

論 文

鏡面冷却式露点計による人工雪結晶生成時の湿度測定

村井昭夫¹⁾²⁾, 高橋修平¹⁾, 亀田貴雄¹⁾,
皆巳幸也³⁾, 井端一雅⁴⁾

要 旨

対流型の人工雪結晶生成装置内に光学式の鏡面冷却式露点計 FINEDEW を設置し, 雪結晶生成時の湿度測定を試みた. FINEDEW は光学系に光ファイバを使った超小型センサタイプの鏡面露点計であり, 鏡面を結晶生成点の近くに置くことが可能なことから, 結晶生成点近傍の露点をリアルタイムで計測できる. 実験の結果, およそ -5°C から -40°C の温度範囲で安定した露点測定が可能であった. また, この結果, 種々の形態の雪結晶(ここでは針状, 渦巻, 広幅六花, 樹枝状六花, 角柱, 側面および砲弾を報告)は氷飽和から水飽和までの水蒸気量で生成していることが測定された. これらの値は Nakaya (1954) の結果と比べると各結晶とも低いものであったが, その理由は, Nakaya (1954) の測定が装置内に浮遊する微小水滴も含めた全水分量を湿度として換算・測定しているのに対し, 本研究では空気塊のみの気相としての相対湿度を測定しているためであると考えられる.

キーワード: 人工雪結晶, 鏡面冷却式露点計, 湿度測定

Key words: artificial snow crystals, chilled mirror hygrometer, water vapor measurements

1. はじめに

これまで, 雪結晶を人工的に生成する実験が Nakaya (1954), 小林 (1957), Hallet and Mason (1958), Kobayashi (1960), Bailey and Hallett (2004) など多くの研究者によって行われ, それにより雪結晶の生成条件と結晶の晶癖・成長形との関係などが明らかにされてきた. これらの実験では結晶の成長条件のひとつである湿度(水分量)の測定が温度とともに重要な要素であるが, 低温下での正確な湿度測定は技術的にも難しいため様々な工夫が行われてきた.

例えば, 対流型の装置を使った研究において, Nakaya (1954) は装置内の空気を吸引し五酸化リンに吸湿させてその質量変化から湿度を測定し, Kobayashi (1960) も同様に空気を吸引し, メタノールに吸湿させて, カールフィッシャー試薬の滴定による化学的方法で水分量の測定を行った.

拡散型の装置を使った実験では小林 (1957) が, 結晶の成長環境下での過冷却水滴の成長(あるいは蒸発)速度から間接的に水蒸気量を求めた. また Hallett and Mason (1958) は装置内に上下に一定の間隔をあけて置いた温度の違う 2 枚の氷板間の湿度傾度によって過飽和を作り, 計算により過飽和度を求め, 最近でも同様に Bailey and Hallett (2004) が温度差のある氷板を 28 mm の間隔で装置上下に置くことで同様に計算で過飽和度を求めている. また, 混合槽を使った低過飽和環境での実験では Kobayashi (1961) が鏡面露点計による湿度測定を行っている.

ところで, これまで特に対流型装置による人工

1) 北見工業大学

〒090-8507 北海道北見市公園町 165 番地

2) 石川県教育センター

〒921-8153 石川県金沢市高尾ウ 31-1

3) 石川県立大学

〒921-8836 石川県石川郡野々市町末松 1 丁目 308 番地

4) 株式会社山武

〒251-8522 神奈川県藤沢市川名 1 丁目 12 番 2 号

雪作製実験においては、湿度測定は結晶の近傍というよりも結晶生成箇所の一定領域における全水分量について行われ、それを過飽和度として雪結晶の形態と関連付けてきたわけである。

今回、自動制御系を組み込んだセンサタイプの光学式鏡面冷却式露点計 FINEDEW™ ((株)山武製 特殊仕様 以下 FINEDEW と記述) を対流型人工雪結晶生成装置に組み込み、雪結晶生成の際の湿度測定を行なった。それは、空气中に多くの微小水滴が浮遊している状態においては、空気塊の湿度は一般に水飽和もしくはそれに近い値であると考えられてきているが、実際には雪結晶生成時の空気塊そのものについての湿度は測定されていないからである。また、雪結晶の成長には過冷却微小水滴が一定の役割を果たすとされるが (Nakaya, 1954), 空気塊そのものの水蒸気量についても結晶成長の過程を議論する上で重要な因子と考えられることから、本研究ではその水蒸気量を実験的に求めることとした。

2. 小型鏡面冷却型露点計 FINEDEW の概要

2.1 FINEDEW の特徴と利点

JIS Z8806 (日本規格協会, 2001) によれば、湿度の計測方法は 1) 水蒸気吸湿法, 2) 熱力学的平衡温度測定による方法, 3) 空気の水蒸気分圧測定による方法, 4) 吸湿性物質の物性特性測定による方法の 4 種に区分されており、鏡面冷却式の露点計はそのうちの 2) 熱力学的平衡温度測定による方法のひとつである。この方法は特性劣化が少なく、精度に対する信頼性が高く、湿度校正の標準としても広く採用されている方式であり (日本機械学会, 1992), 測定範囲の下限も -60°C 、(あるいは冷却能力によっては -100°C) と低いものとなっている (日本規格協会, 2001)。

今回使用した FINEDEW は小型のセンサタイプの鏡面露点計であることが特徴であり、鏡面上の水滴 (低温では霜) の検出には散乱光方式を採用し、光学系には極細の光ファイバーを用いている (Ibata and Kanai, 2008)。これにより、従来の一般的な空気吸引型の鏡面冷却式露点計で必要不可欠であったサンプリングチャンバを不要とし、測定空気の温度や流量、配管による圧力損失などの変動のために測定誤差要因が増大するという従

来の装置の欠点を改善している。同時に、1) センサ部がコンパクトで測定環境に直接挿入可能で、結晶生成点近くの露点を計測でき、2) 応答速度が速く追従性や精度が高く (金井・井端, 2005; Ibata and Kanai, 2008), 結晶生成過程で環境条件が変化しても連続した湿度測定が可能で、3) 装置自体がシンプル、コンパクトで従来の鏡面露点計のような複雑な付加装置を必要とせず操作に高度の熟練を必要としない、などの利点がある。

2.2 FINEDEW の構造と測定原理

FINEDEW はセンサ部とそれを制御するコントローラ部で構成されている。図 1a は人工雪結晶生成装置内に設置したセンサプローブ、図 1b はプローブ先端のセンサ部の構造を側面から示したものである。センサ部は FINEDEW の鏡面 ($2.0\text{ mm} \times 2.5\text{ mm}$, 厚さ 0.3 mm の単結晶シリコン)、測温抵抗体 (Pt100)、ペルチェ素子の順で積層構造となっており、ペルチェ素子によって鏡面

図版

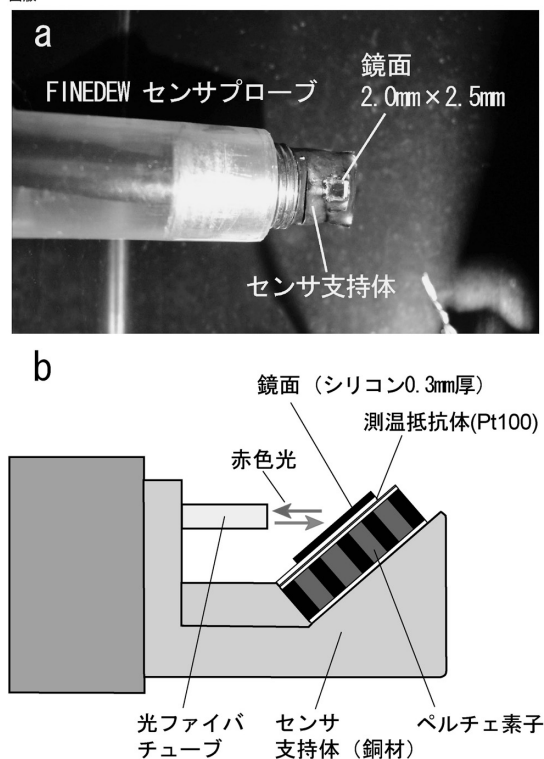


図 1 FINEDEW センサ部 a: 正面から見た人工雪装置内の FINEDEW センサプローブ b: 側面から見たセンサ部の構造。

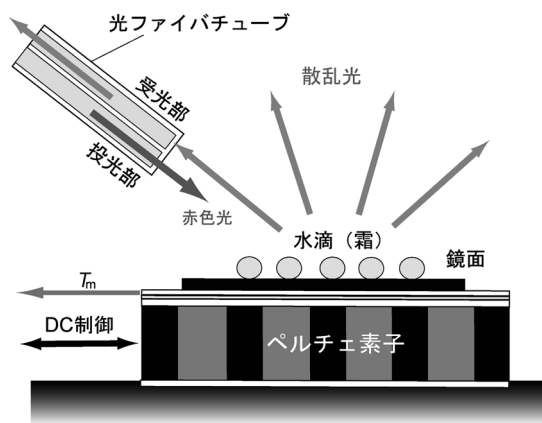


図 2 FINEDEW の動作原理の模式図。

を冷却・加熱し、測温抵抗体によって鏡面温度を測定する。鏡面には変調された赤色可視光（波長 680 nm）が光ファイバによって照射され、鏡面上の水滴（あるいは霜）の生成で発生する散乱光を受光部からコントローラ部へ送って検知する（図 2）。受光側は変調光のパルス周波数に同期しており、外乱光の影響をキャンセルすることができる。コントローラ部では散乱光強度を 25 ms 間隔で監視して、鏡面温度を制御し、鏡面上の水滴あるいは霜の量が一定になるように平衡状態を維持する。このようにして露点（霜点）を連続的に測定できる。

2.3 FINEDEW の校正と測定精度

FINEDEW は計量法校正事業者登録制度（JCSS 制度）において校正事業者に登録されている（株）山武において、気温 25℃ から -15℃、露点・霜点が約 18℃ から -20℃ の範囲 14 点で校正を行った（図 3）。FINEDEW の校正では、まず産業技術総合研究所の標準器により国家標準で校正された露点計（特定二次標準機）により 8 点での校正を行っている（図 3 の●印）。ただし、計量法によって国家標準での校正は気温 +10℃ ～ +25℃、露点が +23℃ ～ -10℃ の範囲と定められている（阿部, 2009）ため、特定二次標準機で校正した別の校正用露点計を用いて特定二次標準機と比較しながら、さらに露点で -20℃ まで 6 点の校正を行い（図 3 の□印）、これらによって広い範囲での FINEDEW の機器偏差を求め、下に述べる補正式 (1) を得ている。

具体的には、以下のような方法で校正をおこな

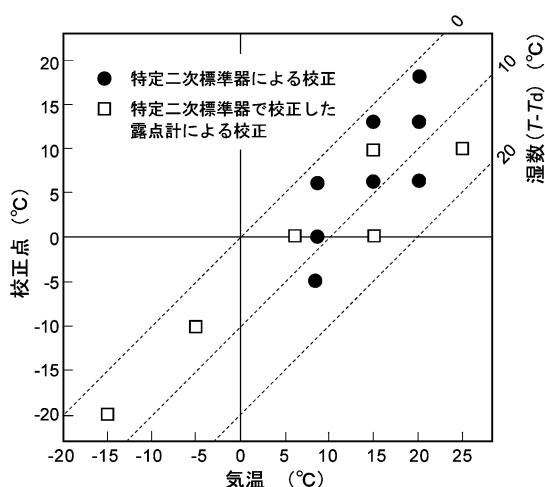
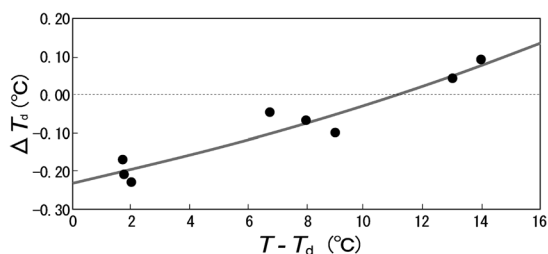


図 3 校正を行った気温-校正点（露点・霜点）と湿数。

図 4 測定環境の湿数 ($T - T_d$) による FINEDEW の測定値の偏差 (ΔT_d)。

い、その結果から補正式を求めると同時にその精度を確認した。

1) 日本の計量器の国家標準供給機関である産業技術総合研究所で校正された特定二次標準器により、気温 8℃ で露点が 6℃・0℃・-5℃、気温 20℃ で露点が 18℃・13℃・6℃、気温 15℃ で露点が 13℃・6℃の 8 点で校正を行った。その際、気温 8℃、気温 20℃ 両者における露点 6℃ の校正結果の比較から校正設備自体に温度依存性がないことを確認した。同時にこれらの校正の結果として FINEDEW で計測される露点には、測定時の湿数（気温-露点温度で定義）に依存した偏差が存在することを確認した（図 4）。この偏差は、1) 鏡面温度を計測する測温抵抗体のリード線からの熱流、2) ペルチェ素子に供給される電力による素子の自己発熱の影響と考えられる。

2) 1) の校正結果から FINEDEW の計測露点を、湿数の二次関数で補正する補正式を算出した。

$$\Delta T_d = 0.000183(T - T_d)^2 + 0.020324(T - T_d) - 0.254566 \quad (1)$$

ここで ΔT_d は偏差 (補正量), T は気温 ($^{\circ}\text{C}$)
 T_d は測定露点温度 ($^{\circ}\text{C}$) である.

3) 特定二次標準器によって比較校正された露点計で, 気温 25°C で露点 10°C , 気温 15°C で露点 10°C および 0°C , 気温 6°C で露点 0°C , 気温 -5°C で霜点 -10°C , 気温 -15°C で霜点 -20°C の 6 点についてそれぞれ校正を行い, その偏差が上記補正式(1)に $\pm 0.05^{\circ}\text{C}$ でフィットすることを確認した.

1) と 2) により, FINEDEW では計測精度の信頼性を表す拡張不確かさ (ここでは標準偏差の 2 倍の範囲を表す) 0.18°C で露点計測が可能である. また, 補正式(1)は, 比較的広範囲の温度, 露点・霜点の計測結果から求めたものであることから, 上記の範囲を超える環境温度, 露点・霜点においても同様の精度 (拡張不確かさ) が見積もられると推定している.

3. 装置の概要と湿度および温度の測定方法

3.1 実験装置概要

図 5 は実験装置全体, 図 6 は人工雪結晶生成装置 (以下 人工雪生成装置) 断面と測定系の構成を示したものである.

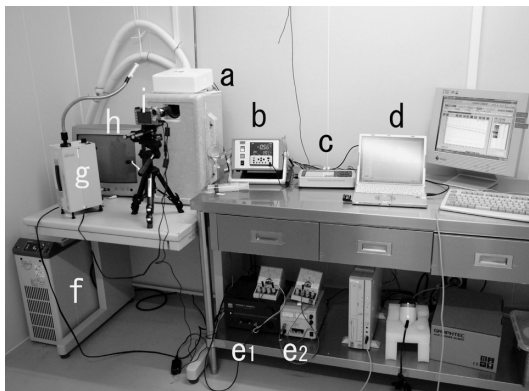


図 5 本実験で使用した実験装置全体図
 a: 人工雪結晶生成装置 (村井, 2005), b: FINEDEW コントロール部, c: データロガー (Graphtec, GL-800), d: コントロール用 PC, e₁ および e₂: 直流電源装置, f: 冷却水循環装置, g: ファイバ照明装置, h: モニタ, i: 拡大光学系と撮影用デジタルカメラ (Nikon Telescomicro + Nikon Coolpix P5000).

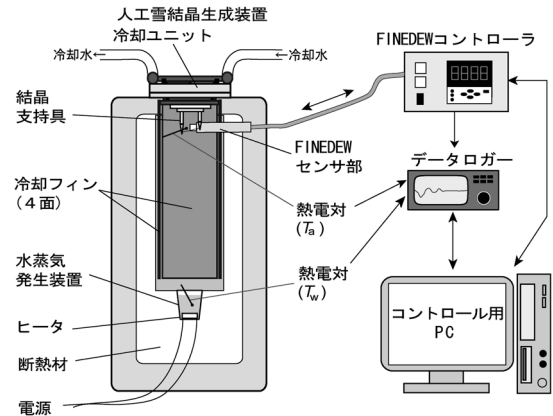


図 6 人工雪結晶生成装置 (村井, 2005) の断面と測定系の構成.

すべての実験装置は, 10°C に設定された低温室内に設置されている. 人工雪生成装置は冷却系にペルチェ素子を使用した対流型装置 (村井, 2005) を使用した. この装置の内部空間サイズは $90\text{ mm} \times 90\text{ mm} \times 255\text{ mm}$ で, 最下部には直径 40 mm のステンレス製容器にヒータを取り付けた水蒸気発生装置, 上部には繊維 (イヌの細毛, 直径約 $50\text{ }\mu\text{m}$) を張った結晶支持具が置かれている. 内部は銅製の冷却フィンによって四方から冷却され, 水蒸気は水蒸気発生装置から対流によって上部へと運ばれる. この結晶生成点近くに FINEDEW のセンサプローブを挿入・設置している. FINEDEW の各種設定パラメータはコントロール用のパーソナルコンピュータ (以下 PC) から入力する. FINEDEW によって測定した露点 (以下 T_d) または霜点 (以下 T_i), および熱電対によって測定した結晶生成点の温度 (以下 T_a), 水蒸気発生装置の水の底部から約 5 mm の位置での水温 (以下 T_w) はデータロガー (Graphtec 社製 GL-800) を通して 1 秒間隔で PC に記録される. 生成結晶と鏡面の状態は断熱窓を通して拡大光学系 (Nikon Telescomicro ED 6×18) を装着したデジタルカメラ (Nikon Coolpix P5000) で記録する.

図 7 は $T_a = -24.7^{\circ}\text{C}$, $T_w = 6.5^{\circ}\text{C}$ で結晶生成実験時に装置内部 13 カ所の測定で得た装置内の温度分布である. 装置の中央部で温度が高く壁面 (冷却フィン) 付近で温度が低いことから, 中央部で水蒸気を含んだ暖気の上昇流, 壁面付近では冷

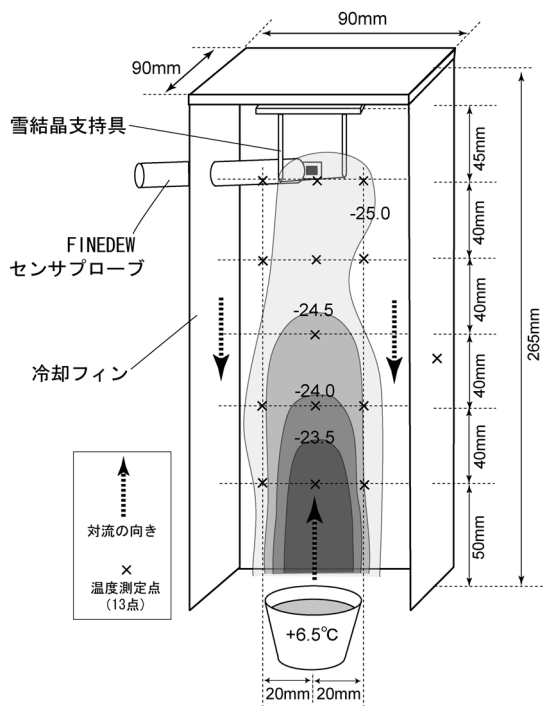


図 7 $T_a = -24.7^\circ\text{C}$, $T_w = +6.5^\circ\text{C}$ の時の人工雪装置内部の温度分布.

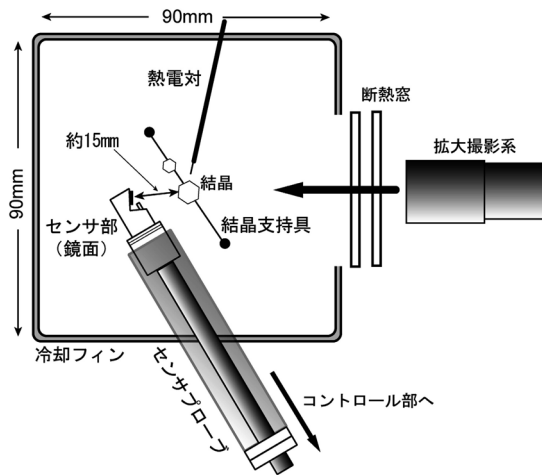


図 8 人工雪結晶生成装置内へのセンサ部の設置状況図.

気の下降流という循環で対流が起きていることがわかる。

図 8 はセンサ部の装置内への設置状況と生成する雪結晶との位置関係上方から示した図である。センサプローブは冷却フィンの壁面に対して約 45° の角度で装置内部へ挿入、結晶生成のための

繊維から約 15 mm の距離に鏡面が鉛直になるように設置し、 T_a 測定用の熱電対は繊維から約 0.5 cm の位置にある。

3.2 FINEDEW による露点測定手順

FINEDEW による露点の測定は次の (1) から (5) の手順で行う。

- 1) 人工雪生成装置を動作させて設定した条件 (たとえば $T_a = -15^\circ\text{C}$ ・ $T_w = 15^\circ\text{C}$) に安定させ、雪結晶を生成させる。
- 2) マニュアル操作で FINEDEW の鏡面温度を上げ、鏡面上の水滴を取り除く。
- 3) FINEDEW への入力電流を OFF にして数分間放置し、鏡面を含むセンサ部全体の温度を環境になじませる。
- 4) FINEDEW を測定モードにして、測定を開始する。
- 5) 鏡面温度が安定したところで計測をおこなう。同時に、拡大光学系を使い目視により鏡面に存在する水が過冷却水滴であるか、氷 (霜) であるかを把握しておく。

手順 2), 3) の操作を行うことで 4) での FINEDEW の初期動作が安定する。FINEDEW ではコントロール部のマニュアルモードへの切り替えで鏡面の温度を自由にコントロールできる。

図 9 は手順 4) で動作開始から測定が安定するまでの測定状況を表したものである。ここで T_a は結晶生成点温度、 T_m は鏡面温度、PV 値 (Process Value, 以下 PV) は鏡面上の水滴 (霜) からの散乱光強度を電圧値で表している。FINEDEW は鏡面上の水滴 (霜) 量を PV として検出し、鏡面温度 (以下 T_m) をコントロールしながら平衡状態に安定化させる。PV の値が一定になることで鏡面の状態が良好にコントロールされていることが判断できる。

図 9 では測定開始後約 8 分で PV と T_m が安定している。 T_m が安定したところで 60 秒間計測 (1 秒間隔で 60 測定) の平均をとり、これを T_d (または鏡面が霜の場合は T_i) とする。

図 10 は測定時の鏡面状態の例である。鏡面全体に直径 $40\mu\text{m}$ 以下の水滴あるいは氷がほぼ均一に分布して存在している事がわかる。曲面に対する飽和水蒸気圧は平面の水面に対する飽和水蒸気圧とは異なることから、露点測定への影響も考

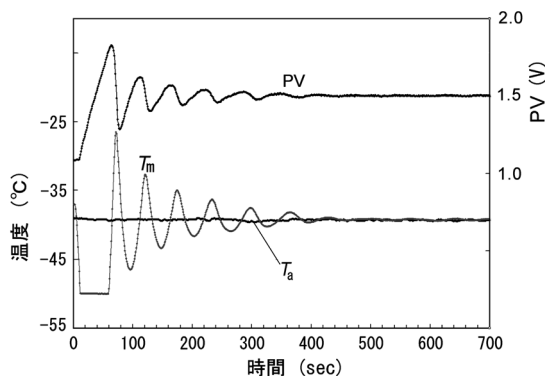


図 9 FINEDEW 動作開始からの動作状況 (T_m : 鏡面温度 PV: process value = 散乱光強度を電圧値で示したもの).

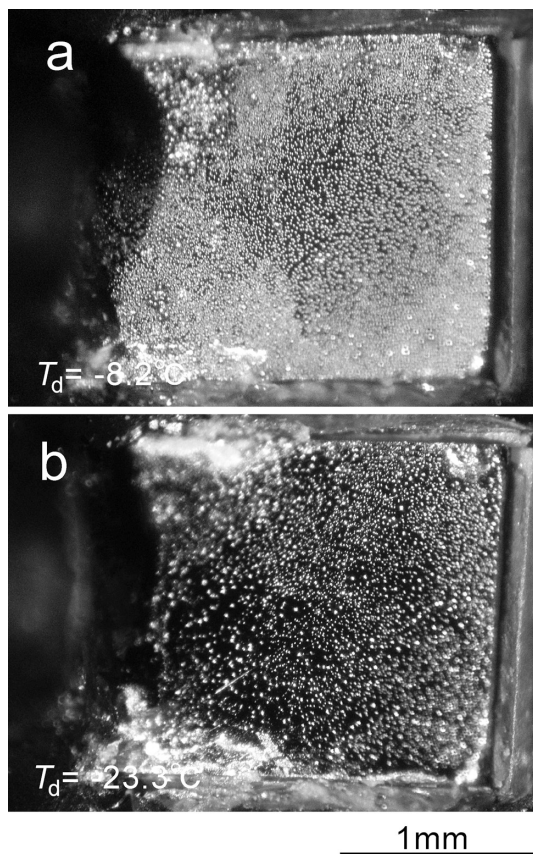
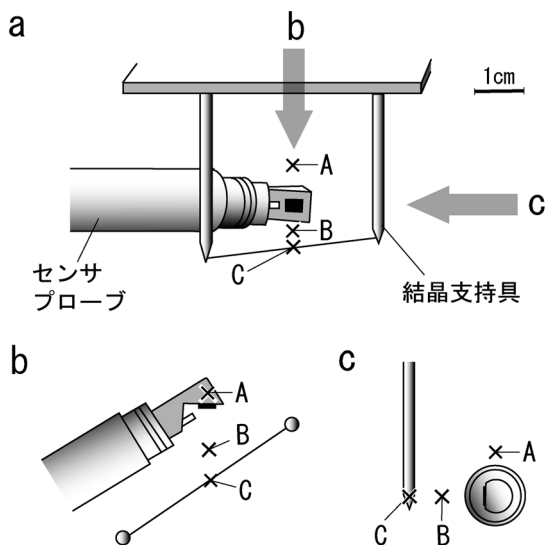


図 10 測定時の鏡面状態の拡大写真 a: 水滴の場合 b: 霜(氷)の場合.

えられるが、鏡面露点計において、結露開始後鏡面上の微小な水滴は $10\mu\text{m} \sim 40\mu\text{m}$ 程度まで成長し、最終的に真の露点温度と鏡面温度の差は



動作後の 温度変化	A点 センサ上5mm	+0.2°C
	B点 鏡面前1cm	+0.1°C
	C点 結晶生成点	<+0.1°C

図 11 FINEDEW 動作前と動作後のセンサプローブ周辺の温度変化 a: 結晶支持具, センサプローブと測定場所の位置関係, b: 図 11a の矢印 b 方向 (鉛直) から見た各測定点の位置関係, c: 図 11a の矢印 c 方向 (水平) から見た各測定点の位置関係.

0.01°C 程度となることが知られており (日本機械学会, 1992), 湿度測定上は無視できるとされている. また, FINEDEW は機器としての校正がなされていることから, 鏡面上の水滴の曲率による測定値の補正は考慮する必要はない (Ibata and Kanai, 2008).

FINEDEW はペルチェ素子によって鏡面を加熱・冷却するが, このとき素子から発生する熱はセンサ部支持体 (銅製) へ伝導し, 雪結晶生成装置内へ放出される.

図 11 はセンサおよび結晶生成点付近での FINEDEW 動作前と動作後の気温変化である. FINEDEW の動作による結晶生成点での温度変化は 0.1°C 未満であり, 素子からの放熱による結晶生成への影響はほとんどないものと考えられる.

ここまで述べた手順で T_d (T_f) を測定すると同時に鏡面に均一に水滴あるいは霜が存在しているか拡大光学系を使って目視で把握しておく.

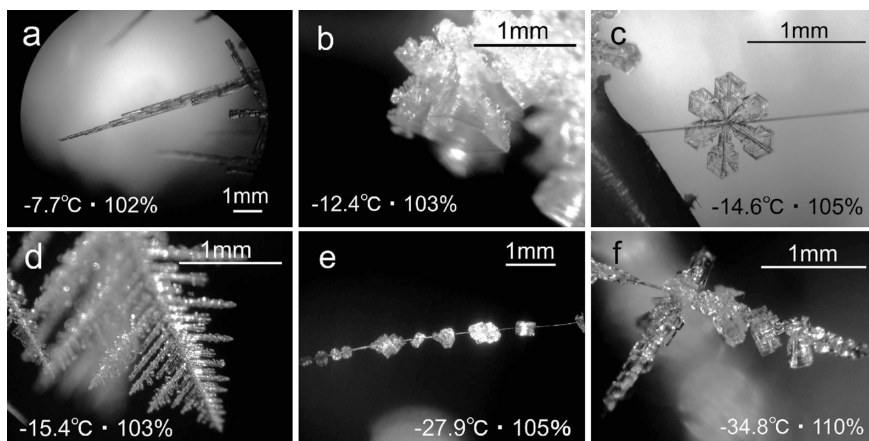


図 12 人工雪装置内で生成した雪結晶 a~f. (写真内の数値は $T_a \cdot RH_i$).

a: 針状結晶, b: 渦巻結晶, c: 広幅六花結晶, d: 樹枝状六花結晶, e: 角柱状結晶, f: 砲弾結晶と側面結晶.

3.3 結晶生成点温度 (T_a) の測定

T_a は K 型の熱電対によって測定し, データロガーにより 1 秒間隔で記録する. 使用する熱電対は $0^\circ\text{C} \sim -50^\circ\text{C}$ の範囲において $\pm 0.1^\circ\text{C}$ の精度で校正試験された白金測温抵抗体を用いてデータロガーに接続した状態で $0^\circ\text{C} \sim -38^\circ\text{C}$ の範囲で校正した.

3.4 装置内結晶生成点の湿度の算出

3.2 節に記述した T_d または T_f により飽和水蒸気圧を与える Sonntag の式 (日本規格協会, 2001) を用いて装置内の水蒸気圧 (e) を求める. また, T_a と Sonntag の式を用いて, T_a での水の飽和水蒸気圧 (E_i) を求め, これらを用いて, 式 (2) により雪結晶近傍での水飽和に対する気相としての相対湿度 (RH_i) を計算する.

$$RH_i(\%) = \frac{e}{E_i} \times 100 \quad (2)$$

e : 装置内の空気中の水蒸気圧

E_i : 温度 T_a の時の水の飽和水蒸気圧

4. 結果

図 12a~f に人工雪結晶装置内で生成させた結晶と, 生成時の RH_i 測定結果の例を挙げる. a は $T_a = -7.7^\circ\text{C}$ で生成した針状結晶, b は $T_a = -12.4^\circ\text{C}$ で

のコップ状の渦巻結晶, c は $T_a = -14.6^\circ\text{C}$ での広幅六花結晶, d は $T_a = -15.4^\circ\text{C}$ での樹枝状六花結晶, e は $T_a = -27.9^\circ\text{C}$ での角柱状結晶, f は $T_a = -34.8^\circ\text{C}$ で生成した角柱および砲弾, 側面結晶である (ここでの雪結晶の名称は Magono and Lee (1966) に従った). 図中の各写真左下に示した数値は T_a と RH_i であり, これらの測定結果を Nakaya (1954) のダイヤグラム (以下, 中谷ダイヤグラム) 上に示したものが図 13 である.

Nakaya (1954) では Supersaturation (過飽和度) の定義として, 以下の式を示している.

$$s = \frac{D}{D_{\text{sat}}} \times 100 \quad (3)$$

D : 装置内の水分量 (気相と液相の和)

D_{sat} : 温度 T_a での水の飽和水蒸気量

即ち, Nakaya (1954) の過飽和度とは, 空気中の気相としての水蒸気量と液相の微水滴を合わせた蒸気量を示している. 一方, (2) 式に示した湿度 RH_i とは, 空気塊に含まれている水蒸気量のみを計測した結果である. この両者を比較することにより, 雪結晶生成時の水滴の影響について調べることができると考えた.

ところで, 中谷ダイヤグラムは $T_a = -27^\circ\text{C}$ の領域までしか示されていないため, 図 13 は x 軸

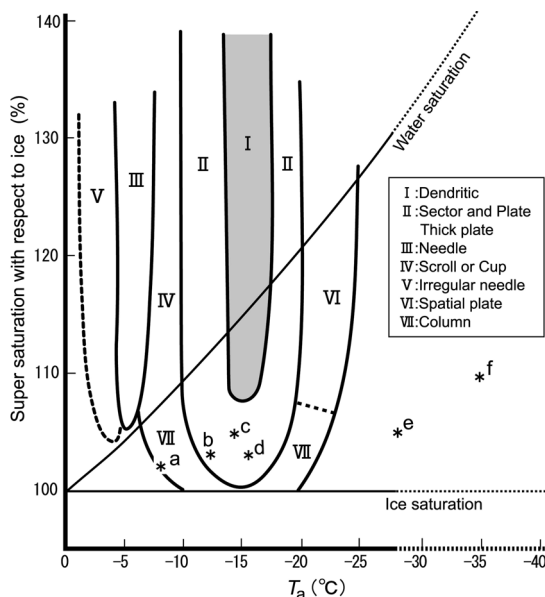


図 13 雪結晶の生成時の温度と湿度. 図 12a~f の雪結晶生成時の温度と RH_i を Nakaya (1954) のダイヤグラムに示した. ただし, Nakaya (1954) は気相としての水蒸気量と液相の微水滴による水蒸気量を合わせたものを Super saturation として示している.

を拡張して示した. 図 12a~f すべての結晶で RH_i が水に対しては過飽和, 同時に水に対して未飽和となっている.

図 14 は図 12a~f の T_d と T_f の測定過程を示したものである. 図中の「計測区間」とは, 2.4 節の手順に従った測定で T_m が安定してからの 60 秒間, 60 回の計測を行った区間を示している. 図 14 a では FINEDEW の動作開始後に鏡面の温度はいったん約 -13°C まで下がっているが, 鏡面上には過冷却水滴が存在していることを目視で確認している. また図 14b, c, d では最初過冷却水滴が生成したが, しばらく経過した後に過冷却が破れ鏡面上の水滴は徐々に氷へ遷移した. 鏡面上に過冷却水滴と氷が共存する間 (図 14 中で L+S と表示) 測定値は不安定であるが, 鏡面上の水がすべて氷となった後, 安定する. T_m が安定した後に計測を行い, これを T_f とする. 図 14e, f では FINEDEW 動作直後, いったん -40°C 以下まで降下し, 鏡面上に凝結する水は初期から氷となるため水と氷の混在による一時的な不安定状態は存在せず, 鏡面温度の揺れが速やかに収束していく. こ

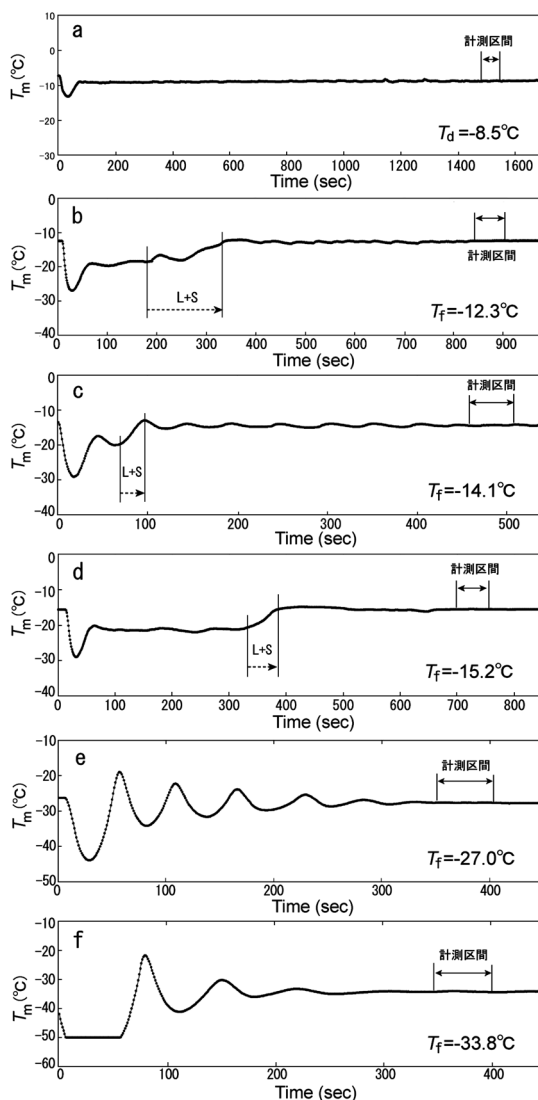


図 14 FINEDEW による各結晶生成時の T_d ・ T_f 測定状況のグラフ. グラフ中の L+S は鏡面に過冷却水滴と霜が混在している期間, T_d および T_f はそれぞれ計測露点, 霜点を示す.

こでは約 6 分後に T_m が安定し, T_f の計測が可能になっている. 測定区間での T_d と T_f の計測値の標準偏差はそれぞれ 0.048°C , 0.074°C , 0.020°C , 0.072°C , 0.072°C , 0.106°C と小さく, 安定した測定ができていくことがわかる.

5. 考察

5.1 実験結果と従来の研究との比較

中谷ダイヤグラムでは, 107% 以上の氷飽和で

樹枝状六花結晶が生成することが示されている。しかし FINEDEW による測定では、図 12 の d の樹枝状六花結晶が成長する空気塊は $RH_i = 103\%$ ($T_a = -15.4^\circ\text{C}$, $T_i = -15.2^\circ\text{C}$) であり、参考までに比較すれば、中谷ダイアグラムの樹枝状結晶成長域の下限值より 4% ほど低い値になっている。これは、本研究では RH_i が「気相としての相対湿度」、すなわち水蒸気を測定対象としているのに対し、空気を吸引し水分を五酸化リンに吸収させる Nakaya (1954) の方法では、対馬 (2004) も指摘しているように装置内に多く浮遊する微水滴を含めた装置内の空気中の水分量を測定していることによるものと考えられる。実際、本研究では $T_a \geq -25^\circ\text{C}$ の結晶生成実験で装置下部の水蒸気発生装置内の水を加熱することで水蒸気を供給しており、結晶生成時、装置内には多くの微小水滴が浮遊しているのが観察された。多くの微小水滴と結晶の存在から、湿度が氷飽和以上かつ水飽和未満となっている本研究の測定結果には妥当性があると考えられる。

図 12e および図 12f はいわゆる低温領域の結晶である。FINEDEW は鏡面の冷却性能が高く、 -25°C 以下の温度域においても容易に露点（霜点）の測定ができる。本研究では -25°C 以下の結晶生成実験で、装置下部の水蒸気発生装置内の水を凍結させた状態で約 20 時間放置した後、氷の下部から加熱し、氷表面の温度を上げる方法で水蒸気の供給を行った。このとき、初期に装置内に存在した過冷却微水滴は目視では認められなかった。

図 12e では $RH_i = 105\%$ で、比較的小型の結晶は無垢の角柱であるが、a 軸方向の長さ（以下 l_a ） $270\mu\text{m}$ 以上の結晶は骸晶構造を持っている。Kobayashi (1961) によるダイアグラムではこの温度域で約 113% 以上の氷飽和で Hollow prism、それ以下では Solid Column としており、本結果とは若干の違いがある。しかし、 $-23^\circ\text{C} < T_a < -32^\circ\text{C}$ において、角柱状結晶の軸比 l_c/l_a （以下軸比と呼ぶ；樋口 (1961)）は成長するにつれて漸近的に 1.4 に近づくとしており、軸比が約 1.2~1.5 である本結果と一致している。

図 12f では $RH_i = 105\%$ で砲弾結晶（または角柱結晶）と側面結晶が混在している。Bailey and Hallett (2004) でも $-30^\circ\text{C} \sim -40^\circ\text{C}$ で同様に角柱

や板状あるいは多結晶の混在が示されている。

5.2 雪結晶生成実験における湿度測定方法の比較

表 1 はこれまでに行われた主な人工雪結晶生成実験での湿度（水分量）の測定方法とその特性をまとめたものである。結晶生成実験での湿度測定では、測定精度以外に、1) 結晶が生成している近傍での測定ができるか、2) 結晶生成過程での環境（気温・湿度）の時間的変化に関わる計測に対応できるか、3) リアルタイムで測定できるか、ということも実験の目的によっては重要な要素になる。これらについて表中の「○」は測定可能、「×」は不可能または困難であることを示し、また、測定精度については各論文に掲載されている数値が記入されている。

低温下での湿度測定は、一般に技術的困難を伴うとされているが、さらに特に対流型の装置においては内部の空気が常に対流していることから結晶生成点での正確な湿度測定は容易ではない。Nakaya (1954) の方法は容積約 3 l の装置から約 23 l の空気を吸引するものであることから、それを補償する空気が装置内に流入することで過飽和度が過小評価される可能性が指摘されている (Kobayashi, 1960)。Kobayashi (1960) では吸引する空気を 1 l とし、補償される外部からの空気は T_a に近い温度で飽和させるなどの工夫がなされており、その精度を -20°C において 2-5% としているものの、測定法が複雑かつ大がかりであるという問題も残っている。

また、これら化学的な吸湿法と呼ばれる方法には、その他にもサンプリング系による配管などによる被測定水分の吸着・リークや吸湿の効率の問題、あるいは質量測定での誤差など多くの不確かさの要因があり (日本機械学会, 1992)、大量の試料の水蒸気量を積算して測定するもので、均一と見なす空間の湿度値を測定するために用いる方法とされている (日本規格協会, 2001)。つまり、吸湿法による測定は試薬の効率や質量の測定精度という直接的な誤差原因に加え、装置に起因する多くの付加的要因で測定精度の低下も考えられ、これらが複合して測定誤差を増幅する可能性が否定できない。また、この方法で求められた Nakaya (1954) の過飽和度 (S) は微小水滴を含む空気中の「含水量」を測定している点で、他の湿度測定

表 1 これまでの主な人工雪結晶生成装置を使った実験での湿度測定方法とその特徴 (○: 可能, ×: 不可能, —: 記載なし).

生成装置 のタイプ	著者名	測定方法および 算出方法	測定精度	結晶生成点 近傍の測定	湿度変化 への対応	リアルタイム 計測	備考
対流型	Nakaya (1954)	五酸化リンによる吸湿法	—	×	×	×	全水量測定
	Kobayashi (1960)	カールフィッシャー法に よる吸湿法	2-5% (-20°C)	×	×	×	全水量測定
	本研究	鏡面露点計による 光学式平衡温度測定	±0.18°C (Td) ±1.7% (-20°C)	○	○	○	空気塊水蒸気 量測定
拡散型	小林 (1957)	過冷却水滴の成長速度 からの計算	—	○	×	×	空気塊水蒸気 量測定
	Hallett & Mason (1958)	上下の氷板の温度差に よる計算	—	○	×	—	空気塊水蒸気 量測定
	Bailey & Hallett (2004)	上下の氷板の温度差に よる計算	—	○	×	—	空気塊水蒸気 量測定
混合槽	Kobayashi (1961)	鏡面露点計を使用して の肉眼判定	<3% -20°C以上	○	×	○	空気塊水蒸気 量測定 低過飽和時

方法とは意味が異なっている (対馬, 2004).

一方, 拡散型で用いられている, 上下 2 枚の氷板の温度差を用いて過飽和を作り出し, その温度分布から過飽和度を求める方法では, 壁面の効果を避けるために縦横比が 1:10 以上必要とされている (Elliott, 1971) が, この方法の精度については実験的に検証されていないようである.

これらの方法に対して, 鏡面冷却式露点計による測定は, 誤差を生じる要因が比較的少ない (日本規格協会: 2001) という特徴があり, 特にセンサタイプである FINEDEW では従来の鏡面冷却式露点計で問題となる配管や測定空気の流れなどの誤差要因は考慮する必要がなく, 高い精度での測定が可能である.

5.3 FINEDEW での湿度測定の可能性と課題

これまでの雪結晶生成実験では, 成長過程での温度・湿度変化と結晶形態の変化にも興味を持たれこれまで種々の研究がなされてきている (Nakaya, 1954; 小林, 1957 等). 拡散型の装置では装置内の空気の成層状態が非常に安定しており, 結晶生成点の温度変化は結晶を成長させる高さを変化させることなどで行われてきた (小林, 1957)

が, 温度と湿度を個別に変化させることは難しい. 反面, 対流型の装置では雪結晶生成時の温度・湿度は T_a と T_w を変化させることによって個別に変化させることができるが, そのときの湿度変化を時系列で連続測定することはこれまでほとんどできなかった.

FINEDEW では, 鏡面上の結露 (あるいは結氷) 量を連続して監視・測定しており, 露点 (あるいは霜点) のわずかな変化にも早い応答速度で対応できるため (Ibata and Kanai, 2008), 結晶生成途中で温度・湿度条件を変化させて実験を行う場合でも連続して計測可能で, 同時にその経過も記録することができる. その結果, 湿度の変化と結晶の成長過程を詳細に関連付けることが可能になる.

このように, FINEDEW を使用することで, 結晶の近傍で, 広範囲の温度条件における安定かつ正確な湿度の測定が可能となり, さらにリアルタイムで数時間にわたる連続した計測もできる. これにより結晶成長過程での温度・湿度変化を連続的にとらえることができ, より詳細で幅広い研究が可能になる. また FINEDEW は対流型に限ら

ず拡散型の装置においても同様に計測が可能であるため、これらの比較検討も可能となる。

しかしながら、これまでの実験の結果、特に数時間にわたる連続した測定では、以下のような計測上の課題も見いだされた。

5.3.1 鏡面の状態の把握の必要性

3.2にも記したように、鏡面露点計による氷点下での露点の測定では鏡面上に存在する水分が水であるか氷であるかを把握しておく必要がある。人工雪生成装置内で鏡面が冷却していく際に、鏡面上の水分ははじめ過冷却水滴の状態で存在するが、低温下ではある時に瞬間的に凍結が始まる。このような水滴の相変化は湿度の連続測定に不具合を生ずることから、一旦装置の操作をマニュアルモードに切り替え、鏡面温度を強制的に下げて鏡面上の水滴を凍結させることにより、安定した状態で湿度の連続測定を行うことができる。

5.3.2 長時間にわたる連続計測においての問題

FINEDEW は鏡面温度を精度よくコントロールし、定常的に熱力学的に平衡な状態に保つことで、長時間わたる連続した露点の測定が可能になっている。しかし、低温域での長時間連続の測定では時として鏡面の状態が著しく変化し、動作が不安定になる場合もある。そのため、数時間に及ぶ連続した露点測定では 5.3.1 節と同様、鏡面状態には十分な留意が必要である。

もし、計測時に装置の動作が不安定になった場合は、一旦、マニュアル操作に変更して鏡面の温度を手動で上げ、鏡面の水滴をすべて昇華蒸発させ、再び測定を行うようにする。なお、将来的にはこのような処理を自動的に行うために装置の制御ソフトウェアを改良、定期的に鏡面の温度を上げて自動で測定をリスタートする機能を追加するなどの自動制御の方法の改善が考えられる。

6. まとめ

散乱光検知方式を採用した超小型センサタイプの鏡面冷却式鏡面露点計 FINEDEW を対流型人工雪結晶生成装置内に設置し、雪結晶生成時の湿度測定を行ったところ、以下のような結果が得られた。

1) FINEDEW は鏡面露点計が持つ高い精度・安定性という利点と、加えてコンパクトで応答

性・追従性に優れているという特性を併せ持ち、これを使つての湿度測定には、結晶生成点近傍での直接かつリアルタイムの測定が可能であるなど、従来の人工雪生成の実験・研究における湿度測定方法にはない優位点がある。

2) 実験の結果、0℃に近い高温領域から−40℃までの領域までの広い範囲で±0.18℃（−20℃の湿度で±1.7%）の精度で露点（霜点）温度測定が可能であり、人工雪結晶生成実験における湿度計測に適用できる。

3) 測定の結果、種々の形態の雪結晶（ここでは針状、渦巻、広幅六花、樹枝状六花、角柱、側面および砲弾を報告）は氷飽和から水飽和までの水蒸気量で成長していることが計測された。これらの値は Nakaya (1954) の結果と比べると各結晶ともに低い湿度値となっているが、その理由は、Nakaya (1954) の測定が装置内に浮遊する微小水滴も含めた全水分量を湿度として換算・測定しているのに対し、本研究では空気塊のみの気相としての相対湿度を測定しているためであると考えられる。

謝 辞

本稿の査読を担当された方々には丁寧な内容を検討して頂き、また大変的確で有意義なご指摘、コメントを頂きました。また、英文要旨は北見工業大学の Jennifer Claro 氏に校閲していただいた。深く感謝致します。

文 献

- 阿部 恒, 2009: ガス微量水分測定の信頼性の飛躍的向上—計量トレーサビリティの確立と計測器の性能評価—. *Synthesiology* **2**, No. 3, 223–236.
- Bailey, M. and Hallett, J., 2004: Growth rates and habits of ice crystals between −20℃ and −70℃. *J. Atmos. Sci.*, **61**, 514–544.
- Elliott, W.P., 1971: Dimensions of thermal diffusion chambers. *J. Atmos. Sci.*, **28**, 810–811.
- Hallett, J. and Mason, B.J., 1958: The influence of temperature and supersaturation on the habit of ice crystals grown from the vapour. *Proc. Roy. Soc. London., ser. A* **247**, 440–453.
- 樋口敬二, 1961: 結晶の形について. *Journ. Met. Soc. Japan*, **39**, 237–248.
- Ibata, K. and Kanai, Y., 2008: Development of the

- micro chilled mirror hygrometer. Proceedings of the 5th International Symposium on Humidity and Moisture (ISHM2006, Brazil) on CD (ISBN 978-85-86920-04-2), index 161, 1-10.
- 金井良之・井端一雅, 2005: 最新の微細加工技術を用いた小型鏡面冷却式露点計の実現. *Savemation Review*, **23** (2), 30-37.
- 小林禎作, 1957: Diffusion cloud chamber による雪結晶習性の研究. *低温科学, 物理編* 16, 1-26.
- Kobayashi, T., 1960: Experimental Researches on the snow crystal habit and growth using a convection-mixing chamber. *J. Met. Soc. Japan*. **38** (5), 231-238.
- Kobayashi, T., 1961: The growth of snow crystals at low supersaturations. *Phil. Mag.* **6**, 1363-1370.
- Magono, C. and Lee, C.W., 1966: Meteorological classification of natural snow crystals. *J. Fac. Sci., Hokkaido Univ., Ser.VII*, **4**, 321-335.
- Mason, B.J., 1971: The physics of clouds. Clarendon press, Oxford, 2nd press, 671pp.
- 村井昭夫, 2005: ペルチェ素子を使用した対流型人工雪生成装置の制作. *雪氷*, **67**, 341-352.
- Nakaya, U., 1954: Snow crystals: Natural and artificial. Harvard University press, Cambridge, 510pp.
- 日本機械学会, 1992: 湿度水分計測と環境のモニタ. 技報堂出版, 471pp.
- 日本規格協会, 2001: JIS 湿度—測定方法. JIS Z 8806, 東京, 45pp.
- 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.

Water vapor measurements during snow crystal formations by the “FINEDEW” chilled mirror hygrometer

Akio MURAI^{1,2)}, Shuhei TAKAHASHI¹⁾, Takao KAMEDA¹⁾,
Yukiya MINAMI³⁾ and Kazumasa IBATA⁴⁾

1) Kitami Institute of Technology, Koen-cho 165, Kitami, Hokkaido 090-8507

2) Ishikawa Prefectural Institute for Education Research and In-service Training,
Takaomachi u31-1, Kanazawa, Ishikawa 921-8153

3) Ishikawa Prefectural University,
Suematsu 1-308, Nonoichi, Ishikawagun, Ishikawa 921-8836

4) Yamatake Corporation,
Kawana 1-12-2, Fujisawa, Kanagawa 251-8522

Abstract: The experiment introduced in this paper was performed in order to measure humidity during snow crystal formation by using the FINEDEW chilled mirror hygrometer. FINEDEW is a micro chilled mirror hygrometer employing a pair of thin fiber optics, which enables the real-time measurement of dew point temperatures by keeping the mirror close to the fiber line that generates the snow crystals. The results of this experiment have clarified that it is possible to measure dew point temperatures between -5°C and -40°C by this device. In comparison with the previous report by Nakaya (1954), the humidity measured by the FINEDEW is a few percent lower than his report. We propose that the difference is caused by the fact that we measure water vapor in the air, while Nakaya (1954) measured water vapor and liquid water droplets in the air. This paper also presents the principles and features of the humidity measuring system employing FINEDEW.

(2010 年 1 月 25 日受付, 2010 年 6 月 20 日改稿受付, 2010 年 11 月 28 日最終改稿受付,
2010 年 12 月 4 日受理, 討論期限 2011 年 7 月 15 日)