

## 走査型電子顕微鏡後方散乱電子回折法 (SEM-EBSD)による石英-長石質ウルトラマ イロナイトの結晶方位解析

Crystallographic orientation analysis of quartz-feldspar ultramylonite using electron back-scatter diffraction in the SEM

重松紀生\*

Norio Shigematsu\*

2001 年 5 月 22 日受付.

\*産業技術総合研究所地球科学情報研究部門

Institute of Geoscience, Geological Survey of Japan,  
National Institute of Advanced Industrial Science and  
Technology, AIST Tsukuba Central 7, 1-1-1 Higashi,  
Tsukuba 305-8567, Japan

**Key Words :** EBSD, SEM, feldspar, ultramylonite, fine grain size, CPO

### はじめに

構造地質学における変形微小構造解析において走査型電子顕微鏡(SEM)は、光学偏光顕微鏡と並ぶ強力な道具となりつつある(Trimby et al., 1998; Heidelbach et al., 2000; Jian et al., 2000など)。この背景には、90年代になって電子線回折現象を利用した、後方散乱電子回折(EBSD)(Dingley, 1984; Prior et al., 1999)や方位差像(OC像)(Prior et al., 1996)といった技術が開発され積極的に利用されるようになったことがある。EBSDについては構造地質の44号にも紹介されている(道林, 2000)。

従来の光学偏光顕微鏡とユニバーサルステージによる結晶方位決定では、薄片の厚さ(約25μm)より細粒な粒子の測定是不可能である。また例えば石英のような一軸性結晶の結晶方位をユニークに決める、ある

いは柘榴石のような光学的等方結晶の結晶方位を決めることも不可能である。しかし SEM-EBSD を用いればこれらの問題は全て解決する。

ところで、石英・長石を主要構成鉱物とする地殻内の剪断帯の中心部は、ウルトラマイロナイトと呼ばれる非常に細粒な断層岩から構成されることが多い(Sibson, 1977など)。しかしながら、これまでウルトラマイロナイト中の長石を SEM-EBSD により解析している例はほとんどない。例えば、Fliervoet et al. (1997)では、オーストラリアレッドバンク変形帯の角閃岩相と緑色片岩相で変形したウルトラマイロナイトについて解析をしているが、SEM-EBSD による結晶方位の解析は石英についてのみ行っており、長石については行っていない。これは長石の結晶構造のデータベースがなかったことに加え、ウルトラマイロナイト中の長石粒子が1μm未満と極端に小さく、また試料帶電が著しいために測定が困難であるという理由からである。さらにこれらの問題以外に、長石の結晶の対称性が悪いということも測定を困難なものにしている。

筆者はイギリスのリバプール大学の David J. Prior 氏、John Wheeler 氏とともに石英-長石質ウルトラマイロナイトの SEM-EBSD による結晶方位の測定を行った。小論では石英-長石質ウルトラマイロナイトを SEM-EBSD により測定する際に発生する問題点とその原因、その解決法について紹介する。

### 後方散乱電子回折(EBSD)

#### 1. EBSD の空間分解能

EBSD は入射電子線が試料内で一度非弾性散乱してわずかに運動エネルギーを失った後、再びブレーキ反射を起こす結果生じる(Fig. 1a)。EBSD のパターン(EBSP)が得られる励起領域の体積は電子線の試料内部での挙動により決まる。モンテカルロシミュレーションによれば、Al の場合に入射電子は通常 EBSD

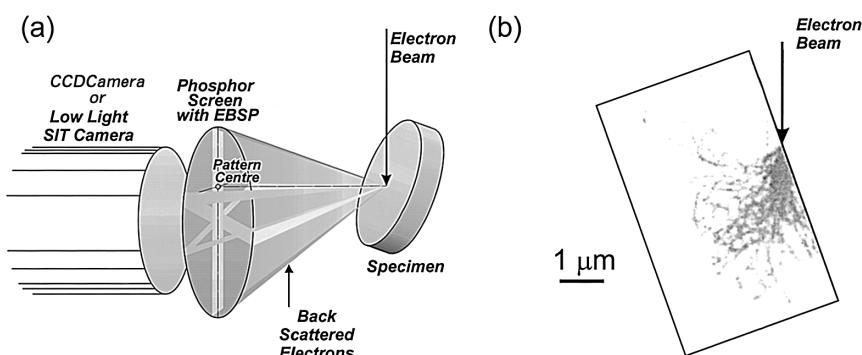


Fig. 1 (a) Schematic illustration of electron backscatter diffraction. (b) Two-dimensional schematic illustration of the trajectories of electrons interacting with multiple nuclei in the plane perpendicular to the tilt axis, modeled through a Monte-Carlo simulation (after Prior et al. 1999).

の解析を行う試料傾斜角 70° 加速電圧 20 kV の条件で最大深さ 2.5 μm まで入射する (Fig. 1 b). しかし、非弾性散乱により電子がある程度以上のエネルギーを失うと、EBSP 形成に寄与しなくなる。このため、実際に EBSP 形成に寄与するのは進入深さ数 10 nm までである (Prior et al., 1999). 一方、解析では、回折電子線を試料から脱出しやすくするため試料を 70° 傾ける。このため EBSP の励起領域は長軸が傾斜軸と直行した伸張比が 3 度の橢円形状となり、傾斜軸方向とそれと直交した方向で分解能が異なる。また SEM の空間分解能は電界放出型 (FE) の SEM により入射電子線のプローブ径を小さくすることで上げることができる。これにより例えば Al では、傾斜軸と平行方向で 50 nm 以下、傾斜軸と直交方向に 200 nm の分解能を得ることができる (Humphreys, 1998).

なお、SEM の選択は、ウルトラマイロナイトに含まれるようなサブミクロン以下の結晶粒を観察する場合、FE-SEM を使用するべきである。ただし InLens 型の FE-SEM は、試料が磁界中にあるため EBSP が歪み、指数付けができない (鈴木, 2000)。

また EBSD の解析では試料表面の鏡面研磨が必要であるが、通常のダイアモンド研磨では試料表面の結晶構造を壊してしまい、そのままでは良質の EBSP を得ることができない。このため、コロイダルシリカによる琢磨により、試料表面のアモルファス層を除去する必要がある。

ところで電子線の電流値が大きければ EBSD の信号は強くなり、より質の良い EBSP が得られる。SEM で電流値を大きくするためにはプローブ径を大きくするため、その分だけ空間分解能は落ちる。また、非導電性試料の観察の場合、試料帶電を避けるため通常炭素膜などを蒸着するが、蒸着膜は通常数 10 nm の厚さがあり、また EBSP の形成は表面数 10 nm で発生するため、蒸着した試料できれいな EBSP を得ることは難しい。良質の EBSP を得るためにには、試料を蒸着しないか、電流値を上げる。前者の選択は深刻な試料帶電の原因となる。いずれにせよ、非導電性試料において金属などの導電性試料で得られる解像度は期待できず、タングステンフィラメントでは数ミクロン、FE 電子銃の場合で数 100 nm のオーダーである (Prior et al., 1999)。

## 2. 長石の持つ問題

EBSD の自動測定を行う場合、結晶方位は発生した EBSP を高感度 SIT カメラまたは CCD カメラにより取り込み (Fig. 2 a), Hough 変換により自動的に菊池バンドを検出し、指数付けを行うことにより決定する。しかし、Hough 変換は EBSP の質が低い、あるいは結晶の対称性が低いと問題を生じる (鈴木, 2000)。実際、筆者が石英・長石について菊池バンド抽出を自動で試みたところ、ほとんどうまくいかなかった。造

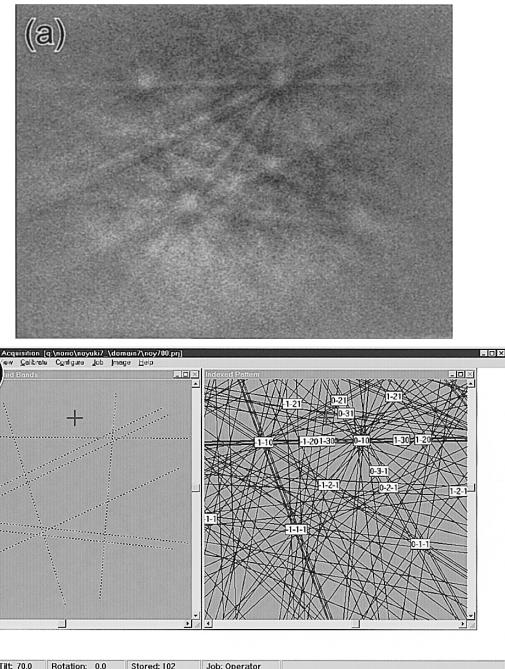


Fig. 2 (a) Bitmap of EBSP of a plagioclase grain. (b) Windows of the HKL Channel acquisition software. Key reflectors in (a) are picked by hand-drawing onto the bitmap image (left window), and these are indexed (right window).

岩鉱物の EBSD による自動測定は、柘榴石、方解石ではうまくいくが、多くの鉱物については今後の課題である (Prior pers. comm.). 従って、多くの造岩鉱物について、金属で行われているような方位マッピングを行なうことは現段階では不可能で、個々の粒子の方位を測定することになる。

菊池バンドの自動検出が不可能な場合、手動で菊池バンドを検出し、検出したバンドに合うパターンをコンピュータで計算して指数付けを行う (Fig. 2 b). 計算に必要な斜長石のリフレクターファイルは Prior and Wheeler (1999) により公開されている。なお、コンピュータで行った指数付けの結果が正しいかどうかは人間が目で判断する。

ここで長石の場合に、結晶方位決定上の問題がいくつかある。コンピュータで行った指数付けの結果が正しいかどうかを判断する為には、EBSP の質が良いことが必要である。このためには経験的に長石の場合、石英の 5 倍、柘榴石より 1 衡、金属より 2 衡も大きな電流値が必要になる (Prior and Wheeler, 1999)。このことは前述の通り、空間分解能を著しく落とし、また試料帶電の原因となる。

一方、コンピュータで行った指数付けの結果は、コンピュータが最初に示した 74% が正しくない (Prior and Wheeler, 1999)。このうち 9% は [010] 軸回りの擬似単斜対称によるものである。筆者の印象では手動で菊池バンド検出をする場合、ある特定の方位に対

し、特定のバンドを検出すればコンピュータの計算結果はほぼ確実に正しい。石英の場合、対称性がある程度高いため現れるパターンは限られており、操作者がバンド検出についてある程度の経験を積むことによりコンピュータはほぼ確実な答えを返すようになる。一方、三斜晶系の斜長石については、非常に類似しているパターンでも全く方位が異なる場合が多数存在する。これは三方晶系の石英が六方晶系の擬似対称性を持ち、解が類似しているが異なる場合に、計算結果をc軸回りに60°回転させればよいのとは大きく異なる。以上、斜長石の指数付けはある程度の熟練を要するし、手間もかかる。1粒子測定の所要時間は、筆者の経験では、石英ではある程度熟練すれば、30~60秒であるのに対し、長石では10分~20分を要する。

### EBSDによる細粒長石の測定

ウルトラマイロナイト中のサブミクロン長石粒子の結晶方位をEBSDにより測定する際には、上記のような問題がある。筆者が測定を行った際には、バンドの手動検出、コンピュータの計算結果の正誤判断の問題は現段階ではどうしようもないで、主として良質のEBSPを得るための対処を行った。

測定を行った石英-長石質のウルトラマイロナイトは、福島県阿武隈山地の畠川破碎帯西側の小剪断帯より採取したものである(Shigematsu, 1999; Hiraga, et al., 1999; Shigematsu and Tanaka, 2000など)。解析はイギリス・リバプール大学地球科学教室のCamScanX500 Crystal Microprobeにより行った。解析を行った斜長石の粒径はサブミクロンから数ミクロン程度である(Fig. 3a)。なおFig. 3(a)は方位差像(OC像)もしくは前方散乱電子像と呼ばれ、結晶方位差によりコントラストがついている(Prior et al., 1996)。

試料帶電は、試料への入射電子に対し試料から放出

される後方散乱電子(BSE)や二次電子(SE)が少ないとするために起こる。試料から放出される電子の量は印加される電圧に依存しこのことを利用し、結像用の電子銃とは別に電子銃を設置して、電子線を印加することにより、試料帶電を押さえることができる(Prior pers. comm.)。

筆者らは、通常のEBSD解析と同様に試料を炭素蒸着せずにこの方法を検討した。確かに試料帶電を押さえることができ高空間分解能でEBSPを得られたが、試料汚染が著しく、1時間ほどでEBSPは得られなくなった。この場合、再度コロイダルシリカによる琢磨により試料表面の汚染を除去することが必要で、上述の長石1粒子の測定時間を考えれば、この方法は実用に耐えない。

結局、試料帶電を押さえるため、炭素蒸着を行い測定を行った。炭素蒸着によりEBSPの質が落ちることについては加速電圧・電流値を上げることで補い、測定は25kV, 20nAという非常に高い値で行った。このためあまり高い空間分解能は期待できず、実際Fig. 3(a)でも、番号がついている粒子が測定した粒子であるが、測定ができた最も小さな粒子の粒径はほぼ1μm程度で、これより細粒になると多くの場合、指数付けを行うのに十分良質なEBSPを得ることは困難であった。このようにして測定した結果をFig. 3(b)に示す。

### おわりに

従来、斜長石の結晶定向配列(CPO)は、多くの場合ユニバーサルステージ(Krule, 1987; Ji et al., 1994など)が用いられてきた。またX線回折あるいは中性子線回折を用いたテクスチャゴニオメータ(Wenk et al., 1986; Wenk and Pannetier, 1990), 透過電子顕微鏡による制限視野回折を用いる方法も(Fitz Gerald et al., 1983; Shigematsu and Tanaka, 2000)行われ

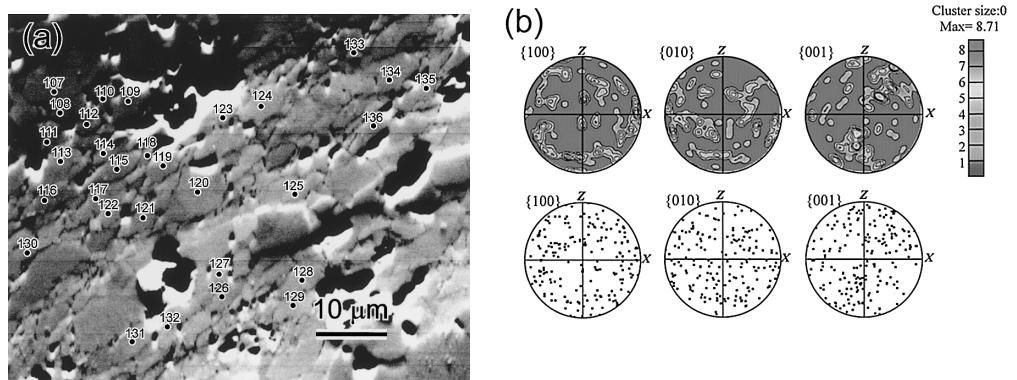


Fig. 3 (a) OC image of a typical microstructure in a quartz-feldspar ultramylonite. EBSD measurement points are shown as numbered dots. (b) CPOs of plagioclase {100}, {010} and {001} in the ultramylonite. Equal-area, upper-hemisphere projections of 200 grain measurements. The specimen reference system is defined as Z being perpendicular to the foliation, and X being parallel to lineation.

てきた。しかしいずれの場合も様々な問題点を持ち、ウルトラマイロナイト中の細粒長石のCPO解析は実質不可能であった。こうした意味でもSEM-EBSDによりウルトラマイロナイトの細粒斜長石の結晶方位が確実にユニークに決められるようになったことは意義深い。しかしながら、測定はある程度の熟練を要する上に時間もかかるものだということを最後に述べておきたい。

### 謝 辞

リバプール大学のDavid J. Prior博士、John Wheeler博士には同大学のSEM-EBSDシステムの使用に関し多くの便宜を図っていただいた。リバプール大学の姜 振廷 (Jian Zhenting) 博士(現在イエール大学)には様々な点で渡り議論していただいた。千葉大学の金川久一博士には粗稿に目を通していただいた。本研究は文部省科学研究補助金(課題番号12740285)、科学技術庁振興調整費「陸域震源断層深部滑り過程に関する総合研究」、早稲田大学特定課題補助金(99A-524)の援助を受けた。ここに記して感謝いたします。

### 文 献

- Dingley, D.J., 1984, Diffraction from sub-micron areas using electron backscattering in a scanning electron microscope. *Scanning Electron Microsc.*, **2**, 569-575.
- Fitz Gerald, J.D., Etheridge, M.A. and Vernon, R. H., 1983, Dynamic recrystallization in a naturally deformed albite. *Text. Microsc.*, **5**, 219-237.
- Fliervoet, T., White, S. and Drury, M., 1997, Evidence for dominant grain-boundary sliding deformation in greenschist- and amphibolite-grade polymimetic ultramylonites from the Redbank Deformed Zone, Central Australia. *Jour. Struct. Geol.*, **19**, 1495-1520.
- Heidelbach F., Kunze, K. and Wenk, H-R., 2000, Texture analysis of a recrystallized quartzite using electron diffraction in the scanning electron microscope. *Jour. Struct. Geol.*, **22**, 91-104.
- Hiraga, T., Nagase, T. and Akizuki, M., 1999, The structure of grain boundaries in granite-origin ultramylonite studied by high-resolution electron microscopy. *Phys. Chem. Minerals*, **26**, 617-623.
- Humphreys, F.J., 1998, Quantitative metallography by electron backscattered diffraction. *Jour. Microsc.*, **195**, 170-185.
- Ji, S., Zhao, X. and Zhao, P., 1994, On the measurement of plagioclase lattice preferred orientations. *Jour. Struct. Geol.*, **16**, 1711-1718.
- Jian, Z., Prior, D.J. and Wheeler, J., 2000, Albite CPO and grain misorientation distribution in a low-grade mylonite : implication for granular flow. *Jour. Struct. Geol.*, **22**, 1663-1674.
- Kruhl, J., 1987, Preferred lattice orientations of plagioclase from amphibolite and greenschist facies rock near the Insubric Line (Western Alps). *Tectonophysics*, **135**, 233-242.
- 道林克禎, 2000, SEM-EBSPシステムによるカンラン岩の結晶方位解析。構造地質, no. 44, 63-66.
- Prior, D.J., Boyle, A.P., Brenker, F., Cheadle, M.C., Day, A., Lopez, G., Peruzzo, L., Potts, G.J., Reddy, S., Spiess, R., Timms, N.E., Trimby, P. W., Wheeler, J. and Zetterstrom, L., 1999, The application of electron backscatter diffraction and orientation contrast imaging in the SEM to textural problems in rocks. *Am. Mineral.*, **84**, 1741-1759.
- Prior D.J., Trimby, P. W., Wever, U. D. and Dingley, D.J., 1996, Orientation contrast imaging of microstructures in rock using forescatter detectors in the scanning electron microscope. *Mineral. Mag.*, **60**, 859-869.
- Prior, D.J. and Wheeler, J., 1999, Feldspar fabrics in a greenschist facies albite-rich mylonite from electron backscatter diffraction. *Tectonophysics*, **303**, 29-49.
- Shigematsu, N., 1999, Dynamic recrystallization in deformed plagioclase during progressive shear deformation. *Tectonophysics* **305**, 437-452.
- Shigematsu, N. and Tanaka, H., 2000, Dislocation creep of fine-grained recrystallized plagioclase under low-temperature conditions. *Jour. Struct. Geol.*, **22**, 65-79.
- Sibson, R.H., 1977, Fault rocks and fault mechanisms. *Jour. Geol. Soc. London*, **133**, 191-213.
- 鈴木清一, 2000, EBSPの基礎的事項と材料への応用。TSL技術資料, OIM ACADEMY.
- Trimby, P.W., Prior, D.J. and Wheeler, J., 1998, Grain boundary hierarchy development in a quartz mylonite. *Jour. Struct. Geol.*, **20**, 917-935.
- Trimby, P.W. and Prior D.J., 1999, Microstructural imaging techniques : a comparison between light and scanning electron microscopy. *Tectonophysics*, **303**, 71-81.
- Wenk, H-R., Bunge, H.J., Jansen, E. and Pannetier, J., 1986, Preferred orientation of plagioclase - neutron diffraction and U-stage data. *Tectonophysics*, **126**, 271-284.
- Wenk, H-R. and Pannetier, J., 1990, Texture development in deformed granodiorites from the Santa Rosa mylonite zone, southern California. *Jour. Struct. Geol.*, **12**, 177-184.