雲核測定用熱拡散型チャンバーの改良および 製紙工場地域での測定

成 瀬 弘

On an Improvement of the Thermal Diffusion Chamber for Cloud Nuclei Measurement and Some Measurements around the Paper Mills

by

Hiroshi Naruse

Meteorological Research Institute, Tokyo

(Received January 15, 1978)

Abstract

An improved thermal diffusion chamber is developed for easy and convenient measurement of cloud condensation nuclei (CCN) in field work. It is designed to involve a faster temperature control system (see Fig. 1).

In order to use the thermal diffusion chamber more than usually accurately, a better temperature regulation mode is experimentally investigated. The measurements of the temperatures inside the chamber and the CCN are carried out and these results are shown in Fig. 6 and Table 2. It is shown that the CCN counts in Case 2 ($T_t > T_a > T_b$) are larger than those in Case 1 ($T_a > T_t > T_b$), where T_t , T_b , and T_a are the temperatures at the top and bottom of the chamber and of the air introduced.

The theoretical calculations and experimental investigations on transient supersaturations are reported by Fitzgerald (1970) and Saxena et al. (1970, 1973). According to the calculated results by Fitzgerald and Saxena et al., the values of transient supersaturation in the chamber under the condition at $T_a = T_b$ are larger than in the case of $T_a = T_t$. On the other hand, it is shown by Saxena et al. that these value are dependent upon the relative humidity of the air introduced. As shown in Table 2, the CCN in Case 2 is 1.4 times larger than that in Case 1. It is found that the results of our experiment nearly coincide with those obtained by Saxena et al. The author considers that transient supersaturation occurs in Case 2. From the analysis of experimental results, it is concluded that Case 1 mode is a better regulation mode than Case 2.

In August, 1976, some measurements of CCN concentration were made by the present diffusion chamber in a city of paper mills, Fuji-city, Sizuoka Prefecture. Hourly correlation between CCN and SO_2 , which has been from the city pollution monitoring station, during the daytime was higher than those between CCN and Aitken nuclei (Figs. 7, 8, and 9, Table 3). It is also shown (Fig. 10) from the supersaturation spectra of CCN measured that the spectra consist of more particles of higher nucleation activity at the time of peak concentration than at other times.

This result suggests that sulphates production from such factories have a positive relationship with the increase of CCN.

1. 序

熱拡散型チャンバーは、湿潤な水平の二つのプレートとの空間内に温度勾配を与えて規定の過飽和を作り、この中にサンプル空気を導入し、エアロゾル粒子を活性化させ霧粒にして、それを計測する装置である。この装置で計測された雲核濃度および過飽和スペクトラムより、その雲核を含む空気が大気の上方にもちあげられた時、雲中でどのような雲粒分布が生成されるかがわかる。それは雲のコロイド的安定性や放射散乱などについて、重要な情報を与え、降水機構論や大気熱収支（および気候変動の原因）論に役立てられる。

この装置は、Wieland (1956) によって雲核計としてはじめて製作され、その後、Tomey (1963) によって雲物理の分野の野外観測で使用された。更に、Gagin et al. (1968), Radke and Hobbs (1969a), Hoppel and Wojciechowski (1976) らによって、器械の改良と測定法の検討が行なわれてきた。最近では、Hudson (1973), Lala et al. (1977) らによって、自動的に連続して測定の出来る器械が開発されてきている。

一方、わが国におけるこの種の器械の開発は、Uchida (1966a) によって塩化水素の蒸気を使用した化学拡散型チャンバー (chemical diffusion chamber) が試作され、測定法が検討された。その器械は、Kikuchi (1971) によって南極観測に使用された。その後、内田 (1971, 1972) は熱拡散型チャンバーを試作し、雲核の地域分布の研究に使用した。

熱拡散型チャンバーによる雲核の測定における問題点は、導入するサンプル空気のチャンバー内への導入速度、チャンバーの温度、サンプル空気の湿度などによって定常的な規定される過飽和度を越えて、一時的に異常な過飽和が形成されるということである。これらの現象については、水蒸気と熱の拡散率の相違によって発生するものとされており、Fitzgerald (1970), Saxena et al. (1970) が理論的に検討し、Saxena et al. (1973) が実験的に検討している。

更に、このような過飽和の形成問題以外に水蒸気の与え方や霧粒計測上の誤差などの技術的に細かい問題もあって、測定には注意深かい配慮が必要とされている。

内田 (1971, 1972) が試作した熱拡散型チャンバーは、活性化領域が $15\text{ cm} \times 15\text{ cm} \times 2\text{ cm}$ の箱

型で、温度制御はチャンバーの上部と下部に取り付けた貯水箱に水を循環させて、半透膜のプレートを湿潤にする方式のものであった。したがって、温度制御にはかなりの待ち時間が必要であり、雲核の過飽和スペクトラムの測定には不便であった。

そこで、筆者はチャンバーの温度制御をより速やかに行えるようにすること、更に長時間一定の温度差に保持されるようにすることを初期の目的として試作を行った。本報告では温度制御を熱電素子によって行うように改良した円筒形の熱拡散型チャンバーの装置の説明と二通りの温度制御方式による測定法の検討および若干の測定結果について述べる。

2. 測定装置の改良と測定法の検討

2.1. 改良した熱拡散型チャンバー

Fig. 1, 2 は試作した熱拡散型チャンバーの図面と写真を示したものである。Fig. 1 の左側はチャンバーの構造を示した縦断面図であり、右側はチャンバーの中心部の横断面図である。図面からわかるように、チャンバーの側壁は肉厚 15 cm のプラスチックで円筒形に作られ、活性化領域は円筒を上下に2分する位置にあり、直径 11 cm 、高さ 1.6 cm (容積 152 cm^3) の薄い円柱上の空間

Fig. 1. Structure of the improved thermal diffusion chamber, scale 1:1.

① Plastic chamber body	⑩ Photographic window
② Cloud chamber	⑪ Light window
③ Copper plate	⑫ Phototube window
④ Thermo-panel	⑬ Air inlet
⑤ Heat sink	⑭ Air outlet
⑥ Fan house	⑮ Blotter paper
⑦ Plate control thermister	
⑧ Thermister	⑯ Stainless-steel wire
⑨ Droplets sampling arm	⑰ Press ring

Fig. 2. A general view of the thermal diffusion cloud nuclei counter.

である。この空間の上、下には熱電素子（小松製 12 対型）を取り付けた銅板がある。温度制御はこの銅板内に埋め込んだサーミスターと精密温度調節器（芝浦電子製 C-168）によって、上面を高く下面を低く温度調節される。温度の設定範囲は $5 \sim 32^{\circ}\text{C}$ で $\pm 0.2^{\circ}\text{C}$ の精度で上、下それぞれ別個に設定される。加熱と冷却に必要な熱電素子の電流容量は、それぞれ 12A, 20A である。

水蒸気の補給は、銅板の上面と下面に吸取紙を金網状の取り付け金具によって取り付け、測定前に蒸留水で適当に湿らされる。上面と下面の温度は、吸取紙の真ん中にビーズ状のサーミスターを置き、精密温度計 (MGB III) によって、 $\pm 0.1^{\circ}\text{C}$ の精度で測定される。

チャンバーは図示されているように、銅板と熱電素子の空間には断熱材が詰め込まれており、チャンバーの窓は光源用、撮影用の二つがあり、いずれも二重ガラスで導電塗料によって曇り止めの処理がされている。また、チャンバー内に生じた霧粒を直接採取するために適当なアームが挿入されるようになっている。

サンプル空気の導入は、直径 3 mm の空気口からファンによって、20 cc/sec の流量で約 15 秒間押し込められる。チャンバー内では空気を導入させると、数秒間で霧粒が発生する。この霧粒の計測には、Uchida (1966a) と殆んど同じ光学系を使用した。Fig. 3 はその略図である。光源は 100W の超高圧水銀灯（ウシオ電機製 USH-102D）を使用し、この光源からのビームは、適当に調節したコンデンサーレンズ、スリット、結像レンズによって、チャンバーの中心部に一定容積の像を作る。この結像の次元は $1.0\text{ cm} \times 0.5\text{ cm} \times 0.1\text{ cm}$ (0.05

Fig. 3. A schematic diagram of the optical system utilizing the thermal diffusion chamber.

Fig. 4. The photograph of the droplets formed in the chamber at 0.5% supersaturation.

cm^3) で、この結像部分のビームは平行になっており、この部分が光軸に対して 135° の方向から 85 mm のレンズにより 1 対 1 の倍率で写真撮影される。Fig. 4 に 0.5% の過飽和度で活性化した霧粒の写真の例を示す。写真はコダック、レコーデングフィルム 2475 を用い、f8, 1/15 秒程度の条件で撮影される。普通の測定においては、約 1 分以内に 3 枚の写真を撮り、それらを計数して平均した値をもってその観測時刻の雲核数とした。フィルム面における結像部の次元は、 $0.8\text{ cm} \times 0.5\text{ cm} \times 0.1\text{ cm}$ に相当する。f8 における 85 mm レンズの被写界深度は、1.1 mm なので結像部は充分焦点の合った写真が得られる。

以上が今回試作した熱拡散型チャンバーの性能と測定手順である。なお、今回の室内実験と野外測定においては、サンプル空気の導入方法は、ファンによって押し込む方式を用いた。これは測定上の便利さから行ったことであるので、エアロゾル粒子がファンの羽根へ付着するなどの影響をさけるためには、今後は当然吸引方式に改める必要がある。

また、水蒸気の補給源としての吸取紙に水をぬらした状態は、2~3 日位しか保持されない。更

に、写真による計数方式も長時間の野外観測を行うためには不便である。これらの点については、今後適当な方法で改良を加える予定である。

2.2. 熱拡散型チャンバー内の温度分布の測定

熱拡散型チャンバー内の過飽和度は、上面と下面の温度差から決定されるので、チャンバー内の温度分布を調べておくことが必要である。そこで、この温度測定を直径 0.13 mm の CC 熱電対とフルスケール 1 mV の記録計を用い、 $\pm 0.1^\circ\text{C}$ の測定精度で行った。

Fig. 5. An example of temperature regulation records. Case 1 ($T_a > T_t > T_b$) and Case 2 ($T_t > T_a > T_b$) are correspondent to each different temperature regulation mode, where T_t , T_b and T_a are temperatures at the top and bottom of the chamber and the introduced air temperature, respectively.

Fig. 5 は、チャンバーの温度制御の例を示した記録紙の一部である。これは、サンプル空気が $17.3 \sim 17.6^\circ\text{C}$ の時に、上面を 14.5°C に設定し、下面を 10.7°C まで下降させ、その後再び上昇させて4つの温度差を与えた場合の記録例を示したものである。この場合の上面と下面の温度と温度差は、図中に示してあり、過飽和度はそれぞれ 0.1, 0.25, 0.42, 0.58% である。図中の最初のピークは熱電素子の性能を調べたもので、これからプレートの温度を上昇させる速度は約 $1.5^\circ\text{C}/\text{min}$ で、温度を下降させる速度は約 $0.8^\circ\text{C}/\text{min}$ であることがわかる。更に、この図では温度差 1.6°C で20分程度の記録例しか示されていないが、2~3日程度の連続試験では、測定精度内で安定した記録が得られている。

以上のように、このチャンバーによれば温度制御が短時間で済み、二つのプレート面における温度差の保持が、精度良く長時間安定であった。したがって、雲核の過飽和スペクトラムの測定は、能率的に行うことが出来る。例えば、0.3~1.0%

までの間で4~5点の過飽和スペクトラムを測定するとして、10~15分あれば充分である。

チャンバー内の温度分布の測定は、チャンバーの高さ 16 mm の間に小さな棒を垂直に立て、この棒に7個の熱電対を取り付け、それを移動させて行った。したがって、垂直方向の7点については殆んど同時に測定されるが、水平方向については同時ではない。垂直方向の測定は2ペンの記録計を一台しか使用しなかったため、残る6点についての測定は指示電圧を切換え方式によって次々に続みとる方式で行った。水平方向の測定位置はチャンバーの中心(A)、中心と壁面との中間(B)、壁面(C)の三点である。

チャンバー内の温度分布の測定結果の一例を Fig. 6 に示す。図中の Case 1, 2 は二つの温度制御方式を示し、Case 1 は $T_a > T_t > T_b$, Case 2 は $T_t > T_a > T_b$ である。ここで、 T_t , T_b は上面と下面の温度であり、 T_a はサンプル空気の温度である。図中の太線と細線はサンプル空気を導入する前、後の温度プロフィールを示す。

Fig. 6. Three examples of temperature profile in the regulation modes, Case 1 and 2. 'Before' and 'after' in the figure show that the measurement was done either before or after the introduction of air.

この図からわかるように、チャンバー内の温度プロフィールは、Case 1, 2 とともにほぼ同じような傾向を示す。サンプル空気を導入する前の温度プロフィールは、12 mm の点を除けばほぼ直線的である。これまでのほかの測定例はほぼ直線的になることから、この場合の 12 mm の点の値は、測定誤差が大きかったものと思われる。したがって、この点の値は信頼性が少いとみるべきである。A, B, C の3点における上、下の温度差は、A が大きく B, C では約 0.4°C A より小さくなっている。

これは壁面や導入空気の影響によるものと思われる。

導入した空気によって生じる温度変化は、上、下の温度差が大きくなると Case 1, 2 とともに大きくなる。この温度変化の特徴は、Case 1 では中心部から下面の間で上昇し、Case 2 では上面から中心部の間で下降することである。しかし、前述したように 12 mm の点の値が信頼出来ないで、Case 2 の場合はなんともいえない。Fig. 6 におけるチャンバーの中心 (A) における温度変化は、図中に示したように Case 1 では $+0.25^{\circ}\text{C}$ であり、Case 2 では -0.1°C であった。このような Case 1, 2 によるチャンバー内の温度変化の数値は、測定精度と同程度なので充分信頼出来るものではない。この点については、今後、更に厳密な測定によって確認する必要がある。

更に、以上に述べたような温度制御方式の問題のほかに、チャンバー内の温度に影響を与える要因として、導入空気が取入口のパイプに押し込まれるので加圧により僅かに温度が上昇する。また、光源ビームによっても影響し、3 分間の照明に対してチャンバーの中心の温度は 0.2°C 上昇した。これは過飽和度の変化に換算すると、温度差 $3\sim 5^{\circ}\text{C}$ (過飽和度約 $0.3\sim 1.0\%$) の範囲内で 0.01% の減少となる。したがって、3 分以上の照明はさけるよう注意が必要である。

2.3. 熱拡散型チャンバー内の過飽和度の変化

熱拡散型チャンバー内の過飽和度 $S(\%)$ は、

$$S = \left(\frac{P}{P_e} - 1 \right) \times 100 \quad \dots\dots\dots (1)$$

で表わされる。ここで P_e は T における水平面に対する飽和水蒸気圧を示す。上面と下面の温度を T_t, T_b とし、水蒸気圧をそれぞれ P_t, P_b とし、求める点の温度と水蒸気圧を T, P とすると分圧 P はどの点においても温度の関数として次式で表わされる (Amelin, 1967)。

$$P = \left(\frac{T - T_b}{T_t - T_b} \right) (P_t - P_b) + P_b \quad \dots\dots\dots (2)$$

この式を (1) へ用いると

$$S = \left\{ \left(\frac{T - T_b}{T_t - T_b} \right) \left(\frac{P_t - P_b}{P_e} \right) + \frac{P_b}{P_e} - 1 \right\} \times 100 \quad \dots\dots\dots (3)$$

となる。(3) 式は、チャンバー内で T が与えられ

れば、その点における定常的な S を表わす式である。したがって、チャンバー内の幾何学的中心に生じる最高の定常的過飽和度 S_m は (3) 式から

$$S_m = \left\{ \frac{P_t + P_b}{2P_e(T_m)} - 1 \right\} \times 100 \quad \dots\dots\dots (4)$$

が得られる。ここで $P_e(T_m)$ は平均温度 $T_m = (T_t + T_b)/2$ に対する飽和水蒸気圧である。本研究では通常、チャンバー内の中心温度は測定していないから、 S の値は (4) 式から求めている。そこで、Fig. 6 に示した温度分布から、平均値と実測値の中心温度を用いた場合の二つの S 、更に空気を導入した場合の S の変化について比較を行ってみる。その結果を Table 1 に示す。表中の平均中心温度①は (4) 式中の T_m であり、②は実測値である。矢印は空気を導入した後の値を示す。 S の①と②は、それぞれの中心温度①と②を用いて、(3)と(4)式から求めた値を示す。

Table 1 から平均値と実測値の二つの中心温度の差を比較すると、チャンバーの中心 (A) 点では、 $0.03 \rightarrow 0.02^{\circ}\text{C}$ (Case 1), $0.21 \rightarrow 0.24^{\circ}\text{C}$ (Case 2) となり、平均値が実測値に比較して僅かに大きい値を示した。これらの数値を S の差で示すと $0.00 \rightarrow 0.001\%$ (Case 1), $0.001 \rightarrow 0.005\%$ (Case 2) となる。すなわち、二つの中心温度によって計算した S の差は、1000 分の 1 の桁に効く程度である。したがって、 S の求め方は、通常行っている平均温度を用いる方法で問題がないことがわかる。

Table 1 において注目したいことは、空気を導入した後の温度変化がかなり大きいことである。この温度変化は、チャンバー内の霧粒の成長や運動などに影響を及ぼすことが考えられる。そこで空気を導入した後の中心温度変化の大きさについて調べてみる。この大きさは、Fig. 6 の説明でも述べたように Case 1 で $+0.25^{\circ}\text{C}$ 、Case 2 で -0.1°C であり、 S の差はそれぞれ 0.14% と 0.05% の減少となる。

以上のように、温度分布の測定によって、空気の導入後にチャンバー内でかなりの S の減少が生じることがわかる。

2.4. 二つの温度制御方式で測定した自然の雲核濃度

チャンバー内の温度分布から S を知り、それと同時に雲核数を測定して対応させることは、この

Table 1. An example of temperature measurement for the regulation modes Case 1 and 2. Mean center temperature ① means the average value of the temperatures at the top and bottom. Arrows show the changes after introduction of air. Supersaturations S , ① and ②, were calculated from the temperatures ①, and ②, respectively.

Position in chamber		A			B			C		
Case 1	Control temp. (°C)	Ta > Tr > Ts(°C)			Ta > Tr > Ts(°C)			Ta > Tr > Ts(°C)		
		23.0	20.65	16.5	22.5	20.6	16.8	21.0	20.6	16.8
	Mean center temp. (°C) ①	18.58 → 18.78			18.7 → 18.95			18.7 → 18.88		
	Measured center temp. (°C) ②	18.55 → 18.8			18.42 → 18.7			18.3 → 18.55		
	S (%) ①	0.738 → 0.597			0.621 → 0.465			0.621 → 0.535		
Case 2	S (%) ②	0.738 → 0.598			0.613 → 0.460			0.606 → 0.528		
	Control temp. (°C)	Tr > Ta > Ts(°C)			Tr > Ta > Ts(°C)			Tr > Ta > Ts(°C)		
		26.54	24.7	22.6	26.2	25.0	22.7	26.3	25.0	22.7
	Mean center temp. (°C) ①	24.57 → 24.5			24.45 → 24.45			24.5 → 24.47		
	Measured center temp. (°C) ②	24.36 → 24.26			24.4 → 24.26			24.37 → 24.12		
	S (%) ①	0.606 → 0.565			0.478 → 0.478			0.507 → 0.469		
	S (%) ②	0.607 → 0.560			0.480 → 0.474			0.507 → 0.460		

測定法の検討上重要なことである。しかしながら、この二つを同時に行うことは技術的に やっかいである。

そこで、ここでは前述した温度分布の測定とは別個に雲核の測定を行った。そのため、制御温度は Fig. 6 と Table 1 に示した Case 1, 2 の値とは異なり、Table 2 に示す値となった。Table 2 における Case 1, 2 の雲核数を比較すると、Case 1 は 2 に比べて S が高いにもかかわらず雲核数は少ない。平均すると Case 1 では $S=0.52\%$, $N=330$ 個/cm³, Case 2 では $S=0.48\%$, $N=448$ 個/cm³ となり、これには 679 という高い値も含ま

れる。

Table 2 の雲核の測定は、短時間のわずか 2 回の測定ではあるが、 S の低い Case 2 の場合に雲核数が多いという一見矛盾した結果を示した。これらの測定結果が、実際に Case 1, 2 の温度制御方式の相違から生じたものかどうかについて、前述の温度分布および S の変化から検討を行ってみる。

Fig. 6 および Table 1 における Case 1, 2 の相違は、空気の導入後におけるチャンバーの中心温度が、Case 1 では 0.25°C 上昇し、Case 2 では 0.1°C 下降したことであった。したがって、Table 2 においても、これと同程度か或は少な目の中心温度の変化があったものと推定することができる。そこで、Table 2 の 5 月 7 日の制御温度に対して、Fig. 6 における温度変化の数値を適用して S の変化を調べてみると、Case 1 では 0.531 → 0.516% で、Case 2 では 0.496 → 0.498% となる。このように、Case 1 の S はかなり減少するが、Case 2 では殆んど変らない。したがって、以上のような導入空気による温度変化から、Case 2 における 高めの雲核数を説明することは困難であ

Table 2. The concentration of natural CCN measured by the two temperature regulation modes.

Date	S (%)	Case	CCN(cm ³)	Control temperature (°C)		
				Ta > Tr > Ts	Tr > Ta > Ts	
1977 5.4	1447—1452	0.51	1	406	20.5	19.1 15.7
	1514—1516	0.45	2	440		22.0 19.9 18.7
	1529—1530	0.51	1	296	19.7	19.1 15.7
	1554—1557	0.48	2	679		21.7 19.3 18.3
	1615—1618	0.53	1	353	19.5	18.55 15.1
5.7	1644—1650	0.49	2	345		24.0 23.5 20.5
	1702—1706	0.53	1	304	23.7	20.0 16.5
	1719—1721	0.49	2	329		24.0 23.5 20.5
	1735—1738	0.53	1	289	23.7	20.0 16.5

る。

前述したように、熱拡散型チャンバーによる雲核の測定上の問題点は、サンプル空気の導入に伴って、一時的に異常な過飽和が生じることである。

Fitzgerald (1970) は、 $T_a=T_t$, $T_a=T_b$ (温度差はいずれも 4°C) の二つの温度制御方式を用い、飽和したサンプル空気を仮定した場合の S の過度的変化を計算した。その結果、 $T_a=T_t$ の場合における S は一時的に低い値を示し、 $T_a=T_b$ の場合は $0.1\sim 0.5$ sec 間に $S=1.6\%$ という定常値より3倍も高い値となることを示した。また、Saxena et al. (1970) もこれとほぼ同様な結果を示し、同時に、湿度 50% のサンプル空気では、 S の過度的な値による影響が飽和空気の場合より少いことを計算で示した。更に、Saxena et al. (1973) は、 $T_a=T_t$, $T_a=T_b$ の二つの温度制御方式によりサンプル空気の湿度を調節し、湿度 93, 90, 84% の各空気中における雲核の過飽和スペクトラムを測定した。その結果、 $T_a=T_b$ の場合の雲核数は $T_a=T_t$ の場合よりも常に $1.1\sim 1.7$ 倍高く、湿度 93% の空気では $S=0.5\%$ の場合の測定を例にとると 1.2 倍高い濃度値を示した。

過飽和度 S の増加に伴う霧粒の生成過程は指数関数的に増加する関係にあり、非可逆的な現象である。そのため、サンプル空気の導入に伴う S の過度的変化の影響は、 $T_a=T_t$ で S が一時的に低い値をとる場合には無視できるが、 $T_a=T_b$ で S が一時的に高い値をとる場合には霧粒数が異常に大きくなり、正確な雲核測定が困難になると思われる。そこで、これらの結果を参考にして Table 2 を検討してみる。

Table 2 において、サンプル空気が飽和であれば、Case 2 における S の極大値は約 1.3% になるであろう。実際には、Table 2 の両日ともサンプル空気は湿度 $75\sim 80\%$ であったので、 S の極大値は 1.3% より小さい値になっていたと思われるが、定常値よりは大きい値になっていたと推定される。実際、Case 2 における平均霧粒数は、Case 1 よりも 1.4 倍多い。これは、Saxena et al. (1973) の測定ともほぼ一致する。このように、Table 2 における Case 2 の高めの雲核数は、一時的な高過飽和の影響によるものとみることが出来る。

Fitzgerald (1970) と Saxena et al. (1970, 1973) の報告に基づく、以上のような Table 2 の検討結

果から、Case 2 では一時的に S が異常に大きくなる可能性があり、したがって、Table 2 に示された Case 2 の雲核数は正しい定常値ではなく、Case 1 の雲核数の方が正しい値と思われる。そこで、温度制御方式としては Case 1 の方が有効と判断し、この方式を用いて実際の測定を行うことにした。

3. 富士市における雲核の測定

試作した熱拡散型チャンバーの実用試験と同時に、雲核の地域的な特性を調べる目的から、製紙工場地域における雲核の測定を行った。

測定は 1976 年 8 月 21 日～27 日に静岡県富士市鷹岡町の公害分析センターの 2 階において行った。鷹岡町は主な製紙工場がある海岸近辺から北東の山側へ数 km 入ったゆるやかな傾斜地にあり、近辺にも製紙工場がある。

雲核の測定は、日中の時間変化 ($S=0.5\%$ の濃度) と過飽和スペクトラムについて行った。測定に用いた温度制御方式は、Case 1 ($T_a>T_t>T_b$) を用い、この場合の T_a は T_t よりも $3\sim 4^{\circ}\text{C}$ 高い温度であった。

Fig. 7. The hourly variation of Aitken nuclei, CCN ($S: 0.5\%$) and SO_2 at Fuji city on 21, 26 August, 1976.

Fig. 7, 8, 9 に雲核濃度の測定結果を示す。図中の AN はエートケン核で、ガードナーカウンタ (半径 $10^{-3}\mu$ 以上の全粒子をかぞえる) による小粒子数を示す。 SO_2 は約 1 km 北方に離れた富士市の大気汚染監視点 (鷹岡公民館) における値である。測定を行った5日間の 7～17 h における雲核濃度は、大体 $5\sim 23\times 10^2$ 個/ cm^3 であった。その変化型は大別すると、午前山で午後谷となる型 (21, 23, 26 日)、午前と午後に高くなる型 (25日)、午前に低く午後高くなる型 (22 日) の三

Fig. 8. The hourly variation of Aitken nuclei, CCN, ($S: 0.5\%$) and SO_2 at Fuji city on 23, 25 August, 1976.

Fig. 9. The hourly variation of Aitken nuclei, CCN, ($S: 0.5\%$) and SO_2 at Fuji city on 22 August, 1976.

つになる。

雲核に対するエートケン核と SO_2 との相関係数を Table 3 に示す。22日の SO_2 は欠測のため相関係数は不明である。表からわかるように、雲核とエートケン核の相関係数は正負いずれの値もとるが、雲核と SO_2 とでは正の相関を示す日が多い。

以上のように、わずか5日間の測定ではあるが、富士市で測定した日中の雲核濃度の変化傾向は、エートケン核よりも SO_2 の日変化と大体良い対応を示した。 $S=0.5\%$ で活性化するエアロゾル粒子の大きさは、直径 $0.04\sim 0.2\mu$ の吸湿性粒子が相当する (Katz et al. 1973)。したがって、測定した雲核濃度の変化は、直径 $0.04\sim 0.2\mu$ の吸湿粒

Table 3. The coefficients of correlation between CCN and Aitken nuclei and between CCN and SO_2 .

Data	CCN—A.N	CCN— SO_2
1976. 8.21	+ 0.41	+ 0.65
22	+0.03	?
23	- 0.65	+ 0.90
25	- 0.52	-0.03
26	+ 0.64	+ 0.76

子の変化ともみられる。Fig. 7, 8, 9 に示したような雲核濃度の変化型は、これらの大きさの吸湿粒子が SO_2 と同じような発生源と関係しており、その日の大気安定度によってそれぞれの変化型を示したものと思われる。

次に、8月25日～27日に測定した雲核の過飽和スペクトラムを Fig. 10 に示す。図のように、測定された雲核数 N (個/cm³) と過飽和度との関係は、対数スケールで直線に近似するので、 $N=cS^k$ の実験式が用いられる。 c, k は気団によって異なる常数である。この期間に測定した過飽和スペクトラムの c, k を求めると、図中に示したように、 $c=1534\sim 3084$, $k=0.57\sim 1.38$ となる。8月26日の 09 h 55 m～10 h 14 m (N_3) と 14 h 02 m～14 h 15 m (N_2) の二つの過飽和スペクトラムは、 $N_3=3084S^{0.57}$, $N_2=1801S^{0.99}$ で表わされる。この二つの過飽和スペクトラムを測定した時間は、Fig. 7 からわかるように、雲核、エートケン核、 SO_2 の相関がそれぞれ高かった日の雲核濃度のピーク時と減少時に相当する。したがって、8月26日の雲核濃度の変化におけるピーク時の過飽和スペクトラムは、減少時と比較して c は大きく k は小さいことがわかる。換言すれば、この時間のエアロゾル粒子は、各過飽和度の測定範囲にわたって活性化しやすい性質を持った多数の粒子であったことを示す。これは、至極当然なことではあるが、 c, k は汚染空気中のエアロゾル粒子の性質を比較する上で、一つの目安となるので便利である。

ここで参考として、1971年7～8月に米国の工業都市セントルイスにおける測定例をあげてみると、都市の風下で $N=3890S^{0.75}$ 、風上で $N=2210S^{0.69}$ (Fitzgerald et al. 1973) が報告されている。この場合の装置は箱型のチャンバーで容積が 450 cm³ である。参考までにこれらの数値と比較すると Fig. 10 の数値は、やや小さい程度でそれ程大

Fig. 10. The CCN supersaturation spectra at Fuji city on 25-27 August, 1976.

きな差はないようにみえる。

以上に述べてきたように、今回の製紙工場地域における雲核濃度や過飽和スペクトラムの測定結果は、製紙工場などから発生する汚染質、特に硫酸塩粒子の濃度と深く関係していることを示唆していることがわかる。

4. ま と め

雲核測定のために、取扱いが簡単な熱拡散型チャンバーを試作した。この装置は温度制御が短時間に行われ、一定の温度差が長時間安定して保持出来るので、過飽和スペクトラムの測定に便利である。

この熱拡散型チャンバーを用いて、過飽和の形成に影響を与える温度制御方式について、チャンバー内の温度分布と雲核数の測定から実験的に調べた。

その結果、サンプル空気を導入した時のチャンバー内の温度分布は、Case 1 ($T_a > T_t > T_b$) では中心部から下面の間で上昇傾向を示し、Case 2 ($T_t > T_a > T_b$) では上面から中心部の間で下降傾向を示した。温度差が約 4°C の測定例では、チャンバーの中心における温度変化は、Case 1 で $+0.25^\circ\text{C}$ で Case 2 で -0.1°C であり、過飽和度にすると $0.05 \sim 0.14\%$ の減少となる。

自然の空気を用いた雲核の測定法の検討では、Case 1 における雲核数よりも Case 2 の方が高く、過飽和度は逆に Case 1 が高いという一見矛

盾した結果を示した。

Fitzgerald (1970) と Saxena et al. (1970, 1973) は、サンプル空気導入時における一時的過飽和について計算と実験を行い、一時的過飽和の影響は $T_a = T_t$ より $T_a = T_b$ の場合に大きくなり、その大きさはサンプル空気の湿度に関係すると報告した。これらの報告に基づき、Table 2 の結果を検討すると Case 2 における高めの雲核数は、一時的過飽和の影響によるものと判断される。Case 2 における雲核数は Case 1 よりも 1.4 倍多く、これは Saxena et al. (1973) の実験ともほぼ一致する。したがって、温度制御方式は Case 2 よりも Case 1 の方が有効といえる。

この装置と Case 1 の温度制御方式を用いて、製紙工場地域において若干の測定を行った。その結果、日中における雲核濃度 ($S=0.5\%$) は、エートケン核よりも約 1 km 離れた地点の SO_2 濃度との相関が高く示された。また、雲核濃度のピーク時の過飽和スペクトラムは、濃度の減少時に比較して活性化しやすい多数の粒子から成り立っていた。これらの測定から、製紙工場地域から発生する硫酸塩粒子が雲核濃度に深く関係していることがわかった。

5. 謝 辞

この研究を行うに際して、予報研究部内田英治部長から適切な助言と激励をいただいた。また台風研究部藤原美幸室長と当舎万寿夫主任研究官か

ら、報告をまとめる上で懇切なご援助をいただいた。また当研究部森口実主任研究官には、観測に際して大変お世話になった。これらの方々に深く感謝いたします。

観測に際して、富士市環境部公害課より多くのご便宜とご協力をいただいた。ここに公害課秋山武雄課長、大気係井口邦美係長をはじめ、係の方々に深く感謝の意を表します。

この装置の試作に当たって、臼井工業所臼井英雄氏に多大の苦勞をかけた。ここに深く感謝の意を表します。

References

- Amelin, A.G., 1967: Theory of Fog Condensation. Israel Program for scientific Translations Jerusalem., p. 95.
- Fitzgerald, J.W., 1970: Non-steady-state supersaturations in thermal diffusion chambers. *J. Atmos. Sci.*, 27, 70-72.
- Fitzgerald, J.W. and P.A. Spyers-Duran, 1973: Changes in cloud nucleus concentration and cloud droplet size distribution associated with pollution from St. Louis. *J. Appl. Met.*, 12, 511-516.
- Gagin, A. and B. Terliuc, 1968: A modified Wieland-Twomey thermal diffusion cloud nuclei counter. *J. Rech. Atmos.*, 3, 73-77.
- Hoppel, W.A. and T.A. Wojciechowski, 1976: Accuracy limitations on CCN measurements with thermal gradient diffusion chambers. *J. Appl. Met.*, 15, 107-112.
- Hudson, J.G. and P. Squires, 1973: Evaluation of a recording continuous cloud nucleus counter. *J. Appl. Met.*, 12, 175-183.
- Katz, U. and W.C. Kocmond, 1973: An investigation of the size-supersaturation relationship of soluble condensation nuclei. *J. Atmos. Sci.*, 30, 160-165.
- Kikuchi, K., 1971: Observation of cloud condensation nuclei at Syowa Station, Antarctica. *J. M.S., Jap.* 49, 376-383.
- Lala, G.G. and J.E. Jiusto, 1977: An automatic light scattering CCN counter. *J. Appl. Met.*, 16, 413-418.
- Radke, L.F. and P.V. Hobbs, 1969a: An automatic cloud condensation nuclei counter. *J. Appl. Met.*, 8, 105-109.
- Saxena, V.K., J.N. Burford and J.L. Kassner, JR., 1970: Operation of a thermal diffusion chamber for measurements on cloud condensation nuclei. *J. Atmos. Sci.*, 27, 73-80.
- Saxena, V.K. and J.L. Fowler, 1973: Experimental investigation of transient supersaturations in a thermal diffusion chamber. *J. Appl. Met.*, 12, 984-990.
- Twomey, S., 1963: Measurements of natural cloud nuclei. *J. Rech. Atmos.*, 1, 101-105.
- Uchida, E., 1966a: Chemical diffusion chamber for counting condensation nuclei activated in a small supersaturation. *Pap. Met. Geophys.*, 17, 31-45.
- Wieland, W., 1956: Die wasserdampfkondensation an natürlichem aerosol bei geringen Übersättigungen, *Z.A.M.P.*, 428.

参考文献

- 内田英治, 1971: 雲核の地域分布の研究——石廊崎および富士山における観測. 気象研究所研究報告, 22, 23-42.
- 内田英治, 1972: 雲核の地域分布の研究 (II)——東京—父島間海上および富士山における観測. 気象研究所研究報告, 23, 183-196.

雲核測定用熱拡散型チャンバーの改良および製紙工場地域での測定

成 瀬 弘

雲核測定用として、便利な熱拡散型チャンバーを試作した。この装置は温度制御が短時間に行われるので、雲核スペクトラムの測定に便利である。

熱拡散型チャンバーによる雲核の測定において、チャンバーへ導入する空気のとチャンバーの温度が極端に違くと、異常な過飽和が形成される。そこで、規定の過飽和を得るために二つの温度制御方式について、チャンバー内の温度分布と雲核数の測定から調べた。その結果、Case 2 ($T_i > T_a > T_b$) における雲核数は、Case 1 ($T_a > T_i > T_b$) よりも 1.4 倍多かった。これは Saxena et al. (1973) の実験ともほぼ一致し、一時的過飽和が生じたものと推定される。したがって、温度制御方式は Case 2 よりも Case 1 の方が有効といえる。

この熱拡散型チャンバーを用いて1976年8月静岡県富士市の製紙工場地域において、若干の測定を行った。その結果、日中における雲核濃度は、エートケン核数よりも SO_2 濃度との相関が高く示された。また、雲核濃度のピーク時のエアロゾル粒子は、減少時と比較して各過飽和度の測定範囲にわたって活性化しやすい性質を持った多数の粒子であった。これらの測定から、製紙工場地域から発生する硫酸塩粒子が雲核濃度に深く関係していることがわかった。