

令和 4 年 6 月 16 日現在

機関番号：82108

研究種目：研究活動スタート支援

研究期間：2020～2021

課題番号：20K22420

研究課題名（和文）繰り返し使用可能な極限環境反応場を有する物性測定プラットフォームの構築

研究課題名（英文）Reusable platform for physical property measurements under extreme conditions

研究代表者

松本 凌（MATSUMOTO, Ryo）

国立研究開発法人物質・材料研究機構・若手国際研究センター・ICYS研究員

研究者番号：10883960

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 2,200,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、高温・高圧環境を発生し、さらにその場で試料の物性測定を行える材料合成プラットフォームの開発を目指した。2年間の成果として、高圧発生のためのダイヤモンドアンビル上に、導電性のホウ素ドーパダイヤモンドから成る加熱用電極、温度測定用電極、および物性測定用電極を微細加工することに成功した。さらに、ダイヤモンドアンビル自体が割れてしまわない限り、洗浄して繰り返し使用することも示された。発生可能圧力は50GPa程度、発生可能温度は1000℃程度まで向上した。このプラットフォームを用いて、新規硫化物を合成し、超伝導を示す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

温度と圧力は機能性材料の物性を決定する最も基本的かつ制御可能なパラメータである。本研究で構築したプラットフォームではこれらを簡便に制御しながら、その場で試料の結晶構造や電気抵抗を分析できるため、今後の様々な材料開発に貢献できる。特に近年注目されている水素化物高温超伝導体の探索では高温高圧合成や物性測定の難易度の高さがボトルネックであったため、今後の高温超伝導体探索の高効率化に貢献できたと考えている。

研究成果の概要（英文）：In this study, we have developed a materials synthesis platform that can generate high-temperature and high-pressure environments and measure the physical properties of samples under the extreme conditions. As a progress for two years, the conductive boron-doped diamond thin films were fabricated on the diamond anvil for generating high pressure as a heater, thermometer, and electrodes for resistivity measurements. The diamond components showed no degradation even after the high-temperature and high-pressure experiments. The pressure and temperature that can be generated have been improved to about 50 GPa and 1000 °C, respectively. Using this platform, a new superconducting sulfide was synthesized.

研究分野：電気材料

キーワード：超伝導 高圧力 ダイヤモンド

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

“圧力”および“温度”は材料の性質を司る基本的なパラメータである。最近では、これらを巧みに制御した極限環境実験によって、室温にせまる高い超伝導転移温度を示す水素化合物が合成され、大きな注目を集めている (M. Somayazulu et al., PRL, 2019)。また圧力や温度は、第一原理計算やインフォマティクスのアプローチとの親和性も高く、高圧・高温下で合成した $\text{Li}_2\text{MgH}_{16}$ が 100 以上の超伝導転移温度を示すというような予測もなされている (Y. Sun et al., PRL, 2019)。このように、機能性材料の開発分野において、圧力や温度を積極的に制御した物質開発は魅力的である。その一方で、このような極限環境下での合成やその場物性測定は非常に難易度が高く、実験的アプローチの報告は極めて少ない。この類の実験は、一度の測定で装置を破壊するいわゆるワンショット型であるため、莫大な設備的また労力的コストが生じることも大きな問題である。また、反応中や反応後のキネティックな物性測定を行うことも困難である。これらの問題を解決すれば、理論やインフォマティクスの支援を受けた、理想的な物質設計が可能となり、様々な機能性材料の開発が加速する。

2. 研究の目的

本研究では「繰り返し使用可能な極限環境反応場を有する物性測定プラットフォーム」を構築し、これを用いて新規超伝導体を創製することを目的とした。この目的を達成するために、申請者がこれまで独自に開発してきた、高濃度キャリアドーパダイヤモンドを用いた電極作製技術を活用する。一般的に、高圧力下で材料の物性測定を行う際には、ダイヤモンドアンビルセル (DAC) を用いる。DAC の圧子はダイヤモンドであり、試料に電極を取り付けて加圧すれば物性測定を行うことができる。加圧中にレーザーを導入すれば、試料を加熱することも可能である。しかしながら、DAC の試料室は極小であるため、試料片への電極端子付けが困難であり、高圧力下での断線も頻発する。レーザー加熱は、発熱量が試料に依存することなど、多くの問題を抱える。

3. 研究の方法

我々のグループではこれまでに、物性測定用の電極や、電極とガスケットの短絡を防ぐ絶縁層を予めダイヤモンドアンビル上に気相成長させた、電極導入型 DAC を開発し、これを用いて 10 以上の新規超伝導体を発見してきた。この電極は高濃度にホウ素を注入した導電性ダイヤモンドで構成されており、圧力下でも安定動作するうえに何度も繰り返し使用することができる。この独創的知見に基づき、本研究ではキャリア注入した導電性ダイヤモンドによって構成される物性測定用電極、加熱用電極および温度計を微細加工することを提案する。この方式が実現すれば、高温・高圧力下での水素化合物系高温超伝導体の合成およびその場物性測定が可能になると期待される。

4. 研究成果

(1) 繰り返し使用可能な極限環境反応場を有する物性測定プラットフォームの開発

図 1 に申請者が開発したホウ素ドーパダイヤモンド電極付き DAC の模式図を示す。下側アンビルの黒色の部分は高い導電性を持つ高濃度ホウ素ドーパダイヤモンド薄膜であり、試料を合成するためのヒーターと温度計および試料の電気抵抗を測定するための電極として機能する。ガスケットと接触する電極部をアンドープダイヤモンドで被覆すれば、高圧力下でも絶縁が保たれる。本装置では、所望の温度・圧力下で物質を合成し、その場で試料の結晶構造や超伝導特性などの物性を決定することができる。さらにホウ素ドーパダイヤモンド薄膜は下地のダイヤモンドからエピタキシャル成長しており、高圧力下でも安定して動作する。本研究期間中に最大到達圧力は 50 GPa、最大到達温度は 1000 を記録し、マルチアンビルプレスなどの従来の高温高圧合成装置と比較しても遜色ない性能となった。またこのような高温高圧実験後も電極やヒーターに劣化は生じず、アンビル自体が割れるまで繰り返し使用できることが示された。

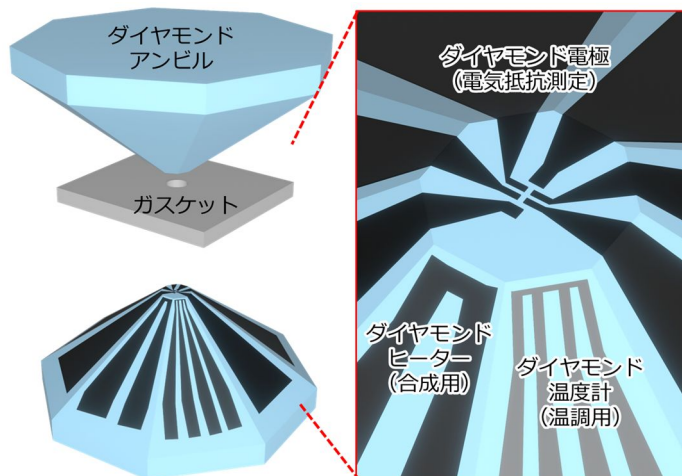


図 1 ホウ素ドーパダイヤモンド電極付き DAC の模式図

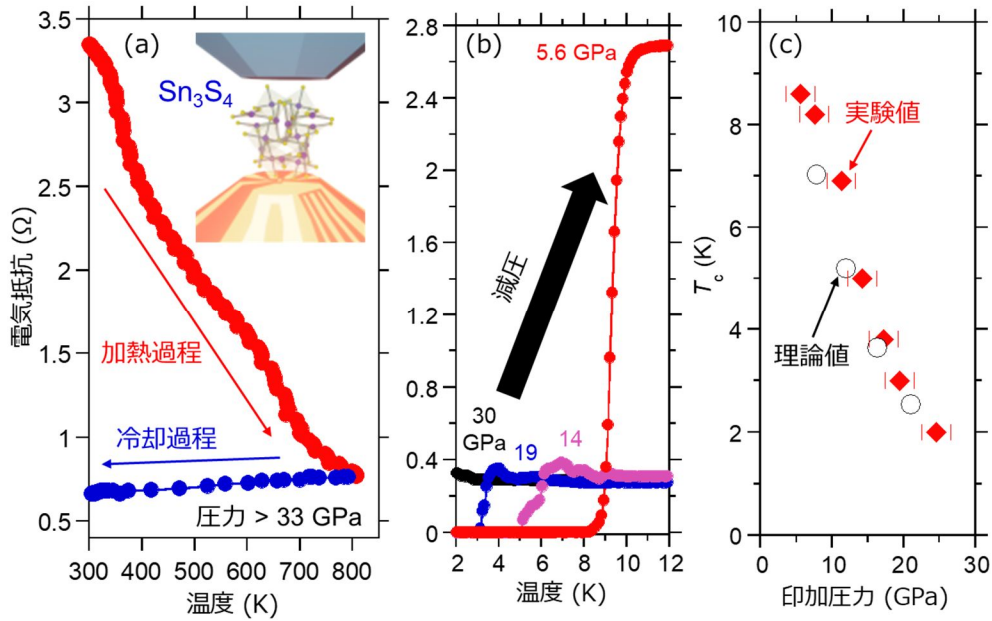


図 2 Sn₃S₄ の合成中の(a)電気抵抗と(b)超伝導特性、(c) T_c の圧力依存性

(2) 新規超伝導体 Sn₃S₄ の発見

構築したプラットフォームを用いて、理論計算により高圧力下での存在および超伝導特性が予測されていた Sn₃S₄ の合成に成功した。図 2(a)には高圧合成中の試料の電気抵抗をリアルタイム測定した様子を示す。加熱過程では半導体的であった電気抵抗の温度依存性が、冷却過程では金属的に変化しており、出発原料とは異なる物質が生成されたことが分かる。その場 X 線回折測定の結果から、高圧合成で得られた物質は目的相である Sn₃S₄ であることが分かった。図 2(b)の低温における電気抵抗の温度依存性から、合成した Sn₃S₄ は明瞭な超伝導転移を示した。図 2(c)には観測された超伝導転移温度 (T_c) と理論計算から予測される T_c の圧力依存性をそれぞれプロットした。実験で観測された T_c は減圧するにつれて上昇し、この振る舞いは第一原理計算の予測と良く一致した。この成果は理論で設計された物質を実際に合成するモデルケースといえる。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計12件（うち査読付論文 12件 / うち国際共著 2件 / うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Matsumoto Ryo, Nakano Satoshi, Yamamoto Sayaka, Takano Yoshihiko	4. 巻 60
2. 論文標題 Synthesis and electrical transport measurement of superconducting hydrides using diamond anvil cell with boron-doped diamond electrodes	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 090902 ~ 090902
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.35848/1347-4065/ac1a49	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 Matsumoto Ryo, Yamamoto Sayaka, Adachi Shintaro, Sakai Takeshi, Irifune Tetsuo, Takano Yoshihiko	4. 巻 119
2. 論文標題 Diamond anvil cell with boron-doped diamond heater for high-pressure synthesis and in situ transport measurements	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Applied Physics Letters	6. 最初と最後の頁 053502 ~ 053502
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0059705	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 Matsumoto Ryo, Hou Zhufeng, Adachi Shintaro, Yamamoto Sayaka, Tanaka Hiromi, Takeya Hiroyuki, Irifune Tetsuo, Terakura Kiyoyuki, Takano Yoshihiko	4. 巻 33
2. 論文標題 Experimental Observation of Pressure-Induced Superconductivity in Layered Transition-Metal Chalcogenides (Zr,Hf)GeTe ₄ Explored by a Data-Driven Approach	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Chemistry of Materials	6. 最初と最後の頁 3602 ~ 3610
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.chemmater.1c00272	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 該当する
1. 著者名 Yamamoto Sayaka, Matsumoto Ryo, Adachi Shintaro, Terashima Kensei, Tanaka Hiromi, Irifune Tetsuo, Takeya Hiroyuki, Takano Yoshihiko	4. 巻 334-335
2. 論文標題 Pressure-induced superconductivity in TiGeTe ₆	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Solid State Communications	6. 最初と最後の頁 114363 ~ 114363
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.ssc.2021.114363	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 Matsumoto Ryo, Terashima Kensei, Nakano Satoshi, Nakamura Kazuki, Yamamoto Sayaka, Yamamoto Takafumi D., Ishikawa Takahiro, Adachi Shintaro, Irifune Tetsuo, Imai Motoharu, Takano Yoshihiko	4. 巻 61
2. 論文標題 High-Pressure Synthesis of Superconducting Sn3S4 Using a Diamond Anvil Cell with a Boron-Doped Diamond Heater	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Inorganic Chemistry	6. 最初と最後の頁 4476 ~ 4483
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.inorgchem.2c00013	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 Matsumoto Ryo, Yamamoto Sayaka, Nemoto Yoshihiro, Nishimiya Yuki, Takano Yoshihiko	4. 巻 7
2. 論文標題 Electrical Transport Measurements on Layered La(0,F)BiS2 under Extremely High Pressure	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Condensed Matter	6. 最初と最後の頁 25 ~ 25
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3390/condmat7010025	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 Matsumoto Ryo, Sadki El Hadi S., Tanaka Hiromi, Yamamoto Sayaka, Adachi Shintaro, Younis Adnan, Takeya Hiroyuki, Takano Yoshihiko	4. 巻 730
2. 論文標題 Concurrent synthesis and boron-doping of amorphous carbon films by focused ion beam-assisted chemical vapor deposition	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Thin Solid Films	6. 最初と最後の頁 138704 ~ 138704
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.tsf.2021.138704	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 該当する

1. 著者名 Matsumoto Ryo, Yamamoto Sayaka, Takano Yoshihiko, Tanaka Hiromi	4. 巻 6
2. 論文標題 Crystal Growth and High-Pressure Effects of Bi-Based Superconducting Whiskers	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 ACS Omega	6. 最初と最後の頁 12179 ~ 12186
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsomega.1c00880	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 Matsumoto Ryo, Einaga Mari, Adachi Shintaro, Yamamoto Sayaka, Irifune Tetsuo, Terashima Kensei, Takeya Hiroyuki, Nakamoto Yuki, Shimizu Katsuya, Takano Yoshihiko	4. 巻 33
2. 論文標題 Electrical transport measurements for superconducting sulfur hydrides using boron-doped diamond electrodes on beveled diamond anvil	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Superconductor Science and Technology	6. 最初と最後の頁 124005 ~ 124005
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1361-6668/abbdc5	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 Liu Supeng, Matsumoto Ryo, Jha Rajveer, Yamashita Aichi, Kawaguchi Saori I, Goto Yosuke, Takano Yoshihiko, Mizuguchi Yoshikazu	4. 巻 33
2. 論文標題 High-pressure effects on superconducting properties and crystal structure of Bi-based layered superconductor La ₂ O ₂ Bi ₃ Ag _{0.6} Sn _{0.4} S ₆	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Physics: Condensed Matter	6. 最初と最後の頁 225702 ~ 225702
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1361-648X/abe81b	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 Yamamoto Sayaka, Matsumoto Ryo, Adachi Shintaro, Takano Yoshihiko	4. 巻 14
2. 論文標題 High-pressure effects on La(0,F)BiS ₂ single crystal using diamond anvil cell with dual-probe diamond electrodes	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Applied Physics Express	6. 最初と最後の頁 043001 ~ 043001
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.35848/1882-0786/abec91	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 Adachi Shintaro, Matsumoto Ryo, Yamamoto Sayaka, Yamamoto Takafumi D., Terashima Kensei, Saito Yoshito, Esparza Echevarria Miren, Baptista de Castro Pedro, Song Peng, Iwasaki Suguru, Takeya Hiroyuki, Takano Yoshihiko	4. 巻 116
2. 論文標題 Demonstration of electric double layer gating under high pressure by the development of field-effect diamond anvil cell	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Applied Physics Letters	6. 最初と最後の頁 223506 ~ 223506
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0004973	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10件（うち招待講演 3件 / うち国際学会 2件）

1. 発表者名 松本凌
2. 発表標題 ホウ素ドーパダイヤモンドを用いた高温高压合成およびその場物性測定
3. 学会等名 第46回未来を拓く高圧力科学技術セミナーシリーズ（招待講演）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 松本凌
2. 発表標題 高温高压合成およびその場物性測定機能を持つDACの開発
3. 学会等名 ISSP ワークショップ（招待講演）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 松本凌
2. 発表標題 高温高压合成およびその場物性測定機能を持つDACの開発
3. 学会等名 第8回プリウスシンポジウム
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 松本凌
2. 発表標題 その場物性測定機能付き高压合成装置による新規超伝導体探索
3. 学会等名 第68回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 松本凌
2. 発表標題 Development of Diamond Anvil Cell for Superconducting Materials Research under High Temperature and High Pressure
3. 学会等名 MRM 2021 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 松本凌
2. 発表標題 高温高压合成およびその場物性測定機能を持つDACの開発
3. 学会等名 第62回高压討論会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 松本凌
2. 発表標題 Sn-S系化合物の高温高压合成とその場物性測定
3. 学会等名 日本物理学会2021年秋季大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 松本凌
2. 発表標題 高温高压合成およびその場物性測定機能を持つDACの開発と超伝導探索
3. 学会等名 第82回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 松本 凌, 山本 紗矢香, 足立 伸太郎, 山本 貴史, 寺嶋 健成, 仲村 和貴, 安藤 寛, 竹屋 浩幸, 境 毅, 入船 徹男, 高野 義彦
2. 発表標題 高温高圧発生機構を有する物性測定システムの構築
3. 学会等名 応用物理学会2021年春季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 R. Matsumoto, M. Einaga, S. Adachi, S. Yamamoto, K. Nakamura, T. Irifune, H. Takeya, Y. Nakamoto, K. Shimizu, S. Nakano, Y. Takano
2. 発表標題 Electrical measurements for superconducting hydrides using diamond anvil cell with boron-doped diamond electrodes
3. 学会等名 ISS2020 (国際学会)
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計2件

1. 著者名 松本凌, 高野義彦	4. 発行年 2021年
2. 出版社 技術情報協会	5. 総ページ数 500
3. 書名 マテリアルズインフォマティクスのためのデータ作成とその解析、応用事例	

1. 著者名 松本凌, 高野義彦	4. 発行年 2021年
2. 出版社 (株)エヌ・ティー・エス	5. 総ページ数 277
3. 書名 マテリアルズ・インフォマティクス 開発事例最前線	

〔出願〕 計2件

産業財産権の名称 ダイヤモンドアンビルセルおよび高圧物性測定装置	発明者 松本 凌, 山本 紗矢香, 高野 義彦, 境 毅	権利者 物質・材料研究機構
産業財産権の種類、番号 特許、2020-200684	出願年 2020年	国内・外国の別 国内

産業財産権の名称 ダイヤモンドアンビルとその製造方法	発明者 福井 宏之, バロン アルフレッド, 高野 義彦, 松本 凌	権利者 物質・材料研究 機構、理化学研 究所
産業財産権の種類、番号 特許、2020-204936	出願年 2020年	国内・外国の別 国内

〔取得〕 計0件

〔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
---------	---------