

# 位相コントラストX線イメージング法を用いた氷床コア中におけるエアハイドレートの三次元分布解析

竹谷敏<sup>1</sup>、後藤義人<sup>1</sup>、米山明男<sup>2</sup>、上田和浩<sup>2</sup>、宮本淳<sup>3</sup>、本堂武夫<sup>3</sup>、堀彰<sup>4</sup>、兵藤一行<sup>5</sup>、武田徹<sup>6</sup>

<sup>1</sup>産業技術総合研究所、<sup>2</sup>日立製作所、<sup>3</sup>北海道大学、<sup>4</sup>北見工業大学、<sup>5</sup>高エネルギー加速器研究機構、<sup>6</sup>北里大学

## Three dimensional analysis of air hydrate in ice core sample by using phase-contrast X-ray imaging techniques

Satoshi Takeya<sup>1</sup>, Yoshito Gotoh<sup>1</sup>, Akio Yoneyama<sup>2</sup>, Kazuhiro Ueda<sup>2</sup>, Atsushi Miyamoto<sup>3</sup>, Takeo Hondoh<sup>3</sup>, Akira Hori<sup>4</sup>, Kazuyuki Hyodo<sup>5</sup>, Tohoru Takeda<sup>6</sup>

<sup>1</sup>National Institute of Advanced Industrial Science and Technology, <sup>2</sup>Hitachi Ltd., <sup>3</sup>Hokkaido Univ., <sup>4</sup>Kitami Institute of Technology, <sup>5</sup>High Energy Accelerator Research Organization, <sup>6</sup>Kitasato University

Phase-contrast X-ray imaging (PCXI) technique with synchrotron X-ray radiation is a unique technique to identify air hydrate within ice crystal. Methodologies of non-destructive imaging of air hydrate by the PCXI technique using a specially designed cryo-chamber, and examples of non-destructive images of air hydrate within ice cores drilled from Dome F are reported. The cryogenic imaging technique developed by means of two different PCXI techniques, X-ray interferometric imaging (XII) and diffraction enhanced imaging (DEI), allows us measurements under temperature conditions from 190 K up to 370 K with special resolution of 50  $\mu\text{m}$ .

### 1. はじめに

南極やグリーンランドでは、雪は解けずに堆積し氷床氷へと変化する。降雪時の大気は、降り積もった積雪層の重さによる圧密によって、氷の中に気泡として取り込まれ、気泡中の空気はおよそ深さ 500m を超えると、氷と反応しエアハイドレート結晶へと徐々に変化し、1300m では気泡は全てハイドレート(サイズ: 数百マイクロン以下)に変化する。このエアハイドレートを観察するにあたり、従来のように顕微鏡観察で 3 次元分布を調べるためには、大変な労力がかかった。一般的に非破壊検査に用いられる吸収コントラスト型 X 線 CT 法や MRI 法では、エアハイドレート結晶粒子とまわりの氷は共に水分子によって形成され、かつそれらの密度差は非常に小さいため、エアハイドレートと氷との識別が出来なかった。

我々は、位相コントラスト X 線イメージング手法のなかでも特に密度分解能が高い X 線干渉 (XII) 法を用い(1)、低温測定可能なイメージング技術を開発し、氷中のエアハイドレートや水中の THF ハイドレートの可視化に成功した(2,3)。XII 法では、密度に対するダイナミックレンジが狭いため、氷中に気泡が共存する状態では、ハイドレートの観察ができない点が問題であったが、位相コントラスト X 線イメージング手法の一種である屈折コントラスト (DEI) 法を用い、氷中にエアハイドレートと気泡が共存する状態での X 線イメージングを可能にした。本発表では、これら位相コントラスト X 線イメージング法を用いた氷中のエアハイドレートの非破壊三次元可視化技術に関して発表する。

### 2. 実験方法

X 線が透過率の高い物質(酸素、窒素、水素等の軽元素で構成される物質)を通過した場合、強度はほとんど変化しないが、位相は大きくシフト(屈折)する。このシフトを強度に変換して検出すれば、軽元素で構成される物質に関しても、高感度な観察が可能になる。本研究においては、位相シフトを検出する方法として、試料を透過した X 線を、試料を透過していない参照波と干渉させる方法(干渉法)、アナライザー結晶とよばれる単結晶の回折により位相シフトの空間微分である試料の屈折角度分布を測定する DEI 法を用いた。両者の測定において、高エネルギー加速器研究機構のシンクロトロン放射光を利用した。

Fig. 1 に今回の測定で用いた XII 法と DEI 法の光学系、クライオチャンバーの概略を示す。クライオチャンバーは断熱層、液体容器、冷却装置、温調ユニットから構成されており、液体窒素の供給により、数時間～数日に渡ってサンプルを液体(酢酸メチル)に浸けた状態で  $\pm 1\text{K}$  の精度で温度(温度範囲:  $-85 \sim +100$ )を保つことができる。また、画像の空間分解能は、いずれの場合も、およそ  $50\mu\text{m}$  である。

### 3. 結果および考察

南極ドームふじより掘削した氷コアに関し、XII 法と DEI 法の両方の手法で氷コア中のエアハイドレートの可視化が可能であることが示された (Fig. 2)。XII 法においては、個々のエアハイドレート結晶の高精細な識別が可能であり、かつ、数  $\text{mg}/\text{cm}^3$  の密度分解能での測定が可能であることが示されている(2)。DEI 法では、氷中にエアハイドレートと気泡が共存する状態においても、氷とエアハイドレートの識別が可能であることが確認された。すなわち、密度分解能に関しては DEI 法よりも XII 法がより高く(4)、密度のダイナミックレンジでは DEI 法が XII 法より広いという特性が確認された。本研究で用いたクラ

イオセルは、XII 法と DEI 法の両方の手法での使用に対応するよう独自に開発したものである。これにより、氷コア中にエアハイドレートと気泡の両方が含まれる深さ 500m ~ 1300m 場合や、エアハイドレートのみが含まれる 1300m 以深の場合など、試料毎に両測定手法の長所をいかし目的に応じた測定を行うことが可能となった。

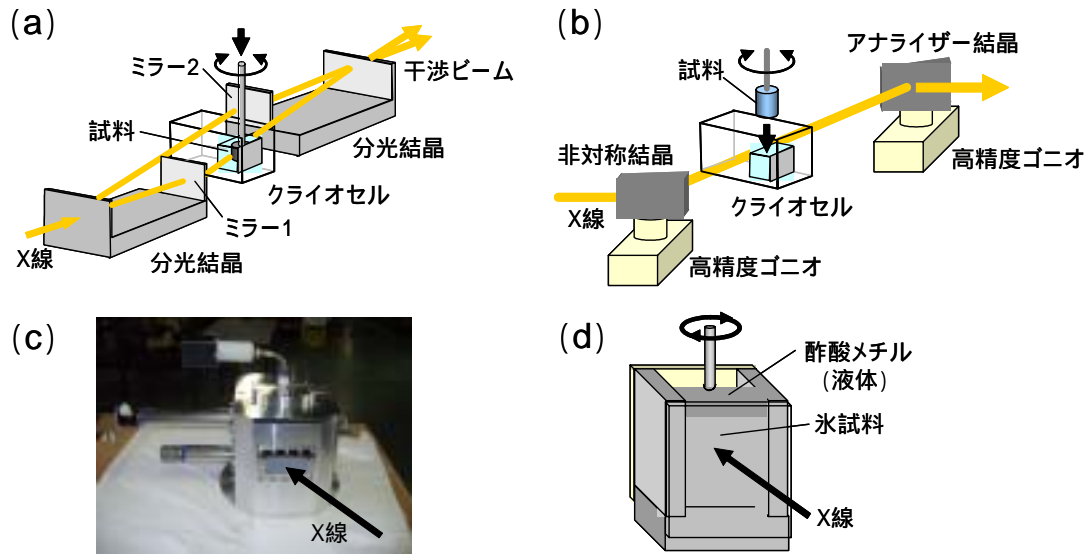


Figure 1. 装置概略

(a) X線干渉(XII)法, (b) 屈折コントラスト(DEI)法, (c) クライオセル, (d) クライオセル内の液体試料容器

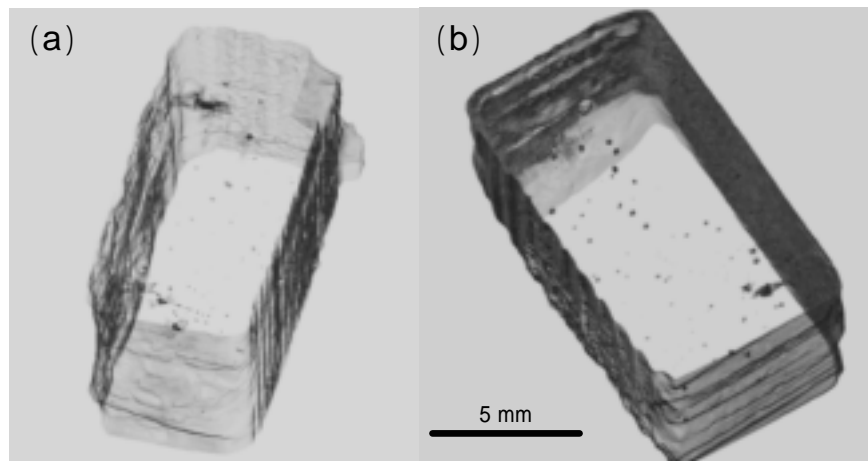


Figure 2. 氷中のエアハイドレートの位相コントラスト X 線イメージ

(a) 氷コア(2175.6m 深)の XII 像, (b) 氷コア(2175.8m 深)の DEI 像

直方体型氷(外形のみ描写)を透視して見た様子で、内部に粒状のエアハイドレートが観察される

謝辞

この研究に用いられた氷コア試料は、南極地域観測隊が南極ドームふじにて採取したものの一部である。本研究の放射光を用いた測定は、高エネルギー加速器研究機構放射光施設の共同利用課題(2010G170, 2009S2-006)のもとで実施した。また、本研究の一部は、本研究は科研費(23550036)の助成を受けたものである。

References

- 1) Yoneyama, A. et al. A phase-contrast X-ray imaging system—with a 60 x 30mm field of view—based on a skew-symmetric two-crystal X-ray interferometer, Nucl. Instrum. Meth. A 523, 217-222, 2004.
- 2) Takeya, S. et al. Observation of low-temperature object by phase-contrast x-ray imaging: Nondestructive imaging of air clathrate hydrates at 233 K, Rev. Sci. Instrum. 77, 053705-1-4, 2006.
- 3) Takeya, S. et al. Imaging and density mapping of tetrahydrofuran clathrate hydrates by phase-contrast x-ray computed tomography, Appl. Phys. Lett. 90, 081920-1-3, 2007.
- 4) Yonayama, A. et al. Quantitative comparison of imaging performance of x-ray interferometric imaging and diffraction enhanced imaging, Med. Phys. 35, 4724-4734, 2008.