



# HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	Diffusion Cloud Chamber による雪・氷晶の生成機構の研究 (序報)
Author(s)	小林, 禎作; KOBAYASHI, Teisaku
Citation	低温科学. 物理篇, 15, 1-11
Issue Date	1956-11-30
Doc URL	<a href="https://hdl.handle.net/2115/17907">https://hdl.handle.net/2115/17907</a>
Type	departmental bulletin paper
File Information	15_p1-11.pdf



## Diffusion Cloud Chamber による雪・氷晶 の生成機構の研究 (序報)\* \*\*

小林 禎 作

(低温科学研究所 気象学部門)

(昭和 31 年 7 月受理)

### I. はしがき

人工降雨の基礎的研究の一環として、沃化銀その他氷晶核物質の氷晶化の機構を調べるために、筆者は北海道電力株式会社の委託により、雲物理実験用の Diffusion Cloud Chamber を試作した。

ここ数年来のこの種実験では、Schaefer<sup>1)</sup>の所謂“Diffusion Cloud Chamber”に倣った装置が多く使われている。筆者の試作したのも、その構造は大体 Schaefer のものと同じであるが、低温箱としても更にいろいろな目的の実験に使えるよう改良を試みた。装置の主要部は写真 No. 1 及び第 1 図に示される通りである。従来の装置は冷媒として dry ice 等の寒剤を用い、常温の室内で操作、実験している。それに対し今回試作したものは、冷却用に Freon 22 を使った 1/4 H.P. 冷凍機 (空冷式、日立製作所製) を装備し、長期に恒つての低温度の維持と温度調節とを容易にすると共に、装置全体を本研究所の低温実験室内において運転するよう設計されたのが特徴である。製作は島津製作所に依頼し、本年 1 月下旬完成した。

冷媒にはトリクレン (trichloro-ethylene) を使用し、 $-20^{\circ}\text{C}$  の室温でその温度を  $-55^{\circ}\text{C}$  まで下げることが出来、冷媒温度の調整はアルコール-水銀温度調節器により、真空管リレー、電磁リレーを経て冷凍機の始動・停止によつて行われる。作動の精度は  $\pm 0.5^{\circ}\text{C}$  であつた。更に低温度の必要な時には、冷媒液に dry ice を混入して使用する。

水蒸気は、上部の水槽とそれに渡して張られた濡れガーゼから絶えず補給され、濡れガー

\* 北海道大学低温科学研究所業績 第 330 号

\*\* 北海道電力株式会社委託研究

1956 年 5 月 日本気象学会にて講演

1956 年 6 月 人工降雨研究連絡会に発表

Experimental Researches on the Snow Crystal Habit and Growth by Means of a Diffusion Cloud Chamber (Preliminary Report). June 1956, A Report to the Committee for Rain-Making in Japan, the Hokkaido Electric Power Company, Inc.

ゼの温度は、水槽及び頂部のヒーターによつて室温から +30°C までの任意の温度に保たれる。従つて我々の実験においては、低温室の温度 (最低 -40°C まで冷却可能)、冷媒温度 (室温 ~ -55°C) 及び濡れガーゼの温度 (室温 ~ +30°C) を適当に保つことにより、いろいろな温度勾配を低温槽内に与えることが可能である。

観測部分は Acrylite (アクリル酸樹脂板) からなる二重壁で組立てられ、内外面には結霜の除去を容易にするため、Drifilm を薄く塗布した。槽底部の銅板中央には  $2 \times 2 \text{ cm}^2$  の孔があり、これを通つてスライドガラス上に捕集された氷晶は、長い真鍮製支持板で横に送られ外に取出される。槽の底部には、別に倒立顕微鏡を置いて落下した氷晶等を直接観察することもできる。

槽内温度の分布は、アクリル酸樹脂壁を通して横に挿入された3点の銅—コンスタンタン熱電対と、槽の上部を通じ垂直に上下し得る熱電対1個とによつて測定した。

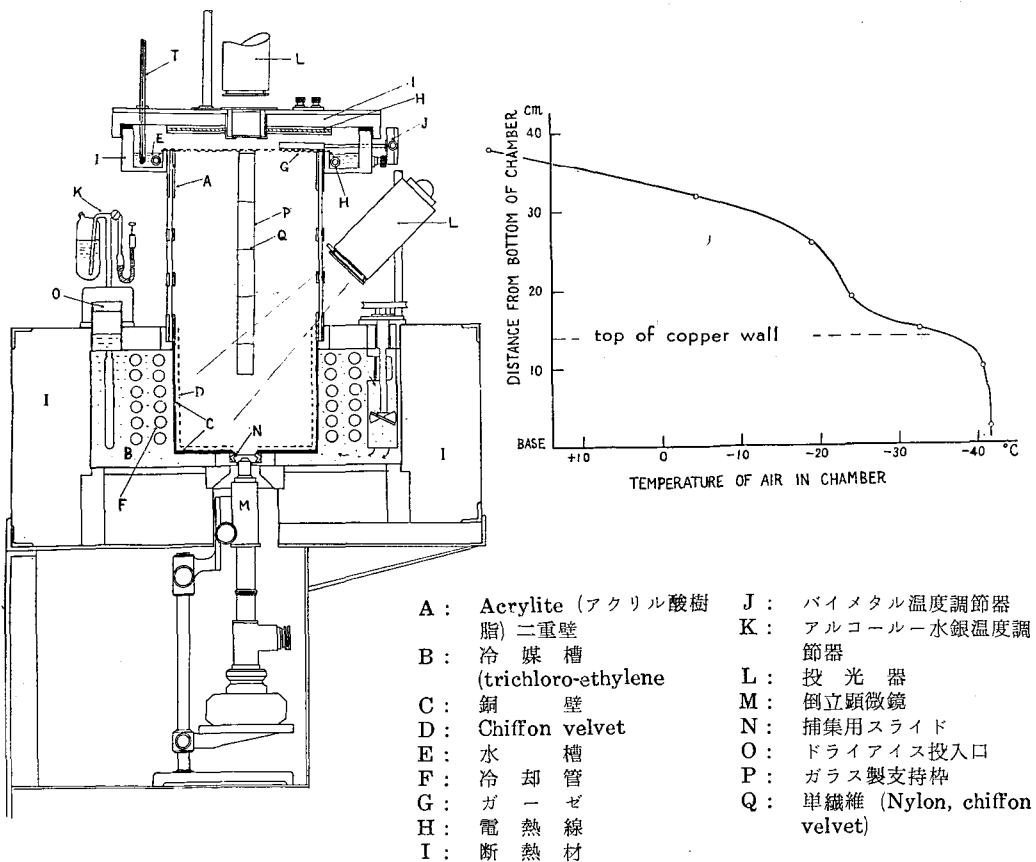
## II. 雪の結晶に対する液相の水の影響

どのような結晶形の雪が、どのような温度 ( $T_a$ ) 及び過飽和度 ( $s$ ) 条件のもとで生成されるかということは、中谷・花島<sup>9)</sup>らの実験によつて詳しく研究され、所謂 “ $T_a$ - $s$  Diagram” としてよく知られている。その後、H. J. aufm Kampe, H. K. Weickmann と J. J. Kelly (1951)<sup>10)</sup>; J. S. Marshall と M. P. Langleben (1954)<sup>11)</sup>; D. Shaw と B. J. Mason (1955)<sup>12)</sup> らの研究があり、それに関するいろいろな実験と検討が重ねられたが、雪の結晶の形成の機構は、これらの理論或は実験に示されたものより、更に複雑なものであろうことが推察される。中谷は花島らの人工雪の実験、及び熊井<sup>9)</sup>の電子顕微鏡による天然雪の核の研究から、大気中に存在する直径数  $\mu$  程度の微小な水滴—aerosol—が雪の結晶の生成に重要な寄与をなすであろうことを指摘した。そして中谷は最近この点を確めるため一連の実験を行つた<sup>7)</sup>。即ち、人工雪の装置その他の条件は以前のままとし、ただ装置内の空気をあらかじめ長い cotton filter と thermal precipitator を通し、清浄な (“aerosol free”) なものにして人工雪を作る。その結果、例えば以前には樹枝状結晶が出来た条件のもとでは“針”又は“さや状結晶”が生ずるというように、aerosol の存在が雪の結晶形に著しい影響を与えることが確められた。

これは極めて重要な興味深い実験結果であるが、我々の Diffusion Cloud Chamber によれば、これは簡単に追試することができる。通常の低温室内の空気を槽内に導き、上部ヒーターを加熱して水蒸気を送り乍ら底部を冷やして行くと、槽内は微小な過冷却水滴で充滿し、これは顕微鏡用光源 (Olympus 製 6 V, 5 A) を使つて、その “Tyndall effect” から肉眼ではつきり確められる。槽内は上部が温く、下層程冷いので熱的に極めて安定しており、微水滴はゆつくりと自由落下する。このようにして槽上部の濡れガーゼの温度  $T_w$ 、冷媒温度  $T_b$  (槽下部の銅函内の気温は通常  $T_b$  より 5~10°C 高い) を一定に保つたまま半日位放置すると、槽内の凝結核は殆んど全部微水滴となつて落下してしまい、最早や顕微鏡用光源によつての Tyndall

effect は見られなくなる。この状態を “water droplet free” と呼ぶ。槽内を気密に保ち、且つ相当の時間をかければ、凝結核以外の aerosol も “rain out” されるであろうが、我々の今の実験段階ではまだこの点は確められていない。しかし乍ら、このようにして得られた実験条件は中谷の “aerosol free” の条件に可成り似たものと考えてよからう。中谷・花島の実験では対流によつて盛に水蒸気が補給されるのに比べ、我々の実験では上からの拡散によつて補給されるだけであるので、その水蒸気の補給の割合、結晶の生成場所の過飽和度の相異について尚検討する必要はあるが、我々の Diffusion Cloud Chamber 内での人工雪の生成の結果は、完全に中谷の実験を支持するものであつた。

我々が今日までに行つた一連の実験においては、低温実験室の室温  $T_r$ 、冷媒槽温度  $T_c$  及び濡れガーゼの温度  $T_w$  は、夫々ほぼ  $-20$ 、 $-50$ 、及び  $+20^\circ\text{C}$  に保たれた。槽下部の銅函内面は霧吹きで吹いた水を凍らせて、あらかじめ氷で覆つておく。更にこの銅函の内側には、霧粒や氷晶の観測を容易にするため、銅壁から 5 mm 離して黒い chiffon velvet が張つてある



第 1 図

ので、その底にも掻き落した霜の細かい粒を撒いておく。従つて槽の頂部及び底部は、夫々その温度で水及び氷について飽和に保たれる。槽内の温度分布の一例を槽の縦断面図と共に第1図に示す。

図からわかるように、槽の上部水槽近くと、銅壁の上端近くとは、他に比べより急峻な温度勾配で従つて可成りの過飽和が予想され、特にアクリル壁上部7~8 cmの間では著しい霜の附着と成長が認められた。それより下の部分では点々と isolated hoar がみられるだけで、槽内の観測、写真撮影には殆んど支障を来さなかつた。

写真 No. 2 は槽をセットしてから数日間実験を繰返した後における、アクリル壁上部の針状及び樹枝状の霜の形成状況を示す。この温度領域 ( $-2 \sim -12^{\circ}\text{C}$ ) に形成される針及び羽毛状結晶 (feather-like needle) は六角柱の集りのような構造で、顕微鏡写真 No. 3 及び No. 4 によく示されている。気密が悪くて槽内にまだ充分多くの過冷却水滴が残っているか、或は上蓋を開けて霧粒を新に補給したりすると、これらの針状結晶の先端には大きな美事な六花の樹枝状結晶が咲き出る。この樹枝の形成される気層の温度は大體  $-10 \sim -12^{\circ}\text{C}$  であつた。これらの結晶は2~3時間の内に、直径3 cm 位の大きさに達することは珍らしくない (写真 Nos. 5 及び 6)。写真 No. 7 は角柱から構成された針状結晶で、右端の針に垂直な平面が六花の樹枝の面である。No. 8 はこの先端に伸びた樹枝の1本の枝を示し、No. 9 はこの先端近くの針の断面写真である。

槽内の過冷却水滴が“rain out”されたのが確められたら、人工雪を作るための細い繊維を3~4本、槽の中央適当な高さに置く。このために、直径0.5 mm 位に細く引いたガラス棒で長さ28 cm、幅2 cmの矩形の枠を作り、これに繊維を張つて吊り下げた。雪を作るための繊維として、中谷は兎の腹毛を使つたが、筆者はその他にパラフィン蒸気中にさらした Nylon 単繊維、chiffon velvet の単繊維等をよく乾燥して用いたが、chiffon velvet は特に具合がよかつた。写真 Nos. 10 及び 11 は吊り枠上部 ( $0^{\circ}\text{C}$  附近) と一番下の単繊維 ( $-33^{\circ}\text{C}$ , 写真 No. 13) の上及びその附近での結晶の形成状況を示す。

又、ガラス棒による熱伝導のために安定した気層の中に局所的な擾乱の起ることを恐れ、ガラス棒に張つた糸を吊す代りに、写真 No. 12 に見られるように、上から底まで1本の Nylon 単繊維を吊り下げても実験を試みた。この方法によれば、吊り下げた糸を上げ下げして温度条件を変えてやることにより、結晶の成長の様子がどのように変つて行くかをも観察することができる。

“Water droplet free” な条件のもとでの7回の実験の結果、 $0^{\circ}\text{C}$  のすぐ下の領域を除けば、 $-40^{\circ}\text{C}$  までのあらゆる温度で、結晶形は常に針状又はさや状の成長をすることが確められた。さや状の結晶というのは、主軸方向に側面だけが伸びた中空の六角柱で、成長するにつれて針状の外観を呈する。写真 Nos. 13~18 はこれらの結晶の典型的な例である。これらの結晶が aufm Kampe, Weickmann らが Cirrus の底近くで捕集した氷晶に大へん似ていることも面

白い。以上の結果は全て、雪の結晶が微小水滴の存在しない大気中では、結晶主軸の方向に成長する傾向をもつものであることを示しており、中谷の最近の結果と完全に一致する。

唯ここで例外として興味のあるのは、ガラス棒或はナイロン糸のほぼ  $0^{\circ}\text{C}$  の高さをつけ根として、下向きに樹枝状の結晶が伸びていることである。その生成の模様は写真 Nos. 10, 12 及び 19 にみられる通りである。写真 No. 19 では、ガラス棒に横に渡した糸は明らかに正の温度域にあり、凝結した水蒸気は水球をなしている。従つて樹枝状結晶のつけ根はほぼ  $0^{\circ}\text{C}$  とみられ、ここを通じて結晶表面には絶えず液相の水が補給され乍ら成長したものと考えられる。

この部分の気層は  $10^{\circ}\text{C}/\text{cm}$  という強い温度勾配をもち、結晶の下端の気温はほぼ  $-13^{\circ}\text{C}$ 、従つて一見樹枝に見えるこの結晶も上と下ではその構造が幾分違つている (写真 No. 20)。上の部分には温度の変動によつて、その表面に明らかに融解・凍結を繰り返した様子がみえ、丸味をもつた内部構造のない薄い樹枝は、水面にできる disc crystal<sup>9)</sup> の樹枝状、或は鱗片状 (fan-shaped) 成長と極めて似ており、常に液相の水の薄膜に包まれ乍ら成長したものと考えられる。樹枝の下部は扇形の結晶からなる擬樹枝 (pseudo-dendritic) 構造を示し、個々の扇形結晶はすべて上向きに水蒸気の流れの方向に伸びているが、それに反して枝の下側は丸味をもつて水の薄膜の懸垂したような模様がみられる。扇形結晶の成長についても、この部分には可成りの過飽和が予想されるので、或は目に見えぬ位の微小水滴がなお存在したかもしれず、水蒸気からの直接の昇華ではなく、中谷のいうように、微小水滴が結晶表面の水の薄膜上に拡がり乍ら成長したものかも知れない。何れにしてもこの  $0^{\circ}\text{C}$  近くに出来た樹枝状結晶の成長には、液相の水が強く寄与しているものと思われる。しかし今までの実験においては、槽内の水蒸気量・水滴含量について何らの測定も行われていないので、今後これらの条件について更に吟味する必要がある。

### III. 沃化銀の種播きによる氷晶生成について

Vonnegut<sup>10)</sup>, Schaefer らによつて沃化銀核の著しい氷晶化作用が見出されて以来、Diffusion Cloud Chamber 或いは Mixing Cloud Chamber を使つてのこの種の実験は多くの人々によつて行われ、沃化銀の氷晶化の機構を明らかにしようとすると共に、又大規模な cloud seeding に実用化し得る更に安定な経済的な核物質を探そうとする幾多の努力がなされて来た。ところが沃化銀以外の核物質については、研究者によつてその結果にまちまちな点が多い。

Mason と Hallet<sup>11)</sup> は物質の純度についてとくに注意を払つて実験し、不純物としての銀及び沃度の trace を除くと、今まで active とみられていた核物質も  $-40^{\circ}\text{C}$  以上では殆んど全部氷晶になり得ないことを示した。そして比較的高い温度では、結晶格子常数の水に似ている沃化銀 ( $-5^{\circ}\text{C}$ ) と沃化鉛 ( $-7^{\circ}\text{C}$ ) にのみ氷晶化作用のあることを確認した。

沃化銀の氷晶化の機構については、その初期において液相を通るか通らないかに興味があ

るのだが、Birstein<sup>11)</sup>、丸山<sup>12)</sup>の実験は昇華に近い状態で起ることを示している。しかしまだ、これといった極め手にはなっていないようである。

又 Mason<sup>13)</sup>は沃化銀を核として金属面上に成長する氷晶の  $c$  軸及び  $a$  軸方向への成長速度を求め、これから **crystal habit** が主として温度に関係し湿度には殆んどよらないことを述べている。しかし乍ら筆者らは、旭川で川霧に沃化銀を種播きしての人工降雪実験において、気象条件に著しい変化はないのに、種播き直後に沢山現われる角柱状結晶が、次第に氷晶数が減ると共に、角板又は星状の結晶に変つて行くのを観測した。従つて核物質を種播きしての氷晶化に際しては、その **threshold temperature** が核の空間密度に関係する許りでなく（これについては Mason も述べているが）、その **crystal habit** も種播きされた核の空間密度によることが考えられる。

これらの点を確めるため、Diffusion Cloud Chamber 内に沃化銀粒子を注入し、降つてくる氷晶を次々と適当な時間々隔でスライドグラス上に捕集して結晶形を観察し、更にこれをレプリカにして電子顕微鏡によつて調べてみた。沃化銀煙は、沃化アンモンとのアセトン溶液数滴を、100 cc の注射器内にとりつけた小さなニクロムヒーター上にのせ、これを燃焼させて作つた。seeding に先立つて、槽内は充分な過冷却水滴で充たした。槽内の温度分布は第1図のそれとほぼ同様で、沃化銀煙は  $0^{\circ}\text{C}$  のすぐ上の高さから注入された。

観察に當つては、顕微鏡用光源を使つて下向き  $45^{\circ}$  に槽内を照射し、これと向い合つて矢張り下向き  $45^{\circ}$  にカメラ (アサヒフлекс、接写リング併用、SSS 級フィルム使用) を置いて順次降雪状況を撮影した。過冷却霧は Tyndall 現象によつてその存在が認められるが、沃化銀煙を注入して数秒経つと、氷晶はキラキラ輝き乍ら降りはじめその相違は容易に見分けられる。写真 No. 21 から No. 26 までは seeding の直前から氷晶のほぼ降り終るまでの状況の一例である。我々の実験では大体1回に、0.1~0.2 mg に相当する沃化銀を核として注入した。沃化銀粒子の粒径分布は測定していないが、氷晶になつたものを調べてみると  $0.1\sim 1\mu$  のものが多い。しかし丸山の測定結果からみても、分布の山はずつと小さい方 ( $0.02\mu$  以下) によつていであろうから、注入された沃化銀核の数は  $10^{12}$  個或はそれ以上の order と思われる。

注入して数秒経つと、比較的大きな氷粒が光り乍ら割合に早く落ちて行く。その後1分位すると、その間に氷晶は段々数を増して水霧は消え、槽内はキラキラ輝く微細な氷晶で充たされる。その落下速度は極めて小さい。そしてこの状態は数十分にわたつて続く。写真 No. 27 から No. 30 までは降つてきた氷晶を次々と追つて顕微鏡写真にとつたものである。写真 No. 31 と No. 32 とは Nos. 27 及び 28 の一部を倍率を上げて撮つたものであるが、これらからよくわかるように、普通の角柱或は角板状結晶とは異つた。不完全な結晶面を持つた massive な氷の粒子が多数混つている。これは Thuman, Robinson<sup>14)</sup> がアラスカの ice fog の中から観測した所謂 “droxtal” に相当するものと思われる。これらは特に seeding による降雪の初期と終期に沢山見られたが、これは写真 Nos. 22, 23 及び 26 にみられる比較的大きな落下速

度をもつたものと対応する。droxtal については電子顕微鏡を用いて更に詳しく調べたので、その結果は後に述べる。

又結晶形が seeding 後時間と共に、次のように変化していることも明瞭に認められる；

Droxtal 及び Hexagonal column

→ Hexagonal simple plate

→ Hexagonal plate with inner design

→ Sector form 及び Droxtal

槽内の温度分布は殆んど一定であつたし、沃化銀の氷晶化の高さ(温度)が段々と変化していつたとも認められない。個々の氷晶は  $0^{\circ}\text{C}$  近くの比較的高い温度層から  $-40^{\circ}\text{C}$  の低い温度層までを通つて成長するが、落下するまでの個々の氷晶の温度履歴は seeding の初期から終期まで変つていない筈である。従つてここにみられる結晶形の変化は、沃化銀によつて生じた氷晶の数によるものと考えるのが妥当であろう。我々の実験では非常に多くの核を一度に注入しているので所謂“over seeding”となり、過冷却水滴は発生した氷晶の germ に喰われたり、或いは沃化銀との衝突によつて凍結し速に成長し乍ら“rain out”される。Diffusion Chamber においては水蒸気の補給にはそれ程多くは期待されないから、単位時間に単位体積中に生じてくる germ の数が多い程、氷晶は小さな過飽和の中に限られた成長(c軸方向に)しかできない。germ の数が少くなるにつれて過飽和度は漸次増し、a軸方向に、edge から、更に corner から伸展をはじめようになる(J. S. Marshall, 1954)。写真 No. 27 から No. 30 までの結晶の形と大きさの変化はこのようにして説明されよう。

最後に電子顕微鏡の観察によつて得られた興味ある結果について述べる。電子顕微鏡用試料としては、あらかじめ 0.05% のコロチオン-醋酸アミル溶液を薄く流して膜張りしたスライドガラス上に降つてきた氷晶を受け、更に 0.25% の Formvar 溶液を用いて氷晶のプラスチックレプリカを作る。水蒸気をゆつくり昇華させた後に、沃化銀その他の核はそのまま残滓として保存される。Formvar 膜をスライドガラスからはがすには、尖つた針で膜にメッシュと同等に碁盤目に傷をつけ、スライドの一端から静に水の中に差入れる。膜は自然に剝離して水面に浮くから、メッシュ上にすくい上げて乾燥すればよい。この際スライドガラスはあらかじめ清浄しておく必要があるが、クロム硫酸等で処理するのは不可い。ガーゼ、上質のチリ紙等で丁寧に拭くのがよい。

写真 Nos. 33 及び 34 はこのようにして得られた電子顕微鏡写真の一例である。これらは seeding 後 15~30 分間に捕集されたもので、ほぼ中心近くにある黒いものが沃化銀である。このように、はつきりとした六角板の結晶形を持つたものには中心近くに核の認められるものが多く、丸山の観察によると同様に、これらは昇華に近い状態で核として働いたものと考えられよう。写真 No. 35 にみられるように、薄い板状結晶内に 2 個の核が認められるものもあるが、これは我々の実験のように濃い沃化銀煙を注入した場合には、これらの中 1 個は氷晶の落下途

中で捕捉されたのかも知れない。

特に興味のあるのは、先に述べた droxtal とと思われるものの生成機構である。写真 Nos. 36 及び 37 は何れもこの例と考えられるが、大きさは前の六角板結晶より小さく、結晶の形も前の程明瞭でなく、丸味をもつて感ぜられる。レプリカ表面の“しわ”はもとの氷粒子が球形或は多面体に近かつたことを示すのではないかと思われる。更にこれらには、Bally-Dorsey 効果<sup>15)</sup>によるとと思われる突起が見えることからして、液体の状態を通じて外から凍つたものであることは明らかである。又微水滴を氷の結晶の上に置いて凍結させた場合でも、先ず球状のまま凍り、更に水蒸気を供給されてはじめて hexagonal の結晶形に変わって行くことが小島<sup>16)</sup>によつて観察されている。従つてここに観測された所謂 droxtal は、seeding に先立つて存在した過冷却水滴が、沃化銀微粒子と接触して凍結したり、その他の因子で凍結したりしたものが、落下途中で更に成長し未発達乍ら結晶面を持つに至つたものと考えられる。

写真 No. 36 には大きな凝結核と更に 1 個の小粒子とが見られるが、後者が沃化銀であろう。写真 No. 35 左下の氷粒は右上の角板結晶によつて落下途中で inoculate された例とみられ、角板結晶が左下方に畸形的に伸びているのは、左下の水滴と接近した際の氷と水との間の水蒸気圧差によるものであろうか。Nos. 35 及び 37 の氷粒中に残つている核物質も、その形からみて沃化銀以外の凝結核ではないかと思われる。(沃化銀は電子線照射のもとでは、通常熱のために Ag と I とに分離し、Nos. 33 及び 34 にみられるように小さな球形粒子に分れる。) その場合、例えば No. 37 において、凍結を惹き起した核の存在が問題とならう。沃化銀を中心核に昇華によつて氷晶が成長する場合には、沃化銀粒子は大きい程有効であるが、過冷却水滴に対して凍結核として働く場合には、水滴との衝突の確率の方がきいてくるであろうから、我々の電子顕微鏡写真の倍率では認められぬ位のものの方が、むしろ凍結核として働く可能性がある。(丸山の観測によれば、氷晶核(中心核)として有効な沃化銀核は直径  $0.2 \mu$  以上、それに対して沃化銀煙の粒径分布では 90% 以上が  $0.03 \mu$  以下である。)

Seeding 終期に観測された droxtal については未だ電子顕微鏡による検討を加えていないのでよくわからないが、これらは比較的 inactive な沃化銀を核とするもので、氷晶生成の最盛期を過ぎ過飽和度が可成りに回復してきてから漸く凝結を起し、更に凍結したものであろう。

以上の考察は何れも試行的なもので、これだけではまだ結論的には何も言えない。沃化銀による氷晶化の機構には、更に色々の角度から検討を加える必要があらう。

#### IV. む す び

以上 Diffusion Cloud Chamber による我々の実験から、雪の結晶の生成には、液相の水が大きく寄与していること；即ち、(1) 過冷却微水滴の存在しない空気中では、雪の結晶は  $c$ -軸方向への成長の著しい傾向をもち、 $-40^{\circ}\text{C}$  までのあらゆる温度域で、針状又はさや状の結晶に

なる。(2)0°C直下の温度域からは疑樹枝結晶が生じたが、これは氷の樹枝構造の成長には、結晶表面における水の薄膜の存在が必要なことを示している。

沃化銀による seeding からは、氷晶形が、温度ばかりでなく、過飽和度によつて支配されること、及び hexagonal の結晶は沃化銀を中心に昇華に近い状態で作られるが、過冷却水滴の凍結によつては droxtal を生ずることがわかつた。

この研究に当つては、有益な御助言を北大理学部、中谷宇吉郎教授から頂いたことを記しあつく感謝の意をあらわします。

又 Diffusion Cloud Chamber の試作について協力下さつた島津製作所、照山速登氏、電子顕微鏡写真の撮影に多大の便宜を与えて下さつた日本電子光学研究所、四本、伊藤、長浜、亀割の諸氏に厚く御礼を申上げる。

最後に、この研究に要した費用の大部は北海道電力株式会社の委託研究費によつたが、一部は文部省科学研究費、北海道庁科学研究助成金によつた。ここに記して感謝の意を表する。

## 文 献

- 1) Schaefer, V. J. 1953 Final Report, ONR PROJECT. Contract No. NONR-925 (00) G. E. Res. Lab. Schenectady, New York. 59.
- 2) Nakaya, U. 1954 Snow crystals, natural and artificial. Harvard University Press.
- 3) aufm Kampe, H. J., H. K. Weickmann and J. J. Kelly 1951 The influence of temperature on the shape of ice crystals growing at water saturation. Journ. Met., **8**, 168.
- 4) Marshall, J. S. and M. P. Langleben 1954 A theory of snow-crystal habit and growth. Journ. Met., **11**, 104.
- 5), 13) Shaw, D. and B. J. Mason 1955 The growth of the ice crystals from the vapour. Phil. Mag., **46**, 249.
- 6) Kumai, M. 1951 Electron-microscope study of snow-crystal nuclei. Journ. Met., **8**, 151.
- 7) Nakaya, U. 1955 Snow crystal and aerosols. Journ. Fac. Sci., Hokkaido Univ., Sapporo, Japan, Ser. II, **4**, 341.
- 8) Arakawa, K. 1955 The growth of ice crystals in water. Journ. Glaci., **2**, 463.
- 9) Vonnegut, B. 1947 The nucleation of ice formation by silver iodide. Journ. Appli. Phys., **18**, 593.
- 10) Mason, B. J. and J. Hallett 1956 Artificial ice-forming nuclei. Nature, **177**, 631.
- 11) Birstein, S. J. 1955 The role of adsorption in heterogeneous nucleation I: Adsorption of water vapour on silver iodide and lead iodide. Journ. Met., **12**, 324.
- 12) 丸山晴久 1956 電子顕微鏡による AgI 核の検出について。人工降雨研究連絡会用印刷物、電力技術研究所応用部。
- 14) Thuman, W. C. and E. Robinson 1954 Studies of Alaskan ice-fog particles. Journ. Met., **11**, 151.
- 15) Blanchard, D. C. 1951 A verification of the Bally-Dorsey theory of spicule formation on sleet pellets. Journ. Met., **8**, 268.
- 16) 小島賢治 1954 雪の結晶に附着して凍つた雲粒の形について。低温科学, 物理篇, **13**, 111.

### Résumé

By the use of a diffusion cloud chamber operated in a low-temperature room by a 1/4 H.P. refrigerating machine charged with Freon 22 (Photo. No. 1) a series of studies on the snow crystal habit and growth has been started. The whole apparatus is so designed that the bottom of the chamber can be cooled down to  $-55^{\circ}\text{C}$  (also to about  $-70^{\circ}\text{C}$  by the aid of dry ice), while the vapour source and the top of the chamber can be maintained at any desired temperature from the room temperature ( $-20^{\circ}\text{C}$ ) up to  $+30^{\circ}\text{C}$  by electric heating. By adjusting these temperatures, we are able to set up any temperature profile in the chamber.

#### (1) *Snow crystal habit in "water droplet free" air*

The snow crystal form in relation to temperature  $T_a$  and supersaturation  $s$  has been thoroughly examined by U. Nakaya and M. Hanajima. Recently, U. Nakaya conducted the experiment of the artificial snow by using the "aerosol free" air and confirmed that the presence of aerosols affects the crystal shape; for example, that a needle or an elongated sheath is obtained under the condition which formerly proved favourable to the formation of dendritic crystal, etc.

When our diffusion cloud chamber, once operated, is left for half a day as it is, supercooled cloud droplets are rained out, nearly the same condition as Nakaya's being realized. Thereafter 3 or 4 filaments (Nylon, chiffon velvet or rabbit hair) on which snow crystals are to be produced are placed at different heights with the aid of a fine glass supporter (cf. Photo. Nos. 10 and 11).

In a series of our experiments so far carried out, the temperatures of the chilled bath, the wetted gauze (vapour source), and the room were kept at about  $-50$ ,  $+20$  and  $-20^{\circ}\text{C}$ , respectively. An example of the temperature profile in the chamber as well as the schematic representation of the chamber is given in Fig. 1. The top and the base of the chamber were always maintained at water- and ice-saturation, respectively.

Photo. No. 2 shows needle and dendritic crystals which were formed on the upper part of the Acrylite wall ( $-2\sim-12^{\circ}\text{C}$ ) after the lapse of a few days. When abundant fog particles are introduced into the chamber by opening the upper lid, dendritic crystals come out perpendicularly from at the tip of the needle extension (Photo. Nos. 5~9).

When fog particles had been rained out, a set of filaments was hung down and left overnight. Photo. Nos. 10 and 11 show the mode of frost formation near the uppermost filament (above  $0^{\circ}\text{C}$ ) and that near and on the lowest filament ( $-33^{\circ}\text{C}$ , cf. Photo. No.13).

In 7 series of our snow-making experiments in "water droplet free" air, the crystal was always found to grow in the form of sheath or needle at any temperature level down to ca.  $-40^{\circ}\text{C}$ , except that pseudo-dendritic crystals grew immediately below the melting level (see Photo. Nos. 10, 12, 19 and 20). The sheath type crystal is to be defined as a hollow column elongated in the direction of principal axis, which in the long run develops into the form like a needle. Photo. Nos. 13~18 give the typical examples of these sheath type needles.

It may be concluded that the presence of water in liquid phase affects the crystal shape remarkably; in the absence of minute water droplets, ice crystals have a tendency to grow in the direction of *c*-axis, and it is only in the presence of the liquid water film on the crystal surfaces that the plane development in dendritic form takes place.

(2) *Ice crystal formation by AgI seeding*

0.1~0.2 mg AgI dissolved in acetone was vaporized on a small electrically heated nichrome wire set in a 100 cc syringe, and injected into the cloud chamber, which had been filled with supercooled water cloud. The supercooled cloud particles could be recognized in the light beam by Tyndall phenomenon, and when the AgI smoke was injected from slightly above 0°C level into the chamber, glittering ice particles started to be formed within a few seconds (Photo. Nos. 21~26).

Precipitating ice particles were sampled on a glass slide and taken out at successive intervals, to be observed under a high magnification microscope. Thereafter they were replicated by the aid of 0.25% Formvar solution for electron-microscope studies.

Photo. Nos. 27~30 illustrate an example of the successive change in shape of the precipitating ice particles;

Droxtal and Hexagonal column

→ Hexagonal simple plate

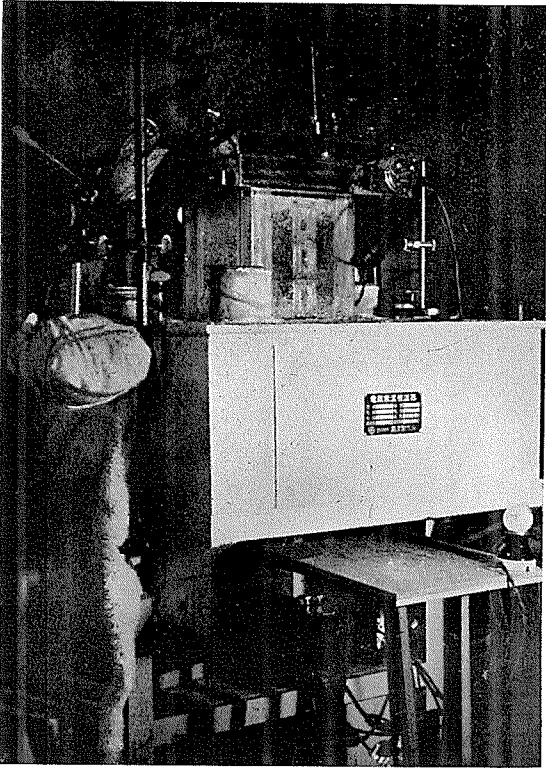
→ Hexagonal plate with inner design

→ Sector form and Droxtal.

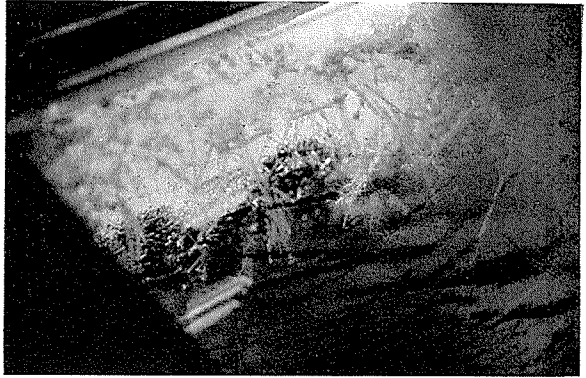
Immediately after the seeding, there appear a number of frozen droplets with rudimentary crystal faces (droxtal) mixed up with relatively few ice crystals (hexagonal column) (Photo. Nos. 31 and 32). The former may have been produced by freezing of supercooled cloud droplets probably due to the direct collision with AgI particles. The spicules on the ice particles, well illustrated in the electron-micrographs Nos. 35~37, are likely produced by the Bally-Dorsey effect. Aside from the question whether the submicroscopic stage of the crystallization be due to the sublimation or condensation, the ordinary hexagonal crystals might well be considered to have grown up by pure sublimation (Photo. Nos. 33 and 34).

During the seeding experiment, the temperature profile in the chamber, within which ice crystals are produced and precipitate, is held nearly constant; nevertheless, the number of ice crystals produced in unit time and volume rapidly decreases. Therefore the change in crystal form and size may probably be attributed to the increase of net supply of water vapour *per* crystal.

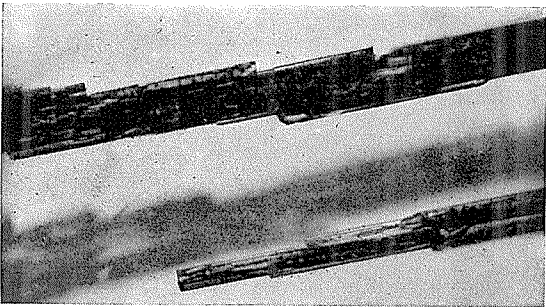




No. 1.

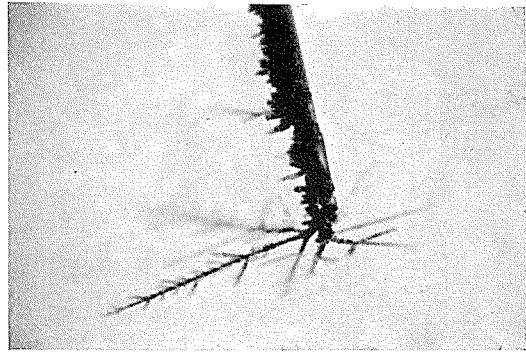


No. 2.



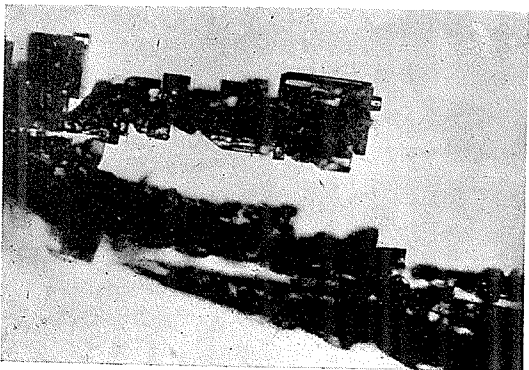
No. 3.

×16



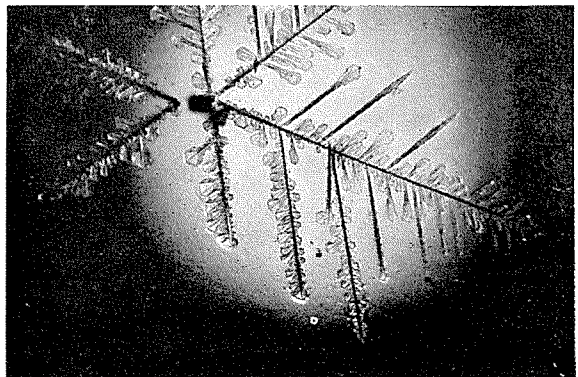
No. 5.

×5.6



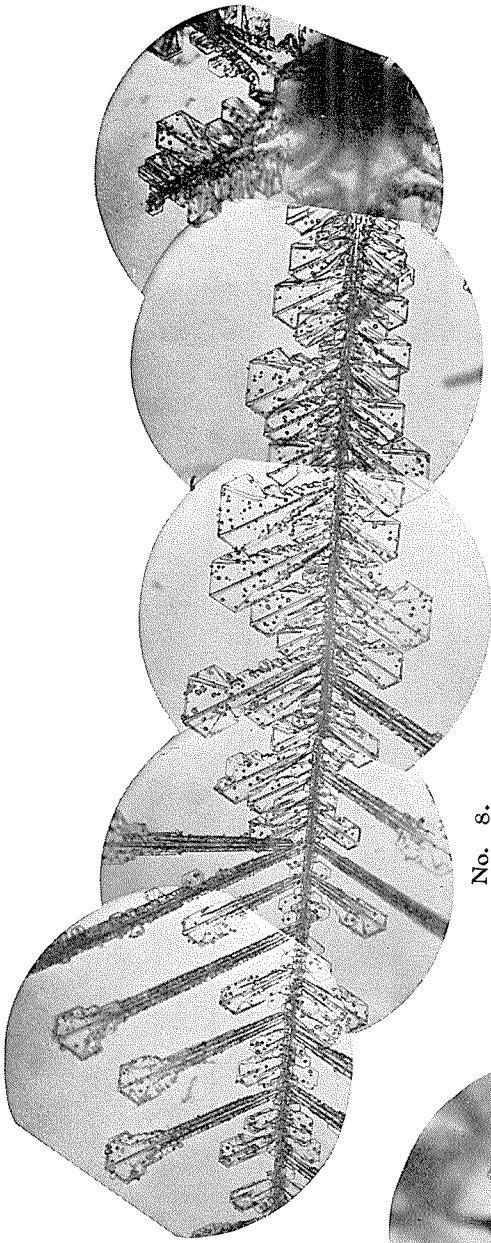
No. 4.

×16



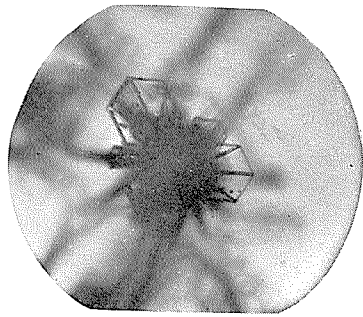
No. 6.

×3.3

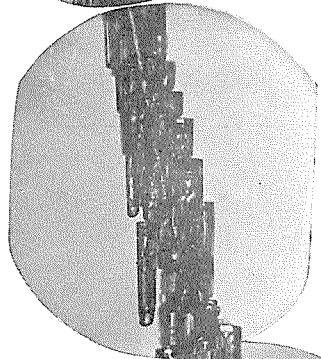
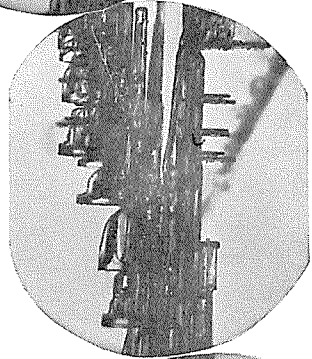
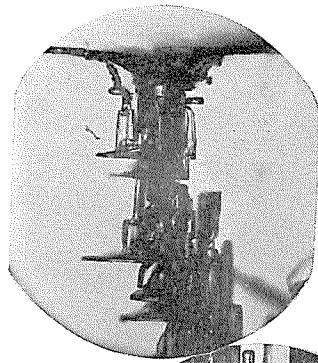


No. 8.

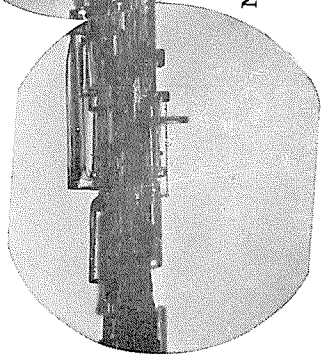
5 mm



No. 9.



No. 7.





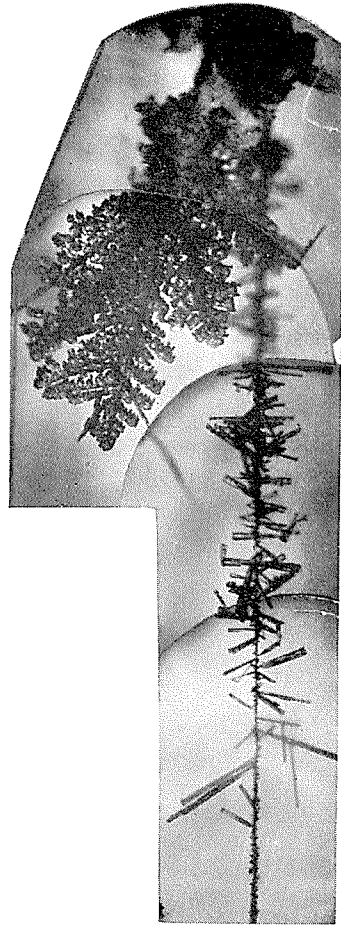
No. 10.



No. 11.



No. 13  $T_n$ ;  $-33^{\circ}\text{C}$   $\times 5.9$

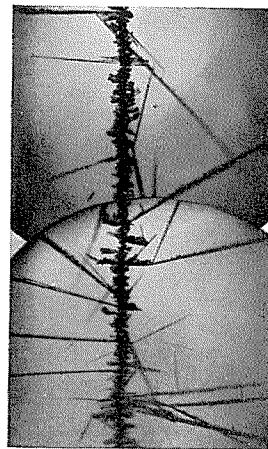


.....  $0^{\circ}\text{C}$

.....  $-13^{\circ}\text{C}$

.....  $-14^{\circ}\text{C}$

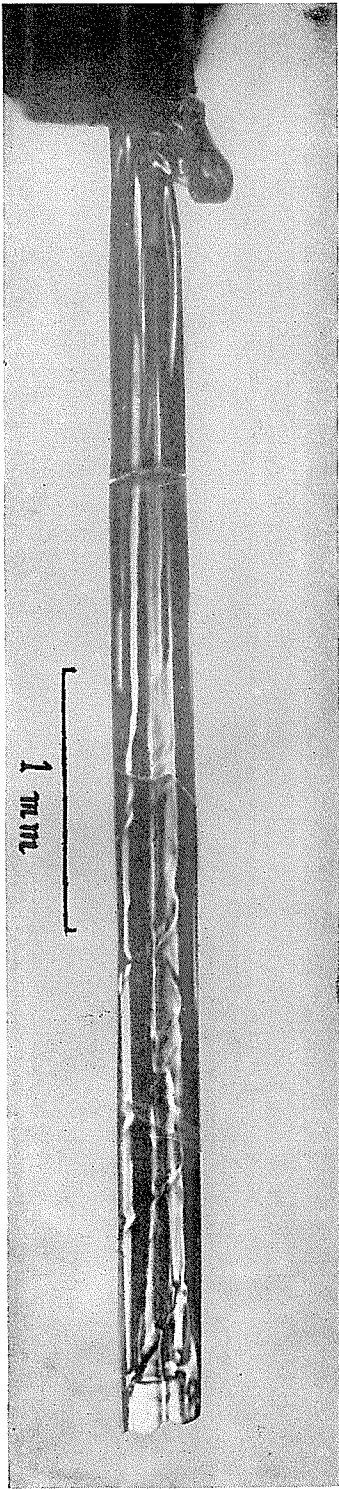
.....  $-15^{\circ}\text{C}$



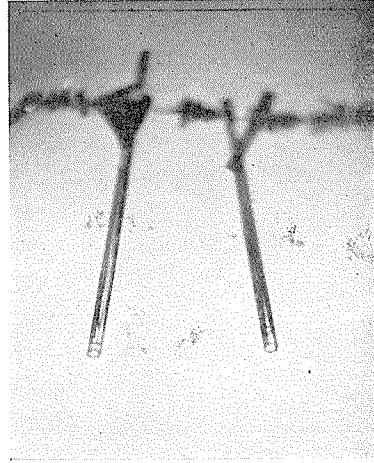
No. 12.

.....  $-31^{\circ}\text{C}$

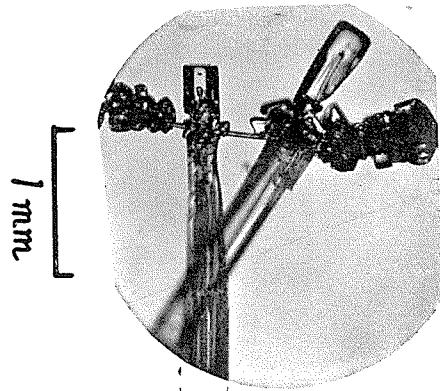
$\times 3.3$



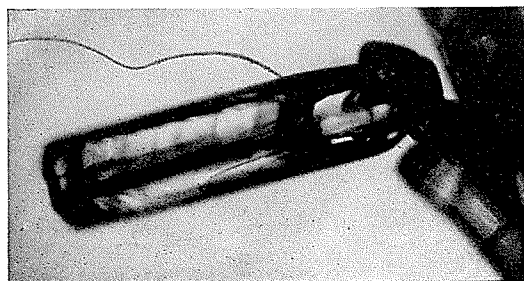
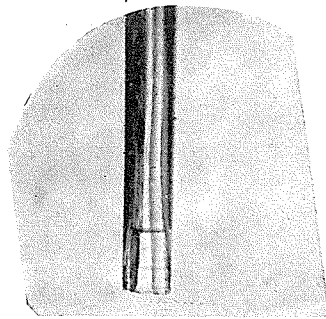
No. 14.  $T_a$ ;  $-13^{\circ}\text{C}$



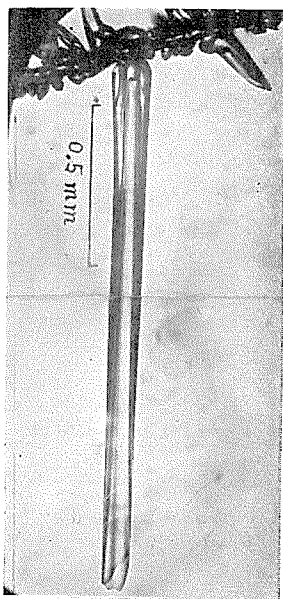
No. 15.  $T_a$ ;  $-19^{\circ}\text{C}$   $\times 5.9$



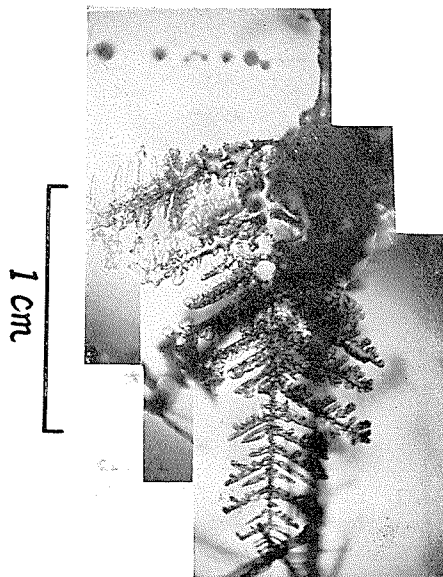
No. 16.  $T_a$ ;  $-19^{\circ}\text{C}$



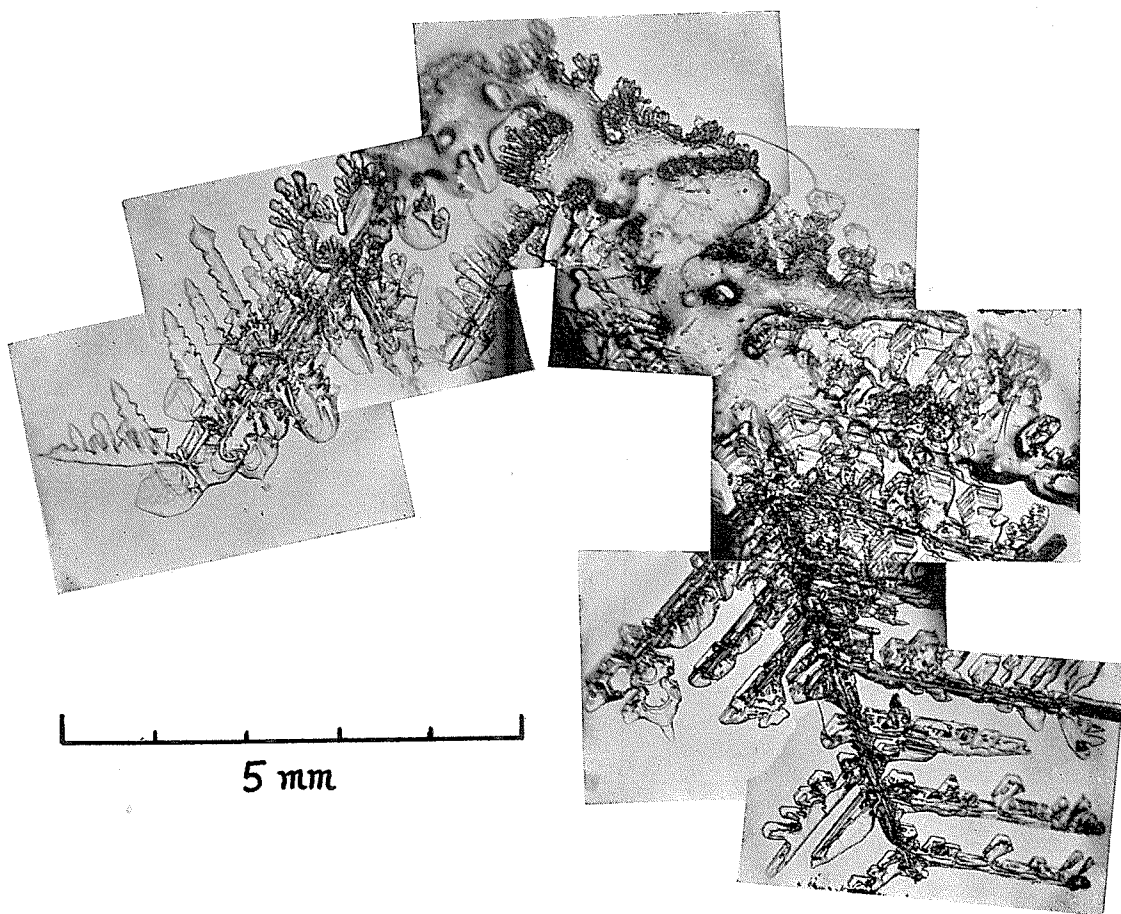
No. 17.  $T_a$ ;  $-13^{\circ}\text{C}$   $\times 39$



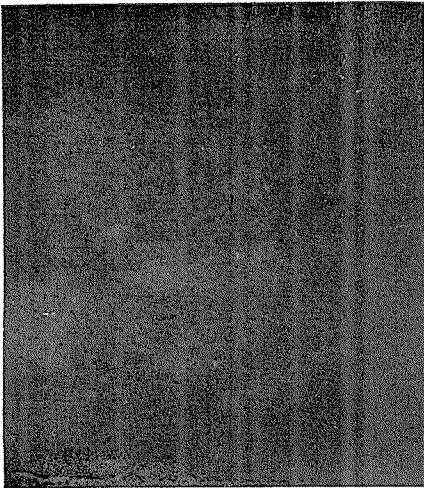
No. 18.  $T_a$ ;  $-39^{\circ}\text{C}$



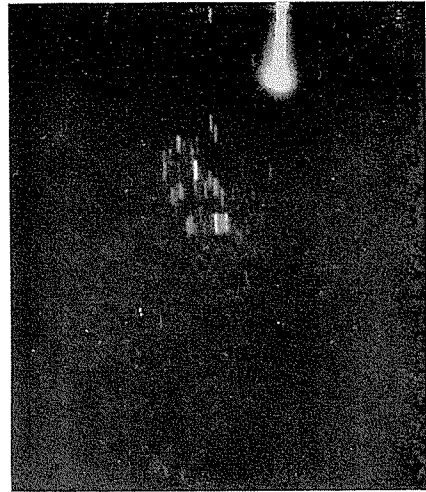
No. 19.



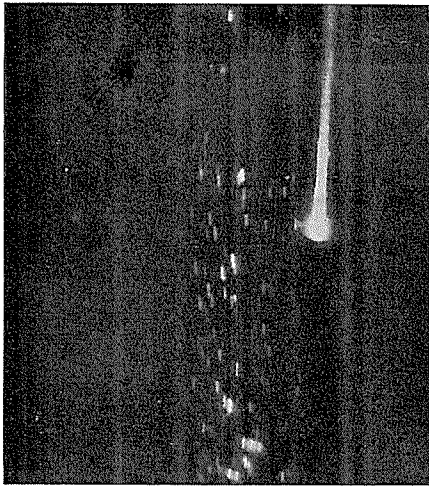
No. 20.



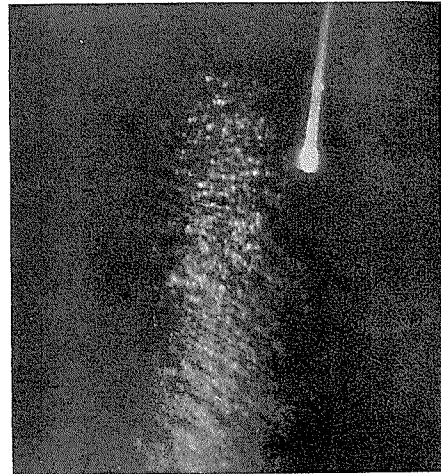
No. 21. Cloud droplets falling prior to AgI seeding. Expos.  $\frac{1}{2}$  sec.



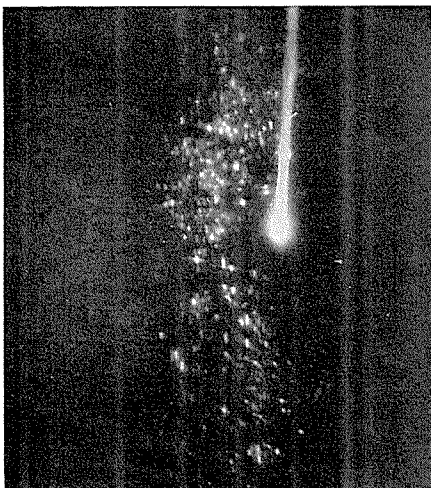
No. 22. 16 sec after seeding. Expos.  $\frac{1}{2}$  sec.



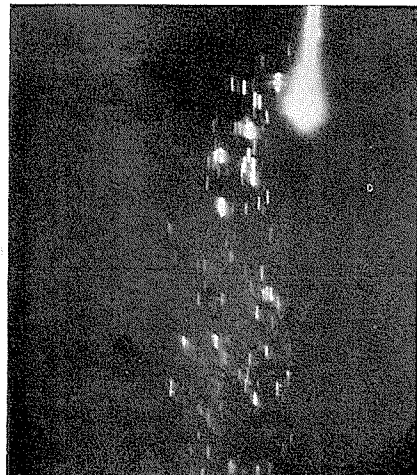
No. 23. 47 sec after seeding. Expos.  $\frac{1}{2}$  sec.



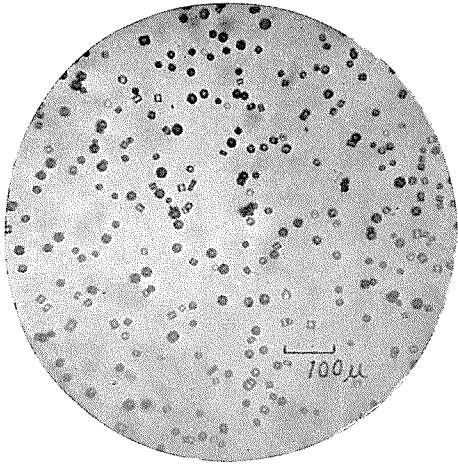
No. 24. 4 min. after seeding. Expos.  $\frac{1}{2}$  sec.



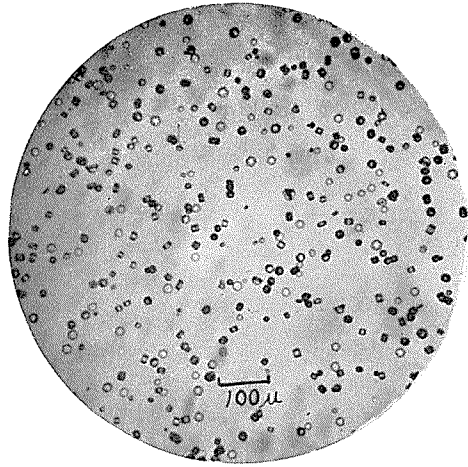
No. 25. 18 min. after seeding. Expos.  $\frac{1}{2}$  sec.



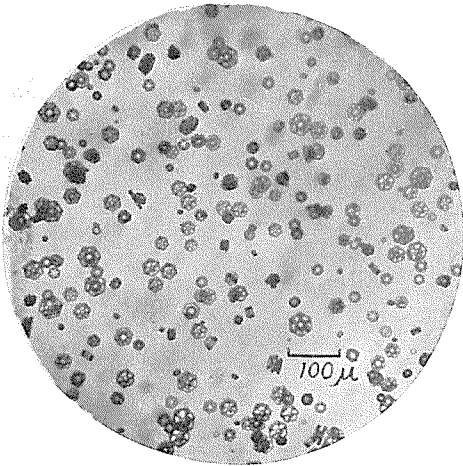
No. 26. 49 min. after seeding. Expos.  $\frac{1}{2}$  sec.



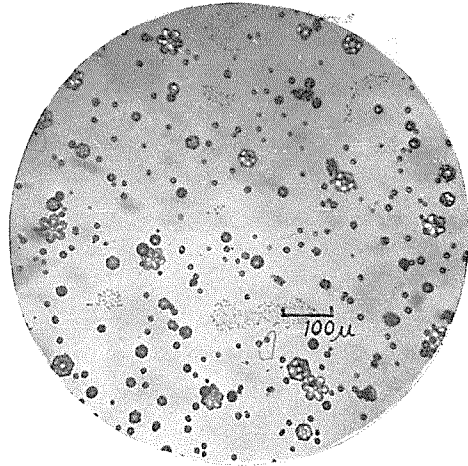
No. 27. Ice particles sampled during 5 min. after seeding.



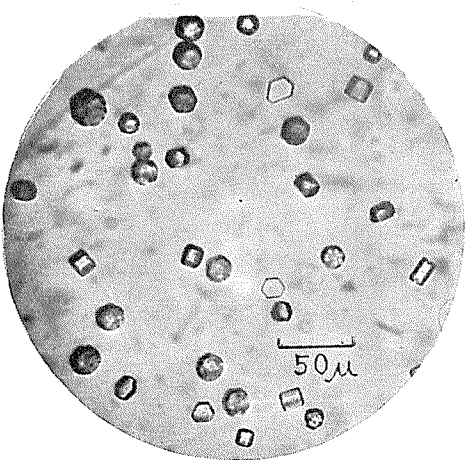
No. 28. Ice particles sampled during the period from 5 to 15 min. after seeding.



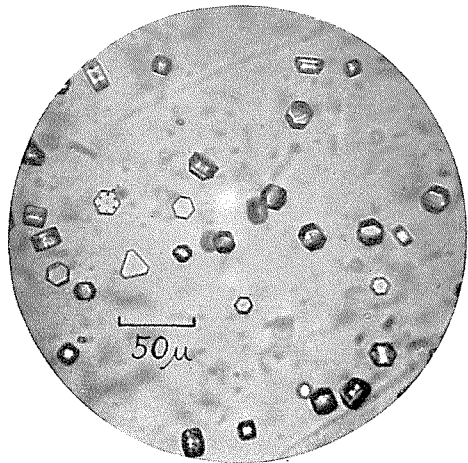
No. 29. Ditto. from 15 to 36 min.



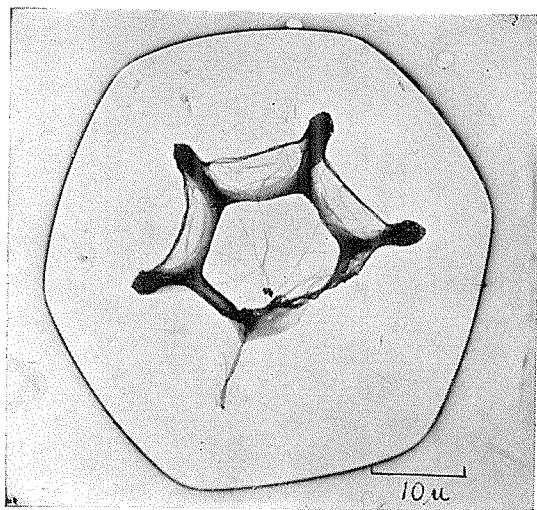
No. 30. Ditto. from 36 to 56 min.



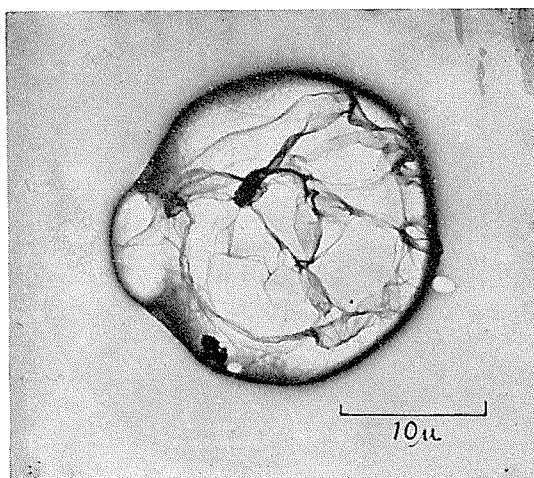
No. 31.



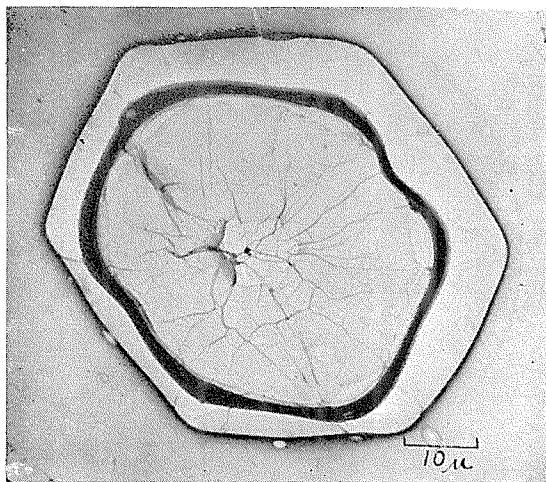
No. 32.



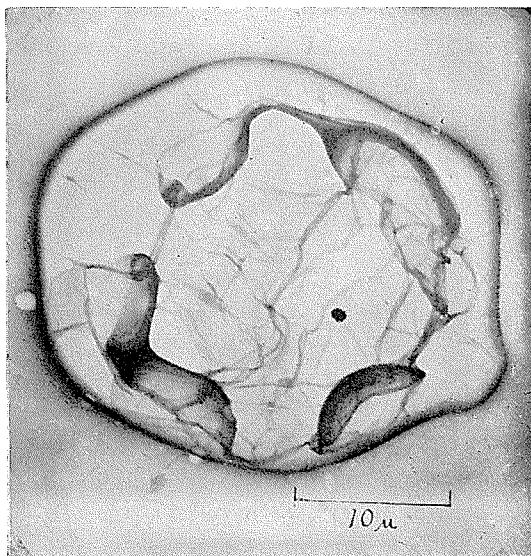
No. 33.



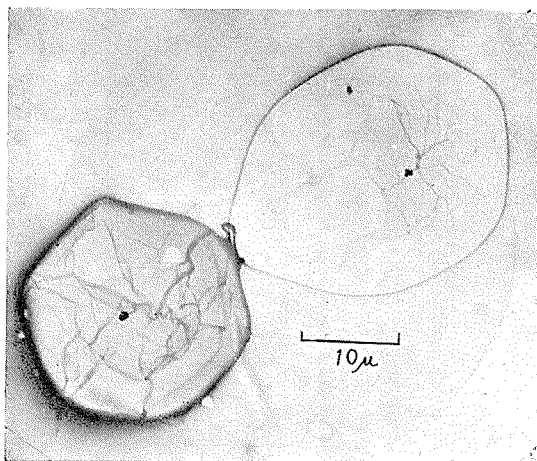
No. 36.



No. 34.



No. 37.



No. 35.