



HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	霜の結晶方位
Author(s)	水野, 悠紀子; MIZUNO, Yukiko
Citation	低温科学. 物理篇, 29, 29-36
Issue Date	1972-03-30
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/18167
Type	departmental bulletin paper
File Information	29_p29-36.pdf



霜の結晶方位*

水野悠紀子

(低温科学研究所)

(昭和46年8月受理)

I. ま え が き

低温実験室の冷却管に生長した霜の結晶の結晶方位を X 線ラウエ写真法によって調べ、霜の結晶の外形と結晶方位との関係を明らかにした。中谷¹⁾は雪や霜の結晶の形と生長条件との関係を詳しく調べ、結晶の形から結晶方位を判定した。しかし、結晶の形から判定される方位には正確を期しがたいばあいがある。偏光により^{2,3)}、あるいは結晶表面に作った蝕像⁴⁾によっても結晶方位はきめられる。しかし X 線の回折による方位決定が最も確実であるといえるであろう。今までにおこなわれた X 線による結晶方位の決定は Glen と Perutz⁵⁾の樹枝状の雪の結晶に関するもの、および Mason と Owston⁶⁾ とによる冷蔵庫の冷却管に生長したコップ型の霜の結晶に関するものにと尽きるようである。

霜柱は雪や霜の結晶と違って昇華水ではなく凍結水であるが、霜柱の生長方向と結晶方位の関係については、吉田と坪井⁷⁾が X 線的に調べている。

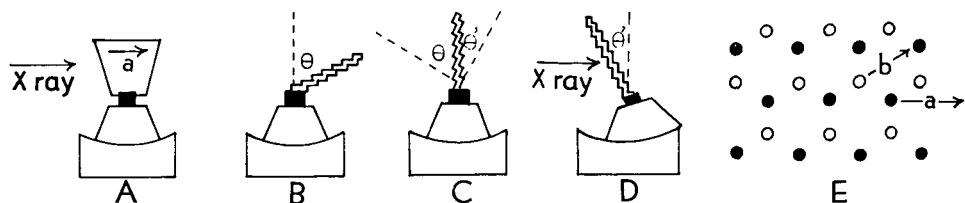
結晶方位決定の試料として用いた低温実験室の冷却管の霜は、約半年間で、さしわたし 2~3 cm に生長した結晶である。中谷の分類によれば、それらの多くはコップ型の霜に属するが、この他にも槍の穂先の形をした結晶が多数あった。これはコップ型結晶の一部とも考えられるが、ここでは、槍先形結晶として区別した。コップ型の霜の結晶には、口が六角形のもの、四角形のものがある。これら三種類の霜の結晶方位を X 線ラウエ写真法で決定した。

II. 六角形コップ型の霜の結晶方位

図版 I の写真 A は -28°C のブラインが流れる低温実験室の冷却管から下向きに生長した六角形コップ型結晶である。低温室の平均温度は -10°C であった。約半年間かかって生長した多くの結晶のうちの一つである。結晶の中には、高さが数 cm にも達する大きいものもあった。結晶は 6 枚の三角形の氷の板を側面板とする口が六角形のコップ型で、写真 A はその側面である。口は写真上方に向かって開いている。このように三次元的に複雑な外形を持つ結晶の結晶方位を調べるには、その外形と入射 X 線の位置関係をはっきりさせておく必要がある。

このコップ型結晶から 1 枚の側面板を切り取り、それを写真 A の直線 **b** に沿って安全かみそりの刃で切断した。B がその切断面の写真である。断面の形は複雑だが、模式的には第 1

* 北海道大学低温科学研究所業績 第 1137 号



第1図 A, B, C, Dは試料として使った霜の結晶の側面板の位置とX線の入射方向との関係を模式的に示す。下の台はゴニオメーターである。Eは氷の結晶の底面内の分子配列と結晶副軸との関係で、白円も黒円もO原子である。O原子とO原子とは実距離で2.75Å離れている。白円も黒円もそれぞれ一平面内において、両平面は紙面に垂直な方向に互いに0.93Åずれている

図のB, C, Dの上部に描いた細長い形として表わすことができる。1枚の側面板を、その結晶方位をラウエ写真法で決めるためゴニオメーターに取りつけた。側面板はコップ型結晶の中心線に対しある角 θ だけ傾いている。それゆえ、第1図Bのように試料として使う側面板を鉛直方向に対して θ だけ傾けてゴニオメーターに取り付けると、霜の結晶の形とラウエ写真で定められる結晶軸との関係が判りやすい。しかしこのように鉛直軸に対して傾けて試料を取り付けるのは困難である。それで第1図Cのように側面板が鉛直に立つように取り付け、X線を紙面に垂直に投射してラウエ写真を撮った。第1図Aは試料を正面から見たところである。X線を矢印の方向に投射したわけで、図版Iの写真Aでいえば、矢印aの方向にあたる。こうして得られたラウエ写真を図版IIのFに示す。ラウエ斑点の配置が、別の氷の単結晶のa軸、すなわち、 $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ と平行にX線を投射したときに得られる斑点群の配置にひとしい。これから結晶主軸のc軸 $\langle 0001 \rangle$ 、副軸のb軸 $\langle 10\bar{1}0 \rangle$ 方向が写真Fに書き入れた方向をむいていることがわかる。副軸のa軸 $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ の方向が入射X線の方向と一致することは言うまでもない。

図版Iの写真Aのように、コップ型の霜の結晶の側面には細い平行な縞がたくさん引かれている。六角形コップ型の霜の結晶では、この縞の方向がa軸の方向である。この縞模様は側面板の内部構造によるものではない。写真Bに示した側面板の切断面からも明らかのように、表面が階段状に屈曲していることによるものである。階段の高さと幅は、個々の霜により、また、同一の霜でも場所によって異なるが、各々の階段は結晶学的に一続きのものである。写真Bでは、左側がコップの内側であり、右側が外側である。コップの内側は外側よりも表面の屈曲が規則的である。これは、水蒸気の供給や、潜熱の放出が、外側面に比べて規則的におこるためと考えられる。側面板の縞に直角な方向の生長は、b軸方向と、c軸方向の生長の合成である。側面板の傾斜が急な深いコップができるか、傾斜がゆるやかな浅いコップができるかは、この2方向の生長速度の比率によるといえる。

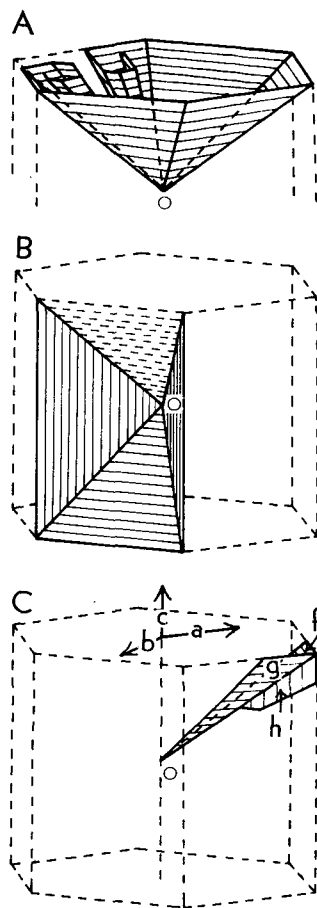
コップ型霜の結晶の中心線に対する側面板の傾き θ は、正確にはきめられない。中心線の方が多少あいまいだし、側面板は表面が平らな板ではないからである。しかし、明確な値ではないにせよ、この θ は、図版II写真Fに示した角度 θ' 、すなわちb軸 $\langle 10\bar{1}0 \rangle$ の鉛直線に対する傾き角の余角に一致する。それで、第1図Dのように側面板を θ' だけ傾けてもう一度側面板の縞と平行にX線を入射してラウエ写真をとった。それが図版IIの写真Gである。この位置では、側面板のc軸、すなわち、結晶主軸 $\langle 0001 \rangle$ の方向が水平になっているはずであ

る。それでこの水平になったはずの主軸が確かに主軸であることを確かめるために、ゴニオメーターを鉛直軸のまわりに90°回転してラウエ写真をとった。つまり、第1図Dの矢印の方向にX線を入射させた。このばあいのラウエ写真が図版II Hである。六方対称配置のラウエ斑点群からこのときの入射X線の方向がc軸の方向であることがわかる。第1図Dのばあい側面板を同図Cの位置から左にθ'だけ傾ける代わりに右にθ'の余角θだけ傾けて矢印の方向にX線を投射すると、入射線の方向はb軸方向と一致する。こうしてとったラウエ写真が写真Iである。

写真F, Gではラウエ斑点が長い。これはX線が側面板の中を側面板の面に平行に通過したからである。つまりX線の側面板内通過距離が長く、1 cmほどもあったからである。写真H, Iのばあいは、X線が側面板を貫く方向に通過した。それゆえ、側面板内通過距離が0.5 mm以下にすぎず、ラウエ斑点は小さい円となった。

六角形コップ型結晶の中心線と側面板との間の角θは霜の結晶ごとにちがう。そして角θの異なる数個の結晶を調べた結果も、みな上に述べたのと同じであった。以上の結果を次のようにまとめることができる。六角形コップ型の霜の結晶は、6枚の二等辺三角形の氷の板を側面板とする底が尖った壺の形である。側面板の表面は平らではなく階段状にうねっている。しかし側面板どうしは、結晶学的に一続きのものである。つまり1枚の側面板のc軸方向は他の側面板のc軸と平行であり、二つの副軸a, bについても同様である。なお、この関係が側面板どうしの接合部でもなりたっていることをラウエ写真をとって確かめた。結局、六角形コップ型結晶の全体が1個の単結晶であり、その結晶主軸はコップの中心線の方向と一致するといえる。ここに中心線とは、六角形のコップの口の中心点と尖った底を結ぶ線である。したがってa軸<1120>方向に平行なコップの口の各辺とコップの中心線とに直角な方向がb軸<1010>方向となる。

実際には六角形コップ型結晶は、今まで述べてきたような完全な形をしているとは限らない。むしろ第2図Aのように側面板の1枚が螺旋状にまきこんだ結晶、または、6枚の側面板のうち2枚か3枚が欠けているものの方が多い。しかし、どちらのばあいも、結晶全体が1つの単結晶である。螺旋状にまきこんだ側面板の部分でも、その中心線がc軸と一致しているのではなく、c軸の方向はコップ自体の中心線に平行である。



第2図 霜の結晶の結晶軸。A: 六角形コップ型結晶, B: 四角形コップ型結晶, C: 槍先形結晶

III. 四角形コップ型の霜

冷却管に生長したコップ型霜には、今まで述べて来た六角形コップ型の結晶が非常に多いが、図版 I の写真 C, D, E に示したような四角形コップ型結晶も見られる。完全な四角形コップ型結晶は、二等辺三角形の氷の板を 4 枚組み合わせてコップの形にしたものである。口の形は矩形である。しかしこのような完全な結晶は少ない。たいていは 4 枚の側面板のうち、1 枚が欠けてコの字形になっているか、2 枚欠けて鍵形になっている。写真 C 左上四半分に斜め左上にむけてコの字形の口を開いた結晶が見える。下側の側面板が欠けた結晶である。その右どなりには口が鍵形の結晶が寄りそっている。写真 D はコの字形結晶を正面から見たところである。コの字の一方の腕が壊れおちている。E は口を手前にむかって開いたたくさんの四角形コップ型結晶の集合である。右上の隅には辺の長さが 2 mm ないし 3 mm の矩形の口が 2 個ならんでいる。写真の上ではそれとはっきり見わけにくいけれども、ほかのところにある矩形もみな四角形コップ型結晶の口である。側面板には、六角形コップ型結晶の側面板と同様、コップの縁と平行な縞模様がみえる。

前の節で述べた六角形結晶にも完全なものはほとんどない。つまり 6 枚の二等辺三角形の氷の側面板を組み合わせた形のものはなく、1 枚、2 枚あるいは 3 枚の側面板が欠けている。

しかし、前の節では、説明の便宜上、六角形コップ型結晶を完全な結晶と考えて話を進めた。この節でも四角形コップ型結晶を完全な形のものとして取扱う。六角形コップ型結晶については Mason と Owston⁶⁾ とが X 線を使って結晶方位を決定し、前の節で述べたことと矛盾しない結果を得ている。しかし四角形コップ型結晶の方位を X 線によって決めた例はいままでにないようである。

四角形コップ型の結晶から直角に交わる相隣る側面板を別々にとり外した。一方の側面板を甲とし、それに直角に交わっていた他方の側面板を乙としよう。まず甲の側面板を第 1 図 C のようにゴニオメーターに取り付け、同図 D のようにコップ型結晶の中心線と側面板との間の角の余角 θ' だけ傾けてから、板の縞と平行に X 線を投射した。側面板と投射 X 線との関係は第 1 図 A のとおりである。こうしてとった写真が図版 II の J である。これから甲の側面板の縞の方向が、結晶主軸の c 軸であることがわかる。また写真 J の x, y の方向は、側面板乙の縞の方向であるが、ラウエ斑点はこの方向が a 軸方向であることを示している。ついで乙の側面板をゴニオメーターにとりつけたあと、第 1 図 D のようにコップの中心線と側面板との間の角 θ' だけ傾けた。このばあいの角 θ' は、側面板甲の角 θ' とは必ずしも同じではない。この位置で側面板の縞の方向に X 線を投射して得た写真が K である。写真の面に直角な方向が側面板乙の縞の方向であることはいうまでもないが、上下方向はコップ型結晶の中心線方向であり、左右の方向は側面板甲の縞の方向と一致する。写真に書き入れてあるように、この写真のラウエ斑点の配置から、紙面に直角な方向が a 軸 $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ の方向、上下方向が b 軸 $\langle 10\bar{1}0 \rangle$ の方向、左右の方向が c 軸 $\langle 0001 \rangle$ の方向であることがわかる。

以上のことから四角形コップ型結晶も六角形コップ型結晶と同様に、全体が 1 個の単結晶であることがわかる。しかし結晶軸の方位は両種の型で一致しない。六角形コップ型結晶で

は、コップの中心線の方向が c 軸の方向であったが、四角形コップ型結晶では b 軸の方向がコップの中心線の方向と一致する。そして、四角形コップ型結晶の互に向かい合う 2 組の側面板のうち、ひと組では、縞の方向が c 軸の方向であり、他の組では縞の方向が a 軸の方向である。六角形コップ型結晶のばあいと同様、四角形コップ型結晶のばあいも、数個の結晶について上のことを確かめた。

以上六角形コップ型結晶と四角形コップ型結晶とについて得た結果は、破線で書いた第 2 図の氷の六角柱結晶によって考えると理解しやすい。 a 軸、 b 軸、 c 軸の方向は同図 **C** に示した通りである。六角形コップ型結晶は、六角柱結晶が主軸方向に骸晶として生長をしたものといえる。また四角形コップ型結晶は、第 2 図 **B** に示したように、六角柱結晶の側面の 1 つが骸晶型の生長をしたものといえることができる。

IV. 槍先形の霜の結晶

六角形コップ型結晶、四角形コップ型結晶が生長していた冷却管には、これらの他に図版 II の写真 L のような槍の穂先の形に見える霜の結晶がたくさん見つかった。この種の結晶が一番多いともいえる。しかし、この槍先形の結晶は一枚の細長い氷の板ではない。たての方向に見ると、鈍角で交わる 2 枚の氷の板であることがわかる。写真 L ではこの 2 枚の板に **f** と **g** との記号がついてある。板 **f** にも **g** にも縞が見えるが、それぞれの縞の方向は互いに 120° の角度をなしている。X 線写真で調べたところ、どちらの縞の方向もともに a 軸方向と一致した。また両方の板の c 軸の方向は互いに平行であった。このことから槍先形結晶は、六角形コップ型結晶から相隣る 2 枚の側面板だけをとりだし、両側面板の交線の両側に細い帯だけを残して他の部分を切り捨てたものと同じであることがわかる。

写真 L にばんやり写っている **h** の印をつけたのは、氷の板 **f** と **g** との交線から斜め上手前に向かって広がる氷の板である。槍先形結晶には、この氷の板 **h** があるものとないものがある。板 **h** にも、書き入れた矢印の方向に縞があって、その方向が c 軸方向と一致することがラウエ写真によって判明した。板 **h** の a 軸方向もラウエ写真で定めた結果、板 **h** のついた槍先形結晶は、第 2 図 **C** のように、六角柱骸晶を、その中心と 1 つの頂点とを結ぶ線にそって細長く切りとったものと同じであることがわかった。写真 L の氷の板 **f**, **g**, **h** はそれぞれ第 2 図 **C** の **f**, **g**, **h** 面に対応する。

氷の板 **h** をその縞に直角に安全かみそりの刃で切断した。図版 II の写真 M が切断面の一部である。この写真から、板 **h** が c 軸方向に伸びた直径 1 mm ほどの細長い氷の六角柱が側面で連結し合ったものであることがわかる。連結した六角柱の対応する側面は平行であるが、互いにずれているから、板の表面は階段状にうねっている。これが縞として見える。このばあいには、写真 B の六角形コップ型結晶の側面板の切断面と違って、内部構造がある。相隣る六角柱の境界が見えるばかりか 1 本の六角柱の中にも年輪状の構造がある。しかし、この内部構造は板を切断したからこそ初めてみえるようになったのであろう。氷の板 **h** の縞模様は、この内部構造によるものではなく、板の表面の階段状のうねりによるものである。

前に述べたように、四角形コップ型結晶の側面板には縞の方向が c 軸と一致する甲種と方

向が a 軸と一致する乙種とがある。甲種は上記の氷の板 h と同じ性質のもの、乙種は六角形コップ型結晶の側面板と同じ性質のものと考えられる。安全かみそりでの氷の板の切断には失敗が多く、四角形コップ型結晶の側面板の切断には成功しなかった。しかし甲種の側面板の切断面は写真 M と同じで、乙種の側面板の切断面は写真 B のとおりであると考えて間違いはないと思う。

V. ま と め

低温実験室の冷却管に生長した六角形コップ型、四角形コップ型および槍先形の霜の結晶の結晶方位を X 線ラウエ写真によって調べ、結晶の外形と結晶方位との関係を明らかにした。その結果は第 2 図のように、氷の六角柱結晶と関連させて考えると理解しやすい。同図 A は六角形コップ型結晶を示している。本文では始めのうち、説明の便宜のために六角形コップ型結晶を 6 枚の二等辺三角形の氷の板で組立てられた完全な結晶と考えた。しかし、実際の六角形コップ型結晶には、第 2 図 A のように 1 つの側面板に裂目がはいり、裂目の縁が螺旋状に内側にまきこんだものが多い。側面板に書き入れた線は、結晶の側面板に見られる縞を表わす。六角形コップ型結晶ではこの縞が a 軸方向と一致し、 c 軸はコップの中心線の方向である。そしてコップ全体が 1 個の単結晶になっている。図のように 1 枚の側面板が螺旋状に巻きこんでいるばあいでも、この巻きこみ部分を含んだままで全体が 1 個の単結晶を形成する。したがって、巻きこみの部分でも c 軸の方向はコップの中心線の方向と一致している。巻きこみ部分の中心線が c 軸の方向をむいているわけではない。

四角形コップ型結晶は互いに向かい合う 2 組の側面板のうち、ひと組は縞の方向が c 軸の方向であり、他の組では a 軸の方向である。

これは第 2 図 B に示したように、六角柱結晶の柱面の 1 つが該晶型の生長をしたものであるといえる。四角形コップ型結晶のコップの中心線の方向は b 軸 $\langle 10\bar{1}0 \rangle$ の方向である。この形の結晶も、六角形コップ型結晶と同様、全体が 1 つの単結晶である。

槍先形の結晶は、第 2 図 C に示したように f , g , h の 3 枚の氷の板が交わったものである。氷の板 h が欠けたものもある。氷の板 f と g とでは縞の方向が a 軸方向に、 h では c 軸方向に走っている。このことから、槍先形結晶は、図のように、六角柱結晶の中心と 1 つの頂点とを結ぶ線に沿って、該晶を細く切り取った形のものといえる。

終りに、この報告を書くにあたっては、吉田順五教授の御指導をうけた。ここに感謝の意を表します。

文 献

- 1) Nakaya, U. 1954 Snow crystals, natural and artificial. Harvard Univ. Press, 504 pp.
- 2) Magono, C. and Suzuki, S. 1967 A study on crystal axes of snow crystals with complicated shapes, utilizing a polarization microscope. *J. Fac. Sci. Hokkaido Univ., Ser. VII.* **3**, 27-35.
- 3) Magono, C. and Sasaki, H. 1970 On the optical axes of snow crystals of the side plane types. *J. Fac. Sci. Hokkaido Univ., Ser. VII.* **3**, 267-275.

- 4) 黒岩大助 1966 雪の結晶の腐蝕. 低温科学, 物理篇, **24**, 57-80.
- 5) Glen, J. W. and Perutz, M. P. 1954 The growth and deformation of ice crystals. *J. Glaciol.*, **2**, 397-403.
- 6) Mason, B. J. and Owston, P. G. 1952 Ice crystal of spiral form grown from the vapour. *Phil. Mag.* **43**, 911-912.
- 7) Yoshida, U. and Tsuboi, S. 1929 Examination of ice crystals by X-rays. Memories of the College of Science Kyoto Imperial Univ. Ser. A **12**, 203-208.

Summary

The author studied by X-ray Laue photography the crystal orientations of hoar crystals growing on the cooling pipes of a cold room. Three types of crystals were found, namely, hexagonal cups, rectangular cups and those looking like a dagger. By examining parts of the crystals separately, she could find how the crystallographic axes are oriented with respect to external forms of the crystals.

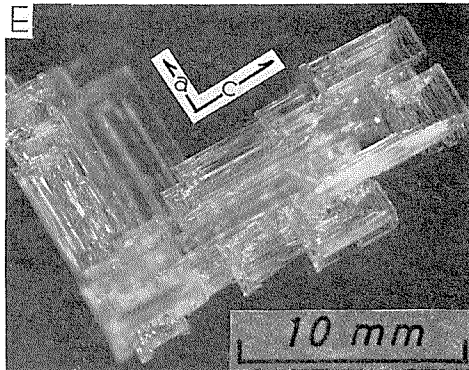
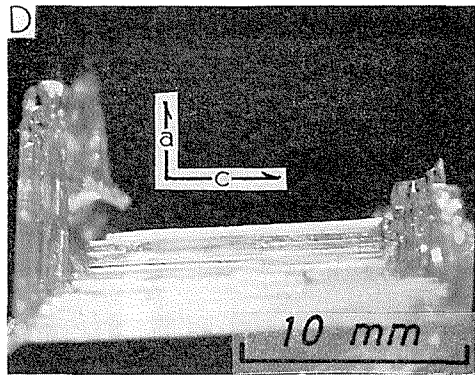
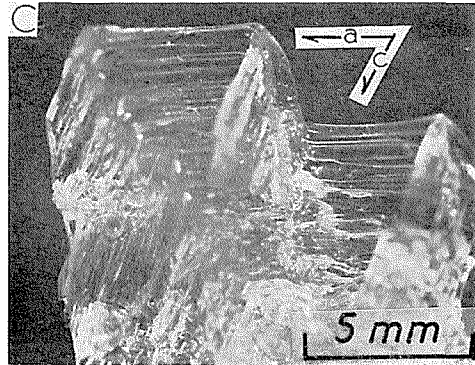
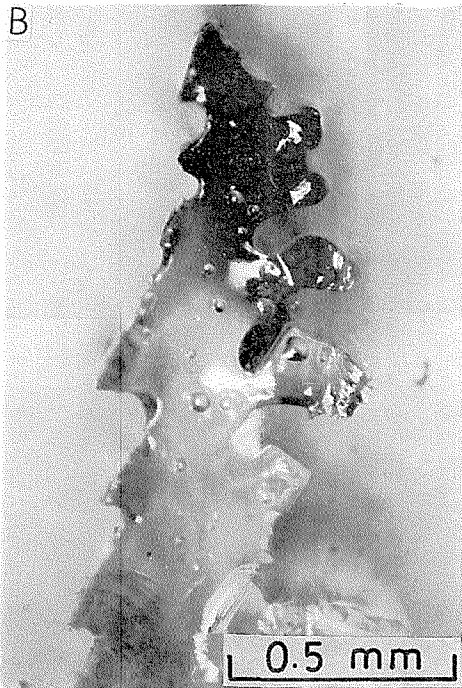
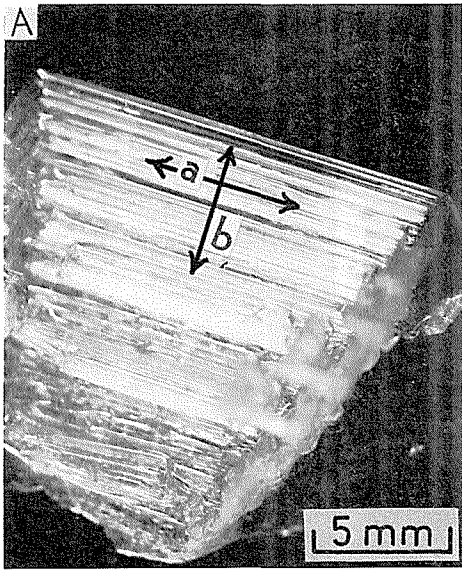
If grown perfectly, the hexagonal cup crystal would be six triangular ice plates so combined as to make a cup-like shape with a hexagonal mouth, but, in most of the actual crystals two of the triangular side plates curl inwardly as illustrated in Fig. 2 A of the text. Photograph A of Pl. I is the side view of a hexagonal cup crystal with its mouth opened upward; side plates of the crystal are striped parallel to edges of the mouth. She cut one of the side plates with a razor perpendicular to the stripes and got the section as shown in Photo. B of Pl. I. A perfect rectangular cup crystal is composed of four triangular ice plates, but one or two of them are lacking in most of the actual crystals as will be seen from Photos. C, D and E. In these photographs the arrows marked a and c indicate the directions parallel to the edges of the rectangular mouth of the crystals. As will be mentioned later, the crystallographic axes a and c of the crystals lie along arrows a and c respectively. Photograph L of Pl. II shows the tip of a dagger-like crystal. The striped ice plates **f** and **g** do not lie in a plane but meet at an obtuse angle. The stripes on plate **f** make exactly an angle of 120° with those on plate **g**. Ice plate **h** vaguely seen in the photograph stands outward on the meeting line of plates **f** and **g**, bisecting the wider angle between them. Photograph M is the section of plate **h** cut by a razor perpendicular to the stripes on its surface. This section shows that plate **h** has such an internal structure as composed of hexagonal rods linked together side by side, whereas the side plates of hexagonal cup crystal are internally structureless as seen from Photo. B of Pl. II. Some of the dagger-like crystals lack plate **h**.

The author determined by X-ray Laue photography the crystallographic axes of the ice plates separated from many hoar crystals of each type and obtained the following results.

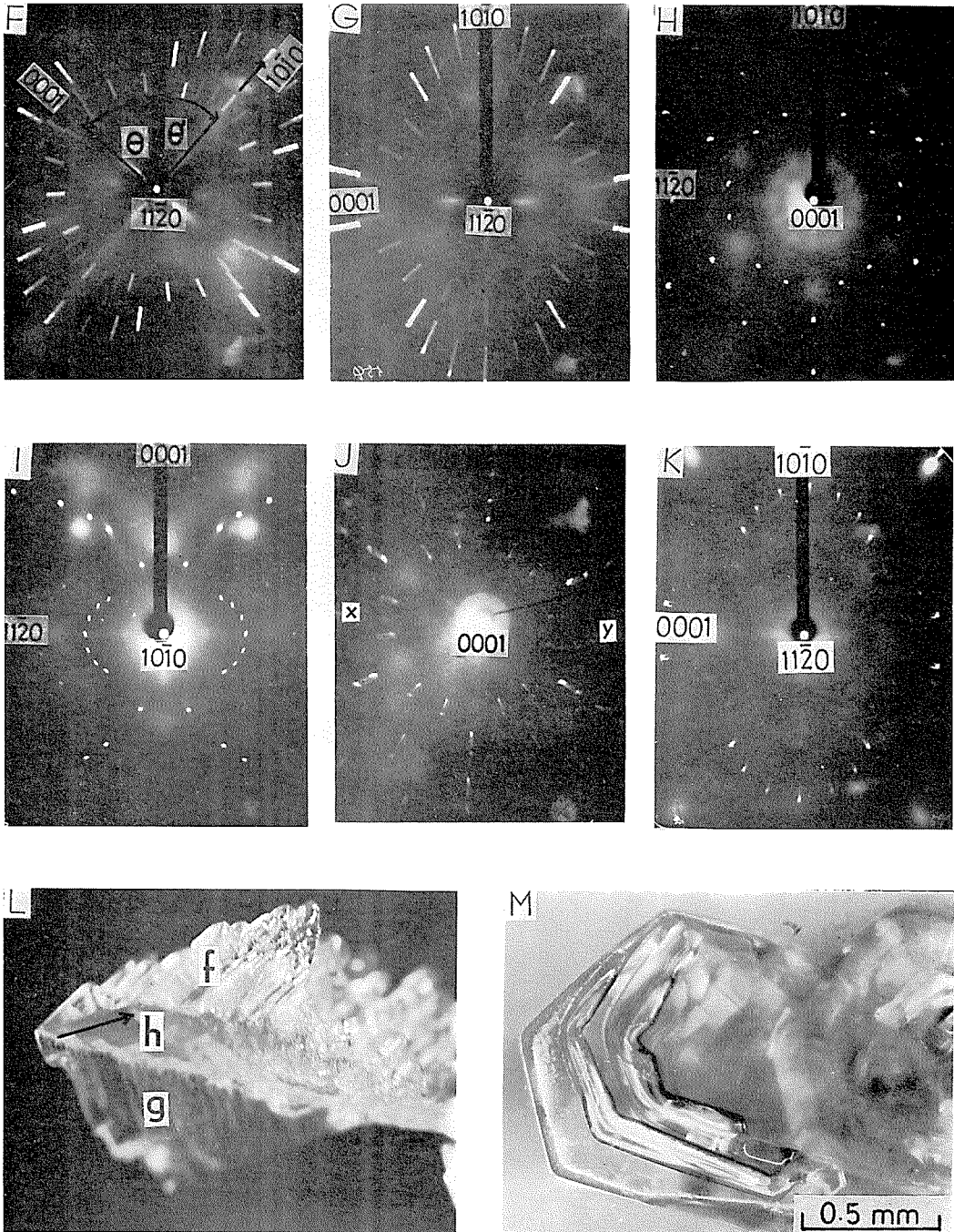
The relationship between the external forms of hoar crystals and their crystallographic axes will most easily be recognized by the aid of hexagonal columnar skeleton of snow crystal represented by broken lines in Fig. 2 of the text. An individual hoar crystal belonging to any of the three types constitutes by itself a single crystal. The central axis of hexagonal cup crystals is the same as the crystallographic c-axis in direction while the edges of the mouth of the crystal, consequently the stripes on its side

plates, lie parallel to the a-axis. Even in the curled parts of the side plates the c-axis is directed along the central axis of the cup.

In the case of rectangular cups she found that one pair of edges of its rectangular mouth facing opposite to each other is parallel to the c-axis while the other pair lies in the direction of the a-axis. It was also shown experimentally that the central axis of rectangular cup crystals is directed parallel to the b-axis. Therefore, the rectangular cup crystal can be said to be a hexagonal columnar skeleton developed only on one of its prismatic planes as illustrated in Fig. 2 B. The stripes on ice plates **f** and **g** of the dagger-like crystal shown in Photo. L of Pl. II lie along the a-axis while those on plate **h** are parallel to c-axis. As shown in Fig. 2 C the dagger-like crystal is a hexagonal columnar skeleton developed along the line connecting its central point to one of its apexes. Both plates **f** and **g** are the same as those composing a hexagonal cup crystal while **h** is of the same nature as those side plates of a rectangular cup crystal whose stripes are directed parallel to the c-axis.



A: 六角形のコップ型結晶の1側面。
 B: 写真Aの矢印**b**に沿って側面板を切った断面。左がコップの内側、右が外側である。
 C, D, Eは四角形コップ型結晶。C: 4枚の側面板のうち1枚が欠けて口がコ字になった結晶を斜め上から見たところ。D: 2枚の側面板が欠けて口が鍵になった結晶の破片。E: 小さい四角形コップ型結晶の集合。コップの口は手前に向かって開いている。矢印a, cはそれぞれa軸, c軸の方向を示す



F, G, H, I: 六角形コップ型結晶のラウエ写真。J, K: 四角形コップ型結晶のラウエ写真
(X線管球対陰極: Cu, 電圧: 30 Kv, 電流: 15 mA, フィルム試料間: 5 cm, 露出: 40分)

L: 槍先形の霜の結晶。氷の板 **f** と **g** とはそれぞれ縞の方向が互いに 120° をなすように交わっている。これらの面の縞の方向はいずれも a 軸方向である。氷の板 **h** はその縞の方向が c 軸の方向である。

M: 氷の板 **h** をその縞に直角に切断した面