



Title	雲微物理モデルで定量的に考察した準実スケール人工雲実験施設内の気温，相対湿度，水の安定同位体比の鉛直分布
Author(s)	藤吉，康志；マジックモンキープロジェクトメンバー
Description	II．詳細雲微物理モデルの開発と応用
Citation	低温科学，72，87-97
Issue Date	2014-03-31
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/55021
Type	departmental bulletin paper
File Information	LTS72_011.pdf



雲微物理モデルで定量的に考察した 準実スケール人工雲実験施設内の気温，相対湿度， 水の安定同位体比の鉛直分布

藤吉 康志¹⁾，マジックモンキープロジェクトメンバー

長さ 500 m 前後の準実スケールの雲科学実験施設で測定した気温の高度変化から，雲が発生しないときには乾燥断熱減率で，雲が発生した時には湿潤断熱減率で気温が下がること，さらに，雲底直下に厚さ数 10 m の気温減率遷移層を検出し，詳細雲微物理モデルを用いた計算と比較することにより，これが最大達成過飽和度高度に対応することを，世界で初めて実スケール大気中で実証した．さらに，雲底下と雲内の水の安定同位体比の測定を行った結果，雲水の安定同位体比が高度と共に減少すること，雲水の $\delta^{18}\text{O}$ と δD 分布もほぼ傾き 8 の直線で近似できることを実証した．一方，雲内の安定同位体比の鉛直分布を正確に再現するためには，レーリー蒸留モデルではなくエアロゾルの効果を考慮した詳細な雲微物理モデル，および実験室で求められた平衡分別係数とは異なる「雲内分別係数」が必要であることが分かった．

A quantitative consideration of vertical profiles of air temperature, relative humidity, and stable isotope ratios of water within the quasi-real scale Artificial Cloud Experimental System (ACES) by using a cloud microphysical model

Yasushi Fujiyoshi¹ and members of Magic Monkey Project

We formed a quasi-real scale cloud (more than a few hundred meters in depth) inside a long vertical shaft, Artificial Cloud Experimental System (ACES), under the ground. This paper will introduce ACES and show results which experimentally confirmed the aerosol effect on vertical profiles of air temperature, relative humidity and stable isotope ratios of water in a cloud. We succeeded in detection of the supersaturation layer near the cloud base. We were firstly able to study the validity of the Rayleigh condensation (distillation) model. By using detailed microphysical model and "Cloud Fractionation Coefficients", we were able to simulate vertical profiles of δD and $\delta^{18}\text{O}$.

1. マジックモンキープロジェクトの概要と目的

雲の形は複雑であり，複雑な物理・化学過程の結果雲が発生する．地球温暖化に伴う全球の水・エネルギー循環の変動を予測する作業の中で明らかになってきたことは，現実の雲の水平・鉛直分布や雲物理・乱流・放射特性の正確な実態が未だにほとんど分かっていないことであつた．自然界に存在する雲の研究方法としては，飛行機や気球などを用いた直接観測と，能動型（レーダな

ど）や受動型（カメラなど）センサーを用いたりリモートセンシングによる間接観測がある．しかし，自然界の雲を対象としている限り全く同じ雲を二度と見ることができないため，再現性が無いという実験科学として致命的な欠陥がある．野外で，雲底下の気塊とその空気塊で発生した雲を観測した例として本号Ⅱ章の航空機観測（小池）や，山にかかる地形性雲を利用した研究があるが（例えば，Bower et al. 1997; Borys et al. 2000; Mertes et al. 2005），雲の縁境界からの外部空気の混入（エントレインメント）の影響を除くこと，再現性，定常性を確保することは野外観測では困難である．List et al. (1986) には，当時の雲物理や雲化学実験装置のレビューと将来への期待が述べられている．2000 年代初めにはカールスルーエ工科大学のエアロゾルチェンバー施設 (AIDA; Aerosol Interactions and Dynamics in the Atmosphere aerosol facility chamber) (Möhler et al.

連絡先

藤吉 康志

北海道大学低温科学研究所

e-mail: fujiyo@lowtem.hokudai.ac.jp

1) 北海道大学低温科学研究所

Inst. Low Temp. Sci., Hokkaido Univ.

2001) が作られ, また宇宙線が雲に与える影響を実験的に検証しようとした欧州原子核研究機構 (CERN) の Cosmics Leaving OUTdoor Droplets (CLOUD) (Duplissy et al. 2010) などの大掛かりな実験装置もある. 我が国では気象研の雲生成チャンバー (本号 II 章田尻他) のような優れた室内雲物理実験装置が作られ, 現在も改良中である. しかし, これらの装置内でも気温・気圧・湿度を相互にコンピューター制御することにより, 模擬的に“上昇気塊”を作っており実際に上昇流中で雲を発生させているわけではない.

そこで我々は三次元的な構造を有する複合系である自然界の雲と室内実験とを結ぶ橋渡しとして, 長さ数 100 m の長大鉛直立坑を鉛直 1 次元の準実スケールの雲科学実験施設として利用した実験をこれまで長期にわたって行ってきた. この施設はほぼ同じ条件で何度も繰り返す可能という実験科学として重要な要件を満たし, かつ上昇しながらの断熱冷却という実際の雲が発生するために必要不可欠な要素を確保できた. 従って, 雲底下から雲頂までつながった上昇気流中でのエアロゾルを含んだ湿潤大気の流れ・物理・化学的性質を測定することで, 雲を介在とした物理化学複合過程を理論や鉛直 1 次元モデルと比較することが可能であった. 岩手県遠野市の釜石鉱山日峰中央立坑で行った Twomey 効果 (Twomey 1977) の検証実験については本号 I 章山形他の論文で紹介されているので, ここでは立坑内で発生した準実スケールの人工雲内で実測した気温・湿度・酸素・水素安定同位体比の鉛直分布を詳細雲物理モデルで再現した結果について報告する.

この地下に雲を作る実験は, 1989 年 8 月に北大工学部の山田正助教授 (当時) から, 深さ約 700 m (直径 5.5 m の細い円筒形) の三井石炭鉱業 (株) 上砂川南部排気立坑を有効に利用した研究ができないかと相談を受けたことがきっかけで始まった. その後実験計画の推進母体である雲物理現象研究会 (会長: 若濱五郎北大低温研所長 (当時)) を 1990 年 5 月に設立し, 1991 年には三井建設 (株) の稲毛正昭技術部長 (当時) が獲得された技術開発プロジェクト予算で観測設備の設計と製作と現地調査を行い, 1992 年には 3 回, 1993 年と 1994 年に各 1 回の計 5 回実験を行った. その後, 諸事情により上砂川の鉛直立坑が閉鎖されたため新たな候補地を調査した結果, 岩手県遠野市上郷町に位置する釜石鉱山日峰坑中央立坑 (深さ 430 m, 幅 5 m で奥行 2.5 m の長方形) を利用して実験を再開し, 1996 年~2006 年の約 10 年間毎年 1 回ずつ実験を行った. 釜石立坑の岩盤は花崗岩質で, 石炭鉱である上砂川に比べて地質学的に極めて強固である.

なお, 本プロジェクトは孫悟空 (マジックモンキー) が自在に雲を操って活躍したことにあやかって, マジックモンキープロジェクトと命名した (図 1).



図 1: マジックモンキープロジェクトのロゴ
Fig. 1: Logo of Magic Monkey Project

2. 立坑内の気温と湿度の鉛直分布

2.1 上砂川南部排気立坑での測定例 (乾燥断熱減率と湿潤断熱減率の実測)

図 2 は鉛直立坑内の観測設備の配置図と作業風景である. 坑頂にある換気用大型ファンで空気を吸い込むことで, 上砂川南部排気立坑内に毎秒約 2 m s^{-1} の上昇流を発生させた. この上昇流内に観測用測器を搭載した観測ゴンドラを 50 m 間隔で 3~5 分間停止させて測定を行った. 装置の取り付けから巻き上げ後のデータ回収までを含めて 1 サイクルの測定に約 3 時間かかるため, 1 日で午前と午後各 1 回しか実験できない. ゴンドラの観測深度は, 巻上機ヘッドシープに取り付けたシンクロ発信機の信号をデジタルコンバーターを介してパソコンに取り込むことで記録した. ゴンドラは上中下 3 段のデッキに仕切られ, 上段には立坑内をモニターするためのビデオカメラと各種測定装置, 中段には雨滴観測用 CCD カメラと重心をとるためのバランスウェイトを, 下段にはバッテリーなどの電源設備を入れた. 気温・湿度・気圧の高度分布は, それぞれサーミスタ式温度計・高分子静電容量式湿度計 (バイサラ社製 HMP35A)・シリコン静電容量絶対圧センサー (バイサラ社 PTA427) を用いて測定した.

立坑内の気象条件の定常性は高く, 坑底の 1 日の気温の変動幅は 0.02°C 以下, 湿度も 0.2% 以下であった. 図 3 は雲の発生がビデオカメラ画像で確認できた 1992 年 7 月と 9 月と, 雲が発生しなかった 1993 年 3 月の気温の鉛直分布を比較したものである. 雲が発生しなかった 3 月の実験では立坑の下端から 700 m 上空までほぼ一定の減率で気温が低下している (太白丸). 一方, 9 月

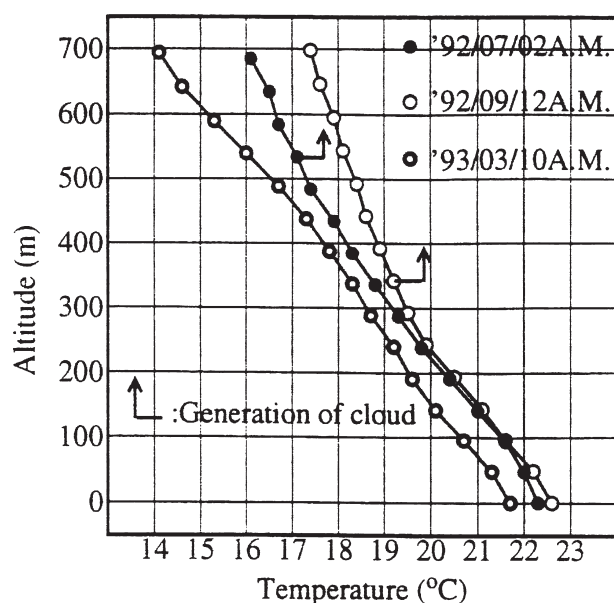
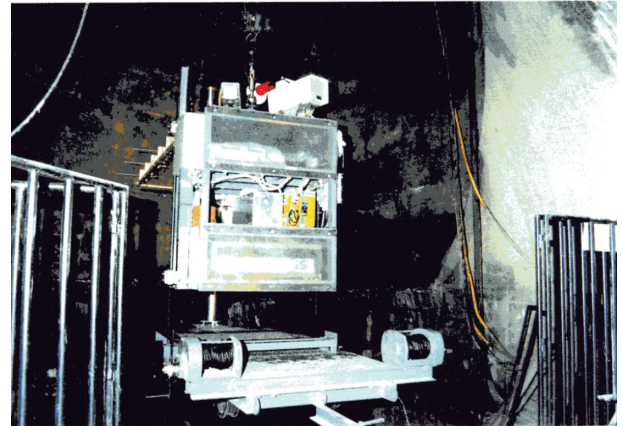
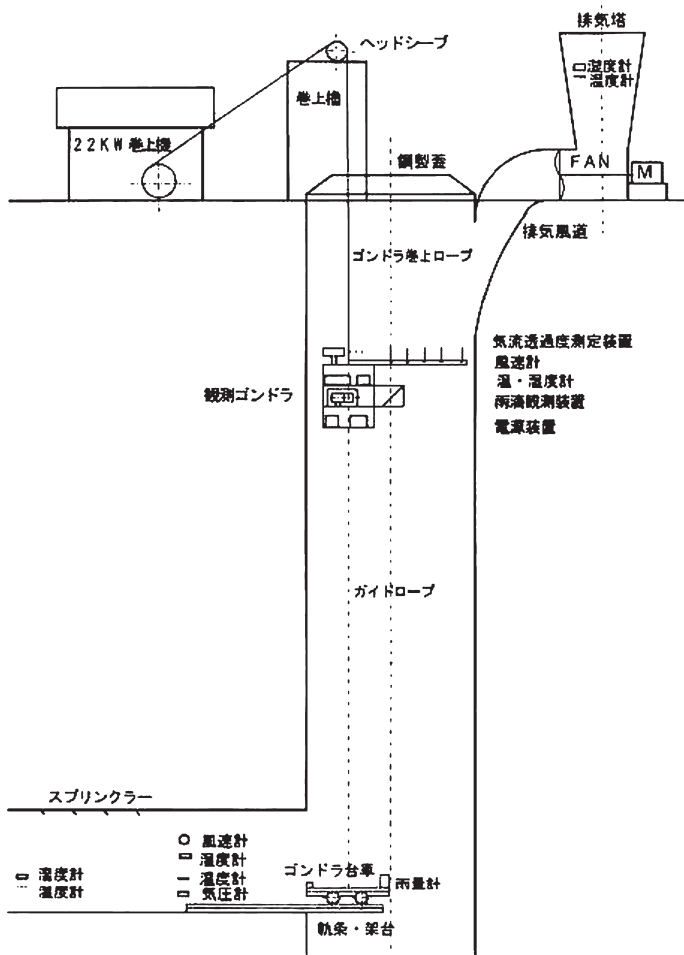


図3：立坑内の気温の鉛直分布。雲は矢印で示した高度で発生。

Fig. 3: Vertical profiles of air temperature within ACES. Arrows indicate the levels where a cloud began to appear.

の実験では雲が目視できた350 mより上空とそれ以下とでは明らかに気温減率が異なっている（白丸）。7月の実験でも雲が目視できた530 m高度を境に気温の傾きがわずかに変化している（黒丸）。相対湿度が100%未満の空気が断熱的に上昇した時は乾燥断熱減率で、飽和した後は湿潤断熱減率で気温が低下することは、どの気象学の教科書にも理論的に解説されている。しかし、現実には、周囲の空気と混合せずに地上から上空まで同じ空気塊が断熱的に上昇することは稀である。従ってここで示した結果は、数100 m以上の高度範囲を上昇する閉じた空気塊中の気温の高度変化を実証した恐らく世界で初めての実験であろう。

上砂川南部排気立坑では上記のように、雲が実際に立坑内で発生していること、雲の発生の有無によって気温の鉛直分布に変化が生ずることが確認できた。ただ、こ

の立坑は石炭鉱内にあることから、粉塵爆発などの防災対策を施した観測装置しか使えないという制限があり、坑道の変形も大きい観測時以外の坑道保全作業に経費もかかった。さらに石炭廃鉱に対する行政方針の変更といった諸事情によってこの立坑が閉鎖されたため、エアロゾルの成分や量、上昇速度を変化させるなどのより複雑で定量的な実験は次の釜石鉱山日峰坑中央立坑を使って行うこととなった。

2.2 釜石鉱山日峰坑中央立坑での測定例

2.2.1 雲底部の気温減率遷移層の検出

雲底付近の最大達成過飽和度は、理論的には雲凝結核の化学組成と粒径分布、及び上昇速度で決まる。また、この過飽和度によって初期の雲粒粒径分布が決り、その結果、雲の光学的厚さや降水効率に影響を与える。しかしながら、雲底で実際にどの程度の過飽和度が存在しているかを航空機で測定したという報告例 (Hoffer 1960) はあるが、後述するようにそれらの値の信頼性は低いと思われる。II章の久芳の図3からも分かるように、上昇中の空気塊中の湿度は100%になっても増加し続け、ある高度で過飽和度が最大になる (最大達成過飽和度)。気温は雲底下から最大達成過飽和度高度まではほぼ乾燥断熱減率で下がるが、最大達成過飽和度より上空では一気に凝結が起こり短時間に潜熱が放出されるため気温の高度低下が小さくなる。さらにその上空では断熱冷却と非断熱加熱 (凝結熱) で決まる湿潤断熱減率で気温が下がる。久芳のパーセルモデルを用いた計算によれば、乾燥断熱減率から湿潤断熱減率へと変化する気温減率遷移層 (この層内で急激に雲粒が発生する) はたかだか数10 mの厚さであることが予想された。そこで気温、湿度の鉛直分布を10 m間隔で連続的に測定することで、雲底付近に存在するはずの気温減率遷移層を検出することを試みた。

釜石立坑の概略図は本号I章の山形他の図1に示され

ている。立坑の底部 (以下坑底) へは鉱山設備の坑内電車 (トロッコ) で、立坑の頂部 (以下坑頂) へは山腹から徒歩でアクセスした。坑頂には送風機を2台設置して立坑内の空気を吸い込むことで立坑内の上昇流速を3段階に変化させた。送風機を稼働させて立坑内に上昇気流を発生させると、数分後には坑頂部の観測スペースが雲で満たされた (図4)。釜石立坑では上砂川立坑とは異なりゴンドラは使わず、ロガー付きの温湿度計を複数連結させた釣り糸を坑頂 (高度425 m) から坑底 (高度0 m) に降ろした後固定して、気温と湿度の鉛直プロファイルを得た。上記のモデル計算とこれまでの実験データから、雲底は坑底から50 m付近にあることが予想されたので、坑底から高度100 mまでは10 m毎に、それ以上は約50 m毎に通風装置で覆った温湿度計を取り付け (100, 150, 200, 270, 340, 410 m)、合計15箇所での測定を行った。

使用した温湿度計は、ONSET社 HOB0 H8 Pro (H08-030-08 および H08-032-08) である。H08-032-08は湿度センサーも搭載し、いずれのタイプとも精度は0.2°C、分解能は0.03°Cである (これらは気象庁の気象測器検定試験センターに持ち込んで校正を行った)。測定間隔は30秒とし、観測期間中連続計測した。取得した温度データは、坑底で実験条件を変更した際に前回の実験条件の影響が出ないように、各イベントの終了10分間の時間平均値を用いた。またバックグラウンドの温度として、立坑内から全員が撤収した3時間後から、翌朝坑内で作業を開始する1時間前の13時間平均値を使用した。その理由は、人熱によってもたらされる気温への影響を除きたかったからである。言い換えれば、そのくらい立坑内の気象条件は安定である。事実、いずれの期間も平均した時間帯の標準偏差は0.015°C以下であった。

以下では、2003年11月23日~29日 (MMP03) と2004年11月21日~27日 (MMP04) に行なわれた実



図4：釜石雲物理実験施設の坑頂部での雲発生前 (左) と発生後 (右) の風景

Fig. 4: Snapshots of the working space at the top of ACES before (left panel) and after formation of a cloud (right panel).

験結果について報告する．MMP03 では，1 回の実験に対してエアロゾル成分は 1 種類のみを噴霧した（詳細は本号 I 章山形他の論文を参照）．MMP04 では，2 種類のエアロゾル成分を同時に噴霧した実験，エアロゾル粒径を意図的に変化させた実験も行った．NaCl を付加して雲を発生させると，各高度の気温は上昇し始め，各高度共約 15 分後にほぼ一定値を示した．標準偏差は， 0.03°C 以下であった．これ以降を定常時間帯と定義し，この時間帯で平均（40 分）した値を用いて気温の鉛直プロファイル（図 5）を作成した．全層を直線近似した場合，気温減率は $0.54^{\circ}\text{C}/100\text{ m}$ とほぼ湿潤断熱減率である（図 5 左）．しかし近似直線は上層では良い対応を示しているが 100 m 以下は対応が悪く下層では気温減率が異なっている．坑底から 120 m までを拡大したのが図 5 右である．下層 0 m から 30 m のみの気温減率は， $0.97^{\circ}\text{C}/100\text{ m}$ とほぼ乾燥断熱減率で近似できた．一方 30 m～70 m の黒破線で囲った高度範囲に，湿潤断熱減率よりもさらに小さい気温減率を持つ層が定期的に存在していた．我々が使用したタイプの湿度計では原理的に過飽和層は検出できないため，直接的に過飽和度を測定することは困難である．理論的には最大達成過飽和度高度より上空では一気に凝結が起これり，その急激な潜熱放出によって気温減率が減少し，さらにその上空では湿潤断熱減率で気温が低下するはずである．すなわち，図 5 で示した気温の鉛直分布は，高度 30 m 付近が最大達成過飽和度の存在する高度であり，坑底から上空 70 m までの範囲で雲凝結核が一気に活性化（雲が発生）したことを示している．

このように，立坑で測定した気温の高度変化から，予想通り気温減率遷移層が検出され，この層内の気温減率も，上昇速度や散布物質の濃度によって変化した（図は省略）．10 m 毎の気温測定といえ， $0.1\sim 0.05^{\circ}\text{C}$ の変化しかなく，センサーの感度はもちろんのこと，実験設

備の気温の安定性がこのような過飽和層の検出には不可欠である．従って，屋外の観測では，測定精度と気温の時間空間変動の大きさ，そして気温遷移層の厚さが高々数 10 m 程度であることを考えると，航空機観測ではこの層の検出はほとんど不可能であろう．一方，最近開発が行われている短時間応答型の鏡面冷却式のゾンデであれば検出と定量的な測定が期待できる．

2.2.2 詳細雲微物理モデルを用いた立坑内の気温と湿度（過飽和度）の鉛直分布の再現

上記で示した準実スケール人工雲実験施設内の測定結果を再現するために，Kuba et al. (2003) の非断熱パーセルビンモデルを使用した（本号 II 章久芳の論文を参照）．計算にあたって CCN の粒径分布を 184 クラスに離散化し，各クラスに入る CCN 数を活性化した雲粒数密度の 1 % 未満とした．実験装置内の条件はほぼ鉛直一次元の閉鎖系と考えることができ，エントレインメントの影響を無視できる．発生する雲の厚さも 400 m 程度であるので，併合成長によって上昇気塊から抜ける雨滴の影響も無視できる．実験では，エアロゾルの噴霧量と溶質，上昇流速を変化させているが，本モデルはそれいづれも変数として扱っているため実験毎の違いを比較することが可能である．ただし，坑内の上昇速度は実測されていないので，坑底と坑頂で測定した上昇流速から高度の関数として近似した．

どの高度で雲が発生するかによって気温の鉛直分布が大きく変化するため，数値計算で最大達成過飽和度が出現する高度が実測高度と一致するよう，計算に必要な変数に関しては感度実験を行なって初期値を決定した．感度実験のために値を変える変数は坑底湿度（ rh_0 ），坑頂気圧（ ptop ），坑底気温（ t_0 ）である．測定値から決めた初期値はそれぞれ（ $\text{rh}_0=97.0\%$ ， $\text{ptop}=990\text{ hPa}$ ， $t_0=13.25^{\circ}\text{C}$ ）であり，湿度は 2 %，気温は 1°C ，気圧

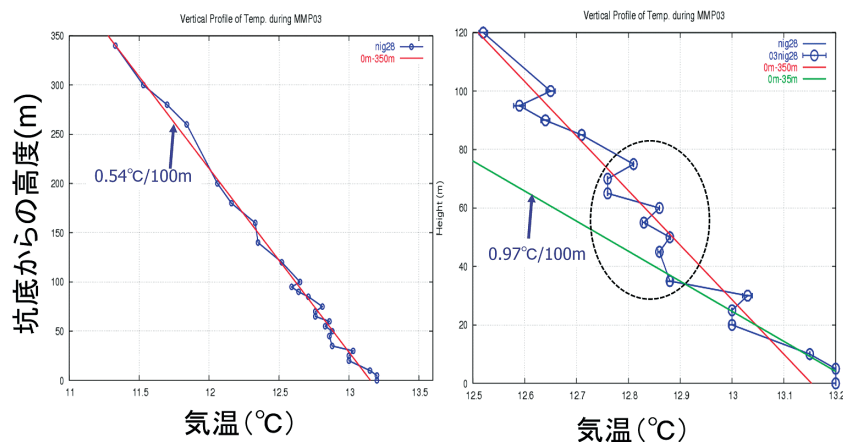


図 5：坑底から坑頂までの立坑内の気温の鉛直分布とその近似直線（赤線）（左），雲底高度付近（黒破線）の気温の鉛直分布と雲底下の気温の近似直線（緑線）（右）．

Fig. 5: Left panel shows a vertical profile of observed air temperatures from the bottom to the top of ACES and a regression line (red line). Right panel shows a vertical profile of air temperature around the cloud base and a regression line (green line).

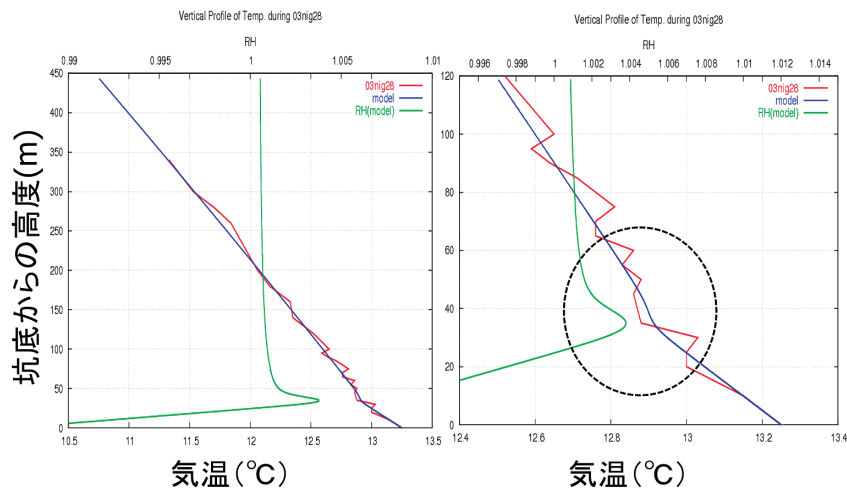


図6：図5と同じ。ただし、実測した気温（赤実線）と、雲微物理モデルで再現した気温（青実線）と相対湿度（緑実線）の鉛直分布。

Fig.6：Same as Fig.5, but for air temperature (blue line) and relative humidity (green line) simulated by using the microphysical model.

は5 hPa ずつ変化させた感度実験を行った。計算には坑頂-坑底間の気圧差が重要である。そのため観測された坑頂-坑底間の平均気圧差を参考に、坑底気圧を固定して坑頂気圧を変化させることで、気圧差の変化に対する感度実験を行なった。その結果、坑底湿度 (rh0) = 98.7%, 坑底気温 (t0) = 13.25°C, 坑頂気圧 (p0) = 993 hPa と設定することにより、実測した気温（赤実線）をほぼ忠実に再現することができた（図6の青実線）。なお計算から求めた相対湿度（図6の緑実線）の鉛直分布を見て分かるように、相対湿度の最大値は100.3%程度であり、坑底から約35 mの高度に形成されていた。

2.3 水の安定同位体比の鉛直分布

定常的に存在する準実スケールの雲は、エアロゾル-雲相互作用以外にもさまざまな応用が可能である。そのひとつとして、以下では雲生成時の水の安定同位体の分別過程の実証実験を紹介する。

2.3.1 水の安定同位体を利用する意義

これまで、大気中や地中での水・水蒸気の起源や輸送過程を調べる手法として、水の安定同位体をトレーサーとして用いる試みが多く研究者によって行われてきた（例えば、気象研究ノート第220号2009）。通常の分子に比べて同位体分子の存在比率は非常に小さいため、水の安定同位体比 R ($\text{HDO}/\text{H}_2\text{O}$ または $\text{H}_2^{18}\text{O}/\text{H}_2^{16}\text{O}$) は、以下のように表記される。

$$\delta = \left(\frac{R_{\text{sample}} - R_{\text{SMOW}}}{R_{\text{SMOW}}} \right) \times 1000$$

ここで R は同位体比を、SMOW は標準平均海水 (Standard Mean Ocean Water) を表し、単位は‰である。海面から蒸発した水蒸気中には一般に海水中よりも同位体が少ないために δ 値は負となる。世界の多くの

降水は $\delta D(\text{‰}) = 8\delta^{18}O(\text{‰}) + 10$ という直線（天水線）上にはほぼ分布している (Craig 1961)。しかし、全ての水がこの線上に乗るわけではなく、 $\delta^{18}O$ 軸の切片の値はその空気塊に地表面から水蒸気を取り込まれる蒸発過程（動的分別過程）、すなわち平衡蒸発からのずれに大きく影響される。さらに雲形成時（水の相変化時）や雨滴落下中の蒸発時には同位体分別が起こるため値が変化する (Gedzelman and Arnold 1994)。ただし、空気塊から平衡分別過程で順次重い (δ 値が高い) 水分子が降水となって落下するという仮定の下では（レーリー蒸留過程）、 $d = \delta D - 8\delta^{18}O$ として定義される d 値 (d -excess) は保存するため、水蒸気の変質と動きを調べるためのトレーサーとして水循環の研究に利用されている (Dansgaard 1964)。

これまで、世界各地で採取された雨や雪の水の安定同位体比は、上で述べた極めて単純なレーリー蒸留モデルで説明されてきた。また、平衡同位体分別係数も水面と水蒸気間平衡にある閉鎖系を用いた室内実験から求められてきた (Kakiuchi and Matsuo 1979; Ehhalt and Knott 1965; Stewart and Friedman 1975; Baertschi and Thürkauf 1960; Craig et al. 1963; Merlivat et al. 1963; Majoube 1971)。しかしながら、雲は大きさ数 μm から数十 μm の様々な大きさの微小水滴（雲粒）から構成されており、そのためわずかではあるが雲内の相対湿度は100%以上である。従って、雲内での同位体分別係数は、従来の同位体分別係数とは異なる可能性がある。また、雲発生前の空気塊中の水蒸気と、雲発生後の同じ空気塊中の雲水の同位体比測定を自然界で行なった例はこれまでにない。その理由は、雲の周囲からのエントレインメントの効果や雲自体の時空間変動が大きすぎるため、自然界では同じ空気塊の水蒸気から雲水をラグランジュ的にサンプリングすることはほとんど不可能である

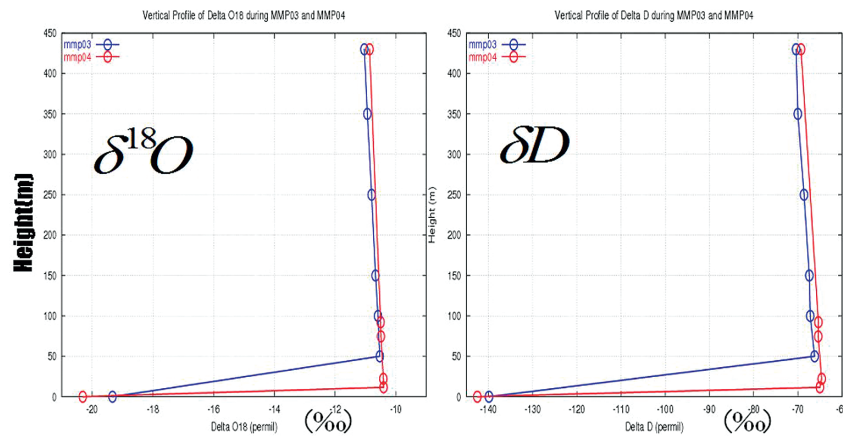


図7：2013年（青）、2014年（赤）に採取した雲水と水蒸気中に含まれる酸素と水素同位体比（ $\delta^{18}\text{O}$ と δD ）の鉛直プロファイル。

Fig. 7 : Vertical profiles of $\delta^{18}\text{O}$ (left) and δD (right) of cloud water and water vapor observed in 2003 (blue) and 2004 (red).

からである。一方鉛直立坑内では、坑底から流入した空気がそのまま立坑内を上昇して雲が発生するので、(1)ほぼ完全な閉鎖系であり、(2)空気塊の上昇によって安定的に雲を発生させることができ、(3)雲形成に必要な水蒸気源が限定でき、(4)必要な高度の気象データや雲物理量や雲水の採取が可能である。そこで、閉じた系内に発生した雲粒を直接サンプリングし、雲底下の水蒸気と雲水中の安定同位体比の鉛直分布から「レーリー蒸留過程による同位体分別過程」を検証し、さらに従来用いられてきた「同位体分別係数」の妥当性を検討した。

2.3.2 測定方法と結果

自作した複数の雲水サンプラーを一定間隔で取り付け、釣り糸を、坑頂から坑底に降ろして固定した。雲水採取は人為起源の影響（温度上昇や人の呼吸による水蒸気放出）がない夜間のみ実施した。また、気流内で凝結成長しながら上昇してきた雲粒を自然な形で捕集できるように、強制吸引せず上昇流中にサンプラーをかざすだけにした。また、念のため、我々のサンプルと中央大学山田研究室が坑頂で細線式雲水サンプラーを用いて採取した雲水の同位体比を比較したが、測定誤差の範囲内で一致した。起源水蒸気となる坑底での水蒸気の捕集はドライアイスとアルコールを用いたコールドトラップ法を用いて、深夜1時間のみタイマーを使って実施した。採取した雲水および水蒸気の ^{18}O は北大・低温研所有の $\text{CO}_2/\text{H}_2/\text{H}_2\text{O}$ 自動平衡装置（中野電子社製）と、自動質量分析装置（Thermo Electron/Finnigan MAT社のDelta Plus）を使用して測定した。Dは質量分析計（GV Instruments社のIsoprime Pyr-OH）を用いて熱分解法で分析した。

採取した雲水と水蒸気中に含まれる酸素と水素同位体比（ $\delta^{18}\text{O}$ と δD ）の鉛直プロファイルを図7に示した。高度0mのデータは水蒸気、それ以外は雲水の同位体比である。0mで採取した水蒸気の $\delta^{18}\text{O}$ （ δD ）に対し

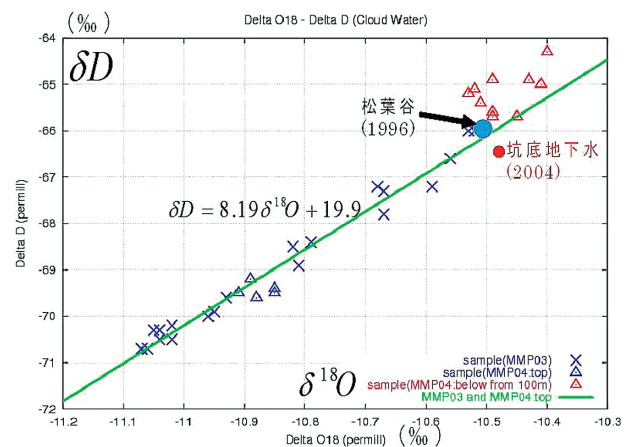


図8：2003年と2004年に採取した雲水と坑底を流れる地下水の $\delta^{18}\text{O}$ - δD 関係。

Fig. 8 : Relationship between $\delta^{18}\text{O}$ and δD of cloud water and ground water sampled in 2003 and 2004.

て雲水の $\delta^{18}\text{O}$ （ δD ）は、予想通り8～9‰（75‰）大きい。2003年の雲水中の $\delta^{18}\text{O}$ の鉛直プロファイルを見ると、高度が上がるにつれてこれも予想通り高度50mから430mまでで約0.5‰減少している（図7左の青○）。100m未満の高度を重点的に観測した2004年の結果も上昇するほど雲水中の安定同位体比が減少した（図7左の赤○）。雲水中の δD の値も高度が上がるにつれて減少した（図7右）。図8に2003年と2004年に採取した雲水と坑底を流れる地下水の $\delta^{18}\text{O}$ - δD 分布を示した。これらは採取した年度が異なるにも関わらずほぼ傾き8の以下の直線（緑の直線）で近似できる。

$$\delta\text{D}(\text{‰}) = 8.19\delta^{18}\text{O}(\text{‰}) + 19.9$$

一方、注目すべきはMMP04で重点的に採取した坑底から100mの下層の値が、他のサンプルの近似から外れているということである（赤△）。

2.3.3 詳細雲物理モデルを用いた水の安定同位体比の再現

水蒸気と雲粒の間に生じる複雑な同位体分別を正確に

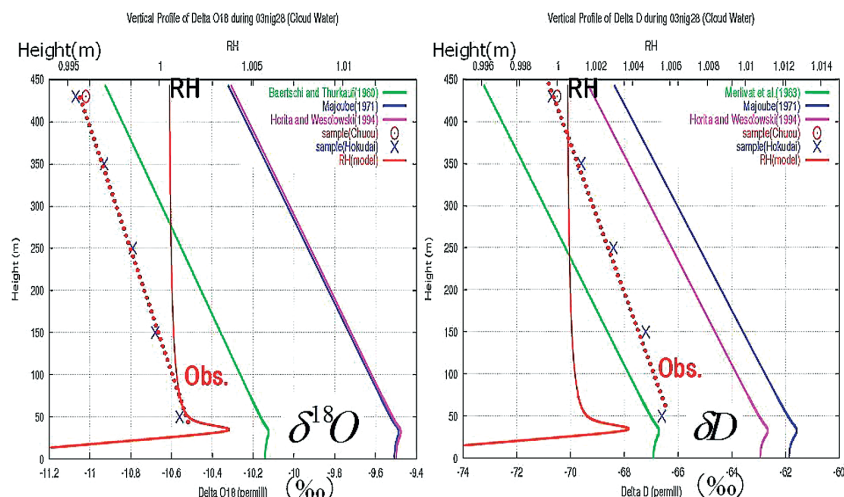


図9：酸素同位体比 ($\delta^{18}\text{O}$) (左図) と水素同位体比 (δD) (右図) の鉛直分布の実測値 (x と赤破線) と平衡分別係数を用いて計算した値 (実線), 及ぶ計算で求めた相対湿度 (赤実線).

Fig. 9: Vertical profiles of observed (dotted red line) and simulated stable isotope ratios of water ($\delta^{18}\text{O}$ (left) and δD (right)) and relative humidity (green line).

見積もるためには、個々の雲粒やその相互作用を計算できる詳細な雲微物理モデルが必要であり、ここでも Kuba et al. (2003) の非断熱パーセルモデルを使用し、雲水や水蒸気中の同位体比を計算する方程式をこのモデルに組み込んだ。このモデルでは雲底下であってもわずかに存在する粒径の大きなエアロゾルの凝結成長も計算できるため、雲底下の雲水の安定同位体比も計算が可能である。

安定同位体分別係数 α は以下に示すように気温 T (K) に依存するため、立坑内の気温を正確に再現する必要があるが、2.2.2 の図5で示したように、感度実験から決定したパラメータを使うと観測した気温の鉛直分布をほぼ再現できる。気相から液相間の、 ^{18}O の分別係数 $\alpha(^{18}\text{O})$ と D の分別係数 $\alpha(\text{D})$ は、それぞれ室内実験によって求められた以下の値を用いて計算した。

- 1) Baertschi and Thürkauf (1960)

$$\alpha(^{18}\text{O}) = 1 - 0.0105 + \frac{5.8}{T}$$

- 2) Merlivat et al. (1963)

$$\alpha(\text{D}) = 1 - 0.1941 + \frac{80.8}{T}$$

- 3) Majoube (1971)

$$\ln \alpha(^{18}\text{O}) = \frac{1137}{T^2} - \frac{0.4156}{T} - 0.0020667$$

$$\ln \alpha(\text{D}) = \frac{24884}{T^2} - \frac{76.248}{T} + 0.052612$$

- 4) Horita and Wesolowski (1994)

$$\ln \alpha(^{18}\text{O}) = -7.685 \times 10^{-3} + \frac{6.7123}{T} - \frac{1.6664 \times 10^3}{T^2} + \frac{0.35041 \times 10^6}{T^3}$$

$$\ln \alpha(\text{D}) = \frac{1158.8 \times T^3}{10^{-12}} - \frac{1620.1 \times T^2}{10^{-9}} + \frac{794.84 \times T}{10^{-6}} - 161.04 + \frac{2.9992 \times 10^6}{T^3}$$

酸素同位体比 ($\delta^{18}\text{O}$) と水素同位体比 (δD) の鉛直分布の実測値 (x と赤破線) と計算値 (実線), そして計算で求めた相対湿度 (赤実線) を図9に示す。図から分かるように、 $\delta^{18}\text{O}$ と δD 共にどの分別係数を用いた計算値よりも観測値の方が低く、また同位体比の高度減率は計算値よりも観測値の方がやや小さい。また、特筆すべきことは、いずれの同位体分別係数を用いても、最大達成過飽和度高度で同位体比も最大となっていることである。

図10は同じ初期値で上昇した空気塊中の相対湿度と $\delta^{18}\text{O}$ の高度変化を、詳細雲微物理モデルとレーリー蒸留モデルで計算した結果を比較したものである。図から明らかなように、値の差はわずか(数%以下)とはいえ、雲水の安定同位体比は雲粒が一気に発生する時点(横矢印)で既にレーリー蒸留モデルとは異なっている。言い換えれば、気温と湿度が同じ空気塊であっても、雲凝結核特性が異なることで発生した雲水の安定同位体比も異なる。このような結果は、エアロゾルの効果を考慮しない、すなわち雲内の過飽和を計算しないレーリー蒸留モデルでは再現できない特徴である。

図9に示したように、各種パラメータ(坑底湿度、坑頂気圧、坑底気温、エアロゾル成分)を変えて観測した気温の鉛直分布が忠実に再現できたにも関わらず、計算した同位体比の鉛直分布の傾きは実測値と一致しなかった。このことは、雲内での実際の同位体分別係数(以下、雲内分別係数と呼ぶ)が、実験室で求められた同位体分別係数とは異なる可能性を示している。そこで、観測された安定同位体比の鉛直分布を再現できる雲内分別

係数の温度依存性を以下のようにして試算した．まず，立坑内の温度範囲はおよそ 13.3°C から 11.4°C の間で狭いため，温度変化に対する上記の 4 つの平衡分別係数を気温 T (K) の 1 次式で近似した (図 11)．そこでこの直線の傾きと切片を変化させた感度実験を行った結果，以下の式を用いると観測値をほぼ再現できた．図 12 はこの雲内同位体分別係数を用いて計算した安定同位体比の鉛直分布と実測値を示したものであり，最大達成過飽和度が出現する高度，すなわち一気に雲粒が発生する高度で同位体比が最大値を示すこと，また，安定同位体比

の高度減率も良く再現できている．

$$\alpha(^{18}\text{O}) = -3.5 \times 10^{-4} T + 1.11$$

$$\alpha(D) = -3.6 \times 10^{-3} T + 2.12$$

平衡分別係数と比較するために，図 11 には上式で近似した雲内分別係数の温度変化も示してあるが，この温度範囲では雲内分別係数の温度依存性 (傾き) は平衡分別係数よりも大きい． ^{18}O の雲内分別係数の方がどの平衡分別係数よりも値が低い，気温が低い (すなわち上空) ほど両者の差が小さくなっている．また，D の雲内分別係数の値も，比較的新しい実験データである 3) と 4) と比較すると，気温が高い雲底部では雲内分別係数と平衡分別係数の差が大きいが，気温が低い雲頂部の方では両者がより近い値となっている．通常，雲粒は上昇するにつれて半径が大きくなり平衡蒸気圧も水平面の値に近くなることから，上記の結果は定性的には妥当である．

3. 結語

本実験装置を用いたその他の研究としては，降雨モデルの改良 (山田他 1995)，雲凝結核と雲粒の粒径分布の直接比較 (播磨屋他 1998; Yamagata et al. 1998, 2004)，雲化学的研究 (Utiyama et al. 2001)，葉面の霧粒捕捉率 (Izumi et al. 2004) などを行った．また，国内外の研究者の施設見学も多かった．

そもそも準実スケールの雲物理実験を開始した時には，立坑内に乱流を発生させて雲粒の併合速度を変える実験や中間地点から乾燥空気を混合するというエントレインメント実験はもちろん，北海道という寒冷環境を活かして過冷却雲や氷雲まで作りたいと考えていた．そうならば，雲の帯電機構や混合雲の氷晶化，人工降雨などの気象工学の実験にも発展できた可能性があった．そのために，立坑内部の改造など実際に設計図を作り，予算の見積もりも行っ国との関係省庁と折衝したこともあっ

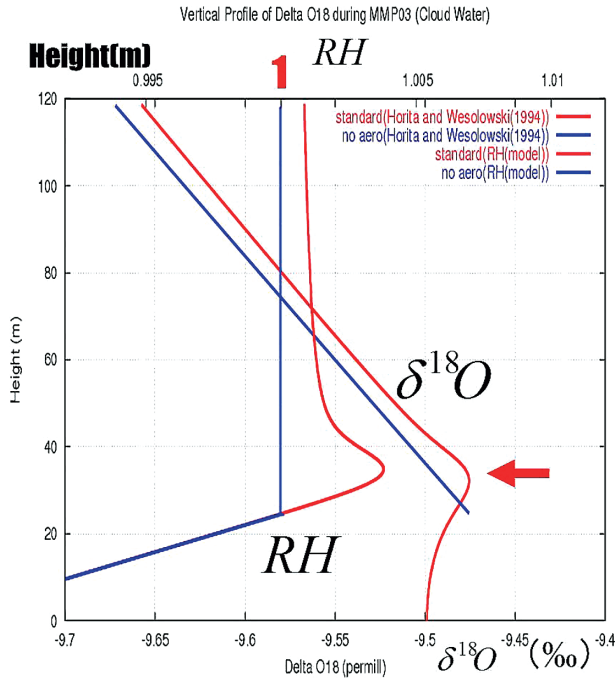


図 10：詳細雲微物理モデル (赤線) とレーリー蒸留モデル (青線) で計算した立坑内の相対湿度と雲水の $\delta^{18}\text{O}$ の高度変化。

Fig. 10: Vertical profiles of relative humidity and $\delta^{18}\text{O}$ of cloud water within ACES simulated by Rayleigh-distillation model (blue line) and the microphysical model (red line).

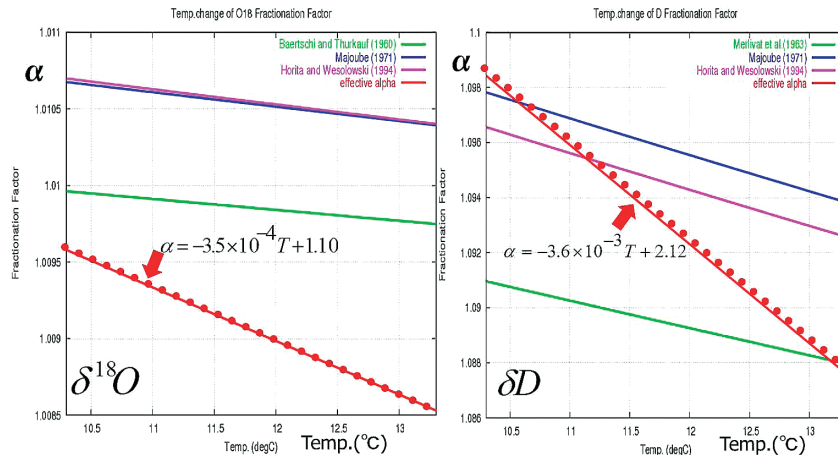


図 11： ^{18}O (左) と D (右) の平衡分別係数と計算から決めた雲分別係数 (赤線) の温度依存性

Fig. 11: Temperature dependency of equilibrium and estimated in-cloud (red line) fractionation factors of ^{18}O (left) and D (right).

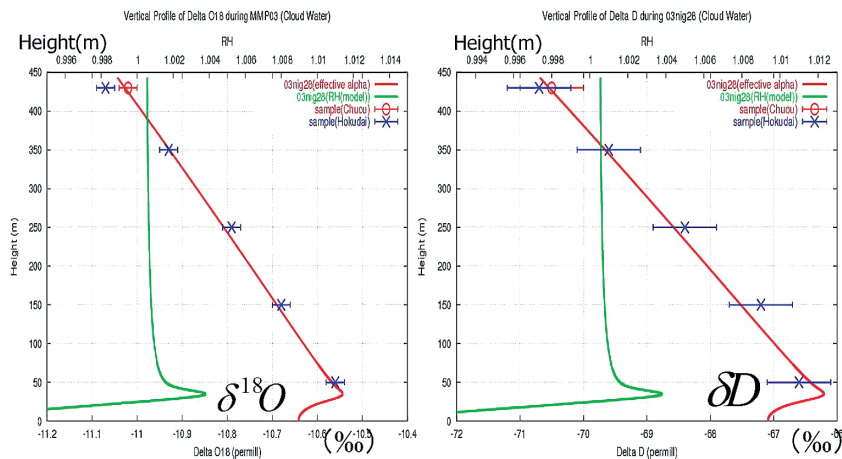


図 12: $\delta^{18}\text{O}$ (左) と δD (右) と相対湿度 (緑) の計算から決定した雲分別係数を用いて再現した結果 (赤実線) と実測値 (x) の鉛直分布。

Fig. 12: Observed (x) vertical profiles of $\delta^{18}\text{O}$ (left) and δD (right). Red lines indicate the vertical profiles of $\delta^{18}\text{O}$ (left) and δD (right) simulated by using estimated in-cloud fractionation factors.

た。しかし、東京スカイツリーと同程度の実験施設を地上に立てることに比べれば格段に費用が少なく済むとはいえ、10 年前の経済状況では受け入れ難い提案であった。ただ、宇宙線による増雲効果を確認するためだけに CERN が CLOUD 施設を作ったことを考えれば、現在の地球温暖化予測で最も不確実性の大きな雲-エアロゾル相互作用を解明するためのより大がかりな実験施設を建設することは、必ずしも「雲を掴む」話ではないのかも知れない。

謝辞

本論文は、中嶋聡君の 2004 年度北大・地球環境科学研究科修士論文「長大鉛直立坑を利用した雲生成時の水の安定同位体分別過程の検証実験」を修正・加筆して作成しました。水の安定同位体比の測定にあたっては中塚助教授 (当時) の、雲微物理モデルを用いた計算は久芳博士のご協力をいただきました。マジックモンキープロジェクトの立ち上げに当たっては、三井建設 (株) の稲毛正昭氏と三井石炭鉱業 (株) の皆様、特に高橋善和氏の献身的なご支援にはいくらかお礼を申し上げても足りません。図 1 のマジックモンキープロジェクトのロゴは高橋氏作成によるものです。さらに釜石市総務企画部、日鉄鉱業 (株) 釜石鉱山の皆様には長年観測を支援していただき、本当にありがとうございました。また、観測立ち上げ時に会長をお引き受けいただいた北大・低温研の若濱所長 (当時)、北大理学部 of 播磨屋教授と院生の佐々木聡君 (当時)、北大工学部の太田幸雄教授と山形定助手 (当時) と院生の皆さん、国立環境研究所の内山政弘、福山力両博士、東洋大の泉克幸助教授 (当時)、そして中央大学の山田正教授と数多くの学部生と院生の皆さん、富山大学の青木一真准教授、北大低温研雲科学分野の院生の皆さんには毎年慣れない地下の暗黒での観

測作業に参加していただきました。皆さんの協力無しではプロジェクトをこれだけ継続することはできませんでした。本当にありがとうございました。

引用文献

- Baertschi and Thürkauf 1960: Isotopie-Effekt für die Trennung der Sauerstoff-Isotopen ^{16}O und ^{18}O bei der Rektifikation von leichtem und schwerem Wasser, *Helvetica Chimica Acta*, **43**, 80-89.
- Borys, R. D., D. H. Lowenthal, D. L. Mitchell, 2000: The relationships among cloud microphysics, chemistry, and precipitation rate in cold mountain clouds, *Atmos. Environ.*, **34**, 2593-2602.
- Bower, K. N., Choularton, T. W., Gallagher, M. W., Colville, R. N., Wells, M., Beswick, K. M., Wiedensohler, A., Hansson, H.-C., Svenningsson, B., Swietlicki, E., Wendisch, M., Berner, A., Kruis, C., Laj, P., Facchini, M. C., Fuzzi, S., Bizjak, M., Dollard, G., Jones, B., Acker, K., Wiprecht, W., Preiss, M., Sutton, M. A., Hargreaves, K. J., Storeton-West, R. L., Cape, J. N., Arends, B. G., 1997: Observations and modelling of the processing of aerosol by a hill cap cloud, *Atmos. Environ.*, **31**, 2527-2543.
- Craig, H., 1961: Isotopic variations in meteoric waters, *Science*, **133**, 1702-1703.
- Craig, H., L. I. Gordon, and Y. Horibe, 1963: Isotopic exchange effects in the evaporation of water: 1. Low-temperature experimental results, *J. Geophys. Res.*, **68**, 5079-5087.
- Dansgaard, W., 1964: Stable isotopes in precipitation, *Tellus*, **16**, 436-468.
- Duplissy, J., Enghoff, M. B., Aplin, K. L., Arnold, F., Aufm-hoff, H., Avngaard, M., Baltensperger, U., Bondo, T., Bingham, R., Carslaw, K., Curtius, J., David, A., Fastrup, B., Gagnè, S., Hahn, F., Harrison, R. G., Kellett, B., Kirkby, J., Kulmala, M., Laakso, L., Laaksonen, A.,

- Lillestol, E., Lockwood, M., Mäkelä, J., Makhmutov, V., Marsh, N. D., Nieminen, T., Onnela, A., Pedersen, E., Pedersen, J. O. P., Polny, J., Reichl, U., Seinfeld, J. H., Sipilä, M., Stozhkov, Y., Stratmann, F., Svensmark, H., Svensmark, J., Veenhof, R., Verheggen, B., Viisanen, Y., Wagner, P. E., Wehrle, G., Weingartner, E., Wex, H., Wilhelmsson, M., and Winkler, P. M., 2010: Results from the CERN pilot CLOUD experiment, *Atmos. Chem. Phys.*, **10**, 1635–1647, doi:10.5194/acp-10-1635-2010.
- von Ehhalt, D. and K. Knott 1965: Kinetische Isotopentrennung bei der Verdampfung von Wasser, *Tellus*, **17**, 389–397.
- 播磨屋敏生, 佐々木聡, 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.
- Hoffer, T. E., 1960: A laboratory investigation of droplet freezing, *Tech. Note*, No.22, Cloud Physics Res., Chicago, Dept. Meteor., Univ. Chicago, 64pp.
- Horita, J., and D. J. Wesolowski, 1994: Liquid-vapor fractionation of oxygen and hydrogen isotopes of water from the freezing to the critical temperature. *Geochim. Cosmochim. Acta*, **58**, 3425–3437.
- Iszumi, 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.
- Kakiuchi, M., and S. Matsuo, 1979: Direct measurements of D-H and O-18-O-16 fractionation factors between vapor and liquid water in the temperature-range from 10 to 40-degrees-C, *Geochem. J.*, **13**, 307–311.
- 気象研究ノート第 220 号, 2009: 気象学における水安定同位体比の利用 (編集 芳村 圭, 一柳錦平, 杉本敦子), 128 pp.
- List, R., J. Hallett, J. Warner, and R. Reinking, 1986: The future of laboratory research and facilities for cloud physics and cloud chemistry: Report on a technical workshop held in Boulder, Colorado, 20–22 March 1985, *Bull. Amer. Meteor. Soc.*, **67**, 1389–1397.
- Majoube, M., 1971: Fractionnement en oxygène-18 et en deuterium entre l'eau et sa vapeur, *J. Chem. Phys.*, **68**, 1423–1436.
- Merlivat, L., R. Botter, and G. Nief, 1963: Fractionnement isotopique lors des changements d'état solide-vapeur et liquide-vapeur de l'eau à des températures inférieures à 0°C, *Tellus*, **19**, 122–127.
- Mertes, S., D. Galgon, K. Schwirn, A. Nowak, K. Lehmann, A. Massling, A. Wiedensohler, W. Wieprecht, 2005: Evolution of particle concentration and size distribution observed upwind, inside and downwind hill cap clouds at connected flow conditions during FEBUKO, *Atmos. Environ.*, **39**, 4233–4245.
- Möhler, O., Nink, A., Saathoff, H., Schaefer, S., Schnaiter, M., Schöck, W., and Schurath, U., 2001: The Karlsruhe aerosol chamber facility AIDA: technical description and first results of homogeneous and heterogeneous ice nucleation experiments, *Proc. of Workshop on Ion-Aerosol-Cloud-Interactions (IACI)*, (Ed) Kirkby, J., CERN 2001–007, Geneva, 2001.
- Stewart, M. K., I. Friedman, 1975: Deuterium fractionation between aqueous salt solutions and water vapor, *J. Geophys. Res., Oceans*, **80**, 3812–3818.
- 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, and M. Inage, 2001: Rate of sulfur dioxide removal, Artificial Cloud Experiments utilizing a long vertical shaft, *Water, Air, and soil Pollution*, **230**, 325–330.
- Yamagata, S., S. Baba, N. Murao, S. Ohta, T. Fukuyama, M. Utiyama, T. Yamada, Y. Fujiyoshi, T. Harimaya, M. Inage, 1998: Real scale experiment of sulfur dioxide dissolution into cloud droplets generated in Artificial Cloud Experimental System (ACE), *J. Global Environ. Engineering*, **4**, 53–63.
- 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.
- 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-30, 1–13.