

令和 4 年 6 月 8 日現在

機関番号：14301

研究種目：若手研究

研究期間：2019～2021

課題番号：19K15678

研究課題名（和文）アニオン制御に立脚した酸素発生触媒の高活性化と触媒設計指針の創製

研究課題名（英文）Research and development of mixed-anion compounds as efficient oxygen evolution electrocatalysts

研究代表者

宮原 雄人（Miyahara, Yuto）

京都大学・工学研究科・助教

研究者番号：60807816

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）：環境に優しいエネルギー変換デバイスとしてアルカリ水電解や空気二次電池が注目されているが、電気化学的な酸素発生反応が遅く、触媒の高活性化が重要視されている。本研究では酸素発生触媒として複合アニオン化合物に着目した検討を行った。これまでに見出しているペロブスカイト酸塩化物に加え、酸フッ化物や酸窒化物で高活性化することやそのメカニズム、高活性化には遷移金属サイトとして利用する金属カチオンとの組み合わせが重要であることを明確にした。これらの検討で得られた触媒のうち、特に高活性であった化合物は従前の酸化物触媒と比較して酸素発生電位を200 mV程度低減させられることを確認した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

アニオン組成に着目した酸素発生触媒の検討は世界的にも珍しく、高活性化の要因と併せて明確にすることで触媒探索の可能性を拡げることができた。本研究によって得られた知見は高活性な酸素発生触媒の創製へ向けた新たな設計指針を提供するものであり、上記デバイスの普及へ向けて有益な成果が得られたといえる。

研究成果の概要（英文）：Alkaline water electrolyzers and metal-air rechargeable batteries, which use electrochemical oxygen evolution reaction (OER), are attractive energy conversion devices due to their environmentally friendliness. In this research, I focused on mixed-anion compounds for efficient OER electrocatalysts. In addition to perovskite oxychlorides, which we have found highly active, oxyfluorides and oxynitrides also showed higher OER activities than the corresponding oxides. Through characterizations, we proposed that the OER on the oxychlorides took place via a novel dual-site pathway. The selection of transition-metal cations was also an important factor to obtain high OER activity, and therefore proper combination of effective cation and anion will further enhance the OER activity. By using the highly active mixed-anion catalyst, the OER overpotential was successfully reduced by 200 mV compared with a corresponding conventional oxide catalyst.

研究分野：電気化学

キーワード：二次電池 水電解 酸素発生触媒 複合アニオン化合物

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

アルカリ水電解システムや金属-空気二次電池は本質的に低コスト化が可能な次世代のエネルギー変換デバイスとして期待されている一方で、普及へ向けた最大の課題の一つは酸素電極反応が非常に遅いことであり、高活性な酸素発生触媒に関する研究が精力的に行われている。酸素発生触媒には低コスト性および高い酸化耐性が求められることから、遷移金属元素を利用した化合物が触媒探索動向の主流の一つとなっている。その大部分は金属カチオン組成や結晶構造に着目した酸化物系材料に限定されており、アニオン組成を積極的に制御した化合物の触媒活性はほとんど着目されてこなかった。

研究代表者は研究開始当初までに、複数のアニオン元素からなる複合アニオン化合物に着目し、コバルト系ペロブスカイト酸塩化物 ($\text{Sr}_2\text{CoO}_3\text{Cl}$) が従前の酸化物触媒と比較して高い酸素発生・還元活性を有すること、およびその定性的な要因について初めて明らかにしている (Miyahara *et al. Chem. Commun.* 2017)。特に興味深いのは、本化合物の酸素発生活性が従前の酸化物触媒と比較して大幅に向上していることであり、アニオン組成を積極的かつ適切に制御することでさらなる高活性化が期待できる。これまでに、カチオン元素については複数の元素を利用することによる柔軟な触媒設計が可能となっている一方、複数のアニオン元素を利用した酸素発生活性の制御およびその支配因子については全くの未知の状態であった。複合アニオン化合物を基盤とした酸素発生触媒の設計指針の確立には、複合アニオン化合物が有する諸物性と酸素発生活性との相関性について解明することが重要となる。

2. 研究の目的

上述の背景のとおり、酸素発生触媒の研究にはアニオン組成の能動的な制御がほとんど着目されてきておらず、「結晶構造制御」と「カチオン制御」による二次元的な設計指針をもとに行われていた。そこで、本研究は広範なアニオン元素が利用可能な結晶構造であるペロブスカイト構造に関して種々の複合アニオン化合物を合成し、その物理化学特性と酸素発生活性を評価することでそれらの相関性を明らかにし、アニオン制御に立脚した酸素発生触媒の設計指針を新たに構築することを推進した。本研究は「アニオン制御」という触媒探索について新機軸を創出しうるものであり、三次元的な設計指針によって触媒探索の可能性を飛躍的に向上させるための基盤技術を確立させることを目指した。

3. 研究の方法

複合アニオン化合物を基盤とした高活性かつ高耐久性を有する酸素発生触媒の創製とそれに向けた新たな設計指針を獲得するために、本研究では以下の研究項目について推進した。

(1) 種々の複合アニオン化合物の合成および酸素発生活性評価

ペロブスカイト構造を有する種々の複合アニオン化合物 (Fe/Co 系酸塩化物に分類される $\text{Sr}_2\text{Co}_{1-x}\text{Fe}_x\text{O}_3\text{Cl}$ および $\text{Sr}_3(\text{Co}_{1-x}\text{Fe}_x)_2\text{O}_5\text{Cl}_2$ や酸フッ化物 $\text{Sr}_2\text{Co}_{1-x}\text{Fe}_x\text{O}_3\text{F}$ 、 Mn 系酸塩化物 $\text{Sr}_4\text{Mn}_3\text{O}_7.5\text{Cl}_2$ 、 Fe 系酸フッ化物 $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{FeO}_{3-x}\text{F}_x$ 、 Fe 系酸硫化物 $\text{Sr}_2\text{CuFeO}_3\text{S}$ および $\text{Sr}_3\text{Cu}_2\text{Fe}_2\text{O}_5\text{S}_2$ 、 Co/Fe 系酸窒化物 $\text{Sr}_2(\text{Co}_{1-x}\text{Fe}_x)_2\text{MoO}_5\text{N}$ 、 Ni 系酸塩化物 $\text{Sr}_2\text{NiO}_3\text{Cl}$) について合成を試みた。得られた化合物について水酸化カリウム水溶液中における酸素発生活性を評価した。

(2) 複合アニオン化合物の高活性化要因の解明

複合アニオンにおいて高活性化が達成される要因として、特に高活性化が達成された Fe/Co 系酸塩化物に着目し、種々のキャラクター化結果との相関性に加えて、酸素発生過電圧の理論計算を行うことで、過電圧低減の要因について検討した。

(3) 設計指針のとりまとめおよびプロトタイプセルによる実証

種々の複合アニオンで得られた活性とアニオン元素の活性を比較し、アニオン制御による高活性化に必要な設計指針について検討した。また、特に高活性化が達成された Fe/Co 系酸塩化物について亜鉛-空気二次電池のプロトタイプセルを構築し、従前の酸化物触媒との比較を行った。

4. 研究成果

(1) 種々の複合アニオン化合物の合成および酸素発生活性評価

まず、種々の複合アニオン化合物に関して既報を参考に合成を行った。 Fe/Co 系酸塩化物は固相法、酸フッ化物は高压合成法、 Mn 系酸塩化物は真空封入を用いた固相法、 Fe 系酸フッ化物はポリフッ化ビニリデンとの混合物を用いた固相法、 Fe 系酸硫化物は真空封入を用いた固相法、 Co/Fe 系酸窒化物はアンモニア雰囲気を活用した固相法によって合成した。これらの化合物については X 線回折 (XRD) 測定やエネルギー分散型 X 線分光もしくは誘導結合プラズマ発行分光分析を用いた元素分析の結果、目的とする化合物が高純度で得られたことを確認した。なお、 Fe/Co 系酸フッ化物はこれまで合成報告がなく、無機固体化学の観点からも今後の応用展開が期待される。なお、 Ni 系酸塩化物の合成も試みたが、高純度化合物の合成には成功しておらず、 NiO 等の不純物が XRD で確認された。

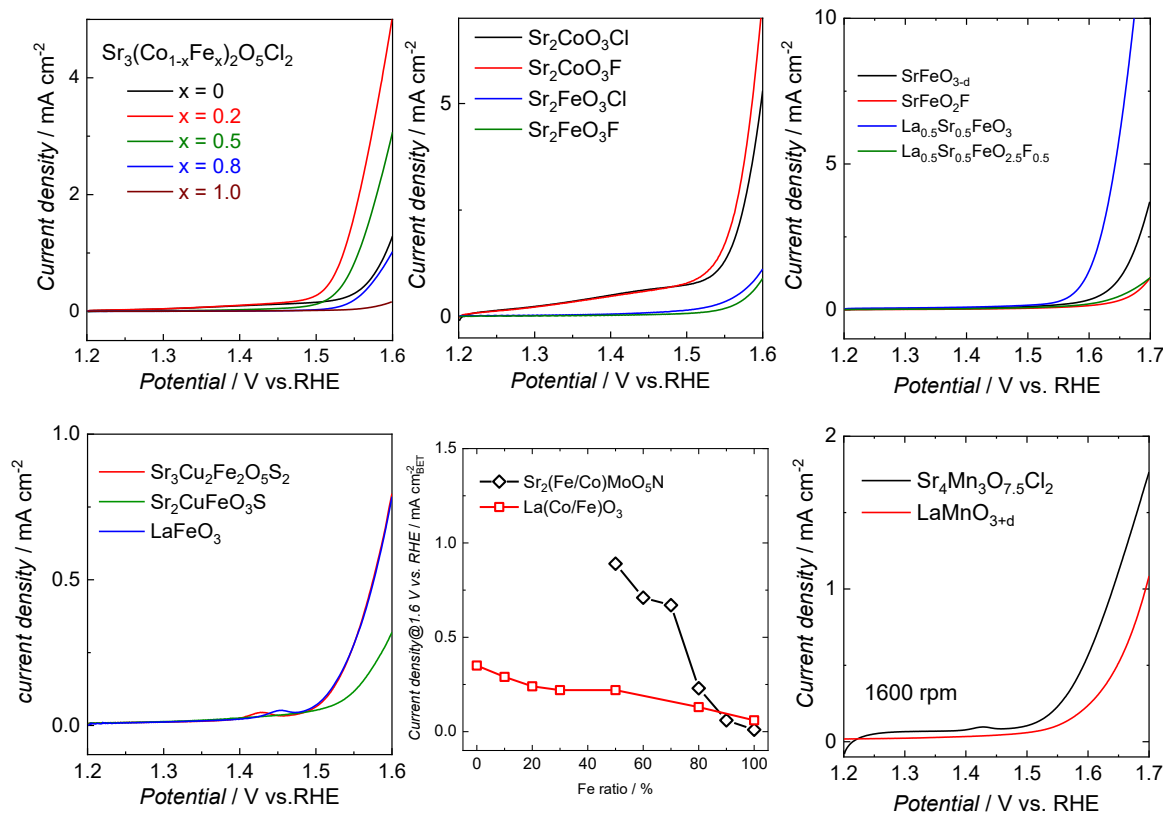


図 1. (a) $\text{Sr}_3(\text{Co}_{1-x}\text{Fe}_x)_2\text{O}_5\text{Cl}_2$ の酸素発生活性評価結果、(b) 酸塩化物と酸フッ化物の酸素発生活性の比較、(c) $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{FeO}_{3-x}\text{F}_x$ および比較触媒として使用した $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{FeO}_3$ の酸素発生活性評価結果、(d) $\text{Sr}_2\text{CuFeO}_3\text{S}$ 、 $\text{Sr}_3\text{Cu}_2\text{Fe}_2\text{O}_5\text{S}_2$ および比較触媒として使用した LaFeO_3 の酸素発生活性評価結果、(e) 1.6 V (可逆水素電極基準) における $\text{Sr}_2(\text{Co}_{1-x}\text{Fe}_x)_2\text{MoO}_5\text{N}$ および比較触媒として使用した $\text{La}(\text{Co}_{1-x}\text{Fe}_x)\text{O}_3$ の酸素発生電流、(f) $\text{Sr}_4\text{Mn}_3\text{O}_{7.5}\text{Cl}_2$ および比較触媒として使用した LaMnO_{3+d} の酸素発生活性評価結果。

触媒活性測定には回転電極を使用し、導電助剤炭素とアイオノマー、触媒粉末からなる触媒層をグラッシーカーボン上に形成させた。図 1 (a) に $\text{Sr}_3(\text{Co}_{1-x}\text{Fe}_x)_2\text{O}_5\text{Cl}_2$ の酸素発生活性評価結果を示す。これまでに当研究室で検討した $\text{Sr}_2\text{Co}_{1-x}\text{Fe}_x\text{O}_3\text{Cl}$ と同様、 $x = 0.2$ で最大の活性を示し、得られた過電圧も同程度であった。 $\text{Sr}_3(\text{Co}_{1-x}\text{Fe}_x)_2\text{O}_5\text{Cl}_2$ および $\text{Sr}_2\text{Co}_{1-x}\text{Fe}_x\text{O}_3\text{Cl}$ はいずれも Ruddlesden-Popper 型層状ペロブスカイト構造 $\text{A}_{n+1}\text{B}_n\text{X}_{3n+1}$ を有しており、ペロブスカイト層の層数のみが異なっている ($\text{Sr}_3(\text{Co}_{1-x}\text{Fe}_x)_2\text{O}_5\text{Cl}_2$ は $n = 2$ 、 $\text{Sr}_2\text{Co}_{1-x}\text{Fe}_x\text{O}_3\text{Cl}$ は $n = 1$) ことから、ペロブスカイト層数が触媒活性に与える影響は小さく、活性サイトと考えられる CoO_5Cl 八面体ユニットが同じであれば同様の活性を示すことが示唆された。続いて、 $\text{Sr}_2\text{Co}_{1-x}\text{Fe}_x\text{O}_3\text{F}$ についても同様の方法で酸素発生活性評価を行ったところ、酸塩化物と同様、 $x = 0.2$ で最大活性が得られた。図 1 (b) に Fe および Co について酸塩化物と酸フッ化物の酸素発生活性評価結果を示す。Fe 系では F と Cl とともに活性が低く、大きな差異は見られなかった一方で、Co 系では F 系の方がやや高い触媒活性を示した。研究代表者はこれまでに、理論計算で得られる酸素 p バンド中心が Co 系酸塩化物および酸化物の酸素発生活性と良い相関性を示し、その値が大きいくほど高活性になることを定性的に明らかにしている。酸フッ化物についても同様の理論計算を行ったところ、Fe 系では酸塩化物およびフッ化物ともに -3.0 eV であったのに対し、Co 系では酸塩化物が -2.0 eV、酸フッ化物は -1.8 eV であった。すなわち、理論計算で推測される活性序列と酸塩化物および酸フッ化物はいずれも良い相関性を示しており、F が酸素発生活性の向上に対してより効果的にはたらくことが示唆された。

図 1 (c) に $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{FeO}_{3-x}\text{F}_x$ の酸素発生活性評価結果を示す。 $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{FeO}_3$ と比較して活性は低く、F 元素の導入による効果は見られなかったことから、F 元素の導入による活性向上は全ての組成で発現するものではないことが示唆された。また、図 1 (d) で示した $\text{Sr}_2\text{CuFeO}_3\text{S}$ および $\text{Sr}_3\text{Cu}_2\text{Fe}_2\text{O}_5\text{S}_2$ についても比較触媒の LaFeO_3 に比べて活性は向上しておらず、S 元素の活性向上効果は見いだせなかった。

図 1 (e) に $\text{Sr}_2(\text{Co}_{1-x}\text{Fe}_x)_2\text{MoO}_5\text{N}$ の酸素発生活性評価結果を示す。可逆水素電極基準 1.6 V における酸素発生電流値を比較すると、Co 含有量が増大するほど触媒活性が向上することが明らかとなった。また、比較触媒である $\text{La}(\text{Co}_{1-x}\text{Fe}_x)\text{O}_3$ と比べた場合、Co 含有量が 20 % を超えると有意に酸塩化物の方が高い酸素発生活性を示しており、N 元素についても遷移金属元素にある程度の Co を含むことで複合アニオン化のメリットが期待できることが示唆された。

最後に、 $\text{Sr}_4\text{Mn}_3\text{O}_{7.5}\text{Cl}_2$ の酸素発生活性評価結果を示す。 LaMnO_{3+d} と比較して若干の活性向上が見られたことに加え、酸素還元活性の向上も見られており、Mn 系に対しても Cl 元素導入の効果が見られることが明らかとなった。

(2) 複合アニオン化合物の高活性化要因の解明

高活性化の要因を明らかにするため、高活性化の効果が高い組成の一つである Fe/Co 系酸塩化物 $\text{Sr}_2\text{Co}_{1-x}\text{Fe}_x\text{O}_3\text{Cl}$ について種々のキャラクターゼーションおよび理論計算を行った。X 線光電子分光で表面状態を確認した結果、全ての組成で Co^{3+} および Fe^{3+} をとっており、価数の差異やバルク組成とのズレは見られなかった。また、Co 単体の系で有効であった酸素 p バンド中心について、 $\text{Sr}_2\text{Co}_{0.75}\text{Fe}_{0.25}\text{O}_3\text{Cl}$ は -2.8 eV と計算された。この値は $\text{Sr}_2\text{CoO}_3\text{Cl}$ の -2.0 eV と比較して有意に低く、理論計算から推測される活性序列と実際の活性とは相関していなかった。この要因として、Fe 周辺の O はより強く配位しており、平均情報である酸素 p バンド中心を強力に低下させたことが考えられる。すなわち、複数の遷移金属元素から構成される複合アニオン化合物に対して酸素 p バンド中心を用いた活性の議論は困難であることが明らかとなった。

続いて、酸素発生過電圧の理論計算を行った。一般的な酸素発生触媒では遷移金属元素上の 1 つのサイトで反応が進行する（以下、1 サイト経路と呼ぶ）ことが知られている一方で、1 サイト経路で計算を行うと $\text{Sr}_2\text{Co}_{0.75}\text{Fe}_{0.25}\text{O}_3\text{Cl}$ と $\text{Sr}_2\text{CoO}_3\text{Cl}$ はほぼ同じ理論過電圧をとったことから、一般的な機構とは異なる経路を取ることが示唆された。そこで、中間体において水酸化物イオンの拡散が含まれる新奇 2 サイト経路を仮定し、理論計算を行った結果を図 2 に示す。この場合、得られた理論過電圧は $\text{Sr}_2\text{Co}_{0.75}\text{Fe}_{0.25}\text{O}_3\text{Cl}$ の方が 80 mV 程度小さく、実験的に得られた活性序列をよりよく反映するものであった。以上の検討から、Fe/Co 固溶系では酸素発生が協奏的に進行することでさらなる高活性化が達成されたことが示された。

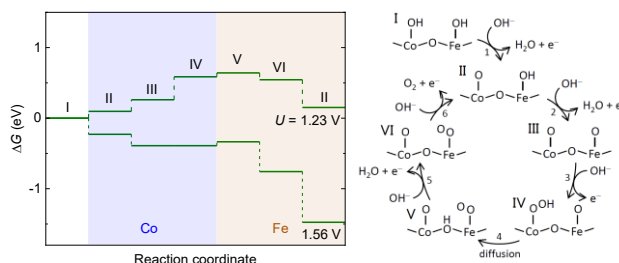


図 2. 2 サイト経路を仮定した場合における $\text{Sr}_2\text{Co}_{0.75}\text{Fe}_{0.25}\text{O}_3\text{Cl}$ の自由エネルギーダイアグラム。

(3) 設計指針のとりまとめおよびプロトタイプセルによる実証

(1) で得られた活性データについて、複合アニオン化が複数の元素で達成された Fe/Co 系で取りまとめたものを図 3 に示す。まず、Fe 単体ではいずれの複合アニオン化合物についても低い活性にとどまった。これらの材料に含まれる鉄の状態は Fe^{3+} であり、ペロブスカイト型酸化物においては活性が低いことが知られている。これに対して、Co を固溶することで複合アニオン化の効果が見られることや、高活性化の程度はアニオン元素に依存することが分かる。すなわち、複合アニオン化の効果を発現するには適切な遷移金属元素を選択する必要がある、酸化物において高活性であることが確認されている遷移金属元素を含むことが必要条件となっていることが明らかとなった。今後、複合アニオン化合物の合成手法が開拓され、本研究で検討できなかったアニオン元素と高活性な遷移金属元素を含んだ化合物が報告されることが期待される。

最後に、高活性であった $\text{Sr}_2\text{Co}_{0.8}\text{Fe}_{0.2}\text{O}_3\text{Cl}$ および従前の酸化物である LaCoO_3 について亜鉛-空気二次電池のプロトタイプセルを構築し、 5 mA cm^{-2} で 10 分毎に充放電した結果を図 4 に示す。 $\text{Sr}_2\text{Co}_{0.8}\text{Fe}_{0.2}\text{O}_3\text{Cl}$ を採用することで充電電圧がおおよそ 200 mV 程度低減していることや、放電電圧の減少が抑制されることが確認された。触媒層は触媒、導電助剤炭素およびポリマーから構成されており、導電助剤炭素は充電時の高電圧条件において不安定である。すなわち、充電電圧を低減することで導電助剤炭素の劣化を抑制し、触媒層の耐久性が向上したことが示唆された。以上の結果から、酸素発生活性の向上によって亜鉛-空気二次電池のエネルギー効率向上および高耐久化が実証された。本プロトタイプセルで得られた充電電圧の低減は水電解におけるアノード電位低減と同義であり、複合アニオン化合物が高活性な水電解用アノード触媒として機能することが示された。

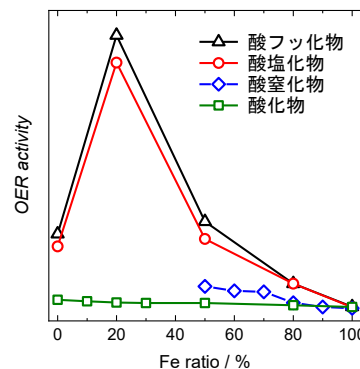


図 3. Co/Fe 系複合アニオン化合物および酸化物における酸素発生生活性の比較。

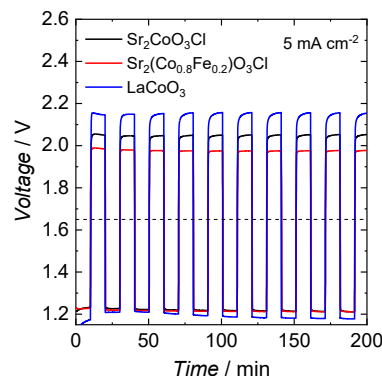


図 4. 試作型亜鉛-空気二次電池の充放電測定結果。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2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 Miyahara Yuto, Fukutsuka Tomokazu, Abe Takeshi, Miyazaki Kohei	4. 巻 32
2. 論文標題 Dual-Site Catalysis of Fe-Incorporated Oxochlorides as Oxygen Evolution Electrocatalysts	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Chemistry of Materials	6. 最初と最後の頁 8195 ~ 8202
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.chemmater.0c01674	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 Inoue Yuta, Miyahara Yuto, Miyazaki Kohei, Kondo Yasuyuki, Yokoyama Yuko, Abe Takeshi	4. 巻 169
2. 論文標題 Influence of Chemical Operation on the Electrocatalytic Activity of Ba _{0.5} Sr _{0.5} Co _{0.8} Fe _{0.2} O ₃ -for the Oxygen Evolution Reaction	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of The Electrochemical Society	6. 最初と最後の頁 010518 ~ 010518
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1149/1945-7111/ac4299	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14件（うち招待講演 3件 / うち国際学会 2件）

1. 発表者名 Y. Miyahara, K. Miyazaki, K. Yoshida, Y. Kondo, Y. Yokoyama, T. Abe
2. 発表標題 Oxygen Electrocatalysis on Mixed-Anion Perovskite Compounds in Alkaline Media
3. 学会等名 PRiME2020 (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Jiayuan Ni, 近藤靖幸, 横山悠子, 宮原雄人, 宮崎晃平, 安部武志
2. 発表標題 アルカリ水溶液中における酸素電極用炭素材料の触媒活性と耐久性
3. 学会等名 第61回電池討論会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 倪佳媛, 宮原雄人, 宮崎晃平, 近藤靖幸, 横山悠子, 安部武志
2. 発表標題 アルカリ水溶液における酸素電極用カーボン担体の触媒活性と耐久性に与える影響
3. 学会等名 電気化学会第88回大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 宮原雄人
2. 発表標題 水系電解質を用いた次世代二次電池に関する研究
3. 学会等名 大阪電気通信大学エレクトロニクス基礎研究所ワークショップ～二次電池とキャパシタの開発・研究の新展開～（招待講演）
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 沖田祥理, 宮原雄人, 宮崎晃平, 近藤靖幸, 横山悠子, 安部武志
2. 発表標題 アルカリ水溶液中における複合アニオン化合物の酸素電極触媒活性
3. 学会等名 電気化学会第87回大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 宮原雄人, NI Jiayuan, 宮崎晃平, 近藤靖幸, 横山悠子, 安部武志
2. 発表標題 アルカリ溶液中における酸化物系空気極触媒中の炭素材料が触媒特性に及ぼす影響
3. 学会等名 第46回炭素材料学会年会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 井上雄太, 宮原雄人, 宮崎晃平, 近藤靖幸, 横山悠子, 安部武志
2. 発表標題 ペロブスカイト構造を有する酸素発生触媒における活性変化挙動解析
3. 学会等名 2021年電気化学会秋季大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 倪佳媛, 宮原雄人, 宮崎晃平, 近藤靖幸, 横山悠子, 安部武志
2. 発表標題 酸素電極用複合触媒における炭素材料の触媒活性および耐久性評価
3. 学会等名 第48回炭素材料学会年会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 宮原雄人, 沖田祥理, 宮崎晃平, 近藤靖幸, 横山悠子, 安部武志
2. 発表標題 アルカリ水溶液中における複合アニオン化合物の酸素電極触媒活性
3. 学会等名 第62回電池討論会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 井上雄太, 宮原雄人, 宮崎晃平, 近藤靖幸, 横山悠子, 安部武志
2. 発表標題 ペロブスカイト型酸素発生触媒における活性変化挙動解析
3. 学会等名 第62回電池討論会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 井上雄太, 宮原雄人, 宮崎晃平, 李昌熹, 安部武志
2. 発表標題 Ba _{0.5} Sr _{0.5} Co _{0.8} Fe _{0.2} O _{3-δ} 空気極触媒における活性挙動のpH依存性
3. 学会等名 電気化学会第89回大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 倪佳媛, 宮原雄人, 宮崎晃平, 李昌熹, 近藤靖幸, 横山悠子, 安部武志
2. 発表標題 酸素電極用複合触媒におけるカーボン担体が触媒活性および耐久性に与える影響
3. 学会等名 電気化学会第89回大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 宮原雄人
2. 発表標題 備長炭電池の化学と炭素系空気極触媒の研究動向
3. 学会等名 第134回黒鉛化合物研究会 (招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Yuto Miyahara, Kohei Miyazaki, Takeshi Abe
2. 発表標題 Oxygen Electrocatalysis on Perovskite Oxyhalides in Alkaline Media
3. 学会等名 International Core-to-Core Conference on Mixed Anion Research for Energy Conversion (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022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
---------	---------