

人工回灌过程中富里酸和Cu(II)对多孔介质悬浮物堵塞的影响

梁昊志, 王欢, 张俊杰, 刘勇毅, 方运海

Effect of fulvic acid and Cu(II) on the suspended particles clogging of porous media during artificial recharge

LIANG Haozhi, WANG Huan, ZHANG Junjie, LIU Yongyi, and FANG Yunhai

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.16030/j.cnki.issn.1000-3665.202301011>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

井内嵌入同轴多孔与固体圆柱地下水渗流流型分析

Flow pattern analysis around a solid cylinder with both porous and water rings in porous media

朱琳, 雷海燕, 马非, 戴传山 水文地质工程地质. 2021, 48(4): 25-31

非均匀多孔介质等效渗透率的普适表达式

A universal expression of the equivalent permeability of heterogeneous porous media

张东, 刘晓丽, 王恩志 水文地质工程地质. 2020, 47(4): 35-42

多孔介质界面对重非水相液体迁移过程影响的图像法研究

Investigation on the influence of porous media interface on DNAPL migration based on image methods

刘汉乐, 郝胜瑶, 马建初 水文地质工程地质. 2019, 46(5): 169-174

非饱和花岗岩残积土水-气两相驱替过程数值模拟

Numerical simulation of water-gas two-phase displacement process in unsaturated granite residual soil

蔡沛辰, 阙云, 李显 水文地质工程地质. 2021, 48(6): 54-63

高盐强酸性地下水中复合苯系污染物原位芬顿氧化实验研究

In-situ Fenton oxidation experiment of compound benzene pollutants in high salt and strong acid groundwater

郭威, 袁放, 张佳, 谢斌, 冯学洋, 陈鸿汉 水文地质工程地质. 2021, 48(2): 182-189

承德市富硒土壤区镉的地球化学特征及生态风险评价

Geochemical characteristics and ecological risk assessment of cadmium in selenium-rich soil of Chengde City in Hebei Province

杨帆, 王京彬, 王晨, 何泽新, 贾凤超, 黄行凯, 张晓敏, 刘卫, 崔晓英 水文地质工程地质. 2020, 47(6): 163-172



关注微信公众号, 获得更多资讯信息

DOI: 10.16030/j.cnki.issn.1000-3665.202301011

梁昊志, 王欢, 张俊杰, 等. 人工回灌过程中富里酸和 Cu(II) 对多孔介质悬浮物堵塞的影响 [J]. 水文地质工程地质, 2023, 50(5): 212-221.

LIANG Haozhi, WANG Huan, ZHANG Junjie, *et al.* Effect of fulvic acid and Cu(II) on the suspended particles clogging of porous media during artificial recharge[J]. Hydrogeology & Engineering Geology, 2023, 50(5): 212-221.

人工回灌过程中富里酸和 Cu(II) 对多孔介质悬浮物堵塞的影响

梁昊志^{1,2}, 王欢^{1,2,3}, 张俊杰^{1,2}, 刘勇毅¹, 方运海⁴

(1. 桂林理工大学环境科学与工程学院, 广西 桂林 541004; 2. 广西环境污染控制理论与技术重点实验室, 广西 桂林 541004; 3. 桂林理工大学岩溶地区水污染控制与用水安全保障协同创新中心, 广西 桂林 541004; 4. 合肥工业大学资源与环境学院, 安徽 合肥 230009)

摘要: 地下水人工回灌是解决地下水超采问题的有效措施, 悬浮颗粒物堵塞是影响回灌进行的技术瓶颈。目前多数研究聚焦在悬浮物堵塞方面, 然而地表回灌水中重金属离子以及腐殖质对多孔介质物理堵塞的影响缺乏研究。本研究采用室内渗流砂柱试验研究富里酸、Cu(II) 以及两者共存对多孔介质悬浮物堵塞的影响, 分别采用高岭土(SS组)、富里酸+高岭土(SS+FA组)、富里酸+Cu(II)+高岭土(SS+FA+Cu组)配置模拟回灌用水。研究表明: (1)回灌结束时, SS组、SS+FA组、SS+FA+Cu组多孔介质整体相对渗透系数 K' 分别降至 0.233, 0.095, 0.182。SS组和 SS+FA+Cu组在中上层(0~7.50 cm)相对渗透系数 K' 均降至 0.28 以下, 而在底层(7.50~10.50 cm)相对渗透系数 K' 仅降至 0.45 左右, 说明 2 组多孔介质中上层重度堵塞($0 < K' < 0.30$)、底层中度堵塞($0.30 < K' < 0.60$); SS+FA组在各渗流段(0~10.50 cm)相对渗透系数 K' 均降至 0.18 以下, 说明 SS+FA组各渗流段多孔介质均为重度堵塞, 相对其它 2 组, SS+FA组中悬浮物更易向深层迁移。(2)富里酸、Cu(II) 的存在会改变悬浮颗粒粒径、荷电性及内部氢键作用, 从而影响多孔介质的堵塞发生。(3)相对 SS组, SS+FA组富里酸的存在会加剧多孔介质堵塞; SS+FA+Cu组多孔介质整体堵塞程度比 SS+FA组小, 说明 Cu(II) 会缓解富里酸对堵塞的加剧作用。探明富里酸和 Cu(II) 对多孔介质堵塞的影响机制, 能够为人工回灌过程中多孔介质堵塞的防治提供理论基础和科学依据。

关键词: 多孔介质; 堵塞; 悬浮物; 富里酸; Cu(II); 地下水超采; 地面沉降

中图分类号: P641

文献标志码: A

文章编号: 1000-3665(2023)05-0212-10

Effect of fulvic acid and Cu(II) on the suspended particles clogging of porous media during artificial recharge

LIANG Haozhi^{1,2}, WANG Huan^{1,2,3}, ZHANG Junjie^{1,2}, LIU Yongyi¹, FANG Yunhai⁴

(1. College of Environmental Science and Engineering, Guilin University of Technology, Guilin, Guangxi 541004, China; 2. Guangxi Key Laboratory of Environmental Pollution Control Theory and Technology, Guilin, Guangxi 541004, China; 3. Collaborative Innovation Center for Water Pollution Control and Water Safety in Karst Area, Guilin University of Technology, Guilin, Guangxi 541004, China; 4. School of Resources and Environmental Engineering, Hefei University of Technology, Hefei, Anhui 230009, China)

收稿日期: 2023-01-15; 修订日期: 2023-03-19

投稿网址: www.swdzcgdz.com

基金项目: 国家自然科学基金青年基金项目(42207064); 广西科技基地和人才专项项目(桂科 AD21220079)

第一作者: 梁昊志(1998-), 男, 硕士研究生, 主要从事水资源利用与保护研究。E-mail: lianghaozhi1106@163.com

通讯作者: 王欢(1990-), 男, 讲师, 主要从事水资源利用与保护研究。E-mail: wanghuan@glut.edu.cn

Abstract: Artificial recharge is an effective technology to solve the problem of groundwater over-exploitation. Clogging of porous media is the bottleneck affecting groundwater recharge. Most studies have focused on the clogging of suspended particles. Few studies focus on the effects of heavy metal ions and humus in recharge water on the physical clogging. This study conducts sand column experiment to explore the influence of fulvic acid, Cu(II) and their coexistence on the suspended particles clogging of porous media. Kaolin (SS group), fulvic acid + kaolin (SS+FA group), fulvic acid + Cu(II) + kaolin (SS+FA+Cu group) are added to recharge water, respectively. The results show that (1) the relative hydraulic conductivity (K') of SS group, SS+FA group and SS+FA+Cu group decrease to 0.233, 0.095 and 0.182, respectively. The K' of SS group and SS+FA+Cu group in 0–7.50 cm decrease to below 0.28, while the K' in the bottom layer (7.50–10.50 cm) decrease to about 0.45, which indicates that 0–7.50 cm of the porous media in SS group and SS+FA+Cu group are severely clogged ($0 < K' < 0.30$) and the bottom layer is moderately clogged ($0.30 < K' < 0.60$). The K' of the porous media in SS+FA group among different layers (0–10.50 cm) decrease to below 0.18, which shows that the porous media of SS+FA group in different layers are severely clogged. Compared with the other two experimental groups, the suspended particles in SS+FA group are more likely to migrate into the deeper layer in the sand column. (2) Fulvic acid and Cu(II) can change the particle size, charge and internal hydrogen bonding of the suspended particles, thus affect the clogging process. (3) Compared with SS group, fulvic acid aggravates the clogging of the porous media. The clogging degree of the porous media in SS+FA+Cu group is slighter than that in SS+FA group, which indicates that Cu(II) would alleviate the aggravating effect of fulvic acid on clogging. Exploring the influence mechanism of fulvic acid and Cu(II) on porous media clogging can provide a theoretical and scientific basis for the prevention and treatment of porous media clogging in the process of artificial recharge.

Keywords: porous media; clogging; suspended particles; fulvic acid; Cu(II); groundwater over-exploitation; land subsidence

地下水对人类的生存发展具有不可替代的作用^[1]。随着社会经济快速发展, 地下水的需求量不断增加, 地下水超采问题日益突出。因地下水超采而引发的海水入侵、地下水水位衰减、地面沉降^[2-4]、水质恶化等环境地质问题已经成为世界各国共同面临的难题^[5-6]。地下水人工回灌是解决地下水超采问题的有效措施之一, 然而回灌过程中极易发生含水层堵塞使得回灌设施不能正常使用, 造成严重的损失。Bloetscher等^[7]对美国 233 个含水层存储和回收(aquifer storage and recovery, ASR)站点调查分析得出, 有 33 个站点存在堵塞问题, 其中近半数因堵塞而停运。美国马里兰州的 207 个回灌设施中, 大半部分因为堵塞问题而停用。为了提高人工回灌的效率、延长回灌设施的工作寿命, 探究人工回灌过程中堵塞机理势在必行。

人工回灌多孔介质的堵塞类型主要包括: 物理堵塞、生物堵塞、化学堵塞。物理堵塞是最主要的堵塞类型, 占比约 70%^[8]。针对物理堵塞有学者研究发现, 悬浮物是导致多孔介质物理堵塞的重要因素, 占据物理堵塞的 92%。影响多孔介质悬浮物堵塞的因素有

很多, 其中悬浮物粒径、悬浮物浓度、多孔介质粒径等已被广泛研究。研究表明, 悬浮颗粒的粒径越小, 悬浮颗粒越容易迁移至介质深层, 堵塞发生越快; 在一定范围内悬浮物的浓度越高, 堵塞发生越快^[9]。当多孔介质粒径 D_p 与悬浮颗粒中位粒径 d_{50} 之比 (D_p/d_{50}) 越小, 越容易发生表层堵塞, D_p/d_{50} 越大, 越容易发生内部堵塞^[10-11]。此外, 悬浮颗粒的表面性质和回灌水的理化性质对多孔介质渗透性也有影响^[12-13], 研究结果表明当悬浮颗粒球形度较低或表面粗糙度较大时, 更容易造成多孔介质渗透性的降低^[14]。回灌水的 pH、离子成分及离子浓度会影响黏土颗粒和有机物质的吸附和凝聚, 同时会干扰介质空隙对悬浮微粒的截留作用。回灌水的离子强度较高时, 高岭土颗粒会发生絮凝, 导致渗透性能迅速下降^[15-16]。目前对于多孔介质单一物理堵塞形成机理和影响因素的研究已较为充分。

而在实际条件下, 地表水常被用作回灌水源补充地下水, 悬浮颗粒物、重金属离子、腐殖酸在地表水体中通常是共同存在的^[17-18]。组成悬浮颗粒物的黏

土矿物以高岭石和蒙脱石为主要的代表^[19]。黏土矿物通常具有比表面积大、粒径小、对污染物吸附能力强等特点,易与地表水体中常见物质(例如腐殖酸、金属离子等)发生相互作用^[20]。腐殖酸可以分为 3 类:富里酸、胡敏酸、棕腐酸。其中富里酸可与氧化物、金属离子发生相互作用,常被用做重金属离子的吸附剂。此外,已有研究证实富里酸在吸附重金属离子的同时又会被悬浮颗粒所吸附^[21],因此受到广泛关注。随着铜矿的开采和铜制品的使用,大量含铜废水的排放,目前在土壤、沉积物、海洋、湖泊、河流和地下水等体系中均发现了铜^[22],成为水体中一种常见的重金属离子。水环境中的 Cu(II)既会与水体中的腐殖酸发生络合作用被吸附,又会被水环境的悬浮颗粒所吸附^[23]。有研究发现,悬浮颗粒、腐殖酸会促进重金属离子迁移^[24-25],重金属离子会抑制悬浮颗粒迁移^[26-28],腐殖酸会促进悬浮颗粒在多孔介质中的迁移^[29],研究结果表明悬浮颗粒物、重金属离子、腐殖酸三者之间存在相互影响和作用。

目前学者们对腐殖酸、高岭土、重金属离子在饱和和多孔介质中的迁移规律进行了广泛研究,但水体中的腐殖酸和重金属离子对人工回灌多孔介质的悬浮物堵塞的影响鲜有研究。本文采用室内渗流砂柱试验,模拟人工回灌多孔介质的悬浮物堵塞过程,探明不同因素(富里酸、Cu(II)、富里酸和 Cu(II)共存)影响下多孔介质渗透性随时间的变化特征,比较不同组别悬浮物沉积量的分布特征,分析富里酸和 Cu(II)对悬浮颗粒物荷电性、粒径和表面基团的影响,最终系统阐明富里酸和 Cu(II)存在条件下多孔介质悬浮物堵塞的形成过程和机制。

1 试验装置与方法

1.1 试验材料

本试验采用粒径范围为 0.50~1.00 mm 的石英砂(中国厦门 ISO 标准砂有限公司, SiO₂>96%)作为供试多孔介质。试验开始前,将石英砂放入 0.25 mol/L 盐酸溶液浸泡 12 h,用纯水反复漂洗,再将其放入 0.25 mol/L 氢氧化钠溶液浸泡 12 h,纯水反复漂洗至中性,而后放入 105℃ 烘箱中烘干备用。采用高岭土(上海阿拉丁生化科技股份有限公司)模拟悬浮颗粒物。

高岭土配置悬浊液的主要过程如下:取高岭土于纯水中,搅拌均匀后静置 12 h,用虹吸法取上清液得到 100 NTU 高岭土浊液备用。采用富里酸(合肥千胜生物科技有限公司)作为溶解性有机质。试验用到的

富里酸溶液质量浓度为 5.00 mg/L。本试验采用氯化铜(上海百舜生物科技有限公司)配置 Cu(II)溶液,试验用的 Cu(II)质量浓度为 1.00 mg/L。

1.2 试验装置和步骤

1.2.1 试验装置

试验装置主要由有机玻璃柱、潜水泵、定水头装置、供水箱组成。试验所用有机玻璃柱长度为 25.00 cm,内径为 4.00 cm,柱体右侧自上而下有 6 个测压口,测压口间距为 0, 1.50, 4.50, 7.50, 10.50, 13.50 cm,左侧对应位置有 6 个取样口,测压板精度为 0.10 cm,水头高度为 5.00 cm,装柱完成后初始相对渗透系数为 0.309 cm/s,具体试验装置如图 1 所示。

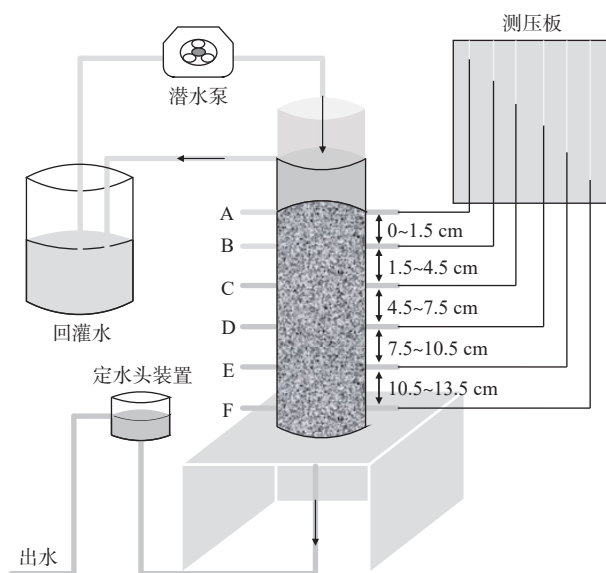


图 1 试验装置示意图

Fig. 1 Schematic diagram of experimental setup

1.2.2 试验步骤

本试验采用湿法进行砂柱填装,将砂样等容重装入试验砂柱,砂柱高度为 16.50 cm。装柱完成后,砂柱饱水 24 h,待测压板读数稳定后开始记录测压板的初始读数,计算得到初始渗透系数 K_0 。回灌模拟用水加入少量苯酚以消除微生物的影响。试验开始后,每隔一段时间读取测压板水头值及出水口流量,计算相应时刻多孔介质渗透系数 K :

$$K = \frac{4Q\Delta x}{d^2\Delta h} \quad (1)$$

式中: Q ——出水口的流量/(m³·d⁻¹);

Δx ——任意两测压管间的距离/m;

Δh ——两测压管间的水头差/m;

d ——砂柱内径/m。

为了更加直观地反映砂柱渗透性的变化, 引入相对渗透系数 K' :

$$K' = K/K_0 \quad (2)$$

式中: K_0 ——砂层初始渗透系数/($\text{m} \cdot \text{d}^{-1}$);

K ——任意时刻任意砂层渗透系数/($\text{m} \cdot \text{d}^{-1}$).

1.3 试验组别

本研究共设计 5 个组别, 每个组别进行 3 组平行试验, 试验过程以纯水作为空白对照, 渗流试验主要组别及参数见表 1。

表 1 渗流试验主要组别及参数设计

Table 1 Parameters of different experimental groups

| 试验组别 | 模拟回灌用水 | 高岭土浊度 /NTU | 富里酸质量浓度 /($\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$) | Cu(II)质量浓度 /($\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$) |
|-----------|----------------|---------------|---|--|
| CK组 | 纯水 | — | — | — |
| FA组 | 富里酸 | — | 5.00 | — |
| SS组 | 高岭土 | 100 | — | — |
| SS+FA组 | 高岭土+富里酸 | 100 | 5.00 | — |
| SS+FA+Cu组 | 高岭土+富里酸+Cu(II) | 100 | 5.00 | 1.00 |

1.4 分析与测试方法

1.4.1 傅里叶红外光谱分析

取一定量待测样品真空冷冻干燥 48 h 至样品达到上机要求, 然后按照质量比 1 : 100 将待测样品与 KBr(光谱纯)于研钵中混匀并研磨压片, 采用傅里叶红外光谱仪(Tensor 27, Bruck, Germany)对待测样品进行测定, 以研究富里酸、Cu(II)对高岭土颗粒官能团的影响。

1.4.2 Zeta 电位和粒径的测定

为了研究富里酸、Cu(II)对高岭土颗粒表面电荷和粒径的影响, 采用纳米粒度及 Zeta 电位分析仪(Zetasizer Nano ZS 90, America)测定样品的 Zeta 电位: 取 0.10 g 固体样品均匀分散至 100 mL 超纯水中, 调整参数, 放入磁力搅拌样品池内测定电位值。采用马尔文激光粒度仪(Mastersizer 3 000, Britain)测定样品粒径: 将待测样品分散在 500 mL 超纯水中, 调整样品加入量至遮光度达到 10% ~ 20%, 然后对样品进行测定。

1.4.3 悬浮物沉积量的测定

多孔介质表面悬浮物沉积量根据质量法进行计算。试验结束后, 为了避免不同渗流段之间发生扰动, 小心取出不同渗流段的多孔介质, 于 105℃ 恒温烘干至恒重, 质量记为 m_0 , 使用酸性清洗剂对不同渗流段的多孔介质反复清洗至澄清, 再次于 105℃ 恒温烘

干至恒重, 质量记为 $m_{\text{砂}}$, 沉积量 $S_{\text{沉}}$ 可表示为:

$$S_{\text{沉}} = \frac{m_0 - m_{\text{砂}}}{m_{\text{砂}}} \quad (3)$$

2 结果

2.1 傅里叶变换红外光谱分析

为了探明富里酸和 Cu(II)对悬浮物表面基团的影响, 采用傅里叶红外光谱对高岭土颗粒表面基团进行分析, 结果如图 2 所示。根据红外光谱官能团对照表可知, 在 3 000 ~ 3 650 cm^{-1} 的吸收峰是由分子间氢键的 O-H 基团伸缩振动形成的吸收带, 比较 SS 组和 SS+FA 组可以发现, SS+FA 组颗粒在该区域峰吸收强度增加, 说明高岭土和富里酸存在氢键。对此 SS+FA 和 SS+FA+Cu 组, SS+FA+Cu 组颗粒在该区域峰吸收强度减弱, 说明 Cu(II)的存在减弱了高岭土与富里酸之间的氢键作用。在 1 200 ~ 1 650 cm^{-1} 的吸收峰是由分子间 C-O 基团的伸缩振动和 C-H 基团的弯曲振动所导致。比较 SS 组和 SS+FA 组可以发现, SS+FA 组颗粒在该区域峰吸收强度增加, 说明加入富里酸会促进 C-O 基团的伸缩振动和 C-H 基团的弯曲振动。对此 SS+FA 和 SS+FA+Cu 组, SS+FA+Cu 组颗粒在该区域峰吸收强度减弱, 说明 Cu(II)会减弱富里酸对 C-O 基团伸缩振动和 C-H 基团弯曲振动的促进作用。

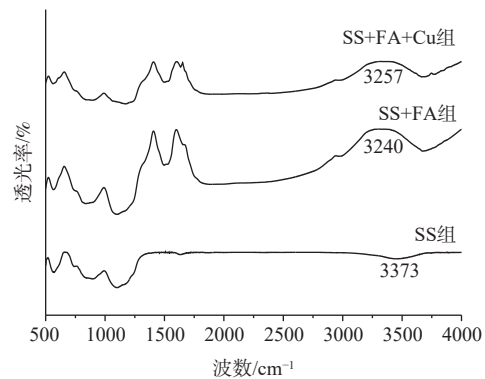


图 2 傅里叶变换红外光谱图

Fig. 2 Fourier transform infrared spectrum

2.2 不同组别悬浮颗粒表面荷电性和粒径分析

SS 组、SS+FA 组、SS+FA+Cu 组悬浮物颗粒的 Zeta 电位值分别是 -5.64, -8.56, -7.22 mV(表 2), 说明添加富里酸或 Cu(II)能够影响悬浮颗粒物的电性, 其原因可能是高岭土吸附富里酸或 Cu(II), 从而造成悬浮物荷电性的改变。SS 组、SS+FA 组、SS+FA+Cu 组悬浮物颗粒的中位粒径分别为 2.47, 2.05, 2.37 μm (表 2), 表明富里酸或 Cu(II)的添加会改变悬浮颗粒

物的粒径,其原因可能是高岭土颗粒吸附富里酸或 Cu(II)使得悬浮颗粒内部分子结合力发生变化,根据傅里叶变换红外光谱分析可知结合力大小为 SS+FA 组>SS+FA+Cu 组>SS 组。悬浮颗粒内部分子结合力越强,分子结合越紧密,悬浮物粒径越小;反之,则粒径越大。

表 2 不同组别悬浮物 Zeta 电位及粒径

Table 2 Zeta potential and particle size of suspended solids in different experimental groups

| 试验组别 | 悬浮颗粒 | 悬浮颗粒共存物质 | Zeta 电位/mV | 中位粒径/ μm |
|------------|------|------------|------------|---------------------|
| SS 组 | 高岭土 | 无 | -5.64 | 2.47 |
| SS+FA 组 | 高岭土 | 富里酸 | -8.56 | 2.05 |
| SS+FA+Cu 组 | 高岭土 | 富里酸+Cu(II) | -7.22 | 2.37 |

3 分析与讨论

3.1 多孔介质渗透性的时间及纵向变化规律

3.1.1 多孔介质渗透性时间变化特征

不同因素(富里酸、Cu(II)、富里酸和 Cu(II)共存)影响下,多孔介质相对渗透系数 K' 随时间变化如图 3 所示。研究表明,随着回灌试验的进行,SS 组、SS+FA 组、SS+FA+Cu 组多孔介质相对渗透系数 K' 均呈现下降趋势。由于空白对照组(CK 组)、FA 组与其他 3 组流体性质不同,CK 组与 FA 组不含悬浮颗粒,在回灌过程中几乎不会发生堵塞。事实证明,在实际回灌试验过程中,CK 组、FA 组多孔介质相对渗透系数在 1 上下波动,说明 CK 组、FA 组多孔介质几乎未发生堵塞。在回灌试验进行到 28 h,SS 组、SS+FA 组、SS+FA+Cu 组多孔介质相对渗透系数 K' 分别下降至 0.569, 0.681, 0.595, SS 组相对渗透系数 K' 随时间下降最快,其次是 SS+FA+Cu 组。而在回灌试验后期(28~56 h),SS+FA 组相对渗透系数 K' 随时间下降最快;在回灌试验结束(56 h)时,SS、SS+FA、SS+FA+Cu 组多孔介质相对渗透系数 K' 分别下降至 0.233, 0.096, 0.182, 多孔介质堵塞程度大小顺序为 SS+FA 组>SS+FA+Cu 组>SS 组。结果表明,富里酸、Cu(II)的存在对多孔介质的渗透性有显著的影响,相较于 SS 组,在回灌试验的前 30 h,SS+FA 组多孔介质相对渗透系数下降较慢,在回灌试验的 30~56 h,SS+FA 组多孔介质相对渗透系数下降较快。就最终结果看,富里酸的加入会加剧多孔介质物理堵塞;回灌同样时间(56 h),SS+FA+Cu 组多孔介质相对渗透系数 K' 是 SS+FA 组 K' 的约 2.00 倍,SS+FA+Cu 组多孔介质堵塞程度反而较轻,说明相对于仅加入富里酸的组别(SS+FA 组),

SS+FA+Cu 组中 Cu(II)的加入会在一定程度上减弱富里酸对堵塞的加剧作用。

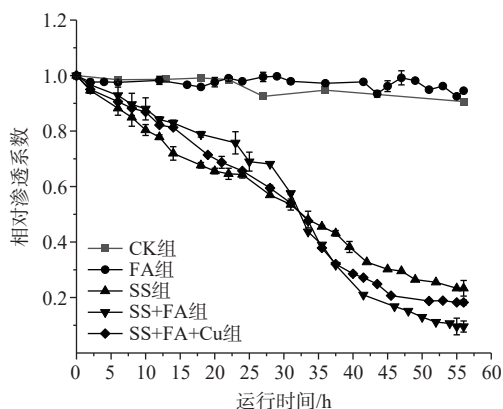


图 3 多孔介质整体相对渗透系数随时间变化

Fig. 3 Changes of relative hydraulic conductivity for the entire sand column with time

3.1.2 多孔介质渗透性垂向变化特征

不同组别各渗流段(AB 段表示 0~1.50 cm、BC 段表示 1.50~4.50 cm、CD 段表示 4.50~7.50 cm、DE 段表示 7.50~10.50 cm)多孔介质相对渗透系数 K' 随时间变化如图 4 所示。研究表明,随着回灌试验的进行,CK 组与 FA 组的各层多孔介质相对渗透系数均在 1 上下波动,说明 CK 组、FA 组砂柱各渗流段多孔介质并未发生堵塞。SS、SS+FA、SS+FA+Cu 组的各层多孔介质渗透系数均随回灌进行而降低,且 3 组均是表层(AB 层)相对渗透系数降低最快。由图 4 知,在回灌试验结束时,SS 组在 AB、BC、CD、DE 层多孔介质相对渗透系数分别降至 0.115, 0.205, 0.276, 0.470; SS+FA 组由表层至底层多孔介质相对渗透系数分别降至 0.059, 0.163, 0.182, 0.123; SS+FA+Cu 组由表层至底层多孔介质相对渗透系数分别降至 0.121, 0.190, 0.221, 0.436。各组别多孔介质 AB 层均是物理堵塞最严重的区域,原因可能是在回灌试验过程中,悬浮颗粒最先与多孔介质 AB 层接触,碰撞几率更高,悬浮颗粒更容易沉积,这与 Wang 等^[30]的研究结果一致。为了便于比较多孔介质的堵塞程度,本研究中定义多孔介质相对渗透系数 $K' < 0.30$ 为重度堵塞, $0.30 \leq K' < 0.60$ 为中度堵塞, $0.60 \leq K' < 1$ 为轻度堵塞。回灌试验结束时,SS 组与 SS+FA+Cu 组多孔介质中上层(AB、BC、CD 层)重度堵塞、底层(DE 层)中度堵塞,SS+FA 组多孔介质各层均为重度堵塞。造成这一现象的原因与悬浮颗粒的迁移能力相关,SS+FA 组悬浮颗粒迁移能力最强,悬浮颗粒更易迁移至砂柱深层,造成多孔介质内

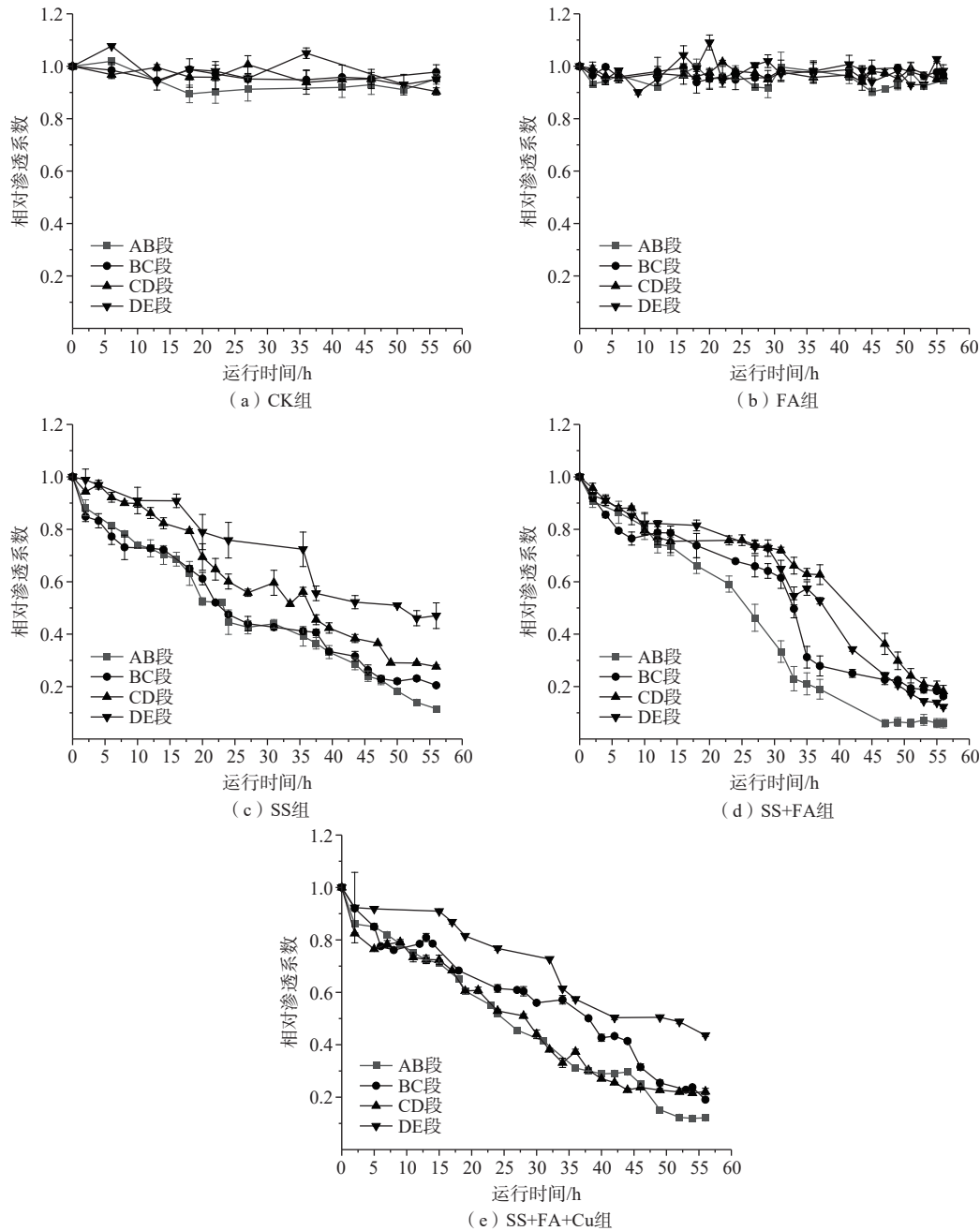


图 4 不同试验组砂柱各渗流段相对渗透系数随时间变化

Fig. 4 Changes in relative hydraulic conductivity of each seepage section of the sand columns in different test groups with time

注: AB 段表示 0 ~ 1.50 cm; BC 段表示 1.50 ~ 4.50 cm; CD 段表示 4.50 ~ 7.50 cm; DE 段表示 7.50 ~ 10.50 cm。

部堵塞, 随着回灌试验的进行, 堵塞沉积物由渗流柱底部逐渐向上累积将演变为混合堵塞(各层均为重度堵塞)^[10]; SS 组与 SS+FA+Cu 组悬浮颗粒迁移能力较弱, 悬浮颗粒更易在多孔介质的中上层沉积造成多孔介质中上层重度堵塞。

3.2 不同渗流段沉积物分布特征

在回灌试验结束时, CK 组与 FA 组多孔介质并未监测到悬浮物沉积, 因此 2 组多孔介质并未发生堵

塞。回灌试验结束时 SS 组、SS+FA 组、SS+FA+Cu 组在各渗流段多孔介质中悬浮颗粒的沉积量如图 5 所示。在回灌试验结束时, SS 组与 SS+FA+Cu 组悬浮物沉积量均随渗流深度的增加而减小, SS 组 AB 段的沉积量为 45.59 mg/g 砂, 分别是 BC 段、CD 段、DE 段的 1.29, 1.25, 1.86 倍。SS+FA+Cu 组在 AB 段的沉积量为 47.55 mg/g 砂, 分别为 BC、CD、DE 段沉积量的 1.31, 1.43, 1.88 倍。SS+FA 组的沉积量在 AB、BC、CD、DE

渗流段分别为 51.69, 37.96, 36.47, 45.17 mg/g 砂, SS+FA 组在各渗流段沉积量均较多;且 SS+FA 组在各渗流段沉积量均高于 SS 组、SS+FA+Cu 组(图 5)。研究结果表明,回灌试验结束时,SS+FA 组多孔介质各层悬浮物沉积量均较多($S_{沉}>30$ mg/g 砂),而 SS 组与 SS+FA+Cu 组仅 AB、BC、CD 层悬浮物沉积量较多,而 DE 层悬浮物沉积量较少($S_{沉}<30$ mg/g 砂)。

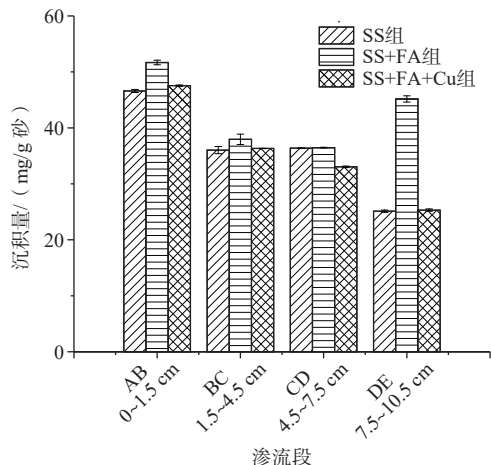


图 5 不同渗流段石英砂介质中悬浮颗粒沉积量

Fig. 5 Deposition of suspended particles in the sand column of different seepage layers

3.3 多孔介质堵塞形成机制

悬浮颗粒物在溶液中的稳定性和沉积能力是影响其在多孔介质中迁移的重要因素^[31-33],悬浮颗粒物稳定性越强则越容易迁移;反之则越容易沉积。在本研究中,悬浮颗粒的稳定性 and 迁移能力主要受到悬浮颗粒氢键作用、悬浮颗粒粒径、悬浮颗粒和多孔介质表面荷电性等因素的影响。氢键是一种较强的分子间作用力,氢键作用越强,分子结合越紧密,颗粒粒径越小,悬浮颗粒越容易发生迁移。根据傅里叶红外的测定结果可知,SS、SS+FA、SS+FA+Cu 组高岭土与富里酸之间的氢键作用由强到弱依次为 SS+FA 组、SS+FA+Cu 组、SS 组。本研究对 SS、SS+FA、SS+FA+Cu 组悬浮物粒径进行了测定(表 2),测定结果表明 SS、SS+FA、SS+FA+Cu 组悬浮物粒径大小依次为:SS 组 > SS+FA+Cu 组 > SS+FA 组。而静电力同样是影响悬浮颗粒和多孔介质之间相互作用的重要因素^[18],通过分析悬浮颗粒荷电性的变化,可以揭示悬浮颗粒与多孔介质的静电相互作用。本研究中所用石英砂是带负电的^[30],而 SS、SS+FA、SS+FA+Cu 组悬浮物表面 Zeta 电位分别是 -5.64, -8.56, -7.22 mV。相较于 SS 组,SS+FA 组中带负电的富里酸会吸附在高岭土表面使得悬

浮颗粒的负电性增强,致使悬浮颗粒与多孔介质的静电斥力增强,从而增强悬浮颗粒在多孔介质中的迁移能力;由表 2 可知,相较于 SS 组,SS+FA+Cu 组中悬浮颗粒的负电性更强。与 SS+FA 组比,SS+FA+Cu 组悬浮颗粒的负电性较弱,可能是由于带正电的 Cu(II) 会吸附在高岭土表面使得悬浮颗粒的负电性减弱,致使悬浮颗粒与多孔介质的静电斥力减弱,从而削弱悬浮颗粒在多孔介质中的迁移能力,具体见图 6。试验结果表明,悬浮颗粒负电性由强到弱依次为 SS+FA 组、SS+FA+Cu 组、SS 组,悬浮物与多孔介质表面静电斥力大小顺序为 SS+FA 组 > SS+FA+Cu 组 > SS 组。由上述结果综合考虑,得到不同试验组别悬浮颗粒在多孔介质的迁移能力强弱依次为 SS+FA 组 > SS+FA+Cu 组 > SS 组。

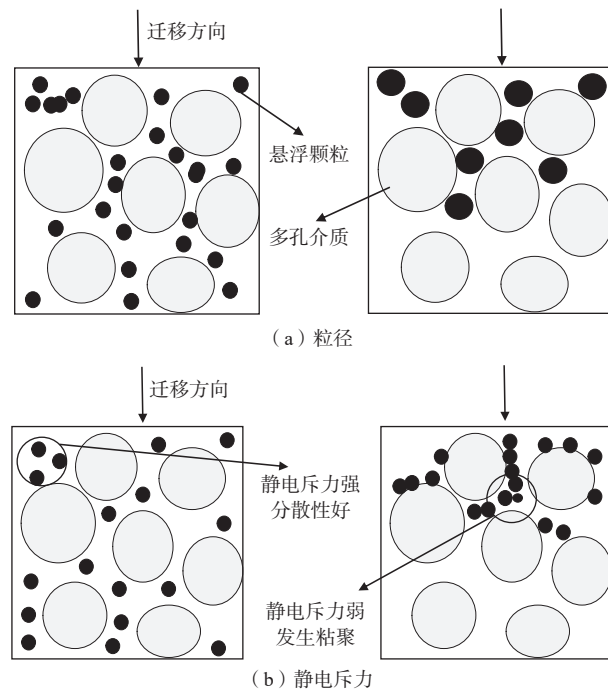


图 6 悬浮颗粒粒径和静电斥力对迁移能力的影响

Fig. 6 Influence of particle size and electrostatic repulsion of suspended particles on migration ability

多孔介质物理堵塞的根本原因是悬浮物在多孔介质中的沉积,悬浮物的沉积使得多孔介质的渗透性降低,进而导致堵塞的发生^[34]。多孔介质中悬浮物沉积量的多少决定着多孔介质的堵塞程度,悬浮物沉积的位置影响多孔介质堵塞的类型。在本研究中,根据多孔介质相对渗透系数变化情况,堵塞程度可分为重度堵塞($K'<0.30$)、中度堵塞($0.30 \leq K'<0.60$)、轻度堵塞($0.60 \leq K'<1$)。根据悬浮物沉积的位置,堵塞类型分为表层堵塞、混合堵塞(图 7)。悬浮颗粒在多孔介

质中的迁移能力是影响多孔介质物理堵塞程度和堵塞类型的关键要素。回灌试验过程中, 由于 SS 组与 SS+FA+Cu 组悬浮颗粒迁移能力较弱, 大部分悬浮颗粒迅速在砂柱表层沉积, 在多孔介质表层迅速形成紧密的“堆积介质层”, 造成多孔介质表层堵塞, 回灌试验前期多孔介质渗透性迅速降低, 小部分悬浮颗粒随水流继续向多孔介质深层迁移, 悬浮颗粒在迁移的过程中会发生筛滤作用、重力作用以及与多孔介质的碰撞作用, 悬浮颗粒在多孔介质深层沉积。因此, 在回灌试验结束时, SS 组与 SS+FA+Cu 组多孔介质中上层

为重度堵塞, 底层为中度堵塞。回灌试验过程中, 由于 SS+FA 组悬浮颗粒迁移能力最强, 悬浮颗粒更容易迁移至砂柱深层, 悬浮颗粒在迁移的过程中发生筛滤作用、重力作用以及与多孔介质的碰撞作用, 悬浮颗粒在多孔介质内部沉积。由于内部堵塞发生远没有表层堵塞快速, 因而在回灌试验前期, SS+FA 组多孔介质渗透性降低程度最小, 随着回灌试验的进行, 多孔介质内部堵塞严重, 堵塞由底层向表层发展, 内部堵塞演变成混合堵塞^[10-11]。至回灌试验结束时, SS+FA 组多孔介质各层均为重度堵塞。

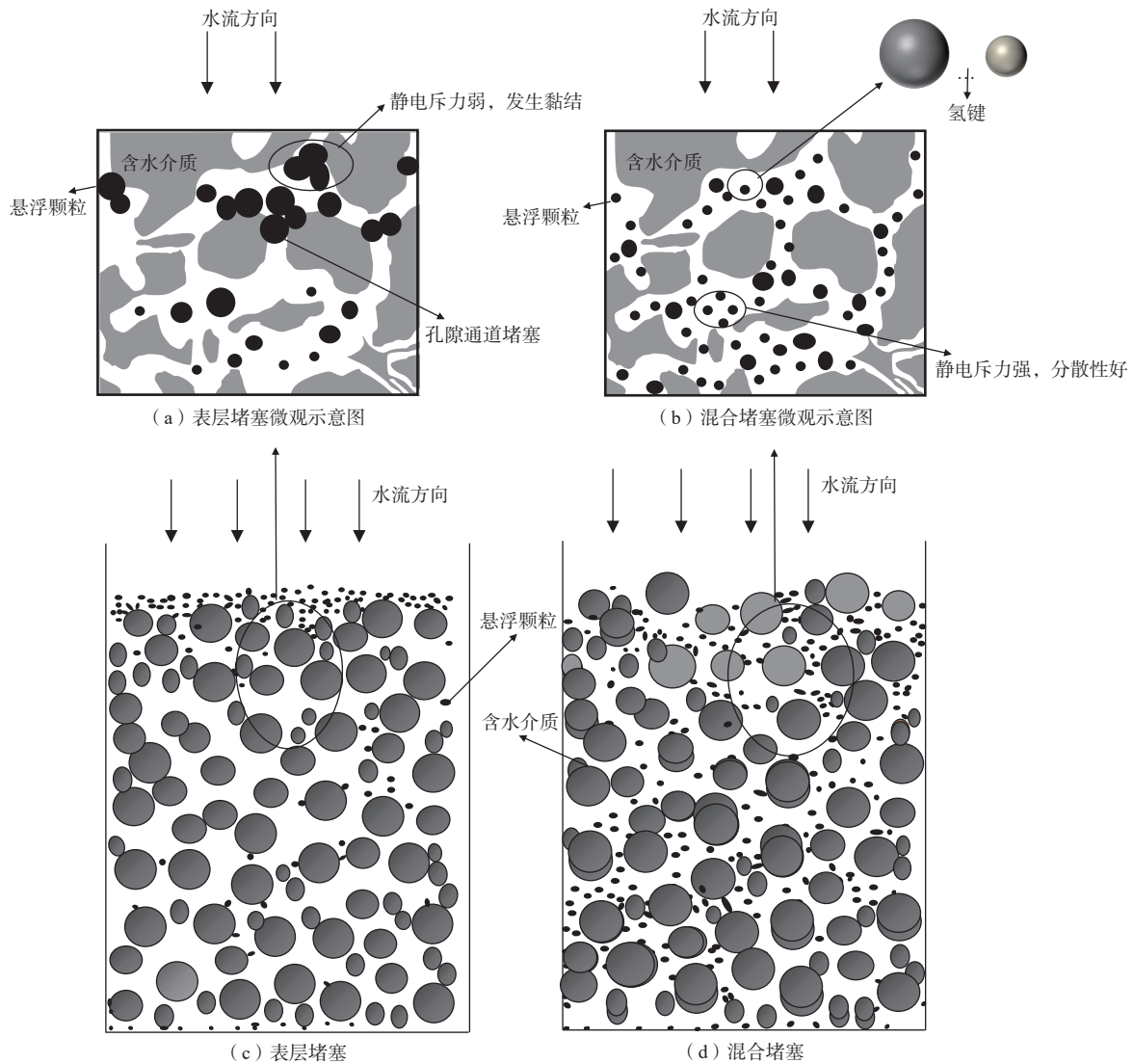


图 7 悬浮物堵塞类型及微观机制示意图

Fig. 7 Schematic diagrams showing the mechanism of suspended solids clogging and main clogging types

4 结论

(1) 添加富里酸会加剧悬浮颗粒对多孔介质的堵

塞程度; 富里酸和 Cu(II) 同时存在会加剧悬浮颗粒对多孔介质的堵塞程度, 但相对于仅加入富里酸的组别, 同时加入富里酸和 Cu(II) 的组别中 Cu(II) 的加

入会在一定程度上减弱富里酸对堵塞的加剧作用。

(2)高岭土组与高岭土、富里酸和 Cu(II)组多孔介质中上层为重度堵塞,底层为中度堵塞;高岭土和富里酸组多孔介质各层均为重度堵塞。

(3)悬浮颗粒的粒径、荷电性及氢键作用均会影响悬浮颗粒的迁移能力,研究发现添加富里酸会使悬浮颗粒迁移能力增强,相对于高岭土和富里酸组,高岭土、富里酸和 Cu(II)组中 Cu(II)的加入会在减弱富里酸对悬浮颗粒迁移能力的促进作用。悬浮颗粒在多孔介质的迁移能力强弱为 SS+FA 组>SS+FA+Cu 组>SS 组。悬浮颗粒迁移能力愈强,愈容易发生混合堵塞;悬浮颗粒的迁移能力愈弱,愈容易发生中上层堵塞。

参考文献 (References) :

- [1] HAO Aibing, ZHANG Yilong, ZHANG Eryong, et al. Review: Groundwater resources and related environmental issues in China[J]. *Hydrogeology Journal*, 2018, 26(5): 1325 – 1337.
- [2] 靳博文,王文科,段磊,等.保定平原区地下水生态水位阈值的探讨[J].*水文地质工程地质*, 2022, 49(5): 166 – 175. [JIN Bowen, WANG Wenke, DUAN Lei, et al. Discussion on the threshold of groundwater ecological water level in Baoding plain area[J]. *Hydrogeology & Engineering Geology*, 2022, 49(5): 166 – 175. (in Chinese)]
- [3] 郭海朋,李文鹏,王丽亚,等.华北平原地下水位驱动下的地面沉降现状与研究展望[J].*水文地质工程地质*, 2021, 48(3): 162 – 171. [GUO Haipeng, LI Wenpeng, WANG Liya, et al. Present situation and research prospects of the land subsidence driven by groundwater levels in the North China Plain[J]. *Hydrogeology & Engineering Geology*, 2021, 48(3): 162 – 171. (in Chinese with English abstract)]
- [4] 葛伟丽,李元杰,张春明,等.基于InSAR技术的内蒙古巴彦淖尔市地面沉降演化特征及成因分析[J].*水文地质工程地质*, 2022, 49(4): 198 – 206. [GE Weili, LI Yuanjie, ZHANG Chunming, et al. An attribution analysis of land subsidence features in the city of Bayannur in Inner Mongolia based on InSAR[J]. *Hydrogeology & Engineering Geology*, 2022, 49(4): 198 – 206. (in Chinese with English abstract)]
- [5] 冶雪艳,孙邱杰,杜新强,等.地下水人工补给过程介质堵塞及控制研究进展[J].*中国环境科学*, 2022, 42(9): 4145 – 4156. [YE Xueyan, SUN Qiujie, DU Xinqiang, et al. Research progress on medium blockage and control in artificial groundwater recharge process[J]. *China Environmental Science*, 2022, 42(9): 4145 – 4156. (in Chinese)]
- [6] 高宗军,徐海龙,夏璐.地下水人工回灌含水介质微生物堵塞试验研究[J].*水文地质工程地质*, 2020, 47(3): 8 – 16. [GAO Zongjun, XU Hailong, XIA Lu. An experimental study of bioclogging of aquifer media during artificial reinjection of groundwater[J]. *Hydrogeology & Engineering Geology*, 2020, 47(3): 8 – 16. (in Chinese with English abstract)]
- [7] BLOETSCHER F, SHAM C H, RATICK S J. Aquifer storage and recovery: Can an updated inventory predict future system success?[J]. *Journal AWWA*, 2020, 112(10): 48 – 55.
- [8] ZAIDI M, AHFIR N D, ALEM A, et al. Assessment of clogging of managed aquifer recharge in a semi-arid region[J]. *Science of the Total Environment*, 2020, 730: 139107.
- [9] WANG Zijia, DU Xinqiang, YANG Yuesuo, et al. Surface clogging process modeling of suspended solids during urban stormwater aquifer recharge[J]. *Journal of Environmental Sciences*, 2012, 24(8): 1418 – 1424.
- [10] DU Xinqiang, FANG Yunqing, WANG Zijia, et al. The prediction methods for potential suspended solids clogging types during managed aquifer recharge[J]. *Water*, 2014, 6(4): 961 – 975.
- [11] DU Xinqiang, YE Xueyan, ZHANG Xiaowan. Clogging of saturated porous media by silt-sized suspended solids under varying physical conditions during managed aquifer recharge[J]. *Hydrological Processes*, 2018, 32(14): 2254 – 2262.
- [12] BRADFORD S A, TORKZABAN S, WALKER S L. Coupling of physical and chemical mechanisms of colloid straining in saturated porous media[J]. *Water Research*, 2007, 41(13): 3012 – 3024.
- [13] XU Shangping, LIAO Qian, SAIERS J E. Straining of nonspherical colloids in saturated porous media[J]. *Environmental Science & Technology*, 2008, 42(3): 771 – 778.
- [14] TANG Yao, YAO Xinyu, CHEN Yining, et al. Experiment research on physical clogging mechanism in the porous media and its impact on permeability[J]. *Granular Matter*, 2020, 22(2): 1 – 14.
- [15] YE Xxueyan, DU Xinqiang, et al. Mechanism of suspended kaolinite particle clogging in porous media during managed aquifer recharge[J]. *Groundwater*, 2019, 57(5): 764 – 771.
- [16] 冶雪艳,杜新强,张赫轩,等.回灌过程中离子强度和水流流速对胶体粒子在多孔介质中堵塞的影响[J].*化工学报*, 2017, 68(12): 4793 – 4801. [YE Xueyan,

- CUI Ruijuan , DU Xinqiang, ZHANG Hexuan, et al. Effects of solution ionic strength and flow velocity on colloid clogging in saturated porous media during artificial recharge[J]. *CIESC Journal*, 2017, 68(12): 4793 – 4801. (in Chinese with English abstract)
- [17] 李颖. 水体中重金属、腐殖酸和粘土颗粒物之间的相互作用研究[D]. 济南: 山东大学, 2010. [LI Y. Interaction between heavy metals, humic acid and clay particles in water [D]. Jinan: Shandong University, 2010. (in Chinese)]
- [18] 丁翔, 李忠武, 徐卫华, 等. DOM对沉积物悬浮颗粒吸附铜的促进作用及机制[J]. *环境科学*, 2021, 42(8): 3837 – 3846. [DING Xiang, LI Zhongwu, XU Weihua, et al. Promotion and mechanisms of DOM on copper adsorption by suspended sediment particles[J]. *Environmental Science*, 2021, 42(8): 3837 – 3846. (in Chinese with English abstract)]
- [19] 赵康, 陈冲, 商建英. 腐殖酸-高岭石胶体对铀(VI)在饱和多孔介质中迁移过程的影响[J]. *水土保持学报*, 2018, 32(6): 286 – 293. [ZHAO Kang, CHEN Chong, SHANG Jianying. Effect of humic acid-kaolinite on uranium transport in saturated porous media[J]. *Journal of Soil and Water Conservation*, 2018, 32(6): 286 – 293. (in Chinese with English abstract)]
- [20] SHANG Jianying , LIU Chongxuan , WANG Zheming , et al. Effect of grain size on uranium(VI) surface complexation kinetics and adsorption additivity[J]. *Environmental Science & Technology*, 2011, 45(14): 6025 – 6031.
- [21] MIBUS J, SACHS S, PFINGSTEN W, et al. Migration of uranium(IV)/(VI) in the presence of humic acids in quartz sand: a laboratory column study[J]. *Journal of Contaminant Hydrology*, 2007, 89(3/4): 199 – 217.
- [22] FU Zhiyou , GUO Wenjing , DANG Zhi, et al. Refocusing on nonpriority toxic metals in the aquatic environment in China[J]. *Environmental Science & Technology*, 2017, 51(6): 3117 – 3118.
- [23] LIU Baolin , DONG Deming , HUA Xiuyi , et al. Spatial distribution and ecological risk assessment of heavy metals in surface sediment of Songhua River, northeast China[J]. *Chinese Geographical Science*, 2021, 31(2): 223 – 233.
- [24] 谢冰怡. 不同类型胶体对铅、镉在饱和多孔介质中迁移的影响研究[D]. 杨凌: 西北农林科技大学, 2017. [XIE Bingyi. The influence of different colloids on the transport of lead and cadmium in saturated porous media[D]. Yangling: Northwest A & F University, 2017. (in Chinese with English abstract)]
- [25] TANG Xiangyu, WEISBROD N. Colloid-facilitated transport of lead in natural discrete fractures[J]. *Environmental Pollution*, 2009, 157(8/9): 2266 – 2274.
- [26] 王晓龙. 悬浮颗粒影响下镉离子渗透迁移特性试验研究[D]. 北京: 北京交通大学, 2018. [WANG Xiaolong. Experimental study on the seepage migration characteristics of cadmium ion under the effect of suspended particles[D]. Beijing: Beijing Jiao tong University, 2018. (in Chinese)]
- [27] 刘璐璐. 速度和浓度变化状态下悬浮颗粒与铅离子耦合迁移特性研究[D]. 北京: 北京交通大学, 2019. [LIU Lulu. Study on coupled migration characteristics of suspended particles and lead ions when changing the seepage velocity and concentration[D]. Beijing: Beijing Jiaotong University, 2019. (in Chinese with English abstract)]
- [28] BAI Bing, ZHAI Zhen Qian, RAO Dengyu . The seepage transport of heavy metal Pb²⁺ through sand column in the presence of silicon powders[J]. *Journal of Hydrology and Hydromechanics*, 2019, 67(4): 349 – 358.
- [29] 孟庆玲, 姜岩, 张家豪. 腐殖酸、高岭土和铜在含水层介质中的协同迁移[J]. *科学技术与工程*, 2019, 19(15): 349 – 352. [MENG Qingling, JIANG Yan, ZHANG Jiahao. Co-transport of humic acid, kaolinite and copper in saturated porous media[J]. *Science Technology and Engineering*, 2019, 19(15): 349 – 352. (in Chinese with English abstract)]
- [30] WANG Huan, XIN Jia, ZHENG Xilai , et al. Clogging evolution in porous media under the coexistence of suspended particles and bacteria: insights into the mechanisms and implications for groundwater recharge[J]. *Journal of Hydrology*, 2020, 582: 124554.
- [31] YAN Chaorui , CHENG Tang, SHANG Jianying . Effect of bovine serum albumin on stability and transport of kaolinite colloid[J]. *Water Research*, 2019, 155: 204 – 213.
- [32] AKBOUR R A, DOUCH J, HAMDANI M, et al. Transport of kaolinite colloids through quartz sand: influence of humic acid, Ca²⁺, and trace metals[J]. *Journal of Colloid and Interface Science*, 2002, 253(1): 1 – 8.
- [33] ZHU Miao, WANG Hongtao , KELLER A A, et al. The effect of humic acid on the aggregation of titanium dioxide nanoparticles under different pH and ionic strengths[J]. *Science of the Total Environment*, 2014, 487: 375 – 380.
- [34] 夏璐, 郑西来, 段玉环, 等. 砂柱微生物堵塞过程及机理分析[J]. *水利学报*, 2014, 45(6): 749 – 755. [XIA Lu, ZHENG Xilai, DUAN Yuhuan, et al. Analysis of process and mechanism of bioclogging in aqueous media[J]. *Journal of Hydraulic Engineering*, 2014, 45(6): 749 – 755. (in Chinese with English abstract)]