

## 基于响应面法优化污泥燃料的水热制备工艺\*

庄修政<sup>1,2,3,4</sup>, 黄艳琴<sup>1,2,3</sup>, 阴秀丽<sup>1,2,3†</sup>, 吴创之<sup>1,2,3</sup>

(1. 中国科学院广州能源研究所, 广州 510640; 2. 中国科学院可再生能源重点实验室, 广州 510640; 3. 广东省新能源和可再生能源研究开发与应用重点实验室, 广州 510640; 4. 中国科学院大学 北京 100049)

**摘要:** 城市污泥是人类活动的副产物, 对其进行焚烧处理是污泥减量化与资源化利用的有效手段。污泥水热碳化作为一种预处理方式, 对污泥的后续焚烧处置具有重要影响。为优化水热碳化工艺, 对水热温度、反应时间以及固液比等3个因素进行单因素试验, 并根据单因素试验结果进一步设计中心组合试验。随后, 以污泥脱水后的收到基热值为指标, 采用响应面法优化污泥水热处理制备固体燃料的工艺条件。结果表明, 在水热温度为208.65℃、反应时间为16.82 min、固液比为12.31%条件下, 其水热污泥收到基的理论热值可达4207 J/g。验证试验得出水热污泥收到基的热值为4203 ± 24 J/g, 符合响应面模型的分析结果。能耗分析结果表明, 污泥水热处理制备固体燃料的能耗要比传统热干法低65%以上。

**关键词:** 响应面; 城市污泥; 水热处理; 制备工艺

中图分类号: TK7; X7

文献标志码: A

doi: 10.3969/j.issn.2095-560X.2017.05.001

## Optimization of Hydrothermal Process for Solid Fuel Derived from Sewage Sludge by Response Surface Methodology

ZHUANG Xiu-zheng<sup>1,2,3,4</sup>, HUANG Yan-qin<sup>1,2,3</sup>, YIN Xiu-li<sup>1,2,3</sup>, WU Chuang-zhi<sup>1,2,3</sup>

(1. Guangzhou Institute of Energy Conversion, Chinese Academy of Sciences, Guangzhou 510640, China;

2. CAS Key Laboratory of Renewable Energy, Guangzhou 510640, China;

3. Guangdong Provincial Key Laboratory of New and Renewable Energy Research and Development, Guangzhou 510640, China;

4. University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China)

**Abstract:** Sewage sludge is the by-product of human activities, and incineration is one of the effective disposal technologies for the minimization and utilization of sludge. Hydrothermal carbonization of sludge, as a kind of pretreatment, is of great important for incineration. In order to upgrade the sludge, the effects of hydrothermal temperature, holding time and solid-to-liquid ratio on the fuel property of sludge were studied in single factor experiments. Subsequently, response surface methodology was used to optimize the conditions of hydrothermal process and the calorific value of hydrothermal sludge was used as an evaluation index. The results indicated that the optimum conditions were hydrothermal temperature of 208.65°C, holding time of 16.82 min and solid-to-liquid ratio of 12.31%. Among these conditions, the optimum calorific value of hydrothermal sludge was 4207 J/g. Furthermore, the verification experiment showed that the actual calorific value of hydrothermal sludge prepared via above conditions was 4203 ± 24 J/g, which was basically consistent with the results of response surface methodology. Moreover, more than 65% energy could be cut down via hydrothermal treatment when comparing with traditional thermal.

**Key words:** response surface methodology; sewage sludge; hydrothermal treatment; preparation process

## 0 引言

近年来, 随着我国经济的快速发展和人们生活水平的提高, 城市污水的排放量也不断增加, 随之

带来的是污水处理规模的大幅增加以及污泥处置的难题。结合《中国环境状况公报》的数据以及城镇废水固含量0.015%计算, 我国于2015年城市污泥产量为3525万t脱水污泥(含水率80%), 且每年以

\* 收稿日期: 2017-07-25

修订日期: 2017-09-03

基金项目: 国家自然科学基金项目(51676195, 51661145022)

† 通信作者: 阴秀丽, E-mail: xlyin@ms.giec.ac.cn

近 290 万 t 的速率增长<sup>[1]</sup>。目前,污泥的处置方法主要包括填埋、土地利用与热化学处理等,其中焚烧法是热化学利用的一种主要方式,以回收污泥中能量为目的,也是污泥处理中最彻底的一种处置方法,但直接焚烧污泥会由于其高含水率与较差的燃料特性等造成一系列问题,如热值低、燃烧不稳定等。

水热碳化是一种以水热炭为主要产物的水热处理技术,能有效提高污泥的燃料性能与改善其脱水性,从而得到更高品质的固体燃料。同时,水热处理能脱除污泥中的 N、S 化合物与固定重金属等,降低污泥在焚烧过程中的污染物排放<sup>[2-4]</sup>。HE 等<sup>[5]</sup>与 LU 等<sup>[6]</sup>发现污泥等废弃物的燃料率与能量密度等特性经水热处理后均得到提升。同时,PENG 等<sup>[7]</sup>也发现水热污泥的 O/C 与 H/C 分别由 0.48、2.0 降至 0.10、1.73,说明污泥的煤化程度加深,其燃料性质往煤方向转变,是一种潜在的燃料来源。此外,水热过程能破化污泥的胶体结构,使得大量束缚水转化为可被机械力脱除的自由水,从而改善污泥脱水性能<sup>[8]</sup>。同时,污泥脱水性能的提高也有利于处置成本的降低。WANG 等<sup>[8]</sup>将污泥水热处理耦合机械压滤系统,发现污泥水热脱水的能耗远低于传统热干处理,与 ESCALA 等<sup>[9]</sup>和 NEYENS 等<sup>[10-11]</sup>的结论一致。

水热处理作为一种对污泥等高含水率废弃物的预处理方式,具有较大的潜力。但目前关于污泥水热处理的提质过程及针对污泥作为燃料应用的工艺条件研究鲜有报道。鉴于此,本文研究目标如下:(1)首先通过单因素试验研究水热温度、反应时间与固液比对污泥的提质与煤化作用;(2)再通过响应面法对污泥水热处理制备固体燃料的工艺进行优化;(3)最后计算最优工艺条件下水热处理污泥的能耗,以期为污泥的资源化利用提供一定的理论参考。

## 1 材料与方 法

### 1.1 污泥原料

污泥原料取自广州市某污水处理厂,污泥初始含水率为 97%,其中悬浮性固体与溶解性固体分别为 2.9%与 0.1%,pH 值为 7.7。污泥原料首先通过真空抽滤脱水,剩余固体在 105 ℃下干燥 24 h 后粉碎并过 300 目筛,得到的污泥粉末置于干燥皿中保存待用。

### 1.2 水热处理流程

将一定比例的污泥粉末与 100 mL 纯水均匀混合,置于 250 mL 的微型水热反应釜(SLM250)中,通入 N<sub>2</sub>并保持 10 min 以确保反应釜内为惰性环境,随后将釜内温度上升到设定值并根据实验要求保持一定时间。在升温及保温过程中,使釜内转子转速保持在 200 r/min,从而保证物料加热均匀。一旦保温阶段结束立即关闭电源,取出反应釜使其自然冷却。当釜内温度降至 85 ℃以下时,将釜内污泥取出并在 10000 r/min 下进行离心脱滤 20 min,得到的脱水滤饼用密封袋装好并置于 4 ℃下保存待测。

### 1.3 测试方法

工业分析根据国家标准 GB/T 28731-2012 的分析方法进行。元素分析采用德国元素系统分析公司生产的元素分析仪(Vario EL cube)进行分析。热值(HHV)采用微电脑量热计(WZR-1T-CII)进行分析。

### 1.4 单因素试验

#### 1.4.1 水热温度的影响

分别将水热温度设定为 120 ℃、150 ℃、180 ℃、210 ℃和 240 ℃,并在固液比为 7.5%、反应时间为 30 min 的条件下进行污泥的水热处理,研究水热温度对污泥热值的影响。

#### 1.4.2 反应时间的影响

分别将反应时间设定为 10 min、30 min、50 min、70 min 和 90 min,并在水热温度为 180 ℃、固液比为 7.5%的条件下进行污泥的水热处理,研究反应时间对污泥热值的影响。

#### 1.4.3 固液比的影响

分别将固液比设定为 2.5%、5%、7.5%、10%和 12.5%,并在水热温度为 180 ℃、反应时间为 30 min 的条件下进行污泥的水热处理,研究固液比对污泥热值的影响。

### 1.5 响应面法对污泥燃料制备工艺进行优化

在单因素试验基础上,根据中心组合试验设计原理<sup>[12]</sup>,以脱水污泥收到基热值为指标,设计 3 因素 3 水平响应面分析试验,从而评估不同水热处理条件与评价指标间的非线性关系。因素水平编码见表 1,数据用 Design Expert 软件分析并确定最优水热工艺参数。

表1 因素水平编码表

Table 1 Factors and levels in central composite design

因素	变量	水平		
		-1	0	+1
水热温度/	A	200	210	220
反应时间/min	B	10	15	20
固液比/%	C	10	12	14

## 1.6 污泥水热处理的能耗分析

为了便于计算污泥水热处理过程中的能耗，特作如下假设<sup>[8]</sup>：(1) 水热升温过程中所需要的能量全部由加热装置提供；(2) 水热反应装置为理论密封装置，即没有能量损失；(3) 污泥水热过程及冷却过程中释放的能量被视为可回收的潜在热量。

因此，污泥水热处理制备固体燃料的能耗包括两部分：能量输入部分与能量回收部分。其中，能量输入部分为水热处理过程中的加热能耗 ( $Q_H$ ) 和脱滤过程中的机械能耗 ( $Q_{mech}$ ) 之和，能量回收部分为水热反应热 ( $Q_{RH}$ ) 和污泥由高温降至室温回收的能量 ( $Q_r$ ) 之和。

### 1.6.1 能量输入部分

水热处理过程中的加热能耗 ( $Q_H$ , kJ/kg 湿污泥) 可根据式 (1) 进行计算：

$$Q_H = [C_{ps,sludge}(1-W) + C_{pw,sludge}W] \times (T_f - T_0) \quad (1)$$

式中， $C_{ps,sludge}$  和  $C_{pw,sludge}$  分别为污泥中固体和水分的比热容， $\text{kJ}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$ ； $W$  为污泥的湿基含水率； $T_f$  和  $T_0$  分别为目标水热温度和初始温度 (室温)。

在本试验中，由于机械脱滤的效率与能耗和不同规格的压滤机有关，为了便于计算脱滤过程中的比机械功，一般工业应用的离心脱滤机能耗为 54 ~ 144 kJ/kg 干固体，本文取平均值 99 kJ/kg 干固体计算，其与水热处理后污泥的含固率 ( $1-W$ ) 的乘积为机械脱滤过程中的机械能耗 ( $Q_{mech}$ , kJ/kg 湿污泥)。

### 1.6.2 能量回收部分

水热处理过程的水热反应热 ( $Q_{RH}$ , kJ/kg 湿污泥) 可根据式 (2) 中的比干基水热反应热 ( $q_{RH}$ ) 和污泥中的含固率 ( $1-W$ ) 进行计算：

$$q_{RH} = H_{u,sludge} - \mu_{DM} H_{u,hydro-sludge} = H_{u,sludge} (1 - \eta_{HT}) \quad (2)$$

式中： $q_{RH}$  为干基比水热反应热， $\text{MJ}/\text{kg}$  干污泥； $\mu_{DM}$  为水热污泥的干基产量，其值等于水热污泥和剩余污泥中的干固体质量之比； $\eta_{HT}$  为水热碳化效率，是

$\mu_{DM}$  与  $\psi$  的乘积； $\psi$  为水热污泥的热值增加因子，等于水热污泥与污泥的干基高位热值之比； $H_{u,sludge}$  和  $\mu_{DM} H_{u,hydro-sludge}$  分别为污泥和水热污泥的干基高位热值， $\text{kJ}/\text{kg}$ 。

污泥水热处理后处于高温状态，对于滞留在水热污泥中的热量  $Q_r$  ( $\text{kJ}/\text{kg}$  湿污泥)，可以通过使水热污泥从目标水热温度冷却至室温而进行回收，并按照式 (1) 进行计算。

## 2 结果与讨论

### 2.1 水热污泥的特性分析

污泥水热处理前后的工业、元素分析及其炭得率等如表 2 所示。可以发现，随着水热温度的增加，炭得率逐渐下降，这可归因为污泥在水热过程中发生水解、脱羟基以及脱碳酸基等反应，使得有机质发生转化从而减少了固体产物得率<sup>[13-14]</sup>，污泥中 H、O 元素与挥发分随温度的上升而减少也可从侧面反应这一现象。另一方面，污泥中固定碳由于碳化反应的存在而有所增加，使得污泥的燃料率也随水热温度的上升而从 0.04 提升至 0.26，说明水热处理能改善污泥的燃料性能<sup>[14]</sup>。此外，当把反应时间从 10 min 延长至 90 min 时，炭得率保持在 70% 左右。这是由于在水热过程中，污泥的水解反应与聚合反应是同时进行的，前者主要是将污泥有机物转化为可溶性小分子产物<sup>[15]</sup>，后者则是将该小分子产物通过缩聚反应等形成聚合物，并进一步碳化形成水热炭<sup>[16-17]</sup>。延长反应时间可保证液相中的可溶性小分子充分聚合、碳化形成水热炭。因此，当延长反应时间使得污泥的水解速率与液相中小分子的聚合速率平衡时，炭得率保持不变或上升<sup>[18]</sup>。对于固液比而言，增加污泥浓度会使炭得率有所增加，但对污泥的元素与工业分析影响不大。

为探究水热处理对污泥燃料性能的提质效果，将原料与污泥水热炭原子个数比  $n_H/n_C$  和  $n_O/n_C$  的变化以 Van-Krevelen 图表示 (如图 1 所示，反映原料的煤化过程)。从图 1 可以发现，整个水热提质过程主要包括脱羟基和脱羧基反应等<sup>[19]</sup>，随着水热反应的进行，污泥中的 H 与 O 元素通过脱羟基与脱碳酸基反应以  $\text{H}_2\text{O}$  与  $\text{CO}_2$  形式脱除，使得  $n_O/n_C$  与  $n_H/n_C$  显著下降。总体而言，对污泥进行水热处理能改善污泥的燃料性能，使其煤化程度逐渐加深<sup>[20-22]</sup>。

表 2 水热污泥的基本性质

Table 2 The properties of solid products derived from hydrothermal treatment of sewage sludge

污泥处理条件	元素分析/wt% (daf <sup>a</sup> )					工业分析/wt%(db <sup>d</sup> )			炭得率 <sup>b</sup> /wt% (db <sup>d</sup> )	燃料率 <sup>c</sup>	
	C	H	O	N	S	灰分	挥发分	固定碳			
未处理	48.53	8.47	33.68	7.95	1.36	48.67	49.13	2.21	/	0.04	
水热温度/	120	49.25	8.46	33.79	7.09	1.41	51.17	44.94	3.88	86.18	0.09
	150	50.64	8.43	32.43	7.18	1.32	53.74	42.25	4.01	79.81	0.09
	180	52.30	8.54	32.33	5.71	1.12	63.54	31.87	4.59	69.41	0.15
	210	53.95	8.45	31.43	5.07	1.11	65.67	28.71	5.62	66.09	0.20
	240	57.04	8.74	28.52	4.52	1.19	69.67	24.00	6.34	63.92	0.26
反应时间/min	10	52.26	8.84	31.90	5.90	1.09	62.23	32.76	3.92	73.16	0.12
	30	52.30	8.82	32.33	5.44	1.12	63.54	31.87	4.59	69.41	0.15
	50	55.38	8.77	29.48	5.27	1.09	64.32	30.86	4.23	69.42	0.14
	70	55.71	8.80	29.25	4.96	1.27	64.55	30.71	4.73	68.68	0.15
	90	56.40	8.58	29.02	4.85	1.15	65.16	29.46	5.38	68.97	0.18
固液比/%	2.5	50.71	8.82	34.07	4.78	1.00	64.03	32.22	3.75	65.92	0.11
	5.0	51.08	8.56	34.26	5.05	1.04	64.09	32.19	3.72	66.82	0.12
	7.5	52.57	8.82	32.05	5.44	1.12	63.54	31.87	4.59	69.45	0.15
	10.0	54.36	8.90	29.86	5.65	1.23	62.94	32.04	5.02	69.03	0.10
	12.5	50.56	9.25	27.15	5.81	1.24	63.45	31.25	5.30	71.89	0.08

注：<sup>a</sup> 干燥无灰基；<sup>d</sup> 干燥基；<sup>b</sup> 炭得率为水热处理后污泥水热炭的干燥基重量与污泥原料之比；<sup>c</sup> 燃料率表示污泥干燥基中固定碳与挥发分的比值。

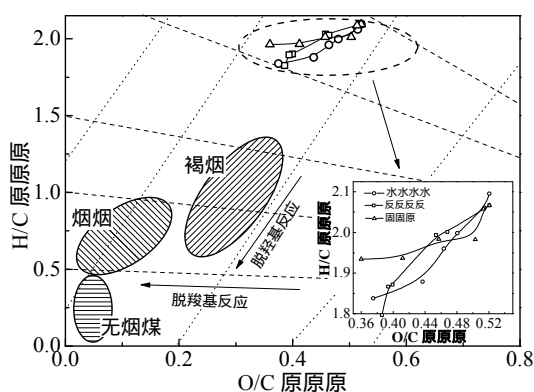


图 1 污泥水热处理的提质作用

Fig. 1 The coalification band of sewage sludge with hydrothermal treatment

## 2.2 不同因素对污泥热值的影响

### 2.2.1 水热温度对污泥热值的影响

水热处理后的污泥经机械脱水后其含水率明显降低，可采用焚烧法进行处理，而发热量是燃烧中一个重要参考指标。不同温度处理后污泥的干燥基、干燥无灰基与收到基热值如图 2 所示，其中干燥基发热量指单位质量干污泥完全燃烧后释放出的热量，可以从侧面反映干污泥中有机组分的多少。干燥无灰基发热量指单位质量无灰污泥完全燃烧释放

出的热量，而收到基发热量指在计算中扣除了由污泥中水分蒸发带走的热量，表示单位质量的脱水污泥在燃烧过程中能够被有效利用的热量。

从图 2 中可以发现，随着水热温度从 120 上升至 240，污泥干基中的有机质含量下降、灰分含量增加，使得污泥干基的发热量逐步减少至 7529 J/g。但另一方面，污泥的干燥无灰基热值则随着温度的上升而从 22199 J/g 提高至 26573 J/g，这可归因于水热处理的提质作用。在水热过程中，由于污泥中的 H 与 O 元素脱除<sup>[19]</sup>，使得低能量的 C—H、C—O 键向高能量的 C—C 键转化，从而提高污泥的能量密度与热值。此外，污泥在水热过程中的芳构化反应很大程度上取决于水热温度<sup>[19]</sup>。在较高温度下 (> 180)，芳构化程度加剧，使得 C=C 双键密度增加。若考虑到反应温度对污泥脱水性能的改善，污泥收到基的热值则随温度的上升而增加，并在 210 时达到最大值 3775 J/g 后保持稳定。这是由于原始污泥的脱水性能较差<sup>[23]</sup>，在 10000 rpm 下离心脱水后其含水率仍高达 80.84%，水分的气化潜热消耗了污泥燃烧释放的全部热量。而随着水热温度的上升，污泥的脱水性能也随之提高<sup>[8,24]</sup>，从而减少了污泥离心脱水后的含水率并增加了污泥的收到基热值。总体而

言，以污泥收到基热值为标准评价水热处理的效果更具有实际意义，因此水热温度在 210 时其处理效果较好。

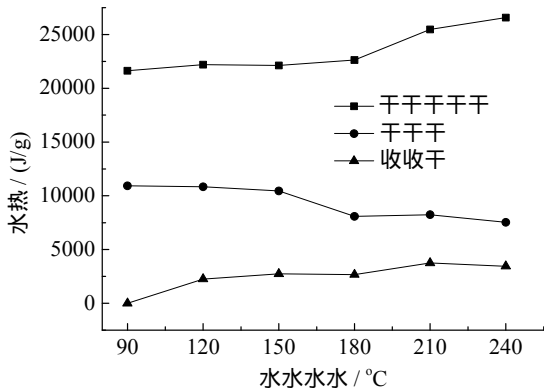


图 2 水热温度对污泥热值的影响  
Fig. 2 Effect of hydrothermal temperature on the sludge HHV

### 2.2.2 反应时间对污泥热值的影响

不同反应时间对污泥热值的影响如图 3 所示。在水热温度为 180 、固液比为 7.5% 的条件下，污泥的干燥基热值随着反应时间的增加在前 30 min 内缓慢减少，随后保持不变。这是由于在前 30 min 内水解反应占主导地位，污泥有机物的溶解过多引起的。而随着反应时间的延长，水解速率与聚合速率达到平衡，生成大量具有更高能量的水热炭从而平衡了由于有机物水解所减少的热量。而干燥无灰基热值呈先上升后下降的趋势。在 180 下反应前 10 min 内，污泥中蛋白质能被快速水解<sup>[15]</sup>，而大量木质纤维素类物质仍以稳定形式存在。因此，大量低能量的蛋白质（热值约 16 kJ/g）比例降低造成单位干燥无灰基热值的增加。延长反应时间能使纤维素类

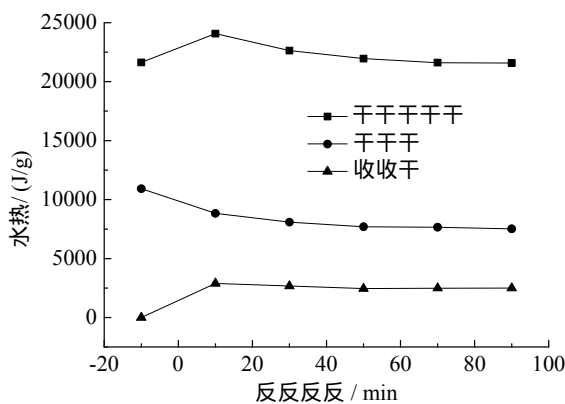


图 3 反应时间对污泥热值的影响  
Fig. 3 Effect of hydrothermal treatment holding time on the sludge HHV

物质逐渐水解，同时其水解产物进一步脱羟基生成羟甲基糠醛（HMF，热值约为 22 kJ/g<sup>[25]</sup>）等产物，解释了水热污泥的干燥无灰基热值最终稳定在 22000 J/g 左右。最后，反应时间对污泥收到基热值影响不大，这主要是由于延长时间并不能显著地改善污泥的脱水性能<sup>[18]</sup>。污泥收到基热值在 10 min 下达到最大值 2895 J/g，之后保持不变。

### 2.2.3 固液比对污泥热值的影响

不同固液比对污泥热值的影响效果如图 4 所示，在水热温度为 180 、反应时间为 30 min 的条件下，固液比对污泥干燥基与干燥无灰基热值的影响不大，但对污泥收到基的热值则呈现上升趋势，这可能是由于高浓度的污泥使得其在水热过程中传热更充分，导致污泥的水解作用更强而进一步增加了污泥的脱水性能导致的。

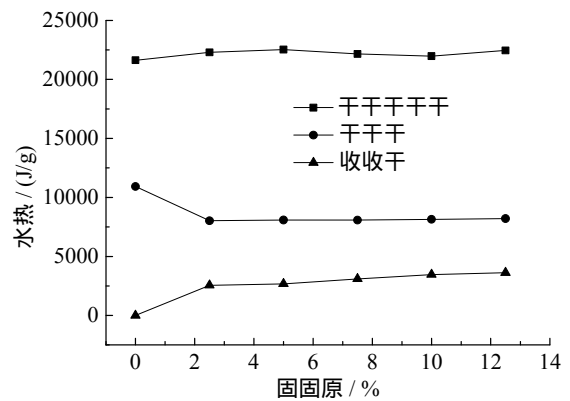


图 4 固液比对污泥热值的影响  
Fig. 4 Effect of solid-to-liquid ratio on the sludge HHV

## 2.3 响应面法优化污泥水热处理的工艺参数

### 2.3.1 回归方程的建立与方差分析

响应面试验结果如表 3 所示，通过 Design Expert 数据分析软件进行回归分析，得到的方差分析结果如表 4 所示，其中失拟项  $P > 0.05$ ，说明在本次实验条件下得出的回归方程没有失拟，能够较好地分析在较佳的水热温度、时间与固液比条件下对污泥水热处理的影响。由表 4 可知，反应时间的一次项达到极显著水平 ( $P < 0.01$ ，置信区间  $> 99\%$ )，固液比的一次项达到显著水平 ( $P < 0.05$ ，置信区间  $> 95\%$ ) 而水热温度的影响效果不显著 ( $P > 0.05$ ，置信区间  $< 95\%$ )，这可能是由于通过单因素试验得出的水热温度范围 (200 ~ 220 ) 已经是较佳的条件区间。所有因素的二次项对水热污泥热值的曲面效应显著，并且其

AB、BC 交互效应显著，表明各影响因素对水热污泥热值的影响不是简单的线性关系。总体而言，该模型达到极显著水平 ( $P < 0.01$ )，并且失拟项不显著 ( $P > 0.05$ )，说明该回归方程对数据进行了较好拟合，其二次回归方程为：

$$Y = -159505 + 1409A + 847.1B + 1533.3C - 2.885AB - 1.05AC + 11.075BC - 3.23A^2 - 11.3B^2 - 59.625C^2$$

表 3 响应面分析方案及试验结果

Table 3 Experimental scheme and results of central composite design

试验号	水平			收到基热值 <sup>a</sup> /(J/g)
	A	B	C	
1	-1	-1	0	3324
2	1	-1	0	3513
3	-1	1	0	3882
4	1	1	0	3494
5	-1	0	-1	3540
6	1	0	-1	3539
7	-1	0	1	3698
8	1	0	1	3613
9	0	-1	-1	3401
10	0	1	-1	3607
11	0	-1	1	3447
12	0	1	1	4097
13	0	0	0	4202
14	0	0	0	4124
15	0	0	0	4151

注：<sup>a</sup> 10000 r/min 离心脱水 20 min。

表 4 回归模型方差分析

Table 4 Variance analysis of the regression equation for the HHV of received based hydrothermal sludge

方差来源	平方和/10 <sup>3</sup>	自由度	均方和/10 <sup>3</sup>	F 值	P 值
A	10.15	1	10.15	1.77	0.2409
B	242.90	1	242.90	42.33	0.0013
C	73.54	1	73.54	12.81	0.0159
AB	83.23	1	83.23	14.50	0.0125
AC	1.76	1	1.76	0.31	0.0603
BC	49.06	1	49.06	8.55	0.0329
A <sup>2</sup>	385.20	1	385.20	67.13	0.0004
B <sup>2</sup>	295.20	1	295.20	51.44	0.0008
C <sup>2</sup>	210.00	1	210.00	36.60	0.0018
模型	1235.00	9	137.20	23.92	0.0014
残差	28.69	5	5.74	/	/
失拟项	25.55	3	8.52	5.43	0.1595
纯误差	3.14	2	1.57	/	/
总离差	1264.00	14	/	/	/

### 2.3.2 响应面及等高线分析

响应面图是由响应值在各试验因素交互作用下得到结果所构成的一个三维空间曲面，可通过其分析各因素对污泥热值的影响及得出最佳制备工艺。图 5 ~ 图 7 分别是三水平因素相互间对水热污泥热值的响应面图。从图 5 可发现，当水热温度在 205 ~ 215、反应时间在 15 ~ 20 min 范围内时，两者存在显著的增益效应，其水热污泥的热值最高。同理可知，当水热温度与固液比以及反应时间与固液比的取值范围分别在 205 ~ 213、11.5% ~ 13.5% (见图 6) 以及 14 ~ 19 min、11.5% ~ 13.8% (见图 7) 的情况下，水热污泥制备效果较好。对模型进一步分析得到水热污泥的理论最佳条件点为：水热温度为 208.65、反应时间为 16.82 min、固液比为 12.31%，理论热值为 4207 J/g。

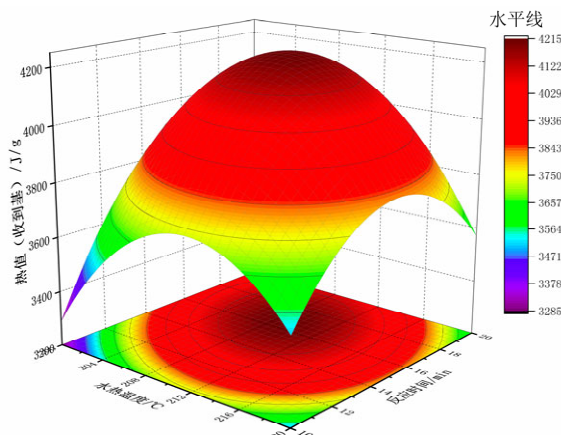


图 5 水热温度与反应时间对水热污泥热值的响应面图  
Fig. 5 Response surface and contour line of the interaction between hydrothermal temperature and holding time

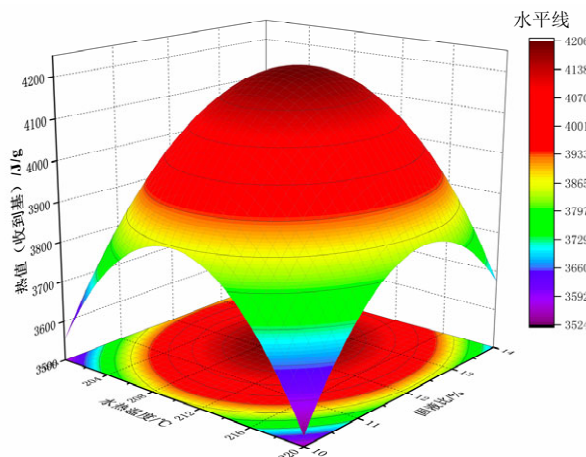


图 6 水热温度与固液比对水热污泥热值的响应面图  
Fig. 6 Response surface and contour line of the interaction between hydrothermal temperature and solid-to-liquid ratio



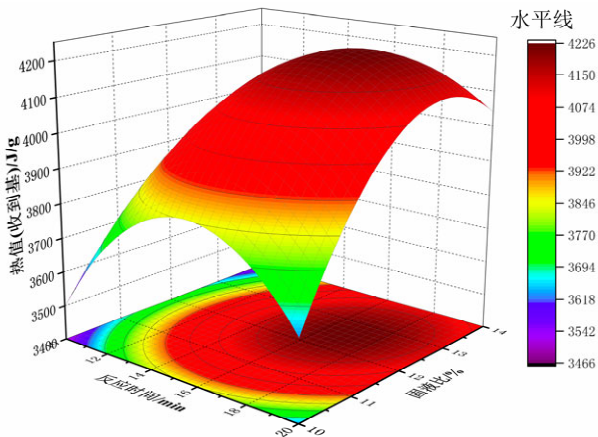


图 7 反应时间与固液比对水热污泥热值的响应面图  
 Fig. 7 Response surface and contour line of the interaction between holding time and solid-to-liquid ratio

### 2.3.3 响应面验证试验

为检验模拟的可靠性，采用上述最优条件制备水热污泥并测试其收到基热值，同时考虑到操作的便利，将最佳条件修正为水热温度 209 、反应时间 17 min、固液比 12.3%，得到水热污泥的收到基热值为  $4203 \pm 24$  J/g，符合响应面分析结果。

## 2.4 污泥水热处理的能耗分析

为了满足适用于焚烧处理的污泥含水率标准要求，以最终得到含水率为 30%的污泥为标准进行计算。同时，以 1 t 含水率为 97%的城市污泥为例，对最佳工艺条件下的污泥水热处理进行理论能耗计算，并与传统热干法的能耗进行对比，能耗分析结果如图 8 所示。根据 1.6 中相关公式计算出污泥水热处理后其加热能耗为 896 MJ，同时在此过程中可回收的热量为 763 MJ。此外，水热污泥通过离心脱滤后（10000 r/min，20 min）得到含水率为 42%的污泥滤饼，需要进一步烘干至含水率为 30%才满足焚烧要求。在烘干过程中的能耗按照脱去的水分以及水的气化潜热（3135 kJ/kg）计算。传统热干法则是先将含水率为 97%污泥先进行离心脱滤后再将污泥烘干至含水率为 30%。最终可以得出传统热干法的能耗则为 362 MJ，而水热处理制备固体燃料的能耗总能耗为 124 MJ，比传统热干法减少超过 65%的能量。

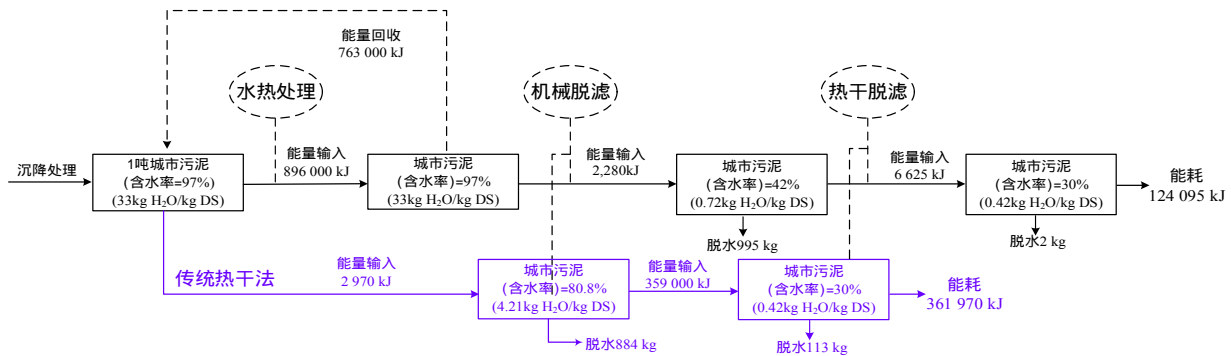


图 8 污泥水热处理的能耗分析  
 Fig. 8 The energy consumption of hydrothermal treatment of sludge

## 3 结论

(1) 水热温度、固液比与水热污泥的收到基热值呈正相关关系，这主要是由于污泥在水热过程中的提质效果以及其脱水性能得到改善而导致的，而反应时间对水热污泥的收到基热值影响不大，说明污泥在水热过程中的相关反应能在短时间内完成。

(2) 响应面分析所得最佳制备工艺参数为水热温度 208.65 、反应时间为 16.82 min、固液比为 12.32%，制得水热污泥的收到基热值为  $4203 \pm 24$  J/g，与响应面分析的理论最佳值相符。

(3) 通过能耗计算分析得出污泥通过水热处理制备固体燃料具有经济优势，其能耗要比传统热干法低 65%以上。

### 参考文献：

[1] ZHAO P T, SHEN Y F, GE S F, et al. Clean solid biofuel production from high moisture content waste biomass employing hydrothermal treatment[J]. Applied energy, 2014, 131: 345-367. DOI: 10.1016/j.apenergy.2014.06.038.  
 [2] ZHAO P T, CHEN H F, GE S F, et al. Effect of the hydrothermal pretreatment for the reduction of NO emission from sewage sludge combustion[J]. Applied energy, 2013, 111: 199-205. DOI: 10.1016/j.apenergy.2013.05.029.

- [3] HE C, WANG K, YANG Y H, et al. Effective nitrogen removal and recovery from dewatered sewage sludge using a novel integrated system of accelerated hydrothermal deamination and air stripping[J]. *Environmental science & technology*, 2015, 49(11): 6872-6880. DOI: 10.1021/acs.est.5b00652.
- [4] WANG X D, LI C X, ZHANG B, et al. Migration and risk assessment of heavy metals in sewage sludge during hydrothermal treatment combined with pyrolysis[J]. *Bioresource technology*, 2016, 221: 560-567. DOI: 10.1016/j.biortech.2016.09.069.
- [5] HE C, WANG K, YANG Y H, et al. Utilization of sewage-sludge-derived hydrochars toward efficient cocombustion with different-rank coals: effects of subcritical water conversion and blending scenarios[J]. *Energy & fuels*, 2014, 28(9): 6140-6150. DOI: 10.1021/ef501386g.
- [6] LU L, NAMIOKA T, YOSHIKAWA K. Effects of hydrothermal treatment on characteristics and combustion behaviors of municipal solid wastes[J]. *Applied energy*, 2011, 88(11): 3659-3664. DOI: 10.1016/j.apenergy.2011.04.022.
- [7] PENG C, ZHAI Y B, YUN Z, et al. Production of char from sewage sludge employing hydrothermal carbonization: char properties, combustion behavior and thermal characteristics[J]. *Fuel*, 2016, 176: 110-118. DOI: 10.1016/j.fuel.2016.02.068.
- [8] WANG L P, ZHANG L, LI A M. Hydrothermal treatment coupled with mechanical expression at increased temperature for excess sludge dewatering: influence of operating conditions and the process energetics[J]. *Water research*, 2014, 65: 85-97. DOI: 10.1016/j.watres.2014.07.020.
- [9] ESCALA M, ZUMBÜHL T, KOLLER C, et al. Hydrothermal carbonization as an energy-efficient alternative to established drying technologies for sewage sludge: a feasibility study on a laboratory scale[J]. *Energy & fuels*, 2013, 27(1): 454-460. DOI: 10.1021/ef3015266.
- [10] NEYENS E, BAEYENS J, CREEMERS C. Alkaline thermal sludge hydrolysis[J]. *Journal of hazardous materials*, 2003, 97(1/3): 295-314. DOI: 10.1016/S0304-3894(02)00286-8.
- [11] NEYENS E, BAEYENS J, WEEMAES M, et al. Hot acid hydrolysis as a potential treatment of thickened sewage sludge[J]. *Journal of hazardous materials*, 2003, 98(1/3): 275-293. DOI: 10.1016/S0304-3894(03)00002-5.
- [12] BAŞ D, BOYACI I H. Modeling and optimization I: usability of response surface methodology[J]. *Journal of food engineering*, 2007, 78(3): 836-845. DOI: 10.1016/j.jfoodeng.2005.11.024.
- [13] SAVEYN H, CURVERS D, SCHOUTTETEN M, et al. Improved dewatering by hydrothermal conversion of sludge[J]. *Journal of residuals science & technology*, 2009, 6(1): 51-56.
- [14] HE C, WANG K, GIANNIS A, et al. Products evolution during hydrothermal conversion of dewatered sewage sludge in sub- and near-critical water: effects of reaction conditions and calcium oxide additive[J]. *International journal of hydrogen energy*, 2015, 40(17): 5776-5787. DOI: 10.1016/j.ijhydene.2015.03.006.
- [15] YIN F J, CHEN H Z, XU G H, et al. A detailed kinetic model for the hydrothermal decomposition process of sewage sludge[J]. *Bioresource technology*, 2015, 198: 351-357. DOI: 10.1016/j.biortech.2015.09.033.
- [16] KANG S M, LI X L, FAN J, et al. Characterization of hydrochars produced by hydrothermal carbonization of lignin, Cellulose, D-Xylose, and wood meal[J]. *Industrial & engineering chemistry research*, 2012, 51(26): 9023-9031. DOI: 10.1021/ie300565d.
- [17] KRUSE A, FUNKE A, TITIRICI M M. Hydrothermal conversion of biomass to fuels and energetic materials[J]. *Current opinion in chemical biology*, 2013, 17(3): 515-521. DOI: 10.1016/j.cbpa.2013.05.004.
- [18] 闫秀懿, 乔玮, 李飘, 等. 含油污泥的水热法减量处理[J]. *化工环保*, 2014, 34(4): 340-343. DOI: 10.3969/j.issn.1006-1878.2014.04.008.
- [19] FUNKE A, ZIEGLER F. Hydrothermal carbonization of biomass: a summary and discussion of chemical mechanisms for process engineering[J]. *Biofuels bioproducts & biorefining*, 2010, 4(2): 160-177. DOI: 10.1002/bbb.198.
- [20] AREEPRASERT C, ZHAO P T, MA D C, et al. Alternative solid fuel production from paper sludge employing hydrothermal treatment[J]. *Energy & fuels*, 2014, 28(2): 1198-1206. DOI: 10.1021/ef402371h.
- [21] ZHAO P T, SHEN Y F, GE S F, et al. Energy recycling from sewage sludge by producing solid biofuel with hydrothermal carbonization[J]. *Energy conversion and management*, 2014, 78: 815-821. DOI: 10.1016/j.enconman.2013.11.026.
- [22] HE C, ZHAO J, YANG Y H, et al. Multiscale characteristics dynamics of hydrochar from hydrothermal conversion of sewage sludge under sub- and near-critical water[J]. *Bioresource technology*, 2016, 211: 486-493. DOI: 10.1016/j.biortech.2016.03.110.
- [23] VAXELAIRE J, CÉZAC P. Moisture distribution in activated sludges: a review[J]. *Water research*, 2004, 38(9): 2214-2230. DOI: 10.1016/j.watres.2004.02.021.
- [24] ZHU Y, HAN Z, LIU X Y, et al. Study on the effect and mechanism of hydrothermal pretreatment of dewatered sewage sludge cake for dewaterability[J]. *Journal of the air & waste management association*, 2013, 63(8): 997-1002. DOI: 10.1080/10962247.2013.788458.
- [25] KAMBO H S, DUTTA A. Comparative evaluation of torrefaction and hydrothermal carbonization of lignocellulosic biomass for the production of solid biofuel[J]. *Energy conversion and management*, 2015, 105: 746-755. DOI: 10.1016/j.enconman.2015.08.031.

#### 作者简介：

庄修政 (1992-), 男, 硕士研究生, 主要从事生物质燃料的制备与转化研究。

阴秀丽 (1968-), 女, 研究员, 博士生导师, 主要从事生物质热化学转化基础与应用研究。