

# 大氣中に浮遊する極微小粒子\*

三 崎 方 郎\*\*

## 1. プロローグ

通常的气象観測技術でも、また人間の五感にもとらえられないが、確かに大氣中に実在している現象の一つに大量の浮遊極微小粒子がある。それは雲物理で凝結核としてよく知られている微小粒子より更に小さいので、非常に大量にあるにもかかわらず視程障害すら起していない。しかし明らかに汚染質の一種であって、汚染源から広く大氣中に瀰漫(びまん)しているものである。一括してサブミクロン・エアロゾルと呼んでいる。

ここで観測の一例を挙げよう。1966年10月に南極観測船“ふじ”が東京湾を出て、三陸沖を北上し、津軽海峡を通過して小樽に入港するまで、船上で記録された大氣の電気伝導率である。その変化を第1図(a)の実線で示してある。(b)は船から陸岸までの最短距離で、両者を比較してみると、陸から船が離れる程、電気伝導率が高くなることが見られよう。

この関係を、 $\lambda$ :電気伝導率、 $D$ :距離(km)として

$$\lambda = 1.35(1 - e^{\alpha D}) \times 10^{-14} \text{ mho/m}$$

$$\alpha = 0.06/\text{km}$$

として表わすと、第1図の(a)の破線となり、実線とほぼ同じ経過を辿っていることがわかる。つまり、海上の大氣電気伝導率は、陸岸からの距離でほぼ決まるということを示しているわけである。

さて、水は不純物を含むと電気伝導率が高くなるが、空気の場合は逆であって、汚れている程電気伝導率が低くなるという事実がある。それは空気に電気伝導性を与えている小イオンが、エアロゾル粒子に喰われて少なくなるからである。そしてみると、第1図は、海上の空気が陸岸に近い程汚れているという状態を示していることになる。なおこの観測中は快晴であって、視程障害が全くなかったことをつけ加えておく(三崎, 竹内, 1970)

## 2. サブミクロン・エアロゾル

エアロゾル粒子の粒径分布に関してはよく知られた

Junge (1952) の図がある(第2図)。それによると、0.1ミクロンより大きな粒子はいわゆる逆4乗則の領域にあって、大きな粒子程急速にその数が少くなっている。大ざっぱにいうと、1ミクロンより小さな粒子は数万ヶ/cc あるが、1ミクロンより大きな粒子は数ヶ/cc しか存在しない。したがって電気伝導率を低下させる役割りは、1ミクロンより小さな粒子、つまりサブミクロン・エアロゾルである。ところで Junge の図の0.1ミクロン以下の部分は、測定技術がまだ現在のように進歩していない時代の資料であるので、あまり信頼するわけにはゆかない。

さて、このように小さな粒子は顕微鏡でも見る事ができないので、粒径分布を知ろうというものなかなか困難な仕事である。測定可能な物理量で、しかも粒径との関係が知られているものを手掛りとしなければならない。そうした物理量としては、粒子の空気中における沈降速度、拡散係数、また電場をかけたときの移動速度、つまり電気的移動度などが挙げられる。

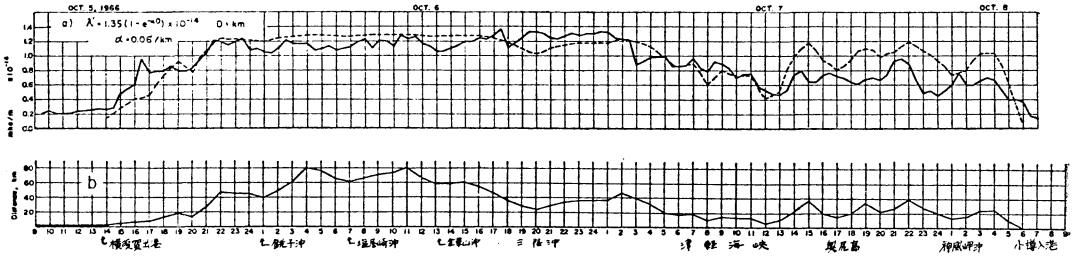
まず沈降速度であるが、これは Stokes-Cunningham の法則で粒径と関係づけられている。しかしながら、粒子が小さくなるとその速度はきわめて遅い。たとえば、0.01 $\mu$  の粒子だと1cmの距離を沈降するのに1日かかる。したがって重力にたよっていたのでは効果的な粒子の篩(ふる)い分けができない。そこで Goetz (1957, 1960) は重力の代りに遠心力を利用することにして、資料の空気を高速回転装置にかけて、粒子の篩(ふる)い分けを行なった。しかし装置の器械的強度からその回転数にはおのずから限度がある。Goetz の装置が有効なのは事実上0.05ミクロンが限度で、それより直径が小さい粒子の粒径分布は求まらない。

拡散係数の測定はかなり昔から行なわれている。エアロゾルが均質(粒径が揃っている)な場合にはこの方法も使えるが、不均質な場合の粒径分布を求めることはまづできない。

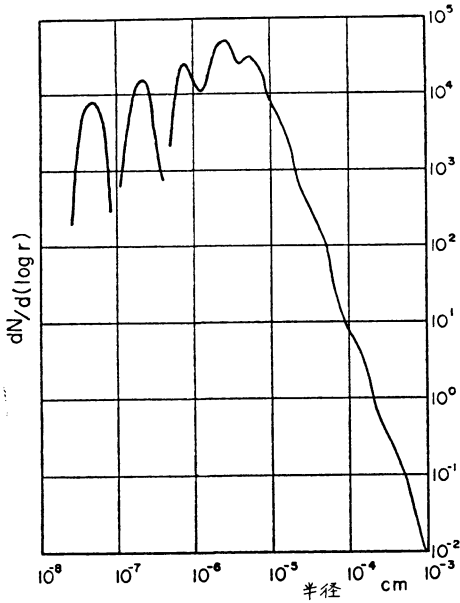
電気的移動度分布の測定法は次節で説明するが、この有利な点は、分解能の高いスペクトル分析が可能なこと

\* Submicron Particles in the Atmosphere

\*\* M. Misaki 気象研究所  
—1970年7月20日受理—



第1図 海上の大気電気伝導率変化と陸岸からの距離変化の関係  
 a) 実線：測定値，破線： $\lambda' = 1.35(1 - e^{-\alpha D}) \times 10^{-14} \text{ mho/m}$  の値  
 b) 船から陸岸までの最短距離

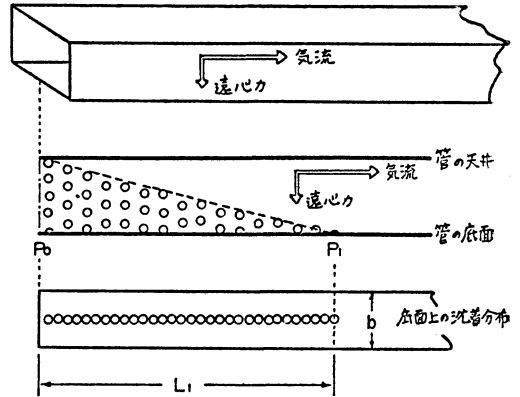


第2図 エーロゾル粒子の粒径分布 (Junge, 1952)

と、粒径の小さい領域ほどむしろ精度よく測られるという点にある。後者の点は Goetz の遠心分離法と対照的である。ただし、電気的移動度は帯電粒子（イオン）だけがもつ特性であるので、当然ながらこの測定の対象はイオンに限られる。無帯電粒子も含めたエーロゾル全体の粒径分布は、イオンの移動度分布から推定する以外にない。エーロゾル粒子の帯電機構は粒子と小イオンの衝突結合現象であり、その理論から上述の推定を可能にする方法が生ずる。

3. イオンの電気的移動度測定法

イオンの移動度分布を求めるために私共の考えた方法（三崎, 1950, 1966）は、後に Whipple (1960) によって解析方法が改良された。これを述べるには、まず

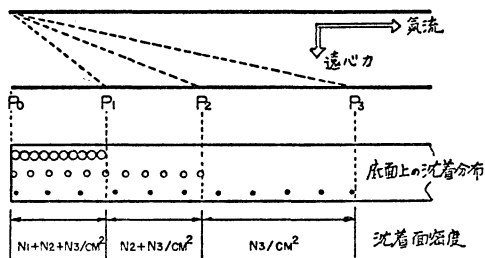


第3図 エーロゾル粒子の沈降速度スペクトラム測定法、その1、エーロゾル粒子が均質の場合

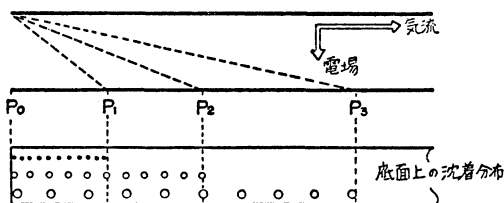
Goetz (1960) の遠心分離法の説明から入って行くのがわかりやすいと思う。

切口が矩形の細長い管の中を、乱流が起らぬように空気を静かに通したと考えよう。そして第3図に示すように、管の一側面（底面）に直角に重力または遠心力が一樣に働いているとする。まずエーロゾルは均質であって、その粒子は半径が  $r_1$  であったとする。これが気流によって管の中に入ってくると、遠心力によって次第に底面に近づき、遂には底面に沈着する。適当な時間空気を流しつづけた後底面をはがして顕微鏡で調べてみれば、入口の点  $P_0$  からある距離の点  $P_1$  まで、エーロゾル粒子が一樣に沈着しており、 $P_1$  より遠い場所には1箇所も見当たらないだろう。何故なら管の天井から入った粒子がやっと  $P_1$  まで到達しているのだからである。

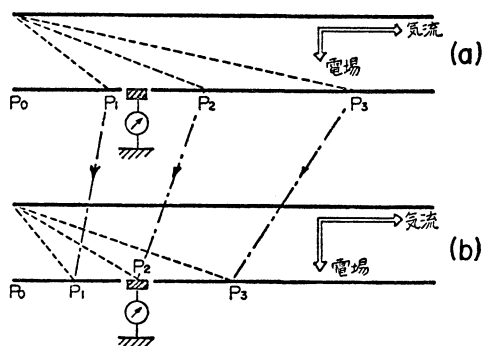
次に、 $r_1, r_2, r_3$  という半径をもった3種類のエーロゾル粒子が混合している場合を考えよう。 $r_1 > r_2 > r_3$  とすると第4図のようになる。すなわち、 $r_1$  粒子が  $P_0P_1$  の上に分布して沈着するのは前と同じであるが、粒子は



第4図 エーロゾル粒子の沈降速度スペクトラム測定法、その2、エーロゾル粒子が不均質の場合



第5図 エーロゾル粒子の電氣的移動度スペクトラム測定法(1)



第6図 エーロゾル粒子の電氣的移動度スペクトラム測定法(2)

もっと小さいために沈降速度が遅い。したがって、 $P_1$ よりもっと遠い点  $P_2$  まで到達する。 $r_3$  粒子はさらに遠い点  $P_3$  まで到達する。したがって、 $\overline{P_0P_1}$  上には、 $r_1, r_2, r_3$  3種の粒子が入りまじって沈着しており、 $\overline{P_1P_2}$  上には、 $r_2, r_3$  粒子が、 $\overline{P_2P_3}$  上には  $r_3$  粒子だけが沈着していることになる。ただし、顕微鏡でも、粒子の箇数は数えることができるが、半径の識別まではできない。

入口から  $P_1, P_2, P_3$  までの距離は、それぞれ半径  $r_1, r_2, r_3$  に対応している。このことは逆にいえば、粒子

が入口から管の中に侵入しうる最遠点までの距離を測れば、粒子の半径を知り得るといことになる。 $r_3$  粒子に対する最遠点  $P_3$  はすぐわかるが、 $r_1, r_2$  粒子に対する最遠点  $P_1, P_2$  はどうして知ることができようか。実はこれも簡単である。 $r_1, r_2, r_3$  粒子は  $\overline{P_0P_1}$  間に、 $\overline{P_0P_2}$  間に、 $\overline{P_0P_3}$  間に、それぞれ様の面密度で沈着している。それを  $N_1/cm^2, N_2/cm^2, N_3/cm^2$  としよう。そうすると、 $\overline{P_0P_1}$  間には  $(N_1+N_2+N_3)/cm^2$ 、 $\overline{P_1P_2}$  間には、 $(N_2+N_3)/cm^2$ 、 $\overline{P_2P_3}$  間には  $N_3/cm^2$  の面密度での沈着がある筈である。それで、 $P_1, P_2$  は沈着面密度が急減する場所として見出される(第4図参照)。

$N_1, N_2, N_3$  は各区間における沈着面密度の階差をとってゆけば求まる。ところでそれ等は粒子の空気中での濃度、管を通る空気の流量  $\phi$ 、捕集時間  $T$  に比例し、沈着面積に反比例するから、たとえば  $r_1$  粒子の空気中における濃度  $n_1$  は

$$n_1 = N_1 \frac{L_1 b}{\phi T}$$

として求まる。ここで  $L_1$  は  $\overline{P_0P_1}$  の長さ、 $b$  は底面の巾である。

以上はエーロゾルが線スペクトル分布をしていた場合の話であるが、大気中のエーロゾルの粒径分布は連続である。しかしその場合も考え方は同じであって、階差が微分という操作におきかわるだけである。容易に想像されよう。

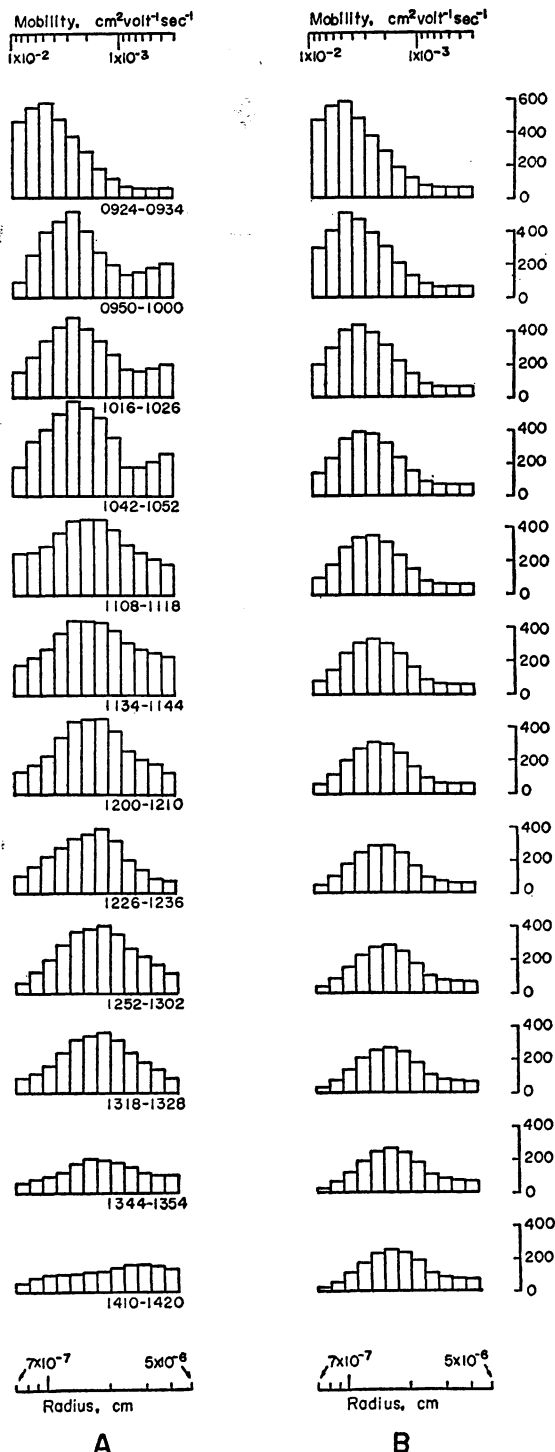
さて、いよいよ本論である帯電粒子の電氣的移動度分布の測定法に入る。電氣的移動度とは、単位の大さの電場をかけたとき粒子がもつ速度であって、空気抗抵が働いているから大きな粒子ほど移動度は小さい。粒子の半径と移動度との関係は次式で表わされる。

$$k = pe \left[ \left(1 - \frac{\rho_a}{\rho}\right) \left(1 + \beta \frac{l}{r}\right) / 6\pi\eta r \right]$$

ここで、 $k$ : 移動度、 $r$ : 半径、 $e$ : 素電荷量、 $\rho_a$ : 空気の密度、 $\rho$ : 粒子の密度、 $\beta$ : Cunningham の係数、 $l$ : 空気分子の平均自由行程、 $\eta$ : 空気の粘性係数である。 $p$  は粒子がもっている素電荷の数であって、半径が  $3 \times 10^{-6}cm$  以上になると  $p$  が2以上である粒子も現われてくる。この辺は議論が複雑になり過ぎるので、ここではすべて  $p=1$  としておく。

測定法は本質的にはさきに述べた遠心分離法と類似している。遠心力の代りに電場をかけるという点がちがうだけである。

ただし、この場合は第5図に示すように、小さな粒子



第7図 凝集による粒径分布変化の実測例  
A列; 実測, B列; 計算(三崎, 1964)

ほど電場による運動速度が大きいため、入口に近い距離内に沈着する。第4図と反対であることに留意されたい。したがって、大きな粒子ほど長い距離にわたって底面に沈着するので、沈着の面密度はそれだけ薄められている。その結果、大きな粒子に対するほど、測定精度が悪くなる。この点もさきほどの遠心分離法の場合とは反対になっている。

問題は底面に沈着した粒子の面密度の検出法である。さきの場合には左端(入口)から右方に顕微鏡をずらせて行けばよかったが、今度の場合は更に小さな粒子領域までにわたるので、顕微鏡では見えない。そのかわり、第6図に示すように、底面の一部を絶縁して電流計につなげば、単位時間に沈着してくる粒子数は電流として検出される。しかし、そのような検出部分を無数に底面に配置しておくことは不可能だし、検出部分を1箇所として、それを左から右へずらせて行くことも、器械構造上実際的でない。

一番簡単な方法は、検出部は一つとし、それを適当な位置に固定しておいて、そこへ所望の沈着箇所を呼び込むことである。たとえば、第6図の(a)では、 $P_2$ 点は検出部から外れているが、電場を強くすることによって、第6図(b)のように沈着分布を入口の方へ短縮し、 $P_2$ 点を検出部にのせることができる。

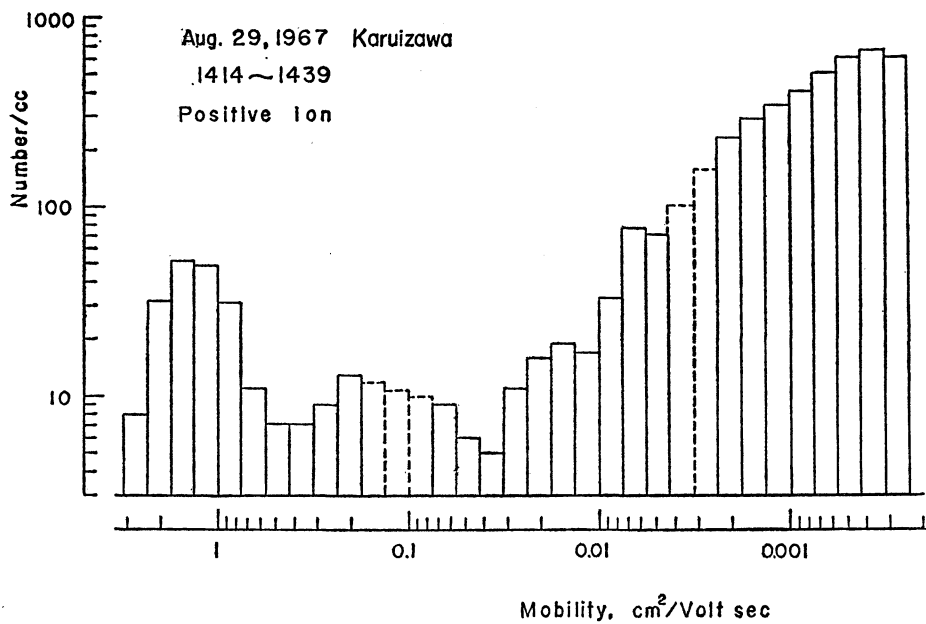
つまり、スペクトラム測定の実際操作として、Goetzの遠心分離法の時には、顕微鏡で沈着底面を左から右へ走査したが、われわれの場合には電極にかけた電圧を零から順次高めてゆけばよい。これは顕微鏡を動かすかわりに、資料を動かして顕微鏡下にもってくることに相当する。検出部の長さは理想的には無限に短いとよいのだが、実際はそうはゆかず有限の長さをもつ、この長さがスペクトラム測定法の分解能を決定する。

以上の厳密な数学的表示は、三崎(1966)を参照されたい。

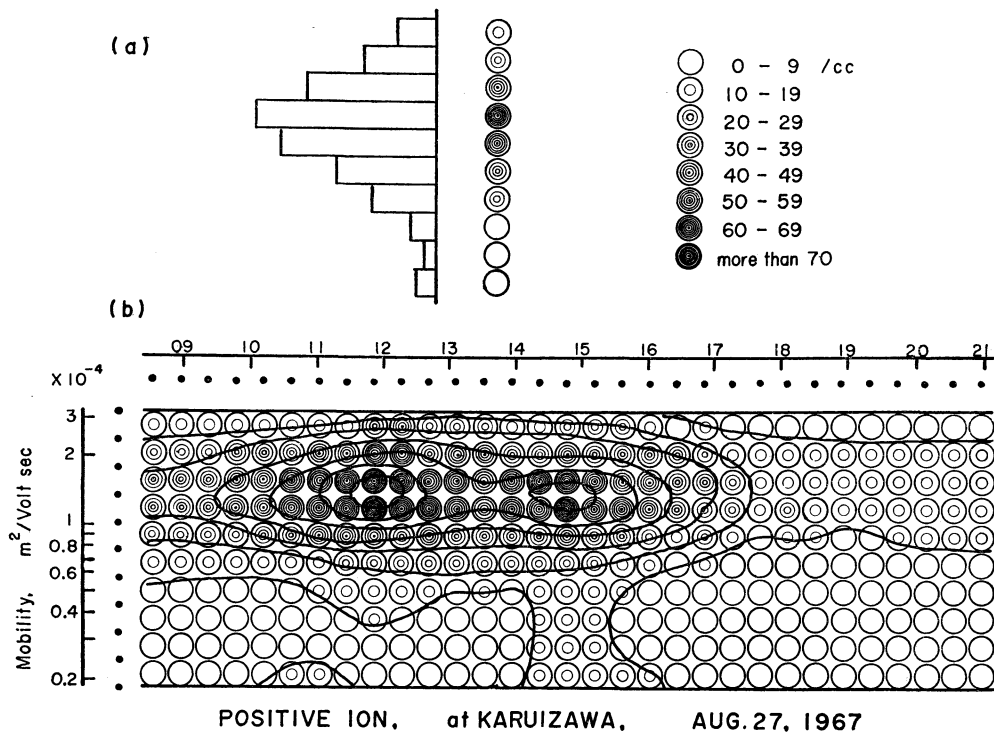
測定結果のスペクトラムは、横軸、電気的移動度を分解能の巾で細く区切ったヒストグラム表示となる。なおこの横軸の電気的移動度を、前出の半径との関係式を用いて、半径に目盛り直せば粒径分布となる。

第7図に、26分毎に測定したスペクトラムの時間変動の一例を示す。左側の列(A)は実測結果である。これに対し、粒子の凝集作用ではスペクトラムはどのように変化するかを計算で求めたものが右側の列(B)である。左右ほぼ同じ経過を辿っていることが見られよう。

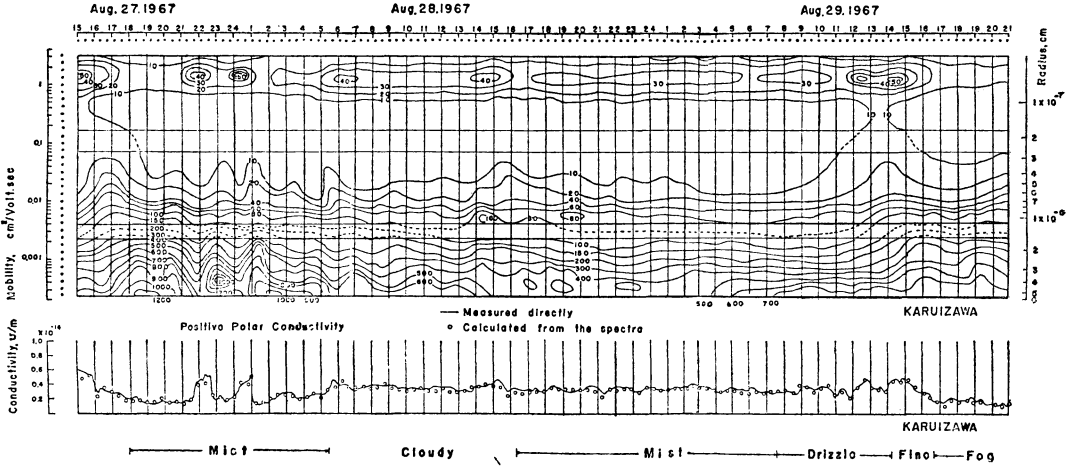
このように、電気的移動度分布の測定は、高い分解能



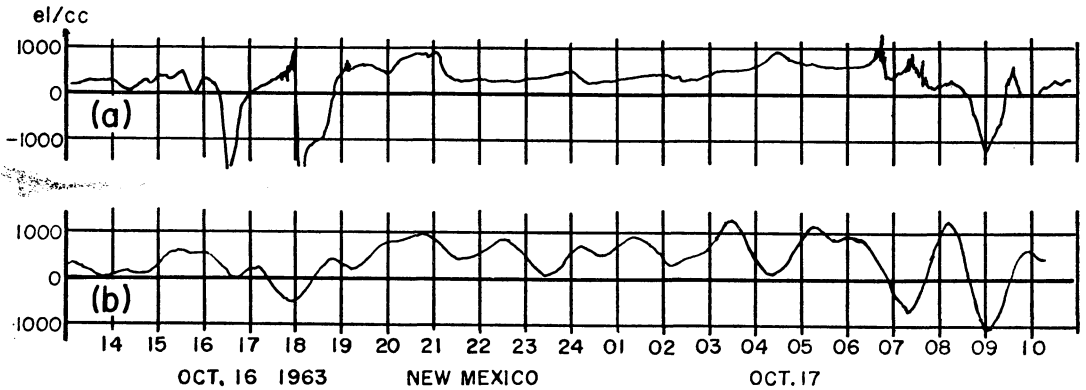
第8図 全領域移動度スペクトラムの1例



第9図 ダイナミック・スペクトラムの作り方



第10図 ダイナミック・スペクトラムの1例



第11図 空間電荷記録の比較 (a) 直接測定, (b) ダイナミック・スペクトラムから算出したもの

で、比較的短時間に測定ができるので、エアロゾル粒径分布の時々刻々の変動を追跡できる強味がある。

さて、サブミクロン粒子の粒径は  $10^{-4}\text{cm} \sim 10^{-8}\text{cm}$  まで（1ミクロン以下分子のオーダーまで）にわたっているので、全領域を通して走査するには到底1組の器械ではできない。第8図は3組の器械にそれぞれの領域を分担させ、同時に動かして得られたスペクトラムの1例である。左端の山はいわゆる小イオン群をあらわしている。器械はすべて自動的に操作され、記録はアナログと同時にデジタルプリントされ、電子計算機で最終結果が作表される。

4. ダイナミック・スペクトラム

ところで、第8図のような分布図の時間変動を、第7図のような形式で表示すると、いたづらに紙面を要して

概観が掴みがたい。そこで以下のような便宜的な表現をとることとする。

第9図(a)では、ヒストグラムの各柱の高さを色別の小円の1列で表わしてある。一定時間間隔で相次いで求められるスペクトラムを同様に右隣りに並べて行くと、第9図(b)のような色模様ができるから、そこで色が変わる境界に沿って曲線(等高線)を引けば、移動度を縦軸に、時刻を横軸に目盛った“移動度スペクトラムの時間変化状態”を示す図が得られる。これをダイナミック・スペクトラムと呼ぶことにする。以上のなりたちから、この図の中の等高線にそえられた値の意味も、ことさら説明を加えるまでもなく理解していただこう。また、この図を形づくっている小円の直径が、スペクトラムの移動度に関する分解能を表わすと同時に、時間に

対する分解能をも表わしていることも理解されよう。以後の図ではこの小円群を画かぬかわりに、小円の直径で縦軸、横軸をきざんだ点列をそえておく。

第10図は2日間にわたるダイナミック・スペクトラムの1例である。図中上辺の山脈は小イオン群の時間変動であり、すぐ下につながる巾広い谷間を経て、大イオン群が複雑な変化をしている有様が見える。

5. スペクトラム測定の精度

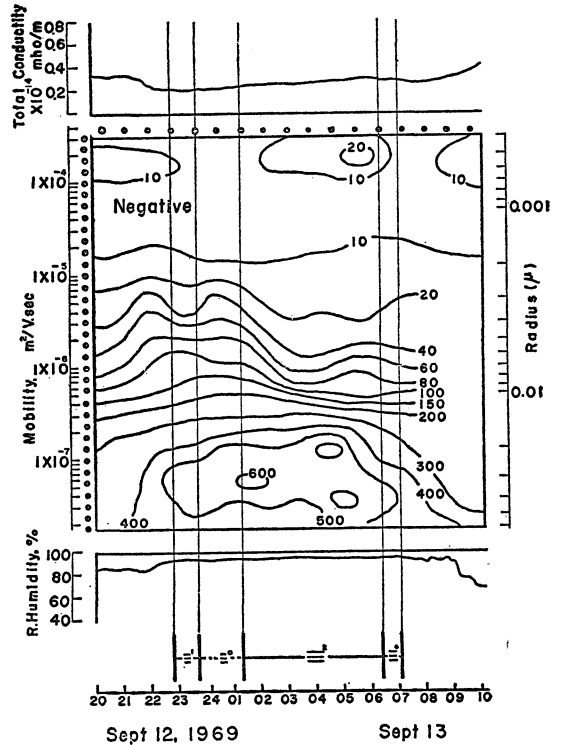
今まで述べてきたスペクトラム測定の精度を評価することは極めて難しい。系統的誤差の介入が最もおそろしい。ところが系統的誤差というものとはどんな実験でもそうであるが、果して存在しているかどうかの判定すら困難なものである。特にこのスペクトラム測定の実験では、検出される電流が $10^{-14} \sim 10^{-15}$  Amp. のオーダーであるので、話にもならぬような些細なことが大きな障害となる。

スペクトラム測定の結果から計算で求められる諸量を、全く独立に行なったその直接測定の結果と比較すれば、間接的ながらスペクトラム測定の精度をある程度評価できよう。

空気中の正イオンと負イオンの濃度差が空間電荷密度である。したがって、スペクトラムを表わすヒストグラムの各柱の高さの総和を正イオン、負イオンそれぞれについて求め、その差をとればそれが空間電荷密度である。一方、これは全く別な方法で直接に測定することができる。第11図はこの比較であり、まず大きな誤りはないと判断される。大イオン濃度は小イオン濃度と比べて2桁も高いから、この比較検定はスペクトラムの特に粒径の大きい方(大イオン)の測定精度の目安となる。

空気の電気伝導率は1ヶ1ヶの粒子の電気的移動度の総和に素電荷量を乗じたものである。したがってスペクトラムの各柱の高さに、その柱に対応する移動度を乗じて総和をとり、それに素電荷量を掛ければよい。一方、これも全く別な方法で直接に測定できる。第10図の最下辺にその比較を示す。実線は直接測定の記録であり、白丸は上掲のスペクトラムから計算して求めたものである。両者は完全に一致していることが見られよう。

大イオンの移動度は、小イオンのそれに比べて遙かに小さいから、伝導率には小イオンが殆んどの寄与をしている。したがって、上述の測定結果の比較は、特にスペクトラムの粒径の小さい方(小イオン)の測定の精度が保証されていることの間接的な証明になる。そして定性的には、3. で述べたように、粒径の大きくなる程、測定



第12図 霧発生時前後のダイナミック・スペクトラム

精度は悪くなる。

6. 霧発生時前後のエロゾル変動

一般の気象条件が一見殆んど同じであっても、霧が発生する場合と、そうでない場合とがある。このような時には霧が発生するか否かの決定権を持つものは、エロゾル分布に現われる何らかの変動ではあるまいか。われわれは理論的根拠をもっていないが、この推量が正しいかどうか、実際に観測を試みることにした。

大気の電気伝導率が霧発生に先行して減少をはじめるといことは、かなり以前から欧米の二三の研究者が着目したことで、この現象については Dolezalek (1963) の詳しい総合報告もある。ところで、電気伝導率とエロゾル粒径分布とが密接な関係にあることは、再三述べたところである。

第12図は、1969年に軽井沢で行なった観測結果の一部である。同図が示す通り、霧発生約2時間ほど前から、サブミクロン領域のエロゾルが増加をはじめ、霧発生の時点では0.01ミクロン~0.06ミクロンの範囲で2万ヶ/cc 前後にまで達している。(2.のおわりに述べた

ように、小イオンとエアロゾル粒子との間の結合理論を応用すると、第12図をもとにして、無帯電粒子まで含めたエアロゾル粒子全体の概数を求めることができる)そしてこの異常増加の終了とはほぼ同じ時刻に霧も消失している。

われわれの観測に関する限り、いずれの例でも上述の現象は現われている。まだ観測例も数多くはなく、この研究も進行中であるので、今の時点で断定的に述べるのは尚早かも知れぬが、「霧が大氣中にある時には、単に霧粒子が浮んでいるだけでなく、それより遙かに小さいエアロゾルが多数、その背影となって存在している。そしてその背影は霧発生に先行して形成されはじめる」ということは確かと思われる。

### 7. 将来の研究目標

エアロゾル粒子の挙動を支配する物理現象として、沈降、拡散、凝集、水蒸気の凝結、電荷の授受等は重要な因子であるが、そのいずれもが粒径に関係している。したがって、エアロゾルが関係する物理現象の研究には、その粒径分布を知ることが第一歩である。この意味でわれわれの仕事もまさにエアロゾル研究の基礎的な一部分にすぎない。

最後に、われわれエアロゾル研究にたずさわっているグループの当面している問題、次になすべき問題、そしてまた手をつけていない問題に言及したい。

第1に、サブミクロン・エアロゾルの生成過程の問題がある。これは勿論、自然現象として生成される過程と、人間活動の結果生成される過程とに大別されよう。またその複合として、たとえば、光化学反応により生成される大氣汚染粒子の問題もある。

第2に、サブミクロン粒子の凝集・沈降作用以外の強制的除去作用の評価が必要である。たとえば降水によるWash-outの効率評価である。この問題は、サブミクロン粒子が、なかなか除去され難い特性を持っていることを考え合せると、全世界的ないわゆる Back Ground Pollutionの問題と大きな関係がある。

第3に、イオン化学の導入がある。現在のところ、対流圏小イオンについては、Sikсна, Mohnen等の研究がその口火を切っている。この筋の研究は高層大氣の組成の問題につながる。

第4はわれわれが終局的に目指しているところである

が、それはエアロゾル問題と気象現象との結びつきである。これには大氣の熱収支等がある。

通常の気象観測技術では捕捉されていないが、たとえば冒頭に述べた場合には、陸地から海上に数十軒、あるいは数百軒も拡がって行ったサブミクロン・エアロゾルの“実在”がある。話は海上に限らず、一般の大氣中でもこうした“実在”が果して気象現象に“積極的な影響”を与えていないだろうか。少なくともわれわれはここに述べた筋の研究なり手法なりが、将来気象学にとって第三の眼となることを信じているのである。

### 文 献

- Dolezalek, H. (1963): The atmospheric electric fog effect, *Reviews of Geophysics*, Vol. 1, No. 2.
- Goetz, A. (1957): An instrument for the quantitative separation of air-borne particular matter down to 0.2 micron, *Geophys. Pur. Appl.*, 36, 49-69.
- Goetz, A. and O. Preining (1969): The aerosol spectrometer and its application to nuclear condensation, *Proceedings of the Cloud Physics Conference*, Woods Hole, Mass. *Geophysical Monograph No. 5 of American Geophysical Union*, 164-183.
- Junge, C.E. (1952): Gestzmässigkeiten in der Grössenverteilung atmosphärischer Aerosole über dem Kontinent, *Berichte des Deutschen Wetterdiens tes in der US-Zone*, Nr. 35, 261-277.
- Misaki, M. (1950): A method of measuring the ion spectrum, *Pap. Met. Geophys.*, Tokyo, 1, 313-318.
- Misaki, M. (1961): Studies on the atmospheric ion spectrum, I and II, *Pap., Met. Geophys.*, Tokyo, 12, 247-260, 261-276.
- Misaki, M. (1964): Mobility spectrums of large ions in the New Mexico Semidesert, *Journ. Geophys Res.* 69, 3309-3318
- 三崎方郎 (1966) サブミクロン・エアロゾル, 気象研究ノート, 16, 395-411.
- Misaki, M. and T. Takeuti (1970): The extension of air pollution from land over ocean as revealed in the variation of atmospheric electric conductivity, *Journ. Meteor. Soc. Japan*, 48, 263-269.
- Whipple, E.C. Jr. (1960): An improved technique obtaining atmospheric ion mobility distribution, *Jurn. Geophys. Res.*, 65, 3679-3684.