

胺种类对硅基胺吸附剂的 CO₂ 吸附性能影响

李冠宇, 郑仙荣, 宁 辉, 郭百合

(太原理工大学电气与动力工程学院, 太原 030024)

摘 要: 燃煤烟气中 CO₂ 减排刻不容缓, 而传统吸附材料存在吸附性能有限、受烟气中杂质影响大等问题, 本研究以聚环氧乙烷-聚环氧丙烷-聚环氧乙烷三嵌段共聚物为模板剂, Na₂SiO₃ 为硅源, 制备硅基介孔材料 SM, 并在其上担载四乙烯五胺 (TEPA)、聚乙烯亚胺 (PEI) 以及 2-氨基-2-甲基-1-丙醇 (AMP), 获得硅基胺吸附剂, 用于 CO₂ 吸附实验。结果表明, 硅基材料负载胺后, CO₂ 吸附性能均明显提高, 且双胺吸附剂要优于单胺吸附剂。最优硅基胺吸附剂 30PEI-30AMP/SM 的 CO₂ 吸附量达到 4.30 mmol/g。TEPA 和 PEI 含有大量伯胺基团, 能与 CO₂ 发生化学反应, 但高黏度限制了它们在载体中的分散。AMP 是具有羟基的位阻胺, 可以引入额外的网络结构, 提高吸附剂的热稳定性。双胺吸附剂不同种类的胺可以相互协作, 共同提高 CO₂ 的吸附性能。同时, 燃煤烟气中的 SO₂ 和水蒸气等成分也会对吸附剂的 CO₂ 吸附性能产生重要影响。强酸性的 SO₂ 会优先与碱性胺基反应, 生成的亚硫酸盐会堵塞孔隙, 增加 CO₂ 的扩散阻力, 严重抑制 CO₂ 的吸附; 水蒸气可以减少与等量 CO₂ 反应的胺基数量, 提高胺基团的利用效率, 从而提高吸附剂的 CO₂ 吸附性能; NO 对 CO₂ 吸附几乎没有影响。

关键词: 介孔材料; 有机胺; 硅基胺吸附剂; 二氧化碳吸附

中图分类号: TQ17 文献标志码: A 文章编号: 0454-5648(2025)11-3382-11

网络出版时间: 2025-10-11



燃煤产生的 CO₂ 是造成温室效应的主要原因之一, 因此减少燃煤 CO₂ 排放量刻不容缓^[1-2]; 同时 CO₂ 捕集也是碳捕获、利用与封存技术的基础和关键。燃烧后捕集 CO₂^[3] 因不影响燃烧状况而备受关注。其中固体吸附剂吸附法又因操作简便、再生特性好成为研究热点^[4]。

固体吸附剂吸附 CO₂ 的关键是吸附剂的物理和化学特性, 即孔隙结构特征和表面化学活性位点等。硅基材料因比表面积大, 且孔径可调节, 孔道结构多变等特征, 常被用作吸附剂载体^[5]。但其本身 CO₂ 吸附能力较弱, 需要担载化学试剂(如碳酸钾、有机胺等)来改善其表面特性, 以增强其与 CO₂ 分子的亲和力, 实现对 CO₂ 捕集^[6-8]。近年来, 关于硅基材料担载有机胺用于 CO₂ 吸附的研究较多, 一系列具有创新性和前瞻性的研究成果不断涌现。Zhao 等^[9] 合成了一系列四乙烯五胺 (TEPA) 浸渍的介孔 SBA-15 吸附剂, 并在各种条件下进行了 CO₂ 吸附测试。含 60% (质量分数) TEPA 的 SBA-15 在 75 °C、

湿润环境下对 CO₂ 的吸附量最高, 为 5.22 mmol/g。实验结果显示, 支撑材料的结构和表面特性, 特别是均匀的介孔含量是使胺更好地分散到 SBA-15 孔隙中的主要因素。Liu 等^[10] 探讨了 MCM-41 担载 TEPA、聚乙烯亚胺 (PEI) 和乙二胺 (EDA), 并研究其 CO₂ 吸附性能。实验结果表明, 由于 EDA 易挥发, 用其浸渍的样品表现出较低的 CO₂ 吸附能力。TEPA、PEI 浸渍的样品则表现出较高的吸附能力和热稳定性。Sarmah 等^[11] 探究了以低成本的粉煤灰基材料负载一乙醇胺 (MEA)、二甲胺 (DMA)、二乙醇胺 (DEA) 等不同种类的有机胺时的 CO₂ 吸附能力。实验结果表明, 位阻胺 DMA 的加入, 不仅显著提高了吸附剂的热稳定性, 还使得其 CO₂ 吸附性能得到了大幅提升。但目前针对不同种双胺吸附剂对 CO₂ 吸附的影响的研究较少。

实际燃煤烟气中存在大量 SO₂、NO_x、H₂O 气体, 会影响固体胺吸附剂对 CO₂ 捕集。Rezaei 等^[12] 通过在固定床中进行动态多组分吸附实验, 发现

收稿日期: 2025-03-03。 修订日期: 2025-04-03。

基金项目: 山西省自然科学研究面上项目(202303021211066)。

第一作者: 李冠宇(1997), 男, 硕士研究生。

通信作者: 郑仙荣(1976), 女, 博士, 副教授。

Received date: 2025-03-03. Revised date: 2025-04-03.

First author: LI Guanyu (1997-), male, Master candidate.

E-mail: 3218951792@qq.com

Correspondent author: ZHENG Xianrong (1976-), female, Ph D, Associate Professor.

E-mail: zxrty1313@126.com

SO₂ 对吸附剂的 CO₂ 吸附量有显著影响, 而 NO 对 CO₂ 吸附的竞争作用很小。Khatri 等^[13]发现, 在 H₂O 存在环境下, SO₂ 与 SBA-15 表面胺基之间会发生强烈的相互作用, 形成硫酸盐/亚硫酸盐, 从而阻塞了 CO₂ 活性吸附位点。大多数关于负载胺吸附剂的文献研究集中在 CO₂ 吸附剂的开发上, 而关于负载胺吸附剂在烟气杂质(SO₂、NO_x、H₂O 气体)存在下的稳定性的研究较少^[14]。

基于此, 本工作以 Na₂SiO₃ 为硅源, 聚环氧乙烷-聚环氧丙烷-聚环氧乙烷三嵌段共聚物(P123)为模板剂, 制备硅基介孔材料, 在其上负载小分子胺 TEPA、大分子胺 PEI 和位阻胺 2-氨基-2-甲基-1-丙醇(AMP)合成硅基胺吸附剂。通过 Brunauer-Emmett-Teller (BET)计算方法、热重分析(TG)、傅里叶红外光谱(FT-IR)和扫描电子显微镜(SEM)等吸附动力学和表征分析探究硅基胺吸附剂的 CO₂ 吸附机理。同时揭示吸附温度、胺种类和气体组分(SO₂、NO_x、H₂O)对 CO₂ 吸附的影响机制。

1 实验

1.1 试剂

所用化学试剂均为分析纯, 主要有 HCl(37%)、Na₂SiO₃、P123, TEPA、PEI、AMP, 无水乙醇。

1.2 硅基胺吸附剂的制备

以 Na₂SiO₃ 为原料采用溶胶-凝胶法制备所需硅基介孔材料。首先将 10 g Na₂SiO₃ 溶解在 50 g 去离子水中, 搅拌至完全溶解。将浓度为 37.5% 的浓盐酸和去离子水按 1:5 的比例配置成 2 mol/L 的稀盐酸, 将制备得到的稀盐酸逐滴滴入至胶状物质产生。将所得胶体过滤洗涤后加入 2 g P123, 40 °C 水浴搅拌 24 h, 然后将混合物放入反应釜中, 在 120 °C 反应 24 h; 随后将反应产物过滤, 洗涤, 干燥; 最后将干燥产物置于马弗炉中 550 °C 煅烧 3 h 以去除模板剂 P123。将制得的硅基材料命名为 SM。

将制备的 SM 作为载体, 使用浸渍法将 TEPA、PEI、AMP 负载在载体上制得硅基胺吸附剂。具体流程如下: 将一定比例的 TEPA、PEI、AMP 溶解在 20 mL 无水乙醇中, 磁力搅拌 30 min, 使其充分溶解, 然后加入一定量的 SM, 磁力搅拌至混合物变粘稠状。然后将其置于 80 °C 烘箱中干燥 12 h, 制备出一系列硅基胺吸附剂, 吸附剂代码如表 1 所示。

制备的吸附剂用 x₁TEPA-x₂PEI-x₃AMP/SM 表示, 其中 x₁、x₂ 和 x₃ 分别表示 TEPA、PEI 和 AMP 占吸附剂的质量分数, 计算方式分别如式(1)~式(3)。

$$x_1 = \frac{m_{\text{TEPA}}}{m_{\text{SM}} + m_{\text{TEPA}} + m_{\text{PEI}} + m_{\text{AMP}}} \times 100\% \quad (1)$$

$$x_2 = \frac{m_{\text{PEI}}}{m_{\text{SM}} + m_{\text{TEPA}} + m_{\text{PEI}} + m_{\text{AMP}}} \times 100\% \quad (2)$$

$$x_3 = \frac{m_{\text{AMP}}}{m_{\text{SM}} + m_{\text{TEPA}} + m_{\text{PEI}} + m_{\text{AMP}}} \times 100\% \quad (3)$$

式中: m_{TEPA} 为吸附剂中 TEPA 的添加量, g; m_{PEI} 为吸附剂中 PEI 的添加量, g; m_{AMP} 为吸附剂中 AMP 的添加量, g; m_{SM} 为吸附剂中 SM 的添加量, g。

根据 TEPA、PEI 和 AMP 密度和 SM 的介孔孔容计算得到理论最大负载量(w_c, %), 如式(4)所示。

$$w_c = \frac{\rho V_{\text{pore}}}{\rho V_{\text{pore}} + 1} \quad (4)$$

式中: ρ 表示 TEPA、PEI 和 AMP 的密度, g/cm³; V_{pore} 表示材料表面孔的容积, cm³/g。

表 1 硅基胺吸附剂

Adsorbent	TEPA	PEI	AMP
10TEPA/SM	10	0	0
30TEPA/SM	30	0	0
60TEPA/SM	60	0	0
10PEI/SM	0	10	0
30PEI/SM	0	30	0
60PEI/SM	0	60	0
10AMP/SM	0	0	10
30AMP/SM	0	0	30
60AMP/SM	0	0	60
30TEPA-30AMP/SM	30	0	30
30PEI-30AMP/SM	0	30	30
30TEPA-30PEI/SM	30	30	0

w is mass fraction; TEPA is triethylenetetramine; PEI is polyethyleneimine; AMP is 2-amino-2-methyl-1-propanol; SM is support material; 10TEPA/SM is 10% triethylenetetramine/support material.

TEPA、PEI 和 AMP 的 w_c 分别为 57%、59%、56%, 于是在制备吸附剂时, 3 种有机胺在实验中选用的负载量分别取 10%、30%和 60%。

1.3 表征仪器

1) 采用 Micromeritics 公司的 ASAP2460 对各吸附剂的孔隙结构进行表征, 比表面积采用 BET 法计算, 孔径采用 Barrett-Joyner-Halenda (BJH)法计算。

2) 采用布鲁克 TENSOR II 的傅里叶变换红外光谱仪对各吸附剂的表面官能团进行表征。波数范围为 4000~400cm⁻¹。

3) 采用日本 JSM-IT200 型扫描电子显微镜。扫描电子显微镜是利用具有高能量的入射电子束与实

验样品表面发生物理作用, 获得样品的微观形貌。

1.4 硅基胺吸附剂的 CO₂ 吸附性能实验

硅基胺吸附剂的 CO₂ 吸附实验在热重分析仪上进行。将约 10 mg 样品置于样品架上, 在 N₂ 气流下升温至 100 °C 并保持 30 min, 去除样品中的挥发性组分。之后降温至吸附温度, 并将气体切换成 CO₂, 吸附时间为 30 min, 使样品达到吸附饱和, 记录样品重量随时间的变化。吸附过程结束后, 再在 100 °C 通入 N₂ 30 min, 使样品吸附的 CO₂ 解吸。对同一样品进行 10 次吸附-解吸循环过程, 测试吸附剂的循环吸附性能。

评价 CO₂ 吸附性能的指标 q_1 如式(5)所示。

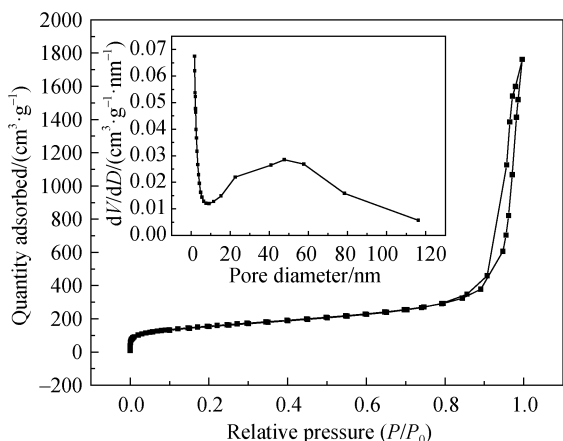
$$q_1 = \frac{m}{44m_y} \quad (5)$$

式中: q_1 为单位质量吸附剂累计 CO₂ 吸附量, mmol/g; m 为吸附剂吸附 CO₂ 的增重量, mg; m_y 为吸附剂的质量, mg。

2 结果与讨论

2.1 硅基胺吸附剂的表征分析

2.1.1 孔隙结构分析 硅基材料 SM 的 N₂ 吸附-脱附等温线如图 1 所示。结果显示 SM 的吸脱附曲线为 IV 型吸附等温线, 具有 H4 型回滞环, 表明 SM 为典型的介孔结构, 同时存在部分孔径小于 2 nm 的微孔^[15–16], SM 的介孔比例为 87.5%, 孔容为 1.40 cm³/g, 平均孔径为 7.23 nm。是一种很好的载体材料。



dV is differential volume change; dD is differential pore diameter change; P is equilibrium pressure; P_0 is saturation vapor pressure.

图 1 SM 的 N₂ 吸附-脱附等温线和孔径分布曲线

Fig. 1 N₂ adsorption-desorption isotherm and pore diameter distribution curves of SM

图 2 是 SM 的 SEM 图像, 显然, 该硅材料为表

面相对光滑的微米(1~5 μm)球形颗粒。结合图 1 孔径分布结果, 说明 SM 是一种微米球形介孔硅材料。

硅基胺吸附剂的 N₂ 吸附-脱附等温线和孔径分布, 以及孔结构参数分别如图 3、图 4 和表 2 所示。

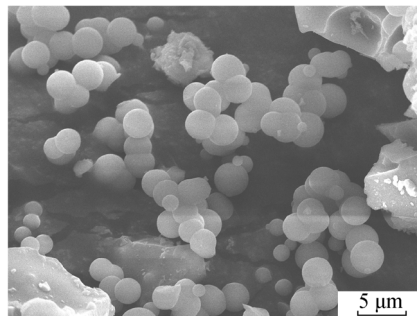


图 2 SM 的 SEM 照片

Fig. 2 SEM image of SM

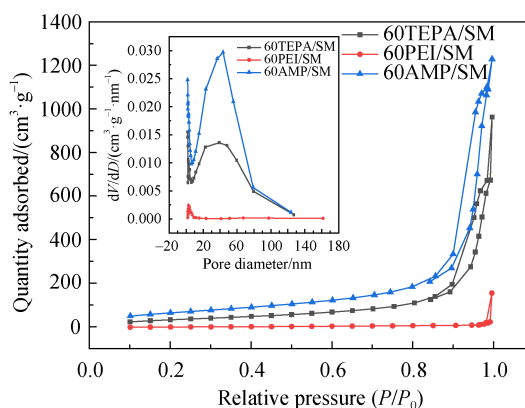


图 3 硅基单胺吸附剂的 N₂ 吸附-脱附等温线和孔径分布曲线
Fig. 3 N₂ adsorption-desorption isotherms and pore size distribution curves of silicon-based monoamine adsorbents

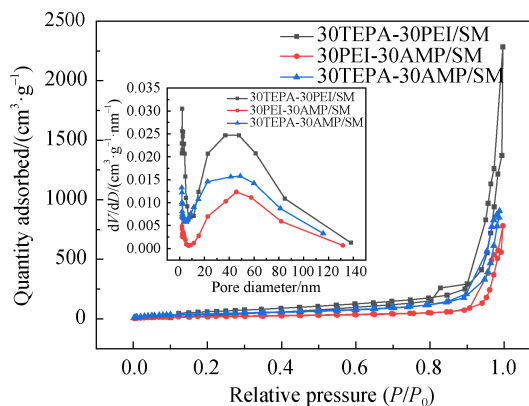


图 4 硅基双胺吸附剂的 N₂ 吸附-脱附等温线和孔径分布曲线
Fig. 4 N₂ adsorption-desorption isotherms and pore size distribution curves of the silica-based diamine adsorbents

图 3 和图 4 的吸附-脱附等温线显示, 当 TEPA、PEI、AMP 分别以单胺和双胺形式负载于硅基材料 SM 后, 回滞环明显变细甚至消失, 这一变化直观

表 2 硅基胺吸附剂的孔结构参数

Table 2 Pore Structure parameters of silica-based amine adsorbents

Samples	Surface area/ (m ² ·g ⁻¹)	Pore volume/ (cm ³ ·g ⁻¹)	Pore size/ nm
SM	530.61	1.40	7.23
60TEPA/SM	139.18	0.47	12.66
60PEI/SM	7.07	0.01	6.47
60AMP/SM	246.04	0.84	12.94
30TEPA-30AMP/SM	226.25	0.78	12.26
30PEI-30AMP/SM	74.65	0.25	12.79
30TEPA-30PEI/SM	154.66	0.53	12.83

地反映了 SM 的孔隙结构被有机胺填充。有机胺分子通过物理或化学作用与孔壁表面的硅羟基等基团结合, 逐渐占据了孔道内的空间, 导致孔隙率下降。表 2 数据显示, 相比较 SM, 硅基胺吸附剂的比表面积和孔体积均不同程度地减小, 说明各类胺都有效负载到硅基材料 SM 上。与此同时, 孔径则增大, 这说明有机胺分子会优先负载在较小的孔中, 导致较小的孔消失, 这种填充机制不仅减少了材料的微孔数量, 还改变了其孔径分布特征, 从而导致平均孔径增大^[17]。

对比表 2 中 3 种硅基单胺吸附剂的孔隙结构参数, 在相同的胺负载量下, 60PEI/SM 的比表面积最小, 而 60AMP/SM 的比表面积最大。这是由于 PEI 是大分子胺(分子量 25 000), 在负载过程中更容易占据孔道空间, 导致比表面积显著减小。所以 60PEI/SM 的比表面积只有 7.07 m²/g, 孔容只有 0.01 cm³/g。而 TEPA 属于多胺类, 含有多个氨基和乙烯基团, 其分子量适中, 使得 TEPA 在填充孔隙的同时, 还能保持一定的孔隙率和比表面积。AMP 分子量(89.14)相对较小, 在负载过程中占据的孔道空间也较小, 因此比表面积减小的程度也最不显著。

与单胺吸附剂相比, 3 种双胺吸附剂的孔结构参数介于单胺之间。这表明双胺复合有效地利用了不同胺类化合物的特性, 通过分子间的相互作用和空间排列, 显著改善了材料的孔隙结构^[18]。

2.1.2 红外光谱分析 图 5 和表 3 为各吸附剂的 FT-IR 光谱结果。图 5 中的代号和吸附剂对应关系分别为: a-SM、b-60PEI/SM、c-60TEPA/SM、d-60AMP/SM、e-30TEPA-30PEI/SM、f-30PEI-30AMP/SM 和 g-30TEPA-30AMP/SM。

各吸附剂的 FT-IR 光谱结果显示, 均在 924 cm⁻¹ (弯曲振动)、814 cm⁻¹ (对称拉伸振动) 和 592 cm⁻¹ (非对称拉伸振动) 处出现了硅基材料的振动特征峰

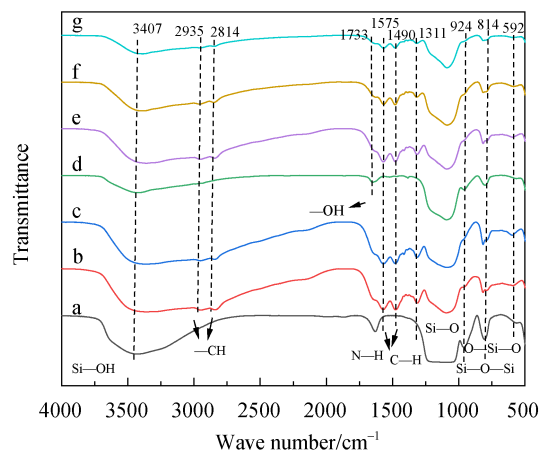


图 5 各吸附剂的红外光谱

Fig. 5 FT-IR spectra of adsorbents

表 3 图 5 中各吸附剂对应官能团类型

Table 3 Functional group type of adsorbents in Fig.5

Sample	Assignment				
SM (a)	Si—OH	Si—O—Si			
60PEI/SM (b)	Si—OH	Si—O—Si	—CH	—NH	
60TEPA/SM (c)	Si—OH	Si—O—Si	—CH	—NH	
60AMP/SM (d)	Si—OH	Si—O—Si	—OH		
30TEPA-30PEI/SM (e)	Si—OH	Si—O—Si	—CH	—NH	—OH
30PEI-30AMP/SM (f)	Si—OH	Si—O—Si	—CH	—NH	—OH
30TEPA-30AMP/SM (g)	Si—OH	Si—O—Si	—CH	—NH	

Si—O—Si, 显然有机胺改性并不会影响硅基载体的骨架架构^[19]。同时, 对于 SM, 在 3407 cm⁻¹ 处观察到 Si—OH 的吸收峰, 这是硅基材料存在羟基的特征表现。而在负载有机胺后, Si—OH 的吸收峰虽然减弱, 但并未完全消失, 这表明部分 Si—OH 与有机胺形成了氢键或共价键, 从而实现了有机胺在硅基材料上的牢固负载, 增强了胺吸附剂的稳定性^[20]。

此外, 负载有机胺后的吸附剂出现了多个新的特征峰。与 SM 相比, 载胺样品在 2935 cm⁻¹ 和 2814 cm⁻¹ 处出现了—CH 的不对称和对称峰, 这是烷烃类化合物的典型振动峰, 表明有机胺分子中的烷基链被成功负载到了硅基材料上^[21]。在 b、c、e、f 和 g 样品中的 1575 cm⁻¹ 和 1490 cm⁻¹ 处出现了—CH 的弯曲振动峰和伯胺的 N—H 弯曲振动峰, 说明有伯胺基团的 TEPA 和 PEI 被成功负载在了 SM 上。同时在 1311 cm⁻¹ 处出现了—CH 的变形振动峰, 证明了 TEPA 和 PEI 被负载在了样品中, 且 b、c、d 样品的峰强度较 f、g 样品更强, 表明这些样品中 TEPA 和 PEI 负载量要相对较高。d、f 和 g 样品在 1733 cm⁻¹ 处存在羟基的振动峰^[22-23], 从而证明 AMP 被成功负载。而且 d 样品的振动峰相对于双胺样品呈现增

强趋势,说明其中负载的羟基基团负载量更多。

2.1.3 热失重分析 图6展示了各吸附剂的热重分析曲线。同时获得样品的失重率如表4所示。显然吸附剂质量损失主要发生在2个阶段。首先,在0~120℃范围内出现第1次失重,这主要是样品中残存的水分和未脱除的二氧化碳的脱除所致^[24]。所有载胺样品在120℃以下均表现出良好的稳定性,这意味着在本研究中的吸附和脱附温度范围内,有机胺不会发生分解。随后,在121~600℃温区内,发生了第2次质量损失,这归因于负载的有机胺的分解^[25]。硅基材料SM在121~600℃区间几乎无任何失重,彰显了其卓越的热稳定性;载胺吸附剂在第2阶段失重率与其载胺率基本一致。综上所述,所制备的硅基胺吸附剂在实验温度范围内展现出良好的热稳定性。

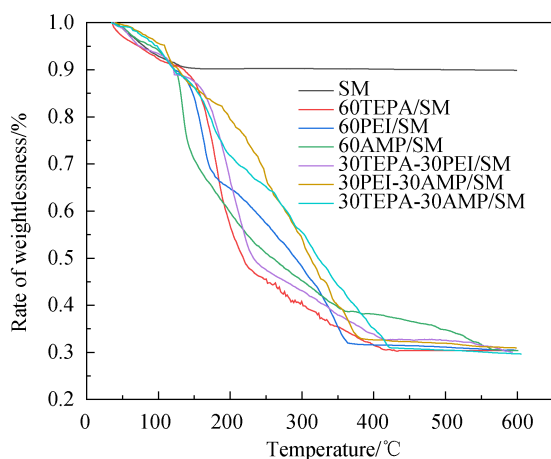


图6 吸附剂TG曲线

Fig. 6 TG curves of adsorbents

表4 吸附剂各阶段质量损失率

Table 4 Mass loss rate of adsorbents at each stage

Sample	First stage	Second stage
	0–121 °C/%	121–800 °C/%
SM	8.46	1.65
60TEPA/SM	9.80	59.84
60PEI/SM	10.05	59.03
60AMP/SM	9.76	59.88
30TEPA-30AMP/SM	11.03	58.90
30PEI-30AMP/SM	9.28	59.76
30TEPA-30PEI/SM	10.33	59.76

2.2 吸附剂的CO₂吸附性能

2.2.1 胺种类对CO₂吸附性能的影响 在热重分析仪上,纯CO₂气氛下考察胺种类对吸附剂CO₂吸附量的影响,结果如表5所示。

表5 胺种类对吸附剂CO₂吸附量的影响

Table 5 Effect of amine type on CO₂ adsorption capacity of adsorbent

Sample	CO ₂ adsorption capacity/(mmol·g ⁻¹)
SM	1.40
10TEPA/SM	1.52
30TEPA/SM	1.68
60TEPA/SM	3.46
10PEI/SM	1.50
30PEI/SM	1.63
60PEI/SM	2.78
10AMP/SM	1.57
30AMP/SM	2.24
60AMP/SM	3.22
30TEPA-30AMP/SM	4.07
30PEI-30AMP/SM	4.30
30TEPA-30PEI/SM	3.52

表5结果显示,硅基材料SM的CO₂吸附量只有1.40 mmol/g。对于硅基单胺吸附剂,随着胺负载量的增加,CO₂吸附量均增加,3种有机胺TEPA、PEI和AMP均在负载量为60%时达到最大CO₂吸附能力,其中60TEPA/SM的CO₂吸附量最高,为3.46 mmol/g。同时考虑到TEPA、PEI和AMP的密度分别为0.998、1.08、0.934 g/cm³,SM的介孔孔容为1.40 cm³/g,可根据式(4)得w_c分别为57%,59%,56%。因此后续将60%作为单胺吸附剂和双胺吸附剂的总胺负载量,进行实验、分析和探讨。

表5结果显示,有机胺改性可以增强SM的CO₂吸附能力。单胺吸附剂中60TEPA/SM、60PEI/SM和60AMP/SM的CO₂吸附容量提高幅度较大,分别是SM的2.47倍、1.99倍和2.33倍。而经双胺改性后的吸附剂的CO₂吸附量又在单胺基础上进一步提高了。相较于30TEPA/SM、30PEI/SM和30AMP/SM,3种双胺吸附剂的CO₂吸附量均呈现出“1+1>2”的效果,说明复合胺之间产生了协同效应。这种效应不仅优化了吸附剂的孔结构,创造了更多的吸附位点,还通过降低扩散阻力来加速吸附过程,从而显著提高了整体的吸附效率。其中,TEPA与PEI分子间可能形成的氢键网络结构进一步增强了混合物的稳定性,并为吸附过程提供了更为稳固的支撑;同时,AMP是一种具有空间位阻效应的位阻胺,内部有大量的—OH基团,可通过氢键与TEPA或PEI结合,也在载体中形成网络结构,这促进了PEI和TEPA在硅基材料表面的分散,降低了CO₂在吸附剂中的扩散阻力,从而增强了CO₂和胺基团

的反应^[26]。

为进一步明确吸附剂与 CO₂ 反应机理, 对吸附 CO₂ 后的样品也进行了 FT-IR 表征, 并与吸附 CO₂ 前的 FT-IR 谱对比, 结果如图 7 和图 8 所示。

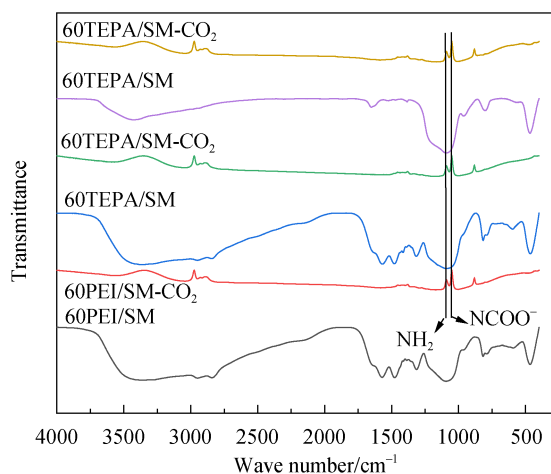


图 7 60PEI/SM、60TEPA/SM、60AMP/SM 吸附 CO₂ 前后红外光谱

Fig. 7 Infrared spectra of 60PEI/SM, 60TEPA/SM, 60AMP/SM before and after CO₂ adsorption

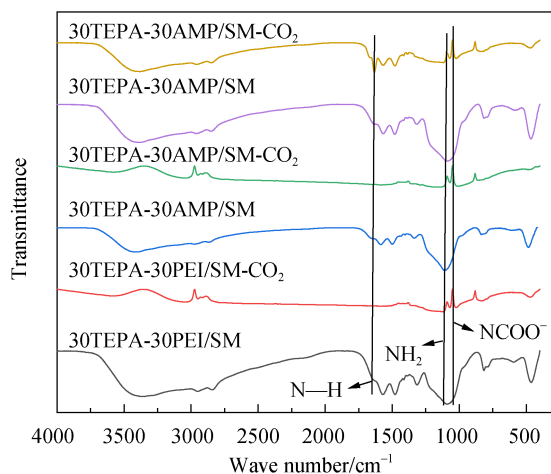


图 8 30TEPA-30PEI/SM、30TEPA-30AMP/SM、30PEI-30AMP/SM 吸附 CO₂ 前后红外光谱

Fig. 8 Infrared spectra of 30TEPA-30PEI/SM, 30TEPA-30AMP/SM, and 30PEI-30AMP/SM before and after CO₂ adsorption

图 7 和图 8 FT-IR 结果显示, 在吸附 CO₂ 后, 在 1490 cm⁻¹ 处的 N—H 峰强变弱, 说明 N—H 基团参与了反应。同时光谱中出现了位于 1568、1202 cm⁻¹ 和 1070 cm⁻¹ 的 3 个显著吸收峰, 分别对应于 R-NH₃⁺ 中的 N—H 变形、R₁R₂-NH₂ 拉伸振动和 NCOO⁻ 骨架振动。这是因为样品吸附 CO₂ 后, CO₂ 与 NH₂ 和 N—H 反应生成 RNH₃⁺、RNH₂ 和 NCOO⁻。在无水

条件下, CO₂ 首先与吸附剂上的伯胺或仲胺反应生成两性离子中间产物。然后, 两性离子之间的中间产物去质子化, 最终形成质子化产物和氨基甲酸酯^[27]。反应机理如式(6)~式(8):



2.2.2 吸附温度对 CO₂ 吸附性能的影响 对吸附性能较好的 3 种硅基双胺吸附剂 30TEPA-30AMP/SM、30PEI-30AMP/SM 和 30TEPA-30PEI/SM 进行吸附温度(45、60、75、90 °C)影响实验, 实验结果如图 9 所示。

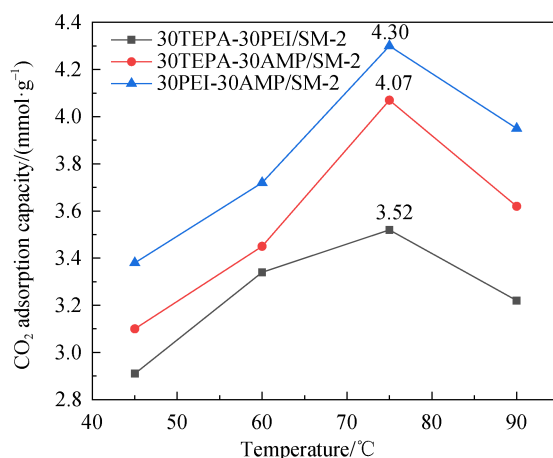


图 9 吸附温度对吸附剂 CO₂ 吸附量的影响

Fig. 9 Effect of adsorption temperature on CO₂ adsorption capacity of adsorbent

显然, 3 种双胺吸附剂的 CO₂ 吸附量随吸附温度的变化趋势相同, 均随温度的升高先增大后减小, 在 75 °C 时达到最大值。这是因为当吸附温度在 45~75 °C 时, 升温使 CO₂ 分子热运动更加剧烈, 促进 CO₂ 分子更快向吸附剂中的胺基团层扩散, 加快了 CO₂ 分子与胺基活性组分的接触, 同时胺基团活性也逐渐增强, 因此加快了 CO₂ 吸附速度, 即在这个温区, CO₂ 吸附反应主要受动力学因素控制; 胺基基团与 CO₂ 的反应为可逆放热反应, 在 75~90 °C 时, 随着反应的进行, 温度继续升高反而会导致吸附反应逆向进行, 不利于 CO₂ 吸附, 此时 CO₂ 吸附反应已转为主要受热力学因素控制^[28]。

2.3 CO₂ 吸附动力学

采用准一级动力学模型^[29]、准二级动力学模型^[30]和 Avrami 动力学模型^[31](表 6)探究了 3 种硅基双胺吸附剂。

表 6 动力学模型
Table 6 Dynamic model

Dynamic model	Equation
Pseudo-first-order kinetic model	$q_t = q_e (1 - e^{-k_1 t})$
Pseudo-second-order kinetic model	$q_t = k_2 q_e^2 (1 + k_2 q_e t)$
Avrami kinetic model	$q_t = q_e [1 - e^{-(k_a t)^n}]$

In the table, q_e refers to the saturated adsorption capacity of the adsorbent, mmol/g; q_t denotes the CO_2 adsorption capacity of the adsorbent at time t , in mmol/g; k_a , k_1 , k_2 are the adsorption rate constants of the Avrami, pseudo-first-order, and pseudo-second-order models; n represents the exponent of the Avrami model.

采用准一级动力学模型(物理吸附), 准二级动力学模型(化学吸附)和 Avrami 动力学模型(多个吸

附路径)探究了 3 种硅基双胺吸附剂在 75 °C 下的 CO_2 吸附动力学。图 10 和表 7 分别为拟合曲线和拟合所得动力学参数。图 10 中的代号和吸附剂对应关系分别为: a-SM、b-30TEPA-30PEI/SM、c-30PEI-30AMP/SM 和 d-30TEPA-30AMP/SM。从表 7 数据可知, 硅基材料 SM 的准一级动力学模型 R^2 达到了 0.991, 而准二级动力学模型 R^2 只有 0.954, 说明 SM 吸附 CO_2 的过程更符合准一级动力学模型, 以物理吸附为主。而 30TEPA-30AMP/SM、30PEI-30AMP/SM 和 30TEPA-30PEI/SM 的 Avrami 动力学模型 R^2 均达到了 0.98 以上, 说明 3 种双胺吸附剂的 CO_2 吸附过程既受到物理吸附的影响, 也受化学吸附的影响。

表 7 吸附动力学模型参数
Table 7 Parameters of adsorption kinetics model

Samples	pseudo-first-order kinetic model			pseudo-second-order kinetic model			Avrami kinetic model			
	q_e	k_1	R^2	q_e	k_2	R^2	q_e	k_a	n	R^2
SM	1.41	0.001	0.991	1.55	0.006	0.954				
30TEPA-30AMP/SM	4.12	0.348	0.972	4.61	0.094	0.916	4.08	0.335	1.428	0.993
30PEI-30AMP/SM	4.36	0.378	0.942	5.03	0.09	0.889	4.27	0.374	1.94	0.991
30TEPA-30PEI/SM	3.43	0.458	0.954	3.84	0.159	0.883	3.39	0.433	1.56	0.989

R^2 is coefficient of determination

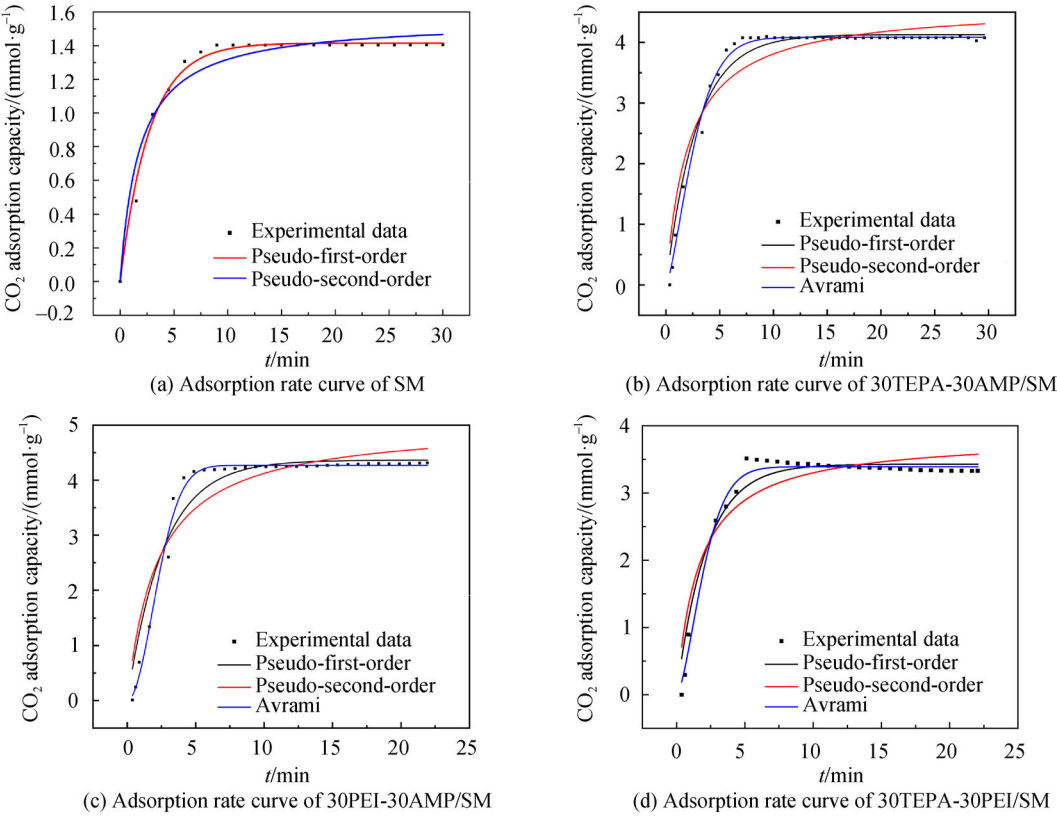


图 10 各吸附剂 75 °C 时的吸附速率曲线及 3 种模型下的拟合曲线

Fig. 10 Adsorption rate curves of each adsorbent at 75 °C and the fitted curves under three models

2.4 CO₂ 循环性能

在热重分析仪上纯 CO₂ 气氛下进行 30PEI-30AMP/SM 的 CO₂ 循环吸附性能的考察, 连续 10 次循环的 CO₂ 吸附量如图 11 所示。显然, 随循环次数的增加, CO₂ 吸附量逐渐减少, 造成此情况的原因主要是循环过程中 CO₂ 脱附不完全。10 次循环后, CO₂ 吸附量从 4.31 mmol/g 下降到 3.90 mmol/g, 但仍达初始容量的 95%。这一现象可归因于 PEI、AMP 与硅基材料之间形成的强氢键相互作用。这种

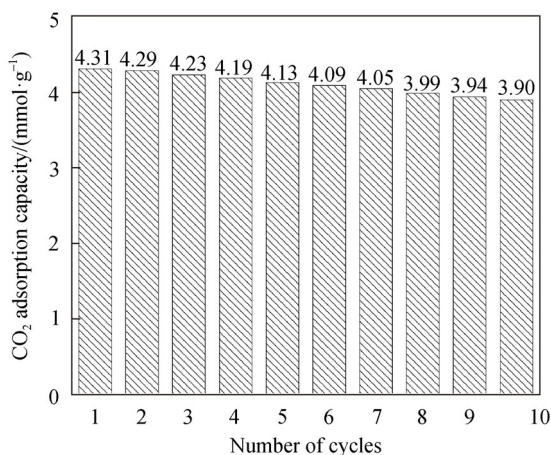


图 11 30PEI-30AMP/SM 的 10 次循环再生的 CO₂ 吸附量
Fig. 11 CO₂ adsorption capacity after 10 cycles of regeneration for 30PEI-30AMP/SM

相互作用显著增强了有机胺分子间的稳定性, 有效限制了游离有机胺的数量, 进而大幅度降低了其挥发性, 实现了更稳定的控制和性能优化^[32]。因此, 混合胺之间的协同作用提高了吸附剂的可再生性。

2.5 气体组分对 30PEI-30AMP/SM 的 CO₂ 吸附性能影响

燃煤烟气中除 CO₂ 外, 还含有较多的 SO₂、NO_x 以及水蒸气, 因此, 有必要进行模拟烟气组分对 CO₂ 吸附性能的影响探究。依据超低排放标准, SO₂<35 mg/m³, NO_x<50 mg/m³, 同时考虑到在燃煤锅炉烟气湿法脱硫后, 水蒸气含量会增加, 因此 SO₂、NO_x 和水蒸气浓度选取如表 8 所示。

气体组分影响实验在固定床吸附装置上进行, 吸附温度 75 °C, CO₂ 浓度 12.5%。

SO₂、H₂O、NO 对 30PEI-30AMP/SM 的 CO₂ 吸附容量的影响如图 12 所示。显然, 随着 SO₂ 的引入, CO₂ 吸附容量呈显著下降趋势, 由最初的 4.01 mmol/g 减小到 2.92 mmol/g, 降幅为 27%。这是因为 SO₂ 是较 CO₂ 酸性更强的气体, 当两者同时存在时, 强酸性 SO₂ 会优先占据吸附剂中呈碱性的胺基团, 并与之发生反应式(9), 从而导致活性位点减少^[33]。因此 SO₂ 的引入导致 CO₂ 吸附量减小。

表 8 气体组分影响实验条件

Table 8 Adsorption reaction conditions

Numble	CO ₂ concentration/%	SO ₂ concentration/(mg·m ⁻³)	steam concentration/%	NO concentration/(mg·m ⁻³)	CO ₂ adsorption capacity/(mmol·g ⁻¹)
1	12.5	0	0	0	4.01
2	12.5	35	0	0	3.47
3	12.5	0	10	0	4.71
4	12.5	0	0	50	3.99
5	12.5	35	10	50	4.33

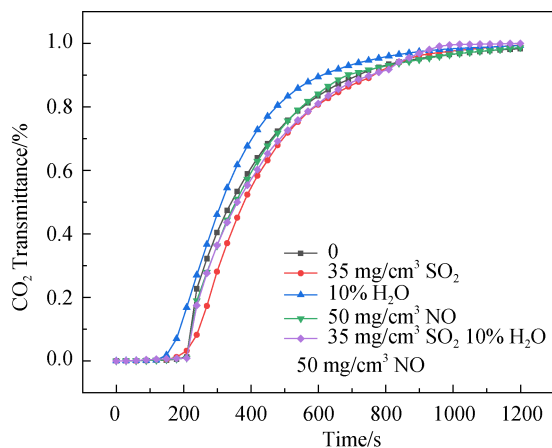


图 12 SO₂、NO 和水蒸气对吸附剂 CO₂ 吸附量的影响
Fig. 12 Impact of SO₂, NO and Water Vapor on the CO₂ dsorption capacity of the adsorbent

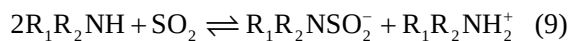
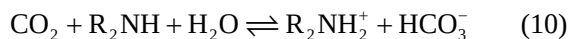


图 12 结果显示, 随着水蒸气的引入, 30PEI-30AMP/SM 的 CO₂ 吸附容量增大, 在水蒸气含量为 10% 时, 为 4.71 mmol/g。这一结果表明, 水蒸气的存在会对 CO₂ 的吸附产生积极的影响。这是由于水蒸气存在时, 胺基吸附剂与 CO₂ 的吸附机理发生了改变, 按照反应式(10)进行对比没有水蒸气时的反应式(6), 2 mol 胺基只能与 1 mol CO₂ 分子反应, 而此时 1 mol 的胺基就可以与 1 mol CO₂ 分子发生反应, 胺基的利用率明显提高了, 因而 CO₂ 吸附容量也增加了^[34]。

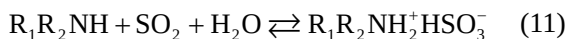


通入 NO 后, 30PEI-30AMP/SM 的 CO₂ 吸附能

力只出现了略微下降, CO₂ 吸附容量也相差不大。

从表 8 可以看出, 当实验气氛中 SO₂、水蒸气和 NO 都存在时, 吸附剂的吸附量为 4.33 mmol/g, 这主要是因为此时水蒸气和 SO₂ 会对 CO₂ 吸附共同作用。

此时 SO₂ 的反应如式(11)所示。SO₂ 不仅会与 CO₂ 竞争吸附位点, 也会消耗一部分水蒸气, 造成 CO₂ 吸附量降低, 水蒸气则会对 CO₂ 吸附有促进作用, SO₂ 和水蒸气共同作用影响 CO₂ 吸附量。



为了进一步了解不同气氛下吸附反应机理, 对实验 1、实验 2、实验 3、实验 5 条件下吸附 CO₂ 后的样品进行 FT-IR 表征, 表征结果如图 13 所示。

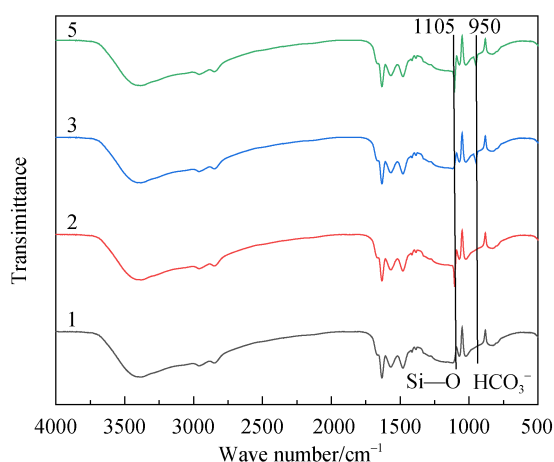


图 13 不同气氛下样品红外光谱

Fig. 13 Infrared spectra of samples under different atmospheres

通过对图 13 的表征结果进行分析可知, 样品 2 在 1105 cm⁻¹ 处均出现了 Si—O 键的伸缩振动峰。这一特征峰的出现表明了亚硫酸根的形成, 与反应式(9)所描述的情况吻合。样品 3 在 950 cm⁻¹ 处出现了 HCO₃⁻ 的伸缩振动峰, 这与反应式(10)相符。而样品 5 在 1105 cm⁻¹ 和 950 cm⁻¹ 处均出现了相应的特征峰, 这又与反应式(11)相契合。

3 结论

1) 以 P123 为模板, Na₂SiO₃ 为硅源, 制备硅基介孔材料, 分别浸渍 TEPA、PEI、AMP 合成 9 种单胺和 3 种双胺吸附剂, 其中硅基双胺吸附剂的 CO₂ 吸附性能更优。

2) 大分子胺 PEI 能显著占据孔道空间, 导致比表面积和孔容大幅减小, 孔径相对增大。小分子胺 TEPA 和 AMP 填充孔隙的同时能保持一定孔隙率和比表面积。双胺复合可以有效利用不同胺类特

性, 通过分子间相互作用和空间排列, 显著改善孔隙结构。

3) TEPA 和 PEI 中含有大量的伯胺基团, 会与 CO₂ 发生化学反应, 但由于高黏度, 其在载体中的分散受到限制。AMP 是一种具有羟基的位阻胺, 它的加入引入了额外的网络结构, 提高了吸附剂的热稳定性。双胺吸附剂中不同种类胺可相互协作, 提高其 CO₂ 吸附性能。

4) 燃煤烟气中的 SO₂ 会与 CO₂ 竞争吸附剂中有限的吸附位点, 优先和吸附剂表面的胺基团发生化学反应, 减少了 CO₂ 吸附位点, 且生成的硫酸盐也会阻塞孔道, 增大 CO₂ 扩散阻力, 造成吸附剂 CO₂ 吸附性能降低。适量的水蒸气会提高胺基的利用效率, 提高吸附剂的 CO₂ 吸附性能。

参考文献:

- [1] 王玉莹, 郑仙荣, 郝晓峰, 等. 掺氮糖基炭材料吸附 CO₂ 机理研究[J]. 中国电机工程学报, 2025, 45(13): 5204–5213.
WANG Yuying, ZHENG Xianrong, HAO Xiaofeng, et al. Proc CSEE, 2025, 45(13): 5204–5213.
- [2] HAJARI A, ATANGA M, HARTVIGSEN J L, et al. Combined flue gas cleanup process for simultaneous removal of SO_x, NO_x, and CO₂: A techno-economic analysis[J]. Energy Fuels, 2017, 31(4): 4165–4172.
- [3] WANG J Y, HUANG L, YANG R Y, et al. Recent advances in solid sorbents for CO₂ capture and new development trends[J]. Energy Environ Sci, 2014, 7(11): 3478–3518.
- [4] PIRES J C M, MARTINS F G, ALVIM-FERRAZ M C M, et al. Recent developments on carbon capture and storage: An overview[J]. Chem Eng Res Des, 2011, 89(9): 1446–1460.
- [5] SREEDHAR I, VAIDHISWARAN R, KAMANI B M, et al. Process and engineering trends in membrane based carbon capture[J]. Renew Sustain Energy Rev, 2017, 68: 659–684.
- [6] CHEN C, ZHANG S Q, ROW K H, et al. Amine-silica composites for CO₂ capture: A short review[J]. J Energy Chem, 2017, 26(5): 868–880.
- [7] RAO N, WANG M, SHANG Z M, et al. CO₂ adsorption by amine-functionalized MCM-41: A comparison between impregnation and grafting modification methods[J]. Energy Fuels, 2018, 32(1): 670–677.
- [8] 丁明月, 刘梦龙, 岳海荣, 等. TEPA/MCM-41 固体胺吸附剂的制备及其 CO₂ 吸附性能研究[J]. 应用化工, 2019, 48(11): 2533–2537.
DING Mingyue, LIU Menglong, YUE Hairong, et al. Appl Chem Ind, 2019, 48(11): 2533–2537.
- [9] ZHAO A, SAMANTA A, SARKAR P, et al. Carbon dioxide adsorption on amine-impregnated mesoporous SBA-15 sorbents: Experimental and kinetics study[J]. Ind Eng Chem Res, 2013, 52(19): 6480–6491.
- [10] LIU Z L, TENG Y, ZHANG K, et al. CO₂ adsorption properties and thermal stability of different amine-impregnated MCM-41 materials[J]. J Fuel Chem Technol, 2013, 41(4): 469–475.
- [11] SARMAH M, BARUAH B P, KHARE P. A comparison between CO₂ capturing capacities of fly ash based composites of MEA/DMA and DEA/DMA[J]. Fuel Process Technol, 2013, 106: 490–497.
- [12] REZAEI F, JONES C W. Stability of supported amine adsorbents to SO₂ and NO_x in postcombustion CO₂ capture. 1. single-component adsorption[J]. Ind Eng Chem Res, 2013, 52(34): 12192–12201.

- [13] KHATRI R A, CHUANG S S C, SOONG Y, et al. Thermal and chemical stability of regenerable solid amine sorbent for CO₂ capture[J]. *Energy Fuels*, 2006, 20(4): 1514–1520.
- [14] Bollini P, Didas A S, Jones W C. Amine-oxide hybrid materials for acid gas separations[J]. *Journal of Materials Chemistry: An Interdisciplinary Journal dealing with Synthesis, Structures, Properties and Applications of Materials, Particular Those Associated with Advanced Technology*, 2011, 21 (39): 15100–15120.
- [15] YANG X Y, LI Y, VAN TENDELOO G, et al. One-pot synthesis of catalytically stable and active nanoreactors: Encapsulation of size-controlled nanoparticles within a hierarchically macroporous Core@Ordered mesoporous shell system[J]. *Adv Mater*, 2009, 21(13): 1368–1372.
- [16] AHMED S, RAMLI A, YUSUP S. Development of polyethylenimine-functionalized mesoporous Si-MCM-41 for CO₂ adsorption[J]. *Fuel Process Technol*, 2017, 167: 622–630.
- [17] LI K M, JIANG J G, TIAN S C, et al. Polyethyleneimine–nano silica composites: A low-cost and promising adsorbent for CO₂ capture[J]. *J Mater Chem A*, 2015, 3(5): 2166–2175.
- [18] HEYDARI-GORJI A, BELMABKHOUT Y, SAYARI A. Polyethylenimine-impregnated mesoporous silica: Effect of amine loading and surface alkyl chains on CO₂ adsorption[J]. *Langmuir*, 2011, 27(20): 12411–12416.
- [19] 杨永红, 李芬芬, 杨成, 等. TEPA 在 SBA-15(P) 上的嫁接形态及其对 CO₂ 吸附性能的影响[J]. *物理化学学报*, 2012, 28(1): 195–200.
YANG Yonghong, LI Fenfen, YANG Cheng, et al. *Acta Phys Chim Sin*, 2012, 28(1): 195–200.
- [20] OUYANG J, ZHENG C H, GU W, et al. Textural properties determined CO₂ capture of tetraethylenepentamine loaded SiO₂ nanowires from α -sepiolite[J]. *Chem Eng J*, 2018, 337: 342–350.
- [21] JIAO J, CAO J, XIA Y, et al. Improvement of adsorbent materials for CO₂ capture by amine functionalized mesoporous silica with worm-hole framework structure[J]. *Chem Eng J*, 2016, 306: 9–16.
- [22] WANG X, CHEN L L, GUO Q J. Development of hybrid amine-functionalized MCM-41 sorbents for CO₂ capture[J]. *Chem Eng J*, 2015, 260: 573–581.
- [23] AHMED S, RAMLI A, YUSUP S. Effect of TEPA loading on the physicochemical properties of Si-MCM-41 by impregnation method[C]//International Conference on Fundamental and Applied Sciences 2012: (ICFAS2012), Kuala Lumpur Convention Centre, Kuala Lumpur, Malaysia. AIP, 2012: 599–604.
- [24] YAN X L, ZHANG L, ZHANG Y, et al. Amine-modified mesocellular silica foams for CO₂ capture[J]. *Chem Eng J*, 2011, 168(2): 918–924.
- [25] GUO L P, HU X, HU G S, et al. Tetraethylenepentamine modified protonated titanate nanotubes for CO₂ capture[J]. *Fuel Process Technol*, 2015, 138: 663–669.
- [26] HEYDARI-GORJI A, BELMABKHOUT Y, SAYARI A. Polyethylenimine-impregnated mesoporous silica: Effect of amine loading and surface alkyl chains on CO₂ adsorption[J]. *Langmuir*, 2011, 27(20): 12411–12416.
- [27] QI G G, WANG Y B, ESTEVEZ L, et al. High efficiency nanocomposite sorbents for CO₂ capture based on amine-functionalized mesoporous capsules[J]. *Energy Environ Sci*, 2011, 4(2): 444–452.
- [28] 张琪琦. 有机胺固体吸附剂的制备及其吸附二氧化碳性能研究[D]. 太原: 太原理工大学, 2022.
ZHANG Qiqi. Preparation of organic amine-based solid adsorbents and study on their carbon dioxide adsorption performance [D]. Taiyuan: Taiyuan University of Technology, 2022.
- [29] ARRAN GIBSON J A, GROMOV A V, BRANDANI S, et al. The effect of pore structure on the CO₂ adsorption efficiency of polyamine impregnated porous carbons[J]. *Microporous Mesoporous Mater*, 2015, 208: 129–139.
- [30] QI G G, FU L L, CHOI B H, et al. Efficient CO₂ sorbents based on silica foam with ultra-large mesopores[J]. *Energy Environ Sci*, 2012, 5(6): 7368–7375.
- [31] LIU L B, CHEN H B, SHIKO E, et al. Low-cost DETA impregnation of acid-activated sepiolite for CO₂ capture[J]. *Chem Eng J*, 2018, 353: 940–948.
- [32] WANG X, GUO Q J, ZHAO J, et al. Mixed amine-modified MCM-41 sorbents for CO₂ capture[J]. *Int J Greenh Gas Control*, 2015, 37: 90–98.
- [33] FAN Y F, REZAEI F, LABRECQUE Y, et al. Stability of amine-based hollow fiber CO₂ adsorbents in the presence of NO and SO₂[J]. *Fuel*, 2015, 160: 153–164.
- [34] 杜瑾. 复合胺功能化固体吸附剂对 CO₂ 吸附性能的研究[D]. 青岛: 青岛科技大学, 2021.
DU Jin. study on CO₂ adsorption performance of composite amine-functionalized solid adsorbents [D]. Qingdao: Qingdao University of Science & Technology, 2021.

Study on Effect of Amine Type on CO₂ Adsorption Performance of Silicon-Based Adsorbent

LI Guanyu, ZHENG Xianrong, NING Hui, GUO Baihe

(College of Electrical and Power Engineering, Taiyuan University of Technology, Taiyuan 030024, China)

Extended Abstract

Introduction CO₂ generated from coal combustion is the main cause of the greenhouse effect, and it is urgent to reduce its CO₂ emissions. CO₂ capture is the key to Carbon Capture, Utilization and Storage (CCUS) technology. Silicon-based materials are commonly used as carriers for adsorbents, but their CO₂ adsorption capacity is weak, and chemical reagents need to be supported. At present, there is little research on the stability of different diamine adsorbents and adsorbents in the presence of impurity gases. Therefore, it is necessary to prepare silicon-based amine adsorbents and explore their adsorption mechanism and the influence of various factors. In this paper, a variety of organic amines are loaded onto silicon-based materials, aiming to prepare various silicon-based amine adsorbents. The influence mechanism of adsorption temperature, amine types, and gas components (SO₂, NO_x, H₂O) on CO₂ adsorption are carefully investigated.

Methods Using P123 as the template agent and Na_2SiO_3 as the silicon source, the silicon-based mesoporous material SM was prepared. Then, tetraethylenepentamine (TEPA), polyethyleneimine (PEI) and 2-amino-2-methyl-1-propanol (AMP) were supported on SM to obtain the silicon-based amine adsorbents.

CO_2 adsorption mechanism of the silicon-based amine adsorbents was explored through pore structure analysis, infrared spectroscopy analysis and thermogravimetric analysis. CO_2 adsorption experiments of the silicon-based amine adsorbents were carried out by using a fixed-bed analyzer and a thermogravimetric analyzer.

Results and discussion Pore structure analysis shows that due to the filling of organic amines, the porosity decreases and the average pore diameter increases. Infrared analysis indicates that the modification of organic amines does not damage the silicon-based carrier skeleton. Some Si—OH groups form bonds with organic amines, and new characteristic peaks appear after loading, which proves the successful loading of organic amines. Thermogravimetric analysis reveals that the weight loss of the adsorbent occurs in two stages, and the silicon-based amine adsorbent exhibits good thermal stability. In terms of adsorption performance, the modification of organic amines enhances the CO_2 adsorption capacity of SM. Modification with diamines is more effective, as CO_2 reacts with amino groups to form specific products. Adsorption kinetics studies find that the adsorption of CO_2 by SM is mainly physical adsorption, and the adsorption of the three diamine adsorbents is jointly affected by physical and chemical adsorption. Regarding the cyclic performance, after 10 cycles of 30PEI-30AMP/SM, the CO_2 adsorption capacity can reach 95% of the initial capacity, and the synergistic effect of the mixed amines improves the regenerability of the adsorbent. As for the influence of gas components, SO_2 reduces the CO_2 adsorption capacity, water vapor enhances it, and NO has a relatively minor effect.

Conclusions The main conclusions of this work are summarized as follows: 1) A silicon-based mesoporous material was prepared by using P123 as the template and Na_2SiO_3 as the silicon source. By impregnating with TEPA, PEI and AMP, nine monoamine adsorbents and three diamine adsorbents were synthesized. Among them, the CO_2 adsorption performance of the silicon-based diamine adsorbents is better. 2) The macromolecular amine PEI can significantly occupy the pore space, causing a significant decrease in the specific surface area and pore volume, and a relative increase in pore diameter. The small molecular amines like TEPA and AMP can maintain a higher porosity and specific surface area while filling the pores. The combination of diamines can effectively utilize the characteristics of different amines, and significantly improve the pore structure through intermolecular interactions and spatial arrangements. 3) TEPA and PEI contain a large number of primary amine groups, which can react with CO_2 . However, their high viscosity limits their dispersion in the carrier. AMP, a steric hindrance amine with hydroxyl groups, forms an additional network structure, improving the thermal stability of the adsorbent. Different types of amines in the diamine adsorbents can cooperate with each other to enhance their CO_2 adsorption performance. 4) SO_2 in coal-fired flue gas will compete with CO_2 for the limited adsorption sites in the adsorbent, preferentially reacting chemically with the amine groups on the surface of the adsorbent, reducing the adsorption sites for CO_2 . Moreover, the generated sulfates will also block the pores, increasing the diffusion resistance of CO_2 and resulting in a decrease in the CO_2 adsorption performance of the adsorbent. An appropriate amount of water vapor can improve the utilization efficiency of amino groups and enhance the CO_2 adsorption performance of the adsorbent.

Keywords mesoporous material; amine; silicon-based amine adsorbents; CO_2 adsorption