

32. 競合的成長における雲粒の平衡半径および平衡温度におよぼす 凝結核個数密度の影響

Effect of Number Density of CCN on Equilibrium Radius and Temperature of Cloud Droplet during Competitive Growth

芝 定孝*・平田雄志*・八木俊策**

Sadataka SHIBA, Yushi HIRATA and Shunsaku YAGI

ABSTRACT; Usually, for the estimation of the cloud droplet size in the equilibrium state, Köhler equation is utilized, assuming constant vapor content and constant temperature. However, the condensational growth of the cloud droplet consumes the ambient water vapor and releases the latent heat. Therefore, the ambient water vapor pressure and the temperature are changed. Taking account of the variations of the water vapor content and the temperature, a new model for the estimation of the equilibrium cloud droplet size and temperature has been developed by modifying Köhler equation. The modification of Köhler model is based on the mass and the heat conservation laws for the water (vapor and liquid) in the air parcel occupied by one cloud droplet. Variations of size and temperature with number density of CCN are simulated numerically.

KEYWORDS; acid rain, cloud droplet, competitive growth, condensation, rainout of gaseous pollutant

1 緒論

地上における降水の水質は降水が大気中で取り込んだ種々の大気汚染物質に支配される。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）によって行われる。雲粒の大きさはこのレインアウトに重要な影響をおよぼす。その為、レインアウトを支配する雲粒の成長とサイズの評価が酸性雨などの降水の汚染問題の研究には不可欠である。

通常、大気水蒸気の凝結成長による雲粒の大きさの評価には平衡半径を与える Köhler 方程式が利用される。ところが、Köhler 方程式が仮定する計算条件は無限空間における単一の雲粒成長であり、無限の大気水蒸気の存在である。従って、大気水蒸気圧は変化せず、飽和比も変化しないものと仮定する。筆者らは多数の雲粒の競合的な成長の場合にはこの様な仮定の成立が困難な事を明らかにした。ただし、その場合雲粒および大気の水蒸気は近似的に変化しないものとして検討した。しかし、大気水蒸気の凝結により蒸発潜熱が生じる為に温度は上昇するはずである。温度変化を無視した競合的成長の場合については、Köhler 方程式が基礎とする化学ポテンシャルの平衡という条件の他に気塊中の水分の質量保存式を連立させて雲粒の平衡半径をについて検討したが、今回は化学ポテンシャルおよび水分の質量保存式の他に更に熱エネルギー保存式を連立させた新たな数式モデルを組み立てる事により、この温度上昇を加味した場合の雲粒の平衡半

* 大阪大学大学院基礎工学研究科 Graduate School of Engineering Science, Osaka University.

** 摂南大学工学部 Faculty of Engineering, Setsunan University.

径と、雲粒および雲粒を含む気塊の温度および飽和比の変化とについて、数値シミュレーションにより検討を加えた。雲粒凝結核（CCN）として最も一般的な大気汚染物質である硫酸アンモニウムを対象とし、大気水蒸気の種々の初期飽和比に対して、雲粒平衡半径、雲粒を含む気塊の温度および飽和比を求めた。新たに開発した数式モデルによる数値シミュレーションの結果によると、雲粒凝結核の個数密度は雲粒平衡半径の変化に対して大きな影響をおよぼすが、温度変化に対しては平衡半径を支配する物性値を大きく変える程の影響はおよぼさない事が明らかとなった。ただし、気象学的にみれば、温度変化に対する雲粒凝結核個数密度の影響は小さくはない。

2 モデルと支配方程式

雲粒の生成は、雲粒表面の平衡水蒸気圧と大気の水蒸気圧との差が大気水蒸気の水滴への凝縮の推進力となり、水蒸気水滴となる事により行われる。これが雲粒生成モデルの基礎的な考えである。その場合、水蒸気のみ自発的な凝縮が生じるには平衡水蒸気圧よりもかなり高い水蒸気圧（すなわち高い飽和比）が必要であるが、大気中に凝結核が存在すれば、それよりも低い水蒸気圧でも凝結が可能となる。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からである。ここでは、この様に水蒸気凝縮の推進力を増強する凝結核として硫酸アンモニウムを例に考察している。硫酸アンモニウムはアンモニアガスと硫酸ガスとの気相反応の結果生成される代表的な二次汚染物質で大気中に多量に存在し、しかも水に良く溶ける。大気中に存在する $0.1\mu\text{m}$ から $1.0\mu\text{m}$ の大きさの硫酸アンモニウムの粒子の大部分が雲粒凝結核として雲粒に取り込まれる。

2.1 雲粒の平衡半径

雲粒凝結核上に生成される雲粒の平衡半径は一般に Köhler 方程式によって求められる。この式は熱力学的な平衡条件より、雲粒とその周囲大気の双方の化学ポテンシャルが平衡状態にあるとして導かれる（Pruppacher and Klett, 1980）。雲粒表面の平衡水蒸気圧と大気の水蒸気圧とが平衡に達した状態では、雲粒成長の推進力が無くなり成長が停止する。Köhler 方程式の場合、雲粒は無限の水蒸気容量を有する空間内での成長で、水蒸気圧および温度は一定のままと仮定する。実際には有限である水蒸気を無限と仮定するので、Köhler 方程式は凝結核がただ一つあるいはその個数密度が小さい場合には近似的にあてはまるが、そうでない実場面では誤差の大きい平衡半径を与える事が予想される。更に、Köhler 方程式は、この様な欠点の他に、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大きな欠点を有する（Shiba, et al., 2001）。

2.2 新しい数式モデルの組み立て

前述の Köhler モデルの有する欠点は、水分質量の保存および熱エネルギーの保存を考慮する事により取り除く事が可能である。化学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を連立させた新しいモデルの支配方程式は次の三つの式の様に与えられる。

$$\mu_w(p, T, a_w) = \mu_v(p, T, a_v) \quad (1)$$

$$m_{wc} + m_{ve} = m_{v0} \quad (2)$$

$$C_{pw}(m_{we}T_e - m_{w0}T_0) + C_{pv}(m_{ve}T_e - m_{v0}T_0) + C_{pa}(m_{ae}T_e - m_{a0}T_0) = L_e(m_{we} - m_{w0}) \quad (3)$$

ただし、 T_0 および T_e はそれぞれ初期温度および平衡温度； a_w 、 a_v はそれぞれ水滴、水蒸気の活量； m_{wx} 、 m_{vx} 、 m_{ax} はそれぞれ水滴、水蒸気、空気の質量； C_{px} は定圧比熱； L_e は水蒸気の凝縮潜熱、である。また、 μ_w 、 μ_v はそれぞれ雲粒、水蒸気の化学ポテンシャルで次の式(4)で与えられる。

$$\mu_x(p, T, a_x) = \mu_{x0}(p, T) + RT \ln(a_x) \quad (4)$$

式(1)、(2)、(3)の支配方程式より、次ぎの雲粒の平衡半径 a_e 、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 に関する作業方程式を得る。

$$\ln(S_e) = \frac{A_1}{a_e} - \frac{A_2}{a_e^3} \quad (5)$$

$$S_e = S_0(1 - A_3 a_e^3) A_4 \quad (6)$$

$$T_e = T_0 + \frac{[L_e + (C_{pv} - C_{pw})T_0]m_{we}}{C_{pw}m_{we} + C_{pv}m_{ve} + C_{pa}m_{ac}} \quad (7)$$

ただし、上式中の各係数 A_x は次式で与えられる。

$$A_1 = \frac{2M_w \sigma}{R_3 T_e \rho_w} \quad (8)$$

$$A_2 = \frac{3\nu m_s M_w}{4\pi M_s \rho_w} \quad (9)$$

$$A_3 = \frac{4\pi \rho_w R_1 T_e}{3M_w e(T_0)} N \quad (10)$$

$$A_4 = \frac{n(T_0) e_{sat}(T_0)}{n(T_e) e_{sat}(T_e)} \approx \frac{e_{sat}(T_0)}{e_{sat}(T_e)} \quad (11)$$

ただし、 N は雲粒凝結核 (CCN) の大気 1cm^3 当たりの個数密度； σ は水の表面張力； R_1 、 R_3 はそれぞれ $[\text{atm cm}^3/(\text{mol K})]$ および $[\text{erg}/(\text{mol K})]$ 単位による気体定数； M_w 、 M_s はそれぞれ水および CCN (硫酸アンモニウム) の分子量； m_s は CCN (硫酸アンモニウム) の質量； ρ_w は水の密度； ν は CCN 解離時のファントフォッフ係数； $e(T_x)$ 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。

式(5)の形は Köhler 方程式と同じであるが、Köhler 方程式中の飽和比は変化しないので、初期値 S_0 のままで、既知である。しかし、本モデルの式(5)での飽和比は未知の平衡値 S_e であり、未知数である。式(6)より、平衡飽和比は初期飽和比を雲粒の平衡半径で補正した形をしており、雲粒が大きくなる程、減少する事がわかる。式(7)からは、平衡温度が雲粒を含む気塊中の水滴 (雲粒)、大気水蒸気、空気のそれぞれの質量に依存して変化する事がわかる。従って、雲粒の平衡半径を求めるのには、Köhler モデルでは Köhler 方程式を単独で解いたのに対し、新しいモデルではこれら三つの式を連立して解く事によって求められる。

なお、以下の表 1 および表 2 に本モデルによる数値シミュレーションで用いた物性値を示す。

Table 1. Value of Physical Properties (1)

R_i	R_3	σ	e_{sat}	ρ_w	ρ_s	ν
82.0	8.31×10^7	75.67	6.108	1.001	1.769	3
atm cm ³ /(mol K)	erg/(mol K)	dyn/cm	mb	g/cm ³	g/cm ³	—

Table 2. Value of Physical Properties (2)

L_e	T_0	M_w	M_s	C_{pw}	C_{pv}	C_{pa}
597.3	273.15	18.0	132.0	1.00	0.45	0.24
cal/mol	K	g/mol	g/mol	cal/(g C)	cal/(g C)	cal/(g C)

3 数値シミュレーション

数値シミュレーションに用いた雲粒凝結核の初期半径はいずれも 1.0×10^{-5} cm である。この場合の Köhler 曲線での臨界飽和比（曲線の最大値に対応する飽和比）は 5.94×10^{-4} で、これに対する臨界平衡半径は 1.35×10^{-4} cm となる。図式的に言えば、雲粒の平衡半径は、式(5)の右辺が表す Köhler 曲線と式(5)の左辺が表す過飽和曲線（飽和比から 1 を引いた値である過飽和の半径に対する変化を表す）との交点として求められる。交点が複数個存在する場合は物理的に安定な最小の半径を与えるものが雲粒の平衡半径となる。

3.1 Köhler モデルと新しいモデルの比較

本論文で示すモデルは雲粒凝結核が多数存在し、雲粒の成長が競合的に行われる場合への適用を想定している。しかし、Köhler モデルが対象とする雲粒が一つで競合的成長でない場合にも適用可能なので、両モデルの状況が同じである単一雲粒の成長の場合について、比較をする。

(A) Köhler モデル

本モデルの式(5)において、飽和比に対して変数 S_e の代わりに定数 S_0 として、単独で解けばよい。飽和比は一定と仮定するので、過飽和曲線は水平な直線となる。この様子は図 1 に示すとおりである。図 1 において、山形の曲線が Köhler 曲線で、過飽和曲線は水平な直線となる。

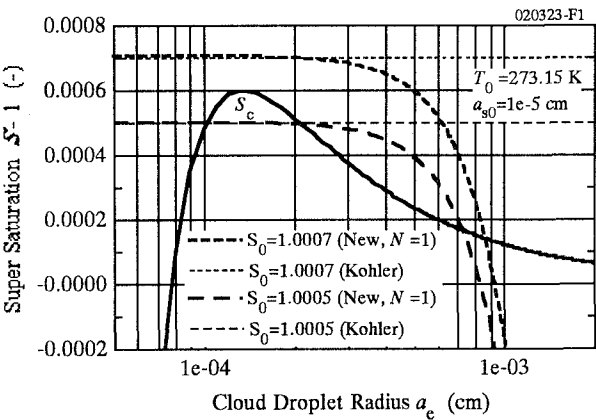


Figure 1. Relationships between Super Saturation and Equilibrium Radius.

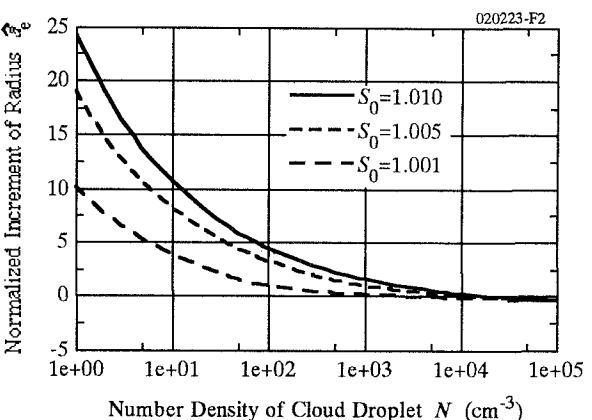


Figure 2. Relationships between Equilibrium Radius and Number Density of CCN.

例えば、 S_0 が 1.0005 の場合、過飽和曲線は水平な細い破線であり、交点は二つあり、雲粒の平衡半径は小さい方の交点の X 座標として求められる。しかし、 S_0 が 1.0007 の場合は、水平な細い点線の過飽和曲線とは交点を持たない。したがって、雲粒の平衡半径は求められない。

(B) 新しいモデル

式(5)から(7)を連立して解く新しいモデルでは、Köhler 曲線は Köhler モデルの山形曲線と同じ形となるが、過飽和曲線は式(6)から明らかなごとく水平な直線ではなく太い点線あるいは破線で示す様な右下がりの曲線となる。この様子はやはり、図 1 に示されている。初期飽和比 S_0 が 1.0005 の場合は、Köhler 曲線と過飽和曲線とは三つの交点を有するが、このうち最小の X 座標が雲粒の平衡半径となる。Köhler モデルの場合には交点が無く解が求められなかった初期飽和比 S_0 が 1.0007 の場合にも、新しいモデルでは交点を有し、雲粒の平衡半径が求められる。この場合、初期飽和比が高いので、平衡半径がかなり大きくなる事も理にかなっていると言えよう。

3.2 凝結核の個数密度 N が雲粒平衡半径に及ぼす影響

雲粒の平衡半径 a_e 、平衡温度 T_e 、平衡飽和比 S_e の初期状態からの変化量を示す変数として下記の様な無次元変数を導入する。雲粒凝結核の初期半径は固定している。

$$\hat{a}_e = \frac{a_e - a_p}{a_p} \tag{12}$$

$$\hat{T}_e = \frac{T_e - T_0}{\Delta T_{as}} \tag{13}$$

$$\hat{S}_e = \frac{S_e - S_0}{S_0} \tag{14}$$

ただし、 a_p はポテンシャル半径と呼ばれ、Köhler モデルにおいて飽和比を $S_0 = 1$ とおいて求められる。 T_0 、 S_0 はそれぞれ初期温度、初期飽和比であり、 ΔT_{as} は次式で与えられる温度差である。

$$\Delta T_{as} = \Delta \Gamma_{as} \times 1 \text{ m} = 4.0 \times 10^{-3} \text{ C} \tag{15}$$

$$\Delta \Gamma_{as} = \Gamma_a - \Gamma_s \approx (9.8 - 5.8) \times 10^{-3} = 4.0 \times 10^{-3} \text{ C/m} \tag{16}$$

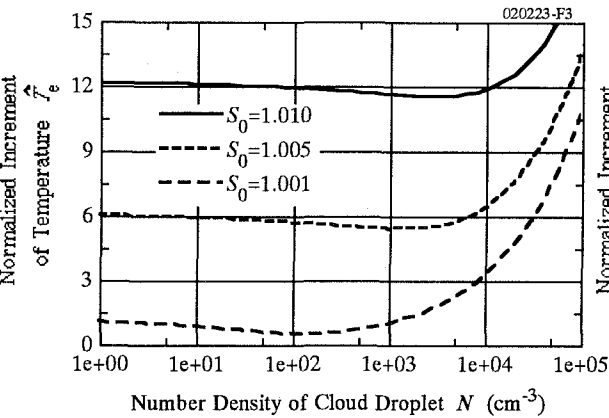


Figure 3. Relationships between Temperature Increment and Number Density of CCN.

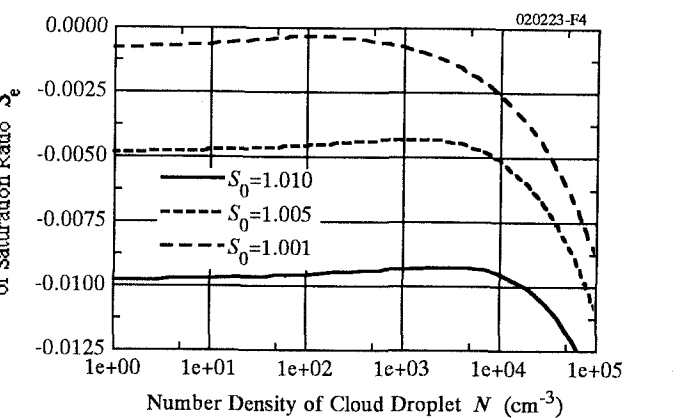


Figure 4. Relationships between Saturation Ratio Decrement and Number Density of CCN.

Γ_a 、 Γ_s はそれぞれ乾燥空気の上昇時の体積膨張による温度低下の割合、すなわち、乾燥断熱減率、水蒸気で飽和した空気上昇時の飽和断熱減率である。したがって、その差 $\Delta\Gamma_{as}$ は飽和水蒸気の凝結による気塊の温度上昇率に相当する。ただし、1000mb、0℃の場合である。

図2に無次元平衡半径 $\hat{a}_e$ とCCNの個数密度 N との関係を示す。予想されるごとく、個数密度が大きくなる程、無次元平衡半径は小さくなっている。これは雲粒のお互いの競合的成長の効果によるものである。ほぼ $N=1000$ より小さい個数密度に対する領域では、個数密度の増加とともに無次元平衡半径は劇的に減少する（成長量が小さくなる）様子が見られる。一方、これより大きい個数密度の領域での減少の仕方は小さくなってくる。これは、後述の大気水蒸気の変化を示す図4と対比すると、CCN個数密度による水蒸気の消費のされ方の変化に起因するものと考えられる。また、CCN個数密度の平衡半径減少に対する影響の程度は大気水蒸気の初期飽和比が大きい程、大きくなる事がわかる。

図3に無次元平衡温度 $\hat{T}_e$ とCCNの個数密度 N との関係を示す。予想されるごとく、初期飽和比 S_0 が大きい程、無次元平衡温度は高くなっている。大気水蒸気の凝結潜熱による雲粒と水蒸気を含む気塊の温度上昇は、 10^{-3} C程度のものであり、雲粒の平衡半径の変化量を支配する物性値に影響をおよぼす程のものではない。しかし、気象学的にみれば、上昇する気塊中の飽和水蒸気の断熱凝縮によりもたらされる温度変化よりも大きく、個数密度が大きくなれば、その十数倍にも達する大きな温度変化の生じる事が分かる。図の曲線はいずれも無次元平衡温度に最小値を有する。この最小値に対応する個数密度の値は初期飽和比が大きい程大きくなっている。

図4に無次元平衡飽和比 $\hat{S}_e$ とCCNの個数密度 N との関係を示す。図3で大気水蒸気の凝結潜熱による温度の上昇が正である事より、大気水蒸気が消費され、式(14)で定義される無次元飽和比は負となる事が予想される。図4の結果は、図3より予想されるとおりである。初期飽和比が大きい程、大気水蒸気の減少は大きくなっている。これらの曲線は図3の場合とは逆にいずれも最大値を有する。雲粒とその周囲の気塊の温度上昇は水蒸気凝結（水蒸気の消費）がもたらす潜熱の放出による事より、図3の曲線と図4の曲線とはX軸に関して対称の様な関係にあるのは当然の事とも言えよう。

4 結論

本数式モデルを用いて行った数値シミュレーションの結果、次ぎの様な事が言える。

- (1) 大気水蒸気の初期飽和比が大きければ大きい程、競合的成長（雲粒凝結核が多数存在する場合）による雲粒平衡半径の減少は、より顕著になる。
- (2) 雲粒凝結核個数密度に対する無次元平衡温度（温度上昇に相当）の曲線は最小値を有する。
- (3) 雲粒凝結核の増加による雲粒を含む気塊の温度上昇は、雲粒の平衡半径に影響をおよぼす程ではないが、水蒸気で飽和した気塊の上昇による断熱上昇温度と比較すると可成り高い。
- (4) 大気水蒸気の減少の仕方は、温度上昇の仕方と反対の様にふるまう。

参考文献

1. Pruppacher H. R. and Klett J. D. (1980). Microphysics of Clouds and Precipitation, D. Reidel Publishing Co., Dordrecht, Holland, pp.350-353 and 412-447.
2. Shiba S., Hirata Y. and Yagi S. (2001). Effect of Number Density of CCN on Condensational Growth of Cloud Droplet, Journal of Aerosol Science, Vol.32, No.S1, pp.581-582.