総 説

雪結晶の形態変化と気体の圧力

権 田 武 彦¹⁾, 難 波 淳 一²⁾, 清 忠 師¹⁾

要 旨

雪結晶の形態変化即ち晶癖変化と形態不安定は、温度と過飽和度のみではなく気体の圧力と結晶サイズによって変化する。形態変化の気体の圧力の影響は、結晶のサイズが小さいとき特に顕著である。高压気体中では、1気圧以下の圧力で生ずる雪結晶の晶癖変化の温度依存性は生じない。

キーワード：雪結晶の形態、高压ガス中の雪、樹枝状氷晶、気体の圧力、体積拡散律速

Key words: morphology of snow crystal, snow crystal in high pressure gas, dendritic ice crystal, pressure of carrier gas, rate determining process of volume diffusion

1. はじめに

1気圧の空気中で成長する雪結晶の形態は、温度と過飽和度に依存して変化する事は誰もが知っている (Nakaya, 1951, 1954 ; Kobayasi, 1961 ; Hallett and Mason, 1958). Kuroda and Lacmann (1982) は、雪結晶の形態変化のうち晶癖変化が温度の低下と共にシステマティックに変化する機構を理論的に説明した。この理論の主旨を定性的に云えば、雪結晶のミクロな表面構造が温度と面方位に依存して変化し、これらの組み合わせによって、雪結晶の晶癖が変化するというものである。一方、Gonda and Yamazaki (1982), Gonda and Koike (1983) は実験的に、Yokoyama and Kuroda (1990) は、コンピューターシミュレーションによって、雪結晶の形態不安定が過飽和度と結晶サイズに依存して変化することを示した。雪結晶の晶癖変化の温度依存性と形態不安定の過飽和度と結晶サイズ依存性については、黒田 (1984, 1990), 黒田と横山 (1990) の解説の中で詳しく述べられている。雪結晶の晶癖変化と形態不安定を支配する因子は、上記の他に、気体の圧力、核形成時のミクロな物理現象、空気の対流の有無な

どが考えられる。ここでは、雪結晶の形態変化が気体の圧力と結晶サイズに依存して変化することを述べる。

2. 自由落下法で成長する微細氷晶の形態変化と気体の圧力

高さ 50 cm, 直径 6 cm のステンレスのシリンダーで構成された高压用低温槽 (Gonda, 1975) を用いて、 -7°C と -15°C について、いずれも水飽和のヘリウムガス中で、気体の圧力をいろいろ変えて微細氷晶を成長させた。その結果の一例を第1図に示す。 -7°C , $1/2$ 気圧のヘリウムガス中では、多面体の角柱結晶が成長するが、1気圧の下では底面に小さな凹みを持つ骸晶角柱が成長する。 15 気圧の下では、底面に深い凹みを持つ骸晶角柱或いは鞘状の結晶が成長する。一方、 -15°C , $1/2$ 気圧のヘリウムガス中では、柱面に小さな凹みを持つ骸晶角板が成長するが、1気圧の下では柱面に深い凹みを持つ骸晶角板が成長する。また 15 気圧の下では、樹枝状結晶が成長する。

第2図は、 -7°C と -15°C について、いずれも水飽和のヘリウムガス中で成長した微細氷晶の a 軸方向と c 軸方向のサイズ比 c/a と気体の圧力の関係を示す。これを見るとわかるように、 -7°C と -15°C のヘリウム低压気体中では、そ

1) 愛知学院大学・教養部
〒470-0195 日進市岩崎町阿良池 12
2) 厚木東高等学校
〒243-0817 厚木市王子 1-1-1

第1図 -7°C , 水飽和と -15°C , 水飽和のヘリウムガス中で自由落下した微細氷晶.

第2図 自由落下法で成長した微細氷晶のa軸方向とc軸方向のサイズ比 c/a の気体の圧力依存性.

れぞれ微細氷晶のサイズ比 c/a が1.0に近い角柱と角板が成長する. 一方気体の圧力を増すと, これらの結晶は細長い角柱或いは薄い角板に変化する. 即ち微細氷晶の形態は, 気体の圧力に依存して大きく変化する事がわかる.

第3図は, -7°C と -15°C について, いずれも水飽和のヘリウムガス中で高い頻度で成長した微細氷晶の形態の圧力依存性を図式的に示したものである. これを見るとわかる様に -7°C と -15°C , いずれも水飽和で成長する微細氷晶の形

第3図 自由落下法で高い頻度で成長した微細氷晶の圧力依存性。

態は、圧力に依存して大きく変化する事がわかる。

3. 雲母上で成長する氷晶の形態変化と気体の圧力

沃化銀を蒸着した雲母上に成長した比較的大きい氷晶の形態変化の圧力効果を調べるために、高圧用低温槽を作成した (Gonda, 1980)。この低温槽を用いて、 -16°C 、氷飽和に近い過飽和度 (雲母上と水蒸気補給源の温度差 $\Delta T = 1.3^{\circ}\text{C}$) で氷晶を成長させた。その結果の一例を第4図に示す。この実験の場合、自由落下法に比べると約一桁大きい結晶の形態変化を研究する事ができる。1気圧のヘリウムガス中では、柱面に深い凹みを持つ骸晶角板が成長するが、5気圧のヘリウムガス中では第1枝の柱面に凹みを持つ扇形結晶が成長する。また20気圧のヘリウムガス中では、六花状結晶が成長する。過飽和度が低く、結晶のサイズが自由落下法に比べると1桁大きいので、気圧の圧力の効果は顕著ではないが、結晶の形態は気体の圧力に依存して変化する事が分かる。

第5図は、雲母上で成長した氷晶のa軸方向とc軸方向のサイズ比 c/a と気体の圧力と結晶サイズの間の関係を示す。この図から明らかな様に、 -16°C で成長する角板氷晶は、気体の圧力が大

第4図 -16°C 、氷飽和に近い過飽和度で雲母上に成長した氷晶。

第5図 雲母上に成長した氷晶のa軸方向とc軸方向のサイズ比 c/a の気体の圧力と結晶サイズ依存性.

第6図 雲母上に成長した氷晶と自由落下法で成長した微細氷晶の形態変化の圧力効果.

きくなると薄くなる (c 軸よりも a 軸方向のサイズが大きい). またこの図の場合, 結晶のサイズが $100\mu\text{m}$ より大きいのであまりはっきりしないが, サイズ比 c/a の気体の圧力効果は, 結晶サイズが小さい程大きくなる傾向がある. 別の言葉で言えば, 結晶サイズが大きくなると気体の圧力効果は小さくなる. この現象の物理的意味は, 別に述べる.

第6図は, 雲母上に成長した氷晶と自由落下法

で成長した氷晶の形態変化の圧力効果を図式的に示したものである. 各圧力に於ける氷晶の形態は, 各圧力で高い頻度で出現した結晶の形を示した. これを見ると分かる様に, 自由落下法で成長した微細氷晶の形態変化の圧力依存性の度合いは, 雲母上で成長した大きい結晶の形態変化よりも著しい事がわかる.

第7図 -14°C , 8%の過飽和度で兎毛上に成長した雪結晶の形態変化の圧力効果.
(a) 0, (b) 10, (c) 21, (d) 26, (e) 39, (f) 47 min.

4. 兎毛上で成長する雪結晶の形態変化と気体の圧力

兎毛上で雪結晶を成長させて, その形態変化の圧力効果を調べるために, 高圧用低温槽を作成した (Gonda and Namba, 1981). この低温槽を用いて, -14°C , 8%の過飽和度で, ヘリウムガスの圧力を 10 気圧と 1 気圧の間で交互に変化させて, 雪結晶の形態変化を調べた. 第7図は, その結果の一例である. (a) は, 10 気圧のヘリウムガス中で兎毛上に氷晶が核形成してから 25 分後のものである. 1 気圧の気体中では, 板状結晶が成長する温度であるにもかかわらず, ここでは針状結晶が成長した. ヘリウムガスの圧力を 1 気圧までゆっくり下げると, 10 分後に針状結晶の先端に六角板結晶が成長した (b). その後再びヘリウムガスの圧力を 10 気圧までゆっくり上げると, 六角板結晶の各角から再び針状結晶が成長した (c). この様に気体の圧力を交互に変えれば (d, e, f), 以上述べた結果が繰り返えされる. 即ち, 雪結晶の形態は, 気体の圧力を変えるとドラスティックに, その形態を変えることがわかる.

第8図は, 兎毛上に成長した雪結晶の a 軸方向と c 軸方向のサイズ比 c/a と気体の圧力 (上方の矢印) の関係を示す. 10 気圧のヘリウムガス中では, サイズ比 c/a の値が 3.0 ~ 4.0 に近い針状結晶が成長するが, 気体の圧力を 1 気圧に下げる

第8図 兎毛上に成長した雪結晶の a 軸方向と c 軸方向のサイズ比 c/a の気体の圧力依存性.

と, サイズ比 c/a が 0.3 に近い板状結晶が成長する. ヘリウムガスの圧力を 10 気圧と 1 気圧の間で交互に変化させると, 以上の結果が何度でも繰り返えされる事が分かる.

第9図 (A), (B) は, それぞれ -7°C , 過飽和度 6% の 10 気圧のヘリウムガス中で成長した雪結晶である. (A), (B) は, 共に同じ成長条件で成長させたのにも関わらず, 針状結晶と板状結晶が成長した.

(A)

(B)

第9図 -7°C , 過飽和度6%の10気圧のヘリウムガス中で成長した雪結晶.

(A): (a) 0, (b) 2, (c) 9, (d) 10, (e) 12 min.

(B): (a) 0, (b) 1.5, (c) 3.5, (d) 5.5, (e) 8.5, (f) 12.5, (g) 18.5 min.

第10図 (A), (B) は, それぞれ -14°C , 過飽和度12%の10気圧のヘリウムガス中で成長した結晶である. (A), (B) は, 共に同じ成長条件で成長させたのにも関わらず, 針状結晶と板状結晶が成長した. 以上の実験事実は, 高压ガス中では, 1気圧以下の圧力で生ずる雪結晶の晶癖変化の温度依存性が生じない事を意味する.

第11図は, 10気圧のヘリウムガス中で毛毛上に成長した雪結晶のa軸方向とc軸方向のサイズ比 c/a と結晶サイズの間の関係を示す. (A) は,

-14°C , 過飽和度12%で成長した雪結晶, (B) は, -7°C , 過飽和度6%で成長した雪結晶である. (A), (B) を比較するとわかる様に, 高压ガス中で成長する雪結晶の形態(サイズ比 c/a) は, 成長温度に依存しない事が分かる. 即ち, 高压ガス中では, 1気圧以下の圧力で生ずる雪結晶の晶癖変化の温度依存性は生じない. この事実は, 高压ガス中では雪結晶が六角板状に成長するか, 六角柱状に成長するかは, 温度によって一義的には決まらないことを意味する.

5. 実験結果の解釈

雪結晶の形態変化即ち結晶の晶癖変化と形態不安定は, 温度と過飽和度以外の因子, とりわけ気体の圧力と結晶サイズに依存して大きく変化する. また雪結晶の形態変化の圧力依存性は, 結晶のサイズが小さいとき顕著である. 以上の実験結果は以下の様に解釈できる.

多くの実験から1気圧以下の気体中で成長する雪結晶の表面は, 一般に分子論的スケールでみてスムーズである. 従って, 結晶表面上に吸着した水分子は結晶表面上を拡散し, その後多くの分子は環境相に再離脱するので, 吸着水分子は必ずしも成長に寄与するとは限らない. 結晶表面上にキックを持つステップが存在すれば, 吸着水分子はそこで初めて結晶化する. 1気圧以下の気体中では, 結晶の周りの等水蒸気圧線の間隔が広く, 従って水蒸気圧勾配は小さく結晶全体にわたり, ほぼ一定である. このとき, 環境相から降ってくる水分子は, 結晶表面上に様に降り注ぐ. その結果, 雪結晶は相似形を維持しながら成長し, 温度に依存した形の多面体結晶が成長する. このことは1気圧以下の気体中で成長する雪結晶は, 水分子の表面カイネティクスによって律速されることを意味する.

一方, 1気圧以上の高压気体中で成長する雪結晶の表面は, 一般に分子論的スケールでみてラフである. この様な結晶表面上に降ってくる水分子は, 殆ど結晶化し成長に寄与する. 高压気体中では, 結晶の周りの等水蒸気圧線の間隔は狭く, 水蒸気圧勾配は, 結晶の先端である角で最も大きい. 従って水蒸気は結晶の角に集中し, 結晶の角が優先的に成長し結晶は樹枝状化する. 以上は角板状

第10図 -14°C , 過飽和度12%の10気圧のヘリウムガス中で成長した雪結晶.
 (A): (a) 2, (b) 5, (c) 7, (d) 9, (e) 11, (f) 13, (g) 15, (h) 17 min.
 (B): (a) 2, (b) 7, (c) 12, (d) 17, (e) 22, (f) 27, (g) 32 min.

結晶について述べたものであるが、角柱状結晶についても同様のことが云える。結論として高压気体中では、氷結晶が核形成した後、何らかの理由によって、結晶の一部がある特定の方向へ突出すると、凸部へ水蒸気が集中し、凸部が優先的に成長する。このことは高压気体中で成長する雪結晶

は、水分子の体積拡散によって律速されて、晶癖変化の温度依存性が消えることを意味する。ここで結晶サイズが大きくなると、高压気体中で成長する雪結晶の周りの等水蒸気圧線の間隔が広くなって、水蒸気圧勾配が小さくなる。従って結晶のサイズが大きくなると、水蒸気の体積拡散による

第11図 10気圧のヘリウムガス中で兎毛上に成長した雪結晶のa軸方向とc軸方向のサイズ比 a/c と結晶サイズの関係.

(A) : -14°C , 12%の過飽和度で成長した雪結晶.

(B) : -7°C , 6%の過飽和度で成長した雪結晶.

先端効果が弱まって、気体の圧力の効果も弱まることになる。

6. 結 論

以上の実験結果から、以下の結論を導く事ができる。

- (1) 雪結晶の晶癖変化と形態不安定は、温度、過飽和度、結晶サイズ以外に気体の圧力に依存して大きく変化する。
- (2) 高圧気体中では、1気圧以下の圧力で生ずる雪結晶の晶癖変化の温度依存性は生じない。

文 献

- Gonda, T., 1975 : A high-pressure cold chamber for the study of ice crystal growth in compressed gases. *J. Meteorol. Soc. Japan*, **53**, 334-339.
- 権田武彦, 1980 : 気相からの氷の結晶成長. 日本結晶成長学会誌, 7巻, 197-214.
- Gonda, T. and Namba, J., 1981: Effect of the diffusion field of water vapour and the crystal size on the morphology of ice crystals grown from the vapour phase. *J. Crystal Growth*, **52**, 60-63.
- Gonda, T. and Yamazaki, T., 1982: Morphological stability of polyhedral ice crystals growing from the vapour phase. *J. Crystal Growth*, **60**, 259-263.
- Gonda, T. and Koike, T., 1983: Growth mechanisms of single ice crystals growing at a low temperature and their morphological stability. *J. Crystal Growth*, **65**, 36-42.
- Hallett, J. and Mason, B. J., 1958: The influence of temperature and supersaturation on the habit of ice crystals grown from the vapour. *Proc. Roy. Soc. A*, **247**, 440-453.
- Kobayashi, T., 1961: The growth of snow crystals at low supersaturation. *Phil. Mag.*, **6**, 1363-1370.
- Kuroda, T. and Lacmann, R., 1982: Growth kinetics of ice from vapour phase and its growth forms. *J. Crystal Growth*, **56**, 189-205.
- 黒田登志雄, 1984 : 雪の結晶成長と成長形, 日本物理学会誌, **39**, 772-778.
- 黒田登志雄, 1990 : 雪の結晶の成長と形, 数理科学, No. **319**, 5-11.
- 黒田登志雄, 横山悦郎, 1990 : 雪の形態形成および氷の表面融解現象, 日本物理学会誌, **45**, 541-548.
- Nakaya, U., 1951: The formation of ice crystals. *Compendium Meteor. (Amer. Meteor. Soc., Boston)* 207-220.
- Nakaya, U., 1954: *Snow crystals, natural and artificial*. Har-

vard Univ. Press, 248-252.

Yokoyama, E. and Kuroda, T., 1990: Pattern formation in growth of snow crystals occurring in the surface

kinetic process and the diffusion process. Physical Review A, 41, No 4, 2038-2049.

Influence of the pressure of carrier gas on the morphology of snow crystals

Takehiko GONDA¹⁾, Junichi NAMBA²⁾ and Tadanori SEI¹⁾

1) *Division of General Education, Aichi Gakuin University, Araiike 12, Iwasaki, Nisshin 470-0195*

2) *Atsugi Higashi High School, Oji 1-1-1, Atsugi 243-0817*

Abstract: The morphology of snow crystals, snow crystal habit and the morphological instability of the crystals depend not only on temperature and supersaturation but also on the pressure of carrier gas and crystal size.

The influence of the pressure of carrier gas on the morphology of snow crystals is most prominent when the crystal size is small. The temperature dependence of snow crystal habit which occurs at or below normal pressure disappears in high pressure gas.

(2001 年 9 月 6 日受付, 2001 年 10 月 15 日改稿受付, 2001 年 10 月 15 日受理, 討論期限 2002 年 5 月 15 日)