

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 4 年 6 月 10 日現在

機関番号：82626

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2019～2021

課題番号：19K04481

研究課題名(和文) コンビナトリアルケミストリーによる新超伝導物質発見プロセスの確立

研究課題名(英文) Development of a Process for Discovery of New Superconductors by Combinatorial Chemistry

研究代表者

伊豫 彰 (Iyo, Akira)

国立研究開発法人産業技術総合研究所・エレクトロニクス・製造領域・上級主任研究員

研究者番号：50356523

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円

研究成果の概要(和文)：革新的な物質をより効率的に発見・開発する方法の確立は、日本の物質研究力の向上のために重要である。本研究は、創薬で成功しているコンビナトリアルケミストリーの概念を新規超伝導物質探索に適用し、その有効性を検証するとともに新物質探索プロセスとして確立することを目指した。提案した物質探索プロセスを繰り返し実行することにより、 Mg_2Rh_3P 、アンチペロブスカイト(Ca,Sr)Pd₃PとLaPd₃P、ラーベス相BaIr₂などの新規超伝導物質を発見した。例年の全世界の新規超伝導物質の報告を考慮すると、本方法の費用・時間対効果は絶大である。今後は、本方法を他の機能性物質の開発に適用するための研究が望まれる。

研究成果の学術的意義や社会的意義

少子化に伴う研究人材の減少により、世界における日本の物質開発力の低下が危惧される。実際に、近年の超伝導物質開発における日本の研究成果は減少している。一方、豊富な人材を背景に台頭した中国が、超伝導分野の研究を席卷しつつある。

このような状況下、本研究はコンビナトリアルケミストリーの概念を新規超伝導物質探索に応用することにより、革新的な物質をより効率的に発見・開発する方法の確立を目指した。その結果、成果に至るまでの費用・時間対効果を大幅に高められることを実証した。今後、この方法を他の機能性材料にも適用することで、少子化が進行中であっても日本の物質材料の研究力の維持・向上に寄与できると期待される

研究成果の概要(英文)：Development of more efficient methods to discover and develop innovative materials is important for improving Japan's materials research capabilities. In this study, we applied the concept of combinatorial chemistry, which has been successfully used in drug design, to the search for new superconductors, and aimed to verify its effectiveness and establish it as a new material discovery process.

By repeatedly performing the proposed process, we discovered new superconductors such as Mg_2Rh_3P , antiperovskite (Ca,Sr)Pd₃P and LaPd₃P, and Laves phase BaIr₂. Considering the worldwide reports of new superconductors in previous years, the cost and time-effectiveness of this method is significant. Future research on the application of this method to the development of other functional materials is desirable.

研究分野：超伝導材料

キーワード：新規超伝導物質探索 新規物質発見 コンビナトリアルケミストリー マテリアルズ・インフォマティクス アンチペロブスカイト ラーベス相

1. 研究開始当初の背景

歴史を振り返ると、革新的・高性能な物質・材料の発見・開発が、科学技術を進展させたり人々の生活の質を高めたりする起爆剤になってきた。世の中の科学技術が進歩する中で、さらなる革新的・高性能な物質・材料が求められている。しかしながら、日本の少子化に伴う研究開発人材の減少に加え、人材豊富な新興国の追い上げにより、日本のお家芸であった物質開発の相対的な地位の低下が現実的に起きつつある。このような研究背景において、「より効率的・効果的に物質開発を行う方法は無いであろうか？」という「問い」がこの研究課題提案の原点である。

マテリアルズ・インフォマティクス(MI)が、その問いに対する1つの答えとして注目されている。MIとは、データマイニングなどの情報科学を通じて新材料や代替材料を効率的に探索する取り組みである。これまでの材料探索は研究者の経験と鋭い直感に依存していたが、物質特性をコンピュータ上で高精度に計算した材料データベースや人工知能などを活用するMIによって、時間とコストを大幅に削減することが期待される。

MIを用いて物質開発が加速される材料系も存在するであろうし、今後注力すべき研究分野で有ることも間違いない。重要なことは、それぞれの研究分野の材料の特徴に応じた最適なアプローチ方法を見出すことであろう。超伝導分野における、新規超伝導物質探索を考えてみる。図1に示すように、新規超伝導物質の発見に至る道筋は様々である。この分類の中で、今後MIによる研究の進展が期待されるのは

(2)~(4)である。しかしながら、「(1)未知の物質の合成と超伝導性を発見」は、MIには極めて困難である。なぜならば、物質データが世の中に存在しないからである。非連続的で革新的な超伝導物質は(1)で発見される可能性が最も高いと考えており、MIとともに注力すべき研究課題である。

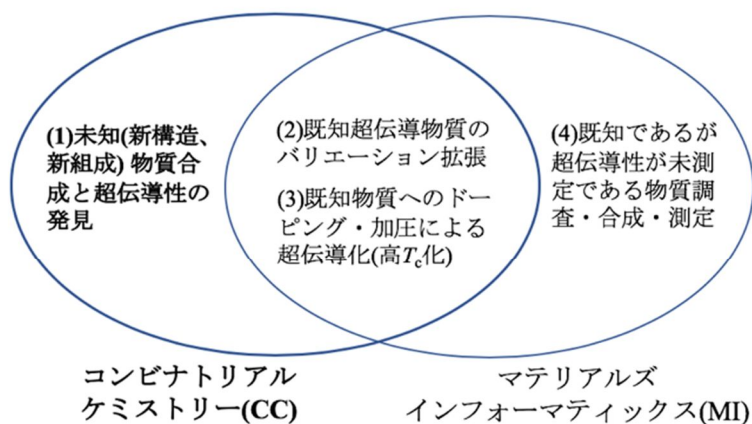


図1 新超伝導物質の発見に至るの4つのパターンとCCとMIの適用可能範囲。

2. 研究の目的

上記の研究背景において、MIと対極的であるが相補的にもなりうるコンビナトリアルケミストリー(CC)の概念を用いた新超伝導物質探索プロセスを考案した。バルク試料を用いたCC法であることから、バルクコンビナトリアル(BC)法と呼ぶ。BC法の特徴は、過去のデータや知見・経験を用いずとも、新規超伝導物質が発見可能であることにある。しかも、思いがけない(非連続的な)超伝導物質の発見ができる可能性があることも魅力である。この研究は、BC法による新規超伝導物質探索プロセスの有効性を、実際の新規超伝導物質の発見を持って実証・確立することを目的とした。中長期的には、他の機能性材料開発への適用を念頭において研究を実施した。

3. 研究の方法

コンビナトリアルケミストリー(CC)は、一般的に、同時に多品種化合物を合成すること、目的とする機能を高速に選別すること(ハイスループットスクリーニング)から構成される。この概念を新規超伝導物質探索に適用するために、図2に示すBC法による探索プロセスを考案した。具体的には、(1)任意に選んだ約4~6種類の元素を含む試料について、短時間熱処理などにより試料内部に多種の化合物を同時に生成させる。(2)高感度なSQUID磁束計を用いてバルク試料中の新超伝導成分の有無の検出とその超伝導転移温度(T_c)を測定する(ハイスループットスクリーニング)。試料中にある僅か(0.01%程度)な超伝導成分でも検出可能であることがこの方法を成立させる重要なポイントである。仕込んだ元素の組み合わせから生じうる既知の超伝導物質とその超伝導転移温度(T_c)は、データベースから予め予測可能である。予測外の T_c が測定されたら、未知の超伝導体が試料中に存在する可能性が高いことになる。(1)~(2)の作業を繰り返し、未知超伝導物質が存在する可能性のある元素の組み合わせを探す。

未知の超伝導体の可能性がある元素の組み合わせを見出した場合は、仕込む元素の組み合わせを変えて(1)~(2)の作業を繰り返すことにより、超伝導発現に必要な元素の組み合わせを割り出すことが容易に可能である。その後、未知物質の組成比や結晶構造を特定することで、新規超伝導体発見に至る。

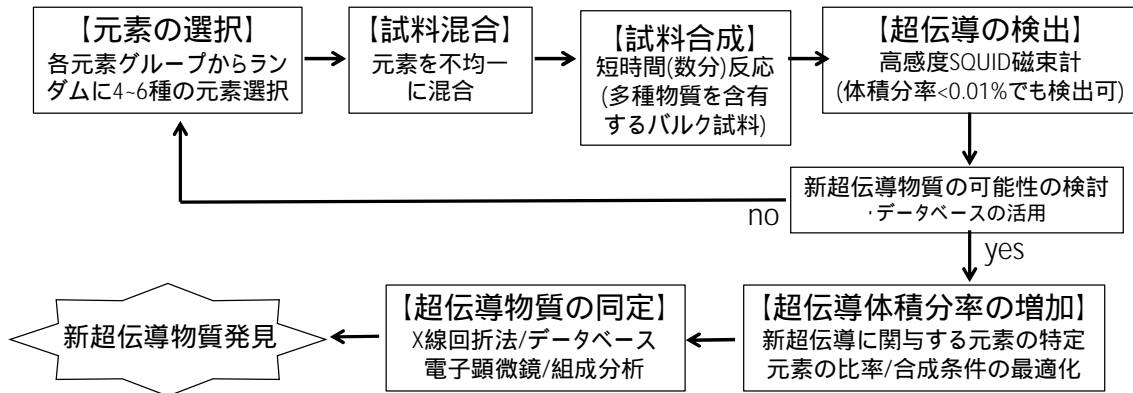


図2 BC法による新超伝導物質探索プロセス

4. 研究成果

3年間の研究期間中、断続的に上記のBC法による探索プロセスを実行した。その結果、図3に示す幾つもの超伝導体を発見することができた。全て、本研究で初めて合成された新規物質であり、本探索法の特徴を表している。発見した物質の物性を測定したり、論文を執筆したりする期間を除くと、実質的にこの探索プロセスを実行していた時間はそれほど長くない。新規超伝導物質探索は世界中で行われているものの、一年間に報告される新規超伝導物質(報告例のない新規物質を合成し、超伝導性を発見したもの)はせいぜい10個程度である。それらを考慮すると、これほど幾つもの新規超伝導物質をたった1人で発見できたことは、当初の期待を大きく上回るものであった。これらの成果により、BC法が実行可能であり、かつ大変有効であること実証できたと考えている。

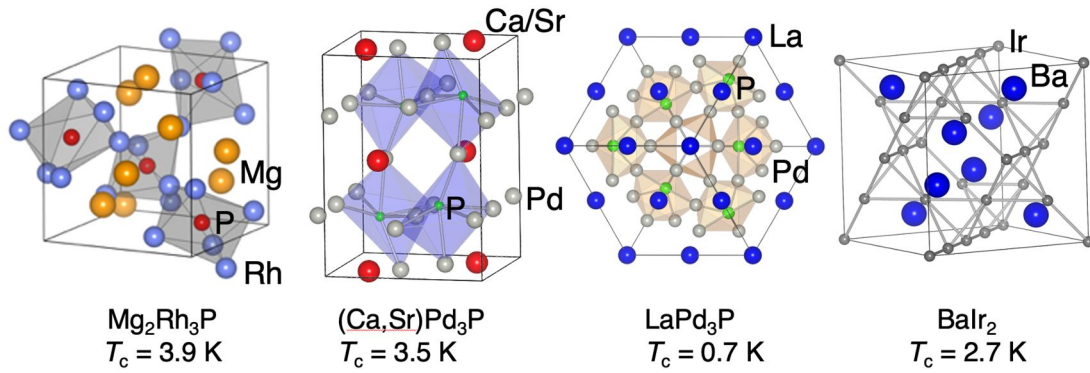


図3 本研究で発見された新規超伝導物質

本研究では、超伝導物質を対象に実施してきたが、BC法は磁性材料など機能性材料にも適用可能であると考えている。その際、目的とする機能に応じたハイスループットスクリーニング法を考案することが、BC法による材料探索を成立させる鍵となる。また、BC法による物質探索を成功させるためには、探索実施中に材料の特性に応じたノウハウを蓄積し、成果に辿り着くまでの手数・時間を減らす工夫をこらすことも重要なポイントである。今後、物質探索・開発の有力な手法として発展するように、BC法を広める活動を行いたい。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計5件（うち査読付論文 5件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Iyo Akira, Fujihisa Hiroshi, Gotoh Yoshito, Ishida Shigeyuki, Ninomiya Hiroki, Yoshida Yoshiyuki, Eisaki Hiroshi, Hirose Hishiro T., Terashima Taichi, Kawashima Kenji	4. 巻 59
2. 論文標題 Structural Phase Transitions and Superconductivity Induced in Antiperovskite Phosphide CaPd3P	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Inorganic Chemistry	6. 最初と最後の頁 12397 ~ 12403
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.inorgchem.0c01482	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 IYO Akira	4. 巻 62
2. 論文標題 Discovery of Mg2Rh3P and Superconductivity Induced by Mg-Deficiency	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Nihon Kessho Gakkaishi	6. 最初と最後の頁 219 ~ 220
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.5940/jcrsj.62.219	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 Akira Iyo, Izumi Hase, Hiroshi Fujihisa, Yoshito Gotoh, Nao Takeshita, Shigeyuki Ishida, Hiroki Ninomiya, Yoshiyuki Yoshida, Hiroshi Eisaki, and Kenji Kawashima	4. 巻 3
2. 論文標題 Superconductivity induced by Mg deficiency in noncentrosymmetric phosphide Mg2Rh3P	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 PHYSICAL REVIEW MATERIALS	6. 最初と最後の頁 124802(1-7)
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevMaterials.3.124802	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 Iyo Akira, Hase Izumi, Fujihisa Hiroshi, Gotoh Yoshito, Ishida Shigeyuki, Ninomiya Hiroki, Yoshida Yoshiyuki, Eisaki Hiroshi, Hirose Hishiro T., Terashima Taichi, Kawashima Kenji	4. 巻 60
2. 論文標題 Antiperovskite Superconductor LaPd3P with Noncentrosymmetric Cubic Structure	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Inorganic Chemistry	6. 最初と最後の頁 18017 ~ 18023
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.inorgchem.1c02604	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 Iyo Akira, Hase Izumi, Fujihisa Hiroshi, Gotoh Yoshito, Takeshita Nao, Ishida Shigeyuki, Ninomiya Hiroki, Yoshida Yoshiyuki, Eisaki Hiroshi, Hirose Hishiro T., Terashima Taichi, Kawashima Kenji	4. 巻 882
2. 論文標題 Superconductivity of centrosymmetric and non-centrosymmetric phases in antiperovskite (Ca,Sr)Pd3P	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Alloys and Compounds	6. 最初と最後の頁 160733 ~ 160733
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jallcom.2021.160733	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4件 (うち招待講演 1件 / うち国際学会 0件)

1. 発表者名 伊豫彰
2. 発表標題 バルクコンピナトリアルケミストリー法を用いた新超伝導体の探索
3. 学会等名 日本物理学会 2020年秋季大会 シンポジウム「高温超伝導への新ルート開拓とその現状」(招待講演)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 伊豫彰
2. 発表標題 アンチペロブスカイト型リン化合物CaPd3Pに誘起される構造相転移と超伝導
3. 学会等名 新学術領域研究「量子液晶の物性科学」量子物質開発フォーラム
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 伊豫彰, 長谷泉, 藤久裕司, 後藤義人, 竹下 直, 二宮博樹, 石田茂之, 吉田良行, 永崎洋, 川島健司
2. 発表標題 空間反転対称性のないMg2Rh3P における超伝導
3. 学会等名 日本物理学会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 越沼輝成、二宮博樹、伊豫彰、長谷泉、藤久裕司、後藤義人、永崎洋、石田茂之、西尾太郎、川島健司、吉田良行
2. 発表標題 新ラベス相超伝導体Ba1r2の高圧合成と超伝導特性
3. 学会等名 日本物理学会 第77回年次大会
4. 発表年 2022年

〔図書〕 計1件

1. 著者名 伊豫彰、川島健司	4. 発行年 2020年
2. 出版社 エヌ・ティー・エス	5. 総ページ数 12
3. 書名 マテリアルズ・インフォマティクス 開発事例最前線の中の「バルクコンピナトリアル合成による新規超伝導物質の探索」	

〔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

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