

付録『雲の物理とエアロゾル』

近藤 豊・小池 真

I 各章の発展解説

II 参考書籍

III 本文と付録で引用した文献

本書では多岐にわたる分野を系統的に説明している。そのため各分野の知識と理解が必要となる。これらを全て読者（特に初学者）が他書を参考にして短期間に学ぶことは、大きな負担となる可能性がある。他書を参考にすることなく、本書の本文の内容をより深く理解することができることを目的として、重要な項目を詳細に解説した。いくつかの項目については当該分野の専門家である以下の方々に執筆、数値モデル計算結果の表示、図の作成、コメントなどをお願いした。これらの方々の貴重なご尽力には深く感謝する次第である。ただし、著者はこの付録の全ての内容に最終的な責任を負っている。

2024年5月

近藤 豊・小池 真

付録 I の協力者（五十音順）とその章・節

大畑祥：10A13, 12A1, 16A1

川合秀明：11A2

竹川暢之：9A2

松井仁志：6A3, 6A4, 10A3, 10A11, 16A2

廣川淳：10A4, 10A6, 10A7, 10A8, 10A12

宮崎雄三：10A7

森樹大：4A1, 7A4

森野悠：16A3

I 各章の発展解説

第2章

2A1 H₂O 分子の形と水素結合の模式図

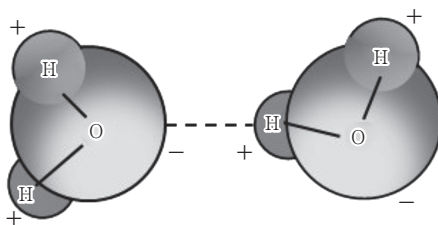
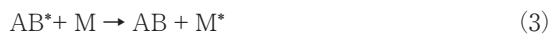


図1 O と H の原子核の間の距離は約 1\AA (0.1 nm) であり, H-O-H の結合の角度は約 105° である. H は + に, O は - に帯電し H₂O 分子は分極している. 1 つの H₂O 分子は他の H₂O 分子と電氣的に引き合い, + と - の電荷が向き合うように配列する傾向が生じる. これを水素結合という.

2A2 三体反応

三体反応は A, B の 2 つの成分が反応し, 1 つの成分 AB が生成される反応である. この反応では, 励起された中間生成物 AB* が第三体 M の衝突により, エネルギー的に安定化する. 一連の過程は



I 各章の発展解説

である。第三体 M は AB* から過剰なエネルギーを取り除き、最終的にそれを熱エネルギーとして消散することのできる不活性な分子である。これは主として、N₂ と O₂ である。この一連の反応は



と記される。

反応(1), (2), (3)の反応係数をそれぞれ k_1, k_2, k_3 と書くと、反応速度（単位体積中で単位時間当たり反応する分子数）は

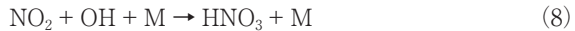
$$\begin{aligned} -\frac{d[A]}{dt} &= -\frac{d[B]}{dt} = \frac{d[AB]}{dt} = \frac{k_1 k_3 [A][B][M]}{k_2 + k_3 [M]} = \frac{k_1 k_3}{k_2} [A][B][M] \\ &= k [A][B][M] \text{ (molecules cm}^{-3} \text{ s}^{-1}\text{)} \end{aligned} \quad (6)$$

となる。ここで

$$k = \frac{k_1 k_3}{k_2} \quad (7)$$

である。式(6)右辺の展開においては、 $[M] \ll k_2/k_3$ という近似を用いている。大気中ではこの近似は良い精度で成り立つ。式(7)の反応速度定数 k は、 $\text{cm}^6 \text{ molecules}^{-2} \text{ s}^{-1}$ の次元をもち、二体反応の反応速度定数 k の次元 $\text{cm}^3 \text{ molecules}^{-1} \text{ s}^{-1}$ とは異なることに注意されたい。

三体反応の重要な具体例として、気体の HNO₃ の生成反応



がある。気体の HNO₃(g) は気体の NH₃(g) と



の反応をして固体の硝酸エアロゾル NH₄NO₃(s) を生成する (7.6 節)。

2A3 ラジカルによる連鎖反応

大気中での多くの反応性気体の濃度は、実験室で実現できる濃度に比べかなり低く、気体分子間の衝突頻度はかなり低い。そのため多少の例外を除けば、少なくとも 1 種類のラジカル (radical) 成分が気相反応に含まれていなければ、その反応は大気中では十分な速さで進行しない。

原子・分子・イオンを構成するいずれかの原子がその最外殻に不対電子を持つ場合、それらをラジカルあるいはフリーラジカルと呼ぶ。大気中での化学反応において OH は最も重要なラジカル成分の一つである。非ラジカル成分とは、最外殻に不対電子を持たない化学種である。ラジカル成分は不対電子を持つので非ラジカル成分に比べ高い自由エネルギーを持ち、反応性が極めて高い。

ラジカルが関与する反応の例として



を考える。この反応では非ラジカルの CH_4 から水素原子が抜き取られて、不対電子を持つラジカル CH_3 (メチルラジカル) となる。つまりラジカルはこの反応では消滅せず別のラジカルが生成することになる。この反応で生成する H_2O は非ラジカルである。

ラジカルは高い自由エネルギーを持っているため、非ラジカル成分からラジカルが生成する反応は、一般的に吸熱反応 (外部からエネルギーを吸収することで起きる反応) である。大気中では、多くの場合、このエネルギーは太陽放射から与えられ、



で、ラジカルが初めて生成する。生成したラジカルが非ラジカルと反応することにより、別のラジカル成分となり、ラジカルが



というように連鎖的に反応が伝搬する。この反応で不対電子を持つ成分が必ず生成することは、反応(1)の例から理解できる。反応(3)において生じた非ラジカルが光解離して新たなラジカルが生じることもある。これにより、ラジカル数が増加し、連鎖反応が加速される。これを分枝反応 (branching reaction) と呼ぶ。

この連鎖反応が停止するためには不対電子を持つ2つのラジカルが反応する必要がある。すなわち



あるいは



という反応である。ここで M は N_2 , O_2 などの第 3 体である。ラジカルの濃度は非ラジカルの濃度に比べ低く、ラジカル同士の衝突頻度は小さい。このため、ラジカルが消滅する反応は伝搬反応(3)に比べ遅い。

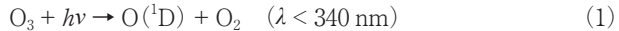
大気中でのラジカルによる連鎖反応が開始されるためには、太陽放射による光解離作用が必要である。光解離を含む反応過程は光化学反応と呼ばれる。

以上述べた反応のタイプの具体例は次の付録 2A4 で示される。そこで現れる反応の多くが、上記のタイプに分類できることがわかる。

2A4 対流圏の光化学過程

1. OH の生成

対流圏での OH と O_3 の化学過程は密接に結びついている。実際 OH の主要な生成源は O_3 の光解離である。 O_3 は波長 λ が 340 nm より短い太陽光を吸収し



と解離し、 $\text{O}({}^1\text{D})$ を生成する。ここで、 $\text{O}({}^1\text{D})$ は励起された一重項の O 原子である。この $\text{O}({}^1\text{D})$ の大部分は、 N_2 および O_2 分子と衝突し、



の反応により、基底状態の $\text{O}({}^3\text{P})$ に脱励起される。しかし $\text{O}({}^1\text{D})$ の一部は水蒸気分子との反応、

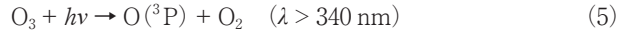


により OH ラジカルを生成する。対流圏での H_2O の混合比は 1% 程度であり、反応(3)の速度定数は反応(2)に比べ約 10 倍であるため、生成される $\text{O}({}^1\text{D})$ のうち約 10% が OH を生成する。 O_3 が反応(1), (3)で OH に変換される過程は O_3 の大きな損失過程でもある。 O_3 は地表面への沈着でも失われる。

一方、反応(2)で生成される $\text{O}({}^3\text{P})$ は O_2 との反応



により O_3 に戻る. $\lambda > 340 \text{ nm}$ の太陽光による O_3 の解離,



で生成される $O(^3P)$ も O_3 に戻る. 昼間は反応(2), (5)による $O(^3P)$ の生成は, 反応(4)による $O(^3P)$ の消失と, ほぼ釣り合う.

2. OH の反応

OH は大気の主成分とは反応せず, O_2 を含む大気中において連鎖反応を開始する機能がある. この触媒反応サイクルの中ではOH は消費されることなく再生される. このため高い反応性にもかかわらず日中のOH 濃度は高く維持され, 最大 10^7 cm^{-3} 程度に達する. この反応過程を理解するのに適した例はOH と一酸化炭素CO との反応である.



の反応により, 安定した最終生成物である CO_2 が生成される. またこの反応で, 非常に反応性の高い水素原子H が生成される. H は直ちに O_2 と結合し



により, ヒドロペルオキシラジカル (hydroperoxyl radical) HO_2 を生成する (伝搬反応). O_2 にH が付加されたことで, 酸素原子間の結合が弱まるため, HO_2 は O_2 に比べ反応性が大きく増加する. 特に重要な反応は一酸化窒素NO の酸化



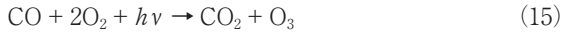
である. NO の人為的発生源の影響が大きい大気境界層中での昼間のNO 混合比は 0.1 ppbv を超えることが多い. ここで ppbv (parts per billion by volume) は体積混合比が 10^{-9} であることを表す. このような環境条件での HO_2 の反応としては反応(8)が最も速い. 反応(6)で消費されたOH がこの反応で再生 (リサイクル) される点が重要である. この反応に限らず, 一般にOH と他種の分子とのほとんどすべての反応系ではこのような連鎖反応が起き, OH が再生されるのである. 反応(8)で HO_2 をより反応性の高いOH に戻す働きをするNO はOH の収支に重要な役割をしている. OH と HO_2 は短時間で相互に変換されるので, まとめて HO_x と呼ぶ.

I 各章の発展解説

反応(8)で生成された二酸化窒素 NO_2 は昼間には近紫外 - 可視領域の太陽光で数分以内に



と光分解される。ここで生じた O 原子は反応(4)で直ちに O_3 を生成する。OH ラジカルの反応(6), (7), (8) に反応(9), (4) を加えると



という正味の反応(15)になる。これが対流圏での O_3 の重要な生成過程である。この反応系では、ラジカルである OH, HO_2 , NO, NO_2 は消費されずに上記の5つの反応が繰り返し起きる。また CO と O_2 はそれぞれ CO_2 と O_3 への酸化により正味に消費される。

CO よりも複雑な化合物である揮発性有機化合物 VOCs (volatile organic compounds) を考える。 $\text{C}_n\text{H}_{2n+2}$ (n は正の整数) の分子式で表されるアルカンから H 原子を 1 つ取り去った原子団 $\text{C}_n\text{H}_{2n+1}$ をアルキル基 (alkyl group) と呼び R で表す。形式的に書けば



である。C 原子を 1 つ含む CH_4 を考えてみる。空間的に比較的均一に分布する CH_4 の OH による酸化



では CH_3O_2 ($\text{R} = \text{CH}_3$) が生成される。清浄な大気中では約 70% の OH が反応(6)で CO と反応し、約 30% の OH が反応(17)で CH_4 と反応する。 CH_3O_2 は HO_2 の反応(8)と同様に NO を NO_2 に変換しオゾン生成に寄与する。反応(15)からわかるように 1 個の CO 分子の酸化で 1 個の O_3 が生成される。同様に考えると 1 個の CH_4 分子の酸化で最大 3.5 個の O_3 が生成されることが示される。

CO, CH₄, あるいは, より複雑な VOC の酸化による O₃ の生成では NO_x (NO と NO₂) が触媒として作用する. 触媒とは, それ自体は変化せずに反応を促進する成分のことである. 陸域などの NO > 30 pptv の領域では O₃ が生成される. ここで pptv (parts per trillion by volume) は体積混合比が 10⁻¹² であることを表す. 一方, 遠隔の海洋上で NO は非常に低濃度になるため, HO₂ は反応(8)ではなく O₃ と反応する頻度が増す. その場合

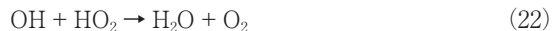


の反応サイクルで O₃ が消失する.

O₃ は OH の主たる生成源であり, それ自体も酸化能がある. このため O₃ は対流圏の酸化能を支配する重要な要素である. 対流圏オゾンは, このような化学過程と, 成層圏からの輸送に影響される. NO_x 濃度が高く, 人為起源・自然起源の VOC の濃度も高い地域では VOC は CH₄ と類似した複雑な酸化反応により O₃ を生成するため地表面付近で O₃ が高濃度になり, 人間の健康や植物の生育に悪影響が生じる. また O₃ は地表面から射出される赤外放射のうち λ = 9.6 μm 付近の赤外放射を吸収するため温室効果を持つ.

3. HO_x の消滅

HO_x を正味消滅し, 連鎖反応を停止させる過程は, HO_x ラジカルと他のラジカルとの反応 (付録 2A3 の式(4)) である. 主な反応は



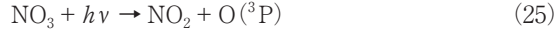
である.

4. NO₃ の化学

NO₃ は比較的遅い反応



で生成される. 日中には NO₃ は



により、数十秒で光解離するので NO_3 濃度は極めて低くなる。夜間はこの反応が働かないため、 NO_3 濃度は時間とともに増加していく。一方 NO_3 は



の反応でその一部が N_2O_5 に変換される。 N_2O_5 は水を含んだエアロゾル、霧、雲粒子の表面での不均一反応



で HNO_3 に変換され、大気中から失われる。

5. OH, O_3 , NO_3 の分布と微量気体の酸化速度

大気微量成分を酸化する機能を持つ成分である主要な酸化剤は OH, O_3 , NO_3 である。これらの酸化剤による大気微量成分 A の酸化の時定数 τ を求めることができる。2.6 節で説明したように τ は空気塊中での酸化剤の濃度と、酸化剤と成分 A との反応速度定数で決まる。

図 1 に 3 次元の化学輸送モデルで計算された OH, O_3 , NO_3 濃度の緯度 - 高度分布を示した。全球平均した OH 濃度は約 $1.0 \times 10^6 \text{ cm}^{-3}$ であり、これまでの観測と良く一致している。OH 濃度は大きな緯度変化をし、日射が最大となる低緯度で最も高くなる。また高度 4 km 付近で最大となる。 NO_3 の地表付近での平均濃度は約 $3\text{--}15 \times 10^7 \text{ cm}^{-3}$ で OH に比べ 10 倍以上高く、夜間での酸化反応に重要となる。また OH, O_3 , NO_3 濃度は南半球よりも北半球で高い。これらの成分の濃度に影響する大気微量成分の自然・人為的な発生量が大陸上で大きいためである。

SO_2 と二硫化ジメチル (DMS) はそれぞれ人為起源および自然起源の硫酸エアロゾルの主要な前駆気体である (第 10 章)。 SO_2 の気相での酸化は主として OH による。DMS の酸化には OH と NO_3 が重要である。

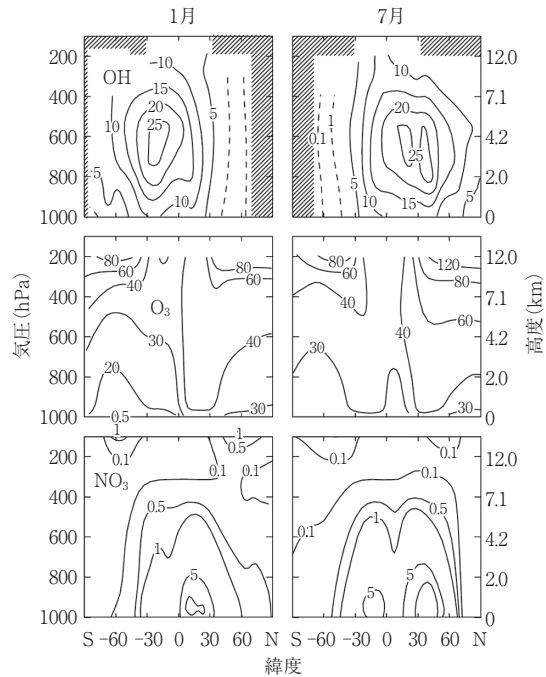


図1 3次元モデルで計算されたOH(単位は 10^5 cm^{-3}), O_3 (ppbv), NO_3 (pptv)の濃度の緯度-高度分布. 左は1月, 右は7月の値. Ehhalt *et al.* (2015) を改変.

第3章

3A1 熱力学的な系

図1に示したように注目している系を考え, それ以外のすべての系を外界とする. 系と外界の定義からそれらを合わせた系は, 宇宙全体である. 宇宙全体ではなくとも, 系と系を取り囲む十分大きな領域は良い近似で孤立系であると考えられる.

I 各章の発展解説

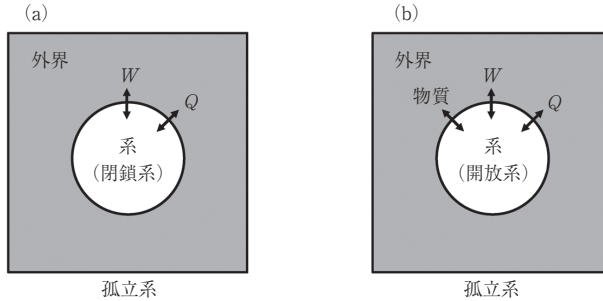


図1 (a) 外界と仕事(W)および熱(Q)のやり取りのみがある系 (閉鎖系), (b) 外界と仕事(W)および熱(Q)のやり取りがあることに加え, 物質の出入りがある系 (開放系). (a), (b) のいずれの場合でも, 系と外界を合わせたものは孤立系である.

3A2 気体になされる仕事

物体に力 F が作用し, 力の方向に距離 dx だけ物体が移動する場合, 物体になされる仕事 δW は,

$$\delta W = F dx \quad (1)$$

である. 系が気体の場合の δW を求める.

図1に示したように, ピストンを備えたシリンダー中の気体を準静的に圧縮する過程を考える. 気体の圧力を p とし, ピストンの面積を A とすると, 気体からピストンに働く力は pA である. 平衡に十分近い状態でピストンを押す力 F は pA に等しい. したがって, ピストンを dx 押し込んだ時に系になされる仕事は

$$d'W = F dx = pA dx \quad (2)$$

である. $A dx$ は気体の体積 V の減少 $-dV$ に等しいので

$$d'W = -p dV \quad (3)$$

となる.

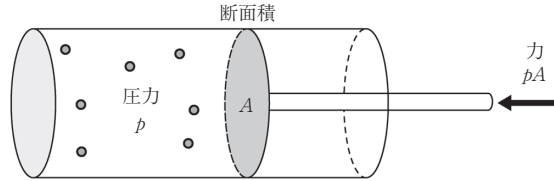


図1 圧力 p の気体が入ったシリンダーに断面積 A のピストンを押し込む様子

第4章

4A1 気体分子の速度分布と平均速度

1. 速度分布

気体分子運動論によれば、温度 T の理想気体の中で熱運動している分子の速度 $v(v_x, v_y, v_z)$ が $(v_x, v_x + dv_x)$, $(v_y, v_y + dv_y)$, $(v_z, v_z + dv_z)$ の範囲にある確率は

$$f(v) dv_x dv_y dv_z = \left(\frac{m}{2\pi kT} \right)^{3/2} \exp\left(-\frac{mv^2}{2kT}\right) dv_x dv_y dv_z \quad (1)$$

で与えられる。ここで m は単一分子の質量で k はボルツマン定数であり、

$$v^2 = v_x^2 + v_y^2 + v_z^2 \quad (2)$$

である。これをマクスウェルの速度分布という。

速さが $(v, v + dv)$ の領域を考える。これは速度空間において半径 v 、厚さが dv の球殻に相当する。この速度領域にある分子の確率は

$$F(v) dv = 4\pi v^2 f(v) dv = 4\pi \left(\frac{m}{2\pi kT} \right)^{3/2} v^2 \exp\left(-\frac{mv^2}{2kT}\right) dv \quad (3)$$

となる。ここで $F(v)$ は確率密度と呼ばれる (図1)。 $F(v)$ は dv の大きさにはよらない。 $F(v)$ に無限小の dv をかけると実際の確率となる。確率密度は5.1節の粒径分布関数と類似した数学的概念である。 $F(v)$ の定義から

$$\int_0^{\infty} F(v) dv = 1 \quad (4)$$

となる。これは式(3)の最右辺を式(4)の左辺に代入すれば再確認できる。

2. 平均速度

$F(v)$ が最大となる最大確率速度 v_m は

$$\frac{dF(v)}{dv} = 0 \quad (5)$$

の条件より求まり,

$$v_m = \sqrt{\frac{2kT}{m}} \quad (6)$$

となる. 分子の平均速度は確率密度を用いて

$$\bar{v} \equiv \int_0^{\infty} v F(v) dv \quad (7)$$

と表される. この式の右辺に式(3)を用いれば

$$\bar{v} = 4\pi \left(\frac{m}{2\pi kT}\right)^{3/2} \int_0^{\infty} v^3 \exp\left(-\frac{mv^2}{2kT}\right) dv = 4\pi \left(\frac{m}{2\pi kT}\right)^{3/2} \frac{1}{2} \left(\frac{2kT}{m}\right)^2 \quad (8)$$

となる. 最右辺を整理すれば

$$\bar{v} = \sqrt{\frac{8kT}{\pi m}} \quad (9)$$

を得る. また同様に

$$\overline{v^2} \equiv \int_0^{\infty} v^2 F(v) dv = \frac{3kT}{m} \quad (10)$$

となる. これより根平均 2 乗速度 (root mean square velocity)

$$v_{\text{rms}} \equiv \sqrt{\overline{v^2}} = \sqrt{\frac{3kT}{m}} \quad (11)$$

を得る.

3. エネルギーの等分配則

分子の運動エネルギーの平均値は

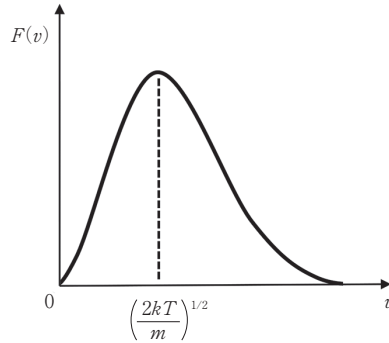
$$\bar{\varepsilon} \equiv \frac{\overline{mv^2}}{2} = m \frac{\overline{v^2}}{2} = \frac{3kT}{2} \quad (12)$$

となる. 気体分子のエネルギーは, 速度の x, y, z 成分で表すと

$$\varepsilon = \frac{m}{2}(v_x^2 + v_y^2 + v_z^2) \quad (13)$$

となる. 理想気体では分子の運動の方向に関する特異性はないと考えられる.

したがって分子運動は x, y, z 方向で同等であり,

図1 確率密度 $F(v)$ の関数形

$$\overline{v_x^2} = \overline{v_y^2} = \overline{v_z^2} = \frac{1}{3} \overline{v^2} \quad (14)$$

となる。式(12), (13), (14)より

$$\frac{\overline{mv_x^2}}{2} = \frac{\overline{mv_y^2}}{2} = \frac{\overline{mv_z^2}}{2} = \frac{kT}{2} \quad (15)$$

となる。このことより、気体分子の運動エネルギーの平均値は、1つの自由度当たりに、 $kT/2$ に等分配されることがわかる。この結果をエネルギーの等分配則という。

4A2 物体表面への気体分子の衝突頻度

1. 箱の中の分子の衝突過程

分子の総数が N の理想気体が体積 V の直方体の箱の中に含まれている状態を考える。希薄な気体では分子間の距離は分子の直径よりもはるかに大きい。気体を構成する分子は分子同士の衝突や、箱の壁との衝突の際には運動エネルギーの損失はないものとする。箱の壁は滑らかであり、壁との衝突で分子の接線方向の速度の変化はないと考える。また衝突時以外には分子は相互に力を及ぼさないと仮定する。この場合には、分子は衝突と衝突の間では直線運動をする。分子が均一に分布していると考えれば、任意の体積要素中 dV での分子数 dN は

$$dN = n dV \quad (1)$$

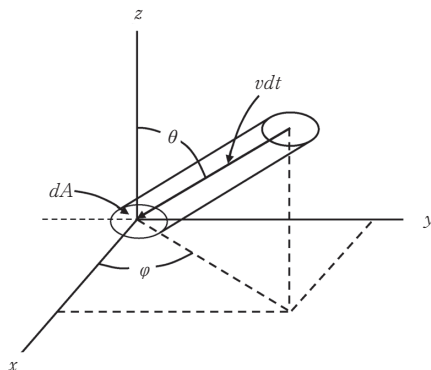


図1 面積要素 dA への分子衝突の配置図

である。ここで n は分子の平均数密度である。

壁の表面に単位面積当たり、単位時間に衝突する分子数を求めるために、図1に示したように、壁の面積要素 dA に直交するような座標系を設定する。速度 v で (θ, φ) 方向から $(d\theta, d\varphi)$ の角度範囲で入射する分子を考える。長さが $v dt$ で軸が (θ, φ) 方向を向いた円筒中にあり、この速度で、この方向に運動するすべての分子は dt の時間内に壁の面積要素 dA に衝突する。逆に、この速度と方向で dA に衝突するすべての分子はこの円筒内にある。

dt を十分小さくとれば、円筒の長さ $v dt$ は任意に小さいと考えることができるので、ここでは壁のすぐ近くの分子だけを考えればよい。この場合 $v dt$ は分子の平均自由行よりかなり小さく、分子間の衝突は考えなくてよい。つまり円筒内にあり、壁の方に進むいずれの分子も、壁にぶつかる前に分子間の衝突により曲げられことなく壁にぶつかると考えてよい。

図1より円筒の体積は

$$dV = v dt dA \cos \theta \quad (2)$$

であるのでこの円筒中にある分子数は $nv dt dA \cos \theta$ となる。

速度が $(v, v + dv)$ の範囲にある確率は付録 4A1 の式(3)の最左辺 $F(v) dv$ であるので、この速度範囲にある単位体積中の分子数 dn_v は

$$dn_v(v) = nF(v) dv \quad (3)$$

となる。式(1), (2), (3)より、この速度範囲にある円筒中の分子数は

$$dN_v = dn_v(v) v dt dA \cos \theta \quad (4)$$

である。

2. 分子の壁への衝突頻度

付録 4A1 で述べたように分子の速度分布はすべての方向で均一であるので、 (θ, φ) 方向を中心に $d\omega = \sin \theta d\varphi d\theta$ の微小立体角の範囲から分子が入射する確率 p は、全立体角は 4π であることを考慮すれば

$$p = d\omega/4\pi \quad (5)$$

である。式(4), (5)より $d\omega$ の微小立体角の範囲から分子が dA 面に単位面積当たり、単位時間に入射する数 (すなわちフラックス) は

$$p dN_v/dt dA = v dn_v(v) \cos \theta \frac{d\omega}{4\pi} = v dn_v(v) \frac{\sin \theta \cos \theta}{4\pi} d\varphi d\theta \quad (6)$$

となる。全方位からのフラックスは、式(6)を φ について 0 から 2π , θ について 0 から $\pi/2$ の範囲で積分することで求まる。この結果、速度が $v, v + dv$ の範囲にある分子の全方位からの入射フラックス $j_v(v)dv$ (molecules $\text{m}^{-2} \text{s}^{-1}$) は

$$j_v(v)dv = v dn_v(v) \int_0^{2\pi} \int_0^{\pi/2} \frac{\sin \theta \cos \theta}{4\pi} d\varphi d\theta = \frac{v dn_v(v)}{4} \quad (7)$$

と表される。この式の最右辺に式(3)を代入すれば

$$j_v(v)dv = \frac{1}{4} nvF(v)dv \quad (8)$$

となる。この式を v で積分すればすべての速度の分子によるフラックス密度 (略してフラックス) j (molecules $\text{m}^{-2} \text{s}^{-1}$) が求まる。すなわち

$$j = \int_0^{\infty} j_v(v)dv = \frac{1}{4} n \int_0^{\infty} vF(v)dv \quad (9)$$

となる。また付録 4A1 の式(7)を再掲すれば

$$\bar{v} = \int_0^{\infty} vF(v)dv \quad (10)$$

である。これを用いれば、式(8)は

$$j = \frac{1}{4} n\bar{c} \quad (11)$$

I 各章の発展解説

となる。ここでは本文に合わせて \bar{v} を \bar{c} と記した。 \bar{c} は付録 4A1 の式(9)より

$$\bar{c} = \left(\frac{8kT}{\pi m} \right)^{1/2} \quad (12)$$

で与えられる。ここで T は気体の温度、 m は単一分子の質量である。気体の圧力を p とすれば

$$p = nkT \quad (13)$$

である。式(12)と式(13)を式(11)に代入すれば

$$j = \frac{p}{\sqrt{2\pi mkT}} \quad (14)$$

となる。

4A3 フィックの第二法則

フィックの第二法則を 3次元化するために、その導出過程を 3次元で考える。蒸気中における体積 V の領域とそれを取り囲む閉曲面 S を考える。この領域に単位時間に流入する蒸気 v の分子数は

$$- \iint_S \mathbf{j}_v \cdot \mathbf{n} \, dS = - \iiint_V \nabla \cdot \mathbf{j}_v \, dV \quad (1)$$

である。ここで \mathbf{n} は S 上の任意の点での外向きの単位法線ベクトルであり、 \mathbf{j}_v は 3次元のフラックスベクトルである。この式の右辺の導出にはガウスの発散定理を用いている。一方、領域 V 内の蒸気 v の総分子数の変化率は

$$\frac{d}{dt} \iiint_V n_v \, dV = \iiint_V \frac{\partial n_v}{\partial t} \, dV \quad (2)$$

となる。式(1)と式(2)は同じ量を表すので、それらの右辺は等しいとおけば

$$\iiint_V \left(\nabla \cdot \mathbf{j}_v + \frac{\partial n_v}{\partial t} \right) dV = 0 \quad (3)$$

を得る。領域 V の大きさは任意なのでこの式の左辺の被積分関数はゼロになり、

$$\nabla \cdot \mathbf{j}_v + \frac{\partial n_v}{\partial t} = 0 \quad (4)$$

が成り立つ。これは連続の式である。この式にフィックの第一法則

$$\mathbf{j}_v = -D\nabla n_v \quad (5)$$

を代入すれば、3次元で表されるフィックの第二法則

$$\frac{\partial n_v}{\partial t} = \nabla \cdot (D_g \nabla n_v) \quad (6)$$

を得る.

4A4 完全流体の運動方程式

粘性がない仮想的な流体を完全流体と呼ぶ. 密度が ρ の完全流体中での単位体積の流体粒子を考える. 単位質量の流体粒子に作用する体積力を

$$\mathbf{f} = (f_x, f_y, f_z) \quad (1)$$

とすると単位体積の粒子に働く力は $\rho\mathbf{f}$ である. また圧力勾配による力は $-\nabla p$ である. このような力を考慮して流体粒子の運動方程式を求める. そのために、まず流体粒子の加速度の表現を求める.

1. 流体粒子の加速度

流体の運動を記述するための方法として、連続的な流体を流体粒子の集まりと考えて、流体粒子の運動に沿って物理量 A の時間変化を追跡するラグランジュ法がある. ラグランジュ法において、時刻 t での流体粒子の位置を $(x(t), y(t), z(t))$ と表す. また、流体粒子の位置における物理量 A は $A(x(t), y(t), z(t), t)$ と表現される.

もう一つの方法は、固定された任意位置 $\mathbf{x}(x, y, z)$ における物理量 A の時間変化を考えるオイラー法である. $\mathbf{x}(x, y, z)$ は t の関数ではなく、 \mathbf{x} と t は互いに独立な変数である. オイラー法は個々の流体粒子の振る舞いに注目するのではなく、各時刻 t における流れの場合全体での A の分布 $A(x, y, z, t)$ を見渡す記述法である.

このように、ラグランジュ法では形式的には $A(x(t), y(t), z(t), t)$ はオイラー法と似た記号で表されるが、 $(x(t), y(t), z(t))$ は流体粒子の位置を表す. 時間間隔 dt におけるラグランジュ法での流体粒子の A の変化 dA は、微分の連鎖律より

I 各章の発展解説

$$dA(x(t), y(t), z(t), t) = \frac{\partial A}{\partial t} dt + \frac{\partial A}{\partial x} dx + \frac{\partial A}{\partial y} dy + \frac{\partial A}{\partial z} dz \quad (2)$$

となる。ここで (dx, dy, dz) は時刻 t で位置 (x, y, z) にある流体粒子の時間間隔 dt における変位である。粒子は粒子位置での速度 $\mathbf{V} \equiv (u, v, w)$ で動くと考えられるので、

$$dx = \frac{\partial x}{\partial t} dt = u dt, \quad dy = \frac{\partial y}{\partial t} dt = v dt, \quad dz = \frac{\partial z}{\partial t} dt = w dt \quad (3)$$

となる。これを式(2)に代入し、その両辺を dt で割れば

$$\frac{dA}{dt} \equiv \frac{\partial A}{\partial t} + \frac{\partial A}{\partial x} u + \frac{\partial A}{\partial y} v + \frac{\partial A}{\partial z} w = \frac{\partial A}{\partial t} + \mathbf{V} \cdot \nabla A \quad (4)$$

となる。この微分演算子 d/dt をラグランジュ微分あるいは物質微分などと呼ぶ。これに対し $\partial/\partial t$ をオイラー微分と呼ぶ。物理量 A を流体粒子の速度 \mathbf{V} とすれば式(4)より流体粒子の加速度は

$$\frac{d\mathbf{V}}{dt} = \frac{\partial \mathbf{V}}{\partial t} + (\mathbf{V} \cdot \nabla) \mathbf{V} \quad (5)$$

となる。

単位体積の流体粒子の運動方程式はこの加速度の式を用いて、ニュートンの第二法則より

$$\rho \left(\frac{\partial \mathbf{V}}{\partial t} + (\mathbf{V} \cdot \nabla) \mathbf{V} \right) = \rho \mathbf{f} - \nabla p \quad (6)$$

と表せる。これをオイラーの運動方程式という。

4A5 粘性流体の運動方程式

ここではナビエーストークスの方程式を系統的に導出する。この方程式を導出するために、流体力学の基本的な概念である流体の変形を表現することから始める。その後、流体の変形の数値と流体に作用する応力との関係を定式化する。

1. 流体の変形速度

流体の動的な変形を表現するために、流体の有限時間での変形を考える。図1に示したように、流体粒子中の近接した点P（その位置ベクトルは \mathbf{r} ）とQ（その位置ベクトルは $\mathbf{r}' = \mathbf{r} + \delta \mathbf{r}$ ）が微小の時間 dt にP', Q'へ変位（移動）したとする。変位ベクトルを

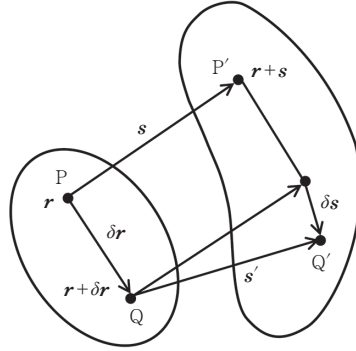


図1 流体粒子の変位と変形

$$\overrightarrow{PP'} \equiv \mathbf{s}(\mathbf{r}), \quad \overrightarrow{QQ'} \equiv \mathbf{s}'(\mathbf{r} + \delta\mathbf{r}) \quad (1)$$

で定義する (図1). ベクトルの加算則より,

$$\mathbf{s}'(\mathbf{r} + \delta\mathbf{r}) = \mathbf{s}(\mathbf{r}) + \delta\mathbf{s}(\mathbf{r}) \quad (2)$$

となる. P の変位と Q の変位の差は

$$\delta\mathbf{s} = \mathbf{s}'(\mathbf{r} + \delta\mathbf{r}) - \mathbf{s}(\mathbf{r}) \quad (3)$$

である. 一方, P および Q で流体が変位する速度は, それぞれの位置での流体の速度 $\mathbf{v} = (u, v, w)$ および $\mathbf{v}' = (u', v', w')$ に等しい. このため, P では $\mathbf{v} = d\mathbf{s}/dt$, Q では $\mathbf{v}' = d\mathbf{s}'/dt$ の関係が成り立つ. したがって,

$$\frac{d\mathbf{s}'}{dt} - \frac{d\mathbf{s}}{dt} = \mathbf{v}'(\mathbf{r} + \delta\mathbf{r}) - \mathbf{v}(\mathbf{r}) \equiv \delta\mathbf{v}(\mathbf{r}) \quad (4)$$

となる. 一方, この式の左辺は

$$\frac{d\mathbf{s}'}{dt} - \frac{d\mathbf{s}}{dt} = \frac{d}{dt}[\mathbf{s}'(\mathbf{r} + \delta\mathbf{r}) - \mathbf{s}(\mathbf{r})] = \frac{d}{dt} \delta\mathbf{s}(\mathbf{r}) \quad (5)$$

と表される. これはベクトルの微分の差は, ベクトルの差の微分に等しいという関係を表した式である. これより

$$\frac{d}{dt} \delta\mathbf{s}(\mathbf{r}) = \delta\mathbf{v}(\mathbf{r}) \quad (6)$$

となる. この式は P と Q の相対変位を表すベクトル $\delta\mathbf{s}(\mathbf{r})$ の変化率 (単位時間当たりの相対変位) は P と Q の相対速度 (速度ベクトルの差) で表される

I 各章の発展解説

ことを意味している。以下ではこの基本的な関係を具体的に表現していく。

PとQは近接しているので、 \mathbf{v}' を \mathbf{v} の周りでテイラー展開できる。x成分については

$$u'(x + \delta x, y + \delta y, z + \delta z) \approx u(x, y, z) + \frac{\partial u}{\partial x} \delta x + \frac{\partial u}{\partial y} \delta y + \frac{\partial u}{\partial z} \delta z \quad (7)$$

であるので、

$$\delta u = u'(x + \delta x, y + \delta y, z + \delta z) - u(x, y, z) = \frac{\partial u}{\partial x} \delta x + \frac{\partial u}{\partial y} \delta y + \frac{\partial u}{\partial z} \delta z \quad (8)$$

となる。vとwも同様に表されるので

$$\frac{d}{dt} \delta \mathbf{s} = \delta \mathbf{v} = \begin{pmatrix} \frac{\partial u}{\partial x} & \frac{\partial u}{\partial y} & \frac{\partial u}{\partial z} \\ \frac{\partial v}{\partial x} & \frac{\partial v}{\partial y} & \frac{\partial v}{\partial z} \\ \frac{\partial w}{\partial x} & \frac{\partial w}{\partial y} & \frac{\partial w}{\partial z} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \delta x \\ \delta y \\ \delta z \end{pmatrix} \quad (9)$$

となる。この式はPとQの相対変位の時間微分で定義される変形速度は、Pでの流体粒子速度の空間微分で表せることを示している。

式(8)の δu は

$$\begin{aligned} \delta u &= \frac{\partial u}{\partial x} \delta x + \frac{1}{2} \left(\frac{\partial u}{\partial y} + \frac{\partial v}{\partial x} \right) \delta y + \frac{1}{2} \left(\frac{\partial u}{\partial z} + \frac{\partial w}{\partial x} \right) \delta z \\ &\quad + \frac{1}{2} \left(\frac{\partial v}{\partial y} - \frac{\partial v}{\partial x} \right) \delta y + \frac{1}{2} \left(\frac{\partial u}{\partial z} - \frac{\partial w}{\partial x} \right) \delta z \end{aligned} \quad (10a)$$

と、恒等式として書き直すことができる。 δv と δw も同様に

$$\begin{aligned} \delta v &= \frac{\partial v}{\partial y} \delta y + \frac{1}{2} \left(\frac{\partial v}{\partial x} + \frac{\partial u}{\partial y} \right) \delta x + \frac{1}{2} \left(\frac{\partial v}{\partial z} + \frac{\partial w}{\partial y} \right) \delta z \\ &\quad + \frac{1}{2} \left(\frac{\partial v}{\partial x} - \frac{\partial u}{\partial y} \right) \delta x + \frac{1}{2} \left(\frac{\partial v}{\partial z} - \frac{\partial w}{\partial y} \right) \delta z \end{aligned} \quad (10b)$$

$$\begin{aligned} \delta w &= \frac{\partial w}{\partial z} \delta z + \frac{1}{2} \left(\frac{\partial w}{\partial x} + \frac{\partial u}{\partial z} \right) \delta x + \frac{1}{2} \left(\frac{\partial w}{\partial y} + \frac{\partial v}{\partial z} \right) \delta y \\ &\quad + \frac{1}{2} \left(\frac{\partial w}{\partial x} - \frac{\partial u}{\partial z} \right) \delta x + \frac{1}{2} \left(\frac{\partial w}{\partial y} - \frac{\partial v}{\partial z} \right) \delta y \end{aligned} \quad (10c)$$

と恒等的に表すことができる。さらにこれをまとめると

$$\delta u = e_{xx} \delta x + e_{xy} \delta y + e_{xz} \delta z + (\eta \delta z - \zeta \delta y) \quad (11a)$$

$$\delta v = e_{yx} \delta x + e_{yy} \delta y + e_{yz} \delta z + (\zeta \delta x - \xi \delta z) \quad (11b)$$

$$\delta w = e_{xx} \delta x + e_{zy} \delta y + e_{zz} \delta z + (\zeta \delta y - \eta \delta x) \quad (11c)$$

となる。ここで

$$e_{xx} = \frac{\partial u}{\partial x}, \quad e_{yy} = \frac{\partial v}{\partial y}, \quad e_{zz} = \frac{\partial w}{\partial z} \quad (12a)$$

$$e_{xy} = e_{yx} = \frac{1}{2} \left(\frac{\partial u}{\partial y} + \frac{\partial v}{\partial x} \right), \quad e_{yz} = e_{zy} = \frac{1}{2} \left(\frac{\partial v}{\partial z} + \frac{\partial w}{\partial y} \right),$$

$$e_{zx} = e_{xz} = \frac{1}{2} \left(\frac{\partial w}{\partial x} + \frac{\partial u}{\partial z} \right) \quad (12b)$$

$$\xi = \frac{1}{2} \left(\frac{\partial w}{\partial y} - \frac{\partial v}{\partial z} \right), \quad \eta = \frac{1}{2} \left(\frac{\partial u}{\partial z} - \frac{\partial w}{\partial x} \right), \quad \zeta = \frac{1}{2} \left(\frac{\partial v}{\partial x} - \frac{\partial u}{\partial y} \right) \quad (12c)$$

である。

ここで

$$\mathbf{E} \equiv \begin{pmatrix} e_{xx} & e_{xy} & e_{xz} \\ e_{yx} & e_{yy} & e_{yz} \\ e_{zx} & e_{zy} & e_{zz} \end{pmatrix} \quad (13)$$

と正方行列で表される2階のテンソル \mathbf{E} を定義する。式(12a), (12b)より成分 e_{ij} ($i, j = 1, 2, 3$ あるいは x, y, z) は $e_{ij} = e_{ji}$ なので \mathbf{E} は対称テンソル (symmetric tensor) であり, その独立な成分の数は6である。 \mathbf{E} はひずみ速度テンソルと呼ばれる。

また, 3つの成分だけで表される2階のテンソル

$$\mathbf{\Omega} \equiv \begin{pmatrix} 0 & -\zeta & \eta \\ \zeta & 0 & -\xi \\ -\eta & \xi & 0 \end{pmatrix} \quad (14)$$

を定義する。 $\mathbf{\Omega}$ は反対称テンソル (anti-symmetric tensor) である。式(12c) は \mathbf{v} の回転 (rotation) である $\text{rot } \mathbf{v}$ と

$$(\xi, \eta, \zeta) = \frac{1}{2} \text{rot } \mathbf{v} = \frac{1}{2} \nabla \times \mathbf{v} \quad (15)$$

の関係がある。また

$$\boldsymbol{\omega} = \text{rot } \mathbf{v} \quad (16)$$

I 各章の発展解説

は渦度と呼ばれる.

\mathbf{E} と $\mathbf{\Omega}$ を用いれば変形速度 $\delta \mathbf{v}$ は

$$\delta \mathbf{v} = \mathbf{E} \begin{pmatrix} \delta x \\ \delta y \\ \delta z \end{pmatrix} + \mathbf{\Omega} \begin{pmatrix} \delta x \\ \delta y \\ \delta z \end{pmatrix} \quad (17)$$

と表される. 以下では, \mathbf{E} と $\mathbf{\Omega}$ の物理的意味を各種の変形と結びつけて解釈する.

1.1 \mathbf{E} の物理的意味 1——伸びの変形

e_{xx} だけが 0 でない場合は式(11a)より

$$\delta u = e_{xx} \delta x, \quad \delta v = \delta w = 0 \quad (18)$$

である. これは図 2(a)に示したように x 方向の伸びを表し, e_{xx} は単位時間当たりの伸びの割合を表わす. e_{yy}, e_{zz} も同様に, それぞれ y, z 方向の単位時間当たりの伸びの割合を表す.

初めに各辺の長さが $\delta x, \delta y, \delta z$ であった直方体の流体粒子がそれぞれの方向に単位時間当たり $\delta u, \delta v, \delta w$ 伸びた場合の体積変化率は

$$\frac{\left(\delta x + \frac{\partial u}{\partial x} \delta x \right) \left(\delta y + \frac{\partial v}{\partial y} \delta y \right) \left(\delta z + \frac{\partial w}{\partial z} \delta z \right) - \delta x \delta y \delta z}{\delta x \delta y \delta z} \\ \approx \frac{\partial u}{\partial x} + \frac{\partial v}{\partial y} + \frac{\partial w}{\partial z} = \nabla \cdot \mathbf{v} = e_{xx} + e_{yy} + e_{zz} \quad (19)$$

となる. この式の最右辺は \mathbf{E} の対角成分の和である Trace \mathbf{E} に等しい. 一般に Trace は座標系の回転に対して不変である.

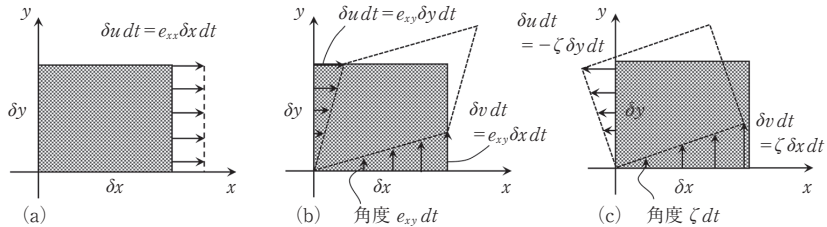


図 2 微小時間 dt 後の流体粒子の変形. 佐野 (2000) を改変.

1.2 E の物理的意味2——純粋なずれの変形

e_{xy} だけが0でない場合は、式(11a), (11b)より

$$\delta u = e_{xy} \delta y, \quad \delta v = e_{xy} \delta x, \quad \delta w = 0 \quad (20)$$

である。これは図2(b)に示したように xy 面内での純粋なずれ流れを表す。 e_{xy} は xy 面内で長方形の各辺がひしゃげる角速度である。同様に e_{yz} , e_{zx} はそれぞれ yz 面内, xz 面内の純粋なずれ流れを表す。

1.3 Ω の物理的意味——回転

ζ だけが0でない場合は、式(11a), (11b)より

$$\delta u = -\zeta \delta y, \quad \delta v = \zeta \delta x, \quad \delta w = 0 \quad (21)$$

である。これは図2(c)に示したように z 軸の周りの剛体回転を表す。 ζ は単位時間当たりの回転角である。同様にして ξ , η はそれぞれ x 軸, y 軸の周りの剛体回転を表し、その回転の各速度がそれぞれ ξ , η である。剛体回転においては任意に選んだ2点の相対位置は変わらない。

2. 応力テンソル

図3に示したように x 軸に垂直な面に作用する応力を \boldsymbol{p}_x とし、その x, y, z 成分を p_{xx}, p_{xy}, p_{xz} と記す。同様に y 軸, z 軸に垂直な面に作用する応力を、 $\boldsymbol{p}_y = (p_{yx}, p_{yy}, p_{yz})$, $\boldsymbol{p}_z = (p_{zx}, p_{zy}, p_{zz})$ と記す。これを用いれば

$$\boldsymbol{P} \equiv \begin{pmatrix} \boldsymbol{p}_x \\ \boldsymbol{p}_y \\ \boldsymbol{p}_z \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} p_{xx} & p_{xy} & p_{xz} \\ p_{yx} & p_{yy} & p_{yz} \\ p_{zx} & p_{zy} & p_{zz} \end{pmatrix} \quad (22)$$

と書ける。これを2階の応力テンソルと呼ぶ。図3に示したように、 p_{ij} ($i, j = 1, 2, 3$ あるいは x, y, z) において、 i は力が作用する面の外向きの法線方向を、 j は力の方向を示す。

微小な立方体の流体粒子について力のモーメントのつり合いを調べることにより、

$$p_{xy} = p_{yx}, \quad p_{yz} = p_{zy}, \quad p_{zx} = p_{xz} \quad (23)$$

となり、 \boldsymbol{P} は対称テンソルであることが示される。したがって \boldsymbol{P} の独立な成分の数は \boldsymbol{E} と同じで6である。

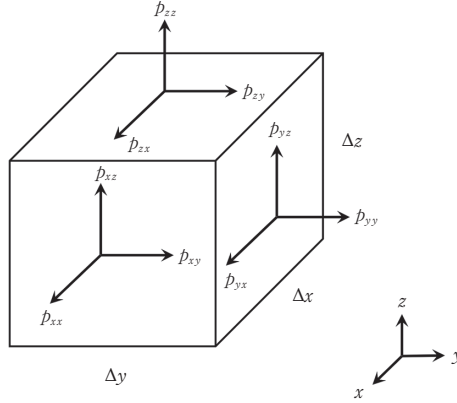


図3 直方体の流体粒子に作用する応力テンソル

3. 応力と変形速度

流体に静水圧以外の応力が作用するとひずみ速度が生じ、ひずみ速度が生じるとそこに応力が生じる。すなわち応力はひずみ速度の関数である。つまり \mathbf{P} は \mathbf{E} の関数である。一方、 $\boldsymbol{\Omega}$ は剛体回転を表すので、応力には寄与しない。数学的には、 \mathbf{P} は対称テンソルであるので対称テンソル \mathbf{E} と線形に関係付けられるが、反対称テンソル $\boldsymbol{\Omega}$ とは線形に関係付けることはできないとも言える。

この関係を具体的に考えるために、4.3節の図4.6の流れを考える。ニュートンの粘性法則である式(4.31)を再掲すると

$$\tau = \mu \frac{\partial u(z)}{\partial z} \quad (24)$$

である。前述のように $\partial u(z)/\partial z$ はひずみ速度テンソルの1成分である。また τ は応力テンソル \mathbf{P} の1成分である。したがって、この式は応力テンソルとひずみ速度テンソルは比例関係にあることを示している。

図4.6の流れ場では \mathbf{P} の成分は zx 成分である $p_{zx} = \tau$ のみであり、対応する \mathbf{E} の zx 成分は式(12b)より

$$e_{zx} = \frac{1}{2} \frac{\partial u}{\partial z} \quad (25)$$

である。したがって、式(24)は

$$p_{zx} = 2\mu e_{zx} \quad (26)$$

と書き直すことができる.

この例のように応力 \mathbf{P} とずり \mathbf{E} との関係が線形であると仮定し, 流体は等方的であるとすると

$$\mathbf{P} = c\mathbf{I} + 2\eta\mathbf{E} = c \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} + 2\eta\mathbf{E} \quad (27)$$

と表される. ここで \mathbf{I} は単位行列, c と η は定数である. またこの後の便宜を考慮して最右辺の第2項に係数2を付けた.

図3の各面での圧力の平均を

$$p = -\frac{1}{3} \text{Trace } \mathbf{P} = -\frac{1}{3}(p_{xx} + p_{yy} + p_{zz}) \quad (28)$$

として与える. この式の最右辺の応力 p_{ii} は流体粒子の表面の外向きを正に取るのに対し, 圧力 p は内向きを正にする. このため式(28)の右辺にはマイナスの符号が付く. 静止流体では $p_{xx} = p_{yy} = p_{zz}$ であるが, 運動する流体では, 必ずしもこの関係は成り立たない. 式(28)は静止流体の圧力の拡張となっている.

式(28)右辺の \mathbf{P} に, 式(27)を代入すれば

$$p = -\frac{1}{3} \text{Trace } \mathbf{P} = -c - \frac{2}{3}\eta(e_{xx} + e_{yy} + e_{zz}) \quad (29)$$

となる. この式の最右辺に式(12a)を代入すれば

$$c = -p - \frac{2}{3}\eta \left(\frac{\partial u}{\partial x} + \frac{\partial v}{\partial y} + \frac{\partial w}{\partial z} \right) = -p - \frac{2}{3}\eta \nabla \cdot \mathbf{v} \quad (30)$$

となる. これを式(27)に代入すれば

$$\begin{pmatrix} p_{xx} & p_{xy} & p_{xz} \\ p_{yx} & p_{yy} & p_{yz} \\ p_{zx} & p_{zy} & p_{zz} \end{pmatrix} = \left(-p - \frac{2}{3}\eta \nabla \cdot \mathbf{v} \right) \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} + 2\eta \begin{pmatrix} e_{xx} & e_{xy} & e_{xz} \\ e_{yx} & e_{yy} & e_{yz} \\ e_{zx} & e_{zy} & e_{zz} \end{pmatrix} \quad (31)$$

となる. この式を各成分で表示すれば \mathbf{P} の各成分

$$p_{xx} = -p - \frac{2}{3}\eta \nabla \cdot \mathbf{v} + 2\eta \frac{\partial v}{\partial x} \quad (32a)$$

$$p_{xy} = p_{yx} = 2\eta e_{xy} \quad (32b)$$

$$p_{xz} = p_{zx} = 2\eta e_{zx} \quad (32c)$$

が得られる.

I 各章の発展解説

この p_{zx} の式(32c)と式(26)の右辺第1式との比較より、式(27)の η は粘性係数 μ に等しいことがわかる。これを用いれば式(32a), (32b), (32c)の応力テンソルは

$$p_{xx} = -p + 2\mu \left(\frac{\partial u}{\partial x} - \frac{1}{3} \nabla \cdot \mathbf{v} \right) \quad (33a)$$

$$p_{xy} = p_{yx} = \mu \left(\frac{\partial u}{\partial y} + \frac{\partial v}{\partial x} \right) \quad (33b)$$

$$p_{xz} = p_{zx} = \mu \left(\frac{\partial w}{\partial x} + \frac{\partial u}{\partial z} \right) \quad (33c)$$

となる。 $\nabla \cdot \mathbf{v} = 0$ となる非圧縮性流体の場合には、これらの応力テンソルは、

$$p_{ij} = -p \delta_{ij} + \mu \left(\frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j}{\partial x_i} \right) \quad (34)$$

と、1つの式で表される。ここで、 $i, j = 1, 2, 3$ あるいは x, y, z であり、 δ_{ij} は

$$\delta_{ij} = 1 (i = j), \quad \delta_{ij} = 0 (i \neq j) \quad (35)$$

で定義されるクロネッカーのデルタである。

4. 運動方程式

図3に示した、各辺の長さが $\Delta x, \Delta y, \Delta z$ でそれらが x, y, z 軸に平行な流体粒子を考える。この粒子を x 方向に加速する力は各面での x 方向の正味の力の和であるので、

$$F_x = [p_{xx}(x + \Delta x, y, z) - p_{xx}(x, y, z)] \Delta y \Delta z + [p_{yx}(x, y + \Delta y, z) - p_{yx}(x, y, z)] \Delta z \Delta x + [p_{zx}(x, y, z + \Delta z) - p_{zx}(x, y, z)] \Delta x \Delta y \quad (36)$$

となる。また

$$p_{xx}(x + \Delta x, y, z) - p_{xx}(x, y, z) \approx \left(\frac{\partial p_{xx}}{\partial x} \right) \Delta x \quad (37a)$$

$$p_{yx}(x, y + \Delta y, z) - p_{yx}(x, y, z) \approx \left(\frac{\partial p_{yx}}{\partial y} \right) \Delta y \quad (37b)$$

$$p_{zx}(x, y, z + \Delta z) - p_{zx}(x, y, z) \approx \left(\frac{\partial p_{zx}}{\partial z} \right) \Delta z \quad (37c)$$

と近似できるので、式(36)は

$$F_x = \left(\frac{\partial p_{xx}}{\partial x} + \frac{\partial p_{yx}}{\partial y} + \frac{\partial p_{zx}}{\partial z} \right) \Delta x \Delta y \Delta z \quad (38)$$

となる。体積力 ρf_x と応力 F_x が作用する単位体積の流体粒子の運動方程式の x 成分は付録 4A4 の運動方程式と同様に

$$\rho \frac{du}{dt} = \rho f_x + \frac{\partial p_{xx}}{\partial x} + \frac{\partial p_{yx}}{\partial y} + \frac{\partial p_{zx}}{\partial z} \quad (39)$$

となる。

式(33a), (33b), (33c)より

$$\frac{\partial p_{xx}}{\partial x} = -\frac{2}{3}\mu \frac{\partial}{\partial x} \nabla \cdot \mathbf{v} + 2\mu \frac{\partial^2 u}{\partial x^2} \quad (40a)$$

$$\frac{\partial p_{yx}}{\partial y} = \mu \left(\frac{\partial^2 u}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 v}{\partial y \partial x} \right) \quad (40b)$$

$$\frac{\partial p_{zx}}{\partial z} = \mu \left(\frac{\partial^2 w}{\partial z \partial x} + \frac{\partial^2 u}{\partial z^2} \right) \quad (40c)$$

となる。これより

$$\begin{aligned} \frac{\partial p_{xx}}{\partial x} + \frac{\partial p_{yx}}{\partial y} + \frac{\partial p_{zx}}{\partial z} &= -\frac{\partial p}{\partial x} - \frac{2}{3}\mu \nabla \cdot \mathbf{v} + 2\mu \frac{\partial^2 u}{\partial x^2} + \mu \left(\frac{\partial^2 u}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 v}{\partial y \partial x} \right) + \mu \left(\frac{\partial^2 w}{\partial z \partial x} + \frac{\partial^2 u}{\partial z^2} \right) \\ &= -\frac{\partial p}{\partial x} - \frac{2}{3}\mu \frac{\partial}{\partial x} \nabla \cdot \mathbf{v} + 2\mu \frac{\partial^2 u}{\partial x^2} + \mu \frac{\partial}{\partial x} \left(\frac{\partial u}{\partial x} + \frac{\partial v}{\partial y} + \frac{\partial w}{\partial z} \right) - \mu \frac{\partial^2 u}{\partial x^2} + \mu \left(\frac{\partial^2 u}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 u}{\partial z^2} \right) \\ &= -\frac{\partial p}{\partial x} + \frac{1}{3}\mu \frac{\partial}{\partial x} \nabla \cdot \mathbf{v} + \mu \nabla^2 \mathbf{v} \end{aligned} \quad (41)$$

を得る。 y, z 成分も同様な形になるので、運動方程式は

$$\rho \frac{d\mathbf{v}}{dt} = \rho \mathbf{f} - \nabla p + \frac{1}{3}\mu \nabla (\nabla \cdot \mathbf{v}) + \mu \nabla^2 \mathbf{v} \quad (42)$$

となる。ここで $\rho \mathbf{f}$ は体積力である。これがナビエーストークスの方程式である。非圧縮性流体の場合は $\nabla \cdot \mathbf{v} = 0$ なので NS 方程式は

$$\rho \frac{d\mathbf{v}}{dt} = \rho \mathbf{f} - \nabla p + \mu \nabla^2 \mathbf{v} \quad (43)$$

となる。 $\mu = 0$ とすれば付録 4A4 の式(6)であるオイラーの方程式になる。

4A6 運動する流体中での静止物体

速度 U で運動する流体中に静止する断面積 S 物体の配置を図 1 に示した。

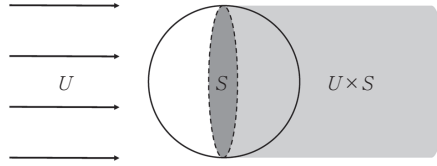


図1 速度 U で運動する流体中に静止する物体

物体の断面積を S とすると、単位時間に物体により止められる流体の体積は US である。

4A7 式(4.61)の導出

1. 変位の2乗

4.7節の式(4.60)を再掲すると

$$m \frac{d^2 x}{dt^2} = -\beta \frac{dx}{dt} + F(t) \quad (1)$$

となる。ここで時刻 $t=0$ で粒子の位置を $x=0$ とする。このように座標系を設定すれば x を時刻 t における粒子の原点からの変位と解釈できる。

$F(t)$ はランダムな変化をする量であるため、式(1)の解もランダムな特性を持つと考えられる。物理的に意味のある解を求めるためには何らかの形で解の平均的な挙動を求める必要がある。その準備のために式(1)の両辺に x を掛けると

$$\frac{m}{2} \left(\frac{d^2(x^2)}{dt^2} \right) - mv^2 = -\frac{\beta}{2} \frac{d(x^2)}{dt} + F(t)x \quad (2)$$

が得られる。この式の導出には

$$v = \frac{dx}{dt} \quad (3)$$

$$x \frac{dv}{dt} = x \frac{d^2 x}{dt^2} = \frac{1}{2} \frac{d^2(x^2)}{dt^2} - \left(\frac{dx}{dt} \right)^2 = \frac{1}{2} \frac{d^2(x^2)}{dt^2} - v^2 \quad (4)$$

$$x \frac{dx}{dt} = \frac{1}{2} \frac{d(x^2)}{dt} \quad (5)$$

の関係式を用いた。

2. 変位の2乗の平均値

多くのブラウン粒子についての物理量 A の平均を $\langle A \rangle$ で表すことにする。式(2)の左辺第2項の mv^2 については、付録4A1で述べたエネルギー等分配則

$$\frac{1}{2} m \langle v^2 \rangle = \frac{1}{2} kT \quad (6)$$

が適用される。このエネルギー等分配則が成り立つのは気体分子と粒子との衝突により粒子が熱平衡になるためである。 $F(t)$ と x とは互いに独立な変化をするので $\langle F(t)x \rangle = \langle F(t) \rangle \langle x \rangle$ となる。 $F(t)$ はその定義から完全にランダムな変化をするので $\langle F(t) \rangle = 0$ となり、式(2)の右辺第2項の平均はゼロとなる。ここで

$$X \equiv \frac{d\langle x^2 \rangle}{dt} \quad (6)$$

と定義する。式(2)の両辺を平均すると

$$\frac{m}{2} \frac{dX}{dt} + \frac{\beta X}{2} = kT \quad (7)$$

となる。この式で右辺 = 0 とした同次方程式の一般解は $X_1 = C \exp(-t/\tau)$ となる。 τ は

$$\tau = \frac{m}{\beta} = \frac{mC_c}{6\pi\mu r_p} = \frac{2}{9} \frac{\rho_p r_p^2 C_c}{\mu} \quad (8)$$

である。 ρ_p は粒子を構成する物質の密度である。式(7)で $dX/dt = 0$ とおいて得られる $X_2 = 2kT/\beta$ は非同次方程式(7)の特解である。したがって方程式(7)の一般解は

$$X = X_1 + X_2 = C \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right) + \frac{2kT}{\beta} \quad (9)$$

となる。 $r_p = 1 \mu\text{m}$, $\rho_p = 1 \text{ g cm}^{-3}$ とすると 20°C で1気圧の大気では、 $\tau = 10^{-5} \text{ s}$ となる。つまり項 X_1 は粘性により 10^{-5} s 程度の間に減衰しゼロになるので無視でき、この式は

$$X \equiv \frac{d\langle x^2 \rangle}{dt} = \frac{2kT}{\beta} \quad (10)$$

となる。これを $t=0$ から t まで積分し、 $t=0$ で $x=0$ の初期条件を考慮すると、

$$\langle x^2 \rangle = \frac{2kTt}{\beta} = \frac{kTC_c t}{3\pi\mu r_p} \quad (11)$$

を得る。

第5章

5A1 エアロゾルの分布関数の具体例

エアロゾルの粒径分布を理解するために具体的な例を示す。単位体積当たりの空気に含まれる粒子数である粒子数濃度 (m^{-3}) を測定することを考える。測定する粒子の直径 D の範囲をビン (区間) に分割する。 i 番目のビン $[D_i, D_{i+1}]$ の幅 ΔD_i は $\Delta D_i = D_{i+1} - D_i$ である。このビン内で測定された粒子の数濃度を ΔN_i と記す。図 1(a) では直径の全範囲を 10 個のビンに分割し、 i 番目のビンの粒子数濃度 ΔN_i を表示した。各区間の ΔN_i は適当に決めた $\Delta D_i (\mu\text{m})$ の大きさに依存することがわかる。 ΔN_i を ΔD_i で規格化した

$$n_i = \frac{\Delta N_i}{\Delta D_i} \quad (\text{particles m}^{-3} \mu\text{m}^{-1}) \quad (1)$$

を図 1(b) の白丸で示した。単位直径当たりの数濃度である n_i は ΔN_i に比べはるかに平滑化されていることがわかる。ビンの数を限りなく多くした $\Delta D_i \rightarrow 0$ の極限である数濃度の粒径分布関数 $dN(D)/dD$ は図 1(b) の曲線となる。

図 1(b) に示した分布関数は 5.4 節における対数正規分布関数である。ただし x 軸は対数ではなく線形にしてあるので図 5.1 と見かけは異なる。すなわち、直径 D を線形で表示すれば対数正規分布は大きな直径方向に伸びる非対称な形状をしている。

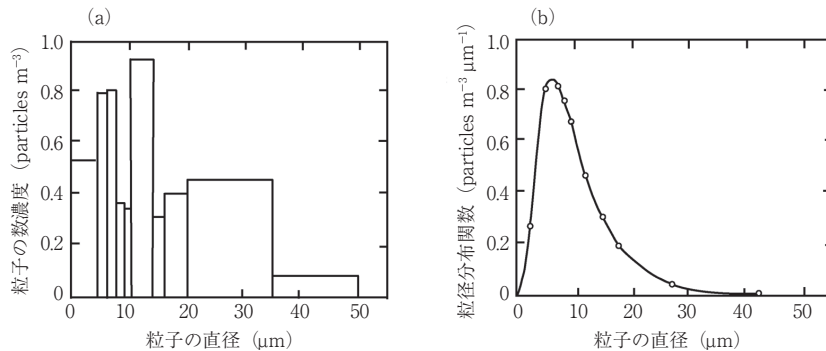


図 1 (a) 粒子の各直径区間での粒子数濃度 (particles m^{-3}). (b) 図 1(a) に対応する数濃度の粒径分布関数 ($\text{particles m}^{-3} \mu\text{m}^{-1}$). 両図とも y 軸の数値は相対値。

第6章

6A1 鉱物ダスト粒子の摩擦速度の閾値

図1に砂粒子の跳躍に必要な摩擦速度の閾値 u_{*t} の測定値と計算値を示した。粒径が小さくなると静電気力により粒子同士の引力が増加するので、粒子は跳躍しにくくなる。その一方で粒径が大きくなると重力が増加し、跳躍しにくくなる傾向が生じる。この2つの効果の兼ね合いで、直径 100 μm 付近で閾値 u_{*t} が最小の約 20 cm s^{-1} となる。

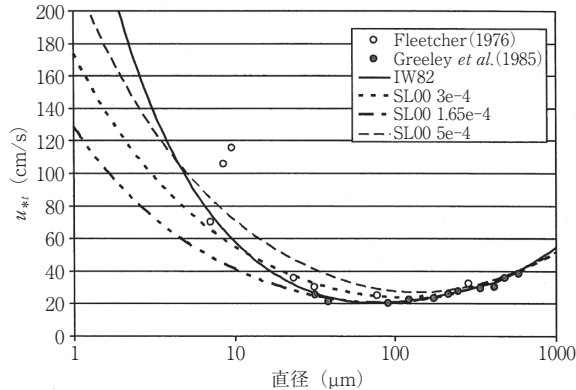


図1 砂粒子の直径の関数としての跳躍に必要な摩擦速度の閾値 u_{*t} 。
○と●は実測値で、曲線はモデル計算値。Marticorena (2014) を改変。

6A2 鉱物ダストの粒径微分フラックス

放出される鉱物ダストの直径を N 個のビン (区間) で分割し、 i 番目のビンの平均直径を D_i 、そのビン巾を ΔD_i とする。式(6.14)の α を D_i 、 ΔD_i 、および D_s (跳躍粒子の直径) の関数であると考え、各ビンでの α を $\alpha(D_i, \Delta D_i, D_s) (\text{m}^{-1})$ と記す。 $\alpha(D_i, \Delta D_i, D_s)$ の値は、風洞実験や理論的考察 (Shao *et al.*, 2004) から求められる。

各ビンでの質量フラックス $F(D_i, \Delta D_i)$ は式(6.14)の α を $\alpha(D_i, \Delta D_i, D_s)$ で置き換え、その式をそのビンでの下限直径 d_1 から上限直径 d_2 まで D_s で積分し

た式

$$F(D_i, \Delta D_i) = \int_{d_i}^{d_{i+1}} \alpha(D_i, \Delta D_i, D_s) Q(D_s) p(D_s) dD_s \quad (\text{kg m}^{-2} \text{s}^{-1}) \quad (1)$$

で表される。ここで、 $p(D_s)$ は跳躍粒子の発生源となる土壤の粒径分布関数である。また $p(D_s)dD_s$ は D_s 粒子の寄与の重み付け因子（無次元量）である。世界各地での土壤の $p(D_s)$ の測定は不十分なので、適切な近似をする必要がある。各 i についての式(1)を $i=1$ から N まで足し合わせれば式(6.14)の F と一致する。

6A3 鉱物ダスト粒子の質量濃度分布

CAM-ATRAS で計算された地表面付近での鉱物ダスト粒子の年平均の濃度分布 (ng m^{-3}) を図1に示した。

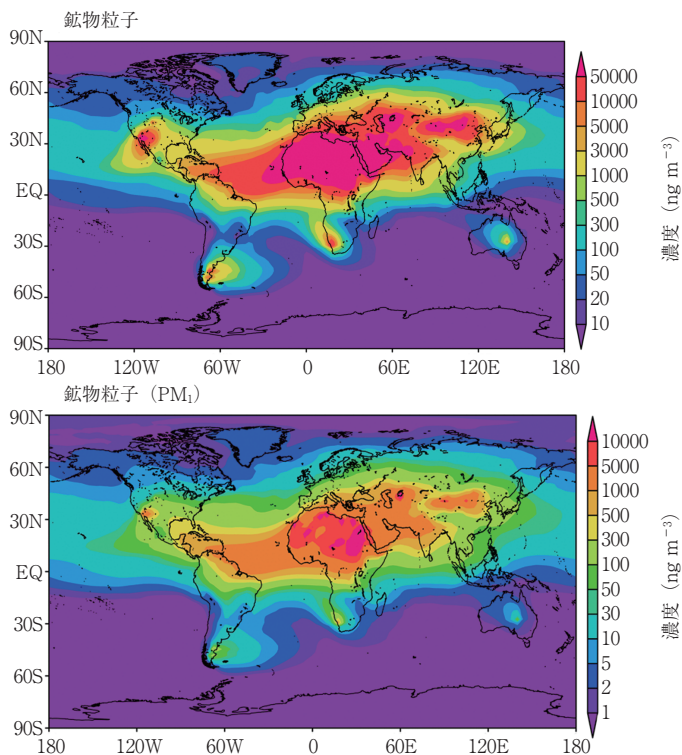


図1 CAM-ATRAS で計算された地表面付近での全粒径の鉱物ダスト粒子（上）と PM₁₀ 鉱物ダスト粒子（下）の年平均の質量濃度。乾燥鉱物ダスト粒子の密度は 2.6 g cm^{-3} とした。

6A4 海塩粒子の質量濃度分布と風速

CAM5-ATRAS で計算された年平均の地表面付近での海塩粒子の濃度分布と高度 10 m での風速を図 1 に示した。全粒径の海塩粒子質量濃が高い領域は強風域に対応していることがわかる。

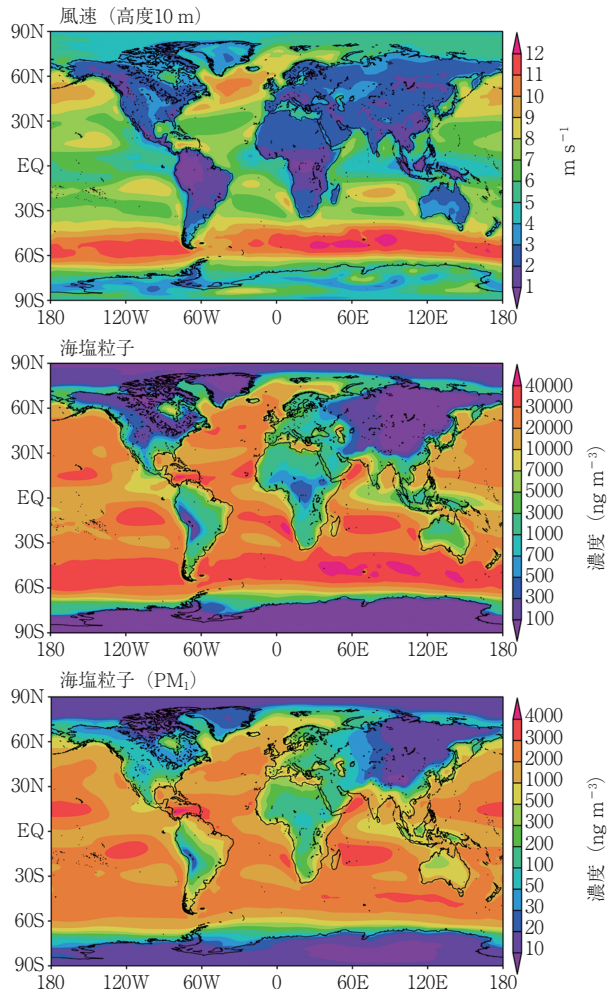


図 1 CAM-ATRAS モデルで計算された年平均の、高度 10 m での風速 (上)、地表面付近での海塩粒子の全粒径の質量濃度 (中)、 PM_{10} 質量濃度 (下)。

6A5 海水の組成と無機塩の組成

表 1 に塩分濃度 35 の海水の組成を、表 2 には海水の無機塩の組成を示した。

表 1 塩分濃度 35 の海水の各成分の質量割合

成分	質量割合
H ₂ O	0.9648
Cl ⁻	0.0194
HCO ₃ ⁻	0.0027
Br ⁻	0.0001
Na ⁺	0.0108
Mg ²⁺	0.0013
Ca ²⁺	0.0004
K ⁺	0.0004
その他の成分	< 0.0001
塩の合計	0.0352
総計	1.0000

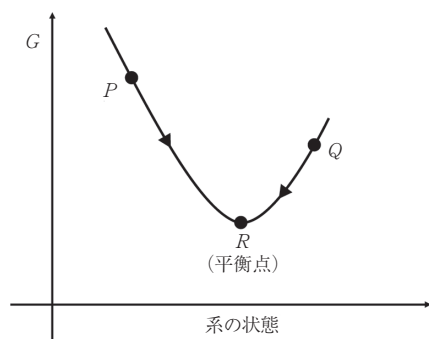
表 2 塩分濃度 35 の海水 1000 g 中での無機塩の質量とモル数

成分	質量 (g)	モル
NaCl	25.9	0.443
MgCl ₂	5.0	0.053
Na ₂ SO ₄	4.0	0.028
H ₂ O	965.1	
総計	1000	

注：塩の合計が 0.0350 になっていないのは塩分濃度の概念・定義などの歴史の変遷による。

第 7 章

7A1 系の状態の関数としてのギブズエネルギー



温度と圧力が一定の条件で、孤立系の状態の変化はそのギブズエネルギー G が減少するように起きる (図 1)。 G が最小になると系は平衡に達する。

図 1 孤立系のギブズエネルギー G と系の状態との関係の模式図。

7A2 ギブズエネルギーの関係式

ギブズエネルギー G は示量性なので定温・定圧の条件で各成分の量 n_i を λ 倍すると G も λ 倍になる。これを式で表せば、

$$\lambda G(T, p, n_1, n_2, \dots, n_k) = G(T, p, \lambda n_1, \lambda n_2, \dots, \lambda n_k) \quad (1)$$

となる。この式の両辺を λ で微分すると、微分の連鎖律より

$$\begin{aligned} G(T, p, n_1, n_2, \dots, n_k) &= \sum_{i=1}^k \left[\frac{\partial G(T, p, \lambda n_1, \lambda n_2, \dots, \lambda n_k)}{\partial (\lambda n_i)} \right]_{T, p, n_j} \frac{d(\lambda n_i)}{d\lambda} \\ &= \sum_{i=1}^k \left[\frac{\partial G(T, p, \lambda n_1, \lambda n_2, \dots, \lambda n_k)}{\partial (\lambda n_i)} \right]_{T, p, n_j} n_i \end{aligned} \quad (2)$$

となる。ここで $\lambda = 1$ とおけば

$$G = \sum_{i=1}^k \left(\frac{\partial G}{\partial n_i} \right)_{T, p, n_j} n_i = \sum_{i=1}^k \mu_i n_i \quad (3)$$

を得る。

7A3 水の蒸発に伴う仕事量

相変化に伴う潜熱（エンタルピー）を ΔH 、内部エネルギーの変化を ΔU 、仕事量を $\Delta(pV)$ と記すと、

$$\Delta H = \Delta U + \Delta(pV) \quad (1)$$

となる。

100°C, 1気圧において水の蒸発に必要な潜熱は 41.1 kJ mol^{-1} である。この際の水の体積の増加は $\Delta V = 3.02 \times 10^4 \text{ cm}^3 \text{ mol}^{-1}$ である。大気に対してなされる仕事 $\Delta(pV)$ は $3.02 \times 10^4 \text{ cm}^3 \text{ atm mol}^{-1} \approx 3.1 \text{ kJ mol}^{-1}$ である。これは潜熱の8%である。残りの92%は、水から水蒸気に変化する際の内部エネルギーの増加 ΔU である。

この内部エネルギーの増加は、分子レベルの運動エネルギー（並進エネルギー、回転エネルギー、振動エネルギー）の変化と分子間の間隔が大きくなったことによるポテンシャルエネルギーの増加から成っている。ポテンシャルエネ

I 各章の発展解説

ルギーの増加の方が運動エネルギーの増加よりもはるかに大きい。

同様なことは、固体から液体への変化についてもいえる。ただし、この場合はポテンシャルエネルギーの増加は大変小さい。

7A4 $\text{H}_2\text{SO}_4 - \text{HNO}_3 - \text{NH}_3 - \text{H}_2\text{O}$ よりなる系の化学組成

RH = 70% の条件で、全 H_2SO_4 および全 NH_3 の関数としてのエアロゾル化学組成を計算した結果を図 1 に示した。7.14.4 項で述べたエアロゾルの特性を考慮すると $T = 298 \text{ K}$, RH = 70%, $\langle \text{全NH}_3 \rangle = 10 \mu\text{g m}^{-3}$, $\langle \text{全HNO}_3 \rangle = 10 \mu\text{g m}^{-3}$

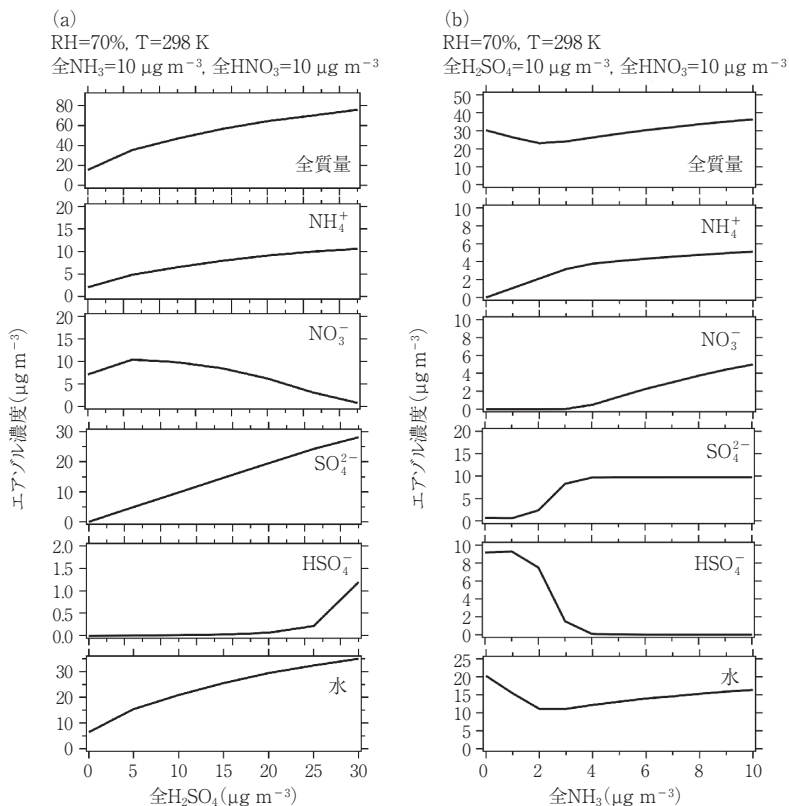


図 1 (a) RH = 70%, 全 $\text{NH}_3 = 10 \mu\text{g m}^{-3}$, 全 $\text{HNO}_3 = 10 \mu\text{g m}^{-3}$ の条件で、全 H_2SO_4 の関数としてのエアロゾル化学組成の計算値。(b) RH = 70%, 全 $\text{H}_2\text{SO}_4 = 10 \mu\text{g m}^{-3}$, 全 $\text{HNO}_3 = 10 \mu\text{g m}^{-3}$ の条件で、全 NH_3 の関数としてのエアロゾル化学組成の計算値。

という条件で全 H_2SO_4 を変えた場合のエアロゾル濃度の変化の計算結果を定性的に解釈できる。ここで $\langle \rangle$ は括弧内の成分の質量濃度を表す。

NH_4NO_3 の DRH は約 60% ($< \text{RH}$) であるので、全 H_2SO_4 が低い場合は液相の NH_4NO_3 (NH_4^+ と NO_3^-) からなるエアロゾルが生成される (図 1(a))。 NH_3 の多くは NH_4NO_3 として反応に使われるので、全 H_2SO_4 が増加したときに生成するのは固体の $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ ではなく、DRH が低い液相の NH_4HSO_4 (HSO_4^- と SO_4^{2-}) である。全 H_2SO_4 が増加していくと次第に NH_4HSO_4 が増加し、含水量も増加していく。

また、 H_2SO_4 と HNO_3 が NH_3 と共存し、 $\langle \text{全 H}_2\text{SO}_4 \rangle = \langle \text{全 HNO}_3 \rangle = 10 \mu\text{g m}^{-3}$ である場合は、 H_2SO_4 が NH_3 で完全に中和された後に NH_4NO_3 が生成される (図 1(b))。

7.14.2 項と 7.14.4 項で示されたように、 T , RH , NH_3 , HNO_3 , H_2SO_4 の組み合わせでエアロゾルの含水量が大きく変わる。含水量を決める要因の一つは RH と DRH との差である。

第8章

8A1 式(8.9)の導出

$$r = \sqrt{x^2 + y^2 + z^2} \quad (1)$$

を x で微分すれば

$$\frac{\partial r}{\partial x} = \frac{x}{\sqrt{x^2 + y^2 + z^2}} = \frac{x}{r} \quad (2)$$

となる。同様に

$$\frac{\partial r}{\partial y} = \frac{y}{r}, \quad \frac{\partial r}{\partial z} = \frac{z}{r} \quad (3)$$

であり、

$$\nabla r = \frac{\mathbf{r}}{r} = \mathbf{e}_r \quad (4)$$

となる。ここで \mathbf{e}_r は動径方向を向いた単位ベクトルである。一般に関数 $\varphi(r)$ が r だけに依存する場合

$$\frac{\partial \varphi(\mathbf{r})}{\partial x} = \frac{d\varphi}{dr} \frac{\partial r}{\partial x} = \frac{d\varphi}{dr} \frac{x}{r} \quad (5)$$

となる。同様に

$$\frac{\partial \varphi(\mathbf{r})}{\partial y} = \frac{d\varphi}{dr} \frac{y}{r}, \quad \frac{\partial \varphi(\mathbf{r})}{\partial z} = \frac{d\varphi}{dr} \frac{z}{r} \quad (6)$$

となる。これより

$$\nabla \varphi(\mathbf{r}) = \frac{d\varphi}{dr} \left(\frac{x}{r}, \frac{y}{r}, \frac{z}{r} \right) = \frac{d\varphi}{dr} \frac{\mathbf{r}}{r} = \frac{d\varphi}{dr} \mathbf{e}_r \quad (7)$$

を得る。

8A2 気体の動力学を考慮した凝集率

半径 r_1 と r_2 の粒子に対して、気体の動力学を考慮した補正を行ったブラウン凝集率 $K(r_1, r_2)$ の計算値を表 1 に示した。8.8 節の表 8.1 を表 2 として再掲した。2つの表を比較すると、 $r_1 < 0.01 \mu\text{m}$ では補正を行った $K(r_1, r_2)$ は小さくなっている。しかし $r_1 > 0.01 \mu\text{m}$ では両者の違いは小さい。すなわち、この領域では r_2 粒子は r_1 粒子に急速に吸収されるという傾向は変わらない。

表 1 気体の動力学を考慮した $K(r_1, r_2)$ の計算値 ($10^{-10} \text{cm}^3 \text{s}^{-1}$). $p = 1013 \text{hPa}$, $T = 293 \text{K}$, 粒子密度 $\rho = 1 \text{g cm}^{-3}$ での値. Zebel (1966) による.

$r_1 (\mu\text{m}) \backslash r_2 (\mu\text{m})$	0.001	0.01	0.1	1.0
0.001	8.8	—	—	—
0.01	180	21.0	—	—
0.1	8845	169	11.1	—
1.0	178100	2032	36.0	6.4

表 2 $K(r_1, r_2)$ の値 ($10^{-10} \text{cm}^3 \text{s}^{-1}$). 表 8.1 の再掲.

$r_1 (\mu\text{m}) \backslash r_2 (\mu\text{m})$	0.001	0.01	0.1	1.0
0.001	803	—	—	—
0.01	2230	84.0		
0.1	20300	234	12.7	
1.0	201000	2120	36.7	6.6

第9章

9A1 水蒸気の均一核生成率の飽和比依存性

式(9.25)を用いて $T = 0^\circ\text{C}$ の条件で計算した水蒸気からの水滴の均一核生成率 $J(S)$ を飽和比 S の関数として図1に示した。 $S < 4$ で $J(S) \approx 0$ であり、 $S \approx 4.4$ で $J(S)$ が急速に増加する。このように核生成が有効になるための S には閾値が存在するのが均一核生成の特徴である。

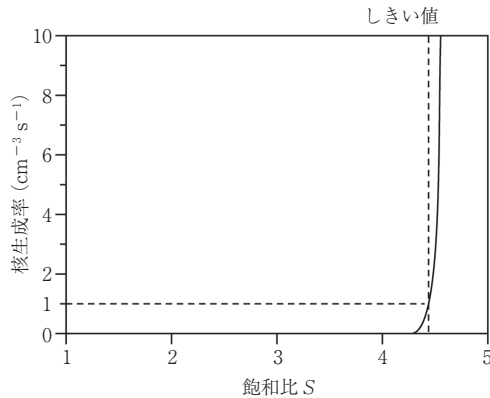


図1 水蒸気の核生成率の飽和比依存性。Lamb and Verlinde (2011) を改変。

9A2 新粒子生成の観測例

図1に中国の下流域にある長崎県福江島で2013年の2月に観測されたエアロゾル粒径分布 ($dN/d\log D$) の時間変化を示す。エアロゾルの粒径が急速に増大する様子が見られる。この空気塊は中国におけるエアロゾルやその前駆動気体の影響を強く受けていたことが示されている。

I 各章の発展解説

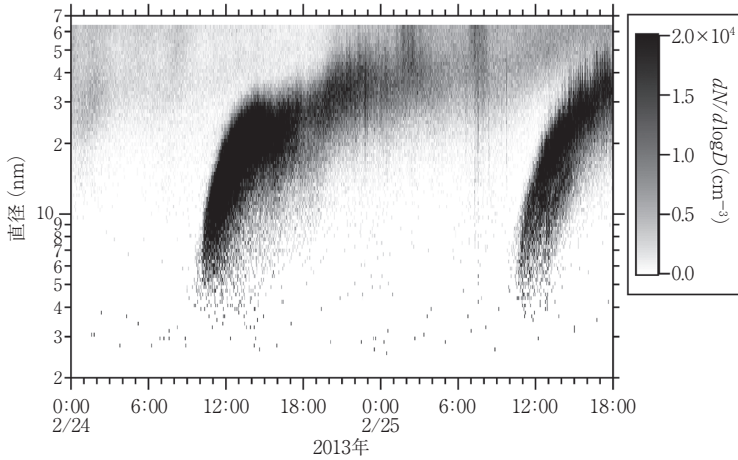


図1 長崎県福江島で観測された新粒子生成によるエアロゾル粒径分布 ($dN/d \log D$) の時間変化. Takegawa *et al.* (2020) を改変.

第10章

10A1 海水中での生物活動による DMS の生成過程

海水中で DMS は主として3つの過程で生成される(図1). 1) 海水中の SO_4^{2-} が植物プランクトンに取り込まれ, その一部が DMSP ($(\text{CCH}_3)_2\text{S}^+\text{CH}_2\text{CH}_2\text{COO}^-$) に変換される. 2) 植物プランクトンの分解などにより DMSP が

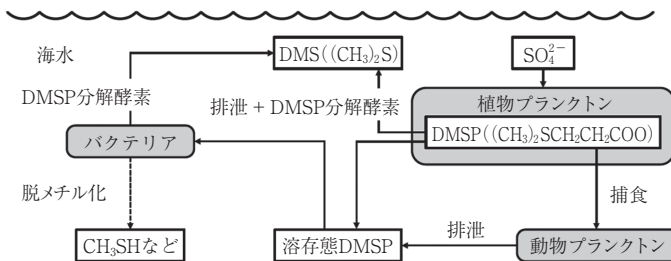


図1 海洋中での DMS 生成の模式図. Nagao (2012) を改変.

海水中に溶け込む。3) 溶存態のDMSPが海水中のバクテリアに取り込まれ、DMSPを分解する酵素でDMSに変換される。

このようにして海水中で生成されたDMSの一部（10%以下）が大気中に放出される。

10A2 硫酸エアロゾルとその前駆気体の発生量

表1にDMSとSO₂の全球での発生量と消失量の推定値を示した。また非海塩性硫酸塩の発生と沈着量も示した。

表1 全球での硫黄化合物の収支

DMS	発生量	19.4
SO ₂	全発生量	95.7
	人為起源発生	67.2
	DMSからの発生	18.5
	その他の発生源	10.0
	全消失量	96.4
非海塩性硫酸塩 (nss-SO ₄ ²⁻)	乾性・湿性沈着	41.9
	酸化による消失	51.6
	全発生量	53.3
	液相での酸化	42
	気相での酸化	11
	直接排出	2
	全消失量	57.6
乾性沈着	6.4	
湿性沈着	44.6	

数字の単位は Tg S/年

20種類の数値モデルによる計算結果の中央値。Faloona (2009) による。

10A3 無機エアロゾルの質量濃度分布

図1にCAM5-ATRASで計算された地表面付近での年平均の硫酸エアロゾル、硝酸エアロゾルの質量濃度分布を示した。

I 各章の発展解説

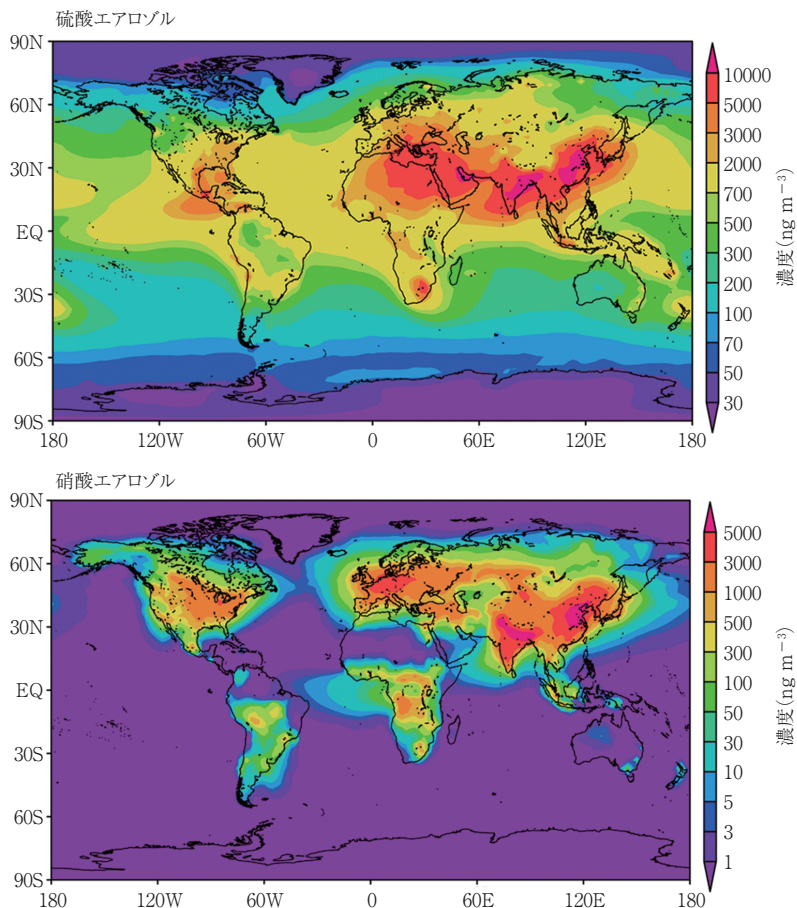


図1 CAM-ATRASで計算された地表面付近での年平均の硫酸エアロゾル濃度（上）と硝酸エアロゾル濃度（下）。硝酸エアロゾルでは SO_4^{2-} の、硝酸エアロゾルでは NO_3^- の質量濃度を示した。

10A4 有機エアロゾルの前駆気体の発生量

表1に全球での主要なBVOCの1980-2010年における年平均の発生量と相対的寄与を示した。この推定はSindelarova *et al.* (2014)による。

表 1 全球での主要な BVOC の 1980-2010 年の発生量と相対的寄与

成分	発生量 (Tg yr ⁻¹)	相対的寄与 (%)
イソプレン	594 ± 34	69.2
モノテルペン総計	95 ± 3	10.9
α-ピネン	32 ± 1	3.7
β-ピネン	16.7 ± 0.6	1.9
セスキテルペン	20 ± 1	2.4
メタノール	130 ± 4	6.4
アセトン	37 ± 1	3.0
エタノール	19 ± 1	1.3
アセトアルデヒド	19 ± 1	1.3
エテン	18.1 ± 0.5	2.0
プロペン	15.0 ± 0.4	1.7
ホルムアルデヒド	4.6 ± 0.2	0.2
ギ酸	3.5 ± 0.2	0.1
酢酸	3.5 ± 0.2	0.1
メチルブテノール	1.6 ± 0.1	0.1
トルエン	1.5 ± 0.1	0.2
他の VOCs	8.5 ± 0.3	0.8

10A5 有機化合物の蒸気圧

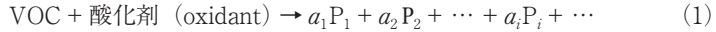
表 1 に含酸素有機化合物の平衡蒸気圧を示した。

表 1 含酸素有機化合物の平衡蒸気圧

成分	蒸気圧 (298 K) (atm)
アセトアルデヒド (acetaldehyde)	1.2
ピノンアルデヒド (pinonaldehyde)	4.2×10^{-5}
ペンタナール (pentanal)	$> 10^{-3}$
ギ酸 (formic acid)	$> 10^{-3}$
グルタル酸 (glutaric acid)	4.2×10^{-9}
マロン酸 (malonic acid)	5.2×10^{-9}
シュウ酸 (oxalic acid)	2.1×10^{-9}
コハク酸 (succinic acid)	4.0×10^{-10}
アジピン酸 (adipic acid)	3.2×10^{-11}
ピン酸 (pinic acid)	4.2×10^{-10}
ピメリン酸 (pimelic acid)	5.1×10^{-10}
レボグルコサン (levoglucosan)	4.5×10^{-10}

10A6 VOC と粒子相との平衡関係

大気中に放出された VOC は大気中での酸化反応



により有機生成物（分子種） P_1, P_2, \dots を生じる．ここで a_i は1モルのVOCの反応により生成される酸化されたVOC成分 P_i のモル数，すなわちモル収率（molar yield）である．反応により生成された有機成分 i はその一部が既存の粒子に凝縮しOAが生成される．OA粒子は成分 i を含む複数の成分から構成されており，各成分は粒子中で反応しないと仮定する．粒子相での成分 i の存在比 X_p を成分 i の平衡質量濃度 C_i^* とOAの質量濃度 C_{OA} の関数で表現すると便利である．このために次の手順に従い計算をする．1) 単一の成分 i からなるOAと平衡にある蒸気 i （分子量は M_i ）の質量濃度 c_i を求める．2) 多成分からなるOA（平均分子量は \bar{M} ）と平衡にある成分 i の気相の質量濃度 c_i^* を求める．3) c_i^* と粒子相の質量濃度 c_i^p との関係を求め，成分 i が粒子として存在する割合を求める．

1) 最初に分子量が M である蒸気分圧 p と質量濃度 c の一般的な関係を導く．温度 T ，体積 V の蒸気の質量を m とするとそのモル数は $n = m/M$ なので，理想気体の状態方程式から

$$pV = \frac{m}{M} R^* T \quad (2)$$

となる．この蒸気の質量濃度（密度）を

$$c \equiv m/V (\text{g m}^{-3}) \quad (3)$$

とすれば，この式は

$$p = \frac{m}{V} \frac{R^* T}{M} = \frac{c}{M} R^* T \quad (4)$$

となり，これより

$$c = \frac{pM}{R^* T} \quad (5)$$

が得られる．

2) まず分子量が M_i である単一の成分 i からなる液体粒子を考える．成分 i の平衡蒸気圧を p_i^* とすると，その質量濃度 c_i^* は式(5)から

$$c_i^* = \frac{p_i^* M_i}{R^* T} \quad (6)$$

となる。

3) 次に多成分の溶液からなる OA を考える。この粒子と熱力学平衡にある成分 i の蒸気圧 p_i はラウールの法則を非理想溶液に拡張した 7.9 節の式(7.79), (7.80)から

$$p_i = a_i p_i^* = x_i \gamma_i p_i^* \quad (7)$$

と表される。ここで a_i , x_i , γ_i はそれぞれ成分 i の粒子相での活量、モル分率、活量係数である。 p_i に対応する蒸気の質量濃度 c_i は式(5)より

$$c_i = \frac{p_i M_i}{R^* T} \quad (8)$$

となる。この式に式(7)の p_i を代入すれば

$$c_i = \frac{x_i \gamma_i p_i^* M_i}{R^* T} \quad (9)$$

となる。OA の質量濃度を C_{OA} 、OA 中の成分 i の質量濃度を c_i^p とすると、OA 成分 i のモル濃度（単位体積の空気中でのモル数）は、

$$N_i^p = \frac{c_i^p}{M_i} \quad (10)$$

である。 \bar{M} を多成分からなる OA の平均分子量とすれば、OA 全体のモル濃度は

$$N_{OA} = \frac{C_{OA}}{\bar{M}} \quad (11)$$

である。これより OA 中での成分 i のモル分率 x_i は

$$x_i = \frac{N_i^p}{N_{OA}} = \frac{c_i^p}{C_{OA}} \frac{\bar{M}}{M_i} \quad (12)$$

となる。これを式(9)の右辺に代入すれば、

$$c_i = \frac{1}{C_{OA}} \gamma_i \frac{p_i^* \bar{M}}{R^* T} c_i^p \quad (13)$$

を得る。ここで

$$C_i^* \equiv \frac{p_i^* \bar{M}}{R^* T} \quad (14)$$

I 各章の発展解説

を定義する。 C_i^* は単一の成分 i からなる液体と平衡にある気相成分 i の密度である c_i^* (式(6)) の分子量 M_i を多成分の液体の平均分子量 \bar{M} で置き換えた(気相成分 i の) 平衡質量濃度である。 これを用いると式(13)は

$$c_i = \frac{1}{C_{OA}} \gamma_i C_i^* c_i^p \quad (15)$$

となる。

さらに気相成分 i の有効平衡質量濃度を

$$C_i \equiv \gamma_i C_i^* = \gamma_i \frac{p_i^* \bar{M}}{R^* T} \quad (16)$$

と定義する。 これは非理想溶液の効果を考慮して C_i^* を補正した値であり、活量(7.9節の式(7.81))に類似している。 結局、 C_i は分子量が \bar{M} である非理想溶液と平衡にある蒸気成分 i の質量濃度である。 これを式(15)の右辺に代入すれば、多成分からなる OA と平衡にある蒸気成分 i の質量濃度は

$$c_i = \frac{c_i^p}{C_{OA}} C_i \quad (17)$$

となる。 この式を用いれば、化学反応で生成される成分 i の総量のうち粒子相に分配される割合は

$$X_p \equiv \frac{c_i^p}{c_i^p + c_i} = \frac{1}{1 + \frac{c_i}{c_i^p}} = \frac{1}{1 + \frac{C_i}{C_{OA}}} \quad (18)$$

と表される。

化学熱力学の教科書では単一成分の液体と平衡にある蒸気の圧力や質量濃度に*を付け、多成分における蒸気の圧力や質量濃度に*を付けないことが多いので本書の第7章でもそれに従った。 しかし、式(18)をその導出過程と切り離して示すと、 C_i が平衡質量濃度であるか明確でないので C_i を C_i^* と記すことが多い。 第10章ではこの慣例に従い式(18)を

$$X_p = \frac{1}{1 + \frac{C_i^*}{C_{OA}}} \quad (19)$$

と表した。

10A7 重要な BVOC とその反応

テルペン類、特にモノテルペン ($C_{10}H_{16}$) は最も重要な SOA の前駆気体である。イソプレンを除いて考えれば、全球での α -ピネン、 β -ピネン、サビネン (sabinene)、リモネンの発生量はすべてのテルペンの発生量の 40-80% を占めている (Seinfeld and Pankow, 2003)。モノテルペン成分が SOA の生成に寄与していることは多くのチェンバー実験や大気観測から実証されている。室内実験により SOA の収率、気相の反応速度、SOA の化学組成が測定されてきた。この実験結果を基に大気中の SOA 分布を数値モデルで計算し、観測と比較するという方法により SOA の挙動の理解が深まっている。たとえば夏季の北米南東部では

$$\frac{\text{(モノテルペンから生成する SOA 質量)}}{\text{(微小粒子中の全有機エアロゾル質量)}} \sim 0.5$$

と推定されている (Zhang *et al.*, 2018)。

イソプレンは生物起源から放出される他の VOC に比べその放出量は格段に大きいにも関わらず 2000 年代初頭までは、イソプレンの酸化生成物の揮発性が高いため SOA の前駆気体として重要であるとは考えられていなかった。しかしアマゾンの熱帯雨林での観測から高い極性をもつ有機物がエアロゾル中に多量に存在することが見出された (Claeys, 2004)。その化合物は 2-メチルトロール (2-methyltetrols) であり、これは 2-メチルトレイトール (2-methylthreitol) と 2-メチルエリトリトール (2-methylerythritol) という 2 種の異性体で構成される。その後、室内実験でこれらの成分の生成経路が判明し、イソプレンはその反応で重要な寄与をすると認識されるようになった。その反応経路を以下に述べる。

1. イソプレンからの SOA の生成経路

1.1 気相反応

図 1 に OH ラジカルで開始されるイソプレンからの BSOA 生成の簡略化された経路を示す。イソプレンの 2 つの 2 重結合の 1 つに OH が付加されることで生成されるヒドロキシアルキルラジカル (ISOP) と O_2 が反応し有機ペルオキシラジカル (ISOP O_2) が生成する。これまで R と記してきた有機化合物をイソプレンに対応する化合物であることを明確化して ISOP と記している。

I 各章の発展解説

NO_x 濃度が高い場合、 ISOPO_2 は NO と反応しアルコキシラジカルを生成する。これは分解し、揮発性のメタクロレイン (methacrolein: MACR), メチルビニルケトン (methyl vinyl keton: MVK) を生成したり、ヒドロキシカルボニル異性体 (hydroxycarbonyl isomer) などに変わる。 ISOPO_2 と NO との反応の結果、SOA 生成に寄与する可能性のあるヒドロキシナイトレート異性体 (hydroxy nitrate isomer) が約 7% の収率で生成する。

NO_x 濃度が低い場合は、 ISOPO_2 は HO_2 あるいは RO_2 と反応するか、または異性化する。 ISOPO_2 と HO_2 との反応ではヒドロキシヒドロペルオキシド (hydroxyhydroperoxide, ISOPOOH) が約 70% の収率で生成する。

ISOPO_2 と RO_2 との反応ではカルボニル化合物などが生成すると考えられている。清浄な大気中では ISOPO_2 の寿命が長く、異性化反応でヒドロペルキシアルデヒド (hydroperoxyaldehydes: HPALDs) が生成する。HPALDs は光分解によって OH を再生成する機能がある。

NO_x 濃度が低い条件下で、 ISOPOOH は OH が付加する反応をした後に、異性化反応により **IEPOX** と呼ばれるイソプレンのエポキシジオール (epoxydiols of isoprene) を 75% 以上の収率で生成する。

2. 液相反応

2.1 エアロゾル粒子

硫酸アンモニウムなどの無機塩を含むエアロゾルは相対湿度が閾値以上になると熱力学平衡で液体の水を含むようになる (7.13 節)。この水と無機塩との質量比は、雲粒子よりもはるかに小さい。エアロゾルは、雲粒子と比べ濃縮された水溶液であり、アンモニアなどで中和されていなければ酸性度も高い (H^+ 濃度が高い)。エアロゾル水分量と水分中の H^+ や SO_4^{2-} などの濃度は IEPOX をはじめとする有機物の溶解度を支配する。これは 2 種類の効果である塩溶効果 (salting-in effect) および塩析効果 (salting-out effect) として知られている。

気相の IEPOX は水溶性が高いため容易にエアロゾルに取り込まれる。 H^+ を含むエアロゾル中に取り込まれた IEPOX から酸触媒反応により硫酸エステル (organo sulfate), 2-メチルテトロール (2-methyltetrols), オリゴマーなどが生成される。これらの生成物は SOA の生成に大きく寄与する。実際、植生からのイソプレンの発生が多い世界の森林地域 (アマゾン, 東南アジアなど) で観測される OA の約 20-30% がこのような化合物であることが観測され

ている。

2.2 雲粒子

雲粒子中では上で述べたイソプレンの酸化により、メチルビニルケトン (MVK)、マタクロレイン (MACR)、グリコールアルデヒド (glycolaldehyde: $C_2H_4O_2$) などが生成される。これらの第一世代の生成物は揮発性であり、水には溶けにくい。第一世代の化合物はOHで酸化され、グリオキサール (glyoxal: CHO-CHO)、メチルグリオキサール (methylglyoxal) などが生成される。これらは半揮発性であり溶液に溶け、液相でのOHとの酸化反応でピルビン酸 (pyruvic acid)、グリオキシル酸 (glyoxylic acid)、シュウ酸 (oxalic acid) などが生成する。これらの蒸気圧は低く (10A5)、SOA生成に寄与する。メチルグリオキサールは液相で低揮発性のオリゴマーや有機硫酸を生じる (図10.7)。

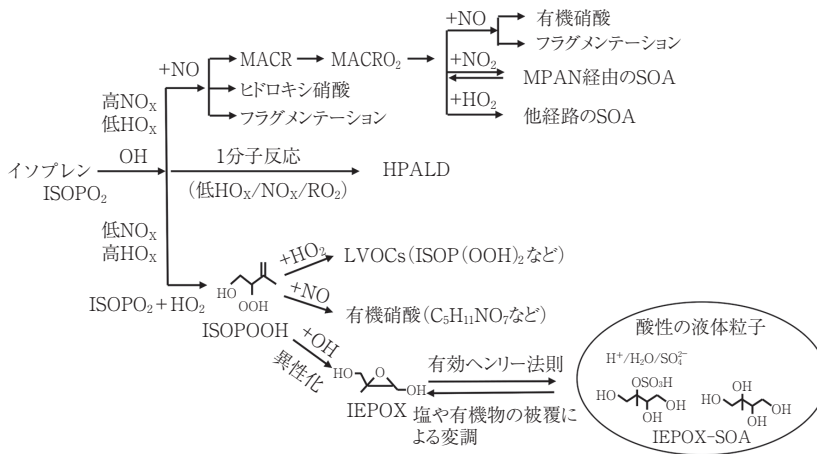


図1 イソプレンからのSOA生成過程の簡略化された模式図。
Shrivastava, *et al.* (2017) を改変。

10A8 重要なAVOCとその反応

AVOCからのASOAの生成過程が詳しく調べられてきた (Ervens *et al.* (2004) など)。芳香族化合物はAVOCの中で主要な成分である。その中でもトルエン (C_7H_8) は存在量が最も大きいAVOCの一つである。その酸化は

I 各章の発展解説

OH で開始され、ベンゼン環への付加反応もしくはメチル基からの水素引き抜き反応へと進む。OH 付加した化合物は O_2 と反応しペルオキシラジカルになる。引き続き反応により、メチルグリオキサルとグリオキサルが高い収率で生成する。これらの化合物は、そのかなりの割合が雲水に溶解、雲水中での反応で SOA が生成する。これらの液相反応はイソプレンの場合と類似している。

エテン (C_2H_4) は人為起源アルケンの中でも主要な成分である。それは主に OH で酸化され、引き続き反応の結果、約 20% がグリコールアルデヒド (ヒドロキシアセトアルデヒドともいう)、約 80% がホルムアルデヒド (HCHO) になる。グリコールアルデヒドは更に OH と反応し、約 20% がグリオキサルになる。グリコールアルデヒドとグリオキサルは雲水に溶解しやすい。これらの成分が液相反応することで SOA が生成される。

O_3 によるシクロヘキセン (cyclohexene: C_6H_{10}) の気相酸化ではグルタル酸 (C_5) やアジピン酸 (C_6) といったジカルボン酸が生じる。これらの酸は水に溶解、溶液中での反応で、コハク酸 (succinic acid: C_4)、マロン酸 (malonic acid: C_3)、シュウ酸 (C_2) と、より炭素数の少ないジカルボン酸に変化していく。これらのジカルボン酸の蒸気圧は十分低い (表 10.3, 付録 10A5) ため、雲粒子が蒸発すると、これらの成分を含んだ SOA が生成される。

10A9 BC および一次有機のエアロゾルの発生量

Bond *et al.* (2013) による全球での BC と POA の 2000 年での発生量の推定を表 1 に示した。開放系での燃焼 (open burning) とは森林火災・野焼き・農業廃棄物の燃焼である。

表 1 全球での BC と POA の 2000 年における発生量の推定。単位は $Gg (= 10^9 \text{ g}) C \text{ yr}^{-1}$

		BC	POA
すべての発生源	エネルギー利用	4770	15,900
	開放系での燃焼	2760	31,100
	合計	7530	47,000
1750 年でのバックグラウンド	エネルギー利用	390	1560
	開放系での燃焼	1020	12,800
	合計	1410	14,360
工業化時代	エネルギー利用	4380	14,300
	開放系での燃焼	1740	18,300
	合計	6120	32,600

10A10 POA とその反応

2006年頃までは、自動車からの排気やバイオマス燃焼などにより、大気中に粒子として直接放出される不揮発性で非水溶性の有機エアロゾルはPOAと定義されてきた。実際この過程による排出直後では、粒子は主として酸素を含まない炭化水素からなり、この化学特性を有している。しかし都市域を含め広い領域で、含酸素有機エアロゾル (oxygenated organic aerosol: OOA) が、有機エアロゾルの主成分であることがエアロゾル質量分析計で観測された。また、燃焼による粒子発生源から生じる高濃度の有機エアロゾルを希釈していくと、式(10.38)に従い、 X_p の値が低下していくことが2006年頃に観測された。このことは発生直後の燃焼起源POAは揮発性であることを示している。その後の多くの室内実験・野外観測・モデル計算により、POAはそれと同時に排出されるVOCと合わせて初めてその挙動の特性を説明できるようになってきた。

これを具体的に理解するために、POAと同時に生成する多くの種類のVOCを同定し、それぞれの種類のVOCの C_i^* を求め、式(10.38)などを用いてVBSの各ビンにおけるVOC排出量を推定したロサンゼルスでの研究結果の例を図1に示した (Shrivastava *et al.*, 2008)。 $C_i^* < 10^3 \mu\text{g m}^{-3}$ では有機成分の大部分が粒子相にあり、これが従来のPOAに相当する。

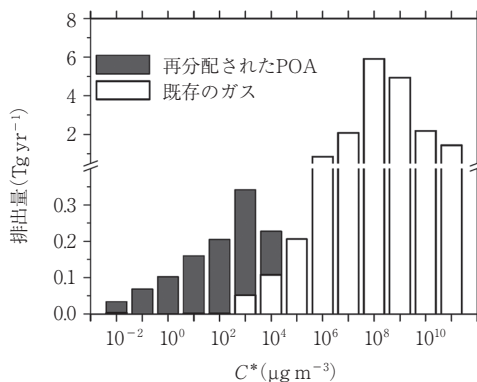


図1 C^* の関数として表したVOCのロサンゼルスでの発生量。気相、粒子相に分配される部分はそれぞれ白と黒で示した。Shrivastava (2008) による。

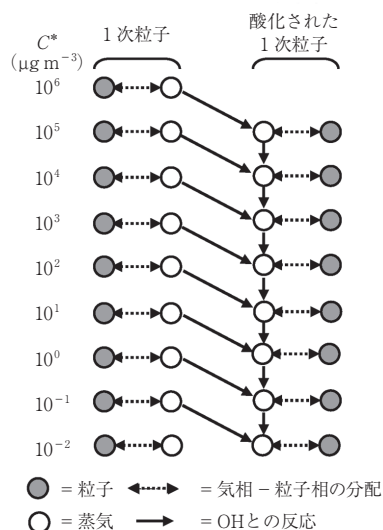


図2 POAと平衡にあるVOCの酸化によるOPOAの生成のダイアグラム. Shrivastava (2008) による.

同じである. このためPOAとSOAの区別があいまいになる. 実際, SOAの計算もVBSを用いた図2と同様の方法で行うことができる. ただし, 関与するVOCの化学種はPOAとは大きく異なり, それに対応する化学過程も異なる.

10A11 有機エアロゾルとブラックカーボンの質量濃度分布

CAM-ATRASで計算された年平均の, 地表面付近でのPOA, SOAおよびBCの濃度分布を図1に示した.

図2にPOAとVOCの混合物の相互作用を取り扱う1つの方法を模式的に示した (Shrivastava *et al.*, 2008).

VOC成分*i*はOHとの1回の酸化反応で C_i^* が1/10に低下すると仮定する. 酸化により生成された成分を*i*-1, その平衡質量濃度を C_{i-1}^* とする. 平衡質量濃度が C_{i-1}^* の粒子に成分*i*-1のVOCにこれが加わり, C_{i-1}^* にある粒子濃度が増加する. この過程が繰り返されていく間に元々あったPOAに光化学的に生成される有機成分が加わり, 粒子濃度が変化していく. この生成されたエアロゾルをOPOA (oxidized POA (酸化されたPOA)) と呼ぶ.

図2で表されるOPOAの光化学生成過程は, SOA生成過程と基本的に

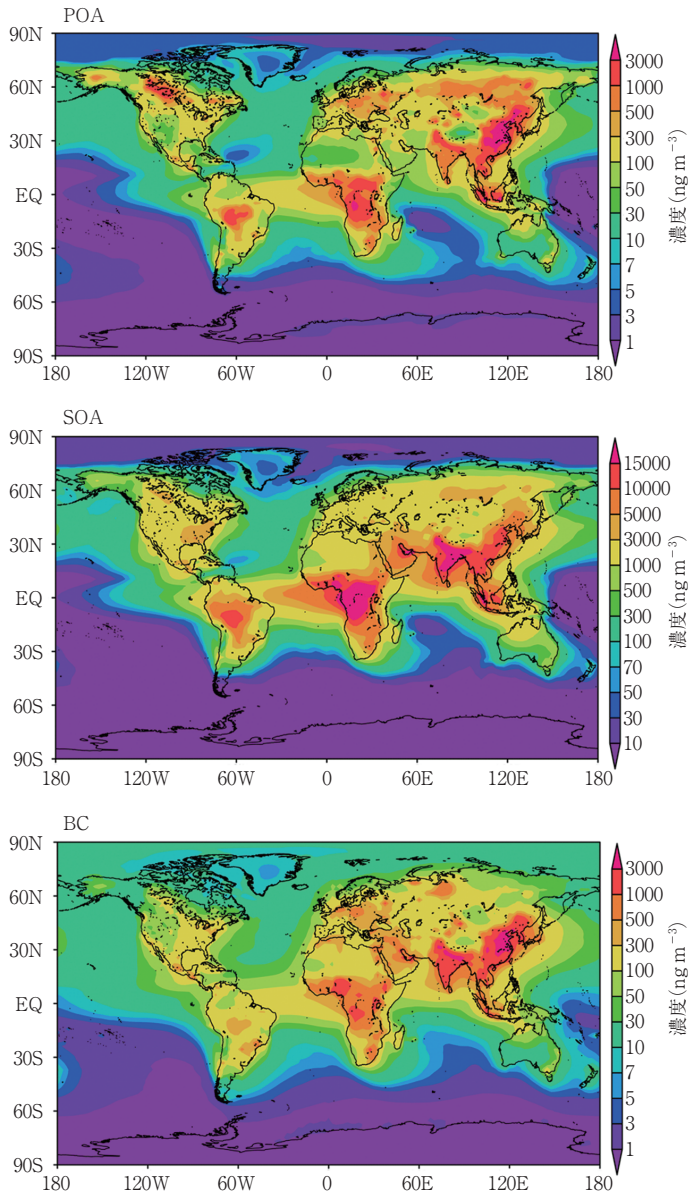


図1 CAM-ATRASで計算された年平均の地表面付近でのPOA(上), SOA(中), BC(下)の年平均の質量濃度(ng m^{-3}). POAとSOAについては、それらに含まれるすべての化学成分の質量濃度を示した。

10A12 ブラックカーボンの構造と生成過程

1. BC の構造

単一の BC 粒子には典型的には約 10^5 個の炭素粒子が含まれ H/C 比は約 0.1 である。炭素原子が正六角形に共役二重結合した分子であるグラフェン（巨大な平面状分子）が約 0.34 nm の間隔で層状に重なったグラフェン小板（platelet）の中に配置される（図 1）。各グラフェン内において炭素原子は 120° の角度で最近接の 3 つの炭素原子と結合している。数層のグラフェン小板が重なり、約 1 nm の厚さの結晶子（crystallite）を構成する。約 10^3 個の結晶子が集まり球形の一次粒子を構成する。この結晶子は一次粒子の表面に対し平行状に配置されている。数十から数千個の一次粒子の凝集体が、鎖状の二次粒子（BC）である。ここで述べた一次粒子と二次粒子は 10 章などで述べた一次エアロゾルと二次エアロゾルとは意味が異なる。

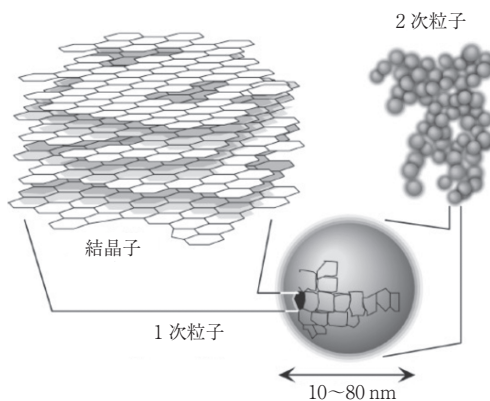


図 1 BC 粒子の構造. Miyoshi (2017) を改変.

2. BC の生成

図 2 に示したように高温のエンジン内での BC 生成は、燃料の熱分解による前駆気体の生成、核生成、併合、併合した粒子表面上への付着成長による一次粒子の生成、一次粒子の凝集、酸化という過程からなる。より具体的には燃焼に伴い、次の 6 つの一連の過程が生じる。図 2 中での番号は、以下の過程の番号に対応する。

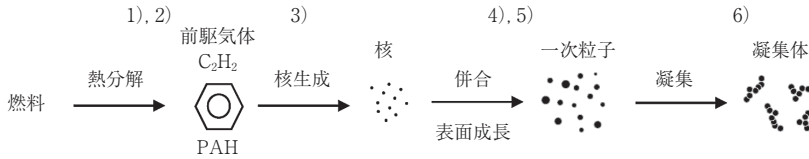


図2 ディーゼルエンジン中での燃焼によるBC粒子の生成過程.
Tree and Svenson (2007) を改変.

1) 燃料中の炭素と水素が高温で燃焼する際に酸素が不足したり、燃料との混合が不均一であったりするので、一部は不完全燃焼の状態になる。2) H, O, OH ラジカルで促進される熱分解により不飽和の炭化水素、ポリアセチレン、PAH、アセチレンなどが作られる。3) 1300–1600 K の温度で、このような気相の反応物から直径 1–2 nm 程度の粒子が核生成する。4) この高温下で小粒子に気相の炭化水素（特にアセチレン）が凝縮し成長する。5) 小粒子同士の衝突と併合により、直径 10–80 nm の一次粒子が生成する。6) この一次粒子が互いに凝集し、多くの一次粒子からなる鎖状の二次粒子ができる。この BC 粒子の典型的な大きさは 100 nm から 2 μm の範囲にある。

10A13 ブラックカーボンの光吸収と吸湿特性

1. BC の光吸収

炭素原子の価電子の電子配置は $2s^2 2p_x^1 2p_y^1$ である。2s と 2p の軌道エネルギー差は小さい。このため共役二重結合をしている正六角形状の炭素分子では 2s 軌道を占めている 2 つの電子のうちの 1 つが 2p 軌道に昇位して、 $2s^1 2p_x^1 2p_y^1 2p_z^1$ の電子配置になる。このうちの 2s 軌道と 2 つの 2p 軌道から 3 つの sp^2 混成軌道ができる。

この sp^2 混成軌道はそれぞれが隣接する炭素原子の sp^2 混成軌道と相互作用することで、正六角形状の分子平面を形成するための σ 結合を作る。残ったもう 1 つの 2p 軌道は分子平面に対し垂直に立っている。これは、隣の炭素原子の同種の 2p 軌道との間で相互作用をして π 結合を作る。すべての炭素が共役二重結合しているので、 π 軌道は分子全体に広がっている。すなわち、ベンゼン分子のように、正六角形の 1 つのユニット全体に広がるドーナツ状の π 軌道が分子面の上下にでき、6 個の π 電子は特定の C–C 間にそれぞれ局在しているのではなく、すべての C–C 間に均等に分布している。

I 各章の発展解説

このため π 電子は平面全体を自由に動くことができ、種々のエネルギー状態を取ることができる。エネルギー準位の間隔が狭いため、BCは可視領域の光を連続的に吸収し黒色になる。混成軌道や π 結合の説明については、有機化学の教科書を参照されたい。

2. 被覆による BC の光吸収増幅

BCを内部に含む粒子のBC部分をBCコア(BC core)と呼び、その形状を球形と近似する。またコアと同心の球殻状にBCが被覆されると仮定し、これをBCのシェル(shell)と呼ぶ。BCを内部に含む粒子が球対称のコアとシェルからなると近似したモデルをコア-シェルモデルと呼ぶ(Ohata *et al.*, 2016)。

被覆されたBCは被覆されていないBCに比べ、太陽光をより強く吸収する作用がある。これは被覆によりBC粒子の被覆層に入射する光線が屈折しBC方向に進む確率が増加するため、レンズ効果と呼ばれる。凸レンズが平行光線を屈折によりレンズの中央部に集める効果に類似している。ただしBCの大きさは光の波長と同程度なので、BCの光学的な特性の計算にはレンズの場合のような幾何光学の理論は適用できない。

光吸収の増幅度 E は

$$E \equiv [\text{被覆された状態での BC の光吸収断面積}] / [\text{被覆なしでの光吸収断面積}]$$

として定義される。ここでは光の波長 500 nm, BCのコア直径 150 nm, BCコアの複素屈折率 $1.95 + 0.79i$, 被覆成分(硫酸アンモニウム)の複素屈折率 $1.53 + 0i$ を与え、コア-シェルモデルを仮定した。球形粒子に適用できる光学理論(ミー理論)を用いて E を計算した結果を図1(a)に示した。[BCの全体直径]/[コア直径]の比 R が 1.4 程度で $E \approx 1.4$ となり、 $R \approx 2$ で $E \approx 2$ となる。このような光吸収の増幅効果は室内実験でも示されている(Shiraiwa *et al.*, 2010)。

3. BC の雲凝結核特性

BCコアの吸湿パラメータ κ の値を 0, 被覆成分(硫酸アンモニウム)の κ の値を 0.61 と仮定し、BCが雲凝結核として作用するのに必要な過飽和度(臨界過飽和度)を κ -ケーラー理論を用いて計算した結果を図1(b)に示した。臨界過飽和度や κ -ケーラー理論については第12章を参照されたい。臨界過飽和度は被覆の厚さ(シェルの体積)の増加とともに水蒸気を吸収しやすくなり、

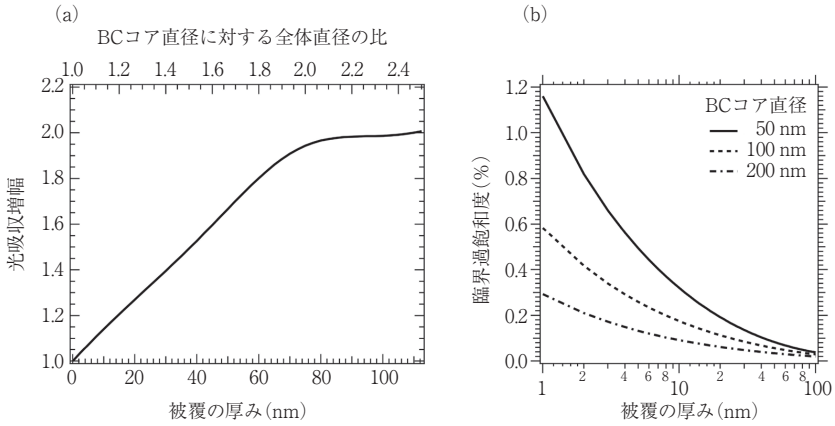


図 1 (a) 波長 500 nm の光に対する, BC の光吸収増幅率と被覆の厚さとの関係.
 (b) BC の雲凝結核特性 (臨界過飽和度) の被覆の厚さ依存性.

臨界過飽和度が低下することがわかる. このように被覆が厚い BC は雲凝結核として作用しやすい.

第 11 章

11A1 相対湿度の高度変化と湿潤断熱減率

1. 相対湿度の高度変化

飽和水蒸気の混合比 q_s の式(11.2)を再掲すると

$$q_s(T, p) = \frac{\varepsilon e_s(T)}{p} \quad (1)$$

である. ここで $e_s(T)$ は平衡水蒸気圧であり, また

$$\varepsilon \equiv \frac{R_d}{R_v} = \frac{M_v}{M_d} = 0.622 \quad (2)$$

である. 式(1)を p で微分すれば

$$\frac{dq_s}{dp} = \frac{d}{dp} \left(\frac{\varepsilon e_s}{p} \right) = \varepsilon \left(\frac{1}{p} \frac{de_s}{dp} - \frac{e_s}{p^2} \right) = \varepsilon \left(\frac{1}{p} \frac{de_s}{dT} \frac{dT}{dp} - \frac{e_s}{p^2} \right) = \frac{\varepsilon e_s}{p} \left(\frac{1}{e_s} \frac{de_s}{dT} \frac{dT}{dp} - \frac{1}{p} \right)$$

$$= q_s \left(\frac{1}{e_s} \frac{de_s}{dT} \frac{dT}{dp} - \frac{1}{p} \right) \quad (3)$$

となる。一方クラウドジウス-クラベイロンの式である7.4節の式(7.46)を再掲すれば

$$\frac{de_s}{dT} = \frac{L_{lv}^* e_s(T)}{R^* T^2} = \frac{L_{lv} e_s}{R_v T^2} \quad (4)$$

である。ここで L_{lv} は単位質量の水蒸気の凝結に伴う潜熱（エンタルピー）である。これを式(3)の最右辺に代入すると

$$\frac{dq_s}{dp} = q_s \left(\frac{L_{lv}}{R_v T^2} \frac{dT}{dp} - \frac{1}{p} \right) \quad (5)$$

を得る。ここでは水蒸気の凝結が起きる以前の状態を考えているので、3.2節の乾燥断熱過程の式(3.19)が成り立つ。それを再掲すれば

$$\frac{dT}{dp} = \frac{1}{c_p \rho} = \frac{RT}{c_p p} \approx \frac{R_d T}{c_p p} \quad (6)$$

となる。この式の右辺第2式の導出には理想気体の状態方程式

$$p = \rho R T \approx \rho R_d T \quad (7)$$

を用いた。式(6)を式(5)に代入すると

$$\frac{dq_s}{dp} = q_s \left(\frac{L_{lv}}{R_v T^2} \frac{R_d T}{c_p p} - \frac{1}{p} \right) = q_s \left(\frac{\varepsilon L_{lv}}{c_p T} \frac{1}{p} - \frac{1}{p} \right) = \frac{q_s}{p} \left(\frac{\varepsilon L_{lv}}{c_p T} - 1 \right) \quad (8)$$

を得る。 $\varepsilon = 0.622$, $L_{lv} = 2.50 \times 10^6 \text{ J kg}^{-1}$, $c_p = 1005 \text{ J K}^{-1} \text{ kg}^{-1}$ であるので

$$\frac{\varepsilon L_{lv}}{c_p T} = \frac{1560}{T} \quad (9)$$

となる。式(8)より、 $T < 1560 \text{ K}$ では

$$\frac{dq_s}{dp} > 0 \quad (10)$$

である。

2. 湿潤断熱減率

空気塊が上昇すると断熱膨張によりその温度 T は低下し、相対湿度 RH が高くなる。RH < 100% の高度までは、 T は乾燥断熱減率 Γ_d で低下する。しかし空気塊が上昇を続け RH = 100% に達すると水蒸気の凝結が起き始める。この高度を持ち上げ凝結高度 (LCL) という。LCL に達した後は、凝結に伴い

水蒸気の潜熱が放出される。すなわち非断熱加熱が起きる。水蒸気が飽和した状態で気圧 p が変化する場合の高度 z に対する T の変化率を求める。

$L_{lv}q_v$ は単位質量の空気塊中に存在する水蒸気のエンタルピー（化学エネルギー）である。ここでは水蒸気が飽和した状態を考えているので $q_v = q_s$ である。湿潤断熱変化における単位質量の空気塊のエネルギー収支を表す 3.2 節の式 (3.18) を再掲すると

$$d'q = c_p dT - \frac{RT}{p} dp \quad (11)$$

となる。 $d'q$ は水蒸気の凝結に伴い放出される潜熱であり、 $dq_s < 0$ なので

$$d'q = -L_{lv} dq_s \quad (12)$$

と表わされる。これを式(11)の左辺に代入すると

$$-L_{lv} dq_s \approx c_p dT - \frac{R_d T}{p} dp \quad (13)$$

となる。一方、式(1)の対数をとって微分すると

$$\frac{dq_s(T, p)}{q_s} = -\frac{dp}{p} + \frac{de_s}{e_s} \quad (14)$$

となる。この dq_s を式(13)の左辺に代すると

$$-L_{lv} q_s \left(\frac{de_s}{e_s} - \frac{dp}{p} \right) = c_p dT - \frac{R_d T}{p} dp \quad (15)$$

となる。また静水圧平衡の式である 2.5 節の式 (2.41) を再掲すると

$$\frac{dp}{p} = -\frac{g}{R_d T} dz \quad (16)$$

である。これを式(15)の両辺に代入し、変形すると

$$-c_p dT = L_{lv} q_s \left(\frac{de_s}{e_s} + \frac{g}{R_d T} dz \right) + g dz \quad (17)$$

となる。この式の両辺を $c_p dz$ で割れば

$$-\frac{dT}{dz} = \frac{L_{lv}}{c_p} q_s \left(\frac{1}{e_s} \frac{de_s}{dz} + \frac{g}{R_d T} \right) + \frac{g}{c_p} \quad (18)$$

となる。また微分の連鎖律である

$$\frac{de_s}{dz} = \frac{de_s}{dT} \frac{dT}{dz} \quad (19)$$

の関係を式(18)の右辺に代入すると

$$-\frac{dT}{dz} = \frac{L_{lv}}{c_p} q_s \left(\frac{1}{e_s} \frac{de_s}{dT} \frac{dT}{dz} + \frac{g}{R_d T} \right) + \frac{g}{c_p} \quad (20)$$

となる。 dT/dz を含む項を左辺にまとめると

$$-\frac{dT}{dz} \left(1 + \frac{de_s}{dT} \frac{L_{lv}}{c_p} \frac{q_s}{e_s} \right) = \frac{g}{c_p} \left(\frac{L_{lv} q_s}{R_d T} + 1 \right) \quad (21)$$

となる。この式の左辺第2項に式(4)を代入すると

$$-\frac{dT}{dz} \left(1 + \frac{L_{lv}^2 q_s}{R_v c_p T^2} \right) = \left(\frac{L_{lv} q_s}{R_d T} + 1 \right) \frac{g}{c_p} \quad (22)$$

となる。

$$\Gamma_s = -\frac{dT}{dz} \quad (23)$$

と

$$\Gamma_d = \frac{c_p}{g} \quad (24)$$

の関係を用いると湿潤断熱減率は

$$\Gamma_s(T, p) = \left(\frac{1 + \frac{L_{lv} q_s}{R_d T}}{1 + \frac{L_{lv}^2 q_s}{R_v c_p T^2}} \right) \Gamma_d = \left(\frac{1 + \frac{L_{lv} q_s}{R_d T}}{1 + \frac{\varepsilon L_{lv}^2 q_s}{c_p R_d T^2}} \right) \Gamma_d \quad (25)$$

と表される。

$$\frac{L_{lv} R_d}{R_v c_p T} > 1 \quad (26)$$

なので、式(25)最右辺の () 内の式の値は1以下となり、

$$\Gamma_s(T, p) < \Gamma_d \quad (27)$$

が得られる。

11A2 降水量の全球分布

1979-2013年における降水量の通年平均値を図1と図2に示した。

GPCP降水量

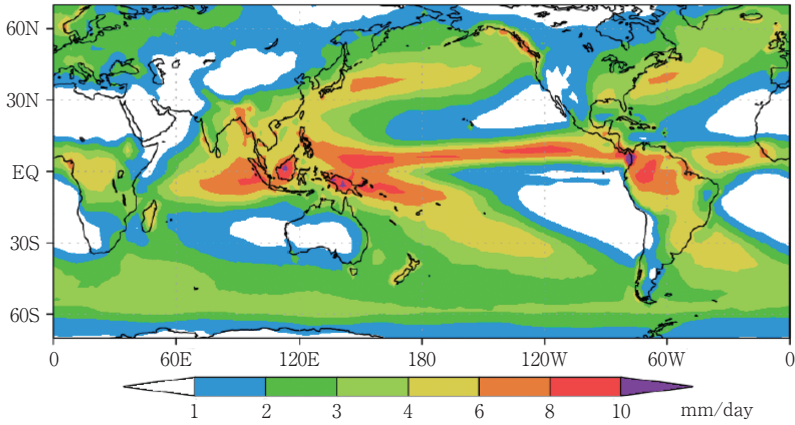


図 1 2.5°(緯度)×2.5°(経度)グリッドでの GPCP (Global Precipitation Climatology Project) データによる年平均した 1 日当たりの降水量の分布. Kawai *et al.* (2021) を改変.

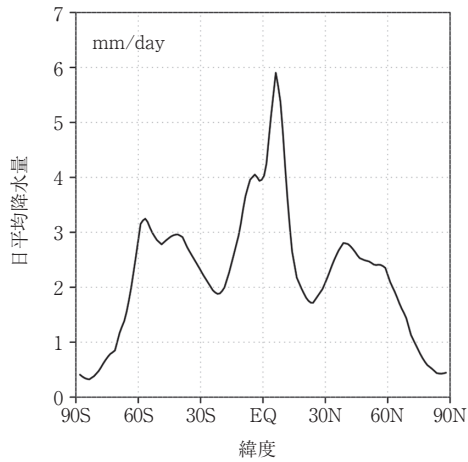


図 2 経度方向に平均した年平均の降水量. 1979–2013 年の GPCP データを用いた, Kawai *et al.* (2021) による.

第12章

12A1 水滴の曲率効果と溶質効果の分子運動論的な解釈

1. 曲率効果

曲率効果は式(12.7)の導出過程から明らかなように, “ ΔG の計算には水蒸気と液体の水という新しい界面を形成するためのエネルギーを考慮する必要がある” という熱力学的な効果と理解できる. これに加え, “分子は相互に力を及ぼしあいながら運動する” という分子運動論的な立場からも曲率効果を説明できる (図1(a)および(b)). 微視的には常に水面や水滴から水分子がランダムに気相に飛び出している. この単位表面積当たりのフラックスを $j_{\text{out}}(r)$ (molecules $\text{m}^{-2} \text{s}^{-1}$) とする. また水蒸気分子が水面に衝突して取り込まれるフラックスを $j_{\text{in}}(r)$ とする. ここで r は水滴の半径であり, 図1(a)は $r = \infty$ に相当する. $j_{\text{out}}(r) = j_{\text{in}}(r)$ となる状態が平衡状態である. 水表面にある水分子と周囲の多数の水分子との引力 (水素結合) が表面にある水分子を引き留めている. 平面状の水面 (図1(a)) よりも表面が凸である水滴 (図1(b)) の方が, 表面にある水分子を引き留める周囲の水分子の数が少なく (図1(b)の点線で描いた小円の分子の数だけ) 引き留める力が弱い. このため $j_{\text{out}}(r) > j_{\text{out}}(\infty)$ となる. 水蒸気の入出りを釣り合わせるためには, $j_{\text{in}}(r) = j_{\text{out}}(r) > j_{\text{out}}(\infty) = j_{\text{in}}(\infty)$ となる必要がある. 液面の直上においては, $j_{\text{in}}(r) > j_{\text{in}}(\infty)$ の関係が成り立つためには $e_s(r) > e_s(\infty)$ となる必要がある (4.1.3 節の式(4.6)). また r が小さいほど表面にある水分子の周囲の水分子数が少なくなるために $e_s(r)$ は高くなる. これが分子運動論的な曲率効果の説明である.

2. 溶質効果

液面が平面である水溶液を考える. 水溶液中の H_2O のモル濃度を n_w , 溶質 (solute) のモル濃度を n_s とする. ラウールの法則 (7.8 節) により, 理想溶液では水溶液に対する平衡水蒸気圧 $e_s^{\text{soln}}(\infty)$ と純水に対する平衡水蒸気圧 $e_s(\infty)$ との比は, 水溶液中の水のモル分率 $x_w = n_w / (n_w + n_s)$ と等しくなり,

$$\frac{e_s^{\text{soln}}(\infty)}{e_s(\infty)} = \frac{n_w}{n_w + n_s} \quad (1)$$

と表される。この結果、平衡水蒸気圧 $e_s^{\text{soln}}(\infty)$ は溶質のモル分率の増加とともに線形に低下する (図12.4の点線)。このことから、水溶液では $\text{RH} < 100\%$ でも気液平衡が成り立つ。この溶質効果も分子運動論的に説明できる。水溶液でも平衡状態においては出入りする H_2O 分子のフラックスは等しいため、 $j_{\text{in}}^{\text{soln}}(\infty) = j_{\text{out}}^{\text{soln}}(\infty)$ となる (図1(c))。純粋な水では水面はすべて H_2O 分子が占めるが (図1(a))、水溶液では溶質の分子も表面を占める。水溶液表面の H_2O 分子の比率が水溶液中の水のモル分率 x_w と等しいとすると、水溶液から出ていく水蒸気フラックスは $j_{\text{out}}^{\text{soln}}(\infty) = x_w j_{\text{out}}(\infty)$ となる。平衡状態では $j_{\text{in}}^{\text{soln}}(\infty) = j_{\text{out}}^{\text{soln}}(\infty) = x_w j_{\text{in}}(\infty)$ となる。 $j_{\text{in}}^{\text{soln}}(\infty) = x_w j_{\text{in}}(\infty)$ の関係が成り立つためには $e_s^{\text{soln}}(\infty) = x_w e_s(\infty)$ となる必要がある (式(4.6))。

上述のように、式(1)は液面から出ていく H_2O フラックスと液面に入る H_2O フラックスが等しいという平衡状態を考えて導出される。液面での水のモル分率は液体全体での水のモル分率に等しいので、両式は液面の曲率半径に依存せず成り立つことが理解できる。

無機の溶質の一部は水溶液の中でイオンに解離する。上記の微視的な観点からすると、溶質のイオン化により液面における水以外の分子の割合が増加し、水のモル分率が減少する。先と同様の分子運動論的な考察から $e_s^{\text{soln}}(\infty)$ はその分だけ低下することになる。

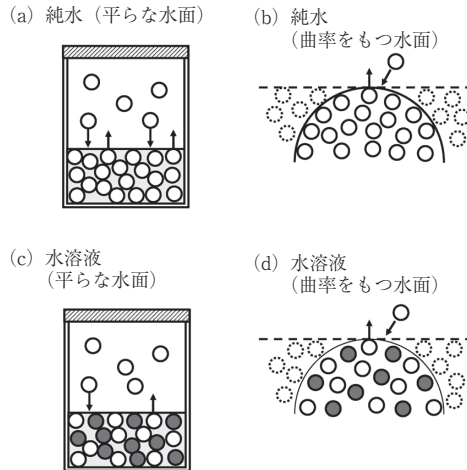


図1 液体表面が平面あるいは球面の場合において、純水および水溶液と気相との間で生じる水分子のフラックスの模式図。

12A2 CCN の数濃度分布

CCN の化学組成が同一であれば活性化半径 r_{act} と活性化過飽和度 s_{act} は一対一に対応し s_{act} の増加とともに r_{act} は減少する (12.2 節の図 12.6). この関係はケーラー理論の重要な結果である. このことから CCN の数濃度 N_{CCN} を $s = (S-1) \times 100\%$ の関数である $N_{\text{CCN}}(s)$ として表することができる. これを CCN の活性化スペクトル (activity spectrum) という. $N_{\text{CCN}}(s)$ は CCN 数濃度計測器で測定される. この測定器は既知の流量で取り込んだ空気を過飽和度 s の環境下に置き, その空気に含まれるエアロゾルのうち雲粒子に成長した粒子数を計測するという原理に基づく. 図 1 にさまざまな地域の気境界層中において観測された $N_{\text{CCN}}(s)$ の例を示す. 一般的に, 人為的なエアロゾルの影響が大きい大陸性の気団中では海洋性の気団中に比べ $N_{\text{CCN}}(s)$ が大きい. 実際, 図 1 の例では $s = 0.02\text{--}1\%$ の範囲での $N_{\text{CCN}}(s)$ には約 10 倍, 場所によってはそれ以上の差がある. また s が大きくなると r_{act} は減少するので, $N_{\text{CCN}}(s)$ は増加することも図 1 の例で示されている.

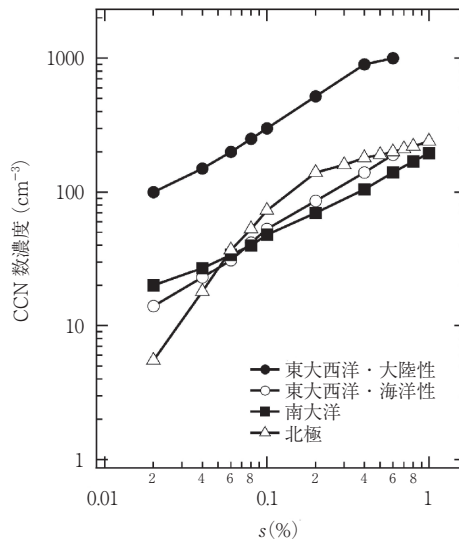


図 1 東部大西洋・大陸性, 東部大西洋・海洋性, 南大洋, 北極の各領域の気境界層中での平均的な $N_{\text{CCN}}(s)$. 晴天状態での航空機観測により得られた値である. Hudson and Yum (2002) を改変.

12A3 モデル計算による CCN の数濃度分布

CAM-ATRAS で計算された地表面付近での $s = 0.1\%$ および 1% に対応する CCN 数濃度 ($N_{\text{CCN}}(s)$) を図 1 に示した.

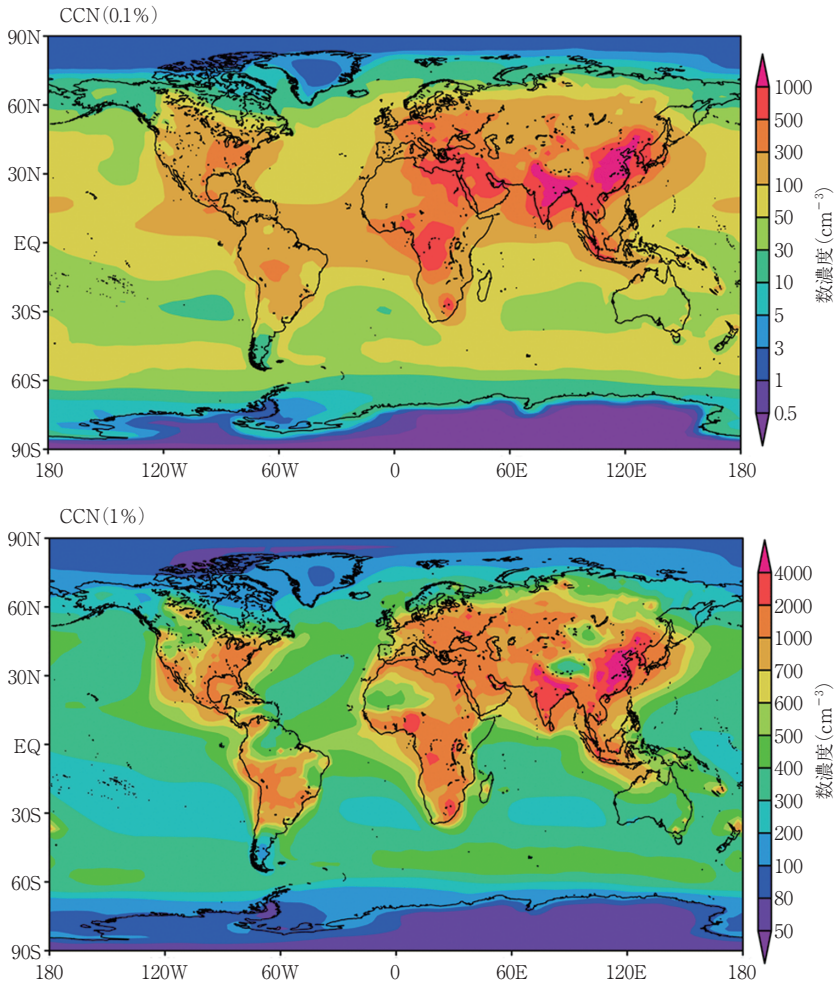


図 1 CAM-ATRAS で計算された地表面付近の $N_{\text{CCN}}(0.1\%)$ (上) と $N_{\text{CCN}}(1\%)$ (下) (cm^{-3}).

第13章

13A1 熱伝導方程式

比熱 c , 密度 ρ , 断面積が一定の x 軸方向に延びた柱状の物体を考える. 時刻 t , 位置 x における温度を $T(x, t)$ とする. x における垂直断面を通して高温側から低温側に熱エネルギーが流入する. 単位断面積当たり単位時間に流入する熱エネルギー, すなわち熱フラックス密度 (略して熱フラックス) $q_T(x)$ は T の勾配に比例するというフーリエの熱伝導の法則により

$$q_T(x) = -K \frac{\partial T(x)}{\partial x} \quad (\text{J m}^{-2} \text{s}^{-1}) \quad (1)$$

で与えられる. ここでマイナスの符号は高温側から低温側に熱フラックスが生じることに対応している. K は熱伝導係数 (あるいは熱伝導率) ($\text{J s}^{-1} \text{m}^{-1} \text{K}^{-1}$) であり, $p = 1000 \text{ hPa}$, $T = -10^\circ\text{C} \sim 10^\circ\text{C}$ での空気では $K \approx 25 \times 10^{-2} \text{ J s}^{-1} \text{m}^{-1} \text{K}^{-1}$ である. $[x, x + \Delta x]$ の領域に単位断面積当たり Δt の時間に正味流入する熱エネルギーは, 式(1)を用いて

$$\begin{aligned} [q_T(x) - q_T(x + \Delta x)] \Delta t &= -K \left[\frac{\partial T(x)}{\partial x} - \left(\frac{\partial T(x + \Delta x)}{\partial x} \right) \right] \Delta t \approx K \frac{\partial}{\partial x} \left(\frac{\partial T(x)}{\partial x} \right) \Delta x \Delta t \\ &= K \frac{\partial^2 T(x)}{\partial x^2} \Delta x \Delta t \end{aligned} \quad (2)$$

と表される.

一方, $[x, x + \Delta x]$ の領域における, 単位断面積当たりの質量 $\rho \Delta x$ である. この部分の温度を Δt の間に ΔT だけ上昇させるのに必要な熱エネルギーは

$$(\rho \Delta x) c \Delta T = c \rho \left(\frac{\partial T}{\partial t} \Delta t \right) \Delta x = c \rho \frac{\partial T}{\partial t} \Delta x \Delta t \quad (3)$$

と表される.

式(2)と式(3)の最右辺が等しいとおけば熱伝導方程式

$$\frac{\partial T(x, t)}{\partial t} = k \frac{\partial^2 T(x, t)}{\partial x^2} \quad (4)$$

が得られる. ここで $k = K/c\rho$ は熱拡散係数である.

4.2 節の蒸気の拡散フラックスの表現と同様に式(1)の $q_T(x)$ を 3 次元に拡張

することができる。すなわち、等温度面上の単位面積を単位時間に通過する熱エネルギーフラックスベクトルは

$$\mathbf{q}_T(\mathbf{r}, t) = -K \nabla T(\mathbf{r}, t) \quad (5)$$

と表される。これに対応して3次元の熱伝導方程式は

$$\frac{\partial T(\mathbf{r}, t)}{\partial t} = k \nabla^2 T(\mathbf{r}, t) \quad (6)$$

となる。

13A2 雲粒子の凝結成長

1. 式(13.21)の導出

平衡水蒸気圧 $e_s(T)$ の温度変化はクラウジウス-クラペイロンの式

$$\frac{de_s}{dT} = \frac{L_{lv}}{R_v} \frac{e_s}{T^2} \quad (1)$$

で与えられる（付録11A1の式(4)）。ここで平衡水蒸気密度を $\rho_s(T)$ とし、理想気体の式 $e_s = \rho_s R_v T$ をこの式の左辺に代入すれば、

$$\frac{d\rho_s}{dT} R_v T + \rho_s R_v = \frac{L_{lv}}{R_v} \frac{\rho_s R_v}{T} \quad (2)$$

となる。この式の両辺に $dT/\rho_s R_v T$ を掛ければ

$$\frac{d\rho_s}{\rho_s} + \frac{dT}{T} = \frac{L_{lv}}{R_v} \frac{dT}{T^2} \quad (3)$$

となり、

$$\frac{d\rho_s(T)}{\rho_s(T)} = \frac{L_{lv}}{R_v} \frac{dT}{T^2} - \frac{dT}{T} = \left(\frac{L_{lv}}{R_v T} - 1 \right) \frac{dT}{T} \quad (4)$$

が得られる。これが式(13.21)である。

2. 式(13.22)の導出

式(4)は

$$d \ln \rho_s(T) = \frac{L_{lv}}{R_v} \frac{dT}{T^2} - \frac{dT}{T} \quad (5)$$

となる。この式を T から $T(r_p)$ まで T について積分すると、

$$\begin{aligned}\ln \frac{\rho_s(T(r_p))}{\rho_s(T)} &= -\frac{L_{lv}}{R_v} \left[\frac{1}{T(r_p)} - \frac{1}{T} \right] - \ln \frac{T(r_p)}{T} \\ &= \frac{L_{lv}}{R_v T(r_p) T} [T(r_p) - T] - \ln \frac{T(r_p)}{T}\end{aligned}\quad (6)$$

となる。 $0 < (T(r_p) - T)/T \ll 1$ なので

$$\ln \frac{T(r_p)}{T} = \ln \frac{T + T(r_p) - T}{T} = \ln \left[1 + \frac{T(r_p) - T}{T} \right] \approx \frac{T(r_p) - T}{T} \quad (7)$$

と近似できる。これを式(6)の最右辺の第2項に代入すると、

$$\begin{aligned}\ln \frac{\rho_s(T(r_p))}{\rho_s(T)} &\approx \frac{L_{lv}}{R_v T(r_p) T} [T(r_p) - T] - \frac{[T(r_p) - T]}{T} \\ &\approx \frac{L_{lv} - R_v T}{R_v T^2} [T(r_p) - T]\end{aligned}\quad (8)$$

となる。この式の最右辺の導出では $T(r_p) T \approx T^2$ と近似した。この式の両辺を $T(r_p)$ で微分すると (T と $\rho_s(T)$ は一定として)

$$\frac{d\rho_s(T(r_p))}{\rho_s(T(r_p)) dT(r_p)} = \frac{L_{lv} - R_v T}{R_v T^2} \quad (9)$$

となる。

ここで $\rho_s(T(r_p))$ を T の周りでテイラー展開し、 $[T(r_p) - T]$ についての1次の項だけを残せば

$$\rho_s(T(r_p)) = \rho_s(T + T(r_p) - T) \approx \rho_s(T) + \frac{d\rho_s(T(r_p))}{dT(r_p)} [T(r_p) - T] \quad (10)$$

となる。これを $\rho_s(T)$ で割れば

$$\begin{aligned}\frac{\rho_s(T(r_p))}{\rho_s(T)} &= 1 + \frac{d\rho_s(T(r_p))}{\rho_s(T) dT(r_p)} [T(r_p) - T] \\ &\approx 1 + \frac{1}{\rho_s(T(r_p))} \frac{d\rho_s(T(r_p))}{dT(r_p)} [T(r_p) - T]\end{aligned}\quad (11)$$

となる。この式の最右辺に式(9)を代入すると

$$\begin{aligned}\frac{\rho_s(T(r_p))}{\rho_s(T)} &\approx 1 + \frac{L_{lv} - R_v T}{R_v T^2} [T(r_p) - T] \\ &= 1 + \left(\frac{L_{lv} - R_v T}{R_v T} \right) \left[\frac{T(r_p) - T}{T} \right]\end{aligned}\quad (12)$$

となる。この式は

$$\frac{\rho_s(T(r_p)) - \rho_s(T)}{\rho_s(T)} = \left[\frac{T(r_p) - T}{T} \right] \left(\frac{L_{lv}}{R_v T} - 1 \right) \quad (13)$$

と変形される。

一方、式(13.20)を再掲すれば

$$T(r_p) - T = \frac{L_{lv}}{4\pi r_p K} \frac{dm}{dt} \quad (14)$$

であり、これを式(13)の右辺に代入すれば

$$\frac{\rho_s(T(r_p)) - \rho_s(T)}{\rho_s(T)} = \left(\frac{L_{lv}}{4\pi r_p K T} \right) \left(\frac{L_{lv}}{R_v T} - 1 \right) \frac{dm}{dt} \quad (15)$$

となる。これは潜熱の効果を熱伝導の法則を用いて表した式である。

一方、分子拡散の効果を表す式(13.9)は

$$\frac{\rho_v(\infty) - \rho_s(T(r_p))}{\rho_s(T(r_p))} = \frac{1}{4\pi r_p D_v \rho_s(T(r_p))} \frac{dm}{dt} \quad (16)$$

と変形できる。この式の両辺の分母において $T(r_p) \approx T$ と近似すると

$$\frac{\rho_v(\infty) - \rho_s(T(r_p))}{\rho_s(T)} = \frac{1}{4\pi r_p D_v \rho_s(T)} \frac{dm}{dt} \quad (17)$$

となる。式(15)と(17)の両辺をそれぞれ加えると、

$$\begin{aligned} \frac{\rho_v(\infty) - \rho_s(T)}{\rho_s(T)} &= \left[\frac{L_{lv}}{4\pi r_p K T} \left(\frac{L_{lv}}{R_v T} - 1 \right) + \frac{1}{4\pi r_p D_v \rho_s(T)} \right] \frac{dm}{dt} \\ &= \frac{1}{4\pi r_p} \left[\frac{L_{lv}}{K T} \left(\frac{L_{lv}}{R_v T} - 1 \right) + \frac{1}{D_v \rho_s(T)} \right] \frac{dm}{dt} \end{aligned} \quad (18)$$

となる。これより

$$\frac{dm}{dt} = \frac{4\pi r_p \left[\frac{\rho_v(\infty)}{\rho_s(T)} - 1 \right]}{\frac{L_{lv}}{K T} \left(\frac{L_{lv}}{R_v T} - 1 \right) + \frac{1}{D_v \rho_s(T)}} = \frac{4\pi r_p (S - 1)}{\frac{L_{lv}}{K T} \left(\frac{L_{lv}}{R_v T} - 1 \right) + \frac{1}{D_v \rho_s(T)}} \quad (19)$$

となり、式(13.22)を得る。上式の最右辺の分子では

$$S \equiv \frac{\rho_v(\infty)}{\rho_s(T)} \quad (20)$$

を用いた。

13A3 式(13.40), (13.41)の導出

水蒸気圧を e , 平衡水蒸気圧 e_s とすれば過飽和度は

$$s \equiv S - 1 = \frac{e - e_s(T)}{e_s(T)} \quad (1)$$

である. s の時間変化は

$$\frac{ds}{dt} = \frac{d}{dt} \left(\frac{e}{e_s} \right) = \frac{1}{e_s} \frac{de}{dt} - \frac{e}{e_s^2} \frac{de_s}{dt} \quad (2)$$

と表される. 以下の計算により, この式の右辺の第1項を空気塊の上昇速度 w (あるいは空気塊の気圧 p の時間微分) で, 第2項を ρ_c の時間微分で表現する. やや長い式変形が続くが, 各ステップは単純な微分計算と代数計算の組み合わせである.

1. de/dt の表現

まず式(2)の右辺第1項の e の時間微分を求める. 水蒸気の密度は

$$\rho_v = \frac{e M_w}{R^* T} = \frac{e}{R_v T} \quad (3)$$

であり (2.3節の式(2.24)), 乾燥空気密度は

$$\rho_d = \frac{p_d}{R_d T} \quad (4)$$

である (2.3節の式(2.21)). 水蒸気の質量混合比 q_v は

$$q_v \equiv \frac{\rho_v}{\rho_d} \quad (5)$$

である. 雲水の密度を ρ_c とすればその質量混合比は

$$q_c \equiv \frac{\rho_c}{\rho_d} \quad (6)$$

である. また

$$q_v \approx \varepsilon \frac{e}{p} = \frac{R_d}{R_v} \frac{e}{p} \quad (7)$$

となる (2.3節の式(2.29)). これより

$$e = p q_v \frac{R_v}{R_d} \quad (8)$$

となる。これを時間微分すると

$$\frac{de}{dt} = \frac{R_v}{R_d} \left(p \frac{dq_v}{dt} + q_v \frac{dp}{dt} \right) \quad (9)$$

となる。

降水がなければ

$$q_t \equiv q_v + q_c \quad (10)$$

は保存するので

$$\frac{dq_v}{dt} = -\frac{dq_c}{dt} \quad (11)$$

が成り立つ。これを式(9)に代入すれば

$$\frac{de}{dt} = \frac{R_v}{R_d} \left(-p \frac{dq_c}{dt} + q_v \frac{dp}{dt} \right) \quad (12)$$

となる。これで e の時間微分が q_c と p の時間変化で表された。

2. de_s/dt の表現

次に式(2)の右辺第2項の平衡水蒸気圧 e_s の時間微分を求める。 e_s に関するクラウジウス-クラペイロンの式は

$$\frac{de_s}{dT} = \frac{L_{lv} e_s}{R_v T^2} \quad (13)$$

である (付録 11A1 の式(4))。 L_{lv} は単位質量の水蒸気の凝結に伴う潜熱である。これを用いると

$$\frac{de_s}{dt} = \frac{de_s}{dT} \frac{dT}{dt} = \frac{L_{lv} e_s}{R_v T^2} \frac{dT}{dt} \quad (14)$$

となる。湿潤断熱変化における単位質量の空気塊のエネルギー収支を表す3.2節の式(3.18)を再掲すると

$$d'q = c_p dT - \frac{RT}{p} dp \quad (15)$$

となる。左辺は水蒸気の凝結に伴い放出される潜熱あり、 L_{lv} の定義から

$$d'q = L_{lv} dq_c \quad (16)$$

となる。これを用いれば式(15)は

$$c_p dT = RT \frac{dp}{p} + L_{lv} dq_c \quad (17)$$

となる. この式は

$$\frac{dT}{dt} = \frac{RT}{c_p p} \frac{dp}{dt} + \frac{L_{lv}}{c_p} \frac{dq_c}{dt} \approx \frac{R_d T}{c_p p} \frac{dp}{dt} + \frac{L_{lv}}{c_p} \frac{dq_c}{dt} \quad (18)$$

と変形される. この式の最右辺では $R \approx R_d$ と近似した. この式を式(14)の右辺に代入すれば

$$\frac{de_s}{dt} = \frac{L_{lv} e_s}{R_v T^2} \left(\frac{R_d T}{c_p p} \frac{dp}{dt} + \frac{L_{lv}}{c_p} \frac{dq_c}{dt} \right) \quad (19)$$

となり, e_s の時間微分も q_c と p の時間微分で表された. これで s の時間微分を求める準備が出来た.

3. ds/dt の表現

式(2)の最右辺に式(12)と式(19)を代入すると

$$\begin{aligned} \frac{ds}{dt} &= \frac{1}{e_s} \left[\frac{R_v}{R_d} \left(-p \frac{dq_c}{dt} + q_v \frac{dp}{dt} \right) \right] - \frac{e}{e_s^2} \frac{L_{lv} e_s}{R_v T^2} \left(\frac{R_d T}{c_p p} \frac{dp}{dt} + \frac{L_{lv}}{c_p} \frac{dq_c}{dt} \right) \\ &= \left(\frac{1}{e_s} \frac{R_v}{R_d} q_v - \frac{e}{e_s} \frac{R_d}{c_p p} \frac{L_{lv} e_s}{R_v T} \right) \frac{dp}{dt} - \left(\frac{1}{e_s} \frac{R_v}{R_d} p + \frac{e}{e_s} \frac{L_{lv}^2}{c_p R_v T^2} \right) \frac{dq_c}{dt} \end{aligned} \quad (20)$$

となる.

次に p の時間微分を w で表現する.

$$\frac{dp}{dt} = \frac{dp}{dz} \frac{dz}{dt} = -\rho g w = -\frac{gp}{RT} w \approx -\frac{gp}{R_d T} w \quad (21)$$

となる. ここで $w \equiv dz/dt$ は空気塊の鉛直速度である. また式(7)より

$$p = \frac{e R_d}{q_v R_v} \quad (22)$$

となる.

式(20)の最右辺第1項は式(21), (22)を用いれば

$$\begin{aligned} -\left(\frac{1}{e_s} \frac{R_v}{R_d} q_v - \frac{e}{e_s} \frac{R_d}{c_p p} \frac{L_{lv}}{R_v T} \right) \frac{gp}{R_d T} w &= -\left(\frac{1}{e_s} \frac{R_v}{R_d} p q_v - \frac{e}{e_s} \frac{R_d}{c_p} \frac{L_{lv}}{R_v T} \right) \frac{g}{R_d T} w \\ &= \left(\frac{e}{e_s} \frac{R_d}{c_p} \frac{L_{lv}}{R_v T} - \frac{1}{e_s} \frac{R_v}{R_d} \frac{e R_d}{R_v} \right) \frac{g}{R_d T} w = \frac{e}{e_s} \left(\frac{g}{c_p} \frac{L_{lv}}{R_v T^2} - \frac{g}{R_d T} \right) w \end{aligned} \quad (23)$$

となる.

式(20)の最右辺第2項は p に式(22)を代入して

$$-\left(\frac{1}{e_s} \frac{R_v}{R_d} \frac{e}{q_v} \frac{R_d}{R_v} + \frac{e}{e_s} \frac{L_{lv}^2}{c_p R_v T^2}\right) \frac{dq_c}{dt} = -\frac{e}{e_s} \left(\frac{1}{q_v} + \frac{L_{lv}^2}{c_p R_v T^2}\right) \frac{dq_c}{dt} \quad (24)$$

となる。

ここで式(6)を時間微分し dq_c/dt を求める。 ρ_c に比べ ρ_d の変化は極めて小さいので

$$\frac{dq_c}{dt} \approx \frac{1}{\rho_d} \frac{d\rho_c}{dt} \quad (25)$$

と近似できる。式(24)の最右辺に式(25)を代入すれば

$$\begin{aligned} -\frac{e}{e_s} \left(\frac{1}{q_v} + \frac{L_{lv}^2}{c_p R_v T^2}\right) \frac{1}{\rho_d} \frac{d\rho_c}{dt} &= -\frac{e}{e_s} \left(\frac{1}{q_v \rho_d} + \frac{L_{lv}^2}{c_p R_v \rho_d T^2}\right) \frac{d\rho_c}{dt} \\ &= -\frac{e}{e_s} \left(\frac{1}{\rho_v} + \frac{L_{lv}^2}{c_p p T} \frac{R_d}{R_v}\right) \frac{d\rho_c}{dt} = \frac{e}{e_s} \left(\frac{R_v T}{e_s} + \frac{L_{lv}^2}{c_p p T} \frac{R_d}{R_v}\right) \frac{d\rho_c}{dt} \end{aligned} \quad (26)$$

となる。式(26)の右辺第2式の導出には $q_v \rho_d = \rho_v$ (式(5)) と $p \approx p_d = \rho_d R_d T$ (式(4)) を用いた。式(26)の最右辺の式第1項では式(3)で $e = e_s$ とした式(凝結が起きている状態なので)を用いた。

式(20)の最右辺第1項を式(23)で置き換え、式(20)の最右辺第2項を式(26)で置き換えれば

$$\frac{1}{s} \frac{ds}{dt} = \left(\frac{g}{c_p} \frac{L_{lv}}{R_v T^2} - \frac{g}{R_d T}\right) w - \left(\frac{R_v T}{e_s} + \frac{L_{lv}^2}{c_p p T} \frac{R_d}{R_v}\right) \frac{d\rho_c}{dt} \quad (27)$$

を得る。凝結が起きている状態なので $s \approx 1$ であるので

$$\frac{ds}{dt} = A_1 w - A_2 \frac{d\rho_c}{dt} \quad (28)$$

$$A_1 = \frac{L_{lv} g}{c_p R_v T^2} - \frac{g}{R_d T} = \frac{L_{lv} M_w g}{c_p R^* T^2} - \frac{g}{R_d T} \quad (29)$$

$$A_2 = \frac{R_v T}{e_s} + \frac{L_{lv}^2}{c_p p T} \frac{R_d}{R_v} = \frac{R^* T}{e_s M_w} + \frac{L_{lv}^2}{c_p p T} \frac{M_w}{M_d} \quad (30)$$

と、式(13.40), (13.41)を得る。

13A4 係数 A_1 と A_2 の値

1013 hPa での係数 A_1 と A_2 の値を温度の関数として図 1 に示した.

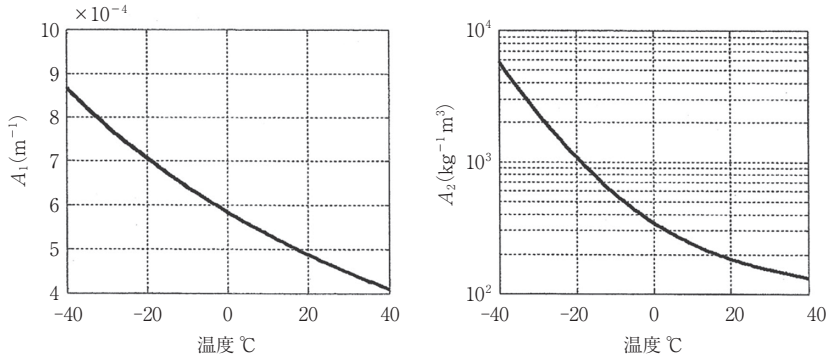


図 1 1013 hPa での A_1 と A_2 の温度依存性. Khain and Pinsky (2018) および Pinsky *et al.* (2013) を改変.

13A5 凝結成長による雲粒子粒径分布の高度変化

図 1 に, $w = 3 \text{ m s}^{-1}$ で $N_a = 100 \text{ cm}^{-3}$ および 1000 cm^{-3} の条件下で, パーセルモデルによりで計算した高度 $Z = 2000 \text{ m}$ までの雲粒子の粒径分布 $n_c(r)$ の高度変化を示した. この高度領域で, Z とともに平均半径は大きくなり, $n_c(r)$ の幅は小さくなっていくことがわかる.

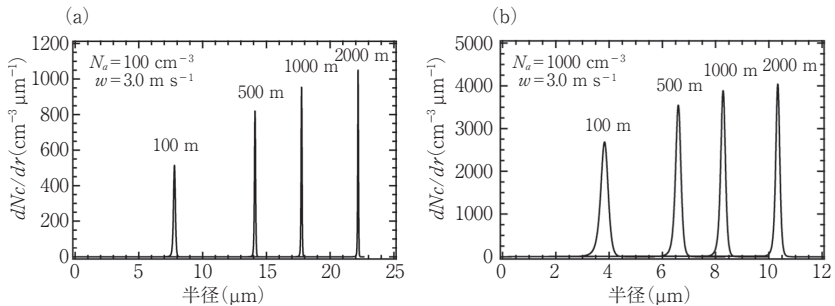


図 1 $w = 3 \text{ m s}^{-1}$ で上昇する孤立した空気塊中での雲粒子の粒径分布の高度変化. エアロゾル数濃度 N_a を (a) $N_a = 100 \text{ cm}^{-3}$ および (b) $N_a = 1000 \text{ cm}^{-3}$ とした.

13A6 s_{\max} および N_c の近似式の導出

1. CCN の活性化スペクトル

CCN の数濃度 N_{CCN} を $s = (S-1) \times 100\%$ の関数として

$$N_{\text{CCN}}(s) = Cs^k \quad (1)$$

と経験的に近似する。微分型の活性化スペクトルは

$$n_{\text{CCN}}(s) \equiv \frac{dN_{\text{CCN}}(s)}{ds} = Cks^{k-1} \quad (2)$$

である。エアロゾル粒径分布の形状が同一ならば C はエアロゾル数濃度 N_a に比例することは 12.4 節の図 12.8a からわかる。

2. s_{\max} および N_c の解析的表現

式(2)を用いて、 N_c を C, k, w で近似的に表現する式を Twomey (1959) に基づいて導出する。13.2 節の式(13.26) $\times r$ を時間積分すると

$$r(t)^2 - r(\tau)^2 \approx r(t)^2 \approx 2G \int_{\tau}^t s(t') dt' \quad (4)$$

と表される。この式は 8.1 節の式(8.20)に対応する。ここで τ はエアロゾルが水滴に活性化した時刻であり、この式から時刻 t における $r(t)$ (凝結成長による r の変化) が与えられる。ただし、雲粒子は短時間に成長するのでその間の G は一定と近似している。これより

$$r(t) \approx (2G)^{1/2} \left[\int_{\tau}^t s(t') dt' \right]^{1/2} \quad (5)$$

となる。

N_c は雲粒子の最小半径 r_1 から最大半径 r_2 の間にある雲粒子数濃度を足し合わせたものである。CCN の化学組成が同一であれば CCN の活性化半径 r_{act} はその CCN が雲粒子に活性化する s_{act} と一対一に対応する (12.2 節, 12.4 節)。任意の時刻 t において空気塊中には、さまざまな水滴半径 $r(t)$ をもつ雲粒子が存在することになるが、その $r(t)$ は s_{act} と一対一に対応する。したがって過飽和度が $[s, s + ds]$ の範囲で活性化する CCN 数濃度 $dN_{\text{CCN}}(s) = n_{\text{CCN}}(s) ds$ は $[r, r + dr]$ の範囲にある雲粒数濃度 $dN_c(r) = n_c(r) dr$ と一致する。式(13.43)はこの関係と式(5)を用いて

$$\begin{aligned}\frac{d\rho_c}{dt} &= 4\pi\rho_L G s(t) \int_0^s r n_{\text{CCN}}(s') ds' \\ &= 2\pi\rho_L (2G)^{3/2} s(t) \int_0^s n_{\text{CCN}}(s') \left[\int_{\tau(s')}^s s(t') dt' \right]^{1/2} ds'\end{aligned}\quad (6)$$

と表される. この式を用いると式(13.39)は

$$\frac{ds}{dt} = A_1 w - 2\pi A_2 \rho_L (2G)^{3/2} s(t) \int_0^s n_{\text{CCN}}(s') \left[\int_{\tau(s')}^t s(t') dt' \right]^{1/2} ds' \quad (7)$$

となる. 式(2)で与えられる $n_{\text{CCN}}(s)$ を式(7)に代入すればこの式の右辺の積分を行うことができる. このようにして得られた式(7)において $ds/dt = 0$ とおくことで s の最大値 s_{max} が得られ

$$s_{\text{max}} = \frac{1}{C^{1/(k+2)}} \left[\frac{A_1^{3/2}}{2\pi\rho_L A_2 G^{3/2} k B(k/2, 3/2)} \right]^{1/(k+2)} w^{3/[2(k+2)]} \quad (8)$$

となる. ここで

$$B(u, v) \equiv \int_0^1 x^{u-1} (1-x)^{v-1} dx \quad (9)$$

はベータ関数である. s_{max} に対する N_c は式(1)の s に式(8)の s_{max} を代入し

$$N_c \approx C^{2/(k+2)} \left[\frac{A_1^{3/2}}{2\pi\rho_L A_2 G^{3/2} k B(k/2, 3/2)} \right]^{k/(k+2)} w^{3k/[2(k+2)]} \text{ (cm}^{-3}\text{)} \quad (10)$$

となる.

13A7 水滴の終端落下速度

半径 r の降水粒子に働く重力 F_g は,

$$F_g = mg = \frac{4}{3} \pi r^3 \rho_L g \quad (1)$$

である. ここで g は重力加速度, m は水粒子の質量, ρ_L はその密度である. また落下する粒子に作用する空気の抗力 F_D は, 4.5 節の式(4.45)より

$$F_D = \frac{1}{2} S_p V^2 \rho_{\text{air}} C_D = \frac{1}{2} \pi r^2 V^2 \rho_{\text{air}} C_D \quad (2)$$

である. ここで S_p は粒子の断面積, V は落下速度, ρ_{air} は空気の密度, C_D は抵抗係数である. $F_g = F_D$ が成り立つ時の V が終端落下速度 U であるので,

$$U = \left(\frac{8 \rho_L g r}{3 \rho_{\text{air}} C_D} \right)^{\frac{1}{2}} \quad (3)$$

となる。この式は球形粒子に対して一般的に成り立つ。しかし C_D が U に依存しているために、この式だけでは r と U との関係は決まらない。ここで4.5節の式(4.43)のレイノルズ数 Re

$$Re = \frac{2rU\rho_{\text{air}}}{\mu_{\text{air}}} \quad (4)$$

を用いる。 μ_{air} は空気の粘性係数である。この式と式(3)から、 U は、

$$U = \frac{2}{9} \frac{\rho_L g r^2}{\mu_{\text{air}} \left(\frac{C_D Re}{24} \right)} \quad (5)$$

と表される。この式は Re の大小にかかわらず一般的に成り立つ。また U と r との関係は Re に依存する。以下では、 r の各範囲での U の表現を示す。

1. $r = 1\text{--}30\mu\text{m}$ の領域

Re が十分に小さいため、流れは層流となる。水滴周りの空気の流線は上流と下流とでほぼ対称となる。この流れでは

$$C_D \approx \frac{24}{Re} \quad (6)$$

となる(4.5節)。これを式(5)に代入すれば、

$$U(r) = \frac{2}{9} \frac{\rho_L g r^2}{\mu_{\text{air}}} = k_1 r^2 \quad (7)$$

となる。これは4.5節の式(4.56)である。地表面付近では $k_1 \approx 1.19 \times 10^6 \text{ cm}^{-1} \text{ s}^{-1}$ である。

2. $r = 100\text{--}600\mu\text{m}$ の領域

水滴の下流側に空気の渦ができ始める。 C_D は1.の層流での値よりも大きくなり、実験から得られる経験式を用いると、

$$U(r) = k_2 r \quad (8)$$

となる。地表面付近では、 $k_2 \approx 8 \times 10^3 \text{ s}^{-1}$ である。

3. $r > 0.7\text{mm}$ の領域

Re が非常に大きくなるため、水滴周囲の空気の流れは乱流となる。この状態での実験結果を用いた経験式は

$$U(r) = k_3 r^{1/2} \quad (9)$$

となる。地表面付近では、 $k_3 \approx 2.2 \times 10^3 \text{ cm}^{1/2} \text{ s}^{-1}$ である。なお上空では ρ_{air} が減少し抗力が減るので、

$$U \approx U_0 \left(\frac{\rho_{\text{air}}^0}{\rho_{\text{air}}} \right)^{1/2} \quad (10)$$

と近似的に表現される。ここで U_0 と ρ_{air}^0 は、それぞれ地表面高度での U と ρ_{air} である。

表1に $U(r)$ の値を示した。 $r > 50 \mu\text{m}$ では、気圧 1013 hPa、気温 20°C、RH = 50% での実験結果 (Gunn and Kinzer, 1949) を用いた。 $r < 50 \mu\text{m}$ では、気圧 1013 hPa、気温 20°C での計算値 (Beard, 1976) を用いた。

表1 水滴の体積等価半径と終端落下速度の関係

半径 (μm)	終端落下速度 (m s^{-1})	半径 (μm)	終端落下速度 (m s^{-1})
2.5*	7.53E-04	1100	6.90
5*	3.01E-03	1200	7.27
10*	1.21E-02	1300	7.57
25*	7.26E-02	1400	7.82
50	0.27	1500	8.06
100	0.72	1600	8.26
150	1.17	1700	8.44
200	1.62	1800	8.60
250	2.06	1900	8.72
300	2.47	2000	8.83
350	2.87	2100	8.92
400	3.27	2200	8.98
450	3.67	2300	9.03
500	4.03	2400	9.07
600	4.64	2500	9.09
700	5.17	2600	9.12
800	5.65	2700	9.14
900	6.09	2800	9.16
1000	6.49	2900	9.17

気圧 1013 hPa、気温 20°C、RH = 50% での実験結果 (Gunn and Kinzer, 1949)。半径の値に * 印をつけてある値は、気圧 1013 hPa、気温 20°C での計算値 (Beard, 1976) である。

13A8 落下する雨滴の形状

終端落下速度で落下する直径 1-6 mm の水滴の形状の計算値を図 1 に示した。計算は Beard and Chuang (1987) による。直径 1 mm ではほぼ球形であるが 2 mm 以上になると球形からずれて、扁平な形状となる。

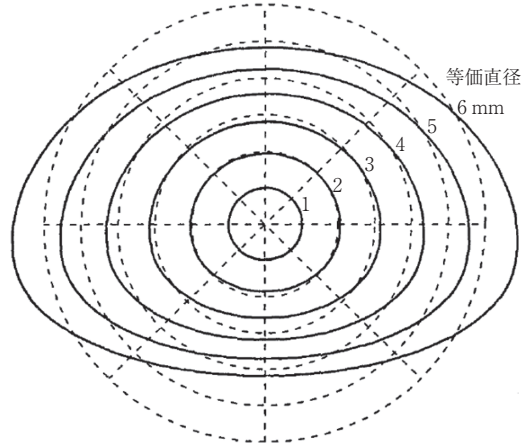


図 1 終端落下速度で落下する等価直径 1-6 mm の水滴の形状 (実線)。点線は球形粒子。Beard and Chuang (1987) を改変。

13A9 乱流エネルギーの表現

乱流とは空気を構成する流体粒子が不規則に混合しながら流れる状態である (6.1 節)。積雲などでの空気の流れは乱流状態にあることが観測されている。乱流下での不規則な運動は、6.1 節の式 (6.1), (6.2) のように、風の成分の平均値からの偏差である u' , v' , w' などのランダムに変動する成分で表される。単位質量の空気中での乱流の運動エネルギーは

$$E' = \frac{1}{2}(\overline{u'^2} + \overline{v'^2} + \overline{w'^2}) = \frac{3}{2}\overline{u'^2} \quad (1)$$

である。ここで

$$\overline{u'^2} \equiv \frac{\overline{u'^2} + \overline{v'^2} + \overline{w'^2}}{3} \quad (2)$$

である。

乱流理論によれば、大スケール渦から小スケール渦へと乱流エネルギーの連続的なカスケードが起きる。渦のスケールが小さくなり最小渦のレイノルズ数

I 各章の発展解説

が1に近くなると、カスケードは停止し、乱流エネルギーは分子粘性により熱エネルギーに変わる。この最小スケールにおける単位時間当たりのエネルギーの散逸を ε と記す。

$$\varepsilon = -\frac{dE'}{dt} \quad (\text{cm}^2 \text{s}^{-3}) \quad (3)$$

で与えられるエネルギー散逸率 ε は乱流強度の良い目安となる。層雲中では $\varepsilon \approx 10 \text{ cm}^2 \text{ s}^{-3}$ 、積雲で $\varepsilon = 100\text{--}200 \text{ cm}^2 \text{ s}^{-3}$ 、強い積乱雲で $\varepsilon \approx 1000 \text{ cm}^2 \text{ s}^{-3}$ と推定されている。

13A10 雲内での雲粒子の核生成の効果

以下では Khain *et al.* (2000) および Pinsky and Khain (2002) による計算結果を基に雲内核生成の効果の説明する。

1. 雲内での雲粒子の核生成

13.5節では空気塊の上昇速度 w は一定として s や $n_c(r)$ を計算した。しかし雲粒子への水蒸気の凝結に伴い潜熱が生じるため、空気塊の温度が上昇する。暖められた空気塊は周囲の空気に比べ軽くなり、浮力が増し w が増大する(11.1節)。図1(a)に典型的な積雲での w の高度分布を示した。 $Z < 100 \text{ m}$ での w を w_0 と記す。ここでは $w_0 = 0.25 \text{ m s}^{-1}$ あるいは 3.0 m s^{-1} とした。この速度は13.5節での w とほぼ同じである。 w_0 が小さいほど $Z < 100 \text{ m}$ での s_{max} は小さくなる(図13.1(e))。今の場合 s が s_{max} に達した後で w が増すため s は再び増加を始める。積雲においては上昇する空気塊は一般的には乱流状態にある。以下の計算結果には乱流が衝突併合を促進するという効果(13.11節)も含まれている。

(a) $w_0 = 0.25 \text{ m s}^{-1}$ の場合

$w_0 = 0.25 \text{ m s}^{-1}$ では $Z > 100 \text{ m}$ で $s > s_{\text{max}}$ となり、 $Z \approx 2000 \text{ m}$ で s は再び最大となる(図1(b))。13.5節の図13.2に示したように $w_0 = 0.25 \text{ m s}^{-1}$ では、 $s = 0$ での r が約 $0.3 \mu\text{m}$ 以下のエアロゾル(液滴)は $s = s_{\text{max}}$ では雲粒子に活性化されずヘイズ粒子に留まる。しかしヘイズ粒子は $s > s_{\text{max}}$ となる高度で次第に雲粒子として活性化されていく。これが雲内核生成である。図1(c)で雲粒子数濃度 N_c が $Z > 100 \text{ m}$ で増加していくのは雲内核生成による。

新たに生じた雲粒子は、雲底付近で生じ凝結成長を続けてきた雲粒子よりも \bar{r} は小さい。SCE で計算された各 Z での $n_c(r)$ を図2に示した。 $Z = 50 \text{ m}$ では雲内核生成がまだ起きていないため $n_c(r)$ は単一モードである。 $Z = 200 \text{ m}$ では雲内核生成が起きるため、 $n_c(r)$ は \bar{r} の異なる2つのモードから成る。このような $n_c(r)$ においては衝突併合が速く進行する。また小さな \bar{r} の水滴は大きな \bar{r} の水滴よりも成長率が大きいため、2つのモードは接近していく。このため $Z = 1500 \text{ m}$ では $n_c(r)$ は幅の広い単一のモードに近くなる(図2)。このような $n_c(r)$ では降水粒子が短時間で生成される(13.10節の図13.6(b)のように)。一方、凝結成長のみを考慮した $n_c(r)$ の幅は $Z > 100 \text{ m}$ で $1 \mu\text{m}$ 以下である(付録13A5の図1)。この $n_c(r)$ の幅と比べれば、図2の $n_c(r)$ の幅は大変大きく、雲内核生成と乱流の効果が大きいことが示される。

(b) $w_0 = 3 \text{ m s}^{-1}$ の場合

一方 $w_0 = 3 \text{ m s}^{-1}$ の場合は、 $Z > 100 \text{ m}$ でも $s < s_{\text{max}}$ であり(図1(b))ヘイズ粒子の核生成は起きず(図1(c)) $n_c(r)$ は単一モードのままである(図示していない)。したがって $w_0 = 3 \text{ m s}^{-1}$ では $w_0 = 0.25 \text{ m s}^{-1}$ の場合に比べれば降水粒子の生成は起きにくいことになる。ただし、乱流の効果はあるので、この場合でも $n_c(r)$ の幅は付録13A5の図1の $n_c(r)$ の幅より大きくなる。

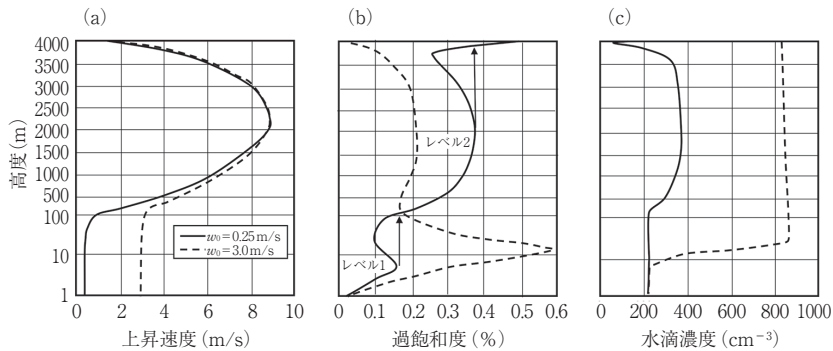


図1 (a) 空気塊の上昇速度 w の高度分布。雲底付近の速度は $w_0 = 0.25 \text{ m s}^{-1}$ (実線) と 3 m s^{-1} (破線) とした。(b) 過飽和度 s の高度分布。 $w_0 = 0.25 \text{ m s}^{-1}$ の場合、最初に s が最大となる高度(レベル1)と2回目に最大となる高度(レベル2)を示した。(c) 雲粒子数濃度の高度分布。Pinsky and Khain (2002) を改変。

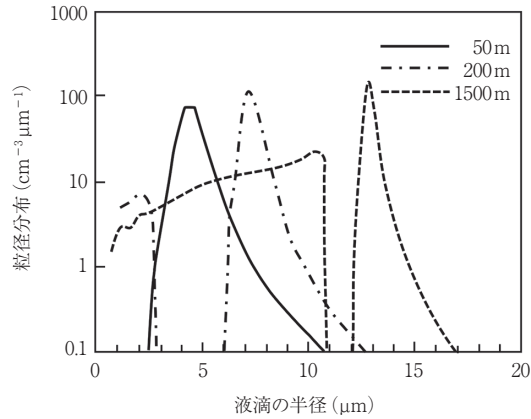


図2 $w_0 = 0.25 \text{ m}^{-1}$ の条件で計算された各高度での $n_c(r)$. $N_c \approx 200\text{--}400 \text{ cm}^{-3}$ である (図1cより). Khain *et al.* (2000) を改変.

13A11 降水粒子の分裂の型

降水粒子の分裂の型は (a) フィラメント型, (b) シート型, (c) ディスク型の3種の型に大別される. 図1はそれぞれの型の模式図である.

(a) 衝突は大きな粒子の端で起きる. このため併合した粒子の重心の周りに回転運動し, 遠心力のために粒子が延ばされ, 元の小粒子は引きちぎられ分裂する.

(b) 衝突は(a)の場合に比べて, 大きな粒子の中心に, より近い位置で起きる. 併合した粒子の回転運動によりシート状の水が放出され, それが細かな水滴に分裂する.

(c) 衝突は大きな粒子の中心付近で起きる. ディスク状に変形した後, 多数の細かな水滴に分裂する. 回転運動は起きないので, 吸収された運動エネルギーの多くが, 細かな水滴の表面エネルギーに変換される.

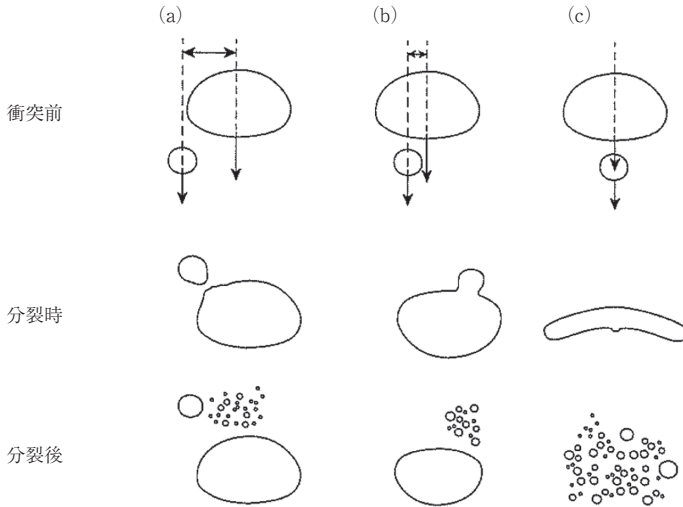


図 1 水滴の分裂の模式図. Lohman *et al.* (2016) を改変.

第 14 章

14A1 球冠の体積と面積

1. 体積

図 1(a)の形状の曲率半径 r の球冠を, 図 1(b)に示したように高さ dx の円盤に分割する. θ は接触角であり, この図での天頂角に等しい. dx は

$$dx = r d\theta \sin \theta \quad (1)$$

となる. この円盤の体積 dV は

$$dV = \pi(r \sin \theta)^2 dx = \pi(r \sin \theta)^2 r d\theta \sin \theta = \pi r^3 (\sin \theta)^3 d\theta \quad (2)$$

である. これを $x=0$ から x まで ($\theta=0$ から θ まで) 積分すれば球冠の全体積

$$V = \pi r^3 \int_0^\theta \sin^3 \theta d\theta = \pi r^3 \frac{2 - 3 \cos \theta + \cos^3 \theta}{3} = \pi r^3 \frac{(1 - \cos \theta)^2 (2 + \cos \theta)}{3} \quad (3)$$

を得る.

2. 面積

図 2 に示した球冠の帯状の表面積 dS は

$$dS = 2\pi r \sin \theta \, rd\theta = 2\pi r^2 \sin \theta \, d\theta \quad (4)$$

である. これを $\theta=0$ から θ まで積分して球冠の全表面積

$$S = 2\pi r^2 \int_0^\theta \sin \theta \, d\theta = 2\pi r^2 (1 - \cos \theta) \quad (5)$$

を得る.

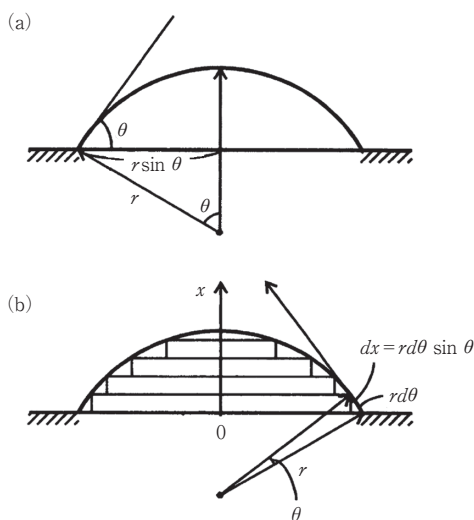


図 1 球冠の体積を求めるための幾何学的な配置図. 後藤 (2003) による.

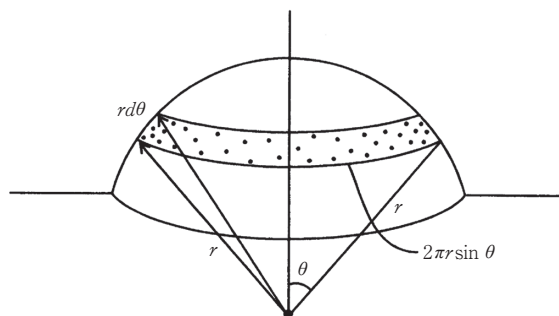


図 2 球冠の表面積を求めるための幾何学的な配置図. 後藤 (2003) による.

14A2 固体粒子上での浸水凍結における $f(m, x)$ の関数形

半径が r_N の球形の固体粒子 N の表面に曲率半径が r の球冠が生成される場合を考える。この場合は N の表面は平面ではなく球面である。この場合でも、球冠の曲率半径 r_{LS}^* は式(14.29)で与えられる (14.4 節)。再掲すれば

$$r_{LS}^* = -\frac{2\sigma_{LS}}{\Delta G_v} = -\frac{2\sigma_{LS}}{N_S \Delta\mu_{LS}} = \frac{2\sigma_{LS}}{N_S kT \ln S} \quad (1)$$

となる。粒子半径 r_N と曲率半径 $r = r_{LS}^*$ の比を

$$x \equiv \frac{r_N}{r_{LS}^*} = -r_N \frac{\Delta G_v}{2\sigma_{LS}} = \frac{r_N N_S kT \ln S}{2\sigma_{LS}} \quad (2)$$

とする。 r_N (あるいは x) が大きいほど球面は平面に近づく。この球冠の体積 V_{cap} と表面積 A_{LS} を計算することができる。それを用いた V_{cap}/V_{sphere} 比は m に加え x にも依存する。ここで $V_{sphere} = (4/3)\pi r^3$ である。この比を

$$f(m, x) = V_{cap}/V_{sphere} \quad (3)$$

と記す。 $f(m, x)$ の関数形は

$$f(m, x) = 1 + \left(\frac{1-mx}{g}\right)^3 + x^3 \left[2 - 3\left(\frac{x-m}{g}\right) + \left(\frac{x-m}{g}\right)^3 \right] + 3mx^2 \left(\frac{x-m}{g} - 1\right) \quad (4)$$

である。ここで

$$g = (1 + x^2 - 2mx)^{1/2} \quad (5)$$

である。 m (あるいは θ) が同一であれば、

$$f(m, x) \geq f(m) \quad (6)$$

となる。等号は $x = \infty$ で成り立つ。

14A3 氷の結晶と INP の格子の関係

図1に INP の表面に氷の結晶が生成していく過程を模式的に示した。

I 各章の発展解説

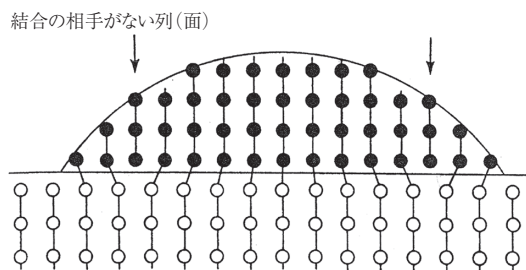


図1 氷の結晶格子がINPの格子に適合していく過程. ○はINPの結晶, ●は氷を形成する H_2O 分子. 矢印は格子欠陥の位置を示す. Fletcher (1962) を改変.

第15章

15A1 実験室におけるWBF過程の観察

実験室でのガラス板上においてWBF過程が進行する様子を図1に示した. ガラス板を低温にすれば, その上に水蒸気が凝結して水滴ができる. 水滴の1つが凍るか, 小さな氷の結晶を落とすとする. 氷の結晶はすぐに大きくなり,

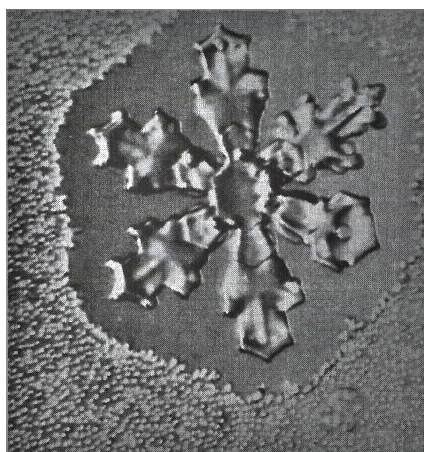


図1 低温のガラス板上にできた水滴の近傍に小さな氷の結晶を生じた時の水滴の変化の様子. Pruppacher and Klett (2000) による.

写真のような雪の形になる。氷晶近くの水滴は氷粒子に対して平衡水蒸気圧が高いので、水滴が蒸発していく様子がよく見える。水蒸気は拡散で氷晶表面に運ばれ、そこで沈着するので氷晶は成長する。

15A2 氷晶の成長過程

1. 氷晶表面での水蒸気の沈着

水滴と異なり氷晶の基底面や柱面では H_2O 分子同士が強く結合しているので、熱エネルギーすなわち運動エネルギーが高い水蒸気分子が氷結晶の一部として組み込まれるのは容易ではない。そのため氷結晶表面に入射する水蒸気分子の一部のみが結晶に組み込まれることになる。図 1 に示したように、水蒸気は 3 つの段階を経て結晶面に組み込まれる。この図では理解しやすくするため H_2O 分子を立方体で表した。

水蒸気分子は結晶表面のランダムな位置に入射し、水素結合に起因する引力で表面に吸着 (adsorb) する (段階 1)。この水蒸気分子を吸着分子と呼ぶ。吸着分子の 6 つの面のうち 1 面だけが結晶表面から引力を受けるのでその力は相対的に弱い。吸着分子は十分な熱エネルギーを持っているので、結晶表面を自由に動き回る。これは 2 次元的な拡散である (段階 2)。

一般的には結晶面には 1 分子の厚さの段差構造であるステップ (step) が存在する (図 1)。吸着分子がステップに沿う位置にあるキンク (kink) と呼ばれる場所に行き着くと分子は格子に取り込まれ、そこで固定される (段階 3)。この過程を沈着 (deposition) と呼ぶ。キンクの位置で固定されるのは、キンクでは吸着分子の 3 面が結晶の H_2O 分子から引力を受けるからである。もし吸着分子が表面に留まる時間内にキンクに遭遇しなかった場合には、その吸着分子は結晶表面から脱離し元の気相に戻ってしまう。この場合には、この H_2O 分子は結晶の成長に寄与しない。このように、 H_2O 分子はステップの位置でのみ結晶化する。

氷晶の昇華成長は、結晶表面に次々と吸着する水蒸気分子の一部がキンクに取り込まれ、氷晶面のステップが前進し、 H_2O 分子の層が形成されていくことにより実現する。このようにステップは吸着分子を取り込むことで前進する。吸着分子が結晶表面を覆い、1 つの分子層が完成するとステップは消滅する。そうなれば、新しいステップが供給されない限り氷晶は成長することができない。したがって、氷晶の成長にはステップが絶えず供給される必要がある。そ

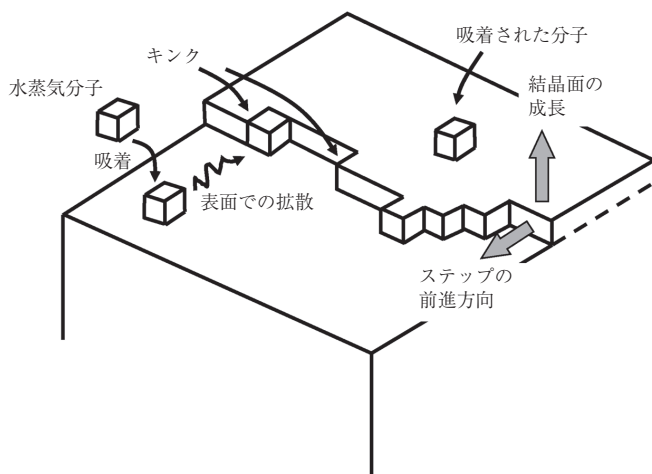


図1 結晶面における水蒸気分子の沈着過程の模式図.

のようなステップの供給源として1) 2次元核生成と2) らせん転位に伴い氷晶表面に存在するステップ, の2種類がある. 以下ではこれらの機構による氷晶の成長を説明する.

2. 2次元核生成による成長

もし氷晶表面で, 部分的に吸着 H_2O 分子の濃度が高まり, 確率的揺らぎにより数十個の吸着分子からなる島状の部分分子層ができると, その島状分子層の周りはステップの構造になる (図2(a)). このような島状分子層は2次元核を形成しているの2次元核と呼ばれる. ステップが生成されれば1. で述べたように H_2O 分子の層が形成され, 平らな面の上に単分子層ごとの成長が起きる. このような成長を単一核成長と呼ぶ.

これに対し, 単分子層が表面を覆い尽くす前に, ある程度成長した単分子層の上に2次元核が形成される場合がある. 図2(b)で示したように, いくつかの重なった単分子層が盛り上がるようにして成長する. このような成長を多核成長と呼ぶ.

このような島状分子層は, やがて結晶全面を覆いステップは消滅する. したがって, 氷晶が成長するためには2次元核生成が繰り返し起きる必要がある. 2次元核生成が起きるためには過飽和度が閾値を超える必要がある. これは核生成が起きるためには, ギブズエネルギー変化 ΔG が臨界ギブズエネルギー

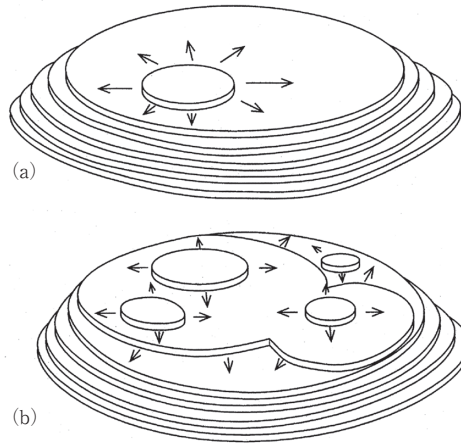


図 2 2次元核による成長. (a) 単一核成長, (b) 多核成長. 上羽 (2002) を改変.

ΔG^* の大きさ以上になる必要があることによる (第 9 章, 14 章). 観測できる程度の速度で水晶成長が起きるためには 30-50% もの過飽和度が必要と考えられている.

3. らせん転位による渦巻き成長

上述したように 2次元核生成による水晶の成長には高い過飽和度が必要である. しかし, 実際には過飽和度が数%でも水晶は成長することが知られている. 以下で述べるように, らせん転位による渦巻き成長が低過飽和度の水晶成長において重要となる. これは水晶の格子欠陥に伴い, らせん階段状のステップが連続的に生成されることにより結晶成長が維持される機構である.

3.1 格子欠陥

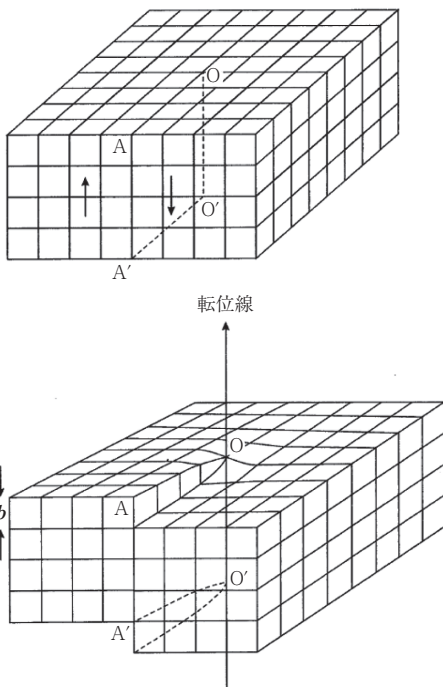
理想的な結晶ではその格子構造が完全に規則正しく繰り返される. しかし実際の結晶では, 外見では認められない程度のさまざまな不完全性が含まれている. なかでも格子程度の大きさの不完全さを格子欠陥と呼ぶ. 格子欠陥には点状, 線状, 面状の 3種類がある.

点状欠陥とは, 1) 正規の格子位置にあるべき構成原子 (あるいは分子) が抜けた状態である空孔や, 2) 正規の格子位置の間隙に本来あるべきでない原子が入り込んだ格子間原子のことである. これらの欠陥は, ある一定の密度で

存在した方が熱力学的に結晶は安定である。線状の欠陥は転位と呼ばれる。

3.2 らせん転位

転位の1種である、らせん転位の構造を図3に示した。完全結晶のOAA'O'の面に切れ目を入れ、AA'に沿って分子の繰り返し周期 b だけOO'に平行にずらすと、



AA'に沿って分子の繰り返し周期 b だけOO'に平行にずらすと、AA'に沿う分子は完全につながり、歪がOO'のまわりに集中する。このようにしてできたOO'近傍の構造がらせん転位である。OO'は転位線であり、転位はそのまわりの歪を含んでいる。ずらした方向と大きさを表すベクトル \mathbf{b} はバーガスベクトルと呼ばれる(図3・下図を参照)。 \mathbf{b} の大きさは、単純立方格子では格子定数 a に等しい。らせん転位が結晶中に存在すると、それが氷晶表面に抜け出た点から氷晶の端に至るまでの領域でステップが作られる。図1で示したように、このステップにH₂O分子が取り込まれる。

図3 らせん転位の構造。下図の \mathbf{b} の上下の矢印の間隔が \mathbf{b} の大きさを示す。後藤(2003)による。

このステップを上からみた状態を図4に、またその3次元的な模式図を図5として示した。図4(a)でのOAがステップの位置である。直線OAの左側がステップの上段、右側が下段である。ステップにH₂O分子が取り込まれることでステップは前進する。単位長さ当たりのステップへの取り込み率はステップの位置に依存しないと考えられる。したがって、ステップ面に垂直な方向へのステップの前進速度はステップの位置に依存せず一定となる。OO'はらせん転位で固定されている(図3, 4(a))なので、ステップ各部での前進の角速度は0に近いほど大きくなる。このためステップOAは次第にらせん状になる。

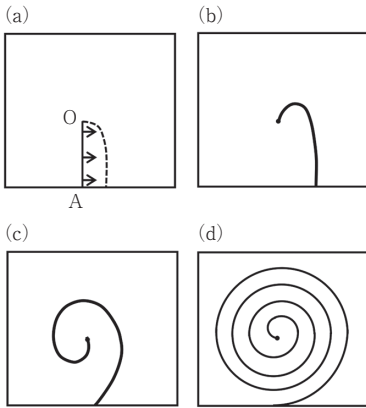


図 4 らせん転位とそこから発生するステップの発達. 真上から見た図. 後藤 (2003) を改変.

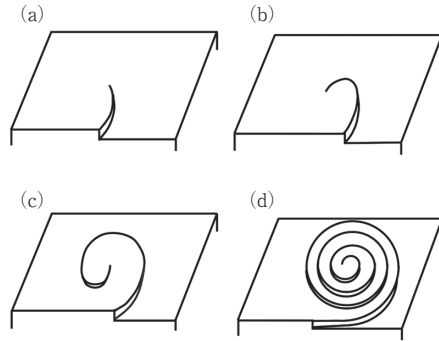


図 5 図 4 の鳥瞰図. 後藤 (2003) を改変.

このように、らせん転位が存在するとステップが回転しながら移動する間に氷晶表面上で H_2O 分子は氷晶に組に込まれていく。図 5 に示したように転位線を中心にしてそれに垂直な氷晶面上をステップがらせん状に這い上がっていくことになる。ステップに垂直な方向の前進速度はステップの各部分で一定なので、らせん状に形成されるステップの間隔は一定に保たれる。

らせん転位は氷晶に確率的に存在する。多数のらせん転位により生じたステップの渦巻が分布する様子を図 6 に示した (Bethge and Keller, 1974)。これは NaCl 結晶の例である。どの場所でもステップの間隔がほぼ等しいことが、この図からもわかる。

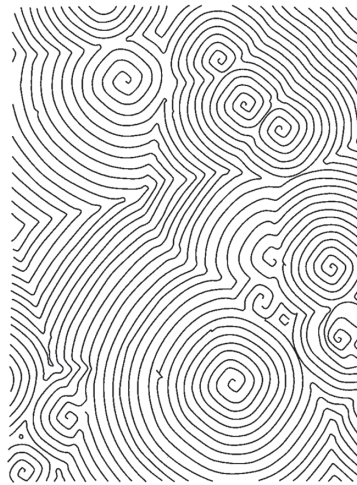


図 6 に多数のらせん転位に伴うステップが分布する様子. Bethge and Keller (1974) による NaCl 結晶における例.

15A3 境界面での水蒸気フラックスと密度

1. 式(15.23)の導出

動力学領域からみた $x = r + \Delta$ の境界面での水蒸気フラックスを考える。水蒸気の氷晶表面での平衡密度を ρ_s 、境界面での密度を ρ_{int} 、その密度差を $\delta\rho_{\text{int}} \equiv \rho_{\text{int}} - \rho_s$ とする。境界面から氷晶に向かって入射 (impinge) する水蒸気の質量フラックスを j_{imp} ($\text{g cm}^{-2} \text{s}^{-1}$) とする。この境界面を通過する水蒸気フラックスは 4.1 節の式(4.6)で与えられる。これに単一の水蒸気分子の質量を掛ければ質量フラックスになる。このことから j_{imp} は

$$j_{\text{imp}} = \frac{\rho_{\text{int}} \bar{c}}{4} \quad (1)$$

となる。 \bar{c} は水蒸気分子の平均速度である。この j_{imp} が結晶表面に入射する水蒸気分子のフラックスと等しくなる。

結晶表面に入射した水蒸気分子のうち、付録 15A2 で述べたような過程により結晶相に組み込まれる割合 α を蒸気の沈着係数 (deposition coefficient) という。この α を用いると、結晶相に組み込まれ沈着する水蒸気フラックス j_{in} は

$$j_{\text{in}} = \alpha j_{\text{imp}} = \alpha \frac{\rho_{\text{int}} \bar{c}}{4} \quad (2)$$

となる。この式は α の定義とも言える。動力学領域では水蒸気分子と空気分子との衝突を考える必要がないため、この j_{in} は結晶相に組み込まれ沈着する水蒸気フラックスを $x = r + \Delta$ の境界面で評価したものと考えることができる。

次に結晶面から出ていくフラックスを j_{out} を求める。平衡状態においては結晶相に組み込まれるフラックス $j_{\text{in}}^{\text{eq}}$ と結晶面から出ていくフラックス $j_{\text{out}}^{\text{eq}}$ は等しい。また $\rho_{\text{int}} = \rho_s$ となる。このため平衡状態における j_{out} は

$$j_{\text{out}}^{\text{eq}} = j_{\text{in}}^{\text{eq}} = \alpha \frac{\rho_s \bar{c}}{4} \quad (3)$$

で与えられる。 $x < r + \Delta$ では水蒸気分子の衝突は無視できるので、 j_{out} は ρ_{int} には依存しない。このため非平衡状態でも j_{out} は平衡状態でのフラックス $j_{\text{out}}^{\text{eq}}$ と等しく、

$$j_{\text{out}} = j_{\text{out}}^{\text{eq}} = \alpha \frac{\rho_s \bar{c}}{4} \quad (4)$$

となる。これを用いると、 $\rho_{\text{int}} > \rho_s$ の状態で結晶相へ正味組み込まれる蒸気のフラックス $j_{\text{in}}^{\text{net}}$ は

$$j_{\text{in}}^{\text{net}} \equiv j_{\text{in}} - j_{\text{out}} = \alpha \frac{(\rho_{\text{int}} - \rho_s) \bar{c}}{4} \quad (5)$$

となる。これが式(15.23)である。

結晶相の表面積は $4\pi r^2$ であるので結晶相へ正味組み込まれる水蒸気的全フラックス $J_{\text{in}}^{\text{net}}$ は

$$J_{\text{in}}^{\text{net}} = 4\pi r^2 j_{\text{in}}^{\text{net}} = \pi r^2 \alpha \bar{c} (\rho_{\text{int}} - \rho_s) \quad (6)$$

となる。

2. 式(15.24)の導出

次に分子拡散が支配的である $x > r + \Delta$ の領域から $x = r + \Delta$ 面に向かう下向きの水蒸気フラックスを求める。この領域での水蒸気密度は8.1節の式(8.6)より

$$\rho(x) = \frac{A}{x} + B \quad (7)$$

の形となる。 $x = \infty$ での水蒸気密度を ρ_{∞} とすれば

$$\rho(\infty) \equiv \rho_{\infty} = B \quad (8)$$

であり、

$$\rho(x) = \frac{A}{x} + \rho_{\infty} \quad (9)$$

となる。 $x = r + \Delta$ では

$$\rho(r + \Delta) = \frac{A}{r + \Delta} + \rho_{\infty} \quad (10)$$

であるので、

$$A = [\rho(r + \Delta) - \rho_{\infty}] (r + \Delta) \quad (11)$$

となる。これを式(9)に代入し

$$\rho(x) = \frac{[\rho(r+\Delta) - \rho_\infty](r+\Delta)}{x} + \rho_\infty \quad (12)$$

を得る. ここで $\rho_{\text{int}} \equiv \rho(r+\Delta)$ とすれば, この式は

$$\rho(x) = \rho_\infty - \frac{(\rho_\infty - \rho_{\text{int}})(r+\Delta)}{x} \quad (13)$$

となる. この式を x で微分すれば

$$\frac{d\rho(x)}{dx} = \frac{(\rho_\infty - \rho_{\text{int}})(r+\Delta)}{x^2} \quad (14)$$

となる. これより

$$\left[\frac{d\rho(x)}{dx} \right]_{x=r+\Delta} = \frac{\rho_\infty - \rho_{\text{int}}}{r+\Delta} \quad (15)$$

を得る. $x = r + \Delta$ 面に向かう水蒸気の拡散フラックス j_{diff} は

$$j_{\text{diff}}(r+\Delta) = -D_v \left[\frac{d\rho(x)}{dx} \right]_{x=r+\Delta} = -D_v \frac{\rho_\infty - \rho_{\text{int}}}{r+\Delta} \approx -D_v \frac{\rho_\infty - \rho_{\text{int}}}{r} \quad (16)$$

となる. これが式(15.24)である.

$x = r + \Delta$ 境界面の面積は $4\pi(r+\Delta)^2$ であるので $x = r + \Delta$ 面に向かう上方からの水蒸気的全拡散フラックス J_{diff} は

$$J_{\text{diff}}(r+\Delta) = 4\pi(r+\Delta)^2 j_{\text{diff}}(r+\Delta) = -4\pi(r+\Delta)D_v(\rho_\infty - \rho_{\text{int}}) \quad (17)$$

となる.

3. 式(15.25), (15.26), (15.27)の導出

式(17)の J_{diff} は上向きを正にとってある. 一方, 式(6)の $J_{\text{in}}^{\text{net}}$ は氷表面への方向を正にとってある. これを考慮すると平衡状態では

$$-J_{\text{diff}}(r+\Delta) = J_{\text{in}}^{\text{net}} \quad (18)$$

が成り立つ. この式の左辺に式(17)を, 右辺に式(6)を代入すれば

$$4\pi(r+\Delta)D_v(\rho_\infty - \rho_{\text{int}}) = \pi r^2 \alpha \bar{c} (\rho_{\text{int}} - \rho_s) \quad (19)$$

となる. ρ_{int} を含む項をまとめれば

$$[4(r+\Delta)D_v + r^2 \alpha \bar{c}] \rho_{\text{int}} = 4(r+\Delta)D_v \rho_\infty + r^2 \alpha \bar{c} \rho_s \quad (20)$$

となり, ρ_{int} が

$$\rho_{\text{int}} = \frac{4(r+\Delta)D_v\rho_\infty + r^2\alpha\bar{c}\rho_s}{4(r+\Delta)D_v + r^2\alpha\bar{c}} \approx \frac{\rho_\infty + \frac{\alpha\bar{c}}{4} \frac{r}{D_v} \rho_s}{1 + \frac{\alpha\bar{c}}{4} \frac{r}{D_v}} \quad (21)$$

と与えられる。最右辺の式では、 $r \approx 10 \mu\text{m} \gg \Delta \approx \lambda \approx 0.1 \mu\text{m}$ であることを用いた。これが式(15.25)である。これを用いると

$$\delta\rho_{\text{int}} \equiv \rho_{\text{int}} - \rho_s = \frac{\rho_\infty + \frac{\alpha\bar{c}}{4} \frac{r}{D_v} \rho_s}{1 + \frac{\alpha\bar{c}}{4} \frac{r}{D_v}} - \rho_s = \frac{\rho_\infty - \rho_s}{1 + \frac{\alpha\bar{c}}{4} \frac{r}{D_v}} \quad (22)$$

を得る。これが式(15.26)である。

水蒸気が氷過飽和の状態では $\delta\rho_{\text{int}} > 0$ となる (図 15.5)。 $\delta\rho_{\text{int}}$ は境界面と氷表面との間に生じる ρ の不連続的な段差であり、 r と α が小さいほど大きくなる。式(5)の最右辺に式(22)を代入すると $j_{\text{in}}^{\text{net}}$ は

$$j_{\text{in}}^{\text{net}} = \frac{\alpha}{4} \bar{c} \delta\rho_{\text{int}} = \frac{\alpha}{4} \bar{c} \frac{\rho_\infty - \rho_s}{1 + \frac{\alpha\bar{c}}{4} \frac{r}{D_v}} \quad (23)$$

と表される。これが式(15.27)である。

また $D_v \approx 1.8 \times 10^{-5} \text{m}^2 \text{s}^{-1}$ で、 $r \approx 1 \times 10^{-5} \text{m}$ であるので、

$$\frac{D_v}{r} \approx \frac{1.8 \times 10^{-5} \text{m}^2 \text{s}^{-1}}{1 \times 10^{-5} \text{m}} \approx 2 \text{m s}^{-1} \quad (24)$$

となる。一方 $\alpha\bar{c}/4 \approx 10 \text{m s}^{-1}$ であり、

$$\frac{\alpha\bar{c}}{4} \frac{r}{D_v} \gg 1 \quad (25)$$

となるので、式(22)は

$$\delta\rho_{\text{int}} = \rho_{\text{int}} - \rho_s \approx \frac{4D_v}{\alpha r \bar{c}} (\rho_\infty - \rho_s) \propto \frac{1}{\alpha} \quad (26)$$

と近似できる。

また式(23)は

$$j_{\text{in}}^{\text{net}} \approx \frac{D_v}{r} (\rho_\infty - \rho_s) \propto \nabla\rho \quad (27)$$

と近似できる。

15A4 キャパシタンスモデルの限界

15.2節において、キャパシタンスモデルを説明した。そこでは静電磁気学とのアナロジーに基づいて昇華成長における水蒸気の沈着フラックスを定式化した。その際には、結晶表面の ρ_s が場所によらず一定であるという境界条件を用いて、結晶周囲の ρ の分布をラプラスの方程式により求めた。この境界条件は静電磁気学において、導体表面では場所によらず同じ電位であることに対応する。拡散が卓越する領域である $x \geq r + \Delta$ でラプラスの方程式が成り立つと考えているので、この領域の境界面は $x = r + \Delta$ であり、ここでは ρ が一定ということになる。一方、沈着係数 α が面によって異なる場合には、境界面($x = r + \Delta$)における ρ 、すなわち ρ_{int} が面により異なる値となる(付録15A3の式(21))。

ここで、水蒸気の水平方向の再分配を考慮せずに動径方向のみの水蒸気フラックスが存在すると仮定する。この場合には、この境界面で ρ が一定であるという境界条件は、沈着係数 α が結晶面の種類に関わらず一定である時に限り実現する。この解析からキャパシタンスモデルでは、 α が一定であるということが暗黙に仮定されていることがわかる。

α が一定である時、式(15.31)および式(15.35)より、

$$\frac{dc/dt}{da/dt} = \frac{dc}{da} = \frac{\alpha_c(T) \nabla \rho_c}{\alpha_a(T) \nabla \rho_a} = \frac{\nabla \rho_c}{\nabla \rho_a} = \frac{c}{a} \quad (1)$$

となり、

$$\frac{da}{a} = \frac{dc}{c} \quad (2)$$

となる。すなわち、昇華成長においてアスペクト比は変化しない。すなわち、キャパシタンスモデルでは、昇華成長による晶癖の変化は起きないことになる。

15A5 終端落下速度の数学的表現

氷粒子の終端落下速度 v_p は、1) 大気中における氷粒子の存在量、2) 雲の放射効果、3) 降水量、などの気候要素に影響する重要なパラメータである。しかし氷粒子の形状は複雑であるので v_p の推定も容易ではない。落下中の粒子は空気抵抗が最大となる向きを取る。このため一般に射影面積が最大となる面

は落下方向と直交する。また抵抗係数 C_D はコンパクトな形状（短い角柱）の粒子では小さく v_p が大きいのに対し、広がった形状（樹枝状）の粒子では C_D は大きく v_p は小さい。以下これらの関係を定式化する。

1. デイビス数

v_p はレイノルズ数 Re が求まれば、4.4節の式(4.43)を変形した式、

$$v_p = \frac{\mu_{\text{air}} Re}{\rho_{\text{air}} D_p} \quad (1)$$

により求まる。 D_p は粒子の最大長、 μ_{air} は空気の粘性係数、 ρ_{air} は空気の密度である。ここでデイビス数 N_{Da} を

$$N_{Da} \equiv C_D Re^2 \quad (2)$$

で定義する。 Re は N_{Da} と抵抗係数 C_D が求まれば、式(2)から求めることができる。そこでまず N_{Da} の表現を以下の手順で求める。

速度 v_p で落下する質量 m_p の粒子（形状は任意）に作用する抗力は

$$F_D = \frac{1}{2} \rho_{\text{air}} v_p^2 A_p C_D \quad (3)$$

と表される（4.4節の式(4.45)）。 A_p は粒子の最大射影面積である。一方、粒子に作用する重力は $F_g = m_p g$ であるので、 $F_g = F_D$ の関係式より、

$$v_p^2 = \frac{2m_p g}{\rho_{\text{air}} A_p C_D} \quad (4)$$

が成り立つ。この式と式(1)を組み合わせると、 Re^2 は、

$$Re^2 = \frac{v_p^2 \rho_{\text{air}}^2 D_p^2}{\mu_{\text{air}}^2} = \frac{2g \rho_{\text{air}}}{\mu_{\text{air}}^2} \left(\frac{m_p}{A_p} \right) \frac{D_p^2}{C_D} \quad (5)$$

と表される。この Re を式(2)に代入すると、

$$N_{Da} = \frac{2g \rho_{\text{air}}}{\mu_{\text{air}}^2} \left(\frac{m_p}{A_p} \right) D_p^2 \quad (6)$$

が得られる。この式により、粒子の質量・形状を表すパラメータと空気の特徴づけるパラメータからデイビス数 N_{Da} を求めることができる。

2. 抵抗係数

式(2)の右辺に含まれる C_D は粒子形状に依存するので、その推定は複雑である。流体力学の理論によれば、粒子に働く粘性の効果は、粒子近傍の境界層

I 各章の発展解説

の内側のみで働くとする近似が良い精度で成り立つ。そこで粒子とその周りの境界層を一体化した物体を考えると、空気中でのこの物体の運動は、粘性のないポテンシャル流中の運動として扱うことができる。この理論に基づくと、 C_D は

$$C_D = C_{D0} \left[1 + \frac{\delta_0}{(Re)^{1/2}} \right]^2 \quad (7)$$

と表すことができる。 δ_0 は粒子近傍の境界層の厚さ、 C_{D0} はポテンシャル流の抵抗係数で、共に無次元量である。 Re が低い極限（粘性効果が大きい層流）と高い極限（乱流）の室内実験から $\delta_0 = 5.83$, $C_{D0} = 0.6$ と推定されている。

3. レイノルズ数

式(7)を式(2)に代入し、 Re について解くと

$$Re = \frac{\delta_0^2}{4} \left[\left\{ 1 + \frac{4(N_{Da})^{1/2}}{\delta_0^2 (C_{D0})^{1/2}} \right\}^{1/2} - 1 \right]^2 \quad (8)$$

が得られる。

4. 落下速度

ここまでで得られた結果を用いて v_p を求めるための手順をまとめる。1) 粒子の D_p , A_p , m_p から式(6)を用いて N_{Da} を求める。2) N_{Da} から式(8)を用いて Re を求める。3) Re から式(1)を用いて v_p を求める。

ここまででは個別粒子について説明してきたが、 N_{Da} については粒径分布に基づく表現が可能である。単一の晶癖（形状）をもつ粒子集団を考える。晶癖で分類されるそれぞれの集団には異なった大きさの粒子が含まれる。単一晶癖の粒子集団に含まれる個々の粒子の D_p に対する A_p と m_p の値を、べき乗則で近似する。具体的には、これらの物理量を4つのパラメータ a, b, c, d と氷の密度 ρ_{ICE} により、

$$m_p = \rho_{ICE} a D_p^b \quad (7)$$

$$A_p = c D_p^d \quad (8)$$

と近似する。球形粒子の場合には $a = \pi/6$, $b = 3$, $c = \pi/4$, $d = 2$ であり、角板粒子の場合には $a = 0.00739$, $b = 2.45$, $c = 0.65$, $d = 2$ となる (Mitchell, 1996)。こ

のとき N_{Da} は,

$$N_{Da}(D_p, a, b, c, d) = \frac{2g\rho_{\text{air}}}{\mu_{\text{air}}^2} \left(\frac{m_p}{A_p} \right) D_p^2 = \frac{2g\rho_{\text{air}}}{\mu_{\text{air}}^2} \frac{a}{c} D_p^{2+b-d} \quad (9)$$

となる. このように, 単一晶癖の粒子集団では, N_{Da} は D_p のみの関数となる. また式(2)より, Re も D_p のみの関数となるので, 式(1)より v_p を D_p のみの関数として求めることができる.

第 16 章

16A1 雲中でのエアロゾル過程

1. 雲核生成に伴うエアロゾル除去

図 1 に模式的に示した湿潤対流において, 上昇する空気塊中の一部のエアロゾルは雲底付近での雲粒活性化により水滴に取り込まれる. 水滴 (雲粒・雨粒) 同士の衝突で, 1 つの水滴中に複数のエアロゾルが含まれるようになる. 成長した雨粒の落下とともにエアロゾルは大気から除去される.

2. エアロゾルと雲・降水粒子との衝突による除去

雲の底部より雨粒が落下してくると, 雲底より下層にあるエアロゾルは雨滴と衝突しそれに取り込まれ, 雨滴とともに地上に落下する (図 1).

雲の内部で雲粒子が半径 r のエアロゾルと衝突すると, エアロゾルが雲粒子に取り込まれて除去される (図 1). この除去効率の r 依存性は雲底下での衝突過程と類似している. 雲底下や雲中での累積モードのエアロゾルと雲・降水粒子との衝突による除去は重要ではなく, 雲核生成を経た降水除去 (雲内除去) がエアロゾルの湿性除去の 90% 近くを占めると推定されている (Ohata *et al.*, 2016).

I 各章の発展解説

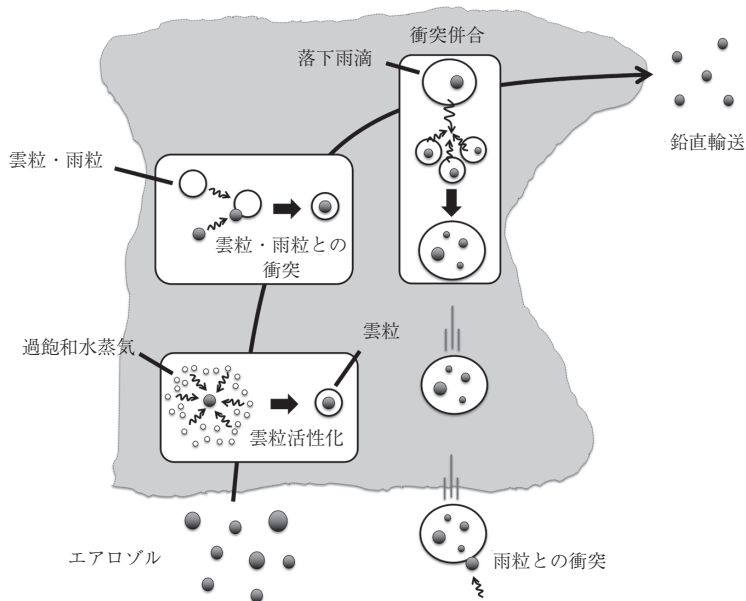


図1 暖かい雨によるエアロゾルの除去メカニズムの概略図. Ohata *et al.* (2016) を改変.

16A2 最大過飽和度の緯度分布

CAM-ATRASで計算された下部対流圏での雲の最大過飽和度 s_{\max} の年平均の分布を図1に示した. 経度方向に平均した中低緯度での値は $s_{\max} \approx 0.15\%$ であるが, 高緯度では $s_{\max} > 0.3\%$ となる.

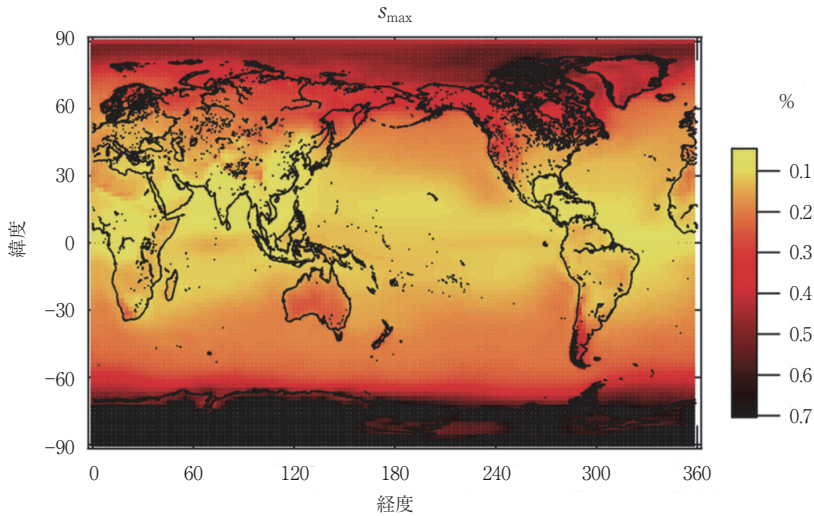


図 1 雲の最大過飽和度 s_{\max} の全球分布. s_{\max} は下部対流圏 ($p > 800$ hPa) の雲層中での値. Matsui and Liu (2021) を改変.

16A3 放射性物質とその湿性沈着

大気中に存在する放射性核種は天然放射性核種と人工放射性核種に区分される。

1. 天然放射性核種

天然放射性核種は、宇宙線によって上空で生成される宇宙線放射性核種 (^7Be , ^{10}Be , ^{14}C 等) と、地球誕生以来存在している核種 (ウラン・トリウムとその子孫核種, ^{40}K 等) に分けられる。一部の天然放射性核種は大気エアロゾルに含まれることが多いため、エアロゾルの挙動を理解するためのトレーサーとしても活用されている。たとえば ^7Be は成層圏を中心とする上空大気のエアロゾル、ウラン・トリウムは土壌起源エアロゾル、 ^{40}K は海塩や植物燃焼起源エアロゾルのトレーサーとして利用されている。

2. 人工放射性核種

1945 年の原爆投下や 1950 年代から 1960 年代にかけての旧ソ連や米国等による大気圏内核実験によって、 ^{235}U の核分裂で生成される物質 (^{85}Kr , ^{90}Sr ,

^{131}I , ^{133}Xe , ^{134}Cs , ^{137}Cs 等) が大量に大気中に放出された。また人工放射性核種は 1986 年 4 月のチョルノービリ原子力発電所事故, 2011 年 3 月の福島第一原子力発電所 (福島第一原発) 事故によっても放出され, 地球全体に拡散した。

3. 放射性核種の特性

放射性核種のうち, ^{85}Kr と ^{133}Xe は気体であり, ^{131}I と ^{133}I は半揮発性である。 ^{90}Sr , ^{134}Cs , ^{137}Cs 等は常温では平衡蒸気圧が低く, エアロゾルに内部混合する形で存在することになる。福島第一原子力発電所事故で放出された放射性物質のうち ^{131}I と ^{133}I の半減期はそれぞれ約 8 時間と 20 時間である。また ^{134}Cs および ^{137}Cs の半減期はそれぞれ約 2.1 年と 30.1 年である。このため ^{137}Cs の環境への影響は長期に及ぶ。

4. ^{134}Cs , ^{137}Cs を含むエアロゾルとその沈着

図 1 に福島第一原発事故の約 50 日後につくば市で観測された ^{134}Cs , ^{137}Cs を含むエアロゾルの粒径分布を示す (Kaneyasu *et al.*, 2012)。このエアロゾルの質量の大部分は累積モードにあり, 累積モードのエアロゾルの大部分は硫酸エアロゾルであった (Kaneyasu *et al.*, 2012)。つまり放射性セシウム (^{134}Cs , ^{137}Cs) の大部分は累積モードの硫酸エアロゾルに含まれていたことになる。チョルノービリ原発事故から放出された放射性セシウムも累積モードの硫酸エアロゾルに含まれていたことが発生源から離れた地域での観測から知られている。

このことは 2 つの要因で生じると考えられる。まず, 1) 原子炉中で高温の蒸気であった放射性セシウムは大気中に放出され冷却されるとエアロゾル上に凝縮する。また, 2) 一般的にはエアロゾルの表面積濃度は累積モードで最大になり (図 5.1) 多くの場合, 硫酸エアロゾルは累積モードエアロゾルの主要な成分である。1), 2) の結果, 放射性セシウムの大部分は表面積濃度が大きい累積モードの硫酸エアロゾル上に凝縮すると予測される。

さらに放射性セシウムは大気成分を電離し, 電離で生じたイオンが H_2SO_4 と H_2O による均一核生成 (9.3 節) を誘導し, SO_2 濃度が高い環境下では放射性セシウムを含む硫酸エアロゾルが生成することも考えられる。ただし福島では SO_2 濃度は比較的 low だったと推定され, この過程は重要ではなかったと思われる。

いずれにせよ放射性セシウムの沈着は主として湿性沈着により起きることがわかる。放射性セシウムが累積モードの水溶性エアロゾルと内部混合している

図 1 2011 年 4 月 28 日から 5 月 12 日にかけてつくば市で観測された ^{134}Cs , ^{137}Cs を含むエアロゾルの粒径分布 $\Delta(\text{Activity})/\Delta(\log D_p)$. ここで放射能の強さ (activity) を表す単位であるベクレル (Bq) は単位体積当たり, 1 秒間に崩壊する原子核の数である. Kaneyasu *et al.* (2012) を改変.

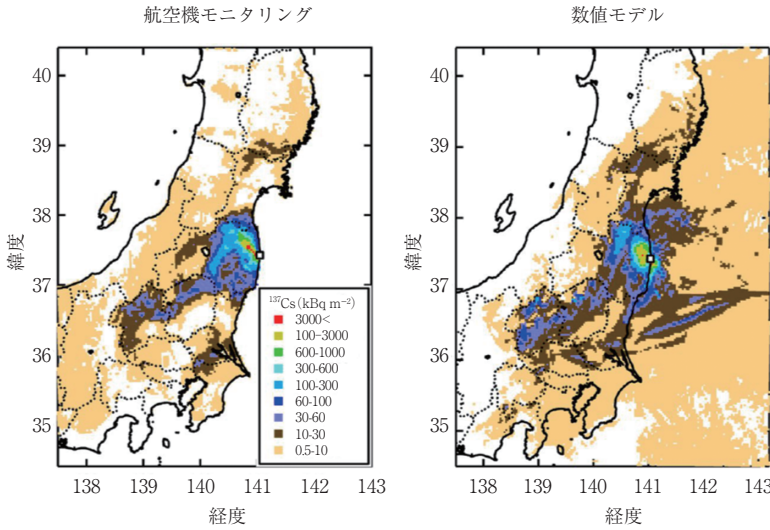
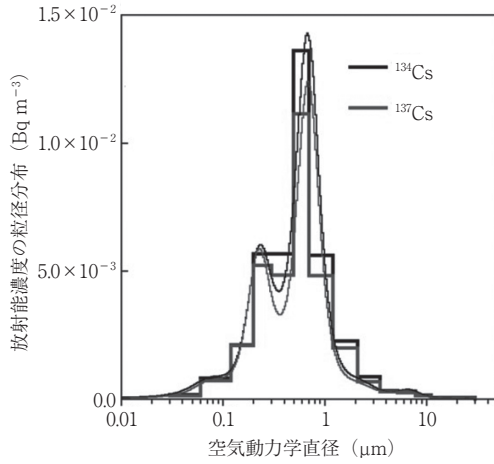


図 2 航空機モニタリングと数値モデルに基づいて推計された放射性セシウム (^{137}Cs) の沈着量. 航空機モニタリングにおいては 2011 年 6 月 -11 月にかけて上空で測定した放射線量を基に ^{137}Cs の沈着量を推計した. Morino *et al.* (2013) を改変.

と仮定して計算したその沈着量を図 2 に示した (Morino *et al.*, 2013). 計算値は, 1 桁の範囲内で観測値と一致している.

原子力発電所の多くは日本を含め中緯度にある. 経度にも依存するが, そこ

では温帯低気圧活動などにより年間平均降水量が比較的多い（11.4節，付録11A2）。このため，季節にもよるが，この事例のように原発の事故で放射性物質が放出されると湿性沈着により土壌が汚染される確率は低くない。

16A4 乾性沈着速度

1. 乱流層と準層流底層での過程

乱流が卓越する接地層内での水平風速 U は6.1節の式(6.11)で表される。再掲すれば

$$U(z) = \frac{u_*}{k} \ln \left(\frac{z}{z_0} \right) \quad (1)$$

となる。この式に従えば $z = z_0$ において風速 U は $U = 0$ となる。このことは $0 < z < z_0$ の準層流底層ではほぼ層流になることに対応する。

図1として16.3節の図16.2を再掲した。この図に示したように， $z = 0, z_0, z_1$ におけるエアロゾル濃度 C を C_1, C_2, C_3 とする。エアロゾルは地表面で完全に吸収されると仮定し $C_1 = 0$ とする。この地表面での消失源のため， $C_1 = 0 < C_2 < C_3$ となる。拡散がこの C の濃度勾配を均一化するように働く（4.8節）。この拡散の主な微物理過程は，1) 準層流底層（層 b ）では主に空気分子のエアロゾルへの衝突（ブラウン運動）であり，2) その上の層（層 a ）では乱流に伴う攪拌である（図1）。

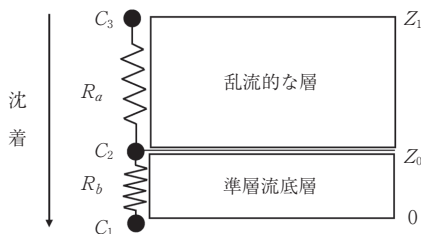


図1 エアロゾルの乾性沈着の抵抗モデルの概念図。 z_0 は粗度長， z_1 は参照高度である。

2. 準層流底層と乱流層での粒子フラックス

2.1 準層流底層でのフラックス

層 b でのブラウン拡散のフラックスは,

$$j_b = -D \frac{dC}{dz} \quad (2)$$

である (4.8 節). ここで拡散係数 $D(\text{m}^2 \text{s}^{-1})$ は 4.5 節の式(4.71)で与えられる.

2.2 乱流層でのフラックス

層 a での乱流フラックスは,

$$j_a = -K \frac{dC}{dz} \quad (3)$$

と表現される. ここで $K(\text{m}^2 \text{s}^{-1})$ は乱流に伴う拡散係数である. この式は 6.1 節の運動量フラックスである式(6.5)に類似している.

2.3 重力沈降のフラックス

このような拡散に加え, 直径 D_p のエアロゾルは各高度で重力沈降する. その速度 V_s は,

$$V_s = \frac{\rho_p D_p^2 g C_c}{18 \mu} \quad (4)$$

であり (4.6 節の式(4.56)), 粒子の沈降フラックスは

$$j_s = -C V_s \quad (5)$$

となる.

2.4 定常状態でのフラックスの表現 (沈着速度)

定常状態においては層 b でのフラックス $j_b + j_s$ と層 a でのフラックス $j_a + j_s$ は等しい. これを式で表せば

$$-D \left(\frac{dC}{dz} \right)_{\text{層 } b} - C_2 V_s = -K \left(\frac{dC}{dz} \right)_{\text{層 } a} - C_3 V_s \quad (6)$$

となる. 上式の両辺のフラックスの絶対値 j を差分形式で表せば

$$j = D \frac{C_2}{z_0} + C_2 V_s = K \frac{C_3 - C_2}{z_1 - z_0} + C_3 V_s \quad (7)$$

I 各章の発展解説

となる. ここで R_a と R_b を

$$\frac{1}{R_b} \equiv \frac{D}{z_0} \quad (\text{m s}^{-1}) \quad (8)$$

$$\frac{1}{R_a} \equiv \frac{K}{z_1 - z_0} \quad (\text{m s}^{-1}) \quad (9)$$

と定義する. 式(2), (3)よりフラックス j_a と j_b はそれぞれ拡散係数 K と D に比例する. 一方, R_a と R_b は式(8), (9)より拡散係数 K と D に反比例するので j_a と j_b はそれぞれ R_a と R_b に反比例する. 従って R_a と R_b はフラックスに対する抵抗とみなすことができる.

式(7)の右辺の第1式 = 第2式という関係は

$$\frac{C_2}{R_b} + V_s C_2 = \frac{C_3 - C_2}{R_a} + V_s C_3 \quad (10)$$

となる. この式より

$$C_2 = \frac{R_b(1 + R_a V_s)}{R_a + R_b + R_a R_b V_s} C_3 \quad (11)$$

の関係が得られる. この式を式(7)の右辺第1式に代入すると

$$j = \left(\frac{1}{R_b} + V_s \right) C_2 = \left(\frac{1}{R_a + R_b + R_a R_b V_s} + V_s \right) C_3 \quad (12)$$

となる. 沈着速度 V_d を

$$V_d \equiv \frac{1}{R_a + R_b + R_a R_b V_s} + V_s \quad (13)$$

と定義する. $z = z_1 = 10 \text{ m}$ 高度でのエアロゾル濃度を $C_3 = C$ と記せば式(12)は

$$j = V_d C \quad (14)$$

となる. 粒径が小さく $V_s \approx 0$ と近似できる場合には全抵抗 R は

$$R \approx R_a + R_b \quad (15)$$

となる. この場合, 式(13)は

$$\frac{1}{V_d} = R_a + R_b \quad (16)$$

と表される.

j を電流 (I), C を電圧 (V), $1/V_d$ を電気抵抗 (R) と考えれば, この式と

直流電気回路の関係式 $I = V/R$ とのアナロジーが成り立つ。濃度勾配 C は j を駆動するので、電圧に対応する。そうすれば、 $1/V_d$ は抵抗に対応することになる。 R_a は空気力学的な乱流に伴う抵抗、 R_b は準層流低層の拡散に伴う抵抗である。 R_a と R_b の相対的な大きさは、乱流の状態で変わる。乱流が弱く大気が安定な時は、フラックスは主として乱流効果が制約となるので R において R_a が主要となる。大気が中立ないし不安定な時は、フラックスは主としてブラウン拡散が制約となるので R において R_b が主要となる。 R_a と R_b の数学的な表現は複雑であり、その導出は Seinfeld and Pandis (2016) を参照されたい。

II 参考書籍

エアロゾルの物理・化学全般

- Boucher, O. (2015), *Atmospheric Aerosols*, Springer, 311 pp.
- Hinds, W. H. (1999), *Aerosol Technology*, 2nd ed., John Wiley & Sons, 483 pp.
- Seinfeld, J. H., and Pandis, S. N. (2016), *Atmospheric Chemistry and Physics*, 3rd ed., Wiley, 1152 pp.

雲の微物理全般

- Fletcher, N. H. (1962), *The Physics of Rainclouds*, Cambridge University Press, 386 pp.
雲微物理の重要な概念を理解するために適している古典である。
- Houze, R. A. (2014), *Cloud Dynamics* (2nd ed.), Academic Press, 496 pp.
- Lamb, D., and Verlinde, J. (2011), *Physics and Chemistry of Clouds*, Cambridge University Press, 584 pp.
- Lohman, U., Lüönd, F., and Mahrt, M. (2016), *An Introduction to Clouds: From the Microscale to Climate*, Cambridge University Press, 391 pp.
- Pruppacher, H. R., and Klett, J. D. (2000), *Microphysics of Clouds and Precipitation*, Kluwer Academic Publishers, 954 pp.
- Rogers, P. R., and Yau, M. K. (1989), *A Short Course in Cloud Physics*, Pergamon Press, 293 pp.
- Young, K. C. (1993), *Microphysical Processes in Clouds*, Oxford University Press, 427 pp.
- 武田喬男, 雨の科学, 講談社学術文庫

第2章, 10章

大気化学

- Jacob, D. (1999), *Introduction to Atmospheric Chemistry*, Princeton University Press, 266 pp.
- 大気化学入門 D. J. ジェイコブ / 近藤豊 訳 (2002年), 東京大学出版会

大気化学反応

- Akimoto, H., and Hirokawa, J. (2020), *Atmospheric Multiphase Chemistry*, John Wiley & Sons Ltd., 525 pp.
- Finlayson-Pitts, B. L., and Pitts, J. N., Jr. (2000), *Chemistry of the Upper and Lower Atmosphere*, Academic Press, 969 pp.

第3章, 13章

大気の熱力学

- Bohren, C. F., and Albrecht, B. A. (1998), *Atmospheric Thermodynamics*, Oxford University Press, 402 pp.

大気の熱力学や関連した物理過程に関し深い考察がなされている。

- Curry, J. A., and Webster, P. J. (1999), *Thermodynamics of Atmospheres and Oceans*, Academic Press, 467 pp.
- Petty, G. W. (2008), *A First Course in Atmospheric Thermodynamics*, Sundog Publishing, 337 pp.
- Tsonis, A. A. (2007), *An Introduction to Atmospheric Thermodynamics*, Cambridge University Press, 198 pp.

第4章

流体力学

- Buresti, G (2012), *Elements of Fluid Dynamics*, Imperial College Press, 584 pp.
- アッシャー・H・シャピロ 今井功 訳 (1977年), 流れの科学, 河出書房新社
- 佐野理 (2000年), 連続体の力学, 裳華房
- 巽友正 (1995), 連続体の力学, 岩波書店
- 戸田盛和 (1994), 流体力学30講 (物理学30講シリーズ), 朝倉書店
- 松島八十男 (1981), 変形と流れの力学 (基礎の物理2), 朝倉書店

第6章

大気境界層

- Fleagle, R. G., and Buisinger, J. A. (1980), *An Introduction to Atmospheric Physics*, Academic Press, 432 pp.
- Goody, R. (1995), *Principles of Atmospheric Physics and Chemistry*, Oxford University Press, 324 pp.
- 上の2つの本では大気物理学の一部として大気境界層中での運動量や物質の輸送を手短に記述しているので初学者には便利である。
- Stull, R. B. (1988), *An Introduction to Boundary Layer Meteorology*, Kluwer Academic Publishers, 670 pp.
- 大気境界層の物理過程を詳細に記述している。

鉱物ダスト

- Knippertz, P., and Stutt, J. -B. W., ed. (2014), *Mineral Dust*, Springer, 509 pp.
- Shao, Y. (2008), *Physics and Modelling of Wind Erosion*, Springer, 452 pp.

海塩粒子

- Lewis, E. R., and Schwarz, S. E. (2004), *Sea Salt Aerosol Production: Mechanisms, Methods, Measurements and Models - A Critical Review*, American Geophysical Union, 432 pp.

第7章

化学熱力学

- Denbigh (1981), *The Principles of Chemical Equilibrium*, Cambridge University Press, 494 pp.
- デンビ 化学熱力学 化学平衡の理論と応用 (上), (下) (1973), 榎友彦・野村昭之

II 参考書籍

助・安田元夫 訳, 廣川書店
化学熱力学を明快に説明している。
蒲池幹治 (2016 年), 基本 化学熱力学 基礎編, 三共出版
蒲池幹治 (2016 年), 基本 化学熱力学 展開編, 三共出版
由井宏治 (2013 年), 化学熱力学入門, オーム社

第 11 章 大気力学

Martin, J. E. (2006), *Mid-Latitude Atmospheric Dynamics*, Wiley, 324 pp.
ジョナサン・E. マーティン, 大気力学の基礎 中緯度の総観気象, 近藤豊・市橋正生
訳, 東京大学出版会
小倉義光, 総観気象学入門, 東京大学出版会

第 12-15 章 雲の微物理と数値モデルの専門書

Khain, A. P., and Pinsky, M. (2018), *Physical Processes in Clouds and Cloud Modeling*,
Cambridge University Press, 621 pp.
Khavorostyanov, V. I., and Curry, J. A. (2014), *Thermodynamics, Kinetics, and Micro-*
physics of Clouds, Cambridge University Press, 782 pp.

第 14 章, 15 章 氷晶の核生成と成長

上羽牧夫 編集 (2002), 結晶成長のしくみを探る: その物理的基礎, 共立出版
小林禎作 (1970), 雪の結晶: 自然の芸術をさぐる, 講談社 ブルーバックス
小林禎作 (1980), 六花の美, サイエンス社
小林禎作 (2013), 雪の結晶はなぜ六角形なのか, ちくま学芸文庫
黒田登志雄 (1984), 結晶は生きている, サイエンス社
後藤芳彦 (2003), 結晶成長, 内田老鶴圃
前野紀一 (2006), 氷の科学, 北海道大学出版会

第 15 章 電磁気学

砂川重信 (1987), 電磁気学, 岩波書店

Ⅲ 本文と付録で引用した文献

第 1 章

- Adachi, K., *et al.* (2021), Compositions and mixing states of aerosol particles by aircraft observations in the Arctic springtime, 2018, *Atmos. Chem. Phys.*, **21**, 3607–3626. <https://doi.org/10.5194/acp-21-3607-2021>.
- Hill, W., *et al.* (2023), Lung adenocarcinoma promotion by air pollutants, *Nature*, **616**, 159–167, <https://doi.org/10.1038/s41586-023-05875-3>.
- Matsui, H. (2017), Development of a global aerosol model using a two-dimensional sectional method: 1. Model design, *J. Advances in Modeling Earth Systems*, **9**, 1921–1947, doi: 10.1002/2017MS000936.
- Matsui, H., and Mahowald, N. (2017), Development of a global aerosol model using a two-dimensional sectional method: 2. Evaluation and sensitivity simulations, *J. Advances in Modeling Earth Systems*, **9**, 1887–1920, doi: 10.1002/2017MS000937.
- Zhang, Q., *et al.* (2007), Ubiquity and dominance of oxygenated species in organic aerosols in anthropogenically-influenced Northern Hemisphere midlatitudes, *Geophys. Res. Lett.*, **34**, L13801, doi: 10.1029/2007GL029979.

第 2 章

- Ehhalt, D., *et al.* (2015), Oxidizing Capacity, *Encyclopedia of Atmospheric Sciences*, 2nd ed., vol 6, Academic Press.
- Jacob, D. (1999), *Introduction to Atmospheric Chemistry*, Princeton University Press.
- 大気化学入門 D. J. ジェイコブ / 近藤豊 訳 (2002 年), 東京大学出版会

第 4 章

- Hinds, W. H. (1999), *Aerosol Technology*, 2nd ed., John Wiley & Sons.
- Seinfeld, J. H., and Pandis, S. N. (2016), *Atmospheric Chemistry and Physics*, 3rd ed., Wiley.
- 佐野理 (2000), 連続体の力学, 裳華房

第 6 章

- Gill, P. S., *et al.* (1983), Organic films on atmospheric particles, fog droplets, cloud droplets, raindrops, and snowflakes, *Rev. Geophys. Space Phys.*, **21**, 903–920.
- Gong, S. L. (2003), A parameterization of sea-salt aerosol source function for sub-and super-micron particles, *Global Biogeochem. Cy.*, **17**(4), 1097, doi: 10.1029/2003GB

Ⅲ 本文と付録で引用した文献

002079.

- Jaeglé, L., *et al.* (2011), Global distribution of sea salt aerosols: new constraints from in situ and remote sensing observations. *Atmos. Chem. Phys.*, **11**, 3137–3157, www.atmos-chem-phys.net/11/3137/2011/doi:10.5194/acp-11-3137-2011.
- Kiselev, A., *et al.* (2016), Active sites in heterogeneous ice nucleation—The example of K-rich feldspars. *Science*, **355**, 367–37.
- Marticorena, B. (2014), Dust production mechanisms, Chapter 5 in *Mineral Dust*, ed. Knippets, P., and Stuut, J. -B. W., Springer.
- Moosmüller, H., *et al.* (2009), Aerosol light absorption and its measurement: A review, *J. Quant. Spect. Rad. Trans.*, **110**, 844–878, <https://doi.org/10.1016/j.jqsrt.2009.02.035>
- Murray, B. J., *et al.* (2012), Ice nucleation by particles immersed in supercooled cloud droplets. *Chem. Soc. Rev.*, **41**, 6519–6554.
- Shao, Y. (2004), Simplification of a dust emission scheme and comparison with data. *J. Geophys. Res.*, **109**, doi: 10.1029/2003JD004372.
- Sokolik, I. N. and Toon, O. B. (1999), Incorporation of mineralogical composition into models of the radiative properties of mineral aerosol from UV to IR wavelengths. *J. Geophys. Res.*, **104**, 9423–9444, <https://doi.org/10.1029/1998JD200048>. 1999.

第7章

- Fountoukis, C., and A. Nenes (2007), ISORROPIA II: A computationally efficient thermodynamic equilibrium model for K^+ - Ca^{2+} - Mg^{2+} - NH_4^+ - Na^+ - SO_4^{2-} - NO_3^- - Cl^- - H_2O aerosols, *Atmos. Chem. Phys.*, **7**, 4639–4659.
- Seinfeld, J. H., and Pandis, S. N. (2016), *Atmospheric Chemistry and Physics*, 3rd ed., Wiley.

第8章

- Seinfeld, J. H., and Pandis, S. N. (2016), *Atmospheric Chemistry and Physics*, 3rd ed., Wiley.
- Zebel, B. (1966), Coagulation of aerosols, Chapter II in *Aerosol Science*, Davies, C. N., ed., Academic Press.

第9章

- Almeida, J., *et al.* (2013), Molecular understanding of sulphuric acid-amine particle nucleation in the atmosphere, *Nature*, **502**, 359–363, doi: 10.1038/nature12663.
- Brock, C. A., *et al.* (1995), Particle formation in the upper tropical troposphere—a source of nuclei for the stratospheric aerosol, *Science*, **270**, 1650–1653.
- Chen, M., *et al.* (2012), Acid-base chemical reaction model for nucleation rates in the polluted atmospheric boundary layer, *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.*, **109**, 18713–18718.
- Carslaw, K. S., *et al.* (2013), Large contribution of natural aerosols to uncertainty in in-

- direct forcing, *Nature*, **503**, 67–71, doi: 10.1038/nature12674.
- Finlayson-Pitts, B. L., and Pitts, J. N. Jr. (2000), *Chemistry of the Upper and Lower Atmosphere*, Academic Press.
- Gordon, H., *et al.* (2016), Reduced anthropogenic aerosol radiative forcing caused by biogenic new particle formation, *Proc. Natl. Acad. Sci. U. S. A.*, **113**, 12053–12058, doi: 10.1073/pnas.1602360113.
- Gordon, H., *et al.* (2017), Causes and importance of new particle formation in the present-day and preindustrial atmospheres, *J. Geophys. Res. Atmos.*, **122**, 8739–8760, doi: 10.1002/2017JD026844.
- Hamill, P. (1975), The time dependent growth of H₂O–H₂SO₄ aerosols by heteromolecular condensation, *J. Aerosol Sci.*, **6**, 475–482.
- Hamill, P., *et al.* (1977), The nucleation of H₂SO₄–H₂O solution aerosol particles in the stratosphere, *J. Atmos. Sci.* **34**, 150–162.
- Heist, R. H., and Reiss, H. (1974), Hydrates in supersaturated binary sulfuric acid–water vapor, *J. Chem. Phys.*, **61**, 573–581, <https://doi.org/10.1063/1.1681932>.
- Kirkby, J., *et al.* (2011), Role of sulphuric acid, ammonia and galactic cosmic rays in atmospheric aerosol nucleation, *Nature*, **476**, 429–433.
- Kirkby, J., *et al.* (2016), Ion-induced nucleation of pure biogenic particles, *Nature*, **533** (7604), 521–526.
- Lamb, D., and Verlinde, J. (2011), *Physics and Chemistry of Clouds*, Cambridge University Press.
- Lehtipalo, K., *et al.* (2018), Multicomponent new particle formation from sulfuric acid, ammonia, and biogenic vapors, *Sci. Adv.*, **4**(12), :eaau5363.
- Matsui, H., *et al.* (2011), Impact of new particle formation on the concentrations of aerosols and cloud condensation nuclei around Beijing, *J. Geophys. Res.*, **116**, D19208, doi: 10.1029/2011JD016025.
- Mirabel, P., and Katz, J. L. (1974), Binary homogeneous nucleation as a mechanism for the formation of aerosols, *J. Chem. Phys.*, **60**, 1138–1144.
- Takegawa, N., *et al.* (2020), Enhanced new particle formation above the marine boundary layer over the Yellow Sea: Potential impacts on cloud condensation nuclei, *J. Geophys. Res.* **125**, e2019JD031448. <https://doi.org/10.1029/2019JD031448>.
- Tröstl, J., *et al.* (2016), The role of low-volatility organic compounds in initial particle growth in the atmosphere, *Nature*, **533**(7604), 527–531.

第 10 章

- Atkinson, R., and Arey, J. (2003), Atmospheric degradation of volatile organic compounds, *Chem. Rev.*, **103**, 4605–4630.
- Bond, T. C., and Bergstrom, R. W. (2006), Light absorption by carbonaceous particles: an investigative review, *Aerosol Sci. Technol.*, **40**(1), 27–67, <https://doi.org/10.1080/02786820500421521>.
- Bond, T. C., *et al.* (2013), Bounding the role of black carbon in the climate system: A scientific assessment, *J. Geophys. Res.*, **118**, doi: 10.1002/jgrd.50171.

III 本文と付録で引用した文献

- Claeys, M., *et al.* (2004), Formation of secondary organic aerosols through photooxidation of isoprene, *Science*, **303**(5661), 1173–1176.
- Donahue N. M., *et al.* (2006), Coupled partitioning, dilution, and chemical aging of semivolatile organics. *Environ. Sci. Technol.*, **40**, 2635–2643.
- Ervens, B., *et al.* (2004), A modeling study of aqueous production of dicarboxylic acids: I. Chemical pathways and speciated organic mass production, *J. Geophys. Res.*, **109**, D15205, doi: 10.1029/2003JD004387.
- Ervens, B., and Volkamer, R. (2010), Glyoxal processing by aerosol multiphase chemistry: Towards a kinetic modeling framework of secondary aerosol formation in aqueous particles, *Atmos. Chem. Phys.*, **10**, 8219–8244, doi 10.5194/acp-10-8219-2010.
- Faloona, I. (2009), Sulfur processing in the marine atmospheric boundary layer: A review and critical assessment of modeling uncertainties, *Atmos. Environ.*, **43**(18), 2841–285.
- Finlayson-Pitts, B. L., and Pitts, J. N., Jr. (2000), *Chemistry of the Upper and Lower Atmosphere*, Academic Press.
- Herckes, P., and Collett, J. L., Jr. (2015), *Cloud Chemistry*, in *Encyclopedia of Atmospheric Sciences*, 2nd ed., vol 6, Academic Press.
- Kondo, Y. (2015), Effects of black carbon on climate: Advances in measurement and modeling, *Monogr. Environ. Earth Planets*, **3**, 1–85, doi: 10.5047/meep.2015.00301.0001.
- Kroll, J. H., and Seinfeld, J. H. (2008), Chemistry of secondary organic aerosol: Formation and evolution of low-volatility organics in the atmosphere, *Atmos. Environ.*, **42**, 3593–3624.
- Matsui, H., *et al.* (2018), Anthropogenic combustion iron as a complex climate forcer, *Nature Comm.*, **9**:1593, doi: 10.1038/s41467-018-03997-0.
- McNeil, V. F. (2015), Aqueous organic chemistry in the atmosphere: Sources and chemical processing of organic aerosols, *Environ. Sci. Technol.*, **49**, 1237–1244, doi: 10.1021/es5043707.
- Miyoshi, A. (2017), Chemistry of the formation of PAHs and soot particles from combustion (1), *J. Combustion Soc. Japan*, **59**(187), 55–60 (in Japanese).
- Moteki, N. (2023), Climate-relevant properties of black carbon aerosols revealed by in situ measurements: a review, *Progress in Earth and Planetary Science*, 10:12, <https://doi.org/10.1186/s40645-023-00544-4>.
- Moteki, N., *et al.* (2017), Anthropogenic iron oxide aerosols enhance atmospheric heating, *Nature Comm.*, **8**, 15329, doi: 10.1038/ncomms15329.
- Moteki, N., *et al.* (2023), Constraining the complex refractive index of black carbon particles using the complex forward-scattering amplitude, *Aerosol Sci. Technol.*, **57**:7, 678–699, doi: 10.1080/02786826.2023.2202243.
- Nagao, I. (2012), Climate regulation by marine biogenic sulfur compound, dimethyl sulfide (DMS), *Eaorozu Kenkyu*, **27**(3), 269–277 (in Japanese).
- Ohata, S., *et al.* (2016), Hygroscopicity of materials internally mixed with black carbon measured in Tokyo, *J. Geophys. Res.*, **121**, doi10.1002/2015JD024153.

- Seinfeld, J. H., and Pandis, S. N. (2016), *Atmospheric Chemistry and Physics*, 3rd ed., Wiley.
- Shiraiwa, M., *et al.* (2010), Amplification of light absorption of black carbon by organic coating, *Aerosol Sci. Tech.*, **44**, 46-54.
- Shrivastava, M. K., *et al.* (2008), Effects of gas particle partitioning and aging of primary emissions on urban and regional organic aerosol concentrations *J. Geophys. Res.*, **113**, D18301, doi: 10.1029/2007JD009735.
- Shrivastava, M., *et al.* (2017), Recent advances in understanding secondary organic aerosol: Implications for global climate forcing, *Rev. Geophys.*, **55**, 509-559, doi: 10.1002/2016RG000540.
- Sindelarova, K., *et al.* (2014), Global data set of biogenic VOC., emissions calculated by the MEGAN model over the last 30 years, *Atmos. Chem. Phys.*, **14**, 9317-9341, www.atmos-chem-phys.net/14/9317/2014/doi: 10.5194/acp-14-9317-2014.
- Tree, D. R., and Svenson, K. I. (2007), Soot processes in compression ignition engines, *Prog. Energy Combust. Sci.*, **33**(3), 272-309.
- Yoshida, A., *et al.* (2020), Abundances and microphysical properties of light-absorbing iron oxide and black carbon aerosols over the East Asian and Arctic regions, *J. Geophys. Res.*, **125**, e2019D032301. <http://doi.org/10.1029/2019JD032301>.

第 11 章

- Houze, R. A. Jr., and Hobbs, P. V. (1982), Organization and structure of precipitating cloud systems, *Adv. Geophys.*, **24**, 225-315.
- Kawai, H., *et al.* (2021), Relationship between shortwave radiation bias over the Southern Ocean and the double-intertropical convergence zone problem in MRI-ESM2, *Atmos. Sci. Lett.*, **22**(12), 1064, <https://doi.org/10.1002/asl.1064>.

第 12 章

- Petters, M. D., and Kreidenweis, S. M. (2007), A single parameter representation of hygroscopic growth and cloud condensation nucleus activity, *Atmos. Chem. Phys.*, **7**, 1961-1971, <http://www.atmos-chem-phys.net/7/1961/2007/>
- Hudson, J. G., and Yum, S. S. (2002), Cloud condensation nuclei spectra and polluted and clean clouds over the Indian Ocean, *J. Geophys. Res.*, **107** (D19), 8022, doi: 10.1029/2001JD000829.
- Seinfeld, J. H., and Pandis, S. N. (2016), *Atmospheric Chemistry and Physics*, 3rd ed., Wiley.
- Twomey, S. (1959), The supersaturation in natural clouds and the variation of cloud droplet concentration, *Geofis. Pura Appl.*, **42**, 243-249.

第 13 章

- Beard, K. V. (1976), Terminal velocity and shape of cloud and precipitation drops

III 本文と付録で引用した文献

- aloft, *J. Atmos. Sci.*, **33**, 851-864.
- Beard, K. V., and Chuang, C. (1987), A new model for the equilibrium shape of raindrops, *J. Atmos. Sci.*, **44**, 1509.
- Berry, E. X. (1967), Cloud droplet growth by collection, *J. Atmos. Sci.*, **24**, 688-701.
- Gunn, R., and Kinzer, G. D. (1949), The terminal velocity of fall for water droplets in stagnant air, *J. Meteorol.*, **6**, 243-248.
- Khain, P., and Pinsky, M. (2018), *Physical Processes in Clouds and Cloud Modeling*, Cambridge University Press.
- Khain, A., *et al.* (2000), Notes on the state-of-the-art numerical modeling of cloud microphysics, *Atmos. Res.*, **55**, 159-224.
- Lohman, U., Lüönd, F., and Mahrt, M. (2016), *An Introduction to Clouds: From the Microscale to Climate*, Cambridge University Press.
- Low, T. B., and List, R. (1982), Collision, coalescence and breakup of raindrops. Part I: Experimentally established coalescence efficiencies and fragment size distributions in breakup, *J. Atmos. Sci.*, **39**, 1591-1606.
- Marshall, J. S., and Palmer, W. M. (1948), The distribution of raindrops with size, *J. Meteor.*, **5**, 165-166.
- Pinsky, M., *et al.* (2001), Collision efficiency of drops in a wide range of Reynolds numbers: Effects of pressure on spectrum evolution, *J. Atmos. Sci.*, **58**, 742-764.
- Pinsky, B., and Khain, A. P. (2002), Effects of in-cloud nucleation and turbulence on droplet spectrum formation in cumulus clouds, *Q. J. Royal Meteorol. Soc.*, **128**, 501-533.
- Pinsky, M., *et al.* (2013), Supersaturation and diffusional droplet growth in liquid clouds, *J. Atmos. Sci.*, **70**, 2778-2793, doi: 10.1175/JAS-D-12-077.1.
- Twomey, S. (1959), The nuclei of natural cloud formation. Part II: The supersaturation in natural clouds and the variation of cloud droplet concentration, *Geofis. Pur. Appl.*, **43**, 243.

第 14 章

- 福田明治, 本堂武夫 (1984), 氷の転位, 日本金属学会会報, 第 23 卷, 第 6 号, 509-514.
- 後藤芳彦 (2003), 結晶成長, 内田老鶴圃
- 前野紀一 (2006), 氷の科学, 北海道大学出版会
- 當房豊 (2019), 混相雲内でのエアロゾルの氷晶核としての役割, 大気化学研究 第 41 号. Article No. 041A02.
- Bethge, H., and Keller, K. W. (1974), Evaporation rate of NaCl in vacuum, *J. Cryst. Growth*, **23**, 105-112.
- Fletcher, N. H. (1962), *The Physics of Rainclouds*, Cambridge University Press.
- Kiselev, A., *et al.* (2016). Active sites in heterogeneous ice nucleation-The example of K-rich feldspars. *Science*, **355**, 367-37.
- Hallett, J., and Mossop, S. C. (1974), Production of secondary ice particles during riming process, *Nature*, **249**, 26-28.
- Murray, B. J., *et al.* (2012), Ice nucleation by particles immersed in supercooled cloud

- droplets, *Chem. Soc. Rev.*, **41**, 6519–6554.
- Petters, M. D., and Wright, T. P. (2015), Revisiting ice nucleation from precipitation samples, *Geophys. Res. Lett.*, **42**, 8758–8766, doi: 10.1002/2015GL065733.
- Schill, G. P., *et al.* (2020), The contribution of black carbon to global ice nucleating particle concentrations relevant to mixed-phase clouds, *Proc. Natl. Acad. Sci. U. S. A.*, **117**, 22705–22711, www.pnas.org/cgi/doi/10.1073/pnas.2001674117.
- Young, K. C. (1993), *Microphysical Processes in Clouds*, Oxford University Press.

第 15 章

- 上羽牧夫 編集 (2002), 結晶成長のしくみを探る：その物理的基礎, 共立出版
- 小林禎作 (2013), 雪の結晶はなぜ六角形なのか, ちくま学芸文庫
- 砂川重信 (1987), 電磁気学, 岩波書店
- 二宮光三 (2004), 数値予報の基礎知識, オーム社
- Bailey, M. P., and Hallet, J. (2009), A comprehensive habit diagram for atmospheric ice crystals: Confirmation from the laboratory, AIRS, and other field studies, *J. Atmos. Sci.*, **66**, 2888–2899, doi: 10.1175/2009JAS28231.
- Chen, J.-P., and Lamb, D. (1994), The theoretical basis for the parameterization of ice crystal habits: growth by vapor deposition, *J. Atmos. Sci.*, **51**(9), 1206–1221.
- Kessler, E. (1969), On the distribution and continuity of water substance in atmospheric circulations, *Meteorol. Monogr.*, **32**.
- Khain, A. P., *et al.* (2015), Representation of microphysical processes in cloud resolving models: Spectral (bin) microphysics versus bulk parameterization, *Rev. Geophys.*, **53**, 247–322.
- Kobayashi, T. (1961), The growth of snow crystals at low supersaturation, *Phil. Mag.*, **6**, 1363–1370.
- Lamb, D., and Verlinde, J. (2011), *Physics and Chemistry of Clouds*, Cambridge University Press.
- Mitchell, D. L. (1996), Use of mass- and area-dimensional power laws for determining precipitation particle terminal velocities, *J. Atmos. Sci.*, **53**, 1710–1723.
- Mitchell, D. L., and Heymsfield, A. J. (2005), Refinements in the treatment of ice particle terminal velocities, highlighting aggregates, *J. Atmos. Sci.*, **62**, 1637–1644.
- Lin, Y., *et al.* (1983), Bulk parameterization of the snow field in a cloud model, *J. Climate Appl. Meteorol.*, **22**, 1065–1092. [https://doi.org/10.1175/1520-450\(1983\)022<1065:bpotsf>2.0.co;2](https://doi.org/10.1175/1520-450(1983)022<1065:bpotsf>2.0.co;2).
- Morrison, H., *et al.* (2020), Confronting the challenge of modeling cloud and precipitation microphysics. *J. Advances in Modeling Earth Systems*, **12**, e2019MS001689. <https://doi.org/10.1029/2019MS001689>.
- Straka, J. M. (2009), *Cloud and precipitation microphysics, Principle and parameterization*, Cambridge University Press.
- Sulia, K., and Harrington, J. Y. (2011), Ice aspect ratio influences on mixed-phase clouds: Impacts on phase partitioning in parcel models, *J. Geophys. Res.*, **116**, D21309, doi: 10.1029/2011JD016298, 2011

第 16 章

- Croft, B., *et al.* (2010), Influences of in-cloud aerosol scavenging parametrizations on aerosol concentrations and wet deposition in ECHAM-HAM, *Atmos. Chem. Phys.*, **10**, 1511–1543.
- Kaneyasu, N., *et al.* (2012), Sulfate aerosol as a potential transport medium of radiocesium from the Fukushima nuclear accident, *Environ. Sci. Technol.*, **46**, 5720–5726, dx.doi.org/10.1021/es204667h.
- Kerkweg, A., *et al.* (2006), Technical Note: An implementation of the dry removal processes DRY DEPosition and SEDimentation in the Modular Earth Submodel System (MESSy), *Atmos. Chem. Phys.*, **6**, 4617–4632.
- Morino, Y. (2013), Episode analysis of deposition of radiocesium from the Fukushima daiich nuclear power plant accident, *Environ. Sci. Technol.*, **47**, 2314–2322, dx.doi.org/10.1021/es304620x.
- Matsui, H., and Liu, M. (2021), Importance of supersaturation in Arctic black carbon simulations, *Journal of Climate*, **34**, 7843–7856, doi: 10.1175/JCLI-D-20-0994.1.
- Matsui, H., and Moteki, N. (2020), High sensitivity of Arctic black carbon radiative effects to subgrid vertical velocity in aerosol activation, *Geophys. Res. Lett.*, **47**, e2020GL088978, doi: 10.1029/2020GL088978.
- Ohata, S., *et al.* (2016), A key process controlling the wet removal of aerosols: new observational evidence, *Scientific Reports*, **6**, 34113; doi: 10.1038/srep34113.
- Wang, H. (2013), Sensitivity of remote aerosol distributions to representation of cloud-aerosol interactions in a global climate model, *Geosci. Model Dev.*, **6**, 765–782, 2013 www.geosci-model-dev.net/6/765/2013. doi: 10.5194/gmd-6-765-2013.
- Yang, Q., *et al.* (2015), Aerosol transport and wet scavenging in deep convective clouds: A case study and model evaluation using a multiple passive tracer analysis approach, *J. Geophys. Res. Atmos.*, **120**, 8448–8468, doi: 10.1002/2015JD023647.
- Yu, P., *et al.* (2019), Efficient in-cloud removal of aerosols by deep convection, *Geophys. Res. Lett.*, **46**, 1061–1069. <https://doi.org/10.1029/2018GL080544>.

2024年5月 発行

付録

雲の物理とエアロゾル

物理と化学の基礎から学ぶ

著者 近藤 豊・小池 真

制作協力 東京大学出版会
国立極地研究所情報図書室