



高圧下で合成された微小試料の常圧および高圧その場回折測定 ：希ガス化合物の超高压合成

丹羽 健, 朝田 敢斗, 佐々木 拓也, 長谷川 正
名古屋大学

キーワード：超高压, ダイヤモンドアンビルセル, 希ガス

1. 背景と研究目的

希ガス (He, Ne, Ar, Xe など) は, その安定な電子配置から化合物を形成しないと考えられてきた。しかし, 重元素である Xe などは, Pt やフッ素と結合を有する化合物を形成することが報告されている [1]。一方, 近年の超高压物質科学の発展により, 徐々にではあるが希ガス化合物に対しても興味深い研究結果が報告されてきた。例えば高圧地球科学の視点から, 100 GPa を超える圧力領域にて Xe は金属化し地球中心核の主要構成物質である Fe や Ni と合金を形成する可能性が示唆されている。そして最近の超高压実験からも, Xe と遷移金属 (Fe, Ni) の固溶体合金の合成を示唆する実験結果が報告されている [2]。また, 希ガスと他の分子性ガスをダイヤモンドアンビルセル (以下 DAC) に封入することで, 数 GPa の圧力領域でファンデルワールス化合物を合成する研究も報告されている。最近我々も Xe-N₂ 系においてファンデルワールス化合物の合成に成功し, 高圧下における振る舞いを調べた。Xe のような重元素は超高压下の非常に圧縮された状態では電子軌道の重なりによる化学的な結合の変化が期待される。そこで本研究では, 希ガス化合物の物質科学開拓のため, 研究例の少ない Kr 系化合物の実験に取り組んでいる。Kr は大気中の存在比が Xe に次いで少なく, その化合物に関する研究例もほとんどない。まず Kr を冷却固化し DAC に充填するところから研究をスタートさせ, その後あいち SR の BL2S1 にて充填された Kr の回折パターンを得ることを目指した。

2. 実験内容

本研究ではまず Kr を DAC に充填するところから始めた。初期充填密度が重要なため, 2000 気圧程度に圧縮したガス状態で DAC に充填するケースが多いが, そのためには設備の法規制も含めて実験室レベルで取り組むのが難しい。そこで Kr ガスを低温で固化し充填する方法に取り組んだ。技術的にクリアすべき課題を克服し, 光学顕微鏡にて試料の充填が確認できた段階で BL2S1 で高圧下における粉末パターンを取得した。

3. 結果および考察

Kr は Xe に比べ固化温度が低いいため, 液体窒素で低温固化させて充填するには DAC を十分冷やす必要がある。断熱やガス噴射角度など様々な改良の末に, DAC への充填を安定して行える技術の確立に目処がたった。Kr を充填した DAC を 2 つ用意し, 約 9 GPa で粉末回折実験を行ったところ, 面心立方 (fcc) 構造で指数付けできる回折線を観測した。また, 過去の研究から fcc-Kr は圧力の増加とともに六方最密 (hcp) 構造への相転移が報告されており, 本研究でも hcp に対応するピークが検出されており過去の結果と整合している。一方, 本研究で観測した fcc 相はよく見るとピーク位置が立方晶から少しずつれており, これが hcp への相転移に関係した歪みの影響なのか現在調査中である。今後は Kr と他の元素との化合物合成を目指した実験を行う予定である。

4. 参考文献

1. N. Bartlett, Proc. Chem. Soc. 112 (1962) 218
2. E. Stavrou et al. Phys. Rev. Lett. 120 (2018) 096001