前置反硝化脱氮系统外加碳源在线控制基础

王之晖,王淑莹,彭永臻,高春娣
(北京工业大学环境与能源工程学院,北京 100022)

摘要:以低碳氮比(C/N)生活污水为研究对象,对连续流前置反硝化生物脱氮系统外加碳源的控制方法进行了研究,从而能使出水硝酸盐和亚硝酸盐(NO_x^--N)的浓度在满足出水水质标准的情况下,尽可能减少外加碳源的投加量.试验结果表明:总回流比大于 2 碳源不足时,增加总回流比并不能提高脱氮效率;总回流比一定,缺氧区出水 NO_x^--N 的浓度达到 2 mg/L 左右时,即使碳源投加量成倍增加,TN 的去除率提高不多.在对总回流比与投加碳源量的相互关系分析的基础上提出了外加碳源量的控制方案:通过使缺氧区出水 NO_x^--N 浓度维持在 2 mg/L 左右来控制外加碳源的投加量,总回流比由进水 TN 及出水 NO_x^--N 浓度的标准值来确定.该控制方案既容易判断碳源投加的最佳点又能节省碳源的投加量,易于在污水处理实践中实现.

关键词:前置反硝化;低碳氮比;外加碳源;回流比;在线控制
中图分类号:X703.1 文献标识码:A 文章编号:0250-3301(2004)03-0073-05

On-line Control of External Carbon Addition to Predenitrification Process

WANG Zhi-hui, WANG Shu-ying, PENG Yong-zhen, GAO Chun-di
(College of Environmental and Energy Engineering, Beijing University of Technology, Beijing 100022, China)

Abstract: With domestic wastewater of low ratio of carbon and nitrogen(C/N), the control of external carbon dosage was studied for the predenitrification process with continuous flow. The objective is to keep the external carbon usage as low as possible while nitrate plus nitrite concentrations(NO_x^--N) of outflow under demand. The experimental results show that nitrogen removal efficiency couldn't be improved by increasing total recirculating rate with total recirculating rate more than 2 for lack of carbon source and removal efficiency of TN couldn't be largely improved by double dosage of carbon source with constant recirculating rate when NO_x^--N concentration reaches about 2 mg/L. Based on the analysis of the relationship between the external carbon addition and total recirculating rate, a control method was proposed. The external carbon dosage is controlled by keeping NO_x^--N concentration of anoxic zone at the level of 2 mg/L, and the total recirculating rate is determined by stated effluent NO_x^--N concentration. The control method not only can determine the reference point of carbon dosage, but also can optimize the usage of carbon addition. It is easy to be carried out in wastewater treatment plants.

Key words: predenitrification; low C/N; external carbon addition; recirculating rate; on-line control

随着氨氮(NH_3-N)、硝态氮(NO_x^--N)等在线检测仪器的开发,国内外对污水生物处理在线控制的研究越来越多.对于前置反硝化系统的控制研究主要集中在:通过调整硝化区/反硝化区的容积比、调整硝化区溶解氧(DO)的浓度以及回流比来控制处理系统出水 NH_3-N 和硝酸盐(NO_3^--N)浓度[1~3],通过在线识别模型在现有净化能力的基础上实现 N 的去除[4,5].但是,在实际应用中常常由于控制系统的控制方法过于复杂而使操作人员无法理解控制器的控制行为,使安装的控制系统被闲置.因此,研究开发简单的控制规则是实现污水生物处理过程控制的关键.

前置反硝化脱氮系统的最大优点就是能够充分利用进水中的可生物降解 COD 作为反硝化的碳源,可以减少外加碳源的需求量、降低耗氧量及剩余污泥的产生.但要求进水中有足够高的 C/N 来满足反硝化所需碳源[6].当进水中的 C/N 不能满足反硝化要求时,就需要外加碳源[7,8].其中碳源的投加速率十分关键,投加量不足将引起出水中硝酸盐浓度超标,投加量太多,又会增加运行费用(如作为碳源投加的药剂用量,污泥产量,需氧量).由于处理系统进水流量以及成分的巨大波动,促使人们对前置反硝化系统在线控制方法进行研究,以保证出水中的硝酸盐浓度满足出水水质要求,优化碳源的使用,减少外加碳源的用量.通常可以用 2 个控制变量来达到这一目的:外加碳源的投加速率及硝酸盐的回流比例[9].通过对前者的控制可保证回流到缺氧区的硝酸盐全部去除;通过对回流比的调节,可控制回流到缺氧区的硝酸盐量.

本文以低碳氮比生活污水为研究对象,对连续

收稿日期:2003-06-05;修订日期:2003-08-18
基金项目:国家自然科学基金重点项目(50138010);北京市教委重点项目(Kz200310005003);国家"十五"科技攻关项目(2002BA806B04)
作者简介:王之晖(1973~),女,博士研究生,主要从事污水生物处理及其智能控制研究.

流前置反硝化生物脱氮系统外加碳源的控制方法进行研究,在对回流比与投加碳源量之间的相互关系分析的基础上,确定了外加碳源投加的控制方案.

1 试验装置与方法

前置反硝化生物脱氮系统主要由合建式缺氧-好氧推流反应器和竖流沉淀池组成,模型采用透明有机玻璃制作,其结构如图1所示.合建式反应器总有效容积为57L,其中缺氧区占22%,好氧区占78%.为模拟水流的推流状态,将反应器沿池长分格,缺氧区2格,好氧区8格.缺氧区通过机械搅拌器的搅拌使反应器内的活性污泥与进水底物、回流污泥和回流硝化液充分混合.好氧区由空压机供气,采用烧结砂头作为微孔曝气器,DO浓度通过气体流量计和阀门控制.温度控制仪严格控制反应器内的温度.

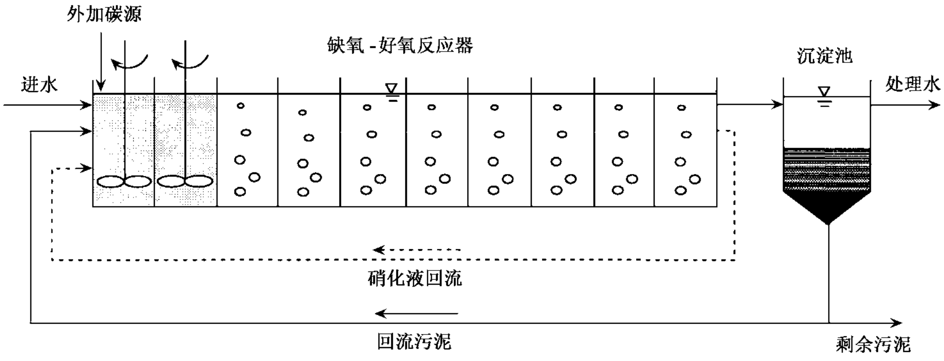

图1 前置反硝化系统试验模型装置

Fig.1 Schematic diagram of experimental equipment of predenitrification process

试验所用原水为北京工业大学家属区的生活污水,原水的C/N较低,约为3.5~4.进水COD为280~400mg/L,总氮(TN)为90~110mg/L,NH_3-N为80~100mg/L,PO_4^{3-}-P为8~10mg/L,pH为7.1~7.8.生活污水由蠕动泵计量进入缺氧-好氧反应器反应,经沉淀池沉淀获得处理水.回流污泥量和回流硝化液量由蠕动泵计量控制.

检测分析的项目有COD、TN、NH_3-N、NO_3^--N、亚硝酸盐(NO_2^--N)、pH、DO、氧化还原电位(ORP)等.COD采用兰州连华科技5B-3型快速测定仪、TN采用过硫酸钾氧化-紫外分光光度法、NH_3-N采用纳氏试剂光度法、NO_3^--N采用麝香草酚分光光度法、NO_2^--N采用N-(1-萘基)-乙二胺光度法、pH及ORP采用WTW inolab pH level 2测定仪、DO采用WTW Oxi 330i溶解氧测定仪测定.

2 结果与分析

试验过程中控制反应器内的悬浮固体浓度(MLSS)为4 500~5 000mg/L,进水COD负荷为0.19~0.41kg/(kg·d),NH_3-N负荷为0.06~0.11kg/(kg·d),处理系统出水COD≤50mg/L,出水NH_3-N≤2mg/L,基本可以保证出水氨态氮全部去除.

2.1 无外加碳源情况下总回流比对N去除的影响

总回流比定义为回流污泥量与回流硝化液之和与进水流量的比值.试验中,对每一给定的总回流比经若干周期运行使系统达到稳定,对系统的稳态结果进行研究.

不向反应器中投加碳源,在保证硝化反应进行完全的前题下,调节处理系统的总回流比,观察氮的去除情况.图2所示为不外加碳源,进水COD负荷为0.24kg/(kg·d)、NH_3-N负荷为0.06kg/(kg·d)时,不同总回流比下NH_3-N、NO_x^--N及TN去除率的变化情况.反应器中NH_3-N的去除主要通过微生物的合成代谢及自养微生物的氧化作用去除.由于回流液中的NH_3-N已基本降解为0mg/L,总回流比越高,对进水的稀释作用也越大,当总回流比在2~6之间变化时,随着总回流比的增加,反应器中第1格NH_3-N的浓度逐渐降低,硝化反应结束(即NH_3-N降解为0mg/L)的格数向后推迟.如图2所示,总回流比为2.18时,硝化反应至第6格结束;总回流比提高至3.92时,硝化反应至第8格结束;总回流比为5.54时,硝化反应至第9格才结束.可见,不投加碳源情况下,增加总回流比对硝化反应NH_3-N去除效率并无提高,反而由于回流量的加大使推流反应系统趋于完全混合,增加运行费用.

从图 2 可以看到,反应器中 NO_x^-- N 的浓度随着总回流比由低到高变化,回流至反应器缺氧区的 NO_x^-- N 浓度也逐渐增加.在缺氧区第 1 格和第 2 格 NO_x^-- N 浓度变化不大,变化幅度不超过 1 mg/ L,进入好氧区通过自养微生物的硝化作用,NO_x^-- N 的浓度开始逐渐增加,至反应器末端 NO_x^-- N 的浓度几乎相等.从而可以说明:①缺氧区的容积并不是反硝化速率的限制因素,NO_x^-- N 在缺氧区的两格中基本没有发生变化;②总回流比也不是反硝化的限制因素,总回流比的增加并没有降低反应器出水中 NO_x^-- N 的浓度.

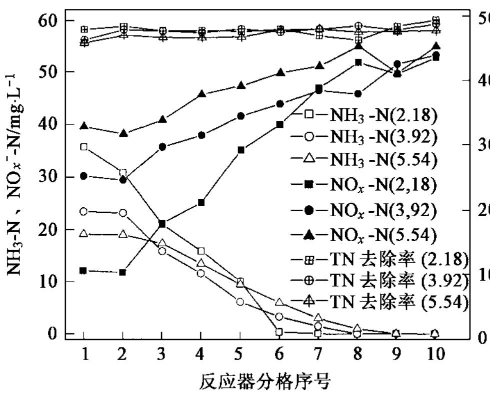

图 2 不投加碳源不同总回流比 NH_3- N、NO_x^-- N 及 TN 去除率在反应器中的变化

Fig.2 Variations of NH_3- N, NO_x^-- N and TN removal efficiency in reactor at different total recirculating rate with no carbon addition

因此可以推断,碳源不足是反硝化的限制因素.图 2 中 NH_3- N 在好氧区的变化速率也可说明这一点,硝化反应从好氧区第 1 格就以较高的去除速率进行,说明进水中的溶解性可生物降解 COD (bCOD) 已基本在缺氧区被全部去除.剩余颗粒性 bCOD 必须水解后才能降解,降解速度很慢,可生物降解的 COD 不再与自养硝化菌争夺电子受体.

总回流比在 2 ~ 6 之间变化时,反应系统 TN 的去除率为 45.78 % ~ 49.37 %,去除率基本没有提高(见图 2).处理系统中 TN 的最终减少,一是通过微生物的生长利用,再就是通过反硝化以 N_2、N_xO_y 气体形式从体系中去除.维持反应器中的 MLSS 不变,被微生物生长所利用的 TN 也就不变,那么处理系统以反硝化途径去除的 TN 也就没有提高.NH_3-N 转化为 NO_x^-- N 只是 N 的形态发生转变,就 TN 而言并没有减少,只有回流至缺氧区的 NO_x^-- N 全部反硝化,以气态形式从处理系统逸出,才能使系统中 TN 的含量降低.

可见,在进水 C/ N 小于 4 时,无论总回流比(2 ~ 6)为多少,回流的 NO_x^-- N 都没有被完全还原,内循环的大小已不再是脱氮的限制因素,碳源不足是主要因素.

2.2 恒定总回流比.投加碳源量对处理系统的影响

以甲醇作为外加碳源,向缺氧区第 1 格投加碳源,投加量以相当于进水中多少 COD 来计算.图 3 所示是总回流比为 2.97 时,不同碳源投加量下缺氧区出水 COD、NO_x^-- N 及 TN 去除率的变化情况.投加碳源量(COD/ 进水)在 0 ~ 221.58 mg/ L 之间变化时,缺氧区出水 NO_x^-- N 浓度由 30.51 mg/ L 降低至 1.92 mg/ L;COD 浓度由 66.22 mg/ L 增至 82.78 mg/ L;处理系统 TN 的去除率由 45.2 %提高至 73.1 %.继续增加碳源至 697 mg/ L,缺氧区出水 NO_x^-- N 降至 0 mg/ L,TN 去除率仅提高 3.27 %,而投加的碳源量却增加了 2 倍多.并且随着碳源的投加量增加,缺氧区出水 COD 浓度也从 82.78 mg/ L 增加到 185.12 mg/ L,增加了好氧区的负担.

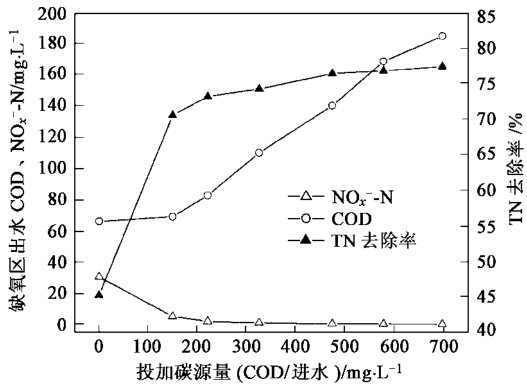

图 3 恒定总回流比碳源投加量对缺氧区出水 COD、NO_x^-- N 及 TN 去除率的影响

Fig.3 Effect of carbon dosage on the effluent COD, NO_x^-- N and TN removal efficiency of anoxic zone with constant total recirculating rate

根据 IAWPRC 推荐的 ASM No.1 模型,缺氧区反硝化速率为:

$$r_{den} = \mu_{H,max} \frac{S_{S,AN}}{K_S + S_{S,AN}} \frac{S_{NO,AN}}{K_{NO} + S_{NO,AN}} X_{BH} \tag{1}$$

式中:r_{den} 为 NO_x^-- N 的反硝化速率,mg·(L·d)$^{-1}$;$\mu_{H,max}$ 为异养菌的最大比增长速率,d^{-1};$S_{S,AN}$ 为缺氧区可生物降解 COD 浓度,mg·L^{-1};$S_{NO,AN}$ 为缺氧区 NO_x^-- N 浓度,mg·L^{-1};K_S 为可生物降解 COD

的半速率常数，mg·L^{-1}；K_{NO}为 NO_x^--N 的半速率常数，mg·L^{-1}；X_{BH}为反应器中异养菌的浓度，mg·L^{-1}.

从(1)式可以看出，对于稳定运行的处理系统，其异养菌的浓度已经确定不变，若反硝化速率恒定，缺氧区 $S_{NO,AN}$越低，$S_{S,AN}$则越高，$S_{NO,AN}$和 $S_{S,AN}$呈反比例关系.而进入好氧区的 COD 浓度与 $S_{S,AN}$成正比例关系，$S_{S,AN}$越高，进入好氧区的 COD 就越多，这样不但降低碳源的利用率，而且增加好氧区的 COD 负荷.因此，$S_{NO,AN}$不应太低，以减少进入好氧区的 COD.

恒定总回流比，随着碳源投加量的增加，缺氧区出水 NO_x^--N 浓度降低.当缺氧区出水 NO_x^--N 浓度达到 2.0 mg/L 左右时，即使碳源投加量成倍增加，缺氧区出水 NO_x^--N 浓度降低幅度不大，而且 TN 的去除率提高并不多.并且投加碳源量过多，还会导致缺氧区出水的 COD 很高，增加好氧区的 COD 负荷及药剂费用，影响硝化效果.因此，控制投加碳源量，使缺氧区出水 NO_x^--N 浓度保持在 2.0 mg/L 左右时，能够在碳源投加量较少的情况下，保证处理系统 N 的去除效果.

2.3 恒定碳源投加量总回流比对处理系统的影响

在碳源投加量恒定的情况下，对总回流比对缺氧区出水 COD、NO_x^--N 及 TN 去除率的影响进行研究，总回流比的调节范围为 1.5 ~ 6.0.图 4 是在缺氧区第 1 格投加 168.45 mg/L 碳源时，不同总回流比下缺氧区出水 COD、NO_x^--N 及总氮去除率的变化情况.当总回流比为 1.5 ~ 2.0，投加碳源量基本可以保证回流至缺氧区的 NO_x^--N 被全部反硝化去除，缺氧区出水 NO_x^--N 浓度小于 2.0 mg/L；随着总回流比增至 5.65，缺氧区的 NO_x^--N 累积量增加，投加的碳源已不能保证回流的 NO_x^--N 完全被反硝化，缺氧区出水 NO_x^--N 浓度提高至 9.37 mg/L.

在反硝化过程中，微生物利用溶解性 bCOD 进行反硝化的速率要快于利用颗粒性 bCOD，通过反硝化速率的变化可以确定原水中的溶解性 bCOD 及颗粒性 bCOD 的含量[10]，在连续流处理系统中受缺氧区容积的限制，溶解性 bCOD 对处理系统的反硝化更有利，向处理系统中加入碳源(溶解性 bCOD)可以提高处理系统的脱氮效率，但并不影响处理系统对原水中溶解性 bCOD 的利用[11].从图 4 中 TN 去除率的变化，可以看出缺氧区溶解性 bCOD 的利用情况.在总回流比由低到高的变化过程中，缺氧区出水 COD 逐渐减少，总回流比在 1.50 ~ 2.97 之间变化时，缺氧区内溶解性 bCOD 还较多，故 TN 去除率增加较快；当总回流比从 2.97 增至 4.81，缺氧区出水 COD 由 67.23 mg/L 降至 37.63 mg/L，缺氧区溶解性 bCOD 逐渐减少，故 TN 去除率提高缓慢；继续提高总回流比至 5.65 时，由于缺氧区出水 COD 已经降到 35.5 mg/L，可以认为反应器中的溶解性 bCOD(可被 NO_x^--N 快速利用的碳源)已基本全部被利用，而回流至缺氧区 DO 的总量却在不断增加，有限的碳源优先被 DO 利用，被 NO_x^--N 利用的碳源量就相对减少，反而导致 TN 去除率下降.

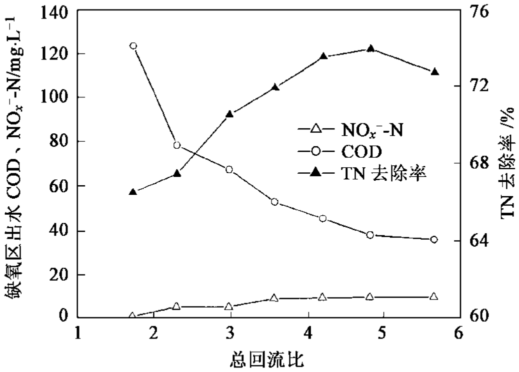

图 4 恒定碳源投加量总回流比对缺氧区出水 COD、NO_x^--N 及 TN 去除率的影响

Fig.4 Effect of total recirculating rate on the effluent COD，NO_x^--N and TN removal efficiency of anoxic zone with constant carbon dosage

可见，恒定碳源投加量，随着总回流比的增加，TN 去除率增加，出水中的 TN 降低；但是，当总回流比达到一定值时，TN 去除率达到最高；再进一步增加总回流比反而会使出水中的 TN 增加，降低 TN 的去除率.

2.4 外加碳源量的控制方法

通过前面的分析可以看出碳源投加量与总回流比之间存在一种最佳配合范围.为简化控制方法，控制过程中假设进入处理系统的 TN 一部分转化为 NO_x^--N(1 - r)，另一部分直接通过新生微生物的合成(r)消耗掉，根据质量平衡可得：

$$S_{NO,AE} = S_{NO,AN} + (1 - r) Q_{inf} S_{TN,in}/Q \quad (2)$$

$$Q = Q_{inf} + Q_{int} + Q_r \quad (3)$$

式中：$S_{NO,AE}$为好氧区出水 NO_x^--N 浓度，mg·L^{-1}；$S_{NO,AN}$为进入好氧区 NO_x^--N 浓度，mg·L^{-1}；r 为被微生物利用的总氮比例；$S_{TN,in}$为进水总氮浓度，mg·L^{-1}；Q_{inf}，Q_{int}，Q_r 分别为进水流量、回流硝化液量

和回流污泥量, $m^3 \cdot d^{-1}$.

由(2)式和(3)式可以导出总回流比 R_t 为:

$$R_t = \frac{1}{\frac{(1-r)S_{TN,in}}{S_{NO,AE}-S_{NO,AN}}-1} \quad (4)$$

从(4)式可以看出,在此假设条件下,总回流比仅与进水 TN 浓度、缺氧区及好氧区出水 NO_x^--N 浓度和被新生微生物利用的 TN 比例 r 有关.通过对实验数据的统计,确定 r 值为 0.25,表 1 为控制缺氧区及好氧区出水 NO_x^--N 浓度分别为 15 mg/L 和 2 mg/L 时,控制的总回流比值随进水 TN 浓度的变化.

在污水处理实践中,可以根据不同处理要求及相关的出水水质标准确定好氧区出水 NO_x^--N 浓度及 r 值.本研究在对大量的试验运行数据进行统计后,确定 r 为 0.25;确定缺氧区出水 NO_x^--N 浓度为 2 mg/L.由检测的进水 TN 浓度确定反应系统的总回流比,控制外加碳源量,使缺氧区出水 NO_x^--N 浓度维持在 2 mg/L 左右.

表 1　进水 TN 与控制的总回流比的对应关系

Table 1　The relationship between influent total nitrogen and the control value of total recirculating rate

进水 TN 浓度/ $mg \cdot L^{-1}$	60 ~ 70	70 ~ 80	80 ~ 90	90 ~ 100	100 ~ 110
总回流比 R_t	2.46 ~ 3.04	3.04 ~ 3.62	3.62 ~ 4.19	4.19 ~ 4.77	4.77 ~ 5.35

3　结论

(1) 在进水碳源不足情况下,当总回流比大于 2 时,增加总回流比对去除 NH_3-N、NO_x^--N 及 TN 并无提高,反而由于回流量的加大使推流反应系统趋于完全混合,并增加运行费用;此时总回流比已不再是脱 N 的限制因素,碳源不足是主要限制因素.进一步提高系统 TN 的去除率,必须外加碳源.

(2) 控制总回流比一定,缺氧区出水 NO_x^--N 浓度随着碳源投加量的增加而降低,当缺氧区出水 NO_x^--N 浓度达到 2.0 mg/L 左右时,即使碳源投加量成倍增加,缺氧区出水 NO_x^--N 浓度降低幅度不大,对 TN 去除率提高不多.并且,由于投加碳源量过多,导致缺氧区出水的 COD 过高,不但增加药剂费用,而且加重好氧区负担,影响硝化效果.

(3) 控制碳源投加量一定,随着总回流比增加,TN 去除率增加,出水中 TN 降低;当总回流比增加到一定值时,TN 去除率达到最高;再进一步增加总回流比反而会使出水中的 TN 增加,降低了 TN 的去除率.

(4) 通过使缺氧区出水 NO_x^--N 浓度保持在 2 mg/L 左右来控制外加碳源的投加量,总回流比由进水 TN 浓度和出水 NO_x^--N 的标准值来确定.这样既容易判断碳源投加的最佳点又节省碳源的投加量.

参考文献:

[1] Ulrich Meyer, H Johannes Pöpel. Fuzzy-control for improved nitrogen removal and energy saving in WWT-plants with pre-denitrification[A]. IWA 3rd World Water Congress, Melbourne Australia: 2002, CD-ROM, paper reference no. e20937a.

[2] Kalker T J J, C P van Goor, P J Roeleveld. Fuzzy control of aeration in an activated sludge wastewater treatment plant: design, simulation and evaluation[J]. Wat. Sci. Tech., 1999, **39**(4):71 ~ 78.

[3] Samuelsson P, Carlsson B. Control of the aeration volume in an activated sludge processs for nitrogen removal[J]. Wat. Sci. Tech., 2002, **45**(4-5):45 ~ 52.

[4] Hoen K, Schuhen M, Köhne M. Control of nitrogen removal in wastewater treatment plants with predenitrification, depending on the actual purification capacity[J]. Wat. Sci. Tech., 1996, **33**(1):223 ~ 236.

[5] Ingildsen P, Jeppsson U, Olsson G. Dissolved oxygen controller based on on-line measurements of ammonium combining feed-forward and feedback[J]. Wat. Sci. Tech., 2002, **45**(4-5): 453 ~ 460.

[6] Hallin Sara, Pell Mikael. Metabolic properties of denitrifying bacteria adapting to methanol and ethanol in activated sludge [J]. Wat. Res., 1998, **32**(1):13 ~ 18.

[7] Marsili Libelli S, Giunti L. Fuzzy predictive control for nitrogen removal in biological wastewater treatment[J]. Wat. Sci. Tech., 2002, **45**(4-5):37 ~ 44.

[8] Purtschert I, Siegrist H, Gujer W. Enhanced denitrification with methanol at WWTP Zürich-Werdhölzli[J]. Wat. Sci. Tech., 1996, **33**(12):117 ~ 126.

[9] Carlsson B, Rehnström A. Control of an activated sludge process with nitrogen removal-a benchmark study[J]. Wat. Sci. Tech., 2002, **45**(4-5):135 ~ 142.

[10] Sözen S, Ubay Cokgör E, Orhon D, Henze M. Respirometric analysis of activated sludge behaviour-Ⅱ. Heterotrophic growth under aerobic and anoxic conditions[J]. Wat. Res., 1998, **32**(2):476 ~ 488.

[11] Hallin S, Lindberg C F, Pell M, Plaza E, Carlsson B. Microbial adaptation, process performances and a suggested control strategy in a pre-denitrifying system with ethanol dosage[J]. Wat. Sci. Tech., 1996, **34**(1-2):91 ~ 99.