



# 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 ：超高压下における遷移金属炭窒化物の合成の試み

AichiSR

丹羽 健, 中島 健太, 佐々木 拓也, 長谷川 正  
名古屋大学工学研究科

キーワード：超高压, ダイヤモンドアンビルセル, 炭窒化物

## 1. 背景と研究目的

超高压実験手法は新奇な窒化物や酸化物の創製に非常に有効である。最近の先端的な研究から超高压下で多数の新奇窒化物が合成され、常圧下とは全く異なる物質群・物質科学が存在することがわかってきた。また、炭化物も酸化物や窒化物と並ぶ優れた機能性物質であり、超高压実験技術が新奇炭化物の創製に強く寄与することが近年明らかになってきた。その一方で、金属炭窒化物は、窒化物と炭化物両方の性質を組み合わせた特異な構造、物性を示すことが期待されるが、過去に合成された報告は少ない。そこで本研究では、超高压下において過去に報告のない金属炭窒化物の合成を目的とした。

本研究では着目する金属元素として Ru を選択した。Ru は約 32 GPa での直接窒素反応により、構造中に N-N dimer を含んだ  $\text{RuN}_2$  が合成され、常圧下で準安定的に回収されることが報告されている[1]。また、近年高压下における Ru と C の固相反応によって  $\text{Ru}_2\text{C}$ [2]や  $\text{Ru}_{32}\text{C}_4$ [3]といった炭化物が新たに合成され関心が高まっている。そこで本実験では高压下において Ru, C,  $\text{N}_2$  の反応させて新たに 3 元系 Ru-C-N 系化合物の超高温高压合成を目的とした。

## 2. 実験内容

出発試料は Ru 塊と C 塊を用いて、アーク溶解、液体急冷凝固法により作製した。超高压下における合成実験にはダイヤモンドアンビルセル (DAC) を用いた。予備加圧したステンレスガasketに直径約 100  $\mu\text{m}$  の穴をあけ試料室とした。そのあと四角形に成形した出発試料と液体窒素を試料室内に充填した。目的圧力まで室温で加圧後、レーザー加熱を行った。加熱後および減圧過程において BL2S1 における高压 X 線回折実験および実験室系における Raman 分光測定から合成物を評価した。

## 3. 結果および考察

予備実験として 40 GPa 以上の圧力で実験をおこない、その試料を常圧下に回収し XRD 測定したところ、過去に報告のある  $\text{RuN}_2$  と Ru に加えて不明なピークが何本か検出された。未知ピークは既知の Ru-N 系, Ru-C 系化合物では同定できなかった。また、圧力媒体を  $\text{N}_2$  から NaCl に変更し、同条件で常圧回収実験を行った際にこれらのピークは観測されなかったことから、未知ピークが Ru-C 系化合物由来である可能性は低い。以上より、未知ピークは超高压下で合成された新規 Ru-C-N 系化合物由来であると考えられる。そこで超高压下で合成相を確認するため、40 GPa 以上の圧力で加熱した試料の室温高压その場 XRD 測定をおこなった。BL2S1 における高压その場 XRD 測定から、高压その場でも同様に  $\text{RuN}_2$  と Ru に加えて不明なピークが何本か検出され、減圧に伴いピークは低角シフトし、予備実験とおなじく常圧まで回収された。現在、全体の相関係や炭窒化物創製の可能性を含めて解析中である。

## 4. 参考文献

- [1] Niwa *et al.*, Chem. Eur. J., 20(2014)1-5
- [2] Kumar *et al.*, J.Phys.Cond.Matter.,24(2012)362202
- [3] Zhao *et al.*, Nanoscale., 6(2014)10370