



# HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	凍上現象の理論 : アイスレンズと土粒子間の水膜近傍で起こるカイネティック過程
Author(s)	黒田, 登志雄; KURODA, Toshio
Citation	低温科学. 物理篇, 44, 183-189
Issue Date	1986-03-10
Doc URL	<a href="https://hdl.handle.net/2115/18529">https://hdl.handle.net/2115/18529</a>
Type	departmental bulletin paper
File Information	44_p183-189.pdf



## 凍上現象の理論

—アイスレンズと土粒子間の水膜近傍で起こるカイネティック過程—\*

黒田 登志雄

(低温科学研究所)

(昭和60年10月受理)

### I. はじめに

凍上現象には次の三つの過程が関連している。

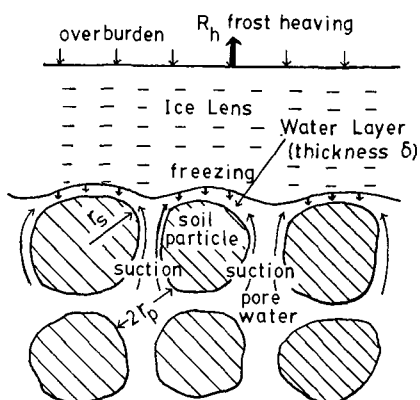
- i) アイスレンズと土粒子間の水膜 (water layer) 近傍でのカイネティック過程, すなわち, 水膜による間隙水 (pore water) の吸引と水膜の凍結過程 (第1図)。
  - ii) 地下水位から水膜に向かう巨視的な水輸送過程。
  - iii) 水膜の凍結の潜熱と未凍土側から凍結面に流れ込む熱を凍土側に逃がす熱輸送過程。
- これまでも, いくつかの理論的研究は行われているが<sup>1-4)</sup>, i) のカイネティック過程についてのわれわれの理解は遅れている。

本研究の目的の第1は, アイスレンズと土粒子間の水膜の熱力学的性質, たとえば, 化学ポテンシャル  $\mu(\delta)$ , 水膜と氷が安定に共存できる平衡状態の厚み  $\delta_{eq}$  などを議論することである (II章)。これらは, 水膜近くの間隙水の吸引, 水膜の凍結の駆動力を理解するのに不可欠なものである。第2の目的は, その結果を用いて, カイネティック過程からいかに凍上速度  $R_h$  が決定されるかを明らかにすることである (III章)。

なお, この論文は, 第4回地盤凍結国際シンポジウム (1985年8月) で発表された研究<sup>5)</sup> に基づくものである。詳しい式の導出法などについては文献5)を参照して戴きたい。

### II. 水膜の化学ポテンシャルおよび平衡厚み

アイスレンズと土粒子間の水膜の近くで起こるカイネティック過程に対しては, 次の描像が成り立つものと考えられる。1) 氷の融点  $T_m=0^\circ\text{C}$  以下の温度であっても水膜は安定に存在できる。2) 定常的に凍上が進行するためには, 水膜がその近くの間隙水を吸



第1図 アイスレンズと土粒子間の水膜の近くで起こるカイネティック過程, すなわち間隙水の吸引過程と水膜の凍結過程を示す模式図

\* 北海道大学低温科学研究所業績 第2779号

引してアイスレンズを上へ押し上げながら、同時に、吸引したのと同じ量の水がアイスレンズと水膜の界面で凍結する必要がある。

このような特徴を持ったカイネティック過程を速度論的に議論するにはまず、水膜による間隙水の吸引および水膜の凍結の熱力学的駆動力が何であるかを明らかにする必要がある。

表面の効果を無視しうる程大きな氷(以後バルクの氷 (bulk ice) と呼ぶ)の化学ポテンシャルを基準にして測った水膜の化学ポテンシャルを  $\Delta\mu(\delta)$  と書く。  $\Delta\mu(\delta)$  は、元来、土粒子と水膜とアイスレンズの間の分子間相互作用から決まるものであるから、それは水膜の厚み  $\delta$  に依存するものと考えられる。また、同様にして測ったバルクの水の化学ポテンシャルを  $\Delta\mu_w$  と表わす\*。温度  $T$  が  $0^\circ\text{C}$  以下では、バルクの水は不安定であるから  $\Delta\mu_w > 0$  である。一方、熱測定<sup>6)</sup> や NMR<sup>7)</sup> の結果は、  $T < 0^\circ\text{C}$  であってもアイスレンズと土粒子の間で薄い水膜が安定に存在できることを示唆している。すなわち、薄い水膜の化学ポテンシャルはバルクの水の化学ポテンシャルよりも低下しているはずである。ところで、  $\delta \rightarrow \infty$  の水膜はバルクの水とみなせるから、

$$\Delta\mu(\delta \rightarrow \infty) = \Delta\mu_w \quad (1)$$

である。したがって水膜の  $\Delta\mu(\delta)$  は第2図に示すように厚み  $\delta$  の増加関数であると考えられる。第2図において  $\delta$  を小さくしていくと水膜と、水の化学ポテンシャルが等しくなる、すなわち

$$\Delta\mu(\delta_{eq}) = 0 \quad (2)$$

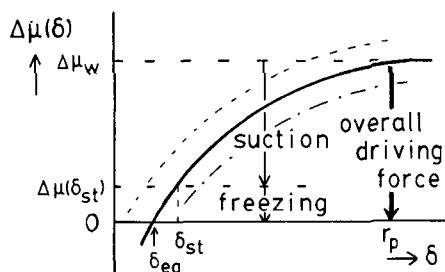
となる厚み  $\delta_{eq}$  が存在することがわかる。言い換えれば、  $\delta = \delta_{eq}$  の水膜は氷と安定な平衡状態にある。

$\Delta\mu(\delta)$  が既知の場合は、逆に、(2)式を解いて、平衡状態の厚み  $\delta_{eq}$  が温度や上載荷重の関数として求められる<sup>5)</sup>。

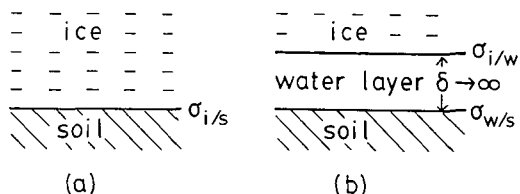
ところで  $\Delta\mu(\delta)$  の関数形は、バルクの氷の融点  $T_m (=0^\circ\text{C})$  以下の温度で水膜が安定に存在できる理由を説明するモデルに依存する。しかしながら、どのモデルにおいても  $\Delta\mu(\delta)$  は、上で述べた性質を持つはずである。たとえば、黒田 (1985)<sup>5)</sup> は、氷-水-土粒子の系 (第3図) において、次式で定義されるぬれのパラメータ (wettability parameter)  $\Delta\sigma_\infty$  が正であるために水膜が  $T < 0^\circ\text{C}$  においても安定に存在できると考えて  $\Delta\mu(\delta)$ ,  $\delta_{eq}$  を求めた<sup>5,8)</sup>。

$$\Delta\sigma_\infty = \sigma_{i/s} - (\sigma_{i/w} + \sigma_{w/s}) > 0 \quad (3)$$

ここで、  $\sigma_{i/s}$ ,  $\sigma_{i/w}$ ,  $\sigma_{w/s}$  はそれぞれ、氷/土粒子、氷/水、水/土粒子の間の界面張力、す



第2図 水の化学ポテンシャルを基準にして測った水膜の化学ポテンシャル  $\Delta\mu(\delta)$  とその厚み  $\delta$  の関係



第3図 (a) 土粒子と氷が水膜なしで接した場合と (b) 水膜を介して接した場合の界面自由エネルギーの違いを示す模式図

\* 文献5)では  $\mu_w$  となっているが、氷の化学ポテンシャルを基準にするという意味でここでは  $\Delta\mu_w$  と書き改めた。

なわち界面の自由エネルギー密度である。また、この現象論的モデルから導出された  $\Delta\mu(\delta)$ ,  $\delta_{eq}$  は次のようになる<sup>5)</sup>。

$$\Delta\mu(\delta) = \frac{Q_m \Delta T}{T_m} - p \Delta v_m - \frac{nA^n \Delta\sigma_\infty v_m}{(A + \delta)^{n+1}}, \quad (4)$$

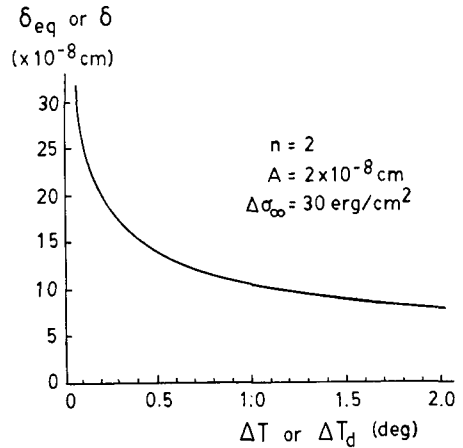
$$\delta_{eq} = -A + \left[ \frac{nA^n \Delta\sigma_\infty v_m T_m}{Q_m \Delta T - p \Delta v_m T_m} \right]^{1/(n+1)} \quad (5)$$

ここで用いられた文字記号の約束は次のとおりである。  $T_m$ : バルク氷の融点,  $Q_m$ : 1分子あたりの融解熱,  $\Delta T = T_m - T$ :  $T_m$  を基準にした過冷却度,  $p$ : 上載圧,  $\Delta v_m$ : 氷と液体の1分子あたりの体積差 ( $>0$ ),  $v_m$ : 液体1分子の体積,

$n$  および  $A$ : 分子間ポテンシャルと関連したパラメータ。

(4)式の第1項は、液体のバルク自由エネルギーに対応する項、第2項は上載圧の効果を表わす項 (Clausius-Clapeyron の式に対応)、第3項が土粒子-水-アイスレンズ間の分子間相互作用による自由エネルギーの低下に対応する項である。また、(5)式から、平衡状態の水膜の厚み  $\delta_{eq}$  は  $p=0$  のとき  $T=T_m$  で無限大で、 $T$  の減少と共に小さくなることかわかる (第4図)。それは、 $T$  の減少と共に液体のバルク項の不利 ((4)式第1項) が増大するためである。

なお、文献5)では、厚み  $\delta$  の水膜の氷点  $T_f(\delta)$  の降下  $\Delta T_d (= T_m - T_f(\delta))$  や、飽和蒸気圧  $p(\delta)$  も議論されている。



第4図 氷と安定に共存する水膜の平衡厚み  $\delta_{eq}$  と水膜の過冷却度  $\Delta T$  ( $0^\circ\text{C}$  を基準にした) の関係

### III. カイネティック過程から決まる凍上速度

第1図に示すように、土粒子の表面から間隙水の中心までの距離  $r_p$  は、土粒子とアイスレンズ間の水膜の厚み  $\delta$  よりも大きいので、間隙水の化学ポテンシャル  $\Delta\mu(r_p)$  は水膜の化学ポテンシャル  $\Delta\mu(\delta)$  よりも大きい (第2図)。また一般に、物質は化学ポテンシャルの高い状態から低い状態へむかって移動する。したがって、水膜は、およそ土粒子のサイズ  $r_s$  程度離れたところの間隙水を吸引する。その結果、水膜の厚み  $\delta$  が増大し、 $\delta$  は平衡状態の厚み  $\delta_{eq}$  より大きくなる。ここで、間隙水の化学ポテンシャルは、ほぼバルクの水の化学ポテンシャル  $\Delta\mu_w$  に等しいとみなすならば (第2図)、吸引の駆動力の大きさ、すなわち水膜の所での化学ポテンシャルの勾配  $|\text{grand } \Delta\mu(\delta)|$  は  $[\Delta\mu_w - \Delta\mu(\delta)]/r_s$  で近似できる。したがって、間隙水の吸引による水膜の厚化速度  $R_s$  は、次の Darcy の法則で与えられるであろう。

$$R_s = K \frac{\Delta\mu_w - \Delta\mu(\delta)}{r_s} \quad (6)$$

ここで、 $K$  はアイスレンズ近くの透水係数である。厚み  $\delta$  が増すと吸引の駆動力が減るので、

$R_s$  は  $\delta$  と共に減少する (第5図)。

ところで、間隙水を吸引して  $\delta > \delta_{eq}$  となった水膜の化学ポテンシャルは水の化学ポテンシャルよりも高い ( $\Delta\mu(\delta > \delta_{eq}) > 0$ ) ので、アイスレンズと水膜の界面で凍結が進行する。

このような凍結による水膜の厚みの減少速度  $R_f$  は凍結の駆動力  $\Delta\mu(\delta)$  に比例する<sup>9)</sup>。すなわち、

$$R_f = -\frac{D\Delta\mu(\delta)}{akT} \quad (7)$$

ここで、 $D$  は水膜の中の水分子の自己拡散係数、 $a$  は分子間隔、 $k$  はボルツマン定数である。 $\delta$  が増す程、凍結の駆動力  $\Delta\mu(\delta)$  が増加するので (第2図)、 $R_f$  は  $\delta$  の増加関数である (第5図)。なお、 $\delta < \delta_{eq}$  の水膜の  $\Delta\mu(\delta)$  は負となり (第2図)、その場合、アイスレンズの融解 ( $R_f < 0$ ) が起こり、 $\delta$  が増加しようとする。

第5図から明らかのように、 $\delta = \delta_{st}$  の厚みのとき、吸引による水膜の厚化速度  $R_s$  と凍結による厚みの減少速度  $R_f$  がバランスする。

したがって、条件式

$$R_s(\Delta\mu(\delta_{st})) = R_f(\Delta\mu(\delta_{st})) = R_h \quad (8)$$

から定常状態における水膜の化学ポテンシャル  $\Delta\mu(\delta_{st})$ 、厚み  $\delta_{st}$  および凍上速度  $R_h$  が  $\Delta T$ 、 $p$  の関数として求められる。すなわち、

$$\Delta\mu(\delta_{st}) = \frac{Q_m \Delta T / T_m - p \Delta v_m}{1 + \frac{r_s D}{akTK}} \quad (9)$$

$$R_h = \frac{Q_m \Delta T / T_m - p \Delta v_m}{\frac{akT}{D} + \frac{r_s}{K}} \quad (10)$$

なお、定常状態の水膜の厚み  $\delta_{st}$  は (4), (9) 式から求められる。

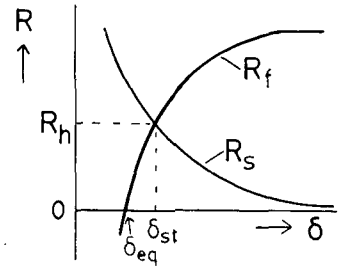
#### IV. 討 論

##### 1. 凍上速度 $R_h$ の $\Delta T$ 依存性および $p$ 依存性

水膜に吸引された間隙水がアイスレンズのところで凍結してはじめて凍上は進行する。したがって、間隙水 (近似的にバルクの水とみなせる) と水の化学ポテンシャルの差

$$\Delta\mu(r_p) \approx \Delta\mu_w = \frac{Q_m \Delta T}{T_m} - p \Delta v_m \quad (11)$$

が、凍上を起こさせる全体の駆動力 (overall driving force) となる (第2図)。そのため、カイネティック過程だけから決まる凍上速度  $R_h$  ((10)式) が、氷に対するバルクの水の化学ポテンシャル  $\Delta\mu_w$  に比例しているのである。第2図には全体の駆動力が吸引 (suction) の駆動力と凍結



第5図 間隙水の吸引による水膜の厚み  $\delta$  の増加速度  $R_s$  および水膜の凍結による厚みの減少速度  $R_f$  の  $\delta$  依存性

(freezing) の駆動力に分割されるようすが矢印で記入されている。また、(10)式の分母が、ちょうど、間隙水の吸引過程の抵抗  $r_s/K$  と水膜の凍結過程の抵抗  $akT/D$  の和になっている点が注目される。

第6図は、上載圧  $p=0$  と  $p=5 \text{ kgf/cm}^2$  の場合に、カイネティック過程から決まる凍上速度  $R_h$  を水膜の過冷却度  $\Delta T$  の関数としてプロットしたものである。計算に際しては次の数値を用いた。

$Q_m/T_m = 3.7 \times 10^{-16} \text{ erg deg}^{-1}$ ,  $\Delta v_m = 3 \times 10^{-24} \text{ cm}^3$ ,  $a = 3 \times 10^{-8} \text{ cm}$ ,  $k = 1.38 \times 10^{-16} \text{ erg deg}^{-1}$ ,  $D = 1 \times 10^{-6} \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1}$ ,  $K = 1 \times 10^9 \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1} \text{ erg}^{-1}$ 。透水係数  $K$  の値は堀口の実験値<sup>10)</sup>に基づいている<sup>5)</sup>。

$R_h$  が  $\Delta T$  と共に増大するのは、凍上を起こさせる全体の駆動力(10)式の分子)が  $\Delta T$  と共に増大するからである。当然のことながら、吸引の駆動力  $\Delta\mu_w - \Delta\mu(\delta_{st})$  も凍上の駆動力  $\Delta\mu(\delta_{st})$  も  $\Delta T$  と共に増大する(9)式)。

また、上載圧  $p$  を増すと、間隙水の化学ポテンシャルが水膜および氷に対して相対的に小さくなる(9), (11)式)。したがって、 $R_h$  は  $p$  と共に減少する。そして、

$$p = \frac{Q_m}{\Delta v_m T_m} \Delta T \quad (12)$$

となると、間隙水(バルクの水)の化学ポテンシャルは氷の化学ポテンシャルと等しくなり(11)式から  $\Delta\mu_w = 0$ ), 凍上速度はゼロとなる。このとき、水膜の平衡厚み  $\delta_{eq}$  は無限大となり(5)式), その化学ポテンシャルは

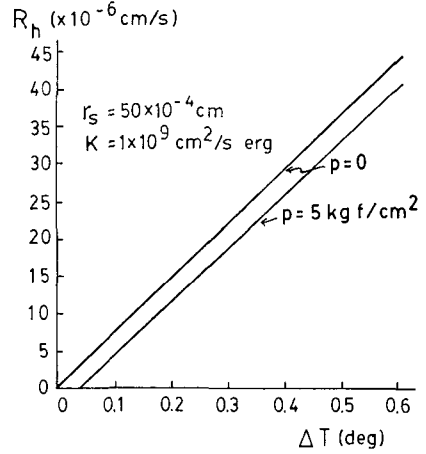
$$\Delta\mu(\delta_{eq} = \infty) = \Delta\mu_w = 0$$

となっているので(4)式), 吸引も凍結も起こらないのである。逆に、上載圧  $p$  が一定の場合、凍土側に逃がす熱流を大きくして  $\Delta T$  を

$$\Delta T = \frac{\Delta v_m T_m}{Q_m} p$$

以上にしないと、凍上は起こらない。たとえば、 $p = 5 \text{ kg t/cm}^2$  の場合、その  $\Delta T$  は  $0.04 \text{ deg}$  である(第6図)。ただし、この議論は  $p$  が氷にも水膜にも均等にかかるという仮定に基づくものである。

先に述べたように、カイネティック過程から決まる凍上速度  $R_h$  (10)式)は間隙水の吸引の抵抗  $r_s/K$  と水膜の凍結の抵抗  $akT/D$  の和に逆比例している。ところが、第6図の計算に用いた数値を使うと凍結の抵抗は吸引の抵抗に比べて無視しうる程小さいことがわかる。すなわち  $r_s = 50 \times 10^{-4} \text{ cm}$  に対して  $(akT/D)/(r_s/K) = 2.3 \times 10^{-4}$  したがって、カイネティック過程から決まる凍上速度  $R_h$  は、実際的には、アイスレンズと土粒子間の水膜がその近くの間隙水を吸引



第6図 水膜近くのカイネティック過程から決まる凍上速度  $R_h$  の過冷却度  $\Delta T$  依存性および上載圧  $p$  依存性

する速さ  $R_s$  に支配されており、(10)式は次式のように近似できる。

$$R_h = \frac{K}{r_s} \left[ -\frac{Q_m \Delta T}{T_m} - p \Delta v_m \right] \quad (10')$$

また、この結果は、次のようにも解釈できる。水膜の凍結の速さ  $R_f$  のカイネティック係数  $D/akT$  ((7)式) は吸引の速さ  $R_s$  のカイネティック係数  $K/r_s$  ((6)式) よりも格段と大きいので、凍結の駆動力  $\Delta\mu(\delta)$  が非常に小さくても  $R_f$  は十分大きい。実際、(9)式で与えられる定常状態の水膜の化学ポテンシャル  $\Delta\mu(\delta_{st})$  は間隙水 (バルクの水) の化学ポテンシャルよりも極めて小さく、 $\Delta\mu(\delta_{st}) = 2.3 \times 10^{-4} \Delta\mu_w$ 、である。すなわち、水膜の厚み  $\delta_{st}$  は、平衡値  $\delta_{eq}$  に近く、水膜の化学ポテンシャルは水の化学ポテンシャルにほぼ等しいとみなせる。したがって、(10)'式に見られるように、水膜が間隙水を吸引する駆動力  $\Delta\mu_w - \Delta\mu(\delta_{st})$  が  $\Delta\mu_w$  に置きかえられるのである。

## 2. 凍上の律速過程

はじめに述べたように、凍上現象には、ここで議論した i) カイネティック過程の他に、ii) 地下水位から水膜に向かう巨視的な水輸送過程、ならびに iii) 水膜の凍結の潜熱と未凍土側から凍結面に流れ込む熱を凍土側に逃がす熱輸送過程が関連している。

実際の系では、一般に、これらの三つの過程がカップルしあって凍上速度が決まっている。たとえば、ここで導出した i) の過程から決まる凍上速度  $R_h$  は、水膜の過冷度  $\Delta T$  の増加関数 ((10)式) で、その  $\Delta T$  は iii) の熱輸送過程に強く依存する。すなわち、 $\Delta T$  を通じて i) と iii) の過程がカップルするのである。また、本論文で  $R_h$  を導びく際には、完全に水で飽和した土を前提とした。しかしながら、現実の系では、水膜がその近くの間隙水を吸引すると、水膜近くの土の含水比が減少するので、それを地下水位からの巨視的な水の流れによってどの程度おぎなえるかが、凍上速度に影響する (i) と ii) のカップリング)。

今後の課題として、ここで定性的に述べた三つの過程の相互作用を考慮して凍上速度を定量的に求め、外的な条件 (大気温度、地下水位、土粒子の種類、粒径など) に応じて、どの過程が律速過程として重要になるかを、議論する必要がある。

## 謝 辞

本研究を行うにあたり、木下誠一教授、堀口薫助教授、福田正己講師に、有益な御助言を戴いた。深く感謝の意を表します。

## 文 献

- 1) Jackson, K. A. and Chalmers, B. 1958 Freezing of liquids in porous media with special reference to frost heave in soils. *J. Applied Physics*, **29**, 1178-1181.
- 2) Uhlmann, D. R., Chalmers, B. and Jackson, K. A. 1964 Interaction between particles and a solid-liquid interface. *J. Applied Physics*, **35**, 2986-2993.
- 3) Miller, R. D. 1978 Frost heaving in noncolloidal soils. Proc. 3rd. Int. Conf. Permafrost, vol. 1, p. 707-713, Ottawa, National Research Council of Canada.
- 4) Takagi, S. 1980 The adsorption force theory of frost heaving. *Cold Region Science and Technology*, **3**, 57-81.

- 5) Kuroda, T. 1985 Theoretical study of frost heaving —kinetic process at water layer between ice lens and soil particles—. *Ground Freezing*, eds. S. Kinoshita and M. Fukuda (Balkema) vol. **1** 39-45.
- 6) Horiguchi, K. 1985 Determination of unfrozen water content by DSC. *Ground Freezing*, eds. S. Kinoshita and M. Fukuda (Balkema) vol. **1** 33-38.
- 7) Xiaozu, Xu, Oliphant, J. L. and Tice, A. R. 1985 Prediction of unfrozen water contents in frozen soils by a two-point or one-point method. *Ground Freezing*, eds. S. Kinoshita and M. Fukuda (Hokkaido University) vol. **2** 83-87.
- 8) Kuroda, T. and Lacmann, R. 1982 Growth kinetics of ice from the vapour phase and its growth forms. *J. Crystal Growth*, **56**, 189-205.
- 9) Cahn, J. W., Hillig, W. B. and Sears G. W. 1964 The molecular mechanism of solidification. *Acta Metallurgica*, **12**, 1421-1439.
- 10) 堀口 薫 1977 凍結面への水分の移動について (1), (2) 昭和 52 年度 日本雪氷学会, 講演予稿集, 講演番号 325, 326.

### Summary

In this paper we investigate thermodynamical properties of a water layer between an ice lens and soil particles, e.g. the chemical potential  $\Delta\mu(\delta)$  of the water layer as a function of the layer thickness  $\delta$ , the supercooling  $\Delta T$  and the overburden pressure  $p$ , the equilibrium thickness  $\delta_{eq}$  of the layer, and so on. Then we discuss the kinetic process of frost heaving at the layer, i.e. the process of freezing and the process of suction of water, and derive the rate  $R_h$  of frost heaving under steady state conditions for given  $\Delta T$  and  $p$ . This paper is based on the study<sup>5)</sup> presented at the 4th International Symposium on Ground Freezing (Sapporo, 1985).

We can draw the following concluding remarks:

1. The chemical potential  $\Delta\mu(\delta)$  of the water layer between an ice lens and soil particles against ice increases with an increase in layer thickness  $\delta$ . It is negative for  $\delta$  smaller than the equilibrium thickness  $\delta_{eq}$ , zero at  $\delta = \delta_{eq}$  and reaches the chemical potential of bulk water for  $\delta \rightarrow \infty$ .

2. Since the chemical potential  $\Delta\mu(r_p)$  of pore water is larger than  $\Delta\mu(\delta)$  of the water layer, the pore water is drawn towards the layer and consequently the layer thickness tends to become larger than  $\delta_{eq}$ . The rate  $R_s$  of thickening of the layer by the suction of pore water is an increasing function of the chemical potential difference  $\Delta\mu(r_p) - \Delta\mu(\delta)$  in a distance of the order of the mean radius of soil particles.

3. The chemical potential  $\Delta\mu(\delta)$  of the layer with the thickness  $\delta$  larger than  $\delta_{eq}$  is positive. Therefore, freezing occurs at the interface between the ice lens and the water layer so as to reduce the layer thickness. The thinning rate  $R_f$  of the layer by freezing is a increasing function of  $\Delta\mu(\delta)$ .

4. From the balance equation  $R_s = R_f = R_h$ , we can derive the layer thickness  $\delta_{st}$ , the chemical potential  $\Delta\mu(\delta_{st})$  and the rate  $R_h$  of frost heaving under steady state conditions.

5. It is shown that  $\delta_{st}$  is fairly close to  $\delta_{eq}$  because of a large kinetic coefficient of the freezing rate and that the rate  $R_h$  is actually controlled by the rate of suction of pore water at the water layer, so long as the supercooling  $\Delta T$  and overburden pressure  $p$  are given and soil is saturated with water.