

DISS. ETH NO. 18456

DYNAMICS OF TEMPERATURE GRADIENT
SNOW METAMORPHISM

MICROSTRUCTURAL EVOLUTION
AND
TRANSPORT PROCESSES

A dissertation submitted to

ETH Zurich

for the degree of
Doctor of Sciences

presented by

Bernd R. Pinzer

Dipl. Phys., Universität Augsburg

05.10.1978

citizen of
Germany

accepted on the recommendation of

Prof. Dr. Dimos Poulidakos
Prof. Dr. Marco F.M. Stampanoni
Dr. Martin Schneebeil

May 2009

Abstract

Differences in curvature or temperature across structural elements in snow lead to concentration gradients of water vapor over adjacent ice surfaces. The resulting local redistribution of mass via sublimation, diffusion and deposition — termed metamorphism — causes considerable changes in microstructure and therefore the physical properties of snow.

The focus of this work is the study of the rate of recrystallization during temperature gradient metamorphism and associated structural changes. The ideal tool to investigate these processes is X-ray computed tomography, since it allows a time-lapse analysis with undisturbed snow samples. In a first step, the applicability of the μ CT method for snow imaging had to be ensured, due to its limited resolution. By comparing ice surface area measured with μ CT to values measured by molecular adsorption, the possibility of undetected surface features on ice could be excluded.

Knowing that I could trust the μ CT method, I extracted the mass flux from time-lapse tomographies of snow subjected to a constant temperature gradient of 50 K m^{-1} . An algorithm, known as *particle image velocimetry* in fluid dynamics, was implemented to construct a displacement vector field for subsequent images. The flux obtained from the apparent movement of the structure was lower than predicted by the commonly accepted concept of diffusion enhancement. In fact, the macroscopic transport could be accurately modeled by a continuum theory with the diffusion constant of water vapor in air. A finite element simulation to solve for the temperature and the vapor concentration field in the microstructure confirmed that the macroscopic mass transport was not enhanced and was also independent of structure. Thus, the notion of diffusion enhancement could be rejected. In addition, I found residence times of the ice voxels on the order of 3-4 days, which means that the entire ice mass changed phase once during this period. The concept of coarsening in the classical sense, i.e. growth of larger particles at the expense of smaller ones, is therefore very misleading in the context of temperature gradient metamorphism.

The unique morphological manifestation of a large temperature gradient ($>20 \text{ K m}^{-1}$) is thought to be the formation of faceted crystals. However, by applying alternating temperature gradients to snow, I could show that a high temperature gradient of 80 K m^{-1} and more does not necessarily lead to facets. A special sample holder was constructed to observe this type of metamorphism directly in a μ CT. The scans revealed a mass transfer rate of up to 60% of the total ice mass in 12 h, while the morphology remained rounded. This contradicts the current classification of snow metamorphism, which connects rounded shapes to (quasi-)isothermal metamorphism. High recrystallization rates are thought to affect the uptake of chemicals in snow and therefore snow photochemistry, although data on nonequilibrium uptake of trace gases in ice is scarce.

To shed light on the interaction of trace gases with snow, a setup to measure the effective diffusivity of NO_x and HONO was developed. The molecules were radioactively marked with ^{13}N ($t_{1/2} \approx 10 \text{ min}$), and the migration velocity of the highly soluble HONO was deduced from

the activity profile. The diffusion of the sparingly soluble NO_x was determined by the downstream concentration profile. The strong interactions of HONO with ice lead to an effective diffusivity that is 100–300 times smaller than for NO_x .

The experimental results on water vapor transfer challenge the current understanding of snow metamorphism. Operational snow pack models have to account for the unusual snow metamorphism in alternating temperature gradients that can be found near the surface. Models for chemical air-snow interactions may have to take the high recrystallization rates into account when temperature gradients are present, but more uptake experiments are needed to determine how.

Zusammenfassung

Aufgrund von Krümmungs- oder Temperaturunterschieden zwischen benachbarten Eisstrukturen im Schnee entsteht ein Wasserdampf-Konzentrationsgefälle im Porenraum, was zu einer ständigen Umlagerung von Eis über Sublimation, Diffusion und anschließender Deposition führt. Dieser Prozess — die sog. Schneemetamorphose — ändert die Mikrostruktur und damit auch die physikalischen Eigenschaften von Schnee beträchtlich.

Der Schwerpunkt der vorliegenden Arbeit liegt auf der Untersuchung der Umkristallisierungsrate die durch einen Temperaturgradienten hervorgerufen wird, und den damit verbundenen Strukturänderungen. Röntgen-Mikrotomographie ist hervorragend für das Studium dieser Prozesse geeignet, da sie Zeitrafferaufnahmen einer ungestörten Schneeprobe ermöglicht. Bevor allerdings Schlüsse aus Tomographieaufnahmen gezogen werden können, muss sichergestellt werden dass die begrenzte Auflösung der Methode keine Artefakte erzeugt. Zum Beispiel würde das Übersehen von Obflächenstrukturen unterhalb der μ CT-Auflösung die gemessene spezifische Oberfläche verfälschen. Durch Vergleich mit Methanadsorption, also mit einer Methode zur Oberflächenbestimmung mit molekularer Auflösung, konnte die Existenz solcher Strukturen allerdings ausgeschlossen werden.

Nachdem die Zuverlässigkeit der μ CT-Daten gezeigt war, konnte ich den Wasserdampf-Massenfluss während der Schneemetamorphose mithilfe von dreidimensionalen Zeitrafferaufnahmen von Schneeproben, die einem Temperaturgradienten von 50 K m^{-1} ausgesetzt waren, berechnen. Dazu wurde ein Algorithmus aus der Fluidynamik (*particle image velocimetry*) implementiert, welcher ein lokales Verschiebungsfeld für zwei aufeinanderfolgende μ CT-Bilder erzeugt. Der Massenfluss aus der scheinbaren Bewegung der Eisstruktur war niedriger als man nach gängiger Auffassung (diffusion enhancement) erwartet hätte. In der Tat konnte ein Kontinuumsmodell mit der Diffusionskonstanten von Wasserdampf in Luft den gemessenen Fluss gut erklären. Zur Bestätigung der Messungen wurde ein Finite-Elemente (FE) Modell zur Berechnung der Temperaturverteilung und des Konzentrations-Feldes in Eis und in der Luft herangezogen. Auch das FE Modell widersprach der Vorstellung eines diffusionsverstärkenden Effektes von Schnee. Das Konzept des “diffusion enhancement” ist somit nicht mehr haltbar. Zudem war die Verweildauer der Eisvoxel von der Grössenordnung 3–4 Tage, was bedeutet dass die komplette Eismasse in dieser Zeit einmal in Wasserdampf umgewandelt worden ist. Die Vorstellung eines “coarsening” im klassischen Sinne, also des Wachsens von größeren Strukturen auf Kosten von Kleineren, ist also bei der Temperaturgradienten-Metamorphose irreführend.

Kantige Formen werden üblicherweise als eindeutiges Kennzeichen für starke Temperaturgradienten ($>20 \text{ K m}^{-1}$) interpretiert. Durch Anlegen eines sinus-förmigen Gradienten konnte ich allerdings zeigen, dass Werte von mehr als 80 K m^{-1} nicht notwendigerweise zu kantigen Formen führen. Die μ CT Aufnahmen zeigten eine Massenumlagerungsrate von bis zu 60 % der gesamten Eismasse während 12 h, während die Kornformen sich kaum veränderten. Dies widerspricht der momentanen Klassifizierung der Schneemetamorphose, die kleinen runden Kornformen den Prozess der abbauenden (oder quasi-isothermen) Metamorphose zuordnet. Hohe Wachstumsraten beeinflussen wahrscheinlich die Aufnahme von chemischen Elementen

im Schnee und damit die gesamte Photochemie. Allerdings gibt es kaum experimentelle Daten zur Spurengasaufnahme auf wachsendem Eis.

Um die Wechselwirkung von Spurengasen mit Schnee besser zu verstehen, wurde ein Aufbau zur Messung der effektiven Diffusionskonstanten von NO_x und HONO entwickelt. Die Moleküle wurden mit ^{13}N radioaktiv markiert ($t_{1/2} \approx 10$ min), was die Berechnung der Transportgeschwindigkeit für das hoch wasserlösliche HONO aus dem Aktivitätsprofil ermöglichte. Die Diffusion des schwerlöslichen NO_x wurde über die Konzentration im Trägergas hinter der Schneeprobe bestimmt. Die unterschiedlichen Wechselwirkungen mit Eis schlugen sich in den Diffusionskonstanten nieder, welche für HONO 100–300 mal niedriger war als für NO_x .

Die experimentellen Resultate zum Wasserdampftransport stellen das momentane Verständnis der Schneemetamorphose auf den Prüfstand. Operative Schneedeckenmodelle müssen die ungewöhnliche Metamorphose unter wechselnden Gradienten — wie sie oft in der Nähe der Schneeoberfläche vorkommen — berücksichtigen. Für die Modellierung der chemischen Wechselwirkungen zwischen Schnee und Atmosphäre könnte die schnelle Umkristallisierung eine wichtige Rolle spielen. Zur Quantifizierung dieser Rolle sind weitere Experimente unumgänglich.