

超高压プロセスによる天然ダイヤモンド単結晶・多結晶の成因解明 —新超硬質材料の合成と開発—

物質・材料研究機構 物質研究所 赤石 實

1. はじめに

カザフスタンをはじめ世界の数カ所で変成岩起源のダイヤモンド単結晶が発見され、それらのダイヤモンドがどのような環境で生成したか、地質学者の間でたいへん興味を持たれている。彼等の多くは、C-O-H流体相からのダイヤモンド合成と同じようなプロセスで変成岩起源のダイヤモンドが生成した可能性が高いと推定している。[H]/[O]比の異なるC-O-H流体相からのダイヤモンドの生成プロセスと生成条件に及ぼす流体相の組成の効果を調べた。その結果、何れの組成の流体からもダイヤモンド単結晶の生成は認められたが、[H]/[O]比の小さい酸化性流体の方が、還元性のそれらよりもダイヤモンドが生成しやすい傾向が確認された。

粒子径1 μm 以下の微粒ダイヤモンド多結晶の合成とその切削工具への応用を昨年報告したが、本年度はダイヤモンドの微粒化を目指した研究を行った。その結果、粒子径が数百 nmのダイヤモンド多結晶を合成することができた。また、前年度に引き続き、微粒ダイヤモンド多結晶を切削工具に加工し、高Si-Al合金、Al-SiC系MMC材料等を被削材に用いて切削テストを行った。

2. 種々のC-O-H流体相からのダイヤモンド合成

C-O-H 3元系流体相は、[H]/[O]=2を境界に酸化性流体、水、還元性流体と大きく3つに分類される。何れの流体相からも7.7 GPa, 1300°C以上の条件でダイヤモンドが生成することは既に報告している。異なる[H]/[O]比の流体相と黒鉛からダイヤモンドの生成プロセスを比較検討することは、天然ダイヤモンドの成因解明の観点からも材料科学的な視点からも極めて重要である。本研究で用いた出発物質を表1に示す。

表1 出発物質とその組成

#	[H]/[O]	流体相源	炭素量(mmol)	流体相量(mmol)
A	1	シュウ酸二水和物	1.05	0.16
B	2	グルコース	0	1.5
C	6	ステアリン酸 ^a +シュウ酸二水和物 ^b	1.76	0.015 ^a + 0.012 ^b

上記A, B, Cの各反応のプロセスの詳細及び合成ダイヤモンドの形態等の記載は省略しますが、これらの反応の全てにおいて、最初に黒鉛結晶が生成し、その後長い潜伏期間を経て、ダイヤモンドの結晶化が認められた。[H]/[O]の増加に従って、ダイヤモンドの生成反応が遅くなることが確認された。

3. 微粒ダイヤモンド多結晶体の合成

脱シリケート処理した $0-0.25\ \mu\text{m}$ の天然ダイヤモンド粉末を炭酸マグネシウム(MgCO_3)- $0.1\text{mol}\%$ シュウ酸二水和物(OAD)混合粉末上に積層し、 $7.7\ \text{GPa}$, $1800-2300^\circ\text{C}$ の条件で、 $20-30$ 分間処理した。回収試料を研削後、X線回折計、走査型電子顕微鏡(SEM)、ヴィカース硬度計を用いて調べた。何れの試料にも MgCO_3 の溶浸は認められるが、 2100°C 以上の温度で焼結した試料のみ高硬度であった。 2000°C 以下の試料は何れもその硬さは低く、ダイヤモンド多結晶体とは言い難い。粒径数百ナノメートルの多結晶体表面の圧痕の微分干渉顕微鏡写真と焼結体破面のSEM像を図1及び2に示す。

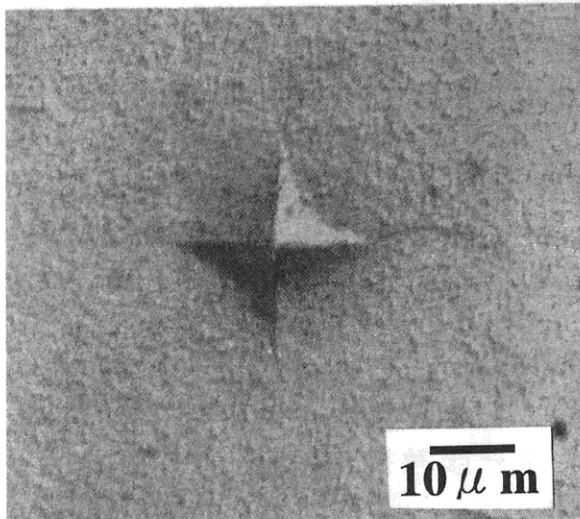


図1 圧痕の光学顕微鏡写真
 $7.7\ \text{GPa}$, 2100°C , $30\ \text{min}$.

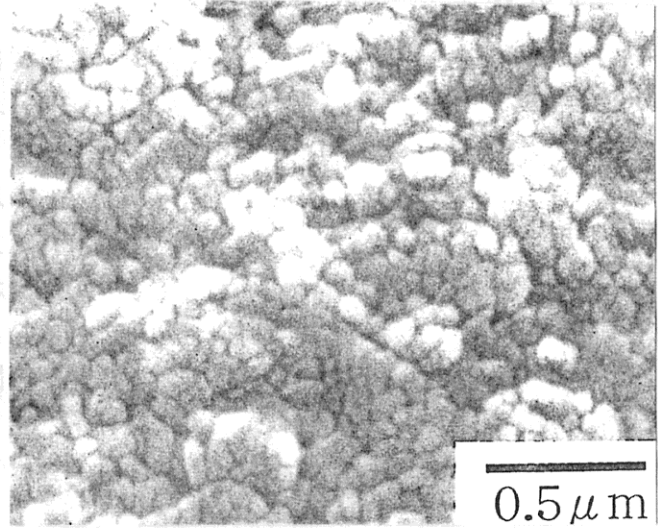


図2 多結晶体破面の二次電子像
 $7.7\ \text{GPa}$, 2100°C , $30\ \text{min}$.

4. 多結晶体工具の切削テスト

MgCO_3 -OAD混合粉末を焼結助剤に用い合成した粒径 $1\ \mu\text{m}$ 以下の微粒ダイヤモンド多結晶体、同様な方法で作製した炭酸塩を助剤とする $2-4\ \mu\text{m}$ の粒径のダイヤモンド多結晶体及び MgCO_3 のみを焼結助剤に用いて合成した粒径 $6-12\ \mu\text{m}$ のダイヤモンド多結晶体の3種類の多結晶体から通常の切削工具を試作した。これらの工具を用いて、高Si-Al合金である(A390-T6(Al-17%Si-4.5%Cu-0.55%Mg)の周速 $1000\text{m}/\text{min}$ の高速加工及びMMC材であるAl-20%SiCの周速 $400\text{m}/\text{min}$ での加工を上記切削工具を用いて行った。比較のために、粒径の異なる市販の金属を助剤とする3種類のダイヤモンド多結晶体からも同一工具形状の工具を作製した。

A390-T6の高速切削

切削テストの結果、炭酸塩を助剤とする $2-4\ \mu\text{m}$ 多結晶体が、耐摩耗性、仕上げ面粗度とも最も優れた性能を示した。粒径 $1\ \mu\text{m}$ 以下の微粒ダイヤモンド多結晶体は、 $2-4\ \mu\text{m}$ 多結晶体に次いで耐摩耗性に優れていた。

Al-20%SiCの切削

炭酸塩を助剤に用いて三菱マテリアルで合成した $6-12\ \mu\text{m}$ のダイヤモンド多結晶体が切削テストを行った多結晶体中で最も優れた耐摩耗性を示した。比較品の結果も同様に、粒径の大きいダイヤモンド多結晶体程耐摩耗性が高かった。