

**科学研究費助成事業 研究成果報告書**

平成 29 年 5 月 19 日現在

機関番号：14101

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2014～2016

課題番号：26450338

研究課題名(和文)凍結融解にともなう土中の物質移動予測の多次元および非平衡系への進展

研究課題名(英文)Improvement of understanding multi-scale and non-equilibrium heat and water flows in soils during freezing and thawing processes

研究代表者

渡辺 晋生 (Watanabe, Kunio)

三重大学・生物資源学研究科・教授

研究者番号：10335151

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,900,000円

研究成果の概要(和文)：土の凍結融解過程における物質移動に関して、凍結面近傍の非平衡な水ポテンシャルの変動の測定に成功し、不凍水量のヒステリシス、凍土の透水係数、マクロポアによる土の凍結の遅延、マクロポアや浸透水の再凍結が凍土の融解浸潤過程に及ぼす影響等を明らかにした。また、土の凍結モデルについて、1次元モデルの適用拡張法や凍土の見かけの熱伝導率や透水係数の与え方を提案するとともに、融解過程の氷の結晶成長の遅れや再凍結など課題を整理した。

研究成果の概要(英文)：To understand heat and water flows in freezing and thawing soils, column experiments and numerical analysis were performed. Fluctuation of water potential in non-equilibrium state near freezing front was directly observed. And, hysteresis in unfrozen water curve, hydraulic conductivity of frozen soil, retardation of soil freezing by macropores, blocking of the macropores by ice, and effect of the macropores on soil thawing were clarified. For modeling of soil freezing and thawing processes, extension method of conventional 1D model to 3D phenomena, and applying method of apparent thermal conductivity and hydraulic conductivity were proposed. Then, we summarized the issues in the current soil freezing model, such as non-equilibrium melting of soil pore ice and re-freezing of infiltrated water, which should be studied in future.

研究分野：土壌物理学

キーワード：凍土 土壌凍結層 水分移動 熱移動 浸潤 水ポテンシャル 不凍水 透水係数

### 1. 研究開始当初の背景

地表が 0 以下に冷やされると、土中水が凍結面近傍に引き寄せられ凍結する。地表に形成された凍土の透水性は低く、春先に融雪水の一部は湛水、あるいは地表を流出する。また、凍土の消失期には、年最大規模の下方浸透が観測されることも珍しくない。こうした凍結・融解時の土中水の再分布は、栄養塩・化学汚染物質の移動や、凍土層下の微生物活性を律則し、農地の水分・施肥管理や地耐力に影響を及ぼすだけでなく、硝酸態窒素の地下水帯への流出や温室効果ガスの地表への放出を誘起する。温暖化にともなう土壌凍結深分布や降水パターンの変化が顕在化しつつある現在、農業の持続的展開、気候変動への適応、生態環境との調和、エネルギー節約の観点から、寒冷圏の土の凍結融解と付随する物質移動の理解が求められている。更に、凍土は軟弱地盤の改良や遮水に利用されることがある。福島第一原子力発電所周辺の凍土壁にも国内外の注目が集まっている。こうした計画の評価や問題への対応にも、土の凍結融解と物質移動の理解は不可欠である。

凍結にともなう不飽和土中の水分・物質移動については、各国において数値モデルの開発が進められている。研究代表者らも、不凍水量測定や土中氷の成長観察、不飽和土のカラム凍結実験に基づき、土の凍結モデルの改良に取り組んできた。こうした取り組みにより、比較的単純な一次元の土の凍結とその際の物質移動の予測が可能となった。しかし、実際の土の凍結は一次元で生じるとは限らない。こうした不均一性は凍土層下の酸化還元の進行と物質動態にも波及する。また、福島の凍土壁のように、側方から(二次/三次元)の水の流れは土の凍結に多大な影響を及ぼす。こうしたより複雑かつ現実的問題への展開が、土の凍結研究に求められている。

また、土の凍結に比べ、融解に関する研究は遅れている。これは、融解過程では遷移的状況下で水量や透水係数が激しく変化するため、現行の温度平衡を仮定した凍結モデルでは融解速度や浸潤量を表現できないためである。研究代表者らも、間隙構造を考慮した凍土の不飽和透水モデルを構築し、凍土への融解浸透過程や凍結融解時の不凍水量のヒステリシスを実験的に明らかにしてきた。しかし、これらを数値モデルに付与するには、非平衡凍結融解過程のモデル化や融点近傍の透水係数と負圧の定量化が必要である。また、凍結過程に比べ凍土の融解や融解浸潤過程は地中のマクロポアなどの影響を強く受ける。しかしながら、こうした凍土の融解と物質移動に対する土の非一次元性の影響については未だほとんどわかっておらず、農地の湛水や融解湖の突然の消失、人工凍土からの漏水、融解期の温暖化ガスの放出等を検討するためには、更なる実験データの蓄積とモデルの改良が必要である。

### 2. 研究の目的

本研究においては、(1)凍結層の発達と融解にともない、土中の水分フラックスや圧力分布がいかに変動するか、またこれらにマクロポアの数や形状が及ぼす影響を明らかにすることを目的に一次元土カラムの凍結・融解実験を行う。この際、氷の成長の非平衡により不凍水量や圧力の分布が、実測と現行の凍結モデルでどの程度異なるのかを評価し、モデルの問題点を整理することも目的とする。また3次元での凍結現象をどの程度1次元モデルで解析可能かを検討することを目的に点冷源から3次元的に形成する凍結層の発達過程を観察する。

(2)土の融解過程やより複雑な凍結過程を再現できる数値モデルの構築を目的に、精密に温度を制御できる小型透水セルを用いて、定温で水量が変化する融点近傍の凍土の透水係数の測定とその水量との関係の定式化を行う。また、融点近傍の不凍水(0以下でも液状で存在する水)量-温度関係(凍土の水分特性)のヒステリシスの凍結速度や全水量依存性の定式化も目的とし、これらの現行の凍結モデルへの応用を検討する。

(3)地表の凍結・融解にともなう凍結層下の酸化還元状態の変化や物質移動を明らかにすることを目的に、不飽和土については有機物分解と硝化の反応速度定数に土中の水分流れや基質、pHの変化が及ぼす影響を明らかにする。この際、土質や水分流れによる窒素イオンの平衡定数の違いも検討する。飽和土については、還元や還元ともなう鉄イオンや主要陽イオンの挙動が水分流れの有無でどのように異なるかを明らかにする。そして、水分溶質移動モデル HYDRUS に化学反応データベース PHREEQC を組み合わせた HPI モデルでこれらの現象を再現し、凍結モデルへの結合を目指す。

### 3. 研究の方法

試料には、岩手大学附属農場の休耕畑の表層から採土した黒ボク土(攪乱土・不攪乱土)、三重大学附属農場で採土した黄色土、三重大学内農場で採土した低地土、および鳥取砂丘砂を用いた。攪乱土については、2 mm 篩通過分とし、砂については、先に水洗した。

(1)任意の含水率と乾燥密度に調整した試料を、内径 7.8 cm、高さ 35 cm のアクリル鉛直カラムに均一に充填した。マクロポアを考慮する実験では、試料に上端から下端まで続く直径 2 あるいは 5 mm の直孔を 2 あるいは 4 個穿った。カラム上下端には冷却装置を取り付けた。カラム側面から T 型熱電対を 1 cm 間隔で 34 本、テンシオメータと TDR プローブを 5 cm 間隔で各 5 本設置した。また 7.5、12.5 cm 深には鏡面冷却式のマイクロ水ポテンシャルセンサーを設置し、カラム側面を断熱した。カラムを 2 の恒温室に 2 日間静置することで、試料に初期条件として一定温度分布と重力水分分布を与えた。ここで、カラ

ム上下端の冷却装置にそれぞれ-8 と 2 の冷媒を循環し、試料を上端より凍結した。その後、任意の時間に試料上端の温度を変え、凍結層を融解、再凍結した。浸潤を考慮する実験では融解開始とともに試料上端に一定水頭で 0 の水を供給するとともに下端を大気に解放した。それ以外の実験では、カラム上下端からの水分の流入出はなしとした。試料の各深さの温度、水分量(0 以下では不凍水量)、圧力水頭(水ポテンシャル)を 2.5 分間隔で測定した。実験は多連で行い、任意の時間に一つずつカラムを 2.5 cm 分画に切断し、試料の全水分分布を測定した。そして、各時間の各分画の全水分量の差違から、各深さの水分フラックスを求めた。現行の凍結モデルを用いてカラム実験の数値解析を行った。計算には HYDRUS を用いた。

点冷源からの 3 次元凍結実験については、縦 37 cm × 横 63 cm のプラスチック製容器に深さ 30 cm まで試料を同様に詰め、容器の側面と底面を断熱した。容器下端から 30 cm 長の TDR を鉛直上向きに設置した。また、5, 10, 15, 20 cm 深に熱電対を、10, 20 cm 深に 7 cm 長の TDR を水平に設置した。試料上端に 0.5 cm 厚の鉄板を敷き、その中央に 14 cm 長の凍結管をモルタルで貼り固めた。試料に初期温度分布と水分分布を与えた後、凍結管に-15, -20, -25, -30 の冷媒を循環することで試料を上面から凍結した。

(2) カラム凍結実験同様に厚さ 3 cm の薄型円筒セルに試料を詰めた。セル中央に TDR を、TDR の上下 0.5 cm に圧力センサーを設置し、TDR と圧力センサーと等しい高さに熱電対を設置した。精密恒温槽でセル全体の温度を均一に保ちつつ変化させるとともに一定流量で試料に通水した。そして、この際の温度と不凍水量、圧力勾配を測定し、透水係数を算出した。常温において、同様の試料の水分特性曲線と不飽和透水係数を吸引法、加圧板法、鏡面冷却式水ポテンシャル計、および蒸発法で求め、凍土の不凍水量曲線と透水係数と比較した。

(3) 不飽和土については、高さ 20 cm、内径 5 cm のカラムに試料を詰め、上端から純水を 5 d、 $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$  溶液 5 cmol-N/L を 9 d、純水を 18 d 滴下した。滴下速度は 0.8 cm/d で一定とした。カラムの 4 深度に 4 極センサーとテンシオメータを設置し、電気伝導度 EC と圧力水頭を 10 分間隔で測定した。下端から 35.5 cm 下方に排水口を設け、排液を 30 mL 毎に採取した。排液については窒素濃度と pH、EC、陽イオン濃度を測定した。9, 27, 40 d にカラムを解体し、各深さの含水率と pH、窒素各態の量を測定した。実験は 25 の室内で行った。また、比較のためバッチ試験を並行して行った。実験結果を水分移動のリチャーズ式と溶質移動の移流分散方程式を用いて解析した。この際、陽イオンの吸脱着にはイオン交換モデルを、有機物分解と  $\text{NH}_4$  の硝化には一次分解反応を仮定した。この際、まず

バッチ試験の  $\text{NH}_4$  吸着量とカラム試験の  $\text{NH}_4$  の浸透深さを表すよう  $\text{NH}_4$  の吸着平衡定数をそれぞれ求めた。次にバッチ試験の硝化速度を表す  $\text{NH}_4$  の吸着態と溶存態の硝化速度定数  $k_a$  と  $k_1$  を 3 組決定した。3 組は、両者が等しい条件、片方のみが硝化に關与する条件とした。そしてこれらの  $k$  を用いてカラム実験の窒素の挙動を検討した。

飽和土については、0.5 g/100  $g_{\text{soil}}$  のグルコースを加えた試料を、内径 15 cm の円筒容器に同様に充填した。Eh 計と採水口を、2 cm ごとに 7 本ずつ容器側面から挿入した。試料を飽和後、上端に 2 cm の湛水深を維持し、静置あるいは 0.06 M グルコース溶液を 1 cm/day で浸透した。任意の時間に土の酸化還元電位 Eh と、採取した土中水の pH と  $\text{Fe}^{2+}$  および主要陽イオン濃度を測定した。

#### 4. 研究成果

(1) 一次元土カラムの上層に凍結層を 48 時間かけて形成し、その後融解したときの土中の水分フラックス分布を図 1 に示す。図中、正の値は上向きのフラックスを示す。凍結層形成時には (initial 0 h)、土中水は凍結にともない未凍土から凍結層へ全層で上向きに移動した。凍結層の融解が始まって初期の間は (0 24 h)、未凍土層から凍土層への水分移動が継続した。その後融解が進むと (24 48 h) 全層の水分が下方へ移動した。このときの水分・熱移動を数値モデルで計算した。図 2 に融解 48 時間後の水分分布を示す。実測では、融解が始まると上層の融解層と下層の未凍土層から凍結層に水分が流れこみ、凍土内を流入してから凍結するため、凍結層中央部で全水量が最大となった。一方、計算では、凍結層に流入した水はすぐに凍結し、凍結層上下端近傍に二つのピークが生じるという現実との相違点が明らかになった。こうした融解遷移期の水分フラックスを実験的に明らかにした事はこれまでにない成果であり、実測に基づく現行の凍結モデルの課題の整理から、遷移過程の非平衡な水の融解のモデル化という今後のモデルの改善点を明確にできた意義は大きい。

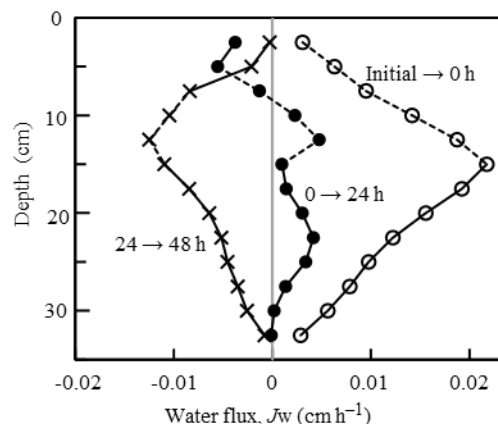


図 1 凍結層形成・融解時の土中の水分フラックス分布 (黒ボク土)

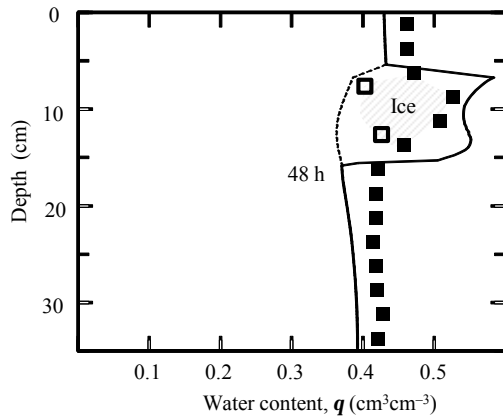


図2 凍結層融解 48 時間経過の土中の水分分布 (黒ボク土)。印と印は全水量と不凍水量の実測値、実線と破線は全水量と不凍水量の計算値を示す。全水量と不凍水量の差は氷量であり、網掛け部は実測の氷量を示す。

図3にマクロポアを持つ土を上端から凍結した際の、凍結深の進行過程を示す。マクロポアが存在すると、その数や径によって凍結の進行が遅れること、こうした遅延がマクロポア内の水蒸気の対流と凝結によることが明らかになった。ここで、凍結層が形成した土に0の水を浸潤したときの積算浸潤量を図4に示す。マクロポアがない場合は、浸潤は3期間、すなわち初期に地表で流入水が再凍結し浸潤前線が進行しない期間、凍結層内を浸潤前線がゆっくり進行する期間、凍結層が残っていても浸潤が未凍土中と同様に進行する期間を経ることが確認できた。2mm径のマクロポアがあっても、浸潤の傾向に違いは見られなかった。一方、5mm径のマクロポアがある場合、十分に温度の低い凍結層が残っていても、マクロポアを介し多量の水が凍結層下へ流下することが明らかになった。この際、マクロポア内を流下する水が凍結し目詰まりが生じること、こうした氷がマクロポア壁面から同心円状に形成することを世界で始めて観察することに成功した。現行のモデルではマクロポアによる凍結の遅延は見かけの熱伝導率を調整することで、マクロポア内の選択流は3次元の解析でそれぞれ再現可能であるが、浸透水の再凍結がいつどこで生じるかを表すモデルは現存しない。融解の遷移過程とあわせ、こうした再凍結過程のモデル化は、今後の凍結モデルの発展に必要な大きな課題である。

図5に、点冷源(図中右上)から土を凍結したときの、土中の温度分布を示す。冷却温度が-15~-30の範囲であれば、凍土は、冷却開始後1日までは冷源を基点に半球状に、それ以降は下方へ面的に発達した。そこで、冷源の温度と対象とするサイズによって、凍土の厚さを1次元モデルで評価できる範囲を整理した。また、Stefan解によって凍土の厚さを評価する場合は、実用的には見かけの熱伝導率のフィッティングが必要であること、数値計算の面では地表面境界温度の与え方に課題があることが明らかとなった。

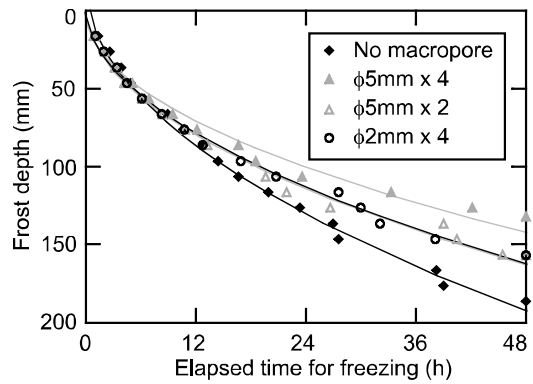


図3 凍結過程にあるマクロポアを持つ黒ボク土中の凍結深の時間発展。

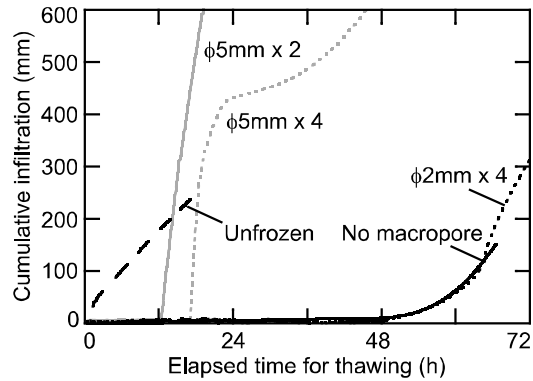


図4 融解過程にあるマクロポアを持つ黒ボク土中への積算浸潤量。破線はマクロポアを持たない未凍土への浸潤の場合。

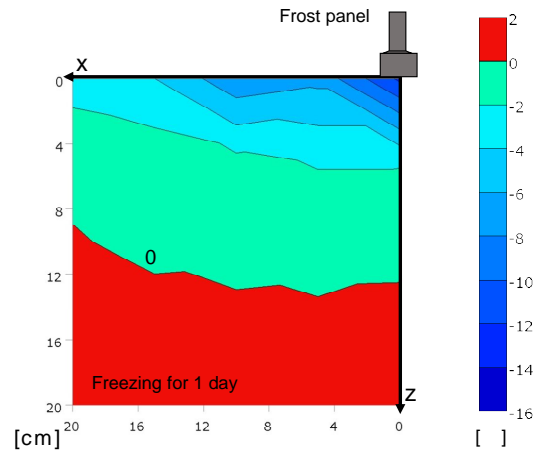


図5 点冷源(-30)により含水率0.2の鳥取砂丘砂を下方に3次元的に冷却したときの、冷却開始後1日経過時の試料内の温度分布。

(2) 薄型セルの温度を精密に制御することで、凍土の不凍水量と透水係数の測定に成功した。不凍水量については、土中の氷の結晶成長と温度変化の非平衡により、凍結過程と融解過程では見かけ上のヒステリシスが生じることを示した。そして、凍結・融解速度や水量の変化量に基づき、不凍水量のヒステリシスの立式を試みた。

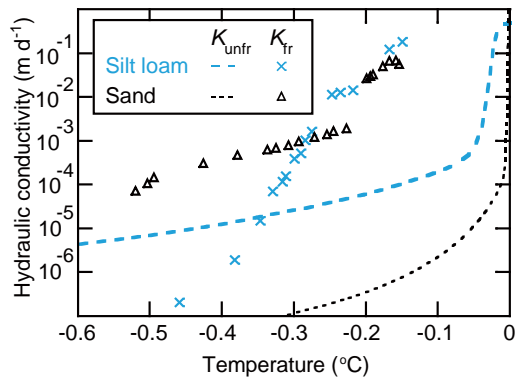


図6 融解過程にある凍土の透水係数と温度の関係

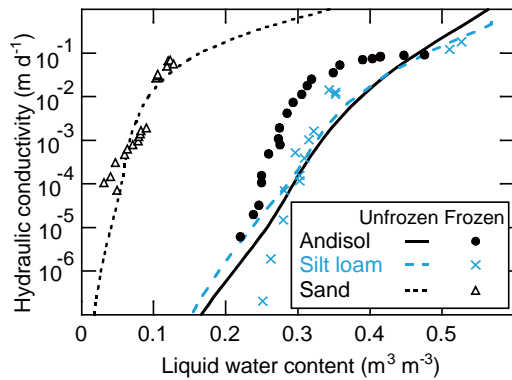


図7 融解過程にある凍土の透水係数と液状水量の関係

融解過程において測定した、黒ボク土、シルトローム、砂の透水係数と温度の関係を図6に、液状水量との関係派を図7にマーカーでそれぞれ示す。図6の破線と点線は未凍土の不飽和透水係数 - 圧力関係の圧力をクラウジウスクラペイロンの式により温度に変換したものである。未凍土の透水係数は凍土の透水係数を過小評価することが分かる。一方、未凍土の不飽和透水係数 - 水分量関係(図7の実線)は凍土の透水係数 - 不凍水量関係と良く一致することが明らかになった。すなわち、凍土の数値モデルにおいては、透水係数を温度で評価するより、水分量で評価すべきといえ、これは今後の土の凍結モデル開発に非常に重要な知見といえる。

(3) 図8に砂質ロームと黒ボク土について、硫化アンモニウムを9日間(図中網掛)滴下したときの、下端からの排液の硝酸濃度の推移を示す。図中実線は異なる吸着態と溶存態のアンモニウムに異なる組合せの硝化定数を与えた場合の数値解析の結果である。水の流れによってイオン交換定数が変化すること、土質によって吸着態が主として硝化する場合と溶存態が主として硝化する場合が明らかになった。また、イオン交換反応と一次分解反応を組み込むことで、好氣的条件化の窒素動態を概ねモデルができた。凍結モデルへ組み込む準備が整ったといえる。

図9に砂質ロームを湛水し、2週間経過した時点の土中の酸化還元電位と鉄イオン濃度を示す。

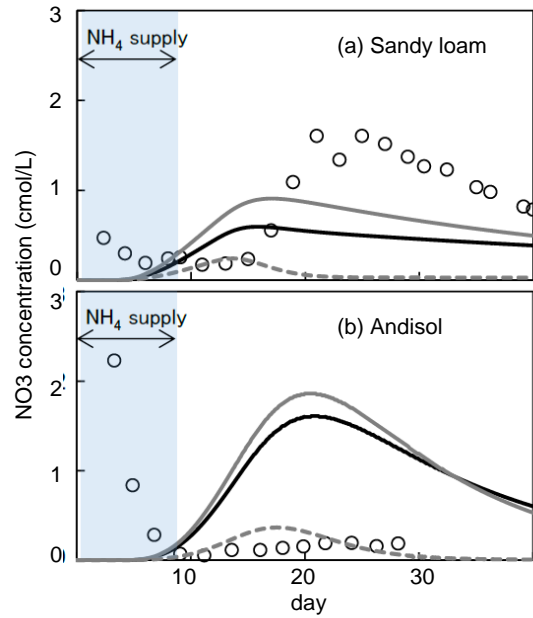


図8 35cm土カラムを1 cm/dの降雨に晒した際の、下端からの排液の硝酸濃度。(a)砂質ローム、(b)黒ボク土。マーカーは実測値、黒線は吸着態と溶存態の硝化定数を等しいとした場合、灰線は吸着態が、破線は溶存態がそれぞれ主として硝化するとした場合の数値計算結果。

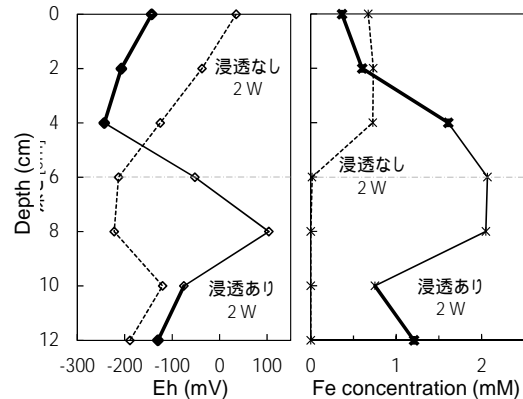


図9 砂質ロームを2週間湛水した時の土中の酸化還元電位 Eh と溶存鉄イオン濃度分布。

水の浸透がない場合、還元傾向が6 cm深を境に上下層で異なった。上層は比較的ゆっくり還元が進行し、pHも低かった。そして、鉄イオンの土中水への溶出が生じた。一方、下層では還元が徐々に進行し、pHは7に近づいた。そして、鉄イオンの溶出はみられなかった。水の浸透があると、還元傾向は0~4, 4~10, 10~12の上中下三層で異なった。上層は湛水からの酸素の供給により還元が遅れpHが高くなった。中下層の還元状態の分布は水の流れがない場合の上下層の分布と類似したが、pHが低くなった。そして、全層で鉄の溶出が確認された。湛水土中への水の浸透は、還元分布を下方へ伸張し、全層におけるFeの可溶化と流出を促すと考えられた。今後、こうした現象が実際に凍土環境下でいかに生じるか更なる実験的検証が必要である。また、電子の授受を考慮した土の還元モデル開発が期待される。

## 5. 主な発表論文等

[雑誌論文](計10件)

Kunio Watanabe and Yuki Kugisaki, 2017, Effect of macropores on soil freezing and thawing with infiltration, Hydrological Processes, 査読有, 31, 270-278, doi:10.1002/hyp.10939,

Kunio Watanabe and Yurie Osada, 2016, Comparison of hydraulic conductivity in frozen saturated and unfrozen unsaturated soils, Vadose Zone Journal, 査読有, 15, doi: 10.2136/vzj2015.11.0154

武藤由子, 渡辺晋生, 山本清仁, 倉島栄一, 2015, 5TE センサーで測定した土壌水分量の簡易補正と電気伝導率の検証, 農業農村工学会論文集, 査読有, 296, I-9-I-17.

[学会発表](計48件)

中西真紀, 渡辺晋生, 2016, 10月29日, 浸透過程にある3種の不飽和土における窒素の吸着と硝化, 土壤物理学会, 京都大学(京都府・左京区).

伴俊和, 渡辺晋生, 2016, 10月29日, 土中の不凍水圧変化に凍結融解速度が及ぼす影響, 土壤物理学会, 京都大学(京都府・左京区).

伴俊和, 渡辺晋生, 2016, 9月29日-10月1日, 異なる速度で凍結融解する土中の不凍水圧連続測定, 雪氷学会, 名古屋大学(愛知県・名古屋市).

釘崎佑樹, 渡辺晋生, 2016, 9月29日-10月1日, 凍結層の形成と融解にともなう不飽和土中の水分・熱移動に関する研究, 雪氷学会, 名古屋大学(愛知県・名古屋市).

中西真紀, 渡辺晋生, 2016, 9月20-22日, 吸着特性の異なる不飽和土中の窒素の硝化と挙動, 土壤肥料学会, 佐賀大学(佐賀県・佐賀市).

中西真紀, 渡辺晋生, 2016, 8月30日-9月1日, 不飽和浸透過程にあるNH<sub>4</sub>吸着特性の異なる畑土中の窒素動態, 農業農村工学会, ホテル法華クラブ仙台・ハーネル仙台(宮城県・仙台市).

伴俊和, 渡辺晋生, 2016, 8月30日-9月1日, 鏡面冷却式露点計を用いた凍土の土中水圧測定, 農業農村工学会, ホテル法華クラブ仙台・ハーネル仙台(宮城県・仙台市).

釘崎佑樹, 渡辺晋生, 2015, 10月24日, 凍結層融解時の水分移動に関する実験および数値解析, 土壤物理学会, 佐賀大学(佐賀県・佐賀市).

K. Watanabe, Y. Osada, N. Toride, 2014, Nov. 2-5, Estimation of soil freezing curve based on water retention curve measured with a vapor sorption analyzer. ASA-CSSA-SSSA Annu. Meeting, Long Beach, USA.

M. Takeuchi, K. Watanabe, N. Toride, 2014, Nov. 2-5, Observation of reoxida-

tion and denitrification layers in reduced soil under nitrate infiltration. ASA-CSSA-SSSA Annu. Meeting, Long Beach, USA.

Y. Osada and K. Watanabe, 2014, Nov. 2-5, Simultaneous measurement of soil freezing curve and hydraulic conductivity under freezing and thawing processes. ASA-CSSA-SSSA Annu. Meeting, Long Beach, USA.

武藤由子, 窪田有真, 渡辺晋生, 2014, 10月25日, 5TE センサーで土壌水分量と電気伝導率を推定するための簡易的利用法, 土壤物理学会, 宮城大学(宮城県・仙台市).

M. Takeuchi, K. Watanabe, N. Toride, 2014, June 8-13, Sub-milli observation of reduction and reoxidation of flooded soil with different water flow rate. 20th World Cong. Soil Sci., Jeju, Korea.

Y. Osada and K. Watanabe, 2014, June 8-13, Unfrozen water content of Andisol under different freezing and thawing conditions. 20th World Cong. Soil Sci., Jeju, Korea.

[図書](計1件)

渡辺晋生 他, 2016, 雪と氷の疑問60, 成山堂書店, 193 (p92-94).

[産業財産権]

該当なし

[その他]

<http://www.bio.mie-u.ac.jp/~kunio/>

## 6. 研究組織

(1)研究代表者

渡辺 晋生 (WATANABE, Kunio)  
三重大学・生物資源学研究所・教授  
研究者番号: 10335151

(2)研究分担者

該当なし

(3)連携研究者

武藤 由子 (MUTO, Yoshiko)  
岩手大学・農学部・准教授  
研究者番号: 60436053

(4)研究協力者

Markus Flury (FLURY, Markus)  
Jiri Simunek (SIMUNEK, Jiri)  
伴 俊和 (BAN, Toshikazu)  
中西 真紀 (NAKANISHI, Maki)  
釘崎 佑樹 (KUGISAKI, Yuki)  
長田 友里恵 (OSADA, Yurie)  
竹内 萌実 (TAKEUCHI, Megumi)