合よりも炭化還元の進行が抑制されている傾向が認められ、いわゆる過炭化状態と示唆される炭素析出失活の進行中でも言うの抑制効果が推定される。すなわち、V共修飾は高活性Mo<sub>2</sub>C種の還元的形成を促進し、かつ過度の還元種形成を抑制する効果があると推定した。現在、これらの詳細も含め、V共修飾Mo活性種の構造解析を進めており、とくにMo/V=40におけるMo-V/GaAlMFI(40)触媒の高活性因子についてさらなる検討を進めている。

## (3) まとめ

メタン脱水素芳香族化触媒の高活性・高耐久化を目指した二元活性種複合制御として、H-MFI上のMoへのV共修飾による炭化物活性種の高活性化、並びに強酸点上炭素析出の抑制としてGa格子置換による部分メタロシリケート化MFI担体を導入した。その結果、修飾MoへのV共修飾により経時失活の抑制に寄与する条件を明らかにし、これがH-MFIへのGa導入による局所的メタロシリケート化によって高活性化・高耐久化を図れることが示唆された。加えて、高活性時にはMo過炭化物活性種の形成が顕著であることから、高還元Mo種形成と担体H-MFIの適度な酸強度抑制が高耐久化の因子となると結論づけられた。現在さらなる高活性化・高耐久化の要因を図りつつ、分光学的検討を進めている。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 1件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 K. Kuramochi, R. Yamazaki, Y. Nozawa, Y. Sonobe, H. Aritani	4. 巻 47
2. 論文標題 Formation of Catalytically Active MoCx Species during Methane Dehydroaromatization over Mo-V Co-Modified H-MFI Zeolites	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 UVSOR Activity Report	6. 最初と最後の頁 57
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 H. Aritani, K. Kuramochi, R. Yamazaki, H. Miyanaga, S. Sato, A. Nakahira	4. 巻 46
2. 論文標題 Mo L3-edge XANES Study of Active and Durable Mo-Carbide Species on H-MFI for Methane Dehydroaromatization Catalysts	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 UVSOR Activity Report	6. 最初と最後の頁 50
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 倉持健太・有谷博文	4. 巻 68(7)
2. 論文標題 身のまわりにある固体の酸・塩基	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 化学と教育	6. 最初と最後の頁 310-313
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.20665/kakyoshi.68.7_310	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計3件（うち招待講演 0件/うち国際学会 0件）

1. 発表者名 小笠原奎士・茂木昂・加藤碧・有谷博文
2. 発表標題 Mo/H-MFI触媒へのV共修飾によるメタン脱水素芳香族化活性への効果
3. 学会等名 触媒学会第126回触媒討論会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 加藤碧・小笠原奎士・園部裕也・有谷博文
2. 発表標題 V共修飾Mo/H-MFI上のメタン芳香族化活性Mo2C種の検討
3. 学会等名 日本化学会第101春季年会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 小笠原奎士, 茂木昂, 加藤碧, 有谷博文
2. 発表標題 V修飾Mo/H-MFI触媒のメタン脱水素芳香族化活性種の検討
3. 学会等名 日本化学会第100春季年会
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究 分担 者	田中 庸裕  (TANAKA Tsunehi ro)  (70201621)	京都大学・工学研究科・教授    (14301)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------