



Title	日本海沿岸海上における凝結核の測定
Author(s)	遠藤, 辰雄; ENDOH, Tatsuo; 孫野, 長治 他
Citation	北海道大学地球物理学研究報告, 40, 99-111
Issue Date	1981-11-30
DOI	https://doi.org/10.14943/gbhu.40.99
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/14390
Type	departmental bulletin paper
File Information	40_p99-111.pdf



日本海沿岸海上における凝結核の測定

遠藤 辰雄・孫野 長治*

北海道大学理学部地球物理学教室

(昭和 56 年 8 月 10 日受理)

Measurement of Condensation Nuclei along the Japan Sea Coast of Japan Island

By Tatsuo ENDOH and Choji MAGONO*

Department of Geophysics, Faculty of Science,
Hokkaido University

(Received August 10, 1981)

Condensation nuclei were measured along the Japan Sea Coast of Japan island on a car ferry. Concentrations of condensation nuclei were observed to decrease as the ferry departed from the coast in a relaxation distance of 160 km. In the case of sea breeze, back ground values could be decided at such a short distance from the coast and were about 5.3×10^2 particles per centimeter cubed.

It was observed that condensation nuclei decreased remarkably in a sea fog. This decreasing may be considered to be caused by the effect of wet removal by fog particles from the changes in their supersaturation spectrum.

The gradient of supersaturation spectrum of condensation nuclei was found to be gradually decreasing as the measuring points increased in distance from the coast. These tendencies may be explained as follows. The size of the particles becomes larger because of coagulation and the properties of the particles should be become more hygroscopic during their long migration over the sea surface.

Condensation nuclei measured in winter monsoon were found to have an extremely low concentration and specially not to contain components of the smallest size range which were considered to be generated from anthropogenic sources. It may be considered that the particles were coagulated during the long migration and removed by catastrophically turbulent sea surface under strong wind.

* 北海道大学名誉教授

* Professor emeritus of Hokkaido University

I. はじめに

我が国では多くの場合、都市が海岸に近いが、そのような都市の大気中のエアロゾル濃度は、近くの海上からやってくる気塊のエアロゾル値の上に都市独自のものが重なっていると考えられる。特に降水による大気の自浄作用など低濃度値を議論するとき、沿岸海上のバックグラウンド濃度を基準値として凡そ知っている必要がある。

また海上での濃度のバックグラウンド値の経年変化は海域による特性はあるにしても一応、全地球的な大気汚染の進みを示すと考えることができる。これまで HOGAN (1968) によってほぼ全世界の海洋上にわたって凝結核の数濃度の分布を求めたものがあり、それは測定点は粗いが、広域にわたっていることが特徴である。我国の近海については、すでに遠藤・菊地 (1978) 及び遠藤・村上 (1981) によって太平洋側沿岸海上での凝結核の測定例が報告されている。日本海においても今後の変化を議論する上でも出来るだけ早くから測定をはじめ、機会あるたびにくりかえしておくべきであると考えられる。

ここでは、主に今後の比較のために測定結果を示すことを第1の目的とし、さらに部分的に解析と考察を加え得られた、いくつかの知見をあわせて報告する。

また測定器は異なるが、この最初の測定より23年前に大田 (1950) による測定があるので、それとも一応比較してみた。

II. 観 測

観測はカーフェリー上で行い、Fig.1に示す航路に沿って測定された。図では、その測定点の位置と時刻が示されている。a)は小樽から舞鶴までのコースで1971年6月19日から21日までの往路と6月29日から30日までの帰路を示す。b)は1975年10月27日から28日までの往路と10月31日から11月2日までの帰路を夫々示し、後者では小樽・新潟・敦賀の間のコースであった。

使用した測器は米国Gardner社製のCN型 small particle detector であり、これはENDOW and MAGONO(1971)によって既に札幌市全域にわたる移動観測に用いられたものである。本器はポータブルであるので風向に応じて、自船からの影響をさけるため、常に風上側の最先端へと船上で移動することができた。また予め数回連続して測り、それらの値が大きく変動して高い値を含むときは、近くに特定の発生源があるものとして、それをさけるなどの注意をはらった。

測定は1時間毎に行った。これは海上の距離にして約40km毎に相当する (Fig.1参照)。測定器の原理は、採集した空気(約90cc)に十分な加湿を行い飽和させ、後段の減圧室との弁を急激に開通させることによって資料空気を断熱膨張させるものである。その時発生する霧粒による光の減衰量から元の凝結核の数濃度を更正表から算出するものである。この減圧室の圧力を種々変えることにより膨張比を変えることができる。毎回の測定では膨張比を5段階に変えて計った。それは本器の減圧室の圧力ゲージを通常は水銀柱にして26インチの低圧にするところ、この他に

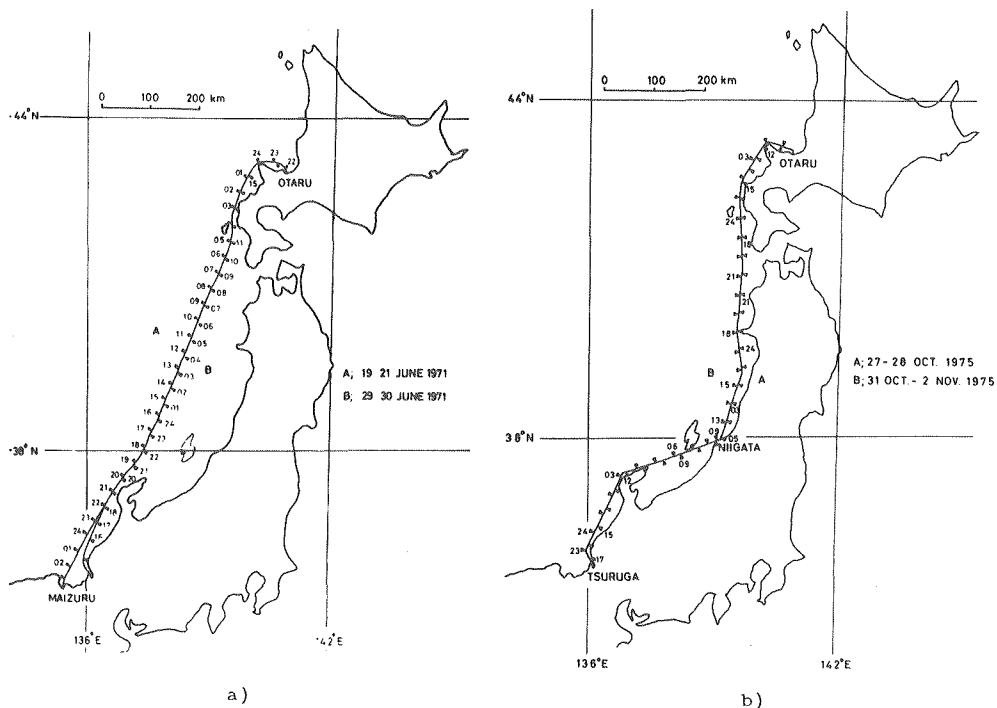


Fig. 1. Observation point and time, a) 19-21, 29-30 June 1971 b) 27-28 Oct., 31 Oct.-2 Nov. 1975.

2, 5, 10, 20 インチの値でも測定した。これらは気温 15°C では低い方から順に 1, 10, 50, 200, 525% の過飽和度に夫々相当していることになる。本器の更正是、この 26 インチの場合についてのみなされているので、他の膨張比の場合は絶対値の保障はない。しかし相対的な比較を行う上では問題はないと考えた。またこの条件付きの資料として残しておけば、後に必要な更正在可能である。

1977年11月29日にも、同じコースで測定を行った。そのとき用いた凝結核の粒径の分別器は、遠藤・村上 (1981) によってつくられたもので、この方法は RICH (1966) による原理にもとづき、diffusion battery と ion denuder からなるものである。分けられた凝結核の粒径範囲は $10^{-7} \sim 1.5 \times 10^{-6}\text{cm}$, $1.5 \times 10^{-6} \sim 4 \times 10^{-6}\text{cm}$, $4 \times 10^{-6}\text{cm} \sim 10^{-5}\text{cm}$ の三段階で、それらを夫々、small size, medium size, large size と呼ぶことにする。

III. 結 果

観測した日の天気は 1977 年 12 月のもは北西の季節風が強く測定を制限される程であったが、他の Fig. 1 に示される二例については日本海全体が高気圧下で好天であった。

Fig. 2 は Fig. 1 a) の航路に沿った測定結果である。縦軸は凝結核の数濃度を示し、横軸は測定時刻 (JST) を示すが、これはまた測定位置にも相当する。下部には、各観測地点における天気を日本式天気図記号にて示してある。1971 年 6 月 20 日の一部で海霧に会っているが、これを除く

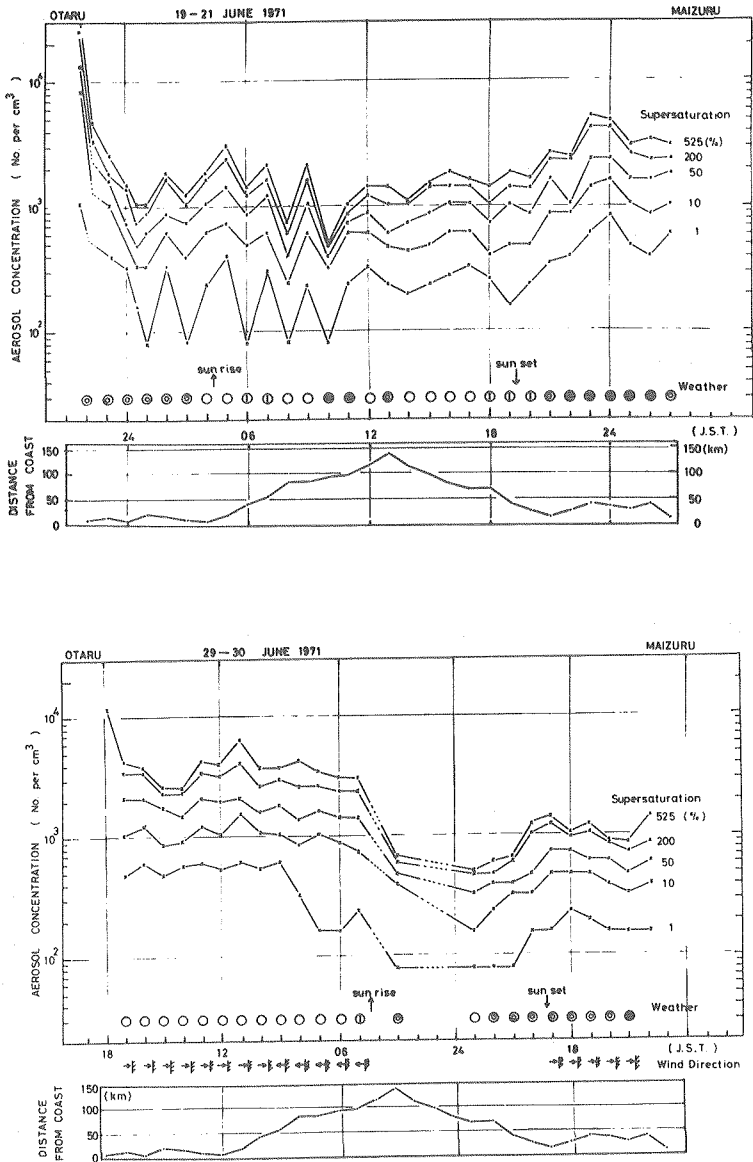


Fig. 2. Observed values of concentration of condensation nuclei in a series of five degrees of supersaturation (%), weather condition, wind direction and distance from coast along the course of Fig. 1 a) A (upper), B (lower).

と、ほとんど無風で晴又は曇である。また同6月30日の例では船の進行方向に交叉するとして海風か陸風の区別をつくような風がみとめられたので、その向きを矢印で示した。また両方の場合とも南端の測定点は梅雨の下に入り雨であった。

5本の曲線は1%~525%の5段階の過飽和度に対する数濃度である。図の下端の曲線はMISAKI et al. (1970)と同様にして、各測定点の海岸からの最短距離を示したものである。それと

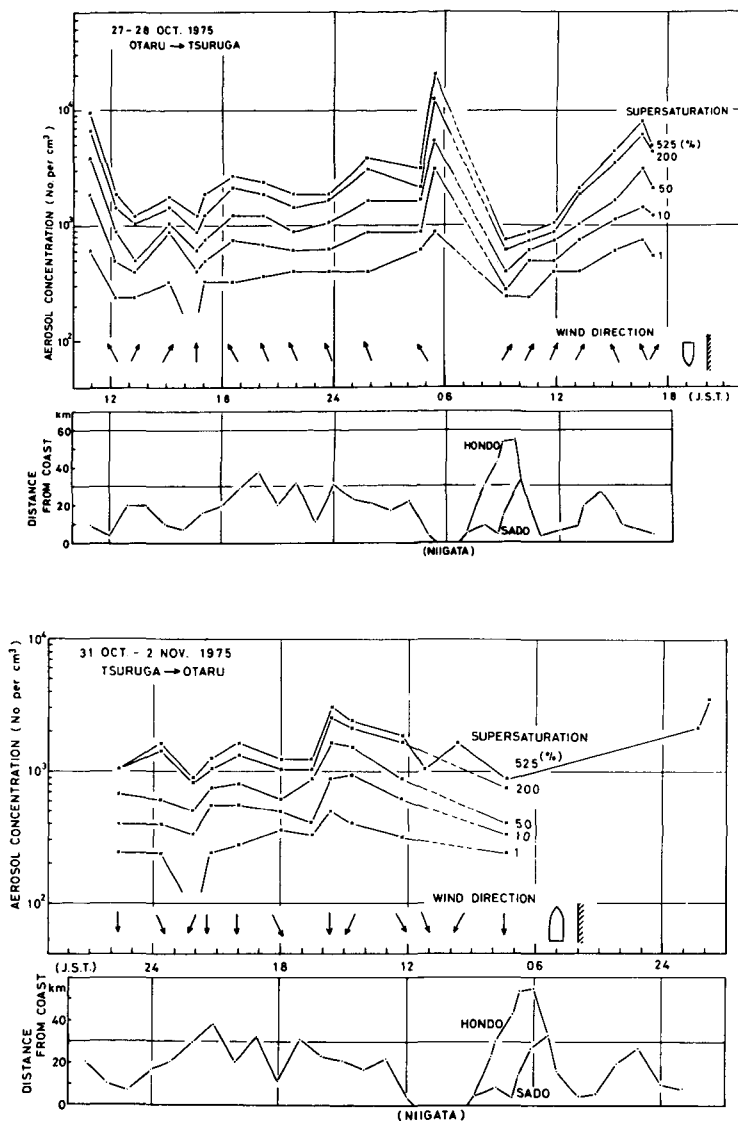


Fig. 3. Same as Fig. 2 except the course of Fig. 1 b) A (upper), B (lower).

比べると、海岸から離れる程、数濃度が下がっているのが容易にわかる。また途中、海霧に遭遇した6月30日10時00分の値は極端に濃度が下がっているのが注目される。

復路での風向は、6月30日の05時00分の日の出から陸風であり、海岸からの距離が長いにもかかわらず高濃度になっているのがみられる。

Fig.3は1975年の観測結果である。天気の記事を除くとFig.2と同様である。しかしFig.1からわかるように、この航路は途中で新潟によるため、全体的に陸に近いものであることが前のものと異なる。1975年10月28日05時の値は風向からみても新潟の影響を受けて高い値となってい

る。

Fig. 4 は 1977 年 12 月 29 日の測定結果で、この時は日本海上は北西の強い季節風下であって荒れたため航路のほとんどで観測を制限された。しかし舞鶴につく 4 時間程前から測定することが出来た。測定点の位置は Fig. 1 の a) の A コースにおける 6 月 20 日の 19 時から 21 日の 03 時の測定の区間に当たる。測定時刻は 1977 年 11 月 29 日の 09 時から 18 時までの間の条件の許された時である。図では 09 時から 12 時までの値が最も低く、その後は陸の影響で高くなっていくのがわかる。この 09 時における small size の凝結核は遠藤・村上 (1981) によると人為的な発生源から出て間のないものと考えられているが、その値が $20 \text{ 個}/\text{cm}^3$ と極めて低いことがみとめられる。これは強風下で catastrophic な海面と接して長い距離を吹走して来た気塊中のエアロゾルに対する海面の効果を示す例として注目される。

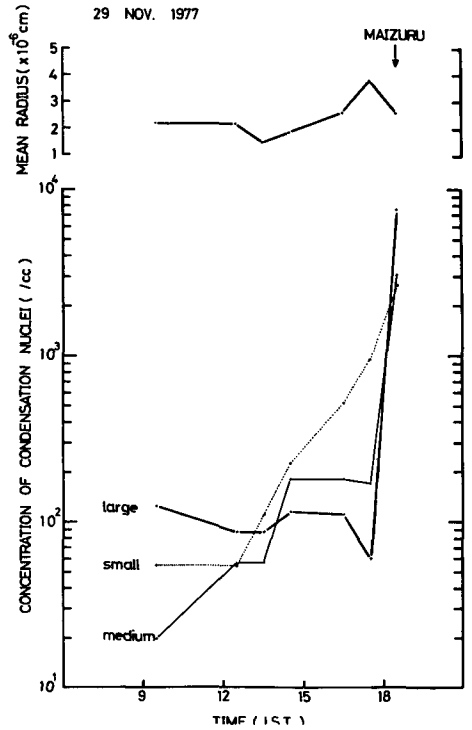


Fig. 4. Observed values of concentration of condensation nuclei in three degrees of particle size and mean radius of the particles.

IV. 解析と考察

以下に 1971 年の測定結果について、主に解析し、その考察から得られた知見を示す。

Fig. 5 は、この年の往復航路で得た凝結核数濃度の全例のうち、過飽和度 525% のものを海岸からの距離に対してプロットしたものである。縦軸は数濃度を、横軸は距離を示す。これらの点の回帰線から求めた relaxation distance は約 160 km である。

次に、これらのうちから海風、陸風の区別をつくものだけを取り出したのが Fig. 6 である。図の各点に印した三角形の矢じりの向きが風向を示し、図の左方と右方が夫々海岸と沖の方向に当たる。陸風のときは、海岸に最も近いところでの値が沖の方へ維持され 80~100 km まではり出していたことがみとめられる。また海風のときは、海岸からの距離にしたがって濃度は減少し、ほぼ 70 km ほど沖では海上でのバックグラウンド値とみられる値まで減少し、しかも一定値に落ちついているのがみられる。その平均曲線は図に示すように、海上での数濃度 N は

$$N = N_0 + N_c \exp(-aD)$$

の形で表わされるものである。すなわち海上での数濃度 N は、海洋上のバックグラウンド値 N_0 の

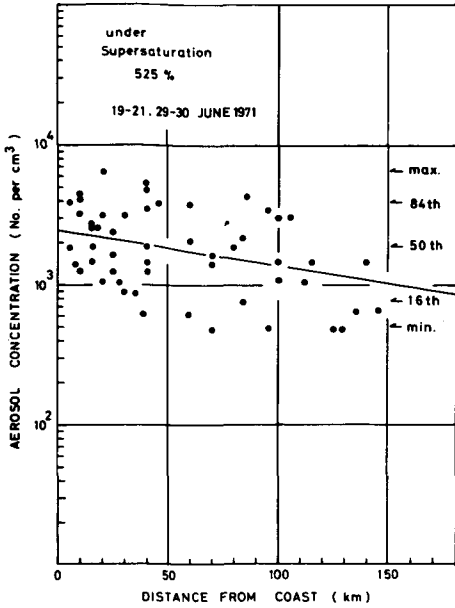


Fig. 5. Concentration of condensation nuclei measured in a supersaturation of 525% versus distance from coast.

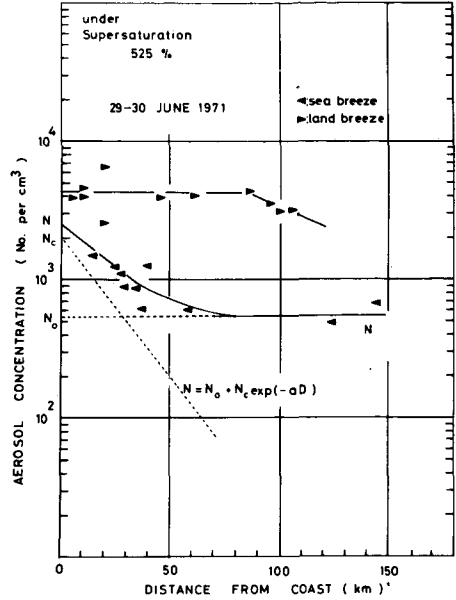


Fig. 6. Observed values in sea and land breeze of Fig. 5.

上に海岸での濃度 N_0 が海岸からの距離 D と共に指数関数的に減少するものを重ねたものであるとみることができる。この N_0 は 530 個/cm³ ほどである。

Fig. 7 は Fig. 5 と同様に過飽和度 1% の凝結核の全例を海岸からの距離に対してプロットしたものである。これらの点は先のものに比べ低い値となるが、この測器の読みとり限界は 8×10 個/cm³ である。

Fig. 8 は、これから海風、陸風の区別をつくものを取り出したものである。ほぼ Fig. 6 と同じ傾向がみられるが、陸風のときのこの 1% の過飽和度で検出される凝結核の海上への張りだしは 50 km ほどであることがわかる。これは先に示した 525% の粒子に比べより速く減少するようである。これは海上へ流出するにつれて凝結しやすい粒子（吸湿性の高い比較的大きいもの）から順に減衰し、凝結しにくい粒子ほど残るためであると考えられる。

Fig. 9 は 1971 年の A の航路の途中で海霧に会ったときのもので、6 月 20 日の 10 時と 11 時のスペクトラムを、その前後の 09 時と 12 時の霧の外側でのものと比較したものである。これによると海霧の中では、その前後に比べて全体的に濃度が低くなっているのがわかる。さらに過飽和度 10% から 525% までのスペクトラムの勾配にもちがいがあり、勾配は霧の中では小さくなっている。このことは霧の中では、エアロゾルの併合が進んで 525% よりのもものが 10% の方へシフトしたと考えるよりは、エアロゾルが高い湿度の下で質的に変り吸湿性のものとなり、低い過飽和度でも凝結しやすいものになったとみるか、または霧粒の準エンブリオとなって粒径の大きな方つまり凝結しやすい方へスペクトラムがシフトしたとみるのが妥当と考えられる。このような凝結核

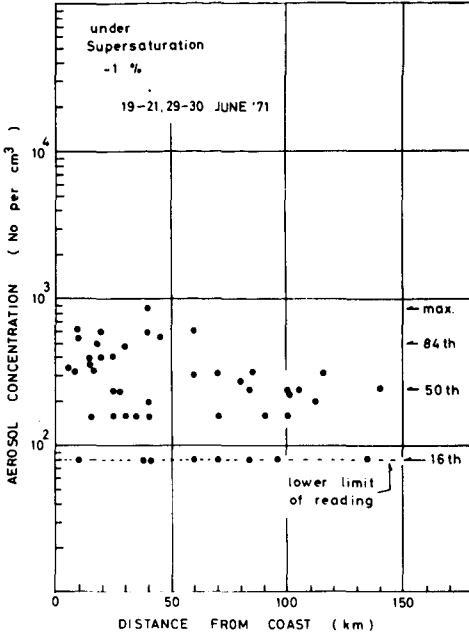


Fig. 7. Same as Fig. 5 except a supersaturation of 1%.

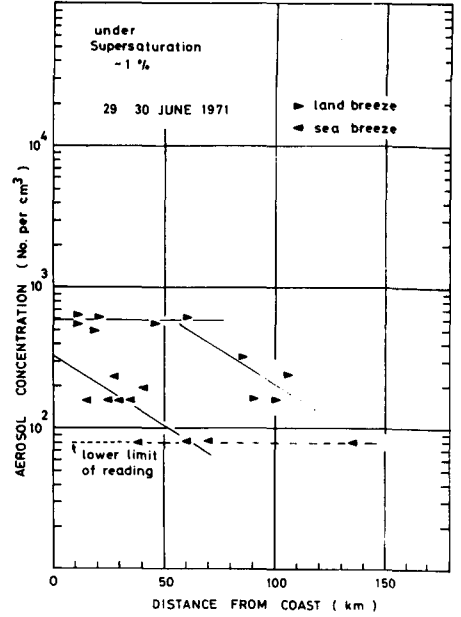


Fig. 8. Same as Fig. 6 except of Fig. 7.

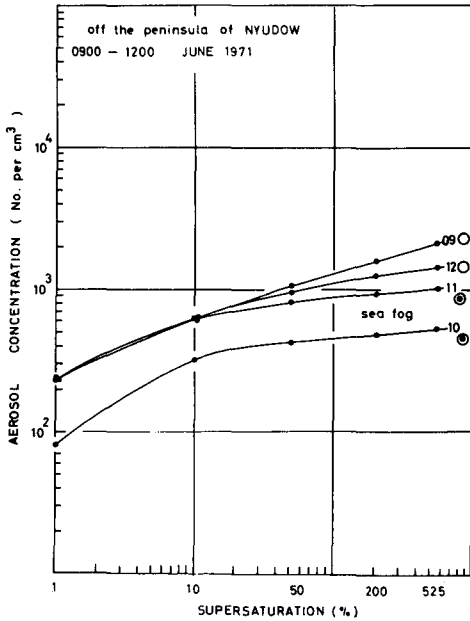


Fig. 9. Changes of supersaturation spectrum of condensation nuclei in sea fog.

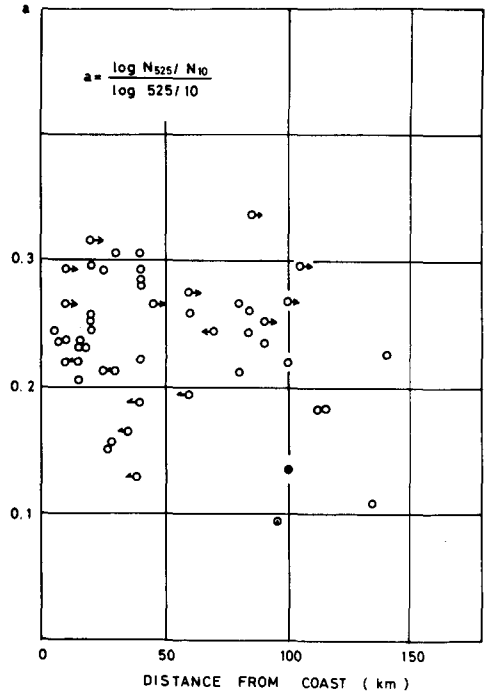


Fig. 10. Values of a (gradient between 10 to 525% of supersaturation spectrum of condensation nuclei) versus distance from coast, arrows show wind direction.

は霧の中ではつぎつぎと成長して大きくなり重力落下により rain out されるため全体的な数濃度も減少してみえろと考えると、これらを説明することが出来る。

エーロゾルの海上流出による変質を調べるため、次にいくつかの解析を行った。Fig. 10 は各観測点におけるスペクトラムの勾配を、その点の海岸からの距離に対してプロットしたものである。矢印のあるものは、海風か陸風かの区別のできたものである。また⊙印は海霧の中でのものである。横軸は海岸からの距離を、縦軸はスペクトラムの勾配の a を表わす。この a は

$$a = \frac{\log N_{525}/N_{10}}{\log 525/10}$$

であり、ここで N_{525} 、 N_{10} は夫々同一測点での過飽和度 525% と 10% での凝結核の数濃度である。図の陸風のものに注目すると海上流出の距離に関係なく、ほぼ a は一定な値で 0.29 のままである。また海風のものについては a はかなり分散しているのがわかる。このことは、陸風のは流出して間もない気流と考えられるのでエーロゾルが、それ程変質をうけていないため a が一定のままであると考えられる。一方、海のは海上での漂流時間が長く、しかもその程度はさまざまのため、それぞれの履歴によって、 a の値は先に比べて小さく、しかも、かなり分散している。

次に、これらのものから、海風、陸風の区別をつくものを除いて Fig. 11 に示す。これは夫々の海岸からの距離で静止している大気のスぺクトラムの勾配 a を表わしている。これによると、一般に距離の遠いもの程、流出後の時間経過が大きいものと考えられる。そこで、かなりの分散はあるが、海岸からの距離が大きくなる程、 a の値は減少していくとみることが出来る。これは時間の経過に伴って、凝結しにくい粒径の小さいものが併合によって凝結しやすい大きな粒径のものになるためと考えると、距離とともにスペクトラムが下っていくことを説明することができる。

a を算出するとき、対数目盛上での過飽和度を、10% と 525% の数濃度をとったことについては物理的に厳密な意味はなく、単にその増減についての定性的な意味に着目しているにすぎない。そこで

過飽和度 525% の凝結核の数濃度が高いことは、結果的に a を大きくする要因になっているので、ここで得た全資料の過飽和度 525% で測られる凝結核の数濃度の a に対する相関をみると Fig. 12 のようになる。そこでは N_{525} と a について、まづ第一に正の相関のあることがあげられる。それは先に考えたように全体的な数濃度が高いことは、 a が大きく、スペクトラムが立って行くことにあたる。

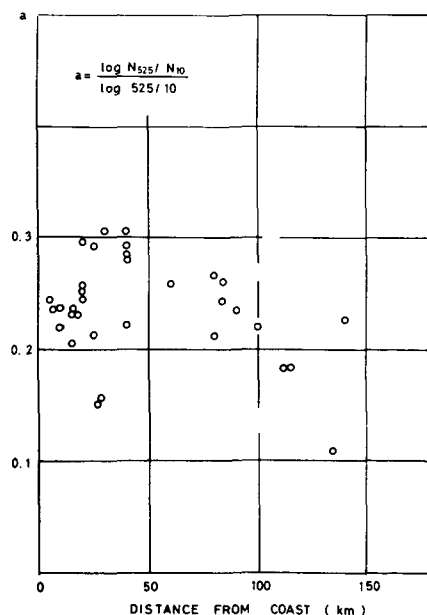


Fig. 11. Same as Fig. 10 except with wind.

そこで、この図について吟味すると、これらの点群は凝結核の変質の様式（モード）を示すと考えることが出来る。つまり全凝結核数(525%のもの)濃度が減少していく過程でどのプロセスが卓越して効くかを、このモードから見積ることが出来る。

初期の値は、図の座標 (N_{525} , a) が (5×10^3 , 0.3) あたりを出発点にしているとみることができ、ここから始まって、次の三つの方向へかわっていく過程を考えることができる。

(1) 拡散のみで濃度が減少し、粒径や質的に変わらないで全濃度だけが希釈される場合である。この場合、スペクトラムは変化しないで、図の中では、縦軸に沿って上から下へ移動するのみである。

(2) 併合により粒径の小さいものが大きくなる場合と、また吸湿によって凝結核が活性化する場合がある。この場合には、全凝結核数濃度の減少に伴って a は下るので、図の中では右上より左下へ向かって斜めに進行する。

(3) 自由落下により dry fall out する場合で、粒径の大なるものから失われるか、または活性な凝結核のみが rain out される場合である。このときは、全凝結核の減少に伴い a は増加するので図では左上より右下へと移動する。

これらの主なモードを考えて、Fig. 12 をみると、海上へ流出した大気中の凝結核の変化のモードとしては、上述の (2) の過程が主役といえる。さらにその分布が多少分散しているのは、実際には (1) や (3) のモードが、それぞれの履歴の中に複雑に含まれているためとみることができる。

過飽和度 1% の凝結核は雲核 (CCN) に近いと考えられ、また 525% の核は、サブミクロンエロゾル (CN) の総数濃度とみなすことができるので、それらの関係を比べてみた。それが Fig. 13 である。図から、二つの関係は、おおむね正相関であるが、1% の凝結核は測定限界に近いため精度が悪いことと、これらの凝結核の履歴が多様多様であるため、このままでは、かなりの分散がある。

Fig. 14 は、得られたすべての凝結核数濃度の値の測定時の過飽和度に対するスペクトラムで、夫々の同一過飽和度毎の値の分散を上下 16% を切り落として、それを上下の尖端とし中位値を腹とするダイヤモンド形で表わしたものである。中位値をつらねた曲線が、このスペクトラムの代表値である。大田 (1950) による測定は過飽和度 300% ほどに相当すると考えられるので、この

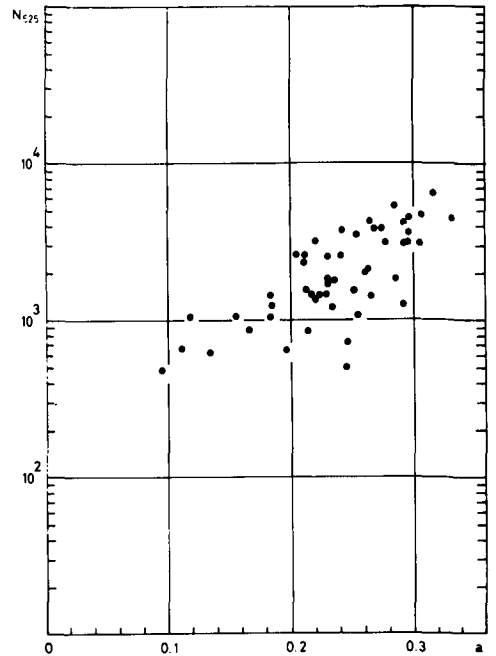


Fig. 12. Concentration of condensation nuclei in a supersaturation of 525% versus the values of a .

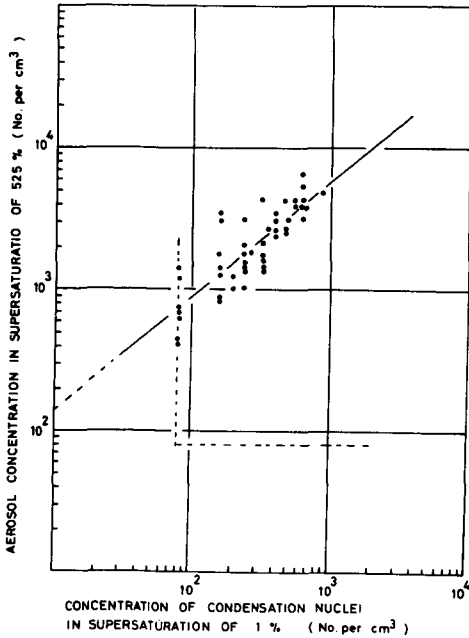


Fig. 13. Concentration of condensation nuclei in a supersaturation of 525% versus that of 1%.

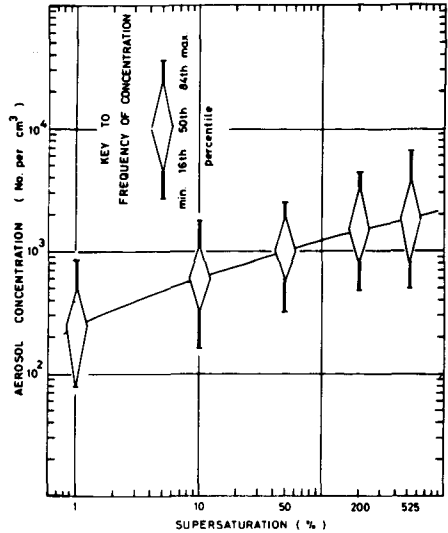


Fig. 14. Distribution range of number concentration of condensation nuclei in five degrees of supersaturation from all observed values along the course of Fig. 1 a) in 1971. The curve shows median values of the spectrum.

Table 1. Comparison of representative values of number concentration of condensation nuclei in supersaturation of 300% in various observations on the Japan Sea.

凝結核数濃度 (個/cm³)					最小値	平均値	最大値
大田	1948年5月	6日間115回	礼文島	高気圧下	480	1,040	2,200
著者	1971年6月	5日間52回	小樽-舞鶴	高気圧下	480	1,700	4,800
著者	1975年11月	5日間35回	小樽-敦賀	高気圧下	700	1,800	6,500

Fig. 14 から内挿した値を求め、さらに同様にして求めた 1975 年の値も加えて、三者を比べると Table 1 のようになる。

測器の差、海域内での場所の差はあるが天気は、よく似た時のものである。23 年前と比べると、最小値については、1971 年は変らないが、1975 年では 1.5 倍となっている。平均値は 1971 年が 1.6 倍、1975 年が 1.7 倍となっている。また最大値についてみると 1971 年は 2 倍、1975 年は 3 倍となっている。これが大気汚染の経年的な進行と決めることはむづかしい。大田 (1950) の測定は日本海の北部であり、著者らのものはそれに比べて南方を測っていることになる。1971 年と 1975 年の差は測定航路の海岸からの距離の差異によるものが含まれていると考えるべきである。今後、経年変化を比較するためには、さらに詳細な規格化が必要と考えられる。

V. ま と め

日本海沿岸海上で凝結核を測定した結果次のことがわかった。

(1) 海岸からの距離が大きくなるにつれて凝結核は減少し、全測定例より求めた decay constant は約 160 km であった。ただし、測定時は高気圧下であった。

(2) この関係は風向によって異り、陸からの風では海岸の値が、1971 年の場合では約 100 km まで一定に保たれて張り出していた。一方、海からの風のときには、吹き寄せの効果により勾配は急になり、沖あい 80 km ほどで、この海域での海洋上の凝結核数濃度のバックグラウンドと考えられる値がみられた。その値は 5.3×10^2 個/cm³ であった。

(3) 1948 年の測定と比べると 1971 年及び 1975 年の測定値は平均で夫々、1.6 倍と 1.7 倍と増加しているが、これには海上の位置の差異が効いていると考えられる。

(4) 海霧の中では凝結核の数濃度は特に低く、また過飽和度の高い測定で検出される粒子が相対的に減少しているのがみられた。これらは霧によって凝結核が変質を受ける、一種の降水過程に含まれる大気自浄化の効果がみられた。この変質は主に吸湿により凝結核の活性化と考えられた。

(5) 過飽和度に対する凝結核の数濃度のスペクトラムの勾配は、海岸からの距離が大きくなるにつれて、ゆるむようにみられた。これは凝結しづらい粒子が相対的に海上を長時間漂う間に減少していくようにみられる。このことは、時間とともに粒径の小さいものが併合によって大きい凝結核となることと、海面から充分加湿されることによって、これらの核が活性化することによると考えると説明することができる。また海上で長時間漂流した凝結核の変質のモードは主に上述の型であることがわかった。しかし流出してまもないものについては粒径の大きいものが dry fall out するか、または活性化核が rain out されることがさらに大きく加わっていると考えられる。

(6) 冬のモンスーン下の日本海上をわたってくる大気中の凝結核の粒径別の数濃度を比べると、人為的につくられる粒径の小さいものが他の粒径のものより極端に低くなっていることがあられるのがみられた。これは強風下で波浪の荒れている catastrophic な海面の効果として注目されている。

謝辞 この観測に際し、新日本海フェリー株式会社の方々より好意的な御協力を賜った。またこの研究の費用は文部省科学研究補助金（特定研究「海洋環境保全の基礎的研究」課題番号 210504）によった。研究代表者の東京大学海洋研究所の浅井富雄教授の御指導と御援助を賜った。これらのことに対し筆者らは心からの謝意を表わす次第である。

文 献

- 遠藤辰雄・菊地勝弘, 1978. 本州北東部の太平洋側沿岸海上におけるエイトケン核と巨大海塩粒子の測定. 北海道大学地球物理学研究報告, **37**, 9-18.
- ENDOW, T. and C. MAGONO, 1971. Distributions of aerosols in Sapporo in the winter season. *J. Meteor. Soc. Japan*, **49**, 48-55.
- 遠藤辰雄・村上正隆, 1981. 大気汚染物質の海洋への輸送(そのI) —— 日本列島北東部太平洋沿岸海上の凝結核と巨大海塩粒子の測定 ——. 環境科学 北海道大学大学院環境科学研究科紀要, **4**, (印刷中).
- HOGAN, A.W., 1968. Experiments with Aitken counters in maritime atmospheres. *J. Rech Atmos.*, **3**, 53-57.
- MISAKI, M. and T. TAKEUCHI, 1970. The extension of air pollution from land over ocean as revealed in the variation of atmospheric electric conductivity. *J. Meteor. Soc. Japan*, **48**, 263-269.
- MORITA, Y., H. ISHIKAWA, J. NGASAKA and M. KANADA, 1973. The land-to-ocean transitional behavior of atmospheric parameters and their relation to atmospheric pollution. *J. Meteor. Soc. Japan*, **51**, 294-306.
- MORITA, Y., H. ISHIKAWA and N. TORIYAMA, 1971. Some experimental results elaborating the equilibrium conditions of small ions in the atmosphere over the Pacific Ocean. *Proc. Res. Inst. Atmospheric, Nagoya Univ.*, **18**, 11-18.
- NOLAN, J.J. and P.J. NOLAN, 1938. Diffusion and fall of atmospheric condensation nuclei. *Proc. Roy. Irish Acad.*, **45**, A 4, 47-63.
- 大田正次, 1950. 太平洋及び日本海における大気凝結核及び非電荷核の測定. 気象集誌, **28**, 357-366.
- RICH, T.A., 1966. Apparatus and method for measuring the size of aerosols. *J. Rech. Atmos.*, **2**, 79-86.