

# ダイヤモンドのおいたち

## ～中世以前の成因論から最近の成因論まで～

### ②

砂川 一郎

ダイヤモンドが地下深部の高温高压下で形成され キンバレー岩マグマによって地表近くまで運ばれてきたという考えは 最初1899年にイギリスのボネーによって発表された。彼は上部マントルの岩相を代表すると考えられているエクログイト岩中にもダイヤモンドが発見されることに着目して ダイヤモンドは上部マントル層の高温高压下で キンバレー岩中にふくまれる他の斑晶であるかんらん石 ざくろ石 輝石類などとともに晶出し こうして固化したエクログイト岩が地殻変動で破壊されて超塩基性のマグマによって地表近くまで運びあげられたものと考えた。キンバレー岩マグマは運搬人の役割を果たしたにすぎないというわけである。

ところで この考えでゆくと ダイヤモンド形成の場所はマントル層上部となり 地下数10km から100km程度の深さに相当する。この深さでの温度・圧力条件は現在の地球物理学的知識からいうと 1200°C 1万気圧程度であろう。この条件が正しいかどうか もう少し検討してみよう。

まずベルマンとシモン(Berman-Simon)がおこなったダイヤモンドと石墨との安定領域についての熱力学的な計算結果を基礎として検討を試みよう。彼らの計算結果によると図1に示したような状態図をダイヤモンド—石墨について描くことができる。この図で明らかなように ダイヤモンドは1.3万気圧以下では安定ではない。

ところで 大ざっぱに見積って圧力数値を3倍すると地下の深度(km)のスケールに相当するから ベルマン—シモンのカーブから ダイヤモンドが地下どのくらいの深さで安定かを検討してみると 温度の如何を問わず 地下40kmよりも浅いところではダイヤモンドは全く安定には存在しえないと考えることができる。さらにフランクがベルマン—シモンの曲線から地下での温度上昇率を見積った結果によると1kmあたり 130°C程度の上昇率とみこまれる。それからえられた温度と深さを比較検討してみると 深さ100km 温度700°Cがぎりぎりのダイヤモンド安定な条件であり フランクによればこれよりも深く最低120km温度1,000°Cがダイヤモンドが安定に存在しうる 最も浅い場所であろうと考えられるのである。したがって ダイヤモンドが実際に成長するところは これよりもずっと深いところではなければならないわけである。

一方 人工ダイヤモンドの合成実験の結果からみてもダイヤモンドが成長する条件は1700°C 5万気圧の程度以上であるから(図2) 深さにして200km以深を考へねばならなくなるであろう。

合成実験の結果をもとにして天然ダイヤモンドの生成条件を推定したのは G. E. 研究所のウエントルフである。彼によると 天然ダイヤモンドは温度1,600°C 圧力6万気圧程度の条件下で 温度降下ないしは圧力増大により かつ鉄が触媒としての働きをした結果形成されたということである。この推定からみると ダイヤモンド

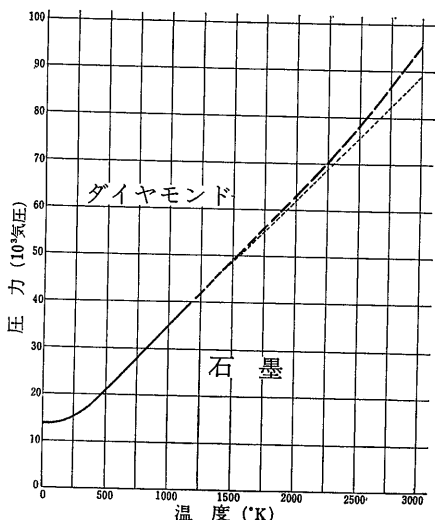


図1 Berman-Simonの計算結果(R. Berman : Physical Properties of Diamondより)

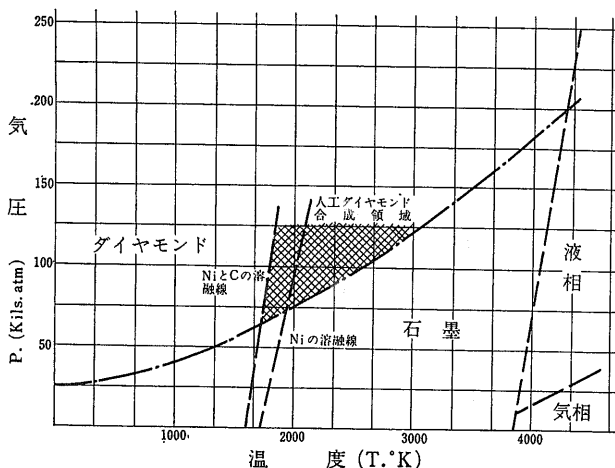


図2 人工ダイヤモンドの生成領域

は地下 200—230km 程度の深さでの形成と考えることができよう。 いずれにしても 最近までに与えられた条件の推定では 200km 前後までの深さというのが 一番深い場所であったといえる。 その条件が果たして正しいかどうかを これから色々な角度から検討してみることにしよう。

ウエントルフの推定はあくまでも G. E. 研究所における合成実験の結果をもとにして考えられたもので 鉄が触媒としての働きをしたという直接の証拠が与えられているわけではない。 実際 天然のダイヤモンドの結晶にはそのような証拠はまったく残されていない ないしはそのような証拠はまだみつけられてはいないのである。 これに反して 本誌 80 81 84 号にも論じたように人工ダイヤモンドの結晶には 触媒として使った金属の歴然たる証拠が残されている。 その証拠は 結晶面の表面構造や X 線回折点の異常などにみいだすことができるのである。

人工ダイヤモンドの合成は 石墨と Fe Ni など第 8 属の金属ないしその合金の粉末 粒あるいは板の混合物をダイヤモンド安定領域下におくことによって行なわれ合成に要する時間は普通数分のオーダーである。 この際混合した金属が本来の意味で触媒としての役割を果たすのか それとも一種のフラックスの役割を果たし 溶媒として働くのかどちらかということについては 議論があるところである。 しかし いずれにしても六方晶

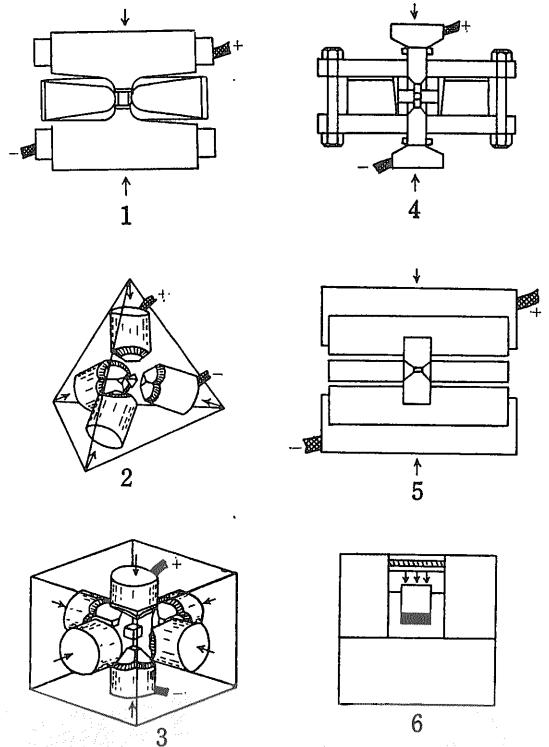


図3 ダイヤモンド合成に成功した各種の高温高压実験装置 矢印は圧力方向 + は加熱用の電流方向

系に属する結晶構造をもつ石墨は 一たん金属と共融した上でその中から等軸晶系の構造をもつダイヤモンドを析出させることはたしからしい。 そのため石墨とダイ

アモンドの境界には常に金属の薄層が存在し 石墨→ダイヤモンドの転移はこの薄層を通しておこなわれるので ほとんど大部分の人工ダイヤモンドの結晶の表面には金属の薄膜が存在するのが普通である。 また成長過程を通じてこれら金属薄膜はダイヤモンド結晶中にとりこまれる。 それが人工ダイヤモンドの色の原因になっているものと考えられる。

このような成長機構の結果 人工ダイヤモンドの結晶面上には珊瑚の枝状の模様——(111)面上——や樹枝状の模様——(100)面上——が普遍的に観察される。



図4 ダイヤモンド合成工場 (南アフリカ I. D. I. B. 提供)

これらの模様はすべて触媒としてつかった金属ないしその炭化物の薄膜に由来している。またX線回折点に衛星状の回折点があられたりする。一方天然ダイヤモンドの結晶面の表面構造やX線回折写真上にはこの種の触媒金属の存在を示すような証拠はまったくみいだせないのである。したがってウエントルフが主張しているような鉄の触媒の存在という考えにはにわかに承認しがたいものがある。またダイヤモンドの人工合成の結果によると触媒金属をつかわないで石墨からダイヤモンドへの直接転移をおこさせるためには触媒をつかった場合よりもはるかに高い温度・圧力条件が必要とされている。

一方現在おこなわれているダイヤモンド合成の方法と天然の生成条件とを比較してみると両者の化学的環境の間にも越え難いギャップが存在することがすぐ理解できるであろう。従来の考え方が正しいとすれば天然では珪酸塩の溶液であるマグマ中でダイヤモンドの晶出がおこなわれたのであり人工合成では石墨と金属と

の混合物中からの晶出である。したがって合成結果から天然ダイヤモンドの生成条件を正しく推定しようとするためには今までのように石墨と金属との混合物からの合成ではなくキンバレー岩類似の珪酸塩溶融体からのダイヤモンド合成をおこなうことがぜひ必要であろう。この種の実験に成功すれば合成条件から天然の生成条件を推定することにかかなりの意味がでてくるであろう。しかし残念ながらこの種の実験はまだ成功していない。通常の合成実験の過程でアクシデンタルに反応物のまわりをとりかこんでいるタルク中にダイヤモンドができたという報告はあるが正確ではない。したがって人工ダイヤモンドの合成実験の結果から直接天然ダイヤモンドの生成条件や機構を類推することにはまだ無理が多いといえよう。

さらに合成実験からは第1次近似としての大まかな温度・圧力条件の推定は可能であってもダイヤモンドの結晶がどのような機構やプロセスで形成されそれがその後どのような変化をたどって現在に至ったかという動的な履歴を知ることはできない。そのような事知ららんとするといきおい天然のダイヤモンドの結晶自身の中に残されている証拠をみつけだしてそれから解明する以外に方法がないのである。この際解読の手がかりになる証拠には中谷宇吉郎が雪の結晶の形をつかって空中でおこっている出来事を解読したようにまず結晶の形の問題があげられよう。ついで結晶面上に残された成長や溶解の軌跡である表面構造・成長過程での条件変化を示す結晶内部の累帯構造があげられよう。またダイヤモンド中にふくまれている異種鉱物の包有物の種類や存在のしかた・不純物元素の種類・量・存在のしかたあるいは結晶中での転位のような格子欠陥の分布のしかたもあげることができよう。中谷が雲の上からの手紙の解読を試みたとき解読の鍵は結晶の外形

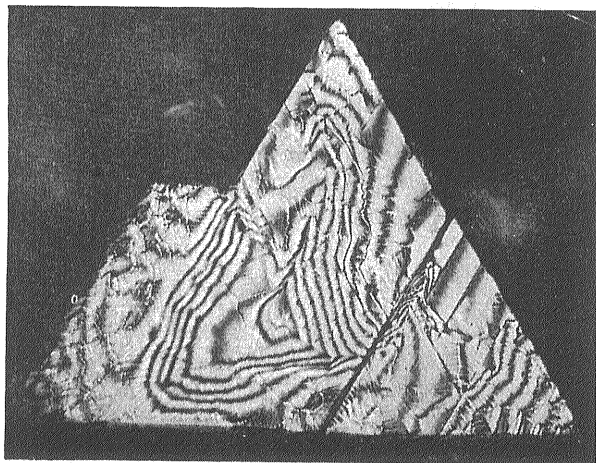


図5 人工ダイヤモンドの(111)面の干渉写真 ×500

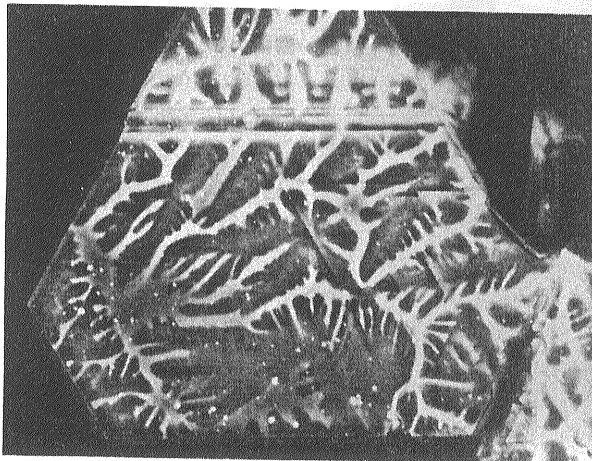


図6 人工ダイヤモンドの(111)面の位相差顕微鏡写真 ×500

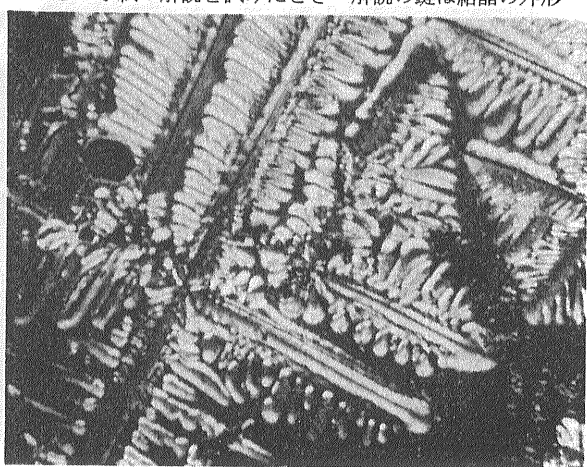


図7 人工ダイヤモンドの(100)面の干渉位相差写真 ×150

だけであった。それに比べると現在のわれわれははるかに種類の多い合い鍵をもっているわけである。問題はその合い鍵をいかに活用するかであろう。

結晶の外形は同一種の鉱物でも個体によって種々変化に富んでいるのが普通である。同一化学成分の同一結晶構造の結晶では常に一定の外形をとるはずだと考えがちであるが現実には千差万別の形をとっている。たとえば方解石が薄板状 厚板状 柱状 釘頭状 犬牙状 樽状 針状など千差万別の形をとる例とか雪の結晶の千変万化の形などはそのよい例である。このような現象をわれわれは晶相変化の現象とよんでいる。晶相変化がおこるのはいうまでもなく結晶の育つ環境や生成条件の違いに原因しているから結晶の外形から生成条件を推定しようという考えが成りたってくる。中谷の研究はその類のものであったし天然の鉱物についても多くの研究が発表されている。

ところでもし外部条件の影響を完全に無視して結晶が完全に平衡な状態から成長したとすると結晶の外形は結晶構造の幾何学や原子間の結合のしかたあるいは結合の強さの方向性などの結晶内部の特性だけに支配された一定の形をとるはずである。この種のアイデアライズした形態を結晶の理想形あるいは平衡形とよんでいる。平衡形を内部構造からわりだそうとする試みは古くブラベーの時代からおこなわれており Bravais の法則 Bravais-Donnay-Harker の法則 Donnay の第2次拡張則 Hartman-Perdock の法則 Wolff の法則などがだされている(本誌152号参照)。これらは格子の幾何学(Bravais, Bravais-Donnay-Harker, Donnay)原子間結合の強さの方向性(Hartman-Perdock)あるいはこ

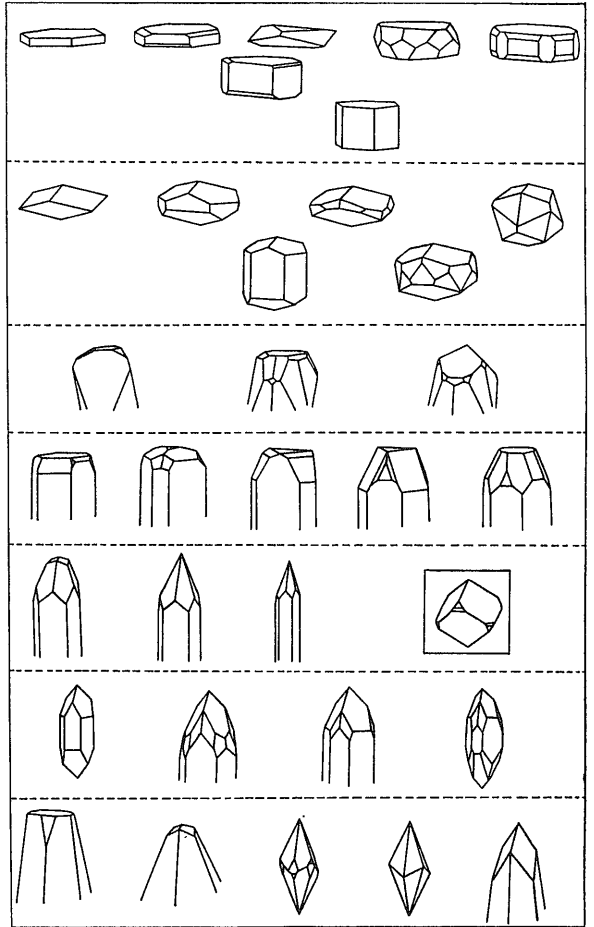


図8 方解石の結晶の形 足尾鉱山産の結晶をまとめて示したもので上段から下段にむかって 早期から晩期への変化を示してある(砂川原図)

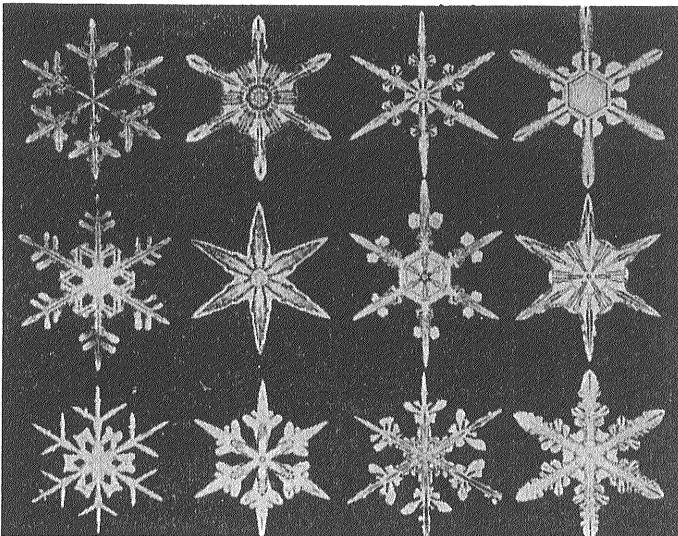


図9 雪の結晶

れらと表面自由エネルギーとのくみあわせ(Wolff)を利用して平衡形をだそうとする試みである。それぞれに特色があるが現状では Hartman の方法がもっともたしからしいので その方法にたつてダイヤモンドの平衡形をわりだしてみよう。

本誌152号で簡単に説明したように結晶の中での原子間結合の強いものをえらびだしそれをむすんでゆくと結合鎖がえられる。これを周期的結合鎖 Periodic Bond Chain, P. B. C. とよび そのベクトルを P. B. C. ベクトルと名付けると 1つの結晶の中には P. B. C. ベクトルが何本も存在することがわかる。結晶面は P. B. C. ベクトルをまったくふくんでいない面 1本だけふくむ面 2本以上ふくんでいる面の3種類にわけこ

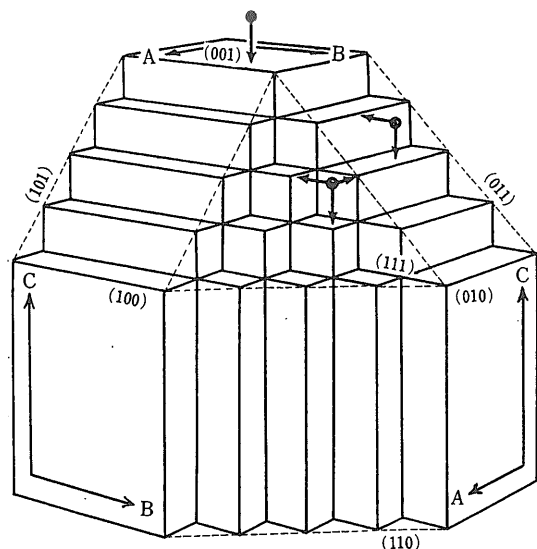
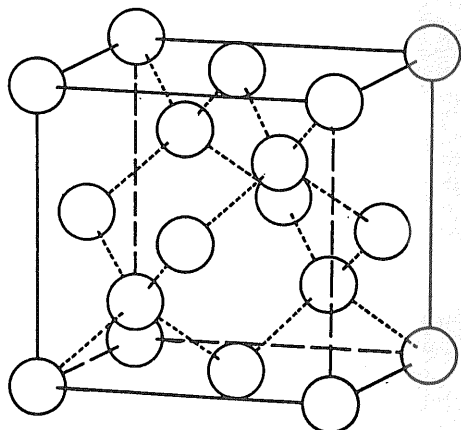


図10 P. B. C. ベクトルと結晶面の種類 矢印の線は P. B. C. ベクトルで A//[100] B//[010] C//[001] (100) (010) (001) 面はF面; (110) (101) (011)はS面 (111)はK面 (Hartman より)

とができる (図10参照)。図からも理解できるように P. B. C. ベクトルをまったくふくんでいない結晶面は原子的な凹凸 (これをキンクとよぶ) だけで構成されている面であるから その面の成長は原子ないし分子単位でつくかわることによって行なわれる。そのため この面に垂直な方向の成長速度は著しく早くなり この面は現実の結晶面としては出現しにくくなる。この種の面をK面 (Kinked face) とよぶ。

P. B. C. ベクトル1本だけをふくんでいる面はステップだけで構成されている面で 鎖がつけ加わることによって成長する。垂直方向での成長速度はK面よりもおそいが 次のF面よりも早くなるから 現実の結晶上では出現する可能性はあるが大きく発達する面ではない。



← a. 3.56667 Å →

図11 ダイヤモンドの結晶構造

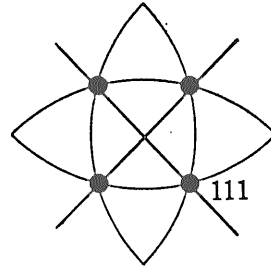
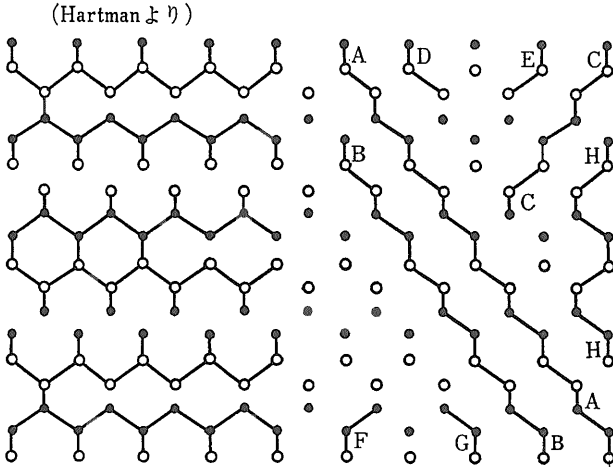
この面はS面 (Stepped face) とよばれている。P. B. C. ベクトルを2本以上ふくむ面は図10であきらかなように平坦な結晶面であり 成長層のひろがりによってつくられる面でF面 (Flat face) と命名されている。この面に垂直な方向の成長速度がS K面に比べてはるかに遅いことはいまでもない。したがって現実結晶上に出現しやすく かつ大きく発達しうる結晶面であることがわかる。以上が Hartman の法則の基本的な概念である。

さて Hartman 流の考え方にたつてダイヤモンドの結晶構造とその中での炭素間原子の結合を解析してみると ダイヤモンドの P. B. C. ベクトルは  $\langle \frac{1}{2} \frac{1}{2} 0 \rangle$  方向のみに存在することがわかる。図12 13から理解できるように {111} 面は  $\langle \frac{1}{2} \frac{1}{2} 0 \rangle$  方向の P. B. C. ベクトルを1つの面内に3本ふくんでいるから F面である。これに対して {110} {100} 面は一見独自の P. B. C. ベクトルをふくんでいるようにみえるが 詳しくみるとそれは {111} 内の  $\langle \frac{1}{2} \frac{1}{2} 0 \rangle$  方向の P. B. C. ベクトルの構成部分のみでつくられているベクトルである。したがって {110} {100} 面内には  $\langle \frac{1}{2} \frac{1}{2} 0 \rangle$  の部分だけでつくられた P. B. C. をふくんでいるが独自の P. B. C. ベクトルはふくんでいないとすることができる。したがって この2面はF面ではなくS面に相当する。

さて このような解析をおこなってみると ダイヤモンドが平衡ないしそれに近い条件下で成長したとすると {111} 面がもっともよく発達した8面体形の結晶ができそれに {110} や {100} 面が小さく発達するか あるいは {110} や {100} を中心とした晶相は ごく低い頻度でしか産出しないうであろうと予測される。また 結晶面の表面構造についていえば 成長層の自由な発達がみられるのは {111} のみで その他の面の上には成長層が発達しないであろうと考えられる。現実の結晶ではどうかを天然と人工のダイヤモンドの結晶について比較しながら以下にのべてみよう。

天然のダイヤモンドは多くの場合 結晶面をもった結晶として産出する。ときにカーボナードとかシュワルツライト あるいはいわゆるボルトと俗称されているような微細結晶の不規則方位での球状集合体や核を中心として放射状に成長した微結晶の集合体からなる球状結晶として産することもあるが これらの産出頻度は低い。またまれには規則正しい外形をもつ透明な結晶を核としてまわりを微結晶の集合体でとりまわっているコーテッドダイヤモンドといわれるものもある。

結晶として産出するダイヤモンドの外形を調べてみる



←  
図13  
ダイヤモンドの P. B.  
C. ベクトル(線)とF  
面(黒丸)のステレオ投  
影 (Hartman より)

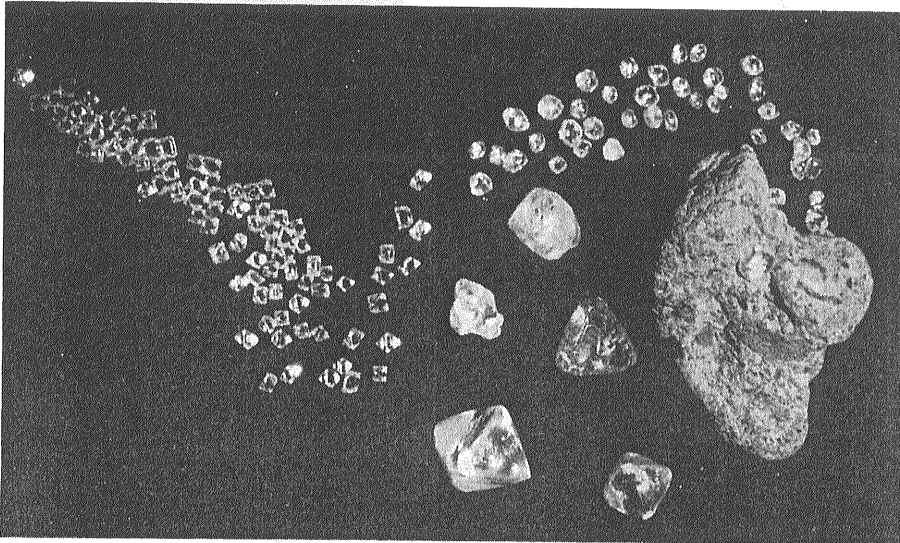
図12 ダイヤモンドの結晶構造を(110)面に投影したも  
の図の左半分では構造を(001)のスライスに分割して示して  
ある。 A—A B—Bは(111)のスライス C—Cは  
(111)のスライス 左の上に示した(001)面上のスライスは  
F面である(111)と(111) (DEで示してある)のスライス  
の一部分で構成されている。 同様(001)の下側はFGで  
構成されている。 これから(001)はF面ではなく S面  
であることがわかる。 H—Hは(110)面のスライス  
(Hartman より)

と {111} を中心とした 8 面体の結晶が圧倒的に多い。 これについて {110} を中心とする斜方12面体型の結晶が多く {100} を主とする 6 面体型の結晶は圧倒的に少ない。 また 8 面体結晶の {111} 面が分化して {hll} や {hhl} 面などで構成されている場合もある。 したがって 結晶の外形だけについていえば天然ダイヤモンドは平衡形に近い傾向を示しているということができよう。 つまり平衡条件に近いところで成長したことを示していると考えられる。

これに対して 人工ダイヤモンドでは四周完全な結晶とともに 急速な成長をあらわす樹枝状結晶や骸晶状の結晶の産出が多い。 また晶相も 合成条件に応じて変化にとんでおり 高温高压側で合成したもの



↑図14 天然ダイヤモンドの色々な結晶形 8面体 6面体 12面体など各種の結晶がみられる (I.D.I.B. 提供)



←  
図15  
天然ダイヤモンドの結晶  
左側の小粒の結晶は 8 面  
体型 右側には12面体型が  
多い (I. D. I. B. 提供)

では 8 面体が主要晶相であるが 温度・圧力条件の低下にともなって {100} が発達し {100} を主とする 6 面体が主要晶相になっている。また 天然の結晶と比べて 特徴的なことは人工にはほとんど {110} 面の発達がみられないことである。この点でも天然と人工の間には違いがみいだせる。さらに {111} {110} {100} 面などの主要結晶面の表面構造の研究結果からみても 天然と人工の間には著しい相違がある。相違点の 1 つである {111} 面上の触媒金属の薄膜に帰因する珊瑚の枝状の模様や樹枝状の模様については 先にのべたが それ以外の著しい相違は成長層の発達のみみいだすことができる。

天然ダイヤモンドの結晶では明瞭な成長層の発達がみ

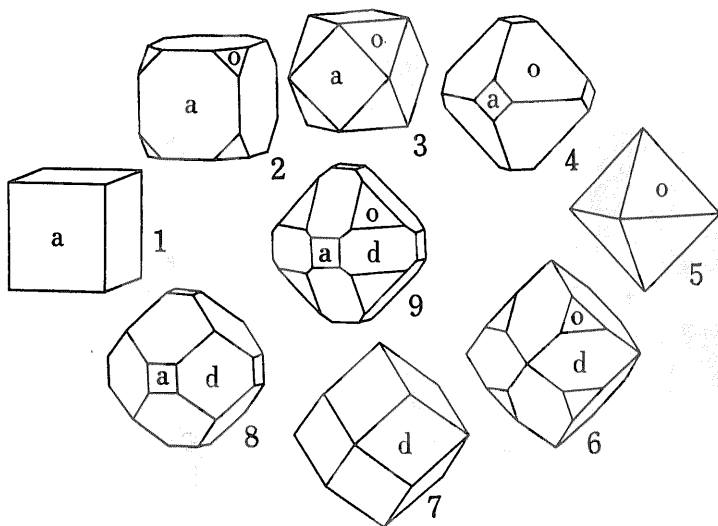


図16 ダイヤモンドの結晶形 a, {100} o, {111} d, {110}

とめられるのは {111} 面のみである。{111} 面上には後述のトライゴンとともに それとは逆方位 (したがって {111} 面の 3 角形と同じむき) の 3 角形の成長層と成長丘とが発達している。成長丘は 1 つの {111} 面で 1 つしか存在しない場合も 多数個存在する場合もある。これから これらの成長丘の頂点が成長の中心で ここから成長層が発生し 2 次的にひろがって {111} 面が形成されたことがわかる。これに対して {110} 面や {100} 面には成長層の発達はまったくみとめられない。{110} 面は {111} との稜に平行な方向の条線が主として発達し これに成長完了後の溶解作用によってつくられたと考えられるデスク状 網目状 首飾り状などの模様のみみいだされる。{100} 面は細かい凹凸で特徴づけられ 成長層の発達はまったくみられない。

これら各面の表面構造の特徴もまた Hartman の法則から予測される特徴と一致しており この点からも天然のダイヤモンドが平衡条件に近い条件下で成長したことがわかって来る。

これに対して 人工ダイヤモンドでは {111} {100} とも多くの場合樹枝状や珊瑚

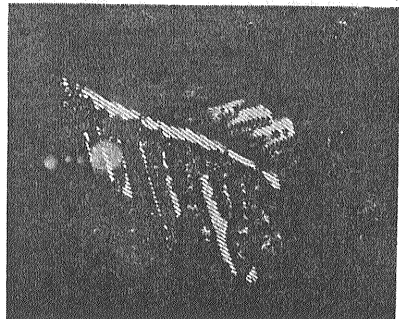


図17 人工ダイヤモンドの樹枝状結晶 ×50

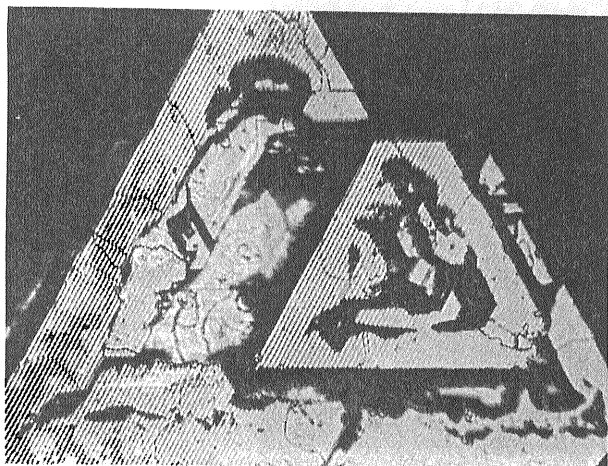


図18 人工ダイヤモンドの樹枝状の結晶面 干渉写真 ×250

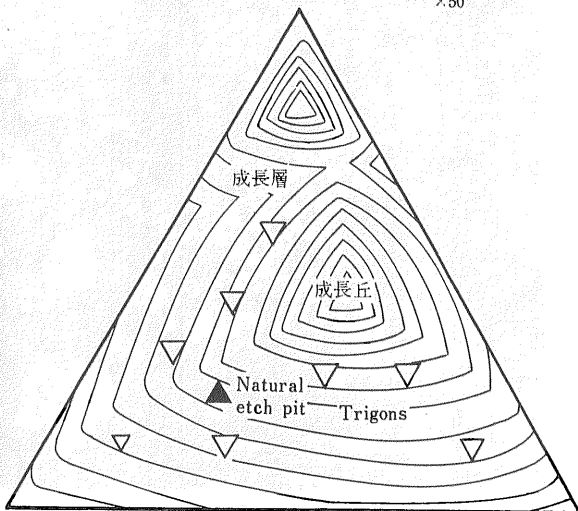


図19 天然ダイヤモンドの {111} 面の表面構造

の枝状の薄膜で被覆されているが これをとりのぞいた下には2つの結晶面ともに成長層の発達が目とめられるのである。{111}面は細かい3角形の成長層の発達で特徴づけられ一方{100}面上には4角形の渦巻成長層が発達している。Hartmanの法則からみると成長層が期待できない{100}面上にも明瞭な成長層の発達がみだされるわけである。これは人工ダイヤモンドが平衡条件からかなりはずれた条件下で成長したことを示す間接的な証拠であろう。

さて気相や過飽和度の低い溶液相から結晶が成長するときラセン転位を媒介として渦巻階段状に成長層がひろがることによって結晶成長がおこなわれる場合が多いということはすでに読者も度々聞いておられることであろう。渦巻成長の考えは1949年にイギリスのフランクが考えだした理論でその後この理論を実証する渦巻状の成長層は広範囲の結晶種について観察されている。本誌の表紙にも天然の鉱物にみられる渦巻模様の顕微

鏡写真をいくつか紹介したことがある。

フランクの渦巻成長理論があらわれてからダイヤモンドについても渦巻成長層がみだされるのではないかと考えて数多くの研究者がダイヤモンドの結晶面の詳しい観察をおこなってきた。その努力にもかかわらず天然のダイヤモンドの結晶には渦巻成長をはっきり証拠だてる表面構造は今までみだされていない。ダイヤモンドに最初に渦巻模様をみだしたのは私とトランスキーとによる人工ダイヤモンドの{100}面についての観察である。この渦巻成長層は{100}の対称に支配された4角形で階段の高さは500~1500Åで1結晶格子ないしその小さい整数倍の高さをもっている典型的な渦巻成長層とはかなり異なる。また渦巻成長層の階段はスムーズでなく細かい凹凸がみられる点も典型的な渦巻とは異なっている。この種の渦巻は多分触媒金属の薄膜が成長中のダイヤモンド結晶中にとりこまれることによって発生した大きな格子のくいちがい(Burgersベクトルの大きいラセン転位ないし転位群)を媒介として

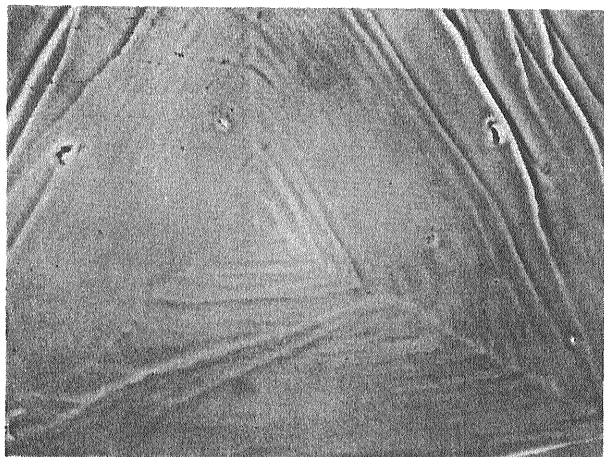


図20 天然ダイヤモンドの(111)面上の成長層 ×150

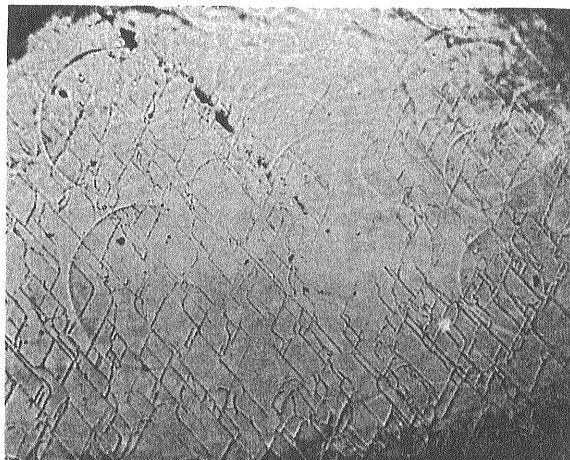


図21 天然ダイヤモンドの(110)面上の網目状模様と円卓状模様(D. C. Pandeya 原図) ×25

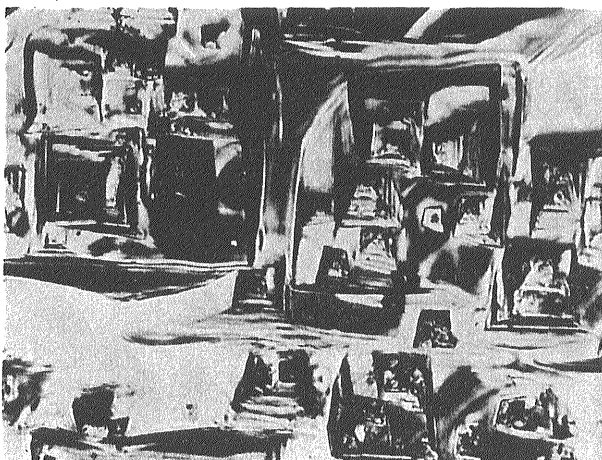


図22 天然ダイヤモンドの(100)面 ×250

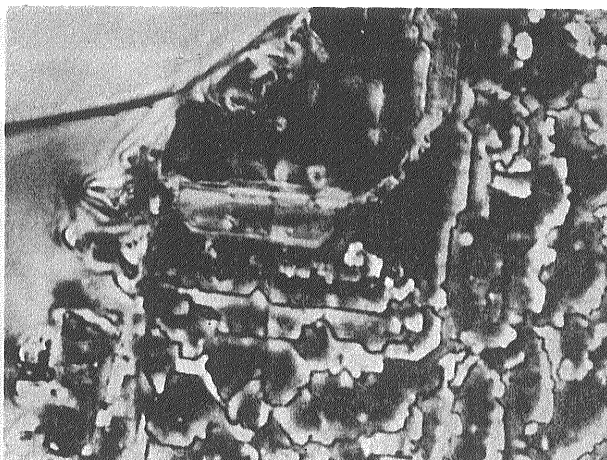


図23 人工ダイヤモンドの(100)面上の渦巻成長層 位相差顕微鏡写真 ×1,350



つくられたものであろう。

私たちの観察以後 インドのパテールらが人工ダイヤモンドの {111} 面上に渦巻成長層を観察したという報告をおこなっているが その証拠として提示した写真から判定する限り それはラセン転位による渦巻成長層と断定することはできない種類のものである。以上がダイヤモンドの結晶上の渦巻についての従来えられている観察結果で はっきりした証拠は人工ダイヤモンドの {100} 面上にしかみだされていないのである。

さて それなら天然のダイヤモンドの {111} 面上にみられる三角形の成長層やピラミッド状の成長丘はどうしてできたのだろうか？ イギリスのラングはラング法（X線顕微鏡法 詳細は後述）によって天然ダイヤモンドの結晶中の転位などの欠陥を詳しく調べた。その目的は後述のトライゴンの成因に関連した証拠をつかまえることであったが その過程で {111} 面上のピラミッドの頂点に達する転位が結晶中に存在しないか ないしは少なくともラング法ではみだしえないという結論に到達した。このことからピラミッドはラセン転位を媒介とした渦巻成長によってつくられたものではないと結論している。ラングのこの考え方が果たして正しいかどうかを 次に少し考察してみたいと思う。

結晶面上に層成長によってピラミッドができる機構には2つの可能性が考えられる。1つはいうまでもなくラセン転位を媒介とした渦巻成長で この場合頂点の尖ったピラミッドができるはずである。第2の可能性は異種鉱物あるいは異方位結晶が成長中の結晶面上に接触している場合である。この際の成長層の挙動は 異方位結晶の大きさ 形状 方位などによって異なる。大部分の場合 他の成長中心からひろがってきた成長層は異方位結晶をとりかこむような形で前進し 川の流れの中にある岩のうしろにできる水流模様と酷似した表面構

造ができる。しかし 少数の場合 特に結晶面上の他の場所に成長の活性中心が存在しないようなときで かつ針状の結晶などが接触している場合 あるいは双晶関係の位置で異方位結晶が接触している場合などには これらの接触点が成長の活性中心になり そこから成長層がひろがることもある。その典型的な例は貫入双晶の螢石にひろくみとめられる。貫入双晶をしている螢石の結晶面をよくみると 両個体の接触点が中心となって成長層がひろがり 接触点を頂点とする4角形の傾斜のゆるいピラミッドでがきていることがわかる。同じように磁硫鉄鉱の {100} 面上にも 異方位結晶が成長の活性中心になっていることが多い。図25はその1例である。また天然の水晶の {10 $\bar{1}$ 1} 面上に広くみられる2等辺3角形のピラミッドのうちあるものは 異方位結晶との接触点が成長の活性中心となってつくられたものである。たとえば 図26は水晶の {1011} 面の表面構造の顕微鏡写真であるが 2等辺3角形の成長丘の頂点から走る針状の結晶の存在に気がつかれるであろう。針状結晶と基体結晶との接合点が成長の活性中心になってピラミッド状の成長丘がつくられた証拠である。

ところで このまま成長が続けられて異方位結晶や針状の異種結晶が 基体結晶の中に完全にとりこめられてしまうと もう活性中心になりうる場所がなくなってしまふから その後は成長層の2次元的なひろがりだけがおこなわれる。その結果できるのは頂上の平坦な成長丘であろう。したがって この種の原因でできた成長丘は その頂上が尖ったピラミッドであれば 頂上に異種結晶か異方位結晶が残されているはずである。逆にこのような原因でつくられた成長丘の頂上に異方位結晶が存在しない場合には 頂上は平坦になっていなければならないはずで 平坦でもなく異方位結晶も存在していないときには 渦巻成長による成長丘と考えるか ある

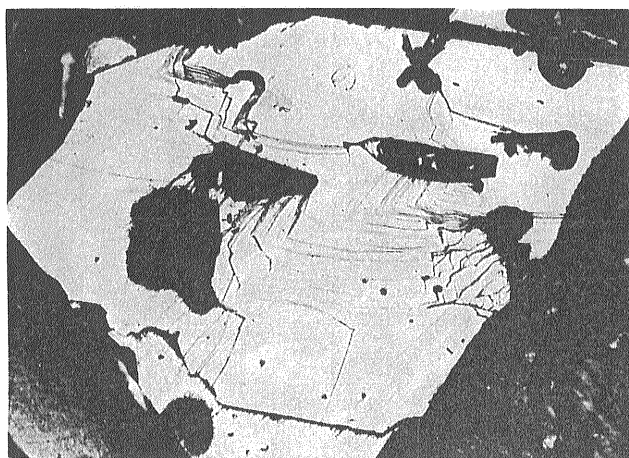


図24 成長層のひろがりに対する異方位結晶の影響 赤鉄鉱 ×10

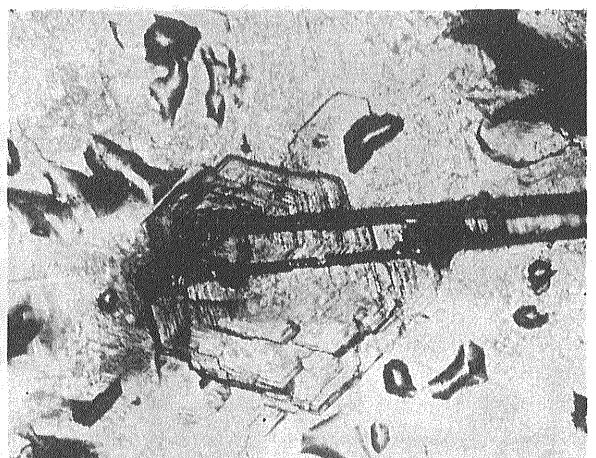


図25 磁硫鉄鉱の底面にみられる異方位結晶と成長層の関係 黒い細長い2本の棒は異方位結晶 六角形の成長層がそこを中心として広がっていることがわかる ×10

いはこれら以外の成長の活性中心を想定しなければならぬであろう。

ところで 上の2つの可能性以外に結晶成長によってピラミッド状の成長丘をつくる機構が考えられるであろうか？ 2次元核形成によって成長中心ができる場合には 普通のプロセスでは多数の成長中心ができ かつみな平坦な表面をもつ成長島状になるはずである。 2次元核形成で頂点のとがったピラミッド状の成長丘をつくらうとすると 新しい2次元核が次々に同じ個所に形成されることを前提としなければならず これが可能となる条件はその場所になんらかの不完全性が存在し かつそれが2次元核を通して遺伝しつねに成長表面に顔をだしているような機構を考えねばならない。 このような機構といえば 結局上の2つの可能性に帰ってしまうのである。 したがって 成長中の結晶表面にピラミッドができる可能性として現在考えるものはラセン転位か異方位結晶以外にはなさそうである。

ダイヤモンドの{111}面上にみられる3角形のピラミッドは いずれも頂点のとがったピラミッドであり かつその頂点に異方位結晶をみいだせない。 したがってこれらが渦巻成長でつくられた可能性が高いわけである。 しかしラングのX線による研究結果ではラセン転位の存在を認めることができず また表面構造の研究からも渦巻成長によったという証拠は残念ながら現在つかまえていない。 これは ほとんどすべての天然のダイヤモンドの結晶がなんらかの形の溶解作用をうけているからであろう(後述)。 渦巻成長の明確な証拠をつかむことが今後課せられた課題である。

渦巻成長によったか 2次元核を中心とした層成長によったか あるいは異方位結晶を媒介としたかは ともかくとして 天然のダイヤモンドでも人工のダイヤモンドでも 成長層の2次元的なひろがりによって結晶成長がおこなわれたことは確かである。 このことはダイヤモンドが成長したときの環境を示す点で重要である。 なぜかという点 生成環境の相違によって結晶成長の機構が異なるからである。 この点を詳しく説明するためには長文を要するので ここではごく大ざっぱに異なった環境からの成長機構の相違点を要約し それをもとにしてダイヤモンドの結晶面上に成長層が発達することの意義を考察してみることにする。

結晶成長と一口に言ってもその機構は必ずしも単純ではない。 異なった相からの成長ごとに異なった特徴をもっていることはいうまでもなからう。 これを大きく分けると固相からの成長と 液相からの成長とに2大別できる。 液相からの成長ではあるていど不規則に分布

運動している液相の中の原子あるいは分子が なんらかの原因あるいは駆動力によって集って規則正しく配列しなおすことによって結晶成長がおこなわれる。 これに対して 固相の結晶作用(再結晶作用)では結晶境界や結晶内部にたくえられていた歪エネルギーが 外から加えられた熱エネルギーで解放されることによって成長がおこなわれる。 この際の成長は結晶粒界の移動であり 液相と境されている結晶面の移動によるものではない。 したがって自由に発達した結晶面は期待しがたく かつ成長層や成長丘は観察されないはずである。 このことからダイヤモンドが固相反応による再結晶作用によって形成されたものではないことが推定されよう。

一方液相からの結晶成長は 気相と溶液相からの成長の場合と融液相からの成長の場合とに2大別できる。 前者の場合には気相や溶液相中にある結晶分子は非常に拡散した状態にあり 固相との間の密度差がいちじるしい。 そのため 過飽和の到達のような濃縮過程によって核形成や結晶成長がおこる。 また 気相や溶液相中の結晶分子が相当の距離を輸送されることによって 成長中の結晶の表面に到達する。 表面に達した分子は通常の成長条件下では結晶表面をある時間はいまわる。 この間に分子がキックやステップに遭遇すると そこではじめて結晶の中にくみこまれる。 このような過程で結晶成長が進行するのであるから 成長の基本は層ないし渦巻成長であり 結晶面上には成長層 渦巻成長層あるいは成長丘がみいだされるはずである。

気相や溶液相からの成長に対して融液相からの成長は液相固相の間での密度差 原子間距離の差 および液相から固相への分子輸送距離の点で著しく異なっている。 単成分や2成分系の融液相では液相-固相の間での密度

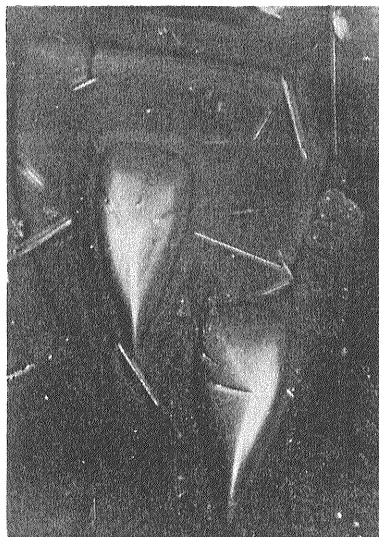
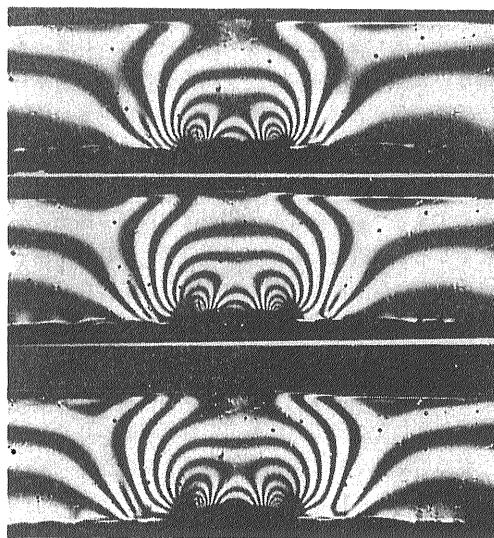
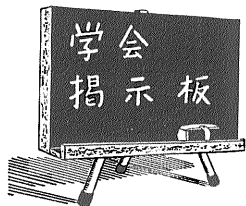


図26  
水晶の(10 $\bar{1}$ 1)面上の成長丘 針状の異種結晶の接点から成長層が発生している ×120

や原子間距離にはせいぜい数%程度の差しかない。そのため 気相や溶液相からの成長とは異なり 融液相からの成長では濃縮によって核形成がおこらず 過冷却状態の到達によって核がつくられ結晶が成長する。また液相から固相への輸送距離もきわめて短かく 1分子かせいぜい数分子の距離と考えられている。このような特徴をもっているので 液相と固相との境界面は 特殊な結晶をのぞいては荒れた曲面になり 気相や溶液相からの成長のように平坦な低指数の結晶面にならない場合がより一般的である。そのため 結晶の成長は液相-固相の界面に垂直な方向の様な成長としておこなわれ成長層の2次元的なひろがりや過巻成長などによらない場合の方が多くなるはずである。ダイヤモンドの表面構造の観察結果と上記の考察をくみあわせると ダイヤモンドは固相からの再結晶作用によってでも 融液相からの成長でもなく 溶液相からの成長であると考えざるをえない。溶液相からの成長という意味は炭素がマグマ(珪酸塩溶液)の中に溶解しており 温度や圧力条件の変化によってマグマが炭素に関して過飽和状態になった結果ダイヤモンドの結晶成長がおこったということである。(つづく) (筆者は鉱石課長)



訂正  
地質ニュース No. 161 の「地質構造の光弾性モデル」のうち 第12図(20ページ)の下から2番目の写真は 上掲の写真のあやまりです。また第4図(16ページ)に引用文献(応力測定法 1956)が脱落していました。おぼびと共に訂正いたします。



・石炭科学国際会議

1. 昭和43年6月10日~14日
2. 石炭化作用・熱分解・ガス化・石炭組織に関する講演会
3. Mining Institute of the Czechoslovakia, Academy of Science

my of Science

4. 石炭科学国際会議
5. Mining Institute of the Czechoslovak Academy of Science, Praha.

・国際写真測量学会

1. 昭和43年7月8日(月)~20日(土)
2. 撮影および航法 図化理論および機械 航空三角測量 地形測量 地形測量以外への応用 用語・教育および歴史写真判読の7つの部門ごとに あらかじめ決定された重要な主題について 決められた報告者の報告をもとにして討論を行なう
3. スイス ロザンヌ
4. 国際写真測量学会・スイス写真測量学会
5. Secrétariat du XIe Congrès International de Photogrammétrie: Institut de Photogrammétrie EPUL, 33, avenue de Cour, 1000, Lausanne Suisse.

・国際粘土会議

1. 昭和44年9月5日~15日
2. 1969年国際粘土会議(粘土鉱物の結晶構造 成因その他)
3. 日本

4. 国際粘土研究連合会 (Association International Pour l'Etude des Argiles-AIPEA)
5. 東京都文京区大塚3丁目  
東京教育大学理学部地質学鉱物学教室内  
1969年国際粘土会議組織委員会

・日本分光学会

- A. 1. 昭和43年3月30日(土)~4月1日(月)
2. 第15回応用物理学関係連合講演会
3. 東京工業大学(目黒区大岡山2-12-1)
4. 日本分光学会
5. 東京都新宿区百人町4-400  
東京教育大学光学研究所内  
日本分光学会 Tel 東京(03) 362-7881
- B. 1. 昭和43年5月24日(金)~25日(土)
2. 昭和43年日本分光学会通常総会・講演会
3. 国立教育会館(東京都千代田区霞ヶ関3-2)
4. 日本分光学会
5. 東京都新宿区百人町4-400  
東京教育大学光学研究所内  
日本分光学会 Tel 東京(03) 362-7881

・物理探鉱技術協会

1. 昭和43年4月25日(木)~27日(土)
2. 創立20周年記念行事及春季講演会
3. 創立20周年記念行事……………機械振興会館  
春季講演会……………早稲田大学小野講堂
4. 物理探鉱技術協会
5. 神奈川県川崎市久木135 地質調査所内  
物理探鉱技術協会  
Tel. (044)-83-3171

[注] 1. 開催年月日 2. 会合名 3. 会場  
4. 主催者 5. 連絡先(掲載順位は原稿到着順)