



## 氷の表面を濡らす水膜は普通の水より流れにくい

### 研究成果のポイント

- ・独自の光学顕微鏡技術を駆使し、擬似液体層<sup>※1</sup>の形態変化の様子を非接触・非破壊で追跡することで、従来では測定が困難であった擬似液体層の物理的性質<sup>※2</sup>を定量的に評価することに成功した。
- ・擬似液体層は、バルク水<sup>※3</sup>とは性質が明確に異なることを明らかにした。
- ・長年の謎であった氷の表面融解の機構解明に向けた新しいアプローチを提案。

### 研究成果の概要

氷の表面は 0°C以下であっても薄い水膜で濡れています。この現象は氷の「表面融解」として古くから知られていますが、氷の表面がなぜ濡れるのかは未だに大きな謎に包まれています。本研究では、表面融解により生じる水膜「擬似液体層」に着目し、その物理的性質を独自の光学顕微鏡技術を駆使して調べました。その結果、擬似液体層の流れ易さ（表面張力と粘性係数の比）がバルク水のそれと比べて、最大約 200 分の 1 にまで低下することが、すなわち氷表面を濡らす水膜はバルク水より流れにくいことが分かりました。この違いは氷界面に局在する水分子がバルク水には見られない特異な構造・運動性を持つことに起因していると考えられます。本研究成果は、長年の謎であった氷の表面融解のメカニズムを解明する上での重要な手掛かりになると期待されます。

### 論文発表の概要

研究論文名：In *situ* Determination of Surface Tension-to-Shear Viscosity Ratio for Quasiliquid Layers on Ice Crystal Surfaces（顕微鏡その場観察による氷結晶上における擬似液体層の表面張力－粘性係数比の直接測定）

著者：村田 憲一郎，麻川 明俊，長嶋 剣，古川 義純，佐崎 元（北海道大学低温科学研究所）

公表雑誌：Physical Review Letters

公表日：米国東部時間 2015 年 12 月 17 日（木）（オンライン公開）

## 研究成果の概要

### (背景)

「融点以下の温度条件でも氷の表面は非常に薄い水膜（擬似液体層）で覆われている」、いわゆる表面融解として知られるこの現象の研究の歴史は古く、電磁気学の祖であるマイケル=ファラデーにまで遡ります。それ以来多くの研究者がこの現象の解明に力を注いできましたが、150年以上経た今もなお、そのような薄い水膜が発生する理由は明らかになっていません。この現象を理解するためには、擬似液体層を十分な時間的・空間的分解能を持つ手段で直接捉え、その物理的性質を明らかにすることが極めて重要になります。しかし、ナノメートル程度の厚みしか持たない擬似液体層を実験的に直接捉えること自体が極めて困難であったため、擬似液体層の物理的性質やバルク水との相違を定量的に明らかにしようとする研究は決定的に不足していました。

### (研究手法)

オリンパス株式会社と共同開発したレーザー共焦点微分干渉顕微鏡<sup>※4</sup>と呼ばれる独自の光学顕微鏡を用いて実験を行いました。この顕微鏡の高さ方向の分解能は1分子レベルに達しており、氷結晶上の擬似液体層そのものを直接可視化することができます。本研究では、特に擬似液体層同士が氷上で合体・融合する時の形態の変化に着目しました（図1、図2）。その形態変化が起こる速さは、①界面張力による変形に対する復元力と、②粘性による摩擦力のバランスにより決定されます。つまり、形態変化の様子を詳細に解析することで、それら2つの力を特徴付ける値の比—表面張力と粘性係数の比—を決定することができます。本研究手法では、従来の構造解析や分光法などの「時間的・空間的に平均化された」手法とは異なり、光学顕微鏡により「非接触かつ実時間・実空間（その場観察）」で擬似液体層の動きを捉えることができます。これにより、擬似液体層そのものの物理的性質を直接測定することが可能となります。

### (研究成果)

我々の先行研究により、氷上の擬似液体層が温度と水蒸気圧に応じて、①液滴を形成する部分濡れ（図1）、②薄膜化する完全濡れ（図2）、の2種類の濡れ形態を示すことは知られていました。今回新たに、擬似液体層の表面張力-粘性係数比がバルク水のそれと比較し、部分濡れでは約20分の1に、完全濡れの場合は約200分の1にまで低下することが分かりました。つまり、擬似液体層はバルク水と比べ非常に流れにくい状態になっているといえます。この結果は、氷界面に局在する水分子がバルク水とは異なる構造・運動性を有していることを強く示唆しています。また、部分濡れから完全濡れ状態への形態変化の詳細を解析することで、完全に濡れた擬似液体層の膜厚がおおよそ9ナノメートルであることも明らかにしました。

### (今後への期待)

氷結晶上の擬似液体層は、雪玉作りから氷上の潤滑、凍上現象、雪の形態変化、雷雲での電気の発生機構など、我々に身近な低温での自然現象に深く関わっていると考えられています。本研究における擬似液体層の物性のより正確な評価は、これらの自然現象を理解するための重要な知見となると考えられます。また、我々の実験結果は氷界面近傍での水の流れがバルク水とは大きく異なることを示していますが、界面により誘起される水の異常挙動は氷だけではなく他の様々な界面においても起こり得る普遍的な現象であると考えられます。近年のナノテクノロジーの進展により、いわゆる「ナノ

空間」中における水の流動特性（マイクロ・ナノフルイディクス）の研究がにわかに注目されつつあります。ナノスケールという極小空間内では閉じ込める壁，つまり界面の効果が決定的に重要になります。マイクロ・ナノフルイディクスの研究対象には細胞内での水の流れなども視野に入ります。そのため，我々の成果は物性物理学を越えた幅広い研究領域に大きなインパクトを与えるものと期待されます。

### お問い合わせ先

所属・職・氏名：北海道大学低温科学研究所 助教 村田 憲一郎（むらた けんいちろう）

TEL：011-706-5466 E-mail：murata@lowtem.hokudai.ac.jp

ホームページ：http://www.lowtem.hokudai.ac.jp/ptdice/

### 【参考図】

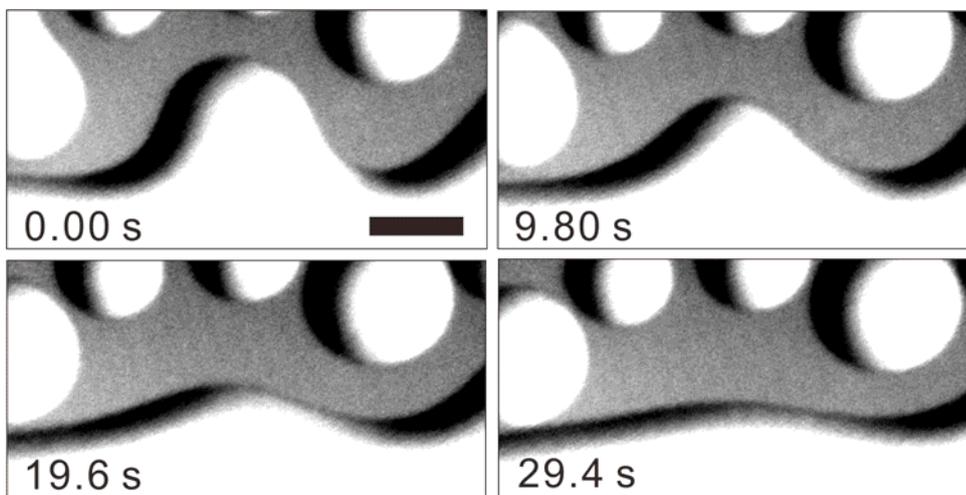


図 1：サイズの異なる液滴型（部分濡れ）の擬似液体層同士が合体し，小さい擬似液体層が大きいものに吸収されていく時の様子。合体・融合によって乱された液滴の形状が，元の平らな状態に戻る様子（緩和過程）が確認できる。（単位は秒。スケールバーは  $20\mu\text{m}$ ）

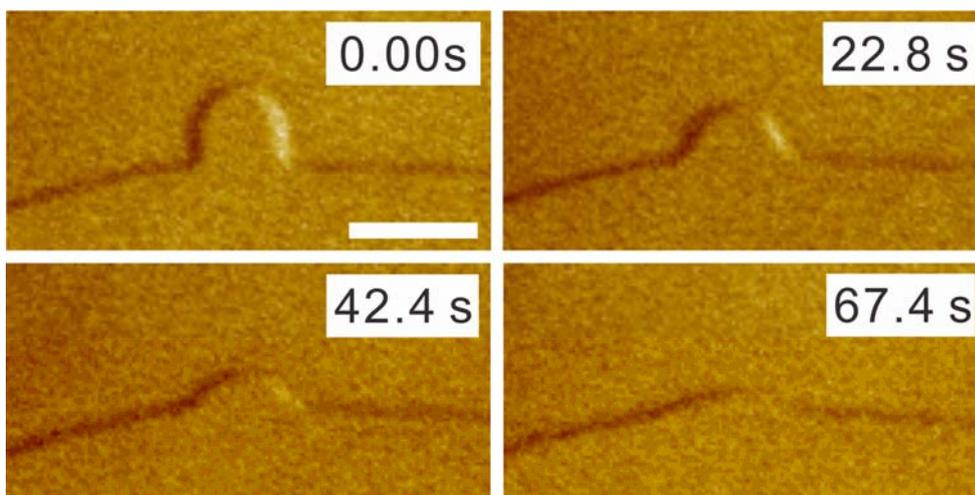


図 2：サイズの異なる薄膜型（完全濡れ）の擬似液体層同士が合体し，小さい擬似液体層が大きいものに吸収されていく時の様子。（単位は秒。スケールバーは  $10\mu\text{m}$ ）

## [用語解説]

※1 **擬似液体層**：表面融解により生じた氷表面を覆う極薄の水膜を指す。エリプソメトリーなどによる測定から、厚みは数十 nm 程度と見積もられている。この水膜は、より氷に近い構造を持つ水であると予想されているため、通常のバルク水（※3）と区別するために「擬似液体層」と呼ばれている。

※2 **物理的性質（物性）**：密度，屈折率，比熱，融点，沸点などをはじめとした個々の物質が有する性質の総称。本研究では，擬似液体層の表面張力と粘性係数の比に着目している。

※3 **バルク水**：ナノメートル程度のサイズの物質では，水に限らず，その物理的性質がサイズによって顕著に変化することが知られている。このような効果を有限サイズ効果と呼ぶ。バルク水とは，この有限サイズ効果が現れなくなる程度に大きくなった（マイクロメートル以上）水を指す。

※4 **レーザー共焦点微分干渉顕微鏡**：微分干渉顕微鏡は試料表面の高さ変化を光の干渉を利用して明暗のコントラストに変換する。レーザー共焦点顕微鏡はピンホールと共に光源としてレーザーを用いることでノイズ光を大幅に除去し，観察像を鮮明にする。レーザー共焦点微分干渉顕微鏡は，この2つの顕微法を組み合わせ，さらに様々な改良を加えた独自の光学顕微鏡で，一分子レベルの段差を可視化する非常に高い分解能を実現する。