

2. 地上設置型低濃度エアロゾル測定装置の開発

伊 藤 朋 之*

2.1 はじめに

この章では、全地球的規模の大気バックグラウンド汚染の監視を目的とした基準観測所において、定常観測に使用できるような地上設置型のエアロゾル濃度自動測定器の開発研究について報告する。はじめにこの研究の基本的事項について、若干の説明を加える。

空気中に固体あるいは液体から成る粒子が浮遊して存在するとき、空気と粒子から成るそのような系をエアロゾルといい、浮遊している粒子をエアロゾル粒子という。大気中に通常浮遊している粒子の大きさは、大体 $10^{-7} \sim 10^{-3} \text{ cm}$ の半径範囲にある。ただしこのような粒径の範囲の両端は、はっきりきまったものではない。極めて小さな粒子は、ブラウン運動による移動範囲、すなわち拡散係数が大きいので、他の粒子と衝突して併合される機会が多い。例えば、半径 10^{-7} cm の粒子だけから成る単分散エアロゾルの濃度の半減する時間は、初期濃度が都市の代表的濃度 10^4 個/cc の場合1時間たらずである。一方、極めて大きな粒子は、空気中での重力による沈降速度が大きい。例えば、半径 10^{-3} cm の粒子は、静止空気中で1秒間に1 cm沈下する。従って地上100 mの気層内に舞い上った半径 10^{-3} cm より大きな粒子は、1時間半たらずの間に濃度が半減することになる。このように、小さすぎる粒子、大きすぎる粒子、ともに空気中での寿命が短い。このため、発生後ある程度時間を経たエアロゾルは、大体上記の粒径範囲の粒子で構成されることになる。

エアロゾル粒子は、その総質量、総個数ともに、大気構成要素としては極めて微量であるけれども、大気現象のさまざまな分野で無視し得ない役割を果たしている。従って、人間活動の活発化に伴って、大気中のエアロゾルの濃度や、粒径構成や、物質組成が変化すると、大気現象が変化するのではないか、という懸念が生じるのである。エアロゾルの変質が気象や気候の変化につながる確かな証拠や詳細な過程についての理論は、むしろ研究の途上であって、多くの不確定な部分を残しているけれども、大ざっぱには、次のような観点がある。

$0.1 \mu \text{ m}$ 程度より大きな粒子は、主として大気輻射学の分野で重視されている。この種の粒子の数濃度や、複素屈折率の値を変えるような物質組成の変化が、大気の熱収支にどのような影響を与えるか、に関しては、多くの研究が集中している点である。一方、 $0.1 \mu \text{ m}$ 程度より小さな粒子は、雲物理学との関連で重要である。大気中の自然雲核の大きさは、大体 $0.01 \mu \text{ m}$ から $0.1 \mu \text{ m}$ の範囲にあるといわれている。この粒径範囲は、発生後充分時間がたったエアロゾルの場合、エアロゾル粒子の大部分が集中している粒径範囲でもある。従って、遠く離れた汚染源からの影響を受けてエアロゾル濃度が増大する場合、雲核のバックグラウンド値を増大させる恐れがあり、雲の性状に影響を与える可能性も考えられる。さらに、エー

* 物理気象研究部

ロゾルは、気体状物質の地球化学的循環にも重要な役割を果たしている。

上で述べたような、エーロゾルの大気現象への関与の仕方は、粒子の粒径や物質組成によって著しく異なる。従って、細かい議論に耐えるような観測資料を得るためには、個数濃度、質量濃度、物質組成、などを粒子の大きさ別に細かく分割して測定する必要がある。さらに、雲核や氷晶核のように、エーロゾル粒子の持つ働きに着目した測定も必要になってくる。しかし、これから気象庁で業務化されようとしている、全地球的規模の大気バックグラウンド汚染の監視業務において、毎日の定常観測としてそのような細分した測定を行なうことは不可能である。むしろ、定期的あるいは不定期の特別研究観測の形で実行することになろう。そして定常観測項目としては、エーロゾルの人間活動による汚染に敏感に応答する要素であって、その測定法が氷年の自動測定に適している要素による汚染監視が中心になるだろう。

以上に述べた諸点を考慮して、この研究では、エーロゾル粒子を $0.1\ \mu\text{m}$ 以上の大粒子と、 $0.1\ \mu\text{m}$ 以下の小粒子に大別し、それぞれについて、個数濃度の自動測定器を開発することにした。

現存する種類の測定器の性能を文献調査した結果、小粒子濃度はボラック型光電式凝結核濃度測定装置（略してボラック・カウンタ）を、また、大粒子濃度はロイコ・カウンタで代表される光散乱型粒子計数器（略して大粒子計数器）をそれぞれ基礎に、長期間の連続自動観測に必要な改良を行なうことにした。

ただし、大粒子用測定器については、既に市販されている国産品を購入し、若干の改造を施すに留った。改造の主要点は光源の寿命を考慮した若干の修正改良、すなわち、光源の自動点滅機構と光電出力の自動較正機構を内蔵させ、毎時、10分間だけ測定し残りは休止するようにした点である。この改造によって2週間毎に光源ランプを交換して長期間の無人観測が可能となった。研究期間全体でみると、重点は小粒子用測定器に向けられ、この報告では、小粒子用測定器についてのみ報告する。

この研究における測器開発の目標は、都市の濃度に比べて100分の1程度の極低濃度のエーロゾル濃度を、外気の状態に左右されないで長期間安定して測定できる自動測定装置を開発することにある。

2.2 現用の小粒子濃度測定器の種類

半径 $0.1\ \mu\text{m}$ 以下の粒子は、通常の光学的方法では検出できない。小粒子濃度の測定器は多くのタイプのものが使用されているけれども、考え方の基本は共通している。すなわち小粒子を含んだ空気を或る種の蒸気で過飽和にする。過飽和蒸気は空気の中に含まれている微小粒子を核にして凝結し、微小粒子を霧粒に成長させる。これによって $0.1\ \mu\text{m}$ 以下の大きさの小粒子が数ミクロンの大きさに拡大され、通常の光学的方法で測定できるようになる。過飽和蒸気の作り方や、蒸気物質、さらに霧粒子の濃度の測定方法の色々な組合せから、性能の異なる多くの種類の測定器が作られている。図2.1には現在用いられている種々の測定器の系譜を示してある。

図で第1段の分類は過飽和蒸気を作る方法の違いに従ったものである。断熱膨脹型は飽和蒸気を含む空気を急速膨脹させた時生じる瞬間的な過飽和を利用する。混合型は蒸気で飽和した高温の空気と低温の空

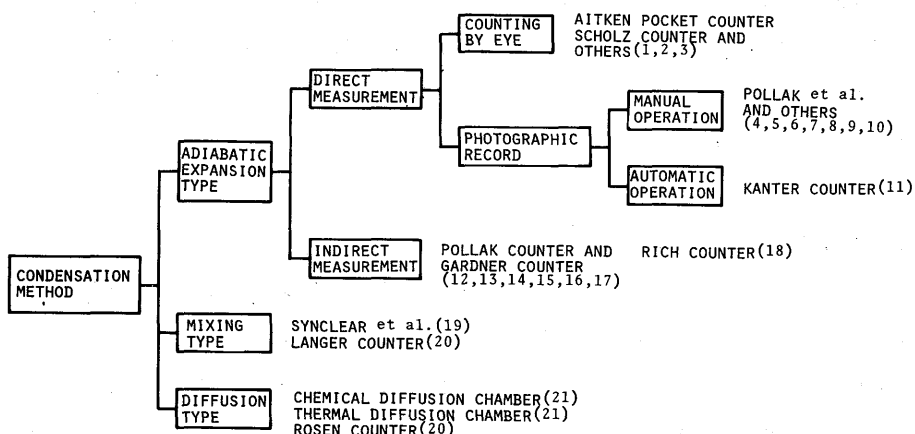


図 2.1 凝結法によるサブ、ミクロンエアロゾル濃度測定法。図中の数字は文献番号。

- (1)Landsberg, 1938. (2)大田, 1950 a. (3)大田, 1950 b. (4)Pollak, 1952. (5) Pollak, 1954. (6)Pollak & Daly, 1957. (7)Pollak, 1958. (8)Emmanuel et al. 1969. (9)大田他, 1973. (10)児島他, 1973. (11) Kanter et al., 1971. (12)Pollak & Metniaks, 1957. (13)Metniaks et al., 1959. (14)Pollak et al., 1960. (15)Pollak et al., 1961. (16)Hogan et al. 1975. (17) Ito 1976. (18)Skala 1963. (19)Sinclair et al., 1975. (20)Gadle et al., 1975. (21)内田 1974.

気を混合したとき、熱の分子拡散係数が蒸気の拡散係数より大きいために生じる局所的な過飽和を利用する。拡散型は、水平に対峙した高温の平面から低温の平面への蒸気と熱の定常的な移動がある時、両面の間で、蒸気圧および温度の分布勾配は直線的であるのに飽和蒸気圧曲線が温度の増加に対して下に凸形に増加する形を持っているため、両面の中間で生じる過飽和を利用する。拡散型は主として低い過飽和で活性化する雲核の測定に用いる。エチレン・グリコール蒸気を使ったRosen Counter は拡散型のゾンデへの利用例である。混合型には水蒸気を用いたゾンデ Langer Counter, エチルアルコールを用いた Sinclair and Hoopes の continuous flow type の測定器がある。この他、混合型には、常温では蒸気圧の低い di-oethylphthalate 等を使用した測器も研究されている。装置の単純さ、結果の信頼性の高さから最も多くの研究が集中しているのは、水蒸気を使用した断熱膨脹型の測器である。

過飽和蒸気が小粒子を核にして凝結して生じた霧の濃度を測定する方法にも色々ある。変り種としては、Langer Counter で採用しているガラスの毛管の中を霧粒が通過するとき発する音を 1 つ 1 つ計数する方法、Rosen Counter で採用している霧粒 1 つ 1 つからの散乱光をパルスとして計数するいわゆる光散乱型粒子計数器を用いたものがある。このような霧粒を 1 つ 1 つ計数する方法は、特に今問題にしている低い濃度の測定には有利なように見える。しかしこの種の霧粒計数法に適した霧を発生させる方法には未解決な点、困難な点が多く、地上測器に限れば、他の測定法に比べて、全体的には有利とはいえない。

古くから一般に使われてきた光学的検出方法には 2 つある。1 つは、霧粒をさらに光学顕微鏡で拡大し、視野内の霧粒数を目視で、あるいは写真に撮って計数するいわば直接法である。もう 1 つは、霧の中を通

過する光の減衰率あるいは散乱強度を用いて霧の濃度を測定する間接法である。自動化装置としては間接法が適しているけれども、間接法を用いた自動化装置には必然的に、直接法を用いた検定装置の開発が必要となる。このような理由からボラック・カウンターの自動化とエイトケン・カウンターを用いた検定装置の試作を行なうことになったのである。

2.3 ボラック・カウンター

ボラック・カウンターは1946年P. J. NolanとL. W. Pollak (Nolan, et al. 1946)によって最初に作られて以来、それまでの目視計数型のエイトケン・カウンター、ショルツ・カウンターに代って、エーロゾル濃度の研究用測器として広く用いられるようになった。現在までに多くの改良が重ねられてきており、中心になって改良を行なってきた人の名をとってボラック・カウンターと呼んでいる。

多くの研究者によってなされてきた改良研究を調査した結果下記の構造のものが最も安定した性能を有するものであると判断した。

- (1) 名称：ボラック型凝結核測定器
- (2) 原理：湿った試料空気を断熱膨脹させた時発生する霧の濃度を、光の減衰率によって測定し、エーロゾル濃度を求める。
- (3) 霧発生部（霧管）：円筒縦型。上下端に光透過用ガラス窓。内壁は湿った素焼管。霧のできる空間は高さ600mm、直径25mm。上下ガラス窓は電熱ガラス板とする（上面0.4 watt、下面0.9 watt）。
- (4) 膨脹方式：膨脹比1.21の減圧膨脹。
- (5) 光源：6 watt タングステン電球。弱収束光線（入射端直径15mm、受光端14mm）。光電出力10 μ A。
- (6) 受光部：セレンウム光電池。中心部に直径15mmの感部を残し、残り周辺部は黒い隔板で覆う。光電流を記録するための外部回路の全抵抗は5 K Ω 以下とする。

以下これらの仕様の理由について若干の説明を記する。

霧管は横型にすると、発生した霧粒の沈降消失のため、光線の通路上の霧濃度の一様性が保証されず、(Pollak, et al. 1955) また、霧の持続時間が短くなって、応答速度の遅い通常のペン書きの記録計では、記録計の応答特性が濃度測定精度に影響するようになる (Metnieks, 1957)。

霧管の直径は25mmより細い霧管ではエーロゾルの拡散損失の影響が大きく、また25mmより太い霧管では、断熱膨脹時の管内空気の乱れが測定値のばらつきの原因になる (Metnieks, et al. 1959), (Pollak, et al. 1955)。ガラス窓が結露のため曇ると、断熱膨脹のとき瞬間的に曇りが晴れるため濃度を低い目に誤測定することになる。このため上下のガラス窓を電熱ガラス製にして、若干暖めて結露を防ぐ (Metnieks, et al. 1959), (Pollak, et al. 1955)。

試料空気を加圧しておいてから常圧に放出して膨脹を行なわせるいわゆる過圧型の膨脹 (Metnieks, et al. 1959) に比べて、常圧の霧管を低圧容器に連結して膨脹を行なわせるいわゆる減圧型の膨脹 (Pollak, et al. 1961) は次の点で有利である。基準観測所で測定対象となる低濃度（数100個／

cc) に対し測定室内の濃度は著しく高い(数 10,000 個/cc)ことが予想される。過圧型では、加圧のため室内空気をフィルターを通して霧発生部を送るとき、フィルターによる粒子の除去効率のわずかの違いが測定誤差として影響する恐れがある。過圧型の場合、膨脹時に外気に向けて放出される空気はフィルターを通した加圧空気と霧管内の試料空気が混合したものである。混合の度合には制御できない要素が複雑に影響しているので濃度測定に誤差を生じる恐れがある。過圧型では、加圧による霧管内の昇温を解消するのに、減圧型より余計に時間を必要とする。このため最小可測粒径は減圧型より大粒径となる。さらに加圧時にガラス面への水蒸気の輸送が起り、ガラス面を曇らせることがあるほか、素焼の壁への空気の押込みによる粒子損失 (Metnieks et al. 1959) の恐れもある。これらの不都合は全て、減圧型では解消されている。

弱収束光線は次の理由のため使用する (Pollak et al. 1960)。断熱膨脹時、霧管内は一時的に壁の近くが高温、中心部分が低温の温度不均一ができる。このため空気のレンズ効果が起り減衰率測定用の光線が収束する。受光部の感光面より小さい面積に光があたるようにしておけば、感光面に入ってくる光量は瞬間的なレンズ効果によって影響されない。このため、使用する光線をわずかに収束させるのである。

セレンウム光電池は外部抵抗が大きいと、光量と出力電流の直線性が失われる他、光電出力の温度依存も大きくなる。光電出力が $10\mu\text{A}$ 程度の弱い光では、外部抵抗 $5\text{K}\Omega$ 程度までは測定に大きな影響を与えない (大田他, 1973)。

以上のような理由から前記の構造上の特徴を持つポラック・カウンターが現時点で最も性能の優れたものであると判断した。今回の研究では、前記の構造上の特徴を全て完全にそなえたポラック・カウンターを自動化して、低濃度のエアロゾルを、長期間ほとんど人手を加えずに測定して、信頼性の高い測定値を得るよう改造することが目標である。研究成果として挙げられる最も重要な改良点は、(1)霧管を特殊な構造に作り、試料空気の温度、湿度を自動的に調整できるようにして、長期間の無人観測を可能にし長期連続観測中に経験する外気の温度、湿度の変化が測定値に及ぼす影響を除去したこと (Itô, 1976)、(2)受光部を特殊な構造にして、電流補償方式による低濃度測定法を自動化し、 1000個/cc 以下、数 10個/cc までの濃度を安定して測定できるようにしたこととの2点である。

2.4 基準観測所用ポラック・カウンター

図 2.2 は、自動化したポラック型測定器の写真、図 2.3 はその系統図、図 2.4 は標準的な測定プログラムでの各部の動作、そして図 2.5 にはタイマー・リレー回路図を示す。図 2.3、図 2.4 をもとに動作の概略を説明する。

まず、3分間の吸引時間中に試料空気を弁 V1、V2 を通して霧管内に流し、古い試料空気との置き換えを行なう。この間同時に、弁 V4、V5、揚水ポンプ P3 を作動させて、霧管の外管と素焼製内管の間のすき間に、水槽内で 20°C に温度調整した水を送り込み、循環させ霧管の含水量を維持し、温度を調整する。3分間の吸引時間が終ると、V2、V1 の順で弁を閉じ、弁 V4、V5、ポンプ P3 も切って、空

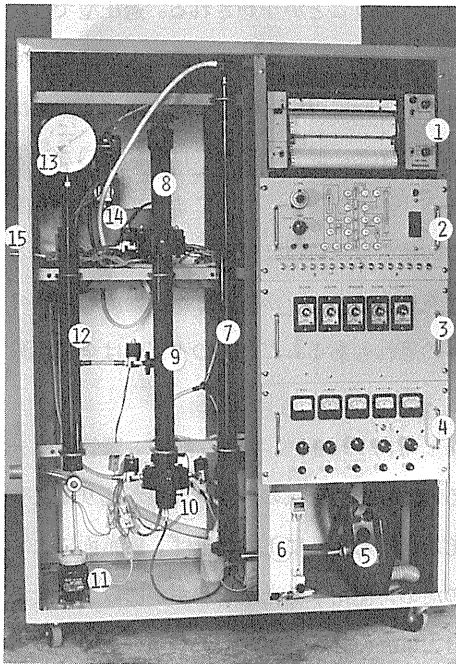


図 2.2 サブミクロンエアロゾル濃度自動測定装置。

- 1.記録計 2.パイロットランプパネル 3.タイマーリレーボックス 4.電源部 5.吸引ポンプ
6.流量計 7.拡散管 8.光源部 9.霧管 10.受光部 11.減圧ポンプ 12.低圧容器 13.接点付圧力計 14.水槽 15.試料吸引口

図 2.3 サブミクロンエアロゾル濃度自動測定装置の系統図。実線矢印は空気の流れ、点線矢印は水の流れの向きを、それぞれ示す。

- 1.光源部 2.素焼管 3.霧発生部
4.循環水 5.受光部 6.接点付圧力計
7.低圧容器 8.減圧ポンプ
9.吸引ポンプ 10.ハンドバルブ
11.流量計 12.ニードルバルブ
13.温度計 14.水槽 15.ヒーター
16.温度制御部 17.水流ポンプ

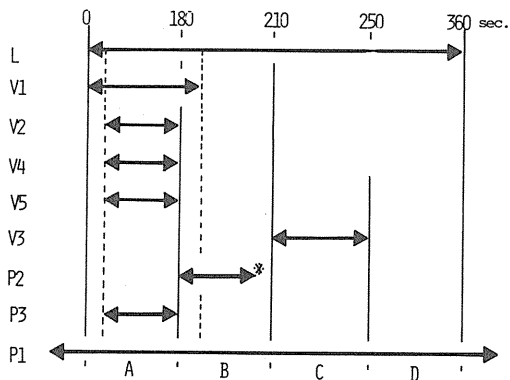
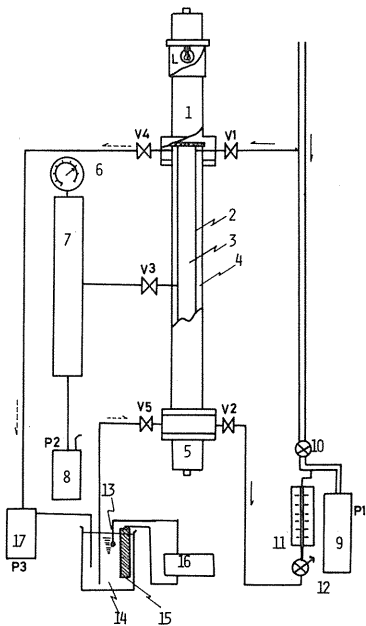


図 2.4 自動測定プログラム。L～P 1の記号は図 2.3 参照。

A: 試料吸引 B: 試料の調温調湿 C: 断熱霧測定 D: 休止

※ 接点付圧力計 ON で停止。

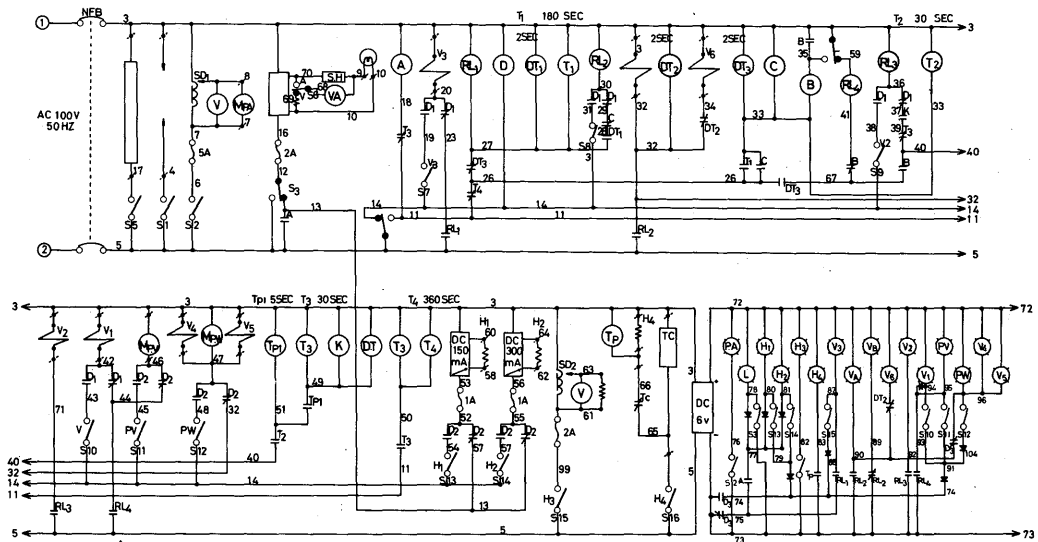


図 2.5 プログラムタイマー回路図。 $T_1 \sim T_5$, $DT_1 \sim DT_3$: タイマー
 $A \sim C$, $D_1 \sim D_3$, K , $RL_1 \sim RL_4$, RR , RR_1 : リレー
 V_1 : 減圧ポンプ用電磁弁, V_2 : 膨脹用電磁弁, $V_3 \cdot V_4 \cdot V_A$
 (V_B) : 試料吸引用電磁弁, $V_5 \cdot V_6$: 循環水用電磁弁, V_7 :
 ドレン用電磁弁, P_A : 吸引ポンプ, P_V : 減圧ポンプ, P_W : 水流
 ポンプ, L : 光源ランプ

気, 水の循環を停止し, 霧管内を密閉する。次の30秒の間に, 試料空気温度, 湿度は素焼の壁と完全に平衡に達する。一方では, この30秒の間に圧力スイッチ (Pollak et al. 1957) と連動したポンプ P_2 によって低圧容器 (Pollak. 1958) を所定の圧力まで排気する。30秒の調温調湿時間が終ると弁 V_3 を開いて, 霧管内を常圧から, 174mb だけ低圧にする。外気圧が 1000 mb のとき霧管内の膨脹前の圧力と膨脹後の圧力の比, すなわち膨脹比は 1.21 になるので, 湿度約 300% 以上の過飽和状態が生じ, 霧管内の空気中に含まれている半径 $2 \times 10^{-7} \text{ cm}$ 以上の粒子は全て1個1個の霧粒に成長する。霧管の上部にある光源部で調整された光線は霧管の中心軸に沿って下部の受光部に入る。たとえば, エーロゾル濃度が 1000 個/cc の場合, 光の減衰率は約 15% となる。この減衰率を読み取って, 予め作成されている換算表を用いて濃度に換算するのである。以下に今回の改良点の重要な2点について説明する。

2.4.1 改良型霧管と測定精度

霧の中を通過する平行光線の波長分布や光路の長さが定まっている場合, 霧による光の減衰率は光路中の霧粒の粒径別の個数によって定まる (Metnieks et al. 1959)。ボラック・カウンタでは, 瞬間的に 370% 程度の高い過飽和が作られるため, 低い過飽和でじょじょに成長する場合と違って, 発生する霧粒の粒径は核になるエーロゾル粒子の粒径や物質に依らずほぼ均一な粒径になる (Pollak et al. 1959) (Ohta. 1959)。従って毎回の測定において, 霧粒になる水の総量が一定に保たれていれ

ば、発生する霧粒の大きさは、エアロゾル濃度だけの関数となり、しかもほぼ均一粒径なので、そのような霧による光の減衰率もエアロゾル濃度だけの関数になる。従って、この種の測定器を安定に作動させるためには、毎回の断熱膨脹において、霧水量が同じになるよう工夫する必要がある。このため、膨脹比を一定に保ち、膨脹前の試料空気を湿度100%に調湿しさらに、一定の温度たとえば20℃に調温する必要があるのである(Pollak, 1961)(Nolan et al. 1964)。

NolanとPollakがこの方式の測定器を最初に作ったとき行ったいろいろな膨脹比のもとでの光の減衰率とエアロゾル濃度の関係の実験結果を用いて推定すると、膨脹比が1.21から0.01だけ変動すると、約3%程度の濃度測定誤差が生じることがわかる(Nolan et al. 1946)。膨脹比は、今回の自動化装置では、圧力スイッチを用いて、差圧が174mbになるよう自動化している。従って、外気圧の変動、試料吸引終了後密閉霧管内での昇温、圧力スイッチ動作のばらつき等の原因で膨脹比のばらつきが起る。これらの原因により生じる膨脹比のばらつきの大きさを概算すると次のようになる。

圧力スイッチの動作が差圧の設定値217mbのまわりに9mbばらつくと、膨脹比は1.21のまわりに0.01だけばらつく。今回の測定器で使用した接点付差圧計はブルドン管を圧力センサに用いたもので許容公差は±15mbとなっている。実際には、減圧速度が遅いのでオーバーシュートによるばらつきは少なく、設定後の自動測定中の減圧量のばらつきは±3mbを越えなかった。

次に霧管を密閉した後に管内空気の調温のために生じる圧力変化は、霧管と異なる温度の試料を吸引する場合に問題となる。しかし実際には試料空気は霧管の入口に入った瞬間から管の壁と熱の授受を行ない、吸引終了直後の霧管と管内空気の温度差は、霧管と外気との差に比べてはるかに小さくなっている。色々な温度差について、吸引流量を変えながら霧管内の温度を測定した結果(図2.6)、2ℓ/分の

吸引流速で、20℃の霧管に0℃の試料空気を導入する場合、吸引終了後の管内空気の平均温度は19℃程度にまで調温されており、その後霧管を密閉したあと昇温して20℃になっても、それによる内圧上昇は約3mbで、膨脹比の変化は0.003程度である。膨脹比が1.21から0.01だけ変化することを許すなら、2ℓ/分の吸引速度で

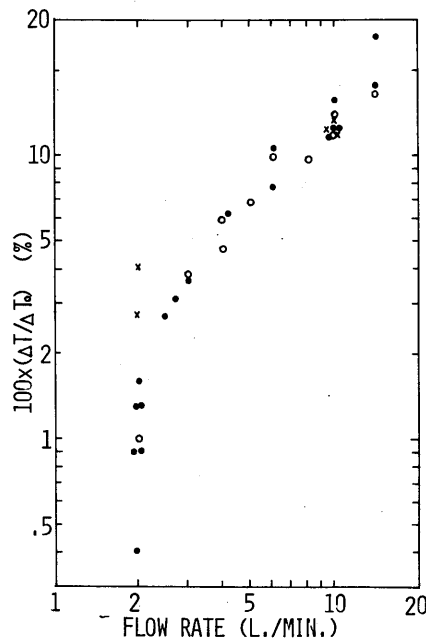


図2.6 霧管温度と、吸引中の試料空気の温度の差異。横軸は吸引流速、縦軸は霧管に入る前の空気と霧管の温度差(ΔT_0)に対する霧管中心で流れる空気と霧管の温度差(ΔT)の比(%)。○印: $\Delta T_0 = -10^\circ\text{C}$, ●印: $+15^\circ\text{C}$, ×印: $+23^\circ\text{C}$ 。

-27℃の空気まで吸引しても良いことになる。実際には霧管温度は外気温と余り大きな差が生じないよう場所、季節に合わせて設定値を変えることが望ましい。

最後に、高低気圧等の通過で外気圧が1000 mbと違った場合、やはり膨脹比は変わるけれども、その差が35 mbに達しないと膨脹比は0.01の差を生じない。従って通常の気象状態では、外気圧の変動による測定誤差はほとんど問題にならない。

以上、考えられる3つの状況について推定した膨脹比の変動巾からみると、今回の測定器では、膨脹比のばらつきが原因で3%以上の濃度測定誤差が生じることはないようである。

次に湿度の問題である。試料空気の湿度を100%に調整するために、ボラック・カウンターでは、NolanとPollakの第1号器以来、霧管内に水蒸気源を置く方式を採用している。当初は、霧管の内壁に充分水を吸った沍紙を貼って、試料の調湿に当たっていたけれども、しわができた、測定中にはがれたりすることがあって、現在では素焼筒が用いられるようになった(Metnieks et al. 1959)。調湿法としては他に、Rich Counter (Skala. 1963)で採用しているような霧管外で水蒸気を補給する方法もあるが、ボラック・カウンターのように発生した霧の濃さの時間変化を記録し1回の測定中の光の減衰率の最大値をエーロゾル濃度と対応付ける方式の測器には、外部に水蒸気源を置く方法は適しない。ボラック・カウンターでは、前にもレンズ効果のところ述べたように、膨脹直後霧管内は、壁の近くが高温、中心部分が低温の温度傾度が生じ、膨脹直後から壁から中心部に向う熱の輸送が始まる(Ohta. 1959)(Kassner et al. 1968)。このとき壁が全く水分を含んでいない場合、霧管内は壁からの熱の輸送による昇温の影響を大きく受けて、霧粒が充分成長せず、霧の寿命が極めて短時間なものになってしまう(Pollak et al. 1955)。壁が充分の水を含んでいれば、熱の輸送とともに水蒸気の輸送も同時に起るので、昇温のえいきょうをそれほど受けず、霧粒は、膨脹比に充分見合うだけの大きさにまで成長し、安定した再現性のある測定を可能にする。このように霧管の内壁が充分湿っていることが大切である。しかし、通常霧管は500回程度の測定を行なうと、含んでいた水をほとんど失なうため、その都度、測定器を分解して水を補給してやる必要がある。この様な不便を解消するため考案されたのが今回の霧管である。

図2.7に霧管の設計図を示す。霧管は内径25 mm、外径33 mmの素焼製の内管と、内径51 mmの真鍮製の外管の2重管構造になっている。外管と内管の間の厚さ9 mmの隙間には、気泡のはいらないように水で完全に満し、毎回の試料空気吸引時に、同時に水の循環補給を行なう。素焼管は長さ1 cm当り約0.9 gの保水量のあるものを使用している。このままで使用すると、水を循環する時、素焼の内外面の圧力差により、素焼の中の水が管内にしみ込んだり、逆に素焼の中に空気を引き込んだりして、後の測定に悪影響を及ぼすので、素焼の外面にビニール塗料を塗ってこれを防いだ。このようにしても、管内が断熱膨脹で低圧になっているときには、給水系の弁が開いていると水が管内にしみ出るので、水の循環は管内が常圧になっている試料吸引中にだけ行なうようにする。また、素焼の上下の切口は、合成樹脂の接着剤をしみ込ませて乾燥したのち、削り上げて、Oリングによる気密を可能にした。今回の改良型霧

管は、無人運転の可能な時間を飛躍的に延長したが、そればかりでなく、次のべる霧管温度の調整の問題も最も望ましい形で解消した。

霧管にはいる前に調整装置の中を通過させて、試料空気温度、湿度を調整する方式は、調整の達成の程度や、調整装置内でのエーロゾルの損失について、常にある程度の不安が残るし、それらの量的評価がむずかしい。一方、霧管自体を一定の温度で充分湿った状態に保つ方式では、試料空気湿度と温度の調整の達成には充分の信頼があるうえ、エーロゾルの損

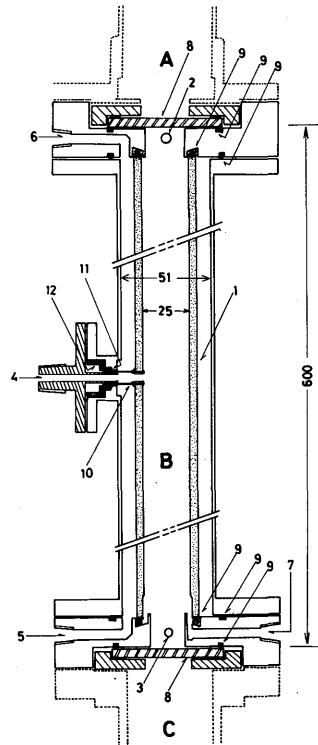


図 2.7 霧管の断面図

- 1.素焼管 2.空気入口 3.空気出口 4.膨脹用空気出口 5.循環水入口 6.循環水出口 7.ドレーン 8.電熱ガラス板 9.オーリング 10.ビニールパイプ 11.オーリング 12.押えリング
寸法はmm単位。

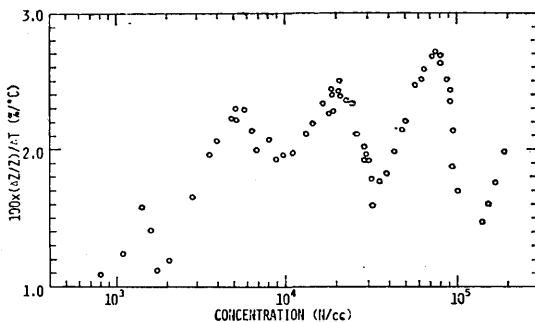


図 2.8 霧管の温度変化に依る濃度測定誤差。試料空気温度 0℃。2 台の測定器の霧管の温度はそれぞれ 2℃と 25℃、それぞれの測定値から換算された濃度値 Z_2 , Z_{25} 。 $\Delta T = 23^\circ\text{C}$, $\Delta Z = Z_{25} - Z_2$, $Z = Z_{25} - (Z_{25} - Z_2) \times 5 / \Delta T$ 。

失も容易に推定できる利点がある。

上記のように、霧管の温度を希望する色々な温度で一定に保つことができるようになったため、霧管の温度の異なる 2 台の測定器の比較が容易になった。図 2.8 は、0℃の空気資料を 2℃の霧管と 25℃の霧管で測定し、それぞれ得られた光の減衰率を、20℃の霧管について有効な検定表を用いて換算した濃度値の食い違いを、温度差 1℃当りの % で示している。エーロゾル濃度が高いと温度による測定誤差は大きく、1℃当り 3% 近くに達することがある。今回の測定器は、±1℃の精度で温度を一定に保つことができ、対象となる濃度値は数千個/cc 以下であるから、温度効果による誤差も極めて小さくなっていることがわかる。

以上で述べたことから、測定器が自体の不安定のため、測定濃度値に 3% 以上のばらつきを起こさ

せることは、ほとんどなさ
 そうである。実際、図 2.9
 に示すように、同じ仕様で
 製作した3台の測定器は、
 極めて良い一致を示してい
 る。それぞれの測定器につ
 いて光線の調整、膨脹比の
 設定、温度の設定を所定の
 手順に従って行なうだけで、
 互に測定器間で減衰率を比
 較して調整を行なうことは

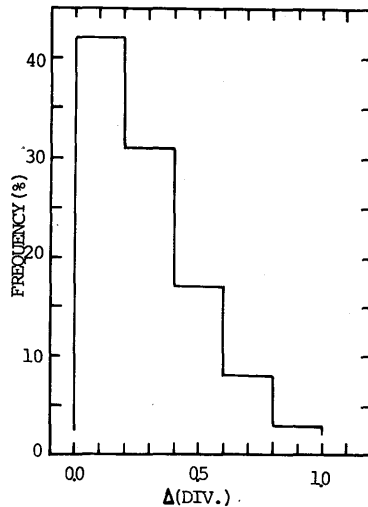


図 2.9 器差の頻度分布。同じ試
 料空気を3台の同型測定器で測
 定し、3つの測定値の内最大と
 最小の差の頻度を示す。 $\Delta =$
 1.0 div は記録のフルスケール
 を100としたときの1目盛で、
 光の減衰率1%に相当する。

しないで、同一試料空気を3台で測定した結果が図 2.9 である。光の減衰率7%から9.2%の範囲で、減衰率については Δ 等間隔にとった36回の比較を行ない、各比較に於て、最大値から最小値を引いた差の頻度を示している。減衰率のフルスケールを100目盛として、36例中23例が0.25目盛($\Delta E = 0.25\%$)以内で、また31例が0.5目盛($\Delta E = 0.5\%$)以内で一致した減衰率を与えている。そして1目盛以上すなわち減衰率にして1%以上の食い違いは現れなかった。図 2.9 の頻度分布から得られる測定器間の読取値の差異の2乗平均値は、0.37目盛で、1目盛は濃度にして約1割の差異に相当するので、濃度測定 of 公算誤差は大体 $\pm 2.5\%$ 以下であろうと推定できる。

2.4.2 低濃度エアロゾルの測定法

北太平洋の中緯度高気圧の中の代表的エアロゾル濃度は大体100~200個/cc程度である(大田他, 1973)。200個/ccの濃度をポラックカウンターで測定すると、5.6%の光の減衰率が得られる。膨脹前の光の強さを記録紙のフルスケール200mmに合わせておくと、霧の発生した時のふれは11.2mmである。振れの測定の分解能は大体0.5mm程度であるから、光の減衰率の分解能は0.25%となる。このあたりの濃度値では、これは濃度の分解能として25個/ccに相当し、測定値の1割程度の分解能しかないことになる。今回の装置では光線の調整、光学系の耐振性など特に注意して製作され、安定した光線を供給し雑音の少ない記録が得られているので、単に記録の分解能を上げることだけで、低濃度測定においても十分な分解能を持つ測定値が得られる。(図 2.10, 光源部)

図 2.11 の(2)が低濃度測定用の受光部光電流測定回路である。原理的には Pollak と Metnieks によって用いられた光電流補償方式 (Pollak et al. 1957) (Pollak et al. 1963) と同じであるが、自動記録が得られるよう工夫した点に特徴がある。霧のない時に光電池 PC から出て抵抗 R_1 を流れる光電流 I_0 を、水銀電池 MB から出て逆方向に R_1 を流れる補償電流 I_G でちょうど打ち消すように抵抗 R_2 を調整する。この時記録計 REC はゼロ線を引いている。霧が発生すると R_G からの光電

流は I_0 から I に減少し、抵抗 R_1 には $I_0 - I = I_0 - I$ の電流が流れ、記録計には R_1 の両端に生じた電圧に見合った振れが記録される。光の減衰率 $\frac{I_0 - I}{I_0}$ への換算は、霧の代りに、ガラス板を光電池の前に置いて、その時の記録計の振れを基準に内挿、外挿して求める。ポラック・カウンターの光学系についての、ガラス板による光の減衰率の値は、マイクロアンメータとガルバノメータを用いるCampbell-Freeth回路(図2.11の(3))を用いて、予め測定しておく。ガラス板は通常、減衰率8%程度のものを用い、記録の振れが、ちょうど全スパンの半分程度になるようにする。このようにし

て、1000個/cc以下の濃度が数10個/ccまで2~3個/ccの分解能で記録できる。

図2.12には、ガラス板による基準減衰量の記録が自動測定中、各測定毎に記録されるよう工夫した受光部の図を示す。光電池の前にターレット機構を取り付け、ガラス板の入った窓と、何も入っていない窓とが、測定

プログラムに従って、モーターで交互に光電池の前に来るようになっている。このような方式で得られた記録の1例が図2.13に示されている。

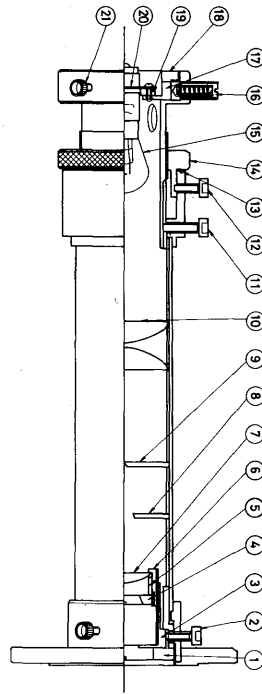


図2.10 光源部

1. 終端金具 2. 光路調整ネジ
 3. 15φスリット 4. 30φレンズ押え金具 5. 30φレンズ押え管
 6. 30φレンズホルダー(フォトセルに入射する光線の直径を調整するため上下移動が可能)
 7. 30φレンズ 8. 10φスリット 9. 1.0φスリット 10. 47.5φレンズ
 11. ランプハウス上下ガイドネジ 12. ランプハウス水平ガイドネジ 13. ベアリングボール
 14. ランプハウス上下調整ナット 15. 光源ランプ
 16. ランプ水平調整用スプリング 17. ソケット取付台 18. ソケット取付台押え
 19. ソケット絶縁カラー 20. ソケット
 21. 光源ランプフィラメント位置調整ネジ。
- 寸法はmm単位。

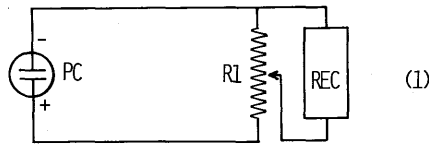
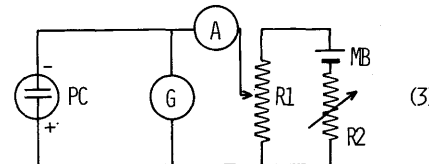
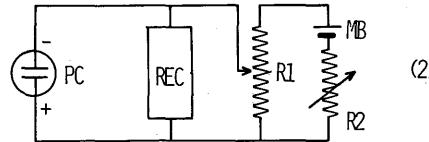


図2.11 光電出力記録回路

REC:記録計 PC:フォトセル MB:水銀電池 R_1 , R_2 :抵抗 A:マイクロアンメータ G:ガルバノメータ (1)通常濃度の記録回路 (2)低濃度の記録回路 (3)セレンウム光電池の出力電流を正しく測定できる回路。



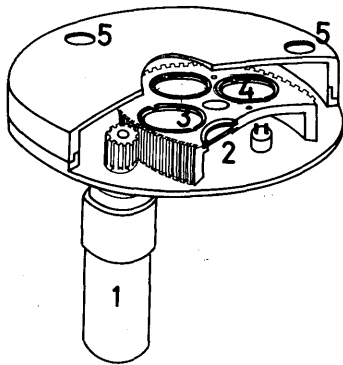


図2.12 改良型受光部

- 1.モーター 2.光学フィルター（減光率8%）
- 3.霧測定用穴 4.光軸調整用目盛ガラス
- 5.霧管への取付ボルト穴

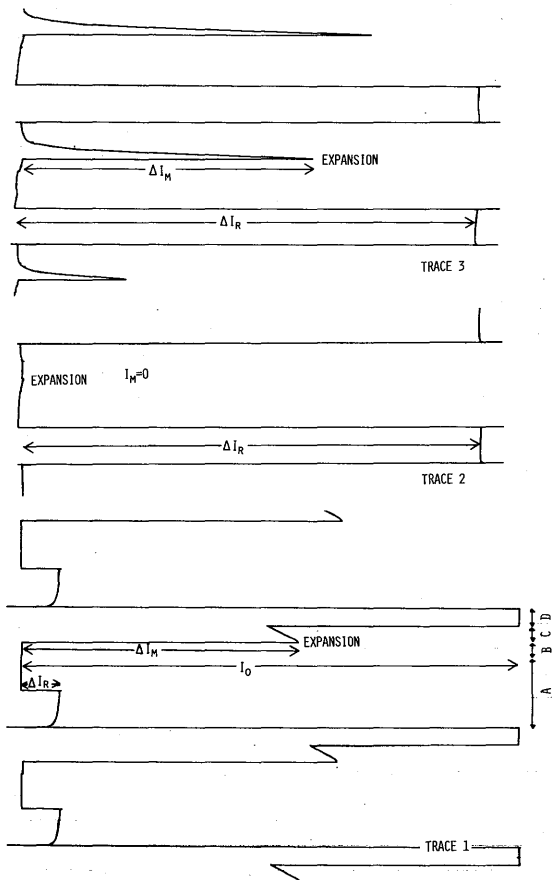


図2.13 測定記録例

TRACE 1: 通常濃度の記録例（図2.11の(1)の回路を使用）。 I_0 は霧がないときの光電流、 ΔI_m は霧が出たときの光電流減少量、 ΔI_R は光学フィルターによる光電流減少量（フィルターによる減光率 = $(\Delta I_R / I_0) \times 100 = 7.5\%$ と読める）。A: 吸引時間, B: 温度湿度調整時間, C: 霧測定時間, D: 休止時間。

TRACE 2, 3: 光電流補償回路を用いた記録例（図2.11の(2)の回路使用）。 ΔI_R , ΔI_m 共に TRACE 1 に同じ。例 ΔI_R は大きく拡大されて記録されないことに注意。TRACE 2 は無塵空気についての記録で、 $\Delta I_m = 0$ になっている。TRACE 3 は極低濃度エーロゾルについての記録。光の減衰率に換算すると $E = (\Delta I_m / \Delta I_R) \times 7.5 \div 4.7\%$ となり、濃度約160個/ccに相当する。

2.4.3 自動化のまとめ

1957年型ブラック・カウンターに、弱収束光、減圧膨脹方式を組合せ、さらに新しく工夫された霧管と受光部を持つ自動測器を開発した。完成した測定器によって、1000個/cc以下の低濃度エーロゾル濃度を、数10個/ccまで、外気の気圧、気温、湿度の変化の影響をほとんど受けないで、相対精度±3%以内で測定できる。1週間に1回記録紙を交換し、1ヶ月に1回循環水交換とガラス面の清掃を

行なうことによって、5分毎の濃度値を1年程度連続して得ることができる。測定値のデジタル化など、データー処理のための改良は、今後の問題である。

定常観測用に開発された測器は当然長期間の連続運転による耐用テストの結果も合わせて報告されるべきである。この特研の中では耐用テストは行なわれなかった。しかし、ここで報告した測定器と全く同じものを、この特別研究の期間に並行して行った気象庁との共同調査観測で使用する機会にめぐまれた。そこでは、計6台の同型器をそれぞれ1年間連続した観測に使用し、本質的に重大な故障もなく通年データーを取得することに成功した（気象庁、1975）（気象庁、1976）。一方、文部省極地研究所との共同研究として、南極昭和基地でのエーロゾル濃度の通年観測にも、同型の測器を使用している。そこでは、100個/cc前後の低濃度のエーロゾルの観測資料が、これまでに10ヶ月間の連続記録として得られている。これらの観測は今回の特研とは予算項目、成果目標とも全く異なるため、ここでその結果について詳しく論じることはできない。しかしながら、これらの観測が支障なく行なわれたことによって、ここで報告した測定器の耐用性が充分なこと、従って、定常観測用測器として有用であることについて、ある程度の保障を与えることができる。

2.5 検定装置の開発

図2.14は、今回製作した検定装置である。断熱膨脹霧箱と顕微鏡撮影装置（顕微鏡、暗視野照明、ポラロイドカメラ）および補助装置（自動化装置、過圧容器、低圧容器、流量計、吸引ポンプ、加圧ポンプ）から成る。主な特徴は、複雑な手順を要する測定動作の1回の測定分を自動化して、誤操作による失敗を避け、調湿時間、膨脹速度、露光時間など、測定の精度に直接関与する動作部分の時間を標準化したこと、また、ポラロイドカメラを使用して、結果に即時性を持たせたことにある。

図2.15には、装置の配管を示す。この図をもとに、測定の手順をのべる。試料空気は、弁1、弁2、を開いて、1ℓ/分の流速で1分間、霧箱の中を吹き流して採取する。採取が終ると、弁1、弁2、を閉じ霧箱底面に貼った湿った汚紙から水蒸気を補給して、試料空気の湿度を100%にする。この調湿のために20秒間待ったのち、低圧容器に通じる弁3を開く。このとき、膨脹部のゴム膜が図で左側の面に密着してい

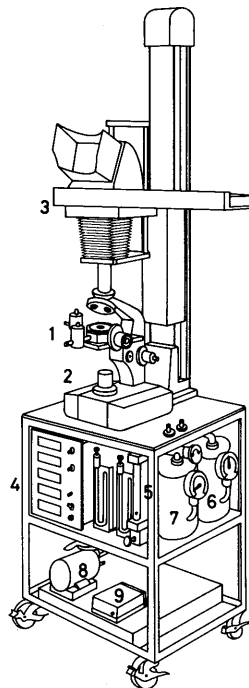


図2.14 検定用濃度測定器

- 1.写真撮影式エイトケンカウンター
- 2.生物顕微鏡
- 3.ポラロイドカメラ
- 4.自動化装置
- 5.流量計
- 6.低圧容器
- 7.加圧容器
- 8.減圧ポンプ
- 9.加圧ポンプ

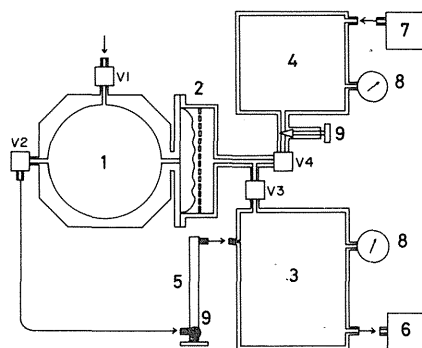


図2.15 検定用濃度測定器系統図

1.霧発生部 2.膨脹部 3.低圧容器
4.加圧容器 5.流量計 6.減圧ポンプ
7.加圧ポンプ 8.圧力計 9.ニードルバルブ, V1~V4, バルブ

たのが瞬間的に右側に移動してゴム膜ストッパーに密着する。これによって霧箱内の空気は、膨脹比1.21の断熱膨脹を行ない、霧が発生する。弁3を開いた後0.3秒においてカメラのシャッターを開き、3秒間露光した後シャッターを閉じる。シャッターの開いている3秒の間に、発生した霧粒は全て、暗視野照明されている底面のガラス面上に落下して強く輝き、暗い視野内の白い斑点として撮影される。図2.16にはこのような写真の1例を示す。写真撮影が終ると弁3を閉じ、代って弁4を開く。ニードルバルブで調節した流速で空気を送り込み、約2秒の時間をかけてゴム膜をゆっくり左側に押し戻す。同一の試料空気について2度、3度の膨脹、撮影をくりかえし、視野内に霧が発生しなくなるまでこれを行なう。このように同一試料についての1度、2度、3度、……の撮影で得られた霧粒の合計を測定値として、エーロゾル濃度に換算する。

ゴム膜移動式の膨脹部を持つこの断熱膨脹霧箱は、先に気象研究所の経常研究で開発されてきた

PHOTO-1

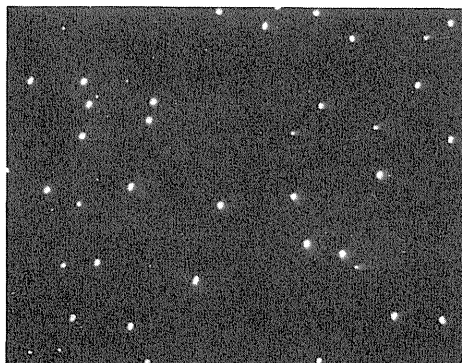


PHOTO-2

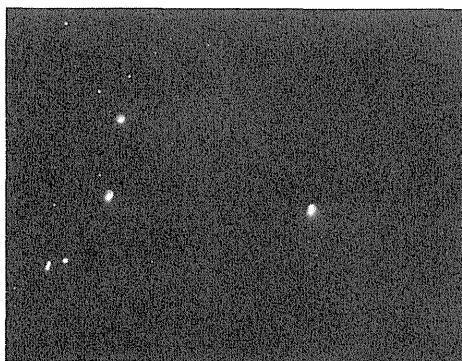


PHOTO-3

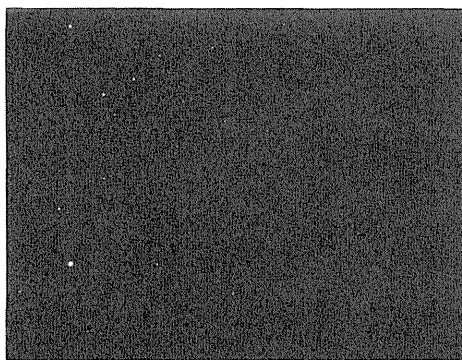


図2.16 霧粒撮影例

同じ試料について、相次ぐ1回目、2回目、3回目の膨脹での霧粒写真をPHOTO-1, 2, 3の順で示す。

もので、以下の長所を持っている（大田他、1973）。ゴム膜移動式の膨脹方式は、静かに急速に、しかも充分な再現性をもって膨脹を行なうことができる。同一試料の反復膨脹が可能である。自動化が容易である。以上の点で従来のピストンによる膨脹方式よりも優れている。落下した霧粒を撮影して計数する方式は、視野体積の決定が容易で、従って換算されたエアロゾル濃度値の精度は極めて高い。

霧箱内の構造は可能な限り単純化して、膨脹時に気流、熱の不均一が生じるのを避けている。

2.5.1 改良型霧箱とその性能

今回製作した霧箱では、上記の特徴を生かしながら、さらに以下に述べる改良を施した。主な改良点は暗視野の性能を向上させたこと、膨脹比を安定させたことである。

図 2.17 に、改良型霧箱の鉛直断面図を示す。

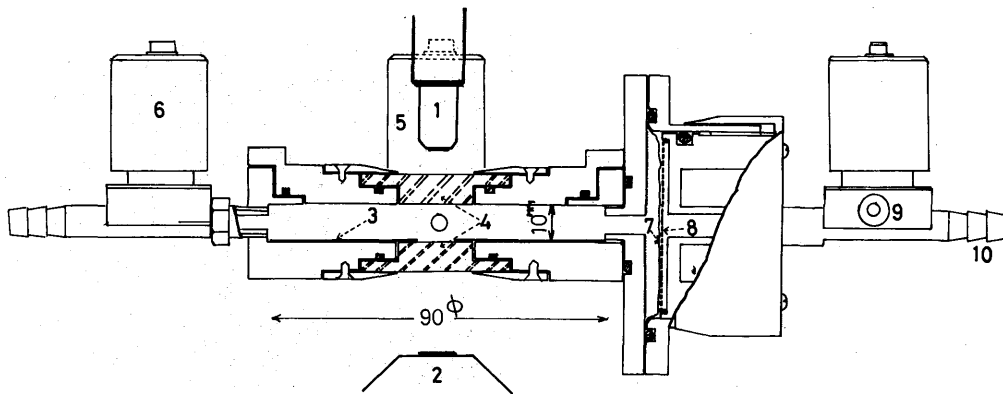


図 2.17 写真撮影式エイトケンカウンター断面図

- 1.顕微鏡対物レンズ 2.暗視野レンズ
- 3.湿った濾紙 4.透明ガラス窓 5.と
- 6.電磁弁 7.ゴム膜 8.ストッパー
- 9.加圧容器へ 10.低圧容器へ

上下のガラス窓に使用する凸型ガラスの突起部のガラスの厚さを5mmとした。この厚さが1mmであった、前の霧箱の場合、突起部のガラス板とその下のガラス板との接着面が暗視野照明域に入るため、接着面のゴミや気泡が、霧粒撮影の障害になっていた。霧粒落下面より5mm下にこの接着面を下げることで、この障害を避けることができた。これによって、暗視野の性能は飛躍的に改良され、前の霧箱では1秒間が限度であった露光時間（霧粒撮影のための）を、5秒間まで延長しても、コントラストの強い霧粒の像が得られるようになった。霧粒が全部落下するまでに要する時間は、発生した霧粒の大きさの関数であり、これは、試料空気のエアロゾル濃度に依存する。発生した霧粒を正しく計数するためには全ての粒子が落下し終るまでシャッターを開いておく必要があり、露光時間が長く取れるということは、より高い濃度まで正しく測定できるということになる。前の霧箱では測定可能な濃度の上限は800個／

cc 程度であったが、今回の改良で、上限濃度を 2500 個/cc 程度にまで広げることができた。なお、これ以上の高濃度については、霧粒からの散乱光による暗視野の妨害が起り、写真の画質が悪くなるので、別の照明方法（例えば児島・関川（児島他・1973））を用いるか、あるいはエーロゾルを希釈して測定するか（Ito, 1976）、いずれかの方法をとる必要がある。

次に膨脹比に関する改良をのべる。顕微鏡写真に撮影された霧粒はその数 n から、次の式を用いて空気 1 cc 当りのエーロゾル濃度 Z に換算される。

$$Z = a \cdot b^{-1} \cdot c^{-1} \cdot n$$

ここで、 a は膨脹比 (1.21)、 b は視野面積 ($2.00\text{mm} \times 2.58\text{mm} = 5.16\text{mm}^2$ 、又は $3.23\text{mm} \times 4.16\text{mm} = 13.44\text{mm}^2$) c は霧箱内の高さ (10.0 mm) である。これら a 、 b 、 c の値は、その決定精度が、そのまま得られる濃度値の精度になるので、正確な値を知る必要がある。視野面積 (b)、高さ (c) の決定は問題になる部分はなく、又測定毎に変動する要因はない。膨脹比については、若干の工夫がなされた。膨脹部のゴム膜は、膨脹前は図 2.15 で右側から加圧容器からの空気圧によって左側の面に押し付けられている。前の霧箱では、左側の面に膜が押し付けられるとき霧箱に通じる穴を先にふさいでしまって、ゴム膜のたるみの中に空気がとに残され、膨脹前の膨脹部の体積が完全に 0 となっていない場合があった。この欠点を改めるため、ゴム膜が密着される左側の面にガーゼを貼り付けて良好な結果を得た。膨脹部のゴム膜ストッパーのたわみによる膨脹比のばらつきも無視し得ないことが解ったので、金網のストッパーを厚さ 1 mm の真鍮板（穴を沢山あける）に代えた。膨脹比の設定が容易にできるようにするため、ゴム膜ストッパーは、1 回転 1 mm のピッチの回転移動式とし、膨脹部の外側に目盛を付けて 100 分の 1 回転（膨脹比にすると 0.0003）の精度で設定できるようにした。この目盛の膨脹比への換算表を作ることが 1 つの問題である。設計図の寸法をもとに換算する方法、霧箱と膨脹部に水をみたして、膨脹時の水量の変化をビュレットで読みとる方法など種々試みたが、膨脹前後の容器内の圧力を、温度平衡のもとで測定するのが、最も確実な方法のようである。しかし、この圧力法では小さな容器内の圧力の変化を測定するとき、圧力センサーの体積変化や導管の体積などが影響するので注意を要する。ここでは、圧力測定時のセンサーの体積変化が無視し得る、ストレンゲージ型圧力変換器（共和電業・P G-D）を用いて測定した。この方法の利点は、霧箱のふたと全く同じ寸法の取付板を用いて、霧箱の容積を変えずにセンサーを取り付けることができる点である。ストッパーの位置を色々変えて膨脹比を測定した後、膨脹比が 1.21 になるよう目盛を合わせた。ちなみに、このとき、設計及び寸法測定から得られた膨脹比の値は 1.214、水で用いる方法では 1.24、水銀柱を用いる方法（水銀柱の高さの変化に伴う導管体積の変化、及び導管内圧力変化は計算で補正する）では 1.209 となった。水を用いる方法が大きく違った値を与えているのは、霧箱容積を測定するとき水を完全にメスシリンダーに移し切れない点および、ビュレットによる測定分解能が粗すぎる点が原因になっているようである。

2.5.2 検定装置開発のまとめ

ボラック型エーロゾル濃度測定器の検定装置を試作した。今回製作した装置によって、0～2500個/ccまでの濃度範囲で、「直接測定法」による濃度値が得られる。1回の測定は所用時間3分以下であり、1回毎の自動操作が可能である。

本装置の製作仕様および標準的な操作仕様は以下のとおりである。

〔操作〕：試料吸引は1ℓ/分で60秒間、湿度調整時間は30秒間、膨脹とシャッター開との時間差は0.5秒、シャッター開放時間3秒、ゴム膜もどしは2秒をかけて行なう。過圧容器過圧量100mb、低圧容器減圧量600mb、膨脹比1.21。

〔暗視野〕：集光レンズは $f \div 30\text{mm}$ 、直径30mmを用い、レンズ中央の直径15mmを、光反射の少ない黒い布板（フェルト地）でおおう。

〔顕微鏡〕：ニコン生物顕微鏡（ステージは霧箱脱着が容易に行なえるよう加工）、対物レンズ×2 Plan, ×3 Plan, 接眼レンズ×10 P, 鏡筒74mm。

〔カメラ〕：ポラロイドカメラMP-4型（電磁シャッター加工）、ポラロイドフィルム103Type（ASA 3000, 画面74.5mm×96mm）

〔霧粒撮影視野〕：2mm×2.58mm（対物レンズ2 Plan, 接眼レンズから印画紙面までのきより280mm）、3.23mm×4.16mm（対物レンズ3 Plan, 接眼レンズから印画紙面までのきより320mm）。

〔その他〕：霧箱の高さ1.00mm。

測定値の誤差については、測器の定数にもとづくものは、ほとんど無視できるくらい小さく、主として霧粒計数値の統計的ばらつき（ポアソン分布をする）（大田他、1973）によるものだけとみなせる。従って霧粒の全計数値が100個程度になるよう測定回数を定めることによって $\frac{10}{100} \times 100 \times 0.6741 = 6.7$ %程度の確率誤差におさめることができる。

尚、高濃度領域での検定については、文献（Itô、1976）に、精密な希釈装置を用いる方法を示したので参照されたい。

2.6 結 語

エーロゾルの全地球的な大気バックグランド汚染の監視を目的とする基準観測所において、エーロゾル濃度の定常観測に供し得る地上測定器を開発した。今回の研究では小粒子は、ボラック型凝結核測定器、大粒子は光散乱型の大粒子計数器で測定することを想定して、必要な改良研究を行なった。大粒子については、光散乱型大粒子測定器（金川、1970）（横地他、1970）（Gradel、1974）の市販品^{*}を購入し、南鳥島、父島での現地観測に使用して来た。これらの観測を通じて気付かれた不都合な点について、その都度改修を行ってきたが、特に項を改めて記すほどの本質的なものではないと判断し、この報告ではふれなかった。

* ダン産業株式会社（狛江市岩戸1056番地1）製ダストカウンター PM-730-S15P型

一方大気のエアロゾル汚染の敏感な指標であり、しかも永年に恒るデーターの蓄積があることから、バックグラウンド汚染の監視項目としてぜひ加えられるべきと思われる大気電気伝導率については、既に十分な性能を有する測定器が気象研究所によって開発されており（三崎・1976）、若干の修正をもって、定常観測に移行できるものと判断し、この特研では取り挙げなかった。

今回の特別研究で行なわれてきた改良研究によって、基準観測所での使用に供することのできる、第一次のモデルが完成したものとする。

参 考 文 献

- Cadle, R.D., G. Langer, J.B. Haberl, A. Hogan, J.M. Rosen, W.A. Sedlacek and J. Wegrynn, 1975: A comparison of the Langer, Rosen, Nolan-Pollak and SANDS condensation nucleus counters. *J. Appl. Met.* 14, 1566-1571.
- Emmanuel, M.B., and P. Squires, 1969: The calibration of a photo-electric nucleus counter at low values of nucleus concentration *PAGEOP.*, 72, 268-283.
- Graedel, T.E., 1974: Channel width determination and electronic pulse processing losses in optical particle counters, *Aerosol Sci.* 5, 125-131.
- Hogan, H., W. Winters and G. Gardner, 1975: A portable aerosol detector of high sensitivity. *J. Appl. Met.*, 14, 39-45.
- Ito T. 1976: An automatic pollak counter improved for routine field operation. *Journal of Meteorological Society of Japan.* 54, 81-90.
- Kassner, J.L. Jr., J.C. Carstens and L.B. Allen, 1968: Analysis of the heat and vapour propagation from the walls of the Nolan, Pollak and Gardner type condensation nucleus counters. *J. Atmos. Sci.* 25, 919-926.
- Kanter, H. and C.E. Junge., 1971: A new automatic condensation nuclei counter for low particle concentrations. *Suppl. Proc. 7th International confer. on condensation and ice nuclei.* Sept. 1969. 205-212.
- Landsberg, H., 1938: Atmospheric condensation nuclei. *Eigebn. Kosm. Phys.* 3, 155-252
(邦訳: 伊藤 彊自, 地球物理学文献抄(938) 407-445)

- Metnieks, A.L. and L.W. Pollak., 1959: Instruction for use of photo-electric condensation nucleus counters, Geophys. Bull. 16 of the School of Cosmic Physics (Dublin Institute for Advanced Studies.)
- Metnieks, A.L., 1957: On F. Verzar's photo-electric automatic nucleus counter. Geof. p. e Appl., 36, 41-48.
- Nolan, P.J., and L.W. Pollak, 1946: The calibration of photo-electric nucleus counter. Proc. Roy. Irish Acad., A51, 9-31.
- Nolan, P.J. and J.A. Scott., 1964: The influence of variations in pressure and temperature on the calibration of a photoelectric nucleus counter. Proc. Roy. Irish Acad., A64, No.3, 4-48.
- Ohta, S., 1959: Investigation on the formation and disappearance of fog in an expansion fog chamber. Geoph. Magazine 29, 232-287.
- Pollak, L.W., 1952: A condensation nuclei counter with photographic recording. Geofis. pura e appl. 22, 75-83.
- Pollak, L.W., 1954: Improvements to the condensation nuclei counter with photographic recording and the frequency distribution of nuclei counters. Sci. Proc. Intern. Assoc. Meteor. I.U.G. G., Rome Meeting, 374-381.
- Pollak, L.W. and T.C. O' Connor, 1955: A photo-electric condensation nucleus counter of high precision. Geofis. pura e appl., 32, 139-146.
- Pollak, L.W. and A.L. Metnieks, 1957: Photo-electric condensation nucleus counter of high precision for measuring low and very low concentration of nuclei. Geofis. pura e appl., 37, 174-182.
- Pollak, L.W. and A.L. Metnieks, 1960: Intrinsic calibration of the photoelectric condensation nucleus counter model 1957 with convergent light beam, Technical (Scientific) Note No.9 Contract AF 61(052)-26, Dublin Institute for Advanced Studies.
- Pollak, L.W., T. Murphy and T.C. O'Connor., 1955: The uncertainties in measurements of condensation nuclei with photo-electric counters and the decay of nuclei in large vessels. Scient. Proc. Internat. Assoc. Meteorol., Rome General Assembly, Sept. 1954. 369-373.

- Pollak, L.W. and J. Daly, 1957: A condensation nucleus counter with stereo-photomicrographic recording. *Geofis. pura e appl.*, 36, 27-34.
- Pollak, L.W., 1968: An improved model of the condensation nucleus counter with stereo-photo-micrographic recording. *Geofis. pura e appl.*, 41, 211-216.
- Pollak, L.W. and A.L. Metnieks, 1959: Further investigations of the fog in the photo-electric condensation nucleus counter. *Geof. p e Appl.*, 42, 89-107.
- Pollak, L.W. and A.L. Metnieks, 1961: Extinction in a photo-electric nucleus counter using adiabatic expansion of 1.21 pressure ratio achieved by increasing or decreasing the original pressure, *Geofis. pura e appl.*, 49, 208-216.
- Pollak, L.W., 1961: The influence of pressure and temperature on the counting of condensation nuclei, Part II. *Geofis. pura e appl.*, 50, No.3, 2-16.
- Pollak, L.W. and A.L. Metnieks, 1963: A small portable photo-electric condensation nucleus counter. *Geofis. pura e appl.*, 55, 137-150.
- Skala, G.F. 1963: A new instrument for the continuous measurement of condensation nuclei. *Anal. Chem.*, 35, 702-706.
- Sinclair, D. and G.S. Hoopes. 1975: A continuous flow condensation nucleus counter. *Aerosol Sci.* 6, 1-7.
- 金川昭, 1970: 側方光散乱粒子カウンターの応答計算, 化学工学, 34, 521-527.
- 児島紘, 関川俊男, 1973: 凝結核濃度測定における問題点. 天気. 20, 300-305.
- 気象庁(1975): むつ小川原地域大気環境調査報告書総括編(Ⅱ).
- 気象庁(1976): 秋田湾地域大気環境調査報告書総括編(Ⅱ) 303-401.
- 大田正次, 1950a: 核心計の改良, 気象集誌, 28, 158-161.
- 大田正次, 1950b: 核心壁の影響について, 気象集誌, 28, 161-167.
- 大田正次, 伊藤明之, 1973: サブミクロンエアロゾルのバックグラウンド汚染の測定法の開発および, 小笠原諸島・マカス島近海での測定結果について, 気象研究所報告, 24, 111-137.
- 横地明, 金川昭, 1970: 側方光散乱粒子カウンターの改良, 化学工学, 34, 997-1001.
- 三崎方郎, 1976: 大気電気の測定, 日本気象学会気象研究ノート第130号, 685-698.