

DOI: 10.19951/j.cnki.1672-9331.20231127002

文章编号: 1672-9331(2024)06-0066-11

引用格式: 蒋晨煜, 杜倩卉, 张军辉, 等. 煤矸石路基填料中污染物的释放-迁移-抑制特性研究[J]. 长沙理工大学学报(自然科学版), 2024, 21(6): 66-76.

Citation: JIANG Chenyu, DU Qianhui, ZHANG Junhui, et al. Release-migration-solidification characteristics of pollutants in coal gangue as subgrade fill material[J]. J Changsha UnivSci Tech (Nat Sci), 2024, 21(6): 66-76.

# 煤矸石路基填料中污染物的释放-迁移-抑制特性研究

蒋晨煜, 杜倩卉, 张军辉, 顾凡

(长沙理工大学 交通运输工程学院, 湖南 长沙 410114)

**摘要:**【目的】以煤矸石路基填料为研究对象, 探究自然降雨作用下路基填料中重金属污染物的释放-迁移-抑制特性。【方法】通过室内试验确定了煤矸石填料的基本性能、煤矸石填料中重金属污染物种类和在自然降雨中重金属污染物的释放-迁移特性; 基于多孔介质溶质迁移理论, 建立了煤矸石路基填料污染物扩散数值模型, 以预测污染物在长期降雨作用下对水土环境的影响; 根据地聚物在不同掺量(质量分数)与不同养护龄期下对煤矸石填料中污染物的固化效果, 探究地聚物对重金属污染物螯合作用的有效性, 并与传统水泥的固化效果进行比较, 综合评价了地聚物对煤矸石路基填料的抑制特性。【结果】煤矸石中的Pb、As重金属元素浸出浓度(质量浓度)均超出环境限值, 分别是《地下水质量标准》中规定的Ⅲ类地下水限值的9.1倍和9.8倍; 在降雨前期, 煤矸石填料中各重金属污染物释放速率大且淋出量大; 随后, 释放速率缓慢减小直至稳定, 累积释放量持续增大; 随时间推移, 重金属污染物向路基底部迁移; 在掺入地聚物后, 各重金属浸出浓度均低于环境标准限值。【结论】煤矸石路基填料中的重金属污染物对环境的影响具有持续性和长期性特点; 随着地聚物掺量及养护龄期的增加, 浸出液中重金属浓度(质量浓度)下降, 直至远低于Ⅲ类水限值。地聚物的固化效果比水泥的更好, 且在地聚物掺量为8%, 养护龄期为14 d时, 地聚物对污染物螯合效果为最佳。

**关键词:** 煤矸石; 固体废弃物; 重金属浸出毒性; 动态淋滤; 地聚物

中图分类号: U416.214

文献标志码: A

## Release-migration-solidification characteristics of pollutants in coal gangue as subgrade fill material

JIANG Chenyu, DU Qianhui, ZHANG Junhui, GU Fan

(School of Traffic & Transportation Engineering, Changsha University of Science & Technology, Changsha 410114, China)

**Abstract:** [Purposes] This study uses coal gangue as subgrade fill material and explores the release-migration-solidification characteristics of heavy metal pollutants under the influence of natural rainfall. [Methods] Laboratory experiments were conducted to determine the basic properties of coal gangue fill material, identify the types of heavy metal pollutants, and investigate the release-migration characteristics of heavy metal pollutants during natural rainfall. Based on

收稿日期: 2023-11-27; 修回日期: 2024-01-14; 接受日期: 2024-01-17

基金项目: 国家自然科学基金青年项目(52108400); 长沙理工大学专业学位研究生“实践创新与创业能力提升计划”项目(CLSJCX22025)

通信作者: 顾凡(1987—)(ORCID: 0000-0002-3992-3545), 男, 教授, 主要从事交通岩土方面的研究。

E-mail: fan.gu@csust.edu.cn

投稿网址: <http://cslgxbzk.csust.edu.cn/cslgdxxbzk/home>

porous media solute transport theory, a numerical model was established to predict the impact of pollutants on the soil-water environment under extended rainfall. The solidification effects of geopolymers on pollutants in coal gangue fill material were examined at different mass fraction levels and curing ages. The effectiveness of geopolymers in chelating heavy metal pollutants in coal gangue fill material was explored. The solidification characteristics of geopolymer-solidified coal gangue fill material were comprehensively evaluated by comparing them against the cement solidification method. [**Findings**] The leaching mass concentrations of Pb and As heavy metal pollutants in coal gangue exceeded environmental limits, which were 9.1 times and 9.8 times greater than the Class III groundwater limit in Standard for Groundwater Quality, respectively. In the early stages of rainfall, various heavy metal pollutants in coal gangue fill material exhibited rapid release rates and substantial leaching, followed by a gradual decrease in release rate until reaching a plateau, with cumulative release amount continuously increasing. Heavy metal pollutants migrated towards the bottom of the subgrade over time. After adding geopolymers, the leaching concentrations of all heavy metals were much lower than the required limit in the environmental standards. [**Conclusions**] Heavy metal pollutants in coal gangue as subgrade fill material exhibited persistent and long-term environmental impact. With increasing geopolymer content and curing age, the mass concentrations of heavy metals in the leachate significantly reduced and were much lower than the Class III water limits. Compared to cement solidification, geopolymers demonstrated a superior solidification effect. The optimal solidification treatment of pollutants was recommended as the addition of 8% geopolymer with 14 curing days.

**Key words:** coal gangue; solid waste; leaching toxicity of heavy metal; dynamic leaching; geopolymer

**Foundation items:** Project (52108400) supported by the National Natural Science Foundation of China; Project (CLSJCX22025) supported by Program of Innovation Implement and Entrepreneurship Enhancement for Professional Degree Graduates of Changsha University of Science & Technology

**Corresponding author:** GU Fan (1987—) (ORCID: 0000-0002-3992-3545), male, professor, research interest: transportation geotechnics. E-mail: fan.gu@csust.edu.cn

## 0 引言

随着经济快速发展,我国固体废弃物的年产量和累积堆存量与日俱增。当前各类固废累积堆存量约800亿t,年产生量近120亿t,固废的综合利用率超过50%。相对于发达国家,我国利用固废生产高附加值产品的资源化利用水平仍相对较低<sup>[1-2]</sup>。与此同时,我国砂石等筑路材料的年均消耗量达数十亿t<sup>[3]</sup>,严重消耗了自然资源。煤矸石是在采煤和洗煤过程中产生的固体废弃物,如西南区采煤过程中形成的煤矸石堆存量约9亿t。煤矸石在矿坑附近堆积成山,占压大量土地面积,在暴雨季节易导致滑坡、泥石流地质灾害,污染矿

山周边河湖水系。我国每年对煤矸石的利用率不足30%,且每年对煤矸石山的修整都需要大量资金。近年来,煤矸石常被用作公路路基填料<sup>[4-5]</sup>。

目前,国内外学者对煤矸石路基填料的路用性能展开了大量研究:胡雪松等<sup>[6]</sup>通过颗粒级配试验发现,广西合山市煤矸石粒径因曲率系数 $C_c$ 小于3,不均匀系数 $C_u$ 大于5,属于良好级配且易于压实,并证实采用煤矸石材料换填膨胀土能显著减弱路基的长期沉降趋势;耿琳等<sup>[7]</sup>通过冻胀试验探究普通填料和掺煤矸石填料的冻胀特性,发现煤矸石的掺入能有效降低填料的冻胀率,并显著提升路基的抗冻性能;YANG等<sup>[8]</sup>基于有限元方法对煤矸石填筑路基的数值模型进行了沉降分析,发现沉降量从路基顶部开始向下逐渐减小,最

大沉降量约为7 mm,符合路基设计规范的要求。虽然作为路基填料的煤矸石具有良好的路用性能,但其内部各类重金属元素会在酸雨等环境因素影响下渗漏到周边土体中,污染地下水和土壤,制约自然环境的可持续发展<sup>[9-13]</sup>;TANG等<sup>[14]</sup>研究了典型矿区煤矸石复垦土壤中重金属的污染性,通过连续提取法发现,煤矸石中的重金属元素Mn主要以还原态存在,并对当地生态环境具有中等风险;LI等<sup>[15]</sup>通过对比发现,未经煅烧和固化处理的煤矸石在长期使用过程中,其重金属成分会以多种方式浸出,进而对土壤和地下水造成影响。目前,有效的防控煤矸石污染物释放的技术主要有固化/稳定化技术(solidification/stabilisation, S/S)、屏障隔离技术、萃取技术及生物技术等<sup>[16-19]</sup>,其中的S/S技术处理效率高、成本低,近年来在国内得到了大范围的应用和研究。固化剂的选择已成为当下的热点选题。与传统的水泥相比,地聚物固化后的固废填料具有结构强度高、抗侵蚀性好、低碳环保等优点<sup>[20-23]</sup>。

综上所述,现有研究主要集中于煤矸石填料的路用性能评估和不同固化剂对煤矸石填料所含重金属污染物的固化机理,而对于煤矸石路基填料中的污染物释放-迁移规律及不同固化剂对其污染物抑制特性的研究相对不足。在施工和运营阶段应如何有效地防止煤矸石路基填料的污染这个问题上,业界尚未形成统一认知。未来需聚焦于这一空白,以深入探讨煤矸石路基填料的性能及其在环境方面的潜在影响。这将为更全面、系统地理解和优化煤矸石路基填料的应用提供有力支持<sup>[24-25]</sup>。

因此,本文以煤矸石路基调料为研究对象,对其所含污染物在降雨作用及地聚物和水泥固化作用下的释放-迁移-抑制特性进行研究,并采用有限元方法对污染物在降雨作用下的长期释放特性进行探究。

## 1 材料与试验

### 1.1 试验材料

本文所用煤矸石来自江西省丰城市曲江大井煤矿,呈黑色或灰黑色块状,如图1所示。本研究



图1 煤矸石

Fig. 1 Coal gangue

采用颚式破碎机对煤矸石进行破碎处理。

为验证试验用的煤矸石材料可作为良好的路基填料,本文对其进行了筛分、击实、加州承载比(California bearing ratio, CBR)等试验,结果如图2所示。由图2可知,煤矸石的 $C_u$ 、 $C_c$ 分别为20.47、1.57,均符合《公路土工试验规程》中对良好级配的要求。

煤矸石的CBR值如表1所示。从表1可看出,煤矸石的CBR值符合高速公路和一级公路路基填料CBR最小值要求。此外,本研究采用干法重型击实试验确定了煤矸石再生填料的最佳含水率和最大干密度分别为5.61%和 $2.07 \text{ g/cm}^3$ 。

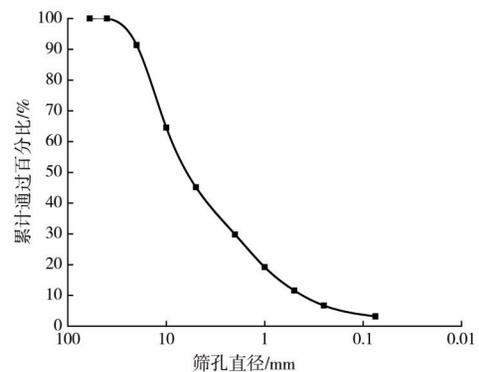


图2 煤矸石级配曲线图

Fig. 2 Gradation curve of coal gangue

表1 煤矸石的CBR值

Table 1 CBR values of coal gangue %	
煤矸石所属路基分区	煤矸石的CBR
93区	8.4
94区	13.6
96区	20.8

本文采用X射线衍射法(X-Ray Diffraction, XRD)对煤矸石路基填料进行化学组分测定,结果如表2所示。由表2可知试验用煤矸石中 $\text{SiO}_2$ 、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Fe}_2\text{O}_3$ 的质量分数之和为79.40%。该结果符

合《公路路基设计规范》(JTG D30—2015)对填料氧化物含量的要求。

表2 煤矸石主要化学组成

Table 2 Main chemical composition of coal gangue %

$w(\text{SiO}_2)$	$w(\text{Al}_2\text{O}_3)$	$w(\text{Fe}_2\text{O}_3)$	$w(\text{CaO})$	$w(\text{MgO})$	$w(\text{K}_2\text{O})$
57.22	17.81	4.37	2.70	2.38	2.21

### 1.2 试验

#### 1.2.1 污染物毒性浸出试验

煤矸石用作路基填料时,其内部的重金属污染物会在雨水等自然环境因素作用下发生浸出现象,且浸出污染物的含量和种类是固体废弃物环境风险评估中的重要指标。因此,本研究对试验用煤矸石路基填料进行毒性浸出试验,结果如表3所示。本文中所有浓度均为质量浓度。

表3 各类重金属元素浸出浓度

Table 3 Leaching concentrations of heavy metals  $\mu\text{g/L}$

重金属种类	浸出浓度	Ⅲ类地下水标准	浸出毒性标准限值
Cr	9.70	50	5 000
Cd	2.30	5	1 000
Pb	90.60	10	5 000
Cu	23.30	1 000	100 000
Zn	224.00	1 000	100 000
Co	32.10	50	
Mn	45.80	100	
As	98.17	10	5 000

由表3可知,试验用煤矸石固体废弃物的重金属元素浸出浓度均远低于《危险废物鉴别标准 浸出毒性鉴别》(GB 5085.3—2007)的限值,但Pb、As的浸出浓度分别是《地下水质量标准》(GB/T 14848—2017)中规定的Ⅲ类地下水限值(同于生活饮用水卫生标准)的9.1倍、9.8倍。煤矸石作为路基填料长期使用可能对地下水环境造成危害。因此,本研究选取煤矸石中的Pb、As为典型污染物进行后续研究。

#### 1.2.2 动态淋滤试验

为探究煤矸石中Pb、As污染物在自然降雨条件下的淋出浓度、累积释放量及重金属形态的变化,本研究对试验用煤矸石进行了动态淋滤试验。相关实验装置如图3所示。

本试验通过设置三种不同pH值的淋液对煤矸石土柱进行淋滤,以探究煤矸石中的重金属污染物在不同pH值的酸雨下的释放特性。本研究使用电感耦合等离子体质谱(inductively coupled

plasma-mass spectrometry, ICP-MS)测定了淋出液中的重金属元素的浓度。试验结果如图4所示。

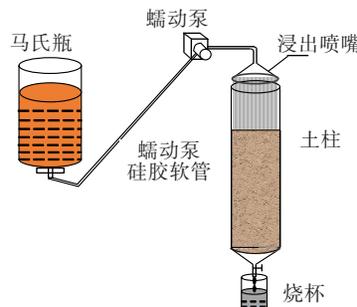
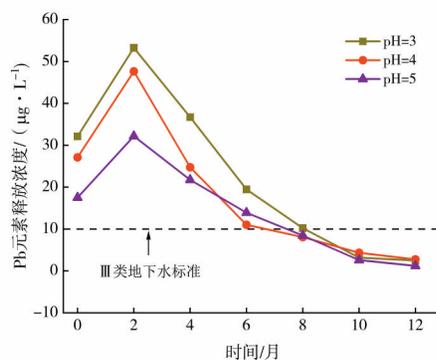
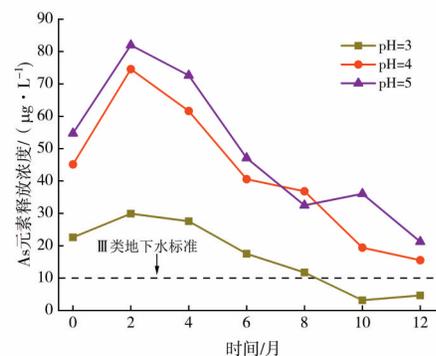


图3 淋滤试验装置图

Fig. 3 Leaching test setup



(a) Pb元素释放浓度变化



(b) As元素释放浓度变化

图4 煤矸石淋出液中重金属含量变化规律

Fig. 4 Variation of heavy metal content in leachate of coal gangue

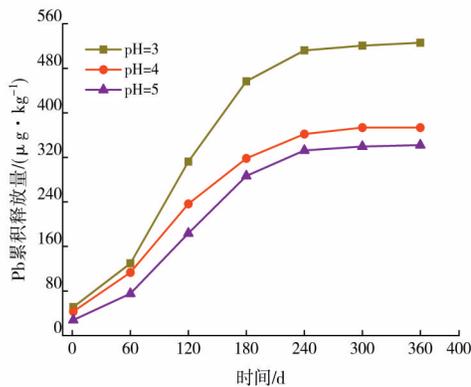
从图4可以看出,在淋滤初期,Pb、As两种污染物均大量析出。这是由于一定质量的煤矸石填料中的重金属污染物是有限的,并且其表面吸附的一定量的重金属粉末会伴随着淋滤液淋出,使得重金属元素在淋滤初期大量析出,而随着再生料中重金属污染物不断减少,其释放速率又逐渐变小,最终趋于稳定。在三种pH值的酸雨淋滤下,重金属污染物的释放速率均在2个月时出现峰

值后又逐渐变小,并且这两种元素在6个月内的释放浓度均超过了Ⅲ类地下水质量标准限值。这表明两种污染物对环境产生不良影响且持续时间较长。在pH值变化对释放浓度的影响方面,Pb元素释放量随着pH值减小呈逐渐上升的趋势,而As元素释放量的趋势与之相反。这是由于在强酸性条件下,大部分活性态As吸附在矿物表面,而As的迁移受到抑制。

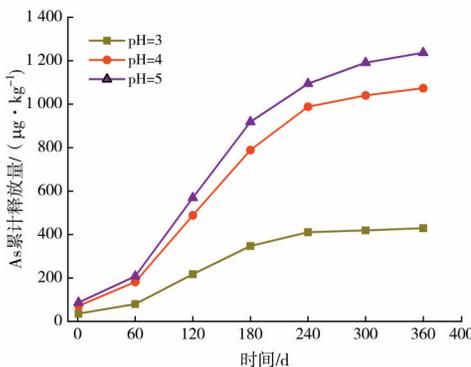
为了进一步探究煤矸石路基填料的累积释放特性,本文按式(1)计算了Pb、As的累积释放量。结果如图5所示。

$$q = \sum_{i=1}^n C_i \times V_i / M \quad (1)$$

式中: $q$ 为单位质量重金属累积释放量, $\mu\text{g}/\text{kg}$ ;  $C_i$ 为第*i*次取的淋滤液中重金属浓度, $\mu\text{g}/\text{L}$ ;  $V_i$ 为第*i*次取样时淋滤液的体积, $\text{L}$ ;  $M$ 为淋滤柱中固废再生料的质量, $\text{kg}$ ;  $n$ 为取样次数。



(a) Pb元素累积释放量变化



(b) As元素累积释放量变化

图5 煤矸石淋出液中重金属累积释放量

Fig. 5 Cumulative release amount of heavy metals in leachate of coal gangue

从图5看出,煤矸石中两种重金属元素累积释放量均持续增大,且As的累积释放量大于Pb的。

## 2 数值模拟

为了预测探究重金属污染迁移情况,本研究首先采用COMSOL软件建立了用作公路路基填料的煤矸石的污染物释放模型,然后验证了模型的准确性,最后对重金属污染物的长期释放特性进行了预测研究。本研究对煤矸石等固废再生料迁移防控具有重要意义。

### 2.1 渗流场理论模型

在煤矸石路基填料中的重金属元素在自然降雨条件下在周边土壤中的迁移研究中,土壤被视为多孔介质,且土壤的渗流规律符合达西定律<sup>[26]</sup>。业界使用COMSOL软件和Richards方程模块来模拟饱和-非饱和多孔介质中的水分运动和分布<sup>[27]</sup>。水力参数随着不饱和状态而变化,相关表达式如下:

$$\rho \left( \frac{C_m}{\rho g} + S_e S \right) \frac{\partial p}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho \mathbf{u}) = Q_m \quad (2)$$

$$\mathbf{u} = -\frac{\kappa_s}{\mu} \kappa_r (\nabla p + \rho g \nabla D) \quad (3)$$

式中: $\rho$ 为流体密度; $C_m$ 为容水度; $S_e$ 有效饱和度; $S$ 为储水系数; $\mu$ 为流体黏度;压力 $p = \rho g H_p$ ,其中 $\rho g$ 为重度, $H_p$ 为压力水头; $Q_m$ 为源汇项; $\mathbf{u}$ 为达西速度; $\kappa_s$ 为饱和渗透系数; $\kappa_r$ 为相对渗透率; $D$ 为相对高程。

在上述方程中, $\kappa_r$ 、 $S_e$ 和 $C_m$ 都能够用土壤含水率 $\theta$ 或 $H_p$ 表达出来。IPPISCH等<sup>[28]</sup>表明Van Genuchten模型是在水力传导率预测中使用最广泛的模型之一。相关表达式如下:

$$S_e = \frac{\theta - \theta_r}{\theta_s - \theta_r} = \begin{cases} \frac{1}{(1 + |\alpha H_p|^n)^m}, & H_p < 0 \\ 1, & H_p \geq 0 \end{cases} \quad (4)$$

$$C_m = \begin{cases} \frac{\alpha m}{1 - m} (\theta_s - \theta_r) S_e^{1/m} (1 - S_e^{1/m})^m, & H_p < 0 \\ 0, & H_p \geq 0 \end{cases} \quad (5)$$

$$\kappa_r = \begin{cases} S_e^L [1 - (1 - S_e^{1/m})^m]^2, & H_p < 0 \\ 1, & H_p \geq 0 \end{cases} \quad (6)$$

式中: $\theta_s$ 为饱和体积含水率; $\theta_r$ 为残余体积含水率; $\alpha$ 、 $m$ 、 $n$ 、 $L$ 分别为拟合参数,且 $m = 1 - 1/n$ ,  $0 < m < 1$ 。

### 2.2 浓度场理论模型

煤矸石中的重金属元素的运移主要通过

流、分子扩散、机械弥散等过程实现。机械弥散和分子扩散作用通常同时存在,相互影响,并且从式(2)~(6)可以看出,两者均遵循 Fick 第一定律,且表现形式相似,难以严格区别。因此,业界一般将二者合称为水动力弥散系数  $D_{10}$ ,其数值可通过土柱穿透试验确定。土柱穿透试验装置同样采用动态淋滤装置,选择示踪剂法对  $D_{10}$  进行测定,并以淋滤时间为横坐标,淋出液中氯离子浓度  $C$  与初始氯离子浓度  $C_0$  的比值为纵坐标绘制氯离子穿透曲线。 $D_{10}$  的计算公式为

$$v = lt_{0.50} \tag{7}$$

$$D_{10} = v^2(t_{0.84} - t_{0.16})^2 / (8t_{0.5}) \tag{8}$$

式中: $v$  为水流速度,  $\text{cm}/\text{min}$ ;  $l$  为取样口到土柱起始端的距离,  $l=20 \text{ cm}$ ;  $t_{0.50}$ 、 $t_{0.16}$ 、 $t_{0.84}$  为  $C/C_0$  数值分别

为 0.50、0.16、0.84 时的时间,  $\text{min}$ 。

再生料内污染物纵横向弥散能力可用纵向弥散长度  $\alpha_L$  与横向弥散长度  $\alpha_T$  表示。

$$\alpha_{10} = D_{10}/v \tag{9}$$

$$\alpha_T = \alpha_{10}/5 \tag{10}$$

### 2.3 参数取值

本研究采用环刀法测定煤矸石路基填料的容重  $\rho_b$ ,测量在  $(105 \pm 2) \text{ }^\circ\text{C}$  时烘干的煤矸石样品的含水率,并通过动态淋滤装置测定煤矸石的  $\kappa_s$ ,通过土柱穿透试验确定煤矸石的  $D_L$ 。试验装置同样采用动态淋滤装置,其中初始浓度均采用毒性浸出试验中重金属的最大释放浓度,土水特征曲线中的参数借鉴了相关文献<sup>[29-31]</sup>中的经验参考值,如表 4 所示。

表 4 煤矸石数值模拟参数取值

Table 4 Numerical simulation parameters of coal gangue

$\rho_b/(\text{kg}\cdot\text{m}^{-3})$	$k_s/(\text{m}\cdot\text{s}^{-1})$	$\theta_s/\%$	$\theta_r/\%$	$\alpha$	$n$	$L$	$D_{10}/(\text{cm}^2\cdot\text{min}^{-1})$	$a_{10}/\text{cm}$	$a_T/\text{cm}$
2 070	$6.12 \times 10^{-5}$	0.486	0.249	0.143	2.387	0.5	$1.597 \times 10^{-2}$	1.137	0.227

除  $D_{10}$  外,浓度场研究还需要测定重金属元素的初始释放浓度及释放速率。重金属元素的初始浓度采用毒性浸出试验中重金属元素的最大释放量,即煤矸石中 Pb、As 初始浓度(分别为 90.60、98.17  $\mu\text{g}/\text{L}$ )。各重金属元素的释放速率为图 5 中

的曲线斜率。

### 2.4 模型验证

煤矸石中的 Pb 元素在 22、65、90、180、270 和 300 d 的模拟迁移释放量如图 6 所示。

Pb 元素浓度的模拟值与试验值如图 7 所示。

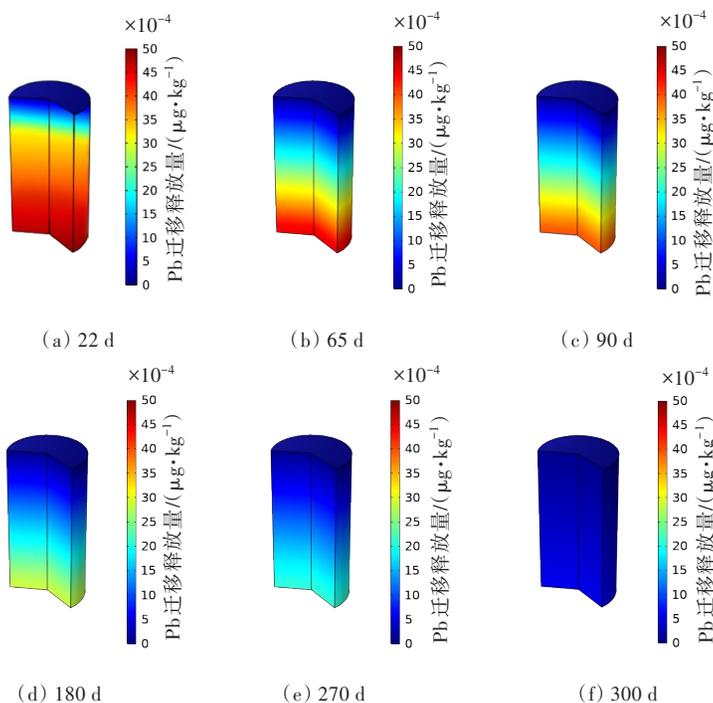


图 6 Pb 元素释放迁移云图

Fig. 6 Contour map of Pb element release and migration

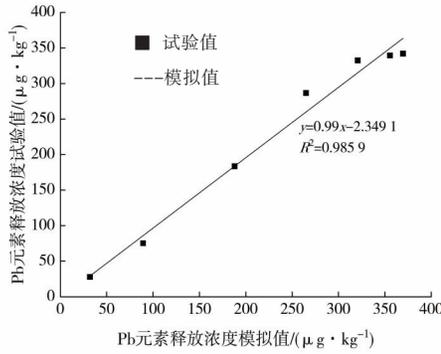


图7 Pb元素释放试验与模拟对比图

Fig. 7 Comparison between experimental and simulated release of Pb element

由图7可以看出,Pb释放浓度的模型模拟值与试验值的拟合效果较好。故该数值模型可以用于预测煤矸石中的重金属污染物的迁移特性。

### 2.5 路基中污染物的释放迁移模拟

路基结构的有限元模型如图8所示,其中路面宽度为26.00 m,厚度为0.80 m,路基高度为6.00 m,路基边坡坡度为1:1.5,地基深度为15.00 m,宽度为40.00 m,地下水位设为1.00 m。

路基结构的主要参数如表5所示。煤矸石中的重金属 Pb、As 元素数值模拟结果如图9~10所示。

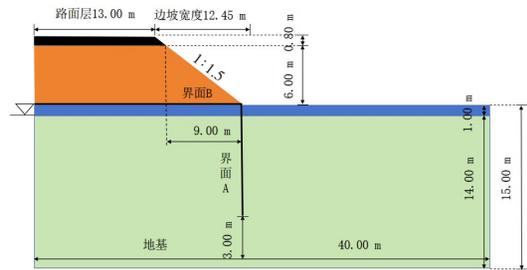


图8 路基模型图

Fig. 8 Subgrade model

表5 地基主要参数

Table 5 Main parameters of subgrade

$k_s/(m \cdot s^{-1})$	$\theta_s/\%$	$\theta_f/\%$	$\alpha$	$n$	$L$	$a_{10}/cm$	$a_r/cm$
$2.94 \times 10^{-5}$	0.53	0.05	0.097	1.419	0.5	0.3	0.08

从图9~10看出,煤矸石填筑路基结构中的重金属污染物大量聚集在边坡处,并随着时间缓慢地向基层底部迁移,最终进入地下水中,对环境造成不可逆的破坏。

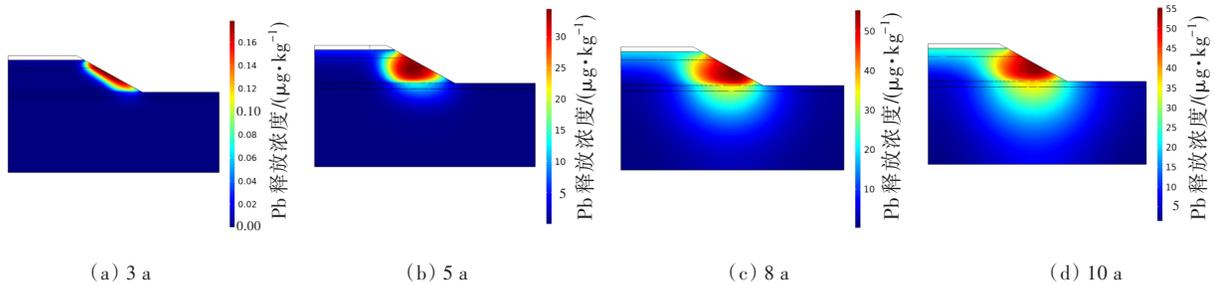


图9 煤矸石中Pb浓度分布云图

Fig. 9 Contour map of Pb concentration distribution in coal gangue

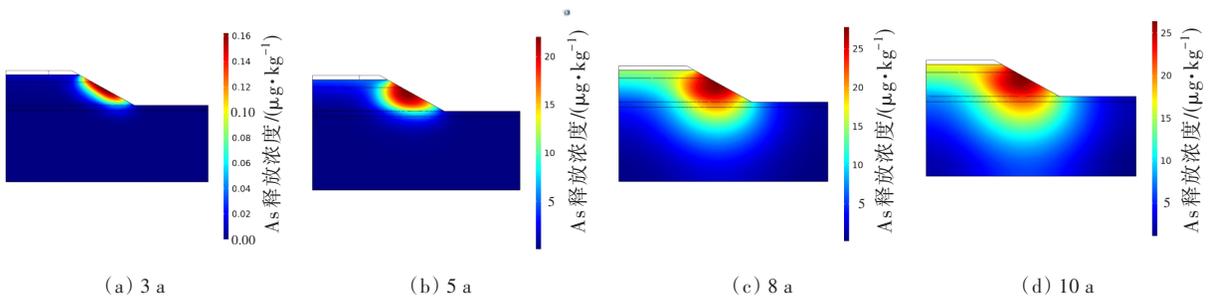


图10 煤矸石中As浓度分布云图

Fig. 10 Contour map of As concentration distribution in coal gangue

筑路路段地下水中的各污染物浓度随时间演化特性如图11所示。从图11可以看出,在道路运营5.3 a后,地下水中的Pb、As浓度均超出Ⅲ类标

准限值。此外,煤矸石中Pb浓度在10 a后仍以一定的速率持续增加。这说明污染物对路域环境的影响具有长期性和持久性。

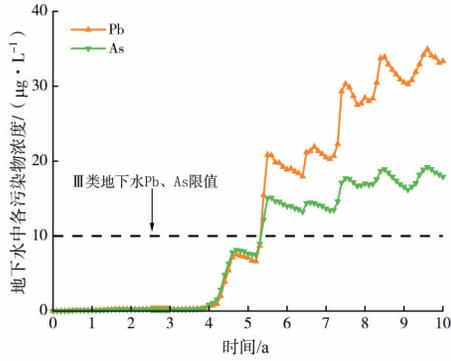


图 11 煤矸石填筑路基时地下水中各污染物浓度

Fig. 11 Concentrations of various pollutants in groundwater during coal gangue construction as subgrade fill material

### 3 地聚物对煤矸石路基填料中污染物的抑制特性研究

煤矸石填料中的重金属污染物在长期的雨水作用下发生迁移并进入地下水,对周围环境造成不可逆的破坏。因此,业界需要对煤矸石填料作一定的固化处理。与传统的水泥固化相比,地聚物具有结构强度高、抗侵蚀性高、耐久性好、低碳环保等优点。本节分别使用地聚物与水泥对煤矸石填料进行固化处理,综合评价地聚物对煤矸石填料中的重金属元素的抑制特性。作为碱性固化材料的地聚物的过量添加会导致路基填料出现“泛碱”现象,因此本文结合国内外研究现状,取地聚物掺量(即质量分数,下文同)分别为4%、8%和12%,并探究相应地聚物分别在7、14和28 d的养护龄期时的固化性能。

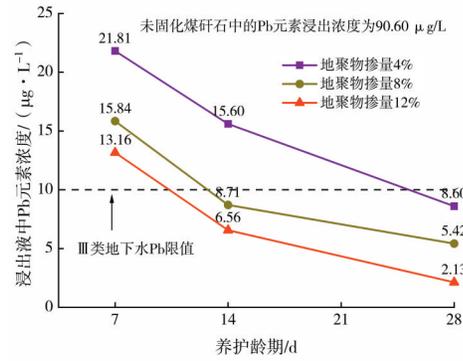
#### 3.1 地聚物固化作用对重金属元素的抑制特性

本文按式(11)计算煤矸石中重金属元素的固化率  $C_R$ ,以评估地聚物对重金属元素的固化效果。

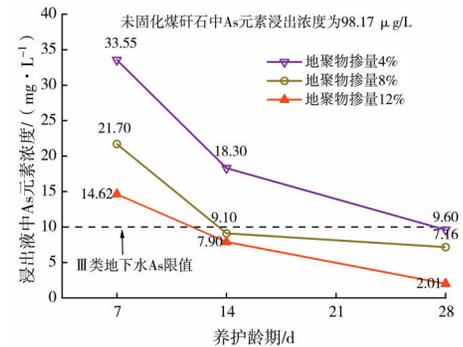
$$C_R = \frac{C_r - C_s}{C_r} \times 100\% \quad (11)$$

式中:  $C_r$  为原煤矸石再生料中重金属的浸出浓度,  $\mu\text{g/L}$ ;  $C_s$  为固化后再生料中重金属的浸出浓度,  $\mu\text{g/L}$ 。

本研究分别在煤矸石填料中加入掺量分别为4%、8%、12%的地聚物,再进行毒性浸出试验,结果如图12所示。从图12可以看出,当地聚物掺量为4%,养护龄期为7 d时,煤矸石固化体中Pb、As元素固化率分别达到75.93%,65.82%。这说明



(a) Pb元素浸出液中重金属元素浓度变化



(b) As元素浸出液中重金属元素浓度变化

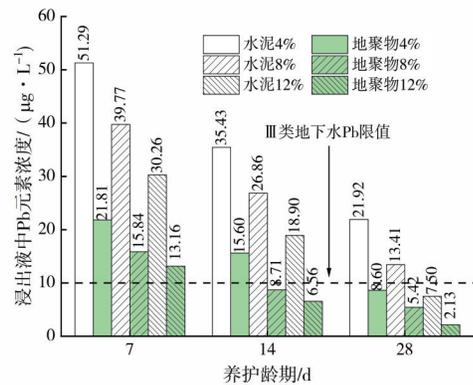
图 12 地聚物煤矸石固化体浸出液中重金属元素浓度变化

Fig. 12 Variation of heavy metal element concentrations in leachate of geopolymer-solidified coal gangue

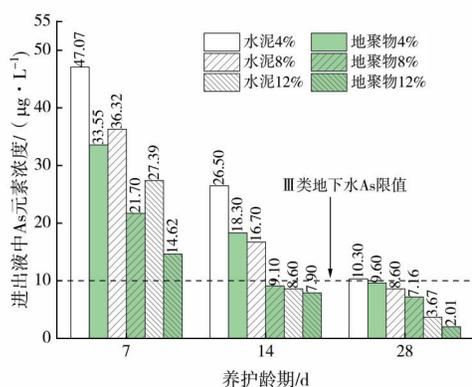
地聚物的固化效果极佳。具体表现为:在掺入8%地聚物并养护14 d后,煤矸石固化体中各重金属的浸出浓度均低于Ⅲ类地下水标准限值;经28 d养护后,煤矸石固化体中各重金属的固化率达97%以上,完全符合Ⅲ类地下水质量标准的要求。

#### 3.2 与水泥固化效果对比分析

本研究在煤矸石填料中掺入与低聚物相同掺量的水泥,再进行毒性浸出试验。水泥固化的试验结果与地聚物固化后的结果如图13所示。



(a) Pb元素地聚物/水泥固化体浸出毒性对比



(b) As元素地聚物/水泥固化体浸出毒性对比

图13 煤矸石地聚物/水泥固化体浸出毒性对比

Fig. 13 Comparison of leaching toxicity from geopolymer/cement-solidified coal gangue

从图13可以看出,在相同掺量、相同养护龄期的条件下,地聚物固化后的重金属释放浓度始终小于水泥固化后的,即地聚物的固化效果远远超过了水泥的固化效果。从图13还可以看出,当地聚物掺量为8%、煤矸石路基填料养护龄期为14 d时,各重金属的浸出浓度均小于Ⅲ类地下水标准限值,即经过再生利用处理后的煤矸石浸出液不会对环境造成明显影响,而水泥作为固化剂时,需将其掺量增加到12%、煤矸石路基填料养护龄期至少为28 d时,水泥的固化效果才能符合要求。因此,相比于地聚物,使用水泥对煤矸石路基填料进行固化处理的传统方式不仅添加量大,养护龄期长,而且水泥对重金属污染物的固化能力及抗渗性均较差。除此之外,地聚合物还具有较好的重金属固化性能和抗酸雨性能。

## 4 结论

本文以煤矸石为主要研究对象,对再生料基本理化性能、浸出毒性等进行全面分析,探究其用作路基填料的可行性,通过土柱动态淋滤试验和逐级提取方法对典型污染物元素在不同pH值、降雨量等因素的影响下的释放规律进行研究。同时,本研究采用COMSOL软件建立足尺路基模型,预测了煤矸石作为路基填料在降雨作用下对周边水土环境的长期影响,并对比分析了水泥和煤矸石在不同掺量(4%、8%、12%)及不同养护龄期(7、14、28 d)时对再生料中的重金属的固化效果。

主要结论如下:

1) 煤矸石是一种级配良好的路基填料,但其包含的Pb和As两种重金属元素在毒性浸出试验中的浸出浓度均超出了《地下水质量标准》(GB/T 14848—2017)中的Ⅲ类地下水限值,且分别是限值的9.1倍与9.8倍。因此,煤矸石充当路基填料时会对当地生态环境造成破坏。

2) 动态淋滤试验显示,随着淋滤时间推移,两种重金属元素的释放浓度均显著降低,且随着淋滤液pH值降低,Pb元素的释放浓度不断增大,As元素的释放浓度不断减小。在累积释放量方面,两种重金属元素均表现为随时间推移而增大。其中,两种金属元素在6个月的释放浓度均超过了Ⅲ类地下水质量标准限值。这表明煤矸石路基填料对环境产生的不良影响且持续时间较长。

3) 本研究采用COMSOL软件模拟煤矸石路基填料中重金属元素在长期自然环境作用下的释放-迁移规律。模拟结果表明:重金属元素随时间推移逐渐向路基底部及地基处迁移;煤矸石路基地下水中的Pb、As浓度在道路运营5.3 a后超出Ⅲ类标准限值,且Pb浓度在10 a后仍保持以一定的速率增加。这说明煤矸石路基填料中的重金属污染物对环境的影响具有持续性和长期性的特点。

4) 随着地聚物、水泥掺量及固化后养护龄期的增加,煤矸石填料浸出液中的重金属浓度显著降低。在掺入8%地聚物并养护14 d后,煤矸石路基填料中各重金属的浸出浓度均低于Ⅲ类地下水标准限值。这符合了固废料再生利用的环境要求。本研究对比分析了地聚物 and 传统水泥的固化效果,发现地聚物的固化效果要远远优于水泥的。

由于时间和地域因素的限制,本研究存在一定局限性,有待进一步研究与深入探讨:首先,本文研究对象仅针对江西地区煤矸石进行释放特性分析,未对更多种类、更多地区的固体废弃物进行浸出毒性研究,在后续研究中应对多种常见固废料的污染特性进行分析;其次,本文仅针对地聚物固化重金属污染物的固化性能进行试验分析,并未对固化后的煤矸石填料在包括抗压、抗剪、抗变形等在内的路基稳定性上进行分析。因此,后续研究有必要完善经地聚物固化处理后的煤矸石填料用于路基工程的可行性分析。

## [参考文献]

- [1] 姜玲玲,丁爽,刘丽丽,等.“无废城市”建设与碳减排协同推进研究[J]. 环境保护, 2022, 50(11): 39-43. DOI: 10.14026/j.cnki.0253-9705.2022.11.014.  
JIANG Lingling, DING Shuang, LIU Lili, et al. Study on the cooperative promotion of “No Waste Cities” construction and carbon emission reduction [J]. Environmental Protection, 2022, 50 (11) : 39-43. DOI: 10.14026/j.cnki.0253-9705.2022.11.014.
- [2] 杜祥琬. 固废资源化利用是高质量发展的要素[J]. 人民论坛, 2022(9): 6-8. DOI: 10.3969/j.issn.1004-3381.2022.09.001.  
DU Xiangwan. Resource utilization of solid waste is the key factor of high-quality development [J]. People's Tribune, 2022 (9) : 6-8. DOI: 10.3969/j.issn.1004-3381.2022.09.001.
- [3] 中国公路学报编辑部. 道路固废资源化专刊导语[J]. 中国公路学报, 2021, 34(10): 封2. DOI: 10.3969/j.issn.1001-7372.2021.10.001.  
Editorial Department of China Journal of Highway and Transport. Introduction to the special issue of road solid waste recycling [J]. China Journal of Highway and Transport, 2021, 34 (10) : Front Cover 2. DOI: 10.3969/j.issn.1001-7372.2021.10.001.
- [4] LI Z X, GUO T T, CHEN Y Z, et al. Road performance analysis of cement stabilized coal gangue mixture [J]. Materials Research Express, 2021, 8 (12) : 125502. DOI: 10.1088/2053-1591/ac3e97.
- [5] 陈仁朋,王鹏飞,刘鹏,等. 路基煤矸石填料土-水特征曲线试验研究[J]. 岩土力学, 2020, 41(2): 372-378. DOI: 10.16285/j.rsm.2019.0372.  
CHEN Renpeng, WANG Pengfei, LIU Peng, et al. Experimental study on soil-water characteristic curves of subgrade coal gangue filler [J]. Rock and Soil Mechanics, 2020, 41(2): 372-378. DOI: 10.16285/j.rsm.2019.0372.
- [6] 胡雪松,唐朝晖,万佳文,等. 煤矸石换填膨胀土路基的沉降研究[J]. 地质科技情报, 2017, 36(6): 261-266. DOI: 10.19509/j.cnki.dzkq.2017.0630.  
HU Xuesong, TANG Chaohui, WAN Jiawen, et al. Replacing expansive soil with coal gangue in subgrade settlement [J]. Geological Science and Technology Information, 2017, 36(6): 261-266. DOI: 10.19509/j.cnki.dzkq.2017.0630.
- [7] 耿琳,唐浩,罗军,等. 掺煤矸石高速铁路路基填料冻胀特性试验研究[J]. 铁道建筑, 2019, 59(2): 41-45, 49. DOI: 10.3969/j.issn.1003-1995.2019.02.11.  
GENG Lin, TANG Hao, LUO Jun, et al. Experimental study on frost-heaving characteristics of high speed railway subgrade fillers mixed with coal gangue [J]. Railway Engineering, 2019, 59(2) : 41-45, 49. DOI: 10.3969/j.issn.1003-1995.2019.02.11.
- [8] YANG X Y, ZHANG Y, LI Z H. Embankment displacement PLAXIS simulation and microstructural behavior of treated-coal gangue [J]. Minerals, 2020, 10 (3) : 218. DOI: 10.3390/min10030218.
- [9] BUTERA S, CHRISTENSEN T H, ASTRUP T F. Composition and leaching of construction and demolition waste: inorganic elements and organic compounds [J]. Journal of Hazardous Materials, 2014, 276: 302-311. DOI: 10.1016/j.jhazmat.2014.05.033.
- [10] 孙亚乔,王旭东,段磊,等. 冻融作用下煤矸石重金属释放特性及潜在生态风险评价[J]. 环境工程, 2018, 36 (11) : 152-157. DOI: 10.13205/j. hjgc.201811030.  
SUN Yaqiao, WANG Xudong, DUAN Lei, et al. Release characteristics and potential ecological risk evaluation of heavy metals in coal gangues under freeze-thaw action [J]. Environmental Engineering, 2018, 36 (11) : 152-157. DOI: 10.13205/j. hjgc.201811030.
- [11] 邓仁健,周德如. 基于人工降雨作用下煤矸石路堤污染物释放研究[J]. 河北工程大学学报(自然科学版), 2009, 26(1): 66-68, 75. DOI: 10.3969/j.issn.1673-9469.2009.01.017.  
DENG Renjian, ZHOU Deru. Research on pollutant release from coal gangue under runoff leaching operation [J]. Journal of Hebei University of Engineering (Natural Science Edition), 2009, 26(1): 66-68, 75. DOI: 10.3969/j.issn.1673-9469.2009.01.017.
- [12] TANG Q, GU F, GAO Y F, et al. Desorption characteristics of Cr(III), Mn(II), and Ni(II) in contaminated soil using citric acid and citric acid-containing wastewater [J]. Soils and Foundations, 2018, 58 (1) : 50-64. DOI: 10.1016/j. sandf.2017.12.001.
- [13] QIANG T, HEEJONG K, KAZUTO E, et al. Size effect on lysimeter test evaluating the properties of construction and demolition waste leachate [J]. Soils and Foundations, 2015, 55 (4) : 720-736. DOI: 10.1016/j. sandf.2015.06.005.
- [14] TANG Q, LI L Y, ZHANG S, et al. Characterization of heavy metals in coal gangue-reclaimed soils from a coal mining area [J]. Journal of Geochemical Exploration, 2018, 186: 1-11. DOI: 10.1016/j. gexplo.2017.11.018.
- [15] LI J Y, WANG J M. Comprehensive utilization and environmental risks of coal gangue: a review [J]. Journal of Cleaner Production, 2019, 239: 117946. DOI: 10.1016/j. jclepro.2019.117946.
- [16] DASSEKPO J B M, NING J Q, ZHA X X. Potential solidification/stabilization of clay-waste using green geopolymer remediation technologies [J]. Process Safety and Environmental Protection, 2018, 117: 684-693.

- DOI: 10.1016/j.psep.2018.06.013.
- [17] WU H L, JIN F, NI J, et al. Engineering properties of vertical cutoff walls consisting of reactive magnesia-activated slag and bentonite: workability, strength, and hydraulic conductivity [J]. *Journal of Materials in Civil Engineering*, 2019, 31 (11): 04019263. DOI: 10.1061/(ASCE)mt.1943-5533.0002908.
- [18] WEIBEL G, EGGENBERGER U, KULIK D A, et al. Extraction of heavy metals from MSWI fly ash using hydrochloric acid and sodium chloride solution [J]. *Waste Management*, 2018, 76: 457-471. DOI: 10.1016/j.wasman.2018.03.022.
- [19] LIU S H, WEN K J, ARMWOOD C, et al. Enhancement of MICP-treated sandy soils against environmental deterioration [J]. *Journal of Materials in Civil Engineering*, 2019, 31 (12): 04019294. DOI: 10.1061/(ASCE)mt.1943-5533.0002959.
- [20] SIYAL AA, SHAMSUDDIN M R, KHAN M I, et al. A review on geopolymers as emerging materials for the adsorption of heavy metals and dyes [J]. *Journal of Environmental Management*, 2018, 224: 327-339. DOI: 10.1016/j.jenvman.2018.07.046.
- [21] 仇秀梅, 刘亚东, 严春杰, 等. 粉煤灰基地质聚合物固化  $Pb^{2+}$  及其高温稳定性研究 [J]. *硅酸盐通报*, 2019, 38(7): 2281-2287, 2294. DOI: 10.16552/j.cnki.issn1001-1625.2019.07.047.
- QIU Xiumei, LIU Yadong, YAN Chunjie, et al. Research on immobilization of  $Pb^{2+}$  using fly ash-based geopolymer and its thermostability [J]. *Bulletin of the Chinese Ceramic Society*, 2019, 38 (7): 2281-2287, 2294. DOI: 10.16552/j.cnki.issn1001-1625.2019.07.047.
- [22] 吕毅刚, 肖百豪, 韩伟威, 等. 激发剂含量及养护温度对偏高岭土基地聚物孔溶液 pH 的影响 [J]. *长沙理工大学学报(自然科学版)*, 2023, 20(5): 59-66. DOI: 10.19951/j.cnki.1672-9331.20220322001.
- LYU Yigang, XIAO Baihao, HAN Weiwei, et al. Effect of activator content and curing temperature on the pH of pore solution of metakaolin-based geopolymer [J]. *Journal of Changsha University of Science & Technology (Natural Science)*, 2023, 20(5): 59-66. DOI: 10.19951/j.cnki.1672-9331.20220322001.
- [23] 张永杰, 谭长江, 邓沛宇, 等. 地聚物-水泥固化土石混合体试验与固化机理研究 [J]. *长沙理工大学学报(自然科学版)*, 2023, 20(5): 49-58. DOI: 10.19951/j.cnki.1672-9331.20230330001.
- ZHANG Yongjie, TAN Changjiang, DENG Peiyu, et al. Study on test and curing mechanism of geopolymer-cement solidified soil-rock mixture [J]. *Journal of Changsha University of Science & Technology (Natural Science)*, 2023, 20(5): 49-58. DOI: 10.19951/j.cnki.1672-9331.20230330001.
- [24] ISHCENKO V. Heavy metals in municipal waste: the content and leaching ability by waste fraction [J]. *Journal of Environmental Science and Health, Part A, Toxic/Hazardous Substances & Environmental Engineering*, 2019, 54 (14): 1448-1456. DOI: 10.1080/10934529.2019.1655369.
- [25] HUA C Y, ZHOU G Z, YIN X, et al. Assessment of heavy metal in coal gangue: distribution, leaching characteristic and potential ecological risk [J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2018, 25 (32): 32321-32331. DOI: 10.1007/s11356-018-3118-4.
- [26] LI J M, HUANG Y L, SONG T Q, et al. Study on the migration characteristics of  $Cu^{2+}$  ions of backfill gangue in subsided area [J]. *Polish Journal of Environmental Studies*, 2018, 27(1): 145-154. DOI: 10.15244/pjoes/73905.
- [27] 黄奕勇, 田野, 张翔. COMSOL 多物理场仿真入门指南 [M]. 北京: 机械工业出版社, 2021.
- HUANG Yiyong, TIAN Ye, ZHANG Xiang. COMSOL introductory guide to multi-physical field simulation [M]. Beijing: China Machine Press, 2021.
- [28] IPPISCH O, VOGEL H J, BASTIAN P. Validity limits for the van Genuchten Mualem model and implications for parameter estimation and numerical simulation [J]. *Advances in Water Resources*, 2006, 29(12): 1780-1789. DOI: 10.1016/j.advwatres.2005.12.011.
- [29] MARSH A, HEATH A, PATUREAU P, et al. Alkali activation behaviour of un-calcined montmorillonite and illite clay minerals [J]. *Applied Clay Science*, 2018, 166: 250-261. DOI: 10.1016/j.clay.2018.09.011.
- [30] WANG Y G, HAN F L, MU J Q. Solidification/stabilization mechanism of  $Pb(II)$ ,  $Cd(II)$ ,  $Mn(II)$  and  $Cr(III)$  in fly ash based geopolymers [J]. *Construction and Building Materials*, 2018, 160: 818-827. DOI: 10.1016/j.conbuildmat.2017.12.006.
- [31] 刘龙武, 谢尧, 宁泽宇, 等. 膨胀土微波干燥曲线特性研究 [J]. *交通科学与工程*, 2023, 39(1): 1-6, 25. DOI: 10.16544/j.cnki.cn43-1494/u.20210601001.
- LIU Longwu, XIE Yao, NING Zeyu, et al. Study on characteristics of microwave drying curve of expansive soil [J]. *Journal of Transport Science and Engineering*, 2023, 39 (1): 1-6, 25. DOI: 10.16544/j.cnki.cn43-1494/u.20210601001.

(责任编辑:彭三军;校对:赵冰)