



Title	X線ラウエ法による氷結晶の方位解析
Author(s)	宮本, 淳
Citation	低温科学, 71, 59-68
Issue Date	2013-03-31
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/52340
Type	departmental bulletin paper
File Information	LTS71_007.pdf



X線ラウエ法による氷結晶の方位解析

宮本 淳¹⁾

2012年11月8日受付, 2012年12月20日受理

氷結晶の方位, 特に氷床コア試料の結晶c軸方位は, 氷床の変形履歴を反映し, 氷床の力学的性質を決定する主要因子として詳細に調べられてきた. 測定装置は, 多くの時間と労力, 操作に熟練を要するユニバーサル・ステージから発展し, 近年は自動測定装置が用いられている. 2000 mを超えるような深層コアの解析には自動化された測定装置が有効に用いられているが, 氷床深部に存在する非常に強い単極大型などの特殊な結晶方位分布の詳細を明らかにするには, 十分な測定精度を有していない. そこで, 筆者らはX線を用いた半自動化された結晶方位測定装置を開発し, 高精度測定を実現した. 本稿では, この装置の開発について述べ, 研究への適用例について紹介する.

Ice crystal orientation measurement using Laue X-ray diffraction method

Atsushi Miyamoto¹

Ice crystal c-axis orientation of ice core samples have been investigated in detail as a major controlling factor of the mechanical properties of ice sheets. The universal stage was a common measurement device for c-axis orientation. The measurement procedure using this device is very time-consuming, involving tedious work in a cold laboratory. Instead, automated measuring devices have been widely used in recent years. Those are very effective for the analysis of large amounts of samples with more than 2000 m long ice core. However, the automated devices do not have a sufficient measurement accuracy to reveal details of the exceptional crystal orientation distribution such as the very strong single maximum existing in the deep part of ice sheet. Therefore, in order to obtain high accuracy, a new ice crystal orientation measuring device has been developed using the Laue X-ray diffraction method. This paper describes the development of this new device and examples of applying it to various researches.

1. はじめに

結晶の特性は, 原子の並ぶ向き (結晶方位) によって異なる. 材料科学や金属学, 地質学で扱う結晶のほとんどは多結晶体であり, それぞれは異なる結晶方位を持つ多数の結晶粒の集合体である. さらに, これらの多結晶体は, 生成過程や変形, 温度の履歴に応じて, 粒径が粗大化あるいは細粒化したり, 結晶方位がある方向に揃ったりなどの集合組織を持つ. よって, 多結晶体を構成するそれぞれの結晶粒の粒径や方位など調べ, 結晶集合組織の情報を知ることによって, その多結晶体の性質を明らかにすることができる. 材料科学においては, 例えば加工方法と結晶組織, そしてその材料強度の関係などが

論じられ, 地質学においては, 岩石を構成する鉱物の集合組織から, その岩石がたどってきた温度や変形の履歴を議論し, 地球の岩石圈の変動を明らかにしている. 本稿では, 天然に存在する氷, 特に南極やグリーンランドに存在する氷床の研究における氷結晶の方位解析について論じるが, 岩石と同様に氷床の変動の歴史は氷結晶の結晶集合組織に記録され, 特にその変形は主に結晶方位分布に支配されている. このような背景の下, 結晶の方位測定に関する研究が盛んに行われてきた. 同じ結晶方位を測定するという目的でも, 各研究分野において多様な測定手法が存在する. 本稿では, 氷結晶の方位測定に用いられてきたいくつかの手法とその利点, 欠点を紹介し, 氷床研究を目的として, 筆者らが行ってきたX線ラウエ法による氷結晶方位解析装置の開発について述べる. また, その装置を用いて行われたグリーンランド氷床コアや人工単結晶氷の結晶方位解析から得られ始めている新たな知見についても紹介する.

1) 北海道大学低温科学研究所

¹ Institute of Low Temperature Science, Hokkaido University, Sapporo, Japan

E-mail: miyamoto@lowtem.hokudai.ac.jp

2. 氷床研究における結晶方位解析

2.1. 氷床コアの物理的研究

氷床コアとは、南極やグリーンランドなどの極地氷床で掘削された直径 10 cm 程の円柱試料である。掘削技術の向上により、表面から岩盤までの深層掘削を目指した計画も多く、深層コア試料の数は世界各国で 10 数本に達している。コア試料に閉じ込められた空気は地球に存在した過去の空気そのものであり、火山灰等の不純物も層序を持って氷床に堆積し、それらの分析から過去数十万年に達する地球の気候・環境変動の詳細が議論されてきている。氷床コア研究は、地球環境科学において非常に重要な役割を果たしている。

このような氷床コア研究においては、深部ほど年代の古い氷を得ることができるが、年層厚が深さとともに薄くなるために分析の時間分解能が低くなる。高精度化してきている衛星観測等によって氷床の表面形状や高度、レーダー観測によって氷床の内部層構造が明らかになり、また計算機シミュレーションの発達により氷床流動モデルも高度化しており、過去から未来に至る氷床の形状も議論されている。しかし、深層氷床コア掘削によって、これまで得ることが困難であった氷床深部の氷の結晶組織や力学的性質が明らかになると、モデルと実際の氷床氷の特性との相違点がはっきりしてきた。実際、コア掘削後に深部の年代が流動モデル計算で予想されたものよりも大幅に若いことが明らかになり、目的の年代に達しなかったという報告がある (Dahl-Jensen et al., 2002)。また、グリーンランドにおいてはわずか 30 km 離れた地点で掘削されたコアの深部の気候・環境情報シグナルの不一致が報告されている (Taylor et al. 1993)。この不一致は氷床深部特有の氷の力学的性質が原因であることが氷床コアの変形実験から示されている (Castelnau et al., 1998; Miyamoto et al., 2002)。以上のように、氷床深部では氷床の変形の大部分を担っているにもかかわらず、未だ不明な点が多く、年代の見積もり誤差を大きくしている。よって、氷床深部のコアから高精度に地球の気候・環境変動の歴史を読み取るためには、氷床流動モデルの基礎情報となる氷床の内部構造、具体的には層構造などのマクロなスケールまでの構造から結晶方位などの結晶集合組織、再結晶や結晶粒成長に関わる結晶微細構造などのミクロなスケールの構造と変形機構の詳細を知ることが不可欠である。しかし、詳細な氷床の内部構造を直接観察する方法として、地質学のように露頭を観察することが不可能な氷床研究においては、広範囲かつ多点で掘削された氷床コア試料を用いるしかなく、わずか 10 数本のコア試料のみからしか氷床内部の氷を得ることができない現状では、その内部構造の理解が十分に進んでいるとは言えない。

2.2. 氷床氷の力学的性質

地球上に通常存在する氷の結晶形は氷 I_h と呼ばれ、六方晶系の結晶である。酸素原子が作る六角形の格子面を基底面と呼び、この面に垂直な方向が c 軸である。 c 軸に直交方向で正六角形の対角方向を a 軸と定義する。結晶の代表的な変形機構は、転位の移動による塑性変形として理解されているが、氷単結晶は基底面を滑り面として容易に変形する強い塑性異方性を持っている (図 1)。つまり、 c 軸に平行な方向の圧縮については変形しにくく、 c 軸に鉛直方向のせん断変形に対しては変形しやすい。よって、単結晶氷の一軸圧縮変形時は圧縮軸と c 軸のなす角度が 45° の時に、最大分解せん断応力が、滑り変形しやすい基底面に働き、最も変形しやすくなる。同様に、多結晶体についても、単純には、圧縮軸と c 軸のなす角度が 45° の結晶が多くなれば、より変形しやすくなる。

ここでは、筆者らが進めてきたグリーンランド氷床頂上ドーム位置で掘削された GRIP コアを用いた研究について述べる。はじめに氷の力学的性質を支配する主要因である結晶 c 軸方位分布を明らかにし、続いてコア軸 (コアは鉛直方向に掘削されるが、掘削孔は厳密には鉛直方向にはならず、特に深部では多少傾斜する。よって掘削された円柱コア試料の軸をコア軸と呼び、基準とする。) から 45° 傾けて切り出されたコア氷試料の一軸圧縮試験を行い (圧縮試験時の最大分解せん断応力が氷床の水平方向に一致する)、結晶方位と氷試料の変形のしやすさについて調べた。氷の変形のしやすさは、圧縮試験において、定常クリープ時のひずみ速度を比較した。多結晶氷の定常クリープ時のひずみ速度 ($\dot{\epsilon}$) と応力 (σ) の関係 (氷の流動則) は、Glen (1955) により実験的に導かれ、次式で表される。

$$\dot{\epsilon} = B\sigma^n \exp\left(-\frac{Q}{\kappa T}\right)$$

ここで、 B は流動パラメータ、 n は応力定数 (氷の場合 $n \approx 3$) Q は活性化エネルギー、 κ はボルツマン定数、 T は絶対温度である。流動パラメータは結晶粒径、 c 軸方位分布、不純物濃度などに依存する。コア試料の

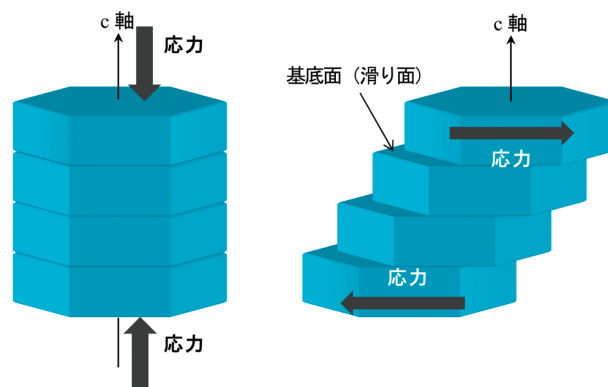


図 1：単結晶氷の基底面滑り変形。

試験結果から得られた流動パラメータと標準的な多結晶試料（粒径が氷床氷と同程度で結晶方位分布がランダム）を試験した時の流動パラメータの比を取れば、結晶粒径以外の要因によって、コア試料が標準多結晶試料よりも何倍ひずみ速度が速いか、遅いか（変形しやすいか、変形しにくい）という議論が可能になる。これをエンハンスメント・ファクターとして数値化した。その結果、氷床深部においてはエンハンスメント・ファクターが50を超える（このコア試料は、標準多結晶試料よりもひずみ速度が50倍速い）ことが明らかになった（図2）。また、c軸方位の集中度のごくわずかな違いで変形のしやすさが数十倍変化することが明らかになった。さらに、岩盤付近の最深部を除いて、氷体は深さとともに結晶c軸方位分布の集中度が増加するのに調和して、徐々に変形しやすくなっていくが、氷床深部（約2100 m以深）においては結晶c軸方位分布が著しく発達し、すべて結晶のc軸方位がほぼ同じ方向に集中する強い単極大型を示し（図3）、氷床の水平方向に異常に変形しやすくなることを明らかにした（Miyamoto et al., 1999; Miyamoto et al., 2003）。この実験事実は氷床の変形速度が、ごくわずかなc軸方位分布の違いで大変動する可能性を示唆しており、これまで提唱されてい

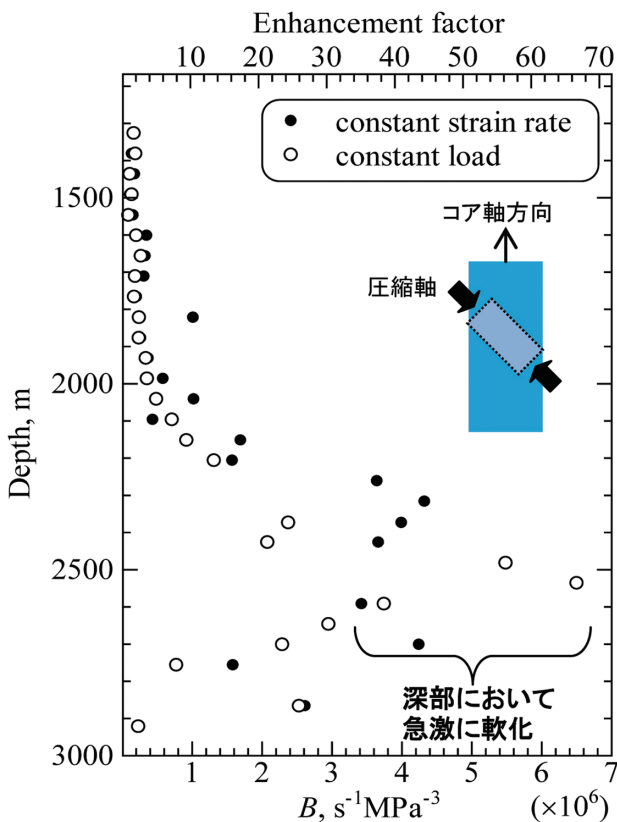


図2：GRIP コアの定ひずみ速度・定荷重一軸圧縮試験により求められたエンハンスメント・ファクター（流動パラメータ B より計算。結晶方位分布がランダムな氷よりも何倍軟らかいかという指標）の深さ分布。深部では、水平方向の変形に対して結晶方位分布がランダムな氷よりも30倍以上軟らかい氷の存在を確認することができる。圧縮試片の切り出し方法は、グラフ中に模式図として表した。

る氷床流動モデル（例えば、Azuma, 1995）では実験結果を説明することができない。この変形のしやすさの要因については、不純物濃度や粒径が厚さ数 mm から数 cm の年層スケールで異なる互層縞模様構造等と氷の変形速度の相関について調べられたが、明瞭な相関はなく、c軸方位の強い集中という、特殊な結晶方位分布が最も強い支配的要因であることが示されている（Miyamoto, 1999）。ここで問題になるのは結晶c軸方位分布がコア軸を中心に数度以内に分布していることである。隣り合う結晶粒の角度差が 5° 以内にあることは明確であり、例えば角度差が 0 から 5° の間で、変形のしやすさが大きく変化するようなメカニズムがあることが予想される。しかし、従来からのユニバーサル・ステージによる解析（測定精度約 5° ）ではこれらの方位角度差を議論する測定精度の限界を超えている。著しく強い単極大型に発達した結晶c軸方位分布を定量的に議論するためには高精度の結晶方位測定が不可欠であることがこれらの研究から示され、X線を利用した測定装置の開発に至った。

3. 氷結晶の方位測定法

3.1. 種々の氷結晶方位測定法

氷床コア試料をはじめ、地球上に存在する天然の氷結晶の粒径は数 $100 \mu\text{m}$ から数 10 cm ほどである。通常氷床コア試料の結晶方位を調べる際は、面積 100 cm^2 程度、厚さ 0.5 mm 以下の薄片を作成し、その中に含まれる直径数 mm 程度の結晶粒 200 個程度の結晶方位を調べる。

種々の氷結晶方位測定方法の利点、欠点等は、表1にまとめるが、主要な測定装置として、氷床コア研究の初期から用いられてきたのは、ユニバーサル・ステージで

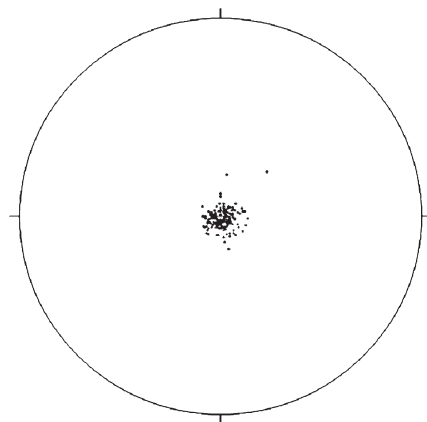


図3：GRIP コア 2537 m の結晶c軸方位分布。シュミット・ネットにプロットし、中心がコア軸方向。測定結晶粒数は210個。ユニバーサル・ステージにより測定されたGRIP コアのc軸方位分布のうち、最も強い単極大型を示した。天頂角 10° の小円内にほぼすべての結晶粒が入り、平行度は99.2%を示す。

表 1：氷結晶の方位測定方法

測定法	測定装置	得られる情報	利点	欠点	フィールドでの測定可否
手動光学的手法	ユニバーサル・ステージ	c 軸方位	同様の方法で測定された大量のデータの蓄積あり	- 複雑な測定手順と多大な労力が必要 - 低い測定精度 (5°程度)	可 (要光源)
自動光学的手法	市販の装置, 自作解析装置	c 軸方位, 粒径	自動測定	- 低い測定精度 - 測定原理由来のエラー	可 (要電源, 制御用 PC)
エッチピット法	顕微鏡	c 軸・a 軸方位	- 簡便な測定装置 - a 軸方の測定が可能	- 複雑な測定手順と多大な労力が必要 - 低い測定精度	可
超音波法	超音波厚さ計	c 軸方位集中度	簡便な測定装置	個々の結晶の方位測定が不可	可
X線極点図法	X線源, ゴニオステージ	任意の結晶方位の集中度	任意の結晶方位の集中度の測定が可能	個々の結晶の方位測定が不可	不可
EBSD 法	走査電子顕微鏡, 冷却チャンバー	任意の結晶方位, 方位マッピング	- 結晶方位のマッピングが可能 - 高精度測定 (約 0.1°) - 自動測定 - 任意の結晶方位の測定が可能	- 装置の大型化 - 狭い測定範囲 (数 cm²) - 冷却チャンバーが必要 - 装置の大型化	不可
X線ラウエ法	X線源, X線カメラ, 電動ステージ	任意の測定箇所の任意の結晶方位	- 高精度測定 (<0.5°) - 高空間分解能 (<0.5 mm) - 任意の結晶方位の測定が可能 - 広い測定範囲 (約 100 cm²)	比較的に遅い測定速度	不可

ある (Langway, 1958). この方法では自在回転台に置かれた薄片試料を手順に沿って回転させ, 各結晶の消光位を目視で探すという光学的方法で c 軸方位を決定する. 簡便な装置でフィールドにおいても測定可能であるが, 測定には熟練が必要な上に多大な労力を要する. 現在は, この測定原理に基づいて操作手順を画像解析により自動化した装置が開発されている (Wang and Azuma, 1999). 画像解析技術の発達により, 各結晶の粒形の認識も自動的に行われ, 結晶粒径や結晶粒の伸長方向の情報も得られる. 特に近年の水床コア研究においては, オーストラリアのメルボルン大学で開発された自動測定装置が, 標準的なものとして世界各国で用いられている (Wilson et al., 2007). 装置は小型化しており, 全体で 25 kg ほどなので, 電源さえ確保されればフィールドでの運用も可能である. 世界各国が同じ装置で測定された共通のデータセットを持つことになるので, 研究結果の比較には大きな利点がある. この装置は現在市販されている (Russell-Head Instruments 社製 G50 fabric analyser).

エッチ・ピット法では, 氷試料表面に現れる特定の結晶面で構成される腐食孔 (エッチ・ピット) の輪郭を解析することで結晶方位を決定することができる (Higuchi, 1958; Matsuda, 1979). 六方晶である氷では, 昇華により, 試料表面に生じる正六角柱を基本構造としたピットを顕微鏡で観察することができる. 他の方法に比べ, 必要な機器は最も簡便であるが, 観察可能なピットを作る点, 複雑な解析などの点において熟練が必要であり, 多大な労力を要する.

超音波法では, 氷結晶中を伝わる超音波速度の異方性を利用して結晶 c 軸方位の集中度を議論することができる (Langway et al., 1988). 氷床コア研究においては, 試料表面を平滑に処理することで測定でき, 測定試料を他の解析に再利用することができる利点もあるが, 個々の結晶粒方位を測定することができず普及していない.

X線極点図法は金属の結晶組織などの細粒結晶の方位測定に用いられる方法である. 氷床コア研究においても, 表層の比較的細粒なフィルンの結晶方位測定には有効であるが, 超音波法と同様に個々の結晶粒方位を測定することができない.

SEM (走査電子顕微鏡) による EBSD (Electron Back Scattering Diffraction, 後方散乱電子回折像) 法は確立されたひとつの方法であり, 近年結晶材料の結晶方位測定に盛んに用いられている. 測定, 解析も自動化され, 結晶方位のマッピング情報も得ることが可能であり, 微小な範囲の詳細な結晶方位を正確に知ることができる. しかし, 氷床コア研究においては, 直径数 mm 程度の結晶粒の方位を大量に測定する必要があるため, その測定範囲は広範囲になる. そのため, 比較的測定範囲の狭い (数 cm²) この方法は, 個々の氷結晶の方位を広範囲にわたり測定する目的には適さない.

3.2. X線ラウエ法による結晶方位測定装置の開発

氷の結晶方位測定における長年の課題は, 測定における多大な労力であった. 低温実験室あるいはフィールドにおいて長時間にわたり研究者がユニバーサル・ステージを操作して個々の結晶の方位を測定しなければならない

かった。また、測定に関して研究者の熟達度が結果に影響を与えることもあった。現在標準的に用いられている自動化された結晶c軸方位解析装置はそれらの点を克服しているが、ユニバーサル・ステージと同様の測定原理を利用しているため、高精度測定には向いておらず、特定の方位測定に関してエラーが存在することも報告されている。X線測定の目的はこれまでにない高精度な結晶方位解析である。また、氷床内部における、ある深度の結晶方位分布の代表性を得るためには、これまでの方法と同様に200個程度の結晶粒の測定が必要である。

このような測定条件を満たすX線ラウエ法による氷結晶の結晶方位解析については、Mori et al. (1985)の先行研究があり、X線発生装置（リガク社製 SLX-2000、管電圧 60 kV、管電流 250 mA）も低温科学研究所の低温室内に既設されていたので、この方法を採用した。ラウエ法はX線結晶学において確立された方法であるが、試料に連続X線を当て、前方あるいは背面に置かれたディテクターでラウエ斑点像を記録する方法である。得られたラウエ像を解析することにより、氷結晶についてはc軸のみならず、a軸方位の測定も可能であり、結晶学的に完全な方位情報を得ることができる。電動ステージを用いて結晶ひとつひとつにX線を当てることできれば、氷床コア研究で用いる比較的大きな薄片試料（約 100 cm²）の測定も可能である。

開発は測定手順に従い、試料の準備と装置の設計、ラウエ像の取得、ラウエ像の解析の3つについて検討し、測定の自動化に向けて装置の改良を進めてきた。図4に装置の概略を示し、以下に装置の概要について述べる。

氷床コア試料の結晶をひとつひとつにX線を当てるためには、薄片試料を用い結晶粒を認識する必要がある。

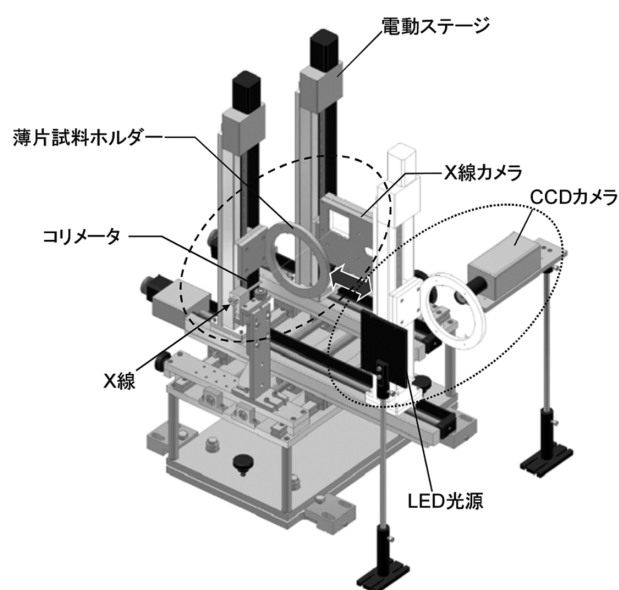


図4：X線ラウエ法による結晶方位装置のステージ部。点線で囲まれた部分で各結晶の認識とX線照射部分の座標を決める。破線で囲まれた部分でX線の照射とラウエ像の取得を行う。

ラウエ法にはX線源、ディテクター、試料の順に配置し、試料から背面に反射するラウエ像を得る背面反射法とX線源、試料、ディテクターの順に配置し、試料を透過したX線が作るラウエ像を得る透過法がある。この装置の開発では、X線の強度、コリメータ径、試料とディテクター間の距離、X線の露出時間等を様々に調整し、両方の方法について検討した結果、薄片試料から解析可能なラウエ像を得るために、透過法を用いることにした。また、薄片試料は通常ガラス板に固定されるが、ガラス板によるX線の吸収により十分な回折強度を得られないため、アクリル板を用いた。

装置はX線発生部、電動ステージ、制御部（ステージコントロールおよび制御プログラムは自作。X線シャッターのコントローラは低温科学研究所技術部で製作。）から成る。電動ステージ（低温科学研究所技術部で製作）およびCCDカメラはX線照射位置座標を決める（個々の結晶の認識）ために導入した（図4）。低温室内において、偏光フィルターをつけたCCDカメラを通した映像で薄片中の結晶粒ひとつひとつを確認しながら試料を載せた電動ステージを操作し、X線照射位置座標を決める。座標位置はファイルに保存され、測定時にはその座標情報を読み取り、ステージをコントロールすることにより、自動的に目的の結晶にX線を照射することができる。

多数の結晶粒の方位解析のためには、デジタル化されたラウエ像を保存し、ラウエパターン解析ソフトウェアを用いて方位情報を得る必要がある。ディテクターは当初イメージング・プレート（IP）を用い、露出時間30秒ほどで解析可能なラウエ像を得ることができた。しかし、結晶ひとつを解析する毎に、IPの取り付け、X線照射、IPの取り外し、IPの読み取りの一連の作業が必要であり、多数の結晶粒の解析としては現実的な方法ではない。そこで、Rad-icon社製X線CMOSカメラを導入した。ディテクター部の面積は5×5 cmで、このカメラ導入によりIPでは30秒必要であったX線露出時間は5秒に減少し、X線照射終了とほぼ同時にラウエ像をコンピュータに取り込むことができるようになった。

得られたラウエ像の解析は、ラウエパターン解析ソフトウェアを用い、ラウエ斑点の位置をデジタイズし、解析することによって方位情報を得ることができる。しかし、1枚の薄片試料中の200個の結晶粒から得られた200枚のラウエ像を解析し、一連のデータセットとして保存するようなソフトウェアは存在していなかった。そこで、ラウエパターン解析ソフトウェアを開発しているノルム工学社と共同で、大量の方位解析用のソフトウェアを開発した。図5はそのソフトウェアの代表的な解析画面の一例である。具体的には、予め測定する面指数を入力し、指数付けが決定した後、各方位の数値をファイ

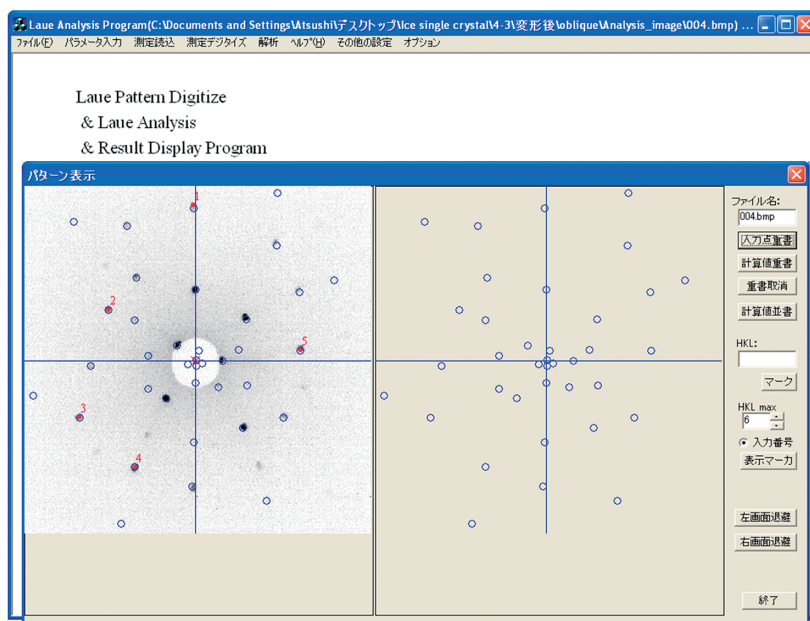


図5：ラウエパターン解析ソフトウェア上の解析結果表示画面。パターン表示の左側の表示中、黒い点はX線装置により得られたラウエ斑点像。その上に重なっている青い丸印が解析によりシミュレートされたラウエ像。両者は完全に一致している。

ルに転送する仕様とした。転送後、次に解析するラウエ像を自動的に読み込むなど、解析操作を極力少なくする工夫をし、アルゴリズムの改良によりラウエパターンの検索時間が早くなり、精度も向上した。

現在、すべての操作が低温室外から可能である半自動化された測定装置として稼働している (Miyamoto et al., 2011)。方位解析精度は 0.5° 以下で従来の方法よりも一桁上がり、空間分解能は 0.5 mm 以下、半日で100粒子ほどの測定が可能になり、高精度氷結晶方位解析装置としての目的を果たし、現実的な解析速度を実現することができた。測定の自動化を目指し、開発は継続しているが、特に、画像解析の技術は進歩が速く、現在測定速度を律速しているラウエ斑点のデジタイズは、近い将来自動化できると考えており、さらに測定速度が向上することが期待される。高精度測定、高空間分解能測定、a軸方位の測定の3つの利点により、氷結晶組織に関する研究は新たな段階に入ることができたと考えている。

4. X線ラウエ法結晶方位測定装置を用いた研究

X線ラウエ法導入の目的は氷結晶のc軸方位を正確に測定することだったが、その測定原理上あらゆる結晶面方位を測定することができる。氷結晶の場合、c軸に加えa軸を測定すれば、結晶学的に完全な方位を記載することが可能である。また、測定空間分解能も 0.5 mm 以下とユニバーサル・ステージによる測定に比べ高い。本章では、この2つの利点を生かした研究により得られ始めた新たな知見について述べる。

4.1. 氷床氷のa軸方位分布

氷床コア研究においてc軸方位分布は、氷床の流動特性を支配する主要因として物理解析の重要な基礎情報として議論されてきた。南極、グリーンランド氷床で掘削された深層氷床コアのc軸方位の深さ分布は、一般的には浅層部のランダム配向から深層部における氷床の鉛直方向への強い集中（単極大型）と深さとともに徐々に集中度が増す。2.2節で述べたように、グリーンランドGRIPコアの結晶方位解析からは、深部においてc軸方位が著しく単極大型に発達していることが明らかになっている。この深度では、力学試験により特に氷床の水平方向に異常に変形しやすいという結果を得ており、わずかなc軸方位分布の違いで、変形のしやすさが大きく変化することも明らかになっている。その原因を探るためにもa軸方位の測定も行い、完全な結晶方位分布を記載することを試みた。

開発した結晶方位測定装置により、c軸とa軸3軸（図6a）を測定した (Miyamoto et al., 2005)。その結果、c軸方位分布についてこれまでユニバーサル・ステージで行ってきた結果と同様に強い単極大型であったが、測定精度はこれまでに比べ高くなっている。a軸方位分布は図6bに示す。a軸方位は3軸測定し、シュミット・ネットにプロットしているので、もしa軸方位が同じ方向に揃う傾向があれば、 60° 毎に3つの極大が現れるはずである。図6の2374 mのa軸方位は破線で示すように3つの極大を確認することができ、極大と極大の間の角度は 60° である。同様に2483, 2593, 2647 mにもa軸方位の異方性分布が確認された。2483 mについてはa軸が分布していない部分（矢印で

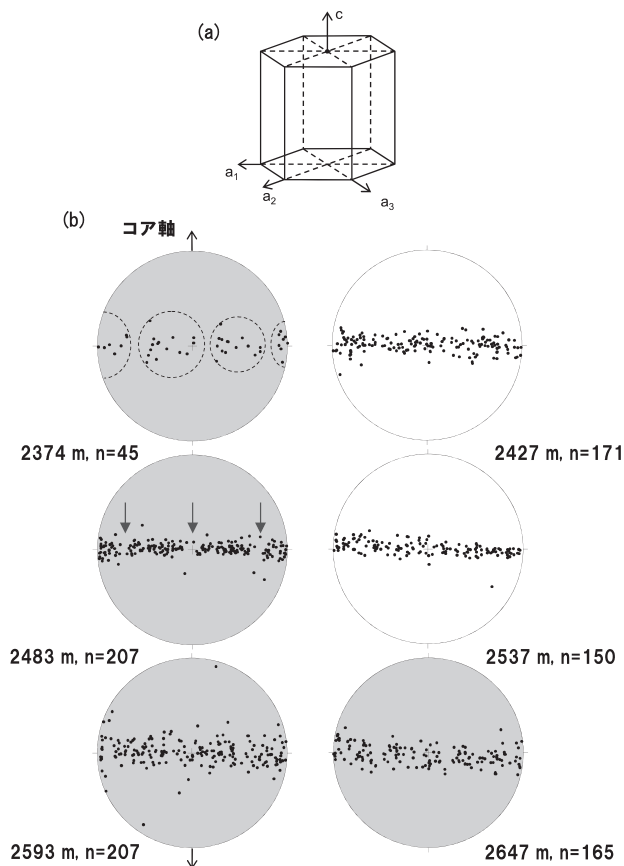


図6：(a)測定した軸方位（c軸とa軸3軸の計4軸）を表す模式図と(b)測定されたGRIPコアのa軸方位分布。各シュミット・ネットに付した数字は深度と測定数（a軸はひとつの結晶につき3軸測定しているので、測定結晶粒数は表示の数字の1/3.）。グレーで示したシュミット・ネットはa軸方位の異方性分布が確認されたことを表す。

示した)が60°毎に3箇所明瞭に確認することができる。当初、a軸方位はランダムに分布すると予想したが、c軸方位が強い単極大型を示す深度において、a軸方位も部分的に揃うことがX線による氷床氷の結晶方位解析から明らかになり、c軸方位分布がほぼ同じであってもa軸方位分布の集中度に差があることがわかった。

このa軸方位の異方性分布はc軸方位の分布のように深さとともに集中度が増すような傾向は確認されなかった。a軸方位が発達した深度と発達していない深度が互層を成している。これはc軸方位の集中化は深さとともに増す鉛直ひずみによる結晶粒の回転で説明されているが (Azuma and Higashi, 1985), a軸方位の異方性分布は別のメカニズムによるものであると予想できる。a軸方位の集中化の原因を明らかにするために、はじめに粒径を測定した。その結果、a軸方位の異方性分布が確認される部分の粒径はその周りに比べて小さいことが明らかになった。この構造は変成岩に見られるマイロナイト構造に類似している。マイロナイト構造は、強いせん断変形を受け、再結晶により鉱物が細粒多結晶化した時に生じる。氷床内部においても、特に氷床底部でせん断変形を受けた結果、粒径が比較的小さくなり、a軸方位が揃ったと考えられる。

さらに、GRIPコアの単純せん断試験を行い、変形前後のa軸方位分布を比較し、a軸の発達過程を調べた。試験装置はLi et al. (2000)と同様のものを用い、-15°Cの環境で行った。せん断方向は氷床深部の応力場を想定し、氷床の水平方向に平行（コア軸に対して鉛直）に設定した（図7a）。変形前の結晶a軸方位に異方性分布を確認することができない2427 mの試料を、

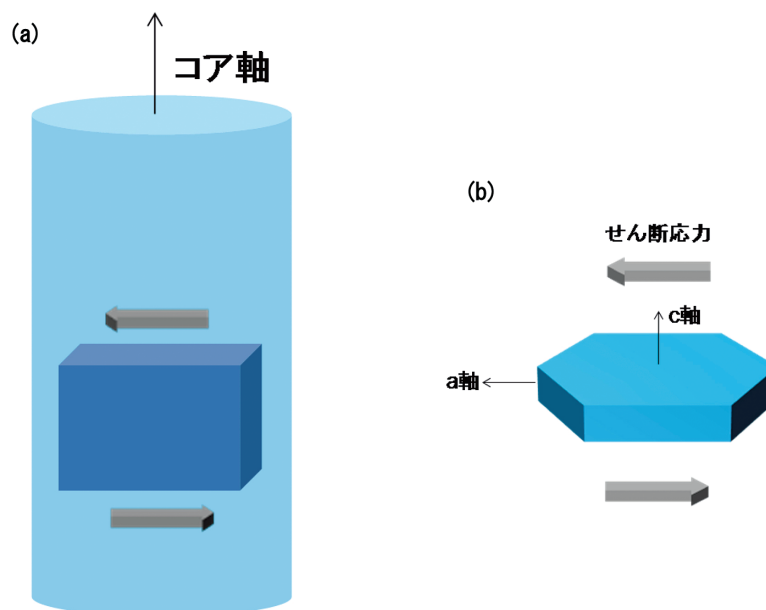


図7：(a)コア軸とせん断応力方向の関係を示す模式図。(b)せん断方向とa軸方位が一致することを示す概念図。

最終ひずみ量 30%まで単純せん断変形させた結果、変形後の a 軸方位には弱い異方性分布を確認することができた。変形後、結晶粒径は細粒化し、せん断方向とひとつの a 軸の集中軸 [1120] が一致していることが明らかになった (図 7b)。同様の分布が 2593 m の試験においても確認され、この試料の試験前の a 軸方位は異方性分布を示しており、その集中軸はせん断方向とは一致していなかったにも関わらず、試験後の a 軸方位集中軸はせん断方向に一致する傾向を示した。これらの試験結果より、その傾向は非常に弱いものの、a 軸方位がせん断方向に揃う傾向があることが明らかになった (Miyamoto et al., 2005)。

4.2. 氷の変形のしやすさと結晶方位分布の関係

氷床深部の応力場を想定した GRIP コアの単純せん断試験により得られたひずみ速度とその試験片の c 軸方位の集中度 (測定された各結晶方位の方向ベクトルの平行度で、方位がランダムな時 0%, すべての方向ベクトルが同じ方向の時に 100%の値を取る。) の関係を調べた (宮本ら, 2005)。単純せん断試験は、 -15°C において、応力 0.18 MPa で行った。用いた試料の c 軸方位の平行度は 93%以上で、どれもその分布は単極大型である。ひずみ速度は、ひずみ量の増加にともない、おそらく結晶粒の細粒化のためと考えられるが、減少が続けるので、細粒化が起きていないひずみ量 2%時のひずみ速度を比較した。ひずみ速度は、平行度 98%以上において急激に大きくなることが明らかになった。2427 m の試料の平行度は 98.1%, 2537 m は 98.8%とごくわずかな c 軸方位集中度の違いであるが、ひずみ速度は 2537 m の方が 2 倍以上大きい。c 軸方位の集中度が大きくなると、隣り合う結晶粒の角度差は非常に小さくなり、試料は単結晶体に近くなり、粒界が転位の移動の妨げになる効果が低くなっていると考えられる。

ここで、a 軸方位分布の影響について検討する。c 軸方位分布は両者とも強い単極大型であり、a 軸方位が異方性分布を持つものと持たないものの 2 つの試料間には転位の移動度に関して差が生じ、変形のしやすさも異なることが予想される。上述の通り、2427 m と 2537 m の両者の試料の c 軸方位分布の差はごくわずかであり、ほぼ同じと言える。2 倍以上のひずみ速度の差の原因を a 軸方位分布に求めれば、2537 m の a 軸方位分布の異方性がより強いと予想されるが、実際には 2427 m の異方性がより強かった。現時点では、a 軸方位分布の集中度を定量的に表すことができていないために、c 軸方位の影響と a 軸方位の影響を分離することができず、変形のしやすさと結晶方位分布の関係を定量的に議論することができないが、a 軸方位分布が変形のしやすさに与える影響は小さいと考えられる。いずれにしても、氷床深部の氷の力学的性質はコアの年代決定や氷床流動に大

きな影響を与え、単極大型に発達した結晶 c 軸方位分布がわずかに異なることにより、その性質が大きく変化することが明らかになり、氷床深部は非常に複雑な流動状態であると想像できる。また、地球温暖化などの影響で氷床全体の質量バランスが変わった時には、氷床の流動状態が大変動する可能性が示唆される。さらに詳細な議論を行うために、現在様々な地点で掘削された深層氷床コアに加え、次節に示すような結晶方位の関係を単純化した人工氷試料を用いた結晶方位解析と変形実験を継続している。

4.3. 再結晶粒の a 軸方位分布

a 軸方位の発達過程の詳細を明らかにするために、人工単結晶氷を用いた実験を行った。単結晶氷の基底面に最大分解せん断応力が働くように、一軸圧縮軸と c 軸のなす角度を 45° に設定し、 -15°C の温度条件下で試験を行った (図 8a)。その結果、変形後の試料は座屈しているものの変形量の大きいせん断変形帯に粒径数 mm の扁平した再結晶粒が発生した (図 8b, c)。試料の底面や表面に接しておらず、図 8c に示すように隣接せず、距離をおいて分布する結晶粒も含む 3 つの再結晶粒の結晶軸方位を調べた結果、c 軸、a 軸ともに揃った方位関係であることが明らかになった。この再結晶粒の方位は母結晶である元の単結晶氷の方位には一致せず、c 軸はせん断面にほぼ鉛直で、ひとつの a 軸が滑り方向にほぼ一致することもわかった。この結果は、氷床深部のコアにおいて発見されている a 軸方位分布を実験的に再現できたことを意味している。つまり、a 軸方位が揃うという特殊な結晶方位分布は、当初予想した通り、せん断変形により発達したものであることが示唆される。a 軸方位の集中度が定量化できれば、粒径の情報も参考にして、氷床内部においてそのせん断変形量等の情報を得られる可能性はあるが、詳細な議論は今後の課題である。

4.4. その他の研究への応用

X線ラウエ法による氷結晶方位解析装置は、その高精度、高空間分解能測定と c 軸以外の軸方位解析可能という特徴を生かして様々な研究に応用されている。氷床内部の結晶の再結晶過程の理解ために、結晶内に観察される亜結晶境界間の c 軸、および a 軸方位角度差を精密に測定することにより、その方位関係を議論した。南極 EDML コアを用いた研究では亜結晶境界の分布と方位角度差を調べたが、その方位関係は主に 3 つのパターン (①亜結晶境界は氷結晶の基底面に対して平行で、回転軸は基底面に平行。②亜結晶境界は基底面に対して垂直で、回転軸は基底面に平行。③亜結晶境界は基底面に対して垂直で、回転軸は基底面に垂直。) に分類でき、角度差は 4° 以下であることを見出した (Weikusat et al.,

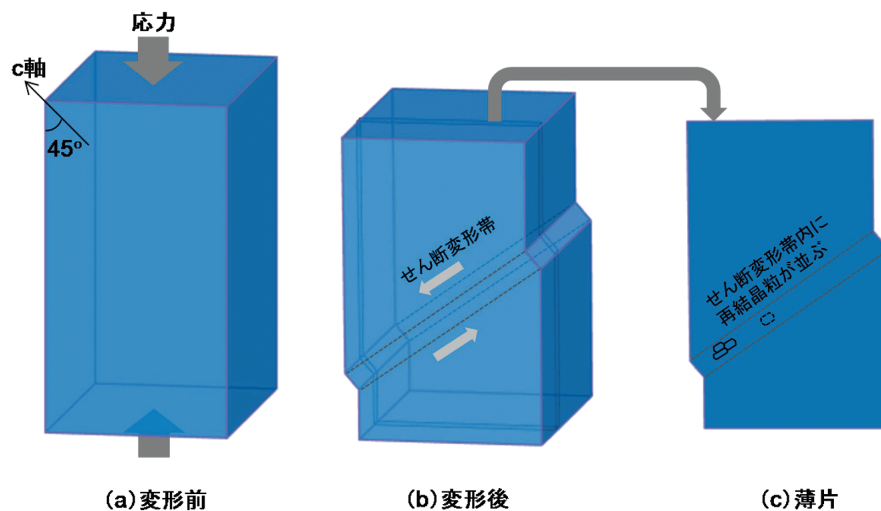


図8：単結晶氷の変形実験前後の試料と応力関係、変形状態を示す概略図。(a)変形前：c軸方位と圧縮軸のなす角度は45°。(b)変形後：試料は座屈しているものの、せん断変形帯(点線で示した部分)が確認され、再結晶粒が変形帯に並んでいることが確認された。(c)薄片：せん断変形帯内の再結晶粒の結晶方位を調べるために、薄片試料を切り出した。試料表面で核生成していない粒径数mm以上の結晶粒を選択し、結晶方位を測定した。六角形で示したように、結晶粒は必ずしも隣接して並ぶのではなく、距離を置いて分布する結晶も確認できた。

2011)。

また、高空間分解能測定を生かして細粒結晶の方位解析を行った。凍土中の析出水は針状の水を束ねた特有の構造を持ち、その断面の粒径は1mm以下から数mm程度と比較的小さく、従来の方法では結晶方位の測定は困難であった。この研究では、土の凍結に伴って発生する大きな凍上力について、析出水の結晶方位に着目して解明することを目指している。載荷重かけて析出水を成長させ、荷重と結晶c軸方位の関係を調べた。その結果、荷重ゼロの場合、主にa軸成長(c軸方位は氷の成長方向に対して鉛直)の氷結晶で構成されることを示し、荷重が大きくなるとc軸成長(c軸方位は氷の成長方向に対して平行)に変化する傾向が確認された(武田・宮本, 2010)。

5. まとめ

本稿では、氷の結晶方位測定に関して、これまで用いられてきた種々の測定方法を紹介し、それぞれの方法の利点と欠点をまとめた。特に筆者らが進める氷床研究において、氷の結晶方位測定を高精度に行うには、粒径等の試料の特徴からX線ラウエ法が有用であり、測定装置を開発し、半自動化された装置を完成させた。この装置の高精度方位測定とa軸方位の測定が可能という特長を生かした研究は未だ初期段階であるが、氷床氷のa軸方位の異方性分布の発見や単純せん断変形により生じた再結晶粒のa軸方位がせん断方向と一致する傾向があること、亜結晶粒界間の方位角度差の測定による方位関係の分類等、これまでになく新しい知見を得ることができた。また、高空間分解能測定が可能であることが

ら、氷床氷以外の微小氷結晶の方位測定にも応用されており、装置の適用範囲も広がりつつある。本装置を用いた研究の主な目的は氷床の内部構造の理解であるが、結晶方位の深さ分布の詳細を明らかにするには相当量の測定が必要になる。測定速度の向上は必須であり、現在も改良を進めているが、明らかになりつつある特殊な結晶方位分布や結晶組織は、地質学で研究されているものと類似しており、その実験方法や結果の解釈は氷床の研究にも参考になる点が多い。氷床コア研究においては、化学的な手法による地球の気候・環境変動の歴史の解明が注目されているが、氷床の内部構造と氷の力学的特性に関する知見を基に過去数十万年間にわたり氷が置かれていた物理的環境の変化と将来の氷床の変動を予想することは、地球変動システムを理解する上で重要なテーマである。地質学の知識も導入し、研究を進展させることによって、氷床の内部構造の理解を目的とした新たな氷床コア掘削の提案にもつながることが期待される。

謝辞

本研究を進めるにあたり、X線ラウエ装置のステージ部分およびX線シャッターコントローラ等の電子機器は低温科学研究所技術部に設計、製作していただいた。GRIP コア試料の使用については、北見工業大学の庄子仁教授、および欧州 GRIP 計画関係者に許可をいただき、便宜を図っていただいた。また、装置の開発は日本学術振興会科学研究費補助金 14 GS 0202, 22540426 の助成を受けて行われた。ここに深く感謝の意を表します。

参考文献

- Azuma, N. and A. Higashi. (1985) Formation processes of ice fabric pattern in ice sheets. *Ann. Glaciol.*, **6**, 130-134.
- Azuma, N. (1995) A flow law for anisotropic polycrystalline ice under uniaxial compressive deformation. *Cold Reg. Sci. Technol.*, **23**(2), 137-147.
- Castelnau, O., H. Shoji, A. Mangeney, H. Milsch, P. Duval, A. Miyamoto, K. Kawada, O. Watanabe. (1998) Anisotropic behavior of GRIP ices and flow in central Greenland, *Earth Planet. Sci. Lett.*, **154**(1-4), 307-322.
- Dahl-Jensen, D., N. S. Gundestrup, H. Miller, O. Watanabe, S. J. Johnsen, J. P. Steffensen, H. B. Clausen, A. Svensson and L. B. Larsen. (2002) The NorthGRIP deep drilling programme. *Ann. Glaciol.*, **35**, 1-4.
- Glen, J. W. (1955) The creep of polycrystalline ice. *Proc. Roy. Soc. London, Ser. A*, **228**(1175), 519-538.
- Higuchi, K. (1958) The etching of ice crystals. *Acta Metall.*, **6**(10), 636-642.
- Langway, C. C., Jr. (1958) Ice fabrics and the universal stage. SIPRE Tech. Rep. **62**.
- Langway, C. C. Jr., H. Shoji and N. Azuma. (1988) Crystal size and orientation patterns in the Wisconsin-age ice from Dye 3, Greenland. *Ann. Glaciol.*, **10**, 109-115.
- Li J., T. H. Jacka and W. F. Budd. (2000) Strong single-maximum crystal fabrics developed in ice undergoing shear with unconstrained normal deformation. *Ann. Glaciol.*, **30**, 88-92.
- Matsuda, M. (1979) Determination of a-axis orientations of polycrystalline ice. *J. Glaciol.*, **22**(86), 165-169.
- Miyamoto, A. (1999) Mechanical properties and crystal textures of Greenland deep ice cores. (Ph.D. thesis, Hokkaido University.)
- Miyamoto, A., H. Narita, T. Hondoh, H. Shoji, O. Watanabe, D. Dahl-Jensen, N. S. Gundestrup and H. B. Clausen. (1999) Ice sheet flow conditions deduced from mechanical tests of ice core. *Ann. Glaciol.*, **29**, 179-183.
- Miyamoto, A., H. Shoji and K. Hyakutake. (2002) The effect of hydrostatic pressure on crack formation in ice single crystals. *Mem. Natl. Inst. Polar Res. Spec. Issue*, **56**, 287-294.
- Miyamoto, A., K. Shimohara, K. Hyakutake, H. Shoji, H. Narita and T. Hondoh. (2003) Mechanical anisotropy of deep ice core samples by uniaxial compression tests. *Mem. Natl. Inst. Polar Res. Spec. Issue*, **57**, 168-177.
- Miyamoto, A., H. Shoji, A. Hori, T. Hondoh, H. B. Clausen and O. Watanabe. (2005) Ice fabric evolution process understood from anisotropic distribution of a-axis orientation on the GRIP (Greenland) ice core. *Ann. Glaciol.*, **42**, 47-52.
- Miyamoto, A., H. Shoji, T. Hondoh, H. B. Clausen and O. Watanabe. (2005) New consideration of ice fabrics development in the light of a-axes orientation of the GRIP and the Dome Fuji ice core. *Geophysical Research Abstracts*, **7**, 06544.
- 宮本 淳, 本堂武夫, 庄子 仁 (2005) 氷床深部氷の単純せん断変形実験. 第 28 回極域気水圏シンポジウムプログラム・講演要旨, 34.
- Miyamoto, A., I. Waikusat and T. Hondoh. (2011) Complete determination of ice crystal orientation using Laue X-ray diffraction method. *J. Glaciol.*, **57**(201), 103-110.
- Mori, Y., T. Hondoh and A. Higashi. (1985) Development of an automatic ice fabric analyser. *Ann. Glaciol.*, **6**, 281-283.
- 武田一夫, 宮本 淳 (2010) 土の凍結に伴う析出水の結晶構造の特性. 雪氷研究大会 (2010・長岡) 講演要旨集, 93.
- Taylor, K. C., C. U. Hammer, R. B. Alley, H. B. Clausen, D. Dahl-Jensen, A. J. Gow, N. S. Gundestrup, J. Kipfstuhl, J. C. Moore, and E. D. Waddington. (1993) Electrical conductivity measurements from the GISP2 and GRIP Greenland ice cores. *Nature*, **366**, 549-552.
- Wang, Y. and N. Azuma. (1999) A new automatic ice-fabric analyzer which uses image-analysis techniques. *Ann. Glaciol.*, **29**, 155-162.
- Weikusat, I., A. Miyamoto, S. H. Faria, S. Kipfstuhl, N. Azuma and T. Hondoh. (2011) Subgrain boundaries in Antarctic ice quantified by Laue X-ray diffraction. *J. Glaciol.*, **57**(201), 111-120.
- Wilson, C. J. L., D. S. Russell-Head, K. Kunze and G. Viola. (2007) The analysis of quartz c-axis fabrics using a modified optical microscope. *J. Microsc.*, **227**(1), 30-41.