

ガラス粉粒体中に析出するアイスレンズの成長温度とNaCl濃度の関係

Temperature at growth surface of ice lens in glass-powder saturated with NaCl solution

渡辺晋生*、武藤由子*、溝口 勝**

Kunio WATANABE*, Yoshiko MUTO* and Masaru MIZOGUCHI**

はじめに 土壌が凍結すると、地表が隆起することがある(凍上)。このとき土中には、土粒子をほとんど含まない氷晶アイスレンズ：以下 IL とする)が析出する。IL の析出を伴う凍上は数10 cm に及ぶことがあり、灌漑排水系や構造物の基礎に深刻な被害を与える。ところで、海岸などの塩類土壌では凍上が抑制されることが知られている。また、凍上対策として地表に塩を撒くこともある。しかし、こうした塩がIL の生成にどのように影響しているのかはよくわかっていない。そこで本研究では、土壌の代わりにNaCl 溶液で飽和したガラス粉粒体を凍結し、IL の成長面の温度と間隙溶液のNaCl 濃度の関係を調べた。

試料と方法 粒径の揃ったガラス粉粒体直径 2.2 μm を異なる濃度の NaCl 溶液($C_L = 0, 0.005, 0.01, 0.015, 0.03, 0.05, 0.1 \text{ mol/L}$)で飽和し、 $70 \times 20 \times 3 \text{ mm}^3$ のガラスセルに詰めた。試料の含水比は80%である。セルは初期温度 2°C にならした。ここで、セルを一方向凍結装置に設置し、温度勾配 $G = 0.21^\circ\text{C/mm}$ と凍結速度($V = 0.4 \mu\text{m/s}$)を与え凍結した(Fig.1)。凍結面近傍の様子は、顕微鏡と CCD カメラを介し連続的に録画した。録画した画像はコンピュータを用いて、10 μm の精度で解析した。IL 成長面の温度は、成長面の位置の相対的な変化と、 G から算出した。また同様に、異なる濃度のNaCl水溶液の凍結実験も行った。

実験結果 NaCl 溶液で飽和したガラス粉粒体を一方向凍結すると、凍結面近傍に平滑な IL が観察された。Fig.2 に試料($C_L = 0 \text{ mol/L}$)に、 $V = 0.4 \mu\text{m/s}$ を 10000s 間与えたときの凍結面近傍の様子を示す。IL はおよそ一定の位置(一定温度)で発生と成長を繰り返し、図のように層をなした。また、一定の V の下では、IL の厚さとその間隔はおよそ一定となった。Fig.3 に各 NaCl 濃度における、IL の平均厚さと間隔を示す。IL は間隙水の初期NaCl 濃度が高いほど薄くなった。ここで、IL の厚さの総和を凍上量とすれば、間隙水の塩濃度の増加により凍上が抑制されたことがわかる。Fig.4 に各 NaCl 濃度における IL 成長面の温度を示す。IL の成長面の温度は、間隙水の初期NaCl 濃度が高いほど低くなった。図中 \times はNaCl 水溶液中の氷の成長面の温度である。NaCl 濃度による成長温度の低下は、粉粒体中では3-5 倍強く現れた。

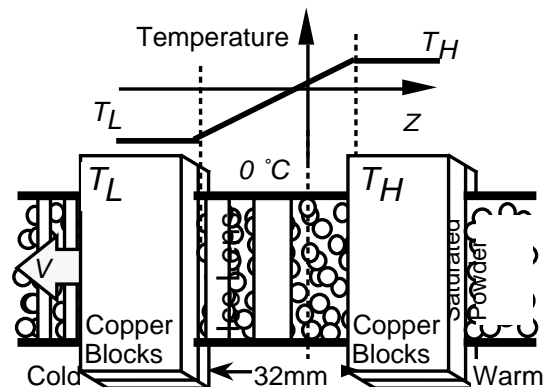


Fig. 1 Schematic illustration of the unidirectional freezing experiment.

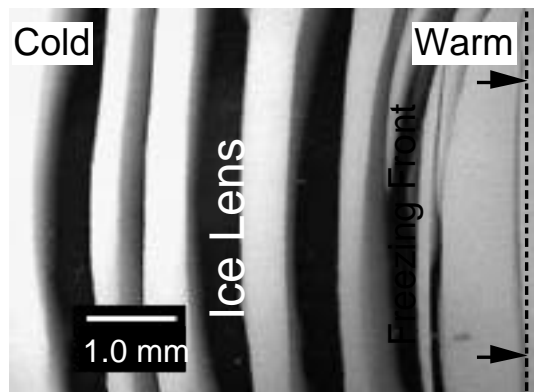


Fig. 2 Ice lenses observed in glass powder.

* 三重大学生物資源学部 Faculty of Bioresources, Mie University

** 東京大学大学院農学生命科学研究科 Department of Biological and Environmental Engineering, The University of Tokyo

考察 ILは0度(T_0)より低い温度 T で成長した。この凝固点降下は以下に示される。

$$T_0 - T = T + T_{vdw} + T_q + T_{RT} \quad (1)$$

T : IL の成長面の曲率、 T_{vdw} : 成長面と粒子間の分子間力、 T_q : クーロン力、 T_{RT} : 成長面近傍の塩濃度、による凝固点降下である。IL の成長には曲率と分子間力が支配的であり、一定の成長速度下では $T + T_{vdw}$ は一定値 T_C をとると考えられる。また本実験では T_q は無視できる。一方、氷の成長面近傍では、界面の移動によって溶質濃度は蓄積・増大する。液相方向を z 軸とし、移動する界面に原点0をとると溶液濃度は Fig.5 の様になる。ここで、界面の溶液濃度を C_I 、界面より十分離れた液相の溶液濃度を C_L とすると、定常状態では $C_I = C_L \exp(-V/D)$ が成り立つ。ここで、 D は拡散定数であり、 D/V は界面拡散層を溶質が通過する速度と考えられる。これらの関係を用いると、IL 成長面の温度について次の関係が得られる。

$$T_0 - T = T_C + (T_0/q) RT_0 C_L \exp(V/D)$$

は氷の密度、 q は融解の潜熱、 R は気体定数である。ここで、今回得られた IL 成長面の温度から各 NaCl 濃度における D/V を求め、IL 平均厚さとの関係を求めた(Fig.6)。溶液濃度が増し、IL が薄くなるにつれ D/V は速くなった。IL が成長すると、粒子は成長面より押し出され、成長面近傍に堆積する。つまり、IL が厚くなるにつれ成長面近傍の粒子数は増える。このため、溶液濃度が低いとき、溶質の拡散が IL 近傍の粒子により強く妨げられたと思われる。

おわりに 異なる濃度の NaCl 溶液で飽和したガラス粉粒体の一方向凍結実験を行った。この結果、粒径の揃ったガラス粉粒体中において、IL の平均厚さと間隙水の NaCl 濃度の関係、IL 成長面の温度と NaCl 濃度の関係が明らかになった。これらの関係から IL 成長面近傍の粒子による溶質拡散の遅延が示唆された。

参考文献 ¹⁾J. S. Wettlaufer: Impurity effects in the premelting of ice, Physical Review Letters **82**, pp. 2516-2519 (1999).

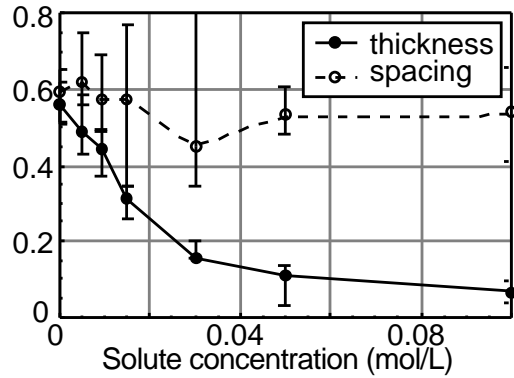


Fig. 3 Mean thickness of ice lenses and mean spacing between ice lenses,

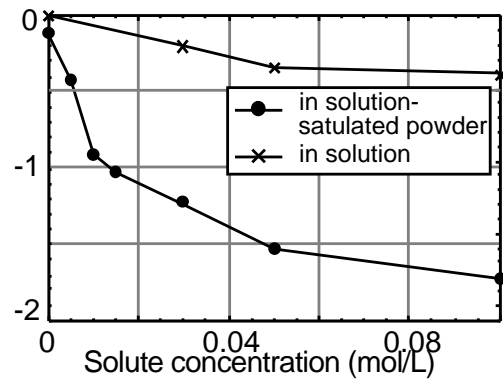


Fig. 4 Temperature at growth surface of ice lens.

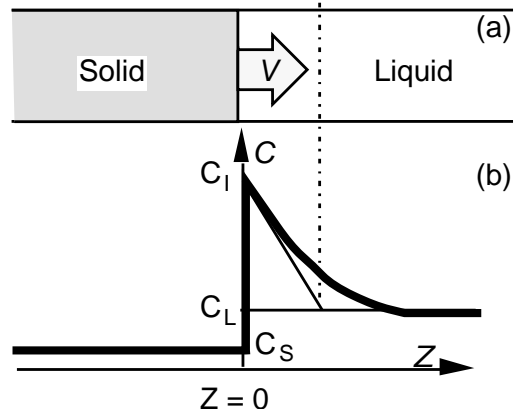


Fig. 5 Schematic illustration of solute distribution near the advancing interface during unidirectional freezing. (a) Solid-liquid interface. (b) Solute distribution.

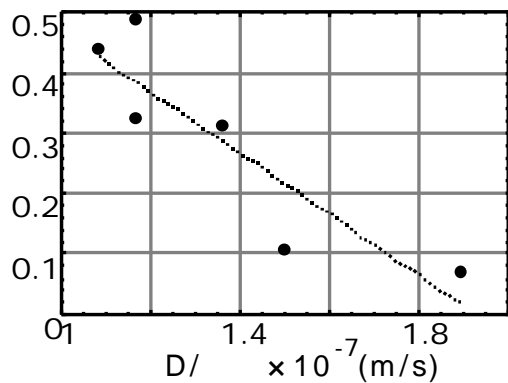


Fig. 6 Relationship between mean thickness of ice lens and D/V .