

Title	Study of Superhard Materials derived from C60 Fullerene at High Pressure and High Temperature
Author(s)	堀川, 高志
Citation	大阪大学, 2002, 博士論文
Version Type	
URL	https://hdl.handle.net/11094/43570
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"〉 大阪大学の博士論文について 〈/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	堀川高志
博士の専攻分野の名称	博士(工学)
学位記番号	第 17110 号
学位授与年月日	平成14年3月25日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当 基礎工学研究科物理系専攻
学位論文名	Study of Superhard Materials derived from C ₆₀ Fullerene at High Pressure and High Temperature (C ₆₀ フラーレンより高温高圧下において創成された超硬質物質の研究)
論文審査委員	(主査) 教授 天谷 喜一 (副査) 教授 那須 三郎 教授 鈴木 直

論文内容の要旨

カルビン、グラファイト、ダイヤモンドに続く、第四の炭素の同素体として近年注目を浴びているC₆₀は、一般にフラーレンと呼ばれる炭素からなる物質の一つである。本研究ではC₆₀に対して、(i) 高温高圧回収実験、(ii) 放射光を用いた高温高圧その場観察X線回折実験、(iii) 室温における体積弾性率の測定、以上三つの側面から実験・解析を行った。

(i) 回収実験からは、10~15GPaの圧力領域において、C₆₀は温度の上昇に伴い、出発試料のf.c.c.構造→アモルファス→層状の炭素と変化をすることが分かった。このうちアモルファス状態からの回収試料は、微小押込み硬さ(H)が42.3~103.0GPaの超高硬度物質であった(10GPa・600°C、12GPa・400~650°C、15GPa・165°C)。このアモルファス状態は、C₆₀の球殻構造が壊れた後に形成された、sp²およびsp³結合を持った炭素からなる。同じ圧力・温度下では、回収試料の硬度は保持時間に依存し、硬度のmaximumが存在する。硬度のmaximumの値は高温ほど高くなり、硬度がmaximumに到達するまでの時間は、高温ほど短いことが確認された。

(ii) 放射光を用いたその場観察実験では、高圧・高温状態を保持している間の時間分割X線回折測定を初めて行った(12.5、14.3 GPa)。その結果、出発試料のf.c.c.構造からアモルファス状態への変化を確認することができた。残存f.c.c.構造の格子定数は、約三時間の保持の間、連続的に減少し、その減少量は高温ほど大きいものであった。高圧下での加熱時の変化の流れは回収実験と同じであり、残存f.c.c.構造の格子定数が1.16~1.26nmの領域ではアモルファス相が形成され、SiCよりも硬い回収試料が得られた。

(iii) 体積弾性率の測定では、C₆₀を室温で11GPaまで加圧し、その間の体積変化からf.c.c.構造のC₆₀の体積弾性率(B₀)として、15.6±0.8GPaという値を得た。

なお、全ての場合においてC₆₀からのダイヤモンド化は観測されなかった。また、室温での15GPaまでの加圧ではf.c.c.構造は保たれていた。

論文審査の結果の要旨

本論文はダイヤモンドに匹敵する超高硬度を示す超高压下C₆₀に関し実験的研究を行ったものである。カルビン、

グラファイト、ダイヤモンドに続く、第四の炭素の同素体として近年注目を浴びている C_{60} は、一般にフラーレンと呼ばれる炭素からなる物質の一つである。本研究では C_{60} に対して、(i) 高温高圧回収実験、(ii) 放射光を用いた高温高圧その場観察 X 線回折実験、(iii) 室温における体積弾性率の測定、以上三つの側面から実験・解析を行っている。

(i) 回収実験からは、10~15GPa の圧力領域において、 C_{60} は温度の上昇に伴い、出発試料の f.c.c.構造→アモルファス→層状の炭素と変化をすることが確認された。このうちアモルファス状態からの回収試料は、微小押込み硬さ (H_c) が42.3~103.0GPa の超高硬度物質であった (10GPa・600°C、12GPa・400~650°C、15GPa・165°C)。このアモルファス状態は、 C_{60} の球殻構造が壊れた後に形成された、 sp^2 および sp^3 結合を持った炭素からなる。同じ圧力・温度下では、回収試料の硬度は保持時間に依存し、硬度の maximum が存在する。硬度の maximum の値は高温ほど高くなり、硬度が maximum に到達するまでの時間は、高温ほど短いことが確認されている。

(ii) 放射光を用いたその場観察実験では、高圧・高温状態を保持している間の時間分割 X 線回折測定を初めて行っている (12.5、14.3GPa)。その結果、出発試料の f.c.c.構造からアモルファス状態への変化が確認されている。また、残存 f.c.c.構造の格子定数は、約三時間の保持の間、連続的に減少し、その減少量は高温ほど大きいものであった。高圧下での加熱時の変化の流れは回収実験と同じであり、残存 f.c.c.構造の格子定数が1.16~1.26nm の領域ではアモルファス相が形成され、SiC よりも硬い回収試料が得られている。

(iii) 体積弾性率の測定では、 C_{60} を室温で11GPa まで加圧し、その間の体積変化から f.c.c.構造の C_{60} の体積弾性率 (B_0) として、 15.6 ± 0.8 GPa という値が得られている。

なお、全ての場合において C_{60} からのダイヤモンド化は観測されず、室温での15GPa までの加圧では f.c.c.構造は保たれていることが示されている。

以上、超高圧下のフラーレンの示す超高硬度について、その生成過程を多面的な物性実験より明らかにした。

上記により博士 (工学) の学位論文として価値あるものと認める。