

令和 4 年 6 月 15 日現在

機関番号：13101

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2019～2021

課題番号：19K05369

研究課題名(和文) 回転拡散係数の分子論的定式化とその応用

研究課題名(英文) Molecular-based formulation of rotational diffusion coefficient and its application

研究代表者

大鳥 範和 (Ohtori, Norikazu)

新潟大学・自然科学系・教授

研究者番号：20272859

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：窒素分子の純液体中での並進および回転の拡散係数について、分子質量、慣性モーメント、数密度、分子形状、充填率、温度の各変数依存性を、分子動力学計算によって評価し、粘性率の評価結果と併せて定式化した。得られた表式は、種々の二原子分子と三原子分子の幅広い密度と温度での並進および回転の拡散係数ならびに粘性率の挙動を統一的に表現できることがわかった。これによって、直線型分子に対する並進および回転の拡散係数ならびに粘性率の定式化が達成されたと結論した。特に、並進の拡散係数と粘性率は分子形状に依存しないが、回転の拡散係数は分子形状に強く依存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

回転拡散係数は、主として液体中での分子運動を記述する物理量として、並進運動の自己拡散係数と並んで重要な位置を占めている。一方、回転拡散に及ぼす分子形状の影響は、これまで慣性モーメントや分極などの分子内の質量や電荷の分布の影響と一体化して論じられ、純粋な形状の効果を議論した報告は皆無と言える。本研究結果は、純粋な形状の効果を、慣性モーメントや分極の効果から切り離して独立に評価し、分子形状を変数として回転拡散係数と関連するStokes-Einstein-Debyeの関係の定式化に成功した初めての成果である。

研究成果の概要(英文)：We have evaluated the diffusivity of translation and rotation of nitrogen molecules in pure liquid by molecular dynamics calculation to evaluate the dependence of molecular mass, moment of inertia, number density, molecular shape, filling rate, and temperature on each variable. It was formulated together with the evaluation result of the viscosity. It was found that the obtained formula can uniformly express the behavior of the diffusion coefficient and viscosity of translation and rotation at a wide range of densities and temperatures of various diatomic and triatomic molecules. It was concluded that this achieved the formulation of translational and rotational diffusivity and viscosity for linear molecules. In particular, it was clarified that the translational diffusivity and viscosity do not depend on the molecular shape, but the rotational diffusivity strongly depends on the molecular shape.

研究分野：基礎物理化学

キーワード：液体 溶液 回転拡散係数 分子動力学法 ストークス・アインシュタイン・デバイの関係

1. 研究開始当初の背景

分子の回転運動は、並進や振動運動と共に、物質の動的性質を記述する主要な運動モードの一つである。液体の流動性は並進運動に依存しているが、並進と回転拡散の間には強い相関関係(結合)が理論的に示され、近年その関係の破れが動的不均一性の判断基準として重要視されている。ところが、このような並進と回転拡散の結合およびその破れを一般的かつ定量的に論じる上で、回転拡散に関する基盤的情報(実験値や理論の見積り)は並進拡散と比較して著しく乏しい。これは、回転運動が物性に及ぼす影響の範囲もさることながら、実験手段とその適用対象がともに限定的であることが主な原因であると考えられる。この状況を克服し、両者の関係を一般的かつ定量的に論じて正確な結論に到達する最短の方法は、回転拡散に関する法則性を定式化することである。

2. 研究の目的

本課題の目的は、溶液化学および過冷却液体の見地から重要な分子群について、回転拡散係数を記述する必要十分な独立変数を明らかにして、これを用いた分子論的表式を得ること、得られた表式に基づいて、Stokes-Einstein-Debye の関係の微視的表式を得ること、および先行研究で得られた Stokes-Einstein の微視的關係式と併せて、動的不均一性の判断基準として適切な表式を提示することである。

3. 研究の方法

本課題では、最も単純な形状の二原子分子から研究を始めるが、分子の形状は著しく多様であるため、対象を物理化学(溶液化学および過冷却液体)の見地から重要な形状の分子に限定した。最初に、 N_2 や O_2 などの単純な棒状、つまり直線型の分子について、回転拡散係数の定式化を試みた。具体的には、 N_2 の気液共存線上の液体状態について、既知の分子間相互作用を用いた分子動力学計算を種々の条件下で実行し、回転拡散係数の l/σ 比依存性、慣性モーメント(I)依存性、充填率(η)依存性を、それぞれ独立に評価した。分子動力学計算の結果から回転拡散係数を評価する際には Einstein の式を用いた。分子形状を示す l/σ 比が変化すると慣性モーメントや充填率が変化するため、これらの変数は互いに従属関係にあるが、本研究ではこれらを独立に変化させる方法を新規に考案して実行した。また、分子動力学計算の結果から、回転拡散係数と同様の手法で、粘性率を定式化した。ただし、粘性率の評価には Green-Kubo 公式を用いた。得られた回転拡散係数の表式と粘性率の表式の積によって Stokes-Einstein-Debye の関係に対する表式を得た。

これまで Stokes-Einstein の関係および Stokes-Einstein-Debye の関係の研究対象としてきた、Ar や N_2 などの単原子分子や二原子分子に対応する、より複雑な分子として C_{60} や C_{90} などの球状および棒状のフラーレン分子を対象に、液体 Ar 中の希薄溶存状態の分子動力学計算を実行し回転拡散係数を評価した。また、球状や棒状以外の形状の分子として、水分子のような非直線状 3 原子分子およびベンゼンのような盤状の分子を対象として、それらの純液体状態の分子動力学計算を実行し回転拡散係数を評価した。さらに、2 つのベンゼン環が各頂点(C 原子)で連結したビフェニル分子、同様に 3 つのベンゼン環が折れ線上に連結した *o*-テルフェニル分子について、それらの純液体状態における分子動力学計算を実行し回転拡散係数を評価した。*o*-テルフェニル分子については、分子間相互作用モデルとして、全原子モデルの他に、各ベンゼン環を単原子に置き換えて分子全体を折れ線型の三原子分子とした粗視化モデルが提案されている。両モデルで、実験で観測される通常の液体状態と過冷却状態が実現できている。一方、水分子は折れ線型の三原子分子であるとともに、深い過冷却状態を取ることが知られている。折れ線型の三原子分子という共通の形状の観点で、水と *o*-テルフェニル分子の粗視化モデルの比較は興味深い。そこで本課題では、*o*-テルフェニル分子の粗視化モデルについても分子動力学計算を実行して回転拡散係数を評価し、全原子モデルとの比較、および結合角度の影響について調べた。

4. 研究成果

N_2 の気液共存線上の液体状態について、既知の分子間相互作用を用いた分子動力学計算を種々の条件下で実行し、回転拡散係数の l/σ 比依存性、慣性モーメント(I)依存性、充填率(η)依存性を、それぞれ独立に評価して得られた回転拡散係数の表式に対するプロットを図 1 に示す。横軸には、これらの 3 つの変数以外に、相互作用エネルギーの強さを表す ϵ 、運動エネルギーの大きさを表す $k_B T$ が加わっている。ここで、 ϵ は、窒素分子間の相互作用エネルギーを各原子間の相互作用の和で表したときに用いられる Lennard-Jones ポテンシャル関数で用いられる相互作用パラメーターであり、 k_B はボルツマン定数、また T は絶対温度を表している。なお、分子

重心の質量の効果は慣性モーメントに含まれている。この結果は、 N_2 に対して求められた表式であるが、図 1 が示すように、 Cl_2 などの一連の二原子分子の他、 CO_2 などの三原子分子にも適用可能であることがわかる。また、同図は、計算値が実験値とも良く一致し、さらには CO_2 分子の相互作用モデルにおいて分子内の分極の考慮の有無にかかわらず適用可能なことも示している。分子の形状は分極の大きさとも従属関係にあるため、分極の有無にかかわらず回転拡散係数を定式化できたと言える。

図 1 に示した回転拡散係数の表式と別途求めた粘性率の表式の積を取って得られた Stokes-Einstein-Debye の関係の表式に対するプロットを図 2 に示す。液体中の分子間の空隙を考慮しない Stokes 式に基づく従来の Stokes-Einstein の関係が、分子直径の -1 乗に比例し、同じく従前の Stokes-Einstein-Debye の関係が、分子直径の -3 乗に比例するのは対照的に、著者らの先行研究と本課題で得られた、Stokes-Einstein の関係と Stokes-Einstein-Debye の関係が、それぞれ数密度の $1/3$ 乗および数密度に依存することは、分子間の空隙を考慮した結果として一貫性があり妥当である。加えて、従来の Stokes-Einstein-Debye の関係が分子形状を表す変数を一切含んでいないのに対して、本課題で得られた表式は、 l/σ 比の -3 乗に依存する項を含み、つまり回転拡散係数が分子形状に依ることをあらわに示す結果であり、至極合理的である。また、同図は、 Cl_2 などの一連の二原子分子の他、 CO_2 などの三原子分子にも適用可能であること、さらには CO_2 分子の相互作用モデルにおいて分子内の分極の考慮の有無にかかわらず適用可能なことも示している。

図 3 に、液体ベンゼンに対する Stokes-Einstein-Debye の関係を示す。これは気液共存線上の種々の液体状態に対する結果であり、温度と密度がともに変化した場合の結果であるため、分子形状を変数に含まないが、数密度に対する依存性は図 1 の直線状の二原子分子や三原子分子と共通している。一方、図 1 が回転拡散係数と粘性率の各充填率依存性が互いに打ち消し合った結果であるのに対して、図 3 では両者の各充填率依存性が相殺していない。これは今後の研究課題である。

図 4 に、液体 Ar 中に希薄溶存した状態の C_{60} や C_{90} などのフラーレン分子に対する Stokes-Einstein-Debye の関係を示す。横軸の慣性モーメントの $-1/2$ 乗の項は、質量の $-1/2$ 乗と数密度の $-1/3$ 乗の積に相当するので、結果として横軸は数密度の 1 乗に比例する。また、横軸の相互作用の強さ ϵ と分子サイズ σ それぞれの比は、分母が溶質と溶媒の平均の値、分子が溶質（回転する分子種）の値を示しており、それぞれ次数は各比に対する回転拡散係数の依存性を調べた結果から決定された。また、図中の実線は、黒が純粋な液体窒素における N_2 分子、赤が液体 Ar 中に希薄溶存する N_2 分子に対する依存性を示している。この図から分かるように、液体 Ar 中に希薄溶存する一連の球状および棒状のフラーレン分子 (C_{60} 、 C_{70} 、 C_{90} 、 C_{110} 、および C_{150}) に対しては、横軸に示した以外の変数依存性が存在するか、あるいは横軸に示した変数依存性の次数に検討の余地があるか、のいずれかもしくは両方の可能性を示唆しており、今後の検討課題である。

図 5 に、*o*-テルフェニル分子について、それらの純液体状態における Stokes-Einstein-Debye の関係を示す。同図中の \bullet 、 \circ 、 \square は、図 6 に示す *o*-テルフェニル分子の分子座標における 3 つの軸に対応しており、この各軸が回転する運動に対してそれぞれ回転拡散係数と Stokes-Einstein-Debye の関係の評価した。図 5 において、緑色のシンボルは全原子モデル (OPLS-AA)、その他の色は粗視化した三原子分子モデルの結果を表しており、すなわち、赤、青、黒の各シンボルは、それぞれ三原子分子の結合角度を、 120 度、 109.5 度、 75 度に設定した結果を表している。同図から、全原子モデルと結合角度の等しい粗視化モデルの結果 (黒色) と全原子モデルの結果 (緑色) は、 \bullet 、 \circ 、 \square の各軸間の差異に多少の違いがあるものの、概ね良く一致しており、粗視化モデルの妥当性を示している。一方、結合角度が大きくなるにつれて、 \bullet 、 \circ の各軸間の差異が大きくなる傾向が認められた。これは各軸間の慣性モーメントの差異による、つまり \bullet と \circ の軸の回転運動における慣性モーメントが結合角度の増大に伴って小さくなるため、回転拡散係数が大きくなったことによって説明できる。逆に、 \square の軸の回転運動は慣性モーメントが大きくなるため、回転拡散係数は小さくなる。いずれにせよ、図 5 は、*o*-テルフェニルの液体状態について、相互作用モデル、結合角度、および回転軸によらず、本課題の N_2 に対して導出された Stokes-Einstein-Debye の関係が成立することを示している。

図 7 に、*o*-テルフェニルの過冷却状態での動的不均一性の議論に用いられる並進と回転の拡散係数の比のグラフを示す。縦軸は、並進と回転の拡散係数の比 D_t/D_r を Stokes-Einstein の関係および Stokes-Einstein-Debye の関係がともに成り立っている高温領域の比を基準とした対数 $\log[(D_t/D_r)/(D_t/D_r)_{High T}]$ を、温度に対してプロットした結果である。Eastwood らの結果[1]は低温になるにつれ、上に偏差している。これは並進運動に対して回転運動の方がより減速していることを意味する。一方で、Lambardo らの結果[2]では低温になるにつれてどの回転軸に対しても並進運動の方がより減速しており、実験系とは異なっている。本研究の Einstein の式から求めた回転拡散係数を用いた結果においても分子スケールの SED 関係の破綻が見られた温度領域では下に偏差し、並進運動の方がより減速することが見て取れる。しかし、回転緩和時間から求めた回転拡散係数を用いた結果では、並進と回転の比は一定である。ただし、より低温ではこの比率が変化する可能性があるためにさらに調査が必要であり、今後の検討課題である。この現象について Chong ら[3]は、回転拡散係数の評価に用いる Einstein の式の問題点を挙げている。例えば、分子が cage 内に trap されている過冷却状態において、分子は重心座標の rattling や libration といった振動的なダイナミクスしか起こすことができず、その際、配向ベクトルが libration の過程である軸を回ってしまうと位相変位を射影した成分は 2π ほど増えてしまう。これは、分子がほと

んど回転しなくても位相変位が増えることを意味する。つまり、過冷却状態において Einstein の式から求めた回転拡散係数 D_r と回転緩和時間 τ_2 との間の $D_r = 1/6\tau_2$ の関係が破綻している。図 8 に、回転拡散係数と回転緩和時間の間の $D_r = 1/6\tau_2$ の関係について調べた結果を示す。高温の液体領域においては $D_r = 1/6\tau_2$ の関係が概ね成り立っているが、内挿図に示した回転の遅い低温領域においては $D_r = 1/6\tau_2$ の関係が破綻していることがわかる。つまり、低温領域では密な構造に分子が trap され、再配向相関関数が減衰していく時間が長くなるのに対して、Einstein の式から得られる回転の平均二乗変位角は配向ベクトルの rattling や libration といった振動的なダイナミクスを積算して評価してしまうため、 $D_r = 1/6\tau_2$ の関係式が破綻すると考えられる。

図 9 に、純粋な水の室温から過冷却状態に至る温度領域での Stokes-Einstein-Debye の関係を示す。室温では、 N_2 について本課題で導出された Stokes-Einstein-Debye の関係に概ね従っているが、過冷却状態では、温度の低下につれて逆の依存性をより強く示している。これは回転拡散係数と粘性率の積の温度依存性が一次でないことによると考えられるが、詳細については今後の課題である。図 10 に、本研究で計算を行った 2 つのモデル (TIP4P/2005 および Dang-Chang モデル) で得られた並進および回転の拡散係数の粘性率/温度に対するプロットの比較を示す。両対数スケールにおいて、並進拡散係数と粘性率は概ね反比例の関係にあるが、回転拡散係数はその関係から外れている、つまり Stokes-Einstein-Debye の関係が破綻していることを示しており、上述の温度依存性に関係していると推測される。一方、この場合も水分子の回転拡散係数は Einstein の関係に基づいて評価されているため、回転緩和時間に基づく議論がさらに必要であり、今後の検討課題である。

- [1] M. P. Eastwood, T. Chitra, J. M. Jumper, K. Palmo, A. C. Pan, D. E. Shaw, *J. Phys. Chem. B*, **117**, 12898-12907(2013).
 [2] T. G. Lombardo, P. G. Debenedetti, F. H. Stillinger, *J. Chem. Phys.*, **125**, 174507(2006).
 [3] S. -H. Chong and W. Kob, *Phys. Rev. Lett.*, **102**, 025702(2009).

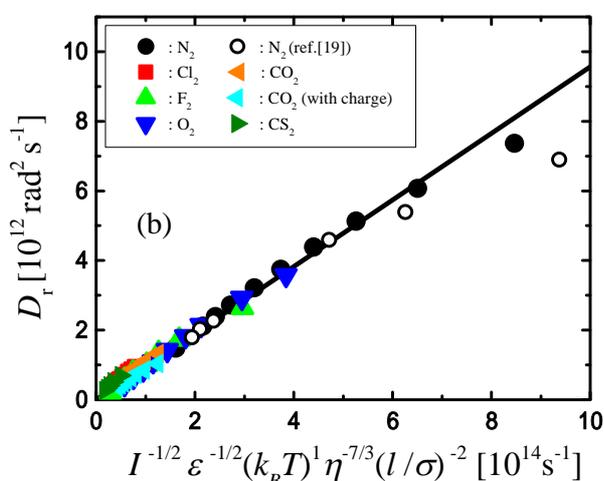


図 1 直線型分子の回転拡散係数

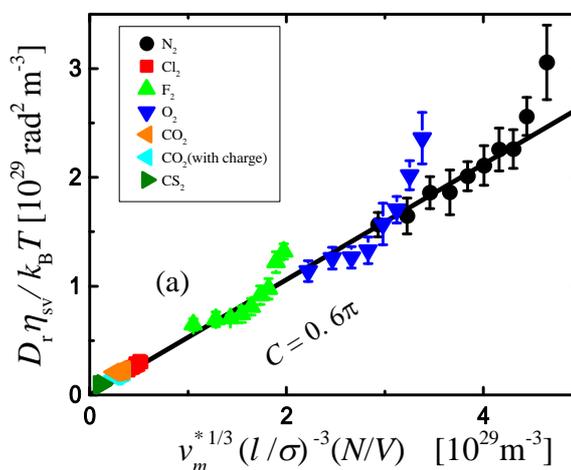


図 2 直線型分子の Stokes-Einstein-Debye の関係

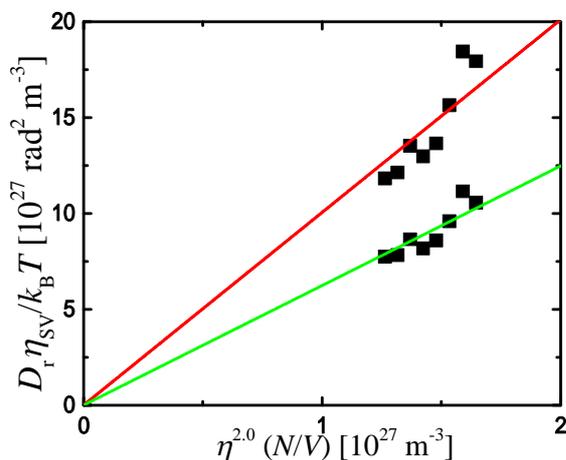


図 3 液体ベンゼンの Stokes-Einstein-Debye の関係

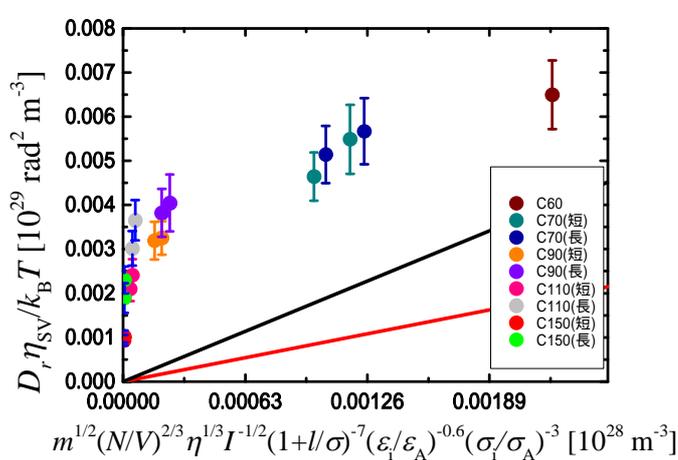


図 4 液体 Ar 中のフラーレン分子の Stokes-Einstein-Debye の関係

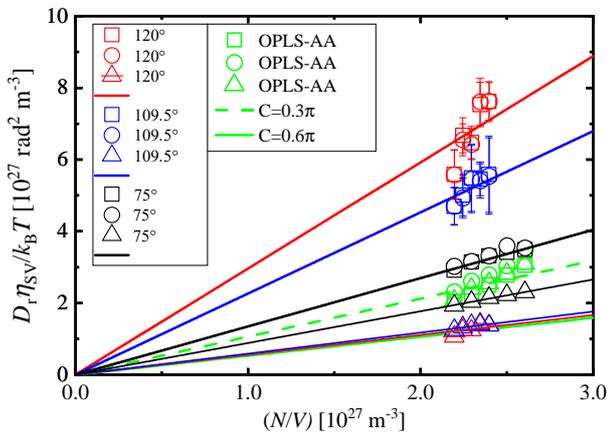


図 5 液体 *o*-テルフェニルの Stokes-Einstein-Debye の関係

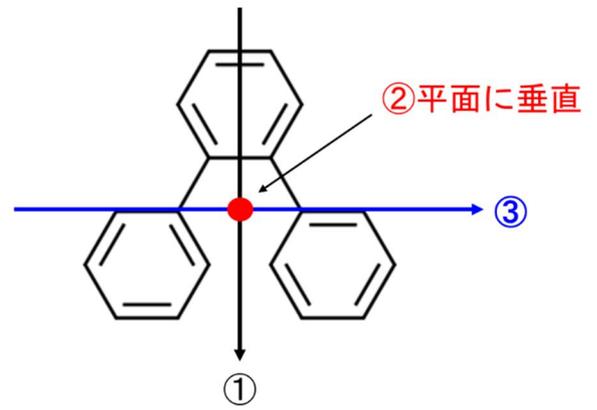


図 6 *o*-テルフェニル分子上の軸

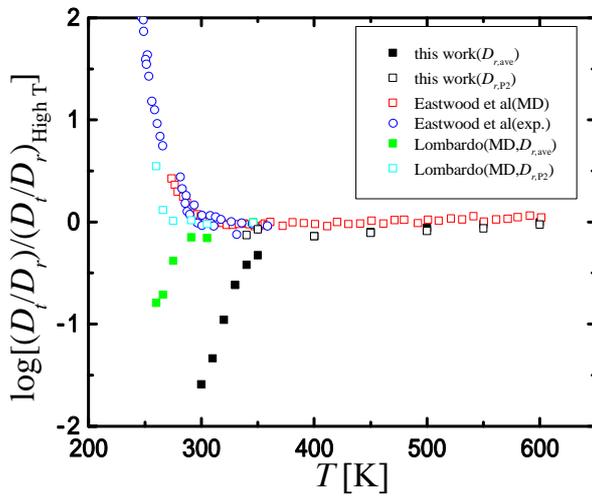


図 7 液体 *o*-テルフェニルの並進および回転の拡散係数の比の温度依存性

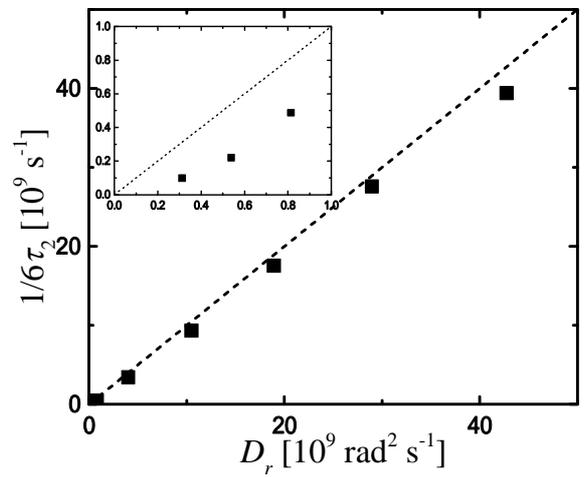


図 8 液体 *o*-テルフェニルにおける回転拡散係数と回転緩和時間の関係

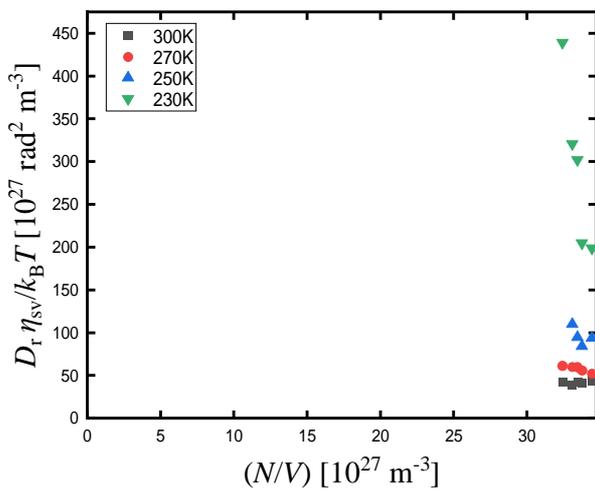


図 9 水の室温および過冷却状態における Stokes-Einstein-Debye の関係

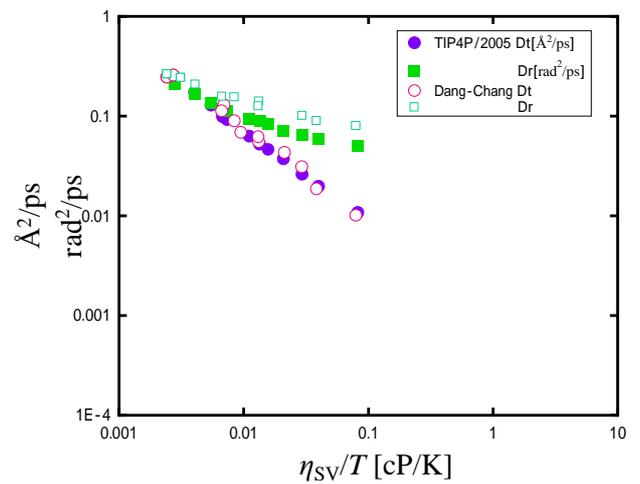


図 10 水の室温および過冷却状態における並進および回転の拡散係数の比較

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 3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 Ishii Yoshiki, Murakami Tomohiro, Ohtori Norikazu	4. 巻 346
2. 論文標題 Molecular size and shape effects: Tracer diffusion and the Stokes-Einstein relation	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of Molecular Liquids	6. 最初と最後の頁 118235 ~ 118235
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.molliq.2021.118235	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 -

1. 著者名 Ohtori Norikazu, Kondo Yuta, Ishii Yoshiki	4. 巻 314
2. 論文標題 Molecular size and shape effects: Rotational diffusion and the Stokes-Einstein-Debye relation	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Molecular Liquids	6. 最初と最後の頁 113764 ~ 113764
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.molliq.2020.113764	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 -

1. 著者名 Ohtori Norikazu, Kondo Yuta, Shintani Kenta, Murakami Tomohiro, Nobuta Tamio, Ishii Yoshiki	4. 巻 49
2. 論文標題 The Stokes-Einstein Relation for Non-spherical Molecular Liquids	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Chemistry Letters	6. 最初と最後の頁 379 ~ 382
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1246/cl.200021	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18件（うち招待講演 1件/うち国際学会 2件）

1. 発表者名 Y. Ishii, M. Salanne, and N. Ohtori
2. 発表標題 Evaluation of Transport Properties of Molten Alkaline-earth Halides and Oxyhalides Using Polarizable Ion Model
3. 学会等名 7th Asian Conference on Molten Salt Chemistry and Technology (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 信太 峻, 眞谷健汰, 宮本祥平, 石井良樹, 大鳥範和
2. 発表標題 水と過冷却水中の水分子のオーダーパラメーターの充填率と温度依存性
3. 学会等名 第 35 回分子シミュレーション討論会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 見川佳澄, 信田民生, 石井良樹, 大鳥範和
2. 発表標題 o-terphenyl の3 サイトモデルによる Stokes-Einstein およびStokes-Einstein-Debye の関係
3. 学会等名 第 35 回分子シミュレーション討論会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 川端海都, 石井良樹, 大鳥範和
2. 発表標題 溶融アルカリハロゲン化物の輸送係数のイオン間相互作用エネルギー依存性II
3. 学会等名 第 53 回溶融塩化学討論会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 阿部俊太, 近藤優多, 石井良樹, 大鳥範和
2. 発表標題 二原子分子液体の輸送係数の分子形状依存性
3. 学会等名 第43 回溶液化学シンポジウム
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 川端海都, 服部由佳, 石井良樹, 大鳥範和
2. 発表標題 溶融アルカリハロゲン化物の輸送係数のイオン間相互作用エネルギー依存性
3. 学会等名 第52回溶融塩化学討論会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 服部由佳, 石井良樹, 岡田勲, 大鳥範和
2. 発表標題 分子動力学法による溶融アルカリハロゲン化物の内部移動度の評価II
3. 学会等名 第52回溶融塩化学討論会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 阿部俊太, 近藤優多, 石井良樹, 大鳥範和
2. 発表標題 二原子分子液体の熱伝導率
3. 学会等名 第41回日本熱物性シンポジウム
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 信田民生, 石井良樹, 大鳥範和
2. 発表標題 o-テルフェニルの液体及び過冷却状態でのStokes-EinsteinおよびStokes-Einstein-Debyeの関係
3. 学会等名 溶液化学研究会若手の会オンラインシンポジウム
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 N. Ohtori, Y. Hattori, Y. Ishii, M. Salanne, P. A. Madden, and I. Okada
2. 発表標題 Revisiting the Chemla effect after 60 years from the discovery
3. 学会等名 11th international symposium on Molten salts Chemistry and Technology (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 眞谷健汰, 内山輝, 石井良樹, 大鳥範和
2. 発表標題 過冷却状態における単純液体の輸送係数に対する引力と斥力の効果
3. 学会等名 第33回分子シミュレーション討論会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 服部由佳, 石井良樹, 岡田勲, 大鳥範和
2. 発表標題 分子動力学法による溶融アルカリハロゲン化物の内部移動度の評価
3. 学会等名 金属学会北陸信越支部・鉄鋼協会北陸信越支部令和元年度連合講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 眞谷健汰, 宮本祥平, 石井良樹, 大鳥範和
2. 発表標題 KAモデルを用いた過冷却領域におけるStokes-Einsteinの関係
3. 学会等名 金属学会北陸信越支部・鉄鋼協会北陸信越支部令和元年度連合講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 近藤優多, 大鳥範和, 石井良樹
2. 発表標題 MD計算による直線型分子に対するStokes-Einstein-Debye の関係の定式化
3. 学会等名 第42回溶液化学シンポジウム
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 眞谷健汰, 内山輝, 石井良樹, 大鳥範和
2. 発表標題 過冷却LJ液体の輸送係数に対する引力と斥力の効果
3. 学会等名 第42回溶液化学シンポジウム
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 村上智央, 石井良樹, 大鳥範和
2. 発表標題 鎖状分子の貴ガス溶液におけるストークス・アインシュタインの関係
3. 学会等名 第42回溶液化学シンポジウム
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 信田民生, 石井良樹, 大鳥範和
2. 発表標題 MD計算による液体ベンゼンの輸送的性質とStokes-Einsteinの関係
3. 学会等名 第42回溶液化学シンポジウム
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 服部由佳, 石井良樹, 岡田勲, 大鳥範和
2. 発表標題 分子動力学法による溶融アルカリハロゲン化物の内部移動度の評価
3. 学会等名 第51回溶融塩化学討論会
4. 発表年 2019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

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			
フランス	ソルボンヌ大学			
英国	オックスフォード大学			