

# 高圧合成法による試料合成過程のX線その場観察

関根ちひろ, 松井一樹, 伊藤高二郎, 三塚修平, 福士雄介  
室蘭工業大学大学院工学研究科

高圧合成法は常圧下では得られない物質や合成が極めて困難である物質を合成できる強力な試料作成方法の一つである。しかし、純良試料の合成や大型単結晶を育成するための最適条件を決定するのは多大な時間と労力を必要とする。そこで、本研究では放射光X線を用いて、高温高圧下における試料の合成過程や熔融状態をその場観察し、不純物相の生成を抑え、目的物質の単一相純良多結晶試料や大型単結晶を育成するための最適条件を効率的に決定する手法を開発したので報告する。また、測定例として、スクッテルダイト化合物の実験結果を報告する。

スクッテルダイト化合物は次世代の高効率熱電変換材料への応用が期待されている物質であるが、さらに近年、非BCS超伝導、多極子転移、重い電子系的振舞、金属-絶縁体転移などの強相関電子系物質に特有な異常物性を示すことが明らかとなり、物性研究者の注目を集めている物質でもある。スクッテルダイト化合物は試料合成が極めて困難な物質であるが、我々は高圧合成法がスクッテルダイト化合物の合成に有効であることを見出し、これまでに新物質を含む多くの化合物の合成に成功している [1, 2]。

実験は高エネルギー加速器研究機構 物質構造科学研究所 放射光科学研究施設の実験ステーション AR-NE5Cで行った。圧力発生にはキュービックアンビル装置(MAX80)を用い、白色X線と半導体検出器を用いたエネルギー分散法粉末X線回折により、高温高圧下のその場観察実験を行った。

試料として、2元系の非充填スクッテルダイト化合物  $\text{CoSb}_3$ ,  $\text{RhSb}_3$ ,  $\text{IrSb}_3$  および3元系の充填スクッテルダイト化合物  $\text{CeFe}_4\text{Sb}_{12}$  の各組成元素の粉末を組成比どおりに混合したものを出発物質として用いた。圧力は2~4GPa、温度は室温から1600°Cの間でその場観察実験を行い、各化合物の純良多結晶試料の最適な合成条件と熔融温度を決定することができた。さらに、融液状態から徐冷することにより、2元系の非充填スクッテルダイト化合物では、高圧下で単結晶育成が期待できることが分かった。しかし、3元系の充填スクッテルダイト化合物では融液からの徐冷過程で不純物相が成長し、単結晶化は難しく、フラックス剤の利用などが必要であることが分かった。

## 参考文献

- [1] C. Sekine *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **77** Suppl. A (2008) 135.
- [2] C. Sekine *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **78** (2009) 093707.