

## “最近の研究から”

## 雪結晶の形態形成のシミュレーション\*

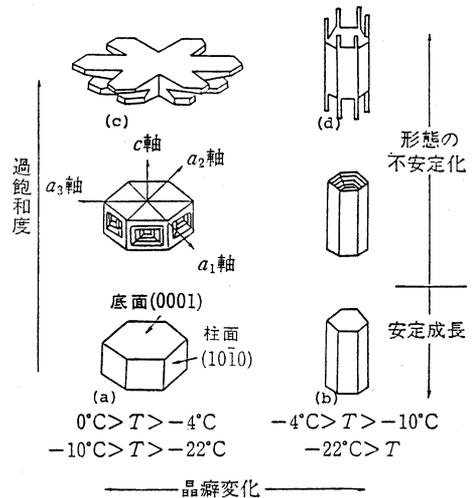
黒田 登志雄・横山 悦郎\*\*

雲の中の過冷却水滴が凍結してできた初期水晶の形は球形であるが、その後、周囲の過飽和の水蒸気分子を取り込んで成長し、成長速度の遅い二つの底面( $\{0001\}$ 面)と六つの柱面( $\{10\bar{1}0\}$ 面)で囲まれた六角プリズムへと発達する。

もし、過飽和度が低いと、結晶はこのような多面体の形態を維持したまま更に大きく成長できる。しかしながら、過飽和度が高いと、結晶の角や稜が優先的に伸び始め、多面体形態が不安定となり、骸晶、樹枝状結晶、針状結晶が現われる(第1図)。このような、成長条件と結晶の形の関係については、中谷吉宇郎の先駆的な仕事以来、多数の実験的研究が行われ、成果があげられてきた。しかしながら、雪結晶が成長するとき、各々の成長条件に対応した特徴的な形態が作り出されるしくみについての理解は大変遅れていた。

一方、結晶成長の分野において、近年、結晶の表面で原子や分子がどのような運動を行って結晶という秩序構造が作りあげられていくか、という結晶表面上のカイネティック過程(微物理過程)についての理解が格段と進歩した。その結果、雪の多種多様な形態が生み出される仕組みを結晶成長の素過程に立ち戻って解明することが可能になってきた。現在、われわれの研究室では、雪の結晶の形態形成のシミュレーションを行っており、結晶の形態形成の研究の難しさと面白さについて述べてみたい。

取り扱いを簡単にするために、ここでは、氷結晶のc軸に垂直な断面に投影した二次元の結晶の形を考える。第2図は、時刻tにおける結晶表面の一部を表わしたもので、テラスと呼ばれる分子スケールでみて平らな平面と、ステップと呼ばれる一分子層の厚みを持つ段差からできている。氷結晶の場合、c軸のまわりに60度回転す



第1図 雪結晶の形態と成長条件の関係を示す模式図。

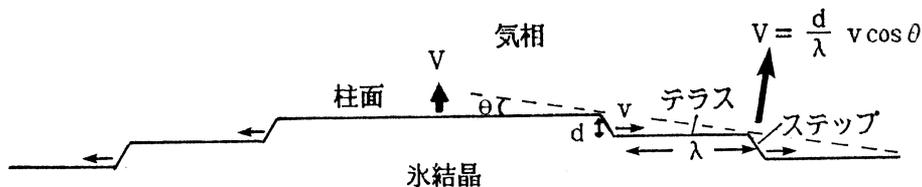
るごとにステップを全く含まないテラスだけの表面が現われる。これが、第1図の六つの柱面に対応する。

ところで、大気中を拡散して結晶表面に到達してテラスに吸着した水分子は、テラスに沿って二次元的な表面拡散を行うが、ステップに到達して初めて結晶構造に組み込まれる。また、ステップからあまり遠くに(格子定数の数100倍以上離れた場所に)吸着した分子は、表面拡散している間に再び大気中へ離脱してしまい、結晶成長には寄与できない。したがって、結晶表面における過飽和度 $\sigma_s$ が同一の場合、ステップが密に並んだ表面ほど、成長は速い。逆に、元来ステップを持たない柱面は、成長が困難である。ただし、 $\sigma_s$ が十分大きい場合は、二次元核生成や、らせん転位の助けで柱面上にステップを生み出して成長することができる。

以上のことを反映して、結晶表面上でのカイネティック過程から決まる、表面の法線方向の成長速度は、次の

\* Simulation of pattern formation of snow crystals.

\*\* Toshio Kuroda, Etsuro Yokoyama, 北大低温研.



第2図 柱面から $\theta$ 傾いた結晶表面の模式図。ステップがテラスに沿って前進して表面の厚みを増していく。

ように表わされる。

$$V_k = \beta(\theta; \sigma_s) \cdot \sigma_s \quad (1)$$

ここで、表面過飽和度  $\sigma_s$  は、結晶表面と接した水蒸気分圧  $p_s$  と氷の飽和蒸気圧  $p_e$  を用いて  $\sigma_s = (p_s - p_e) / p_e$  で与えられる。また、 $\beta$  は、カイネティック係数と呼ばれ、柱面からの傾き  $\theta$  に依存し、60度ごとに表われる柱面に対して極端に小さな値をとる。

後で第3, 4図で示すように、この $\beta$ の異方性は、氷の結晶構造が元来備えている六方対称性を雪の結晶の形態形成に反映する重要な因子である。

また、柱面の  $\beta(0; \sigma_s)$  はステップの生成頻度によって決まるので  $\sigma_s$  に依存する。すなわち、 $\sigma_s$  の増大と共に  $\beta(0, \sigma_s)$  が大きくなり、成長速度の異方性は弱まることになる。その結果、カイネティック過程から決まる成長速度  $V_k$  は、 $\sigma_s$  に対して非線形にふるまう。これが、わずかな成長条件の違いによって、形態形成の様子が激変する要因の一つなのである。

一方、結晶表面上の各点の過飽和度  $\sigma_s$  を求めるには、結晶をとりまく大気中の水分子の拡散場を解かねばならない。その際の境界条件の一つは、結晶から十分遠くの過飽和度が自然条件あるいは実験条件から決まる値  $\sigma_\infty$  に等しいというものであるが、結晶表面上の条件については、次のような大変やっかいな問題がある。

Mason に代表されるような、これまでの雪の成長理論では、結晶表面で平衡条件が成長することを仮定して((1)式で  $\beta \rightarrow \infty$  を仮定したことに対応する)、 $\sigma_s = 0$  という境界条件の下で解を求めていたので、話は簡単であった。しかしながら、先に述べたように、雪の形態形成にとって表面のカイネティック過程は不可欠であるので、 $\sigma_s > 0$  なのである。そこで、結晶表面上の境界条件として、表面の法線方向に見た過飽和度勾配  $q_s = (\partial \sigma / \partial n)$  の分布を与えてみよう。ところで、拡散流から決まる成長速度  $V_d$  は  $q_s$  に比例するので、これは、境界条件として、 $V_d$  の分布を与えたことに他ならない。ただし、この分布自体は未知なので、このような境界条件の下で

解かれた  $\sigma_s$  の分布を元にした、カイネティック過程から決まる  $V_k$  ((1)式)と、境界条件として与えた拡散過程から決まる  $V_d$  が結晶表面上の各点で等しいというセルフ・コンシステントな条件を満たすように両過程を解く必要がある。この一連の作業は、大変やっかいなものであるが、雪結晶の形態形成をシミュレートする際の本質的な部分である。

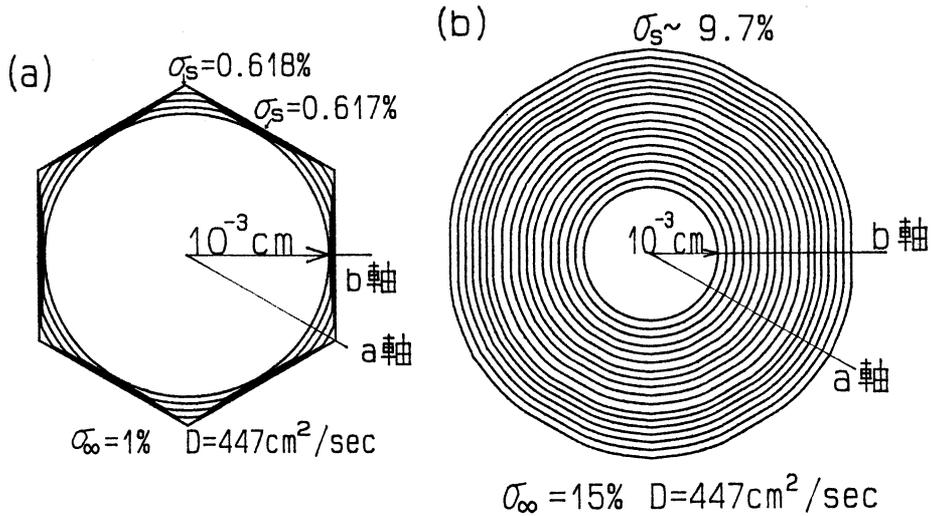
そこで、われわれは、拡散方程式を結晶の周囲の全空間で解く代わりに、結晶表面と、結晶から遠方の境界における値だけを含んだ、拡散方程式と等価な境界積分方程式を代数方程式になおして解く、“境界要素法”を、この問題に適用した。こうして、ある時刻の結晶表面上の各点で法線方向の成長速度が得られると、それを元にした  $\Delta t$  時間後の形を次々と決定していくことができるのである。

なお、雪結晶の形の時間発展の計算機シミュレーションは、駒林 (1972) によって最初に行われた。ただし、それには、表面でのカイネティック過程は取り入れられていないので、むしろ、それは過冷却水から成長する円盤氷の形態不安定性 (Arakawa and Higuchi, 1952) のシミュレーション (物質拡散が熱拡散に対応する) として意味を持つ。

ここで、われわれの行った、シミュレーションを示そう (Yokoyama and Kuroda, in press). 詳細については原論文を参照して載きたい。第3図は、空気圧を 0.3 Torr まで減圧して、拡散係数  $D$  を  $447 \text{ cm}^2/\text{s}$  まで増大させたときに、半径  $10^{-3} \text{ cm}$  の円形初期氷晶が成長中にとる形態をシミュレートした結果である。十分遠方の過飽和度  $\sigma_\infty$  が 1% の場合 ((a)) は、表面過飽和度  $\sigma_s$  が小さく  $\beta$  の異方性が大きいので、 $\beta$  の小さな柱面が速やかに発達する。

一方、 $\sigma_\infty$  を 15% に高めると ((b)),  $\sigma_s$  の増大のため柱面上でステップが頻りに生成されるので、 $\beta$  の異方性が弱まる。そのため、柱面は発達し難くなる。

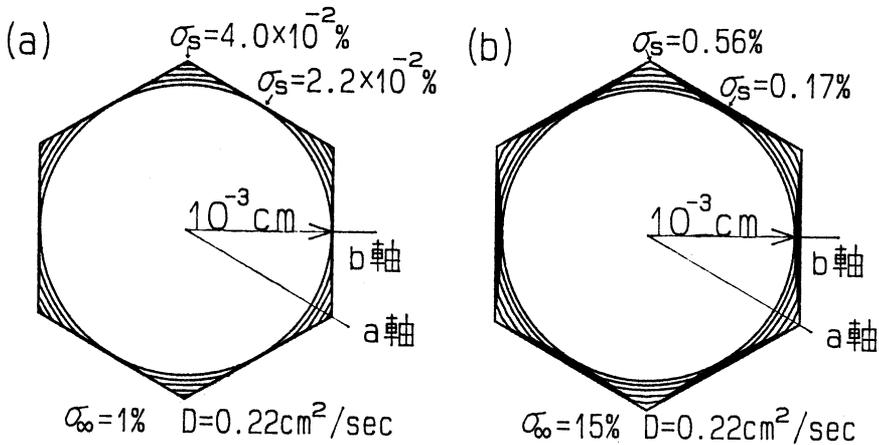
第4図は、1気圧の下 ( $D=0.22 \text{ cm}^2/\text{s}$ ) での同様の



第3図 空気圧 0.3 Torr におけるファセットの発達。

(a) 内側から, 0, 6, 11, 17, 23 秒後の形. 図に示す過飽和度  $\sigma_s$  は, 六角形となった時 (23秒後) の角と面の中央の値を示す.

(b) 内側から, 0, 2, 3.1, 4, 5, 6.1, 7, 8, 9, 10.1, 11.2, 12, 12.9, 13.8, 14.7, 15.7, 16.7 秒後の形.  $\sigma_s$  は, 16.7 秒後の値.  $\sigma_\infty = 15\%$  は,  $-20^\circ\text{C}$  における水飽和状態に対応する.



第4図 空気圧 1 気圧下におけるファセットの発達。

(a) 内側から, 0, 233, 401, 575, 703, 750 秒後の形.

(b) 内側から, 0, 13, 27, 44, 60, 84 秒後の形.

シミュレーションである. この場合,  $\sigma_\infty$  を 15% まで高くしても ((b)), 拡散による分子補給が困難なため  $\sigma_s$  が小さくなり, 再び  $\beta$  の異方性が増す. その結果, 84 秒後に初期氷晶とあまり大きさの変わらない六角プリズムが生成される. また, このとき, 六角プリズムの角の

$\sigma_s$  が柱面中の  $\sigma_s$  よりも高いために, この後, 角でステップが優先的に生成され, a 軸方向に六本の樹枝 (一次枝) が伸び始める.

ところで, 統計物理学の最近のトピックスである秩序形成過程の動力学の一つの応用として, 雪の形態形成の

経時変化のシミュレーションに眼が向けられるようになり、Nature など (Nittman ら, 1986; Family ら, preprint) にも論文が発表されている。また、ニューヨーク・タイムズの科学欄 (1987年1月6日) にも、この話題が大きくとりあげられた。たしかに、これらの仕事は、比較的単純なモデルを用いて、多数の雪に似た、六方対称性を持った樹枝状パターンを生みだしており、形態形成の数理として興味深い点もあるが、そこで用いられたパラメーターと実際の大气中の拡散係数や過飽和度との対応関係が皆目わからない。また、特に、本稿で強調した表面でのステップの運動による成長のモードが全くとり入れられていないという点でも、雪の結晶の形を理解したとは言い難い。

一方、われわれの研究の方は、ようやく、六角板から樹枝が伸び始める過程がシミュレートできるようになった段階である (『天気』35.2. 研究機関めぐり・北大低温研 (遠藤辰雄) の第3図)。しかしながら、現実の成長条件との対応を意識しながら、何とか、一次枝から更に、側方に伸びる二次枝が発生する仕組みまでも明らかにしていこうと努力中である。

気象学会には、大气の力学の解析の仕事あるいは計算

機シミュレーションの仕事で活躍中の若い研究者が大勢いる。その中から、ここで述べた、雪の形態形成の問題に挑戦し、これまでにみがきあげた腕前を発揮してくださる方はいないだろうか。

## 文 献

- Arakawa, K. and K. Higuchi, 1952: Studies on the freezing of water. J. Fac. Sci. Hokkaido Univ., Ser. II, 5, 201-212.
- Family, F., D.E. Platt and T. Vicsek, preprint: Deterministic growth model of pattern formation in dendritic solidification.
- Komabayashi, M., 1972: Two dimensional computation of shape of anisotropic ice crystal growing in air. J. Recherches Atm., 6, 307-328.
- Nittman, J. and H.E. Stanley, 1986: Tip splitting without interfacial tension and dendritic growth patterns arising from molecular anisotropy. Nature, 321, 663-668.
- Yokoyama, E. and T. Kuroda, in press: Pattern Formation of Snow Crystals-Simulation of development of facets by means of boundary element method-. Dynamics of Ordering Processes, ed. S. Komura, Plenum.

## (P200からのつづき)

WMO 世界気象監視 (WWW) 計画の基礎組織としての WMC, RMC, NMC の階層構造の機能をより充実させるため、RMC (Regional Meteorological Centre) の一部分に RSMC としてより専門的な機能強化を持たせようとの計画が進められており、すでにいくつかの RMC が具体的な RSMC の機能を提案している。数値

予報・客観解析の一般的な精度向上のみならず、各地域での気象学的、地理的、社会的特徴にマッチした、より多様な数値予報の出力の要求される時代となって来ているし、その利用者・利用法も国境を越えたひろがりを見せている。広義での GDPS (Global Data Processing System) の主体である数値予報業務も、より大きな視点から位置づけ、将来計画を立てる必要がある。