

砕波に伴う流体への溶解炭酸ガス濃度計測

Measurement of dissolved CO₂ in water under breaking waves

大塚淳一¹・日端 弾²・渡部靖憲³

Junichi OTSUKA, Hazumi HIBATA, Yasunori WATANABE

In this study, distributions of dissolved CO₂ under breaking waves are experimentally measured using two-color Laser Induced Fluorescence (LIF). CO₂ mainly dissolves on gas / water interfaces of the plunging waves and around bubbles entrained by successive plunging jets. vortices induced by the jets quickly diffuse downward the dissolved CO₂ together with the bubbles. Undertow transport the dissolved CO₂ offshoreward below the trough level for enhancing the CO₂ concentration in a whole surf zone.

1. はじめに

近海域は、河川からの豊富な栄養分の供給によって植物プランクトンの光合成が活発であり、その活動は季節や気候、さらに海象の変化によっても大きく変動し、海面を通した炭酸ガス交換は非平衡状態となる。炭酸ガスの非平衡状態における植物プランクトンの活動や、気象、海象の変動に対する炭酸ガスの海面からの輸送を精度良く予測することは沿岸環境さらには海流等による輸送を経由した広い海域の環境を評価する上で重要といえるが、それらに関する研究例は極めて少ない。外洋での炭酸ガス交換に関しては、これまで多くの研究が行われ、平衡状態を仮定し海上風をパラメータとしてモデル化されており（例えば Liss・Merlivat, 1986）、海面を通した直接的なガス交換を行う砕波の影響は考慮されていない。近海域で顕著に発達する砕波は大量の混入気泡と渦を生成し、それらは比較的水深が浅い近海域において炭酸ガスの供給や乱流拡散に大きく寄与するため、これらの要素を考慮したモデル構築が必要といえる。

本研究は、これまで未解明な点が多い近海域における砕波の混相流学的発達機構を含めた非平衡海域のガス供給モデルを開発するため、砕波の発達過程における炭酸ガスの溶解・拡散過程を 2 色の蛍光試薬を用いる Laser Induced Fluorescence (LIF) により計測し、混入気泡および渦による乱れのスケールが水中への炭酸ガス供給・拡散へ与える影響について特徴化、定量化することを目的としている。

2. 実験方法

(1) 2 色 LIF システムの構築

蛍光試薬を流体へ混入し LIF によって流体中の濃度場を面的に計測をする手法は、水中に溶解した炭酸ガス

濃度の計測に広く適用されている。炭酸ガスが水中に溶解すると HCO₃⁻ イオンと H⁺ イオンに電離し pH が低下する。蛍光試薬ウラニン (蛍光波長 514 nm, 以下 FNa と略記) の蛍光強度は pH が 4 ~ 8 において HCO₃⁻ イオン量に比例するため、水中に溶解した炭酸ガス濃度 (溶存炭酸ガス濃度) の計測に使用されている。一方、蛍光強度はレーザー強度にも依存するため、レーザー強度の距離減衰によって計測精度が大きく低下する。森ら (2002) は FNa と蛍光強度が pH に依存しない蛍光試薬ローダミン B (蛍光波長 605 nm, 以下 RB と略記) を使用した 2 色 LIF により森ら (2002) と同様にレーザー距離減衰を補正し、溶存炭酸ガス濃度を計測している。本研究では FNa と蛍光強度が pH に依存しない蛍光試薬ローダミン B (蛍光波長 605 nm, 以下 RB と略記) を使用した 2 色 LIF により森ら (2002) と同様にレーザー距離減衰を補正し、溶存炭酸ガス濃度を計測した。なお、本実験における pH の範囲では炭酸ガスの溶解によって HCO₃⁻ イオンのほかに H₂CO₃ が同時に存在するため、次項に示すキャリブレーションによって蛍光強度比からの溶存炭酸ガス濃度の換算式を取得した。

a) 2 色 LIF のキャリブレーション

水槽 (長さ 30 cm × 高さ 25 cm × 幅 20 cm) に水 (水温

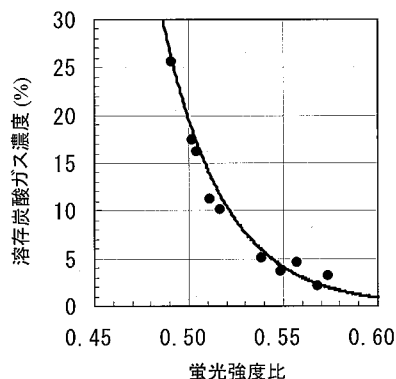


図-1 蛍光強度比と溶存炭酸ガス濃度の関係

1 学生会員 修(工) 北海道大学大学院工学研究科
日本学術振興会特別研究員 (DC2)
2 岩見沢市役所土木課道路整備係
3 正 会 員 工博 北海道大学准教授大学院工学研究科

14.0度)を入れFNaとRBを試薬濃度がそれぞれ12 ppm, 0.14 ppmとなるように溶解し、水槽側方からYAGレーザー(波長532 nm)をシート状に照射した。炭酸ガスを水中に吹き込み溶存炭酸ガス濃度(計測時の水温における炭酸ガス飽和濃度に対するパーセンテージ)とpHの変化をそれぞれ炭酸ガス濃度計と隔膜式pHメーターで計測した。各試薬の蛍光強度は水槽正面に設置した2台のCCDカメラ(8 bit, 1K×1K pixels, 29.5 fps)で計測した。なお、各カメラのレンズには透過波長が520 nm以下と580 nm以上の光学フィルターがそれぞれ設置されており、各試薬の蛍光強度を分離して同時に撮影することができる。これらの計測結果から最小二乗法によって以下に示す蛍光強度比とpHの関係式および溶存炭酸ガス濃度とpHの関係式を取得した。

$$R = 0.088p + 0.031 \quad \cdots (1)$$

$$C = 3 \times 10^8 \exp(-2.74p) \quad \cdots (2)$$

ここで、 R は蛍光強度比、 p はpH、 C は溶存炭酸ガス濃度を示している。溶存炭酸ガス濃度と蛍光強度比の関係式は式(1)を式(2)に代入することにより得られ、以下の式となる。

$$C = 3 \times 10^8 \exp(-31.16(R + 0.031)) \quad \cdots (3)$$

図-1内の実線は式(3)を、黒丸はキャリブレーション時に計測した蛍光強度比と溶存炭酸ガス濃度の関係をプロットしたものである。なお、この結果より実験結果は蛍光強度比0.49以上および25%以下の溶存炭酸ガス濃度について評価した。

(2) 実験装置と実験条件

実験は延長8.00 m、高さ0.60 m、幅0.25 m、底面および側面が透明アクリルで製作された二次元可視化造波水槽で行われた(図-2参照)。実験条件は周期1.4秒、砕波水深17.5 cm、砕波波高13.6 cm、海底勾配1/20であり砕波形態は崩れ巻き波砕波であった。座標系は砕波点の静水位を原点とし、波向き方向に x 軸、鉛直方向に z 軸を定義した。計測は $x=40$ cm(着水点近傍)、 $x=70$ cm(遷移領域)および $x=150$ cm(ボア領域)で行い、各計測位置の水深はそれぞれ15.5 cm, 14.0 cm, 10.0 cmである。

本実験では炭酸ガス以外の気体の溶解を防ぐため、水槽上部にアクリル製の蓋を設置し全面を密封した後、水槽内の気相に炭酸ガスを充填した。水槽液相(水温14.0度)にはキャリブレーション時と同一濃度のFNaとRBを混入し、水槽底面からレーザーシートを砕波帯縦断面に照射した。レーザーシート内におけるFNaとRBの励起光と混入気泡界面からのレーザー反射光(波長532 nm)を分離するため、LIF用の2台のCCDカメラに加えてレーザー反射光を撮影するCCDカメラ(LIF用と同

一仕様)を設置した。このカメラのレンズには透過中心波長532 nmの光学バンドパスフィルターが設置されており、レーザー反射光のみを撮影することができる。3台のCCDカメラは波峰が $x=-50$ cmを通過するとき発生するトリガ信号によって同時に起動し、全計測点において計測開始から同一時間経過した画像を取得した。なお、計測終了後は炭酸ガスの溶解によりpHが低下しているため、水中に窒素ガスを吹き込み水槽内全液相のpHが7.0になることを確認してから次の試行計測を行った。

各カメラの光行差の違いにより画像内の座標系は実座標系と異なるため、取得画像に対して線形投影法を適用し画像内の座標系を実座標系に変換した。取得画像のノイズ処理はガウシアンフィルタとトップハットフィルタで行った。

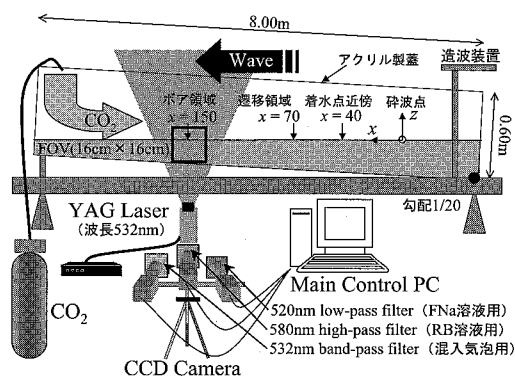


図-2 実験装置

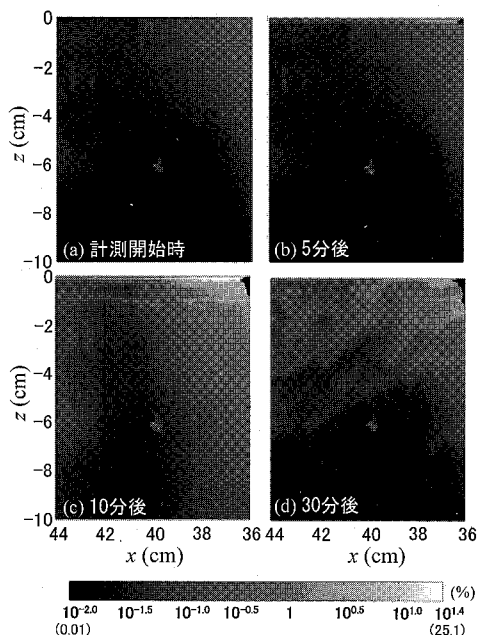


図-3 静水中で高濃度の溶存炭酸ガスが分子拡散する様子

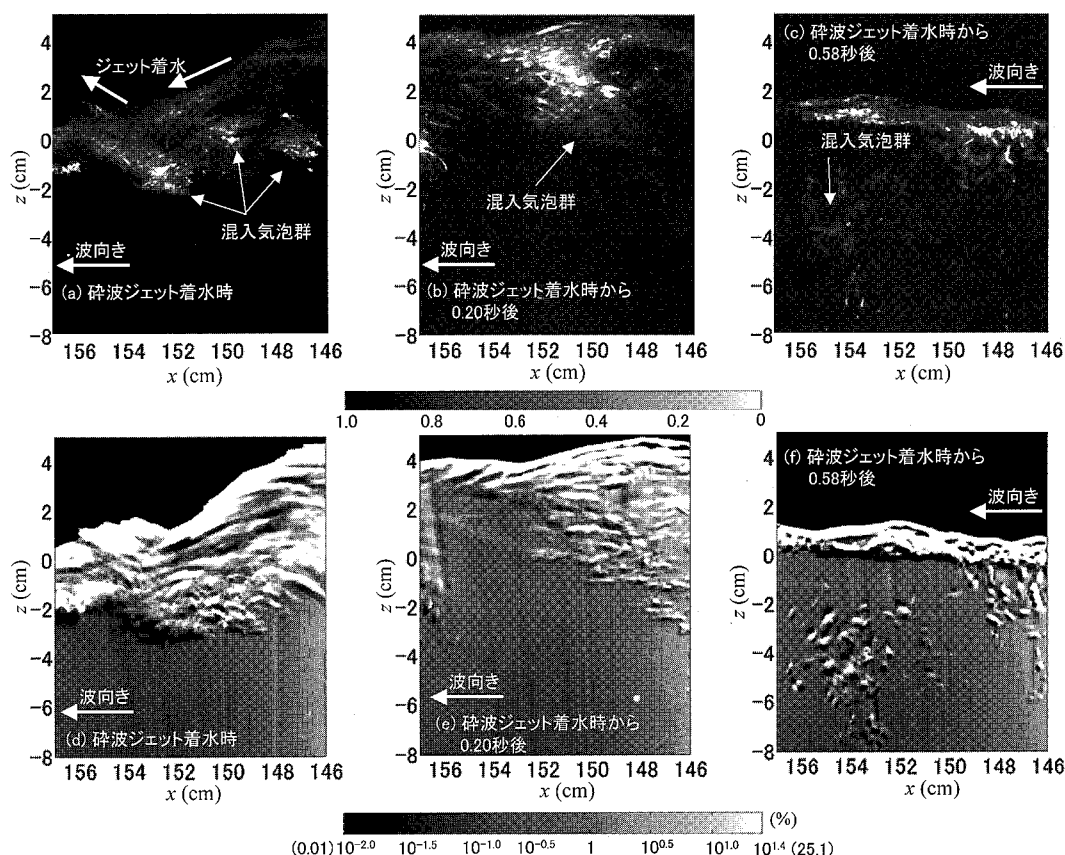


図-4 ボア領域 ($x=150\text{cm}$) における気泡可視画像濃度(a) (b) (c) と溶存炭酸ガス濃度の空間分布(d) (e) (f) (ad; 砕波ジェット着水時, be; 着水時から0.20秒後, cf; 着水時から0.58秒後)

3. 結 果

(1) 静水中における溶存炭酸ガスの分子拡散

溶存炭酸ガスの分子拡散速度を計測するため、水槽内の気相に炭酸ガスを充填後、静水中において溶存炭酸ガスが拡散する様子を撮影した。図-3は静水中において水面近傍の高濃度溶存炭酸ガスが分子拡散によって底面方向へ拡散する様子を示している。計測開始から時間の経過とともに水面近傍の極めて浅い領域で溶存炭酸ガス濃度が増加する(図-3(b))。計測開始からおよそ10分後、10%以上の高濃度溶存炭酸ガス層は底面方向へ拡散を開始した(図-3(c))。その後、拡散はさらに進行し計測から30分経過した時点で0.1%程度の溶存炭酸ガスが $z=-9\text{cm}$ に達する(図-3(d))。砕波帯内の遷移領域において波峰通過後に三次元的渦によって顕著に増加するトラフレベル以下の溶存炭酸ガス濃度の空間平均値は約0.4%となる(図-7(b)参照)。図-3(d)において0.4%の溶存炭酸ガス濃度(各深度の平均値)は $z=-1.4\text{cm}$ まで到達し、その間の分子拡散速度 $7.8 \times 10^{-4}\text{cm/s}$ と見積もることができる。

(2) 波浪実験

図-4はボア領域における混入気泡界面からのレーザー一反射光を表す気泡可視画像濃度(図-4(a) (b) (c))と溶存炭酸ガス濃度(図-4(d) (e) (f))の空間分布を示している。なお、図-4(a) (d)は砕波ジェット着水時、図-4(b) (e)は着水時から0.20秒後、図-4(c) (f)は着水時から0.58秒後における計測結果である。砕波フロント通過時、気相から炭酸ガスを封入した大量の混入気泡が生成される。複雑に変形した気液界面および混入気泡から炭酸ガスが水中に溶解するため、砕波フロント下に極めて複雑な分布で濃度20%以上の高濃度溶存炭酸ガス領域が現れる(図-4(a) (d))。フロント通過時に生成される底面方向に軸を持つ三次元的渦は大量の混入気泡を渦内にトラップし底面方向へ輸送しながら岸側へ進行し、渦内の混入気泡群はその輸送過程においても気泡中から炭酸ガスを溶解する(図-4(b) (e))。深部まで輸送された混入気泡はその領域および浮上過程において気泡から炭酸ガスを溶解するため、気泡周囲の溶存炭酸濃度が顕著に増加し(図-4(c) (f))、その濃度は比較的高く5%~15%に及ぶ。

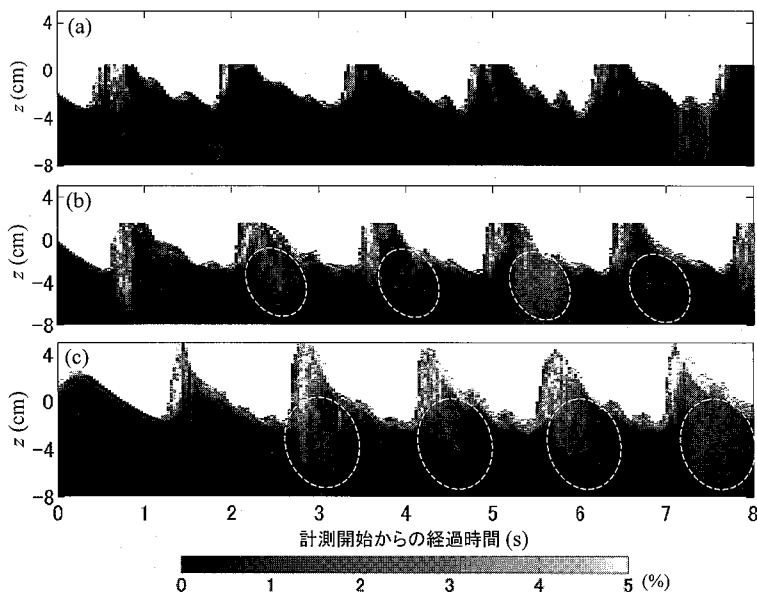


図-5 溶存炭酸ガス濃度の鉛直分布の時系列 (a; 着水点近傍 ($x=40\text{cm}$), b; 遷移領域 ($x=70\text{cm}$), c; ボア領域 ($x=150\text{cm}$))

図-5 は各計測点における溶存炭酸ガス濃度の鉛直分布の時系列を示している。なお、各深度の溶存炭酸ガス濃度は計測面内の同一深度の平均値である。波峰直下における水面から 5 cm 程度の比較的浅い領域では、4 % 以上の比較的高い濃度を示している。着水点近傍 ($x=40\text{cm}$) では高濃度の溶存炭酸ガスが深部へ拡散する前に岸側へ移流するため、波峰通過後の溶存炭酸ガス濃度は時間的、空間的に大きく変化せず、低い値を維持する (図-5(a))。遷移領域 ($x=70\text{cm}$) では波峰通過時に生成される三次元的渦の強い乱流混合・拡散によって水面近傍の高濃度溶存炭酸ガスが急速に底面方向へ拡散する (図-5(b) 白点線内)。このときの拡散速度を図-3 に示した分子拡散速度と比較するため、波峰直下 $z=0\text{cm}$ の約 4 % の溶存炭酸ガスが拡散によって 0.4 % となる深度と時間を求めると、それぞれ $z=-8\text{cm}$ と 0.5 秒であり、拡散速度は 16cm/s となる。この値は分子拡散速度と比べて 20000 倍以上に達し、溶存炭酸ガス濃度の拡散に対して三次元的渦が大きく寄与しているといえる。著者ら (2006) は本実験と同一波浪条件において、トラフレベル以下における気泡と流体の同時速度計測を行い、混入気泡は砕波ジェットの水平圧力勾配と渦内の強い圧力勾配によって流体よりも 2 倍以上の速度で運動し、さらに気液間の相対速度の増加によって気泡変動スケールの乱れが発生することを示している。特に遷移領域における $z=-4\text{cm}$ から -8cm において、単位体積当たりの流体の乱れに対する気泡の乱れの寄与は 5 % 以上 ($z=-4\text{cm}$ では 10 %) であり、混入気泡は炭酸

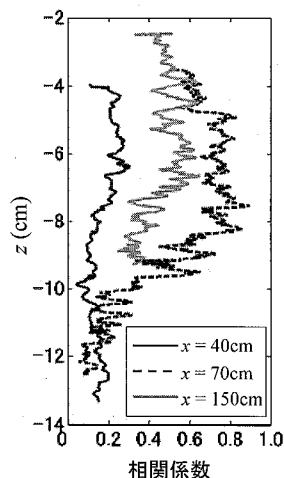


図-6 トラフレベル以下における溶存炭酸ガス濃度と気泡可視画像濃度の鉛直分布の時系列に関する各深度の相関係数

ガス拡散を促進する乱れの供給源としても寄与している。ボア領域 ($x=150\text{cm}$) においても同様に波峰通過時に 4 % 以上の高濃度溶存炭酸ガスが底面方向へ拡散する。ボア領域では生成された乱れが空間的に一様に発達し、長時間にわたってエアレートされてきた背後の乱流を連行するため、遷移領域よりも砕波ごとの拡散過程の変化は小さく、炭酸ガスの乱流混合・拡散は比較的長時間継続する (図-5(c) 白点線内)。波峰直下に現れる高い溶存炭酸ガス濃度はその継続時間が相対的に短く、範囲も水面近傍に限定されている一方、強い乱流混合によって深部に輸送される溶存炭酸ガスは同じ領域に長時間存在するため、ボア領域は砕波帯全体のネットの溶存炭酸ガス濃度の上昇に主要な役割を果たしていると考えられる。

図-6 はトラフレベル以下における図-5 に示した溶存炭酸ガス濃度と気泡可視画像濃度の時系列の相関係数の鉛直分布を示している。遷移領域 ($x=70\text{cm}$) において 0.8 程度の高い相関係数が得られ、その深度は三次元的渦によって輸送される混入気泡が比較的多く存在する領域とはほぼ一致する。遷移領域では砕波ジェットの規模が大きいため生成される気泡量が多く、さらに三次元的渦が顕著に発達する領域であり、より多くの混入気泡が渦内にトラップされるため、それらは深部への炭酸ガス供給源として大きく寄与してといえる。

図-7 はそれぞれ、各計測点における水位変動 (図-7(a)) およびトラフレベル以下において空間平均された溶存炭酸ガス濃度 (図-7(b)) と気泡可視画像濃度 (図-7(c)) の時系列を示している。着水点近傍 ($x=40$

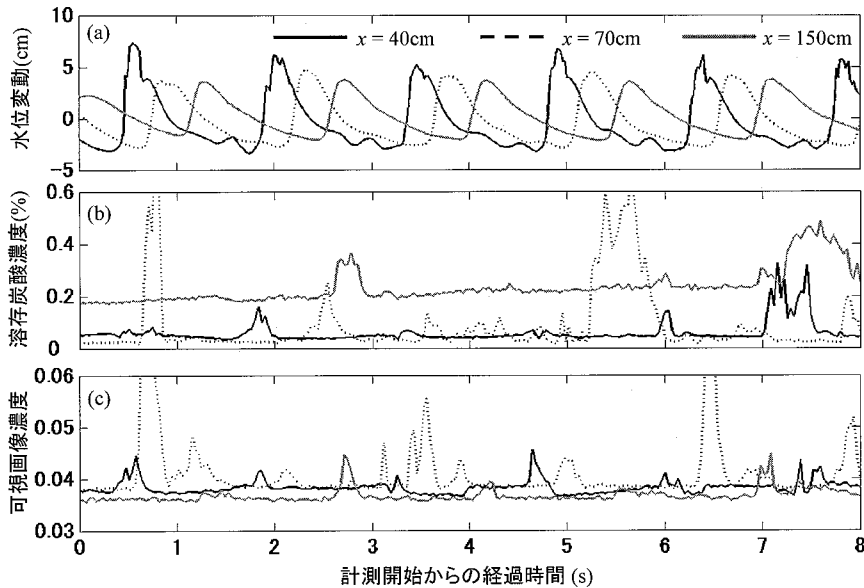


図-7 各計測領域における水位変動(a)およびトラフレベル以下において空間平均された溶存炭酸ガス濃度(b)と気泡可視画像濃度(c)の時系列

cm)において気泡可視画像濃度の増加に伴い溶存炭酸ガス濃度が増加する位相が存在し、その位相は砕波ジェット着水時とほぼ一致する(図-7(b)(c))。遷移領域では砕波ジェットの規模が大きく、ジェット着水時に生成される炭酸ガスを含んだ混入気泡が短時間で深部まで到達し、トラフレベル以下における瞬時の空間的溶存炭酸ガス濃度の上昇に寄与する(図-7(b)(c))。ボア領域($x=150$ cm)では時間の経過とともに空間平均された溶存炭酸ガス濃度は緩やかに上昇する一方、着水点近傍($x=40$ cm)および遷移領域($x=70$ cm)では間欠的な濃度上昇を繰り返すだけで継続的な濃度上昇は見られない(図-7(b))。遷移領域では混入気泡および三次元的渦による乱流混合・拡散によってトラフレベル以下へ多くの溶存炭酸ガスが供給されているが、水深が深く供給された溶存炭酸ガスが容易に拡散するため本計測時間内では継続して低い濃度を示している。一方、水深が浅いボア領域では供給された溶存炭酸ガスが空間的に十分混合されやすく、相対的に速く空間全体の溶存炭酸ガス濃度が上昇し、継続的な濃度上昇を開始する。より長時間の計測によって各計測領域の溶存炭酸ガス濃度が十分上昇した状態では、戻り流れがトラフレベル以下における各領域間の溶存炭酸ガスの輸送手段として大きく寄与すると考えられる。

4. 結 論

本研究で得られた主要な結論を以下に示す。

- 1) 砕波ジェット着水点近傍では、複雑に変形した気泡

- 2) 三次元的渦によって深部まで輸送される混入気泡は個々の気泡から炭酸ガスを溶解する。遷移領域では気泡量が多く深部における炭酸ガスの供給源として大きく寄与する一方、炭酸ガスを拡散する乱れの供給源としても寄与する。
- 3) 三次元的渦による乱流拡散は、水面近傍の高濃度溶存炭酸ガスを急速に深部へ輸送し、その速度は静水時における分子拡散速度の20000倍以上に達する。
- 4) 水深が深い遷移領域では供給された溶存炭酸ガスが容易に拡散するため、比較的長時間、低濃度状態を継続する。一方、水深が浅いボア領域では供給された溶存炭酸ガスが空間的に十分混合されやすく、相対的に速く継続的な濃度上昇を開始する。
- 5) 各計測領域の溶存炭酸ガス濃度が十分上昇した状態では、戻り流れがトラフレベル以下における各領域間の溶存炭酸ガスを輸送し砕波帯全域の濃度を増加させる。

参 考 文 献

- 大塚淳一・渡部靖憲(2006):三次元砕波混入気泡流と気泡群による砕波乱流強化について,第53回海講論文集, pp. 91-95.
- 森 信人・今村正裕(2002):2色LIF-PIVを用いた水表面におけるガス交換過程の計測,第49回海講論文集, pp. 96-100.
- Liss, P. and L. Merlivat (1986): Air-sea gas exchange: introduction and synthesis. In P. Buat-Menard (Ed.), The role of air-sea exchange in geochemical cycling, pp. 113-127, Reidel/Dordrecht.