



## 雪結晶のダイアグラムに関する一考察

メタデータ	言語: Japanese 出版者: 北海道教育大学 公開日: 2008-05-21 キーワード: 作成者: 油川, 英明, 中埜渡, 美佳 メールアドレス: 所属:
URL	<a href="https://doi.org/10.32150/00005522">https://doi.org/10.32150/00005522</a>

## 雪結晶のダイヤグラムに関する一考察

油川 英明・中埜渡美佳

北海道教育大学岩見沢校物理学教室

## A Study of the Snow-Crystal Diagram

ABURAKAWA Hideaki and NAKANOWATARI Mika

Department of Physics, Iwamizawa Campus, Hokkaido University of Education, Iwamizawa 068-8642

### Abstract

A study of Nakaya diagram and Kobayashi's diagram of snow crystals brought several results as follows. Type of snow-crystal growth was determined principally by the temperature and the water vapor of the surrounding air. The ordinate of Nakaya diagram indicated the relative humidity and almost all of the snow crystals grew at the humidity of the supersaturation excess over water equilibrium, but its supersaturation could not be found in nature. This was the contradiction between the experiment and nature, and it had to be investigated. The ordinate of Kobayashi's diagram indicated the excess of ambient vapor density over that at equilibrium with the ice crystal, and its density was not supplied amount for growing the ice crystal, but calculated amount according to the hypothesis of upward shifting temperature of the ice crystal by the latent heat of the sublimation. It must be noticed that the ordinate of Kobayashi's diagram was completely different from it of Nakaya diagram.

### 1. はじめに

我が国は世界的にも希な多雪地で、北海道、東北、北陸等の都市域・人口密集地における積雪量は他国にほとんどその例を見ない。このような多量の降雪は主に日本海側の地域で特別に見られる現象で、19世紀の後半に著された鈴木牧之の「北越雪譜」（池内，1997）は、このことを興味深い地方風土として紹介し、当時の江戸において評判を呼んだと言われている。このような自然の環境により、我が国における雪の研究は世界の先駆を

為している。特に、人工雪の作製実験に成功し、それに基づいて作成された雪結晶の成長に関する中谷ダイヤグラム（Nakaya, 1954）は、幾つかの補填や修正が為されてきたものの、国際的な標準として認められている（Frank, 1982）。

雪は太古の昔から降り続けているが、その科学的・体系的な研究は20世紀の中葉、上述の中谷（1949）によりはじめて着手された。これは前述のように、世界、特に近代科学が興隆した欧米においては我が国のような多雪地が見られないことから、17世紀初期のケプラーやデカルトなどの著

述等に若干の記載はあるものの、雪は詩歌や絵画などの文芸的な題材となることの方が多かったようである。その後、ヨーロッパにおいては捕鯨などによる北極圏への航海が行われるようになり、博物学的な雪の観察が徐々に行われるようになった(西澤他, 1996)。

ヨーロッパの近代科学が我が国に伝えられたのは江戸時代の末期で、周知のように長崎の出島を通してであった。この頃、古河藩主の土井利位は我が国で初めて、オランダから伝来した「蘭鏡」により雪結晶の観察を行い、1832年、雪のスケッチ画を「雪華図説」として、また、1840年には「続雪華図説」として著した。これは、華麗な文様の題材として珍重されたものの、系統的な科学研究に発展することはなかった。当時の我が国においては欧米のような科学教育がほとんど行われておらず、自然の現象に対しては個人的に興味を持つ者や、西洋の書物に触れて関心を示す者だけが好事家的に観察や調査を行っていたわけで、自然に関する研究が散発的で系統性に欠けるものであったことは無理からぬことであった。つまり、一国の科学を発展させるためには、先ずもって体系的な科学教育が公平に進められる必要があるということである。

時代が明治に入り、我が国の学校制度や教育内容が、ヨーロッパの模倣とは言え急激に整えられ、欧米の先進的な科学や文化が一挙に取り入れられた。このようななかで、1900年、先の中谷宇吉郎は北陸の加賀で出生し、旧東京帝国大学で寺田寅彦の薫陶を受け、北海道の地に赴任した。中谷は旧北海道帝国大学で、自らも手がけていた当時の先端的な原子物理学の分野ではなく、雪の研究に着手したわけであるが、それは、中谷が天然の現象を物理学的に究明しようとする師・寺田の地球科学的な観点を引き継ぎ、また、地域の環境や特性に関する研究を推進することが地方の大学の存在証明でもあるという考えからのようである。そして中谷は、その当時に出版された Bentley (1931) の雪の写真集に感銘を受けたことが直接の動機となって、1932年、十勝岳において雪の観

察を開始した(東, 1997)。

中谷は、天然の雪結晶について多くの観察記録をまとめ、雪の科学研究の第一歩として結晶の分類を手がけ、複雑多様な雪の結晶を40種類ほどに分類した。それが今日においても雪結晶分類の基になっている。次に中谷は、その結晶の多様性を探るべく、人工雪の実験に着手した。そして、兎の毛を核としてついに1936年3月12日、世界ではじめて人の手による雪をつくり出した(中谷, 1949)。

このような人工雪の実験をもとに、中谷は、雪結晶が温度と湿度に依存して多様な形に成長するとした、いわゆる中谷ダイヤグラムを完成させた。それとともに、中谷は雪の生成機構及びその定義に言及し、雪とは「水蒸気が或る種の核に昇華凝固した氷の結晶である」と、その著書(中谷, 1949; Nakaya, 1954)の冒頭に述べている。

その後の雪の研究は、洋の東西を問わず、前述の定義を前提にして進められてきた。さらに Kobayashi (1961) は、中谷の研究についてより詳細な水蒸気量の測定による追試を行い、中谷ダイヤグラムの補填・修正を行った。このような経過を経て、雪結晶の研究は、その後、水蒸気からの「昇華凝固」説を基盤に、結晶の複雑な形態の形成機構を解明することに焦点が据えられてきた。

しかし、このような研究の基盤及び方向性、つまり雪結晶の「昇華凝固」説に基づいた結晶成長に関する研究について、疑問が全く存在しないわけではない。それは、人工雪作製実験の当初において、花島(1944)により見出された装置内における無数の過冷却微水滴の浮遊現象であり、また、Kumai (1951)による天然の雪結晶に付着した多数の凝結核の発見である。これらは、中谷の「昇華凝固」説(雪結晶の気相成長説)に疑問を投げかけるものであった。そして、中谷ダイヤグラム及びそれを修正したとされる小林のダイヤグラムにおいて、天然の現象と対比させたとき、そこには明白なくい違いが存在していたのである。それは、人工の雪結晶は水蒸気量が水飽和を超えた過

飽和のもとでなければそのほとんどは成長しないが、天然においてはそのような過飽和の状態は存在しないということである。このことは、先の花鳥や Kumai による観察・発見の事実とも関連して、雪の研究過程に内棲してきた根源的な矛盾であった。

このような人工雪の実験結果と天然の現象との差異に関する疑問について、中谷はその著書 (Nakaya, 1954) の末尾にやや詳細な論述を行っており、かつ、この問題について将来の研究方向を示唆している。それは極めて重要な指摘であると見なされるので、以下にその全体を意識的に引用する。

「ここにひとつの重要な問題が残されている。それはつまり過飽和の問題である。M.G. Bennett が1934年、Royal Meteorological Society (London) の論文において、『過飽和が存在するか否かに関してはほとんど証明されておらず、その明白な証明が求められている』と述べているように、この問題は未だに答えられず残されている。天然の大気において飽和の臨界値を超えた水蒸気が純粋に気体の状態で存在することはほとんど起こりそうもないことである。端的に言うならば、空气中に水蒸気の過飽和が存在することは考えられないことで、それは、ウイルソンの霧箱における断熱膨張の瞬間のような、ごく特別な場合にのみ期待できることである。そのような特別な場合でさえ、過飽和の瞬間は極めて短く、 $10^{-3}$  ないしは  $10^{-4}$  秒とされている。過飽和が天然の大気において観察できるとすれば、飽和した空気の中かで微小な水滴が存在しているということにおいては [それを水蒸気量として換算すれば - 中谷ダイヤグラムの過飽和度はそのようにして求められている -] 考えられる。実際、我々の人工雪作製装置による実験において、雪結晶が生成される箇所ですら  $1$  ないし  $2 \mu\text{m}$  の径の微小な水滴が常に無数に観察された。それらは氷晶の生成に関わって水蒸気と同じ振る舞いをして結晶の成長に寄与することが見いだされた。つまり、それらは水滴のまま氷晶に凍りつくのではなく、氷晶に付着した

瞬間に結晶の表面に広がるのである。結果として、それらの微水滴は [雪結晶への] 凝着の過程で、水蒸気の昇華のような現象を示すのである。この現象は、少なくとも氷晶面における水分子の表面拡散によるものと考えられる。このような見地から、これらの微水滴は雪結晶の成長現象に対して重要な役割を果たしていると言える。天然における雪の生成においても同じような現象が起こっていると推察される。しかしながら、そのような微細な水滴が天然の大気中に常に存在しているのかどうかについては定かではない。この問題に答えるためには、雪結晶が成長している雲の微水滴 [雲粒] について正確な粒径分布を見いだすことが必要であろう。」 ([ ]内の記載は引用者)

つまり、中谷は人工雪の研究の将来として、過冷却微水滴としての雲粒の形態や分布及びその相変化を解明することの重要性を示唆していたわけである。しかし、その後の研究は、実験的にも理論的にも、何故か純粋な「過飽和」を求める方向へと進められた。そして最近、中谷が指摘したような、あるいはより天然に近い過冷却雲粒について、液相から直接的に雪結晶へと変化することが実験的に示された (油川, 2005)。これらのことについては、対馬 (2004, 2005) が系統的な論評を展開している。

以上のようなことから、本論においては、中谷及び小林の雪の研究について再考し、特にそのダイヤグラムについて検討を行うものである。

## 2. 中谷ダイヤグラムについて

Nakaya (1954) は人工雪の実験から、雪結晶の成長形態は温度と湿度により決められるとして、それらの関係をダイヤグラムに表した。その後、Hallet and Mason (1958)、小林 (1957)、Kobayashi (1960, 1961)、Mason et al. (1963) などにより雪結晶の成長に関わるダイヤグラムが示されたが、それらはいずれも中谷ダイヤグラムを踏襲したものであった (Frank, 1982)。

ところで、現在、我が国において最も一般的に

普及しているのは小林によるダイヤグラムである。しかし、これは中谷のダイヤグラムと少し趣が異なるところがあり、その読みとりについては少し注意が必要であるが、このことについては後に詳述する。

図1は、いわゆる中谷ダイヤグラムの基となった図で、人工雪の実験結果が直接的に示されているものである。

中谷(1949)による人工雪の実験装置は、径が8cm、長さが60cmほどのガラス管を用意し、その下方には水蒸気を供給するための小型の水槽を入れ、上端には兎の毛を吊して空中に雪結晶が生成するようにしたものである。なお、このガラス管の中心部には径が4cmほどの細いガラス管が挿入されており、水蒸気の流通を円滑に保つように工夫されている。この装置全体を低温実験室に入れ、室温と水槽の水温を調整することにより、結晶生成領域の温度と水分量を調節し、種々の結晶を成長させるようにしている。

図1の横軸にはこの装置の結晶生成領域温度( $T_a$ )が、また、縦軸には水蒸気を供給するために装置下端に置かれた水槽中の水温( $T_w$ )が目盛りされている。各々の温度のもとで成長した結晶の形を記号として図にプロットし、結晶形が同じである領域を囲んだ曲線が示されている。ここで、Nakaya(1954)は特に言及はしていないが、このような結果は人工雪作製装置の形状に依存することに留意しなければならない。つまり、図1の結果は、水蒸気を供給する水槽とその上方の結晶成長領域との垂直距離が46cmほどの場合で、この距離が異なれば、当然ながら縦軸と横軸の値、特に縦軸の値が異なってくるわけである。このようなことから、Nakaya(1954)は装置の形状に関係しないような図を作成するために、図1の一般化を意図して、縦軸の値を水蒸気量に変換し、それを相対湿度として表記したのである。

しかし、ここには二つの疑問が考えられる。その第一は、図1において、例えば雪結晶の典型である樹枝状結晶を成長させるためには、その成長領域の温度を $-15^{\circ}\text{C}$ 、水槽の温度を $+15^{\circ}\text{C}$ とする

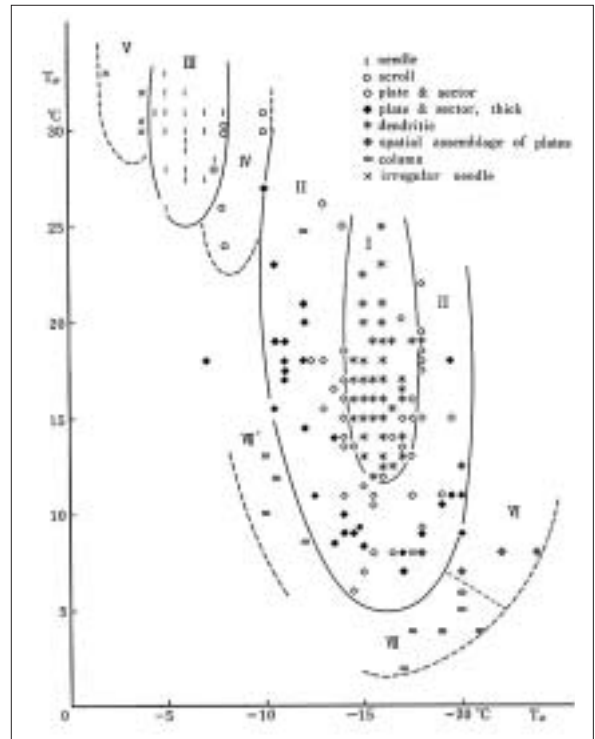


図1 中谷の $T_a$ - $T_w$ ダイヤグラム

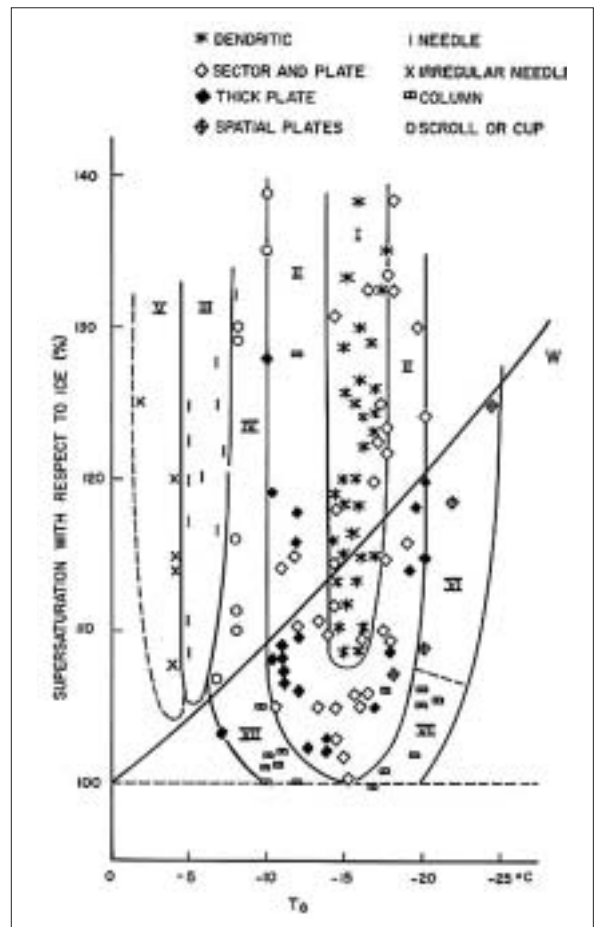


図2 中谷ダイヤグラム

必要がある。そして、この間は50cmに満たない垂直距離である。これを天然にそのまま適応すれば、樹枝状の雪結晶が成長する雪雲内の温度勾配は $30^{\circ}\text{C}/50\text{cm}$ となり、現実的な大気気温減率である $1\sim 0.5^{\circ}\text{C}/100\text{m}$ とは比較にならないほどの値である。実験と天然とのこのような差異が何故か検討されることはなかったが、この実験結果を天然に適応するためには、その差異について検討が必要ではなかったかと考えられる。

ところが実際には、天然と同じような雪結晶が「成長した」という事実をもって、根源的な疑問を覆う結果となったものと考えられる。これは、実験の問題ではなく、実験結果の解釈、つまりは研究の方法論に帰着する問題で、いわゆる実証主義的な方法論にあると言える（油川，2003）。

第二の疑問は、上述のことにも関連することであるが、図1の縦軸の値を何らの躊躇もなく水蒸気量に変換することができるのかどうかということである。実際には、図2に示されたように、縦軸は氷飽和以上の過飽和量として相対湿度により表されている。図1から図2へのこのような飛躍は、結果としてあらたな矛盾を生み出すこととなる。それは、天然には存在しない水飽和以上の過飽和度を導入しなければならなかったこと、そしてさらに困惑を招くこととして、人工雪装置内において観察された微小な水滴（花島，1944）について、それが液相であるにもかかわらず水蒸気と見なすという、この実験に限定されるような手法を取らざるを得なかったということである。すなわち、図2の縦軸の値は、

$$s = \frac{w + \rho'}{\rho_0} \times 100$$

により相対湿度を求めているが、ここで、 $s$ は相対湿度、 $w$ は単位体積当たりの水分量（微水滴量）、 $\rho'$ はその温度の過冷却水と平衡な水蒸気密度、 $\rho_0$ はその温度の水と平衡な水蒸気密度としている（Nakaya, 1954）。このような見積もりは人工雪作製装置の特殊性に由来するものと見なされる。

ところで、図2は雪結晶成長に関する  $T_a$ - $s$  ダ

イヤグラムで、1954年に出版された「Snow Crystals -Natural and Artificial-」(Nakaya, 1954)にはじめて掲載されたものである。熊井（私信）によれば、この図はシカゴ大学のバイヤス教授により「中谷ダイヤグラム」と命名され、その後、一般的にそのような呼称になったとの由である。このダイヤグラムでは、雪結晶の成長は当然ながら氷飽和（図の横軸に平行で、100%を示す点線）以上においてなされ、さらに、針状結晶や樹枝状結晶の大部分は、先に述べたように、水飽和（図の  $W$  で示された曲線）以上の領域で成長することが示されている。ただ、樹枝状や扇形などの結晶の一部は水飽和を若干下回る湿度の領域においても生成されている。つまり、このダイヤグラムをそのまま天然に適用すれば、雪結晶の多くは、大気が水飽和以上の過飽和状態でなければ成長しないということになる。しかし、そのような大気の現象はほとんど観察され得ないことであり（Warner, 1968; Tazawa and Magono, 1973）、また、凝結核が無数に存在する天然の大気において、このダイヤグラムに示されたような大きな過飽和の状態を想定することは、理論的にも困難なことである（黒田，1986）。

また、ダイヤグラムの湿度 ( $s$ ) の値を決めるとき、空気中の水蒸気に加え、微水滴をも水蒸気量に換算して見積もっていることは先に述べたとおりであるが、このことは天然の現象と人工雪の実験結果との整合性を図ることにはなるものの、ダイヤグラムの縦軸の値が「湿度」という本来的な定義からはずれるだけではなく、気相と液相の水分を同一視することによって、雪結晶の成長が水蒸気によるものか液体の水によるものか、判然としないことになる。

### 3. 小林のダイヤグラムについて

小林（1957）は、雪結晶の成長について、前述のような液相の関与が問題となったことから、また、Marshall and Langbein（1954）が、雪の形態は温度ではなく水蒸気量により一義的に決定

されるとする理論的な説を展開したことから、水蒸気により純粋に成長する雪結晶の習性を実験的に調査するために、拡散型の人工雪作製装置を用いて雪結晶の作製を行った。さらに Kobayashi (1960) は、それまでの水蒸気量の測定 (花島, 1949; Nakaya, 1954) に疑問を抱いていたことから、対流型の装置について水蒸気量の再測定を行っている。これらの実験から導かれた人工雪の成長に関する小林の結果について、以下に示す。

図3は、拡散型による結晶成長の結果で、その表示は中谷ダイヤグラムに則している。

拡散型の人工雪作製装置は、高さが60cmのプラスチックの筒の上端に湿った布を張って水蒸気の供給源とし、下方はドライアイスなどの冷媒で冷却して、筒の中心部の上下方向に垂らした繊維に雪結晶を生成させるものである。水蒸気の供給は、中谷の対流型とは正反対に、上方から下方へ拡散によって送られるわけであるが、実験の前にこの

水蒸気で強制的に霧粒を発生させて実験槽内のチリを落下させてから本実験を始める。このことにより、実験槽内は高い過飽和を得ることができるとしている。

図4は、図3の水蒸気量の値 (グラフの縦軸) を氷飽和からの水蒸気密度に変換して示したものである。ただし、この図4の縦軸は  $\rho_v - \rho_i$  と表記され、一見、空気中の水蒸気密度から氷表面の水蒸気飽和密度を差し引いたように示されているが、実際は特別な演算による値である。例えば、図4の水飽和の超過水蒸気密度を示した曲線は、図2及び図3の水飽和曲線とは異なり、単に水飽和の水分量から氷飽和の水分量を差し引いた値ではない。これは、水飽和状態のもとで雪結晶 (実際には氷球を仮定) が気相成長する場合、その表面が水蒸気の昇華潜熱により昇温するものとし

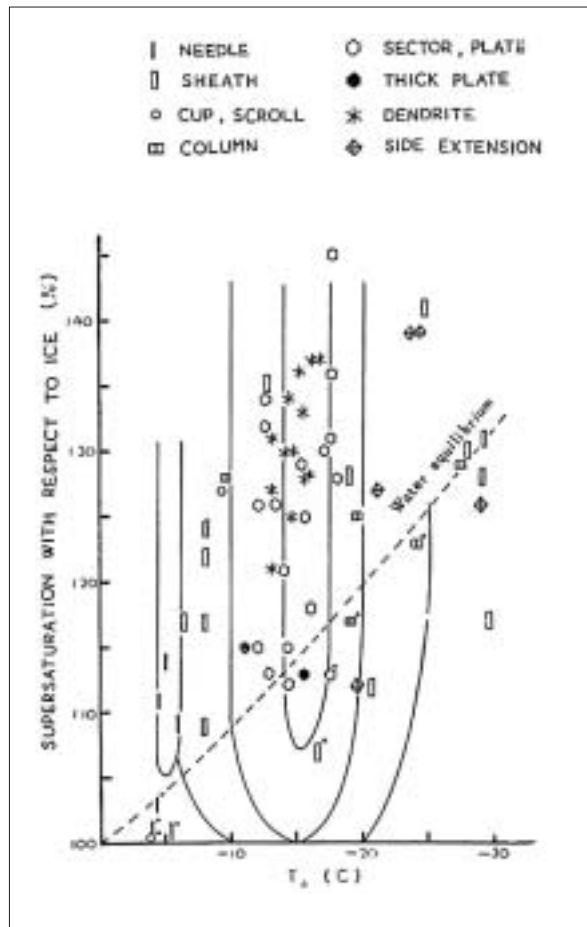


図3 小林の拡散型装置によるTa-sダイヤグラム

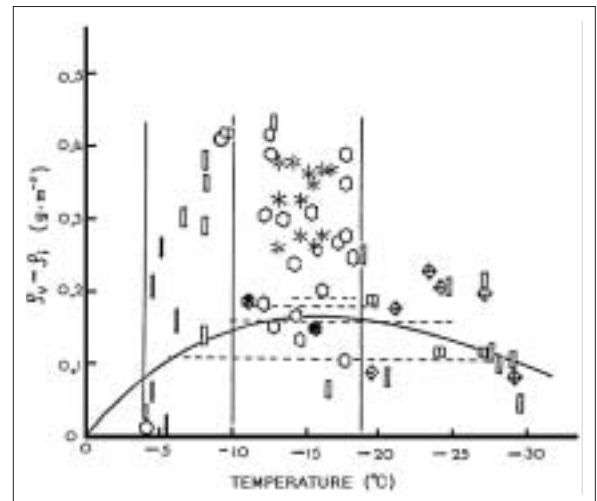


図4 小林のTa- $\Delta\rho$ ダイヤグラム

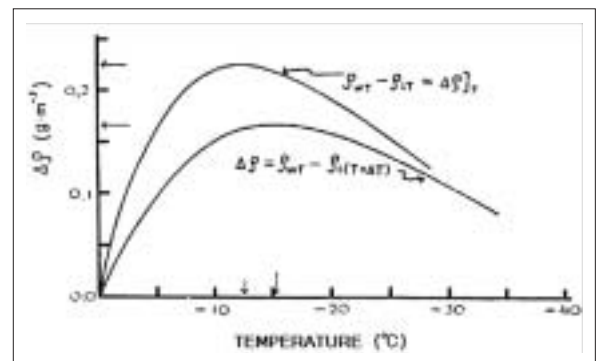


図5 水飽和水蒸気密度と水飽和水蒸気密度との差  
小林 (1957) より

て、周囲の温度 (T) よりも若干高くなった結晶の表面温度 (T + ΔT) と平衡する氷の水蒸気量と、温度 T の空気中における水の飽和水蒸気量との差を理論的に求めて描かれたグラフである。それ故、この値 (図4の曲線) は純粋の水-氷の飽和水蒸気量差よりも小さな値となる。また、図4に示されている各結晶の水蒸気密度の値も、同様に図3の値を変換したものである。

ここで、水と氷の飽和水蒸気密度の純粋な差 (Δρ)<sub>T</sub> のグラフと、水飽和の値から上述の T + ΔT の氷表面における飽和水蒸気密度を差し引いた超過水蒸気密度 (Δρ) のグラフを図5に示す。この図では、例えば、「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量と、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……の最大値は-15.4℃で0.1676g/m<sup>3</sup> [縦軸下方の水平矢印] 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℃で0.224g/m<sup>3</sup> [縦軸上方の水平矢印] ……」(小林, 1957) となっている。

#### 4. 結晶の成長と平衡水蒸気密度について

先の水-氷の超過水蒸気密度は Marshall and Langleben (1954) によって理論的に求められたものである。すなわち、半径 a の球形の氷粒子が周囲に対して静止し、その空気の水蒸気密度が時間的に一定で、かつ氷表面での水蒸気密度よりも高いものとすれば、氷球の成長は水蒸気分子の拡散のみにより行われ、その成長速度はラプラスの式から、

$$\frac{dm}{dt} = 4\pi a D [\rho_{aT} - \rho_i(T + \Delta T)] \quad (1)$$

と求められる。ここで、m は氷球の質量、D は水蒸気の空気中における拡散係数、ρ<sub>aT</sub> は温度 T における周囲の空気の水蒸気密度、ρ<sub>i(T+ΔT)</sub> は成長しつつある氷球表面の温度 (T + ΔT) における平衡水蒸気密度である。同様にして、このときの放出熱量は、

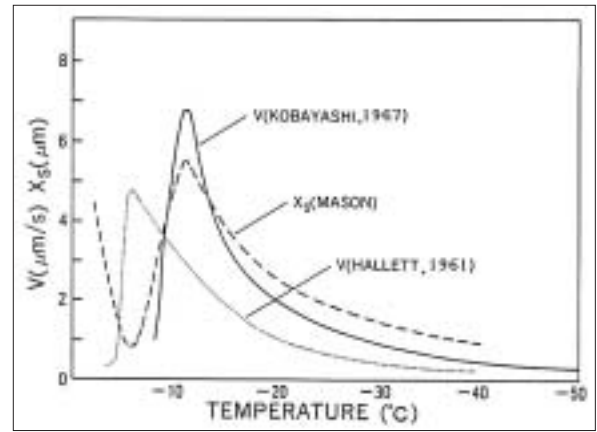


図6 雪結晶成長速度の結晶軸異方性 (実験値) Kobayashi and Kurodo(1987)より

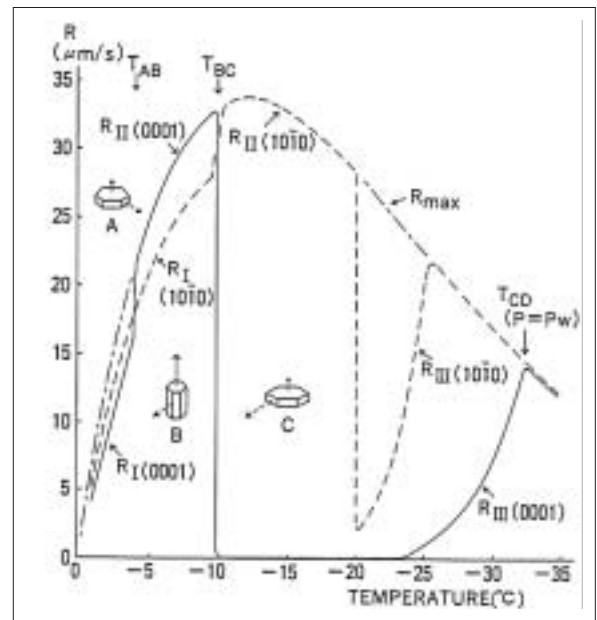


図7 雪結晶成長速度の結晶軸異方性 (理論値) Kobayashi and Kurodo(1987)より

$$L \frac{dm}{dt} = 4\pi a K [(T + \Delta T) - T] \quad (2)$$

と求められる。ここで、L は氷の昇華潜熱、K は空気熱伝導率である (潜熱は全て空気中に散逸するものとして)。

そして、(1), (2)式より、

$$\frac{\rho_{aT} - \rho_i(T + \Delta T)}{(T + \Delta T) - T} = \frac{K}{DL} \quad (3)$$

が得られる。ここで、ρ<sub>aT</sub> を水飽和とし、K/DL から ρ<sub>aT</sub> - ρ<sub>i(T+ΔT)</sub> を求めてグラフに描いたものが図5の Δρ の曲線である。

雪結晶の成長を考えると、このグラフに示さ

れた $\Delta\rho$ の値については、少し検討されなければならないことがある。それは、

- 1) 氷球の昇華成長をそのまま雪結晶の成長に適用することが妥当か否か。雪は板状結晶及び柱状結晶、あるいはその混合型があり、それぞれの成長（結晶軸）方向において、その速度には差が存在する（図6及び図7参照）。それ故、ダイアグラムにおいて、全ての形の雪結晶に氷球の理論値をそのまま取り入れることは、必ずしも妥当であるとは考えられないこと。
- 2) Kobayashi and Kuroda (1987) も指摘しているように、雪結晶は水蒸気から直接に昇華成長するというよりも、気相-液相-固相と変化する、いわゆるV-QL-S成長によるとされ、また、雪結晶は疑似液体層により成長するという理論が展開されてきている（Kuroda and Lacmann, 1982）ことから、氷球（雪結晶と見なして）の成長が、周囲の空気と純粋な氷表面の水蒸気密度の差によるとした仮定は検討の余地があるものと考えられる。
- 3) 雪結晶の成長に関して表面カインेटックス説を導入するならば（Kobayashi and Kuroda, 1987）、結晶の成長に寄与する水蒸気量（つまり結晶表面に凝結捕捉される水分子数）について、その凝結率が考慮されなければならない。

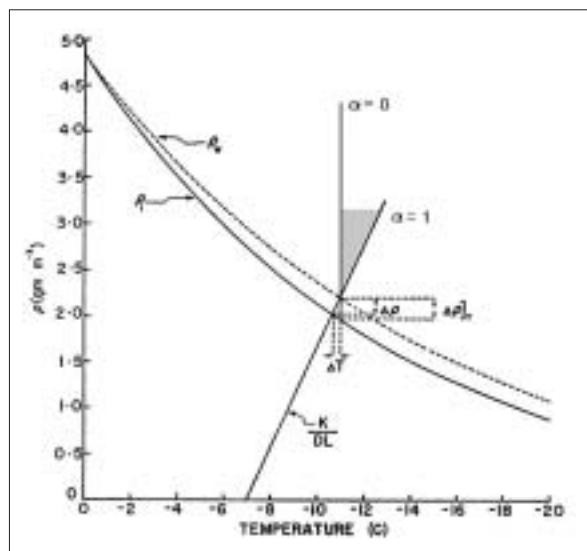


図8 氷結晶の水飽和水蒸気密度( $\rho_w$ )中での成長に伴う氷表面の潜熱放出効果による昇温度( $\Delta T$ )と凝結率( $\alpha$ )

- 4) 小林の図4において示された過剰水蒸気密度( $\Delta\rho$ )の値は、周囲の空気と結晶表面との相対的な水蒸気量で、それは、当然、周囲の水蒸気量の変動だけではなく、結晶の成長速度にも依存する。つまり、中谷ダイアグラム（図2）等における過飽和の値は雪結晶を取りまく環境相の絶対量を示したものであり、小林（図4）の場合は成長過程の雪結晶の表面状態を基準にした環境相との相対的な水分量であることから、後者は雪結晶の成長を大略的に解釈するための因子とはなり得ても、結晶成長のために供給される水蒸気量（条件）にはなり得ないということである。

Marshall and Langbein (1954) の仮説が妥当であると見なした場合でも、上記の1)、2)及び3)から、結晶の成長量を表す(1)式には結晶方位および結晶表面の要素に関係した水蒸気の結晶捕捉率、つまり凝結率( $\alpha$ とする)が乗じられる必要があり、(1)式は

$$\frac{dm}{dt} = 4\pi aD [\rho_{aT} - \rho_i(T+\Delta T)] \cdot \alpha$$

と修正されるべきであろう。結局、(3)式は

$$\frac{\rho_{aT} - \rho_i(T+\Delta T)}{(T+\Delta T) - T} = \frac{K}{DL} \cdot \frac{1}{\alpha}$$

と表されることになる。結晶の成長に伴う潜熱効

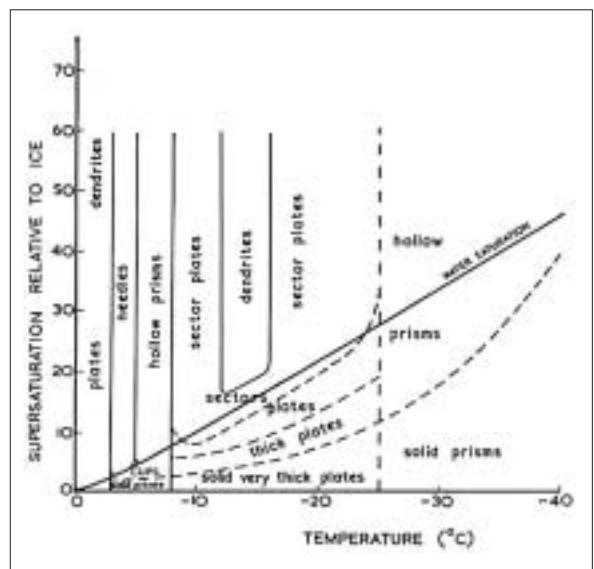


図9 拡散型によるTa-sのダイアグラム Hallett and Mason(1985)より

果を厳密に見積もるためには、この $a$ を決定して水蒸気密度を求めなければならないわけである。これを図8に示す。

Marshall and Langleben (1954)及び小林 (1957) は $\alpha = 1$ に限定された場合で、一般には、図8に示したように、二直線の間挟まれた領域で、 $\alpha$ の値が0以上で1以下の範囲にあるものと考えられる。

### 5. 雪結晶のダイヤグラムと結晶形の表示

図9はHallett and Mason (1958)のダイヤグラムであるが、中谷ダイヤグラムに比して、結晶形に関する水蒸気過飽和度は10%程度大きな値となっている。例えば、樹枝状結晶は全て水飽和を超えた領域となっている。これについては、両者の実験方法や水蒸気量測定法の相違によること他に、両者とも結晶形を抽象的に表現していることにも起因していることも考えられる。すなわち、「樹枝状結晶」と表現するとき、例えば星状結晶をそれを含めるのか否かなど、実験者によってそのとらえ方(定義)に差があるのではないかと予想されるからである。それ故、結晶の形状を客観的な数値として表し、例えば、図10に示したような雪結晶のフラクタル次元(油川・安武, 1996)を用いてダイヤグラムを作成するなどして、結晶領域を客観的に判別することが必要ではないかと考えられる。そのようにして描いたダイヤグラムに従来の結晶形の名称を併記すれば、これまでのダイヤグラムとの関連性が得られ、主観的な要素が少なくなり、より普遍的なものになるはずである。このようなことから、雪結晶のダイヤグラムは今後、再作成が必要であると考えられる。

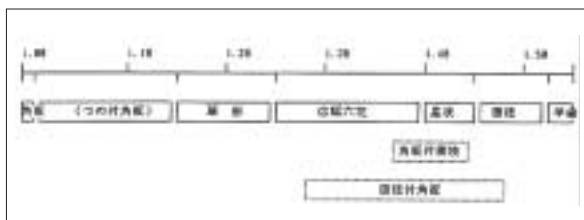


図10 雪結晶のフラクタル次元。  
油川・安武 (1996) より

### 6. 過飽和水蒸気量と相対湿度

小林のダイヤグラムが一般に公表されたとき、その相対湿度の表示について若干の疑問が感じられたので、検討を行ってみた。それは、Kobayashi (1961)がHallett and Mason (1958)の図9を引用して描いた図11の、水飽和を上回る種々の $\Delta\rho$ の値を過飽和度として示した曲線についてである。この図は、例えば $\Delta\rho = 0.20\text{g/m}^3$ を過飽和度に変換した場合、その曲線が水飽和の過飽和度を示す曲線(図11の water saturation)よりも大きな値となって、その上方に示されている。これは、先の図5において示されているように、水飽和に対する水飽和の水蒸気量は、 $-12.5^\circ\text{C}$ では、 $\Delta\rho$ が明らかに $0.2\text{g/cm}^3$ を超えているわけで、つまり、図11のように $\Delta\rho = 0.20\text{g/cm}^3$ の曲線が全体として水飽和を上回ることはあり得ないということである。このようなことから、 $\Delta\rho = 0.2 \sim 0.05\text{g/cm}^3$ の相対湿度の曲線をそのまま描いてみたものが図12である。この図12では、図11の各 $\Delta\rho$ と比較して、絶対値だけではなく、曲線の勾配も両者は異なっていることから、Kobayashi (1961)の曲線は特殊な方法により描かれたグラフではないかと見られる。以下にその推測の一端を述べてみよう。

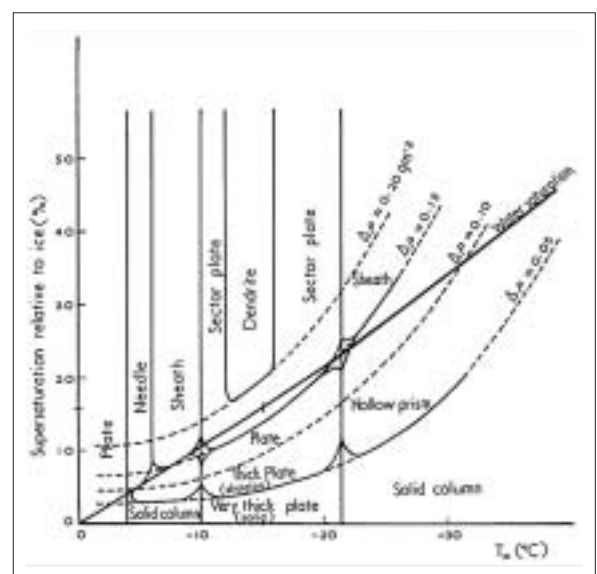


図11 小林による $\Delta\rho$ の相対湿度変換  
Kobayashi (1961) より

Kobayashi (1961)の論文では、この図11の前に、先の図4と同じような、 $\Delta\rho$ と温度の関係を示したグラフを掲げている。それはすなわち、図13に示されたもので、より一般化された $T_a - \Delta\rho$ ダイアグラムとなっており、これが後に「小林のダイアグラム」として多くのテキストに引用されているものである。

この図13では、水飽和の空気中の水蒸気量と、その下で成長する雪結晶表面の平衡水蒸気量との差を示す曲線には、 $(\rho_w - \rho_i)$ という説明が付されているだけで、これを表記のままに受け取るならば、水飽和の水蒸気量と氷飽和の水蒸気量の単純な差として理解されてしまう。しかし、先の図4に示されているように、これは明らかにそのような量ではなく、 $(\rho_{wT} - \rho_{i(T+\Delta T)})$ のはずのもので、潜熱の放出による結晶の昇温効果を仮定した値である。

このことについて、結論的に述べるならば、この $(\rho_w - \rho_i)$ という表示は、Kobayashi (1961)の超過水蒸気密度曲線と、彼が引用したHallett and Mason (1958)の図9のwater saturationの曲線とを一致させる(両者の氷と水の平衡蒸気量の差は明らかに異なる値であるが)ことによる結果であると考えられる。つまり、 $(\rho_{wT} - \rho_{i(T+\Delta T)})$ の曲線を図4の $\Delta\rho]_T$ に換算して戻し、Hallett and Masonのwater saturationに一致させ、かつ、 $\Delta\rho = 0.2 \sim 0.05 \text{g/cm}^3$ の各値を、water saturationに戻した操作と同じようにし

て過飽和度(%)に「換算した」ものようである。そしてこのことはまた、図11に示されたように、そのような $\Delta\rho$ の各曲線がHallett and Masonの結晶形の領域と重なっている、例えば、Hallett and Masonの樹枝状結晶の下限が $\Delta\rho = 0.20 \text{g/cm}^3$ の曲線と一致しているなど、好都合な結果が得られたことにより、その操作の「妥当性」が認められることになったものと推測される。

Kobayashi (1961)のこのような操作は、自らの超過水蒸気密度という考え方を通常の過飽和水蒸気量へと逆変換させることになり、中谷ダイアグラムに対して差別化を図った自らのダイアグラムの特徴を失わせることになりかねない。

図11に描かれた $\Delta\rho = 0.2 \sim 0.05 \text{g/cm}^3$ の各々のグラフには特別な注釈が付されていないことから、氷飽和以上の値と誤解される可能性が大きく、余り適切なものではないと言える。このようなことについてKobayashi (1961)は全く言及していないので、以上に述べたことは推測の域を出るものではないが、著者らが前述のような「換算」を試み、グラフを求めてみたところ、その結果は、まさに図11のKobayashi (1961)の示した各 $\Delta\rho$ のグラフにほとんど一致した。このことから、先に述べた推測がある程度の可能性を有しているものとみなされる。

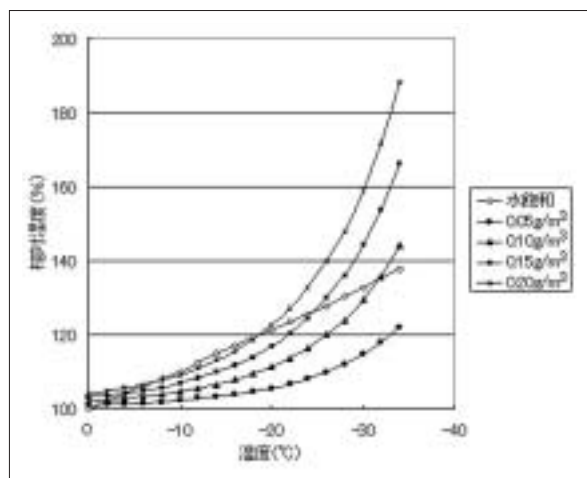


図12 超過水蒸気密度の相対湿度変換

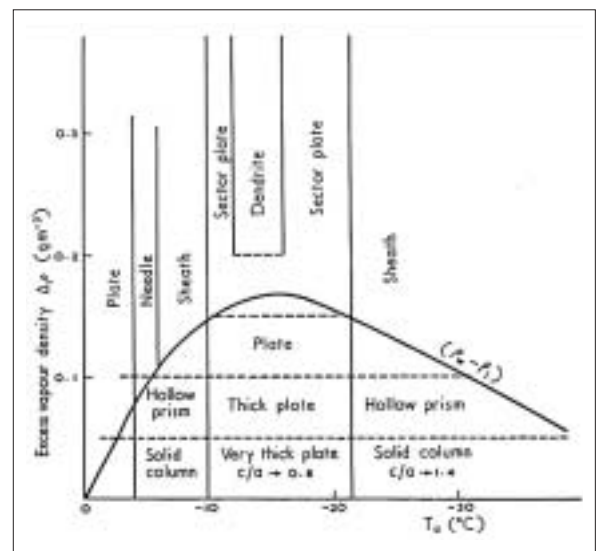


図13 小林による $T_a - \Delta\rho$ のダイアグラム  
Kobayashi (1961)より

いずれにしても、図11がこのように公表されたということは、Kobayashi (1961)とHallett and Mason (1958)の実験結果が「一致した」とのみなされ、結果として両者による中谷ダイヤグラムの修正が認められたことになる。その例として、図14にFrank (1982)によりまとめられた雪結晶のダイヤグラムを示す。これは、中谷ダイヤグラムとして説明がなされているが、実際はKobayashi (1961)の図13を基にして描かれたものである。特に、図14に示されている $\Delta\rho_w$ の曲線は、水飽和と氷飽和との水蒸気量の純粋な差として示されている。これは図13の $\rho_w - \rho_i$ と同様の表現であるが、しかし、実際は $\rho_{wT} - \rho_{i(T+\Delta T)}$ のはずのものである。雪結晶のダイヤグラムは、実質的にはMason-Kobayashiによるものが一般的に評価されるようになってきたわけであるが、それは、両者において水蒸気量の見積もりが異なっているということをも問に付してのことである。

ところで、図15は、Kuroda and Lacmann (1982)による氷-水飽和水蒸気圧の差( $\rho = \rho_w$ の曲線、目盛りは右の縦軸)と氷飽和に対する水飽和及び種々の氷飽和からの超過水蒸気圧に関する相対湿度である。相対湿度は飽和を超えた値が左の縦軸に示されており、各グラフのパラメータ

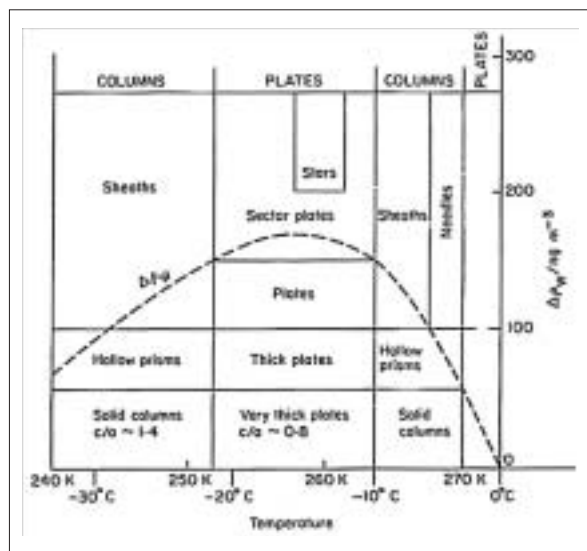


図14 雪結晶ダイヤグラムのまとめ Frank(1982)より

は Torr の単位で表されている。これを水蒸気密度の値 ( $\text{g}/\text{m}^3$ ) に換算すれば、 $0.2\text{Torr} = 0.211\text{g}/\text{m}^3$ ,  $0.15\text{Torr} = 0.158\text{g}/\text{m}^3$ ,  $0.10\text{Torr} = 0.106\text{g}/\text{m}^3$ ,  $0.05\text{Torr} = 0.053\text{g}/\text{m}^3$ となり、曲線のパターンは先のKobayashiによる図11に類似しているが、これはKobayashi (1961)による超過水蒸気密度の相対湿度曲線とは明らかに異なる単位のもので、当然ながら図11の各 $\Delta\rho$ のグラフを支持するものではない。

### 7. 人工雪装置内の水蒸気量の測定

ここで、中谷ダイヤグラムに示された水蒸気量が過少な見積もりであったとするKobayashi (1960)の論述を検討してみよう。

Nakaya (1954)の過少な水蒸気量の見積もりの根拠としてKobayashi (1960)は、対流型装置の3リットル程の容積から20リットル以上もの空気を吸引する方法(花島, 1944)が、外部の乾燥空気も混入させて取り込む可能性を示唆している。そして、Kobayashi (1960)の方法では、同様の装置からは1リットル程度の吸引で済み、誤

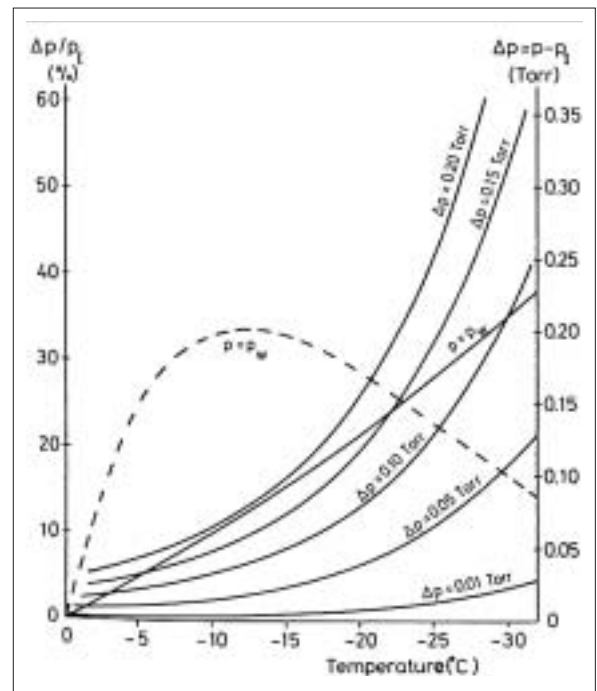


図15 氷飽和を超えた水蒸気密度 $\Delta\rho$ の相対湿度 Kuroda and Lacmann(1982)より

差も2～5%であるとしている。実際に水蒸気を測定したKobayashi (1960)の結果を図16に示す。この図で特徴的なことは、氷飽和以下(図の100%以下)の領域においても角柱などの結晶成長が示されていることである。これは、もちろん原理的にはありえないことであるが、このことに対してKobayashi (1961)は、装置内部から吸引した空気は装置内全体の平均されたもので、結晶が成長している箇所限定された空気ではないとし、また、これは避けられない誤差であるとしている(10%もの誤差と見なされるが)。しかし、100%以上の領域における測定水蒸気量にはどのような補正がなされたのかについては触れられておらず、ダイヤグラムの作成にはそのまま採用されているようである。

Nakaya (1954)の場合と比較して、このように過飽和度が比較的高く測定されていることについては他の原因も考えられる。それは温度の違いである。Nakaya (1954)の $T_a-T_w$ のダイヤグラムはすでに図1に示した通りであるが、Kobayashi (1960)の図16の元になっている

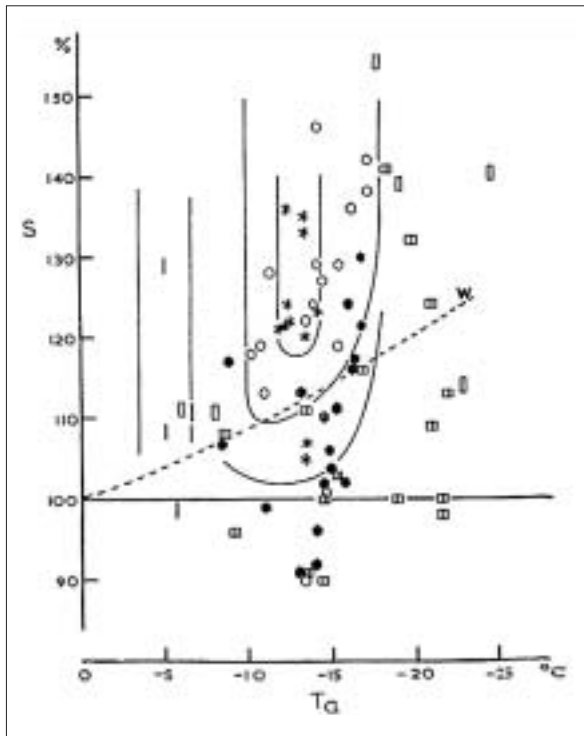


図16 小林の対流型によるTs-sダイヤグラム Kobayashi(1961)より

$T_a-T_w$ のダイヤグラムを図17に示す。

これらの図で明らかなのは、ダイヤグラムの縦軸( $T_w$ )の値(水蒸気供給源の温度)が、Nakayaのそれに比してKobayashiの方が数度ほど高くなっていることである。例えば、樹枝状結晶の生成下限について、Nakayaの場合は+12°Cくらいであるのに対して、Kobayashiの方は+18°Cほどになっている。装置は両者ともに同じ形状となっているようであるが、Nakayaの装置は全体が低温実験室に入れられて、実験管内の水蒸気の冷却が自然空冷的であるのに対して、Kobayashiは装置自体の外壁に冷媒を循環させて実験槽内の水蒸気を強制冷却している。水蒸気源の温度及び水蒸気の冷却過程が雪結晶の成長に影響を与えるという報告もみられることから(油川, 2005), NakayaとKobayashiの実験装置についてより詳細な比較検討が必要であるように考えられる。いずれにしても、温度の測定誤差は湿度の測定ほど大きなものではないので、両者の温度測

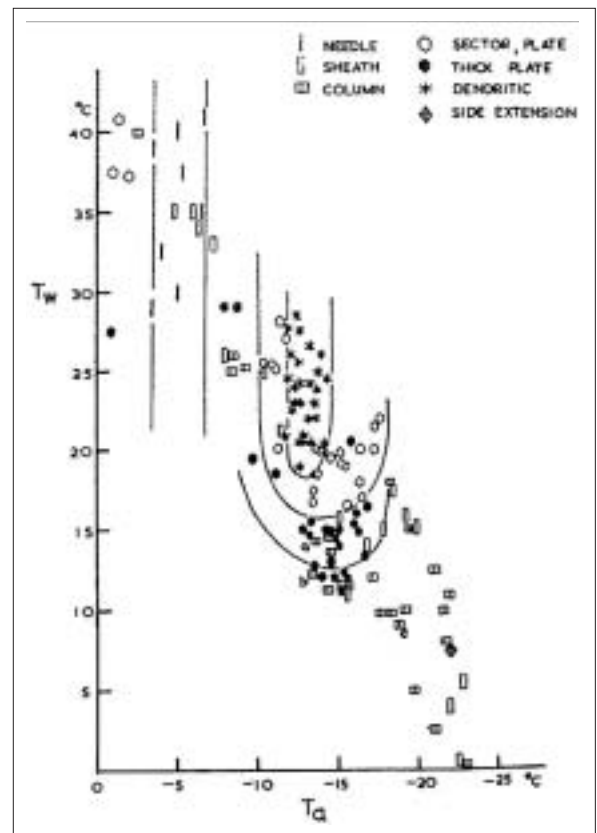


図17 小林の対流型によるTs-Twダイヤグラム Kobayashi(1961)より

定値については相応の精度があるものと考えられる。つまり、このような  $T_w$  の違いは水蒸気の供給に直接関係することであり、このことが Kobayashi による水蒸気の測定値に反映され、比較的大きな値として示されているとも考えられる。

## 8. おわりに

雪結晶の成長に関するダイヤグラムの考察を行ない、以下のような結果が得られた。

- 1) 人工雪の実験により作成された雪結晶のダイヤグラムにおいては、結晶の成長形態は温度と水蒸気量により決められるとされているが、その水蒸気量は天然において存在しない水飽和以上の過飽和度を必要としている。この矛盾を解消するために、Nakaya (1954) は雪結晶の成長に過冷却の雲粒が直接に液相として関与している可能性を示唆している。
- 2) 小林のダイヤグラムにおける過飽和の水分量は、他のダイヤグラムとは異なり、結晶表面の昇華潜熱による昇温を仮定し、成長しつつある結晶表面を基にして周囲の空気との水蒸気密度差を求めたものであり、結晶の環境相の水分量をそのまま示したものではない。
- 3) 結晶表面に捕捉される水蒸気は、結晶の方位や表面状態に依存すると考えられるので、小林が結晶面昇温の見積りに用いた雪結晶の成長量に対しては、相応の凝結率を導入すべきであると考えられる。
- 4) これまでのダイヤグラムは雪結晶の形について概念的な表示を用いているため、結晶成長領域の決定には客観性が欠けているように見なされる。これを改良するためには、結晶の形態を数値化したダイヤグラムを作成する必要がある。
- 5) 人工雪作製装置は、結晶が成長する領域の温度と水蒸気量だけではなく、水蒸気供給源の温度及び水蒸気の冷却過程にも留意すべきである。

なお、本論文は、著者の一人である中埜渡美佳 (2005) の2004年度本学学士論文をもとに作成されたものである。

## 参考文献

- 油川英明・安武 学, 1996: 雪結晶のフラクタル次元について. 北海道教育大学紀要 (第二部A), 47, 7-15
- 油川英明, 2003: 実証の落とし穴-中谷宇吉郎の人工雪を巡って-. 年報いわみざわ, 第24号, 47-58
- 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
- Bentley, W. A. and Humphrey, W. J., 1931: Snow Crystals, McGraw Hill, New York, 226pp.
- Frank, F. C., 1982: Snow Crystals. Contemporary Physics, 23, 3-22
- Hallett, J. and Mason, B. J., 1958: The influence of temperature and super-saturation on the habit of ice crystals grown from the vapour. Proc. Roy. Soc., 247, 440-453
- 花鳥政人, 1944: 人工雪の生成条件について-補遺. 低温科学, 物理篇, 2, 23-29
- 東 晃, 1997: 雪と氷の科学者・中谷宇吉郎. 北海道大学図書刊行会, 245pp.
- 池内 紀, 1997: 鈴木牧之著「北越雪譜」. 小学館, 238pp.
- 小林禎作, 1957: Diffusion Cloud Chamberによる雪結晶習性の研究. 低温科学, 物理篇, 16, 1-26
- Kobayashi, T., 1960: Experimental researches on the snow crystal habit and growth using a convection-mixing chamber. J. Meteor. Soc. Japan, 38, 231-238
- Kobayashi, T., 1961: The Growth of Snow Crystals at Low Supersaturations. Phil. Mag., 6, 1363-1370
- Kobayashi, T. and Kuroda, T., 1987: Snow crystals. Morphology of Crystals, TERRAPUB, Tokyo, 643-743
- Kumai, M., 1951: Electron-Microscope Study of Snow-Crystal Nuclei. J. Meteor., 8, 151-156
- Kuroda, T. and Lacmann, R., 1982: Growth kinetics of ice from vapour phase and its growth forms. J. Crystal Growth, 56, 189-205
- 黒田登志雄, 1986: 雪氷の構造と物性. 基礎雪氷学講座 I, 古今書院, 209pp.
- Marshall, J. S. and Langbein, M. P., 1954: A theory of snow-crystal habit and growth. J. Meteor., 11, 104-120
- Mason, B. J., Bryant, G. W., Van den Henvel, A. P., 1963: The growth habit and surface structure of ice crystals. Phil. Mag., 8, 505-526
- 中埜渡美佳, 2005: 我が国における雪の研究過程に関する

- る研究. 北海道教育大学岩見沢校教員養成課程2004年度卒業論文
- 中谷宇吉郎, 1949: 雪の研究. 岩波書店, 161pp.
- Nakaya, U., 1954 : Snow Crystals-Natural and Artificial-. Harvard University, Press, Cambridge, 510pp.
- 西澤陽子・菅原美喜子・油川英明, 1996: 校章に見られる雪華及び雪輪文様について. 年報いわみざわ, 第17号, 111-122
- Tazawa, S., and Magono, C., 1973 : The Vertical Structure of Snow Clouds, as Revealed by "Snow Crystal Sondes", Part I .J. Meteor. Soc. Japan, 51, 168-175
- 対馬勝年, 2004: 中谷ダイヤグラムと拡散式人工雪作成法の問題. 天気, 51, 753-758
- 対馬勝年, 2005: 雪結晶の分類図表について. 雪氷, 64, 380-382
- Warner, J.,1968 : The Supersaturation in Natural Clouds. J. de Recherches Atmospheriques, 3, 233-237

(油川英明, 岩見沢校, 教授)

(中埜渡美佳, 岩見沢校, 2004年度卒業生)