

Kontinentales Tiefbohrprogramm der Bundesrepublik Deutschland Untersuchung der Graphitisierung während der Metamorphose mittels hochauflösender TEM

Werner Skrotzki & Ines Strackenbrock (IGDL, Göttingen)

Zielsetzung: Kohlenstoff ist weitverbreitet in sedimentären und metamorphen Gesteinen. Sein Ursprung ist unterschiedlich, jedoch wird als Hauptquelle organisches Material angenommen. Während progradierender Metamorphose wird dieses Material zu Graphit umgewandelt, der Grad der Graphitisierung hängt dabei von der Intensität und Dauer der Metamorphose ab. Retrograde Überprägungen werden weitgehend ausgeschlossen. Röntgenuntersuchungen der Kristallinität anhand der Lage und Breite des 0002 Reflexes zeigen, daß die Graphitisierung mit dem Metamorphosegrad zunimmt. Parallel zu solchen indirekten Untersuchungen war es das Ziel der vorliegenden Arbeit, durch hochauflösende Transmissionselektronenmikroskopie (HRTEM) direkte Informationen über das Ausmaß und den Grad der Gitterperfektion zu gewinnen. Die Studie wurde an niedrig- bis hochmetamorphem Graphit der Canavese und Ivrea Zone durchgeführt. Das Material wurde als Modellschubstanz ausgewählt, um die HRTEM als potentielle Methode im KTB-Projekt zu testen bzw. zu eichen. Vergleichende Untersuchungen an Graphiten aus Gesteinen der Oberpfalz sind in Vorbereitung.

Experimentelles: Für die HRTEM-Untersuchungen wurden Graphite ausgewählter Fraktionen aus einer wässrigen Suspension auf eine amorphe Kohlelochfolie aufgeschwemmt. Dabei kommen Graphitblättchen, die i.w. mit ihrer Basisebene parallel zur Folie ausgerichtet sind, über den Löchern zu liegen. Dünne Randbereiche dieser Graphite können dann parallel zur Basisebene durchstrahlt werden. Für die HRTEM wurde ein Philips 420 ST Elektronenmikroskop mit 120 kV Beschleunigungsspannung benutzt.

Ergebnisse: Der untersuchte Graphit weist starke strukturelle Unterschiede auf. Mit zunehmender Metamorphosetemperatur, bestimmt anhand des $^{12}\text{C}/^{13}\text{C}$ Isotopenaustausches zwischen Calcit und Graphit (STRACKENBROCK, 1988), wird folgender qualitativer Trend beobachtet (Fig. 1 - 5):

- Verbreiterung der Graphitblättchen,
- Abnahme der Welligkeit der Blättchen,
- Abnahme der Defektdichte (wie Stufenversetzungen),
- Konstanz des Netzebenenabstandes $d_{0002} = 3.36 \pm 0.04 \text{ \AA}$, in Übereinstimmung mit Röntgenaten (3.355 \pm 0.005 \AA),
- Wechsel des Elektronenbeugungsbildes von einem Ring- zu einem Punktmuster.

Diese Beobachtungen charakterisieren eine wachsende Kristallinität. Über ähnliche Ergebnisse berichten BUSECK & BO-JUN (1985).

Diskussion: Die Ergebnisse zeigen, daß mit HRTEM ein direkter Einblick in die Natur des Graphitisierungsprozesses gewonnen werden kann. Ausgehend von einem wahrscheinlich amorphem Zustand des organischen Materials bilden sich kristalline Blättchen. Diese Blättchen, deren Schichten bereits den für Graphit typischen Basisebenenabstand aufweisen, sind stark verbogen und enthalten eine hohe Dichte an Defekten. Mit zunehmender Temperatur werden die Blättchen immer dicker, es erfolgt eine planare Ausrichtung und die Defektdichte nimmt ab. Die Defektdichte ist offenbar verantwortlich für die Halbwertsbreite des 0002 Reflexes in Röntgenuntersuchungen. Eine Quantifizierung der Defektdichte und der Welligkeit der Graphitblättchen ist geplant. Die Elektronenbeugungsdiagramme zeigen die Graphitkristallite mit der Basisebene senkrecht zum Elektronenstrahl ausgerichtet. Der Übergang vom Ringsystem zum Punktdiagramm bedeutet eine Zunahme der Kristallitgröße. Unklar ist, inwieweit der Unterschied der Beugungsbilder, insbesondere die hohe diffuse Intensität, auch durch die Graphitisierung bestimmt wird und nicht allein auf der unterschiedlichen Korngröße des verwendeten Materials beruht (Canavese: $2 < \bar{\phi} < 6.3 \mu\text{m}$, Ivrea: $6.3 < \bar{\phi} < 20 \mu\text{m}$ und $20 < \bar{\phi} < 63 \mu\text{m}$).

Literatur:

- STRACKENBROCK, I., 1988, Dissertation, Göttingen, in Vorbereitung.
BUSECK, P.R. & BO-JUN, H., 1985, Geochim. Cosmochim. Acta, 49, 2003-2016.

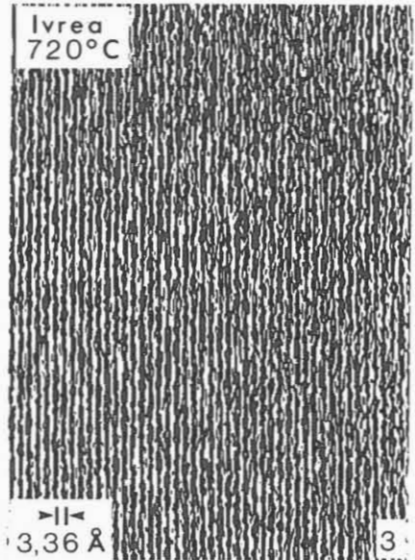
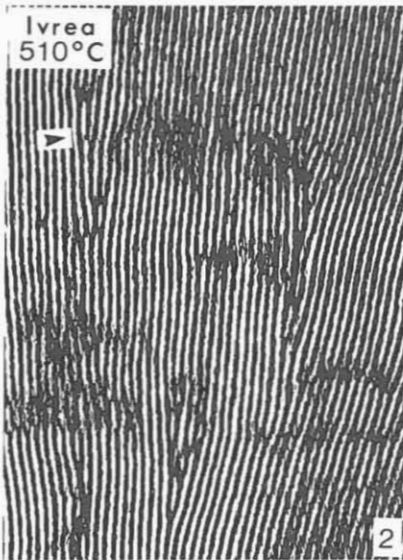


Fig. 1, 2, 3: (0002) Netzebenenabbildung (gefiltert), Pfeil markiert Stufenversetzung.

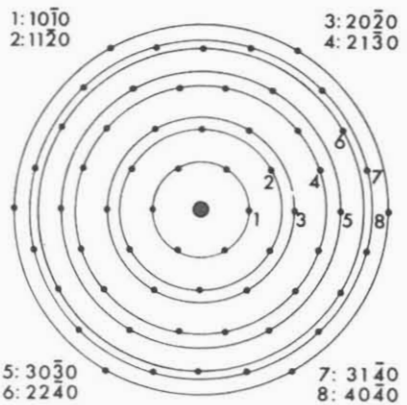
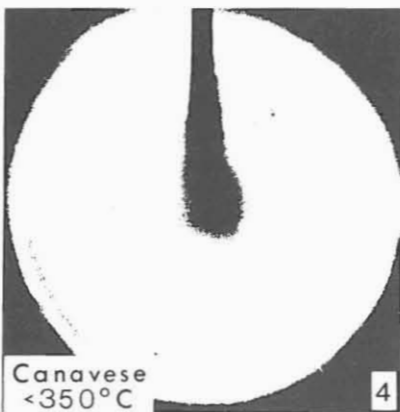


Fig. 4, 5: Elektronenbeugungsaufnahmen.

Fig. 6: [0001] Beugungsdiagramm (schematisch). Punkte: einzelner Kristallit; Kreise: viele Kristallite rotiert um [0001].