

論 文

凍結過程にある不飽和砂中の水分移動と透水係数に 溶質が及ぼす影響

渡 辺 晋 生^{1*}, 和 気 朋 己¹

要 旨

寒冷地の物質循環の予測や農地の施肥管理の効率化には、凍結にともなう土中の水分移動や水理特性に与える土中水中の溶質の影響を考慮する必要がある。そこで本論では、純水あるいは 0.1 M の NaCl 溶液を混合した鳥取砂丘砂を 35 cm の鉛直カラムに詰め、上端から凍結した。そして、凍結過程にある砂中の温度、水分、溶質濃度分布の変化を観測した。その結果、溶質によって未凍結領域から凍結領域への水分移動が抑制され凍結深の進行が促進されること、溶質が移流によって凍結領域に蓄積することが確認された。また、毛管モデルを凍結砂に応用し、凍土の透水係数が間隙氷の成長により低下すること、不凍水量-透水係数関係が溶質の影響を受けないことを示した。

キーワード：凍土、不凍水、水分・溶質移動、カラム実験、毛管モデル

Key words: frozen soil, unfrozen water, water and solute transport, column experiment, capillary bundle model

1. はじめに

凍結にともなう未凍土から凍土への水分移動や、凍土の融解をとともなう地表からの降水や融雪水の浸透は、土中の溶質移動を引き起こす。こうした水分・溶質移動は、寒冷地の水収支や農地の水分・栄養塩の再分布 (Cary *et al.*, 1979; Gray and Granger, 1986; Baker and Spaans, 1997) だけでなく、表面流去水による土壌侵食 (Singh *et al.*, 2008) や河川の水質低下 (Shanley and Chalmers, 1999)、凍土下の微生物活性の変化や温室効果ガス放出のタイミング (Yanai *et al.*, 2011) などに影響を及ぼす。また、凍土中の不凍水量や氷の分布は溶質濃度に依存する (Watanabe and Mizoguchi, 2002)。このため、温度の等しい凍土であっても、強度や熱伝導率、透水性などの物性は凍土の溶質濃度によって異なる (土質工学会, 1994)。そこで、溶質を含む土の凍結・融解過程を考える際には、

水分・溶質移動と水分移動特性の変化を同時に評価することが重要である。

凍結融解にともなう溶質を含む土中の水分・溶質再分布については、多くの先行研究がある。例えば、室内実験により、凍結面における溶質の吐出量や凍土の溶質濃度の低下が土質や含水率、溶質の種類や濃度、凍結速度や方向に依存すること、未凍土と凍土の溶質濃度の差が有効分配係数で概ね表現できることなどが示されている (溝口ら, 1986; Baker and Osterkamp, 1989; 八木ら, 1991; Watanabe *et al.*, 2001; Gay and Azouni, 2003; Bing and He, 2008)。一方、これらの実験は同一温度条件下で異なる時間凍結した試料を切り分けることで各時間の溶質分布を測定しており、経時的な溶質移動を論ずるに至っていない。Stähli and Stadler (1997) は、砂やロームの土カラムに TDR を挿入し、凍結融解時の不凍水量と溶質濃度の経時変化を測定した。そして、溶質移動が凍結初期は移流に依存し、濃度分布が形成されるにつれ拡散により再分布することを提示した。しか

¹ 三重大学大学院 生物資源学研究所

〒514-0081 津市栗真町屋町 1577

* 連絡先

しながら, いずれの実験においても凍結時の土の透水係数の変化については明らかにされていない。

凍土の透水係数は, 温度の低下とともに急激に低下する. 溶質を含まない凍土の透水係数については, 0°C 近辺に限られてはいるもののいくつかの実測例 (Burt and Williams, 1976; Horiguchi and Miller, 1983) がある. より広い温度範囲の凍土の透水係数については, 水の代わりに油や有機溶媒を用いた透液試験 (Andersland *et al.*, 1996; Wiggert *et al.*, 1997; McCauley *et al.*, 2002) や通気試験 (Seyfried and Murdoc, 1997) からの推定例があるが, 溶質の影響を評価した例は少ない. また, 凍土の透水係数の低下は, 不凍水量の低下にともなう通水断面の減少や不凍水の粘性の低下, 間隙水による通水流路の遮断などに起因すると考えられる. Jame and Norum (1980) や Lundin (1990) は水量の指数関数で表される抑制係数を未凍土の不飽和透水係数に積算し凍土の透水係数を表すモデルを提案しているが, Newman and Wilson (1997) や渡辺ら (2010) は数値解析に基づき抑制係数を用いる計算の問題点を指摘している. そして, Watanabe and Flury (2008) は毛管モデルを拡張し, 抑制係数を使用することなく不飽和凍土の透水係数を表した. しかしながら, 溶質を含む不飽和凍土の透水係数を説明するモデルは未だなく, このため, 凍結過程の水分移動を扱える数値計算コードが開発されているものの (例えば, Zhao *et al.*, 1997; Stähli *et al.*, 1999; Hansson *et al.*, 2004; Flerchinger *et al.*, 2006), 溶質の再分布の正確な解析に問題点を残している.

そこでここでは, カラム凍結実験により塩を含む不飽和砂中の凍結にともなう水分・溶質移動を観察する. そして, その際の不飽和透水係数を算出し, 溶質を含む凍土の毛管モデルとともに評価することを目的とする.

2. 試料と方法

鳥取砂丘砂を脱イオン水で洗浄し, 試料とした. 吸引法, 加圧板法, 鏡面冷却露点式水ポテンシャル計で測定した試料の水分特性曲線 (体積含水率 $\theta \text{ m}^3 \text{ m}^{-3}$ とマトリックポテンシャル水頭 $h \text{ cm}$ の関係) を図 1 に示す. 図中, 実線は式 (1) の Durner (1994) のモデルで表した適合曲線である.

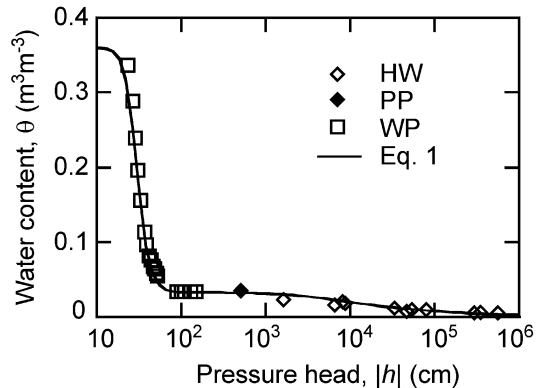


図 1 鳥取砂丘砂の水分特性曲線. HW は吸引法, PP は加圧板法, WP は鏡面冷却露点式水ポテンシャル計による測定値. 実線は式 (1) による適合曲線.

$$S_e = w_1 [1 + (\alpha_1 |h|)^{n_1}]^{-m_1} + w_2 [1 + (\alpha_2 |h|)^{n_2}]^{-m_2} \quad (1)$$

ここで, $S_e = (\theta - \theta_r) / (\theta_s - \theta_r)$, $m = 1 - n^{-1}$, $w_1 = 1 - w_2$ であり, θ_s と θ_r は飽和および残留体積含水率, α と n は適合パラメータ, w_2 は重み係数である. 鳥取砂丘砂の土粒子密度は 2.67 Mg m^{-3} , 平均粒径と均等係数は 0.35 mm , 1.70 である. 鳥取砂丘砂は豊浦砂とは異なり粒径にばらつきがあり, わずかながらも細粒分を含む. それゆえ, 豊浦砂より水分特性曲線の傾きが緩く, より一般的な砂試料といえる. また, こうした水分特性曲線は数値解析にも有利であることから, 鳥取砂丘砂を本研究の試料に選定した.

純水あるいは 0.1 M の NaCl 溶液を混合した試料を, 乾燥密度 $\rho_b = 1.45 \text{ Mg m}^{-3}$, 含水率 $\theta = 0.15 \text{ m}^3 \text{ m}^{-3}$ になるように, 内径 78 mm , 高さ 350 mm , 壁厚 10 mm のアクリル円筒に 25 mm 深ずつ順に充填した. T 型熱電対とプローブ長 75 mm の TDR を 50 mm 深間隔でアクリル円筒壁面より試料に挿入し, 試料上下端に温度制御ブロックを設置した. 図 2 に装置の概要を示す. 装置を 3°C の低温室に 24 h 以上静置することで, 試料に初期温度分布と水分分布を与えた. 試料の壁面を厚さ 30 mm のガラス繊維で断熱した. そして, 試料上下端の制御ブロックの温度をそれぞれ -8°C と 2°C に保持し, 試料を上端より下方へ凍結した. この際, 試料上下端からの給排水はなしとした.

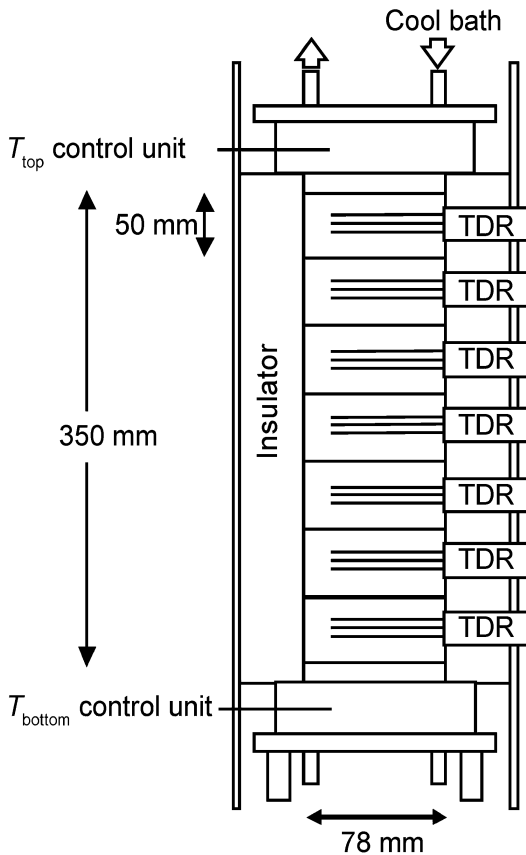


図 2 装置の概要.

実験は 4 連で行い, 異なる経過時間 (0, 6, 24, 48 h) においてそれぞれの試料を 50 mm 深間隔に切り分け, 炉乾燥により試料の全水量 θ_T 分布を求めた.

実験中, 熱電対により各深さの温度を, TDR により土の (見かけの) 比誘電率 ϵ_r と電気伝導度 EC_a をそれぞれモニターした. 各深さの ϵ_r より, 液状水量 (0°C 以下では不凍水量 θ_l) を Watanabe and Wake (2009), 渡辺ら (2010) の検量モデルに基づき求めた. そして, 全水量 θ_T と不凍水量 θ_l の差から含水量 θ_i を求めた. 電気伝導度は水と氷で大きく異なり, また温度依存性, 溶質濃度依存性を持つ. そこで, 異なる濃度の NaCl 溶液で様々な含水率に調整した砂試料の EC_a を $-10^\circ\text{C} \sim 5^\circ\text{C}$ の範囲で前もって測定し, 各温度における EC_a と試料の溶質濃度 ($= C_a \rho_b + C \theta_l + C_i \theta_i$) の関係を求めた. 氷から溶質は全て吐き出され (氷の溶質濃度 $C_i = 0$), 砂表面に溶質は吸着しない (吸

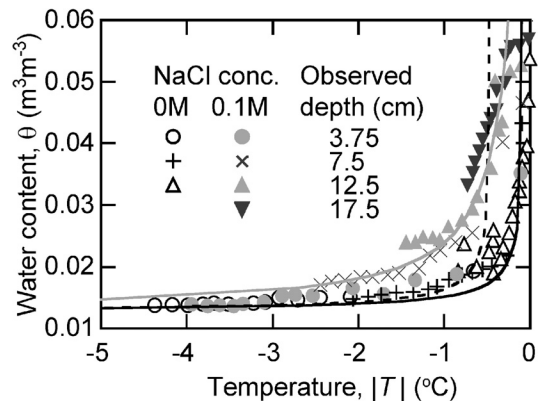


図 3 カラム実験から求めた鳥取砂丘砂の不凍水量曲線. 濃淡のプロットはそれぞれ溶質を含まない試料と 0.1 M の NaCl 溶液を含む試料の各深さで測定した値. 濃淡の実線はそれぞれ溶質を含まない場合に式 (2) を, 0.1 M 溶液を含む場合に式 (3) を用い, 毛管モデルで推定した不凍水量曲線. 破線は濃実線を 0.37°C 低温側に平行移動した曲線.

着量 $C_a = 0$) と仮定できる場合は, 試料の溶質濃度から液状水 (不凍水) θ_l の溶液濃度 C を求められる.

3. 結果

3.1 不凍水量

凍結過程において連続的に測定した, 試料各深さの不凍水量 θ_l と温度 T の関係 (不凍水量曲線) を図 3 に示す. 溶質を含まない試料の液状水量 (不凍水量) は 0°C 以下になると急激に減少し, その後温度低下とともになだらかに減少を続け, -2°C で $-0.015 \text{ m}^3 \text{ m}^{-3}$ 程度となった. また, 深さが異なると全水量 (0°C 以上の液状水量) は異なったが (後述の図 5), $\theta_l - T$ 関係はほぼ同一の不凍水量曲線で表せた.

0.1 M の NaCl 溶液を加えた試料は溶質を含まない試料に比べ, 同一温度でも不凍水量が多くなった. この不凍水量曲線は, 溶質を含まない試料の不凍水量曲線を 0.37°C ($\approx 0.1 \text{ M}$ のバルクの NaCl 溶液の凝固点降下) 低温側に平行移動した曲線と概ね一致した. また, 測定深が深くなるほど, 不凍水量曲線の低温側への変移が顕著になった.

3.2 温度, 水分量, 溶質分布

図 4 に凍結開始後 6 h と 48 h 経過時の試料内の

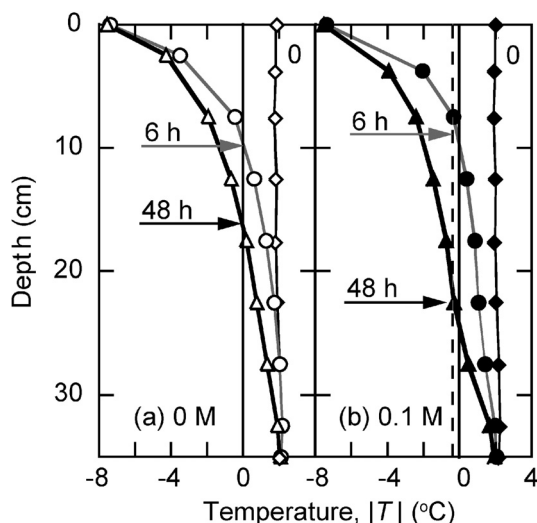


図 4 (a) 溶質を含まない試料と (b) 0.1 M の NaCl 溶液を含む試料の凍結開始後 0, 6, 48 h の温度分布. 矢印は各時間の 0°C 面の位置, (b) の破線は -0.37°C .

温度分布を示す. 初期温度は試料全深さで概ね 3°C (=室温) と一定であった. 温度制御を開始すると, いずれの試料についても上下端の温度は速やかに制御温度に達した. 実験中, 4 連の試料の各深さの温度差は $\pm 0.2^{\circ}\text{C}$ 以内であり, 4 つの試料カラムがほぼ同様に凍結していることが確認できた. また, アイスレンズの発生や試料カラムの体積変化はみられなかった.

凍結を開始すると, 0°C 面が初期に急激にその後なだらかに進行し, 溶質を含まない試料では, 6 h で 97 mm 深, 48 h で 160 mm 深にそれぞれ達した. 0.1 M の NaCl 溶液を含む試料についても, 0°C 面は 6 h で 91 mm 深となった. しかし, その後の 0°C 面の進行速度は溶質を含まない場合より速く, 0°C 面は 48 h で 225 mm 深に達した. これは, NaCl により氷の生成量が抑えられ, 凍土内で発生する潜熱が減少したことによる.

図 5a に凍結開始後 6 h と 48 h 経過時 (図 4 と同時刻) の溶質を含まない試料内の水分分布を示す. 図中の矢印は各時間の 0°C 面の位置を示す. また, 実線は炉乾法で測定した全水量, 破線は TDR で測定した不凍水量であり, その差は水量を示す. 炉乾法で求めた未凍結領域の全水量が, TDR で測定した水分量一致したことから, TDR

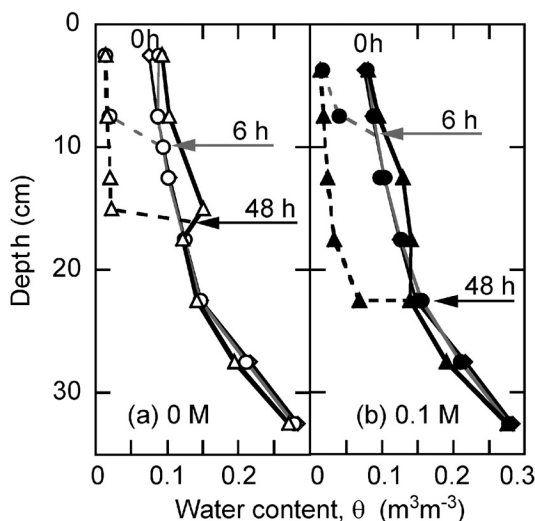


図 5 (a) 溶質を含まない試料と (b) 0.1 M の NaCl 溶液を含む試料の凍結開始後 0, 6, 48 h の水分分布. 矢印は各時間の 0°C 面の位置, 実線は炉乾法で測定した全水量, 破線は TDR で測定した不凍水量.

による水分測定の妥当性が確認できた. 試料の初期水分量は上端で $0.1\text{ m}^3\text{ m}^{-3}$ 未満, 下端で 0.3 程度と下方ほど多くなった. これは試料各深さに相当する圧力 (マトリックポテンシャル) 水頭差と図 1 の関係とよく一致した (重力分布). 実験中, 4 連の試料の各深さの比誘電率の差は ± 0.5 以内 (θ で $\pm 0.01\text{ m}^3\text{ m}^{-3}$ に相当) だった.

試料端面の温度制御を開始し, 試料が上端より凍結すると, 下方の未凍結領域から上方へ水分移動が生じ, 凍土内の全水量が増加した. この際, 不凍水量は温度低下にともない減少した. 凍結が進行するにつれ, 未凍土内の水分量は減少し, 凍結面近傍の水量は増大した. この結果, 凍結面上下の凍土と未凍土の全水量の差は大きくなった. また, 凍結面近傍では 0°C 以下の凍土においてもわずかではあるが全水量の増加が継続した. 試料は, 0°C 以下においても $0.1\text{ m}^3\text{ m}^{-3}$ 以下ではあるが不凍水を保持しており, これが通水流路になっていると考えられる.

溶質を含む試料についても, 溶質を含まない試料と同様の初期水分分布が与えられた (図 5b). 試料が溶質を含む場合も温度低下にともない不凍水量が減少したが, 溶質を含まない場合に比べ,

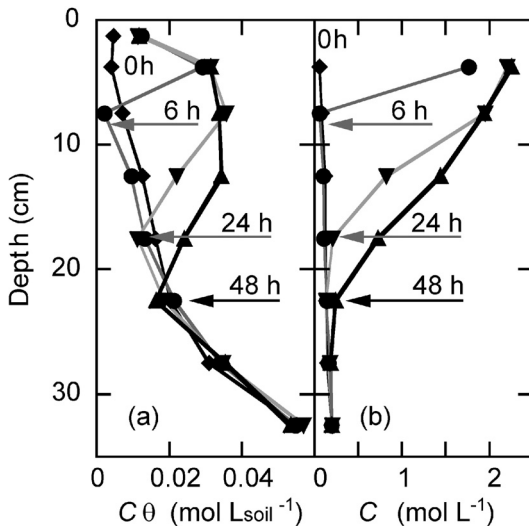


図 6 0.1 M の NaCl を含む試料中の (a) 全溶質濃度 $C\theta$ (b) 土中水の溶液濃度 C . 矢印は各時間の 0°C 面の位置.

凍結は深くまで進行した。また、凍土内の全水量の増加や凍結面における水分フラックス（時間当たりの水分移動量）は少なくなった。溶質が加わることで、凍結面近傍の圧力勾配が小さくなったと考えられる。

図 6a に、凍結の進行にともなう 0.1 M の NaCl を含む試料中の試料全体の溶質分布の変化を示す。図中矢印は、各時間の 0°C 面の位置である。全溶質濃度 $C\theta$ は凍土内で最大となり、凍結面近傍の未凍土で極小となった。また全溶質分布は水分分布の形状と類似し、既往の研究（溝口ら, 1986; Baker and Osterkamp, 1989; 八木ら, 1991）にみられる結果とも同様の傾向を示した。移流により凍土内に溶質が移動したと考えられる。

ここで、溶質が氷から不凍水へ全て吐き出されると仮定し、土中の液状水中の溶液濃度分布 C を求めた（図 6b）。この場合、不凍水中の溶液濃度が初期濃度の数倍から数十倍まで高くなった。この際の凝固点は -5°C 程度まで降下することになるが、実際の不凍水量曲線（図 3）ではこうした凝固点降下は見られなかった。従って、凍土内の溶質は全て不凍水中へ吐き出されるのではなく、一部は氷に取り込まれ、一部は間隙水の結晶粒界に局所的に高濃度の不凍水として保持されるなどし

て、微視的には不均一に分布しているといえる。

4. 考察

4.1 凍土の不凍水量

土中間隙を、径の異なる毛管の束と考えるモデルを毛管モデルと呼ぶ。毛管モデルは実際の土中水の流路網とは幾つかの点で異なるが、実際の土と同じ性質を多く持つため、土中の水分保持や水分移動と間隙形状の関係を理解するのに有用である（Jury and Horton, 2004）。いま、それぞれ長さが L_c の毛管からなる流路をねじって、長さ $L < L_c$ 、断面積 A の土カラムになるように束ねる。次に、図 1 の水分特性曲線を一定の水分量間隔 $\Delta\theta$ で分割する。水分量 θ の段階的な減少に対応するマトリックスポテンシャル水頭 $h_f = h(\theta_s - J\Delta\theta)$ は式 (1) から求められる。ここで、 θ_s は飽和含水率、 $J = 1, 2, 3, \dots, M$ である。各マトリックスポテンシャル h_f に対応する毛管の半径はラプラス式から $R_f = -2\gamma\cos\phi/\rho_w g h_f$ となり、単位断面積当たりの毛管の本数は $n_f = \Delta\theta/\pi R_f^2$ となる。ここで、 γ は水の表面張力、 ϕ は土と水の接触角であり、粘土の場合 15° 程度（Shang *et al.*, 2010）、 ρ_w は水の密度、 g は重力加速度である。

ところで、毛管内の壁面近傍の水は、 0°C 以下に冷やされても毛管壁面の表面力により凍結しない。表面力に van der Waals 力のみを考えた場合、温度 T と凍結しない水膜の厚さ d の関係は式 (2) で表される（Dash *et al.*, 1995）。

$$T_m - T = -\frac{AT_m}{6\pi\rho_i L d^3} \quad (2)$$

ここで、 T_m は水の融点、 A はハマーカー定数、 ρ_i は氷の密度、 L_f は融解の潜熱である。また、表面が帯電している場合、電気的引力は表面近傍の水に含まれる溶質濃度によって変化する。Wettlaufer (1999) は、一価の不揮発性イオンを一種のみ含む場合の水膜の厚さ d と温度 T の関係を式 (3) のように導いている。

$$T_m - T = \frac{T_m}{\rho_i L_f} \left[\frac{RT_m N_i}{d} - \frac{A}{6\pi d^3} - \frac{\Delta\gamma c}{2} \sqrt{\frac{N_i}{d}} \left(1 + \frac{\sigma}{d} \right) \exp \left(-c \sqrt{\frac{N_i}{d}} (d - \sigma) \right) \right] \quad (3)$$

ここで、 R はガス定数、 N_i は単位断面積当たりの

イオンのモル数, $\Delta\gamma$ は固液界面と気液界面の自由エネルギー差, σ はカットオフ距離, $c = e(\epsilon kT)^{-1/2}$ であり e は電気素量, ϵ は水膜の誘電率, k はボルツマン定数である。また, 成長可能な氷核の最小径は温度によって異なる。毛管中央で円柱状に成長する氷の場合, その半径 r_{GT} はギブストムソン効果とモル凝固点降下により式 (4) で表される

$$r_{GT} = \frac{\gamma_{iw}}{\rho_s} \left(\frac{T_m - T}{T_m} L_i - \frac{iRC}{\rho_l} \right)^{-1} \quad (4)$$

ここで, γ_{iw} は氷水界面の自由エネルギー, i は解離定数である。従って, 半径 R_j の毛管に含まれる氷の半径 r_{ij} は $R_j - d < r_{GT}$ のとき 0 となり, $R_j - d \geq r_{GT}$ のとき $r_{ij} = R_j - d$ となる。そして, 不凍水量は全水量 θ_T から氷量 θ_i を引くことで求められる。

$$\theta_i = \theta_T - \theta_l = \pi \sum_{j=1}^M n_j (R_j^2 - r_{ij}^2) \quad (5)$$

図 3 に図 1 の水分特性曲線と毛管モデルで求めた不凍水量曲線を示す。溶質を含まない場合は, 毛管壁面の不凍水膜厚を式 (2) で, 0.1 M の溶質を含む場合は式 (3) でそれぞれ表した。また, 図 3 には溶質を含まない場合の毛管モデルの不凍水量曲線を 0.1 M の凝固点降下分 (0.37°C) 平行移動した不凍水量曲線も破線で併記した。式 (2) に基づく不凍水量曲線は溶質を含まない試料の実測値とよく一致した。それゆえ, 毛管モデルは溶質を含まない試料のカラム実験の結果をよく再現するとみなせる。

溶質を含む場合は, 式 (2) に基づく不凍水量曲線を平衡移動した曲線より式 (3) に基づく不凍水量曲線の方がより実測値を再現した。ほとんど溶質を吸着しない砂のような土の不凍水量を考える場合であっても, モル凝固点降下だけではなく, 荷電の影響も考慮すべきと言える。また, 実測値において測定深が深くなるほど, 不凍水量曲線の低温側への変移が顕著になったのは, 溶質の再分布により下方ほど, 土中水の溶液濃度が高くなったためと考えられる。

4.2 凍土の透水係数

水蒸気と氷の移動を無視できる場合, 凍結過程にある不飽和土中の水分移動はリチャーズ式に氷量変化と温度勾配による移動項を加えることで表

現できる (例えば, Hansson *et al.*, 2004; 渡辺ら, 2007)。

$$\begin{aligned} \frac{\partial \theta}{\partial t} + \frac{\rho_l}{\rho_i} \frac{\partial \theta_i}{\partial t} \\ = \frac{\partial}{\partial z} \left(K(h) \frac{\partial h}{\partial z} + K(h) + K(h) \gamma h \frac{\partial T}{\partial z} \right) \end{aligned} \quad (6)$$

ここで, $K(h)$ は土の (0°C 以下では凍土の) 不飽和透水係数である。式 (6) 右辺の括弧内は水分フラックス q_w を表しており, 液状水量と氷量の変化から求めることができる。従って, 土中水の圧力 (マトリックポテンシャル) と温度勾配を測定すれば, 不飽和透水係数 $K(h)$ を式 (7) から評価できる。

$$K(h) = - \frac{q_w}{\frac{\Delta T}{\Delta z} \gamma h + \frac{\Delta h}{\Delta z} + 1} \quad (7)$$

未凍土の h は図 1 の水分特性曲線に図 5 の水分分布を代入することで得られる。また, 凍土の h は凍結速度が遅い時はクラウドスクリペロンの式と浸透圧から式 (8) で求められることが確認されている (Watanabe *et al.*, 2012)。

$$h = \frac{L_i}{g} \ln \frac{T_m - T}{T_m} - \frac{iCRT}{\rho g} \quad (8)$$

図 7 にカラム実験の結果と式 (7) から求めた砂の不飽和透水係数を示す。未凍結砂の透水係数は高水分量領域では水分低下にともないなだらかに, 低水分領域では急激に減少した。一般に, カラムや時間の差分の影響を強く受けるため, 式 (7) による不飽和透水係数の推定精度は高くない。しかしながら, 求めた透水係数が蒸発法による透水係数の推定値 (坂井・取出, 2007) とともよく一致したことから (図 7), ここでは用いた空間と時間差分 (6~24 h, 5 cm) により, 砂の不飽和透水係数を式 (7) で妥当に評価できたとみなした。凍結砂については, 未凍結砂にくらべ不凍水量の減少にともなう透水係数の低下が緩やかになった。また, 砂が溶質を含んでも, 凍土の不飽和透水係数に溶質を含まない場合との差違はみられなかった。

ところで, 毛管モデルでは凍土の透水係数は式 (9) で表される (Watanabe and Flury, 2008)。

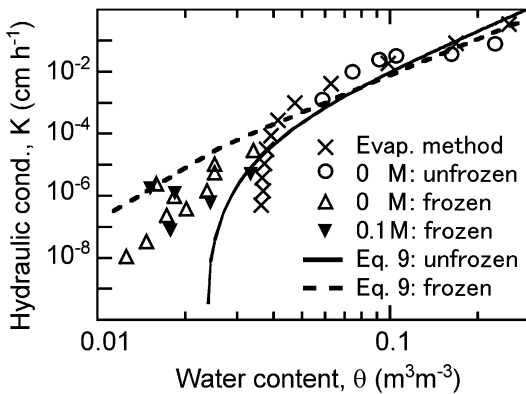


図 7 砂中の液状水量と不飽和透水係数の関係。
○, △, ▼ は式 (7) により算出した。

$$K(\theta_s - J\Delta\theta) = \frac{\xi \rho_w g \pi}{8\eta} \sum_{j=1}^M n_j \left[R_j^4 - r_{ij}^4 + \frac{(R_j^2 - r_{ij}^2)}{\ln(r_{ij}/R_j)} \right] \quad (9)$$

ここで、 $\xi = L/L_c$ は屈曲度である。図 7 に式 (9) による不飽和透水係数曲線を示す。この際、屈曲度は蒸発法により推定した不飽和透水係数曲線に未凍結時 ($r_i = 0$) の式 (9) が一致するように与えた ($\xi = 0.015$)。式 (9) で求めた透水係数は未凍結時には、水分量が 0.1 以上のときはなだらかに、0.1 以下のときは急激に低下した。しかし、温度が 0°C 以下 (不凍水量は 0.1 以下) に低下すると、式 (7) による実測値同様、透水係数が等量の液状水を持つ未凍結砂より高くなった。これは、毛管の中心に氷が成長し水分流れが環状流れに変わったことで、透水係数の低下に対する不凍水の低下量が多くなったためである (Watanabe and Flury, 2008)。こうした氷の成長による通水流路の形状変化が、粗粒間隙を含まない場合の凍土の透水係数を決定していると考えられる。また、凍土の毛管モデルにおいては溶質の影響は不凍水膜厚の式 (3) と最小の水径の式 (5) に反映されるが、これらは水分量と透水係数の関係自体には影響を及ぼさない。このため、式 (7) による結果と同様、溶質の有無に関わらず凍結砂の不凍水量—透水係数関係は一致した。すなわち、溶質の有無により温度と不凍水量の関係は異なるが、不凍水量が同じ (温度は異なる) 凍土の透水係数は一致するといえる。

5. おわりに

凍結過程にある不飽和砂中の水分移動と透水係数に、溶質が与える影響を明らかにすることを目的に、NaCl を含む砂の一次元カラム凍結実験を行った。その結果、溶質が加わることで潜熱の発生が抑えられ、砂中を 0°C 面が深くまで進行するようになること。この際、凍結面近傍の圧力勾配が小さくなり、未凍結砂から凍結砂への水分移動も少なくなることが示された。不凍水量曲線については溶質による凝固点降下で低温側へシフトすること、こうした不凍水量曲線の変化を毛管モデルでよく表現できることが確認された。凍結砂の透水係数については、凍結 (不凍水量の減少) にともない低下したが、等量の水分量を持つ未凍結砂より高くなった。また、溶質が加わっても不凍水量—透水係数関係は不変であった。これは、間隙中で成長した氷により、土中の通水流路の形状が変化したためと考えられる。今後は吸着性の土についても水分移動や透水係数に与える溶質の影響を評価し、モデルを数値計算コードに組み込む形に改良することが必要である。

謝 辞

本研究の一部は、科学研究費補助金 (23580328) による。

文 献

- Andersland, O. B., D. C. Wiggert and S. H. Davies, 1996: Hydraulic conductivity of frozen granular soils. *J. Environ. Eng.*, **122**, 212–216.
- Baker, G. C. and T. E. Osterkamp, 1989: Salt redistribution during freezing of saline sand columns at constant rates. *Water Resour. Res.*, **25**, 1825–1831.
- Baker, J. M. and E. J. A. Spaans, 1997: Mechanics of meltwater movement above and within frozen soil. *Int. Symp. Phys., Chem., Ecol. Season. Frozen Soils*, edited by I. K. Iskander, E. A. Wright, J. K. Radke, B. S. Sharratt, P. H. Groenevelt, Hanover, U.S.A CRREL, 31–36.
- Bing, H. and P. He, 2008: Experimental study of water and salt redistribution of clay soil in an opening system with constant temperature. *Environ. Geol.*, **55**, 717–721.

- Burt, T. P. and P. J. Williams, 1976: Hydraulic conductivity in frozen soils. *Earth Surf. Processes*, **1**, 349-360.
- Dash, J. G., H. Fu. and J. S. Wettlaufer, 1995: The pre-melting of ice and its environmental consequences, *Rep. Prog. Phys.*, **58**, 115-167.
- 土質工学会編, 1994: 土の凍結—その理論と実際. 東京, 土質工学会, 310 pp.
- Durner, W. 1994: Hydraulic conductivity estimation for soils with heterogeneous pore structure. *Water Resour. Res.*, **30**, 211-233.
- Cary, J. W., R.I. Pafendick. and G. S. Campbell, 1979: Water and salt movement in unsaturated frozen soil: Principles and field observations. *Soil. Sci. Soc. Am. J.*, **43**, 3-8.
- Flerchinger, G. N., M. S. Seyfried and S. P. Hardegree, 2006: Using soil freezing characteristics to model multi-season soil water dynamics. *Vadose Zone J.*, **5**, 1143-1153.
- Gay, G. and M. A. Azouni, 2003: Experimental study of the redistribution of heavy metals contaminants in coarse-grained soils by unidirectional freezing. *Cold Reg. Sci. Technol.*, **37**, 151-157.
- Gray, D. M. and R. J. Granger, 1986: In situ measurements of moisture and salt movement in freezing soils. *Can. J. Earth Sci.*, **23**, 696-704.
- Hansson, K., J. Šmúnek, M. Mizoguchi, L. C. Lundin and M. Th. van Genuchten, 2004: Water flow and heat transport in frozen soil: Numerical solution and freeze-thaw applications. *Vadose Zone J.*, **3**, 693-704.
- Horiguchi, K. and R. D. Miller, 1983: Hydraulic conductivity of frozen earth materials. *Proc. 4th Intl. Conf. Permafrost* Washington, D.C., Natl. Acad. Press, 504-509.
- Jame, Y. W. and D. I. Norum, 1980: Heat and mass transfer in freezing unsaturated porous media. *Water Resour. Res.*, **16**, 811-819.
- Jury, W. A. and R. Horton, 2004: Soil Physics, 6th ed., Hoboken, John Wiley, 370 pp.
- Lundin, L.C., 1990: Hydraulic properties in an operational model of frozen soil. *J. Hydrol.*, **118**, 289-310.
- McCauley, C. A., D. M. White, M. R. Lilly and D. N. Nyman, 2002: A comparison of hydraulic conductivities, permeabilities and infiltration rates in frozen and unfrozen soils. *Cold Reg. Sci. Technol.*, **34**, 117-125.
- 溝口 勝, 中野政詩, 白井清恒, 1986: 不飽和土の凍結における水分・溶質・温度分布の変化. 農木論集, **122**, 11-17.
- Newman, G. P. and G. W. Wilson, 1997: Heat and mass transfer in unsaturated soils during freezing. *Can. Geotech. J.*, **34**, 63-70.
- 坂井 勝, 取出伸夫, 2007: 砂質土と団粒土に対する水分移動特性関数の検討. 土壌の物理性, **107**, 63-77.
- Seyfried, M. S. and M. D. Murdock, 1997: Use of air permeability to estimate infiltrability of frozen soil. *J. Hydrol.*, **202**, 85-107.
- Shang, J., M. Flury, J. B. Harsh and R. L. Zollars, 2010: Contact angles of aluminosilicate clays as affected by relative humidity and exchangeable cations. *Colloids Surf. A. Physicochem. Eng. Asp.*, **353**, 1-9.
- Shanley, J.B. and A. Chalmers, 1999: The effect of frozen soil on snowmelt runoff at Sleepers River, Vermont. *Hydrol. Process.*, **13**, 1843-1857.
- Singh, P., J., J. Q. Wu., D. K. McCool, S. Dun, C. H. Lin and J. R. Morse, 2008: Winter hydrologic and erosion processes in the U.S. Palouse region: Field experimentation and WEPP simulation. *Vadose Zone J.*, **8**, 426-436.
- Stähli, M. and D. Stadler, 1997: Measurement of water and solute dynamics in freezing soil columns with time domain reflectometry. *J. Hydrol.*, **195**, 352-369.
- Stähli, M., P. E. Jansson and L. C. Lundin, 1999: Soil moisture redistribution and infiltration in frozen sandy soils, *Water Resour. Res.*, **35**, 95-103.
- Watanabe, K. and M. Flury, 2008: Capillary bundle model of hydraulic conductivity for frozen soil. *Water Resour. Res.*, **44**, W12402.
- Watanabe, K. and M. Mizoguchi, 2002: Amount of unfrozen water in frozen porous media saturated with solution, *Cold Reg. Sci. Technol.*, **34**, 103-110.
- Watanabe, K. and T. Wake, 2009: Measurement of unfrozen water content and relative permittivity of frozen unsaturated soil using NMR and TDR. *Cold Reg. Sci. Technol.*, **59**, 34-41.
- Watanabe, K., Y. Muto and M. Mizoguchi, 2001: Water and solute distributions near an ice lens in a glass-powder medium saturated with sodium chloride solution under unidirectional freezing. *Crystal Growth and Design*, **1**, 207-211.
- 渡辺晋生, 取出伸夫, 坂井 勝, J. Šmúnek, 2007: 凍結を伴う土中の水分・熱・溶質移動モデル. 土壌の物理性, **106**, 21-32.
- 渡辺晋生, 紀藤哲矢, 坂井 勝, 取出伸夫, 2010: 凍結面近傍の不凍水量変化に基づく凍土の水分特性曲線と不飽和透水係数の検討. 土壌の物理性, **116**, 9-18.
- 渡辺晋生, 大森陽介, 和気朋己, 坂井 勝, 2010: サーマ TDR による凍土の不凍水分量・熱伝導率の同時測定. 雪氷, **72**, 157-168.
- Watanabe, K., M. Takeuchi, Y. Osada and K. Ibata, 2012: A micro chilled-mirror hygrometer for measuring water potential in relatively dry and partially frozen

- soils. *Soil Sci. Soc. Am. J.*, **76**, 1938–1945.
- Wiggert, D. C., O. B. Andersland, S. H. Davies, 1997: Movement of liquid contaminants in partially saturated frozen granular soils. *Cold Reg. Sci. Technol.*, **25**, 111–117.
- Wettlaufer, J.S., 1999: Impurity effect in the premelting of ice. *Phys. Rev. Lett.*, **82**, 2516–2519.
- 八木陶子, 福田正己, 石崎武志, 1991: 塩分を含む土の凍結と凍上に関する実験的研究. 低温科学. 物理篇, **49**, 53–64
- Yanai, Y., T. Hirota, Y. Iwata, M. Nemoto, O. Nagata and N. Koga, 2011: Accumulation of nitrous oxide and depletion of oxygen in seasonally frozen soils in northern Japan – Snow cover manipulation experiments. *Soil Biol. Biochem.*, **43**, 1779–1786.
- Zhao, L., D. M. Gray, and D. H. Male, 1997: Numerical analysis of simultaneous heat and mass transfer during infiltration into frozen ground. *J. Hydrol.*, **200**, 345–363.

Solute effect on soil water flow and hydraulic properties of frozen unsaturated sand

Kunio WATANABE¹* and Tomomi WAKE¹

¹ Graduate School of Bioresources, Mie University, 1577 Kruima-Machiya, Tsu 514-8507

* Corresponding author

Abstract: Understanding the solute effect on soil water dynamics during soil freezing is important for managing soil water and nutrients and for controlling groundwater pollution. In this study, we performed a column experiment, using variably saturated sand with NaCl solution, to estimate the solute effect on soil water flow and hydraulic properties. The sand column (i.d.: 78 mm; length: 350 mm), which was instrumented with seven thermocouples and seven time domain reflectometry probes, was cooled from the top to form a frozen layer. We monitored temperature, liquid water content, and solute concentration. Water flow from the unsaturated region to the frozen region and solute accumulation in the frozen region due to convection were observed. When the soil contained solutes, the frost reached deeper and frost-induced water flow decreased. Applying a capillary bundle model to the column experiment showed that pore-ice formation resulted in a decrease in the hydraulic conductivity of the frozen sand. The frozen sand showed the same relationship between unfrozen water content and hydraulic conductivity irrespective of the soil solute concentration, but the relationship between temperature and unfrozen water content varied depending on the solute concentration.

(2012 年 10 月 26 日受付, 2013 年 3 月 20 日改稿受付, 2013 年 3 月 31 日最終改稿受付,
2013 年 7 月 12 日受理, 討論期限 2014 年 3 月 15 日)