

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 6 年 5 月 6 日現在

機関番号：33903

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2020～2023

課題番号：20K05545

研究課題名(和文) 典型金属イオン含有異種多核高原子価窒素錯体の合成と電気化学的窒素固定法の開発

研究課題名(英文) Synthesis of heterogeneous multinuclear highvalent dinitrogen complexes containing typical metal ions and development of electrochemical dinitrogen fixation method

研究代表者

梶田 裕二 (Yuji, Kajita)

愛知工業大学・工学部・教授

研究者番号：60397495

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)：今回我々は、トリアミドアミン誘導体をバナジウム(III)およびクロム(III)と反応させることによって、多数のアルカリ金属イオンが付加したバナジウム-およびクロム-窒素錯体の合成に成功した。合成に成功した錯体の結晶構造は全て決定することに成功した。また、架橋二窒素配位子の活性化においては、複数の遷移金属イオン間で架橋された方が、架橋二窒素配位子へ電子を大きく供与できるため、大きく活性化されることを明らかにした。さらに、今回合成に成功した錯体におけるナトリウムイオンとカリウムイオンの二窒素配位子の活性化効果については、カリウムイオンの方が二窒素配位子を大きく活性化できることを明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

今回我々の研究は、低い過電圧で窒素分子を還元できる金属錯体触媒の開発を目標とし、その目標に向けて、多くの新規異種多核金属錯体を合成し、それらの構造を決定した。これらの結果は、高原子価を有する窒素活性化錯体として大変貴重な例であり、学術的な価値が大変高いと考えられる。また、安価なアルカリ金属イオンを付加させることによりさらなる二窒素配位子の活性化に成功させることができ、かつカリウムイオンの方がナトリウムイオンよりも活性化能が高いという結果を得たことは、新規の窒素固定法を開発する上で工業的、社会的にも大変価値があると考えられる。

研究成果の概要(英文)： In this time, we succeeded in synthesizing vanadium- and chromium-dinitrogen complexes with many alkali metal ions added by reacting triamidoamine derivatives with vanadium(III) and chromium(III). We succeeded in determining the crystal structures of all the successfully synthesized complexes. Furthermore, regarding the activation of bridged dinitrogen ligands, we found that bridges between multiple transition metal ions can donate more electrons to the bridged dinitrogen ligands, resulting in more activation. Furthermore, regarding the activation effects of sodium ions and potassium ions on the dinitrogen ligand in the complex that was successfully synthesized, it was revealed that potassium ions can activate the dinitrogen ligand to a greater extent.

研究分野：生物無機化学 錯体化学

キーワード：窒素固定 金属錯体触媒 クロムイオン バナジウムイオン アルカリ金属イオン

### 1. 研究開始当初の背景

大気中の窒素を活性化して他の化合物へ変換する研究は、ほぼ無尽蔵と言われる窒素を資源として利用する大変重要な研究であり、様々な方法が世界中で研究されている(参考文献①, ②)。特に、金属錯体を用いて窒素を活性化する研究については、Schrock や Nishibayashi らのグループが窒素をアンモニアへ触媒的に変換することに成功して以来(参考文献③, ④)、増々盛んになっている。しかし、これまでの研究では、窒素を活性化するために、高温・高圧の厳しい反応条件、強力な還元剤、もしくは-3V もの電位を必要とすることなどが大きな問題となっている。

### 2. 研究の目的

本研究の目的は以下の項目である。

- (1) 異種多核高原子価窒素錯体の合成と典型金属イオンの効果の検討
- (2) N<sub>2</sub>配位子を最も活性化できる典型金属イオンの探索
- (3) 異種多核高原子価窒素錯体を用いた電気化学的窒素固定とその課題

### 3. 研究の方法

本研究は以下の方法を適宜用いて実施された。

- (1) 当研究室で開発された、嵩高い置換基をもつ窒素錯体[(M<sub>tr</sub>L)<sub>2</sub>(N<sub>2</sub>)](M<sub>tr</sub>=V, Cr)を用いて、Li<sup>+</sup>, Na<sup>+</sup>, K<sup>+</sup>が配位した窒素錯体を4種類以上合成し、結晶構造を決定する。NMR, ESR, SQUID 測定からは磁気的性質を、IR, 共鳴ラマン測定からは N-N 結合の状態をそれぞれ明らかにする。
- (2) Li<sup>+</sup>, Na<sup>+</sup>, K<sup>+</sup>の代わりに Mg<sup>2+</sup>, Ca<sup>2+</sup>, Ba<sup>2+</sup>, Al<sup>3+</sup>を用いて、これらのイオンが付加した窒素錯体を4種以上合成する。
- (3) (1) および (2) で合成した典型金属イオンが付加した窒素錯体を用いて電気化学的なアンモニア合成を行い、M<sub>tr</sub> および M<sub>ty</sub> の効果、生成物、電流効率などを明らかにする。各種合成および一部の測定は、本学で行う。本学で不可能な測定や解析である単結晶 X 線構造解析、<sup>15</sup>N NMR, ESR, SQUID 測定に関しては外部の研究機関に依頼した。

### 4. 研究成果

当研究室ではすでに図1に示す高原子価二核バナジウム-および二核クロム-窒素錯体の合成に成功し、それらの構造も決定している(参考文献⑤)。そこで、これらの錯体をアルカリ金属であるナトリウムおよびカリウムとそれぞれ反応させることにより、それらのイオンが付加した窒素錯体の合成をそれぞれ行った。

配位子の末端置換基に iBu 基をもつ二核バナジウム窒素錯体に対して1当量の金属 Na と反応させたところ、Na<sup>+</sup>イオンが錯体に対して1つ付加した窒素錯体 **1** を得た。この化合物の中心構造は、2つのバナジウムイオン間に架橋配位した二窒素配位子をもち、さらにこの二窒素配位子に対して side-on 型で配位した Na<sup>+</sup>イオンを有していた(図2, 参考文献⑥)。この錯体の N-N 結合距離は、1.225 Å であり、共鳴ラマンスペクトル測定による N-N 伸縮振動は 1482 cm<sup>-1</sup> に観測された。Na<sup>+</sup>イオンが付加していない前駆体である窒素錯体における N-N 結合距離は 1.203 Å であり、0.022 Å 程度活性化されていた。次に、配位子の末端置換基を変更することで Na<sup>+</sup>イオンの立体効果を確認しようと考え、配位子の末端置換基に Bn 基をもつ二核バナジウム窒素錯体を用いて同様の反応を行ったところ、Na<sup>+</sup>イオンが二窒

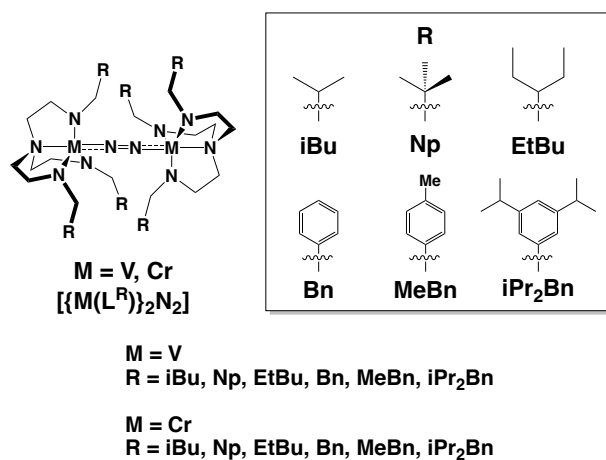


図1.

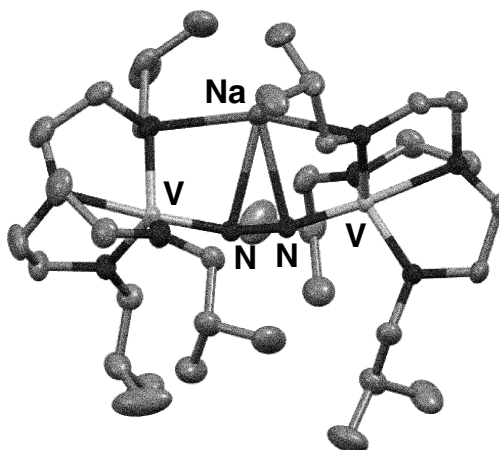
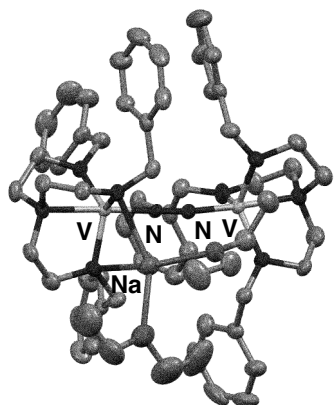
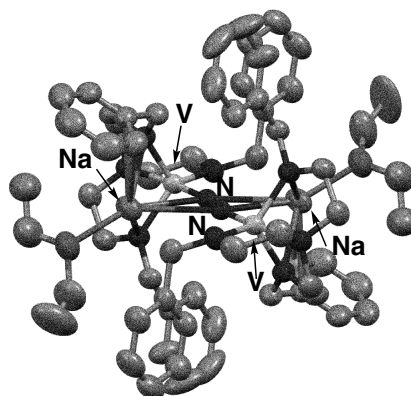


図2. 化合物 **1** の結晶構造



(A) 錯体 2 の結晶構造



(B) 錯体 3 の結晶構造

図 3.

素配位に配位していない錯体 2 が得られた (図 3 (A))。そこで、反応させる金属ナトリウムの当量を錯体に対して大過剰に加えたところ、錯体に対して  $\text{Na}^+$  イオンが 2 当量付加した錯体 3 を得ることができた (図 3 (B))。錯体 3 の N-N 結合距離は 1.238 Å であり、 $\text{Na}^+$  イオンが 1 つ付加した錯体の N-N 結合距離よりもさらに活性化されていることがわかった。

次に、金属ナトリウムの代わりに金属カリウムを二核バナジウム窒素錯体に反応させ、 $\text{K}^+$  イオン付加体の合成を試みた。その結果、配位子の末端に EtBu 基をもつ二核バナジウム窒素錯体を用いて合成した錯体 4 の結晶構造を決定することができた。錯体 4 の結晶構造を図 4 に示した。錯体 4 は、2 つの  $\text{K}^+$  イオンが二窒素配位に side-on 型で配位していた。この錯体の N-N 結合距離は 1.253 Å で、N-N 結合が最も活性化されていることが明らかとなった。また、この錯体において、特筆すべきは 2 つの  $\text{N}_2\text{K}$  平面で作られる二面角が 134.9 ° であり、錯体 3 における 2 つの  $\text{N}_2\text{Na}$  平面で作られる二面角 (180 °) と比較すると非常に小さくなっていることである。錯体 3 から錯体 4 における二面角の減少も二窒素配位の活性化に大きく影響していると考えられる。

次に中心金属にクロムイオンをもつ二核窒素錯体を用いて、金属ナトリウムおよび金属カリウムと反応させることで、典型金属イオンの効果をさらに詳細に検討した。

配位子の末端に Bn 基をもつ二核クロム窒素錯体に金属ナトリウムを反応させたところ、図 5 に示す錯体 5 を得た (参考文献⑦)。この錯体では、 $\text{Na}^+$  イオンがトリアミドアミン配位子の二つのアミド窒素原子に挟まれており、さらにこの  $\text{Na}^+$  イオンには溶媒由来のジエチルエーテル、二窒素配位の末端 N 原子も配位していた。中心金属にバナジウムイオンをもつ錯体では、二窒素配位はアルカリ金属イオンに対して side-on 型に配位していたが、中心金属イオンをクロムイオンに変更することによって、end-on 型で配位する錯体を合成できた。錯体 5 における N-N 結合距離は 1.162 Å であった。この値は、前駆体である二核クロム窒素錯体の N-N 結合距離である 1.186 Å と比較すると短くなっており、二窒素配位に end-on 型でアルカリ金属イオンが配位すると、活性化は弱められることが明らかとなった。これは、遷移金属イオンが有する逆供与結合に関係すると考えられ、二窒素配位が end-on で配位している場合、逆供与結合の有無や大きさが二窒素配位の活性化に大きく影響していることが明らかとなった。次に同じ二核クロム窒素錯体に金属カリウムを反応させたところ、複雑な構造をした錯体 6 を得た (参考文献⑦)。錯体 6 の結晶構造を図 6 に示した。錯体 6 は、異種二核クロム-カリウム窒素錯体を単位部位として、これが 4 つ組み合わせさせた構造をしていた。カリウムイオンは二窒素配位に対して end-on、side-on の両方の形式で配位していた。この錯体 6 における N-N 結合距離の平均値は 1.173 Å で、錯体 5 の N-N 結合よりは活性化されているものの、前駆体である二核クロム錯体よりは活性が弱められていた。このことから遷移金属イオンからの逆供与は、N-N 結合活性化において

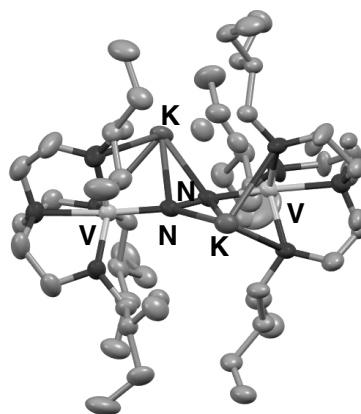


図 4. 錯体 4 の結晶構造

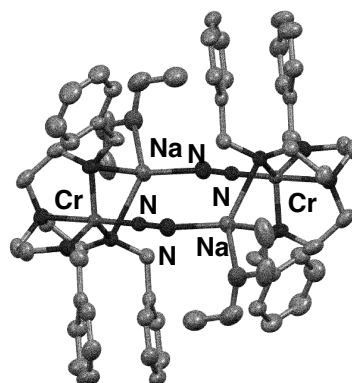


図 5. 錯体 5 の結晶構造

非常に重要であることが明らかとなった。

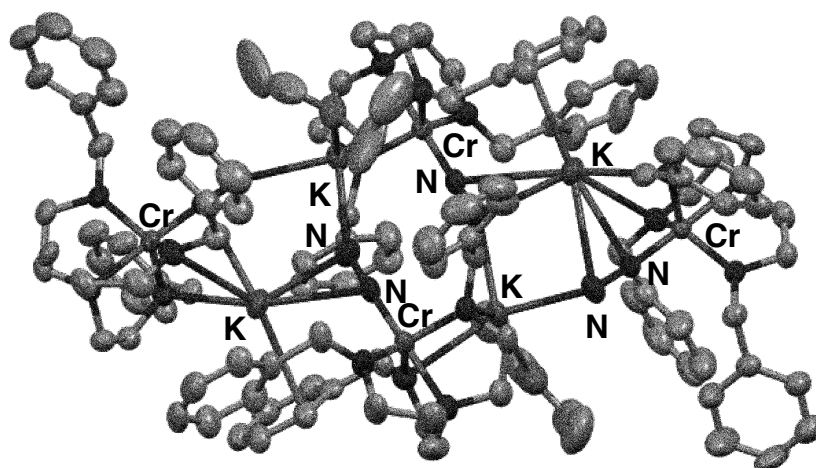


図 6. 錯体 6 の結晶構造

これまでに述べた錯体では、類似の構造をとらせることができないため、アルカリ金属イオンの効果について正確に評価することができないと考えた。そこで、類似の構造をとらせることを考え、反応系中にクラウンエーテルを共存させアルカリ金属イオンをこれに包接させることを考えた。金属ナトリウムを用いる場合には 15-crown-5 を、金属カリウムを用いる場合には 18-crown-6 を用いてアルカリ金属イオン付加体の合成をそれぞれ行った。金属ナトリウムと 15-crown-5 を用いて合成した錯体を錯体 7、金属カリウムと 18-crown-6 を用いて合成した錯体を錯体 8 とした (参考文献⑦)。合成した錯体 7 および 8 の結晶構造をそれぞれ決定することができたため、図 7 および 8 にそれぞれ示した。錯体 7 および 8 において、二窒素配位子はアルカリ金属イオンと遷移金属イオンとの間に end-on モードで架橋配位し、アルカリ金属イオンには共存させたクラウンエーテルも配位していた。錯体 7 および 8 の N-N 結合距離は、それぞれ 1.163 Å, 1.167 Å であった。これらの結果からも N-N 結合の活性化には遷移金属イオンによる逆供与が非常に重要であることを明らかにした。また、Na<sup>+</sup>イオンおよび K<sup>+</sup>イオンにおける二窒素配位子の活性化への影響について、K<sup>+</sup>イオンを有する錯体 8 の方が N-N 結合距離がわずかに長くなっているため、K<sup>+</sup>イオンの方が二窒素配位子を強く活性化することがわかった。

最後に、末端置換基に極めて嵩高いジシクロヘキシルメチル基を導入した配位子を用いて遷移金属イオンおよびアルカリ金属イオンの効果を調べた。遷移金属イオンにバナジウムイオン、アルカリ金属イオンに Na<sup>+</sup>イオンをもつものを錯体 9、遷移金属イオンにバナジウムイオン、アルカリ金属イオンに K<sup>+</sup>イオンをもつものを錯体 10、遷移金属イオンにクロムイオン、アルカリ金属イオンに K<sup>+</sup>イオンをもつものを錯体 11 とした。これらの錯体の結晶構造を図 9, 10, 11 にそれぞれ示した。これらの錯体では、アルカリ金属イオンおよび遷移金属イオンのみを変更され、それ以外は全て同じ配位子を用いているため、比較検討にとっても都合が良い。錯体 9, 10, 11 の構造は錯体 7 および 8 と類似した構造であったが、アルカリ金属イオンに配位した二窒素配位子の反対側に THF が配位していた。また、これらの錯体における N-N 結合距離は、それぞれ 0.985 Å, 1.152 Å, 1.162 Å であった。錯体 9 における N-N 結合距離は、フリーの窒素分子 (1.1 Å) に比べて逆に短くなっていた。また、Na<sup>+</sup>イオンの代わりに K<sup>+</sup>イオンをもつ錯体 10 (参考文献⑧) では 1.152 Å であり、こちらは活性化されていることがわかった。また、バナジウムイオンの代わりにクロムイオンをもつ錯体 11 では、N-N 結合はさらに活性化され、1.162 Å であった。これらの結果から、アルカリ金属イオンとしては、Na<sup>+</sup>イオンよりも K<sup>+</sup>イオンの方が二窒素配位子に対する活性化能は高く、さらにバナジウムイオンよりもクロムイオンの方が二窒素配位子の活

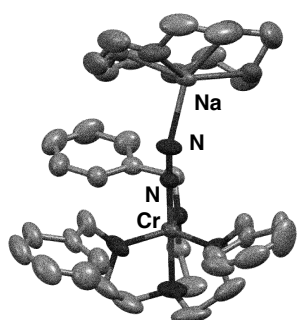


図 7. 錯体 7 の結晶構造

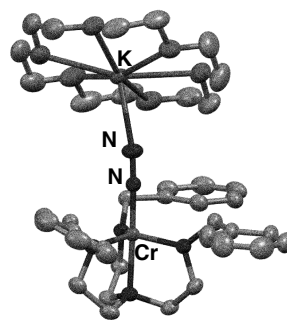


図 8. 錯体 8 の結晶構造

性化能は高いことを明らかにした。

我々はさらにアルカリ金属イオンの代わりに  $Mg^{2+}$  や  $Ca^{2+}$  などのアルカリ土類金属イオンや  $Al^{3+}$  などの高い酸化数をもつ典型金属イオンが付加した錯体の合成も行った。しかし、これらの錯体を合成、もしくはそれらの結晶構造を決定することができなかった。また、今回構造を決定したアルカリ金属イオンが付加した各種窒素錯体についての電気化学的測定については本研究期間にはデータを揃えることができなかったが、現在も本データ収集中である。

以上、今回我々は、トリアミドアミン誘導体をバナジウム(III)およびクロム(III)と反応させることによって、多数のアルカリ金属イオンが付加したバナジウム-およびクロム-窒素錯体の合成に成功した。合成に成功した錯体の結晶構造は全て決定することに成功した。また、架橋二窒素配位子の活性化においては、複数の遷移金属イオン間で架橋された方が、架橋二窒素配位子へ電子を大きく供与できるため、大きく活性化されることを明らかにした。さらに、今回合成に成功した錯体における  $Na^+$  イオンと  $K^+$  イオンの二窒素配位子の活性化効果については、 $K^+$  イオンの方が二窒素配位子を大きく活性化できることを明らかにした。このことは  $K^+$  イオンが  $Na^+$  イオンよりも side-on 型で配位し易いことも関係していると考えられる。また、バナジウムイオンとクロムイオンにおいてはクロムイオンの方が二窒素配位子の活性化効果が高いという結果を得ることができた。これらの結果は、高効率な窒素固定触媒の開発において大変重要な指標になると考えられる。

#### <引用文献>

- ① Masaaki Kitano, Yasunori Inoue, Youhei Yamazaki, Fumitaka Hayashi, Shinji Kanbara, Satoru Matsuishi, Toshiharu Yokoyama, Sung-Wng Kim, Michikazu Hara Hideo Hosono *Nat. Chem.* **2012**, *4*, 934-940.
- ② Tsuyoshi Murakami, Tokujiro Nishikiori, Toshiyuki Nohira, Yasuhiko Ito *J. Am. Chem. Soc.* **2003**, *125*, 334-335.
- ③ Dmitry V. Yandulov, Richard R. Schrock *Science*, **2003**, *301*, 76-78.
- ④ Kazuya Arashiba, Yoshihiro Miyake, Yoshiaki Nishibayashi *Nat. Chem.* **2011**, *3*, 120-125.
- ⑤ Yoshiaki Kokubo, Chiaki Yamamoto, Kazuki Tsuzuki, Takuya, Nagai, Akira Katayama, Takehiko Ohta, Takashi Ogura, Yuko Wasada-Tsutsui, Yuji Kajita, Shinichi Kugimiya, Hideki Masuda *Inorg. Chem.* **2018**, *57*, 11884-11894.
- ⑥ Yoshiaki Kokubo, Yukjo Wasada-Tsutsui, Shunsuke Yomura, Sachiko Yanagisawa, Minoru Kubo, Shinichi Kugimiya, Yuji Kajita, Tomohiro Ozawa, Hideki Masuda *Eur. J. Inorg. Chem.* **2020**, 1456-1464.
- ⑦ Yoshiaki Kokubo, Kazuki Tsuzuki, Hikari Sugiura, Shunsuke Yomura, Yuko Wasada-Tsutsui, Tomohiro Ozawa, Sachiko Yanagisawa, Minoru Kubo, Tomoyuki Takeyama, Takahide Yamaguchi, Yuichi Shimazaki, Shinichi Kugimiya, Hideki Masuda, Yuji Kajita *Inorg. Chem.* **2023**, *62*, 5320-5333.
- ⑧ Yoshiaki Kokubo, Itsuki Igarashi, Kenichi Nakao, Wataru Hachiya, Shinichi Kugimiya, Tomohiro Ozawa, Hideki Masuda, Yuji Kajita *Molecules* **2022**, *27*, 5864.

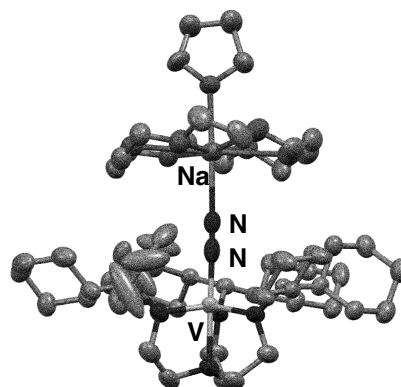


図 9. 錯体 9 の結晶構造

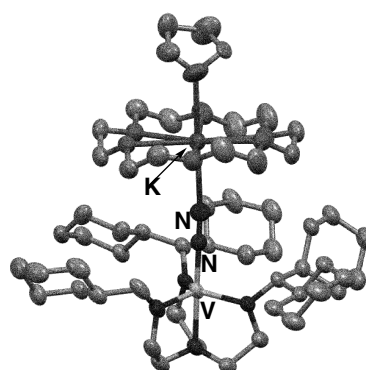


図 10. 錯体 10 の結晶構造

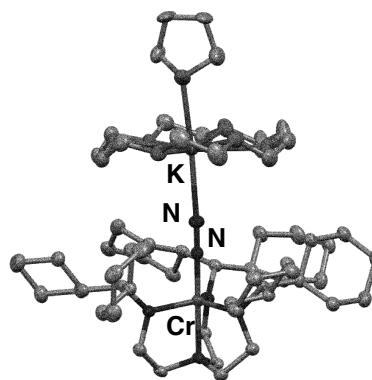


図 11. 錯体 11 の結晶構造

## 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 1件）

1. 著者名 Kokubo Yoshiaki, Igarashi Itsuki, Nakao Kenichi, Hachiya Wataru, Kugimiya Shinichi, Ozawa Tomohiro, Masuda Hideki, Kajita Yuji	4. 巻 27
2. 論文標題 The Steric Effect in Preparations of Vanadium(II)/(III) Dinitrogen Complexes of Triamidoamine Ligands Bearing Bulky Substituents	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Molecules	6. 最初と最後の頁 5864 ~ 5864
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3390/molecules27185864	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Kokubo Yoshiaki, Tsuzuki Kazuki, Sugiura Hikari, Yomura Shunsuke, Wasada-Tsutsui Yuko, Ozawa Tomohiro, Yanagisawa Sachiko, Kubo Minoru, Takeyama Tomoyuki, Yamaguchi Takahide, Shimazaki Yuichi, Kugimiya Shinichi, Masuda Hideki, Kajita Yuji	4. 巻 62
2. 論文標題 Syntheses, Characterizations, Crystal Structures, and Protonation Reactions of Dinitrogen Chromium Complexes Supported with Triamidoamine Ligands	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Inorganic Chemistry	6. 最初と最後の頁 5320 ~ 5333
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.inorgchem.2c01561	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 Wasada-Tsutsui Yuko, Wasada Hiroaki, Suzuki Tatsuya, Katayama Akira, Kajita Yuji, Inomata Tomohiko, Ozawa Tomohiro, Masuda Hideki	4. 巻 2020
2. 論文標題 Efficient Electronic Structure to Stabilize N <sub>2</sub> -Bridged Dinuclear Complexes Intended for N <sub>2</sub> Activation: Iminophosphorane Iron(I) and Cobalt(I)	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 European Journal of Inorganic Chemistry	6. 最初と最後の頁 1411 ~ 1417
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/ejic.201901131	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 0件/うち国際学会 3件）

1. 発表者名 小久保佳亮、梶田裕二
2. 発表標題 かさ高い置換基を持つトリアミドアミン配位子を用いたクロム窒素錯体の合成と構造
3. 学会等名 錯体化学会第73回討論会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 小久保佳亮、梶田裕二
2. 発表標題 バナジウムおよびクロムを用いた異種二核窒素錯体の構造と反応性
3. 学会等名 日本化学会第104春季年会
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 小久保佳亮、梶田裕二
2. 発表標題 かさ高い置換基を持つトリアミドアミン配位子を用いたクロム窒素錯体の合成と構造
3. 学会等名 錯体化学会第73回討論会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 小久保佳亮、梶田裕二
2. 発表標題 バナジウムおよびクロムを用いた異種二核窒素錯体の構造と反応性
3. 学会等名 日本化学会第104春季年会
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 Yoshiaki Kokubo, Yuji Kajita
2. 発表標題 Syntheses and Structures of Vanadium Dinitrogen Complexes Supported with Triamidoamine Ligand with a Series of Sterically Hindered Substituents
3. 学会等名 8th Asian Conference on Coordination Chemistry (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Yoshiaki Kokubo, Yuji Kajita
2. 発表標題 Syntheses and Structures of Vanadium Dinitrogen Complexes Bearing Triamidoamine Ligands with Alkali Ions
3. 学会等名 錯体化学会第72回討論会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 小久保佳亮、梶田裕二
2. 発表標題 トリアミドアミン配位子の末端N原子に第三級炭素が隣接したバナジウム窒素錯体の合成と構造
3. 学会等名 第53回中部化学関係学協会支部連合秋季大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 小久保佳亮、梶田裕二
2. 発表標題 末端N原子に第三級炭素が隣接しているトリアミドアミン配位子を用いたクロム窒素錯体の合成と構造
3. 学会等名 日本化学会第103春季年会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Yoshiaki Kokubo, Yuji Kajita
2. 発表標題 The Effect of Bulkier Substituents to Vanadium Dinitrogen Complexes bearing Triamidoamine Ligands
3. 学会等名 錯体化学会第71回討論会
4. 発表年 2021年



1. 発表者名 Yoshiaki Kokubo, Yuji Kajita
2. 発表標題 Syntheses and protonation reactivity of dinitrogen-divanadium complexes bearing a series of triamidoamine ligands
3. 学会等名 Pacifichem 2021 (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Tomomi Isogai, Yoshiaki Kokubo, Yuji Kajita
2. 発表標題 Syntheses, characterizations, and reactivities of dinitrogen-dichromium complexes bearing triamidoamine ligands
3. 学会等名 Pacifichem 2021 (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 小久保佳亮、梶田裕二、増田秀樹
2. 発表標題 The Syntheses and Structures of Dinitrogen Chromium Complexes Supported with Triamidoamine Ligands
3. 学会等名 日本化学会第102春季年会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 小久保佳亮、梶田裕二
2. 発表標題 三級炭素原子が末端N原子に隣接したトリアミドアミン配位子を持つバナジウム錯体の合成と構造
3. 学会等名 錯体化学会第70回討論会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 小久保佳亮、梶田裕二
2. 発表標題 かさ高い置換基を持つトリアミドアミン配位子を用いたバナジウム窒素錯体の合成と構造
3. 学会等名 日本化学会第101春季年会
4. 発表年 2021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