

地球水素の生産と散逸

1 概要

水素とその化合物の超高層大気物理学について、全球の日平均を表すための簡略化されたモデルで議論する。渦拡散と分子拡散による垂直輸送には主要な成分として H_2O , H , H_2 が含まれる。高度 100km での流れは H_2 に支配されていることがわかった。この H_2 は中間圏で H に変化し、散逸する。流量は化学的な詳細と、仮定した渦係数の変化の大きさには関係しない。高度 100km での均一圏界面の上方面では、 H_2 の流量はその限界値に近く、その値は H_2 の混合比に比例している。 H 原子の総量に対するこの混合比は、高度 30km での H_2O , H_2 , CH_4 よりも少し小さい。後者の変化はそれに釣り合うように散逸流量を変化させる。このモデルは観測された散逸流量に加えて、中間圏での OH と H の観測結果もまあまあ良く再現する。混合比を二分の一ほど (2 ファクター) 小さくすればさらに良く一致する。高度 30km での H_2O 混合比は体積の 1ppm よりも小さく、ほぼ確実に数 ppm よりも大きなものはないことが示唆されている。

2 序論

一般に言ってジオコロナ中の水素の存在とその散逸が成層圏内の水蒸気と関係している (Bates and Nicolet, 1950) ことは、以前から明らかにされてきた。しかし、この関係の詳細についてはまだ不明瞭である。研究は高度 100km 以上の大気中の H 原子の拡散と散逸に集中した。この高度では密度は固定されている、もしくは (観測などで) 決定されるべきパラメーターとしてみなせる (Bates and Patterson, 1961; Kockarts and Nicolet, 1962, 1963; Meier and Mange, 1973; Vidal-Madjar et al., 1973)。 H_2 が存在することが Bates and Nicolet (1965) で言われ、Patterson (1966) で調査されたが、その濃度についてはまだあいまいであった。観測証拠のかなりは、 H_2 が水素システムの重要な構成要素であるとして (Tinsley, 1969; Meier and Prinz, 1970; Meier and Mange, 1973)。

他の研究者達も成層圏と中間圏での水素の超高層大気物理学について考えたが、彼らのほとんどは上向きの流量を無視している (Hasstvedt, 1968; Shimazaki and Laird, 1970; Bowman et al., 1970; Hunt, 1971; George et al., 1972)。Strobel (1972) で指摘しているように、これらの論文の多くは、水素流量の問題を別にしてさえ、納得できるような方法で境界条件を扱っていない。Thomas and Bowman (1972) による最近の論文では、中間圏に関しては満足いくものだが、まだ散逸水素の関係は扱っていない。

中間圏の水素散逸に関する関係は、Donahue (1969) と Brunkmann (1969, 1971a) で説明されているが、これには決定的な結果がない。本研究はこの関係に集中し、中間圏での垂直輸送率 (渦拡散によるものを表している) の実験による決定の可能性についても調べ

る。化学的性質はあえて簡単なものにしていて、例えば日変化よりもむしろ日平均を使っている。酸素と窒素が背景の大気として与えられている。それゆえ何が散逸流量を支配している本質的な要素であるかということを見るのが可能である。その基礎的な結果は、下部熱圏の H_2 と H の "制限拡散" (Hunten, 1973a, b) によって流量が制限されることである。その制御要素はそれゆえ、高度 100km での全 H 原子の混合比であり、成層圏での値とほとんど同じ値を、渦と分子の拡散によって維持している。化学過程の詳細はほとんど無関係である。上部熱圏では、すでによく知られているように H_2 が H に変わりその形で散逸する。

コンピュータ計算によって得られる主要な結果が与えられるが、それらは近似の解析解とよく似ている。これによって、研究の過程が証明され、非常に簡単な記述が得られる。量的に正しい解よりもむしろ、そのような記述がこの研究の目的である。

3 鉛直輸送

ここでは、分子拡散と渦拡散を結合した方程式には Colegrove et al. (1966) を採用している。数密度 n_a の大気中での数密度 n_i の微量成分での混合比 $f_i = n_i/n_a$ では、流量 ϕ_i に関するこの方程式の役立つ形は (Hunten, 1973a)

$$\phi_i = \phi_l - (Kn_a + b_i) \frac{df_i}{dz} \quad (1)$$

で、限界流量 (limiting flux) は

$$\phi_l = b_i f_i \left[\frac{m_a g}{kT} \left(1 - \frac{m_i}{m_a} \right) - \frac{\alpha_i}{T} \frac{dT}{dz} \right] \quad (2)$$

$$\approx \frac{b_i f_i}{H_a} \left(1 - \frac{m_i}{m_a} \right) \quad (3)$$

ここで K は渦拡散係数。 $b_i = D_i n_a$ で、 D_i は平均分子拡散係数。 m_i 、 m_a は分子質量。 g は重力加速度。 k はボルツマン定数である。 T は温度。 α_i は熱拡散因子。そして $H_a = -n_a (dn_a/dz)^{-1}$ で、これは実際の大気密度スケールハイトである。

混合比が高さによらない場合は、浮力があるため限界流量は存在する。しかしながら、この研究で使われている K の値に関して、とても小さな勾配 (df_i/dz) は同じかもしくは大きい流量を与えうる。 D_i が K より大きい均一圏界面 (もしくは乱流圏界面) より上では、いくらかの距離では H と H_2 の流量は近似的に ϕ_l と等しい。ここで式 (2) は近似式 (3) よりかなり正確である。 H では $\alpha = -0.25$ 、 H_2 では $\alpha = -0.30$ を使う (Bates and Patterson, 1961; McErloy and Hunten, 1969 参照)。したがって、特別な項は熱圏以下では限界流量を約 11% 増加させる。係数 b はここでは Hunten(1973b) に従って表 1 の値を使っている。

第一次近似として分子の拡散を無視できるような成層圏と中間圏では、個々の水素化合物と水素原子の流れは化学変化によって複雑になる：高度が低いところは H_2O が、高いと

ここでは H_2 や H が化学反応を支配している。たとえどんな化学組成でも、M.B.McElroy が何年も前に指摘した H 原子の総量の流量方程式は役に立つ。もし分子拡散が無視できるなら、式 (1) は水素を含む構成要素 i それぞれに対して次のように書ける。

$$\phi_i = -Kn_a \frac{df_i}{dz} \quad (4)$$

もしこのすべてを足し合わせると、正味の H 原子は増減しないので、解は

$$\phi_t = -Kn_a \frac{df_t}{dz} = constant \quad (5)$$

となる。 ϕ_t は散逸流量 ($\sim 10^8 \text{cm}^{-2}\text{sec}^{-1}$) と等しくなければいけないので、式 (5) が適用される場合は df_t/dz は負でなければならない。対流圏では、簡単に式 (4),(5) では表せない降水が大きな流量になる。したがって、式 (5) は $\sim 15\text{km}$ (主な水素化合物の分子が H_2O と CH_4) より上でのみ正しい。我々の計算の下部境界線の 30km では、 H_2O の混合比は、メタンを含めても 4ppm と仮定した。全水素の混合比 9ppm に対して H_2 は 0.5ppm とする。その理由については 5 節で議論する。微小な拡散係数と比較的大きな質量ゆえに H_2O の浮力の流量はたった $\sim 10^7 \text{cm}^{-2}\text{sec}^{-1}$ である。それゆえ、流量の約 80 % が渦拡散によって高度 70km 以下では運ばれなければならない。

分子拡散が無視できるにもかかわらず、式 (5) は役に立つ。なぜなら完全に化学過程と独立しているからである。一定の総混合比の原理は以前に直感的な基準に基づいて扱われている。[例: Bates and Nicolet, 1950, 式 (70)]

渦拡散方程式 (4) の有用な解は Hanson and Donaldson (1967) で与えられている。ここでは多少一般的な導出をする。化学的もしくは光化学的消失の時定数 τ を用いた連続方程式に基づいていて、生成はない。

$$-\frac{d\phi_i}{dz} = \frac{d}{dz} \left(Kn_a \frac{df_i}{dz} \right) = n_a f_i / \tau \quad (6)$$

もし K が一定で、そのとき f_i と n_i がスケールハイト H_f と H_i に伴って変化するなら、式 (6) は次のように減少させる。

$$H_i H_f = K\tau = \frac{H_i^2 H_a}{H_a - H_i}$$

$$H_i = r H_a [-1 \pm (1 + 2/r)^{\frac{1}{2}}] \quad (7)$$

時定数輸送の破壊率は $r = K\tau/(2H_a^2)$ である。式 (7) の下の符号は、下向きの流量を表していて、これは負のスケールハイトを与える。Strobel(1973b) の式 (2) は式 (7) に関して、大きな r にも小さな r にも漸近的に適当な便利な近似を示している。

計算ではいくつかの K 分布を仮定した (表 2)。Wofsy et al. (1972) の議論をうけて、 K の分布は 30km からある高度 (ほとんどの分布では 85km) までは指数関数的に増加し、それより上では一定であると仮定した。微量 K のわれわれの参照分布の選択はアルゴンのデータに強く影響を受け、このことは Von Zahn(1967, 1970) で批評された。Hartmann et

al.(1968) も見よ。最近の熱圏が酸素原子に富むという証言 (Offermann and Grossmann, 1972; Moe, 1973) は、この選択を支持する。Von Zahn(1970) の 17 回のロケット飛行でのアルゴンの測定から推測される平均均一圏界面高度は 101km である。均一圏界面で用いられる定義 ($D_i = K$) は K が高さによらず一定の場合のみ適切である。 $\phi_i = 0$ での式 (1) の解からわかるように、ここで使われている分布には均一圏界面より下に付け加えられた小さな拡散性の境界がある。その結果、経験的な均一圏界面が、 K に参照分布を用いた場合では約 0.5km、低分布を用いた場合では 2.0km 下に配置される。よって、後者はアルゴンのデータと矛盾する寸前である。この研究の結果も小さな渦係数に賛成しそうである。つまりゆるい水素の上向き輸送は高度 30km とそれ以上 (もし妥当であれば) の観測と折り合いをつける必要があるようだろう。大気中の Na 分布に見られる険しい勾配が、小さな渦係数を簡単に説明できそうである。

渦係数は Donahue et al,(1973) によって、OGO-6 の酸素の緑色大気光のデータから導出された。これらの結果は、励起状態を発生及び抑制させる速度係数の実験データに依存していて、そして太陽流量のような他の量にも依存している。著者が指摘するように、 K の絶対的な値ははっきりしない。Reyder and Hays(1973) のヘリウムのデータからは、 $K = 1.8 \times 10^6 \text{cm}^2 \text{sec}^{-1}$ と推測される。

われわれの得た渦係数に関しては、Keneshea and Zimmerman(1970)、Johnson and Gottlieb(1970) の推薦には従わない。その理由には次のようなものがある。われわれが必要としている係数は、鉛直運動に影響を及ぼさないくらい小さな密度成分の輸送に関する係数である。Johnson and Gottlieb はトレーサーとして熱を使った。熱は運動に対して重要な効果をもつという特性があるからである。その上彼らは見積もられた加熱率と冷却率の小さな差から K を導出して、それぞれの不確かさに左右される。ここでは、一桁ほど食い違っているかもしれない。Keneshea and Zimmerman は水平渦運動の観測を用いて乱流が等方的であると明確な前提をおいた。その根拠は渦のスケールがそのスケールハイトやせん断のスケールより比較的小さいことである。しかしそれ以上に重要な要素は鉛直運動を妨げる下部熱圏と中間圏での高い安定性である (Colegrove et al, 1966)。その水平渦運動は観測された小さなスケールにおける鉛直成分の最上限としか解釈されない。加えてトレイル法で観測されるものとは違う、より大きなスケールの重要な運動があるだろう。

Keneshea と Zimarman も乱流が "乱流圏界面" 付近で突然に止まるはずであると主張している。そして確かに乱流圏界面は不自然な跡のによって通常観測される。渦運動は高高度で鈍らされなければならず、その上その鈍りは運動のスケールによらなければならない、ということにはほとんど疑いが無い。Colegrove et al(1966) ではその問題に簡潔に議論していて、他に調べるためのデータがないなら難しい K の分布にはほとんど使い道がないと指摘している。熱圏よりもはるかに高いところでも K が定数であることは物理的に現実的ではないが、われわれに必要なのは矛盾せず理にかなった鉛直輸送の記述である。H と H_2 は乱流圏界面付近においてほぼ限界速度で流れていて、渦流量は無視できる程度なので、想定される分布はこの目的には十分である。

4 化学

採用した大気モデルは付録に記述する。odd oxygen 種のうち、 H_2 の破壊の原因である $O(^1D)$ には注意が必要である。ここでは日平均（日照時間の半分の値）は優れた近似である。なぜなら H_2 の寿命はととても長いからである。反応式と反応速度係数は表 3 に示した。 H_2O の光分解係数は Kockarts(1971) を採用し、さらに日平均値にするため 2 で割る。我々のモデルでは、 H_2O の光分解による重要な H の生産を含めている。McNesby et al.(1962) と McNesby and Okabe(1964) によると 1236A での現象の 4 分の 1 は $H_2 + O$ の直接の生産で、おそらく Lyman - α でもそうである。分解速度 J_{19b} はこの過程を表してさらに、 $H + OH$ を生産する残りの分解反応は J_{19a} に含まれる。

他の主な H_2 源は R16b で、H と HO_2 の反応である。ここでは反応速度の標準値として Clyne and Thursh(1963) と Barth and Suess(1960) の実験データを基にした Hunten and McElroy(1970) による低速度を採用する。それよりもとても大きな値は McElroy and Donahue(1972) 採用した。いくつかの計算にはこれらの値を用いる。

三番目に重要な反応は R29 で、これは OH と HO_2 の反応によって H_2O を再循環させている。多くの初期の研究は速度係数として Kaufman(1969) の $10^{-11} \text{cm}^{-2} \text{sec}^{-1}$ の下限値を利用している。20 倍も大きな測定値はいくつか結果に大きな影響を与える。

よく知られているように（Parkinson and Hunten, 1972 参照）、水分解システムの高層大気物理学は "odd hydrogen" ($H, OH, HO_2, 2H_2O_2$) の概念を使うことにより非常に単純化できる。odd hydrogen は、数密度が常に無視できるほど小さい H_2O_2 を除いてすぐに平衡に達する。odd hydrogen の H_2O と H_2 への消失と、主に H_2O からの生成はととても鈍く別々のものとみなせる。 H_2O, H_2 と（80km より上での）H に関してのみは輸送は重要である。（他の分子種に対しては局所平衡は妥当である）

図 1 は 70km 以下で妥当な odd hydrogen の化学変化を単純化したものである。時定数はこの高さで与えられるものである。水素の化学変化に対する洞察は、比 R_1, R_2 で表される局所化学平衡の近似式によって得られる。

$$R_1 = \frac{[H]}{[HO_2]} = \frac{k_{28}}{k_{14b}} \frac{[O]}{[O_2][M]} = 2.3 \times 10^{21} \frac{O}{[O_2][M]} \quad (8)$$

$$R_2 = \frac{[OH]}{[HO_2]} = \frac{k_{28}}{k_{26}} \left(1 + \frac{k_{14a}}{k_{14b}} \frac{O_3}{[O_2][M]} \right) = 1.4 \left(1 + 8.7 \times 10^{20} \frac{[O_3]}{[O_2][M]} \right) \quad (9)$$

H_2O_2 は鈍いほうに寄与するにすぎない。図 2 での数密度の関係が示すように、40km より下での 10^{-2} から 80km では 10^4 まで、 R_1 は急激に上昇する。 R_2 はほとんど一定で、45km での 2 から 70km では 4 である。

odd hydrogen の消失は 75km より下では R29 に支配されている。ここでは OH や HO_2 が H_2O に戻されている。より高いところでは、R16b と R16c による H_2O と H_2 の生成が重要になる。odd hydrogen の数密度は H_2O の光分解とこれらの消失反応とのつり合いで

得られる。式 (8),(9) から次のように表せる。

$$\begin{aligned} [\text{HO}_2] &= \left(\frac{J_{19a}[\text{H}_2\text{O}]}{k_{29}R_2 + (k_{16b} + k_{16c})R_1} \right)^{\frac{1}{2}} \\ &= \left(\frac{J_{19a}[\text{H}_2\text{O}]}{k_{29}(R_2 + R_2/65)} \right)^{\frac{1}{2}} \end{aligned} \quad (10)$$

(50km より下では J_{19a} は $J_{19a} + k_{21}[O(^1\text{D})]$ に置き換えるべきである) さらに式 (10) は 70km より下でのみ妥当である。より高いところでは、図 2 に見られるように $[\text{H}]$ は $[\text{H}_2\text{O}]$ に近づくもしくは超え、 H_2O の再循環は崩壊する。より低い地域では R_{29} により H_2O は能率よく再循環され、局所的な化学反応は H_2O の分布には影響しない。しかしながらそれには混合比をゆっくり低下させる上向き流量があるのである。以前には、Brinkmann(1971a) と Anderson(1971a) ではこの能率的な再循環は見つからなかった。彼らを選択した k_{29} は最近の測定値のたった 1/20 であったことがその理由のひとつである。70km より上での OH や H_2O が安定に近いのは H_2O 数密度と分離係数 J_{16} の高度依存性による。 H_2O は光分解と二つの HO_2 分子からの生成との単純な平衡にある (図 1 参照)。

70km より上では odd hydrogen はもはや平衡式 (10) によって制限されない。しかし、生成される水素の総計によってむしろ制限される。式 (8),(9) はまだ妥当で、(H の総計の限界と組み合わせると) 図 2 に見られるような OH と HO_2 数密度の急な低下を与える。したがって、突然に H_2O の再循環の崩壊が生じる。図 2 のモデルでは 73.5km (H_2O の corner height) で生じる。この高さより上では H_2O は光分解による消失に対して単純に混ざる。この分布は式 (7) でうまく記述される。例えば 80km では、 $r = 0.26$ で H_2O のスケールハイトは大気スケールハイトのほとんど正確に半分になる。渦係数が大きな場合、スケールハイトは小さくなる。

総流量方程式 (5) は主な odd hydrogen 種が三つある時には比例しない。そして分子拡散は無視すべきでない。 H_2 はそれ特有の問題を引き起こす。なぜなら寿命が長くまたここでの供給源から上方、下方両方に輸送されてしまうためである。したがって結合された連続方程式を全て数値計算解に頼る必要がある。これらの計算方法は Strobel(1973a) によるもので表 3 の全化学反応が含まれている。いつものように境界条件に特に注意が必要である。下方境界 (30km) では各 odd hydrogen の構成成分は光化学的に平衡になる。 H_2O の数混合比は 4ppm、 H_2 は 5ppm である。かなりの H_2 の上向き流量が得られる。比較すると、いくつかのモデルは下方境界面が中間圏の供給源からの下向き流量を許すように調節されている。混合比は 10^3 ファクターほど小さい。

上方境界面は 250km に置かれる。ここでは H_2 の総量がとてもすくなく、重要な構成成分は H だけである。境界条件を構成する Jeans escape 方程式は次のように書かれる。

$$\phi_i = n_i(U/2\sqrt{\pi})(1 + \lambda_c)e^{-\lambda_i} \quad (11)$$

ここで $U = (2kT/m_i)^{frac{1}{2}}$ と $\lambda = GMm_i/(kTr)$ は普通のポテンシャルエネルギー変数で、 G は重力定数、 M は地球質量、 r は動径距離である。Hunten(1973b) は λ_c が限界高

度の値を参照する限り、臨界高度と同じ温度を持つ便利な点において、 n_i と λ_i は求められるということを強調しておく。

5 結果

参照モデルの密度は図 2 に見られる。R16b の固定した説明抜きでさえ、 H_2 数密度は大きく、75km から 100km では他の数密度を超えている。それゆえ均一圏界面での H_2 の存在は散逸流量を決めるのに重要である。この後の議論のほとんどはこの分子についてである。中間圏と下部境界面の両方から分子が流れる事に関して 50km 付近には深い極小値がある。後者の流れは、もし付け加えたメタンの破壊による供給源がないならば、対流圏で使われる 30km での混合比を疑うには十分に大きい。前に述べた他のモデルでは、 H_2 の低境界条件は 100km では本質的に影響はない。熱圏では H は H_2 数密度の勾配よりも陰しくなる。ただし通常の流量一定としたモデルよりはかなり小さいが。

図 3 は参照モデルと、 H_2 の生成のための H と HO_2 の反応、 k_{16b} が高速のモデル (線と点の線) での H_2 の収支を示している。生成ははっきりと 80km 以下でピークをむかえていて、消失はむしろ高高度まで一様に広がっている。 H_2 はそれゆえ供給域から上方、下方に流れていってしまう。参照モデルでは生成の二つの要素の分布も見られる。偶然にもどちらもほとんど同じ高度にピークをもっている。 k_{16b} の増加は二つの理由から小さな影響しか与えない。反応物質の供給はほとんど同じファクターで減少し、そして H_2O の数密度も光分解による減率と似たように減少するからである。

図 4 では、成分 H_2O , H_2 , H の流れの参照モデルの流量が示されている。最も際立つ特徴は H_2O と H_2 の大きな逆流である。どちらもそれぞれの基本的な流量 (1.5×10^8 原子数 $cm^{-2} sec^{-1}$) もしくは多くの分子の半分よりも大きくなる。これには二つの "循環" がある。ひとつは 45km 以下での H_2 の上昇と H_2O の下降。もうひとつは H の 85km 以上の反対方向の流れである。80km 近辺には H 原子の大きな下降流と 87km より上での上昇流がある。100km 近くでは H_2 と H の流量は、 H_2 の形での H 原子の流量の総計の 3 分の 2 と本質的には等しい。120km 以上では H_2 の H への変化は、付録で示されているようにより高い高度で高温の O が増えていくにつれ、 $O(^1D)$ が支配的である。

他のモデルとそれらの結果は表 4 に概要を載せる。 H_2 の供給源と渦係数の分布両方をそれぞれ変更した。より多い H_2 の供給源によって、100km での H_2 と H の流量の比は明白に増加しているにもかかわらず、化学反応が散逸流量 ϕ に与える体系的影響はわかりにくい。中間圏界面付近では H_2 は H_2O を糧に増加する。

予想通り、渦係数は散逸流量に顕著な影響を及ぼす。式 (5) の総流量の解はとても面白い。われわれのモデルで仮定したような、 K と n_a がどちらも高度とともに指数関数的に

増加する場合、その解はとてもシンプルである。低高度 l から高高度 u までの f_t の変化は

$$\Delta f_t = -\phi_l \left(\frac{1}{H_a} + \frac{1}{H_K} \right)^{-1} \left(\frac{1}{K_u n_{au}} - \frac{1}{K_l n_{al}} \right) \quad (12)$$

モデル (表 2) のほとんどでは H_K は 85km までやそれ以上はどこまでも負である。しかし、絶対値は常に H_a よりも大きい。 f_t の変化のほとんどがその層の頂上付近で起こるのは、二つ目の括弧内の第一項が高度とともに指数関数的に増加するからである。表 3 の流量を用いた参照モデルでは式 (12) は 30 ~ 85km の間で $\Delta f_t = -5.3$ ppm、85km 以上ではさらに大きく減少すると予想される。数値モデルでは 30km で 9ppm から 100km では 6.3ppm まで変化している。この違いは分子拡散によるもので、式 (5) と (12) には含まれていない。図 4 からは、どの高度でもこの流量が重要であり、85km 以上では支配的であることがわかる。分子流量がどの高度でも支配的ではない唯一の理由は、式 (2) の $1 - (m_i/m_a)$ の小さな浮力因子と結合した H_2O の拡散係数の値が小さいことである。この点を一部調査もするために、数値モデルは b_{H_2} に等しい任意の集合の b_{H_2O} とともに動かすと、その結果、20 % も散逸流量が増加した。この増加は、均一圏での H_2O 流量が増加することによる。結果、全高度において H_2O の数密度は増加して、 H_2 と H の生産も増加する。

それゆえ、式 (5),(12) は全てのストーリーを述べてはいないけれども、われわれのモデルに影響を及ぼすような上方混合の割合における障害を示している。そのような障害は支配的な分子が、拡散しにくい H_2O から拡散しやすい H に変化する場合のみ起こり得る。

他の結論は、異なったパラメーターを代入した様々なモデル (表 4 参照) から取り出せる。

渦係数

混合効率が増加または減少するとき、 H_2O の数密度はどの高さでも (70km より上では特に) それを追随する。 H_2 と H の生成も追随するが、これらは付加的因子によって影響を受ける。混合効率を減少させた場合散逸流量が大きく減少する。しかし混合効率を増加させた場合、成層圏への下向きの流れによって H_2 は除去される。したがって、表 4 の最後の 2 行を説明すると、参照モデルより上の混合効率の最初の増加は散逸流量をたった 20 % しか増加させず、また更なる増加は散逸流量に何の影響も与えない。これらの詳細は総水素流量の表現式 (5) に基づく一般的な原理にのみ反映されている。

H_2 生成

数種類の H_2 生成速度を与えた場合について調べた。 H_2 と H の数密度の比は変化したにもかかわらず、結果の解答として散逸流量には何の影響もない。 H_2 の増加は 100km での分子の大きな流量を許容するが、 H の流量を抑制する。また、 H の数密度と速度の両方は減少する。後者は、熱圏に H_2 の解離という供給源が存在するためである。Lyman- 流

量を任意に倍増させた場合、 H_2 の総量は増すにもかかわらず散逸流量は同じ理由で変化しない。

H_2O 入力

数値計算では 30km での H_2O (と H_2) の総量は変わらなかったが、その効果は 3 節の式から簡単に見積もることができる。それぞれの高さでの主構成要素と散逸流量は水素の総量の混合比から直接測れる。70km もしくは 80km 以下では odd hydrogen の三つの要素が同じ割合を維持していて、それらの総量は水素の総量の平方根から測れる。明白な計算は混合比の変化が非常に大きいときのみ必要である；その場合にも詳細部に興味がある場合にかぎる。

メタン

モデルは 30km でのそれぞれの分子を二つの H_2O 分子で置き換えることによって暗に CH_4 を含んでいる。 H_2O の代わりに CH_4 の酸化と光分解によって H_2 が生成されることを除けば、この取り扱いは正確だろう。Wofsy et al. (1972) によれば 5 つの H_2O 分子がすべての H_2 のために作られる。ほとんど全てが Lyman- α によって光分解され H_2 が生成されるが、 CH_4 はその高さでほとんど生き残らない。Wofsy and McElroy (1973) は 30km でのメタンの流量は $1 - 5 \times 10^9 \text{cm}^{-2}\text{sec}^{-1}$ であると示した。そのとき全高度での H_2 の供給量はそれゆえ少なくとも $10^9 \text{cm}^{-2}\text{sec}^{-1}$ であり、図 4 に見られる 30km での H_2 の流量に匹敵する。われわれのモデル (図 3) での H_2 の高高度での生成は $10^8 \text{cm}^{-2}\text{sec}^{-1}$ より少し多く、高高度での Lyman- α による CH_4 の光分解での生成 (Wofsy and McElroy, 1973) に匹敵する。すでに指摘したように散逸流量はこの領域での H_2 の生成にあまり依存しない。それゆえ、このモデルで CH_4 を無視することによる散逸流量の重大な変化は期待されないが、われわれは 50km 域での H_2 の数密度を過小評価しているかもしれない。

6 観測との比較

われわれの計算で用いられる混合比は、20-30km での H_2O や CH_4 , H_2 の測定値に基づいたものである。これらの測定値についてまず議論し、その後高高度での様々な水素の成分の測定値を計算結果と比較する。これらのデータは不確かなものではあるが、ほとんど矛盾しないもので、またこれらは入力する混合比を 2 ファクターほど小さくすることを提案している。この問題はさらに以下のサブセクション毎に考えていく。

a. H_2O , CH_4 , H_2 30 – 60km

気球型水素測定器による大量の蓄積データがあるが、その結果のほとんどはバルーンや計測機器からの水蒸気の影響を受けている。なされるべき予防策は Mastenbrook(1968) と Sissenwine et al.(1968) に書かれている。これら二通りのデータを比較すると、後者のデータはまだ完全には汚染を除去できていないことがわかる。しかし、真の決定は他の方法で検査することなくしては困難である。最近の検査は Goldman et al.(1973) によって与えられている。彼は H_2O の $25\mu\text{m}$ 領域での熱放射を赤外線によって観測している。またこの方法は気球が使われているものの、放出の大部分は遠方から来ているので、局所的な汚染には鈍いのである。[ただし Zander(1966) は光学的な観測にも注意が必要であると言っている。また同様のことが Houghton(1966) でも言われている。]

したがって水素の計測の結果は、Mastenbrook の結果のみを使用する。これらは通常 25km ~ 30km で 2.5ppm (質量) である。Goldman et al. はわずかに少ない約 1.8ppm であることを見つけたが、予想ではピークの高さ (30km-36km) では総量はとても大きい 4-6ppm であった。データに明白な欠点が無いのにそのような突然の急増が起こるのは理由を説明するのが非常に困難である。(ひょっとすると背景の未知の放射が、同じく道具による影響に原因があるのかもしれない。よって全ての結果から下層の部分除去したほうが良いかもしれない。) Mastenbrook の結果は転換要素 1.62 を 4.0ppm に増やしている (体積)。頂点を無視した視覚による値はほぼ 3.0ppm であった (体積)。

いくぶん高いところ、44km-62km では集めたサンプルによる結果は Scholz et al.(1970) で調査されている。汚染による重大な問題をもものともせず、体積混合比を 3-10ppm の幅で見積もり、気球型センサーの小さな値を支持している。

Schmidt and Seiler(1970) と Scholz et al.(1970) によると、 H_2 の混合比はその面の付近では 0.5ppm に近づく。高高度のサンプルでは Scholz et al. が 0.3-0.45ppm であることを見つけたが、また液体水素冷却液による汚染の問題を抱えている。したがってわれわれは下部境界では 0.4ppm を仮定したが、50km での 0.4ppm と同じ値は出せない。われわれの結果は 0.7ppm であった。 H_2 の 30km から 50km へのより早い渦輸送と H_2 と CH_4 の生成は、予想される密度を上昇させる。しかし観測による不確かさがあるということには注意しなければならない。

CH_4 の上向き流量と、その OH による破壊は Wofsy et al.(1972) と Wofsy and McElroy(1973) で扱われている。表面での混合比はほぼ 1.5ppm で、成層圏で急激に減少することが観測によってわかった。しかしながら、Ehhalt(1967) で与えられる二つの例にはこの減少は見られない。高高度でまず最初に出てくる例は幸運なことにもっぱらメタンであるが、Ehhalt et al.(1972) では $0.25 \pm 0.02\text{ppm}$ と再評価されている。このデータを適合させるために、Wofsy and McElroy(1973) では渦係数を強引に上げている。彼らの C モデルでは、30km では $K = 3.5 \times 10^4 \text{cm}^2 \text{sec}^{-1}$ 50km では $K = 2.5 \times 10^5 \text{cm}^2 \text{sec}^{-1}$ となっている。上に書いたように、 H_2 と同じ問題は同じように解決できた。 H_2 の分布は別とし

て、われわれの結果は 50km 以下では渦係数には鈍感である。

この論文でほのめかされている CH₄ の混合比は 30km では 0.5ppm で、それゆえ水素総量への寄与は 2ppm である。このメタンのほとんどが H₂O に変わったのだから、下部境界では 4ppm 含むことになる。H₂ が 0.5ppm なら、水素総量の混合比は 9ppm である。もし以下で議論されるデータに適合するように代わりに 5ppm が使われたなら、H₂O ないの原子はたった 2ppm で分子では 1ppm である。最下部の湿度計測でも機材による水蒸気で汚染されてしまうだろう。

OH 共鳴の dayglow 計測による蛍光と 45km から 70km までの密度は Anderson(1971a,b) によって調査されている。その解は図 2 に見られ、最下部以外は良い結果である。観測による誤差はわずかに外側に見積もられるだろう。これらの解はデータの識別によって得られるものなので、図 5 に実際の観測値との比較を載せた。実用的にするために、誤差線を引いてある。しかしながら、このモデルの H₂O の半分の値でより良く一致するが、結果 OH は 30 %も減少してしまった。

この大気の一部では、支配的な平衡は水の光と O(1D) による分解で、これらは R29 の反応により OH と HO₂ の間で再利用される。したがってこの過程の速度が誤っていないのなら、Anderson のデータは H₂O 混合比に直接影響を与える。

b. 散逸流量

500km での H 原子の密度は Lyman- α dayglow (Meier and Manage, 1973) と地球コロナ H 原子による共鳴吸収 (Vidal-Madjar et al., 1973) の観測によって得られる。二つ目の論文が特にではあるが、どちらの論文も先駆的な議論をしている。外気圏温度が 1100K なら、Donahue(1966) の見積もりに従えば密度は $(4 - 5) \times 10^4 \text{cm}^{-3}$ で、したがって散逸流量は $7 \times 10^7 \text{cm}^{-2} \text{sec}^{-1}$ となる。Meier や Manage が議論しているように、密度の誤差は非対称である；散逸流量の項では、下部境界が $5 \times 10^7 \text{cm}^{-2} \text{sec}^{-1}$ から上部境界は 20×10^7 である。Brinton and Mayr(1971) の質量分光器による解は、低温高圧での散逸流量にほぼ等しい値を与えている。付加的な不確かさは式 (11) の n_i からきている。主な問題は温度に関係している；100K の変化は速度を 2 ファクターほど変化させる。さらに小さな下向きの修正でエネルギー分布の高い原子の散逸が減少してしまう。(Brinkmann, 1971b; Chamberlain and Smith, 1971)；1100K でのファクターは 0.73 である。したがって散逸流量として好ましい値は $5 \times 10^7 \text{cm}^{-2} \text{sec}^{-1}$ で、温度が 100K 程度不確かなら $2 - 30 \times 10^7$ ほど幅がある。

われわれの結果はすべてこの範囲で落ちるが、好ましい値よりは上である；渦係数の参照分布モデルならファクターは 3 程度である。

c. 100km での H_2 and H

熱圏下部での水素原子は太陽 Lyman- α の共鳴吸収で観測できる。Meier and Prinz(1970) は 4 度のロケット飛行からその結果を議論している、さらにこれらのうち一つの詳細は Jones et al. (1970) と Jones(1970) で与えられている。100km での密度は上で議論されている衛星からのデータから推測される総量のたった $\frac{1}{3}$ か $\frac{1}{2}$ である。確かに Kockart and Nicolet(1963) による従来の水素分布の標準は衛星の値の $\frac{1}{3}$ になっていて、これは同じロケット飛行に基づくものである。Tinsley(1969) でのこの状況の再調査によれば、 H_2 分子の存在がこの違いを作っているということを暗に意味していると指摘している、この結論は広く支持されている。Patterson(1966) によるモデルでは有意義な説明がなされているが、 H_2 の密度に由来するものから独立ではない。我々の結果はロケットや衛星によるデータに一致するような H と H_2 の総量を与え、Tinsley の説明を確証するのに十分である。Kockarts-Nicolet 分布 (化学を除いた我々のプログラム) では、図 2 のようになる。

もう一つの H 分布は Evans and Llewellyn(1973) で 60-100km での dayglow データから推測されている。まずオゾンの分布は蛍光の $O_2(1\Delta)$ 放射から得られる。ただしそのほとんどがオゾンの光分解で生成されると仮定する。この密度は R14b の H と O_3 の反応で起こる OH の振動の縞の観測も同時に兼ね備えている。図 6 を見ると我々の結果との一致はまあまあである。70km より下では放射前の励起した OH 同士の衝突による抑制によって一致していない。さらに太陽が水平線より 3° 下になると、オゾン分離する紫外線はおそらく弱くなってしまふ。80km より上の結果は、むしろ乱れているが、予想よりも 3-5 ファクター下がって見えるだろう。この結果は矛盾の原因を考えるというよりも、時期尚早であった。データは高高度で得られるが、ここでは水素はイオン消失による急激な減少が起きている。(ただしこの急激な減少もまた限界流量の制限のうちだが) $O_2(1\Delta)$ の放射は通常とは違う輝きに見え、そしてそれは Evans et al. (1968) で述べられているほかのいくつかの供給源が寄与している。したがって誤ったオゾン密度の増加が起きている。

この研究では、密度を 2 ファクターほど下げて標準化すると地球コロナのデータや Evans や Llewellyn のデータにより良く一致する、ということを再び強調しておく。

d. 太陽活動の影響

Vidal-Madjar et al. (1973) によれば 100km までの参照密度は、太陽活動によるデータの 1.7 ファクターほどの変化に一致する必要がある。下部境界での水素総量の混合比である重要なファクターのみがわかるだけで、我々のモデルではそのような変化は何も説明できない(もしくは無視している)。1.7 ファクターはジーンズ速度の変化を補う外気圏密度の大きな変化の残りの部分である。その上 Vidal-Madjar et al. は我々の勢力圏を覆う地球の限界域での散逸流量のみの計算をしている。すでに述べたように、我々は地球平均の散逸流量は太陽活動によって変化しないと仮定するほうを好む。そうでなければ、30km での水蒸気は太陽活動に影響を受けるが高高度での長期にわたる輸送によってその変化を

抑制することは無い、と強引に結論する。

この論文のモデルは地球日平均での試みであり、成層圏と中間圏には合理的に当てはまる。平均散逸流量は均一圏より上で決定され、現実的である。しかし横からの流れや気温の日変化や極地のイオンの流れ (Vidal-Madjar et al., 1973) を含め、熱圏で起こる現象の詳細はとても複雑である。単に衛星による観測から散逸流量を得ることさえ困難である；ただもしかすると思いがけなくほぼ一致する結果を得ているかもしれない。

7 考察

この研究で水素の高層物理学の簡単な実態が明らかになる。30km では水蒸気、メタンそして H_2 は上方に拡散、混合される。そしてここから 100km まででは H とともに H_2 に変換される；水素原子の総混合比はほぼ同じだけ残るが、わずかには減少する。100km より上では H_2 の上向き限界流量速度は (2) 式で書かれる。130km での分子はまず酸素原子によって原子に変わる。この強力な供給源によって、100km での H 流量は (2) 式で与えられるよりもずっと小さくなる。数値計算は行っていないが、散逸流量は 30km での H の総混合比に比例する。

化学の詳細は散逸流量を決めるのに必要不可欠な機能を果たすわけではない (表 4)。総 H 原子の項では化学変化は拡散係数の違う新しい水素の形 (分子中の元素番号で重さは決まる) を作り出すに過ぎない。したがって分子の渦流量の比は限界流量と均一圏の状況によって変わる。しかしこの詳細だけで、30km での主要素 H_2O から 100km では H_2 、そして 250km では H に変わるような全ての効果を表すことができる。

H_2O の拡散係数が H_2 よりそれほど小さくないなら渦混合はさほど重要な役割を果たさない。しかし実際は小さな渦係数 K の勾配が大きければ、 f_i は混合に影響を受け小さく変化するはずである。たとえそうでも、85km で K を 40 ファクターほど変化させても散逸流量の変化はほんの 70% である。式 (5) からはより大きな効果を予想できる、ただし渦輸送は分子拡散による補助もあるのでその効果は起きない。

このモデルによる予測は臨界高度から 30km までどの高度でも観測に一致し、理にかなっている。もし全ての H 原子の混合比が 2 ファクター減少させるとさらに良く一致する。気球高度での湿度は上で採用された 4ppm よりも、おそらく 1ppm (体積) ほどであろう。 H_2 総量の測定結果がそのように小さな理由は難しい；おそらく他の誤差かもしくは、まだ汚染による影響があるのだ。大きい値はほぼ間違いなく採用できない。

限界拡散は水素の消失にはとても重要なので、その性質を整理する。分子拡散と渦拡散が両方含まれている式 (1) は単純な場合 [例えば Hunten, 1973a; Wallaca and Hunten, 1973; そして式 (12)] には解析的に積分できる。結果は一定の混合比 f_i による二つの独立した解がある。ひとつは微量成分の静的分布 (もしくは "拡散平衡") で表現され、もう

一つは最大（限界）流量解である。最初の項に掛けられている残りの項によるこの項の係数は f_i が全体のほんの一部にしか一致しないことを除けば式 (2) の ϕ_l に似ている。その境界条件を適用すると実際の解は二つのその独立した要素を単純に線形結合する。もしこれらの条件が水素に関連する項をゼロに近づけるなら流量は限界値に達する。ただし水素の項が負であった場合には流量はまだ大きくなる；この状況は通常現実的ではなく、なぜなら流れの構成要素の混合比が高度の上昇とともに急激に減少してしまい、流れが成長を “阻止 (chokes off)” (mange, 1961; Donahue, 1966) してしまうからである。

“制限流量” もしくは “制限拡散” の考え方は流量よりもむしろ限界速度に関係している。微小要素が背景の大気をすり抜けて拡散できる最大速度は式 (2) より、 $D_i(1 - M_i/M_a)/H_a$ に近似される。この速度は拡散係数が背景の大気の数密度に反比例するので高度の関数である。それゆえ微小要素は背景の大気のスケールハイトと考えることができる。もし制限流量の解が正確に当てはまるなら、H 原子の総混合比は一定で高度によらないであろう。実際の流量を特定するには境界条件を適用する必要がある。この研究では 30km では総水素混合比、250km ではジーンズエスケープ速度を使っている。実際には、水素だけを考慮するのは重大な問題があり、それは拡散係数 D_i が流れの成分と大幅に違うからである。得られた結果はまだ正当であるが、(この論文でのような) 流れの特定の成分の処置によってはまだ良くすることができる。しかし残念なことに化学変化のせいで、流量は高さに依存してしまう。したがって追従する総流量に基づく考察はおおよそのものである。

実際の流れを制限している場合で近似するときの次数はジーンズ速度による。もしこの速度が臨界高度で制限速度 D_i/H_a もしくは $6 \times 10^4 \text{cmsec}^{-1}$ に等しいなら流量は全ての高度で限界値をとるのである。外気圏温度が通常の幅では H 原子のジーンズ速度はだいぶ少なく (例えば 1000K では 10^3cmsec^{-1})、高高度では密度分布は静的分布に達する。散逸流量は 100km での制限流量よりも ~25 % 少なく、外気圏温度に鈍い。もしこの温度が 500K 以下に下がれば流量はジーンズ速度から割り出され、制限流量よりもずっとちいさくなる。詳細な考察 (ジーンズ速度と制限流量、どちらによって決まるかといった簡単な基準) は Hunten(1973b) で与えられている。