熱線法による、霧粒子の凍結温度および

氷晶数の測定装置の試作

藤 谷 義 保・宇 津 雄 平・佐 野 悞

名古屋大学理学部化学教室

A Hot Wire Type Apparatus for Measuring the Freezing Temperature of Supercooled Fog and the Number of Ice Crystals Thereby Formed

Y. Fujitani, Y. Uzu and I. Sano

*Chemical Institute, Faculty of Science, Nagoya University
(Manuscript received 22 May 1961)*

Abstract

Being based on the following principle, the apparatus was constructed: The ice crystals produced from supercooled fog will, every time they strike against an electrically heated metal (platinum) wire and come to be held thereon, cool the wire half a moment as they each absorb from it the heat of volatilization, leading to the decreases in electrical resistance of wire and, therefore, to the increases in electrical current flowing through it; these are tape-recorded as pulses in voltage, which are transmitted successively to a discriminative system composed of electronic circuit in order to separate themselves from disturbing noises and are, then, detected by means of oscillography and/or the electronic counter method, the freezing temperature being determined as the temperature from which onwards the count of pulses rises sharply. As for the discriminative system described above, two types (A and B) were examined in turn, and the latter was found to be more available.

The apparatus was tested with fogs of aqueous solution of KCl (10^{-5} N) and of K_3PO_4 (10^{-5} N), their average droplet size being both 8μ in diameter. Comparison was made, for the fogs obtained from KCl solutions (10^{-1} — 10^{-6} N), between the Bigg's sugar solution method and those in the present and previous⁽¹⁾ reports, with the finding that there exists a good correspondence.

Further experiments have been done, using the apparatus, with a variety of electrolyte-containing fogs. The results obtained and its discussion will be given in the next communication.

1. 序 言

近時、降水機構の追究や人工降雨の実験などを通じ、大気中の水滴の凍結が気象学的諸問題——特に、降雨、降雪、発雷のごとき——と密接な関係をもつことが明らかにされてきた。しかし、水滴の凍結に関する実験的ならびに理論的研究は

多くの研究者によつて取り扱われているにもかかわらず、なお、成果に乏しい状態にある。この最大の原因は凍結温度および氷晶数の測定法の不備にあると思われる。今日まで多くの研究者により採用されている測定法は (1) 低温槽中に生じた氷晶の肉眼観察法⁽¹⁾, (2) 過冷却砂糖水溶液を使つた、いわゆる Bigg の方法⁽²⁾, (3) 加熱白金線に

よる Vonnegut の方法⁽³⁾などである。筆者らは前報⁽¹⁾で肉眼観察法により水滴の凍結温度および氷晶数の測定を行つたが、この方法は再現性に乏しい上、主観が入り易く、また、眼の疲労が大きい。一方、過冷の砂糖水溶液を用いる Bigg の方法は測定可能な温度範囲が限られている他、再現性も低く、さらに測定操作の上で要注意の点が多い。加熱白金線を使う方法はこれらの欠点が少ないものであり、Vonnegut はこれを比較的大きい氷晶の検出に適用しているが、筆者らはその方法を改良し、小さい氷晶の測定にも役だつような装置を考案したので以下に報告する。

2. 氷晶の発生装置

装置の主要部は Fig. 1 に示すごとく霧滴を発生

させる硬質ガラス製のネビュライザー(N)と霧滴を冷却するコールドチャンバー(C)とである。まず、霧滴を発生させるにはビュレット(B)からネビュライザーに試料液体 0.5 cc を注入した後、グラスウールのろ層管(F₁) (直径 2 cm, 長さ 3 m), 20% の苛性カリ水溶液を入れた洗気びん(W₁, W₂) および綿のろ層管(F₂) (直径 2 cm, 長さ 2 m) を通して塵埃および炭酸ガスを除去した、3 気圧の精製空気をネビュライザーに吹き込み、試料液体を霧に分散させる。このような条件下で発生する霧滴の粒度分布は平均直径 8 μ であり、かなり均一に分散している⁽¹⁾。

次にコールドチャンバーは直径 20cm, 高さ 30 cm の鉄製の円筒で、軽油(K) の中に浸してある。これをギヤポンプで循環させ、ドライアイス

Fig. 1. Arrangement of apparatus for forming ice crystals.

B : Burette	M ₁ , M ₂ : Hg-Manometer
C : Cold Chamber	N : Nebulizer
E : Observation Window	P : Glass Plate
F ₁ , F ₂ : Glass Wool Filter	Q : Quartz Tube
G : Gyre Pump	R : Reservoir
H : Heater	S : Aq. Sugar Soln.
I : Insulation	T ₁ , T ₂ , T ₃ : Thermister Thermometer
K : Kerosene	St : Stirrer
L : Light Source	W ₁ , W ₂ : Washing Bottle

によつて冷却した軽油と入れ替えることによりチャンバーを冷却するようになっていゝ。チャンバー内に3本のサーミスター温度計(誤差 $\pm 0.1^{\circ}\text{C}$, 示度の遅れ2秒)を底より8 cm (T_1), 16 cm (T_2), 24 cm (T_3)の位置に固定し、各場所の温度を測定したところ、すべて同一温度を示したので底より8 cmの温度をもつてチャンバーの温度とみなした。霧滴の凍結温度および氷晶数を測定するにはコールドチャンバーの温度を 1°C ずつ下げて行き、その度毎に、前に述べた方法で発生させた霧

を10秒間チャンバー内に導入した後、氷晶の生成の有無を後に記した電気的方法により判定した。なお、コールドチャンバーの内壁や導入管などに霜の発生するのを防ぐため、内壁にはグリセリンの霧を噴霧器で吹きつけ、導入管はヒーター(H)により加熱した。

3. 凍結温度および氷晶数測定装置と方法

測定装置は Fig. 2 のごとき構成部分より成つてゐる。以下順を追つて各部分を説明する。

Fig. 2. Block diagram of apparatus for counting the ice crystal pulses.

Fig. 3. Pt-wire element for capturing the ice crystals.

3. 1. 白金線

Fig. 3 のごとく内径5 mmの石英管(長さ50 cm)の先に $3 \times 1 \text{ mm}^2$ の長方形の穴を4個互に直角の位置に明け、まわりに直径0.07 mmの白金線を密に巻きつける。白金線は約 600°C に赤熱することができるようになってゐる。この石英管をコールドチャンバーに固定し(Fig. 1, Q), 前述のようにして霧をチャンバー中に10秒間導入, 30秒間放置した後、霧滴が凍結してできた氷晶とかまだ残つてゐる霧滴とかを真空ポンプを働かせ、また、コックをあけることにより吸引びん(R)(容量10 l)を通して90秒間一定の流速(15 cc/s)の下に赤熱白金線の間から吸引する。氷晶や霧滴が赤熱白金線に衝突、付着すれば蒸発熱を吸収し

Fig. 4. Electronic circuit for amplifying the ice crystal pulses.

て白金線の温度を下げ電気抵抗を減少させて電流の変化をもたらす。これを下のごとくにして電圧のパルスに変える。

3. 2. 増巾器

回路図は Fig. 4 で示される。まず、電流変化を図のごとくトランスによつて電圧パルスに変えるが、その際、白金線(インピーダンス、6 オーム)とトランスとの間にインピーダンス・マッチングを起させて出力が最大となるように注意した。さらにこの電圧パルスを高感度のシャープカットオフの真空管(6S J7)で増巾する——ノイズ防止のためヒーター電圧は乾電池を使用。かように増巾したパルスをハイパス・フィルターに通してノイズなどに由来するとみなされる 260 c/s 以下の低周波をすべてカットし、通過してくるパルスのみをテープレコーダーに上記の吸引操作の 90 秒間録電する。なお、この増巾回路は 900~6,000 c/s の範囲にわたつてほぼ一様に増巾できるという周波数特性をもっている。また、B 電源(+250 V)にはノイズ防止のため安定電源を使用した。

元来、氷晶は同じ質量の過冷却の霧滴より 1 g につき約 80 カロリーだけ熱容量が大きいので、氷晶に起因するパルスは過冷却の霧滴のパルスより当然大きくなるものと考えられる。ただし、注意

しなければならない点は、ここで取り扱う霧滴や氷晶の質量がはなはだ小さく、従つて熱容量の差もはなはだ小さいということである。大きい霧滴と小さい氷晶の場合にはパルスの大きさが逆転するようなことも起り得る。かような場合には、当然、その大きさだけからパルスが氷晶あるいは霧滴のいずれに由来するものであるかを判別することは容易でない。しかし筆者らが Bigg の方法——砂糖 120 g と水 100 g の溶液を使用——および肉眼観察の方法——観察窓 (Fig. 1, E) より暗視野照明の下に氷晶の出現を肉眼で観察——を併用した結果によると、氷晶の出現と大きいパルスとが一致し、氷晶に起因するパルスは霧滴のパルスよりはるかに大きいということが確認されたので上にあげたような疑問は一応ないことがわかつた。これは、おそらく、いつたん氷晶ができると水と氷の蒸気圧の差のために氷晶の方は急速に成長し、一方、過冷却の霧滴は蒸発して小さくなるためと考えられる。そこで次にこれらの、氷晶に由来する大きいパルスの数を計数するために以下にのべるごとく二種類のパルス弁別方法 A および B を考案し、それらにより凍結温度を測定した。

3. 3. 弁別方法 A

回路図は Fig. 5 (ただし、スイッチ S_A の場合)

Fig. 5. Electronic circuit for discriminating the ice crystal pulses.

S_A switch system : discriminative method AS_B switch system : discriminative method B

の通りで、テープレコーダーに録電された種々の高さのパルスを真空管 (6J5) と可変グリッドバイアス——0～23 V、回路図は点線の枠内に示してある——あるいはさらに可変抵抗 (R) とにより弁別、増巾し、ついでこれを真空管 (6SN7) で二段増巾した後、オシログラフまたはさらに計数器に入れて計数する。なお、この増巾は負荷を小さくして波形の忠実度を増すように注意した。

下に、この方法を KCl 水溶液 (濃度、 10^{-5} N) を用いた場合について説明する。チャンパー内の温度およびグリッドバイアスをそれぞれ一定として実験し、可変抵抗 (R) とパルスカウント数との関係を求めると Fig. 6 および Fig. 7 に示したとき結果が得られる。Fig. 6 はグリッドバイアスを -10 V で一定とした場合であり、Fig. 7 はグリッドバイアスが 0 V のときである。これら

の図によると -14°C 以上では温度の変化によるカウント数の変化はあまり著しくないが、 -15°C 以下になると急に増加の傾向が現われる。これは氷晶に由来するものと考えられるので、こういう急激の変化を示し始める温度を凍結温度とみなすことにした。

この弁別方法は凍結温度を測定する目的には十分であるが、氷晶数を測定するのには難がある。というのは、この方法では入力電圧を種々に変え、そのある一定の電圧以下のパルスを真空管の特性によりカットし、それ以上の電圧のパルスのみを増巾するが、しかもかように増巾されたパルスの中で計数器の計数可能範囲の電圧 (140 V 以上) のもののみが計数されるようになっていて、一定電圧以上のパルスの中、小さいパルスは計数されないという欠点がある。このような欠点を除い

Fig. 6. Relation between the number of pulses and the resistance of circuit (R, Fig. 5) for KCl soln. fog (discriminative method A). The broken line represents noises in the absence of fog at -16°C ; the freezing temperature of fog is read as -15°C .

Fig. 7. Relation between the number of pulses and the resistance of circuit (R, Fig. 5) for KCl soln. fog (discriminative method A). The broken line represents noises in the absence of fog at -16°C ; the freezing temperature of fog is read as -15°C .

たものが次に述べる弁別方法Bである。

3. 4. 弁別方法 B

回路図は Fig. 5 (スイッチ S_B の場合) に示してある。前のAと異なる点はグリットバイアスの代りに 6AC7 弁別器を使つて一定の高さ以上のパルスのみを弁別し、これをすべて計数器で計数できるようにしたことである。すなわち、テープレコーダーに録電された電圧パルスを弁別方法Aと同様に 6J5, 6SN7 で増巾した後、6AC7 弁別器により一定の高さ以上のパルスを弁別してオシログラフや計数器に入れ、パルス数を計数する。

6AC7 弁別器の回路図は Fig. 8 に示したごとく

であるが、これは一般によく用いられる Schmitt 回路の一部分で、その分解時間は $1\mu\text{sec}$ 程度であるといわれる⁽⁴⁾。この回路はA点での電圧が限界値、100 V、以上になつたとき新しい状態でトリガーするようになっていたが、このときのパルスの大きさは図中の 0~100 V のバイアス電圧によつて定められ、A 点での電圧が 100 V 以上であるパルスのみここを通過することができ、これがそのまま計数される。

測定法としては可変抵抗 (Fig. 5, R)——テープよりの出力電圧を抑制するための——を、増巾度を小さくするようにある一定の抵抗値にしてお

Fig. 8. Electronic circuit for the 6AC7 discriminator of Fig. 5.

き、バイアス電圧 (0~100 V) をパラメーターとしてチャンバーの温度とパルスのカウント数との間の関係を調べればよい。K₃PO₄ 溶液 (10⁻⁵N) についての例を Fig. 9 に示した。横軸はチャンバー内の温度で、縦軸にはパルスのカウント数が目

盛つてある。図よりわかるように、各電圧の場合を通じ、ある温度以下になるとパルス数の急増点が認められるので、こういう点を各電圧毎に図のごとく直線で補外して求めると、45 V 以下の場合には 1°C 以内の違いで互に一致する。このパルス数の急増点が、一体、氷晶に由来するのか、あるいは、大きい霧滴に由来するのかが次の問題であるが、前に述べたように、Bigg

の方法および肉眼観察の方法によりパルス急増点の温度の前後において氷晶の現われ方を観察した結果によると、パルスの急増は氷晶に由来するものであることがわかる。故にこういう補外点を電圧毎に求め、それらを平均して凍結温度とみなす

Fig. 9. Relation between the number of pulses and the temperature of cold chamber for K₃PO₄ soln. fog (discriminative method B). The freezing temperature of fog is read as -18.5°C.

Fig. 10. Relation between the number of pulses and the temperature of cold chamber for KCl soln. fog (discriminative method B). The freezing temperature of fog is read as -15.2°C.

ことにした——Fig. 9 では -18.5°C 。ただし、ここでは便宜上パルス数に最も著しい差異の認められた電圧、45V と 40V、の補外点の平均を凍結温度として採用してある。なお、この程度の電圧ではバックグラウンドのパルス——空気の乱流その他によるノイズのパルス——は完全に無視することができた。Fig. 10 は KCl 溶液 (10^{-5}N) の場合であり、凍結温度は、 -15.2°C である。

以上の測定に用いた水および溶質についてはその純度に特に留意した。水は電気伝導度が $[2 \times 10^{-6} \text{ mho/cm}]$ 以下の純粋なものであり、溶質はいずれも 2~3 回再結晶を行って精製したものである。

4. 測定結果

以上の二種類の方法により、I-I 価型電解質である KCl 溶液の霧について凍結温度と溶液濃度との間の関係を測定した。結果は Fig. 11 および Fig. 12 のごとくである。横軸は濃度(N)の対数で、縦軸には凍結温度 ($^{\circ}\text{C}$) がとつてある。Fig. 11 は弁別方法 A によつて得られた結果で、 10^{-4}

Fig. 11. Relation between the freezing temperature of fog determined by means of the discriminative method A and the concentration of KCl soln. from which the fog has been generated.

Fig. 12. Relation between the freezing temperature of fog determined by the discriminative method B as well as Bigg's method and the concentration of KCl soln. from which the fog has been generated.

$\sim 10^{-5}\text{N}$ の濃度において極大点をもっている。一方、Fig. 12 は弁別方法 B によるもので、やはり、 $10^{-4} \sim 10^{-5}\text{N}$ の濃度に極大点をもち、また、Bigg の方法との間にも、よい一致を示している。なお、これらの結果は肉眼観察法で測定した前報⁽¹⁾の結果とも実際上一致しているといつてよい。

5. 考 察

ここに記載した電気的測定法の欠点は主に加熱白金線による氷晶の捕集効率にあるものと思われる。流体力学的に見て霧滴とか氷晶とかの一連の流れは、もともと、白金線を避けて流れる傾向をもっているものであるが、こういう際の捕集効率を支配する因子としては粒子の大きさ、白金線の直径、白金線コイルを通過する流速などをあげることができるから大きな粒子を高速度で、細い白金線目がけて流す場合に捕集効率はより良好であると考えられる。一方、パルスの振巾を支配する因子としては白金線の直径、表面状態、温度およ

び白金線コイル間を通過する流速などがある。したがって捕集効率を高め、しかも振巾の大きいパルスを得るには、細い白金線を使うとともに流速を大きく、また、白金線の温度を高くすることが望ましいが、実際問題として、流速が大きく、白金線の温度が高い場合にはバックグラウンドのノイズによるパルスも著しく大きくなる。しかし、かようなノイズに由来するパルスを除くために流速を小さくすれば捕集効率が低下するので、ここにこの装置の感度を制限する重大な因子があるように思われる。故にこの装置は氷晶の絶対数を測定するためにはともかく、凍結温度を客観的に測定する目的に対しては十分に満足できるものであると考えられる。

文 献

1. Sano, I., Y. Fujitani and Y. Uzu, 1960: An experiment on the freezing of electrolyte-containing water droplets. *J. Met. Soc. Japan*, **38**, 195-199.
2. Bigg, E. K., 1956: Counts of atmospheric freezing nuclei at Carnarvon, Western Australia, January 1956. *Austral. J. Phys.*, **9**, 561-565.
———, 1957: A new technique for counting ice-forming nuclei in aerosols. *Tellus*, **3**, 394-400.
3. Vonnegut, B. J. and R. Neubauer, 1952: Detection and measurement of aerosol particles by the use of an electrically heated filament. *Anal. Chem.*, **24**, 1000-1005.
4. Elmore, W. C. and M. Sands, 1949: "Electronics: Experimental Techniques", p. 202, McGraw-Hill Book Co., Inc., New York.