

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公表特許公報(A)

(11) 特許出願公表番号

特表2007-531681

(P2007-531681A)

(43) 公表日 平成19年11月8日(2007.11.8)

(51) Int. Cl.	F I	テーマコード (参考)
CO1B 31/06 (2006.01)	CO1B 31/06 A	3CO63
B24D 3/00 (2006.01)	B24D 3/00 320B	4G146
CO9K 3/14 (2006.01)	CO9K 3/14 550F	

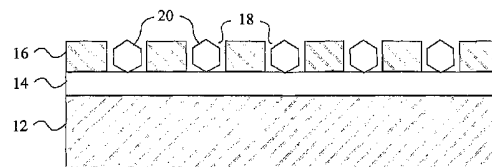
審査請求 未請求 予備審査請求 未請求 (全 36 頁)

(21) 出願番号	特願2007-501942 (P2007-501942)	(71) 出願人	506295573 ソン, チェン-ミン 台湾, タイペイ カウンティ 2391 1, タンスイ, チュン-チョン ロー ド, レーン 32, ナンバー 4
(86) (22) 出願日	平成17年3月1日 (2005.3.1)	(74) 代理人	100078282 弁理士 山本 秀策
(85) 翻訳文提出日	平成18年10月26日 (2006.10.26)	(74) 代理人	100062409 弁理士 安村 高明
(86) 国際出願番号	PCT/US2005/006739	(74) 代理人	100113413 弁理士 森下 夏樹
(87) 国際公開番号	W02005/084334	(72) 発明者	ソン, チェン-ミン 台湾, タイペイ カウンティ 2391 1, タンスイ, チュン-チョン ロー ド, レーン 32, ナンバー 4
(87) 国際公開日	平成17年9月15日 (2005.9.15)		最終頁に続く
(31) 優先権主張番号	10/791, 300		
(32) 優先日	平成16年3月1日 (2004.3.1)		
(33) 優先権主張国	米国 (US)		
(31) 優先権主張番号	10/926, 576		
(32) 優先日	平成16年8月25日 (2004.8.25)		
(33) 優先権主張国	米国 (US)		

(54) 【発明の名称】 結晶種の制御された配置を伴う超研磨粒子の合成

(57) 【要約】

超研磨粒子を合成するための改良された方法は、高収率及び狭い粒度分布を有する高品質の産業用超研磨粒子を提供する。この合成方法は、原材料(12)及び触媒材料(14)の実質的に均一な混合物又は原材料及び金属触媒の相を形成する工程を含む。複数の結晶種(20)は、混合物中の所定パターン中又はその層の1つの上に配置され、成長前駆体(24)を形成する。成長前駆体は、超研磨結晶が所望な成長度のために十分な時間、熱力学的に安定な温度及び圧力に維持される。都合のよいことに、結晶種のパターン化された配置及び開示されたプロセスは、合成八面体ダイヤモンドの製造を可能にし、一般的に改良された成長条件を可能にする。結果として、成長した超研磨粒子は、典型的には、高品質粒子及び狭い粒度分布で高収率を有する。



【特許請求の範囲】

【請求項 1】

超研磨粒子を合成するための方法であって、該方法は以下の工程：

(a) 原材料及び触媒材料の実質的に均一な混合物を含み、成長前駆体中に少なくとも部分的に所定のパターンで配置される結晶種を有する成長前駆体を形成する工程；及び

(b) あらかじめ選択された形態を有する超研磨粒子を成長させるのに十分な温度条件及び圧力条件で該成長前駆体を加熱する工程

を包含する、方法。

【請求項 2】

超研磨粒子を合成するための方法であって、該方法は以下の工程：

(a) 原材料を含む原材料層と該原材料に隣接する粒子状触媒層とを含む成長前駆体を形成する工程であって、該粒子状触媒層は触媒材料を含み、該成長前駆体は該原材料層及び該粒子状触媒層の 1 つに少なくとも部分的に所定パターンに配置された結晶種を有する、工程；及び

(b) あらかじめ選択された形態を有する超研磨粒子を成長させるのに十分な温度条件及び圧力条件で該成長前駆体を加熱する工程

を包含する、方法。

【請求項 3】

前記超研磨粒子がダイヤモンドであり、前記原材料が炭素源である、請求項 1 又は 2 のいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 4】

前記触媒材料が、Fe、Ni、Co、Mn、Cr 及びそれらのアロイからなる群から選択されるメンバーである、請求項 3 に記載の方法。

【請求項 5】

前記触媒材料が Fe - Ni アロイである、請求項 4 に記載の方法。

【請求項 6】

前記炭素源が黒鉛である、請求項 3 に記載の方法。

【請求項 7】

前記黒鉛が 0 . 5 0 より大きい黒鉛化度を有する、請求項 6 に記載の方法。

【請求項 8】

前記成長前駆体が、原材料、触媒材料、及び結晶種から本質的になる、請求項 1 又は 2 のいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 9】

前記結晶種が触媒コーティングでコーティングされる、請求項 1 又は 2 のいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 10】

前記触媒コーティングが、鉄、ニッケル、コバルト、及びそれらのアロイからなる群から選択される触媒金属である、請求項 9 に記載の方法。

【請求項 11】

前記触媒コーティングがニッケルを含む、請求項 10 に記載の方法。

【請求項 12】

前記成長前駆体を形成する工程が、前記実質的に均一な混合物でそれぞれの結晶種を実質的に取り囲む工程を包含する、請求項 1 に記載の方法。

【請求項 13】

少なくとも 1 つの追加の時間で前記成長前駆体を形成する工程を繰り返して多層成長前駆体を形成する工程をさらに包含する、請求項 1 又は 2 のいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 14】

前記多層成長前駆体は 3 ~ 10 個の結晶成長層を含む、請求項 13 に記載の方法。

【請求項 15】

前記結晶種が多結晶種である、請求項 1 又は 2 のいずれか 1 項に記載の方法。

10

20

30

40

50

【請求項 16】

前記多結晶種はダイヤモンド粒子及び触媒金属を含む、請求項 15 に記載の方法。

【請求項 17】

前記多結晶種は、以下の工程：

(a) ダイヤモンド粒子、触媒金属粉末、有機バインダー、及び任意の溶媒のスラリーを提供する工程、

(b) 該スラリーから複数の多結晶種前駆体を形成する工程；及び

(c) 該有機バインダー及び任意の溶媒を除去して多結晶種を形成する工程によって形成される、請求項 16 に記載の方法。

【請求項 18】

前記結晶種が、前記超研磨粒子の平均直径の約 0.05 ~ 約 0.2 倍の平均直径を有する、請求項 1 に記載の方法。

10

【請求項 19】

前記あらかじめ選択された形態が八面体である、請求項 1 又は 2 のいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 20】

前記所定パターンが、約 400 μm ~ 約 900 μm 離れた距離に結晶種を配置する、請求項 1 に記載の方法。

【請求項 21】

前記超研磨粒子が約 100 μm ~ 約 5 mm の粒径を有する、請求項 1 に記載の方法。

20

【請求項 22】

前記成長前駆体を形成する工程が、所定パターン中の金属触媒層上に前記結晶種を配置する工程と、原材料及び触媒材料の混合物中に結晶種を埋め込む工程とを包含する、請求項 1 に記載の方法。

【請求項 23】

前記成長前駆体を形成する工程が、以下の工程：

(a) 前記混合物又は金属触媒層の表面のいずれか上に開口パターンを有するテンプレートを配置し、該開口のそれぞれが 1 個の結晶種を受け入れるように構成されている、工程；

(b) 該テンプレートの開口を該結晶種で満たす工程；及び

(c) 該テンプレートを除去する工程

をさらに含む、請求項 1 に記載の方法。

30

【請求項 24】

超研磨粒子の成長中に温度条件を制御する方法であって、該方法は、以下の工程：

(a) 原材料及び触媒材料の実質的に均一な混合物を含む粒子状結晶成長層を形成する工程；

(b) 該粒子状結晶成長層中の少なくとも部分的に所定パターンに結晶種を配置して成長前駆体を形成する工程；及び

(c) 該成長前駆体を加熱する工程

を包含する、方法。

40

【請求項 25】

所定パターンに前記結晶種を配置する工程は、以下の工程：

(a) 前記混合物又は金属触媒層の表面のいずれか上に開口パターンを有するテンプレートを配置し、該開口のそれぞれが 1 個の結晶種を受け入れるように構成されている、工程；

(b) 該テンプレートの開口を該結晶種で満たす工程；及び

(c) 該テンプレートを除去する工程

をさらに包含する、請求項 24 に記載の方法。

【請求項 26】

所定パターンに前記結晶種を配置する工程は、前記粒子状結晶成長層中に少なくとも部分

50

的に該結晶種を埋め込む工程をさらに含む、請求項 25 に記載の方法。

【請求項 27】

前記超研磨粒子がダイヤモンドであり、前記原材料が炭素源である、請求項 24 に記載の方法。

【請求項 28】

前記触媒材料が、Fe、Ni、Co、Mn、Cr 及びそれらのアロイからなる群から選択されるメンバーである、請求項 24 に記載の方法。

【請求項 29】

前記成長前駆体が、原材料、触媒材料、及び結晶種から本質的になる、請求項 24 に記載の方法。

10

【請求項 30】

前記結晶種が触媒コーティングでコーティングされる、請求項 24 に記載の方法。

【請求項 31】

前記成長前駆体が、所定パターン中に配置された結晶種を有する複数の結晶成長層を含む多層成長前駆体である、請求項 24 に記載の方法。

【請求項 32】

前記結晶種が多結晶種である、請求項 24 に記載の方法。

【請求項 33】

前記成長前駆体の温度をモニタリングする工程と、前記超研磨粒子があらかじめ選択された形態を有して成長するような温度に維持する工程とをさらに含む、請求項 24 に記載の方法。

20

【請求項 34】

前記あらかじめ選択された形態が八面体である、請求項 24 に記載の方法。

【請求項 35】

マトリックス材料中に配置した複数の八面体ダイヤモンド粒子を含む、成長したダイヤモンド粒子の塊。

【請求項 36】

前記複数の八面体ダイヤモンド粒子が、平均粒径約 0.2 未満の標準偏差によって特徴付けられる狭い粒度分布を有する、請求項 35 に記載の塊。

【請求項 37】

前記複数の八面体ダイヤモンド粒子が約 10 μm ~ 約 10 mm の平均粒径を有する、請求項 35 に記載の塊。

30

【請求項 38】

前記複数の八面体ダイヤモンド粒子が約 20 μm ~ 約 5 mm の平均粒径を有する、請求項 37 に記載の塊。

【請求項 39】

前記複数の八面体ダイヤモンド粒子が 1 重量% 未満の含有物を有する、請求項 35 に記載の塊。

【請求項 40】

約 1 μm ~ 約 10 mm の粒径を有する合成八面体ダイヤモンド。

40

【請求項 41】

超研磨粒子を合成するための方法であって、該方法は以下の工程：

(a) 原材料層及び粒子状触媒層を含む成長前駆体を形成する工程；

(b) 該触媒層及び該原材料層の少なくとも 1 つにおける所定パターン中に少なくとも部分的に多結晶種を配置して成長前駆体を形成する工程であって、該多結晶種がダイヤモンド粒子及び触媒金属を含む、工程；及び

(c) あらかじめ選択された形態を有する超研磨粒子を成長させるのに十分、該成長前駆体を加熱する工程

を包含する方法。

【請求項 42】

50

前記多結晶種は、以下の工程：

(a) ダイヤモンド粒子、触媒金属粉末、有機バインダー、及び任意の溶媒のスラリーを提供する工程、

(b) 前記触媒層及び前記原材料層のすくなくとも1つにおいて該スラリーから複数の多結晶種前駆体を形成する工程；及び

(c) 該有機バインダー及び任意の溶媒を除去して多結晶種を形成する工程によって形成される、請求項41に記載の方法。

【請求項43】

前記スラリーから複数の多結晶種を形成する工程は、前記スラリーをスクリーン印刷して所定パターンを作成する工程を含む、請求項41に記載の方法。

10

【請求項44】

超研磨粒子であって、

(a) 原材料及び触媒材料の実質的に均一な混合物を含み、成長前駆体中に少なくとも部分的に所定パターンで結晶種を有する成長前駆体を形成する工程であって、該多結晶種はダイヤモンド粒子及び触媒金属を含む、工程；及び

(b) あらかじめ選択された形態を有する超研磨粒子を成長させるのに十分な温度条件及び圧力条件で該成長前駆体を加熱する工程を包含する方法によって形成される、超研磨粒子。

【請求項45】

前記多結晶種は、以下の工程：

20

(a) ダイヤモンド粒子、触媒金属粉末、有機バインダー、及び任意の溶媒のスラリーを提供する工程、

(b) 該スラリーから複数の多結晶種前駆体を形成する工程；及び

(c) 該有機バインダー及び任意の溶媒を除去して多結晶種を形成する工程によって形成される、請求項44に記載の超研磨粒子。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

(発明の分野)

本発明は、一般的に、超研磨粒子を合成する方法に関する。従って、本発明は、化学、冶金学及び物質科学の分野を含む。

30

【背景技術】

【0002】

(発明の背景)

ダイヤモンド及び立方晶窒化ホウ素(cBN)粒子は、種々の研磨適用及び切断適用における超研磨材としての広範囲にわたる用途が見出されている。ダイヤモンド粒子の世界消費は、現在400メートルトンを上回る。超研磨粒子を組み込んだ通常のツールとしては、切断ツール、ドリルビット、丸鋸、砥石車、ラッピングベルト、研磨パッドなどが挙げられる。一般に、ダイヤモンド砂は、3種類の異なった粒度範囲に分類することができる：鋸適用のための粗いメッシュ鋸砂(米国メッシュ18~60、すなわち1mm~0.23mm)、粉砕適用のための中程度の粒度の研磨砂(米国メッシュ60~400、230ミクロン~37ミクロン)、及び研磨用途のためのミクロンダイヤモンドの微細粉末(米国メッシュ<400メッシュ)。

40

【0003】

ダイヤモンド超研磨材の中で、鋸用ダイヤモンドは、約18~60メッシュの最も大きな粒度を有する。高品質鋸用ダイヤモンドは、一般的に、完全に成長した結晶学的表面を有する自形である。さらに、高品質鋸用ダイヤモンドは、欠損が非常に少ないか、又は含有物が非常に少なくあるべきである。鋸用ダイヤモンドのための標準的な適用は、高品質ダイヤモンドを必要とする。このことは、切断中、特に高速での切断中に直面する高い衝撃力に少なくとも部分的に起因している。対照的に、粉砕車において使用されるようなさ

50

らに小さなダイヤモンド粒子(すなわち、60～400メッシュ、すなわち0.25mm～37μm)は、加工物から段階的に材料を除去する表面にひっかき傷を作る。このような粉碎適用において、衝撃力は、切断適用のための衝撃力よりも典型的にはかなり小さい。従って、商業的に満足なさらに小さいダイヤモンドは、鋸用ダイヤモンドのようなさらに大きなダイヤモンドで一般的に受け入れられるレベルよりも欠陥及び不純物について懸念が少ない状態で製造することができる。

【0004】

超研磨材は、典型的には超高压下(例えば、約5.5GPa)及び高温下(例えば、1300)で形成される。ダイヤモンド砂の質は、典型的には成長速度によって制御される。より遅い成長速度により、結晶形態のより完全な形成が可能になり、内部欠陥の量が少なくなる。高品質の、十分に結晶化したダイヤモンド砂は、より攻撃的な鋸動作に適したさらに高い衝撃強さを示す。欠陥(例えば、金属含有物)の量はさらに、ダイヤモンド砂の熱安定性に影響を与える。含有物の少ないダイヤモンドは、劣化することなく、ダイヤモンドツールを製造するために典型的に使用されるより高い加工温度(例えば1000)に耐えることができる。さらに低い量の含有物を有するダイヤモンドはさらに、熱が発生する切断先端での磨耗を遅らせることができる。

10

【0005】

ダイヤモンド砂は、典型的には、溶融金属の触媒作用下で黒鉛をダイヤモンドに変換することによって成長する。溶融金属はさらに、炭素の溶媒としても役立つ。ダイヤモンドを合成するために使用される典型的な触媒としては、鉄、ニッケル、コバルト、マンガン又はそれらのアロイが挙げられる。ダイヤモンドの成長速度は、圧力及び温度によって制御される。典型的には、ダイヤモンドを安定にするのに必要な過剰圧力が低いほど、及び/又は触媒金属を溶融させるのに必要な過剰温度が低いほど、成長速度は遅くなる。例えば、Invar組成物の鉄及びニッケルの溶融アロイ(Fe65-Ni35)中で鋸用砂を成長させるために、圧力は約5.2GPaであり、温度は約1270である。

20

【0006】

特定の質を有するグレードのダイヤモンドを合成するために成長速度が決定されると、その粒径は成長時間によって決定することができる。鋸砂は研磨砂より非常に大きいので、それらはさらにかなり長い成長時間を必要とする。例えば、30/40メッシュの成長は、45分間が必要であり得；40/50メッシュの成長は25分間が必要であり得る。対照的に、100/120メッシュの成長は2分間が必要であり得；200/230メッシュの成長は1分間が必要であり得る。ミクロンのダイヤモンドは、典型的には、さらに大きなダイヤモンド、特に、大量の欠陥を有するさらに大きなダイヤモンドを微粉状にすることによって製造される。

30

【0007】

ダイヤモンドの成長のための時間が長くなるにつれて、圧力及び温度を制御することがより困難になる。しかし、結晶成長中の超高压条件の下で、圧力は、ダイヤモンド形成に伴う体積収縮に起因して連続的に減少する傾向がある。さらに、成長領域内の温度は、ダイヤモンド形成に伴う電気抵抗の増加に起因して上昇する場合がある。それゆえに、ダイヤモンド砂の均一な成長のための圧力及び温度の最適条件を維持することは非常に難しい。鋸用ダイヤモンド砂は、典型的には、例えば、より小さな粉碎用砂に必要な時間、例えば約1分よりもさらにかなり長い時間(例えば40分)かけて、超高压下で成長する。結果的に、鋸用ダイヤモンド砂は、特に高い品質を有するものは、成長させるのが非常に困難である。高い衝撃強さを有する鋸用砂は、自形の結晶形状及び金属又は黒鉛のいずれかを含む含有物が非常に少ないことによって特徴付けられる。それ故、圧力および温度の非常に厳しい制御は、高品質ダイヤモンドを生産するために、長期間を通じて必要である。

40

【0008】

これらの問題点は部分的に、鋸用砂を成長させることが可能な企業は数多くあるが、一方、さらに大きな粒度を有する高グレード鋸用砂を成長させることが可能な企業は非常に少ないことを説明する。結果として、粒が粗い鋸用砂、特に、高い品質、高い衝撃強さ、

50

及び高い熱安定性を有する鋸用砂を成長させる技術をマスターすることができる企業は非常に少ない。

【0009】

さらに大きな高品質ダイヤモンドを合成するための典型的な方法は、原材料（例えば黒鉛）及び金属触媒の均一性を確保する工程と、プロセス温度及び圧力を注意深く制御する工程とを含む。ダイヤモンド成長において使用される高圧高温（HPHT）プロセスは、 200 cm^3 を超える反応体積を使用することができる。多くの場合、反応体積における黒鉛からダイヤモンドへの変換は約30%までであり得る。残念なことに、典型的なプロセスはさらに、外部の欠陥（例えばざらつき）及び望ましくない含有物（例えば金属及びカーボン含有物）を有する結晶を生じる。それ故に、弱い低品質のダイヤモンドから受容可能な高い強度のダイヤモンドを分離するのにさらに経費を費やされる。

10

【0010】

高グレードの鋸用ダイヤモンドのダイヤモンド合成において考慮される1つの主な因子は、ダイヤモンドの核形成が均一にほぼ同時に起こるような条件を提供することである。ランダムな核形成方法は、典型的には、原材料のいくつかの領域が無駄になり、他の領域は高い欠陥率を有するダイヤモンド結晶で密に占められている。いくつかのダイヤモンド合成方法は、いくらか改良された核形成の均一性を有し；しかし、ダイヤモンドの成長中に局所的な圧力変化が起こり得る。反応セルを通して直接的に電流を流すことによって加熱が達成される場合、ダイヤモンドの成長はさらに、加熱を制御するために使用される電流で妨害される場合がある。このような妨害の結果は、反応セル全体にわたる温度勾配及び圧力勾配において非均一であり、変動性であり、結晶粒径、結晶の形状、及び含有物のレベルを広範囲に分布させる。これらの困難性にもかかわらず、非常に均質な出発材料を提供し、プロセス条件を注意深く制御することによって、反応セルの体積効率は典型的には2~3カラット/ cm^3 未満である。この限界的な収率は、大量の原材料を無駄にし、生産効率を下げ、改良のためのかなりの余地が残される。

20

【0011】

大きな産業用ダイヤモンド粒子を合成するための他の方法は、黒鉛及び/又は触媒の固体ディスクの層を形成する工程を含む。次いで、黒鉛層と触媒層との界面でダイヤモンド核形成が起こる。しかし、このような材料は、本質的に不均一である。例えば、ディスクに切断される黒鉛棒のための焼成温度は各領域によって変動することができ、ディスクの微細構造及び組成に影響をおよぼす。さらに、黒鉛を棒へと機械的に形成する間、黒鉛の微細構造が変化する場合があり、例えば、その外側領域が押出中に表皮効果を示す。結果として、黒鉛ディスクは、多孔性、黒鉛化度、灰分などにおいて変動する領域を有する傾向がある。同様に、触媒ディスクは、アロイ組成物を金属原子として変動させ、結晶構造は冷却中に乖離する傾向がある。さらに、押出及び機械的な形成プロセスの間、種々の領域におけるアロイ組成物は、さらに変化する。結果として、黒鉛及び触媒金属の局所的な濃度及び性質は、固体ディスク全体にわたって数パーセントまで変動し得る。このような条件下で成長したダイヤモンドは、異なる時間で核形成する傾向があり、変動する成長速度を受ける傾向があり、図19A、19B、及び22に示されるように、広範囲の粒度分布を有するダイヤモンドを製造し、連晶、過剰成長（すなわち速い成長速度）、及び不均一な成長（すなわち非対称の成長）に起因する欠陥のあるダイヤモンドの数が増加する。

30

40

【0012】

最近、産業用ダイヤモンド粒子の収率をさらに増やすために粉末状材料を使用する努力がなされた。これらの方法は、改良されたダイヤモンド核形成を達成するために、均一に混合した黒鉛及び触媒粉末に対して試みられた。しかし、ダイヤモンド核形成はランダムに起こる（すなわち、広範囲の粒度分布）が、図23に示されるように、HPHT条件下で粉末全体はいくらか均一である。このような方法は、いくつかの成功をもたらし、3カラット/ cm^3 まで改良された収率を生じた。さらに、特定の粒度の高品質のダイヤモンドの収率はさらに、従来層状ディスク方法を用いて達成可能なレベルの5倍まで向上した。しかし、粉末状混合物を用いる方法は、制御するのが困難である場合がある。例えば

50

、黒鉛及び金属触媒材料の密度は顕著に異なり、均一に混合させることは非常に難しい。それに加えて、粉末状混合物を用いる方法は、一般的に、層状のものを用いる方法よりも、さらに厳しく制御されたプロセス条件が必要とされる。

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0013】

それ故に、商業的用途のために適切な大きなダイヤモンド粒子の品質及び収率をさらに上げる方法は、研究及び開発で探され続ける。

【課題を解決するための手段】

【0014】

(発明の要旨)

高収率及び狭い粒度分布で高品質の産業用超研磨粒子を提供する、超研磨粒子を合成するための方法を開発することが有利であることが、本願発明者らによって認識された。

【0015】

1つの局面では、本発明は、超研磨材合成中の核形成部位を制御するための方法を提供することによって上述のような問題を解決する。上述の方法は、原材料層を形成する工程、原材料層に隣接して粒子状触媒層を形成する工程、及び触媒層及び原材料の少なくとも1つで所定パターンに結晶種を配置して成長前駆体を形成する工程を含むことができる。好ましくは、結晶種は、触媒材料によって実質的に取り囲むことができる。1つの代替的な実施形態では、結晶種は、原材料層中に配置される場合、触媒金属でコーティングする

10

20

【0016】

本発明の方法は、ダイヤモンド及び立方晶窒化ホウ素(cBN)のような超研磨材の形成に適用することができる。いずれかの場合において、結晶種は、ダイヤモンド種、cBN種、SiC種、又はそれらの組み合わせであることができる。

【0017】

1つの詳細な局面では、触媒層は、触媒材料から本質的になることができる。ダイヤモンド合成のための適切な触媒材料としては、Fe、Ni、Co、Mn、Cr及びそれらのアロイのような炭素溶媒を挙げることができる。鉄及びニッケルのアロイは、本発明と組み合わせると有用であることがわかり、このアロイは容易に商業的に入手可能である。cBN合成に適切な触媒材料としては、アルカリ金属、アルカリ土類金属、及びそれらの化合物を挙げることができる。

30

【0018】

原材料層の組成は、合成される超研磨材の種類に依存し得る。ダイヤモンド合成は、典型的には、炭素源の層を用いることを含む。本発明の別の詳細な局面では、炭素源の層は、主に黒鉛であることができる。さらに、本発明に従って、黒鉛化度は好ましくは0.50よりも大きくあることができる。炭素源の層は、粒子状の層として、又は黒鉛の固体板として形成することができる。同様に、cBN合成のために適切な原材料層は、六角形の窒化ホウ素源の層であることができる。

【0019】

本発明の別の局面では、成長前駆体は、複数の交互の原材料層及び触媒層を含むことができる。使用されるHPHT装置の反応体積に依存して、層の数は、1層~30層又はそれ以上に変動させることができる。なお別の詳細な局面では、成長前駆体は、所定パターンに配置された複数の結晶種をそれぞれ有する複数の粒子状触媒層を含むことができる。これらの所定パターンは、異なる粒度又は種類の結晶種を含むことができる。さらに、所定パターンは、層によって異なり得る層間の結晶種のパターンに関してそれぞれの層及び特定のパターン内に結晶種を配置することを含むことができる。

40

【0020】

適切な成長条件は、任意の数の公知のHPHT装置、例えば、限定されないが、ベルト装置、キュービックプレス、環状装置、スライディングアンビル、スプリット球体、スプ

50

リットダイなどを用いて維持することができる。このようなデバイスを用いて、成長前駆体を、ダイヤモンド又はcBNが超研磨材の成長に十分な時間、熱力学的に安定な温度及び圧力に維持することができる。有利には、粒子状触媒層に少なくとも部分的に結晶種を配置することは、典型的な合成プロセスにおいて必要とされるよりも要求が多くない非常に均一な成長条件を提供する。従って、所定パターンにおける結晶種の配置は、欠陥が少ない結晶成長の均一性を増加させるのに役立つ粒子状触媒層を提供しつつ、結晶成長の均一性、核形成時間を改良し、結晶の連晶及び成長しない領域を減らすことに役立つ。

【0021】

本発明のなお別の局面に従えば、結晶種は、多くの方法を用いて所定パターンに配置することができる。1つの方法は、開口パターンを有するテンプレートを触媒層の上に置く工程を含む。それぞれの開口は1個の結晶種を受け入れるように構成されることができる。次いで、この開口を結晶種で満たすことができる。次いで、結晶種を、触媒層の中に少なくとも部分的にプレスすることができる。テンプレートは、結晶種を触媒層にプレスする前又は後のいずれかに、任意に除去することができる。

10

【0022】

代替的な実施形態では、転写シートを、所定パターンで結晶種を触媒層に配置するために用いることができる。なお別の代替的な実施形態では、真空チャックは、所定パターンで結晶種を正しい位置に置いて、配置するために用いることができる。

【0023】

本発明の成長した超研磨材は、高品質のダイヤモンド粒子及びダイヤモンド粒度の狭い分布で高収率を有する。典型的には、ダイヤモンド粒子の収率は、予想され得る炭素からダイヤモンドへの変換が約30～約80%の範囲であることができる。さらに、高品質ダイヤモンドの割合は、全収率の50%～約90%の範囲であることができる。本発明の有効性のさらなる例として、本発明の成長したダイヤモンドは、上述の従来の方法の半分よりも小さい標準偏差を有する狭い粒度分布を有することができる。さらに、本発明の成長したダイヤモンドは、顕著に少ない含有物を有することができる。

20

【0024】

このように、さまざまな本発明の特徴は、むしろ広範囲に、後に続くそれらの詳細な説明がよりよく理解されるように、そして技術に対する本発明の貢献がよりよく認識されるように、概説された。本発明の他の特徴は、以下の発明の詳細な説明(添付の特許請求の範囲とともになされる)からより明白になるか、又は本発明の実施によって教示され得る。

30

【0025】

本発明の追加の特徴及び効果は、添付の図面と組み合わせて解釈される、後に続く詳細な説明から明らかであり、それらは共に、一例として、発明の特徴を例示する。

【発明を実施するための最良の形態】**【0026】**

(詳細な説明)

図面に示される例示的な実施形態に対して参照がなされ、それらを記載するために特定の言語が本明細書中で使用される。にもかかわらず、本発明の範囲の限定がこのことにより意図されないと理解される。本明細書中で示される発明の特徴、プロセス工程、及び材料の変更及びさらなる改変、及び関連技術分野で及びこの開示を所有する当業者になされる、本明細書中で示されるような本発明の原理のさらなる適用は、本発明の範囲内であるとみなされる。また、本願明細書において使用される専門用語が特定の実施形態だけを記載するために使われるものであり、制限することを意図するものではないことが理解されなければならない。

40

【0027】

(A . 定義)

本発明を記載し、請求することにおいて、以下の専門用語が、使われる。

【0028】

50

単数形「a」、「an」、及び「the」は、文脈で明確に示されないかぎり、複数の指示物を含む。このように、たとえば、「マトリックス物質(a matrix material)」は、1つ以上のこのような材料に対する参照を含み、「アロイ(an alloy)」に対する参照は、1つ以上のこのようなアロイに対する参照を含む。

【0029】

本明細書中で使用される場合、「粒子状」は、層に対して使用される場合、その層が粒子で形成されていることを示す。典型的には、本発明の粒子状層は、遊離した粉末、パッケージ化された粉末、又は実質的に焼結していない粒子を有する圧縮された粉末であることができる。これらの粒子状層は、多孔質又は半多孔質成形体であることができる。成形された粒子状層は、例えば、限定されないが、湿式又は乾式の冷成形(例えば、冷間静水圧成形、型成形、圧延、押出鑄込、鑄込み成形など)が挙げられる任意の公知の成形プロセスを用いて形成することができる。本発明において使用される粒子状材料(例えば、黒鉛及び金属触媒粉末)は、好ましくは、酸化及び汚染を防ぐために不活性環境中で取り扱われ、保存されることことができる。

10

【0030】

本明細書中で使用される場合、「実質的に含まない」などは、組成物中に同定された元素又は薬剤を含まないことを指す。特に、「実質的に含まない」として同定された元素は、組成物に完全に存在しないか、又は組成物に対して測定可能な影響を有さないほどの十分少ない量しか含まれないかのいずれかである。

【0031】

本明細書中で使用される場合、「所定パターン」は、前駆体の形成前に同定され、他の結晶種との規定された関係においてそれぞれの結晶種が独立して配置されるか又は置かれる、ランダムでないパターンを指す。例えば、「ダイヤモンド種を所定パターンで配置すること」は、特定のランダムでないあらかじめ選択された位置に個々の粒子を配置することを指す。さらに、このようなパターンは、均一の格子又は相殺された蜂巢パターンに限られておらず、使用される成長条件及び材料に基づく任意の数の構造を含んでもよい。

20

【0032】

本明細書中で使用される場合、「均一の格子パターン」は、全ての方向にお互いから均一に離れているダイヤモンド粒子のパターンを指す。

【0033】

本明細書中で使用される場合、「基質」は、固体金属材料を指す。多くの固体金属材料が金属粒子焼結又は硬結の生成物であるが、本明細書中で使用される場合、「基質」は、固体の塊又は固体形態に焼結又は硬結されていない粉末状金属材料又は粒子状金属材料を含まないことが理解される。

30

【0034】

本明細書中で使用される場合、「アロイ」は、第2の材料を有する金属の固体又は液体溶液を指し、この第2の材料は、非金属(例えば炭素)、金属、又は金属の性質を高めるか又は向上させるアロイであってもよい。

【0035】

本明細書中で使用される場合、「結晶種」は、さらに大きな結晶粒子を成長させるための出発材料として役立つ粒子を指す。本明細書中で使用される場合、結晶種は、典型的には、ダイヤモンド種、cBN種、及びSiC種を含む。例えば、超研磨ダイヤモンドの成長は、通常は、ダイヤモンド種を用いて達成されるが、cBN種及び/又はSiC種もまた超研磨ダイヤモンドを成長させるために使用することができる。同様に、cBNは、ダイヤモンド種、cBN種、及びSiC種を用いて成長させることができる。

40

【0036】

本明細書中で使用される場合、「ダイヤモンド種」は、天然又は合成ダイヤモンド、超硬質結晶、又は多結晶基質、又は基質の混合物のいずれかの粒子を指し、限定されないが、ダイヤモンド、多結晶ダイヤモンド(PCD)が挙げられる。ダイヤモンド種は、さらに大きなダイヤモンド結晶を成長させるための出発材料として使用され、ダイヤモンドの

50

ランダムな核形成及びランダムな成長を防ぐのに役立つ。

【0037】

本明細書中で使用される場合、「超研磨粒子」は、研磨剤として使用するのに適した粒子を指し、ダイヤモンド及びcBN粒子を含む。

【0038】

本明細書中で使用される場合、「前駆体」は、結晶種、粒子状触媒層、及び原材料層のアセンブリを指す。前駆体は、HPHT成長プロセス前のこのようなアセンブリを記載する。このような焼結していない前駆体は、時折、「なま生地 (green body)」と呼ばれる。

【0039】

本明細書中で使用される場合、「プレート」は、部分的に焼結した材料の塊、完全に焼結した材料の塊、又は構造において非多孔質結晶である材料の塊を指す。これは、実質的に非焼結である粒子を含む成形体又は圧粉と区別されるものである。プレートは、典型的には円状又は円板状であることができるが、機能的である他の形状 (例えば四角形) も使用することができる。

【0040】

本明細書中で使用される場合、「黒鉛化度」は、3.354オングストロームの理論上の間隔を有するグラフェン面を有する黒鉛の比率を指す。このように、黒鉛化度1は、3.354オングストロームのグラフェン面の基礎面分離 ($d_{(0002)}$) を有する (すなわち、炭素原子の六角形のネットワークを有する) 黒鉛が100%であることを示す。さらに高い黒鉛化度は、グラフェン面の間隔がさらに小さいことを示す。黒鉛化度Gは、式1を用いて計算することができる。

【0041】

$$G = (3.440 - d_{(0002)}) / (3.440 - 3.354) \quad (1)$$

逆に、 $d_{(0002)}$ は、式2を用いてGに基づいて計算することができる。

【0042】

$$d_{(0002)} = 3.354 + 0.086(1 - G) \quad (2)$$

式1を参照すると、3.440オングストロームは、無定形炭素についての基礎面の間隔であり ($L_c = 50$)、一方、3.354オングストロームは、長期間 (例えば12時間) 3000 で黒鉛化可能な炭素を焼結することによって達成され得る純粋な黒鉛の間隔である ($L_c = 1000$)。さらに高い黒鉛化度は、基礎面のサイズ (L_a) 及び重層層のサイズ (L_c) によって特徴づけられる、さらに大きな結晶粒径に対応する。サイズパラメータが基礎面の間隔に反比例して関連している点に注意する。表1は、いくつかの通常の種類黒鉛についての結晶の性質を示す。

【0043】

(表1)

【0044】

【表1】

表1

黒鉛の種類	$d_{(002)}$	L_a (Å)	L_c (Å)	I_{112}/I_{110}
天然	3.355	1250	375	1.3
低温 (2800°C)	3.359	645	227	1.0
電極	3.360	509	184	1.0
スペクトル	3.362	475	145	0.6
高温 (3000°C)	3.368		400	0.9
低灰	3.380	601	180	0.8
天然度が低い	3.43	98	44	0.5

本明細書中で使用される場合、「開口」は、意図された適用に依存する所定のサイズ及

10

20

30

40

50

び形状を有するテンプレート表面を貫通する開口部を指す。例えば、開口のサイズは、所与のメッシュサイズの複数の結晶種を収容するように設計されてもよい。しかし、たった1個の結晶種がそれぞれの開口に収容されるように開口を設計することが多くの場合望ましい。

【0045】

本明細書中で使用される場合、「含有物」は、ダイヤモンドの成長表面と周囲の材料との間の界面でのダイヤモンドの代わりに炭素又は金属析出物の形成を指す。多くの場合、含有物は、ダイヤモンドの成長表面でのかなりの量の炭素の存在及び/又はHPHT成長中の温度条件及び圧力条件の不十分な制御によって形成される。同様の含有物及び欠陥は、cBN合成中にも形成される場合がある。

10

【0046】

本明細書中で使用される場合、「自形」は、独特の形状を有すること、又は天然の結晶学的表面を含有する改変されていない天然形状を有する結晶を指す。

【0047】

本明細書中で使用される場合、「八面体」は、結晶学的表面が優先して(111)平面である結晶形態を指す。八面体のダイヤモンドの結晶は、典型的には、図14(一番右)及び図21B(主に八面体のダイヤモンド)に示されるような8個の三角形表面を有する。

【0048】

濃度、量、及び他の数値データは、本明細書中で範囲を持つ書式で示されてもよい。この種の範囲を持つ書式が、単に簡便又は簡潔さのためだけに使用され、数値が範囲の限定として明確に引用されるだけでなく、それぞれの数値及び副次的な範囲のすべてが明確に引用されるかのようにその範囲内に包含されることを含むと柔軟に解釈すべきであることが理解される。

20

【0049】

例えば、約1~約4.5の数値範囲は、1~約4.5を明確に引用するだけでなく、個々の数値(例えば、2、3、4)、及び副次的な範囲(1~3、2~4など)を含むと解釈されるべきである。同じ原理が1個の数値だけを引用する範囲にも適用され、例えば、「約4.5未満」は、上に引用される値及び範囲の全てを含むと解釈されるべきである。さらに、このような解釈は、記載される範囲又は特徴の幅を問わず適用するべきである。

30

【0050】

(B. 本発明)

本発明のさまざまな要素が数字による呼称を与えられ、本発明が述べられる図面が参照される。以下の説明が本発明の原理の単なる例示であり、添付の特許請求の範囲を狭くするものであると主張されるべきではないことが理解される。

【0051】

本発明は、超研磨粒子合成中の核形成部位を制御するための方法を含む。一般的に、本発明の方法は、対応する結晶種からダイヤモンド又はcBN超研磨粒子のいずれかを形成するために使用することができる。しかし、本発明の原理はまた、他の結晶粒子を製造するために有用であり得ることも理解される。

40

【0052】

(層状の成長前駆体)

図1を参照して、原材料層12を形成することができる。原材料層は、粒子状層又は固体プレートとして提供することができる。本発明の1つの局面では、原材料層は粒子状層であることができる。本発明の一実施形態では、原材料層は遊離した粉末として提供することができる。遊離した粉末は、型に配置されることができ、そして任意の公知のプレス技術を使用して、必要に応じてプレスされることができる。例えば、粉末は、約8~約15%の多孔性を達成するために約200MPaで冷間静水圧成形を使用してプレスすることができるが、約30%未満の多孔性が典型的には満足できるものである。粒子状層を用

50

いて本発明の結晶種を容易に置くことができ、結晶種の周囲の大きな空隙の形成を防ぐことができる。

【0053】

原材料層は、所望の超研磨粒子を成長させるための原材料を提供することができる任意の材料を含むことができる。特に、炭素源がダイヤモンド成長のために使用可能であるが、六角形の窒化ホウ素のような低圧状態の窒化ホウ素がcBN成長のために使用可能である。ダイヤモンド成長条件下で、炭素源層は、炭素源材料（例えば、黒鉛、無定形炭素、ダイヤモンド粉末など）を含むことができる。本発明の1つの局面では、炭素源層は黒鉛を含むことができる。種々の炭素源材料が使用可能であるが、黒鉛が一般的には良好な結晶成長を提供し、成長したダイヤモンドの均質性を高める。黒鉛が炭素源材料として使用される場合、好ましくは、炭素源材料は、少なくとも約85重量%の黒鉛を含む。黒鉛が粒子状層として形成される実施形態について、適切な黒鉛粉末は、典型的には約1 μ m～約1mmであることができる。本発明の1つの詳細な局面では、黒鉛は、0.50を超える黒鉛化度を有することができる。好ましくは、黒鉛は、約0.75～約1の黒鉛化度を有することができる。いくつかの場合には約0.80を超える黒鉛化度を有することができる。しかし、黒鉛化度は、最も好ましくは約0.85～約1である。さらに高い黒鉛化度がさらに大きな結晶粒径及び成長したダイヤモンドの改良された質及び均質性に対応することが実験により示された。ダイヤモンドは、典型的には、溶融触媒金属の存在下でグラフェン面のしわ寄せ（puckering）及び屈曲を介して形成される。それ故に、ダイヤモンド形成は、高い黒鉛化度を有する黒鉛を提供することによって改良することができる。

10

20

【0054】

本発明の別の局面では、粒子状触媒層14は、原材料層12に隣接して形成することができる。粒子状触媒層は、金属触媒粉末で形成することができる。本発明の金属触媒層は、遊離した粉末、多孔質成形体又は他の実質的に焼結していない塊として形成することができる。遊離した粉末は、原材料層に隣接した適切な型に粉末を入れることによって直接使用することができる。この遊離した粉末は、必要に応じて、公知のプレス技術を用いてプレスし、ディスクを形成することができる。あるいは、金属触媒粉末から、ディスクが形成され、ついで原材料層に隣接して配置することができる。

【0055】

好ましい実施形態では、粒子状触媒層は、バインダー、油、有機材料を含有しない。さらに、本発明の粒子状触媒層は、本質的に金属触媒粉末からなることができる。成長プロセス中の有機材料の存在は、成長した超研磨結晶構造中に望ましくない欠陥及び不均一性を生じる場合がある。粒子状触媒層を提供することにより、以下にさらに詳細に記載されるように、結晶種を触媒相中に容易に包埋することが可能である。このような粒子状層を取り扱う際に、有機バインダーが含まれる場合よりも、有機バインダーの欠如などがアセンブリ及びディスクをよりもろくする傾向があるので、注意が払われなければならない。それ故に、本発明のいくつかの実施形態では、原材料層として固体プレートを使用し、アセンブリに対してさらなる機械的支持体を提供することが望ましい場合がある。任意の実施形態では、原材料層及び触媒層は共にプレスされ、本発明の方法において使用するための二層アセンブリを簡便に供給することができる。本発明の1つの局面では、粒子状触媒層は、約33%未満の多孔性を有することができる。

30

40

【0056】

本発明の1つの詳細な局面では、触媒層は、所望な超研磨粒子の成長に適切な触媒材料を含むことができる。ダイヤモンド合成に適切な触媒材料は、炭素源材料からダイヤモンドの成長を促進可能な炭素溶媒である任意の金属又はアロイを含む金属触媒粉末を含むことができる。適切な金属触媒材料の非限定的な例としては、Fe、Ni、Co、Mn、Cr及びそれらのアロイを挙げることができる。いくつかの一般的な金属触媒アロイとしては、Fe-Ni、例えば、INVARアロイ、Fe-Co、Ni-Mn-Coなどを挙げることができる。現在の好ましい金属触媒材料は、Fe-Niアロイ、例えば、Fe-3

50

5 Ni、Fe - 31 Ni - 5 Co、Fe - 30 Ni、及び他の INVAR アロイであり、Fe - 35 Ni は最も好ましく、より容易に入手可能である。一般的に、適切な Fe - Ni アロイは、約 10 重量% ~ 約 50 重量% で変動するニッケル含量を有することができる。それに加えて、触媒材料は、ダイヤモンド合成下で、ダイヤモンドの成長速度を制御し（すなわち、炭素拡散の抑制を経て）、さらにダイヤモンド内へ窒素及び/又は酸素が過剰に拡散をすることを防ぐ添加剤を含むことができる。適切な添加剤としては、Mg、Ca、Si、Mo、Zr、Ti、V、Nb、Zn、Y、W、Cu、Al、Au、Ag、Pb、B、Ge、In、Sm、及びこれらの材料と C 及び B との化合物を挙げることができる。

【0057】

同様に、cBN 合成に適切な触媒材料としては、適切な窒化ホウ素原材料から cBN の成長を促進可能な任意の触媒を挙げることができる。cBN 成長に適切な触媒材料の非限定的な例としては、アルカリ金属、アルカリ土類金属、及びそれらの化合物が挙げられる。このような触媒材料のいくつかの特定の例としては、リチウム、ナトリウム、カルシウム、マグネシウム、バリウム、アルカリ金属及びアルカリ土類金属の窒化物、例えば、Li₃N、Ca₃N₂、Mg₃N₂、CaBN₂、及び Li₃BN₂ を挙げることができる。さらに、触媒材料としては、Al、Fe、Co、Ni、及びそれらのアロイを挙げることができる。cBN 合成下の触媒材料としてはさらに、cBN 結晶の成長速度を制御する非常に少量の添加剤、例えば、Si、Mo、Zr、Ti、Al、Pt、Pb、Sn、B、C、及びこれらの材料と Si、B、及び N との化合物を挙げることができる。

【0058】

粒子状触媒層 14 の寸法は、かなり変化させることができる。しかし、この層の厚みは、結晶種とその周囲の触媒材料との界面で結晶が成長可能なように十分、原材料（例えば炭素）が結晶種に拡散可能である厚みであるべきである。本発明の 1 つの局面では、原材料層及び/又は粒子状触媒層は、粉末を冷間プレス加工することによって形成し、本発明において使用するための薄層（例えばディスク）にスライスされる凝集性の固まりを形成することができる。次いで、プレスされたディスクを後で使用するために保存し、上述のような型に容易に入れることができる。

【0059】

図 3 を参照すると、本発明に従って、結晶種 20 は、粒子状触媒層 14 上の所定パターンに配置することができる。規則的な所定パターンに結晶種を配置することによって、利用可能な成長体積を有効に使用し、結晶の質を上げ、成長した超研磨粒子の粒度分布を減少させるための成長条件を最適化することができる。結晶種は、ダイヤモンド又は cBN のいずれかについて成長が起こり得る任意の適切な種材料であることができる。本発明の 1 つの局面では、結晶種は、ダイヤモンド種、cBN 種、又は SiC 種であることができる。ダイヤモンド又は cBN のいずれかの合成は、このような結晶種を利用することができる。しばしば、ダイヤモンド種はダイヤモンド合成にとって好ましい結晶種である。さらに、cBN 合成のいくつかの実施形態では、cBN 種を使用することができる。あるいは、結晶種は、複数のより小さな結晶が共に結合して各結晶種を形成する複数の粒子であることができる。多くの場合、触媒層に結晶種を配置する場合、結晶種は、好ましくはコーティングされていない種であり、すなわち、結晶種は、結晶種の周りにさらなる金属又は他のコーティングを含まない。

【0060】

典型的には、結晶種は、約 30 μm ~ 約 500 μm、好ましくは約 55 μm ~ 約 500 μm の直径を有することができる。しかし、本発明は、理想的にはほとんど任意のサイズの結晶種のパターン化された配置及び成長に適している。さらに大きな結晶種を利用することが可能であれば、さらに、大きな超研磨粒子を製造するのに必要な成長時間が減る。特に、本発明において使用するのに適したダイヤモンド種は、典型的なダイヤモンド種よりもさらに大きいもの、すなわち約 200 μm ~ 約 500 μm のものであることができるが、上述の範囲のダイヤモンド種も有効に使用することができる。あるいは、結晶種は、

10

20

30

40

50

約10 μ m~約50 μ mの直径を有することができ、いくつかの場合には、約20 μ mの直径を有することができる。本発明の方法は、含有物の組み込みも避けつつ、成長時間の延長を可能にする。一般的な指針として、典型的な結晶種は、所望な成長した超研磨粒子の平均直径の約0.05~約0.2倍の平均直径を有することができる。詳細な局面では、適切なダイヤモンド種はI I a型ダイヤモンドであることができ、合成又は天然のダイヤモンドであってもよい。あるいは、合成c B N又はS i C種を使用することができる。さらなる代替的な実施形態では、結晶種は、異なる種類の種の混合物、すなわち、ダイヤモンド種、c B N種、及びS i C種の2つ以上の混合物であることができる。

【0061】

所定パターンに結晶種を配置することは、多くの様式において達成することができる。1つの実施形態では、結晶種は、種の配置をガイドするためのテンプレートを用いて所定パターンに配置することができる。図1は、粒子状触媒層14上に配置可能なテンプレート16の側面図である。整合性及び精度を改良するために、テンプレートは、必要に応じて、案内ピン(guiding pin)などを用いて配置することができる。

10

【0062】

適切なテンプレートは、開口のパターンを形成することができるほとんど任意の材料で形成することができる。開口18は、各開口に1個の結晶種20を収容するようなサイズであることができる。開口は、典型的には円状であるが、他のいかなる実際的な形状も、使うことができる。典型的には、テンプレート16は、金属シート(例えばステンレススチール、ニッケル、アルミニウム)、又は硬質プラスチックで形成することができる。しかし、他の材料(例えば、ポリマー材料、セラミック材料、又はコンポジット材料)もさらに、テンプレートを形成するために使用することができる。本発明の1つの局面では、テンプレートは、図1及び3に示されるような材料を完全に貫通して延びる穴を形成するために調製することができる。あるいは、この穴は、くぼみ又は陥凹を形成するために材料によって部分的にのみ形成することができる。この実施形態では、テンプレートはさらに、結晶種を基質上に配置するための移動シートとしても作用することができる。いずれの場合においても、この穴は、機械的方法又は化学的方法のような任意の公知の方法を用いて形成することができる。いくつかの例としては、レーザー穿孔、マイクロ穿孔、コンピュータ数値制御(CNC)穿孔、化学エッチングなどを挙げることができる。本発明の1つの局面では、テンプレートはふるいであることができる。

20

30

【0063】

所定パターンは、結晶種を結晶成長に適切な距離で配置するほとんど任意のパターンであることができる。図2Aは、所定パターンがテンプレート16中の開口18の規則的な格子パターンであり得、x方向及びy方向の両方に規則的な間隔で結晶種を配置するために使用可能な1つの実施形態を示す。あるいは、所定パターンは、図2Bに示されるような一連のオフセット列であることができる。なお別の代替的な実施形態では、開口18は、濃度を変えた結晶種を粒子状触媒層14に配置させることができるように、又はサイズを変えた結晶種でさえも粒子状触媒層14に配置することができるように、形成することができる(図3)。例えば、種々のサイズの開口を有する所定パターンは、より大きな結晶種を最初に配置してより大きな開口を満たし、次いでより小さなメッシュの結晶種を用いてより小さな開口を満たすことによって満たすことができる。

40

【0064】

テンプレート16中の開口18の間隔は、いくぶん変動させることができる。しかし、開口は、個々の結晶種が400 μ m~約1.5mm離れて配置されるように形成されるべきである。当業者は、この範囲に入らない間隔も使用可能であり、結晶種のサイズ及び所望な最終的に成長した超研磨剤のサイズに依存し得ることを理解する。これらの距離は中心から中心まで測定されることを注記すべきである。さらなる手引きとして、開口は、隣の結晶と競合することなく、それぞれの種が原材料を受け入れるために十分に間隔をあけられるような距離で結晶種を配置するように形成することができる。超研磨粒子の所望な最終的なサイズに依存して、成長した超研磨粒子の間隔は、約300 μ m~約100

50

0 μmの範囲にあることができるが、この範囲に入らない距離も使用可能である。典型的には、成長した超研磨粒子の最終的な直径は、隣で成長した超研磨粒子の縁の間の成長した超研磨粒子の最終的な直径の少なくとも約0.8倍の距離を残し、好ましくは、最終的な直径の約1.2~約3倍の距離を残す。例えば、約800 μm~約900 μmの間隔は、約425 μm~約600 μm(30/40メッシュ)の直径を有する粒子を成長させるために使用することができる。別の例では、約650 μmの間隔は、約45メッシュのサイズを有する成長した超研磨粒子間で可能であり、一方、約800 μmの間隔は、約35メッシュのより大きな成長した粒子について可能である。なお別の例では、約700 μm~約1.5 mmの間隔は、30/40メッシュ(600~425 μm)の成長したダイヤモンドを成長させるために使用することができる。開口間の過剰に大きな間隔は、顕著な量の無駄な空間及び原材料を生じる場合があり、一方、結晶種を配置する開口の間隔が狭すぎると、共に成長する大量の結晶を生じる場合がある。当業者は、HPHT成長の間、収縮分を補正するために、間隔を適切に調整することができる。

10

【0065】

必要ではないが、バインダーの薄層を、結晶種を表面上に配置する前にその表面に配置することができる。このことは、種がそれらの所定位置に残されるのを防ぎ、製造中の取扱い容易性を高めることに役立つ場合がある。適切なバインダーとしては、限定されないが、有機バインダー、例えば、アクリル接着剤、ワックス、ポリエチレングリコール、ポリビニルアルコール、パラフィン、ナフタレン、ポリビニルブチラール、フェノール樹脂、ワックスエマルジョン及びそれらの混合物を挙げることができる。

20

【0066】

図3に示されるように、結晶種20を、テンプレート16の開口18に配置することができる。過剰の結晶種は、それぞれの開口が1個の結晶種で満たされるように、テンプレート表面を越えて広がる場合がある。過剰の結晶種は払いのけられるか、又は図3に示されるような粒子状触媒層14上に配置残った粒子を残して除去することができる。テンプレートは、結晶種のサイズ及びそのプロセスに依存して変動する厚みを有することができる。典型的には、テンプレートの厚みは、結晶種の直径の約0.6~約1.1倍であることができる。結晶種がテンプレートの開口に配置されると、次いで、粒子状触媒層上の所定パターン中に結晶種を残した状態でテンプレートを除去することができる。次いで、テンプレートをその状態に依存して再利用するか、又は破棄することができる。図4に示されるように、金属プレート22又は他の硬質表面を使用して、結晶種20を粒子状触媒層14内に少なくとも部分的にプレスすることができる。場合により、テンプレートが結晶種の直径未満の厚みを有する場合、結晶種が触媒層内に包埋される距離を制御するために、プレス中にテンプレートが残され、次いで除去されることができる。本発明の一実施形態では、結晶種20は、粒子の約半分~ほぼ全体が触媒層に埋め込まれるように、触媒層内にプレスすることができる。1つの局面では、結晶種は、それぞれの結晶種が触媒材料によって実質的に取り囲まれるように触媒層内に完全にプレスすることができる。

30

【0067】

本発明に従って、結晶種20の任意の露出部分は、図5に示されるように、触媒材料がそれぞれの結晶種を実質的に取り囲み成長前駆体24を形成するように、さらなる金属触媒材料で覆うことができる。典型的には、本発明のこの実施形態では、初期の粒子状触媒層14の厚み(図1、3、及び4)は、結晶種の直径の約0.5~約0.9倍、好ましくは約0.7倍であることができる。露出した結晶種は、露出した結晶種上にさらなる触媒材料を配置し、必要に応じてプレスして約33%未満まで多孔性を減少させ、図5に示されるような成長前駆体24を製造することによって覆うことができる。

40

【0068】

1つの代替的な実施形態では、結晶種の露出部分は、金属触媒プレート又はホイルを用いて覆うことができるが、固体プレート中のいくつかの固有の非均一性に起因して、粉末金属触媒が好ましい。粒子状触媒層14は、好ましくは、それぞれの結晶種を最初に完全に取り囲むのに十分な厚みを有する。結晶成長の間に、金属触媒材料は、結晶種の表面を

50

ぬらし続ける。それ故に、粒子状触媒層の厚みは、成長した超研磨粒子の直径よりも大きい必要はない。

【0069】

ダイヤモンド合成中に、金属触媒に対する黒鉛の比は、ダイヤモンド形成のための原材料の有用性を決定することができる。典型的には、金属触媒に対する黒鉛の比は、約0.5～約2.0重量比、好ましくは約0.7～約1.5重量比の範囲であることができる。1つの局面では、触媒金属は、成長条件中に、成長中のダイヤモンドの直径の約20～約60%の厚みを有する溶融触媒金属層を形成するのに十分な量で提供することができる。

【0070】

図6を参照すると、さらなる原材料層12及び粒子状触媒層14は、高温高压（HPHT）の装置セル体積の有効な使用について改良するために形成することができる。それぞれの層の厚みは、結晶種20の直径及び最終的な成長した超研磨粒子の相当する直径に依存することができる。さらに、これらの層の厚みはさらに、付近の触媒層中の結晶種間の距離に影響を与えることができる。それぞれの粒子状触媒層中の所定パターンは、図6におけるような層を整列させる際に、アセンブリが成長前駆体24の厚みにわたって所定パターンを示すように構造化することができる。図6に示されるパターンはオフセットパターンであるが、隣接して成長する結晶に影響を与えない限り、任意の適切なアレンジを使用することができる。典型的には、粒子状触媒層は、約50 μm ～約500 μm の厚みを有することができ、一方、原材料層は、約70 μm ～約1mmの厚みを有することができる。当業者は、同定された範囲外の厚み及び形状も使用可能であることを認識する。

10

20

【0071】

典型的なHPHT反応セルは、約1.5 cm^3 ～約100 cm^3 の反応体積を有することができる。それ故に、結晶成長に利用可能な反応体積を完全に利用するために、成長前駆体中に大量の層を含むことがしばしば実際的である。本発明の1つの局面では、成長前駆体は約3～約50層を有することができる。それに加えて、それぞれの層の形成及び結晶種の配置は、多孔性を減らし、成長前駆体の凝集性を高めるために、プレス工程の前又は後に行なうことができる。このように、1つの好ましい実施形態では、それぞれの層は、多層成長前駆体全体をプレスする前にプレスすることができる。プレスは、好ましくは、冷間静水圧成形によって達成することができるが、他のプレス技術も使用することができる。

30

【0072】

（所定パターンへの結晶種の配置）

上述のように、結晶種は、多くの方法を用いて所定パターン中に配置することができる。当業者は、表面又は基質上の所望の位置に粒子を配置するための種々の様式を認識する。研磨ツールの製造のためのパターンに超研磨粒子を配置するための多くの技術が開発された。例えば、米国特許第2,876,086号；第4,680,199号；第4,925,457号；第5,380,390号；及び第6,286,498号（これらそれぞれは参考として組み込まれる）は、種々の研磨ツールを形成するためにパターン中に超研磨粒子を配置する方法を開示する。

【0073】

結晶種を所定パターンに配置するための代替的な方法は、シート上に接着層を有する移動シートを提供する工程を包含することができる。移動シートは、自立し、結晶種を触媒層に移すことが可能な任意の材料であることができる。次いで、上述のようなテンプレートを、接着層上に配置することができる。好ましくは、接着層は、テンプレートの除去が容易な状態で、接着剤に接触する結晶種を保持するのに十分粘着性である。移動シートと共に使用するのに適した中程度に粘着性の接着剤の非限定的な例としては、アクリル接着剤及びポリマー性接着微粒子、例えば、POST-IT（3M Companyの商標）ノートにおいて使用されるようなものを挙げるることができる。あるいは、テンプレートは、テンプレートの除去を容易にするために、平滑で及び/又は粘着性ではない材料（例えばTEFLONなど）でコーティングされた表面を有することができる。次いで、テンプ

40

50

レートの開口を、上述のような結晶種で満たすことができる。次いで、テンプレートを除去することができる。テンプレートを除去した後、移動シートを触媒層に対して配置することができる。移動シートを結晶種と触媒層との間に配置することができる。使用される材料に依存して、移動シートは、HPHTの初期段階の間に分解してもよい。

【0074】

あるいは、移動シートは、結晶種が移動シートと粒子状触媒層との間にあるように配置することができる。次いで、移動シートを除去するか、又は適所に残すことができる。結晶種を乱すことなく移動シートを容易に除去するために、粒子を粒子状触媒層に部分的にプレスすることができる。もちろん、接着層の組成をさらに調整して、接着剤の粘着性を減らすこともできる。あるいは、移動シートは、金属触媒層（例えば粒子状触媒層において使用される金属触媒材料で形成されるホイル又はディスク）であることができる。金属触媒ホイル層は、金属触媒材料を用いて結晶種を取り囲むのに役立つ位置に維持することができる。このような実施形態では、結晶成長に悪影響を与え得る有機バインダーの使用を避けるために、結晶種をホイル内に部分的に包埋することが望ましい場合がある。特定の移動シートプロセスを使用する場合であっても、結晶種を粒子状触媒層に少なくとも部分的にプレスすることができる。

10

【0075】

本発明のなお別の代替的な実施形態では、結晶種を真空チャックを用いて所定パターンに配置することができる。具体的には、真空チャックは、その中に開口パターンを有して形成することができる。開口を真空で引くことによりそれぞれの開口に1個の結晶種が確実に入るように、開口は、1個の結晶種を保持するように構造化することができる。このように、開口は、結晶種よりもわずかに小さいサイズの、真空源に接続される初期部分を有することができる。実際に、真空は、開口を通して引かれ、次いでチャックを結晶種の供給において配置することができる。次いで、チャックを粒子状触媒層又は場合により移動シートの上に配置することができるか、及び結晶種を放出し、チャック中の開口パターンに対応する所定パターン中に結晶種を配置するのに真空を十分減らすことができる。次いで、上述の様式と同様の様式で、結晶種を触媒層内に少なくとも部分的にプレスすることができる。

20

【0076】

あるいは、結晶種は、上述の方法のいずれか（すなわち、テンプレート、ふるい、移動シートなど）を用いて、触媒層よりも、原材料層の上の所定パターンに配置することができる。所定パターンに結晶種を配置するための上述の方法のいずれかが、さらに原材料層上で使用可能であることが理解される。典型的には、ダイヤモンド種は、ダイヤモンド種と原材料の炭素又は黒鉛とが直接接触するのを防ぐために、原材料層に配置する前に触媒金属でコーティングすることができる。ダイヤモンド粒子のコーティングは、当該産業において公知であり、利用可能な多くの方法を用いて達成することができる。典型的には、ダイヤモンド粒子は、触媒金属（例えば、Fe、Ni、Co、及びそれらのアロイ）によってコーティングすることができる。ニッケル及びニッケルアロイの触媒コーティングが特に好ましい。金属コーティングは、HPHT成長中にダイヤモンド種の周囲に溶融触媒層を提供するのに役立つ、黒鉛又は他の炭素原材料との直接的な接触を防ぐのに役立つ。このコーティングは、約2 μm～約50 μmで変動する厚みを有することができるが、この範囲外の厚みも使用することができる。

30

40

【0077】

なお別の代替的な実施形態では、結晶種は、スクリーン印刷、他のリソグラフィ技術などのような方法を用いてスラリーから多結晶種を形成することによって所定パターンに配置することができる。このように、結晶種は、多結晶又は単結晶であることができる。この実施形態にしたがって、多結晶種は、ダイヤモンド粒子、触媒金属粉末、有機バインダー、及び任意の溶媒のスラリーを形成することによって調製することができる。このスラリーから、複数の多結晶種前駆体が形成され、有機バインダー及び任意の溶媒を除去して多結晶種を形成する。

50

【0078】

ダイヤモンド粒子は、ほとんど任意の機能的なサイズであることができる。一般的な指針として、約1 μ m～約15 μ mのサイズが有用であり得、典型的には約2 μ m～約4 μ mのサイズが有用であり得る。多結晶種の最終的なサイズは、本明細書中で議論される結晶種とほぼ同じサイズであり得るが、多くの場合において、多結晶種は約10 μ m未満であることができる。さらに、触媒金属粉末は、他の実施形態と組み合わせ、又は多結晶種と組み合わせ使用可能な実施形態と組み合わせ、上述の触媒材料を含むことができる。典型的には、触媒は、約5体積%～約50体積%の多結晶種を含むことができる。

【0079】

適切な有機バインダーの非限定的な例としては、ポリエチレングリコール(PEG)、ポリビニルアルコール、メチルプロピルセルロース、カルボキシメチルセルロース、ヒドロキシエチルセルロース、メチルエチルセルロース、ポリビニルブチラール、アクリル樹脂、コールタールピッチ、長鎖脂肪質、糖、澱粉、アルギナート、ポリスチレン、セルロースアセテート、フェノール樹脂及びそれらの混合物を挙げることができる。任意の溶媒は、特定の印刷技術に適應するようにスラリーの粘度を調整するために含まれることができる。適切な溶媒としては、限定されないが、アセトン、エタノール、イソプロパノール、グリコール、メタノール、トリクロロエチレン、トルエン及びそれらの混合物を挙げることができる。

10

【0080】

例えば、スラリーは、表面(例えば成長前駆体又は粒子状成長層の表面)上に印刷され、多結晶種前駆体を形成することができる。有機バインダー及び任意の溶媒は、乾燥工程及び/又は脱ろう工程において除去することができる。例えば、第1の加熱工程は、任意の溶媒を除去するために使用することができる(例えば、約100で約4時間)、第2の脱ろう工程は、有機バインダーを除去するために使用することができる(例えば、600で約2時間加熱(通常は減圧下))。最終的な多結晶種は、典型的には、ダイヤモンド粒子及び触媒金属を含む。最適な結果は、最終的な成長した超研磨粒子が多結晶種のサイズの約10倍より大きいサイズを有する場合に達成することができる。

20

【0081】

本発明にしたがって、多結晶種は、単結晶構造を有する最終的に成長した超研磨粒子を製造することがわかった。本発明の成長条件は、多結晶種が結合して実質的に1個の結晶を形成可能であると考えられる。この様式で形成された超研磨粒子は、研磨適用中に粒子の微細な破壊を可能にする傾向がある。典型的な超研磨粒子は、残りの粒子を使用できない状態にする鈍い破壊又は大きな破壊のいずれかになる傾向がある。しかし、微細な破壊は、粒子の新しく鋭い縁を周期的に露出させ、粒子の塊の利用寿命を延ばすことができる。

30

【0082】

(混合物成長前駆体)

本発明のなお別の代替的な実施形態では、超研磨粒子合成中の核形成部位を制御するための方法は、粒子状結晶成長層を形成する工程を含むことができる。一般的に、成長前駆体を形成することができ、次いで、あらかじめ選択された形態を有する超研磨粒子を成長させるのに十分、加熱することができる。成長前駆体は、原材料及び触媒材料の実質的に均一な混合物を含むように形成することができる。さらに、成長前駆体は、所定パターン中に少なくとも部分的に結晶種を有することができる。層状成長前駆体に関する上述の原理及び考察は、原材料及び触媒材料の実質的に均一な混合物を含む成長前駆体と組み合わせても使用可能であることが理解される。

40

【0083】

図7を参照すると、粒子状結晶成長層15は、粒子状原材料及び粒子状触媒材料の実質的に均質な混合物であることができる。結晶種20は、粒子状結晶成長層中に少なくとも部分的に所定パターンで配置され、上述の同じ方法を用いて成長前駆体24を形成することができる。さらに、成長前駆体は、図7に示されるように、1個の層又は複数の層を含

50

むことができる。上述の材料、範囲、パターン化された配置方法、及び他の局面はさらに、原材料及び触媒材料の混合物を含む粒子状結晶成長層に適用することができる。1つの局面では、成長前駆体は、原材料、触媒材料、及び結晶種から本質的になることができる。

【0084】

以前に述べたように、黒鉛によって実質的に取り囲まれたコーティングされていないダイヤモンド種は、望ましくない場合がある。しかし、ダイヤモンド種を炭素原材料及び触媒の混合物で取り囲むことにより、触媒粉末がダイヤモンド種の表面を濡らし、その表面をコーティングすることが可能になる。この湿潤効果は、少なくとも部分的に、ダイヤモンドと溶媒金属との間に形成されるカーバイド結合を結果として生じる。ダイヤモンドは、触媒金属が炭素で不飽和状態にあるため、最初に溶解してもよいが、一旦触媒金属が溶融すると、炭素は溶融触媒内に拡散し始める。溶解又は懸濁した炭素は、ダイヤモンド種の表面にすぐに付着し、ダイヤモンド種が成長可能になる。

10

【0085】

1つの現時点で好ましい実施形態では、ダイヤモンド種は、触媒材料でコーティングすることができる。いくつかの実施形態では、コーティングは、触媒材料から本質的になることができる。典型的には、コーティングは、粒子状触媒層において使用される触媒材料の溶融温度と比較して約5 内の溶融温度を有する触媒材料であることができる。このことは、金属が顕著に異なる時間で溶融し、最終的に成長したダイヤモンドの質を下げることを避けるのに役立つ。ダイヤモンド種は、任意の公知の技術を用いて触媒材料でコーティングすることができる。ほとんどの触媒金属について必要な厚みでダイヤモンドにコーティングすることが容易にはできず、かなりの費用を必要とし、及び/又は所望でない有機残渣材料が残るため、ダイヤモンド粒子のコーティングは歴史的に困難であることがわかっている。コーティング技術のいくつかの例としては、限定されないが、電気鍍金、化学（例えば、非電着性金属析出の）堆積、物理的蒸着法（例えばスパッタリング）、化学気相成長、融解塩コーティングなどが挙げられる。

20

【0086】

一実施形態では、触媒金属はニッケルであることができるが、他の触媒金属も適切であり得る。図8A及び8Bは、本発明の一実施例に従う、ニッケルコーティングされたダイヤモンド粒子の顕微写真を示す。ニッケルコーティングは、典型的には、小さい突出またはスパイク（*s p i k e*）によって特徴づけられる非常に不規則な面微細形状を有する。この不規則な微細形状は、成長前駆体の混合物中の触媒コーティングと触媒金属との間の接触表面積が増加するというさらなる利点を有する。この様式において、さらなる触媒材料は、ダイヤモンドと原材料との直接的な接触を避けるのに十分な厚みのコーティングを維持するために、結晶成長中に触媒コーティングに容易に拡散させることができる。ダイヤモンド成長が進行するにつれて、ダイヤモンドの表面積が増加し、触媒コーティングの厚みが減少する傾向がある。しかし、本発明にしたがって、触媒コーティングの厚みは、成長前駆体中での触媒材料の量を調整することによって維持することができる。触媒コーティングは、ダイヤモンドと原材料との実質的に直接的な接触を避けるのに十分な厚みを有することができる。典型的には、触媒コーティングは、粒子の直径の約0.5～約1.3倍の厚みを有することができる。例えば、約40 μm の直径を有するダイヤモンド種は、最終的な直径が約100 μm のものまでコーティングすることができる。このように、この場合におけるコーティング厚みは約30 μm である。さらに大きな結晶種ではさらに、所定パターンに種を配置する正確度及び速度を向上させることができる。実際の様式として、約50 μm よりも小さな粒子は、テンプレートを用いて確実に配置することが困難である場合がある。

30

40

【0087】

本発明のなお別の局面では、結晶種を、金属触媒層（例えばホイル又はディスク）上に整列させ、所定パターンの結晶種を形成することができる。結晶種は、上述と同様の様式で金属層上に配置することができる。触媒材料及び原材料の実質的に均一な混合物を、結

50

晶種の周りに形成することができ、次いで、成長前駆体の多孔性を減らすために確固たるものとする事ができる。さらなる層は、別の金属触媒層を成長前駆体上に配置し、上述の工程を繰り返して、ほとんど任意の数の層を有する複数層を有する成長前駆体を製造することによって形成することができる。金属触媒層は、超研磨粒子の成長に適した任意の触媒材料を含むことができる。典型的には、金属触媒層は、約 $20\ \mu\text{m}$ ~ 約 $0.10\ \text{mm}$ の厚みを有することができるが、任意の機能的な厚みを使用することができる。一般的に、多層を有する前駆体中の層の数は、使用される H P H T 装置に依存して変動させることができる。典型的には、前駆体の高さは、その直径の約 80% であるが、いくらか変動させることができる。

【0088】

金属触媒層は、成長前駆体について改良された機械的支持を有する実質的に平滑な表面を提供することができる。さらに、超研磨粒子の成長中に、この層は、成長する超研磨粒子の周りに触媒コーティングを維持するための触媒材料の初期供給源を提供することができる。超研磨粒子が成長を続けるにつれて、さらなる触媒材料の主な供給源は、触媒及び原材料の混合物であることができる。

【0089】

本発明の別の任意の局面では、成長前駆体を、外側表面に沿って金属コーティングでコーティングすることができる。適切な金属材料としては、Fe、Ni、Co、及びそれらのアロイを挙げることができる。外側の金属コーティングは、成長条件下で、前駆体が H P H T 装置の反応セル壁に付着又は結合することを防ぐのに役立つ。コーティングの厚みは、上述の利点を提供するのに十分な任意の厚みであることができるが、典型的な厚みは約 $50\ \mu\text{m}$ ~ 約 $300\ \mu\text{m}$ の範囲であることができる。なお別の任意の局面では、分離材料の層は、H P H T 装置の反応セル体積中で成長前駆体に隣接して含まれることができる。NaCl の層は、典型的には分離材料として使用可能であるが、他の材料も使用することができる。

【0090】

次いで、成長前駆体を、ダイヤモンド又は c B N が熱力学的に安定な温度及び圧力にさらすことができる。温度及び圧力が成長条件に十分な状態まで高まるにつれて、原材料（例えば、炭素）は結晶種に向かって移動する。十分な触媒材料がこのようなコーティングを形成するために存在する場合、個々の結晶種の周囲の触媒材料は、それぞれの種の周りに実質的に触媒層を形成する。触媒コーティングは、結晶種の表面でダイヤモンド又は c B N の形成を促進する。成長条件は、成長した超研磨粒子の特定のサイズを達成するために所定の時間維持される。

【0091】

有利には、本発明の方法は、それぞれの超研磨粒子の成長条件よりも高度な制御を可能にする。非常に規則的な種の配置及び実質的に均質な成長前駆体の組成は、成長前駆体全体での正確な温度制御を可能にする。結果として、個々の超研磨粒子の成長は、成長前駆体全体でほぼ均一になり得る。それ故に、最終的な超研磨粒子は、形状、サイズ、及び質において非常に均一である。典型的には、成長した超研磨粒子は、選別されておらず粒度もばらばらな粒子の平均サイズの約 0.2 未満の標準偏差によって特徴づけられる狭い粒度分布を有することができる。多くの場合において、粒度分布は、粒子において平均約 0.1 未満の標準偏差を有することができ、例えば、約 $100\ \mu\text{m}$ の平均サイズを有する成長した粒子の 1 個のアセンブリが約 $90\ \mu\text{m}$ ~ 約 $110\ \mu\text{m}$ の範囲外の粒子を実質的に有さない。

【0092】

最終的に成長した超研磨粒子は、多くの公知の方法を用いて成長前駆体から回収することができる。例えば、任意の残りの金属マトリックスは、加温した王水に溶解することによって除去することができ、残った黒鉛は熱硫酸によって除去することができる。回収された超研磨粒子をさらにきれいにし、及び / 又は商業的用途のために調製することができる。

10

20

30

40

50

【0093】

(ダイヤモンド成長の考察)

本発明にしたがって、成長前駆体は、それぞれの種が実質的に同一の成長環境にさらされるように、制御された位置に配置されたダイヤモンド種を含むことができる。この様式では、それぞれの種は、実質的に同様のサイズ及び質になるまで成長させることができる。この技術は、ほぼ完全な出力が特定の適用又は顧客にとって均一であるため、サイズ及び質の個別の選択を可能にする。成長条件の均一性におけるこの向上に起因して、多くの利点を現実化させることができる。例えば、結晶形態を、あらかじめ選択された形態、例えば、八面体、正八面体などを有する超研磨粒子を製造するために制御することができる。以下の議論は、示される任意の特定の理論によって束縛されるものではないが、本発明の方法を用いて特定の結果を得るための手引きを提供する。

10

【0094】

ダイヤモンド成長は、溶解した炭素原子を提供することによって、又は存在するダイヤモンド結晶表面に付加する黒鉛の層にしわを寄せることによって達成することができる。図9Aは、成長の進行におけるダイヤモンドの八面体(111)表面を示す。図9Bに示されるように、この層に含有される炭素原子は、1つの結合していないか、又はぶらさがった電子を含有する。ダイヤモンドの八面体表面は、図9Cに示されるように、黒鉛層にしわをよせることによって優先的に形成することができる。ナノサイズの黒鉛のフレイク(黒鉛様の炭素すなわちGLC)が存在する場合、図10Aに示されるように、これらのフレイクは容易に再整列して菱面体晶黒鉛を形成することができる。菱面体晶黒鉛は、容易にしわがよせられ、図10Bに示されるようなダイヤモンド様炭素(DLC)を形成することができる。次いで、ダイヤモンド様炭素を図10Cに示されるようにダイヤモンドの八面体(111)表面に付加することができる。菱面体晶黒鉛を形成するこのような方法のさらなる詳細は、出願人の同時係属出願である米国特許出願番号第10/900,037号(2004年7月24日出願、本明細書中に参考として組み込まれる)に見出され得る。

20

【0095】

同様に、ダイヤモンドの立方体(100)表面は図11Aに示される。これらの原子スケールの原子配置がマクロスケールの結晶構造(すなわち、ダイヤモンド粒子の立方体表面対八面体表面)に影響を与えることを注記することは興味深い。ダイヤモンドの立方体表面上の炭素原子は、図11Bに示されるような2個のぶらさがった電子を有する原子を含有する。このように、炭素原子は、図11Cに示されるように、ダイヤモンドの成長がこの表面に垂直に起こるように立方体表面に容易に付着することができる。

30

【0096】

図12Aを参照して、ダイヤモンド成長機構が、さらに詳細に議論される。図12Aは、触媒材料32に取り囲まれる成長するダイヤモンド粒子30を示す。ダイヤモンド粒子の立方体(100)表面36の一部分及び八面体(111)表面38の一部分も示されている。ダイヤモンド粒子を取り囲む触媒材料エンベロープ32はさらに、触媒エンベロープ中を拡散する原材料34と接触している。図12Bは、この平面上で成長しやすい成長条件下での立方体表面36の一部分を示す。具体的に、比較的高い温度で、黒鉛は溶解して原子状炭素溶質を形成する。これらの炭素原子は、ダイヤモンドの立方体表面上にダイヤモンドとして析出する傾向がある。この表面に垂直な立方体表面の成長により、立方体表面がさらに小さくなり、成長するダイヤモンドがさらに八面体になる。

40

【0097】

逆に、図12Cに示されるように、温度が比較的低い場合、黒鉛は溶融触媒中で崩壊し、ダイヤモンド様炭素(DLC)になる触媒作用下でしわのよった黒鉛様炭素(GLC)を形成する。DLCはダイヤモンドの八面体(111)表面に付加する。結果として、(111)表面に垂直な成長は、この表面を縮小し、ダイヤモンド結晶をさらに立方体にする。例えば、図13Aは、DLCが八面体(111)表面に優先的に析出し、結晶がさらに立方体になるような低温でのダイヤモンド成長を示す。逆に、より高い温度は、図13

50

Bに示されるように、炭素原子を立方体表面に析出しやすくし、ダイヤモンド結晶はより八面体になる。

【0098】

ダイヤモンド形態は、(100)表面及び(111)表面に垂直な相対成長速度によって決定される。図14において、ダイヤモンド成長の最も速い方向(結晶の最も大きなサイズ)は、 $v = 0.3V(111)/V(100)$ (ここで、Vは同定された表面に垂直な方向での成長速度である)によって測定される。図15は、自形の結晶形態を有する一般的な高級な鋸砂の顕微写真である。これらの高級な鋸砂は、典型的には、図において示されるように正八面体である。八面体(111)表面は、他のダイヤモンド表面と比較して、最も高い炭素充填密度を有する。結果として、ダイヤモンド粒子の欠陥がこの開裂面に沿って起こる傾向があるように、互いからの八面体の表面の分離はさらに遠い。炭素原子が(111)表面に付加されるにつれて、それらは面を横切って広がるよりも面に沿って広がる傾向がある。一方、DLCが優先的に析出する場合、八面体の面が(111)表面に対して垂直に成長する。さらに、八面体のダイヤモンドは、他の形状のダイヤモンドよりもさらに正確な角度を有する。このように、八面体のダイヤモンドは、1個の点カッター及び伸線ダイスを製造するのに非常に望ましい。

10

【0099】

ダイヤモンド形態に対する温度の効果は、得られる形態を注意深く制御するためにダイヤモンド自身に基づいて温度の調整を可能にする。このように、ダイヤモンドが立方体でありすぎる場合、温度は、さらに八面体を製造するために電氣的な加熱電力を加えることによって増加させることができる。一方、さらに低い電力は、ダイヤモンドをより立方体にすることができる。本発明の方法及び成長前駆体は、結晶形態に対するこれらの微妙な温度効果の制御及び操作の向上を可能にする。例えば、八面体ダイヤモンドを優先的に得るために、約1305 ~ 約1320の温度を使用することができる。同様に、約1250 ~ 約1310の温度は、立方体又は正八面体のダイヤモンドを得るために有用であり得る。しかし、これらの温度範囲は、単に一般的な指針であり、実際の値は使用される特定の触媒材料及び原材料に依存して変動させることができる。本発明にしたがって、温度は、結晶成長中に成長前駆体全体で約10内に制御することができ、典型的には約5、いくつかの場合には約2内に制御することができる。

20

【0100】

このように、本発明にしたがって、合成八面体ダイヤモンドは、非常に少ない含有物を有した状態で大量に製造することができる。さらに、本発明の合成八面体ダイヤモンドは、比較的大きなサイズで形成することができる。例えば、約1 μ mよりも大きいサイズ及びしばしば約10 μ mよりも大きいサイズが容易に実現化可能である。一般的に、有用な合成八面体ダイヤモンドは、約1 μ m ~ 約10mmのサイズを有することができ、約20 μ m ~ 約5mmのサイズのものが好ましい。

30

【0101】

図16を参照すると、グラフは、本発明の方法を用いた場合の種々の指針及び考察のための局面を示す。ダイヤモンド成長中に、ダイヤモンド種が原材料と接触する場合、ダイヤモンドは、黒鉛又は金属のいずれかが含有物として捕捉され、含有物を多く有するダイヤモンドを形成するようには形成されない。結果として、ダイヤモンドが触媒の溶融層に包まれ、ダイヤモンドの成長を阻害しないことが重要である。例えば、ダイヤモンドの表面積は、ダイヤモンドのサイズの二乗に比例する。さらに、触媒の供給は、成長するダイヤモンドのサイズに比例する。このように、触媒コーティングの厚みは、ダイヤモンドが大きくなるにつれて徐々に減少する場合がある。このように、本発明の実質的に均一な混合物は、成長するダイヤモンドの周りに十分に厚い触媒コーティングを維持可能な追加の触媒材料を比較的均一に与えることができる。このように、原材料及び触媒材料の両方が、成長するダイヤモンドに対して拡散する傾向がある。実質的に連続した触媒エンベロープをそれぞれの成長する結晶の周りに維持することは、成長したダイヤモンド中の含有物の数を顕著に減らすのに役立つ。

40

50

【0102】

図17は、成長したダイヤモンド28を形成するための、触媒材料26の存在下でのダイヤモンド種20の成長を示す。ダイヤモンド種と炭素供給源材料との直接的な接触は、望ましくない数の含有物を生じる場合がある。典型的な成長条件は、いくらか変動させることができるが、温度は約1200 ~ 約1400 であることができ、圧力は約4 ~ 約7 GPaであることができる。適切な温度は選択される触媒材料に依存することができる。一般的な指針として、温度は、触媒の融点の約10 ~ 約200 上であることができる。成長時間は、典型的には、約5分 ~ 約2時間であることができる。本発明におけるパターン化された結晶種の配置はさらに、プロセス条件において比較的大きな改変を可能にする。例えば、温度及び圧力は、約1 ~ 約10 %で変動することができ、いくつかの場合において、約3 % ~ 約5 %で変動することができる。このことにより、成長した超研磨粒子の質を維持しつつ、従来の方法よりもプロセス条件の制御が厳しくなくてもよい。典型的には、本発明にしたがった結晶成長は、高い衝撃強さを有する高品質の超研磨粒子が製造されるように、実質的にエピタキシャルな成長であることができる。さらに、本発明の方法は、完全に自動化することができ、手動評価及びプロセスの必要性を減少させる。

10

【0103】

上述の考察に加えて、含有物のレベルは、反応セルから汚染物（例えば金属上の酸素、黒鉛中の水分）を除去することによってさらに減らすことができる。このような汚染物を除去するための1つの有効な様式は、成長前駆体、触媒材料、及び/又は原材料を高減圧（例えば 10^{-1} Pa）、高温（例えば1100 ）に長期間（例えば2時間）さらすことである。この加熱処理の間、水素を材料にパージしてさらに酸素を除去するために水素を使用することができる。ダイヤモンドをさらに黄色に富むようにするために窒素をパージすることもできる。これらの汚染物が実質的に除去されると、成長したダイヤモンドは、最少レベルの含有物を有して非常に透明であり得る。ダイヤモンドはさらに、ダイヤモンド結晶の内側に捕捉された任意の金属触媒によって無定形炭素（黒鉛に対して中間的な工程）に逆変換される場合がある。典型的には、この逆変換は700 を超える温度で始まる場合がある。無定形炭素が触媒含有物の周囲に形成されるとすぐに、得られた体積拡大がダイヤモンドに微細なクラックを生じさせる場合がある。結果として、ダイヤモンドの衝撃強さが減少する場合がある。このように、より低い含有物レベルを有するダイヤモンドは、熱プレス及び衝撃切断の高い温度でよりよく残り得る。本発明に従って成長したダイヤモンドは、高い衝撃強さ及び高い熱安定性を有し、ダイヤモンドツールを製造するために高温（例えば1000 ）で加工可能であり、攻撃的な切断適用において使用することができる。一般的な指針として、成長プロセスの最初から熔融金属が種を取り囲んでいる場合、約20ミクロンのダイヤモンド種は溶解し、核形成の制御が失われる傾向がある。一方、コーティングされていない種が約50ミクロンよりも大きい場合、金属触媒のコーティングが好ましくあり得る。さもないと、熔融触媒が種の周囲に流れ得る前に、黒鉛がダイヤモンド種と接触する場合がある。熔融触媒のコーティングが存在しないと、黒鉛はいくつかの金属とともに含有物として捕捉される場合がある。

20

30

【0104】

本発明の1つの詳細な局面では、結晶種は、所望な成長したダイヤモンド粒子サイズの約10 % ~ 約30 %であることができる。成長条件及び結晶種のサイズに依存して、成長した超研磨粒子は約100 μ m ~ 約2 mmの粒子サイズを有することができる。最も一般的な超研磨粒子サイズは、約18メッシュ ~ 約60メッシュの範囲であることができる。さらに大きな結晶種が使用される場合、さらに大きな超研磨粒子を成長させることができる。典型的には、多くの研磨適用及び切断適用において有用な成長した超研磨粒子は、約210 μ m ~ 約1 mmの粒子サイズを有することができる。本発明の1つの利点は、成長した超研磨粒子サイズの均一性である。所定パターン及び層の配向は、実質的に均一な核形成及びダイヤモンド及びcBNの成長を可能にする。それ故に、本発明の成長した超研磨粒子は、ランダムに核形成し種化した前駆体から成長した粒子と比較して、非常に狭い粒度分布を有し、改良された品質を有する。例えば、本発明を用いた粒度分布は、典型的

40

50

には、従来のランダムに種形成する方法の標準偏差の半分未満である。典型的には、本発明の成長した超研磨粒子はさらに、肉眼での概観検査の下で典型的には発見できない含有物レベルを有する。典型的には、本発明を用いた場合、ダイヤモンドに対して炭素の変換率が約30%~約90%の収率になると予想することができる。さらに、高品質のダイヤモンドの割合は、50%~約90%の範囲であることができ、典型的な収率は70%を超える。本発明のいくつかの実施形態では、高品質ダイヤモンドの収率は、約2カラット/cm³~約5カラット/cm³の範囲であることができ、好ましくは約3.5カラット/cm³~約4.5カラット/cm³の範囲であることができる。図18は、本発明にしたがって成長したダイヤモンド粒子のアセンブリを示す。図18において、ダイヤモンド粒子は、サイズにおいて実質的に均一であり、均一な自形の結晶の形状を示す。この例において、ダイヤモンドの分離は0.9mmであらかじめ決定された。

10

【実施例】

【0105】

以下の実施例は、本発明の例示的な実施形態を示す。しかし、以下の例は、本発明の原理の適応の単なる例示又は説明であることが理解されるべきである。多くの改変及び代替的な組成、方法及びシステムは、本発明の精神及び範囲を逸脱することなく当業者によって考案されてもよい。添付の特許請求の範囲は、このような改変及びアレンジを網羅することが意図される。このように、本発明が特殊性をもって上述されているが、以下の例は、本発明の実践的な実施形態であると現時点でみなされるものと関連して、さらなる詳細を提供する。

20

【0106】

(実施例1)

直径28mmを有する円形の型を、約20μmの平均粒径、5μ-cmの低い抵抗性及び黒鉛化度0.8を有する粉末状天然黒鉛で満たした。この黒鉛は、油、有機バインダー、灰分、又は他の非炭素物質を実質的に含まないように精製した。この黒鉛を150MPaで冷間プレスし、厚み0.7mm及び密度2g/cm³(多孔度12%)を有する粒子状成形体ディスクを形成した。高純度INVAR(40μm未満のメッシュサイズを有するFe-35Ni)を黒鉛層上に配置し、300MPaで冷間プレスし、厚み0.2mm及び密度6g/cm³(多孔度約20%)を有する粒子状触媒層を形成した。接着剤の薄層を粒子状の触媒層上に吹き付けた。図2Bに示されるのと同様の、(中心から中心まで)0.8mmの空間をあけられた開口及び直径130μmの開口を有するテンプレートを触媒層上に配置した。120/140のメッシュサイズ(直径約115μm)を有するコーティングされていないダイヤモンド種でテンプレートを覆い、開口を満たした。次いで、過剰のダイヤモンド種を再利用のために集めた。テンプレートを除去し、金属プレートを使用してダイヤモンド種を触媒層内にプレスし、それぞれのダイヤモンド種のほぼ3分の2が触媒材料に取り囲まれるようにした。次いで、さらなるINVARをダイヤモンド種の周りに層状に配置した。さらなる触媒材料を150MPaで冷間プレスし、触媒層全体が厚み0.3mmになるようにした。黒鉛及び触媒材料の7つのさらなる層を形成し、ダイヤモンド成長前駆体を製造した。それぞれの層を減圧で約800~約1100で2時間脱ろうし、接着剤及び他の有機物を除去した。ダイヤモンド成長前駆体の外側表面を鉄の200μm層でコーティングした。次いで、ダイヤモンド成長前駆体をベルト装置に配置した。次いで、前駆体に約5.2GPaの圧力をかけ、約1260の温度で約1時間加熱した。次いで、層状に成長したダイヤモンドアセンブリを冷却し、ベルト装置から取り外した。このアセンブリを部分的に粉砕すると、実質的に均一なサイズで黄色の成長したダイヤモンドが現れた。成長したダイヤモンドの平均メッシュサイズは30/40であった。さらに、成長したダイヤモンドは、完全に成長した結晶学的表面を有するとともに、目に見える含有物が非常に少なく、優れた硬度、優れた透明性を示した。

30

40

【0107】

(実施例2)

直径28mmを有する円形の型を、約20μmの平均粒径、5μ-cmの低い抵抗性

50

及び黒鉛化度 0.8 を有する粉末状天然黒鉛で満たした。この黒鉛は、油、有機バインダー、灰分、又は他の非炭素物質を実質的に含まないように精製した。この黒鉛を高純度 INVAR (40 μm 未満のメッシュサイズを有する Fe - 35 Ni) と混合した。黒鉛対金属触媒の重量比は 1 : 1.5 であった。次いで、この混合物を 250 MPa で冷間プレスし、厚み 0.7 mm 及び密度 2 g / cm^3 (多孔度約 12%) を有する粒子状成形体ディスクを形成した。この粒子状成形体ディスクを接着剤の薄層でコーティングした。図 2 B に示されるのと同様の、(中心から中心まで) 0.8 mm の空間をあけられた開口及び直径 130 μm の開口を有するテンプレートを成形体ディスク上に配置した。120 / 140 のメッシュサイズ(直径約 115 μm) を有するコーティングされていないダイヤモンド種でテンプレートを覆い、開口を満たした。次いで、過剰のダイヤモンド種を再利用のために集めた。テンプレートを除去し、金属プレートを使用してダイヤモンド種を成形体ディスク内にプレスし、それぞれのダイヤモンド種のほぼ 3 分の 2 が材料に取り囲まれるようにした。次いで、さらなる黒鉛及び INVAR 粉末をダイヤモンド種の周りに層状に配置した。さらなる粉末材料を 250 MPa で冷間プレスし、層全体が厚み 0.9 mm になるようにした。それぞれにダイヤモンド種のパターンを有する黒鉛及び触媒材料の 7 つのさらなる層を形成し、ダイヤモンド成長前駆体を製造した。ダイヤモンド成長前駆体の外側表面を鉄の 200 μm 層でコーティングした。次いで、ダイヤモンド成長前駆体をベルト装置に配置した。次いで、前駆体に約 5.2 GPa の圧力をかけ、約 1260 の温度で約 50 分間加熱した。次いで、層状に成長したダイヤモンドアセンブリを冷却し、ベルト装置から取り外した。このアセンブリを部分的に粉砕すると、実質的に均一な成長したダイヤモンドが現れた。成長したダイヤモンドの平均メッシュサイズは 30 / 40 であった。さらに、成長したダイヤモンドは、完全に成長した結晶学的表面を有するとともに、目に見える含有物が非常に少なく、優れた硬度、優れた透明性を示した。

10

20

30

40

【0108】

(実施例 3)

約 20 ミクロンの粒径を有する天然黒鉛粉末を直径 37 mm \times 厚み 0.8 mm のディスクに約 400 MPa でプレスすることによって黒鉛ディスクを調製した。得られた黒鉛ディスクの多孔度は約 15% であった。約 105 ~ 125 ミクロンのコーティングされた直径を有する Ni でコーティングされたダイヤモンド種(コーティング前で約 65 ~ 75 ミクロンの直径を有する)を、黒鉛ディスク内の約 0.8 mm のピッチを有する格子パターン中に置き、播種された黒鉛ディスクを形成した。この播種された黒鉛ディスクを INVAR (Fe 65 - Ni 35) ディスクと交互にし、スチール製容器に入れ、直径 38.8 mm \times 高さ 30 mm の最終的な成長セルを作成した。これらの成長セルのうち 100 個は、約 5.2 GPa の圧力及び約 1250 の温度を達成するために、600 mm の槌頭サイズで 2500 トンの立方体プレスでプレスされた。この圧力及び温度を 50 分間維持し、次いで、圧力を下げ、温度を徐々に下げた。プレスされた成長セルを個々に破壊すると、良品で実質的に目に見える欠陥を有さない 30 / 40 メッシュを有するダイヤモンドが現れた。成長したダイヤモンドのほとんどは、元々の種から成長し、元々播種された位置に対応する異なった格子パターン中に存在した。達成された最終的なダイヤモンドの収率は 4 カラット / cc であった。この収率は、3 カラット / cc 未満を与える典型的な商業的なダイヤモンド合成プロセスよりも顕著に高かった。

【0109】

(実施例 4)

それぞれの層を原材料及び触媒材料の混合物で製造した以外は、実施例 3 と同様であった。INVAR 粉末(約 40 μm のメッシュを有する)及び黒鉛粉末を 1.5 : 1 の比率でブレンドすることによってディスクを製造し、次いで、厚み 1 mm のディスクを製造するために上述のようにプレスした。上述のものと同じパターンテンプレートを用いて、Ni でコーティングされたダイヤモンド種をプレスされたディスクに直接播種し、播種されたディスクを形成した。播種されたディスクを積み重ね、プレスし、加熱してダイヤモンドを成長させた。この結果は実施例 3 と実質的に同じであった。

50

【0110】

(実施例5)

ダイヤモンド種がコーティングされていない、すなわちNiコーティングされていない以外は、実施例4と同様であった。成長したダイヤモンドは、結晶種の元々の位置に対応する黒い点を有しており、品質が悪いものであった。結晶種は、実質的に炭素に逆変換されていた。この実施例は、成長を開始させる前にダイヤモンド種を溶融触媒で囲むことが望ましいことを強調するものである。本実施例において、黒鉛は溶融触媒エンベロープ上に分散し、ダイヤモンドとして析出する。混合物中でコーティングされていない種を使用する場合のようにダイヤモンドが溶融金属によって完全に囲まれていない場合、直接的な黒鉛とダイヤモンドとの接触により、目に見える黒鉛含有物が多く生じる。

10

【0111】

(実施例6)

混合物中で使用される粉末が約6ミクロンの粒径を有する鉄及び約2ミクロンの粒径を有するコバルトを2:1の重量比で有する以外は、実施例3と同様であった。ニッケルでコーティングされたダイヤモンド種とコーティングされていないダイヤモンド種を両方使用した。他の実施例におけるように、成長したダイヤモンドは、コーティングされていないダイヤモンド種を用いた場合に品質が悪かった。

【0112】

(実施例7)

天然黒鉛(20ミクロン)及びINVAR粉末(40ミクロン)の1:1.5重量比の実質的に均質な混合物を350MPaでプレスし、直径37mm×厚み1mmのディスクを形成した。これらのディスクの表面に薄いアクリルバインダーを吹き付けた。800ミクロンごとに直径130ミクロンの穴を有するテンプレートをバインダーの上面に直接配置した。約120ミクロンのサイズになるまでニッケルでコーティングされたダイヤモンド(60ミクロン)をテンプレートの上面に広げた。それぞれの開口に入ったダイヤモンドはディスク上のバインダーに接着する。過剰のダイヤモンド及びテンプレートを除去した後、ダイヤモンドが埋め込まれたディスクを約30層積み重ね、次いで、片面が開いたスチール製容器に入れた。開放された缶を600で2時間加熱し、バインダーを除去した。次いで、別のスチール製容器を使用してこの開いている部分を覆い、この2つの容器を30トンの力でプレスし、きつく保持した。次いで、この缶を5.2GPaの超圧力及び1300に50分間さらした。その結果、ごくわずかな量の自然発生的核形成を伴い、30/40メッシュのダイヤモンド結晶の格子分布が示された。きれいなダイヤモンドは黄色を示し、高い衝撃強さを示した。

20

30

【0113】

(実施例8)

テンプレートを用いてダイヤモンド種を最初に可とう性テープに接着させておく以外は実施例7と同様であった。次いで、パターン化されたダイヤモンド種をバインダーでコーティングされたディスクに移した。ディスク上のバインダーはテープ上の接着剤よりも強く、その結果、ダイヤモンド粒子は簡単に移された。この結果は実施例7と実質的に同じであった。

40

【0114】

(実施例9)

ダイヤモンド種を薄いニッケル層(37mmに0.08mm厚み)に接着させた以外は、実施例1と同様であった。金属層は、プレスされたディスクよりも、パターン化された播種プロセス中の取り扱いがかなり容易であった。次いで、黒鉛及びINVAR混合物のプレスされたディスクの間に金属層をはさんだ。実施例7と同様の高圧合成後に、黄色のダイヤモンド結晶が生成した。

【0115】

(実施例10)

コーティングされていないダイヤモンド種(30ミクロン)を用いて、テンプレートを

50

用いてニッケルディスク上に接着させた。得られた成長したダイヤモンドは、実施例7のものよりもわずかに多くの含有物を有していたが、なお高い衝撃強さを有し、黄色であった。

【0116】

(実施例11)

上述の実施例は、INVARディスクで積み重ねられた純粋な黒鉛ディスクと置き換えることができる。本実施例では、ダイヤモンド種はINVARディスクに接着する。

【0117】

(実施例12)

図19Aは、原材料と触媒材料との混合物を形成する工程を含む、従来のダイヤモンド成長技術を用いた成長後の塊の顕微写真である。本サンプルの成長条件は、圧力5.2 GPa、温度1300 で35分間であった。図19Bは、図19Aの塊から回収されるような、選別されておらず、粒度もばらばらなダイヤモンドの顕微写真である。回収されたダイヤモンドは、広範囲の粒度分布を有し、品質が悪い、立方八面体であった。このセルについての最終的なダイヤモンドの収率は約2 ct/ccであった。

【0118】

本発明にしたがって、65 μmの平均粒度を有するダイヤモンド種を、最終直径が約125 μmになるまでニッケルでコーティングした(例えば、図8A及び8B)。コーティングされたダイヤモンド種を、上述のようなテンプレートを用いて、黒鉛及びINVAR(65 Fe-35 Ni)の粉末状混合物に1:1.5の比率で配置し、図17に示されるものと同様の多層構造にした。2個の別個の多層前駆体をこの様式で調製した。

【0119】

図20Aは、圧力5.2 GPa、温度1300 で35分間、多層前駆体の1つをプレスすることによって形成された成長後の塊の顕微写真である。図20Bは、図20Aの塊から回収される、選別されておらず、粒度もばらばらなダイヤモンドの顕微写真である。回収されたダイヤモンドは、非常に均一なサイズを有し、含有物が非常に少ないことを特長とする品質分布を有し、正八面体であった。このセルについての最終的なダイヤモンドの収率は約5 ct/ccであった。

【0120】

図21Aは、圧力5.2 GPa、温度1320 で35分間、多層前駆体の1つをプレスすることによって形成された成長後の塊の顕微写真である。図21Bは、図21Aの塊から回収される、選別されておらず、粒度もばらばらなダイヤモンドの顕微写真である。回収されたダイヤモンドは、非常に均一なサイズを有し、含有物が非常に少ないことを特長とする品質分布を有する、八面体であった。このセルについての最終的なダイヤモンドの収率は約5 ct/ccであった。

【0121】

図19B、20B及び21Bはそれぞれ、同じ拡大倍率で示されている。このように、本発明で用いるダイヤモンドの平均粒径は、従来の播種プロセスを用いたものよりも大きく、結晶形態及び品質についてはより均質であることがわかる。

【0122】

このように、改良された品質及び粒度分布を有する超研磨粒子を製造し、成長させるための改良された方法及び材料が開示される。上の記載及び実施例は、本発明の特定の潜在的な実施形態を説明することのみが意図される。本発明が、広い有用性及び適用の可能性を有することは、当業者によって容易に理解される。本明細書中に記載された以外の本発明の多くの実施形態及び適応例、及び多くの変形例、改変及び等価なアレンジは、本発明及び本発明の要旨又は範囲から逸脱することなく、それらの上の記載から明らかであるか、又はそれらの上の記載によって合理的に示唆される。したがって、本発明が好ましい実施形態に関連して詳細に記載されているが、この開示は本発明の単なる説明及び例示であり、この記載は、本発明の全体的かつ実施可能な開示を提供する目的のためにのみなされていることが理解されるべきである。上の開示は、本発明を限定することも、そうでな

10

20

30

40

50

れば、いずれかのこのような他の実施形態、適応例、変形例、改変及び等価なアレンジを排除することも意図されておらず、そのように解釈されるべきでもない。本発明は、本明細書に添付の特許請求の範囲及びその等価物によってのみ限定される。

【図面の簡単な説明】

【0123】

【図1】図1は、本発明の一実施形態に従って、それらの上にテンプレートを有する原材料層及び粒子状触媒層の側面図である。

【図2A】図2Aは、本発明の一実施形態に従うテンプレートの平面図である。

【図2B】図2Bは、本発明の別の実施形態に従うテンプレートの平面図である。

【図3】図3は、本発明の一実施形態に従って、所定パターンに配置される結晶種を有する図1のアセンブリの側面図である。 10

【図4】図4は、本発明の一実施形態に従って触媒層に結晶種をプレスする側面図である。

【図5】図5は、本発明の一実施形態に従う成長前駆体の側面図である。

【図6】図6は、本発明の一実施形態に従う多層成長前駆体の側面図である。

【図7】図7は、本発明の代替の実施形態に従う多層成長前駆体の側面図である。

【図8】図8A及び8Bは、本発明の一実施形態に用いられるニッケル被覆ダイヤモンド種の顕微写真である。

【図9A】図9Aは、ダイヤモンドの単一の八面体の(111)表面の斜視図である。

【図9B】図9Bは、1個の結合していない電子を有する1個の炭素原子の斜視図である 20

【図9C】図9Cは、しわの寄った黒鉛平面の斜視図である。

【図10A】図10Aは、黒鉛表面の斜視図である。

【図10B】図10Bは、図10Aの黒鉛平面から形成されるダイヤモンド様炭素の斜視図である。

【図10C】図10Cは、図10Bのダイヤモンド様炭素から形成されるダイヤモンドの斜視図である。

【図11A】図11Aは、ダイヤモンドの1個の立方面(100)の斜視図である。

【図11B】図11Bは、2個の結合していない電子を有する1個の炭素原子の斜視図である。 30

【図11C】図11Cは、立方面に沿って成長したダイヤモンドの斜視図である。

【図12A】図12Aは、本発明の一実施形態に従う連続触媒エンベロープを有する成長するダイヤモンドの側方断面図である。

【図12B】図12Bは、本発明の一実施形態に従って、ダイヤモンドの成長する立方面を示す特徴36の拡大した側方断面図である。

【図12C】図12Cは、本発明の一実施形態に従って、ダイヤモンドの成長する八面体の表面を示す特徴38の拡大した側方断面図である。

【図13A】図13Aは、本発明の一実施形態に従って、八面体表面上での成長によって支配され成長し、さらなる立方体ダイヤモンドを形成する、ダイヤモンドの側方断面図である。 40

【図13B】図13Bは、本発明の一実施形態に従って、立方面上での成長によって支配され成長し、さらなる八面体ダイヤモンドを形成する、ダイヤモンドの側方断面図である。

【図14】図14は、ダイヤモンド及び対応する成長パラメータの一連の結晶形態学である。

【図15】図15は、多くの立方八面体のダイヤモンドの顕微写真である。

【図16】図16は、本発明の方法を用いた場合に多くの成長において考慮すべき事項及び効果を例示しているグラフである。

【図17】図17は、本発明の一実施形態に従って、HPHT加工し、結晶成長の種々の局面を同定した後の、多層アセンブリ(例えば、図6に示されるもの)の一部分の側面図 50

である。

【図18】図18は、非常に均一な粒度分布及び均一な結晶形状を示す、本発明の成長したダイヤモンドアセンブリの顕微写真である。

【図19A】図19Aは、不均一な粒度分布及び不均一な結晶形状を示す、従来技術の成長したダイヤモンドアセンブリの顕微写真である。

【図19B】図19Bは、図19Aのアセンブリから回収される、選別されておらず、粒度もばらばらなダイヤモンドの顕微写真である。

【図20A】図20Aは、非常に均一な粒度分布及び均一な結晶形状を示す、本発明の一実施形態の成長したダイヤモンドアセンブリの顕微写真である。

【図20B】図20Bは、図20Aのアセンブリから回収される、選別されておらず、粒

10

度もばらばらな立方八面体ダイヤモンドの顕微写真である。

【図21A】図21Aは、非常に均一な粒度分布及び均一な結晶形状を示す、本発明の一実施形態の成長したダイヤモンドアセンブリの顕微写真である。

【図21B】図21Bは、主に八面体ダイヤモンドである図20Aのアセンブリから回収される、選別されておらず、粒度もばらばらなダイヤモンドの顕微写真である。

【図22】図22は、不均一な粒度分布及び不均一な結晶形状を強調する、の交互のプレート方法から成長した従来のダイヤモンドアセンブリの顕微写真である。

【図23】図23は、従来の方法よりもいくらかの改良を示すが、いくらか不均一な粒度分布及び不均一な結晶形状の欠点を有する、公知の粉末化方法を用いて成長したダイヤモンドアセンブリの顕微写真である。

20

【図1】

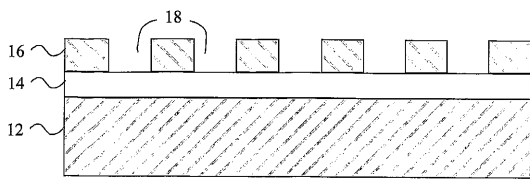


FIG. 1

【図2B】

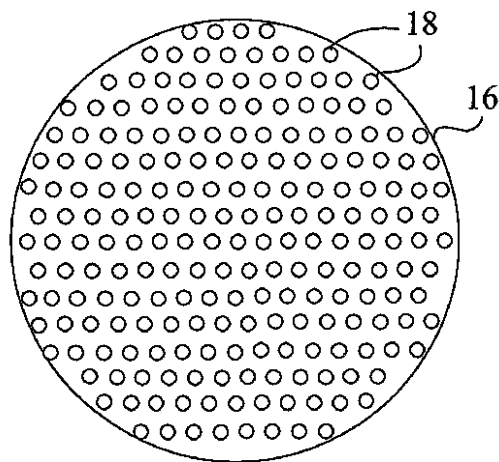


FIG. 2B

【図2A】

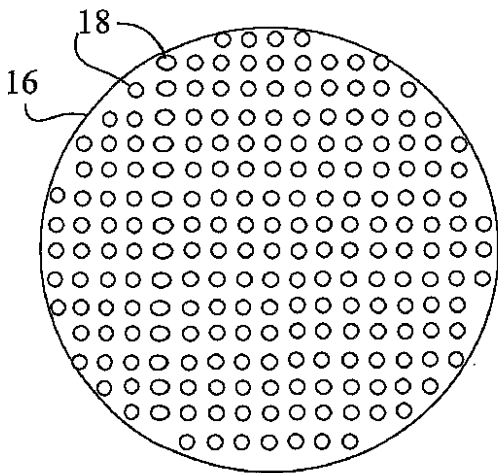


FIG. 2A

【図3】

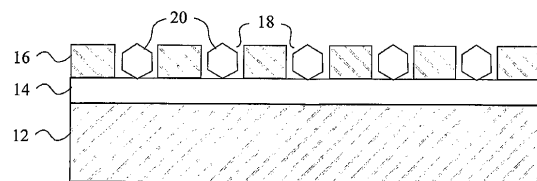


FIG. 3

【 図 4 】

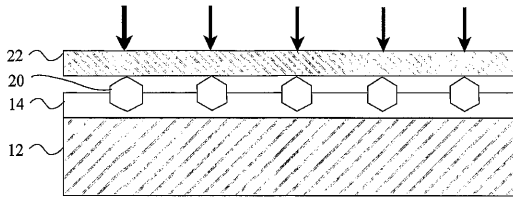


FIG. 4

【 図 5 】

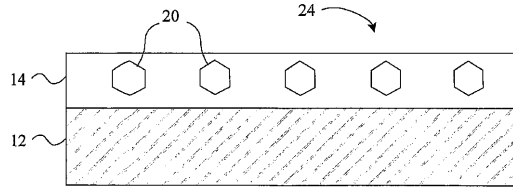


FIG. 5

【 図 6 】

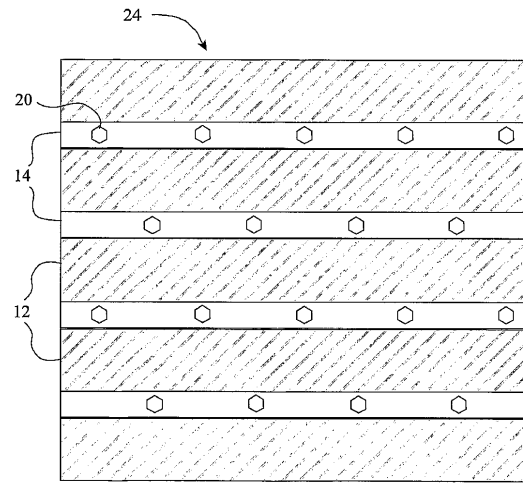


FIG. 6

【 図 7 】

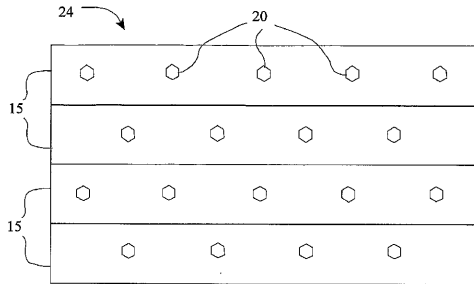


FIG. 7

【 図 8 B 】

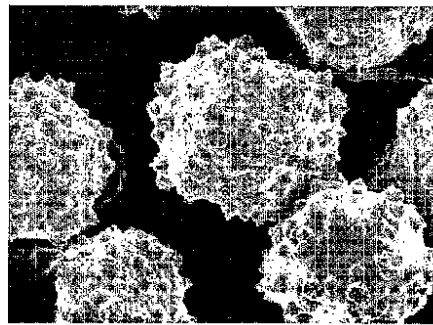


FIG. 8B

【 図 8 A 】

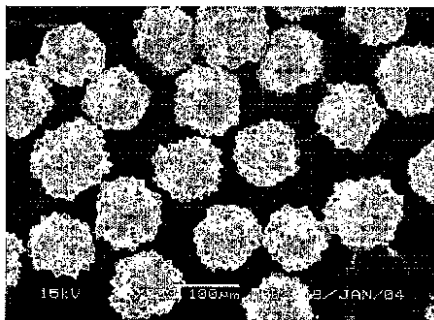


FIG. 8A

【 図 9 A 】

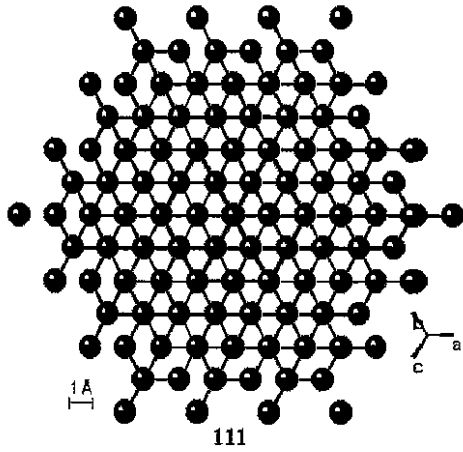


FIG. 9A

【 図 9 B 】



FIG. 9B

【 図 9 C 】

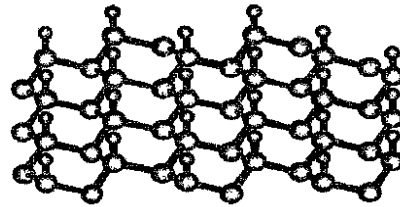


FIG. 9C

【 図 1 0 A 】

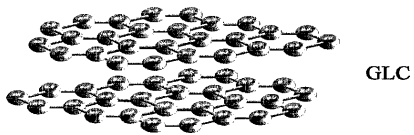


FIG. 10A

【 図 1 0 B 】

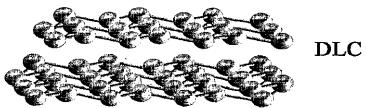


FIG. 10B

【 図 1 0 C 】

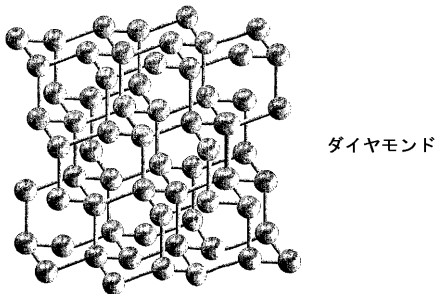


FIG. 10C

【 図 1 1 A 】

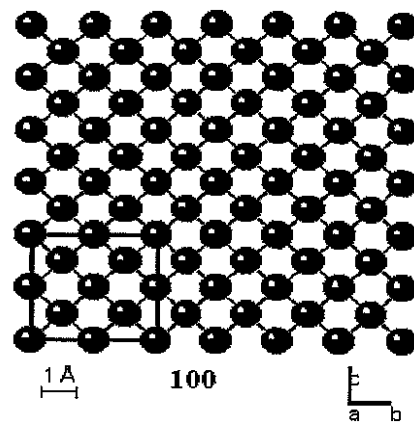


FIG. 11A

【 図 1 1 B 】



FIG. 11B

【図 1 1 C】

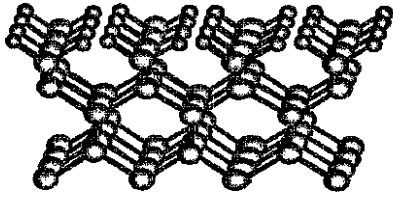


FIG. 11C

【図 1 2 B】

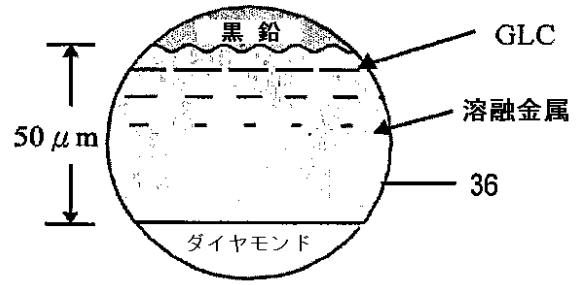


FIG. 12B

【図 1 2 A】

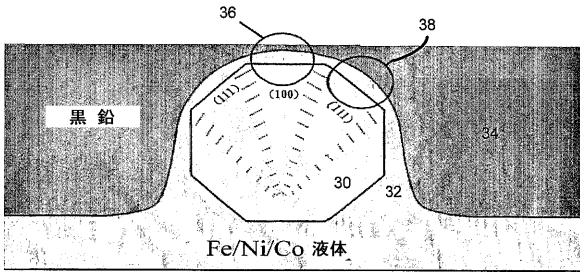


FIG. 12A

【図 1 2 C】

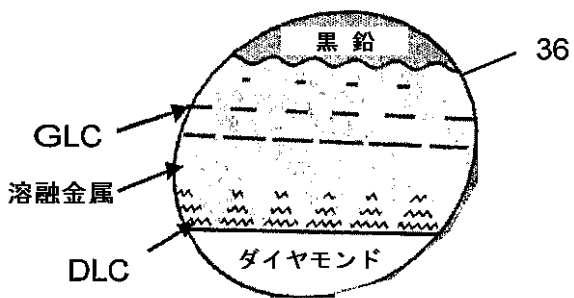
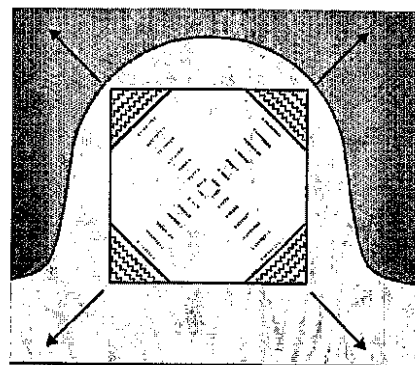


FIG. 12C

【図 1 3 A】

黒鉛 → GLC → DLC
 迅速な成長 ⊥ (111)

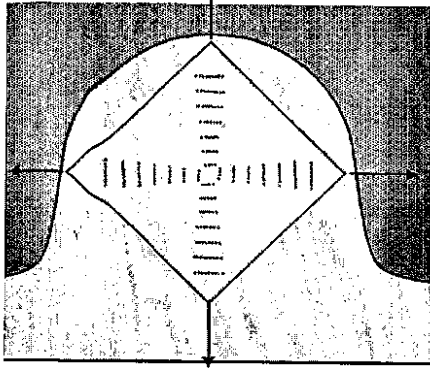


立方体
 (冷形状)

FIG. 13A

【 図 1 3 B 】

黒鉛 → GLC → C 原子
迅速な成長 ⊥ (100)



八面体
(熱形状)

FIG. 13B

【 図 1 4 】

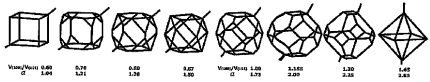


FIG. 14

【 図 1 7 】

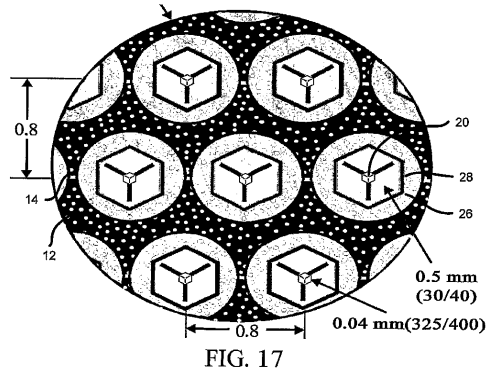


FIG. 17

【 図 1 5 】

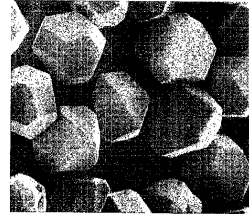


FIG. 15

【 図 1 6 】

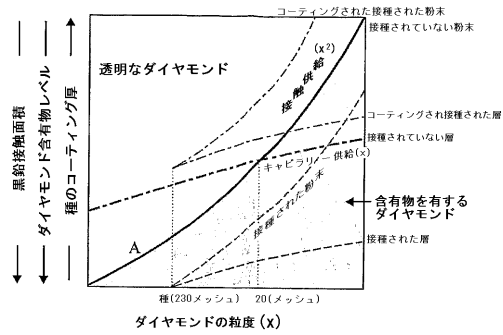


FIG. 16

【 図 1 8 】

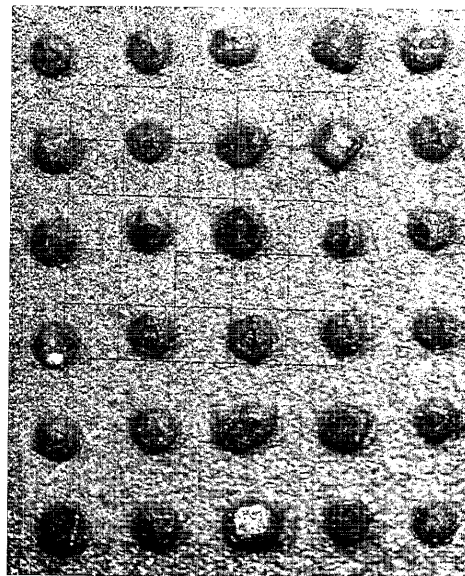


FIG. 18

【 図 1 9 A 】

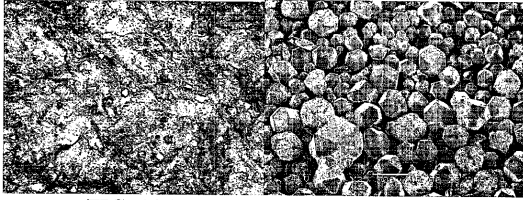


FIG. 19A

FIG. 19B

【 図 1 9 B 】

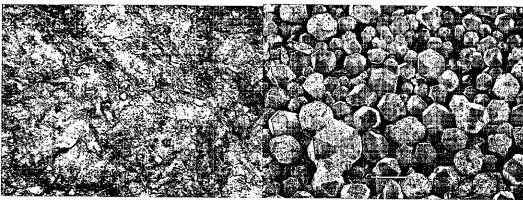


FIG. 19A

FIG. 19B

【 図 2 0 A 】

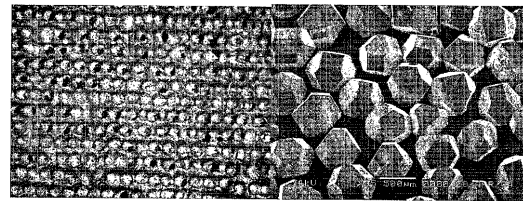


FIG. 20A

FIG. 20B

【 図 2 0 B 】

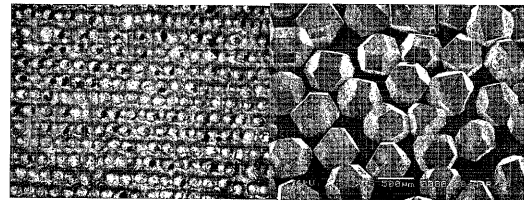


FIG. 20A

FIG. 20B

【 図 2 1 A 】

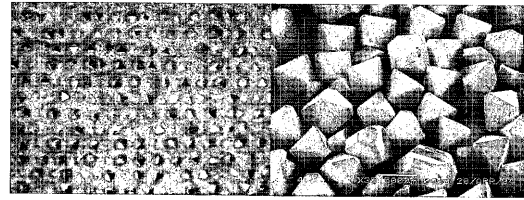


FIG. 21A

FIG. 21B

【 図 2 1 B 】

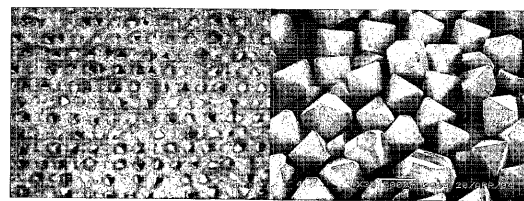


FIG. 21A

FIG. 21B

【 図 2 2 】

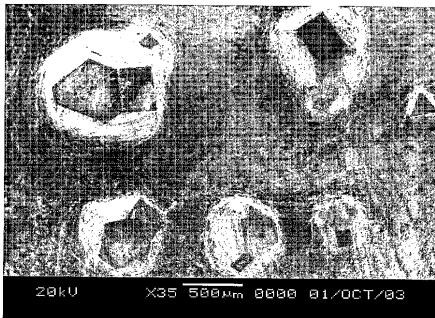


FIG. 22

【 図 2 3 】

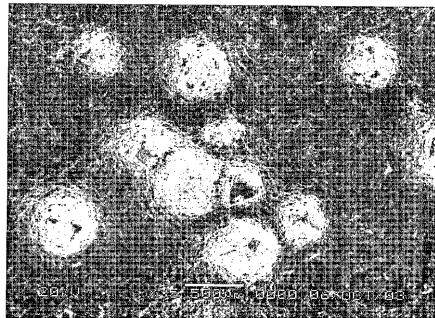


FIG. 23

フロントページの続き

(81)指定国 AP(BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), EA(AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), EP(AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, MC, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OA(BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG), AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NA, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW

(特許庁注：以下のものは登録商標)

1 . T E F L O N

Fターム(参考) 3C063 AA01 AB01 BB02 CC01

4G146 AA04 AB01 AC02A AC02B AD26 BA02 BA43 BA46 BB05 BB10

BC11 BC34B BC37B BC38B BC44 BC50