

砕波による CO₂ 溶解過程に関する研究

Research of CO₂ solution process by wave breaking

北海道大学工学部土木工学科 ○ 学生員 日端弾 (Hazumi Hibata)
北海道大学大学院工学研究科助手 正 員 渡部靖憲 (Yasunori Watanabe)

1. はじめに

海面を通じた気体の交換を考える時、波浪の砕波は直接的原因であり、不可欠なパラメータとなる。近年その対策が急務である地球温暖化に関連して、全地球的な炭素循環過程の解明へ向けて多くの研究が行われている一方、炭素の海洋への輸送のインプットとなる CO₂ 量が海上風のみによる経験的な簡略モデルに頼っている背景がある。

CO₂ の海洋への溶解は主に次の過程を経由して為されるものと考えられる。まず、海上風により波浪が発生し、風、地形変化、波浪間干渉のいずれかにより砕波する。砕波はジェット下への空気塊の取り込みや大量の気泡の混入により CO₂ を海水中へ供給し、同時に生成する乱れによる急速な混合、拡散により海中への物理的な輸送を促進する。ここで重要な点は、砕波はその波高、波長に応じて乱れの発達過程は大きく異なり、CO₂ 溶解のソースとなる封入空気塊や気泡の混入量が砕波形態に大きく依存するだけでなく、溶解した CO₂ の乱流拡散砕波過程を通じて常に変化していくことである。すなわち、CO₂ の溶解速度及び拡散速度が個々の砕波の形態に依存した時空間的に遷移するものであり、海中への CO₂ 供給モデルはこの特徴を適切に反映したものであるべきである。本研究は、2 色 Laser Induced Fluorescence (LIF) 法を砕波下の CO₂ 輸送問題へ適用し、混入気泡の CO₂ 溶解への寄与、乱流による移流・拡散過程について、種々の砕波形態に対して、その時空間変化を実験的に明らかにしようとするものである。

2. 実験方法

2.1 LIF

LIF 法とは、レーザーなどの照射光により特定の原子・分子などを上位準位へと励起させ、下位準位へと戻るときに放出される蛍光の観測から、物理量を可視化・測定する手法である。近年、蛍光強度が pH に依存する蛍光染料を用いて水中の pH や CO₂ の濃度変化を計測することが試みられている。Fluorescein sodium (以下 FNa と略記) の蛍光強度は pH=4-8 の間で HCO₃⁻ イオン量と比例する特性を持ち、CO₂ の濃度変化に対するトレーサーとして適している。しかし、LIF では入射レーザー光強度や光学特性によって定量的に CO₂ 濃度を計測するには難しいという問題がある。そこで本研究では以下に示す 2 色 LIF を用いた。

2 色 LIF では、蛍光強度が pH に依存する染料と非依存の染料の 2 種類を用い、両者の強度比を用いて濃度換算を行う。これにより、入射レーザー光強度や局所的な光学特性を相殺することが出来る。

本研究では染料として、蛍光強度が pH に依存する FNa と pH 独立な Rhodamine B (以下 RB と略記) をそれぞれ用いる。また、

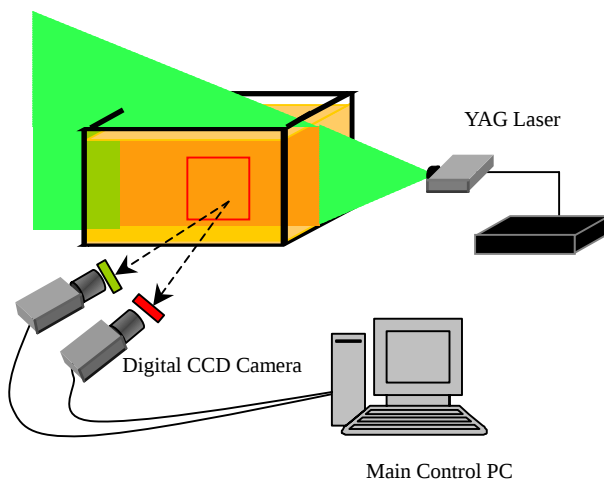
FNa の蛍光と RB の励起蛍光を光学的に分離するため、LIF 用の 2 台のカメラには、それぞれバンドパスフィルター (中心波長 560nm) とハイパスフィルター (透過限界波長 580nm) を装着する。蛍光強度の計測は 8bit デジタルビデオカメラ (Kodak 製、解像度 1000×1000pixel) によって行い、取得された 256 色グレースケール画像はカメラと接続されたパーソナルコンピュータに保存される。

2.2 画像処理

あらかじめ、二台のカメラで同一箇所を画像座標と実座標を対応させるようにカメラのキャリブレーションを行う。レーザーシート上に設置した較正グリッドを二台のカメラで撮影し、閾値を決めて二値化を行いグリッドの重心の画像座標を実座標へ線形投影を行う。変換後の画像は Gaussian フィルターによりノイズ処理され、輝度は 0 から 1 までの画像濃度として数値処理される。

2.3 キャリブレーション

蛍光強度から pH を換算することによって面的な濃度分布を求める。そのために以下に示す 4 つのキャリブレーションを行う必要がある。キャリブレーションは、静水中に上記 2 種の染料を溶かし行う。実験装置は図—1 に示す。



図—1 実験装置

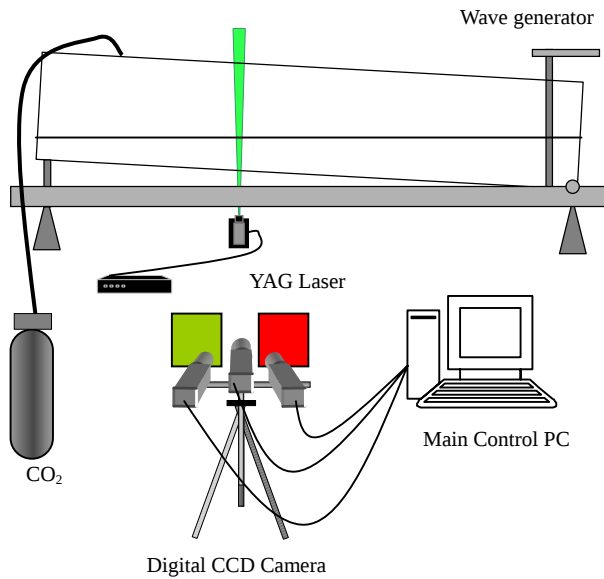
まず染料の濃度を変化させながら LIF を行い、染料濃度と蛍光強度、蛍光強度の空間分布を調べる。染料の濃度は表 - 1 のように変化させる。

次に pH を変化させ pH と蛍光強度、pH と蛍光強度比の関係を調べる。pH は水槽に CO₂ を吹き込むことで変化させる。この時 pH メーター及び隔膜式 CO₂ メーターを用い参照値を計測する。

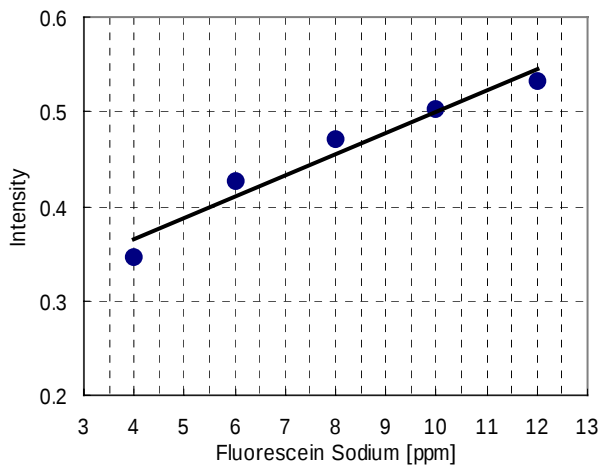
FNa	4.0	6.0	8.0	10.0	12.0
Rhodamine B	0.06	0.08	0.10	0.12	0.14

(単位: ppm)

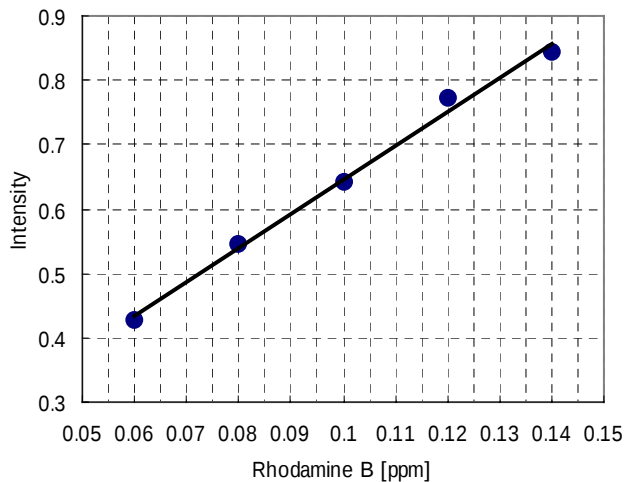
表—1 染料の濃度



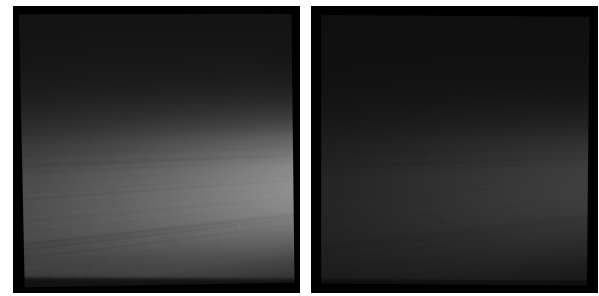
図—2 波浪実験装置概略図



図—3 FNa 濃度と蛍光輝度の関係

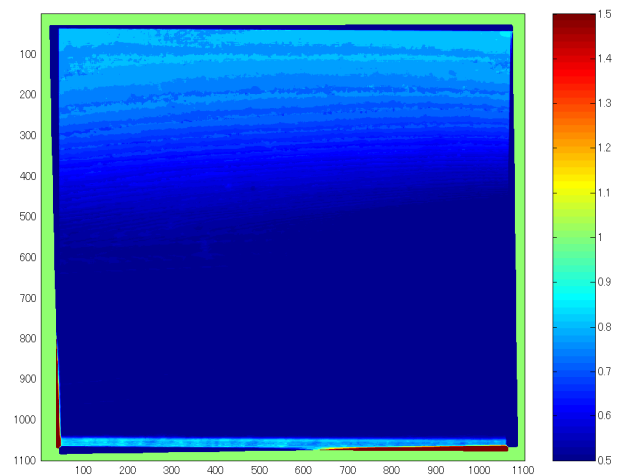


図—4 Rhodamine B と蛍光輝度の関係



(a) Rhodamine B

(b) Fluorescein Sodium



(c) 蛍光輝度比の面的分布

図—5 FNa 及び RhodamineB より計測された蛍光輝度と
蛍光輝度比の面的分布

2.4 波浪実験

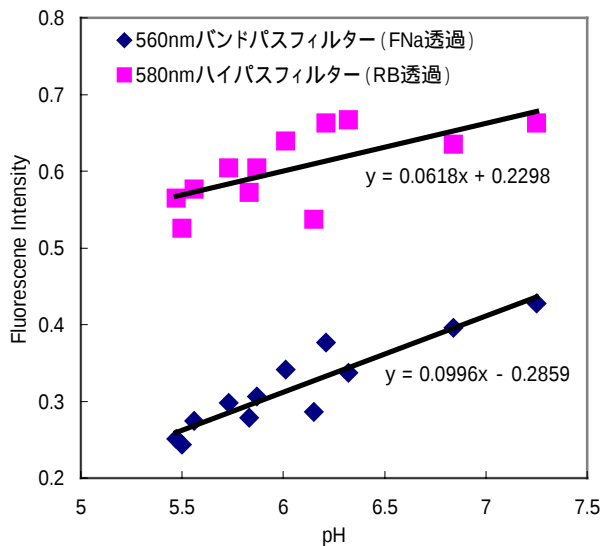
波浪実験は造波水槽（長さ 8.0m）を用いて行う。水槽の上下及び側壁はアクリル製であり、気相に CO₂ を満たした状態で碎波をさせ行う。図—2 に実験装置の概略図を示す。

実験ではレーザー光源として YAG レーザー（励起波 532nm）を用い、水路底面からシート状に照射する。画像は 3 台のデジタル CCD カメラを用いて収集する。3 台のうち 2 台は LIF に、残り一台は気泡追跡のために用いる。

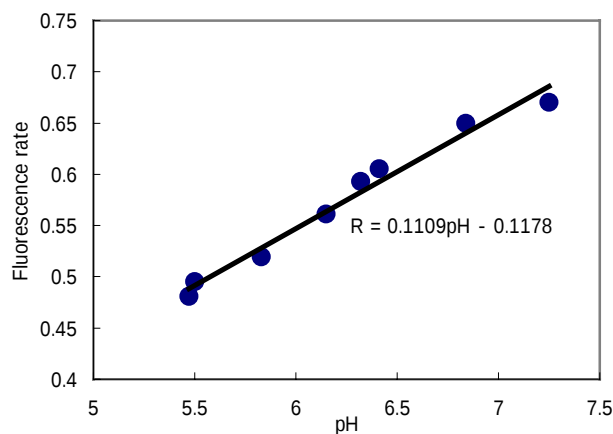
3. 結果

実験で使用する FNa 及び RB の蛍光励起特性をまず調査した。図—3 及び 4 は両蛍光染料の水溶液濃度と蛍光輝度との関係を表している。なお、蛍光輝度は最大画像濃度で正規化されている。本実験で設定する水溶液濃度のレンジでは両染料ともに水溶液濃度に比例する蛍光発光が得られることがわかる。よって、本実験ではこのレンジ内の濃度に対して十分な輝度分解性能が得られる水溶液濃度（FNa 12.0ppm, RB 0.14ppm）を採用した。

図—5 は各蛍光染料に対する蛍光輝度分布（座標変換後の画像）と両者の比を表したものである。レーザーによる蛍光励起は、照射するレーザーの強度に依存するため、シリンダカルレンズのみでエキスパンドしたレーザーシート面上で放射状に蛍光輝度分布を持つことがわかる。一方、両蛍光染料共にレーザー強度に対して線形的に蛍光輝度が変化することがわかっており、それらの輝度比（ $R = I_{FNa}/I_{RB}$, I_{FNa} : FNa の蛍光輝度, I_{RB} :



図—6 蛍光輝度と pH の関係

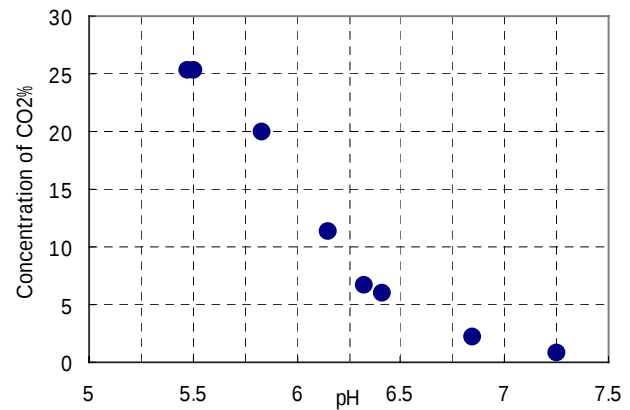
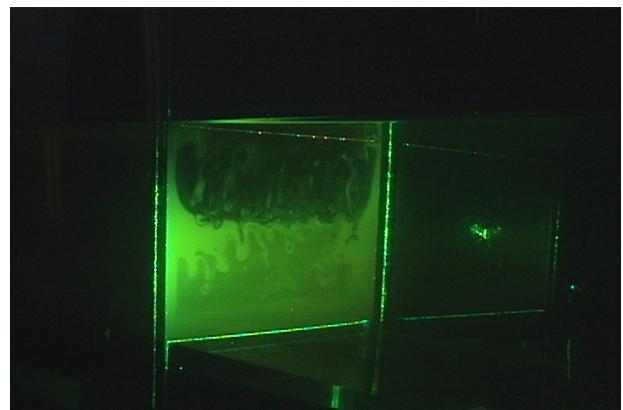


図—7 蛍光輝度比と pH の関係

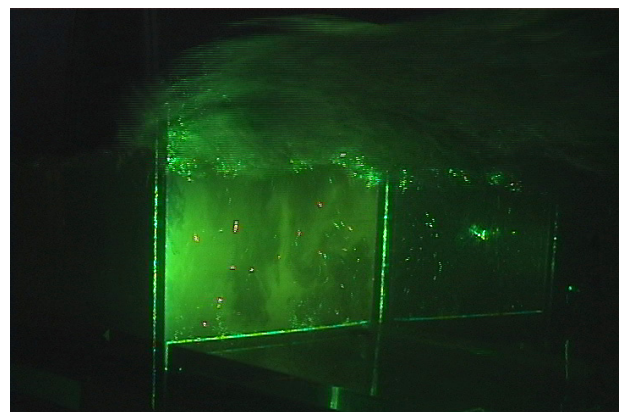
RB の蛍光輝度) はレーザー強度に依存しない一定の分布となる (図—5C 参照)。pH の変化により、 I_{FNa} が変化する場合、 R の pH 依存性をあらかじめ見積もることで、レーザー強度に依存することなく pH の空間分布あるいは CO_2 濃度を R から算出することができる。

図—6 はレーザーシート面上の FNa と RB の両蛍光励起高強度の pH 依存性調べたものである。ややばらつきが見られるが両蛍光染料共に勾配の異なる線形関数で近似可能であることを表している。580nm ハイパスフィルターより得られる蛍光もバンドパスフィルターからの蛍光よりは小さいものの pH の減少と共に減衰しているのは 580nm 以上透過のハイパスフィルターでも多少 FNa の蛍光を透過しているためである。これらの関係から輝度比 R もまた pH に対して線形関数で記述可能であり、最小二乗法から $R=0.1109pH - 0.1178$ の近似式を取得できる (図—7 参照)。一方、同時に計測した CO_2 濃度は pH の増加に伴い指数減衰するためこれも適当に近似関数を取得可能である (図—8 参照)。これら R と pH、pH と溶解 CO_2 濃度の近似式を使うことにより、画像計測で取得した R の面的分布から面的に CO_2 濃度分布を算出し、可視化することが可能である。

なお、砕波下の溶解 CO_2 分布の時間変化について現在実験を

図—8 CO_2 濃度と pH の関係

写真—1 1 色 LIF (静水時)



写真—2 1 色 LIF (砕波時)

行っており、論文報告会にて成果を発表する。

参考に造波水槽での LIF 予備実験を行った結果を記載する。予備実験では FNa のみを用いた 1 色のみの LIF を行った。写真—1 及び 2 は実験で得られたものである。写真—1 は砕波する前の静水時を撮影しており、気層からの CO_2 の自然溶解により水面付近の pH が下がりその部分が暗くなっているのが見られる。写真—2 は砕波時のものだが、写真—1 で暗くなっていた部分が砕波による乱流拡散により水路底面付近まで広がっているのが分かる。さらに混入した気泡付近でも CO_2 の溶解が起こり少し暗くなっている様子を見ることができた。予備実験では、この

様に LIF を用いることが CO_2 濃度分布を面的に可視化するツールとして有効であることが分かった。

4. 結論

2 色 LIF について蛍光染料、 CO_2 濃度についてキャリブレーションを行った。染料の濃度と蛍光輝度の関係を経験的に求めた。バンドパスフィルターとハイパスフィルターから得られた 2 枚の画像から蛍光輝度の面的分布を求めた。また、輝度比の空間分布から光源からの距離によるレーザー光の減衰による影響が相殺されていることを確認した。pH と蛍光輝度、蛍光輝度比の関係を経験的に求めた。以上の結果を総合し画像解析から面的な CO_2 濃度の分布計測が有効であることを確かめた。また、造波水槽予備実験から碎波過程で起きる気泡混入、乱流拡散によるガス交換促進を定性的に確かめることができた。今後は論文報告会までに波浪水槽で碎波下の溶解 CO_2 分布の時間変化について実験、検討を行う。

参 考 文 献

- 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、海岸工学論文集、第 49 巻、pp.96-100.
- 渡部靖憲、秀島賢保、佐伯 浩 (2004) : 三 次 元 Super-Resolution PIV の開発と碎波下の混層流への適用、海岸工学論文集、第 51 巻、pp106-110
- 渡部靖憲、森 信人、秀島賢保、 : 碎波波面直下の縦渦遷移と熱・物質拡散率について、海岸工学論文集、第 52 巻、pp96-100
- B. J'ahne and H. Haußecker (1998) : Air-water gas exchange, *Annu. Rev. Fluid Mech.* 1998, 30:443–68