

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 5 月 16 日現在

機関番号：12601

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2014～2016

課題番号：26610170

研究課題名(和文)新・鉱物「形」学事始め

研究課題名(英文)"New mineralogy" based on mineral shape

研究代表者

平賀 岳彦(Hiraga, Takehiko)

東京大学・地震研究所・准教授

研究者番号：10444077

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,800,000円

研究成果の概要(和文)：鉱物の「形」と「向き」は、粒界における結晶面の種類およびその発現の頻度で決定され、それが地質環境に応じて変化することで、岩石組織の多様性が生まれている可能性を探った。オリビンの粒界が低温・高温条件で、ある結晶面に平行な粒界(低指数面粒界)の発達が変わることが分かった。一般の粒界に比べて、結晶面に平行な粒界は3倍程度、やわらかい(すべりやすい)ことを示すことに成功した。そのすべりやすさが、オリビン多結晶体のクリープ後の結晶軸選択配向の発達を決定している。

研究成果の概要(英文)：Mineral grain shape is controlled by the development of low-index plane grain boundary which is parallel to specific crystallographic plane of the minerals. We showed that the development changes with temperature for olivine. Based on creep experiments of olivine aggregates, we found that the low-index plane grain boundaries are ~3 times easier to slide compared to general boundaries, which results in crystallographic preferred orientation in the aggregates.

研究分野：岩石・鉱物物理

キーワード：低指数面粒界 粒界すべり 結晶軸選択配向

1. 研究開始当初の背景

申請者は、最近、オリビン多結晶体中の粒子の「形」が、温度や部分熔融メルトの有無によって変化し、その「形」が、多結晶体クリープ後のオリビン結晶の選択配向やそのパターンを決めていることを発見した (Miyazaki, Sueyoshi & Hiraga, Nature 2013)。粒子「形」を決める多くの粒界が、ある特定の結晶学的面に平行になり、その粒界を挟む粒子が互いにずれる (粒界すべり) 結果、配向が生じると考えられる。岩石組織の基本因子である、鉱物の「形」と「向き」は、粒界における結晶面の種類およびその発現の頻度で決定され、それが地質環境に応じて変化することで、岩石組織の多様性が生まれている可能性が出てきた。

申請者の研究成果 (Miyazaki et al. 2013) によると、比較的低温条件でオリビン多結晶体を合成すると、オリビン粒子が等方的に成長し、それに対して、高温下では異方的な粒成長が起きる。等方粒子を持つ試料が高温下でクリープすると結晶選択配向は生じないが、異方粒子を持つ試料では、著しい結晶選択配向が生じた。高温下の平均的な粒子「形」は[010]軸伸長、(010)面が発達するマッチ箱形で、その(010)面に粒界すべりが優先的に起こると、粒子回転が生じ、選択配向ができると推定した。さらに、メルトが存在すると、弱い[001]軸伸長になり、よく知られる自形オリビンに変化する。このように、オリビンは、粒子の成長時の環境によって、粒界における結晶学的面の発現が変化し、その結果、粒子「形」が変わる。その「形」変化から予想した地震波速度異方性の分布は、上部マントルでの観測結果と一致した。鉱物「形」が、地球ダイナミクスを理解する上で、重要な意味を持ち始めたのである。申請者は、オリビン粒界に留まらず、岩石中の石英、斜長石および雲母で、結晶面粒界が発達することをこれまで報告しており (Hiraga et al. 1999; 平

賀 1999)、オリビンから推定された、鉱物粒子「形」= 結晶面粒界の多様性は、自然界で普遍的な現象と考えた。

2. 研究の目的

これまでの実験結果をまとめると、結晶面粒界の発達は、系のソリダス温度に関係している。系のソリダス温度を決める化学種は、粒界に偏析しやすく、その偏析がソリダス温度以下で、粒界での構造転移をうながし、結果的にマクロな粒界構造変化 (結晶面粒界の発達) を生んでいると考えている。つまり、鉱物固有の温度 (圧力効果も含む) 化学結晶面粒界の出現条件が存在しているはずで、粒界移動 (粒界すべりを含む) 実験から明らかにする。また、粒界の構造変化を生む原子レベルでのメカニズムを粒界の原子配列と結合状態の解析から解明する。地球内部の物質科学的理解に必須の、新たな学問、鉱物「形」学を作る。そのためには、鉱物「形」を複数の粒界に分解し、その粒界の易動度、構造およびエネルギーから「形」を理解する。

3. 研究の方法

粒界解析には、研究室で合成法が開発された真空焼結法 (Koizumi et al. 2010) を経た高緻密細粒鉱物多結晶体を用いた。粒界タイプの発達には系の融点と相関すると予想され、その検証のために Fe や Ca を磁鉄鉱や炭酸カルシウムの微粒粉の形で添加させ、系の化学制御を行った。大気下では安定でない Fe を含むオリビンの実験には酸素分圧の制御が必須で、そのために、本挑戦的萌芽研究の研究費を利用してジルコニア管による酸素センサーを導入した。これをアルミナ管と接続させ、高純度アルゴンガスを流し、ある酸素分圧で一定な還元状態を保つようなシステムを作った。アルミナ管は、カンタルスーパーの発熱体を持つ炉で直接熱せられ、1400 までの実験を行えるようにした。粒界すべり等の高

温下での粒界タイプに起因する粒界での動的現象の再現には、先述した高温炉を一軸変形試験機に付属させ、歪速度 10^{-4} 程度で試料を高温変形させた。高温変形と試料の表面観察を同一試料において繰り返すことで、粒界プロセスの直接観察を行った。試料の最終・最大歪は 0.5 程度である。

鉱物形を調べるために、集束イオンビーム (FIB) 法と走査型電子顕微鏡下での後方散乱電子回折法 (SEM-EBSD) 法を組み合わせて、焼結試料中のオリビンと斜長石の粒界面の 3 次元構造を決定し、それが隣接粒子の結晶方位とどのような関係にあるかを調べる手法開発を進めた。まず、FIB 機内で EBSD にかける際の試料内での場所の特定に用いるためのカーボン (マーカー) を複数デポジットした。そのマーカー範囲内で EBSD 測定を行い、その範囲の一部を FIB 法を用いて試料の表面に垂直方向の断面を削り出した。その後、サーマルエッチングを施し、粒界溝を試料表面に形成させる。それをなぞることで、粒界の 3 次元構造 (粒界面) を明らかにする。その粒界面が隣接する粒子の結晶構造においてどのような方向かを調べる。これは、粒界面の法線ベクトルを試料の基準軸において決定し、次に、試料の基準軸と粒界を挟む二つの結晶粒子の結晶軸の回転関係それぞれを調べることで、粒界面の法線ベクトルを 2 粒子の結晶軸空間に投影させるものである。この研究は、現在も進行中であり、モンペリエ大学の EBSD 法を用いた微細構造を専門とする David Mainprice 氏の協力を得て、多くの粒界方位データを解析できるプログラムを作成中である。

低指数面粒界を含む・含まない鉱物多結晶試料を準備し、その高温変形を行うことで、粒界タイプにより、粒界のすべり性を評価した。鉱物多結晶試料表面に、幅 100 nm、長さ 20 ミクロン、10 本程度のマーカー溝を

FIB 法を用いて作り、その変形 (歪、回転、オフセット) を観察する。その際、マーカー溝は、円柱試料の長軸方向 (// 変形時の圧縮方向) と平行になるようにした。また、一軸圧縮下では、低指数面粒界が歪 0.5 程度で十分に引張方向に並ぶことを利用し、歪 0.7 の変形後、その試料を 45° 方向に回転し、変形実験ように整形し、それを再度、圧縮実験を行うことで、低指数面粒界のすべり性を調べる。これは、低指数面粒界への分解せん断応力を最大にさせ、粒界すべりと試料の異方的変形つまり粘性の異方性を測定できることを期待したものである。

4. 研究成果

粒界の 3 次元構造を FIB 法および SEM-EBSD 法を用いることで、粒径 1 ミクロン程度の多結晶中에서도解析できることが分かった。また、Mainprice 氏が主体的に取り組んでいる EBSD のデータから様々な微細構造データを得る汎用ソフトウェア MT EX を利用して粒界解析を行えるようプログラムを改良することができた。現在、この研究は進行中で、特に、Mainprice 氏には地震研に客員教授として来てもらい、共同研究を行っているところである。また、EBSD 法に加えて、天然試料の解析には光学偏光顕微鏡にユニバーサルステージを付属させ、厚めの岩石薄片を回転させ、粒界面の方向と光学特性から推定する結晶軸方向を利用して、粒界面の特定を行えることを示した。

Fe なし、Fe 入りオリビンおよび斜長石のすべての系での粒界が高温条件で、結晶の b 面に平行な粒界 (低指数面粒界) の発達することが分かった。予想度落ち、Fe 入りオリビンでの異方形粒子の出現 (低指数面粒界の発達) は、Fe なしオリビンと比べてかなり低温条件であり、系の融点が低指数面粒界の発達に相関していることが確認された。Fe 入りオリビンは、上部マントルの Fe 量を再現して

おり、天然での拡散クリープ下での低指数面粒界の発達とそれに伴う結晶軸選択配向が一層確かなものになった(Miyazaki et al. 2013 の時点では、Fe なしオリビンの結果であり、Fe なしオリビンに特有な低指数面粒界 (= オリビン粒子の異方形) の発達と疑う研究者がいた)。また、すべての系で、低指数面粒界が発達するときに、拡散クリープ下、期待される b 軸が圧縮方向に集中する結晶軸選択配向が生じることが確認された。斜長石では、その b 面に平行な粒界の発達が、b 面に平行な双晶面が粒子表面で容易に確認され、予想より容易に低指数面粒界の発達を示すことができた。

低指数面粒界を変形によって配列させ、その 45° 方向からの再変形実験によって、低指数面粒界での選択的すべりとそれに伴う粒子回転が確認された。低指数面粒界でのすべりは、試料のせん断歪をうまく説明し、低指数面粒界のすべり易さを示すことができた。鉍物形を支配する低指数面粒界の方向とそれを含むオリビン粒子の一軸加圧下での回転を調べた。低指数面粒界にかかる分解せん断応力が回転を決定していることが分かり、その低指数面粒界を含まない試料中のオリビン粒子回転速度と比較することで、低指数面粒界の相対的すべりやすさ (boundary viscosity) が測定された。その結果、低指数面粒界は一般の粒界に比べて、結晶面に平行な粒界は 3 倍程度、やわらかい (すべりやすい) ことが分かった。これは、低指数面粒界と一般粒界での結晶格子レベルでの平滑性に起因していることが、高分解電子顕微鏡法での粒界構造解析から分かった。したがって、低結晶面に支配された粒界でのすべりやすさが、オリビン多結晶体のクリープ後の結晶軸選択配向の発達を決定している。この考えを一般化し、マントル全体の地震波特性を考察した。オリビン 輝石系、ウォズエライト、リングウツタイト、ブリッジマナイト フェ

ロペリクレーヌ、ポストペロウスカイトの多結晶試料の微細構造を観察より、融点近傍でのオリビン 輝石系およびポストペロウスカイトで異方的な粒成子形成、つまり低指数面粒界の発達を見出した。この結果と地震波速度の異方性・等方性の深度分布を比較すると、低指数面粒界の発達と地震波速度異方性が検出される深度が見事に一致した。この成果の内容は、現在、国際誌に投稿中である。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

〔雑誌論文〕(計 1 件)

Koizumi, S., Suzuki, T.S., Sakka, Y., Yabe K., Hiraga, T., Synthesis of crystallographically oriented olivine aggregates using colloidal processing in a strong magnetic field, *Physics and Chemistry of Minerals*, 43, DOI: 10.1007/s00269-016-0826-5, 2016 査読有

〔学会発表〕(計 1 件)

平賀岳彦・マントル超塑性と異方性
日本地球惑星科学連合 連合大会 2016 年大会 招待講演 2016 年 5 月 24 日 幕張メッセ (千葉県千葉市)

〔図書〕(計 件)

〔産業財産権〕

出願状況 (計 件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年月日：
国内外の別：

取得状況 (計 件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
取得年月日：
国内外の別：

〔その他〕

ホームページ等

http://www.eri.u-tokyo.ac.jp/hi_ragalab/index.html

6. 研究組織

(1) 研究代表者

平賀岳彦 (HIRAGA Takehiko)
東京大学・地震研究所・准教授
研究者番号：10444077

(2) 研究分担者

()

研究者番号：

(3) 連携研究者

()

研究者番号：

(4) 研究協力者

()