



HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	準実スケール人工雲実験施設を用いた硫酸アンモニウムエアロゾルが雲粒生成に与える影響の検討
Author(s)	山形, 定; 三浦, 二郎; 太田, 幸雄 他
Description	I. 雲凝結核・氷晶核特性の測定とモデル化
Citation	低温科学, 72, 21-27
Issue Date	2014-03-31
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/55014
Type	departmental bulletin paper
File Information	LTS72_004.pdf



準実スケール人工雲実験施設を用いた 硫酸アンモニウムエアロゾルが雲粒生成に与える 影響の検討

山形 定¹⁾, 三浦 二郎¹⁾, 太田 幸雄¹⁾, 藤吉 康志²⁾

高度 430 m におよぶ準実スケールの人工雲実験施設において硫酸アンモニウムエアロゾル粒子を発生させ、雲核活性化が起きる高度 40 m 程度までのエアロゾル、雲粒について測定をおこなった。バックグラウンド粒子数濃度を低下させたことにより、実験室用粒子発生装置を用いた安定的なエアロゾル粒子供給が可能となった。エアロゾル粒子および雲粒を同時に捕集可能な 2 段式インパクターを用い複数高度で両粒子の数濃度、粒径分布を求めた。粒子発生用の硫酸アンモニウム溶液濃度を高くすると、発生粒子個数が増加したが粒径に大きな変化は見られなかった。エアロゾル粒子数増加により生成する雲粒粒子数は増加、雲粒径は減少し、Twomey 効果が検証された。

Study on the influence of ammonium sulfate aerosol on cloud droplets utilizing Artificial Cloud Experimental System (ACES) with semi-real scale

Sadamu YAMAGATA¹, Jiro MIURA¹, Sachio OHTA¹, Yasushi Fujiyoshi²

Ammonium sulfate particles were generated at the bottom of semi-real scale Artificial Cloud Experimental System (ACES) which has 430m total height. In order to study the influences of aerosol particles to the cloud droplets simultaneous sampling at several altitudes was carried out up to 40m high from the bottom where CCN activation dominated. Reduction of background particles allowed the use of an aerosol generator for laboratory experiments which resulted in stable aerosol generation. Aerosol particles and cloud droplets were collected simultaneously by 2-stage impactors at several altitudes to obtain number concentrations and size distributions of particles and droplets. High concentration of ammonium sulfate solution for aerosol generation resulted in the increase of number concentration of aerosol particles while the particle diameter changed little. Due to this increase the number concentration of cloud droplets increased while the diameter of droplets decreased, which confirms Twomey effect.

1. はじめに

鉱山の立坑を用いた人工雲実験は、藤吉および山田によって 1989 年に構想され、その後 1992 年から 1993 年まで北海道上砂川町の三井炭坑南部排気立坑で、その後 1995 年から 2006 年まで岩手県遠野市の釜石鉱山日峰中央立坑で繰り返し実験がおこなわれた（藤吉ほか 1998；山形 2003）。水平方向は数メートルしかないものの、実大気と同規模の高低差を持つ準実スケール実験シ

ステムとして、実大気観測と室内実験の橋渡しをおこなうことが期待される。このシステムの最大の特長は同一条件で雲を繰り返し生成可能であること、同一の雲を定常的に発生させられることであり、そこではさまざまな実験結果が得られている（山田ほか 1995；播磨屋ほか 1998；Izumi et al. 2004；Utiyama et al. 2001；Yamagata et al. 2004）。

エアロゾルが気候に与える影響には、太陽光や地球放射に直接関わる直接効果とともに、エアロゾルが雲核として働くことを通じ気候に影響する間接効果がある。エアロゾル数が雲粒数と雲粒径に関与することを通して気候に影響与える Twomey 効果（Twomey 1977）をはじめとするエアロゾルの間接気候影響は、温室効果ガスをはじめとするさまざまな気候影響因子の中で現在最も不確定性の大きなものであり（IPCC, 2013）、現在もさまざまな検討が進められている（Tao et al. 2012）。

釜石鉱山での人工雲実験は 2006 年を最後に中断して

連絡先

山形 定

北海道大学 大学院工学研究院

e-mail: yamagata@eng.hokudai.ac.jp

1) 北海道大学 大学院工学研究院

Graduate School of Engineering, Hokkaido University

2) 北海道大学低温科学研究所

Institute of Low Temperature, Hokkaido University

いるが、ここでは釜石鉱山立坑に流入する空気の清浄化を実現することにより可能となった、硫酸アンモニウム粒子個数が生成する雲粒数および雲粒径に与える影響について2002年のデータを中心に報告する。

2. 方法

実験は2002年11月10～16日に岩手県遠野市の釜石鉱山日峰中央立坑内のACES(図1)で行なった。また翌2003年11月24～28日におこなった実験データを補足的に用いる。ACESは高低差430mの廃鉱となった立坑で、坑頂部分には上昇気流を発生させるためのファンが設置してある。立坑内は全高度に渡り、はしごによってアクセスでき、全高度域ではしご部の踊り場を利用した機器の設置、雲の観測が可能となっている。坑道内の空気は地下水が存在することにより相対湿度がほぼ100%になっているが、この空気が立坑内を上昇し断熱的に膨張すると気温が低下し水蒸気過飽和状態となる。エアロゾル粒子の人為的発生などにかかわらず、水蒸気過飽和度が最も高くなるのは坑底から高度30～50m付近であり、それよりも高い高度では雲粒数の増加

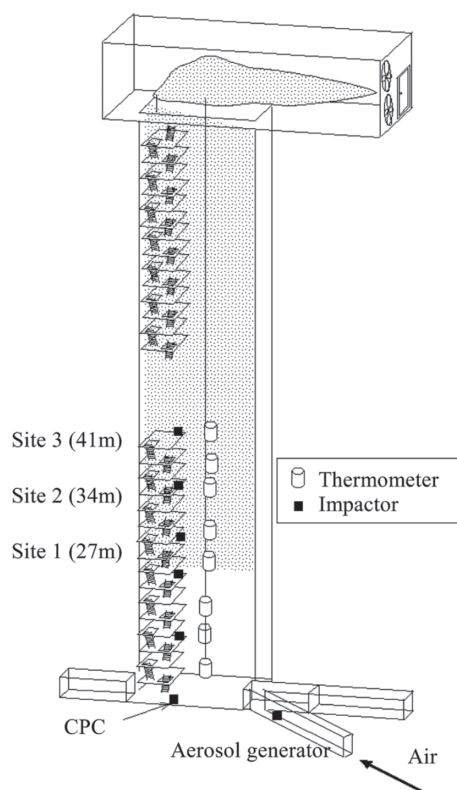


図1：ACES内の実験装置設置状況。それぞれの高度に雲粒とエアロゾル捕集をそれぞれのインパクション面に同時サンプリングするインパクターが設置してある。坑底では硫酸アンモニウムエアロゾルの発生、モニタリングがなされた。

Figure 1: Experimental setup in ACES. Impactors were set at each sampling site to collect cloud droplets and aerosol particles simultaneously on each impaction plate. At the bottom of ACES $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ aerosol particles were generated and monitored.

は見られず、雲粒径が徐々に大きくなることがこれまでの予備的観測によりわかっている。このため本実験では坑底から高度40mまでの地点で集中的に観測を行なった。

坑頂に2つあるファンの運転組み合わせにより立坑内の上昇風速は、自然通気状態および0.8～1.4mで3段階に制御可能である。坑底で大気中に存在し雲核として作用すると考えられている硫酸アンモニウム $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ を、実験室用粒子発生装置(TSI, 3076)で発生させた。立坑内を上昇する気塊中の硫酸アンモニウム粒子分布ができる限り一様にさせるために、粒子の発生は立坑入口よりも30m程度風上でおこなった。従来はバックグラウンド粒子数が多かったためミスト発生装置で粒子を大量に発生させていたが、坑内空気流入路の変更などによりバックグラウンド粒子数濃度を低下させた結果、より粒子発生量のコントロールのしやすい実験室用粒子発生装置の使用が可能となった。

立坑内の温度および湿度は、観測期間中坑頂から10m毎につり下げた温湿度センサー(HOBO, H08-032-08(気温・湿度), H08-030-08(気温))で一定時間毎に記録した。立坑内の上昇流の風速は、各年の観測終了後に、坑頂および坑底付近の2点で風速計(Kanomax, Anemomaster 6011)を用い測定した。

坑底におけるエアロゾル粒子を、10nm～1 μm の全粒子数濃度を測定するCPC(Condensation Particle Counter, TSI 3007)で測定すると同時に、孔径0.1 μm のニュークリポアフィルター(Advantec, K-010A)上に捕集した。エアロゾルサンプルは実験室に持ち帰り電子顕微鏡(Hitachi, S3200N)で観察し、合わせてX線分析により成分元素について明らかにした。電子顕微鏡は対象物を真空状態で観察するため、得られるエアロゾル粒径は乾燥粒径となっている。

同一空気サンプル中の雲粒とエアロゾル粒子を捕集するために使用した2段式インパクターの概要を図2に示す。インパクターの下流側に接続したプラスチック製シリンジのプランジャーをモーター駆動させ3.6[L/min]でサンプル空気を吸引すると、空気中に含まれた雲粒・エアロゾル粒子がインパクター内に導入され、雲粒・エ

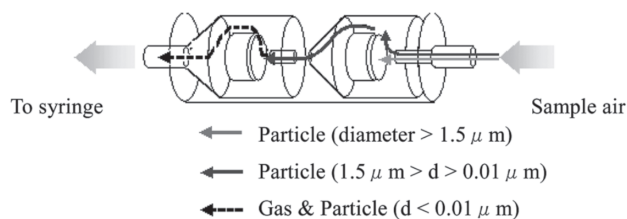


図2：ACES実験で雲粒および雲粒間エアロゾル粒子を捕集するために使用された2段インパクターの概要。

Figure 2: Outline of the 2-stage impactor used for sampling of cloud droplets and interstitial aerosol particles during experiments in ACES.

アロゾルがそれぞれの粒径に応じて上段，下段の衝突面にそれぞれ分離捕集される構造となっている。

2 段式インパクターの上段では空気力学径 $1.5\ \mu\text{m}$ 以上の雲粒がスス薄膜上に，後段ではそれ以下のエアロゾル粒子がニュークリポアフィルター上に衝突捕集される。雲粒数濃度，雲粒径が大きく変化する環境下では，捕集される雲粒が少なすぎたり，多すぎて痕跡が重なるなどの問題が生じる。立坑内の採気量はこれまでに得られた雲粒数濃度の結果より $50\ \text{cc}$ とした。サンプリングは，インパクターを立坑内に $1\ \text{m}$ ほど突き出し，ノズル穴を気塊の流線方向である下向きにしておこなった。

図 3 の (A) に雲粒の痕跡の一例を示す。雲粒の痕跡はデジタルマイクロスコプ (Keyence VHX6300) によって痕跡数と痕跡径を計測した。観察時には光源を対象物側面におき，水滴衝突痕の凹面の陰影が明瞭になる

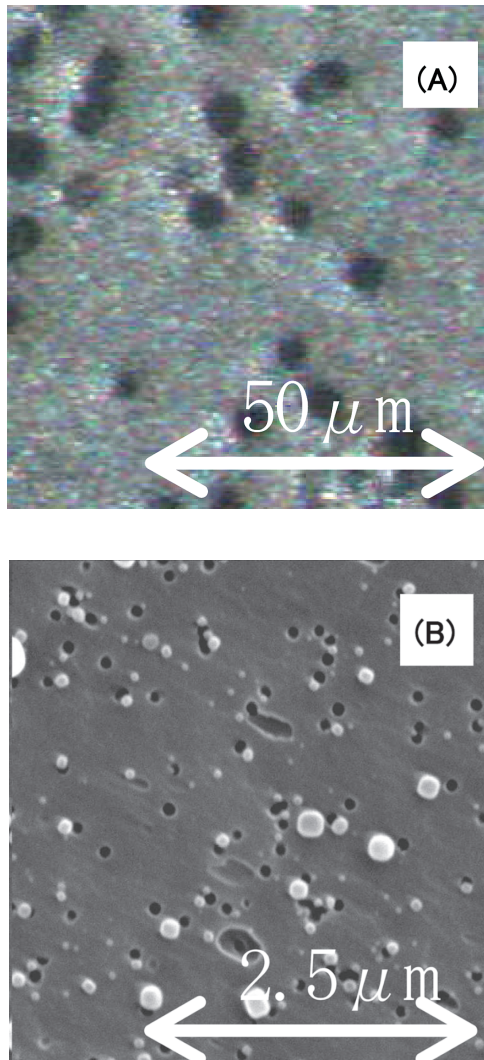


図 3：ススを被覆した上段衝突面に捕集された雲粒のマイクロスコプ像 (A) および後段衝突面に捕集された雲粒間エアロゾル粒子の走査型電子顕微鏡像 (B)。

Figure 3: Microscopic image of cloud droplets (A) sampled on the soot coated upper impaction plate of the 2-stage impactor and scanning electron microscopical image of interstitial aerosol particles (B) on the lower impaction plate of the impactor.

よう調節した。デジタルマイクロスコプの分解能は $0.2\ \mu\text{m}$ 程度であり，境界部分による測定誤差によって検出限界が決まる。測定誤差の 3 倍である $0.8\ \mu\text{m}$ を雲粒粒径の検出限界，および雲粒径の最低分解能とした。

すす捕集面の痕跡径を実粒径に換算する検量線を作成するため，ツェーデル油とススで 2 等分されたインパクター捕集面に，超音波噴霧器で発生させた霧 ($2\sim 100\ \mu\text{m}$) を捕集した。ツェーデル油中に捕集され球形を維持している水滴の径を実粒径として，スス上の痕跡径を校正した。この水滴径の範囲内では，ツェーデル油内の水滴径はスス上痕跡径と比例定数 0.66 の直線関係にあったため，雲粒の実粒径 = スス痕跡径 $\times 0.66$ とした。

雲核の定性にはエアロゾル粒子と同様に走査電子顕微鏡—X 線マイクロアナライザーを用いた。炭素のみからなるススを雲粒痕跡のために用いることで炭素以外のブランクを低減したため，X 線マイクロアナライザーによる雲核の定性が容易となった。雲核の走査型電子顕微鏡観察では，雲核として作用したと考えられる残留物の形態が観察時に必要な電子線照射によって変化する可能性があるため，輪郭の判別が可能な最低限のレベルの電子線照射で倍率は $1000\sim 6000$ 倍で観察した。2 段インパクターの下段衝突面に捕集されたエアロゾル粒子の観察にも走査型電子顕微鏡を用いた。

3. 結果および考察

3.1 ACES 内の気温

観測期間中の坑底温度は非常に安定しており日中，夜間を通して $13.0\sim 13.2^\circ\text{C}$ 以内の変動にとどまっていた。温度プロファイルの例を図 4 に示す。これまでに起こった観測で得られたものと同様に高度 $30\ \text{m}\sim 50\ \text{m}$ で気温減率の小さな領域が観測された。この領域は雲が発生し始める高度であり，過飽和状態の水蒸気が凝縮により大量の熱を発生しているものと考えられる。坑底でエアロゾル粒子を発生している期間についても温度プロファイルに大きな変化は見られなかった。雲の生成には相対湿度あるいは水蒸気過飽和度のデータが重要であるが，立坑内は全高度に渡って相対湿度がほぼ 100% となっている。そのような状況において，相対湿度あるいは水蒸気過飽和度を，高度プロファイルを作成できる精度で測定することは困難であった。

3.2 坑底におけるバックグラウンドエアロゾル粒子および発生エアロゾル粒子の評価

バックグラウンド時に坑底で CPC によって計測された $10\ \text{nm}$ 以上の全粒子数は $1000[\text{個}/\text{cc}]$ のレベル， $0.3\ \mu\text{m}$ 以上の粒子数は $10[\text{個}/\text{cc}]$ レベルと清浄な海洋上大気レベルであった。

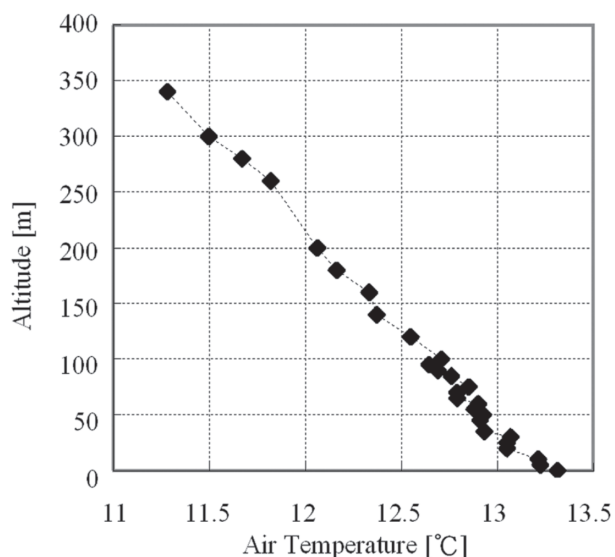


図4：ACES内気温の高度プロファイル（2003年11月24日）

Figure 4: Vertical profile of air temperature in ACES on 24 Nov. 2003.

坑底で捕集されたエアロゾル粒子の電子顕微鏡観察およびX線分析の結果、硫酸アンモニウム以外のエアロゾル粒子は粒径が $0.4\sim 8.0\mu\text{m}$ の領域にあり、釜石鉱山で産出される炭酸カルシウムや鉄を含む鉱物系のものが主体であり、海塩粒子がその数分の一程度含まれていた。

発生された硫酸アンモニウム粒子は立坑入口までの湿度100%に近い環境下を20秒程度運ばれた後に立坑に入り上昇し始める。図5に気塊が上昇し始める直前に坑底のCPCで測定されたエアロゾル粒子総数の時間変化例（2003年11月25日）を示す。エアロゾル粒子発生は10時に開始し、11時30分には発生条件を維持したままファンの稼働条件を変更させ風速を $0.8[\text{m}/\text{sec}]$ から $1.0[\text{m}/\text{sec}]$ へ、さらに11時45分には同様に粒子発生条件を維持したまま風速を $1.0[\text{m}/\text{sec}]$ から $1.5[\text{m}/\text{sec}]$ に上昇させた。粒子発生直後に粒子数は、 $1400[\text{個}/\text{cc}]$ から $2400[\text{個}/\text{cc}]$ に $1000[\text{個}/\text{cc}]$ 程度急増した後、

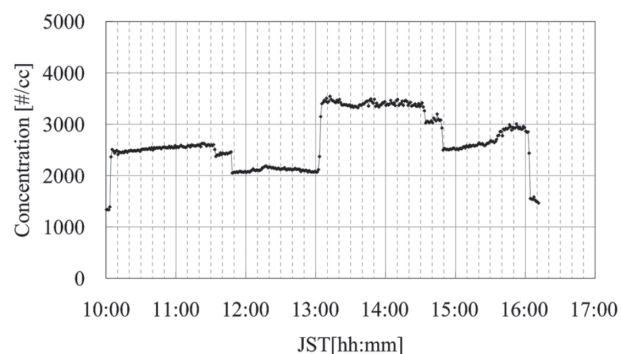


図5：ACES坑底でCPCによって計測された全粒子個数濃度の時間変化（2003年11月25日）

Figure 5: Time series of total aerosol number concentration measured at the bottom of ACES with CPC on 25 Nov. 2003.

徐々に増加した。発生粒子数を一定に保ったまま風速を上昇させた11時30分および11時45分には全粒子数濃度が段階的に低下した。これは風速を上げたことにより粒子の希釈が起きたためである。13時に粒子の発生個数を倍増させ、風速を最初の実験条件である $0.8[\text{m}/\text{sec}]$ に低下させると、粒子数濃度は最初の粒子発生時にバックグラウンドから増加した個数濃度 $1000[\text{個}/\text{cc}]$ のほぼ2倍に相当する粒子数濃度 $3400[\text{個}/\text{cc}]$ となった。以上の結果より、雲核として作用する硫酸アンモニウム粒子の供給粒子数は実験期間中安定的におこなわれ、雲生成へのエアロゾル粒子の影響を評価するために十分な実験条件が得られていたと考えられる。

3.3 バックグラウンド雲粒の評価

バックグラウンド観測時に高度40m地点において2段インパクターで捕集された雲粒痕跡94個を対象に雲核成分の元素分析をおこなった結果、その73個は硫黄(S)を含んでいた。19個からは何の元素も検出されなかったが、これは観察時の電子線照射によって蒸発したものと考えられる。いずれの元素も検出されなかった雲粒痕跡に雲核として含まれていたものは、電子線照射で揮発する硫酸アンモニウム粒子と考えられるが、有機エアロゾルの可能性も否定できない。これは、衝突面がスス(C)であり、有機エアロゾルの検出ができないためである。

硫黄を含んだ73個の痕跡の中で18%が鉄(Fe)やケイ素(Si)を含んでおり、その雲粒個数濃度は $2.2[\text{個}/\text{cc}]$ であった。硫酸アンモニウム粒子を発生させた場合には、水蒸気の凝縮が起こりやすくなり、水蒸気の最大過飽和度はバックグラウンド時よりも低下すると考えられる。したがって、硫酸アンモニウム粒子を発生させた場合に鉱物粒子を含んだ雲粒は最大でも $2.2[\text{個}/\text{cc}]$ と考えた。

2段インパクターの後段に捕集されるエアロゾル粒子は、雲中の雲粒間に浮遊していた粒子であり活性化しなかったものである。雲が発生する前の全エアロゾル粒子の一部は活性化して雲粒に成長する。残りのエアロゾル粒子は雲粒間に浮遊するため、雲発生前の全エアロゾル粒子数と雲粒間の残存エアロゾル数の差が生成した雲粒数と一致する。雲生成前後の全エアロゾル粒子数の差から求めた雲核数濃度と雲粒数濃度の関係を図6に示す。両者はほぼ1:1の直線関係にあり、エアロゾル粒子数濃度の減少が雲粒数濃度の増加で説明できること、すなわちACESの高度40m付近までではエアロゾル粒子や雲粒の壁面や鉛直方向への沈着、外部から異なる気塊の流入によるエアロゾル粒子数の増減などを考慮する必要がないことがわかる。

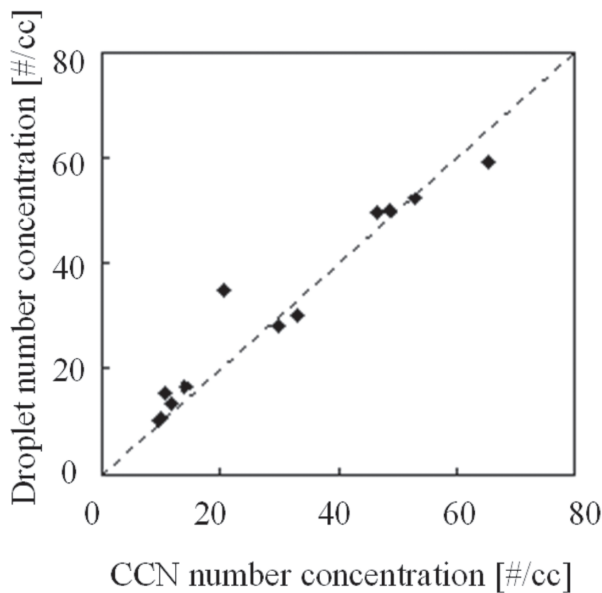


図6：雲底下および雲中において2段階インパクターで捕集されたエアロゾル粒子および雲粒数から得られた雲核数濃度と雲粒数濃度との関係

Figure 6: Relationship between number concentrations of CCN and cloud droplet obtained from the 2 stage impactor below and in cloud

表1：ACES 実験パラメータ (2002 年 11 月)

Table 1: Parameters in ACES experiments in Nov. 2002

Case	Aerosol particle		Wind speed [m/sec]
	Conc. [# /cc]	Dp[μ m]	
1	12.4	0.07	0.6
2	27.3	0.07	0.6
3	202.2	0.07	0.6
4	158.7	0.07	0.9

3.4 硫酸アンモニウム粒子発生時の雲粒の評価

表1に2002年11月実験のパラメータを示す。上昇風速を一定のままエアロゾル粒子発生量を3段階(Case 1~3)に変化させた場合、およびエアロゾル粒子発生量を一定のまま上昇風速を2段階(Case 3, 4)に変化させた場合の雲の生成に与える影響を評価した。

雲粒を捕集した高度は坑底から27 m (Site 1), 34 m (Site 2), 41 m (Site 3)である。エアロゾル粒子数濃度は10~200[個/cc]であり、清浄な洋上大気から人為発生源の影響を受けた洋上大気レベルである。また、上昇風速は積雲レベルである。

2段階インパクター下段に捕集されたエアロゾル粒子の乾燥粒径分布を図7に示す。エアロゾル粒子のモード径は噴霧した硫酸アンモニウム溶液の濃度に関わらず一定で、乾燥粒径0.07 μ mを示した。粒径分布がほぼ一定のまま数濃度が変化していることがわかる。

図8に雲粒粒径分布と雲水量の高度プロファイルを示す。エアロゾル粒子数濃度が12.4[個/cc]と低いCase 1では、高度27 mのSite 1で4 μ m付近にピークがあっ

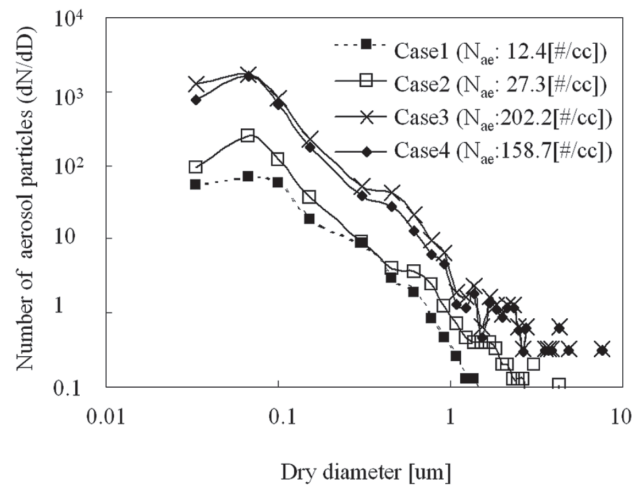


図7：ACESの雲底下において2段階インパクターの後段衝突面に捕集されたエアロゾル粒子の粒径分布。N_{ae}は乾燥粒径0.03 μ m以上の粒子数濃度。

Figure 7: Size distribution of aerosol particles below cloud base in ACES sampled by the 2-stage impactor on its second stage. N_{ae}: number concentration of aerosol particles with dry diameter > 0.03 μ m.

た分布は、高度34 mのSite 2に上昇するとピークが低くなるとともに5 μ mよりも大きな粒径域の雲粒が増えている。さらにSite 3に達すると粒径分布のピークが5 μ mにシフトしており、この高度域で新たな雲核の活性化による雲粒数の増加は抑制されていることがわかる。生成した雲粒の粒径は12 μ m以下と小さく併合はほとんど起きない領域であるため、雲粒の成長は水蒸気の凝縮によるものであり、併合による雲粒数の減少も生じていないと考えられる。以上の結果から、硫酸アンモニウムエアロゾル粒子数濃度が10[個/cc]程度の場合には一旦エアロゾル粒子の一部が雲核として働き活性化すると、その直後から雲粒数の増加は抑制され、水蒸気の凝縮は既存雲粒の成長に使われることがわかる。

一方、エアロゾル粒子数濃度が27.3[個/cc]のCase 2では、高度41 mのSite 3まで気塊が上昇しても雲粒の粒径分布のピークは4 μ m付近のままであり、引き続き雲核の活性化が起きて雲粒数が増加し続けている。エアロゾル個数が12.4[個/cc]から27.3[個/cc]へ2倍弱増加しただけで、水蒸気の凝縮先が既存の雲粒から、雲核として作用するエアロゾルへと変わっていることは興味深い。さらにエアロゾル粒子数濃度が増え200[個/cc]程度になると雲粒数が増加すると共に、エアロゾル粒子数濃度が27.3[個/cc]の時よりも各雲粒の成長が抑制され雲粒粒径分布のピークが3 μ m程度に小さくなった。

図9に雲水量(A)、モード粒径(B)、雲粒数(C)の高度変化を示す。同一高度でCase毎の雲粒数(C)を比較すると、硫酸アンモニウムエアロゾル粒子数が増加するにつれ、雲粒数は増加した。これは水蒸気量を維持したまま硫酸アンモニウムエアロゾル粒子数濃度を増加させると、雲粒数濃度は増加し、雲粒径が減少するという

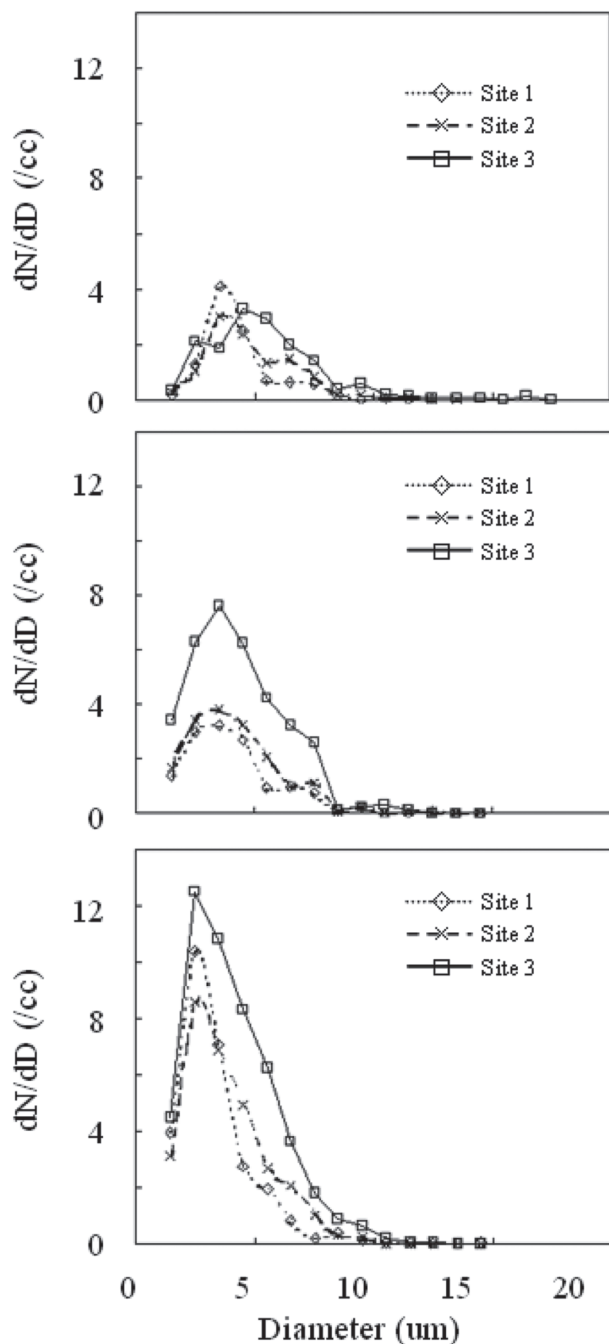


図8：各サンプリング高さで観測された雲粒の粒径分布
Figure 8: Size distributions of cloud droplets observed at each sampling site.

Twomey 効果の実験的検証である。エアロゾル粒子数増加に従い雲粒数が増加する一方、雲粒のモード径(B)は小さくなる傾向を示した。雲水量も増加したものの変化の割合は雲粒数や粒径ほど顕著ではなかった。これは、上昇風速が一定のため過飽和となって凝結する水蒸気量が一定であるためであり、粒子数が多いほど雲水量が多くなるのは、過飽和水蒸気が大量に存在するエアロゾル粒子によって効率よく凝結した結果と考えられる。

上昇風速を上げた場合には雲粒捕集地点を通過する風量が増える結果、気塊の水蒸気濃度は同じままでも凝結可能な水蒸気量が増加するため、雲水量が増加すると考

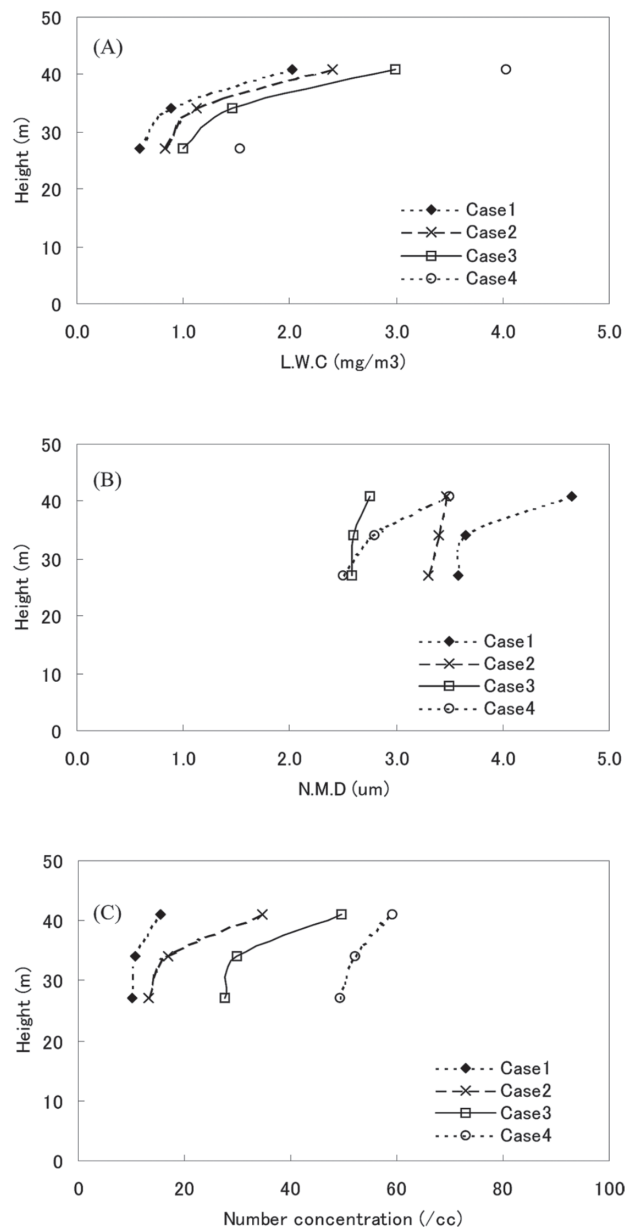


図9：雲粒の雲水量(A)，メジアン径(B)，数濃度(C)の高度プロファイル

Figure 9: Vertical profiles of liquid water contents (A), Median diameter (B), and number concentrations (C) of cloud droplet.

えられる。Case 4 と Case 3 の差がこれに該当する。ここではエアロゾル粒子発生量が同じまま上昇風速を増加しているため、エアロゾル粒子数濃度が Case 4 では 158.7[個/cc]と Case 3 の 202.2[個/cc]よりも減少している。Case 1～3 の実験結果では粒子数が減少すると雲水量は小さくなるが、Case 4 では粒子数濃度が減少しているにもかかわらず雲水量が増加している。これは、凝結水蒸気量の増加効果が粒子数減少量の効果を上回ったためと考えられる。

4. おわりに

ACES は 3.3 に述べたように外部から異なる気塊の

流入がない実験系となっており，実大気中の雲生成では必然的に起こる乾燥気塊の取り込み，エントレインメントがない．航空機観測などで大気中の雲観測でエントレインメントの効果などが評価されている（Lu et al., 2008）が，このような実大気での雲生成現象を解釈するためにも ACES のようなエントレインメントのない実験系でエアロゾルと雲粒との関係を検討することは極めて有用であろう．ACES での実験にはさまざまな可能性があるが，ここで報告したエアロゾルと雲との関係を明らかにすることはその一つであり，さらに条件を変えてくわしく検討することが求められる．例えば，立坑内で生成した雲を含む気塊に，横坑から相対湿度の低い気塊を人為的に導入・混合させる模擬エントレインメント実験をおこなうことも可能である．このような実験結果と実大気中の雲観測とを並行しておこなうことにより，雲で起きているエントレインメントが雲粒に与える影響を評価することができると期待される．

5. 謝辞

人工雲実験に協力いただいた北海道大学工学研究科（当時）の松島健将氏，堀江弘泰氏，中島義晴氏，北海道大学大学院理学研究科（当時）の播磨屋敏生氏，佐々木聰氏に感謝いたします．

6. 参考文献

- 播磨屋敏生，佐々木聰，山田 正，藤吉康志，稲毛正昭（1998）立坑を用いた雲物理実験設備の構成と雲物理特性．北海道大学地球物理学研究報告，**61**：23-33．
- IPCC, 2013: Summary for Policymakers. In: Climate Change 2013: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change [Stocker, T. F., D. Qin, G.-K. Plattner, M. Tignor, S. K. Allen, J. Boschung, A. Nauels, Y. Xia, V. Bex and P. M. Midgley (eds.)]. Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA.
- Izumi, K., H. Ghilajidin, M. Utiyama, T. Fukuyama, S. Yamagata, S. Ohta (2004) A new method for measuring the deposition flux of small-sized water droplets with a polymeric water absorbent. *J. Aerosol Res.*, **19**, 142-148.
- 藤吉康志，播磨屋敏生，若濱五郎（1993）準実スケールの人工雲物理実験計画の紹介．*天気*，**40**，213-216．
- Lu, M.-L., G. Feingold, H. H. Jonsson, P. Y. Chuang, H. Gates R. C. Flagan, J. H. Seinfeld. (2012) Impact of aerosols on convective clouds and precipitation. *Rev. Geophys.*, **50** RG2001, doi:10.1029/2011RG000369.
- Tao, W.-K. J.-P. Chen, Z. Li, C. Wang, C. Zhang. (2012) Impacts of aerosols on convective clouds and precipitation, *Rev. Geophys.*, **50**, RG2001, doi:10.1029/2011RG000369.
- Twomey, S. (1977) The Influence of Pollution on the Short-wave Albedo of Clouds. *J. Atmos. Sci.*, **34**, 1149-1152.
- Utiyama, M., T. Fukuyama, S. Yamagata, S. Ohta, K. Izumi, T. Harimaya, Y. Fujiyoshi, T. Yamada, M. Inage (2001) Rate of sulfur dioxide removal artificial cloud experiments utilizing a long vertical shaft. *Water, Air and Soil Pollution* **130**, 325-330.
- 山田 正，日比野忠史，深和岳人，松浦正典，藤吉康志，播磨屋敏生，稲毛正昭，中津川誠（1995）実スケールの雲物理実験と降雨モデルによる雲の微物理過程の考察．土木学会論文集，**509/II**，1-13．
- 山形 定（2003）立坑を用いた人工雲実験．*エアロゾル研究*，**18**，266-270．
- Yamagata, S., T. Kuroda, T. Zaima, N. Murao, S. Ohta, Y. Fujiyoshi, T. Harimaya, T. Yamada, K. Izumi, T. Fukuyama, M. Utiyama (2004) Mineral particles in cloud droplets produced in an Artificial Cloud Experimental System (ACES). *Aerosol Sci. Technol.*, **38**, 293-299.