



Title	Synthesis of High-Purity and High-Quality Diamond Crystal and its Characterization
Author(s)	角谷, 均
Citation	大阪大学, 1997, 博士論文
Version Type	
URL	https://hdl.handle.net/11094/41065
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、大阪大学の博士論文についてをご参照ください。

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

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

The University of Osaka

氏 名	角 谷 均
博士の専攻分野の名称	博 士 (工 学)
学 位 記 番 号	第 1 3 4 5 1 号
学 位 授 与 年 月 日	平 成 9 年 11 月 19 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	Synthesis of High-Purity and High-Quality Diamond Crystal and its Characterization (高純度高品位ダイヤモンド結晶の合成とその特徴)
論 文 審 査 委 員	(主査) 教 授 天谷 喜一 (副査) 教 授 遠藤 将一 教 授 那須 三郎 教 授 北岡 良雄 助教授 小野寺昭史

論 文 内 容 の 要 旨

高純度で良質なダイヤモンド単結晶の合成方法について系統的に研究し、新しい合成技術を開発、従来にない高品位なダイヤモンド単結晶の安定的合成に成功した。そして、得られた結晶の結晶性、機械的特性の研究を行い、ダイヤモンドの結晶欠陥、特性に関し、幾つかの新たな知見を得た。また、そのダイヤモンドの工業的、科学的応用について検討した。各々の概要を以下に示す。

高圧高温下での温度差法によるダイヤモンド単結晶合成において、固溶不純物を有効に除去し、かつインクルージョンの混入を防ぐ方法を開発した。高純度な炭素源、Fe-Co 系溶媒を用い、窒素ゲッターとして Ti を溶媒に添加することで、窒素、ホウ素およびニッケルの固溶不純物を 0.1 ppm 以下に除去できることがわかった。また、窒素ゲッターとともに、Cu を添加することで、インクルージョンの混入を有効に防止できることを見出した。その結果、不純物およびインクルージョンをほとんど含まない良質な高純度ダイヤモンド結晶 (II a 型) を、2~3 mg/hr という速い成長速度で安定合成できるようになった。

こうして得られた合成 II a 型ダイヤモンドの結晶性を、ロッキングカーブ、偏光像観察、X線トポグラフ観察、ラマンスペクトルなどで詳しく調べた。そして、天然のダイヤモンドや従来の窒素を含む合成ダイヤモンド (I b 型) より、はるかに結晶欠陥、歪が少なく、結晶性に優れることを明かにした。また、種結晶に低歪、低欠陥の結晶を用いることで、線状の転位欠陥が除去され、より結晶性に優れたダイヤモンド結晶の合成が可能であることがわかった。

さらに、この合成 II a 型ダイヤモンドの機械的特性を、ヌーブ硬度とその異方性、およびへき開性により評価した。このダイヤモンドの硬度は、従来の合成 I b 型ダイヤモンドより高く、硬度異方性は天然ダイヤモンドや合成 I b 型ダイヤモンドとまったく異なる傾向を示すことがわかった。また、へき開面は、従来の合成ダイヤモンドや天然ダイヤモンドに比べ極めて平坦であることを見出した。このような特徴的な機械的特性は、破壊や塑性変形の起点となる不純物、欠陥が非常に少ないことによると考えられ、ダイヤモンド本来の特性を示唆するものである。

この合成 II a 型ダイヤモンドは、ダイヤモンド本来の優れた特性が、不純物や結晶欠陥により制限されることがないため幅広い用途が考えられ、従来の合成ダイヤモンドや天然ダイヤモンドでは適用できなかった新しい分野 (光学

部品、窓材、分光結晶など）への展開が可能である。また、各分野の研究用材料としても有用である。

論文審査の結果の要旨

ダイヤモンドは、物質中最も高硬度でかつ熱伝導度が良く、広い波長領域に亘り光の吸収が無い等の優れた特性を持つ材料である。しかしながら、合成ダイヤモンドの場合、原子半径が類似した窒素やホウ素等が孤立置換型の不純物として格子中に入りやすく、不純物がダイヤモンド構造の格子中に入ると、前述の優れた特性が低下する事が知られている。従来、窒素を除去する方法として、鉄属金属溶媒中に Al を添加し窒素と反応させて窒化物を形成する方法が取られてきた。

申請者は、従来法における窒素不純物の除去不足と Al の添加量増大による溶媒金属の巻き込み量増大という事実を明確に示した。そして、窒素不純物除去効果の増大のために窒素と反応性の高い Ti を溶媒中に添加することを試みた。その際、多量に発生する炭化チタンの微粒子生成を抑制することは、Ti の他に Cu を添加する事で可能であり、良質な結晶が比較的早い成長速度で合成されることを示した。Ti, Cu の添加により含有窒素量は 0.1 ppm 以下となった。この段階で尚残るホウ素不純物は原材料の高純度化で除去可能であることを見出した。又、種結晶に低歪、低欠陥の結晶を用いることで線状の転位欠陥が除去され、より結晶性の優れたダイヤモンドの合成が可能であることを示した。最終的に得られた合成ダイヤモンドの結晶は、天然のダイヤモンドや従来の窒素を含む合成ダイヤモンドよりはるかに結晶欠陥、歪みが少なく、結晶性に優れる事を明らかにした。機械的特性についても、硬度とその異方性および劈開性の評価において、不純物、欠陥の非常に少ないダイヤモンド本来の特性を示唆する結果を見出した。

以上の研究成果は、工業材料をはじめとする応用面はもとより、物性基礎論的意義においても極めて重要で、博士（工学）の学位論文として価値あるものと認める。