

雪結晶の液相成長説による中谷宇吉郎著「雪の研究」の謎解き

Solving riddles of Ukichiro Nakaya's "Studies on Snow Crystals" based on the liquid-phase growth theory of snow crystals

油川 英明^{1,2}

Hideaki Aburakawa^{1,2}

Corresponding author: abu440407@yahoo.ne.jp (H. Aburakawa)

¹ 日本雪氷学会 北海道支部, ²NPO 法人 雪氷ネットワーク

¹ Hokkaido Branch, the Japanese Society of Snow and Ice, ²NPO Network of Snow and Ice Specialists

雪の結晶は過冷却の微水滴(雲粒)が転移・成長するという液相成長説についてはこれまで紹介してきたが, その液相成長説を基に中谷宇吉郎著「雪の研究」の人工雪作製に関わる幾つかの疑問点, つまり「謎」について解明を試みた. 今回は, 1) 霜の成長実験になぜ水蒸気の供給方法が関係するのか, 2) 人工雪はなぜ兎毛に生成するのか, 3) 人工雪の作製になぜ長い時間を要するのか, について考察を行う.

1. はじめに

中谷の「雪の研究」¹⁾は, 天然雪及び人工雪の研究を集大成して1949年に著された. この内容に加えて, いわゆる「中谷ダイヤグラム」及び将来の研究展望が記載された著作が1954年にハーバード大学から「Snow Crystals」²⁾として出版された. これは, 雪の昇華成長説を基に著述され, 今日まで雪結晶の研究の基礎とされている.

しかし, 「雪の研究」の人工雪作製に関わることには幾つかの疑問点がみられる. そのなかから以下に三点ほど取りあげると,

- 1) 人工雪を作るための前段に霜を作る実験を行っているが, このとき, 水蒸気の供給方法により霜の成長が著しく異なるが, それはなぜか?
- 2) 人工雪の作製には兎毛が適しているとしているが, 他の繊維が不都合なのはなぜか?
- 3) 人工雪の成長時間が天然の降雪現象に比して相当に長いとみなされるのはなぜか?

これらの「謎」は, 中谷による雪結晶の昇華成長説に起因していると考えられることから, これまでも報告³⁾してきたように, 雪の結晶は過冷却微水滴(天然では雲粒)により生成・成長するとした液相成長説により, 先にあげた三点の疑問の「謎解き」を試みる. ここでは, 先ず雪結晶の液相成長説について述べることから始める.

2. 雪結晶の液相成長について

図1は過冷却微水滴による氷晶の生成実験³⁾で, 径が20 μm ほどの過冷却微水滴が上端から伸びてくる樹枝状結晶の先端に触れられて結晶化

する様子を示したものである.

図2は, 上記と同様の実験により, 樹枝状結晶が周囲の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. この場合, 樹枝状の結晶が触手のように過冷却微水滴を捕捉している.

ところで, 過冷却微水滴であれば皆, 氷晶化することではなく, 水蒸気が氷点下において比較的低速で凝結したものが氷晶へ転移する. 図1, 図2の場合は20 μm ほどの径の過冷却微水滴が30分ほどの時間をかけて形成されたものである. これに対して, 短時間に凝結して形成された過冷却微水滴や, 常温でつくられた微水滴を過冷却にしたものは単なる氷球に凍結する. このような例を図3に示す. 氷球となる過冷却微水滴(雲粒)は, 天然では霰を形成することになる.

3. 過冷却微水滴の結晶化

3. 1 過冷却微水滴の生成

氷点下において水蒸気は飽和を超えると固相(氷結晶)ではなく, 液相(過冷却微水滴)として凝結し, その後, 温度の低下によって固相へと相変化する. これはオストワルドの段階則と呼ばれ, 過冷却微水滴が固相へと相変化する温度は, 理論的には -80°C と言われている⁴⁾.

氷点下で飽和を超える水蒸気中において, 粒子(微水滴あるいは氷結晶)が生成するための臨界のエネルギーを ΔG , 粒子の表面エネルギーを δ , 粒子と水蒸気の自由エネルギーの差を $\Delta \mu$ とすれば,

$$\Delta G \propto \delta^3 / \Delta \mu^2$$

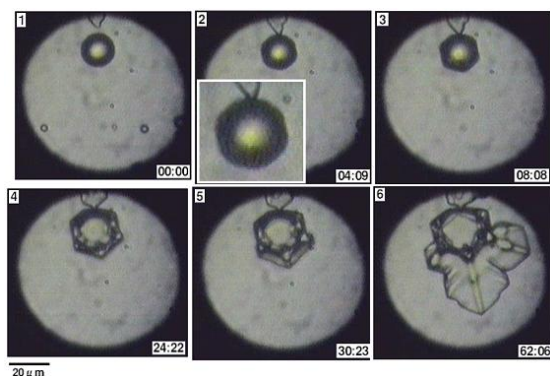


図1 過冷却微水滴から生成する氷晶．実験温度は -15°C で各図の右下に[秒：ビデオフレーム数 (30 フレームで1秒)]を示す．動画は下記の URL をクリックして閲覧．マウスの左クリックやスクロールホイールで画像の進行・停止や拡大・縮小が可能．

https://1drv.ms/v/c/4077b911737148cf/IQBoeJb2I9sRQ5qp0UN9-UtgAXqW_6UJ6r3AlpxjrfcByIU?e=ijOgRb

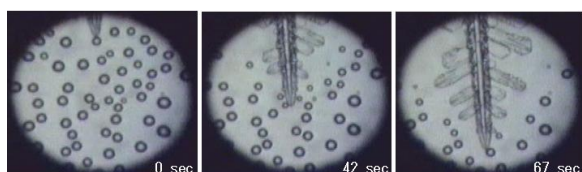


図2 過冷却微水滴を捕捉して成長する樹枝状結晶．各図の右下は経過時間 (秒)．動画は下記の URL をクリックして閲覧．画像の操作は図1の場合と同様．

https://1drv.ms/v/c/4077b911737148cf/IQBkBPp9q9iQouiFE216s5pASB3OfmPzx6-fd16_nlERC8?e=HlqOQI

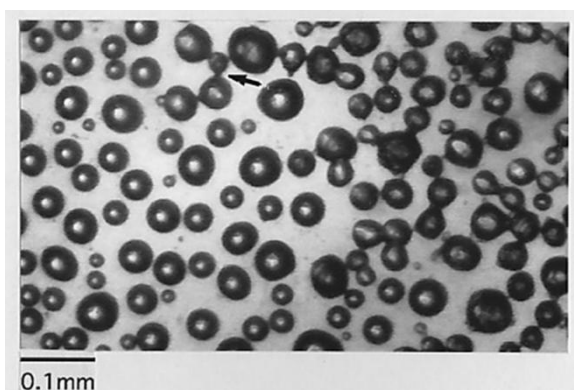


図3 急速に凝結した過冷却微水滴の氷球への凍結．図中の矢印は氷球から伸びた突起．

と表され、 ΔG が小さければそれだけその粒子が形成しやすいことになる．ここで、固相と液相の表面エネルギー及び自由エネルギー差をそれぞれ δ_C 、 δ_L および $\Delta \mu_C$ 、 $\Delta \mu_L$ とすれば、液相の過冷却度が余り大きくない領域では、 $\delta_C \gg \delta_L$ 、 $\Delta \mu_C > \Delta \mu_L$ なので固相に比して液相の ΔG が小さく、液相の形成がエネルギー的に有利であり、氷点下のある温度 (理論的には -80°C だが、実際は異物などの影響でそれよりも高い温度) までは過冷却微水滴が生成することになる．

3. 2 過冷却微水滴の氷晶化

以前の報告⁵⁾でも述べたように、氷点下において水蒸気が低速に凝結して生成した過冷却微水滴は、水分子が六員環のいす型 (板状結晶型) 及び舟型 (柱状結晶型) を形成するとみなされる．そして、その微水滴の過冷却が破れるのは、周囲の水蒸気のさらなる凝結作用や凝結核の影響により不安定となり、エネルギー的に有利な固相へと転移し、氷晶を生じることになる．

このとき、比較的大きな凝結核を内包している過冷却微水滴の方がエネルギー的に不利となるために氷晶化しやすくなる．天然の雪雲が過冷却雲粒と氷晶を混在させているのはこのことに因るものと考えられる．

3. 3 雪結晶の液膜による成長

雪や霜の結晶は、一般に液膜に覆われ、その液膜が平衡の厚さを超えたときに結晶が成長し、平衡厚さが減少したときに衰退するものとみなされる⁶⁾．つまり、雪や霜は水蒸気により成長しているように見えるが、微視的には、水蒸気が結晶表面の液膜に取り込まれ、その液膜から結晶が成長するということである．結晶に過冷却微水滴 (雲粒) が附着して結晶表面の液膜が厚くなれば、結晶の成長はさらに速くなる．

4. 「雪の研究」の謎解き

4. 1 なぜ水蒸気の供給方法で霜が変わる？

中谷は、人工雪の事前実験として人工霜の作成実験を行い、その経緯について、「雪の研究」に以下のように述べている．

すなわち、「第4.1節 人工霜の製作」として、「・・・硝子板を下に置いてその上に水蒸気を通して見たのであるが、この方法では霜を十分な大きさに発達させることが出来ず、特に目的とする

ところ即ち冷却板から空气中に霜を伸び出さすことが出来なかった.ところが色々試みているうちに、冷却板を上置いて、下から暖い水蒸気を自然対流で送ってやったところが、十分に発達した霜の結晶が得られることを知った。」

この水蒸気の供給方法は、後に人工雪の作製に取り入れられたわけであるが、水蒸気の供給方法により霜の結晶の成長が異なるのはなぜか？ということについては言及されていない。ただ、随筆「雪を作る話」には、「・・・天然の雪の結晶の出来るとおりに真似をすれば良いという極めて平凡な結論に達したのである。」と記されている。これは、上記の「謎」に対する現象論的な説明ではあっても論理的な回答とは言えないであろう。

中谷の霜の実験について図4に模式的に示す。このなかで図の右のように水蒸気を冷却壁により冷却して供給する方法が最も霜の結晶を成長させたと述べている。ただ、このような水蒸気の事前冷却の効果については記述されていない。

このような実験の経過から、中谷は、霜の結晶が水蒸気の昇華作用により成長すること、そして水蒸気は主に温度によりその作用が決定されると見なしていたことが窺われる。

図4の結果は、霜の昇華（気相）成長説を前述の図1～図3に示したような液相成長説に置き換えれば、その謎解きは可能となる。すなわち、図4の左図は冷却板に対して急激に暖かい水蒸気を送っていることになり、図3の場合と同じことである。図4の中央の図は、水蒸気は穏やかに

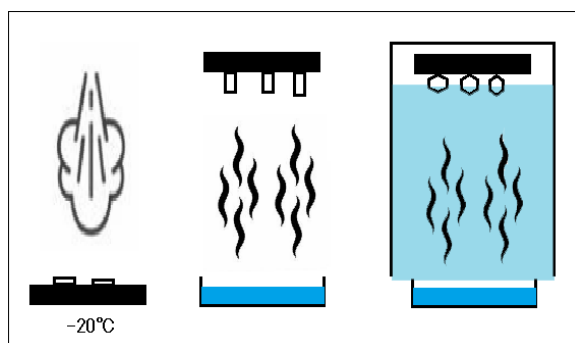


図4 中谷の霜の作製実験. 水蒸気の供給方法について、左の図は上方から下面の冷却盤に吹き付け、中の図は下方から上方の冷却盤に湯気を自然対流で上昇させ、右の図はさらに湯気を冷却壁で冷やして上方へ対流させる。最後の方法が最も霜の結晶を成長させることができたと述べている。

供給されるが、室温のままで冷却板に送られるので急激に冷却されて典型的な霜の結晶は得られない。これらに対して、図4の右図は、氷点下の水蒸気が穏やかに冷却板に供給されるので、図1や図2に近い結晶が得られることになる。

4. 2 なぜ兎毛に人工雪が成長するのか？

中谷は人工雪の作製に際して、絹や木綿などの糸ではなく、兎毛を用いて成功した。このことが、「雪の研究」の緒言の「或る種の核」という表現となり、これ以降、雪結晶を作る特別な核、つまり氷晶核として一般化されることになる。しかし、今日においても氷晶核の実体は定かでない。実は、凝結核で十分だからである³⁾。

なぜ兎毛なのか、ということについて、「雪の研究」の第51節には、「・・・兎の腹毛を高倍率の顕微鏡下で調べたところ、第54図に示すように、所々に極微の瘤があることが分かった。・・・毛の瘤に氷が附着して小氷塊になると、その後結晶は生長する・・・」と記されている。

図5-1に第51節に掲載されている第54図を示す。この図の左には「毛の瘤に氷が附着して小氷塊になる」という記述を模式的に角板状結晶として描いたものである。瘤を核とした場合は図の角板のように、兎毛の長さ方向と平行に結晶は長すると考えられる。しかし、実際の人工雪は図5-2に示したように、兎毛と直行した方向に成長しているわけである。このような人工雪の成長形態から、そして、雪結晶が先の図1のような過冷却微水滴から生成するものとすれば、兎毛には図5-1の右に示したように、過冷却水がドーナツ形の液滴状に形成される必要があるものと考えられる。そして、このような液滴が形成されやすいのは、兎毛が細いものほど都合が良いわけであるが、実際、中谷は先の第51節に「毛の太さは細いものが適している」と記している。

また、兎毛以外の糸状のものが人工雪の作製に不向きなのは、先の中谷の説明によれば、糸に瘤がないからということになる。絹糸の場合を例に考えてみれば、図5-3に示したように、絹糸は複数本の繊維が撚られて糸となっていることから、水蒸気が凝結しても液滴とはならず繊維の間にしみこんで凍結してしまい、微水滴が生成できないと考えられる。それ故、絹糸の隙間をふさいで過冷却水がしみこまないように疎水状にすれば人工雪が作製できることになる。実際、先の

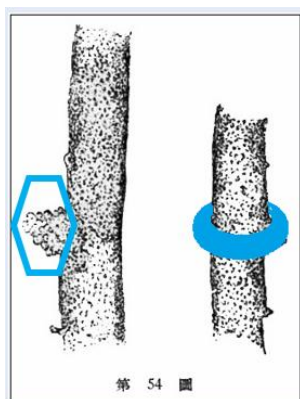


図 5-1 兎毛の瘤

第 51 節には「・・・後には絹の繊維をパラフィンの蒸気の上に暫くさらしたものをを用いてみたが、結果は良好であった。」と記されている。結局、兎毛は疎水性であったことが人工雪の作製に適していたものと考えられる。

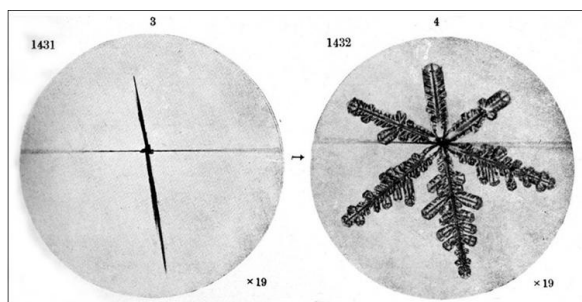


図 5-2 兎毛に成長した人工雪

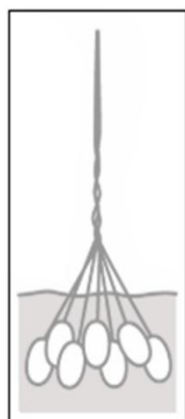


図 5-3
繭から繊維
が燃られる
絹糸

4. 3 なぜ人工雪の作製に長時間が必要なのか？

中谷式の人雪の作製装置は、1 個の雪結晶が作られるのに 1 時間ほどの時間を要する。結晶の種類によってはそれ以上の時間が必要とされ、天然の降雪現象では想定し難い時間である。これは、図 6 に示したような人工雪の作製装置と天然の雪雲に関するスケールの相違に因るものと考えられる。

すなわち、人工雪の水蒸気源（水槽）から結晶の生成高さまでは 40cm ほどで、天然の雪結晶が形成される雪雲の高さは、一般には水蒸気が供給される地表面から 1000～2000m で、水蒸気の移送時間は 30 分～1 時間ほどである。これは、水蒸気の移動距離の差、つまり水蒸気が冷却されて過冷却微水滴（人工雪では兎毛上の水滴、天然では雲粒）に凝結される時間の差となる。

雪雲の中では、図 1 や図 2 のように、数十 μm の雲粒により数分程度（雪雲内の気流によっては雲粒の捕捉が促進されてそれ以下の時間）で結晶

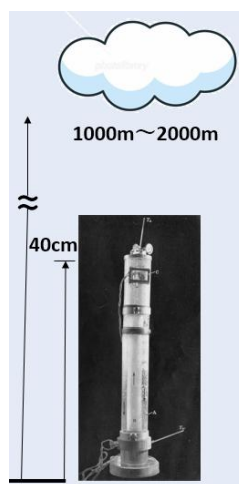


図 6 人工雪作製装置と雪雲の高さ

が成長する。中谷式の人雪作製装置でこのような雲粒の大きさの過冷却微水滴を生成させるためには、装置の水槽の温度を高めて水蒸気を大量に送ることが必要になるが、そのようにすれば水滴は急激に凝結し、図 3 のように単なる氷球に凍結してしまうわけである。このようなことから、人工雪の装置では、中谷が示しているように、緩やかに凝結させた 1～2 μm ほどの微小な過冷却水滴により、それだけ時間をかけて結晶を成長させるということになる。つまり、人工雪の作製装置は、天然の雪雲までの距離、すなわち空間を時間で補っているということになるわけである。

5. おわりに

中谷宇吉郎著「雪の研究」の「謎」について、雪の昇華成長説から液相成長説へ観点を移し換えて読み解いてみた。これは、いわゆるパラダイムシフトということであるが、このようなシフトが妥当であるか否かは、天然雪及び人工雪に関するさらなる検証が必要であろう。さらに、雪結晶の成長について広く真摯な議論が求められていることも確かなことである。

【参考文献】

- 1) 中谷宇吉郎(1949)：雪の研究，岩波書店，東京，161pp.
- 2) Nakaya, U., (1954)：Snow Crystals, Harvard Univ. Press, Cambridge, 510 pp.
- 3) 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
- 4) 黒田登志雄(2006)：結晶は生きている，サイエンス社，東京，265 pp.
- 5) 油川英明(2024)：雪の結晶は過冷却雲粒の氷晶転移により形成される，北海道の雪氷，**43**, 83-86
- 6) Kuroda, T., and R. Lacmann (1982)：Growth kinetics of ice from the vapour phase and its growth forms, *J. Crystal Growth*, **56**, 189-206