

云内高浓度冰晶之谜*

王明康

(南京大学气象系)

1. 前言

自从 Bergeron 确立冰晶效应的降水理论以来,在云物理学中,对云内冰相发展过程的研究摆在重要位置上。在很长时间内,人们认为冰晶核与云内的冰晶大致上一一对应,二者的浓度十分接近。因而,根据冰晶核观测值可以估计云内的冰晶浓度。但是,随着冰晶观测技术的不断发展,越来越多的观测事实表明:云内冰晶浓度常常超过同一温度下冰晶核测定值,甚至可相差 3—4 个量级(例如:Koenig^[1], Braham^[2], Hobbs^[3], Mossop 等^[4,5,6], Ono^[7], Cooper 和 Vali^[8], Hallett 等^[9])。

这一高浓度冰晶的观测事实又一次说明自然降水现象的复杂性。看来,人们对云内冰相发展过程的了解还很肤浅。另一方面,这一观测事实势必对经典的人工降水方法提出重大的疑问。十多年来,在云物理学中,这是一项重要的研究课题。已经提出很多解释。其中最重要的一种解释是:云内存在某种产生次级冰晶的过程。对这种过程又提出不同假说。有的假说已得到一些实验和观测支持。另一些假说则遇到很多矛盾和困难。到目前为止,云内高浓度冰晶现象仍然可以说是一个谜。

本文限于讨论三种提供云内次级冰晶的主要过程:凝结时云滴的冻结破碎,单个水滴冻结时的破碎以及由于碰撞等作用导致冰晶的破碎。

2. 凝结破碎

根据 Mossop 等^[4,5,6]的系统观测,澳大利亚海洋积云中的冰晶浓度高于冰晶核 3—4 个量级,其微物理特征是:除了直径 250 微米的大水滴之外,还存在霰粒。此外,在层云中未观测到高浓度冰晶,也未出现霰粒。这一类观测结果给人们一个重要的启示是:高浓度冰晶这一现象与凝结过程有关。当过冷云滴与霰粒碰撞、在其表面上冻结时,很可能碎裂。这些碎片在云内继续增长,当它们达到霰粒大小时,因破碎作用又提供更多的碎片。这种连锁反应的凝结破碎过程既可以解释海洋积云中高浓度冰晶现象,又可以说明层云中何以不出现这一现象。

但这种解释曾经遇到困难。一是实验研究似乎并不支持凝结破碎过程,例如 Aufdermaur 和 Johnson^[10], Mossop 等^[11]。二是 Gagin^[12]在以色列对大陆性积云进行冰晶观

* 本文于 1982 年 6 月 3 日收到,1982 年 10 月 18 日收到修改稿。

测的结果表明:尽管云内同样存在霰粒和大云滴,但并不出现高浓度冰晶,冰晶和冰晶核二者的浓度充其量仅仅相差几倍而已。

Hallett 和 Mossop^[13]的实验有助于解决以上的矛盾。他们的实验旨在说明温度对凝结破碎过程具有决定性作用。云内温度必须在 -3° 与 -8°C 之间的有限范围内才有可能出现破碎作用。在 -5°C 时,每毫克的凝结(相等于一个密度为 0.24克厘米^{-3} 、直径为2毫米的球状霰粒)提供350个次级冰晶。在此温度范围以外,次级冰晶数很快下降到零。以Hallett 和 Mossop 的实验结果为依据,不难设想:有一些实验研究之所以未能观测到凝结破碎,无非是实验中选择的温度范围不能满足以上的要求。至于以色列的观测结果也可以由这一实验结果加以解释。原来,以色列的冬季积云可以发展到很高的高度,霰粒往往在云体的上部形成并迅速增长。一边增长,一边很快下降。在 -5°C 高度,霰粒已是如此之大,在此高度的停留时间十分短促,难以充分发挥凝结破碎作用。一旦离开这一温度区,此种作用完全丧失。

实际上,除了温度以外,凝结破碎作用还决定于云内的滴谱。Mossop^[14]指出:凝结破碎的另一个前提是:云内必须存在直径大于24微米的大云滴。在 -5°C 时,当这种大小的大云滴约250个碰撞在一个霰粒表面上时,大致可以产生一个冰的碎片。

由于海洋性和大陆性积云云滴谱特征的差异十分显著,根据 Mossop^[14]的实验结果不难理解,两种积云内冰晶浓度也截然不同。

Mossop^[15]进一步又指出:凝结破碎作用所提供的次级冰晶数还决定于直径小于13微米的云滴浓度。

Hallett 和 Mossop^[13]以及 Mossop^[14,15]的实验结果分别可以写成三个云内冰晶产生率公式,把相应的云内微结构观测值代入公式即可求得冰晶产生率的预计值。另一方面,由冰晶浓度的观测值和冰晶增长公式可推算云内实际存在的冰晶产生率。对这两种产生率进行比较即可以检验凝结破碎假说。Gordon 和 Marwitz^[16]以及 Hobbs 和 Cooper^[17]根据美国穿云观测资料按以上方法进行分析后认为此种假说基本上得到观测的支持。此外,支持这一假说的穿云个例分析也不乏其例,例如 Vardiman 和 Humphries^[18]。

以上的讨论限于阐明凝结破碎的条件,进一步就应该研究凝结破碎的机制问题。

实际上,在 Mossop^[15]之前,Goldsmith 等^[19]已指出:不但大云滴,而且小云滴对凝结破碎也是十分重要。大云滴在霰粒上碰撞后破碎的可能性决定于霰粒的结构。小云滴虽不能因碰撞而破碎,但它可以影响霰粒的结构,从而决定凝结破碎效率。相对同一个大云滴来说,若碰撞的小云滴越多,则霰粒的结构越脆弱,产生的碎片数越多。Goldsmith 这一看法有助于全面了解凝结破碎过程,但他不能提供小云滴影响霰粒结构的明确的物理图象。

Choulaton 等^[20]立足在 Johnson 和 Hallett^[21]的实验基础上解释凝结破碎机制。

Johnson 和 Hallett 曾经指出单个水滴冻结时破碎的原因。在冻结水滴对称地释放冻结潜热的前提下,在其表面形成一层闭合的冰壳。在冰壳之内,水的冻结使其膨胀,压力上升,一旦超过冰壳的强度,冻结中的水滴在破碎后提供很多冰的碎片。现在的问题可以归结为:在凝结场合,碰撞在霰粒表面上的水滴在冻结时是否也能形成闭合的冰壳,也就是说,是否也能对称地释放冻结潜热。

在扫描电子显微镜下, Choullarton 等^[20]观测到直径约 15 微米的冻结水滴上出现长约 3 微米的钉状结构。这种结构意味着在闭合冰壳的某个薄弱部位上出现裂痕。它的重要性在于: 提供云滴在霰粒上冻结时对称地放热并形成闭合冰壳的信息。在解释观测结果时, Choullarton 等又成功地引用 Goldsmith 等提出的冻结破碎决定于小云滴的观点。他们认为: 小云滴在霰粒表面上的碰撞, 实际上, 创造一种有利条件, 使大云滴与霰粒的接触面积大大减少, 因而, 冻结潜热的释放主要是沿着云滴四周的空气, 相反, 沿着霰粒表面传导的热量十分有限。这种冻结方式可以保证放热十分对称, 从而形成相当坚实而闭合的冰壳。Choullarton 等提出的冻结破碎机制的确是前进一步, 但这种机制还必须解释次级冰晶对温度的依赖关系。

Choullarton 等^[22]进一步的实验结果表明: 钉状结构只限于在一定温度范围内出现。有趣的是: 这一温度范围与 Hallett 和 Mossop^[13]得到的次级冰晶产生率的温度范围恰好一致。在 -5°C 时, 对于直径在 20 微米以上的云滴来说, 出现钉状结构的可能性最大, 约占云滴总数 5%。Choullarton 等认为此种结构很容易破碎, 可提供 10 个碎片。设想 120 个钉状结构中有一个破碎, 在 -5°C , 约 250 个水滴可产生一个碎片, 此结果与 Mossop^[14]的实验一致。

Mossop^[23]在水滴中加入少量 NH_4OH 或 HCl , 或在云室中引进少量 NH_3 气体用以减弱冰壳的强度。实验表明: (1) 出现钉状结构的可能性下降, (2) 云室中次级冰晶产生率减少到 9%。由此可见, 钉状结构的破碎应以冰壳的形成作为前提。Mossop 进一步又指出: 次级冰晶的主要来源与其说是钉状结构的破碎, 不如说是冰壳的破碎。

基于两个大小不同的液态水滴碰撞后可能出现三种情况: 合并, 部分合并和反跳 (参阅 Whelpdale 和 List^[24]以及 Levin 和 Machnes^[25]) Aufdermaur 和 Larsen^[26] 试图了解在云滴和冰粒碰撞的场合反跳或部分合并是否可能成为冻结破碎的一种机制。当云滴和霰粒接触时, 在其表面上, 沿着云滴的方向生长一个枝状冰晶, 在部分合并或反跳场合, 当云滴离开霰粒时, 此种冰晶断裂, 并随着云滴一起离开, 云滴则冻结。Aufdermaur 和 Larsen 的实验表明: 设冰粒直径约为 1 毫米, 当温度从 -5°C 下降到 -12.5°C , 部分合并或反跳的水滴中冻结的百分数从 7% 增加到 32%。但进一步的计算表明: 此种次级冰粒远大于 Hallett 和 Mossop 机制提供的碎片, 约在 10 倍以上, 但产生率至少小 10 倍。因而, 这种部分合并或反跳作用不能看成是冻结破碎的机制。

Mossop 和 Wishart^[27]的实验也否定这种机制。实际上, 直径约 24 微米的水滴以 2米秒^{-1} 速度碰撞在冰面上, 其接触时间仅 0.2 微秒。根据 Hallett^[28]在 -5°C 时平行于基面的冰的增长率为 1.7厘米秒^{-1} 。在此时间内形成的枝状冰晶仅 0.2 微米, 此种大小的冰晶未必能折断并随着水滴而离开。

3. 冻结破碎

很多观测指出: 当积云中出現高浓度冰晶时, 常常存在大云滴。人们指望着单个大水滴冻结时的破碎作用可说明高浓度的冰晶现象。

早期, Mason 和 Maybank^[29]指出: 悬于热电偶上半径约 1 毫米的水滴在 -10°C 冻结时每个水滴平均可产生 54 个碎片。Kachurin 和 Bekryayev^[30]的实验也支持冻结破碎

假说。但 Dye 和 Hobbs^[31]指出: 以上的实验中引入浓度很高的二氧化碳, 水滴在冻结之前又未能和周围环境达到热力平衡, 因而以上的结论不可信。若在实验中排除这两种因素, 10 个大水滴中仅有一个在冻结时产生一个碎片, 不足以说明冻结破碎是有效的次级冰晶机制。

Bader 等^[32]唯恐冻结时产生的碎片太小, 在微米以下, 小于检测能力, 从而低估次级冰粒的浓度, 为此他们特地设计一种扩散云室用以测量 0.15—0.30 微米以上的碎片。但实验结果不足以说明高浓度冰晶现象。

前一节已指出, 按照 Johnson 和 Hallett^[21]的实验, 对称冻结是冻结破碎的前提。为了满足这一要求, 在实验中水滴应不停地转动。因而, 人们进而对转动这一因素一度曾寄以希望。Pruppacher 和 Schlamp^[33] 以及 Murray 和 List^[34] 在垂直风洞中悬浮水滴, Kolomeychuk 等^[35]在锥形管中用氮气支托水滴, Takahasi 和 Yamashita^[36] 让水滴自由地下降, 都分别考虑转动的因素。实验方法的细节不尽相同, 具体的结果也不一致, 但没有一种足以说明高浓度冰晶的可能性。按水滴大小为序, 部分水滴冻结实验结果列于表内 (参阅[33], [35], [37—41])。

表 水滴的冻结破碎

参考文献	水滴直径 (微米)	实验条件和结果
[37]	20—50	不破碎
[38]	20—60	在 -15° 与 -20°C 之间, 约 20% 破碎, 每滴产生 2—3 个碎片。
[39]	50—120	10% 破碎, 此百分数随水滴增大而增大。每滴产生 2 个以下的碎片。
[39]	60—120	在 -8° 与 -12°C 之间仅 2—3 个水滴破碎, 产生约 100 个碎片。
[37]	50—150	在 -20° 与 -32° 之间观测到破碎, 破碎频率与温度无关
[40]	75—175	破碎频率与核化温度有关。在 -16°C 为极大, 约 37%, 在 -6°C 约 17%。
[40]	220—350	破碎频率与核化温度有关, 在 -15°C 和干燥环境中为极大, 约 23%, 在过冷云中 30—40%。
[33]	400	42% 水滴冻结后产生 1 个碎片, 8.5% 产生 2—3 个, 6.3% 产生 3 个以上。
[41]	400—700	不破碎, 出现钉状结构、大部分断裂。
[36]	100—800	在 300 与 800 微米之间约 2.4—11.6% 破碎, 出现裂痕的频率随水滴增大而增大。对于 100 微米此种频率为 4%, 对于 700 微米则为 67%。
[35]	1200	56% 水滴破碎, 23% 水滴出现裂痕。
[35]	1400—1900	73% 水滴破碎, 17% 水滴出现裂痕, 与温度无关。
[35]	~1600	35% 水滴破碎, 22% 水滴出现裂痕, 每滴产生 16 个碎片。

Knight 和 Knight^[42]在雹胚的研究中注意到: 452 个冻结水滴(即雹胚)中 13% 已破碎, 其余水滴中半数以上其裂痕清晰可辨。他们认为: 从目前来看, 与其说是冻结破碎作用不重要, 倒不如说是实验方法不完善, 对云中水滴冻结现象不能充分模拟。例如: (1) 水滴在云中不但定向转动, 还可以出现翻滚, (2) 水滴在冻结的同时还在继续进行碰撞, (3) 水滴可以包含某些气体, 而压缩气体的膨胀能量可远大于压缩液体。这些因素在实验中都未能很好模拟。当然, 在充分考虑这些因素之后能否一定说明高浓度冰晶, 目前还不能预料。其次, 根据雹胚资料推测水滴冻结的特征总是有一定的局限性, 它只能代表强烈上升气流中产生的水滴。但是这种方法也不是没有可取之处, 它毕竟来源于实实在在的云体。

以上的讨论仅仅定性地指出冰壳内的压力可足以使其破碎,但压力的具体数值以及它的变化规律还必须通过直接测量才能得到。

Visagie^[43]用一种布尔登(Bourdon)管插在冻结的水滴中测量它的破碎压力。这种布尔登管的主体是一根呈倒“J”形的毛细管,其体积约30毫米³。当压力上升时,在显微镜下可以观测到毛细管稍稍偏移。每一巴压力约偏离2微米,由此可测定冰壳内的压力。测量结果表明:(1)破碎压力约为几十个大气压,最大值为76个大气压;(2)冰壳越厚,冻结越快,则破碎压力越大;(3)在水滴冻结过程中,冰壳内压力的上升和下降交替出现,可达到20次以上。当压力上升时,冰壳上出现裂痕,过冷水从裂痕中挤出,在冰壳表面上铺开并冻结,其结果是:裂痕得以闭合,与此同时,冰壳内压力又上升。

Visagie测量方法的缺点是:(1)毛细管必须插入冻结水滴之中,使压力的测量结果小于实际值;(2)插入水滴的位置未必恰好在水滴中心,不能代表最大压力;(3)只限于很大的水滴,直径约7—10毫米。

King和Fletcher^[44]把冻结中水滴的表面冰壳看成是一种粘滞弹性体,推导它的应力和应变方程组。由于冰壳变形时冰和水的体积都相应地发生变化,使方程显得十分复杂。Zhekamukhov^[45]认为,相对于冻结所引起的冰的膨胀来说,冰壳变形时出现的冰和水的压缩性可不考虑。他把计算得到的压力值与Visagie^[43]的观测结果相比较。在冻结的初期,理论值与实验结果很一致,在中、后期,理论值大于实验值。分析其原因,一是在计算中引入一些简化条件,例如,假设冰壳上出现裂痕后立即封闭,与实际不符合;二是毛细管插入水滴之中,测量值偏低。

4. 冰 晶 破 碎

当飞机穿云时,若以碰撞法收集云内冰晶,必须采用减速器才能使收集的冰晶在碰撞时不致于破碎。但是观测表明:减速后收集的冰晶中,星状、扇状和立体枝状常常不完整,失去其中一部分,而针状冰晶常常断裂。与此同时,可以观测到很多各种形状冰晶断裂后的碎片。这些碎片不是成堆地聚集在一起,而是孤立地、分离地分布在取样片上;碎片的形状又明显地不对称;更重要的是,即令在高山上收集冰晶,也观测到不少碎片。看来,破碎作用并不是由于在取样器进口处、在减速器以及在取样片上的碰撞而引起,却是由于(1)冰晶与冰晶,或冰晶与云滴之间的碰撞的力学作用,(2)冰晶与云滴之间碰撞的热力作用而引起。

以取样片上冰晶破碎资料为依据,Hobbs和Farber^[46]推测冰晶相互之间在云内碰撞后破碎的条件。若以碰撞速度最大值表示这一条件,则不同形状的冰晶要求不同的数值。例如,星状冰晶所要求的碰撞速度最大值约为空心柱状冰晶的1/3,约为实心柱状的1/2。因而,星状冰晶碰撞后产生次级冰粒的可能性大于柱状冰晶。但是,冰晶在取样片(涂料层厚度约为150微米)上的碰撞破碎毕竟不同于两个冰晶之间,以上数据只能作为参考。

Vardiman^[47]着重研究冰晶的凝结程度在碰撞破碎中的重要性。高速照相资料表明:在平面枝晶场合,对于相同的碰撞前后的动量变化来说,随着凝结程度从无到有,从小到大,破碎后的冰粒数依此增加。至于轻度凝结的立体枝晶,就其凝结的程度来看,无疑

小于霰粒,但实验表明,其破碎后产生的碎片数却大于霰粒。看来,在霰粒形成之前,凇结作用使其强度减弱,在霰粒形成后,由于碰撞的过冷水滴似乎起一种粘连作用,凇结过程可增加其强度。

以上系着眼于一次碰撞中产生的碎片数,就次级冰粒产生率来说,还应该考虑另一个因素:碰撞频率。Vardiman 在计算中仿照 Austin 和 Kraus^[48]提出的方法处理碰撞频率。计算结果表明:相对速度和凇结程度是两个最关键的参数。当相对速度增加 10%,则次级冰晶产生率增加 50%。但这两个参数的作用往往是相互制约的。例如,在他的计算中以霰和无凇结的平面枝晶之间的相对速度为最大,但冰晶产生率却不是最大,因为这两种冰晶在一次碰撞中所产生的冰晶数都比较少。实际上,霰和大量凇结的平面枝晶在碰撞后提供最多的次级冰晶。其次是霰和中等凇结的平面枝晶,或霰与轻度凇结的立体枝晶。应该指出:冰晶的碰撞破碎实验还仅仅停留在冰晶相对固定板的模拟实验阶段,又不考虑空气的湍流作用。

Koenig^[49]在高山上收集冰晶,以避免飞机穿云取样引起的碰撞破碎问题。他注意到柱状冰晶的末端呈鞘状、卷状或不规则状。具有这类结构的冰晶在碰撞时其末端很可能断裂,出现碎片。问题是:(1)两个冰晶在垂直方向排成一线的碰撞方式有利于破碎,但 Jayaweera 和 Mason^[50]的资料表明:碰撞时两个冰晶的末端呈直角形;(2)冰并不是特别脆弱的物质,碰撞的动能又很小,并不是说碰撞破碎不可能出现,而是说破碎的机会是否很多;(3)若冰晶的碰撞破碎是产生次级冰晶的主要机制,则云的积冰温度和湿度条件应与脆弱冰晶增长的条件一致。为了在柱状冰晶的末端出现卷状结构,云内过饱和水汽值应和云的旺盛发展阶段相对应,但观测表明:高浓度冰晶现象往往出现在这一阶段之后。

Odenrantz 等^[51]用扫描电子显微镜对冰晶的复制品进行观测后指出:冰晶表面上存在冰须,冰晶之间的碰撞很可能导致冰须的断裂,形成次级冰晶。Smith-Johannsen^[52]则表示异议。他认为这种“冰须”结构系由复制引起,是一种假象。Cross^[53]考虑到复制用的化学物品难免不改变冰晶的表面结构,决定用扫描电子显微镜直接观测冰晶的本身,而不是观测其复制品。但是在这种显微镜中样品周围必须保持高度真空,为了满足这一条件,Cross 限于观察蒸发中的冰晶。在多晶体的冰晶表面上,他找到厚度小于半微米、长度约几个微米的冰须。但这一实验结果还不足以使人们信服地承认自然冰晶表面上存在冰须。至于云内是否存在蒸发的条件,Ruskin^[54]指出:并非不可能。

Dye 和 Hobbs^[55]指出:当直径 1 毫米的过冷水滴与冰晶轻轻地接触时,后者常常破碎成 5—10 个碎片。Hobbs 和 Farber^[46]认为:水滴冻结时释放的潜热使冰晶膨胀,而膨胀的不均匀性导致冰晶的破碎。这种形式的冰晶破碎系来源于热力作用。

从冰的热膨胀系数和弹性模数来看,它比较脆弱。冰的热扩散系数小,相当大的温度梯度可持续一定时间。水的冻结潜热又很大。这些因素都有利于冰晶的热力破碎。问题是:过冷水滴在冰晶表面上碰撞前后的温度变化充其量不超过 40°C,从热力作用来看,释放的冻结潜热还十分有限。

King 和 Fletcher^[56]对准静态、各向同性的宏观热力弹性微分方程求解,并与实验结果比较。对于圆柱形(片状)的冰晶来说,其破碎的概率决定于加热面积和冰晶二者半径之比。在自然云内,此种比值一般在 0.2 以下,热力破碎作用要求云滴在冰晶表面上碰撞

后温度变化应达到 35°C 。若温度变化只能保持 10°C ，设片状冰晶的直径为 400 微米，则对水滴直径的要求相应地提高到 200 微米，才能由热力作用引起破碎。显然，在云内，这种冰晶和云滴的碰撞概率可略而不计。因而，King 和 Fletcher 并不支持热力作用引起的冰晶破碎可足以说明自然云内的高浓度冰晶。

Schaefer 和 Cheng^[57] 从模拟霰粒的表面结构出发提出另一种次级冰晶机制。在冰相发展的初期冰粒不多，增长条件有利，很快增长成霰粒，并下降到云内温度较高的部位。此时在其表面上出现脆弱的枝状冰晶构成的霜层。在霜层内冰晶的底部结合在一起，此种结合部分常常小于直径 5 微米。在过饱和环境中，霜层无疑处在增长阶段。但从局部来看，曲率很大的结合部分要求更高的过饱和条件才能保证其增长。若湿度条件不能满足，即因蒸发作用而断裂，产生次级冰晶。显然，霰粒的表面结构是一个关键因素。但以上模拟的霰粒的表面结构能否代表云内实际情况，值得进一步研究。

总之，十多年来，高浓度冰晶之谜虽未揭开，但应该看到已取得不少进展。从研究成果来看，以凝结破碎假说较为突出。从研究方法来看，除实验和观测之外，还进行理论计算。但大量的问题有待逐一去解决。若三种研究手段能密切结合，则揭秘的日子早来到。

参 考 文 献

- [1] Koenig, L. R., The glaciating behavior of small cumulonimbus clouds, *J. Atmos. Sci.*, **20**, 24—47, 1963.
- [2] Braham, R. R., What is the role of ice in summer rain shower? *J. Atmos. Sci.*, **21**, 640—645, 1964.
- [3] Hobbs, P. V., Ice multiplication in clouds, *J. Atmos. Sci.*, **26**, 315—318, 1969.
- [4] Messop, S. C., R. E. Ruskin and K. J. Hefferman, Glaciation of a cumulus cloud at approximately -4°C , *J. Atmos. Sci.*, **25**, 889—899, 1968.
- [5] Mossop, S. C., A. Ono and F. R. Wishart, Ice particles in maritime clouds near Tasmania, *Quart. J. R. Met. Soc.*, **96**, 487—508, 1970.
- [6] Mossop, S. C., R. E. Cottis and B. M. Bartlett, Ice crystal concentrations in cumulus and stratocumulus clouds, *Quart. J. R. Met. Soc.*, **98**, 105—123, 1972.
- [7] Ono, A., Evidence on the nature of ice crystal multiplication processes in natural clouds, *J. Rech. Atmos.*, **6**, 399—408, 1972.
- [8] Cooper, W. A. and G. Vali, Ice crystal concentrations in wintertime clouds, *Intern. Conf. Cloud Physics*, 91—96, 1976.
- [9] Hallett, J., R. I. Sax, D. Lamb and A. S. R. Murty, Aircraft measurements of ice in Florida cumuli, *Quart. J. R. Met. Soc.*, **104**, 631—651, 1978.
- [10] Aufdermaur, A. N. and D. A. Johnson, Charge separation due to riming in an electric field, *Quart. J. R. Met. Soc.*, **98**, 369—382, 1972.
- [11] Mossop, S. C., J. L. Brownscombe and G. J. Collins, The production of secondary ice particles during riming, *Quart. J. R. Met. Soc.*, **100**, 427—436, 1974.
- [12] Gagin, A., Studies of the factors governing the colloidal stability of continental cumulus clouds, *Proc. Intern. Conf. Weather Modification*, 5—10, 1971.
- [13] Hallett, J. and S. C. Mossop, Production of secondary ice particles during the riming process, *Nature*, **249**, 26—28, 1974.
- [14] Mossop, S. C., Production of secondary ice particles during the growth of graupel by riming, *Quart. J. R. Met. Soc.*, **102**, 45—57, 1976.
- [15] Mossop, S. C., The influence of drop distribution on the production of secondary ice particles during graupel growth, *Quart. J. R. Met. Soc.*, **104**, 323—330, 1978.
- [16] Gordon, C. L. and J. D. Marwitz, Secondary ice crystal production in stable orographic clouds over the Sierra Nevada. 8th Conf. Inadvertent and Planned Weather Modification, 62—63,

- 1981.
- [17] Hobbs, R. L. and W. A. Cooper, Field evidence supporting the operation of the Hallett-Mossop mechanism of secondary ice crystal production, 8th Conf. Inadvertent and planned weather Modification, 106—107, 1981.
- [18] Vardiman, L. and J. H. Humphries, A case study of the Hallett-Mossop ice multiplication process in the Sierra Nevada. 7th Conf. Inadvertent and Planned Weather Modification, 98—99, 1979.
- [19] Goldsmith, P., The ice phase of clouds, Intern. Conf. Cloud Physics, 163—167, 1976.
- [20] Choullarton, T. W., J. Latham and B. J. Mason, A possible mechanism of ice splinter production during riming, *Nature*, 274, 791—792, 1978.
- [21] Johnson, D. A. and J. Hallett, Freezing and shattering of supercooled water drops, *Quart. J. R. Met. Soc.*, 94, 468—492, 1968.
- [22] Choullarton, T. W., D. J. Griggs, B. Y. Humood and J. Latham, Laboratory studies of riming and its relation to ice splinter production, *Quart. J. R. Met. Soc.*, 106, 367—374, 1980.
- [23] Mossop, S. C., The mechanism of ice splinter production during riming, *Geophys. Res. Letters*, 7, 167—169, 1980.
- [24] Whelpdale, D. M. and R. List, The coalescence process in raindrop growth, *J. Geophys. Res.*, 76, 2836—2854, 1971.
- [25] Levin, Z. and B. Machnes, Experimental evaluation of the coalescence efficiencies of colliding water drops, *Pure and Appl. Geophys.*, 115, 845—867, 1977.
- [26] Aufdermaur, A. N. and H. R. Larsen, Ice multiplication through grazing collisions, Intern. Conf. Cloud Physics, 152—156, 1976.
- [27] Mossop, S. C. and E. R. Wishart, Recent experiments on “splinter” production during riming, Intern. Conf. Cloud Physics, 148—151, 1976.
- [28] Hallett, J., Experimental studies of the crystallization of supercooled water, *J. Atmos. Sci.*, 21, 671—682, 1964.
- [29] Mason, B. J. and J. May bank, The fragmentation and electrification of freezing water drops, *Quart. J. R. Met. Soc.*, 86, 176—185, 1960.
- [30] Kachurin, L. G. and V. I. Bekryayev, A study of the electrification of crystallizing water, *Dokl. AN USSR*, 130, No. 1, 1960.
- [31] Dye, J. E. and P. V. Hobbs, Effect of carbon dioxide on the shattering of freezing water drops, *Nature*, 209, 464—466, 1966.
- [32] Bader, M., J. Gloster, J. L. Brownscombe and P. Goldsmith, The production of sub-micron ice fragments by water droplets freezing in free fall or on accretion upon an ice surface, *Quart. J. R. Met. Soc.*, 100, 420—426, 1974.
- [33] Pruppacher, H. R. and R. J. Schlamp, A wind tunnel investigation on ice multiplication by freezing of water drops falling at terminal velocity in air, *J. Geophys. Res.*, 80, 380—386, 1975.
- [34] Murray, W. A. and R. List, Freezing of water drops, *J. Glaciology*, 11, 415—429, 1972.
- [35] Kolomeychuk, R. J., D. C. McKay and J. V. Iribarne, The fragmentation and electrification of freezing drops, *J. Atmos. Sci.*, 32, 974—979, 1975.
- [36] Takahashi, T. and A. Yamashita, Deformation and fragmentation of freezing water drops in free fall, *Coll. Met. Pap., Div. Met. Geophys. Inst., Tokyo University*, 17, 431—435, 1969.
- [37] Hobbs, P. V. and A. J. Alkezweeny, The fragmentation of freezing water drops in free fall, *J. Atmos. Sci.*, 25, 881—888, 1969.
- [38] Brownscombe, J. L. and N. S. C. Thorndike, The freezing of water droplet in free fall, *Proc. Intern. Conf. Cloud Physics*, 280—284, 1968.
- [39] Brownscombe, J. L. and N. S. C. Thorndike, Freezing and shattering of water droplets in free fall, *Nature*, 220, 687—689, 1968.
- [40] Takahashi, C. and A. Yamashita, Shattering of frozen water drops in a supercooled cloud, *J. Met. Soc. Jap.*, 48, 373—376, 1970.
- [41] Pitter, R. L. and H. R. Pruppacher, A wind tunnel investigation of freezing of small water drops falling at terminal velocity in air, *Quart. J. R. Met. Soc.*, 99, 540—550, 1973.
- [42] Knight, C. A. and N. C. Knight, Drop freezing in clouds, *J. Atmos. Sci.*, 31, 1174—1176, 1974.
- [43] Visagie, P. J., Pressures inside freezing water drops, *J. Glaciology*, 8, 301—309, 1969.
- [44] King, W. D. and N. H. Fletcher, Pressure stresses in freezing water drops, *J. Phys. D., Appl. Phys.*, 6, 2157—2173, 1973.
- [45] Zhekamukhov, M. K., Fragmentation of crystallizing water drops, *Izvestiya, atmos. and ocean.*

- phys., 12, 798—802, 1977.
- [46] Hobbs, P. V. and R. J. Farber, Fragmentation of ice particles in clouds, *J. Rech. Atmos.*, 6, 245—259, 1972.
- [47] Vardiman, L., Ice crystal multiplication by crystal fracture, Intern. Conf. Cloud Physics, 168—171, 1976.
- [48] Austin, P. M. and M. J. Kraus, Snowflake aggregation—A numerical model, Proc. Intern. Conf. Cloud Physics, 300—303, 1968.
- [49] Koenig, L. R., Some observations suggesting ice multiplication in the atmosphere, *J. Atmos. Sci.*, 23, 460—463, 1968.
- [50] Jayaweera, K. O. L. F. and B. J. Mason, The behavior of freely falling cylinders and cones in a viscous fluid, *J. Fluid Mech.*, 22, 709—720, 1965.
- [51] Odencrantz, F. K., W. S. McEwan, P. St. Amand and W. G. Finnegan, Mechanism for multiplication of atmospheric ice crystals: apparent charge distribution on laboratory crystals, *Science*, 160, 1345, 1968.
- [52] Smith-Johannsen, R. I., Ice crystals, *Science*, 163, 174—175, 1969.
- [53] Cross, J. D., Scanning electron microscopy of evaporating ice, *Science*, 164, 174—175, 1969.
- [54] Ruskin, R. E., Multiplication of ice embryos by ice-whisker shedding, *Science*, 166, 906, 1969.
- [55] Dye, J. E. and P. V. Hobbs, The influence of environmental parameters on the freezing and fragmentation of suspended water drops, *J. Atmos. Sci.*, 25, 82—96, 1968.
- [56] King, W. D. and N. H. Fletcher, Thermal shock as an ice multiplication mechanism, part 1, Theory, Part 2. Experimental, *J. Atmos. Sci.*, 33, 85—96, 97—102, 1976.
- [57] Schaefer, V. J. and R. J. Cheng, The production of ice crystals fragments by sublimation and electrification, *J. Rech. Atmos.* 5, 5—10, 1971.