

多粒径凝結核を含む気塊中の雲粒平衡半径と 競合的成長

EQUILIBRIUM CLOUD DROPLET RADIUS AND COMPETITIVE GROWTH IN AIR PARCEL CONTAINING MULTI-SIZED CLOUD CONDENSATION NUCLEI

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 摂南大学教授 工学部マネジメントシステム工学科 (〒572-8508 寝屋川市池田中町 17-8)

Taking account of the variation of the water vapor content and the temperature in the air parcel, a new model for the size estimation of the cloud droplets on multi-sized CCN has been developed by modifying traditional Köhler model for the equilibrium state. The modification of Köhler model is based on the mass and the heat conservation laws applied for the control volume of multi-sized CCN. Variations of droplet size, decrement of saturation ratio and increment of temperature with CCN composition (size and number) of air parcel are simulated numerically. The results of numerical simulations with this new model show that competitive growth of droplets on multi-sized CCN is controlled by large size CCN.

Key Words: *Cloud droplet, Equilibrium radius, Equilibrium saturation ratio, In- and inter-size-class competitive growth, Mathematical model, Multi-sized CCN.*

1. 緒論

最近、局地的な（マイクロ α からメソ γ スケール程度）大気における水分の鉛直対流による化学物質（大気汚染物質）の輸送過程が、化学物質の地球規模の長距離輸送モデルに関連して、益々重要視されている。逆に、汚染物質輸送そのものを主目標とはしない研究者にも、このような化学物質の鉛直輸送の測定結果は対流雲の微細な物理過程の研究に対する一種の診断ツールとしても利用し得る事が認識され始めている。この水分の鉛直対流は、強い対流性のアップドラフトと対流性の降水とであり、地上と大気の間での水循環に大きく関与している。地上付近の大気汚染物質は、かつて問題となった高煙突によ

る高高度排出がなくとも、強力なアップドラフトにより上空に鉛直輸送され、また、上空における水溶性の大気汚染物質は降水に取り込まれて、大気中から除去され地上に沈着する。大きな環境問題の一つである酸性雨はこの様な大気降水間の汚染物質移動によって生じたものである。この場合の降水による大気汚染物質の取り込みはレインアウト（雲粒による雲中での取り込み）とウオッシュアウト（雨滴による雲底下での取り込み）の二つの物質移動過程によって行われる。その為、これ等の物質移動過程の機構解明は酸性雨などの降水の汚染問題の研究には不可欠となる。化学反応を含むこれらの輸送過程においては、微細な物理過程（microphysics）の役割が重要となってくる。しかし、いわゆる地球規模の

物質輸送モデルでは、長距離輸送に重点が置かれ、鉛直輸送過程については、いまだ基本的なレベルにおいても未解決のままである。特に、降水の関与する大気汚染物質の湿性沈着の予測が困難であると言われるのはこの事を端的に表している。地球規模の物質輸送モデルにおいて、鉛直方向輸送機構の解明を未解決のまま現象の数式モデル化がいわゆるパラメタリゼーションによって行われるならば、それは物理化学的根拠のあいまいなもの、ひいてはモデル計算の結果の信頼性は低いものとなる恐れがある。

大気汚染と降水現象とは、汚染物質である雲粒凝結核上への雲粒生成と雲粒による汚染物質のレインアウトという現象、あるいは雨滴による汚染物質のウォッシュアウトという現象を介して密接に結びついている。レインアウトやウォッシュアウトによる大気汚染物質の降水中への移動、すなわち、鉛直方向輸送に関連しては、大気中（流れ場）における雲の生成と雨滴への成長とが重要な役割を演じる。Takahashi¹⁾の一次元非定常モデルによる雲と雨滴の成長に関する研究は、降雨強度のみならず雲粒や雨滴の塩分濃度の変化にも及び、汚染物質の大気降水間移動による鉛直方向輸送機構の物理化学的な解明という面からも水工学上きわめて注目すべき先駆的研究と言えよう。

降雨に関連して、雨滴や雲のレベルにまで踏み込んだ従来に見られない水循環における水の鉛直方向輸送に関する新しいミクロな取り扱い（中川ら²⁾の雨滴径分布の高度依存性に関する研究や、大石ら³⁾の洪水制御に対流雲からの降雨に関する知識を利用する研究など）や、大気降水間の汚染物質移動に関するミクロな取り扱い（松井ら⁴⁾の水質を組み込んだ積雲の数値シミュレーション、大石ら⁵⁾のビン法による降水粒径、雲物理過程、化学過程を考慮した二次元雲解像モデルの研究、大石ら⁶⁾の硝酸湿性降水量と雨滴粒径分布に関する研究など）も鉛直方向輸送機構の精密化の先駆けと言えよう。

本研究は、鉛直方向輸送機構の一つであるレインアウトを支配する雲粒の成長とサイズを、雲と言う有限の空間（気塊）において、雲物理学に基づき物理化学的に評価しようとするものである。本論文では、特に多粒径の雲粒凝結核（CCN）上に凝結成長する場合のサイズクラス間の競合的成長も考慮し

た雲粒の平衡半径を評価するモデルについて述べている。

2. 雲粒の成長と気塊の平衡半径

大気中で水蒸気凝結により雲が生成するには、通常、雲粒凝結核(CCN)が必要である。水蒸気のみでの自発的な凝縮で雲粒が生成するには平衡水蒸気圧よりもかなり高い水蒸気圧（1 よりかなり大きい飽和比）が必要であるが、大気中での CCN 上への凝縮は、自発的な凝縮の場合より低い水蒸気圧でも凝縮が可能である。溶質を含む水の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からである。本論文で扱う雲粒の凝縮は多粒径の CCN 上への凝縮で、その CCN として水に良く溶ける硫酸アンモニウムのエアロゾルを例に考察している。

(1) 従来の雲粒半径評価モデルの欠陥

雲粒の大きさの評価には平衡半径（成長停止）を与える Köhler モデル^{7),8)}が利用される。しかし、筆者等^{9),10),11)}は雲物理学における伝統的な Köhler モデルが雲粒の適切な平衡半径を与えない事を既に示した。Köhler モデルは無限空間での単一雲粒の成長を対象とし、無限量の大気水蒸気存在と雲粒温度の不変性を仮定する。したがって、雲粒の凝結成長にともない、水蒸気が消費されても、大気の水蒸気圧も温度も不変とする。しかし、実際の大气中の様に雲粒凝結核の個数が増加すると、多数の雲粒の競合的な成長となり水蒸気の消費量は無視できず、水蒸気圧一定という仮定の成立しない事は明らかである。凝結潜熱の発生も無視しえない。更に、Köhler モデルは臨界飽和比より大きい飽和比では平衡半径が求められないと言う決定的な欠点をも有する。

(2) 新しいモデルの特徴

無視し得ない欠点を有する Köhler モデルに対し、筆者等は競合的成長を考慮した雲粒平衡半径を求める数式モデルを新たに提案する。Köhler モデルは雲粒と大気のそれぞれのケミカルポテンシャルが平衡状態にあるという条件を唯一の基礎にしている。新しいモデルではケミカルポテンシャルの平衡式の

他に、新たに、雲粒を含む空気塊に対する水分（雲粒と水蒸気）の質量保存式と熱エネルギーの保存式の二つを加えている。これらの保存式を加える事により、前述の Köhler モデルの欠陥を取り除き、複数の雲粒が競合的に成長する場合の雲粒の平衡半径の評価のみならず、雲粒を含む気塊の平衡温度と気塊の平衡飽和比の二つの変数を評価する事を可能としている。筆者らの以前のモデル⁹⁾は CCN を単一粒径と仮定したが、ここではより実際的な多粒径の CCN が共存する場合を取り扱っている。

(3) 新しいモデルの支配方程式

CCN のサイズクラスの数 ns とする。CCN の数と生成する雲粒の数は一対一に対応し、また CCN のサイズクラスの数も雲粒のサイズクラスの数ともに ns となる。したがって、各サイズクラスの雲粒径に対するケミカルポテンシャルの平衡式は ns 個となる。新しいモデルはケミカルポテンシャルの平衡式に水分質量の保存式と熱エネルギーの保存式の二つを連立させている。サイズクラス i の雲粒の平衡半径 a_i 、大気水蒸気の平衡飽和比 S_e 、雲粒および大気の平衡温度 T_e に対する支配方程式は、サイズクラス i における雲粒の個数を k_i とすると、次の $(ns+2)$ 個の式で与えられる。

$$\ln(S_e) = \frac{A_1}{a_i} - \frac{A_2}{a_i^3} \quad (i = 1, 2, \dots, ns) \quad (1)$$

$$S_e = S_0(1 - A_3 \sum_{i=1}^{ns} (a_i^3 \times k_i)) A_4 \quad (\sum_{i=1}^{ns} k_i = N) \quad (2)$$

$$T_e = T_0 + \frac{L_e(T_0)m_{we}}{\Delta C_{pw}m_{we} + C_{pv}m_{ve} + C_{pa}m_{ae}} \quad (3)$$

ただし、 N は CCN の個数密度 [cm^{-3}]; m_{we} 、 m_{ve} 、 m_{ae} はそれぞれ、気塊内の水滴、水蒸気、空気の平衡時の各質量 [g]; C_{px} は x (w, v, a に対応し、それぞれ水滴、水蒸気、空気をあらわす) の定圧比熱 [$\text{cal}/(\text{gC})$]; $\Delta C_{pw} = C_{pw} - C_{pv}$; L_e は水蒸気の蒸発潜熱 [cal/g]; である。上式中の各係数 A_x は次式で求められ、CCN の種類と大きさに依存する。

$$A_1 = \frac{2M_w\sigma}{R_3T_e\rho_{we}} \quad (4)$$

$$A_2 = \frac{3vm_sM_w}{4\pi M_s\rho_{we}} \quad (5)$$

$$A_3 = \frac{4\pi\rho_{we}R_1T_e}{3M_we(T_0)} \quad (6)$$

$$A_4 = \frac{n(T_0)e_{sat}(T_0)}{n(T_e)e_{sat}(T_e)} \approx \frac{e_{sat}(T_0)}{e_{sat}(T_e)} \quad (7)$$

ただし、 σ は水の表面張力; R_1 、 R_3 はそれぞれ表-1 に示す気体定数; M_w 、 M_s はそれぞれ水、CCN $[(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4]$ の分子量; m_s は CCN の質量; ρ_{we} は水の密度; v は CCN 解離時のファントフォッフ係数; $e_{sat}(T_x)$ は大気水蒸気圧; $n(T_x)$ は水および空気の総モル数、である。通常、大気水蒸気量は空気に比べ非常に少ないので、空気のモル数は雲粒凝結の前後で殆ど変化しないものと仮定し、式(7)の近似が成立する。物性値とその単位は表-1 と表-2 に示す。CCN の $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ の水溶液はほぼ完全に解離し、van't Hoff 係数は $v=3$ となる。固体の雲粒凝結核の初期半径は $0.1 \mu\text{m}$ と仮定している。

表-1 0 °C における物性値 (1)

R_1	R_3	v	σ
82.0	8.31×10^7	3	75.67
$\text{atm cm}^3/(\text{molK})$	$\text{erg}/(\text{molK})$	-	dyn/cm

表-2 0 °C における物性値 (2)

ρ_w	ρ_s	M_w	M_s	e_{sat}	$T(0)$
1.001	1.769	18	132	6.108	273.15
g/cm^3	g/cm^3	g/mol	g/mol	mb	K

単一粒径の CCN 上への水蒸気凝結の場合の雲粒の競合的成長は同一サイズ内での競合のみであった。しかし、粒径の異なる CCN の共存する場合の競合的成長は同一サイズクラス内での競合に、更に異なるサイズクラス同士の競合が加わり、単一粒径の CCN のみ場合に得られる平衡半径の結果からは予測し得ない非線形性が加わる。また、数値計算は単一粒径 CCN の場合も決して容易に実行出来るというわけではなかったが、多粒径 CCN の場合は更にサイズクラスの数が多くなる程計算量は増加し、格段に取り扱い難くなる。

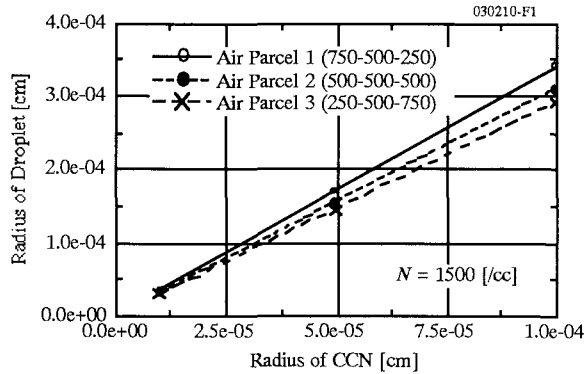


図-1 CCN サイズに対する雲粒平衡半径の変化

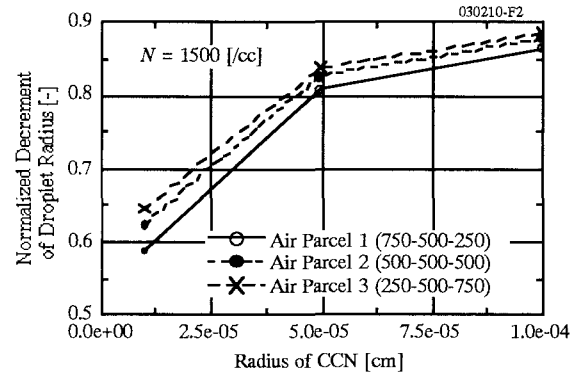


図-2 CCN サイズに対する雲粒平衡半径減少の変化

3. 数値シミュレーション

数値計算の簡単の為に、表-3 に示す様な三つのタイプの模擬気塊に対して雲粒平衡半径分布、平衡温度、平衡飽和比の各数値シミュレーションを行った。模擬気塊に含まれる雲粒凝結核(CCN)の初期半径は小、中、大の三つのサイズクラスとし、小径は $0.1 \mu\text{m}$ ($1.0 \times 10^{-5} \text{cm}$)、中径は $0.5 \mu\text{m}$ ($5.0 \times 10^{-5} \text{cm}$)、大径は $1.0 \mu\text{m}$ ($1.0 \times 10^{-4} \text{cm}$)、とした。これら小、中、大の三種類の CCN サイズと気塊 1 cm^3 当たりに含まれる CCN の個数の組み合わせとによって、各気塊内に含まれる CCN の粒径分布の変化を特徴付けた。CCN のサイズと数によって、小サイズの CCN が多いタイプ 1 の気塊(small rich)、小、中、大サイズの CCN が均等に含まれるタイプ 2 の気塊(even)、大サイズの CCN が多いタイプ 3 の気塊(large rich)の三つのタイプに分類した。CCN の個数密度 N は各気塊とも 1500 cm^{-3} 、飽和比は 1 とした。

表-3 模擬気塊のタイプと CCN 組成

	Type 1	Type 2	Type 3
$0.1 \mu\text{m}$	750	500	250
$0.5 \mu\text{m}$	500	500	500
$1.0 \mu\text{m}$	250	500	750

また、競合的成長による平衡半径、平衡温度、平衡飽和比の変化を評価する無次元変数として、次ぎに定義する量を導入した。

$$\hat{a}_i = (a_i - a_p) / a_p \quad (8)$$

$$\Delta S_e = S_e - S_0 \quad (9)$$

$$\Delta T_e = T_e - T_0 \quad (10)$$

ただし、 a_p は雲粒のポテンシャル半径で、Köhler モデルで飽和比を 1 とおいて求められる平衡半径である。したがって、この無次元半径は、競合的成長をともしなわれない平衡半径からの、競合的成長した雲粒平衡半径の減少量を示す。

(1) 雲粒平衡半径と CCN 半径

図-1 に新しく提案するモデルで計算した雲粒平衡半径と CCN 半径との関係を図示する。気塊のタイプをパラメータとしてプロットしている。各曲線はほぼ直線と見なせ、大きい CCN を多く含むタイプの気塊ほどその勾配は緩やかである。気塊が、大きいサイズの CCN を多く含む程、どのサイズにおいても、その気塊に含まれる雲粒の平衡半径は小さくなる事を意味する。同一サイズクラス内での競合的成長という観点からは、CCN を多く含む気塊ほど、気塊内のその CCN サイズに対応する雲粒平衡半径は小さくなる。図の示す $1.0 \mu\text{m}$ の CCN サイズに対する各気塊タイプ内の雲粒サイズの大きい順は予想どおりである。しかし、他のサイズでは CCN の含まれ方(多少)が $1.0 \mu\text{m}$ の CCN とは異なるのに、雲粒サイズの大きい順が $1.0 \mu\text{m}$ の CCN に対する雲粒サイズの順位と同じである。これは同一サイズクラス内の競合的成長では説明がつかない。もし、サイズクラス間の競合的成長がなければ、最

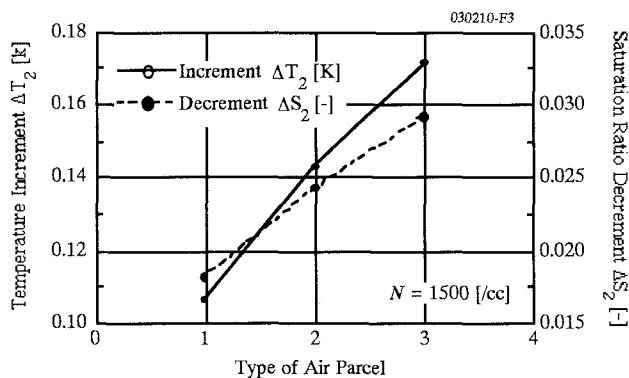


図-3 気塊タイプによる温度上昇と飽和比減少の変化

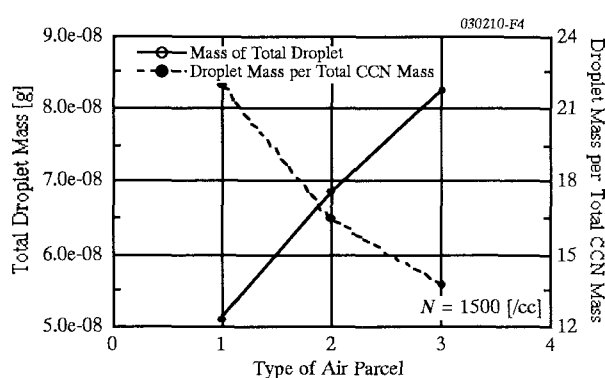


図-4 気塊タイプによる雲粒凝結質量の変化

小の $0.1\mu\text{m}$ の CCN においては平衡雲粒のサイズはタイプ 1 で最小で、タイプ 1 の直線が一番下にくるはずである。タイプ 3 の直線が一番下なのは、 $1.0\mu\text{m}$ CCN による他のサイズの雲粒小粒化の効果がタイプ 3 の気塊で最大となるからである。大サイズクラス内の競合は大サイズ内に止まらず他のサイズの雲粒凝結にまで及び、大サイズ CCN が気塊内雲粒の粒径分布を支配する事を示唆する。大サイズ CCN が有する水蒸気凝結能力が小サイズ CCN の有する水蒸気凝結能力より大きい為と考えられる。

(2) 雲粒平衡半径の減少と CCN 半径

競合的成長による平衡半径の減少評価に式(8)で定義する無次元平衡半径を用いた。この量は競合的成長と関係のないポテンシャル半径からの減少を表す。この値が大きい程、競合的成長による半径減少は大きい。CCN の各サイズに対して、気塊タイプをパラメータとし、減少率をプロットしたものが図-2 である。競合的成長の観点からは、図の示す $1.0\mu\text{m}$ の大サイズ CCN における減少率の順位は妥当な結果であろう。しかし、どのサイズでも、大サイズ CCN を含む割合が大きいタイプの気塊程、雲粒半径の減少率は大きい。この結果より、雲粒半径減少率もまた、サイズクラス間の雲粒の競合的成長により、大サイズ CCN に支配されていると言える。

(3) 温度上昇と飽和比減少

気塊の安定性という観点から、気塊の温度上昇

は非常に重要な因子である¹²⁾。気塊の各タイプに対する気塊の飽和比減少と気塊の温度上昇を図-3 に示す。ただし、飽和比減少と温度上昇の評価にはそれぞれ前述の式(9)、式(10)で定義した無次元変数を用いている。大サイズ CCN を含む割合の大きいタイプの気塊程、気塊の飽和比減少が大きく(破線のプロット)、また、気塊の温度上昇も大きい(実線のプロット)。この結果は雲粒凝結成長にともない水蒸気凝結により気塊内水蒸気が消費され、その凝結潜熱が気塊内に放出される事を考えると容易に予想される結果と言えよう。

CCN 上への水蒸気凝結は強制的に上昇させられた気塊自身の温度低下に起因する凝結とは異なり、気塊の温度は周囲の大気温度より常に高くなる。その為、浮力で気塊は常に上昇しようとし、常に静力学的に不安定化する。したがって、湿潤気塊内の水蒸気の凝結は気塊の温度上昇をもたらし、気塊の大気中における局所的な鉛直運動(小規模な擾乱)の要因となり得る。この際に生じる鉛直運動は、不安定性を解消しようとするいわゆる熱対流であり、降水をもたらす局所的な積雲対流の原因と同種のものである。この様に CCN による雲粒生成は気候変動の観点からも興味深いものである。

(4) 凝結水量の CCN 半径に対する変化

図-4 に気塊のタイプに対する雲粒の総質量の変化と CCN の単位質量当たりの雲粒質量(あるいは、CCN の水蒸気凝結効率とも言えよう)の変化とを

示す。実線が雲粒総質量の変化で、破線が CCN 単位質量当たりの雲粒質量の変化である。

CCN の総質量が大きくなればなる程、雲粒に変化する水蒸気の総凝結量（雲粒の総生成量）は多くなる。雲粒と大気との化学ポテンシャルの平衡式における係数より明らかなごとく、水蒸気の凝結量は CCN 質量の増加関数となるから当然と言える。この様子は図-4 に示す実線のプロットで確認される（大きい CCN を含む割合の大きいタイプの気塊程、気塊内の CCN の総質量は大きくなる）。ところが、CCN の単位質量当たりの水蒸気凝結量で見ると、図-4 に示す破線のプロットの様に、大きい CCN を多く含む気塊程（CCN の総質量が大きくなる程）、CCN の単位質量当たりの水蒸気凝結量は減少している（CCN の水蒸気凝結効率が低下する）。この結果は、大サイズの CCN が支配するサイズクラス間の競合的成長をとまなうと、大サイズ CCN が気塊内の雲粒平衡半径を支配する事に因る。大サイズ CCN が増えると CCN の総質量は増えるが、大サイズを始めとする各サイズの雲粒の小粒化が激化し、全体としての雲粒の総質量は減る。

4. 結論

多粒径 CCN を含む気塊における雲粒の競合的成長による雲粒平衡半径を求める新しいモデルを提案した。そのモデルは飽和比減少および温度上昇を考慮しており、平衡半径、平衡飽和比、平衡温度の数値シミュレーションの結果、次の様な結論を得た。

(1) 異なる粒径の共存する気塊内での大気水蒸気凝結による雲粒平衡半径は、同一サイズクラス内の競合的成長に加えて、異なるサイズクラス間の競合的成長をする為、他のサイズクラスの雲粒平衡半径も大きいサイズの CCN に支配される。

(2) CCN の総質量が大きい程、気塊内の水蒸気凝結量は多くなるが、CCN の単位質量当たりの凝結量は逆に少なくなる。CCN 総質量の増大は大サイズ CCN 個数の増加を意味する。CCN 単位質量当たりの凝結量減少は、対応する大サイズおよび他サイズにおける雲粒の競合的成長の激化による大サイズを始めとする各雲粒の小粒化が進行する事による。

謝辞

本論文のモデル作成に関して、C. F. Clement 博士より丁寧かつ有益なコメントを頂いた。また、本研究の一部は文部科学省の科学研究補助金特定領域研究（領域長：笠原三紀夫 京都大学教授）「微粒子の環境影響」(14048215)の補助により行った。

参考文献

- 1) Takahashi, T.: Warm Rain Giant Nuclei and Chemical Balance - A Numerical Model, *Journal of the Atmospheric Sciences*, Vol.33, pp.269-286, 1976.
- 2) 中川勝広、中北英一、佐藤 亨、池淵周一：降雨タイプに依存した雨滴粒径分布パラメータとその鉛直分布、*水工学論文集*, Vol.41, pp.141-146, 1997.
- 3) 大石 哲、池淵周一、小尻利治、舩田直樹：対流雲かの降雨に関する知識を有する人工知能による洪水制御支援手法の開発、*水工学論文集*, Vol.43, pp.251-256, 1999.
- 4) 松井光弘、池淵周一、中北英一、大石 哲：雲物理モデルと結合させた酸性雨・酸性雪予測モデルの開発に関する研究、平成 11 年度土木学会関西支部学術講演会講演概要、pp.II2.1-II2.2, 1999.
- 5) 大石 哲、松井光弘、池淵周一：詳細な雲物理過程を含む酸性雨・酸性雪予測モデルの開発、*水工学論文集*, Vol.46, pp.1-6, 2002.
- 6) 大石 哲、砂田憲吾、池淵周一：硝酸の湿性降下量と雨滴粒径分布の関係に関する数値実験的研究、*水工学論文集*, Vol.47, pp.115-120, 2003.
- 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) 浅井富雄、武田喬男、木村竜治：大気科学講座 2、雲や降水を伴う大気、東京大学出版会、東京、p.79, 1981.
- 9) Shiba, S., Hirata, Y. and Yagi, S.: Competitive growth of cloud droplets attended with consumption of ambient water vapour, *Proc. Of 12th-Annual Conference of the Aerosol Society*, pp.34-37, Bath, UK, June, 2001.
- 10) Shiba, S., Hirata, Y. and Yagi, S.: Effect of Number Density of CCN on Condensational Growth of Cloud Droplet, *Journal of Aerosol Science*, Vol.32, No.S1, pp.S581-S582, 2001.
- 11) 芝 定孝、平田雄志、八木俊策：大気水蒸気の凝結による雲粒の競合的成長と雲粒の平衡半径、*水工学論文集*, Vol.46, pp.7-12, 2002.
- 12) 芝 定孝、平田雄志、八木俊策：凝結核への雲粒の競合的成長による湿潤気塊の平衡温度、*水工学論文集*, Vol.47, pp.121-126, 2003.

(2003.9.30 受付)