

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成24年 6月30日現在

機関番号：82706

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2009～2011

課題番号：21540501

研究課題名（和文） マイロナイト細粒化と粒界発達の機構解明

研究課題名（英文） Mechanisms of subgrain boundary development and grain size decrease in mylonite

研究代表者

Raimbourg Hugues (RAIMBOURG HUGUES)

独立行政法人海洋研究開発機構・地球内部ダイナミクス領域・招聘研究員

研究者番号：40509709

研究成果の概要（和文）：北海道日高変成帯マイロナイト中の斜方輝石を透過電子顕微鏡で観察し、結晶中の小角粒界の原子スケールの構造とその発達プロセス、また結晶の褶曲・細粒化の機構を明らかにした。斜方輝石中の *b* 軸を回転軸とし、ほぼ(001)面に平行な小角粒界はそのずれ角度によって4段階程度の構造変化が観察された。また離溶した普通輝石の(100)界面では2つの界面で非対称な密度で転位が形成されており、これが結晶の褶曲・変形に大きく寄与していることが明らかになった。

研究成果の概要（英文）：The deformation structures of orthopyroxene (Opx) in mylonite rock from Hidaka Metamorphic belt have been investigated mainly using transmission electron microscopy (TEM). Low-angle grain boundaries with the *b*-axis as the rotation axes and almost parallel to the (001) plane of Opx are common and their atomic structure are varied from coherent to semi-coherent and finally incoherent, depending on the misorientation angle of the boundaries. Asymmetric misfit dislocation densities along the two (100) interfaces between exsolved augite lamella and host Opx were also found, which is probably the origin of the folding of the Opx crystal.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	800,000円	240,000円	1,040,000円
2010年度	1,400,000円	420,000円	1,820,000円
2011年度	1,000,000円	300,000円	1,300,000円
年度			
年度			
総計	3,200,000円	960,000円	4,160,000円

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：地球惑星科学・岩石・鉱物・鉱床学

キーワード：岩石変形、マイロナイト、細粒化、粒界、斜方輝石、TEM、EBSD、FIB

1. 研究開始当初の背景

地殻上部の岩石の変形は主にその破碎を伴うのに対して、5-10kmの地殻深部では、岩石は延性的な変形を起こす。この延性変形も地殻上部の破碎変形のように岩石中で非常に局所的に起こり、日高剪断帯では未変形な母岩を横切るマイロナイト帯としてよく観察

される。このような局所的な岩石の応力・変形の集中は多くの例で見られるように、鉱物の細粒化を伴う。本研究代表者はこれまで、日高剪断帯のグラニュライト相マイロナイト中の塑性変形に伴う斜長石と斜方輝石の極端な細粒化について研究を続けてきた。ここでは電子後方散乱回折等を用いた解析に

より、斜方輝石の粒径が局所的に大きく変わっており、変形により形成された細粒な斜方輝石は未変形な大きなものと比べて力学的にはるかに弱いことが示された。その研究で鉱物の細粒化が岩石のレオロジーに大きく影響していることが示されたが、岩石への応力がどのように鉱物の細粒化を進行させるのかという問題は、未解明なまま残された。金属学や材料科学では、転位の組織化による小角粒界の発達→再結晶化などのいくつかのモデルが提唱あるいは実証されているが、それよりも遥かに長い時間で変形が起こり、しかもより複雑な構造の珪酸塩鉱物にそのような単純なモデルを応用できる保証はまったくない。また珪酸塩鉱物はどのような（小角）粒界の原子構造をもつかなど、これまでほとんど解明されていないのが現状であり、そのような知見無しにこの領域の研究の進展は難しいと思われる。

2. 研究の目的

このような背景や課題のもと、本研究の目的は大きく2つある。ひとつは天然において塑性変形を起こした鉱物（具体的には日高変成帯のマイロナイト中の斜方輝石）中に見られる（小角）粒界の原子レベルの構造を透過電子顕微鏡（Transmission Electron Microscope: TEM）を用いて決定すること、もうひとつはその結果をもとに延性変形における鉱物細粒化のメカニズムを明らかにすることである。

結晶粒界の構造は、鉱物の塑性変形やレオロジーを考える上で非常に重要なはずであるが、天然岩石中におけるその原子スケールの構造は、これまでほとんどその報告がない。考えるその理由は、変形を受けた鉱物試料から特定の方向から（小角）粒界等を観察するための TEM 試料作製法が十分に確立されていなかったことが考えられる。しかしながらこの問題は後で述べるように最新の集束イオンビーム（Focused Ion Beam: FIB）法の実用化によって克服されようとしている。そして分担者（小暮）は、鉱物中の原子配列を TEM 観察する高分解能電子顕微鏡法（High-resolution TEM: HRTEM）で豊富な経験と知識を持っており、さらに研究代表者（Raimbourg）はこの2年間、日高剪断帯のマイロナイト中の塑性変形を受けた斜方輝石を走査電子顕微鏡（Scanning Electron Microscope: SEM）に装着された電子後方散乱回折（Electron BackScatter Diffraction: EBSD）等を用いて研究してきており、試料に関しては十分な知識が蓄えられている。

3. 研究の方法

本研究の目的は、（小角）粒界構造の原子スケールでの観察とその発達による真の粒界の形成→鉱物の細粒化のプロセスを明らかにすることである。また塑性変形による鉱物の湾曲の機構なども明らかにしていく。上で述べたが、本研究には HRTEM 観察のための試料作製法が実験の成否の鍵となる。これまでの EBSD 等を用いた研究からマイロナイト中の塑性変形を受けた斜方輝石は、その *b* 軸を軸とした褶曲、回転が起きていることが判っている。そこで TEM 用試料は斜方輝石の *b* 軸から観察できるように作製しなくてはならない。このため以下のような手順により、TEM 試料作製を行った。

(1) マイロナイトの岩石薄片（葉理面に垂直かつストリーションに平行な面で作製したもの）をフッ酸でエッチングし、転位のピット、粒界、さらに離溶した普通輝石（augite）のラメラが SEM 内で観察できるようにする（Fig. 1）。

(2) EBSD（ThermoNoran PhaseID）を用いて斜方輝石の *b* 軸が薄片の法線に近いもの（ずれがおおよそ 30° 以内）ものを選ぶ。

(3) 選んだ斜方輝石の表面を高分解能 SEM（Hitachi S-4500）で観察し、TEM 観察したい（小角）粒界の場所を探す（Fig. 1）。

(4) FIB 装置（Hitachi FB-2100, Fig. 2a）を用いて、薄片の面と平行に、（小角）粒界を含んだ領域を切り出し、TEM 試料台の上に固定して薄膜化する（Fig. 2c）。このときに EBSD で求められた結晶方位を考慮し、TEM 内で入射電子線が *b* 軸と平行に調整できるように、試料を TEM 試料台にある角度で斜めに固定する（Fig. 2b）。

このようにして作製し、しかも様々な粒界構造をもつ試料を加速電圧 200kV の TEM（JEOL JEM-2010UHR）で観察した。ここで粒界のずれ角度は電子回折や格子縞から計測した。

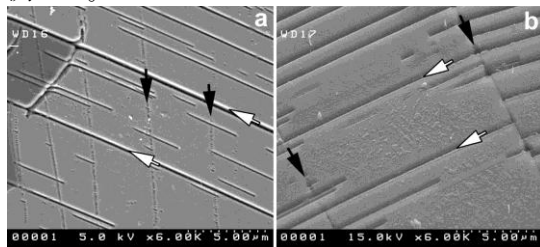


Fig. 1. 岩石薄片（コロイダルシリカで最終仕上げ）をフッ酸でエッチングし、斜方輝石上に見られる（100）面に平行な普通輝石の離溶ラメラ（白矢印）と転位のエッチピット列として認識される小角粒界（aの黒い矢印）あるいは折れたラメラとして認識される比較的ずれ各度の大きい小角粒界（bの黒矢印）

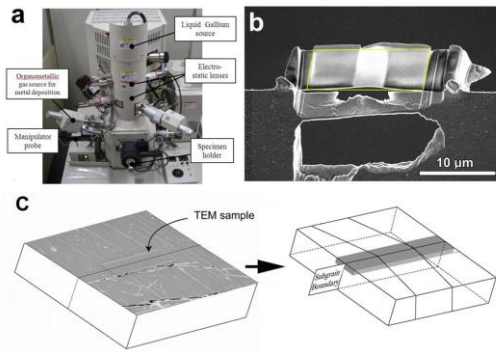


Fig. 2. (a) 集束イオンビーム (FIB) 装置の概観と機能. (b) FIB によって作製された TEM 観察用薄膜. 黄色い四角い部分が観察領域. EBSD で得られた結晶方位を考慮して試料を TEM 試料台上に斜めに固定してある. (c) FIB による岩石薄片からの小角粒界観察用 TEM 試料作製法の模式図.

4. 研究成果

4-1. (001)面に平行な粒界の微細構造とそのずれ角度による変化

b軸方向からのHRTEM観察によって、斜方輝石中の(小角粒界)構造が、そのずれ角度によって大きく変化することが原子スケールで明らかとなった。

最初の小角粒界の形成は、2つ以上の部分転位に分解した(100)面上の[001]のバーガズベクトルを持つ刃状転位 (以下(100)[001]転位と記述する、尚斜方輝石中のこの転位については昔から多くの報告がある) がおよそ(001)面に沿ってある間隔で並んだものが観察される (Fig. 3)。この程度の転位密度では、両側の結晶の方位のずれはほとんど計測できない。次に見られるものは、転位がかなり高密度に、明らかに(001)面に沿って配列したもので、この場合の小角粒界のずれは1-2°程度となる (Fig. 4a)。ここに見られる転位は明らかに(100)[001]転位とは異なっている。その構造は解析中であり、現時点で結論は出ていない。さらにずれ角度が大きい (~7°) 小角粒界では、(001)面に沿って0.46 nmの格子縞が繋がった領域と、格子縞が途切れて構造の乱れた領域が交互に連なった粒界構造が観察できた (Fig. 4b)。これ以上のずれ角度では、Fig. 4cのように界面は(100)面と平行であるが、両側の結晶の格子縞に繋がりがまったく見られないインコヒーレントな完全な“粒界”になっていることがわかる。

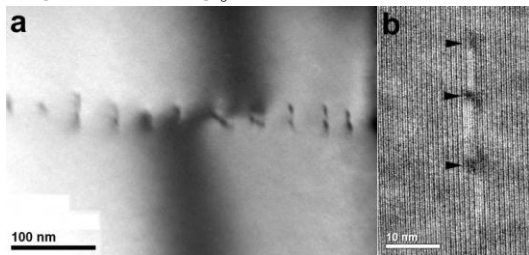


Fig. 3. (a) (100)[001]刃状転位で構成される小角粒界. (b)ひとつの転位の HRTEM 像. 黒い矢印が分かれた転位芯となっている。

このようないろいろな(小角)粒界における構造の連続-不連続は、HRTEM 像だけでなく、より低倍での回折コントラストで認識される粒界での結晶歪みの有無によっても確認できる (詳細は Raimbourg et al., 2011)。

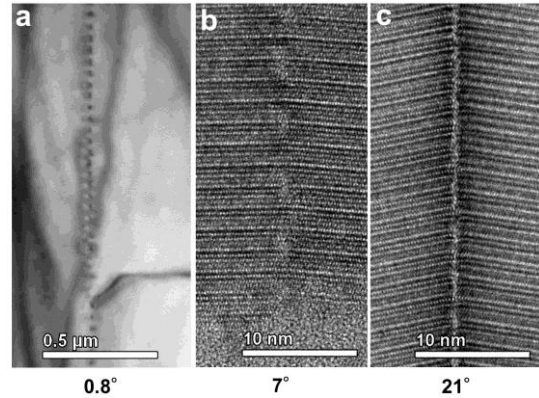


Fig. 4. ずれ角度 (図の下に示された数字) によって変化する粒界構造の低倍像(a)と HRTEM 像(b, c). (本文参照).

4-2. 離溶した普通輝石のラメラの(100)界面に形成されるミスフィット転位の分布及び結晶褶曲の機構

今回観察した斜方輝石の塑性変形には、小角粒界の形成とともに結晶の褶曲(folding)や湾曲(bending)がよく観察された。このような褶曲構造は連続的な結晶体中でどのように起きているかを今回明らかにした。一般的にこの結晶の褶曲も刃状転位の導入によって起きると考えられるが、多くの結晶で見られる転位密度は、褶曲半径から予想されるものよりもはるかに小さかった。一方褶曲を起している結晶には必ず普通輝石の高密度のラメラ組織が観察された。この普通輝石とマトリックスである斜方輝石では、その格子定数の違いより(100)界面に刃状転位(ミスフィット転位)の形成が予測されるが、このミスフィット転位の(100)界面上での密度が、普通輝石のラメラの上下の界面で大きく異なるものがよく観察された (Fig. 5)。

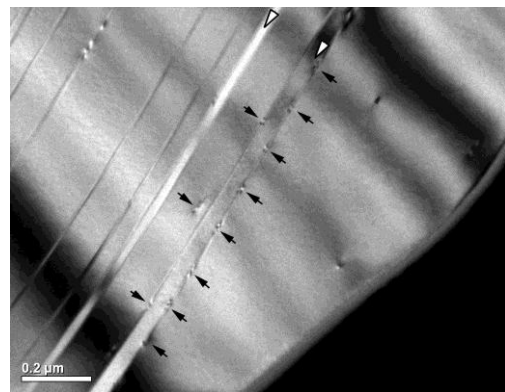


Fig. 5. 斜方輝石中の普通輝石のラメラ (白い矢印) の(100)界面上に形成されたミスフィット転位 (黒い矢印)。尚このミスフィット転位も2つの部分転位に分かれている。

この上下界面の転位密度の違いによって斜方輝石の褶曲による格子歪みが解放されているものと考えられる（詳細は Raimbourg et al., 2011 参照）。このように離溶組織と褶曲構造には密接な関係があることが、今回の観察で明らかになった。

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 6 件）

- ① Inoue, S. and Kogure, T., Electron backscatter diffraction (EBSD) analyses of phyllosilicates in petrographic thin sections, *American Mineralogist*, (査読有), 97, 2012, 755-758.
DOI:10.2138/am.2012.4061
- ② Raimbourg, H., Kogure, T., and Toyoshima, T., Crystal bending, subgrain boundaries development and recrystallization in orthopyroxene during granulite-facies deformation, *Contribution to Mineralogy and Petrology* (査読有), 162, 2011, 1093-1111
DOI: 10.1007/s00410-011-0642-3.
- ③ Angliboust, S., Aard, P., Raimbourg, H., et al., Subduction interface processes recorded by eclogite-facies shear zone (Monviso, W. Alps), *Lithos* (査読有), 127, 2011, 222-238
DOI:10.1016/j.lithos.2011.09.004
- ④ Kameda, J., Raimbourg, H., Kogure, T., et al., Low-grade metamorphism around the down-dip limit of seismogenic subduction zones: Example from an ancient accretionary complex in the Shimanto Belt, Japan, *Tectonophysics*, (査読有), 502, 2011, 383-392
DOI:10.1016/j.tecto.2011.02.010
- ⑤ Raimbourg, H., Ujii, K., Kopf A., et al., The role of compaction contrasts in sediments in decollement initiation in an accretionary prism, *Marine Geology*, (査読有), 282, 2011, 188-200
DOI:10.1016/j.margeo.2011.02.011
- ⑥ Raimbourg, H., Hamano, Y., Saito, s., et al., Acoustic and mechanical properties of Nankai accretionary prism core samples, *Geochemistry Geophysics Geosystem*, (査読有), 12, 2011, Q0AD10
DOI:10.1029/2010GC003169

〔学会発表〕（計 2 件）

- ① Raimbourg, H., Kogure, T., and Toyoshima, T., Crystal folding and recrystallization in naturally deformed orthopyroxene: insights from TEM imaging of subgrain/grain boundary development, EGU General Assembly, 2011/04/07, Vienna, Austria
- ② Kogure, T., Kameda, J., Beaufort, D., and Raimbourg, H., Structure Nanoanalyses of Specified Regions in Minerals, Rocks and Soils through

SEM-FIB-TEM Sequence, 17th IFSM, International Microscopy Congress, 2010/9/21, Rio de Janeiro, Brazil

6. 研究組織

(1) 研究代表者

Raimbourg Hugues (RAIMBOURG HUGUES)
独立行政法人海洋研究開発機構・地球内部
ダイナミクス領域・招聘研究員
研究者番号：40509709

(2) 研究分担者

小暮 敏博 (KOGURE TOSHIHIRO)
東京大学・大学院理学研究科・准教授
研究者番号：50282728

(3) 連携研究者

無し