

微細組織から探る鉱物の結晶化・組織化プロセス

Crystallization and self-organization process of natural/synthetic minerals investigated through nano-/micro-texture analysis

大藤弘明¹

Tohoku Univ.¹

E-mail: ohfuji@tohoku.ac.jp

自然界において、鉱物は多様な色や結晶形態・組織を示し、我々の好奇心を刺激してくれる。鉱物結晶の色は、化学組成や微量元素、構造欠陥などに起因することが多く、形態・組織は、結晶構造に加え、過飽和度/過冷却度や濃度/温度勾配など、成長時の外的要因（環境）を反映して形成される。従って、鉱物結晶の内外に記録された情報を詳細に調べることで、その結晶が形成したプロセスや環境条件を把握することができる。本講演では天然・合成鉱物の特異な結晶化形態・組織の例をいくつか示しながら、電子顕微鏡によるミクロナノ観察を通して、その結晶化・組織化プロセスを解明した例を紹介したい。

成長駆動力の低い環境下（溶液成長では過飽和度の低い場合）、結晶成長は主にらせん転位周囲のステップ成長による渦巻成長で進行し、スムーズな結晶面で覆われた単結晶が形成される。駆動力の上昇とともに結晶面は次第にラフになり、成長機構も→二次元核形成→付着型成長と遷移し、核形成が加速され、最終的には多結晶による集合組織が形成される。実際、講演者はガラス封入容器中におけるパイライト（FeS₂）の水熱合成実験で、結晶化形態が溶液過飽和度に応じて「自形単結晶」→「骸晶」→「針状集合体」→「球晶」と変化してゆく様子を確認した（Fig. 1）。球晶状のパイライトは天然においても普遍的に産出し、中心から放射状に集合した柱状結晶より構成される。その結晶方位分布を調べると、個々の結晶は[100]方位へ伸長するが、隣接した結晶間のミスオリエンテーションは中心から外側へ行くほど大きくなってゆくことが分かった。高駆動力下での非平衡成長の結果、下地との格子ミスフィットを伴いながら伸長成長し、幾何学選別作用により球晶を形成したと解釈される。同様の特徴は天然ダイヤモンドの球晶体（バラス）においても確認され、球晶形成の普遍的なプロセスと考えられる。

一方、泥が堆積して形成した堆積物/堆積岩中に普遍的に含まれるパイライトは、さらに特異な木苺状の形態を示し（Fig. 2）、フランボイダルパイライト（多くは径 100 μm 以下）と呼ばれる。個々のマイクロクリスタルのサイズ、形態が1つの集合体内で完全に均質であることから、付加成長ではなく一度の核形成イベント（極めて高い成長駆動力下）で生じたといえる。このような均一なコロイド結晶の多核形成は自然界でも稀で、しかもそれが木苺状の組織をなす例は他にない。講演者はその内部構造に着目し、マイクロクリスタルの充填構造が「不規則充填」、「立方最密充填」、「二十面体充填」の3タイプに分類されることを明らかにした。さらに結晶方位分析より、マイクロクリスタルの規則充填は、凝集中の粒子間の界面エネルギーの最小化に駆動された粒子の回転によって形成されると予測し、これは最近のコロイド研究によっても証明されつつある。

このように、鉱物は多様な形態・組織を示すが、その本質的な物理プロセスには物質を超えた様々な共通点があり、材料結晶の組織制御などへもその知見を応用できる可能性がある。

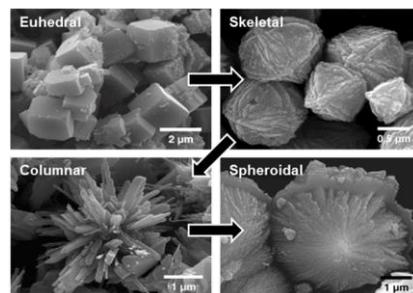


Fig. 1 Variety of pyrite morphologies synthesized at low (upper left) to high supersaturated (lower right) conditions

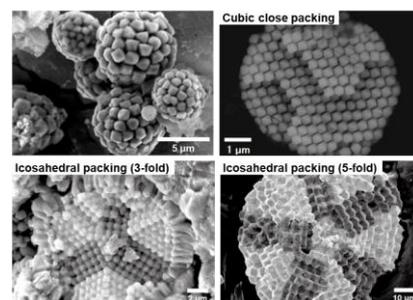


Fig. 2 SEM images of framboidal pyrite and its cross-sections showing regular packings of microcrystals.