

気泡プルームから水中への酸素輸送拡散速度計測

Measurement of Oxygen Transfer from Bubble Plume to Water

北海道大学大学院工学院 学生会員 新井田靖郎 (Yasuo Niida)

北海道大学大学院工学研究院 正会員 渡部靖憲 (Yasunori Watanabe)

1. はじめに

沿岸砕波、並びに海洋における風波砕波に伴うエアレーションは海中の溶存酸素濃度を大きく左右し、これらの物理イベントは海洋の化学的、生物的応答と直接結びついている。室内実験¹⁾及び海洋観測²⁾によってマクロな海中酸素濃度と波浪との相関が確認され、特に酸素のような難溶性の気体の空気中から海中への輸送には砕波による混入気泡が大きな役割を果たしていることが知られている。しかし、現在までのところ、砕波イベントに対する気泡サイズや気泡量のパラメータ化が十分ではなく、また気泡サイズ、数密度、浮上速度、圧力及び温度と多くのパラメータに依存して変化し、酸素輸送モデルの構築に不可欠な混入気泡から海中への酸素輸送速度の定量化には至っていない。

酸素輸送速度の定量化に必要な個々の混入気泡、あるいは気泡群からの局所的酸素輸送の計測には、基礎的な室内実験による気泡周りの酸素濃度の面的計測が不可欠である。一方で著者ら³⁾は、蛍光励起画像計測を用いて気泡の存在する水中の瞬時的面的酸素濃度を測定している。

本研究では、最も基礎的なエアレーション過程のひとつである気泡プルームを対象に、蛍光励起画像計測や Particle Image Velocimetry (PIV) を用いて酸素輸送の時空間的特性を明らかにし、任意の気泡サイズ分布に対する酸素輸送速度の定量化を行う。

2. 蛍光励起画像計測による溶存酸素濃度測定の実験原理

蛍光励起画像計測による水中の溶存気体濃度場測定は水中に気体濃度に応じて蛍光強度が変化する蛍光試薬を混入させ、予め取得した蛍光強度と気体濃度の関係を基に蛍光分布画像から気体濃度分布を決定する手法である。

Vaughanら⁴⁾はピレン酸が溶存酸素濃度の指標として使用可能であることを報告している。また Woodrowら⁵⁾はピレン酸を用いて静水面および波面を通じた空中から水中への酸素輸送計測を行っている。水溶液中のピレン酸分子は紫外線を照射されることによって励起され、蛍光を発する(図-1参照)が、溶液中に酸素が存在するとその蛍光は弱められる(酸素クエンチング)。ピレン酸を用いた溶存酸素の蛍光励起画像測定はこの酸素クエンチングを利用することによって溶存酸素濃度を測定するものである。

3. 実験方法

3.1 蛍光励起画像計測

実験は 4×10^{-5} M ピレン酸溶液を注入した矩形のガラス水槽 (15 cm × 17 cm × 20 cm, 水深は 17 cm, 水温 23 度) において行われた。図-2 に実験装置の概略図を示す。なおピレン酸は水への溶解度が低いため、本研究ではピレン酸を初めに 0.05 mol/L の温めた水酸化ナトリウム水溶液中に溶かすことで 4×10^{-3} mol/L のピレン酸水溶液を作成し、それを純水で希釈することで実験で使用する 4×10^{-5} mol/L ピレン酸溶液を作成した。

酸素ガスは空気流量調節器を経て水槽底面に設置されたニードルより放出される(図-2参照)。



図 1: 紫外線を照射され蛍光を発するピレン酸水溶液

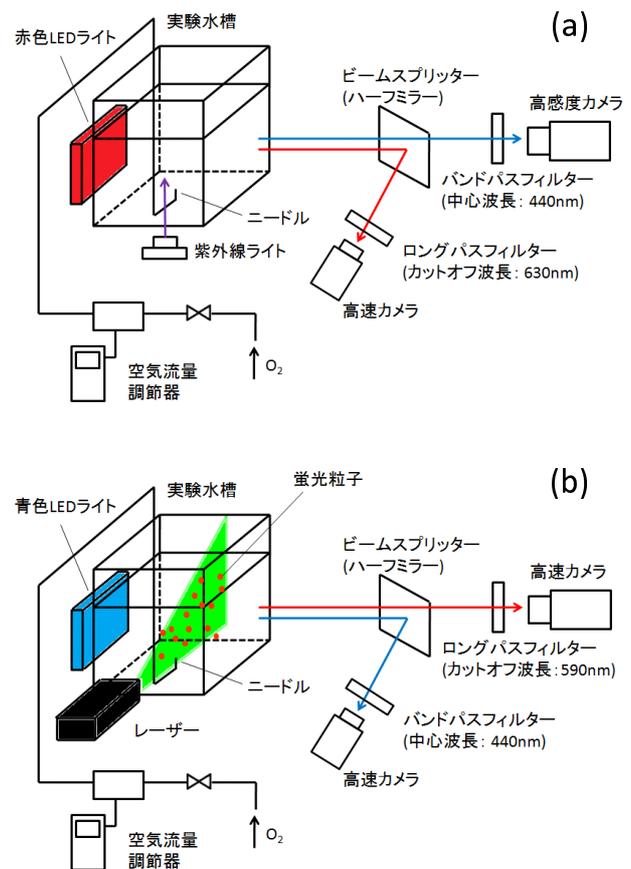


図 2: 実験装置概略 (a: 蛍光励起画像計測, b: PIV 計測)

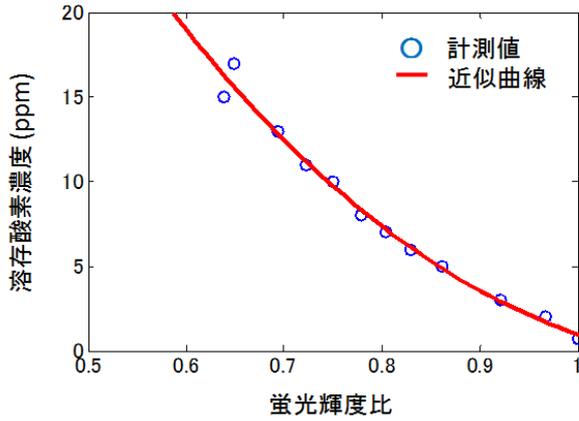


図 3: キャリブレーションカーブの一例

ピレン酸を励起させる紫外線スポットライトを水槽底面中央より照射し、7 cm × 8 cm の赤色 LED パネルによるバックライトを気泡撮影のため水槽背後より照射した。気泡のバックライト射影とピレン酸分子の蛍光は二種類の光学フィルターを用いて光学的に分離して計測した。すなわち、水槽からの赤色背景光及び励起光の両者は水槽前面に対して 45 度に傾けられたハーフミラーによって 2 方向に分けられ、それぞれ高速カメラ (シャッタースピード 0.5 ms, 500 fps, 解像度 1280 × 1000 画素) と高感度 12 bit カメラ (解像度 348 × 260 画素, 露光時間 10 ms) によって撮影される。紫外線ライトの散乱光および赤色 LED ライト光を除外するため高感度カメラには中心波長 440 nm バンドパスフィルターを装着し、励起蛍光の影響を除外するために高速カメラにはカットオフ波長 630 nm のロングパスフィルターを装着した。これにより同時刻、同一位置における酸素濃度と気泡位置を特定可能であり、気泡界面からの光の反射屈折を除去した正味の酸素濃度分布を取得可能である。蛍光輝度と溶存酸素濃度計によって計測した酸素濃度の関係 (図-3 参照) を予め取得し、較正值を基に蛍光分布画像から酸素濃度分布を決定する。

高速カメラにより取得した画像に対しては渡部ら⁶⁾と同様に、画像中の流体エッジ検出法として、Level-set 法を適用する。これは、画像濃度に対して形状を変化させるアクティブコンターを初期条件として画像端に設置し、コンター内外の画像濃度偏差の二乗和を最小とするよう境界線からの距離関数を逐次計算によって求める方法である。

3.2 Particle Image Velocimetry

気体輸送においては流れの構造が重要な役割を果たす事が知られている。そこで水槽内に中立粒子を混入し YAG レーザシート面上の流速分布を FFT 相互相関法による Particle Image Velocimetry (PIV) により計測した。中立粒子にはダイヤイオン HP20SS (直径約 63-150 μ m) を蛍光着色したものを使用し、水槽側面からレーザーシートを照射することにより蛍光粒子を励起発光させた。またバックライト法によって気泡射影を撮影するため、10 cm × 18 cm の青色 LED パネルを水槽背後に設置した (図-2 参照)。

粒子からの蛍光および気泡の射影はハーフミラーを介して二方向に分けられ、それぞれ高速カメラによって取得される。粒子の蛍光を取得するためのカメラ (シャッタースピード 2 ms, 500 fps, 解像度 1280 × 1000 画素) にはカットオフ波長 590 nm のロングパスフィルターを装着し、気泡のバックライト射影を取得するためのカメラ (シャッタースピード 4 ms, 250 fps, 解像度 1280 × 1000 画素) には中心波長 440 nm バンドパスフィルターを装着した。

3.3 実験条件と計測領域

実験条件を表 1 に示す。本研究では、気泡サイズに対す

表 1: 実験条件

case	酸素流量	ニードル内径
1	15mL/min	0.24mm
2	40mL/min	0.4mm
3	50mL/min	1.2mm
4	80mL/min	1.2mm
5	120mL/min	1.2mm

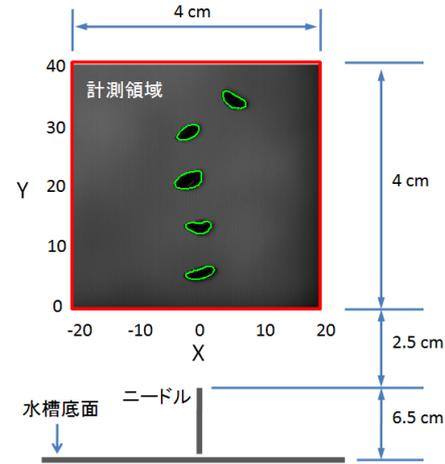


図 4: 計測領域

る酸素輸送速度を調査するため、ある一定の径の気泡が連続的に放出されるようにニードルと酸素流量を選択した。酸素流量は 15 - 120 mL/min, ニードルは内径が 0.24, 0.4, 1.2 mm のものを使用した。すべての case において実験前に窒素パブリングによって溶存酸素濃度を 0 程度にまで低下させてから実験を開始した。実験は暗室内で行われ、気泡注入開始より 5 分毎に 30 分後まで、計測を行った。

本実験における計測領域を図-4 に示す。ノズルの鉛直線上 2.5 cm の位置を原点とする XY 座標系を設定した。

4. 実験結果

4.1 気泡群の特性および流速場

Level-set 法によって検出された気泡のエッジを図-5 に示す。検出されたエッジを基に気泡サイズ及び個数を計測した。図-6 は、すべての case に対する気泡サイズスペクトルを表している。なお、サイズスペクトルは、気泡径ヒストグラムの 100 μ m 毎のビン中の増分として定義される。図-6 より、それぞれの case において、ニードルと流量に応じた固有の径を持つ気泡が同程度の数で発生している事がわかる。case 1 は 2.1 mm, case 2 は 3.2 mm, case 3 は 3.6 mm, case 4 は 4.3 mm, case 5 は 4.5 mm 程度の中心径を持つ気泡群によって気泡ブルームが生成されている。

図-7 は、case 1 と case 5 に対するボイド率の分布を表わしたものである。小径気泡は、スパイラル状に上昇する傾向があり、小径気泡によって構成される case 1 は相対的に側方に広く気泡が分布し、大径気泡からなる case 5 は高い浮力から上昇速度が速く上昇軸上の極めて狭い範囲に集中したボイド率分布となる。

図-8 は PIV によって計測された、case 5 に対応する計測

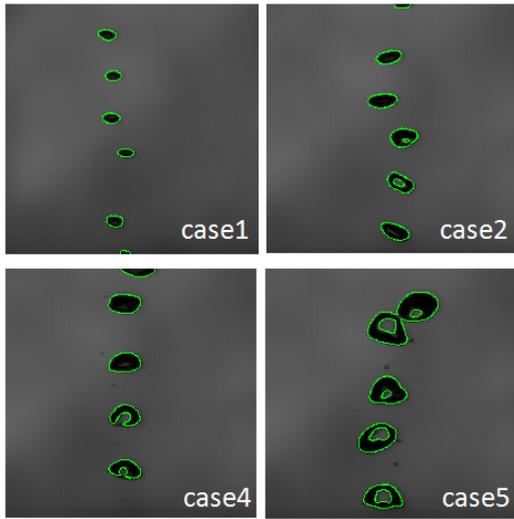


図 5: 実験によって得られる気泡の射影画像と Level-set 法によるエッジの検出例 (緑)

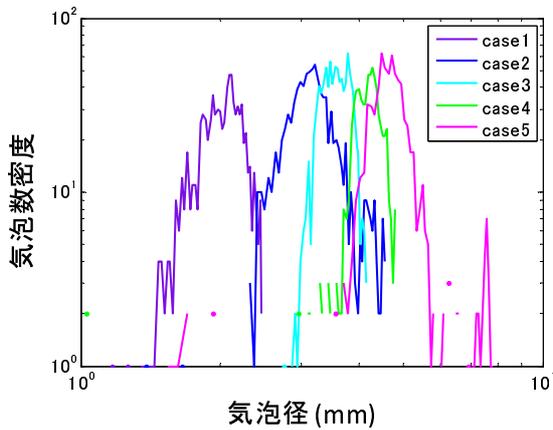


図 6: 気泡サイズスペクトル分布

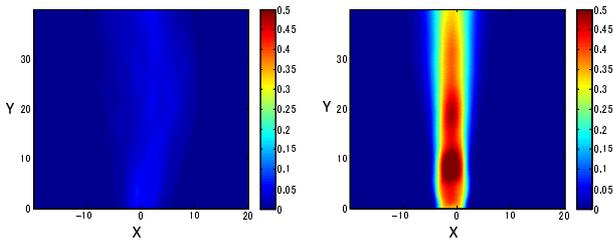


図 7: ポイド率分布 (左: case 1, 右: case 5)

領域内の時間平均流速場である。水槽内には気泡ブルームに誘起された対流が発生し、図-8 では上昇する気泡群に伴う典型的な流れ場が形成されている。図-8 より酸素濃度計測領域内には周囲流体が流れ込んでいる様子がわかる。また、図-7 に示したポイド率の高い領域で鉛直方向の流速が大きくなっている。

4.2 酸素濃度の時間変化特性

図-9 は、case 1 と case 2 に対する瞬時の溶存酸素分布の時間変化を比較したものである。両 case とも時間の経過と

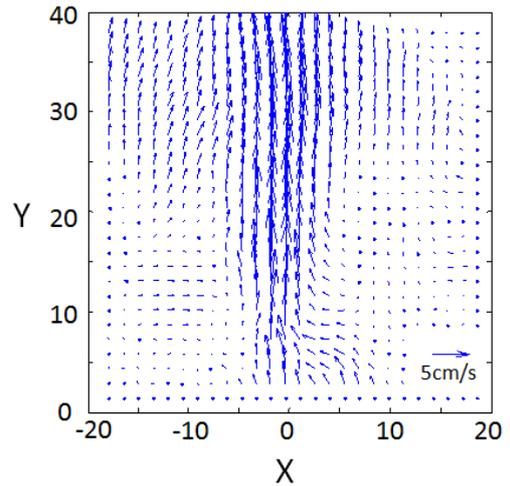


図 8: 計測領域内の時間平均流速場 (case 5)

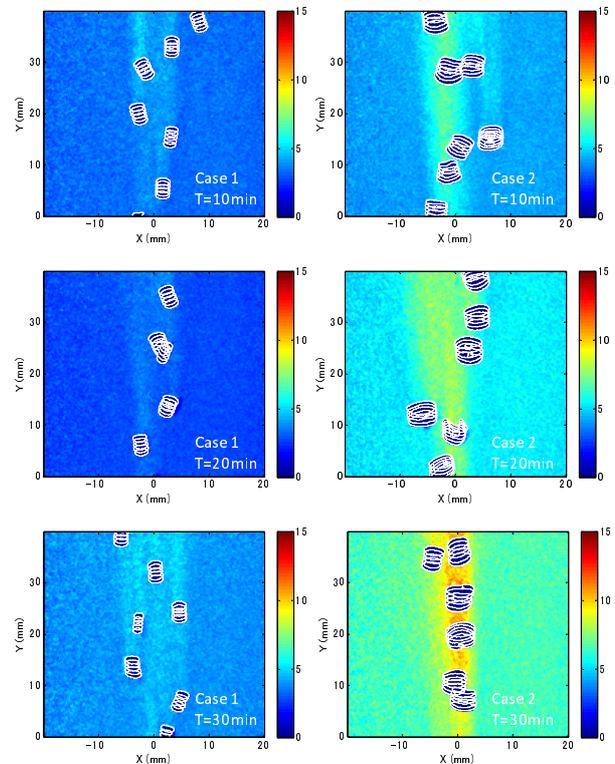


図 9: 溶存酸素濃度の瞬時空間分布の時間 (左: case 1, 右: case 2)

ともに計測領域内の溶存酸素濃度が上昇しているが、径にしてわずか 1mm 程度の差にも関わらず、濃度上昇の様子は大きく異なっている。

図-10 は case1 と case5 の鉛直方向に平均された酸素濃度の水平分布を表わす。時間の経過とともに最大値及び全体の分布が上昇している。

小径気泡が卓越する case 1 では、酸素濃度のピーク値は低いものの、大きな偏りなく酸素の溶解が進行している。一方、case 5 は、上昇軸に集中した濃度分布となる (図-10 参照)。この特徴は、ポイド率と溶存酸素濃度分布の相似性を示唆しており、ポイド率分布は溶存酸素濃度を決定するためのソースとして重要なパラメータとなり得る。

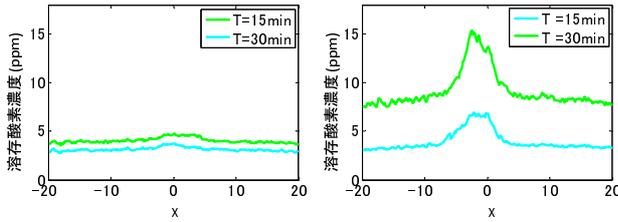


図 10: 溶存酸素濃度の鉛直方向平均の水平方向分布 (左: case 1, 右: case 5)

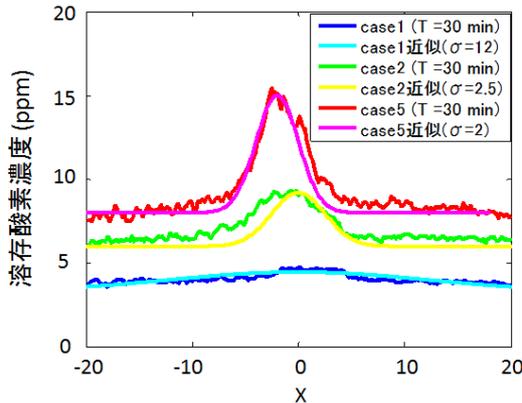


図 11: 溶存酸素濃度水平方向分布のガウス関数による近似

図-10 では、上昇軸方向平均酸素濃度は軸上に最大値をもつ典型的な噴流に現れるような分布を形成している。これは気泡ブルーム存在時の酸素濃度分布 C をガウス分布で表現できる可能性を示唆している。図-11 は、case 1, case 2, case 5 における気泡混入開始 30 分後の酸素濃度分布をガウス分布を利用した次式で近似したものである。

$$C = C_1 \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma} \exp\left(-\frac{X^2}{2\sigma^2}\right) + C_2 \quad (1)$$

ここで σ^2 は分散, C_1, C_2 は定数である。

図-11 において上昇軸上に集中した酸素高濃度域が現れる case 5 では σ が 2 であったのに対して、小径気泡からなる case 1 は σ が 12 と非常に大きいものとなった。このことは酸素濃度分布をガウス分布で近似した際の分散によって拡散が特徴づけられることを示している。

4.3 気泡からの酸素輸送速度

酸素濃度の時間変化 $\frac{dC}{dt}$ を気泡からの酸素輸送速度と定義して計算し、それぞれの case において発生する気泡群の代表径から求めた気泡一つ当たりの表面積 S_b との関係を図-12 に示す。図-12 には最小自乗法によって求めた次式に示す近似直線も併記している。

$$\frac{dC}{dt} = \frac{48.2953}{1.0203 \times 10^4} S_b \quad (2)$$

一般に二相間の物質の輸送は、界面を通じて行われるため、気泡から水中への酸素輸送に関しても、その輸送速度は気泡の表面積に比例する。

4. 結論

本研究では蛍光励起画像計測を用いて気泡ブルームから水中への酸素輸送速度計測を行い、気泡からの酸素輸送の基礎的特性を調査した。

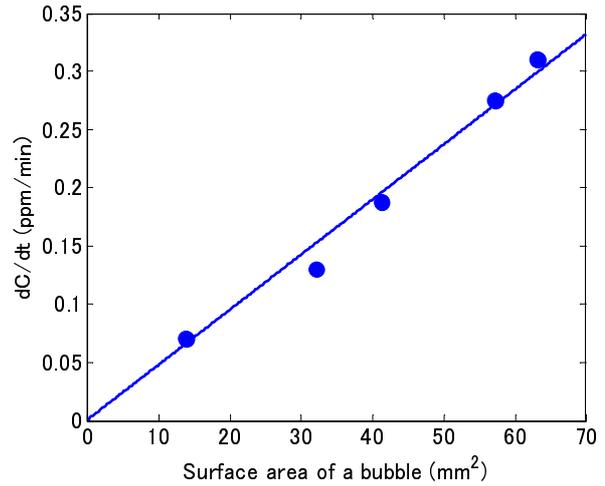


図 12: 気泡の表面積と酸素輸送速度の関係

気泡のボイド率と酸素濃度の分布の相関は高く、ボイド率は酸素濃度を決定するための重要なパラメータとなることが示唆された。

気泡ブルーム生成後、時間の経過とともに水中溶存酸素濃度は上昇し、その上昇速度は気泡サイズ分布によって極めて敏感に変化した。

溶存酸素濃度の横断方向分布はガウス分布で表わすことができた。スパイラル状に運動する小気泡のケースではその分散が大きかった。一方で大気泡のケースでは、相対的に大きな浮力によって気泡が比較的速く上昇し、またそれに伴って促進される流体の上昇軸方向の流れにより、軸上に集中した溶存酸素濃度分布を形成するために、分散は小さいものとなった。分散の大きい小径気泡は相対的に側方への拡散、広範囲にわたる酸素輸送に対する寄与が大きいともいうことができる。

また本研究では、気体輸送における気泡の径の影響の定量的評価のために、固有の径を持つ気泡群で構成される気泡ブルームによる水中溶存酸素濃度変化を計測し、気泡サイズと酸素輸送速度の関係を調査した。その結果、気泡からの酸素輸送速度は気泡の表面積の増加に伴って直線的に増加することが明らかになった。

参考文献

- 1) Farmer, D. M., C. L. McNeil and B. D. Johnson: Evidence for the importance of bubbles in increasing air-sea gas flux, *Nature*, 361, 620-623, 1993.
- 2) 角野昇八, 仲田義弘, 斉藤満, 中谷成智, 芳田利春, 小田一紀: 海岸構造物の曝気能に関する実験的再考察, *海岸工学論文集*, 41, pp. 1036-1040, 1994.
- 3) 新井田靖郎, 渡部靖憲: 気泡群から水中への酸素輸送拡散速度計測, *土木学会論文集 B2 (海岸工学)*, Vol.67, No.2, pp.66-70, 2011.
- 4) Woodrow, P. T. and S. R. Duke: Laser-Induced Fluorescence Studies of Oxygen Transfer Across Unsheared Flat and Wavy Air-Water Interfaces, *Ind. Eng. Chem. Res.*, 40, 1985-1995, 2001.
- 5) Vaughan, W. M. and G. Weber: Oxygen Quenching of Pyrenebutyric Acid Fluorescence in Water. A Dynamic of the Microenvironment., *Biochemistry*, 9, 464-473, 1970.
- 6) 渡部靖憲, 石崎真一郎: 越波ジェットのフィンガー化と飛沫への分列過程, *海岸工学論文集*, 56, pp. 11-15, 2009.