報 文

霜結晶による積雪表層の安定同位体分別過程

八久保 晶 弘¹⁾, 橋 本 重 将²⁾, 中 尾 正 義²⁾,
本 山 秀 明³⁾, 鈴 木 啓 助⁴⁾, 西 村 浩 一⁵⁾

要 旨

1996年3月, 北海道内にて積雪表層のサンプリングを行ない, 放射冷却時の酸素同位体比 ($\delta^{18}\text{O}$) とイオン濃度の変化を測定した. 観測結果からは, 夜間は表面霜としもぞらめ雪が発達して積雪表層の $\delta^{18}\text{O}$ が減少し, これに対して昇華蒸発の卓越する日中は $\delta^{18}\text{O}$ が増加する傾向がみられた. 観測期間中のある晩のイオン濃度と昇華量の測定データから積雪表層での質量収支を計算した結果, 表面霜の $\delta^{18}\text{O}$ は積雪表層のそれより相対的に6%ほど小さかったのに対し, しもぞらめ雪の $\delta^{18}\text{O}$ は誤差の範囲で周囲とほとんど変わらなかった.

一方, 積雪試料に約 $90^{\circ}\text{C m}^{-1}$ の温度勾配を11日間かけてしもぞらめ雪を実験的に作り, その安定同位体比 (δD と $\delta^{18}\text{O}$) の変化量を求めた. その結果, 試料の高温側では δ 値が増加, 低温側では減少した. $\delta\text{D} - \delta^{18}\text{O}$ ダイアグラムの傾きは2.4から3.1と小さい値をとり, 氷の昇華現象においても動的同位体効果に支配されていることを示した.

キーワード: 安定同位体, 表面霜, しもぞらめ雪

Key Words: stable isotope, surface hoar, depth hoar

1. はじめに

雪氷コア解析においては, コア中の酸素・水素の安定同位体比が様々な情報を提供する. 水 (H_2O) は, H_2^{16}O (99.77%), HD^{16}O (0.03%), H_2^{18}O (0.2%) の主要な安定同位体からなり, これらの存在比が相変化によって僅かに変化するからである. 例えば, 安定同位体比は水蒸気の凝結温度を反映することから, 過去の気温変動のおおまかな推定に古くから利用されてきた. また, 安定同位体比は温度依存性だけにとどまらず, 水蒸気の供給源となる海面での蒸発過程 (Johnsen

et al., 1989) や極域への水蒸気輸送過程 (加藤・樋口, 1979) などにも依存することが知られている. 近年, こうした大気中における水蒸気輸送・相変化で生ずる同位体分別過程を GCM に組み込んだ数値実験も多数報告されるようになり (例えば, Jouzel *et al.*, 1997; Armengaud *et al.*, 1998), 極域における降雪の安定同位体比を数値モデルで推定するところまで研究が進んでいる.

しかしながら, 降雪の堆積後, 降雪の保持していた安定同位体比がどのように変化するか, についてはまだ詳しく調べられていない. 定性的には, 積雪中の水蒸気拡散による smoothing effect によって雪氷コア中の安定同位体プロファイルの季節振幅は小さくなることがよく知られている (Dansgaard *et al.*, 1973). また, 夏の南極内陸部で昇華蒸発が卓越することによって雪面の酸素同位体比が増加したとの報告もある (Shiraiwa *et al.*, 1996). したがって, 雪氷コアから得られる安定同位体のシグナルを正しく解釈するためには,

1) 北見工業大学

〒090-8507 北見市公園町 165

2) 名古屋大学大気水圏科学研究所

〒464-8601 名古屋市千種区不老町

3) 国立極地研究所

〒173-8515 東京都板橋区加賀 1-9-10

4) 信州大学理学部

〒390-8621 松本市旭 3-1-1

5) 北海道大学低温科学研究所

〒060-0819 札幌市北区北 19 条西 8 丁目

雪面での昇華過程や、氷床最上部を占める積雪層内の水蒸気輸送にともなう安定同位体の変化を定量的に明らかにすることが不可欠である。

積雪表面および積雪表層では水蒸気のやりとりが活発であり、雪粒子が劇的に変化するところである。例えば、他の地表面と比べると、積雪の熱伝導率が小さいために放射冷却時には雪面温度が極端に低下して、雪面近傍に極めて大きな温度勾配を出現させる。気象条件が整えば、雪面で昇華凝結が起こって表面霜が発達する (Hachikubo and Akitaya, 1997)。また、雪面直下では積雪表層にかかる温度勾配によってこしもぎらめ雪やしもぎらめ雪が発達する (Colbeck, 1989; Fukuzawa and Akitaya, 1993; Birkeland, 1998)。一方で、雪面では昇華蒸発も頻繁に起こる。しもぎらめ雪の材料となる水蒸気も、もとは下方の積雪粒子が昇華蒸発したものである。

このように、積雪表層ではマクロな水蒸気移動がみられるので、昇華蒸発・昇華凝結にともなう同位体分別によって堆積時の安定同位体比のプロファイルは容易に変化する。積雪に温度勾配がかかる場合の安定同位体比の変化を調べた例としては、氷板入りの試料に温度勾配をかけた実験を行ない、氷板の有無によって酸素同位体比プロファイルがどう変化するかを考察した Satow and Watanabe (1985) の研究がある。また、Sommerfeld *et al.* (1991) も同様に、積雪に温度勾配をかけた実験から酸素・水素の両同位体比の変化を求め、水蒸気の輸送距離は粒子サイズ以上であると主張している。野外観測では、Friedman *et al.* (1991) がアラスカで9冬期間にわたり、季節積雪の酸素・水素の両同位体比の変化を調査した例がある。

筆者らはこれまでに、放射冷却した雪面への水蒸気輸送の集中現象に注目し、積雪表層の酸素同位体比がどう変化したかを調べた (Hachikubo *et al.*, 1997)。また、これに関連して、低温室においてしもぎらめ雪を実験的に作り、安定同位体プロファイルが定量的にどの程度変化するかを調べた (Hachikubo *et al.*, 2000)。本論文では、Hachikubo *et al.* (1997) で用いた野外観測データについてさらに解析を行ない、表面霜としもぎらめ雪の酸素同位体比を分離した結果を中心に、

しもぎらめ雪に関する室内実験結果も交えて紹介する。

2. 放射冷却時の積雪表層の酸素同位体比の変化

2.1. 観測場所および観測手法

1996年3月、北海道大学低温科学研究所の雪崩観測所 (問寒別, 北海道北部) にて野外観測を行なった (図1)。現地ではこの時期に晴天が続きやすく、放射冷却下における積雪表層の変態過程の観測に適している。観測所は標高240 mの尾根上にあり、放射冷却下でも無風にならない。また、日本海までは約20 kmと近く、水蒸気の供給は冬期でも豊富であるために、表面霜の形成がしばしばみられる。

主たる観測項目は、化学分析用の積雪表層のサンプリングであり、表面霜の形成前後、すなわち夕方と朝に行なった。サンプリング厚さは深さ2-3 mmから雪面までと、深さ10 mmから雪面までの2種類であり、表面霜が雪面にできれば表面霜もそれぞれのサンプルに含めた。

サンプルはポリエチレン製の容器に詰めて凍結保存され、のちに融解させて酸素同位体比と主イオン濃度を求めた。酸素同位体比については東京都立大学理学部地理学科の質量分析計 (Finnigan MAT: delta S) で、主イオンについてはイオンクロマトグラフ (Dionex-2020 i/SP) で分析を行なった。なお、これ以降、次の式 (1) で定義される δ 値をもって、安定同位体比の僅かな変動を千分率で表わす (例えば酒井・松久, 1996)。

$$\delta = \{(R_{\text{sample}} / R_{\text{standard}}) - 1\} \times 1000 \text{ (‰)} \cdots (1)$$

ここで、 R_{sample} は測定試料の、 R_{standard} は標準試料 (SMOW: Standard Mean Ocean Water) のそれぞれの同位体比である。

また、昇華量の直接測定もあわせて行なった。sublimation gauge は南極ドーム F 基地で用いられたものとはほぼ同型で (Shiraiwa *et al.*, 1996; Kameda *et al.*, 1997)、縦250 mm、横250 mm、深さ40 mmの塩ビ製のコンテナに周辺の積雪表層と同じ雪を切り出して詰めたものである (図2)。これを、上面が雪面と同じレベルになるよう

図1 観測場所(北大天塩地方演習林, 問寒別)。

Fig. 1 Location map of the observation site (Teshio Experimental Forest of Hokkaido University in Toikanbetsu, Japan).

図2 2種類の sublimation gauge の概略図と設置状況。

Fig. 2 Schematic view of vapor transport around the two sublimation gauges.

に埋め, 任意に取り出してその重量変化を電子天秤で測定することによって昇華量が求まる. 使用した sublimation gauge には 2 種類あり, 一方は底がステンレス網 (線の太さ: 0.1 mm, 間隔: 0.3 mm) になっていて水蒸気を通過させ, 霜が付着しないのに対し, もう一つは底が側面と同じ塩ビ製で水蒸気を通さないで, 底の外部に霜が付着する. 重量測定時には付着した霜を丁寧に削って取り除く. ここで, sublimation gauge 自体が水蒸気輸送の環境などを乱さないと仮定すれば, 2 種類の sublimation gauge の重量変化の差は深さ 40 mm での水蒸気輸送量に等しい, とみることができる.

観測所では各気象要素 (温湿度・雪面温度・風速など) の観測も同時に行なわれており, それぞれ 30 分平均値が記録されている. 特に雪面温度については, 夜間は銅コンスタンタン熱電対の接点にわずかに水をつけて凍らせ, これを雪粒子に見立てて, 雪面に複数点設置して測定した. ただし, 日中は短波放射の吸収によって熱電対での測定が困難となるので, 赤外放射温度計 (HORIBA IT-340 W) を用いて測定した.

2.2. 観測結果および考察

本節では, 降雪がなく晴天の続いた 3 月 3 日から 6 日にかけての観測例を紹介する.

2.2.1 気象観測と積雪断面観測の結果

図 3 は観測期間中の気温・雪面温度, 相対湿度, 風速, バルク法 (例えば Stull, 1988) で求められた潜熱フラックスの時系列変化である. 潜熱フラックス IE については, 観測データから式 (2) により算出した.

$$IE = \rho C_p U_z (q_z - q_s) \dots \dots \dots (2)$$

ここで l は昇華潜熱, E は昇華速度, ρ は空気密度, C_p は水蒸気バルク輸送係数, U_z は風速, q は比湿であり, 添え字の z と s はそれぞれ高さ 1 m と雪面を表わす. C_p には Hachikubo *et al.* (1994) が野外観測で求めた値 (2.9×10^{-3}) を用いた.

3 月 3 ~ 4 日と 5 ~ 6 日の 2 晩では, 雪面が放射冷却されて雪面温度と気温との差が最大で

図 3 1996 年 3 月 3 ~ 6 日の気象要素の時系列変化. (a) 1 m 気温と雪面温度. (b) 1 m 相対湿度. (c) 1 m 風速. (d) 潜熱フラックス (雪面に向かう方を正にとる).

Fig. 3 Time variations of meteorological elements from 3 to 6 March, 1996. (a) The air temperature at 1m height and the snow surface temperature. (b) The relative humidity at 1m height. (c) The wind speed at 1m height. (d) The latent heat flux, and the positive values show the incoming heat flux to the snow surface.

10°C 近くに達した. また, 相対湿度が 80 % 以上と高くかつ微風だったことにより, 表面霜の形成に最適な条件であったことがわかる (Hachikubo

and Akitaya, 1997). 図3(d)から, 両晩の潜熱フラックスは正の値となっており, 実際に表面霜がそれぞれ1 mm, 3 mm 程度に発達しているのに対し, 日中ではかなりの量の昇華蒸発が雪面で起こっているものと推測される.

一方, 雪面の放射冷却で表層に大きな温度勾配がかかったことにより, 雪面直下にはしもぞらめ雪・こしもぞらめ雪が発達した. 図4は3月6日の積雪表層の構造を表わしている(雪質の表記は国際分類(Colbeck *et al.*, 1990)による). 特に, 表層の深さ30 mm まではしもぞらめ雪がよく発達しており, おそらく3月3~4日と5~6日の2晩で次第に形成されたものと思われる.

2.2.2 酸素同位体比とイオン濃度の変化

このときの表層の酸素同位体比($\delta^{18}\text{O}$)の時系列変化を図5に示した. 表面霜・しもぞらめ雪の形成に対応して, 表層の $\delta^{18}\text{O}$ は小さくなる傾向が認められる. また, 表層1 cm 厚のサンプルよ

り表層2~3 mm 厚のサンプルの方が変化率が大きく, 一晩で最大2%以上減少している. 雪面に近いほど霜結晶の占める割合は多く, $\delta^{18}\text{O}$ の変化が霜結晶の形成によるものとすれば, この傾向は妥当と考えられる. 図5の例の他, 観測期間中に表面霜の形成が5例観察されたが, 夜間の $\delta^{18}\text{O}$ の変化はいずれも同様の減少傾向であった. これに対して, 3月3日の日中には $\delta^{18}\text{O}$ が増加している. また, 3月4日朝から3月5日夕方まではサンプリングされていないので詳細は不明だが, 3月5日夕方に $\delta^{18}\text{O}$ が比較的大きい値をとっていることから, $\delta^{18}\text{O}$ の増加傾向は日中の雪面の昇華蒸発に対応していると見ることができる. すなわち, 日中は空気中への昇華蒸発によって重い水分子が相対的に雪面に取り残され, 結果的に表層の $\delta^{18}\text{O}$ が増加したと考えられる.

次に, 濃度の高かったイオンである Na^+ と Cl^- のそれぞれの濃度の時系列変化を代表例として図6に示した. グラフからは, 昇華凝結すなわち表面霜が形成されたときに濃度が減少し, 昇華蒸発時に上昇する傾向が読みとれる. これらのグラフの形は図5の $\delta^{18}\text{O}$ の変化パターンと似ている. その他のイオンについては, 乾性降水物の影響が Ca^{2+} などにみられたものの, ほぼ同じ割合で変化した(Hachikubo *et al.*, 1997). このことは, 昇華凝結時に積雪表層に pure な水蒸気が集中したためにイオン濃度が下がり, また日中の昇華蒸発

図4 1996年3月6日12:30の積雪表層の断面構造.

Fig. 4 Stratigraphy near the snow surface at 1230LT on 6 March.

図5 1996年3月3~6日の表層の $\delta^{18}\text{O}$ の時系列変化. 3月3日9:00には, 表層2~3 mm 厚のサンプルサンプリングは行なわれていない.

Fig. 5 Time variations of the $\delta^{18}\text{O}$ contents of the surface layer from 3 to 6 March, 1996. We did not obtain a 2~3 mm thick sample at 0900LT on 3 March.

図6 1996年3月3～6日の表層の Na^+ と Cl^- の時系列変化.

Fig. 6 Time variations of the concentrations of Na^+ and Cl^- near the snow surface from 3 to 6 March, 1996.

によってイオンが取り残されて濃度が上昇したものと説明できる.

2.2.3 霜結晶の酸素同位体比の推定

ここでは3月5～6日に発達した表層の霜結晶(表面霜としもざらめ雪)に焦点を絞り, 特に表層10 mm厚と2～3 mm厚での水蒸気のやりとりに注目する.

2種類の sublimation gauge によって測定された, 一晩の表面霜昇華凝結量と深さ40 mmでの水蒸気輸送量はそれぞれ, 0.118 kg m^{-2} と 0.050 kg m^{-2} であった. 前者については, 気象データを用いて式(1)から算出した一晩の昇華凝結量である 0.123 kg m^{-2} とほぼ一致している. また, 後者は表層内で新たにしもざらめ雪を形成した分と考えられる.

一方, 6日昼の積雪断面観測結果(図4)から, 表層30 mmの積雪密度は 0.19 Mg m^{-3} である. 以下, 表層10 mm厚と2～3 mm厚の積雪密度

はこれに等しいと仮定する. また, 3月5～6日にかけての表層10 mm厚の主イオン濃度減少の割合は, いくつかの例外を除き, どのイオンも $91.7 \pm 1.2 \%$ の範囲内にあった(Hachikubo *et al.*, 1997). これと同様に, 表層2～3 mm厚では $41.4 \pm 4.9 \%$ であった. これらが前述のように, pureな水蒸気が表層で霜結晶を作った結果であるとすれば, 霜結晶の形成前後における表層10 mm厚と2～3 mm厚での質量収支はそれぞれ式(3)と式(4)で表わされる.

$$\frac{0.19 (\text{Mg m}^{-3}) \times 0.010 (\text{m}) - x_1 (\text{Mg m}^{-2})}{0.19 (\text{Mg m}^{-3}) \times 0.010 (\text{m})} = 0.917 \pm 0.012 \quad (3)$$

$$\frac{0.19 (\text{Mg m}^{-3}) \times \{0.002 \sim 0.003 (\text{m})\} - x_2 (\text{Mg m}^{-2})}{0.19 (\text{Mg m}^{-3}) \times \{0.002 \sim 0.003 (\text{m})\}} = 0.414 \pm 0.049 \quad (4)$$

x_1 , x_2 はそれぞれの層厚における霜結晶の昇華凝結量であり, 式(3)より x_1 は $0.16 \pm 0.02 \text{ kg m}^{-2}$, 式(4)より x_2 は $0.28 \pm 0.08 \text{ kg m}^{-2}$ となる. 前者の値は sublimation gauge によって測定された値である 0.168 kg m^{-2} とほとんど変わらず, すなわち積雪中の水蒸気輸送量は深さ10 mmと40 mmとでそれほど違いがなかったと言える. また, 後者からは積雪表面直下でさらに大量の上向き水蒸気輸送があったことが推察される.

これらの結果をもとに, 霜結晶形成前後の表層10 mm厚と2～3 mm厚での水蒸気の質量収支をまとめると, 表1のように表わされる. このときの $\delta^{18}\text{O}$ の変化が全て霜結晶によるものとして計算すると, それぞれの層厚における霜結晶の $\delta^{18}\text{O}$ の値 y_1 , y_2 は式(5), 式(6)で表わされる.

$$\begin{aligned} & -9.9 (\%) \times [1.9 (\text{kg m}^{-2}) \\ & \quad - \{0.16 \pm 0.02 (\text{kg m}^{-2})\}] \\ & + y_1 (\%) \times \{0.16 \pm 0.02 (\text{kg m}^{-2})\} \\ & = -10.3 (\%) \times 1.9 (\text{kg m}^{-2}) \dots \dots \dots (5) \end{aligned}$$

表1 1996年3月5～6日における表層10 mm厚と2～3 mm厚それぞれの重量および $\delta^{18}\text{O}$ の変化.

Table 1. Changes of mass components of surface layer (10mm and 2-3mm in thickness) and $\delta^{18}\text{O}$ from 3 to 6 March, 1996.

積雪表層 10 mm 厚	3月5日 18:00 [kg m ⁻²]	3月6日 8:00 [kg m ⁻²]
元の表層 10 mm 厚	1.7 ± 0.0	1.7 ± 0.0
表面霜	—	0.118
しもざらめ雪	—	0.04 ± 0.02
総量	1.7 ± 0.0	1.9
$\delta^{18}\text{O}$ [‰]	− 9.9	− 10.3

積雪表層 2～3 mm 厚	3月5日 18:00 [kg m ⁻²]	3月6日 8:00 [kg m ⁻²]
元の表層 10 mm 厚	0.20 ± 0.06	0.20 ± 0.06
表面霜	—	0.118
しもざらめ雪	—	0.16 ± 0.08
総量	0.20 ± 0.06	0.48 ± 0.10
$\delta^{18}\text{O}$ [‰]	− 9.8	− 11.7

$$\begin{aligned}
 & -9.8 (\text{‰}) \times \{0.48 \pm 0.10 (\text{kg m}^{-2})\} \\
 & - \{0.28 \pm 0.08 (\text{kg m}^{-2})\} \\
 & + y_2 (\text{‰}) \times \{0.28 \pm 0.08 (\text{kg m}^{-2})\} \\
 & = -11.7 (\text{‰}) \times \{0.48 \pm 0.10 (\text{kg m}^{-2})\} \cdots (6)
 \end{aligned}$$

式 (5), 式 (6) から, y_1 , y_2 はそれぞれ $-14.7 \pm 0.7 \text{‰}$, $-13.0 \pm 0.3 \text{‰}$ となり, もとの表層の値を比較すると 3～5%ほど小さいことがわかる.

さらに, 表層の $\delta^{18}\text{O}$ の変化に対する表面霜としもざらめ雪それぞれの寄与の分離を試みた. 表面霜としもざらめ雪の $\delta^{18}\text{O}$ をそれぞれ $\delta^{18}\text{O}_{\text{SH}}$, $\delta^{18}\text{O}_{\text{DH}}$ とすると, 上述の2種類の層厚に対して以下の質量保存式が成り立つ.

$$\begin{aligned}
 & \delta^{18}\text{O}_{\text{SH}} \times 0.118 (\text{kg m}^{-2}) + \delta^{18}\text{O}_{\text{DH}} \\
 & \times \{(0.16 \pm 0.02) - 0.118\} (\text{kg m}^{-2}) \\
 & = -14.7 \pm 0.7 (\text{‰}) \times 0.16 \pm 0.02 (\text{kg m}^{-2}) \\
 & \cdots (7)
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 & \delta^{18}\text{O}_{\text{SH}} \times 0.118 (\text{kg m}^{-2}) + \delta^{18}\text{O}_{\text{DH}} \\
 & \times \{(0.28 \pm 0.08) - 0.118\} (\text{kg m}^{-2}) \\
 & = -13.0 \pm 0.3 (\text{‰}) \times 0.28 \pm 0.08 (\text{kg m}^{-2}) \\
 & \cdots (8)
 \end{aligned}$$

式 (7) と式 (8) を連立方程式として解くことにより, $\delta^{18}\text{O}_{\text{SH}}$ は $-16.1 \pm 1.1 \text{‰}$, $\delta^{18}\text{O}_{\text{DH}}$ は $-10.6 \pm 2.2 \text{‰}$, とそれぞれ求められた. 前者はもとの表層の値より 6%ほど小さいのに対し, 後者については若干小さいものの, 誤差を考慮するともとの表層の値とほとんど変わらなかったという結果が得られた. したがって, このケースにおける表層の $\delta^{18}\text{O}$ の低下は主に表面霜によるものであったと推定されるが, 積雪密度に関する仮定など, 上記の計算の前提条件に問題点があることも否めない. また, 観測期間中に発達した表面霜は小さ過ぎて, 表面霜だけのサンプリングができなかったために, 表層の $\delta^{18}\text{O}$ の減少に対する表面霜の寄与を直接検証することはできなかった.

3. 低温室におけるしもざらめ雪の生成実験

3.1. 実験装置と方法

北大低温研の低温室において約 11 日間, 縦 240 mm × 横 270 mm × 高さ 150 mm の積雪試料に約 90°C m^{-1} の大きな温度勾配を鉛直方向にかけて, しもざらめ雪を作成した. ヒーターユニット付きの断熱箱からなる実験装置 (図 7) は, 加熱プレート側のみ温度制御が可能であり, 冷却プレート側は低温室の室温で制御する. また, 試料

図 7 実験装置の概略図.

Fig. 7 Illustration of the apparatus.

図 8 実験 A, B それぞれの試料の上下端の温度変化.

Fig. 8 Time variations of the snow temperature at the top and the bottom of snow specimens A and B.

を入れる部分は完全に密閉される.

積雪試料には、北海道中山峠のしまり雪をふるい (1.7 mm メッシュ) でほぐしたものを使用し、これを十分かき混ぜることによって、試料中の同位体比はマクロにみて均一であると仮定した. 実験装置に雪を詰めたときの積雪密度は約 0.38 Mg m^{-3} であった. また、重力方向に対する温度勾配の向きなどによる違いをみるために、実験 A では加熱プレートを試料上部に、実験 B では装置を逆さまにして加熱プレートを試料下部にセットした.

実験後、積雪試料はいずれも丈夫な「かたしもしらめ雪」に変化した. これらの試料を水平に 1 cm おきにバンドソーでカットして 15 に分割し、それぞれ融解させて安定同位体分析用の試料とした. 酸素同位体比 ($\delta^{18}\text{O}$) については名古屋大学大気水圏科学研究所の質量分析計 (Finnigan MAT250) で、水素同位体比 (δD) については東京工業大学総合理工学研究科の質量分析計

図 9 実験後の積雪試料のアニリン薄片.

Fig. 9 A thin section of snow specimen after the experiment.

(Finnigan MAT252) で分析を行なった.

3.2. 実験結果と考察

まず、実験期間中の上下端の温度変化を図 8 に示した. 温度変化は最初の約半日で安定したが、冷却プレートは室温制御の影響を受け、小刻みに変動している.

図 9 の写真は実験後の積雪試料のアニリン薄片であり、しもぎらめ雪の特徴であるコップ状の霰晶の断面がみられる. しもぎらめ雪は写真下からの水蒸気供給方向に向かって成長する一方で、粒子の上部には昇華蒸発によるなめらかな面が出ている.

実験 A, B の試料について $\delta^{18}\text{O} \cdot \delta\text{D}$ を測定した結果、昇華蒸発の卓越する高温部では δ 値がいずれも大きくなり、一方で昇華凝結の卓越する低温部では δ 値がいずれも小さくなった (図 10). また、大きな変化は試料の上端・下端だけにみられ、特に昇華蒸発側の変化量が大きく、実験 A

図10 実験A, Bそれぞれの δ 値のプロファイルの変化. 実験はそれぞれの初期値を表わす.

Fig. 10 Isotopic profiles of $\delta^{18}\text{O}$ and δD . Solid lines show the initial conditions.

では $\delta^{18}\text{O}$ で1‰以上, δD で4‰近くに達した. これに対し, 試料上下端以外の部分では δ 値がほとんど変化していない. 図9で想像されるように, 雪粒子の一方で水蒸気を昇華凝結させて霜結晶を作り, 他方で昇華蒸発させる「水蒸気の手渡し輸送」が行なわれるとすれば (Yosida *et al.*, 1955), 相対的に δ 値の小さい水蒸気をただ手渡ししているだけで雪粒子自体の δ 値は変化しない, と説明できる.

また, 実験Aと実験Bの結果と比較すると,

両者の温度ならびに温度勾配の絶対値がほぼ等しいにもかかわらず, 試料下面を冷却した場合より加熱した場合の方が, 上述の δ 値の変化量は大きかった. 上部を加熱した実験Bでは空隙中の空気は安定しており, 水蒸気は空隙中を自己拡散していくしかないが, 下部を加熱した実験Aでは積雪中の空隙で対流が起こる可能性もある. したがって, 実験結果は積雪試料内の水蒸気輸送係数が対流によってわずかに増加したことを示唆していると考えられる.

これらのデータから $\delta^{18}\text{O} - \delta\text{D}$ グラフの傾きを求めると、2.4 ~ 3.1 という小さい値が得られた (図 11)。この値は、Sommerfeld *et al.* (1991) がほぼ同様の温度・温度勾配環境下で求めた実験値である 3.0 とほぼ等しい。一方で、天水線の傾きの値である 8 に対し、水の蒸発の際には動的同位体効果によって傾きの値が約 5 になることが知られており (酒井・松久, 1996)、この値は蒸発速度に依存している。また、Sommerfeld *et al.* (1991) が指摘しているように、氷表面に存在する擬似液体層が同位体交換を促進する役割を担っている可能性もある。したがって、水の蒸発の場合と同様、氷の昇華現象においても動的同位体効果に支配さ

れていると考えられる。

Johnsen (1977) は、世界各地の氷床コアで季節振幅が失われているかどうかを調べた結果から、氷化過程における水蒸気の平均拡散距離は氷にして 7 ~ 8 cm 程度であるとした。しかしながら一方で、Whillans and Grootes (1985) は積雪内の水蒸気輸送について理論的検討と数値実験を行ない、smoothing effect が温度と積雪密度に大きく依存すると結論づけている。すなわち、平均拡散距離もほぼ一定とは考えにくい。そこで、今回の実験結果と Sommerfeld *et al.* (1991) の実験結果の一部との比較を行なった (表 2)。

表 2 から、本実験は Sommerfeld らの結果と比

図 11 $\delta^{18}\text{O} - \delta\text{D}$ グラフ。数式は実験 A, B それぞれの回帰式。また、太線は天水線 ($\delta\text{D} = 8 \times \delta^{18}\text{O} + 10$) を表わす。

Fig. 11 δD plotted against $\delta^{18}\text{O}$. Thin lines show the regression lines of each run, and the thick line shows the meteoric water line ($\delta\text{D} = 8 \times \delta^{18}\text{O} + 10$).

表 2 Sommerfeld *et al.* (1991) の実験結果の一部と本実験の結果との比較。

Table 2. Comparison of this study and the result of Sommerfeld *et al.* (1991).

	実験時間 [day]	積雪密度 [Mg m^{-3}]	温度勾配 [$^{\circ}\text{C m}^{-1}$]	$\delta^{18}\text{O}$ の変動量 (加熱プレート側) [‰]
Sommerfeld <i>et al.</i> (1991)	13	0.23	0.5	3
本実験	11	0.38	0.9	0.5 ~ 1.3

較して、両者の実験時間にそれほど違いはない。そして、積雪密度については1.7倍、温度勾配については倍近くあるが、結果としての $\delta^{18}\text{O}$ の変動値はSommerfeldらの実験値の半分以下となっている。このことは、温度勾配が水蒸気圧勾配を決定して水蒸気輸送を左右する効果よりも、通気性のなさや拡散の困難さとしての積雪密度の効果の方が $\delta^{18}\text{O}$ の変動に大きく影響したことを示している。

4. まとめと今後の展望

野外観測では、放射冷却した雪面に上下方向から集中する水蒸気フラックスによって形成される霜結晶(表面霜・しもざらめ雪)が、積雪表層の酸素同位体比を容易に変化させることが分かった。また、今回観測された1996年3月5～6日のケースでは、表面霜としもざらめ雪のそれぞれの安定同位体比を個別に求めた。その結果、前者はもとの積雪表層の値と比較して約6%小さかったのに対し、後者はわずかにちいさいものの、大きな誤差を考慮すると、もとの積雪表層の値とほとんど変わらなかったと結論された。したがって、しもざらめ雪の同位体効果の解明のためには、精密な測定に限界のある野外観測よりも、任意の一定条件下での室内実験が今後いっそう期待される。

室内実験では、昇華蒸発の卓越する層で δ 値が増大、昇華凝結の卓越する層で減少し、中間層では“軽い”水蒸気の受け渡しするだけで δ 値がほとんど変わらないことが確認された。また、重力方向に対する温度勾配の向きを変えた実験では、対流による水蒸気拡散の増加が原因と思われる結果が得られた。そして、今回の実験結果と従来の知見との比較によって、安定同位体の変化量は積雪密度に大きく依存することが示唆された。

しかしながら、疑問点は多数残されている。安定同位体濃度が粒子スケールでどのように分布しているのか、昇華蒸発の卓越する氷表面では重い安定同位体がどう存在するのか、擬似液体層の効果とも絡めて、今後の研究が待たれるところである。そして、しもざらめ雪形成時の $\delta^{18}\text{O}$ — δD グラフの傾きの昇華速度依存性、ならびに水蒸気の平均拡散距離の温度・密度依存性を、安定同位体

をトレーサーとして実験的に求めることが、今後の具体的な方針となろう。

また、今回の室内実験では δ 値の変化の検出を主目的としたために、温度勾配が極端に大きくかつ短時間で行なわれた。したがって、これらの結果を極地の現象にそのまま適用することはできない。今後は、現実的な条件に近づけて基礎データをさらに蓄積する一方で、積雪内の水蒸気輸送理論との対応についても検討していく予定である。

謝 辞

北大低温研の白岩孝行助手、総合研究大学院大学院生の飯塚芳徳氏には、本研究着手のきっかけと有益な助言ををいただきました。野外観測においては、北大農学部天塩地方演習林の方々にサポートしていただきました。室内実験試料の δD 測定の際には、東工大総合理工学研究科の吉田尚弘教授にお世話になりました。また、北大低温研技術部の技官の方々には野外観測用の器材およびしもざらめ雪生成装置を制作していただき、また低温機関室の方々には低温室使用の際にお世話になりました。同研究所大学院生の森淳子氏には、図表の作成を援助していただきました。ここに感謝の意を表します。なお、研究費の一部は文部省雪崩事業費から支出された。

文 献

- Armengaud, A., Koster, R. D., Jouzel, J. and Ciais, P., 1998: Deuterium excess in Greenland snow: Analysis with simple and complex models. *J. Geophys. Res.*, **103**, 8947-8953.
- Birkeland, K. W., 1998: Terminology and predominant processes associated with the formation of weak layers of near-surface faceted crystals in the mountain snowpack. *Arct. Alp. Res.*, **30**, 193-199.
- Colbeck, S. C., 1989: Snow-crystal growth with varying surface temperatures and radiation penetration. *J. Glaciol.*, **35**(119), 23-29.
- Colbeck, S., Akitaya, E., Armstrong, R., Gubler, H., Lafeuille, J., Lied, K., McClung, D. and Morris, E., 1990: The international classification for seasonal snow on the ground. Wallingford, Oxfordshire, International Association of Scientific Hydrology. International Commission on Snow and Ice.
- Dansgaard, W., Johnsen, S. J., Clausen, H. B., Hammer, C. U. and Grundestrup, N., 1973: Stable isotope glaciology. *Medd. Groenl.*, **197**(2), 1-53.
- Friedman, I., Renson, C. and Gleason, J., 1991: Isotopic

- changes during snow metamorphism. *Stable Isotope Geochemistry*, **3**, 211-221.
- Fukuzawa, T. and Akitaya, E., 1993: Depth-hoar crystal growth in the surface layer under high temperature gradient. *Ann. Glaciol.*, **18**, 39-45.
- Hachikubo, A. and Akitaya, E., 1997: Effect of wind on surface hoar growth on snow. *J. Geophys. Res.*, **102**, 4367-4373.
- Hachikubo, A., Fukuzawa, T. and Akitaya, E., 1994: Formation rate of surface hoar crystals under various wind velocities. *Proceedings International Snow Science Workshop, Snowbird, Utah*, 132-137.
- Hachikubo, A., Hashimoto, S., Nakawo, M. and Nishimura, K., 2000: Isotopic mass fractionation of snow due to depth hoar formation. *Polar Meteorol. Glaciol.*, **14**, submitted.
- Hachikubo, A., Motoyama, H., Suzuki, K. and Akitaya, E., 1997: Fluctuation of $\delta^{18}\text{O}$ of surface snow with surface hoar and depth hoar formation. *Proc. NIPR Symp. Polar Meteorol. Glaciol.*, **11**, 94-102.
- Johnsen, S. J., 1977: Stable isotope homogenization of polar firn and ice. *IAHS Publ.*, **118**, 210-219.
- Johnsen, S. J., Dansgaard, W. and White, J. W. C., 1989: The origin of Arctic precipitation under present and glacial conditions. *Tellus*, **41B**, 452-468.
- Jouzel, J., Alley, R. B., Cuffey, K. M., Dansgaard, W., Grootes, P., Hoffmann, G., Johnsen, S. J., Koster, R. D., Peel, D., Shuman, C. A., Stievenard, M., Stuiver, M. and White, J., 1997: Validity of the temperature reconstruction from water isotopes in ice cores. *J. Geophys. Res.*, **102**, 26471-26487.
- Kameda, T., Azuma, N., Furukawa, T., Ageta, Y. and Takahashi, S., 1997: Surface mass balance, sublimation and snow temperatures at Dome Fuji Station, Antarctica, in 1995. *Proc. NIPR Symp. Polar Meteorol. Glaciol.*, **11**, 24-34.
- 加藤喜久雄・樋口敬二, 1979: 南極高気圧下で生成した雪の酸素同位体組成. *南極資料*, **67**, 152-163.
- 酒井均・松久幸敬, 1996: 安定同位体地球化学. 東京大学出版会, 403 pp.
- Satow, K. and Watanabe, O., 1985: Net accumulation and oxygen isotope composition of snow on Mizuho Plateau, Antarctica. *Ann. Glaciol.*, **6**, 300-302.
- Shiraiwa, T., Taguchi, Y., Saito, T., Shoji, H., Yokoyama, K., Watanabe, O., Enomoto, H., Kodama, Y. and Takeuchi, Y., 1996: Observations on the evaporation-condensation process and heat-balance during the austral summer at the snow surface of Dome Fuji Station, East Antarctica (abstract). *Proc. NIPR Symp. Polar Meteorol. Glaciol.*, **10**, 150.
- Sommerfeld, R. A., Judy, C. and Friedman, I., 1991: Isotopic changes during the formation of depth hoar in experimental snowpacks. *Stable Isotope Geochemistry*, **3**, 205-209.
- Stull, R. B., 1988: *An Introduction to Boundary Layer Meteorology*. Kluwer Academic Publishers, Dordrecht, 666 pp.
- Whillans, I. M. and Grootes, P. M., 1985: Isotopic diffusion in cold snow and firn. *J. Geophys. Res.*, **90**, 3910-3918.
- Yosida, Z. *et al.*, 1955: Physical studies on deposited snow. I. Thermal properties. *Contributions from the Institute of Low Temperature Science, Ser. A.*, **7**, 19-74.

Isotopic mass fractionation of surface snow due to hoarfrost formation

Akihiro HACHIKUBO¹⁾, Shigemasa HASHIMOTO²⁾, Masayoshi NAKAWO²⁾,
Hideaki MOTOYAMA³⁾, Keisuke SUZUKI⁴⁾ and Kouichi NISHIMURA⁵⁾

1) *Kitami Institute of Technology, 165, Koen-cho, Kitami 090-8507*

2) *Institute for Hydrospheric-Atmospheric Sciences, Nagoya University,
Furo-cho, Chikusa-ku, Nagoya 464-8601*

3) *National Institute of Polar Research, 9-10, Kaga 1-chome, Itabashi-ku, Tokyo 173-8515*

4) *Faculty of Science, Shinshu University, Asahi 3-1-1, Matsumoto 390-8621*

5) *Institute of Low Temperature Science, Hokkaido University, N19 W8, Sapporo 060-0819*

Abstract: In March 1996, $\delta^{18}\text{O}$ and major ions of the snow surface layer were measured during hoarfrost formation in Hokkaido. In nighttime, $\delta^{18}\text{O}$ decreased when surface hoar and depth hoar crystals formed above and beneath the snow surface, respectively, while $\delta^{18}\text{O}$ increased due to sublimation in daytime. From concentration data of major ions and sublimation data with sublimation gauges, $\delta^{18}\text{O}$ of surface hoar sublimed on 5-6 March was estimated to be approximately 6 ‰ lower than that of the original surface layer, whereas that of depth hoar was estimated to be almost the same as that of the original surface layer.

Stable isotopic ratios (δD and $\delta^{18}\text{O}$) of depth hoar were also measured experimentally. Snow specimens were under large temperature gradient (90°C m^{-1}) for 11 days. δD and $\delta^{18}\text{O}$ decreased in the region at low temperature, in contrast to an increase in the region at high temperature. An isotope diagram of the data showed a slope of 2.4–3.1, which indicated that isotopic fractionation on sublimation depends on the kinetic isotope effect.

(1999 年 12 月 29 日受付, 2000 年 2 月 23 日改稿受付, 2000 年 3 月 29 日再改稿受付, 2000 年 4 月 1 日受理,
討論期限 2000 年 11 月 15 日)