



Title	Diffusion Cloud Chamber による雪結晶習性の研究
Author(s)	小林, 禎作; KOBAYASHI, Teisaku
Citation	低温科学. 物理篇, 16, 1-26
Issue Date	1957-12-13
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/17925
Type	departmental bulletin paper
File Information	16_p1-26.pdf



Diffusion Cloud Chamber による雪結晶習性の研究* **

小 林 禎 作

(低温科学研究所 気象学部門)

(昭和32年6月受理)

I. は し が き

中谷・花島¹⁾らは人工雪装置を低温実験室内に持込んで人工的に雪を作り、雪の結晶形とその成長条件との間の関係を明らかにした。彼らの実験装置は、底に温い水槽を置いた二重のガラス円筒からなる対流型のもので、この装置の上部近くに、ウサギの腹毛を吊して結晶の心核とした。低温室温度と水槽温度 T_w とを調節して、結晶の生成される附近の気温 T_a と過飽和度 s をいろいろと変え、天然にみられる殆んどすべての結晶形の雪を人工的に作り出した。

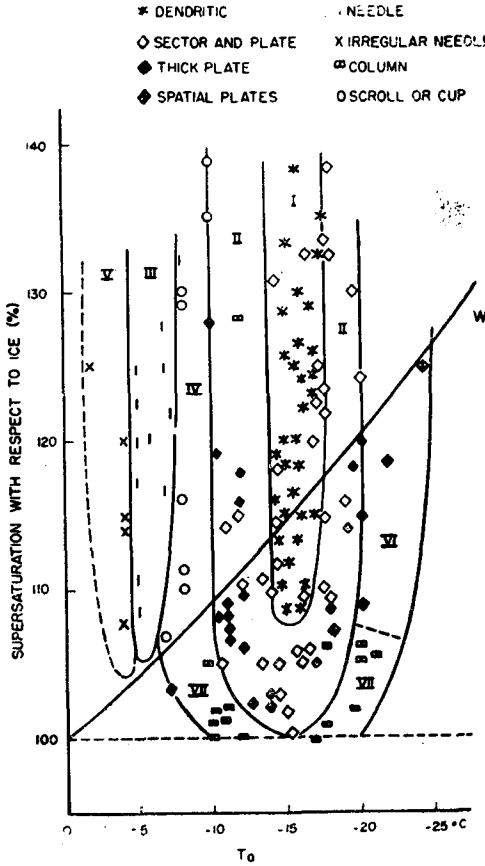
中谷は数多くの実験から、雪の結晶形と成長条件との間の関係を T_a-s diagram 上に表わしたが、それは次の第1図に示される。これからわかるように、結晶形を支配する主な因子は温度のようである。それぞれの結晶形に対応する領域の T_a 軸方向の幅は極めて狭く且つ截然としているが、 s 軸方向への拡りはかなり広い。一般に過飽和度が結晶の形をきめるとも考えられるが、これは $-14\sim-17^\circ\text{C}$ の狭い範囲で氷について約110%の過飽和度を境に、角板から樹枝状への変化にみられるだけである。

aufm Kampe, Weickmann と Kelly²⁾ は水飽和において、過冷却霧に種播きして得られる氷晶を顕微鏡によつて観察し、結晶形を温度の函数として示している。Shaw と Mason³⁾ は金属面上に沃化銀を核として成長する結晶の、 c 軸及び a 軸方向への成長速度を求め、これから結晶の大きさによらない limiting habit が矢張り温度によつてきまることが示した。Mason と aufm Kampe らの実験結果は極めてよく一致し、 0° から -25°C の間にわたつて、plates-prisms-plates-prisms という結晶習性のはつきりした温度への依存性を示している。この傾向は中谷らの実験結果ともよく合うが、ただここで $0^\circ\sim-4.5^\circ\text{C}$ の間にみられる transparent plate は中谷の人工雪実験にはみられなかつたものである。

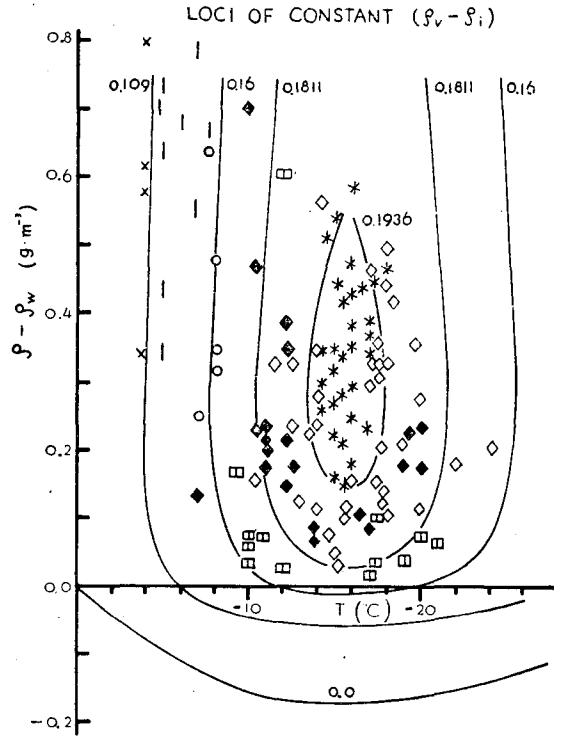
一方 Marshall と Langleben⁴⁾ は、結晶の成長の型を支配するのは、成長しつつある雪の結晶に対する周りの水蒸気の真の過飽和の程度であるとの考察に立つて、中谷らの実験結果が

* 北海道大学低温科学研究所業績 第368号

** 北海道電力株式会社委託研究。1957年5月、日本気象学会にて講演。1957年6月、人工降雨研究連絡会に発表。



第 1 図 (U. Nakaya による)



第 2 図 (J. S. Marshall and M. P. Langleben による)

その考え方を裏付ける一つの例証であることを理論的に示した。Marshall の理論は後にやや詳しく述べることにして、ここにはその結果を第 2 図に示す。第 2 図は第 1 図の中谷の T_a - s diagram を書き直したもので、縦軸は雲粒を含めた空気中全水蒸気量の水飽和に対する過飽和分* ($\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$) で表わしてある。中谷の実験結果に重ねて引いた実線は、成長しつつある氷の表面に対する周りの水蒸気の実際の過飽和分 $(\rho_v - \rho_i)$ がそれぞれ一定の値をとる点の軌跡である。ここに $\rho_v - \rho_i = \text{const.}$ として Marshall によつて与えられた境界は、中谷らが実験によつて確めた結晶習性を極めてうまく説明し、 $\rho_v - \rho_i$ がある値を越すと角柱状の成長から角板状の成長に移り、 $\rho_v - \rho_i$ が更に大きな値になると、星状或いは樹枝状の成長に移ることを示している。

Marshall の取扱いは、一見中谷らの実験を理論的にうまく説明したようにみえるが、Marshall は中谷の diagram における過飽和度の解釈について中谷自身とは異なつた見解をとつている。即ち、Marshall は中谷の T_a - s diagram⁵⁾ に表わす所の過飽和度 s を“水につい

* 以下本文中過飽和度 (%) は degree of supersaturation over ice (or water) を表わし、過飽和分 ($\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$) は excess of vapour density over that at equilibrium with ice (or water) を意味する。

て”と解釈し、その仮定に立つて中谷の T_a-s diagram を第2図のように書き直している。それに対し中谷は、過飽和度 s は“氷について”⁶⁾ 計算されているとの立場を主張しているのであるから、実は中谷の実験も Marshall の理論の裏付けとはなっていないのである。

そこでこのような混乱を惹き起した中谷の実験における過飽和について、一応検討してみる必要がある。中谷の実験装置は、底に温い水槽を置いた二重のガラス円筒からなり、あたためられ湿気を含んだ空気は中央円筒内を上昇する。次第に冷えて過飽和となつた水蒸気は、凝結核の上に微小な雲粒を作り、それを成長させ乍ら上昇し、やがて外側円筒内を下降する。中谷の T_a-T_w diagram⁷⁾ によれば、水槽温度 T_w は常に 0°C 以上 30°C の範囲に保たれていたようであるから、装置内部のガラス管壁に霜が附着してこない限りは、Marshall の指摘したように、ウサギの毛を吊した人工雪結晶の生成域には、雲粒を含めて水飽和以上のかんりの過飽和が実現されていたであろう。しかし乍ら、一旦装置内部の壁に霜が着きはじめたら事情は全く異なってくる。 T_w を上げて送られる水蒸気量を増しても、それは途中にある霜の成長を助けこそすれ、ウサギの毛を置いた人工雪生成域の過飽和をそれほど高めるとは限らない。又外側円筒を下降する気流は水飽和よりもむしろ氷飽和に近いと考えられるから、水槽面で T_w の水飽和空気と混合しても、必ずしも直ぐに水飽和以上に達し雲粒を作るとは限らないであろう。

つまり、人工雪の生成域の過飽和度は決して T_a と T_w とで一義的にきまるのではなく、むしろ装置内の霜の着き具合によつて左右されると考えられる。

中谷の実験では、一つ一つの実験について、五酸化燐の吸湿法によつて結晶生成域附近の全含水量の測定を行い、過飽和度 s を水上過飽和の値として計算している。従つて T_a-s diagram の飽過和度 s は、測定法による誤差の範囲で“氷飽和について”の値を示しているともみべきで、Marshall のいうように氷飽和についてとみるのは当らない。けれども中谷の過飽和度の測定法にも問題は残っている。

中谷の実験における過飽和度は、雲粒を含めた全水蒸気密度の、その温度で氷飽和にある水蒸気密度に対する百分率で表わしている。その測定は五酸化燐による吸湿法を用いているが小さな装置内から大量の空気 (ca. 20 l) を捕集して測定しているので、いかにゆつくり吸引したとしても、その測定結果は過飽和を小さく見積る傾向に出る。更に中谷の実験では、水飽和以上の過飽和にある場合でも、結晶の観測される場所近くの空気中水蒸気は恐らく水飽和か、それよりもごく僅かの過飽和に止まるのであつて、過飽和分の大部は成長しつつある雲粒によつて担われていると考えられる。従つて吸湿法によつて全含水量を測定しようとする場合、吸湿管による雲粒の捕捉率は必ず 1 よりも小さいのであるから、この点からしても中谷の過飽和度はかなり過小に見積られていると考えられる。

Marshall の理論と中谷の実験との間に存する過飽和度についての取扱いの混乱を除き、更に Marshall の理論の当否を確かめるためにも、よりよい方法で成長しつつある結晶の周りの過飽和を実際に測定し乍ら、今一度人工雪の実験を繰返す必要がある。このような目的から我

々は拡散型の低温箱を使つて人工雪の実験を行つた。この装置を使えば、中の雲粒は時間の経過と共に落下し尽くして、水蒸気のみによる眞の過飽和が実現されるので、Marshall の理論と比較する上にも大へん都合である。

このような実験は既に Marshall と Gunn⁹⁾によつても試みられている。過冷却水滴の成長(蒸発)速度から周りの過飽和度を推定し、これと結晶形の観測とを対応させているが、実験は単なる試みの域を出でず、雪の結晶習性を明らかにし、Marshall 自らの理論を確めるには至っていない。

拡散型低温箱による昨年度の実験⁹⁾において、雲粒を除いた清浄な空気の中では、雪の結晶は -40°C までのあらゆる温度範囲にわたりサヤ状(sheath type)の成長をすると報告した。その後これは装置内壁の撥水用に使つた G. E. Dri-film(シリコン)蒸気の影響によることが確かめられた。更にシリコン・オイル、その他いろいろな蒸気の痕跡が雪の結晶習性に著しい影響を及ぼすこともわかつてきた。これに関しては別に報告するが、以下述べる実験は、水蒸気以外の蒸気の痕跡については特に深い注意を払つて行われたものである。

II. 装置並びに実験方法

実験は昨年度の実験に引き続き、Freon 22, 1/4 H.P. 冷凍機を装備した拡散型低温箱*によつて行つた。装置の主要部は透明なアクリル酸樹脂二重壁によつて組立てられた拡散箱(内り、 $18\text{ cm} \times 18\text{ cm} \times 22\text{ cm}$)で、下端は冷媒槽に浸たされた銅箱部($18\text{ cm} \times 18\text{ cm} \times 16\text{ cm}$)につながる。アクリル酸樹脂の壁には、結晶の顕微鏡写真撮影のため、カバーガラス($27\text{ mm} \times 47\text{ mm}$)3枚を組合わせた観測窓が向い合つて3個づつある。

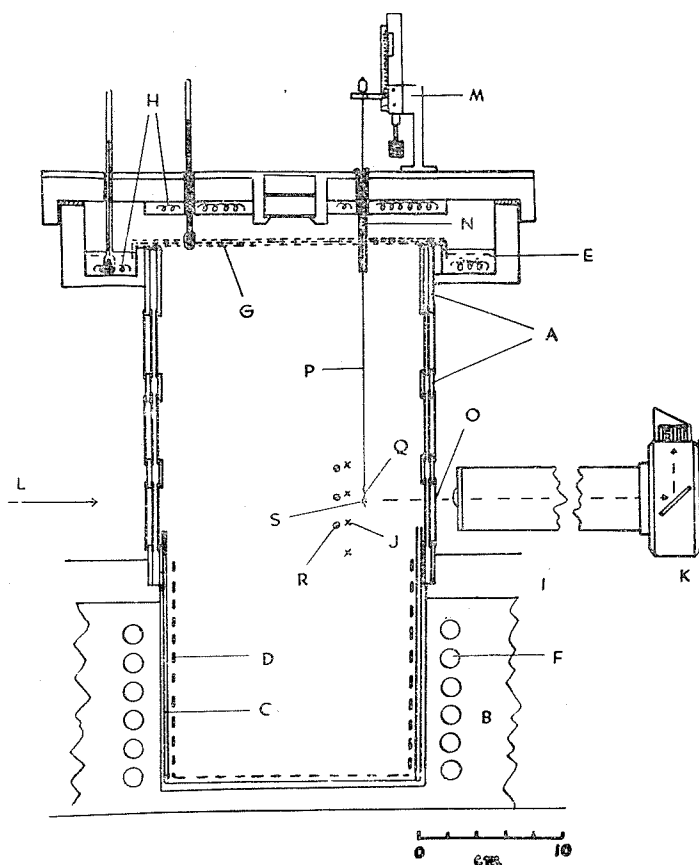
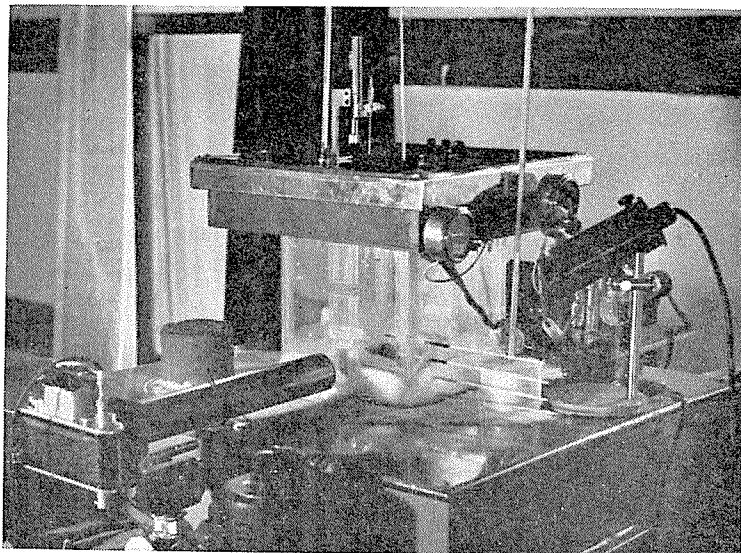
アクリル壁の上部外側には四周に水槽が取付けられ、水槽温度は電熱によつて調節される。拡散箱の上面には目の粗い銅網が張られ、その上にガーゼが8枚黒絹ピロード1枚が重ねられている。ガーゼの端は水槽にひたし、絶えず全面に水が補給されるようにしてある。ガーゼ面の温度は、上蓋の下面に納めてある電熱線によつて一定温度に保たれる。これらの温度調節はバイメタル調節器によつた。

冷媒槽内には銅箱を取巻いて冷却管が収められ、Freon 22 冷凍機によつて冷却される。この装置はもともと全体を -20°C の低温室内において運転するよう設計されているので、断熱があまり充分でないが、常温においても -40°C まで常時冷却することができる。冷媒温度の調節はアルコール-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 $\pm 0.5^{\circ}\text{C}$ である。実験に先立ち、銅箱内壁には霧吹きで微水滴を凍りつかせて氷飽和に保ち、その内側には黒い chiffon velvet を張つておく。更に充分気密が保たれるよう、各部分はポリエチレンテープを使つて念入りにシールされる。

-20°C の低温室内で実験するのは、観測に色々と支障が多いので、今回は本研究所の低温風洞室前室を使つて実験を行つた。11月~3月の実験期間中、室温は殆んど 0°C ~ -3°C に保

* 北海道電力株式会社委託研究費による。著者の設計にもとづき、島津製作所に製作を依頼した。

No. 1



- A ; アクリル酸樹脂二重壁
- B ; 冷媒槽 (塩化カルシウム溶液)
- C ; 銅壁
- D ; 絹ピロード (黒)
- E ; 水槽
- F ; 冷却管 (Freon 22, 1/4 H.P. 冷凍機に接続)
- G ; 濡れガーゼ
- H ; 電熱線
- I ; 断熱材
- J ; 熱電対
- K ; 顕微撮影用カメラ
- L ; 平行光束 (500 W. Photo Flood Lamp)
- M ; 上下微動装置
- N ; ガラス製導管
- O ; ガラス窓
- P ; ガラス製支持管
- Q ; ウサギの毛
- R ; 細アルコール温度計
- S ; 人工雪結晶

第 3 図

たれ、実験に極めて好都合であつた。昨年度の実験では冷媒液にトリクレンを用い、アクリル酸樹脂壁には撥水用に G. E. Dri-film を塗布した。今回の実験ではこれらの使用を避け、アクリル酸樹脂の拡散箱も特に新しく作り代え、冷媒液としては塩化カルシウム溶液 (比重 1.29, 凍結温度 -51°C) を用いた。

拡散箱上部の濡れガーゼを温めながら、冷媒温度を下げて行くと、箱内の気層は上に温かく下層程冷いので極めて安定し、水蒸気は上の濡れガーゼから拡散によつて下方へ選ばれるだけである。過飽和になつた水蒸気は、最初箱の中に存在する aerosol の上に凝結し微小な過冷却霧となつて自由落下する。このまま半日位放置すると、箱内の aerosol は殆んど全部落ち尽くしてしまい、Tyndall 効果によつては最早霧粒の存在は認められなくなる。時により $10^{-1} \sim 10^{-2}$ 個 / cc の比較的大きな霧粒 (直径: $10 \sim 15 \mu$ 程度) がどうしても除ききれないことがあつたが、これら水滴の過飽和に対する寄与は無視されるであろう。従つて拡散箱内には水蒸気のみによる過飽和が実現されたと考えられる。このようにして、実験は内部の過飽和が充分定常状態に達するのを待つて始められる。

孤立した人工雪の芽を作り、これを空气中に吊り下げておくためのものとしては、中谷らの実験にならつてウサギの腹毛を用いた。拡散型低温箱内の温度勾配は、アクリル酸樹脂壁と銅箱との接ぎ目附近の気層で最も急峻であり、従つて過飽和度も大きいので、この高さにウサギの毛を吊り下げる。このためウサギの毛を細いガラス管 (外径約 1 mm, 長さ 32 cm) の一端にパラフィンで固定し、上蓋の細孔からガラス製の導管を通して垂直に吊り下げる。ウサギの毛は使用に先立つて、細いガラス支持管に固定したまま、五酸化燐入りの乾燥器で真空に引いて乾燥する。ガラス管の他端は、顕微鏡用メカニカル・ステージを改造した上下微動装置に固定する。結晶の作られる水平位置は、拡散箱の中心から 4 cm, アクリル酸樹脂壁から 5 cm の位置である。従つて温度並びに水蒸気の拡散場に対する器壁の影響は、ここまでは及ばないものと考えられる。

結晶の写真撮影のためには、カメラ (アサヒ・フレックス) に接写用蛇腹 (ベロスコープ) と長さ 27 cm の補助鏡筒を併用し、水平顕微鏡用架台に取付けた。焦点距離 50 mm の水平顕微鏡用対物レンズを使用し、フィルム面での倍率は 6.2 倍である。光源には 100 V, 500 W のフォト・フラット・ランプを、熱線吸収フィルターには硫酸銅溶液を用い、冷凍機の振動を考慮して、ネオパン S 級 (ASA 50) フィルムで 1/100 秒のシャッターが切れるようにした。カメラの視野は温度勾配の最も急峻な、銅箱底より 21.5 cm の高さに固定された。

結晶芽が現われたら、これをカメラ視野の中央に導き、適当な時間々隔で成長過程を写真に撮る。結晶は吊り下げたウサギの毛の何処に出来るか予測できないし、2~3 cm の長さの毛の上に点々と数個の結晶が成長するのが普通である。

結晶の生成温度 T_a を求めるには、ウサギの毛の位置をはさんで上下にほぼ 2 cm の間隔で 4 点の熱電対と、更に 3 本の細温度計を補助的にそれぞれ水平に挿し込んで、あらかじめ気温の垂直分布を求めておく。カメラ視野の高さは予めきめられているから、それぞれの結晶の

カメラ視野の高さに対する相対位置がわかれば、結晶の生成温度 T_a は直ちに求められる。結晶の生成域の垂直温度勾配は $3^\circ\text{C}/\text{cm}$ 程度であるから、 T_a を求めるには、結晶の生成位置を充分正確に知る必要がある。結晶のカメラ視野に対する相対位置は、上蓋に取付けたウサギの毛の上下微動装置の読取りから $1/10\text{ mm}$ までの精度で与えられる。

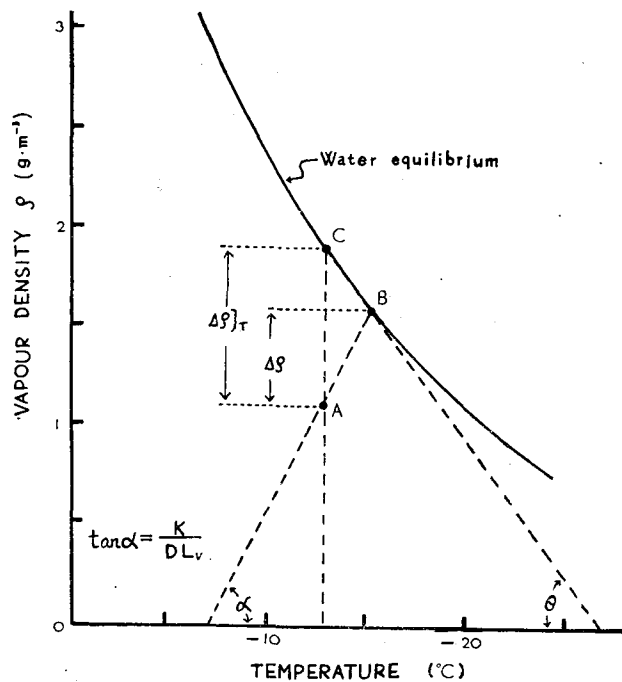
結晶の生成条件 T_a, s を変えるには、冷媒槽の温度 T_b と、頂部濡れガーゼの温度 T_w とを調節して行う。一方、結晶を上下に適当に移動するだけで、温度と湿度の条件を段階的に変えてやることができるから、それに応じた結晶の成長型の変化を、過渡的過程を経ることなく容易に観測することもできる。このことは拡散型低温箱によつて、雪の結晶習性を研究する上での一つの大きな利点である。

結晶の成長を観測し乍ら、これを適当な大きさにまで成長させたら、次にこの結晶を上部の濡れガーゼ近くの 0°C 以上の温度域まで引上げて融かす。融かした水滴は再び水平顕微鏡(カメラ)視野の高さに戻し、引続きその成長或いは蒸発の過程を追つて写真撮影する。この場合、 -15°C 位までの温度に、水滴を過冷却のまま保つのはそれ程困難なことではなかつた。この方法による過飽和度の測定については次節に述べる。

III. 過飽和度の測定

過冷却水滴の成長或いは蒸発の速度は、周りの空気の水蒸気密度と、水滴表面と平衡にある水蒸気密度との差の函数である。この関係を使つて湿度を測定しようとする試みは、Marshall と Gunn によつて既に行われている。我々はこの実験において Marshall と Gunn¹⁰⁾ の方法にそのままならつた。

Marshall と Langleben によつて雪の結晶の成長の場合について指摘されているように、成長或いは蒸発しつつある水滴の表面温度は周囲の気温よりやや高いか或いは低いかである。この関係は第4図によつて説明される。図の曲線は水についての飽和水蒸気密度を示す。周囲の未飽和空気を A 点で表わすと、この中に置かれた水滴表面の温度及び平衡水蒸気密



第4図 (J. S. Marshall and K. L. S. Gunn による)

度は、 A 点を通り K/DL_v の勾配をもつた直線と飽和水蒸気密度曲線との交わり B 点で与えられる。 K は空気 の熱伝導度、 D は水蒸気の空気中での拡散係数、 L_v は蒸発の潜熱である。

水滴の蒸発速度に関係するのは $\Delta\rho=(\rho_B-\rho_A)$ であるが、 A 点の湿度を知るために必要な量は $\Delta\rho]_r=(\rho_c-\rho_A)$ である。これらの間には

$$\Delta\rho]_r = \Delta\rho \left(1 + \frac{\tan \theta}{K/DL_v} \right) \quad (1)$$

$\tan \theta$; 飽和水蒸気密度曲線の温度 T における勾配

の関係が成立つことは容易に示される。 $\Delta\rho]_r/\Delta\rho$ は周囲の温度を横軸に第5図に示され、 $\Delta\rho$ を測定すればこれから直ちに $\Delta\rho]_r$ が求められる。

半径 r の球状の“hygrometer droplet” について、水蒸気の拡散による成長の速度は

$$\frac{dm}{dt} = 4\pi r D \Delta\rho \quad (2)$$

で与えられ、ここで $\Delta\rho$ は上に述べたように、成長しつつある水滴とそれよりもやや低い温度にある周囲の空気との間の有効な水蒸気密度の差である。又、

$$\frac{dm}{dt} = 4\pi r^2 \rho_{liq,w} \frac{dr}{dt} \quad (3)$$

$\rho_{liq,w}$; 水の密度

と書けるから、(2), (3) 式から

$$\Delta\rho = \frac{\rho_{liq,w}}{8D} \cdot \frac{\Delta d^2}{\Delta t} \quad (4)$$

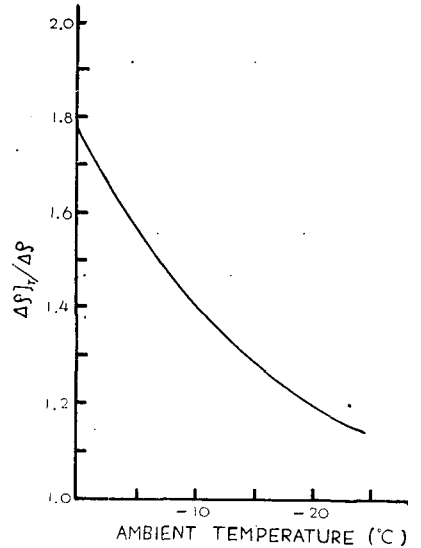
ここで d は水滴の直径、 $D=0.2 \text{ cm}^2 \text{ sec}^{-1}$ (-18°C)、 $\rho_{liq,w}=1 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ として Δd^2 を (*microne*)²、 Δt を *kilosec.* で表わすと、

$$\Delta\rho \text{ (g}\cdot\text{m}^{-3}\text{)} = 6.25 \times 10^{-6} \cdot \frac{\Delta d^2}{\Delta t} \quad (5)$$

と与えられる。

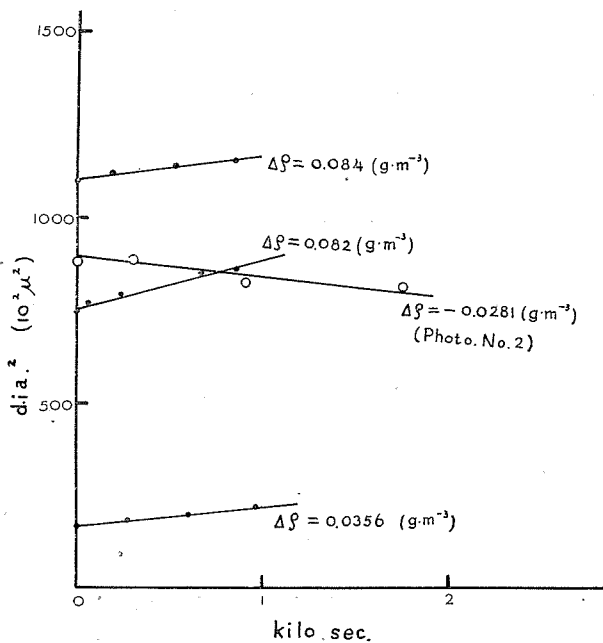
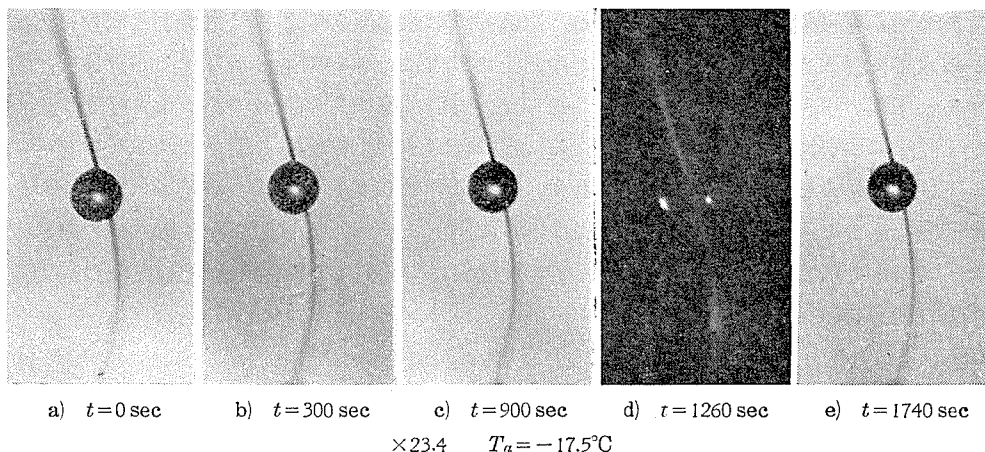
観測の数例を挙げると写真、No. 2 及び第6図の如くで、これら直線の傾斜から $\Delta\rho$ が、次いで第5図によつて $\Delta\rho]_r$ が求められる。

我々の拡散型低温箱の中に過冷却水滴を吊るしてその成長或いは蒸発速度を求める場合、(2) 式は厳密にはあてはまらない。第一に、水滴は一樣な水蒸気密度場の中に静置されたものでなく、上から下に向う密度勾配の中に置かれていること。第二には、凝結或いは蒸発の潜熱は空気を通じての伝導によつて授受されるのみでなく、水滴を支持するウサギの毛の伝導にも



第5図 (J. S. Marshall and K. L. S. Gunn による)

No. 2



第 6 図

よつていることを考慮せねばならない。しかし乍ら今回の実験では、差し当りこれらの点は無視して Marshall と Gunn の計算をそのまま踏襲した。

以上の手続きによつて、過冷却水滴の置かれた場所、即ち水平顕微鏡の視野の高さの水蒸気密度が求められる。しかし乍ら、雪の結晶はこの位置をはさんで、上下にウサギの毛の長さの範囲に点々と成長するのであるから、この範囲の気層について水蒸気密度の垂直分布を知る必要がある。このため少なくとも上下二点について上述の測定が行えれば好都合であるが、カ

メラを上下することの困難さのために果し得なかつた。

そこでかなり粗つばい仮定であるが、他の一点の水蒸気密度として次のようにきめた。器壁から水平に挿入された4本の熱電対の中、上の3本には霜が附着し成長するが、銅壁内に位置する最下部の一本には殆んど霜がつかないか、ついてもほんの僅かであつた。そこでこの高さを丁度氷について飽和していると考え、この仮定は亦、ウサギの毛をこれ以下のレベルに吊り下げても殆んど結晶の成長がみられず、時には昇華して行くのすら観測されたことから、まあ妥当なものともみなされよう。このようにして上下2点の水蒸気密度を与え、この間に直線的な密度勾配を仮定すると、この間の温度勾配は別に得られているから、それぞれの高さの過飽和度は直ちに決定される。

IV. 人工雪実験の概要

1) 人工雪の芽 (germ) の形成について;

人工雪をその成長条件に応じて典型的な形に成長させるためには、個々の結晶を取巻く拡散場が相互に影響し合わぬよう、結晶芽一つ一つを充分離して作らねばならない。

中谷が述べているように、孤立した結晶芽を作るにはウサギの腹毛の細いものが好都合であるが、ウサギの毛は装置内に吊す前に充分乾燥しておくと共に、水槽温度を徐々に上げて周囲の過飽和度を高めて行くことが必要である。

拡散型低温箱では、過飽和を制御するのに上部の濡れガーゼ温度 T_w の調節によつて行つて行くが、ガーゼ面温度と結晶生成位置の過飽和度との間にはかなりの遅れがあるので、ウサギの毛を吊り下げたから T_w を変えるのは好ましくない。結晶の成長条件を厳密にきめるためには拡散箱内の温度及び湿度の分布が定常化してからウサギの毛を入れなければならない。そのためいきなり大きな過飽和の中にさらされるのも避けられなかつた。又ウサギの毛は上蓋の細孔から吊り下げるので、結晶の生成域よりも遙かに湿つた空気の中を通さねばならないのも具合が悪かつた。水飽和を越える大きな過飽和、特に樹枝状結晶の成長条件のもとでは、しばしばウサギの毛の上に小さな過冷却水滴が凝結して“じゅずつなぎ”になり、ある一点から瞬間的に凍結が全部に拡がつて行く。その後これらの氷粒からは、それぞれ数本の樹枝状の枝が伸びはじめるが、美しい六方対称の樹枝状結晶が出来るのはごく稀である。

氷晶芽が毛の上に点々と孤立して現われると、周りの水蒸気は優先的にこれらの上に奪われ、もはや他の場所には水滴の凝結は起らない。このような時には、結晶は典型的な美しい形に成長して行く。孤立した結晶芽を作るには、水飽和近くの氷上過飽和という条件が最も適していた。

第11図(14頁)の結果からもわかるように、ウサギの毛の上に氷晶芽が現われてくるのは、水飽和以上及び水飽和のごく近くの氷上過飽和に限られている。図中結晶形の型を表わす印の右肩に+を附けたものは、予め作った氷晶芽をこの領域に持つて来て成長させたものを示している。

このことから、ウサギの毛の上に現われる氷晶芽は、毛の表面への capillary condensation によつて、先ず液相を通りそれが凍結して形作られるものと考えられる。

2) 針状結晶 (needle);

針状結晶は高い温度で水蒸気の供給が充分に行われる時にみられる。その温度域は $-4.5 \sim -6^{\circ}\text{C}$ というごく狭い範囲に限られ、その境界も極めてはつきりしている (中谷 T_a-s diagram, 領域 III に対応)。写真, No. 3 (a, b, c, d) は針の成長過程を示すものである。ここにいる針状結晶は見掛け上“針”のように見えるものをすべて漠然と呼んでいるのであるが、その構造については更に詳しい検討と分類が必要なようである。

3) サヤ型 (sheath), コップ型 (cup), ビョウブ型 (scroll) 結晶;

中谷の T_a-s diagram 上 IV, コップ型結晶の領域に相当する所には、我々の実験ではサヤ型及びビョウブ状の成長がみられた。これは我々の実験における雪結晶の成長型を特徴づけるものの一つである。サヤ型というのは六角柱の側面だけに囲まれた筒状のもので、六面を完全に備えたものと、その中の一面が欠け両端が内側に巻きこまれた構造をもつものがある。針に比べては主軸方向の伸びが少なく、ずんぐりと成長して行く (写真, Nos. 4 及び 5)。針状の成長と扇形・樹枝状の成長との中間の領域 ($-6 \sim -10^{\circ}\text{C}$) にこのサヤ型の結晶が観測されるのは面白い。吊り下げたウサギの毛に生じるサヤ型結晶は、下へ行く程 (温度が低くなる程) ずんぐりしたものになつて行き、次いで厚角板、扇形へと移つて行く。

扇形又は樹枝状結晶をこの領域に移すと、周辺から base plane に垂直に側壁がビョウブ状に伸びる。写真, Nos. 6 及び 7 はそのよい例である。

サヤ型結晶は $-6 \sim -10^{\circ}\text{C}$ の温度域の外に、 -20°C 以下の領域にもかなりの散らばりをもつて、側面結晶 (side extension) 及び不規則な立体平板結晶 (irregular assemblage of plates) に混つて現われる (写真, Nos. 8 及び 9)。中谷の人工雪実験にあつては、サヤ型結晶は -20°C 以下の低い温度で水蒸気の供給のゆるやかな場合に作られており、我々の実験の低温側のサヤ型結晶の成長と一致している。中谷の実験では、高温側 $-6 \sim -10^{\circ}\text{C}$ の間についてはサヤ型という記述はなく、コップ型結晶となつているが、サヤ型、コップ型、ビョウブ状の結晶は c 軸及び a 軸方向への成長比によつて便宜的に名付けられたもので、結晶習性の上からは同型のものと思うべきであろう。

4) 角柱状結晶 (column);

中谷の実験での角柱の生成領域 VII に当る条件は、我々の装置によつては実現することがむづかしかつた。そのため角柱の出来る機会は少なかつたが、その数例のデータから推しても、サヤ型結晶と同じく、平板状結晶の生成域 ($-10 \sim -20^{\circ}\text{C}$) の外周部に作られることは間違いなさそうである (写真, No. 10)。

5) 厚角板結晶 (thick plate);

厚角板についても観測例が少ないが、 $-10 \sim -20^{\circ}\text{C}$ の平板状結晶域で過飽和の低い場合に生じている (写真, No. 11)。

6) 扇形 (sector), 角板 (hexagonal plate) 結晶;

—12～—18°C の温度で、過飽和度 (氷について) 110～140% の広い範囲にわたって観測される。この結晶を作るには、はじめウサギの毛を—20°C 位の所まで吊り下げて氷晶芽を作り、その後直ちに引上げて—12～—18°C の温度におくと、ウサギの毛に沿って点々と孤立した結晶が得られる。この場合ツツミ状のものも屢々みられた (写真, Nos. 12 (a, b, c, d, e) 及び 14 (a, b, c))。単純な六角板の成長をすることは、成長のごく初期を除いては稀であり、多くは扇形になる。過飽和が 115% の程度を越すと、扇形の各頂点から放射状に枝が伸びはじめ扇形構造の星状に、更に 125% 程度の過飽和になると、広幅樹枝の成長に移つて行く (写真, No. 13)。

7) 樹枝状結晶 (dendrite);

—13～—18°C の範囲で 125% 以上の大きな過飽和のもとでは、所謂樹枝状の成長がみられた。このような条件のもとでウサギの毛を吊り下げると、ウサギの毛には無数の水滴が凝結して、過冷却のままじゆず玉状に成長することが多い。一旦凍結を起すと、それらの氷粒からは樹枝が伸びはじめるが、このような場合六方対称に成長することはごく稀である (写真, Nos. 15～17)。

最初ウサギの毛の上に具合よく数点の氷晶芽が得られた時には、その後じゆず玉状に水滴が凝結してきても、氷晶芽の近くは平衡蒸気圧差の関係から水滴のないまま残り、結晶は急速に樹枝状へと成長する。(写真, No. 18)。

ここで注目されるのは、我々の実験で得られた樹枝状結晶は成長の初期を除いて、多くは扇形構造のもので、中谷の分類による真正の樹枝は殆んどみられなかつたことである。このことについては後節で改めて論議する。

このような条件のもとでは、拡散箱の内面、アクリル酸樹脂壁と銅壁との境目附近の霜からも多くの樹枝状結晶が成長する (写真, No. 19)。大きくなり過ぎたものは自重に耐えられないで、遂にはつけ根から折れて落ちる。面白いことに、大きくなつた樹枝は先ず *c* 軸に垂直な平面内で曲りを生じ、可成りの速さで垂れ下つて行くことがある。写真, No. 20 (a, b, c) はその一例である。これは中谷¹¹⁾が氷の単結晶構造について述べているように、樹枝状結晶の枝も幾つかの薄い層状構造から出来ていると考えられ、その隣り層相互の間での回転によつて曲つて行くものと思われる。

8) 平板集合 (assemblage of plates), 側面結晶 (side extension);

—20°C 以下の温度においては、不規則な立体平板集合と側面結晶 (写真, No. 21) が得られたが、これらの詳しい構造についてはまだよくわかつてはいない。これらに混つてサヤ型の結晶も多くみられた。

9) —4°C より高い温度域での角板結晶;

アクリル酸樹脂壁の—5～—6°C の部分を付け根として、箱の中央に向いやや斜上向きに伸びて行く針状結晶は、通常ある所まで伸びると、その尖端附近で太くなりピョウブ状に広がるか、サヤ又は角柱の不規則集合のような外観を呈する (写真, No. 22)。中谷の実験では、

—4.5°C以上の範囲で不規則な針の集合ができるとしている。

しかし乍ら一例ではあるが、拡散箱の内壁から斜上方に伸びた針状結晶の尖端に、それぞれ薄い角板が成長するのがみられた。写真, No. 23はその例である。針のつけねの温度はほぼ—5°Cであるので、斜上方に位置する角板の周りの温度は—5°Cより高いことは疑いない。これは aufm Kampe, Weickmann 及び Mason らが—5°C以上で transparent plate ができたとしているのと丁度一致する*。我々の実験では一例を見出したに過ぎないが、今後更に注意して調べる必要がある。

10) 結晶の成長型の変化;

拡散型低温箱を使つての人工雪実験においては、成長条件を変化させて、それに対応する結晶の成長型の移行を観測することが非常に容易である。拡散箱の内部は、一定した温度と水蒸気密度との垂直分布をもつて安定しているから、吊り下げたウサギの毛の位置を上下に移動するだけで、それに応じた温度と過飽和度の変化を結晶に与えることができる。一定の過飽和に保つたまま、温度だけを変えることができれば、更に面白いのであるが、これは実現がむずかしい。我々の実験においては、拡散箱内の温度分布と水蒸気密度分布とを夫々独立に与えることはできないので、生成温度 T_a は任意に変えてやることもできても、 T_a -s diagram 上の任意の変化過程をたどらすという訳には行かない。しかし乍らウサギの毛を上下するには僅か数秒位しか要しないから、途中の遷移過程を経ることなしに、極めて明瞭な成長型の変化を観察することができる。次にその典型的な数例を、成長条件と並べて写真によつて示す。

針 (needle) → 扇形 (sector) → ビョウブ型 (scroll): 写真, No. 24, 第 7 図. (図版 VI).

角柱 (column) → 扇形 (sector) → 針 (needle) → 角板 (plate): 写真, No. 25, 第 8 図. (図版 VII).

次の 2 例は T_a をだんだん上げて過飽和度を増して行つた場合の結晶型の変化を示すものである。

ツツミ (column → plate): 写真, No. 26, 第 9 図. (図版 VIII).

扇形 (sector) → 樹枝 (dendrite): 写真, No. 27, 第 10 図. (図版 VIII).

11) 結晶形と気温及び過飽和度との関係;

以上に述べたように、拡散箱中の微水滴を除いた空気中においても、中谷の人工雪の T_a -s diagram にほぼ対応して、それぞれ、針・サヤ型・厚角板・扇形・樹枝・側面結晶等を作り出すことができた。それぞれの結晶形と、その作られる時の周囲の気温、過飽和度との関係を示したものが第 11 図である。

縦軸は氷についての過飽和度 (%) で示してある。図中の実線は中谷の実験から得られた境界である。中谷の実験においては、過飽和度が小さく見積られる傾向にあつたことを考慮するなら、中谷の実験結果と我々の実験結果との間にはかなりよい一致が認められる。

中谷の実験での雲粒を含めての過飽和度と、我々の場合での水蒸気相のみの過飽和度とが、

* 運輸技術研究所、花鳥及び六車による aerosol を濃過した空気中の人工雪実験でも、我々と同じ結果が得られている。

結晶習性をきめる上に同等の寄与をしているという点に問題は残るのであるが、第11図の結果から、中谷の過飽和度が“氷について”の値であることは間違いないものと考えられる。

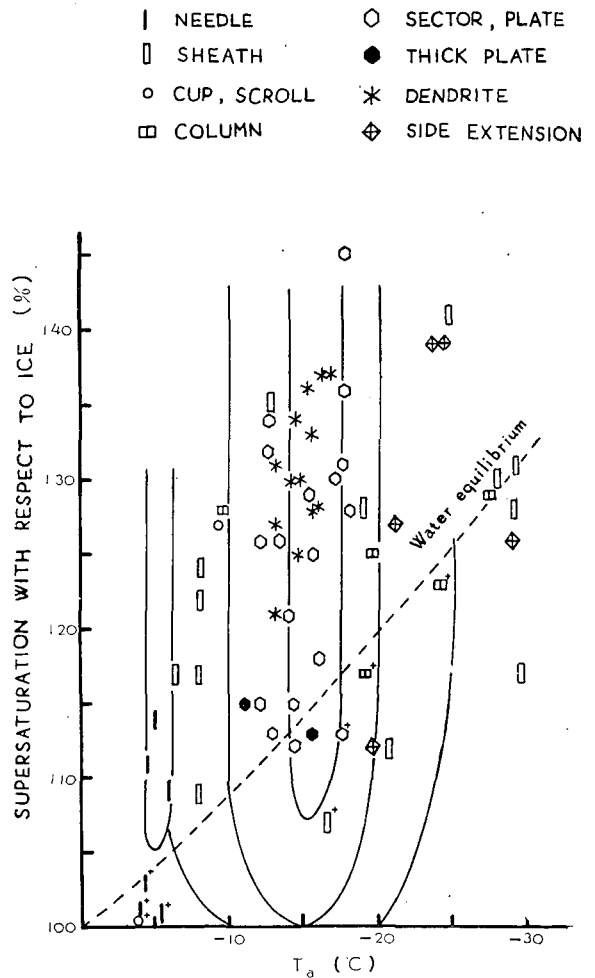
第11図の結果からみて、 c 軸方向の成長と a 軸方向の平板状の成長との間には、極めて截然とした温度の境界があり、結晶習性に対しては、過飽和度よりも温度の方がより支配的に働いていることは明らかである。ただ $-12\sim-14^{\circ}\text{C}$ の平板結晶の成長領域では、Marshall理論の基本的な考え方が当てはまる。即ち、過飽和度が高くなつて、角板の頂点のもつ高い平衡蒸気圧に打勝つと共に、この部分から樹枝状の枝が伸びはじめるのがみられている。

V. 微水滴の影響

中谷の実験装置は対流混合型のものであつて、自然の雪が雲の中で形成される時の条件とかなりよく似ている。しかるに我々の拡散箱で雪の結晶を作る場合は、中谷のそれと、従つて

又自然の雪の生成の場合と条件とかなり違う。第一に我々の実験では、微小な雲粒を自然落下させてしまつた清浄な空気の中で雪の結晶を成長させるのであるから、中谷¹²⁾の指摘したように微水滴の存在が結晶の成長に重要な寄与をなすのであれば、中谷の人工雪と我々の人工雪との間には当然差異がある筈である。第二は水蒸気の輸送方式を左右する周りの空気の流れの場の状態が異なつている。中谷の対流型と我々の拡散型とでは、水蒸気の流れの状態、特に結晶の周りの乱流状態とかなり異なり、結晶の成長或いは結晶習性の上にその影響が当然予想される。実際には、この両者合わせたものが中谷と我々との人工雪の違いとして現われてくるのであるが、中谷の装置内の対流の効果はそれ程大きいものとは考えられないので、ここでは一応無視して考えてよからう。

結晶習性について、我々と中谷の実験結果とは、 -4°C より高い温度域に生ずる角板結晶



第 11 図

を除いて、ほぼ同様な傾向にある。一方それぞれの領域に現われる結晶の成長型について注意して調べてみると、我々の人工雪と中谷の人工雪とはかなりの相違があり、この違いは微水滴の影響によると考えられる。この影響の特徴的に現われているのが、我々の実験におけるサヤ型の成長と樹枝の構造とである。

i) サヤ型結晶とその成長の機構；

中谷の実験では -20°C 以下の低温度にしかみられなかつたサヤ型の結晶が、拡散箱の実験では、板状結晶の成長域を除く $-6\sim-20^{\circ}\text{C}$ の広い範囲にわたり極めて高い頻度で現われている。針の構造においても、中谷の得たものより、更に主軸方向への成長が著しい。シリコン蒸気の痕跡を入れてやることにより、 c 軸方向への成長は更に著しくなるが、微水滴が存在しないという条件だけで、主軸方向への成長の傾向が増していることも確かのようなのである。

これは微水滴の存在が、むしろサヤ型の成長を阻害しているものとして、次のように説明されよう。サヤ型の結晶は写真, No. 28 からわかるように、その側壁は多くの薄層を重ね合わせた構造から成っている。大きな過飽和のもとで急速に成長して行く場合、サヤの内部へは水蒸気が充分補給されないので、一番外側の壁が優先的に薄く層状に伸び、内側の層はそれに遅れて成長する。

一様な過飽和水蒸気中にこのような薄い側壁を持つた長いサヤを置いて、水蒸気の拡散のみによつて成長する場合を考えると、その薄い壁の尖端においては、水蒸気の密度勾配が大きいためサヤは益々その長さの方向に選択的に伸びる。一方その薄層の尖端は、その側面に比べ、その曲率に由来する高い平衡蒸気圧を持つ。これはその尖端部での成長を阻止する効果を持つから、薄い側壁がその長さの方向に伸びるためには、周りの水蒸気がこの阻止に打勝つだけの充分大きな過飽和になつていなければならない。この過飽和の程度は勿論薄い側壁の尖端のもつ曲率によつて支配されるが、ここで必要な過飽和は雲粒を含めぬ水蒸気相のみによる真の過飽和である。雲粒の存在する場合、周りの水蒸気の過飽和は、ごく僅かの水上過飽和に到達するに過ぎない。それを越える余剰の水蒸気は雲粒を成長させるために費されるので、普通の条件で1%を越す水上過飽和は先ずないと考えてよい。中谷の実験はこのような場合に相当する。

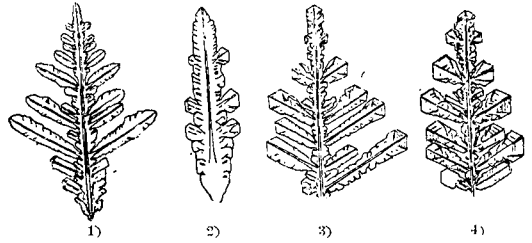
ところが aerosol をあらかじめ除いておくと、水について過飽和になつても雲粒は現われてこないで、我々の拡散箱では、水蒸気相のみによる15% (-8°C) 程度の水上過飽和さえ得られている。このような高い過飽和は、薄い側壁からなるサヤ型結晶の成長に極めて好都合な訳である。

ii) 樹枝状結晶の構造；

中谷は真正の樹枝と扇形構造の樹枝とを区別し、一見樹枝の外観を呈していても、その枝の細い部分に扇形構造をもつものは、厳密には扇形として扱っている。第12図は中谷の“Snow Crystals”に示された樹枝と扇形との相違を示すものである。拡散箱による実験から得られた樹枝状結晶は、すべてきつちりした直線的な扇形構造を示している。樹枝状結晶の構造

について中谷が指摘しているように、樹枝の成長が、その先端に集る水蒸気の流れに乗って運ばれた微小な水滴の結晶面での surface diffusion と、微水滴中に含まれた aerosol が与える結晶欠陥とによつて支配されるとするなら、微水滴の存在しない我々の実験では、当然この結晶の成長は見られない筈である。我々の実験で得られた樹枝は、Marshall が考えたように、大きな過飽和のもとで純粋に水蒸気の拡散と昇華とのみによつて、

扇形の隅が次々と成長 (corner growth) を繰返して形成されたものとみるべきであろう。真正の樹枝と aerosol との関係については、中谷らの Hawaii 島, Mauna Loa 山頂 (13,450 ft) での雪観測の報告¹³⁾にもみられる。aerosol の甚だしく少ないこの地域では真正の樹枝は全く観測されておらず、これは我々の実験結果と一致する。



第12図 (U. Nakaya による)

樹枝状結晶と扇形結晶との區別：

- 1) 真正の樹枝 2) 星状
3), 4) 扇形構造の樹枝 (中谷の分類では扇形に入る)

VI. Marshall の理論との対照

我々の実験は、微水滴を含まない過飽和の空気中で、雪の結晶が水蒸気の拡散と昇華とのみによつて成長する場合の結晶習性を調べたものであるが、これは Marshall と Langleben が理論的に取扱つたものになりに近い。そこで Marshall の理論をここに要約すると共に、我々の実験と Marshall の理論とを比較検討してみる必要がある。

過飽和大気中で昇華によつて成長しつつある雪の結晶は、周りの気温よりも僅かに高い温度にある。この温度の上昇を考慮に入れることが、周りの空気の氷の表面に対する真の水蒸気の過飽和分を知る上に必要である。昇華によつて氷の結晶が成長する場合、潜熱を放す割合は周囲と結晶表面との間の水蒸気密度の差、即ち氷の実質の増加の割合に比例する。又伝導及び対流による氷の結晶の冷却の割合は、成長しつつある氷とその周囲との間の温度差に比例する。この過程は過飽和空気中におかれた湿球温度計のそれと全く同じである。

乾湿球温度計一厳密に云えば、 0°C 以下、氷について 100% 以上の領域での湿球氷結した場合一について、周囲と氷表面との間の水蒸気密度の差と、湿球温度の減少分との比は、乾湿球湿度表によれば温度及び湿度に無関係で、これを 0°C 以下過飽和の場合にまで拡張して、

$$\frac{\rho_{aT} - \rho_s(x+\Delta T)}{(T+\Delta T) - T} = \text{Const.} \times f(B) \quad (6)$$

として表わされる。 T は周囲の温度、 $T+\Delta T$ は成長しつつある氷球の温度、 ρ_{aT} は周囲の水蒸気密度、 $\rho_s(x+\Delta T)$ は氷の表面での水蒸気密度で、 $f(B)$ は大気圧のみによる函数である。

簡単のために、半径 a の球形の水の粒子が周りに対し静止し、周りの空気の水蒸気密度は

氷の表面での水蒸気密度よりも高い場合について考える。

拡散によるこの氷球の成長速度は、

$$\frac{dm}{dt} = 4\pi aD[\rho_{aT} - \rho_{i(T+\Delta T)}], \quad (7)$$

ここで m は氷球の質量, t は時間, D は水蒸気の空気中への拡散係数である。同様に熱輸送の式は

$$L \frac{dm}{dt} = 4\pi aK[(T+\Delta T) - T] \quad (8)$$

で表わされる。 L は昇華の潜熱, K は空気の熱伝導度である。

(7) 及び (8) 式から, 定常状態について

$$\frac{\rho_{aT} - \rho_{i(T+\Delta T)}}{(T+\Delta T) - T} = \frac{K}{DL} \quad (9)$$

を得る。

若し結晶の成長に対流が支配的な役割をすると仮定すれば (即ち, 氷の結晶の周りが充分に通風される場合), (9) の関係は

$$\frac{\rho_{aT} - \rho_{i(T+\Delta T)}}{(T+\Delta T) - T} = \frac{c_p}{L} d \quad (10)$$

と書かれる。ここで c_p はある圧力での空気の比熱, d は空気の密度である。

これらの結果は, 1000 mb の大気圧に関して, 第1表に示される。

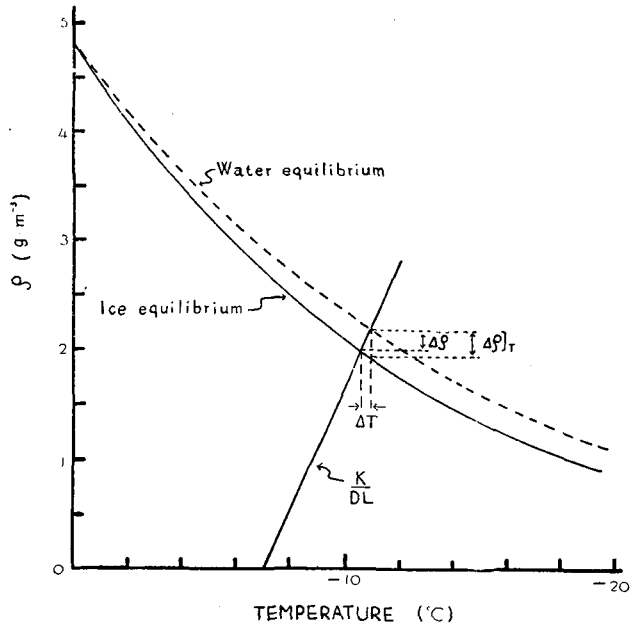
第1表 $\Delta\rho/\Delta T$ [$\text{g}\cdot\text{m}^{-3}(\text{deg. C})^{-1}$]

	-2°C	-10°C	-20°C	-30°C
乾 湿 球	0.539	0.539	0.539	—
拡 散	0.379	0.393	0.408	0.425
対 流	0.452	0.469	0.487	0.507

周囲の空気の, 成長しつつある氷の表面に対する水蒸気密度の過飽和分 (以下 $\Delta\rho$ で表わす) については, Houghton¹⁴⁾, Mason¹⁵⁾ らの計算があるが, 図式的には第13図に示すように与えられる。(図の場合, 周りの空気は水について丁度飽和にある。) 温度 T と水蒸気密度 ρ_a とが与えられれば, この点 (ρ_a, T) を通り K/DL (拡散による成長の場合) なる勾配をもつた直線が引ける。この直線は氷についての飽和水蒸気密度曲線 ρ_i と $(\rho_{i(T+\Delta T)}, T+\Delta T)$ なる点で交わる。前に述べた “hygrometer drop” の方法により, 周囲の気温 T と水蒸気密度 ρ_{aT} が求められておれば, このようにして $\Delta\rho$ は直ちに図上で求められる。

$\Delta\rho$ は又 Marshall と Langleben によれば

$$\Delta\rho = \frac{4p]r}{\frac{RT}{M} + \left(\frac{dp_i}{dT} - \frac{p_i}{T}\right) / \frac{K}{DL}} \quad (11)$$

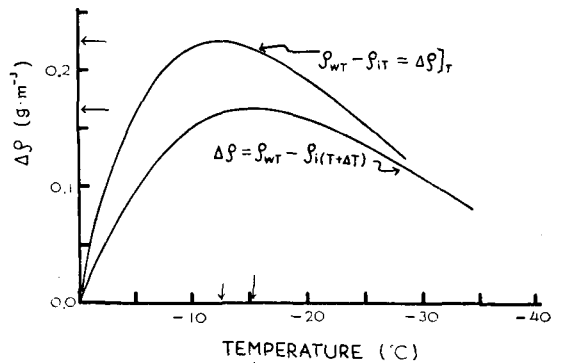


第13図 (J. S. Marshall and M. P. Langleben による)

と計算される。ここで $\Delta p]_T$ はある温度 T の周囲の空気と同温度にある氷との間の水蒸気張力の差、 p_i は氷についての飽和水蒸気張力である。

周囲が水について丁度飽和している場合、水についての飽和水蒸気密度と、成長しつつある氷の温度での氷についての飽和水蒸気密度との差 $\Delta \rho$ は第14図の通りで、その最大値は -15.4°C で $0.1676 \text{ g} \cdot \text{m}^{-3}$ である。これに対し、周囲と氷とが同じ温度にあるとした時には、その最大値は -12.5°C で $0.224 \text{ g} \cdot \text{m}^{-3}$ である。

我々の拡散箱の実験では、上から下に向う水蒸気の密度勾配の中に結晶を作るので、一様な水蒸気密度場での成長を扱った Marshall の理論とは、厳密には我々の実験結果をそのまま対比させることは出来ない。しかしほぼ垂直に吊り下げたウサギの毛の上に現われる針・角板・サヤ等の結晶は、毛に垂直な面内にはほぼ水平に成長することが多い。上下に伸びた扇形結晶においても、上下それぞれの



第14図 (J. S. Marshall and M. P. Langleben による)

方向への成長速度にそれ程大きな差異は認められない。このような場合には、結晶各部の温度差や、ウサギの毛による潜熱の伝導を無視すれば、我々の人工雪実験には、この“拡散”の

取扱いが近似的に適用されよう。ところが、樹枝の成長に必要な大きな過飽和条件を実現するには、拡散箱上部から下方へ向う水蒸気の流れの影響が無視されなくなつて、樹枝状の結晶は斜上方に卓越して伸びることが多い。このような時には、Marshall の“拡散場”からのズレを考慮する必要が生じてくる。降雪の成長過程で、その初期の落下速度の比較的小さい場合、又中谷の実験におけるように対流のそれ程盛んでない場合など、何れもこの拡散の場合として取扱われよう。

Marshall と Langleben は次に、中谷の実験における結晶の成長の型を、水蒸気相のみによる周囲の過飽和水蒸気密度と氷面での水蒸気密度との差、即ち $(\rho_{vT} - \rho_{i(T+\Delta T)})$ の函数として示している。中谷の実験においては、水蒸気密度は雲粒と真の水蒸気密度との和、即ち

$$\rho = \rho_v + \rho_c$$

ρ_v : 水蒸気の密度

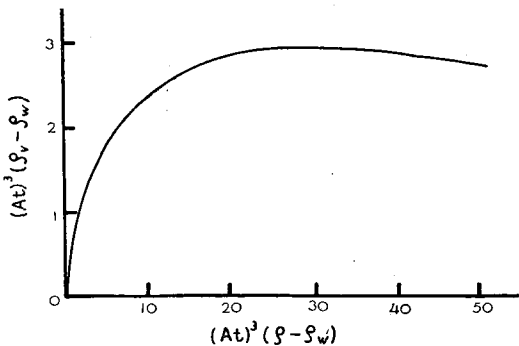
ρ_c : 雲粒としての水蒸気密度

で表わされている。温い湿つた空気は装置内を上昇して冷え過飽和となるが、 ρ_v は水についてそれ程大きな過飽和とならず、 ρ_c がどんどん増して行くものと考えられる。水蒸気相による真の過飽和 $\rho_v - \rho_w$ は $\rho - \rho_w$ のある値で最大値に達し、それ以上は $\rho - \rho_w$ が増しても大きくはなり得ない。第15図はこの関係を示すもので、Marshall は中谷の実験条件に対して、 $(At)^3 = 100 \text{ g}^{-1}\text{m}^3$ なる値を仮定している。中谷の実験データから $\rho - \rho_w$ を知れば、この図から直ちに $\rho_v - \rho_w$ が得られる。これから $\rho_{vT} - \rho_{i(T+\Delta T)} = \text{const.}$ なる軌跡が、次の関係式

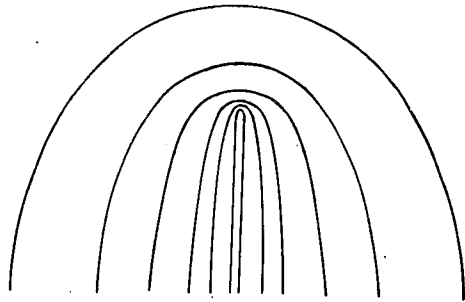
$$\begin{aligned} \rho_{vT} - \rho_{wT} &= (\rho_{vT} - \rho_{i(T+\Delta T)}) \\ &\quad - (\rho_{wT} - \rho_{i(T+\Delta T)}) \\ &= \text{const.} - (\rho_{wT} - \rho_{i(T+\Delta T)}) \end{aligned}$$

によつて、 T_a vs. $(\rho - \rho_w)$ diagram 上に与えられる (第2図)。

これまでの議論は、氷の結晶表面の水蒸気密度はその温度にある平坦な氷の面と平衡にあるとしてきた。六角板状の氷の結晶を水蒸気の密度場におくと、もともと距離に逆比例する密



第15図 (J. S. Marshall and M. P. Langleben による)

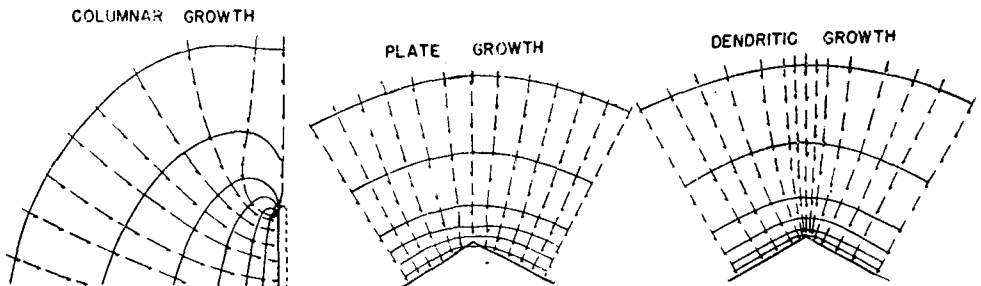


第16図 (J. S. Marshall and M. P. Langleben による)

度場は、六角板の縁辺部でゆがめられる。この密度場の数学的な取扱いは困難であろうが円板の周りの等密度曲線(第16図)から類推されよう。単位面積あたりの成長速度は、その水蒸気密度勾配に比例するから、六角板状結晶の縁辺(edge)はその平坦な面(plane)より伸び易く、六角板の各隅(corner)は更に成長に恵まれている。ところが実際には、六角板の隅から伸びる樹枝状結晶の成長には最も大きな過飽和度を必要とする。これには隅からの成長を阻止するような機構が働いていると考えねばならない。

水の表面の水蒸気圧は水の表面の蒸気圧と同様に、その曲率によつてきまり、六角板の縁辺はその平坦な面より、六角板の各隅は縁辺部より更に高い水蒸気圧をもつ。このため水分子は六角板の各隅から縁辺部へ、縁辺部から更に平らな面へと運ばれ全体は丸っこい形に移つて行く。

それで六角板の縁辺或いは各隅から扇形乃至樹枝状の成長がはじまるためには、それぞれの曲率にもとづく水蒸気圧の効果が打勝つだけの高い過飽和が周りの空気に必要とされる。角柱状(plane growth)、角板状(edge growth)及び樹枝状(corner growth)への成長に都合のよい等密度曲線と水蒸気分子の流れとは定性的に第17図で説明されている。

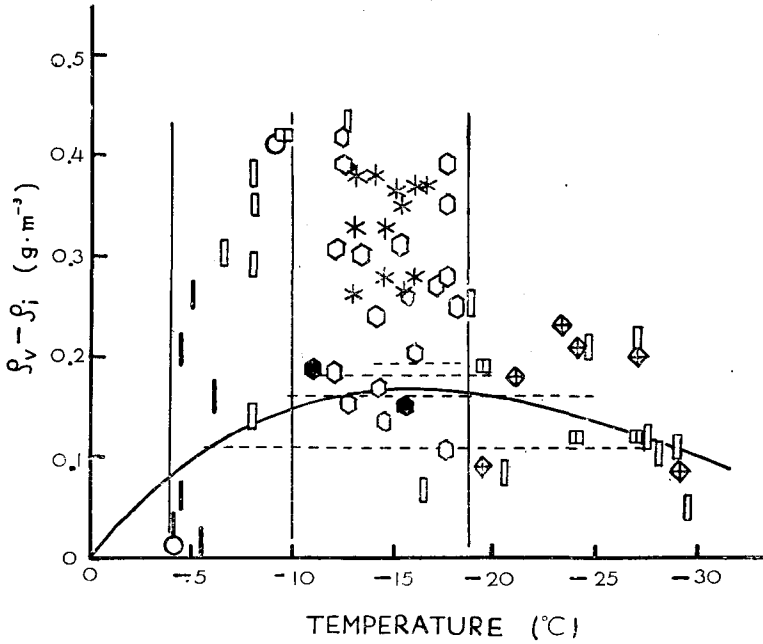


第17図 (J. S. Marshall and M. P. Langleben による)

中谷の実験データに、Marshallによつて重ねて引かれた $\rho_v - \rho_s = \text{const.}$ なる軌跡は、この効果を極めてよく表わしている。第2図には $\rho_v - \rho_s$ として 0.109, 0.16, 0.1811 及び 0.1936 なる軌跡が引かれている。これらの軌跡は、それぞれ中谷の人工雪実験における針・角柱・角板・樹枝の各結晶形の間の境界をうまく形作つており、つまり角柱状成長から角板状成長への移り変りは、 $\rho_v - \rho_s$ の値が $0.18 \text{ g} \cdot \text{m}^{-3}$ を越えると起り、角板状成長から樹枝状成長への移り変りは $0.194 \text{ g} \cdot \text{m}^{-3}$ を越えると起るとするのである。結晶の成長の型が水蒸気の過飽和度によつてきまるとする Marshall の理論は、このように中谷の実験データを使つて、その裏付けを得たと考えられたのである。

以上が結晶習性についての Marshall の理論の概要であるが、中谷の実験の“過飽和度”に対する Marshall らの解釈に問題があることは先に述べた通りである。

我々の拡散箱による人工雪実験の条件は、前に述べた通り、Marshall らの理論的取扱いのそれに最も近いと考えられるから、この両者を対照してみることは特に意義がある。我々の



第 18 図

実験においては、雲粒による水蒸気の過飽和への寄与は殆んど無視されるから

$$\rho = \rho_v$$

である。従つて“drop hygrometer”法により結晶生成位置の水蒸気密度 ρ_T がわかれば、 $\rho_{vT} - \rho_{i(T+\Delta T)}$ は第 13 図と第 1 表とによつて図式的に容易く求められる。第 18 図、 T_a vs. $(\rho_{vT} - \rho_{i(T+\Delta T)})$ diagram はこのようにして第 11 図を書き直したものである。Marshall と Langleben が中谷のデータに対して与えた $\rho_v - \rho_i = \text{const.}$ の軌跡(第 2 図)は、ここでは縦軸の 0.1 と 0.2 の間を通る水平な点線群で表わされている。Marshall らが与えたそれぞれの結晶型の成長域と、我々の実験から得た結晶習性との相違は第 18 図から一見して明らかで、雪の結晶習性が周りの水蒸気の過飽和の状態のみによつてはきまらないことを示している。

サヤ型結晶の成長、或いは扇形構造をもつた樹枝状結晶についての考察から、部分的に一温度の函数として与えられる、あるきまつた軸方向での成長領域では—Marshall 流の考え方の成立つことがわかるが、真正の樹枝の成長が大きな過飽和度ということだけでなく、微水滴の存在するか否かに支配されるということも、結晶習性が単に周りの水蒸気密度場の状態だけではきまらないことを示している。

VII. 雪の結晶習性

我々の実験データはまだ充分なものではないが、第 18 図にみられる実験結果は、雪の結

晶習性が主として温度に支配されることを明瞭に示している。これは aufm Kampe, Weickmann 及び Kelly の実験とも、又最近の Shaw と Mason の実験の傾向ともよく合う。

Shaw と Mason は金属表面上に沃化銀を核にして規則正しい形の氷晶を作り、成長の各段階での c 軸方向の長さ $2c$ と、 a 軸方向の長さ $2a$ を測定した。ある温度と過飽和度において、 da/dt , dc/dt がそれぞれ a 及び c に逆比例するという実験事実から ($v=c/a$ は結晶の成長の過程で変化する),

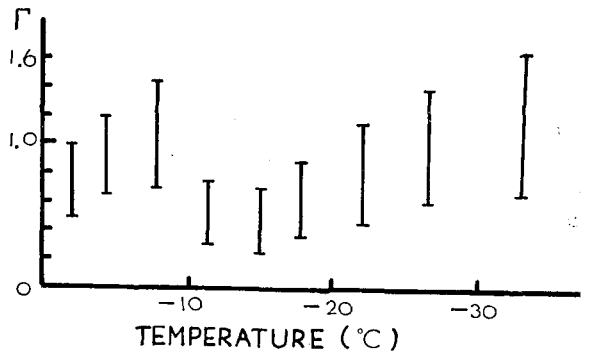
$$(2c)^2 = U_c t + a; \quad (2a)^2 = U_a t + \beta$$

とにおいて

$$\Gamma = (c/a)_{lim} = \sqrt{(U_c/U_a)}$$

を結晶習性の変化を示すパラメーターとした。これは結晶の成長過程には無関係な量になる。ある温度において過飽和度を変えてやると、 Γ はかなり散らばるが、systematic な変化は示さない。いろいろな温度において、過飽和度を変えた時に得られる Γ の最大、最小の値をとつて

図示したのが第 19 図である。 $\Gamma < 1$ は平板状の成長、 $\Gamma > 1$ は角柱状の成長傾向を表わすことに注意すれば、これは温度と結晶習性の間に相関々係の存すること、即ち $0 \sim -5^\circ\text{C}$ の間で角板状、 $-5 \sim -9^\circ\text{C}$ の間で角柱状、 $-9 \sim -26^\circ\text{C}$ の間で角板状、 -26°C 以下で再び角柱状の成長の傾向を示している。Shaw らは過飽和度の変化による Γ の systematic な変化は認められないとしているが、これは推定された過飽和度の精度そのものに疑問の余地があるように思われる。



第 19 図 (D. Shaw and B. J. Mason による)

中谷, aufm Kampe, Mason らの実験をしんしやくし乍ら、第 18 図の我々の実験結果をみると、水蒸気の拡散と昇華によつて成長する場合の雪の結晶習性としては、試行的に次

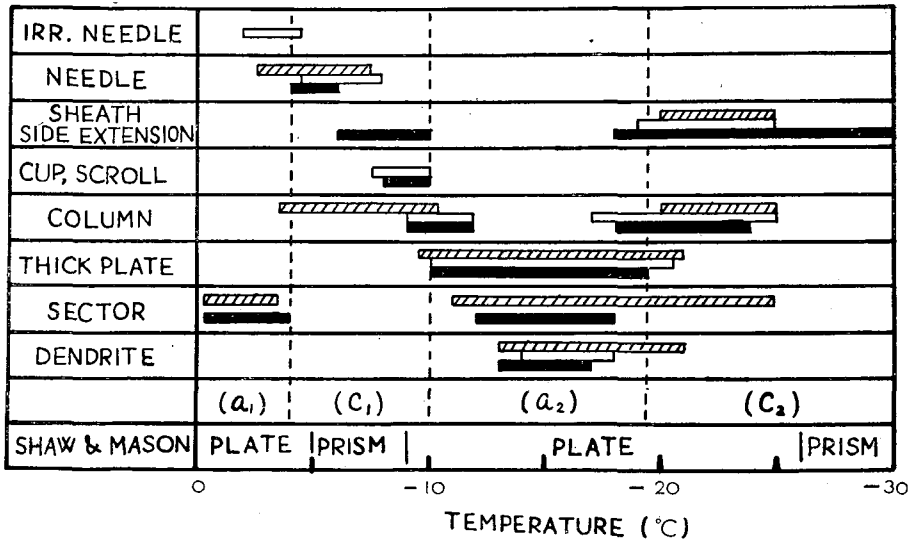
第 2 表

温度範囲	(a ₁) -4°C 以上	(c ₁) -4 ~ -10°C	(a ₂) -10 ~ -20°C	(c ₂) -20 ~ (-35)°C
成長軸方向	a	c	a	c
結晶形	角板	針 ビヨウブ型 サヤ型	(角柱) 厚角 扇樹	(角柱) サヤ型 (側面結晶)

のように考えられそうである。

第一に、結晶習性は温度によつて主軸方向への選択的成長と、 a 軸方向への選択的成長との二つの傾向に分けられる。その成長軸方向と温度との関係は第 2 表の通りである。これを仮りに主習性と名づければ、次にこれらは水蒸気の過飽和度によつてきまる成長速度に応じて第二義的な習性を現わす。例えば c_1 領域においては、過飽和度が増すに従い、角柱—コップ—サヤ型の成長を、 a_2 においては、厚角板—扇形—樹枝の成長をすると考えられる。我々の実験では角柱の観測例が少ないのであるが、角柱と厚角板の相違は c 軸方向の成長と a 軸方向の成長の比によつてきまるだけであるから、この両者は $c_1 \cdot a_2$ の境及び $a_2 \cdot c_2$ の境附近の過飽和度の小さい領域で夫々をつないでいると考えられよう。

以上の考察を要約して、我々の実験結果を中谷、aufm Kampe, Mason らの実験結果と並べて模型的に書くと第 20 図のように示される。



aufm Kampe, Weickmann and Kelly
 Nakaya and Hanajima
 Kobayashi

第 20 図

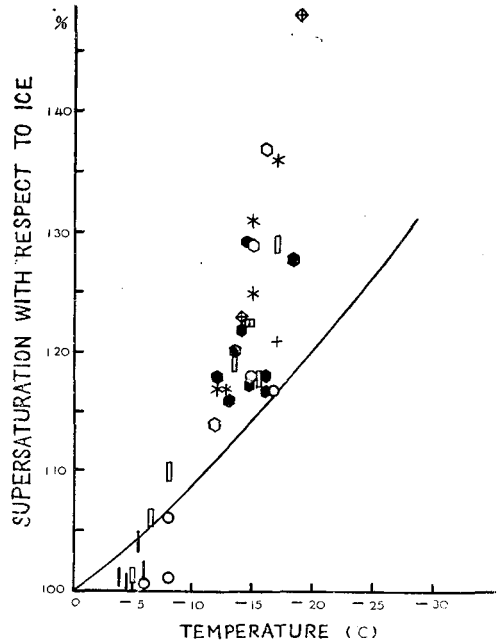
結晶が過飽和水蒸気場で拡散と昇華だけによつて成長するという条件は、実験室的のみ実現される理想的なものである。このような条件のもとでの結晶習性を先ず基本的なものと考え、この結晶習性に変更を加えるものとして、結晶の周りの水蒸気場の乱れ、aerosol の存在、空气中に混在する微量蒸気の痕跡、大気圧等の影響について、今後研究を進めて行くことが大事であろう。

VIII. 微量蒸気の影響

昨年度の実験でみられた針状及びサヤ状結晶の著しい成長が、アクリル酸樹脂の器壁に塗布した Dri-film の蒸気の影響によるものであつたことは既に述べた通りである。これは次のようにして確かめられた。拡散箱内に樹枝状或いは扇形結晶を予め作つておき、その温度及び過飽和条件のまま、Dri-film を塗つた細いガラス棒を拡散箱内に挿入してやると、樹枝や扇形結晶の縁辺からはピョウブ状、更にサヤ状の結晶が伸びはじめる。その後新たにウサギの毛を吊り下げてやると、伸びてくる結晶はことごとくサヤ状又は針状になる。

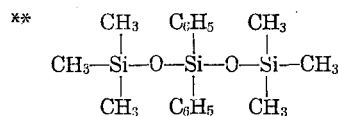
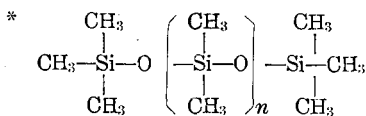
Dri-film 蒸気の外に、昨年度の実験では冷媒槽にトリクロール・エチレン(トリクレン)を使つているので、この蒸気が混入していた恐れもある。小さなシャーレにトリクレンを入れ拡散箱の底に置いて影響を調べたが、結晶習性に対する影響はあまりみられなかつた。実験結果を T_a-s diagram に示せば第 21 図の通りであるが、扇形に代つて厚角板の成長が目立っている外には、著しいサヤ状の成長といったものはみられなかつた。

Dri-film の外に、種々のシリコン・オイル、シリコン・グリース等についても実験が行なわれ 6 c.s. 以下の低粘度オイルでは、その蒸気が結晶習性に極めて大きく影響することがわかつた。



第 21 図

写真, No. 29 は、メチル系シリコン・オイル* DC 200, 3 c.s. をしませた小さな綿玉を拡散箱内に挿入した時に、あらかじめ作つてあつた樹枝状結晶の平面から垂直に伸びて来たサヤ状結晶を示す。写真, No. 30 はメチル系, KF 96, 5 c.s. (信越化学)のごく僅かの痕跡の中にウサギの毛を吊して得たサヤ状結晶で、普通なら樹枝の成長する条件で伸びたものである。写真, No. 31 はメチル・フェニール系シリコン・オイル 6 c.s.** (東芝) の綿玉を吊した中で出来たものであるが、何と名づけたらよいか誠に奇妙な形である。これも普通なら樹枝状結晶の成長する条件で伸びたもので、仮りに“木の葉状の奇形”と呼んでおく。



その他アルコール、芳香族炭化水素等いろいろの有機溶剤の蒸気についてもその影響が調べられ面白い結果が得られている。これら蒸気の氷晶の成長型への影響については、Schaefer¹⁶⁾ Vonnegut¹⁷⁾ の実験があるが、これらの場合、seeding によつて生じた氷晶の成長時間が極めて短いので、我々の実験にみられたような顕著な影響はみえていない。しかし Vonnegut の指摘しているように、これら蒸気の影響はその痕跡の量に関係してくるので、充分定量的な方法で実験を進める必要がある。この実験は中谷教授の指導によつて目下進行中であるので、別に稿を改めて報告する。

IX. 摘 要

拡散型低温箱を使つて微小な雲粒を除き、水蒸気相のみによる過飽和の中で雪の結晶を作り、その結晶習性を調べた。その結果を要約すると次の通りである。

1. 雪の結晶習性は第一義的には温度によつて支配され、結晶の成長軸方向は温度の函数として与えられる。周りの水蒸気の過飽和度は結晶の成長速度と、それにもとづく成長の型を支配するに過ぎない。結晶習性は Marshall の考えたように外部の水蒸気拡散場の条件だけできまるものではなく、結晶表面での crystallographic な問題に帰せられよう。

2. 微水滴の存在しない空気中では、水蒸気相のみによる充分大きな過飽和が実現されるので、主軸方向の成長においてはサヤ状に伸びる傾向が著しい。又樹枝状結晶はすべて扇形構造のものしか現われない。このことは真正樹枝の成長に、微小な水滴の存在が必要なことを裏書きする。

3. シリコンその他微量の蒸気が、雪の結晶習性に対して著しい影響をもつことが確められた。

雪の結晶習性とその成長が、単に温度と過飽和度によつてきまらただけでなく、微小な水滴 aerosol 或いはいろいろな蒸気の痕跡によつても影響されることは、更に恐らくは大気圧の影響等も考慮しなければならぬであろうが、これらのことは気象学的に極めて重要な意味をもつてくるので、今後の研究にまたねばならない。

この研究に当つては、北海道大学理学部中谷宇吉郎教授から多くの御教示をいただいた。又この研究に要した費用の一部は、文部省科学研究費、北海道電力株式会社委託研究費によるものである。

文 献

- 1) Nakaya, U. 1954 Snow crystals, natural and artificial. Harvard Univ. Press.
- 2) 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. J. Meteor., 8, 168.
- 3) Shaw, D. and B. J. Mason 1955 The growth of ice crystals from the vapour. Phil. Mag., 46, 249.
- 4) Marshall, J. S. and M. P. Langleben 1954 A theory of snow-crystal habit and growth. J.

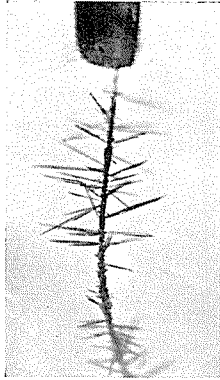
- Meteor.*, **11**, 104.
- 5) Nakaya, U. 1951 The formation of ice crystal. *Compendium meteor.*, Boston, Amer. Meteor. Soc., 215.
 - 6) 文献 1) に同じ. 249.
 - 7) 文献 5) に同じ. 215.
 - 8) Marshall, J. S. and K. L. S. Gunn 1955 A first experiment on snow crystal growth. A paper presented at the conference on the physics of cloud and precipitation particles. Woods Hole, Mass.
 - 9) 小林禎作 1956 Diffusion Cloud Chamber による雪・氷晶の生成機構の研究 (序報). *低温科学, 物理篇*, **15**, 1.
 - 10) 文献 8) に同じ.
 - 11) 中谷吉郎 1956 氷単結晶の物理. *科学*, **26**, 272.
 - 12) Nakaya, U. 1955 Snow crystal and aerosols. *Journ. Fac. Sci., Hokkaido Univ., Sapporo, Japan, Ser. II*, **4**, 341.
 - 13) Nakaya, U., J. Sugaya and M. Shoda 1957 Report of the Mauna Loa expedition on the winter of 1956-57. *Journ. Fac. Sci., Hokkaido Univ., Sapporo, Japan, Ser. II*, **5**, 1.
 - 14) Houghton, H. G. 1950 A preliminary quantitative analysis of precipitation mechanism. *J. Meteor.*, **7**, 363.
 - 15) Mason, B. J. 1953 The growth of ice crystals in a supercooled water cloud. *Quart. J. R. Meteor. Soc.*, **79**, 104.
 - 16) Schaefer, V. J. 1949 The formation of ice crystals in the laboratory and the atmosphere. *Chem. Rev.*, **44**, 291.
 - 17) Vonnegut, B. 1948 Influence of butyl alcohol on shape of snow crystals formed in the laboratory. *Science*, **107**, 621.

Résumé

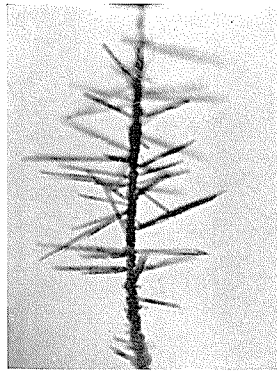
With the object of examining whether or not Marshall and Langleben's theory on the snow-crystal habit is in agreement with experimental fact, we carried out a series of experiments on artificial snow crystals by means of a diffusion cloud chamber where the cloud droplets had been previously removed. The ambient vapour density was measured by a "drop hygrometer" method.

It was found (1) that the snow-crystal habit is primarily determined not by the excess of the ambient vapour density but by the ambient temperature; (2) that snow crystals produced in aerosol-free air show tendencies to grow either in sheath form or in dendritic form with sector-like structure; (3) that the trace of foreign vapours e. g. silicone or acetone remarkably affects the snow crystal habit.

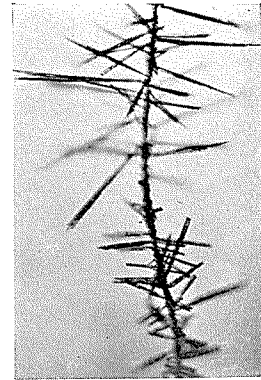
No. 3



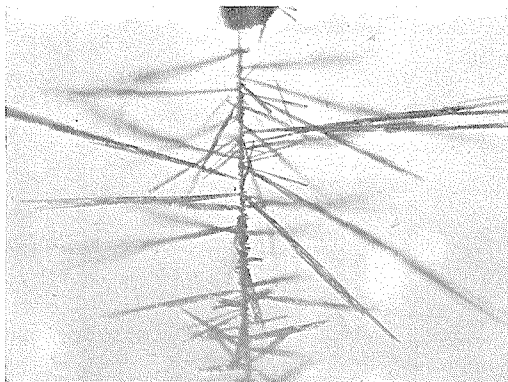
a) $t^* = 39$ min.



b) $t = 54$ min.



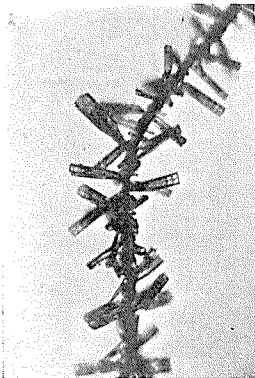
c) $t = 71$ min.



d) $t = 150$ min.

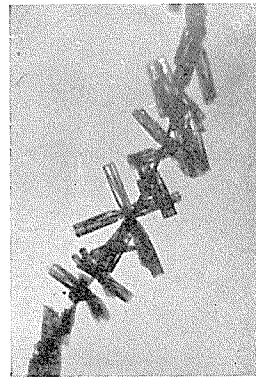
針; $\times 8.0$
 $T_a = -5.1^\circ\text{C}$
 $s = 114\%$ over ice

No. 4



サヤ型; $\times 15$
 $T_a = -6.9^\circ\text{C}$
 $s = 124\%$ over ice
 $t = 110$ min.

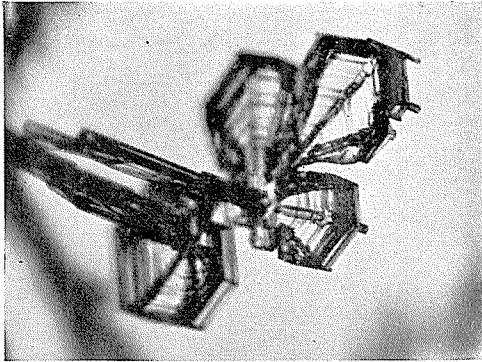
No. 5



サヤ型; $\times 15$
 $T_a = -6.4^\circ\text{C}$
 $s = 117\%$ over ice
 $t = 75$ min.

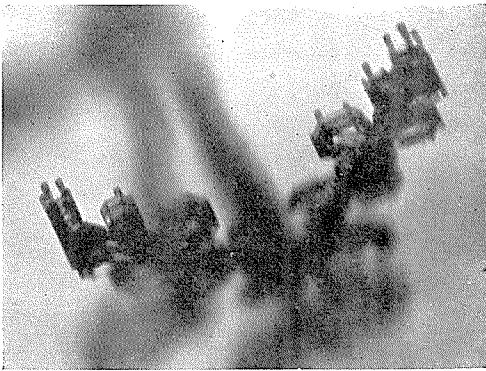
* ウサギの毛が吊り下げられてから、写真にみられる結晶にまで成長するに経過した時間。

No. 6



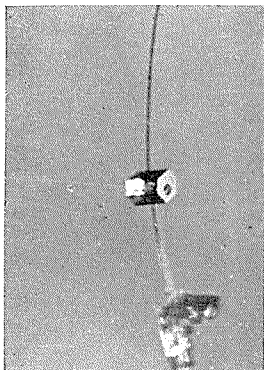
ビヨウブ状; $\times 21$
 $T_a = -4.5^\circ\text{C}$

No. 7



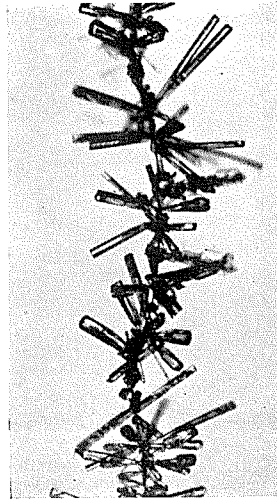
ビヨウブ状; $\times 21$
 $T_a = -5.5^\circ\text{C}$

No. 10



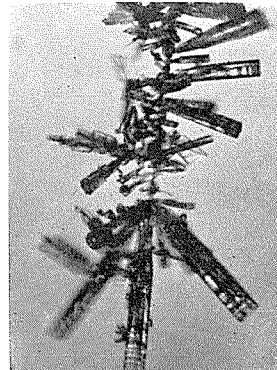
角柱; $\times 21$
 $T_a = -27.2^\circ\text{C}$
 $s = 129\%$ over ice
 $t = 16$ hr 52 min.

No. 8



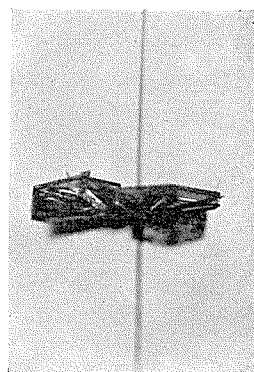
サヤ型; $\times 14$
 $T_a = -29.5^\circ\text{C}$
 $s = 117\%$ over ice
 $t = 20$ hr 26 min.

No. 9



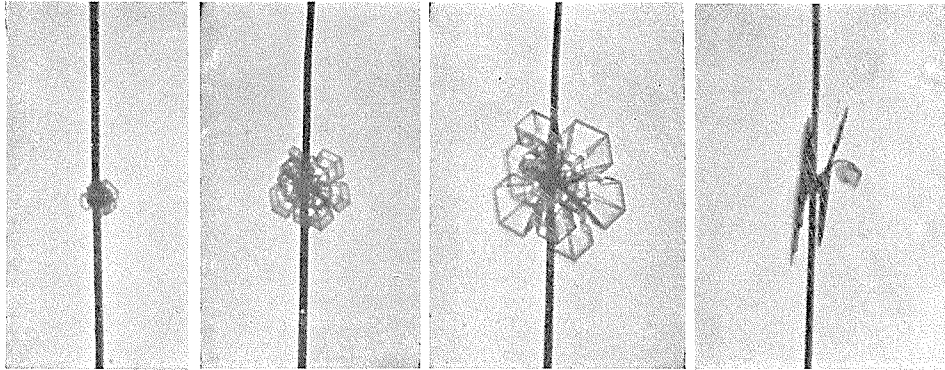
サヤ型と側面結晶; $\times 11$
 $T_a = -29.0^\circ\text{C}$
 $s = 131\%$ over ice
 $t = 16$ hr 47 min.

No. 11



厚角板; $\times 11$
 $T_a = -15.4^\circ\text{C}$
 $s = 113\%$ over ice
 $t = 15$ hr 20 min.

No. 12

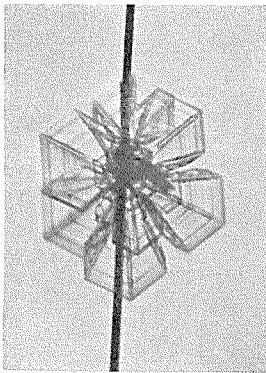


a) $t=11$ min.

b) $t=20$ min.

c) $t=35$ min.

d) $t=36$ min.



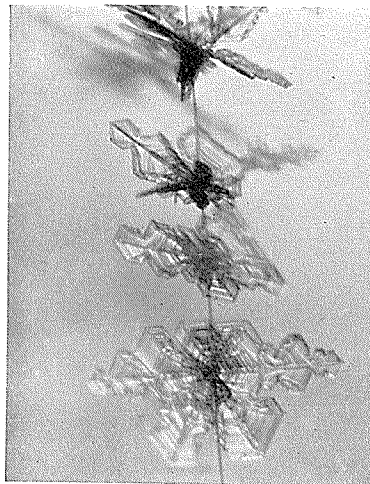
e) $t=56$ min.

扇形 (ツツミ型); $\times 22$

$T_a = -14.2^\circ\text{C}$

$s = 115\%$ over ice

No. 13



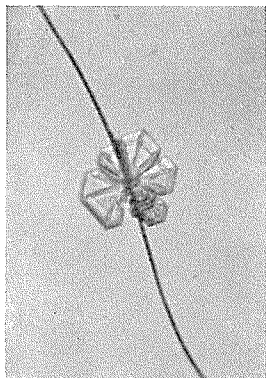
扇形; $\times 12$

$T_a = -15.6^\circ\text{C}$

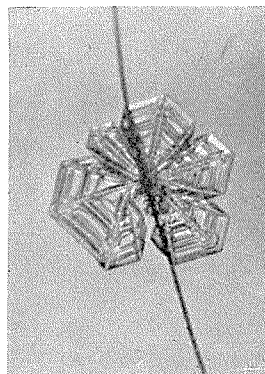
$s = 134\%$ over ice

$t = 2$ hr 19 min.

No. 14



a) $t=41$ min.

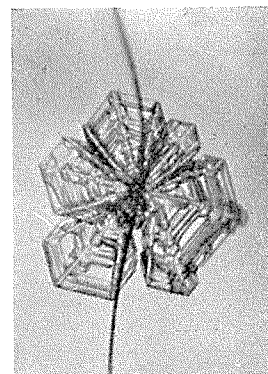


b) $t=86$ min.

扇形; $\times 20$

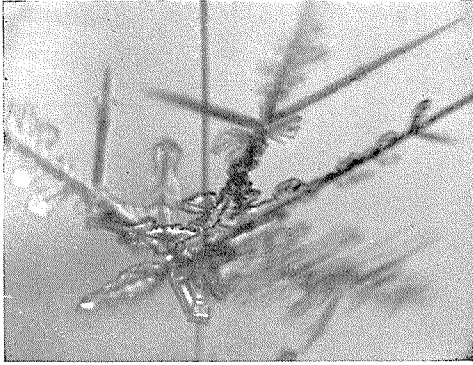
$T_a = -12.7^\circ\text{C}$

$s = 113\%$ over ice



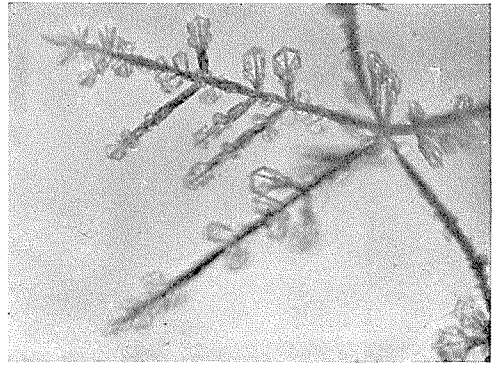
c) $t=119$ min.

No. 15



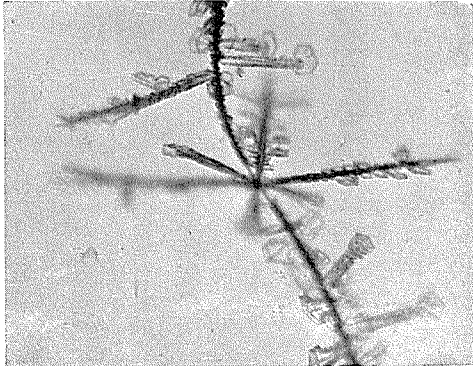
樹枝状; $\times 15$
 $T_a = -14.0^\circ\text{C}$
 $s = 134\%$ over ice
 $t = 121$ min.

No. 16



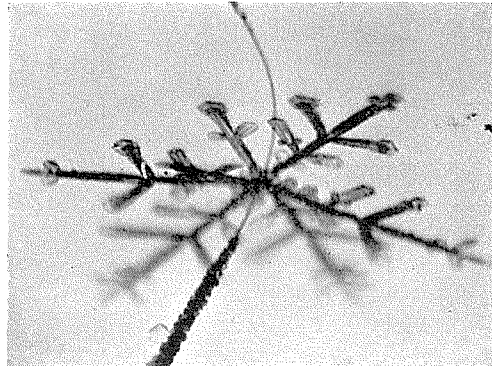
樹枝状; $\times 15$
 $T_a = -12.9^\circ\text{C}$
 $s = 131\%$ over ice
 $t = 44$ min.

No. 17



樹枝状; $\times 14$
 $T_a = -15.3^\circ\text{C}$
 $s = 133\%$ over ice
 $t = 32$ min.

No. 18

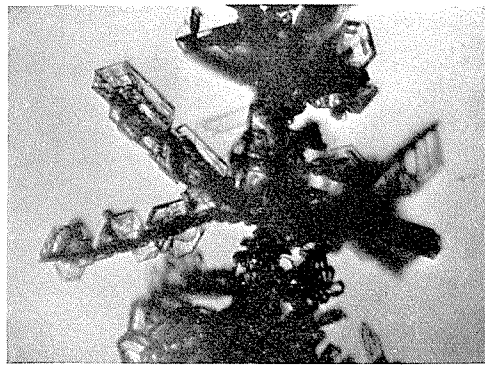


樹枝状; $\times 20$
 $T_a = \text{ca. } -14^\circ\text{C}$

No. 19

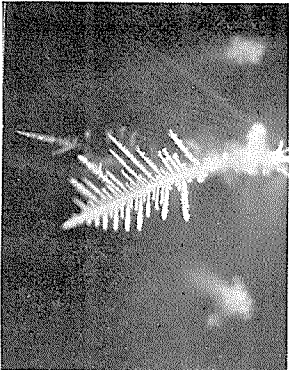


No. 21

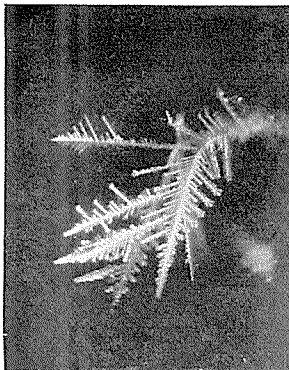


側面結晶; $\times 19$
 $T_a = -24.2^\circ\text{C}$

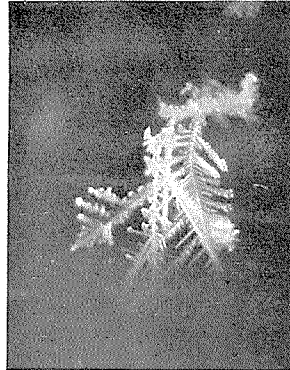
No. 20



a) Dec. 26, 1638 ×0.65

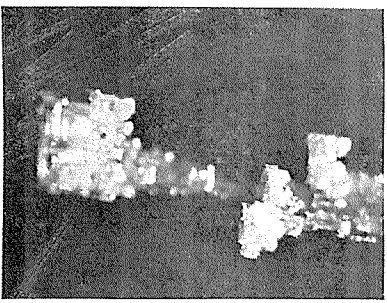


b) Dec. 26, 1815 ×0.65



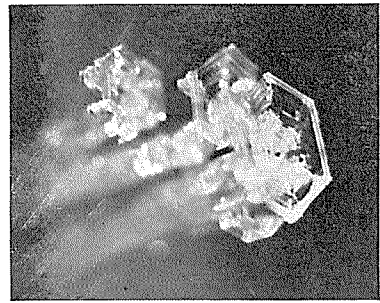
c) Dec. 27, 1120 ×0.65

No. 22



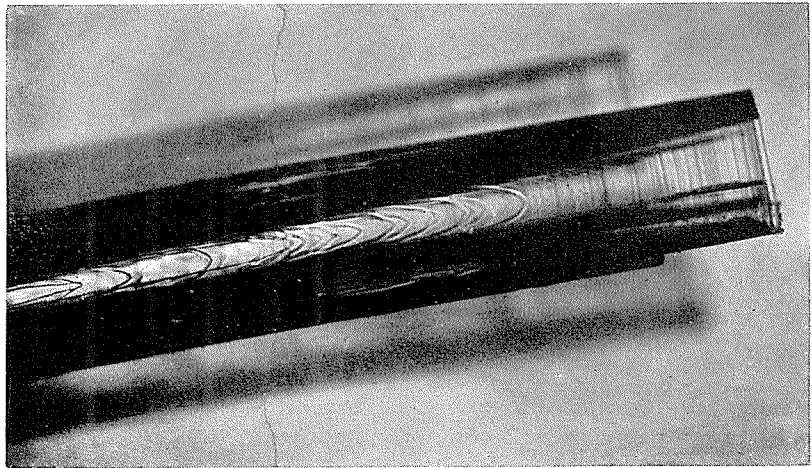
×3.5

No. 23



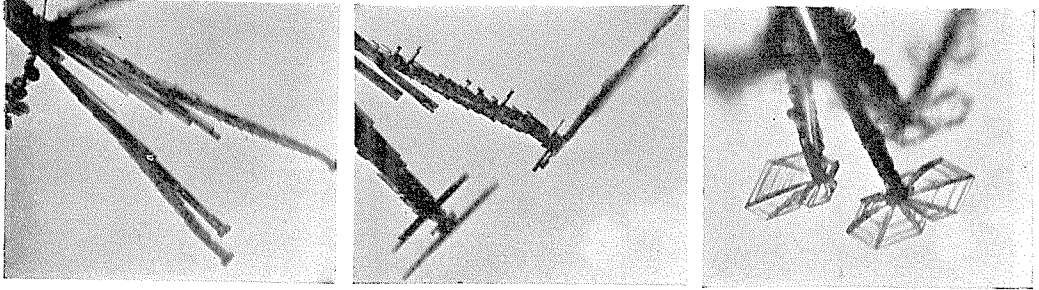
角板; ×5.1

No. 28



×22

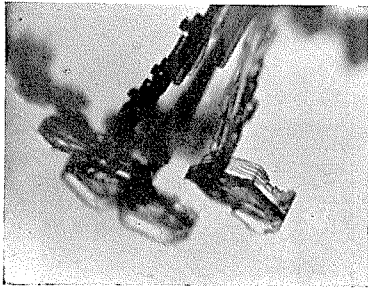
No. 24



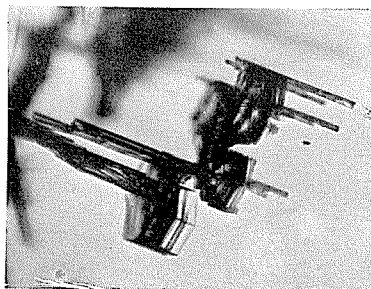
a)

b)

c)



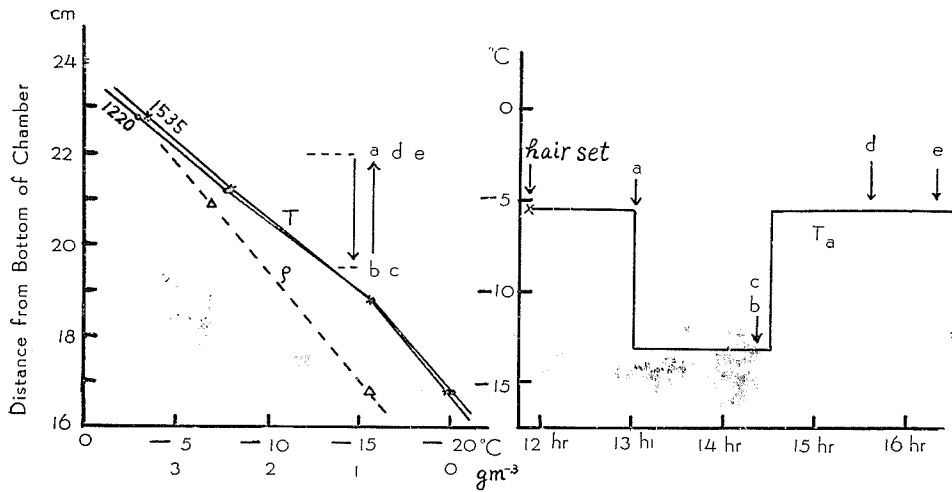
d)



e)

×12

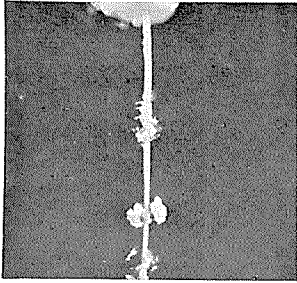
Temperature and Vapour-Density Profile



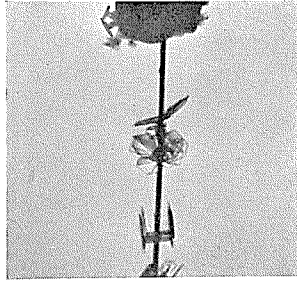
第 7 図

針→扇形→ピュウ型結晶の成長過程

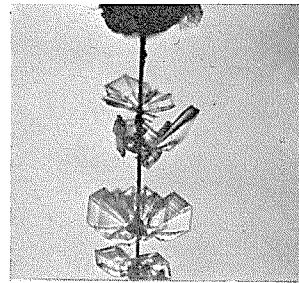
No. 25



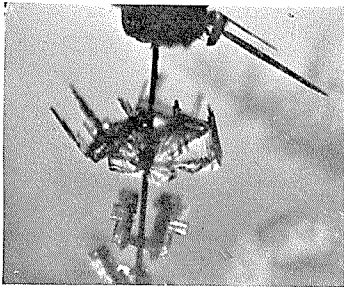
a)



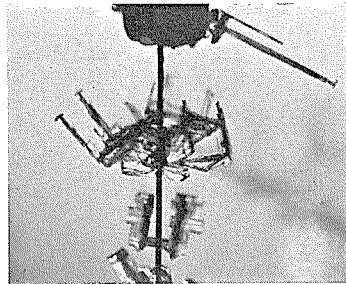
b)



c)



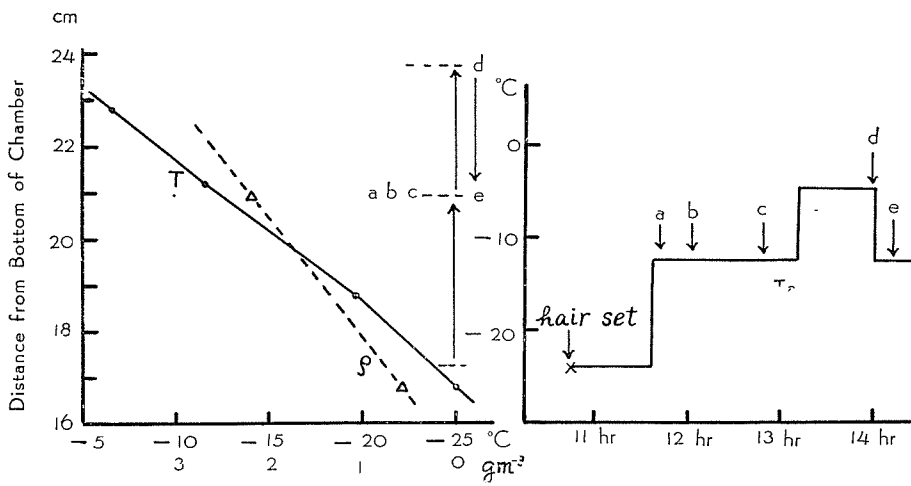
d)



e)

×12

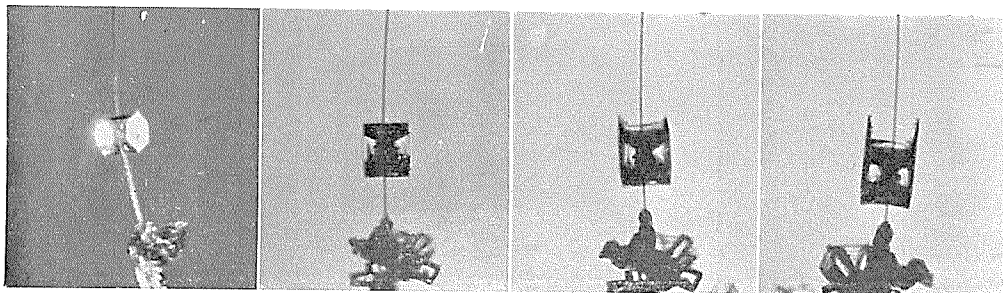
Temperature and Vapour-Density Profile



第 8 図

角柱→扇形→針→角板結晶の成長過程

No. 26

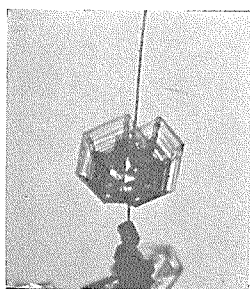


a)

b)

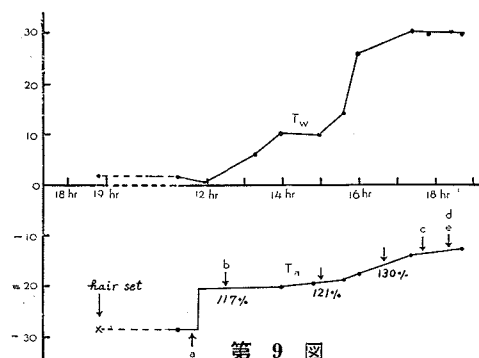
c)

d)



e)

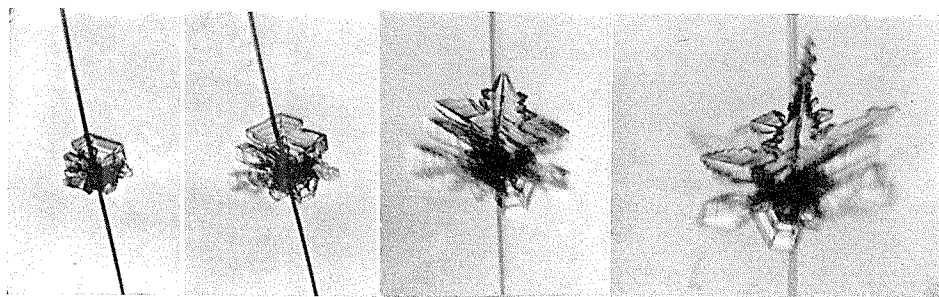
×20



第 9 図

ツヅミ型結晶の成長過程

No. 27



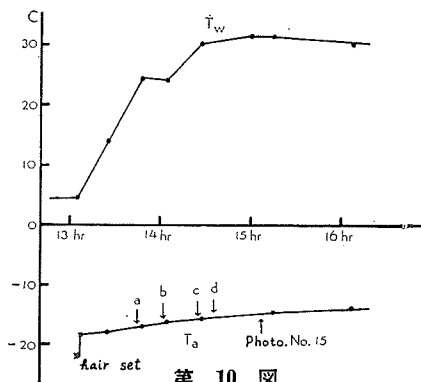
a)

b)

c)

d)

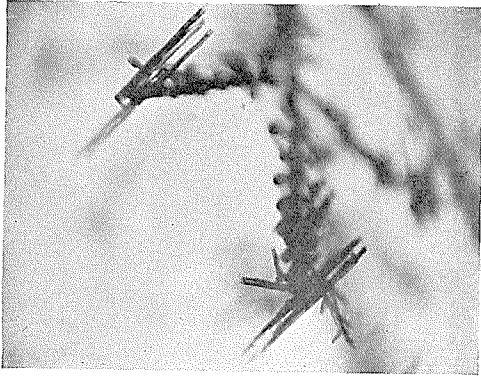
×17



第 10 図

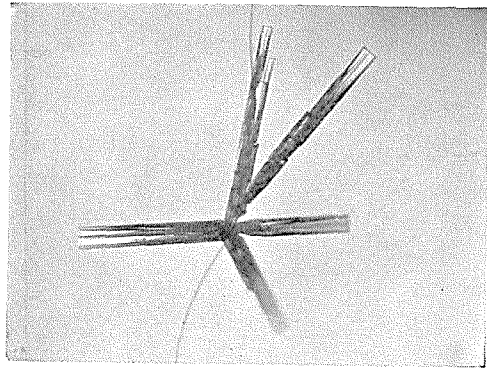
扇形→樹枝状結晶の成長過程

No. 29



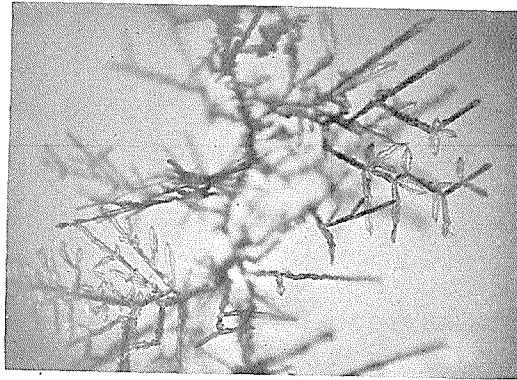
サヤ状; $\times 7.1$
 $T_a = \text{ca. } -14^\circ\text{C}$

No. 30



サヤ状; $\times 8.9$
 $T_a = -13.5^\circ\text{C}$

No. 31



木の葉状奇形; $\times 5.0$
 $T_a = \text{ca. } -13^\circ\text{C}$