

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^{1*}, 山根 和樹^{1,2}, 大隈 理央¹, 董 拓^{1,3}, 酒井 智香子¹, 寺嶋健成¹

¹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

²筑波大学, 〒305-8577 茨城県つくば市天王台 1-1-1

³東京理科大学, 〒125-8585 東京都葛飾区新宿 6-3-1

Ryo MATSUMOTO^{1,*}, Kazuki YAMANE^{1,2}, Masahiro OHKUMA¹, Tou TAKU^{1,3}, Chikako SAKAI¹, and Kensei Terashima¹

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

² University of Tsukuba, 1-1-1 Tennoudai, Tsukuba, Ibaraki 305-8577, Japan

³ Tokyo University of Science, 6-3-1 Shinjuku, Katsushika, Tokyo 125-8585, 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、2021 年度のビームタイムでは、この装置を用いて新規超伝導体

Sn_3S_4 の合成、構造決定、物性測定を同一セル内で行うことに成功した[2]。

2022 年度は、これまで培ってきたノウハウを活かして、 Sn_3S_4 の関連物質である Sn_3Se_4 や Ge_3S_4 、 Si_3S_4 の合成と構造決定、物性測定を目指して検討を進めた。

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

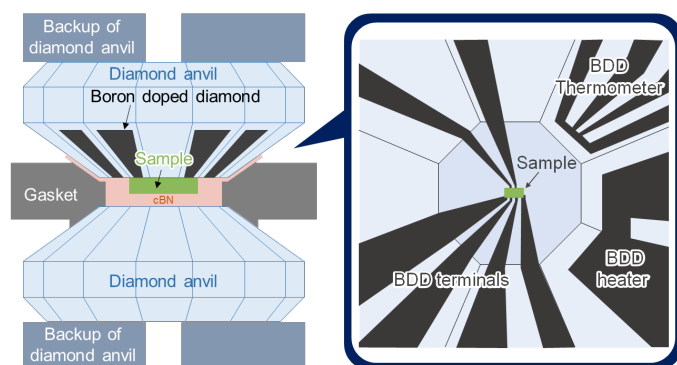


図 1 : 開発した DAC の模式図。

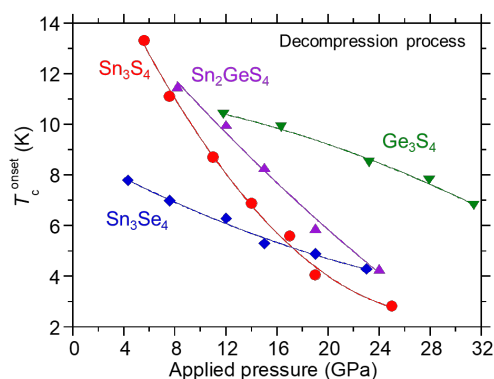


図 2 : 合成した物質の超伝導特性。

する。その後、ダイヤモンドヒーターを利用して700°C程度まで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。室温まで冷却後、再度低温まで電気抵抗の温度依存性を測定し、物性の変化、特に超伝導の有無を調べた。このセルをPF-AR NE-1A (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 Sn_3S_4 と同型構造の物質における超伝導転移温度 T_c の圧力依存性を示す。 Sn_3S_4 のカチオン・アニオンをそれぞれ近隣元素に置換した場合でも、負の圧力依存性を持つ T_c が観測された。これまでの検討から、 Sn_3S_4 はBSC型を前提とした第一原理計算による超伝導特性と良く一致しており、今回得られた関連物質もBCS型であると考えられる。今後は、Snを他族元素へと置換した系の合成にも挑戦する予定である。

4 まとめ

2022年度は、2021年度から構築し始めたヒーター付きDACによる電気抵抗・XRDの同時測定についての実施例を拡充することができた。今後は、より広い物質系への展開や、ハッチ内でのその場試料合成などへも取り組んでいきたい。

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