

16. 高懸濁物濃度の海水の光学特性*¹ (第3報) —懸濁物濃度と吸収係数, 散乱係数の関係—

佐々木保徳*² 宗山 敬*²

横須賀湾の海底堆積物の巻上りによって汚濁した海水の光学的性質は, 粘土鉱物の懸濁液がもつ光学的性質に同じであるというわれわれの知見に基づいて, 本研究では粘土鉱物の懸濁液を用いて, 光学的性質の濃度依存性を調べた。今回は, 特に濃度と吸収係数および散乱係数の関係を求めることを主眼においた。

散乱係数は, ある濃度に達すると, 増加が鈍化し始めることから, 多重散乱が生じ始めているものと考えられる。したがって, 散乱は, 明らかに濃度の影響が認められる。このことは, 多重散乱の尺度としてしばしば用いられる Optical Density の測定からも裏付けられた。

吸収係数は, 濃度に対しほぼ直線的な関係が得られた。しかし, これからただちに, 多重散乱による平均光路長の増大が, 吸収に対し影響を及ぼさないという結論にはならない。

また, これらの光学的パラメーターの性質は, 反射率にも反映され, 反射率が濃度に対して必ずしも直線的関係を示さないという結果として現われている。

Optical Properties of Seawater with High Concentrations of Suspended Solids (Report 3), Relationship of Scattering Coefficients and Absorption Coefficients to Suspended Solid Concentrations

Yasunori Sasaki*², Kei Muneyama*²

The optical properties of turbid seawater caused by the resuspension of Yokosuka Bay sediment are almost same as those of the suspension of clay mineral prepared in the laboratory. In this work the concentration dependencies of the suspension's optical properties were studied using the clay mineral.

Among many fundamental optical parameters, scattering coefficients and absorption coefficients were chosen, and an attempt was made to identify the relationship between the suspended solid concentration and the two coefficients with the help of reflectivity and optical density.

*¹ 本研究は, 受託研究「海洋遠隔探査技術の開発研究」の一環として実施したものである。

*² 海洋保全技術部

*² Marine Environment Department

Scattering coefficients increase to some concentration in a linear mode. Upon reaching this concentration, a less sharp increase occurs. Multiple-scattering is expected to come about at this concentration. Optical density, often used as a measure for the multiplicity of scattering, also gave results in support of this hypothesis.

Absorption coefficients are nearly in a linear relationship with the concentration. However, we cannot come immediately to the conclusion that the increase of the average light-pass length as a result of multiple-scattering has no effect upon the absorption coefficients.

The properties of these optical parameters are clearly reflected in the apparent optical properties of suspension, and the reflectivity of suspension does not necessarily have a linear relation to the suspended solid concentrations.

1. まえがき

これまでに比較的散乱特性の強い海水（主として赤潮海水）および懸濁液について、Kubelka と Munk のモデルを用いて、吸収係数と散乱係数を求める方法および両係数の値等につき検討してきた。しかし、これらはいずれも濃度一定のもとに測定したものであり、両係数の濃度に対する関係についてはまだ定かではない。

一般に懸濁液は溶液と異なり、散乱現象をもつので、濃度と吸収係数、散乱係数の関係は複雑である。従来から多くの理論および実験に基づいて、懸濁物濃度と吸収係数、散乱係数の関係について論じられてきたが、結局、定まった見解は得られていない。

海洋の懸濁物は、大別すると生物性懸濁物と非生物性（鉱物性）懸濁物があり、両者の光学的性質は、第4報⁹⁾に示すように、大きく異なる。高濃度の非生物性懸濁物を含む実海水につき、光学的性質の測定を実施したときの知見によると、粘土鉱物によって作製したモデルについて、室内実験で測定した光学的性質に、きわめて類似した結果が得られている。

本研究では、粘土鉱物で作製した懸濁系のモデルによって非生物性懸濁液の光学的性質の検討を行った。今回は、特に懸濁物濃度と吸収係数、散乱係数の関係を求め、オプティカル デンシティ (Optical Density) の測定から多重散乱のおこり始めについて検討した。

本研究の実施にあたっては、千葉大学工学部江森康文教授ならびに安田嘉純助教授に有効適切なるご助言をいただいた。ここに厚くお礼申し上げます。

2. 理論

Kubelka-Munk の理論から、Turbid Medium の透過率 $T^9)$ は、次式で表わされる。

$$T = \frac{b}{a \cdot \sinh(bSx) + b \cdot \cosh(bSx)} \dots\dots\dots (1)$$

ただし、

K ; Turbid Medium の吸収係数

S ; Turbid Medium の散乱係数

a ; $(K + S) / S$ で定義される定数

b ; $\sqrt{a^2 - 1}$ で定義される定数

x ; Turbid Medium 中の光路長 (厚さ) である。

Turbid Medium の厚さが, x_1, x_2 のときの透過率をそれぞれ t_1, t_2 とすると, 次式のようになる。

$$t_1 = \frac{b}{a \cdot \sinh(bSx_1) + b \cdot \cosh(bSx_1)} \dots\dots\dots(2)$$

$$t_2 = \frac{b}{a \cdot \sinh(bSx_2) + b \cdot \cosh(bSx_2)} \dots\dots\dots(3)$$

となる。

ここで Turbid Medium の厚さ x_1, x_2 が, $2x_1 = x_2$ なる場合を考えると, (3)式は,

$$a \cdot \sinh(2bSx_1) + b \cdot \cosh(2bSx_2) = \frac{b}{t_2} \dots\dots\dots(4)$$

となる。

$$\sinh(2z) = 2 \cdot \sinh(z) \cdot \cosh(z) \dots\dots\dots(5)$$

$$\cosh(2z) = 2 \cdot \cosh^2(z) - 1 \dots\dots\dots(6)$$

の関係を用いると, (4)式は,

$$2 \cdot \cosh(bSx_1) \cdot \left[a \cdot \sinh(bSx_1) + b \cdot \cosh(bSx_2) \right] - b = \frac{b}{t_2} \dots\dots\dots(7)$$

となる。そこで, (7)式に(2)式を代入すると, つぎのようになる。

$$\frac{2b}{t_1} \cdot \cosh(bSx_1) - b = \frac{b}{t_2}$$

$$\therefore \cosh(bSx_1) = \frac{1}{2} \cdot t_1 \cdot \left(1 + \frac{1}{t_2} \right) \dots\dots\dots(8)$$

したがって,

$$S = \frac{1}{b \cdot x_1} \cdot \text{Arcosh} \left[\frac{1}{2} \cdot t_1 \cdot \left(1 + \frac{1}{t_2} \right) \right] \\ = \frac{1}{b \cdot x_1} \cdot \ln \left[y + \sqrt{y^2 - 1} \right] \dots\dots\dots(9)$$

ただし $y = \frac{1}{2} t_1 \left(1 + \frac{1}{t_2} \right)$ である。

さらに, (8)式を平方すると,

$$\cosh^2(bSx_1) = \frac{1}{4} t_1^2 \cdot \left(1 + \frac{1}{t_2} \right)^2 \dots\dots\dots(10)$$

(4)式に b を乗じ, (5)式と(6)式の関係を用いると,

$$2ab \sinh(bSx_1) \cosh(bSx_1) + b^2 \cdot \cosh^2(bSx_1) + b^2 \cdot \sinh^2(bSx_1) = \frac{b^2}{t_2^2} \dots\dots\dots(11)$$

一方, (2)式を平方すると,

$$a^2 \sinh^2(bSx_1) + 2ab \sinh(bSx_1) \cdot \cosh(bSx_1) + b^2 \cdot \cosh^2(bSx_1) = \frac{b^2}{t^2} \dots\dots\dots(12)$$

(12)式から(11)式を減ずると,

$$(a^2 - b^2) \sinh^2(bSx_1) = \frac{b^2}{t_1^2} - \frac{b^2}{t_2^2}$$

$$\therefore \sinh^2(bSx_1) = b^2 \left[\left(\frac{1}{t_1} \right)^2 - \left(\frac{1}{t_2} \right)^2 \right] \dots\dots\dots(13)$$

(10)式と(13)式を次式,

$$\cosh^2(bSx_1) - \sinh^2(bSx_1) = 1$$

に代入すると,

$$\frac{1}{4} t_1^2 \left(1 + \frac{1}{t_2} \right)^2 - b^2 \left[\left(\frac{1}{t_1} \right)^2 - \left(\frac{1}{t_2} \right)^2 \right] = 1$$

これを b^2 について整理すると,

$$b^2 = t_1^2 \left[t_1^2 \cdot \left(1 + \frac{1}{t_2} \right) - 4 t_2^2 \right] / \left[4 \cdot t_2 \cdot (t_2 - t_1^2) \right] \dots\dots\dots(14)$$

したがって(14)式から透過率の測定だけで, Kubelka-Munk パラメータ a および b の決定が, 原理的には可能である。これらの a および b の決定ができれば, (9)式で散乱係数が求まり, さらに,

$$K = (a - 1) \cdot S$$

によって吸収係数の決定が可能である。

3. 装置および測定方法

図1は本実験に用いた装置の概略を示す。

測光器は阿部設計製 2702 型分光放射計 (輝度計型) であり, 検出器には光電子増倍管を用いている。水槽は内径 25cm, 深さ 60cm の円筒型で, 外壁にアルミニウム箔を張付けて使用した。反射率測定用光源には東芝製フラッドランプ (500W) を使用した。

また光源強度の測定には硫酸バリウムを塗布した白色板を使用し, その表面の放射輝度を求めた。なお, この白色板のすべての方向に対する放射輝度係数を全波長域に亘って 1 と仮定した。透過率測定用光源には近藤電気製プロジェクターランプ (JC-12V, 50W) を 4 個使用した。なお, 拡散光透過率を測定するため, 水槽底部に拡散板を置いた。

本実験では、無機懸濁質として粘土鉱物のモンモリロナイトを用いた。十分粉碎し、乾燥したモンモリロナイト約5 gを1 lの精製水中に懸濁させ、1 lのメスシリンダー中で約30min静置した。その上層部の懸濁液約300 mlをとり、精製水で希釈して全容を30 lとした。この段階で得られる懸濁液の濃度を初濃度とし、所定の測定を行ったのち、濃度を順次1/2倍に希釈を続け、初濃度の1/32の濃度の懸濁液までを測定に供した。

Kubelka-Munkのパラメーターは、原理的には(14)式で求められるが、濃度が低くなれば、 $(t_2 - t_1^2)$ の項の誤差が大きくなり、 b^2 が負となることもありうるため、本実験では反射率 R_∞ を測定し、 $a = (1/R_\infty + R_\infty)/2$ および $b = (1/R_\infty - R_\infty)/2$ によって求めた。

また懸濁物濃度の決定は、初濃度の懸濁液を0.45 μm のミリポアフィルターで濾過して求めた結果、初濃度の懸濁液は78 ppmであった。

4. 結果および考察

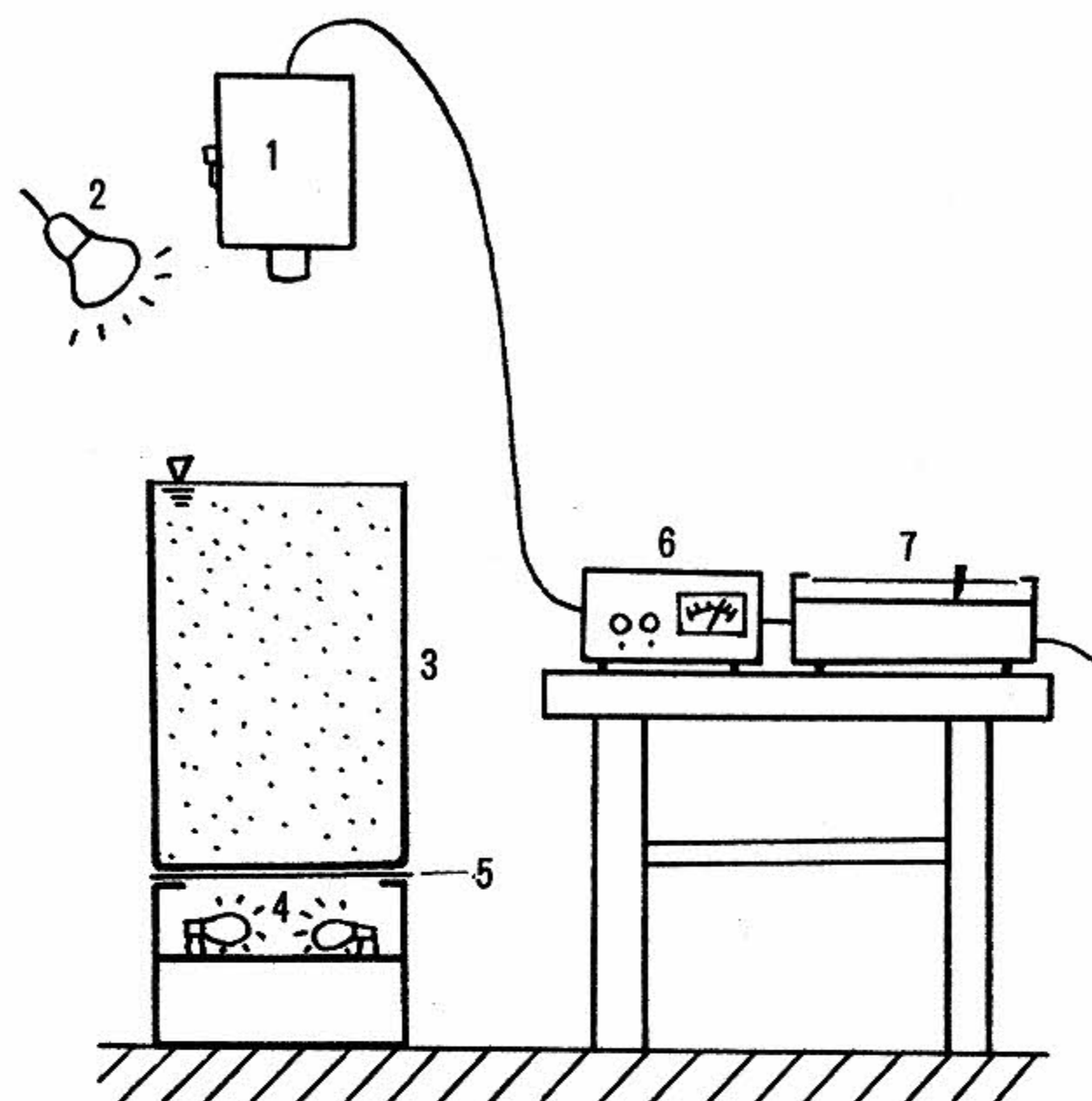
図2は各濃度における反射率 R_∞ と波長の関係を示す。

濃度の表わし方は、78 ppmを32とすれば、本実験に供した懸濁液濃度は、以下、16, 8, 4, 2および1の計6段階になり、今後、これをもって濃度を表すこととする。

図2からわかるように、粘土鉱物では500~600 nmの波長域で、反射率がやや高くなっているが、全体として、特に著しい波長特性が見られない。植物プランクトンなどの生物性懸濁物に富む海水の反射率 R_∞ は580 nm付近および700 nm付近に極大をもち、400~450 nmおよび670 nm付近に極小をもつ¹⁰⁾のに比べれば、これが鉱物性懸濁物の特徴である。一方、濃度8と4の間では反射率の値に著しい変化が認められる。

そこで反射率変化の様子を見るため、波長500 nmで濃度と反射率の関係を示したものが図3である。この図から反射率と濃度の間には、必ずしも直線的な関係はないことが明らかである。特に濃度8付近までは、反射率は濃度とともに、ほぼ直線的に増加する傾向にあるが、8付近をこえると、反射率の増大が急激に鈍化し始める。

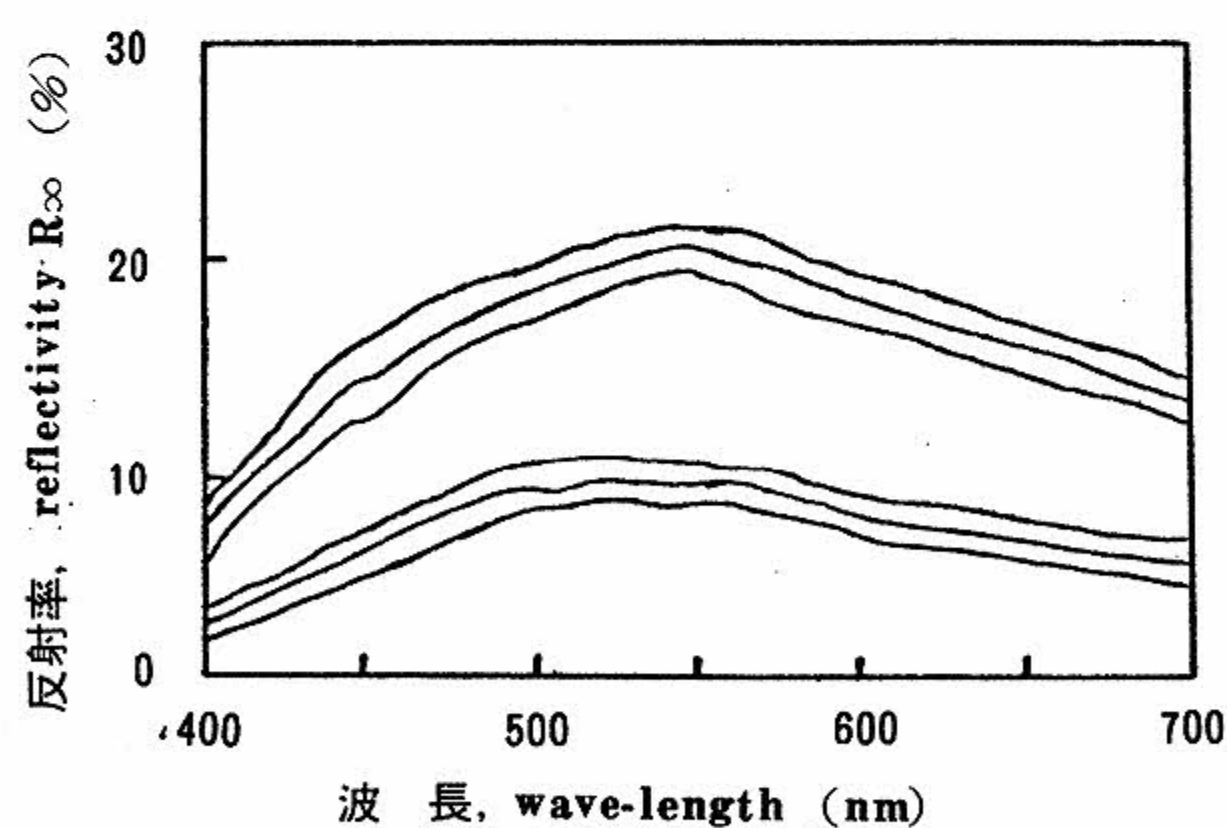
反射率は、懸濁系の内部で生じている光学的過程の一現象的結果であり、これを本質的にとらえるためには、濃度と吸収係数、散乱係数の関係に



1. 分光放射計 (輝度計型) spectral radiometer (radiance-meter type)
2. 反射率測定用光源 light-source for reflectance measurement
3. 水槽 water vessel
4. 透過率測定用光源 light-source for transmittance measurement
5. 拡散板 diffuser
6. アンプ amplifier
7. 記録計 recorder

図1 測定装置の概略

Schematic sketch of measurement system



懸濁液濃度は上から順に 32, 16, 8, 4, 2, 1 に対応する

Curves from top to bottom correspond to concentrations 32, 16, 8, 4, 2 and 1 respectively

図2 濃度と反射率の関係

Relation between concentrations and reflectivities

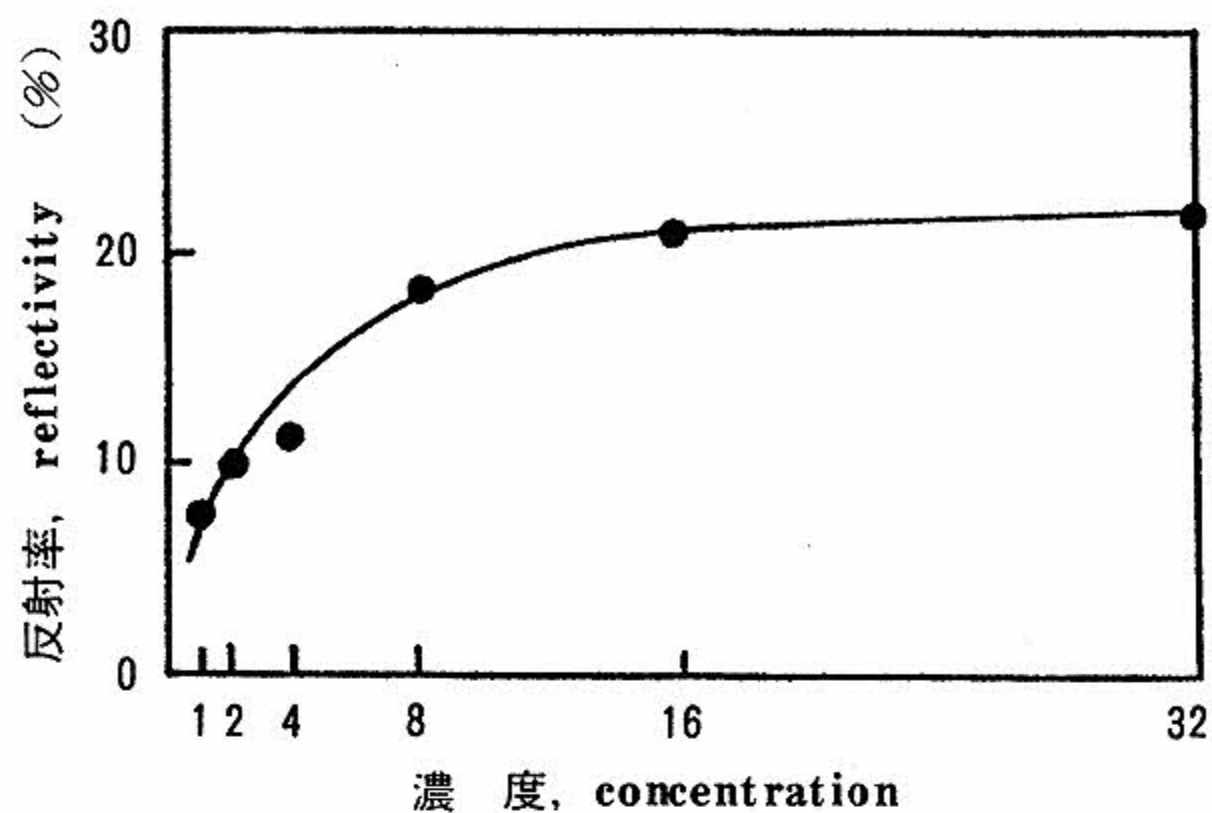


図3 500 nm における懸濁物濃度と反射率の関係

Relation between suspended solid concentration and reflectivity at 500 nm wave-length

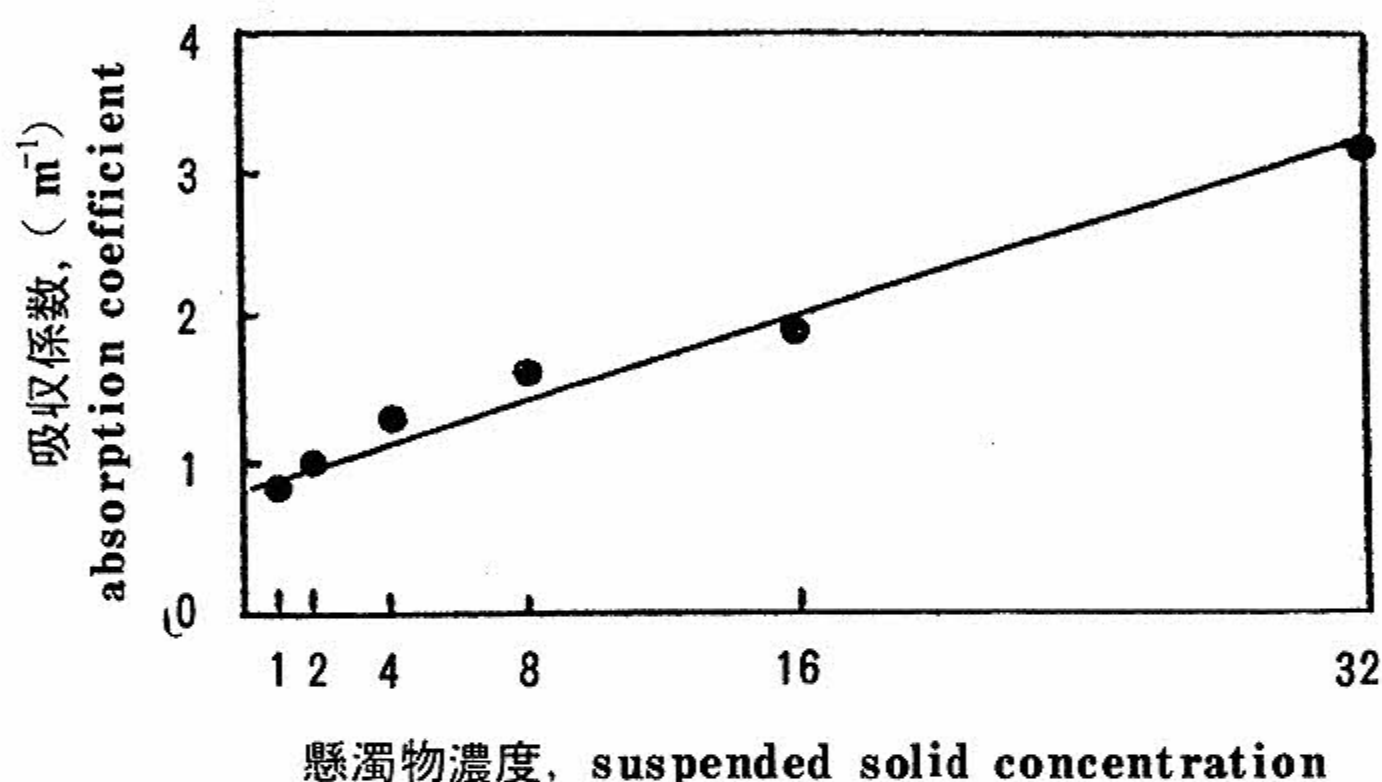


図4 500 nm における懸濁物濃度と吸収係数の関係

Relation between suspended solid concentration and absorption coefficient at 500 nm wave-length

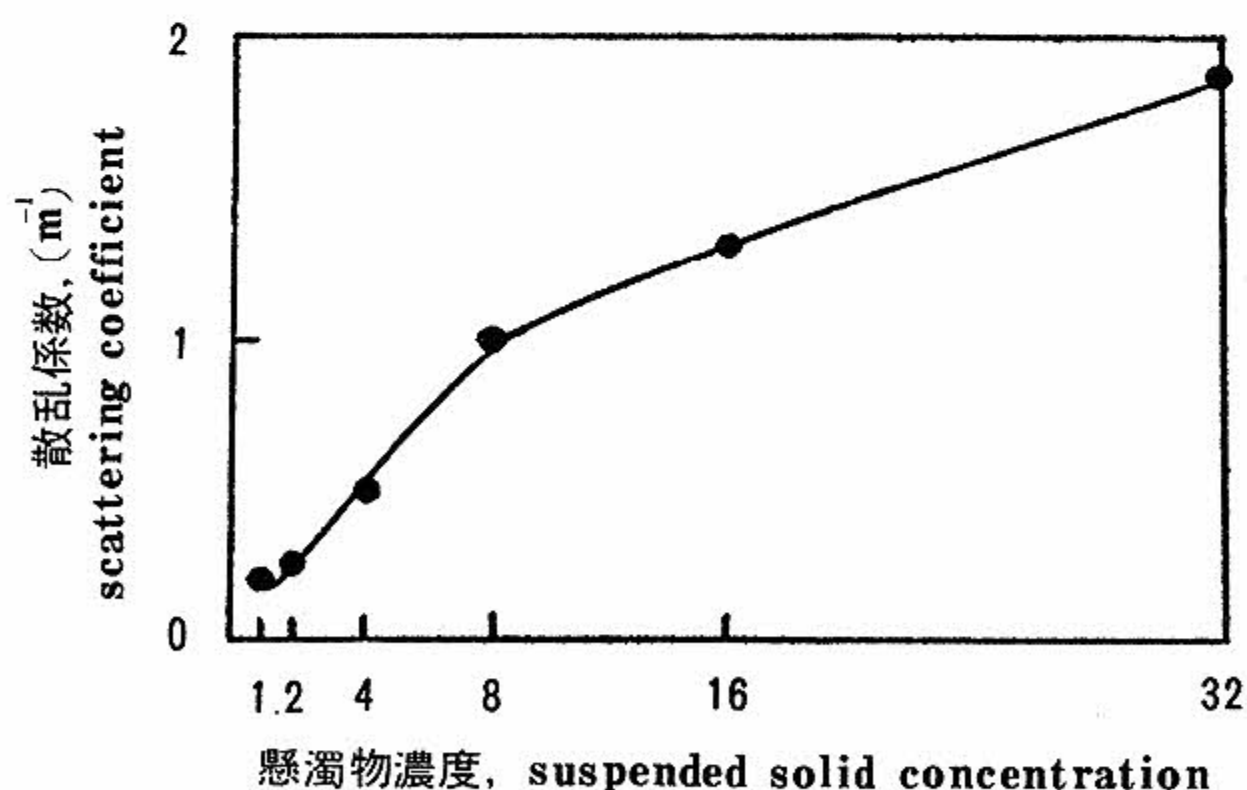


図5 500 nm における懸濁物濃度と散乱係数の関係

Relation between suspended solid concentration and scattering coefficient at 500 nm wave-length

ついて調べる必要がある。

図4は波長500nmにおける濃度と吸収係数の関係を示す。

吸収係数は濃度に対して、直線的に近い状態で増大しているが、これらの測定値の直線からのバラツキが実験誤差によるものか、または本質的な関係を示すものか、これだけでは明確ではない。散乱によって平均光路長が大きくなることから、吸収に対しても影響を及ぼすとされているが、ここではそれが明瞭には認められない。

500nmにおける濃度と散乱係数の関係を示したものが図5である。

散乱係数は懸濁物濃度が8付近に達するまでは、濃度に対して直線的な増加傾向を示しているが、8付近よりも濃度が高くなると、散乱係数の増大が急激に鈍化する傾向が認められる。このことから濃度8付近から散乱に多重性が生じ始めていると考えられる。

そこで、通常、散乱を有する系の多重散乱のパロメーターとして、しばしば用いられているオプティカル デンシティについて検討した。

オプティカル デンシティは通常ODと略記され、次式で定義される。

(1)式の透過率を変形すると、つぎのようになる。

$$T = \frac{(1 - R_{\infty}^2) \cdot e^{-bSx}}{1 - R_{\infty}^2 \cdot e^{-2bSx}}$$

したがって

$$OD = \log \left[\frac{1}{(1 - R_{\infty}^2)} \right] +$$

$$0.4343 bSx - \log (1 - R_{\infty}^2 \cdot e^{-2bSx}) \dots \dots (15)$$

本実験では、

$$R_{\infty}^2 \cdot e^{-2bSx} \ll 1$$

と見做すことができ、第1項も比較的小さいため、ODに最も寄与しているのは第2項となる。さらに第2項はつぎのようになる。

図6は500nmにおける30cmの厚さの懸濁液の透過率と濃度の関係を示す。この図では透過率は濃度に対して完全な双曲線をなしている。これを1mあたりの透過率に換算してオプティカル デンシティを求めた。

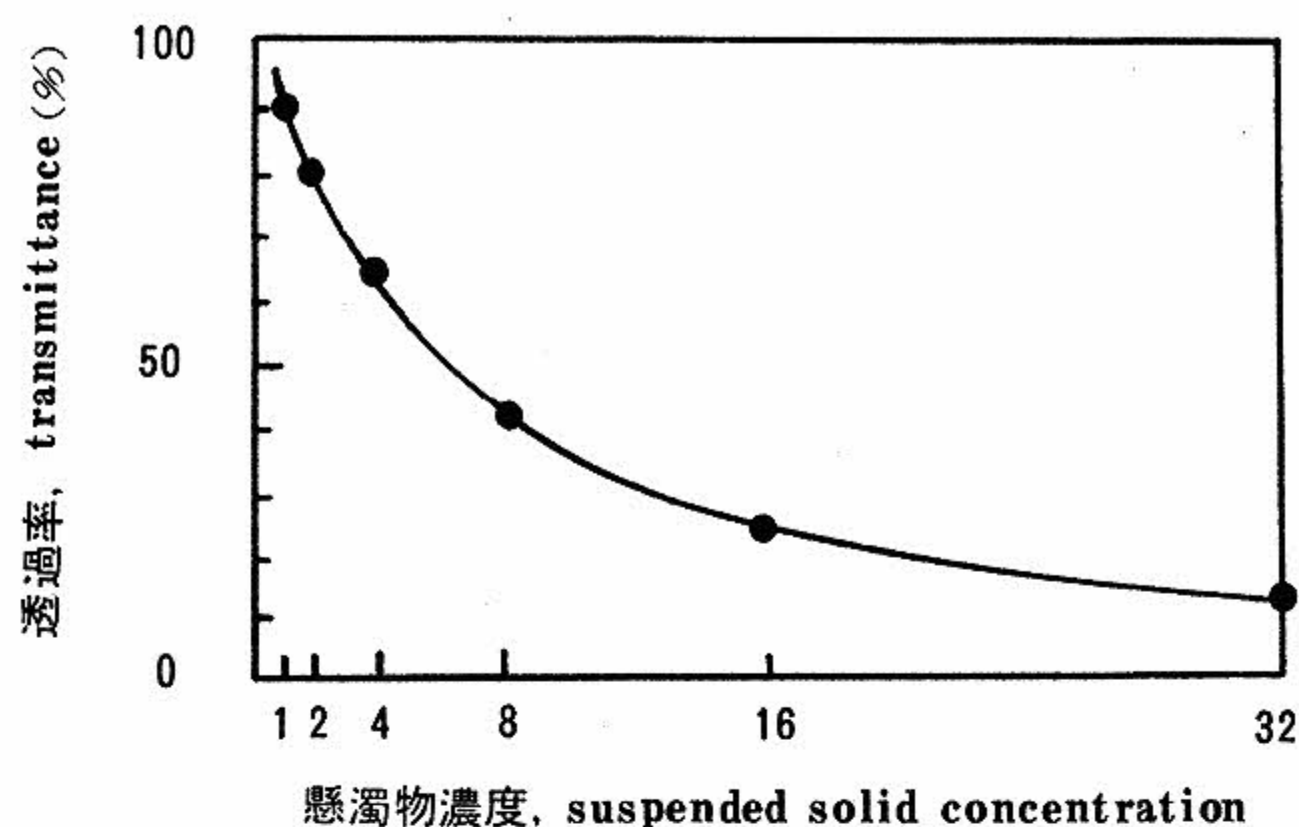


図6 500 nm における懸濁物濃度と透過率の関係

Relation between suspended solid concentration and transmittance per 30 cm at 500 nm wave-length

図7は波長500 nmにおける懸濁物濃度とオプティカル デンシティの関係を示す。

図6の懸濁物濃度と透過率の関係からは得られない知見が、図7では得られる。すなわち、濃度8以下では、ODと濃度が直線的関係を示しているのに対し、8よりも高い濃度ではODの増大が鈍化し、徐々にこの直線からのずれが大きくなっている。一方、(16)式では定数であり、反射率 R_{∞} は図3に示す形状をしていることから、結局、ODの増加の鈍化に対して、散乱係数 S の増大の割合の鈍化が最も寄与していることが明らかであり、多重散乱が濃度とともに大きくなっていると考えてよいであろう。

5. あとがき

この研究によって、懸濁液を透過する光の散乱が濃度の影響を強く受けることが認められた。光の吸収は、特に顕著な濃度依存性は認められなかった。一般には、懸濁系の光学的取扱いで散乱によって平均光路長が増加し、吸収もその影響を受けることは今や通則である。吸収の変化と直接結びつけることができるパラメーターを用いて、詳細に調べる必要がある。

本研究では、粘土鉱物懸濁液について測定を行った。さらに生物性懸濁物、特に植物プランクトンに富む海水の懸濁液について測定し、この測定結果と比較することは意義がある。

また本研究では比較的高濃度の範囲の懸濁液に

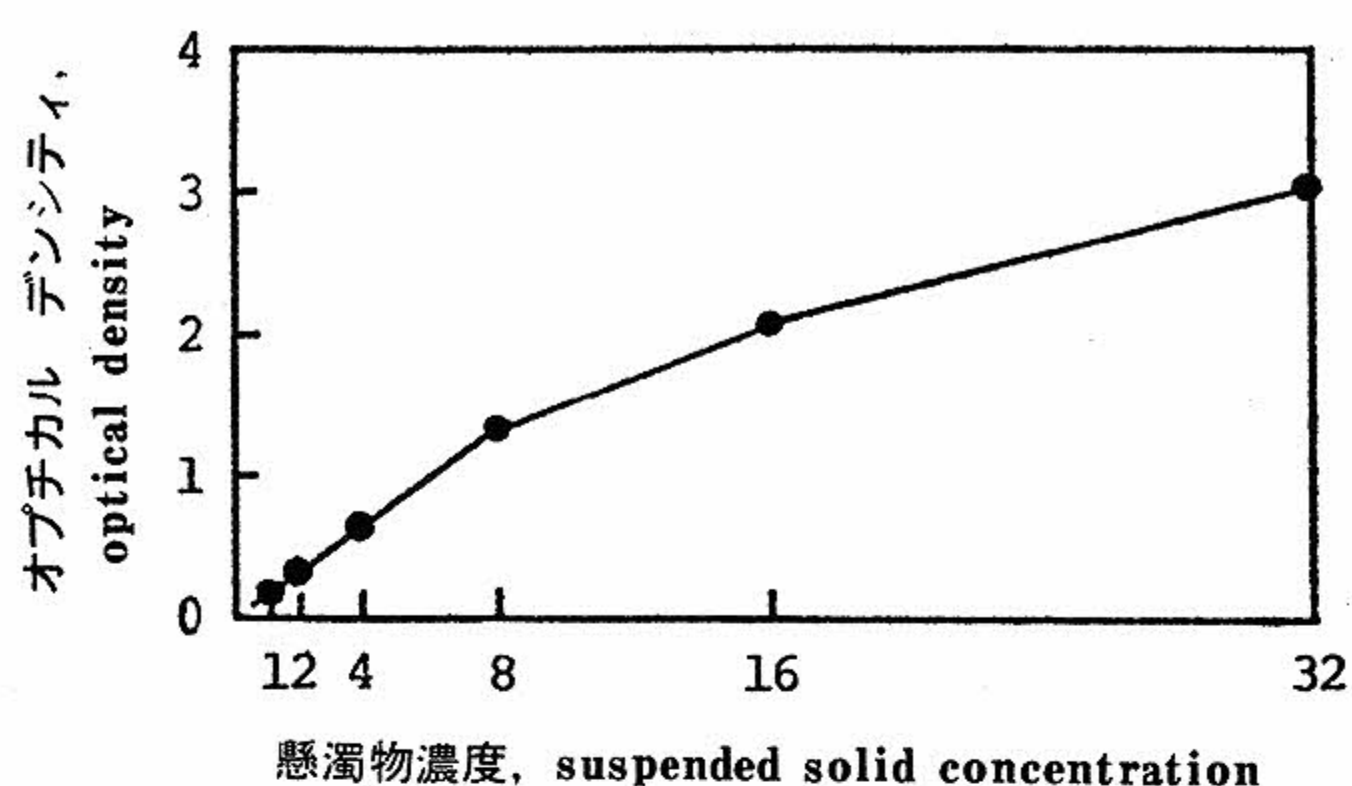


図7 500 nm における懸濁物濃度とオプティカル デンシティの関係

Relation between suspended solid concentration and optical density at 500 nm wave-length

ついて測定を行った。さらに低濃度では懸濁液の光学特性が異なることが十分考えられ、これについては光学モデルの検討を含めて、今後、さらに研究したい。

文 献

- (1) Atkins, J.T., 1965, "The absorption scattering of light in turbid media", University of Delaware, Ph. D., 1965, chemistry Physical, University Microfilms Inc., Ann Arbor, Michigan.
- (2) Billmeyer, Jr., F.W. Abrams, R. L., 1973, "Predicting reflectance and color of paint films by Kubelka-Munk analysis, I. Turbid medium theory", J. Paint Tech. 45 (579) 23
- (3) Billmeyer, Jr., F.W. Phillips, D. G., 1976, "Predicting reflectance and color of paint films by Kubelka-Munk analysis, IV. Kubelka-Munk scattering coefficient", J. Paint Tech. 48 (616) 30
- (4) Butler, W.L., 1962, "Absorption of light by turbid materials", J. O. S. A. 52 (3) 292
- (5) Caldwell, B.P., 1968, "Kubelka-Munk coefficients from transmittance", J. O. S. A. 58 (6) 755
- (6) Duntley S.Q., 1942, "The optical properties of diffusing materials", J.O.S.A. 32 (2) 61
- (7) Kubelka P. Munk F., 1931, "Ein Beitrag zur Optik der Farbanstriche", Zeitschr. für techn. Physik (12) 593

(8) Kubelka P., 1948, "New contributions to the optics of intensely light-scattering materials, Part I", J.O.S.A. 38 (5)

(9) 佐々木保徳, 宗山敬, 1979, "高懸濁物質濃度の海水の光学特性 (第4報), 生物性懸濁物と

非生物性懸濁物の光学特性の比較" JAMSTECTR 4, 181

(10) 佐々木保徳, 宗山敬, 江村 男, 1979, "反射率測定による海水, 海底の光学定数測定第2報" JAMSTECTR 3, 110