

0.5GPa, 800°Cにおけるメノウ中の 石英多結晶体の結晶成長実験

井元 恒¹・道林克禎¹

Grain growth experiments of quartz aggregates in agate under 1GPa and 800°C

Hisashi IMOTO¹ and Katsuyoshi MICHIBAYASHI¹

Abstract We investigated grain growth process of quartz aggregates in agate. The agate samples were annealed in a piston-cylinder solid medium apparatus (MK65S) of Shizuoka University. The experiments were performed at temperature of 800°C, confining pressure of 0.5 GPa for 0.5 hr, 24 hr and 66 hr, respectively. The agates were well crystallized during experiments. Mean grain sizes increased from a few to ten microns with increasing time. Aspect ratios were nearly constant at around 0.7 (b/a ; $b < a$). Shape preferred orientation (SPO) of quartz grains were developed with increasing time. Crystal-preferred orientation of c -axes, which were primarily girdled, appears to control the development of SPO with time.

Key words: agate, quartz, annealed experiment, shape-preferred orientation, crystal-preferred orientation, normal grain growth

はじめに

岩石組織は岩石の挙動を考える上で重要な情報をもつため、岩石組織の発達の研究は古くから行われてきた (Schmidt, 1925; Sander, 1930 など)。岩石組織は発達時に温度、圧力、差応力、歪、岩石の構成鉱物や水の影響を複雑に受ける (高橋ほか, 1988; Ohuchi & Nakamura, 2007)。そのため、天然の岩石の研究のみでは岩石組織がどのような影響を受けているのかを調べることは非常に難しい (Skemer *et al.*, 2006)。岩石組織の発達過程を研究する方法として岩石の高温高压変形実験がある (Hobbs, 1968; Paterson & Olgaard, 2000 など)。本研究は、静岡大学理学部地球科学教室が所有する高温高压実験装置を用いて、静岡岩状態における石英多結晶体の石英粒子を結晶成長させ、結晶成長過程に初期の結晶方位異方性がどのような影響を与えるのか考察した。

方法

実験試料

本研究では実験試料として、メノウを使用した。メノウは石英からなる岩石で、水を約1.5%含み、ファイバー状の構造を持ち、非常に変形しやすい特徴をもつ。本研究では、メノウを直径約1cm、長さ約2cmの円柱状に加工して使用した。

実験方法

本研究では固体圧媒体実験装置MK65Sを使用した (清水ほか, 2006)。MK65Sは封圧1.5GPa、温度1000°C、軸圧2GPaの性能を持つ。

サンプルアセンブリは同じ実験装置を使用した Masuda *et al.* (1997) と同じである (Fig. 1)。実験試料はパイロフィライトの圧媒体で覆われており、温度の測定にはK型の熱電対を使った。本研究では封圧0.5GPa、温度800°Cで高温高压実験を行った。それぞれの実験概要をTable 1に示す。

¹ 静岡大学理学部地球科学教室, 〒422-8529 静岡市駿河区大谷836

¹ Institute of Geosciences, Shizuoka University, 836 Oya, Suruga-ku, Shizuoka, 422-8529 Japan

E-mail: sekmich@ipc.shizuoka.ac.jp (K. M.)

Table 1 Experimental conditions.

Sample No.	date (y.m.d)	material	temperature (°C)	pressure (GPa)	time (hr)	grain size (D)	aspect ratio (short/long)
IMO-005	2007.11.23	agate	800	0.48	0.5	2.9±1.0	0.67
IMO-007	2007.12.02	agate	800	0.48	24	4.9±2.4	0.70
IMO-008	2007.12.07	agate	800	0.50	66	9.6±5.9	0.64

実験手順として、最初に数時間かけて封圧を約0.4 GPaまで上げた後、温度を560°Cまで上げた。この時、熱膨張によって封圧が数10MPa上がった。パイロフィライトの脱水反応を進行させるために560°Cで1時間放置した後、800°Cにした。温度が800°Cになるのに合わせ封圧を0.5GPaにした。実験終了後、温度は数分で常温に、封圧は約1日かけて大気圧に戻した。

実験後、実験試料は全て熱電対の穴を通るように半分には切って薄片にした。さらに薄片を1000番の研磨剤で磨いた後、ダイヤモンドペーストで約2時間研磨し、さらにコロイダルシリカで約12時間化学研磨した。

結果

微細構造観察

本研究では全ての試料について光学顕微鏡と電子顕微鏡による微細構造観察を行った。実験試料の薄片写真と2次電子像をFig. 2に示す。実験時間が0.5時間の試料(IMO-005)はメノウ特有のファイバー構造が観察された(Fig. 2A)。しかし、24時間と66時間の試料(IMO-007とIMO-008)ではファイバー構造は観察されなかった(Fig. 2B, C)。2次電子像では、全体的にポリゴナルな組織が観察され、実験時間が長いほど粗粒化していた(Fig. 2D, E, F)。

微細構造解析

微細構造解析は、最初に実験試料について中央部分の2次電子像を取り込み、その像をもとに粒界を透明シートにトレースした。それをスキャナーによってパソコンに取り込み、画像解析ソフトScion Imageを用いて、結晶の面積、長軸、短軸の長さ、長軸方向の分布を解析した。それより粒径と形態定向配列を計算した。0.5時間の試料(IMO-005)は粒子が細粒すぎて計測できる粒子が少なかったため測定粒子数は90粒であるが、他の2試料は200粒以上測定した。

粒径の対数をとった頻度分布をFig. 3Aに示す。平均粒径は実験時間が長くなるに従って2.9µm, 4.9µm, 9.6µmと大きかった。また、粒径分布は全てほぼ正規分布である。ただし、0.5時間の試料(IMO-005)は粒界がはっきりした粒子を測定しているため、平均粒径が少し大きめに計測された可能性がある。

縦横比の頻度分布をFig. 3Bに示す。平均縦横比は、実

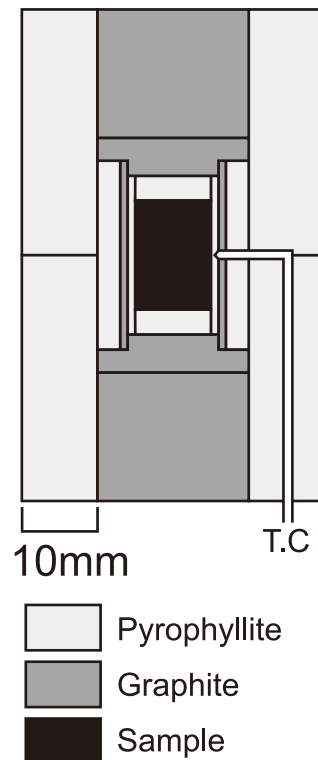


Fig. 1 Specimen assembly used in this study. T.C: thermocouple.

験時間の短い順に0.70, 0.67, 0.64とほとんど変わらず、実験時間には比例しない。頻度分布は全てほぼ正規分布である。

形態定向配列の頻度分布をFig. 3Cに示す。円柱試料の底面を基準方位として0°とした。実験時間0.5時間の試料(IMO-005)と66時間の試料(IMO-008)は0°付近に負のピークがある。さらに、実験時間が長い66時間の試料(IMO-008)の方が負のピークは大きい。24時間の試料(IMO-007)は他の2試料よりも形態定向配列が弱かった。

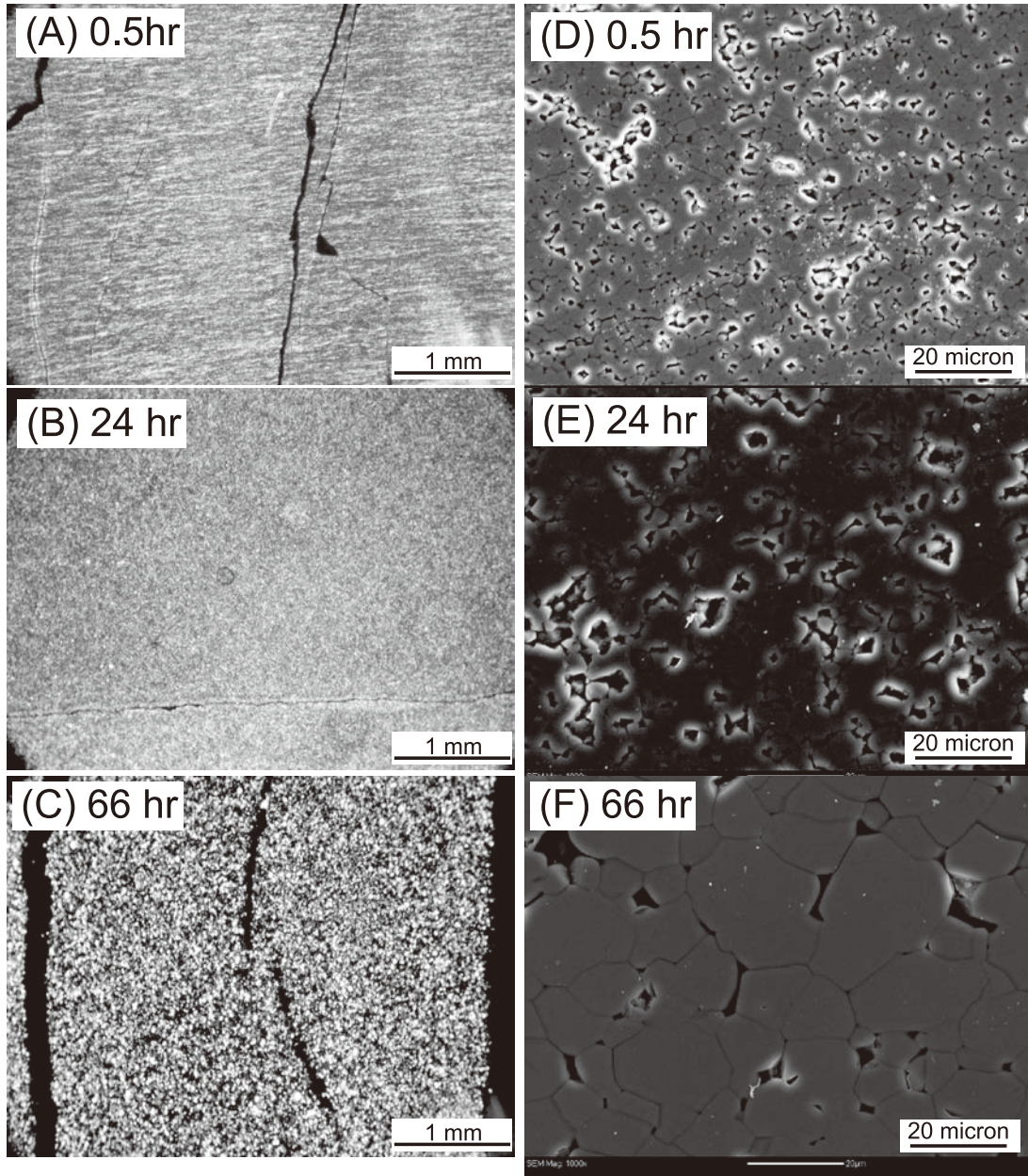


Fig. 2 Photomicrographs of quartz aggregates in the annealed agate samples after (A) 0.5 hr, (B) 24 hr, and (C) 66 hr, respectively. Cross-polarized light. Secondary electron images of quartz aggregates in the annealed agate samples after (D) 0.5 hr, (E) 24 hr, and (F) 66 hr, respectively.

結晶方位解析

結晶方位解析は、SEM-EBSDシステムで行った(道林, 2000)。電子顕微鏡内でのチャージを防ぐために、試料を全て炭素によって厚さ数10nmでコーティングした。測定には静岡大学機器分析センター所有のJSM-6300を使用した。加速電圧は20kV、電流は 1×10^{-8} Aで測定し、解析ソフトはHKL TechnologyのCHANNEL5を使用した。測定は重複しないように粒子1つ1つを2次電子像で確認しながら行った。

結晶方位定向配列の測定結果をFig. 4に示す。円柱試

料の上下をステレオネットの上下に合わせた。全ての試料のc軸はガードル状の分布を示した。それに対してa軸は弱い集中を示した。

考察

結晶成長の種類

本研究の結晶成長が普通粒成長か異常粒成長かについて考察するために、横軸に実験時間、縦軸に平均粒径の図を作成した(Fig. 5)。粒径は次第に粗粒化した(Fig.

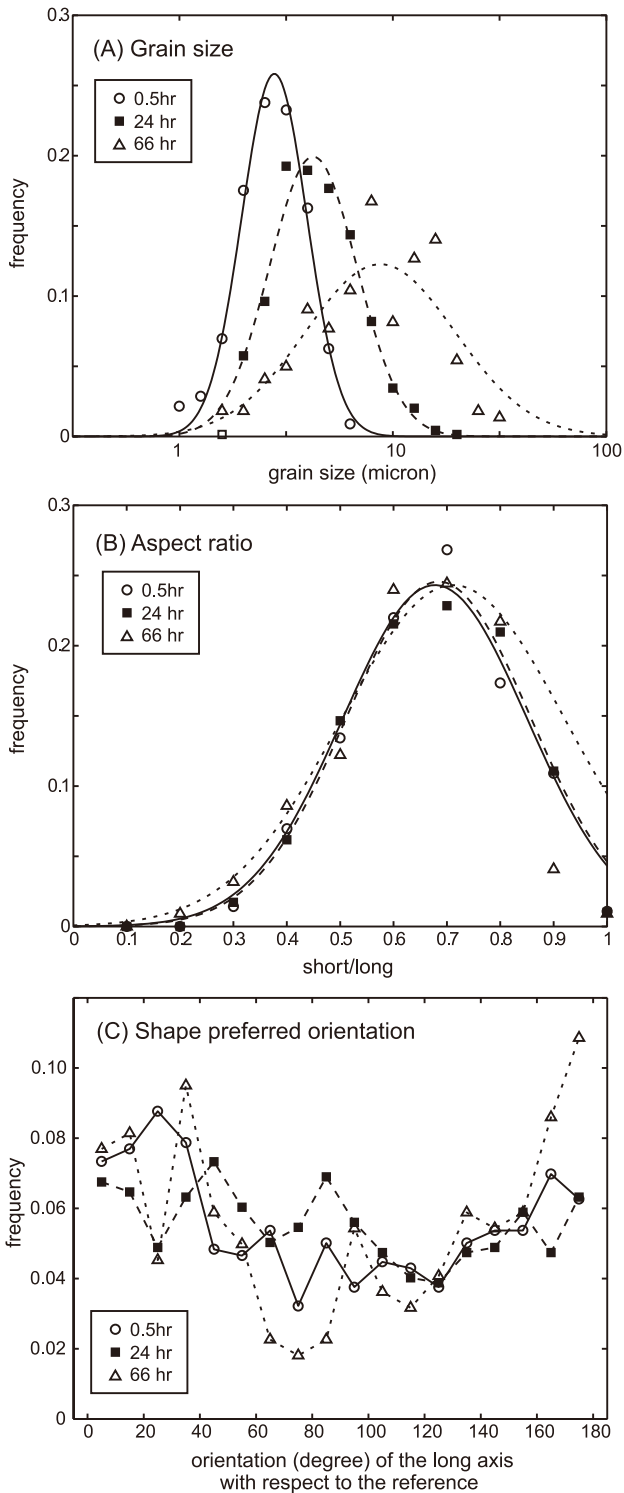


Fig. 3 (A) Grain size distributions of quartz aggregates in the annealed agate samples after 0.5 hr (open circles), 24 hr (solid squares), and 66 hr (open triangles), respectively. Best-fit curves for log-normal distributions are shown. (B) Aspect ratios of quartz aggregates in the annealed agate samples after 0.5 hr (open circles), 24 hr (solid squares), and 66 hr (open triangles), respectively. Best-fit curves for log-normal distributions are shown. (C) Orientation distributions of long-axes with respect to a horizontal reference line for individual grains within the quartz aggregates in the annealed agate samples after 0.5 hr, 24 hr and 66 hr, respectively.

3A and 5). しかし、縦横比は時間が変化しても変わらない (Fig. 3B). 従って、形は変化しないで粗粒化した。これは普通粒成長の特徴である (Evans *et al.*, 2001).

次に、本実験と同じ実験装置、実験アセンブリーで普通粒成長の実験を行っている Masuda *et al.* (1997) と比較した (Fig. 5). Masuda *et al.* (1997) と本実験の封圧の違いは固体媒圧実験の誤差の範囲である. Tullis & Yund (1982) によると普通粒成長の場合、時間と粒径の関係は D を平均粒径、 t を実験時間、 K_0 , n を定数とすると次のように表される。

$$D = K_0 t^n \quad (1)$$

横軸に時間、縦軸に平均粒径の両対数グラフの場合、傾きは n で表わされる。もし n が等しいのであれば粒成長速度が等しいことを示す。Masuda *et al.* (1997) では実験封圧 0.4 GPa、実験温度 800°C の実験結果を用いて $D = 4.0 t^{0.1}$ を得た。本実験の結果では $D = 0.55 t^{0.21}$ となる。4.0 と 0.55 の違いは粒径の測定方法の違いによるものと考えられる。また Masuda *et al.* (1997) の n でも本研究の粒成長は説明可能であるため、本研究の石英の結晶成長速度は Masuda *et al.* (1997) とほぼ同じである。

メノウが初生的に持つ結晶方位異方性の影響

石英粒子は実験時間が長くなるにつれて粗粒化する (Fig. 3A) が、形態は変化していない (Fig. 3B)。また、結晶方位異方性は出発物質のメノウの初生的な結晶方位を反映していると考えられる (Fig. 4)。一方、これらの試料は実験時間が長くなるにつれて形態定向配列に 0° 付近の負のピークが強くなった (Fig. 3C)。正のピークの方は 0° と 180° 方向にピークがある。この方向は c 軸の集中する方向であり、 c 軸の方向に結晶がわずかに伸びている (Fig. 6)。このことは、微細構造発達の数値モデル (Evans *et al.*, 2001) やアナログ物質および天然の石英組織の研究 (Kruhl, 2001) で示唆されている。また、Green (1967), Mainprice (1981MS) や Gleason & Tullis (1993) では実験研究によって {10-11} 面方向、つまり稜面方向に伸張しやすい報告されていることも調和的である。従って、本研究の結果はメノウの初生的な結晶方位によって石英が普通粒成長する際に c 軸の集中する方向にわずかに伸長することを示す。

謝辞

本研究は平成 19 年度静岡大学理学部生物地球科学科地球科学履修コース卒業論文として実施された。本研究の試料の分析には、静岡大学機器分析センターの走査型電子顕微鏡を使用した。本研究を進めるにあたり、静岡大学機器分析センター技術職員の池谷隆司氏と静岡大学理学部地球科学科の森英樹氏から実験機装置の技術面で多大な支援を受けた。そして道林研究室の佐津川貴子氏、藤井彩乃氏、上原茂樹氏、大原達也氏、植田直彦氏、新海優里氏、小森直昭氏、宗林研究室の鈴木慎人氏とは日頃から多くの議論をした。本研究の一部には、日本学術振興会科学研究費補助金と東京大学地震研究所の特定共

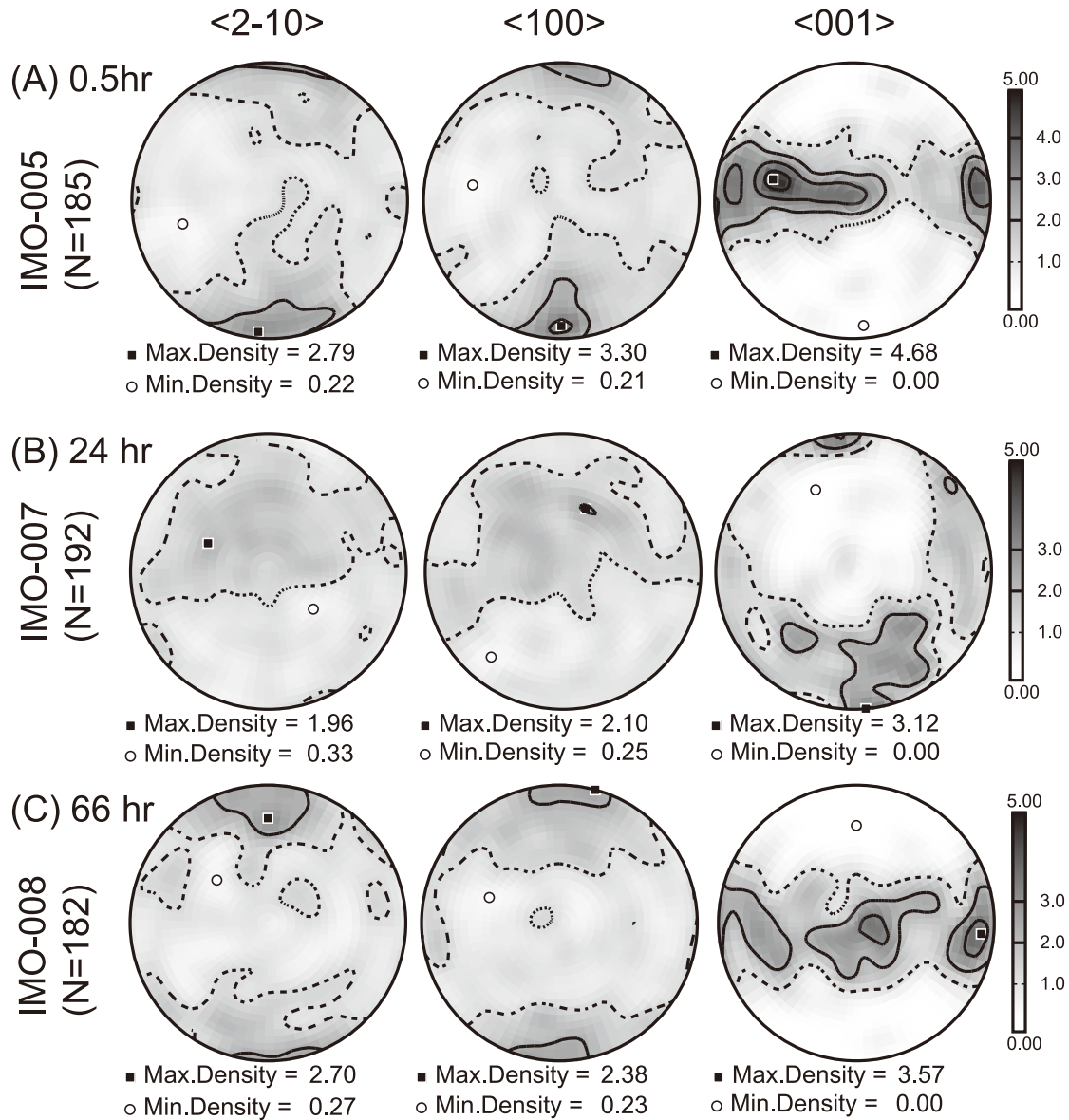


Fig. 4 Crystallographic preferred orientations of quartz within the quartz aggregates in the annealed agate samples after 0.5 hr (A), 24 hr (B) and 66 hr (C), respectively.

同研究「地震発生の素過程」による支援を受けた。静岡大学増田俊明教授と平賀岳彦博士（東京大学地震研究所）には、有益なご意見をいただいた。以上、ここに記して感謝の意を表します。

引用文献

- Evans B., Renner J. & Hirth G. (2001), A few remarks on the kinetics of static grain growth in rocks. *Journal of Earth Sciences*, **90**, 88–103.
- Gleason G. C. & Tullis J. (1993), Improving flow laws and piezometers for quartz and feldspar aggregates. *Geophysical Research Letters*, **20**, 2111–2114.
- Green H. W. (1967), Quartz: extreme preferred orientation produced by annealing. *Science*, **157**, 1444–1447.
- Hobbs B. E. (1968), Recrystallization of single crystals of quartz. *Tectonophysics*, **6**, 353–401.
- Kruhl J. H. (2001), Crystallographic control on the development of foam textures in quartz, plagioclase and analogue material. *Journal of Geology*, **90**, 104–117.
- Mainprice D. H. (1981MS), The experimental deformation of quartz polycrystals. Australian National University PhD thesis.
- Masuda T., Morikawa T., Nakayama Y. & Suzuki T. (1997), Grain-boundary quartz during annealing experiment at high temperature and pressures with implications

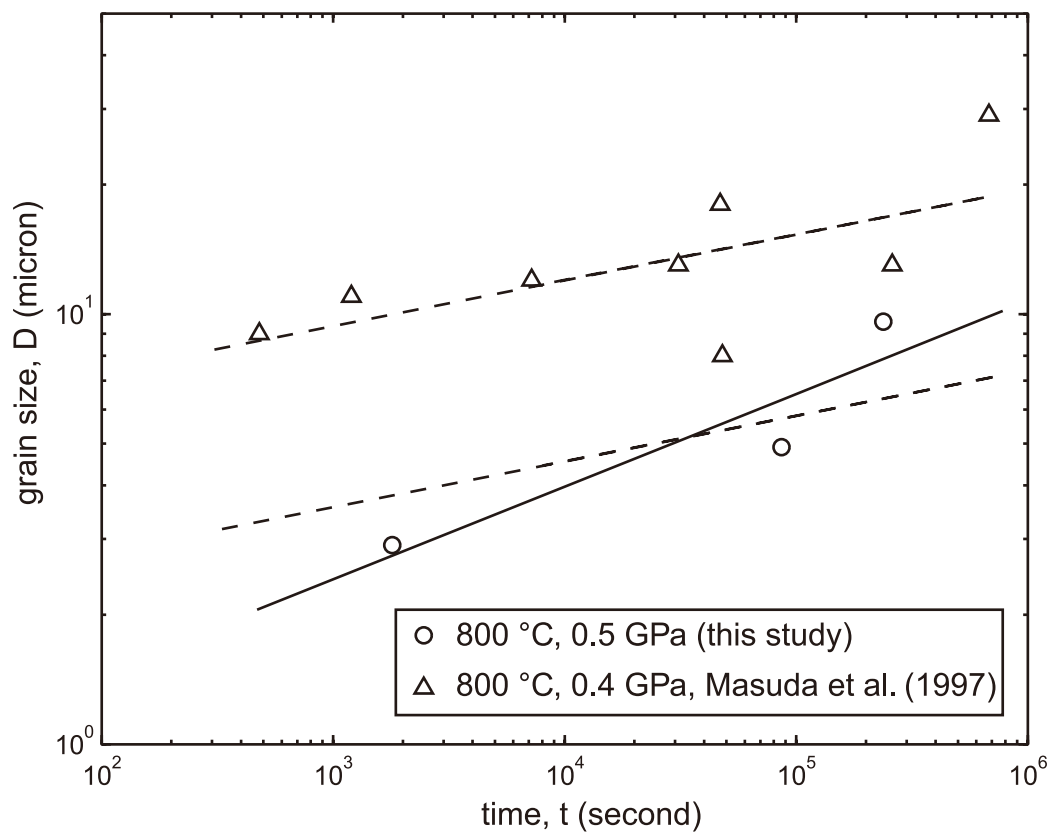


Fig. 5 Mean grain sizes of quartz within the quartz aggregates in the annealed agates with respect to annealing time (t). The solid line represents a least-squares fitting for data in this study. The data of Masuda *et al.* (1997) is shown for comparison.

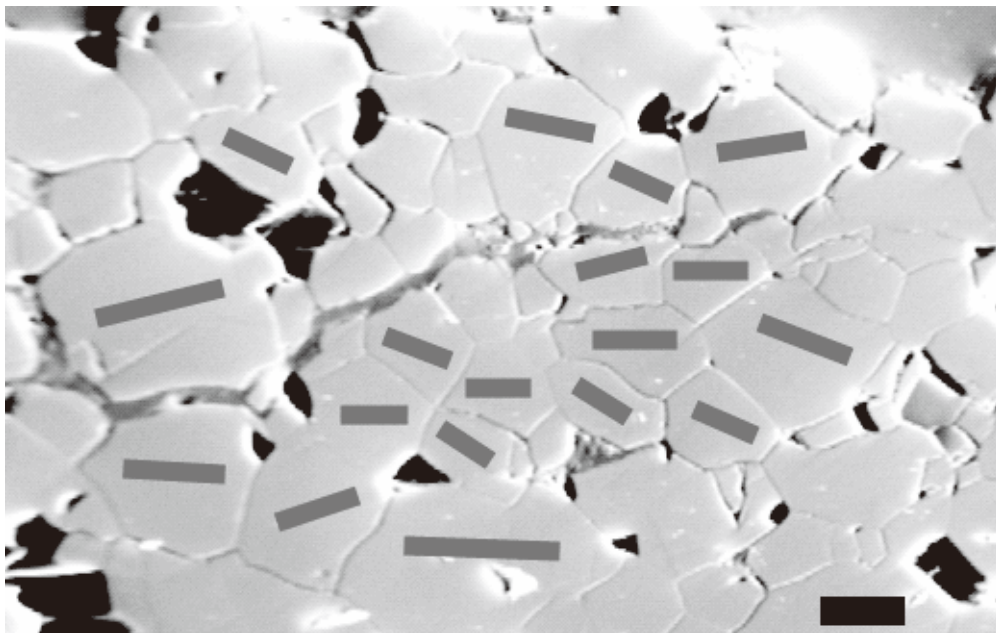


Fig. 6 Relationships between shapes and c -axes (black lines) of quartz grains in the annealed agate for 66 hours.

- for metamorphic geology. *Journal of Metamorphic Geology*, **15**, 311–322.
- 道林克禎 (2000), SEM-EBSDシステムによるカンラン岩の結晶方位解析. *構造地質*, **44**, 63–66.
- Ohuchi T. & Nakamura M. (2007), Grain growth in the forsterite–diopside system. *Physics of the Earth and Planetary Interiors*, **160**, 1–21.
- Paterson M. S. & Olgaard D. L. (2000), Rock deformation tests to large shear strains in torsion. *Journal of Structural Geology*, **22**, 1341–1358.
- Sander B. (1930), *Gefügekunde der Gesteine*. Springer, Wien, 352p.
- Schmidt W. (1925), Gefügestatistik, *Tschermaks Mineralogische und Petrographische Mitteilungen*, **38**, 342–423.
- 清水以知子・道林克禎・渡辺悠太・増田俊明・熊澤峰夫 (2006), 固体圧変形試験機MK65Sの設計と性能：内部摩擦の評価. *構造地質*, **49**, 15–26.
- Skemer P., Katayama I. & Karato S. (2006), Deformation fabric of the Cima di Gagnone peridotite massif, Central Alps, Switzerland: evidence of deformation at low temperatures in the presence of water. *Contributions to Mineralogy and Petrology Minerals*, **152**, 43–51.
- 高橋 学・小出 仁・星野一男 (1988), 岩石における真三軸法について. *地質ニュース*, **401**, 38–50.
- Tullis J. & Yund R. A. (1982), Grain growth kinetics of quartz and calcite aggregates. *Journal of Geology*, **90**, 301–318.