HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	Red Paste 法による積雪の薄片
Author(s)	清水, 弘
Citation	低温科學. 物理篇, 17, 81-86
Issue Date	1958-12-10
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/17945
Type	departmental bulletin paper
File Information	17_p81-86.pdf

Hokkaido University Collection of Scholarly and Academic Papers : HUSCAP

Hiromu SHIMIZU 1958 Thin Section of Deposited Snow by Red Paste Method. I. *Low Temperature Science, Ser. A*, **17**. (With English résumé p. 86)

Red Paste 法による積雪の薄片 I*

清　水　弘
(低温科学研究所　気象学部門)

(昭和 33 年 7 月受理)

I. まえがき

最近，Fuchs[1] がレプリカ法によつて積雪の薄片を作り，その微細構造の研究手段に用いている。彼の方法は，始めに積雪の粒子表面を 8% のレプリカ溶液で被膜し，次に空孔内に 0°C の水を満たして全体を氷のブロックとし，ミーリングマシンで削つて薄片を作るというものである。筆者も早速これを試みたが，Fuchs の方法に 2 つの難点を見出した。

i) レプリカ被膜後，0°C の水を滴下して空孔を氷で充填する操作が手易くない。
(筆者は充填水の浸透を容易にするために，微量のアルコールを加えて表面張力の著しい減少を確認した水を用いたが，滴下した水は殆んどレプリカ内に浸透しなかつた。)

ii) この方法によつてできた薄片は，全体が氷の板で，もとの粒子表面に相当する位置にビニール膜が挟まれているので，高密度の積雪になると，この薄片から積雪粒子ともとの空孔の判別が困難になる。

そこで，以上の 2 点を改善すべく種々試みたが，Red Paste を用いることにより一応実用に供し得る結果を得たので，その方法と若干の観察結果を報告する。

II. 薄片の作製と 1, 2 の観察結果

1. 概　要

Formvar (Polyvinylformaldehyde) の 6% wt. 溶液 (溶媒：2 塩化エチレン) に 30% wt. のベンガラを混入して Red Paste を作る。サンプルの雪の小塊に Red Paste を浸透させ，空孔を埋めた Red Paste が乾燥してからサンドペーパー及び絹布で研削・研磨して薄片を作る。

2. 準　備

i) 2 塩化エチレンの脱水：　市販の 2 塩化エチレンは，extra pure と称するものでも 0.5 %位迄の水を含んでいる[2]。これを −30°C 位の低温に数時間放置すると，含まれた水は綿状に凍結して浮ぶから，これを濾過する。

ii) Formvar とベンガラの脱水：　+50°C 位の恒温槽内で，5 酸化燐を併置して数日間乾燥する。

* 北海道大学低温科学研究所業績　第 449 号

iii) 6% の Formvar 溶液の作製： 十分脱水した Formvar を2塩化エチレンに少しずつ溶かし，漸次濃度を高めて6% に至らせる。この際，Formvar を投入したら手早く振盪して2塩化エチレン内に分散させ，+50°C 位の恒温槽に入れておくと溶解が促進される。(尚，この方法によると更に高濃度の溶液の作製も容易である。) 6% 溶液はかなり粘稠であるが，−20°C 前後でも常温に於けるグリセリン程度の流動性を示す。i), ii) の脱水が不十分な場合には，氷点以下になると，溶液は低濃度で白濁し容器を倒しても流動しない位に粘性を増す。

iv) Red Paste の作製： (Formvar 溶液にベンガラ混入)。薄片をしらべるとき，もとの空孔を容易に識別するためにレプリカ液を不透明に着色する。ベンガラ混入の操作は，薄片の仕上りを支配するから特に注意深く行う必要がある。

最初に，ベンガラ全量 (Formvar 溶液の 30% wt.) をビーカーにとり，これに 6% の Formvar 溶液を少し加え，滑らかな木の棒でベンガラの少塊をつぶしながら十分練る。全体が一様になつたら更に Formvar 溶液を少し加えて練る。この操作を繰り返して 30% のベンガラ混合液を作り，最後に目の細い絹の袋に入れて搾り，Red Paste を仕上げる。Red Paste 作製に際して最も注意すべきことはベンガラの小塊を完全に除去することである。Red Paste はベンガラ混入前の Formvar 溶液に比べて粘稠さは余り変らない。

以上の全操作は，なるべく絶対湿度の低い所で行うべきであり，筆者は低温室 (約 −20°C) を利用した。

3. 積雪のレプリカとその薄片

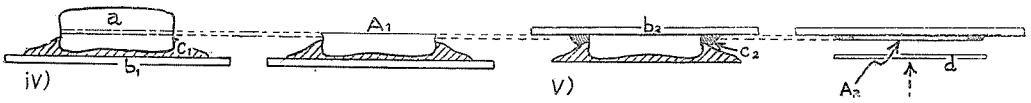
i) サンプルがゆつくり入る大きさの容器 (たて・よこ夫々 20 mm，深さ 10 mm) を通気性のよい紙で作る。これに Red Paste を 8 分目位流し込み (約 3 cc 位)，そのまま数時間放置して気泡を抜く。

ii) 切り出したサンプル (たて・よこ夫々 10 mm，高さ 3〜5 mm) を，Red Paste の中央に静かに浮べ，そのまま放置する。数 10 秒で，Red Paste はサンプルの周囲から中央に向つて浸透し，同時にサンプルは自重によつて徐々に沈下する。これを，そのまま約 1 日放置乾燥する。

iii) 表面が乾燥したら容器をサンプルから切離し，裏返して更に 2〜3 日放置乾燥して積雪のレプリカを作る。

iv) Red Paste が十分乾燥したら，スライドグラス上に 0°C の水を滴下し，その上に積雪レプリカを静かに載せてスライドグラスに貼付ける (氷貼付)。これをサンドペーパー (荒摺 #400，仕上 #600) で研削し，最後に絹布で研磨して片面研磨片を作る (第1図 A_1)。サンドペーパー及び絹布は平らな台の上に張つた。

v) スライドグラスの裏を指先で少し暖めて氷貼付を外し，研磨面を他のスライドグラスに密着させてその周辺だけを水筆で注意深く氷貼付する。(この場合には，一時に多量の水をつけると，水がガラス面と研磨面の間に浸入して積雪粒子に熱的影響を与えることがあり，又，偏光による顕微鏡観察を妨げる。)



第1図 薄片の作製

a: 積雪レプリカ　b_1, b_2: スライドグラス　c_1, c_2: 氷貼付
d: カバーグラス　A_1: 片面研磨片　A: 両面研磨薄片

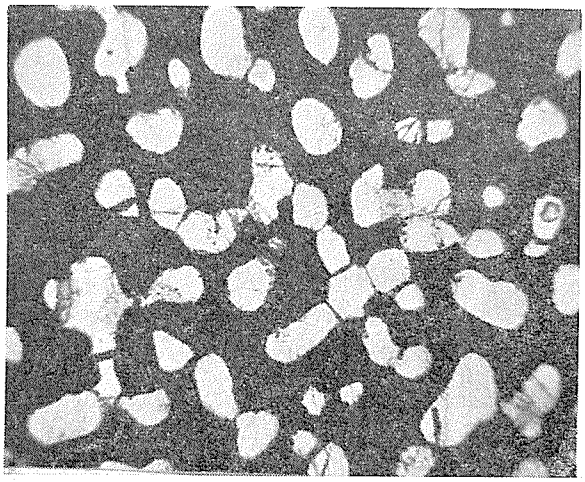
再貼付ができたら，再びサンドペーパーで裏面から研削し，所要の厚さを得たら絹布で研磨して両面研磨薄片を完成する（第1図 A_2）。最後に，新しい研磨面にカバーグラスを被せ，周辺だけを水筆で軽く止めて薄片を密閉する。

4. 薄片の観察

薄片は，その用途に応じて片面研磨及び両面研磨のものが用いられる。

i) 積雪粒子の形・大さ・配列のみを問題とするときは，片面研磨でも十分実用的である。絹布で仕上げた片面研磨片を斜光線によつて顕微鏡観察すると，氷粒子が盛上つているように見えることがある（図版 I-1）。これは研磨面が極めて滑らかに仕上つて，氷粒の底面の形と陰影が見えすぎるために起る錯覚である。又，このような場合には，屢々積雪粒子の輪廓も見難くなることがある。これらの視覚上の障碍を防ぐためには，平らな板に張つたビロードの上に酸化チタンの微粉を掃き，その上でもう一度軽く研磨する。酸化チタンは Red Paste には附着せず，氷粒子面だけに附着して白く不透明にするから，積雪粒子の形は極めて鮮明になる（図版 I-2）。

又，研磨面をそのまま露出放置しておくと，氷は昇華して積雪粒子の嵌り込んでいた形の孔が残る（図版 I-3）。しかし，Red Paste 内には往々にして微小な気泡が残つていることもあるので，もとの積雪粒子の形をこの孔だけから推測することは誤りを伴ない易い。但し，積雪粒子が存在するときは，気泡と積雪粒子の区別は容易である（図版 I-4）。



第2図 透過光で観た両面研磨薄片
（ρ_s=0.45　厚さ 10 μ; ×21）

ii) 積雪粒子の結晶構造をしらべようとするときは，両面研磨の薄片を必要とする。薄片の厚さが 100 μ 程度になると大部分の粒子が上下両研磨面を貫通して磨き出され，透過光による顕微鏡観察が可能となるが，薄片の厚さを 10 μ 程度まで薄くするとは容易である。この両面研磨薄片を透過光で顕微鏡観察すると，もとの空孔は Red Paste で埋められて暗視野となり，積雪粒子は透明な明部となつてそ

の対比は片面研磨よりも更に鮮明である（第2図）。

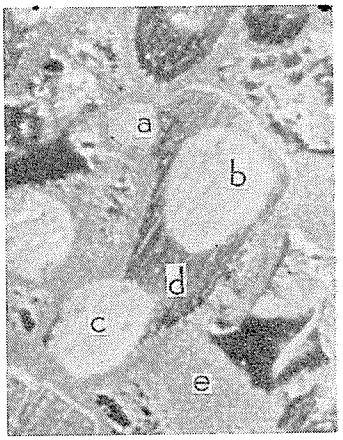
しかし薄片は数10μ程度の厚さがあるので，積雪粒子が斜めに貫通している場合，透過光のみによる観察は粒子の実際の形・大さ・連結状態とはかなり異なつたものになる（第3図）。

積雪粒子の結晶構造をしらべるために，この薄片を偏光顕微鏡で観察すると，クロスニコルにより単結晶の分布とgrain boundaryが明瞭に認められる（図版I–6）。

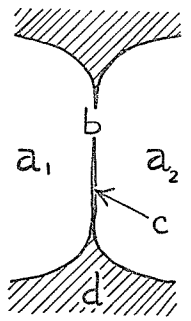
筆者の観察によるとgrain boundaryには2種類の型があつた。

Type I： クロスニコルを用いずに明らかにそれと認められるもの。

これは，例えば（図版I–5）の中央から左に7個の粒子が十字架状に連つているが，これをクロスニコルで観察すると，各粒子は夫々結晶軸方向の異なつた単結晶であることが確認される（図版I–6）。この型のgrain boundaryを高倍率の顕微鏡で観察すると，一般に第4図のような形を示して居り，恰も，積雪粒子が塑性的に変形して行き，隣接粒子との間にこのようなgrain boundaryを生じたかの感じを与える。



第3図 透過光と反射光を併用して観た積雪粒子の薄片（厚さ 100μ： ×55）
a, b, c：両面研磨部 d：片面研磨部 e：Red Paste 反射光で観ると，写真中央に1個の積雪粒子のあることがわかるが，透過光だけで観察すると，a, b, cは3個の独立した小粒子に見える。



第4図 Type Iのgrain boundaryの一般的な形状。
a_1, a_2：積雪粒子 b：grain boundary, c：細隙, d：Red Paste

この種のgrain boundaryは（図版I–4）にも明瞭に見られ，時には極めて細い隙間を含むこともある。又，研磨時に生じたと思われる積雪粒子内の亀裂がgrain boundaryと紛らわしい場合があり，結晶構造に言及するには，偏光による観察が必要である。

Type II： クロスニコルを用いなければ，grain boundaryらしい形跡も殆んど見えないもの。

この例は，（図版I–6）の右端にある略々楕円形の粒子に見られる。この粒子は，普通顕微鏡で観察すると，完全な単一粒子に見えるが，これをクロスニコルで眺めると3個の単結晶から成つていることが確められる。（図版I–5, 6）。しかし，この3個の単結晶の結晶軸方向の差異は，クロスニコルによる着色のコントラストの弱い点から見て微小と考えられる。このgrain boundaryの成因は，研磨時の機械的な衝撃によつてできた，所謂sub-boundaryであるか，再結晶によるgrain boundaryであるか，又は他の機構によるものであるかは，別の研究に俟たねばならない。又，粒子内に，研磨時に生じたと思われる亀裂が存在しても，単結晶が影響を受けていない場も多くあり，これらは結晶構造の研究上注意すべき問題と思われる。

III. むすび

更に，積雪の結晶構造を微細にしらべようとして，2% の Formvar 溶液を研磨面に流し，Etch Pit を作ることを試みた。しかしこの方法では，Red Paste が2% 溶液に再び溶けて積雪粒子面の拡散して来たこと，粒子面が十分に平滑でなかつたこと等のために，観測され得る Pit が得られなかつた。しかし適当な方法によれば，薄片の粒子面上に Etch Pit を作つて各単結晶軸方向を解析することは可能であらう。

以上述べた積雪の薄片作製及び観察は，着手してまだ日が浅く，吟味改善すべき点は多々あるが，積雪の微細構造の研究の一手段として用い得る見透しがついた。

筆者の感じた Fuchs の方法に於ける2つの難点は，次表のやうに改善された。

Fuchs の方法	Red Paste 法
i) 積雪のレプリカ作製に ・Formvar 被膜 ・氷充填 の2操作を要し，各操作ともかなり煩雑である	i) 試料を Red Paste に浮べて放置乾燥するだけで積雪のレプリカが出来る。
ii) 薄片から，もとの積雪粒子と空孔を判別することが容易ではない。	ii) 積雪粒子と空孔の判別は一目瞭然である。

Red Paste 法が，Fuchs の方法に比べて欠点とするところは，積雪のレプリカ乾燥に稍々長時間を要することである。しかし，Fuchs の方法で積雪のレプリカを作るのに少なくとも2日間を要するのに比べて，Red Paste 法は3～5日間を要する程度であるから決定的な難点とは言い難い。

又，両方法を通じての問題点は次の通りである。

i) 空孔を Red Paste 又は氷で埋めたとき屢々微小な気泡が残ることがある。これは研究上多少の障碍となることがある。

ii) 濃厚レプリカ液は，溶液の作製・レプリカの乾燥時間に於いて，又消費量が普通のレプリカに比べて著しく多量であるために経済的な点に於いて今前更に検討すべき問題である。

この研究に際して，有益な示唆を戴き試料を提供された北海道大学理学部中谷宇吉郎教授に厚く感謝の意を表する。

文献

1) Fuchs, A. 1956 Preperation of plastic replicas and thin sections of snow. SIPRE Technical Report *41*.

2) 小林禎作 1955 レプリカ溶液についての2, 3の注意. 天気, *2*, 267.

Résumé

A method of making a thin section of deposited snow using a new plastic solution (here named "Red Paste") is described, and some results obtained by the use of this method are given. The Red Paste was prepared as follows: Formvar powder (Polyvinylformaldehyde) was first dissolved in dichloroethan with the concentration of 6% by weight. Then rouge powder (iron oxide) 30% by weight, was mixed with Formvar solution, which yielded the Red Paste, viscous (something like glycerol), opaque and reddish-brown in colour. A snow sample floated on the top of the Red Paste contained in a paper vessel, then the sample sank as the pores were filled with the Red Paste. While this sample was left as it was, the Red Paste dried up and a reddish-brown plastic replica of snow holding snow particles in it was obtained. By polishing this replica with fine grain sandpaper and soft silk cloth, single-side-polished section or double-side-polished thin section of snow was made. All the work was performed at −20°C. The single-side-polished section could be used for the study of shapes, sizes and arrangements of deposited snow particles, and the double-side-polished thin section for studying the crystallography of snow particles by aid of crossed nicols.

Observations with crossed nicols revealed two types of grain boundary. The type I is illustrated schematically in Fig. 4, and can be seen in Plate I-4 and on the left of Plate I-6. It appears that the boundary of type I was produced as the result of plastic deformations of two neighbouring ice particles. Occasionally, there appeared a fine interstice at the boundary. The type II can be seen on the right-hand side of the Plate I-6. The mechanism of formation of this type of boundary is not yet clear, though it might be either a subboundary generated by some mechanical shock while beeing polished or due to recrystallization of deposited snow particles.

Our Red Paste method has distinct advantages over Fuchs' method, as will be seen from the following comparison.

Fuchs' method	Red Paste method
i) Preparation of a replica of snow involves two delicate and complicated stages of work: covering the snow particles with Formvar and filling the pores with ice.	i) Only a single stage of floating the snow sample on top of the Red Paste is involved. The sample sinks under the Paste, and when the Paste dries up the replica of snow is obtained. Drying of the Red Paste requires 3~5 days.
ii) With Fuchs' thin section it is considerably difficult to distinguish the snow particles from the original air voids filled with ice.	ii) In the case of our thin section, distinction between the snow particles and the original air voids filled with the Red paste is quite clear.

It may be possible to make etch pits on the surface of snow particles in the thin section by a suitable technique. Then, the crystallographic analysis of the deposited snow particles would become much easier.

Red Paste 法による積雪の薄片 I*

図 版 説 明

I–1： 片面研磨片 (×23)
絹研磨 $\rho_s=0.28$

I–2： 片面研磨片 (×23)
TiO_2 研磨 $\rho_s=0.45$

I–3： 片面研磨片 (×35)
氷粒子は昇華して孔が残り，その底が見える。$\rho_s=0.45$, a：孔, b：Red Paste の研磨面。

I–4： 両面研磨薄片 (厚さ 50 μ；×45)
Type I の grain boundary と残留気泡 (a) が見える。

I–5： 両面研磨薄片 (厚さ 10 μ；×40)
$\rho_s=0.45$

I–6： 同じ薄片の偏光観察
2種類の grain boundary が見られる。
左： Type I　　右： Type II

Explanations of Figures and Plates

Fig. 1 : Preparation of thin section.
a : replica of snow. b_1, b_2 : slide glass. c_1, c_2 : ice used to affix the replica to slide glass. d : cover glass. A_1 : single-side-polished section. A_2 : double-side-polished thin section.

Fig. 2 : Double-side-polished thin section (thickness 10 μ), observed with transmitted light. (×21)

Fig. 3 : Double-side-polished thin section (thickness 100 μ), observed with reflective and transmitted light simultaneously. (×55) With transmitted light only, a, b and c look like three separate particles; actually they are the parts of a single particle.
a, b, c : double-side-polished part. d : single-side-polished part. e : Red Paste.

Fig. 4 : General shape of type I of grain boundary.
a_1, a_2 : single particle of snow. b : grain boundary. c : fine interstice. d : Red Paste.

Plate I–1 : Single-side-polished section, polished by silk cloth (×23). The ice particles are so transparent that the bottom surfaces of the ice particles look as if they were elevated, though the surface of this section is almost flat.

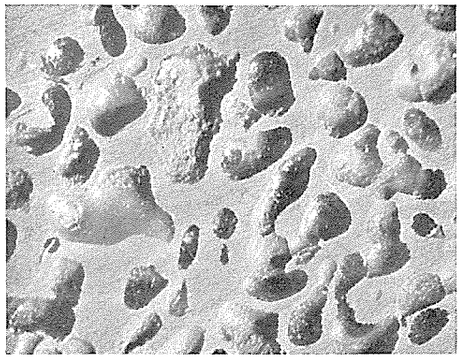
Plate I–2 : Single-side-polished section, polished by TiO_2 (×23). The shapes of particles can be seen more clearly than Plate I–1, as the result of adhesion of TiO_2 powder to only ice particles surface.

Plate I–3 : Single-side-polished section (×35). Ice particles have been sublimated. a : pores in the shape of the ice particles. b : polished face of Red Paste.

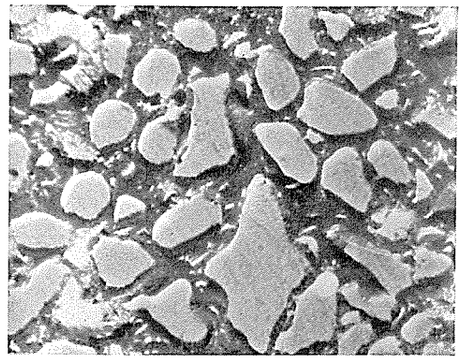
Plate I–4 : Double-side-polish thin section (thickness 50 μ; ×45). Grain boundaries of type I and air bubbles locked in (a) can be seen clearly.

Plate I–5 : Double-side-polished thin section (thickness 10 μ; ×40), observed with transmitted unpolarized light.

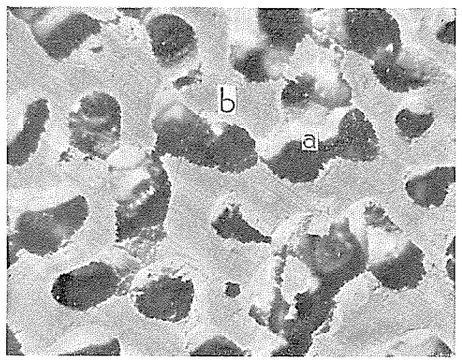
Plate I–6 : Observation of the same thin section as in Plate I–5 by crossed nicols. There can be seen the grain boundaries of type I on the left-hand side, and type II on the right-hand side.



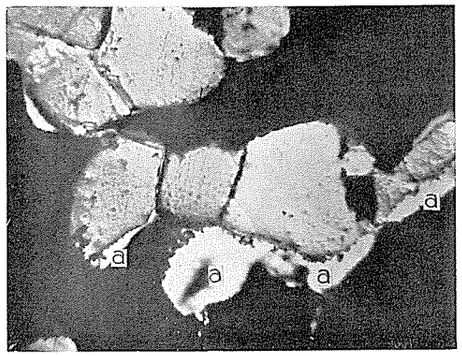
I–1



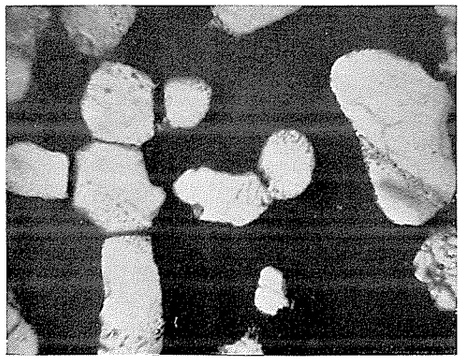
I–2



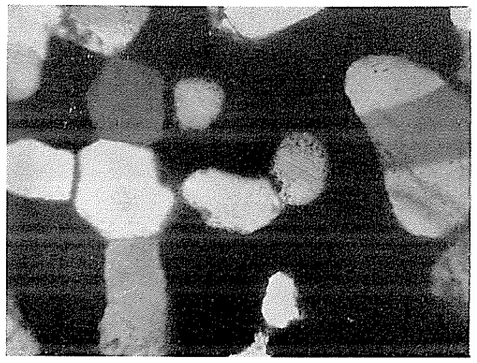
I–3



I–4



I–5



I–6