

# ダイヤモンドヒーター付き DAC を用いた 超伝導体の高圧合成およびその場物性・構造解析 High-pressure synthesis and in-situ analysis of physical properties and crystal structure in superconductors using DAC with diamond heater

松本凌<sup>1\*</sup>, 山根 和樹<sup>1,2</sup>, 寺嶋健成<sup>1</sup>

<sup>1</sup>物質・材料研究機構 ナノアーキテクトニクス材料研究センター  
〒305-0047 茨城県つくば市千現 1-2-1

<sup>2</sup>筑波大学, 〒305-8577 茨城県つくば市天王台 1-1-1

Ryo MATSUMOTO<sup>1,\*</sup> Kazuki YAMANE<sup>1,2</sup>, and Kensei Terashima<sup>1</sup>

<sup>1</sup> National Institute for Materials Science, MANA, 1-2-1 Sengen, Tsukuba, Ibaraki 305-0047, Japan

<sup>2</sup> University of Tsukuba, 1-1-1 Tennoudai, Tsukuba, Ibaraki 305-8577, Japan

## 1 はじめに

近年発見された水素化物高温超伝導体に代表されるように、高圧力下での機能性物質探索に注目が集まっている。しかしながら、高圧力下で合成した物質の構造が常圧まで保たれず、結晶構造や物性を評価できないケースも多々ある。我々は、高圧力発生装置であるダイヤモンドアンビルセル (DAC) のアンビル上に、任意形状に成型したホウ素ドープダイヤモンドのエピタキシャル薄膜をパターンニングすることで、高圧力下で合成を行った後、その場で物性測定を行うことが可能な仕組みを開発した[1]。この装置では、一般的に電極として用いられる、X線吸収率の高い重金属類使用せず、試料空間にはダイヤモンドしか存在しないため、その場 X線回折 (XRD) 測定にも有利と考えられる。実際、2023 年度までのビームタイムでは、Th<sub>3</sub>P<sub>4</sub> 型構造を有する新規超伝導体の物質群を、電気抵抗測定と XRD 分析を同一試料室で行うことにより、発見した [2]。特に昨年度である 2023 年度は、Th<sub>3</sub>P<sub>4</sub> 型構造の超伝導体の中で最高の超伝導転移温度 ( $T_c$ ) を示す In<sub>3-x</sub>S<sub>4</sub> を発見し、構造と物性の関係を調べた。

## 2 実験

図 1 にダイヤモンドヒーター付き DAC の模式図を示す。片側のアンビルには物性測定用の電極、試料合成用のヒーター及び温度計がパターンニングされており、それぞれホウ素ドープダイヤモンドから成る。この電極上に合成したい試料の原材料を載せ、BN などの圧力媒体と共に DAC に封入・加圧する。合成を行いたい圧力に到達したのち、原材料の物性を知るために低温まで電気抵抗の温度依存性を測定する。その後、ダイヤモンドヒーターを利用して電気抵抗測定を行いながら加熱する。目標温度で数分保持するか、加熱途中で物性が大きく変化した場合は、投入電力を減少させて冷却する。本研究では、原料として In<sub>2</sub>S<sub>3</sub> を DAC 内に封入して、40 GPa 以上の圧力で 800°C 程度まで加熱することで、In<sub>3-x</sub>S<sub>4</sub> の合成を試みた。合成に用いた DAC を PF-AR-NE1A (KEK) のビームラインに持ち込み、物性測定を行ったものと同一試料での XRD 測定を行った。

## 3 結果および考察

図 2 に合成した In<sub>3-x</sub>S<sub>4</sub> の XRD パターンを示す。すべての回折線は目的相と圧力伝達媒体で指数付けされ、In<sub>3-x</sub>S<sub>4</sub> の合成に成功した。リートベルト解析の結果、高圧合成を行う際の合成温度と In の欠損量  $x$

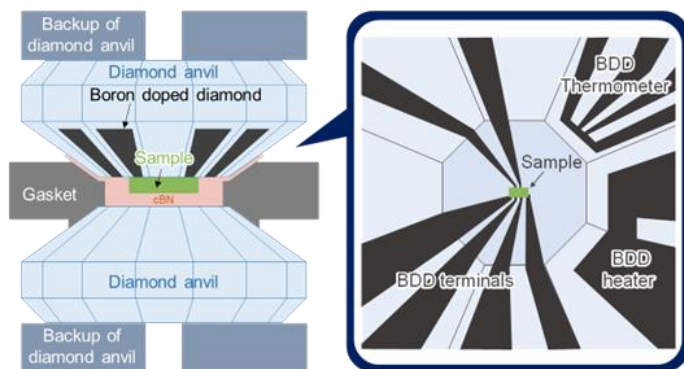


図 1 : 開発した DAC の模式図。

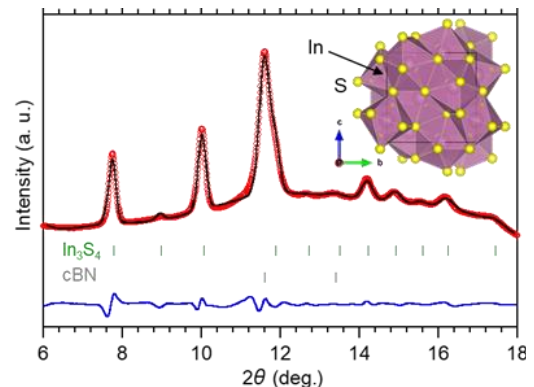


図 2 : 合成した In<sub>3-x</sub>S<sub>4</sub> の回折パターン

に相関があり、高温側のほうが  $\text{In}_3\text{S}_4$  に近づくことが示唆された。合成した  $\text{In}_{3-x}\text{S}_4$  の電気抵抗測定を行ったところ、 $T_c$  が 15 K を超える、比較的優れた超伝導体であることが分かった。今後は、In の欠損量と超伝導特性の関係を調べるため、様々な合成条件試料に対する XRD 測定を行っていく予定である。

#### 4 まとめ

2023 年度は、新規の高温超伝導体発見の可能性を示唆する結果が得られた。2024 年度の課題では、でーたの裏付けや再現実験を行い、ハイインパクト雑誌への成果発表を狙っていく。

#### 謝辞

本研究の遂行にあたり、柴崎 裕樹 博士をはじめとしたビームラインスタッフの皆様、ビームラインユーザーの皆様より多大なるご支援を賜りました。この場をお借りして、感謝申し上げます。

#### 参考文献

- [1] R. Matsumoto et al., Appl. Phys. Lett. 119, 053502 (2021).
- [2] R. Matsumoto et al., Inorg. Chem. 61, 4476 (2022).

\* MATSUMOTO.Ryo@nims.go.jp