



高圧下で合成された微量試料の放射光粉末 X 線回折測定 ：逆ペロブスカイト型構造 Co_3GaN の単相合成

細江 信吾, 佐々木 拓也, 丹羽 健, 長谷川 正
名古屋大学 大学院工学研究科

キーワード：高圧合成, 逆ペロブスカイト型構造, Co_3GaN , 磁性

1. 背景と研究目的

近年、負熱膨張や磁性などの物性を示す逆ペロブスカイト型構造 X_3AB （主に、 $X = \text{Mn}, \text{Fe}, \text{Co}$ などの遷移金属元素、 $A = \text{Ga}, \text{Ge}, \text{Sn}$ などの典型金属元素、 $B = \text{C}, \text{N}, \text{O}$ などの典型非金属元素）の物質が注目されており、その合成や物性に関する研究が盛んに行われている。本研究では Ga を含む逆ペロブスカイト構造窒化物 $X_3\text{GaN}$ に着目した。 Ga を含む逆ペロブスカイト型窒化物は 3d 遷移金属に数多く発見されており、この系の中でよく研究されている物質として $\text{Mn}_3\text{GaN}^{[1]}$ や $\text{Fe}_3\text{GaN}^{[2]}$ 等が挙げられる。逆ペロブスカイト型物質の中には、常圧下で安定とならず高圧下でのみ安定な物質も存在する^[3]。また、我々の先行研究において、 Co_3GaN の存在が見いだされ、その磁性や電気抵抗が測定された。しかしながら、磁性不純物である Co を含む試料であったことから、 Co_3GaN の本質的な磁性については未だ明らかになっていない。磁性元素である Co を含むことから、 Co_3GaN も興味深い磁性を示す可能性が期待されるが、その評価には磁性不純物を含まない Co_3GaN の単相試料を合成する必要がある。そこで本研究では、 Co_3GaN の単相合成を目的とした高圧合成を行い、微量不純物の存在を確認するために放射光 X 線回折測定を行った。

2. 実験内容

試料の高温高圧合成には DIA 型マルチアンビルプレス高圧力発生装置を使用した。出発試料には Co 粉末と粉砕した GaN 単結晶を $\text{Co}:\text{GaN}=3:1$ のモル比となるように秤量・混合した混合粉末を使用した。出発試料を充填した高圧試料セルを 6 GPa まで加圧し、試料セル内のグラファイトヒーターへの電圧を印加により 1400 °C で 40 分間加熱を行った。加熱終了後、常圧まで減圧し、高圧試料セルから試料を回収した。得られた試料は粉砕し、放射光粉末 X 線回折測定により相同定および格子定数の評価を行った。

3. 結果および考察

6 GPa, 1400 °C の条件で合成した試料の放射光粉末 XRD 測定を行ったところ、回折パターンから逆ペロブスカイト構造 ($Pm-3m$) の Co_3GaN および副相として少量の hcp 構造 ($P6_3/mmc$) 相が存在していることが明らかとなった。出発試料であるウルツ鉱型 GaN およびその多形の回折線は観測されなかったことから反応が十分に進行したといえる。しかしながら、副相の hcp 構造の物質は出発試料に用いた Co と同じ結晶構造であるが、格子定数が増加していることから Co に Ga が固溶した固溶体であると推察される。今後、出発試料や合成条件の探索によって Co_3GaN の単相化を目指し、単相試料の磁性に関する調査を行う予定である。

4. 参考文献

- [1] M. Aoki, H. Yamane, M. Shimada, and T. Kajiwar, *J. Alloys Compd.*, **364**, 280-282 (2004)
- [2] A. Houben, J. Burghaus, and R. Dronskowski, *Chem. Mater.*, **21**, 4332-4338 (2009)
- [3] J. Zhang, L. Wang, J. Zhu, and Y. Zhao, *Appl. Phys. Lett.*, **117**, 081904 (2020)