

# 垃圾填埋场新型覆盖层材料厚度对甲烷氧化行为的影响

朱磊, 张相锋\*, 董世魁, 杨文静

北京师范大学环境学院/水环境模拟国家重点实验室, 北京 100875

**摘要:** 甲烷是一种长期存在于大气中的重要温室气体, 它对温室效应的贡献率是二氧化碳的 21 倍, 生活垃圾填埋场是仅次于水稻田的第二大甲烷人为排放源, 减少垃圾填埋场的甲烷气体排放对缓解全球变暖压力具有重要意义。在实验室条件下模拟垃圾填埋场甲烷排放情况, 将堆肥+陶粒混合物(体积比 1:1)这一新型覆盖层材料按 6 个厚度(30、40、50、60、70、80 cm)装入有机玻璃柱中研究甲烷氧化与覆盖层深度的关系。研究结果表明: 试验 94 d 甲烷氧化率开始下降, 到实验结束前 6 个柱体中甲烷氧化率相似, 维持在 24.6%~34.8%之间; 甲烷氧化速率由于甲烷通入量不断加大呈现先增加后减小的趋势, 最低值为  $2.45 \text{ mol}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{d}^{-1}$ , 最高值为  $17.82 \text{ mol}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{d}^{-1}$ ; 在试验第 119~121d 对各个柱体不同深度的气体成分进行分析, 发现甲烷氧化的范围主要集中在基质 0cm~30cm 深处。

**关键词:** 填埋场; 生物覆盖层厚度; 甲烷氧化

**中图分类号:** X705

**文献标识码:** A

**文章编号:** 1674-5906(2009)06-2122-05

城市固体废物的厌氧分解是一个复杂且缓慢的生化过程, 在分解过程中会产生大量的甲烷和二氧化碳气体, 两者都被《京都议定书》认为是需要大量消减的主要温室气体<sup>[1]</sup>。近年来甲烷减排在全球范围内越来越受到重视, 其原因在于: (1) 甲烷的全球变暖趋势(Global Warming Potential, 简称 GWP)是  $\text{CO}_2$  的 21 倍<sup>[2]</sup>, 其吸收红外线辐射比  $\text{CO}_2$  更有效, 已经成为仅次于  $\text{CO}_2$  的主要温室气体<sup>[3]</sup>; (2) 甲烷的大气浓度增长正在以每年 0.6% 的速度逐年增加<sup>[4]</sup>,  $\text{CH}_4$  从工业革命前的  $(0.6 \sim 0.8) \times 10^{-6}$  增加到 1992 年的  $1.72 \times 10^{-6}$ , 增加了大约 145%<sup>[5]</sup>; (3) 甲烷在大气中的停留时间只有 10 a 左右, 而  $\text{CO}_2$  的驻留周期大约是 120 a, 减少甲烷排放可以比控制  $\text{CO}_2$  排放更快并且更为有效地缓解气候变化<sup>[6]</sup>; (4) 当甲烷在空气的浓度范围为 5%~15% 时, 甲烷易发生爆炸<sup>[7]</sup>, 易对人类安全产生威胁。

垃圾填埋场是仅次于农业生产的(水稻生产和家畜饲养)最主要的人为排放源, 约占到甲烷人为排放总量的 17%<sup>[8]</sup>。垃圾填埋场经过一系列的工程设计可以促进甲烷氧化菌生长, 从而提高甲烷的生物氧化。利用甲烷氧化菌可以将垃圾填埋场释放出来的甲烷转变成二氧化碳, 从而减少填埋场甲烷排放量、减轻温室效应。对于垃圾填埋场甲烷氧化的研究, 前人已做了较多工作, 发现影响甲烷氧化菌氧化能力的因素有很多, 包括垃圾组分、填埋场土壤结构、养分状况、湿度、温度、pH 值、土壤深度、氧化还原电位、甲烷和氧气的浓度等<sup>[2, 9]</sup>; 与

覆盖土有关的因素主要有: 土壤结构、有机质含量、湿度、温度、pH 值、土壤深度<sup>[2, 9, 10]</sup>。其中, 填埋场覆盖层厚度(土壤深度)是影响甲烷氧化效率的重要因素。由于甲烷氧化菌为好氧菌, 如果填埋层太厚会阻止覆盖层中空气的向下渗透, 而太薄的填埋层则无法提供足够的生物基质氧化甲烷。而迄今为止, 仍没有相关研究探讨覆盖层厚度和甲烷氧化率之间的关系。因此, 本文在已有研究工作—新型垃圾填埋场覆盖层材料选择的基础上<sup>[11]</sup>, 将新型覆盖层材料基质—堆肥+陶粒混合物(体积比 1:1)设置 6 种厚度处理, 在实验室下用有机玻璃柱模拟研究覆盖层厚度对甲烷氧化的影响, 期望对填埋场甲烷氧化覆盖层新型材料厚度的合理选择提供科学依据。

## 1 实验材料和方法

### 1.1 试验材料

试验所使用的甲烷氧化基质由堆肥陶粒按体积比 1:1 均匀混合制成。本实验使用的堆肥由庭院落叶、废纸和厨余垃圾发酵制成, 堆肥发酵到完全没有臭味, 故可认为是腐熟堆肥, 堆肥为甲烷氧化菌提供高有机质、良好的通风条件、合适的湿度、pH 及营养从而能提供较高的甲烷氧化能力<sup>[12]</sup>。实验开始前堆肥过 1 cm 筛网。

实验用陶粒是一种不规则的颗粒状固体, 陶粒作为工业废弃物, 价格低廉。由于其比表面积较大, 能为甲烷氧化菌提供较好的氧化场所, 并能改善基质的通风条件。课题组前期开展的填埋场覆盖

**基金项目:** 国家 863 高技术计划项目(2007AA06Z350); 国家自然科学基金项目(50808017); 北京市优秀人才资助项目(PYZZ090422001973)

**作者简介:** 朱磊(1986年生), 男, 硕士, 研究方向: 恢复生态学。E-mail: zhulei08@bnu.edu.cn

\*通讯作者: 张相锋, 男, 讲师, E-mail: zhangxf@bnu.edu.cn

**收稿日期:** 2009-09-30

层基质筛选试验表明,与普通土壤、纯堆肥相比,堆肥与陶粒的混合物(体积比 1:1)氧化效率最高,是一种极具开发潜力的新型覆盖层材料<sup>[11]</sup>。

试验前测得基质的有机质含量为 19.7%,含水率为 40%。

### 1.2 柱实验装置及设置

实验装置如图 1 所示,主要装置有:有机玻璃柱(高 100 cm,直径 33 cm)、甲烷气体钢瓶(内装纯度为 99.9%的甲烷)、空气泵、气体加湿瓶、转子流量计。柱体模拟垃圾填埋场的实际情况,自下而上设置混合气体进气口、空气进气口、顶部出气口,柱体由下向上每 10 cm 设置一个采气口。基质厚度由砾石层填充厚度来调节(表 1)。

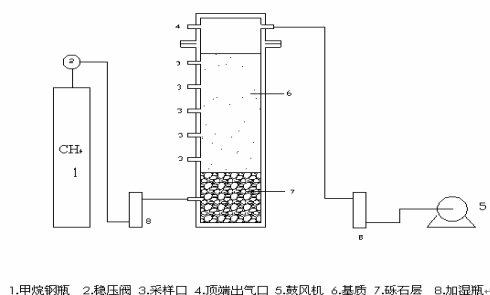


图 1 柱实验装置示意图

Fig.1 Apparatus for the column experiments

表 1 各柱体的基质厚度及相关设置

Table 1 Numbers of gas sampling ports and depths of material for columns

柱体编号	基质厚度/cm	砾石厚度/cm	采气口数目
1 号柱	30	70	4
2 号柱	40	60	5
3 号柱	50	50	6
4 号柱	60	40	7
5 号柱	70	30	8
6 号柱	80	20	9

### 1.3 实验操作与测试

模拟垃圾填埋场的气体流通情况,在柱体上部由鼓风机鼓入新鲜空气,保持柱体上部空气的成分与室内气体一致;甲烷气体进入柱体前用转子流量计调节其流量,甲烷气体和空气在进入模拟柱前经加湿器加湿,以防止柱体内基质含水量的下降。实验过程中,每经过一段适应期后调高甲烷流量,以测定最大甲烷流量(表 2)。实验期间,每周用医用注射针头从全部柱体的气体排气口采样,用 GC-9A 型气象色谱(柱温 70 °C、TCD120 °C)进行气体监测。在 11 月 14 日到 16 日在全部采气口采样进行气体测量并进行气体成分分析。所有柱体放置在实验室内,温度及大气压不受控制。实验在 2008 年 7 月

表 2 各柱体甲烷流量变化

Table 2 The methane flux variation in column experiment with time

柱体编号	时间	流量/(mL/min)	实验天数/d
1-4	7.19-9.23	2	67
	9.24-10.12	4	19
	10.13-12.28	6	77
5-6	7.19-8.23	2	36
	8.24-9.23	4	31
	9.24-10.12	6	19
	10.13-12.28	8	71

28 日至 12 月 28 日进行,历时 163 d。

### 1.4 数据处理

用 Excel 进行数据统计分析及制图

## 2 结果与分析

### 2.1 氧化率和氧化效率

实验开始的前两周内,当通入柱体的甲烷流量为  $2 \text{ mL}\cdot\text{min}^{-1}$  时,基质经过一个对环境的适应时期后,甲烷氧化率稳定在 100%,这与 Perdikeya 等的研究发现相一致<sup>[7]</sup>。有研究表明合适的  $\text{CH}_4$  流量应在  $2.5\sim 5.0 \text{ mL}\cdot\text{min}^{-1}$  之间<sup>[13]</sup>,故将实验甲烷流量控制在这一范围附近并缓慢增加甲烷流量(表 2)。实验前 94 d,各柱体的排气口均未检测出甲烷,可以认为甲烷被全部氧化,不同厚度的基质对甲烷的氧化作用没有显著差异。从实验的第 94 天开始,各柱体的甲烷氧化率开始陆续下降(图 2),在甲烷流量相同的柱 1、2、3、4 中,柱 3 的甲烷氧化率下降最快,柱 1 下降速度最慢:前者的最低值为 26.0%,后者的最低值为 27.5%,两者差异不明显。柱 5、柱 6 的氧化速率前期下降较快,后期一直维持在 20%~30%。甲烷氧化率下降的原因可能与上调甲烷流量有关,或者与柱体内营养物质的过度消耗有关系。

在整个试验期内,不同柱体内的甲烷氧化率随时间的变化趋势相似,且同期内各柱体的甲烷氧化率差异不大(图 2),说明基质厚度对甲烷的生物氧化影响不明显。

### 2.2 甲烷氧化效率

甲烷氧化效率与甲烷氧化率的变化是一致的(图 3)。初期甲烷氧化速率呈现比较稳定的状况,后期随时间和甲烷流量增加甲烷氧化速率呈现上升的趋势(图 3)。这个结果可以用前人的研究发现来解释,即随着培养时间的增加基质内的甲烷氧化菌不断增长<sup>[13,14]</sup>。在第 77 天将各柱体的流量调至最高时,1—4 号柱甲烷氧化速率接近  $13 \text{ mol}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{d}^{-1}$  并维持该水平近两周时间,5、6 号柱在流量调高后的前两天内氧化速率达到了  $16.6 \text{ mol}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{d}^{-1}$ ,其后迅速下降,可能的原因是 5、6 号柱体由于填充了过厚的

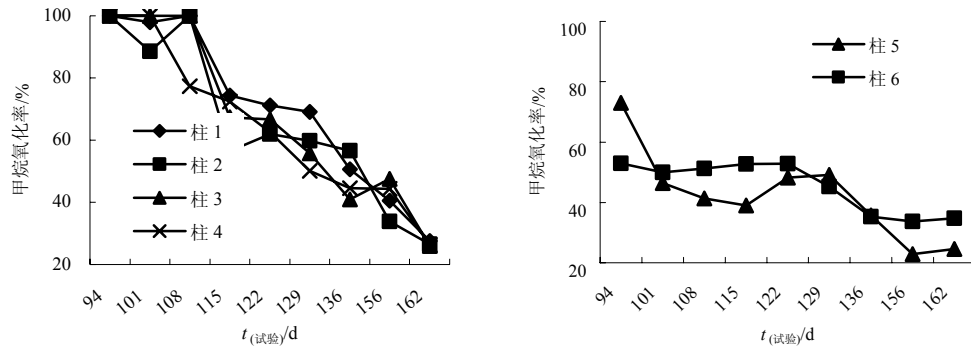


图2 各个柱体的甲烷氧化率随时间变化

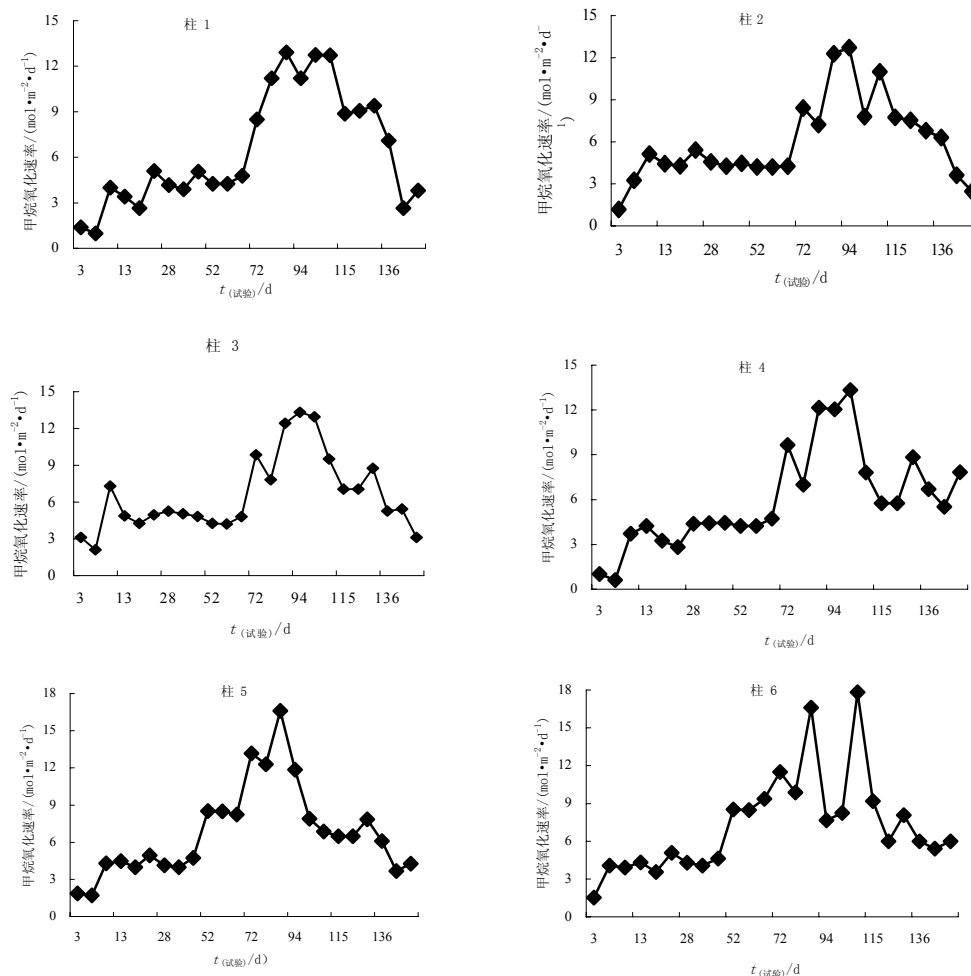
Fig.2 Variation of CH<sub>4</sub> oxidation efficiency with experiment time

图3 各个柱体的甲烷氧化速率随时间变化

Fig.3 Variations of CH<sub>4</sub> oxidation rate with experiment time

基质,调高后的第一次测量中甲烷还未完全渗透到排气口,导致甲烷氧化效率的测量值相对较高。

### 2.3 基质不同深度气体成分变化

图4显示,在所有柱体0~30 cm处,CH<sub>4</sub>值从下向上有明显下降的趋势,而CO<sub>2</sub>有明显增加的趋势,说明该层CH<sub>4</sub>转化为CO<sub>2</sub>过程明显,这一层内的甲烷氧化活动最为剧烈,从而具有最大的甲烷氧化率。这一点还可以从氧气含量的变化趋势中得到

验证,在30 cm以下氧气含量几乎为零,甲烷的生物氧化作用因氧气缺乏而被限制。从这一结果可以推断,0~30 cm处覆盖层基质具有最大的甲烷氧化率。这一结论已被前人的实验所证实<sup>[7]</sup>。

### 3 讨论与结论

(1) 甲烷在第94天以后就发生了下降,由于是在室内内进行,实验装置含有加湿器,故水分和温度不是甲烷氧化的主要影响因素。可能与基质的

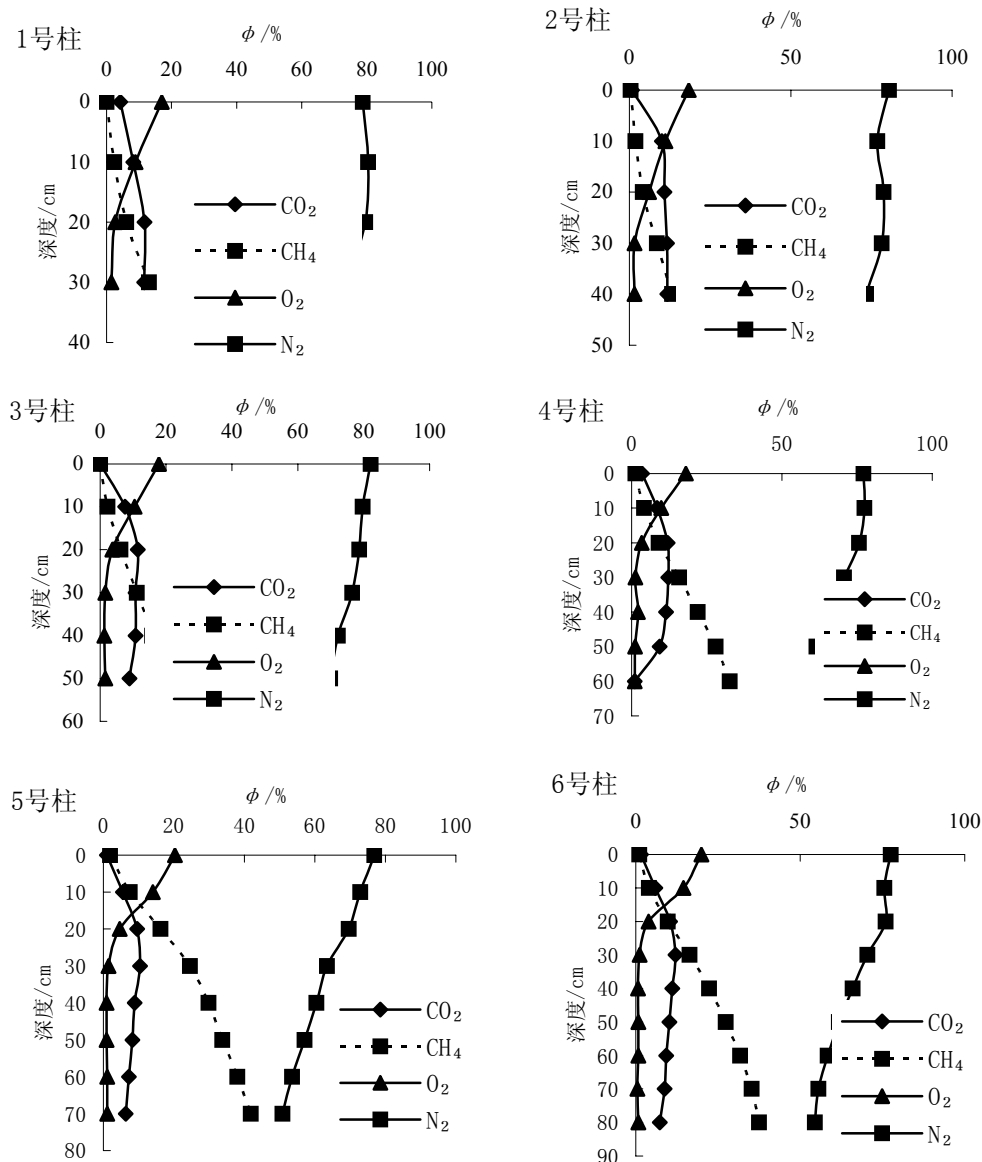


图4 实验 119 天到 121 天测量的各个柱体不同深度的气体组成  
Fig.4 Gas concentration profiles for every column on day 119 to day 121

理化性质有关，也可能基质在长期的甲烷胁迫下产生了 EPS 物质<sup>[15]</sup>。土壤性质的变化和 EPS 是下一步实验重点研究对象。此外甲烷氧化效率与很多环境因素有关。Czepiel 和 Bogner 等人研究了有机物对氧化速率的影响<sup>[16, 17]</sup>。

(2) 本实验中，柱内 0~30 cm 存在甲烷氧化活动，其中 10~20 cm 处氧气迅速减少，说明此深度的甲烷氧化活动最为强烈，这与何晶晶和 DeVisscher 等的实验结果是一致的<sup>[14, 18]</sup>，30 cm 以下处由于缺乏氧气，因此几乎没有甲烷氧化活动。故基质的透气性对甲烷氧化具有一定影响，David Kightley 等发现在加入污泥的基质中 10~30 cm 的氧化率最高<sup>[19]</sup>，J. Berger 等在室外模拟研究时灌溉之前的 50 cm 以上的基质对甲烷都有氧化能力，但灌溉之后 10~30 cm 为主要的甲烷氧化区域<sup>[20]</sup>。

(3) 本实验选取的基质厚度对甲烷氧化率无特别显著的影响，因此从经济效益角度看，应将 30 cm 作为新型填埋层材料的推荐厚度，以达到节约材料成本、保证作用效果的目的。

#### 参考文献：

- [1] (unfccc) U N F C. Kyoto Protocol to the United Nations Framework Convention on Climate Change[R]., 1997.
- [2] Boeckx P, van Cleemput O, Villaralvo I. Methane emission from a landfill and the methane oxidising capacity of its covering soil[J]. Soil Biology and Biochemistry, 1996, 28(10/11): 1397-1405.
- [3] (epa) E P A. Non-CO2 greenhouse gas emissions from developed countries: 1990-2010.[R]. Washington, USA: Office of Air and Radiation, 2001.
- [4] Ipcc. Contributions of working Group I to the Third Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change[M]. Cam-

- bridge, United Kingdom and New York, NY, USA: Cambridge University Press, 2001: 881.
- [5] El-Fadel M, Massoud M. Methane emissions from wastewater management[J]. *Environmental Pollution*. 2001, 114(2): 177-185.
- [6] 陈秋. 温室气体与全球变暖[J]. *电力环境保护*. 2003(3):11-13.  
CHEN Qiu.Greenhouse gases and globe warming[J]. *Electric Power Environmental Protection*.2003(3):11-13.
- [7] Perdikea K, Mehrotra A K, Hettiaratchi J. Study of thin biocovers (TBC) for oxidizing uncaptured methane emissions in bioreactor landfills[J]. *WASTE MANAGEMENT*. 2008, 28(8): 1364-1374.
- [8] Wuebbles D J, Hayhoe K. Atmospheric methane and global change[J]. *Earth-Science Reviews*. 2002, 57(3/4): 177-210.
- [9] 葛垚. 垃圾填埋场甲烷气体高效生物氧化实验室模拟研究[D]. 北京师范大学, 2008.  
GE Yao, Study on Efficient Oxidation of Methane from Landfill by Using Biocover and Biofilter[D]. Beijing Normal University, 2008.
- [10] Park S, Brown K W, Thomas J C. The effect of various environmental and design parameters on methane oxidation in a model biofilter[J]. *WASTE MANAGEMENT & RESEARCH*, 2002, 20(5): 434-444.
- [11] 杨文静. 有机覆盖层对垃圾填埋场甲烷氧化效果的研究及其填埋场适宜草种的筛选[D]. 甘肃农业大学, 2009.  
YANG Wenjing. Study the effect of organic cover on the methane oxidation and selection of proper herbaceous species on the landfill[D]. Gansu Agricultural University, 2009.
- [12] Wilshusen J H, Hettiaratchi J P A, Stein V B. Long-term behavior of passively aerated compost methanotrophic biofilter columns[J]. *Waste Management*. 2004, 24(7): 643-653.
- [13] Kightley D, Nedwell D. Methane oxidation in landfill cover soils: can bacteria solve the emission problem[J]. 1994, 3: 24-26.
- [14] 何晶晶, 瞿贤, 杨琦, 等. 填埋场终场覆盖层甲烷氧化行为实验室模拟研究[J]. *环境科学学报*. 2006, 26 (1) : 40 - 44.  
HE Pinjing; QU Xian, YANG Qi, et al. Simulated study on methane oxidation in landfill cover soil[J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*. 2006, 26 (1) : 40 - 44.
- [15] Wilshusen J H, Hettiaratchi J, de Visscher A, et al. Methane oxidation and formation of EPS in compost: effect of oxygen concentration[J]. *ENVIRONMENTAL POLLUTION*, 2004, 129(2): 305-314.
- [16] Czepiel P M, Mosher B, Crill P M, et al. Quantifying the effect of oxidation on landfill methane emissions[J]. 101(D11).
- [17] Bogner J E, Spokas K A, Burton E A. Kinetics of methane oxidation in a landfill cover soil: Temporal variations, a whole-landfill oxidation experiment, and modeling of net CH<sub>4</sub> emissions[J]. 1997, 31(9): 2504-2514.
- [18] De Visscher A, Thomas D, Boeckx P, et al. Methane oxidation in simulated landfill cover soil environments[J]. 1999, 33(11): 1854-1859.
- [19] Kightley D, Nedwell D B, Cooper M. Capacity for methane oxidation in landfill cover soils measured in laboratory-scale soil microcosms[J]. 1995, 61(2): 592-601.
- [20] Berger J, Fornes L V, Ott C, et al. Methane oxidation in a landfill cover with capillary barrier[J]. *WASTE MANAGEMENT*, 2005, 25(4): 369-373.

## Effects of thickness of new landfill cover material on the methane oxidation

ZHU Lei, ZHANG Xiangfeng, DONG Shikui\*, YANG Wenjing

State Key Laboratory of Water Environment Simulation/School of Environment, Beijing Normal University, Beijing 100875, China

**Abstract:** Methane is a one of key greenhouse gases. Landfill is the second-largest source of anthropogenic methane emissions followin the rice field. Reducing the emission of methane in landfill has great significance for mitigating global warming. In this paper, the relationship between methane oxidation and landfill thickness was studied with 6 simulated columns, which were filled with a mixture of ceramsite and compost( 50 vol % of compost and 50 vol% of ceramsite). The result show the methane oxidation efficiency decreased at the 94th day of the experiment. At the end of the experiment, the oxidation efficiency in 6 simulated columns was similar, varying between 24.6% and 34.8%. With the increase of methane input, the oxidation velocity of methane increased firstly and decreased thereafter, with the minimum value of 2.45 mol·m<sup>-2</sup>·d<sup>-1</sup> and the maximum value of 17.82 mol·m<sup>-2</sup>·d<sup>-1</sup>. The most intensive methane oxidation occurred at the layer of 0 ~ 30 cm, based on the analysis of gas composition at the different depths of 6 columns within 119 and 121 day's experiment.

**Key words:** landfill; cover thickness; methane oxidation