

文 献

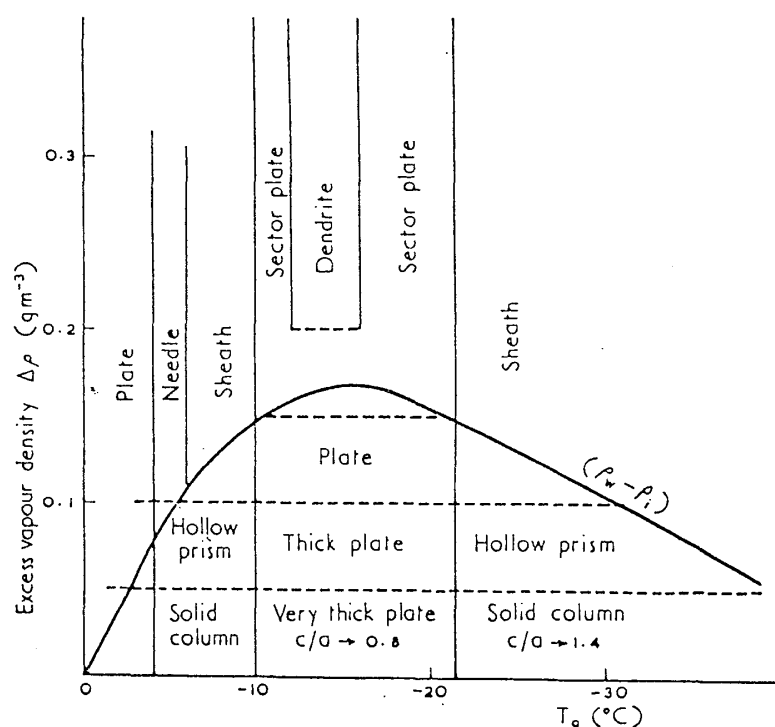
- 1) Kobayashi, T.: The growth of snow crystals at low supersaturation Phil. Mag., 6 1363 ~ 1370 (1961).
 - 2) Kobayashi, T. and T. Ohtake: Hexagonal twin prism of ice J. Atmos. Sci., 31, 1377 ~ 1383 (1974).
 - 3) Kobayashi, T. and Y. Furukawa: On twelve branched snow crystals. J. Cryst. Growth, 28 21 ~ 28. (1975).
 - 4) Kobayashi, T., Y. Furukawa, K. Kikuchi and H. Uyeda: On twinned structures in snow crystals J. Cryst. Growth, 32, 233 ~ 249 (1976).
 - 5) Kobayashi, T., Y. Furukawa, T. Takahashi and H. Uyeda: Cubic structure models at the junctions in polycrystalline snow crystals J. Cryst. Growth, 35, 262 ~ 268 (1976).
 - 6) Kobayashi, T. and Y. Furukawa: Epitaxial relationships during the formation of three-dimensional snow dendrites J. Cryst. Growth, 45, 48 ~ 56 (1978).
 - 7) Furukawa, T. and T. Kobayashi: On the growth mechanism of polycrystalline snow crystals with specific grain boundary J. Cryst. Growth, 45, 57 ~ 65 (1978).
- 他に雪の結晶の形についての解説としては、下記を参考にされたい。
- 8) 小林禎作：雪・氷の結晶成長，応用物理， 44， 1234 ~ 1248 (1975) .
 - 9) 小林禎作：雪－結晶の形，数理科学， No. 184， 10 ~ 17 (1978) .
 - 10) 小林禎作：「六花の美－雪の結晶成長とその形」， pp. 249， サイエンス社 (1980) .

雪結晶の形についての理論的考察

北大・低温研 黒 田 登志雄

1. はじめに

天からの手紙を解読する鍵となる，雪結晶の外形と成長条件の関係を示すダイアグラムを得るための実験的研究は，気象学，雲物理学の分野において多数行われてきた。しかしながら，雪結晶の成長，すなわち氷結晶の蒸気相成長，の機構と成長形に関する理論的研究は数少なく多くの未解決な問題点が残されている。ここでは，小林ダイアグラム¹⁾（第1図）に見られる第1の特徴である，温度の低下にともなって六角板，六角柱が交互に現われる晶癖変化のしく



第1図 単結晶雪の成長形と成長条件の関係を示す小林ダイアグラム¹⁾

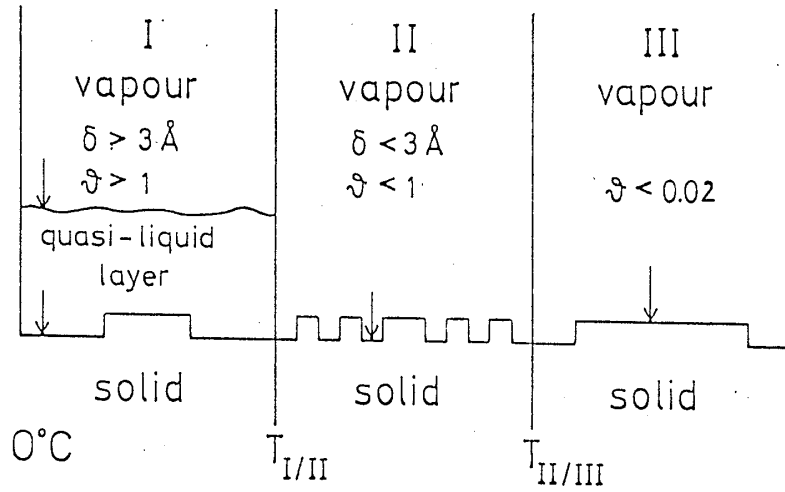
みについての黒田, Lacmann の研究²⁾の要旨を報告する。

2. 雪結晶の晶癖変化のしくみ

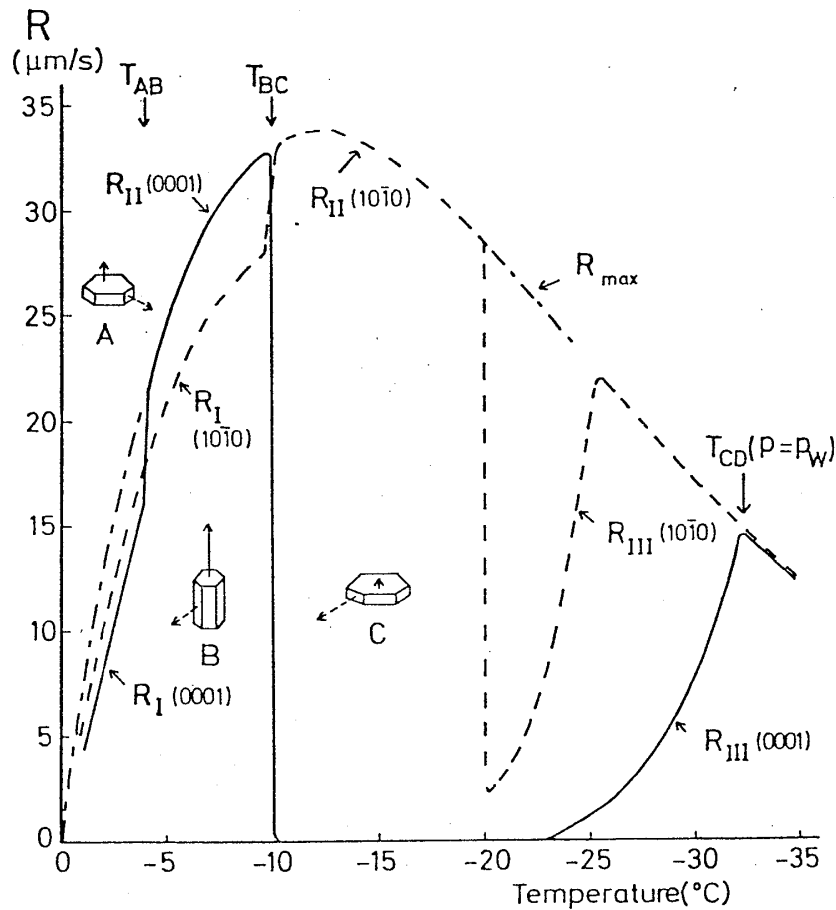
雪結晶の成長機構を考える際には、寒い冬に降る雪結晶の温度が、実は、氷結晶の融点(0℃)に近い高温であることに注意しなければならない。このような温度条件下の氷結晶表面の構造を、他の物質の蒸気相成長の際に仮定するような分子的尺度で見て平らな特異面であると決めつけることはできない。融点直下の氷結晶表面には表面エネルギーを下げるために擬似液体層が存在すると考えられ^{*}、その厚み δ あるいは被覆率 $\mathcal{U}$ は温度の低下と共に小さくなり、低温で裸の特異面が現われる。その結果、ある結晶表面の成長カイネティクスも温度の低下につれて次の様に変化する。

I) 蒸気(V)－擬似液体(QL)－固体(S)－機構($\mathcal{U} > 1$) $\rightarrow T_{I/II} \rightarrow II$) 水分子が強く吸着した荒れた表面の付着成長($1 > \mathcal{U} > 0.02$) $\rightarrow T_{II/III} \rightarrow III$) 裸の特異面の2次元核形成による成長($\mathcal{U} < 0.02$) (第2図)。また、表面構造および成長カイネティクスが変化する温度 $T_{I/II}$,

* 1850年にM.Faradayが提出した氷結晶表面上の擬似液体層の仮説は、理論的にはWeyl³⁾、Fletcher⁴⁾によって検討された。また、実験的にも近年、NMR⁵⁾、電気伝導度^{6, 7)}、偏光解析⁸⁾などを用いた方法でその存在が間接的に示されている。



第2図 温度に依存した氷結晶表面の構造

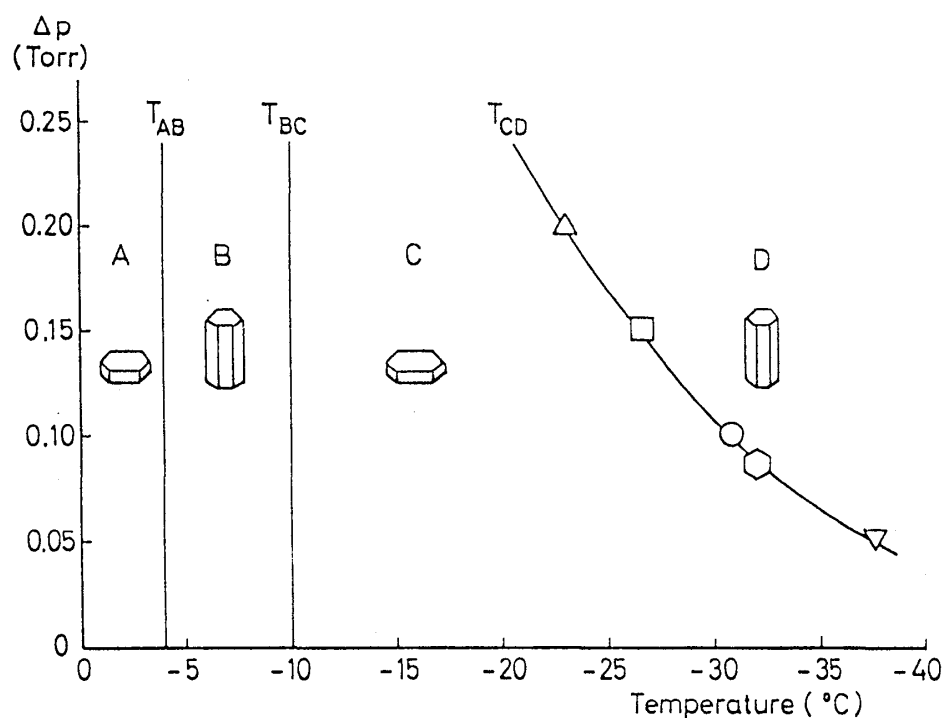


第3図 水飽和における基底面の成長速度 $R(0001)$ (実線) とプリズム面の成長速度 $R(10\bar{1}0)$ (破線)。 R_I , R_{II} , R_{III} はそれぞれ V-QL-S 機構, 付着成長, 2次元核形成による成長速度を表わす。 R_{max} (鎖線) は結晶面のいたるところで水分子が結晶相に組み入れられるとした時の最高成長速度で, $R_{II} \simeq R_{\text{max}}$ である。

$T_{\parallel/\text{III}}$ は結晶面方位によって異なるので、複雑な晶癖変化は主として $\{0001\}$ 面と $\{10\bar{1}0\}$ 面の成長カイネティクスの組み合わせの変化として理解できる。

第3図は水飽和の条件下での $\{0001\}$ 面の成長速度 $R(0001)$ (実線) と $\{10\bar{1}0\}$ 面の成長速度 $R(10\bar{1}0)$ (破線) の温度依存性の計算例を示す。 R_{I} , R_{II} , R_{III} はそれぞれ上記三つの成長カイネティクスに対応している。第4図は晶癖の温度および絶対的過飽和度 $\Delta p = p - p_{\text{I}}$ 依存性を示す理論ダイアグラムである。 p は実際の水蒸気圧, p_{I} は氷の平衡蒸気圧である。

晶癖変化の第1転換温度 $T_{\text{AB}} = -4^{\circ}\text{C}$ と第2転換温度 $T_{\text{BC}} = -10^{\circ}\text{C}$ は表面構造の変化に関連しており, Δp には依存しない。他方, 角板から角柱への第3転換温度 $T_{\text{CD}}(\Delta p)$ は2次元核形成による $\{0001\}$ 面の成長が, 同じく2次元核形成による $\{10\bar{1}0\}$ 面の成長に追いつき, 水蒸気分子の拡散場の形状効果によって前者が後者を追いぬく温度である。その結果, Δp が低下すると T_{CD} は低くなると予想される。



第4図 雪結晶の晶癖と成長条件の関係を示す理論ダイアグラム。

3. 雪結晶の形態安定性の問題

小林ダイアグラム (第1図) に見られる第2の特徴は, 低過飽和度では多面体を維持する安定成長が実現するが, 過飽和度が増大するにつれて結晶の稜や角が優先的に伸び始め, 多面体

が維持できなくなり、骸晶、コップ状結晶、樹枝状結晶が出現することである。この多面体結晶の界面安定性の問題は、拡散過程が原因となって起る界面に沿っての過飽和度の不均一に関連した興味ある問題である。溶液成長における同種の問題は Chernov⁹⁾、黒田ら¹⁰⁾ が定量的に扱っているが、雪結晶の場合は Frank¹¹⁾ による定性的な議論しかない。なお、融液成長の場合に見られる、異方性の少ない界面の形態安定性、あるいは樹枝状成長の研究については Langer の総合報告¹²⁾ を参照して戴きたい。また、結晶界面構造、成長機構、結晶の外形などの結晶成長一般に関しては大川の教科書¹³⁾ がある。

4. おわりに

“形”の問題のどの側面に興味を持つか、また、それをどのように追求するかといった点で立場を異にする他分野の方々の話しを聞き、大きな刺激を受けた。それぞれの分野を越えて、非平衡状態で“形”が作りだされていく過程を理解するために有効な概念、描像といったものが生れる方向にこの研究会が進むことを希望する。

参 考 文 献

- 1) T. Kobayashi: *Phil. Mag.* **6**, 1363 (1961).
- 2) T. Kuroda; Dissertation Technical University Braunschweig 1979; T. Kuroda & R. Lacmann; *J. Cryst. Growth*, 投稿中 ; 日本結晶成長学会誌, **6**, 51 (1979), *Proc. Int. Conf. Cloud Physics* (1980) p. 109.
- 3) W. A. Weyl: *J. Colloid Sci.*, **6**, 389 (1951).
- 4) N. H. Fletcher: *Phil. Mag.*, **7**, 255 (1962); *ibid.*, **18**, 1287 (1968); *Physics and Chemistry of Ice*, ed. E. Whalley et al., Roy. Soc. Canada, Ottawa (1973) p. 132.
- 5) V. I. Kvlividze et al.: *Surf. Sci.*, **44**, 60 (1974).
- 6) C. Jaccard: *Physics of Snow and Ice*, vol. 1, *Proc. Int. Conf. Low Temp. Sci.*, Hokkaido Univ., ed. H. Oura, Tokyo, Maruzen (1967) p. 173.
- 7) N. Maeno & H. Nishimura: *J. Glaciology*, **21**, 193 (1978).
- 8) D. Beaglehole & D. Nason: *Surf. Sci.* **96**, 357 (1980).
- 9) A. A. Chernov: *J. Cryst. Growth*, **24/25**, 11 (1974).
- 10) T. Kuroda et al.: *J. Cryst. Growth*, **42**, 41 (1977); 日本結晶成長学会誌, **6**, 44 (1979).
- 11) F. C. Frank: *J. Cryst. Growth*, **24/25**, 491 (1974), は第 4 回結晶成長国際会議の招待講演として発表されたもので、砂川一郎訳により講演そのものが自然 (中央公論社, 1974) 12 月号, p. 28 に掲載されている。

12) J. S. Langer: Rev. Mod. Phys., 52, 1 (1980).

13) 大川章哉：「結晶成長」裳華房（1977）.

金 米 糖 の 形 態

横浜国大・工 戸 田 盛 和

1. 金米糖

金米糖（金平糖）はよく知られているように、角（ツノ）のある砂糖菓子である。この名前はもともとポルトガル語の Confeitos から来ているもので、1569年（永禄12年）宣教師ルイス・フロイスが織田信長に贈ったのが伝来のはじめである。英語の confectionary（砂糖菓子屋）も同じ語源に属する。

寺田寅彦先生の随筆に「金米糖」というのがある（続冬彦集。昭和2年）。これは昔読んだときから常に記憶に残っていた。今読み返えしてみると、くわしい製法は書いてなく、伝えきいた製法が数行述べられているだけであり、それも正確ではない。ケシ粒を中心に砂糖の濃い液が固まって金米糖ができるのだが、「なぜあのように角を出して生長するかが問題である」ということを少し論じておられる。金米糖が球形に育たないで角を出すのは、ゆらぎによってたまたま出っぱったところができると、出っぱったところが低いところよりも生長速度が大きいという物理的条件さえあればよい。「現在の場合にこの条件が何であるかはまだよくわからないが、そのような可能性はいくらか考え得る。面白いことには、金米糖の角の数がほぼ一定している。その数を決定する因子が何であるか、これは一つの極めて興味ある問題である」と寺田先生は書かれている。そのあと先生はゆらぎの研究が大切であることを述べておられるが、ここでは省略する。とにかく寺田先生は金米糖に関する二つの問題点を明らかに述べておられる。それは次のようにまとめられる。

(1) 金米糖の角が成長する条件。

(2) 角の数をきめる条件。

中谷宇吉郎さんの随筆「寅彦夏話」には中谷さんが大学を出てすぐに寺田先生の助手をしていたときに実験室で聞いた話として金米糖が出ている。上記の随筆が書かれる直前のことだっただろう。ここには次のように書かれている。