

## 科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成25年5月8日現在

機関番号：11301

研究種目：若手研究（A）

研究期間：2009～2012

課題番号：21681007

研究課題名（和文）有機修飾層状複水酸化物を用いたプロセス溶液からのレアメタルの分離回収技術

研究課題名（英文）Separation and recovery technology for rare metal from process solution using layered double hydroxides modified with organic materials

研究代表者

亀田 知人（KAMEDA TOMOHITO）

東北大学・大学院工学研究科・准教授

研究者番号：60333895

研究成果の概要（和文）：本研究では、キレート錯体形成能を有する有機酸アニオンを層間にインターカレートした層状複水酸化物を用いて、水溶液からレアメタルのカチオンを捕捉できることを見出した。キレート錯体の安定性に依存して、レアメタルの捕捉選択性を有することがわかった。この反応は、化学反応律速であることがわかった。

研究成果の概要（英文）：This study has clarified that layered double hydroxides intercalated with organic acid anions with the ability of chelate complex formation could take up rare metal ions from an aqueous solution. The material has uptake selectivity of rare metal ions. This reaction is under chemical reaction control.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	7,000,000	2,100,000	9,100,000
2010年度	4,400,000	1,320,000	5,720,000
2011年度	4,400,000	1,320,000	5,720,000
2012年度	3,800,000	1,140,000	4,940,000
年度			
総計	19,600,000	5,880,000	25,480,000

研究分野：複合新領域

科研費の分科・細目：環境学・環境技術・環境材料

キーワード：環境負荷低減技術

## 1. 研究開始当初の背景

本研究の目的は、プロセス溶液に含まれるCo、Nd、Eu等に代表される数十種類のレアメタルについて、分離回収できる先端技術を開発するための基礎研究を行うことである。この技術は、金属キレート錯体形成能を有する有機物イオンを層間に取り込んだ（インターカレートした）層状複水酸化物（LDH）を開発することで実現することを志向している。

レアメタルは、自動車やエレクトロニクスなど主要産業に欠かせない金属であり、「産業のビタミン」とも呼ばれている。レアメタルの需要は年々増加しており、安定供給が重

要な課題となっているが、レアメタルの多くは特定の国に資源が偏在しているため、サプライリスクが高い。従って、レアメタルの安定確保のためには、レアメタルのリサイクルを積極的に推進する必要がある。現時点では、コストが高いことが原因で、レアメタルのリサイクルはあまり活発に行われてはいないが、リサイクル技術の開発を推進することでコストの低減につながると考える。近年、「家電リサイクル法」、「自動車リサイクル法」の制定に伴い、使用済み製品の再資源化やリサイクルの実施が法制度化し、使用済み家電や自動車のリサイクルシステムが確立

している。しかしながら、リサイクルビジネスは経済原則に左右されることから、回収される金属は、Au、Ag や白金族金属等の貴金属や、Cu、Pb、Zn 等のベースメタルのように、経済的に回収可能なものに限定される。具体的に述べると、小型電子・電気機器やモーター部品には、貴金属の他、ベースメタル、そしてレアメタル群が含まれている。それらの使用済み製品は、乾式製錬（1300 °C で熔融）によりマットとスラグに分離され、マットの電解精製により、貴金属とベースメタルを回収することができる。一方、レアメタル群を含むスラグは、廃棄処分されているのが現状である。レアメタルリサイクルの推進のためには、このスラグからレアメタルを分離回収する技術を開発する必要がある。この技術は、乾式法に比べ省エネルギーである湿式法により実現することを考えている。鉱石の湿式製錬法としては、鉱石の酸浸出溶液を溶媒抽出-電解採取法（SX-EW 法）により処理する方法が有名であるが、溶媒抽出法は高濃度（g/L レベル）の元素を含む溶液に適している。一方、スラグの酸浸出で得られるプロセス溶液は、低濃度（mg/L レベル）でレアメタル群を含んでいるため溶媒抽出法は適さず、新しい湿式法の開発が必要である。そこで、本研究では、有機修飾層状複水酸化物（有機修飾 LDH）を用いたプロセス溶液からのレアメタルの分離回収技術を開発する。この技術は、鉱山や家電製品等の製造工場から生じる、低濃度（mg/L レベル）のレアメタル含有プロセス排水の処理にも応用することを念頭においている。

## 2. 研究の目的

### (1)キレート剤で修飾した層状複水酸化物による重金属イオンの捕捉と反応速度解析

層状複水酸化物(LDH)は、 $M(OH)_2$ の $M^{2+}$ の一部が $M^{3+}$ で置換されることにより生ずる正電荷八面体層をホスト層とし、その層間をアニオンが補償している。LDHはアニオン交換能を有し、その層間に様々なアニオンをインターカレートすることが可能であることから、LDHを用いて水溶液から有害物質を捕捉する研究が行われている。しかし、オキソ酸イオンの形態を取りにくい重金属イオンはそのまま LDH の層間に取り込むことはできない。そこで本研究では、重金属イオンとキレートを形成する機能を持つクエン酸(CA)、リンゴ酸(MA)、酒石酸(TA)イオンをそれぞれ層間にインターカレートした Mg-Al LDH による水溶液からの重金属イオン捕捉の反応速度を解析した。さらに、ホスト層の金属を変えることでホスト層の溶出挙動がどのように変化するか検討した。

### (2)edta 型 Cu-Al LDH によるレアアースの回収

レアアースは自動車や電子部品に必要な不可欠な金属であるが、存在量が少ない、特定

の国に偏在しているといったことから安定な供給が課題となっている。安定な供給を得るためには廃棄物からのレアアースの分離、回収が必要となる。廃棄物の処理過程で発生する廃液中のレアアースを回収する場合、水酸化物沈殿でなくイオンの状態で回収した方が、再利用が容易である。そこで、本研究では、金属と安定な錯体を形成するキレート剤 edta をインターカレートした edta 型 Cu-Al 系層状複水酸化物(edta 型 Cu-Al LDH)を用いた、水溶液中からの  $Sc^{3+}$ 、 $La^{3+}$  および  $Y^{3+}$  の捕捉、並びに速度論および平衡論的解析を行った。また、捕捉後の LDH からのレアアース回収についても検討した。

## 3. 研究の方法

### (1)①銅イオン捕捉の反応速度解析

CA/Cu<sup>2+</sup>モル比 1.0、10°C、20°C、30°Cにおいて CA 型 Mg-Al LDH による Cu<sup>2+</sup>の捕捉を行い、反応速度解析を行った。1.0mM の Cu<sup>2+</sup>の硝酸塩溶液 500mL に、CA 型 Mg-Al LDH を加え、30°C、窒素流通下において、pH を 0.1M HNO<sub>3</sub> 溶液の滴下により 5.0 に保ちながら、60min 攪拌した。所定時間毎にサンプリングを行い、重金属イオン濃度を ICP-AES により決定した。

②キレート剤で修飾した Ni-Al LDH の合成と銅イオンの捕捉 0.08M CA 溶液、0.13M MA 溶液、0.13M TA 溶液各 250mL を窒素流通下において、30°C、300rpm で攪拌しながら、Ni/Al モル比 3.0、 $[Ni^{2+}]+[Al^{3+}]=0.5M$  の Ni-Al 混合硝酸塩溶液 250mL を 10mL/min で滴下した。このとき、pH は 0.5M NaOH 溶液の滴下により 7.0 に保持した。1h 攪拌後、生成物(CA 型、MA 型、TA 型 Ni-Al LDH)を濾過、洗浄、減圧乾燥し、XRD、ICP-AES、HPLC により分析した。Cu<sup>2+</sup>の捕捉は、有機酸イオン/Cu<sup>2+</sup>モル比 2.0 として、合成した Ni-Al LDH を用いて(1)①と同様の方法で行った。

(2)①レアアースの捕捉 単一溶液からのレアアース捕捉挙動を調べるために、共沈法および再生法で合成した edta 型 Cu-Al LDH (Cu/Al=3.0) を 1.0 mM の  $Sc^{3+}$ 、 $La^{3+}$  または  $Y^{3+}$  水溶液 500 ml に、共沈法の場合では edta/ $M^{3+}$ =4.0、再生法では edta/ $M^{3+}$ =3.0 ( $M^{3+}$ :  $Sc^{3+}$  or  $La^{3+}$  or  $Y^{3+}$ ) となるように加え、N<sub>2</sub> 流通下、30°C、300 rpm の条件下で 2 時間攪拌した。各時間(2、6、10、30、60、120 min)で反応溶液 10 ml を分取し、ろ過後、ろ液中の  $Sc^{3+}$ 、 $La^{3+}$  および  $Y^{3+}$  の濃度を ICP-AES により分析した。 $Sc^{3+}$ 、 $La^{3+}$  および  $Y^{3+}$  をそれぞれ 1.0 mM ずつ含む混合水溶液 500 ml に、edta/( $Sc^{3+}+La^{3+}+Y^{3+}$ )=1.0 となるように再生法で合成した edta 型 Cu-Al LDH を加え、単一溶液の場合と同様に実験を行った。

②レアアース捕捉速度および平衡論的解析 レアアース捕捉速度は edta/ $M^{3+}$ =1.0 で、10、20 および 30°C で捕捉実験と同様に検討した。平衡論では LDH 0.2 g をレアアース濃度

0.5~10 mM の溶液 25 mL に、30°C、150 rpm の条件下で投入し、7 d 振とうした。ろ過後、ろ液を ICP-AES により分析し吸着等温線を作成した。

③レアアースの回収 レアアース捕捉後の edta 型 Cu-Al LDH からのレアアース回収を検討するために、Fe<sup>3+</sup>水溶液 10 ml に、単一溶液からレアアースを捕捉した後の edta 型 Cu-Al LDH を 0.2 g 加え、30°C、150 rpm の条件下で 24 h 振とうした。この際、Fe<sup>3+</sup>溶液の濃度は Fe<sup>3+</sup>/edta=1.0 とした。ろ過後、ろ液中の Sc<sup>3+</sup>、La<sup>3+</sup>および Y<sup>3+</sup>の濃度を ICP-AES により分析した。

#### 4. 研究成果

(1)① Cu<sup>2+</sup>捕捉の反応式は C<sub>6</sub>H<sub>5</sub>O<sub>7</sub><sup>3-</sup> + Cu<sup>2+</sup> → Cu(C<sub>6</sub>H<sub>5</sub>O<sub>7</sub>)<sup>-</sup> であると考えられる。本反応は [C<sub>6</sub>H<sub>5</sub>O<sub>7</sub><sup>3-</sup>]/[Cu<sup>2+</sup>] = 1.0 で行っているため、2 次反応式に従うと仮定すると以下の式が成り立つ。

$$-d[\text{Cu}^{2+}]/dt = k[\text{Cu}^{2+}]^2 \quad (1)$$

また、Cu<sup>2+</sup>の初濃度は 1.0mM であるため、(1)式を積分すると以下の式が得られる。

$$1/[\text{Cu}^{2+}] = kt + 1 \quad (2)$$

ここで、Cu<sup>2+</sup>の捕捉率を x とすると、(2)式は 1/(1-x) = kt + 1 と表せる。図 1 に各温度に

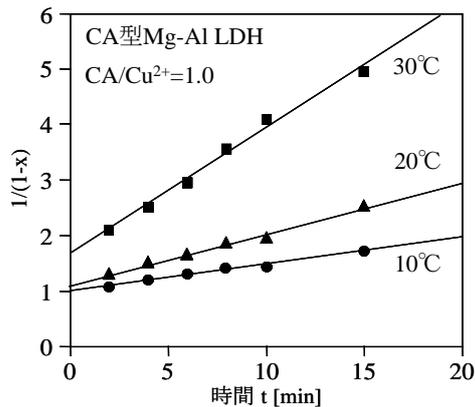


図1 1/(1-x) vs tプロット

おける 1/(1-x) vs t プロットを示す。尚、本反応では、LDH 添加直後に水酸化銅の沈殿生成が考えられるため切片を無視した。30°C において切片の値が 1 から大きくずれているのは、水酸化銅の沈殿生成速度が大きかったためと考えられる。また、直線の傾きから速度定数は 10°C、20°C、30°C においてそれぞれ  $k = 4.8 \times 10^{-2}$ ,  $9.1 \times 10^{-2}$ ,  $2.3 \times 10^{-1} \text{ mM}^{-1} \cdot \text{min}^{-1}$  であり、アレニウスプロットよりこの反応の活性化エネルギーは  $E_a = 55.2 \text{ kJ/mol}$  となった。したがって、この反応は化学反応律速であると考えられる。

(1)② 表 1 に生成物の組成を示す。生成物は、それぞれ CA、MA、TA イオンを層間にインターカレートした Ni-Al LDH であることがわかった。図 2

表1 各Ni-Al LDHの化学組成

生成物	wt%			molar ratio	
	Ni	Al	A	Ni/Al	A/Al
CA型Ni-Al LDH	30.7	5.8	25.8	2.4	0.63
MA型Ni-Al LDH	32.0	6.0	25.0	2.4	0.84
TA型Ni-Al LDH	31.7	5.9	29.7	2.5	0.91

AはCA,MA,TAを表す

に CA 型、MA 型、TA 型 Ni-Al LDH を用いたときの Cu<sup>2+</sup>濃度の経時変化を示す。CA 型 Ni-Al LDH を用いたとき、Cu<sup>2+</sup>濃度は急激に低下したが、MA 型および TA 型については、ほとんど濃度低下は見られなかった。このことから、CA 型 Ni-Al LDH 以外では、有機酸イオンが LDH ホスト層の OH 基と置換され、ホスト層間で架橋構造を形成したため、LDH 層間において有機酸イオンのキレート形成能が低下したと考えられる。図 3 に Cu<sup>2+</sup>捕捉時における LDH からの Ni<sup>2+</sup>および Mg<sup>2+</sup>の溶出率の経時変化を示す。

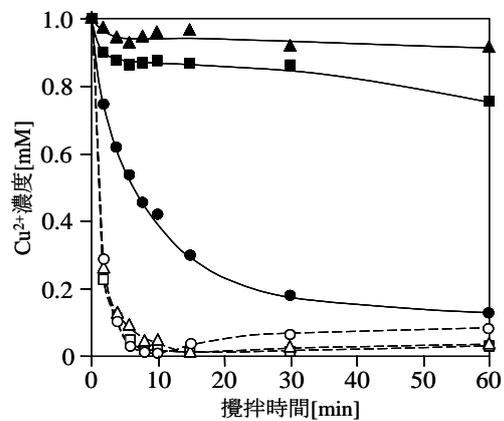


図2 各Ni-Al LDHを用いたときの銅イオン濃度の経時変化

● CA型Ni-Al LDH      ○ CA型Mg-Al LDH  
▲ MA型Ni-Al LDH      △ MA型Mg-Al LDH  
■ TA型Ni-Al LDH      □ TA型Mg-Al LDH

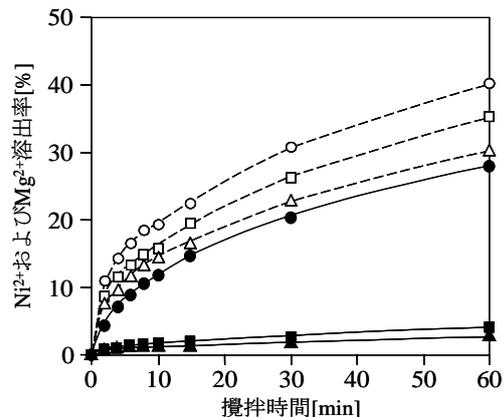


図3 銅イオン捕捉時におけるLDHからのNi<sup>2+</sup>およびMg<sup>2+</sup>溶出率の経時変化

● CA型Ni-Al LDH      ○ CA型Mg-Al LDH  
▲ MA型Ni-Al LDH      △ MA型Mg-Al LDH  
■ TA型Ni-Al LDH      □ TA型Mg-Al LDH

す。Mg-Al LDH と比較して、Ni-Al LDH では、ホスト層 2 価金属の溶出率は、全ての場合において、大きく抑制することができた。このことから、ホスト層の金属を選択することにより、溶解しにくく、かつ溶液中から重金属イオンを捕捉することが可能な LDH を合成できる可能性が示された。

(2)① 図 4 に、単一溶液におけるレアアース捕捉率の経時変化を示す。全ての場合で捕

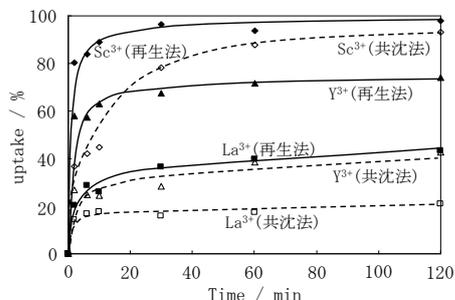


図4 単一溶液におけるレアアース捕捉率の経時変化

率は時間の経過と共に上昇した。edta 型 Cu-Al LDH による  $\text{Sc}^{3+}$ 、 $\text{La}^{3+}$  および  $\text{Y}^{3+}$  の捕捉は、層間での edta とのキレート錯体形成によると考えられる。レアアースの捕捉率を比較すると共沈法および再生法どちらの場合でも  $\text{Sc}^{3+} > \text{Y}^{3+} > \text{La}^{3+}$  となった。これは edta とのキレート錯体の安定度定数 ( $\log K$ ) が  $\text{Sc}^{3+}$  (23.1)  $>$   $\text{Y}^{3+}$  (18.1)  $>$   $\text{La}^{3+}$  (15.5) であることに起因すると考えられる。合成法による捕捉率の違いをみると、全ての場合で再生法により合成した edta 型 Cu-Al LDH の方が、共沈法で合成した場合よりも捕捉率が高かった。共沈法で合成した場合、 $\text{Cu}^{2+}$  と  $\text{Al}^{3+}$  が共沈して LDH を生成する際に、 $\text{Cu}^{2+}$  と edta が錯イオン ( $\log K = 18.8$ ) を形成し、層間にインターカレートされる。再生法の場合では、LDH 仮焼物が溶液中のフリーの edta を取り込み LDH 構造が再生する。従って、LDH 層間にフリーの edta が多い再生法の方が、共沈法よりも捕捉率が高くなったと考えられる。図 5 にレアアースの混合水溶液に LDH を投入した際の  $\text{Sc}^{3+}$ 、 $\text{La}^{3+}$  および  $\text{Y}^{3+}$  の捕捉率の経時変化を示

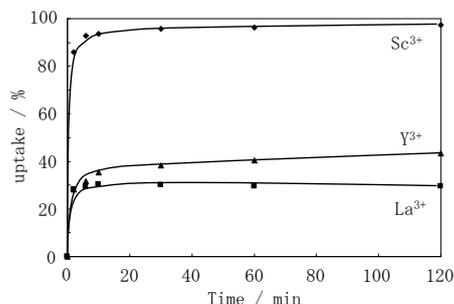


図5 混合溶液におけるレアアース捕捉率の経時変化

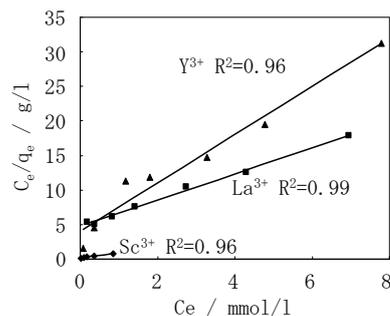


図6 レアアース捕捉のアレニウスプロット

す。時間の経過と共に  $\text{Sc}^{3+}$ 、 $\text{La}^{3+}$  および  $\text{Y}^{3+}$  の捕捉率は上昇した。また、各々の捕捉率の序列は単一溶液と同様に  $\text{Sc}^{3+} > \text{Y}^{3+} > \text{La}^{3+}$  となった。 $\text{Sc}^{3+}$  の捕捉率 98% に対して、 $\text{La}^{3+}$  と  $\text{Y}^{3+}$  の捕捉率はそれぞれ 30%、43% と大きな差が生じており、edta 型 Cu-Al LDH は捕捉において選択性を有することがわかった。

(2)② 反応初期段階における edta 型 Cu-Al LDH によるレアアースの捕捉は、レアアースの LDH 層間への拡散過程が律速であると仮定して、生成物層内拡散律速の式  $1 - 3(1-x)^{2/3} + 2(1-x) = kt$  ( $x$ : 反応率,  $k$ : 速度定数,  $t$ : 時間) を用いて、 $10 \sim 30^\circ\text{C}$  のデータで検討した結果、良好な直線関係が成り立った。これより、本反応における反応初期における律速段階は LDH 層間へのレアアースの拡散過程であるとわかった。その際求めた速度定数を用いたアレニウスプロットを図 6 に示す。直線の傾きから求めたレアアース捕捉における活性化エネルギーは、 $\text{Sc}^{3+}$ 、 $\text{La}^{3+}$  および  $\text{Y}^{3+}$  でそれぞれ 19.6 kJ/mol、36.0 kJ/mol、28.8 kJ/mol となり、拡散律速として妥当な値 (40 kJ/mol 以下) を示した。吸着等温線は Langmuir 式の変形により得られる式  $C_e/q_e = 1/K_L q_m + C_e/q_m$  ( $C_e$ : 平衡濃度,  $q_e$ : 平衡吸着量,  $q_m$ : 飽和吸着量,  $K_L$ : 平衡定数) を適用し、解析を行った (図 7)。良好な直線関係が得られたことから、本反応では edta とレアアースが 1:1 錯体を形成していると考えられる。また、平衡定数  $K_L$  を求めると、 $\text{Sc}^{3+}$ 、

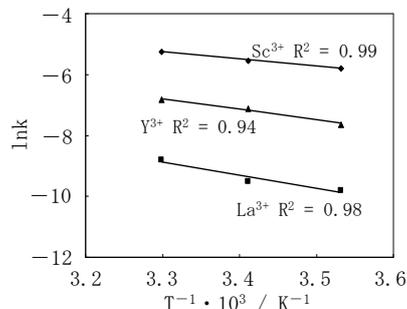


図7 Langmuir フィッティング

La<sup>3+</sup>およびY<sup>3+</sup>で、それぞれ4.4、0.4、0.9となった。これより本反応における見かけの平衡定数の序列は Sc<sup>3+</sup>>Y<sup>3+</sup>>La<sup>3+</sup>となり、レアアース錯体の安定度定数の序列と一致した。

(2)③ Fe<sup>3+</sup>溶液を用いた回収実験の結果、Sc<sup>3+</sup>、La<sup>3+</sup>およびY<sup>3+</sup>の振とう時間24h時の回収率はそれぞれ1%、82%、63%となり、序列はLa<sup>3+</sup>>Y<sup>3+</sup>>Sc<sup>3+</sup>となった。Fe<sup>3+</sup>を用いたレアアースの回収では、図8に示した交換反応によりレアアースが回収できると考えられる。交換反応は、[Fe-edta]錯体の安定度定数が非常に大きい(logK = 25.1)ために起こる反応であり、Fe<sup>3+</sup>よりも安定度定数が小さいLa<sup>3+</sup>とY<sup>3+</sup>は交換反応が進み、回収できたと考えられる。しかし、Sc<sup>3+</sup>は安定度定数が非常に高く、Fe<sup>3+</sup>とあまり差がないため交換反応が起きにくく、あまり回収できなかったと考えられる。

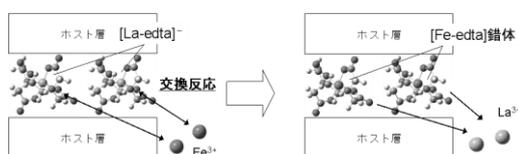


図8 交換反応の模式図

## 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計6件)

- 1) “Preparation of Cu-Al layered double hydroxide intercalated with ethylenediaminetetraacetate by coprecipitation and its uptake of rare earth ions from aqueous solution”, Tomohito Kameda, Kazuaki Hoshi, and Toshiaki Yoshioka, *Solid State Sciences*, **17**, 28-34 (2013). 査読有
- 2) “Thermal decomposition behavior of Cu-Al layered double hydroxide, and ethylenediaminetetraacetate-intercalated Cu-Al layered double hydroxide reconstructed from Cu-Al oxide for uptake of Y<sup>3+</sup> from aqueous solution”, Tomohito Kameda, Kazuaki Hoshi, Toshiaki Yoshioka, *Materials Research Bulletin*, **47**, 4216-4219 (2012). 査読有
- 3) “Ni-Al layered double hydroxides modified with citrate, malate, and tartrate: Preparation by coprecipitation and uptake of Cu<sup>2+</sup> from aqueous solution”, Tomohito Kameda, Hidenori Takeuchi, Toshiaki Yoshioka, *Journal of Physics and Chemistry of Solids*, **72**, 846-851 (2011). 査読有
- 4) “Uptake of Sc<sup>3+</sup> and La<sup>3+</sup> from aqueous

solution using ethylenediaminetetraacetate-intercalated Cu-Al layered double hydroxide reconstructed from Cu-Al oxide”, Tomohito Kameda, Kazuaki Hoshi, Toshiaki Yoshioka, *Solid State Sciences*, **13**, 366-371 (2011). 査読有

5) “Kinetics of uptake of Cu<sup>2+</sup> and Cd<sup>2+</sup> by Mg-Al layered double hydroxides intercalated with citrate, malate, and tartrate”, Tomohito Kameda, Hidenori Takeuchi, Toshiaki Yoshioka, *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*, **355**, 172-177 (2010). 査読有

6) “Preparation of organic acid anion-modified magnesium hydroxides by coprecipitation: A novel material for the uptake of heavy metal ions from aqueous solutions”, Tomohito Kameda, Hidenori Takeuchi, Toshiaki Yoshioka, *Journal of Physics and Chemistry of Solids*, **70**, 1104-1108 (2009). 査読有

[学会発表] (計7件)

- 1) “有機修飾層状複水酸化物による水溶液からの有害物質の捕捉”, 亀田知人, 吉岡敏明, 廃棄物資源循環学会東北支部第4回研究発表会, 仙台 [2012.1.27]
- 2) “edta型Cu-Al系層状複水酸化物を用いたキレート錯体生成によるレアアースの捕捉”, 星和暁, 亀田知人, 吉岡敏明, 無機マテリアル学会第123回学術講演会, 佐賀 [2011.11.17]
- 3) “Uptake of rare earth metal from aqueous solution using copper-aluminium layered double hydroxides intercalated with EDTA”, K. Hoshi, T. Kameda, T. Yoshioka, 16<sup>th</sup> International Symposium on Intercalation Compounds (ISIC16), Sec-Ustupky, Czech Republic [2011.5.24]
- 4) “edta型Cu-Al系層状複水酸化物による水溶液からのレアアースの回収”, 星和暁, 亀田知人, 吉岡敏明, 日本化学会第91春季年会, 講演予稿集 [2011.3.11]
- 5) “edta型Cu-Al系層状複水酸化物によるSc<sup>3+</sup>およびLa<sup>3+</sup>の捕捉”, 星和暁, 亀田知人, 吉岡敏明, 無機マテリアル学会第121回学術講演会, 仙台 [2010.11.4]
- 6) “UPTAKE OF HEAVY METAL IONS FROM AQUEOUS SOLUTION BY Mg-AL LAYERED DOUBLE HYDROXIDES INTERCALATED WITH ORGANIC ACID ANIONS, AND ITS KINETICS”, T. Kameda, H. Takeuchi, T. Yoshioka, 2010 SEA-CSSJ-CMS Trilateral Meeting on Clays (2010TMC), Seville, Spain [2010.6.10]
- 7) “有機修飾層状複水酸化物の合成と水環

境保全・浄化への応用”，亀田知人，平成21年度化学系学協会東北大会，郡山 [2009.9.19]

〔図書〕（計1件）

1) “Hybrid Inorganic-organic Composites of Layered Double Hydroxides Intercalated with Organic Acid Anions for the Uptake of Hazardous Substances from Aqueous Solution”，Tomohito Kameda，Toshiaki Yoshioka，METAL, CERAMIC AND POLYMERIC COMPOSITES FOR VARIOUS USES, INTECH, Chapter 6, pp.123-148 (2011).

〔解説〕（計1件）

1) “有機修飾層状複水酸化物による重金属イオンの捕捉”，亀田知人，吉岡敏明，Journal of the Society of Inorganic Materials, Japan, **19**, 126-132 (2012).

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

亀田 知人 (KAMEDA TOMOHITO)  
東北大学・大学院工学研究科・准教授  
研究者番号：60333895

### (2) 研究分担者

( )

研究者番号：

### (3) 連携研究者

( )

研究者番号：