文章编号:0253 - 9993(2011)05 - 0796 - 06

煤炭地下气化酚污染迁移数值模拟

刘淑琴[1],董贵明[2],杨国勇[2],李金刚[3],高宝平[3],梁　杰[1],陈　峰[3]

(1. 中国矿业大学(北京) 化学与环境工程学院,北京　100083;2. 中国矿业大学 资源与地球科学学院,江苏 徐州　221116;3. 煤基低碳能源国家重点实验室,新奥气化采煤有限公司,河北 廊坊　065001)

摘　要:基于我国西部某煤炭地下气化试验,以气化特征污染物之一——挥发酚为例,建立地下水流运动和污染物迁移数学模型,对气化炉闭炉后的污染物迁移规律进行了数值模拟。结果表明:20 a预测期内,挥发酚具有极弱的向煤层隔水顶板上覆咸水含水层的迁移倾向,水动力弥散是其迁移的主要方式;煤层内部挥发酚的迁移只发生在燃空区附近,在气化后 20 a,污染晕为以燃空区为中心的椭圆形,长轴方向大约 500 m,短轴方向大约 300 m,煤层的低渗透性、水力坡度小和介质的吸附作用是阻碍挥发酚在煤层内扩展的主要原因;煤层与含水层之间的水头差、燃空区上下方隔水层的破坏程度和范围以及水动力弥散作用是含水层污染评价的关键因素。地下水污染风险须通过科学选址、气化过程控污、煤层燃空区污染处理等措施进行综合防治。

关键词:煤炭地下气化;污染物迁移;挥发酚

中图分类号:TD844　　**文献标志码**:A

Numerical simulation of phenol migration for underground coal gasification

LIU Shu-qin[1],DONG Gui-ming[2],YANG Guo-yong[2],LI Jin-gang[3],GAO Bao-ping[3],LIANG Jie[1],CHEN Feng[3]

(1. *School of Chemical and Environmental Engineering,China University of Mining and Technology (Beijing),Beijing* 100083,*China*;2. *College of Resource and Geosciences,China University of Mining and Technology,Xuzhou* 221116,*China*;3. *State Key Laboratory of Coal-based Carbon Energy,Xin'ao Coal Gasification Mining Co.,Ltd.,Langfang* 065001,*China*)

Abstract: Taking the western UCG site in China as the example,the mathematic model of groundwater flow and phenol migration after gasification were established,and numerical simulation was conducted. The results indicate that no obvious phenol pollution is found in the neighboring upper aquifer during the prediction period of 20 years. Molecule diffusion is the main path of phenol migration toward the upper aquifer. Phenol migration in the coal seam occurs near the UCG cavity,and elliptic shape area with with long axis of 500 m and short axis of 300 m is found. Low permeability of coal seam,lower hydraulic gradient,and the absorption by the surrounding strata make big contributions to prevent phenol migration in the coal seam. In addition,the water head difference,the destroy extent of the confining strata,and molecule diffusion are the key factors for groundwater pollution evalution. Groundwater pollution should be prevented by the combination way of site selection,process pressure control,and cavity pollution disposal.

Key words: underground coal gasification; pollutant migration; phenol

近年来,煤炭地下气化技术在国际上已经重新引起关注,澳大利亚、中国、南非、加拿大等国近期都在积极进行煤炭地下气化的工业试验研究[1-2]。煤炭地下气化技术被认为是从根本上解决传统煤炭开采和使用方式存在的一系列技术、安全和环境问题的重要途径之一[3-5]。煤炭地下气化特别适用于低品味煤炭、不可采煤层、以及深部煤炭资源的回收利用,是对我国传统采煤技术的重要补充。然而,煤炭地下气化存在潜在的地下水污染风险[6-13]。煤炭地下气化除了产生 H_2、CO 和 CH_4 等有效可燃组分之外,还将产生苯、萘、酚、多环芳烃等有机污染物[14-15]。如果这些物质进入邻近含水层,将会造成地下水污染,并将很难进行修复。地下水污染风险一方面取决于气化区的煤田水文地质条件,另一方面取决于过程工艺

收稿日期:2010-10-19　　责任编辑:韩晋平
基金项目:国家自然科学基金资助项目(50876112);中央高校科研业务专项基金资助项目(2009QH13);国际合作资助项目(2010DFR60610)
作者简介:刘淑琴(1972—),女,山西吕梁人,副教授,博士。E-mail:cumtlsq@sohu.com

中国煤炭期刊网 www.chinacaj.net

参数、以及气化后的燃空区污染处置方法。在近期由美国印度能源对话煤炭工作组以及亚太合作组织共同组织的煤炭地下气化研讨会形成了以下结论: 煤炭地下气化有可能引起地下水污染,但是如果操作适当是完全可以控制和避免的。

煤炭地下气化污染物迁移的途径包括: ① 气化过程中污染物通过围岩裂隙的迁移。当煤层顶、底板是充水含水层的情况下,气化污染物有可能直接进入含水层; 当煤层顶板存在相对隔水层时,由于燃空区的扩展和煤炭的高温热裂作用,容易形成类似于煤炭开采的断裂带,一旦断裂带穿过该层,则可形成煤气携带污染物进入含水层的通道。气化过程中的污染扩散可以通过压力调节进行控制,控制气化区的气压小于等于煤层的静水压,可以将污染物处于压力封闭的空腔内,避免了污染物向含水层的迁移扩散。② 气化后燃空区污染物随地下水流的迁移。气化结束以后,气化燃空区会很快被含水层水充满,燃空区内部水压和周围含水层的水压可能会比较接近,此时,如果具备通道,则污染物将向含水层中迁移扩散。污染迁移过程如图 1 所示。

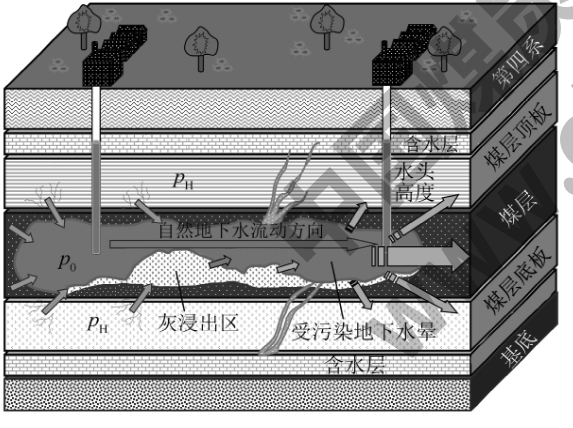


图 1　气化后污染物迁移示意图

Fig. 1　Sketch of pollutant migration after underground gasification

国内外对矿区污染物向含水层的迁移模拟研究还较少,针对煤炭地下气化污染物向含水层的迁移模拟研究则更少。本文以我国西部某一煤炭地下气化试验区的水文地质条件为基础,以气化特征污染物之一——挥分酚为研究对象,通过数值模拟方法分析了地下气化炉闭炉后挥发酚的迁移特征,为煤炭地下气化选址、地下水污染环境评价、及污染控制提供理论和技术支持。

1　概　　况

试验区内海拔高程 1 200 m 左右,相对高差一般小于 100 m。地貌形态较为简单,总趋势是北高南低,主要是剥蚀的低山丘陵地形及堆积砂土地形等,植被不太发育。区内多年降水量 243.5 ~ 450.7 mm,平均降水量 332.5 mm,平均蒸发量 1 889.9 mm。冻土时间较长,最大冻土深度大于 2 m。

气化方式为无井式地下气化,气化区的进气孔和出气孔直线排列,使用定向钻形成初始通道,于 2007 年 10 月开始点火。气化时间共 22 个月,于 2009 年 8 月停炉。停炉后燃空区很快被水充满。气化前进行了污染物背景值测定,气化过程进行了污染物监测,气化结束后继续对挥发酚进行了 11 个月的监测。

2　主要含隔水层

(1) 第四系松散孔隙潜水含水层。区内广泛分布,厚度不等,岩性为黄色、褐黄色含卵砂砾石、含砾中粗砂、中细砂及灰褐色砂黏土。分布不连续,山前地带含水层厚度小于 8 m,水位埋深多小于 5 m。水位水量随季节变化。

(2) 新近系中新统隔水层。区内广泛分布,岩性为灰绿、灰黑色致密块状玄武岩及灰褐色气孔状玄武岩砖红色泥岩等。玄武岩厚度 3.6 ~ 96.6 m,平均厚度 36.9 m,自北向南、向东逐渐变薄以致尖灭。砖红色泥岩厚度 3.4 ~ 20.7 m,泥质胶结,较坚硬,夹于玄武岩层间,属层间隔水层。

(3) 新近系渐新统。分为两段。上段为黄色杂色砂岩泥岩等,厚度 131.9 ~ 478.3 m,平均厚度 233.2 m; 上部砂岩、含砾砂岩为主要含水层,厚度不等,变化较大; 下部泥岩为隔水层,泥岩全区发育稳定,平均厚度 175.6 m。下段为浅灰—深灰色砂岩泥岩褐煤等,厚度 71.6 ~ 157.1 m,平均厚度 81.6 m,为矿区内的主要煤系地层; 煤层平均厚度约 8.3 m,顶板为粉砂岩、泥岩隔水层,平均厚度 35.9 m,顶板隔水层以上为粗砂、砾砂岩含水层,平均厚度 37.4 m。

(4) 煤层的底部岩性主要为混合岩化花岗岩、石榴子石片麻岩及石榴子石角闪片麻岩,岩石具不同程度蚀变(碳酸盐化、高岭土化等),区内钻孔最薄揭露 50.80 m,所有钻孔均未穿透该层,具有很好的隔水性能,属隔水层。简易综合柱状如图 2 所示。

3　水文地质概念模型

区内新近系中新统隔水层和新近系渐新统上段下部隔水层发育稳定,水位观测资料也表明这两个隔水层阻隔了降水和地表水体对下部含水层的补给。煤层底部的变质岩也具有很好的隔水性能。新近系渐新统下段煤层顶板上覆含水层是主要充水含水层,

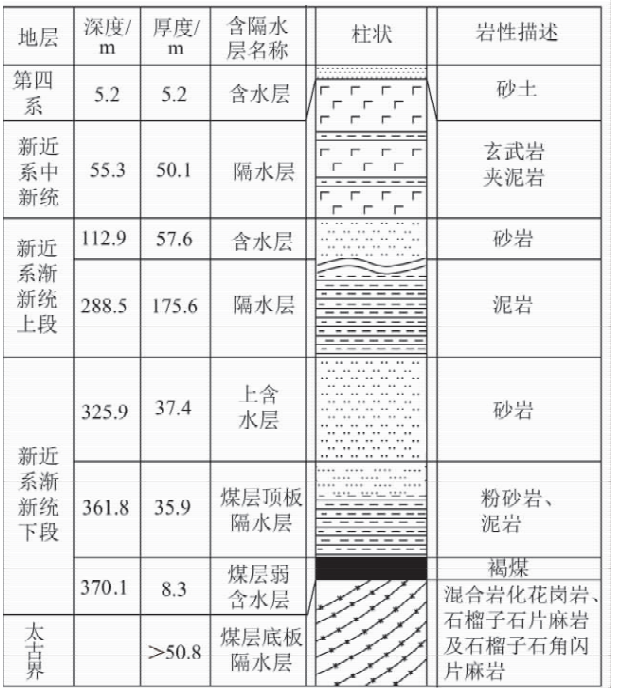


图 2 简易综合柱状图

Fig. 2 Geological log of the coal field

是疏水降压的层位。区内褐煤具有一定的渗透性能，在气化过程中可观测到水位变化，水位低于顶板上覆含水层水位，属于弱含水层。煤层顶板为隔水层，考虑到断裂带的发育和高温热裂作用，假定在燃空区上方的隔水层已具有一定的弱导水作用。因此，将含水系统概化为两个含水层和一个隔水层，即煤层顶板的上覆含水层(上含水层)、煤层含水层和煤层顶板隔水层。两个含水层均为承压含水层，且通过燃空区上方的隔水层的断裂带有水量交换。水流属准三维运动，溶质二维迁移弥散。另外，煤层顶板的上覆含水层(上含水层)为咸水层，不能做为饮用及灌溉水源。

气化后的燃空区范围和体积根据煤气成分计算燃煤量确定，同时在气化通道的一定范围内(300 m×400 m)进行了氡的监测，监测点之间相距 4 m，每 5 d 测量一次，根据氡异常进行燃空区划定。最后确定的燃空区范围为 60.0 m×30.0 m×7.8 m(长×宽×高)。计算区范围为椭圆形，面积 7.4 km^2。计算区边界处流场和挥发酚浓度不受气化影响，经多次计算后确定。燃空区位于计算区的中部偏北，如图 3 所示。其中，1、3 号为上含水层污染观测孔，2、4 号为煤层污染观测孔。观测孔 1、2、3 和 4 距燃空区的距离分别为 83.45、82.00、283.09 和 508.91 m，4 个观测孔基本在一条观测线上，方向为 NE15°，沿地下水径流方向分层布置，同时考虑其它水文地质条件，包括水力坡度、渗透系数和弥散度的大小。顶部和底部边界均为隔水边界，四周有水量交换，无源汇项。地下水向西南方向径流，上含水层和煤层的天然平均水力坡度分别约为 0.000 5 和 0.000 01，水流缓慢。上含水层水位高于煤层水位平均约 30 m，水位差明显。

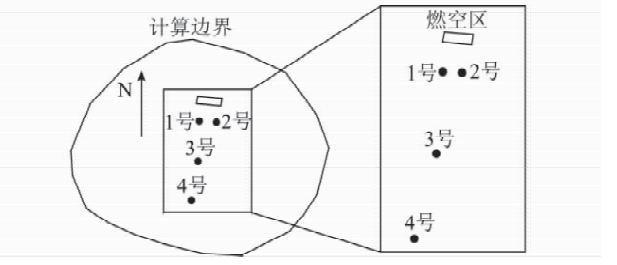


图 3 计算边界及燃空区位置

Fig. 3 Calculation border and the positon of UCG cavity

燃空区外围挥发酚的监测从 2009 年 8 月份开始(气化结束时)，到 2010 年 6 月结束(观测孔分布如图 3 所示)。每月取一次水样进行分析。气化前上含水层挥发酚浓度(以苯酚计)背景值为 0.008 mg/L，煤层背景值(以苯酚计)为 0.014 mg/L。气化结束后对燃空区进行 48 h 抽提，燃空区挥发酚浓度下降为 11.5 mg/L，浓度较背景值明显增加。

4 数学模型

根据水文地质概念模型，水流运动数学模型为

$$\begin{cases} \dfrac{\partial}{\partial x}\left(Km\dfrac{\partial H}{\partial x}\right)+\dfrac{\partial}{\partial y}\left(Km\dfrac{\partial H}{\partial y}\right)+q_1=\mu^*\dfrac{\partial H}{\partial t} \\ H(x,y,t)_{t=0}=H_0(x,y) \\ Km\dfrac{\partial H}{\partial n}\Big|_{\Gamma_2}=q_2(x,y,t) \end{cases}$$

式中，H 为含水层水位，m；K 为渗透系数，m/d；m 为含水层厚度，m；q_1 为上含水层与煤层之间的交换量，m^3/d，通过达西公式计算；μ^* 为储水系数；t 为时间，d；x、y 为空间变量，m；H_0 为含水层初始水头，m；Γ_2 为第二类边界条件；q_2 为边界处的交换量，m^3/d。

溶质运移数学模型为

$$\begin{cases} \dfrac{\partial}{\partial x}\left(\theta D_{xx}\dfrac{\partial C}{\partial x}+\theta D_{xy}\dfrac{\partial C}{\partial y}\right)+\dfrac{\partial}{\partial y}\left(\theta D_{yx}\dfrac{\partial C}{\partial x}+\theta D_{yy}\dfrac{\partial C}{\partial y}\right)- \\ \qquad \dfrac{\partial(q_xC)}{\partial x}-\dfrac{\partial(q_yC)}{\partial y}+q_sC_s=\dfrac{\partial(\theta C)}{\partial t} \\ C(x,y,t)\Big|_{t=0}=C_0(x,y) \\ C(x,y,t)\Big|_{B_1}=f(x,y,t) \end{cases}$$

其中，θ 为有效孔隙度；D 为水动力弥散系数，m^2/d，包含有效分子扩展系数；C 为挥发酚浓度，mg/L；q_x、q_y 为地下水流速，m/d；q_s 为含水层内源/汇的体积流量，d^{-1}；C_s 为源/汇挥发酚浓度，mg/L；$C_0(x,y)$ 为初始浓度分布，mg/L；B_1 为第一类边界条件；$f(x,y,t)$ 为边界处浓度值，mg/L。模型中考虑挥发酚的线性

中国煤炭期刊网 www.chinacaj.net

等温吸附,并用分配系数表示。

5　数值模拟及结果分析

使用 Visual Modflow 中的 Modflow 和 Mt3dms 模块进行数值模拟。3 层共剖分 8 724 个单元,在燃空区及其附近加密剖分单元。水流模型的第二类边界条件通过通用水头边界(GHB)处理。燃空区充满水时刻作为模拟的开始时间(2009 年 8 月),以 1 个月为应力期,每个应力期分为 10 个步长,模拟时间为 20 a(模拟结束时刻为 2029 年 7 月)。使用 2009 年 8 月至 2010 年 6 月的挥发酚监测数据进行拟合。观测孔 1 和 2 挥发酚浓度拟合效果如图 4 所示,根据拟合的相对误差,预测计算值与观测值整体拟合效果较好。预测结果显示,在结束气化以后,上含水层观测孔 1 中挥发酚浓度开始出现上升趋势,说明煤层燃空区挥发酚具有较弱的向上含水层迁移的趋势,而这种迁移在该地层条件下主要依靠水动力弥散作用。但观测值变化极小,观测值在 270 d 左右自 0.008 mg/L 增加到 0.010 mg/L,尚不足以证明酚浓度明显升高,仍需要长期观测。煤层观测孔 2 挥发酚浓度的计算值先是快速上升,然后基本保持不变,说明煤层燃空区中挥发酚在煤层内发生了迁移,污染范围扩大。观测值在计算值附近波动。

根据勘探孔的抽水试验、连通试验及等温吸附试验确定水文地质参数初值,经过进一步的模型识别后确定最后的水文地质参数,见表 1。

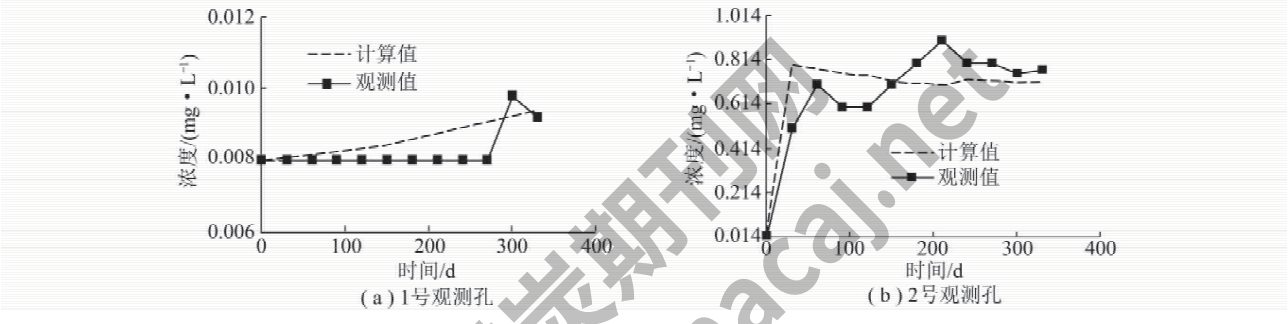


图 4　挥发酚浓度计算值和观测值的对比

Fig. 4　Comparsion of calculation values and measurement values of phenol

表 1　水文地质参数取值

Table 1　Hydrogeological parameters for calculation

地　层	渗透系数/(m·d⁻¹)	贮水率	纵向弥散度/m	横向弥散度/m	有效分子扩散系数/(m²·d⁻¹)	分配系数/(mL·g⁻¹)	有效孔隙度
上含水层	0.050	4×10^{-4}	3.5	0.3	7.9×10^{-5}	3.6	0.20
隔水层断裂带	0.600	2×10^{-6}	6.1	0.5	1.1×10^{-4}	7.9	0.30
煤层	0.009	8×10^{-5}	0.8	0.1	2.2×10^{-6}	23.7	0.05

图 5 和图 6 分别是计算末时刻(20 a 后)上含水层、煤层的水位等值线图和挥发酚浓度等值线图。

经比较,上含水层模拟结束期流场与气化前的天然流场基本一致,即气化对上含水层的水动力条件的改变得到了恢复;煤层模拟结束期流场与气化前的天然流场不同,燃空区附近水位高于四周,这是由于在燃空区上方的隔水层出现断裂带,上层含水层通过该带对煤层的补给形成的。

上含水层在 20 a 后模拟结束期时可以观测到有轻微的挥发酚进入及扩散趋势(图 6(a)),污染晕主要集中在燃空区对应的上含水层部位,浓度最大值为 0.018 mg/L(图 6(a)等值线中心点位置浓度),较背景值增加 2 倍左右,挥发酚浓度由地下水四类水质标准(>0.01 mg/L)变化到五类水质标准(<0.01 mg/L)。这是因为挥发酚进入上含水层是燃空区中挥发酚水动力弥散的结果,并且由于地下水是从上含水层流向煤层,水动力弥散要克服对流的影响,因此,进入上含水层的量就很有限了。污染晕扩展主要是对流和弥散的结果。煤层 20 a 的挥发酚污染晕扩展范围如图 6(b)所示,污染晕是以燃空区为中心的椭圆形,长轴方向大约 500 m,短轴方向大约 300 m。污染晕以燃空区为中心呈对称分布,这是与煤层的流场相一致的。扩展范围不大的主要原因是煤层的渗透系数和水力坡度均较小,地下水流缓慢。另外,煤层对挥发酚有一定的吸附作用,地下水本身具有弱的自净化能力,因此随观测距离增加,浓度显著衰减。

中国煤炭期刊网 www.chinacaj.net

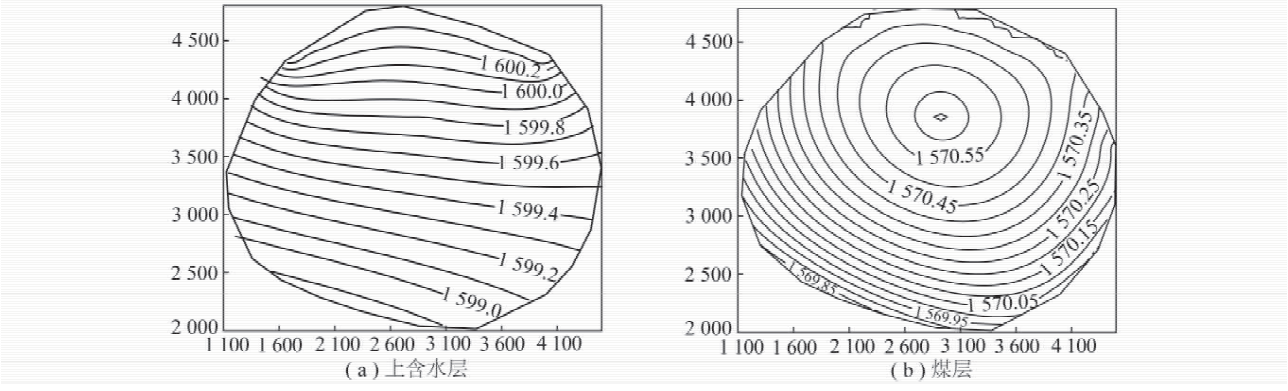


图 5 计算结束(20 a)后上含水层和煤层水位等值线

Fig. 5 Water height isogram of upper aquifer and coal seama after 20 years

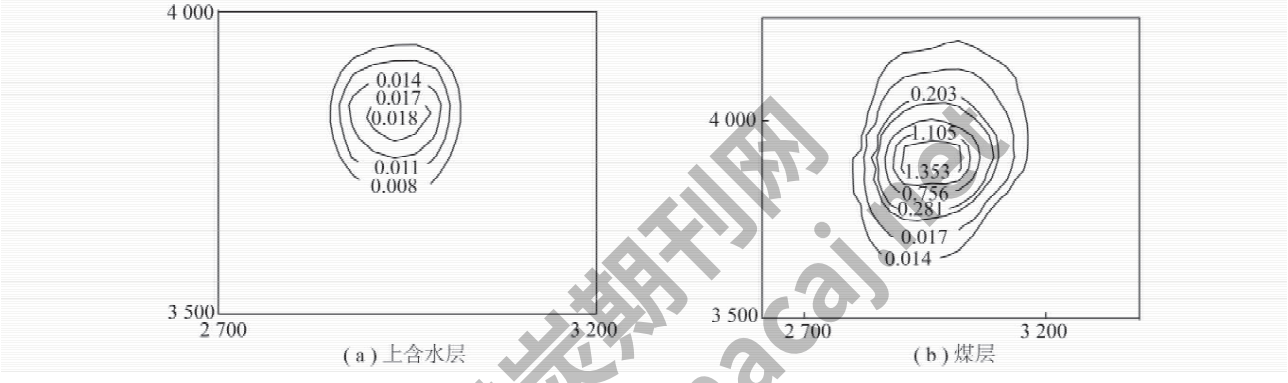


图 6 计算结束(20 a)后上含水层和煤层挥发酚浓度等值线

Fig. 6 Phenol concentration isogram of upper aquifer and coal seam after 20 years

图 7 分别为观测孔 1 和 3、2 和 4 挥发酚计算浓度历时曲线。观测孔 1、2 和 4 挥发酚浓度变化都可以分成 3 个阶段: 第 1 阶段是浓度不断增加的过程,第 2 阶段内保持不变,第 3 阶段出现下降趋势。上含水层观测孔 3 在 1 900 d 之前挥发酚浓度仍为背景值,之后浓度出现上升的趋势,但 20 a 后,浓度仍小于 0.01 mg/L。可以预测,随着时间的延长,观测孔 3 中浓度的变化也将出现与其它观测孔类似的下降阶段。与背景值及地下水质量标准对比,上含水层挥发酚浓度在四类和五类水之间变化,无显著酚污染。由于该含水层为咸水层,不会对该含水层的使用造成影响。煤层挥发酚浓度在迁移扩散后仍较背景值增加 10 倍左右。此外,挥发酚是可被天然分解的有机物,前苏联曾观测到,煤层挥发酚在气化 2 a 后恢复到背景值[8]。

6 地下水污染防治措施

在该地层条件下,针对目标上含水层(咸水层),短期监测没有检测到挥发酚污染,长期模型预测显示会有极弱的挥发酚污染趋势。针对本文研究结果,试验点燃空区应该进一步加强煤层燃空区污染物修复及局部充填封闭的工作,有效地控制潜在的污染风险。考虑其它地下气化工程的地下水污染风险,提出采取以下防治措施,通过多措并举避免可能的地下水污染,保障煤炭地下气化的可持续发展。① 科学选址: 气化煤田的水文地质条件是地下水污染的决定性因素; 目标气化煤层应与气化区内重要含水层无水力联系,并有足够厚的隔水层; 煤层顶底板渗透性低,对气化煤层密闭性好。② 气化钻孔封闭: 气化钻孔建设要确保对含水层的封闭与隔离。③ 气化过程控污: 合理控制气化工艺参数,特别是气化压力,使得气化压力小于等于煤层静水压力,避免煤气携带挥发性污染物向围岩的扩散迁移。④ 燃空区污染处理: 气化后采用抽提、地下水原位修复等方法对燃空区残留污染物进行即时清除,将特征污染物降低到背景值。⑤ 燃空区局部充填: 向燃空区充填黏土等,对残留污染物进行局部包埋的同时,限制了污染物的浸出以及向煤层燃空区以外区域的迁移。

7 结 论

在该气化试验现场的水文地质条件下,煤层中挥发酚的迁移主要发生在燃空区附近; 在气化后 20 a,在煤层中形成了以燃空区为中心的椭圆形污染晕,长轴方向大约 500 m,短轴方向大约 300 m; 挥发酚具有

中国煤炭期刊网 www.chinacaj.net

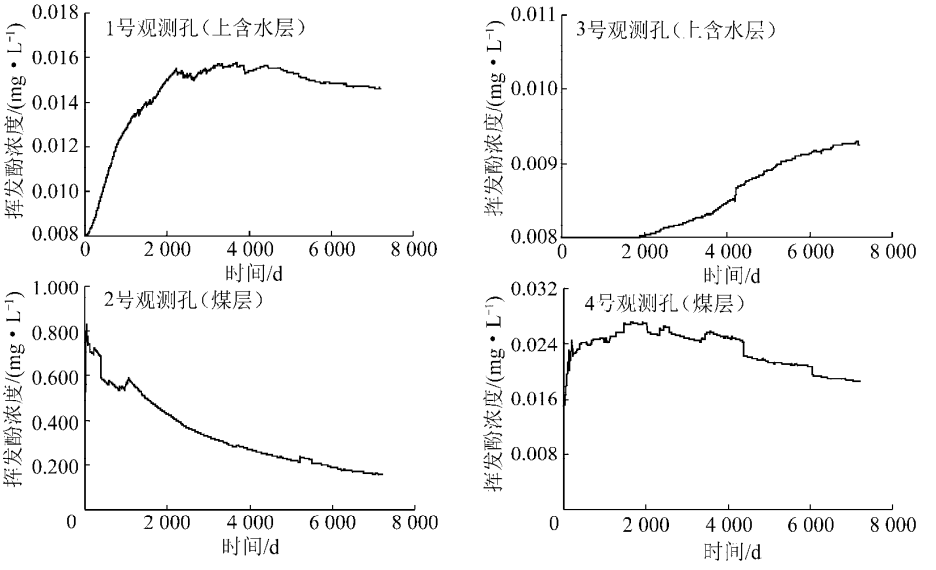


图 7　挥发酚浓度历时曲线

Fig. 7　Duration curves of phenol concentration

极弱的向上含水层的迁移倾向,这种迁移主要依靠水动力弥散作用,短期内没有观测到明显污染,不会影响该层水的使用; 煤层的渗透性能差、水力坡度小和煤的吸附作用是阻碍挥发酚迁移的主要原因; 煤层与含水层之间的水头差、燃空区上下方隔水层的破坏程度和范围以及水动力弥散作用是煤层邻近含水层污染风险评价的关键。

地下水污染风险可以通过科学选址、气化过程控污、煤层燃空区污染处理等措施进行综合控制,相关监测、预测工作仍有待深入研究。本文讨论的煤炭地下气化试验处于探索阶段,随着该基地煤炭地下气化试验的规模化,对不同特征污染物迁移扩散的监测及规律研究也将会进一步深入。此外,气化过程中的污染物迁移特征也值得深入研究。

参考文献:

[1] 刘淑琴,陈　思,李金刚,等. 深部煤层地下气化及其应用前景[J]. 煤炭转化,2007,30(3):79 – 81.
Liu Shuqin,Chen Si,Li Jingang,et al. Deep coal seam underground gasification and application outlook [J]. Coal Conversion,2007,30(3):79 – 81.

[2] Yang L H,Liang J,Yu L. Clean coal technology study on the pilot experiment of underground coal gasification [J]. Energy,2003,28(14):1 445 – 1 460.

[3] 杜　锋,梁　杰. 煤炭地下气化技术 [J]. 陕西煤炭,2003(1):17 – 19.
Du Feng,Liang Jie. Technology of underground coal gasification [J]. Shaanxi Coal,2003(1):17 – 19.

[4] 梁　杰,席建奋,孙加亮,等. 鄂庄薄煤层富氧地下气化模型试验 [J]. 煤炭学报,2007,32(10):1 031 – 1 035.
Liang Jie,Xi Jianfen,Sun Jialiang,et al. Experiment on underground coal gasification of the thin coal seam in Ezhuang [J]. Journal of China Coal Society,2007,32(10):1 031 – 1 035.

[5] DTI. Review of the feasibility of underground coal gasification in the UK [R]. London,2004:5 – 20.

[6] Liu S Q,Liu J H,Yu L. Environmental benefits of underground coal gasification [J]. Journal of Environmental Sciences,2002(14):284 – 288.

[7] Klimentov P P. Influence of groundwater on the process of underground coal gasification [J]. Izv Vyssh Ucheb Zavendenii GeologiyaIxazvedka,1964(4):106 – 119.

[8] Humenick M J,Mattox C F. Organic groundwater contaminants from underground coal gasification [J]. In Situ,1980,4(2):78 – 85.

[9] Stuermer D H,Douglas J N,Morris C J. Organic contaminants in groundwater near an underground coal gasification site in northeastern Wyoming [J]. Environmental Science Technology,1982(16):582 – 587.

[10] Humenick M J. Water pollution control for underground coal gasification [J]. Journal of Energy Engineering,1984,110(2):100 – 112.

[11] Humenick M J. Natural restoration of ground water in UCG [J]. In Situ,1982,6(2):107 – 125.

[12] Campbell J H,Wang F T,Mead S W. Groundwater quality near an underground coal gasification experiment [J]. Journal of Hydrology,1979(44):241 – 266.

[13] Humenick M J,Mattox C F. Groundwater pollutants from underground coal gasification [J]. Water Research,1978(12):463 – 469.

[14] Dalton V A,Campbell J H. Laboratory measurements of groundwater leaching and transport of pollutants produced during underground coal gasification [J]. In Situ,1978,2(4):295 – 328.

[15] Reed G P,Dugwell D R,Kandiyoti R. Control of trace elements in gasification: distribution to the output streams of a pilot scale gasifier [J]. Energy Fuels,2001(15):794 – 801.

中国煤炭期刊网 www.chinacaj.net