

“中谷現象”としての人工雪の生成 The formation of artificial snow crystals as "Nakaya effect"

油川英明 (NPO 法人 雪氷ネットワーク)

Hideaki Aburakawa (NPO : Network of Snow and Ice Specialists)

1. はじめに

本小論は、中谷¹⁾に始まり Hallett and Mason²⁾ や Kobayashi³⁾などによって展開されてきた人工雪について、それが天然の降雪現象とは相容れないものもあることから、ここに「中谷現象」として特化し、総称することを提唱するものである。

中谷は「雪の研究」¹⁾の“緒言”において「雪は低温に於いて水蒸気が或る種の核に昇華作用によって凝縮した氷の結晶である」と述べ、また、その“結語”においては「本研究に於て得られた最大の結果は、天然に観測される雪の結晶の全種類が、低温実験室内で人工的に製作され、その各々の結晶の生成条件が確かめられたという点である。(中略)雪の結晶の形及び構造を決定する要素は、第一に気温、次に過飽和度であることが、実験的に略々確認された。(以下略)」と述べている。

これは、霜そして雪の結晶が水蒸気から昇華成長するということをアプリアリに取り入れた実験の結果によるもので、本来はその昇華成長をこそ実証することから始められるべきであったと考えられる。また、人工雪の作製条件が天然の降雪現象に対して直接的に普遍化されたわけであるが、これについてもまずは天然の現象に則して検討が行われるべきではなかったかと疑念が感じられるところである。

中谷は、人工雪の成功が余りにも画期的であったことから、上記のことについては特段にとらわれることなく、地上の雪結晶を観察すれば上空の気象は人工雪から推しはかることができるとして、「雪は天から送られた手紙である」という印象的な名言を生み出すことになった。しかし、人工雪作製の条件、特に過飽和度ということは天然にはおよそ存在しない現象であり、また、雪結晶が昇華成長ではなく、過冷却微水滴(雲粒)から液相成長するものであることが認められた⁴⁾ことから、本小論においてはそれらの関連についても触れることとする。

2. 中谷ダイヤグラムの特徴

図1は、人工雪の成長条件を示した中谷ダイヤグラム⁵⁾である。このダイヤグラムの特徴は、ほとんどの雪結晶が過飽和(水に対して)の水蒸気量により成長すること、その過飽和度には上限があること、結晶の基本的な形態は温度によりドラスティックに変化し、かつ一義的に決定されること、等々である。しかし、これらのことは天然とは必ずしも一致しない現象であり、特に過飽和が現実に存在しないことは Tazawa and Magono⁶⁾による雪雲の直接観察からも明らかである。

このようなことから、中谷ダイヤグラムに示されていることは人工雪の作製実験に特有なこととし、ここではそれを「中谷現象」として、天然とは異なる特別な現象とみなすことが必要であると考えられる。

雪雲は一般に、地表や海面からの水蒸気を含む空気塊が上昇・降温することにより形成されるが、その空気塊が飽和を超えたとき、氷点下であっても直接に固相の氷球

や氷晶に相変化するよりも、過冷却雲粒として液相を形成することの方がエネルギー的に有利であり、雲粒程度の粒径では -30°C 以下（理論的には -80°C ）の過冷却が可能であるとされている⁷⁾。

つまり、天然の雪結晶は、過冷却雲粒を含んだ飽和水蒸気量近傍の気塊のなかで生成されるとみなす方が妥当であろう。しかし、中谷ダイヤグラムではそのような水蒸気量から樹枝状結晶などの典型的な雪結晶の生成が望めないことから、天然の雪雲を想定すれば、過冷却雲粒の変化・役割に着目がなされることになる。実際、Magono and Lee⁸⁾では、中谷ダイヤグラムの過飽和度（水に対して）の領域は“cloud droplet region”と書き改められており、このことは、過飽和ということが気象学的にはあり得ないということで、中谷ダイヤグラムに示された現象は室内実験に限られたことであると理解される。

3. 過冷却微水滴（雲粒）からの雪結晶の生成実験

天然の雪結晶は、前節で述べたように、雪雲のなかで生成・成長する現象であると考えられることから、雪雲における雲粒の形成から氷晶の発生に至るまでのプロセスを観察することが必要となる。

図2は過冷却微水滴から氷晶が発生・成長する実験⁴⁾の一例である。図2のaは、一つの過冷却微水滴が板状氷晶へ変化する過程を示したもので、微水滴の外形は瞬時に六角形状になり、角板の状態から小六花へ成長している。これは微水滴そのものが氷晶へと変化・成長していることを示しているもので、実験温度は -15°C である。

図2のbは過冷却微水滴（図の矢印）からの柱状の氷晶への成長を示したもので、実験温度は $-7\sim-8^{\circ}\text{C}$ である。この図bの左下に示した数字は経過時間（分：秒）で、3分ほどで柱状結晶の形状が定まるまでに成長している。

図2のcは、樹枝状の枝が過冷却微水滴を捕捉して成長する過程を示したものであるが、側枝は微水滴を取り込んだ部分から活発に成長している。実験温度は -15°C で、樹枝の成長速度は中谷¹⁾の4倍強である。このように過冷却微水滴は、雪雲内の水

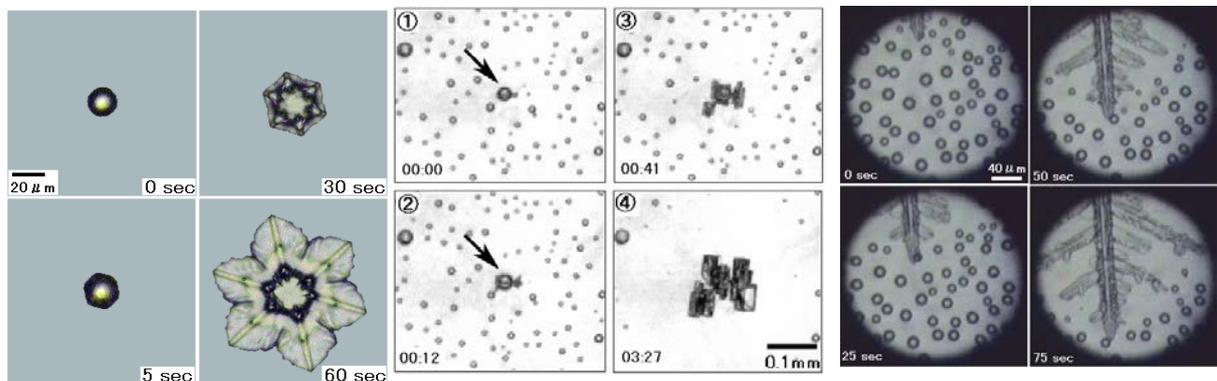


図2 過冷却微水滴による氷晶の発生・成長の実験例。左より a, b, c の図とする。

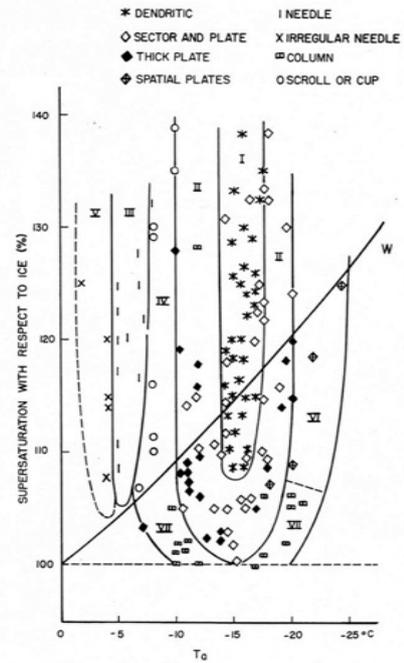


図1 中谷ダイヤグラム。Wは水に対する飽和曲線。

蒸気源⁸⁾というよりも、直接に氷晶を生成させるものであるといえる。なお、過冷却微水滴は、後述のように、凝結速度に応じて氷晶あるいは氷球（霰など）に変化する。

4. 氷晶の発生と成長について

氷晶は前節で述べたように生成することから、その発生と成長とは段階論的に考察すべきであると考えられる。まず、氷晶の発生について考えると、過冷却微水滴の相変化にはその凝結速度によって違いが見られ、比較的穏やかに凝結したものは氷晶化する。そのように結晶化する過冷却微水滴は、氷点下での凝結が緩やかなであれば、氷晶に極めて類似した分子構造のクラスターが形成されるであろうことが推察される。すな

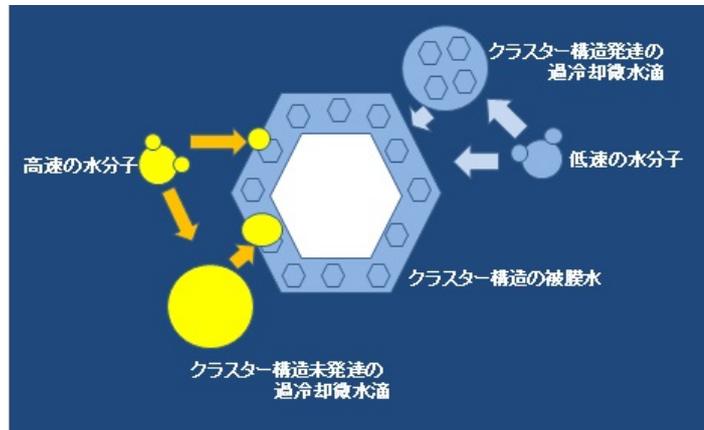


図3 雪雲内における氷晶の液相成長。

わち、固相としての氷晶と上記の過冷却微水滴は、その自由エネルギー（後述の化学ポテンシャル）に関して、一般的な氷と水とのエネルギー差よりも相当に近接したものと考えられる。そして、主にはこの自由エネルギー差の大小により水滴の相変化の形態、つまり六角形状か氷球状か、あるいは角板や樹枝、角柱や針などの成長形が決められるものと推察される。

次に氷晶の成長についてであるが、図3は、前節の実験結果から氷晶の液膜を介した成長機構について、その概念を示したものである。ここで、氷晶によって捕捉された過冷却雲粒は、結晶に取り込まれてその成長に寄与するものと、単に凍結して氷球状になるものとが存在する。前者の雲粒は、図3の青色で示した微水滴で、氷点下で比較的緩やかに凝結した過冷却微水滴であり、これに対して後者は図3の左側の黄色で示した微水滴で、急激に凝結したものである。また、周囲の空気中から飽和を超えた水蒸気が氷晶の液膜に凝結し、その一部となることが推察される。このときも、緩やかな凝結の場合は結晶を成長させる液膜として組み込まれるが、急激な凝結の場合は母結晶の氷晶とは異なった分子配列の状態になり、氷球などに変化するものと考えられる。この場合、氷晶は見かけ上、水蒸気によっても成長することになるが、それは「昇華成長」ということではなく、氷晶表面の液膜を介して行われる液相成長である。これが中谷式的人工雪装置において、水蒸気の供給は穏やかに、かつ氷晶表面の液膜を成長させ得るように多量に、いわゆる「過飽和」の状態にしなければならないこと、そして、その過飽和度には「氷晶化」が可能な水蒸気の輸送速度（凝結速度）として、その上限が存在すること（拡散型装置では水蒸気の輸送が分子拡散で穏やかなことから上限は示されていない）の理由であると考えられる。

ところで、Kuroda and Lacmann⁹⁾によれば、氷点下の融点近傍においては氷結晶の表面は液膜で覆われている方がエネルギー的に有利で、その界面エネルギーと化学ポテンシャルとの関係から液膜の平衡の厚さを求めることができるとして、

$$\delta_{eq} = -A + \left(\frac{nA^n \Delta\sigma_\infty V_m}{\Delta\mu_{l/w}} \right)^{1/(n+1)}$$

という理論式を導いている。ここで、 δ_{eq} は平衡液膜の厚さ、 $\Delta\sigma_{\infty}$ は結晶表面のぬれ易さのパラメータ、 V_m は分子の単位容積、 $\Delta\mu_{I/W}$ は氷と水との化学ポテンシャルの差、 A と n は実験的に決められるパラメータである。

ここで、例えば水膜の蒸発によりその厚さ δ が薄くなったときはそれを補う方向、つまり固相の結晶面が液化することになり、また、水膜に対して水蒸気が凝結するか、先に述べたような氷晶化可能な過冷却微水滴が附着するなどして δ が厚くなったときはそれが減少する方向、つまり結晶面が成長することになる。このことは、液膜と氷晶が可逆的な関係にあるともいえる。

ところで、先にも述べたように、氷晶と液膜の化学ポテンシャルの差 $\Delta\mu_{I/W}$ は、一般的な氷と水との差とは異なり極めて小さな値とみなすならば、上式において平衡液膜の厚さ δ_{eq} は増大の方へシフトすることになる。Kuroda and Lacmann⁹⁾は δ_{eq} について、 $A=1.5\text{ \AA}$ 、 $n=2$ と仮定し、数 \AA の値を求めているが、天然雪の形態や先の過冷却微水滴の実験などからは、液膜の厚さは $1\text{ }\mu\text{m}$ 程度の値として概算される。

5. おわりに

古来、言葉は概念を規定すると言われる。人工雪という言葉が雪結晶について昇華成長・気相成長、そして、天然にはほとんど存在しない水蒸気の「過飽和」という概念を作り上げてきたのではないかと想像される。

雪結晶は過冷却微水滴（雲粒）により形成される可能性が実験的に示されたことから、従来の人工雪について冷静に見直しを行い、それは天然の雪とは異なる現象、つまり「中谷現象」として概念を再構築し、「雪は天からの手紙」の名言は受け継ぎつつも、雪結晶の成長機構に関して液相成長の観点から新たな解明方向を探る必要があるのではないかと考えられる。

【参考・引用文献】

- 1) 中谷宇吉郎, 1949: 雪の研究, 東京, 岩波書店, pp.161.
- 2) Hallett, J. and B. J. Mason, 1958: The influence of temperature and supersaturation on the habit of ice crystals grown from the vapour, *Phil. Roy. Soc.* **247**, 440-453.
- 3) Kobayashi, T., 1961: The growth of snow crystals at low supersaturation, *Phil. mag.* **6**, 1363-1370.
- 4) 油川英明, 2005: 過冷却微水滴の結晶化による雪結晶の生成, *北海道教育大学紀要 (自然科学編)*, **55**, 1-12.
- 5) Nakaya, U., 1954: Snow Crystals-Natural and Artificial, Cambridge, Harvard Univ. Press., pp.510.
- 6) Tazawa, S. and C. Magono, 1973: The Vertical Structure of Snow Clouds, as Revealed by "Snow Crystal Sonde", Part I, *J. Meteor. Soc. Japan*, **51**, 176-190.
- 7) 黒田登志雄, 1984: 結晶は生きている, 東京, サイエンス社, pp. 265.
- 8) Magono, C. and C. W. Lee, 1966: Meteorological Classification of Natural Snow Crystals, *J. Fac. Sci., Hokkaido Univ. Ser. II (Geophysics)*, **2**, 321-335
- 9) Kuroda, T. and R. Lacmann, 1982: Growth kinetic of ice from vapour phase and growth forms, *J. Crystal Growth*, **56**, 189-205