

DOI: 10.13671/j.hjkxxb.2015.0058

梅昌良, 贺玉龙, 苏凯, 等. 2015. 生物覆盖层属性对气体输运过程的影响[J]. 环境科学学报, 35(10): 3210-3217

Mei C G, He Y L, Su K, et al. 2015. Influence of biocover properties on gas transport [J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 35(10): 3210-3217

生物覆盖层属性对气体输运过程的影响

梅昌良¹, 贺玉龙^{1,*}, 苏凯¹, 熊春梅¹, Paul Imhoff²

1. 西南交通大学地球科学与环境工程学院, 成都 610031

2. 特拉华大学土木与环境工程系, 美国 特拉华 纽瓦克 19716

收稿日期: 2014-10-28

修回日期: 2015-01-27

录用日期: 2015-02-12

摘要:为更好地理解生物覆盖介质属性对甲烷减量过程中气体通量分布的影响,将熟化时间为 24 个月和 2 个月的新旧绿色废物分别用于建设 1[#]和 2[#]生物覆盖单元.通过分布在其表面的 12 个静态箱测量混合气体的组成和通量,结合生物覆盖层含水率和干密度对示踪气体进行回归分析,并利用数值模拟工具模拟示踪气体的输运过程.测量结果表明,两个覆盖单元表面气体通量分布呈现高度变异性,其中,1[#]单元中气体通量的最大值与最小值的差别达 9 倍,在 2[#]单元中,这种差异放大到 20 倍.生物覆盖层中含水率和干密度(孔隙度)也同样呈现出高度变异性,多元回归分析表明,含水率和干密度的分布与气体通量的分布明显线性关系,其中,含水率的分布总体上决定了气体的输运路径.数值模拟结果表明,气体在 2[#]单元中的输运受到扩散过程的影响较大,结构性因子变异程度更高导致了预测的不确定性.

关键词:生物覆盖;空间变异性;扩散;气体通量;数值模拟

文章编号: 0253-2468(2015)10-3210-08

中图分类号: X705

文献标识码: A

Influence of biocover properties on gas transport

MEI Changgen¹, HE Yulong^{1,*}, SU Kai¹, XIONG Chunmei¹, Imhoff Paul²

1. Faculty of Geoscience and Environmental Engineering, Southwest Jiaotong University, Chengdu, 610031

2. Department of Civil and Environmental Engineering, University of Delaware, Newark, USA 19716

Received 28 October 2014;

received in revised form 27 January 2015;

accepted 12 February 2015

Abstract: 24-month and 2-month old green wastes were filled into two biocovers marked with 1[#] and 2[#], respectively, for a better understanding of biocover properties on gas transport when biocover technology was utilized to mitigate methane emissions. Gas compositions and fluxes were measured by 12 static chambers placed on the top of each biocover. Regression analysis and numeric simulation were performed to analyze the correlation of gas fluxes and properties such as moisture content, dry bulk density and model transport of tracer. Measurement data showed that gas fluxes exhibited high spatial variability, with the difference between maximum and minimum gas flow about a factor of nine and two orders of magnitude in 1[#] and 2[#] cell, respectively. Moisture content and dry bulk density in both biocovers also exhibited high spatial variability, and multiple linear regression analysis suggested that gas distribution in both biocovers was correlated with water distribution and dry bulk density. Water distribution played important role in determining the transport path of gas. Simulated results indicated that diffusive process influenced the distribution of gas fluxes in 2[#] cell more significantly, and higher variation of structure factors might result in prediction uncertainty.

Keywords: biocover; spatial variability; diffusion; gas flux; numerical simulation

1 引言(Introduction)

生物覆盖(Biocover)是政府间气候变化大会(IPCC)推荐的用于减少垃圾填埋场甲烷排放的低成本技术之一(Intergovernmental Panel on Climate

Change and United Nations, 2007).为达到生物覆盖层的稳定性,一般要求填充介质尽可能均匀(Humer et al., 1999),且要避免优先流(Preferential Flow)如热点(Hotspots)的形成.在实际工程应用中或野外条件下,生物覆盖层覆盖在垃圾填埋场表面,其介质

基金项目: 教育部新世纪优秀人才支持计划项目(No. NCET-11-0710); 中央高校基本科研业务费专项资金(No. SWJTU12CX003, 2682014CX015)

Supported by the Program for New Century Excellent Talents in University of China (No. NCET-11-0710) and the Fundamental Research Funds for the Central Universities of China (No. SWJTU12CX003, 2682014CX015)

作者简介: 梅昌良(1979—),男,博士, E-mail: cgmei@msn.cn; * 通讯作者(责任作者), E-mail: yulonghe@163.com

Biography: MEI Changgen (1979—), male, Ph.D., E-mail: cgmei@msn.cn; * Corresponding author, E-mail: yulonghe@163.com

含水率和孔隙度等参数会随着外界环境条件、时间的改变而变化 (Gebert *et al.*, 2011; Rachor *et al.*, 2013; Röwer *et al.*, 2011), 这关系到物理、化学和生物过程 (Goovaerts, 1998), 最终会影响到生物覆盖层对甲烷削减性能的稳定性和持续性。

堆肥混合物等常见的生物覆盖层建设介质与传统粘土层的不同之处在于前者具有较好的通气性能, 能改善微生物生存环境, 还能有效减少因脱水形成的裂缝。一般地, 气体在生物覆盖层中的运输过程主要受压力梯度 (对流/平流) 或 (和) 浓度差 (扩散) 驱动, 分别可用达西定律和菲克第一定律进行描述。两种过程分别取决于关键参数即气体渗透系数 (K_g) 和扩散系数 (D), 两者与填充介质的属性 (如含水率、孔隙等) 紧密相关 (Allaire *et al.*, 2009; Moldrup *et al.*, 2001)。因此, 本文通过研究生物覆盖层介质属性 (如含水率、干密度等因子) 对气体运输和分布的影响, 并将数值模拟工具用于分析生物覆盖层中气体的运输过程和影响因子, 以期对生物覆盖层的设计、选材和利用提供帮助。

2 研究方法 (Methods)

2.1 试验设计

试验场地位于美国加利福尼亚 YOLO 郡垃圾填埋场, 当地属地中海气候, 降水主要集中在 11 月至次年 2 月, 其它月份几乎没有降水。生物覆盖层建设材料来自于垃圾填埋场接收后分别通过 24 个月和 2 个月自然熟化后的废物。两种绿色废物均通过使用 76 mm 筛网筛选以后用于建设 1[#] 和 2[#] 两个生物覆盖单元, 两者主要差别在于 pH (5.1、5.7)、氨氮 (21、103 $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$)、有机质含量 (38%、61%)、碳氮比 (1.5、1)。在 2.4 m \times 1.8 m 脚线上方安装排水系

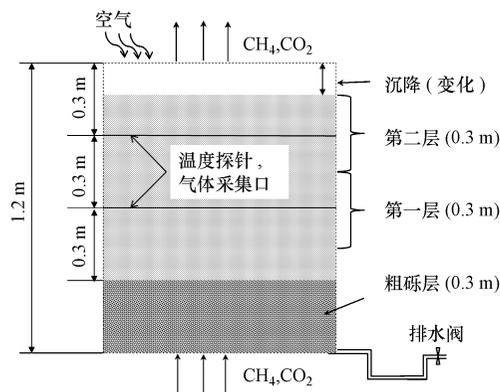


图 1 生物覆盖单元示意图

Fig.1 Sketch map of biocover cell

统并铺有 30 cm 厚粗砾层以使气体可以均匀导入生物覆盖层, 经充分混合的绿色废物填入粗砾层上方, 初始厚度为 90 cm, 填装完成后覆盖单元表面长宽分别为约 2.4 m 和 1.8 m, 其剖面图如图 1 所示。温度探针和气体采集口分别固定在支撑框架 0.3 和 0.6 m 深处 (从上至下), 第二层的高度是指从生物覆盖层表面 (沉降后) 以下 0.3 m, 紧挨着第二层往下 0.3 m 为第一层。经过约 1 年连续通气后, 生物覆盖单元 1[#] 和 2[#] 分别沉降了 0.14 m 和 0.28 m。

12 个直径约 30 cm 的塑料桶放置在生物覆盖单元上层用于测量气体通量, 测量筒截面积之和占整个覆盖单元总表面积的 25%, 底部 CH_4 和 CO_2 导入比例约为 59%:40%, 其示意图如图 2 所示, 每个可密封塑料桶有取气孔, 内部安装有风扇用于快速混合气体。

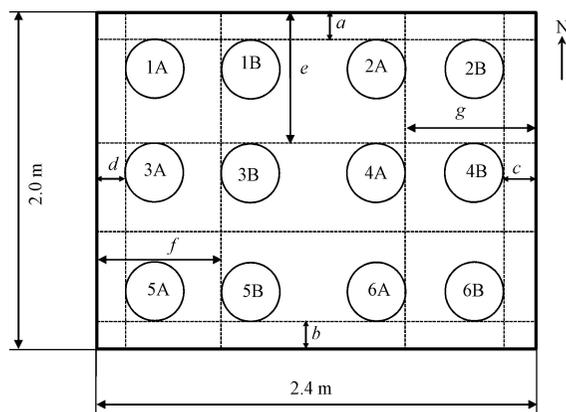


图 2 生物覆盖层顶部测量桶位置图

Fig.2 Layout of bucket measurement on the surface of biocover

2.2 测量方法

每个单元采 3 个直径为 19 cm、高约 30.5 cm 的圆柱体样品, 在 105 $^{\circ}\text{C}$ 条件下烘烤 48 h 用于测量生物覆盖层的初始干 (疏) 密度。生物覆盖单元建设完成后初始干密度的测量完成于 2009 年 3 月 9 日, 结果显示, 1[#] 和 2[#] 单元平均干密度分别为 $(0.29 \pm 0.03) \text{g} \cdot \text{cm}^{-3}$ (95% 置信区间) 和 $(0.25 \pm 0.03) \text{g} \cdot \text{cm}^{-3}$ 。相似地, 利用地螺钻 (直径 6.35 cm) 在如图 2 所示的 12 个测量筒 (1A~6B) 对应的位置下方每个深度取 3 个样品 (0~30 cm, 30~60 cm)。完成含水率测量之后将取至同一个测量筒下方相同深度的 3 个样品装入一个 1390 cm^3 容器测量干密度。对取至 1[#] 和 2[#] 生物覆盖单元的样品的测量分别完成于 2010 年 4 月 16 日和 20 日。

测试期间稳定化气体 (Sulfur Hexafluoride,

SF₆) 在进气端注入, 利用气相色谱仪测量 CH₄、CO₂ 和 SF₆ 在测量桶中的浓度变化, 通过拟合得到气体通量。

同位素试验采用了 Chanton 等(2008) 所使用方法, 将在进出口采集样品送至试验室, 通过气相色谱-燃烧-同位素比率质谱法(HP 5890, Finnigan MAT Delta S) 进行分析, 并假设以对流/平流主导气体输运过程, 即 α_{trans} 为输运系数, 取值为 1 (对流主导则为 1, >1 则表示扩散主导)。

2.3 数值模拟方法

Mostafid 等(2012) 通过研究本文涉及材料水气输运参数得出: Poulsen & Blendstrup 模型 (Poulsen *et al.*, 2008) 在所有的模型中表现得与测量值最为接近, 即气体渗透系数是关于含水率和干密度的函数, 具体如式(1)所示。

$$\log \kappa_a = 10^{[\alpha(\gamma\omega + \delta) + \beta]} \log \left(\frac{1 - \frac{\rho_b}{\rho_s} - \rho_b\omega}{\gamma\omega + \delta} \right) \quad (1)$$

式中, κ_a 是气体渗透系数 (μm^2), α 、 β 、 γ 和 δ 是 4 个拟合参数, ρ_b 和 ρ_s 分别为干密度 ($\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$) 和粒密度 ($\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$), ω 是含水率 ($\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$)。需要说明的是, 干密度在粒密度恒定时与孔隙度可以相互转换。Mostafid 等(2012) 通过试验得出了充气孔隙度有关的 Troeh 模型 (Troeh *et al.*, 1982), 可以准确描述本文所涉及

材料的有效扩散系数的结论, 具体如式 2 所示。

$$\tau = \frac{D_p}{D_0} = C (\varepsilon - \varepsilon_{th})^V \quad (2)$$

式中, τ 为有效扩散系数, D_p 是气体在材料介质中扩散系数, D_0 为气体在空气中的扩散系数, C 、 ε_{th} 和 V 为拟合参数。在本例中 α 、 β 、 γ 和 δ 分别选取为 1.90、0.41、-0.49 和 0.41 (Poulsen *et al.*, 2008), C 、 V 和 ε_{th} 拟合值分别为 0.81、0.15 及 1.43。

TMVOCBio 是基于美国劳伦斯伯克利国家实验室开发的基于 Fortran 语言的多孔介质多维多相非恒温流 (不可冷凝水、气和挥发性有机物) 的数值模拟工具, TOUGH 系列软件是在 TMVOC 基础上改进版本。根据本研究需要, 在 TMVOCBio 基础上增加渗透模型 (Poulsen & Blendstrup 模型) 和扩散系数模型, 即 Troeh 模型。

数值模拟边界条件如表 1 所示, 上边界为开放状态, CO₂、N₂、CH₄ 和 SF₆ 气体组成分别为 0.03%、78%、22% 和 0.0%。生物覆盖层温度分别根据上下边界测量温度和传感器温度通过 Matlab 线性插值完成, 并假设无传热发生。处于同一深度的含水率和干密度分别通过克里金方法 (Kriging) 插值 (斜率设定为 1.0) 得出。渗透系数是含水率和干密度的函数, 通过数值模拟软件内部完成计算。同样地, 扩散系数也是关于含水率也是通过软件内部计算完成。

表 1 数值模拟边界条件

Table 1 Boundaries for simulations

单元编号	CO ₂ /CH ₄ 底部通量/ (L·min ⁻¹)	CO ₂ /CH ₄ 组成	上边界压力 测量值/Pa	下边界压力 测量值/Pa	SF ₆ 导入通量/ (L·min ⁻¹)
1 [#]	1.88	59%:40%	10442	10362	0.11
2 [#]	1.30	59%:40%	10442	10430	0.11

3 结果与讨论 (Results and discussion)

3.1 气流在生物覆盖单元的分布

如图 3 所示, 通过静态箱法测得甲烷通量在 1[#] 和 2[#] 单元分布变化范围分别为 60~510 $\text{g}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{d}^{-1}$ 和 20~370 $\text{g}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{d}^{-1}$ 。两个单元均呈现明显的变异性特点: 在 1[#] 单元的所有测量筒对应位置, 甲烷通量的最大值与最小值差约 9 倍, 在 2[#] 单元中, 这种差异性放大到约 20 倍。如图 4 所示, 示踪气体 SF₆ 在 1[#] 单元中最大流量出现在 5B 位置 (桶位置, 位置分布图与图 2 所示一致)。表观上来看, SF₆ 通量分布趋势与甲烷通量保持一致。在 2[#] 单元除最大气流出现位置

与甲烷略有不同之外, 总体上通量分布的趋势保持一致。

3.2 生物覆盖层属性变异性

众所周知, 使用地螺钻野外采样容易引起较大的测量误差, 因此, 需要对测量数据做相应的校正。2010 年 4 月观测到 1[#] 单元和 2[#] 单元分别沉降了 14 cm 和 28 cm, 估算干密度分别为 0.34 和 0.36 $\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$ 。使用相同的校正系数 (相同的校正系数可以保持测量数据的规律变化趋势) 使得平均干密度接近估计值。校正后的干密度如图 4 所示 (上图为 0~30 cm 深度, 下图为 30~60 cm 深度)。

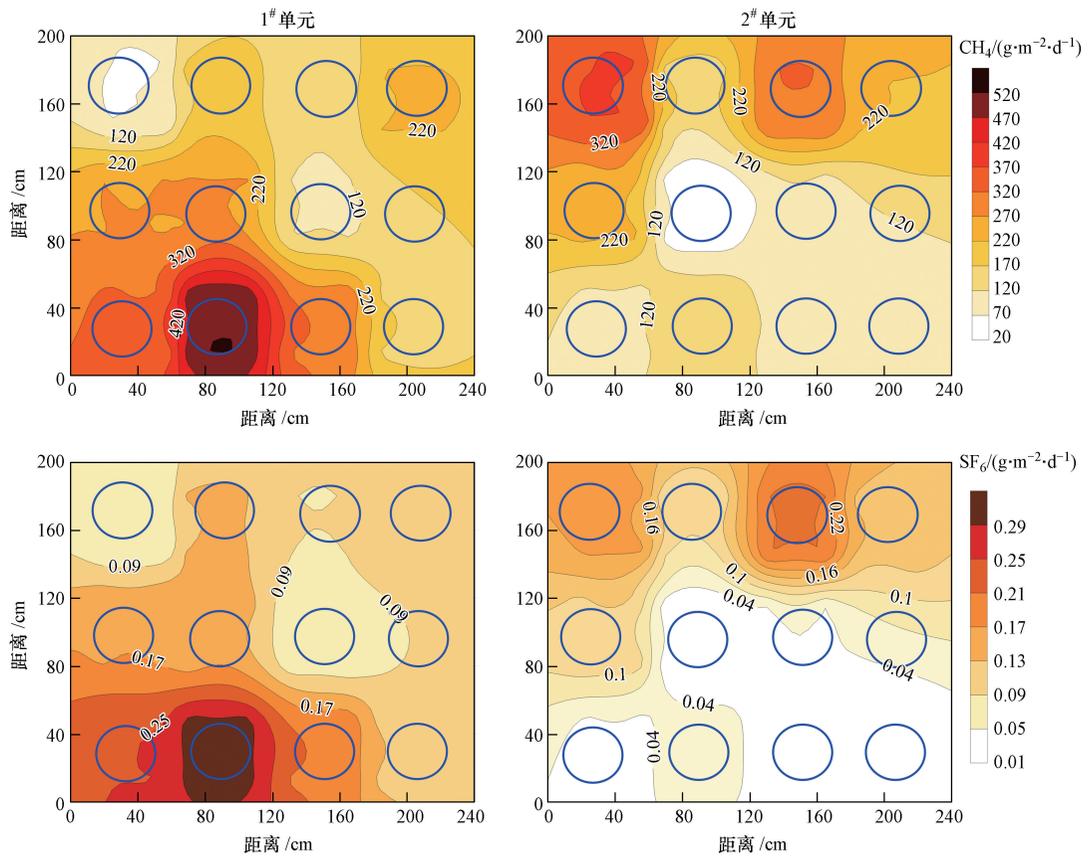


图3 生物覆盖单元测量筒气流分布图

Fig.3 Measured gas fluxes in buckets of two biocovers

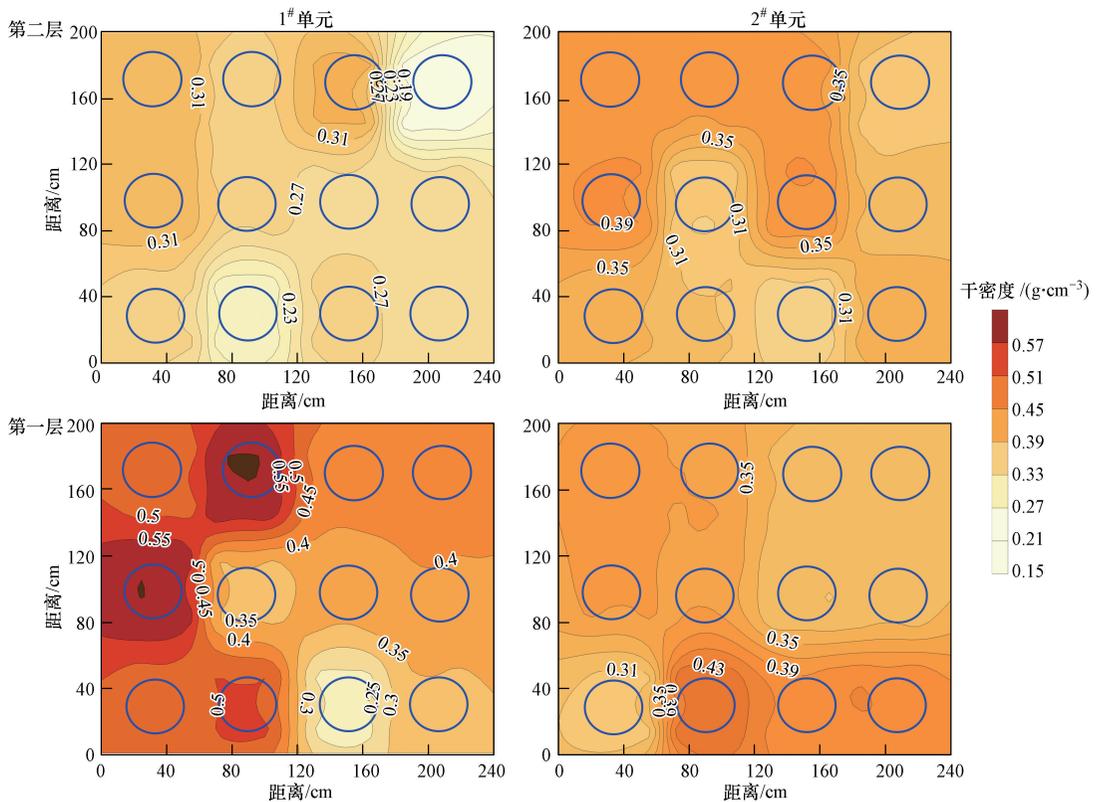


图4 对应测量筒干密度分布图(第二层0~30 cm,第一层30~60 cm)

Fig.4 Measured moisture content in buckets of two biocovers (top for 0~30 cm, bottom for 30~60 cm)

含水率也呈现出明显的空间变异性特点,因当地属于地中海气候,降水主要集中在 11 月至次年 2 月,其它月份降水很少发生.从图 5 可以看出,在 1# 单元的 0~30 cm 和 30~60 cm 两层中的含水率分布

明显呈现出靠近生物覆盖层边缘区域低于中心位置的特点.与此形成对比的是,2# 单元的两层则呈现明显的无规则性.总体上,无论是干密度还是含水率,均呈现出明显的空间变异特点.

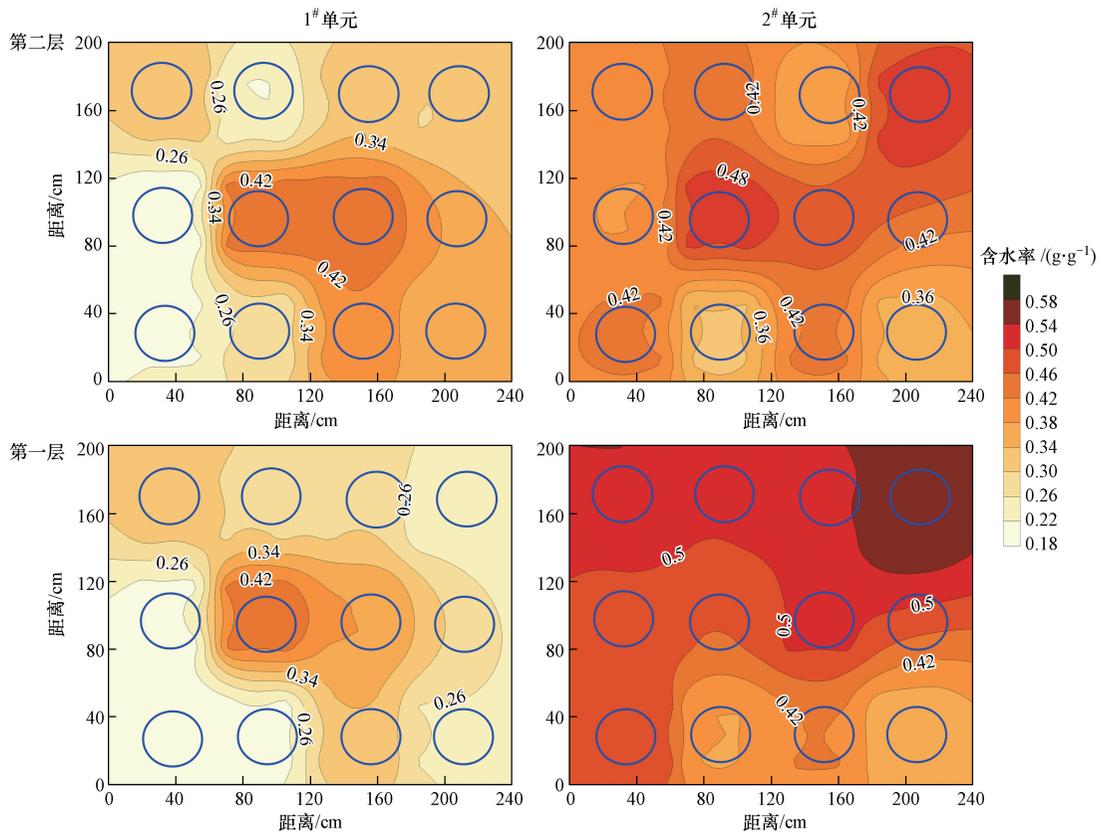


图 5 对应测量筒含水率分布图(第二层 0~30 cm,第一层 30~60 cm)

Fig.5 Measured moisture content corresponding to bucket locations in biocovers (top for 0~30 cm, bottom for 30~60 cm)

3.3 CH₄/CO₂分布与一维流假设

从图 6 中的 CH₄/CO₂分布来看,较低 CH₄/CO₂区域与较高甲烷氧化率区域相互对应.相反地,较高 CH₄/CO₂区域对应着明显偏高的混合气体通量,这

说明氧化的甲烷百分比较低,这与大气中氧气以相对容易地方式扩散进入生物覆盖层保持一致,即向上的气流与向下扩散的氧气产生对冲抵抗.

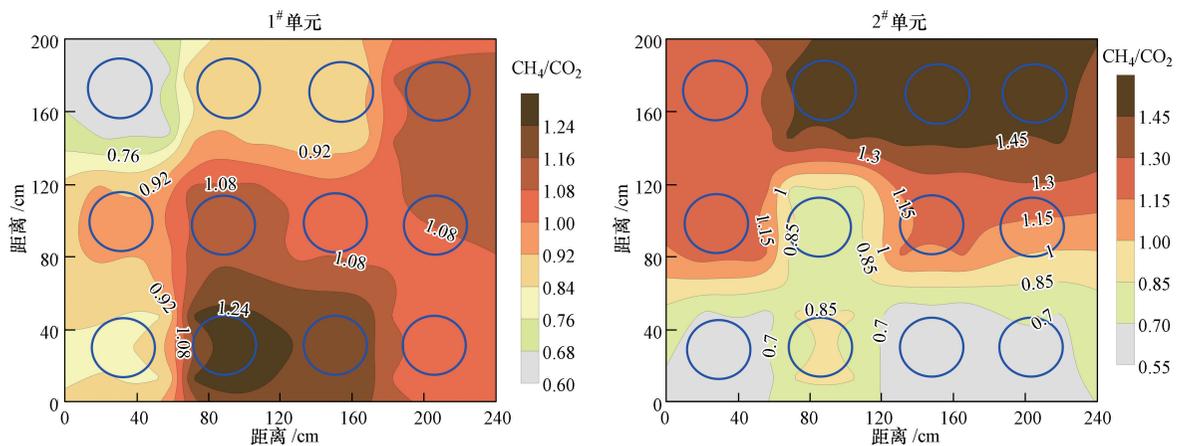


图 6 CH₄/CO₂分布

Fig.6 Distribution of CH₄/CO₂

图7展示的是基于一维流假设条件下甲烷氧化率与 CH_4/CO_2 分布关系,从图中可以看出,两个生物覆盖层都有明显线性关系,即氧化率越高与 CH_4/CO_2 相对应;此外,也可以看出2#单元中因气体导入量相对较小,导致在相同的 CH_4/CO_2 条件下,甲烷的氧化百分比有明显提高。

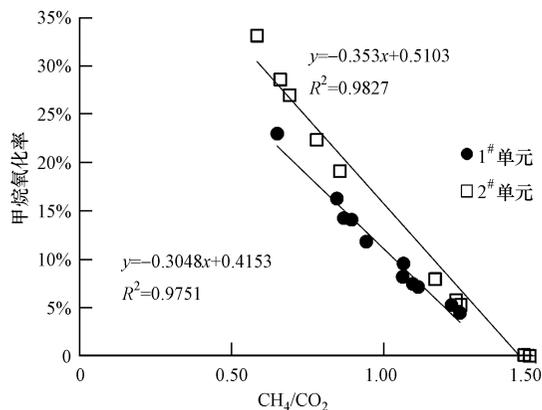


图7 CH_4 氧化率与 CH_4/CO_2 比例的关系

Fig.7 CH_4 oxidation rate versus CH_4/CO_2

3.4 气流的分布与覆盖层属性间的关联性

根据式(1)可以看出,该模型取决于两个关键参数,即含水率和干密度.通过回归分析两者与 SF_6 通量的关系发现, SF_6 气体在两个单元中的输运均与含水率和干密度有关,其中,2#单元的第一层(30~60 cm)的含水率显得更加重要($p < 0.05$);与此相反的是,在1#单元的上层(0~30 cm)干密度显得更加重要($p < 0.05$).需要说明的是,在1#单元中第二层含水率明显高于第一层(前期有少量降水),这说明除水的分布在一定程度上决定了气体的输运路径之外,覆盖单元的结构性因子(如干密度)也是一个重要因素。

3.5 扩散对气体通量分布的影响

2009年6月进行的同位素 C^{13} 试验分析了甲烷的去除率,并与质量守恒方法(忽略呼吸作用和甲烷的产生)进行对比,结果表明,两种方法在1#单元和2#单元的差别分别为2%和9%.在本例中同位素方法测量甲烷氧化率的重要假设之一便是对流/平流主导气体的输运过程($\alpha_{\text{trans}} = 1$),因此,扩散的影响可能是导致该差别的原因之一.尽管生物覆盖层的底部气压与大气压测量值差别不大(< 100 Pa),但微小的压力梯度仍然可能导致明显的对流发生(Warrick, 2001):甲烷在生物覆盖层中的氧化过程是一个缩容反应,以及大气压的波动也会引起

明显的压力梯度产生。

数值模拟结果表明, SF_6 气体在两个生物覆盖层中的输运过程都包含了对流/平流和扩散过程.在30 cm深处 SF_6 扩散通量占总通量的百分比分别为40%与47%,且在越接近上边界扩散过程所占比例越高.虽然2#单元因含有较高有机质含量导致含水率总体偏高,但扩散更加主导了气体的输运过程,一方面2#单元的底部气体导入量($1.30 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$)相对于1#单元($1.88 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$)较小,另外一个重要原因是其含水率和气体通量的分布呈现出明显的空间变异性,即优先流的发生,如图3所示大部分 SF_6 气体通过生物覆盖层的上半部分释放,这与图6中 CH_4/CO_2 分布是一致的。

对 SF_6 气体通量的数值模拟结果表明,模型能准确捕捉到 SF_6 气体在1#生物覆盖单元的分布范围,但数值模拟不能用于描述2#单元中 SF_6 的通量分布(图8).需要指出是,前期测量结果表明,1#和2#单元填料的空气渗透系数与充气孔隙度之间并无明显关联,如图9所示,轻微的充气孔隙度变化都会引起1~3倍的空气渗透系数的变化,这已被证明

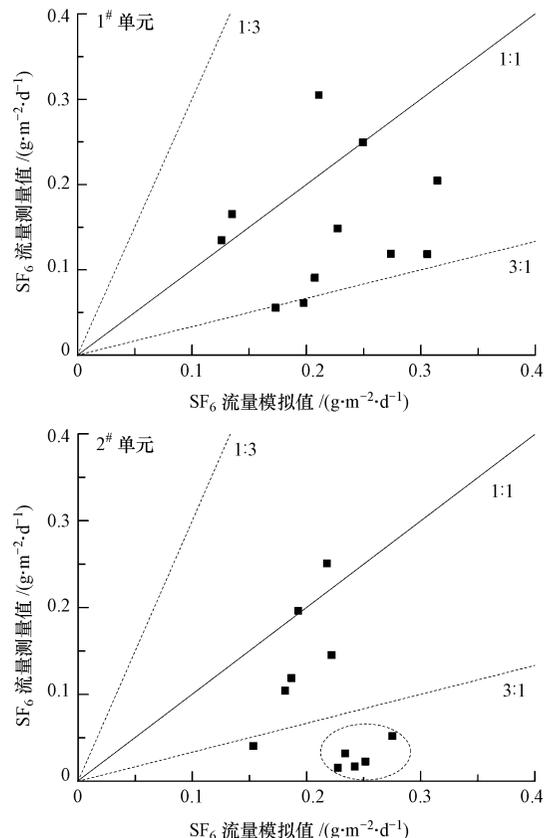


图8 SF_6 气体通量的测量与模拟对比

Fig.8 Measured SF_6 fluxes versus simulated values

是因宏观孔隙的存在 (Mostafid *et al.*, 2012), 从而导致传统的单介质模型不能描述生物覆盖单元气体渗透系数的重要原因。

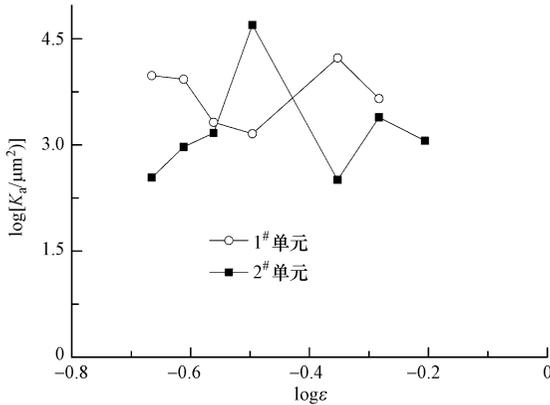


图9 渗透系数的变异性

Fig.9 Variation of air permeability

3.6 误差传递与空间变异性

由于对应每个测量筒覆盖范围含水率的样本数为3, 故会产生标准差, 根据式(1)计算渗透系数会造成误差的传递, 计算的结果如图10所示. 渗透系数在1#单元中的变异系数平均值为约20%, 结合

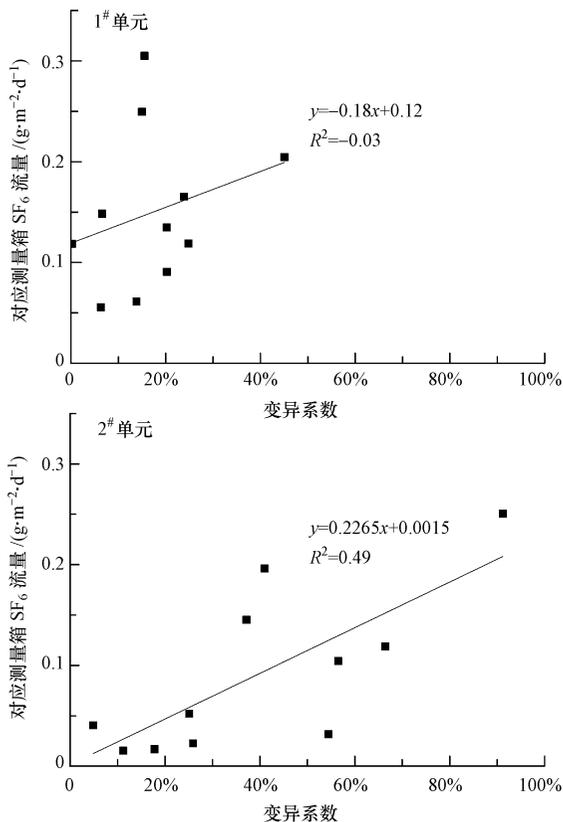


图10 气体渗透系数变异性与测量 SF₆ 通量

Fig.10 Gas permeability versus measured SF₆ fluxes

数值模拟结果也能间接说明同位素测量方式中假设气体的运输以对流/平流为主的假设的正确性. 2#单元则显示出明显的变异性(变异系数大于50%), 结合到图9可以看出, 一方面覆盖层结构性因子的高度变异性给气体的运输带来不确定性, 另一方面也能解释数值模拟工具不能准确描述 SF₆ 气体在2#单元中的运输的原因在于: 对比两个单元, 扩散过程对2#单元中气体的运输过程主导程度更高, 这一结论与同位素方法实验中气体的运输是由对流/平流主导的假设是一致的。

4 结论 (Conclusions)

均匀填入覆盖单元的介质在野外条件下经过短期试验后, 干密度(孔隙度)、含水率等物理参数呈现出明显的空间变异性, 尤其是在有机质含量较高的单元中更为明显, 这种高变异性与气体在覆盖层中的运输有密切联系, 其中, 含水率的分布对气体的运输路径有重要影响. 覆盖层的结构因子(如宏观空隙)引起覆盖层性质在空间上表现出的高度变异性也是引传统单介质模型如 Van Genuchten-Mualem 模型(固有渗透率与相对渗透率的乘积)不能准确描述气体的渗透系数的原因之一. 此外, 数值模拟结果表明, 气体在覆盖单元中的运输主要包括扩散和对流过程, 就本例而言, 尽管两种介质中均呈现出明显的宏观孔隙的存在特征, 但在对熟化时间为24个月介质中的气体运输模拟结果表明, 数值工具能对气体在其中的运输过程进行有效的模拟, 但熟化时间仅为2个月的生物覆盖介质中气体运输则明显受到结构因子的影响导致预测的不确定性。

责任作者简介: 贺玉龙(1975—), 男, 博士, 教授, 主要研究方向为工程环境效应及轨道交通、环境保护。

参考文献 (References):

- Allaire S E, Roulier S, Cessna A J. 2009. Quantifying preferential flow in soils: A review of different techniques[J]. *Journal of Hydrology*, 378(1/2): 179-204
- Chanton J P, Powelson D K. 2008. Effect of Temperature and oxidation rate on carbon-isotope fractionation during methane oxidation by landfill cover materials[J]. *Environmental Science & Technology*, 42: 7818-7823
- Gebert J, Rachor I, Grongröft A, *et al.* 2011. Temporal variability of soil gas composition in landfill covers[J]. *Waste Management*, 31(5): 935-945
- Goovaerts P. 1998. Geostatistical tools for characterizing the spatial

- variability of microbiological and physico-chemical soil properties[J]. *Biology and Fertility of Soils*, 27(4): 315-334
- Humer M, Lechner P. 1999. Alternative approach to the elimination of greenhouse gases from old landfills [J]. *Waste Management & Research*, 17(6): 443-452
- Intergovernmental Panel on Climate Change, United Nations. 2007. *Climate Change 2007 - The Physical Science Basis: Working Group I Contribution to the Fourth Assessment Report of the IPCC* [M]. London: Cambridge University Press
- Moldrup P, Olesen T, Komatsu T, *et al.* 2001. Tortuosity, diffusivity, and permeability in the soil liquid and gaseous phases [J]. *Soil Science Society of America Journal*, 65(3): 613-623
- Mostafid M E, Shank C, Imhoff P T, *et al.* 2012. Gas transport properties of compost-woodchip and green waste for landfill biocovers and biofilters[J]. *Chemical Engineering Journal*, 191: 314-325
- Poulsen T G, Blendstrup H. 2008. Predicting air permeability in porous media with variable structure, bulk density, and water content[J]. *Vadose Zone Journal*, 7(4): 1269-1275
- Rachor I M, Gebert J, Gröngroft A, *et al.* 2013. Variability of methane emissions from an old landfill over different time-scales[J]. *European Journal of Soil Science*, 64(1): 16-26
- Röwer I U, Geck C, Gebert J, *et al.* 2011. Spatial variability of soil gas concentration and methane oxidation capacity in landfill covers [J]. *Waste Management*, 31(5): 926-934
- Troeh F R, Jabro J D, Kirkham D. 1982. Gaseous diffusion equations for porous materials[J]. *Geoderma*, 27(3): 239-253
- Warrick A W. 2001. *Soil Physics Companion* [M]. Boca Raton, Fla.: CRC Press