

平成21年 6月18日現在

研究種目：若手研究(A)  
 研究期間：2006～2008  
 課題番号：18684031  
 研究課題名（和文） 熱拡散チェンバ氷晶計を用いた有機物粒子の雲過程における氷晶形成能の評価  
 研究課題名（英文） Ice nucleation activity of organic particles in cloud processes: Analysis using a thermal diffusion chamber  
 研究代表者  
 持田 陸宏 (MOCHIDA MICHIMIRO)  
 名古屋大学・高等研究院・特任准教授  
 研究者番号：10333642

研究成果の概要：大気エアロゾル粒子やそのモデル粒子の氷晶形成能力を測定する目的で、熱拡散チェンバの立ち上げを進めた。また、熱流体解析ソフトウェアを用いて、エアロゾル導入部の性能の検討や、先行研究で報告のある空気の流れ・水蒸気の飽和度などの計算を行った。さらに、実際の装置を用いて温度制御や氷膜の生成等について検討を進めた。本研究は期間途中で終了となったが、熱拡散チェンバを用いる実験は、関連した研究において継続される予定である。

交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2006年度	12,100,000	3,630,000	15,730,000
2007年度	7,700,000	2,310,000	10,010,000
2008年度	2,000,000	600,000	2,600,000
総計	21,800,000	6,540,000	28,340,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：地球惑星科学・地球宇宙科学

キーワード：有機エアロゾル、氷晶核、雲過程、降水過程、気候変動

## 1. 研究開始当初の背景

大気中における氷晶の形成は、雲の発達や降水において、重要な役割を担っている過程である。この氷晶は、大気中に浮遊する微粒子（エアロゾル粒子）を核とした水の凍結によって形成し得ることが知られている。純粋な水滴の場合には、氷の均一凍結は約 235 K で起こり、水溶性の無機塩などを含む液滴の場合には、その凍結は水の活量という平衡論的な因子で記述されることが指摘されている [Koop et al., 2000]。また、大気粒子の場合には、固体成分の界面における氷結晶の生成によって（不均一凍結）、比較的高い温

度条件での凍結が起こりうると考えられている。

このような大気粒子の氷晶形成能力は、粒子を構成する物質の組成により影響を受けると考えられる。中でも、エアロゾル粒子に含まれる有機物は、その組成や特性がきわめて多様であり、粒子上における凍結過程への影響の推定は容易ではない。例えば、非水溶性の有機成分が存在する場合、一部の無機化合物と同様に氷晶の形成を促進する可能性があるのか、これまで十分な知見が得られていない。また、鉱物粒子などの固体粒子上で不均一凍結が起こることが示唆されている。

一方で[Demott et al., 2003 およびその引用文献]、これらの固体粒子の表面を有機物が覆っている場合に、不均一凍結の過程がどのように影響を受けるのか、明確な理解は得られていない。

大気中に含まれる有機物の存在と、大気粒子を核とする氷晶形成の関係を定量的に理解するためには、凍結の特性に関する実験データに基づいて、理論的あるいは経験的な関係式を得ることが必要である。そこで本研究者は、有機物粒子の氷晶形成能力をほぼ実時間で測定する手法を用いて、その寄与を解明する研究の重要性を認識し、本課題の取り組みを開始した。

## 2. 研究の目的

本研究課題では、大気エアロゾル粒子を含む、空気中の微粒子の氷晶形成能力をほぼ実時間で測定する手段を得るために、連続流型熱拡散チェンバと光学式粒子カウンタを組み合わせた氷晶の測定装置を立ち上げることを第一の目的とした。

さらに、立ち上げた装置を用いて、有機化合物を含む大気エアロゾル粒子や、そのモデル粒子の氷晶形成の特性を測定すること、そして、粒子の化学組成等との関係を明らかにすることで、有機物の氷晶形成に与える影響について考察することなどを、研究開始時における更なる目的とした。

## 3. 研究の方法

### (1) 熱拡散チェンバ

有機物を含む粒子を核とする氷晶形成の研究に使用する装置として、Rogers 型の熱拡散チェンバ[Rogers, 1998; Rogers et al., 2001; Salam et al., 2006]の準備を進めた。この Rogers 型チェンバを用いる方法では、大気粒子を、エアロゾルとして気相に分散させた状態を維持したままで、その氷晶形成能力を測定することが可能であり、先行研究における実績がある。

チェンバは、上部から順に、エアロゾル粒子の導入部、二重管、生成される氷晶の導出部で構成される。装置を構成する部品の準備は、北海道大学低温科学研究所技術部および名古屋大学全学技術センターの協力を得て進めた。形状について検討を行った(研究成果の項を参照)エアロゾル粒子の導入部分は、主にジュラルミンおよびナイロンにより作られている。

氷晶形成の実験では、熱拡散チェンバの二重管を一定の温度にまで冷却する必要がある。そのため、冷媒の外部循環が可能な低温バスサーキュレータを2台調達した。低温バスサーキュレータと熱拡散チェンバの間を循環させる冷媒には、フッ素系の液体を用いた。二重管の温度を測定するために、熱拡散

チェンバの内外に、8 個の熱電対 (K 型) および 4 個の測温抵抗体 (Pt100Ω) を配置した。

### (2) 熱流体解析

熱拡散チェンバの性能を評価するために、実際の装置を用いた検討に先立って、汎用熱流体解析ソフトウェア FLUENT Ver. 6.2 (Fluent Inc.: Lebanon, NH, 2005) を利用したモデル計算を行った。この計算に必要なメッシュの生成には GAMBIT (FLUENT Inc.) を用いた。そして、熱拡散チェンバに導入するエアロゾル粒子の流跡線や、水蒸気の飽和度・温度等の空間分布について計算を行った。これらの解析は、北海道大学の協力者と共同で行った。

### (3) 立ち上げた装置を用いた検討

2 台の低温バスサーキュレータを用いて、チェンバの内・外筒の温度を独立に制御した。また、チェンバを通過した粒子を検出するために、光学式粒子カウンタをチェンバの下流側に配置して動作させた。熱拡散チェンバに流す気体の典型的な流量よりも大流量 (28.3 L/min) で粒子の計数を行う必要があるため、粒子カウンタの排気の一部をカウンタの上流部に戻して空気を循環させる構成を検討した。

## 4. 研究成果

### (1) ノズル形状の検討

試料エアロゾル粒子を導入するためのノズルの性能について、FLUENT を用いた解析を行った。その結果、初期に設計した形状の導入ノズルの場合には、ノズル周辺の空気に流れに乱れが生じ、エアロゾル粒子の軌跡に影響を及ぼす可能性があることが示された。なお、導入ノズルを積極的に冷却しない場合には、外部配管等からの熱伝導により、ノズルの温度が室温近くになる可能性がある。一方、ノズル周囲の部品は二重管と接触しているため、室温よりも冷却されて二重管の設定温度に近づくと考えられる。本検討では、このような温度条件についても考慮して解析を行った。

空気に流れに乱れが生じにくい構造にするため、図1に示すようにノズルの形状を変更し、ノズルと外壁の距離を小さくして解析を行った。その結果、典型的な流量の条件において、エアロゾルを含む試料空気およびシース空気の流れの乱れを抑制できることが示された(図2)。この計算の結果にもとづき、形状を変更したエアロゾル導入ノズルを新たに準備して、熱拡散チェンバへの取り付けを行った。このノズルは、後述する実際のチェンバを用いた検討において使用されている。

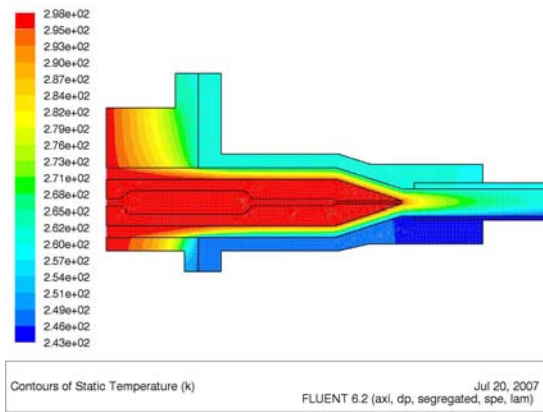
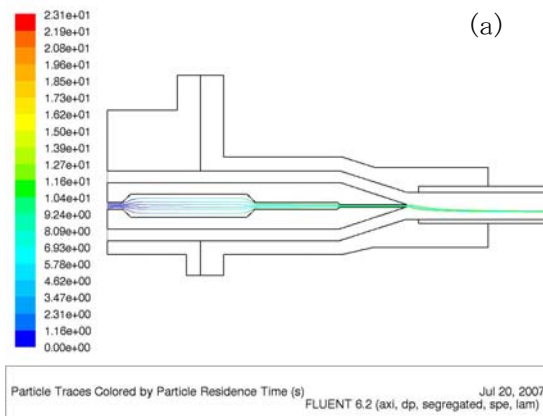
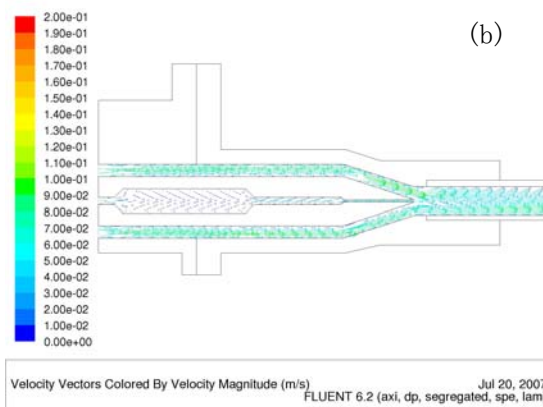


図1. 形状を変更した後の、エアロゾル導入部付近の温度分布を計算結果。図の左側から右側に向かって試料エアロゾルおよびシース空気が流れる構造になっている（実際の装置では、鉛直下向きに流れる）。



(a)



(b)

図2. エアロゾル導入部周辺における(a)エアロゾル粒子の軌跡および(b)空気の速度ベクトルの計算結果。図の左側から右側に向かって試料エアロゾルおよびシース空気が流れる。

## (2) 熱拡散チェンバ内の水蒸気量等の空間分布

先行研究では、平行平板を仮定した数値計算によって、氷で被覆された二重管の間を流れる空気の流れや、水蒸気の過飽和度の空間分布・時間発展のプロファイルが解析されている[Rogers, 1998]。本課題の装置の検討では、熱流体解析ソフトウェアを用いることにより、円筒の曲率や、本研究で形状を決めたノズルの影響を受けた流れの発達についても考慮して、空気の流れや温度、水分子のモル分率を算出した。例として、水のモル分率の空間分布を図3に示す。エアロゾル導入ノズルの影響を受けている二重管の上部では、水のモル分率の分布が導入部からの距離に応じて変化していることを確認することができる。

また、二重管内を流れる空気の流れから、氷および水に対する飽和水蒸気圧を計算した。そして、水のモル分率の計算値から、空気中の水蒸気量を飽和度として得た。実際の装置を用いる実験では、熱拡散チェンバの条件ごとに、粒子が経験する温度・飽和度を算出する必要がある。熱流体解析ソフトウェアを用いて行った検討は、実験の際に求められる計算手続きの準備としての位置付けにもある。

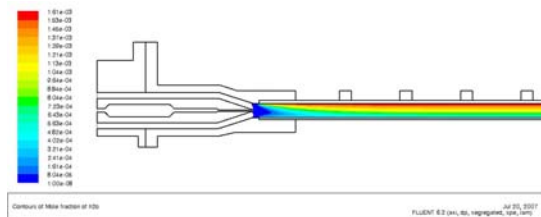


図3. エアロゾル導入ノズル近傍の二重管内における水のモル分率を計算した結果。図の左側から右側に向かって試料エアロゾルおよびシース空気が流れる。

このほかにも、粒子の熱泳動の寄与が小さい点について[Rogers, 1988]、確認のための検討を行った。

## (3) 製作した熱拡散チェンバを用いた検討

まず、立ち上げた装置を用いて、熱電対および測温抵抗体によるチェンバ内・外筒の温度測定を行い、装置の冷却性能を確認することができた。

また、あらかじめ冷却したチェンバの下部から水を導入して、内外筒の表面に氷の膜を生成させる検討を行った。氷の生成には成功したが、この氷の厚さを更に小さくすること

ができれば、氷の表面温度のより正確な制御に結び付くと考えられる。これには、水の供給速度を高めてチェンバ内の滞在時間をより短くするなどの方法が有効であると考えられ、今後も継続的な改良の試みが望まれる（この点については、本課題の研究終了後、現在までに改良を目指した試みが行われている）。

さらに、実験室内のエアロゾルを装置に導入して、チェンバ下部に取り付けた粒子カウンタにより、粒径別の個数濃度の測定を試みた。ただし、本課題の研究期間後に熱拡散チェンバの接続部においてリークの問題が発生したことなどを考慮すると、本課題の期間中に行われた流量制御、粒子計数の実験については、参考としての扱いにとどめる必要がある。

#### (4) 研究の進捗と今後の展望

本研究課題は、当初予定していた研究期間の途中で終了することになったこと、また、熱拡散チェンバの検討に時間を要したこと、有機物の役割を調べるための本格的な実験にまでは至らなかった。しかし、引き続き実施している研究プロジェクト等においても、本研究により立ち上げを進めた熱拡散チェンバを活用することで、エアロゾル粒子を核とする氷晶形成の研究を進めることを目指している。これらの関連した研究において、本課題において実施した検討が役立つと期待される。

大気エアロゾルの気候影響を理解する上で、その雲・降水過程への関わりは、現在でも重要な研究課題のひとつである。その中で、粒子が雲粒の核として作用する能力（雲凝結核活性）と化学組成の関係については、様々な研究の取り組みによって、近年、多くの成果が報告されている。一方で、エアロゾル粒子の氷晶形成の特性と、その化学組成の関係については、未解明のままに残されている部分が少なくない。大気中のエアロゾル粒子が雲粒となり最終的に降水とともに地表に除去される過程の全体像を把握するためには、この両方の理解が必要であり、今後の研究の発展が望まれる。本課題で取り上げた、氷晶形成に対する有機物の影響に関しては、近年いくつかの新たな報告がなされており[e.g., Zobrist et al., 2006]、氷晶形成に関する研究の中でも、今後の進展が期待される課題である。

#### 引用文献

- Demott, P. J. et al.: African dust aerosols as atmospheric ice nuclei, *Geophys. Res. Lett.*, 30(14), 1732, doi:10.1029/2003GL017410, 2003.
- Koop, T. et al.: Water activity as the

determinant for homogeneous ice nucleation in aqueous solutions, *Nature* 406, 611-614, 2000.

Rogers, D. C.: Development of a continuous flow thermal gradient diffusion chamber for ice nucleation studies, *Atmos. Res.*, 22, 149-181, 1988.

Rogers, D. C. et al.: A continuous-flow diffusion chamber for airborne measurements of ice nuclei, *J. Atmos. Oceanic Technol.*, 18, 725-741, 2001.

Salam et al.: Ice nucleation studies of mineral dust particles with a new continuous flow diffusion chamber, *Aerosol. Sci. Technol.*, 40, 134-143, 2006.

Zobrist, B. et al.: Oxalic acid as a heterogeneous ice nucleus in the upper troposphere and its indirect aerosol effect, *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 3115-3129, 2006.

#### 5. 主な発表論文等

（研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線）

〔学会発表〕（計1件）

① 持田陸宏、他2名：大気エアロゾル粒子の氷晶核能力の解析を目的とした連続流型チェンバの製作、第24回エアロゾル科学・技術研究討論会、平成19年8月10日、埼玉県和光市

#### 6. 研究組織

##### (1) 研究代表者

持田 陸宏 (MOCHIDA MICHIMIRO)  
名古屋大学・高等研究院・特任准教授  
研究者番号：10333642

##### (2) 研究分担者

なし

##### (3) 連携研究者

なし

#### 主な研究協力

廣川 淳 (HIROKAWA JUN)  
北海道大学・大学院地球環境科学研究所・准教授  
中坪 俊一 (NAKATSUBO SHUNICHI)  
北海道大学・低温科学研究所・技術専門職員  
重井 明男 (SHIGEI AKIO)  
名古屋大学・高等研究院・技術補佐員  
ほか、北海道大学低温科学研究所技術部お

よび名古屋大学全学技術センターの関係者