

平成 30 年 6 月 27 日現在

機関番号：13102

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2015～2017

課題番号：15K13567

研究課題名(和文)小角散乱を用いた雪氷コア含有エアロゾルのマルチスケール定量解析技術の開発

研究課題名(英文)Development of multiscale and quantitative analysis technique of aerosol contained in ice core using small angle scattering

研究代表者

東 信彦 (Azuma, Nobuhiko)

長岡技術科学大学・工学研究科・学長

研究者番号：70182996

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,000,000円

研究成果の概要(和文)：気候に影響を及ぼすエアロゾル微粒子が積雪に取り込まれた後の挙動を知ることは、氷床コア解析による古気候復元や氷床モデリングで極めて重要である。本研究ではグリーンランドなど北極域で採取した積雪および氷床コア中のエアロゾル微粒子の定量評価を可能とするため、氷を融かすことなく測定可能なX線小角散乱(SAXS)法による測定技術を開発する。また、バルクの氷試料を薄片化することでX線の透過能をあげ、クリープ変形前後の微粒子の氷内部における挙動を定量評価し、クリープ変形に及ぼす微粒子の効果を明らかにする。

研究成果の概要(英文)：It is very important to know the behavior of aerosol contained in accumulated snow, which affects climate, in particular in the field of paleoclimate reconstruction and ice sheet modeling. In this study, in order to quantitatively evaluate aerosol particles in the accumulated snow and ice core obtained from Greenland and other north polar regions, we have developed measurement system of the particles using small angle X-ray scattering (SAXS) without melting ice samples. By thinning ice specimen for the SAXS measurement, the penetrative power of X-ray has been increased, and then the behavior of particles before and after the creep deformation is quantitatively evaluated. Based on these experiment, effect of particles on creep deformation has been clarified.

研究分野：雪氷学

キーワード：人工氷 クリープ X線小角散乱 亜粒界 結晶粒 氷床

1. 研究開始当初の背景

(1) 気候に影響を及ぼすエアロゾル微粒子が積雪に取り込まれた後の挙動を知ることは、氷床コア解析による古気候復元や氷床モデリングで極めて重要である。本研究ではグリーンランドなど北極域で採取した積雪および氷床コア中のエアロゾル微粒子の定量評価を可能とするため、氷を融かすことなく測定可能な X 線小角散乱 (SAXS) 法による測定技術を開発する。

(2) バルクの氷を薄片化することで X 線の透過能をあげ、クリープ変形前後の微粒子の氷内部における挙動を定量評価し、クリープ変形に及ぼす微粒子の効果を明らかにする。

2. 研究の目的

(1) 氷床の塑性変形に寄与すると考えられる氷床に含まれる微粒子には様々なものが報告されており、その多くは解析可能な大きさの微粒子であるが、直径 500nm 以下の微粒子 (以下、超微粒子) が氷床流動に及ぼす影響は、機器の分解能以下の大きさであることからその影響は必ずしも明らかでない。

(2) 線源として CuK 線 (波長: 0.154nm) を用いる実験室レベルの SAXS で測定可能な物体の大きさは、100nm 以下の粒径を有する微粒子であり、この範囲の大きさの超微粒子を人工氷中に分散し、人工氷を圧縮クリープ変形させることで、クリープ変形を中断し、変形部における超微粒子の凝集状態を SAXS を用いて解析することで、超微粒子が氷のクリープ変形に及ぼす効果を解析した。

3. 研究の方法

(1) 直径 10~20nm のアモルファス状の SiO₂ 粉末を用いて実験を行った。濃度 0.01 および 0.1wt.% の SiO₂ を純水に混合し、スプレーにより液体窒素中に噴霧して粉氷を作成した。得られた円柱状試料を旋削し、直径 11.5mm、高さ 25mm のクリープ用試験片を作成した。

(2) クリープ試験機は自作の一軸圧縮クリープ試験機を用いた。シリコンオイルをプラスチック容器に氷試料が埋まるまで入れ、上からおもりを載せて時間経過とともにデジタル変位計で変位を測定した。クリープ試験機はフリーザー内に設置し、温度 -5、負荷応力 0.3~1MPa、最大ひずみ 26% まで圧縮クリープ試験を行った。

(3) SAXS はリガクの nano-viewer を用いて測定を行った。氷試料の測定を可能とするため、冷却可能な試料ホルダーを開発し、低温で 1h 程氷を融かさずに SAXS 測定を可能とした。クリープ前後の氷試料を試料中心部から採取し、マイクロトームを用いて試料厚さ 0.7mm まで試料を薄膜化した。この試料に X 線を照射し、透過ビームをイメージングプレ

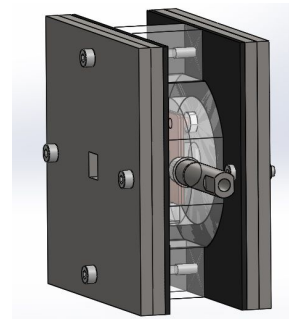


図1 氷試料保持用ホルダー試作品

ート (IP) で検出し、強度プロファイルを獲得した。SAXS の測定時間は 1h とし、ひずみ 0、5、15、26% の条件で測定を行った。X 線強度は容器、空気からの散乱を加味して、ノイズ除去を行い解析した。

4. 研究成果

(1) 図1に SAXS 測定用に開発した試料ホルダーの 3次元立体画像を示す。氷試料は銅板に挟むことで銅を液体窒素等で外部から冷却し、それにより氷を融かさずに測定できるシステムを構築した。アクリル製の筒状のコンテナ内に氷試料を固定し、内部をロータリーポンプを用いて真空引きできる設計とした。また、コンテナの両面をゴムシートで挟み、外側をアクリル板で固定し、X 線の透過経路に穴を明け、真空を保つため窓をカプトンテープで塞ぎ、X 線の透過を可能とした。SAXS で得られる X 強度は、測定時間の増加とともに増加するため、測定時間 1h を可能とする設計を実現した。

(2) 氷試料に超微粒子として SiO₂ を分散させ、X 線強度が測定可能な濃度および氷の膜厚の最適値を求めた。この結果、0.01wt.% 以上の SiO₂ を分散させると、X 線強度が検出可能であること、また氷試料の膜厚を 0.7mm とすると、十分 X 線が氷試料中を透過し、IP で X 線が検出可能であることを確認した。

(3) 得られた氷試料の粒径は、純水氷、0.01% SiO₂ 含有試料、0.1% SiO₂ 含有試料でそれぞれ 67.4、51.2、37.0μm となり、SiO₂ 添加

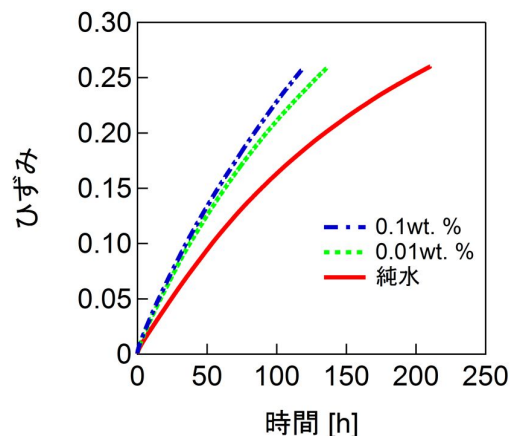


図2 クリープ曲線

量の増加とともに、初期粒径が微細化する。これらの初期試料に対し、 -5 、 0.5MPa の条件でクリープ試験を行い、得られたクリープ曲線を図2に示す。一般的に初期粒径が大きい試料でクリープ速度が低下する傾向を示すことが知られているが、初期粒径が最も大きい純水氷でクリープ特性が優れる（硬くなる）ことがわかる。一方、微粒子を含有した氷試料では、軟らかくなる傾向を示した。

(4) クリープ変形時の負荷応力を変化させて、ひずみ10%で応力指数を求めたところ、応力指数は ~ 2 となることがわかった。変形後にひずみ5、15、26%で中断試験を行い、組織観察を行うと、面白いことに SiO_2 含有氷では氷の粒径がほとんど変化しないのに対し、純水氷のみひずみ26%で平均粒径が $107\mu\text{m}$ まで増加することを確認している。一方、亜粒界密度を測定すると、 SiO_2 含有氷はともに5%ひずみまで大幅に亜粒界密度が低下しその後飽和するのに対し、純水氷では亜粒界密度がひずみ15%まで低下し、その後飽和する傾向を示した。これは SiO_2 含有氷では SiO_2 が粒界をピン止めすることで微細粒を維持させる効果があり、しかもどの氷試料でも粒界拡散を介したクリープ変形が生じていることを示唆している。

(5) クリープ変形中断試験によりSAXSを用いて SiO_2 の平均粒径を求めた。得られた平均粒径は $40\mu\text{m}$ 以上となり、 SiO_2 が凝集体を形成することが示唆される。また、凝集体の大きさは、クリープひずみに依らず0.1% SiO_2 含有試料の方が凝集体の大きさが小さい。0.01、0.1% SiO_2 含有試料どちらもひずみに対する凝集体のサイズ変化は変わらず、ひずみ5%まで増加傾向を示し、その後15%で減少、26%まで再び増加する傾向を示した。この挙動は粒界に偏析することが予想される凝集体が粒界拡散により凝集体の大きさが増加し、その後粒界すべりが起きることで凝集体の分断が起き、最終的に再び粒界拡散が起こることで凝集体の大きさが大きくなると予想される。

<引用文献>

藤井理行、本山秀明、アイスコア、成山堂、2011.

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計1件)

T. Homma, H. Mima, M. Nanko, M. Takeda, Dispersion of nanoscale oxides in MnSi1.73 fabricated by solid state reaction and pulsed electric current sintering, Applied Physics Letters, 108, 2016, p. 103901.

[学会発表](計19件)

猿谷友孝、中島甲葵、高田守昌、本間智之、東信彦、東久美子、微細結晶氷のクリープ変形における結晶粒径と含有不純物の影響、地球惑星科学連合2018年大会、2018.

W. Shigeyama, N. Nagatsuka, T. Homma, M. Takata, K. Goto-Azuma, I. Weikusat, M.R. Drury, E.J.N. Kuiper, G.M. Pennock, R.V. Mateiu, N. Azuma, D. Dahl-Jensen, In-situ observations of solid particles in the Greenland NEEM ice core, Japan Geoscience Union Meeting 2018 (JpGU), 2018.

東久美子、川村賢二、中澤文男、平林幹啓、永塚尚子、繁山航、尾形純、福田かおり、本間智之、グリーンランドEGRIP計画における2016~2018年の日本の観測活動及び氷床コア解析、Japan Geoscience Union Meeting 2018 (JpGU), 2018.

K. Goto-Azuma, F. Nakazawa, K. Kawamura, M. Hirabayashi, N. Nagatsuka, W. Shigeyama, J. Okuno, S. Fujita, H. Enomoto, T. Saruya, K. Nakajima, T. Homma, M. Takata, N. Azuma, Japanese activities under EGRIP (East Greenland Ice Core Project), Fifth International Symposium on Arctic Research, 2018.

T. Saruya, K. Nakajima, M. Takata, T. Homma, N. Azuma, K. Goto-Azuma, Effect of solid particles on polycrystalline ice and its relations with rapid deformation of ice-age ice, Fifth International Symposium on Arctic Research, 2018.

T. Homma, N. Shinbo, W. Shigeyama, K. Nakajima, T. Saito, M. Takata, K. Goto-Azuma, N. Azuma, Application of small angle X-ray scattering to fine particles dispersed in crept artificial ice samples, The Eighth Symposium on Polar Science, 2017.

W. Shigeyama, N. Nagatsuka, T. Homma, M. Takata, K. Goto-Azuma, I. Waikusat, M.R. Mrury, E.J.N. Kuiper, G.M. Pennock, R.V. Mateiu, N. Azuma, D.D. Jensen, Microstructural analysis of the NEEM ice core, Greenland by using electron backscatter diffraction (EBSD), The Eighth Symposium on Polar Science, 2017.

T. Homma, K. Nakajima, T. Saruya, M. Takata, N. Azuma, K. Goto-Azuma, Effect of impurities on deformation behaviour of fine grained artificial ice modeled on the EGRIP ice core
会議名: NEGIS Workshop in 3rd EGRIP meeting, 2017.

東久美子、川村賢二、中澤文雄、平林幹啓、永塚尚子、繁山航、本間智之、宮原盛厚、東グリーンランド深層氷床掘削プロジェクト (EGRIP) における現地観測及び氷床コア解析計画、雪氷研究大会 (2017・十日町) 2017.

猿谷友孝、中島甲葵、高田守昌、本間智之、東信彦、東久美子、氷期氷の速い変形と固体微粒子の関連性について、雪氷研究大会 (2017・十日町) 2017.

中島甲葵、猿谷友孝、高田守昌、本間智之、東信彦、東久美子、人工多結晶氷のクリープ変形に伴う微細組織の変化、雪氷研究大会 (2017・十日町) 2017.

T. Saruya, K. Nakajima, T. Homma, M. Takata, N. Azuma, K. Goto-Azuma, Effects of solid particles on crystal structures and mechanical properties of polycrystalline ice, The Seventh Symposium on Polar Science, 2016.

W. Shigeyama, N. Nagatsuka, T. Homma, M. Takata, K. Goto-Azuma, I. Waikusat, M.R. Drury, E.J. Kuiper, G.M. Pennock, R.V. Mateiu, N. Azuma, Effects of solid particles on deformation and texture/fabric evolution of ice, The Seventh Symposium on Polar Science, 2016.

東久美子、川村賢二、藤田秀二、奥野淳一、本山秀明、阿部彩子、グレーベ・ラルフ、齋藤冬樹、本間智之、東信彦、榎本浩之、Dorthe Dahl-Jensen, 北東グリーンランド氷流での国際氷床深層掘削プロジェクトによる気候・氷床変動の研究, Japan Geoscience Union Meeting 2016, 2016.

新保尚敬、本間智之、高田守昌、東久美子、東信彦、X線小角散乱を用いた人工氷中の超微粒子の定量解析、雪氷研究大会 (2016・名古屋) 2016.

猿谷友孝、中島甲葵、本間智之、高田守昌、東信彦、東久美子、微細粒多結晶氷の塑性変形に及ぼす固体微粒子の影響、雪氷研究大会 (2016・名古屋) 2016.

W. Shigeyama, N. Nagatsuka, T. Homma, M. Takata, K. Goto-Azuma, I. Waikusat, M.R. Drury, E.J. Kuiper, G. Pennock, N. Azuma, Measurement of misorientation in ice crystals by using electron backscatter diffraction (EBSD), The Sixth Symposium on Polar Science, 2015.

K. Goto-Azuma, K. Kawamura, S. Fujita, J. Okuno, A. Abe-Ouchi, R. Greve, F. Saito, T. Homma, N. Azuma, H. Motoyama, H. Enomoto, D. Dahl-Jensen, Japanese participation in the new international deep ice core project in Greenland (EGRIP) under the ArCS project, The Sixth

Symposium on Polar Science, 2015.

繁山航、永塚尚子、本間智之、高田守昌、東久美子、R.V. Mateiu、東信彦、電子線後方散乱回折法を用いた氷の結晶方位に向けた技術開発、雪氷研究大会 (2015-松本) 2015.

〔図書〕(計0件)

〔産業財産権〕

○出願状況 (計0件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年：
国内外の別：

○取得状況 (計0件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
取得年：
国内外の別：

〔その他〕
ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

東 信彦 (AZUMA, Nobuhiko)
長岡技術科学大学・工学研究科・学長
研究者番号：70182996

(2) 研究分担者

本間 智之 (HOMMA, Tomoyuki)
長岡技術科学大学・工学研究科・准教授
研究者番号：50452082

高田 守昌 (TAKATA, Morimasa)
長岡技術科学大学・工学研究科・助教
研究者番号：50377222

東 久美子 (GOTO-AZUMA, Kumiko)
国立極地研究所・研究教育系・教授
研究者番号：80202620