

16. 異粒径の凝結核が共存する気塊中での競合的成長による雲粒平衡半径の評価

Estimation of Equilibrium Radius of Cloud Droplet Competitively Grown in Air Parcel Containing Multi-Sized Cloud Condensation Nuclei

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 pressure and constant temperature. However, consumption of the ambient vapor due to condensational growth decreases the ambient water vapor pressure and increases the temperature. 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, saturation ratio and temperature has been developed with use of the mass and the heat conservation laws. These laws are applied for the control volume of the air parcel which contains multi-sized CCN. Variations of droplet size, decrement of saturation ratio and increment of temperature with CCN composition (size and number) in air parcel are simulated numerically. The results of numerical simulations with this model show that competitive growth of droplets on multi-sized CCN is controlled by large size CCN.

KEYWORDS; acid rain, cloud droplet size, condensational growth, heat release, vapor consumption

1 緒論

降水の水質は雲粒や雨滴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。通常、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）とウォッシュアウト（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。本研究は特にレインアウトを支配する雲粒の成長とサイズの評価をより合理的に行おうとするものである。

雲粒は大気水蒸気の凝結成長によって生成されるが、その場合の雲粒の大きさの簡便な評価式として、雲粒の平衡半径を与える Köhler 方程式（Pruppacher and Klett, 1980）が従来からよく利用される。しかし、Köhler 方程式が実際の雲粒のサイズの評価には無視し得ない矛盾を含む事は、今までにこの地球環境シンポジウムでも明かにしてきた。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、無限の大気水蒸気存在である。すなわち、大気水蒸気圧（したがって、水蒸気の飽和比）も温度も変化しないものと仮定する。筆者らは実際の大気における様に気塊内で多数の雲粒が競合的に成長する場合にはこの様な仮定の成立は困難であり、Köhler 方程式の与える平衡半径は現実的でない事を数値シミュレーションによって明らかにした。ただし、すでに提案した雲粒平衡半径を求めるモデルの誘導に際しては、雲粒凝結核（CCN）が均一な粒径を有するものと仮定していた。

気塊内の CCN も粒径分布を有するが、その場合数式モデルの誘導過程や数値計算の方法は、これまでに述べた均一粒径の CCN に対するモデルをそのまま適用する事は出来ない。そこで、

* 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.

CCN が粒径分布を有する場合に対応可能な数式モデルを新たに組み立てた。先のモデル (Shiba et al., 2001) と同様に雲粒大気間での化学ポテンシャルの平衡条件式の他に、Köhler モデルが考慮しない気塊中の水分の質量保存式と熱エネルギー保存式を連立させた。質量保存式を適用する空間を CCN 一個当たりから全 CCN を含む気塊全体とした為に質量保存式が変更されている。

今回新たに開発した数式モデルでの数値シミュレーションの結果によると、以前と同様に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示された。そして、この他に、気塊中の全 CCN に関する単位質量当たりの水蒸気凝結量は全 CCN の質量が増加する程減少する事、また、気塊内の雲粒の競合的成長（雲粒の粒径分布）はより大きいサイズの CCN によって支配される事などが明らかとなった。

2 物理化学的考察に基づく数式モデルと支配方程式

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、大気中の CCN 上への凝縮は、自発的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。ここで扱う雲粒の凝縮は CCN 上への凝縮で、その CCN として硫酸アンモニウムエアロゾルを例に考察している。硫酸アンモニウムエアロゾル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、典型的な CCN となる。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 Köhler モデルと雲粒平衡半径の評価

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から、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からである。Köhler 方程式の場合、雲粒は無限の水蒸気量を有する無限空間での成長で、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気塊内の水蒸気量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く水蒸気の消費が極僅かな場合には近似的にあてはまるであろう。しかし、そうではない実際の大気中では誤差の大きい雲粒平衡半径を与える結果となる。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決定的な欠点を有する (Shiba, et al., 2001)。これは質量保存則を連立しなかった事による条件不足に起因する。

2.2 新しい数式モデルの組み立て

従来の Köhler モデルは、支配方程式が雲粒大気間の化学ポテンシャルの平衡式のみで、条件の不足したモデルである為、平衡半径の求められない様な場合が生じる。これに対して、本モデルでは雲粒と大気間の化学ポテンシャルの平衡式の他に、気塊内での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、より正確な雲粒の平衡半径を評価する事が可能となる。

水分質量の保存式と熱エネルギーの保存式とを気塊全体に適用し、化学ポテンシャルの平衡式に連立させた新しいモデルの支配方程式は次の合計 $n+2$ 個の式で与えられる。

$$d(m_w + m_v + m_a) = 0 \quad (1)$$

$$d(m_w h_w + m_v h_v + m_a h_a) = 0 \quad (2)$$

$$\mu_{wi}(S_2, T_2, a_{2i}) = \mu_{vi}(S_2, T_2, a_{2i}) \quad (i = 1, 2, 3, \dots, n) \quad (3)$$

ただし、 T_1 および T_2 はそれぞれ初期温度および平衡温度； a_{2x} は平衡活量； m_w 、 m_v 、 m_a はそれぞれ水滴、水蒸気、空気の気塊全体での質量である。 i は気塊内に n 個ある CCN のサイズクラスの各番号である。したがって、支配方程式の数は合計で $n+2$ 個となる。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。

$$\mu_{xi}(S, T, a_{xi}) = \mu_{xi0}(S, T) + RT \ln(a_{xi}) \quad (4)$$

式(1)、(2)、(3)の支配方程式より、次ぎの式(6)、(7)、(8)で与えられる、大気水蒸気の平衡飽和比、雲粒および大気の平衡温度、雲粒の平衡半径に関する作業方程式を得る。

$$m_{w2} = \frac{4}{3} \pi \rho_{w2} \sum_{i=1}^n (a_{2i}^3 \times k_i) \quad \left(\sum_{i=1}^n k_i = N \right) \quad (5)$$

$$S_2 = S_1 (1 - A_3 \sum_{i=1}^n (a_i^3 \times k_i)) A_4 \quad (6)$$

$$T_2 = T_1 + \frac{L_e(T_1) m_{w2}}{\Delta C_p m_{w2} + C_{pv} m_{v2} + C_{pa} m_{a2}} \quad (7)$$

$$\ln(S_2) = \frac{A_1}{a_i} - \frac{A_2}{a_i^3} \quad (i = 1, 2, 3, \dots, n) \quad (8)$$

ただし、 C_{px} は定圧比熱； L_e は水蒸気の凝縮潜熱である。 k_i はサイズクラス i に CCN が k_i 個存在する事を示す。上式中の各係数 A_x は次式で与えられる。

$$A_1 = \frac{2 M_w \sigma}{R_3 T_2 \rho_{w2}} \quad (9)$$

$$A_2 = \frac{3 v m_s M_w}{4 \pi M_s \rho_{w2}} \quad (10)$$

$$A_3 = \frac{4 \pi \rho_{w2} R_1 T_1}{3 M_w e(T_1)} N \quad (11)$$

$$A_4 = \frac{n(T_1) e_{sat}(T_1)}{n(T_2) e_{sat}(T_2)} \quad (12)$$

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[atm cm³/(mol K)]および[erg/(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 は気塊内の全 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。

ここで注意すべき事は、式(8)の形は一見 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定数で初期値 s_1 （既知）のままという事である。これに対して、本モデルの式(8)における飽和比は未知の変数の平衡値 s_2 である。また、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、式の形より雲粒が大きくなる程平衡飽和比の減少する事がわかる。さらに、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。

次の表 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。前述の様に温度変化はこれらの物性値に有為な変化を与える程大きくはないので一定値を用いている。

Table 1. Value of Physical Properties (1)

R_1	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_c	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 異なる粒径の CCN が共存する気塊に対する数値シミュレーション

数値計算上の簡単の為に、表 3 に示す様な三つのタイプの気塊に対して数値シミュレーションを行った。すなわち、数値シミュレーションに用いた気塊内の雲粒凝結核の初期半径は小、中、大の三つの CCN のサイズ（半径）クラスとした。小径は 1.0×10^{-5} cm、中径は 5.0×10^{-5} cm、大径は 1.0×10^{-4} cm、である。これら小、中、大の CCN サイズとその個数の組み合わせによって、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、中サイズの CCN のみのタイプ 2 の気塊、大サイズの CCN が多いタイプ 3 の気塊に分類した。

Table 3. CCN Composition in air parcel ($N = 1500 \text{ cm}^{-3}$)

Type 1 (small CCN rich)		Type 2 (even distribution)		Type 3 (large CCN rich)	
Radius (cm)	Number	Radius (cm)	Number	Radius (cm)	Number
1.0×10^{-5}	750	1.0×10^{-5}	500	1.0×10^{-5}	250
5.0×10^{-5}	500	5.0×10^{-5}	500	5.0×10^{-5}	500
1.0×10^{-4}	250	1.0×10^{-4}	500	1.0×10^{-4}	750

3.1 雲粒平衡半径と CCN 半径

図 1 に本モデルで計算した雲粒の平衡半径と CCN の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。雲粒の個数密度は 1500cm^{-3} である。各曲線はほぼ直線と見なせるが、その勾配は大きい CCN を多く含むタイプの気塊程緩やかである。すなわち、気塊が大きい CCN を含む程、どのサイズにおいても、雲粒の平衡半径は小さくなる。同一サイズクラス内での競合的成長という観点からは、当該サイズでは CCN 個数の多いタイプほど平衡半径が小さくなると考えられるので、CCN サイズ $1.0\text{e-}04\text{cm}$ での各気塊タイプの平衡半径の順位は予想どおりと言えよう。しかし、CCN 個数の多少がこれと異なる他の CCN サイズに対してもやはり同じ順位となるのは意外である。大サイズ CCN の影響が他のサイズクラスにまで及んでいると考えられる。気塊内雲粒の粒径分布が大サイズの CCN に支配される事がうかがわれる。

3.2 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減少評価に、次の無次元量（この絶対値は半径減少率）を導入する。

$$\hat{a}_i = (a_i - a_p) / a_p \quad (13)$$

ただし、 a_p はポテンシャル半径である。この値（負）の絶対値が大きい程、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、大サイズ CCN に対す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、減少率は大きい。減少率もサイズクラスを越えて大サイズ CCN に支配されていると言える。

3.3 温度の上昇と飽和比の減少

気塊の各タイプに対する飽和比の減少と温度の上昇を図 3 に示す。ただし、飽和比の減少と温度の上昇はそれぞれ次の式(14)、式(15)で定義している。

$$\Delta S_2 = S_2 - S_1, \quad \Delta T_2 = T_2 - T_1 \quad (14), (15)$$

大サイズ CCN を含む割合の大きいタイプの気塊程、飽和比減少が大きく（破線プロット）、また、温度上昇も大きい（実線プロット）という結果が得られた。この結果は水蒸気凝結により気塊内水蒸気が消費され、凝結潜熱が気塊内に放出される事を考えると予想どおりの結果である。

3.4 気塊内の全凝結水量と CCN 単位質量当たりの凝結水量

CCN の総質量が大きくなればなる程、雲粒となる水蒸気的全凝結量（雲粒の全生成量）は多くなる。水蒸気の凝結量は CCN 質量の増加関数となるからである。この様子は図 4 の実線プロットで確認される（大 CCN を含む割合の大きいタイプの気塊程、CCN の総質量は大きい）。ところが、総 CCN の単位質量当たりの水蒸気凝結量で見ると、図 4 の破線プロットの様、逆に、CCN の総質量が大なる程減少している。これは、大サイズの CCN が支配する競合的成長では、大サイズ内での競合的成長がもたらす全体への影響の大なる事に因るものと考えられる。

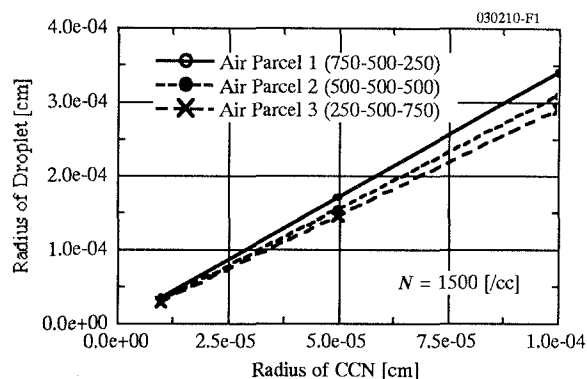


Figure 1. Relationships between CCN Size and Equilibrium Radius.

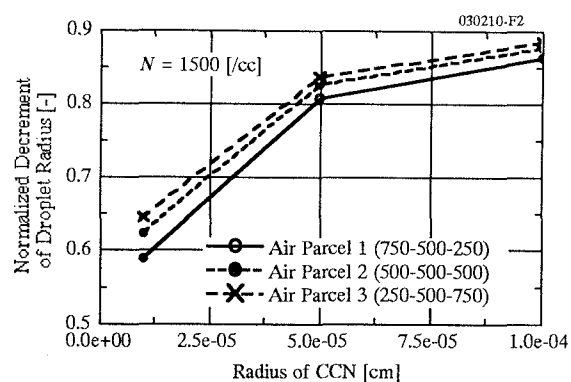


Figure 2. Relationships between CCN Size and Droplet Size Reduction.

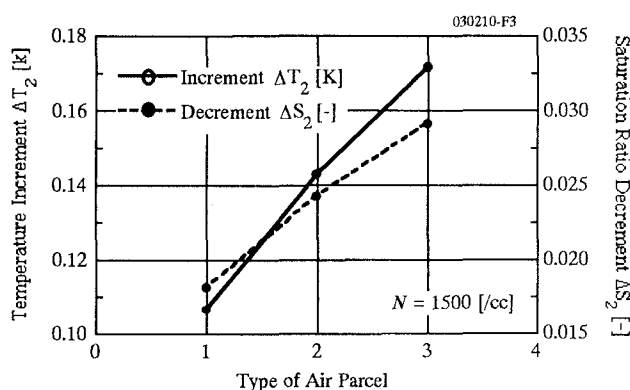


Figure 3. Temperature Increment and Saturation Ratio Reduction on Air Parcel Type.

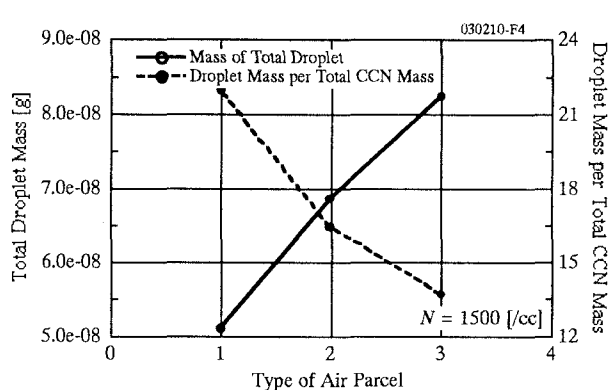


Figure 4. Variation of Droplet Production with Air Parcel Type.

4 結論

本モデルによる数値シミュレーションの結果、以下の事が明らかとなった。(1) 異粒径の CCN が共存する気塊内での大気水蒸気凝結による雲粒の平衡半径は、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、気塊内の水蒸気の凝結水量は多くなるが、総 CCN の単位質量当たりの凝結水量は逆に少なくなる。

謝辞

C. F. Clement 博士より本モデル作成に関し有益なコメントを頂いた。また、本研究は文部科学省の科学研究補助金特定領域研究「微粒子の環境影響」(U-91532-01-0)の補助により行った。

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.