

令和 2 年 5 月 24 日現在

機関番号：10101

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2017～2019

課題番号：17H03381

研究課題名(和文)希土類元素含有ガラス中のプロトンキャリアの超安定化；中温域燃料電池の新展開

研究課題名(英文)Stabilization of proton carriers in rare-earth elements containing glasses; new developments of intermediate-temperature fuel cells

研究代表者

西井 準治(Nishii, Junji)

北海道大学・電子科学研究所・教授

研究者番号：60357697

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,800,000円

研究成果の概要(和文)：250～500 の中温域で作動する燃料電池(中温域 FC)に搭載可能な高いプロトン伝導度を示す電解質の開発を目指した。ガラス中のアルカリイオンをプロトンに置換する独自の手法(APS法)を用い、これまで検討してきた希土類元素含有リン酸塩ガラスの組成の絞り込みと、高いプロトン伝導度の長時間維持の2つの課題に取り組んだ。その結果、310 で0.002S/cmの伝導度を500時間維持できたが、その後は分相、結晶化が進行し、伝導度が低下した。一方、四重極型質量分析法で見積もったガラスからの水分子の離脱温度は450 以上であったことから、更なる組成改良による伝導特性の向上が期待される。

研究成果の学術的意義や社会的意義

従来、電解質としてのガラスは結晶材料に比べて劣ると認識されてきたが、申請者らは独自に開発したプロトン導入法により、これを覆す成果を得ており、本研究はその基礎をなすものである。本研究の実施によって得られるプロトン伝導体は、中温域燃料電池の実現だけでなく水蒸気電解や水素分離へも応用可能であり、その効果はエネルギー関連技術全体へと波及する。本研究の成果は、エネルギーシステム構築に必要な基盤技術とそれを支える基礎科学に大きな進展をもたらし、学術上はもちろんのこと、エネルギー問題に直面する社会の未来に対しても有益な礎を築くことが期待される。

研究成果の概要(英文)：The purpose of this study is the development of high proton conductive electrolyte glass for the intermediate temperature fuel cell operating between 250-500 . Using our original alkali-proton substitution method (APS), following two research issues were conducted; (1) optimization of composition of phosphate glass containing rare-earth elements, (2) sustention of high proton conductivity for long time. A phosphate glass containing 35 mol% NaO<sub>1/2</sub> and 5 mol% GdO<sub>3/2</sub> exhibited the conductivity of 0.002 S/cm for 500 h at 310 . The phase separation and subsequent crystallization were occurred after 500 h. On the other hand, the quadrupole mass spectrometry revealed that the desorption temperature of H<sub>2</sub>O molecule from the glass were located above 450 . Therefore, the progress of proton conductivity is expected by the further composition improvement.

研究分野：無機材料科学

キーワード：酸化物 ガラス イオン イオン伝導 プロトン プロトン伝導 結晶化 分相

1. 研究開発当初の背景

(1) 100 以下で作動する高分子型燃料電池(PEFC)や 600 以上で作動する固体酸化物型燃料電池(SOFC)など、燃料電池に期待が寄せられているが、作動温度が 250~500 の燃料電池(中温域 FC)は、バイオマス由来のメタノールやエタノールを燃料として使用でき、貴金属触媒も不要になる。しかしながら、現状の研究の延長線上には電解質の候補が存在しない。したがって、『新規電解質材料の探索』とそれを可能とする『伝導性プロトン導入プロセスの開拓』が不可欠である。

(2)我々は、中温域で高いプロトン伝導度を維持するガラス電解質の開発に注力する中で、リン酸塩ガラス中の Na<sup>+</sup>をプロトンに置換する独自の手法(APS法)を開発し、500 付近で 3×10<sup>-3</sup> S/cm のプロトン伝導度を示す希土類含有リン酸塩ガラスが存在することを見出した<sup>(1)</sup>。この結果に基づいてガラス組成をさらに絞り込めば、中温域において高い伝導度(10<sup>-2</sup> S/cm 以上)と熱的・化学的安定性に優れたプロトン伝導体が得られる可能性が高まったと判断し、本研究を開始した。

2. 研究の目的

(1)高プロトンキャリア濃度のガラス組成の探索

APS法を用いれば、希土類含有リン酸塩ガラスにプロトンを導入することができるが、これまでの導入の限界は 30 mol%であった、本研究では、プロトン濃度が 35 mol%のガラスを得ることを目指して、APS処理が可能な組成系を開拓する。

(2)中温域におけるプロトンの超安定化に向けたガラス組成の絞り込み

ガラス中へ導入された大量のプロトンが中温域でどの程度の熱的安定性を示すのか、これまで十分な調査がされていない。そこで、プロトン伝導度の経時変化や高感度質量分析などを駆使して、プロトンの超安定化に向けた組成の絞り込みに取り組む。

3. 研究の方法

高いプロトンキャリア濃度を目指して、母ガラス中のナトリウム含有量が高いガラスを開発する。図1に示すように、事前調査では NaO<sub>1/2</sub> の含有量を増加させると、APS処理後のガラスの結晶化に対する安定領域(=キャリアが安定な領域)が希土類イオン半径の大きな方向へ移動する可能性があった。そこで希土類イオン半径をパラメータとして APS後のガラスの結晶化に対する熱的安定性、プロトン伝導度、キャリアとしての熱的安定性を詳細に調べる。また、プロトンの脱離現象(実際には H<sub>2</sub>O 分子の脱離)を四重極型質量分析で調べる。

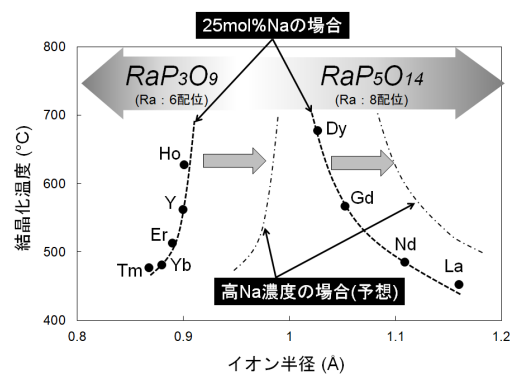


図1 リン酸塩ガラス中の希土類元素のイオン半径と結晶化開始温度との関係(結晶化温度はTG-DTAで測定)

4. 研究成果

これまで、APS後のガラスにおける結晶化に対する熱的安定性を改善することを目的として 25NaO<sub>1/2</sub>-8LaO<sub>3/2</sub>-67PO<sub>5/2</sub> (mol%)ガラスをベースとして、少量の GeO<sub>2</sub> の添加が APS中における結晶化の抑止に効果があることを見出した<sup>(2)</sup>。さらに、アルカリ土類酸化物の添加、及び

希土類酸化物の種類が APS 後のガラスの熱的安定性に影響することを明らかにした。その後、キャリア濃度を増加させるため、 $30\text{NaO}_{1/2}-3\text{MgO}-7\text{REO}_{3/2}-3\text{GeO}_2-57\text{PO}_{5/2}$  ( $\text{RE} = \text{La}, \text{Nd}, \text{Gd}, \text{Dy}, \text{Y}, \text{Yb}$ ) へと組成改良を進めた。

本研究では、更なるガラスの熱的安定性の向上に向けて、 $35\text{NaO}_{1/2}-2\text{RO}-5\text{REO}_{3/2}-5\text{GeO}_2-53\text{PO}_{5/2}$  ( $\text{R}=\text{Mg}, \text{Ca}, \text{Sr}, \text{Ba}$ ;  $\text{RE}=\text{La}, \text{Gd}$ , 以下  $2\text{R}5\text{RE}$  と表記) からなる組成のガラスにおいて、APS 前後の熱物性の評価とプロトン伝導度の長時間測定を実施した。

### (1) 熱物性

APS 前後の  $2\text{R}5\text{RE}$  のガラス転移点( $T_g$ )の値を  $\text{R}^{2+}$  のイオン半径によって整理した結果を図 2 に示す。いずれの組成のガラスにおいても、APS 前後において  $T_g$  が  $200^\circ\text{C}$  以下まで低下した。また、APS 前後のガラスにおいて、 $\text{R}^{2+}$  のイオン半径が大きくなるにつれて  $T_g$  が低下した。一方、APS 前のガラスにおいては、 $T_g$  は  $\text{RE}$  の種類に依存しないが、APS 後においては  $\text{La}$  含有ガラスの  $T_g$  が  $\text{Gd}$  含有ガラスよりも  $5 \sim 10^\circ\text{C}$  高い傾向が見られた。

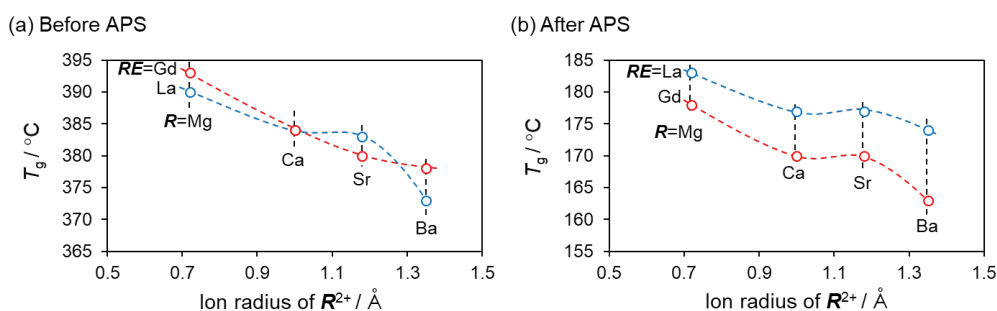


図 2 APS 前後の  $2\text{R}5\text{RE}$  のガラス転移点のアルカリ土類元素依存性

### (2) ガラス構造

図 3 に APS 前後の  $2\text{R}5\text{RE}$  のラマン散乱スペクトルを示す。POP 対称伸縮振動、POP 非対称伸縮振動、OPO 対称伸縮振動、及び OPO 非対称伸縮振動に帰属されるピークが見られた。APS 後はこれらのピークが高波数側へシフトし、 $\text{P}=\text{O}$  伸縮振動のピークが新たに現れた。これは、APS 前はイオン半径の大きな  $\text{Na}^+$  に  $6 \sim 8$  個の酸素イオンが配位しているために、 $\text{PO}_4$  ユニットの対称性が高い (OPOs ピークの半値幅が狭い) が、プロトンに入れ替わると  $\text{PO}_4$  ユニット中の 1 つの酸素とプロトンが  $\text{P}-\text{OH}$  結合を形成するため、対称性が下がることに起因す

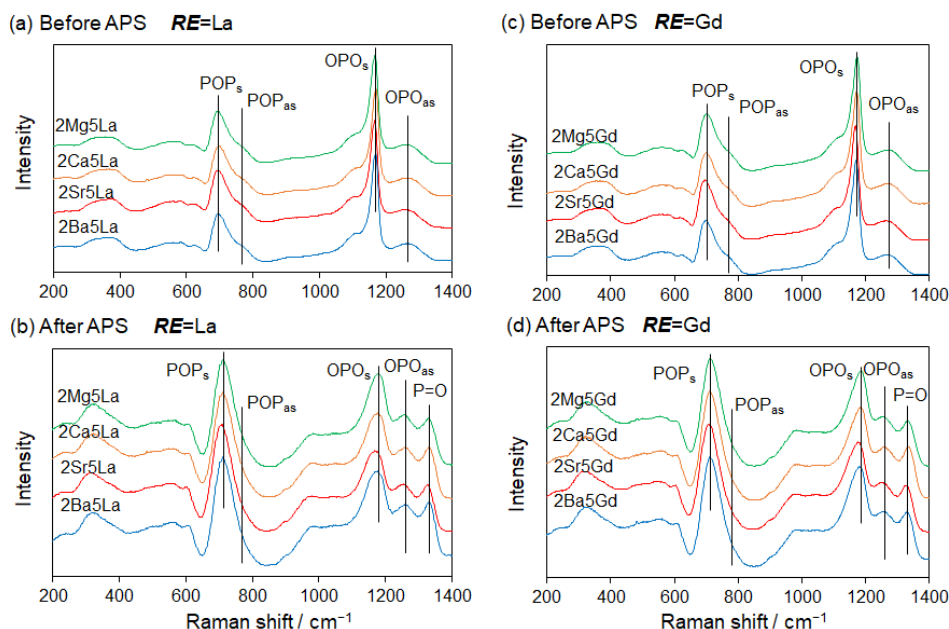


図 3 APS 前後の  $2\text{R}5\text{RE}$  のラマン散乱スペクトル

ると考えられる。

### (3)OH 基の熱的安定性

APS 法によって  $\text{Na}^+$  と置換されたプロトンは、P-OH 結合を形成してリン酸塩ガラス中に存在するが、中温域でのその安定性に関する報告は存在しない。APS 後のガラスを加熱すると脱水縮合が進行し、2 つの P-OH から 1 つの水分子が脱離すると考えられる。そこで、四重極型質量分析法で水分子が脱離し始める温度を測定した。測定結果を図 4 に示す。図中の矢印は  $\text{H}_2\text{O}$  の脱離開始点を示している。いずれのガラスでも、450 以上まで OH 基は内部に留まっていることがわかる。また、Sr および Ba を含有するガラスでは、 $T_g$  が高い La 含有ガラスの方が Gd 含有ガラスよりも低温で急激に  $\text{H}_2\text{O}$  の脱離が起こった。すなわち、OH 基の熱的安定性においては  $R=\text{Sr}$ 、Ba、 $\text{RE}=\text{Gd}$  の組み合わせが優れていると考えられる。なお、それぞれの脱離曲線に見られる小さな鋭いピークは、ガラスが過冷却液体状態になり水蒸気の泡が発生したためである。すなわち、これらのガラスは高温での長時間の測定中においても結晶化しにくいことが確認された。

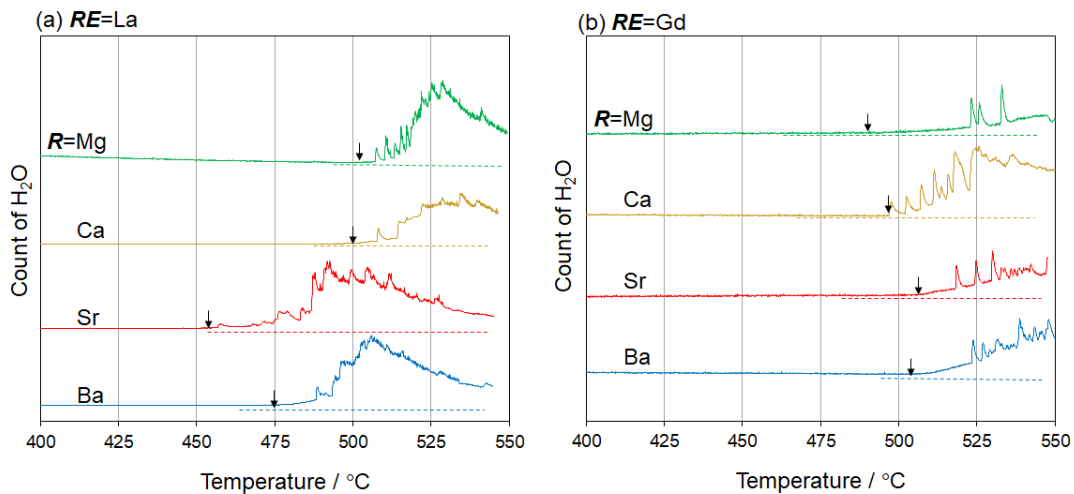


図 4 2R5RE ガラスの過冷却液体状態での水分子脱離プロファイル  
(昇温速度=80 )

### (4)プロトン伝導度の長時間測定

2R5Gd 系ガラスは、APS 後の熱的安定性に優れていることが明らかになったことから、交流インピーダンス法を用いて、これらのガラスのプロトン伝導度の長時間測定を行った。電極としてスパッタ法で成膜した白金(厚み 100nm)を用いた。結果を図 5 に示す。 $T_g$  付近での伝導度は  $10^{-4} \text{ S/cm}$  程度であり、輸率測定によりキャリアはプロトンであることを確認した。一方、伝導度が  $10^{-3} \text{ S/cm}$  以上を示す 310 の過冷却液体状態では、一定時間経過後に伝導度が上昇し、その後、低下する現象が見られた。

伝導度の変化の要因を調べるために、APS 後の 2R5Gd ガラスを 400 の窒素雰囲気中で熱処理した後の断面を光学顕微鏡で観察した。代表例として 4 時間の熱処理後のサンプルの断面を図 6 に示す。いずれのガラスにおいても分相が起こっており、Ba 含有ガラスにおいてはその進行が最も遅く、続いて Ca 含有ガラスであった。また、分相領域のラマンスペクトルを測定した結果、 $900\text{cm}^{-1}$  付近に  $\text{H}_3\text{PO}_4$  のピークが確認された。さらに、SEM-EDS による分析の結果、Ge の濃度が高い粒子が析出していた。

以上のように、過冷却液体状態においても 500 時間以上もの長時間に渡って分相・結晶化することなく、高いプロトン伝導度を維持する組成を見出した。わずか 2 mol% のアルカリ土類

元素の種類がガラスの結晶化に大きく影響するが、その傾向はそのイオン半径では整理できない。高温域において更なる長時間のプロトン伝導を達成するために、結晶化に影響する要因の更なる解明に取り組む必要がある。

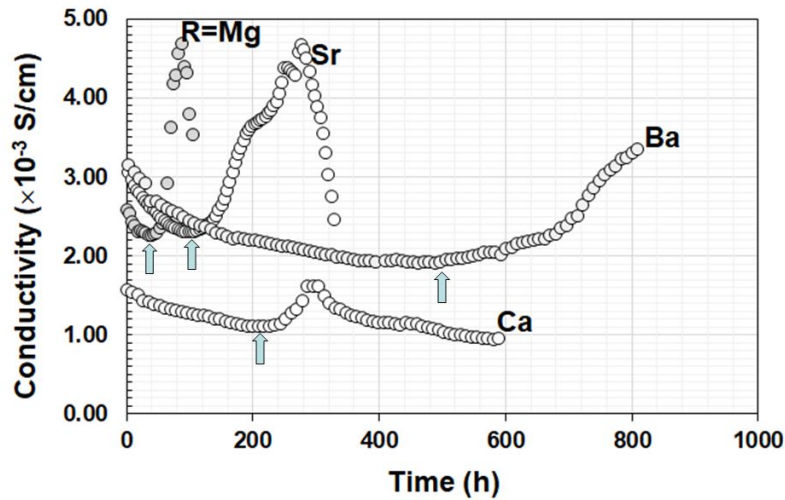


図 5 310 における 2R5Gd のプロトン伝導度の長時間測定結果 (矢印は分相が始まる温度)

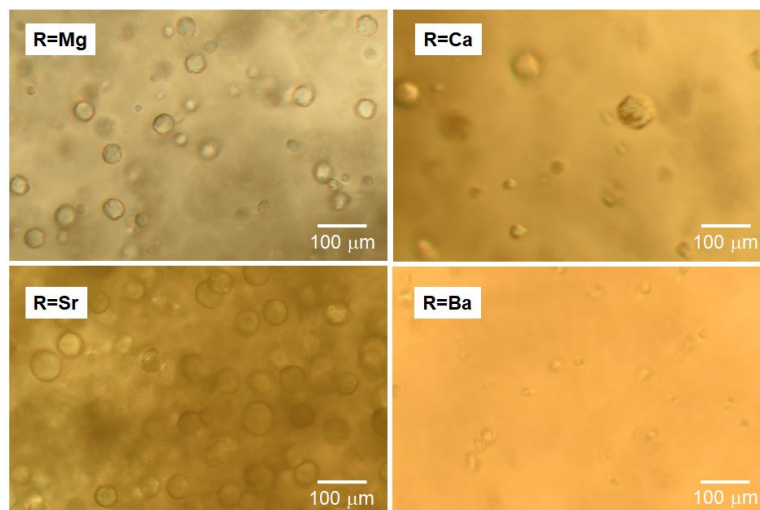


図 6 2R5Gd を 400 、4 時間アニール後の断面写真

#### 参考文献

- (1) Thermal stability and proton conductivity of densely proton injected phosphate glasses containing rare-earth elements, A. Miyazaki, T. Kinoshita, T. Tatebayashi, T. Fang, Y. Ren, T. Ishiyama, T. Yamaguchi, T. Omata, M. Fujioka, K. Hideo, G. Zhao, J. Nishii, *J. Non-Cryst. Solids*, **541**(2020)120064.
- (2) Phase separation and crystallization in sodium lanthanum phosphate glasses induced by electrochemical substitution of sodium ions with protons, K. Kawaguchi, T. Yamaguchi, T. Omata, T. Yamashita, H. Kawazoe, J. Nishii, *Phys. Chem. Chem. Phys.*, **17**(2015)22855.

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計11件（うち査読付論文 11件/うち国際共著 2件/うちオープンアクセス 10件）

1. 著者名 D. Sakai, K. Harada, H. Shibata, K. Kawaguchi, J. Nishii	4. 巻 14
2. 論文標題 Surface relief hologram formed by selective SiO <sub>2</sub> deposition on soda-lime silicate glass	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 PLoS ONE	6. 最初と最後の頁 e0210340
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1371/journal.pone.0210340	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 T. Yamaguchi, S. Tsukuda, T. Ishiyama, J. Nishii, T. Yamashita, H. Kawazoe, T. Omata	4. 巻 6
2. 論文標題 Proton-conducting phosphate glass and its melt exhibiting high electrical conductivity at intermediate temperatures	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Journal of Materials Chemistry A	6. 最初と最後の頁 23628-23637
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1039/C8TA08162J	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 T. Kinoshita, A. Miyazaki, K. Kawaguchi, D. Sakai, T. Yamaguchi, T. Omata, T. Ishiyama, M. Fujioka, H. Kaiju, J. Nishii	4. 巻 428
2. 論文標題 Dense proton injection into phosphate glasses using corona discharge treatment	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Applied Surface Science	6. 最初と最後の頁 718-722
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.apsusc.2017.09.186	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 T. Yamaguchi, T. Kataoka, S. Tsukuda, T. Ishiyama, J. Nishii, T. Yamashita, H. Kawazoe, T. Omata	4. 巻 19
2. 論文標題 Mobility of Proton Carriers in Phosphate Glasses Depends on Polymerization of Phosphate Framework	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Physical Chemistry Chemical Physics	6. 最初と最後の頁 29669-29675
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1039/C7CP05241C	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 S. Tsukuda, K. Miyake, T. Yamaguchi, M. Kita, T. Ishiyama, J. Nishii, T. Yamashita, H. Kawazoe, T. Omata	4. 巻 56
2. 論文標題 Formation of Amorphous H3Zr2Si2P012 by Electrochemical Substitution of Sodium Ions in Na3Zr2Si2P012 with Protons	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Inorganic Chemistry	6. 最初と最後の頁 13949-13954
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.inorgchem.7b02060	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 W. Bian, Y. Chen, W. Huang, G. Zhao, J. Nishii, H. Kaiju, M. Fujioka, L. Li, N. Li, F. Yan	4. 巻 43
2. 論文標題 Effect of F/Ba ratio of precursor solution on the properties of solution-processed YBCO superconducting films	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Ceramics International	6. 最初と最後の頁 8433-8439
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.ceramint.2017.03.193	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 該当する

1. 著者名 T. Yamaguchi, Y. Saito, Y. Kuwahara, H. Yamashita, T. Ishiyama, J. Nishii, T. Yamashita, H. Kawazoe, T. Omata	4. 巻 5
2. 論文標題 Effect of alkaline-earth species in phosphate glasses on mobility of proton carriers	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Journal of Materials Chemistry A	6. 最初と最後の頁 12385-12392
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/C7TA01475A	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 N. Kubo, N. Ikutame, M. Takei, W. Bian, S. Ikeda, K. Yamamoto, K. Uraji, T. Misawa, M. Fujioka, H. Kaiju, G. Zhao, J. Nishii	4. 巻 7
2. 論文標題 Nano-imprinting of surface relief gratings on soda-aluminosilicate and soda-lime silicate glasses	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Optical Materials Express	6. 最初と最後の頁 1438-1445
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) org/10.1364/OME.7.001438	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 該当する

1. 著者名 T. Ishiyama, H. Kishimoto, K. Yamaji, T. Yamaguchi, J. Nishii, T. Yamashita, H. Kawazoe, T. Omata	4. 巻 44
2. 論文標題 Transport properties of proton conducting phosphate glass: An electrochemical hydrogen pump enabling the formation of dry hydrogen gas	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Int. J. Hydrogen Energy	6. 最初と最後の頁 24977-24984
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.ijhydene.2019.07.213	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 T. Omata, T. Yamaguchi, S. Tsukuda, T. Ishiyama, J. Nishii, T. Yamashita, H. Kawazoe	4. 巻 21
2. 論文標題 Proton transport properties of proton-conducting phosphate glasses at their glass transition temperatures	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Phys. Chem. Chem. Phys.	6. 最初と最後の頁 10744 - 10749
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/C9CP01502G	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 A. Miyazaki, T. Kinoshita, T. Tatebayashi, T. Fang, Y. Ren, T. Ishiyama, T. Yamaguchi, T. Omata, M. Fujioka, K. Hideo, G. Zhao, J Nishii	4. 巻 541
2. 論文標題 Thermal stability and proton conductivity of densely proton injected phosphate glasses containing rare-earth elements	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 J. Non-Cryst. Solids	6. 最初と最後の頁 120064
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jnoncrysol.2020.120064	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 -

〔学会発表〕 計11件 (うち招待講演 0件 / うち国際学会 4件)

1. 発表者名 館林 堯、Fang Tong、Fang Xinxiong、藤岡 正弥、海住 英生、Zhao Gaoyang、西井 準治
2. 発表標題 希土類含有リン酸塩ガラスのプロトン伝導性と熱的安定性
3. 学会等名 日本セラミックス協会2019年年会
4. 発表年 2019年



1. 発表者名 館林 堯、Fang Xinxiong、藤岡 正弥、海住 英生、Zhao Gaoyang、西井 準治
2. 発表標題 希土類及びアルカリ土類含有リン酸塩ガラスのプロトン伝導度の長時間維持
3. 学会等名 化学系学協会北海道支部2019年冬季研究発表会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 T. Tatebayashi, X. Fang, M. Fujioka, H. Kaiju, G. Zhao, J. Nishii
2. 発表標題 Thermal stability of high-proton-conductive phosphate glasses containing rare earth elements
3. 学会等名 The 19th RIES-HOKUDAI International Symposium (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 館林 堯、Fang Xinxiong、藤岡 正弥、海住 英生、Zhao Gaoyang、西井 準治
2. 発表標題 Nb添加リン酸塩ガラスにおける高プロトン伝導性の長時間維持
3. 学会等名 平成30年度日本セラミックス協会東北北海道支部研究発表会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 館林 堯、Fang Xinxiong、Bian Weibai、藤岡 正弥、海住 英生、Zhao Gaoyang、西井 準治
2. 発表標題 リン酸塩ガラスにおけるプロトン伝導特性と含有プロトン濃度の相関
3. 学会等名 化学系学協会北海道支部2018年冬季研究発表会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 T. Tatebayashi, T. Yamaguchi, M. Fujioka, H. Kaiju, T. Omata, J. Nishii
2. 発表標題 Effect of alkaline-earth and rare-earth ions on proton conductivity of phosphate
3. 学会等名 The 18th RIES-HOKUDAI International Symposium (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 館林 晃, Bian Weibai, 山口 拓哉, 藤岡 正弥, 海住 英生, 小俣 孝久, 西井 準治
2. 発表標題 リン酸塩ガラスのプロトン伝導におけるアルカリ土類及び希土類イオンの影響
3. 学会等名 第49回日本セラミックス協会ガラス部会夏季若手セミナー
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 館林 晃, Bian Weibai, 藤岡 正弥, 海住 英生, 西井 準治, 山口 拓哉, 小俣 孝久
2. 発表標題 リン酸塩ガラスのプロトン伝導におけるアルカリ土類及び希土類イオンの影響
3. 学会等名 日本化学会北海道支部2017年夏季研究発表会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 T. Fang, Y. Ren, M. Jeem, 藤岡正弥, 小野円佳, 西井準治
2. 発表標題 Thermal Stability of Proton Conductive Phosphate Glasses
3. 学会等名 The 13th Pacific Rim Conference of Ceramic Societies(PACRIM13) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 T. Fang, Y. Ren, M. Jeem, 藤岡正弥, 小野円佳, 西井準治
2. 発表標題 希土類元素を含有するプロトン伝導リン酸塩ガラスの熱的安定性
3. 学会等名 令和元年度 日本セラミックス協会 東北北海道支部研究発表会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Y. Ren, M. Fujioka, M. Jeem, T. Kinoshita, T. Fang, Y. Tanabe, G. Zhao, J. Nishii
2. 発表標題 Effect of GeO2 additive on the properties of phosphate proton conductors prepared by alkali-proton substitution approach
3. 学会等名 The 20th RIES-HOKUDAI International Symposium (国際学会)
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
研究分担者	藤岡 正弥  (Fujioka Masaya)  (40637740)	北海道大学・電子科学研究所・助教   (10101)	
研究分担者	海住 英生  (Kaiju Hideo)  (70396323)	北海道大学・電子科学研究所・准教授   (10101)	
研究分担者	小俣 孝久  (Omata Takahisa)  (80267640)	東北大学・多元物質科学研究所・教授   (11301)	