

DOI: 10.11779/CJGE201510021

非饱和土质覆盖层多组分气体运移机理研究

张旭俊^{1, 2}, 陈云敏^{1, 2}, 徐晓兵^{1, 2}, 詹良通^{1, 2}, 杨益彪^{1, 2}

(1. 浙江大学岩土工程研究所, 浙江 杭州 310058; 2. 浙江大学软弱土与环境土工教育部重点试验室, 浙江 杭州 310058)

摘要: 为研究土质覆盖层中各组分气体的运移规律, 进行了土柱注气试验, 并通过多组分气体运移理论对试验结果进一步分析。分析结果表明: 在注入气体总流量不变的情况下, 改变注入气体的组分, 会显著影响土柱中各组分气体分布; 多组分气体运移理论能较好地预测各组分气体的运移; 表观气相渗透系数不是一常数, 与气压大小相关; 体相扩散是影响各组分气体分布规律的主要因素, 通过改变有效二元扩散系数, 调整各组分气体分布, 可以提高土质覆盖层中甲烷氧化效果。

关键词: 气体运移; 覆盖层; 多组分气体; 非饱和土; 体相扩散

中图分类号: TU43 **文献标识码:** A **文章编号:** 1000-4548(2015)10-1917-07

作者简介: 张旭俊(1990-), 男, 硕士研究生, 主要从事环境土工领域研究。E-mail: pavelz@zju.edu.cn。

Mechanism of multi-component gas migration in unsaturated cover

ZHANG Xu-jun^{1, 2}, CHEN Yun-min^{1, 2}, XU Xiao-bing^{1, 2}, ZHAN Liang-tong^{1, 2}, YANG Yi-biao^{1, 2}

(1. Institute of Geotechnical Engineering, Zhejiang University, Hangzhou 310058, China; 2. MOE Key Laboratory of Soft Soils and Geoenvironmental Engineering, Zhejiang University, Hangzhou 310058, China)

Abstract: A multi-component gas migration model is presented for determining each component flux of landfill gas. The method to determine transport parameters in unsaturated soils is also given. A soil column test is conducted to simulate the progress of gas migration in landfill final cover. The test results are compared with the theoretical ones. It shows that the multi-component gas migration model can give the flux of each component more accurately. Change in the injected gas component fraction has a significant influence on the gas distribution in soils. Amount of apparent gas permeability depends on gas pressure. Bulk diffusion is the main factor to determine the distribution of each component in soils. Changing in effective diffusion coefficient may improve the methane oxidation capacity.

Key words: gas transport; final cover; multi-component gas; unsaturated soil; bulk diffusion

0 引言

目前中国城市生活垃圾的主要处理方式包括卫生填埋、焚烧与堆肥处理等, 其中, 卫生填埋占所有处理方式的 90%^[1]。填埋垃圾体在生化反应过程中, 会产生对环境有害的填埋气, 其主要成分为甲烷和二氧化碳。填埋场通常采用封顶覆盖层来阻止填埋气无组织释放, 提高填埋气收集率。目前, 填埋场覆盖层气体运移分析中多将填埋气作为整体来考虑, 未关注不同组分填埋气的协同运移^[2-3]。填埋场土质覆盖层中存在甲烷菌, 能够将甲烷氧化, 生成水和二氧化碳, 起到减排填埋气的作用, 正得到越来越多的研究和应用^[4-5]。然而, 在土质覆盖层甲烷氧化过程分析及减排效果评价中, 仍缺乏不同组分气体(包括甲烷、氧气等)协同运移和分布规律的研究。

本文介绍了多组分气体运移理论, 并针对非饱和土给出了气体运移参数的取值方法; 开展了甲烷和二

氧化碳的土柱注气试验模拟覆盖层中的气体运移, 监测了土柱不同高度气压与各组分气体的浓度, 通过与理论计算结果的对比分析, 揭示了非饱和土质覆盖层中多组分气体运移的规律。

1 多组分气体运移理论

1.1 气体运移机理

土体中的气体主要以对流与扩散两种方式进行运移。气体整体或某一组分的总通量, 均可以表示为相对应的对流通量和扩散通量之和^[6]。

气体对流是气体在整体压力梯度作用下产生的运移, 土体中的气体对流通量为

基金项目: 国家重点基础研究发展计划(“973”计划)项目(2012CB719805); 国家自然科学基金项目(41402249)

收稿日期: 2014-09-11

$$N^v = v_v \cdot n_g , \quad (1)$$

式中, N^v 为气体的对流通量 ($\text{mol} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$), v_v 为气体整体的对流达西流速 ($\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$), 可以表示为^[6]

$$v_v = -\frac{k_g}{\mu_g} \nabla u_g , \quad (2)$$

式中, μ_g 为气体的动力黏度 ($\text{kg} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$), u_g 为气体相对气压 (Pa), k_g 为土体的气相渗透系数 (m^2)。本文中的渗透系数量纲均为 m^2 , 其大小仅与土体本身的渗透性质相关, 与流体的性质无关。

在干燥状态下, k_g 的值即为土体的固有渗透系数 k_i ; 在非饱和的情况下, 可利用 Brooks–Corey 模型预测^[7]:

$$k_g(S) = (1-S)^2 \left(1 - S^{\frac{2+\lambda}{\lambda}}\right) k_i , \quad (3)$$

式中, λ 为模型参数, 可利用土水特征曲线分析得到, S 为土体的饱和度。

气体中的某一组分的对流通量为^[8]

$$N_i^v = X_i N^v , \quad (4)$$

式中, N_i^v 为组分 i 的对流通量 ($\text{mol} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$), X_i 为组分 i 的摩尔分量, 即气体 i 的摩尔量与气体总摩尔量之比。

气体的扩散按驱动力不同可以分为两种: 由气体分子间的碰撞引起的扩散称为体相扩散; 由气体分子与运移通道壁间的碰撞引起的扩散称为努森扩散^[6]。

体相扩散是由于气体分子间的碰撞引起, 各组分的气体由于其分子质量、浓度(分压)梯度不同, 各自运移的速度也不相同; 不同组分的气体分子之间相互碰撞, 运移慢的组分对运移快的组分有阻滞作用。在单位体积土体中, 由体相扩散引起的气体组分 i 对组分 j 的阻滞力 f_{ij} 为^[9]

$$f_{ij} = \frac{1}{D_{ij}^e} X_i X_j \bar{u}_g (v_i - v_j) , \quad (5)$$

式中, \bar{u}_g 为气体的总气压(绝对气压)(Pa), v_i 为组分 i 的达西流速 ($\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$)。 f_{ij} 本质上是两种气体分子相互碰撞引起的作用力, \bar{u}_g 反映了气体分子的密度, $X_i X_j$ 反映了 i, j 两种气体分子碰撞的概率, $v_i - v_j$ 反映了单次碰撞引起的作用力, D_{ij}^e 为土中 i, j 两种气体的有效二元扩散系数 ($\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$), 可表示为^[10]

$$D_{ij}^e = 0.66n(1-S)D_{ij} , \quad (6)$$

式中, n 为土体的孔隙率, D_{ij} 为自由空间中 i 和 j 组分气体的二元扩散系数 ($\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$), 它与气体 i 和 j 本身的性质相关, 且 $D_{ij}=D_{ji}$, 可通过扩散池试验获得。表 1 列出了常见二元气体的体相扩散系数。

多组分气体(假设共有 k 组)中的组分 i 的体相

扩散过程受到其他 $k-1$ 个组分的作用。假定气体遵循理想气体状态方程, 在仅考虑体相扩散的情况下, 根据式(5)可以得到不同组分扩散通量的隐式表达^[12]:

$$-\frac{\nabla u_{gi}}{RT} = \sum_{j=1, j \neq i}^k \frac{X_j N_{iB}^D - X_i N_{jB}^D}{D_{ij}^e} , \quad (7)$$

式中, N_{iB}^D 为组分 i 的仅存在体相扩散时的扩散通量 ($\text{mol} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$), u_{gi} 为气体 i 组分的分压 (Pa), R 为理想气体常数, 取 $8.31 (\text{J} \cdot \text{K}^{-1} \cdot \text{mol}^{-1})$, T 为温度 (K)。

表 1 常见二元气体扩散系数^[11]

Table 1 Binary gas diffusion coefficients^[11] ($10^{-4} \text{ m}^2/\text{s}$)

气体组分	二元扩散系数	气体组分	二元扩散系数
$\text{N}_2\text{-O}_2$	0.2083	$\text{O}_2\text{-CO}_2$	0.1635
$\text{N}_2\text{-CO}_2$	0.1649	$\text{O}_2\text{-CH}_4$	0.2263
$\text{N}_2\text{-CH}_4$	0.2173	$\text{CO}_2\text{-CH}_4$	0.1705

努森扩散是由于气体分子与运移通道壁发生碰撞引起的运移, 在仅存在努森扩散的情况下, 单位体积的土体中, 土体内部运移通道壁对某气体组分的阻滞力 f'_i 可表示为

$$f'_i = \frac{\bar{u}_{gi} v_i}{D_{iM}^e} , \quad (8)$$

式中, f'_i 本质上是由于 i 组分气体分子与通道壁碰撞引起的作用力, \bar{u}_{gi} 反映了 i 组分气体分子的密度, v_i 反映了单次碰撞引起的作用力, D_{iM}^e 为有效努森扩散系数 ($\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$), 它与气体本身的性质以及土体的性质相关。在非饱和土中, 基于 Brooks–Corey 相对渗透系数预测模型, 有效努森扩散系数可以表示为^[13]

$$D_{iM}^e(S) = (1-S)^2 \left(1 - S^{\frac{1+\lambda}{\lambda}}\right) D_{iMd}^e , \quad (9)$$

式中, D_{iMd}^e 为 i 组分气体在干燥土体中的有效努森扩散系数 (m^2/s), 可表示为^[6]

$$D_{iMd}^e = \frac{n}{\tau} D_{iM} = \frac{d_0}{3} \sqrt{\frac{8RT}{\pi M_i}} , \quad (10)$$

式中, τ 为曲折因子, 反映了土中气体的真实运移长度与表观运移长度之比, D_{iM} 为直径等于 d_0 通道中的努森扩散系数 ($\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$), 在干燥土体中, d_0 即为土体的平均孔径, 其不易直接通过试验获取。因此, 本文采用等效换算的办法计算 D_{iMd}^e , 换算原理如下所述。

将通过渗透试验测得的气相渗透系数称为表观气相渗透系数, 对于同一土体, 在干燥状态下测得的表观气相渗透系数始终大于利用液相测得的固有渗透系数, 这被称为 Klinkenberg 效应^[14], 干燥状态下表观气相渗透系数可以表示为

$$\bar{k}_{gi} = k_i \left(1 + \frac{b_i}{\bar{u}_{gi}}\right) , \quad (11)$$

式中, \bar{k}_{gi} 为气体 i 的表观气相渗透系数 (m^2), k_i 为固有渗透系数 (m^2), \bar{u}_{gi} 为气体 i 的绝对气压 (Pa), b_i 为气体 i 的 Klinkenberg 因子 (Pa), 对于 b_{air} , Sampath 等基于试验提出了经验公式^[15]:

$$b_{\text{air}} = 0.0414 \left(\frac{k_i}{n} \right)^{-0.53}, \quad (12)$$

式中, b_{air} 的单位为 Pa, k_i 的单位为 m^2 。

Thorstenson 等学者认为, Klinkenberg 效应的物理本质即为努森扩散, 并得到了干土中努森扩散系数与 Klinkenberg 因子间的关系^[11]:

$$D_{iM}^e = \frac{k_i b_{\text{air}}}{\mu_i} \left(\frac{M_{\text{air}}}{M_i} \right)^{1/2}, \quad (13)$$

式中, μ_i 为气体 i 的黏滞度 ($\text{kg} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$), M_{air} 和 M_i 分别为空气以及气体 i 的摩尔质量 ($\text{kg} \cdot \text{mol}^{-1}$)。

如不考虑体相扩散, 在单位体积土体内, 组分 i 受到的运移通道壁对某气体组分的阻滞力与其自身压力梯度平衡, 根据式 (8), 可以得到不同组分扩散通量的表达:

$$N_{iM}^D = -D_{iM}^e \nabla n_{gi}, \quad (14)$$

式中, N_{iM}^D 为组分 i 仅存在努森扩散时的扩散通量 ($\text{mol} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$)。

1.2 多组分气体运移方程

若土中气体共有 k 种组分, 根据动量守恒, 可以写出每一组分的运移方程^[12], 将 k 个运移方程联立, 写成矩阵形式:

$$\mathbf{N} = -\mathbf{B}^{-1} \frac{\nabla \mathbf{u}_g}{RT} + \mathbf{B}^{-1} \frac{v_v \bar{u}_g}{RT} \mathbf{Y}, \quad (15)$$

式中,

$$\mathbf{N} = \{N_1, N_2, \dots, N_k\}^T, \quad (16)$$

$$\mathbf{B} = \begin{bmatrix} B_{11} & B_{12} & \cdots & B_{1k} \\ B_{21} & B_{22} & \cdots & B_{2k} \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ B_{k1} & B_{k2} & \cdots & B_{kk} \end{bmatrix}, \quad (17)$$

$$B_{ii} = \frac{1}{D_{iM}^e} + \sum_{\substack{j=1 \\ j \neq i}}^k \frac{X_j}{D_{ij}^e}, \quad (18)$$

$$B_{ij(i \neq j)} = -\frac{X_i}{D_{ij}^e}, \quad (19)$$

$$\mathbf{u}_g = \{u_{g1}, u_{g2}, \dots, u_{gk}\}^T, \quad (20)$$

$$\mathbf{Y} = \left\{ \frac{X_1}{D_{1M}^e}, \frac{X_2}{D_{2M}^e}, \dots, \frac{X_n}{D_{nM}^e} \right\}^T. \quad (21)$$

式 (15) 等式右边第一项描述了气体各个组分梯度对于通量的贡献, 第二项描述了气体总气压对通量的贡献。

将各组分气体扩散通量 (式 (15)) 叠加后再两边同除以 $-\bar{u}_g \nabla \bar{u}_g / RT \mu_g$ 可以得到

$$\bar{k}_g = \mathbf{AB}^{-1} \left(\frac{\mu_g \nabla \mathbf{u}_g}{\bar{u}_g \nabla \bar{u}_g} + \mathbf{Y} k_g \right), \quad (22)$$

$$\mathbf{A} = \underbrace{\{1, 1, \dots, 1\}}_k, \quad (23)$$

式中, \bar{k}_g 为表观气相渗透系数 (m^2), 其涵盖了对流、体相扩散和努森扩散等运移机理, 对于一定饱和度下的特定土体, 其表观气相渗透系数并非常数, 还与气体的各个组分浓度及性质相关。而本文式 (2) 中的气相渗透系数 k_g 仅包括对流。

2 多组分气体运移试验

2.1 试验材料与装置

本试验主要测量土柱不同深度处的气体组分, 并与理论计算结果进行对比, 揭示非饱和土质覆盖层的气体运移规律。

本次试验采用的土为西安某垃圾填埋场附近的新鲜黄土, 其天然含水率和天然干密度分别为 16.5% 和 1.508 g/cm³, 土粒比重为 2.71。土柱试验装置示意图如图1所示。

该装置主要分为3部分。第一部分为供气与流量控制部分, 包括向土柱底部提供气体的气瓶、对应控制流量的质量流量控制器 (控制精度为 0.1 mL/min), 以及向土柱顶部提供空气的空压机、调压阀和玻璃转子流量计。试验过程中, 先通过调压阀和玻璃转子流量计将预定流量的空气 (120 mL/min) 通入土柱顶部, 以模拟填埋场顶部的大气边界; 通过质量流量计控制器将甲烷和二氧化碳气体按预定比例混合, 然后通入土柱底部, 利用质量流量控制器保持通入土柱底部的气体流量恒定; 为保持土样的含水率不变, 空气、甲烷以及二氧化碳在通入土柱前都先经过增湿瓶。

第二部分为试样筒部分。试样筒高 800 mm, 由有机玻璃加工而成, 包括底座、筒体和顶盖, 三者用法兰连接, 连接处有 O型圈以保证气密性。试样筒内径为 200 mm, 每节高为 200 mm, 共 4 节, 其间填筑黄土土样。试样筒边壁分别每隔 100 mm 开孔设置气体取样口、每隔 200 mm 开孔连接测量气压的 U型管; 底座底部开孔连接供气部分; 顶盖顶部开孔连接出气流量测试设备再连通大气。

第三部分为压力和流量测量部分, 包括测量气体压力的 U型管和测量出气流量的电子皂膜流量计, 其中 U型管和电子皂膜流量计的精度分别为 0.01 kPa 和 0.01 mL/min。

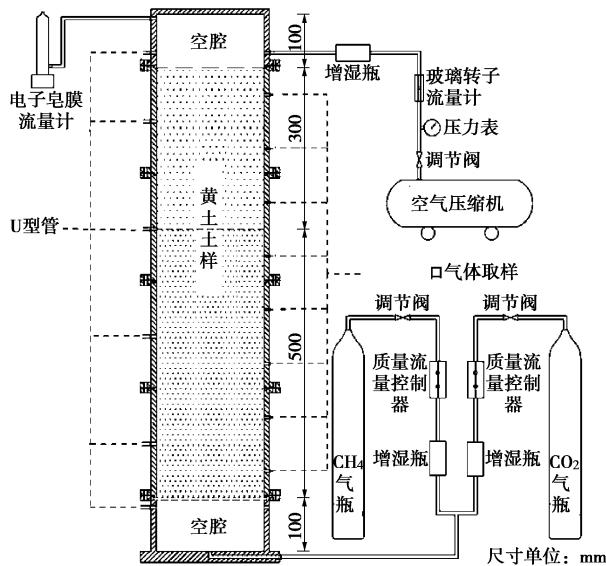


图1 土柱试验装置示意图

Fig. 1 Schematic diagram of soil column tests

2.2 试验方法

本次试验主要分为两个部分，第一部分为制样及土样基本土工参数测试；第二部分为土柱注气试验。

将取回的新鲜黄土用橡皮锤破碎、过 2 mm 筛，分为两组，通过散粒土再压实法制备干密度分别为 1.30 g/cm^3 和 1.45 g/cm^3 的土样（下文分别简称为1号土样和2号土样）。取两组土样的一部分进行固有渗透系数测试，得到土样固有渗透系数。再取两组土样一部分进行土水特征曲线测试，先将试样含水率调配至13.0%，然后利用渗析技术逐级增湿（吸力减小）或脱湿（吸力增大）来调节试样的含水率，待吸力达到平衡后，测得试样体积含水率。利用Brooks–Corey模型^[7]对实测土水特征曲线进行拟合，得到模型参数 λ 。

取两组土样部分进行土柱注气试验，通过喷洒缓慢加水的方式将试样的质量含水率均调节至12.10%，按两层进行分层填筑，如表2所示。

表2 土柱试验土样基本参数

Table 2 Basic parameters of soils used in column tests

土样 编号	土层深度 /cm	填筑 材料	颗粒 比重	干密度 /(g·cm ⁻³)	质量 含水率/%	饱和度 /%
1	0~30	黄土	2.71	1.30	12.10	30.23
2	30~80			1.45		37.74

本次试验共测试两组不同组分气体流入情况下的土柱内的气体分布情况。a组试验中，底部持续通入流量为 15 mL/min 的气体， CH_4 与 CO_2 之比为1:1；b组试验中，底部持续通入流量为 15 mL/min 的气体， CH_4 与 CO_2 之比为3:1。试验中，利用土柱底部的质量流控制器将 CH_4 和 CO_2 按一定的流量均匀混合后通入土柱底部。土柱顶部通过流量计与大气连通，使土柱顶部的边界条件维持一个大气压的状态。待顶部的

流量等于底部的流量，土柱达到稳定状态，由U型管测出土柱各深度处气压，并从气体取样口抽取气体样品用气相色谱仪进行成分分析，得到土柱中气压和气体基准分布。

2.3 试验结果与理论模拟

本次试验测试得到了两组不同干密度土样的固有渗透系数，分别为 $5.88 \times 10^{-14}\text{ m}^2$ （1号土样）和 $1.99 \times 10^{-14}\text{ m}^2$ （2号土样）。通过Brooks–Corey模型^[7]对实测土水特征曲线进行拟合，得到两组土样的模型参数 λ 分别为0.1767（1号土样， $R^2=0.903$ ）和0.1647（2号土样， $R^2=0.961$ ）。

两组土柱试验中，各深度各组分气体的摩尔分量和总气压如图2和图3所示。对比图2(a)和图2(b)的各组分气体的摩尔分量可以发现，即使在同样的流量下，由于通入气体的组分不同，各深度处气体组分比例存在明显差异。对比图3的总气压分布可以发现，在气体流量恒定的情况下，流入气体组分不同，对于气体总气压沿深度的分布几乎没有影响。

假定在运移过程中，土体内气压变化对土体饱和度无影响。在12.10%质量含水率的土体中，土体非饱和气相渗透系数 k_g 可用式(3)求得，空气的有效努森扩散系数 D_{airMd}^e 可通过式(9)和式(12)求得，各组分气体的有效努森扩散系数 D_{iMd}^e 可通过空气的有效努森扩散系数和式(13)换算得到，以上计算结果见表3。有效二元扩散系数 D_{ij} 可按式(6)和表1取。

表3 土柱试验数值模拟计算参数

Table 3 Parameters used in mathematic simulation

土样 编号	孔隙 率n	饱和 度S/%	非饱和气相 渗透系数 k_g/m^2	非饱和有效努 森扩散系数 $D_{airM}^e/(\text{m}^2\cdot\text{s}^{-1})$
1	0.52	30.23	2.86×10^{-14}	4.76×10^{-4}
2	0.46	37.74	7.71×10^{-15}	2.14×10^{-4}

土柱上边界经电子皂膜流量计与大气连通，且由空气压缩机通入的空气的流量（ 120 mL/min ）远大于底部注入气体流量，故可认为顶部为常边界状态，边界上的绝对气压为1个标准大气压，组分为空气组分，近似为 $\text{N}_2 : \text{O}_2 : \text{CH}_4 : \text{CO}_2 = 78 : 21 : 0.5 : 0.5$ 。土体底部持续通入一定流量的 CH_4 和 CO_2 混合气体，为常流量边界。

到达稳态时，土体内部各处 CH_4 和 CO_2 的通量即为土柱底部注入的气体通量， N_2 和 O_2 的通量为0。将各个组分的通量代入式(15)，在Matlab数值分析软件中编程，采用有限差分法求解该微分方程组，得到不同组分分压沿深度的分布图。

图2给出了2组试验中各组分气体摩尔分量的模

拟结果。图2表明多组分气体运移理论能够较准确预测出不同深度处各个组分的摩尔分量。图3给出了2组试验中气体整体的相对压强的模拟结果。图3表明注入气体的组分对于相对压强分布影响很小。实测气体整体的相对压强相比预测值偏小, 这可能是因为黄土试样在12.10%的质量含水率下会出现结团, 均匀性变差, 容易形成易于气体传输的大孔隙, 造成计算得到的表观气相渗透系数比预测值偏大。

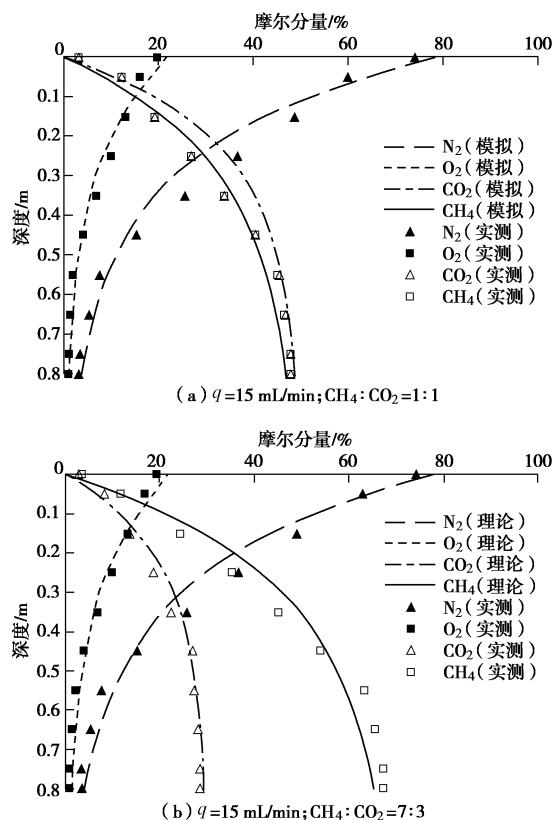


图2 各组分气体摩尔分量实测与模拟结果

Fig. 2 Measured and predicted mole fractions of different components

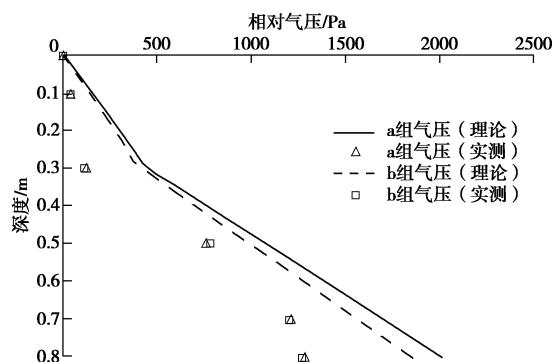


图3 气体总气压模拟结果

Fig. 3 Measured and predicted gas pressures

由式(22)可知, 气相表观渗透系数并非常数。以a组试验为例, 采用表3中气体运移参数取值, 分析得到各个深度处表观气相渗透系数的理论计算结果,

如图4中实线所示。图4表明, 土柱内各个深度处的表观渗透系数基本一致, 其主要原因因为气压模拟结果沿深度变化不大。若将底部注入总流量改为150 mL/min, 组分比例保持不变, 气压梯度计算结果将增加一个数量级, 得到的表观渗透系数如图4虚线所示: 气相表观渗透系数随着气压变大而减小, 0~30 cm段底部气相表观渗透系数比顶部减小了3%, 30~80 cm段底部气相表观渗透系数比顶部减小了7%。因此, 在进行覆盖层气体渗透性能评估时, 若以在常压下测试得到的气相表观渗透系数作为依据, 可能会高估填埋气的排放量, 低估填埋气的收集率。

填埋场覆盖层常添加其他颗粒材料进行颗粒级配改性, 进而改变其固有渗透系数。若将本文a组试验中各层土体的固有渗透系数分别增加或减小一个数量级, 并根据式(13)更新努森扩散系数, 其余条件与a组试验相同, 计算得到气体各组分分布如图5中虚线所示。将其与a组试验的计算结果(图5中实线)对比(各组分气体的图例示意与图2相同), 结果表明, 不同渗透性土体中各组分气体的分布规律较接近, 说明土体的渗透性对于各组分气体分布无显著影响。此外, 为模拟不同降解阶段填埋体产CH₄和CO₂的比例变化, 笔者还计算了底部注入CH₄和CO₂比例为7:3和3:7时土体渗透性对气体分布的影响, 结论与图5一致, 不再重复给出。

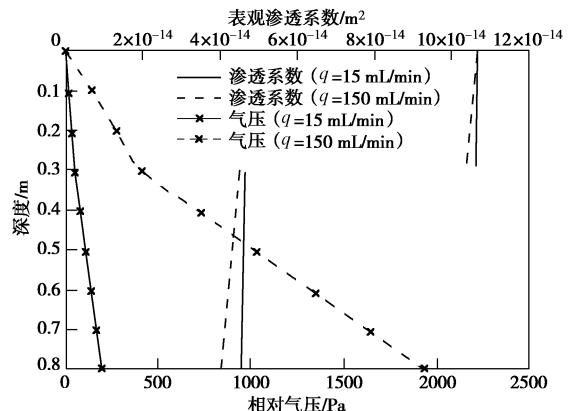


图4 不同流量下表观气相渗透与气压模拟结果

Fig. 4 Apparent gas permeability and pressure with different fluxes

若不考虑体相扩散的影响, 气体间分子作用力为零, 由式(5)可知, D_{ij}^e 为无穷大; 若增强体相扩散的影响, 即增加气体间分子作用力, 取 D_{ij}^e 为现值的一半。在这两种工况下(其余条件与a组试验相同)计算的各组分气体摩尔分量如图6所示(图中虚线代表 D_{ij}^e 为无穷大, 实线代表 D_{ij}^e 为现值一半, 各组分气体的图例示意与图2相同)。图6表明, 如果不考虑体相扩散, 不同气体间没有相互驱替, 在底部通入CH₄和CO₂的情况下, 各深度N₂和O₂的摩尔量同顶部边界完全一致。

但由于土柱内部气体总摩尔量变大,因此N₂和O₂的摩尔分量会沿深度略微减小,CH₄和CO₂的摩尔分量会沿深度略微增加。当D_{ij}^e取现值一半时,与图2(a)的结果相比,0.4~0.8 m处CH₄和CO₂的气体摩尔分量基本与底部注入的气体一致,N₂和O₂的摩尔分量很小,说明当D_{ij}^e值变小时,气体间的驱替作用更加明显,导致此试验条件下土体内各组分气体摩尔分量分布更接近底部注入的气体组分。

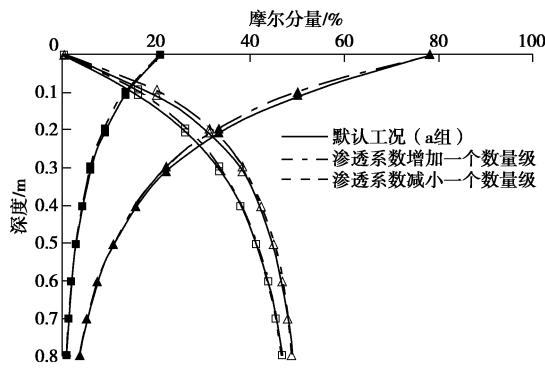


图5 不同渗透系数下各组分摩尔分量模拟结果

Fig. 5 Mole fraction of components with different permeabilities

因此,土体中气体各组分分布规律主要由体相扩散决定,与顶部总气压及土体渗透性基本无关,不同气体分子间的相互作用或驱替,是引起各气体组分沿深度变化的根本原因。

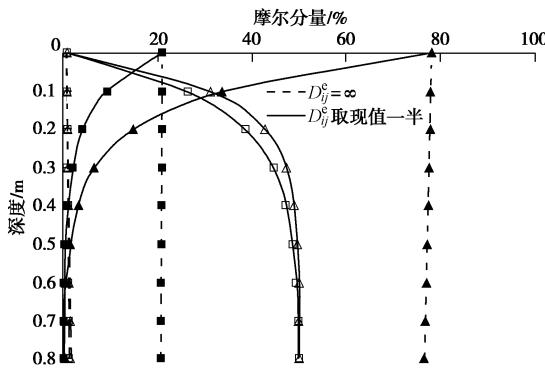


图6 不同扩散系数下各组分摩尔分量模拟结果

Fig. 6 Mole fraction of components with different diffusion coefficients

Hilger等发现,在填埋场覆盖层甲烷氧化过程中,CH₄与O₂消耗比例为1:1.5^[16]。基于这一消耗比例,以a组试验为例,在各组分气体摩尔分量稳态模拟结果条件下,分析了土体各深度单位孔隙体积中能被氧化的最大甲烷量,结果如图7实线所示。图7表明,甲烷氧化主要发生在土柱上部0~30 cm处,结合CH₄和O₂的实测摩尔分量(图2(a))可以发现,在0~10 cm段,甲烷氧化的限制性底物为CH₄(限制性底物定义为反应中最易被消耗完的反应物);在10~80 cm段,甲烷氧化的限制性底物为O₂。在其他条件不

变的情况下,改变D_{ij}^e(分别取现值的一半和两倍),计算各深度处能被氧化的最大CH₄量,结果如图7虚线和点划线所示。结果表明,虽然减小D_{ij}^e能够使覆盖层能够保持较高的甲烷浓度(见图6),但其主要增加土柱下半部分的甲烷浓度,而该部分甲烷氧化的限制性底物为O₂,减小D_{ij}^e使上边界空气中的O₂向土体下半部分扩散的能力减弱,因此能被消耗的CH₄量反而减小;同理,增加D_{ij}^e使土柱下半部分O₂增加,虽然土柱内CH₄含量变少,但能被氧化的量增加。对图7中3条线沿纵坐标积分,再乘以对应的体积含气量,可以得到单位面积的孔隙中,能够被氧化的最大CH₄量,为0.418,0.233,0.641 mol/m²,分别对应D_{ij}^e取现值、D_{ij}^e取现值一半和D_{ij}^e取现值二倍。此外,笔者还计算了在不同通入气体比例(CH₄与CO₂的比例分别为7:3和3:7)下,不同有效二元扩散系数的土体内氧化甲烷量,结论与图7类似,不重复给出。因此,在土质覆盖层设计中,为了避免甲烷浓度或氧气浓度过低对甲烷氧化过程的不利影响,可以结合土质覆盖层的其他功能要求,通过孔隙率或饱和度的控制来调节D_{ij}^e,以提高土质覆盖层的甲烷氧化效果。

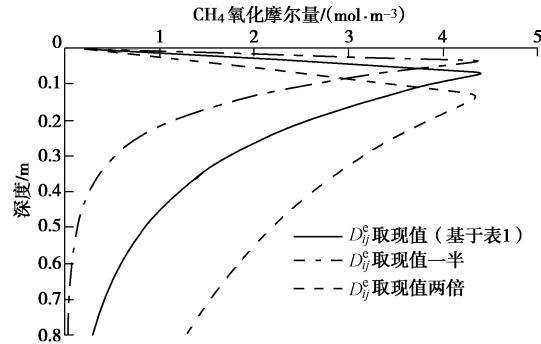


图7 不同扩散系数下土体氧化甲烷量模拟结果

Fig. 7 Mole of methane oxidation with different diffusion coefficients

3 结 论

为了研究土质覆盖层中气体运移机理,开展了土柱注气试验,通过多组分气体理论对试验结果进行了进一步分析,得到以下结论:

(1)在保持注入气体通量大小不变的情况下,改变注入气体组分比例会显著影响各组分摩尔分量的分布,但对总气压的分布影响不大。这是由于组分摩尔分量的变化对于表观气相渗透系数变化不大。基于多组分气体运移理论的模拟结果与实测结果较一致。

(2)气相表观渗透系数并非常数,还与气压相关。气压越大,表观渗透系数越小。若使用在常压下试验得到气相表观渗透系数去预测高压条件下的气体通

量, 会高估填埋气排放量。

(3) 土体中气体各组分分布规律主要由体相扩散决定, 土体固有渗透系数大小对其无显著影响。有效二元扩散系数反映了气体各组分相互间的作用。对于土质覆盖层而言, 通过土体孔隙率或饱和度的控制, 调节有效二元扩散系数, 可以调整土体内各组分气体的摩尔分量分布, 增加土体不同深度处甲烷氧化反应中限制性底物的浓度, 以提高土体甲烷氧化效果, 起到减排的作用。

参考文献:

- [1] 马小飞. 垃圾填埋场抽气试验及填埋气收集量评估方法[D]. 杭州: 浙江大学, 2013. (MA Xiao-fei. Extraction test and evaluation method of landfill gas for municipal solid waste landfills[D]. Hangzhou: Zhejiang University, 2013. (in Chinese))
- [2] 魏海云. 城市生活垃圾填埋场气体运移规律研究[D]. 杭州: 浙江大学, 2007. (WEI Hai-yun. Experimental and numerical study on gas migration in landfill of municipal solid waste[D]. Hangzhou: Zhejiang University, 2007.(in Chinese))
- [3] JAIN P, POWELL J, TOWNSEND T G, et al. Air permeability of waste in a municipal solid waste landfill[J]. Journal of Environmental Engineering, 2005, **131**(11): 1565 – 1573.
- [4] 王云龙, 郝永俊, 吴伟祥, 等. 填埋覆土甲烷氧化微生物及甲烷氧化作用机理研究进展[J]. 应用生态学报, 2007, **18**(1): 199 – 204. (WANG Yun-long, HAO Yong-jun, WU Wei-xiang et al. Research progress on methane oxidation in landfill cover soil[J]. Chinese Journal of Applied Ecology, 2007, **18**(1): 199 – 204. (in Chinese))
- [5] SCHEUTZ C, MOSB AE K H, KJELDSEN P. Attenuation of methane and volatile organic compounds in landfill soil covers[J]. Journal of Environmental Quality, 2004, **33**(1): 61 – 71.
- [6] KRISHNA R, WESSELINGH J A. The Maxwell-Stefan approach to mass transfer[J]. Chemical Engineering Science, 1997, **52**(6): 861 – 911.
- [7] BROOKS R H, COREY T. Hydraulic properties of porous media[R]. Colorado: Colorado State University, 1964.
- [8] HO C K, WEBB S W. Gas transport in porous media[M]. Springer: Springer Science & Business Media, 2006.
- [9] WESSELINGH J A, KRISHNA R. Mass transfer in multicomponent mixtures[M]. Delft: Delft University Press Delft, 2000.
- [10] PENMAN H L. Gas and vapour movements in the soil: I. The diffusion of vapours through porous solids[J]. The Journal of Agricultural Science, 1940, **30**(3): 437 – 462.
- [11] THORSTENSON D C, POLLOCK D W. Gas transport in unsaturated zones: multicomponent systems and the adequacy of Fick's laws[J]. Water Resources Research, 1989, **25**(3): 477 – 507.
- [12] 陈云敏. 环境土工基本理论及工程应用[J]. 岩土工程学报, 2014(1): 1 – 46. (CHEN Yun-min. A fundamental theory of environmental geotechnics and its application.[J]. Chinese Journal of Geotechnical Engineering, 2014(1): 1 – 46. (in Chinese))
- [13] REINECKE S A, SLEEP B E. Knudsen diffusion, gas permeability, and water content in an unconsolidated porous medium[J]. Water Resources Research, 2002, **38**(12): 11 – 16.
- [14] KLINKENBERG L J. The permeability of porous media to liquids and gases[J]. Drilling and Production Practice, 1941, **2**: 200 – 213.
- [15] SAMPATH K, KEIGHIN C W. Factors affecting gas slippage in tight sandstones of cretaceous age in the Uinta basin[J]. Journal of Petroleum Technology, 1982, **34**(11): 2 – 715.
- [16] HILGER H, HUMER M. Biotic landfill cover treatments for mitigating methane emissions[J]. Environmental Monitoring and Assessment, 2003, **84**(1/2): 71 – 84.