

大気汚染粒子への水蒸気凝結による 雲粒の成長

GROWTH OF CLOUD DROPLET DUE TO CONDENSATION OF WATER VAPOR ON PARTICULATE ATMOSPHERIC POLLUTANT

芝 定孝¹・平田雄志²・八木俊策³

Sadataka SHIBA, Yushi HIRATA and Shunsaku YAGI

¹正会員 工博 大阪大学助手 大学院基礎工学研究科化学工学分野 (〒560-8531 豊中市待兼山町 1-3)

²工博 大阪大学教授 大学院基礎工学研究科化学工学分野 (〒560-8531 豊中市待兼山町 1-3)

³正会員 工博 摂南大学助教授 工学部経営工学科 (〒572-8508 寝屋川市池田中町 17-8)

Cloud droplet formation is an important process in water cycle between the earth and the atmosphere. In order to investigate the nonsteady growth of cloud droplets due to the condensation of the atmospheric water vapor on $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ particles, a mathematical model has been constructed and the nonsteady growth has been simulated numerically with use of the mathematical model. The mathematical model is constituted by the conservation laws of water mass and heat energy and the state equation of ideal gas. As the speed of time variation of droplet heat Q_w is very fast compared with that of droplet mass m_w , droplet temperature T_a can be treated as in steady state. The equilibrium droplet size a_e is dependent on the $3/2$ power of the initial radius a_{s0} of cloud condensation nucleus $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$. The larger a_{s0} is, the more the droplet grows in its equilibrium size a_e . It takes much time for large condensation nucleus to attain the equilibrium size a_e . It also has been cleared that Kelvin's equation is not always applicable to estimate the cloud droplet size.

Key Words: Ammonia sulfate, Cloud condensation nuclei, Cloud droplet, Mathematical model, Rainout of atmospheric pollutant, Water cycle, Water vapor pressure.

1. 緒言

水は生命体内での代謝あるいは化学反応に深く関与しており、生命維持の為に不可欠であるのみならず、種々の物質移動に際してのキャリアーとしての役目も有している。たとえば、地球的規模でみれば、大気と雨、陸水、海水との間でのガス状物質の吸収と放散、浮遊物質の取り込み、あるいは地下水と土壌との間での溶存物質の吸脱着等の物質移動現象における媒体である。

大気中の水蒸気は地球全体の水量としては非常に少ないが、凝結して降水となる為、大気中の水分と地表表層の水との交換に重要な役割を演じる。言い換えると、大気を含む地圏における水の循環には水の蒸発散と凝結とは不可欠である。最近、土木工学

の分野でもこの水循環における水文現象とくに降雨に関連したミクロな取り扱い、たとえば雨滴径分布の高度依存性などの従来には見られない様なミクロな取り扱いには相当な進歩が見られる¹⁾。降雨による地上での流出とミクロな気象要素との関連の重要性を次第に意識し始めた結果であろう。しかし、水循環の適切な把握と言う見地からは、雨水流出における水量的な問題に限ってみても、更に雲の生成と成長を解明する事は不可欠であると思われる。

また、降水の水質と言う観点からも、雲の生成と成長のプロセスの解明は重要である。雨水水質を支配する二大因子は、大気雲粒間および大気雨滴間の物質移動過程すなわち大気汚染物質の雲中での取り込み(レインアウト)と雲低下での取り込み(ウオッシュアウト)とである。正しいウオッシュアウトの評価

には雨滴径分布が必要であり、正しいレインアウトの評価には、雲粒径の非定常変化を知る必要がある。

そこで、本研究は水循環における雲粒の生成と成長過程を雲物理学の観点から検討するものである。雲物理学では、雲粒径について理論的な研究が既にな行われているが、それは Kelvin の式²⁾に代表される様に平衡状態での解析に重点が置かれ、非定常状態での解析が十分行われたとは言いがたい。しかし、降雨性の雲の寿命と雲粒の成長のタイムスケールとを対比すると、小さい雲粒は平衡状態にあると仮定できても、大きい雲粒は平衡状態には達していないものと考えられる。雨滴になるのは雲粒中에서도大きいものであるから、水循環の立場からは雲粒径の非定常的変化(成長)を把握する必要がある。

2. 雲粒成長のモデルとその支配方程式

ここで取り扱う雲粒は専ら微小な水滴であり、全く氷相の過程を経ず雨となる場合である。これはいわゆる暖かい雨となる場合に相当し、海洋性気団の中で起こりやすいと言われている。水循環を我が国の様な島国において論じる際には第一に検討すべき場合と考える。これに対して、大気中の微粒子を氷晶核として氷粒子が成長する氷相の過程が成長機構の大部分を占める様な降雨は氷晶雨で、大陸性気団中で起こり易いと言われている。この様な氷粒子の場合は定性的あるいは実験的な検討は行われているものの、水滴に比べてその定量的かつ理論的な定式化は非常に困難である。また、ここでは水蒸気の凝結による成長のみを対象としており、水滴同士の併合過程による水滴の成長は論じていない。

(1) 大気中の水蒸気の大気汚染粒子への凝結

通常、大気の水蒸気圧が過飽和状態になれば水蒸気がすぐに凝結するわけではなく、多くの場合水蒸気は過飽和の状態で存在する。大気中の水蒸気が自発的に凝結して微小な水滴が生成する為には水蒸気圧がかなりの過飽和状態になる必要がある。しかし、氷粒子の場合の氷晶核と同様に、水滴の場合も凝結核が大気中に存在すれば、水滴の形成は水蒸気のみでの自発的な凝結の場合よりも低い過飽和水蒸気圧で可能である。水滴の外界の蒸気圧が過飽和であれば、一旦、微小な水滴が出来ると水滴表面上の水蒸気圧よりも周囲の水蒸気圧の方が高いので、水滴と周囲との間の水蒸気移動の推進力は周囲大気から水滴へと向かい、水滴は成長する。

大気の水蒸気圧が過飽和でなくとも、逆に水滴側の水蒸気圧が大気側の水蒸気圧よりも低くなれば、この場合も水蒸気移動の推進力は周囲大気から水滴に向かい、水滴は成長する。異物質(溶質)を含む水面上

の平衡水蒸気圧は、純水の水面上の平衡水蒸気圧よりも低くなると言う現象が存在する(Raoult の法則)^{2), 3)}ので、水滴中に溶質を含むと上と同じ効果が得られ、水滴は成長する。ここでは、この様な溶質として硫酸アンモニウム $(\text{HN}_4)_2\text{SO}_4$ を取り上げた。 $(\text{HN}_4)_2\text{SO}_4$ は、大気中に排出された一次汚染物質の $\text{NH}_3(\text{g})$ と $\text{SO}_4(\text{g})$ とが大気中で化学反応した結果、生成される二次汚染物質であり、実験的にも確認されている⁴⁾。 $(\text{HN}_4)_2\text{SO}_4$ は水に良く溶け、大気水蒸気の凝結核となり得る。大気中の $0.1 \mu\text{m}$ から $1.0 \mu\text{m}$ の粒子の大部分が雲粒核として雲粒に取り込まれる。 $(\text{HN}_4)_2\text{SO}_4$ は NaCl とともにその代表的な粒子であるが、海塩由来の NaCl の3倍も多い⁵⁾。さらに、北半球の洋上では船舶の航行により、 SO_2 濃度はかなり高く、沿岸部では陸上濃度を越える事さえあり⁶⁾、 $(\text{HN}_4)_2\text{SO}_4$ の雲粒生成に対する寄与は相当地大きいものと考えられる。

(2) モデルの支配方程式

大気水蒸気の凝結を支配する方程式系は水に対する質量保存式と熱エネルギーの保存式および気体の状態方程式である。ここでは、水滴は大気中に静止しているものと仮定しており、運動量の保存式は不要である。したがって、支配方程式は次の式(1)~(3)の様に与えられる。

$$\frac{\partial \rho_w}{\partial t} = D_w \frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left(r^2 \frac{\partial \rho_w}{\partial r} \right) \quad (1)$$

$$\rho_w C_{pw} \frac{\partial T_w}{\partial t} = k_w \frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left(r^2 \frac{\partial T_w}{\partial r} \right) \quad (2)$$

$$e_{vx} = \rho_{vx} \frac{R_1}{M_w} T_x \quad (3)$$

ただし、水滴は $a_s \leq r \leq a$ であり、 $r \leq a_s$ は凝結核で固相、 $r \geq a$ は大気水蒸気で液相であり、 a =水滴の半径(cm); t =時間(sec); a_s =凝結核の半径(cm); ρ_w =水の密度(g/cm^3); D_w =水の拡散係数(cm^2/s); T_w =水滴の温度(K); k_w =水の熱伝導度(cal/s/cm/K); C_{pw} =水の定圧比熱(cal/g/K); e_{vx} =水蒸気圧(atm); R_1 =ガス定数($\text{atm} \cdot \text{cc/mol/K}$); M_w =水の分子量(g/mol)である。式(1)、(2)に対する境界条件は、それぞれ、質量フラックスおよび熱フラックスの連続性より、次の様になる。凝結核表面 $r = a_s$ において、

$$-D_w \frac{\partial \rho_w}{\partial r} = 0 \quad (4)$$

$$-k_s \frac{\partial T_s}{\partial r} = -k_w \frac{\partial T_w}{\partial r} \quad (5)$$

また、水滴表面 $r = a$ において、

$$-D_w \frac{\partial \rho_w}{\partial r} = -D_v \frac{\partial \rho_v}{\partial r} \quad (6)$$

$$-k_w \frac{\partial T_w}{\partial r} = -k_v \frac{\partial T_v}{\partial r} - \frac{L_e j_w}{4\pi a^2} \quad (7)$$

ただし、 L_e = 純水の蒸発潜熱(cal/g)； j_w = 水蒸気の質量流束(g/s)であり、添え字 s は凝結核を、 w は水滴を、 v は水蒸気を示す。凝結核、水滴、水蒸気の各異相間の界面における境界は移動境界であり、その空間的な位置は時間的に変化する。そこで、式(1)、(2)を空間的に積分し、境界条件の式(4)～(7)を考慮すると、時間に関する次の連立常微分方程式を得る。

$$\frac{dm_w}{dt} = 4\pi D_v a (\rho_{v\infty} - \rho_{va}) = j_w \quad (8)$$

$$\frac{dQ_w}{dt} = 4\pi k_v a (T_\infty - T_a) + L_e j_w \quad (9)$$

ただし、添え字 ∞ と a はそれぞれ周囲大気と水滴表面を示す。 m_w は水滴の質量(g)、 Q_w は熱量(cal)である。Pruppacher 等⁷⁾も同様の結果を得ている。

水滴の半径 a は m_w から次式によって求められる。

$$m_w = \rho_w \frac{4\pi}{3} (a^3 - a_s^3) \quad (10)$$

ただし、 a_s は凝結核の半径である。一方、大気水蒸気のフラックスは次式で与えられる。

$$j_w = \frac{4\pi a D_v M_w e_{\text{sat } w}(T_\infty)}{R_1 T_\infty} \times \left\{ S(T_\infty) - \frac{T_\infty}{T_a} F \right\} \quad (11)$$

上式中の関数 F は次式で与えられる。

$$F = \exp \left\{ \frac{L_e M_w (T_a - T_\infty)}{R_2 T_a T_\infty} + \frac{2M_w \sigma}{R_3 T_a \rho_w a} - x_s \right\} \quad (12)$$

ただし、 $S(T_\infty)$ は水蒸気圧の飽和比(-)で x_s は溶質と溶媒のモル比(-)で、それぞれ次の様に定義される。

$$S(T_\infty) = \frac{e_\infty(T_\infty)}{e_{\text{sat } w}(T_\infty)} \quad (13)$$

$$x_s = \frac{vn_s}{n_w} \quad (14)$$

ここに、 e_∞ は周囲大気の水蒸気圧(atm)、 v はファントフオッフ係数(-)、 n_s は溶質のモル数(-)、 n_w は水のモル数(-)である。

ファントフオッフ係数の値は溶質の種類によって異なる。ここで取り扱っている雲粒の溶質(凝結核)は $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ である。 $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ は水に良く溶け、水中で次の様にほぼ完全に解離する。



すなわち、1 モルの硫酸アンモニウムから 2 モルのアンモニウムイオンと 1 モルの硫酸イオンが生じる。したがって、 $v \approx 3$ と仮定している。

(3) 質量および熱の移動のタイムスケール

m_w と Q_w の変化速度を比較すると、 Q_w (したがって T_w) の方が m_w (したがって a) よりもかなり速く変

化する。これは式(8)および式(9)を支配する無次元特性時間の違いに由来する。両者は相当異なるはずである。これらの無次元特性時間は次の様になる。

$$\hat{t}_m = \frac{t D_v}{a^2} \quad (16)$$

$$\hat{t}_Q = \frac{t k_v}{\rho_w C_{pw} a^2} \quad (17)$$

ただし、 C_{pw} = 水の定圧比熱(cal/g/K)である。これらの無次元時間の比は次の式(18)の様に与えられ、 $\hat{t}_Q$ の方が $\hat{t}_m$ よりも圧倒的に小さい事が示される。

$$\frac{\hat{t}_Q}{\hat{t}_m} = \frac{k_v}{D_v \rho_w C_{pw}} = 2.40 \times 10^{-4} \quad (18)$$

この様な場合、 Q_w が定常状態に達するのは m_w よりも圧倒的に速く、 Q_w の時間的な変化は m_w の時間的な変化に対して定常的であると見なし得る。したがって、式(9)より次の近似式を得る。

$$T_a \approx T_\infty + \frac{L_e j_w}{4\pi k_v a} \quad (19)$$

実際、数値シミュレーションにおいては、温度 T_a は厳密式(9)で求めたものも、近似式(19)で求めたものも殆ど同じで、差が見られないと言える程である。

(4) 水滴の平衡半径

平衡(定常)状態での水滴の半径 a_e は次の様にして式(11)より求められる。まず、平衡状態では水滴の成長は停止するので、 $j_w = 0$ である。また、水滴の温度 T_a は周囲の大気温度 T_∞ と等しくなる。したがって、式(11)より次式を得る。

$$\exp \left(\frac{2M_w \sigma}{R_3 T_\infty \rho_w a_e} - x_s \right) = S \quad (20)$$

上式より、平衡半径 a_e が次の様に求められる。

$$a_e = \frac{2M_w \sigma}{R_3 T_\infty \rho_w (x_s + \ln S)} \quad (21)$$

上式は $x_s = 0$ のとき Kelvin の式と一致し、式(11)の妥当性が確かめられる。もし、 $\ln S \approx S + 1$ と仮定出来るならば、次の Kohker の式⁴⁾が得られる。

$$S = 1 + \frac{2M_w \sigma}{R_3 T_\infty \rho_w a_e} - \frac{3vm_s M_w}{4\pi M_s \rho_w a_e^3} \quad (22)$$

通常、大気中では、 $S \approx 1$ であるから、式(22)より直ちに、平衡半径が次の様に求められる。

$$a_e \approx \left(\frac{3vR_3 T_\infty m_s}{8\pi \sigma M_s} \right)^{1/2} = \left(\frac{R_3 T_\infty v \rho_s}{2\sigma M_s} \right)^{1/2} \times a_{s0}^{3/2} \quad (23)$$

ただし、 a_{s0} は凝結核の初期半径(cm)である。上式は雲粒の平衡半径が近似的に凝結核の初期半径の $3/2$ 乗に比例するという事を示している。

3. 雲粒成長の数値シミュレーション

式(1)と式(2)とを空間的に集中化した支配方程式系の式(8)と式(9)とを数値積分して、雲粒半径 a とその温度 T_a とを求めた。ここで、シミュレーション結果の表示の便宜上、次の様な無次元雲粒半径 $\hat{a}$ と雲粒温度上昇 ΔT_a とを定義する。

$$\hat{a} = \frac{a}{a_e} \tag{24}$$

$$\Delta T_a = T_a - T_\infty \tag{25}$$

また、シミュレーション結果でも確認されるごとく、雲粒の温度変化は小さいので、各種物性値によぼす温度変化の影響は無視し、周囲大気温度における値を用いた。

(1) 雲粒半径と雲粒温度の時間変化

無次元雲粒半径 $\hat{a}$ と雲粒温度上昇 ΔT_a の時間変化とを数値シミュレーションした。その結果を図-1と図-2とに示す。これらは、凝結核の初期半径の大きさにより雲粒半径が平衡値に達する時間が大幅に異なる為に、分割して表示したものである。

ただし、シミュレーションの結果でも確認されるごとく、水滴の大気温度からの変化は数度以内と小さいので、温度変化による物性値の変化は無視している。本数値シミュレーションに使用した物性値は大気温度を0Cと仮定した場合で、表-1に示す。

図-1は $10^{-5} < t < 10^{-2}$ (sec)の時間領域に、図-2はそれに続く $10^{-2} < t < 10$ (sec)の時間領域に対するもので、それぞれの横軸の時間スケールは異なっている。また、縦軸の無次元半径のスケールも、図-1では $0 \leq \hat{a} \leq 0.4$ 、図-2では $0 \leq \hat{a} \leq 1.0$ と異なっている。また、パラメータは凝結核の初期半径 a_{s0} であり、 10^{-5} cmと 10^{-4} cmとである。いずれの図も、実線が $\hat{a}$ を、波線が ΔT_a を示している。

図-1と図-2とより、凝結核の初期半径が小さい方が雲粒は速く平衡半径に達するのが分かる。しかし、 a_{s0} が 10^{-5} cmの場合は雲粒半径が a_e の99%(平衡半径の近似値から求めた)に達するのに約25secかかるのに対して、大きい方の凝結核の場合の雲粒の成長は非常に緩慢であり、 a_{s0} が 10^{-4} cmの場合は雲粒半径が a_e の99%に達するのに約70hrを要する。これは、従来から良く用いられるKohkerの式を用いて雲粒径を予測すると、大きい方の雲粒径にかなり誤差を含む事を意味するものと思われる。雲粒の体積は半径の三乗に比例するので、雲水量(従って、降雨量)に対する誤差の影響は半径の大きいもの程大きい。また、雲粒の水質、例えば、酸性度等の予測にも非

定常な予測式を用いるべき事を意味すると考える。

表-2に図-1と図-2とから読み取った、凝結核の初期半径、雲粒の平衡半径、雲粒半径が平衡半径の99%に達するに要する時間 $t_{0.99e}$ をまとめて示す。

次に、雲粒の温度の時間変化はいずれも、周囲の大気温度から上昇し、徐々に最大値に達した後、急速に下降し周囲の大気温度にもどると言う形をとる。しかし、初期の周囲大気温度からの上昇は極めて速く起こるものと思われ、今回の数値シミュレーションではこの立ち上がりの部分を十分に再現する事は出来なかった。従って、図では、温度上昇は、一見、初期から水平に近い極めてゆっくりとした様子で生じる様に変化している。また、いずれの初期凝結核半径についても、温度下降部分は雲粒の成長が顕著となる部分と時間的によく対応している様に見える。この雲粒の温度下降はエネルギーの消費に起因すると思われるので、このような曲線の時間変化の対応(雲粒半径の増加と雲粒温度の下降との対応)は大気より流入した熱エネルギーが雲粒の成長に使われた為に得られたものとする事が出来よう。

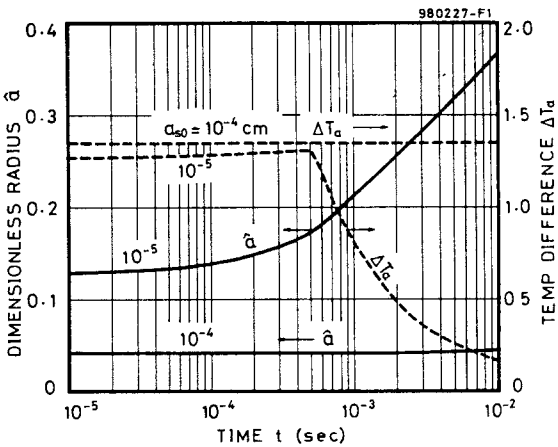


図-1 無次元雲粒半径と雲粒温度上昇(1)

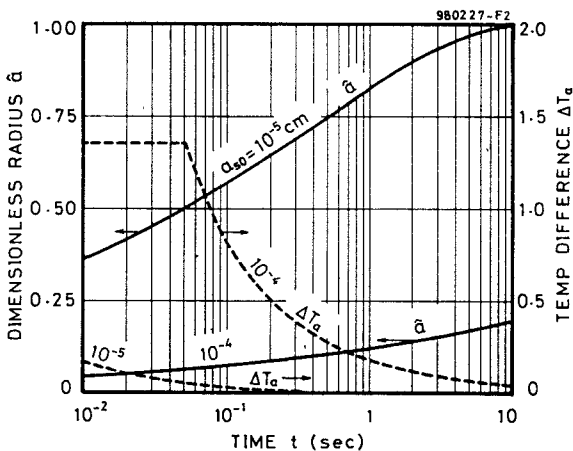


図-2 無次元雲粒半径と雲粒温度上昇(2)

表- 1 シミュレーションに用いた物性値

D_v (cm ² /s)	k_v (cal/s/cm/K)	e_∞ (atm)
0.251	6.0E-5	0.922
T_∞ (K)	L_c (cal/g)	ρ_s (g/cm ³)
273.15	597.3	1.769
M_s (g/mol)	R_1 (atm-cc/mol.K)	R_2 (cal/mol/K)
132	82.0	1.858
R_3 (erg/mol/K)	S (-)	Solubility of AS
8.31E7	1.0	41.22g/100g-sol

表- 2 雲粒の平衡半径と凝結核初期半径

a_{s0} (cm)	a_c (cm)	$t_{0.99e}$ (sec)
1.0E-5	7.765E-5	25
1.0E-4	2.456E-3	2.5E5

通常の雲を構成する雲粒の半径は本シミュレーションで得られた図や表に示す半径よりも大きいから平衡半径に達するにはかなりの時間(数十時間以上)を要し、大部分の雲粒は非定常状態にあるものと思われる。雲域の寿命は、通常、数時間と言われる(降水を伴う対流雲の場合はせいぜい1時間、組織化された対流性降水雲の場合は数時間)。従って、雲粒はその平衡半径に達するより前に衝突、合併、蒸発などの次の段階に移行するか、そのまま、降雨となって地上に落下するものと考えられる。

とくに、雨水水質を支配する要因の一つであるレインアウトは非定常な物質移動現象であり、雨水水質の変化を取り扱う場合、雲粒の大きさも非定常的に変化するものとして取り扱う必要があるだろう。

これに対して、ウォッシュアウトについては、従来から、雲底から地上までの鉛直方向について雨滴半径は平衡に達しているものとして取り扱われるのが一般的である。筆者等もその様に取り扱って、雨水の酸性度を求めているが^{8), 9), 10)}、非定常として(雨滴径分布が雨滴落下中に変化するものとして)解析する必要があるかもしれない。その場合、雨滴の落下速度が終末速度に達しているものと仮定するならば、雨滴の鉛直位置(高度)と時間とは一対一に対応するので、雨滴粒径分布の鉛直構造¹⁾の変化を把握すれば、この様な問題にも対処可能かと思われる。

(2)凝結核半径の時間変化

図- 3 と図- 4 とに雲粒(水相)中の(NH₄)₂SO₄の固相部分(溶けないうちに残っている凝結核の中心部)の半径の時間的変化を示す。凝結核の初期半径 a_{s0} の大きい方も小さい方も曲線の形はほぼ同じである。ただし、縦軸と横軸のスケールは大きく異なっている。

また、凝結核の初期半径の大きさにより、固相の(NH₄)₂SO₄の消失時刻は大きく異なり、大きい方の凝

結核の消失時刻は、小さい方の凝結核の消失時刻の約100倍大きい値となっている。しかし、これらの時刻は、約0.6msと約60msとである。すなわち、いずれも雲粒成長の時間スケールに比べて、非常に短い時間で凝結核が消失する事を示している。したがって、ある程度時間がたてば、近似的には凝結核半径を無視して雲粒半径を求める事も可能であろう。

図- 1、図- 2 の雲粒温度の時間変化と図- 3、図- 4 の凝結核半径の時間変化とを比較すると、雲粒中の固相(凝結核)の消失時刻と雲粒温度の降下開始時刻とがほぼ一致する様に見える。すなわち、凝結核が消失すると、溶質濃度はそれまでの飽和濃度から減少し始め、雲粒温度も急速に降下し始める。そして、雲粒温度は最終的には周囲大気温度にまで降下する($\Delta T_a = 0$)様である。また、雲粒半径の時間変化と凝結核半径の時間変化とを対比させても、同様な事(両者の時間変化が顕著になる時刻がほぼ対応する)が言えよう。これらの結果から、雲粒内の液相中の溶質濃度が物質(水)および熱エネルギーの移動に大きく関与している様子がうかがわれる。

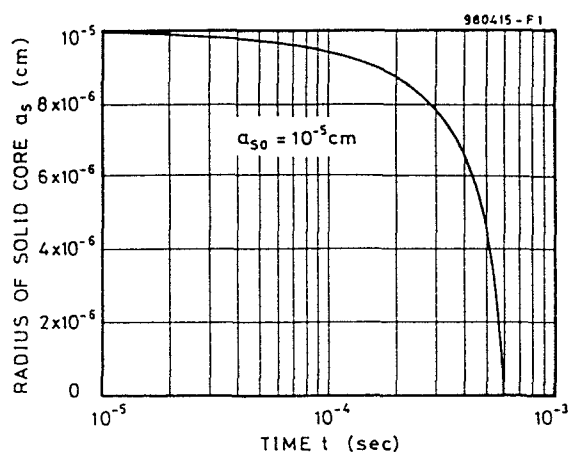


図- 3 雲粒中の凝結核半径の時間変化(1)

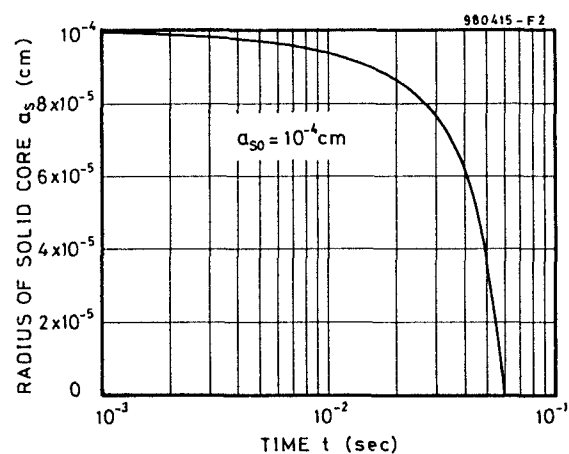


図- 4 雲粒中の凝結核半径の時間変化(2)

4. 結論

質量保存式、熱エネルギー保存式および気体の状態方程式を基礎に雲粒の成長を予測する数式モデルを組み立てた。そして、そのモデルを用いて行った凝結核 $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ への大気水蒸気の凝結による雲粒成長の数値シミュレーションを行った。そのシミュレーションの結果より、次の様な事が結論されよう。

- (1) 質量フラックスの時間変化に比べて、熱フラックスの時間変化は非常に速く、従って、非常に速く定常状態に達するので、事実上、擬定常状態にあると考えられる。
- (2) 通常の大気水蒸気圧の飽和比はほぼ一($S \approx 1$)であるから、雲粒の平衡半径は凝結核の初期半径のほぼ $3/2$ 乗に比例する。
- (3) 従って、凝結核の初期半径が大きければ大きい程、雲粒の平衡半径は指数関数的に大きくなる。
- (4) 小さい凝結核の場合($a_{s,0} = 10^{-5}$ cm)は、雲粒の成長はかなり速い(平衡半径に達するのに約 25sec かかる)。
- (5) 他方、大きい凝縮核の場合($a_{s,0} = 10^{-4}$ cm)の場合は、雲粒の成長は非常に遅い(平衡半径に達するのに約 70hr かかる)。

参考文献

- 1) 中川勝広、中北英一、佐藤亨、池淵周一：雨滴粒径分布の鉛直構造解析とレーダ雨量推定手法の構築、水工学論文集、Vol. 42、pp. 7-12、1998.
- 2) 浅井富雄、武田喬男、木村竜治：雲や降水を伴う大気(岸保勘三郎、浅井富雄編：大気科学講座2)、

東京大学出版会、p. 76、1981.

- 3) Atkins, P. W. : 物理化学(千原秀昭、中村宣男訳)第二判、上、東京化学同人、p. 251、1984.
- 4) Kim, T. O., Ishida, T. Adachi, M., Okuyama, K., and Seinfeld, J. H.: Nanometer-Sized Particle Formation from $\text{NH}_3/\text{SO}_2/\text{H}_2\text{O}/\text{Air}$ Mixtures by Ionizing Irradiation, *Aerosol Science and Technology*, Vol. 29, No. 2, pp. 111-125, 1998.
- 5) Mason, J. : The Role of Aerosol in Cloud Physics (Opening Plenary Lecture), *5th International Aerosol Conference 1998*, Edinburgh, Scotland, UK, September, 1998.
- 6) Corbett, J. J., Capaldi, K. P. and Pandis, S. N.: Global sulfur emission inventories for oceangoing ships and their impact in global chemical transport models, *Journal of Aerosol Science*, Vol. 29, No. S1, pp. S613-S614, 1998.
- 7) Pruppacher, J. R. and Klett, J. D. : *Microphysics of Clouds and Precipitation*, D. Reidel Publishing Co., The Netherlands, p. 414, p. 419, 1978.
- 8) 芝 定孝、平田雄志、八木俊策：雨滴内酸化反応が酸性雨生成におよぼす影響、水工学論文集、Vol. 41、pp. 581-586、1997.
- 9) Sadataka Shiba, Yushi Hirata and Shunsaku Yagi: Acidification of Raindrop Due to Washout of Atmospheric Gaseous Pollutants, *Proc. of 27th International Congress of the IAHR, Water Resources Engineering Division/ASCE*, pp. 299-304, San Francisco, Ca, USA, August, 1997.
- 10) 芝 定孝、八木俊策、平田雄志、蟹谷州男：窒素酸化物のウォッシュアウトによる雨滴の酸性化、土木学会第52回年次学術講演会講演概要集、共通セッション、pp. 168-169、1997.

(1998.9.30 受付)