

雪の結晶は過冷却雲粒の氷晶転移により形成される

Snow crystals are formed by the phase transition of supercooled cloud droplets

油川 英明^{1,2}

Hideaki Abueakawa^{1,2}

Corresponding author: abu440407@yahoo.ne.jp

雪の結晶は、過飽和の水蒸気による昇華（凝華）生成という昇華成長説が通説となっているが、結晶が生成する雪雲のなかには水蒸気の量が飽和しないしそれ以下であることから、昇華成長説は天然には適応し難いものと考えられる。このようなことから、雪雲の雲粒に成因を求め、過冷却微水滴が雪の結晶へ直接に相転移する、ここではこの現象を仮に「氷晶転移」と称するが、このことについて実験的にこれまで確認を行ってきた。今回の報告は、雪の結晶へ氷晶転移する過冷却微水滴（雲粒）の条件について、水分子のクラスターに相応の特徴があるものと考え、その構造に関わる推察を行ったものである。

1. はじめに

中谷¹の「雪の研究」（1949）は、以下のような緒言の書き出しに始まる。すなわち、

「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。このことは現在においても雪の結晶の調査・研究の基とされている。

ここで、「ある種の核」つまり氷晶核の存在については、昨年度の研究発表²で述べたように、雪の結晶は一般的な凝結核により生成されることが示されたので、氷晶核についての探求は余り必要がないものと言える。

また、雪の結晶が「水蒸気の昇華作用によって」生成・成長するとしているのは、水蒸気の過飽和をもとにした人工雪の実験によるものであり、これは天然には見られない現象である。

天然においては、雪の結晶は過冷却雲粒により満たされた雪雲のなかで生成・成長するわけで、雪雲のなかの水蒸気の量は飽和しないしはそれ以下で、人工雪の実験において示されるような過飽和は見出されない。

雪の結晶が生成される雪雲の状況を考えるならば、過冷却雲粒の存在が注目される。一般に、過冷却の微水滴は凍結すれば氷球状になるものとみなされてきたが、ある条件のもとに凝結生成した過冷却微水滴は、過冷却の破れにより氷晶状に結晶化することが実証された²。このような結晶化を、ここでは過冷却微水滴、つまり過冷却雲粒の「氷晶転移」と仮称する。

天然における雪雲の形成は、一般に、地表面から蒸発した水蒸気が比較的ゆっくりと一千メートル以上の距離を上昇し、氷点下のもとで徐々に凝結して過冷却雲粒になるわけである。そして、このような過冷却雲粒が「氷晶転移」して雪の結晶を生成する。これに対して、常温の微水滴がそのまま過冷却したものは単に氷球状に凍結する。つまり、両者は水分子のクラスター構造に違いがあるものと考えられる。ここでは、そのような過冷却雲粒の分子構造について推察を行う。

2. 昇華成長では困難な雪結晶の例

中谷の昇華成長説では困難とみなされる天然の雪結晶の例を図1に示す。この結晶は少し雲粒が付着した六花状であるが、赤い線で示したように、六本の枝の中心は定まっていない、いわゆる畸形の結晶に分類されるものである。そして、この時の高層気象データ（9時）

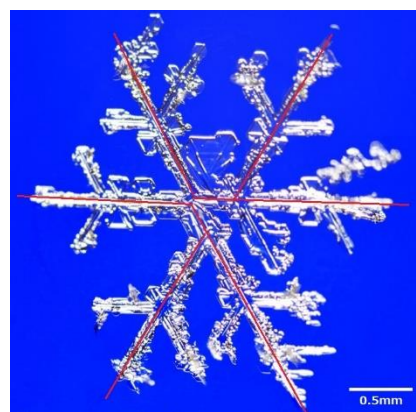


図1 中心が定まっていない六花状結晶。撮影：札幌
2024/02/24 8:31

¹ 日本雪氷学会 北海道支部

² NPO 法人 雪氷ネットワーク

Hokkaido Branch, the Japanese Society of Snow and Ice
NPO Network of Snow and Ice Specialists

では、雪雲の雲頂とみなされる高度二千メートルまでの相対湿度については94%を超える値は見

られなかった。つまり、図1の六花状結晶は未飽和の水蒸気環境のもとで成長したことになる。

このような畸形の結晶の成因について、従来の水蒸気による昇華成長説では解釈が極めて困難である。これに対して、図2に示したような過冷却雲粒による結晶成長の実験²⁾では、雲粒から伸びた枝(赤線)が中心からずれているものがみられる。すなわち、図1の畸形結晶は、幾つかの雲粒から個別に枝が伸び、結果として六花状の結晶が形成されたものとみなされる。

3. 過冷却雲粒から生成するその他の雪結晶

図2に示した結晶の他に、過冷却微水滴(雲粒)

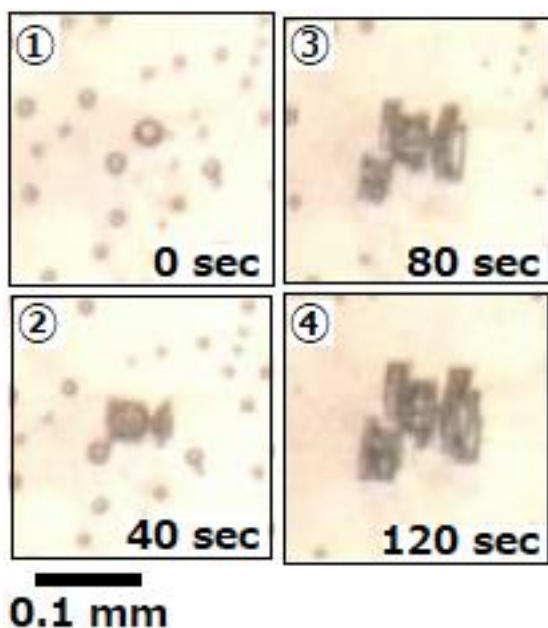


図3 角柱集合の生成. ①の過冷却微水滴は水蒸気の凝結がトリガーとなって過冷却が破れ、氷晶転移する。温度 -5°C

から生成・成長する結晶の実験例を以下に示す。

図3は、柱状結晶の生成の動画から各々の画面を抜き出して示したものである。図2の①に示された中央の過冷却微水滴が中心になって、2分経過した④では角柱の集合が形成されている。この集合体は、中央の過冷却微水滴が氷晶転移し、近傍にある過冷却微水滴に接触してそれらをさらに氷晶転移させて生成した結晶群である。

図4は、板状結晶の成長過程を横方向から撮影した動画の静止画面である。各々の過冷却微水滴は、上方からの結晶の枝に接触され、微水滴の上下から枝を伸ばしている。実際、天然の雪結晶も上下二重乃至はそれ以上の構造が見られることから、このように過冷却微水滴(雲粒)から枝が多重になって成長するものとみなされる。

ところで、過冷却微水滴(雲粒)が直接に氷晶へ変化する、すなわち雲粒の氷晶転移は何故に生じるのか、あるいは図4の②に見られるような過冷却微水滴が氷球状に凍結しつつ結晶の枝を伸ばすのは何故なのか等々については極めて興味のあることである。このようなことから、以下に、過冷却雲粒の水分子の構造と氷晶転移について考察を行うこととする。

4. 過冷却微水滴の氷晶転移について

4. 1 過冷却微水滴の分子構造について

過冷却微水滴は、一般には、過冷却が破れた場合には瞬時に氷球状に凍結するものとみなされてきたが、先の図2, 3, 4に示したように、氷晶転移を生じて氷晶を生成したり、母結晶を成長させたり、二次枝を形成させる微水滴もある。こ

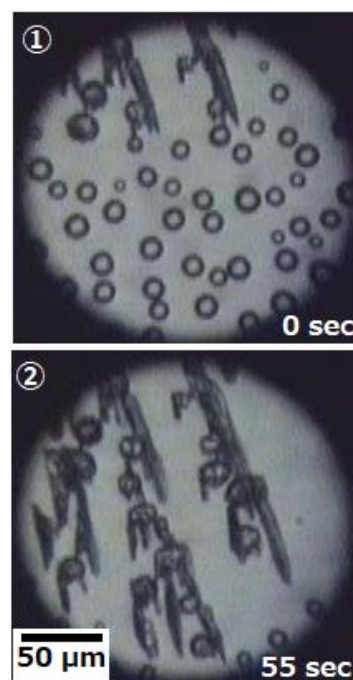


図4 結晶成長の横方向からの観察。氷晶の二重構造の成因である。温度 -15°C

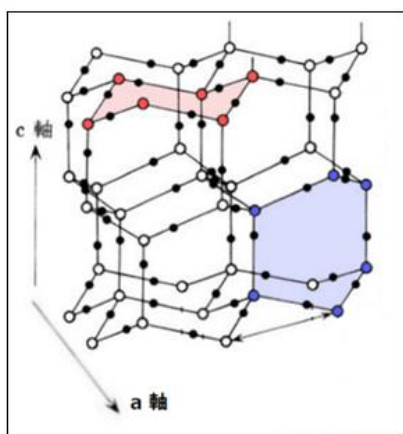
のような過冷却微水滴の差異は、後述するように、その凝結過程に依拠しているものと理解される。

過冷却微水滴が、上記のように、瞬時に氷晶化するということは、この微水滴にはすでに氷晶状の分子構造が準備されているものと考えられる。

水の分子構造については、一般に、氷結晶の構造の一部が含まれると言われているが、この説を過冷却の水に敷衍すれば、より一層、氷結晶の分子構造が含まれるものと考えられる。

図5は氷結晶の分子構造³⁾を示したものであるが、この構造において特徴的な形態が二つ見られる。それは図の赤色で示した椅子形と青色で示した舟形と呼ばれる六員環のクラスターで、氷結晶の底面を形成している形態である。他の一つは青色で示された舟形と言われる六員環で、氷結晶の柱面を形成している形態である。

ここで、ひとつの仮説として、過冷却微水滴はその分子構造として椅子形の形態が多ければ板状結晶へ、舟形の形態が多ければ柱状結晶へ氷晶転移するものとする。雪の結晶が板状か柱状かの二通りに大別され、それ以外の形態が余り見られないということは、過冷却微水滴（雲粒）は椅子形か舟形の水分子の構



黒田 (1984)

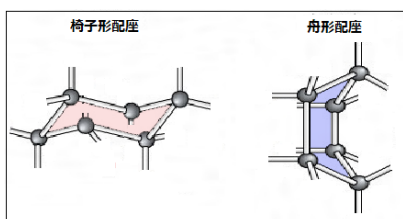


図5 (上図) 氷結晶の分子構造。黒丸は水素、白丸と赤丸と青丸は酸素を示す。赤色の六員環は椅子形、青色の六員環は舟形と呼ばれる。 (下図) 椅子形と舟形。平面の正六角形の内角は120度であるが、水分子の正四面体配位の構造により109.5度の角度となることから六員環は立体的になる。

造が主に生成され、他の構造は生じ難いことになる。

過冷却の水（液相）の水分子構造が椅子形か舟形を形成する理由については以下のように考えられる、すな

わち、図6に示したように、二つの形態の六員環を水平方向から見た場合、四つの質点（酸素）として表される。これらの両端が固定されて中間の二つの質点が振動するという連成振子とみなしたとき、その振動形態は図6のI型とII型として示したような二つの基準振動が導かれる。つまり、過冷却の液相において水分子の六員環が図6のような振動をしているとして、その熱運動が最小となる氷晶転移では、基準振動のような安定な形態を選択するものと考えられる。

これは、水分子の熱運動の大小に関わることで、熱運動が小さければ椅子形（I型）、それより熱運動が大きければ舟形（II型）が生じるようになる。そして、過冷却の液相において、水分子の構造が椅子形であっても熱運動が高まれば舟形へと移り、舟形であっても熱運動が減少すれば椅子形へと移るということになる。このようなことについては有機化合物などにおいて以前より議論がなされてきていることである。

4.2 水分子の配列から推察される立方晶の氷晶について

雪の結晶は樹枝状六花に代表されるように六方晶系の結晶が通例であるが、時として図7に示されたような四角形の板状結晶が直角に交差した枝が見られる。

一般に、結晶は分子の配列によりその構造が決

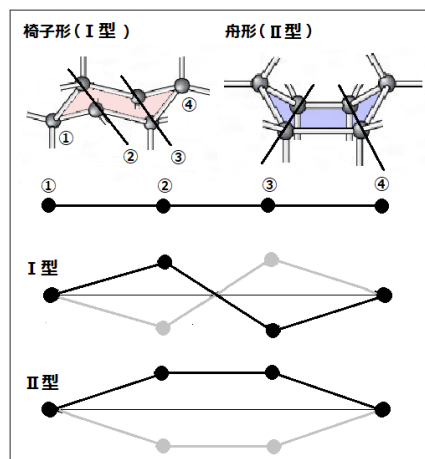


図6 水分子の六員環配列による椅子形と舟形について、水平方向から見た一次元の連成振子を仮定したもの、基準振動としてI型とII型が示される。

められることから、雪結晶の四角形状の形態も水分子の配列構造によるものとみなされる。

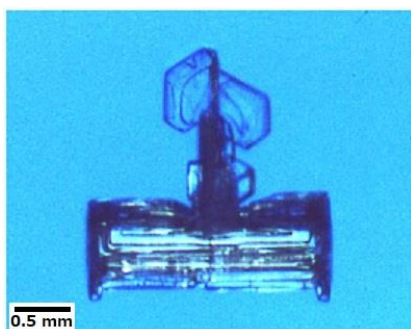


図7 角柱の横から伸びた柱状結晶。四角形状の結晶が直角に交差している。(大雪山系旭岳にて撮影)

水の分子構造は、前述のように氷の構造を一部含むものとされ、四面体配位をもとに、一個の水分子について最近接分子数が、時間的な平均値として、4.4 個と言われている。

このような水分子の四面体配位から導かれる結晶系は、六方晶系結晶と立方晶系結晶の二つであると言われている。これらの結晶構造⁴⁾を図8に示す。

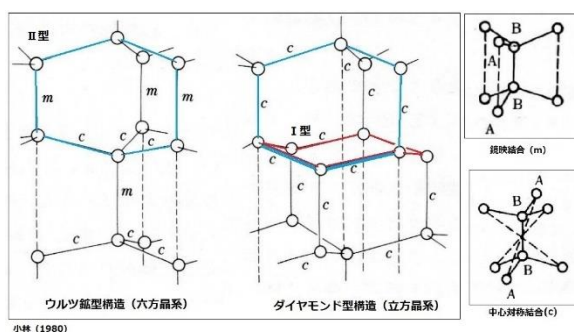


図8 四面体配位の分子構造から導かれる二つの結晶系として、六方晶系のウルツ鉱型構造(氷結晶)と立方晶系のダイヤモンド型構造。ダイヤモンド型には椅子形の六員環だけが認められる。結晶格子に付されている m と c は、図の右に示された鏡映結合と中心対称結合を示す。

図8において、ウルツ鉱型の分子構造は氷結晶と同じもので、図の○印を酸素原子とすれば、六員環の椅子形と舟形が導かれる。他方、ダイヤモンド型の分子構造では、椅子形の六員環が見られるだけで、他は四面体配位の構造となっている。こ

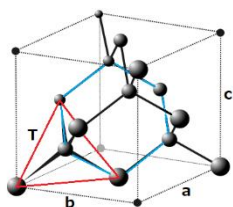


図9 立方晶系結晶の分子構造。

の構造は立方晶系の結晶で、それを改めて図9に示す。各結晶軸は直交しているので、この結晶系の氷晶は、図7に示されたように四角形の板状結晶が直交した形態を示すことになる。

5. 水分子の構造化と氷晶転移

これまで述べてきたことをまとめて図10に示す。この図に示したように、氷晶つまり雪の結晶は、氷点下において水蒸気が緩やかに凝結し、水分子が六員環に構造化した過冷却微水滴(雲粒)から直接に氷晶転移して生成することになる。

過冷却雲粒の水分子の構造化において、分子の熱運動が比較的小さければ椅子形の六員環が多く生成し、氷晶は板状となる。それより熱運動が大きければ舟形が優勢となって、氷晶は柱状となる。さらに水分子の熱運動が大きければ椅子形に水分子の四面体構造が加わり、立方晶系の氷晶を生成することになる。水分子の熱運動がこれ以上に大きければ、過冷却微雲粒は六員環の構造化がなされず、氷球状に凍結する。

過冷却雲粒の構造化、あるいは非構造化は連続的であるとみなされ、構造化が十分に進行していない場合は、図4のような氷球から結晶の枝が伸びることになる。

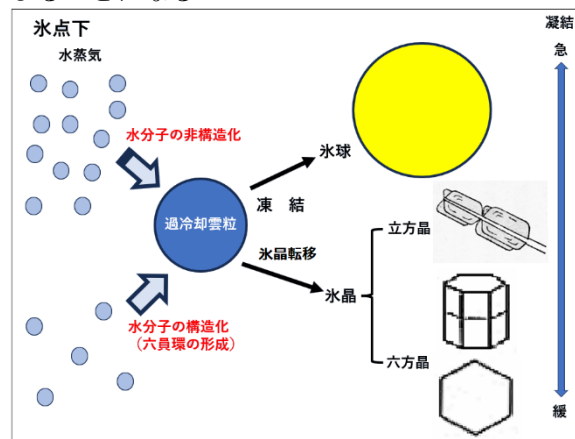


図10 過冷却微水滴の構造化と氷晶転移による各種の氷晶(雪結晶)の生成。

【参考文献】

- 1) 中谷宇吉郎, 1949: 雪の研究, 岩波書店, pp.161
- 2) 油川英明, 2023: 雪の結晶は氷晶核の必要なく生成する, 北海道の雪氷, 42, 65-68
- 3) 黒田登志雄, 1984: 結晶は生きている, サイエンス社, pp.265
- 4) 小林禎作, 1980: 六花の美, サイエンス社, pp.249