



HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	X線トポグラフによる霜および平板氷の結晶欠陥の研究
Author(s)	水野, 悠紀子; MIZUNO, Yukiko
Citation	低温科学. 物理篇, 32, 13-24
Issue Date	1974-03-31
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/18242
Type	departmental bulletin paper
File Information	32_p13-24.pdf



X線トポグラフによる霜および 平板氷の結晶欠陥の研究*

水野悠紀子
(低温科学研究所)
(昭和49年10月受理)

I. ま え が き

昇華凝固過程によって生長する雪や霜の結晶をX線トポグラフによって観察することは、その生長機構と関連して興味あることである。

融液から生長した氷や、天然の単結晶に関して過去十年余りの間に多くの研究者によって氷の塑性変形^{1,2)}や生長過程³⁾、及び不純物^{4,5)}と転位との関係が明らかにされてきた。しかし、気相から生長した霜や雪の結晶をX線トポグラフで観察した例はほとんどない。筆者は、低温実験室内に数年間貯えてあった積雪の上に成長した大きな霜の結晶から適当な散乱強度を与えるのに十分な厚さの六角板結晶を使って霜の底面にある転位をX線トポグラフによって観察した。この結果の一部は既に発表した⁶⁾、今回はより大きな生長速度のもとで作られた結晶の観察もおこなった。数十個の霜の結晶の底面をX線トポグラフで観察した結果、転位像が全く認められない完全結晶がある一方、生長過程で導入されたと考えられる転位を含む結晶も多数見出された。この違いは、主に、生長速度の違いによるものと考えられる。結晶底面に存在する転位のほとんどは、 $\frac{a}{3}\langle 11\bar{2}0 \rangle$ のバーガスベクトルをもつ螺旋転位であるが、同じバーガスベクトルをもつ刃状転位も少数ながらみられた。そのほか、転位が互いに交差する所では、 $\frac{a}{3}\langle 1\bar{2}10 \rangle + \frac{a}{3}\langle 2\bar{1}10 \rangle \rightarrow a\langle \bar{1}100 \rangle$ の反応の結果、 $\langle 10\bar{1}0 \rangle$ 型のバーガスベクトルをもつ転位が形成されることが観察された。

氷の底面に腐蝕液としてフォルムバールの二塩化エチレン溶液(3~5%)をかけて作られる腐蝕像は、転位線の露頭であるといわれている⁷⁾。もしそうならば、これら腐蝕像と対応した転位線が、X線トポグラフで観察されるはずである。そこでX線トポグラフで転位線の位置を確認したのち、腐蝕像を作り、転位との対応を調べた。

II. 試料及び実験の方法

-15°Cの低温実験室の木箱の中に数年間貯えてあったしまり雪の上にさしわたし5mm~1cmにもおよぶ大きさの霜の結晶が生長した。

このような霜の結晶は、六角形、四角形のコップ型と角板結晶であった。このことから生長過程、特に生長速度や温度などが、長時間にわたって一定ではなかったことがわかる。

* 北海道大学低温科学研究所業績 第1333号

しかしいずれの結晶も非常にゆっくり生長したものと考えてよいであろう。筆者は、この中から取扱いの簡単な角板結晶を試料として使った。霜の結晶のばあい、その一端が、異物に固着して生長するために、天然の雪の結晶のように対称性のよいものばかりではなく、外形から六角板結晶の一部と考えられるものも含まれている。

一方、平板氷は、ポリエチレン容器に入れたまま、あらかじめ 0°C になるまで冷却した蒸溜水をシャーレの中に入れて表面からゆっくり生長させて作った。シャーレの側面と底面にはヒーターが巻きつけてあって、凍結が表面からだけ、しかも周囲が自由な状態のまま進行するようにした。氷の厚さが $5\text{ mm}\sim 1\text{ cm}$ になるまで生長させた。このようにして作られた平板氷は、ほとんど C 軸が表面に対して垂直であり、時には $10\text{ cm}\times 10\text{ cm}$ 位の大きさの単結晶が得られることもあった。単結晶の平板氷から約 $2\text{ cm}\times 2\text{ cm}$ の大きさの試料を切り出す。アルコールで周囲を溶かしつつ、 $1.5\text{ cm}\times 1.5\text{ cm}\times 0.1\text{ cm}$ の大きさにしたのち、 n -ヘキサンでアルコールを洗い落した。

霜の結晶は2枚のマイラー膜に挟んで昇華を防いだが、結晶の厚さが一様でないばあいには、マイラー膜と結晶表面の密着がよくないために、長時間にわたって保存することはできなかった。

実験には理学電機製マイクロフレックスとラングカメラA-3型を、又、MoとCuのターゲットを使用した。

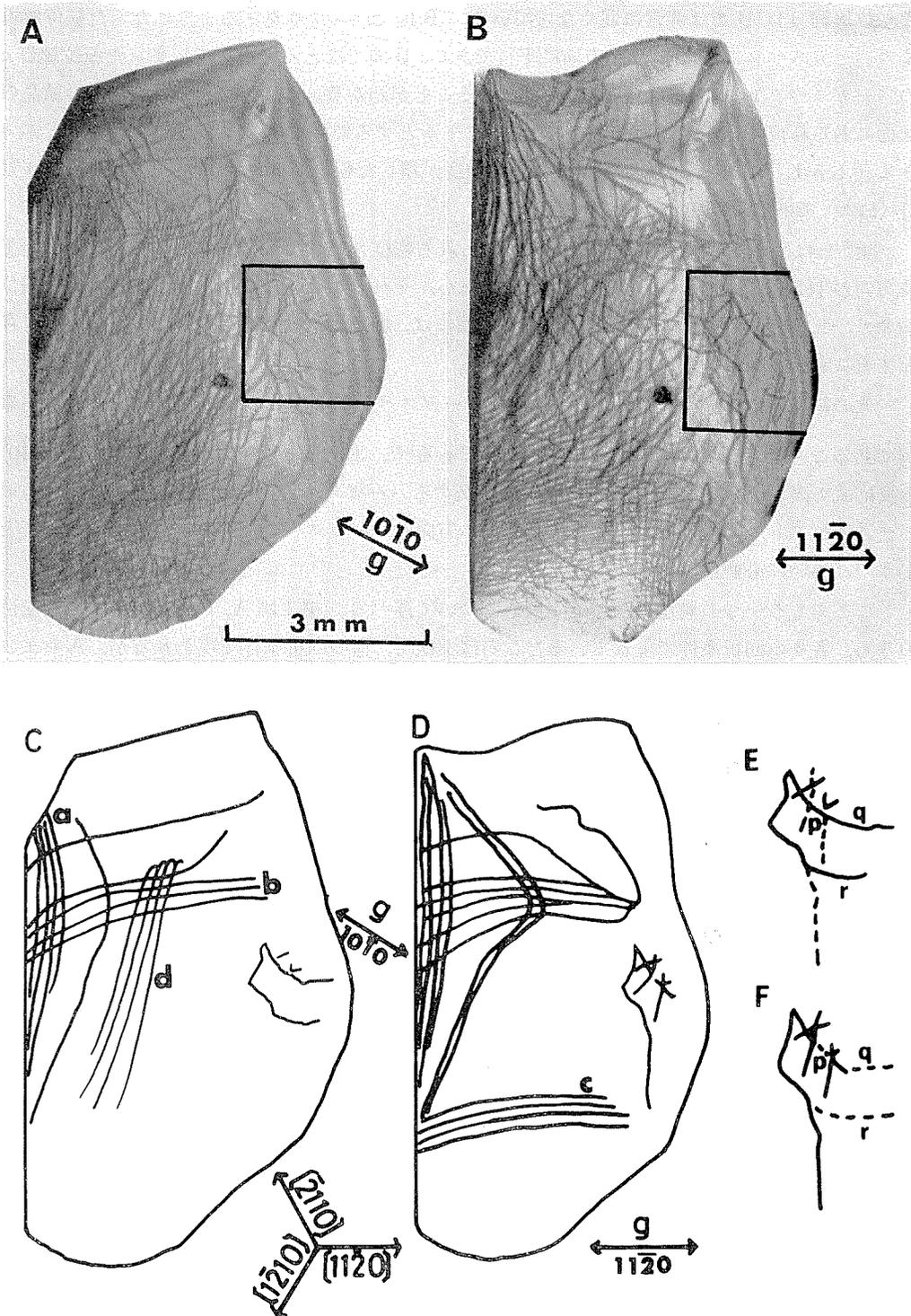
X線回折トポグラフを得るための条件は、反射面が $\{10\bar{1}0\}$ 、 $\{11\bar{2}0\}$ の二つのばあいをとったが、走査面はいずれのときも結晶底面(0001)である。なお、霜の結晶方位は外形から知ることもできるが、あらかじめラウエ法で確かめた。

III. 実験結果

1. 霜の結晶のX線トポグラフ

第1図A, Bに示したのは角板結晶のX線回折像である。結晶の大きさは、最も長い方向で約 9 mm 、厚さは約 1 mm であるが、写真の上方にむかって少しずつ薄くなっている。この結晶は下の部分で固着して生長したものであるが、この部分に多くの転位が密集している。

Aは \mathbf{g} ベクトル(反射面に垂直方向)が $\langle 10\bar{1}0 \rangle$ で、走査面が(0001)の回折像であり、Bは \mathbf{g} ベクトルが $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ の回折像である。A, B図に見られる転位線の方向をいくつかの特徴に分類して描いたのが、それぞれ第1図C, Dである。写真A又はそのスケッチCから明らかのように、霜の結晶中の転位も $[11\bar{2}0]$ 方向か、それと等価な方向に伸びている。しかしAには、 $\mathbf{g}\cdot\mathbf{b}=0$ の消滅則にしたがって $[\bar{1}2\bar{1}0]$ 方向のバーガスベクトルをもつ転位は見えていない。したがって $\langle 10\bar{1}0 \rangle$ を反射ベクトル \mathbf{g} としたばあい、 $[11\bar{2}0]$ と $[\bar{2}110]$ 方向のバーガスを持つ転位だけが現われることになる。更に、転位のバーガスベクトルや種類を正確に決めるためには、 $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ を反射ベクトルとしたときの回折像、第1図Bと比較しなければならない。B図での特徴は、転位線群a及び $[11\bar{2}0]$ 方向に走る転位群bの回折強度が増して、第1図Aよりもはっきり見えるようになったことと、写真Aの下の部分にぼんやりみえていた横方向に並ぶ転位線群Cが非常にはっきり現われたことなどである。一方、第1図Aで $[\bar{1}2\bar{1}0]$ 方向にほぼ平行



第1図 角板結晶の転位。A, Bの反射ベクトルはそれぞれ $\langle 10\bar{1}0 \rangle$ と $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ である。走査面は (0001)。C, Dは主な転位線のスケッチ, E, Fはそれぞれ A, Bの枠の中の転位を拡大したものである。

な転位線群 d は B では非常に弱くなっている。B 図ではっきり見えるようになった転位線群 C のバーガスベクトルは $[\bar{1}2\bar{1}0]$ 方向に平行であり、B 図でほとんど消えてしまった転位線群 d のバーガスベクトルは $[\bar{1}100]$ 方向に平行であることがわかる。このことから、この霜の結晶の底面にある転位は、 $\frac{a}{3} \langle 11\bar{2}0 \rangle$ をバーガスベクトルとする螺旋転位が最も多いということができる。しかし A でも見られるが、B で更に強度が増した転位線群 a は、バーガスベクトルが $\frac{a}{3} \langle 11\bar{2}0 \rangle$ である刃状転位と考えられる。

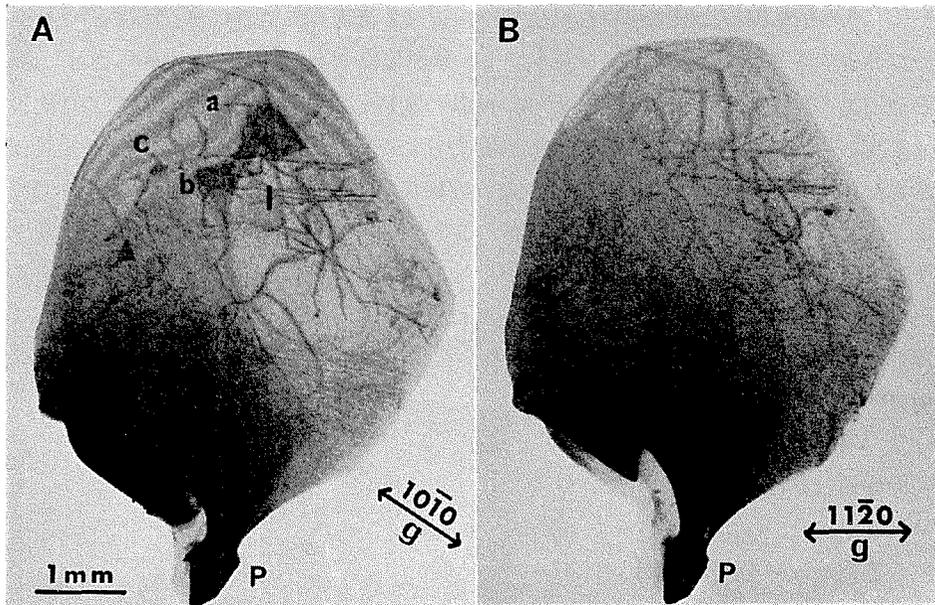
東³⁾らは、融液から生長した氷の中に見られる転位と結晶の生長方向との関係を調べ、生長方向が $[11\bar{2}0]$, $[10\bar{1}0]$ のときには、生長方向か、それと等価な方向に平行であるような転位が多く、一方 $[0001]$ 方向に生長した結晶の底面には、放射状か網目構造を作った転位が多く存在することを明らかにした。

水の結晶構造から考えて、最も基本的なバーガスベクトルは $\frac{a}{3} \langle 11\bar{2}0 \rangle$ であるが、これが事実であることは、他の実験結果からも明らかである^{1,4)}。また $\frac{a}{3} \langle 1\bar{2}10 \rangle + \frac{a}{3} \langle 11\bar{2}0 \rangle \rightarrow \frac{a}{3} \langle 2\bar{1}\bar{1}0 \rangle$ の反応式で表わされるように、互いに 120° で交差するバーガスベクトルをもった転位が、両方のバーガスベクトルに対して 60° をなす新しい方向のバーガスベクトルをもつ転位になることが氷のばあいにも観察されている。

ここでもう一つの異なった転位の反応について述べる。第 1 図 A, B の枠で囲まれた転位のうち、各々の回折条件で現れているところは実線で、他の回折条件で現われるが、A および B では、互いに消えてしまっているものを点線で描いて、それぞれを第 1 図 E, F に示してある。消滅則から第 1 図 E の点線部分は $[\bar{1}2\bar{1}0]$ 方向のバーガスベクトルをもつ転位であり、F の点線部分は $[\bar{1}100]$ に平行なバーガスベクトルをもっていることになる。両方の図で、実線で描かれた部分は $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ 型のバーガスベクトルをもった転位と考えてよいだろう。以上のことから E では実線、F では点線で示された転位 p, q, r は転位線が交差するところで、 $\frac{a}{3} [\bar{1}2\bar{1}0] + \frac{a}{3} \langle 2\bar{1}\bar{1}0 \rangle \rightarrow \langle \bar{1}100 \rangle$ のような反応の結果、 $\langle \bar{1}100 \rangle$ という新しいバーガスベクトルをもった転位が形成されたと考えることができる。このバーガスベクトルは、互いに 60° をなす二つの $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ 型のバーガスベクトルが反応した結果であると考えられる。

転位は結晶の内部で終端を持たないから、X 線トポグラフの上で途中で消えている転位像は、回折条件のために消滅しているのか、または表面に露頭をもったもののいずれかである。第 1 図の写真に後者の例がみられる。それぞれの写真の上部と右側にペンデル縞 (等厚干渉縞) がみられる。ペンデル縞は、試料がこの部分で連続的に薄くなっており⁵⁾、従って、この部分の表面がピラミッド面であることを示している。この部分に終端をもつ転位が何本かみられるが、これは底面上にのった転位が、ピラミッド面に露頭を出して、そこで転位が終っているのである。なお、ペンデル縞は完全性の高い結晶にしかみられない。このことから、この角板結晶は生長点と思われる下部のところに多くの転位を含んでいるが、結晶の先端部分では完全性の高い結晶であるということが出来る。

第 1 図に示したと同じ条件下で生長した別の結晶の X 線トポグラフを第 2 図に示した。この結晶は P 点のところで容器の壁面に付着していたものである。P のまわりには、多くの転



第2図 角板結晶の底面にみられる転位線と積層欠陥。A: 反射ベクトル g は $\langle 10\bar{1}0 \rangle$ 。B: 反射ベクトル g は $\langle 11\bar{2}0 \rangle$, 写真Aの上部中心の黒い回折像が積層欠陥である

位があって、各々の転位線を分解してみることはできない。しかし、2~3 mm 離れたところは転位密度が少なく、ほぼ完全結晶に近いものであることは写真から明らかである。第2図A, Bの走査面はいずれも(0001)面で、反射ベクトルはそれぞれ図に示した通りである。各々の回折条件で得られた写真から、ここにみられる転位は、バーガスベクトルが $\frac{a}{3} \langle 11\bar{2}0 \rangle$ である螺旋転位、及び 30° 転位である。特に直線状の転位 l は、 $b = \frac{a}{3} \langle 11\bar{2}0 \rangle$ の刃状転位と考えるよりは、 $b = \frac{a}{3} \langle 2\bar{1}\bar{1}0 \rangle$ の 30° 転位と考えた方がよいであろう

この結晶でのもう一つの特徴は、第2図Aの上部中心にみられる黒い像である。この像は反射ベクトルを $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ とした第2図Bでは完全に消えてしまっている。回折における消滅の条件から、この黒い回折像は、バーガスベクトルが $\frac{a}{3} \langle 10\bar{1}0 \rangle$ か $\frac{a}{6} \langle 20\bar{2}3 \rangle$ の底面内に含まれたショックレー型の積層欠陥であることは明らかである。これと同じ種類の回折像は、小黒¹⁰⁾らによって、 NH_3 を入れた氷の単結晶で観察されているほか、他の六方晶金属でも見出されている。

筆者は先に、ここに示した積層欠陥像とよく似た同心状の幾何学的模様を六角板の結晶中に見出した⁶⁾。しかしそのばあいには、反射ベクトルを変えても像の形が変わったり、消滅するようなことはなかった。したがって、筆者が先に観察したものは結晶の厚さの違いによるもので、積層欠陥とは異なったものである。数十個におよぶ霜のX線トポグラフの中で積層欠陥が見出されたのはこの一例だけである。

2. 平板氷の転位

氷の結晶で、最初に転位の観察がおこなわれたのは、樹枝状に生長した水面氷を使ってで

あった¹⁾。その結果樹枝状間に偏析した夾雑物によって導入される転位がほとんどであり、そのバーガスベクトルは $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ 方向を向き、主に螺旋転位であることが明らかにされた。

前節で述べた方法で平板氷を作ったが、凍結の初期の段階では、ところどころに円板氷が形成されているのが観察された。円板氷が自然の核になるようにしたが、樹枝状の生長はおこらなかった。すなわち、過冷却度が大きくなれば樹枝状生長をするので、できるだけ過冷却しないようにした。第3図 A, B に示したのが、このようにして生長させた平板氷の X 線トポグラフである。 g ベクトルは、それぞれ図に示したとおりで、走査面は (0001) 面である。

円形の試料ホルダーにとり付けられているために、円形の輪郭をしているが試料がこのように成形されているのではない。A, B の写真から底面に転位網が広がっていることがわかるが、樹枝状結晶にみられたものとは異なっている。写真 A の右半分の部分には、多数の転位線が密集しており転位線群のバーガスベクトルは、 $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ に平行で、各々の転位線はそれと平行か、又は、 $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ と等価な方向に平行であるものが多い。

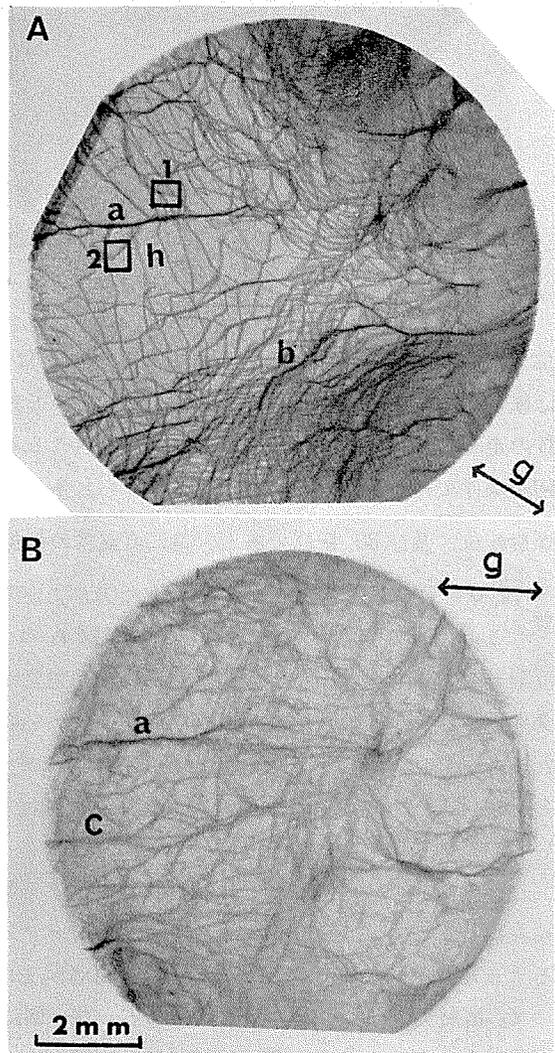
しかし、転位線群 a の下側に、これにはほぼ直角に交わる転位 (たとえば h) は g を $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ としたばあいには消滅していることから、 $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ と同等な方向のバーガスベクトルを有する刃状転位と考えるよりは、 $\langle \bar{1}100 \rangle$ に平行なバーガスベクトルを持つ螺旋転位であるとすべきであろう。転位線群 b についても同様のことがいえる。

逆に、写真 B で現われた転位線群 C は、写真 A では 1 本の転位線に対応しているものであるが、これは $g = \langle 10\bar{1}0 \rangle$ のときに消滅していた $\langle \bar{1}2\bar{1}0 \rangle$ 又は $\langle 1\bar{2}10 \rangle$ 方向をもつ転位の積み重なりによるものであろう。

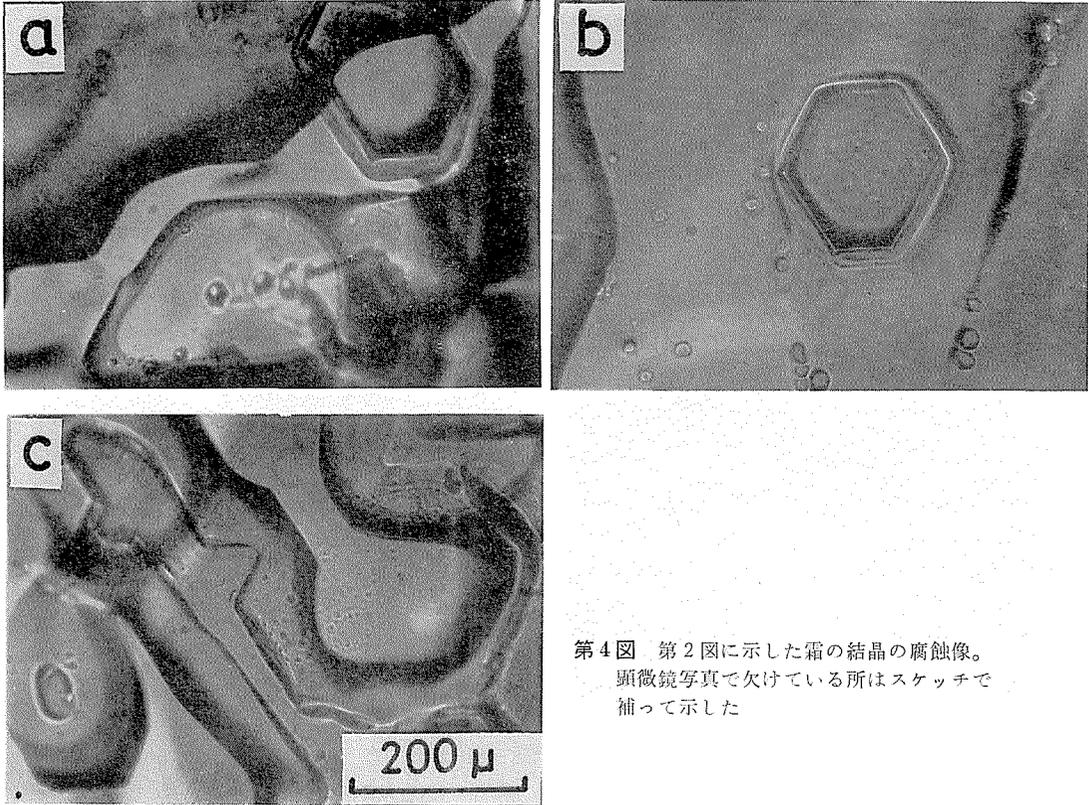
3. X 線回折像と転位蝕像

氷の底面に腐蝕液としてフォルムバールの二塩化エチレン溶液をかけて作られる腐蝕像は、転位線の露頭であるといわれている。

一方、氷の底面には $\frac{a}{3} \langle 11\bar{2}0 \rangle$ のバーガスベクトルをもつ螺旋転位が最も多

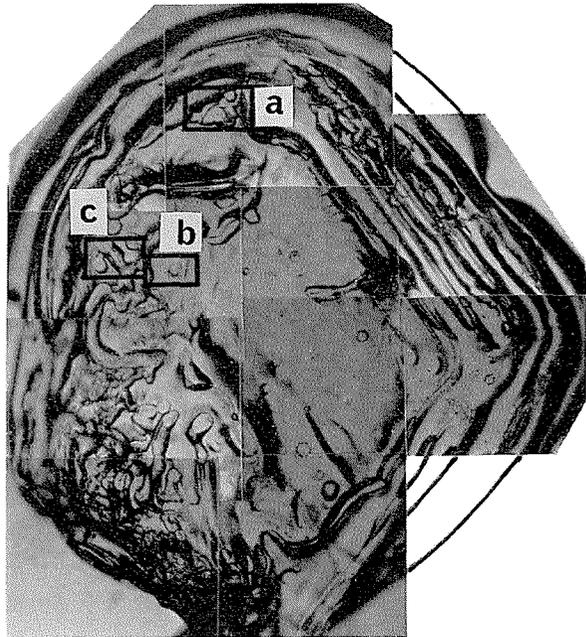


第3図 水面氷の底面にある転位。A, B はそれぞれ反射ベクトルを $\langle 10\bar{1}0 \rangle$, $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ としたときの回折像である

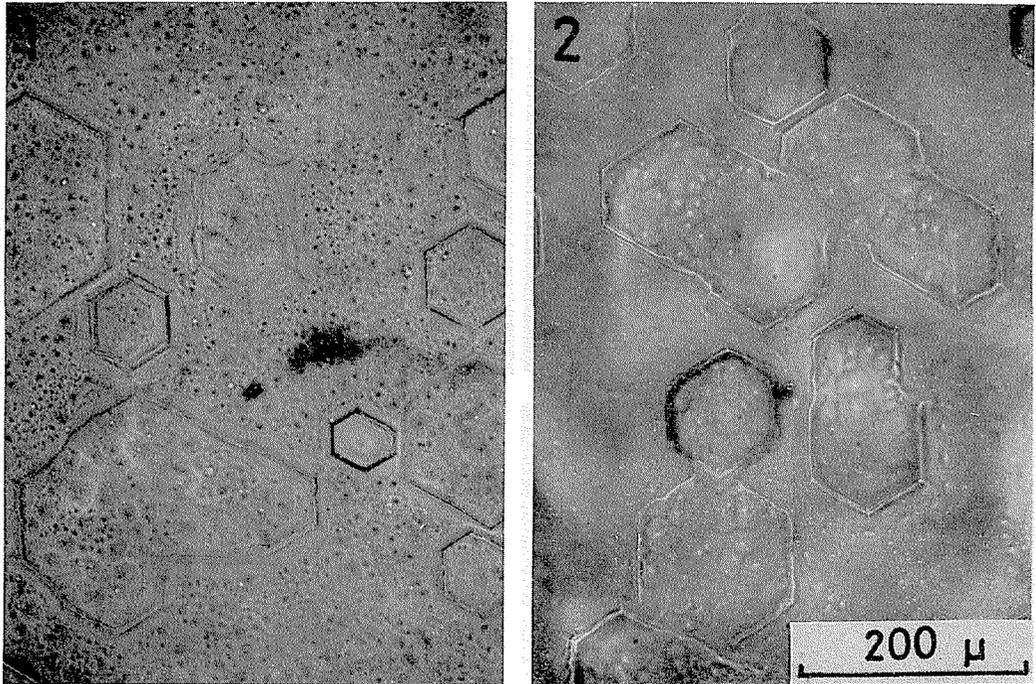


第4図 第2図に示した霜の結晶の腐蝕像。
顕微鏡写真で欠けている所はスケッチで
補って示した

いことが今までのX線トポグラフの研究から明らかである。このことからX線回折像で見られる転位の露頭は柱面にあると考えるのが妥当であろう。したがって、X線による転位像と腐蝕像との対応を調べるには、柱面に腐蝕像を作ることが必要である。現在まだこの方法が確立されていないために、この方法で対応をつけることはできない。東らは、 $C\langle 0001 \rangle$ のバーガスベクトルが存在することも見出したが、これを有する長い螺旋転位が全くみられなかったことを報告している。このことから、底面に腐蝕孔を作った転位は結晶表面近くにある $\frac{a}{3}\langle 11\bar{2}0 \rangle$ のバーガスベクトルをもつ転位が表面の鏡像力によって基底面に垂直に曲って露頭



第5図 転位蝕像。a, b, cはそれぞれ第4図の枠
a, b, cを拡大したものである



第6図 第3図に示した水面氷の転位蝕像写真1, 2はそれぞれ第3図の1, 2枠に対応する場所の転位蝕像である

を作ったと解釈した¹²⁾。しかし、結晶底面にみられる多数の転位蝕像がこのようにして表面に曲って出てきた転位の露頭であると考えるのは難しい。少なくとも何かの原因で底面にあった転位が垂直に曲って露頭を出したばあいには、その転位線はX線トポグラフでは見かけ上、結晶内部で切れていなければならない。

これとは別に、もしも試料の厚さが一様でなければ底面に横たわっている転位が、試料の端の柱面に露頭を顕す代りに、ピラミッド面に露頭を顕すことが考えられる。実際に霜の結晶には、このような観察に適したものが多い。第2図に示したのと同じ結晶の腐蝕像が第4図の顕微鏡つなぎ写真である。底が平らな蒸発ピットは、結晶の周辺部のところどころにみられるが、その中に底が尖った転位蝕像が観察されたのは、a, b, cの枠の中の蒸発ピット内にある。第5図a, b, cにはそれぞれ第4図の枠a, b, cの拡大したものを示した。第2図AのX線トポグラフで転位線が結晶の内部で切れていて、かつ第5図の顕微鏡写真a, b, cと場所において一応の対応がつかうと思われるものにa, b, cと記号をつけた。しかし、たとえば第2図のa点に対応すると思われる腐蝕像、第5図aには3個の転位蝕像が認められるほか、他の2点についても転位蝕像の数の方が多いことがわかる。

同様に、第3図のX線トポグラフに示した平板氷に転位蝕像を作って観察した。第3図に1, 2と番号をつけた部分の転位蝕像をそれぞれ第6図1, 2に示した。この領域には、X線トポグラフ上で結晶中に終端を持っているようにみえる転位線は1本も存在していない。したがって、このような転位蝕像が、結晶底面にある転位の露頭と考えるのは難しいであろう。

IV. ま と め

気相からの生長である霜と融液から生長した平板氷の底面にある転位をX線トポグラフによって観察した。筆者は極めてゆっくり生長した霜の角板結晶には、無転位結晶があるという結論を得たが⁹⁾、更に観察例を増した結果、生長過程に導入された転位を含む結晶が多数見出された。この違いは、生長速度および生長後の温度変化などによるものと考えられる。霜の結晶にみられた転位はほとんどが、 $\frac{a}{3} \langle 11\bar{2}0 \rangle$ のバーガスベクトルをもつ。このことは今まで融液から生長した人工単結晶や、氷河水に関する多くの研究結果と一致するものである。また $\langle \bar{1}100 \rangle$ に平行なバーガスベクトルをもつ転位も見出された。この種の転位は霜と平板氷の両方に観察されたが、転位線が交叉しているところに見られるため、互いに 60° をなす $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ 型のバーガスベクトルをもつ2つの転位が反応した結果 $\langle 10\bar{1}0 \rangle$ と等価な方向に平行なバーガスベクトルをもった転位が新らしく形成されたものと考えられる。吉田、若浜も $\frac{1}{3} \langle 10\bar{1}0 \rangle$ のバーガスベクトルの半転位が存在する可能性については指摘している¹³⁾。しかし $\langle 10\bar{1}0 \rangle$ のバーガスベクトルをもった転位は半転位ではない。いずれにせよ、最も一般的な転位は $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ 型の転位であることは、霜の結晶に於いても同じである。また、これらの転位が生長過程で導入されたことは確かであるが、生長機構に関与しているとは考えにくい。

また霜の結晶中にも積層欠陥が観察されたが、これは NH_3 などの不純物氷にみられたものと同程度の大きさをもつものである。数 mm にも及ぶ大きな積層欠陥が NH_3 を含んだ氷で存在するのは、不純物が欠陥のエネルギーを下げるためと考えられている。しかしこの不純物効果を霜に適応することは生長機構からも難しいであろう。

X線トポグラフで観察された結晶底面中の転位線のなかで、試料の厚さが一様でないために表面にその露頭を顕したと考えられる転位線と腐蝕像との対応を試みたが、腐蝕像の数はX線トポグラフで観察される転位の数よりもずっと多い。もちろん、底面のX線回折像と氷の底面に作られる転位蝕像とは一般に別の種類の転位を観察することになるが、氷の結晶構造や変形機構から考えても、底面に存在する転位よりも、底面に露頭をもつ転位が多いということは考えにくい。このことから腐蝕像の中には、かならずしも転位に直接関係しないものもあるのではないかと思われる。

終りに、この報告を書くにあたり、若浜五郎教授ならびに黒岩大助教授にいろいろ議論していただいた。ここに心からの感謝の意を表します。

文 献

- 1) Webb, W. W. and Hayes, C. E. 1967 Dislocation and plastic deformation of ice. *Phil. Mag.*, **16**, 909-925.
- 2) Fukuda, A. and Higashi, A. 1969 X-ray diffraction topographic studies of the deformation behaviour of ice single crystals. *In Physics of Ice* (N. Riehl, B. Bullemer and H. Engelhardt, ed.) New York: Pleum, 239-250.
- 3) Higashi, A. Oguro, M. and Fukuda, A. 1968 Growth of ice single crystals from the melt, with special reference to dislocation structure. *J. Crys. Growth*, **3**, 728-732.

- 4) Jones, S. J. and Gilra, N. K. 1973 X-ray topographical study of dislocation in pure and HF-doped ice. *Phil. Mag.*, **27**, 457-472.
- 5) Oguro, M. and Higashi, A. 1971 Concentric dislocation loops with (0001) Burgers vectors in ice single crystal doped with NH₃. *Phil. Mag.*, **24**, 713-718.
- 6) 水野悠紀子 1973 霜の結晶のX線トポグラフ. 低温科学, 物理篇, **31**, 279-282.
- 7) Kuroiwa, D. and Hamilton, W. L. 1963 Studies of ice etching and dislocation etch pits, *In Ice and Snow* (W. D. Kingery, ed.) M.I.T. Press Cambridge, Mass. 34-55.
- 8) 水野悠紀子 1971 霜の結晶方位. 低温科学, 物理篇, **29**, 29-36.
- 9) Kato, N. and Lang, A. R. 1959 A study of Pendellösung fringes in X-ray diffraction. *Acta Cryst.* **12**, 787-794.
- 10) Oguro, M. and Higashi, A. 1973 Stacking-fault images in NH₃-doped ice crystals revealed by X-ray diffraction topography. *In Physics and Chemistry of Ice* (E. Whalley, S. J. Jones and L. W. Gold, ed.) 338-343.
- 11) Fourdeux, A. Berghezan, A. and Webb, W. W. 1960 Stacking-faults in zinc. *J. Appl. Phys.*, **31**, 918-920.
- 12) 東 晃・小黒 貢・福田明治 1969 引上げ法による氷単結晶の製作(第2報)—X線トポグラフによる転位の観察—. 応用物理, **38**, 567-573.
- 13) 吉田順五・若浜五郎 1962 氷の結晶の転位模型. 低温科学, 物理篇, **20**, 29-56.

Summary

Dislocation structures of single crystals of both ice grown from a melt and glacier ice have been extensively studied by several investigators by the X-ray topographical method¹⁻⁴⁾ (Lang method). There are, however, few studies on crystal imperfections in snow or hoar crystals which are grown from water vapour. The present author reported in the previous paper preliminary results on an X-ray topographical study on hoar crystals⁶⁾, in which some hoar crystals were found to be dislocation-free perfect crystals.

The present paper describes X-ray diffraction topographs of hoar crystals together with those of tabular ice crystals grown from a melt.

Figure 1 shows the X-ray topographs of a hoar crystal collected from the surface of a large block of snow which had been stored in a cold room for several years. The hoar crystal had the shape of hexagonal plate 0.5~1 mm in thickness and 5 mm in the major dimension.

The photograph A on the left was taken in the direction of the diffracting vector $\langle 10\bar{1}0 \rangle$, and the photograph B on the right in the direction of $\langle 11\bar{2}0 \rangle$. In both cases, an X-ray beam was scanned over the basal plane (0001). Some dislocation lines seen in Fig. 1A were absent in Fig. 1B, and vice versa. When the extinction condition of this topography on dislocation images was taken account of, the Burgers vector **b** of the majority of basal (0001) dislocations in the hoar crystal was found as $\frac{a}{3}\langle 11\bar{2}0 \rangle$, which is in accordance with the previous results obtained for single crystals of ice grown from a melt.

Dislocation lines labelled with **b**, **c** and **d** in Figs. 1C and 1D are of the screw dislocation with the Burgers vector $\frac{a}{3}\langle 11\bar{2}0 \rangle$, while dislocation lines **a** are of the edge dislocation having the same Burgers vector.

It is well-known that two equivalent basal dislocations, for instance, the Burgers vectors $\frac{a}{3}\langle 2\bar{1}\bar{1}0 \rangle$ and $\frac{a}{3}\langle \bar{1}2\bar{1}0 \rangle$, meet and join to make another equivalent, new basal dislocation of $\frac{a}{3}\langle 11\bar{2}0 \rangle$.

In our experiment, however, another type of dislocation reaction was found. Dislocation lines in the rectangular frames in Fig. 1 A and 1 B are respectively drawn in Figs. 1 E and 1 F. Dislocation lines marked with p, q, and r in Fig. 1 E are observed only in Fig. 1 A, while they are completely absent in Fig. 1 B. When the extinction condition is taken account of these dislocations are believed to be of the $\langle 10\bar{1}0 \rangle$ type, which are produced by the following dislocation reaction :

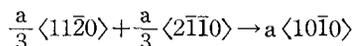


Figure 2 illustrates the X-ray diffraction topographs of another hoar crystal taken in the direction of the different diffracting vector $\langle 10\bar{1}0 \rangle$ for Fig. 2 A and $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ for Fig. 2 B. Near the lower edge p where the hoar crystal started to grow, the dislocation density is so large that an individual dislocation can hardly be seen separately. Away from the point P, however, the dislocation density becomes so small that no dislocation line is seen in the upper part of the crystal.

In Fig. 2 A Pendellösung fringes are clearly seen along the periphery of the crystal. This also gives another evidence that the upper part of the hoar crystal is dislocation-free or distortion-free.

Several triangular dark images are observed in Fig. 2 A. The fact that the images are completely absent in Fig. 2 B strongly suggests that these images are Shockley-type stacking faults lying on the basal plane of the hoar crystal. These stacking faults are extending fairly widely to be of the order of 1 mm in larger dimension. A stacking fault has never been observed in pure ice crystals. However, similar images of stacking faults have been observed in NH_3 -doped ice crystals by Oguro and Higashi¹⁰⁾ and also in zinc crystals by Fourdeux et al.¹¹⁾

Typical X-ray diffraction topographs of a tabular ice are shown in Figs. 3 A and 3 B. Diffracting vectors for each topograph are indicated by the arrow **g**. A great majority of dislocations observed in these figures are dislocations of the $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ type, while a small number of dislocations which perpendicularly intersect with the small angle boundary **a** are of the $\langle 10\bar{1}0 \rangle$ type.

Evaporation etch pits were produced on the surface of one and the same hoar crystal as shown in Fig. 2.

Hexagonal etch pits were then formed chemically at the bottom surface of each evaporation etch pit. The microphotographs, **a**, **b** and **c** in Fig. 5, which show hexagonal etch pits, were taken at the evaporation pits labelled with **a**, **b** and **c** in Fig. 4; they also correspond to **a**, **b** and **c** in Fig. 2 A, respectively.

Chemical etch pits are generally believed to be produced at the emergence points of dislocations in a crystal⁷⁾. The density of the chemical etch pits obtained in the figures **a**, **b** and **c** in Fig. 4, is, however, much larger than the density obtained from the X-ray dislocation images observed at the corresponding spots **a**, **b** and **c** in Fig. 2 A.

It is, therefore, most unlikely that there is a one-to-one correspondence between

chemical etch pits and the emergence points of dislocation lines, even if dislocations lying on the basal plane (0001) are not always visible on X-ray topographs due to the extinction condition. Such unlikeliness is also supported by the microphotographs in Figs. 6-1 and 6-2 of the evaporation and chemical etch pits which were formed on the surface of a tabular ice in the frames marked "1" and "2" in Fig. 3 A. The density of chemical etch pits is also much larger than that of X-ray dislocation images observed in Fig. 3 A.