

# 生活垃圾填埋场甲烷排放规律的短期监测

高志文<sup>1</sup>, 何品晶<sup>1\*</sup>, 邵立明<sup>1</sup>, 李国建<sup>1</sup>, 俞凯觐<sup>2</sup>, 郑学娟<sup>2</sup>, 徐月恩<sup>2</sup>

(1. 同济大学污染控制与资源化研究国家重点实验室, 上海 200092; 2. 杭州市天子岭废弃物处理总场, 杭州 310022)

**摘要:** 为了解国内生活垃圾填埋场封场后的甲烷排放规律及其影响因素, 以静态箱法测试了杭州市天子岭卫生填埋场封场后的甲烷排放情况. 24h 周期内, 2 个测试点甲烷排放速率均值的变化范围为  $3.67 \sim 36.65 \text{ mmol} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{h})^{-1}$ . 2 个测试点甲烷排放速率的最大比值为 625, 其差异可以根据覆土层厚度的不同得到解释. 单点甲烷排放速率显示与大气压强和覆土层含水率的相关性, 逐次回归结果分别为  $r^2 = 0.89$  (测试点 1) 和  $r^2 = 0.76$  (测试点 2). 40d 内甲烷排放速率为  $-0.23 \sim 0.32 \text{ mmol} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{h})^{-1}$  (覆土层厚度相同点的均值), 甲烷排放速率和大气压强无明显线性关系 ( $r^2 = 0.15$ ). 在某时段甲烷排放速率和覆土层含水率或温度具有显著的相关性, 但在整个时段关系却不明显 ( $r^2 < 0.4$ ). 在逐次回归公式中加入大气压强因素可以明显改善整个时段的拟合结果 ( $r^2$  最大为 0.73), 表明甲烷排放速率受多个因素的影响, 但不同阶段各因素的影响程度不同.

**关键词:** 生活垃圾填埋场; 甲烷排放; 甲烷氧化; 影响因素

中图分类号: X51 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2006)09-1727-05

## Short Term Monitoring of Methane Emission Regulation from a Municipal Solid Waste Landfill

GAO Zhi-wen<sup>1</sup>, HE Pin-jing<sup>1</sup>, SHAO Li-ming<sup>1</sup>, LI Guo-jian<sup>1</sup>, YU Kai-jin<sup>2</sup>, ZHENG Xue-juan<sup>2</sup>, XU Yue-en<sup>2</sup>

(1. State Key Laboratory of Pollution Control and Resources Reuse, Tongji University, Shanghai 200092, China; 2. Hangzhou Tianziling Municipal Solid Waste Landfill, Hangzhou 310022, China)

**Abstract:** To understand the regulation and influencing factors of methane emission from landfills in China, rates of methane emission from Hangzhou Tianziling municipal solid waste landfill were measured by static chamber technique. The emission rates ranged from  $3.67$  to  $36.65 \text{ mmol} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{h})^{-1}$  on average of the two tested points (No. 1 and No. 2) during 24-hour cycle. The max ratio of emission rates between the two tested points was 625. The difference with the rates of the two tested points could be explained by the depth of the cover soils. Rate of methane emission from each point correlated with atmospheric pressure and water content of landfill cover soils, and the result from stepwise regression was  $r^2 = 0.89$  for point No. 1,  $r^2 = 0.76$  for point No. 2. Rates of methane emission varied from  $-0.23$  to  $0.32 \text{ mmol} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{h})^{-1}$  on average in 40-day test (points with same depth of cover soils). The low correlation ( $r^2 = 0.15$ ) with atmospheric pressure showed that atmospheric pressure was not the decisive factor. For some time, emission rates correlated with water content or temperature of the landfill cover soils significantly, but not obvious ( $r^2 < 0.4$ ) during the whole monitoring time. When atmospheric pressure was included, the results of stepwise regression were improved significantly, which showed that methane emission rates were influenced by different factors, but the effect of each factor was not the same at a different time.

**Key words:** municipal solid waste landfill; methane emission; methane oxidation; influencing factors

甲烷是重要的温室效应气体, 对温室效应的贡献约为 22%<sup>[1]</sup>. 填埋场是主要的甲烷排放源之一, 全球填埋场每年的甲烷排放量约为 40Tg, 占全球总排放量的 8% 左右<sup>[1]</sup>. 在我国, 填埋场也是重要的甲烷排放源之一<sup>[2]</sup>.

影响生活垃圾填埋场甲烷排放速率的主要因素包括: 大气压强、覆土层的温度和含水率<sup>[3~5]</sup>. Czepiel 等研究发现填埋场甲烷的排放量和大气压强成线性负相关 ( $r^2 = 0.93$ ), 大气压强下降 1 000Pa, 甲烷排放速率增加了 2 倍<sup>[3]</sup>. Börjesson 等拟合生活垃圾填埋场甲烷排放速率与多种因素之间的关系时发现, 在模型中加入大气压强的变化, 拟合

结果与测试值更为接近, 但是大气压强并不是生活垃圾填埋场甲烷排放速率的决定性因素<sup>[6]</sup>.

甲烷气体通过填埋场覆土层时, 在甲烷氧化菌的作用下与融入覆土层的氧气发生甲烷氧化反应<sup>[7]</sup>:  $\text{CH}_4 \rightarrow \text{CHOH} \rightarrow \text{HCHO} \rightarrow \text{HCOOH} \rightarrow \text{CO}_2$ . 可见, 甲烷氧化可以减少填埋场的甲烷排放量, 而甲烷氧化速率又主要受覆土层温度和含水率的影响

收稿日期: 2005-08-01; 修订日期: 2005-10-17

基金项目: 国家高新技术研究发展计划 (863) 项目 (2001AA644010, 2003AA644020)

作者简介: 高志文 (1982~), 男, 硕士研究生, 主要研究方向为固体废物处理与资源化.

\* 通讯联系人

响<sup>[8~10]</sup>。温度的变化不仅会影响气体的传质速率,也会影响甲烷氧化菌的活性;并且在不同温度时,甲烷氧化菌的种类也不相同<sup>[11]</sup>,从而影响甲烷氧化的速率。覆土层含水率对甲烷氧化速率的影响主要表现为:①影响氧气和甲烷的传质速率,从而影响甲烷的氧化速率和排放速率;②影响甲烷氧化菌的活性。

本研究的目的在于通过现场测试,研究生活垃圾填埋场甲烷排放速率与大气压强、覆土层含水率和温度之间的关系,并分析每个因素的影响程度,以了解生活垃圾填埋场甲烷排放速率的变化规律。

## 1 研究场地概况及研究方法

### 1.1 研究场地概况

杭州市天子岭废弃物处理总场位于杭州市区北部,是一座大型的山谷型生活垃圾卫生填埋场,占地 46hm<sup>2</sup>,填埋库区设计总容量为 600 万 m<sup>3</sup>,设计使用年限 13a。自 1991 年 4 月投入使用以来,已填埋处置垃圾 600 多万 t。研究场地位于黄海标高 102.5~115.0m 填埋最终坡面上,此坡面所在台阶已经封场约 5a,覆土厚度 0.6~1.3m。由于甲烷产生量不能满足发电要求,该台阶的主动收集系统已经关闭。

### 1.2 研究方法

#### 1.2.1 甲烷排放速率测试

甲烷排放速率用静态箱法测试,其装置见图 1。静态箱覆盖面积为 0.215m<sup>2</sup>,体积 65L,静态箱顶部设取样口和测温口。

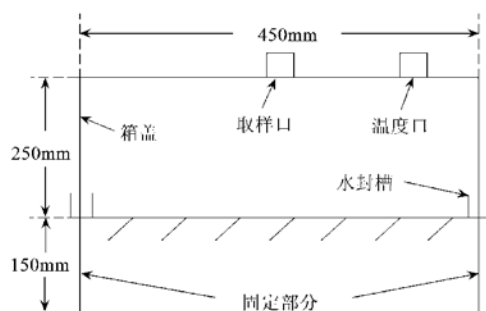


图 1 静态箱

Fig. 1 Static chamber

固定部分埋置在覆土层中,测试时将箱盖插在水封槽内,注水密封。分别在 0, 10, 20, 30 和 40min 从气体取样口取样;取样同时记录箱内温度变化,以校正气体浓度。气样中甲烷的浓度用气相色谱 GC-14B(日本岛津)分析测试。测试条件: FID 检测器,柱温 100℃,进样口温度 110℃,检测器 230℃;以氮气做载气,进气速度 60 mL·min<sup>-1</sup>。

甲烷排放速率计算公式见式(1):

$$J = (V/A)(dc/dt) \quad (1)$$

式(1)中,  $J$  为甲烷排放速率[mmol·(m<sup>2</sup>·h)<sup>-1</sup>];  $V$  为箱盖和固定部分形成的空间体积(m<sup>3</sup>);  $A$  为固定部分的覆盖面积(m<sup>2</sup>);  $dc/dt$  为单位时间内箱内甲烷摩尔浓度的变化[mmol·(m<sup>3</sup>·h)<sup>-1</sup>]。

#### 1.2.2 气象和覆土层因素测试

大气压强用空盒气压表测试,测试精度为 0.01kPa。气温和空气相对湿度用温湿度仪表测试,精度分别为 0.1℃和 1%。覆土层温度用 PC-2WS 多通道温湿度监测仪(锦州阳光科技发展有限公司)测试,温度探头精度为 0.1℃,测试深度分别为 10、20、30 和 40cm。取 0~10cm、10~20cm、20~30cm 和 30~40cm 土壤测试其含水率,覆土层含水率用水分重量和土壤干重的比值表示。

#### 1.2.3 试验测试

试验设 4 个测试点,分别以测试点 1、测试点 2、测试点 3、测试点 4 表示。4 个点在同一高程等间距(间隔 3m)布置。其中测试点 1 的覆土层厚度约为 0.6m,其他 3 点大致相同约为 1.2m。试验从 2005-05-18~2005-06-28,共取样 6 次。06-10T09:30~06-11T09:30 对测试点 1 和测试点 2 作 24h 密集采样,对照监测甲烷排放速率,期间每 4h 取样 1 次,共 7 次;天气状况为小雨,降雨量为 3mm。

## 2 结果与讨论

### 2.1 24h 内甲烷的排放规律

在 24h 内测试点 1 和测试点 2 的甲烷排放速率随时间的变化情况见图 2。可见 2 个测试点的甲烷排放速率相差很大,最大的比值(相同时间甲烷排放速率的比)为 625,这主要与 2 个测试点的覆土层厚度不同有关。因为测试点 2 覆土层较厚,相应其传质阻力大于测试点 1,所以测试点 2 甲烷排放速率比测试点 1 低。测试点 1 和 2 自身甲烷排放速率的波动范围也很大,测试点 1 为 7.22~73.08 mmol·(m<sup>2</sup>·h)<sup>-1</sup>,测试点 2 为 0.09~1.09 mmol·(m<sup>2</sup>·h)<sup>-1</sup>,相差 1 个数量级;2 个测试点的甲烷排放速率随时间的变化大致相同,呈先降后升再降的趋势;2 个测试点甲烷排放速率的均值为 3.67~36.65 mmol·(m<sup>2</sup>·h)<sup>-1</sup>。

图 3 为大气压强的变化情况,大气压强随时间的变化呈上升趋势,与 2 个测试点甲烷排放速率的变化趋势不同,相关性分析( $r^2 < 0.2$ )也说明大气压强并不是甲烷排放速率的控制性因素。这与 Czepiel

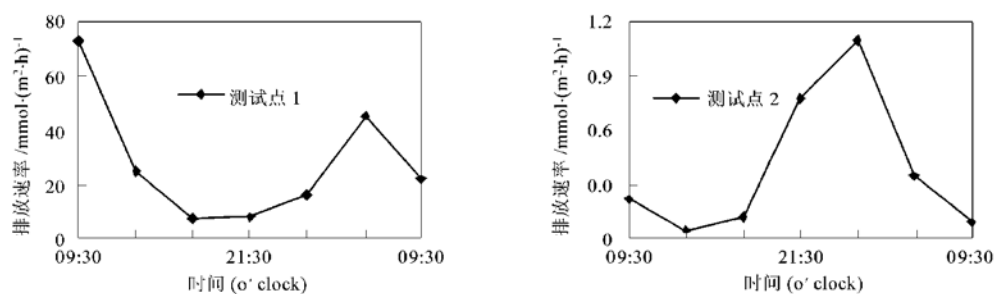


图 2 甲烷排放速率

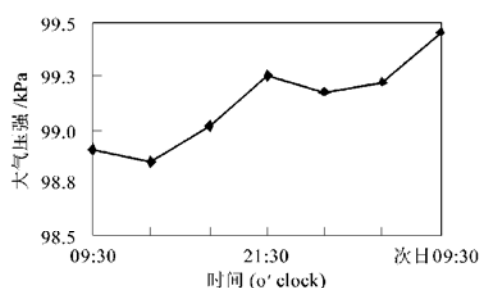
Fig. 2 CH<sub>4</sub> emission rates

图 3 大气压强

Fig. 3 Atmospheric pressure

式(2)中,  $Y$  为甲烷排放速率 [ $\text{mmol} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{h})^{-1}$ ];  $\alpha$  为常量;  $X_1$  为大气压强 (kPa);  $X_2$  为空气相对湿度 (%);  $X_3$  为覆土层含水率 (%);  $X_4$  为覆土层温度 ( $^{\circ}\text{C}$ );  $\beta_1, \beta_2, \beta_3, \beta_4$  为回归参数。

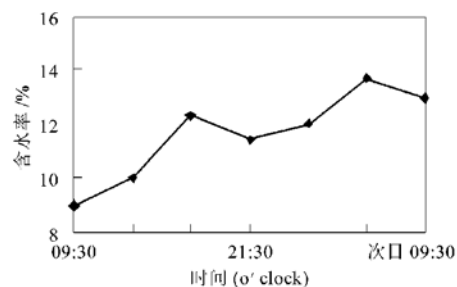


图 5 覆土层含水率

Fig. 5 Water content of the cover soils

等的研究结果不同 ( $r^2 = 0.93$ ), 可能与 Czepiel 等测试填埋场的特殊性有关<sup>[5]</sup>. 空气相对湿度的变化情况见图 4, 受降雨影响, 测试期间空气相对湿度一直很高 (大于 75%); 但降雨只是改变了覆土层表层的土壤含水率, 经测试仅 0~10cm 深覆土层含水率波动较大 (见图 5), 而 10~30cm 和 30~40cm 深覆土层含水率分别在 14% 和 16% 左右, 波动范围小于 1%. 图 6 为气温、10cm 和 40cm 深土壤温度的变化情况, 可见气温对 10cm 深土壤温度的影响比 40cm 深土壤温度明显, 但变化范围都比气温的变化范围小。

以大气压强、空气相对湿度、覆土层含水率和温度为变量, 分别与测试点 1 和测试点 2 的甲烷排放速率做逐次回归分析 (见公式 2):

$$Y = \alpha + \beta_1 X_1 + \beta_2 X_2 + \beta_3 X_3 + \beta_4 X_4 \quad (2)$$

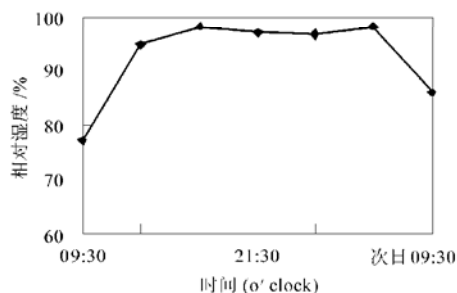


图 4 空气相对湿度

Fig. 4 Atmospheric humidity

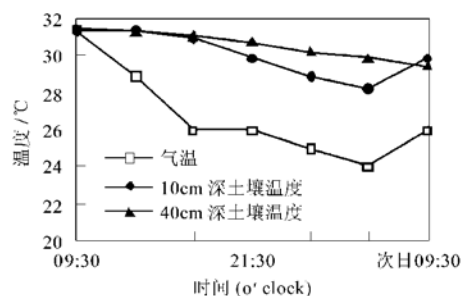


图 6 气温和不同深度覆土层的温度

Fig. 6 Temperature of the air and the cover soils at different depths

大气压强和空气相对湿度的变化可以解释测试点 1 甲烷排放速率变化的 89% ( $r^2 = 0.89$ ), 而只能解释测试点 2 的 35% ( $r^2 = 0.35$ ). 空气相对湿度的提高相应增加了覆土层表层土壤空气的湿度, 从而减少了土壤的孔隙, 且甲烷在水相的传质速率仅为气相的万分之一<sup>[12]</sup>, 所以空气相对湿度的提高使得覆土层表层土壤的气体传质阻力增大, 降低了甲烷的排放速率. 由于测试点 1 和测试点 2 的覆土层厚

度不同,所以这种改变对两者的影响程度也不相同. 加入 0~ 10cm 深覆土层含水率的影响,测试点 1 的拟合结果并没有多大改善,而测试点 2 拟合结果却明显提高( $r^2=0.76$ ),这不仅与测试点 2 覆土的厚度有关,还可能受甲烷氧化的影响. 甲烷氧化的最适含水率在 20% 左右<sup>[8]</sup>,所以含水率提高增大了甲烷的氧化速率<sup>[13]</sup>,而测试点 2 的甲烷排放速率远小于测试点 1,所以甲烷氧化速率的改变对测试点 2 的影响要比测试点 1 更为明显. 在公式中加入 10cm 和 40cm 深土壤温度因素,对 2 个点的拟合结果无明显的改善. 试验期间土壤温度变化幅度最大为 3.1℃,而  $Q_{10}$ (温度每升高 10℃甲烷氧化速率提高的倍数)为 1.9<sup>[14]</sup>,也说明试验温度的变化对甲烷排放速率的影响并不显著.

## 2.2 40d 内甲烷的排放规律

40d 内甲烷排放速率见表 1. 由表 1 可知,3 个点的甲烷排放速率差别较小,这与 3 个点覆土层厚度相差不大有关,所以以 3 个点甲烷排放速率的平均值做统计计算. 甲烷排放速率出现负值说明填埋场覆土层不仅没有甲烷排放,还氧化了大气中的甲烷. Boeckx 和 Bogner 等也发现这一现象<sup>[9,15]</sup>,其数值为  $-0.02 \sim -0.39 \text{ mmol} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{h})^{-1}$ . 可见提高覆土层的甲烷氧化速率不仅可以减少填埋场甲烷的排放量,甚至还可以氧化大气中的甲烷.

测试期间气象因素、不同深度覆土层温度和含水率的测试结果见表 2. 甲烷排放速率(3 个点的均

表 1 短期内 3 个测试点的甲烷排放速率及其均值/ $\text{mmol} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{h})^{-1}$

Table 1 Short-term methane emission rates from the three points and the mean of them/ $\text{mmol} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{h})^{-1}$

| 日期/月-日 | 测试点 2 | 测试点 3 | 测试点 4 | 平均值   |
|--------|-------|-------|-------|-------|
| 05-18  | 0.11  | -0.09 | 0.00  | 0.01  |
| 05-20  | 0.00  | 0.00  | 0.01  | 0.00  |
| 06-01  | 0.07  | 0.04  | 0.23  | 0.11  |
| 06-08  | 0.95  | 0.00  | 0.00  | 0.32  |
| 06-15  | 0.02  | -0.04 | -0.04 | -0.01 |
| 06-22  | -0.17 | 0.01  | 0.01  | -0.15 |
| 06-28  | -0.68 | 0.00  | 0.00  | -0.23 |

值)与大气压强做相关性分析,其相关性  $r^2$  为 0.15,说明即使在较长的时间内(对比 24h 试验),大气压强的变化也不能完全解释甲烷排放速率的变化情况. 05-18~ 06-08 期间,土壤含水率逐渐降低,而甲烷排放速率随着覆土层含水率的降低而升高,其线性相关性  $r^2$  为 0.79,说明在此阶段覆土层含水率是甲烷排放速率变化的主要因素. 在 06-15~ 06-28 之间,覆土层含水率仍有不同程度的下降,但甲烷排放速率却呈明显的降低趋势,甚至甲烷排放速率变为负值,即开始氧化大气中的甲烷. 甲烷氧化的最适温度在 25~ 35℃之间<sup>[9,13,14]</sup>,最适含水率在 20% 左右<sup>[8,9]</sup>,而在此阶段含水率始终低于最适含水率,说明甲烷氧化速率的提高主要与温度的升高有关,即在第 2 阶段温度成为影响甲烷排放速率的主要因素. 这与一般填埋场在夏季的甲烷排放速率要低于冬季是一致的<sup>[6,9]</sup>.

表 2 气象因素、不同深度覆土层温度和含水率

Table 2 Climatic factors, the temperature and water content of the cover soil

| 日期/月-日 | 大气压强/kPa | 气温/℃ | 不同深度覆土层的温度/℃ |      |      |      | 不同深度覆土层的含水率/% |      |      |      |
|--------|----------|------|--------------|------|------|------|---------------|------|------|------|
|        |          |      | 10cm         | 20cm | 30cm | 40cm | 10cm          | 20cm | 30cm | 40cm |
| 05-18  | 100.50   | 20.0 | 20.6         | 20.9 | 21.3 | 21.2 | 16.0          | 14.0 | 17.1 | 14.2 |
| 05-20  | 104.50   | 31.0 | 21.8         | 21.4 | 20.8 | 20.3 | 11.4          | 13.1 | 18.0 | 15.7 |
| 06-01  | 99.10    | 28.0 | 24.6         | 24.7 | 24.8 | 24.5 | 12.0          | 12.3 | 14.3 | 13.4 |
| 06-08  | 97.10    | 36.2 | 25.1         | 25.1 | 25.1 | 24.6 | 9.1           | 13.4 | 13.2 | 13.0 |
| 06-15  | 99.45    | 35.5 | 27.4         | 27.8 | 27.9 | 27.5 | 7.0           | 12.1 | 11.9 | 13.9 |
| 06-22  | 99.39    | 43.1 | 30.6         | 30.3 | 29.4 | 28.9 | 9.0           | 12.6 | 13.0 | 14.2 |
| 06-28  | 99.61    | 43.2 | 29.5         | 29.6 | 29.1 | 28.6 | 5.2           | 8.7  | 10.8 | 13.5 |

将甲烷排放速率分别与不同深度覆土层温度和含水率做逐次回归,其相关性  $r^2$  均小于 0.4,加入大气压强因素后,其相关性有明显改善,  $r^2$  均大于 0.55,最大为 0.73,说明甲烷排放速率受这 3 个因素的综合影响,但每一个因素的影响程度还受其他 2 个因素的制约,在某一时段内可能只是其中 1 个

或者 2 个因素起主要作用.

## 3 结论

(1) 24h 内甲烷排放速率的变化范围为  $3.67 \sim 36.65 \text{ mmol} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{h})^{-1}$  (测试点 1 和 2 的均值),40d 内甲烷排放速率的变化范围为  $-0.23 \sim 0.32$

$\text{mmol} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{h})^{-1}$  (测试点 2 3 4 的均值)。

(2) 24h 内填埋甲烷排放速率主要受大气压强和覆土层含水率的影响, 温度变化对其的影响较小。

(3) 40d 内填埋场甲烷排放速率受气压、覆土层温度和含水率 3 个因素的综合影响, 但每个因素的影响程度还受其他 2 个因素的制约, 并且在不同时段其影响程度也不相同。

(4) 提高填埋场覆土层的甲烷氧化能力, 不仅可以减少填埋场的甲烷排放量, 甚至可以氧化大气中的甲烷, 减少甲烷气体对温室效应的贡献。

#### 参考文献:

- [ 1 ] Visscher A D, Cleemput O V. Simulation model for gas diffusion and methane oxidation in landfill cover soils [ J ]. Waste Management, 2003, **23**( 7 ): 581~ 591.
- [ 2 ] 张相锋, 肖学智, 何毅, 等. 垃圾填埋场的甲烷释放及其减排 [ J ]. 中国沼气, 2006, **24**( 1 ): 3~ 5.
- [ 3 ] Czepiel P M, Shorter J H, Mosher B, *et al.* The influence of atmospheric pressure on landfill methane emissions [ J ]. Waste Management, 2003, **23**( 7 ): 593~ 598.
- [ 4 ] Christophersen M, Kjeldsen P. Lateral gas transport in soil adjacent to an old landfill: factors governing gas migration [ J ]. Waste Management and Research, 2001, **19**( 6 ): 579~ 594.
- [ 5 ] Spokas K, Graffa C, Morcetb M, *et al.* Implications of the spatial variability of landfill emission rates on geospatial analyses [ J ]. Waste Management, 2003, **23**( 7 ): 599~ 607.
- [ 6 ] Börjesson G, Svensson B H. Seasonal and diurnal methane emissions from a landfill and their regulation by methane oxidation [ J ]. Waste Management and Research, 1997, **15**( 1 ): 33~ 54.
- [ 7 ] Hanson R S, Hanson T E. Methanotrophic bacteria [ J ]. Microbiological Reviews, 1996, **60**( 2 ): 439~ 471.
- [ 8 ] Bender M, Conrad R. Effect of  $\text{CH}_4$  concentration and soil condition on the induction of  $\text{CH}_4$  oxidation activity [ J ]. Soil Biology and Biochemistry, 1995, **27**( 12 ): 1517~ 1527.
- [ 9 ] Boeckx P, Cleemput O V, Villaralvo I. Methane emission from a landfill and the methane oxidation capacity of its covering soil [ J ]. Soil Biology and Biochemistry, 1996, **28**( 10/ 11 ): 1397~ 1405.
- [ 10 ] Christophersen M, Linderod L, Jensen E P, *et al.* Methane oxidation at low temperatures in soil exposed to landfill gas [ J ]. Journal of Environmental Quality, 2000, **29**( 6 ): 1989~ 1997.
- [ 11 ] Börjesson G, Sundh I, Svensson B. Microbial oxidation of  $\text{CH}_4$  at different temperatures in landfill cover soils [ J ]. Microbiology Ecology, 2004, **48**( 3 ): 305~ 312.
- [ 12 ] 陈敏恒, 丛德滋, 方图南, 等. 化工原理( 下册) [ M ]. ( 第二版). 北京: 化学工业出版社, 2000. 1~ 23.
- [ 13 ] Visscher A D, Schippers M, Cleemput O V. Short-term kinetic response of enhanced methane oxidation in landfill cover soils to environmental factors [ J ]. Soil Biology and Biochemistry, 2001, **33**( 2 ): 231~ 237.
- [ 14 ] Whalen S C, Reeburgh W S, Sandbeck K A. Rapid methane oxidation in a landfill cover soil [ J ]. Applied and Environment Microbiology, 1990, **56**( 11 ): 3405~ 3411.
- [ 15 ] Bogner J E, Spokas K, Burton E, *et al.* Landfills as atmospheric methane sources and sinks [ J ]. Chemosphere, 1995, **31**( 9 ): 4119~ 4130.