



天 気

1983年4月
Vol. 30, No. 4

1081:203 (成層圏イオン)

成層圏イオン移動度研究の重要性* ——中層大気観測計画 (MAP) の断面——

川本洋人**・小川俊雄***

1. 序

成層圏大気イオンは、主に宇宙線による電離によって生成される。最近の観測によって求められたイオン組成は、大部分が質量数の大きいクラスターイオンであり、宇宙線と空気分子との衝突による直接電離から最終イオンに至るまでに、単純でない化学過程があることを示唆する。

一方、成層圏、中間圏を更によく理解するため中層大気観測計画 (MAP: Middle Atmosphere Program) が現在進行中であり、そのうちの成層圏に存在する微量成分としてのオゾン、エアロゾル、窒素酸化物 NO_x 、フロン等の物質についての研究がすすみつつある。気候変動あるいは人間活動による大気汚染を研究する際に重要なこれらの物質が、イオンの存在と密接に関連していることが最近わかってきた。また、火山噴火、太陽プロトン現象、流星等の現象が成層圏イオンに及ぼす影響についても、研究が行われている。

このように、成層圏大気の総合的な理解を得るために、イオンの研究が不可欠であるという認識が一般的になりつつある。一方、大気の電氣的構造における太陽活動の影響や、世界中の雷活動に起因するグローバル回路の研究のため、成層圏の電場、電流、電気伝導度の観測

が行われている。そのうちの平均量としての、電気伝導度の振舞に、現在の知識では理解し難い事柄が種々見出されており、これらを明らかにするためには、直接大気イオンの微視的な構造とその分布、変化、振舞等について研究する必要が起こってきた。正負のイオンによる電気伝導度 σ_{\pm} とイオン移動度 K_i の関係は、次のように与えられる。

$$\sigma_{\pm} = \sum_i n_i |e| K_i \quad (1)$$

$$K_i = \frac{e}{m_i v_i} \quad (2)$$

ここで、 n_i , e , m_i , v_i は、それぞれ i 種のイオン数密度、素電荷量、イオン質量、及び衝突周波数を表わす。電気伝導度は電場、電流の値よりオームの法則から求めることもできる。イオン移動度の観測は、巨視的に求められる電気伝導度と、個々のイオンの微視的な性質 (例えばイオン質量や衝突周波数) との関係を確認するための鍵となるものと思われる。また、他の物質・現象とイオンとの関係を研究する際にも、イオン移動度の観測が有効な手段となるであろう。こうして、電氣的構造をも含んだ、より総合的な成層圏大気の研究を得るため、イオン移動度についての研究が重要となる。

2. 成層圏イオン研究の現状

2.1. イオン組成

西ドイツの Arnold, 及びベルギーの Arijis のグループは、気球によって成層圏で正・負イオンの質量分析を行った (Arnold 他, 1981 a, 1981 b; Arijis 他, 1982 a,

* Significance of research on stratospheric ion mobility—A work of the Middle Atmosphere Program—.

** Hiroto Kawamoto, 京都産業大学計算機科学研究所.

*** Toshio Ogawa, 京都大学理学部.

第1表 高度約 35 km で観測された正イオンの質量数, 同定された組成とそれらの存在比 (Arijs 他, 1982 a による).

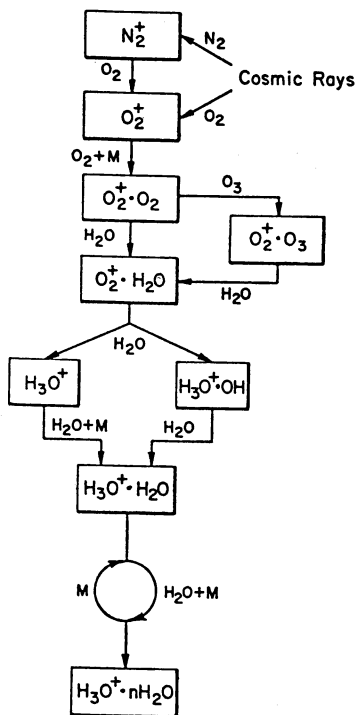
Mass number (amu)	Identification X=41 amu	Measured fractional abundance		
		MPI (Nov. 77)	June 80	Sept. 80
55	H ⁺ (H ₂ O) ₃	0.034 (—)	0.55 (0.023)	0.031 (—)
73	H ⁺ (H ₂ O) ₄	0.268 (0.213)	0.296 (0.322)	0.371 (0.384)
78	H ⁺ X(H ₂ O) ₂	0.072	0.084	0.067
91	H ⁺ (H ₂ O) ₅	0.089 (0.178)	0.028 (0.034)	0.067 (0.085)
96	H ⁺ X(H ₂ O) ₃	0.196	0.444	0.304
101	H ⁺ X ₂ (H ₂ O)	0.107	0.035	0.067
114	H ⁺ X(H ₂ O) ₄	—	0.009	—
119	H ⁺ X ₂ (H ₂ O) ₂	0.161	0.049	0.068
137±1	H ⁺ X ₂ (H ₂ O) ₃	0.044	—	—
142±1	H ⁺ X ₃ (H ₂ O)	0.029	—	0.025

第2表 高度約 32~35 km で観測された負イオンの質量数, 同定された組成とそれらの存在比 (Arijs 他, 1982 b による).

Mass	Identification	Abundances in different flights (%)			
		June 80	Sept. 80	Sept. 81	MPI (1)
125	NO ₃ ⁻ ·HNO ₃	5	2	2	2.6
160	HSO ₄ ⁻ ·HNO ₃	9	16	10	5.3
188	NO ₃ ⁻ (HNO ₃) ₂	8	15	14	65.6
195	HSO ₄ ⁻ ·H ₂ SO ₄	7	14	14	6.6
206	HSO ₄ ⁻ (HNO ₃) ₂ H ₂ O	—	—	3	—
223	HSO ₄ ⁻ (HNO ₃) ₂	4	5	7	14.2
275	HSO ₄ ⁻ ·H ₂ SO ₄ ·HNO ₃ ·H ₂ O	—	—	3	—
293	HSO ₄ ⁻ (H ₂ SO ₄) ₂	19	14	16	2.6
391	HSO ₄ ⁻ (H ₂ SO ₄) ₃	48	34	31	—

1982 b). これらの観測により, 正・負イオンの質量数については, かなりわかってきた. 邦文の解説が小川 (1982 a, 1982 b) により与えられている. ここでは, 観測された主な正・負イオンの質量数, 組成の同定 (identification) 及びそれらの存在比について Arijs のグループが新しくまとめたものを, それぞれ第1表と第2表に示す. これらは正イオンについて3例, 負イオンについて4例の観測をまとめたもので, MPI は, Max Planck Institut のグループの観測によることを表わす. 正イオンの表中の同定 (identification) の列に現われる X は, 質量数が約41の未確定の化合物である. 正イオンについては, H⁺ 核に H₂O 分子が結合したもの (proton hydrates, 略して PH と呼ばれている) 及び, PH 中の

H₂O 分子が X と置換したもの (“non proton hydrates”, 略して NPH と呼ばれている) が主であることがわかる. 負イオンについては, NO₃⁻ 核に HNO₃ 分子が結合したもの, NO₃⁻ 核が HSO₄⁻ 核と置換したもの, HNO₃ 分子が H₂SO₄ 分子と置換したもの, HSO₄⁻ 核に H₂SO₄ 分子が結合したもの等がみられる. MPI グループの観測による質量数の上限は約300であったため, 質量数 391 の負イオンは測定されていない. これらの実験的研究は, Mohnen (1971) の予想したクラスターイオンの存在を実証したと考えられ, 画期的な成果をあげた (最近, MPI グループも質量数を約 600 に拡張した観測を行い, 負イオンとエーロゾル, 微量成分との関連について論じた; Arnold 他, 1982).

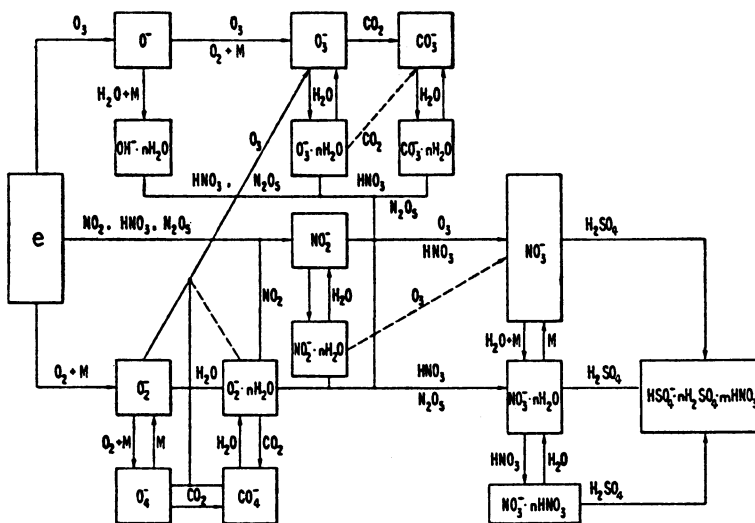


第1図 成層圏における電離から $H_3O^+ \cdot nH_2O$ に至るまでの考えられる正イオンの反応径路 (Dotan 他, 1978 による).

これらのイオン組成の同定 (identification) は、主として室内実験 (Böhringer・Arnold, 1981; Keesee 他, 1979; Smith 他, 1981; Viggiano 他, 1980, 1982) による化学知識の発展に基づいて行われており、正イオン中の化合物 X については CH_3CN とする説が有力である。現在イオンの同定 (identification) は細部にわたっては確立しておらず、後述する Signal Flow Graph 理論等を用いて、化学反応過程全体をシミュレートし、観測及び室内実験のデータをチェックしていくことが有効であると思われる。

2.2. イオン化学反応過程

成層圏における電離から最終イオンに至る化学反応径路については、いくつかの過程が示唆され、大筋については明らかになりつつあるように見える。正・負イオンの反応過程について提唱されているダイアグラムを、それぞれ第1図と第2図に示す。第1図は、Dotan 他 (1978) による、電離から $H_3O^+ \cdot nH_2O$ に至るまでの正イオンの径路であり、この後に、 H_2O 分子がさらに未確定の化合物 X (質量数約 41) と置換していくことが知られている。オゾンが関与する化学反応も考えられていることがわかる。第2図は Viggiano 他 (1980) によるもので、 NO_3^- 核が形成されるまでに、オゾン、二酸化炭素、窒素酸化物、水分子等が複雑に関与している。 NO_3^- 核形成後の径路では、硫酸の存在が重要であ

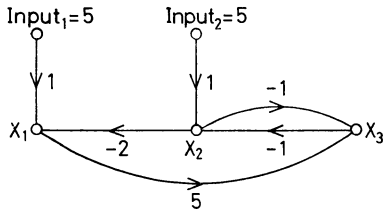


第2図 成層圏における考えられる負イオンの反応径路 (Viggiano 他, 1980による).

ることがわかる。イオン組成の同定 (identification) がまだ完全ではないので、全化学反応過程を作成することは、現在仮定なしではできない。クラスターイオン反応については、その熱力学が重要で、これについては Kebarle (1977) がすぐれたレビューを著しているが、ここでは触れない。また、Arnold (1982) は、硫酸や水分子によりクラスターを形成した負イオンが安定に成長して、エーロゾルの凝結核になり得ると提唱している。

近年、D層での負イオン化学に、Signal Flow Graph (SFG) 理論を適用した定常状態のモデル計算が行われ (Wisemberg・Kockarts, 1980)、D層の正イオン化学にも適用されている (McCrum, 1982)。SFG 理論の基本

的な考え方を、第3図に示す。これは、図中の下部の3元連立方程式を、 X_1, X_2, X_3 の変数を SFG の node (節)、 $-2, -1, 5$ 等の係数を SFG の edge (線) として表わしたものである。このように、SFG における node (節) は、代数方程式の定数項 (入力) 及び変数 (出力) を表わし、edge (線) は、2つの node (節) を結合する線であり、node 間の関係を量的に定義する数値を表わす。edge には、数値の代わりに変数あるいは関数を割り当ててもよく、branch とも呼ばれる。イオン化学に適用する際には、各イオンの生成率と反応を、それぞれ SFG の node (節) と edge (線) と考えることができる。Wisemberg・Kockarts が用いたD層の負イオン化学を図解したものを、第4図に示す。このような複雑なグラフから各節 (イオン生成率) の値を算出するため、次のような方法を用いる。SFG において、出力節 (output node) X_i は、次のように入力 (input) j で表わされる (Henley・Williams, 1973)。



$$\begin{aligned} X_1 &= 5 - 2X_2 \\ X_2 &= 5 - X_3 \\ X_3 &= 5X_1 - X_2 \end{aligned}$$

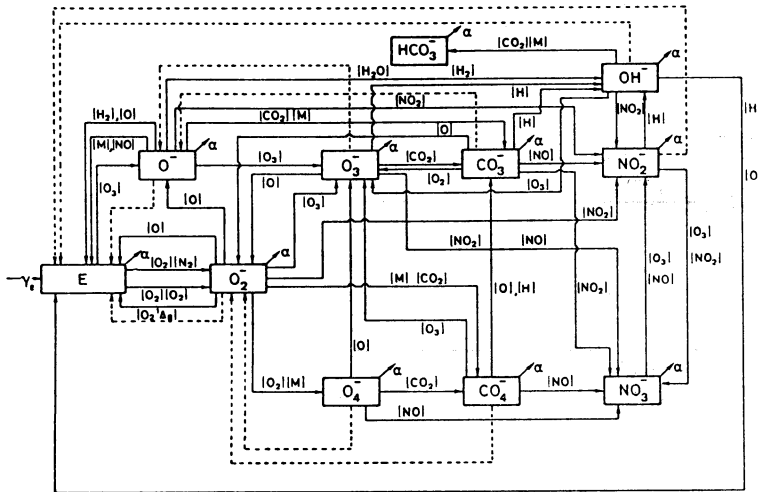
第3図 Signal Flow Graph による3元連立1次方程式の表現 (Henley・Williams, 1973 による)。

$$X_i = \sum_{j=1}^n (T_{j \rightarrow i})(input)_j \quad (3)$$

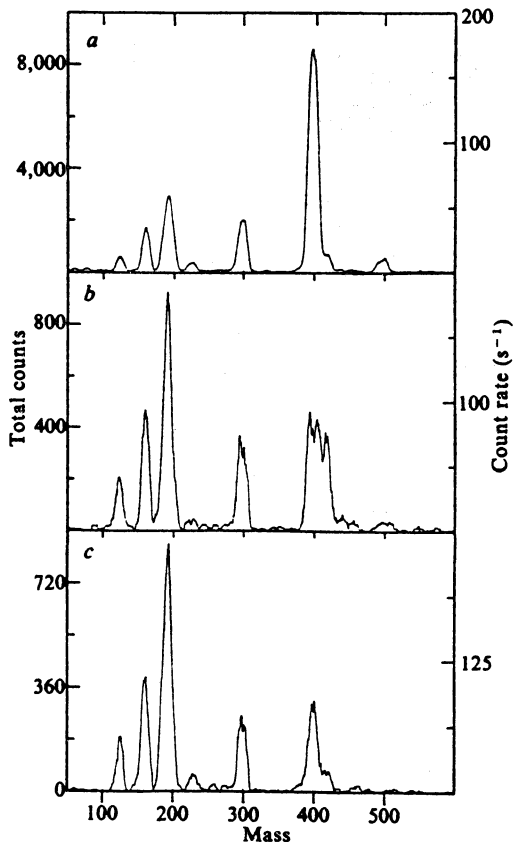
ここで、 $T_{j \rightarrow i}$ はトランスミッタンスであり、その定義は次のようである。

$$T_{j \rightarrow i} = \frac{\text{入力 } j \text{ の出力 } i \text{ への寄与}}{\text{入力 } j} \quad (4)$$

この $T_{j \rightarrow i}$ を求める際には、“Mason の法則”を用いる。この法則の証明は、例えば Henry・Williams (1973) に与えられている。ここでは簡単にトランスミッタンス



第4図 D層における考えられる負イオンの反応経路 (Wisemberg・Kockarts, 1980 による)。点線は光解離反応、 α は正イオンとの再結合を示す。



第5図 高度 34 km (a), 32.9 km (b), 及び 32.4 km (c) で観測された負イオンの質量スペクトル (Arnold 他, 1982 による).

$T_{j \rightarrow i}$ の表現について述べる。ある径路 k 上の線 (edge) の積をパスゲインと呼び P_k で表わし、径路が閉じている場合はループゲインと呼び L で表わす。 P_k と L を用いて、 $T_{j \rightarrow i}$ を求めることができる。

$$T_{j \rightarrow i} = \frac{(\sum_k P_k \Delta_k)}{\Delta} \quad (5)$$

ここで、 \sum_k は j から i に至る全ての径路についての和を表わす。 Δ は、この考えられている SFG 上のループゲインが $L_1, L_2, L_3, \dots, L_l$ であるとすると次のように表わされる。

$$\begin{aligned} \Delta = & 1.0 - (L_1 + L_2 + L_3 + \dots + L_l) \\ & + (L_1 L_2 + L_2 L_3 + \dots) \\ & - (L_1 L_2 L_3 + L_2 L_3 L_4 + \dots) \\ & + \dots \end{aligned} \quad (6)$$

ここで、 L どうしの積は、互いにタッチしない (同じ節を共有しない) もの どうしの積の全てをとる。 Δ_k は、径路 k にタッチしているループを含む項を Δ から除去した値である。

以上に述べた SFG 理論により、電子を含めた m 種の負イオンからなる系の、 i 種のイオン生成率 P_i を求めることができる。

$$P_i = n_i L_i = \sum_{\substack{j=1 \\ j \neq i}}^m r_{ij} n_j + \gamma_i \quad (7)$$

ここで、 n_i は数密度、 L_i は消滅率、 γ_i は i 種が電子の時のみ電離率であり、その他のイオンの時は零である。 r_{ij} は j 種から i 種への反応率である。 (7) 式は次のように書き直すことができる。

$$\begin{aligned} P_i = n_i L_i &= \sum_{\substack{j=1 \\ j \neq i}}^m r_{ij} (L_j n_j / L_j) + \gamma_i \\ &= \sum_{\substack{j=1 \\ j \neq i}}^m (r_{ij} / L_j) P_j + \gamma_i \end{aligned} \quad (8)$$

ここで、入力節を電子の生成率 P_e とすると、(3) 式と同じ形となり、“Mason の法則”により、各イオン生成率 P_i が計算できる。

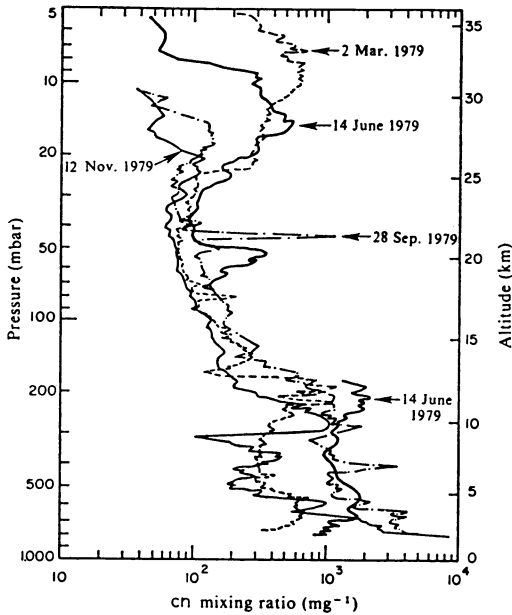
このようにして、第3図のような複雑な化学反応についても簡単に取り扱うことができ、しかも新しいイオン (節) や反応 (線) が加わっても拡張することが容易である。成層圏イオン化学過程にこの方法を適用することができるかどうかを検討することは重要である。

3. 成層圏イオンと他の物質・現象との関連

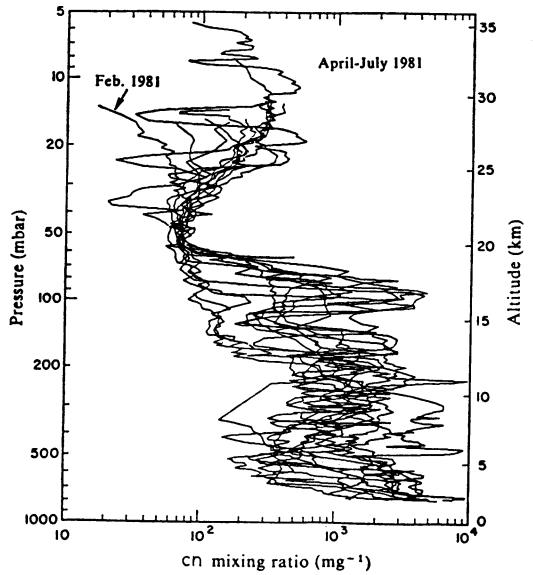
3. 1. 負イオンクラスターと微量成分・エアロゾル

今までの議論でも触れたが、負電荷を帯びたイオン複合体が安定に成長して、成層圏エアロゾルの凝結核になるという説が、現在提唱されている。

Arnold 他 (1982) は、分析される質量数を約 600 まで拡張した観測を行い、エアロゾルや微量成分 (H_2O , HNO_3 , 及び HSO_3) との関連を考察した。第5図に、観測された負イオンの質量スペクトルを示す。上から、それぞれ高度 34 km, 32.9 km, 及び 32.4 km におけるスペクトルである。第2表に示したような質量に対するピークが見られる。更に細かくピークを調べることにより、 H_2O , HNO_3 を含むイオン、及び $HSO_4^-(H_2SO_4)_n$ $HSO_3(n=1, 2, 3)$ の存在も考えられている。 H_2O , HNO_3 は成層圏での存在量も比較的多い成分であるので、この2つの成分を含むイオンの存在は確かである

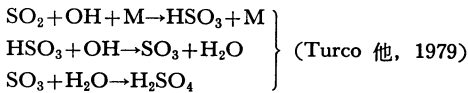


第6図 ララミーにおける凝結核粒子；cn ($r \geq 0.01 \mu\text{m}$) の、1979年に起こったhigh altitude eventの時間変化 (Hofmann・Rosen, 1982による)。



第7図 ララミーにおけるcn ($r \geq 0.01 \mu\text{m}$) 粒子の、1981年に起こった high altitude event. 13~18 kmに見られる増加はアライト火山噴火 (1981年4月28日)の影響 (Hofmann・Rosen, 1982による)。

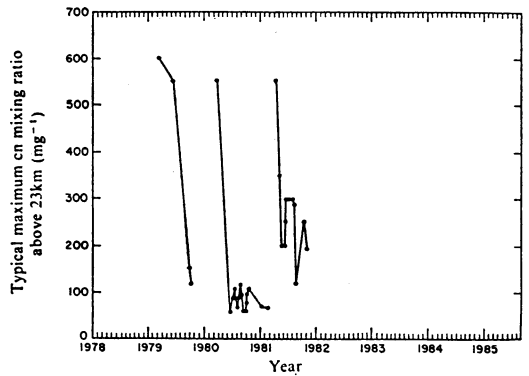
が、 HSO_3 については不確実性が残っている。もし、 HSO_3 を含む負イオンが存在しているのが事実であれば、現在成層圏で検出されていない HSO_3 基の存在を示すものであり、次のような H_2SO_4 の生成機構を支持する。



また、質量数の大きい正負のクラスターイオンが安定なイオン対をなし、成長して凝結核となる (multi-ion complex nucleation) 可能性がある。

3. 2. 負イオンクラスターと凝結核

これらのイオン質量観測の刺激をうけて、Hofmann・Rosen (1982) は、凝結核 (condensation nuclei, 略して cn, 粒子半径 $\geq 0.01 \mu\text{m}$) の観測結果より、約 20 km より上の高度での季節的な変動をみだした。第6図と第7図に、それぞれ1979年と1981年のララミー (北緯41度) での気球による cn の観測結果をまとめたものを示す。1979年3月と6月、及び1981年4月-7月の観測において、高度約 20 km 以上に約1桁の cn 混合比の増加 (high altitude event) が見られる。1981年4月に

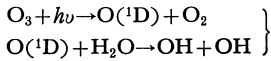


第8図 ララミーにおけるcn ($r \geq 0.01 \mu\text{m}$) 粒子の、春期増大 (Hofmann・Rosen, 1982による)。

は千島列島のアライト火山の噴火があったが、その影響は 13~18 km に限定されているとしている。23 km 以上での cn 混合比の最大値をまとめたものを第8図に示す。不連続なデータであるが、明らかに春に cn 混合比が増加していることがわかる。

このような季節的な変動について、Hofmann・Rosen は次のような解釈をおこなった。極域成層圏では冬期の

硫酸生成は限られているが、主として火山活動による SO₂ や人間活動によって発生する COS (硫化カルボニル) 等の気体は、極域に輸送される。春になって太陽光が極域に達し始めると、SO₂ は O や OH に酸化されて H₂SO₄ となる。O の生成は O₂ と O₃ の光解離により、OH の生成は次のような O₃ の光解離による。

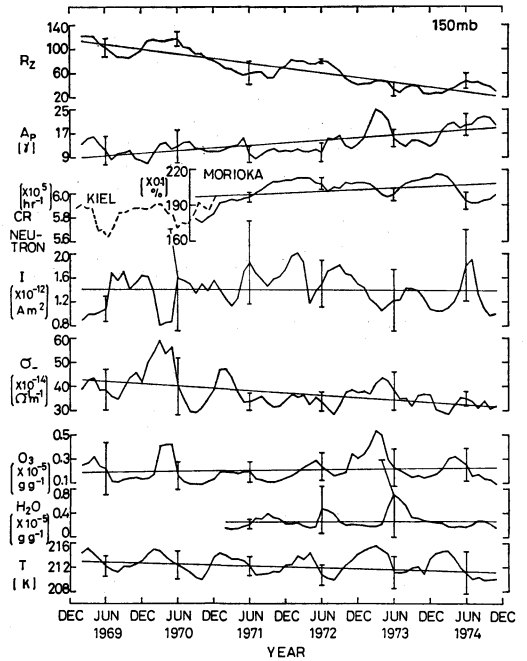


COS も光解離により S を遊離して、硫酸への転化を始める。こうして H₂SO₄ が増加し、イオン複合体を急速に cn に成長させ、その結果中緯度に輸送されてきて観測される。このような過程が起こっているとすれば、大気イオンは、宇宙線のモジュレーション、太陽フレア時の高速粒子、及び地磁気活動を伴うオーロラ活動や高エネルギー粒子降下を通して、太陽活動の影響を受けるだろう。この推測の妥当性を研究するためには、30 km 高度におけるイオン複合体、cn、及びエアロゾル粒子の同時観測を、1 太陽周期にわたって行うことが望ましい。

3. 成層圏電気伝導度

小川・森田(1977)は、気象庁の特殊ゾンデによる 1969—1974年のデータを解析し、多くの興味ある結果を見出した。第9図に 150 mb (高度約 14 km) についての解析結果を示す。図の上から太陽相対黒点数 (R_z)、地磁気活動指数 (A_p)、宇宙線ニュートロン強度 (CR)、空地電流密度 (I)、負電気伝導度 (σ₋)、オゾン混合比 (O₃)、水蒸気混合比 (H₂O)、及び温度 (T) が並べられている。ゾンデのデータは時間に対して不規則に並んでいるため、前後3カ月の平均をとった。これらのデータに対して、永年変化を直線で近似し、それを差し引いた変動分について相互相関係数 (r) をとった。その結果、σ₋ (負電気伝導度) については、R_z との間に弱い正の相関 (r=0.21)、CR との間に弱い負の相関 (r=-0.31)、I との間に負の相関 (r=-0.44)、O₃ 量との間に正の相関 (r=0.57)、H₂O 量との間に弱い負の相関 (r=-0.22)、及び T との間に正の相関 (r=0.51) を見出した。また、高度別にも更に詳しく解析しているが、ここでは触れない。

σ₋ と R_z, CR の相関を考えることにより、太陽活動の電気伝導度への影響が考察される。CR は、R_z と弱い負の相関 (r=-0.28)、A_p と強い負の相関 (r=-0.60) をもち、これらはいわゆる Forbush decrease を反映している。しかしながら、σ₋ と R_z との正の相関及び CR との負の相関は、大気のエネージ作用が主として

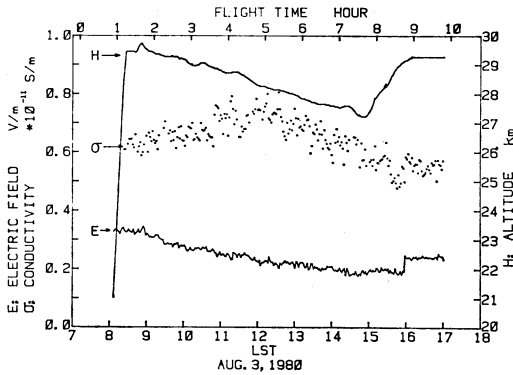


第9図 150 mb (高度約 14 km) における空地電流密度 (I)、負電気伝導度 (σ₋)、オゾン密度 (O₃)、水蒸気量 (H₂O)、気温 (T) の変動と、太陽相対黒点数 (R_z)、地磁気活動指数 (A_p)、宇宙線ニュートロン強度 (CR) の変動との比較 (小川・森田, 1977 による)。

CR によるにもかかわらず、初期イオンが最終イオンになるまでに単純でない化学反応過程を経ていくことや、(1) 式からわかるように σ₋ の値をきめる要素の一つにイオン移動度があることを、考慮しなければならないことを示している。

σ₋ と O₃ との強い正の相関 (r=0.57) は、O₃ がイオン化学反応を促進する重要な役割を担っていることを示唆する。第9図の O₃ の季節変化は、大気の力学的効果によって説明される (島崎, 1979; 小川, 1979)。電気伝導度にも同様の、あるいは別の原因で結果だけが等しい季節変化があることは、今のところ考えられないので、この結果は大気イオンの存在にオゾン密度が深く影響していることを示している。このことは、第2図の負イオン反応経路からもわかるが、その定量的な関係の究明が必要である。

σ₋ と H₂O の弱い負の相関については、イオンの



第10図 オーストラリアにおける観測結果 (1980年8月4日) について高度 30 km に normalize した電場 (E) と電気伝導度 (σ) の時間変化. 気球高度 (H) も示してある (小川他, 1981による).

hydration の次数を増加させることによって移動度を減少させ、結果的に電気伝導度を減少させるのではないかと考えられる。

σ と T との強い正の相関は、ここには示さなかったが、他の高度では負となっているため、説明が難しい。一般に T の増大は電離を減少させるが、逆に移動度と再結合係数を増大させ、また種々のイオン化学反応を促進することによって電気伝導度を増大させると考えられる。しかし、これらの T の効果は絶対温度の比で効くので、あまり大きなものではない。

σ と I は負の相関にあり、このことは大気電気グローバル回路において、雷電流源の高度において、例えば電気伝導度が増大すれば、電源である世界雷活動度が減衰し、従って空地電流密度が減少する、また逆の場合は増加すると解釈することができる。雷を定電流源とした場合のグローバルサーキットモデルについては、最近詳細な定量的検討が行われている (牧野・小川, 1981; Makino・Ogawa, 1983 a, 1983 b)。

以上に述べた負電気伝導度と他の量との関係のいくつかは、現在も未解決のままである。これらの関係をさらに研究するためには、後に詳しく述べるイオン移動度の観測を行うことが、問題の解決に大きく貢献するものと思われる。

3. 4. その他

これらの他の、興味深く思われる成層圏イオンに関する議論のうち幾つかを、ここに紹介する。

Mitra (1981) は、火山噴火によるエアロゾルの増加

が、成層圏イオンに “hole”, 即ちある高度でイオンが減少して密度の穴をつくるであろうと述べている。また、エアロゾルとイオンや電気伝導度との関係の研究は、わが国でも活発になされている (例えば, Hirono 他, 1976; Morita・Ishikawa, 1976)。

Herman・Goldberg (1978) は、太陽プロトン現象 (Solar Proton Event) の際に、高度約 20~30 km 以上で、電離強度が増大し正電気伝導度の増加をもたらすことを、理論・観測の両側面から述べている。

Fehsenfeld 他 (1976) は、室内実験のデータより、大気中の塩素化合物の除去という観点からは、イオン分子反応は重要でない結論している。しかし、その後成層圏イオンの実態が急速に理解されてきたので、現在見直す必要がある。

4. イオン移動度

4. 1. イオン移動度観測の意義

上述してきたように、現在、成層圏イオンの質量については、かなり研究がすすんできた。さらに、電気伝導度、衝突周波数 (イオン-中性粒子), 及びそれらの時間変化等について研究をすすめていくためには、正・負イオンの移動度観測が不可欠である。これらの物理量相互の関係は、序の (1), (2) 式に与えられている。(2) 式よりわかるように、イオン移動度とイオン質量が正確に同時に測定できれば、例えば衝突周波数について詳しい議論を行うことができる。

イオン-中性粒子間の衝突周波数は、それらの温度、平均分子質量、数密度の関数であり、ELF, VLF 帯のグローバルな電波伝搬の計算に際しては、イオン平均分子質量と共に重要な量である。Galejs (1972) は、ELF, VLF 帯の電波伝搬についての計算を行い、特に ELF 帯においては、イオン平均分子質量と衝突周波数の選択が重要であると述べている。

小川他 (1981) は、オーストラリアにおける気球観測により成層圏垂直電流・電場を測定し、その比から電気伝導度を求めた。得られた電場と電気伝導度の日中の変化を第 10 図に示す。時間変化をみるため、垂直電流は高度によって変化しないが、垂直電場と電気伝導度は高度に対して指数関数的にそれぞれ減少、増加しているとして、高度 30 km での値に換算してプロットした。電場と電気伝導度の換算に際しては、電場の垂直分布から得たスケールハイト 8.0 km を用いた。その際用いた気球の高度変化 (H) も同図に示されている。観測期間中、

電場が減少しているのは、世界中の雷活動に起因する大気電場の世界時 (Universal Time) 変化である。一方、電気伝導度は地方時正午頃に最も大きく、太陽高度とともに減少している。高度 30 km での値に変換する際に、一定のスケールハイト (8 km) を仮定して求めたものであるため、これが真の成層圏の日変化を表わすかどうかは、なお検討の余地が残されている。しかし、もしこれが真に太陽高度に依存する変化であるとする、電気伝導度は正午付近で推定夜間値より約30%大きいことになる。以下にこの原因について考える。

電離平衡状態でのイオン数密度 n_i は、電離率 Q 、再結合係数 α_i を用いて次のように表わされる。

$$n_i = \left(\frac{Q}{\alpha_i} \right)^{1/2} \quad (9)$$

これと、(1) 式を考慮すると、

$$Q \propto \sigma_{\pm}^2 \quad (10)$$

となる。これより、電気伝導度の約30%の増加が電離率の増大によるとすると、約70%の電離率の増大を必要とすることがわかる。成層圏で、このような電離率の大きな変化が、太陽天頂角に依存して起こっていると考えるのはむずかしい。

再結合係数 α_i は気圧と気温の関数であるが、昼間と夜間で成層圏の温度の変化はせいぜい数度程度であるので、これによる可能性も少ない。

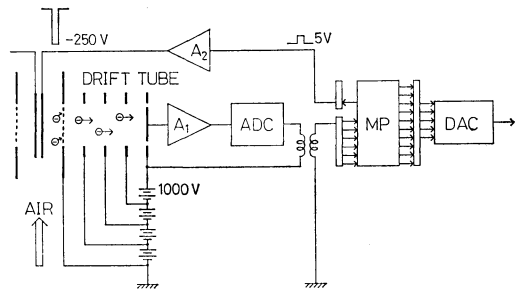
残されたこの日変化の原因は、イオン移動度 K_i の変化である。第1表、第2表に示したように、成層圏イオンの質量には多くの種類がある。したがって、太陽放射の影響によって大気イオンがより軽くて mobile なイオンで構成されるようになれば、電気伝導度が増加することになる。ここにイオン移動度観測の重要性がある。また、前章で述べた種々の成層圏イオンへの影響も、移動度の観測によって解釈されることが期待される。

4. 2. ドリフトチューブ型イオン移動度計

最近、成層圏大気の大気電的特性についてのワイオミング大学におけるワークショップの結果が、Rosen 他 (1982) によりまとめられた。イオン移動度については、Gerdien コンデンサーによる正イオン電気伝導度 σ_+ と正イオン数密度 n_+ の測定結果から、次式を用いて平均量としての移動度 K_{ave} を求めている。

$$K_{ave} = \frac{\sigma_+}{n_+ e} \quad (11)$$

しかしながら、現実の大気イオン移動度はスペクトルをもつので、より精密な移動度スペクトルを得ることが必



第11図 ドリフトチューブ型イオンスペクトル計の模型図 (小川他, 1980による)。

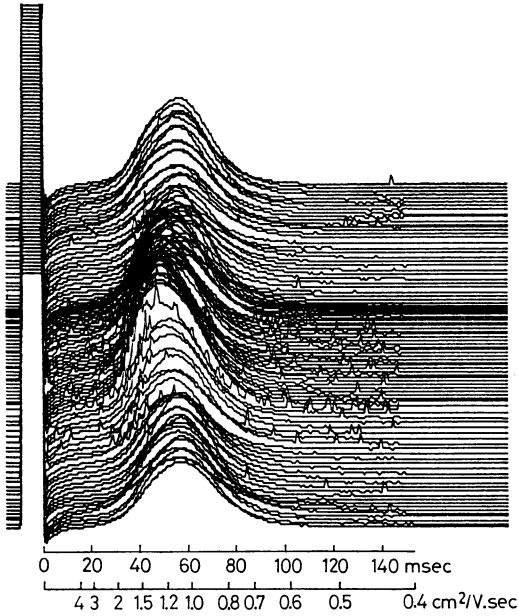
要である。

そこで、従来の Gerdien 法とは原理的に異なった、ドリフトチューブ方式による移動度スペクトル測定の研究が進められている (小寺・小川, 1978; 小川, 1980; 小川他, 1980)。この方法の原理は、円筒の軸方向に電場 E をかけて、円筒内に導入されたイオンの、電場によるドリフト速度 u_i を測定することによって、次式により移動度スペクトルを求めるといものである。

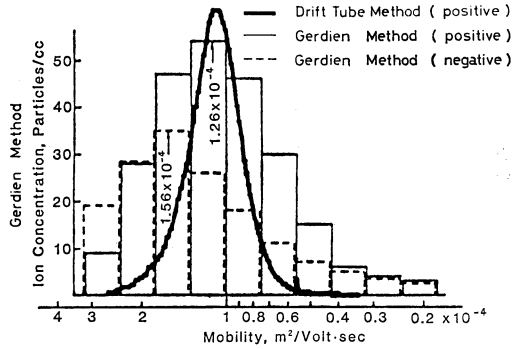
$$u_i = K_i E \quad (12)$$

一般に、イオンを電場中でドリフトさせる時には、イオン独特の現象を考慮しなければならない。例えば He 中での、 He^+ イオンと He_2^+ イオンのそれぞれの移動度を比較すると、質量の大きな He_2^+ イオンの移動度の方が大きくなるのが実験によりわかっている (Engel, 1965; 八田, 1968)。このような場合には、中性粒子と荷電交換を起こす衝突の確率を考えなければならない。このようなイオン移動度に関する現象の詳しいレビューは、Loeb (1961) によって与えられている。ドリフトチューブ方式による測定は、イオン独特の現象をも含めて、移動度をその定義である (12) 式に従って求めようとするものである。

試作したドリフトチューブ型イオン計のブロックダイアグラムを、第11図に示す。ドリフトチューブは直径 5 cm、長さ 8 cm の円筒で、この両端に 1000 V の電圧をかける。円筒の入口にはグリッドを設けて、これを一定時間間隔で開閉し、それに同期して円筒外部にかかるパルス状の電界によって、円筒内部にイオンを導入する。このイオンは、円筒内の電界中でドリフトして、円筒他端の集電極に到達し、高入力抵抗の電流増幅器で計測される。この出力を AD 変換した後、いったんマイクロコンピュータのメモリに記憶させる。この操作を必要回数だけ繰り返して積分した後、再びアナログ出力とし



第12図 各3.3分毎に2.5分間観測した6時間の正の小イオン移動度スペクトルの時間変化。時間は上から下に経過しており、観測室内の空気の汚染度の変化に対応してスペクトルのピークの移動が見られる(小川他, 1980による)。



第13図 Gerdien 法で測定した小イオンスペクトル(三崎, 1976)とドリフトチューブ法で得られた正小イオンスペクトルの比較(小川他, 1980による)。

て記録計に出力させる。小イオン測定の一回の計測時間は 150 msec で、積分回数は 300 回以上で行う。この試作機では、自然に存在する大気イオンを測るには感度(S/N 比)が足りないで、グリッドより約 60 cm 離れた空気導入口に、 α 放射線源をおいて実験を行った。

この装置を用いて測定した、正の小イオンのスペクトルの例を第12図に示す。この例では各3.3分毎に2.5分間計測し、全体で約6時間観測した。時間は上から下に経過している。この観測では、はじめ室内の空気について観測し、途中観測室の窓を開けて空気の入れ換えを行い、再び窓を閉めた。その後ガストーブを点火して室内の空気を汚染し、最後にストーブを消火してもとの状態にもどした。このような空気の汚染度の変化に伴って、スペクトルのピークが移動することがわかる。また、ガストーブ点火中の記録に、時々スパイク状の変動が現われた。

以上のようにして得た大気イオンの移動度スペクトルを、従来の Gerdien 法で得られたものと比べるため、片対数表示にして三崎(1976)の得たスペクトルと比較

したものを第13図に示す。図中の濃い曲線のスペクトルが、ドリフトチューブ方式による正イオンのスペクトルである。Gerdien 法と比較して、はるかに鋭いスペクトルが得られたことがわかる。しかしイオン組成などについて議論するためには、更に高精度の移動度スペクトルが必要である。そのためには、スペクトル計への空気の流入量を増加することにより、成層圏大気においても、充分短い観測時間でスペクトルを得られるようにしなければならない。

5. おわりに

以上述べてきた事柄に関連して、太陽活動が地球大気に及ぼす影響の研究が行われている。Reiter (1974)は、太陽フレア後数日間にわたって世界的に雷活動が増大することを指摘している。この結果を検証するためには、大気電場や電気伝導度が、雲粒の電荷発生を通じて雲の成長過程に及ぼす影響を研究する必要がある(小川, 1981)。また、地磁気活動時の電場変化や、世界雷活動に起因する ELF 帯電波の成層圏気球観測などが行われている(Ogawa・Kawamoto, 1982; Ogawa 他, 1979)。

3章で触れた重要な物質である成層圏オゾン、エアロゾル、水蒸気等と成層圏イオンとの関係を究明していくことは、気候変動や大気汚染の研究に貢献すると考えられる。このように、巨視的並びに微視的な電気的特性の研究は、総合的な成層圏大気を理解を得るために重要であり、太陽地球間物理にも貢献すると考えられる。

以上、成層圏イオンについて、最近の観測例及び他の物質・現象との関連を概観し、問題点について述べた。

これらの問題点の多くに、イオン移動度観測の必要性が認められ、ドリフトチューブ法による高精度スペクトル計の開発が急がれるゆえんである。

文 献

- Arijs, E., D. Nevejans, and J. Ingels, 1982 a: Stratospheric positive ion composition measurements, ion abundances and related trace gas detection, *J. Atmos. Terr. Phys.*, **44**, 43-53.
- , P. Frederic, and J. Ingels, 1982 b: Stratospheric negative ion composition measurements, ion abundances and related trace gas detection, *J. Atmos. Terr. Phys.*, **44**, 681-694.
- Arnold, F., 1982: Ion nucleation—a potential source for stratospheric aerosols, *Nature*, **299**, 134-137.
- , R. Fabian, E.E. Ferguson, and W. Loos, 1981 b: Mass spectrometric measurements of fractional ion abundances in the stratosphere-negative ions, *Planet. Space Sci.*, **29**, 195-203.
- , G. Henschen, and E.E. Ferguson, 1981 a: Mass spectrometric measurements of fractional ion abundances in the stratosphere-positive ions, *Planet. Space Sci.*, **29**, 185-193.
- , A.A. Viggiano, and H. Schlager, 1982: Implication for trace gases and aerosols of large negative ion clusters in the stratosphere, *Nature*, **297**, 371-376.
- Böhringer, H. and F. Arnold, 1981: Acetonitrile in the stratosphere—implications from laboratory studies, *Nature*, **290**, 321-322.
- Dotan, I., J.A. Davidson, F.C. Fehsenfeld, and D.L. Albritton, 1978: Reactions of $O_2^+ \cdot O_2$ with CO_2 , O_3 , and CH_4 and $O_2^+ \cdot O_3$ with H_2O and CH_4 and their role in stratospheric ion chemistry, *J. Geophys. Res.*, **83**, 4036-4038.
- Engel, A. von, 1965: Ionized gases, Oxford University Press, 113-115.
- Fehsenfeld, F.C., P.J. Crutzen, A.L. Schmeltekopf, C.J. Howard, D.L. Albritton, and E.E. Ferguson, 1976: Ion chemistry of chlorine compounds in the troposphere and stratosphere, *J. Geophys. Res.*, **81**, 4454-4460.
- Galejs, J., 1972: Terrestrial propagation of long electromagnetic waves, Pergamon Press, 260-262, 326-331.
- Henley, E.J. and R.A. Williams, 1973: Graph theory in modern engineering, Academic Press, 15-17, 257-263.
- Herman, J.R. and R.A. Goldberg, 1978: Initiation of non-tropical thunderstorms by solar activity, *J. Atmos. Terr. Phys.*, **40**, 121-134.
- Hirono, M., M. Fujiwara, and T. Itabe, 1976: Behavior of the stratospheric aerosols inferred from laser radar and small ion radiosonde observations, *J. Geophys. Res.*, **81**, 1593-1600.
- Hofmann, D.J. and J.M. Rosen, 1982: Stratospheric condensation nuclei variations may relate to solar activity, *Nature*, **297**, 120-124.
- Kebarle, P., 1977: Ion thermochemistry and solvation from gas phase ion equilibria, *Ann. Rev. Phys. Chem.*, **28**, 445-476.
- Keesee, R.G., N. Lee, and A.W. Castleman, Jr., 1979: Atmospheric negative ion hydration derived from laboratory results and comparison to rocket-borne measurements in the lower ionosphere, *J. Geophys. Res.*, **84**, 3719-3722.
- 小寺邦彦・小川俊雄, 1978: ドリフトチューブ型イオンスペクトロメータの試作, *大気電気研究*, **20**, 71.
- Loeb, L.B., 1961: Basic processes of gaseous electronics (second edition), University of California Press, 1-183.
- Makino, M. and T. Ogawa, 1983 a: Modification of atmospheric electric fields and air-earth currents after solar flares, *J. Atmos. Terr. Phys.* (to be published).
- and ———, 1983 b: Interpretation of the solar flare modification of atmospheric electric field and air-earth current, *Weather and Climate Responses to Solar Variation* (ed. by B.M. McCormac), Colorado Associated University Press (in press).
- 牧野雅彦・小川俊雄, 1981: 中層大気の電氣的構造, 第1回 MAP シンポジウム, 昭和55年度, 165-170.
- McCrum, J.L., 1982: Reaction paths leading from O_2^+ to water clusters under cold mesospheric conditions, *Planet. Space Sci.*, **30**, 559-573.
- 三崎方郎, 1976: 大気電気の測定, *気象研究ノート*, **130**, 105-118.
- Mitra, A.P., 1981: Chemistry of middle atmospheric ionization—a review, *J. Atmos. Terr. Phys.*, **43**, 737-752.
- Mohnen, V.A., 1971: Discussion of the formation of major positive and negative ions up to the 50 km level, *PAGEOPH*, **84**, 141-151.
- Morita, Y. and H. Ishikawa, 1976: Simultaneous measurements of electric conductivity and aerosol in the lower stratosphere, *J. Geomag. Geoelectr.*, **28**, 309-315.
- 小川利紘, 1979: 成層圏オゾン, *大気汚染物質の動態* (磯野謙治編), 東京大学出版会, 211-244.
- , 1982 a: 高層大気中のクラスター・イオン (I), *化学の領域*, **36**, 11-12.
- , 1982 b: 高層大気中のクラスター・イオン (II), *化学の領域*, **36**, 224-225.

- 小川俊雄, 1980: 大気イオンスペクトル, 電離圏・大気圏シンポジウム (MAP), 昭和54年度, 120-123.
- , 1981: 地球をとりまく大気電場, 静電気学会誌, 5, 383-394.
- ・伊藤 仁・牧野雅彦・林田佐智子・川本洋人・安原通博・藤田 晃, 1980: 大気イオンスペクトル観測計画, 大気圏シンポジウム, 昭和54年度, 105-109.
- Ogawa, T. and H. Kawamoto, 1982: Mid-latitude horizontal electric fields in the stratosphere during magnetically disturbed periods, Planet. Space Sci., 30, 1013-1024.
- , K. Kozai, H. Kawamoto, M. Yasuhara and A. Huzita, 1979: Schumann resonances observed with a balloon in the stratosphere, J. Atmos. Terr. Phys., 41, 135-142.
- 小川俊雄・牧野雅彦・安原通博・R.J. Stening, 1981: 成層圏電気伝導度の日変化, 第1回 MAP シンポジウム, 昭和55年度, 171-176.
- ・森田 護, 1977: 20-350 mb 高度における電気伝導度・オゾン・水蒸気及び空地電流, 大気電気研究, 18, 107-114.
- Reiter, R., 1974: Study to verify patterns of atmospheric potential gradient and air-earth current after solar flares based upon the geographic distribution of storm centers, Riv. Ital. Geofis., 23, 193-197.
- Rosen, J.M., D.J. Hofmann, W. Gringel, J. Berlinski, S. Michnowski, Y. Morita, T. Ogawa, and D. Olson, 1982: Results of an international workshop on atmospheric electrical measurements, J. Geophys. Res., 87, 1219-1227.
- 島崎達夫, 1979: 成層圏オゾン, 東京大学出版会, 119-133.
- Smith, D., N.G. Adams, and E. Alge, 1981: Ion-ion mutual neutralization and ion-neutral switching reactions of some stratospheric ions, Planet. Space Sci., 29, 449-454.
- Turco, R.P., P. Hamill, O.B. Toon, R.C. Whitten, and C.S. Kiang, 1979: A one dimensional model describing aerosol formation and evolution in the stratosphere: I. Physical processes and mathematical analogs, J. Atmos. Sci., 36, 699-717.
- Viggiano, A.A., R.A. Perry, D.L. Albritton, E.E. Ferguson, and F.C. Fehsenfeld, 1980: The role of H_2SO_4 in stratospheric negative-ion chemistry, J. Geophys. Res., 85, 4551-4555.
- , ——, ——, ——, and ——, 1982: Stratospheric negative-ion reaction paths with H_2SO_4 , J. Geophys. Res., 87, 7340-7342.
- Wisenberg, J. and G. Kockarts, 1980: Negative ion chemistry in the terrestrial D region and signal flow graph theory, J. Geophys. Res., 85, 4642-4652.
- 八田吉典, 1968: 気体放電, 近代科学社, 86-88.

日本気象学会および関連学会行事予定

行事名	開催年月日	主催団体等	場所
日本気象学会昭和58年春季大会	昭和58年5月18日～20日	日本気象学会	筑波研究交流センター
第27回山の気象シンポジウム	昭和58年6月18日		気象庁第1会議室
第20回理工学における同位元素研究発表会	昭和58年7月4日～6日		国立教育会館
エアロゾル科学・技術研究討論会	昭和58年8月25日～26日	エアロゾル研究者連絡会ほか	筑波研究センター
第2回統計気候学国際会議	1983年9月26日～30日	WMO ほか	ポルトガル・リスボン
第21回粉体に関する討論会	昭和58年10月17日～19日		神田学士会館
第9回レーザーレーダ(ライダー)シンポジウム	昭和58年11月10日～11日		もみじ荘(栃木県塩原温泉)