13X-APG 沸石真空变压变温耦合工艺吸附捕集烟道气中 CO2

梁辉,刘振,王璐,李平,于建国

(华东理工大学化学工程联合国家重点实验室,上海 200237)

摘 要:采用 13X-APG 沸石吸附捕集烟道气中 CO₂,并研发了五步循环真空变压变温(VTSA)耦合吸附捕集工艺.实验测定了循环吸附/解吸过程中吸附剂再生率、烟道气中 CO₂回收率、产品气量及产品气中 CO₂纯度,并与传统的真空变压吸附工艺(VSA)和变温吸附工艺(TSA)比较.由于 VTSA 在真空解吸的同时加热吸附剂,减少了真空泵的电耗,可在较温和的真空下(约 3×10³ Pa)操作,附加的吸附剂再生温度也不高,90~150℃下吸附剂再生率达 97%以上,CO₂回收率达 98%以上.吸附剂捕集 CO₂的量可提高到 1.8 mol/kg,是 VSA 工艺产品气量的 2 倍,且产品气中 CO₂纯度提高到 90%以上.

1 前言

气候变暖已是毋庸置疑的事实,90%以上的可能性 是人类活动导致的.全球大气中 CO_2 质量浓度已由工业 化时代前的280×10⁻⁶增至2005年的379×10^{-6[1]}.由于人 类活动产生的全球温室气体排放逐渐增加,预计到2100 年,大气中的 CO_2 含量将达到570×10⁻⁶,导致全球气温 升高1.9°C,海平面升高38 cm^[2].全球范围内每年必须 减少60亿t CO_2 排放才能真正防止全球气候变化^[3].

除了采用新技术以节能降耗、开发可再生能源、达 到减排目的外,CO₂的捕获与封存技术(CCS)具有整体 减少成本及增加温室气体减排灵活性的潜力^[4].21 世 纪,化石燃料将继续主导热力和电力生产,化石燃料燃 烧引起的CO₂排放还将起主要作用^[4,5].因此,研究火电 厂CO₂的捕集及其资源化技术对控制和减少温室气体 排放、应对温室效应及全球变暖问题具有重要意义^[6].

捕集化石燃料燃烧后产生的 CO₂ 的主要技术有吸 收法、吸附法、膜分离法和低温分离法^[7,8].其中吸收法 和吸附法有较悠久的历史,大量用于炼油、合成氨、制 氢、天然气净化等工业过程,相对较成熟,有大量经验 可以参考.一般认为胺类溶剂的化学吸收是捕集电厂、 钢厂等排放的烟道气中 CO₂ 的比较有前景的技术,单乙 醇胺(MEA)吸收燃烧后 CO₂ 的能耗为 4.2~4.8 MJ/kg^[9]. 在捕集中小型电厂、钢厂和水泥厂烟道气中的 CO₂时, 吸附法因设备简单、能耗低、易实现自动化操作、不必 考虑腐蚀性问题等特点而具有较大优势.随着新型高效 吸附剂的开发和分离工艺技术的优化,吸附法捕集 CO₂的成本可以大幅度下降,使其极具竞争力.

根据吸附剂再生方法不同,吸附法捕集分离气体可 分为变压吸附(PSA)/真空变压吸附(VSA)^[10]、变温吸附 (TSA)及电解吸(ESA)^[11]技术. Merel 等^[12]在吸附床中内 置翅式换热元件,以提高变温吸附效率.以 5A 沸石为 吸附剂, 捕集 CO2 量达 37 kg/(m³·h), 总能耗约为 6 MJ/kg. 若采用 3~5 个塔,并优化循环吸附/脱附工艺,充分利 用热量,能耗将与溶剂吸收法相当. Chaffee 等^[13]近期通 过中试实验和 VPSA 捕集工艺的数值模拟优化指出,采 用多个(2~4 个)吸附器同时进行吸附、抽真空、降温、 升温、升压及均压等操作,捕集成本大幅度降低,使吸 附法捕集烟道气中 CO2 工艺更有吸引力. Ishibashi 等^[14] 以沸石为吸附剂,开发了一种捕集电厂烟道气中 CO2 的方法,首先利用真空变压吸附与变温吸附耦合工艺, 使 CO2 纯度提升到 60% 左右, 然后再通过第二套变压吸 附装置,最终得到 90%以上的回收率和 99%以上的纯 度,在1000 m³/h 的示范电厂进行烟道气脱除 CO2 实验, 连续运行 2000 h 没有发现沸石吸附效率下降;由于加 入变温吸附技术,使真空泵电力消耗下降10%,若同时 再利用电厂未被利用的余热加热吸附剂进行解吸,运行 将更为经济,捕集成本有望下降 20%. 但关于真空变压 吸附与变温吸附耦合工艺的基础研究,如吸附床层的设 计、加热条件、循环工艺步骤及耦合吸附捕集 CO2 工艺 与其他传统的吸附工艺的对比,都还没有详细报道.

本工作拟采用吸附性能优良的 13X-APG 沸石吸附

收稿日期: 2009-11-02, 修回日期: 2010-01-26

基金项目: 国家高技术研究发展计划(863)基金资助项目(编号: 2008AA062302); 上海市浦江人才基金资助项目(编号: 08PJ14034); 上海市国际合作基金 资助项目(编号: 08160704000)

作者简介:梁辉(1984-),女,吉林省桦甸市人,硕士研究生,主要研究方向为 CO₂吸附捕集, E-mail: joannalh0212@yahoo.com.cn; 李平,通讯联系人, Tel: 021-64250981, E-mail: liping_2007@ecust.edu.cn.

捕集烟道气中低浓度的 CO₂,探索真空变压吸附与变温 吸附耦合循环过程,并优化耦合吸附捕集工艺条件,降 低捕集成本和能耗.

2 原理

图 1 是吸附质在吸附剂上的吸附平衡等温线,真空 变压变温耦合吸附工艺的原理可用其解释.图中O为吸 附剂吸附饱和点,然后吸附剂解吸以循环使用.解吸方 式有 3 种:抽真空、加热及抽真空和加热耦合.A 代表 真空变压吸附过程解吸点,B 代表变温吸附过程解吸点, C 则是真空变压变温耦合吸附过程解吸点.当吸附量为 q2(O 点)时开始解吸,达到相同的再生效率,即解吸到 吸附量为 q1 时,3 种解吸方式分别对应 A,B,C 点.采用 真空变压变温耦合吸附工艺时,与真空变压吸附工艺相 比,解吸真空度变小,真空泵的动力能耗降低;与变温



图 1 真空变压变温耦合吸附技术的原理示意图



工艺相比,再生温度降低.优化设计耦合工艺,使用低的再生温度,可使用工厂低品位的余热,进一步降低捕 集热能耗.

3 实验

3.1 实验材料

13X-APG 沸石吸附剂(上海环球分子筛有限公司) 是一种碱金属硅铝酸盐,钠 X 型晶体结构,分子式为 Na₈₆[(AlO₂)₈₆(SiO₂)₁₀₆]·xH₂O,孔径为 0.1 nm,球状颗粒 尺寸为 2.5~3.2 mm. 新购的 13X-APG 沸石 需在 320 ℃左 右的烘箱中烘干,活化 12 h 以上使用. 模拟烟道气的组 成为 15% CO₂ 和 85% N₂.

3.2 实验装置与分析仪器

真空变压变温耦合吸附工艺(Vacuum and Temperature Swing Adsorption, VTSA)实验流程如图2所示.实验中采用不锈钢套管吸附器,内管直径25 mm,长550 mm,外管直径50 mm,长550 mm,内管填充115.41 g 13X-APG 沸石,填充高度为350 mm,内管两端各装填直径1~2 mm的玻璃珠10 cm,用厚度1 mm的筛板隔开吸附剂和玻璃珠.夹套通导热油以加热和冷却吸附器内的吸附剂,循环导热油温度由高、低温恒温油浴(分别为DC2006型和CH3015型)控制.近常压下通入模拟烟道气,流量由D07-19B型质量流量控制器调节.MPC301Zp型隔膜真空泵抽真空解吸,并在真空条件下采用少量氮气逆流吹扫.GC-920型色谱和GXH-1050E型 CO₂ 红外在线分析仪同时在线检测 CO₂ 浓度.D08-8CM/ZM型质量流量积算仪计量解吸的CO₂量.吸



图 2 真空变压变温耦合吸附工艺实验流程图 Fig.2 Experimental set-up for CO₂ capture by the combined VTSA process

附器进出口处安装 A0910X 型压力变送器和温度变送器 (K 型热电偶),电脑软件连续采集并记录压力、温度、 CO₂浓度及解吸产品气流量数据.

3.3 实验过程

燃烧后烟道气的排放压力接近常压,所以在常压下 吸附捕集烟道气中 CO₂可节省因压缩大量 N₂而消耗的 动力能耗.考虑到床层的压力降,实验设定吸附捕集压 力为 133×10³ Pa. 13X-APG 沸石吸附剂在常温下对低浓 度 CO₂有较大的吸附量,捕集温度设为常温 30℃.模拟 烟道气组成为 15% CO₂和 85% N₂,因此吸附捕集烟道 气中 CO₂实际分压为 20×10³ Pa.

采用真空再生技术, 捕集工艺为真空变压吸附; 采 用加热再生技术, 捕集工艺为变温吸附. 本研究采用抽 真空和加热耦合方式使吸附的 CO₂解吸, 实现 13X-APG 吸附剂再生, 简称真空变压变温耦合吸附捕集工艺. 该 工艺中吸附剂再生分 3 个阶段: 加热、抽真空和吹扫, 吹扫的目的是回收床层内存留的少量 CO₂.

吸附床吸附 CO₂达到饱和后,进行吸附剂再生.加 热解吸吸附剂采用夹套通过循环导热油间接加热管内 吸附剂至 150℃,解吸出的产品气由吸附器底部常压下 排出,流量积分仪计量累积流量,红外分析仪在线检测 流出气体中 CO₂的浓度.

耦合 VTSA 工艺中再生温度分别选择为 90, 110, 130 和 150℃,以便实际应用中可以利用电厂、钢厂、 水泥厂的低品位余热,进一步降低 CO₂ 捕集能耗.

真空变压变温耦合吸附工艺中循环操作步骤如图 3 所示.每个循环包括吸附、升温、抽真空、真空吹扫和 加压降温 5 个步骤.详细操作步骤如下:

(1)吸附:模拟烟道气(15% CO₂和 85% N₂)在近常压 (133×10³ Pa)和常温(30 ℃)下由塔底进入吸附塔,少量流 出气体分别经色谱和CO₂红外在线分析仪在线检测CO₂ 浓度,至吸附床层 30%突破(CO₂瞬间流出浓度 C_{CO_2} 与 进料中 CO₂浓度 C_{0,CO_2} 比).

(2)升温:用导热油加热吸附床,进行吸附剂再生. 升温解吸气量由流量积分仪计量,红外在线分析仪在线 检测解吸气中 CO₂ 浓度,升温到预定的再生温度, VTSA₁为 150℃,VTSA₂为 130℃,VTSA₃为 110℃, VTSA₄为 90℃.

(3)抽真空:加热解吸后启动隔膜真空泵至真空压力为 3×10³ Pa,进行逆向真空解吸.流量积分仪计量真空 解吸产品气量,红外在线分析仪在线检测解吸气中 CO₂ 浓度.

(4)真空吹扫:真空条件下用少量 N₂逆向吹扫填充 床内滞溜的 CO₂,流量积分仪计量产品气量,红外在线 分析仪检测解吸气中 CO_2 浓度.因为存留的 CO_2 量占解吸量很少,所以吹扫气体 N_2 的用量应该很少,否则会降低产品气中 CO_2 纯度.

(5)加压降温:吸附剂再生后加压,用导热油冷却吸附床至 50℃,准备开始下一个循环吸附/解吸操作.



图 3 真空变压变温耦合工艺的循环吸附/解吸步骤 Fig.3 Cyclic adsorption/desorption procedures in the combined VTSA processes

实验中还测量了常规真空变压吸附(Vacuum Swing Adsorption, VSA)和常规变温吸附(Temperature Swing Adsorption, TSA)工艺的数据,比较了3种工艺的吸附捕 集效率.常规真空变压吸附工艺中循环吸附和解吸操作 步骤包括吸附、抽真空、真空吹扫和加压过程,常规变 温吸附工艺中循环吸附和解吸操作步骤包括吸附、升 温、吹扫和降温过程.

4 结果与讨论

4.1 吸附与解吸动力学

典型的 CO₂ 突破曲线和床内温度变化曲线如图 4 所示,其中烟道气输入流量为 2.212 L/min,夹套通循环 导热油控制温度为 30℃.由图 4(a)根据式(1)可计算出 动态 CO₂吸附量为 2.69 mol/kg.

$$q_{\rm CO_2} = \left(V C_{\rm CO_2, t} t - \int_0^t V C_{\rm CO_2} dt \right) / W , \qquad (1)$$

式中,V为烟道气流量(m³/s), $C_{CO_2,t}$ 为烟道气中 CO₂进 口浓度(mol/m³),t为吸附时间(s), C_{CO_2} 为流出的 CO₂ 瞬间浓度(mol/m³),W为吸附器内填充吸附剂的质量 (kg).

此外,13X-APG 沸石吸附 CO₂ 是强放热过程,尽 管采用夹套导热油循环恒温吸附床,吸附器出口处温度 仍上升 6~8℃,如图 4(b)所示,因此吸附床内存在热波.

图 5 为吸附解吸过程中 CO₂的流出浓度曲线及解吸 得到的产品气流率.从实验结果可计算出升温解吸的 CO₂ 占总解吸量的 56.68%,真空解吸 CO₂ 占总解吸量 的 38.31%,其余是吹扫解吸,占 5%.



图 4 13X-APG 沸石吸附捕集烟道气中 CO₂ 的突破曲线及床温度变化 Fig.4 Typical breakthrough curve and temperature curves from the packed bed with 13X-APG zeolite for CO₂ capture from the modeling flue gas of 15% CO₂ and 85% N₂ with 2.212 L/min flow rate at 30 ℃, and 133×10³ Pa





4.2 常规 VSA, TSA 和耦合 VTSA 吸附捕集工艺的比较

评价吸附捕集烟道气中 CO2 的重要参数有:

 $CO_2 回收率 \eta_{R,CO_2}$:

$$\eta_{\rm R,CO_2} = \frac{{\rm ffg} {\rm g} \eta {\rm O} {\rm CO_2} \pm}{{\rm g} {\rm g} {\rm f} {\rm f} {\rm f} {\rm g} {\rm t} {\rm h} {\rm h} {\rm h} {\rm h} {\rm O} {\rm CO_2} \pm} \times 100\%, \qquad (2)$$

产品气中 CO₂ 纯度 η_{P,CO_3} :

$$\eta_{P,CO_2} = \frac{MW}{MW} = \frac{MW}{MW} = \frac{100\%}{100\%} \times 100\%,$$
(3)

每个循环得到的产品中 CO_2 气量 $Q_{CO_2}(mol/kg)$:

$$Q_{\text{CO}_2} = \frac{\text{每个循环解吸得到的CO}_2 \pm}{\text{吸附器填充吸附剂的质量}},$$
(4)

吸附剂再生率 $\eta_{R,ads}$:

$$\eta_{\text{R,ads}} = \frac{\text{循环稳定后每个循环吸附CO}_2 \pm}{\text{第一个循环吸附CO}_2 \pm} \times 100\%.$$
 (5)

本研究采用常规VSA, TSA 和耦合 VTSA 工艺吸附 捕集吸附捕集烟道气中 CO₂,比较其效率.工艺操作条 件如表 1 所示,压力、温度和 CO₂浓度随时间变化曲线 如图 6 所示.3 种不同循环工艺中,压力、温度、CO₂ 浓度及循环时间不同,加热和冷却将占用较长时间.4~5 次循环后,系统基本能达到稳定状态.

图 7 为 6 组循环吸附捕集烟道气中 CO₂的实验结 果, 其中4组耦合工艺的吸附捕集效率明显优于常规真 空变压吸附和常规变温吸附.13X-APG 沸石捕集 CO2是 强放热的非线性吸附. 采用常规真空变压吸附捕集工 艺,当吸附剂再生压力为 3×10³ Pa 时,循环稳定后,吸 附剂再生率仅达45%,每个循环产品气量较低,约为耦 合工艺的一半,且 CO2 回收率为 83.7%,产品气中 CO2 纯度为 74.3%, 明显偏低. 常规变温吸附捕集工艺吸附 剂再生温度为150℃,与真空变压吸附工艺相比,吸附 剂再生率明显提高, CO2回收率、产品气量及产品气中 CO2纯度均增加,但捕集效率比耦合工艺低.4组耦合吸 附捕集工艺的再生真空压力均为 3×10³ Pa, 但再生温度 不同. 在加热辅助下, 抽真空再生较容易, 吸附剂能很 好再生,再生率达97%以上,CO2回收率达98%以上.产 品气量提高到1.8 mol/kg,是常规真空变压吸附工艺产 品气量的2倍,且产品气中CO2纯度提高到90%以上, 可压缩到 10 MPa 后除去不凝气,直接封存地下.尽管 耦合工艺存在变温吸附,循环时间明显比快速真空变压 吸附长,但实际应用中采用多塔连续循环操作可避免该 缺点.

图 8 为再生过程中每个阶段能回收的 CO₂量. 与抽 真空和加热阶段相比,耦合工艺吹扫阶段能回收的 CO₂ 量很少,因此吹扫过程中应采用少量 N₂,控制吹扫时间 尽可能短,以免降低产品气中 CO₂纯度. 且随辅助加热

再生温度升高,加热阶段能回收的 CO₂量逐渐增加,真 动力消耗将会减少. 空解吸的 CO₂量变少,抽真空时间明显变短,真空泵的



图 6 VSA, TSA 和 VTSA 吸附捕集 CO₂ 工艺中压力、温度和 CO₂ 流出浓度随时间变化曲线 Fig.6 Typical pressure, temperature and CO₂ effluent concentration in VSA, TSA and VTSA processes to capture CO₂ from the flue gas (Desorption conditions are 3×10³ Pa, 30 °C in VSA, 101×10³ Pa, 150 °C in TSA, and 3×10³ Pa, 150 °C in VTSA)





Fig.7 Comparison of CO₂ recovery rate (η_{R,CO_2}), CO₂ purity (η_{P,CO_2}) in product gas, $\eta_{R,ads}$, and CO₂ productivity per cycle (Q_{CO_2}) among VSA, TSA, and combined VTSA processes with different desorption conditions (VSA: 3×10^3 Pa, $30 ^{\circ}$ C; TSA: 101×10^3 Pa, $150 ^{\circ}$ C; VTSA₁: 3×10^3 Pa, $150 ^{\circ}$ C; VTSA₂: 3×10^3 Pa, $130 ^{\circ}$ C; VTSA₃: 3×10^3 Pa, $110 ^{\circ}$ C; VTSA₄: 3×10^3 Pa, $90 ^{\circ}$ C)



13X-APG zeolite (Desorption conditions were the same as Fig.7)

	表2 燃烧后 C0₂吸附捕集工艺的文献报道与本实验结果比较
Table 2	Comparison between experimental results done of this work and that reported in literatures
	for CO ₂ capture of post-combustion by VSA. TSA and VTSA processes

	<u> </u>	1	J	1		
Brocess	Adsorbent	$y_{\rm CO_2}(\%, \varphi)$	Adsorption-desorption,	Adsorption-desorption,	Recovery rate	Purity of CO2
Flocess			<i>p</i> (×10 ³ Pa)	$T(^{\circ}\mathbb{C})$	of CO ₂ (%)	(%)
VSA ^[15] (One bed three steps)	13X	12	118/4	30	60.4	72
VSA ^[15] (One bed three steps)	13X	11.2	118/3	30	78.5	69
VSA ^[16] (Three beds six steps)	13X	8~15	130/5~6	40	60~80	82~83
VSA ^[16] (Three beds nine steps)	13X	8~15	130/5~6	40	60~70	90~95
VSA ^[17] (Three beds six steps)	Activated carbon	13	200/10	30	55	99
TSA ^[18] (Indirect heating)	13X	10	101	15/110	56	Near 100
VSA (This work)	13X-APG	15	133/3	30	81.3	74.3
TSA (This work)	13X-APG	15	133/101	30/150	71.2	90.3
VTSA (This work)	13X-APG	15	133/3	30/90	97.2	91.9
VTSA (This work)	13X-APG	15	133/3	30/150	99.0	90.5

已有许多对燃烧后 CO₂吸附捕集工艺的理论与实验研究报道,基本上集中在常规真空变压吸附工艺和常规变温吸附工艺,关于真空变压变温耦合工艺吸附捕集烟道气中 CO₂的报道很少,文献[14]仅报道了示范工程实验结果节能约 20%.表 2 给出了部分文献报道的实验结果及本实验结果,本实验的 CO₂ 回收率和产品气中CO₂纯度明显提高.

5 结论

以吸附性能优良的 13X-APG 沸石为吸附剂,采用 真空变压变温耦合吸附工艺捕集烟道气中低浓度的 CO₂. 在近常压(133×10³ Pa)和常温(30℃)下吸附捕集, 在加热(90~150℃)和抽真空(3×10³ Pa)条件下进行吸附 剂再生,由实验结果得出以下结论:

(1)20×10³ Pa CO₂分压条件下,吸附剂动态吸附 CO₂ 量达到 2.69 mol/kg,且吸附剂对烟道气中 CO₂的选择性 较高.

(2)采用常规真空变压吸附工艺,吸附剂再生压力为 3×10³ Pa,循环稳定后,吸附剂再生率仅达45%,解吸 得到的产品气量较低,约为耦合工艺的一半,产品气中 CO₂纯度较低,约为74.3%.

(3)采用常规变温吸附工艺,吸附剂再生温度为150 ℃,与真空变压吸附工艺相比,吸附剂再生率明显提高, CO₂回收率、产品气量及产品气中CO₂纯度均增加,但 捕集效率比耦合工艺低.

(4)耦合吸附工艺中,再生真空压力为 3×10³ Pa,再 生加热温度在 90~150℃范围,吸附剂再生率达 97%, CO₂回收率达 98%,产品中 CO₂气量为 1.8 mol/kg, CO₂ 纯度提高到 90%以上,可压缩到 10 MPa 后除去不凝气, 直接封存到地下.

参考文献:

[1] Pachauri R K, Reisinger A. IPCC Climate Change 2007: The AR4

Synthesis Report [R]. Geneva: World Meteorological Organization and United Nations Environment Programme, 2007–11–12.

- [2] Caleb S, Hessami M. A Study of Methods of Carbon Dioxide Capture and Sequestration—The Sustainability of a Photosynthetic Bioreactor Approach [J]. Energy Convers. Manage., 2005, 46(3): 403–420.
- [3] US Department of Energy. Carbon Sequestration Research and Development [R]. Washington DC: Office of Science: Office of Fossil Energy, 1999–09–01.
- [4] Bert M, Ogunlande D, Heleen C, et al. IPCC Special Report on Carbon Dioxide Capture and Storage [R]. Montreal: World Meteorological Organization and United Nations Environment Programme, 2005–09–22.
- [5] 费维扬,艾宁,陈健. 温室气体 CO₂ 的捕集和分离—分离技术面临的挑战与机遇 [J]. 化工进展, 2005, 24(1): 1–4.
- [6] 张茂,吴少华,李振中.火电厂 CO₂捕集及资源化技术 [J]. 电站 系统工程,2007,23(5):11-13.
- [7] Evan J G, Thomas O. Review of Novel Methods for Carbon Dioxide Separation from Flue and Fuel Gases [J]. Fuel Process. Technol., 2005, 86(14/15): 1423–1434.
- [8] Douglas A, Costas T. Separation of CO₂ from Flue Gas: A Review [J]. Sep. Sci. Technol., 2005, 40(1/3): 321–348.
- [9] Aroonwilas A, Veawab A. In Cost Structure and Performance of CO₂ Capture Unit Using Split-stream Cycle [A]. Gale J, Bolland O. Proceedings of the 8th International Conference on Greenhouse Gas Control Technologies (GHGT-8) [C]. Oxford Elsevier Science Ltd., 2008, 452–460.
- [10] Chou C T, Chen C Y. Carbon Dioxide Recovery by Vacuum Swing Adsorption [J]. Sep. Purif. Technol., 2004, 39(1/2): 51–65.

- [11] Grande C A, Rodrigues A E. Electric Swing Adsorption for CO₂ Removal from Flue Gases [J]. Int. J. Greenhouse Gas Control, 2008, 2(2): 194–202.
- [12] Merel J, Clausse M, Meunier F. Experimental Investigation on CO₂ Post-combustion Capture by Indirect Thermal Swing Adsorption Using 13X and 5A Zeolites [J]. Ind. Eng. Chem. Res., 2008, 47(1): 209–215.
- [13] Chaffee A L, Knowles G P, Liang Z, et al. CO₂ Capture by Adsorption: Materials and Process Development [J]. Int. J. Greenhouse Gas Control, 2007, 1(1): 11–18.
- [14] Ishibashi M, Hiromitsu O, Nobuo A, et al. Technology for Removing Carbon Dioxide from Power Plant Flue Gas by the Physical Adsorption Method [J]. Energy Convers. Manage., 1996, 37(6/8): 929–933.
- [15] Li G, Xiao P, Webley P, et al. Capture of CO₂ from High Humidity Flue Gas by Vacuum Swing Adsorption with Zeolite 13X [J]. Adsorption, 2008, 14(2/3): 415–422.
- [16] Zhang J, Webley P, Xiao P. Effect of Process Parameters on Power Requirements of Vacuum Swing Adsorption Technology for CO₂ Capture from Flue Gas [J]. Energy Convers. Manage., 2008, 49(2): 346–356.
- [17] Na B K, Lee H, Koo K K, et al. Effect of Rinse and Recycle Methods on the Pressure Swing Adsorption Process to Recover CO₂ from Power Plant Flue Gas Using Activated Carbon [J]. Ind. Eng. Chem. Res., 2002, 41(22): 5498–5503.
- [18] Mérel J, Clausse M, Meunier F. Carbon Dioxide Capture by Indirect Thermal Swing Adsorption Using 13X Zeolite [J]. Environ. Prog., 2006, 25(4): 327–333.

Capture of CO₂ from Flue Gases by a Combined Process of Vacuum and Temperature Swing Adsorption Using 13X-APG Zeolite

LIANG Hui, LIU Zhen, WANG Lu, LI Ping, YU Jian-guo

(State Key Laboratory of Chemical Engineering, East China University of Science and Technology, Shanghai 200237, China)

Abstract: The combined process of vacuum and temperature swing adsorption (VTSA) was developed to capture CO_2 from the flue gases using 13X-APG zeolite, in which a five-step cyclic adsorption–desorption procedure was involved. The regeneration efficiency of adsorbents, the recovery rate of CO_2 from the flue gas, CO_2 purity in product gas and productivity of product gas were measured for CO_2 capture from the flue gas at ambient pressure and room temperature. The experimental results were compared with those obtained by both conventional vacuum swing adsorption (VSA) process and temperature swing adsorption (TSA) process. In the VTSA process, the adsorbents could be regenerated better at the milder vacuum pressure (3×10^3 Pa) with the heating help ($110 \sim 150$ °C), an excellent capture efficiency could be reached, with 97% regeneration efficiency of adsorbents, 98% of CO_2 recovery rate, 90% of CO_2 purity in product gas, where the productivity double the result captured by the VSA process.

Key words: CO₂ capture; CO₂ mitigation; vacuum swing adsorption; temperature swing adsorption; combined vacuum and temperature swing adsorption