

Title	Diamond Synthesis Based on Solid State Nucleation
Author(s)	細見, 暁
Citation	大阪大学, 1991, 博士論文
Version Type	
URL	<a href="https://hdl.handle.net/11094/37792">https://hdl.handle.net/11094/37792</a>
rights	
Note	著者からインターネット公開の許諾が得られていないため、論文の要旨のみを公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、 <a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed">〈a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed"〉</a> 大阪大学の博士論文について <a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed">〈/a〉</a> をご参照ください。

***Osaka University Knowledge Archive : OUKA***

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

Osaka University

氏 名	ほそ 細	み 見	さとる 暁
博士の専攻分野 の 名 称	博	士	(工 学)
学位記番号	第	9937	号
学位授与年月日	平成 3 年 10 月 28 日		
学位授与の要件	学位規則第 4 条第 2 項該当		
学位論文名	Diamond Synthesis Based on Solid State Nucleation (固相核形成によるダイヤモンド合成)		
論文審査委員	(主査)		
	教授 久米 昭一		
	(副査)		
	教授	西田 良男	教授 遠藤 将一
	助教授	小野寺昭史	

## 論 文 内 容 の 要 旨

グラファイトを原料として用い、溶融金属が共存する静的超高压力下でのダイヤモンド合成方法は、1955年にGE社によって開発され、現在では完全に確立された技術と見られている。この合成方法においては、溶媒（融剤、触媒）金属が溶融状態にあることが必須条件とされており、グラファイトからダイヤモンドへの変換機構についても、GE社の技術者による提言が広く信じられている。一方ソ連では固相での核形成の可能性を指摘した報文があるものの、実験的な確認はされていない。

本研究では、固相状態の溶媒金属中でも、ダイヤモンドの核形成、成長が行われることを実験によって確かめた。また本実験に用いた高压装置の特性についても述べた。

本研究で得られた主な知見は次の通りである。

1. ダイヤモンドが熱力学的に安定な条件下で、グラファイトに接した固相金属中でダイヤモンドの形成を認めた。これらのダイヤモンドは固相金属中で核形成、成長したものと認められる。核形成反応は、鉄の炭化物といった炭素と金属との化合物を経由する可能性が大きい。
2. 固相核形成を促進する溶媒金属として、浸炭コバルトが有効である。この場合超高压力下において昇温する過程で、炭素-金属の共晶温度以下でダイヤモンドの核が生じ、共晶温度以下では固相金属中を拡散する炭素の供給により、共晶温度以上では融液中を運ばれる炭素による成長反応となる。後者の場合は既製核上への成長反応のため、核形成のために必要とされている過剰圧力（余分な化学ポテンシャル）が不要となる特徴が見られた。一方板状のFe-Ni合金を溶媒金属として用いた場合には、金属の粒界上にダイヤモンドが形成する傾向が認められ、核形成密度の制御のためには、粒界密度すなわち金属結晶粒の大きさを制御することも有効であることを認めた。
3. グラファイトを分散させたコバルトを作製し、これを超高压力下で炭素-金属の共晶温度以下

に保つことによって、固相金属中でダイヤモンドの形成を行い、回収品の観察を行った。

## 論文審査の結果の要旨

ダイヤモンド砥粒は研磨材として、また切削・切断工具用原料として広い用途を持つが、需要のほとんどが合成品で賄われる現状である。合成では炭素に遷移金属あるいはそれらの合金を加えた原料を高温・高圧力で処理するが、反応の際には必ず溶融状態を経由すると考えられ、添加金属は融剤として作用すると見なされてきた。本論文は炭素-添加金属2成分系の共晶点以下の温度で、固相状態のまま炭素からダイヤモンド結晶の核を生成させ、これを成長させることが可能であり、添加金属は融剤ではなく触媒として作用することを実証した研究を纏めたものである。

研究実施にあたっては反応効率の高い加圧セルと触媒の開発、生成した微小結晶の同定と評価に適した分析手段の適用が要求される。本研究ではアルミナを外壁に使用したセルにより圧発生効率を高めると同時に圧力容器の長寿命化を図った。触媒としては新たに炭素を含浸させた浸炭コバルトを開発した。生成物の解析と同定は電子顕微鏡、EPMAとともに炭素のK-エミッションバンドの波長対比により行い、僅少かつ微小結晶の検出を可能とした。

上記の手法に従って、出発物質をダイヤモンドが安定な温度・圧力領域に保持することにより、原料炭素に接した金属内にダイヤモンドの生成を確認した。金属相には処理中に溶けた痕跡の認められないことから、固相反応により試料中に核発生を生じこれが次第に成長した結果と考えられ、その機構は固相拡散によると結論づけられた。また浸炭コバルトは固相のみならず共晶点以上の高温でも効率の高い触媒であることが立証された。さらに本実験で使用されたセルは工業生産にも適する性能を持つことが示された。

以上のようにこの論文に発表された研究は固相反応によつてダイヤモンドが合成される事実を見出すとともに、その反応過程も明らかにしたものであって、実用材料製造への応用にも役立つ内容を持ち、無機材料分野における貢献が著しく学位論文として価値あるものと認める。