

新奇炭素系ネットワーク物質の高圧合成による高温超伝導探索

Search for high-temperature superconductivity by high-pressure synthesis of novel carbon-based network materials

茨城大学 中野岳仁

物理学において超伝導は量子力学的効果が巨視的に現れる夢の現象である。また、電気抵抗が消失するという特性から実用上も夢の現象である。近年、いくつかの水素化物において超伝導が発見され、その転移温度は室温に達し大きな注目を集めている[1]。しかしこれらの物質の構造と超伝導状態は 100 万気圧の超高压下でのみ安定で、超伝導特性や発現機構を調べるのが難しい上、実用材料としての道は遠い。一方、この水素のネットワーク構造を炭素で置き換えた物質が常圧でも安定であり、100 K を超える超伝導の発現が理論計算で予測された[2]。また、古くにはフラーレン C₆₀ 分子の結晶を 3 次元重合化した炭素のネットワーク物質が超伝導体として期待され、実際の物質も作られた[3]。物質は半導体的であったが、追試がほとんどなされておらず物性評価も十分ではない。超伝導発現には電子ドーピング等のキャリア数制御が効果的である。そこで本研究では、高圧合成法により新しい炭素系ネットワーク物質を合成し、キャリア数制御法も開発して、常圧下で存在可能な 100 K 級の超伝導体を開発することを目的とした。

まず固体 C₆₀ に対して、マルチアンビル型高圧発生装置を用い、高圧高温処理を行った。15 GPa, 550°C で処理した試料は、X 線粉末回折から面心立方構造の結晶であり、格子定数が出発物質よりも大幅に減少していることが分かった。また赤外顕微分光から元の C₆₀ 固有の分子振動モードが消失していることも分かった。C₆₀ 分子が互いに重合した 3 次元ネットワーク物質が合成されていると考えられる。これは既報研究[3]の一部分を再現する結果であり、分子振動モードの消失は新たに得られた知見である。原子座標を含めた結晶構造はまだ解けていないので、今後、透過型電子顕微鏡によって試料の微小部分の結晶格子の観測を行うことが必要と考えている。一方、電子スピン共鳴と磁化率測定から、温度に依存しない正のスピン磁化率の存在を明らかにした。伝導電子による Pauli 常磁性の可能性が高い。しかし、2 K までは超伝導を示さないことが分かった。電子状態をより詳細に調べるには、光電子分光によって価電子帯の状態密度を観測することが非常に有効と考えられ、これを計画している。

高圧重合後の試料にキャリアドーピングを行うことは困難であるため、本研究ではあらかじめアルカリ金属ドーピングした C₆₀ に対して高圧高温処理を行った。その準備として極めて嫌気性の物質を密封して高圧高温処理を施す方法を独自に実現した。温度圧力相図は未知であるので、SPring-8 BL04B1 において高温高压下での X 線粉末回折の「その場観察」実験を K₃C₆₀ と RbC₆₀ に対して 0 ~ 16.5 GPa, 室温 ~ 800°C の範囲で実施し、新結晶相の探索を行った。その結果、K₃C₆₀ では 15 GPa, 600 ~ 700°C において新たな結晶相の存在を見いだした。また、両物質とも 800°C 以上ではアモルファス化した。K₃C₆₀ について研究室の高圧装置で 15 GPa, 650°C で処理を行い、同物質を得た。磁化率測定からもとの K₃C₆₀ に由来する 18 K 以下での超伝導はほとんど消失していることが分かったが、新たな超伝導は観測されなかった。引き続きこの物質の物性評価を行っている。

本研究の最大の目標であった新たな高温超伝導体はまだ発見できていない。しかし、探索の手法は確立できたので、出発物質の組成を様々に換えて研究を続けてゆく計画である。

【参考文献】

[1] J. A. Flores-Livas *et al.*, *Physics Reports* **856**, 1 (2020). [2] S. Lu *et al.*, *Phys. Rev. B* **93**, 104509 (2016). [3] S. Yamanaka *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **96**, 076602 (2006).