

神戸大学 大学院 平成27年度集中講義

特別講義 流体地球物理学特論 II

Y. IWASAKA

Prof. emeritus Nagoya University
Trustee The University of Shiga Prefecture

第1講

大気エアロゾルへの関心

エアロゾルに科学的な関心が寄せられる ようになってきた時代(1980年代)

粉体と言うものへの関心の高まり

(食、火薬、工業化学:燃焼・窯業・金属加工…、…)

雲や降水現象への関心の高まり

(安全航法、着氷、水力発電、利水:農工業、…、…)

航空機の発達(高高度飛行、…)

戦争で進んだ技術の転用

(高層大気への関心の高まり:成層圏オゾン層、宇宙塵が雨を降らせる、…)

粉体を定義する条件(粉体工学)

(粉を扱う技術はきわめて古くからあった。粉の性質に対する知見の蓄積)

- 1. 固体が細分化され、かつその各部分が相互に拘束され合
わない存在形態**
- 2. 確率統計的特性(集団として見た場合の特性が定義可能)**
- 3. 表面特性が全体の挙動に対して支配的**

1. の定義に対して液体の気中分散系や駈中分散系はどうか？

Powder Technologyでは、このようなケースも取り扱い始める
(1980年代)

**3. のなかで言われる特性と言う言葉を粒子を取り巻く気体や
液体に対する影響も含めて考える(機能)ことの重要性**
(1980年代)

分散している粒子

分散相(ゾル)

連続した媒質

分散媒(ゲル)

**組み合わせによって
いろいろなものが出る**

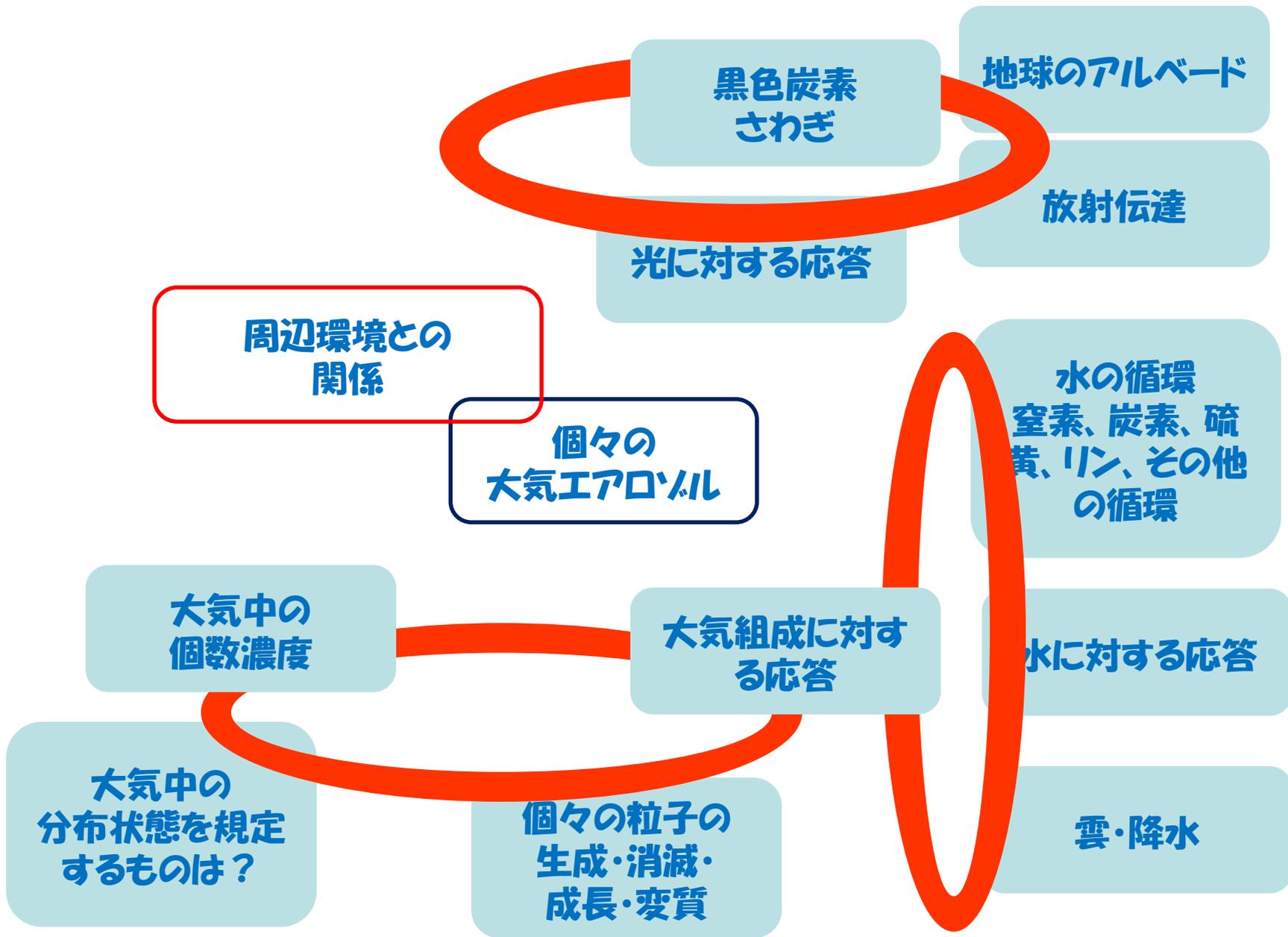
Aerosol

気相に分散している粒子

**大気と言う気相を強調
Atmospheric Aerosol
大気エアロゾル**

伝統的な粒子の分類
 今日の大気エアロゾルのサイエンスでは単一組成の粒子を想定することは次第に少なくなっている。
 例 (古くからの物は名前ある)

分散媒	分散相	名称	
気体	液体	気体ゾル	霧
	固体	気体ゾル	煙
液体	気体	気泡	ビールの泡、ソフトクリーム の泡沫
	液体	エマルジョン	ミルク
	固体	ゾル	金ゾル、銀ゾル
固体	気体	気泡	
	固体	固体ゾル	着色ガラス
	液体	気泡	水を含んだシリカゲル



粒子集団全体の観察
と
個々の粒子の観察

成層圏に対する関心
(オゾン層、エアロゾル層、..)

雲と降水

軍事技術からの転用・派生
(レーダ、ロケット、..)

Nucleation(核生成) に対する科学的関心

過冷却水蒸気の凝縮

何らかの原因で微小水滴が生まれる

- 短時間で消滅
- 消滅せずに成長

過冷却水蒸気の凝縮

丹念に清浄な空気にして過冷却の度合いを増やしてゆく

- 多数の核が一斉に生成

[Homogenous nucleation、均一核生成]

大枠の考え方としては

粒子が小さくなる→表面積と体積の比がほぼ等しくなる
→表面プロセスが目立ってくる

核生成自由エネルギー ΔG (分解 >0 、成長 <0)

半径 a の微小水滴の場合

$$\Delta G = ((3/4)\pi a^3)(\mu_l - \mu_v)(1/v) + 4\pi a^2 \gamma_0$$

μ_l と μ_v は液体と水蒸気の化学ポテンシャル(erg molecule⁻¹)

v は液中の分子容(cm³)

γ_0 は気液界面自由エネルギー(erg cm⁻²)

沸点以下では、 $\mu_l < \mu_v$

a が小さい間は第1項の寄与が小さい

a が大きくなると第1項が効いてくる

核生成自由エネルギー ΔG は極大を経て負の値を取るようになる
(成長 <0)

$$\Delta G = \left(\frac{3}{4}\pi a^3\right)(\mu_l - \mu_v) \left(\frac{1}{v}\right) + 4\pi a^2 \gamma_0$$

の極大値を取る場合の半径 a_n

$$a_n = (2v \gamma_0) / (kT) \ln(p/p_0)$$

温度 T のときの蒸気圧を p

飽和蒸気圧を p_0

p/p_0 は過飽和度と関係づけられる！

話が出来
すぎている！！

室内実験(空気を出来る限りきれいにし水蒸気は含んでいる状態)では、

霧が発生する温度がおおよそ 2.2°C ($p/p_0 \sim 4.2$)

上記の計算では極大値付近の p/p_0 は 4.16

さらにその時の a_n は $6.5 \times 10^{-8} \text{cm}$
(水分子を集めるとおおよそ40個程度)

多くのいい加減さがあることが判っておりながらもほとんどの場合、以下の数式(もしくは、これに経験的な係数を付加した式)を使って議論している。

$$\Delta G = \left(\frac{3}{4}\pi a^3\right)(\mu_l - \mu_v)(1/v) + 4\pi a^2 \gamma_0$$

の極大値を a_n を使って整理し

$$\Delta G_n = (16 \pi \gamma_0^3 v^2) / (3(\mu_l - \mu_v)^2)$$

このような議論の良き実験場所として
(これらは現実にもいろいろな社会的影響があった)

(実験室での観察の困難性が次第に明らかになってきた)

生まれつつある雲(エネルギー、水利用、気象災害、..)

成層圏のエアロゾル(大気圏外核実験、火山噴火、..)

このような議論の良き実験場所として
(これらは現実にもいろいろな社会的影響があった)

(実験室での観察の困難性が次第に明らかになってきた)

生まれつつある雲(エネルギー、水利用、気象災害、..)

成層圏のエアロゾル(大気圏外核実験、火山噴火、..)

成層圏まで到達する飛翔体の登場

V2ロケットの利用

気球技術の向上

航空技術の向上

流星塵が振り込んだ日の数日後は
世界的に雨の日が多くなる！！

火山灰が成層圏まで吹き上げられる
オゾン濃度の高い領域が上空にある

第2講
時代と技術
理想化された大気への疑問
と環境問題への関心

このような状況の時に 良き観測手法が作られる

1950年代にレーザーの原理が提案され

1960年代の中過ぎには使い物にないような試作品が作られる

1970年代にはレーザー技術の応用が始まる

殺人光線 -> 金属加工、プラスチック加工

レーダ -> レーザレーダ(後にライダー)、測量

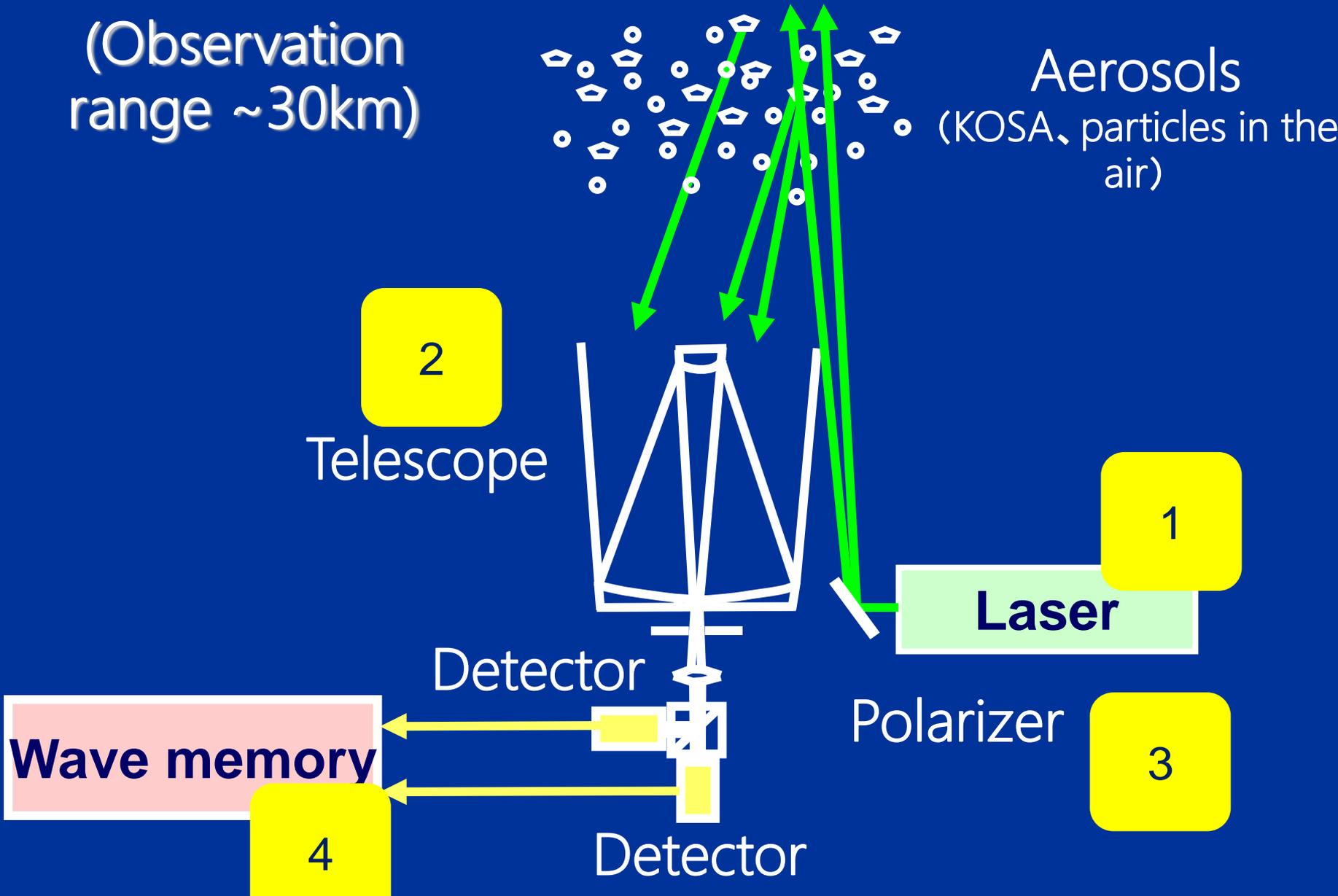
日本では、1970年早々に
東北大学の稲葉文雄が中心になって
レーザーレーダー研究会が組織され
レーザー応用が組織的に始まった

成層圏の探査は当然大きな関心事となった
愉快的ことに日本はたちまちレーザーレーダー王国になった

Basic Concept of Lidar Measurements

(Observation range ~30km)

Aerosols (KOSA, particles in the air)



第7回レーザー・レーダシンポジウム

浜名湖

1981年2月5-6日

特別講演 成層圏エアロゾルが見えてきた過程

小野 晃(第7回シンポジウム実行委員長・名大, 水圏研) ([予稿 \(952kB\)](#))

1. YAGレーザー・レーダによる成層圏エアロゾル層の観測 (I) 最近の観測結果とその理論的検討
柴田 隆, 久々宮成助, 藤原玄夫, 広野求和(九大, 理) ([予稿 \(488kB\)](#))

2. YAGレーザー・レーダによる成層圏エアロゾル層の観測 (II) SAGE衛星観測との比較
藤原玄夫, 広野求和, 柴田 隆(九大, 理) ([予稿 \(292kB\)](#))

3. 気象観測用大型ライダー その1. 装置

安田 升, 島 毅, 黒島大元, 佐竹公彦, 伊藤昇司, 磯部皖一(日電)
内藤恵吉, 高橋克己, 田端 功(気象研) ([予稿 \(904kB\)](#))

4. 気象観測用大型ライダー その2. 測定

田端 功, 内藤恵吉, 高橋克己(気象研)
安田 升, 島 毅(日電) ([予稿 \(976kB\)](#))

5. 南極域中層大気レーザー・レーダ観測計画

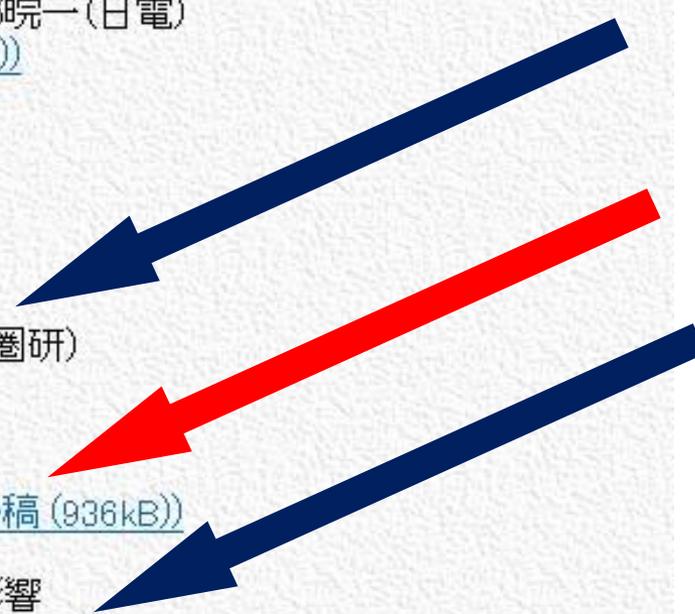
平沢威男, 福西 浩(国立極地研), 岩坂泰信(名大, 水圏研)
藤原玄夫(九大, 理) ([予稿 \(944kB\)](#))

6. 火山噴火の成層圏への影響

岩坂泰信, 林田佐智子, 小林愛樹智(名大, 水圏研) ([予稿 \(936kB\)](#))

7. 黄砂現象が局地的な放射エネルギー収支に与える影響

岩坂泰信, 箕浦宏明, 長屋勝博(名大, 水圏研) ([予稿 \(508kB\)](#))



- ✓ 1974 Fuego
- ✓ 1980 St Helens
- ✓ 1982 El Chichon
- ✓ 1991 Pinatubo

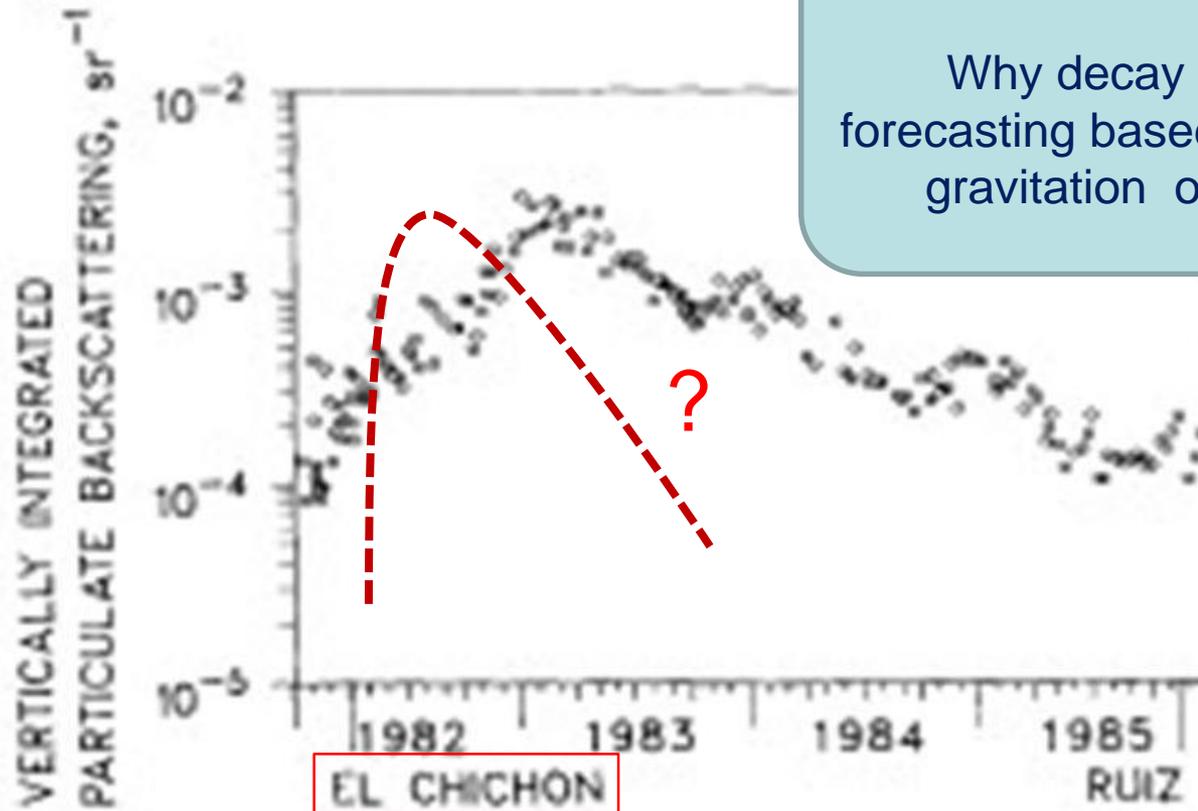
Those large eruption seems to affect global environment such as

- Surface temperature decrease
- Stratospheric ozone loss

連続した長期間のライダー観測

偏光解消度のライダー観測

**並行して人工衛星による観測
(この衛星がPSC発見に貢献する)**

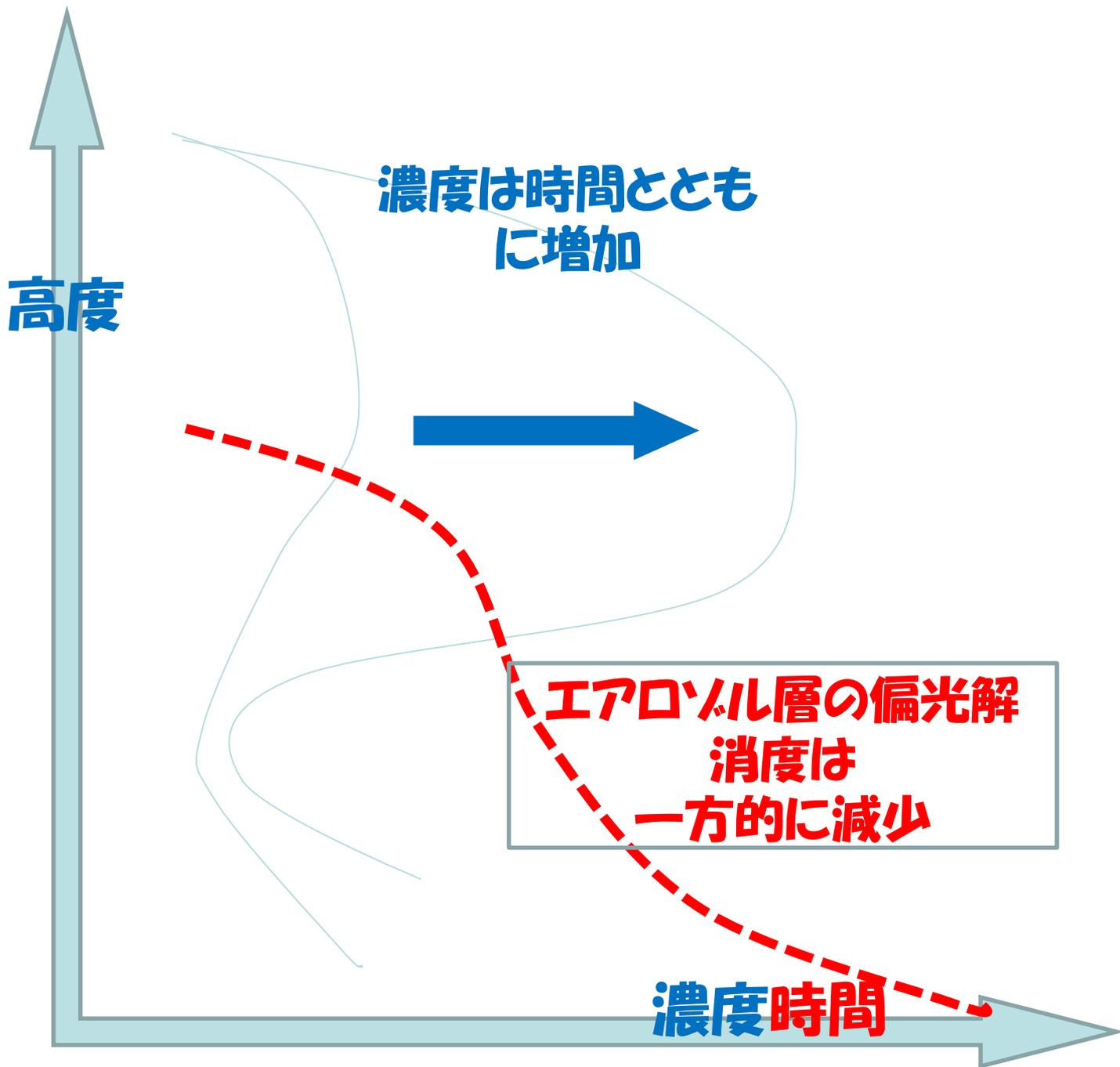


Why peak concentration of volcanic cloud appears after a few months of severe eruption date?

Why decay trend differs forecasting based on hypothesis of gravitation of ash particle?

Fig. 1. Time variation of vertically integrated particulate backscattering (tropopause + 1 km to layer top), measured by ruby lidar (694.3 nm) at Garmisch-Partenkirchen.

This is made on the basis of Long Term Mie Lidar Observation and Nagoya Univ firstly used Dep. Ratio



Scattering ratio

散乱比

Depolarization ratio

偏光解消度

Particle type

(Dust, sulfuric acid droplet,.....)

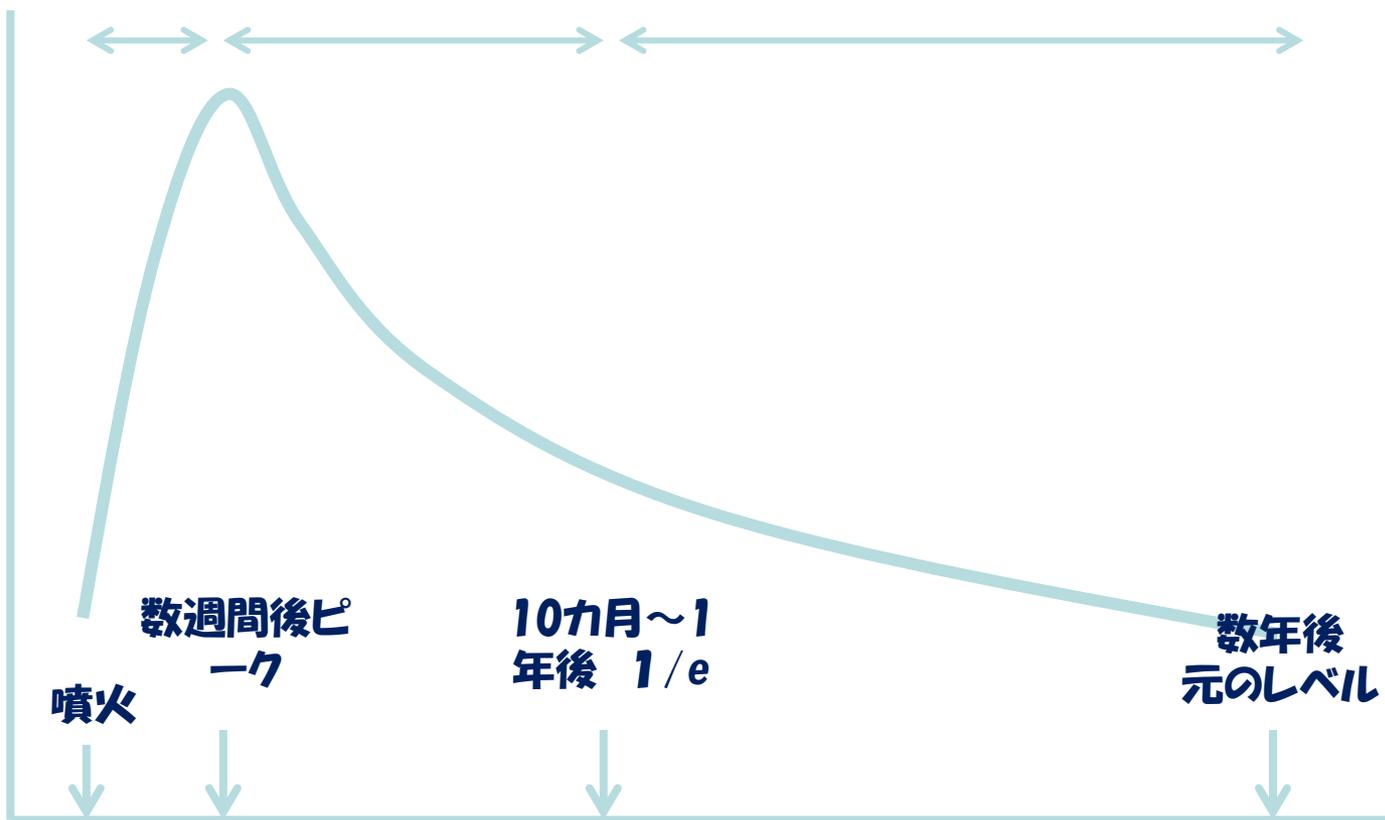
This is now used as standard way



大きい偏光解消
度が観測される

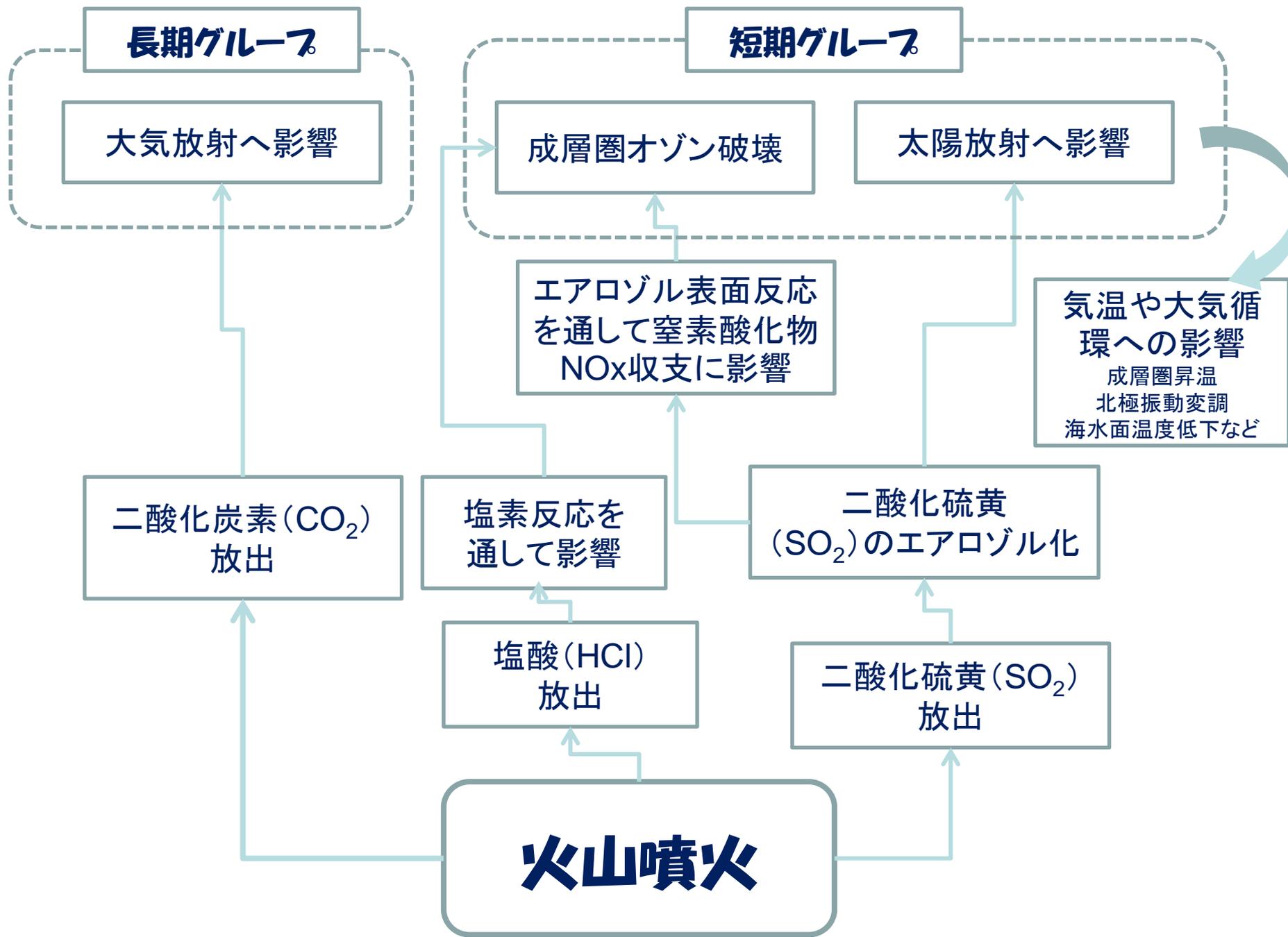
偏光解消度は限り
なく0に近い

成層圏に現れた火山性エアロゾル量



火山噴火後の時間





火山灰

大きい粒子が
重力落下

火山灰が硫酸液
で重くなり落下

火山灰表面
で硫酸液化

SO₂

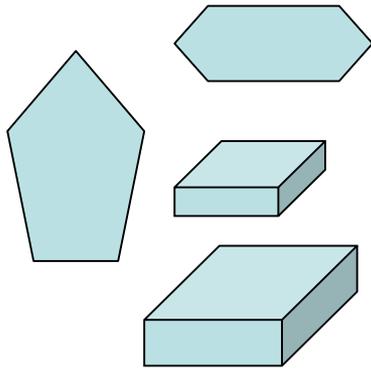
硫酸液滴の
新粒子が生成

新粒子同士が衝突して
大きくなったものから順に対流圏に落下

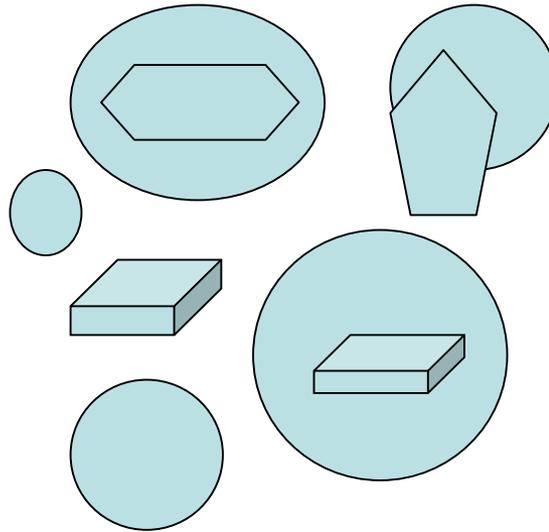
噴火直後は新粒子生成が活発に行われている



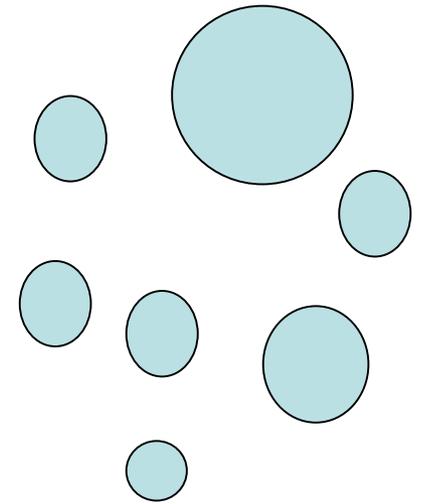
火山灰と硫酸液滴の混合状態



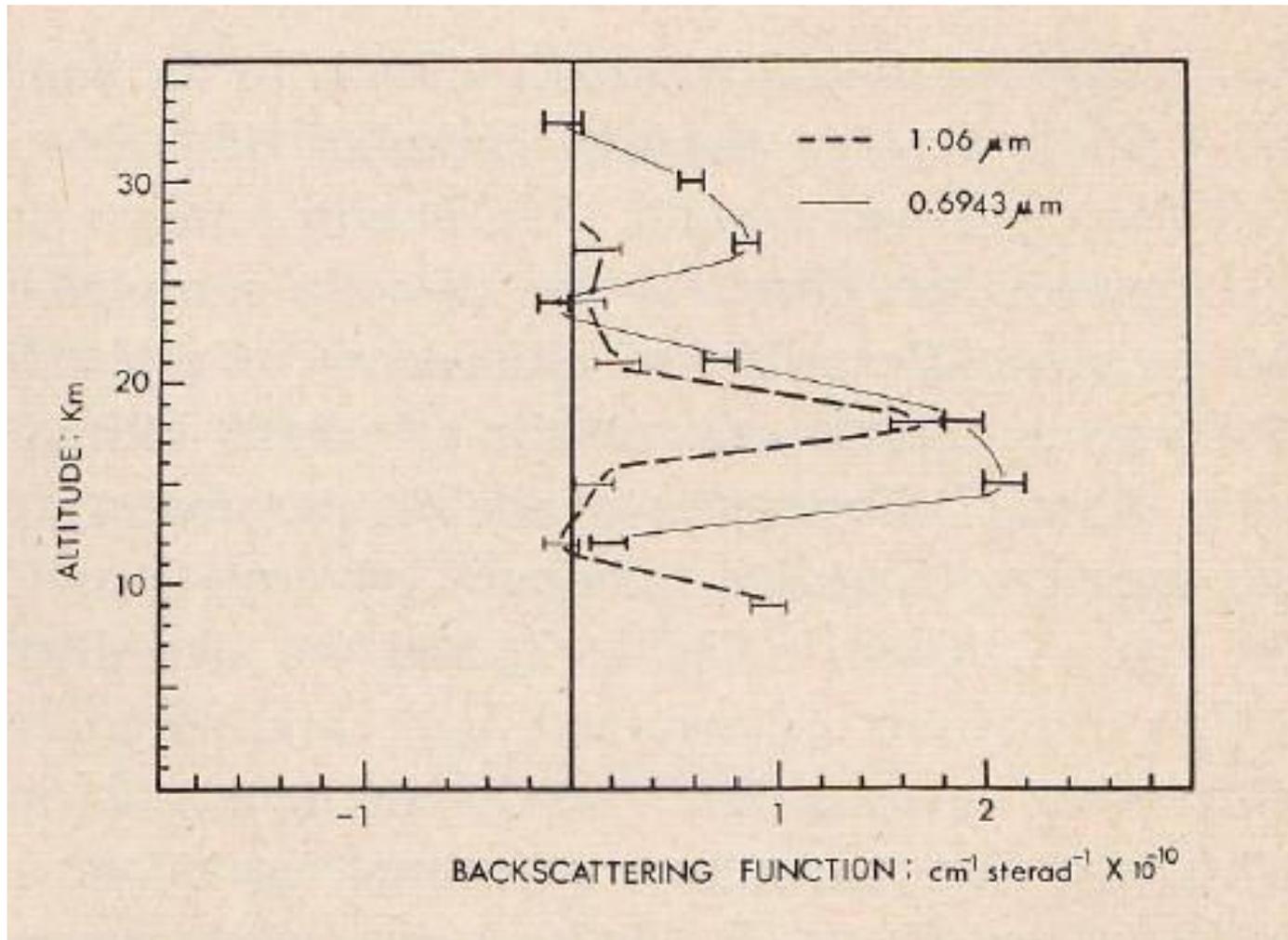
A



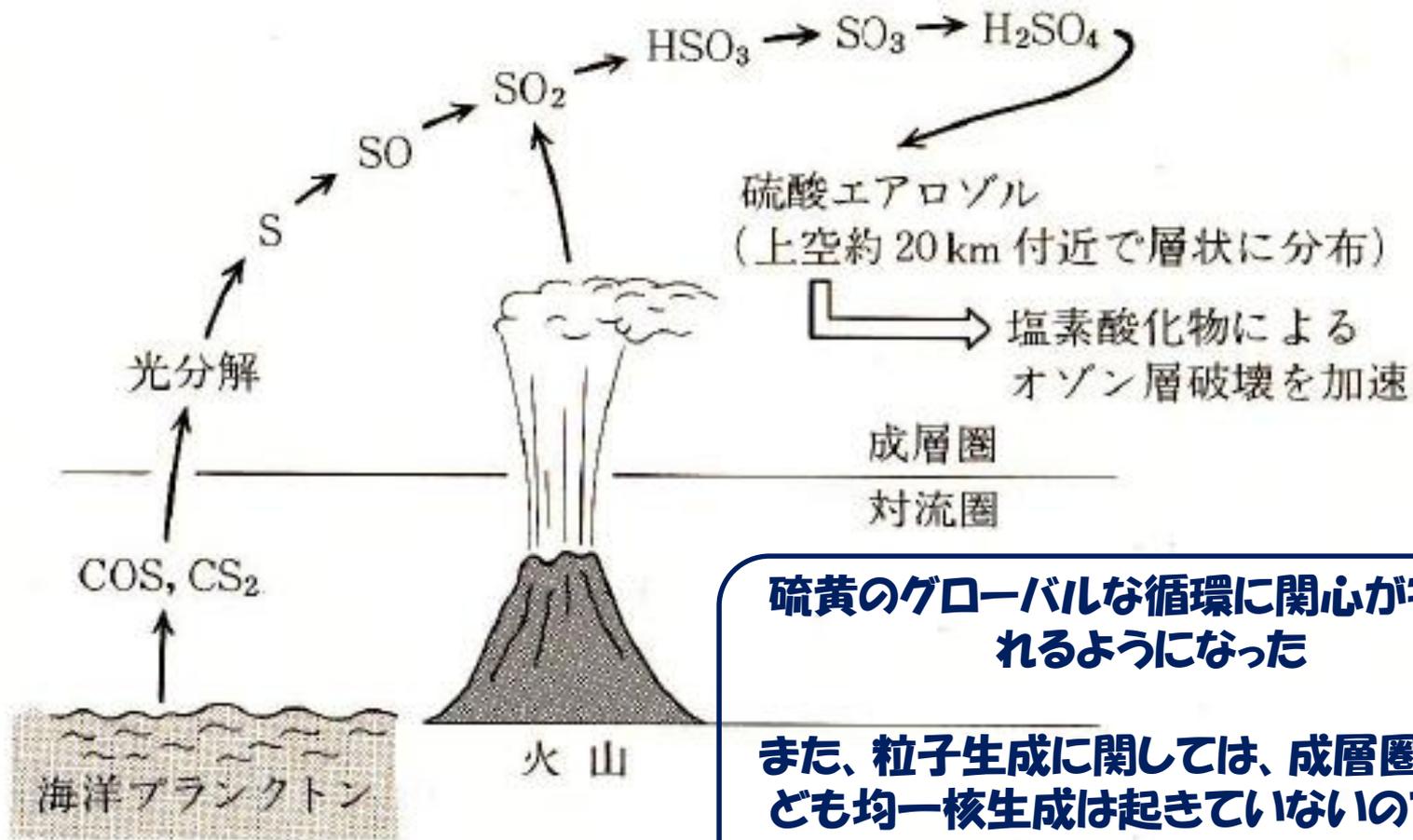
B



C



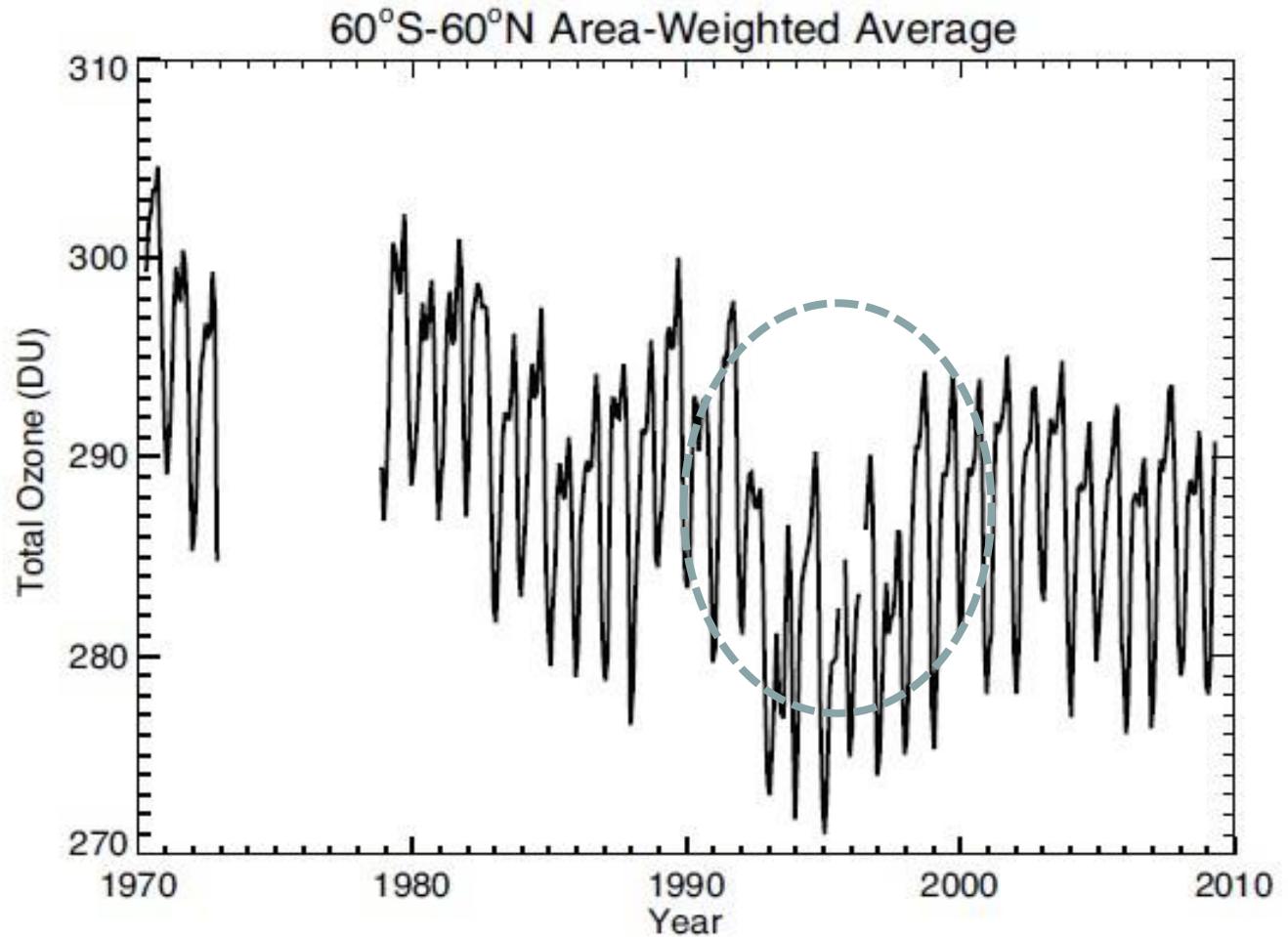
名古屋上空、1976年4月7日—9日のライダーエコーを積算して作ったプロフィール(Iwasaka, 1977)



硫黄のグローバルな循環に関心が寄せられるようになった

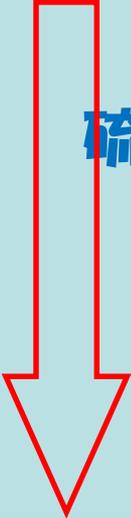
また、粒子生成に関しては、成層圏といえども均一核生成は起きていないのではないかと考えられるようになった

地球規模の気温の低下やオゾン破壊は火山噴火によって生じることが確かめられた



このことに関連して、小池らはピナツボ火山噴火直後から成層圏窒素酸化物(NO_x)濃度が顕著に減少したことを観測した。

この大筋は



硫酸エアロソルの増加
硫酸エアロソルによる窒素酸化物(特に NO_2)の取り込み
ノックス濃度の低下
窒素酸化物による塩素酸化物との反応の低下
塩素酸化物によるオゾン破壊の機会の増大
成層圏オゾン濃度低下

火山噴火影響が関心を集めている中
火山噴煙監視用に打ち上げられた人工衛星が
PSCを検出し、つづいてライダーによるPSCの
検出がなされた

第3講
圧倒的な関心を呼んだ
オゾンホール
エアロゾルの表面反応

どのようにして粒子が生まれるか？

と並んで

**どのような表面反応が進行し
環境に影響が出るか？**

にも多くの人の関心が寄せられるようになった。

話しは飛ぶが、1960年当時、雲形成や降水課程などの研究に携わっていた者の多くは、「火山灰が有力な氷晶核であろう」と考えていた。
この話はまた後で触れる。

1960年代は、世界的に人工降雨が盛んに研究実験されていた時代である。

しかし、巨大火山噴火の噴煙が成層圏に吹き込まれることが気象研究者の興味の持ち方を買えたかもしれない。いずれにせよ、雨や雪と関係づけて考える人はいなかった。



PSC

The Lidar measurement strongly suggested that very cold temperature was important factor to form Polar Stratospheric Cloud (PSC)

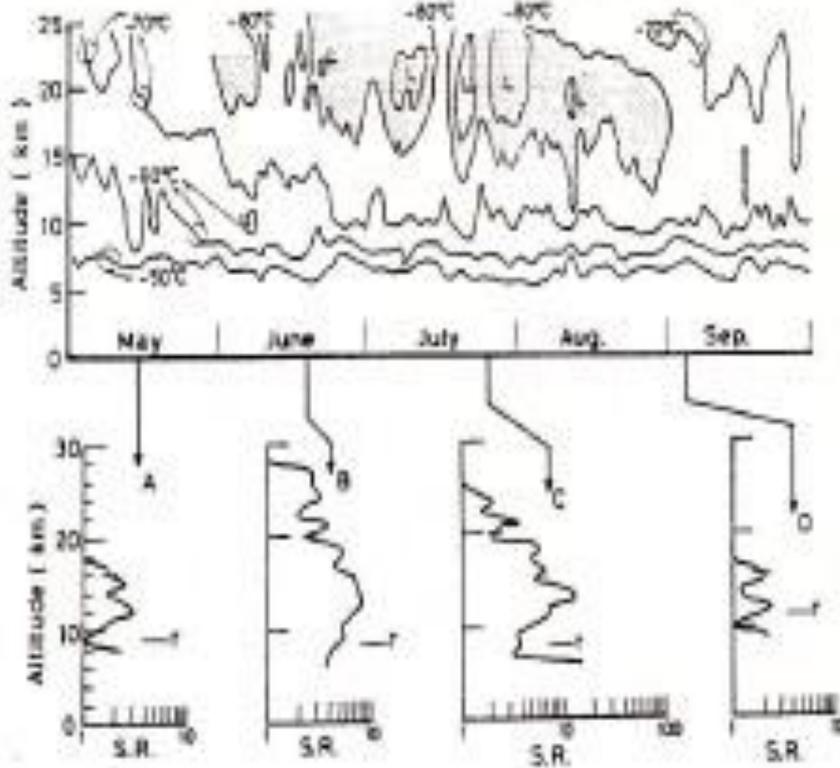


Fig. 1 Temperature distribution and the vertical profiles of scattering ratio measured at Syowa Station ($69^{\circ}00'S$, $39^{\circ}35'E$) in 1983. Very cold region with $T < -80^{\circ}C$ is shaded (upper). "T" indicates the tropopause height (lower).

A; May 14, 1983,
B; June 17, 1983,
C; July 26, 1983,
D; September 2, 1983.

Iwasaka et al., GJR, 1986

南極昭和基地での結果
当時南極でライダーを運用していたのは日本だけでした。低温の冬に大発生するということが判ってから北極でドイツ、アメリカが始めました。

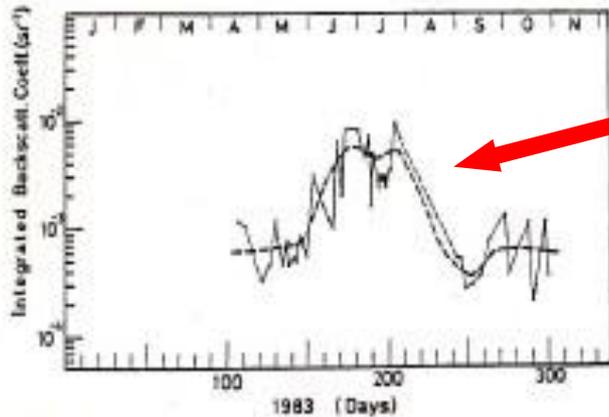


Fig. 2 Integrated backscattering coefficient of aerosol particles in the stratosphere. This value increased extremely in winter.

as volcanic ash loaded into the stratosphere changes noticeably the polarization properties of the incident wave (Hayashida *et al.*, 1984).

In Fig. 3, we compare the depolarization ratio measured on June 2 (early stage of the enhancement) with that on June 30 (fully developed stage).

3. Discussion and summary

1) Aerosol content and depolarization ratio in winter

Now it is well established that most of stratospheric aerosol particles are composed of sulfuric acid solution. Therefore their shape is spherical

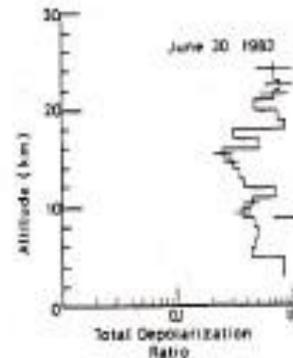
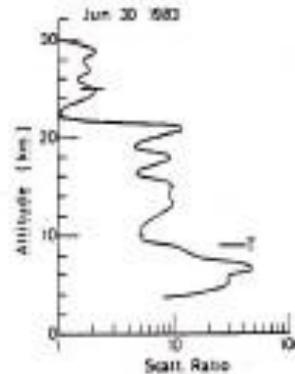
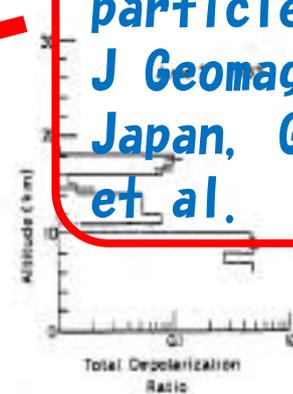
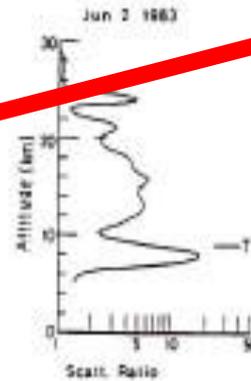


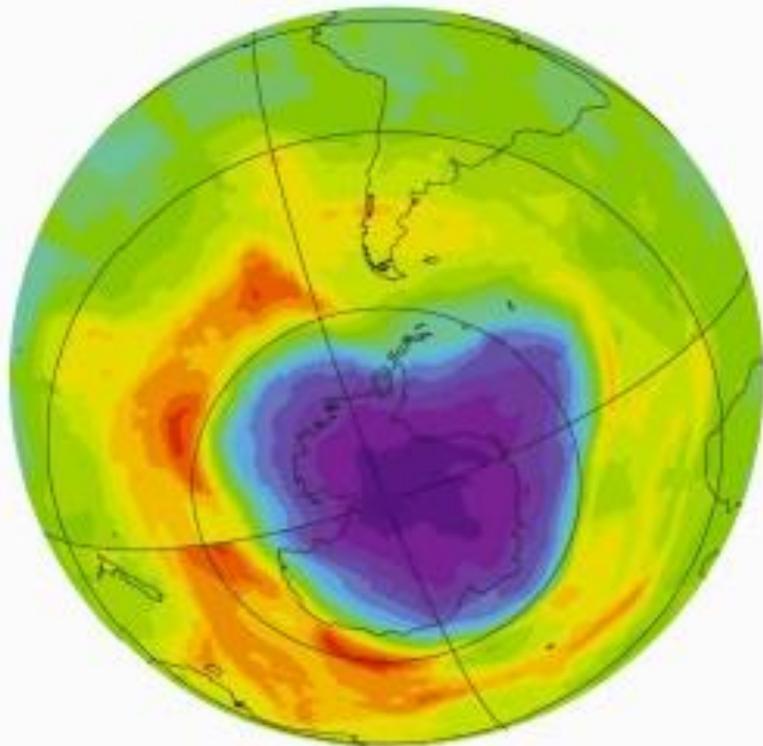
Fig. 3 Comparison of results measured during the winter enhancement of the layer. The measurements large scattering ratio and ratio. However the profiles have large scattering ratio tion ratio.

In winter Antarctic stratosphere lots of particles (PSCs) appeared
 J Geomag Geoelect, J Met Soc Japan, Geophys Lett, Iwasaka *et al.*

Descending PSCs transport stratospheric water, N, and others to the troposphere

Ozone Hole

Polar Stratospheric Cloud
activates inert ClONO_2 and
makes lots of ClO_x
destroying rapidly
stratospheric ozone.



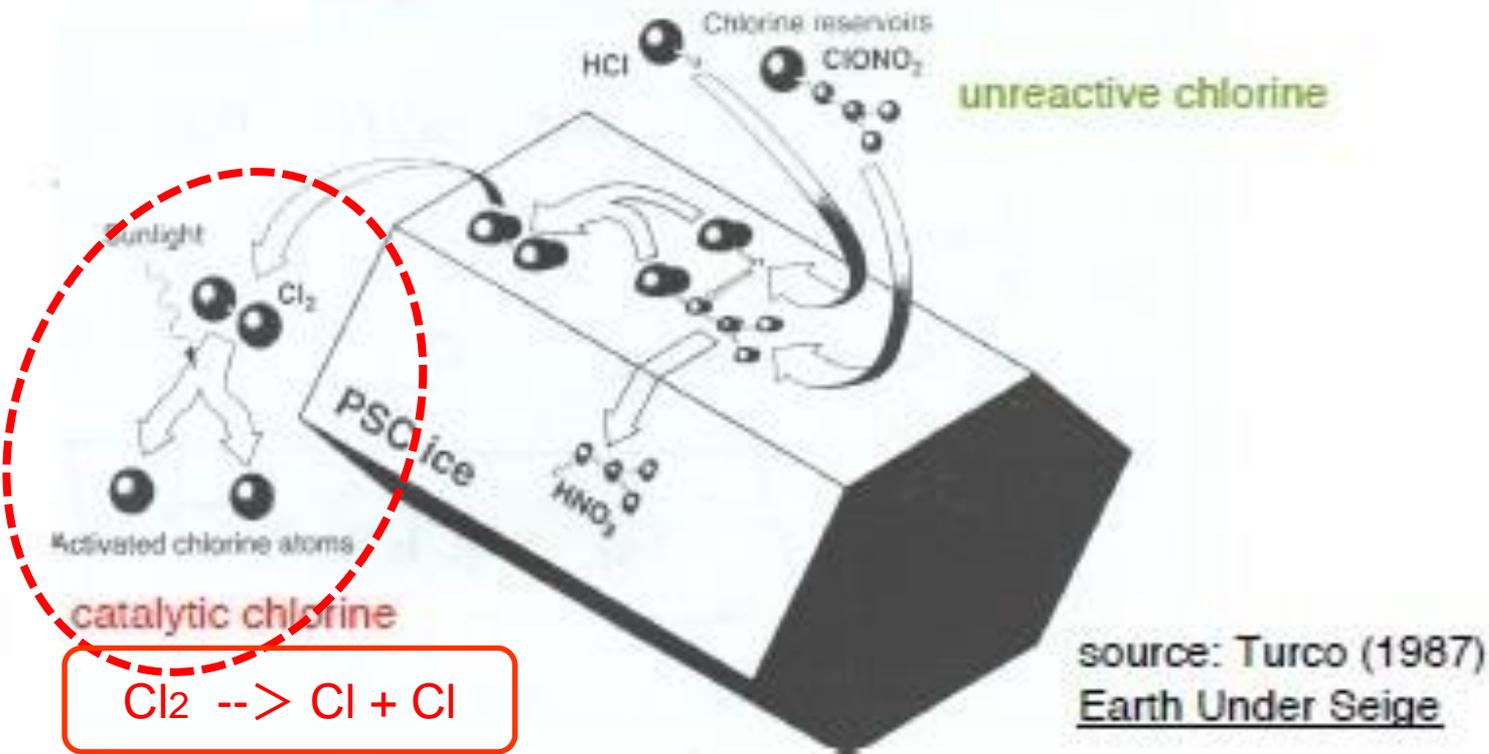
4 October 2001



Total Ozone (Dobson units)

source: <http://www.af.noaa.gov/WWWHD/pubdocs/Assessment02/Q&A.html>

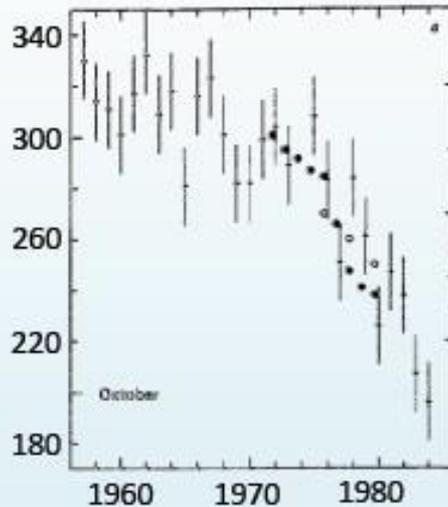
Heterogeneous Reactions Key to catastrophic ozone destruction



Prediction: Ozone destruction should correlate with regions with high concentrations of activated chlorine (Cl and ClO)

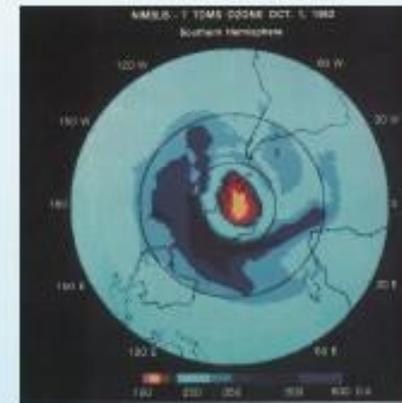
PSC particle has been recognized as important chemical reaction site forming ozone hole and transporter of atmospheric constituents

Ozone Hole Discovery

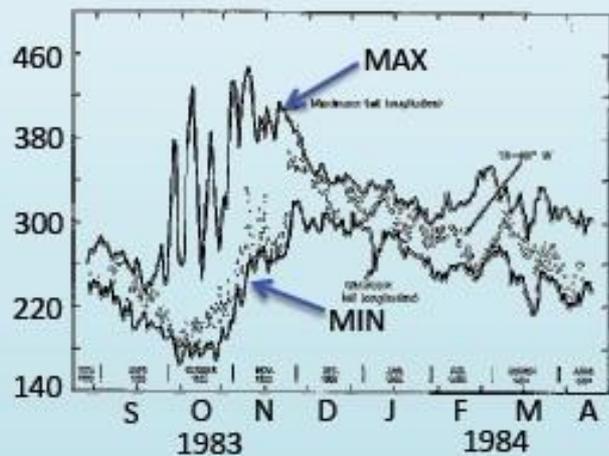


Farman, Gardiner, & Shanklin (1985)

Discovered at the British Antarctic Survey station at Halley Bay from measurements begun during the IGY



Original TOMS ozone hole map produced by Don Heath and PK Bhartia in 1985



Satellite measurements showed that Halley Bay was in best location for seeing ozone hole

Long-term observation of total ozone shows large decay trend in Antarctic spring

**ClO_xはオゾン破壊連鎖
反応によって、オゾンを
急速に破壊する**

南極の冬は
PSCと呼ばれる
エアロゾルが大発
生する

PSC表面では
フロン起源の塩素化合
物を活性化する反応が
急速に進行する

フロンやN₂Oは丈夫な化学物質な
ので簡単には分解せず、いつまで
も大気中に漂っている。
成層圏にまで拡散すると紫外線に
よって光化学反応を起こしClO_xや
NO_xが出来る。

対流圏温暖化
成層圏寒冷化



フロン起源

土壌バクテリ
ア・肥料起源

火山噴火の影響に関する観測で
「オゾン濃度低下」があった。

このオゾンとフロンの関係の中で果たしている
窒素酸化物の役目を見てほしい！

フロンのオゾン破壊が急速に進行しないいわけは
フロン起源の塩素酸化物の反応相手として窒素酸化
物が多量にあった(反応の結果できる組成は極めて
不活性な物質である)ためであったが、ここに多量の硫
酸液滴が混じると



(硫酸液滴のなかに溶け込む)

(結果として塩素酸化物の反応相手がなくなり
オゾン破壊の連鎖反応系を維持させることになる)

PSCの役割とよく
似てます

フロンと言う物質

アメリカでは車社会の到来とともに爆発的に利用が広まった(GMの戦略)
日本では潜水艦の空調に使用された

第2次大戦後、冷媒のほかに

精密機械の洗浄(先進国ではこの比率も高かった)
ただし、今日の日本の高齢化社会を見ていると家庭レベルで使える
空調や食品の冷蔵・冷凍庫は必需品であろう

フロンガス 追放 待ったなし

各国で開発競争火ぶた

【東京23日電】フロンガスに代わる代替品を開発する各国の競争が激化している。日本、米国、欧州各国がそれぞれ独自の技術を開発し、市場を争っている。環境保護の観点から、フロンガスの使用が制限される中、代替品の開発は急務とされている。



【東京23日電】フロンガスに代わる代替品を開発する各国の競争が激化している。日本、米国、欧州各国がそれぞれ独自の技術を開発し、市場を争っている。環境保護の観点から、フロンガスの使用が制限される中、代替品の開発は急務とされている。日本では、三菱電機や日立製作所などが、水素ガスや炭酸ガスなどの代替品を開発している。米国では、デュポン社などが、水素ガスを開発している。欧州では、デュポン社などが、水素ガスを開発している。

ぼく大な費用と時間必要 毒性試験は日米欧共同

業界は、代替品を作ることへ一気に傾く
曰く、「これはオゾン層を壊さない」と。



【東京23日電】フロンガスに代わる代替品を開発する各国の競争が激化している。日本、米国、欧州各国がそれぞれ独自の技術を開発し、市場を争っている。環境保護の観点から、フロンガスの使用が制限される中、代替品の開発は急務とされている。

ウィーン条約／モントリオール議定書

ウィーン条約の主な内容

- (A) オゾン層の変化により生ずる悪影響から人の健康及び環境を保護するために適当な措置をとること(第2条第1項)
- (B) 研究及び組織的観測等に協力すること(第3条)
- (C) 法律、科学、技術等に関する情報を交換すること(第4条)
等について規定

モントリオール議定書の主な内容

- (A) 各オゾン層破壊物質(ODS:Ozone Depleting Substances)の全廃スケジュールの設定(第2条のA~H)
- (B) 非締約国との貿易の規制(規制物質の輸出入の禁止又は制限等)(第4条)
- (C) 最新の科学、環境、技術及び経済に関する情報に基づく規制措置の評価及び再検討(第6条)
等について規定

オゾン層保護対策のこれまでの経緯

海外

- カリフォルニア大・ローランド教授がオゾン層に対するフロンの影響を指摘
 - オゾン層の保護のためのウィーン条約採択
 - オゾン層を破壊する物質に関するモントリオール議定書採択
- （モントリオール議定書
6度の規制強化）
- 1990年 ロンドン
 - 1992年 コペンハーゲン
 - 1995年 ウィーン
 - 1997年 モントリオール
 - 1999年 北京
 - 2007年 モントリオール
- ほぼ全ての国（196カ国＋EU）の参加に（モントリオール議定書）

国内

1974年

1985年

1987年

1988年

1998年

2001年

2002年

2006年

2009年

- オゾン層保護法 成立
- モントリオール議定書 加入

- 家電リサイクル法 成立

- フロン回収・破壊法 成立
- 自動車リサイクル法 成立

- フロン回収・破壊法 改正

フロンはオゾンを壊す

CFCの時代

CFCは2009年で廃止

オゾン壊しのない
フロンを作ろう

HCFCが登場

HCFC生産許可等の規制

HCFCはとんでもない
温暖化原因物質

HFCが登場

市場に出回っているものの
主流はこれ

フロンがもたらした有用性から
逃れられない我々の生活

■自主行動計画策定団体

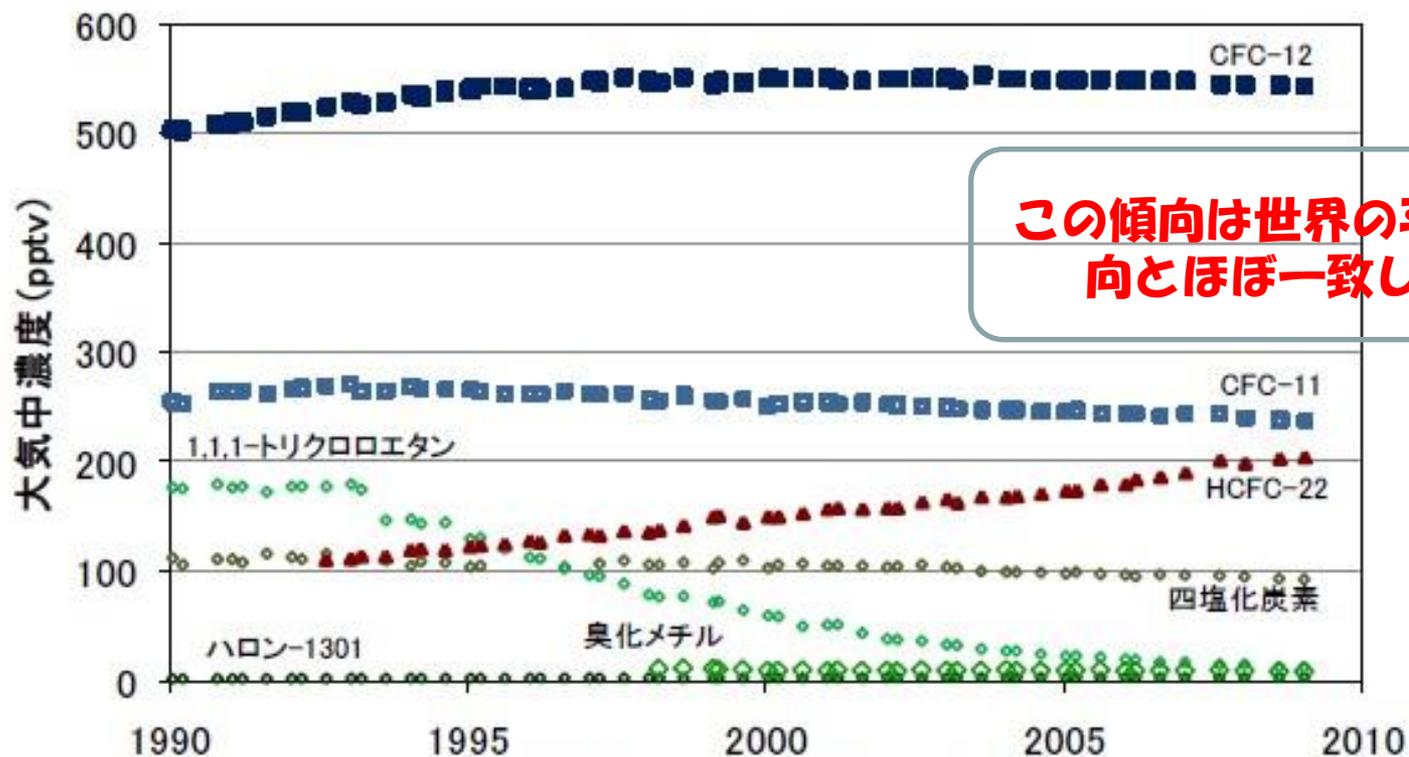
代替フロン等3ガスの排出抑制に向けて、現在では8分野、22団体が自主行動を策定し、開発、利用、漏洩防止、管理の徹底などに取り組んでいます。

区分	対象ガス	策定団体	区分	対象ガス	策定団体
HFC等製造	HFC	日本フッ素フロン協会	冷凍空調機器	HFC	(社)日本自動車工業会
	PFC, SF6	(社)日本化学工業協会			(社)日本自動車部品工業会
樹脂、樹脂材	HFC	クレタンフォーム工業会 クレタン原料工業会			(社)日本自動車販売協会連合会
		高純度ポリエチレン工業会			(社)日本中古自動車販売協会連合会
		押出樹脂ポリスチレン工業会			日本自動車輸入組合
		フェノールフォーム協会			(社)日本冷凍空調工業会
エアゾール等	HFC	(社)日本エアゾール協会			(社)日本冷凍空調関連工業連合会
		日本製薬団体連合会			日本自動車販売工業会
		日本遊戯機協同組合			(社)日本電機工業会
電気機器ガス 使用機器	SF6	(社)日本電機工業会			洗淨用・塗料
		電気事業連合会	半導体等製造	HFC, PFC, SF6	(社)電子情報技術産業協会
金属製造等	SF6	日本マグネシウム協会			

環境省や経産省と一緒にフロン・代替フロン削減を進めている団体など極めて広い業界に及んでいる(=生活にしっかり入り込んでいる)ことが判る

オゾン層破壊物質の大気中濃度の状況(日本)

- 北海道(大気が清浄な地域)の観測地点において
 - CFC-12の大気中濃度は1990年代後半以降ほぼ横ばいであったが、最近わずかに減少の兆し。CFC-11の大気中濃度は減少。
 - HCFC-22の大気中濃度については急速に増加。



この傾向は世界の平均的な傾向とほぼ一致している

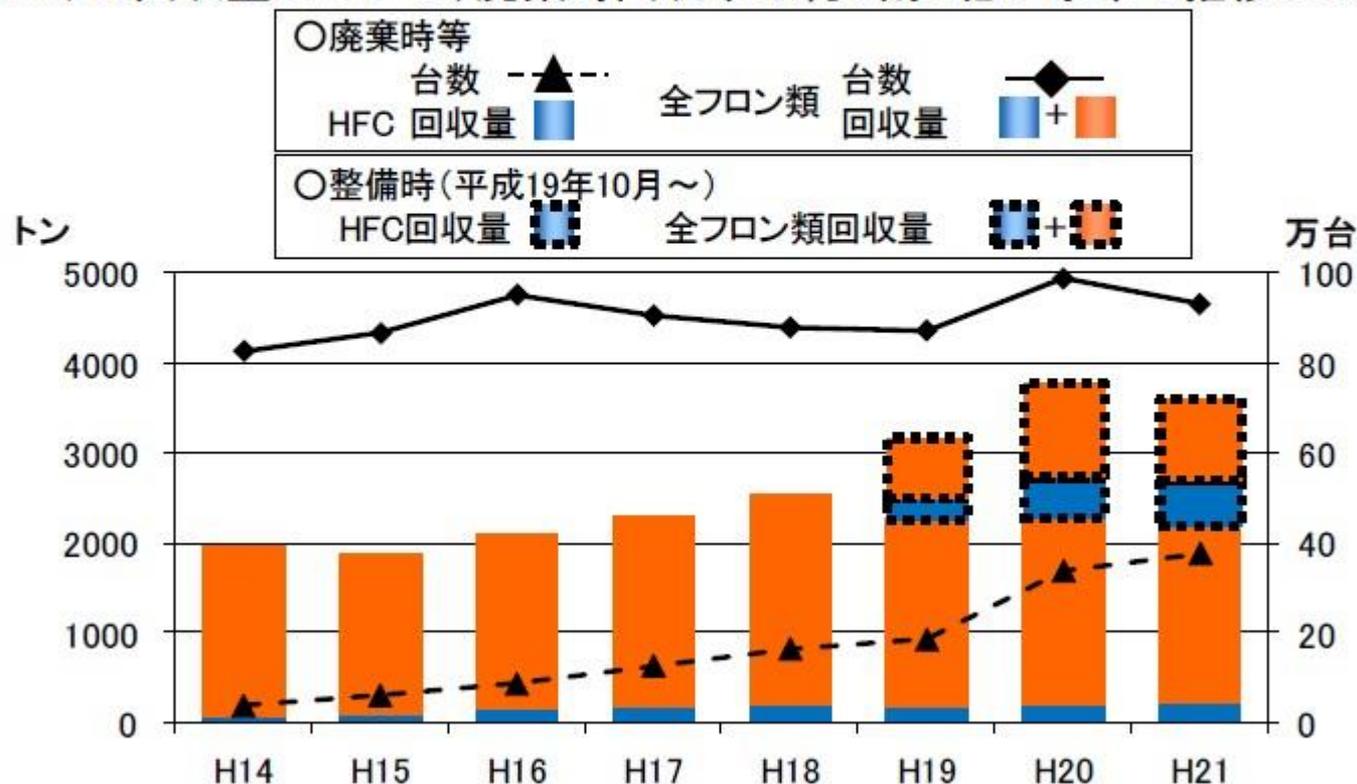
オゾン層破壊物質の大気中濃度(環境省)



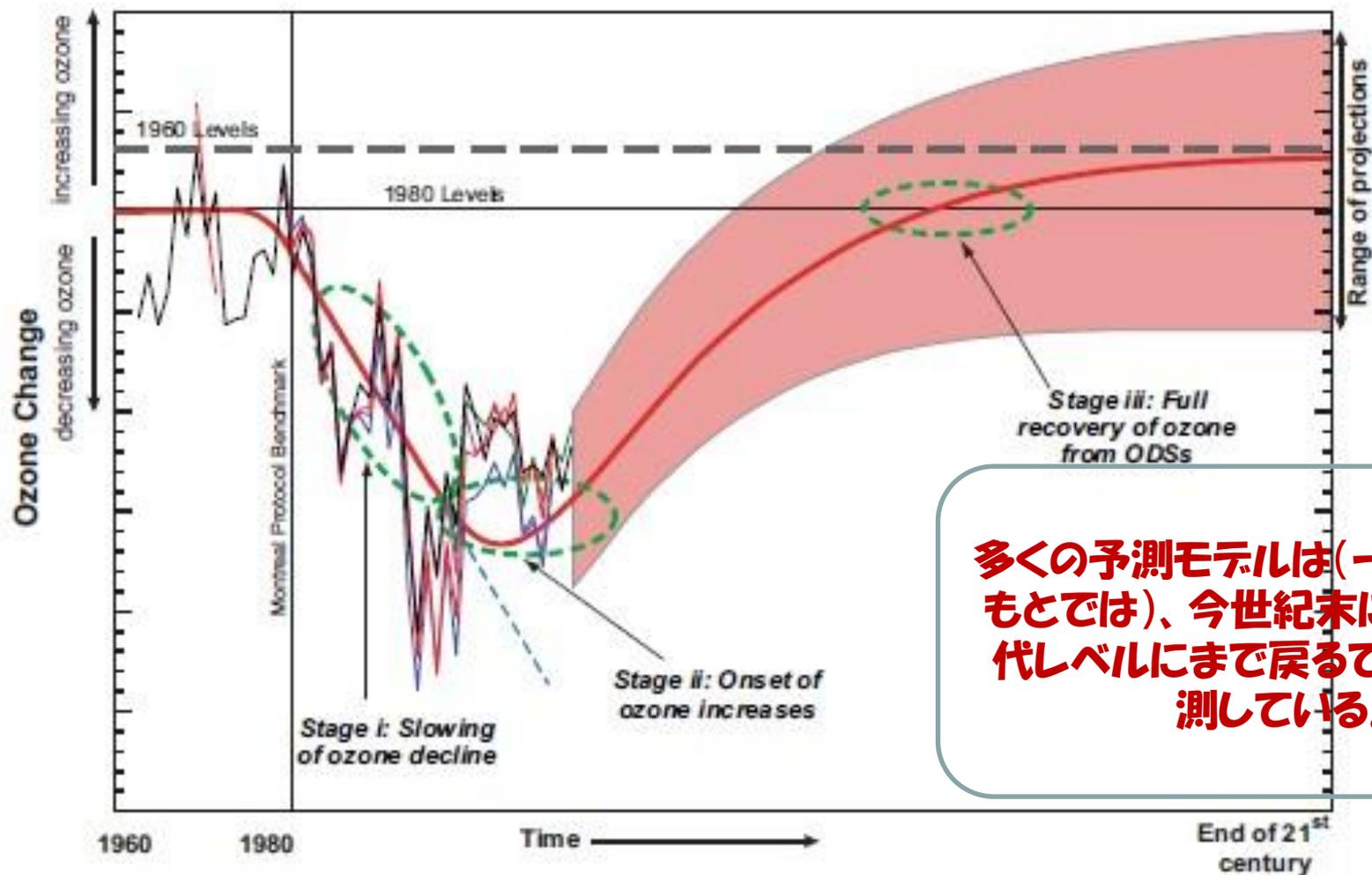
一方で、使用済みのフロンの回収はなかなか進まず。業界任せではダメと言う声は昔から強かった。そして、最近の統計においても、回収率は大幅に改善されたとは言えない状態である。

フロン回収・破壊法による回収量・回収率の推移

○ 第一種特定製品(業務用冷蔵・冷凍・空調機器)のフロン類(CFC、HCFC、HFC)の回収量について、廃棄時回収率は約3割と低い水準で推移している。



	H14	H15	H16	H17	H18	H19	H20	H21
廃棄時回収率	35%	29%	30%	31%	32%	27%	28%	30%



多くの予測モデルは(一定の条件のもとでは)、今世紀末には1960年代レベルにまで戻るであろうと予測している。

Figure P-2. A conceptual diagram of the evolution of column ozone between 60°N and 60°S between 1960 and 2100 (the x-axis is not to scale) adapted from Fig. 6-1 in the 2006 Assessment. The observations are discussed in Chapter 2. The thick red line is a representation of the ozone amounts observed to date and projected for the future. The red-shaded region represents the model results predicted for the future. The Montreal Protocol 1980 ozone level benchmark is shown as the horizontal line. The dashed thick gray line represents the somewhat uncertain 1960 levels. The three recovery stages are shown by green dashed ellipses.

CFC HCFC
規制
使用料抑制



HFC
へ転換
使用量急増



CFC
規制
回収率低迷

CFC
規制
使用时漏えい



フロン類の発明がもたらした
便利さを
「我々はどのように考えればよ
いのか？」

対する答えが求められている

超高齢化社会

例えば、紫外線による健康被害のうち
「長期間浴び続けることによって生じる障害」が多い

超高齢化社会 = 紫外線を浴びている期間が長い人が多い社会

医療体制の改造

医療費負担増

若い時からのケアー

年とってもケアー

「オゾン層が破壊されて紫外線が強くなる」とさかんに皮膚の紫外線ダメージをあげて
 サンスクリーン剤を宣伝する当時の新聞広告

Food Environment Laboratory
 Kyoto University

紫外線は、紫害線。



(さらに好品質、すべの好価格。)

紫外線は、紫害線。オゾン層破壊により、紫外線が強くなる。皮膚の紫外線ダメージをあげて、サンスクリーン剤を宣伝する。

0120-165-555

アテニア化粧品

スピードはひかめずに、シートベルトは忘れずに。

当時(1990年代)から20
 ~30年経ってこのような
 メッセージを見返してみ
 とどのような問題点が出
 てくるのだろうか？

従来見られなかったタイプの火災が起きるようになってきた

都市人口の増加
産業の多様化
都市の拡大

いたるところにある化学工場

都市部で増える高層複合ビル

**例えば、最近の火災では
「天津火災」**

**何でたくさんの消防士が
死んだのか？**



フロン類の一つであるハロン1301は、きわめてすぐれた消火剤である。

消火作業は、都市域や工場地域を中心に複雑化する一方。

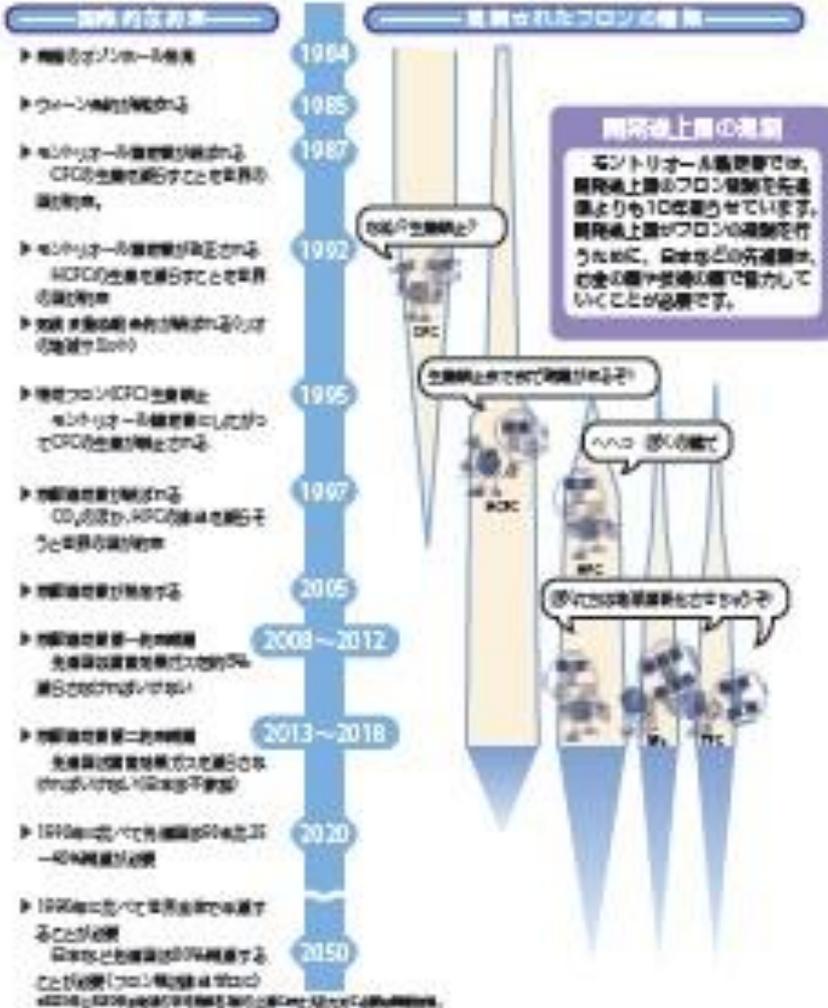
建造物の材料、屋内におかれる物質の種類、屋内におかれる設備品の種類、…

産業の在り方の変化(コンビナート化など)、居住地域との接近、人の集合する施設の増大、…

5

フロン規制と増える代替フロン

モントリオール協定でフロンの一部が規制されたことによって、オゾン層破壊力（F）の弱いフロンHCFCやオゾン層を破壊しない代替フロンHFCなどが増えてきました。



2050年には、我々の身の回りにあるフロン(代替品も含め)一切なくなると見込まれている

**オゾンホール現象は
人間活動による地球規模の環境破壊の大きさを想像させた**

エアロソルの表面反応への関心を高めた

均一核生成は起こりそうになく改めて粒子の生成・成長の意味

**一方で、きわめて長い期間における
水や窒素の循環に関する見方に大きな暗示を与えた**

第4講

グローバルな物質循環との関係
地球温暖化(エアロソルの放射影響
へのかかわり方)

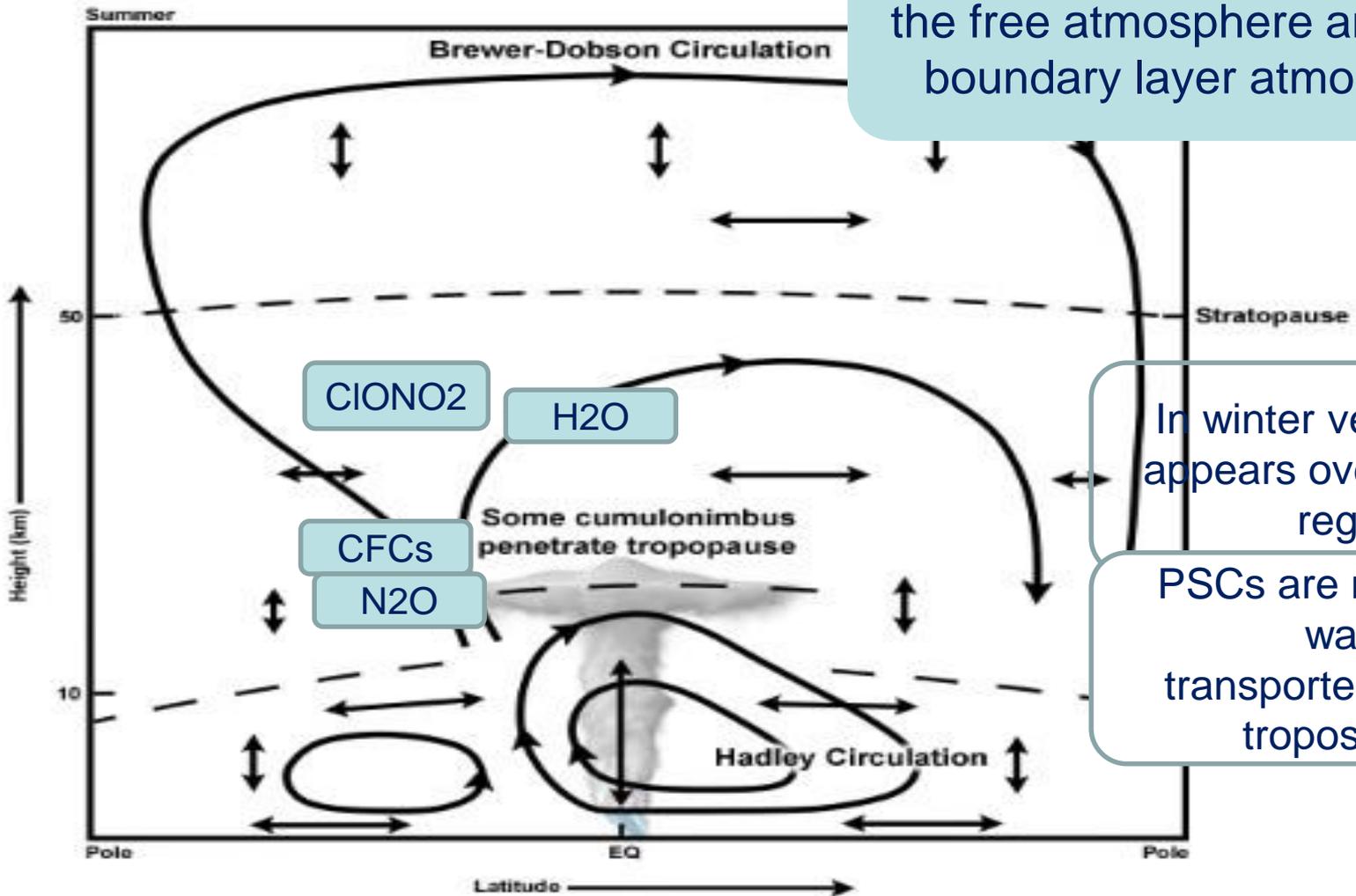
「水は循環している」

**と小学校の教科書などにも記載されている
その時に強調されているのは「大気中へ蒸発してゆく水」
と「雨や雪になって空から落ちてくる水」である。**

**雲や降水は、近年、エアロソルのサイエンスと切り離せないものになっ
てきている。**

↔ Air mass motion

From view of atmospheric dynamics there is large difference of atmospheric dynamical feature between in the free atmosphere and in the boundary layer atmosphere



In winter very cold air appears over the polar region

PSCs are made from water transported from the troposphere

Polar stratospheric clouds (PSC) particle is made from water globally transported from troposphere

General Circulation

(global scale air motion in the stratosphere and the troposphere)

This suggests the importance of combination of air motion and chemical processes including particulate matter

There are many air motions having spatial and temporal scales in the atmosphere

水の循環は

様々な空間スケールで見られ
また
様々な時間スケールで見られ

それらが全体となって
地球の水の循環系を作っている

1970年代から

**人工降雨研究から野外観測へ
研究が大きくなり流れを変える**

**雲粒子の形成と雲形成を
改めて野外でしっかり観測しよう**

**その後は雲や降水の科学は沈滞モードの時代
しかし、今やたいへん活発な分野になりつつある**

雲粒と雨粒(サイズ、半径で)

雲粒の大きさ 0.001mm~0.1mm
(0.1mmの雲粒は極めてまれ:代表値は0.01mm)

雨粒の大きさ 0.1mm~3mm
(代表値は1mm)

水滴が上昇流に抗して落下できる大きさを基準にして、雨粒と雲粒に分ける
デカさで100倍ボリュームで1万倍！！

雲から雨が降ってくるというのは
「小さい水滴の中に目立ってデカいのがいる」

雲粒と雨粒(空間個数濃度)

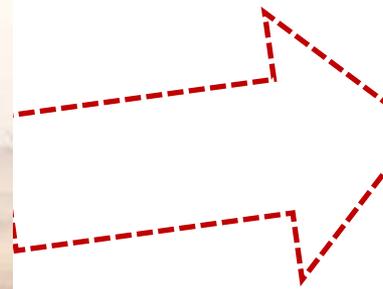
雲粒の濃度 **1cm³中数100個**
(1cm³中 10~数1000個)

雨粒の濃度 **1リットル中1個程度**
(1m³:1000リットルに10~1000個)

100万個の雲粒の中に1個の雨粒がある

**雲から雨が降ってくるというのは
「小さい水滴の中で1個だけ大きくなって落下する現象」とも言える**

雨の降り易さ降りにくさは水蒸気から
適当な濃度の(雲)粒子を作りそれらをもとに
落下するほど大きい(雨)粒子を
「作れるかどうかなのです」



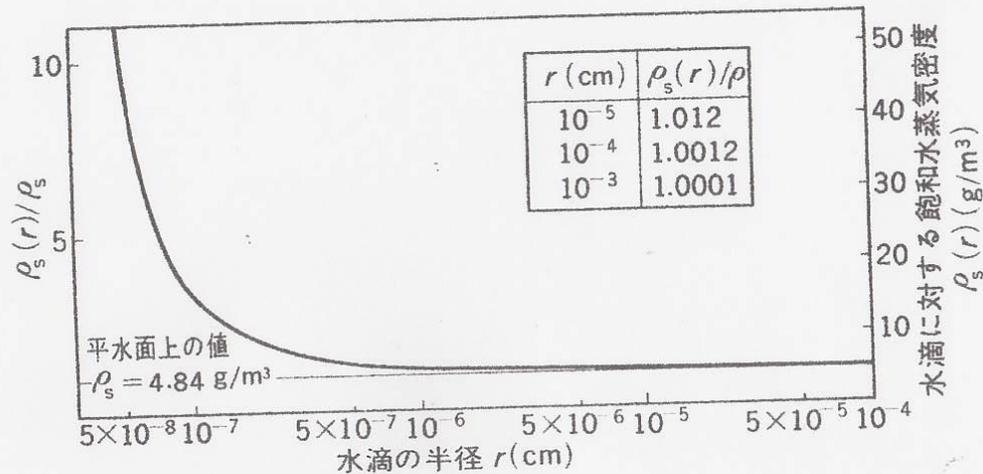


図 18.8 半径 r の水滴に対する飽和水蒸気密度 $\rho_s(r)$ と平水面上における飽和水蒸気密度 ρ_s との比. 0°C .

**この図は気温 0°C の状態にある水面上の飽和水蒸気密度
 水滴の半径が 10^{-7}cm 以下になると急速に「水滴として保持してやる
 ための蒸気圧が高くなってゆく」**

「こんなことが雲の中で起きているとはとても思えない」

多くの気象学者の研究動向を左右した研究に、
1935 ベルシェロン(T. Bergeron)が雲の中の過冷却水滴に氷晶がぶ
つかることで雨粒が生れるのであって肝心なことはどうやって氷の微結
晶が生れるかだ！！

戦後の気象学の発展の中で、このことがきっかけでとにもかくにも氷晶
の生成プロセスに多くの研究者の関心が向かった。
ここにおいても過冷却水滴の生成はある意味で取り残されていた

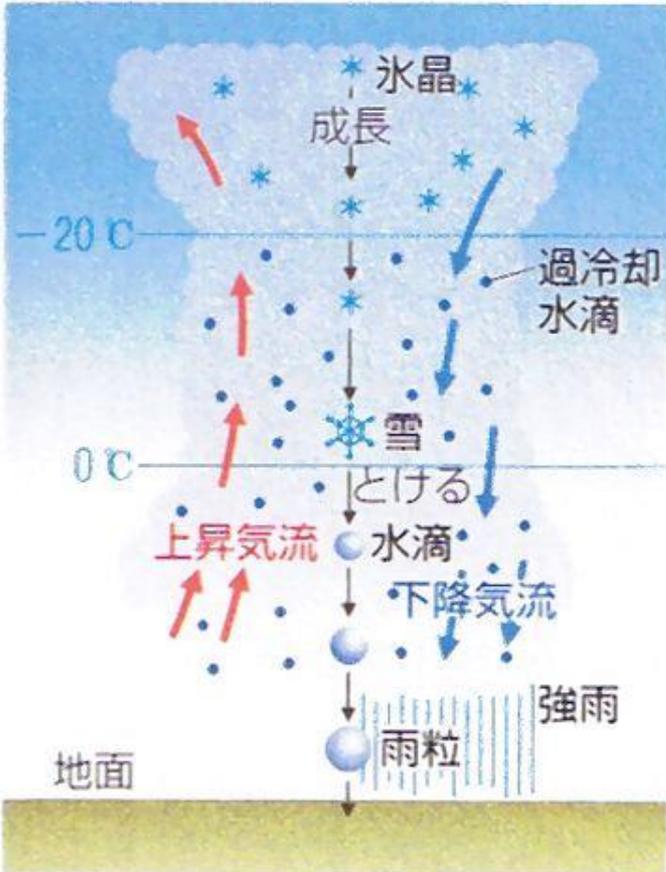
氷晶の研究は水滴の研究よりある意味ではとっつきやすい

いろいろな産業の中で、固体の物性に関する知見が蓄えられていたし戦
後復興のなかで様々な金属や結晶物が作られ利用されていた。

地球上(特に陸上)に降っている雨のほとんどは氷晶(氷の結晶粒子、公
設粒子)が落下途中に溶けて水滴になったものが降っている！！

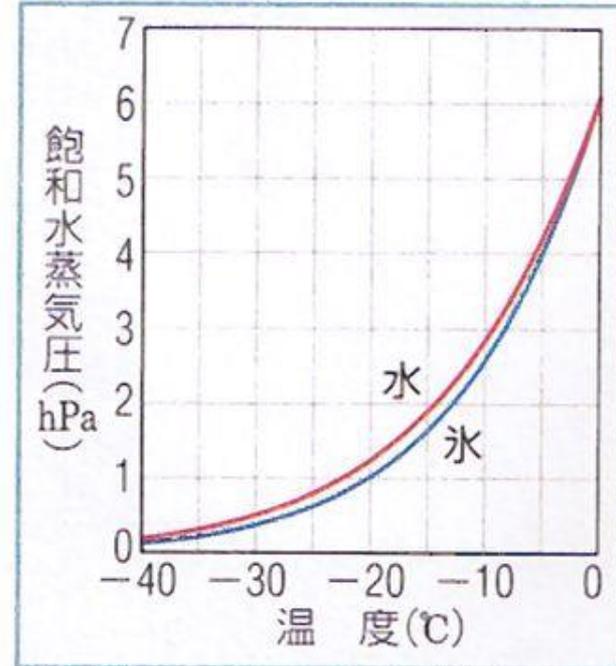
Cold rain (ice crystal rain)

冷たい雨(氷晶雨)



飽和水蒸気圧は氷晶より水滴の方が大きいから、氷晶に対して飽和していても、水滴に対しては不飽和になる。氷晶と過冷却した水滴とが共存していると、水滴が蒸発して水蒸気圧が上がり、水蒸気は氷晶の表面に昇華する。その結果、氷晶は大きくなり、落下していき、途中でとけて雨となる。気温が低い場合は、とけずに雪となる。

水と氷の飽和水蒸気圧



氷と過冷却状態の水、それぞれに対する飽和水蒸気圧は異なる。

氷晶の成長、あるいは氷晶核の研究で

中谷の雪の研究は世界的にもよく知られた研究である。

純粋の10-4cm程度の水滴は-40℃まで凍らない

- ・凍るには種(氷晶核)が必要**
- ・水滴が過冷却になるのはよく見られる**

**やがて、氷晶核として
黄砂や火山灰粒子が能力が高いことも実験的に確かめられるようになった。**

水分子が構造をもってくっつきやすい構造があるからであろうと考えられている。粘土や雲母系のケイ酸塩鉱物。

しかし、天然の氷晶核濃度は相当低い

氷晶が過冷却水滴を食べて成長し雨粒サイズに成長する

このような見方に一石を投じる観測結果がアメリカや日本の研究者から出され始めた「暖かい雨 (warm rain) 」に関する研究だった(1970年前後)。

「暖かい雨 (warm rain)」と呼ばれるものは、ベルシェロンらの指摘したような「氷晶が出来て、それが過冷却水滴を補足したり水滴から水分を奪って成長しながら落下・・・」でなく、何らかの原因で比較的大きな水滴が出来てそれが落下しつつ小さな水滴を補足(衝突して合体する)して雨粒サイズに至るというもので、改めて雲粒子(微水滴)はどうして出来るのかを問うことになった。

そして日本ではこのタイプの雲や降水がしばしば観測される。

(ちなみに、ベルシェロンらの指摘した降水過程は冷たい雨(cold rain)と呼ばれる)

日本列島には頻繁に海からの空気が入り込む
このような空気塊は

- ・あまり汚れてない(エアロゾル粒子が少ない)
- ・そのくせ水蒸気濃度は高い
- ・海塩粒子が含まれている

このような空気塊が上空に持ち上げられ冷やされ海塩粒子が水蒸気を集めて(凝結して)成長を始めたとなると……。

雲粒子の種になるエアロゾル(吸湿性エアロゾル)の研究が急速に広がる

海塩(NaCl)粒子、硫酸アンモニウム($(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$)粒子、硫酸(H_2SO_4)粒子などがその代表例とされるが、大気中に見られるこれらの化学組成や構造などはなかなか複雑で、水がどのように取りつくのかを知るにはまだまだ道が遠い。

水滴の衝突併合成長

collision growth of water droplets

- 大きな水滴は落下速度が大きいため、小さな水滴に追いつき衝突して併合し成長する。
- 衝突併合プロセスが暖かい雨の主な過程。

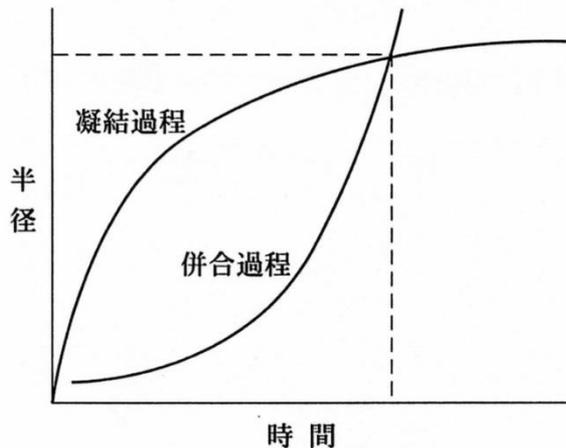


図3.3 水滴の成長速度

水蒸気の凝結による成長速度と水滴同士の衝突併合による成長速度の違いを示す。

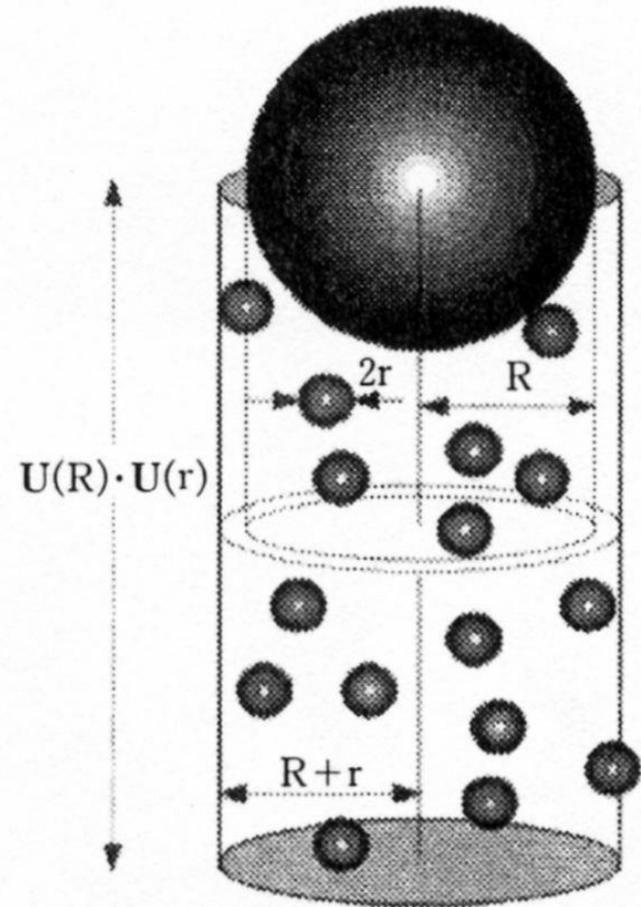


図 5.12 衝突の模式図



蒸気圧降下

現象的には
硫酸液滴などは
良い凝結核

溶液の濃度があまり高くなければ溶液と並行にある水蒸気の圧力 ρ は

$$\rho = (1 - x) \rho_0$$

は、その温度での純水の水蒸気圧、 x はモル分率で表した個体の溶質の濃度。

溶液の状態(液滴の中のことではないか!)がなぜ表面過程に関係するのだろうか?

今でも
解らん



凝結核(condensation nuclei)

雲粒の生成のためには凝結核が必要

- 大気中にはエアロゾルがある。
 - * エイトケン粒子
(0.001~0.1 μm)
 - * 大粒子(0.1~1 μm)
 - * 巨大粒子(1~100 μm)
- 土壌粒子、煙、海塩、硫酸アンモニウム など
- エアロゾルは大陸上で多い。

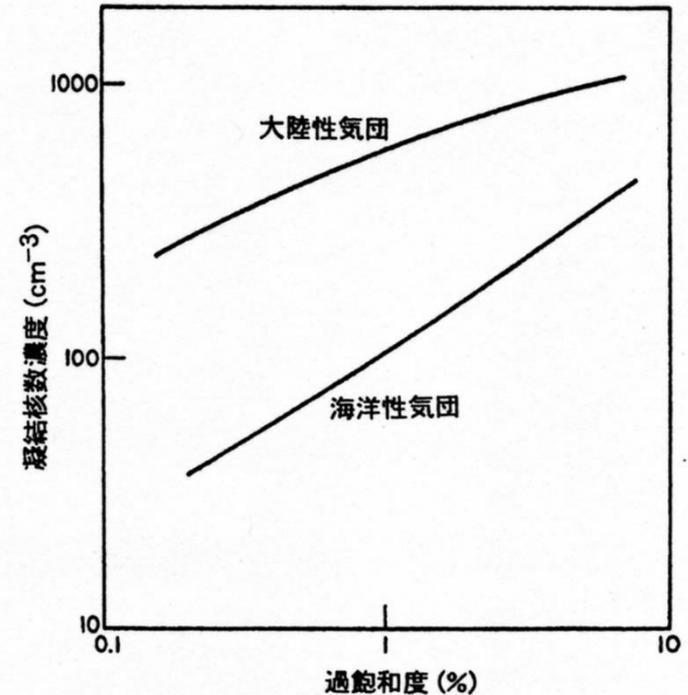
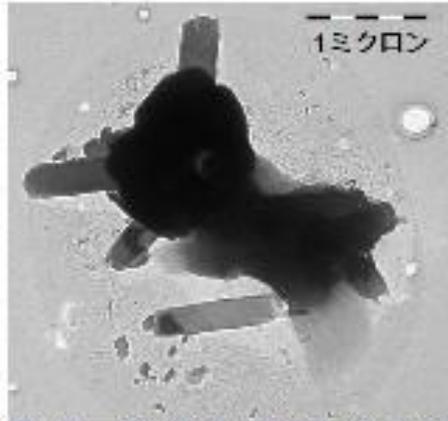


図 5.3 凝結核の活性化スペクトル¹⁷⁾
大陸性気団と海洋性気団の観測結果のメジアンが示されている。

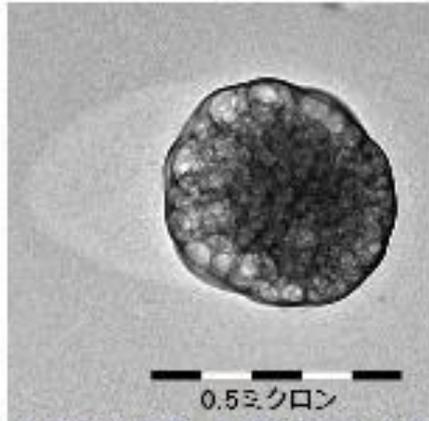
第5講

ふたたび、凝結核や氷晶核
黄砂がしばしば登場

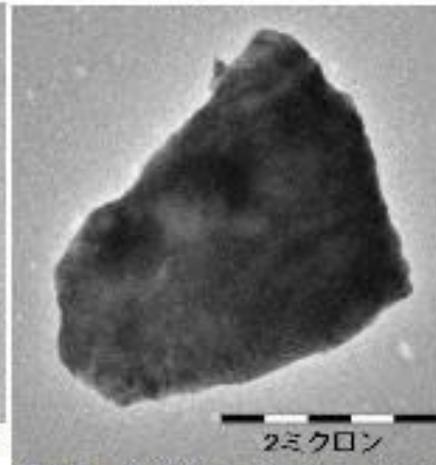
海塩粒子



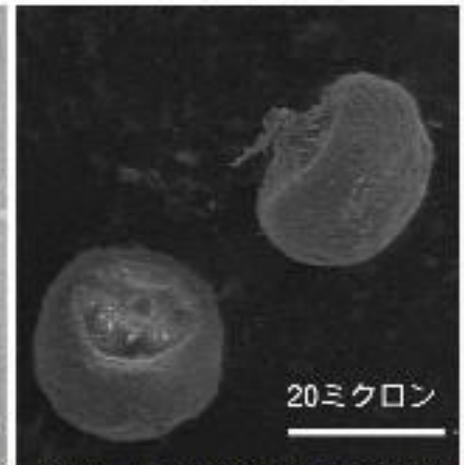
硫酸塩粒子



鉱物粒子



スギ花粉粒子



第7図 海塩粒子と硫酸塩粒子の電子顕微鏡写真。財前祐二さん提供。蓋木(2014)「雲の中では何が起きているのか」より。

第8図 鉱物粒子(アルミノシリケート)とスギ花粉粒子の電子顕微鏡写真。左は財前祐二さん、右は岩田歩さん提供蓋木(2014)「雲の中では何が起きているのか」より。

**代表的な凝結核粒子(エアロゾル)の電子顕微鏡写真
(気象研究所のホームページより)**

(微生物由来のものが出ており、面白いが、ここでスギ花粉を出すのはいかかなものか?)(電子顕微鏡写真が実態を表していると考えると大違い!!)

日本上空でつかまった 黄砂の電子顕微鏡写真

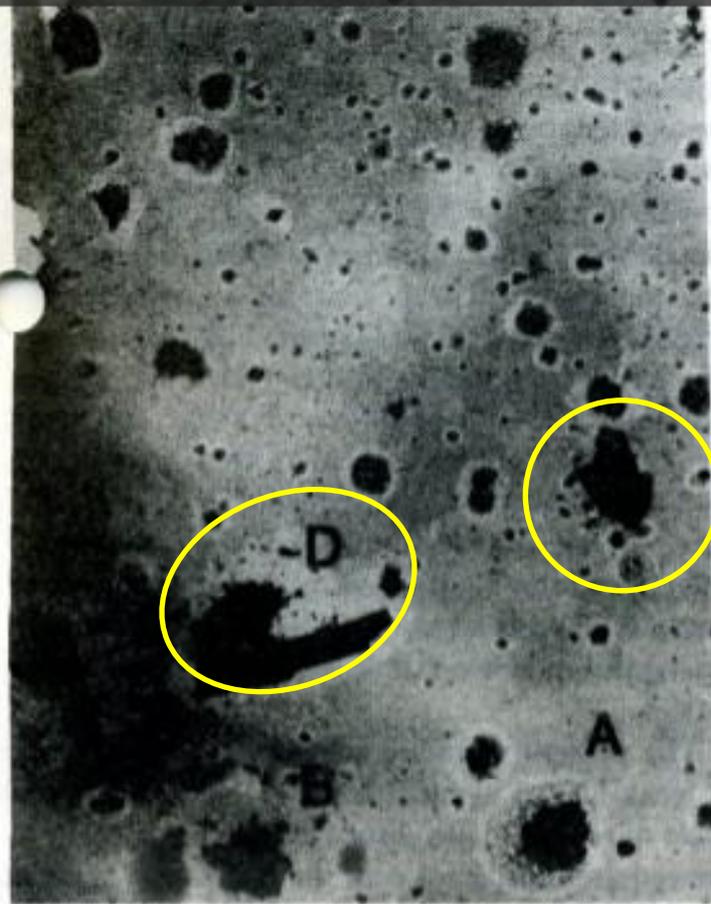
同じ黄砂の写真でも前のと大違い
(こちらのほうは相当に弱い電子線で観察している)

This picture is an important trigger to
consider the effect of long range transport
of Asian pollutants

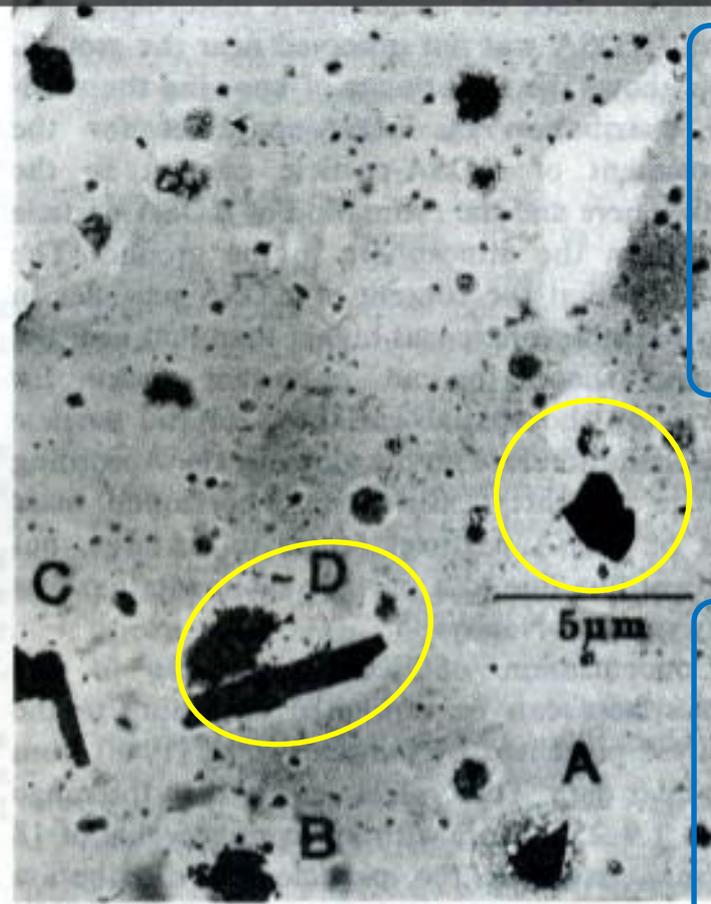
黄砂

黄砂表面の
溶液が
染み出した

カルシウムの膜と
反応する硫酸！？



weak beam



strong beam

黄砂の電子顕微鏡写真。エネルギーの高い電子線を当てると表面の物が蒸発する。

黄砂の表面に何物かが載っていることもあるのでは、と思われたが当時は注目されなかった

Fig. 7. KOSA particle coated solution containing SO_4^{2-} (A, B, C and D). These particles were sampled at 4350 m during the flight of 23 April, 14:00–16:00 LT. Electron micrograph under the weak electron beam (left) and that under the strong beam (right). Faint CaSO_4 dots produced from Ca and SO_4^{2-} in solution on the particle surface are observed around particle A. After the radiation of the strong electron beam, unknown volatile material evaporated from the particle surface. Particles B and C were also coated with solution. However, the trace of the solution does not clearly show the existence of SO_4 . The electron microgram taken under the strong electron beam showed that the particle D was composed of two different particles. This suggests that there is a possibility of coagulation between KOSA particles and other types of particle in the atmosphere.

**エアロゾル粒子の物理化学的性質・大気中での振舞などを理解するのに
粒子表面の状態や機能を知ることの重要性**

**黄砂粒子はそもそも氷晶核として注目を浴びた(おそらく鉱物が持つ結晶性)が
やがて、凝結核として注目を浴びるようになる(1980年代以降)。**

**氷晶核として検討するなら、水分子が取り付きやすい構造を持った(氷と似た構造
を持った)鉱物を見つけるなどの作業になる。**

凝結核として検討するなら、水溶性物質に近い物質の有無が着目点になる。

**一方で、中国の急速な発展は日本やアメリカなどでアジア大陸起源の大気汚染物質の長距離輸送に対する強い
関心を引き起こした(現在も続いている)**

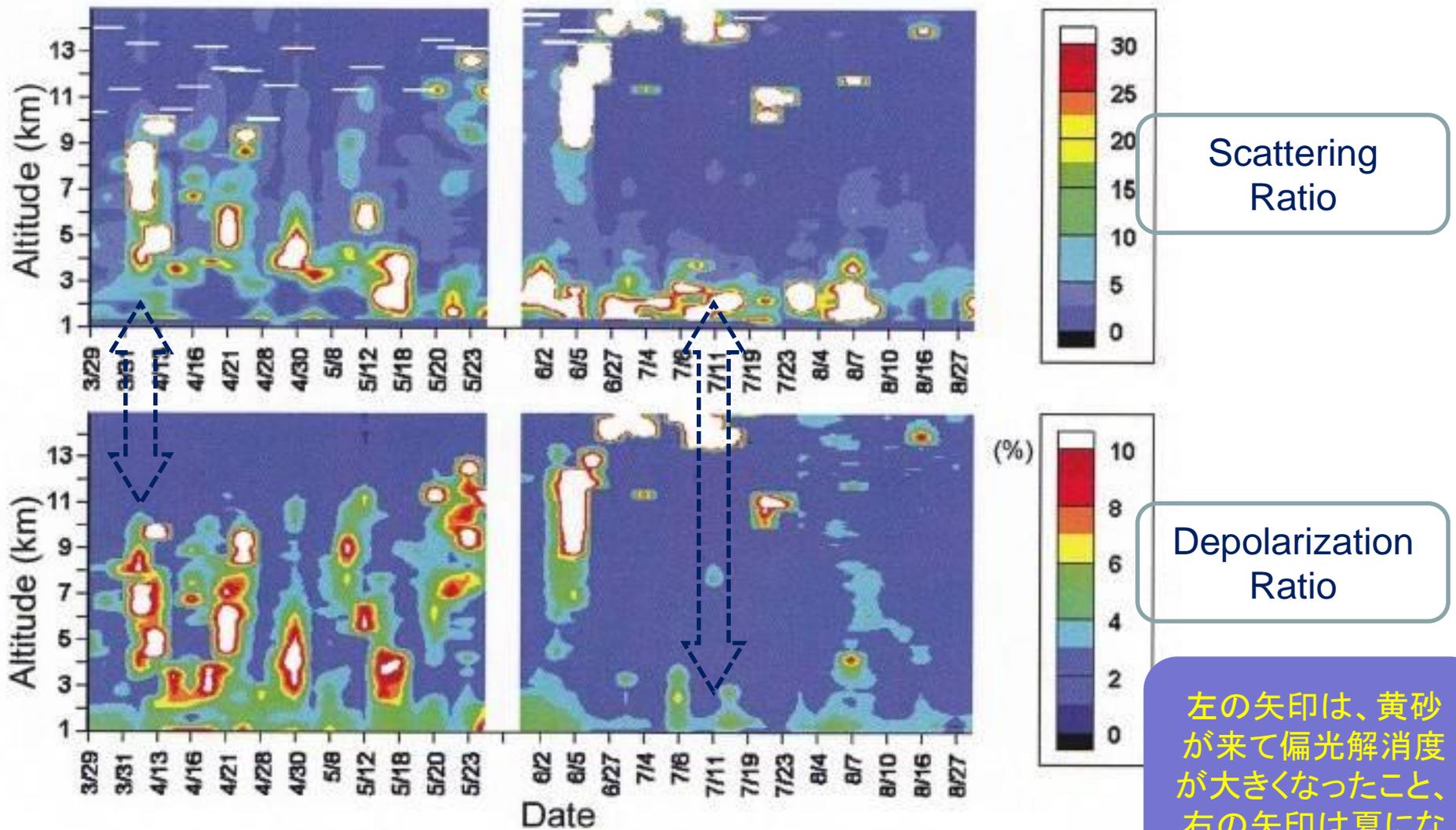


Figure 9. Seasonal change in the vertical profiles of the scattering ratio at a laser wavelength of 1064 nm (top panel) and the aerosol depolarization ratio at 532 nm (bottom panel) derived from a series of lidar measurements in Nagoya (35°N, 137°N) during the period of March to August 1994. Tropopause heights are indicated by white horizontal lines in the top panel. A vertical line divides the spring and summer months.

Those measurements were made by Dr. Kwon et al. (Kwon et al., Atmos. Environ., 1997, Matsuki et al., JGR, 2003)

左の矢印は、黄砂が来て偏光解消度が大きくなったこと、右の矢印は夏になると高度の低いところに光化学反応による粒子ができるが偏光解消度は小さいことを示している

Lidar measurements clearly show that Kosa clouds are frequently transported in the free atmosphere by westerly

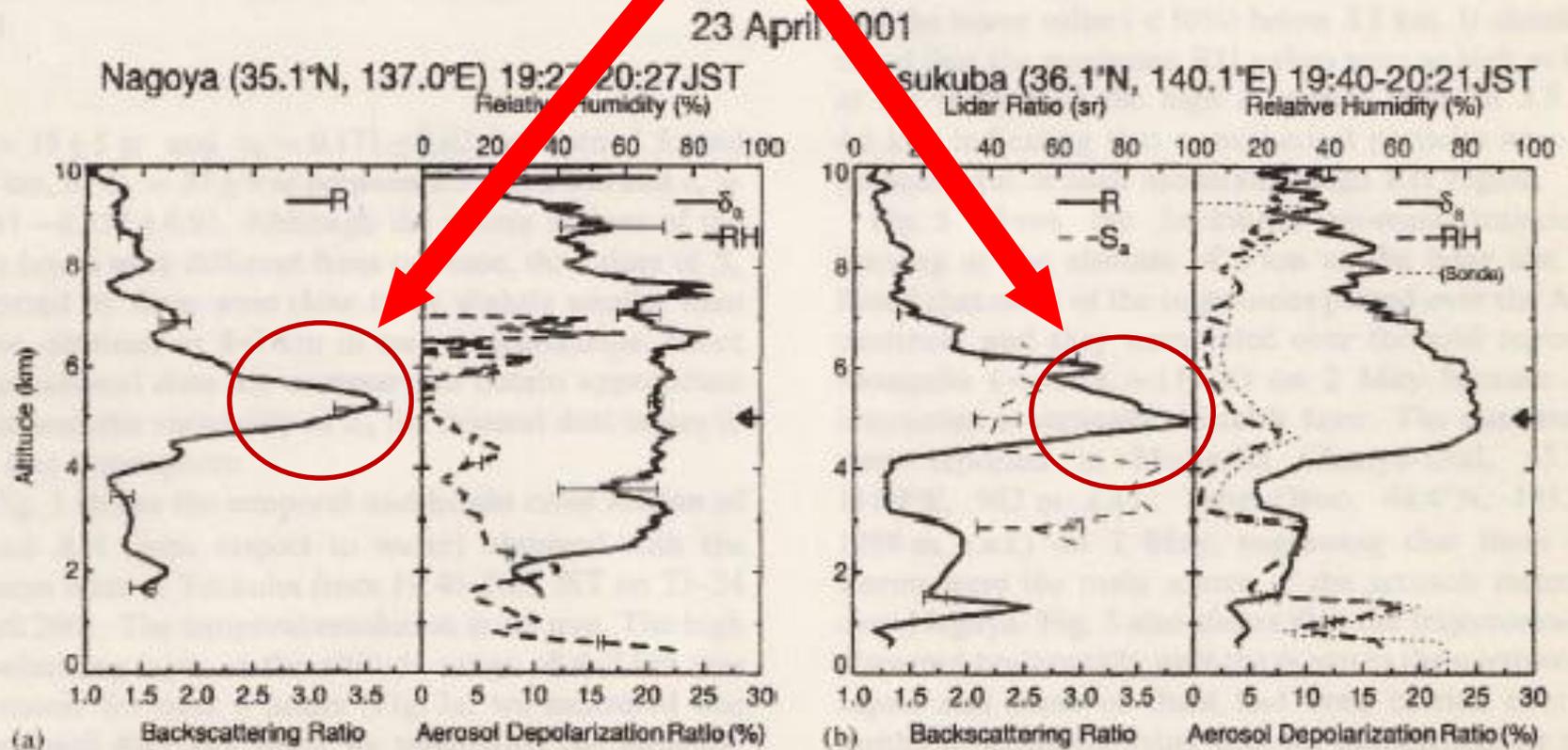
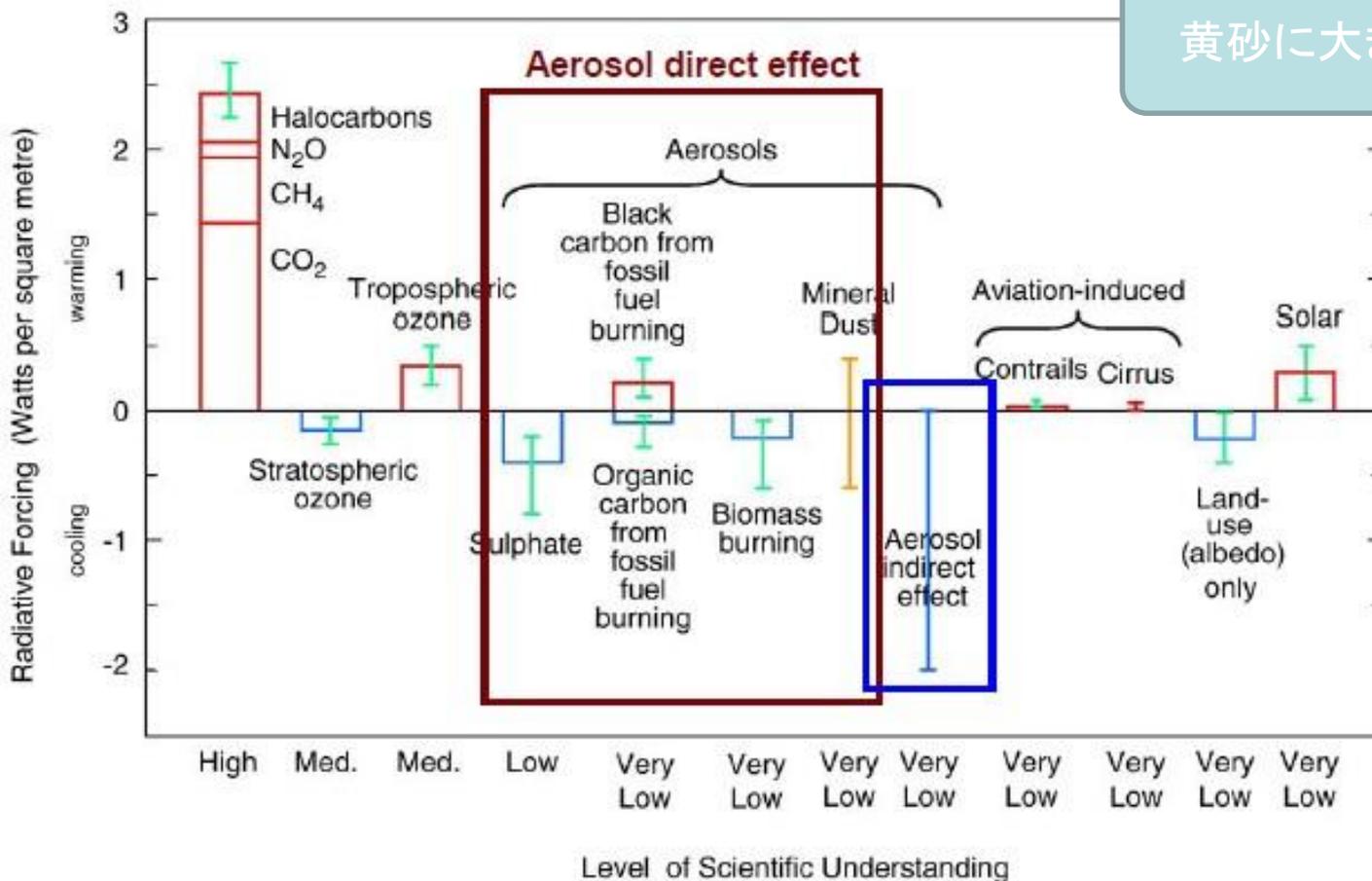


Fig. 1. Vertical profiles of aerosol backscattering ratio (R) and lidar ratio (S_n) at 532 nm (left panels), aerosol depolarization ratio (δ_2) and relative humidity (RH) (right panels) obtained at Nagoya between 19:27 and 20:27 JST (a) and Tsukuba between 19:40 and 20:21 JST (b) on 23 April 2001. The thin-dotted line in the right panel of Fig. 1b shows humidity profile obtained with radiosonde on 20:30 JST at Tsukuba. Arrows in the right panels show the height of which backward trajectories are shown in Fig. 2. The horizontal distance between the two sites is approximately 300 km.

(Sakai et al., 2000, *Atm. Env.*)

The global mean radiative forcing of the climate system for the year 2000, relative to 1750

黄砂に大きな関心



Asian dust attracts large interest of investigators

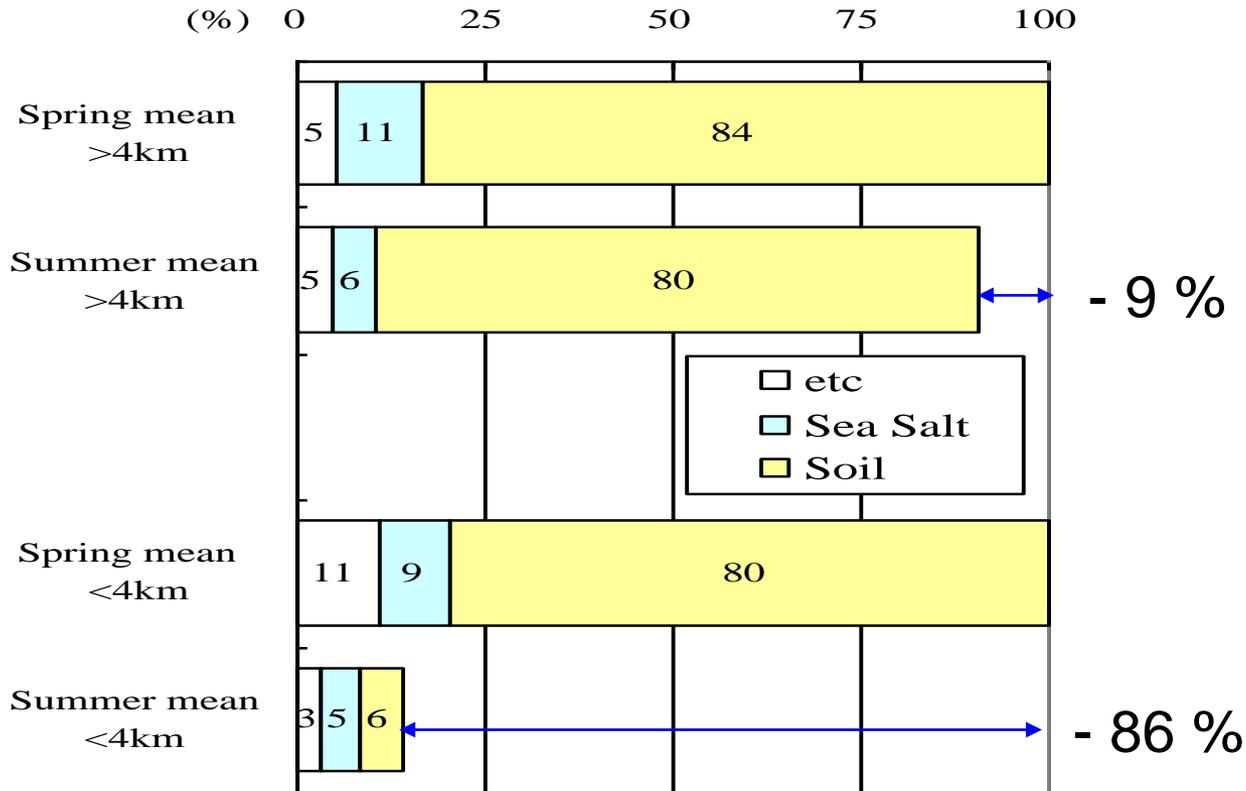
2000-2001 (2004) International project of ACE-Asia was made, and many investigators operated their particle collector at many observational sites.



この国際共同観測時期には韓国やアメリカが済州島で黄砂のライダー観測をしました。名古屋大学が敦煌でやっていたためやや影が薄かった。

2005年～関係国は観測研究体制を整備、得意分野中心に観測施設の充実

Balloon and Air-craft borne measurements showed Large effect of westerly wind on global diffusion of KOSA



Observed seasonal change in the vertical structure of coarse ($D > 1\mu\text{m}$) aerosols over Japan. Relative seasonal change in the total number of coarse particles is shown as 100% being the mean value for spring. Fractions by different particle types are superimposed. (Matsuki et al., JGR 2003)

Taklimakan desert is important source of Asian dust (KOSA)



**Westerly becomes
clear
above about 5km**

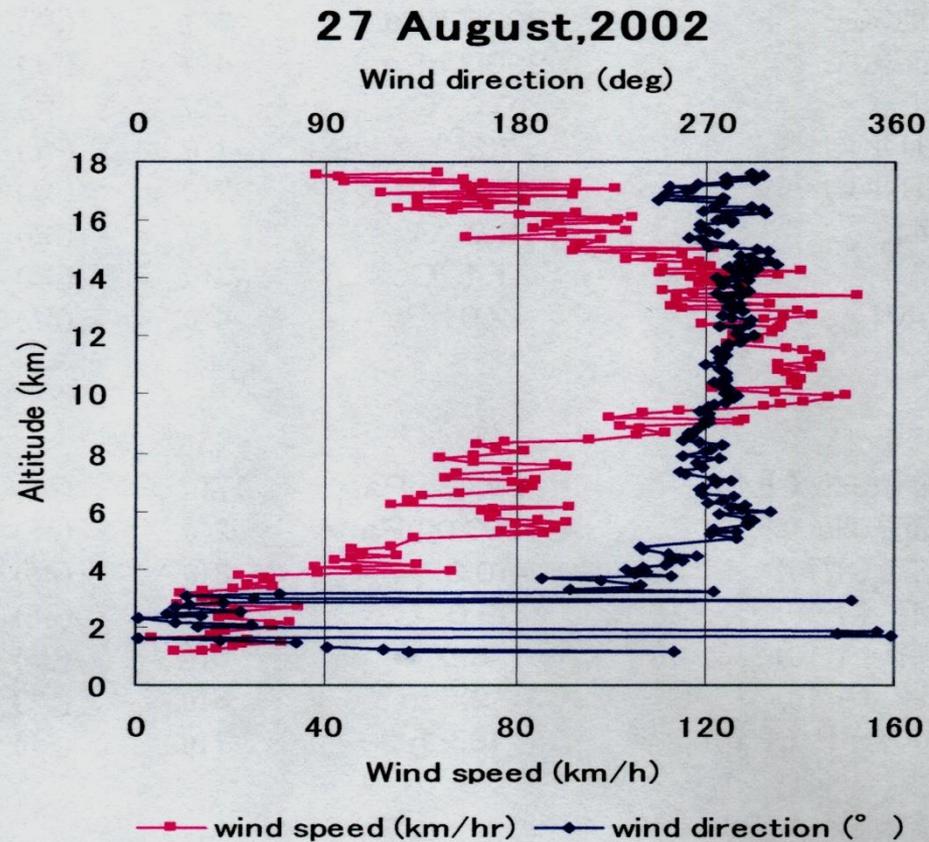
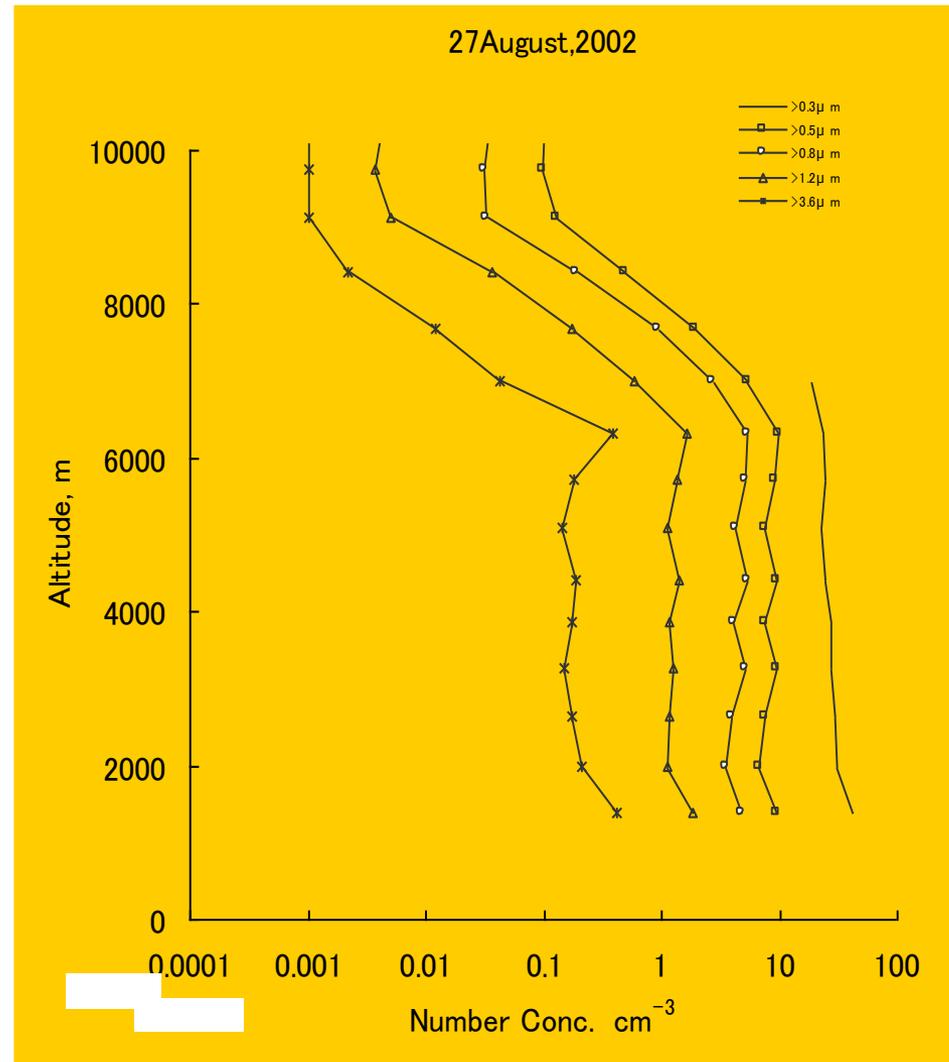


Fig.6 Wind speed and direction deduced from analysis of the balloon trajectory.

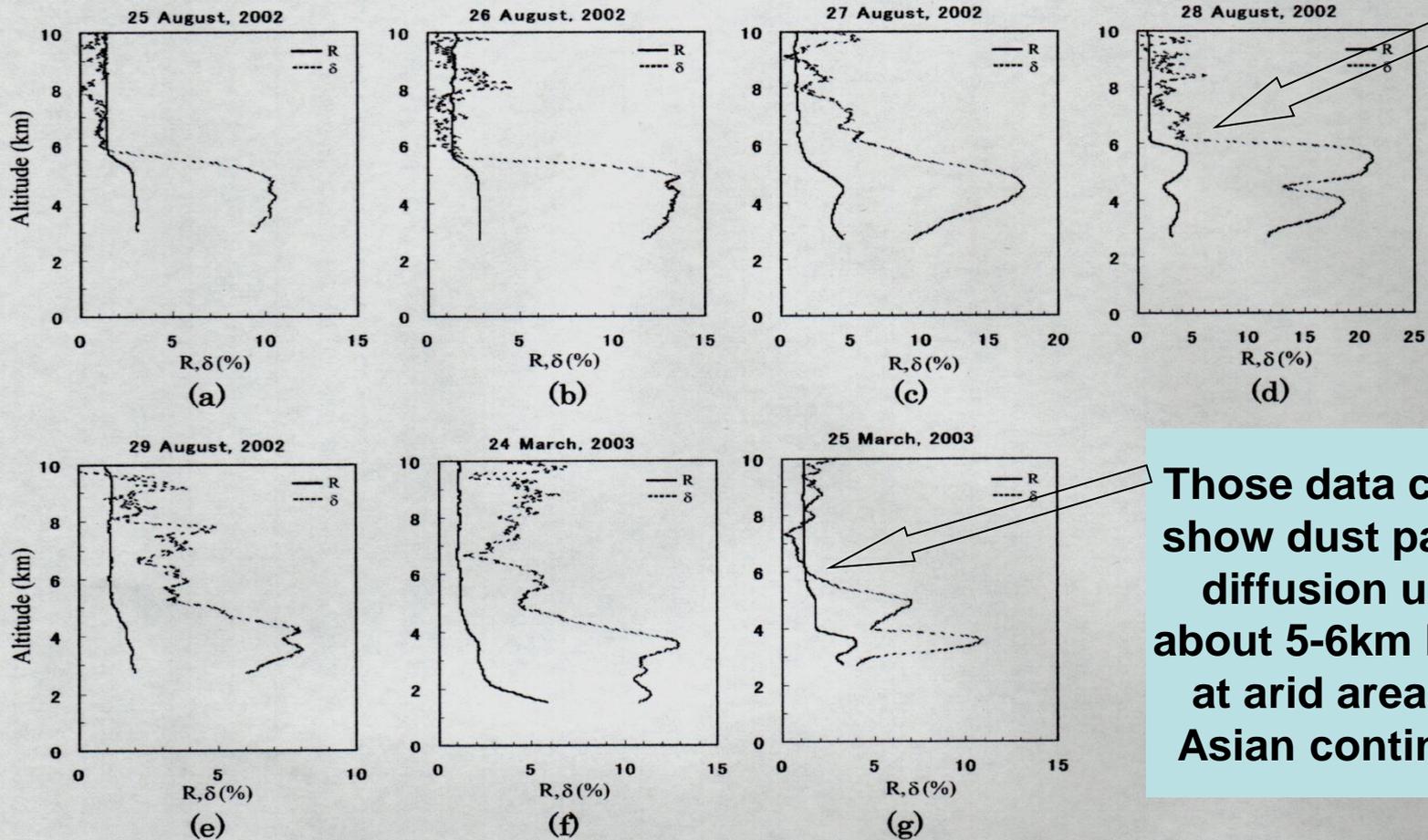
Particle concentration measured with a balloon borne OPC at Dunhuang

Coarse mode particles well mixed in near surface ~ 6km

(Y.S.Kim et al., JGR,2004)

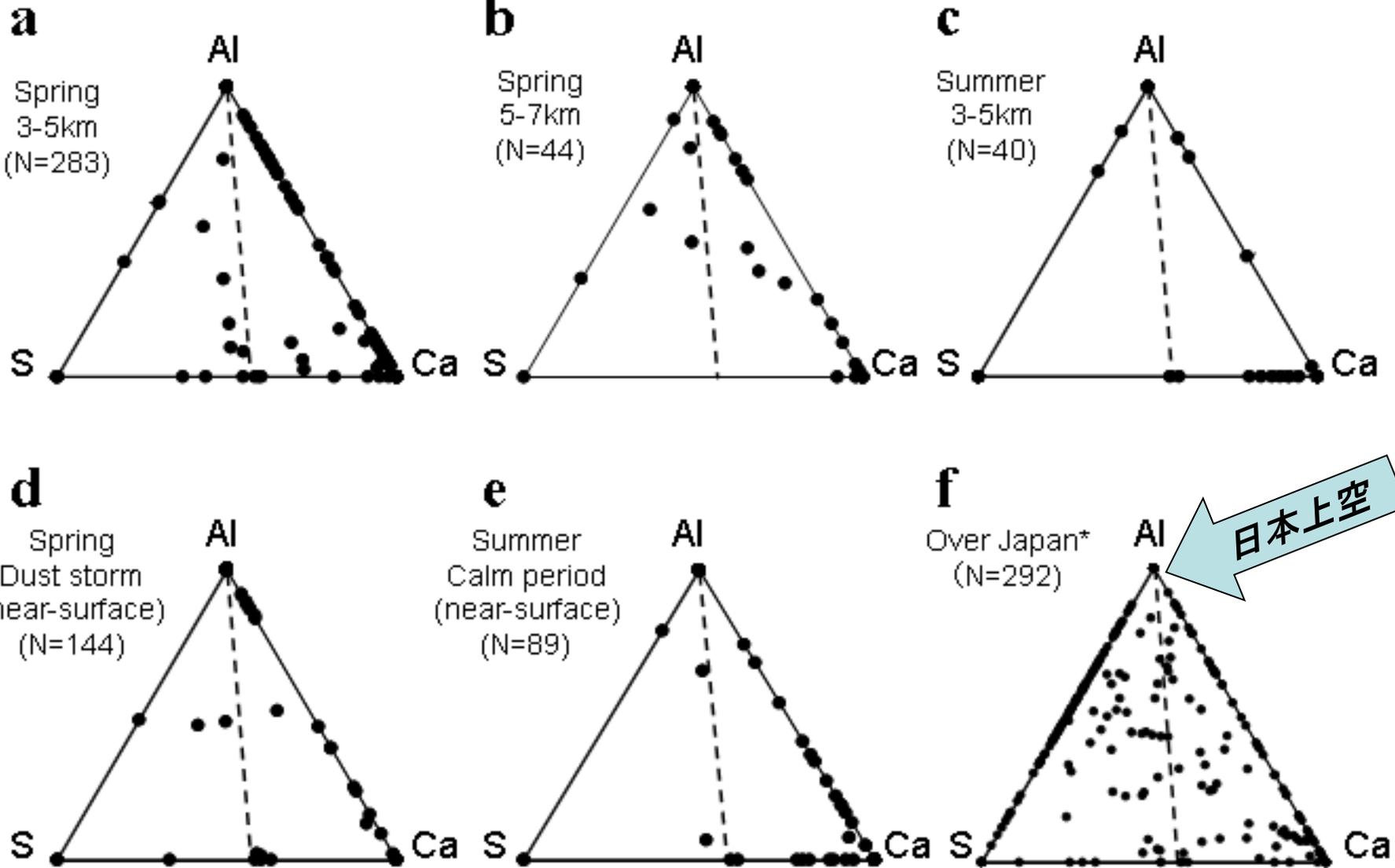


Vertical Profiles of Aerosols Measured by Lidar at Dunhuang (Iwasaka et al., JGR, 2003)



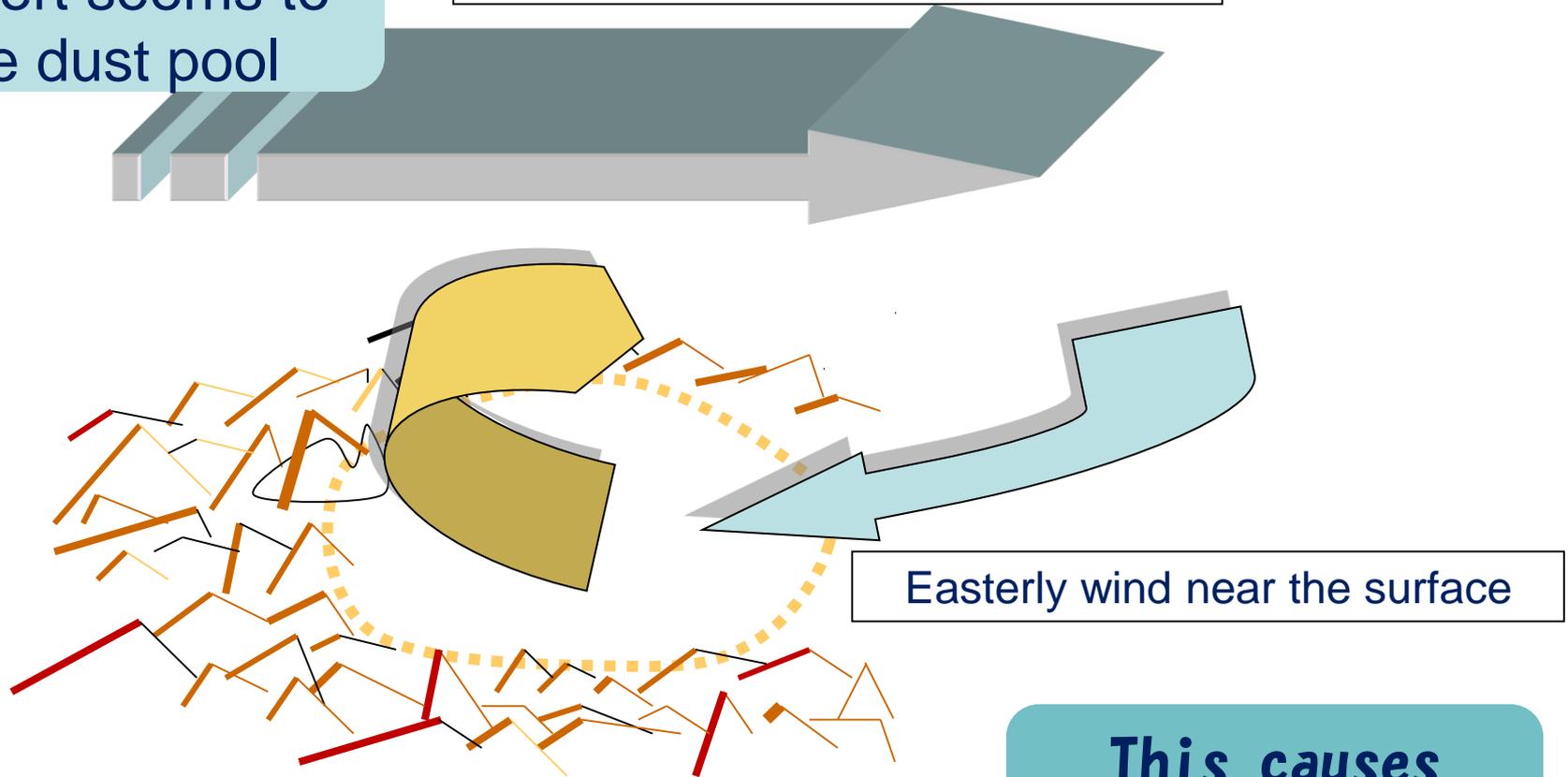
Those data clearly show dust particle diffusion up to about 5-6km height at arid areas of Asian continent

Relative Weight Ratio of Al, S and Ca



Taklimakan
desert seems to
be dust pool

Westerly wind in the free atmosphere



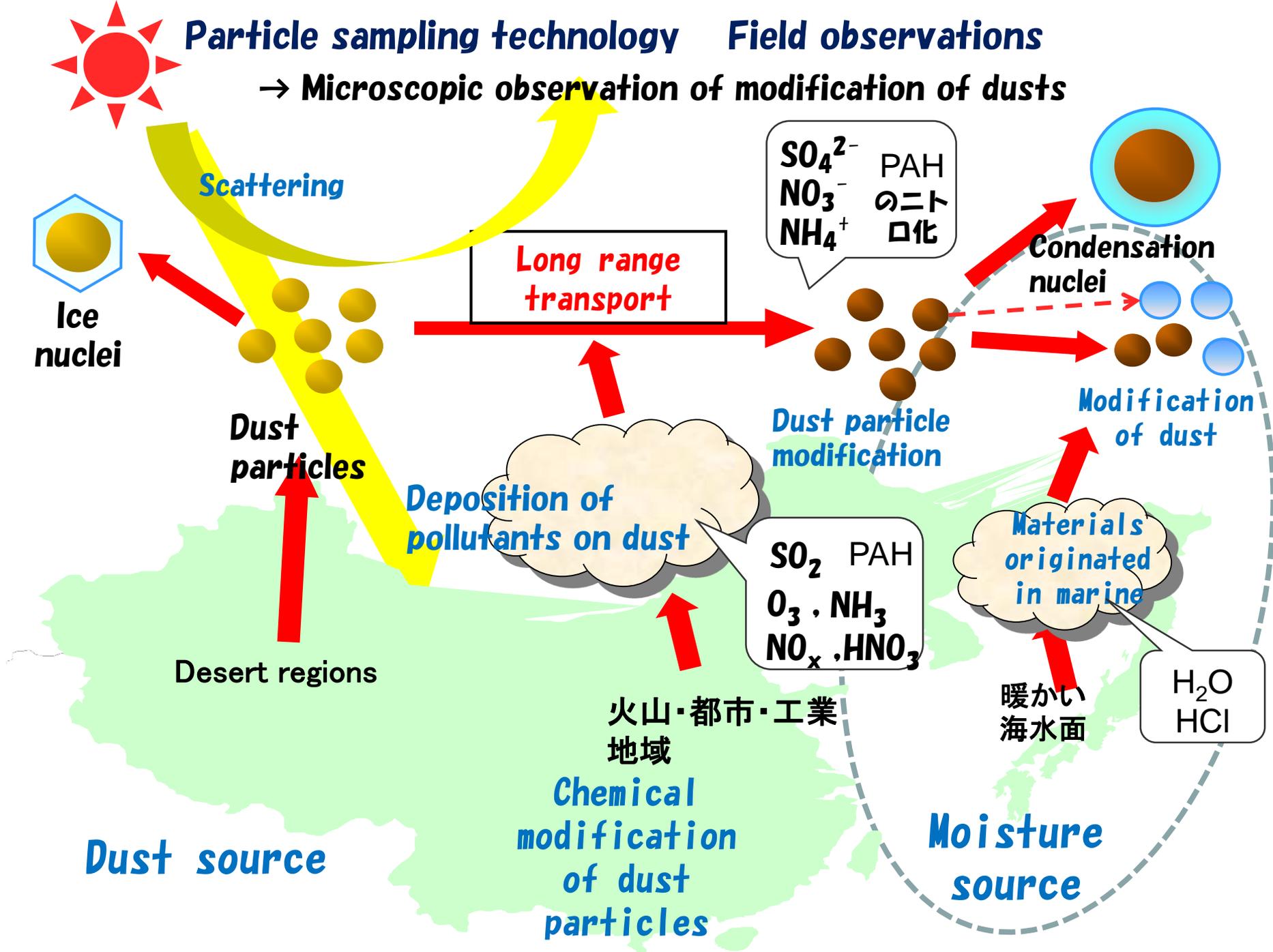
Easterly wind near the surface

**This causes
Background KOSA**

**High mountains (~4000km) are surrounding
the Taklimakan desert,
and mountain-valley breeze are always
diffuse up dust into the free atmosphere**

Particle sampling technology Field observations

→ Microscopic observation of modification of dusts



こういうことになってくるとあれやこれや気になることが出てくる

異常多雨現象の広域性
1993年6～7月 ちなみにその次の夏は大変な猛暑
日本でも中国でも・・・。
ピナツボ火山噴火の影響じゃないの？

大都市域では週末の土曜日や週初めの月曜日は降水量が少ない

改めて凝結核に注目が集まるとともに雲の放射への影響もエアロゾルの放射影響
から眺め直す動きが加速

第6講

微生物が空を飛んでいる

バイオエアロゾルの対流圏広域拡散による影響

微生物生態系への影響、動植物に対する病原性

(e.g., Griffin et al., 2001; Prospero, 2005; Kellogg and Griffin, 2006)

氷晶核として雲形成や間接放射に影響

(e.g., Maki and Wiloughby, 1978; IPCC, 2001; Möhler et al., 2007)

氷晶核としての能力

バイオエアロゾル

-7 ~ -11°C

(Möhler et al., 2007)

-2 ~ -4°C

(Shenell and Vali, 1972)

鉱物粒子

-13 ~ -20°C

(Isono et al., 1959)

スノーマックス
(凍結剤)!

IPCC2001の解説資料には将来の問題として
こんな風に紹介されている

Example 5: Pollen

- Size:** around 3 to 100 μm
- Sources:** plants and vegetal material
- Appearance:** many different shapes.
- Lifetime:** hours to days. Pollen are effectively removed by precipitation
- Other properties :**
- little water soluble
 - health problem for persons suffering from allergies (hay fever).
 - Ice nuclei ?

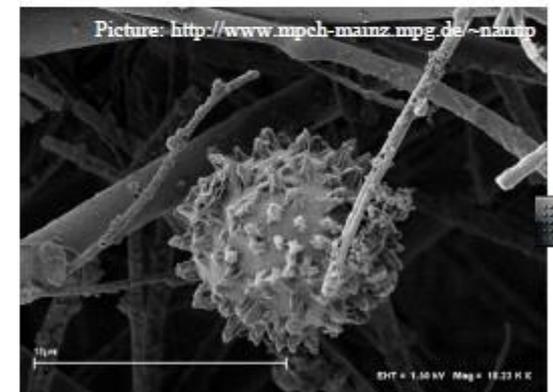
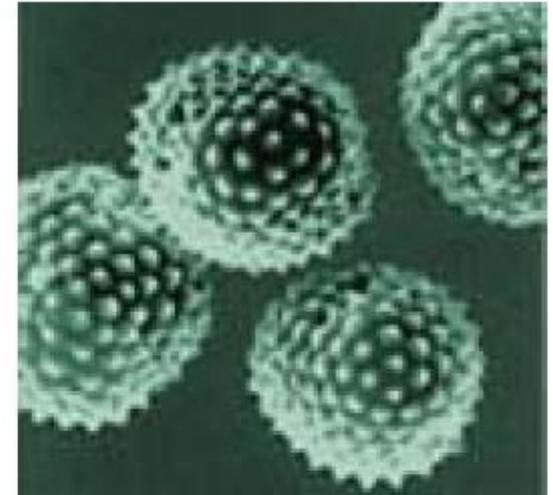
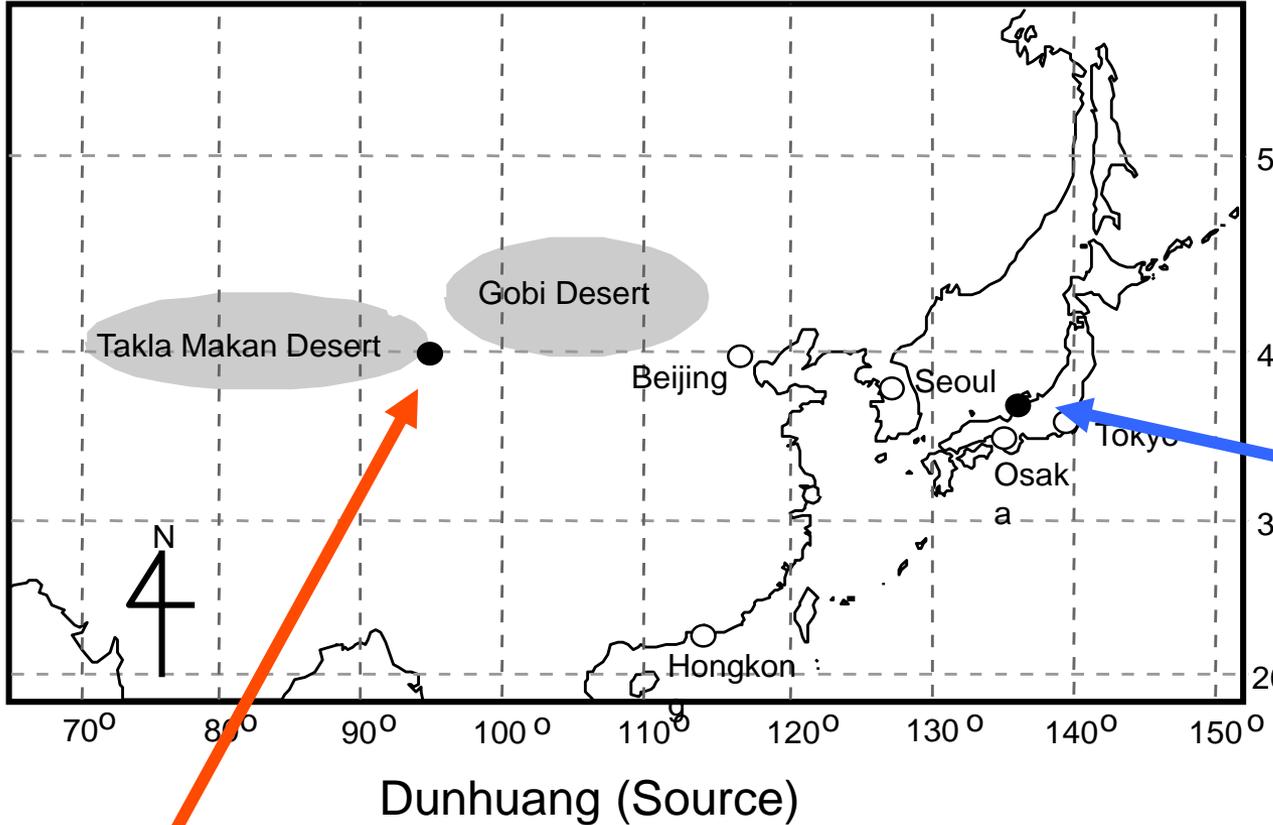


Fig. 1.28 Pollen

Most recently various kind of bioaerosols were identified and mass of bioaerosols largely increased during dust event:

2000年前後からこのような報告が急増しており、空飛ぶ微生物に対する関心は大気科学、生命科学、医学の世界で極めて高い（新しいジャーナルの登場、国際規模の会議開催の活発化、これらの動きに合わせた従来からの学術界の変化）

Sampling in Dunhuang and Kanazawa



Noto Peninsula (Arrival)



バイオエアロゾルに関する研究は急速に広がっているとはいえ、技術的には極めて
初歩的な段階にとどまっている。

最大のネックは、今のところその採集方法にある
(何しろ手に入らなければ話にならない)

今のところ、圧倒的に行われているのは「地上で長時間採集を行う」
いくつかのグループが試みているのが高山を利用した採集
日本だけ、気球や航空機を使った採集

採集した後の生物科学的な分類などは次世代DNAシーケンサーなどの登場で
比較的楽に行える

しかし、黄砂との混合状態などを調べることは難しい

法的な規制の下での取り扱いをせねばならない
(国内、国際)

中国敦煌市にも観測サイトを経営

能登スーパーサイトと連携し黄砂発生源地との系統的な比較を目指す



2006年サンプリング

2007年サンプリング

KOSA



Aircraft



Air sampling at 2000m ~ 3000m

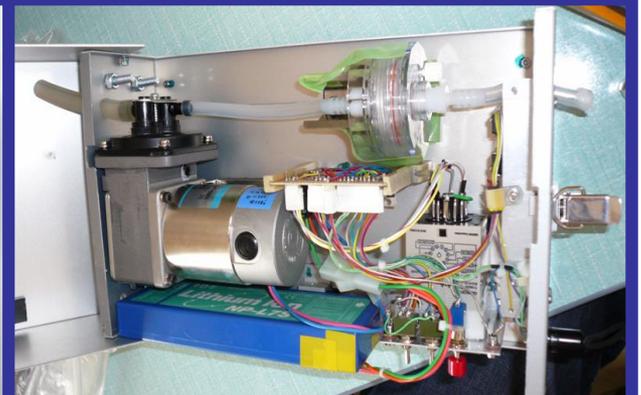


Collection on
0.2 μ m pore size polycarbonate filter at rates of
700 L/h using
air pump.

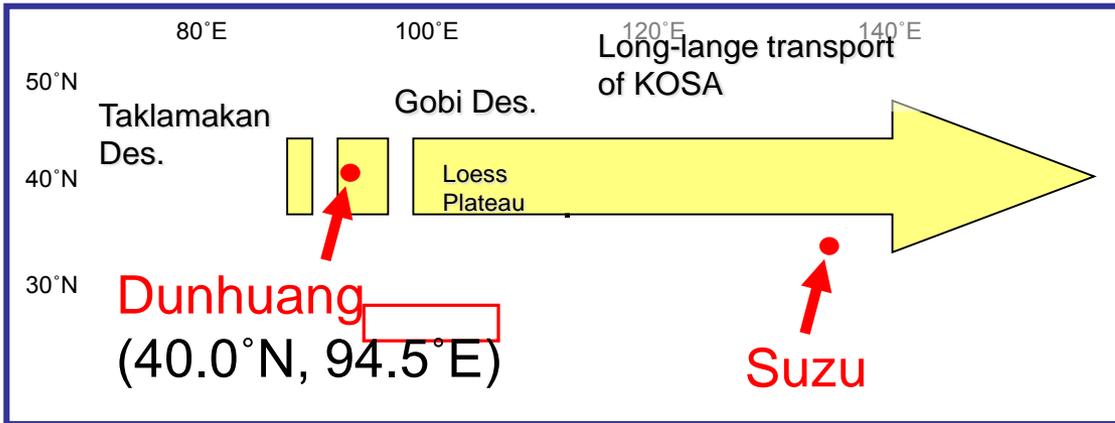
Sampling course



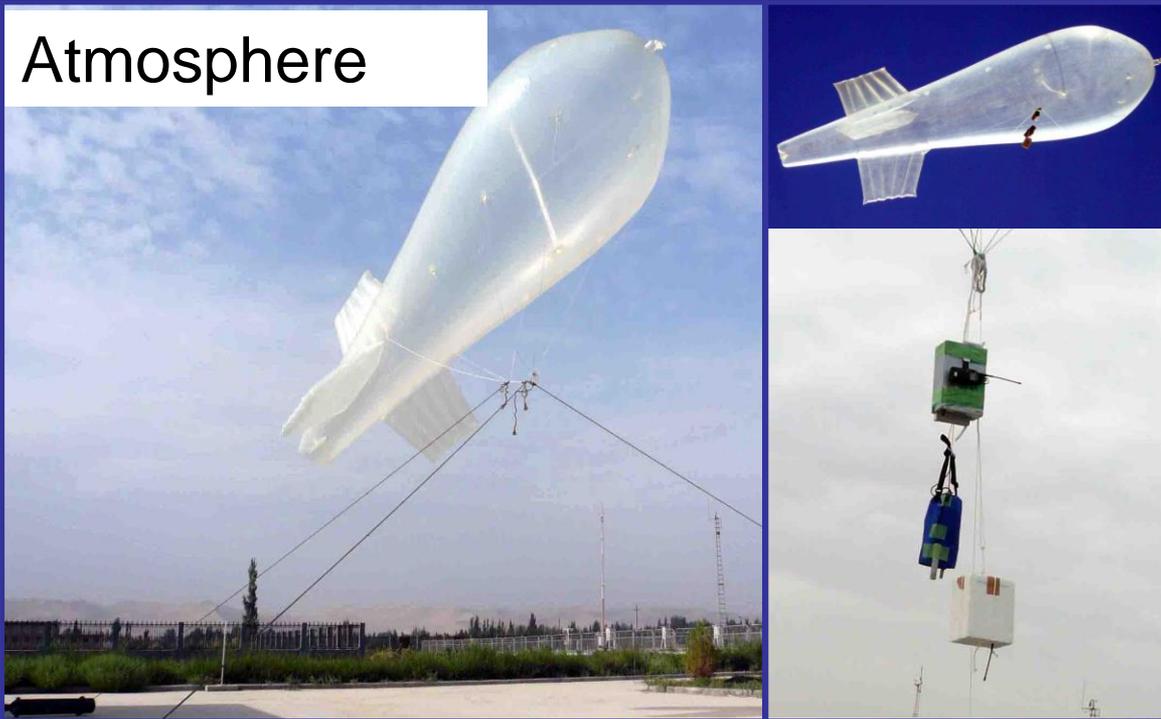
Air sample collected at 800m \sim 1000m



Balloon sampling (Dunhuang City, Suzu City)



Atmosphere



Aerosol sample was collected at heights of 800 m using an air pump with $0.2 \mu\text{m}$ membrane filter (200 m³)

Dunhuang 800 m

2007 August 17

13:15~14:15

Suzu 800m

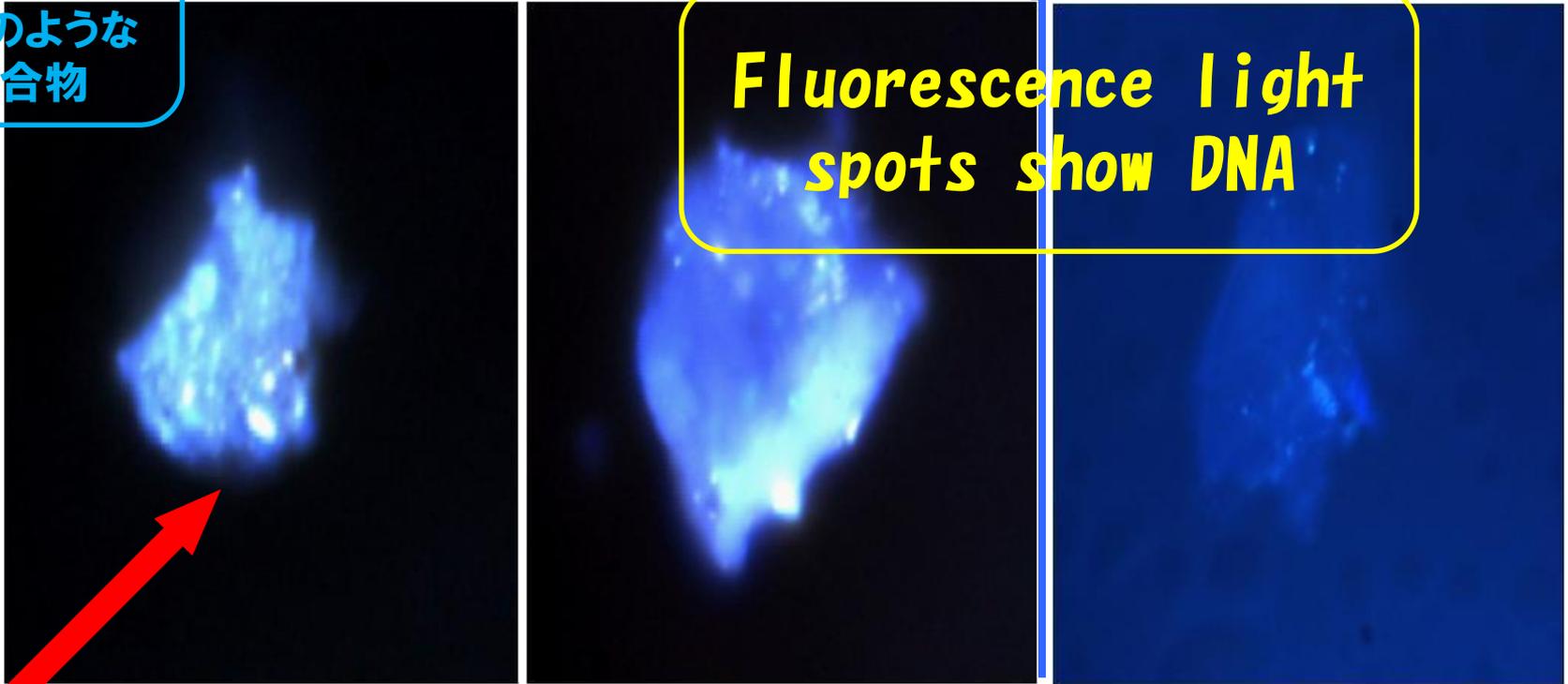
2008 May 7

11:00~12:00

KOSA-Bioaerosol collected at Dunhuang: DAPI Treatment

黄砂粒子の
10~20%
がこのような
混合物

**Fluorescence light
spots show DNA**



Strong Fluorescence Light is observed on Dsut Particle Surface (Mixture of Kosa and microorganisms)

2007年敦煌(地上700 m: 海拔1900 m)

Maki et al., 2008,
Iwasaka et al., 2009

Snow cover sampling (Mt. Tateyama, Murododaira)

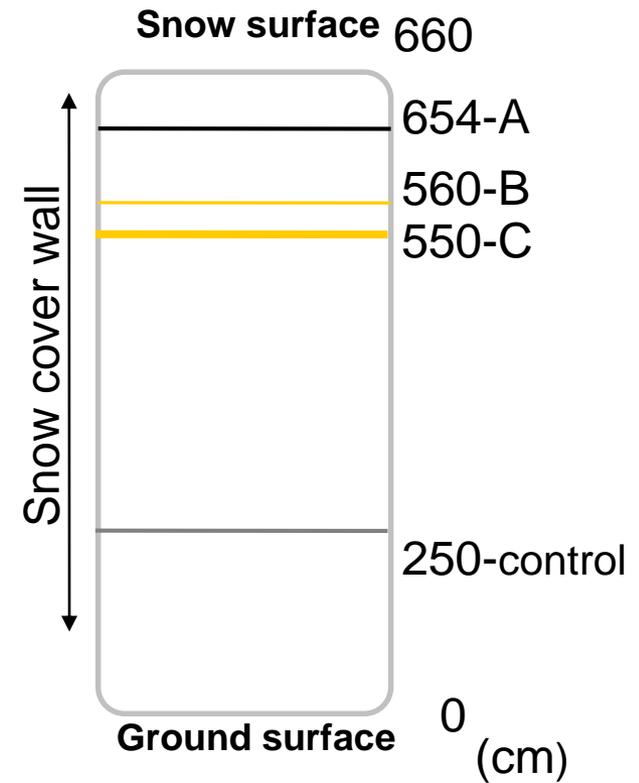


Murododaira, 2450m
The snow cover at depth
of 6m60cm from Fall to
Sp

Sampling dates

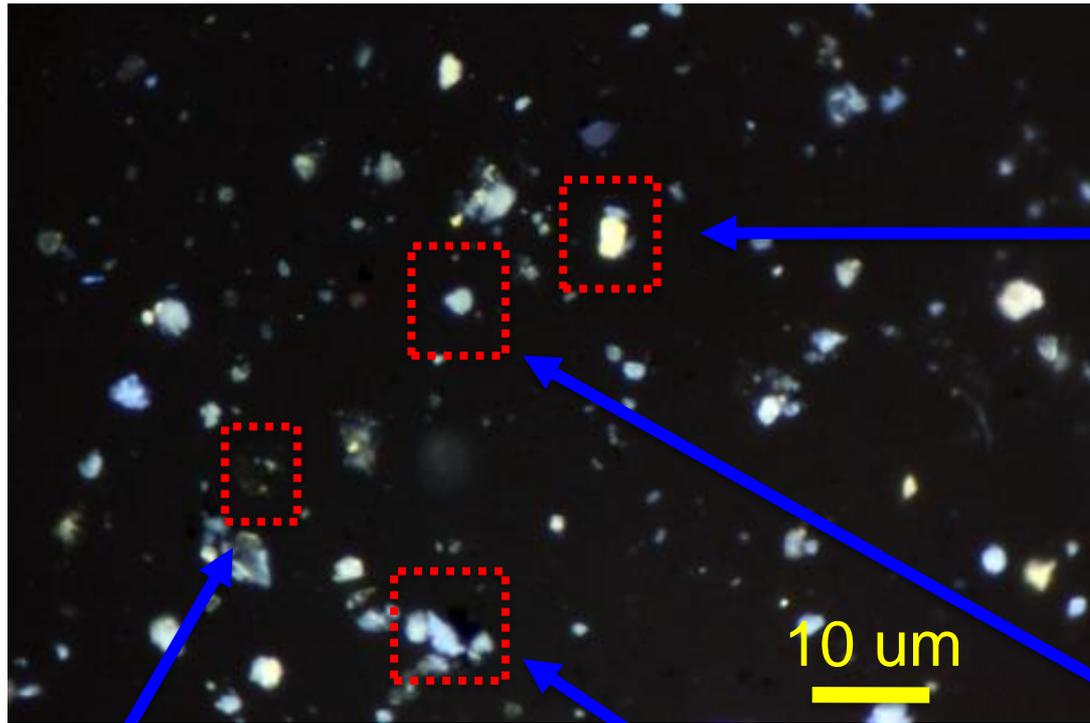
2008 April 16

2010 April 16

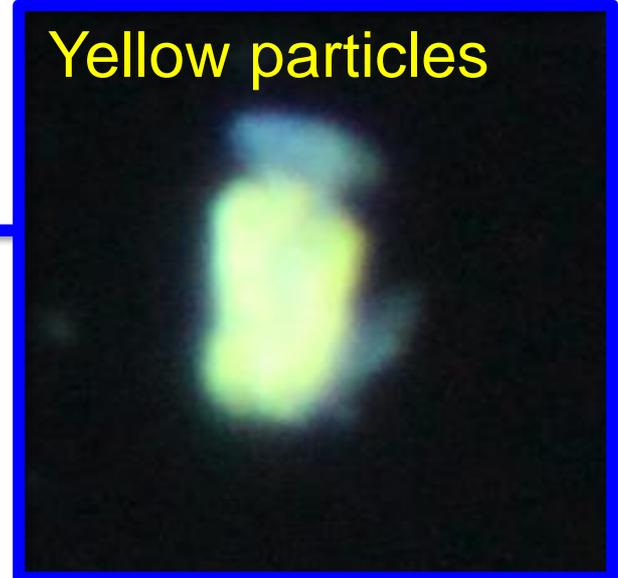


Layers B and C contained Ca at high concentrations of 3.3 mg/L and 1.2 mg/L, respectively, while Ca were not detected from the snow samples of control layer and Layer A.

Microscopic observation



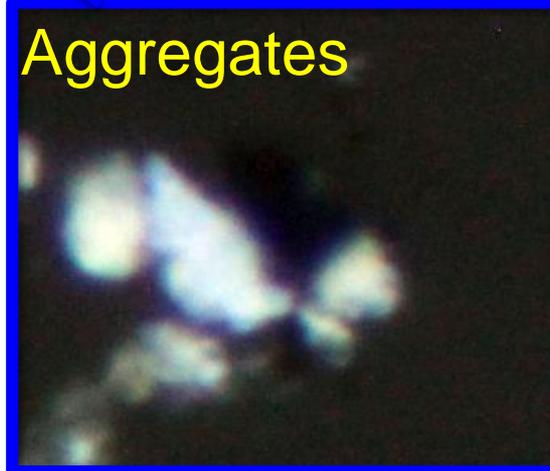
Yellow particles



Bacteria



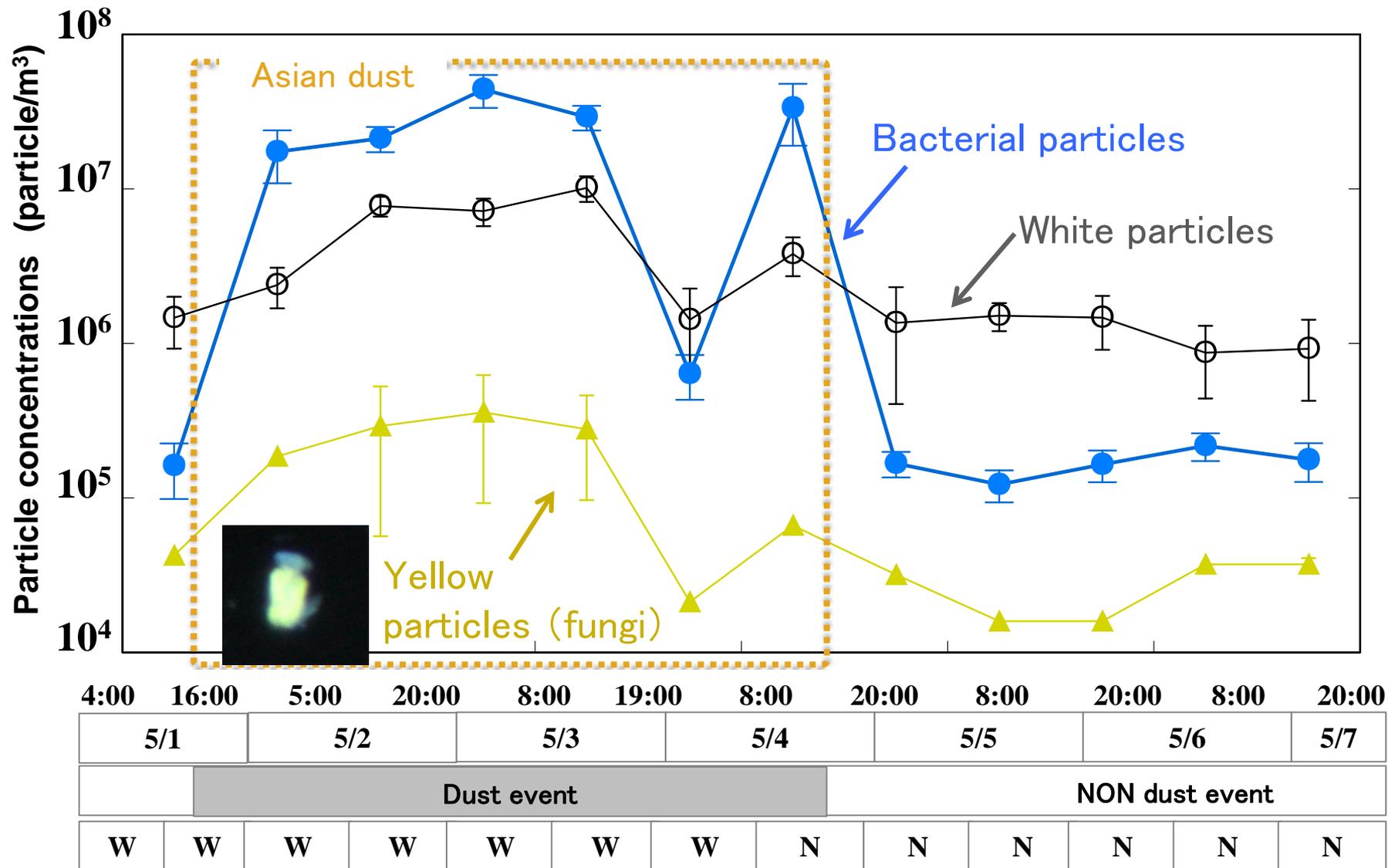
Aggregates



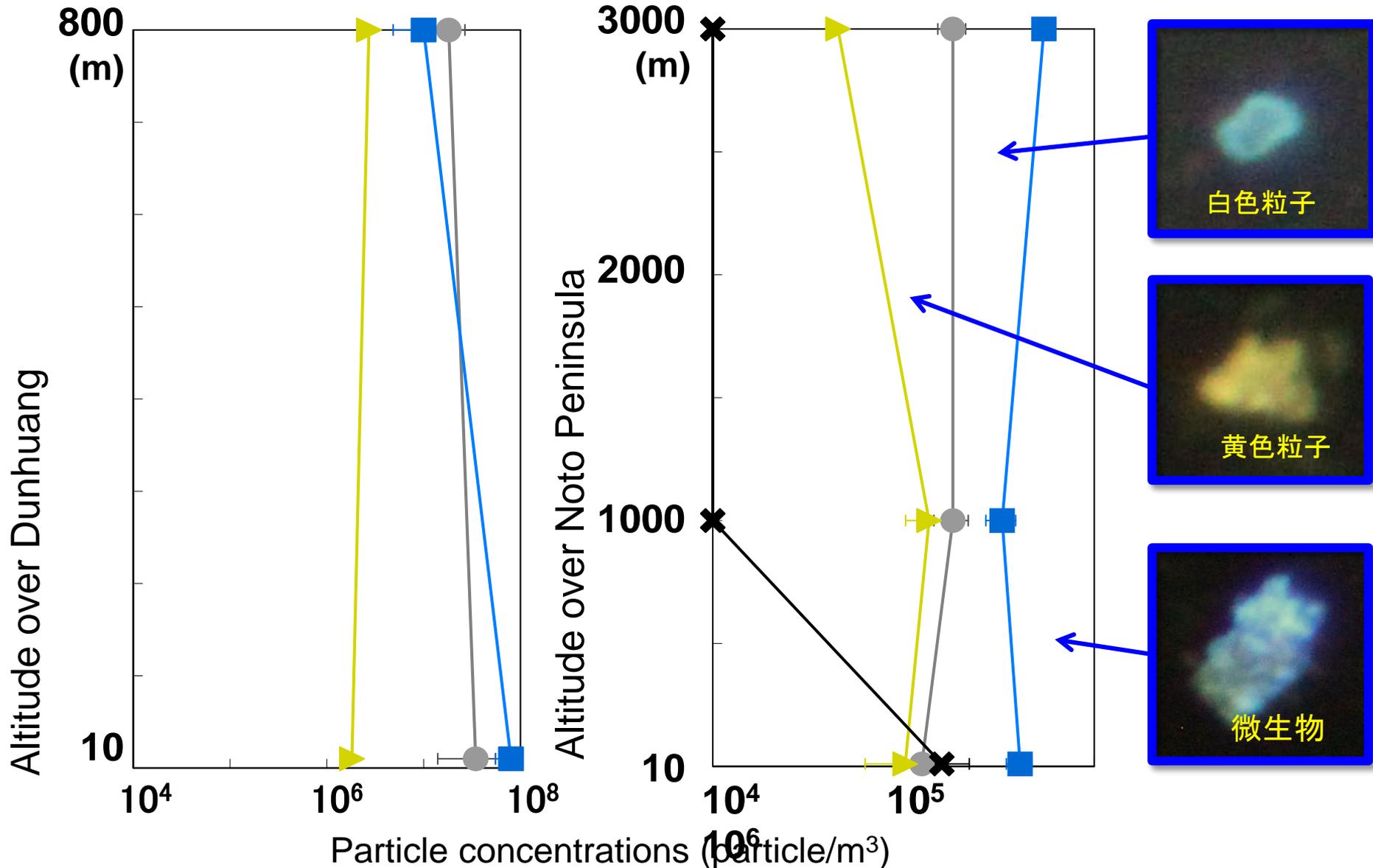
White particles



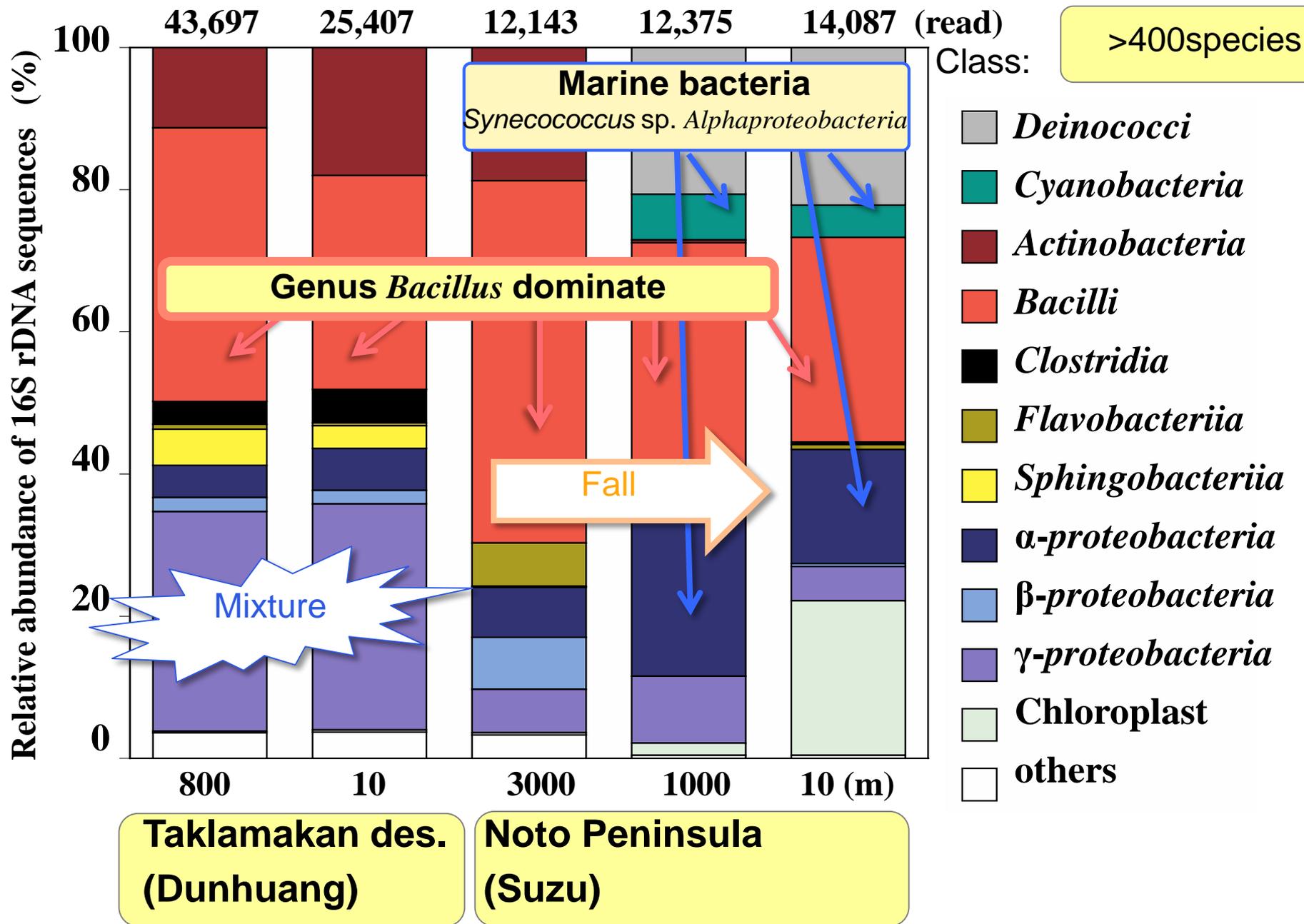
Changes in particle in concentrations



Vertical distribution of aerosol densities



Bacterial structures in atmosphere over Dunhuang and Suzu



Bacterial species dynamics during Asian dust event

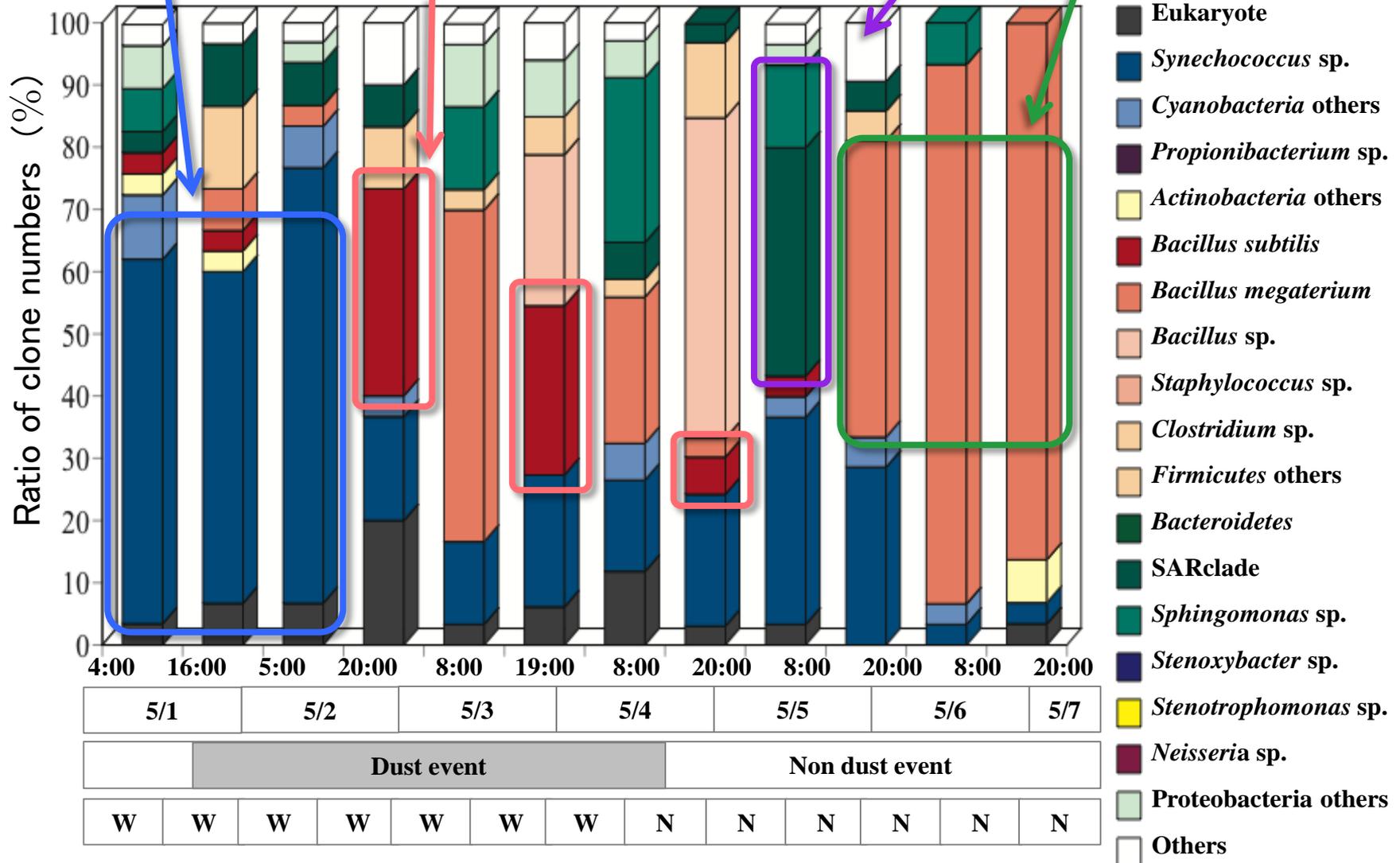
Marine cyanobacteria

Transported bacteria
B. subtilis
Staphylococcus sp.

Cold environmental species

Local origin

> 30 clones for each sample



Natto producing with Kinjo Natto



Japanese traditional health food “Natto”



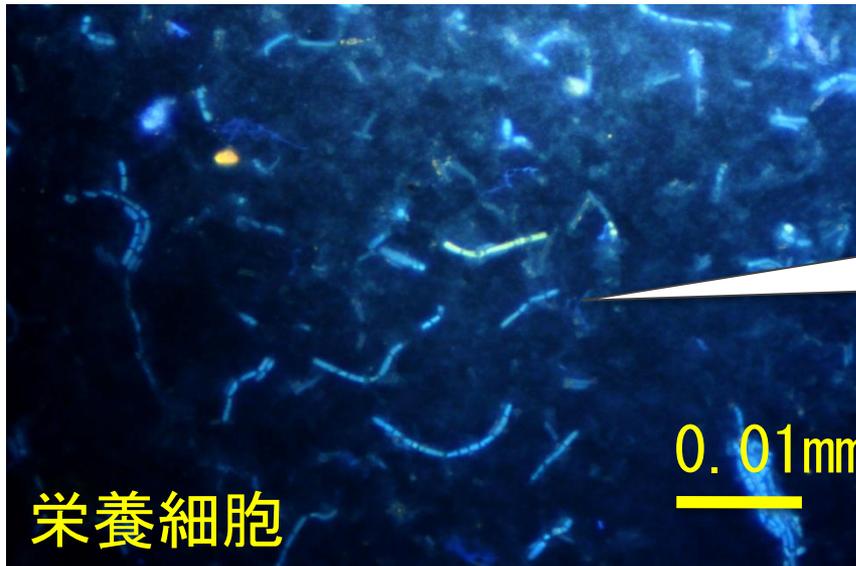
Location : Restaurant in Kanzawa Univ., Store in Ishikawa Prefecture in Japan, et al.

Start Date : From 10 July, 2012 (Natto day)

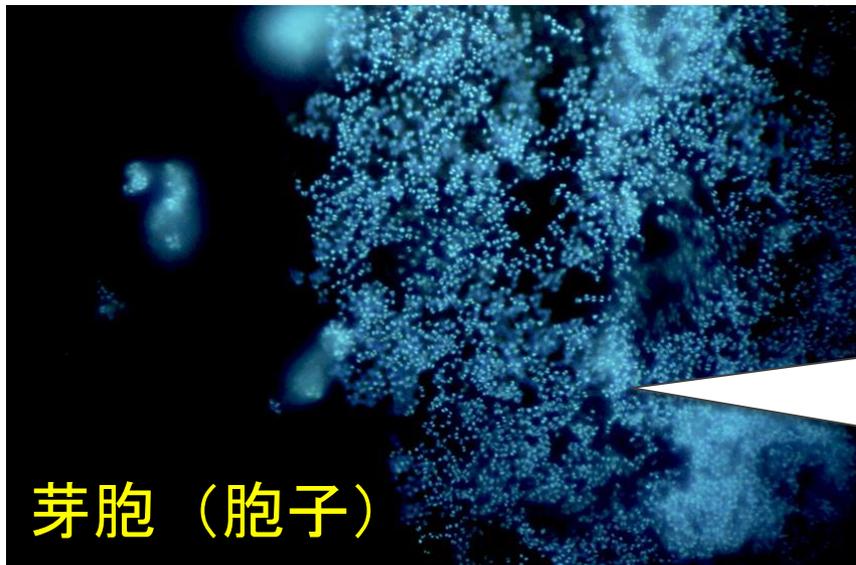
Price : 50 yen/1 piece, 100 yen/2 piece

Products : 5000 piece/month

なぜ納豆菌が空を飛ぶのか？

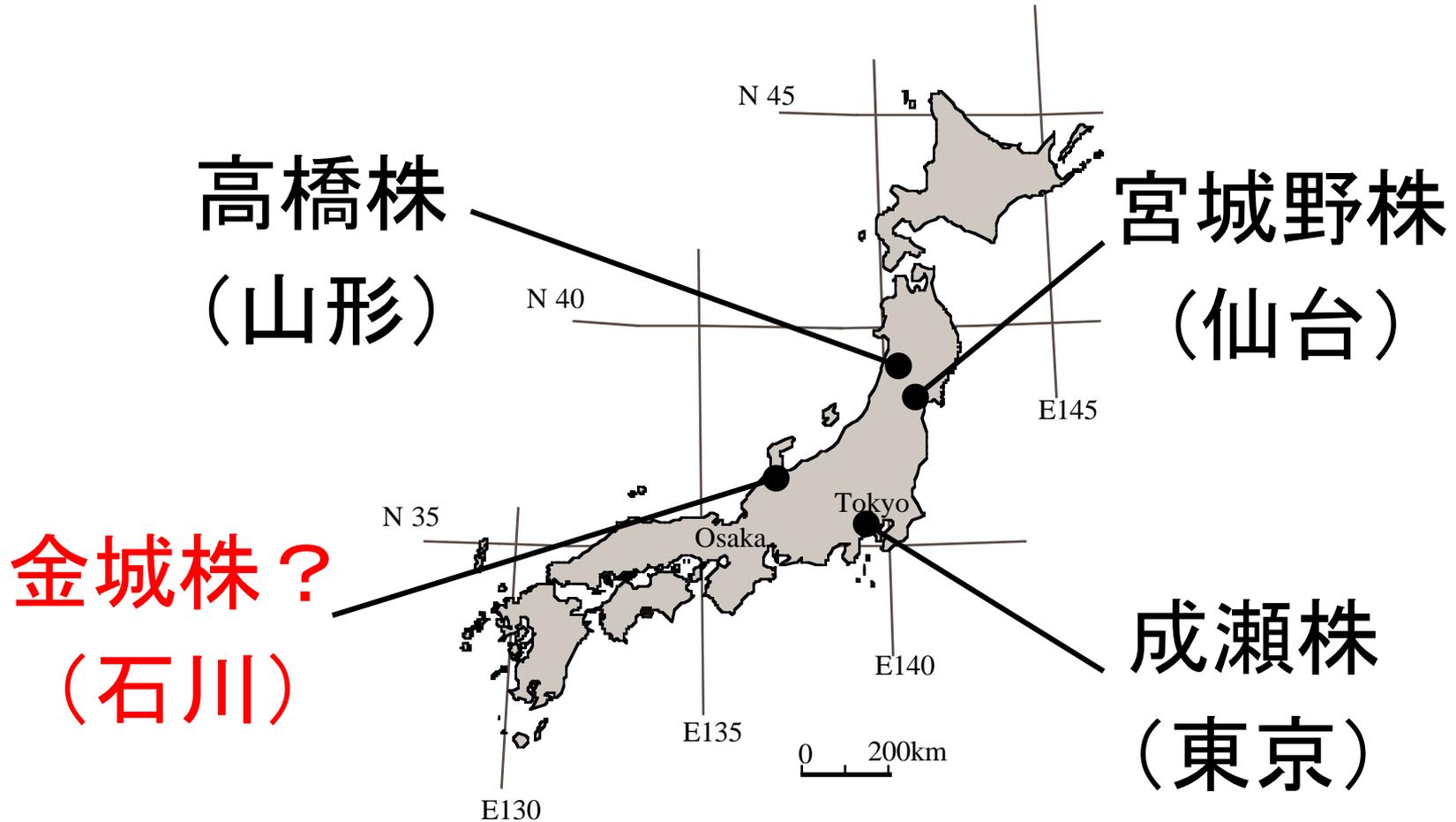


増殖する時

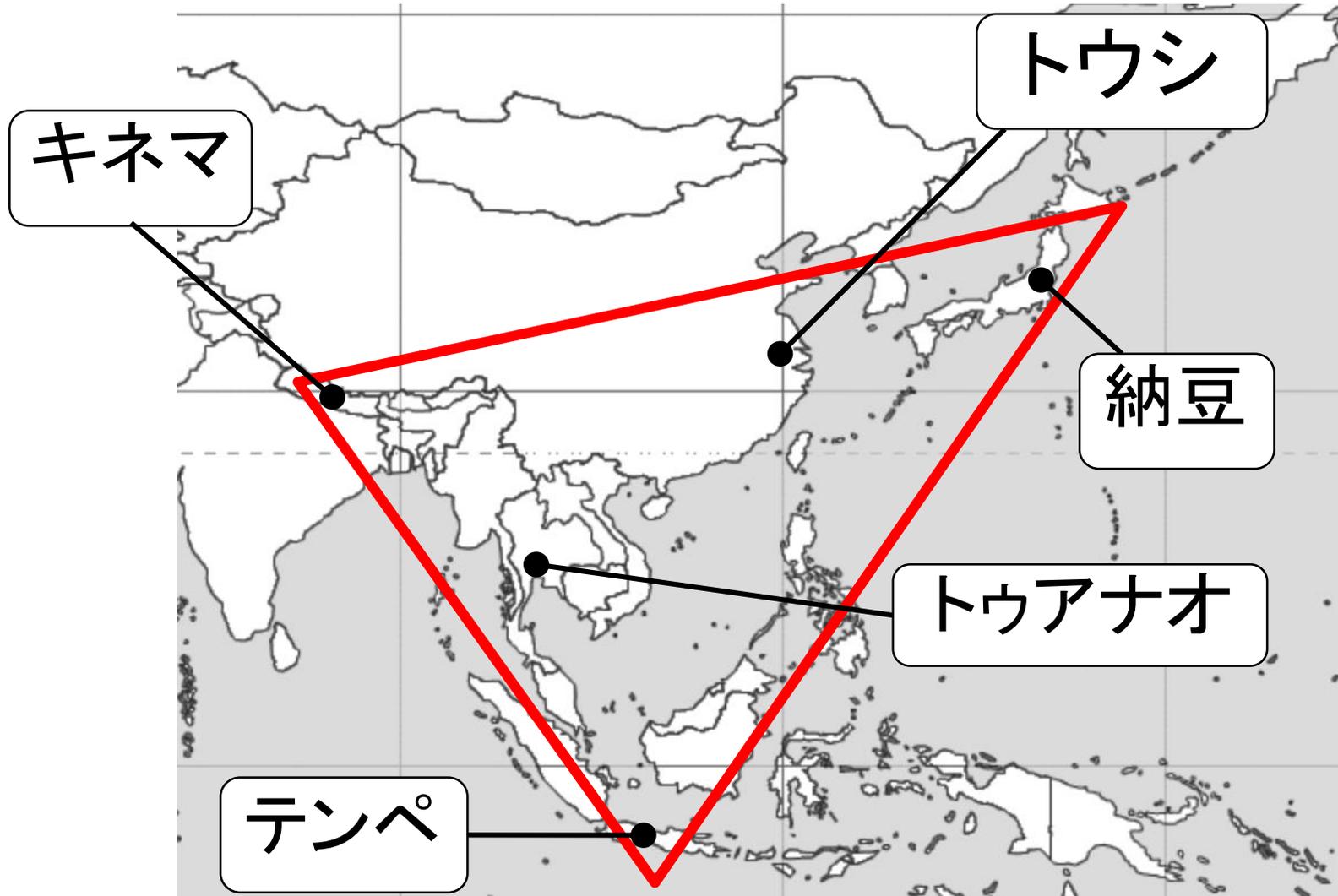


乾燥に強く、
熱 (80°C) にも
耐える。

第四の納豆菌株へ



納豆トライアングル

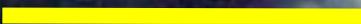


Mushroom

A fluorescence micrograph showing the structure of Bjerkandera adusta hyphae. The image displays several long, thin, yellowish-green hyphae against a dark background. Some hyphae are straight, while others are curved or branched. The hyphae exhibit a granular texture. In the upper right corner, there is a cluster of more complex, interconnected structures, possibly representing a developing fruiting body or a dense network of hyphae. The overall appearance is that of a filamentous fungus.

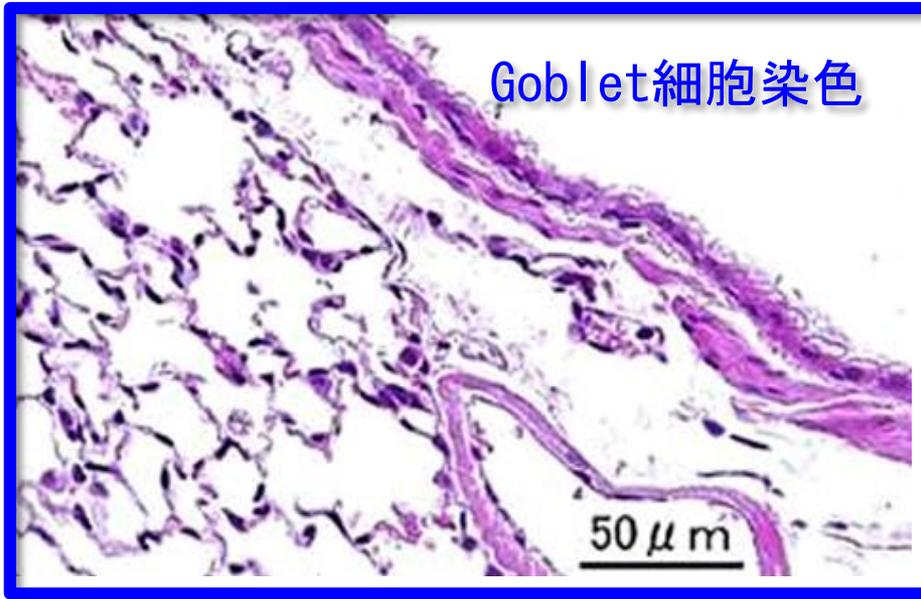
Bjerkandera adusta

10 μm

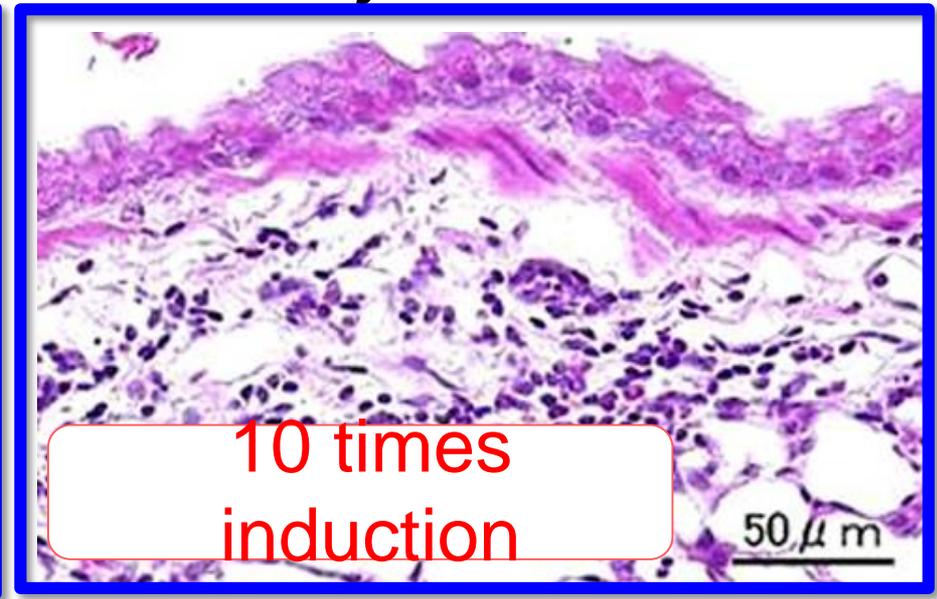
A horizontal yellow scale bar located in the bottom right corner of the image, used to indicate the magnification level.

Induction of allergy

Dust particles



Dust particles
+ *Bjerkandera*



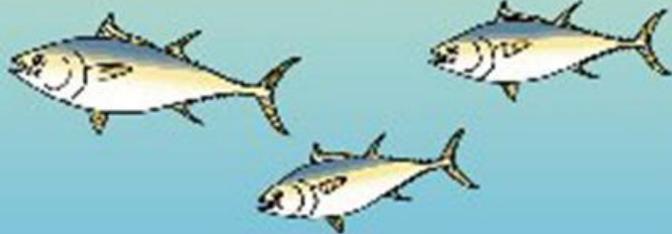
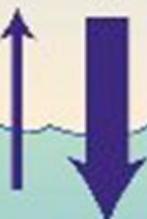
マウスの気道上皮細胞

中国研究者もこのようなスライドを使うようにはなっている

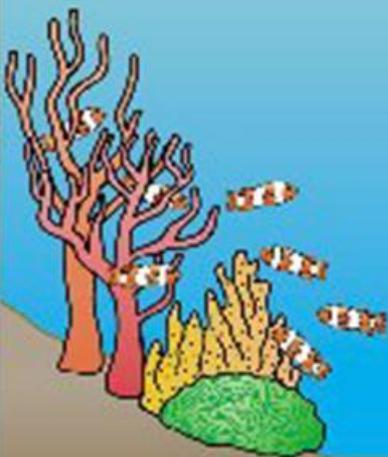
Iron Fertilization



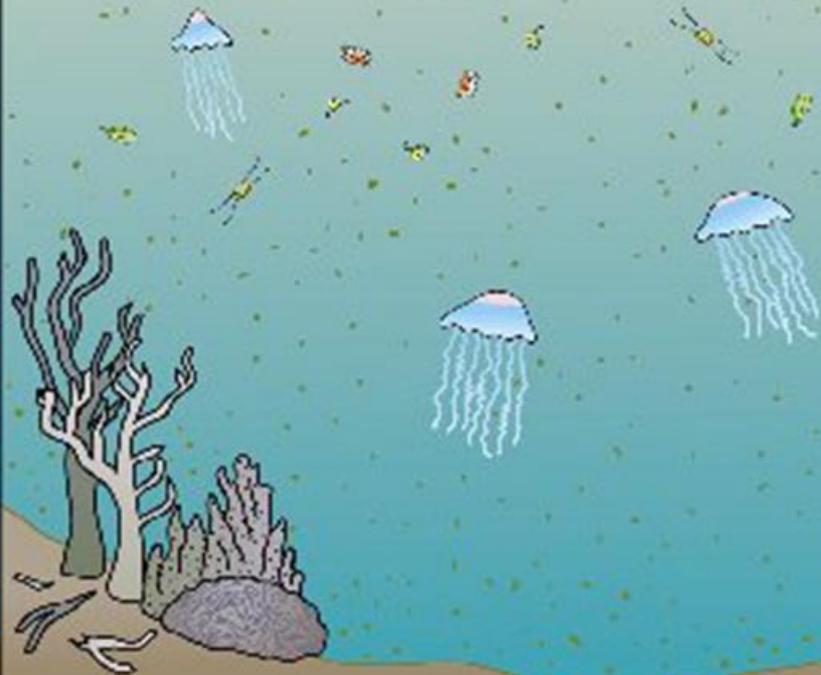
CO₂



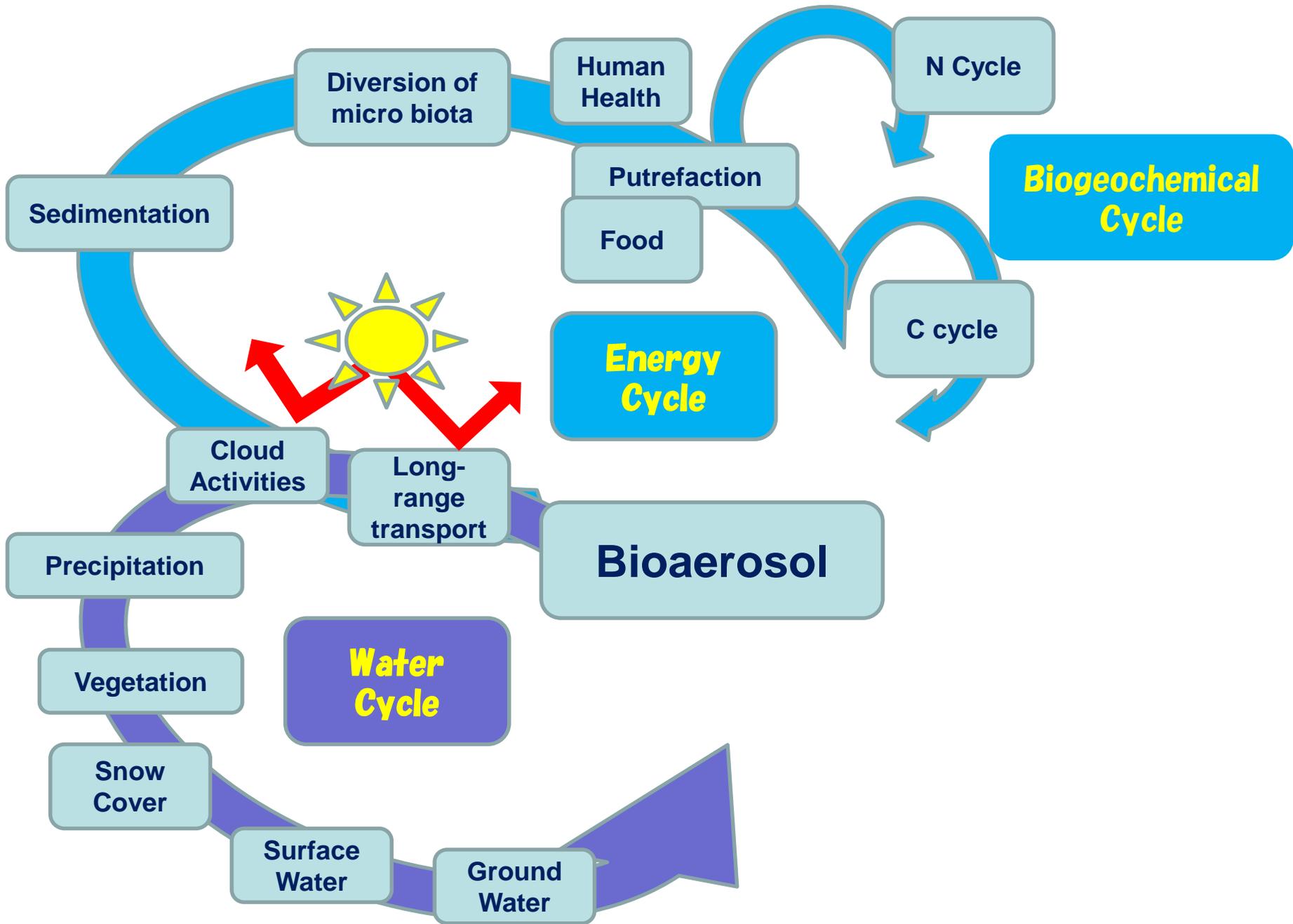
美味刺身



CO₂



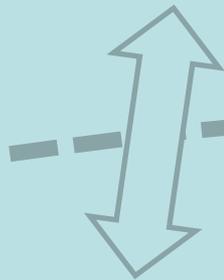
From Chai Fei



Small scale air mass exchange is frequently observed between free atmosphere and boundary layer atmosphere during long range transport

Free
Atmosphere

Long range transport



Boundary
Layer

Various scale air motion
Mixing
transport

