

DOI:10.16030/j.cnki.issn.1000-3665.201902037

# 基于 iTOUGH2 的生物降解模型全局敏感性时变分析

杜建雯, 施小清, 徐红霞, 吴吉春

(南京大学地球科学与工程学院/表生地球化学教育部重点实验室, 江苏 南京 210023)

**摘要:** Monod 动力学方程被广泛应用于描述地下水中有有机污染物微生物降解过程。由于 Monod 方程参数众多, 采用敏感性分析可识别参数的重要程度, 有助于参数反演和理解微生物降解过程。已有敏感性分析一般仅关注敏感性的整体平均值及其随空间的变化, 很少考虑敏感性随时间的变化。以一个好氧生物降解甲苯的一维砂柱试验为例, 基于 iTOUGH2 采用 Morris 法和 Sobol' 法对降解过程参数及试验条件参数开展全局敏感性时变分析。研究结果发现, 由于微生物好氧降解能力随时间先提高后减弱, 导致降解过程参数的敏感性相应地随时间先增加后减少。最大基质降解速率  $k$  的 Sobol' 一阶敏感性指数在试验早期小于 10%, 中期最大为 62%, 晚期减至 49%。参数间的相互作用效应随时间先增大后减小。 $k$  的参数间相互作用效应根据 Sobol' 总敏感性指数与一阶敏感性指数的差值表征, 该值在试验早期和晚期近乎为 0, 中期达 6%。通过敏感性以及参数间相互作用效应的时变分析发现, 试验晚期的观测数据对模型过程参数的敏感性较大以及相互作用效应较小, 因此选择试验晚期数据更有利于降解过程参数的反演识别。同时由于试验条件参数在早期敏感性较大, 为避免试验条件控制不当导致的观测数据误差增大, 试验早期应较中期和晚期更严格控制试验条件。

**关键词:** 全局敏感性分析; 敏感性时变分析; 好氧生物降解; 相互作用效应; 参数反演; 试验设计

中图分类号: P641.3

文献标识码: A

文章编号: 1000-3665(2020)02-0035-08

## Temporal variation of global sensitivity analysis for biodegradation model using iTOUGH2

DU Jianwen, SHI Xiaoqing, XU Hongxia, WU Jichun

(Key Laboratory of Surficial Geochemistry, Ministry of Education/ School of Earth Sciences and Engineering, Nanjing University, Nanjing, Jiangsu 210023, China)

**Abstract:** Monod kinetic equation is widely used to describe the microbial biodegradation process of organic groundwater contaminants. Due to a large number of parameters in the Monod equation, sensitivity analysis can be used to identify the importance of the parameters, which is helpful for parameter inversion and microbial biodegradation process understanding. However, most existing sensitivity analyses only focus on average sensitivity value and space variation, seldom considering sensitivity over time. In this paper, a one-dimensional sand-column experiment of toluene aerobic biodegradation was taken as an example. Based on iTOUGH2 global sensitivity analysis (GSA), we used Morris and Sobol' methods to analyze degradation process parameters and experimental parameters changing with time. The results show that the aerobic degradation ability of microbes first increases and then decreases over time, which leads to the same trend for the degradation process parameters sensitivity. Sobol' Index of the maximum substrate degradation rate  $k$  varies from less than 10% at early-stage to at most 62% at middle-stage and decreases to 49% at late-stage. The parameter interaction effect also varies similarly to sensitivity. We used the differences between Sobol'

收稿日期: 2019-02-27; 修订日期: 2019-11-02

基金项目: 国家自然科学基金项目(41730856;41672229)

第一作者: 杜建雯(1997-), 女, 硕士研究生, 主要从事水文模型数值模拟。E-mail: MG1829055@smail.nju.edu.cn

通讯作者: 施小清(1979-), 男, 教授, 主要从事地下水数值模拟。E-mail: shixq@nju.edu.cn

Total Sensitivity Index and Sobol' Index to describe parameter  $k$ 's parameter interaction effect, which in this case are both at around 0% for early and late stages and rises to 6% at middle-stage. Through these time-varying analyses of sensitivity and parameter interaction effect, we find that observations in the late-stage of the experiment are more sensitive to degradation process parameters and the parameter interaction effect in the late-stage is smaller, so selecting the observations in the late-stage is more beneficial for the degradation process parameters inversion. Besides, to avoid the possible increase of observations error, the one caused by improper experimental control, the experimental conditions should be more strictly controlled in the early-stage than in the middle and late stages because the experimental parameters are more sensitive in the early-stage.

**Keywords:** global sensitivity analysis (GSA); sensitivity time-varying analysis; aerobic biodegradation; interaction effect; parameter inversion; experiment design

随着石油化工产业的迅速发展,大量石化液体产品在其贮存及运输过程中通过土壤进入地下水环境,这种化工产品多以非水相液体(Non-Aqueous Phase Liquids,简称 NAPLs)的形式存在于地下水环境中,毒性大且难去除,对生态环境和人类健康造成巨大的威胁<sup>[1]</sup>。生物修复治理技术是地下水有机污染物治理方法之一,研究始于 20 世纪 80 年代,并不断发展<sup>[2]</sup>。其中原位生物修复技术是一种无需将地下水抽出,直接利用微生物好氧或厌氧降解有毒有机物的方法<sup>[3]</sup>,已被普遍认为是具有发展潜力的地下水绿色修复技术,具有成本低,安全高效,无二次污染等优点<sup>[4]</sup>。

目前常采用 Monod 动力学方程<sup>[5-6]</sup>描述地下水中非水相有机污染物微生物降解过程。Monod 模型考虑基质、电子受体以及营养物质对基质吸收率的共同影响,涉及参数较多,包括浓度、半饱和常数以及各种抑制因子<sup>[7]</sup>,因此基于观测数据反演参数存在较大的不确定性。采用敏感性分析可以识别出重要参数,降低参数估计维数,利于参数反演<sup>[8-14]</sup>。

敏感性分析包括局部敏感性分析<sup>[15]</sup>和全局敏感性分析<sup>[16-18]</sup>,已被广泛应用于水文地质和工程地质等多个领域<sup>[19-28]</sup>。局部敏感性分析方法基于响应变量对参数的局部导数评价敏感性,计算量较小,但易受参数的空间位置影响,且不能考虑参数间的相互作用。对于高度非线性、参数间存在相关性的复杂系统,会因没有考虑参数间的关联性而低估不确定性<sup>[29]</sup>。全局敏感性分析方法则相对具有更多优势,它在整个参数空间进行取样,可更加全面地反映参数变化对响应变量的影响,并且在参数间存在非线性和相互作用的情况下也可提供可靠的结果<sup>[15-18]</sup>。

目前常用的全局敏感性分析方法为 Morris 法<sup>[30]</sup>和 Sobol' 法<sup>[31]</sup>。前者对参数的相对敏感性大小进行评价,是一种定性分析方法;后者可量化评价各参数对

输出不确定性的单独贡献以及共同影响。但 Sobol' 法较 Morris 法所需样本数量更多,通常先采用 Morris 法筛选出敏感性较高的参数,再采用 Sobol' 法进一步定量分析<sup>[12-14]</sup>。

然而,目前开展的敏感性分析一般只关注敏感性的一个整体平均情况和随空间的变化<sup>[8-13,19-25]</sup>,敏感性随时间变化研究较少<sup>[26-28]</sup>。但是分析不同时间段的敏感性情况,对全面识别参数敏感性,进而指导参数反演和决策优化都有着重要意义。例如,罗跃<sup>[26]</sup>等对不同变形阶段和参数区间的地面沉降模型参数进行全局敏感性分析,发现模型可在不同阶段分别进行参数反演;Bea 等<sup>[27]</sup>通过分析反应运移模型参数的全局敏感性时空变化,更好地理解 and 评估了污染场地修复策略随时间的变化(即在修复的不同阶段可采用不同的修复策略)。此外研究敏感性在时间维度上的变化还可以帮助理解研究过程。例如,Valsala 等<sup>[28]</sup>通过分析流量和吸附参数的敏感性随时间变化,揭示了微生物和胶体对含水层中溶解苯类组分浓度分布的影响过程。因此有必要开展敏感性随时间变化的研究,全面分析生物降解模型参数的敏感性,更好地理解生物降解过程并指导参数反演。

本文以甲苯好氧生物降解的一维砂柱试验为研究对象,基于 TMVOCBio 软件模拟生物降解过程。以砂柱右端甲苯浓度为响应变量,采用 iTOUGH2<sup>[32]</sup>反演软件进行 Morris 法和 Sobol' 法全局敏感性时变分析。研究结果有助于深入理解 Monod 模型所描述的好氧生物降解过程,并为相关试验设计优化提供参考。

## 1 研究方法

### 1.1 概念模型

基于 Macquarrie 等<sup>[33]</sup>为理解地下水有机污染物生物降解过程开展的一维水平砂柱试验(图 1)。

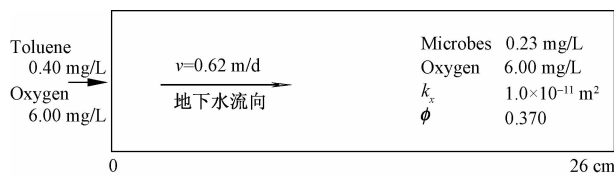


图 1 一维砂柱好氧生物降解概念模型示意图

Fig.1 Schematic diagram for conceptual model of the aerobic biodegradation in one-dimensional sand-column

假定在一个长为 26 cm 的砂柱中进行为期 53 d 的好氧生物降解试验,砂柱中初始微生物 0.23 mg/L、氧气 6 mg/L、甲苯 0 mg/L,在砂柱左端以 0.62 m/d 的流速连续注入溶有甲苯(浓度为 0.4 mg/L)和氧气(浓度为 6 mg/L)的水溶液,在右端观测流出液中的甲苯浓度。

将该一维模型水平剖分为 68 个网格单元,除左右两端分别有 2 个、3 个网格精细离散外,其余 63 个网格均离散为 0.4 cm 长。模型两端为第二类流量边界,相关参数值基于 Macquarrie 等<sup>[33]</sup>的砂柱试验参数设定(表 1)。

表 1 模型降解过程参数及试验条件参数取值<sup>[33]</sup>

Table 1 Biodegradational and experimental parameters value

模型参数	取值
甲苯 Toluene	
输入浓度/(kg·L <sup>-1</sup> )	4.0 × 10 <sup>-7</sup>
总浓度背景值/(kg·L <sup>-1</sup> )	0.00
分子扩散系数 D <sub>a-tol</sub> /(m <sup>2</sup> ·s <sup>-1</sup> )	8.383 5 × 10 <sup>-10</sup>
单位最大降解速率 k/(kg·(kg·s) <sup>-1</sup> )	5.706 × 10 <sup>-6</sup>
半饱和常数 K <sub>s</sub> /(kg·L <sup>-1</sup> )	6.546 × 10 <sup>-7</sup>
氧气 Oxygen	
输入浓度/(kg·L <sup>-1</sup> )	6.0 × 10 <sup>-6</sup>
总浓度背景值/(kg·L <sup>-1</sup> )	6.0 × 10 <sup>-6</sup>
分子扩散系数 D <sub>a-o<sub>2</sub></sub> /(m <sup>2</sup> ·s <sup>-1</sup> )	1.757 3 × 10 <sup>-9</sup>
利用率 X	9
半饱和常数 K <sub>E</sub> /(kg·L <sup>-1</sup> )	1.0 × 10 <sup>-7</sup>
微生物 Microbes	
输入浓度/(mg·(1 000 cm <sup>3</sup> ) <sup>-1</sup> )	0.00
总浓度背景值/(mg·(1 000 cm <sup>3</sup> ) <sup>-1</sup> )	0.23
分子扩散系数 D <sub>a-mic</sub> /(m <sup>2</sup> ·s <sup>-1</sup> )	0.00
生长系数 Y	0.426
衰亡速率系数 d/s <sup>-1</sup>	8.831 × 10 <sup>-18</sup>
试验条件参数	
孔隙度 φ	0.37
水平绝对渗透率 k <sub>x</sub> /m <sup>2</sup>	1.0 × 10 <sup>-11</sup>
达西流速 v/(m·d <sup>-1</sup> )	0.62
水的注入速率 r <sub>wat</sub> /(kg·s <sup>-1</sup> )	2.650 3 × 10 <sup>-3</sup>
甲苯的注入速率 r <sub>tol</sub> /(kg·s <sup>-1</sup> )	1.061 2 × 10 <sup>-9</sup>
氧气的注入速率 r <sub>o<sub>2</sub></sub> /(kg·s <sup>-1</sup> )	1.590 2 × 10 <sup>-8</sup>

1.2 数学模型

基于 TMVOCBio 模拟试验过程,它采用改进的

Monod 动力学速率方程描述 NAPLs 生物降解过程<sup>[7]</sup>。考虑基质以及电子受体对基质吸收率的限制,包括浓度、半饱和常数以及各种抑制因子;忽略阻滞作用、生物相中的扩散、微生物迁移、微生物生长引起的孔隙度变化及其对介质渗透性的影响(堵塞),并认为所有生物量都是有活性的<sup>[7]</sup>。

根据控制基质吸收率的限制因素,该方程有两种形式:(1)所有限制因素共同影响基质吸收率的多重 Monod 动力学方程;(2)只由主要限制因素控制基质吸收速率的最小 Monod 动力学方程<sup>[7]</sup>。假设所有限制因素共同影响基质的吸收率,即采用多重 Monod 动力学方程来描述生物降解反应:

$$\frac{dS}{dt} = -\mu_{OB}B \tag{1}$$

$$\mu_{OB} = \frac{\mu_{max,B}}{I_{NC}} f_T f_{SW} f_{Monod} \frac{1}{I_B} \tag{2}$$

$$f_{Monod} = \frac{S}{K_{S,B} I_C + S + I_H} \frac{E}{K_{E,B} I_C + E + I_H} \tag{3}$$

式中:S——基质浓度/(kg 基质·(kg 水)<sup>-1</sup>);

t——时间/s;

B——生物量浓度/(kg 生物量·(kg 水)<sup>-1</sup>);

μ<sub>OB</sub>——单位基质利用率(按生物量计,/(kg 基质·(kg 生物量·s)<sup>-1</sup>);

μ<sub>max,B</sub>——最大单位基质利用率(按生物量计,/(kg 基质·(kg 生物量·s)<sup>-1</sup>);

I<sub>NC</sub>——非竞争性抑制因子;

I<sub>B</sub>——生物量抑制因子;

f<sub>T</sub>——温度的抑制函数;

f<sub>SW</sub>——水饱和度的抑制函数(1 或 0);

f<sub>Monod</sub>——Monod 动力速率项;

S——基质浓度(kg 基质/kg 水);

E——电子受体浓度(kg 电子受体/kg 水);

I<sub>C</sub>——竞争抑制因子;

I<sub>H</sub>——Haldane 毒性抑制因子;

K<sub>S,B</sub>——基质半饱和常数/(kg 基质·(kg 水)<sup>-1</sup>),是生长率为最大生长率一半时的基质浓度;

K<sub>E,B</sub>——电子受体半饱和常数/(kg 电子受体·(kg 水)<sup>-1</sup>),是生长率为最大生长率一半时的电子受体浓度。

1.3 全局敏感性分析方法

本文采用 iTOUGH2 反演软件进行 Morris 和 Sobol' 全局敏感性分析。iTOUGH2 是美国劳伦斯

Berkeley 试验室开发的具有参数反演、全局敏感性分析和不确定性分析功能的软件,属 TOUGH<sup>[34]</sup> 家族系列软件,在国内外多相流逆问题领域已得到了广泛的应用<sup>[35-37]</sup>。相对而言,全局敏感性功能国内应用较少<sup>[29]</sup>。

### 1.3.1 Morris 法

Morris OAT(One-at-A-Time)法<sup>[17,27]</sup>是一个基于差分的全局敏感性分析方法,取样方法为一次只改变一个参数变量,主要用于定性识别和筛选较敏感的输入参数。假定对  $n$  个参数进行 Morris 敏感性分析,首先将  $n$  个参数空间  $[p_{i,min}, p_{i,max}]$  均分为  $(k-1)$  份,并将参数增量固定为  $\Delta_i = \Delta(p_{i,max} - p_{i,min})$ ,其中  $\Delta = k/\{2(k-1)\}$ 。然后从集合  $\{0, 1/(k-1), 2/(k-1), \dots, 1-\Delta\}$  中为每个参数随机选取一个辅助点  $\xi_i$ ,代入  $p_i = p_{i,min} + \xi_i(p_{i,max} - p_{i,min})$  中得到随机参数值  $p_i$  并组成随机参数集  $p$ 。每个随机参数集需进行  $(n+1)$  次敏感性运算,每次运算将依次随机变化一个参数  $p_i$  为  $(p_i + \Delta_i)$ ,计算该参数  $p_i$  的“主效应” $EE_i$ :

$$EE_i = \left( \frac{1}{\sigma_z} \cdot \frac{f(p_1, \dots, p_i + \Delta_i, \dots, p_n) - f(p_1, \dots, p_n)}{\Delta_i} \right) \quad (4)$$

式中: $f$ ——响应函数;

$P$ —— $n$  维随机参数集;

$p_i$ ——第  $i$  个参数;

$\Delta_i$ ——固定增量;

$\sigma_z$ ——比例因子,一般取观测值的标准差;

$z$ ——响应变量。

对于  $r$  个随机参数集来说,需根据式(4)进行  $r(n+1)$  次敏感性运算得到各参数的  $EE_s$  集合。再计算出三个统计量作为 Morris 敏感性指标:平均值(mean  $EE$ ),绝对值的平均值(mean  $|EE|$ )和标准差( $SD EE$ )。其中 mean  $EE$  和 mean  $|EE|$  代表各参数在参数空间上的平均影响,视为全局敏感性指标; $SD EE$  则用来识别非线性和相互作用效应(即参数间的相互作用对系统响应的影响)。

### 1.3.2 Sobol' 法

Sobol' 法<sup>[17,28]</sup>是一种基于方差的全局敏感性分析方法,用于定量参数对系统响应的贡献度并分析相互作用效应。首先定义随机变量  $Z$  和随机向量  $P = [P_1, P_2, P_3, \dots, P_n]$ ,分别代表系统响应和参数组, $P_i$  为参数组中的第  $i$  个参数。然后定义两个条件方差作为 Sobol' 敏感性指标,分别为一阶敏感性指数  $S_i$  (Sobol' Index) 和总敏感性指数  $S_{ii}$  (Sobol' Total Sensitivity

Index)。

一阶敏感性指数  $S_i$  定义为:

$$S_i = \frac{V[E[Z|P_i]]}{V[Z]} \quad (5)$$

式中: $E[\cdot]$ ——均值;

$V[\cdot]$ ——方差;

$E[Z|P_i]$ ——参数  $P_i$  单独变化引起的响应变量  $Z$  的平均变化。

$S_i$  量化了一阶效应,即参数  $P_i$  单一变化时对响应变量  $Z$  不确定度的贡献,不考虑相互作用效应。

总敏感性指数  $S_{ii}$  定义为:

$$S_{ii} = 1 - \frac{V_{-i}[E[Z|P_{-i}]]}{V[Z]} \quad (6)$$

式中: $E[\cdot]$ ——均值;

$V[\cdot]$ ——方差;

$E[Z|P_{-i}]$ ——除参数  $P_i$  外其余参数变化引起的响应变量  $Z$  的平均变化。

$S_{ii}$  计算了参数  $P_i$  及其与其他参数间的相互作用对响应变量  $Z$  的总效应。

通过分析  $S_{ii}$  与  $S_i$  差值的大小变化,可单独识别相互作用效应,即多个参数共同作用时对单个参数敏感性的影响<sup>[17]</sup>。相互作用效应越小,多参数的共同作用对单个参数的影响越小,越有利于对单个参数的反演识别。

## 2 结果分析

为理解好氧生物降解过程以及试验条件的影响,选取了降解过程参数和试验条件参数两类参数进行全局敏感性分析。采用 Morris 法探讨了降解过程参数和试验条件参数对模型输出结果的影响,然后使用 Sobol' 法定量分析了 Morris 法中敏感性较大的参数,并对参数间相互作用进行了分析。降解过程参数包括最大单位基质降解速率  $k$ 、甲苯半饱和和常数  $K_s$  和氧气半饱和和常数  $K_E$ ,由于采用 Macquarrie 试验<sup>[33]</sup> 的反演估计值,故将不确定性范围设为 15%<sup>[9]</sup>。试验条件参数包括水的注入速率  $r_{wat}$ 、甲苯的注入速率  $r_{tol}$  和氧气的注入速率  $r_{o_2}$ ,根据试验操作可能造成的偏差<sup>[33]</sup>,将不确定性范围设为 20%。参数取值范围见表 2。

### 2.1 Morris 法分析结果

取砂柱右端甲苯浓度为响应变量,利用 Morris 法对表 2 中 6 个参数重复抽样 120 次,对获得的 840 组样点进行敏感性分析,分析结果如图 2 和图 3 所示。图 2 为 Morris 敏感性指标  $EE$  的标准差  $SD EE$  与绝对

值均值  $\text{mean } |EE|$  的整体平均情况对比图。根据横轴  $\text{mean } |EE|$  得各参数敏感性排序为： $r_{\text{tol}} > r_{\text{wat}} > k > K_S > r_{\text{o}_2} > K_E$ 。根据纵轴  $SD EE$  得各参数相互作用效应排序为： $r_{\text{wat}} > r_{\text{tol}} > k > K_S > r_{\text{o}_2} > K_E$ 。

表 2 全局敏感性分析的参数范围

Table 2 Parameters range of global sensitivity analysis

参数	计算取值	不确定性	参数范围 (lg)
最大单位基质降解速率 $k / (\text{kg} \cdot (\text{s} \cdot \text{kg})^{-1})$	$5.706 \times 10^{-6}$	15%	-5.314 ~ -5.183
甲苯半饱和常数 $K_S / (\text{kg} \cdot \text{L}^{-1})$	$6.546 \times 10^{-7}$	15%	-6.255 ~ -6.123
氧气半饱和常数 $K_E / (\text{kg} \cdot \text{L}^{-1})$	$1.000 \times 10^{-7}$	15%	-7.071 ~ -6.939
水的注入速率 $r_{\text{wat}} / (\text{kg} \cdot \text{s}^{-1})$	$2.6503 \times 10^{-3}$	20%	-2.674 ~ -2.498
甲苯的注入速率 $r_{\text{tol}} / (\text{kg} \cdot \text{s}^{-1})$	$1.0612 \times 10^{-9}$	20%	-9.071 ~ -8.895
氧气的注入速率 $r_{\text{o}_2} / (\text{kg} \cdot \text{s}^{-1})$	$1.5902 \times 10^{-8}$	20%	-7.896 ~ -7.719

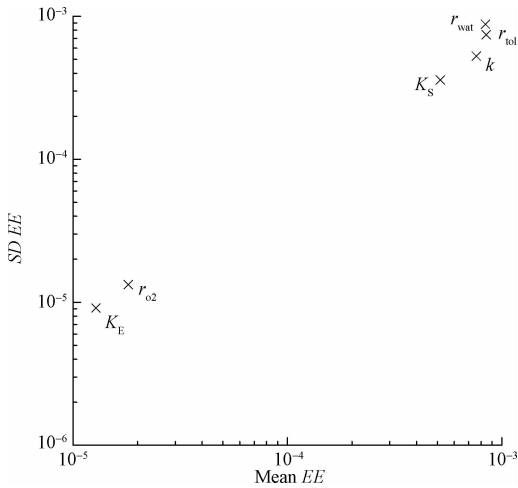


图 2 Morris 敏感性整体平均结果

Fig. 2 Average results of Morris sensitivity analysis

图 3 为同一响应变量下各参数的  $\text{mean } |EE|$  随时间变化曲线。从图 3 可以看出各参数的敏感性是随时间不断变化的,同时参数间的敏感性排序也随时间不断变化。试验早期敏感性排序为  $r_{\text{tol}} > r_{\text{wat}} > k > K_S > r_{\text{o}_2} > K_E$ ,与 Morris 敏感性指标得到的结果一致。而试验晚期呈现出完全不同的顺序： $k > K_S > r_{\text{wat}} > r_{\text{tol}} > r_{\text{o}_2} > K_E$ 。说明传统的分析只比较某时刻或整体平均结果的敏感性(图 2),并不能代表整个试验过程的敏感性情况,故应展开敏感性随时间变化的研究,全面识别参数敏感性。

通过进一步分析参数敏感性时变曲线发现:(1)微生物好氧降解能力随时间变化先提高后减弱。由图

3 可知,降解过程参数  $k$ 、 $K_S$  和  $K_E$  的敏感性随时间先逐渐增大后有所减小,即最初右端的甲苯浓度几乎不受降解过程参数的影响,故微生物降解开始进行;随着时间推移,降解过程参数对响应变量影响变大,即微生物不断降解甲苯;直至试验中期的某一时刻,降解过程参数对响应变量的影响达到最大,说明微生物降解能力达到最佳;再之后试验进入晚期,降解过程参数的影响程度开始减小,微生物降解逐渐衰弱。(2)该生物降解模型氧气充足。由于图 3 中氧气相关参数  $r_{\text{o}_2}$  和  $K_E$  的敏感性在整个好氧降解过程中总是很小,即一个好氧生物降解试验几乎可以不受氧气影响,故认为试验中氧气充足。(3)试验晚期(敏感性较大的时间段)的数据更利于降解过程参数反演。从图 3 可看出,降解过程参数的敏感性直到试验晚期才达到最大,且之后逐渐减小,因此精确观测试验晚期数据更利于反演降解过程参数。(4)不同阶段试验条件控制标准可以不同。从图 3 试验条件参数  $r_{\text{wat}}$  和  $r_{\text{tol}}$  的敏感性变化发现,试验条件参数在早期敏感性较大,在试验中期和晚期相对较小,说明早期试验条件控制不当对于观测值的影响大于试验中期和晚期,因此早期的试验条件控制应严于试验中、晚期。

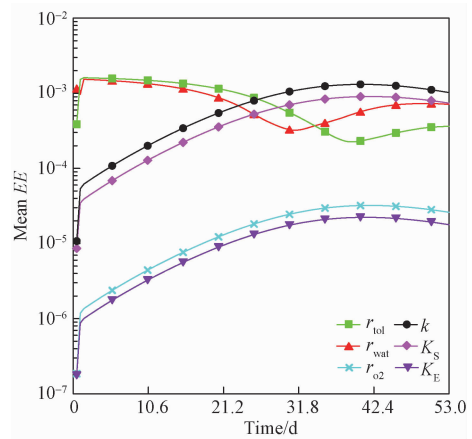


图 3 Morris 敏感性结果时变曲线

Fig. 3 Morris time-dependent sensitivity curves

## 2.2 Sobol' 法分析结果

考虑到 Morris 法仅定性说明参数敏感性,故进一步采用 Sobol'法定量参数对响应变量的相对贡献度,并分析参数间的相互作用效应。此处只针对前文 Morris 法中敏感性较大的参数即最大单位基质降解速率  $k$ 、甲苯半饱和常数  $K_S$ 、水的注入速率  $r_{\text{wat}}$  和甲苯的注入速率  $r_{\text{tol}}$  进行 Sobol'法敏感性分析,并仍以右端甲苯浓度为响应变量。Sobol'法中共选取 2 500 个样点,

分析结果见图 4。

图 4 为以右端甲苯浓度为响应变量时,模型部分参数的一阶敏感性指数  $S_i$  (实线)与总敏感性指数  $S_{ii}$  (虚线)随时间变化曲线。分析  $S_i$  的变化趋势发现,参数的一阶敏感性排序情况(图 4)与 Morris 分析结果(图 3)基本一致。试验早期  $r_{\text{wat}}$  与  $r_{\text{tol}}$  对响应变量的贡献较大,贡献度分别约为 45% 和 53%。试验晚期  $k$  的贡献最大,贡献度为 49% ~ 62%;  $K_s$  的贡献次之,贡献度约在 25%。

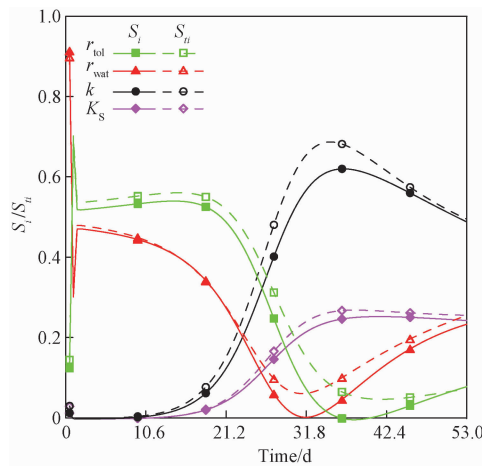


图 4 模型降解过程参数的 Sobol' 敏感性指标时变曲线  
Fig. 4 Sobol' time-dependent sensitivity curves at main biodegradational parameters

对图 4 中各参数的  $S_{ii}$  与  $S_i$  的差值进行时变分析发现:(1)  $S_{ii}$  在整个试验过程中均较  $S_i$  略有增加,且  $S_{ii}$  较  $S_i$  的增加幅度随时间先增大后减小。即该试验过程中参数间存在相互作用,且该相互作用增大了参数单一变化时对响应变量的贡献。从图 4 中可以观察该相互作用效应随时间先增大后减小。其中,增加幅度变化最小的参数  $K_s$  在试验早期和晚期的  $S_{ii}$  较  $S_i$  的增值近乎为 0,在中期增大为 2%;增加幅度变化最大的参数  $k$  在试验早期和晚期的增值同样约为 0,在中期则达 6%。(2) 试验早期和晚期的数据更利于降解过程参数反演。这是由于相互作用效应随试验先增大后减小,选择相互作用效应相对较小的试验早期和晚期更利于参数反演。同时可以根据图 4 对相互作用效应排序进行时变分析,将比图 2 的  $SD EE$  的整体平均排序更能反映实际情况。

### 3 结论与展望

为深入理解好氧生物降解过程以及试验条件的影响,本文以一个好氧生物降解甲苯的一维砂柱试验为

例,采用 iTOUGH2 反演软件中的 Morris 法和 Sobol' 法,以砂柱右端甲苯浓度为响应变量,分析了模型降解过程参数和试验条件参数两类参数的全局敏感性。其中降解过程参数包括最大单位基质降解速率  $k$ 、甲苯半饱和常数  $K_s$  和氧气半饱和常数  $K_E$ 。试验条件参数包括水的注入速率  $r_{\text{wat}}$ 、甲苯的注入速率  $r_{\text{tol}}$  和氧气的注入速率  $r_{\text{o}_2}$ 。研究表明:

(1) 基于 iTOUGH2 进行全局敏感性分析可得到参数敏感性随时间变化曲线,有助于理解研究过程。对于好氧生物降解模型,敏感性排序随时间发生变化,早期试验条件参数敏感性较大(一阶敏感性均多于 40%),排序为  $r_{\text{tol}} > r_{\text{wat}} > k > K_s > r_{\text{o}_2} > K_E$ ;晚期降解过程参数敏感性较大( $k$  的一阶敏感性为 49% ~ 62%),排序为  $k > K_s > r_{\text{wat}} > r_{\text{tol}} > r_{\text{o}_2} > K_E$ 。这是因为好氧生物降解能力随时间先逐渐增大而后又稍有减小,从而导致降解过程参数的敏感性较试验条件参数由大变小。同时参数间相互作用效应也随时间发生变化,本例表现为参数间的相互作用增大了参数单一变化时的影响,且该相互作用效应随时间先增大后减小。

(2) 根据全局敏感性时变分析可识别出试验过程中参数敏感性较大且相互作用效应较小的时段,采用此阶段的试验数据更有利于参数反演。对于本例,试验晚期的数据较其他时段更利于降解过程参数的反演估算。同时为避免试验条件控制不当导致观测数据误差增大,试验条件的早期控制应严于试验中、晚期。后续可继续在 iTOUGH2 框架上进行数据价值分析,可帮助敏感性分析更精准的指导试验设计和反演求参。

### 参考文献 (References):

- [1] 邓亚平,郑菲,施小清,等. 多孔介质中 DNAPLs 运移行为研究进展[J]. 南京大学学报(自然科学版),2016,52(3):409-420. [DENG Y P, ZHENG F, SHI X Q, et al. Review on the transport of dense non-aqueous phase liquids in porous media [J]. Journal of Nanjing University (Natural Sciences), 2016,52(3):409-420. (in Chinese)]
- [2] 胥思勤,王焰新. 土壤及地下水有机污染生物修复技术研究进展[J]. 环境保护,2001,29(2):22-23. [XU S Q, WANG Y X. Bioremediation of organic contaminated soil and groundwater [J]. Engineering Protection 2001,29(2):22-23. (in Chinese)]
- [3] AZUBUIKE C C, CHIKERE C B, OKPOKWASILI G C. Bioremediation techniques-classification based on site of application: principles, advantages, limitations



- and prospects [J]. *World Journal of Microbiology and Biotechnology*, 2016, 32(11): 1 - 18.
- [ 4 ] 安永磊. 原位生物修复硝基苯污染地下水微生物群落结构及修复效能 [D]. 长春: 吉林大学, 2012. [AN Y L. The microbial community structure and remediation efficiency in in-situ bioremediation of nitrobenzene contaminated groundwater [D]. Changchun: Jilin University, 2012. (in Chinese)]
- [ 5 ] MONOD J. The growth of bacterial cultures [J]. *Annual Review of Microbiology*, 1949, 3(1): 371 - 394.
- [ 6 ] 郑春苗, BENNETT G D. 地下水污染物迁移模拟 [M]. 2版. 北京: 高等教育出版社, 2009: 58 - 66. [ZHENG C M, BENNETT G D. Applied contaminant transport modeling [M]. 2nd ed. Beijing: Higher Education Press, 2009: 58 - 66. (in Chinese)]
- [ 7 ] JUNG Y, BATTISTELLI A. User's guide for biodegradation reactions in TMVOCBio [R]. Office of Scientific and Technical Information (OSTI), 2017. DOI:10.2172/1377850.
- [ 8 ] LACROIX E, BROVELLI A, HOLLIGER C, et al. Evaluation of silicate minerals for pH control during bioremediation: Application to chlorinated solvents [J]. *Water Air & Soil Pollution*, 2012, 223(5): 2663 - 2684.
- [ 9 ] CONARD S R. Modeling DNAPL pool dissolution: sensitivity analysis, inhibition kinetic effects, and intermediate-scale flow cell experiment evaluation [D]. Michigan Technological University, 2016: 74 - 84.
- [ 10 ] MOHAMED M, HATFIELD K. Dimensionless parameters to summarize the influence of microbial growth and inhibition on the bioremediation of groundwater contaminants [J]. *Biodegradation*, 2011, 22(5): 877 - 896.
- [ 11 ] 郑菲, 施小清, 吴吉春, 等. 苏北盆地盐城组咸水层 CO<sub>2</sub> 地质封存泄漏风险的全局敏感性分析 [J]. *高校地质学报*, 2012, 18(2): 232 - 238. [ZHENG F, SHI X Q, WU J C, et al. Global sensitivity analysis of leakage risk for CO<sub>2</sub> geological sequestration in the saline aquifer of yancheng formation in Subei basin [J]. *Geological Journal of China Universities*, 2012, 18(2): 232 - 238. (in Chinese)]
- [ 12 ] 宋晓猛, 孔凡哲, 占车生, 等. 基于统计理论方法的水文模型参数敏感性分析 [J]. *水科学进展*, 2012, 23(5): 642 - 649. [SONG X M, KONG F Z, ZHAN C S, et al. Sensitivity analysis of hydrological model parameters using a statistical theory approach [J]. *Advances in Water Science*, 2012, 23(5): 642 - 649. (in Chinese)]
- [ 13 ] 郑菲, 施小清, 吴吉春, 等. 深部咸水层 CO<sub>2</sub> 地质封存数值模拟参数的全局敏感性分析——以苏北盆地盐城组为例 [J]. *吉林大学学报: 地球科学版*, 2014, 44(1): 310 - 318. [ZHENG F, SHI X Q, WU J C, et al. Global parametric sensitivity analysis of numerical simulation for CO<sub>2</sub> geological sequestration in saline aquifers: a case study of Yancheng formation in Subei basin [J]. *Journal of Jilin University (Earth Science Edition)*, 2014, 44(1): 310 - 318. (in Chinese)]
- [ 14 ] WAINWRIGHT H M, FINSTERLE S, ZHOU Q L, et al. Modeling the performance of large-scale CO<sub>2</sub> storage systems: a comparison of different sensitivity analysis methods [J]. *International Journal of Greenhouse Gas Control*, 2013, 17: 189 - 205.
- [ 15 ] CACUCI D. Sensitivity & uncertainty analysis, volume I [M]. Boca Raton: Chapman and Hall/CRC, 2003.
- [ 16 ] WAINWRIGHT H M, FINSTERLE S, JUNG Y, et al. Making sense of global sensitivity analyses [J]. *Computers & Geosciences*, 2014, 65: 84 - 94.
- [ 17 ] WAINWRIGHT H M, FINSTERLE S. Global sensitivity and data-worth analyses in iTOUGH2: user's guide [R]. Office of Scientific and Technical Information (OSTI), 2016. DOI:10.2172/1274412
- [ 18 ] PIANOSI F, BEVEN K, FREER J, et al. Sensitivity analysis of environmental models: a systematic review with practical workflow [J]. *Environmental Modelling & Software*, 2016, 79(6): 214 - 232.
- [ 19 ] UDDAMERI V, HERNANDEZ E A, SINGARAJU S. A successive steady-state model for simulating freshwater discharges and saltwater wedge profiles at Baffin Bay, Texas [J]. *Environmental Earth Sciences*, 2014, 71(6): 2535 - 2546.
- [ 20 ] CVETKOVIC V, SOLTANI S, VIGOUROUX G. Global sensitivity analysis of groundwater transport [J]. *Journal of Hydrology*, 2015, 531(1): 142 - 148.
- [ 21 ] KUMAR D, SINGH A, JHAR K, et al. A variance de composition approach for risk assessment of groundwater quality [J]. *Exposure and Health*, 2019, 11(2): 139 - 151.
- [ 22 ] MAHMOUDI E, HÖLTER R, GEORGIEVA R, et al. On the global sensitivity analysis methods in

- geotechnical engineering; a comparative study on a rock salt energy storage [J]. *International Journal of Civil Engineering*, 2019, 17(1):131 – 143.
- [23] SHAHKARAMI P, LIU L C, MORENO L, et al. Radionuclide migration through fractured rock for arbitrary-length decay chain: analytical solution and global sensitivity analysis [J]. *Journal of Hydrology*, 2015,520:448 – 460.
- [24] SAAD B M, ALEXANDERIAN A, PRUDHOMME S, et al. Probabilistic modeling and global sensitivity analysis for CO<sub>2</sub> storage in geological formations: a spectral approach [J]. *Applied Mathematical Modelling*, 2018,53:584 – 601.
- [25] 刘波,肖红飞,杨亚刚. 基于 Morris 法的巷道围岩变形全局敏感性模拟分析[J]. *矿业安全与环保*, 2018,45(1):102 – 106. [LIU B, XIAO H F, YANG Y G. Global sensitivity simulation analysis of roadway surrounding rock deformation based on morris method [J]. *Mining Safety and Environmental Protection*, 2018,45(1):102 – 106. (in Chinese)]
- [26] 罗跃,叶淑君,吴吉春,等. 地面沉降模型的参数全局敏感性[J]. *浙江大学学报(工学版)*, 2018, 52(10):2007 – 2013. [LUO Y, YE S J, WU J C, et al. Global sensitivity analysis of parameters in land subsidence model [J]. *Journal of Zhejiang University (Engineering Science)*, 2018,52(10):2007 – 2013. (in Chinese)]
- [27] BEA S A, WAINWRIGHT H, SPYCHER N, et al. Identifying key controls on the behavior of an acidic-U (VI) plume in the Savannah River Site using reactive transport modeling [J]. *Journal of Contaminant Hydrology*, 2013, 151:34 – 54.
- [28] VALSALA R, GOVINDARAJAN S K. Co-colloidal BTEX and microbial transport in a saturated porous system: numerical modeling and sensitivity analysis [J]. *Transport in Porous Media*, 2019, 127(2): 269 – 294.
- [29] 张梦琳,胡立堂,程莉蓉,等. 基于 iTOUGH2 的地热模型资料价值分析方法[J]. *地质科技情报*, 2018, 37(3):235 – 241. [ZHANG M L, HU L T, CHENG L R, et al. Evaluation method of data worth of geothermal model using iTOUGH2 [J]. *Geological Science and Technology Information*, 2018, 37(3): 235 – 241. (in Chinese)]
- [30] MORRIS M D. Factorial sampling plans for preliminary computational experiments [J]. *Technometrics*, 1991,33(2):161 – 174.
- [31] SOBOL I M. Sensitivity estimates for nonlinear mathematical model [J]. *Mathematical Modeling and Computational Experiment*, 1993,1:407 – 414.
- [32] FINSTERLE S. iTOUGH2 user's guide [R]. Lawrence Berkeley National Laboratory LBNL-40040, Berkeley, CA, 2010.
- [33] MACQUARRIE K T B, SUDICKY E A, FRIND E O. Simulation of biodegradable organic contaminants in groundwater 1. Numerical formulation in principal directions [J]. *Water Resources Research*, 1990, 26(2):207 – 222.
- [34] PRUESS K. TOUGH2-A general purpose numerical simulator for multiphase fluid and heat flow [R]. Office of Scientific and Technical Information (OSTI), 1991. DOI:10.2172/5212064
- [35] LEE S J, MCPHERSON B J, VASQUEZ F G. Leakage pathway estimation using iTOUGH2 in a multiphase flow system for geologic CO<sub>2</sub> storage [J]. *Environmental Earth Sciences*, 2015, 74(6):5111 – 5128.
- [36] WELLMANN J F, FINSTERLE S, CROUCHER A. Integrating structural geological data into the inverse modelling framework of iTOUGH2 [J]. *Computers & Geosciences*, 2014, 65:95 – 109.
- [37] 王景瑞,胡立堂,尹文杰. iTOUGH2 反演模型在地下水模拟中的应用[J]. *水文地质工程地质*, 2015, 42(1):35 – 41. [WANG J R, HU L T, YIN W J. Application of iTOUGH2 to groundwater modeling [J]. *Hydrogeology & Engineering Geology*, 2015, 42(1):35 – 41. (in Chinese)]

编辑:张若琳