



Title	個々の雨滴・あられ・雪片から : 検出した海塩粒子について Ⅰ
Author(s)	若浜, 五郎; WAKAHAMA, Gorow
Citation	低温科学. 物理篇, 16, 211-226
Issue Date	1957-12-13
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/17936
Type	departmental bulletin paper
File Information	16_p211-226.pdf



個々の雨滴・あられ・雪片から検出した 海塩粒子について I.*

若 浜 五 郎

(低温科学研究所 気象学部門)

(昭和32年7月受理)

I. ま え が き

最近、降水機構の研究が進むにつれて、大気中に浮遊する海塩その他の微粒子(エアロゾル)の研究が盛んに行なわれ、いろいろな興味ある結果が報告されている。その中、凝結核と関係の深い海塩粒子は特に詳しく調べられ、いろいろな新しい物理的・化学的方法を手段としてその実体が解明されつつある。たとえば、黒岩¹⁾・熊井²⁾・磯野³⁾らは電子顕微鏡、電子線回折法により霧、雪などの核を調べ、Woodcock⁴⁾は isopiestic 法(等圧法)により、Twomey⁵⁾は相転移法により、Crozier-Seely⁶⁾、Lodge⁷⁾らは Halo 法によつて海塩粒子を判定して、それぞれ秀れた結果を得ている。しかしながら、以上の研究はいずれも1ヶの凝結核を中心として生成した雲粒、氷晶などの微小要素を対照としたものであつた。微小要素が多数集合して作られたと考えられる個々の降水要素、すなわち、雨滴やあられの粒のなかに、いかなる物質がいかなる分量で不純物として含まれているかに関する研究はない。もつとも、雨水のような、降水要素が多数あつまつたものについての不純物の研究は数多く行なわれている。しかし、これでは各降水要素に関する平均値が与えられるだけである。個々の降水要素に不純物が平均して含まれているとは考えられない。この論文は、個々の降水要素のあいだに存在する含有物の差異を見出す目的で、それに含まれる海塩の量を調査した結果の報告である。

海塩核説によれば、大気凝結核はすべて海塩粒子でまかなわれている。したがつて、凝結核を中心として生成した小水滴の合体、集積物とみられる雨滴、あられ粒などには相当量の NaCl を含むであろう。また「暖い雲」から降る雨は巨大海塩核を必要とするという最近の説⁸⁾を信用するならば、この種の雨滴を乾燥蒸発させた残渣には必ず NaCl が検出される筈である。それでは個々の降水要素中には、どの位の量の NaCl が含まれている可能性があるだろうか。

雨水を分析すると、通常 1~10 mg/l 程度の塩素量を含んでいることが古くから知られている。この塩素量がすべて海塩の NaCl に由来するかどうか疑問であるが、一応海塩の NaCl

* 北海道大学低温科学研究所業績 第389号

に由るものと仮定して考える。すると、5 mg/l の塩素量を含む直径 2 mm の雨滴 1 個には平均 2×10^{-8} g の NaCl が含まれていることになる。

雨滴を乾燥してこれだけの量の NaCl を立方体に結晶させたとすれば、一辺 20 μ 程度の立方体となる。この大きさの結晶なら普通の光学顕微鏡でも充分観察出来る筈である。そこで筆者は、雨滴・あられ・雪片などの 1 個 1 個について、その乾燥残渣を調べた。そして、その中から明らかに NaCl と思われる立方形の結晶を多数例見出したので、それをここに報告する。

II. 方 法

降水要素の捕捉には、いろいろな方法があるが、ここで採用したのはガラス板に直接降水要素を受ける方法である。重クロム酸カリの硫酸溶液で洗滌したガラス板 (5.5 cm \times 4 cm, 11 cm \times 8 cm) に撥水性 (hydrophobic) の Dri-film (米国 GE 社製) を塗布したのち、ガーゼを何回もとりにかえて充分きれいに磨く。こうしたガラス板には、直径 5 mm 位の大水滴も飛び散ることなく捕捉出来る。また、ガラス面の撥水性のために、その水滴はほぼ半球状をなす (Dri-film の接触角は 90°)。Dri-film をぬつたため、あるいはそれが捕捉された雨滴にとけこんで、観測上の誤差の原因となるかもしれない。しかし、蒸溜水の水滴を受けて、後述するような方法で乾燥させてから高倍率の顕微鏡で調べても、ほとんど何の残渣も認められなかつた。

雨滴・あられ・雪片などを受けたガラス板は直ちに樋口式の影写真法⁹⁾ によつて影写真を撮る (写真 1)。こうすることによつて、板上に受けた雨滴・あられなどの位置と大きさが容易に記録される。(固体降水要素のときは、受けたままの状態と、それを静かにとかした時の 2 回写真を撮る。写真 1 (a) は「あられ」を採取した直後の、(b) はそれをとかしたときの写真である)。試料をのせたガラス板を、デシケーターの中に入れて静かに乾燥させると、ガラス面の撥水性のために水滴は半球を保つたまま次第に直径を減じながら蒸発し、遂には中心部にかすかな残渣を残して完全に蒸発してしまう。この残渣を顕微鏡で観察すると、多くの場合、写真 2 (a) に示すように、比較的大きな粒子と小さな粒子が多数分散して析出しているか、または写真 3 (a) に示すような樹枝状の結晶が見られる。そして、いずれの場合も、不溶性の固体粒子がいくつか見られることが多い。しかし、このままでは降水要素の中に含まれていた溶質の量を見積ることは難しいので、これらの分散した残渣を一方所、または数カ所に集めるため、つぎのようなことを行なつた。

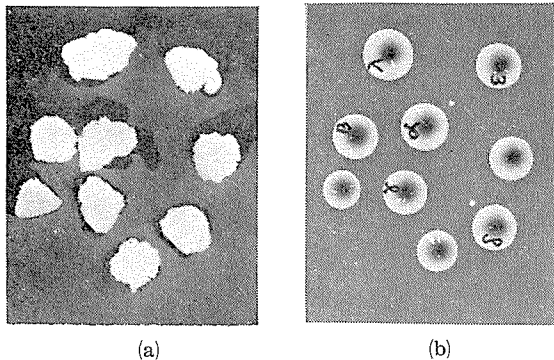
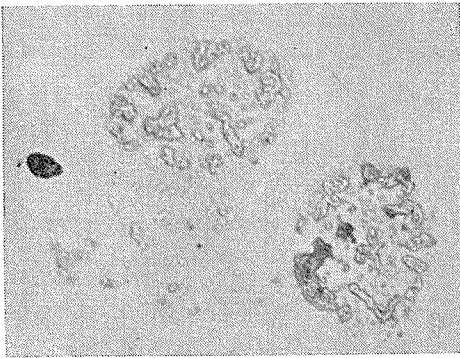


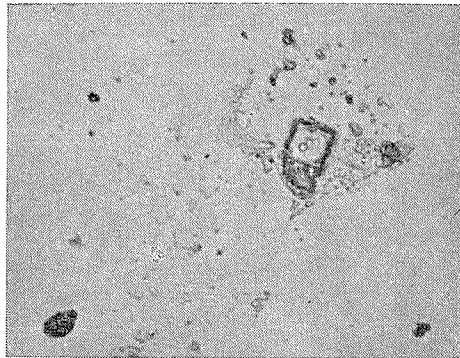
写真 1. 樋口式撮影法による「あられ」の影写真 ($\times 1$)

(a) 採取した直後, (b) とかした時

乾いたガラス板を湿度の高い空気にさらして、ガラス板上の残渣を核として水蒸気を凝結



(a)

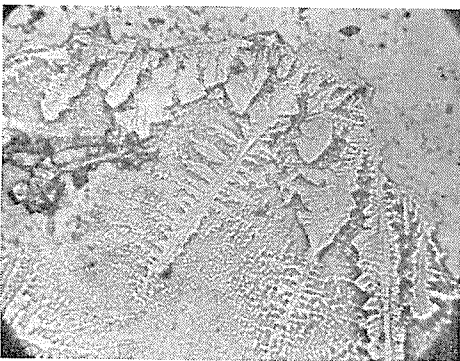


(b)

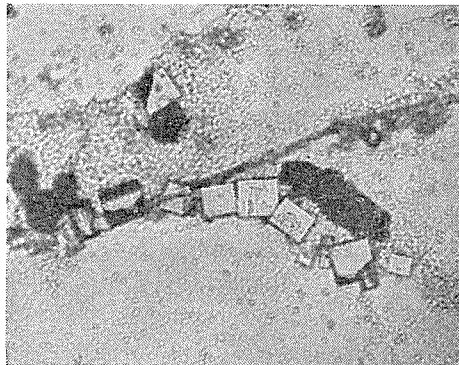
写真 2. 56年10月20日に降った「みぞれ」の残渣(×340).

(a) 乾燥が急速すぎたため、ばらばらに分散析出している。

(b) は(a)を再凝結させて、ゆつくり再結晶させたもの(写真4を参照)。



(a)



(b)

写真 3. 57年1月9日に降った雪片の残渣

(a) 乾燥が急速すぎたため、ばらばらに樹枝状となつて析出している(×330)。

(b) は(a)を再結晶させて立方状に結晶させたところ(×250)。

(c) は(b)を恒湿度槽に入れてRHを75%に保つたときの写真。水蒸気を凝結して結晶が融けはじめているのがわかる(×250)。



(c)

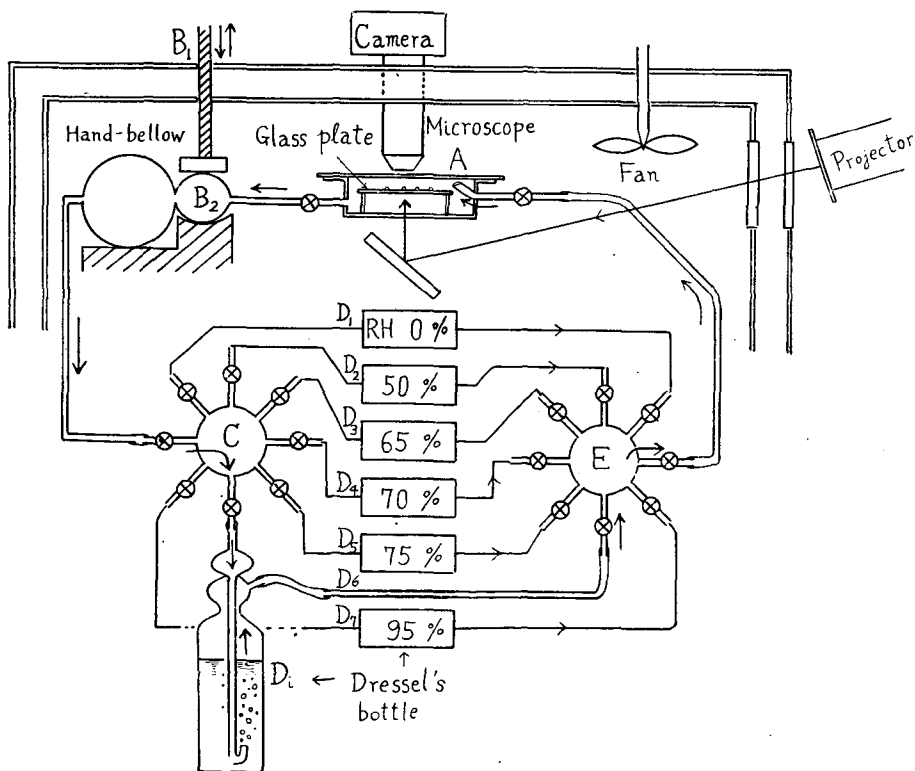
させて液滴にし、ごみのかからぬようにシャーレーの中に入れて極めてゆつくり(2~3昼夜)乾燥させる。このような手続を何回もくり返すと、すべての溶質を写真2(b), 3(b)に示すような美事な立方状の単一結晶, または数個の立方状の結晶に成長させることが出来る。こうすれば、個々の雨滴・あられなどの中に含まれている物質の総量と、その組成を調べる事が非常に容易になる。

結晶は立方状だから、その縦・横の長さおよび高さがわかれば、体積が求まる。縦と横は顕微鏡写真をとつて測ればよい。高さは、顕微鏡の集点を立方状の結晶の上面に合わせた時と、下面(すなわちガラス面)に合わせた時の顕微鏡の上下の変位を示す目盛板を読みとり、その目盛の差からきめる。

次の問題は、この立方状の結晶の化学成分が何であるか、ということである。

得た結晶は NaCl に特有な立方体, または樹枝状の形をしている。しかも非常に吸湿性が強く、かつ水に対する融解速度が非常に早い。これらのことから、結晶の主成分は NaCl であることにはば間違いないが、それをさらに次に述べる相転位法によつてたしかめた。

化学的に純粋な塩類は、それをとりかこむ空気の相対湿度が、その物質に特有なある値に



第 1 図 恒温槽内におかれた恒湿度装置, C, E のコックを適当に開閉することによつて、試料を入れたガラス槽 A 内の空気の湿度を調節する。

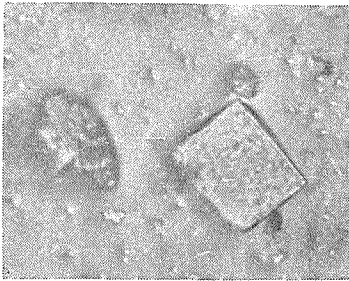
達すると、わづかな湿度の変化に対しても、固体と液体の相の転位を明瞭に現わす。この性質を利用して Owens¹⁰⁾ や Twomey⁵⁾ は、未知の塩類の組成を判定した。筆者も、この相転移法にならつて、得た結晶が液滴化するときと、液滴が結晶化するときの湿度の測定を行なつた。それに用いた湿度測定装置を第 1 図に示す。湿度の測定には、温度が完全に一定に保たれることが絶対必要条件なので、装置全体を二重箱の恒温槽内に納めて温度を一様に保つようにする。図の A はガラス槽で、この中に試料をのせたガラス板を入れる。B₂ は手動ふいごのゴム球で、これを二重箱の外から把手 B₁ で圧縮して空気を矢で示した方向に循環させる。C, E は空気の通路の切りかえ装置である。空気の各通路は、C からいろいろな濃度の硫酸水溶液を 60 cc づつ入れたガラス洗滌びん D をへて、Eに通じているので、C, E のコックを適当に開閉して通路をかえれば、異つた湿度の空気を槽 A に送りこむことができる。実際に用いた相対湿度(以下 RH と書く)は、0, 30, 50, 65, 68, 70, 72, 75, 78, 80, 85, 90% である。湿度はその時の温度によつて大きく変動するから、閉回路全体の温度を一様に保つことが必要である。このため、実験の開始にあつては恒温槽内に取りつけた fan を回しながら相当長時間(少くとも 1 時間くらい)放置して、内部の温度が一様になるまで待つた。ついで、低い RH の通路を開いて空気の環流をはじめ、通路を切りかえては RH をだんだん高い値にかえて行く。この際注意しなければならないことは、切りかえてから後の RH のおくれ、その他の影響である。井上¹¹⁾ はこのような吸収式湿度計について詳しく研究した結果、湿度の測定にはガラス管壁の水蒸気の吸着による誤差が案外大きいことを指適している。新たに吸入した空気の RH が、以前の RH と甚しく異なる場合にはガラス壁から発湿、または吸湿がおこり、その結果新しく吸入した空気の RH が変化してしまう。筆者の場合は、相転移点附近で用いた RH を 65, 68, 70, 72, 75, 78% と細かくきざみ、かつ、切りかえてから 30 分以上も空気を循環させた直後の試料の状態を調べたので、上記のような影響は少いと思われる。さて、RH をある値に切りかえたときに、それまで固体だつた結晶が突然水滴化する。このときの RH が相転移点である。次に RH を高い方から漸次低い方に切りかえて、液相から固相に移るときの RH を求める。このようにして試料が相転位をおこすときの RH を求めた結果は、大体 70~75% の間の値であつた(写真 3(b, c), 6(d))。これは Owens や Twomey が純粋な NaCl について得た結果とほぼ一致する。このことから判断して、ここに得た結晶の主成分が NaCl であると考えてよいであろう。

一般に雨水には、塩素のほかに硫酸基やアンモニウム基などもかなり多く含まれていることがよく知られている。また、磯野³⁾ は電子線回折法を用いて、雪の結晶に含まれている核を調べた際、中心核の近くに、NaCl の微小粒子とともに、かなり多くの量の CaSO₄, MgCl₂ を見出した。したがつて、筆者が得た NaCl の結晶にも、このような水に溶解性の他の物質が混入している公算は大きい。しかし、得られた立方晶の形がよく整つていること、また、相転移の湿度が純粋な NaCl のそれと一致することから、不純物が含まれていたとしても少量にすぎないものと考えられる。

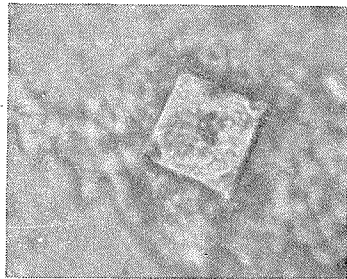
III. 得られた結晶の例

(1) 10月20日(1956)

札幌地方には前夜寒冷前線が通過し、以後初雪が降った。試料を採取したところは「みぞれ」となり、時々雨に変わった。雲形はあまり発達していないCbとFnで、雲底高度1.0 km、雲厚は2.5 kmであつた。写真4(a)は15時ころ採取したほとんどけかかつた雪片(水滴換算直径1.2 mm)の乾燥残渣から得た結晶を示す。これを再凝結させてから、比較的急速に乾燥させたのが第II節で示した写真2(a)である。このように、ばらばらに分散析出した残渣を更に再凝結、再結晶させたのが写真2(b)に示した立方体の結晶で、それを拡大したのが写真4(b)である。この立方体結晶の大きさは $13\mu \times 13\mu \times 10\mu$ 、質量にして約 4×10^{-9} gである。



(a)



(b)

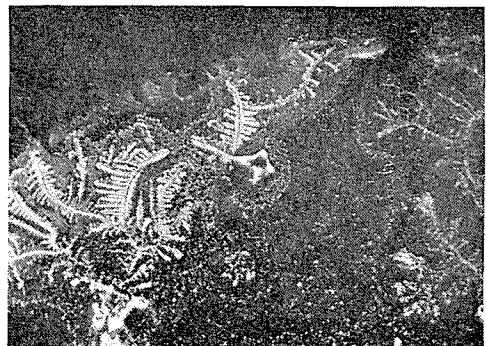
写真4. 56年10月20日に降った「みぞれ」から得た立方状のNaClの結晶で、写真2と同一の試料である。この(a)の結晶を再凝結させて、やや急速に乾燥させたのが、写真2(a)である。(b)は写真2(b)の結晶を拡大したもの($\times 980$)。

(2) 12月29日(1956)

この日は「あられ」を主体とした驟雪が降った。得られた樹枝状結晶の例を写真5に示す。



(a)

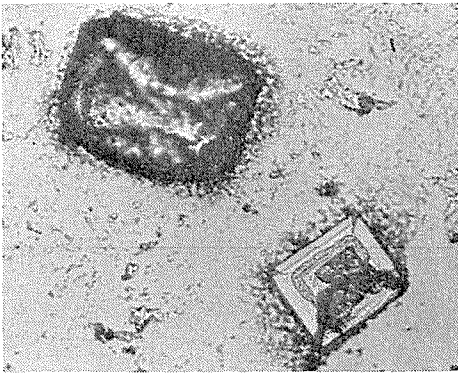


(b)

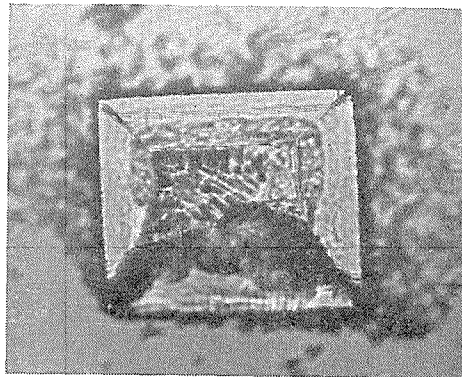
写真5. 56年12月29日に降った「あられ」の乾燥残渣に見出されたNaClの樹枝状結晶($\times 350$)、(b)は位相差顕微鏡による別の結晶($\times 90$)。

(3) 1月9日(1957)

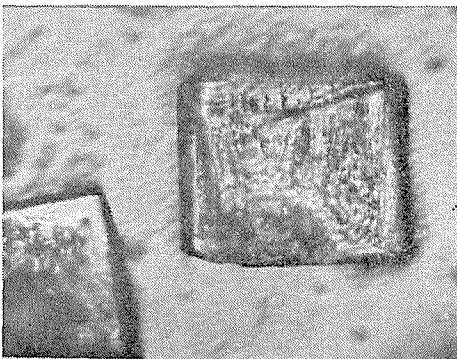
寒冷前線通過にともなう驟雪の降りはじめ(18時ころ)に採取した巨大な雪片(水滴換算直径5 mm)から写真6のような巨大な NaCl がふたつ得られた。写真6(b)はその一部を拡大したもので一部が欠けているが典型的な NaCl の結晶で、中央部は凹んでいて、稜に平行な縞が見られる。写真6(a)の2つの結晶の合計質量は約 2×10^{-6} gである。(c), (d)はこれらの結晶に相転移法を施したときの写真で、(d)は RH を75%にしたとき相転位がおこり、結晶の周辺がとけはじめた有様を示している。また、写真7は同一時刻に採取した別の雪片から得た結晶で、立方体の結晶の対角線の方向に成長したものである。全体としては樹枝状の結晶であるが、ところどころに RH が50%に下つても、まだ丸い液滴のまま存在しているものが見られる。第II節で掲げた写真3は写真7と同一の結晶で、写真7では樹枝状の結晶が写真3(b)では立方体の結晶として析出している。



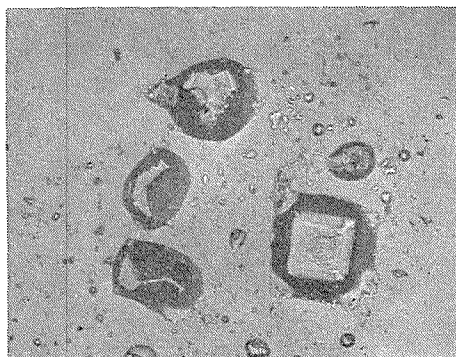
(a)



(b)

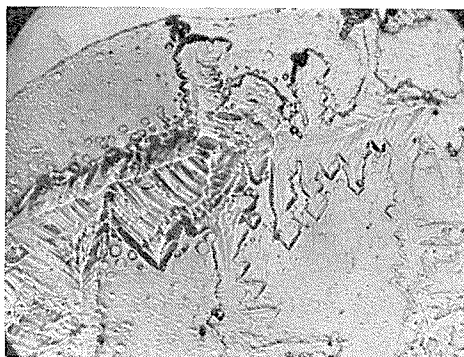


(c)

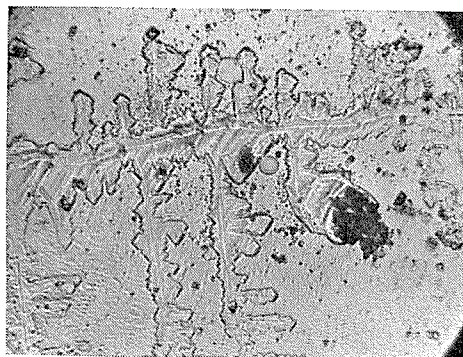


(d)

写真 6. 57年1月9日に降つた雪片から検出された巨大な NaCl の結晶。(a) この2つの結晶の合計質量は、約 2×10^{-6} g, ($\times 170$), (b) は(a)の一部拡大($\times 410$), (c) は(a)を再凝再結晶させたもの ($\times 360$), (d) 同一試料の一変態を RH 75% に保つたときの写真で、水蒸気が凝結して結晶がとけ出しているのがわかる ($\times 100$)。



(a)

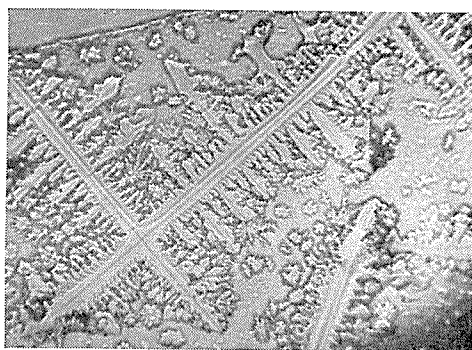


(b)

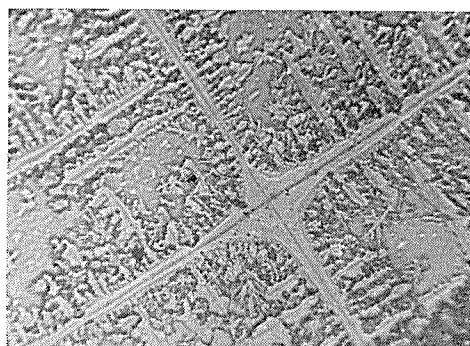
写真 7. 写真 6 と同一時刻に降った別の雪片中から検出された樹枝状の結晶で、写真 3 と同一の試料である ($\times 350$)。

(4) 1 月 24 日 (1957)

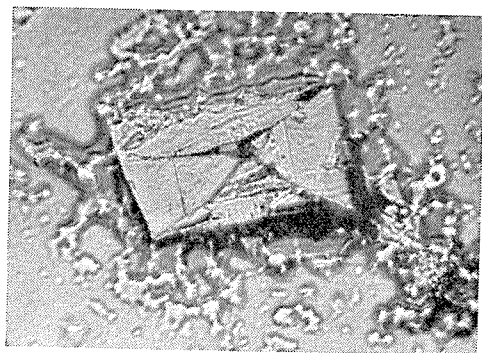
写真 8 は寒冷前線通過時の、あられまじりの驟雪から得た NaCl の結晶である。美しい十字形にのびた樹枝状結晶 (a), (b) のほかに (c) のようなピラミッド状の結晶が多数見られた。



(a)



(b)



(c)

写真 8. 57 年 1 月 24 日に降った「あられ」の残渣中に含まれていた樹枝状結晶 (a), (b) ($\times 390$) と同一試料内に析出していたピラミッド状結晶 (c) ($\times 620$)。

(5) 4月1日(1957)

低気圧通過後、大陸高気圧の強い吹き出しがあり、それがもたらした驟雪中から得た NaCl の結晶を、写真9に示す。

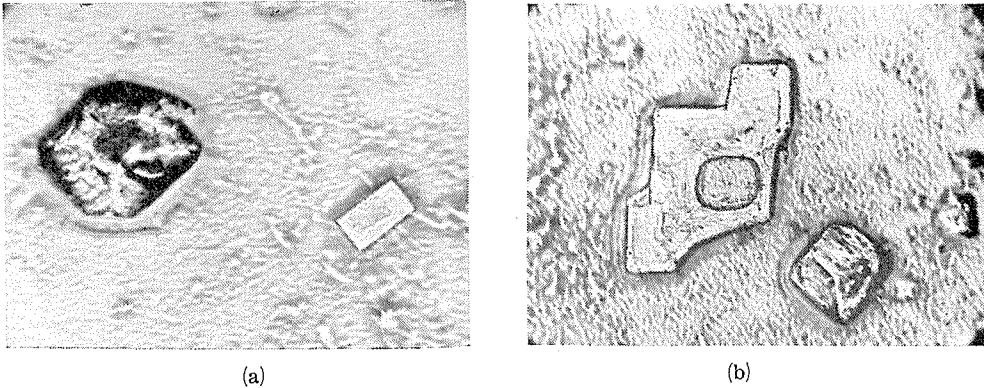


写真 9. 57年4月1日に降つた雪片残渣中から見出された結晶。
(a) (×430), (b) は別の雪片からの結晶 (×350)。

(6) 4月28日(1957)

地形性の弱い驟雨から得た NaCl の結晶を写真10に示した。約100個の雨滴を観察したが、その中で結晶が明瞭に検出されたのは、この1個だけであつた。

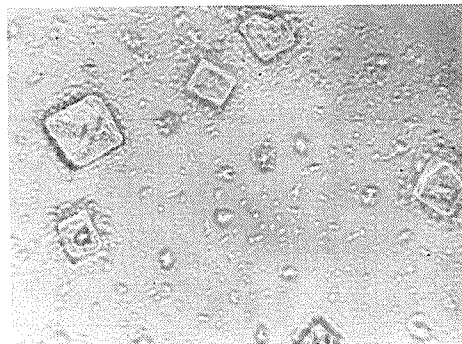


写真 10. 57年4月28日に降つた雨滴の残渣中から見出された結晶 (×430)。

IV. 2, 3の考察

現在までのところ雪に関してはかなりの観測を行なつたが、雨の観測資料は少い。それで雨と雪との比較については多くをいうことができないが、1956年10月から1957年5月までの資料を調べた結果、次のようなことが結論できると思う。

(1) 降水要素中に含まれていた NaCl の量と気象状態の関係

第 III 節でも示したように、多量の NaCl を含んだ降水要素をもらした降水は、例外なく北方の寒気団に由来する北西の強風を伴つた驟雪であつた。これらの降水要素は、強い上昇気流を伴つた Cb 内部で生成された「あられ」または無数の雲粒の付着した巨大雪片である。これに反して、南方の暖気団に由来する降水には、予想外に NaCl の含有量が少なかつた。冬季南方の暖気団によつて降る雪は温暖前線に伴うう地雪が主である。この時の雪を、北西季節風が強い時の驟雪と比べると、一般に雪片が小型であることが多い。また、雪片をなさず単独の結晶のまま降ることも多い。付着している雲粒の数も驟雪時と比べるとはるかに少ない。

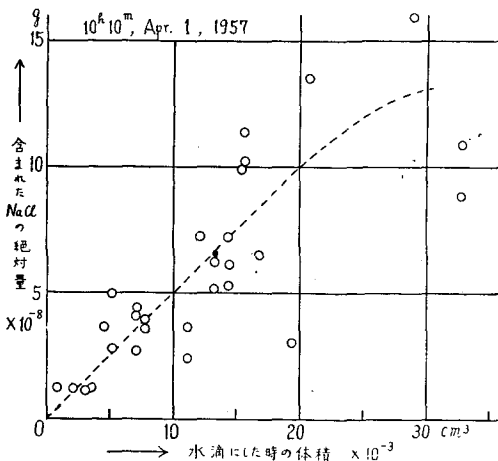
この付着雲粒の多寡が雪片の NaCl の含有量に大きな役割を果しているのではなからうか。これについては後で議論する。

別に行なつた降水中の塩素量測定の結果も、結晶の含有量の場合と同じように、北方寒気団に由来する降水に含まれる塩素量は比較的多いが(大体 3~7 mg/l), 南方暖気団に由来する降水には一般に少ないことを示した。このことは従来の研究¹²⁾¹³⁾と相反しているが、札幌が北西の日本海岸からは僅か 13 km しか離れてないのに、南方の太平洋岸からは 53 km も離れ、かつ南方には山が多いことを考えれば一応納得できることであろう。最近、大喜多ら¹⁴⁾も旭川で降水の塩素量を観測して同じような結果を得たことを報告している。

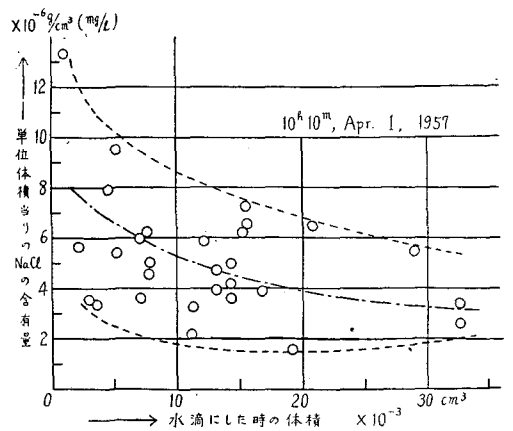
このように、雪片中から見出された結晶の量の大小が、降水に含まれる塩素量の大小と同傾向にあることは当然の事であるが、得られた結晶が NaCl であることのひとつの証拠になっている。

(2) 個々の雪片中に含まれている NaCl の量について

同時刻に採取した個々の降水要素中に含まれている NaCl の量を相互に比較することは、この研究の眼目のひとつであり、最も興味深いことである。しかし、これを行なうには相当の時日と困難があるため、現在のところ、まだひとつの場合についてしか行なっていない。それは本年 4 月 1 日に降つた雪のばあい、第 III 節の写真 9 はそのときのものである。この日の雪も北方寒気団に由来する Cb からの驟雪であり、雪の結晶は多数の雲粒を着け、時々小さな「あられ」を混えていた。その時採取した雪片 29 個全部について、それぞれに含まれていた NaCl の質量を求め、それと、水滴に換算したときの雪片の体積とを比較したのが第 2 図である。これを見ると、一般に大きな雪片ほど多くの NaCl を含んでいることがわかる。第 3 図は個々の雪片に含まれる NaCl の濃度と、水滴換算の体積との関係である。各雪片に含まれた NaCl



第 2 図 個々の雪片中に含まれていた NaCl の量は、大体その水滴換算の体積に比例していることを示す(57年4月1日の驟雪時の雪片)。



第 3 図 個々の雪片中から見出された NaCl の濃度は、雪片の水滴換算の体積が大きくなるほど減少することを示す(鎖線は平均濃度曲線)。

の濃度は、点線内の領域に入る。鎖線は濃度の平均曲線である。全体としてみると、小さい雪片の方が大きい雪片よりも濃度がやや大きく、バラツキも大きい。大きい雪片ほどバラツキが小さくなる理由については、後の第IV節の(3)の(ii)で詳しく述べる。

第3図に鎖線で示した平均の NaCl 濃度と、水滴換算の直径の関係を対数目盛でプロットしたのが第4図の白丸印である。これらの点は大体一本の直線上にのつている。すなわち、塩分量は直径が増すと共に指数函数的に減少して行くことがわかる。

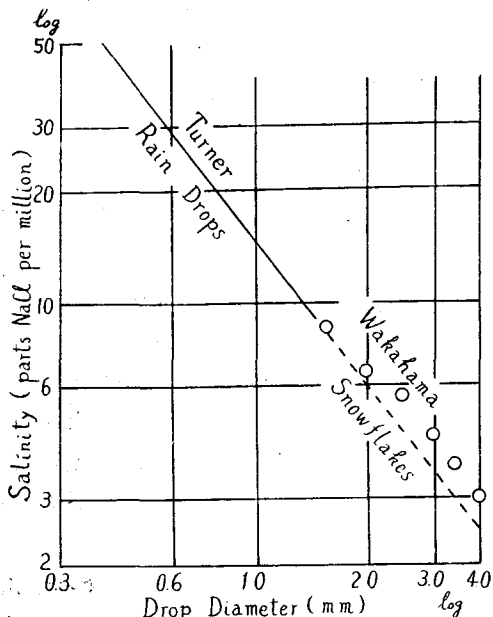
Turner¹⁵⁾は Bergeron 型の雨の雨滴の塩分量を観測して、筆者と同じような結果を得ている。その1例を第4図の実線で示した。これは 20 kt/hr (約 10 m/sec) 以上の強風が海から吹いている場合、海岸から約 8 km 内陸に入つた地点で雨滴の大きさごとの塩分量を観測して得た結果である。Bergeron 型の雨は、元来雪片やあられだつたものが、下層に落下して来たとき、とけて雨になつたものだと考えられている。

筆者の行なつた観測は Bergeron 型の雨になる直前の雪片について行なつたものであり、Turner のそれは雨になつてからの観測である。雨と雪のちがいはあるが、そのほかの観測条件は両者とも非常に類似しているので、筆者が大きい雪片(水滴換算直径 1.5 mm 以上)について得た結果と、Turner が小型の雨滴(直径 1.5 mm 以下)について得た結果は、互に相補う結果になつている。ところが Turner は、塩分量が雨滴の大きさと共に減少するのは主として、雨滴が落下の途中で蒸発するため、小さい雨滴ほど塩分量が濃縮される結果であると説明している。しかし、落下途中での蒸発が非常に少ない筆者の場合でも、Turner の結果と同様な傾向が得られたことは、Turner の説明だけでは不充分であつて、何かほかの原因がそこにあることを示している。

(3) 降水要素中に NaCl が溶入する機構

NaCl はどのような機構で個々の雪片・あられなどに含まれて来たのであろうか。雪片についていえば、次の3通りが考えられる。

- (i) 雪片を構成する個々の結晶の中心核として含まれる場合。
- (ii) 雪片に多数付着した雲粒の一部のものに含まれている場合。



第4図 個々の雪片中から見出された NaCl の濃度と、雪片の水滴換算の大きさとの関係(白丸印)を、Turner が雨について得た結果と比較した。Turner が得た結果は、海面から 20 kt/hr 以上の強風が吹いて来た場合、海岸から 8 km 内陸の地点で Bergeron 型の雨を観測して得たものである。

(iii) 雲底を出てから地上に到達するまでの落下途中で海塩粒子を捕捉する場合。

先づ(i)について考えよう。熊井⁹⁾の電子顕微鏡による雪の中心核の研究の結果によれば、中心核が吸湿性物質であることは非常に少い。従つて、数十~数百個の雪の結晶が集つて出来た雪片の中心核だけで 10^{-8} ~ 10^{-6} g という多量の NaCl をまかなうとは考えにくい。また、熊井が雪の結晶の枝の部分に見出した微小な凝結核や、磯野⁹⁾が中心核の周囲に発見した NaCl の微小粒子(直径 100 m μ 以下)だけでも到底このような量を説明することは出来ない。

(ii)について。第 IV 節の(1)で述べたように、降水要素中に多量の NaCl が含まれているのは、例外なく「あられ」と雲粒付の雪片であり、これらの降雪は、北方の寒気団に由来する強い上昇気流を伴つた Cb からの驟雪であつた。このことは NaCl がどのようにしてこれらの降水要素に含まれるに至つたか、という問題に大きな暗示を与えている。

北西の強風によつて海面から運び出された大小さまじまの海水飛沫は、大気が乾燥している場合は Woodcock⁹⁾が観測したような海塩粒子となつて大気中を浮遊する。しかし、降雪時のように大気が湿潤の場合は、海水飛沫のまま上空に運ばれて結局は雲の中に入る(今仮にこれを海塩雲粒とよぶ)。

「雲を構成している個々の雲粒のすべてが、このような海水飛沫、または海塩粒子を核として発生した水滴である」と考える Köhler¹⁶⁾の説は最近あまり信ぜられていない。むしろ、大部分の雲粒は海塩粒子以外のものを核として発生したもので(今、仮にこれを無塩雲粒とよぶ)、その中に少数の海塩雲粒が混在していると考えられる Ludlam⁹⁾らの説の方が支持されている。事実、黒岩¹⁾・山本¹⁷⁾・荻原¹⁸⁾らが電子顕微鏡で雲の凝結核を調べた結果では、海塩核はあまり多くは見出されていない。黒岩はたつた 1 例だけだが、山頂の山霧の中に混つていた海水飛沫を観測した。彼は観測結果を基として考察した結果、霧粒および海水飛沫の直径を 30 μ としたとき、20mg/l の塩分を含む霧水には、無塩雲粒 1700 個につき海塩雲粒が 1 個の割合で混入していればよいと考えた。このように、無塩雲粒の方が海塩雲粒よりはるかに多いことは、電子顕微鏡による霧核の研究が支持している。

さて、NaCl を多く含んでいたのは「あられ」と雲粒付の雪片であつたことは前にも述べた。今、そのうちの「あられ」について考えてみる。「あられ」はそれ自体が雲粒の集合体だと考えられ、水滴換算の直径が 2~5 mm に達する巨大なものも屢々観測される。水滴換算直径が 2 mm のあられがすべて直径 20 μ の雲粒で形成されたとすると、その雲粒の総数は 10^6 個である。直径が 4 mm のあられでは 10^7 個である。この見積りはやや過大であるが、とに角巨大なあられは莫大な数の雲粒で構成されている。このように大きく成長するまでは、あられ粒は上昇気流や乱流によつて、雲の内部を何回も上下する。そうした長い道中には、雲粒の千個位に 1 個の割合で含まれている海塩雲粒にも衝突するであろう。今、海塩雲粒が 10^3 個に 1 個の割合で雲粒中に混在し、その NaCl の含有量を 10^{-10} g とすれば、 10^6 個の雲粒が集つて出来たあられには平均 10^{-7} g の割合で NaCl が含まれていることになる。筆者の観測では、あられ粒に 10^{-8} ~ 10^{-7} g の NaCl が含まれていることは、めづらしいことではなかつた。

雲粒付の雪片についても同様なことがいえる。1,000 個の雲粒が付着した雪の結晶が 100 個集つて雪片を形成している場合、 10^5 個の雲粒をもつことになる。このうちには海塩雲粒も相当多く含まれていると考えられる。

一般に付着している雲粒の数が多きほど、その中に混入している海塩雲粒の数も多く、従つて 1 個の降水要素中に含まれる NaCl の量も多くなる。第 IV 節の (2) の第 2 図に示した関係は、このことで説明がつく。また同時に、付着した海塩雲粒が多いほど、その降水要素中に含まれる NaCl の濃度が統計的に見て平均化される筈である。第 3 図の点線で示したように、大きな雪片ほど濃度のバラツキが小さくなる関係は、このことで説明がつく。

(iii) について。Woodcock¹⁾ が飛行機で大氣中に浮遊している海塩粒子を観測して 10^{-12} ~ 10^{-7} g の範囲の海塩の粒度分布を求めたことは、前にも述べた通りである。この結果にまつまでもなく、雲底下の大氣中に海塩粒子が多数存在することは以前から知られていた¹⁹⁾。雪片・あられなどが落下の途中で、それらの浮遊海塩粒子を捕捉してくることは当然考えられる。しかし、雲底から地上に達するまでの僅か 1 km くらいの距離を落下してくる間に、これほど多くの NaCl を捕捉して来ると考えるのは少し無理である。

巨大なあられが雲底を出てから地上に達するまでの時間は、せいぜい 200 秒である。それにも拘らず 10^{-9} ~ 10^{-7} g の NaCl がその中から見出されるという事実は、(iii) が大きな因子ではあり得ない一つの証拠と考える。

以上により、個々の降水要素中に含まれる NaCl は、主として、雲内部に混在している海塩雲粒の捕捉に起源をもつものと筆者は考える。

V. む す び

1 個 1 個の雨滴・あられ・雪片などに含まれる NaCl の量は、もしそれを固体として凝縮させることができれば普通の光学顕微鏡を用いても容易に観察できるほど多いことがわかつたので、実際の降水要素の 1 個 1 個についてそのことを試みた。そして写真例に示すような巨大な海塩結晶を見出した。

現在までの少い観測結果によるものではあるが、次の結論に達した。

(1) 海塩は北西季節風が強い時に降る驟雪の雲粒付の雪片・あられに多く含まれ、南方暖気団による地雨、地雪のときには予想外に少い。

(2) 雲粒付の雪片・あられは、その水滴換算の体積が大きいほど、含まれている NaCl の量も多くなる(第 2 図)。しかし、水滴換算の体積が大きいほど NaCl の濃度は小さくなり、かつ平均化してくる傾向がある(第 3 図)。この塩分濃度に関して、Turner が海から強風が吹いた時に降つた Bergeron 型の雨の雨滴に含まれる塩分量を観測して得た結果と比較すると(第 4 図)、塩分濃度と雨滴の大きさの関係が大体同じような傾向にあることがわかつた。

(3) 以上のことから、降水要素中に含まれる海塩の溶入機構としては、多数の無塩雲粒中に混在する少数の海塩雲粒が、雲内部の強い対流活動のため雪片、あられなどに付着して各降

水要素中に含まれるに至つたと考えるのが適當のようである。

得られた立方状結晶は、相転移法にもとづいて NaCl と断定したが、今後は電子線回折法などを行なつて、さらに詳しく調べる予定である。また、空気の清浄な場所で観測を行なう必要もあると考えられる。

おわりに、この研究に対して種々有益な助言をいただいた吉田順五教授、黒岩助教授に厚くお礼を申し上げます。

文 献

- 1) 黒岩大助・只野文哉 1951 超電子顕微鏡による霧核の研究. 低温科学, **7**, 51.
黒岩大助 1953 電子顕微鏡による霧核の研究. 低温科学, **10**, 39.
- 2) Kumai, M. 1951 Electron-microscope study of snow-crystal nuclei. *Jour. Met.*, **8**, 151.
- 3) Isono, K. 1955 On ice-crystal nuclei and other substances found in snow crystals. *Jour. Met.*, **12**, 81.
- 4) Woodcock, A. H. and M. M. Gifford. 1949 Sampling atmospheric sea-salt nuclei over the ocean. *Jour. Mar. Res.*, **8**, 177.
_____ 1952 Atmospheric salt particles and raindrops. *Jour. Met.*, **9**, 200.
- 5) Twomey, S. 1953 The identification of individual hygroscopic particles in the atmosphere by a phase transition method. *Jour. Appl. Phys.*, **24**, 1099.
_____ 1955 The distribution of sea salt nuclei in air over land. *Jour. Met.*, **12**, 81.
- 6) Crozier, W. D. and B. K. Seely. 1950 Some techniques for sampling and identifying particulate matter in the air. New Mexico School of Mines, Technical Report No. 3-NR.
- 7) Lodge, J. P. 1954 Analysis of micron-sized particles. *Anal. Chem.*, **26**, 1829.
- 8) Ludlam, F. H. 1951 The production of showers by the coalescence of cloud droplets. *Quart. Jour. Roy. Met. Soc.*, **77**, 402.
- 9) 樋口敬二 1954 降雪の結晶形, 大きさ, 質量の同時観測の方法について. 気象集誌, **32**, 77.
- 10) Owens, J. S. 1926 Condensation of water from the air upon hygroscopic crystals. *Proc. Roy. Soc., A*, **110**, 738.
- 11) 井上直一 1950 低温用湿度計の研究. 低温科学, **3**, 1.
- 12) 例えば 竹内丑雄・中沢全一 1951 降水中の塩素量と気団の関係. 気象集誌, **II**, **29**, 96.
- 13) Cunningham, R. H. 1941 Chloride content of fog water in relation to air trajectory. *Bull. Amer. Met. Soc.*, **22**, 17.
- 14) 大喜多敏一・辻博 1957 旭川附近における降水中の塩素量の長期観測結果. 1957 年度春季日本気象学会で発表.
- 15) Turner, J. S. 1955 The salinity of rainfall as a function of drop size. *Quart. Jour. Roy. Met. Soc.*, **81**, 418.
- 16) Köhler, H. 1922 Zur Kondensation des Wasserdampfes in der Atmosphäre. *Geophys. Pub.*, **2**, 6.
- 17) 山本義一・大竹武 1954 電子顕微鏡による雲霧核の研究. 気象集誌, **II**, **32**, 242.
- 18) 荻原晰二・大喜多敏一 1952 電子顕微鏡による雲及び霧核の研究. 気象集誌, **30**, No. 2, 132.
- 19) 例えば Wright, H. L. 1940 Atmospheric Opacity at Valentia. *Quart. Jour. Roy. Met. Soc.*, **66**, 66.

Résumé

This work was performed with the purpose to determine by means of microscopic observation the quantity of NaCl contained in the individual precipitation elements such as rain drops, graupels and snowflakes.

For the present purpose the experimental procedure was as follows. The falling precipitation elements were received on a cleaned glass slide coated with hydrophobic Dri-film and were photographed by Higuchi's shadow-photograph method (Photo. 1-a). Then the precipitation elements were melted to water droplets when they were graupels or snowflakes (Photo. 1-b). Since the water droplets lay on the slide in hemispherical form, their volumes could be determined from their diameters. The water drops were then evaporated and the impurities contained within them remained as residuals in irregularly spread patterns on the glass slide (Photo. 2-a). But when water vapor was condensed on the residuals to form water droplets and they were evaporated again, the residuals tended to collect themselves into several patches. The repetition of such a process of condensation and evaporation brought them finally into one or several cubic crystals with some irregularly formed deposits around them (Photos. 2-b, 3-b, 4, 6, 8, 9 and 10. Photo. 2: Residuals of a snowflake which fell in the half-melted state. Photo. 3: The residual of a snowflake; (a) at first the residual appeared as dendritic crystals, but (b) when recrystallized, they changed into cubic crystals, Photo. 4: Cubic crystal found in the residual of a snowflake. Photo. 6: Large cubic sea-salt crystals found in the residual of a snowflake. Photo. 6: (b) enlarged photo. from (a), (c) recrystallized cubic crystals. Photo. 8: (a), (b) Dendritic crystals found in the residual of a large graupel, (c) pyramid-like crystal in the same residual. Photo. 9: Cubic crystals found in the residuals of snowflakes. Photo. 10: Cubic crystals found in the residual of a rain drop).

The cubic crystals gained in this way can well be considered as those of NaCl judging from their external appearances. Examination by phase-transition method showed also that they were made of that substance (Fig. 1: schematic representation of apparatus for controlling relative humidities in the dish A, in which the specimens were placed. Photos. 3-c. 5-d: cubic crystals melting in atmosphere of 75% relative humidity).

The quantity of NaCl contained in each individual precipitation element was then obtained by determining the dimensions of the crystals under an ordinary optical microscope. The largest crystal obtained up to the present is about 2×10^{-6} g (Photo. 6-a).

The following relationships were found between the content of NaCl in the precipitation elements and the weather conditions:

(1) Most of the larger NaCl crystals were found in the residuals of the precipitation elements of showery type: that is, rimed snowflakes or graupels which were produced in cumulo-nimbus clouds developing in northern cold air that had travelled over a warm sea surface. It should be noted that such showery precipitations occur generally with the strong winter monsoon which surely gives rise to much sea water spray.

(2) The quantity of NaCl contained in rain drops or snow crystals produced in alto-stratus or nimbo-stratus clouds which were derived from southern maritime air were

unexpectedly small.

(3) The larger the precipitation element the larger the amount of contained NaCl (Fig. 2: Ordinate: NaCl-content found in the residuals of individual snowflakes. Abscissa: sizes of snowflakes when reduced to water drops). But its concentration tended to decrease as the element became larger. (Fig. 3: Ordinate: NaCl-concentration of individual snowflakes. Abscissa: sizes of snowflakes when reduced to water drops). J. S. Turner made observations on the NaCl content of rain drops. Their masses were smaller than those of the precipitation elements observed by the present author but they showed the same tendency to increase in NaCl content with increase in mass as was found by the author.

Turner's results are represented in Fig. 4, the straight line sloping down from left to right of which the elongation passes near by the circular marks representing the results of the present author obtained on snowflakes. (Fig. 4: The salinity of snowflakes plotted against drop diameters. Comparison of the present results (circular marks) with those of Turner. Turner obtained this curve when he observed rain drops close to the sea (the Radiophysics Laboratory), under the condition of strong wind (more than 20 kt/hr) which blew from the direction of the sea).

(4) NaCl in the precipitation elements can be thought to have come from the droplets of sprayed sea water captured by them while the droplets were floating among numerous non-saline droplets within the cloud.