

令和 4 年 9 月 1 日現在

機関番号：10101

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2019～2021

課題番号：19H02611

研究課題名(和文)多結晶氷の表面融解機構の解明

研究課題名(英文)Studies on the mechanisms of surface melting of ice polycrystals

研究代表者

佐崎 元 (Sazaki, Gen)

北海道大学・低温科学研究所・教授

研究者番号：60261509

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,400,000円

研究成果の概要(和文)：多結晶氷の表面融解過程を高分解光学顕微鏡観察することで、下記の5点を発見した。1) -1.9 ± 0.4 °C以上の温度では、粒界の溝で擬似液体層が生成することを見出した。2) -0.7 ± 0.2 °C以上の温度では、粒表面で擬似液体層が生成するが、10分以内程度で自発的に消滅することを見出した。3) -0.2 °C以上の融点直下では、粒界から多量の擬似液体層が生成し、粒表面を覆い尽くすことを見出した。4) 粒表面は氷単結晶表面よりも擬似液体層に対して良い濡れ性を示すことを見出した。5) NaClを添加すると、極めて低い温度(-11 °C)でも擬似液体層が生成することを見出した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

これまで、単結晶氷の表面融解については、様々な分光学的手法、光学顕微法、原子間力顕微法などを用いて様々な研究が行われてきた。しかし、自然界の大部分の氷は多結晶であり、多結晶は歪みを有する粒界や高指数面からなる粒表面など、単結晶にはない性質を持つ。そのため、様々な自然現象の謎を明らかにするには、まず氷多結晶の表面融解を理解する必要がある。本研究では予想通り、多結晶氷の粒界や粒表面が、単結晶氷にはない特異な表面融解現象を示すことを明らかにすることができた。そのため、本研究で得られた成果は、様々な氷の表面融解に関連する自然現象を今後解明するための出発点として大きく寄与するものと期待している。

研究成果の概要(英文)：We observed the surface melting of polycrystalline ice using an advanced optical microscope, then obtained the following five findings. 1) At temperatures higher than -1.9 ± 0.4 °C, quasi-liquid layers (QLLs) are formed in grooves of grain boundaries. 2) At temperatures higher than -0.7 ± 0.2 °C, QLLs appear on grain surfaces. However, as time elapsed, the QLLs spontaneously disappear within 10 min. 3) At temperatures higher than -0.2 °C, large amount of QLLs appear from grooves of grain boundaries and fully cover grain surfaces. 4) QLLs on grain surfaces show better wettability than those on ice single crystal surfaces. 5) When small amount of NaCl is added, QLLs appear even at -11 °C.

研究分野：結晶成長学

キーワード：氷 多結晶 表面融解 粒界 粒表面 高分解光学顕微鏡

1. 研究開始当初の背景

表面融解による擬似液体層の生成は、復氷現象や氷の滑りやすさを説明するため、1850年代にマイケル・ファラデーが初めて提唱した。それ以降、氷結晶のみならず、金属や半導体などの様々な結晶材料の表面は、融点近傍の高温下では表面融解し、擬似液体層で覆われることが明らかにされて来た[1]。しかし、金属や半導体の擬似液体層は高温下で生成するため、その直接観察は極めて困難であり、融点近傍での結晶の表面物性を支配する擬似液体層の挙動はまだほとんど明らかになっていない。

一方、氷結晶上での擬似液体層の生成については、プロトンチャネリング法、偏光解析法、原子間力顕微鏡法などの手段を用いて、擬似液体層の厚みの温度依存性について多くの測定が行われて来た。しかし、得られた結果は、研究者および測定手段によって極めてばらついている[2]。これは、用いられた測定手法が空間分解能に乏しいことによる(原子間力顕微鏡を用いても、擬似液体層がカンチレバーの横方向への走査を邪魔するため、擬似液体層は可視化されていない)。

申請者らはこのような状況を打破するべく、高さ方向に極めて高い感度を持つレーザー共焦点微分干渉顕微鏡をさらに極限まで改良することで、空気-氷単結晶界面において、単位ステップ(0.37 nm高さ)を直接可視化することに初めて成功した[3]。さらに申請者らは、本顕微鏡を用いて融点近傍の空気-氷単結晶界面をその場観察し、形状が異なる2種類の擬似液体層(液滴状と薄層状)が、 -2°C 以上の温度領域で生成することを見出した[4]。また、2種類の擬似液体層は共に準安定相であり、過飽和水蒸気が氷単結晶表面に凝縮して、もしくは氷単結晶が昇華する際に速度論的に形成されること、2種類の擬似液体層の存在は濡れ転移で説明できることなどを見出している[5, 6]。

これまで、単結晶氷の表面融解については多数の研究が行われてきた。しかし、自然界の大部分の氷は多結晶である。そのため、様々な自然現象の謎を解明するには、多結晶氷の表面融解を理解する必要がある。多結晶氷中には、大面積の粒界が存在する。また、個々の結晶粒の表面は結晶学的高指数面からなる。さらに、結晶粒は単結晶氷よりも多くの格子欠陥を含む場合が多い。そのため、多結晶氷が表面融解する過程を直接高分解光学観察することで、多結晶氷に特有な表面融解現象を明らかにし、表面融解の一般的な描像を確立したい。

2. 研究の目的

本研究では、表面融解により多結晶氷上で生成する擬似液体層を既存のレーザー共焦点微分干渉顕微鏡により直接観察するとともに、擬似液体層が成長・縮小しているかをリニーク型光干渉計(新設)を用いて精密に計測する。さらに、結晶光学主軸分布測定装置(新規購入)を用いて、多結晶氷中の個々の結晶粒の配向と結晶粒界の性質および結晶粒表面の面指数を特定する。これらの直接光学観察・計測を駆使することで、多結晶氷と単結晶氷とではどの様に表面融解の描像が異なるか、およびその機構を解明する。具体的には下記の4点に焦点を絞る。

1) 熱力学的安定性: 様々な温度・水蒸気圧下で多結晶氷上の粒界や粒表面で擬似液体層が成長・縮小する様子その場観察し、擬似液体層が存在しうる温度-水蒸気圧領域(状態図)を明らかにする

2) 生成カイネティクス: 過飽和度(および未飽和度)を変化させると生成する擬似液体層の個数がどの様に变化するかを計測し、氷と擬似液体層の界面自由エネルギーを決定するとともにその物理的描像を明らかにする。

3) 粒界・高指数面の寄与: 粒界や高指数面(両者共に結晶光学主軸分布測定装置(仮称)で評価)よりどの様に擬似液体層が生成するのかを直接観察し、これらが表面融解に及ぼす効果を明らかにする。

4) 不純物の寄与: NaClなどの不純物を意図的に添加した多結晶氷の表面融解を調べ、不純物が擬似液体層の熱力学的安定性や物性に及ぼす寄与を明らかにする。

そして、1~4)の知見から、表面融解の一般的な描像を確立する。

3. 研究の方法

1) 多結晶氷薄膜の作成: 液体窒素温度に冷却したアルミ製ブロックの上にカバーガラスを置き、1.2 m上方より約5 μL の超純水を滴下し、カバーガラス上に直径7~9 mm, 厚み70~80 μm の多結晶氷薄膜を作製した。そして、多結晶氷薄膜をさらに、約0.6 X 0.6 mm^2 に切り出して観察試料とした。この小さな多結晶氷薄膜を切り出す操作は、多結晶氷薄膜の成長に必要な水蒸気量をできるだけ少なくし、多結晶氷薄膜近傍を所定の水蒸気圧に保つために必須であった。

2) 多結晶氷薄膜の光学その場観察: 我々がこれまでに作製した、任意の水蒸気圧および温度($-26\sim 0^{\circ}\text{C}$)のもとで試料氷結晶を光学顕微鏡観察するための観察チャンバー[3]中に、1)で作成した多結晶氷薄膜をセットした。そして、縦方向には原子レベルの検出感度を持つレーザー共焦点微分干渉顕微鏡(LCM-DIM)[3]を用いて、多結晶氷薄膜上での擬似液体層の生成・消滅を、様々な水蒸気圧(P)・温度(T)の下でその場観察した。図1に、氷単結晶表面上に薄層状(黒プロット)

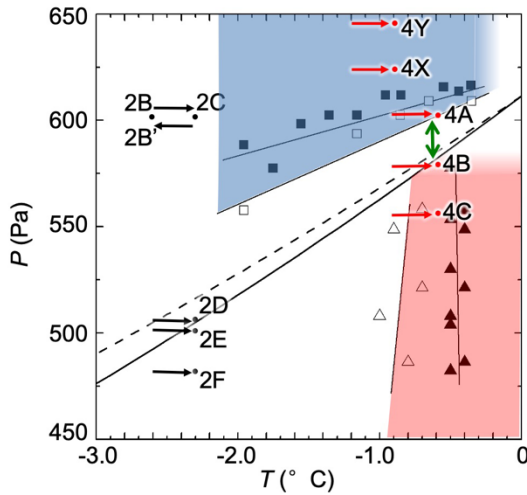


図1. 氷単結晶表面で擬似液体層が生成しうる水蒸気圧-温度領域. □ (△) は液滴状擬似液体層の生成に必要な最低水蒸気圧 (温度), ■ (▲) は薄層状擬似液体層の生成に必要な最低水蒸気圧 (温度) を示す. 点 2B-2F および 4A-4Y は, 図 2B-2F および 4A-4Y での実験条件を示す.

および液滴状 (白プロット) の擬似液体層が生成する際に必要な最低水蒸気圧・温度を示す[5, 6]. 図中の青色および赤色で示された水蒸気圧 (P)-温度 (T) 領域でのみ, 氷単結晶表面では擬似液体層が生成する. 一方, 次節で多結晶氷表面での研究成果を説明する際に示す図 2, 4 での観察条件を, 点 2B-2F および点 4A-4Y に示した.

4. 研究成果

(1) 粒界について

まず, 多結晶氷が粒成長する様子を, LCM-DIM を用いてその場観察した. その結果, 例えば融点近傍の -2°C においては, 粒成長が進行するには 40 分程度の時間を要することがわかった. そのため, 秒~10 分程度の時間スケールで起こる現象は粒成長の影響をそれほど受けていないと考えられる.

次に, 多結晶氷の粒界の溝部分を LCM-DIM 観察した結果を図 2 に示す[7]. なお, 粒界の溝に擬似液体層が生成しているか否かを判別するために, 多結晶氷薄膜を作成する際に, 直径 653 nm のポリスチレン粒子を体積分率 0.02% で超純水に加えた. 図 2A では, 多結晶氷薄膜上で観察されたポリスチレン粒子を白矢印頭で示した. また, 粒界の溝部分を一点破線四角で示した. まず, 図 1 中で点 2B および 2C で示した様に, 過飽和水蒸気中で温度を -2.6 から -2.3°C へと上昇させると, 粒界溝中のポリスチレン粒子は, -2.6°C では時間によらずその位置は固定されたままであったが, -2.3°C では時間とともに移動した. この結果より, -2.6 から -2.3°C への温度上昇に伴い, 粒界溝中にポリスチレン粒子を移動させるために十分な量の擬似液体層が生成したことがわかる. また逆に, 温度を -2.3 から -2.6°C に低下させると, 図 2B' に示した様に, ポリスチレン粒子が再び固定されたことから, 粒界溝中の擬似液体層が消滅 (もしくは減少) したことがわかる. 同様に, 図 2D-2F で示した様に, 気固平衡条件 (2D) および未飽和水蒸気 (2E, 2F) の元でも, 温度を -2.6 から -2.3°C へと上昇させると, 粒界溝中にはポリスチレン粒子を移動させるために十分な量の擬似液体層が生成することがわかった.

温度の上昇に伴う粒界溝中の擬似液体層の生成は次の様に理解できる. 個々の結晶粒の配向はランダムであるため, 粒界では隣り合った結晶粒同士の格子不整合に伴い歪エネルギーが生成することがよく知られている[8]. そのため, 図 3A-1 および B-1 に示した様に, 擬似液体層が生成していないドライな粒界はバルクな水

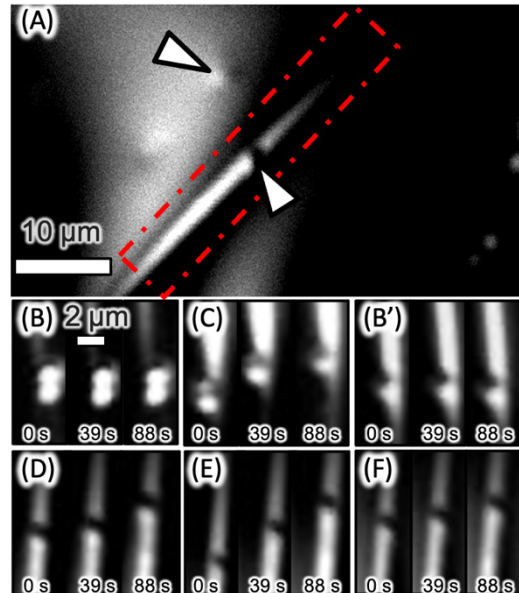


図2. 粒界溝中での擬似液体層の生成. (A) $T=-2.6^{\circ}\text{C}$, $P=506\text{ Pa}$, $P_0=492\text{ Pa}$ で観察した粒界の LCM-DIM 像. 三角矢印頭は, ポリスチレン粒子を示す. (B-F) 像 (A) 中の四角で囲った領域の LCM-DIM 像の経時変化. 観察条件は図 1 中の各点に相当. (B と B') $T=-2.6^{\circ}\text{C}$, 高過飽和水蒸気中, (C) $T=-2.3^{\circ}\text{C}$, 高過飽和水蒸気中, (D と E) $T=-2.3^{\circ}\text{C}$, ほぼ平衡な水蒸気中, (F) $T=-2.3^{\circ}\text{C}$, 未飽和水蒸気中.

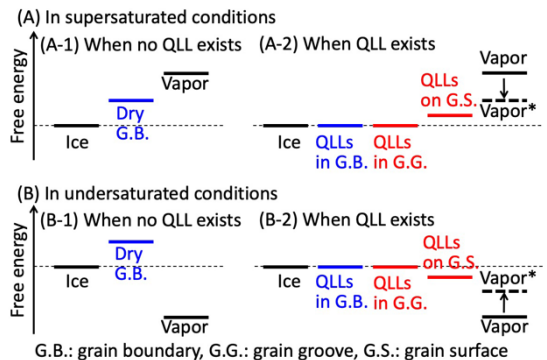


図3. 過飽和 (A) および未飽和 (B) な水蒸気中での各相の自由エネルギー. G. B. は粒界, G. G. は粒界溝, G. S. は粒表面を示す.

結晶よりも不安定な状態にある。温度がある臨界値よりも上がると、粒界が融解して擬似液体層が生成することで、格子不整合が解消されるために粒界は安定になる(図 3A-2 および B-2)。その際に、粒界の溝に生成する擬似液体層は粒界中の擬似液体層と同じく、バルクの結晶と平衡状態にあると考えられる。そのため、水蒸気が過飽和・未飽和であるかによらずに、粒界溝に擬似液体層が生成したものと推察される。同様の実験を多数回行ったところ、粒界溝中に擬似液体層が生成する臨界温度は、 $-1.9 \pm 0.4^\circ\text{C}$ であることがわかった。

(2) 粒表面について

次に、図 1 の点 4A-4Y に示した様に、氷結晶に対して極めて高い過飽和 (4X, 4Y)、過飽和 (4A)、ほぼ平衡 (4B)、および未飽和 (4C) な水蒸気中で、温度を -0.9 から -0.6°C に上昇させた。その際の結晶粒表面の LCM-DIM 像を図 4 に示す[7]。温度上昇より 180 s 程度時間が経過すると、結晶粒表面上に液滴状の擬似液体層が生成することがわかる。図 4A' に示した様に、隣り合った擬似液体層が互いに接触すると自発的に合体することより、結晶粒表面上の半球上の物体は、確かに固相ではなく液相であることがわかる。同様の実験を多数回行ったところ、粒表面に液滴状の擬似液体層が生成する臨界温度は、 $-0.7 \pm 0.2^\circ\text{C}$ であることがわかった。

しかし興味深いことに、さらに時間が経過すると、温度と水蒸気圧を同一に保っているにもかかわらず、結晶粒表面に生成していた液滴状の擬似液体層は自発的に消滅することがわかった(図 4)。このような擬似液体層の自発的な消滅は、氷単結晶表面では観察されず、氷多結晶粒の表面でのみ観察された。この粒表面での擬似液体層の自発的な消滅はどの様に解釈できるであろうか？

我々はこれまでに、氷単結晶表面上では擬似液体層は準安定相であることを明らかにしてきた[5, 6]。多結晶粒表面でも同様に、図 3A-2 および B-2 に示した様に、擬似液体層は準安定相であると考えられる。そうすると、図 1 に示した圧力温度相図中の緑両矢印で示した水蒸気圧領域において、結晶粒上の擬似液体層が自発的に消滅することは、単結晶表面上での結果と矛盾しない。しかし、結晶粒上の擬似液体層が、図 1 で青色および赤色で示した圧力-温度領域でも自発的に消滅することは単結晶表面上での結果と大きく異なる。

その理由としては、現在のところまだ実験的な証拠はないが、次の 2 つのシナリオが考えられる。(1) 結晶粒の表面は高指数面からなるため、ベーサル面およびプリズム面に比べて遥かに成長が速いと予想される。そのため、擬似液体層は粒表面の速い成長に伴って多量に消費されてしまい、消滅すると考えられる。粒表面で擬似液体層が速度論的に存在するには、過飽和および未飽和がより高くないとだめだと予想される。(2) もう 1 つの可能性は、 $-1.9 \pm 0.4^\circ\text{C}$ 以上の温度で粒界の溝に生成する擬似液体層が、粒表面に生成する擬似液体層と共存することに起因する。両者は図 3 に示した熱力学的安定性を持つので、粒表面上の擬似液体層はより安定な粒界溝中の擬似液体層に、気相を介して相転移して消滅してしまうと考えられる。どちらのシナリオが正しいかは、今後の研究の進展を待たねばならない。

(3) 融点 (0°C) 直下での擬似液体層の生成について

我々は、さらに高い -0.2°C 以上の温度領域では、多量の擬似液体層が生成し、多結晶氷表面を全て覆い尽くすことを見出した。生成した擬似液体層の下側には、多結晶薄膜がまだ確かに存在することより、本現象は融点 (0°C) におけるバルク融解とは明確に異なる。多結晶氷表面の凹凸の経時変化をリニーク型光干渉計を用いて精密に計測したところ、多量の擬似液体層は粒界の溝より生成することが確認された。この現象が、 $-1.9 \pm 0.4^\circ\text{C}$ よりも高温で、粒界の溝において擬似液体層が生成する現象とどの様に異なるのか、今後さらに明らかにしてゆきたい。

(4) 結晶粒表面の濡れ性について

多結晶氷の粒表面および氷単結晶の表面を、 -0.2°C 以上の温度領域で光分解光学観察した。その結果、同じ温度 (-0.2°C) および同じ過飽和度 ($\sigma=1.07$) の下であっても、多結晶粒表面と単

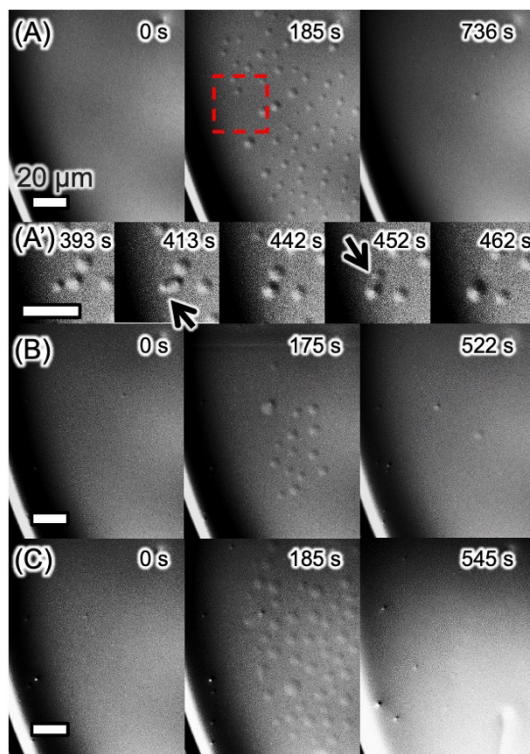


図 4. 結晶粒表面上での液滴状の擬似液体層の生成と消滅. 全て $T=-0.6^\circ\text{C}$ ($P_g=582\text{ Pa}$) で撮影. 観察条件は図 1 中の各点に相当. (A) 過飽和, (B) ほぼ平衡, (C) 未飽和な水蒸気中. (A') 像 (A) 中の四角で囲んだ部分の拡大像. 黒矢印は、隣り合った擬似液体層が互いに接触すると合体することを示す.

結晶表面では、擬似液体層の挙動が異なることを見出した。多結晶粒表面では、生成した擬似液体層は粒表面全体を一様に濡らし、完全濡れを示した。一方、単結晶表面では、生成した擬似液体層は液滴として存在し、部分濡れを示した。これらの結果は、多結晶粒表面の方が単結晶表面に比べて擬似液体層に対する濡れ性が良いことを示す。高指数面からなる結晶粒表面は単結晶表面に比べて極めてラフである。そのため、個々の水分子は、結晶粒表面では単結晶表面にくらべてより弱く表面と結合しており、より液相に近い性質を持つ、すなわちより良い濡れ性を示すものと推察される。

(5) 不純物(NaCl)の効果について

天然に最も多量に存在する塩である NaCl を意図的に系に添加し、その不純物効果を調べた。その結果、0.1 mol/L NaCl 水溶液を液体窒素温度で瞬間凍結して作成した多結晶氷の場合には、純水多結晶氷の場合には擬似液体層の生成が全く確認されない -11.0°C においても、粒界には多量の擬似液体層が存在し、粒表面も数ミクロン厚みの擬似液体層で覆われていることがわかった。この結果は、微量な不純物によって、極めて低温でも多結晶氷の表面融解現象が進行することを示す。

(6) 粒界性格および粒表面の面指数の効果について

上記(1)および(2)で示した、粒界の溝中に擬似液体層が生成する臨界温度、および粒表面上に液滴状の擬似液体層が生成する臨界温度は、実験のランによって図5に示した程度のばらつきを示した。これは、多結晶氷薄膜中の結晶粒の配向がランダムであるため、粒界の性質および粒表面の面指数が異なることに起因すると考えられる。しかし、図5に示した臨界温度のばらつきは、研究を開始する以前に予想した値よりもずっと小さなものであった。そのため、多結晶氷薄膜中の結晶粒の結晶学的方位を計測するための装置を導入したが、それを用いて結晶学的方位と臨界温度の相関を詳細に調べるには至らなかった。

【引用文献】

(研究代表者に2重下線, 研究分担者および連携研究者には1重下線)

- [1] van der Veen JF, Pluis B, & Denier van der Gon AW (1988) Surface melting. *Chemistry and physics of solid surfaces VII*, eds. Vanselow R & Howe RF (Springer-Verlag, Berlin), pp 455-490.
- [2] M. Elbaum, S.G. Lipson, J.G. Dash, *J. Crystal Growth*, **129**, 491-505 (1993).
- [3] G. Sasaki, S. Zepeda, S. Nakatsubo, E. Yokoyama, Y. Furukawa, *Proc. Nat. Acad. Sci. USA.*, **107**, 19702-19707 (2010).
- [4] G. Sasaki, S. Zepeda, S. Nakatsubo, E. Yokoyama, Y. Furukawa, *Proc. Nat. Acad. Sci. USA.*, **109**, 1052-1055 (2012).
- [5] H. Asakawa, G. Sasaki, K. Nagashima, S. Nakatsubo, Y. Furukawa, *Proc. Nat. Acad. Sci. USA.*, **113**, 1749-1753 (2016).
- [6] K. Murata, H. Asakawa, K. Nagashima, Y. Furukawa, G. Sasaki, *Proc. Nat. Acad. Sci. USA.*, **113**, E6741-E6748 (2016).
- [7] J. Chen, T. Maki, K. Nagashima, K. Murata, G. Sasaki, *Crystal Growth & Design*, **20**, 7081-7564 (2020).
- [8] C.L. Vold, M.E. Glicksman, The nature and behavior of grain boundaries: a symposium held at the TMS-AIME fall meeting in Detroit, Michigan, pp. 171-183 (Plenum Press, New York, 1971).

5. 研究組織

(1) 研究代表者

佐崎 元 (SAZAKI GEN) : 北海道大学・低温科学研究所・教授・研究者番号 60261509

(2) 研究分担者

長嶋 剣 (NAGASHIMA KEN) : 北海道大学・低温科学研究所・助教・研究者番号 60436079

村田 憲一郎 (MURATA KEN-ICHIRO) : 北海道大学・低温科学研究所・助教・研究者番号 60646272

(3) 研究協力者

Chen Jialu (CHEN JIALU) : 北海道大学・理学院宇宙理学専攻・博士課程学生

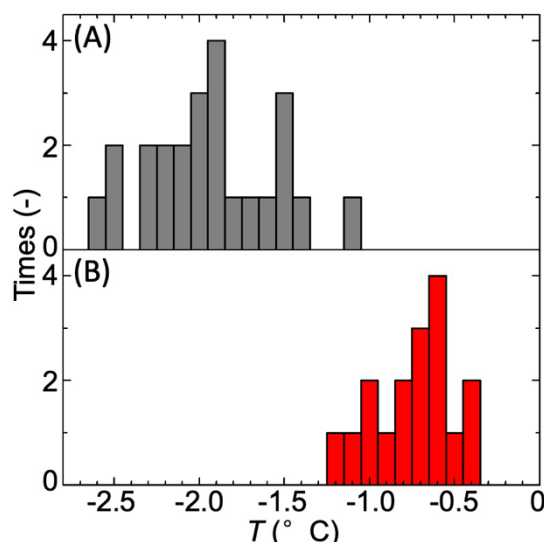


図5. (A)粒界の溝中で擬似液体層が生成するための臨界温度, および(B)粒表面上で擬似液体層が生成するための臨界温度のばらつきについて.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計9件（うち査読付論文 9件／うち国際共著 4件／うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Murata Ken-ichiro, Sato Masahide, Uwaha Makio, Saito Fumiaki, Nagashima Ken, Sazaki Gen	4. 巻 119
2. 論文標題 Step-bunching instability of growing interfaces between ice and supercooled water	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Proceedings of the National Academy of Sciences	6. 最初と最後の頁 e2115955119-1-8
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1073/pnas.2115955119	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Sazaki Gen, Inomata Masahiro, Asakawa Harutoshi, Yokoyama Etsuro, Nakatsubo Shunichi, Murata Ken-ichiro, Nagashima Ken, Furukawa Yoshinori	4. 巻 67
2. 論文標題 In-situ optical microscopy observation of elementary steps on ice crystals grown in vapor and their growth kinetics	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Progress in Crystal Growth and Characterization of Materials	6. 最初と最後の頁 100550 ~ 100550
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.pcrysgrow.2021.100550	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Nagashima Ken, Murata Ken-ichiro, Sazaki Gen	4. 巻 21
2. 論文標題 HCl Droplets Induced Bunched Steps on Ice Crystal Surfaces under Atmospheric-Concentration HCl Gas	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Crystal Growth & Design	6. 最初と最後の頁 2508 ~ 2515
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1021/acs.cgd.1c00172	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Y. Furukawa, K. Nagashima, E. Yokoyama, S. Nakatsubo, S. Zepeda, I. Yoshizaki, H. Tamaru, T. Shimaoka, T. Sone, T. Maki, Asuka Yamamoto, T. Tomobe, K. Murata, G. Sazaki	4. 巻 38
2. 論文標題 Ice crystal growth experiments conducted in the Kibo of international space station	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Int. J. Microgravity Sci. Appl.	6. 最初と最後の頁 380101-1-24
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1021/acs.jpcllett.0c03776	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Chen Jialu, Maki Takao, Nagashima Ken, Murata Ken-ichiro, Sazaki Gen	4. 巻 20
2. 論文標題 Quasi-liquid Layers in Grooves of Grain Boundaries and on Grain Surfaces of Polycrystalline Ice Thin Films	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Crystal Growth & Design	6. 最初と最後の頁 7188 ~ 7196
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.cgd.0c00799	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Chen Jialu, Maki Takao, Nagashima Ken, Murata Ken-ichiro, Sazaki Gen	4. 巻 20
2. 論文標題 Correction to Quasi-Liquid Layers Can Exist on Polycrystalline Ice Thin Films at a Temperature Significantly Lower than on Ice Single Crystals	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Crystal Growth & Design	6. 最初と最後の頁 4852 ~ 4854
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.cgd.0c00725	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Nagashima Ken, Maurais Josee, Murata Ken-ichiro, Furukawa Yoshinori, Ayotte Patrick, Sazaki Gen	4. 巻 10
2. 論文標題 Appearance and Disappearance of Quasi-Liquid Layers on Ice Crystals in the Presence of Nitric Acid Gas	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Crystals	6. 最初と最後の頁 72 ~ 72
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3390/cryst10020072	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Nagata Yuki, Hama Tetsuya, Backus Ellen H. G., Mezger Markus, Bonn Daniel, Bonn Mischa, Sazaki Gen	4. 巻 52
2. 論文標題 The Surface of Ice under Equilibrium and Nonequilibrium Conditions	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Accounts of Chemical Research	6. 最初と最後の頁 1006 ~ 1015
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.accounts.8b00615	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Furukawa Yoshinori, Nagashima Ken, Nakatsubo Shunichi, Zepeda Salvador, Murata Ken-ichiro, Sazaki Gen	4. 巻 377
2. 論文標題 Crystal-plane-dependent effects of antifreeze glycoprotein impurity for ice growth dynamics	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Philosophical Transactions of the Royal Society A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences	6. 最初と最後の頁 20180393-1~13
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1098/rsta.2018.0393	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計21件 (うち招待講演 6件 / うち国際学会 6件)

1. 発表者名 宮本玄樹, 村田憲一郎, 長嶋 剣, 香内 晃, 佐崎 元
2. 発表標題 氷結晶における単位渦巻きステップの成長カイネティクス
3. 学会等名 日本物理学会第77回年次大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 長嶋 剣, 村田憲一郎, 佐崎 元
2. 発表標題 塩化水素ガスにより氷表面に出現する塩酸液滴が氷の気相成長へ与える影響
3. 学会等名 日本物理学会第77回年次大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 長嶋 剣, 村田憲一郎, 佐崎 元
2. 発表標題 塩化水素ガスにより氷表面に生じる塩酸液滴とバンチングステップ
3. 学会等名 第50回結晶成長国内会議
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 宮本元樹, 村田憲一郎, 長嶋 剣, 香内 晃, 佐崎 元
2. 発表標題 氷結晶プリズム面の単位ステップの成長カイネティクス
3. 学会等名 第50回結晶成長国内会議
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 G. Sazaki, J. Chen, K. Murata, K. Nagashima
2. 発表標題 Surface melting of polycrystalline ice revealed by advanced optical microscopy
3. 学会等名 The 8th Crystal Growth and Crystal Technology (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 長嶋 剣, 村田憲一郎, 佐崎 元
2. 発表標題 酸性ガスが氷の気相成長へ与える不純物効果
3. 学会等名 日本物理学会第76回年次大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Jialu Chen, Ken Nagashima, Ken-ichiro Murata, Gen Sazaki
2. 発表標題 Surface melting of polycrystalline ice thin films just below the melting point
3. 学会等名 日本物理学会2020年秋季大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 村田憲一郎, 長嶋 剣, 佐崎 元
2. 発表標題 反射位相差顕微鏡による氷結晶表面の定量位相イメージング
3. 学会等名 日本物理学会2020年秋季大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 佐崎 元, 村田憲一郎, 長嶋 剣, 古川義純, 麻川明俊
2. 発表標題 高分解光学顕微鏡で見る氷結晶の表面融解
3. 学会等名 化学工学会第51回秋季大会(招待講演)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 村田憲一郎, 長嶋 剣, 佐崎 元
2. 発表標題 反射位相差顕微鏡による氷結晶表面のその場観察と定量位相イメージング
3. 学会等名 第49回結晶成長国内会議
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 佐崎 元, 麻川明俊, 村田憲一郎, 長嶋 剣, 中坪俊一, 古川義純
2. 発表標題 高分解光学顕微鏡で見る氷の表面融解: 2種類の擬似液体層とその生成機構
3. 学会等名 日本ゴム協会第117回トライボロジー研究分科会(招待講演)
4. 発表年 2019年

1 . 発表者名 K. Nagashima, G. Sazaki, T. Hama, K. murata, Y. Furukawa
2 . 発表標題 Effects of acidic gasses on ice surfaces grown from water vapor
3 . 学会等名 The 19th International Conference on Crystal Growth and Epitaxy (国際学会)
4 . 発表年 2019年

1 . 発表者名 K. Murata, G. Sazaki
2 . 発表標題 In-situ observations of step dynamics on growing interfaces between ice and supercooled water
3 . 学会等名 The 19th International Conference on Crystal Growth and Epitaxy (招待講演) (国際学会)
4 . 発表年 2019年

1 . 発表者名 J. Chen, K. Nagashima, K. Murata, G. Sazaki
2 . 発表標題 Quasi-liquid layers can exist on polycrystalline ice thin films at a temperature significantly lower than on ice single crystals
3 . 学会等名 The 19th International Conference on Crystal Growth and Epitaxy (国際学会)
4 . 発表年 2019年

1 . 発表者名 G. Sazaki, M. Inomata, K. Murata, K. Nagashima, J. Chen, Y. Furukawa
2 . 発表標題 In-situ optical microscopic observation of ice crystal surfaces
3 . 学会等名 The 19th International Conference on Crystal Growth and Epitaxy (招待講演) (国際学会)
4 . 発表年 2019年

1. 発表者名 佐崎 元, 村田憲一郎, 長嶋 剣, 古川義純
2. 発表標題 ゼロ°C以下の温度でも融けている氷表面の不思議
3. 学会等名 第80回記念シンポジウム「北緯43°からの独創研究発信」, 2019年第80回応用物理学会秋季学術講演会(招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 G. Sazaki, K. Murata, K. Nagashima, Y. Furukawa
2. 発表標題 Surface melting of ice crystals visualized by advanced optical microscopy
3. 学会等名 The 18th Asian Pacific Confederation of Chemical Engineering Congress (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 村田憲一郎, 佐崎 元
2. 発表標題 氷-水成長界面におけるステップダイナミクスのその場観察
3. 学会等名 第48回結晶成長国内会議
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Jialu Chen, Ken-ichiro Murata, Ken Nagashima, Gen Sazaki
2. 発表標題 Behavior of QLLs on grain boundaries of polycrystalline ice thin films
3. 学会等名 第48回結晶成長国内会議
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 長嶋 剣, 佐崎 元, 羽馬哲也, 村田憲一郎, 古川義純
2. 発表標題 酸性溶液として氷に蓄えられる酸性ガス
3. 学会等名 第48回結晶成長国内会議
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Jialu Chen, Ken-ichiro Murata, Ken Nagashima, Gen Sazaki
2. 発表標題 Surface melting on grain boundaries of polycrystalline ice thin films
3. 学会等名 日本物理学会第75回年次大会（コロナウイルスのため現地開催中止．ただし，学会発表は成立）
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計2件

1. 著者名 佐崎 元, 小松 啓, (編)日本表面真空学会	4. 発行年 2021年
2. 出版社 朝倉書店	5. 総ページ数 4
3. 書名 微分干渉顕微鏡・位相差顕微鏡 in 図説 表面分析ハンドブック	

1. 著者名 佐崎 元, 古川義純, (編)日本化学会	4. 発行年 2020年
2. 出版社 化学同人	5. 総ページ数 8
3. 書名 氷結晶の相転移ダイナミクスを見る in 有機・無機材料の相転移ダイナミクス	

〔産業財産権〕

〔その他〕

相転移ダイナミクス分野
<http://www.lowtem.hokudai.ac.jp/ptdice/>
 Phase Transition Dynamics of Ice Group
http://www.lowtem.hokudai.ac.jp/ptdice/index_e.html

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	長嶋 剣 (Nagashima Ken) (60436079)	北海道大学・低温科学研究所・助教 (10101)	
研究分担者	村田 憲一郎 (Murata Kenichiro) (60646272)	北海道大学・低温科学研究所・助教 (10101)	

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究協力者	チェン ジアルー (Chen Jialu)	北海道大学・理学院宇宙理学専攻・後期博士課程学生 (10101)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関		
カナダ	Universite de Sherbrooke		