



Title	圧縮変形で生じる氷の再結晶
Author(s)	鈴木, 重尚; SUZUKI, Shigenao
Citation	低温科学. 物理篇, 29, 11-28
Issue Date	1972-03-30
Doc URL	<a href="https://hdl.handle.net/2115/18166">https://hdl.handle.net/2115/18166</a>
Type	departmental bulletin paper
File Information	29_p11-28.pdf



## 氷の圧縮変形で生じる再結晶\*

鈴木重尚

(低温科学研究所)

(昭和46年9月受理)

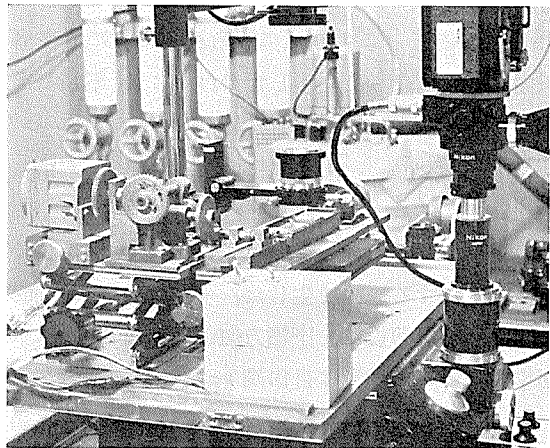
### I. 緒言

筆者はこれまで、ガラス面上に作った氷の微結晶の粗大化の観察を進めてきた<sup>1-3)</sup>。しかしこの実験では微結晶には特に外力を加えていないので、微結晶を粗大化させる駆動力は、隣接している結晶粒間の自由エネルギーの差であった。ところが天然の氷河や積雪のなかでの再結晶は多かれ少なかれ外圧力のもとで行なわれている。従って氷の結晶に外力を加えた場合、つまり Strain-induced の状態での氷の再結晶を調べておく必要がある。

この線に沿う実験的研究は若浜<sup>4-7)</sup>が積雪や、氷の薄板を定速度で一軸圧縮したときそれに伴って積雪粒子や氷の内部に生ずる、底面沁り、破断、細胞化、再結晶等について詳細な報告をしている。しかしそのなかで再結晶に関しては、まだ不明な点が多く残されているように思われる。筆者はこの論文では主に定速圧縮下における自然結晶の境界、及び人工的に、任意の方位差をもつようにつくられた双結晶 (bi-crystal) の熔接境界の移動現象を外力、温度及び結晶主軸の方位差の関数として調べた。また一定荷重のもとで、氷の表面につけた圧痕によって生ずる再結晶についても実験を行なったので報告する。

### II. 試料の作成と実験装置

試料として用いた氷は、実験室でシャーレに入れた蒸溜水を凍らせて作った多結晶氷、市販氷、またはアラスカの氷河水等である。これらの氷から適当な大きさの双結晶を切り出し、結晶粒界がほぼ中央にくるように試料整形台を用いて、厚さ1 mm、縦3 cm、横幅4 cm程度の薄板に整形した。圧縮応力は境界に対して直角に加えた。境界をはさむ二つの結晶粒の結晶主軸の方向は、加圧するまえにあらかじめ、樋口の方法<sup>8)</sup>で蒸発ピットをつくることによって確認した。この実験では



第1図 倒立顕微鏡のステージにセットされた氷の薄板の単軸圧縮装置

\* 北海道大学低温科学研究所業績 第1153号

便宜上結晶主軸は必ず、試料の薄板の面内にある様に準備した。従って、薄板面は必ずプリズム面が出ているわけである。このような試料作成は、すべて  $-5^{\circ}\text{C}$  の低温室で行なわれた。

このようにして作った氷の薄板を、一定速度で圧縮する装置は、すでに若浜が、積雪の薄片や単結晶、多結晶氷の圧縮実験に使用したものである。ここでは詳しくは述べない。但し加圧にともなう変形の微細な変化を観察し、かつ写真、映画撮影を便利にできるように圧縮装置全体は倒立顕微鏡ステージの上にセットされた。第1図はその様子を示す。

また温度を、自由に操作するために、倒立顕微鏡上に取りつけられた装置を恒温箱の中に収めた。しかし写真撮影、顕微鏡観察、その他一切の実験操作は、恒温箱の外側からできるように工夫されている。

実験された温度は、 $-2^{\circ}\text{C}$ 、 $-4^{\circ}\text{C}$ 、 $-6^{\circ}\text{C}$ 、 $-9^{\circ}\text{C}$  の4点である。圧縮速度は  $4\text{ mm/hr.}$  に固定し、試料に与えた最大歪は、 $5\sim 15\%$  である。

### III. 実験結果及び考察

#### 1. 蒸溜水の凍結で作った氷の圧縮

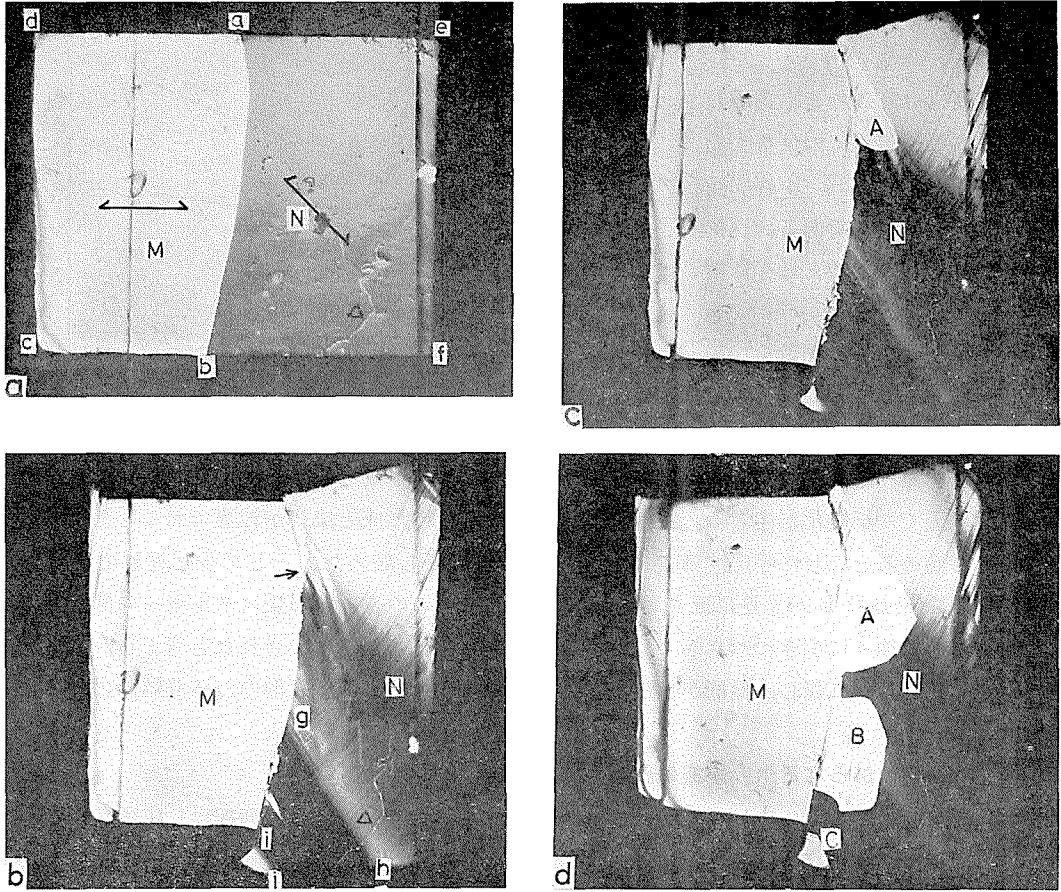
##### A. 多結晶氷より切り出した双結晶の圧縮

第2図は、シャーレの中で蒸溜水を凍結させて作った多結晶氷の中から、双結晶の薄板(厚さ  $1\text{ mm}$ 、大きさ  $15\times 19\text{ mm}$ )を切り出して、 $-4^{\circ}\text{C}$  の温度で、圧縮速度  $4\text{ mm/hr.}$  で約40分圧縮したときの偏光写真である。試料に与えた最大歪量は、 $14\%$  であった。**a** 図は圧縮直前の試料である。写真みられるように結晶粒界 **a**、**b** は結晶 **N** の方に凸な曲率をもっている。圧縮方向は、この写真の左右方向である。結晶 **M**、**N** の結晶主軸は、この氷の薄板の面内にあり、その方向は圧縮方向に対して、それぞれほぼ平行と  $45^{\circ}$  の傾きを持っていた。その主軸方向が、図の中に矢印で示してある。**b** 図は圧縮を開始してから約40分後の写真で、歪量は約  $14\%$  である。この写真にみられるように、すべり帯が **M**、**N** 両結晶のなかに観測されるが、底面すべりによって変形したのは主に **N** 結晶だけである。主軸が圧縮方向に対し  $45^{\circ}$  傾むいているため底面に大きな剪断応力がかかったからである。興味あるのは、圧縮前の **a** の写真で結晶 **N** の表面に  $\Delta$  印で示すような曲りねった傷がついていたが、変形後の **b** でその傷は長く引伸された。

結晶 **N** の中にみられるすべり帯線に交叉して斜に入っている線、**gh**、**ij** は、底面すべりによって変形する途中で生じた、小傾角粒界で、屈折面とも呼ばれているものである。

この氷の薄板で、圧縮方向に平行になっている辺、**de**、**cf** は、束ばくされていないので底面すべりによる変形は自由端 **ae** と、**bf** を横切って行なわれた。その結果、横幅の増加が行なわれたのである。

薄板に与えられた圧縮歪は全体としては、 $14\%$  であったが、結晶 **M** だけについての圧縮量は、約  $7\%$ 、結晶 **N** の場合は  $30\%$  である。粒界 **ab** をみると圧縮前には、単純な、なめらかな曲率をもっていたこの粒界は、**b** 図では、粒界に沿って発生した無数の再結晶粒のため複雑な形をしている。これはおそらく底面のうえを移動してきた転位が境界でとめられ、集積し局部的な応力集中をおこし、方位の異なる微結晶粒が無数に形成されたものと考えられる。試料

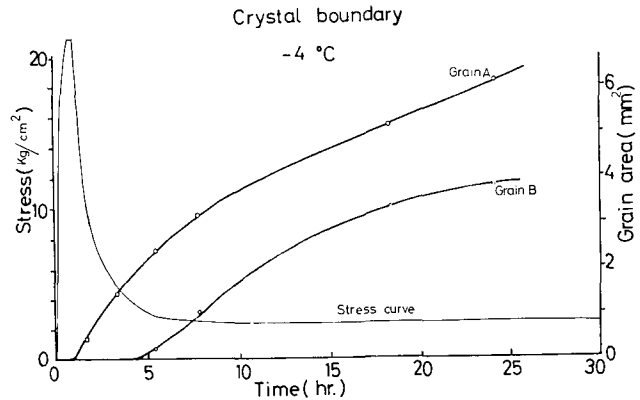


第2図 凍結氷より切り出した双結晶の圧縮 ( $-4^{\circ}\text{C}$ )。a) 圧縮直前, b) 14%の圧縮歪を与えた時, c) 圧縮を止めてから焼鈍を開始して3時間20分後の様子, d) 30時間後の変化

はその後14%の圧縮歪をうけたまま、 $-4^{\circ}\text{C}$ で焼鈍されることになるが、歪エネルギーの解放とともに微結晶粒のうちある少数の選ばれた結晶粒のみが成長していくのが観察される。c図は、圧縮開始後約4時間、焼鈍しはじめてより3時間20分後の写真である。この図でいちじるしいのは、結晶Nの中に再結晶粒Aが非常に速い速度で成長していることである。この結晶はb図の矢印で示す付近から成長しはじめたのである。矢印の頭の所には応力集中を暗示する光弾性模様が観察される。再結晶粒A以外の粒界ab上の微結晶粒はほとんど成長を示していない。d図は、焼鈍開始後30時間たったときの結晶の様子である。結晶粒Aは一そう大きく成長しているが、別の再結晶Bが、Aの下側に大きく成長している。B結晶はc図では、識別できなかったものである。結晶粒、AとBの主軸の方向は、圧縮方向に対してそれぞれ、 $51^{\circ}$ 、 $62.5^{\circ}$ の傾きをもっていた。従って、これらの結晶粒の主軸は、母結晶Nのそれに対しては、それぞれ $6^{\circ}$ 、 $17.5^{\circ}$ の傾きをもっている。母結晶Nには、多数のすべり帯および、屈折面が観察されるのに再結晶粒の表面は、非常になめらかな面をもっている。このことは再結晶粒が Strain-free になっていることを示している。結晶粒Cも母結晶Nの中に生じた小傾角粒

界  $ij$  を境として出来た再結晶粒である。

第3図は、この氷の薄板の圧縮及び焼鈍過程での反抗力曲線と、再結晶粒、A、Bの成長曲線を描いたものである。反抗力曲線は、圧縮開始とともに増加し、約30分で $21 \text{ kg/cm}^2$ に達した。それ以後、圧縮量を増加しても同じ値をとりつづけ、40分後に圧縮をやめると同時に急激に減少した。その間、底面

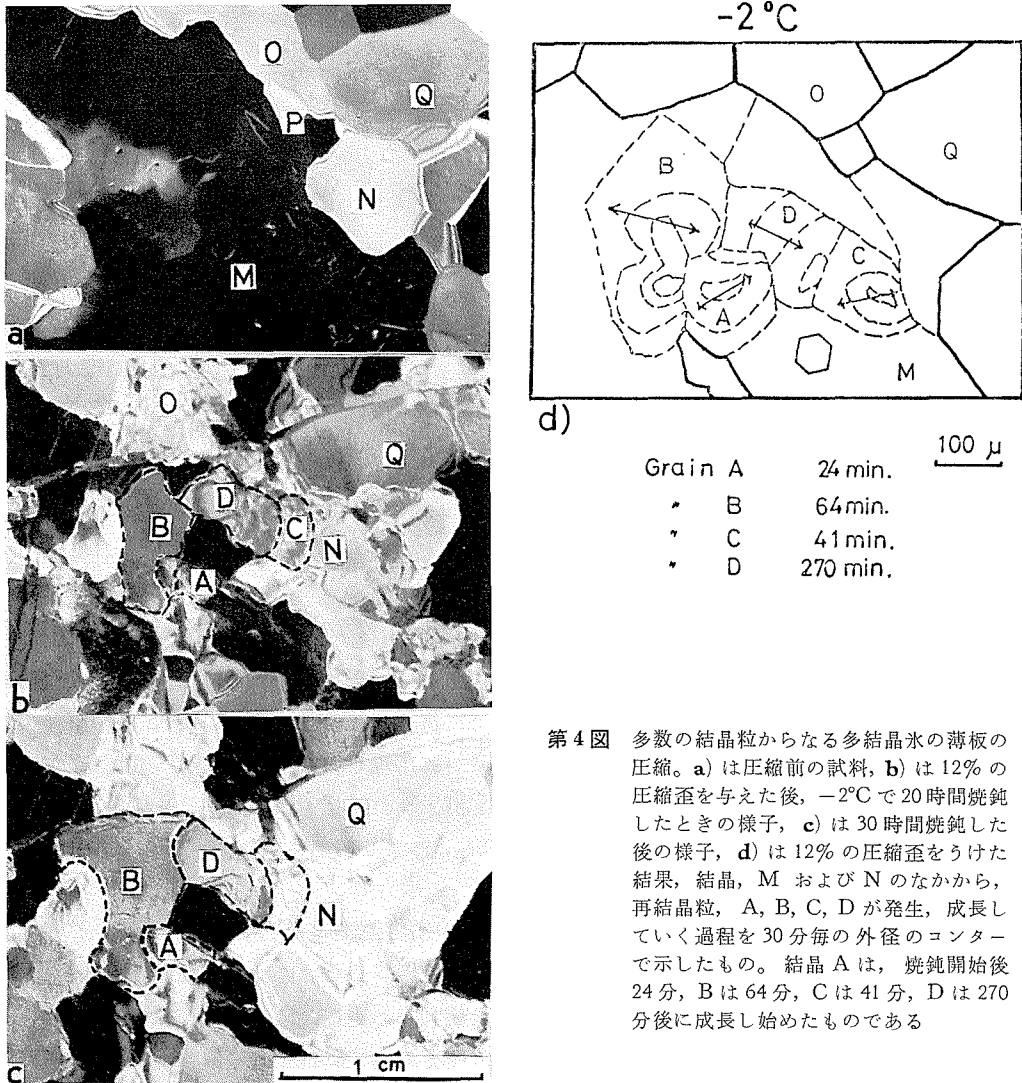


第3図 第2図の試料の圧縮及び焼鈍過程での反抗力曲線と、A、B結晶粒の成長曲線

り、粒界上での細胞化が生じる。そして小さな再結晶粒の形成と成長が粒界でおこった。応力が緩和し始めるとこれに呼応するように結晶粒Aが成長し始めた。そして少し遅れて、約4時間後に、結晶粒Bが急速に成長していくのである。このことから歪エネルギーの開放は主に再結晶と、徐々に引きつづきおこっている底面 $\rightarrow$ 等とによってなされたと考えられる。このようにして圧縮に際し、側面が自由に開放されている場合は塑性変形のため双結晶の粒界は移動しない。

### B. 多結晶粒からなる氷の薄板の圧縮

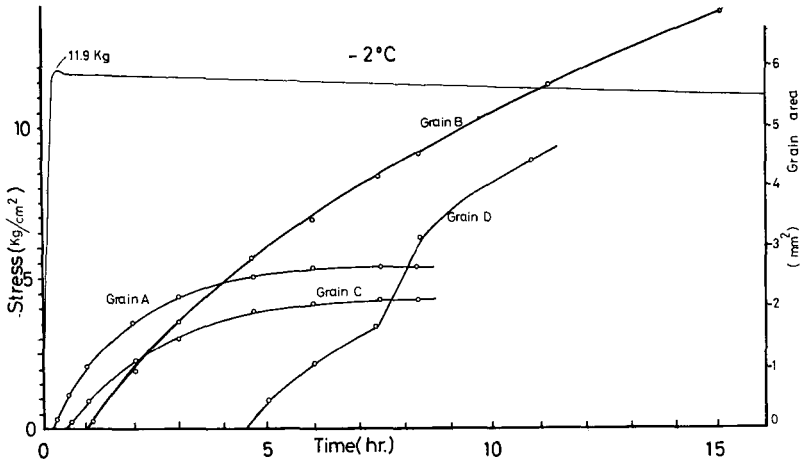
第4図はシャーレに入れた蒸溜水を凍結させてつくった多結晶氷を薄板にし圧縮した例である。a図は、圧縮前の偏光写真であって、この写真中Mと印された黒い大きな結晶は、その結晶主軸は紙面に垂直である。この薄板を写真の左右の方向から定速圧縮し、12%の歪を与えて、 $-2^\circ\text{C}$ で20時間焼鈍したときの同じ視野の写真がb図である。この写真でA、B、C、Dと印をつけられた結晶はすべて再結晶粒で、焼鈍開始よりそれぞれ、24分、64分、41分、270分と時間をずらして発現し、成長していったのである。12%の歪を与える過程で、a図に示されたM、N、O、P等の結晶が、細かな結晶に分裂し、いわゆる細胞化(cell-formation)が起った。やがてそれらの領域から、新しい結晶粒A、B、C、Dが出現したのである。この様子を16mmカメラで撮影したfilmの解析から、30分毎に成長段階にあるそれぞれの結晶粒の外径をスケッチして重ねたのがd図である。最初、焼鈍開始後24分たって結晶粒Aが出現し、図に示された30分ごとのコンターに従って成長しはじめた。64分後には結晶粒Bが、結晶粒Aの成長しつつある粒界の一角から成長しはじめたのである。以後、A結晶の成長速度はおとろえ、B結晶が時間とともにどんどんその面積を増やしていったのである。再結晶粒C、Dに関して、時間はずれてはいるが似た型で成長が行なわれた。つまり焼鈍後41分を経て、再結晶粒Cが母結晶Nの細胞化した領域の一角に発生し、図に示す30分毎のコンターに従って成長した。そして270分後に、再結晶粒Dが、結晶Cが成長しつつある境界の一角に出現し急速に成長しはじめたのである。これらの再結晶粒は、それぞれ特有の成長速度をもって、特に塑性変形のはげしく起った領域を侵食していたのである。図中に示す矢印は再結晶粒の結晶



第4図 多数の結晶粒からなる多結晶氷の薄板の圧縮。a)は圧縮前の試料, b)は12%の圧縮歪を与えた後,  $-2^{\circ}\text{C}$ で20時間焼鈍したときの様子, c)は30時間焼鈍した後の様子, d)は12%の圧縮歪をうけた結果, 結晶, M および N のなかから, 再結晶粒, A, B, C, D が発生, 成長していく過程を30分毎の外径のコンターで示したもの。結晶 A は, 焼鈍開始後24分, B は64分, C は41分, D は270分後に成長し始めたものである

主軸を示している。c 図は, 30 時間, 焼鈍したのちの写真である。再結晶粒 B, D は更に成長しつづけていることがわかる。

第5図は, この多結晶試料を圧縮したときの反抗力曲線と, A, B, C, D の4つの再結晶粒の成長曲線を描いたものである。圧縮開始とともに反抗力は増加し, 16 mm 映画からの観測によると, 10 分後, 歪量7%, 反抗力で約  $8.4 \text{ kg/cm}^2$  に達したとき, 粒界移動, 細胞化, 再結晶等の現象が認められた。その後, 圧縮歪を12%まで与え, 反抗力が  $11.9 \text{ kg/cm}^2$  になった時点で圧縮を止めた。同時に反抗力は緩和ははじめたのである。しかしこの場合は, 圧縮方向に平行な薄板の2つの辺は金属板でおさえてあったので, 前述の試料とは違って, 圧縮方向に対して直角な方向への変形は制限されていた。それ故, 反抗力の緩和はきわめて緩慢であり歪エネルギーの解放は主として再結晶によって徐々になされているものと考えられる。母結晶の激



第5図 第4図の薄板の圧縮，及び焼鈍過程における反抗力曲線と再結晶粒 A, B, C, D の成長曲線

しく組織の乱された領域から発生した再結晶粒 A, B, C, D は、焼鈍を開始してから図に示されるようにそれぞれ一定の時間隔をおいて成長していったのである。16 mm film 解析から再結晶粒の形成が認められたのは  $8.4 \text{ kg/cm}^2$ 、7% の圧縮歪を与えた時であったが、圧縮が進行するにつれて、新たな結晶粒の芽が生成、消滅をくり返してゆくようである。圧縮を止め焼鈍状態に入ると、それら無数の再結晶粒のなかから特に選ばれた少数の strain-free の結晶粒が、大きく成長していくのである。A, C につづき3番目に出現した B 結晶の成長速度は大きく、A, C を追越してどんどん成長をつづけた。この結晶粒 B の結晶主軸の方向は、圧縮方向に対して  $38^\circ$  の傾きをもち、成長するため侵食した母結晶、つまり結晶 M に対しては  $53^\circ$  の傾きを持っていたのである。

## 2. 単結晶をはり合せて作った、人工的双結晶の圧縮 (熔接粒界をもった試料)

圧縮応力下における再結晶ならびに粒界移動現象を調べるためには、実験条件を簡単にするために粒界が直線である双結晶の薄板を用いると便利であるし、両結晶の主軸の方位差も、任意に選べるのが望ましい。しかしこのような条件を満たす試料を、市販氷や、水を凍結させてつくった氷から選び出すことは大へんむずかしい。それで次のような方法で人工的双結晶をつくることにした。人工的双結晶ならば上の条件を満たすことは比較的容易である。まず、氷河氷の大きな単結晶から主軸を面内に含む肉厚の板を2板切り出す。次に板の面に直角にはり合すべき側面をカンナで削って平らにする。主軸の方位がはり合す面に直角になるように側面を向き合せたまま、 $+4^\circ\text{C}$  の部屋で水を暖める。氷の表面がわずかにとけてぬれた状態になった時に、かるくおしつけて両結晶の側面を接触させる。このとき境界には通常気泡が捕捉されるが、両側の結晶に少し力を加えて押しつけ、たまっている水をしばらく出すようにすると、気泡を追い出すことができる。そうして再び  $-1^\circ\text{C} \sim -5^\circ\text{C}$  の低温室内で、ゆっくり凍結させる。そして約3日間低温室内に放置し焼鈍する。最後に熔接粒界が中央にあるような、厚さ 1 mm、たて、よこ  $3 \times 4 \text{ cm}$  の短形の薄板に整形する。

一般に結晶粒界をはさむ二つの結晶に応力がかかった場合、どちらの結晶粒が他の結晶粒

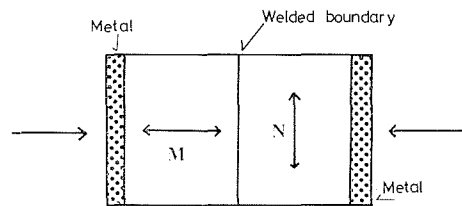
を侵食していくか、いいかえると境界がどちらの結晶の方に移動するかは加えられた外力によって高められる両結晶の弾性自由エネルギーの大小によってきまる。境界は自由エネルギーの低い結晶の方から高い結晶の方へ動く。いいかえると自由エネルギーの高い方の結晶が低い方の結晶に侵食される。この自由エネルギーの増加は、外力が同じでも、外力の方向と結晶主軸との相対的關係できまる。

一般に、氷に氷りが起こらぬよう圧力  $P$  で圧縮した場合、自由エネルギーの増加は、 $\Delta F = P^2/2E$  で与えられる。ここに  $E$  は氷のヤング率である。氷のヤング率  $E$  は、結晶主軸の方向に外力が加わった場合の方が主軸に対し直角に応力が加わった場合に比べて大きい。この実験では圧縮軸に対する双結晶の主軸の方位を自由に変えることができるので、二つの結晶内の自由エネルギーの差を調節できることになる。このような人工双結晶について、圧縮応力を加えたとき、方位差の関数として粒界がどのように移動するか、または双結晶の内部にどのような変化がおこるかを偏光顕微鏡によって観察した。

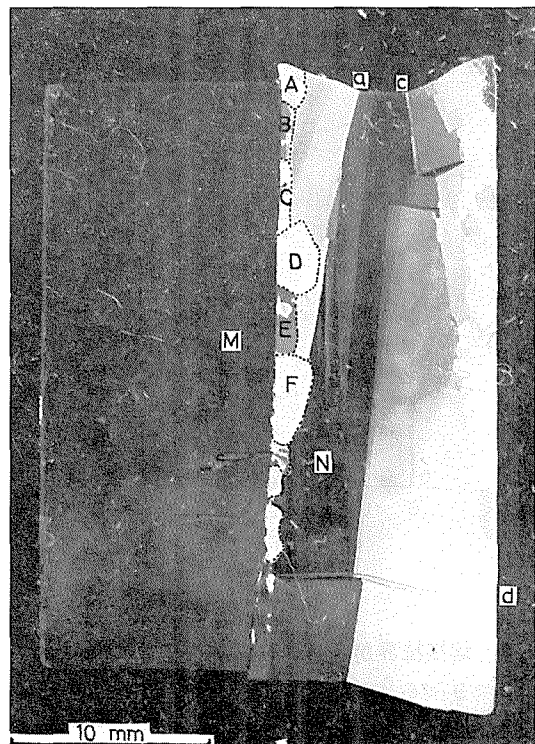
**A. 方位差角が  $90^\circ$  の熔接粒界から結晶粒が発生し、かつ成長してゆく場合**

第6図のように熔接粒界をはさむ二つの結晶の主軸の方向は互いに直交するようにし、一方の結晶粒の主軸方向を圧縮方向と平行に（以下これを M 結晶という）、他方のそれを圧縮方向に対し直角にかつ粒界に平行に配置（以下これを N 結晶という）して圧縮した。このような配置で左右から圧縮すれば、ヤング率の関係から N 結晶の単位体積当りの弾性エネルギーは M 結晶のそれよりも高くなる。また両結晶共底面にはせん断応力は働かないから氷りは起らない筈である。

第7図は、このような氷の薄板を  $-4^\circ\text{C}$  で12% 圧縮した後、20時間たって写した偏光写真である。図の中央にある線が熔接境界である。写真からあきらかに試料に与えた12%の圧縮歪は、ほとんど結晶 N がうけもっており、結晶 M の変形は非常に小さい。圧縮をはじめると同時に、底面す



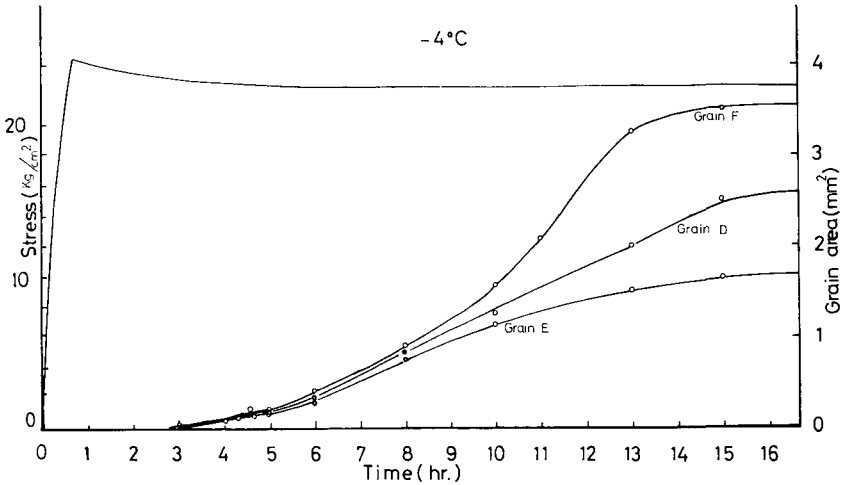
第6図 方位差角  $90^\circ$  の熔接粒界をもつ薄板の、各結晶の主軸の配置



第7図 方位差角  $90^\circ$  の熔接粒界をもった人工双結晶の圧縮。10%の圧縮歪を与えた後、 $-4^\circ\text{C}$  で20時間焼鈍した場合。圧縮前の寸法=たて  $3.3\text{ cm} \times$  よこ  $2.6\text{ cm} \times$  厚さ  $0.1\text{ cm}$

べりが多数生じ、N 結晶内に多数の屈折面を作って多結晶化し、そうして大きな底面剝離が三個所も入ってしまった。特に粒界と、屈折面  $\overline{ab}$  に囲まれた三角形の部分、また金属板と接する外辺と、屈折面  $\overline{cd}$  とに囲まれた三角形の部分では、おおくのすべり帯が観察されたが、やがて圧縮歪 4.5%、応力が  $7 \text{ kg/cm}^2$  に達したとき、この二つの三角形の領域のなかでとくに粒界と左右の金板板に接しているところから再結晶粒の生成が認められ成長していった。粒界や金属板との接触面で発生したたくさんの再結晶粒は、圧縮が進んでいる間は互にくいあって生成、消滅がくり返されていくのである。12% の歪量になったときに、圧縮をやめて焼鈍させた。そうすると選ばれたいくつかの再結晶粒が、先に述べた二つの領域のなかで急速に広がっていったのである。そのいくつかの結晶に A, B, C, D, E, F 等の印をつけた。圧縮方向に対する母結晶 M, N の主軸の方向による弾性率の差を考慮して両結晶の単位体積当りの自由エネルギーを比較すると、N 結晶の方が M 結晶に比べて高い。うえにのべたいろいろな変化はすべて自由エネルギーが高い N 結晶の内部でおこっていることを注意しなければいけない。

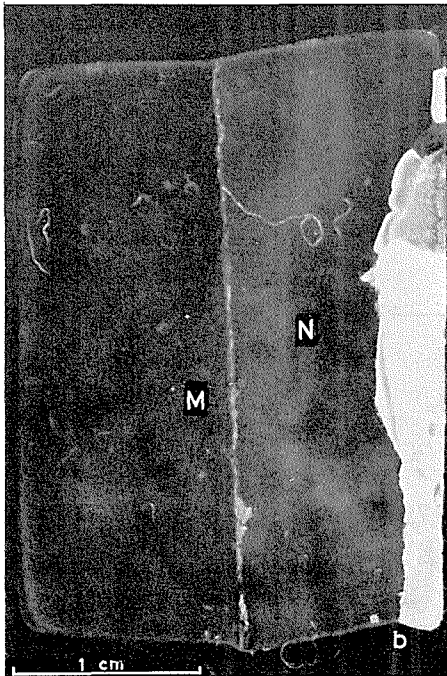
第 8 図は、この試料を圧縮したときの反抗力曲線といくつかの再結晶粒のうち D, E, F の三つの成長曲線を示したものである。反抗力曲線は、圧縮の増加をやめると同時にゆっくりと緩和しはじめる。D, E, F の三つの再結晶粒が観測にかかる成長をしはじめたのは、圧縮をとめてから約 3 時間後であった。これらの再結晶粒の結晶主軸の方向は、圧縮方向に対して、それぞれ  $30^\circ$ ,  $47^\circ$ ,  $20^\circ$  の傾きをもっていた。



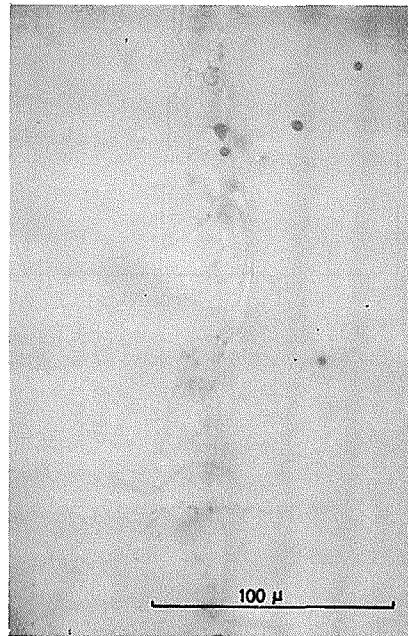
第 8 図 第 7 図の試料の圧縮及び焼鈍過程における反抗力曲線の変化と、再結晶粒 D, E, F の成長曲線

## B. 熔接粒界から再結晶粒が成長しない場合

第 9 図も、第 6 図と同じ配位の氷の薄板を圧縮した場合で、温度を下げ  $-9^\circ\text{C}$  で 10% の圧縮歪を与えて、約 40 時間経たのちの写真である。中央に上下に走る白い線が熔接粒界である。この試料の形は、最初矩形であったが、圧縮によって写真のように変形した。このとき熔接粒界付近では、高倍率の顕微鏡下で観測すると、微結晶が粒界にそって N 結晶のなかにたくさんできていた。この様子が第 10 図に示されている。しかしこれらの微結晶は、時間がいく



第9図 熔接粒界から再結晶粒が発生、成長しなかった例 ( $-9^{\circ}\text{C}$ , 歪量 10%) 圧縮前の寸法 = 長さ 3.2 cm × 幅 2.4 cm × 厚さ 0.1 cm



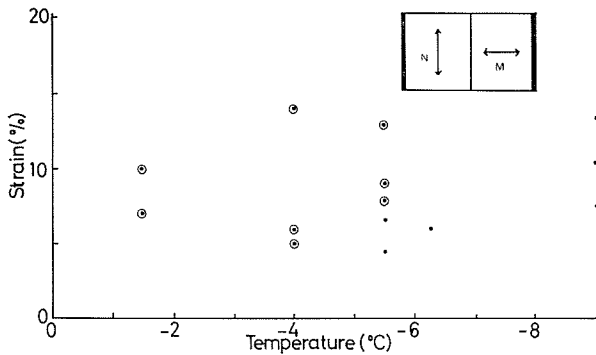
第10図 熔接粒界に発生した微結晶

らたっても大きく成長することはなかった。この理由としては、温度が  $-9^{\circ}\text{C}$  という低温であるためと、粒界付近での塑性変形が少ないことによると考えられる。しかし N 結晶が金属壁と接する部分 (写真の右側) では塑性変形がおりそこで再結晶が生じているのである。観測の結果によれば、まず金属壁に近い b と印したところに圧縮の進行とともにすべり模様があらわれ、それはやがて屈折面を作って折れまがった。この屈折面と壁とで囲まれた部分に圧縮の進行とともに再結晶化が生じたのである。このように再結晶粒が成長するのは塑性変形を受けた領域に限られるようである。したがって  $-9^{\circ}\text{C}$  の低温では、10% 前後の歪を与えただけでは、熔接粒界からは顕著な再結晶粒の成長は観測されなかった。観測にかかるような再結晶粒の成長を生じたのは少くとも歪が 17% 以上に達したときであった。

### C. 熔接粒界から発生した再結晶粒の成長と歪及び温度との関係

人工的に双結晶をつくり熔接境界の両側の結晶の主軸の方向を第7図のように  $90^{\circ}$  になるように配位し、境界に対し垂直に圧縮応力をかけ境界の移動を調べた。境界は自由エネルギーの低い M 結晶の方から自由エネルギーの高い N 結晶の方へ移動するのであろうと期待された。しかし実験結果は境界は移動せず、その代わりに境界の自由エネルギーの高い結晶の側に沿って微結晶の形成がみられた。そして N 結晶が塑性的にしたとき、その微結晶のうちある選ばれた数個の結晶が成長して行った。その微結晶が成長するかどうかは歪の量と、温度とに関する。

第11図は、人工の双結晶を圧縮し、5~20% の範囲で歪を与えた場合、再結晶粒が成長した温度と、しなかった温度を示したものである。ここにプロットした試料の、粒界をはさむ二



第11図 熔接粒界から発生する再結晶粒の成長と歪、温度の関係。⊙印は熔接粒界から再結晶粒の発生、成長があった場合。●印はそれがなかった場合

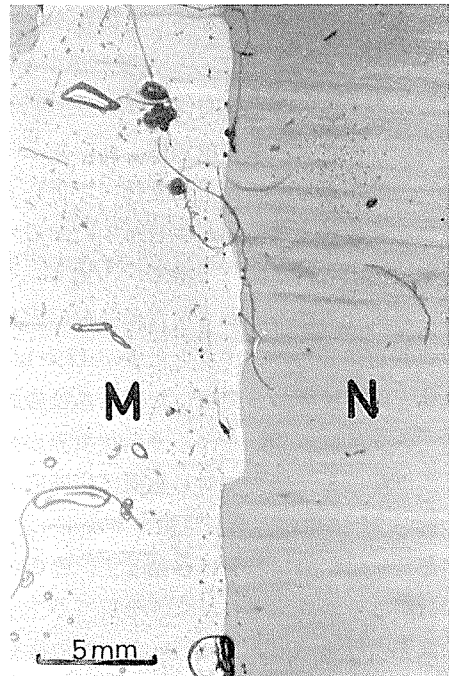
つの結晶の主軸の配位は図示のとおりである。測定温度は、 $-1.5^{\circ}\text{C}$ 、 $-4^{\circ}\text{C}$ 、 $-5.5^{\circ}\text{C}$ 、 $-9^{\circ}\text{C}$ の4点である。図中⊙であらわされた試料は、粒界で発生した結晶粒が、歪んだ結晶の中で成長した場合、図中の●印は粒界での再結晶粒が測定可能な程度には成長しなかった場合である。融点に近い $-1.5^{\circ}\text{C}$ では、5~6%以上の歪量を与えると、再結晶粒の成長があるが、 $-9^{\circ}\text{C}$ になると13%の歪をあたえても再結晶粒の成長が粒界付近からはおこらなかった。 $-5.5^{\circ}\text{C}$ では、歪が7%以下のときは、結晶粒は成長しなかったが歪量を7%以上になると成長した。この実験のように境界をはさんで隣接する結晶の主軸の方位差が $90^{\circ}$ という極端な場合には、圧縮によってN結晶が塑性変形してしまい熔接境界は移動せず、N結晶内部に再結晶が観測された。粒界移動が観測されたのは次に説明するように、温度がきわめて融点に近い場合しかも粒界付近のごく局所的な領域でのみ観測された。

#### D. 方位差角 $90^{\circ}$ の場合の粒界移動

第12図は主軸配位が、第6図と同じ人工双結晶を、 $-1.5^{\circ}\text{C}$ で4%の圧縮歪を与えて、約20時間後に写した偏光顕微鏡写真である。図にみられるごとく結晶Mの領域が、結晶Nの領域に侵食しつつある。境界をはさむ双結晶の主軸の方位差が $90^{\circ}$ という大傾角の場合、境界がM→Nの方向に移動するためには、境界での分子の再配列に大きなエネルギーを必要とするであろう。したがって温度が低い場合は境界は移動せず、むしろN結晶内部で塑性変形と再結晶化がおこったのである。しかしこの実験のように温度が極めて融点に近い場合は、境界は多かれ少かれ流動化し、liquid-likeになっているため境界移動が観測されたものと思われる。しかしこの粒界移動も圧縮応力を増さない限りこれ以上面積を拡大することとはなかった。

#### E. NaClを含む熔接粒界の移動

融液のなかで結晶が成長してゆく場合は、二つの結晶の境界には、通常不純物が偏析される。これが結晶境界の物理的性質に大きな影響をもつ



第12図 熔接粒界の移動した例 ( $-1.5^{\circ}\text{C}$ , 歪量4%)

ことは想像に難くない。しかし人工的双結晶の境界は結晶成長によって自然につくられる境界ではなく熔接境界である。試料をつくるときは  $+4^{\circ}\text{C}$  の部屋で表面が少しとけている状態の二つの結晶を、左右から圧力をかけ押しつけ熔接するので、境界からは水がしぼり出されてしまうため、境界に不純物が包含される可能性は少ない。それで境界における不純物の影響を調べるため次のようにして熔接粒界に不純物を導入することをこころみた。

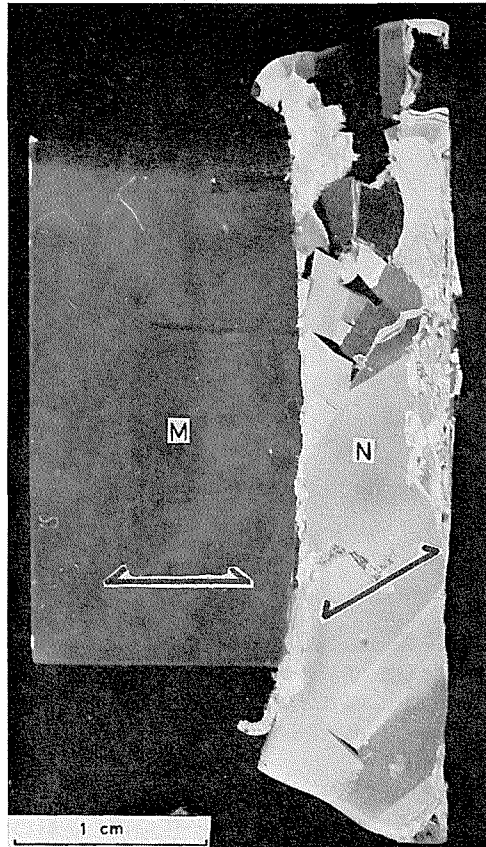
人工的に第7図と同じ結晶配置をもつ試料をつくる時、二つの結晶の熔接界面に、 $\text{NaCl}$  を  $10^{-1}$  規定溶かした水溶液をぬって、強く押しつけないではり合わせた。こうすると二つの結晶は  $\text{NaCl}$  を含む水溶液のうすい膜でつながるであろう。このようにしてつくった試料を、 $-6^{\circ}\text{C}$  で、5% の圧縮歪を与えて20時間焼鈍してみた。この変形をみると今までの例と同じく結晶主軸が熔接粒界に対して平行になっているN結晶の中に多くの傾角粒界が出来、再結晶粒は、母結晶Nとは異なる結晶配位をとりつつ粒界から出発して成長した。こういう傾向はこれまでと同じであったが、これにつけ加えてM結晶からN結晶の方への境界移動が観測されたのである。不純物を含まない熔接粒界の場合は、 $-1.5^{\circ}\text{C}$  という大へん融点に近い温度でなければ境界が結晶  $M \rightarrow$  結晶  $N$  へと移動することはなかった。しかし  $\text{NaCl}$  の入っているこの試料の熔接粒界は、ほぼ同じ歪量に対して  $-6^{\circ}\text{C}$  という低温で移動が観測された。筆者は先の報告<sup>7)</sup>で、 $\text{NaCl}$  を添化した氷の微結晶の粗大化の速度が、純氷の場合に比べて大きくなることを述べたが、 $\text{NaCl}$  の添加にによって熔接境界は liquid-like になっており、境界での分子の再配列が容易になっているものと考えられる。

**F. 方位差角、 $135^{\circ}$  の熔接粒界をもつ**

**双結晶の圧縮**

これまでの実験は、熔接粒界をはさむ二結晶内の結晶主軸の方位差が  $90^{\circ}$  である試料についての圧縮実験であったが、この実験では方位差を  $135^{\circ}$  に傾けてつくった試料を圧縮してみた。

第13図は、このような配位をなすようにつくった双結晶に16%の歪を与えて  $-5.5^{\circ}\text{C}$  で、約20時間焼鈍した後の写真である。M及びN結晶の主軸の向きは、それぞれ矢印で示した。結晶Mの主軸方向が、圧縮を加えた方向である。MとNとの主軸の方位差は  $135^{\circ}$  であるから、結晶Nの主軸は、圧縮方向

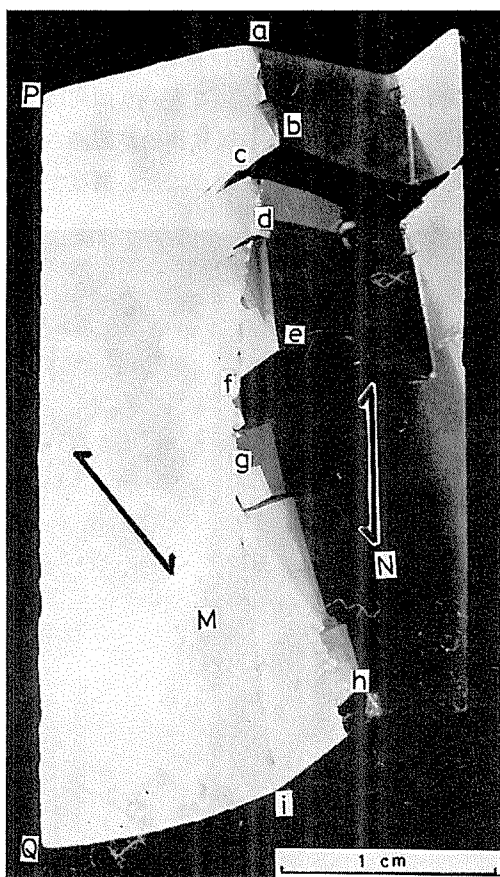


第13図 方位差角、 $135^{\circ}$  の熔接粒界をもつ双結晶の圧縮。(  $-5.5^{\circ}\text{C}$  , 歪量 16% ), 圧縮前の寸法 = たて 2.6 cm × よこ 2.5 cm × 厚さ 0.1 cm

と粒界とに対し、 $45^\circ$ の傾きをもつことになる。写真にみられる通り試料全体の歪は16%であったが、M結晶はほとんど変形をせず、N結晶は約30%の歪をうけ変形した。N結晶の内部には底面すべり、底面剝離、屈折面の形成等著しい組織の変化がみられる。そして激しい塑性変化にともなう細胞化が、熔接粒界及びN結晶が外壁と接するところにみられる。その一部は、N結晶の下の方から細いひもようになって空中に突出している。

### G. 方位差角 $45^\circ$ の熔接粒界をもつ氷の薄板の圧縮

第14図は、熔接粒界をはさむ両側結晶の主軸方向が互いに $45^\circ$ の傾きをもっている場合の双結晶を、 $-5.5^\circ\text{C}$ で12%の圧縮歪を与えたのち、20時間後の写真である。この試料の最初



第14図 方位差角 $45^\circ$ の熔接粒界をもつ双結晶の圧縮。圧縮前の双結晶の寸法 $=2.8\text{ cm}\times 2.4\text{ cm}\times 0.1\text{ cm}$

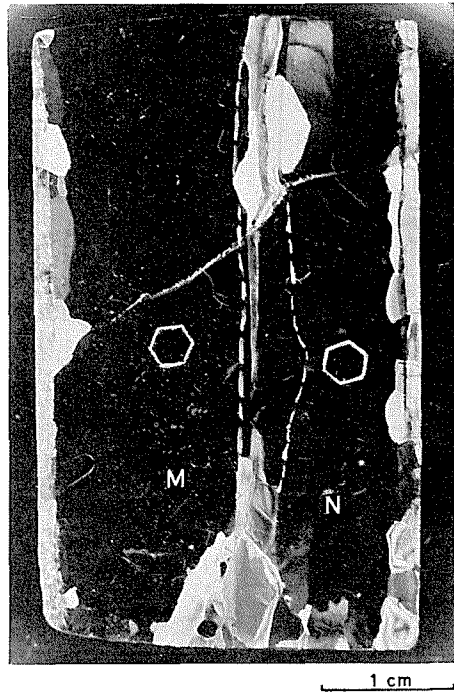
の状態での主軸方向の配位は、矢印で示されている。したがって結晶Mの主軸は、最初は圧縮方向及び粒界に対しそれぞれ $45^\circ$ の傾きを持ち、結晶Nのそれは、圧縮方向に直角、粒界に対して平行な方向であった。この変形を詳しく観察すると、N結晶では大小さまざまな底面剝離と傾角粒界が形成され、M結晶では底面沁りがおこなっていることがわかる。もとの熔接粒界はa, c, d, f, g, iであったからこの境界をのりこえてM結晶がN結晶の領域に侵入するのである。すなわちあきらかに粒界移動がおこなったのである。そしてN結晶内部に移動した粒界は直線で対称傾角粒界を形成している。これらの屈折面の形成過程は、刃状転位の移動によるものであろう。前節の実験に使用された境界をはさむ双結晶方位差角が $90^\circ$ という試料では熔接境界の移動は実験温度が融点に近い場合(第12図)とNaClが境界に添加された場合を除き、ほとんど観測されなかった。このことは方位差が $90^\circ$ という極端な大傾角の場合は、一方の結晶の分子配列が他方の結晶の分子配列にならび変るためには、境界に何らかのliquid-like layerの如きものが介在しない限り困難である

ことをうなづかせる。しかしこの実験ではM結晶の主軸は $45^\circ$ 傾むいており底面沁りで図のような変形がおこなった。圧縮前の試料の寸法はたて $2.8\text{ cm}\times$ よこ $2.4\text{ cm}\times$ 厚さ $0.1\text{ cm}$ であったから圧縮後はM結晶の左側PQは $3.5\text{ cm}$ に引のばされた。そのためもとの境界aiには大きな応力集中がおこなったことになる。このためにN結晶には底面剝離と多くの屈折面(小傾角境界)が生じたのである。前論文で、筆者は粒界エネルギーと、方位差角との観測から方

位差が  $20^\circ$  以下の場合の境界は Read-Schockley の式を満足し、転位境界と考えられることを示した。第 14 図の写真にみられる通り移動しつつある小傾角粒界が剥離した底面と交叉している角度は大変小さい。したがってこの場合の小傾角粒界移動のは方位差角が  $20^\circ$  以下の転位粒界となつてつぎつぎと移動してゆくものと考えられる。

**H. 両側の結晶主軸は平行で副軸のみ異なる  
熔接境界をもつ水の薄板の圧縮**

第 15 図は、結晶 M と N の主軸が互いに平行であるが (c 軸はともにこの紙面に垂直。従つて結晶 M, N の面は底面である。), a 軸の傾きが異なる熔接境界をもつ水の薄板を圧縮し、10% の圧縮歪を与えたあと、 $-1.5^\circ\text{C}$  で 20 時間、焼鈍したときの写真である。M, N 両結晶の a 軸の方向は、M 結晶は境界に対して  $45^\circ$  の傾きをもち、N 結晶は境界に対して  $71^\circ$  の傾きをもっている。したがつて、この熔接境界をはさむ a 軸の方位差角は  $26^\circ$  である。圧縮は、写真の左右から行なわれた。したがつて圧縮方向と結晶 M, N の主軸は直角である。



第 15 図 副軸のみ異なる熔接境界をもつ水の薄板の圧縮。 $(-1.5^\circ\text{C}$ , 歪量 10%) 圧縮前の寸法=たて 4 cm × よこ 3.2 cm × 厚さ 0.1 cm

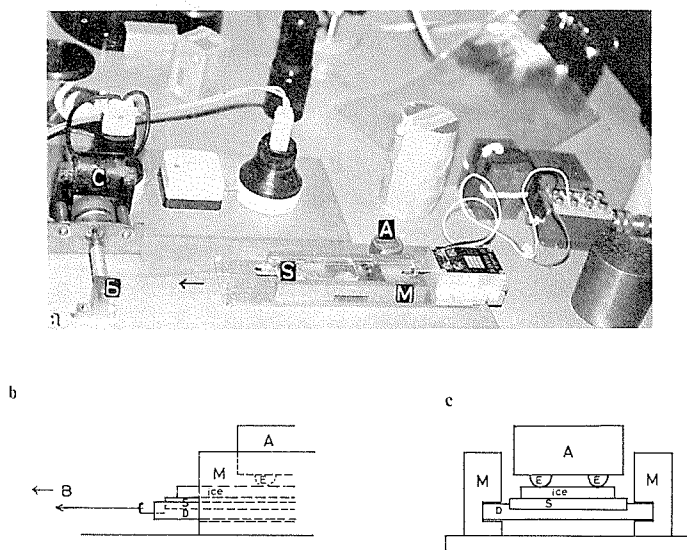
したがつて 10% の塑性変形は、M, N 両結晶内部での非底面すべりによって生じたものと考えられる。したがつて圧縮したあとおこる変形の様子も写真にみられるように両結晶においてほとんど大きな差はなく、再結晶は熔接境界及び左右から両結晶を圧縮している金属壁との接触面から成長している。20 時間後に再結晶粒の成長した面積を測定すると、全体の 25% に達した。図の中に示した白い六角形は、この底面の副軸の向きを示している。

**3. 圧痕にともなう再結晶と粒界移動**

黒岩<sup>9)</sup>は氷の表面の熱腐蝕を研究している際、氷の表面を研磨すると傷痕にそつて地結晶とは異なる配位をもつ微結晶が成長してゆくことを見出した。また北原、河村<sup>10)</sup>等は氷の硬度を測定している際、硬度計の押し込みあとに再結晶化がおこることを見た。同様な現象は、金属結晶に於いても表面に傷痕をあたえたとき再結晶化がおこることが知られている<sup>11)</sup>。氷について圧痕または傷痕にともなう再結晶について、加える力を変えたり、温度条件をかえたりしての系統的研究はあまりなされていないようである。筆者は、特別につくられた装置によって氷の表面に圧痕または傷痕をあたえこれから発生する再結晶粒の挙動を調べた。これまでの定速圧縮の実験では結晶にかかる力は、0 から徐々に増大し一定値に達してから徐々に減衰するという経過をとる。しかしこの実験のように氷の表面を引搔く場合は力は局部的でかつ瞬間的にかかる。この意味において傷痕にともなう再結晶化現象の研究はこれまでの研究を補足することになるであろう。

### A. 実験装置と方法

第16図 a は、この実験のために用いた装置の写真で、b、c 図は、氷の表面に圧力を加える部分の略図である。b は側面図、c は断面図である。この図の中で、氷の薄板をはりつけたスライドガラス S は、しんちゅうで作ったわく (D) の上に、はめ込まれ固定されている。このしんちゅうわく D は、しんちゅう製の案内 M のみぞにはまっけて B 方向にはずべるが上下には動かない。しんちゅうわく D には L 字形の釘が取り付けられ、これにかけられている糸は、モーター (C) のシャフト (B) に結びつけられ、約 5 mm/分 の速度でまきとられるので、しんちゅうわく D は移動する。氷の表面にのせるしんちゅうブロック A の下には、直径 3 mm のボールベアリング (E) が 3 個とりつけられている。このしんちゅうブロックによって、氷に圧力を加えるのである。圧力を加えようと思えば適当な重りをしんちゅうブロック A の上に乗せて圧縮歪を与える。しんちゅうブロックは固定されているので、氷の板が、モーターの回転とともに左に移動すると、氷の表面に、ベアリングによる圧痕をつけることになる。圧痕のついた氷は、直ちに装置からはずされ、あらかじめ一定温度に保たれている顕微鏡のステージの上におかれて圧痕に生ずる再結晶化が観測されるのである。



第16図 氷の表面に圧痕を与える装置。a) 全体写真、  
b) 歪を入れる部分の側面図、c) 同断面図

実験の都合上、氷の表面に圧痕をつける部屋の温度は  $-6^{\circ}\text{C}$  に保った。痕跡の幅は、荷重で多少異なるが凡そ 0.7 mm の程度であった。しんちゅうブロックの上に乗せた重りの重量は、460 g, 920 g, 1.4 kg, 1.7 kg, 2 kg と 5 種類準備したが、もっとも軽い 460 g の重りをのせた場合、氷に圧痕はついたが、微結晶の発生は認められなかった。920 g の重りをのせた場合は、圧痕にはモザイク状のぼんやりとした模様のなかに再結晶粒界が認められた。しかしそれらはやがて時間とともに、りんかくが明瞭になっていった。1.4 kg 以上の重りで圧痕をつけた場合には、試料を顕微鏡のステージに移し、観測をはじめた時点では、すでに明瞭な境界をもつ微

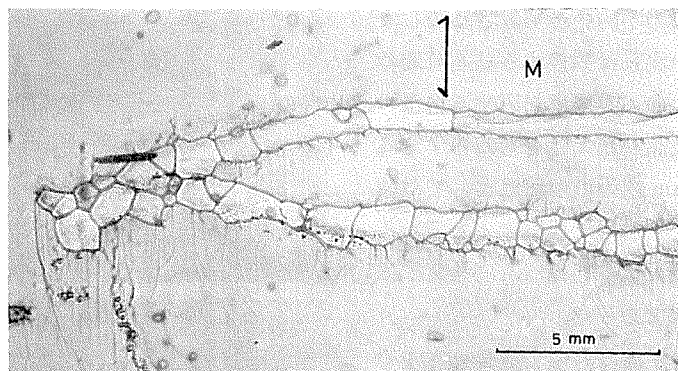
結晶の存在が認められた。しかし今回の実験では、氷の表面に再結晶化をおこす圧力の限界値をあきらかにすることはできなかった。

圧痕の焼鈍温度は、 $-2^{\circ}\text{C}$ 、 $-5^{\circ}\text{C}$ 、 $-10^{\circ}\text{C}$ の3点で行なった。

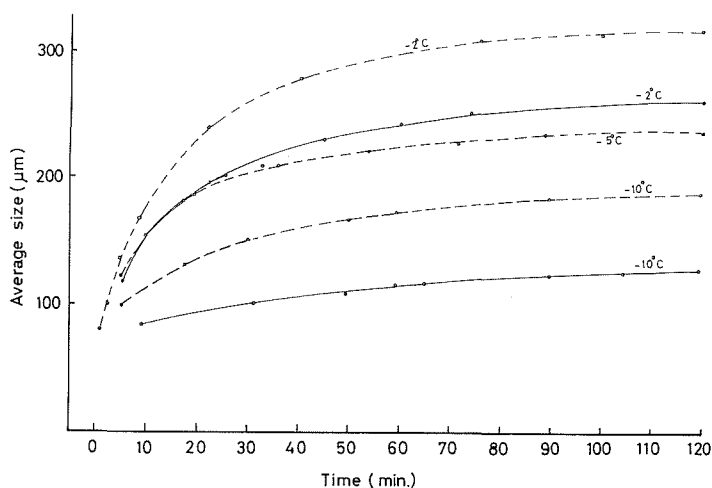
**B. 結果と考察**

i) 引掻によって生じた氷の表面の微結晶の成長

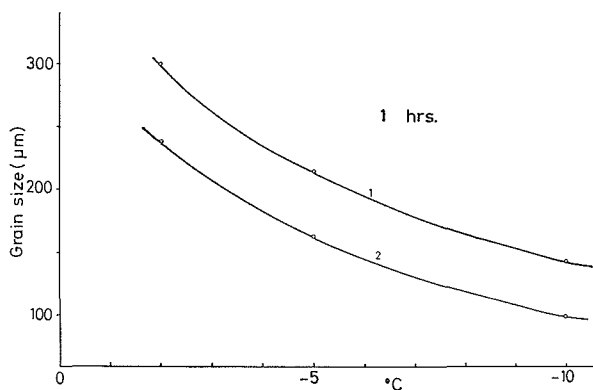
第17図は、圧痕に沿って成長した微結晶の一例である。母結晶 M の結晶主軸の方向を矢印で示す。母結晶の面は、柱面 (11 $\bar{2}$ 0) である。この実験では、しんちゅうブロックの上のせた荷重は 2 kg であった。圧痕は、 $-2^{\circ}\text{C}$  の氷飽和の空气中で、20 時間焼鈍した。なお、圧痕が 2 本入っているのは、氷の表面を 2 回スクラッチしたためである。ボールベアリングがつけた圧痕の外側に、一方向に多数のウロコ状の割目や、小傾角粒界が生じた。割目は、その破面が癒着したあとに小さな気泡を残している。この写真の再結晶は、20 時間の焼鈍によって大体成長し終ったものであるが、それでも圧痕の幅を大きく越えて成長し、母結晶をどんどん侵食することはなかった。このことは、ボールベアリングによる圧縮歪がきわめて局部的であることを示している。



第17図 圧痕に沿って成長した微結晶



第18図 氷の表面の圧痕に生じる微結晶の成長



第19図 圧痕に沿って成長した微結晶の1時間後の粒径と温度の関係

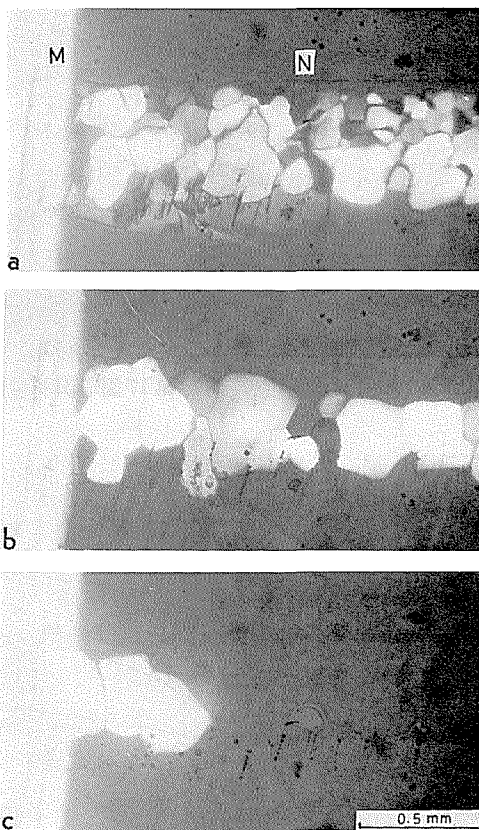
これは焼鈍の初期にはまだ歪エネルギーが十分解放されてないからである。そして焼鈍開始とともに歪は結晶粒の成長によって解放されてゆくものと考えられる。しかし十分時間がたつて外から加えられた力学的歪が解放されてしまえば、それ以後の成長は相接する結晶粒間の界面エネルギーと曲率半径に起因する自由エネルギーの差が結晶の粗大化をもたらすであらう。事実、16 mm 映画の解析によって微結晶の成長の様子をくわしく観察すると、ある程度経てからの粗大化の過程は、前論文に報告した過程と相似であった。

第19図は、圧痕に沿って成長してゆく微結晶の焼鈍開始1時間後の平均粒径と、温度の関係を加えた荷重をパラメータとしてプロットしたものである。曲線Iは、荷重として1.7 kg、曲線IIは1.4 kgの重りをのせてつくった圧痕から成長した結晶粒の平均粒径である。図にみられる通り、同一荷重に対しては焼鈍温度が低くなるに従って成長速度はおそい。

#### ii) 圧痕に沿って成長した結晶の消失

氷の単結晶の表面にボールベアリングでつけた圧痕に沿って成長した再結晶粒は、焼鈍とともに、粗大化してゆくことを述べた。しかし、これらの結晶は本来、エネルギー的に安定な単結晶のなかに無理に成長させられ

これらの微結晶の大きさを、その等面積径であらわし、時間に対してプロットしたのが第18図である。図中、破線で示した成長曲線は、与えた荷重が1.7 kgの場合、実線で示した曲線は、1.4 kgの荷重を与えた場合を意味する。図にみられるように焼鈍温度が高いほど、また与えた歪が大きいほど、微結晶の成長速度は、大きい。また1つの成長曲線を見ると、最初は急な速度で成長し、数十分たつと速度はゆるやかになる。



第20図 氷の表面の圧痕に沿って成長した微結晶の消失。-5°Cでケロシン中で焼鈍した。  
a) 焼鈍後1時間、b) 50間時、c) 70時間

たものである。従って母結晶に比べてエネルギー的に高い状態にある。それ故、若し焼鈍を長時間つづければやがては母結晶に吸収されるべきものと考えられる。この事をたしかめるために、長時間焼鈍をつづけた。

実験は焼鈍中の蒸発を防止するため試料を $-5^{\circ}\text{C}$ のケロシンの中に浸した。第20図 a は焼鈍開始後約1時間の写真であり、b 図は50時間後の同じ視野の写真である。a から b までに粒径は粗大化しているが、a 図の時点で圧痕幅全体を占めていた再結晶の領域はかえって小さくなっていることに気がつく。更に c 図は70時間たったあとの写真であるが、この傾向は著しく再結晶粒はほとんど結晶 N の結晶配位に逆もどりし消失してしまっただ。しかし注意してみると、もとの結晶粒の境界が結晶表面にかすかに残されている。a 図において微結晶の下に見える斜めの黒い線は、ボールベアリングの圧痕に沿って出来た割れ目である。この割れ目はやがてゆ着して、ゆ着面に気泡をのこしているのが b, c 図に観察される。

#### IV. 結 語

中央に一本の結晶境界をもつ双結晶を厚さ1 mm、たて、よこ $3\times 4$  cm の氷の薄板に整形したもの、2枚の単結晶の板を結晶軸がいろいろの方位差をもつように熔接した氷の薄板などを定速圧縮し、10% 前後の圧縮歪を与えたとき生ずる再結晶、および熔接粒界の挙動について調べた。また単結晶氷の表面をボールベアリングで引掻き、圧痕をつけたとき圧痕にそって生ずる微結晶の挙動を温度や荷重を変えて調べた。その結果、次のような知見をえた。

(1) 双結晶からなる氷の薄板を、定速圧縮したとき、通常、粒界より再結晶粒が発生し塑性変形の著しい結晶内部で成長した。

(2) 単結晶をはり合わせて作った人工双結晶の熔接粒界をもつ氷の薄板を圧縮したとき、結晶主軸の方位差角が $90^{\circ}$ のときは $-2^{\circ}\sim -4^{\circ}\text{C}$ では、5% 以上、 $-6^{\circ}\text{C}$ 以下では15% 以上の圧縮歪が与えられたとき、熔接粒界から再結晶粒が発生し成長した。この場合、再結晶粒が成長するのは必ず結晶主軸の方向が、熔接粒界に平行に配置された結晶であった。

(3) 方位差角 $90^{\circ}$ の人工双結晶では温度がきわめて融点に近いときは再結晶は発生せず熔接粒界の移動がおこった。また熔接粒界が NaCl を含む場合は、 $-6^{\circ}\text{C}$ の低温でも粒界移動が認められた。また熔接粒界をはさむ双結晶の方位差角が $45^{\circ}$ のとき小傾角粒界の移動が観察された。

(4) 氷の表面につけたボールベアリングの圧痕に沿って形成された微結晶の成長は、約数十分で圧痕の歪エネルギーが大体解放されてしまうのでそれ以後は界面エネルギーによる隣接結晶間の自由エネルギー差にもとづく粗大化がつづくが、長時間焼鈍すると、終いに母結晶に食われて消滅してゆくことが観察された。

この報告は、低温科学研究所の黒岩大助教授の指導によってなされたものである。論文の推敲、実験結果の討論に対して感謝の意を表します。また同研究所の若浜五郎助教授には、圧縮装置を使用させていただきました。併せて感謝の意を表します。

## 文 献

- 1) 鈴木重尚 1969 氷の微結晶の粗大化に関する研究 (I). 低温科学, 物理篇, **27**, 53-75.
- 2) 鈴木重尚 1970 氷の微結晶の粗大化に関する研究 (II). 低温科学, 物理篇, **28**, 33-45.
- 3) 鈴木重尚 1970 氷の微結晶の粗大化に関する研究 (III). 低温科学, 物理篇, **28**, 47-61.
- 4) 若浜五郎 1960 積雪の薄片を応用した積雪の組織と内部歪の研究. I~II. 低温科学, 物理篇, **19**, 37-96.
- 5) 若浜五郎 1962 氷の塑性変形について. I~IV. 低温科学, 物理篇, **20**, 57-130.
- 6) 若浜五郎 1963 氷の塑性変形について. V. 低温科学, 物理篇, **22**, 1-24.
- 7) 若浜五郎 1964 氷の内部破壊について. 低温科学, 物理篇, **23**, 39-50.
- 8) Higuchi, K. 1957 A new method for recording the grain structure of ice. *J. Glaciol.*, **3**, 22, 131-132.
- 9) 黒岩大助 1964 熱腐蝕法で観測した氷の研磨面の摩耗. 低温科学, 物理篇, **22**, 25-57.
- 10) 北原武道等 1970 氷の硬度の測定 II. 低温科学, 物理篇, **28**, 81-95.
- 11) P. A. Beck, P. R. Sperry, and Hsum Hu 1949 The orientation dependence of the rate of grain boundary migration. *J. Appl. Phys.*, **14**, 420-425.

## Summary

This paper reports experimental results on the recrystallization in mechanically strained ice crystals. In order to observe grain boundary migration and recrystallization occurring in stressed ice crystals, thin rectangular plates of bi-crystals (1 mm in thickness, 3×4 cm in area) were prepared from polycrystalline ice crystals grown from the melt. As it was difficult to obtain bi-crystals with desired crystallographic orientations from an ordinary ice block, artificial bi-crystals were made by welding two plates of single crystal of ice. In our experiments, the orientation of c-axis of two plates of single crystal which consists of artificial bi-crystal was perpendicular to each other. A specimen of bi-crystal was placed in a compressed apparatus mounted on the microscope stage and compressed uniaxially at the rate of 3.7  $\mu$ /sec. When the total strain of compressed bi-crystal attained approximately 5~15%, the recrystallization occurred in the plastically deformed crystal but no migration of grain boundary was observed when the temperature of specimens was not very near the melting point of ice. The rate of growth of new grains which appeared in compressed ice crystals was observed cinematographically and analyzed in relation to strain and annealing temperature. The growth of recrystallized grains formed along a mechanical scratch was also observed as a function of applied stresses.