

# 非饱和土中镉离子传输模型参数反演

崔凯<sup>1</sup>, 李宝元<sup>2</sup>, 李兴斯<sup>2</sup>, 杨国伟<sup>1</sup>

(1. 中国科学院力学研究所高温气体动力学重点实验室, 北京 100080; 2. 大连理工大学工程力学系, 辽宁 大连 116023)

**摘要:** 使用自行设计的真空实验装置, 采用一维实验室土柱实验方法在不同实验条件下进行了15组实验, 并基于实验所得的穿透曲线, 使用梯度正则化方法反演得到了镉离子在8种葡萄牙土样和1种比利时土样中相应的传输模型参数。同时通过数值模拟实验验证了梯度正则化方法的有效性和可靠性, 进而证明所得结果是有效的。

**关键词:** 镉; 非饱和土; 土柱实验; 参数反演; 梯度正则化法

**中图分类号:** S152.72; O614.242 **文献标识码:** A **文章编号:** 1001-6791(2004)06-0700-06

溶质在土壤及地下水中的迁移、转化是一个十分复杂的物理化学过程, 其数学模型可表达为耦合不同效应的对流扩散方程(CDE)<sup>[1]</sup>。在该模型中, 某些相关参数的数值很难直接测得, 一般运用最优化方法, 通过迭代求解使得计算结果与实验结果最接近, 从而得到参数的最优估计值。对于土壤和地下水中溶质迁移的参数反演问题, 通过一维实验室土柱实验获得穿透曲线(Break Through Curves, BTCs), 进而根据拟合穿透曲线优化确定相关参数的方法经常使用。如 Inoue 等<sup>[2]</sup>采用 30 cm 长的土柱进行实验, 并使用 Levenberg-Marquardt 方法确定了 NaCl 在砂土中传输的水动力学参数和溶质传输参数; Kamra 等<sup>[3]</sup>采用多个长 10 cm 的小土柱进行实验, 并采用 Parker 和 van Genuchten 基于非线性最小二乘法开发出的曲线拟合程序 CFXFIT<sup>[4]</sup>, 通过拟合穿透曲线得到溴化物及杀虫剂在德国北部两种土样中迁移转化的相关参数等。

本文研究的问题基于欧洲共同体资助的项目, 针对 8 种来自葡萄牙及 1 种来自比利时的砂质土样, 研究不同条件下镉离子在非饱和土壤中的传输规律并确定相关参数。根据一维实验室土柱实验获得穿透曲线, 反演方法采用梯度正则化法<sup>[5]</sup>, 反演方法的有效性和抵抗观测噪声能力通过数值模拟实验的方法来验证。针对 9 种土样, 进行了 15 组实验, 并根据实验结果反演得到镉离子在不同条件下及不同土样中的传输参数。

## 1 非饱和土中镉离子传输的数学模型

镉离子在非饱和土中的传输方程为<sup>[7,8]</sup>:

$$K_{cd} \frac{\partial C}{\partial t} + \frac{\partial(C)}{\partial t} + \frac{\partial S}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z} \left( \frac{\partial C}{\partial z} \right) - \frac{\partial(qC)}{\partial z} \quad (1)$$

$$\frac{\partial S}{\partial t} = [K(S_0 - S)C - S] \quad (2)$$

式中  $C$  为待求的污染物浓度;  $K_{cd}$  为吸附系数;  $\rho$  为干土样的密度,  $g/cm^3$ ;  $\theta$  为饱和度(体积含水率);  $D$  为纵向弥散度;  $v$  为液相流速,  $cm/h$ ;  $q$  为达西流速,  $cm/h$ ;  $S$  为吸附浓度;  $\alpha$  为交换系数;  $K$  为分配系数;  $S_0$  为固相中最大吸附浓度。

为计算方便, 以实验时土柱上方的入流镉溶液的原始浓度  $C_0$  作为浓度  $C$  的特征量, 以最大吸附浓度  $S_0$

收稿日期: 2003-08-06; 修订日期: 2003-11-20

基金项目: 欧共体国际科学合作基金资助项目 (C \* CT94-0014)

作者简介: 崔凯(1973-), 男, 辽宁丹东人, 博士后, 主要从事土壤中污染物传输参数反演问题、非线性反问题求解、飞行器优化设计等研究。E-mail: karlcui@hotmail.com

作为吸附浓度  $s$  的特征量, 对上述方程做了量纲一的处理, 量纲一的吸附浓度以  $s_2$  表示, 量纲一的浓度仍以  $C$  表示。综合考虑实验中相应的初始及边界条件, 可最终得到镉离子在非饱和土中迁移的控制方程:

$$K_{Cd} \frac{\partial C}{\partial t} + \frac{\partial(C)}{\partial t} + K_A (1 - S_2) C - K_B S_2 = \frac{\partial}{\partial z} \left[ \frac{\partial C}{\partial z} \right] - \frac{\partial(qC)}{\partial z} \quad (0 \leq z \leq L) \quad (3)$$

$$\frac{\partial S_2}{\partial t} = K_A (1 - S_2) C - K_B S_2 \quad (0 \leq z \leq L) \quad (4)$$

$$C(0, t) = \begin{cases} 1 & 0 \leq t \leq t_1 \\ 0 & t_1 < t \leq t_1 + t_2 \end{cases} \quad (z = 0) \quad (5)$$

$$\frac{\partial C(L, t)}{\partial z} = 0 \quad (z = L) \quad (6)$$

$$C(z, 0) = 0 \quad (0 \leq z \leq L) \quad (7)$$

式中  $t_1$  为加污时间, h;  $t_2$  为加水清洗时间, h;  $L$  为土柱长度, cm;  $K_A$  为沉淀速度;  $K_B$  为裂解速度;  $K_{Cd}$  为相对最大沉淀量, 均为量纲一参数。其中纵向弥散度、吸附系数  $K_{Cd}$ 、沉淀速度  $K_A$ 、裂解速度  $K_B$  和相对最大沉淀量  $K_{Cd}$  为待反演参数。

## 2 梯度正则化法及数值算例

通常, 反问题都是不适定的, 即解的存在性、唯一性及求解过程的稳定性很难保证。正则化方法<sup>[6]</sup>是求解不适定问题的一种有效方法。梯度正则化算法 (GR)<sup>[5]</sup>属于迭代正则化方法, 主要适用于求解非线性不适定问题, 自提出以来, 在声波方程反演<sup>[9]</sup>、材料物性参数识别<sup>[10]</sup>等许多领域都得到了成功的应用。

将待反演参数以矢量  $\tilde{p}$  表示, 即  $\tilde{p} = \{ K_{Cd}, K_A, K_B, \}$ 。给定参数  $\tilde{p}$  的数值后, 由式(3)~式(7)可计算求得流出端溶液浓度分布  $\tilde{C}(\tilde{p})$ 。若将实验所得的流出端溶液浓度分布记为  $\tilde{C}_E$ , 将实验值  $\tilde{C}_E$  在计算值  $\tilde{C}(\tilde{p})$  附近作一阶 Taylor 展开, 略去高阶小量后, 可得:

$$\tilde{C}_E = \tilde{C}(\tilde{p}_0) + G(\tilde{p} - \tilde{p}_0) \quad (8)$$

式中  $\tilde{p}_0$  为求解的初始值,  $G = \partial \tilde{C}(\tilde{p}) / \partial \tilde{p}|_{\tilde{p}=\tilde{p}_0}$ 。为简便表达, 令  $\tilde{p} = \tilde{p} - \tilde{p}_0$ , 代入式(8), 并在两边同乘以  $G$  的转置, 以解决  $G$  一般为非方阵的问题。引入正则项并整理后可得梯度正则化法的迭代公式为

$$\begin{cases} (G^T G + I) \cdot \tilde{p} = G^T [\tilde{C}_E - \tilde{C}(\tilde{p}_n)] \\ \tilde{p}_{n+1} = \tilde{p}_n + \tilde{p} \end{cases} \quad (9)$$

式中  $I$  为单位阵;  $\alpha$  为正则化参数。

对于实际问题而言, 观测量不可避免地会带有观测噪声, 即

$$\tilde{C}_E = \tilde{C}_E^* + \epsilon \quad (10)$$

式中  $\epsilon$  为观测噪声;  $\tilde{C}_E^*$  为不含噪声的观测真值。

将式(10)代入式(9), 同时对矩阵  $G$  做奇异值分解 (SVD), 并代入式(9), 整理后可得:

$$\tilde{p} = \sum_{i=1}^m \frac{s_i u_i^T \tilde{C}}{s_i^2 + \alpha} - \sum_{i=1}^m \frac{s_i u_i^T}{s_i^2 + \alpha} \epsilon \quad (11)$$

式中  $m$  为方阵  $G^T G$  的秩;  $s_i$  为按照下降顺序排列的奇异值;  $u_i$  及  $v_i$  分别为第  $i$  个左、右奇异向量;  $\tilde{C} = \tilde{C}(\tilde{p}) - \tilde{C}_E^*$ 。

由于反问题具有不适定性, 奇异值  $s_i$  的某些分量会非常小, 乃至趋近于零。从式(11)可知, 当考虑观测噪声时, 若将正则化参数选取为一个合适的值, 就可以在在一定程度上达到抑制观测噪声的目的。参考文献[10], 基于信赖域方法的思路选取正则化参数。

梯度正则化法的有效性通过如下数值模拟试验验证: 在其他方程参数确定的条件下, 首先给定一组参数  $\tilde{p}$

的数值(参数真值),解得相应的穿透曲线后加入一定强度的随机噪声,并以加入噪声后的穿透曲线作为模拟实验结果,采用梯度正则化法进行反演计算。求解初值取为 $[0.5, 0.5, 0.5, 0.5, 0.5]$ ,计算结果如表1所示。考虑观测噪声时反演得到的穿透曲线与模拟实验得到的穿透曲线拟合情况如图1所示。

表1 模拟反演计算结果

Table 1 Simulated numerical inversion results

误差强度	参数真值					反演结果					迭代次数
	$K_{cd}$	$K_A$	$K_B$	$K_C$	$K_D$	$K_{cd}$	$K_A$	$K_B$	$K_C$	$K_D$	
0%	0.6835	0.1154	1.9298	0.0026	0.6037	0.6835	0.1154	1.9298	0.0026	0.6037	19
2%	0.6835	0.1154	1.9298	0.0026	0.6037	0.7164	0.1191	1.9094	0.0025	0.6063	40
4%	0.6835	0.1154	1.9298	0.0026	0.6037	0.7125	0.1157	1.9725	0.0032	0.6050	21

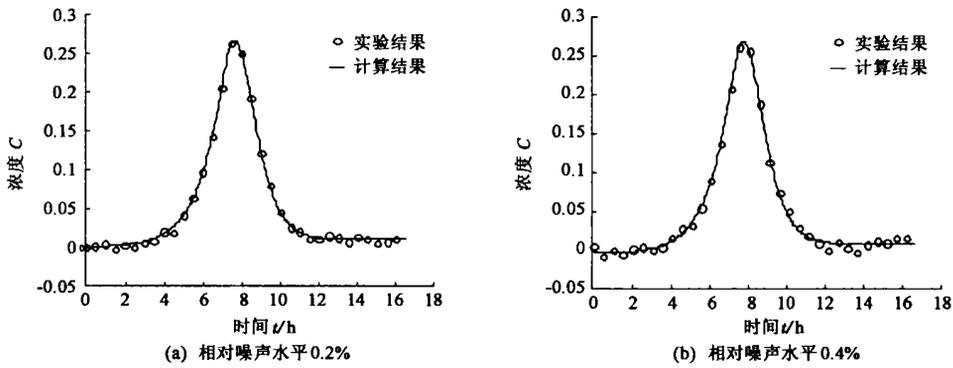


图1 模拟实验穿透曲线与反演穿透曲线的拟合

Fig.1 Simulating experimental BTCs and inversed results

以上结果表明了梯度正则化法是一种有效的反演方法,即使在存在一定强度观测噪声的情况下,使用该方法仍能反演得到较准确的结果。

### 3 实验过程

实验数据通过一维实验室土柱实验得到。在本文的实验中,设计了一套真空装置(图2),使土柱底端维持一定的负压,土柱上端始终保持与大气相通,依靠土柱两端的空气压力差使污染物溶液产生强制流动。同时通过计算机控制的真空系统作用使得土柱两端维持恒定的压差,进而使流动保持相对恒定的速度。这样不但可以在保证实验准确性和精度的条件下,缩短实验时间,还可以在土壤含水率较低的条件,保证实验顺利进行,并得到准确结果。

实验装置主要包括3部分,即真空控制系统、土柱渗流系统和供水系统。流出液浓度测试由岛津 AA646 型原子吸收分光光度计测定。真空控制系统主要包括微机、高分辨率 A/D 板、数字 I/O 绝缘板、开关盒、压力传感器、压力计、真空泵和缓冲罐等。该部分的主要作用为通过微机控制,使得土柱下方保持恒定的真空度,以产生土柱中的强制流动。渗流系统主要由土样盒、集水器及阀门组成。该部分用以盛放土样并收集土样中流出的溶液。供水系统主要包括蠕动泵及精密的输液管路,用于从土样上方为土样提供入流溶液。实验过程如下:

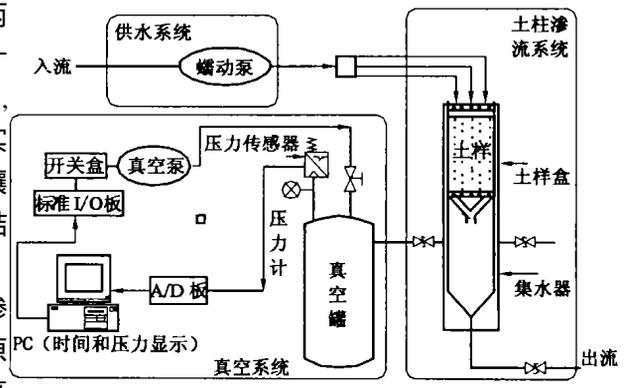


图2 土柱实验装置示意图

Fig.2 Experimental set-up for soil column experiment

(1) 溶液的配制和土柱的准备 实验溶液为给定浓度和 pH 值  $Cd(NO_3)_2$  的溶液,土柱高度为 8~10 cm 左右。将装填好的土柱用 pH 值与实验所用溶液的 pH 值相同的蒸馏水饱和和浸泡 24 h。实验开始前,调整好蠕动泵转速及真空系统的真空度,以保证土柱上方入流溶液的流量固定,并保证土样两侧压差固定。入流溶液首先采用蒸馏水,供液时间持续 10 h 以上,以预先造成土柱的定常渗流及定常饱和度。

(2) 实验步骤 实验开始时,保持土柱上方供液流量及土柱两侧的压差不变,以配制好的镉溶液代替蒸馏水做为入流溶液,进行污染阶段的实验。此阶段中定时从集水器中收集流出液,装入试管留待检验。经过一定的实验时间后,入流溶液用配制好的一定 pH 值的蒸馏水取代镉溶液,进行清洗阶段的实验,仍在相同的时间间隔下收集流出液,装入试管留待检验。经过相同的实验时间后,停止实验。化验流出液浓度从而得到实验的穿透曲线。

(3) 土样体积含水率的测定 将实验土柱取出并切成几小块,盛入小铝盒中,称量此时每小块土的重量。然后,将实验土和铝盒一起放入烘箱中,在温度 100 下烘干 24 h,取出土样并称量其重量,由土样前后重量的差值可算得每块土样的体积含水率。进而可以得到土样相应的平均体积含水率。

### 4 实验结果及参数反演结果

实验土样为 8 种来自于葡萄牙(土样 A1-A4, C1-C4)和 1 种来自于比利时(土样 B)的砂质土样。在不同条件下实验共进行了 15 组。实验所用土柱直径为 3.464 cm。各组试验条件见表 2。其中:  $L$  为土柱高度,  $pH$  为溶液的 pH 值,  $P$  为土柱两端的压力差,  $C$  为镉溶液的原始浓度,  $T_1$  为加镉溶液的时间,  $T_2$  为加蒸馏水清洗的时间,  $\theta$  为土样的平均含水率,  $\rho_s$  为土样的真密度,  $q$  为达西流速。

表 2 实验条件

Table 2 Experimental conditions

实验组号	土样	$L/cm$	pH	$P/(atm)$	$C/(mg \cdot m^{-3})$	$T_1/h$	$T_2/h$	$\theta$	$\rho_s/(cm \cdot g^{-3})$	$q/(cm \cdot h^{-1})$
1	C2	8.0	2.0	0.2	2550	6.0	6.0	0.2375	1.7809	1.5649
2	C2	8.0	6.0	0.2	12406	8.0	8.0	0.2141	1.7924	0.9796
3	C2	8.0	4.0	0.2	12886	6.5	5.5	0.2368	1.7864	1.4291
4	C2	7.9	2.6	0.2	12850	6.5	5.5	0.2084	1.7476	1.3557
5	C1	8.0	6.0	0.2	23043	6.0	6.0	0.2650	1.8573	1.4236
6	C3	8.0	6.0	0.3	23043	12.0	12.0	0.2327	1.8235	0.5964
7	C2	8.0	6.0	0.1	23043	6.0	6.0	0.2692	1.7519	1.3726
8	C4	7.5	6.0	0.3	23043	9.0	9.0	0.2203	1.8673	0.9717
9	A4	10.0	6.0	0.05	6939.6	3.25	2.75	0.1977	1.7639	2.3130
10	A1	10.0	6.0	0.05	6939.6	3.0	3.0	0.2005	1.8399	2.9307
11	A3	10.0	6.0	0.05	6939.6	3.0	3.0	0.2572	1.8190	2.9426
12	A2	10.0	6.0	0.05	6939.6	3.0	3.0	0.2401	1.6554	2.9500
13	A2	10.0	3.6	0.05	6883.3	3.0	3.0	0.1994	1.7810	2.8077
14	A3	10.0	2.0	0.05	7051.5	3.0	3.0	0.2379	1.7204	2.9059
15	B	2.5	2.0	0.20	13193	20.8	28.3	0.4912	1.8724	0.1037

采用梯度正则化法根据相应的实验结果所反演得到的镉在不同土样中的传输参数如表 3 所示。

表 3 参数反演结果

Table 3 Numerical inversion results for experimental BTCs

组号	$K_{dl}$	$K_A$	$K_B$	组号	$K_{dl}$	$K_A$	$K_B$				
1	0.4705	0.1074	2.7182	0.0038	0.5706	9	0.8716	0.0857	3.1276	0.0263	0.2322
2	0.4593	0.0949	1.5590	0.0010	0.4955	10	1.1414	0.0695	6.4981	0.0043	0.4798
3	0.1901	0.0997	2.3297	0.0204	0.4901	11	0.6223	0.0911	3.6665	0.0025	0.4743
4	0.2312	0.0969	1.5664	0.0203	0.4461	12	0.7156	0.1076	4.7487	0.0143	0.5408
5	0.0963	0.0813	2.4124	0.0001	0.1242	13	0.4661	0.0759	3.2386	0.0086	0.4724
6	0.1790	0.0910	2.1520	0.0131	0.0900	14	0.0001	0.0921	5.9735	0.3195	0.1459
7	0.2691	0.0728	2.9524	0.0029	0.4106	15	8.6158	3.6147	0.6981	0.0044	3.5172
8	0.0961	0.1148	2.2316	0.0498	0.0893						

根据反演结果计算所得的穿透曲线与实验穿透曲线之间的误差如表4所示。其中  $E_2$  由下式求得：

$$E_2 = \frac{\sqrt{\sum_{i=1}^n [C_i(\tilde{p}^*) - C_{Ei}]^2}}{n} \quad (12)$$

式中  $\tilde{p}^*$  为反演得到的参数值； $C_i(\tilde{p}^*)$  为在第  $i$  个实验点根据反演结果  $\tilde{p}^*$  计算所得的浓度结果； $C_{Ei}$  为第  $i$  个实验点所得的实验观测结果浓度； $n$  为观测点个数。

表4 反演计算结果与实验结果的误差

Table 4 Errors between inversion results and experimental results

实验号	1	2	3	4	5	6	7	8
$E_2$	0.0024	0.0017	0.0042	0.0024	0.0044	0.0386	0.0042	0.0149
实验号	9	10	11	12	13	14	15	
$E_2$	0.0044	0.0012	$6.60 \times 10^{-4}$	$6.52 \times 10^{-4}$	0.0013	0.0233	0.0020	

根据表4的结果，并综合考虑数值模拟实验结果及观测噪声，可以看出，本文所得的结果是可靠的。

## 5 结 论

本文采用真空装置，对镉离子在不同非饱和土样中的传输过程进行了实验研究，并在实验结果的基础上，利用梯度正则化方法反演得到了相应的传输参数。依据反演值所得的结果与实际实验结果能够很好的拟合，这说明本文所得的结果是可信的，该结果可为相关研究提供参考。

### 参考文献：

- [1] Nielsen D R, Van Genuchten M Th, Biggar J W. Water flow and solute transport process in the unsaturated zone[J]. Water Resources Research, 1986, 22(9) : 895 - 1085.
- [2] Inoue M, Simunek J, Shiozawa S, et al. Simultaneous estimation of soil hydraulic and solute transport parameters from transient infiltration experiments[J]. Advances in Water Resources, 2000, 23 : 677 - 688.
- [3] Kamra S K, Lennartz B, Van Genuchten M Th, et al. Evaluating non-equilibrium solute transport in small soil columns[J]. Journal of Contaminant Hydrology, 2001, 48 : 189 - 212.
- [4] Parker J C, Van Genuchten M Th. Determining transport parameters from laboratory and field tracer experiments[R]. Vir Agric Ex Stat Bull 84 - 3. Vir Pply Inst And State Univ, Blacksburg 1984.
- [5] 张文飞,唐立民. 地震勘探中波动方程反问题的梯度-正则化方法[D]. 大连:大连理工大学,1988.
- [6] Tikhonov A, Arsenin V. Solutions of ill-posed problems[M]. John Wiley & Sons, Inc. 1977.
- [7] Pang Liping, Murray E Close. Non-equilibrium transport of Cd in alluvial gravels[J]. Journal of Contaminant Hydrology, 1999, 36 : 185 - 206.
- [8] Nkedi-Kizza P J, Biggar W, Selim H M, et al. On the equivalence of two conceptual models for describing ion exchange during transport through an aggregated oxisol[J]. Water Resources Research, 1984, 20(8) : 1123 - 1130.
- [9] 李晓江, 张文飞. 声波方程数值反演的 GR 方法[J]. 石油地球物理勘探, 1995, 30(2) : 201 - 206.
- [10] 刘迎曦, 王登刚, 张家良, 等. 材料物性参数识别的梯度正则化方法[J]. 计算力学学报, 2000, 17(1) : 69 - 75.

## Model parameter inversion for cadmium ion transport through unsaturated soils\*

CUI Kai<sup>1</sup>, LI Bao-yuan<sup>2</sup>, LI Xing-si<sup>2</sup>, YANG Guo-wei<sup>1</sup>

(1. Key Laboratory of High Temperature Gas Dynamics, Institute of Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100080, China;

2. Department of Engineering Mechanics, Dalian University of Technology, Dalian 116023, China)

**Abstract:** The procedure of cadmium ion transport through unsaturated soils can be described by the convection-diffusion equation, coupled with non-equilibrium sorption effect. The undetermined model parameters in the dimensionless governing equation include the longitudinal dispersivity, the sorption distribution coefficient, the precipitating rate, the dissolving rate and the maximum precipitation. This paper aims at inverting parameter values of the parameter mentioned above for cadmium ion transport in 8 Portugal soils samples and 1 Belgium soils sample under different experimental conditions. Experimental results of 15 groups are obtained in virtue of the laboratory soil column tests for 9 soils samples mentioned above by using self-designed experimental apparatus under different experimental condition. The gradient regularization method is adopted as the inversion method. Based on the experimental results (BTCs), the corresponding model parameters for each experiment are identified by the numerical inversion. The validity and reliability of the gradient regularization method is verified by the numerical simulated experimental results. The computational results confirm the veracity of results presented in this paper.

**Key words:** cadmium; unsaturated soils; laboratory soil column tests; parameter inversion; gradient regularization

## 启 事

为扩大作者论文的学术交流,本刊自2004年9月起,加入了台湾华艺中文电子期刊服务——思博网(CEPS)。故凡被本刊录用的文章,均视为其文稿刊登后可供国内外文摘刊物或数据库收录、转载并上网发行,其作者文章著作权使用费已与稿酬一次付清,不再另计,作者如有异议,请来稿时予以说明。

华艺中文电子期刊服务——思博网是目前台湾地区最大的期刊全文数据库,在上海等地设有办事机构。CEPS除收录台湾地区300余种核心期刊的全文外,还广泛收录大陆等地的核心期刊,其访问地址为:www.ceps.com.tw。自此,读者可以通过这一网址检索。

华艺中文电子期刊服务(CEPS)目前除提供免费网上检索目次和摘要,并且每日动态更新期刊全文。将来还将免费提供给本刊作者“期刊引文频次分析检索与作者文章引用统计分析”等数据资料。

特此说明

《水科学进展》编辑部

\* The project is supported by the International Scientific Cooperation of Commission of the European Communities (CII \*CT94-0014).