

水表面からの炭酸ガスの輸送に関する 可視化実験

Visualization of CO₂ gas transfer at water surfaces

竹原 幸生*, 江藤 剛治**, 岸田 義広***

By Kosei Takehara, Takeharu Etoh and Yoshihiro Kishida

A technique under development is presented to visualize gas intrusion at water surface. Intensity of fluorescent light emission is dependent of pH of water. Water surface with fluorescent dye is covered with carbon dioxide gas. Light sheet of an Argon-ion laser is applied to the near-surface region and the image of fluorescent light is recorded by a video camera. When carbon dioxide intrudes into a very thin layer of water surface, pH of the layer decreases, and, then, intensity of fluorescent light reduces.

Keywords: gas transfer, carbon dioxide

1. はじめに

水表面における気体輸送現象は、下記の例に示されるように、環境科学における重要な素過程である。

- (1)地球温暖化の主因であるグローバルな大気中の炭酸ガス増加の評価において、海面から海水中への炭酸ガス吸収量を正確に評価することは緊急の課題である。
- (2)水から大気への有害物質等の揮散の問題も重要である。たとえば、水中から発生する臭気規制のための法律が定められることになっているが、水表面の気体輸送現象が未解明のため、具体的な法律策定作業は遅れたままになっている。
- (3)湖沼の生態系の短期間の急激な変化に対して、風や雨等による酸素や炭酸ガスの溶入が支配的な要因の一つになる。

通常水表面からの気体の輸送量は、大気中、水中の当該気体の濃度と、総括輸送係数を用いて計算される。総括輸送係数は気体の種類や水表面の乱れの要因（例えば乱流、風波、降雨等）ごとに与えられるが、総括輸送係数と各種乱れの特性量との関係はいまだ十分整理されていない。

水表面からの気体輸送は水表面極近傍の10~100 μ m程度の非常に薄い濃度境界層内での水や物質の動きに

* 正会員 工修 近畿大学助手 理工学部土木工学科
** 正会員 工博 近畿大学教授 理工学部土木工学科
*** 学生会員 近畿大学大学院 工学研究科土木工学専攻
(〒577 東大阪市小若江3-4-1)

大きく支配される。水表面を通した気体輸送のメカニズムを解明するには、この濃度境界層内の水運動と溶入した気体の動きを直接可視化する技術を開発する必要がある。近年、欧米を中心として、水表面近傍の現象のミクロ・メカニズムの計測・解明を通じて、水表面の気体輸送現象を解明しようとする精力的な研究が進みはじめている。しかし、依然として計測は点計測が主流である。この研究の世界的動向は、著者らの報告に取りまとめられている¹⁾。

本報告では、水表面における気体輸送現象を直接可視化する。試みとして、pH変化で蛍光強度が大きく変化する蛍光物質を用いた方法について検討を加えた。

2. 実験装置

水表面の気体輸送を規定する物理的素過程としていくつか考えられる。本研究では水中の乱れによる気体輸送に着目した。そのモデルとして静水面に単一の渦輪を衝突させ、衝突によって起こる水表面近傍の水運動による気体輸送の可視化を行った。

渦輪を発生させる装置として水頭差を駆動源としたピストン方式のものを使用した²⁾。

本実験において、ノズルは内径25mm、長さ100mmのものを用いた。水面からノズル先端までの水深を150mm、ノズルから放出される水塊の量を約27cm³とした。水頭差(Δh)は20mmに固定した。

炭酸ガスは円筒形のフィルター(厚さ16mm、100μmメッシュ)を通して水槽上部に約6 l/minの速度で充填した。渦輪は、水表面に炭酸ガスを含んだ層が十分発達した後(炭酸ガス充填開始後約30秒)に発生させた。

撮影にはCCDビデオカメラを用いた。照明にはアルゴンイオンレーザーのスリット光(渦輪の中央鉛直断面を通る)を用いた(以上図-1参照)。

3. 可視化手法

多くの蛍光物質はpHや温度の変化により蛍光特性が変化することが知られている³⁾。今回は蛍光物質として水溶性のフルオレセインを用いた。フルオレセインの蛍光強度は励起光494nm、pH7.1のとき極大となり、蛍光スペクトルが極大となる波長は518nmである²⁾。今回は励起光としてアルゴンイオンレーザー(488, 514nm)のスリット光を用いて、炭酸ガスの溶入過程を可視化した。フルオレセインは水道水に溶かし、濃度 2.5×10^{-6} mol/lの水溶液として使用した。アルゴンイオンレーザーのスペクトル分布に比べてフルオレセインの蛍光スペクトルは長波長側に緩やかに減少する。可視化ではビデオカメラのレンズ前面に520nm以下の波長の光をカットする光学フィルターをつけ、蛍光だけの画像(以下、蛍光画像と呼ぶ)を撮影した。

まず、今回用いたフルオレセイン水溶液のpHと蛍光強度の関係を調べた。これを図-2に示す。計測には上記の光学フィルターを使用し、東芝製1/2インチCCDビデオカメラで撮影した。画像はビデオテープに録画

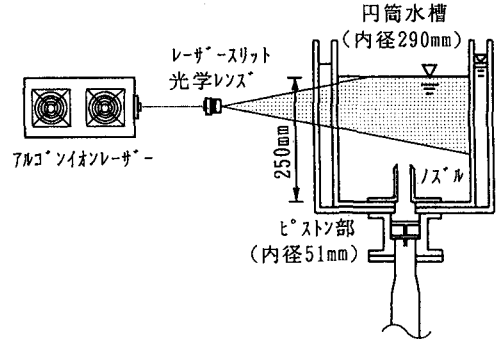


図-1 実験装置

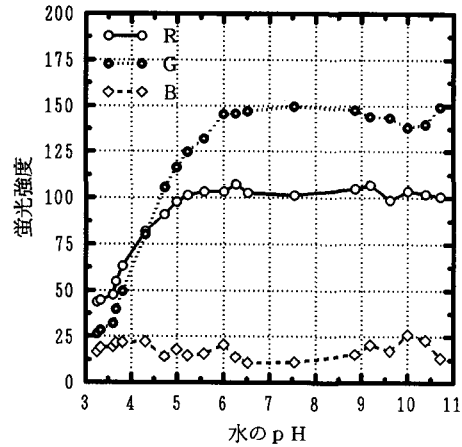


図-2 水のpHと蛍光強度の関係

した後、画像処理装置で赤、緑、青の画像（以下R,G,Bと呼ぶ）をそれぞれ256段階(8bit)、512(H)x480(V)画素のデジタル画像に変換した。撮影条件はpHを除き、同じ条件で行なった。撮影時の水温は17.7℃である。光の強度はすべての画像に対して同一の固定された領域内(50x50画素)で平均した。さらに、同一のpHで撮影した3枚の画像の平均値を用いた。pHの調整は0.1NのHClとNaOHを用いた。

今回用いたCCDビデオカメラの色フィルターおよびR,G,Bの再生方式の詳細がわからないため、どの波長域での光がR,G,Bに対応するか正確にはわからない。しかし、図-2より以下のことを結論できる。

(1)Bの蛍光強度:Bの蛍光強度は弱い。また計測したpH範囲ではほとんど変化しない。今回の撮影では520nm以下の波長の光をカットしているためである。

(2)Gの蛍光強度:Gの蛍光強度はpH6以上では、R,Bの蛍光強度に比べて最も強く、pHの変化で強度は変化しない。pH6以下では、Gの蛍光強度はpHの減少にしたがって急激に減少する。Gの蛍光強度がフルオレセインの蛍光に対して最も強く反応していることがわかる。

(3)Rの蛍光強度:Rの蛍光強度はpH5以上ではGの蛍光強度について強く、pH変化でほとんど変化しない。pH5以下では、Rの蛍光強度はGの蛍光強度変化量に比べて小さいが、同様にpHの減少にしたがって減少する。

以上より、水のpHを6程度の適切な値にセットしておけば、炭酸ガスの溶入した部分はほかの部分より蛍光強度が小さくなる。原理的には蛍光強度と炭酸ガス濃度の関係から面的な水中の炭酸ガス濃度を定量的に計測することができる。

4. 可視化結果

可視化結果を写真-1(a)~(d)に示す。本研究室での水表面に衝突する渦輪の可視化結果²⁾と比較検討した結果を以下に示す。

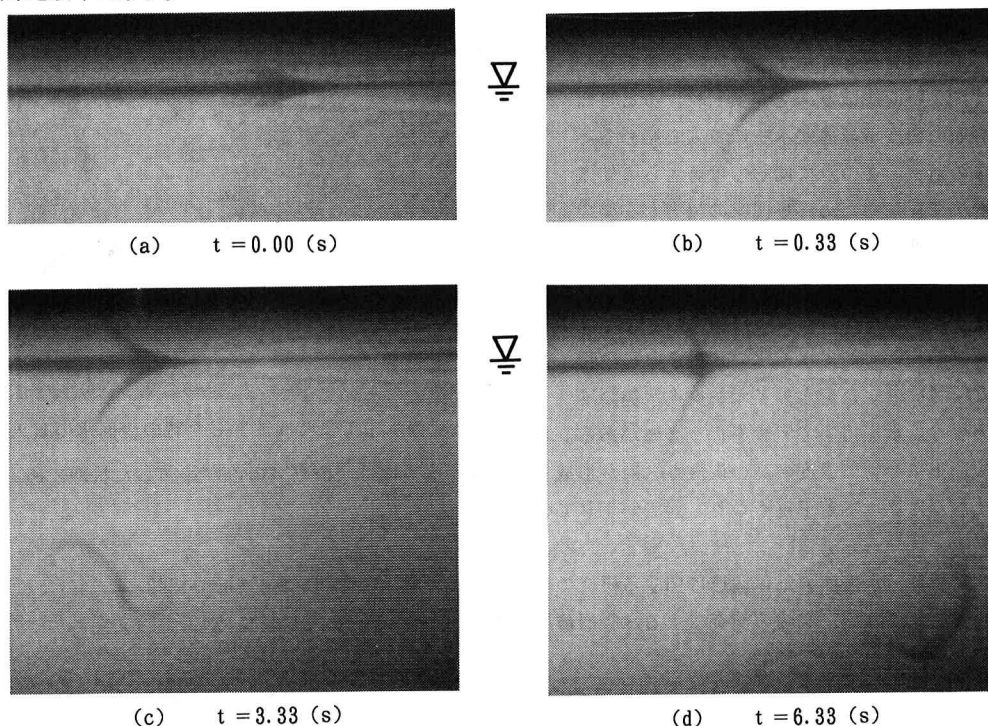


写真-1 渦輪の衝突による水表面薄層（炭酸ガスを含んでいる）の連行
(tは写真-1(a)を基準としたときからの時刻)

- (1)渦輪が水表面に衝突した後、渦輪外縁が水表面から水中に入り込む点に濃度境界層が集められる。渦輪の外縁が水面に接している部分の濃度境界層は非常に薄く今回の可視化では観察が困難であった。
- (2)何らかのトリガーにより、濃度境界層が集められている点より、濃度境界層が渦輪の外縁に沿って水中に連行され始める。いったん連行が始まると連続的に渦輪外縁に沿って連行は続く。
- (3)渦輪は水表面に衝突後、2～3の2次渦輪を形成した後、無秩序な乱れに移行する。同時に渦輪外縁に沿って連続的に連行された表面水は水中に無秩序に拡散される。

5. 計測上の問題点および今後の対策法の検討

今回の実験により、原理的に炭酸ガスの水表面での輸送過程の直接可視化が可能であることが分かった。今後、定量的な計測を行う上で生じた問題点およびその対策法を以下に述べる。

(1)蛍光強度のpH変化に対する反応速度と水運動の速度との関係

a)問題点：蛍光強度のpH変化による反応速度が水運動の速度に比べて十分小さくなければ、計測に用いることができない。また水運動が速くなるほど、水塊は水表面で炭酸ガスと接触する時間が短くなり、蛍光強度の変化量が小さくなる。

b)今後の対策：前者の問題点については、著者らの知識では解決できないため、専門家の協力が必要である。後者の問題点を解決するために次のような方法を検討している。

現有の高速ビデオカメラには1段のマイクロチャンネルプレート型光増強装置（以下、MCP型II管と呼ぶ）を内蔵している。さらに光の変化に対する感度を増すためMCPを2段にしたII管を製作する予定である。しかし、MCPを2段にすることによりノイズも増加するため、蛍光強度変化をノイズから分離できなくなる可能性もある。

(2)静水中で長時間、炭酸ガスを充填し続けた場合の水表面の水中への貫入

a)問題点：写真－2に示すように、渦輪を発生させずに長時間炭酸ガスを充填し続けると自然に水表面の濃度境界層が水中に貫入し始める。

b)今後の対策：この点に関しては著者らの知識では解決できないため、専門家の協力が必要である。可能性としては以下のことが考えられる。

①今回、水として水道水を使用しており、その中に含まれる何らかの物質と炭酸ガスが化学反応を起こし、結果的に水道水の比重より重い物質となっている。蒸留水、イオン交換水等の不純物の少ない水を用いて実験を行う必要がある。



写真－2 静水中で長時間放置した時の表面水の貫入

②水表面上に非常に濃度の高い炭酸ガス層が形成している。水表面は炭酸ガスのみが飽和した状態であるため、下層水に比べて若干重くなり、対流が生じている。

参考文献

- 1)江藤・竹原、水表面の気体輸送に関する研究の現状、近畿大学水工学研究室、50pp.1992.
- 2)江藤・竹原・宮原、渦輪の衝突による水表面薄層の水中への連行現象の可視化、水工学論文集、第36巻、pp.701-704、1992.
- 3)平木・西川、けい光指示薬を用いる酸-塩基滴定（示差滴定）、分析化学、Vol.30、No.1、pp.45-50、1981.