

露点-70°Cにおいて形成された微小氷晶

林 政彦 (福岡大学理学部), 清水俊成 (名古屋大学大学院環境学研究科)

Fine ice particles formed at dew point of -70°C

Masahiko Hayashi (Fukuoka Univ.), Toshinari Shimizu (Nagoya Univ.)

The activation humidity of ice nucleus and shape of fine ice crystal at dew point of -70°C in ambient pressure of 200Pa were examined using Environmental Scanning Electron Microscope (ESEM). Ice crystals were formed on four kind of ice nucleus with size of about 2µm, Silver iodide, calcite, Polystyrene Latex (PSL) sphere and soil particles collected at sand dune at Minsha-san. The activation humidity differ between the type of ice nuclei, 110% for AgI, 130% for calcite and natural mineral, and 160% for PSL. Most frequent shape of ice crystal was icosahedron, so-called pyramid type, on calcite, soil particle and PSL sphere.

1. はじめに

氷晶は巻雲をはじめ対流圏に広範に存在するだけでなく、地表面近くのダイヤモンドダスト、極成層圏雲、高度約 80km に存在する夜光雲などとしても存在し、物質循環、放射収支に寄与している。氷晶に関して様々な研究が行われてきたが、露点-40°C以下において氷晶核から 1~10µm 程度の氷晶形成初期形態の直接的観察は、技術的に困難なためあまり行われていなかった。近年、チャンパー圧を数 100Pa の状態で電子顕微鏡観察ができる顕微鏡 (ESEM) が開発され、露点 0~-100°C でプレート上の氷晶核から氷晶への遷移・成長過程を数 nm の空間分解能で観察できるようになり、林・福島(2009)は ESEM を用いて-80°C、100Pa の環境下で氷晶形成実験を行い、二十面体のピラミッド型結晶が形成されることを示した。また、ピラミッド型結晶は、-40°C以下の条件の氷霧において観測されている。(Ohtake, 1970)。しかし、林・福島(2009)の報告における実験例は 1つであり、氷晶核が不明な撥水性表面に形成された結晶であった。

そこで、本研究では、ESEM を用いて-70°Cの露点環境の下で既知の粒子を昇華氷晶核として作用させ数µmの氷晶を生成させる実験を行い、氷晶の形態、活性化条件などについて検討した。

2. 実験の概要

ESEM は FEI 社 Quanta200 (フィールドエミッションタイプ) を用い、チャンパーに Dry Clean Air と水蒸気の混合気を導入し、全圧 200Pa、露点-70°Cに保った。氷晶核は、PSL、AgI、CaCO₃、中国鳴沙山の砂丘砂の四種類をもちいた。いずれも清浄空气中に分散し、動力学径 1~2 µm の粒子をインパクタ

ーにより分級し、テフロンコーティングした銅板上に採取し、氷晶核とした。

氷晶核の冷却、温度コントロールには、ケンブリッジ社製の高真空 SEM 用冷却ステージ (最低温度-100°C) を用いた。この冷却ステージでは液体窒素を用いた冷却とヒーターの加熱によって温度調節を行う。設定温度精度は±0.5°C程度である。-65°Cで 1 分間放置し、氷晶の形成の有無を確認、以後、氷晶が形成されるまで 1°Cずつステージ温度の降下と氷晶形成の確認を繰り返す。氷晶形成が確認された条件で温度を保ち画像およびステージ温度を記録した。

3. 実験結果

3.1 氷晶活性化相対湿度

氷晶形成時の相対湿度は、核によって異なった (Table 1)。AgI が最も低く、AgI の氷晶核機能の高いことと整合的である。また、PSL の活性化は他と比べて高かった。PSL には結晶構造がないことや表面が滑らかなことなどが影響していると考えられる。

3.2 微小氷晶の形態

形成された氷晶の形態を六角柱型、六角柱と 2つの六角錐台からなるピラミッド型 (20 面体)、複数のピラミッド型結晶から構成された複合 I 型、ピラミッド型ではない結晶から構成された複合 II 型の 4つに分類した (Fig. 1)。氷晶核別の氷晶形態の割合を Table 2 に示す。AgI では六角柱型が 4割と最も多く形成されたが、他の核では、約 8割がピラミッド型、もしくは、複合 I 型であった。本実験の環境下において形成される初期の微小氷晶は主にピラミッド型であり、特に氷晶核機能の高い AgI を除くと氷晶核の種類に対する依存性は低かった。

本実験において、平均自由行程は $20\mu\text{m}$ 程度である。粒径は $2\mu\text{m}$ 程度であり、結晶面への水蒸気の輸送は分子運動論的であるため、水蒸気分子の衝突率は全ての面で等しい。従って、氷晶形態は最も表面エネルギーが低くなる平衡形をとると考えられる。本実験で最も多く形成されたピラミッド型結晶が平衡形である可能性が高い。観察されたピラミッド型の形態パラメータの平均をとり ($a/c=0.84$, $c'/c=0.71$)、これが平衡形と仮定して、同体積のピラミッド型氷晶の c'/c の変化に対する自由エネルギーの依存性を求めた (Fig. 2)。形態パラメータの変化に対して自由エネルギーの変化は余り大きくはなく、さまざまな形態パラメータ (その一つが六角柱型) をとりうることを示唆された。

また、本研究の結果は、氷晶の粒径が平均自由行程よりも小さくなる極成層圏雲の形成初期段階や夜光雲の氷晶は、ピラミッド型結晶である可能性が高いことを示唆する。

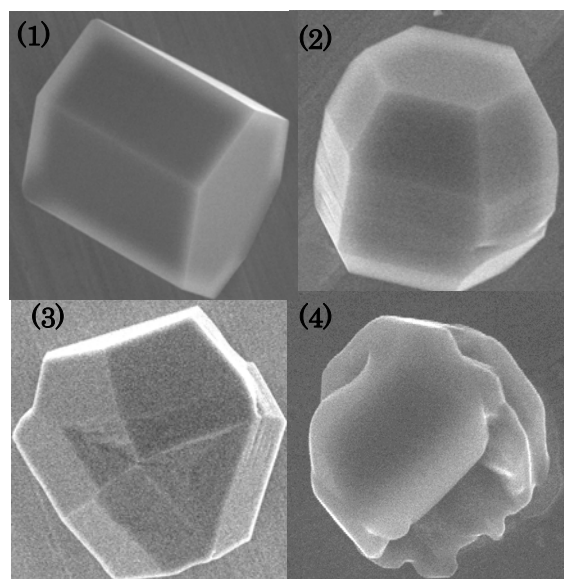


Fig.1 氷晶の形態による分類 (SEM 画像)

- (1): 六角柱型 (2): ピラミッド型 (二十面体)
 (3): 複合 I 型 (4): 複合 II 型

Table 1 氷晶核別の氷晶形成時温度と相対湿度

氷晶核	実験	露点温度 (°C)	氷晶形成開始温度 (°C)	相対湿度 (%)
AgI	1	-69.9	-71	109±8
	2	-69.9	-72	126±9
	3	-70	-71	108±8
	平均			113
鳴沙山の砂	1	-70.7	-73	132±10
	2	-70.5	-73	136±10
	3	-70.3	-73	140±11
	平均			137
CaCO ₃	1	-70.1	-73	144±11
	2	-71	-74	145±11
	平均			145
P S L	1	-61.7	-65.2	162

Table 2. 氷晶核と氷晶形態の割合 (Fig.1 の 4 つの Type に分類)

氷晶核 (分析数)	六角柱型 (%)	ダイヤモンド型 (%)	複合 I 型 (%)	複合 II 型 (%)
AgI (122)	39	30	26	5
砂漠粒子 (146)	8	44	38	8
CaCO ₃ (60)	7	13	70	10
P S L (33)	3	33	57	6

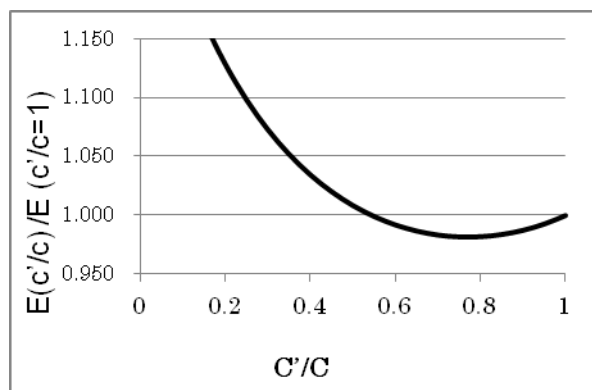


Fig.2 c'/c に対する表面エネルギー (体積一定)

参考文献

林政彦、福島和人 (2009), 2009 年度日本気象学会
 春季大会予稿集, 323
 Ohtake, T (1970), J. Atmos. Sci. **27**, 509 – 11.