

X線トポグラフ法による天然水晶の成長履歴の解析

安田 俊一

YASUDA, T. (1985) A study of crystal growth of a natural quartz crystal by X-ray diffraction topography. *Bull. Geol. Surv. Japan*, vol. 36(7), p. 385-393.

Abstract: The growth history of a beautiful natural quartz crystal was studied by X-ray diffraction topography with a Lang camera. The followings have resulted from the observations on the distribution and variation of various internal imperfections.

In addition to minor, short-term variations in the growth rate, the anisotropic growth can be seen among pyramidal faces, and the one occurred at the intermediate stage is most remarkable. This clearly indicates that growth condition varied from earlier to later stages in the growing history. The growth of prismatic faces proceeded smoothly on m_x faces whereas the growth rate of m_z faces varied oscillatory. The oscillation periods correspond to the variation in the diffraction intensity by growth band on pyramidal faces.

1. はじめに

結晶は瞬時に成長したものではない。微細な核から出発して現在見られる大きさに成長するまでの間には、成長条件の変動、成長速度の変化、不純物の取込みなどさまざまな履歴を経ている。

これらの変動がさまざまな構造欠陥として結晶中に記録されている。包有物、成長縞、成長分域構造、線状欠陥面状欠陥などはこの種の成長によって導入された構造欠陥である。複雑な組成の環境相中で、変動する条件のもとで成長した天然鉱物中には、この種の成長による構造欠陥が制御された条件下で育成した合成結晶より顕著に見られる。それらは天然の鉱物結晶が成長した過程を記録している貴重な情報源であると言える。

天然鉱物の結晶中に見られる、成長によって導入された構造欠陥の研究は古くから行われて来た。包有物の観察、分域構造や累帯構造の光学的研究などはその例である。

X線トポグラフ法(ラング法)は結晶中の欠陥の研究手段として強力な手法であり、多くの結晶について応用され成果をあげて来た。天然鉱物ではダイヤモンド、水晶をはじめ数多くの研究例がある。今回試料として取上げた水晶の場合でも、例えば LANG (1967, a, b) の報告やブラジル双晶についての PHAKEY (1969) の報告に代表される欠陥像の研究があり、一方成長履歴については KASHKUROV *et al.* (1967)、柱面成長についての USHAKOVSKII *et al.* (1970) 及び日本式双晶についての YASUDA

and SUNAGAWA (1982) 等の報告がある。

しかし、1個の結晶全体について成長欠陥を調べ、成長履歴と関連させて、欠陥がどのように導入され成長がどのように進化したかを調べた報告はない。

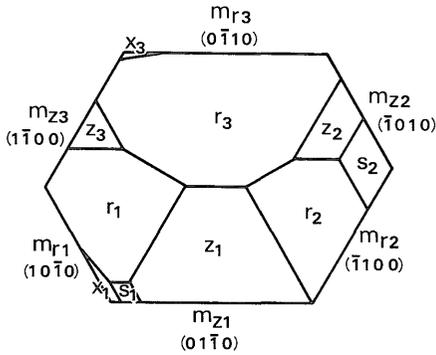
本研究では水晶の六方柱状結晶1個を取上げ、下部から頂部まで輪切りにした板状試料をX線トポグラフ法で撮影し、成長が進むにつれて欠陥分布と結晶の外形がどのように変化したかを解析した。これによって、水晶結晶の成長過程の基本像を把握しようとしたのが本研究のねらいである。解析した試料結晶は1個であるが、天然における水晶結晶の成長のしかたについてひとつの基本像を示すものと言えよう。

2. 試料及び実験

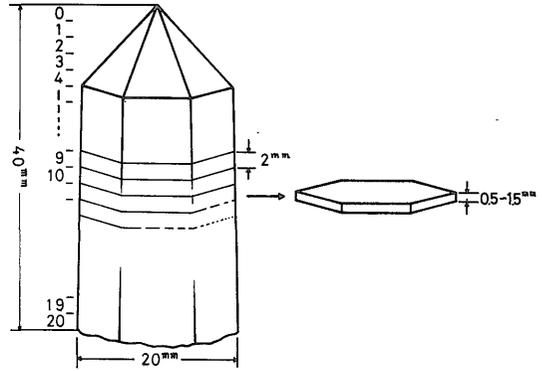
試料結晶は適当な大きさで透明度の高い、肉眼的には不純物や割目を含まない良質の標本用市販品(ブラジル産)を用いた。したがって産状の詳細は不明である。大きさは径約20mm高さ約40mm、右水晶である(第1図)。(以後、本文中の写真はすべて第1図と同じ方位に見るように置いてある)。

この結晶をなるべく底面に平行になる様に約2mm厚の板状の20枚に切断し、これを最終1500番の研磨剤(アラシタム)を使って約1mmの厚さの六角板に仕上げた。研磨剤による機械的研磨は鏡面仕上げを行ってもなお表面付近には小さな歪を残しており、これがバックグラウンドとなってX線トポグラフ上での欠陥像を見にくくしてしまう。このため最終的にはフッ酸による研磨面の表面処理を行った。

* 鉱床部



第1図 試料結晶錐面外形図



第2図 X線トポグラフ用薄板作製模式図

これらの六角薄板には試料結晶の頂部から下部に向って No. 1-20 の番号を付している(第2図)。(以下本文で使用する No. はすべてこの番号である)。

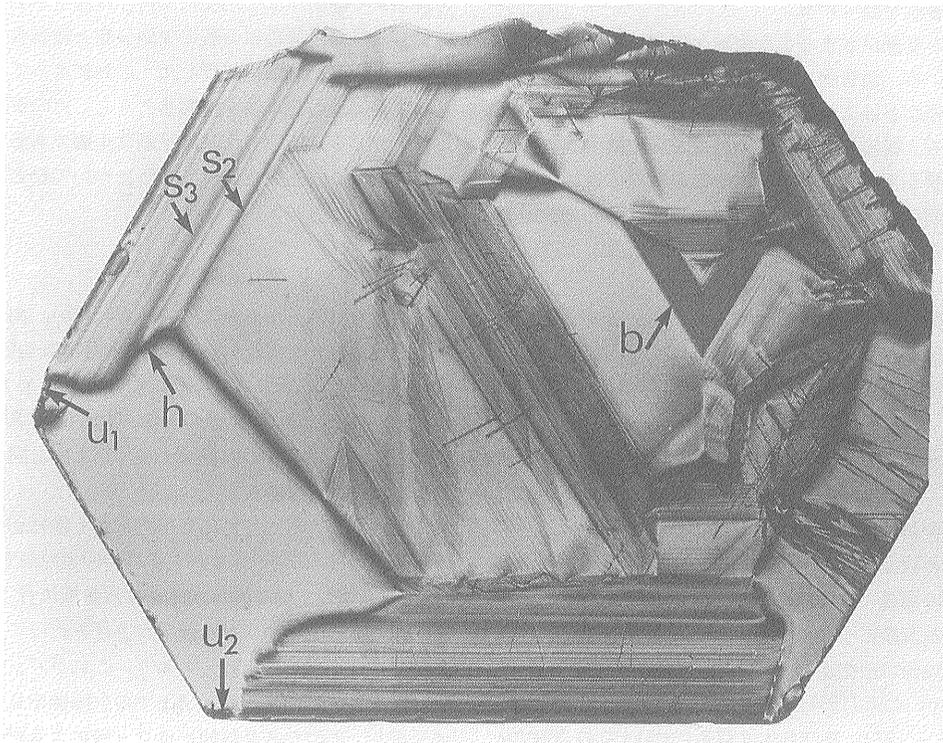
実験装置は理学電機製微小焦点X線発生装置, D-4C型及びラングカメラA-3型を使用, X線源は Ag-K α_1 , 焦点の径は推定 50 μm ϕ 位である。使用した写真乾板は原子核乾板イルフォード L4 50 μm 及び富士 G7B 50 μm , 現像は富士レンドール:水=1:3にし液温約 3 $^{\circ}\text{C}$, 40-60分の低温現像を行った。

3. 欠陥像の観察

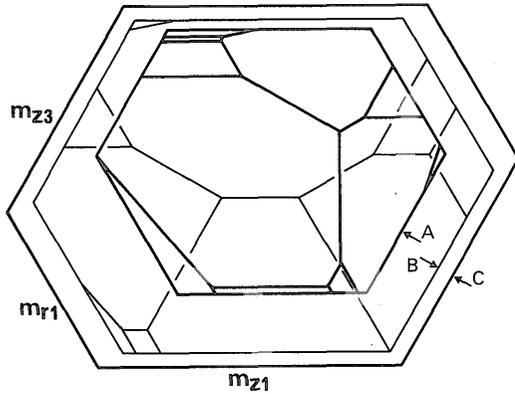
3.1 水平断面及び垂直断面

成長する結晶が異なる結晶面で囲まれるとき, 各面の成長でつくられる領域 (growth sector) は, 領域境界部での歪の集中などによるコントラストの変化によってX線トポグラフ上で観察されるのが普通である。

第3図に1例を示したように, 各薄板のX線トポグラ



第3図 No. 13 X線トポグラフ, (01\bar{1}0)面回折



第4図 成長前期の各面成長領域模式図

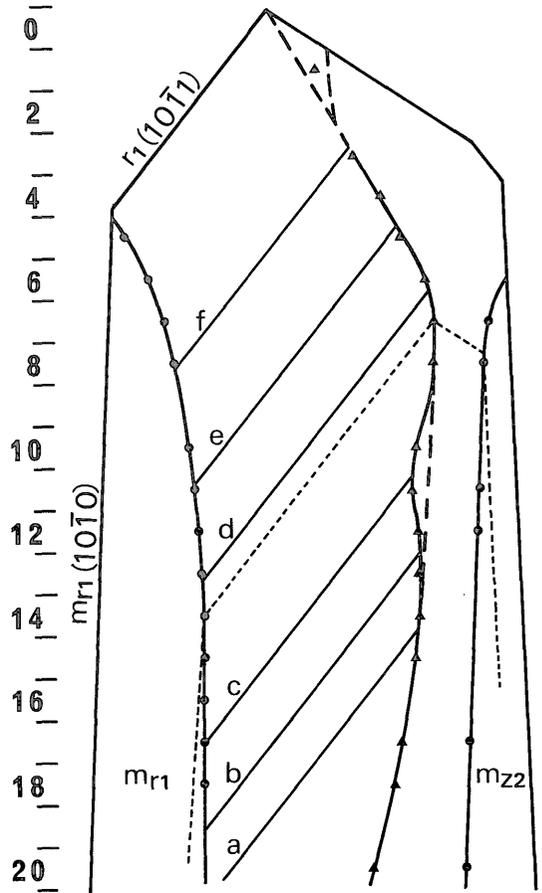
フ上には強い不規則のコントラスト像の形で各成長領域の境界が認められ(例えば第3図h), かつ, それぞれの領域内での縞模様(成長縞) (LANG, 1967, a) や線状欠陥の分布が異なっていることがわかる. これらのX線トポグラフから $\{10\bar{1}1\}$ および $\{10\bar{1}0\}$ 面などの成長で作られる領域, つまり錐面成長の領域と柱面成長の領域が区別つけられ, 又成長期間中に錐面外形がどのように変っていたか追跡が可能である.

第4図は第3図をもとにこれらの関係を模式的に示したものである. 太線で画かれた六角形Aの内側部分が錐面成長(つまりc軸方向に伸びる)領域であり, この六角形Aと外側の六角形Cの間が柱面成長(太る方向)領域である. 薄板No. 20-No. 7の間は, X線トポグラフは多少の変化はあるがほぼ第3図と同様であることから(例えば第11図), 成長期前半の錐面外形を第3図から推定し六角形Aの内側に示した. 細線Bは成長終了時の結晶錐面外形(第1図)を示してある. このAおよびBから成長後半に錐面外形が大きく変化したことがわかる.

トポグラフ上では(例えば第3図)錐面成長領域は各錐面に対応してさらにいくつかの成長域に分れているが, 錐面の法線はいずれも紙面に対して斜交しているため, 各錐面領域とも頂点(r_1, r_2, r_3 面による偶)の位置に一番近い所から外側へ向って次第に新しくなっていく. 一方柱面成長領域も6柱面に対応する成長域に分けられ, 成長面の法線は紙面内にある.

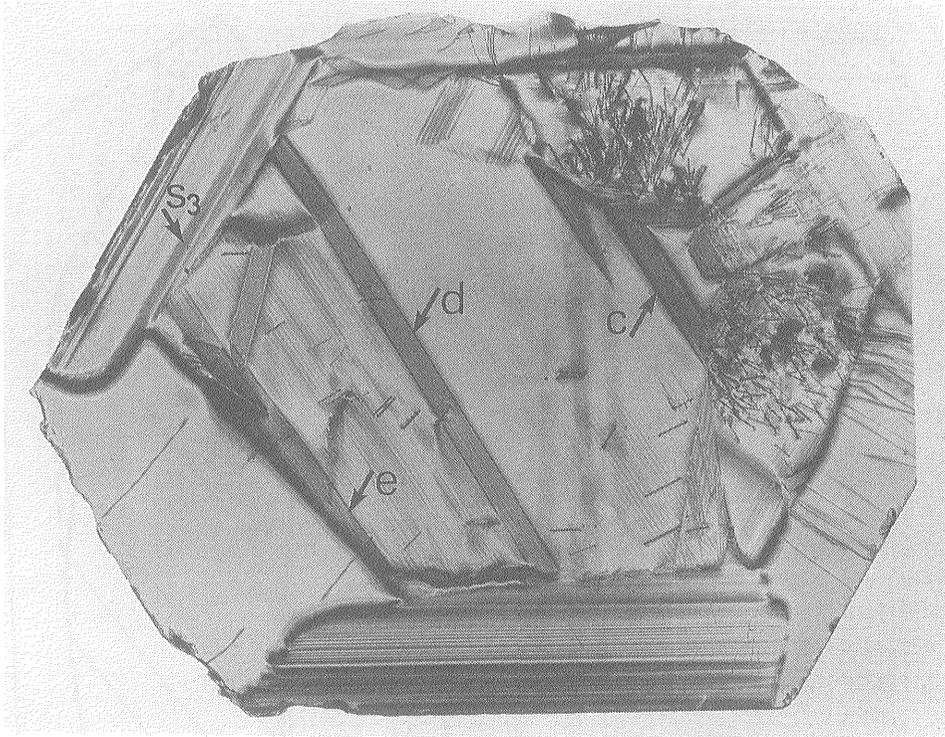
各試料で錐面成長と柱面成長の境界が判定できるので, 同一条件によって得た各薄板のX線トポグラフをもとに欠陥像による結晶の垂直断面図を作った(第5図). 断面は頂点を含む $\{12\bar{1}0\}$ に平行な面である(第5図付図).

第5図, 左端の番号は第2図と同様の薄板の番号(No.)をあらわす. 黒丸印は錐面成長領域と柱面成長領

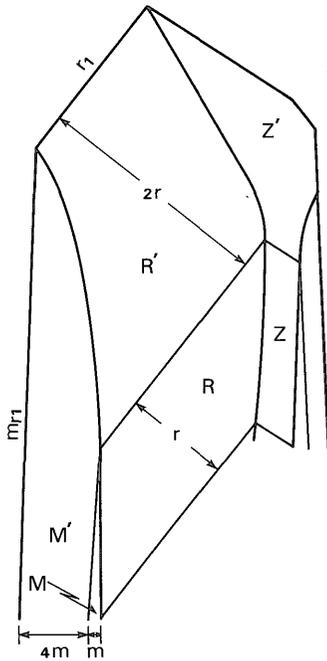


第5図 欠陥像による垂直断面図, 頂点を含む $\{12\bar{1}0\}$ 面

域の境界面の実測位置を示す. ただし $m_{r1}-r_1$ 境界には大きなx面があるため便宜上 r_1-x 面の境界線を印してある. (x面はNos. 6, 5付近で急速に成長するためこの付近では境界線の曲率が多少大きくなっている). また, $m_{z2}-z_2$ 成長領域境界は複雑な曲線になるが(後述), 測



第6図 No. 11 X線トポグラフ, (01\bar{1}0)面回折



第7図 相対成長速度比較図

点が少ないため直線で近似してある。したがって図の左右の m_{r1} , m_{z2} はそれぞれ柱面 m_{r1} , m_{z2} の成長領域であり、これを除いた中央の部分が錐面成長領域である。錐面成長領域内の三角印はX線トポグラフ上で実測した頂点の位置を示しており、紙面に直交する方向での動きは極くわずかなのでここでは無視した。 r_1 面に平行する斜線 a-f はトポグラフ上で r_1 面成長領域内に見られる成長縞のうち、コントラストの高いものの実測点(実測点の記載は省略)を直線で結んだものである。例えば No. 11(第6図)で見られる3枚 c, d, c は、それぞれ e, d, c に対応する。

3.2 成長期区分と優生成長

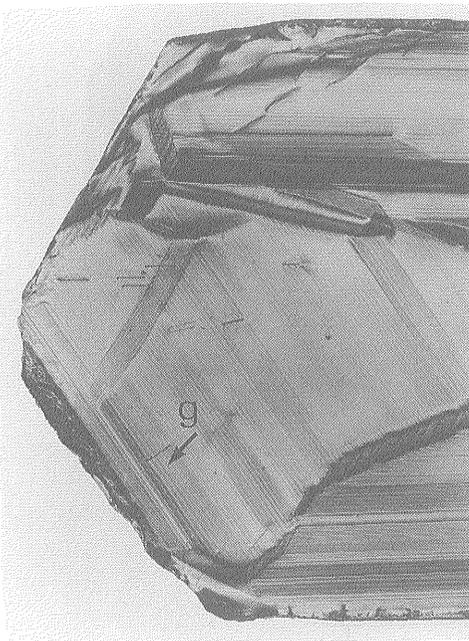
第5図における点線は、 $m_{r1}-r_1$ 成長領域境界線が下部から直線的に上昇し Nos. 15, 14あたりで外側に向って曲りはじめる位置と、頂点の移動が m_{z2} 側から m_{r1} 側に変る所を結んで、この時期の結晶外形を推定したものである。

ほぼこの時期を境に r_1 面の縮小と、 m_{r1} 面の r_1 面に対する成長速度の上昇が認められ、当然外形も変化して来る。おそらく成長条件に変化が起ったものと思われるので、この時期を境に成長を前後期に分けた。

今、第5図をもとに前期と後期の成長領域をそれぞれ M, R, Z, M', R', Z' で表わすと(第7図, 但し MM' 間の境界線は第10図(4)の実測を考慮してある。x 面を考慮しても傾向は同じなのでここでは無視してある), 前期における各面の成長距離は大よそ $M : R : Z \doteq 1 : 9 : 13$ の割合であり, 錐面の成長に対して m_{r1} 面の成長は極端に遅い。一方後期における成長距離の割合は, 大よそ $M' : R' : Z' \doteq 1 : 3 : 2$ となり前期に比較して錐面と m_{r1} 面の成長速度の接近が目される。また $Z'/Z \doteq 1$, $R'/R \doteq 2$, $M'/M \doteq 4$ であるが, Z', R', M' はすべて同一時間内に成長したと考えねばならないから, 後期は Z' 側の成長速度が落ちたか或いは M' 側の成長速度が速まったのかいずれかである。

ところでX線トポグラフ上にはここで述べた成長の前後期を明瞭に区分する欠陥像の変化はみられない。頂点や境界線の移動は一見顕著であるが変化は滑らかであり, 前後期の転換はおそらく温度・圧力といった成長条件の突然の変化によるものではなく, むしろ, 等価の結晶面の成長速度に何らかの原因によって異方性が導入され, $m_{r1} \cdot r_1$ 側のみ優先的に成長速度が増大した結果によるものと考えた方が穏当である。ちなみに, この優先成長は c 軸方向の伸びに対してはあまり寄与していないことも第7図から明らかである。

3.3 錐面成長

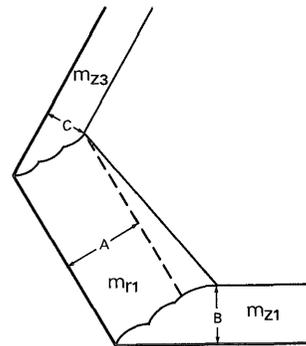


第8図 No.4 X線トポグラフ, (0110)面回折

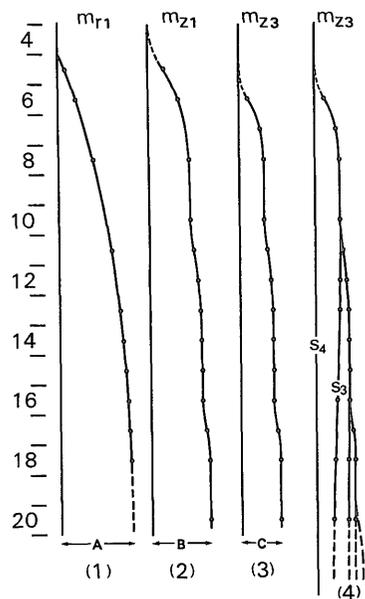
結晶下部から上部まで, 連続的にかつ錐面成長領域のほぼ全域にわたって現れる帯は, 錐面の成長に伴って現れる成長縞である (LANG, 1967, a)。

これらのうち何枚かは特にコントラストが高く, その1枚に注目すると頂点を中心に環状になっている (例えば第3図(b))。つまりいずれの錐面でも同時にコントラストが上昇したことを示しており, 他の成長縞についても同様のことが言える。成長縞は全体的にコントラストは低く, ほぼ周期的にコントラストの高いものが現れるが, 成長末期には全般的にコントラストが高まる傾向が見られる (第8図)。

r_1 面領域内のコントラストの高いものの位置を, 第5図に記載してある (a-f) ことは前述した。



第9図 柱面成長領域厚さ実測値位置図



第10図 柱面成長領域垂直断面図

頂点の動きも第5図に示した。[10 $\bar{1}0$]方向(第5図, 左右方向)の動きに対して[1 $\bar{2}10$] (紙面に直交)方向の動きはほんのわずかなものであるが, 成長末期のみは優先成長の影響で「偶」から「稜($z_1 \cdot r_2$)」に変わるのに伴い, 少し[1 $\bar{2}10$]方向への動きが見られる(第4図)。No. 11付近で一時的に m_{r_1} 側に少し移動しているが, この時期 $r_2 r_3$ 面の成長が速まったらしく, 頂点が「偶($r_1 \cdot r_2 \cdot r_3$)」から「稜($r_1 \cdot z_2$)」に変化した結果(第6図)見掛上 m_{r_1} 側にずれたと考えられ, 全体の流れとしては前期ではゆっくり z_2 面側に移動し, 後期になると速い速度で r_1 面側に移動している。言いかえれば前期では z_2 面側の成長がわずかに速く, 後期では r_1 面側が速くなったと言える。

3.4 柱面成長

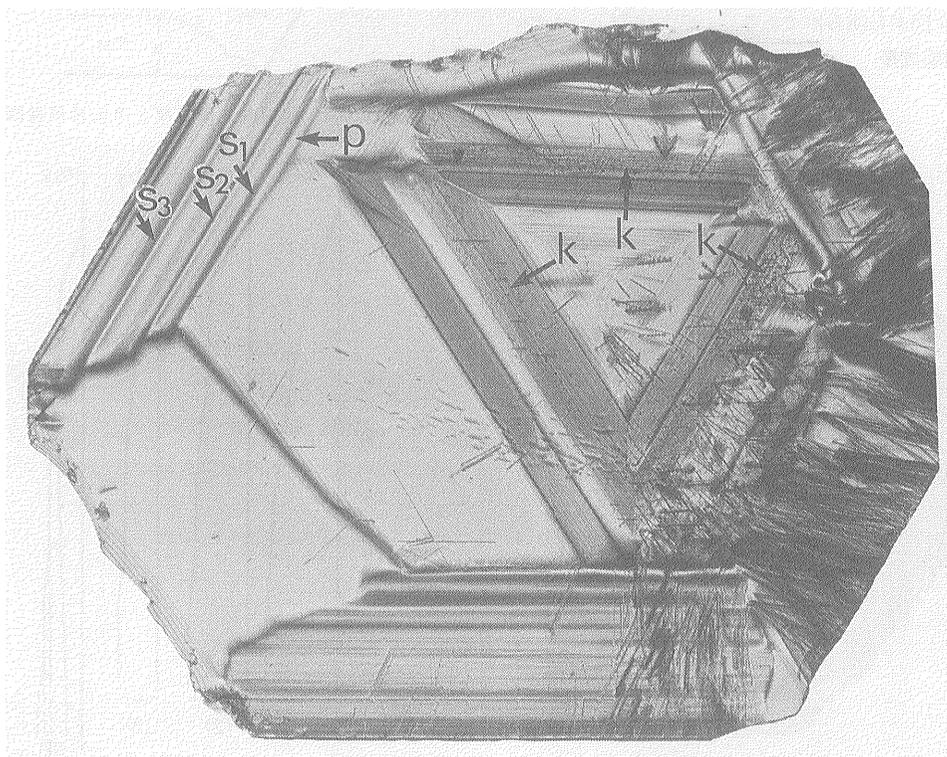
6個の等価な柱面の成長速度は同じではなく, 一方に優先成長しているのが成長の偏りからただちに理解できる(第3図)。またこの優先成長は, 成長後期に起ったことはすでに述べた(第7図)。

各X線トポグラフ上で m_{r_1} , m_{z_3} , r_1 3面の成長領域が接する点(この3面より成る「偶」の位置に対する点)を通り, m_{r_1} 面に平行な直線を引き, これを $r_1 \cdot m_{r_1}$ 両面の

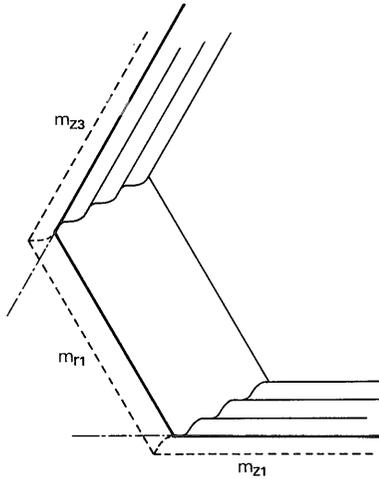
成長領域境界線としこの境界線の縦方向の変化を m_{r_1} 成長領域の厚さAによってみると(第9図), 前述した通り成長末期にx面が急激に縮小するため, 第5図と比較して結晶上部での曲率が少し異なるが, 基本的には変化なく $r_1 \cdot m_{r_1}$ 面間の相対成長速度の変化は平滑であったことがわかる(第10図(1))。

m_{r_1} 面に隣り合う m_{z_1} , m_{z_3} 面についても m_{r_1} と同様にそれぞれ所定の位置での厚さ(第9図B, C)をX線トポグラフ上で実測し, r_1 面との境界面の縦方向の動きを見ると, $r_1 \cdot m_{r_1}$ 面間のような単純曲線では表わせない(第10図(2)(3))。つまり $r_1 \cdot m_{z_1}$, $r_1 \cdot m_{z_3}$ 面間の相対成長速度には顕著な周期的変化があった, 言いかえれば, m_{z_1} , m_{z_3} 面では成長と成長の停滞が繰返されていることがわかる。

一方上のことを底面上で見るため m_{z_2} 面成長領域を例にあげれば, いわゆる成長縞によるコントラストの細かい周期的変化に重なって, もっと大きい周期の幅広のコントラストが見られる。この幅広いコントラスト部は結晶の外縁部を除いてもNo.20付近では3本, No.13付近では2本, そしてNo.11付近では1本それぞれ認められる(第11図(S), 第3図(S), 第6図(S))。



第11図 No.20 X線トポグラフ, (01 $\bar{1}0$)面回折



第12図 柱面間相対成長速度変化模式図

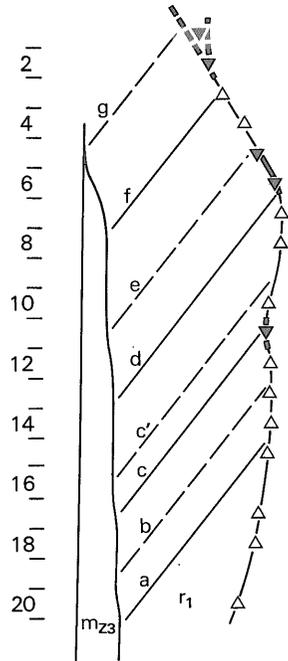
つまりこれらは上に述べた成長の停滞期に対応している。

またこの幅広のコントラストは、各成長停滞期の結晶面(成長界面)の位置とみなすことができるから、第10図(3)と同様の操作によってこれらのコントラストの m_{23} 面成長領域内の位置を実測し、垂直断面図を作り(第10図(4))、結晶の成長に伴う柱面の動きを見ると、柱面の成長は一樣に厚さを増しているとは限らない。特に停滞期 S_3 と最終結晶面 S_4 との間は、結晶下部では薄く先端部に行くにつれて次第に厚くなっており(第10図(4))、優先成長の影響による同一柱面上の成長速度のちがいがはっきりあらわれている。

また柱面成長領域間(例えば m_{r1} - m_{23} 間)の境界線が複雑な曲線であることは、2柱面間の相対成長速度に時間的変化のあったことを示していると共に、上に述べた成長停滞期と関連した動きをしていることがX線トポグラフ上で認められる(第3図(h))。LANG(1973), SER *et al.* (1980)の結晶試料においても同様の傾向が認められる。

そこで m_{r1} - m_{23} 領域間の境界線の動きに注目すると、下部での柱面成長領域は第12図の様な模式図としてあらわすことが出来る。ここでの柱面成長は次の様に説明出来るであろう。

境界面の動き(第10図)から、 m_{r1} 面の成長は比較的定常的に進行し、したがって m_2 面の成長停滞期には m_{r1} 面の面積は次第に縮小して行くが、ある所まで行くと逆に m_2 面の成長が m_{r1} 面に追いつく形で加速され、 m_2 面の面積拡大はにぶりその分 m_{r1} 面が拡大する。これを繰返しながら結晶全体としては六角柱としての均衡を保ちつつ太っていったと考えられる。



第13図 r_1 , m_{23} 面周期的変化対比図

この試料結晶の場合、観察できた範囲では m_2 面の停滞期を3回経た後、丁度4回目の停滞期つまり m_{r1} 面の縮小したところで結晶全体の成長の終了したことが、例えばNo. 13の m_{r1} 面領域内に顕著に現れている(第3図(u_1 , u_2))。

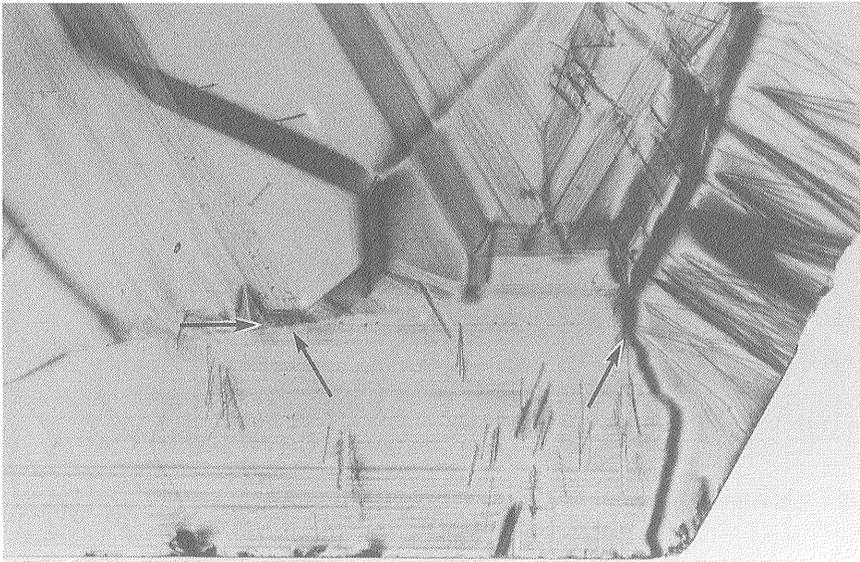
又、 m_{23} 面についても最後の停滞期が明瞭であることから(第5図右上部分)、柱面の成長・停滞の様子は m_2 面すべてに共通する事柄と言える。

3.5 成長の周期性

錐面に平行な成長縞のコントラストが適当な間隔を置いて高くなることはすでに述べた。又、 m_2 面の成長は加速・減速を繰返しながら進行していったことも述べた。この2つの周期的変化の関連性について検討した。

この試料結晶は、 m_{23} 面の一部が r_1 面と直接接しているためそこに稜が存在するが(第4図)、この稜は底面に対して角度をもっているため、底面に平行なX線トポグラフの上の r_1 - m_{23} 境界線は m_{23} 面とは平行にならず、 m_{23} 成長領域は m_{r1} 側がやや厚くなっている。したがって一番古い成長停滞期 S_1 と r_1 - m_{23} 境界線には含まれたクサビ形のコントラストの低い部分Pは S_1 よりさらに古い成長期の存在を示している(第11図)。これを第10図(4)に破線で示した。

この第10図(4)の r_1 - m_{23} 成長領域境界線と第5図の r_1 成長領域の部分を組み合わせて、 r_1 面上の成長縞と r_1 - m_{23} 境



第14図 No. 15 X線トポグラフ, (2110)面回折

矢印の延長方向に点状欠陥が分布する。また、図面右側では矢印の延長線上から線状欠陥が発生している。

界線の形状との位置関係を図示した(第13図)。ただし、ここで組合せた第5図及び第10図(4)は平行面ではなくかつ直接接していない。このため作図上第13図の r_1 成長領域の幅は適当にとつてある。

第13図では成長縞 a-f にさらに c', g の2枚を追加した。第5図上 c-d 間は他の部分に比して間隔が広いが、トポグラフ上では c のすぐ上には何枚かのコントラストの高い成長縞が連続して発生しているので(第3図)、これらのうち c から一番離れた成長縞の位置を c' として追加した。g は成長末期の全体的なコントラストの上昇で判読がやや難しくなるが、ほぼ推定の位置に現れるコントラストの上昇部(第8図(g))に対応している。a については実測出来ない部分は実測部分の延長線によって位置を記入した。頂点の実測点(第5図)は「偶」の場合△、「稜」の場合▼と分けて示した。

以上の結果得られた13図から、 r_1 面と m_{23} 面はその周期性において非常に一致を示すことがわかった。錐面に平行な成長縞のコントラストの上昇は、 m_{23} 面の成長速度の加速時及び減速時と同時期であると言える。つまり成長縞 a, c, d, f は m_{23} 面の成長速度の加速時に、b, c, e, g 減速時にそれぞれ対応している。

3.6 点状欠陥および線状欠陥

これらの欠陥像は、錐面柱面を問わず見られるが、すべて成長前期に発生しており後期には見られない。

点状欠陥は一部の例外を除いて結晶面に平行かつシート状に分布しているところから、短期間に集中的にとり

こまれた包有物と考えられる(例えば第11図(K))。成長縞 c (第5図)と同時期に発生した点状欠陥は結晶全面にわたって取込まれているのが確認された(1部を第14図に示す)。

線状欠陥は m_{r_2} - m_{22} - m_{r_3} 面側に偏って発生する傾向にあり、中でも $r_2 \cdot m_{r_2}$ 面で一番多く発生している。線状欠陥の発生は、前期中断的に認められるが、点状欠陥と同様成長縞 c と同時期の大量発生(第6, 11, 14図)を最後にその後2, 3本の発生を認めるのみで多量の発生はない。主成長面である r_2 , r_3 面成長領域内の線状欠陥(例えば第6図)について検討したが、SER, *et al.* (1980)の指通りいわゆる転位とはやや性質を異にしている。おそらく、短かく切断されたためにフッ酸による侵しよくを簡単に受けてしまったためと思われる。

4. 考 察

X線トポグラフによる結晶内部観察の結果以下のことがわかった。

1) 結晶の成長期を前後期に分けることができた。頂点の動きは(1210)平行面内において顕著で、前期ではゆっくりと(1010)側に移動しつつ比較的外形変化の少ない成長をしているのに対して、後期では、頂点は180°向きを変えて(1010)側に移動し、かつ速度を速めている。これは後期を特徴づける[1010]ないし[1120]方向への優先成長の結果であり、錐面外形もこれに伴って大きく変化している(第4図)。

2) 点状欠陥の発生は、一部の例外を除いてごく短期間に集中的に起っており、どの結晶面にも見られる。しかし後期には見られない。

これに対して線状欠陥は断続的に発生しているが、発生個所は柱面、錐面を問わず常に r_2 - z_2 - r_3 面側に偏る傾向にある。前期なかば、点状欠陥と共に線状欠陥が発生しているが、これを錐面発生のものについて見ると(第6図)、 r_2 , r_3 および z_2 面成長領域内には多くの線状欠陥が見られるのに対して r_1 面領域内には全く見られず、点状欠陥が認められる(第6図(c))のみであり、偏りの傾向を顕著にあらわしている。

3) 1, 2の考察から、成長前期における線状欠陥の発生個所の偏り、後期における優先成長とその向き、およびこれらと一連のものである頂点の移動を考え合せると、前期ではおよそ z_2 面側、後期では反対側の r_1 面側向きの成長が顕著であると言える。このような成長上の異方性の生ずる原因として可能性の最も高いものは溶液の流動であろう(砂川, 1975)。したがって成長前期と後期で溶液の流動方向に大きな変化が起ったのであろうと推定される。

4) 柱面は定常的な成長をする m_r 面、成長・停滞を繰返す m_z 面と顕著に分れた。この成長・停滞の繰返しが錐面成長と関連していることが錐面上のコントラストの上昇との関連で明らかとなった。柱面が錐面成長の進行によって現れる面であることからすれば、当然の結果ともいえるが、例えば頂点の偶・稜の変化等も一連の関係にあるものと推定され(第13図)、錐面上に履歴を残した現象が柱面に影響を及ぼしていると考えるのが順当であろう。

KASHKUROV, *et al.* (1967)も成長の一時期、面間の成長速度比が繰返し変化したことを報告しているが、本文のそれと同一のものであるかどうかは明瞭でない。

成長縞も m_r 面成長領域には全く見られず m_z 面成長領域のみに存在する。LANG(1973)やSER, *et al.* (1980)の試料結晶も同様のX線トポグラフィを示しているが、例えば千歳鉱山産水晶ではいずれの柱面にも成長縞が認められる(安田, 未公表資料)。産状の違いであろうか、これらについては今後の課題である。

5) 優先成長の影響下ではあるが、同一柱面内において結晶下部から先端部にかけて成長速度が直線的に速くなっていることを知った(第10図(4))。天然水晶には柱面成長領域の認められない結晶もあり(USHAKOVSKII, *et al.* (1970)), あるいは六角柱から三角柱へ変るもの等形態的に柱面成長と関連すると思われるものがあることから、柱面成長について今後検討する必要がある。

5. おわりに

水晶の結晶1個をとり、X線トポグラフィ法で調べた結果、結晶の下部から成長終了まで種々の欠陥像の分布がどのように変ったか追跡することができた。これによって成長履歴を解析した。

水晶結晶の成長は錐面の成長に先導され、柱面の成長はこれにひきづられるように進行するが、錐面の中でもそれぞれ成長速度の変動があり、又成長中には成長の異方性もあらわれ、これらに伴って外形変化が起っている。

このように結晶内に残された欠陥像による成長履歴の細かい検討も結晶成長論にとって多くの意味をもつことと思われる。

謝辞

本研究をまとめるにあたり、御指導賜わった東北大学理学部砂川一郎教授をはじめ、御力添えをいただいた以下の方々へ心より感謝の意を表します。

東北大学理学部岩石鉱物鉱床学教室、鉱物講座スタッフ一同には討論を通じて貴重な御教示をいただいた。地質調査所遠藤祐二博士からは本研究の試料結晶を提供していただき、かつ多くの協力と助言をいただいた。

ロシア語文献の翻訳は地質調査所岸本文男氏、仏語文献の翻訳は同所渡辺史郎氏および同所山田正春博士の手をわずらわせた。

著者は又、地質調査所佐々木昭博士に深甚なる感謝の意を表します。氏の永い間にわたる有形無形の激励と力添えがなければ本研究の完成はなかった。

文献

- LANG, A. R. (1967a) Fault surfaces in alpha quartz: their analysis by X-ray diffraction contrast and their bearing on growth history and impurity distribution. *J. Phys. Chem. Solids, Suppl.*, vol. 28, p. 833-838.
- (1967b) Some recent applications of X-ray topography. in NEWKIRK, J. B. and MALLETT, G. R., eds., *Advances in X-ray analysis, Vol. 10*, Plenum Press, New York, p. 91-107.
- (1973) The properties and observation of dislocations. in HARTMAN, P., ed., *Crystal growth: An introduction*, North-Holland Publ. Co., Amsterdam, p. 444-512.
- PHAKEY, P. P. (1969) X-ray topographic study of defects in quartz, I. Brazil twin boundaries.

Phys. Stat. Solidi, vol. 34, p. 105-119.

KASHKUROV, K. F., USHAKOVSKII, V. T., CHERNYI, L. N., KABANOVICH, I. V. and KLESHCHEV, V. (1967) Some peculiarities of internal structure and growth of the quartz crystal. *Zap. All-Union Min. Soc.*, vol. 46, p. 435-439. (in Russian).

USHAKOVSKII, V. T., CHERNYI, L. N. and NIKITICHEV, P. I. (1970) Growth of hexagonal prism faces in quartz crystals. *Soviet Phys.-Doklady*, vol. 15, 527-529.

SER, A., BIDEAU, J. P., CLASTRE, J. and ZARKA, A.

(1980) Etude des défauts de croissance dans des monocristaux naturels de quartz. *J. Appl. Cryst.*, vol. 13, p. 50-57.

砂川一郎(1975) 第7章結晶成長. 森本信男・砂川一郎・都城秋穂著, 鉱物学, 岩波書店, 東京, p. 223-308.

YASUDA, T. and SUNAGAWA, I. (1982) X-ray topographic study of quartz crystals twinned according to Japan twin law. *Phys. Chem. Minerals*, vol. 8, p. 121-127.

(受付: 1984年12月10日; 受理: 1985年1月22日)