

論文

樹脂包埋法による雪結晶のレプリカ作製および それを用いた雪結晶の表面構造計測とその精度

柳 敏^{1,2*}, 久保明彦³, 亀田貴雄³,
田牧純一³, A.M.M. Sharif Ullah³

要 旨

アクリル系可視光硬化型樹脂 (LCR0208) を用いて、樹脂包埋法で雪結晶のレプリカを作製するときの最適条件を把握するため、樹脂の光硬化特性および硬化反応熱と気温との関係を実験的に調べた。また、金属製粗さ標準片を用いてレプリカの転写精度を確かめた。その結果、気温が -2°C 以下で $2000\sim 8000\text{ lux}$ の可視光を10分間照射すると、試料の雪結晶に樹脂の硬化反応熱などに伴う融解が起きず、レプリカが正常に形成されることがわかった。また、樹脂の硬化収縮でレプリカの寸法は2%程縮小し、 0°C 以下では溝状部での樹脂の未充填が生じることもわかった。雪結晶の細かな構造への樹脂の未充填による補正量は、 $0.04\mu\text{m}$ と見積もることができた。これはレーザー顕微鏡による表面構造の測定精度 ($\pm 0.5\mu\text{m}$) よりも小さく、補正をする必要はなかった。従って、レプリカの形状を $\pm 0.5\mu\text{m}$ の精度で評価する場合、樹脂の硬化収縮 (+2%の長さ補正に相当) を考慮することで雪結晶の表面構造を定量的に把握できる。

キーワード：雪結晶, レプリカ, 光硬化性樹脂, 樹脂包埋法, 転写精度, 3次元構造

Key words: snow crystal, replication, light-curing resin, embedding method, copying accuracy, 3D structure

1. はじめに

雪結晶の表面構造は、人工雪結晶、または人工霜結晶を対象として、結晶を切断した切断面の観察 (Nakaya, 1954) や干渉色の観察 (Mason *et al.*, 1963) などによって調べられているが、天然雪結晶を対象とした報告例は少ない。これは、昇華・変形の速い雪結晶の表面構造を氷点下の屋外で迅速かつ正確に観察あるいは測定しなければならぬという天然雪結晶特有の問題のためである。

また、雪結晶において、表面構造を含む結晶全体の3次元的な形態を正確に把握することは、雪結晶の3次元的な形態形成過程を明らかにする上で重要な課題である。このことは、例えば、雪結晶のラクーナ成長による形態形成を提唱したFrank (1974) や、反射型光学顕微鏡を用いて雪結晶構造の定性的観察を行った油川 (1992) において指摘されている。

しかしながら、天然雪結晶の形態は、Nakaya (1954) を始めとし、これまで主に直接観察によって調べられており、レプリカによる形態の把握は補助的手段として用いられていた (例えば、山見・孫野, 1980; 菊地, 1971 など)。これは、従来広く用いられてきたフォルムバル溶液 (レプリカ液) の溶媒揮発によるレプリカ作製法では、雪結晶の表面構造を精度良く保存することが困難であったた

1 北見工業大学大学院

〒090-8507 北海道北見市公園町 165 番地

2 北海道網走南ヶ丘高等学校

〒093-0031 北海道網走市台町 2-13-1

3 北見工業大学

〒090-8507 北海道北見市公園町 165 番地

* 連絡先: abg00040@hkg.odn.ne.jp

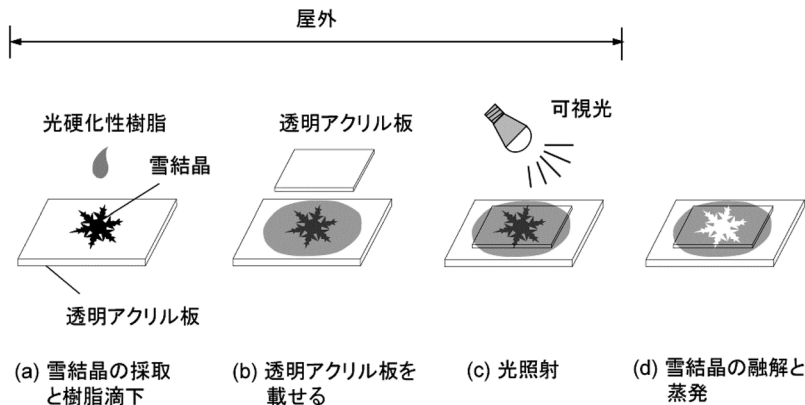


図 1 樹脂包埋法による雪結晶レプリカの作製 (柳, 2005 より).

めである (Kobayashi, 1955; Gonda and Yamazaki, 1980; Griggs and Jayaratne, 1985; Takahashi and Fukuta, 1987).

また, Smith-Johannsen (1965) は, 溶媒揮発を用いることなくプラスチックを硬化させる手段として, シアノアクリレートの重合反応を用いた雪結晶レプリカ作製法を開発した. この作製法は, 雪結晶をシアノアクリレートの蒸気に曝すことによって雪結晶表面上にシアノアクリレートの薄膜を形成する方法であるが, シアノアクリレートの蒸気の影響で原形となる雪結晶にひげ状構造の異常形態が発生するという問題が指摘されている (Anderson *et al.*, 1969).

雪結晶レプリカ作製法での形状保存性の問題を解決する手段として, 柳 (2005) は光硬化性樹脂を雪結晶形態の保存に用いる手法を提案した. これは液状の光硬化性樹脂に雪結晶を浸漬した状態で樹脂硬化を行うことにより雪結晶全体を樹脂層の中に包埋したレプリカ (これを樹脂包埋レプリカと呼ぶ) を作製する方法であった. Tamaki *et al.* (2012) は柳 (2005) による雪結晶レプリカの形状転写精度を検証するため, 紫外線硬化型の光硬化性樹脂を用いて雪結晶の片側表面の構造を保存したレプリカ (これを片面レプリカと呼ぶ) を作製し, その形状転写精度に及ぼすレプリカ作製条件の影響を検討した. 片面レプリカでは, 雪結晶の片側表面の構造を樹脂表面に転写・保存するため, 雪結晶の表面構造を精度良く測定できるという利点があるためである. その結果, 光硬化性樹脂を用いた雪結晶レプリカの形状転写精度は,

レプリカ作製に使用する樹脂の粘度, および樹脂の硬化収縮率が影響を及ぼすことがわかった.

しかし, 雪結晶には, 主に柱状または板状, あるいはそれらの組み合わせとしての多様な形態があり (Nakaya, 1954; Magono and Lee, 1966; 菊地ら, 2012; Kikuchi *et al.*, 2013), その表面に, 雪結晶の特有な模様として観察される微細な凹凸の構造が存在する (油川, 1992; 山下, 2011). 従って, 雪結晶のどの部分にどのような表面構造があるのかを調べるには, 雪結晶全体の 3 次元的な形態を保存したレプリカ, すなわち, 樹脂包埋レプリカを使用する必要がある.

そこで, 本論文では雪結晶の樹脂包埋レプリカ作製に用いる光硬化性樹脂の硬化特性を実験的に調べた. これにより把握した樹脂硬化の最適条件, および金属製粗さ標準片を用いて測定したレプリカでの表面構造の転写精度を報告する. また, 樹脂包埋レプリカで樹脂内部に空洞として保存される雪結晶の 3 次元構造を共焦点レーザー顕微鏡を用いて測定し, 把握した雪結晶の形態および枝の構造的な特徴と従来の直接観察による雪結晶の構造を比較した. それにより, 樹脂包埋レプリカを用いた雪結晶構造の測定でのレーザー顕微鏡の有効性を報告する.

2. 実験の方法と結果

2.1 樹脂包埋法による雪結晶レプリカの作製

図 1 に, 樹脂包埋法によって雪結晶レプリカを作製する手順を示す (柳, 2005 の図を一部改変). 透明なアクリル系樹脂板 (以後, アクリル板と呼

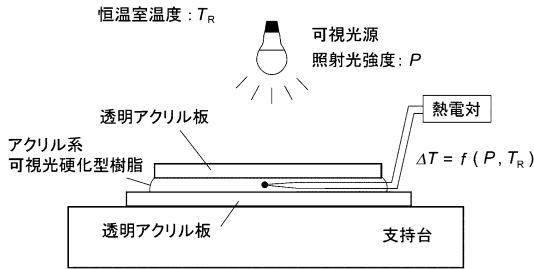


図 2 光硬化性樹脂の硬化実験.

ぶ, 厚さ 1 mm) を屋外に持ち出し, その表面に雪結晶を採取した後, アクリル系の可視光硬化型樹脂 (アロニックス, 型式 LCR0208, 東亜合成(株)) を滴下する (図 1a). 液状の可視光硬化型樹脂がアクリル板と雪結晶の間に入り, 雪結晶の全面を覆ったことを確認する. 次に, もう 1 枚のアクリル板を雪結晶の上部に載せ, これらの 2 枚のアクリル板の間に可視光硬化型樹脂が充填されており, その中に雪結晶があることを確認する (図 1b). さらに, アクリル板の上方から電球型蛍光灯 (型式 EF A 12ED, (株)東芝) で可視光を一定時間照射し樹脂を硬化させる (図 1c). これら一連の作業は, 雪結晶の融解が生じない -3°C 以下の気温で行う. 樹脂が硬化した後, 図 1c で作製した試料を室温下に静置することで雪結晶は融解して水になり, 数週間後にはその水が硬化した可視光硬化型樹脂を通過して大気中に蒸発する. その結果, 可視光硬化型樹脂の内部に雪結晶の空洞ができ, レプリカを作ることができる (図 1d).

このレプリカの特徴は, 紫外線硬化型の光硬化性樹脂を使用した片面レプリカと異なり, 一定の厚みを有する光硬化性樹脂層の両側が 2 枚の透明アクリル板で覆われている点である. このため, 樹脂包埋法によって雪結晶レプリカを作製する場合には, 樹脂硬化用の光としてアクリル板に対する透過性の良い可視光を使用し, 光硬化性樹脂も可視光硬化型の樹脂 (LCR0208) を使用した.

2.2 光硬化性樹脂の硬化特性

図 2 に, 可視光硬化型樹脂の硬化反応速度に及ぼす気温の影響を調べるための実験概要を示す. 実験方法は片面レプリカの作製を行った Tamaki *et al.* (2012) と同様である. すなわち, 図 2 に示すように, 液状の可視光硬化型樹脂の内部に K

表 1 光硬化性樹脂の硬化実験条件.

光硬化性樹脂	アクリル系可視光硬化型樹脂 LCR0208, 東亜合成 (株) 粘度: 0.3 Pa s (24°C) 硬化後の体積収縮率 6.7 %
透明アクリル板	L $10 \times W 10 \times t 1 \text{ mm}$ L $76 \times W 26 \times t 1 \text{ mm}$
滴下量	$60 \mu\text{l}$
可視光源	電球型蛍光灯 EF A 12 ED, (株)東芝
照射光強度 P	$1000 \sim 10000 \text{ lux}$
照射時間	50 分間
熱電対	K 型, $\phi 50 \mu\text{m}$
室温 T_R	$-20, -10, 0, 10, 20^{\circ}\text{C}$

型熱電対 (素線径 $50 \mu\text{m}$) を挿入してから透明アクリル板で液状の樹脂を覆い, その後, 可視光を一定時間照射し, 光硬化反応に伴う樹脂の温度変化を調べた.

表 1 に実験条件を示す. 可視光硬化型樹脂の滴下量は $60 \mu\text{l}$ とし, 恒温室の温度 T_R (以後, 気温と呼ぶ) と照射光強度 P をパラメータとして樹脂内部の温度を測定した.

図 3 は, 気温 T_R が 20°C のときの測定結果である. いずれの照射光強度においても樹脂温度は光照射の開始とともに急激に上昇し, 光照射を開始してから 1~3 分後に最大値に達した. その後, 樹脂温度は緩やかに下降し, やがて一定値になった. 気温を 20°C から -20°C まで変えた場合でも同様の温度変化となった.

ところで, 光硬化性樹脂の硬化反応による発熱は, 大田ら (2009) が示差走査熱量計を用いた熱分析実験を行い, 照射光強度が大きいくほど硬化反応による発熱量のピーク値が上昇し, また, 発熱量がピーク値に達するまでの時間も短くなることを報告している. この硬化発熱の挙動は, 図 3 に示した可視光硬化型樹脂の温度変化と同じであることから, 本実験で測定した樹脂の温度変化も主に硬化反応に伴う発熱によると考えた. そこで, 図 3 に示す $\Delta T-t$ 曲線のピーク温度を最大上昇温度 ΔT_m とし, また, 樹脂温度がピーク値に達した後の放熱過程において 20 秒間あたりの温度変化が 0.1°C 以下になる時点の光照射開始からの経過時間を硬化終了時間 t_f とし, これらの調査

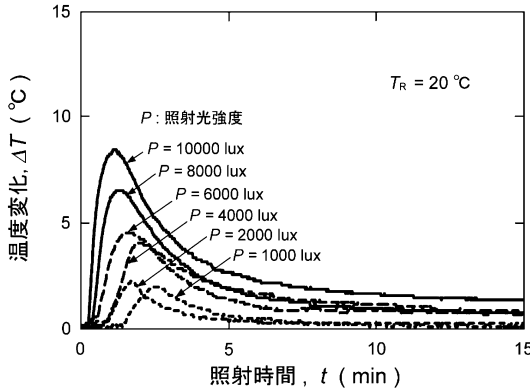


図 3 可視光硬化型樹脂 (LCR0208) の硬化反応に伴う温度変化。

を行った。

図 4 は、可視光の照射強度 P をパラメータとして、最大上昇温度 ΔT_m を気温 T_R に対して示した結果である。いずれの気温でも照射強度の増加により、多くの場合は最大上昇温度が高くなった。

また、図 4 で最大上昇温度に及ぼす気温の影響に注目すると、気温 0°C を境界としてその傾向が異なっていた。つまり、気温が 0°C を超える場合には、気温の上昇とともに最大上昇温度が高くなり、光硬化反応が気温の上昇によって促進することを示している。

一方、気温が 0°C 以下のときには、照射強度 P が 10000 lux の場合を除けば最大上昇温度は気温の影響をあまり受けないことがわかった。ただし、樹脂内部の温度は上昇しており、光硬化反応は確実に進行していた。なお、この実験では液状の樹脂の上に被せたアクリル板が固定されていることで、光照射終了後の樹脂は雪結晶レプリカを作製できる程度に硬化していることがわかっており、気温が 0°C 以下の樹脂硬化においても、光照射終了後の可視光硬化型樹脂が硬化していることを確認している。

図 5 は、気温 T_R をパラメータとして、硬化終了時間 t_f を可視光照射強度 P に対して示した結果である。照射強度が 2000 lux 以下の領域では照射強度を強くすることで硬化終了時間が短くなることがわかった。ただし、照射強度が 2000 lux を超えると硬化終了時間に大きな変化は認められなかった。気温の影響についても照射光

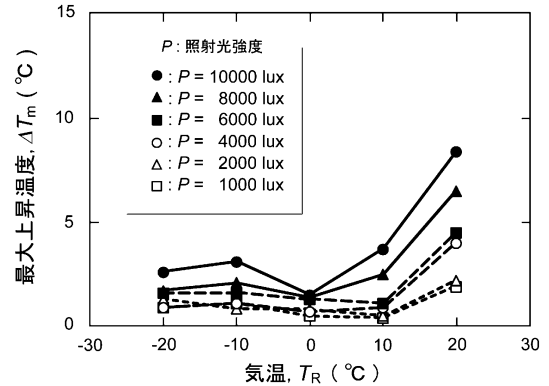


図 4 硬化反応に伴う樹脂の温度上昇。

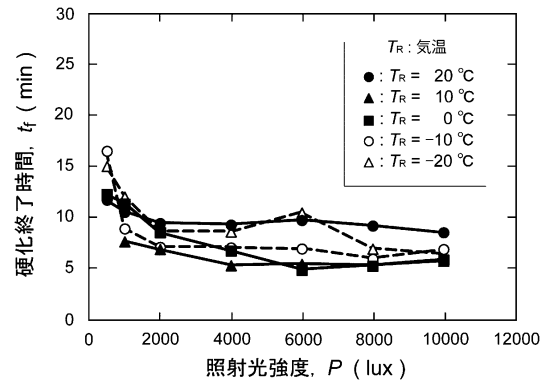


図 5 硬化反応終了時間。

強度に関する有意な傾向は見出せず、照射強度を 2000 lux 以上にすることで 10 分間以内で可視光硬化型樹脂の光硬化反応が終了することがわかった。

2.3 光硬化性樹脂の粘度

光硬化反応前の液状樹脂の粘度は温度に依存し、低温になると粘度が高くなりその流動性が劣化するため、レプリカ作製を行うときの気温は雪結晶の表面構造の転写精度に影響すると考えられる。この点は、Tamaki *et al.* (2012) が紫外線硬化樹脂の場合について、気温が -20°C で作製したレプリカでは、樹脂の充填不良が著しく発生することを報告している。また、高瀬 (2007) は光硬化性樹脂の光硬化反応には樹脂分子の流動性が関与しており、温度依存性があることを報告している。

そこで今回は、樹脂包埋法によって作製する雪

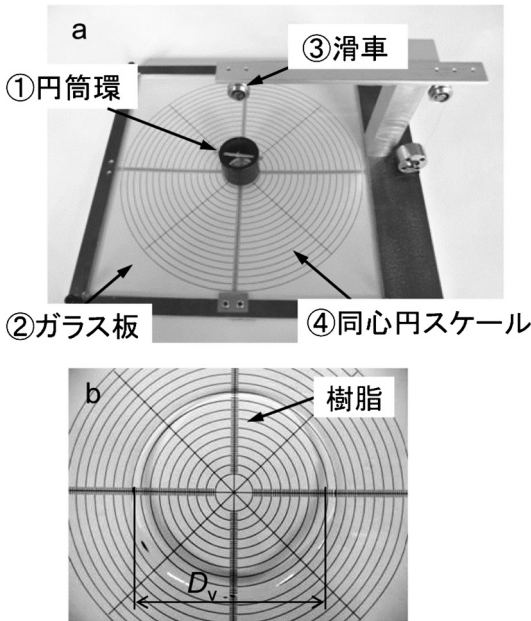


図 6 粘度の測定. (a) 粘度測定装置, (b) 粘度評価方法.

結晶レプリカの材料である可視光硬化型樹脂を対象として、粘度に及ぼす気温の影響を調べた。ここでは光硬化性樹脂の粘度測定法として、間接測定法ではあるが少量の試験液による測定が可能な Line spread test (Nicosia and Robbins, 2007) を用いた。

図 6 に、試作した粘度測定装置の概要を示す。測定装置 (図 6a) は、一定容量の液体を貯蔵する ① 円筒環、円筒環を設置する ② ガラス板、円筒環を持ち上げる ③ 滑車、ガラス板の下に設置した ④ 同心円スケールで構成されている。円筒環の中心は同心円スケールの中心と一致している。測定原理は、円筒環内を一定容量の液体で満たした後、その円筒環を一定速度で引き上げることで、液体がガラス表面を同心円状に流動する現象に基づいている。

図 6b は、流動が終了したときの例である。液体の広がり直径 D_V を同心円スケールで測定し、その測定値から粘度 μ を推定した。

表 2 に実験条件を示す。内径 20 mm の円筒環に 1 ml の試験液体を充填し、拡散時間 1 分間後の広がり直径 D_V を 45° 間隔に測定した値の平均値を粘度推定に用いた。また、25°C での粘度が表

表 2 樹脂の粘度測定条件.

基準粘度液	シリコン液 0.01, 0.05, 0.1, 0.49, 1, 3, 5 Pa s (25 °C)
光硬化性樹脂	アクリル系可視光硬化型樹脂 (LCR0208)
円筒環	内径 20 mm, 高さ 23 mm
気温 T_R	-20, -10, 0, 10, 20 °C
樹脂容量	1 ml
拡散時間	1 分間

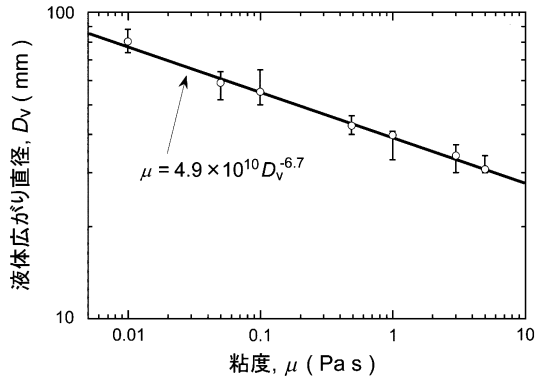


図 7 基準粘度液の広がり直径と粘度の関係. エラーバーは液体広がり直径の測定値における最大値と最小値の範囲を示す.

示されている粘度計校正用シリコン液 (型式 Element 14 PDMS 10-JC, TSF 451-50, TSF 451-100, TSF 451-1000, MOMENTIVE, および型式 SN-4, SN-6, SN-7, アズワン(株)) を使用し、25°C での Line spread test により、 μ と D_V の関係を求めた。これを図 7 に示す。ここでは各粘度で 3 回程度測定し、その最大値と最小値をエラーバーで示した。この結果、粘度は D_V を用いて式 (1) で表されることがわかった。

$$\mu = 4.9 \times 10^{10} D_V^{-6.7} \quad (1)$$

図 8 は、Line spread test により求めた可視光硬化型樹脂の粘度 μ を、気温 T_R に対して示した結果である。樹脂の粘度は気温の低下とともに増加した。雪結晶の採取環境である 0°C 以下では 3.2 Pa s 以上になることがわかった。Tamaki *et al.* (2012) が片面レプリカの作製に使用したポリエー・ポリチオール系紫外線硬化樹脂 (NOA81, Norland 社) の 0°C における粘度は 4.8 Pa s であっ

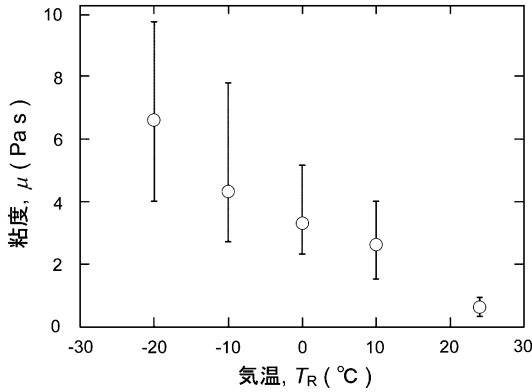


図 8 樹脂粘度の温度特性. エラーバーは Line spread test により求めた可視光硬化型樹脂 (LCR0208) の粘度推定値における最大値と最小値の範囲を示す.

たので, 本実験でレプリカ作製に使用した可視光硬化型樹脂 (LCR0208) の 0°C 以下における流動性は紫外線硬化樹脂 (NOA81) よりも小さく流動性に優れていることがわかった.

2.4 レプリカの形状転写精度

可視光硬化型樹脂を用いてレプリカを作製する場合の雪結晶の表面構造に対する形状転写性を評価するため, 触針式表面形状測定器の較正に使用される金属製粗さ標準片 (E-MC-S10A, (株)東京精密) を用いて片面レプリカを作製した. 金属製粗さ標準片の表面には, 山頂から谷底までの高さ (PV 値, 平均値±標準偏差) $1.47 \pm 0.04 \mu\text{m}$ とピッチ (PI, 同上) $15.31 \pm 0.37 \mu\text{m}$ の正弦波状溝が形成されている (2.5 節で述べるレーザ顕微鏡による測定結果). この溝断面プロファイルとレプリカに転写される溝断面プロファイルを比較することにより, 形状転写精度を評価した. レプリカのプロファイルの測定には, 後述する雪結晶レプリカの 3 次元形状の測定に使用したレーザ顕微鏡 (カラー 3D レーザ顕微鏡, 型式 VK-9700, (株)キーンズ) を使用した.

レプリカに対する転写精度を評価するパラメータとして, ピッチ相対誤差 E_{PI} および PV 値相対誤差 E_{PV} を導入した.

ピッチ相対誤差 E_{PI} は式 (2) で定義した.

$$E_{PI} = \frac{PI_m - PI_s}{PI_s} = \frac{PI_m}{PI_s} - 1 \quad (2)$$

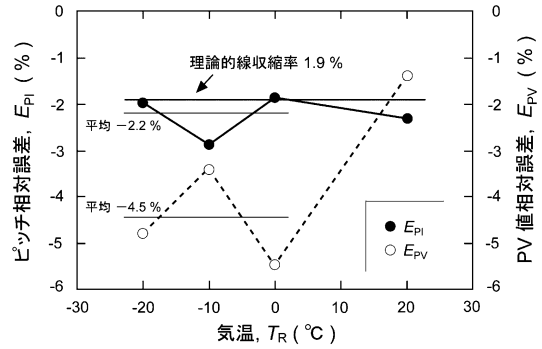


図 9 レプリカの形状転写精度.

ここで PI_m はレプリカに転写される正弦波状溝の間隔 (ピッチ) であり, 溝断面の任意の 30カ所で測定した値の平均値である. PI_s は粗さ標準片の正弦波状溝の平均ピッチ ($PI_s = 15.31 \mu\text{m}$) である.

レプリカに転写される正弦波状溝の山頂から谷底までの高さ (PV 値) の相対誤差 E_{PV} は式 (2) と同様に定義した.

図 9 は, ピッチ相対誤差 E_{PI} および PV 値相対誤差 E_{PV} を気温 T_R に対して示した結果である. 図 9 で E_{PI} に注目すると, いずれの気温でも負の値を示しており, レプリカに転写される溝のピッチが原形 (粗さ標準片のピッチ) よりも短くなっていることがわかった. また, 気温に対する依存性は認められず, 雪結晶の採取環境である 0°C 以下の平均値は -2.2% であった.

一方, 図 9 で E_{PV} に注目すると, ピッチ相対誤差 E_{PI} と同様に, いずれの気温においても負の値を示しており, レプリカに転写される溝の PV 値は原形よりも低くなっていた. ただし, E_{PV} 値は気温の低下とともに 20°C から 0°C で大きく低下した. 雪結晶の採取環境である 0°C 以下で平均すると -4.5% であった.

2.5 雪結晶レプリカの 3 次元形状

2.5.1 レプリカの形状測定方法と測定精度

樹脂包埋法により作製した雪結晶レプリカの利点は, 雪結晶レプリカが空洞として存在する光硬化性樹脂層の厚さを任意に設定できるという点にある. 例えば, 雪結晶の 3 次元構造を光学顕微鏡で観察する場合, 空洞前面の光硬化性樹脂層を数 mm の厚さにすることで顕微鏡で観察可能な試料

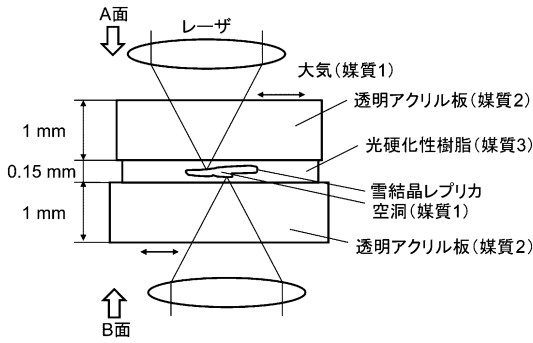


図 10 樹脂包埋法により作製された雪結晶レプリカの 3 次元形状測定.

となる.

一方、雪結晶レプリカの微細な表面形状を測定する場合、レプリカを機械的に損傷しないという点で非接触プローブ法が最も有効な測定法である。この場合、光硬化性樹脂層の厚みをできるだけ薄くすることが重要である。本論文では雪結晶レプリカの表面形状の測定を目的としているため、光硬化性樹脂層の厚さが $150\mu\text{m}$ 程度の樹脂包埋レプリカを作製し、非接触プローブ式表面形状測定器としてレーザー顕微鏡を使用した。

図 10 に測定法の概要を示す。厚さ $150\mu\text{m}$ 程度の光硬化性樹脂の中に雪結晶レプリカが空洞として存在しており、光硬化性樹脂の上面と下面が厚さ 1mm の透明アクリル板で覆われている。レーザー顕微鏡は、レーザービームを試料に照射し、試料表面の正反射光強度が最大となる上下方向 (Z 方向) 位置を検出することで試料表面のプロファイル測定する。従って、本来は、大気中に露出している試料の表面形状の測定を想定している。しかしながら、レーザービームスポットの設定位置を注意深く調整することで空洞表面の形状を測定することが可能となる。樹脂包埋法で作製された雪結晶レプリカの形状測定にはこの手法を採用した。この場合、レーザービームは大気 (媒質 1) からアクリル板 (媒質 2) および光硬化性樹脂 (媒質 3) に到達し、雪結晶レプリカすなわち空洞部 (媒質 1) の上面で反射し、再度アクリル板 (媒質 2) を通過して大気 (媒質 1) に戻る。

ところで、本実験では表 1 に示したように、光硬化性樹脂としてアクリル系樹脂を使用している

表 3 レーザ顕微鏡の仕様.

顕微鏡	カラー 3D レーザ顕微鏡 VK-9700/9710 (株) キーエンス		
	× 10	× 20	× 50
対物レンズ倍率	× 10	× 20	× 50
測定範囲 μm			
X	1350	675	270
Y	1012	506	202
ビームスポット径 (参考値 μm)	2.97	1.48	0.59
被写界深度 μm	4.53	1.91	0.45

ため、媒質 2 と媒質 3 は同一の光学特性とみなすことができる。すなわち、レーザービームの光路は、大気 (媒質 1) からアクリル樹脂 (媒質 2) 内への進行、媒質 2 と媒質 1 の境界面における反射、媒質 2 から媒質 1 への進行となり、測定中に光路が変化することのない安定した光学特性を確保することができる。

表 3 にレーザー顕微鏡の仕様を示す。対物レンズの倍率を大きくすることによってビームスポット径が小さくなるとともに被写界深度が浅くなるため、深さ方向 (Z 方向) の測定精度は向上する。ただし、測定領域 (X-Y 面) は狭まってしまう。本実験では雪結晶の大きさが 1.5mm 程度であることを考慮して、雪結晶の全体形状を測定する場合には対物レンズの倍率を 10 倍 (視野 $1.350 \times 1.012\text{mm}$) に設定し、測定する領域を重複するように走査した。その後、重複部分のデータを重ね合わせることで 1 つのファイルを作成し雪結晶レプリカ全体の 3 次元形状を構築した。表 3 より対物レンズ倍率が 10 倍における被写界深度は $4.53\mu\text{m}$ なので、この値が Z 方向の測定精度を決める。なお、雪結晶レプリカの表面形状を詳細に測定する場合には、20 倍の対物レンズ (被写界深度 $1.91\mu\text{m}$) を用いた。

図 11 は、レーザー顕微鏡を用いた雪結晶レプリカの表面形状測定でのノイズの影響を調べるために行った実験の概要 (図 11a) とその結果 (図 11b) である。雪結晶レプリカの測定では、アクリル板 (媒質 2) と光硬化性樹脂 (媒質 3) のレーザー光に対する透過率が大気 (媒質 1) より小さいこと、およびレーザー光が空洞表面で反射するときの反射率が低いことによって、取得する空洞表面のプロ

ファイルでのノイズの影響が著しく大きくなることが考えられた。このため、アクリル板と光硬化性樹脂を使って透明物体の表面形状測定を行うことにより、測定におけるノイズの影響を検討した。その結果、図 11b に示すように透明物体の平坦な表面に対するノイズは $\pm 0.5 \mu\text{m}$ の範囲に認められることがわかった。従って、雪結晶レプリカの形状測定では測定誤差を $\pm 0.5 \mu\text{m}$ と考える必要があることがわかった。

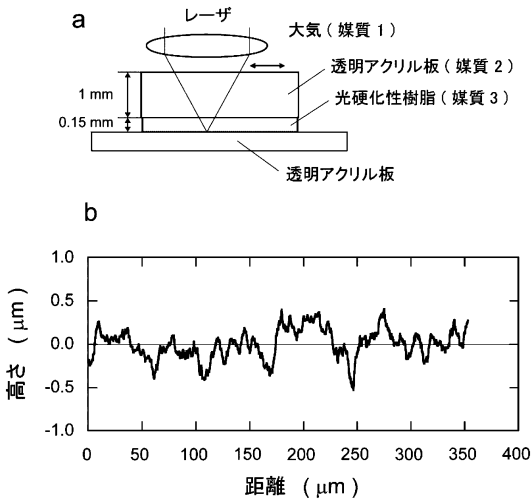


図 11 雪結晶レプリカの 3 次元形状測定におけるノイズの影響に関する実験方法 (a) とその結果 (b)。

2.5.2 雪結晶レプリカの測定結果

図 12 は、アクリル板に採取した雪結晶、およびその樹脂包埋法によって作製したレプリカを実体顕微鏡 (透過光) で観察し、雪結晶の形状保存状態を比較した例である。この雪結晶は、北海道釧路市阿寒町において、2006 年 3 月 8 日 04:03 に気温 -5°C で採取したものであり、雪結晶形態は板状結晶として分類される扇六花 (菊地ら, 2012) である。樹脂包埋レプリカは照射光強度 7000 lux, 照射時間 10 分間の条件で作製した。

図 12a に示した採取直後の雪結晶における a 軸方向に沿った 3 方向の結晶直径の平均は $1.54 \pm 0.02 \text{ mm}$ であった。また、図 12b のレプリカで同様に結晶直径を求めその平均値を算出すると $1.52 \pm 0.02 \text{ mm}$ となり、レプリカでは結晶直径の平均は 0.02 mm 小さくなっていた。

雪結晶レプリカにおける表面模様様の保存状態を仔細に観察すると、実際の雪結晶の枝の内側 (図 12a の点線で示した部分の中心側) では、レプリカで保存されていない表面模様様が認められた (図 12b)。このレプリカに保存されていない表面模様様のうち、各枝中央に存在する 2 本の平行線に注目し、各平行線の太さを基準スケールの写真と比較すると、線の太さが 0.01 mm より小さい場合に、その表面模様様はレプリカには保存されていない。

図 13, 14 は、図 12 に示した雪結晶レプリカの

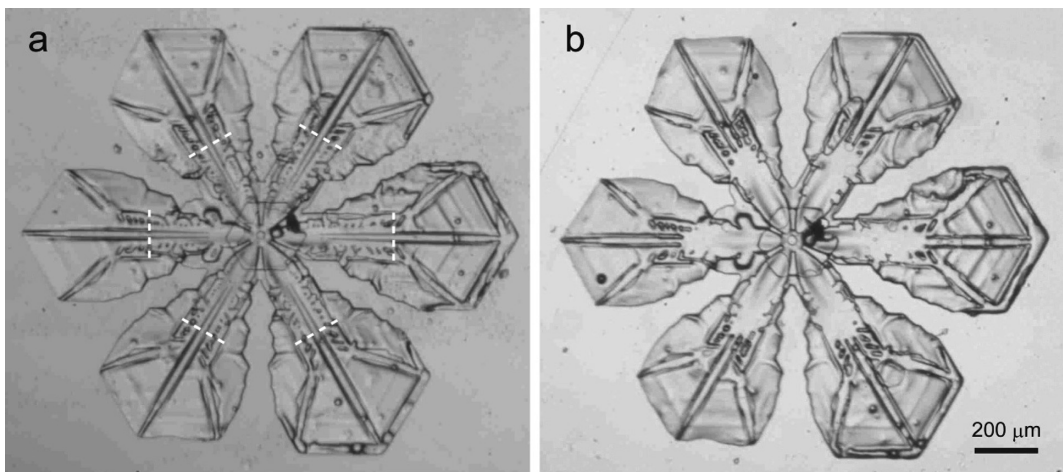


図 12 採取直後の雪結晶とその樹脂包埋レプリカの実体顕微鏡 (透過光) による観察像。(a) 採取直後の雪結晶, (b) レプリカ。

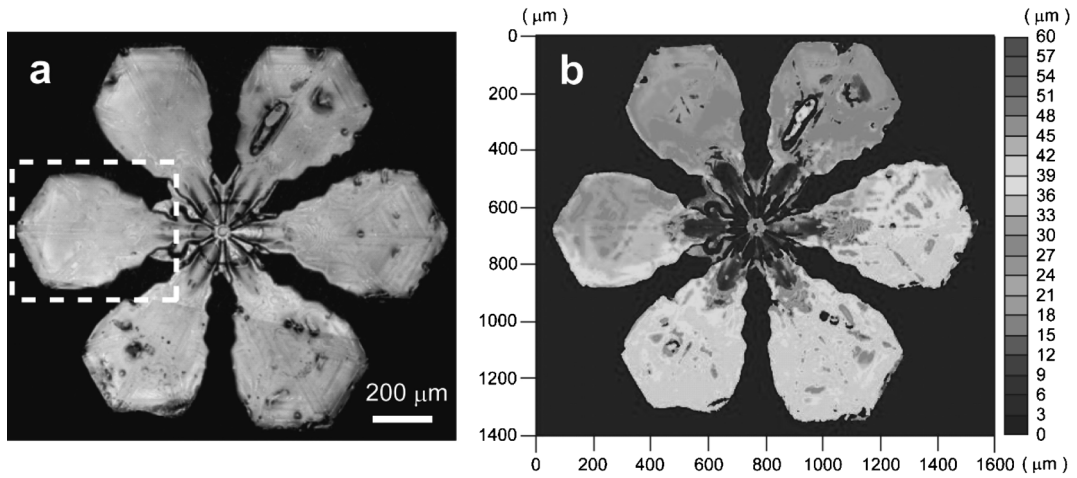


図 13 雪結晶レプリカ A 面の観察. (a) 光学観察像, (b) 3次元形状.

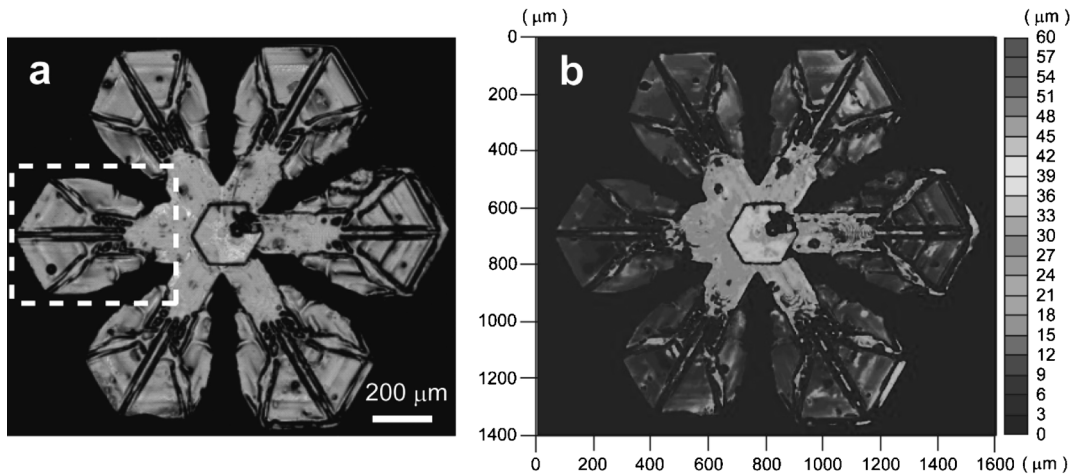


図 14 雪結晶レプリカ B 面の観察. (a) 光学観察像, (b) 3次元形状.

両面をレーザー顕微鏡により 3次元構造を示した結果である。カラー等高線図の Z 座標は雪結晶表面形状の高さに相当する。図 13 での A 面, 図 14 での B 面は, それぞれ, アクリル板表面に採取したときの雪結晶の上面, 下面に相当する。

図 13 に示した A 面に注目すると, 図 13a では結晶中心付近から六方対称的に発生する放射状の模様が観察できるが, 先端部の扇状の枝表面にはそのような模様は観察されなかった。図 13b に示すカラー等高線図では, それぞれの枝は結晶中心付近で Z 方向に低くなっているが, 扇状の枝表面には顕著な凹凸が存在せず, 一様に平坦である

ことが確認できた。

一方, 図 14 に示す B 面に注目すると, 図 14a でのそれぞれの枝において, 2本の平行線として観察される葉脈のような模様が枝の先端に向かって3方向に伸長している。この2本の平行線として観察される模様は, 図 14b によって枝表面から隆起している稜線部であると見なされる。このように, 雪結晶の枝部における表面構造は A 面と B 面で大きく異なっていることがわかった。

図 15, 16 は, 図 13a, 14a 中に破線で囲んだ枝部をレーザー顕微鏡で詳細に観察した結果である。図 15 において, A 面上には顕著な表面模様および

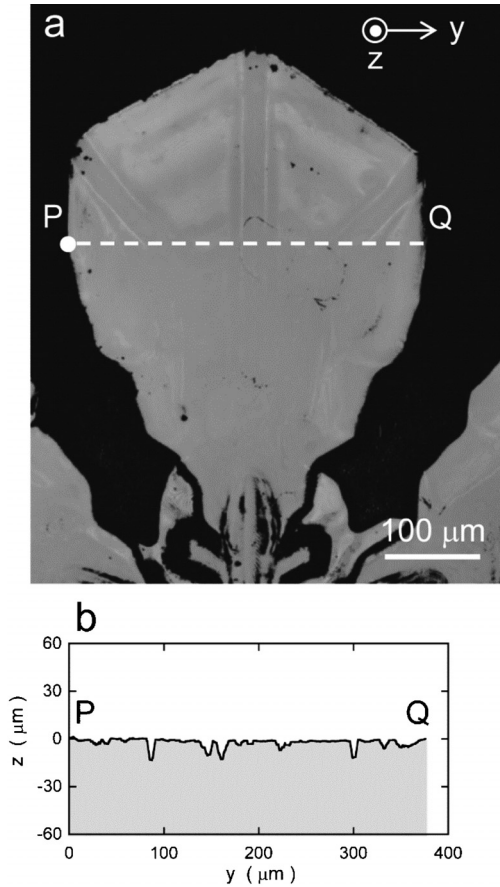


図 15 雪結晶枝部 (A 面) の観察とその断面形状.

凹凸形状が存在しないことが図 15b よりわかる。一方、図 16 に示す B 面上では、図 14 において稜線部として識別できた表面模様は図 16a に示すように枝中央部から枝外縁に向かって 3 方向に伸長していた。このうち、枝先端部に伸長している中央の表面模様に注目すると、これは図 16b に示すように、両側に溝を有する隆起した構造であり、隆起部の周囲表面からの高さは $28\mu\text{m}$ 程度であった。

3. 考察

3.1 可視光硬化型樹脂の硬化特性について

可視光硬化型樹脂を用いて雪結晶の樹脂包埋レプリカを作製する場合、レプリカ作製における適切な樹脂硬化条件を見出すことが必要である。

今回、雪結晶のレプリカ作製に用いた可視光硬

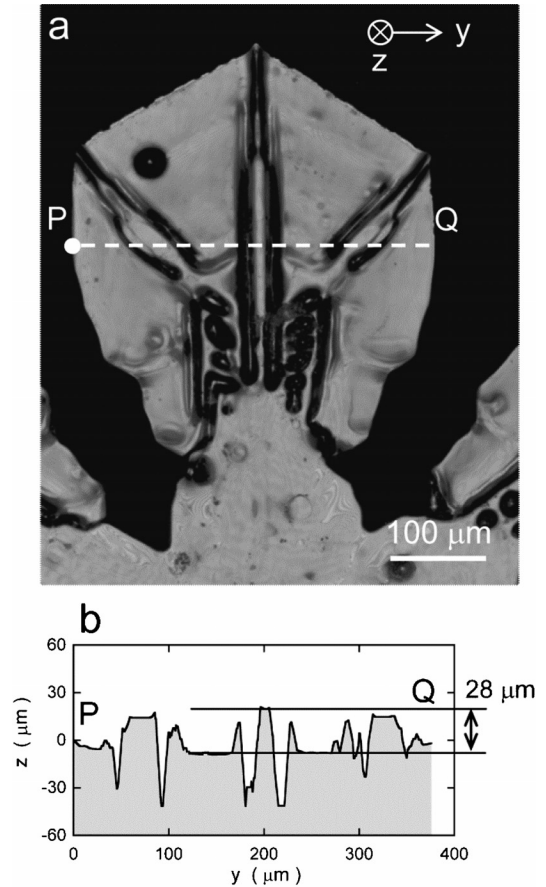


図 16 雪結晶枝部 (B 面) の観察とその断面形状.

化型樹脂では、2.2 節で記述したように、照射光強度の増大によって最大上昇温度が高くなり、樹脂の光硬化反応は照射光強度に依存することがわかった。また、気温が 0°C を超える場合、光硬化反応は気温にも依存する傾向があった (図 4)。樹脂の光硬化反応が気温に依存するのは、温度が高いほど硬化反応に関与する樹脂分子の運動が活発なことにより、光硬化反応が速やかに進行するためである (高瀬, 2007)。このことは、図 8 の粘度測定結果が示しているように、可視光硬化型樹脂の流動性が気温の上昇に依存して高くなることと共通した現象である。

ここで、可視光硬化型樹脂の流動性が温度に依存することは、低温下では流動性が低下し、樹脂が硬化し難くなることも意味している。これに対して、本論文における光硬化反応に伴う樹脂温度

の測定実験では 2.2 節で記述したように、気温が 0℃ 以下での樹脂硬化において、光硬化反応の進行を示す樹脂の温度上昇は認められたが、その最大上昇温度には気温に伴う変化は見られなかった (図 4)。

この理由として、本実験で使用した可視光硬化型樹脂は、気温が 0℃ 以下でも光硬化反応を維持する成分が一定量含まれているためであると考えられる。すなわち、可視光硬化型樹脂は粘度を調整するための希釈剤としてアクリル酸エステルを 30~40% 含有している (東亜合成(株), Material safety data sheet による)。アクリル酸エステルは流動性の高い成分であるため (高山, 2003), 気温が 0℃ 以下であっても光硬化反応の活性が維持されると考えられる。

ところで、雪結晶を顕微鏡により直接観察する場合、雪結晶は観察者の体温や顕微鏡の照明などのわずかな熱によって融解・蒸発して変形するため、その観察作業は -3℃ 以下、できれば -5℃ 以下の環境で行うことが望ましい (Nakaya, 1954 ; 油川, 2005)。このような雪結晶の観察環境でのレプリカ作製について、本実験では図 4 および図 5 に示したように、可視光硬化型樹脂を照射光強度 2000~8000 lux の可視光で硬化させることにより、樹脂の硬化過程の最大上昇温度を 2℃ 以下に保ち、樹脂の硬化終了時間を 10 分以内に行うことができた。すなわち、可視光硬化型樹脂を用いた樹脂包埋法による雪結晶のレプリカ作製は、従来の顕微鏡による雪結晶の観察と同程度の環境 (-3℃ 以下) において行うことが可能である。

3.2 可視光硬化型樹脂のレプリカにおける雪結晶構造の転写精度について

可視光硬化型樹脂によるレプリカが、オリジナルの雪結晶の構造をどの程度まで忠実に反映しているかは、レプリカの転写精度に直接関わることであり、重要である。

ここでは、可視光硬化型樹脂によるレプリカの転写精度は 2.4 節に記述したように、レプリカの平面方向 (E_{PI}) で -2.2%, レプリカの高さ方向 (E_{PV}) で -4.5% となった。光硬化性樹脂によるレプリカがこのように縮小する原因として、紫外線硬化樹脂の場合は樹脂の硬化収縮の影響が挙げられている (Tamaki *et al.*, 2012)。

ところで、本実験でレプリカ作製に用いた可視光硬化型樹脂の硬化収縮による体積減少率は、カタログ値では 6.7% となっており (表 1 参照), 硬化収縮が等方的であると仮定すれば、線収縮率は 1.9% となる。この値は、気温が 0℃ 以下における E_{PI} の平均値とほぼ等しかった。このことより、レプリカに転写される溝のピッチが原形よりも 2% 程縮小する原因は、樹脂の硬化収縮によるものであると考えられる。つまり、このピッチ相対誤差 E_{PI} によりレプリカの測定値を補正すれば、雪結晶の形状寸法を算定できると考えられる。

今回の実験で E_{PI} の値には、2.4 節で記述したように気温に対する依存性は見られなかった。また、0℃ 以下での E_{PI} の平均値は樹脂の理論的線収縮率と同程度であった。これらの実験結果と、 E_{PI} はレプリカでは平面方向の相対誤差であることを考慮すると、高さ方向の相対誤差である E_{PV} の値も樹脂の理論的線収縮率の 1.9% に近い値になることが考えられる。

しかしながら、 E_{PV} の値は 0℃ 以下の低温域においてその 2.4 倍程の -4.5% となった。これは、気温が 0℃ 以下で作製したレプリカの E_{PV} 値には、硬化収縮の他にも図 8 に示した気温の低下に伴う樹脂粘度の低下が影響を及ぼしていると考えられる。

Tamaki *et al.* (2012) によれば、紫外線硬化樹脂を用いたレプリカの転写性評価実験では、気温が 0℃ 以下におけるレプリカ作製で、粘度低下に伴う流動性の劣化によって光硬化性樹脂が粗さ標準片の溝底部に十分に充填されない状態が報告されている。この場合、溝底部の一部が欠損した状態で粗さ標準片の形状がレプリカに転写されるため、硬化収縮のみが影響を及ぼした場合よりもレプリカの PV 値が小さな値になった。今回の実験で図 9 に示した気温が 0℃ 以下における E_{PV} 値の低下は、このことと同様の原因によると考えられる。

ここで、 E_{PV} が -4.5% という結果から、樹脂の硬化収縮の影響を理論的線収縮率と同程度の -1.9% であると仮定し、樹脂の未充填による E_{PV} の低下分を求めると -2.6% となる。この値と、実験に使用した粗さ標準片の PV 値 (1.47 μm) から樹脂の未充填によると考えられる PV 値の低

下量を算出すると $0.04\mu\text{m}$ となる。

また、樹脂の未充填による PV 値の低下は、気温の低下に伴う樹脂の流動性劣化が原因で生じるため、今回の実験と同じように気温が 0°C 以下で作製したレプリカでは、粗さ標準片の溝の高さに依らず樹脂の流動性劣化によって $0.04\mu\text{m}$ 程度の誤差が生じることになると考えられる。

今回、転写精度評価に用いた PV 値相対誤差 E_{PV} は、雪結晶のレプリカでは結晶表面における溝状部の高さ方向の転写精度に関与すると考えられる。つまり、雪結晶レプリカでも結晶表面の溝状部では樹脂の未充填が生じ、レプリカの高さ方向の形状寸法は硬化収縮のみが影響を及ぼしたときよりも小さくなると考えられる。

一方、既に 2.5 節で記述したように、今回のレーザー顕微鏡を用いた樹脂包埋レプリカの形状測定では、測定誤差を考慮して $\pm 0.5\mu\text{m}$ でレプリカの表面形状を表すことにしている。このため、前述した樹脂の未充填による $0.04\mu\text{m}$ 程度の補正量はレプリカの形状に影響を与えるものではない。従って、 $1\mu\text{m}$ の単位でレプリカの表面形状を表す場合、樹脂の線収縮率のみを考慮することによって、レプリカの寸法から実際の雪結晶構造の寸法を算定できると考えられる。なお、雪結晶の平均的な厚さは $10\mu\text{m}$ 程度なので (Nakaya, 1954)、今回の測定方法でのレーザー顕微鏡の測定精度は、雪結晶の構造計測について支障をきたすものではないことがわかった。

3.3 樹脂包埋レプリカでの雪結晶構造の保存状態について

雪結晶とその樹脂包埋レプリカの顕微鏡写真を比較したところ、図 12 に示したように、レプリカの方が実際の雪結晶に比べてその結晶直径が平均的に 0.02mm 小さくなっていた。また、雪結晶の表面模様の中で、レプリカに保存されていないものが認められた。そして、両者の写真には上記以外の顕著な外形的違いが見られないことから、このレプリカは樹脂の硬化収縮の影響を受けていると判断できる。

また、図 12 に示したレプリカの結晶直径は、実際の雪結晶に比べてその減少率が -1% と見積もられる。この値は、図 9 に示した気温が 0°C 以下における E_{PI} 値の -2.2% より減少率が小さいこ

と、および雪結晶の厚さや直径はレプリカでは空洞部の内壁間の寸法であることを考慮すると、レプリカの雪結晶直径に対する硬化収縮の影響は表面構造に対する場合と異なっていることが考えられる。

次に、レプリカに保存されない雪結晶の表面模様が認められたことについては、実験に用いた可視光硬化型樹脂の特性から微細な溝状部がレプリカに保存されなかったことが考えられる。すなわち、3.2 節で記述したように気温が 0°C 以下で作製した粗さ標準片のレプリカでは、標準片の溝底部で樹脂の未充填が生じることがわかっている。このため、雪結晶レプリカにおいても、雪結晶表面の微細な溝状部が樹脂の未充填が原因でレプリカに保存されない場合があると考えられる。従って、図 12b に示した雪結晶レプリカでは、実際の雪結晶表面における浅い溝、図 12 の場合は線の幅が 0.01mm 以下の表面模様は、幅とともにその深さ方向の寸法も小さくなっており、可視光硬化型樹脂の転写限界以下であったことが考えられる。

一方、レプリカに対して雪結晶の表面模様が保存されないことについては、その表面模様の特質によることも考えられる。すなわち、前野・黒岩 (1966) は、雪結晶とそのレプリカなどの顕微鏡写真を比較し、表面模様が雪結晶の外面にある凹凸だけではなく、雪結晶内部の気泡や空洞によるものも存在することを見出ししている。このことを含め、レプリカにおける雪結晶の表面模様の保存状態については、さらに検証が必要である。

雪結晶レプリカのレーザー顕微鏡による観察では、雪結晶の枝部における表面構造は A 面と B 面で大きく異なっており、A 面には顕著な凹凸が存在せず一様に平坦であるのに対し、B 面には稜線部や溝状部の表面凹凸が存在するという観察結果を得た (図 14a, 14b)。

このような、雪結晶の表面構造の面依存性について Nakaya (1954) は、人工雪において扇状の枝に観察される稜線模様や畝模様* は枝の片側表面の凹凸形状に起因すること、その反対側の表面は平坦であることを報告している。また、油川 (1992) は、天然雪結晶の枝の反射光型光学顕微鏡

* 山下 (2011) に従う名称

を用いた観察により、枝には表面凹凸の発達程度が異なる 2 種類の表面が存在することを報告している。図 13, 14 は、これらの報告と同様であり、特に、図 14 に示した枝表面の隆起部は、Nakaya (1954) が報告している扇状の枝における稜線の存在を定量的に示している。

また、図 14 に示す B 面の中心部を詳しく観察すると、結晶中心付近に小さな六角形の表面模様が観察された (図 14a)。この六角形模様は、雪結晶の中心を始点として枝の先端部まで直線を描くと、それぞれの直線が六角形の頂点を通過することから扇六花の構造の一部分であることがわかる (図 14a, 14b)。六角形模様の内部には欠損が一部存在するが、欠損部分を除くと六角形の内部は 30~36 μm の高さを有する平坦な表面であり、六角形部分はさらに 10~20 μm の高さで突き出している (図 14b)。従って、この六角形の構造は、雪の板状結晶の基本的形態である「二重板構造」を構成する片側の小さな六角板 (Nakaya, 1954; Iwai, 1983; Iwai, 1989) と考えられる。

二重板構造の板状結晶について、油川 (1992) は、二重板の各板が互いに向かい合っている側の面を「裏面」、その反対側の面を「表面」と定義し、枝表面の凹凸は「裏面」で顕著であることを述べた。この定義によると、図 13, 14 に示した雪結晶は小さな六角板と大きな六花で構成される二重板構造であり、図 14 に示す B 面には小さな六角板の「表面」と大きな六花の「裏面」が保存されていることになる。

図 15 では、レプリカにおける A 面上には顕著な表面模様および凹凸形状が存在せず、枝における「表面」の構造が転写・保存されていることが確認できた。また、図 16 に示す B 面上において、レプリカの枝中央に見られる稜線の周囲表面に対する高さを測定すると 28 μm であった。このレプリカの形状寸法に樹脂の硬化収縮の影響を 2% と仮定して補正を施すと、実際の雪結晶における表面構造の推定値として、29 μm という数値を得ることができた。

以上の結果より、樹脂包埋法によって作製した雪結晶レプリカでは、雪結晶の立体的な形態や二重板構造を有する板状結晶の形態の他、雪結晶の枝における表裏両面の構造の違いを復元している

ことを確認できた。従って、レーザ顕微鏡を用いて樹脂包埋レプリカの形状測定を行うことにより、これまで困難であった雪結晶表面の 3 次元的な構造を定量的に把握することが可能であると考えられる。

4. まとめ

アクリル系可視光硬化型樹脂を用いた雪結晶のレプリカ作製における最適条件を把握することを目的として、樹脂の光硬化特性に及ぼす照射光強度、およびレプリカ作製時の樹脂硬化反応熱と気温との関係を実験的に調べた。また、レプリカの転写精度に及ぼす気温の影響を明らかにした。得られた結果を以下に示す。

- 1) アクリル系可視光硬化型樹脂の光硬化反応は、雪結晶の採取環境である気温が 0°C 以下の低温下でも着実に進行する。
- 2) アクリル系可視光硬化型樹脂に気温が 0°C 以下で 2000~8000 lux の可視光を照射する場合、光硬化反応熱に伴う最大温度上昇は 2°C 以下であり、硬化終了時間は 10 分以内である。従って、顕微鏡による雪結晶の直接観察に望ましいとされている気温 -3°C 以下 (可能であれば -5°C 以下) で樹脂包埋レプリカの作製を行っても、雪結晶の融解は生じない。
- 3) アクリル系可視光硬化型樹脂の硬化収縮によって、レプリカの平面方向、および高さ方向の寸法はどちらも原形より 2% 程短くなる。高さ方向では溝状部で樹脂の未充填が生じる場合があるが、それは 0.04 μm 程度であり、レーザ顕微鏡による表面構造の測定精度よりも小さく、補正を要するものではなかった。
- 4) 樹脂包埋法により作製した雪結晶レプリカでは、0.01 mm 以下の表面模様にはレプリカに保存されないものがあることに留意する必要があるが、雪結晶の立体形態とともに雪結晶の表面構造が保存されており、レーザ顕微鏡を用いた 3 次元形状測定により、雪結晶の枝の「表面」および「裏面」の構造を定量的に把握することができる。

謝 辞

本研究を進めるにあたり、青木祐弥氏（当時北見工業大学大学院博士前期課程学生、現職ミネベア株式会社）には、樹脂の粘度測定など、実験に際し多大なご協力をいただきました。また、査読を担当された方々には丁寧にご内容を検討していただき、的確で有意義なご指摘をいただきました。深く感謝致します。

文 献

- 油川英明, 1992 : 雪結晶の「裏」と「表」について. 雪氷, **54** (2), 123-130.
- 油川英明, 2005 : 雪結晶の観測. 雪と氷の辞典, 日本雪氷学会, 687-691.
- Anderson, B. J., J. D. Sutkoff and J. Hallett, 1969 : Influence of methyl 2-cyanoacrylate monomer on the habit of ice crystals grown from the vapor. *J. Atmos. Sci.*, **26**, 673-674.
- Frank, F. C., 1974 : 雪の結晶—日本人の研究一. 「自然」12月号, 東京, 中央公論社, 28-38.
- Gonda, T., and T. Yamazaki, 1980 : The dissolution and the change in shapes of ice crystals in replica solution. *J. Met. Soc. Jpn.*, **58** (2), 137-142.
- Griggs, D. J., and E. R. Jayaratne, 1985 : The replication of ice crystals using formbar : Techniques and precautions. *J. Atmos. Oceanic Technol.*, **3**, 547-551.
- Iwai, K., 1983 : Three-dimensional structure of plate-like snow crystals. *J. Met. Soc. Jpn.*, **61** (5), 746-755.
- Iwai, K., 1989 : Three-dimensional structure of natural snow crystals showing by stereo-photomicrographs. *Atmos. Res.*, **24**, 137-147.
- 菊地勝弘, 1971 : 北海道で観測された南極形畸形雪結晶. 北海道大学地球物理学研究報告, **25**, 167-180.
- 菊地勝弘, 亀田貴雄, 樋口敬二, 山下 晃, 雪結晶の新しい分類表を作る会メンバー, 2012 : 中緯度と極域での観測に基づいた新しい雪結晶の分類—グローバル分類—. 雪氷, **74** (3), 223-241.
- Kikuchi, K., T. Kameda, K. Higuchi, A. Yamashita and Working group members for new classification of snow crystals, 2013 : A global classification of snow crystals, ice crystals, and solid precipitation based on observations from middle latitudes to polar regions. *Atmos. Res.*, **132-133**, 460-472 (doi.org/10.1016/j.atmosres.2013.06.006).
- Kobayashi, T., 1955 : Studies on small ice crystals. III. Some remarks on replica method. *Contrib. Inst. Low Temp. Sci., Hokkaido Univ.*, **8**, 75-86
- 前野紀一・黒岩大助, 1966 : 雪の結晶中の気泡, 低温科学, 物理編, **24**, 81-89.
- Magono, C., and C. W. Lee, 1966 : Meteorological classification of natural snow crystals. *J. Fac. Sci. Hokkaido Univ. Ser. VII* **2**, 321-335.
- Mason, B. J., G. W. Bryant and A. P. Van Den Heuvel, 1963 : The growth habits and surface structure of Ice crystals. *Phil. Mag.*, **8**, 505-526.
- Nakaya, U., 1954 : *Snow crystals, natural and artificial*. Cambridge, Mass., Harvard University Press, 510 pp.
- Nicosia, M. A., and J. Robbins, 2007 : The usefulness of the line spread test as a measure of liquid consistency. *Dysphagia*, **22**, 306-311.
- 大田玲奈, 細見博之, 三好理子, 三橋和成, 2009 : 光硬化樹脂の硬化反応解析. *The TRC News*, **108**, 49-52.
- Smith-Johannsen R. L., 1965 : Resin vapour replication technique for snow crystals and biological specimens. *Nature*, **205**, 1204-1205.
- Takahashi, T., and N. Fukuta, 1987 : Ice crystal replication with common plastic solutions. *J. Atmos. Oceanic Technol.*, **5**, 129-135.
- 高瀬英明, 2007 : 光硬化性樹脂の硬化度と硬化挙動の評価. 成形加工, **19** (2), 68-74.
- 高山蹊男, 2003 : スクリーン印刷と感光性樹脂. 感光性樹脂の応用技術, シーエムシー出版, 99-116.
- Tamaki, J., S. Yanagi, Y. Aoki, A. Kubo, T. Kameda, and A. M. M. S. Ullah, 2012 : 3D reproduction of a snow crystal by stereolithography. *J. Adv. Mech. Des. Syst. Manuf.* **6** (6), 923-935.
- 山見信之・孫野長治, 1980 : 氷片から成長した二重板型の雪結晶について. 雪氷, **42** (1), 1-7.
- 山下 晃, 2011 : 科学映画「雪の結晶 (1951)」が記録していた人工雪実験の画像解析 I—代表的板状結晶の成長機構—. 天気, **58** (10), 847-853.
- 柳 敏, 2005 : 光硬化性樹脂を用いた雪と霜のプレパラート作り. 物理教育, **53** (1), 56-59.

Replication technique of snow crystal using light-curing resin and its copying accuracy

Satoshi YANAGI^{1,2*}, Akihiko KUBO^{3*}, Takao KAMEDA^{3*}, Jun'ichi TAMAKI^{3*} and A.M.M. Sharif ULLAH^{3*}

¹ *Graduate School of Engineering, Kitami Institute of Technology,
165 Koen-cho, Kitami, Hokkaido 090-8507*

² *Hokkaido Abashiri Minamigaoka Senior High School, 2-13-1 daimachi, Abashiri, Hokkaido 093-0031*

³ *Kitami Institute of Technology, 165 Koen-cho, Kitami, Hokkaido 090-8507*

* *Corresponding author: abg00040@hkg.odn.ne.jp*

Abstract: In order to clarify the optimum condition for making snow crystal replica by embedding method with light-curing resin (LCR0208), effects of the visual-light intensity and the atmospheric temperature on the curing reaction were examined. Further, the replication accuracy of the replica was investigated. We found that the maximum temperature rise of the resin accompanying the resin curing was less than 2°C and the time for the curing was less than 10 min when the atmospheric temperature was lower than 0°C and the light intensity ranged from 2000 to 8000 lux. This result suggests that the melting of the snow crystal does not occur in the replication process provided the atmospheric temperature is lower than -2°C. On the replication accuracy, we found that the replica shrank by 2% linearly and incomplete filling of the resin occurred at the bottom of fine grooves. The amount of the incomplete filling of the resin was small enough to not affect for measured profile of the replica by a laser microscope used in this study. Therefore, we found that the original surface structure of snow crystals could be estimated using the replica described above by considering cure shrinkage of LCR0208, which is +2% in length for three directions.

(2013年10月15日受付, 2014年9月18日改稿受付, 2014年10月21日最終改稿受付,
2014年10月21日受理, 討論期限2015年7月15日)